

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6552201号
(P6552201)

(45) 発行日 令和1年7月31日(2019.7.31)

(24) 登録日 令和1年7月12日(2019.7.12)

(51) Int.Cl.	F 1
H01L 51/50	(2006.01)
C09K 11/06	(2006.01)
H05B 33/08	(2006.01)
H01L 27/32	(2006.01)
G09F 9/30	(2006.01)
HO5B	33/22
CO9K	11/06
HO5B	33/08
HO1L	27/32

請求項の数 14 (全 33 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2015-7532 (P2015-7532)
 (22) 出願日 平成27年1月19日 (2015.1.19)
 (65) 公開番号 特開2016-134470 (P2016-134470A)
 (43) 公開日 平成28年7月25日 (2016.7.25)
 審査請求日 平成29年12月20日 (2017.12.20)

(73) 特許権者 000001007
 キヤノン株式会社
 東京都大田区下丸子3丁目30番2号
 (74) 代理人 100110870
 弁理士 山口 芳広
 (74) 代理人 100096828
 弁理士 渡辺 敏介
 (72) 発明者 山田 直樹
 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キ
 ャノン株式会社内
 (72) 発明者 鎌谷 淳
 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キ
 ャノン株式会社内

最終頁に続く

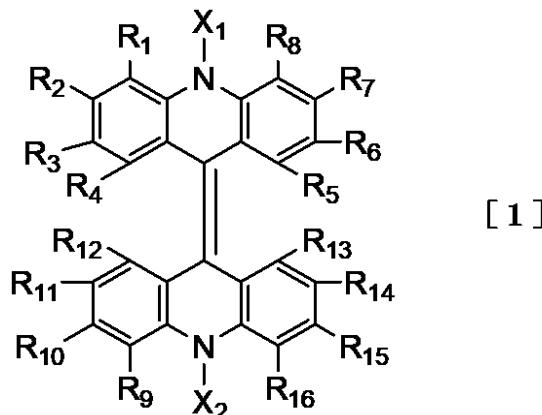
(54) 【発明の名称】有機発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に配置される有機化合物層と、を有し、
 前記有機化合物層が、有機機能層を有し、
 前記有機機能層が、下記一般式 [1] に示される有機化合物を有し、
 前記有機機能層が、前記陰極と発光層との間に配置される層であることを特徴とする、
 有機発光素子。

【化 1】



(一般式 [1] において、X₁及びX₂は、それぞれアリール基を表す。尚、当該アリール

基は、ハロゲン原子又はアルキル基をさらに有してもよい。R₁乃至R₁₆は、それぞれ水素原子又はハロゲン原子、アルキル基及びアリール基から選択される置換基を表す。尚、R₁乃至R₁₆のいずれかがアリール基である場合、当該アリール基はハロゲン原子又はハロゲン原子を有してもよいアルキル基をさらに有してもよい。)

【請求項2】

前記X₁及びX₂がフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基のいずれかであることを特徴とする、請求項1に記載の有機発光素子。

【請求項3】

前記X₁及び前記X₂が、2個以上のベンゼン環から構成されるアリール基であることを特徴とする、請求項1に記載の有機発光素子。

10

【請求項4】

前記X₁又は前記X₂が、フッ素原子を有するアリール基であることを特徴とする、請求項1に記載の有機発光素子。

【請求項5】

前記有機機能層が、前記陰極に接する層であることを特徴とする、請求項1乃至4のいずれか一項に記載の有機発光素子。

【請求項6】

前記有機機能層が、第一の有機化合物と、第二の有機化合物と、を有し、

前記第一の有機化合物が、前記一般式[1]に示される有機化合物であり、

前記第二の有機化合物が、前記一般式[1]に示される有機化合物とは別種の有機化合物であることを特徴とする、請求項5に記載の有機発光素子。

20

【請求項7】

前記有機化合物層が、前記一般式[1]に示される有機化合物とは別種の有機化合物を含み、かつ前記有機機能層に前記発光層側で隣接する層をさらに有することを特徴とする、請求項5に記載の有機発光素子。

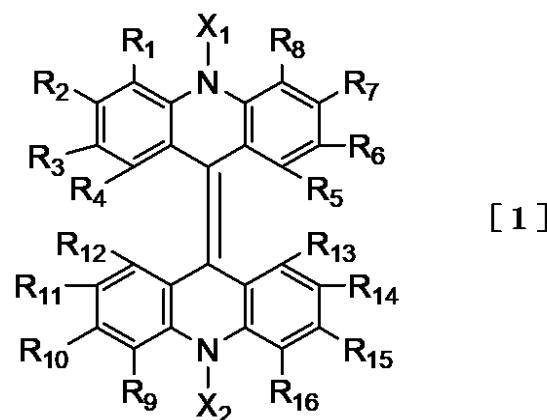
【請求項8】

陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に配置される有機化合物層と、を有し、前記有機化合物層が、有機機能層を有し、

前記有機機能層が、下記一般式[1]に示される有機化合物を有することを特徴とする、有機発光素子。

30

【化2】



40

(一般式[1]において、X₁及びX₂は、それぞれアリール基を表す。尚、当該アリール基は、ハロゲン原子又はアルキル基をさらに有してもよい。R₁乃至R₁₆は、それぞれ水素原子又はハロゲン原子、アルキル基及びアリール基から選択される置換基を表す。尚、R₁乃至R₁₆のいずれかがアリール基である場合、当該アリール基はハロゲン原子又はハロゲン原子を有してもよいアルキル基をさらに有してもよい。ただし、X₁、X₂、R₁乃至R₁₆のうち少なくとも一つはフッ素原子を有する基である。)

【請求項9】

複数の画素を有し、前記複数の画素の少なくともいずれかは、請求項1乃至8のいずれ

50

か一項に記載の有機発光素子と前記有機発光素子に接続されている能動素子とを有することを特徴とする、表示装置。

【請求項 10】

画像情報を入力する入力部と、画像を表示する表示部とを有し、前記表示部は請求項 9 に記載の表示装置であることを特徴とする、画像情報処理装置。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 8 のいずれか一項に記載の有機発光素子と前記有機発光素子に駆動電圧を供給するための A C / D C コンバーターとを有することを特徴とする、照明装置。

【請求項 12】

感光体と前記感光体の表面を帯電させる帯電部と、前記感光体を露光するための露光部と、前記感光体の表面に形成された静電潜像を現像するための現像器と、を有する画像形成装置であって、
10

前記露光部は、請求項 1 乃至 8 のいずれか一項に記載の有機発光素子を有することを特徴とする、画像形成装置。

【請求項 13】

感光体を露光する露光装置であって、

請求項 1 乃至 8 のいずれか一項に記載の有機発光素子を複数有し、

前記複数の有機発光素子が、列を形成して配置されていることを特徴とする、露光装置。
。

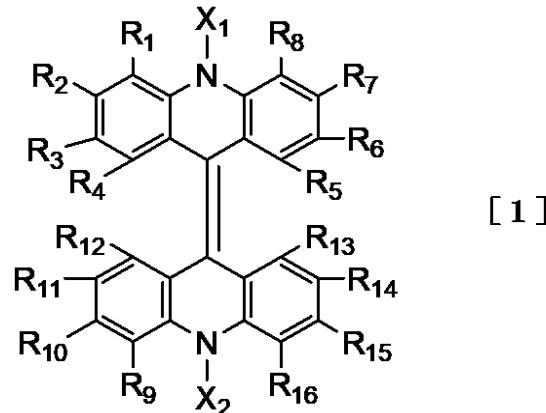
【請求項 14】

陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に配置される有機機能層と、を有し、

前記有機機能層が、下記一般式 [1] に示される有機化合物を有し、

前記有機機能層が、前記陰極に接する層であることを特徴とする、有機電界素子。
20

【化 3】



(一般式 [1] において、X₁及びX₂は、それぞれアリール基を表す。尚、当該アリール基は、ハロゲン原子又はアルキル基をさらに有してもよい。R₁乃至R₁₆は、それぞれ水素原子又はハロゲン原子、アルキル基及びアリール基から選択される置換基を表す。尚、R₁乃至R₁₆のいずれかがアリール基である場合、当該アリール基はハロゲン原子又はハロゲン原子を有してもよいアルキル基をさらに有してもよい。)
30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、有機発光素子に関する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

有機発光素子は、陽極と陰極と、これら両電極間に配置される有機化合物層とを有する素子である。有機発光素子は、各電極から注入させる正孔（ホール）及び電子が有機化合物層である発光層内で再結合することで励起子が生成し、励起子が基底状態に戻る際に光が放出される。有機発光素子の最近の進歩は著しく、駆動電圧が低く、多様な発光波長、
40

10

20

30

40

50

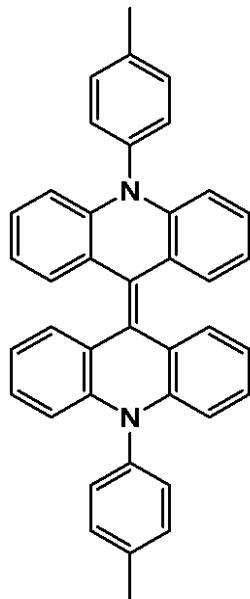
高速応答性、薄型、軽量の発光デバイス化が可能である。

【0003】

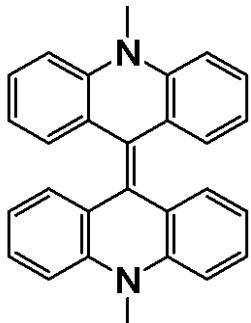
有機発光素子において、電子注入性の向上は素子の低電圧化という観点から重要な課題である。電子注入性の向上の手法としては、有機発光素子の構成材料、特に、電子注入材料としてアルカリ金属を用いる手法が挙げられるが、アルカリ金属は水溶性が高いため、有機発光素子の耐湿性が低くなるという問題がある。非特許文献1には、下記化合物a-1の合成法及びそれを用いたケミルミネッセンスについて開示されている。また非特許文献2には、下記化合物a-2を用いた溶液中の電荷移動に関する開示がある。

【0004】

【化1】



a-1



a-2

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0005】

【非特許文献1】Lodz. Towarz. Nauk: Wydzial III, Acta Chim. (1964), 9, 189-98.

【非特許文献2】Guangpuxue Yu Guangpu Fenxi Volume 18 Issue 6 Pages 669-672 1998

【非特許文献3】The Journal of Biological Chemistry., Vol. 277, No 7, P 5506 (2002)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、上述した課題を解決するためになされるものであり、その目的は、耐湿性が高く低電圧駆動で高効率かつ長寿命である有機発光素子を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の有機発光素子は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に配置される有機化合物層と、を有し、

前記有機化合物層が、有機機能層を有し、

前記有機機能層が、下記一般式[1]に示される有機化合物を有し、

前記有機機能層が、前記陰極と発光層との間に配置される層であることを特徴とする。

【0008】

10

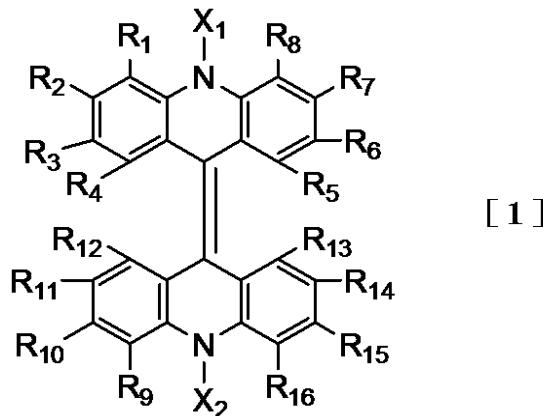
20

30

40

50

【化2】



【0009】

(一般式 [1]において、 X_1 及び X_2 は、それぞれアリール基を表す。尚、当該アリール基は、ハロゲン原子又はアルキル基をさらに有してもよい。 R_1 乃至 R_{16} は、それぞれ水素原子又はハロゲン原子、アルキル基及びアリール基から選択される置換基を表す。尚、 R_1 乃至 R_{16} のいずれかがアリール基である場合、当該アリール基はハロゲン原子又はハロゲン原子を有してもよいアルキル基をさらに有してもよい。)

【発明の効果】

【0010】

本発明によれば、耐湿性が高く低電圧駆動で高効率かつ長寿命である有機発光素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0011】

【図1】本発明の有機発光素子と、この有機発光素子に接続されている能動素子とを有する表示装置の一例を示す断面模式図である。

【図2】本発明に係る有機発光素子を有する画像形成装置の例を示す模式図である。

【図3】(a)及び(b)は、図2の画像形成装置を構成する露光光源の具体例を示す平面概略図であり、(c)は、図2の画像形成装置を構成する感光体の具体例を示す概略図である。

