

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6020166号

(P6020166)

(45) 発行日 平成28年11月2日 (2016. 11. 2)

(24) 登録日 平成28年10月14日 (2016. 10. 14)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 L 51/50 (2006. 01)

H O 5 B 33/22 B

C O 9 K 11/06 (2006. 01)

H O 5 B 33/14 B

C O 7 C 15/38 (2006. 01)

C O 9 K 11/06 6 1 O

C O 9 K 11/06 6 3 5

C O 9 K 11/06 6 4 5

請求項の数 12 (全 57 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2012-527928 (P2012-527928)
 (86) (22) 出願日 平成24年6月11日 (2012. 6. 11)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2012/064872
 (87) 国際公開番号 W02012/173073
 (87) 国際公開日 平成24年12月20日 (2012. 12. 20)
 審査請求日 平成27年3月26日 (2015. 3. 26)
 (31) 優先権主張番号 特願2011-132851 (P2011-132851)
 (32) 優先日 平成23年6月15日 (2011. 6. 15)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(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 上岡 耕司
 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
 (72) 発明者 杉本 和則
 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 富永 剛
 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

最終頁に続く

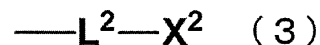
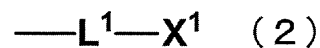
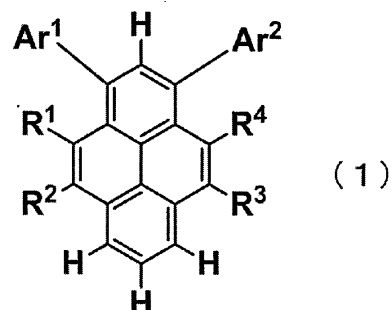
(54) 【発明の名称】 発光素子材料および発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式 (1) で表される化合物を含有する発光素子材料：

【化 1】



R¹ ~ R⁴ 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、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、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、ハロゲン、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、シリル基および -P(=O)R⁵R⁶ からなる群より選ばれる基；R⁵ および R⁶ は、アリール基またはヘテロアリール基であり、隣接する置換基同士で環を形成し

てもよい； $A r^1$ は一般式(2)で表される基である； $A r^2$ は一般式(3)で表される基である； L^1 および L^2 は単結合、アリーレン基またはヘテロアリーレン基であり、それぞれ同じでも異なってもよい；ただし L^1 および L^2 がナフタレニレン基の場合、 L^1 および L^2 がそれぞれナフタレン環の1位でピレンと結合することは無い； X^1 および X^2 はアリール基またはヘテロアリール基であり、それぞれ同じでも異なってもよい；ただし X^1 および X^2 のうち少なくとも1つが電子受容性窒素を含む芳香族複素環基である；ただし L^1 が単結合の場合、 X^1 は1-ナフチル基ではなく、 L^2 が単結合の場合、 X^2 は1-ナフチル基ではない。

【請求項2】

X^1 が2-ピリジル基であるとき、 X^2 が2-ピリジル基以外の基から選ばれる請求項1記載の発光素子材料。

10

【請求項3】

X^1 および X^2 のうち少なくとも1つがアリール基である請求項1または2記載の発光素子材料。

【請求項4】

X^1 および X^2 のうち少なくとも1つがカルbazil基、ジベンゾフラニル基またはジベンゾチオフェニル基である請求項1または2記載の発光素子材料。

【請求項5】

L^1 および L^2 が、単結合、フェニレン基、ビフェニレン基またはナフタレニレン基である請求項1～4いずれか記載の発光素子材料。

20

【請求項6】

$A r^1$ と $A r^2$ が異なる基である請求項1～5のいずれか記載の発光素子材料。

【請求項7】

陽極と陰極の間に有機層が存在し、電気エネルギーにより発光する発光素子であって、前記有機層に請求項1～6のいずれか記載の発光素子材料を含有する発光素子。

【請求項8】

前記有機層が電子輸送層を含み、電子輸送層が請求項1～5のいずれか記載の発光素子材料を含む請求項7記載の発光素子。

【請求項9】

前記電子輸送層がさらにドナー性化合物を含む請求項8記載の発光素子。

30

【請求項10】

ドナー性化合物がアルカリ金属、アルカリ金属を含有する無機塩、アルカリ金属と有機物との錯体、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属を含有する無機塩またはアルカリ土類金属と有機物との錯体である請求項9記載の発光素子。

【請求項11】

ドナー性化合物がアルカリ金属と有機物との錯体またはアルカリ土類金属と有機物との錯体である請求項10記載の発光素子。

【請求項12】

前記有機層が発光層を含み、発光層が請求項1～5のいずれか記載の発光素子材料を含む請求項7記載の発光素子。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気エネルギーを光に変換できる発光素子に関する。より詳しくは、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ものである。

【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蛍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

50

発光素子は、薄型で、かつ、低駆動電圧下での高輝度発光と、蛍光材料を選ぶことにより多色発光が可能であることが特徴であり、注目を集めている。この研究は、コダック社の C. W. Tang らにより有機薄膜素子が高輝度に発光することが示されて以来、多くの研究機関により検討されている。

【0003】

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。

【0004】

10

有機薄膜発光素子には、発光効率の向上、駆動電圧の低下および耐久性の向上が必要である。中でも、発光効率が低いと高輝度を要する画像の出力ができなくなり、所望の輝度を出力するための消費電力量が多くなる。例えば、発光効率を向上させるために、ピレンを基本骨格とした発光材料や電子輸送材料が開発されている（例えば、特許文献1～4参照）。また、電子輸送層として用いられる材料にアルカリ金属をドーピングする技術が開示されている（例えば、特許文献5～6参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2007-131723号公報

