

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3949391号

(P3949391)

(45) 発行日 平成19年7月25日(2007.7.25)

(24) 登録日 平成19年4月27日(2007.4.27)

(51) Int. Cl.		F I		
CO9K	11/06	(2006.01)	CO9K	11/06 610
HO1L	51/50	(2006.01)	CO9K	11/06 660
			HO5B	33/14 B

請求項の数 1 (全 43 頁)

(21) 出願番号	特願2001-143414 (P2001-143414)	(73) 特許権者	306037311
(22) 出願日	平成13年5月14日(2001.5.14)		富士フイルム株式会社
(65) 公開番号	特開2002-338957 (P2002-338957A)		東京都港区西麻布2丁目26番30号
(43) 公開日	平成14年11月27日(2002.11.27)	(74) 代理人	100105647
審査請求日	平成17年10月5日(2005.10.5)		弁理士 小栗 昌平
		(74) 代理人	100105474
			弁理士 本多 弘徳
		(74) 代理人	100108589
			弁理士 市川 利光
		(74) 代理人	100115107
			弁理士 高松 猛
		(74) 代理人	100132986
			弁理士 矢澤 清純

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光素子

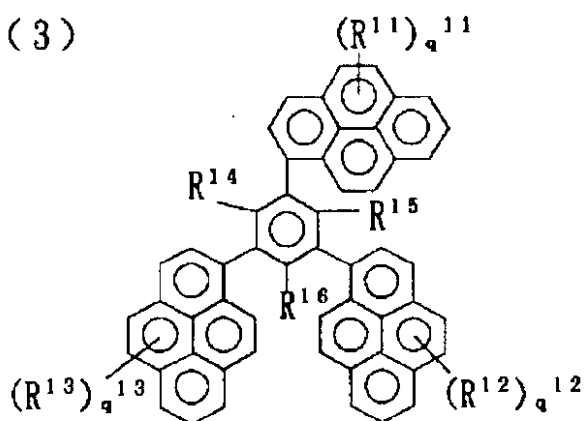
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、発光層中に下記一般式(3)で表される化合物及び一般式(4)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種と、一般式(9)又はその互変異性体で表される金属錯体及び一般式(10)又はその互変異性体で表される金属錯体から選ばれる少なくとも1種とを含むことを特徴とする発光素子。

【化1】

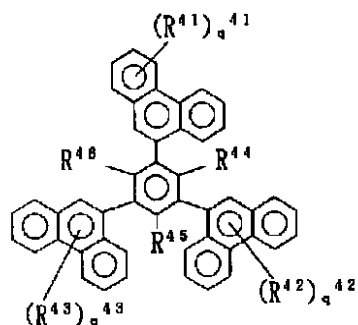
一般式(3)



(式中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} は置換基を表す。 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} は水素原子または置換基を表す。 q^{11} 、 q^{12} 、 q^{13} は0～9の整数を表す。)

【化2】

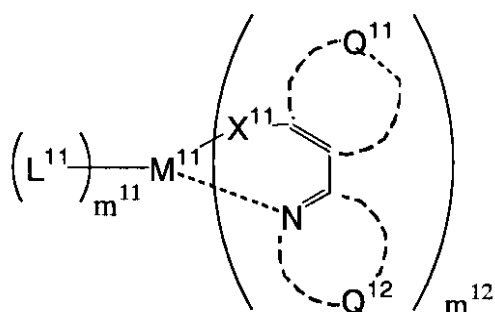
一般式(4)



(式中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 q^{41} 、 q^{42} 、 q^{43} は0～9の整数を表す。)

【化3】

一般式(9)



一般式(9)式中、 M^{11} は金属イオン、 L^{11} は配位子、 X^{11} は酸素原子、置換もしくは無置換の窒素原子(窒素原子上の置換基としては、 $-SO_2R^a$ 、 $-COR^b$ または $-P(=O)(R^c)(R^d)$ (R^a 、 R^b 、 R^c 、 R^d はそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはヘテロ環オキシ基を表す))、または硫黄原子を表す。 Q^{11} 、 Q^{12} は各々芳香環を形成する原子群、含窒素芳香環を形成する原子群を表す。 Q^{11} と Q^{12} が結合して縮環構造を取っても良い。 Q^{11} 、または Q^{12} で形成される環は置換基を有しても良い。 m^{11} 、 m^{12} は各々0～3の整数、1～4の

10

20

30

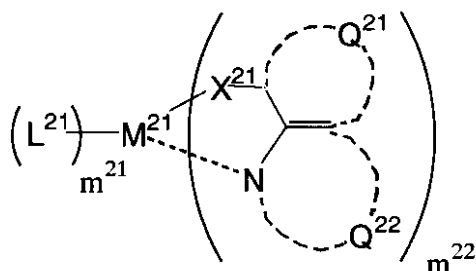
40

50

整数を表す。

【化 4】

一般式(10)



10

一般式(10)式中、 L^{21} 、 X^{21} は前記 L^{11} 、 X^{11} と同義であり、 m^{21} 、 m^{22} は各々 0 ~ 3 の整数、1 ~ 4 の整数を表す。 M^{21} は金属イオンを表す。 Q^{21} 、 Q^{22} は各々芳香環を形成する原子群、含窒素芳香環を形成する原子群を表す。 Q^{21} と Q^{22} が結合して縮環構造を取っても良い。 Q^{21} 、または Q^{22} で形成される環は置換基を有しても良い。

【発明の詳細な説明】

【0001】

20

【発明の属する技術分野】

本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる電界発光(EL)素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】

今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている(アプライドフィジックス レターズ, 51巻, 913頁, 1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(Alq)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料(アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

30

【0003】

近年、有機EL素子をフルカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されているが、高性能フルカラーディスプレイを開発する為には、青・緑・赤、それぞれの発光素子の特性を向上する必要がある。例えば、青色発光素子においては、「有機EL素子とその工業化最前線」(エヌ・ティー・エス社) p38 に記載のジスチリルアリーレン化合物(DPVBi)などが広範に検討されているが、色純度、耐久性、発光輝度、効率の点で問題があり、改良が望まれていた。

40

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、発光特性、耐久性が良好な発光素子の提供にある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題について検討の結果、下記手段により本発明に到達したものである。

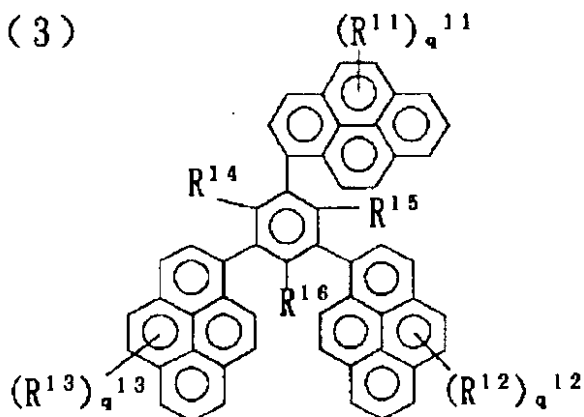
1. 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、発光層中に下記一般式(3)で表される化合物及び一般式(4)で表される化

50

化合物から選ばれる少なくとも1種と、一般式(9)又はその互変異性体で表される金属錯体及び一般式(10)又はその互変異性体で表される金属錯体から選ばれる少なくとも1種とを含むことを特徴とする発光素子。

【化1】

一般式(3)



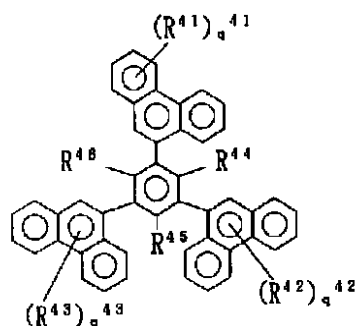
10

(式中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} は置換基を表す。 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} は水素原子または置換基を表す。 q^{11} 、 q^{12} 、 q^{13} は0~9の整数を表す。)

20

【化2】

一般式(4)



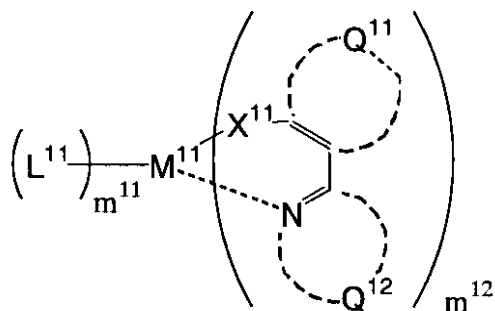
30

(式中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 q^{41} 、 q^{42} 、 q^{43} は0~9の整数を表す。)

)

【化3】

一般式(9)



40

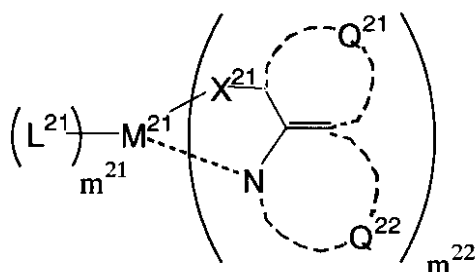
一般式(9)式中、 M^{11} は金属イオン、 L^{11} は配位子、 X^{11} は酸素原子、置換もしくは無置換の窒素原子(窒素原子上の置換基としては、 $-SO_2R^a$ 、 $-COR^b$ または $-P(=O)(R^c)(R^d)$ (R^a 、 R^b 、 R^c 、 R^d はそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリアル基、ヘテロ環基、アミノ基、アルコキシ基、アリアルオキシ基またはヘテロ環オキシ基を表す

50

))、または硫黄原子を表す。 Q^{11} 、 Q^{12} は各々芳香環を形成する原子群、含窒素芳香環を形成する原子群を表す。 Q^{11} と Q^{12} が結合して縮環構造を取っても良い。 Q^{11} 、または Q^{12} で形成される環は置換基を有しても良い。 m^{11} 、 m^{12} は各々0～3の整数、1～4の整数を表す。

【化4】

一般式(10)



10

一般式(10)式中、 L^{21} 、 X^{21} は前記 L^{11} 、 X^{11} と同義であり、 m^{21} 、 m^{22} は各々0～3の整数、1～4の整数を表す。 M^{21} は金属イオンを表す。 Q^{21} 、 Q^{22} は各々芳香環を形成する原子群、含窒素芳香環を形成する原子群を表す。 Q^{21} と Q^{22} が結合して縮環構造を取っても良い。 Q^{21} 、または Q^{22} で形成される環は置換基を有しても良い。

20

【0016】

【発明の実施の形態】

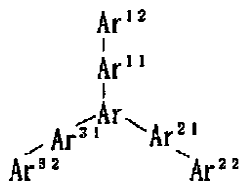
以下、本発明について詳細に説明する。本明細書において「～」はその前後に記載される数値を、それぞれ最小値および最大値として含む範囲を示す。

【0017】

本発明は、一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、発光層中に一般式(1)で表される化合物を少なくとも1種と、金属錯体とを少なくとも1種含むことを特徴とする発光素子に関する。

【化6】

一般式(1)



30

(式中、 Ar^{11} 、 Ar^{21} 、 Ar^{31} はアリーレン基を表し、 Ar^{12} 、 Ar^{22} 、 Ar^{32} は置換基または水素原子を表す。 Ar^{11} 、 Ar^{21} 、 Ar^{31} 、 Ar^{12} 、 Ar^{22} 、 Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造である。 Ar はアリーレン基またはヘテロアリーレン基を表す。)

【0018】

一般式(1)で表される化合物の発光層中の濃度は、それぞれ1質量%以上99質量%以下であることが好ましく、5質量%以上90質量%以下であることがより好ましく、10質量%以上80質量%以下であることがさらに好ましい。

40

【0019】

本発明の金属錯体の発光層中の濃度は、1質量%以上99質量%以下であることが好ましく、5質量%以上90質量%以下であることがより好ましく、10質量%以上80質量%以下であることがさらに好ましい。

【0020】

一般式(1)で表される化合物と金属錯体の発光層中の質量比は1:10～10:1が好ましく、1:5～5:1がより好ましく、1:2～2:1がさらに好ましい。

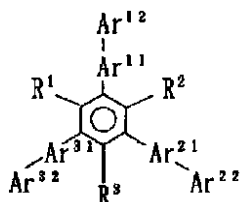
50

【0021】

本発明の発光素子は、一般式(1)で表される化合物の少なくとも1種が、一般式(2)で表される化合物であることが好ましく、一般式(1)で表される化合物の少なくとも1種が、一般式(3)で表される化合物であることがより好ましい。

【化7】

一般式(2)



