

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4835425号
(P4835425)

(45) 発行日 平成23年12月14日 (2011.12.14)

(24) 登録日 平成23年10月7日 (2011.10.7)

(51) Int.Cl.

F I

H O 1 L 51/50 (2006.01)

H O 5 B 33/14 B

C O 9 K 11/06 (2006.01)

C O 9 K 11/06 6 4 5

C O 7 D 209/86 (2006.01)

C O 9 K 11/06 6 9 0

C O 7 D 209/86

請求項の数 4 (全 23 頁)

(21) 出願番号 特願2006-347112 (P2006-347112)
 (22) 出願日 平成18年12月25日 (2006.12.25)
 (65) 公開番号 特開2008-159843 (P2008-159843A)
 (43) 公開日 平成20年7月10日 (2008.7.10)
 審査請求日 平成21年12月22日 (2009.12.22)

(73) 特許権者 000003159
 東レ株式会社
 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号
 (72) 発明者 川本 一成
 神奈川県鎌倉市手広6丁目10番1号 東
 レ株式会社基礎研究所先端融合研究所内
 (72) 発明者 村瀬 清一郎
 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株
 式会社滋賀事業場内
 (72) 発明者 長尾 和真
 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株
 式会社滋賀事業場内

審査官 東松 修太郎

最終頁に続く

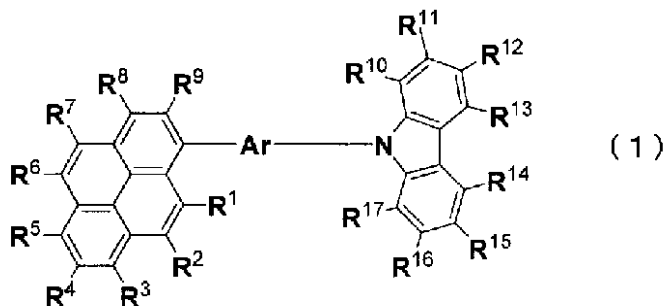
(54) 【発明の名称】 発光素子材料および発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)で表されるピレン化合物を含有することを特徴とする発光素子材料。

【化1】



($R^1 \sim R^{17}$ はそれぞれ同じでも異なっていてもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、アミノ基、シリル基、ホスフィンオキシド基の中から選ばれる。 $R^1 \sim R^{17}$ は隣接する置換基同士で環を形成していてもよい。 Ar はアリーレン基またはヘテロアリーレン基である。但し、 R^{12} 、 R^{15} のうち少なくとも一つはアルキル基である。但し、 R^3 および R^5 の少なくとも一つが ビフェニル基 または ナフチル基 であるか、もしくは R^4 が t-ブチル基 である。)

【請求項 2】

陽極と陰極の間に少なくとも発光層が存在し、電気エネルギーにより発光する発光素子であって、発光層が請求項 1 記載の発光素子材料を含有することを特徴とする発光素子。

【請求項 3】

陽極と陰極の間に少なくとも発光層が存在し、電気エネルギーにより発光する発光素子であって、発光層がホスト材料とドーパント材料からなり、請求項 1 記載の発光素子材料がホスト材料であることを特徴とする発光素子。

【請求項 4】

発光層と陰極の間に少なくとも電子輸送層が存在し、電子輸送層が炭素、水素、窒素、酸素、ケイ素、リンの中から選ばれる元素で構成され、電子受容性窒素を含むヘテロアリアル環構造を有する化合物を含有することを特徴とする請求項 2 または 3 記載の発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、蛍光色素や電荷輸送材として有用な発光素子材料およびこれを用いた発光素子であって、表示素子、フラットパネルディスプレイ、バックライト、照明、インテリア、標識、看板、電子写真機および光信号発生器などの分野に利用可能な発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が両極に挟まれた有機発光体内で再結合する際に発光するという有機薄膜発光素子の研究が、近年活発に行われている。この発光素子は、薄型でかつ低駆動電圧下での高輝度発光と、発光材料を選ぶことによる多色発光が特徴であり、注目を集めている。

【0003】

この研究は、イーストマンコダック社の C. W. Tang らによって有機薄膜発光素子が高輝度に発光することが示されて以来、多くの研究機関が検討を行っている。コダック社の研究グループが提示した有機薄膜発光素子の代表的な構成は、ITO ガラス基板上に、正孔輸送性のジアミン化合物、発光層であるトリス(8-キノリノラート)アルミニウム(III)、そして陰極として Mg:Ag (合金)を順次設けたものであり、10V 程度の駆動電圧で $1,000 \text{ cd/m}^2$ の緑色発光が可能であった(非特許文献 1 参照)。

【0004】

また、有機薄膜発光素子は、発光層に種々の蛍光材料を用いることにより、多様な発光色を得ることが可能であることから、ディスプレイなどへの実用化研究が盛んである。三原色の発光材料の中では緑色発光材料の研究が最も進んでおり、現在は赤色発光材料と青色発光材料において、特性向上を目指して鋭意研究がなされている。

【0005】

有機薄膜発光素子における最大の課題の一つは、素子の発光効率と耐久性を両立させることである。特に青色発光素子に関しては、耐久性が優れ、信頼性の高い素子を提供する青色発光材料は少ない。例えば、ピレン化合物を青色発光素子に用いる技術が開示されている。アリアル置換ピレン(特許文献 1~7 参照)やアミン置換ピレン(特許文献 8~11 参照)を用いた青色発光素子が報告されているが、いずれも耐久性が不十分であった。

【特許文献 1】特開 2000-273056 号公報(請求項 1~2)

【特許文献 2】特開 2001-118682 号公報(請求項 1)

【特許文献 3】特開 2002-63988 号公報(請求項 1)

【特許文献 4】特開 2003-272864 号公報(請求項 1)

【特許文献 5】特開 2004-75567 号公報(請求項 1~4)

【特許文献 6】特開 2004-139957 号公報(請求項 1)

【特許文献 7】国際公開第 04/96945 号パンフレット(特許請求の範囲)

【特許文献 8】特開 2004-204238 号公報(特許請求の範囲)

10

20

30

40

50

【特許文献 9】国際公開第 04/20388 号パンフレット（請求項 1）

【特許文献 10】国際公開第 04/83162 号パンフレット（請求項 1～9）

【特許文献 11】特開 2006-298793 号公報（請求項 1～3）

【非特許文献 1】アプライド フィジックス レターズ（Applied Physics Letters）（米国）1987 年、51 巻、12 号、913～915 頁

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

上述のように、従来の有機薄膜発光素子では、発光効率が高く、かつ耐久性に優れた青色発光素子が提供されていなかった。そこで本発明は、発光効率が高く、かつ耐久性に優れた青色発光素子を可能にする発光素子材料、およびこれを用いた発光素子を提供することを目的とする。

10

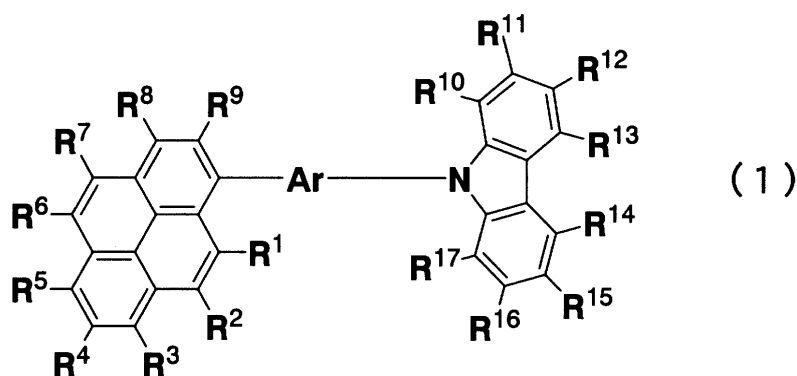
【課題を解決するための手段】

【0007】

すなわち本発明は、一般式（1）で表されるピレン化合物を含有する発光素子材料である。

【0008】

【化 1】



20

【0009】

（ $R^1 \sim R^{17}$ はそれぞれ同じでも異なってもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、アミノ基、シリル基、ホスフィンオキシド基の中から選ばれる。 $R^1 \sim R^{17}$ は隣接する置換基同士で環を形成していてもよい。Ar はアリレン基またはヘテロアリレン基である。但し、 R^{12} 、 R^{15} のうち少なくとも一つはアルキル基である。但し、 R^3 および R^5 の少なくとも一つが ビフェニル基 または ナフチル基 であるか、もしくは R^4 が t-ブチル基 である。）

30

【発明の効果】

【0010】

本発明は、発光素子等に利用可能で、薄膜安定性に優れた発光素子材料を提供できる。さらに、高い発光効率と優れた耐久性を有する発光素子が得られる。

40

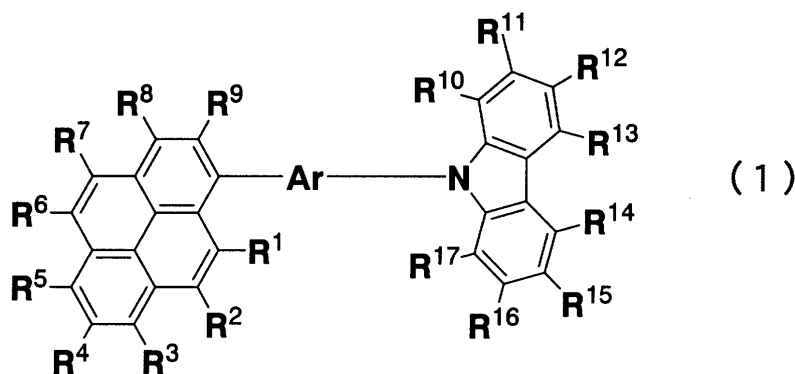
【発明を実施するための最良の形態】

【0011】

本発明における一般式（1）で表されるピレン化合物について詳細に説明する。

【0012】

【化 2】



【 0 0 1 3 】

$R^1 \sim R^{17}$ はそれぞれ同じでも異なってもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、アミノ基、シリル基、ホスフィンオキサイド基の中から選ばれる。 $R^1 \sim R^{17}$ は隣接する置換基同士で環を形成していてもよい。Ar はアリーレン基またはヘテロアリーレン基である。但し、 R^{12} 、 R^{15} のうち少なくとも一つはアルキル基である。但し、 R^3 および R^5 の少なくとも一つが ビフェニル基 または ナフチル基 であるか、もしくは R^4 が t - ブチル基 である。