【図4】本発明に係る有機発光素子を有する照明装置の例を示す模式図である。

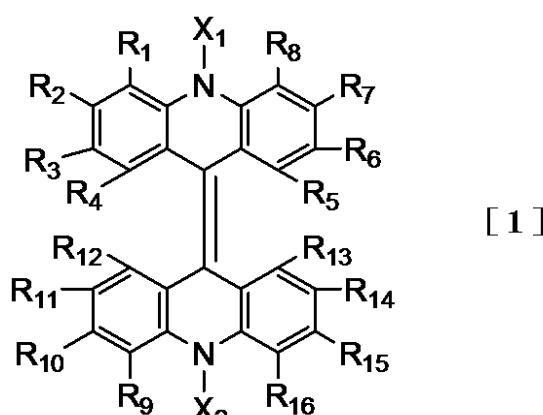
【発明を実施するための形態】

【0012】

本発明は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に配置される有機化合物層と、を有する有機発光素子に関する。本発明において、有機化合物層は、有機機能層を有し、この有機機能層が、下記一般式 [1] に示される有機化合物を有する。

【0013】

【化3】



【0014】

10

20

30

40

50

尚、一般式 [1] の化合物の詳細については、後述する。

【 0 0 1 5 】

【 有機発光素子 】

本発明の有機発光素子は、一対の電極である陽極と陰極と、これら電極の間に配置される有機化合物層とを有する。本発明の有機発光素子は、両電極から正孔と電子が供給され、発光機能を有する有機化合物が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【 0 0 1 6 】

本発明において、有機発光素子を構成する有機化合物層には、少なくとも一般式 [1] の化合物を含む有機機能層が含まれる。この有機機能層は、一般式 [1] の化合物の特性から、好ましくは、発光層と陰極との間に設けられる、いわば電子を注入輸送する役割を果たす層である。有機機能層は、より好ましくは、陰極に接する層、例えば、電子注入層である。また有機機能層は、陰極に接する層として設けてもよいが、本発明においては、有機機能層と陰極との間に有機化合物層を構成する層を介在させててもよい。

【 0 0 1 7 】

本発明の有機発光素子の具体的構成としては、例えば、以下のものが挙げられる。

(i) (基板 /) 陽極 / 発光層 / 電子注入層 / 陰極

(i i) (基板 /) 陽極 / 正孔輸送層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(i i i) (基板 /) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(i v) (基板 /) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(v) (基板 /) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / ブロッキング層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

【 0 0 1 8 】

ただし本発明において有機発光素子の具体的構成については、上記 5 種の態様に限定されるものではない。またこれら 5 種の態様は、いずれも基板に近い電極、即ち、基板側の電極が陽極であるが、本発明では、基板側の電極を陰極として、各層の順序が (i) 乃至 (v) のいずれかと逆の態様となっているものも本発明に実施態様に含まれる。

【 0 0 1 9 】

また (i) 乃至 (v) のいずれかにおいて示されている層のうち、正孔輸送層、発光層、ブロッキング層（正孔ブロッキング層）、電子輸送層及び電子注入層は、それぞれ単一の層であってもよいし複数の層からなる積層体であってもよい。

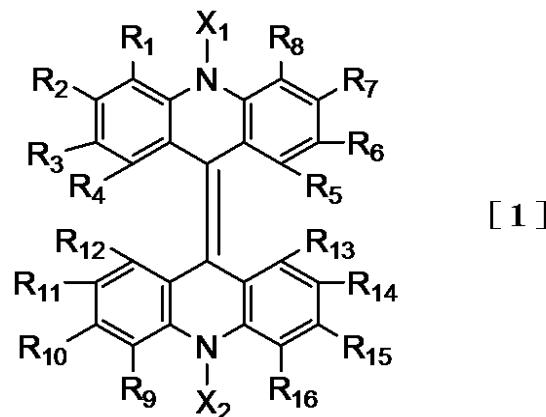
【 0 0 2 0 】

【 一般式 [1] の化合物 】

次に、有機機能層に含まれる下記一般式 [1] に示される化合物について説明する。

【 0 0 2 1 】

【 化 4 】



【 0 0 2 2 】

一般式 [1] において、 X_1 及び X_2 は、それぞれアリール基を表す。

【 0 0 2 3 】

10

20

30

40

50

X_1 及び X_2 で表されるアリール基として、例えば、フェニル基、ナフチル基、ペンタレニル基、インデニル基、アズレニル基、アントリル基、ピレニル基、インダセニル基、アセナフテニル基、フェナントリル基、フェナレニル基、フルオランテニル基、アセフェナントリル基、アセアントリル基、トリフェニレニル基、クリセニル基、ナフタセニル基、ペリレニル基、ペンタセニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

【0024】

これらアリール基の中でも、2個以上のベンゼン環から構成されるアリール基は、耐湿性が高い点で好ましい。2個以上のベンゼン環から構成されるアリール基として、具体的には、ナフチル基、ペンタレニル基、インデニル基、アズレニル基、アントリル基、ピレニル基、インダセニル基、アセナフテニル基、フェナントリル基、フェナレニル基、フルオランテニル基、アセフェナントリル基、アセアントリル基、トリフェニレニル基、クリセニル基、ナフタセニル基、ペリレニル基、ペンタセニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

【0025】

尚、 X_1 及び X_2 で表されるアリール基は、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子及びフッ素原子から選択されるハロゲン原子又はメチル基、エチル基、イソプロピル基、ノルマルプロピル基、セカンダリターシャリブチル基、ターシャリブチル基、ノルマルベンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基等から選択されるアルキル基をさらに有してもよい。

【0026】

一般式[1]において、 R_1 乃至 R_{16} は、それぞれ水素原子又はハロゲン原子、アルキル基及びアリール基から選択される置換基を表す。

【0027】

R_1 乃至 R_{16} で表されるハロゲン原子として、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子及びフッ素原子が挙げられる。

【0028】

R_1 乃至 R_{16} で表されるアルキル基として、例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ノルマルプロピル基、セカンダリターシャリブチル基、ターシャリブチル基、ノルマルベンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基等が挙げられる。本発明において、好ましくは、炭素数1乃至4のアルキル基、即ち、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ノルマルプロピル基、セカンダリターシャリブチル基及びターシャリブチル基から選択される置換基である。 R_1 乃至 R_{16} で表されるアルキル基が炭素数1乃至4のアルキル基である場合、熱分解等の安定性が高いからである。

【0029】

R_1 乃至 R_{16} で表されるアリール基として、例えば、フェニル基、ナフチル基、ペンタレニル基、インデニル基、アズレニル基、アントリル基、ピレニル基、インダセニル基、アセナフテニル基、フェナントリル基、フェナレニル基、フルオランテニル基、アセフェナントリル基、アセアントリル基、トリフェニレニル基、クリセニル基、ナフタセニル基、ペリレニル基、ペンタセニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。一般式[1]中の X_1 及び X_2 と同様に、 R_1 乃至 R_{16} で表されるアリール基として、好ましくは、2個以上のベンゼン環から構成されるアリール基である。

【0030】

尚、 R_1 乃至 R_{16} のいずれかがアリール基である場合、当該アリール基は、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子及びフッ素原子から選択されるハロゲン原子又は当該ハロゲン原子を有してもよいアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ノルマルプロピル基、セカンダリターシャリブチル基、ターシャリブチル基、ノルマルベンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基等のアルキル基にハロゲン原子が導入されてなる置換基）をさらに有してもよい。

【0031】

本発明は、特に、電子注入層に一般式[1]の化合物が含まれることで陰極からの電子

10

20

30

40

50

注入を促進させ、低電圧駆動が可能な有機発光素子を提供することができる。以下にその電子注入のメカニズムについて説明する。

【 0 0 3 2 】

一般式 [1] の化合物の基本骨格であるピアクリジニリデン骨格は、酸化電位が非常に低く（即ち、イオン化エネルギーが小さい）、非常に電子ドナー性が高い。それゆえ、電子注入層に含まれる電子アクセプター性化合物として機能する他の材料や隣接する電子輸送層材料もしくは、隣接する正孔ブロッキング層材料と相互作用し、電荷分離を生じると考えられる。これにより、陰極からの電子注入を促進し、有機発光素子の低電圧化に寄与する。

【 0 0 3 3 】

ただし、ピアクリニデン骨格を有する化合物の全てが有機発光素子の構成材料、具体的には、電子注入材料として用いることができるわけではない。一般式 [1] において、 X_1 及び X_2 がアリール基であることで、以下の化合物特有の物性が大きく向上するため、有機発光素子の特性を向上させることができると考えられる。

【 0 0 3 4 】

(1) 耐水性の向上

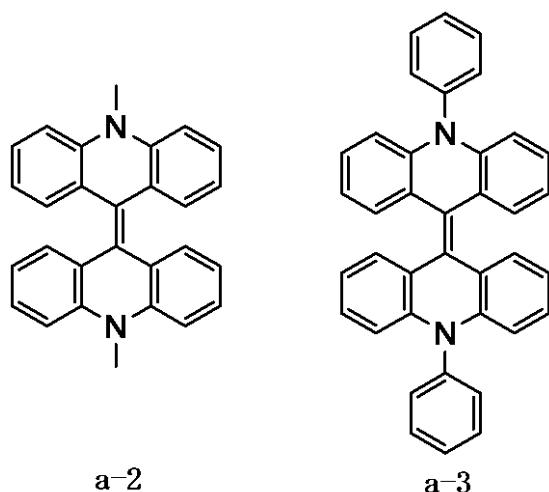
即ち、化合物の耐水溶性が向上することで、湿気による有機発光素子の劣化に対する耐性を向上させることができる。このため、耐湿性を保つための封止を簡易化することができる。

[0 0 3 5]

本発明の有機発光素子を構成する電子注入層は、フッ化リチウム、アルミリチウム、炭酸セシウム、リチウムキノリノール等のアルカリ金属を含む態様と異なり、吸湿性の高いアルカリ金属を含まない。このため、大気中の水分による吸湿による電子注入層の水による劣化が小さい。さらに、例えば、非特許文献 2 に開示のある化合物 a - 2 のように一般式 [1] 中の X_1 及び X_2 がアルキル基である化合物と、 X_1 及び X_2 がアリール基である化合物 a - 3 のような化合物と、を比較する。

【 0 0 3 6 】

【化 5】



〔 0 0 3 7 〕

このとき X_1 及び X_2 がアリール基である化合物の方が化合物自体の疎水性が高くなる。これにより化合物自体の耐水溶性がより向上する。また、アリール基の中でも、2個以上のベンゼン環で構成されるアリール基が X_1 及び X_2 のいずれかに導入されることにより、化合物自体の耐水性がさらに向上する。さらに、一般式 [1] の化合物において、式中の置換基 (X_1 、 X_2 、 R_1 乃至 R_{16}) のうち少なくとも一部がフッ素原子を有する置換基である場合、化合物自体の撥水性が向上し、耐水性がさらに向上する。

【 0 0 3 8 】

(2) 膜安定性の向上

即ち、長期にわたり安定なアモルファス膜を形成することができるため、有機発光素子を長時間駆動させても劣化しにくくなる。

【0039】

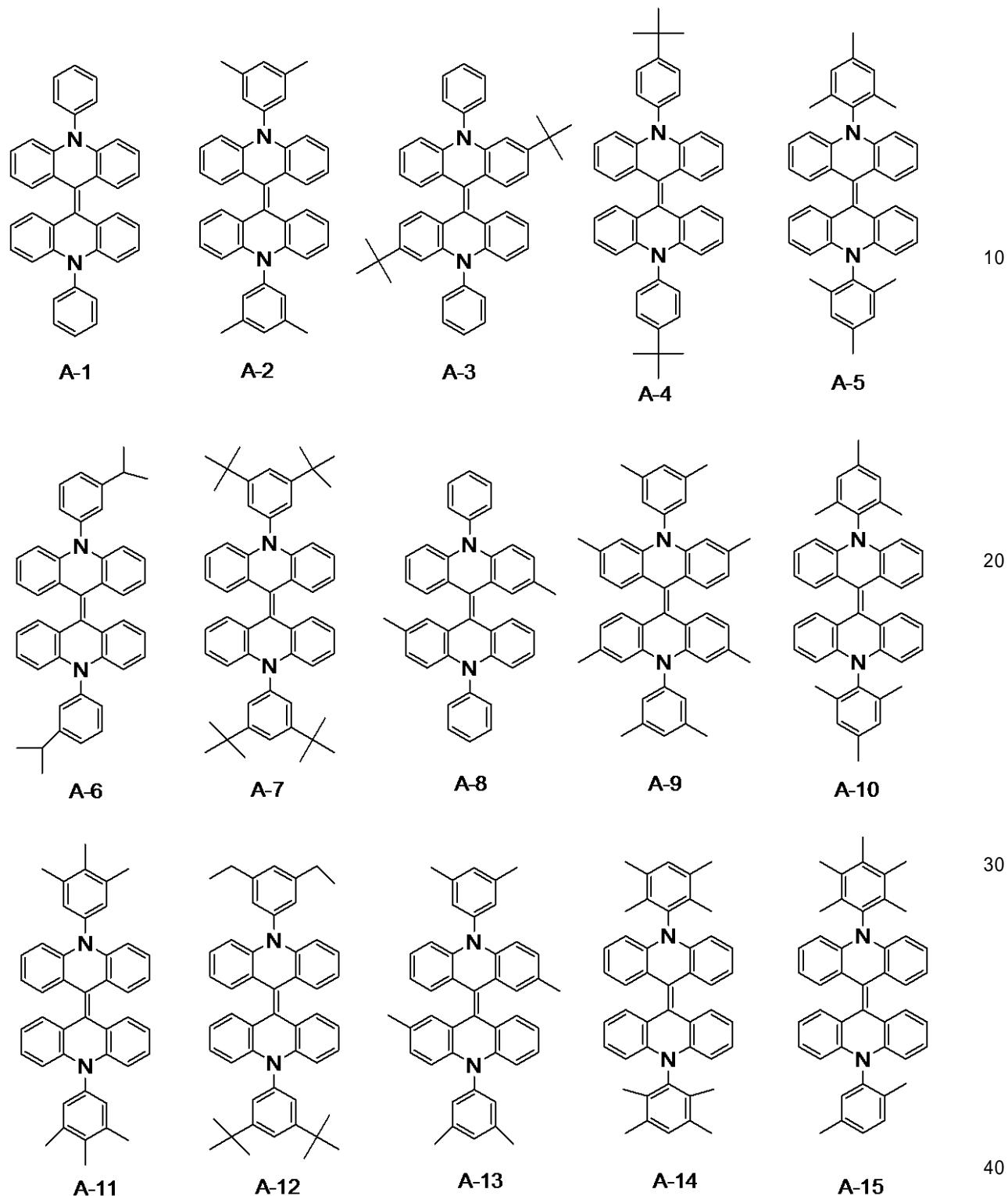
有機発光素子を構成する電子注入層は陰極と接するため、陰極から浸透してくる湿気により、有機化合物層の中でも化合物のアモルファス膜安定性が必要となる。このため、一般式[1]の化合物の中でも X_1 及び X_2 がアルキル基である化合物の場合、ガラス転移温度が低く、長期にわたり安定なアモルファス膜を形成することが困難であると考えられる。一方、本発明の有機発光素子に含まれる一般式[1]中の X_1 及び X_2 がアリール基である化合物の場合、ガラス転移温度が高く、長期にわたり安定なアモルファス膜を形成する。ところで、上記の化合物a-3は、一般式[1]中の X_1 及び X_2 がいずれもフェニル基であるが、ガラス転移温度は245¹⁰であり長期にわたり安定なアモルファス膜を形成し得る物性である。ここで X_1 及び X_2 が2個以上のベンゼン環で構成されるアリール基である場合、化合物自体のガラス転移温度はさらに高くなる。