(式中、 Ar^{11} 、 Ar^{21} 、 Ar^{31} はアリーレン基を表し、 Ar^{12} 、 Ar^{22} 、 Ar^{32} は置換基または水素原子を表す。 Ar^{11} 、 Ar^{21} 、 Ar^{31} 、 Ar^{12} 、 Ar^{22} 、 Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリーレン構造または縮環ヘテロアリーレン構造である。 R^1 、 R^2 、 R^3 は水素原子または置換基を表す。)

【0022】

一般式(1)について説明する。 Ar^{11} 、 Ar^{21} 、 Ar^{31} はアリーレン基を表す。アリーレン基の炭素数は6~30が好ましく、6~20がより好ましく、6~16がさらに好ましい。アリーレン基としては、例えば、フェニレン基、ナフチレン基、アンスリレン基、フェナントレニレン基、ピレニレン基、ペリレニレン基、フルオレニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ルブレニレン基、クリセニレン基、トリフェニレニレン基、ベンゾアンスリレン基、ベンゾフェナントレニレン基、ジフェニルアンスリレン基などが挙げられ、これらのアリーレン基はさらに置換基を有していても良い。

【0023】

アリーレン基上の置換基としては、例えば、アルキル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、*iso*-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリーール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリーールオキシ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、ヘテロアリーールオキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルオキシ、ピラジルオキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、

【0024】

アシル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキ

シカルボニルなどが挙げられる。)、アリアルオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリアルオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリアルチオ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、

10

20

【0025】

ヘテロアリアルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル基、アゼピニル基などが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。

30

40

【0026】

前記 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} は、好ましくはフェニレン基、ナフチレン基、アンスリレン基、フェナントレニレン基、ピフェニレン基、4環以上のアリーレン基(例えばピレニレン基、ペリレニレン基)であり、より好ましくは、フェニレン基、ナフチレン基、フェナントレニレン基、4環以上のアリーレン基であり、さらに好ましくは、フェニレン基、フェナ

50

ントリレン基、ピレニレン基であり、特に好ましくは、ピレニレン基である。

【0027】

前記 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} は、置換基または水素原子を表す。置換基としては、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} として好ましくは水素原子、アリール基、ヘテロアリール基、アルキル基、アルケニル基であり、より好ましくは、水素原子、アリール基、ヘテロアリール基であり、さらに好ましくは水素原子、アリール基であり、特に好ましくは、水素原子、ビレニル基である。

【0028】

前記 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つは縮環アリール構造、または縮環ヘテロアリール構造である。 Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つが縮環アリール構造であることが好ましい。 10

【0029】

前記縮環アリール構造としては、好ましくは、ナフタレン構造、アントラセン構造、フェナントレン構造、ピレン構造、ペリレン構造、より好ましくは、ナフタレン構造、アントラセン構造、ピレン構造、フェナントレン構造であり、さらに好ましくは、フェナントレン構造、4環以上のアリール構造であり、特に好ましくは、ピレン構造である。

【0030】

前記縮環ヘテロアリール構造としては、好ましくは、キノリン構造、キノキサリン構造、キナゾリン構造、アクリジン構造、フェナントリジン構造、フタラジン構造、フェナントロリン構造であり、より好ましくは、キノリン構造、キノキサリン構造、キナゾリン構造、フタラジン構造、フェナントロリン構造である。 20

【0031】

前記 Ar は、3価の基であるアリーレン基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは炭素数6～16、例えばフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、フェナントレン基、ピレニレン基、トリフェニレン基などが挙げられる。）、ヘテロアリーレン基（ヘテロ原子として好ましくは窒素原子、硫黄原子、酸素原子、より好ましくは窒素原子、好ましくは炭素数2～30より好ましくは炭素数3～20、さらに好ましくは炭素数3～16、例えばピリジレン基、ピラジレン基、チオフェニレン基、キノリレン基、キノキサリレン基、トリアジレン基などが挙げられる）を表し、これらの基は置換基を有していても良い。置換基としては例えば、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 30

Ar は、各々3価の基である、フェニレン基（ベンゼントリイル）、ナフチレン基（ナフタレントリイル）、アントラセニレン基（アントラセントリイル）、ピレニレン基（ピレントリイル）、トリフェニレン基であることが好ましく、フェニレン基であることがより好ましく、無置換（ Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} は置換されている）フェニレン基、アルキル置換フェニレン基であることがさらに好ましい。

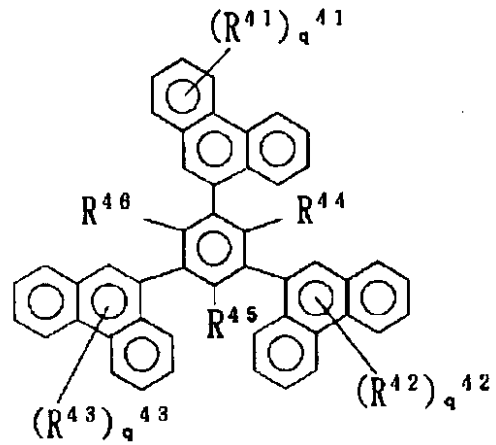
【0032】

一般式(1)で表される化合物の好ましい形態は、一般式(2)で表される化合物、下記一般式(6)で表される化合物であり、より好ましい形態は、一般式(3)で表される化合物、下記一般式(4)で表される化合物、下記一般式(5)で表される化合物、下記一般式(7)で表される化合物、下記一般式(8)で表される化合物であり、さらに好ましい形態は一般式(3)で表される化合物である。また、本発明の化合物は、炭素原子、水素原子のみから構成されている化合物が好ましい。 40

【0033】

【化11】

一般式 (4)

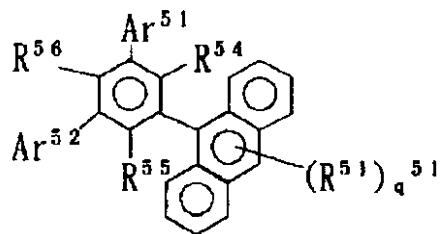


10

【0034】

【化12】

一般式 (5)



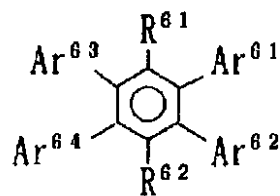
20

【0035】

【化13】

30

一般式 (6)

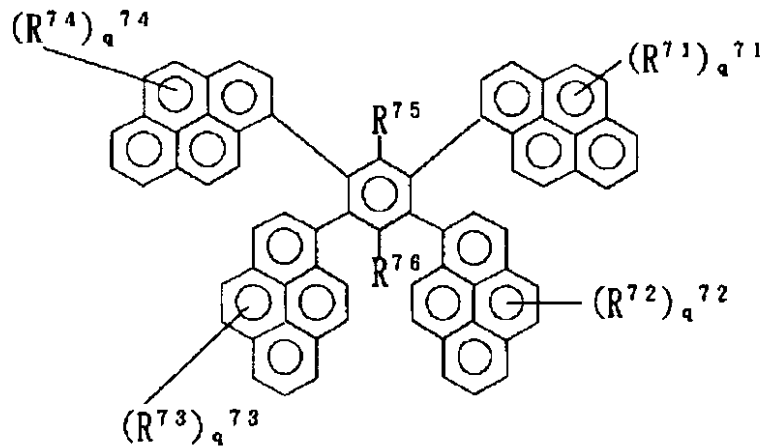


40

【0036】

【化14】

一般式 (7)

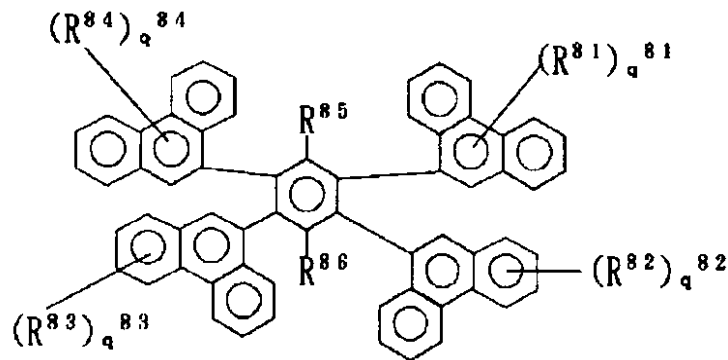


10

【0037】

【化15】

一般式 (8)



20

30

【0038】

一般式 (2) について説明する。一般式 (2) の Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} は一般式 (1) で説明した Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} とそれぞれ同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^1 , R^2 , R^3 は水素原子または置換基を表す。置換基としては、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 R^1 , R^2 , R^3 は好ましくは水素原子、アルキル基、アリアル基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基である。

【0039】

一般式 (1), (2) で表される化合物は Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} , Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} の少なくとも一つがフェナントレン構造、4環以上の縮環アリアル構造または3環以上の縮環ヘテロアリアル構造の化合物が好ましく、フェナントレン構造、ピレン構造がより好ましい。

また、一般式 (1), (2) で表される化合物は Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} が縮環アリアル基または水素原子である化合物が好ましく、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} が3環以上の縮環アリアル基または水素原子であることがより好ましく、 Ar^{12} , Ar^{22} , Ar^{32} がフェナントレン構造、4環以上の縮環アリアル構造、水素原子であることが更に好ましい。また、一般式 (1), (2) で表される化合物は Ar^{11} , Ar^{21} , Ar^{31} がフェナントリレン基または4環以上の縮環アリアル基である化合物が好ましい。

40

50

【0040】

一般式(1)、(2)で表される化合物は、炭素原子、水素原子のみから構成されている化合物が好ましい。

【0041】

一般式(3)について説明する。 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} は置換基を表す。置換基としては、前記 Ar^{11} 上の置換基で説明した基が挙げられる。 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} は好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基であり、より好ましくは、アルキル基、アリール基であり、さらに好ましくは、アリール基である。

【0042】

q^{11} 、 q^{12} 、 q^{13} は0~9の整数を表す。 q^{11} 、 q^{12} 、 q^{13} は好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0、1である。 10

【0043】

R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。

【0044】

一般式(4)について説明する。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 q^{41} 、 q^{42} 、 q^{43} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0、1である。

【0045】

一般式(5)について説明する。 R^{51} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。 Ar^{51} はアンシリル基、フェナントリル基、ピレニル基を表し、 Ar^{52} はフェナントリル基、ピレニル基を表す。 Ar^{51} はフェナントリル基、ピレニル基が好ましく、ピレニル基がより好ましい。 Ar^{52} はピレニル基が好ましい。 q^{51} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0、1である。 20

【0046】

一般式(6)について説明する。 R^{61} 、 R^{62} は前記 R^1 と同義であり、好ましい範囲も同じである。 Ar^{61} 、 Ar^{62} 、 Ar^{63} 、 Ar^{64} は縮環アリール基を表し、好ましくはフェナントリル基、4環以上のアリール基であり、より好ましくは、フェナントリル基、ピレニル基である。 30

【0047】

一般式(7)について説明する。 R^{71} 、 R^{72} 、 R^{73} 、 R^{74} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{75} 、 R^{76} は前記 R^1 と同じであり、好ましい範囲も同じである。 q^{71} 、 q^{72} 、 q^{73} 、 q^{74} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0、1である。

【0048】

一般式(8)について説明する。 R^{81} 、 R^{82} 、 R^{83} 、 R^{84} は前記 R^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{85} 、 R^{86} は前記 R^1 と同じであり、好ましい範囲も同じである。 q^{81} 、 q^{82} 、 q^{83} 、 q^{84} は0~9の整数を表し、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、さらに好ましくは0、1である。 40

【0049】

本発明の発光素子は、フェナンスレン構造を有する一般式(1)で表される化合物、およびピレン構造を有する一般式(1)で表される化合物を有する形態が好ましく、そのうちの少なくとも1種は、一般式(3)で表される化合物、および一般式(4)で表される化合物を含む形態がより好ましい。

【0050】

本発明では、発光層中に一般式(1)で表される化合物を少なくとも1種含むが、そのうちの少なくとも1種は一般式(2)~(8)で表される化合物を含有してよい。一般式(2)~(8)で表される化合物の発光層中の濃度はそれぞれ1質量%以上99質量%以下であることが好ましく、3質量%以上97質量%以下であることがより好ましく、5質量 50

%以上95質量%以下であることがさらに好ましい。

【0051】

本発明の一般式(1)~(8)で表される化合物は低分子化合物であつても良く、また、オリゴマー化合物、ポリマー化合物(重量平均分子量(ポリスチレン換算)は好ましくは1000~5000000、より好ましくは2000~1000000、さらに好ましくは3000~100000である。)であつても良い。

ポリマー化合物の場合、一般式(1)~(8)で表される構造がポリマー主鎖中に含まれても良く、また、ポリマー側鎖に含まれていても良い。また、ポリマー化合物の場合、ホモポリマー化合物であつても良く、共重合体であつても良い。本発明の化合物は低分子化合物が好ましい。