20

【特許文献2】特開2010-056190号公報

【特許文献3】国際公開WO2007/29798号パンフレット

【特許文献4】国際公開WO2008/108256号パンフレット

【特許文献5】国際公開WO2010/113743号パンフレット

【特許文献6】国際公開WO2010/001817号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかし、特に青色発光素子に関しては、高効率発光および低電圧駆動が可能で、かつ、耐久性にも優れた信頼性の高い素子を提供する青色発光材料は少ない。

30

【0007】

また、電子輸送層に用いられる化合物を改良する場合であっても、従来公知の組み合わせでは、低電圧駆動と耐久性との両立には不十分であった。

【0008】

本発明は、かかる従来技術の問題を解決し、高効率発光および低電圧駆動が可能で、かつ、耐久性に優れた有機薄膜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ものである。

【課題を解決するための手段】

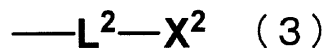
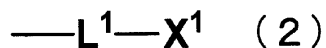
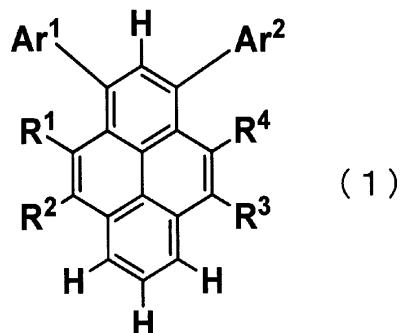
【0009】

本発明は、下記一般式(1)で表される化合物を含有する発光素子材料である：

40

【0010】

【化 1】



10

【0011】

$R^1 \sim R^4$ 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、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、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、ハロゲン、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、シリル基および $\text{P}(=\text{O})\text{R}^5\text{R}^6$ からなる群より選ばれる基； R^5 および R^6 は、アリール基またはヘテロアリール基であり、隣接する置換基同士で環を形成してもよい； Ar^1 は一般式 (2) で表される基である； Ar^2 は一般式 (3) で表される基である； L^1 および L^2 は単結合、アリーレン基またはヘテロアリーレン基であり、それぞれ同じでも異なってもよい；ただし L^1 および L^2 がナフタレニレン基の場合、 L^1 および L^2 がそれぞれナフタレン環の 1 位でピレンと結合することは無い； X^1 および X^2 はアリール基またはヘテロアリール基であり、それぞれ同じでも異なってもよい；ただし X^1 および X^2 のうち少なくとも 1 つが電子受容性窒素を含む芳香族複素環基である；ただし L^1 が単結合の場合、 X^1 は 1-ナフチル基ではなく、 L^2 が単結合の場合、 X^2 は 1-ナフチル基ではない。

20

【0012】

また、本発明は、陽極と陰極の間に有機層が存在し、電気エネルギーにより発光する発光素子であって、前記有機層に上記の発光素子材料を含有する発光素子である。

【発明の効果】

30

【0013】

本発明により、高効率発光および低電圧駆動が可能であり、かつ、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することができる。

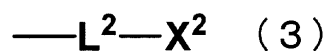
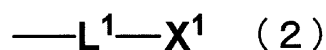
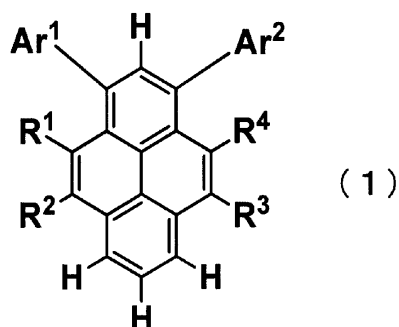
【発明を実施するための形態】

【0014】

一般式 (1) で表される化合物について詳細に説明する。

【0015】

【化 2】



40

【0016】

$R^1 \sim R^4$ 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、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、ア

50

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、ハロゲン、カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基、シリル基および $P(=O)R^5R^6$ からなる群より選ばれる基である。 R^5 および R^6 はアリール基またはヘテロアリール基であり、隣接する置換基同士で環を形成してもよい。 Ar^1 は一般式 (2) で表される基であり、 Ar^2 は一般式 (3) で表される基である。

【0017】

L^1 および L^2 は単結合、アリーレン基またはヘテロアリーレン基であり、それぞれ同じでも異なってもよい。ただし L^1 および L^2 がナフタレニレン基の場合、 L^1 および L^2 がそれぞれナフタレン環の1位でピレンと結合することはない。 X^1 および X^2 はアリール基またはヘテロアリール基であり、それぞれ同じでも異なってもよい。ただし L^1 が単結合の場合、 X^1 は1-ナフチル基ではなく、 L^2 が単結合の場合、 X^2 は1-ナフチル基ではない。

【0018】

これらの置換基のうち、水素は重水素であってもよい。

【0019】

また、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、*tert*-ブ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る。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、入手の容易性やコストの点から、1以上20以下が好ましく、より好ましくは1以上8以下の範囲である。

【0020】

シクロアルキル基とは、例えば、シクロプロピル基、シクロヘキシル基、ノルボルニル基、アダマンチル基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、3以上20以下の範囲が好ましい。

【0021】

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、2以上20以下の範囲が好ましい。

【0022】

アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基、ブタジエニル基などの二重結合を含む不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。アルケニル基の炭素数は特に限定されないが、2以上20以下の範囲が好ましい。

【0023】

シクロアルケニル基とは、例えば、シクロペンテニル基、シクロペンタジエニル基、シクロヘキセニル基などの二重結合を含む不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。