【0040】

以下に、一般式[1]の化合物の具体例を列挙する。ただし、本発明は、これら具体例に限定されるものではない。

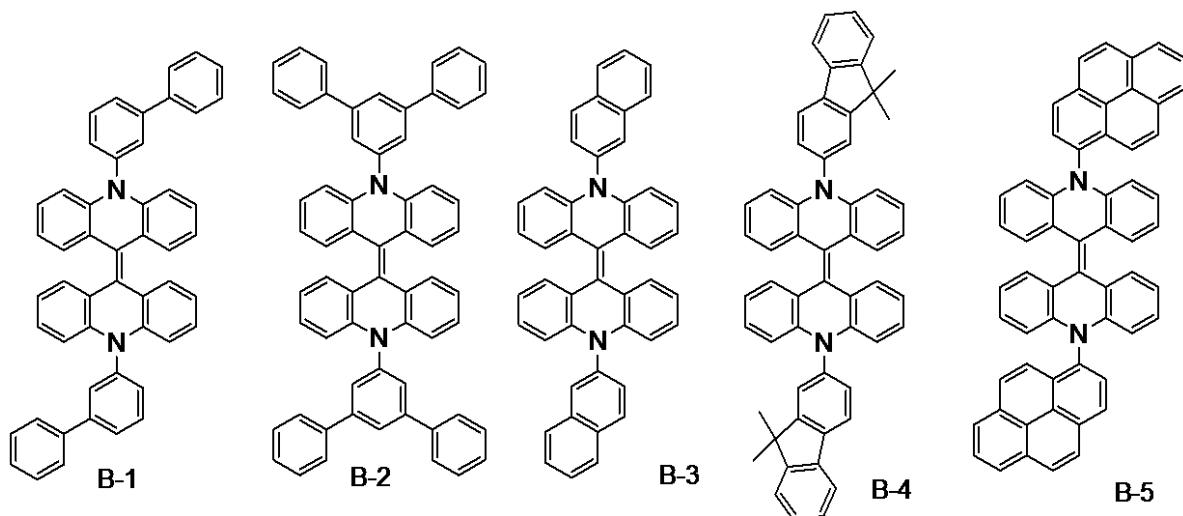
【0041】

【化6】

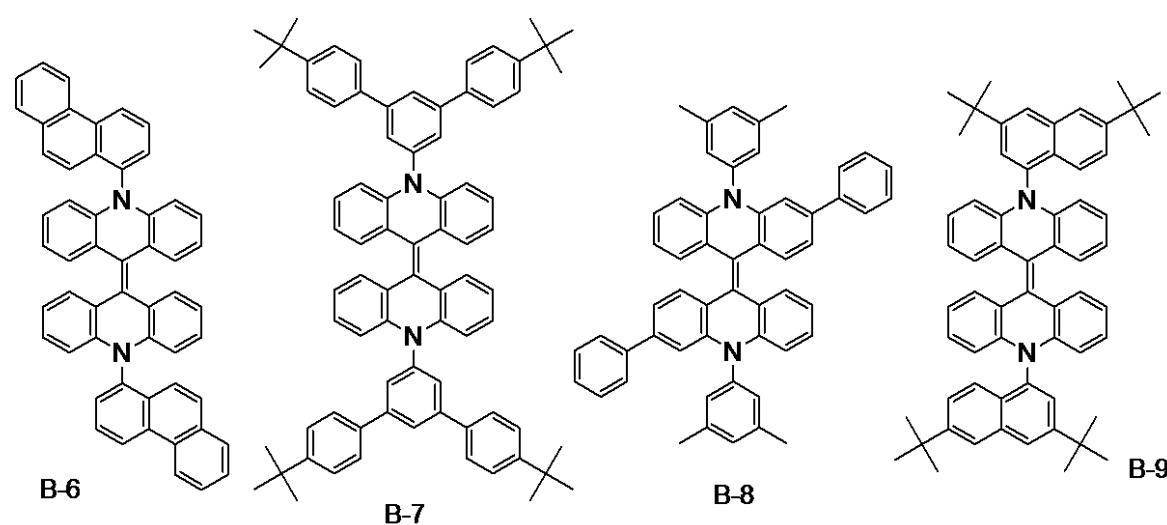


【0042】

【化7】



10

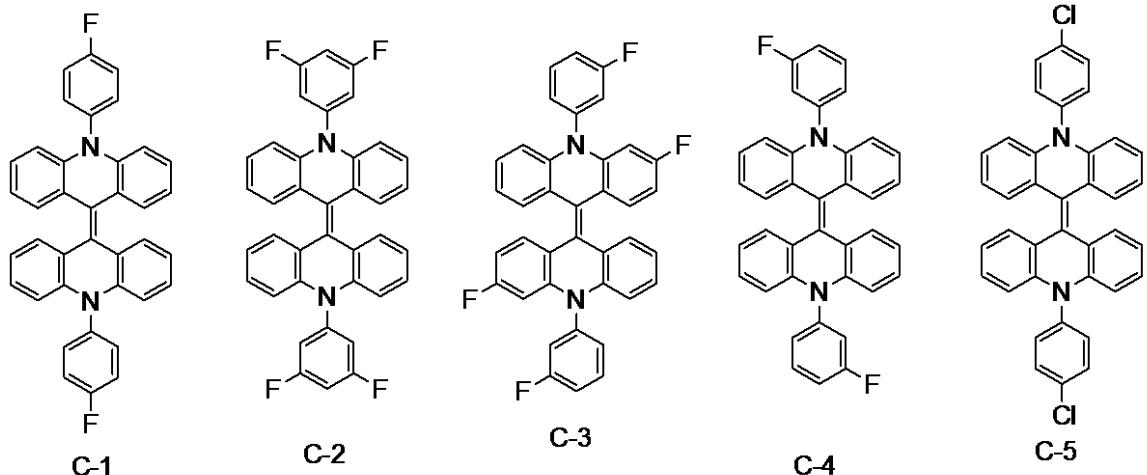


20

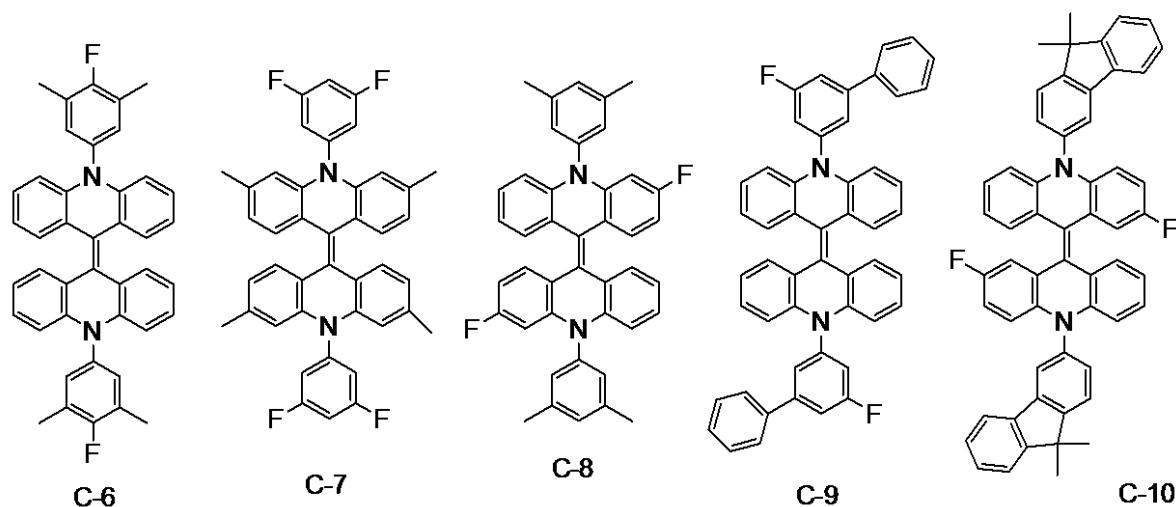
30

【0043】

【化 8】



10



20

〔 0 0 4 4 〕

30

ここで例示化合物 A - 1 は、一般式 [1] 中の X_1 及び X_2 がフェニル基である化合物である。例示化合物 A - 2 乃至 A - 15 は、例示化合物 A - 1 に含まれる複数のベンゼン環のいずれかにアルキル基が置換された化合物であるが、アルキル基による電子供与性により電子注入性が向上しやすい。またアルキル基の導入により昇華温度が低くなるため、素子作製時の蒸着温度を低下させることができる。

〔 0 0 4 5 〕

例示化合物 B - 1 乃至 B - 7、B - 9 は、一般式 [1] 中の X_1 及び X_2 が、フェニル基より大きい置換基、具体的には、2 個以上のベンゼン環から構成されるアリール基である化合物である。一般式 [1] 中の X_1 及び X_2 が 2 個以上のベンゼン環から構成されるアリール基であることにより、例示化合物 A - 1 よりもガラス転移温度が高くなり、成膜時の膜のアモルファスが向上するため、長期にわたり、安定なアモルファス膜を維持しやすい。また 2 個以上のベンゼン環から構成されるアリール基を導入することにより、化合物自体の疎水性が向上し、耐水性が向上する。尚、例示化合物 B - 4 及び B - 7 乃至 B - 9 は、化合物中にアルキル基がさらに導入されている化合物である。これら化合物は、化合物の電子注入性が向上し、昇華温度が低くなるため、素子作製時の蒸着温度を低下させることができる。

〔 0 0 4 6 〕

例示化合物 C - 1 乃至 C - 10 は、化合物中にハロゲン原子を含めた化合物である。ハロゲン原子自体が有する電子吸引性により、酸化に対する化合物の安定性・耐久性が高くなる。特に、化合物中にフッ素原子が含まれている化合物は、化合物の撥水性が向上し、

耐水性が向上する。また化合物中にフッ素原子を含ませると、化合物自体の昇華温度が低くなるため、素子作製時の蒸着温度を低下させることができる。

【0047】

[電子アクセプター性化合物]

本発明の有機発光素子を構成し一般式[1]の有機化合物を有する有機機能層が電子注入層、即ち、陰極と接する層である場合、この電子注入層を、少なくとも二種類の有機化合物を有する層としてもよい。具体的には、第一の有機化合物と、第二の有機化合物と、を有する層としてもよい。尚、ここでいう第一の有機化合物とは、一般式[1]の有機化合物であり、第二の有機化合物とは、一般式[1]の有機化合物とは別種の有機化合物である。またここでいう別種とは、主に、基本骨格が一般式[1]の有機化合物のものとは異なる有機化合物をいう。

【0048】

また、本発明においては、一般式[1]の有機化合物を有する有機機能層に発光層側で隣接し、一般式[1]の有機化合物とは別種の有機化合物を有する層をさらに設けてよい。

【0049】

ここで、有機機能層中又は有機機能層に隣接する層に含まれる一般式[1]の有機化合物とは別種の有機化合物として、例えば、電子アクセプター性化合物が挙げられる。また電子注入層が一般式[1]の化合物と電子アクセプター性化合物とを含む層である場合、両化合物の混合比は特に限定されない。