10

【0052】

本発明の一般式(1)~(8)で表される化合物は、その蛍光スペクトルのmax(最大発光波長)が400~500nmであることが好ましく、400~480nmであることがより好ましく、400~460nmであることがさらに好ましい。

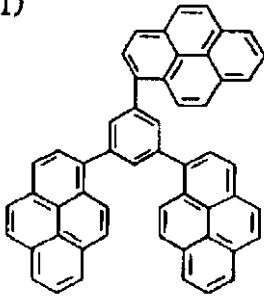
【0053】

次に本発明の一般式(1)~(8)で表される化合物の化合物例を示すが、本発明はこれに限定されない。

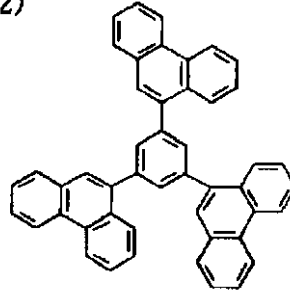
【0054】

【化16】

(1-1)

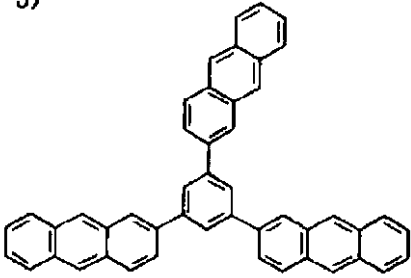


(1-2)

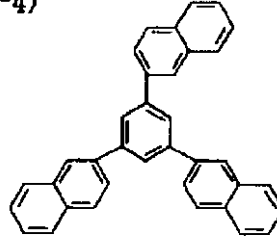


10

(1-3)

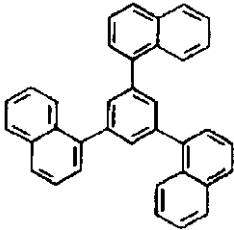


(1-4)

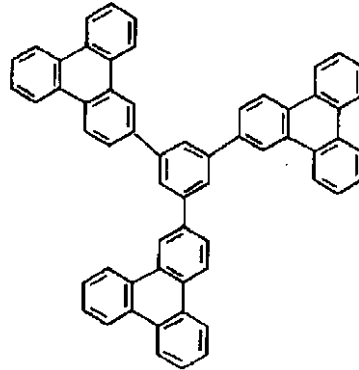


20

(1-5)

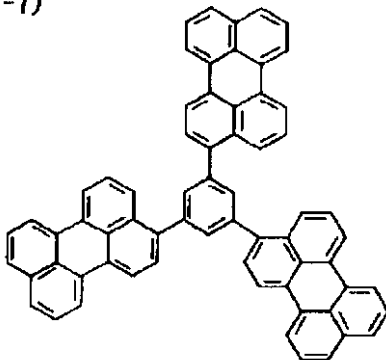


(1-6)

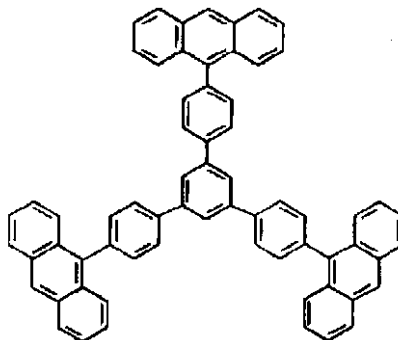


30

(1-7)



(1-8)

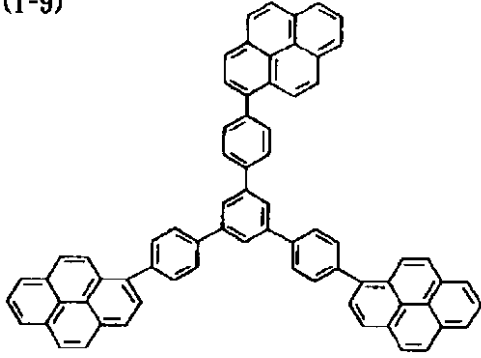


40

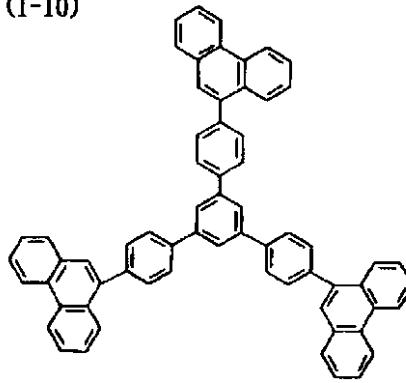
【 0 0 5 5 】

【 化 1 7 】

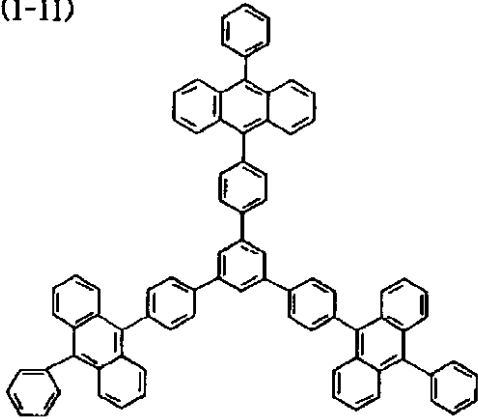
(1-9)



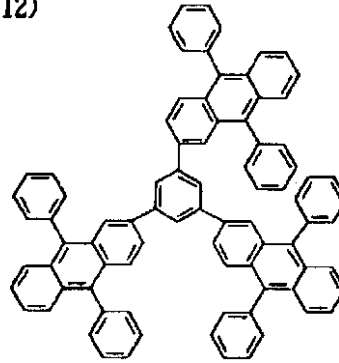
(1-10)



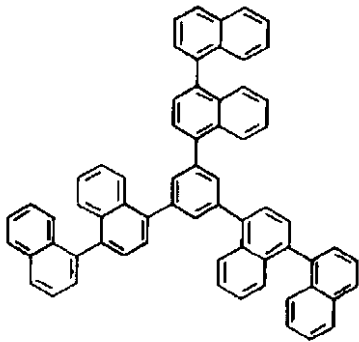
(1-11)



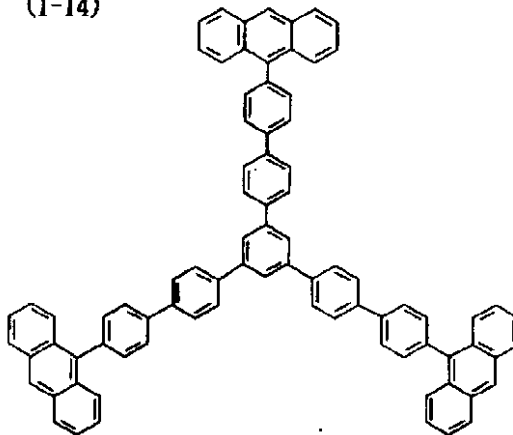
(1-12)



(1-13)



(1-14)



【 0 0 5 6 】
【 化 1 8 】

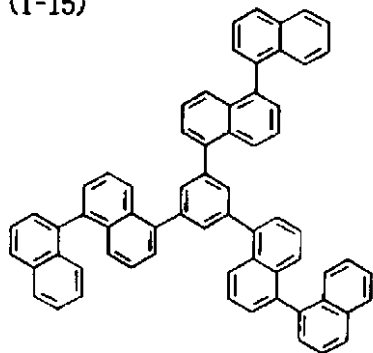
10

20

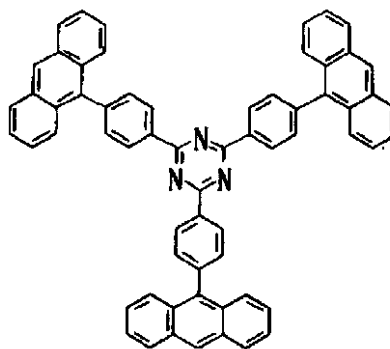
30

40

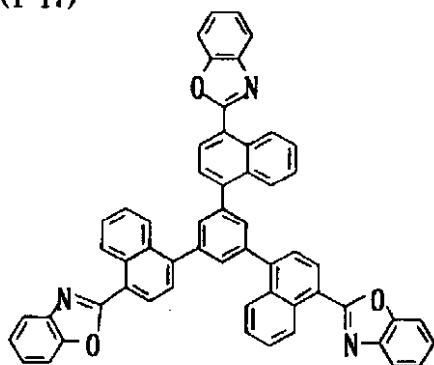
(1-15)



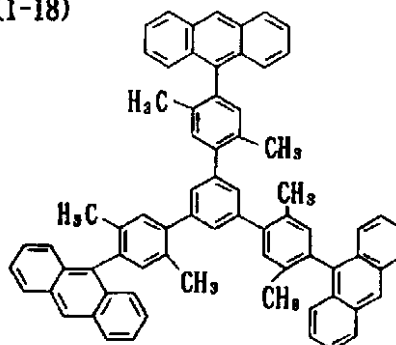
(1-16)



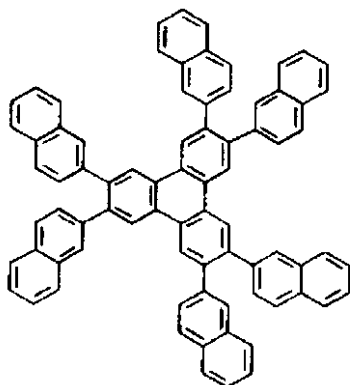
(1-17)



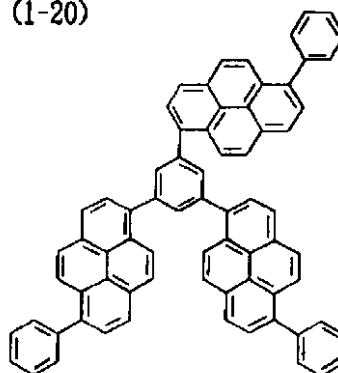
(1-18)



(1-19)



(1-20)



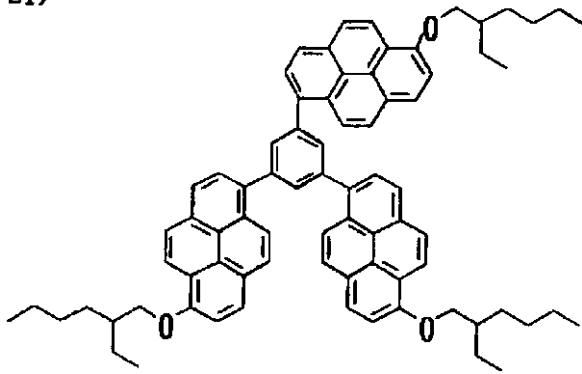
10

20

30

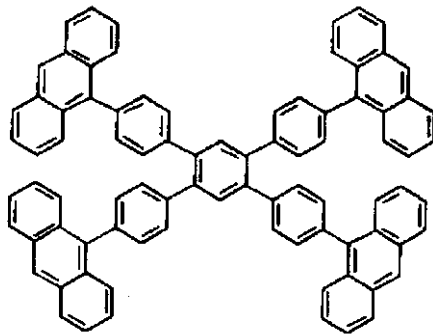
【 0 0 5 7 】
【 化 1 9 】

(1-21)



10

(1-22)

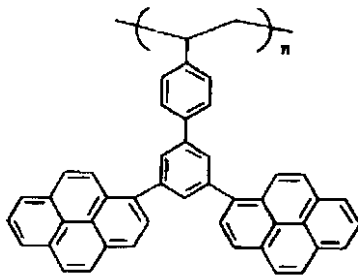


20

【 0 0 5 8 】

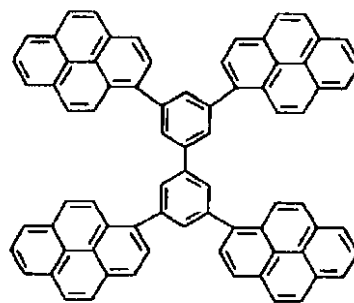
【 化 2 0 】

(1-23)



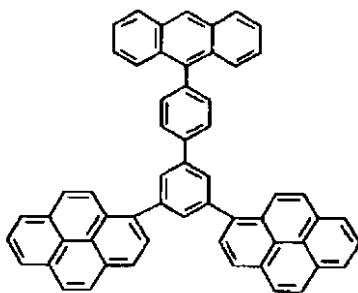
ポリスチレン換算分子量Mw=4200

(1-24)

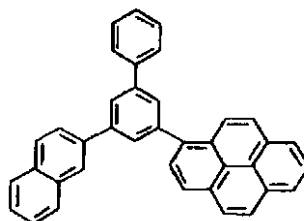


30

(1-25)



(1-26)