【0024】

アルキニル基とは、例えば、エチニル基などの三重結合を含む不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。アルキニル基の炭素数は特に限定されないが、2以上20以下の範囲が好ましい。

【0025】

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、1以上20以下の範囲が好ましい。

【0026】

10

20

30

40

50

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、1以上20以下の範囲が好ましい。

【0027】

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。

【0028】

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、6以上40以下の範囲が好ましい。

【0029】

アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ターフェニル基、フルオランテ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、6以上40以下の範囲が好ましい。

【0030】

ヘテロアリール基とは、フラニル基、チオフェニル基、ピリジル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ピラジニル基、ピリミジル基、ナフチリジル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリル基、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環状芳香族基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。ヘテロアリール基の炭素数は特に限定されないが、2以上30以下の範囲が好ましい。

【0031】

ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素およびヨウ素から選ばれる原子を示す。

【0032】

カルボニル基、カルボキシ基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、アミノ基は、置換基を有していても有していなくてもよい。置換基としては例えばアルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基などが挙げられ、これら置換基はさらに置換されてもよい。

【0033】

シリル基とは、例えばトリメチルシリル基などの、ケイ素原子にアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリール基等の有機基が結合した官能基を示し、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以上20以下の範囲である。また、ケイ素数は、通常、1以上6以下の範囲である。

【0034】

$-P(=O)R^5R^6$ で表される基について、 R^5 および R^6 は、アリール基またはヘテロアリール基であり、隣接する置換基同士で環を形成してもよい。隣接する置換基 R^5 と R^6 が環を形成する場合、 R^5 と R^6 は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、リンおよびケイ素から選ばれる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。

【0035】

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、6以上40以下の範囲が好ましい。

【0036】

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

10

20

30

40

50

、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環状芳香族基から導かれる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。ヘテロアリーレン基の炭素数は特に限定されないが、置換基も含めて２以上３０以下の範囲が好ましい。

【００３７】

一般式（１）で表される化合物は、ピレン骨格の６位、７位および８位が全て水素原子であることにより、ピレン骨格同士の相互作用を強めることができる。この効果によって分子間での電子の受け渡しが容易になり、高い電子輸送性を発現するため、得られる発光素子の駆動電圧を低下させることができる。またピレン骨格の１位と３位の両方をアリール基またはヘテロアリール基で置換することで熱的安定性が向上し、安定な膜を得ることができるため、得られる発光素子の耐久性を向上させることが可能になる。

10

【００３８】

また、 $A r^1$ および $A r^2$ がそれぞれ異なる基であると、分子の対称性の低下に伴ってガラス転位温度が上昇し、得られる薄膜のアモルファス性が向上する。薄膜のアモルファス性が高いと、得られる発光素子を電流駆動させた時に、膜構造の変化や結晶化が起こりにくいため、発光素子の駆動電圧上昇や発光輝度の低下を抑えることができる。従って、 $A r^1$ および $A r^2$ はそれぞれ異なる基であることが好ましい。

【００３９】

L^1 および L^2 はそれぞれ置換基を有していても有していなくてもよい。

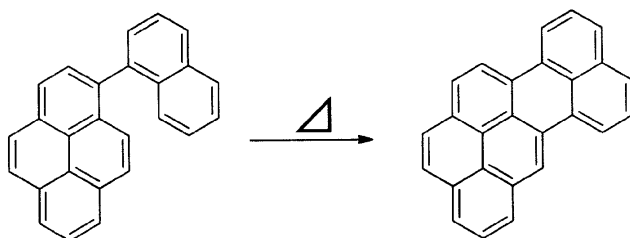
【００４０】

L^1 および L^2 は、それぞれアリーレン基であると、熱的安定性が増すために好ましい。 L^1 および L^2 は、より好ましくは単結合、フェニレン基、ビフェニレン基またはナフタレニレン基である。ただし、ピレン骨格とナフタレン環の１位が直接結合した構造を有する化合物は熱によって下式に示すような縮環反応が起こりやすい。

20

【００４１】

【化３】



30

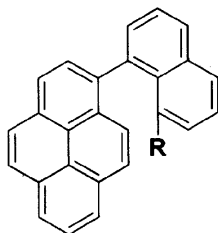
【００４２】

有機薄膜発光素子を作成するに当たり、材料となる有機化合物は昇華精製や蒸着といった工程を経る。この過程で上記の縮環反応が起こると、材料本来の特性が得られなくなってしまう。また、上記の縮環反応を防ぐために、下式に示すようにナフタレン環の８位に置換基 R を導入する方法が考えられるが、このような化合物は置換基による立体障害が大きく、ピレン骨格同士の相互作用を弱める原因となり、電子輸送性の低下を招く原因となる。

40

【００４３】

【化 4】



【0044】

10

従って、 L^1 および L^2 がナフタレニレン基の場合、 L^1 および L^2 がそれぞれナフタレニレン環の1位でピレン骨格と結合してはならない。また同様の理由から、 L^1 が単結合の場合、 X^1 は1-ナフチル基であってはならず、 L^2 が単結合の場合、 X^2 は1-ナフチル基であってはならない。なお1-ナフチル基に芳香環が縮環した置換基も同様の問題が生じるため、同様にピレン骨格と直接結合してはならない。このような問題が生じる具体的な置換基の例としては1-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-アントリル基、9-アントリル基、1-ピレニル基などが挙げられる。

【0045】

20

好ましい L^1 および L^2 の例として、具体的には単結合、1, 4-フェニレン基、1, 3-フェニレン基、4, 4'-ビフェニレン基、2, 6-ナフタレニレン基、2, 8-ナフタレニレン基などが挙げられ、より好ましくは1, 4-フェニレン基などが挙げられる。