【 0 0 1 4 】

これらの置換基のうち、アルキル基とは、例えば、メチル基、エチル基、n - プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、sec - ブチル基、イソブチル基、tert - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基などの飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは置換基を有していても有していなくてもよい。置換されている場合の追加の置換基には特に制限は無く、例えば、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基等を挙げることができ、この点は、以下の記載にも共通する。また、アルキル基の炭素数は特に限定されないが、通常 1 以上 20 以下の範囲、より好ましくは 1 以上 8 以下の範囲、さらに好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、sec - ブチル基、tert - ブチル基である。

【 0 0 1 5 】

シクロアルキル基とは、例えば、シクロプロピル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどの飽和脂環式炭化水素基を示し、これは置換基を有していても有していなくてもよい。アルキル基部分の炭素数は特に限定されないが、通常、3 以上 20 以下の範囲である。

【 0 0 1 6 】

複素環基とは、例えば、ピラン環、ピペリジン環、環状アミドなどの炭素以外の原子を環内に有する脂肪族環を示し、これは置換基を有していても有していなくてもよい。複素環基の炭素数は特に限定されないが、通常、2 以上 20 以下の範囲である。

【 0 0 1 7 】

アルコキシ基とは、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基などのエーテル結合を介して脂肪族炭化水素基が結合した官能基を示し、この脂肪族炭化水素基は置換基を有していても有していなくてもよい。アルコキシ基の炭素数は特に限定されないが、通常、1 以上 20 以下の範囲である。

【 0 0 1 8 】

アルキルチオ基とは、アルコキシ基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。アルキルチオ基の炭化水素基は置換基を有していても有していなくてもよい。アルキルチオ基の炭素数は特に限定されないが、通常、1 以上 20 以下の範囲である。

【 0 0 1 9 】

アリールエーテル基とは、例えば、フェノキシ基など、エーテル結合を介した芳香族炭

10

20

30

40

50

化水素基が結合した官能基を示し、芳香族炭化水素基は置換基を有していても有していなくてもよい。アリールエーテル基の炭素数は特に限定されないが、通常、6以上40以下の範囲である。

【0020】

アリールチオエーテル基とは、アリールエーテル基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。アリールエーテル基における芳香族炭化水素基は置換基を有していても有していなくてもよい。アリールエーテル基の炭素数は特に限定されないが、通常、6以上40以下の範囲である。

【0021】

アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、フェナントリル基、ターフェニル基、ピレニル基などの芳香族炭化水素基を示す。アリール基は、置換基を有していても有していなくてもよい。アリール基の炭素数は特に限定されないが、通常、6～40の範囲である。

10

【0022】

ヘテロアリール基とは、例えば、フラニル基、チオフェニル基、オキサゾリル基、ピリジル基、キノリニル基、カルバゾリル基などの炭素以外の原子を環内に有する芳香族基を示し、これは置換基を有していても有していなくてもよい。ヘテロアリール基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～30の範囲である。

【0023】

シリル基とは、例えば、トリメチルシリル基などのケイ素原子への結合を有する官能基を示し、これは置換基を有していても有していなくてもよい。シリル基の炭素数は特に限定されないが、通常、3～20の範囲である。また、ケイ素数は、通常、1～6である。

20

【0024】

アリーレン基とは、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、フェナントリル基、ターフェニル基、ピレニル基などの芳香族炭化水素基から導かれる2価の基を示し、これは置換基を有していても有していなくてもよい。アリーレン基の炭素数は特に限定されないが、通常、6～40の範囲である。一般式(1)のArがアリーレン基の場合、該アリーレン基は置換基を有していても有していなくてもよいが、置換基も含めて炭素数は6～12の範囲である。

【0025】

ヘテロアリーレン基とは、ピリジル基、キノリニル基、ピラジニル基、ナフチリジル基などの炭素以外の原子を一個または複数個環内に有する6員環芳香族基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基から誘導される2価の基を示し、これは置換基を有していてもいなくてもよい。ヘテロアリーレン基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～30の範囲である。

30

【0026】

隣接する置換基同士で環を形成する場合、任意の隣接2置換基(例えば一般式(1)のR¹とR²)が互いに結合して共役または非共役の縮合環を形成できる。縮合環の構成元素として、炭素以外にも窒素、酸素、硫黄、リン、ケイ素原子を含んでいてもよいし、さらに別の環と縮合してもよい。

40

【0027】

本発明の一般式(1)で表されるピレン化合物は、分子中にピレン骨格と縮合芳香族であるカルバゾール基を有することにより、優れた耐熱性と高い正孔輸送性を有する。さらに、カルバゾール構造に電子供与性のアルキル基が置換することによりラジカルカチオン安定性が高まり、より正孔輸送性が向上する。そのため高い電子輸送性を有する電子輸送材料からなる電子輸送層と組み合わせて用いた際に発光素子内の正孔・電子のバランスを保ちやすく、高い効率を得ている。また、カルバゾール構造へのアルキル基の置換は非晶質性を高める効果があり、それゆえ均一で安定な薄膜を形成できる。

【0028】

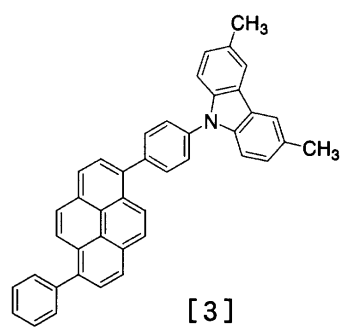
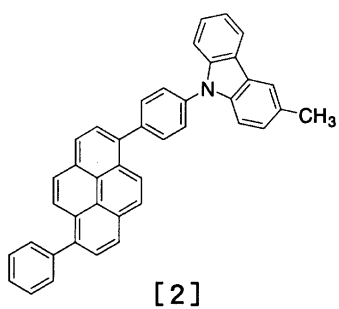
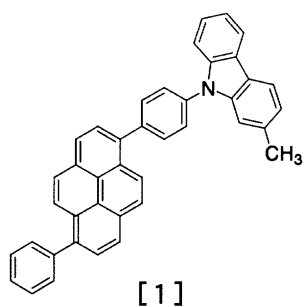
本発明の一般式(1)で表されるピレン化合物は、R³およびR⁵の少なくとも1つが

50

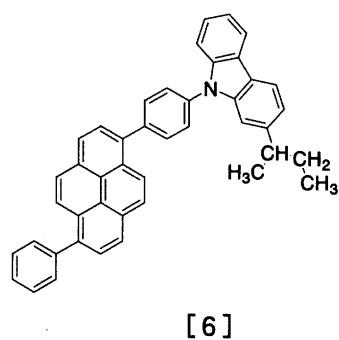
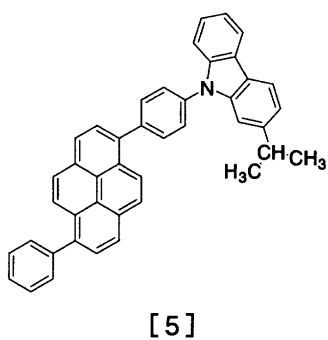
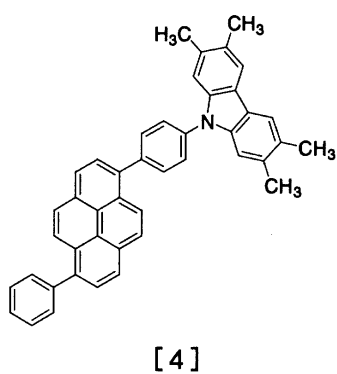
アリール基またはヘテロアリール基であるか、もしくは R^4 がアルキル基またはシクロアルキル基であることにより、ピレン骨格同士の分子間相互作用が抑制され、安定な薄膜が形成できる。このうち R^3 および R^5 の少なくとも1つがアリール基またはヘテロアリール基である場合、合成プロセスがより容易でコストを安くできるという利点から、 R^3 よりも R^5 がアリール基であることが望ましい。また R^4 がアルキル基またはシクロアルキル基である場合、 R^8 がアリール基またはヘテロアリール基であることにより、さらに分子間相互作用が抑制され、より安定な薄膜形成が可能となるため好ましい。カルバゾリル基に置換するアルキル基は、合成の容易さから一つまたは複数が R^{11} 、 R^{12} 、 R^{15} 、 R^{16} のいずれかの位置で置換することが好ましく、さらに発光効率の向上のためには R^{12} 、 R^{15} のいずれかの位置で置換することがより好ましい。上記のようなピレン化合物として、特に限定されるものではないが、具体的には以下のような例が挙げられる。

【0029】

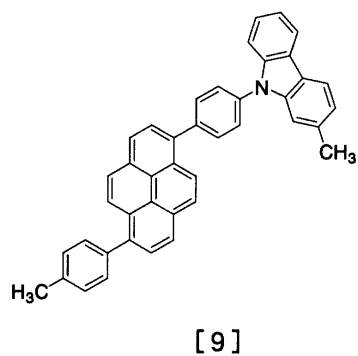
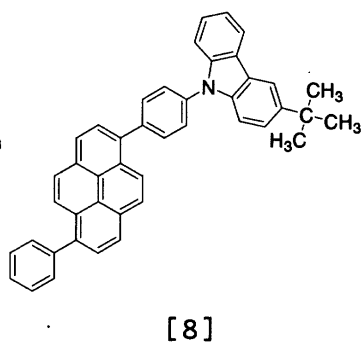
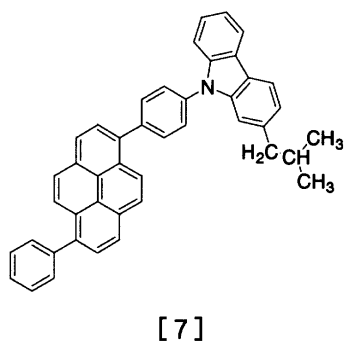
【化 3】