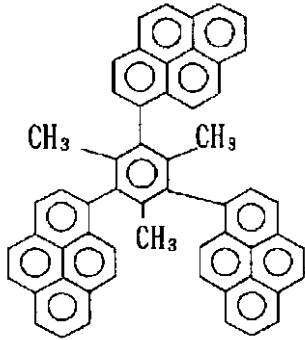
40

【 0 0 5 9 】

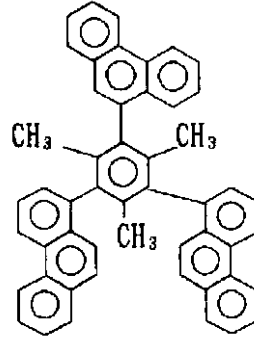
50

【化 2 1】

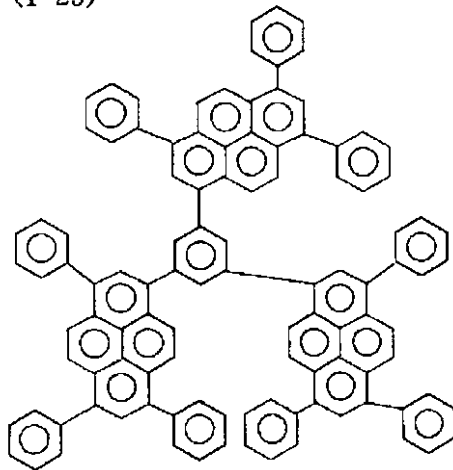
(1-27)



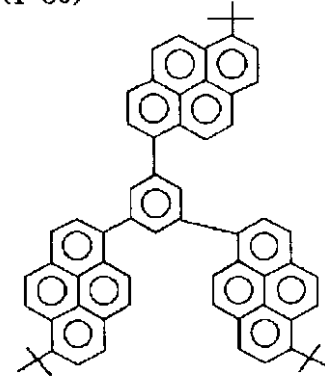
(1-28)



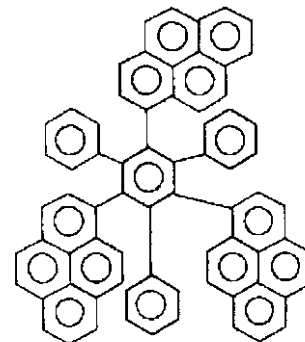
(1-29)



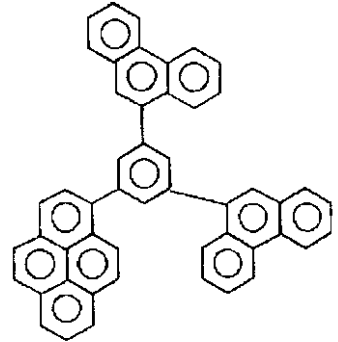
(1-30)



(1-31)



(1-32)



【 0 0 6 0 】

【化 2 2】

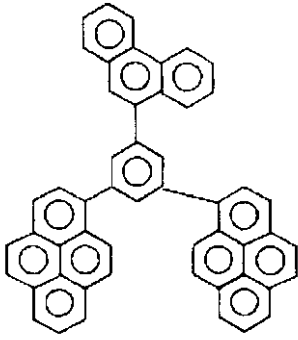
10

20

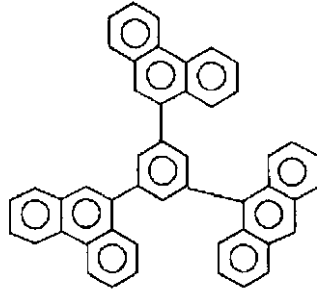
30

40

(1-33)

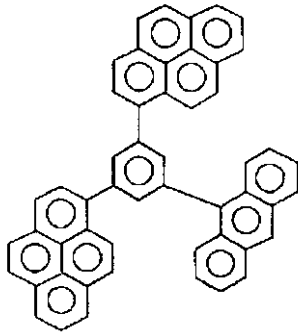


(1-34)

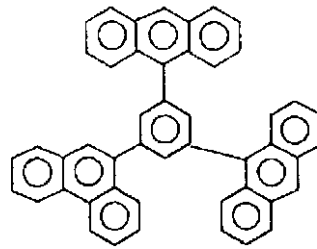


10

(1-35)

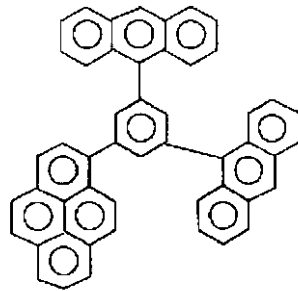


(1-36)

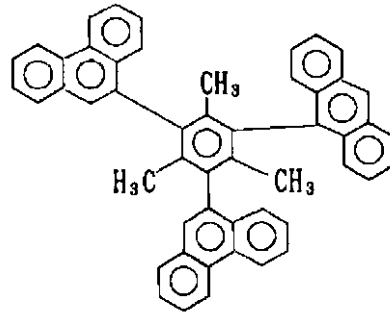


20

(1-37)

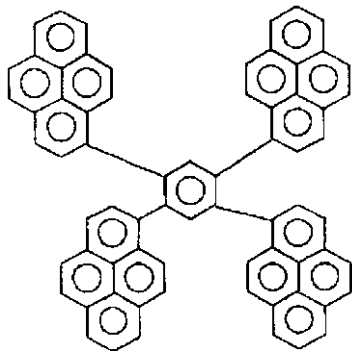


(1-38)

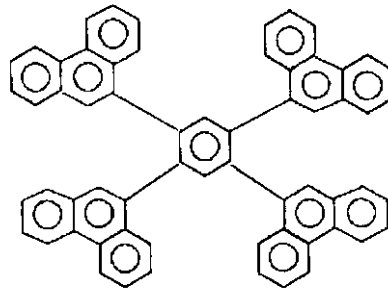


30

(1-39)



(1-40)

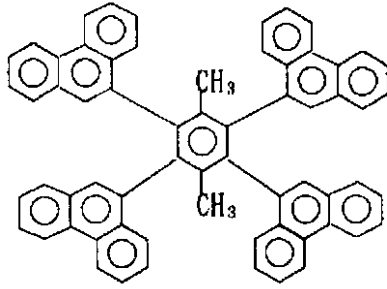


40

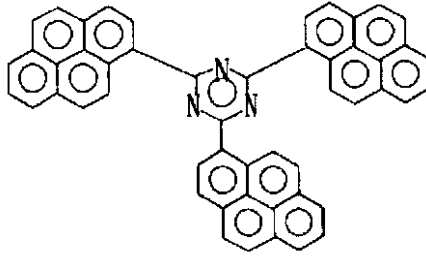
【 0 0 6 1 】

【 化 2 3 】

(1-41)

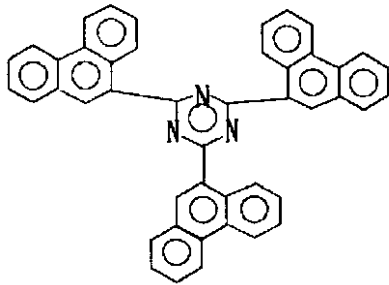


(1-42)

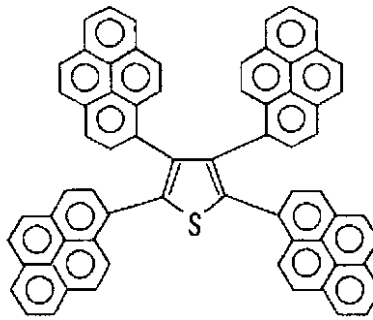


10

(1-43)



(1-44)

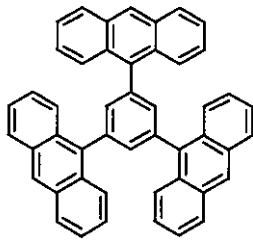


20

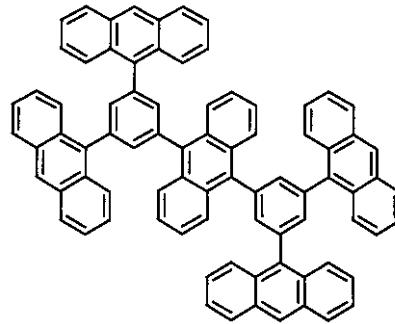
【 0 0 6 2 】

【 化 2 4 】

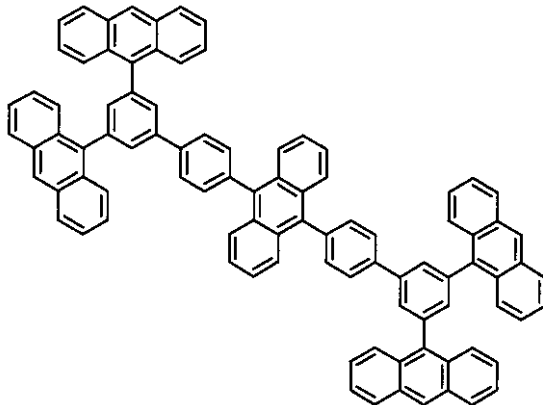
(1-45)



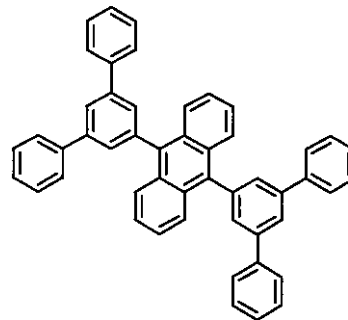
(1-46)



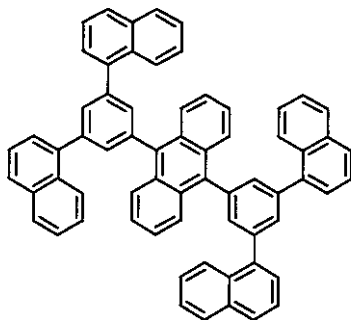
(1-47)



(1-48)



(1-49)



【 0 0 6 3 】

本発明の化合物（一般式（1）～（8）で表される化合物）の製造方法について述べる。本発明の化合物は、種々の公知の芳香族炭素炭素結合生成反応を利用して合成可能であり、例えば、Organic Synthesis Reaction Guide（John Wiley & Sons, Inc.社）p.617～p.643、及び、Comprehensive Organic Transformation（VCH社）p.5～p.103などに記載されている手法を利用して合成することができる。パラジウム触媒存在下炭素炭素結合を生成する合成法が好ましく、ホウ酸誘導体とアリールハライド誘導体をパラジウム触媒存在下合成する手法がさらに好ましい。

【 0 0 6 4 】

ホウ酸誘導体としては、置換または無置換のアリールホウ酸誘導体（例えば、1,4-フェニルジホウ酸、4,4'-ビフェニルジホウ酸、ピレンホウ酸誘導体、フェナントレンホウ酸誘導体等が挙げられる）、ヘテロアリールホウ酸誘導体（例えばピリジルジホウ酸などが挙げられる）などが挙げられる。

【 0 0 6 5 】

アリールハライド誘導体のハロゲン原子は、好ましくは塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子

10

20

30

40

50

であり、より好ましくは、臭素原子、ヨウ素原子であり、特に好ましくは臭素原子である。

【0066】

パラジウム触媒としては、特に限定しないが、例えば、パラジウムテトラキストリフェニルホスフィン、パラジウムカーボン、酢酸パラジウム、パラジウムジクロライド (dppf) (dppf: 1, 1'-ビスジフェニルホスフィノフェロセン) などが挙げられる。トリフェニルホスフィンなどの配位子を同時に添加しても良い。

【0067】

本反応は、塩基を用いた方が好ましい。用いる塩基の種類は特に限定しないが、例えば、炭酸ナトリウム、酢酸ナトリウム、トリエチルアミンなどが挙げられる。用いる塩基の量は特に限定しないが、ホウ酸 (エステル) 部位に対して、好ましくは 0.1 ~ 20 当量、特に好ましくは 1 ~ 10 当量である。

【0068】

本反応は溶媒を用いた方が好ましい。用いる溶媒は特に限定しないが、例えば、エタノール、水、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジメチルホルムアミド、トルエン、テトラヒドロフラン及びそれらの混合溶媒を用いることができる。

【0069】

本発明の発光素子に含まれる金属錯体について説明する。金属錯体中の金属イオンは特に限定されないが、好ましくはベリリウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムイオン、ガリウムイオン、亜鉛イオンであり、より好ましくはベリリウムイオン、アルミニウムイオン、亜鉛イオンであり、更に好ましくは亜鉛イオンである。

【0070】

前記金属錯体中に含まれる配位子としては種々の公知の配位子が有るが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag社 H.Yersin 著 1987年発行、「有機金属化学 - 基礎と応用 - 」裳華房社 山本明夫著 1982年発行 等に記載の配位子が挙げられる。