【0050】

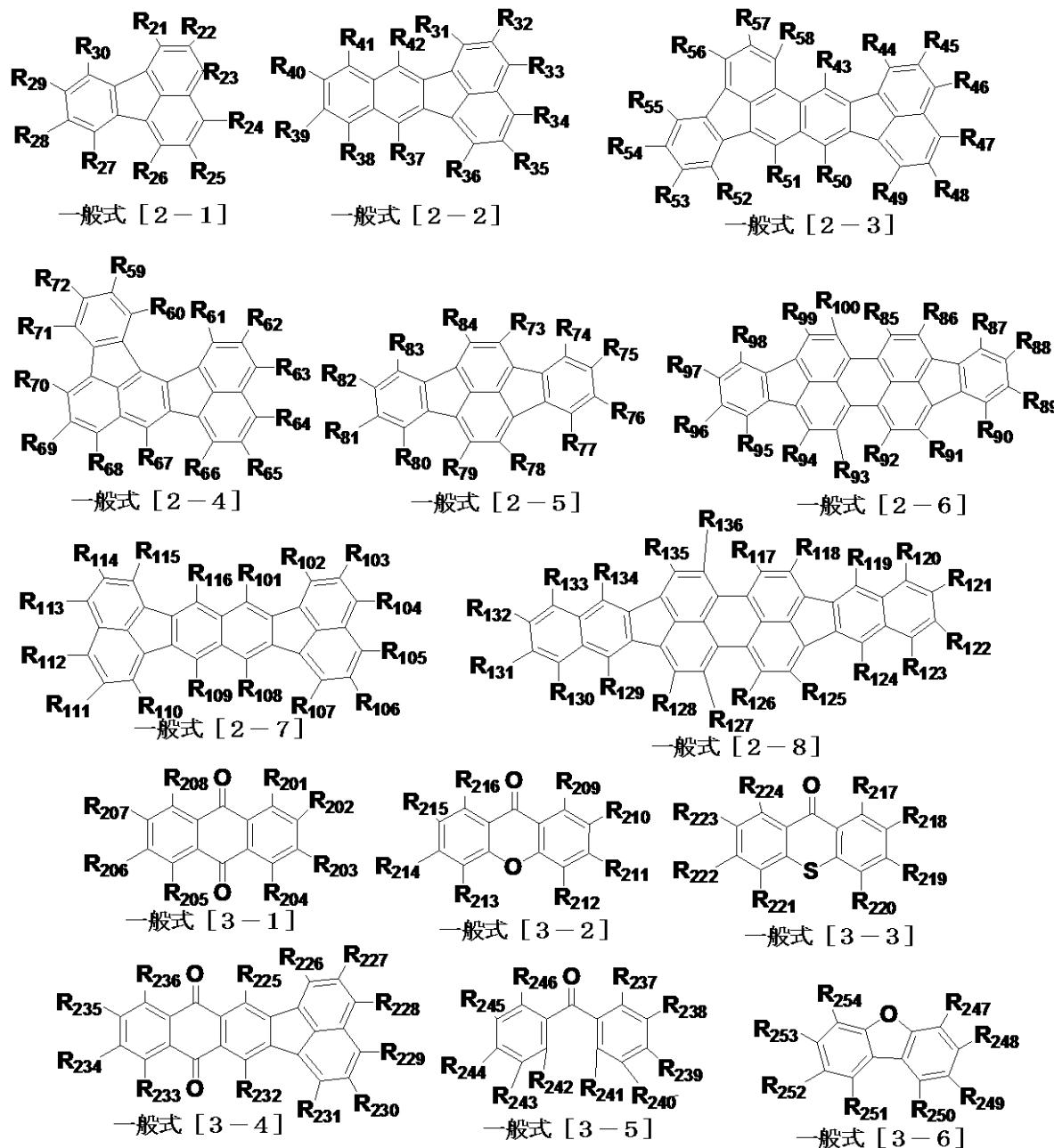
電子アクセプター性化合物として働く電子注入材料として、電子吸引性の特性を持つ骨格や置換基を有する化合物が好ましく用いられる。例えば、下記に示される一般式[2-1]乃至[2-8]、[3-1]乃至[3-6]及び[4-1]乃至[4-10]のいずれかに示される電子アクセプター性化合物が好ましく用いられる。

【0051】

10

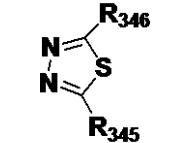
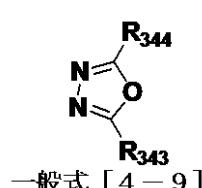
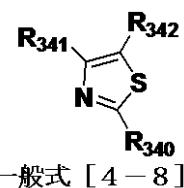
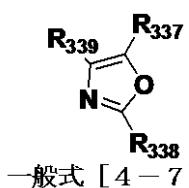
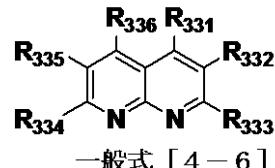
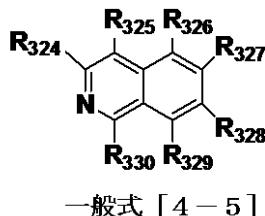
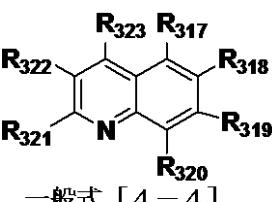
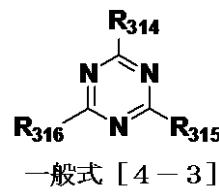
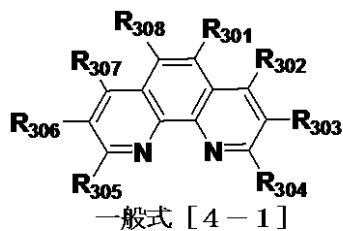
20

【化9】



【0052】

【化10】



【0053】

一般式 [2-1] 乃至 [2-8]、[3-1] 乃至 [3-6] 及び [4-1] 乃至 [4-10] において、R₂₁ 乃至 R₁₃₆ 及び R₂₀₁ 乃至 R₂₅₄、R₃₀₁ 乃至 R₃₄₆ は、それぞれ水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアルコキシ基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換のヘテロアリール基、ハロゲン原子、シアノ基、置換あるいは無置換のアミノ基又はニトロ基から選択される置換基を表す。

【0054】

それぞれ同じであっても異なっていてもよく、隣接置換基同士が互いに結合し環を形成してもよい。

【0055】

R₂₁ 乃至 R₁₃₆ 及び R₂₀₁ 乃至 R₂₅₄ 及び R₃₀₁ 乃至 R₃₄₆ で表されるアルキル基として、例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ノルマルプロピル基、セカンダリターシヤリブチル基、ターシャリブチル基、ノルマルベンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基等が挙げられる。

【0056】

R₂₁ 乃至 R₁₃₆ 及び R₂₀₁ 乃至 R₂₅₄ 及び R₃₀₁ 乃至 R₃₄₆ で表されるアルコキシ基として、メトキシル基、エトキシル基、プロポキシル基、フェノキシル基等が挙げられる。

【0057】

R₂₁ 乃至 R₁₃₆ 及び R₂₀₁ 乃至 R₂₅₄ 及び R₃₀₁ 乃至 R₃₄₆ で表されるアリール基として、例えば、フェニル基、ナフチル基、ペンタレニル基、インデニル基、アズレニル基、アントリル基、ピレニル基、インダセニル基、アセナフテニル基、フェナントリル基、フェナレニル基、フルオランテニル基、アセフェナントリル基、アセアントリル基、トリフェニレニル基、クリセニル基、ナフタセニル基、ベリレニル基、ペンタセニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

【0058】

R₂₁ 乃至 R₁₃₆ 及び R₂₀₁ 乃至 R₂₅₄ 及び R₃₀₁ 乃至 R₃₄₆ で表されるヘテロアリール基は、例えば、ピリジニル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、チエニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、トリアゾリル基等が挙げられる。

【0059】

R₂₁ 乃至 R₁₃₆ 及び R₂₀₁ 乃至 R₂₅₄ 及び R₃₀₁ 乃至 R₃₄₆ で表されるハロゲン原子として

10

20

30

40

50

は、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

【0060】

R_{21} 乃至 R_{136} 及び R_{201} 乃至 R_{254} 及び R_{301} 乃至 R_{346} で表されるアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジベンジルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジターシャルブチルアミノ基、ジアニソリルアミノ基、カルバゾイル基等が挙げられる。

【0061】

上記アルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基及びアミノ基が有してもよい置換基として、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、ピレニル基、アントリル基、フルオレニル基等のアリール基、チエニル基、ピロリル基、ピリジル基等のヘテロアリール基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジベンジルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジアニソリルアミノ基等のアミノ基、メトキシル基、エトキシル基、プロポキシル基、フェノキシル基等のアルコキシル基、シアノ基、ニトロ基、フッ素、塩素等のハロゲン原子等が挙げられる。

10

【0062】

列挙された電子アクセプター性化合物の中でも、一般式 [2-1] 乃至 [2-8] のように、母骨格が炭化水素のみからなる化合物は、キャリア移動度が速く、有機発光素子の駆動電圧を下げるため好ましい。

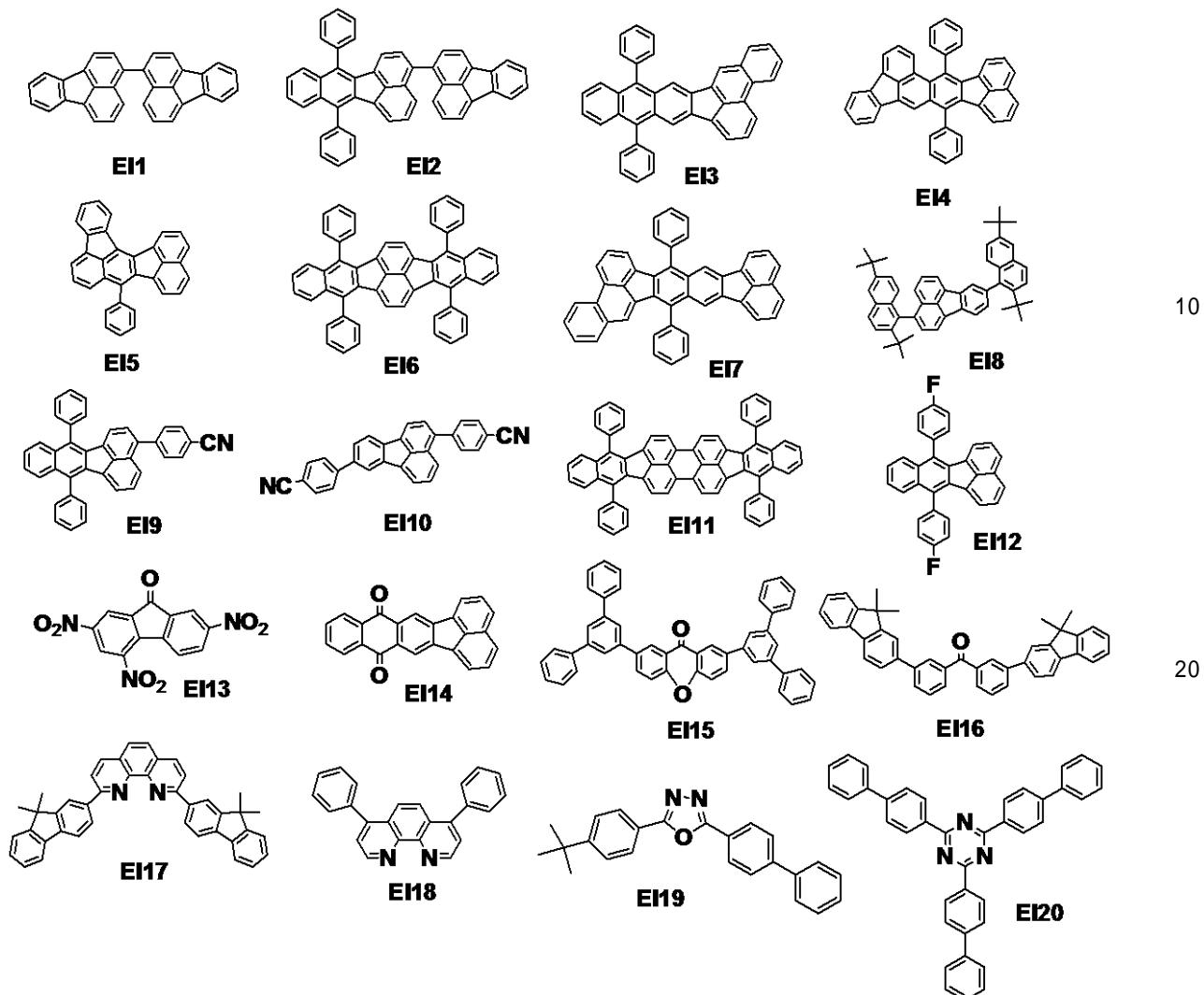
20

【0063】

以下に、電子アクセプター性化合物の具体例を列挙する。ただし、本発明はもちろんこれら化合物に限定されるものではない。

【0064】

【化11】



【0065】

[有機発光素子の他の構成材料]