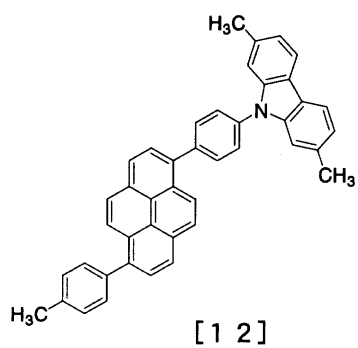
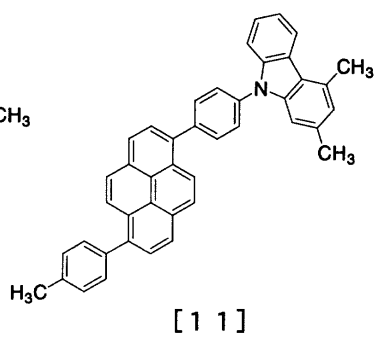
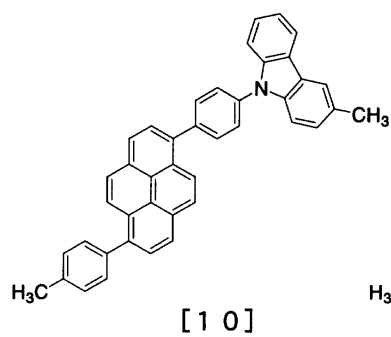
10



20

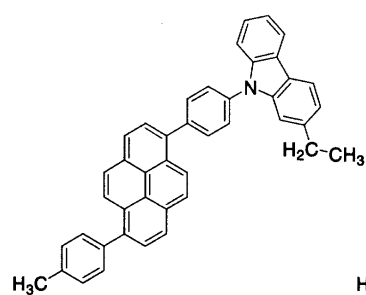


30

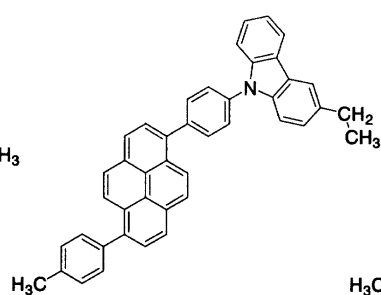


40

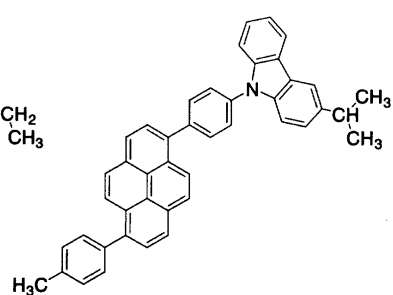
【化 4】



[1 3]

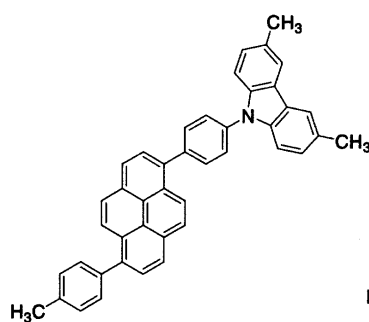


[1 4]

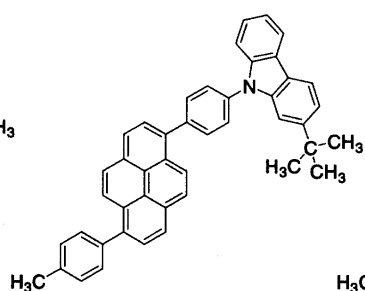


[1 5]

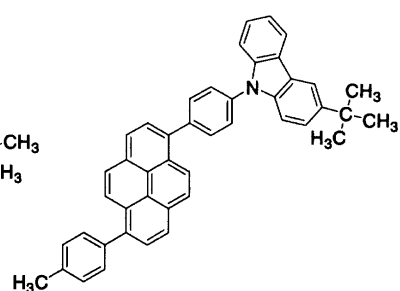
10



[1 6]

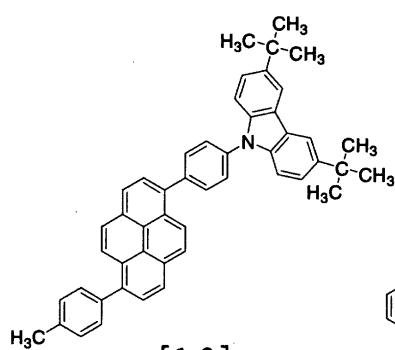


[1 7]

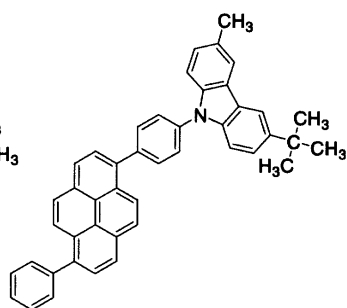


[1 8]

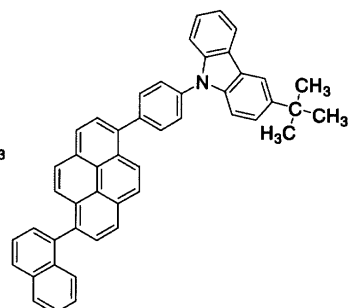
20



[1 9]

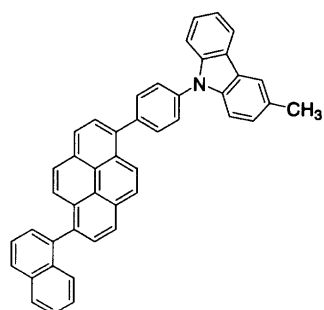


[2 0]

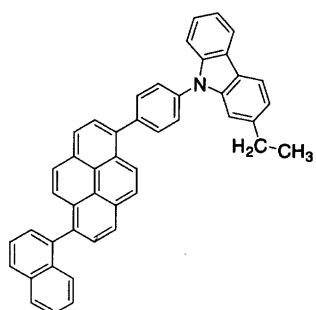


[2 1]

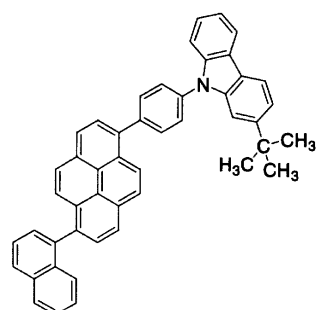
30



[2 2]



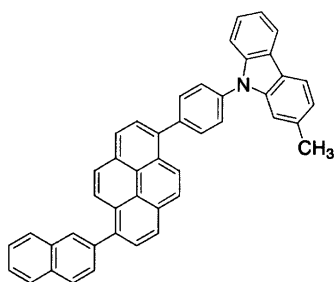
[2 3]



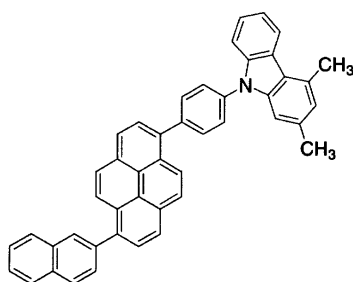
[2 4]

40

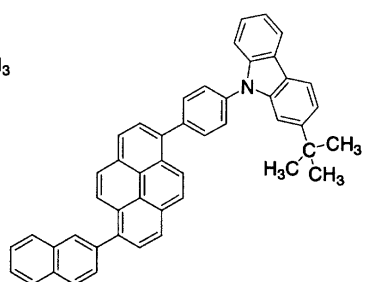
【化 5】



[2 5]

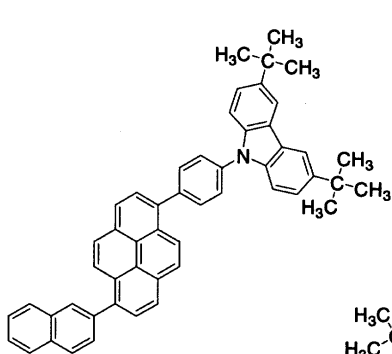


[2 6]

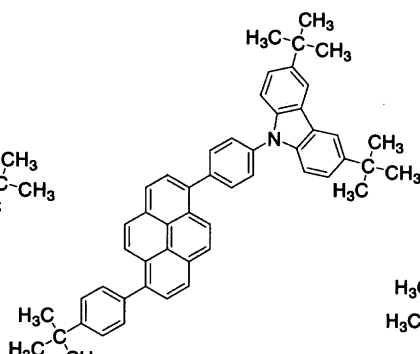


[2 7]

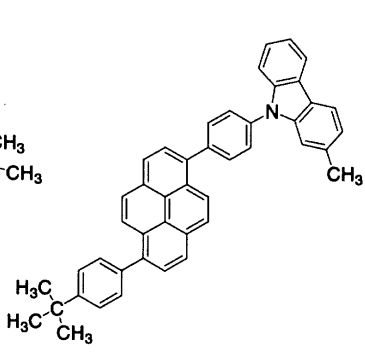
10



[2 8]

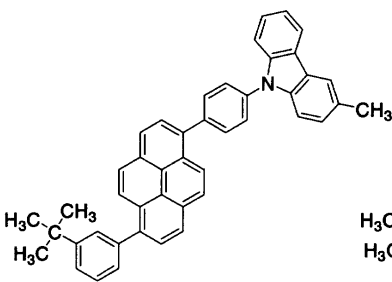


[2 9]