【0071】

前記配位子として、好ましくは含窒素ヘテロ環配位子 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 3 ~ 15 であり、単座配位子であっても 2 座以上の配位子であっても良い。好ましくは 2 座配位子である。例えばピリジン配位子、ピピリジル配位子、キノリノール配位子、ヒドロキシフェニルアゾール配位子 (ヒドロキシフェニルベンズイミダゾール、ヒドロキシフェニルベンズオキサゾール配位子、ヒドロキシフェニルイミダゾール配位子) などが挙げられる)、アルコキシ配位子 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 10 であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2 - エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリーールオキシ配位子 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニルオキシ、1 - ナフチルオキシ、2 - ナフチルオキシ、2, 4, 6 - トリメチルフェニルオキシ、4 - ビフェニルオキシなどが挙げられる。)、

【0072】

ヘテロアリーールオキシ配位子 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルオキシ、ピラジルオキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、アルキルチオ配位子 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリーールチオ配位子 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロアリーールチオ配位子 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルチオ、2 - ベンズイミゾリルチオ、2 - ベンズオキサゾリルチオ、2

10

20

30

40

50

- ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、シロキシ配位子(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数3~25、特に好ましくは炭素数6~20であり、例えば、トリフェニルシロキシ基、トリエトキシシロキシ基、トリイソプロピルシロキシ基などが挙げられる)であり、より好ましくは含窒素ヘテロ環配位子、アリールオキシ配位子、ヘテロアリールオキシ基、シロキシ配位子であり、更に好ましくは含窒素ヘテロ環配位子、アリールオキシ配位子、シロキシ配位子が挙げられる。

【0073】

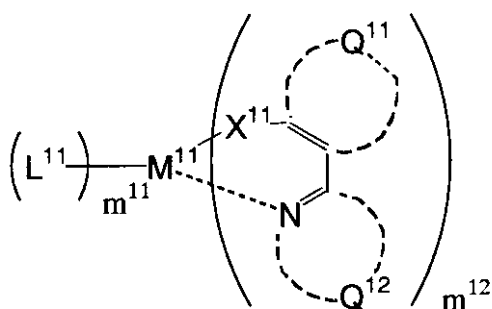
本発明の発光素子の発光層中に含まれる金属錯体は、下記一般式(9)、並びに下記一般式(10)で表される化合物およびその互変異性体が好ましく、より好ましくは一般式(9)で表される化合物およびその互変異性体である。

10

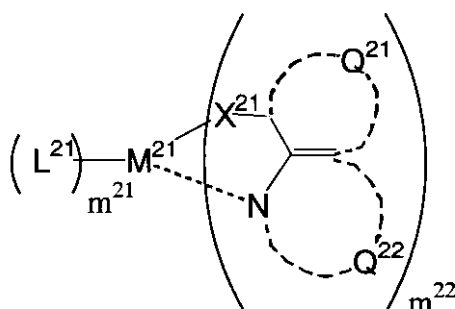
【0074】

【化25】

一般式(9)



一般式(10)



20

【0075】

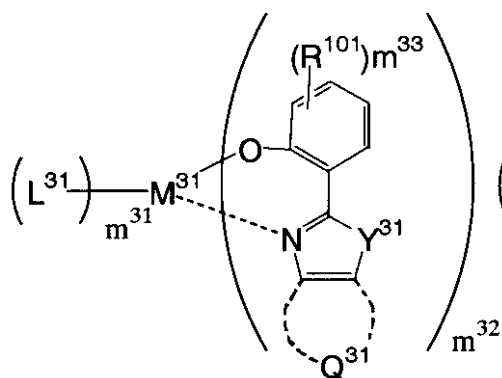
前記一般式(9)~(10)で表される化合物は、下記一般式(11)~(13)で表される化合物およびその互変異性体がより好ましく、一般式(11)で表される化合物およびその互変異性体がさらに好ましい。

【0076】

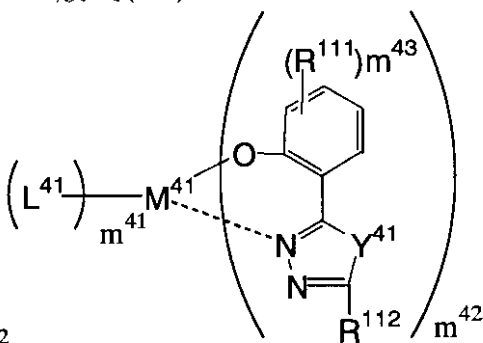
【化26】

30

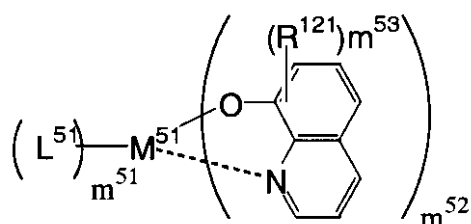
一般式(11)



一般式(12)



一般式(13)



10

20

【0077】

一般式(9)について説明する。M¹¹は金属イオンを表す。金属イオンとして好ましくは、ベリリウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムイオン、ガリウムイオン、亜鉛イオンであり、より好ましくはベリリウムイオン、アルミニウムイオン、亜鉛イオンであり、更に好ましくは亜鉛イオンである。

【0078】

L¹¹は配位子を表す。配位子としては、前記金属錯体中に含まれる配位子で説明した配位子が挙げられ、好ましい範囲も同じである。X¹¹は酸素原子、置換もしくは無置換の窒素原子、または硫黄原子であり、酸素原子がより好ましい。窒素原子上の置換基としては、
-SO₂R^a、-COR^bまたは-P(=O)(R^c)(R^d)(R^a、R^b、R^c、R^dはそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはヘテロ環オキシ基を表す。)が好ましく、-SO₂R^aがより好ましい。

30

【0079】

Q¹¹は芳香環を形成する原子群を表す。Q¹¹とQ¹²が結合して縮環構造を取っても良い。Q¹¹で形成される芳香族環は、芳香族炭化水素、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、例えばベンゼン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、プリミジン、ピリダジン、チアゾール、イソチアゾール、オキサゾール、イソオキサゾールなどが挙げられ、好ましくはベンゼン、ピリジンであり、より好ましくはベンゼンである。

【0080】

Q¹¹で形成される環は、置換基を有しても良く、置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

40

【0081】

50

Q^{12} は含窒素芳香環を形成する原子群を表し、好ましくは炭素数 3 ~ 30、より好ましくは炭素数 3 ~ 20、さらに好ましくは炭素数 3 ~ 15、特に好ましくは炭素数 4 ~ 10 である。

Q^{12} で形成される含窒素芳香環としては、例えばピリジン、キノリン、ピラジン、ピリダジン、イソキノリン、キノキサリン、ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、インドレニンプラゾール、オキサジアゾール、ピラゾロトリアゾール、イソオキサゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ピロロトリアゾール、イミダゾトリアゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、キノリン、ピラジン、ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾイミダゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、ピラゾロトリアゾール、ピロロトリアゾール、チアジアゾールであり、より好ましくはベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、オキサジアゾールである。

10

【0082】

Q^{12} は置換基を有していても良く、置換基としては前記 Q^{11} で説明した基が挙げられる。

【0083】

m^{11} は 0 ~ 3 の整数を表し、0, 1 が好ましく、0 がより好ましい。 m^{12} は 1 ~ 4 の整数を表し、1 ~ 3 が好ましく、2, 3 がより好ましい。

【0084】

一般式 (10) について説明する。 L^{21} 、 X^{21} は前記 L^{11} 、 X^{11} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 m^{21} は 0 ~ 3 の整数を表し、0, 1 が好ましい。 m^{22} は 1 ~ 4 の整数を表し、1 ~ 3 が好ましい。

20

【0085】

M^{21} は金属イオンを表す。金属イオンとして好ましくは、ベリリウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムイオン、ガリウムイオン、亜鉛イオンであり、より好ましくはベリリウムイオン、アルミニウムイオン、亜鉛イオンであり、更に好ましくはアルミニウムイオンである。

【0086】

Q^{21} は芳香環を形成する原子群を表す。 Q^{21} と Q^{22} が結合して縮環構造を取っても良い。 Q^{21} で形成される芳香族環は、芳香族炭化水素、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、好ましくはベンゼン、ピリジンであり、より好ましくはベンゼンである。

【0087】

30

Q^{22} は含窒素芳香環を形成する原子群を表し、好ましくは炭素数 3 ~ 30、より好ましくは炭素数 3 ~ 20、さらに好ましくは炭素数 3 ~ 15、特に好ましくは炭素数 4 ~ 10 である。 Q^{22} で形成される含窒素芳香環として好ましくはピリジン、ピラジンであり、より好ましくはピリジンである。

【0088】

前記 Q^{21} 、 Q^{22} は各々置換基を有しても良く、置換基としては前記 Q^{11} で説明した基が挙げられる。

【0089】

一般式 (11) について説明する。 L^{31} 、 M^{31} 、 m^{31} 、 m^{32} は前記 L^{11} 、 M^{11} 、 m^{11} 、 m^{12} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{101} は置換基を表し、好ましくはアルキル基である。 m^{33} は 0 ~ 4 の整数を表し、0, 1 が好ましい。

40

【0090】

Y^{31} は酸素原子、硫黄原子、セレン原子、置換または無置換の窒素原子を表し、酸素原子、置換または無置換の窒素原子が好ましい。窒素原子上の置換基としてはアルキル基、アリアル基が好ましい。

【0091】

Q^{31} は芳香環を形成する原子群を表す。 Q^{31} で形成される芳香族環は芳香族炭化水素、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、好ましくはベンゼン、ピリジンである。

【0092】

一般式 (12) について説明する。 L^{41} 、 M^{41} 、 R^{111} 、 Y^{41} 、 m^{41} 、 m^{42} 、 m^{43} は前

50

記 L^{11} 、 M^{11} 、 R^{101} 、 Y^{31} 、 m^{11} 、 m^{12} 、 m^{33} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 R^{112} は置換基を表し、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基が好ましく、アルキル基、アリール基がより好ましい。

【0093】

一般式(13)について説明する。 L^{51} 、 M^{51} 、 R^{121} 、 m^{51} 、 m^{52} は前記 L^{21} 、 M^{21} 、 R^{101} 、 m^{21} 、 m^{22} と同義であり、好ましい範囲も同じである。 m^{53} は0～6の整数を表し、0、1が好ましい。

【0094】

本発明の発光素子に含まれる金属錯体のガラス転移点は、好ましくは80以上であり、より好ましくは100以上であり、さらに好ましくは120以上である。

10

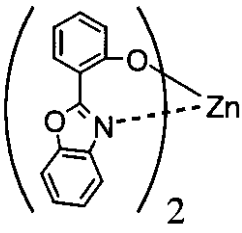
【0095】

以下に、本発明の発光素子に含まれる金属錯体の具体的化合物例を示すが、本発明はこれに限定されない。

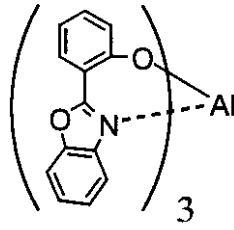
【0096】

【化27】

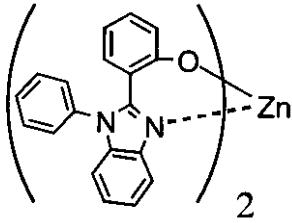
(2-1)



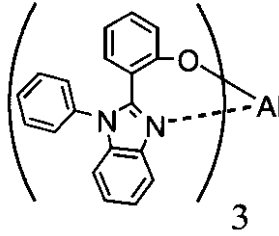
(2-2)



(2-3)

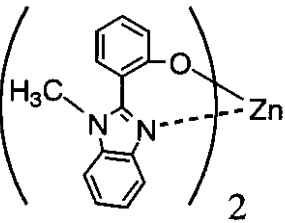


(2-4)

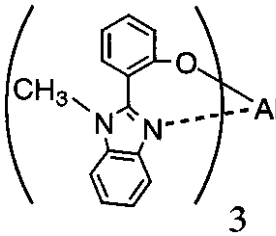


10

(2-5)

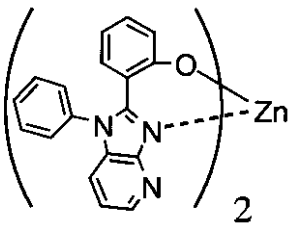


(2-6)

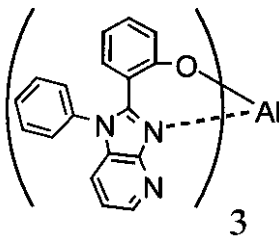


20

(2-7)

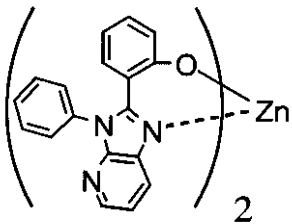


(2-8)