本発明の有機発光素子において、素子に含まれる構成材料として、上述した一般式[1]の化合物及び電子アクセプター性化合物の他に、公知の化合物を使用することができる。以下にこれらの化合物例を挙げる。

【0066】

本発明において、電子輸送層又は正孔ブロッキング層の構成材料としては、陰極から注入された電子を発光層へ輸送することができる材料から任意に選ぶことができ、正孔輸送性材料の正孔移動度とのバランス等を考慮して選択される。電子輸送性能を有する材料としては、オキサジアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、ピラジン誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、フェナントロリン誘導体、有機アルミニウム錯体、縮環化合物（例えばフルオレン誘導体、ナフタレン誘導体、クリセン誘導体、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、ベンゾフルオランテン誘導体、ペリレン誘導体等）が挙げられる。尚、上記の電子輸送性材料は、正孔ブロッキング層の構成材料としても好適に使用されるため、上記電子輸送材料を用いて電子輸送層及び正孔ブロッキング層をそれぞれ設けてもよい。

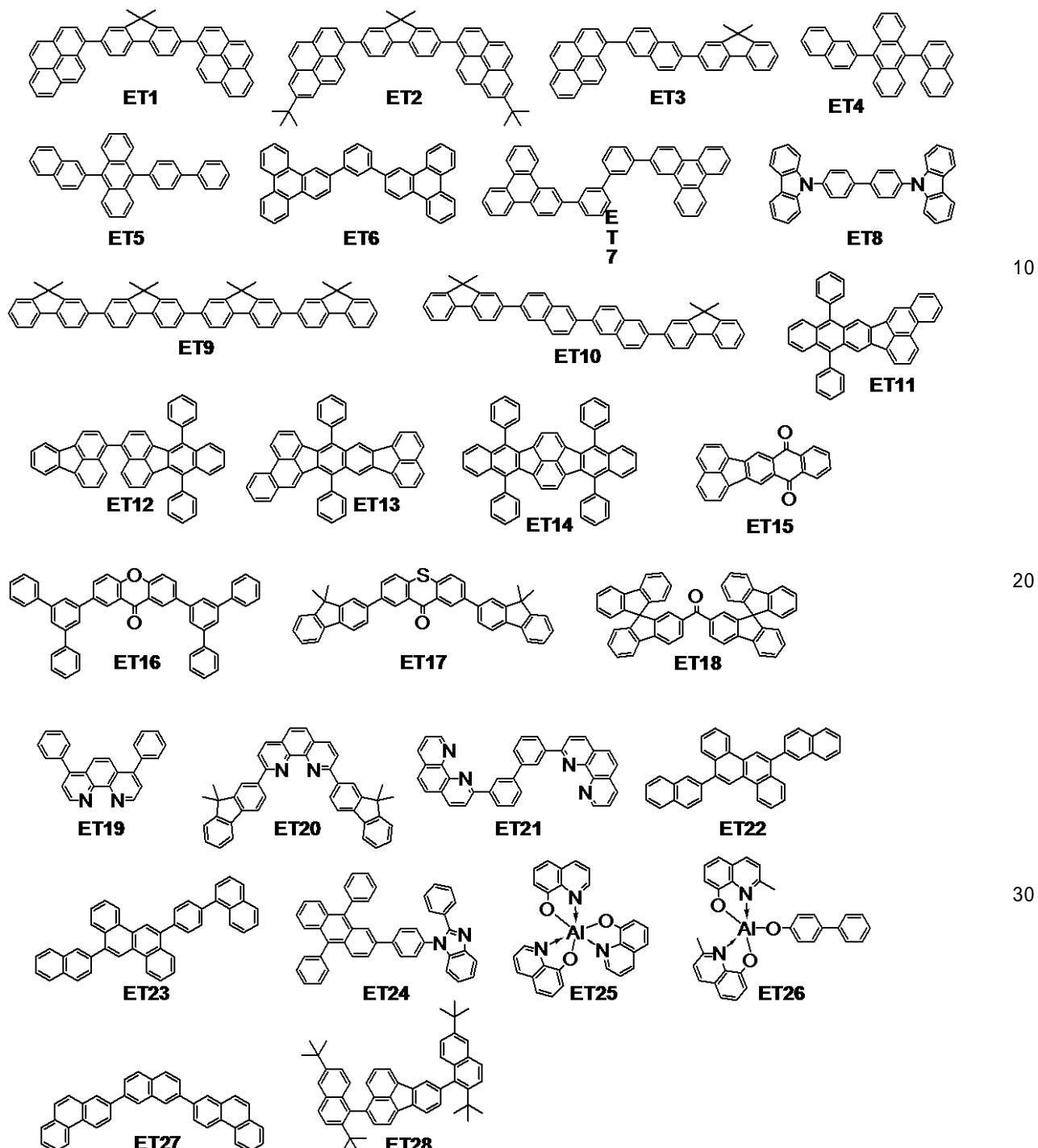
【0067】

以下に、電子輸送性材料として用いられる化合物の具体例を示すが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0068】

40

【化12】



【0069】

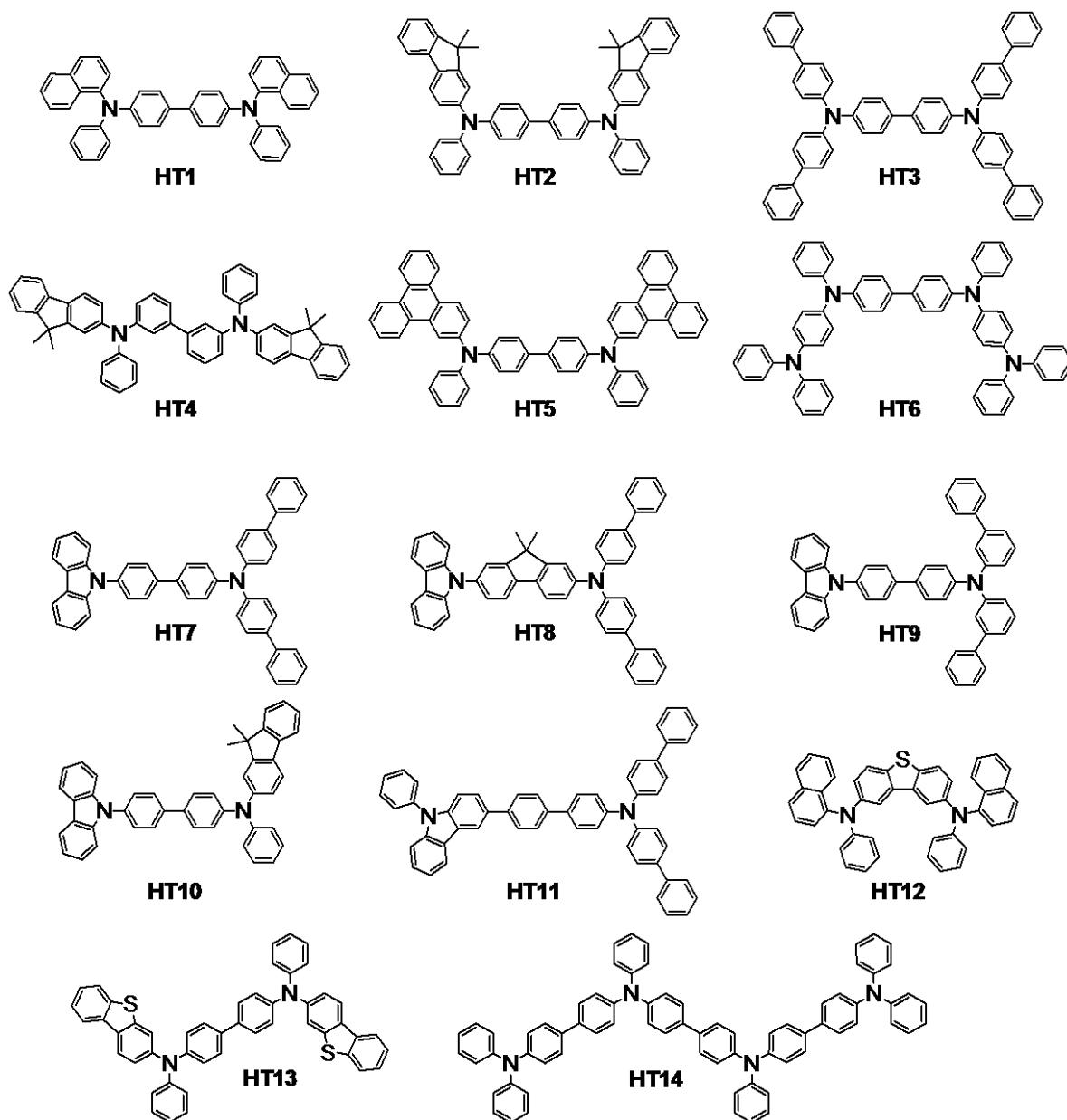
正孔注入輸送性材料としては、陽極からの正孔の注入を容易にし、かつ注入された正孔を発光層へ輸送できるように正孔移動度が高い材料が好ましい。また有機発光素子中において結晶化等の膜質の劣化を防ぐために、ガラス転移点温度が高い材料が好ましい。正孔注入輸送性能を有する低分子及び高分子系材料としては、トリアリールアミン誘導体、アリールカルバゾール誘導体、フェニレンジアミン誘導体、スチルベン誘導体、フタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、ポリ(ビニルカルバゾール)、ポリ(チオフェン)、その他導電性高分子が挙げられる。さらに上記の正孔注入輸送性材料は、電子阻止層にも好適に使用される。

【0070】

以下に、正孔注入輸送性材料として用いられる化合物の具体例を示すが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0071】

【化13】



【0072】

主に発光機能に関わる発光材料としては、縮環化合物（例えばフルオレン誘導体、ナフタレン誘導体、ピレン誘導体、ペリレン誘導体、テトラセン誘導体、アントラセン誘導体、ルブレン等）、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、スチルベン誘導体、トリス（8-キノリノラート）アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、イリジウム錯体、白金錯体、レニウム錯体、銅錯体、ユーロピウム錯体、ルテニウム錯体、及びポリ（フェニレンビニレン）誘導体、ポリ（フルオレン）誘導体、ポリ（フェニレン）誘導体等の高分子誘導体が挙げられる。

【0073】

以下に、発光材料として用いられる化合物の具体例を示すが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0074】