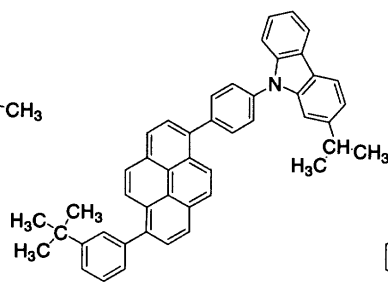


[3 0]

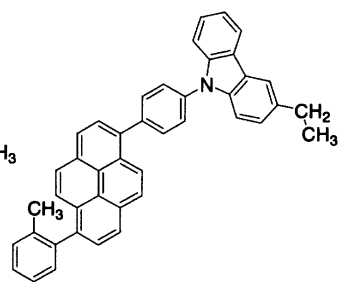
20



[3 1]

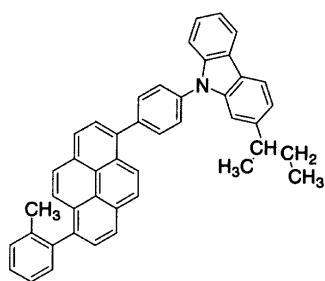


[3 2]

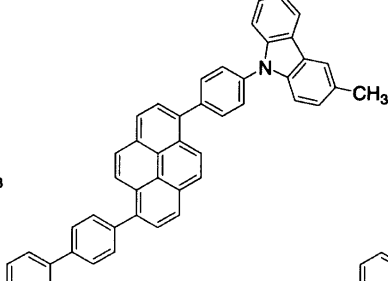


[3 3]

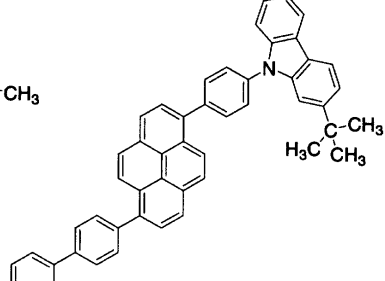
30



[3 4]



[3 5]

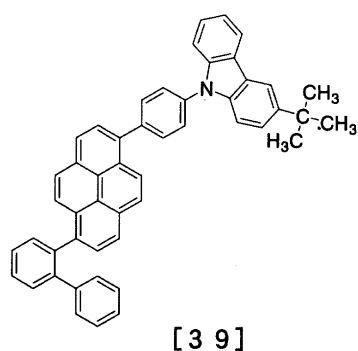
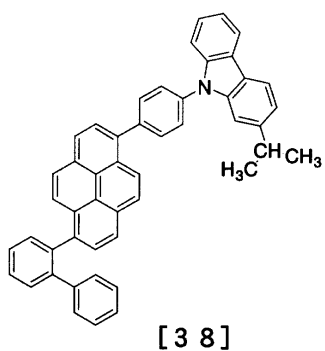
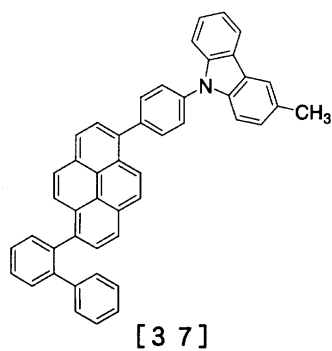


[3 6]

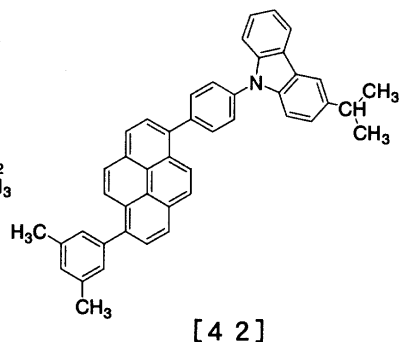
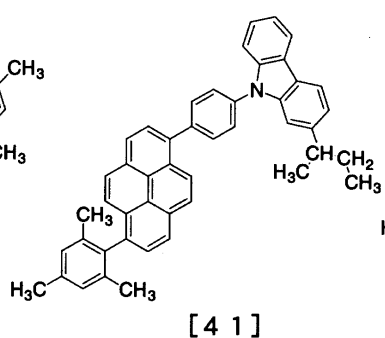
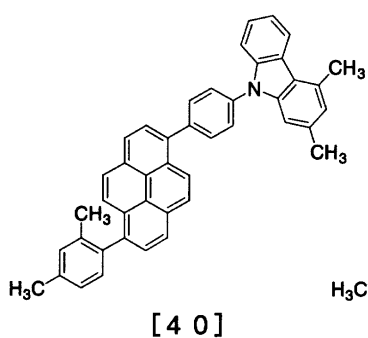
40

【 0 0 3 2 】

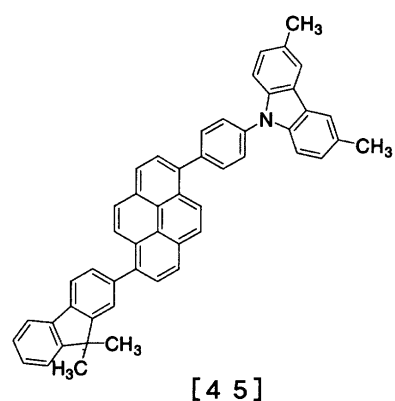
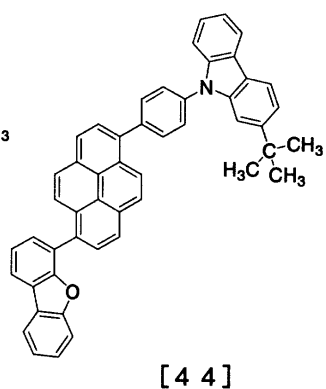
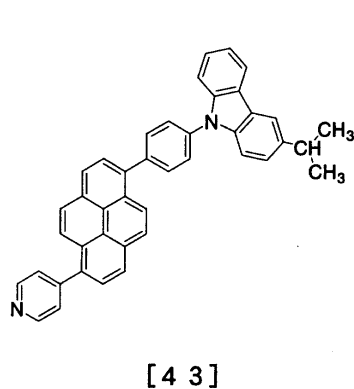
【化 6】



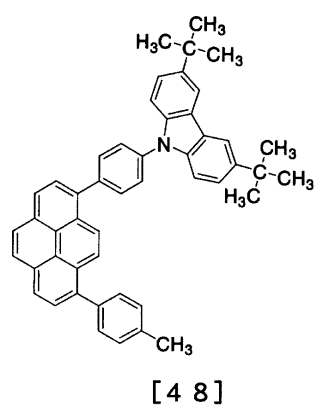
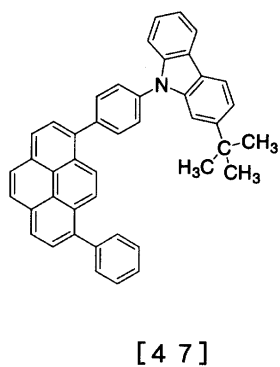
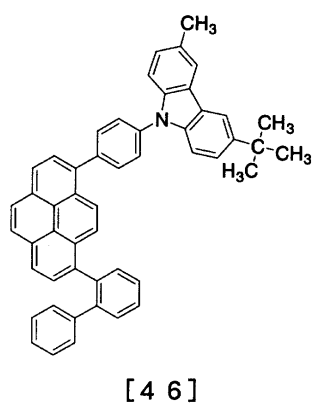
10



20

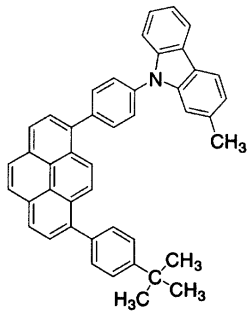


30

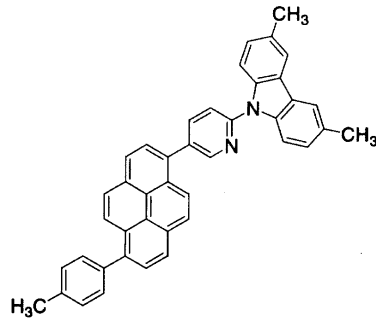


40

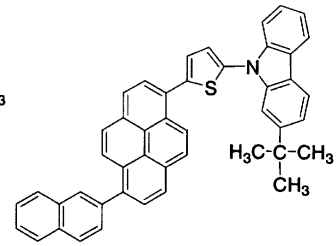
【化 7】



[4 9]

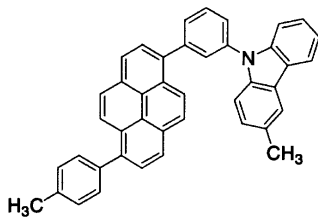


[5 0]

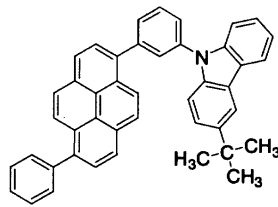


[5 1]

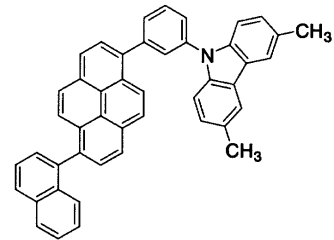
10



[5 2]

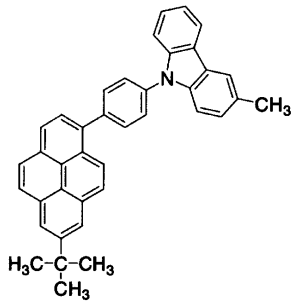


[5 3]

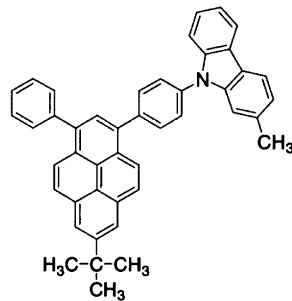


[5 4]