【0046】

L^1 および L^2 がさらに置換されている場合、その置換基としては、特に制限は無いが、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基などが好ましい。アルキル基として好ましくはメチル基、t-ブチル基などである。アリール基として好ましくはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基などである。ヘテロアリール基として好ましくはピリジル基であり、より具体的には2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基などが好ましい。

【0047】

30

X^1 および X^2 がアリール基の場合、それぞれ独立に好ましくはフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、フルオレニル基、フルオランテニル基などである。より具体的にはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-フルオレニル基、フルオランテニル基などが挙げられ、より好ましくはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基などが挙げられる。ただし L^1 が単結合の場合、 X^1 は1-ナフチル基ではなく、 L^2 が単結合の場合、 X^2 は1-ナフチル基ではない。 X^1 および X^2 がさらに置換されている場合、その置換基には特に制限は無く、例えばアルキル基、フェニル基、フッ素などが挙げられ、より具体的にはメチル基、t-ブチル基、フェニル基、フッ素などが挙げられる。

【0048】

40

X^1 および X^2 がヘテロアリール基の場合、それぞれ独立に好ましくはインドリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、ピリジル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ベンゾキノリニル基、キノキサニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、フェナントロリニル基、イミダゾピリジル基、イミダゾキノリニル基、イミダゾキナゾリニル基、ピリドイミダゾキノリニル基、トリアジニル基、アクリジニル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、カルボリニル基などが挙げられる。具体的には、2-インドリル基、2-ベンゾフラニル基、2-ベンゾチオフェニル基、9-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、2-ジベンゾフラニル基、4-ジベンゾフラニル基、2-ジベンゾチオフェニル基、4-ジベンゾチオフェニル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基、2-キノリニル基、3-キノリニル基、6-キノリニル基、1-イソキノリニル基、4-イソキノリニル基、2-ベンゾ[h]キノリニル基

50

、3-ベンゾ[h]キノリニル基、2-キノキサニル基、1-ピラジニル基、2-ピリミジニル基、5-ピリミジニル基、3-ピリダジニル基、2-フェナントロリニル基、3-フェナントロリニル基、2-イミダゾ[1, 2-a]ピリジニル基、3-イミダゾ[1, 2-a]ピリジニル基、11-ベンゾ[4, 5]イミダゾ[1, 2-a]キノリニル基、6-ベンゾ[4, 5]イミダゾ[1, 2-c]キナゾリニル基、6-ピリド[2', 1': 2, 3]イミダゾ[4, 5-c]キノリニル基、1-トリアゾリル基、9-アクリジニル基、1-ベンゾ[d]イミダゾリル基、2-ベンゾ[d]イミダゾリル基、2-ベンゾ[d]オキサゾリル基、2-ベンゾ[d]チアゾリル基、9- α -カリボリニル基、9- β -カリボリニル基、9- γ -カリボリニル基、9- δ -カリボリニル基などが挙げられる。より好ましくは、9-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-ジベンゾフラニル基、4-ジベンゾチオフェニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-キノリニル基、3-キノリニル基、6-キノリニル基、1-イソキノリニル基、4-イソキノリニル基、2-ベンゾ[h]キノリニル基、2-キノキサニル基、1-ピラジニル基、5-ピリミジニル基、2-フェナントロリニル基、1-トリアゾリル基、1-ベンゾ[d]イミダゾリル基、2-ベンゾ[d]イミダゾリル基などが挙げられる。さらに好ましくは9-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-ジベンゾフラニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基などが挙げられる。

10

【0049】

上記 X^1 および X^2 のうち少なくとも一つがアリール基である場合、熱的安定性が増すため好ましい。また X^1 および X^2 のうち少なくとも一つがカルバゾリル基、ジベンゾフラニル基またはジベンゾチオフェニル基である場合、嵩高い芳香族複素環基によりアモルファス性が向上し、薄膜安定性が増すため好ましい。カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基およびジベンゾチオフェニル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。

20

【0050】

また X^1 および X^2 のうち少なくとも一つが電子受容性窒素を含む芳香族複素環基である場合、電子受容性が増すことによって高い電子注入輸送能を発現するため好ましい。

【0051】

ここで言う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芳香族複素環は、高い電子親和性を有する。

30

【0052】

電子受容性窒素を含む芳香族複素環基とは、上記ヘテロアリール基のうち、炭素以外の原子として、少なくとも電子受容性の窒素原子を一個または複数個環内に有する環状芳香族基を示す。具体的には、ピリジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、キノキサニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、フェナントロリニル基、イミダゾピリジニル基、トリアジニル基、アクリジニル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基などが挙げられる。電子受容性窒素を含む芳香族複素環基は、置換基を有していても有していなくてもよい。電子受容性窒素を含む芳香族複素環基に含まれる電子受容性窒素の数は、特に限定されないが、1以上3以下の範囲が好ましい。また、電子受容性窒素を含む芳香族複素環基の炭素数は、特に限定されないが、2以上30以下の範囲が好ましい。

40

【0053】

電子受容性窒素を含む芳香族複素環基の連結位置はどの部分でもよい。例えばピリジニル基の場合、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基および4-ピリジニル基のいずれでもよい。

【0054】

ただし、 X^1 および X^2 がともに2-ピリジニル基の場合は、得られる素子の耐久性の低下を招くため、 X^1 が2-ピリジニル基であるとき、 X^2 としては2-ピリジニル基以外の基から選ばれる基が好ましい。