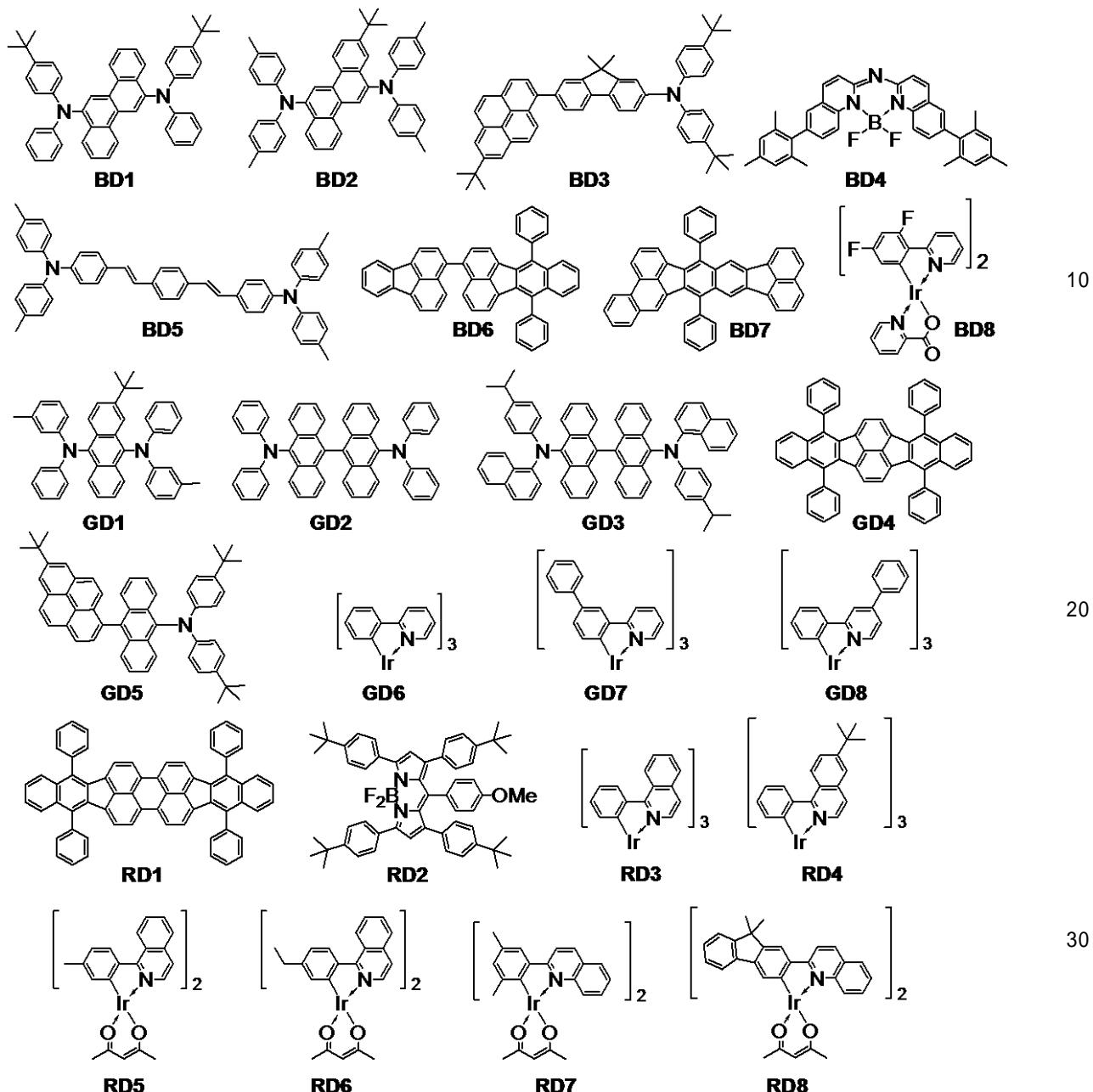
10

20

30

40

【化14】



【0075】

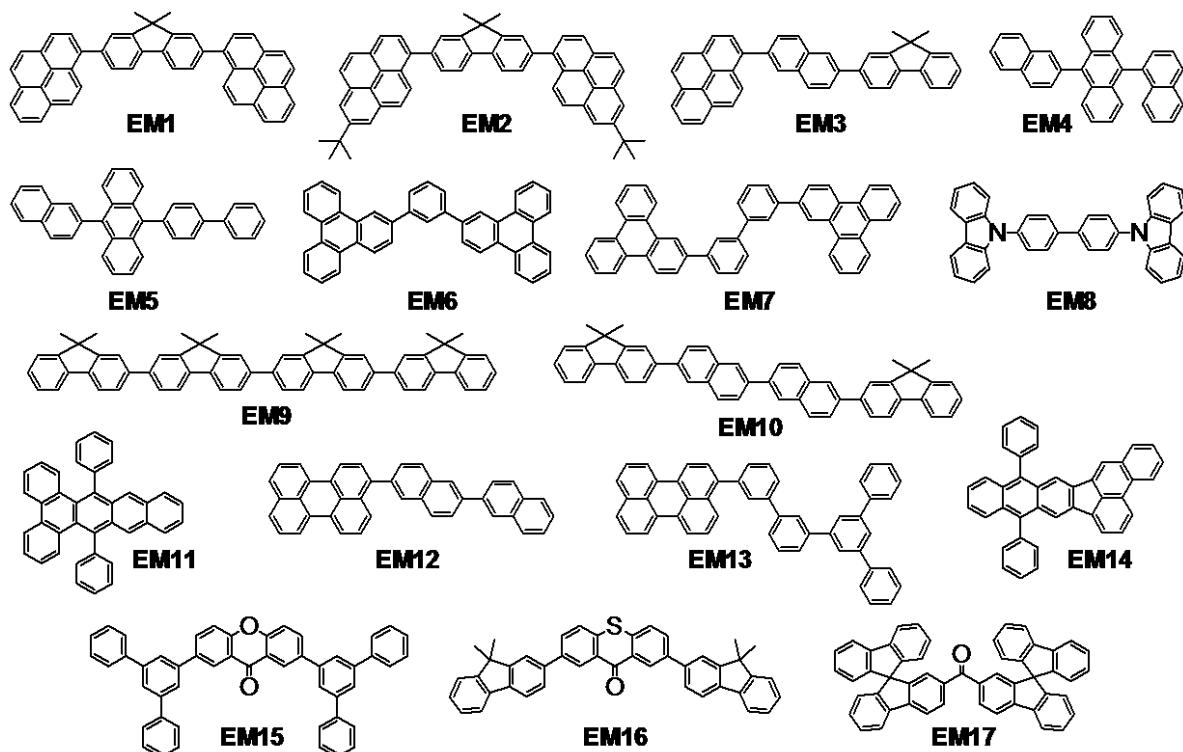
発光層に含まれる発光層ホストあるいは発光アシスト材料としては、芳香族炭化水素化合物もしくはその誘導体の他、カルバゾール誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、有機ベリリウム錯体等が挙げられる。

【0076】

以下に、発光層に含まれる発光層ホストあるいは発光アシスト材料として用いられる化合物の具体例を示すが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0077】

【化15】



10

20

【0078】

陽極の構成材料としては仕事関数がなるべく大きなものがよい。例えば、金、白金、銀、銅、ニッケル、パラジウム、コバルト、セレン、バナジウム、タンゲステン等の金属単体あるいはこれらを組み合わせた合金、酸化錫、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)、酸化亜鉛インジウム等の金属酸化物が使用できる。またポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン等の導電性ポリマーも使用できる。

【0079】

これらの電極物質は一種類を単独で使用してもよいし、二種類以上を併用して使用してもよい。また、陽極は一層で構成されていてもよく、複数の層で構成されていてもよい。

30

【0080】

一方、陰極の構成材料としては仕事関数の小さなものがよいが、これらに限定されるものではない。例えば、リチウム等のアルカリ金属、カルシウム等のアルカリ土類金属、アルミニウム、チタニウム、マンガン、銀、鉛、クロム、金等の金属単体が挙げられる。あるいはこれら金属単体を組み合わせた合金も使用することができる。例えばマグネシウム-銀、アルミニウム-リチウム、アルミニウム-マグネシウム等が使用できる。酸化錫インジウム(ITO)等の金属酸化物の利用も可能である。これらの電極物質は一種類を単独で使用してもよいし、二種類以上を併用して使用してもよい。また陰極は一層構成でもよく、多層構成でもよい。

【0081】

本発明において、有機発光素子の光取り出し方向に関しては、ボトムエミッション構成(基板側から光を取り出す構成)であってもよいし、トップエミッション構成(基板の反対側から光を取り出す構成)であってもよい。ボトムエミッション構成の場合、基板側に近い電極である第一電極は光透過性電極又は半透過性電極となる一方で、基板とは反対側にある第二電極は光反射性電極となる。一方、トップエミッション構成の場合、基板側に近い電極である第一電極は光反射性電極となる一方で、基板とは反対側にある第二電極は光透過性電極又は半透過性電極となる。光反射性電極としては、金属導電層の厚膜(80nm以上600nm以下)を用いることができる。また、半透過性電極としては、膜厚が15nm乃至35nmである金属導電層の薄膜を用いることができる。

【0082】

40

50

本発明の有機発光素子は、酸素や水分等の接触を抑制する目的で封止を行うことが好ましい。本発明の有機発光素子を封止する手段として、例えば、有機発光素子の上に封止層を設ける方法が挙げられる。有機発光素子を封止するための封止層の構成材料としては、 SiO_2 、 SiN 、 SiON 等の無機酸化物、無機窒化物、無機窒化酸化物、フッ素樹脂、ポリパラキシレン、ポリエチレン、シリコーン樹脂、ポリスチレン樹脂等の高分子化合物、光硬化性樹脂等の材料が挙げられる。また、第二電極の上に、ALD（原子層堆積法）で形成された部材を封止層とすることができる。

【0083】

また、第二電極上に、光学干渉層等の有機膜層を形成することもできる。

【0084】

本発明の有機発光素子を構成する有機化合物層（正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、ブロッキング層、電子注入層等）は、以下に示す方法により形成される。

【0085】

本発明の有機発光素子を構成する有機化合物層は、真空蒸着法、イオン化蒸着法、スパッタリング、プラズマ等のドライプロセスを用いることができる。またドライプロセスに代えて、適当な溶媒に溶解させて公知の塗布法（例えば、スピンドルコーティング、ディッピング、キャスト法、LB法、インクジェット法等）により層を形成するウェットプロセスを用いることもできる。

【0086】

ここで真空蒸着法や溶液塗布法等によって層を形成すると、結晶化等が起こりにくく経時安定性に優れる。また塗布法で成膜する場合は、適当なバインダー樹脂と組み合わせて膜を形成することもできる。

【0087】

上記バインダー樹脂としては、ポリビニルカルバゾール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ABS樹脂、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、尿素樹脂等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0088】

また、これらバインダー樹脂は、ホモポリマー又は共重合体として一種類を単独で使用してもよいし、二種類以上を混合して使用してもよい。さらに必要に応じて、公知の可塑剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤等の添加剤を併用してもよい。

【0089】

〔有機発光素子の用途〕

本発明の有機発光素子は、表示装置や照明装置の構成部材として用いることができる。他にも、電子写真方式の画像形成装置の露光光源や液晶表示装置のバックライト、白色光源にカラーフィルターを有する発光装置等の用途がある。カラーフィルターは例えば赤、緑、青の3つの色が透過するフィルターが挙げられる。

【0090】

本発明の表示装置は、本発明の有機発光素子を表示部に有する。尚、この表示部は複数の画素を有する。

【0091】

そしてこの画素は、本発明の有機発光素子と、発光輝度を制御するための能動素子（スイッチング素子）又は增幅素子の一例であるトランジスタとを有し、この有機発光素子の陽極又は陰極とトランジスタのドレイン電極又はソース電極とが電気接続されている。ここで表示装置は、PCT等の画像表示装置として用いることができる。上記トランジスタとして、例えば、TFT素子が挙げられ、このTFT素子は、例えば、基板の絶縁性表面に設けられている。またこのTFT素子は、透明酸化物半導体からなる電極を有するのが好ましい。

【0092】

10

20

30

40

50

表示装置は、エリア C C D、リニア C C D、メモリーカード等からの画像情報を入力する画像入力部を有し、入力された画像を表示部に表示する画像情報処理装置でもよい。

【 0 0 9 3 】

また、撮像装置やインクジェットプリンタが有する表示部は、タッチパネル機能を有していてもよい。このタッチパネル機能の駆動方式は特に限定されない。

【 0 0 9 4 】

また表示装置はマルチファンクションプリンタの表示部に用いられてもよい。

【 0 0 9 5 】

照明装置は例えば室内を照明する装置である。照明装置は白色（色温度が 4200K）、昼白色（色温度が 5000K）、その他青から赤のいずれの色を発光するものであってもよい。

10

【 0 0 9 6 】

本発明の照明装置は、本発明の有機発光素子と、この有機発光素子と接続し有機発光素子に駆動電圧を供給する A C / D C コンバーター（交流電圧を直流電圧に変換する回路）とを有している。尚、この照明装置は、カラーフィルターをさらに有してもよい。

11

【 0 0 9 7 】

本発明の画像形成装置は、感光体とこの感光体の表面を帯電させる帯電部と、感光体を露光して静電潜像を形成するための露光部と、感光体の表面に形成された静電潜像を現像するための現像器とを有する画像形成装置である。ここで画像形成装置に備える露光手段、例えば、露光器は、本発明の有機発光素子を含んでいる。

20

【 0 0 9 8 】

また本発明の有機発光素子は、感光体を露光するための露光器の構成部材（発光部材）として使用することができる。本発明の有機発光素子を有する露光器は、例えば、本発明の有機発光素子を所定の方向に沿って列を形成して配置されている露光装置がある。

【 0 0 9 9 】

次に、図面を参照しながら本発明の表示装置について説明する。図 1 は、有機発光素子とこの有機発光素子に接続されるスイッチング素子（TFT 素子）とを有する表示装置の例を示す断面模式図である。尚、図 1 の表示装置 1 を構成する有機発光素子として、本発明の有機発光素子が用いられている。

【 0 1 0 0 】

30

図 1 の表示装置 1 は、ガラス等の基板 11 とその上部にスイッチング素子となる TFT 素子 18 又は有機化合物層を保護するための防湿膜 12 が設けられている。また符号 13 は金属のゲート電極 13 である。符号 14 はゲート絶縁膜 14 であり、15 は半導体層である。

【 0 1 0 1 】

TFT 素子 18 は、半導体層 15 とドレイン電極 16 とソース電極 17 とを有している。TFT 素子 18 の上部には絶縁膜 19 が設けられている。コンタクトホール 20 を介して有機発光素子を構成する陽極 21 とソース電極 17 とが接続されている。

【 0 1 0 2 】

尚、有機発光素子に含まれる電極（陽極、陰極）と TFT に含まれる電極（ソース電極、ドレイン電極）との電気接続の方式は、図 1 に示される態様に限られるものではない。つまり陽極又は陰極のうちいずれか一方と TFT 素子ソース電極又はドレイン電極のいずれか一方とが電気接続されればよい。

40

【 0 1 0 3 】

図 1 の表示装置 1 では多層の有機化合物層を 1 つの層の如く図示をしているが、有機化合物層 22 は、複数層であってよい。陰極 23 の上には有機発光素子の劣化を抑制するための第一の保護層 24 や第二の保護層 25 が設けられている。

【 0 1 0 4 】

図 1 の表示装置 1 が白色を発する表示装置の場合、図 1 中の有機化合物層 22 に含まれる発光層は、赤色発光材料、緑色発光材料及び青色発光材料を混合してなる層としてもよ

50

い。また赤色発光材料からなる層、緑色発光材料からなる層、青色発光材料からなる層をそれぞれ積層させてなる積層型の発光層としてもよい。さらに別法として、赤色発光材料からなる層、緑色発光材料からなる層、青色発光材料からなる層を横並びにするなりして一の発光層の中にドメインを形成した態様であってもよい。