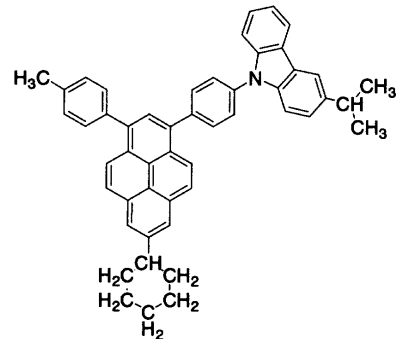
20



[5 5]

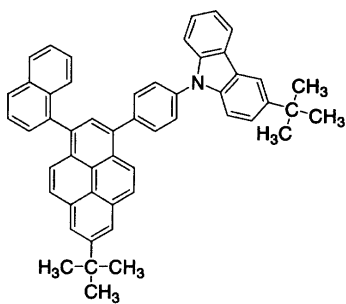


[5 6]

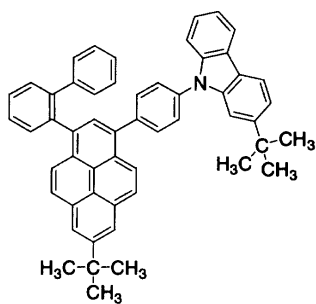


[5 7]

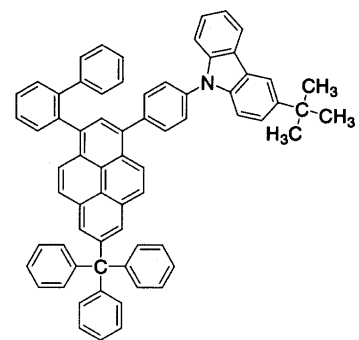
30



[5 8]



[5 9]



[6 0]

40

【 0 0 3 4 】

一般式(1)で表されるピレン化合物の合成には、公知の方法を使用することができる。ピレン骨格へカルbazolリル基を導入する方法は、例えば、パラジウムやニッケル触媒下でのハロゲン化ピレン誘導体とカルbazolまたはカルbazolリルアリアル金属錯体のカップリング反応を用いる方法、パラジウムやニッケル触媒下でのピレニル金属錯体とハロゲン化カルbazol誘導体のカップリング反応を用いる方法などが挙げられるが、これらに限

50

定されるものではない。

【0035】

次に、本発明における発光素子の実施形態について例をあげて詳細に説明する。本発明の発光素子は、少なくとも陽極と陰極、およびそれら陽極と陰極の間に介在する発光素子材料からなる有機層とで構成されている。

【0036】

本発明で用いられる陽極は、正孔を有機層に効率よく注入できる材料であれば特に限定されないが、比較的仕事関数の大きい材料を用いるのが好ましく、例えば、酸化錫、酸化インジウム、酸化亜鉛インジウム、酸化錫インジウム（ITO）などの導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロムなどの金属、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチ

10

オフエン、ポリピロールおよびポリアニリンなどの導電性ポリマーなどが挙げられる。これらの電極材料は、単独で用いてもよいが、複数の材料を積層または混合して用いてもよい。

【0037】

陽極の抵抗は、発光素子の発光に十分な電流が供給できればよく、発光素子の消費電力の点からは低抵抗であることが望ましい。例えば、300 / 以下のITO基板であれば素子電極として機能するが、現在では10 / 程度の基板の供給も可能になっていることから、100 / 以下の低抵抗品を使用することが特に望ましい。ITOの厚みは抵抗値に合わせて任意に選ぶ事ができるが、通常100 ~ 300 nmの間で用いられることが多い。

20

【0038】

また、発光素子の機械的強度を保つために、発光素子を基板上に形成することが好ましい。基板は、ソーダガラスや無アルカリガラスなどのガラス基板が好適に用いられる。ガラス基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分な厚みがあればよいので、0.5 mm以上あれば十分である。ガラスの材質については、ガラスからの溶出イオンが少ない方がよいので無アルカリガラスの方が好ましいが、SiO₂などのバリアコートを施したソーダライムガラスも市販されているのでこれを使用することもできる。さらに、陽極が安定に機能するのであれば、基板はガラスである必要はなく、例えば、プラスチック基板上に陽極を形成しても良い。ITO膜形成方法は、電子線ビーム法、スパッタリング法および化学反応法など特に制限を受けるものではない。

30

【0039】

本発明で用いられる陰極に用いられる材料は、電子を有機層に効率良く注入できる物質であれば特に限定されないが、一般に白金、金、銀、銅、鉄、錫、亜鉛、アルミニウム、インジウム、クロム、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウム、カルシウムおよびマグネシウムならびにこれらの合金などが挙げられる。電子注入効率をあげて素子特性を向上させるためには、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウム、カルシウム、マグネシウムまたはこれら低仕事関数金属を含む合金が有効である。しかしながら、これらの低仕事関数金属は、一般に大気中で不安定であることが多いため、有機層に微量のリチウムやマグネシウム（真空蒸着の膜厚計表示で1 nm以下）をドーピングして安定性の高い電極を得る方法が好ましい例として挙げることができる。また、フッ化リチウムのような無機

40

塩の使用も可能である。更に、電極保護のために白金、金、銀、銅、鉄、錫、アルミニウムおよびインジウムなどの金属、またはこれら金属を用いた合金、シリカ、チタニアおよび窒化ケイ素などの無機物、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、炭化水素系高分子化合物などの有機高分子化合物を積層することが、好ましい例として挙げられる。これらの電極の作製法は、抵抗加熱、電子線ビーム、スパッタリング、イオンプレーティングおよびコーティングなど、導通を取ることができれば特に制限されない。

【0040】

本発明の発光素子は、有機層が一般式（1）で表されるピレン化合物を含む発光素子材料により形成される。発光素子材料とは、自ら発光するもの、およびその発光を助けるもののいずれかに該当し、発光に関与している化合物を指すものであり、具体的には、正孔

50

輸送材料、発光材料および電子輸送材料などが該当する。

【0041】

本発明の発光素子を構成する有機層は、少なくとも発光素子材料を有する発光層から構成される。有機層の構成例は、発光層のみからなる構成の他に、1) 正孔輸送層/発光層/電子輸送層および、2) 発光層/電子輸送層、3) 正孔輸送層/発光層などの積層構成が挙げられる。また、上記各層は、それぞれ単一層、複数層のいずれでもよい。正孔輸送層および電子輸送層が複数層を有する場合、電極に接する側の層をそれぞれ正孔注入層および電子注入層と呼ぶことがあるが、以下の説明では正孔注入材料は正孔輸送材料に、電子注入材料は電子輸送材料にそれぞれ含まれる。

【0042】

正孔輸送層は、正孔輸送材料の一種または二種以上を積層または混合する方法、もしくは、正孔輸送材料と高分子結着剤の混合物を用いる方法により形成される。また、正孔輸送材料に電子受容性化合物を添加して正孔輸送層を形成してもよい。添加する電子受容性化合物としては塩化鉄(III)のような無機塩、テトラシアノキノジメタン(TCNQ)のような有機化合物があげられるがこれらに限定するものではない。正孔輸送材料は、発光素子の作製に必要な薄膜を形成し、陽極から正孔が注入できて、さらに正孔を輸送できる化合物であれば特に限定されない。例えば、4,4'-ビス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)ピフェニル、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ピフェニル、4,4',4''-トリス(3-メチルフェニル(フェニル)アミノ)トリフェニルアミンなどのトリフェニルアミン誘導体、ビス(N-アリルカルバゾール)またはビス(N-アルキルカルバゾール)などのビスカルバゾール誘導体、2,3,6,7,10,11-ヘキサシアノ-1,4,5,8,9,12-ヘキサアザトリフェニレンなどのヘキサアザトリフェニレン誘導体、ピラゾリン誘導体、スチルベン系化合物、ヒドラゾン系化合物、ベンゾフラン誘導体やチオフェン誘導体、オキサジアゾール誘導体、フタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体などの複素環化合物、ポリマー系では前記単量体を側鎖に有するポリカーボネートやスチレン誘導体、ポリチオフェン、ポリアニリン、ポリピロール、ポリフルオレン、ポリビニルカルバゾールおよびポリシランなどが好ましい。

【0043】

本発明において、発光層は単一層、複数層のどちらでもよく、各層の発光材料は単一の材料でも複数の材料(ホスト材料、ドーパント材料)の混合物であってもよいが、効率、色純度、寿命の観点から膜形成、正孔・電子輸送、発光の機能を分離できるホスト材料とドーパント材料との混合物の方が好ましい。すなわち、本発明の発光素子では、各発光層において、ホスト材料もしくはドーパント材料のいずれか一種のみが発光してもよいし、ホスト材料とドーパント材料がともに発光してもよい。ホスト材料とドーパント材料は、それぞれ一種であっても、複数の組み合わせであっても、いずれでもよい。ドーパント材料は発光層の全体に含まれていても、部分的に含まれていても、いずれでもよい。ドーパント材料の量は、多すぎると濃度消光現象が起きるため、ホスト材料に対して20重量%以下で用いることが好ましく、さらに好ましくは10重量%以下である。ドーピング方法は、ホスト材料との共蒸着法によって形成することができるが、ホスト材料と予め混合してから同時に蒸着しても良い。

【0044】

一般式(1)で表されるピレン化合物は正孔輸送材料や電子輸送材料として用いてもよいが、高い発光性能を有することから発光材料として好適に用いられる。また、本発明の発光素子材料は、青色領域に強い発光を示すことから、青色発光材料として好適に用いられるが、緑色~赤色発光素子や白色発光素子用の材料としても用いることができる。本発明のピレン化合物はドーパント材料として用いてもよいが、薄膜安定性に優れることから、ホスト材料として好適に用いられる。