【0055】

電子受容性窒素を含む芳香族複素環基がさらに置換されている場合、その置換基には特

50

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る。

【0056】

一般式(1)で表されるピレン化合物は、以下の方法で合成することができる。ピレン骨格にアリール基およびヘテロアリール基を導入する方法としては、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アリール基およびヘテロアリール基のボロン酸またはボロン酸エステルのカップリング反応を用いる方法が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0057】

ピレン骨格の1位と3位に位置選択的にアリール基もしくはヘテロアリール基を導入する方法としては、例えば以下の方法が挙げられる。まず公知の方法(例えば、国際公開WO2008/108256号パンフレット参照)により、7位がターブチル基で置換されたピレン骨格の1位と3位に位置選択的にアリール基およびヘテロアリール基から選ばれた基を導入する。次いでこれを適当な溶媒中で酸とともに加熱することで、7位のターブチル基を水素原子と置換する。ここで使用する酸の例としては、例えばNafion-Hなどの強酸性ポリマー(“Journal of Organic Chemistry”, (米国), 1991年, 56巻, 3号, p. 1334-1337参照)、トリフルオロメタンスルホン酸などの有機酸もしくは三塩化アルミニウムなどのルイス酸などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

10

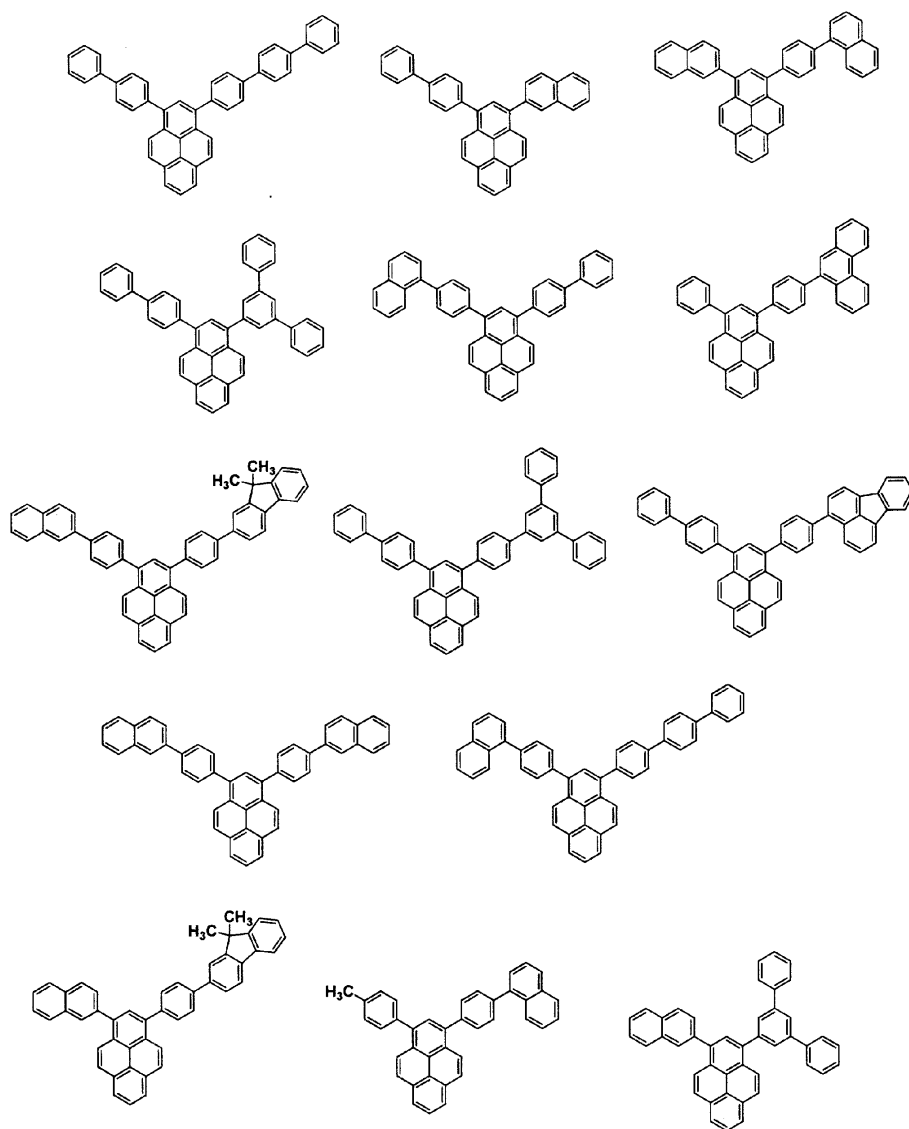
【0058】

上記一般式(1)で表されるピレン化合物としては、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。

20

【0059】

【化 5】