【0105】

図1の表示装置1ではスイッチング素子としてトランジスタを使用しているが、これに代えてMIM素子をスイッチング素子として用いてもよい。

【0106】

また図1の表示装置1に使用されるトランジスタは、単結晶シリコンウエハを用いたトランジスタに限らず、基板の絶縁性表面上に活性層を有する薄膜トランジスタでもよい。活性層として単結晶シリコンを用いた薄膜トランジスタ、活性層としてアモルファスシリコンや微結晶シリコン等の非単結晶シリコンを用いた薄膜トランジスタ、活性層としてインジウム亜鉛酸化物やインジウムガリウム亜鉛酸化物等の非単結晶酸化物半導体を用いた薄膜トランジスタ、活性層として有機膜を用いた有機トランジスタであってもよい。尚、薄膜トランジスタはTFT素子とも呼ばれる。

10

【0107】

本実施形態に係るスイッチング素子は、そのチャネル部に酸化物半導体を有していてもよい。

【0108】

このスイッチング素子は酸化物半導体部がアモルファスでも結晶でもあるいは両者の混在でもよい。結晶は単結晶、微結晶、あるいはC軸等の特定軸が配向している結晶のいずれか、あるいは少なくともいずれか2種の混合でもよい。

20

このようなスイッチング素子を有する有機発光素子は、それぞれの有機発光素子が画素として設けられる画像表示装置に用いられてもよく、あるいは照明装置、レーザービームプリンタ、複写機等の電子写真方式の画像形成装置の感光体を露光する露光部として用いられてもよい。

【0109】

図1の表示装置1に含まれるトランジスタは、Si基板等の基板内に形成されていてもよい。ここで基板内に形成されるとは、Si基板等の基板自体を加工してトランジスタを作製することを意味する。つまり、基板内にトランジスタを有することは、基板とトランジスタとが一体に形成されていると見ることもできる。

30

【0110】

基板内にトランジスタを設けるかどうかについては、精細度によって選択される。例えば1インチでQVGA程度の精細度の場合はSi基板内に有機発光素子を設けることが好みしい。

【0111】

以上の説明の通り、本発明の有機発光素子を用いた表示装置を駆動することにより、良好な画質で、長時間安定な表示が可能になる。

【0112】

次に、本発明の有機発光素子の他の用途について説明する。図2は、本発明に係る有機発光素子を有する画像形成装置の例を示す模式図である。図2の画像形成装置26は、感光体27と、露光光源28と、現像器30と、帯電部31と、転写器32と、搬送ローラー33と、定着器33と、を有している。

40

【0113】

図2の画像形成装置26は、露光光源28から感光体27へ向けて光29が照射され、感光体27の表面に静電潜像が形成される。図2の画像形成装置26において、露光光源28は、本発明に係る有機発光素子を複数有している。また図2の画像形成装置26において、現像器30は、トナー等を有している。図2の画像形成装置26において、帯電部31は、感光体27を帯電させるために設けられている。図2の画像形成装置26において、転写器32は、現像された画像を紙等の記録媒体34に転写するために設けられてい

50

る。尚、記録媒体 34 は、搬送ローラー 33 によって転借 32 へ搬送される。図 2 の画像形成装置 26 において、定着器 35 は、記録媒体 34 に形成された画像を定着させるために設けられている。

【0114】

図 3 (a) 及び図 3 (b) は、図 2 の画像形成装置 26 を構成する露光光源の具体例を示す平面概略図であり、図 3 (c) は、図 2 の画像形成装置 26 を構成する感光体の具体例を示す概略図である。尚、図 3 (a) 及び図 3 (b) は、露光光源 28 に有機発光素子を含む発光部 36 が長尺状の基板 28a に複数配置されている点で共通している。また符号 37 の矢印は、発光部 36 が配列されている列方向を表わす。この列方向は、感光体 27 が回転する軸の方向と同じである。

10

【0115】

ところで図 3 (a) では、発光部 36 は、感光体 27 の軸方向に沿って配置した形態である。一方、図 3 (b) では、第一の列 と第二の列 とのそれぞれにおいて発光部 36 が列方向に交互に配置されている形態である。図 3 (b) において、第一の列 及び第二の列 は、それぞれ行方向に異なる位置に配置されている。

【0116】

また図 3 (b) において、第一の列 は、複数の発光部 36 が一定の間隔を空けて配置される一方で、第二の列 は、第一の列 に含まれる発光部 36 同士の間隔に対応する位置に発光部 36 を有する。即ち、図 3 (b) の露光光源は、行方向にも、複数の発光部が一定の間隔を空けつつ配置されている。

20

【0117】

尚、図 3 (b) の露光光源は、露光光源を構成する発光部 (36、36) を、例えば、格子状、千鳥格子、あるいは市松模様に配置されている状態と言い換えることもできる。

【0118】

図 4 は、本発明に係る有機発光素子を有する照明装置の例を示す模式図である。図 4 の照明装置は、基板 (不図示) の上に設けられる有機発光素子 38 と、AC / DC コンバーター回路 39 と、を有している。また図 4 の照明装置は、装置内の熱を外部へ放出する放熱部に相当する放熱板 (不図示) を、例えば、有機発光素子 38 が載置されている側とは反対側の基板面に有していてもよい。

30

【0119】

[一般式 [1] の有機化合物の他の用途]

ところで、一般式 [1] の有機化合物は、化合物が有する電子注入性から有機発光素子以外の有機電界素子の構成材料、具体的には、電子を注入する機能を有する部材の構成材料として利用することができる。ここでいう有機電界素子は、一対の電極と、これら一対の電極間に配置され一般式 [1] の有機化合物を有する有機機能層と、を有する電界素子である。一般式 [1] が利用可能な有機発光素子以外の有機電界素子として、例えば、有機薄膜トランジスタ (有機 TFT)、有機太陽電池等の非発光型の電界素子が挙げられる。

【実施例】

40

【0120】

以下、実施例により本発明を詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

【0121】

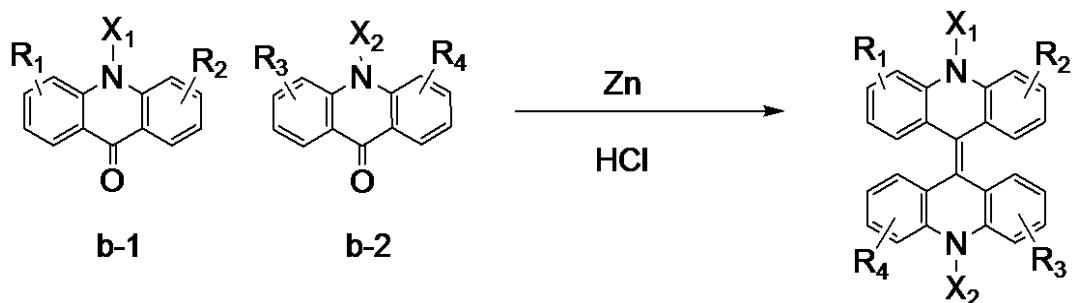
[ビアクリジニリデン化合物の合成例]

本発明で用いられる一般式 [1] の化合物 (ビアクリジニリデン化合物) は、非特許文献 3 を参考にして合成することができる。具体的には、アセトン等を溶媒として用い、亜鉛を加えた後、濃塩酸を滴下し、原料のアクリドン誘導体 b-1 及び b-2 を加えてから反応溶液を攪拌することで合成できる。しかし、一般式 [1] の化合物の合成法は、非特許文献 3 以外の方法を採用しても構わない。

50

【0122】

【化16】



10

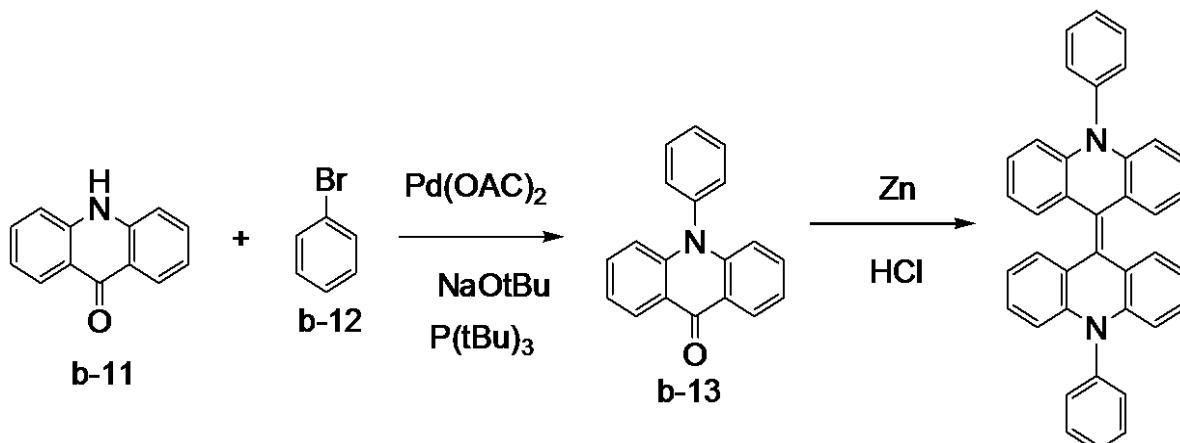
【0123】

(合成例1) 例示化合物A-1の合成

以下に示すスキームに従って、化合物A-1を合成した。

【0124】

【化17】



20

【0125】

(1) 化合物b-13の合成

まず200m1の三ツロフラスコを用意し、このフラスコ内に、下記に示される試薬を入れた。

30

化合物b-11: 1.50g (7.68mmol)

化合物b-12: 2.41g (15.36mmol)

ナトリウムターシャリブトキシド: 1.47g (15.36mmol)

【0126】

次に、クロロベンゼン100m1を入れた後、窒素雰囲気中、室温下で反応溶液を攪拌しながら、トリターシャリブチルフォスフィン155mgを添加した。次いで酢酸パラジウム86mgを添加した。次に、反応溶液を131に昇温した後、この温度(131)で5時間攪拌した。反応終了後、水100m1を入れた後、クロロホルムを用いて有機層を抽出した。次に、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥させた後、減圧濃縮することで粗生成物を得た。次に、この粗生成物を、シリカゲルカラム(トルエン+酢酸エチル混合展開溶媒)で精製することで、化合物b-13を白色固体として1.31g(収率63%)得た。

40

【0127】

(2) 例示化合物A-1の合成

まず50m1三ツロフラスコを用意し、このフラスコ内に、アセトン30m1を入れた後、アルゴンで15分、バブリングした。次に、フラスコ内に、以下に示される試薬を入れた。

化合物b-13: 271mg (1.0mmol)

亜鉛粉: 1.30g (20.0mmol)

50

【0128】

次に、反応溶液を50℃に加熱し、この温度(50℃)で30分攪拌した。次に、反応溶液を氷冷させながら、濃塩酸12.0m1を30分かけて滴下後、室温で20時間反応溶液を攪拌することで反応を進行させた。反応終了後、水30m1を入れ、析出した黄色固体をろ過し、水とメタノールで固体を洗浄することにより、例示化合物A-1を黄色固体として177mg(収率69%)を得た。

【0129】

質量分析法により、この化合物のM⁺である510を確認した。また、DSC(示差走査熱量分析)法により、ガラス転移温度245℃を確認した。

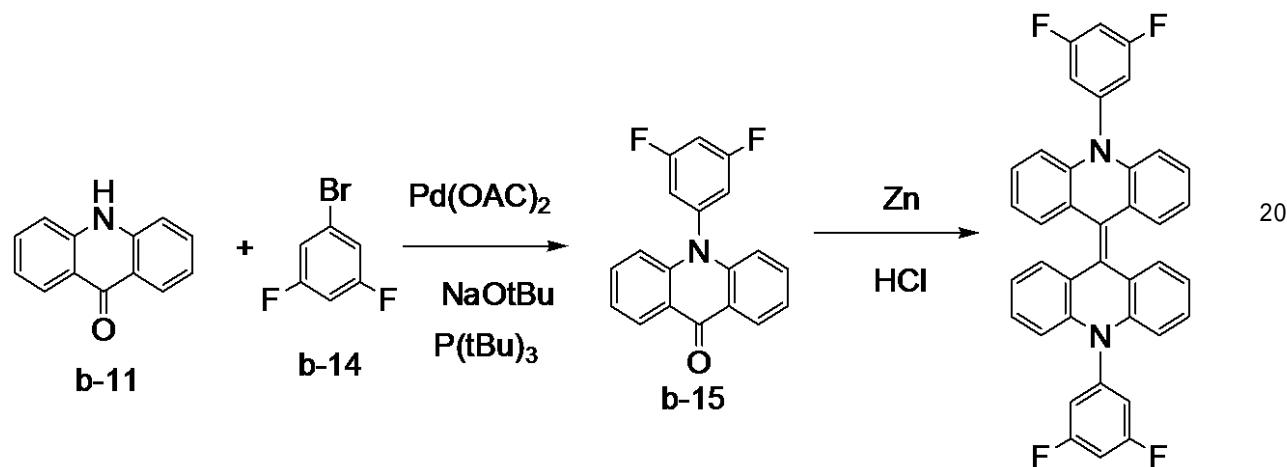
【0130】

(合成例2) 例示化合物C-2の合成

以下に示すスキームに従って、例示化合物C-2を合成した。

【0131】

【化18】



【0132】

(1) 化合物b-15の合成

まず500m1三ツ口フラスコを用意し、このフラスコに、以下に示される試薬を入れた。

化合物b-11: 1.20g (4.40mmol)