【0045】

本発明の一般式(1)で表されるピレン化合物のイオン化ポテンシャルは、特に限定さ

10

20

30

40

50

れないが、好ましくは4.6 eV以上6.2 eV以下であり、より好ましくは4.8 eV以上6.0 eV以下である。なお、イオン化ポテンシャルの絶対値は測定方法により異なる場合があるが、本発明におけるイオン化ポテンシャルは、大気雰囲気型紫外線光電子分析装置(AC-1、理研機器(株)製)を用いて、ITOガラス基板上に30 nm~100 nmの厚さに蒸着した薄膜を測定した値である。

【0046】

本発明で用いられるホスト材料は、本発明の一般式(1)で表されるピレン化合物一種のみに限る必要はなく、本発明の複数のピレン化合物を混合して用いたり、その他のホスト材料の一種以上を本発明のピレン化合物と混合して用いてもよい。混合しうるホスト材料としては、発光体であるアントラセンやペリレンなどの縮合環誘導体、N, N'-ジナフチル-N, N'-ジフェニル-4, 4'-ジフェニル-1, 1'-ジアミンなどの芳香族アミン誘導体、トリス(8-キノリナート)アルミニウム(III)をはじめとする金属キレート化オキシノイド化合物、ジスチリルベンゼン誘導体などのビススチリル誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、インデン誘導体、クマリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピロロピリジン誘導体、ペリノン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、カルバゾール誘導体、ピロロピロール誘導体、ポリマー系では、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリチオフエン誘導体が好適に用いられる。

【0047】

発光材料に含有されるドーパント材料は、特に限定されないが、ナフタレン、アントラセン、フェナンスレン、ピレン、トリフェニレン、ペリレン、フルオレン、インデンなどのアリール環を有する化合物やその誘導体(例えば2-(ベンゾチアゾール-2-イル)-9, 10-ジフェニルアントラセンや5, 6, 11, 12-テトラフェニルナフタセンなど)、フラン、ピロール、チオフエン、シロール、9-シラフルオレン、9, 9'-スピロピシラフルオレン、ベンゾチオフエン、ベンゾフラン、インドール、ジベンゾチオフエン、ジベンゾフラン、イミダゾピリジン、フェナントロリン、ピラジン、ナフチリジン、キノキサリン、ピロロピリジン、チオキサテンなどのヘテロアリール環を有する化合物やその誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、4, 4'-ビス(2-(4-ジフェニルアミノフェニル)エテニル)ビフェニル、4, 4'-ビス(N-(スチルベン-4-イル)-N-フェニルアミノ)スチルベンなどのアミノスチリル誘導体、芳香族アセチレン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、スチルベン誘導体、アルダジン誘導体、ピロメテン誘導体、ジケトピロロ[3, 4-c]ピロール誘導体、2, 3, 5, 6-1H, 4H-テトラヒドロ-9-(2'-ベンゾチアゾリル)キノリジノ[9, 9a, 1-gh]クマリンなどのクマリン誘導体、イミダゾール、チアゾール、チアジアゾール、カルバゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾールなどのアゾール誘導体およびその金属錯体およびN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-4, 4'-ジフェニル-1, 1'-ジアミンに代表される芳香族アミン誘導体などが挙げられる。中でも、電子受容性置換基を有する縮合芳香環誘導体をドーパントとして用いると、本発明のピレン化合物が有する薄膜安定性の効果がより顕著になるため、好ましい。具体的には、1-(ベンゾオキサゾール-2-イル)-3, 8-ビス(4-メチルフェニル)ピレンに代表されるベンゾアゾール基を有するピレン化合物が特に好ましいドーパントとして挙げられる。

【0048】

本発明において、電子輸送層とは、陰極から電子が注入され、さらに電子を輸送する層である。電子輸送層には、電子注入効率が高く、注入された電子を効率良く輸送することが望まれる。そのため電子輸送層は、電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質で構成されることが望ましい。しかしながら、正孔と電子の輸送バランスを考えた場合に、電子輸送層が陽極からの正孔が再結合せずに陰極側へ流れるのを効率よく阻止できる役割を主に果たすならば、電子輸送能力がそれ程高くない材料で構成されていても、発光効率

を向上させる効果は電子輸送能力が高い材料で構成されている場合と同等となる。したがって、本発明における電子輸送層には、正孔の移動を効率よく阻止できる正孔阻止層も同義のものとして含まれる。

【0049】

電子輸送層に用いられる電子輸送材料としては、ナフタレン、アントラセンなどの縮合多環芳香族誘導体、4,4'-ビス(ジフェニルエテニル)ビフェニルに代表されるスチリル系芳香環誘導体、アントラキノンやジフェノキノンなどのキノン誘導体、リンオキサイド誘導体、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム(III)などのキノリノール錯体、ベンゾキノリノール錯体、ヒドロキシアゾール錯体、アゾメチン錯体、トロポロン金属錯体およびフラボノール金属錯体などの各種金属錯体が挙げられるが、駆動電圧を低減し、高効率発光が得られることから、炭素、水素、窒素、酸素、ケイ素、リンの中から選ばれる元素で構成され、電子受容性窒素を含むヘテロアリアル環構造を有する化合物を用いることが好ましい。

10

【0050】

本発明における電子受容性窒素とは、隣接原子との間に多重結合を形成している窒素原子を表す。窒素原子が高い電子陰性度を有することから、該多重結合は電子受容的な性質を有する。それゆえ、電子受容性窒素を含むヘテロアリアル環は、高い電子親和性を有し、電子輸送能に優れ、電子輸送層に用いることで発光素子の駆動電圧を低減できる。電子受容性窒素を含むヘテロアリアル環は、例えば、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、キノリン環、キノキサリン環、ナフチリジン環、ピリミドピリミジン環、ベンゾキノリン環、フェナントロリン環、イミダゾール環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンズイミダゾール環、フェナンスロイミダゾール環などが挙げられる。

20

【0051】

これらのヘテロアリアル環構造を有する化合物としては、例えば、ベンズイミダゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンズチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ピラジン誘導体、フェナントロリン誘導体、キノキサリン誘導体、キノリン誘導体、ベンゾキノリン誘導体、ビピリジンやターピリジンなどのオリゴピリジン誘導体、キノキサリン誘導体およびナフチリジン誘導体などが好ましい化合物として挙げられる。中でも、トリス(N-フェニルベンズイミダゾール-2-イル)ベンゼンなどのイミダゾール誘導体、1,3-ビス[(4-tert-ブチルフェニル)1,3,4-オキサジアゾリル]フェニレンなどのオキサジアゾール誘導体、N-ナフチル-2,5-ジフェニル-1,3,4-トリアゾールなどのトリアゾール誘導体、バソクプロインや1,3-ビス(1,10-フェナントロリン-9-イル)ベンゼンなどのフェナントロリン誘導体、2,2'-ビス(ベンゾ[h]キノリン-2-イル)-9,9'-スピロピフルオレンなどのベンゾキノリン誘導体、2,5-ビス(6'-(2',2''-ビピリジル))-1,1'-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールなどのビピリジン誘導体、1,3-ビス(4'-(2,2':6'2''-ターピリジニル))ベンゼンなどのターピリジン誘導体、ビス(1-ナフチル)-4-(1,8-ナフチリジン-2-イル)フェニルホスフィンオキサイドなどのナフチリジン誘導体が、電子輸送能の点から好ましく用いられる。

30

40

【0052】

上記電子輸送材料は単独でも用いられるが、上記電子輸送材料の2種以上を混合して用いたり、その他の電子輸送材料の一種以上を上記の電子輸送材料に混合して用いても構わない。また、アルカリ金属やアルカリ土類金属などの金属と混合して用いることも可能である。電子輸送層のイオン化ポテンシャルは、特に限定されないが、好ましくは5.8 eV以上8.0 eV以下であり、より好ましくは6.0 eV以上7.5 eV以下である。

【0053】

発光素子を構成する上記各層の形成方法は、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、レーザー誘起熱転写

50

法など特に限定されないが、通常は、素子特性の点から抵抗加熱蒸着または電子ビーム蒸着が好ましい。

【0054】

層の厚みは、発光物質の抵抗値にもよるので限定することはできないが、1～1000nmの間から選ばれる。発光層、電子輸送層、正孔輸送層の膜厚はそれぞれ、好ましくは1nm以上200nm以下であり、さらに好ましくは5nm以上100nm以下である。

【0055】

本発明の発光素子は、電気エネルギーを光に変換できる機能を有する。ここで電気エネルギーとしては主に直流電流が使用されるが、パルス電流や交流電流を用いることも可能である。電流値および電圧値は特に制限はないが、素子の消費電力や寿命を考慮すると、できるだけ低いエネルギーで最大の輝度が得られるよう選ばれるべきである。

10

【0056】

本発明の発光素子は、例えばマトリクスおよび/またはセグメント方式で表示するディスプレイとして好適に用いられる。

【0057】

マトリクス方式とは、表示のための画素が格子状やモザイク状など二次元的に配置され、画素の集合で文字や画像を表示する。画素の形状やサイズは用途によって決まる。例えば、パソコン、モニター、テレビの画像および文字表示には、通常一辺が300μm以下の四角形の画素が用いられ、また、表示パネルのような大型ディスプレイの場合は、一辺がmmオーダーの画素を用いることになる。モノクロ表示の場合は、同じ色の画素を配列すればよいが、カラー表示の場合には、赤、緑、青の画素を並べて表示させる。この場合、典型的にはデルタタイプとストライプタイプがある。そして、このマトリクスの駆動方法は、線順次駆動方法やアクティブマトリクスのどちらでもよい。線順次駆動はその構造が簡単であるが、動作特性を考慮した場合、アクティブマトリクスの方が優れる場合があるので、これも用途によって使い分けることが必要である。