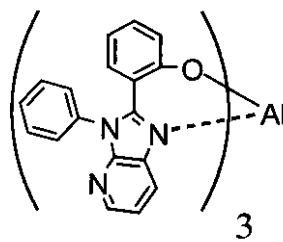


30

(2-9)



(2-10)

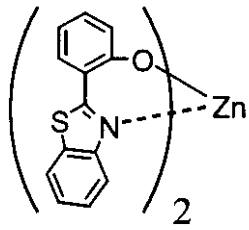


40

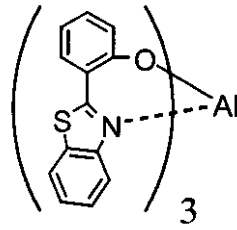
【 0 0 9 7 】

【 化 2 8 】

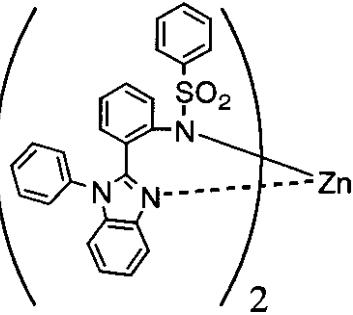
(2-11)



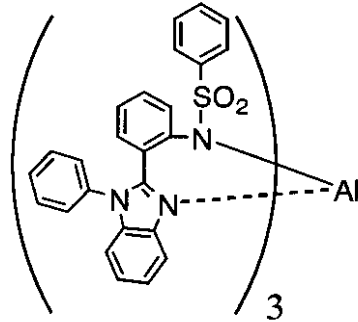
(2-12)



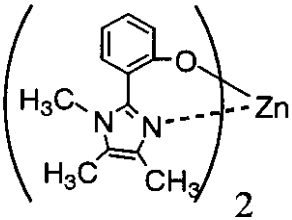
(2-13)



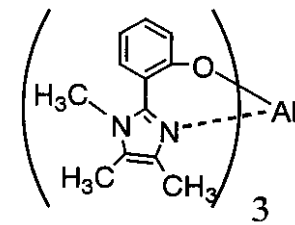
(2-14)



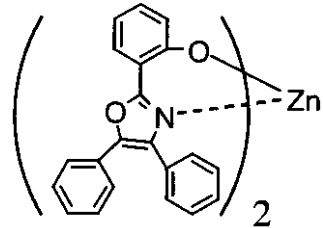
(2-15)



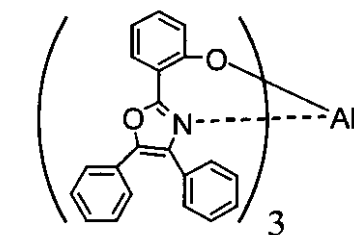
(2-16)



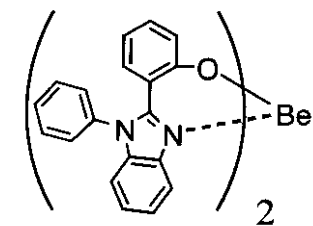
(2-17)



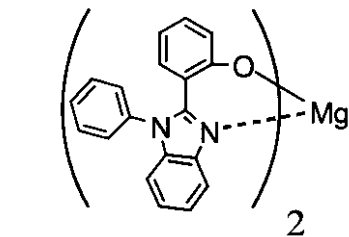
(2-18)



(2-19)



(2-20)



【 0 0 9 8 】

【 化 2 9 】

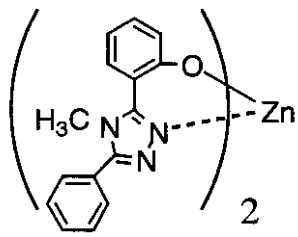
10

20

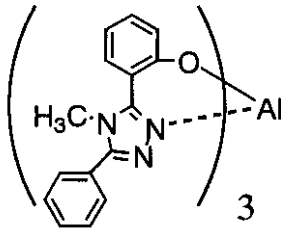
30

40

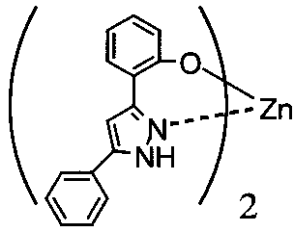
(2-21)



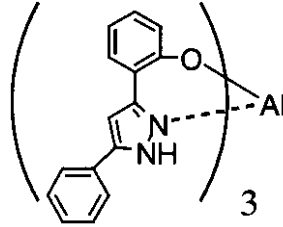
(2-22)



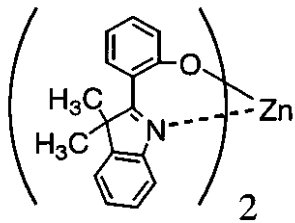
(2-23)



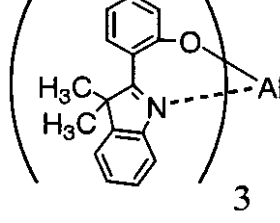
(2-24)



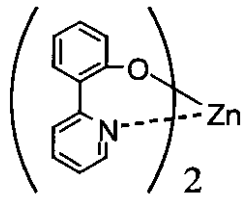
(2-25)



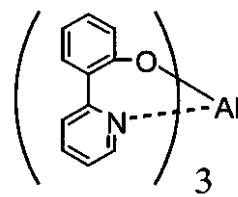
(2-26)



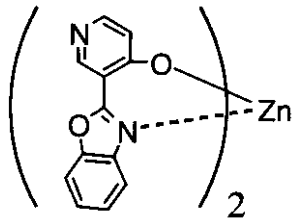
(2-27)



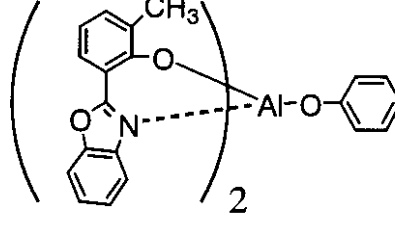
(2-28)



(2-29)



(2-30)



【 0 0 9 9 】
【 化 3 0 】

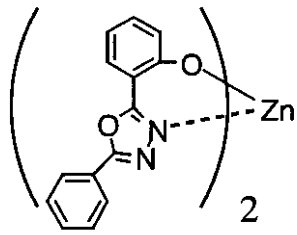
10

20

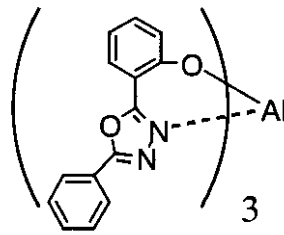
30

40

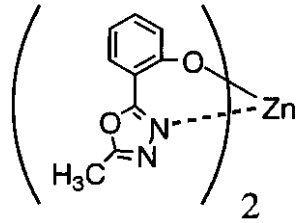
(2-31)



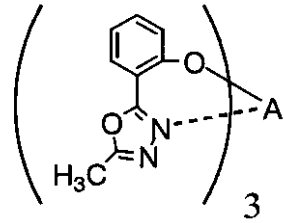
(2-32)



(2-33)

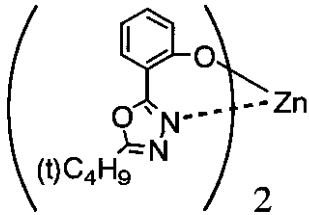


(2-34)

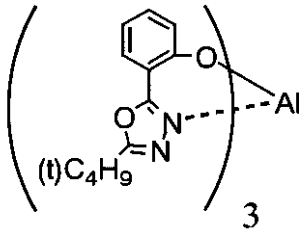


10

(2-35)

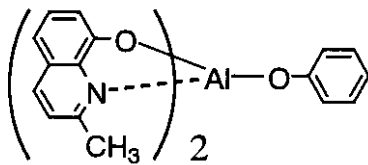


(2-36)

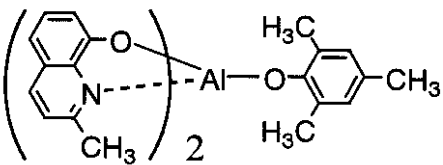


20

(2-37)

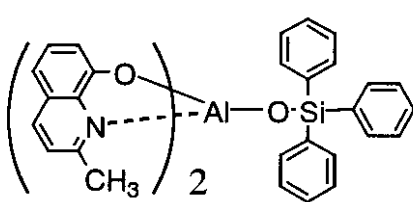


(2-38)

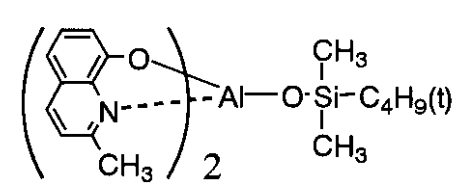


30

(2-39)



(2-40)

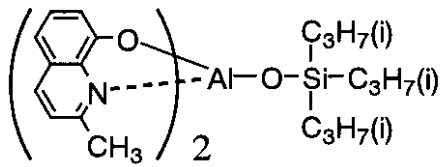


40

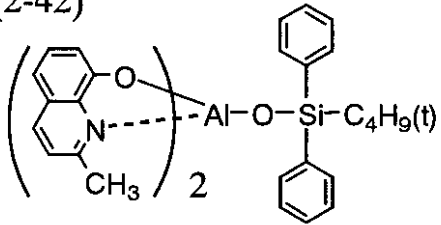
【 0 1 0 0 】

【 化 3 1 】

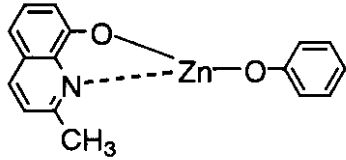
(2-41)



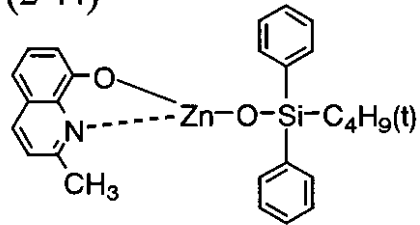
(2-42)



(2-43)

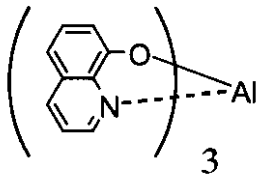


(2-44)

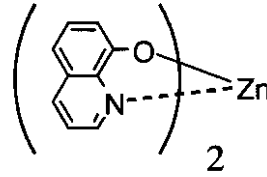


10

(2-45)

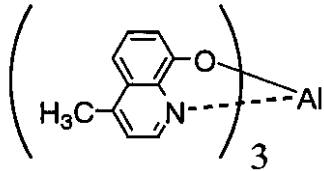


(2-46)

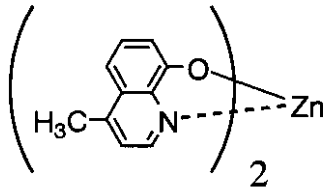


20

(2-47)

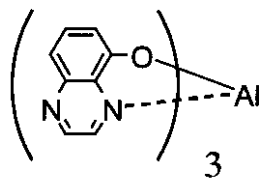


(2-48)

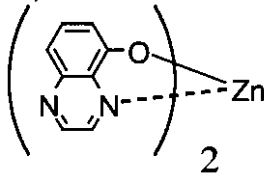


30

(2-49)



(2-50)

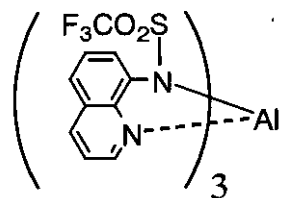


【 0 1 0 1 】

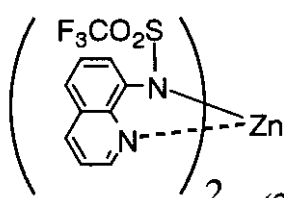
【 化 3 2 】

40

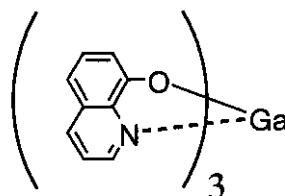
(2-51)



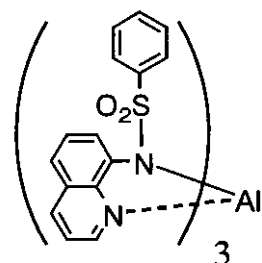
(2-52)



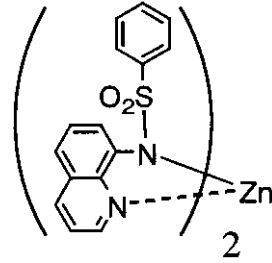
(2-61)



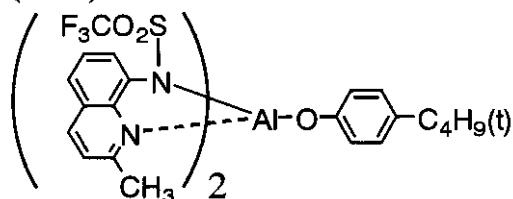
(2-53)