化合物b-14: 2.40g (12.4mmol)

ナトリウムターシャリブトキシド: 1.20g (12.5mmol)

【0133】

次に、オルトキシレン250m1を入れた後、窒素雰囲気中、室温下で反応溶液を攪拌しながら、トリターシャリブチルフォスフィン120mgを添加した。次いで酢酸パラジウム70mgを添加した。次に、反応溶液を144℃に昇温し、この温度(144℃)で5時間攪拌した。反応終了後、水100m1を入れ、有機層をトルエンで抽出した。次に、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥させた後、減圧濃縮することで粗生成物を得た。次に、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエン+酢酸エチル混合展開溶媒)で精製することで、化合物b-15を、白色固体として0.74g(収率55%)を得た。

【0134】

(2) 例示化合物C-2の合成

まず50m1三ツ口フラスコを用意し、このフラスコ内に、アセトン25m1を入れた後、アルゴンで15分、バーリングした。次に、フラスコ内に、以下に示される試薬を入れた。

化合物b-15: 276mg (0.90mmol)

亜鉛粉: 1.17g (18.0mmol)

【0135】

10

20

30

40

50

次に、反応溶液を 50 に加熱し、この温度 (50) で 30 分攪拌した。次に、反応溶液を氷冷させながら、濃塩酸 10.8 ml を 30 分かけて滴下後、室温で 20 時間反応溶液を攪拌することで反応を進行させた。反応終了後、水 25 ml を入れ、析出した黄色固体をろ過し、水とメタノールで固体を洗浄することにより、例示化合物 A-1 を黄色固体として 124 mg (収率 47%) 得た。

【0136】

質量分析法により、この化合物の M^+ である 582 を確認した。

【0137】

(合成例 3 乃至 8)

合成例 2 (1) において、化合物 b-11 に代えて下記表 1 に示されるアクリドン誘導体を使用し、また化合物 b-14 に代えて下記表 1 に示されるハロゲン体を使用したこと 10 を除いては、合成例 2 と同様の方法により下記例示化合物を合成した。

に変えることで合成 2 と同様にして合成した。

【0138】

【表 1】

例示化合物	アクリドン誘導体	ハロゲン体
A-2 (合成例3)		
A-8 (合成例4)		
B-2 (合成例5)		
B-3 (合成例6)		
B-8 (合成例7)		
C-10 (合成例8)		

10

20

30

40

【0139】

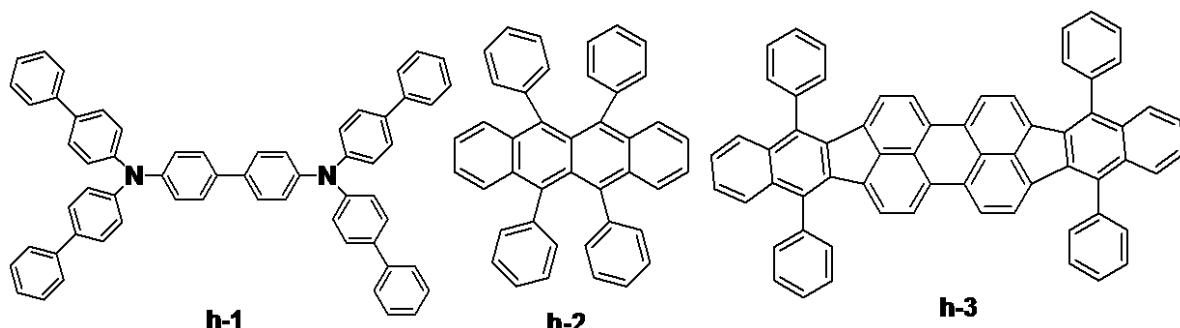
[実施例 1]

本実施例では、基板の上に、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層及び陰極がこの順に積層されている有機発光素子を作製した。尚、本実施例において、電子注入層は、二つの層からなる積層体である。ここで、本実施例にて使用した材料の一部を以下に列挙する。

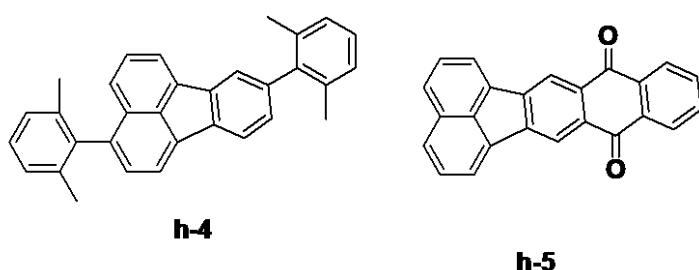
50

【0140】

【化19】



10



20

【0141】

スパッタ法により、ガラス基板（基板）の上に、酸化錫インジウム（ITO）を成膜して陽極を形成した。次に、陽極が形成されている基板を、アセトン、イソプロピルアルコール（IPA）で順次超音波洗浄し、次いでIPAで煮沸洗浄後乾燥した。さらに、UV／オゾン洗浄したものを透明導電性支持基板として次に工程で使用した。

【0142】

次に、透明導電性支持基板の上に、下記表2に示される有機化合物層及び電極層を、 10^{-5} Paの真空チャンバー内における抵抗加熱による真空蒸着を利用して連続成膜することで、有機発光素子を作製した。

30

【0143】

【表2】

	構成材料	膜厚[nm]
正孔輸送層	化合物h-1	40
発光層	ゲスト:h-3(重量濃度 ^(注1) :0.5%) ホスト:h-2(重量濃度 ^(注1) :99.5%)	20
電子輸送層	化合物h-4	10
第二電子注入層	化合物h-5	10
有機機能層 (第一電子注入層)	例示化合物A-1	3
金属電極層(陰極)	Al	150

40

(注1)発光層全体に対する重量濃度

【0144】

本実施例にて得られた有機発光素子に10Vの印加電圧をかけたところ2.9cd/m²のCIE色度(0.64, 0.35)の発光ドーパントh-3由来の赤色発光が観測された。

【0145】

50

「実施例 2 乃至 6」

実施例 1において、電子輸送層、第一電子注入層及び第二電子注入層の組み合わせを、下記表 3 の通りに変更したこと以外は、実施例 1 と同様の方法により有機発光素子を作製した。

[0 1 4 6]

【表3】

	電子輸送層	第二電子注入層	第一電子注入層 (有機機能層)
実施例2	h-4	h-7	A-2
実施例3	h-4	h-8	A-8
実施例4	h-6	h-5	B-2
実施例5	h-6	h-7	A-2
実施例6	h-6	h-8	B-8

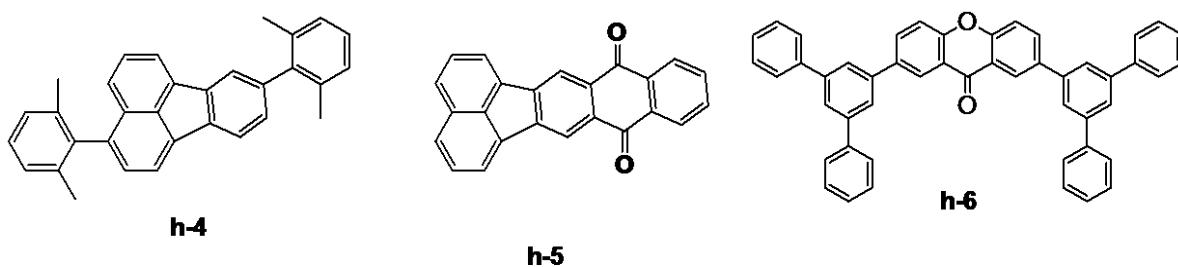
10

(0 1 4 7)

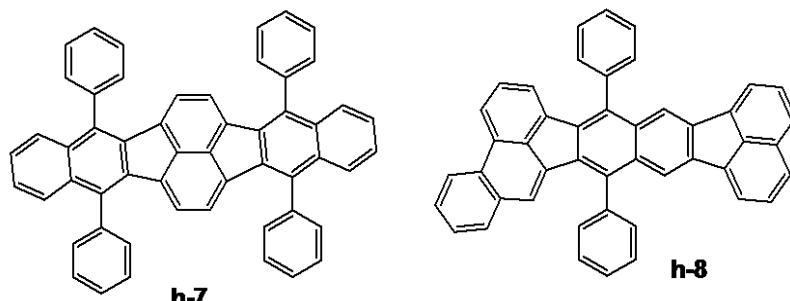
また、実施例2乃至6にて使用した材料の一部を以下に列挙する。

(0 1 4 8)

【化 2 0】



20



30

〔 0 1 4 9 〕

実施例 2 乃至 6 にてそれぞれ作製した有機発光素子について、実施例 1 と同様の方法で評価を行った。素子評価の結果を下記表 4 に示す。

(0 1 5 0)

40

【表4】

	電流効率 ^(注1) [cd/A]	CIE色度 ^(注1) (x, y)
実施例2	3.0	(0.64, 0.35)
実施例3	2.8	(0.65, 0.35)
実施例4	2.7	(0.65, 0.35)
実施例5	2.8	(0.64, 0.35)
実施例6	2.7	(0.65, 0.35)

(注1)印加電圧:10V

10

【0151】

【実施例7】

実施例1において、介在層及び有機機能層を形成する代わりに、以下に説明する電子注入層を形成したことを除いては、実施例1と同様の方法により、有機発光素子を作製した。

【0152】

(電子注入層の形成)

電子輸送層の上に、例示化合物A-2及びh-5を、層内の重量濃度比が例示化合物A-2:h-5=50:50となるように共蒸着し、膜厚10nmの電子注入層を形成した。

20

【0153】

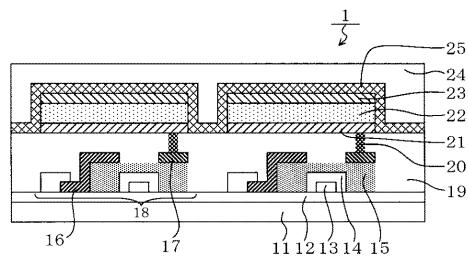
本実施例の有機発光素子に10Vの印加電圧をかけたところ、2.0cd/m²のCIE色度(0.65, 0.35)の発光ドーパントh-3由来の赤色発光が観測された。

【符号の説明】

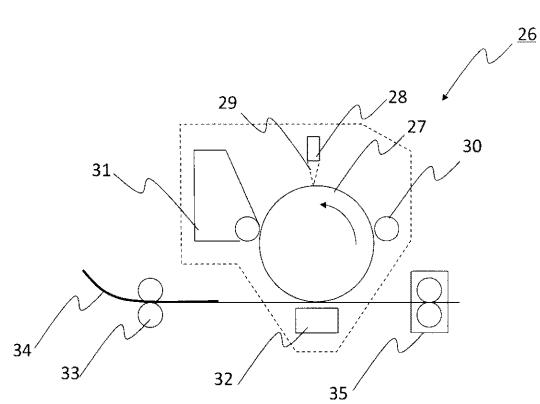
【0154】

18: TFT素子、21:陽極、22:有機化合物層、23:陰極

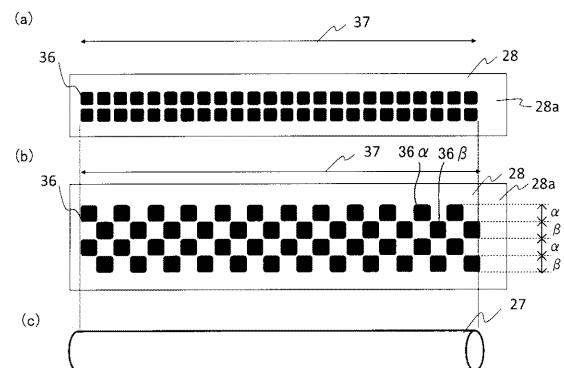
【図1】



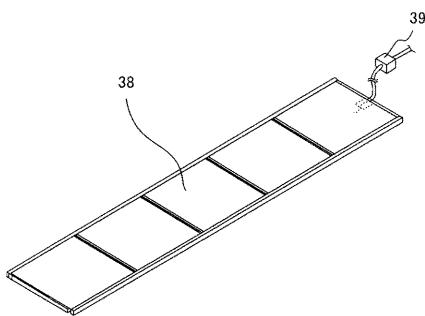
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

G 0 9 F 9/30 3 6 5

(72)発明者 西出 洋祐

東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内

審査官 岩井 好子

(56)参考文献 特開平06-293883 (JP, A)

特開2014-034520 (JP, A)

国際公開第2015/115116 (WO, A1)

特開2001-115155 (JP, A)

特表2005-530501 (JP, A)

特開2004-051490 (JP, A)

Bull. Chem. Soc. Jpn., 1993年, Vol.66, No.6, p.1834-1836, Scheme1(化合物1f)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H 0 1 L 5 1 / 5 0

C 0 9 K 1 1 / 0 6

H 0 5 B 3 3 / 0 8

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)