20

【0058】

本発明におけるセグメント方式とは、予め決められた情報を表示するようにパターンを形成し、このパターンの配置によって決められた領域を発光させる方式である。例えば、デジタル時計や温度計における時刻や温度表示、オーディオ機器や電磁調理器などの動作状態表示および自動車のパネル表示などが挙げられる。そして、前記マトリクス表示とセグメント表示は同じパネルの中に共存していてもよい。

30

【0059】

本発明の発光素子は、各種機器等のバックライトとしても好ましく用いられる。バックライトは、主に自発光しない表示装置の視認性を向上させる目的に使用され、液晶表示装置、時計、オーディオ装置、自動車パネル、表示板および標識などに使用される。特に、液晶表示装置、中でも薄型化が検討されているパソコン用途のバックライトに本発明の発光素子は好ましく用いられ、従来のものより薄型で軽量のバックライトを提供できる。

【実施例】

【0060】

以下、実施例をあげて本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されない。なお、下記の各実施例にある化合物の番号は上の化学式に記載した化合物の番号を指す。また構造分析に関する評価方法を下記に示す。

40

【0061】

¹H-NMRは超伝導FT-NMR "EX-270" (日本電子(株)製)を用い、重クロロホルム溶液にて測定を行った。

【0062】

参考例1 化合物[8]の合成

1-クロロ-2-ヨードベンゼン13g、4-tert-ブチルアニリン9.8g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)0.63g、トリ(tert-ブチル)ホスフィンテトラフルオロホウ酸塩0.29g、tert-ブトキシナトリウム7.9gお

50

よびキシレン 180 ml の混合溶液をアルゴン気流下、60 で2時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、混合溶液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルクロマトグラフィーで精製して、N - (4 - t e r t - ブチルフェニル) - 2 - クロロアニリン 12 g を得た。

【 0 0 6 3 】

続いてN - (4 - t e r t - ブチルフェニル) - 2 - クロロアニリン 12 g と酢酸パラジウム 0.51 g、トリシクロヘキシルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩 1.7 g、炭酸カリウム 12 g、N, N - ジメチルアセトアミド 225 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で6時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、水 300 ml を加え沈殿した固体を吸引濾過により得た。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、ジクロロメタン 15 ml で洗浄して3 - (t e r t - ブチル) カルバゾール 6.3 g を得た。

10

【 0 0 6 4 】

1 - ブロモピレン 59 g、p - クロロフェニルボロン酸 40 g、リン酸三カリウム 108 g、テトラブチルアンモニウムブロミド 16.4 g、酢酸パラジウム 1.15 g とジメチルホルムアミド 1250 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で3時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、水 1000 ml を注入し、ろ過した。メタノール 200 ml で洗浄した後、得られた固体をジクロロメタン 1000 ml に溶解させ、硫酸マグネシウムで乾燥後、セライトを用いてろ過し、エバポレートした。メタノール 200 ml で洗浄し、真空乾燥した後、1 - (4 - クロロフェニル) ピレン 58.2 g を得た。

【 0 0 6 5 】

20

次に、1 - (4 - クロロフェニル) ピレン 58.2 g、N - ブロモスクシンイミド 36.4 g とジメチルホルムアミド 1900 ml の混合溶液をアルゴン気流下、40 で6時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、水 500 ml を注入し、ろ過した。メタノール 200 ml で洗浄し、真空乾燥した後、1 - ブロモ - 6 - (4 - クロロフェニル) ピレンと1 - ブロモ - 8 - (4 - クロロフェニル) ピレンの混合物を得た。

【 0 0 6 6 】

続いて、1 - ブロモ - 6 - (4 - クロロフェニル) ピレンと1 - ブロモ - 8 - (4 - クロロフェニル) ピレンの混合物とジクロロメタン 500 ml の混合溶液をアルゴン気流下、還流しながら30分加熱撹拌した。撹拌しながら室温に冷却した後、さらに30分撹拌し、沈殿物をろ過した。得られた沈殿物とジクロロメタン 300 ml の混合溶液をアルゴン気流下、還流しながら1時間加熱撹拌した。撹拌しながら室温に冷却した後、さらに30分撹拌し、沈殿物をろ過した。真空乾燥した後、1 - ブロモ - 6 - (4 - クロロフェニル) ピレン 15 g を得た。

30

【 0 0 6 7 】

1 - ブロモ - 6 - (4 - クロロフェニル) ピレン 8.2 g、フェニルボロン酸 3.3 g、リン酸三カリウム 13 g、テトラブチルアンモニウムブロミド 2 g、酢酸パラジウム 0.14 g とジメチルホルムアミド 210 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で4時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、水 300 ml を加えて析出した固体を吸引ろ過により得た。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、1 - (4 - クロロフェニル) - 6 - フェニルピレン 7.1 g を得た。

40

【 0 0 6 8 】

1 - (4 - クロロフェニル) - 6 - フェニルピレン 7 g、3 - (t e r t - ブチル) カルバゾール 6 g、t e r t - ブトキシナトリウム 2.6 g、トリ (t e r t - ブチル) ホスフィンテトラフルオロホウ酸塩 0.46 g、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) 1 g とキシレン 180 ml の混合溶液をアルゴン気流下、140 で5時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、混合溶液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し黄白色固体 4.5 g を得た。得られた粉末の ¹ H - NMR 分析結果は次の通りであり、上記で得られた黄白色固体が化合物 [8] であることが確認された。

¹ H - NMR (C D C l ₃ (ppm)) : 1.49(s,9H), 7.29-7.35(m,2H), 7.41-7.70(m,9H), 7.72-7.90

50

(m, 4H), 8.01-8.37(m, 10H) 。

【0069】

尚、この化合物[8]は、油拡散ポンプを用いて 1×10^{-3} Pa の圧力下、約 300 で昇華精製を行ってから発光素子材料として使用した。HPLC 純度（測定波長 254 nm における面積%）は昇華精製前が 99.8%、昇華精製後が 99.9% であった。

【0070】

参考例 2 化合物[17]の合成

1 - ブロモ - 2 - ニトロベンゼン 2 g、4 - (tert - ブチル) フェニルボロン酸 2.3 g、酢酸パラジウム 58 mg、テトラブチルアンモニウムブロミド 0.83 g、リン酸カリウム 5.5 g とジメチルホルムアミド 100 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で 4 時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、混合溶液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製して、1 - [4 - (tert - ブチル) フェニル] - 2 - ニトロベンゼン 2.4 g を得た。

【0071】

続いて 1 - [4 - (tert - ブチル) フェニル] - 2 - ニトロベンゼン 2.4 g と亜リン酸トリエチル 40 ml の混合溶液を、アルゴン気流下 150 で 7 時間撹拌した。亜リン酸トリエチルを減圧留去した後、メタノール 100 ml を加え、析出した固体を吸引濾過により得た。これを真空乾燥し、2 - (tert - ブチル) カルバゾール 1.1 g を得た。

【0072】

1 - ブロモ - 6 - (4 - クロロフェニル) ピレン 10.5 g、4 - メチルフェニルボロン酸 4.8 g、酢酸パラジウム 0.18 g、テトラブチルアンモニウムブロミド 2.6 g、リン酸三カリウム 15 g、とジメチルホルムアミド 270 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で 4 時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、水 200 ml を加えて析出した固体を吸引濾過により得た。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、1 - (4 - クロロフェニル) - 6 - (4 - メチルフェニル) ピレン 12 g を得た。

【0073】

続いて 1 - (4 - クロロフェニル) - 6 - (4 - メチルフェニル) ピレン 0.5 g、2 - (tert - ブチル) カルバゾール 0.36 g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0) 71 mg、トリ(tert - ブチル)ホスフィンテトラフルオロホウ酸塩 32 mg、tert - ブトキシナトリウム 0.18 g およびキシレン 15 ml の混合溶液をアルゴン気流下、140 で 3 時間加熱撹拌した。室温に冷却した後、混合溶液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した後、真空乾燥して白色固体 0.57 g を得た。得られた粉末の ^1H - NMR 分析結果は次の通りであり、上記で得られた白色固体が化合物[17]であることが確認された。

^1H - NMR (CDCl₃ (ppm)) : 1.34(s, 9H), 2.35(s, 3H), 7.00-8.05(m, 23H) 。

【0074】

この化合物[17]は、実施例 1 と同様に昇華精製を行ってから発光素子材料として使用した。HPLC 純度（測定波長 254 nm における面積%）は昇華精製前が 99.5%、昇華精製後が 99.6% であった。

【0075】

参考例 3 化合物[56]の合成

ピレン 4.1 g、tert - ブチルクロリド 2 g とジクロロメタン 33 ml の混合溶液をアルゴン気流下、0 に冷やし、塩化アルミニウム 2.7 g を加えた。この混合溶液を室温で 3 時間撹拌した後、水 30 ml を注入し、ジクロロメタン 30 ml で抽出した。有機層を水 20 ml で 2 回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレートした。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、真空乾燥した後、2 - t - ブチルピレンを含む混合物 3 g（含有率 65%）を得た。

【0076】

次に、2 - tert - ブチルピレン含有混合物 3 g（含有率 65%）、ジクロロメタン

10

20

30

40

50

50 ml とメタノール 15 ml の混合溶液をアルゴン気流下、0 に冷やし、ジクロロメタン 10 ml に溶解させたベンジルトリメチルアンモニウムトリブロマイド 3.3 g を滴下した。この混合溶液を室温で 2 時間攪拌した後、水 50 ml を注入し、ジクロロメタン 50 ml で抽出した。有機層を水 50 ml で 2 回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレートした。得られた固体にメタノール 10 ml を加え、10 分攪拌した後、ろ過した。さらにヘキサン 30 ml を加え、30 分攪拌した後、ろ過した。真空乾燥した後、1 - ブロモ - 7 - tert - ブチルピレン 2.3 g を得た。