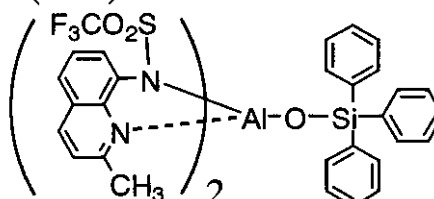
(2-54)



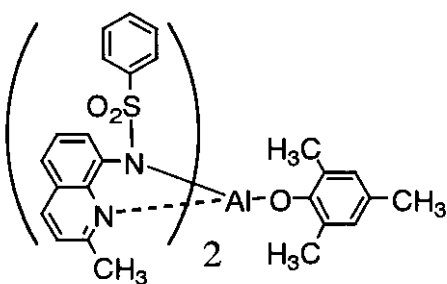
(2-55)



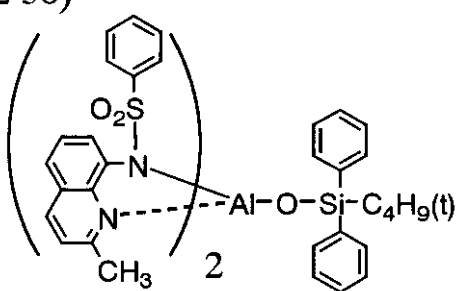
(2-56)



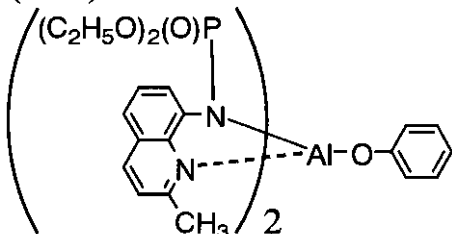
(2-57)



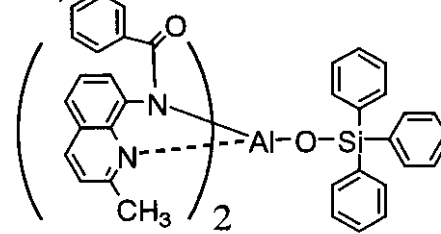
(2-58)



(2-59)



(2-60)



【 0 1 0 2 】

本発明の発光層中に含まれる金属錯体は、配位子を合成すると同時に錯体化しても、また一旦単離した配位子を用いて金属または金属塩との反応により合成できる。

【 0 1 0 3 】

本発明の金属錯体の原料に用いる金属塩としては、特に限定はないが硝酸塩、ハロゲン塩（フッ化物、塩化物、臭化物、ヨウ化物など）、硫酸塩、カルボン酸塩（酢酸塩など）、ホスホン酸塩、スルホン酸塩、水酸化物などが好適に用いられ、好ましくは硝酸塩、塩酸

10

20

30

40

50

塩、硫酸塩、酢酸塩である。

【0104】

金属錯体を合成する際に用いる配位子と、金属塩のモル比は合成する錯体に依りて適宜選択するが、通常金属イオンに対して配位子を0.1～10倍モル、好ましくは0.5～8倍モル、更に好ましくは0.5～6倍モルである。

【0105】

また、錯体の合成に際しては塩基を用いることができる。塩基としては、種々の無機または有機塩基を用いることができ、例えば金属水酸化物（例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなど）、金属炭酸塩（例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウムなど）、金属炭酸水素塩（例えば炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウムなど）、有機塩基（例えばトリエチルアミン、ナトリウムアルコキシドなど）の使用が好ましい。

10

【0106】

使用する塩基の量は、特に限定しないが、好ましくは配位子に対して0.01当量～30当量、より好ましくは1当量～10当量である。

金属錯体の合成に溶媒を用いてもよく、溶媒としては特に限定はないが水、アルコール類（例えばメタノール、エタノール、2-プロパノールなど）、エステル類（例えば酢酸エチルなど）、エーテル類（例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサンなど）、アミド類（例えばジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなど）、ニトリル類（例えばアセトニトリルなど）、ケトン類（例えばアセトン、シクロヘキサノンなど）、炭化水素類（例えばヘキサン、ベンゼン、トルエンなど）、ハロゲン化炭化水素類（例えばジクロロメタン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタンなど）、カルボン酸類（例えば酢酸など）などを用いることができる。また、これら溶媒を混合して用いてもよい。溶媒として好ましくはアルコール類、エーテル類、ケトン類であり、より好ましくはアルコール類であり、特に好ましくはメタノール、エタノール、2-プロパノールである。金属錯体を合成する際の反応温度は特に限定はないが、好ましくは10～150、好ましくは10～100、より好ましくは10～80である。

20

【0107】

次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の発光素子は、本発明の化合物を利用する素子であればシステム、駆動方法、利用形態など特に問わないが、本発明の化合物からの発光を利用するもの、または本化合物を電荷輸送材料として利用する物が好ましい。代表的な発光素子として有機EL（エレクトロルミネッセンス）素子を挙げることができる。

30

【0108】

本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、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、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法、転写法が好ましい。

【0109】

本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の適宜材料を用いることができる。

40

【0110】

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、

50

導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm~1μmであり、更に好ましくは100nm~500nmである。

【0111】

陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合は、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。

陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルーゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。

陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げて、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0112】

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）及びそのフッ化物または酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物または酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることにもできる。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm~1μmであり、更に好ましくは100nm~1μmである。

【0113】

陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。

陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω以下が好ましい。

【0114】

発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよく、また、一重項励起子、または、三重項励起子のいずれから発光する物であっても良い。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジ

10

20

30

40

50

アゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体、本発明の化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは10 nm ~ 500 nmである。

【0115】

発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、LB法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

10

【0116】

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリジン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン誘導体、カーボン膜、本発明の化合物等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは10 nm ~ 500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

20

【0117】

正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、転写法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

30

【0118】

電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シラン誘導体、本発明の化合物等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは10 nm ~

40

50

500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0119】

電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、転写法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0120】

保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、SiO_xN_y、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

【0121】

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシ）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、印刷法、転写法を適用できる。

【0122】

【実施例】

以下に本発明の実施例について説明するが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

【0123】

(1-1)の合成

ピレンホウ酸エステル（下記a） 1.0 g、1,3,5-トリプロモベンゼン 0.29 g、炭酸ナトリウム 0.6 g、トリフェニルホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 gにジエチレングリコールジメチルエーテル 20 ml、水 20 mlを加え還流攪拌した。6時間後、反応溶液をクロロホルム200 ml、水200 mlで希釈し、セライト（和光純薬）ろ過した。有機層を水100 mlで2回洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、再結晶（クロロホルム/メタノール）で精製し（1-1）0.5 gを得た。（1-1）の蒸着膜（膜厚100 nm）を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 maxは480 nmであった。化合物のガラス転移点（Tg）を測定したところ、164であった。

【0124】

【化33】

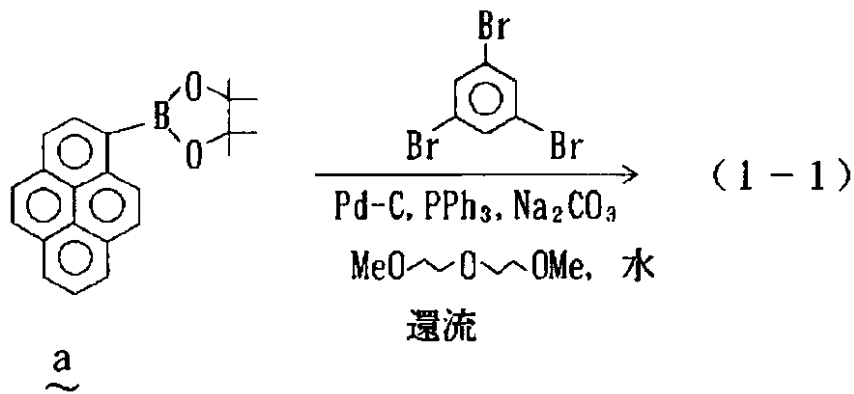
10

20

30

40

(1-1) の合成



10

【0125】

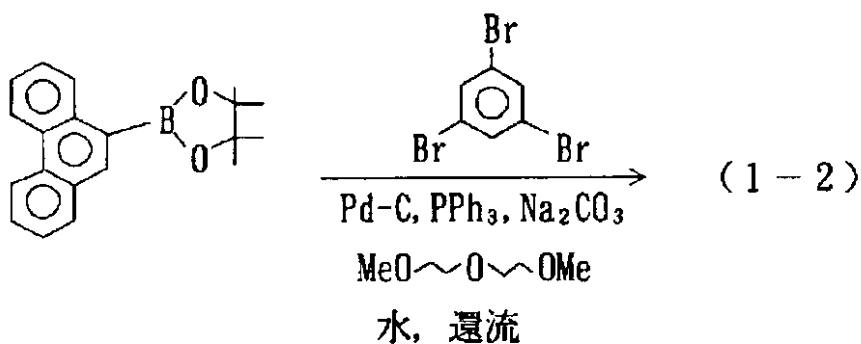
(1-2) の合成

フェナントレンハウ酸エステル 1.5 g、1,3,5-トリブロモベンゼン 0.47 g、炭酸ナトリウム 1.6 g、トリフェニルホスフィン 0.07 g、パラジウムカーボン 0.07 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流攪拌した。6時間後、反応溶液をクロロホルム 200 ml、1 M 塩酸水 200 ml で希釈し、セライトろ過した。有機層を水 100 ml で2回洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー（ヘキサン/酢酸エチル系）で精製した後、再結晶（クロロホルム/メタノール）で精製し (1-2) 1.0 g を得た。MS スペクトルを測定し、(1-2) の構造を確認した。(1-2) の蒸着膜を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 max は 380 nm であった。

20

【0126】

【化34】



30

【0127】

(1-39) の合成

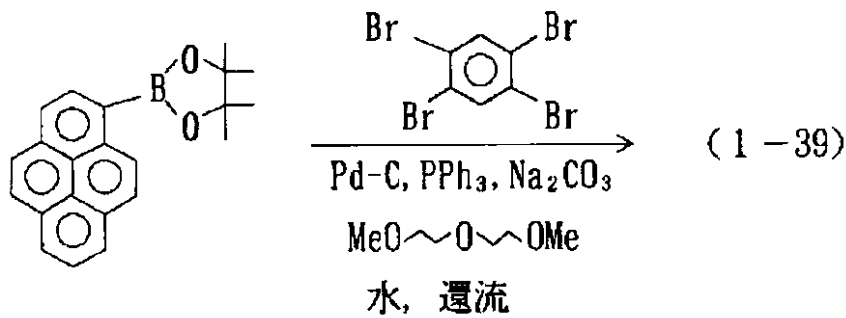
ピレンハウ酸エステル 1.0 g、1,2,4,5-テトラブロモベンゼン 0.28 g、炭酸ナトリウム 0.88 g、トリフェニルホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流攪拌した。6時間後、反応溶液をクロロホルム 200 ml、1 M 塩酸水 200 ml で希釈し、セライトろ過した。有機層を水 100 ml で2回洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー（クロロホルム）で精製した後、再結晶（クロロホルム/メタノール）で精製し (1-39) 0.4 g を得た。MS スペクトルを測定し (1-39) の構造を確認した。

40

【0128】

50

【化35】



10

【0129】

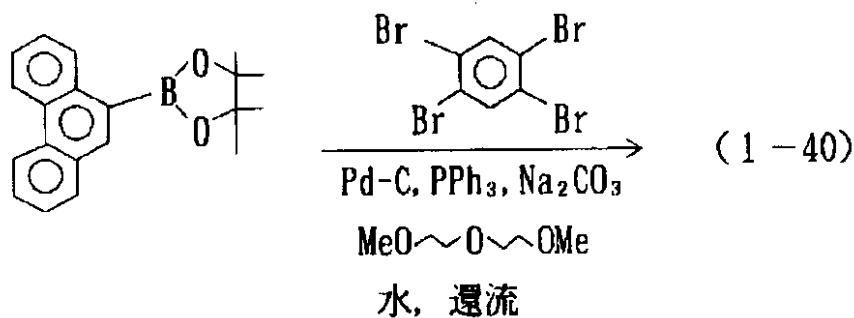
(1-40)の合成

フェナントレンホウ酸エステル 1.15 g、1,2,4,5-テトラブロモベンゼン 0.35 g、炭酸ナトリウム 0.96 g、トリフェニルホスフィン 0.07 g、パラジウムカーボン 0.07 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流攪拌した。6時間後、室温に冷却し、セライトろ過した。ろ別した固体をクロロホルムに溶解し、セライトろ過し、パラジウムカーボンを除去した。カラムクロマトグラフィー(クロロホルム)で精製した後、再結晶(クロロホルム/メタノール)で精製し(1-40) 0.5 g を得た。MSスペクトル測定により(1-40)の構造を確認した。(1-40)の蒸着膜を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 max は 440 nmであった。