【0077】

次に、1 - ブロモ - 7 - tert - ブチルピレン 2.3 g、フェニルボロン酸 1.1 g、リン酸三カリウム 3.8 g、テトラブチルアンモニウムブロミド 0.58 g、酢酸パラジウム 12 mg とジメチルホルムアミド 30 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で 2 時間加熱攪拌した。室温に冷却した後、水 30 ml を注入し、ジクロロメタン 50 ml で抽出した。有機層を水 20 ml で 2 回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレートした。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、真空乾燥した後、7 - tert - ブチル - 1 - フェニルピレン 1.5 g を得た。

【0078】

次に、7 - tert - ブチル - 1 - フェニルピレン 1.5 g、ジクロロメタン 25 ml とメタノール 8 ml の混合溶液をアルゴン気流下、0 に冷やし、ジクロロメタン 5 ml に溶解させたベンジルトリメチルアンモニウムトリブロマイド 1.7 g を滴下した。この混合溶液を室温で 2 時間攪拌した後、水 20 ml を注入し、ジクロロメタン 20 ml で抽出した。有機層を水 20 ml で 2 回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレートした。得られた固体にメタノール 10 ml を加え、一晩放置した。析出した固体をろ過し、真空乾燥した後、1 - ブロモ - 7 - tert - ブチル - 3 - フェニルピレン 1.9 g を得た。

【0079】

次に、1 - ブロモ - 7 - tert - ブチル - 3 - フェニルピレン 1.9 g、4 - クロロフェニルボロン酸 2.5 g、リン酸三カリウム 2.5 g、テトラブチルアンモニウムブロミド 0.38 g、酢酸パラジウム 27 mg とジメチルホルムアミド 40 ml の混合溶液をアルゴン気流下、130 で 2 時間加熱攪拌した。室温に冷却した後、水 40 ml を注入し、ろ過した。メタノール 40 ml で洗浄した後、シリカゲルクロマトグラフィーにより精製し、1 - (4 - クロロフェニル) - 7 - tert - ブチル - 3 - フェニルピレン 1.5 g を得た。

【0080】

次に、1 - (4 - クロロフェニル) - 7 - tert - ブチル - 3 - フェニルピレン 0.6 g、2 - メチルカルバゾール 0.37 g、tert - ブトキシナトリウム 0.17 g、(トリス - tert - ブチルホスフィン) テトラフルオロホウ酸塩 33 mg、ビス(ジベンジリデンアセトン) パラジウム(0) 74 mg と m - キシレン 20 ml の混合溶液をアルゴン気流下、140 で 5 時間加熱攪拌した。室温に冷却した後、セライトを用いてろ過した。ろ液をエバポレートし、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。真空乾燥後、白色結晶 0.44 g を得た。得られた粉末の ¹H - NMR 分析結果は次の通りであり、上記で得られた白色結晶が化合物[56]であることが確認された。

¹H - NMR (CDCl₃ (d=ppm)) : 1.42(s,9H), 2.35(s,3H), 7.00-8.30(m, 23H)

【0081】

尚、この化合物[56]は、実施例 1 と同様に昇華精製を行ってから発光素子材料として使用した。HPLC 純度(測定波長 254 nm における面積%)は昇華精製前が 99.4%、昇華精製後が 99.7%であった。

【0082】

実施例 1

化合物[21]を用いた発光素子を次のように作製した。ITO 透明導電膜を 150 nm

10

20

30

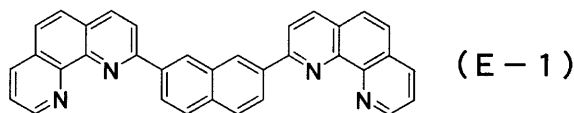
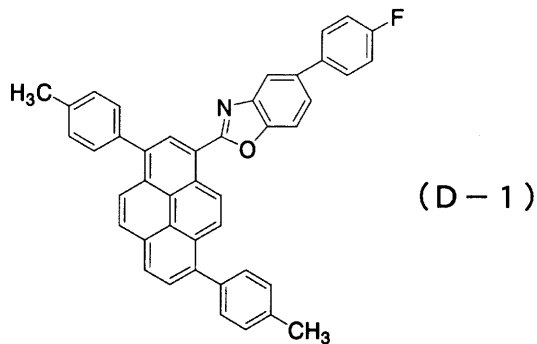
40

50

堆積させたガラス基板（旭硝子（株）製、15 / 、電子ビーム蒸着品）を30×40 mmに切断し、ITO導電膜をフォトリソグラフィ法によりパターン加工して、発光部分および電極引き出し部分を作製した。得られた基板をアセトン、“セミコクリン56”（商品名、フルウチ化学（株）製）で15分間超音波洗浄してから、超純水で洗浄した。続いて、イソプロピルアルコールで15分間超音波洗浄してから熱メタノールに15分間浸漬させて乾燥させた。素子を作製する直前にこの基板を1時間UV - オゾン処理し、さらに真空蒸着装置内に設置して、装置内の真空度が 5×10^{-4} Pa以下になるまで排気した。抵抗加熱法によって、まず正孔注入材料として、銅フタロシアニン（10 nm、正孔輸送材料として、4,4'-ビス（N - （1 - ナフチル） - N - フェニルアミノ）ピフェニルを50 nm蒸着した。次に、発光材料として、ホスト材料としては化合物〔21〕を、またドープ材料としては下記式に示すD - 1をドープ濃度が2%になるように35 nmの厚さに蒸着した。次に、電子輸送材料として、下記式に示すE - 1を20 nmの厚さに積層した。以上で形成した有機層上に、フッ化リチウムを0.5 nmの厚さに蒸着した後、アルミニウムを1000 nm蒸着して陰極とし、5×5 mm角の素子を作製した。ここで言う膜厚は、水晶発振式膜厚モニターの表示値である。この発光素子を10 mA / cm²で直流駆動したところ、発光効率5.91 m（ルーメン）/ Wの高効率青色発光が得られた。この発光素子を10 mA / cm²の直流で連続駆動したところ、輝度半減時間は4000時間であった。

【0083】

【化8】



【0084】

実施例 2 ~ 3

ホスト材料として表1に記載した材料を用いた以外は、実施例1と同様にして発光素子を作製した。各実施例の結果は表1に示した。

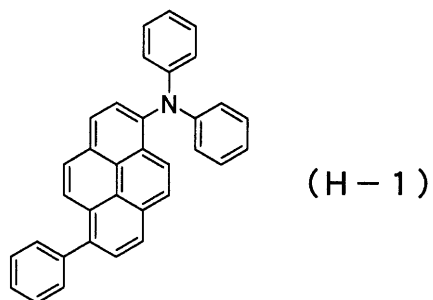
【0085】

比較例 1

ホスト材料として下記式に示すH - 1を用いた以外は、実施例4と同様にして発光素子を作製した。この発光素子を10 mA / cm²で直流駆動したところ、発光効率3.21 m / Wの青色発光が得られた。この発光素子を10 mA / cm²の直流で連続駆動したところ、500時間で輝度半減した。

【0086】

【化 9】



10

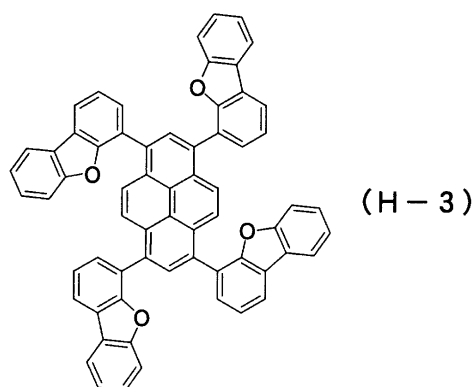
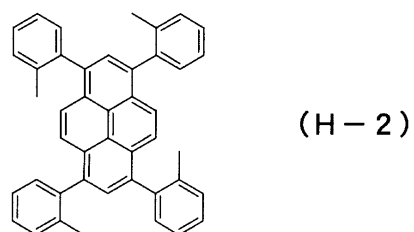
【 0 0 8 7 】

比較例 2 ~ 5

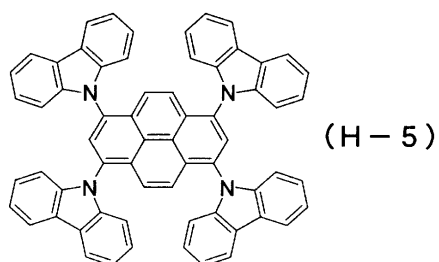
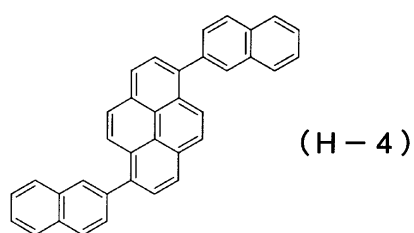
ホスト材料として表 1 に記載した材料を用いた以外は、実施例 4 と同様にして発光素子を作製した。各比較例の結果は表 1 に示した。なお表 1 の H - 2、H - 3、H - 4、H - 5 は下記式で表される化合物である。

【 0 0 8 8 】

【化 1 0】



20



30

【 0 0 8 9 】

【表 1】

表1

	発光層		電子輸送層	発光色	発光効率 (lm/W)	輝度半減時間 (h)
	ホスト材料	ドーパント材料				
実施例1	化合物[21]	D-1	E-1	青色	5.9	4000
実施例2	化合物[39]	D-1	E-1	青色	4.9	4500
実施例3	化合物[58]	D-1	E-1	青色	2.6	7500
比較例1	H-1	D-1	E-1	青色	3.2	500
比較例2	H-2	D-1	E-1	青色	2.8	300
比較例3	H-3	D-1	E-1	青色	3.0	400
比較例4	H-4	D-1	E-1	青色	2.8	350
比較例5	H-5	D-1	E-1	青色	3.2	350

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2006-151845(JP,A)
国際公開第2004/083162(WO,A1)
国際公開第2005/113531(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H01L 51/50-51/56
C09K 11/06
C07D 209/86
CA/REGISTRY(STN)