20

【0130】

【化36】



30

【0131】

(1-35)の合成

1,3,5-トリブロモベンゼン 25 g にジエチルエーテル 250 ml を加え、窒素気流下 -78 に冷却した。n-ブチルリチウム(1.6 M ヘキサン溶液) 52 ml を滴下し、室温に昇温した。アンスロン 15.4 g を分割添加し、加熱還流下 3時間攪拌した。室温に冷却した溶液に酢酸エチル 500 ml、1 M 塩酸水 300 ml を加え、有機層を分取した。有機層を飽和食塩水 300 ml で洗浄した後、濃縮した。カラムクロマトグラフィー(クロロホルム)で精製し化合物 A を 1.5 g 得た。

40

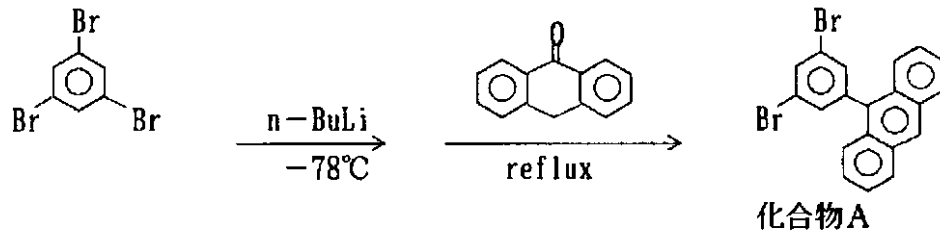
ピレンホウ酸エステル 0.84 g、化合物 A 0.5 g、炭酸ナトリウム 0.51 g、トリフェニルホスフィン 0.05 g、パラジウムカーボン 0.05 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml、水 30 ml を加え還流攪拌した。6時間後、室温に冷却し、セライトろ過した。ろ別した固体をクロロホルムに溶解し、セライトろ過し、パラジウムカーボンを除去した。カラムクロマトグラフィー(クロロホルム)で精製した後、再結晶(クロロホルム/メタノール)で精製し(1-35) 0.3 g を得た。MSスペクトル測定により(1-35)の構造を確認した。(1-35)の蒸着膜を作製し

50

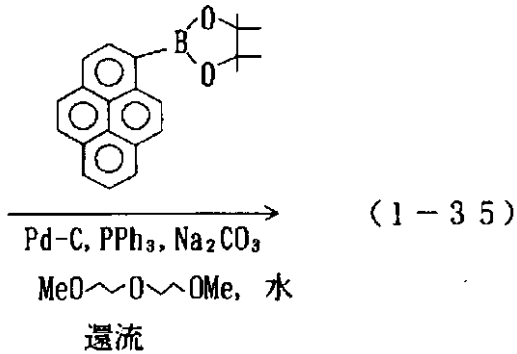
、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 max は 470 nm であった。

【0132】

【化37】



10



20

【0133】

(1-37)の合成

1, 3, 5 - トリブロモベンゼン 10 g にジエチルエーテル 150 ml を加え、窒素気流下 -78 に冷却した。n - ブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 41.7 ml を滴下し、室温に昇温した。アンスロン 13.0 g を分割添加し、加熱還流下 3 時間攪拌した。ジエチルエーテルを蒸留除去し、トルエン 200 ml 、パラトルエンスルホン酸 0.1 g を加え加熱還流下 3 時間攪拌した。室温に冷却した溶液にクロロホルム 300 ml 、水 300 ml を加え、有機層を分取、濃縮した。カラムクロマトグラフィー (クロロホルム) で精製した後、晶析し (クロロホルム / ヘキサン)、化合物 B 2.0 g を得た。

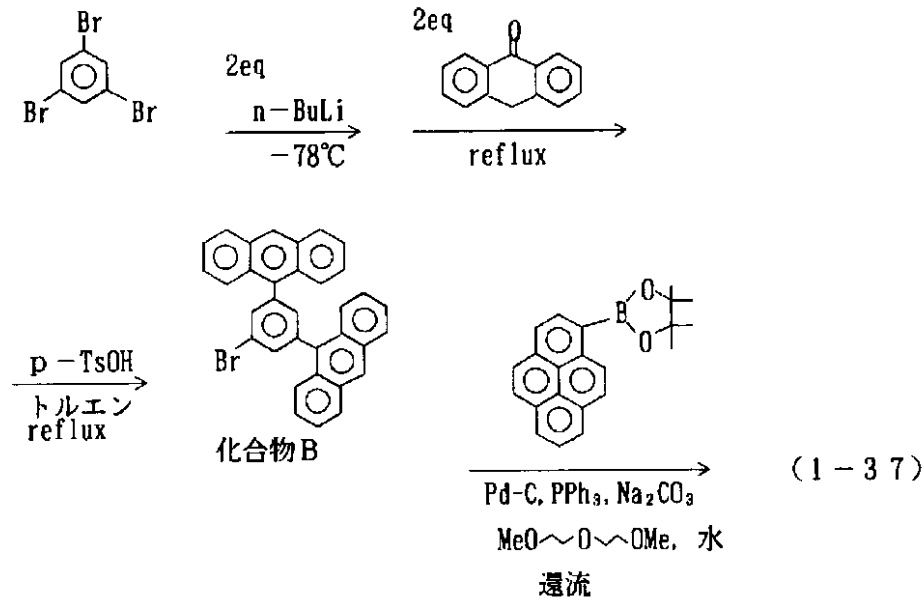
ピレンホウ酸エステル 0.27 g 、化合物 B 0.4 g 、炭酸ナトリウム 0.17 g 、トリフェニルホスフィン 0.05 g 、パラジウムカーボン 0.05 g にジエチレングリコールジメチルエーテル 30 ml 、水 30 ml を加え還流攪拌した。6 時間後、室温に冷却し、セライトろ過した。ろ別した固体をクロロホルムに溶解し、セライトろ過し、パラジウムカーボンを除去した。カラムクロマトグラフィー (ヘキサン / 酢酸エチル系で溶出し、そのあとクロロホルム系で溶出) で精製した後、再結晶で精製し (クロロホルム / メタノール) (1-37) 0.1 g を得た。MS スペクトル測定により (1-37) の構造を確認した。(1-37) の蒸着膜を作製し、その膜蛍光を測定したところ、膜蛍光極大波長 max は 467 nm であった。

30

【0134】

【化38】

40



10

【0135】

比較例 1

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(1-ナフチル)-ベンジジン}$ を40nm蒸着し、この上に、ジスチリル化合物 b を20nm蒸着し、この上にアゾール化合物 c を40nm蒸着した。有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム:銀=10:1を50nm共蒸着した後、銀50nmを蒸着し、素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長を浜松フォトリクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果、色度値(0.15, 0.20)の青緑色発光が得られ、最高輝度1130cd/m²の輝度を得られた。窒素雰囲気下1日放置したところ、膜面の白濁が観察された。

30

【0136】

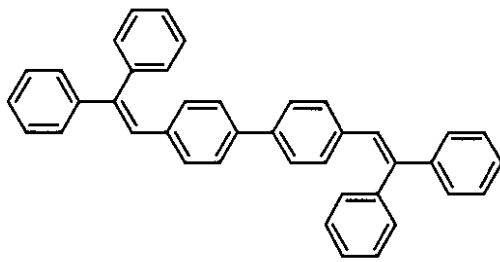
比較例 2

化合物 b の代わりに、本発明の化合物(1-1)を用い、比較例1と同様に素子作製評価した。その結果、(0.17, 0.31)の青緑色発光を得、最高輝度12740cd/m²を得た。素子の外部量子効率を算出したところ(発光輝度、発光スペクトル、電流密度、比視感度曲線より算出)、 $\eta_{EL} = 1.8\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また、100cd/m²で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が1.0V上昇した。

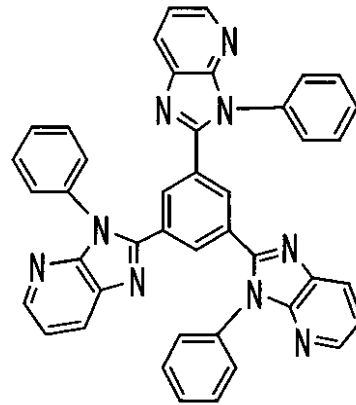
【0137】

【化39】

40



化合物b
(本発明の化合物(2-1))



化合物c

10

【0138】

実施例1

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(-ナフチル)-ベンジジン}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-1)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.22)の青色発光で、最高輝度7000cd/m²を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 2.0\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また、100cd/m²で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.3V上昇した。

20

【0139】

実施例2

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(-ナフチル)-ベンジジン}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と(2-2)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.24)の青色発光で、最高輝度5300cd/m²を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.8\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100cd/m²で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.4V上昇した。

30

【0140】

実施例3

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(-ナフチル)-ベンジジン}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-9)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.19)の青緑色発光で、最高輝度7300cd/m²を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.9\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100cd/m²で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.3V上昇した。

40

【0141】

実施例4

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(-ナフチル)-ベンジジン}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-13)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.21)の青緑色発光で、最高輝度4100cd/m²を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.8\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100

50

cd/m^2 で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.3V上昇した。

【0142】

実施例5

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{-NPD (N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(- ナフチル) - ベンジジン)}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-2)と化合物(2-17)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.18)の青色発光で、最高輝度3000 cd/m^2 を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.7\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100 cd/m^2 で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.6V上昇した。

10

【0143】

実施例6

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{-NPD (N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(- ナフチル) - ベンジジン)}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-31)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.18)の青色発光で、最高輝度5600 cd/m^2 を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.9\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100 cd/m^2 で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.3V上昇した。

20

【0144】

実施例7

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{-NPD (N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(- ナフチル) - ベンジジン)}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-37)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.20)の青色発光で、最高輝度4400 cd/m^2 を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.9\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100 cd/m^2 で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.4V上昇した。

【0145】

実施例8

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{-NPD (N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(- ナフチル) - ベンジジン)}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-1)を10対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.17, 0.25)の青色発光で、最高輝度8900 cd/m^2 を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.8\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100 cd/m^2 で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.6V上昇した。

30

【0146】

実施例9

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{-NPD (N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(- ナフチル) - ベンジジン)}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-1)と化合物(2-1)を1対10の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.17)の青色発光で、最高輝度3800 cd/m^2 を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{\text{EL}} = 1.7\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100 cd/m^2 で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.8V上昇した。

40

【0147】

実施例10

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 $\text{-NPD (N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(- ナフチル) - ベンジジン)}$ を40nm蒸着し、この上に、化合物(1-2)と化

50

合物(2-1)を1対1の比で共蒸着し、この上にアゾール化合物cを40nm蒸着した。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.16)の青色発光で、最高輝度3200cd/m²を得た。素子の外部量子効率を算出したところ、 $\eta_{EL} = 1.6\%$ であった。窒素雰囲気下1日放置したが、膜面は透明であった。また100cd/m²で2時間連続発光させたところ、駆動電圧が0.8V上昇した。

【0148】

実施例11

ポリビニルカルバゾール 40mg、2-(4-t-ブチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール 12mg、(1-1) 1mg、(2-31) 1mg をジクロロエタン 2.5ml に溶解し、洗浄したITO基板上にスピコートした(1500rpm, 20sec)。有機層の膜厚は120nmであった。比較例1と同様に陰極蒸着、素子評価した結果、(0.16, 0.19)の青色発光で、最高輝度2000cd/m²を得た。

10

【0149】

同様に本発明の化合物を含有することにより、高効率・高耐久性の青色発光EL素子が作製できる。また橙～赤色の発光色素(例えばDCM(7,4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostyryl)-4H-pyran)に代表されるピラン誘導体、Ir(acac)(phq)₂(acac=アセチルアセトン, phq=フェニルキノリン)錯体に代表される遷移金属錯体など)を発光層に含有させることにより、高効率・高耐久白色発光素子が作製できる。

20

【0150】

【発明の効果】

本発明の発光素子は発光特性(色純度や外部量子効率(η_{EL}))、耐久性(膜面の白濁がなく、駆動電圧の経時的上昇が小さい)に優れ、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等の分野に好適に使用できる。

フロントページの続き

(72)発明者 五十嵐 達也
神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真フイルム株式会社内

審査官 井上 千弥子

(56)参考文献 特開平08-012600(JP,A)
特開2000-273056(JP,A)
特開2000-044519(JP,A)
特開平11-329732(JP,A)
特開平11-312588(JP,A)
特開2000-144125(JP,A)
特開平04-068076(JP,A)
特開2001-192651(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C09K 11/06
H01L 51/50
CA(STN)
REGISTRY(STN)