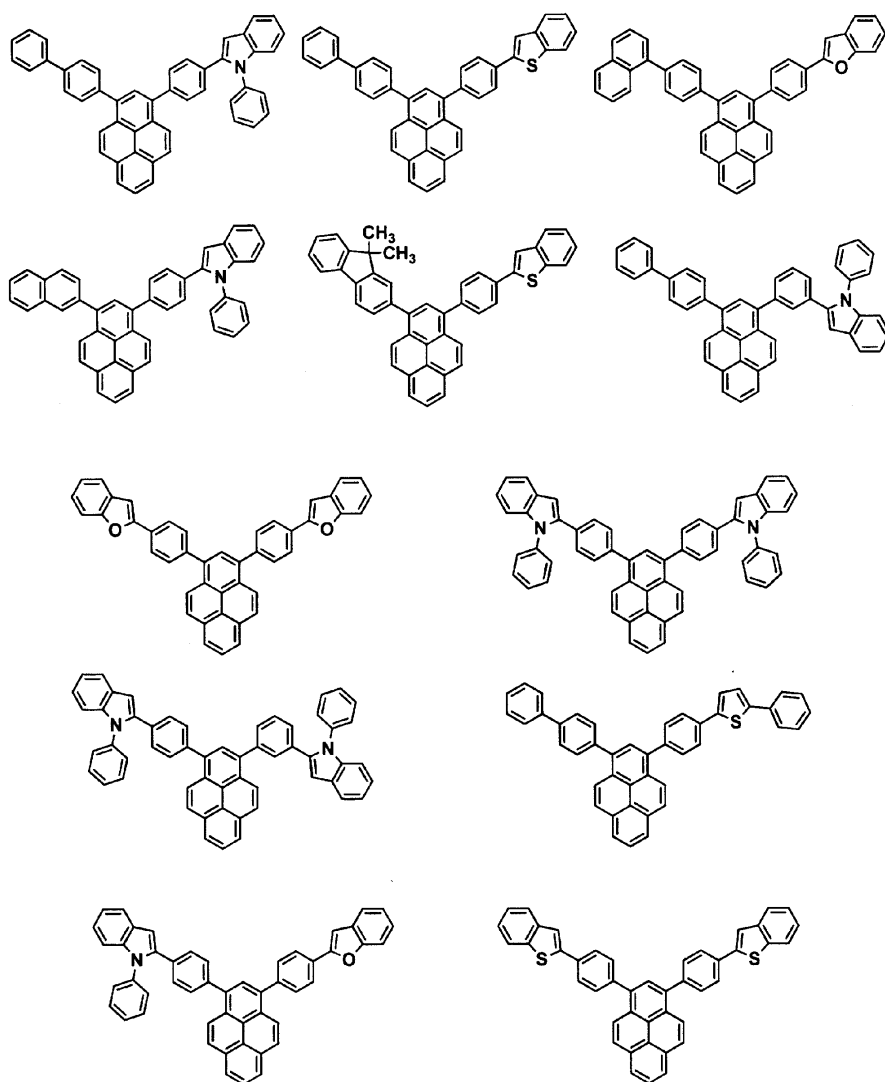


【 0 0 6 0 】

【 0 0 6 1 】

30

【化 7】



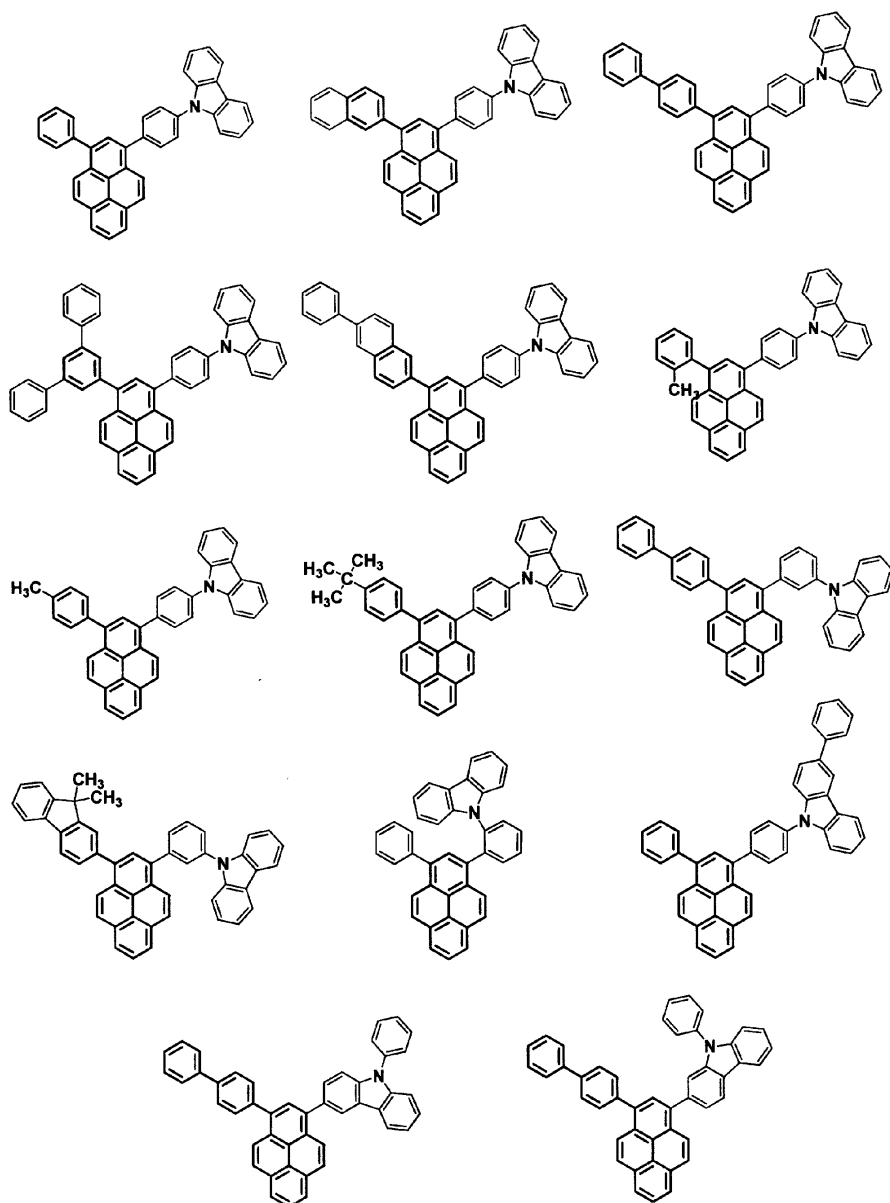
10

20

30

【 0 0 6 2 】

【化 8】



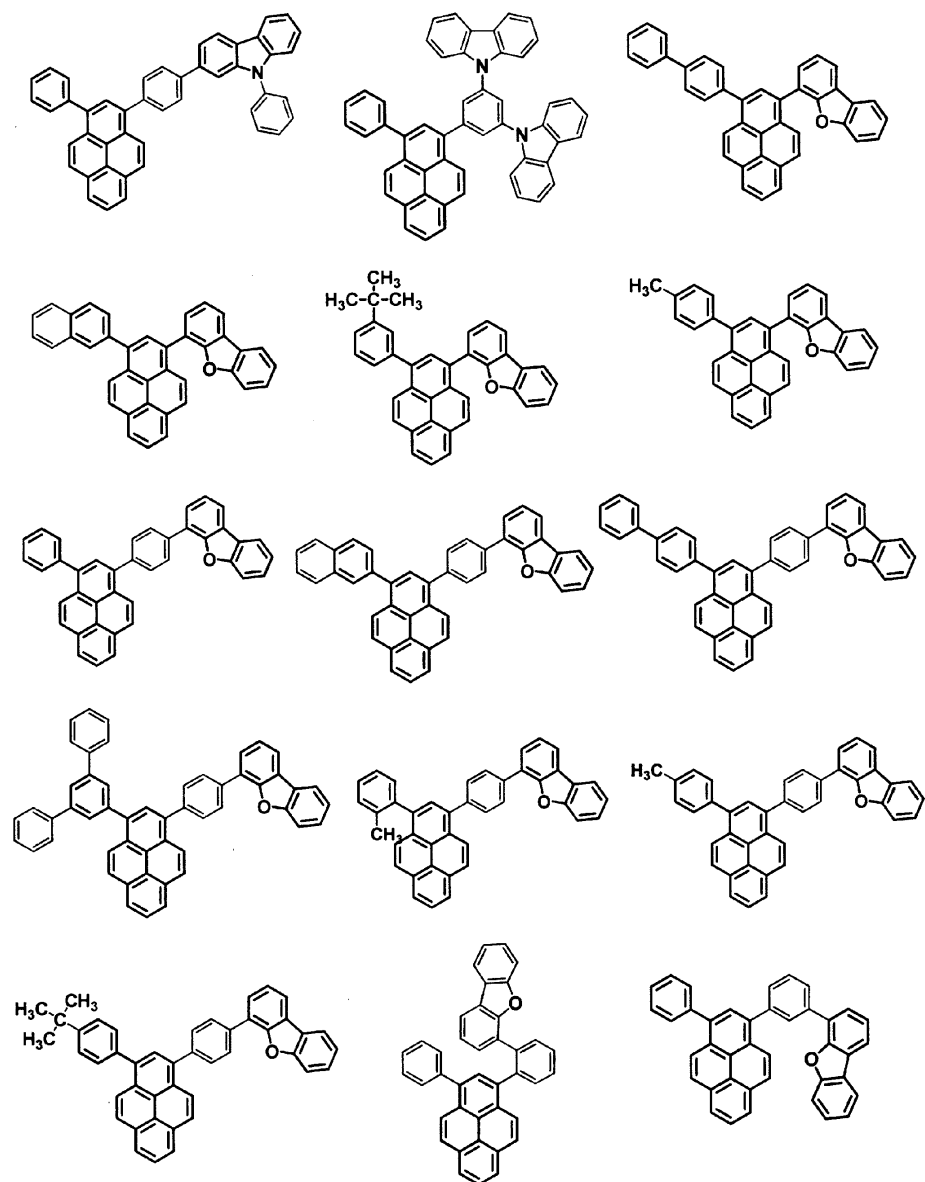
10

20

30

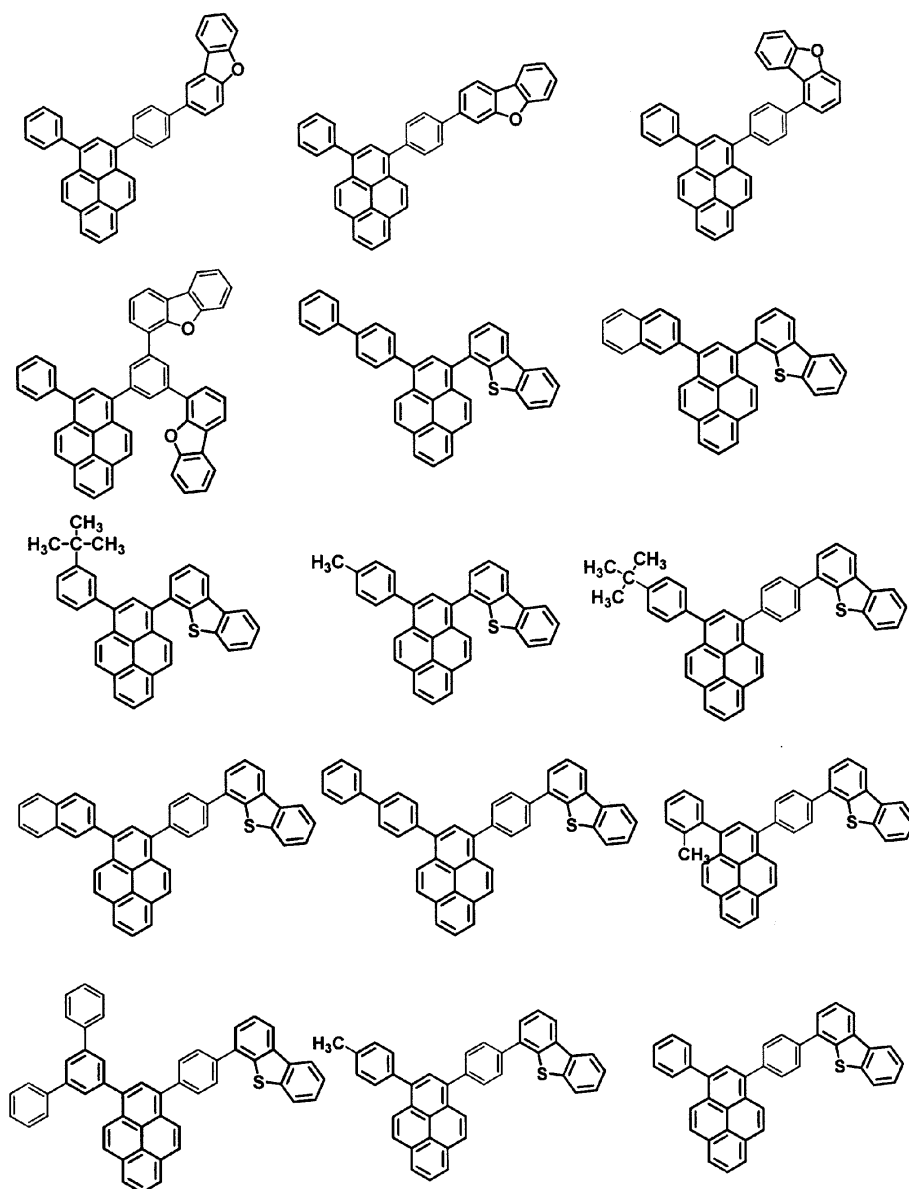
【0063】

【化 9】



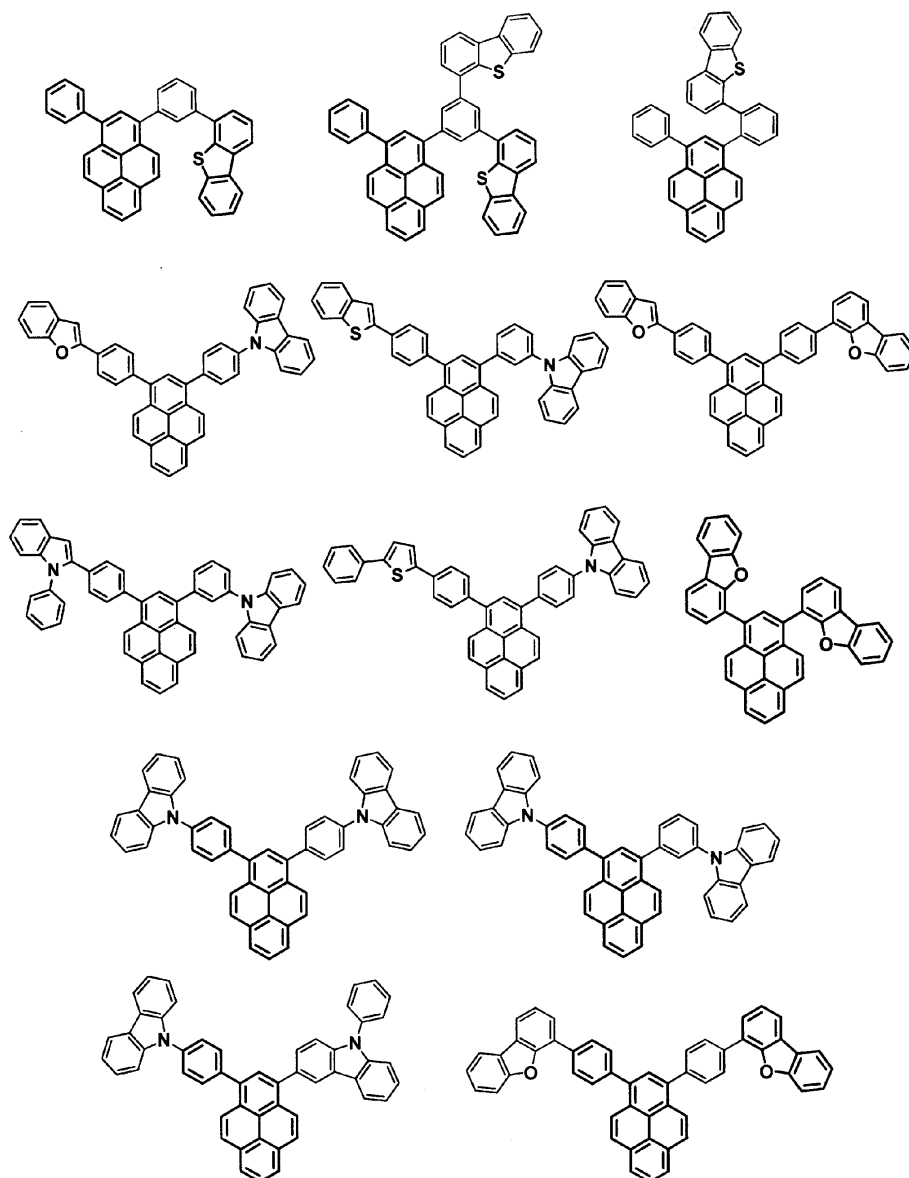
【0064】

【化 10】



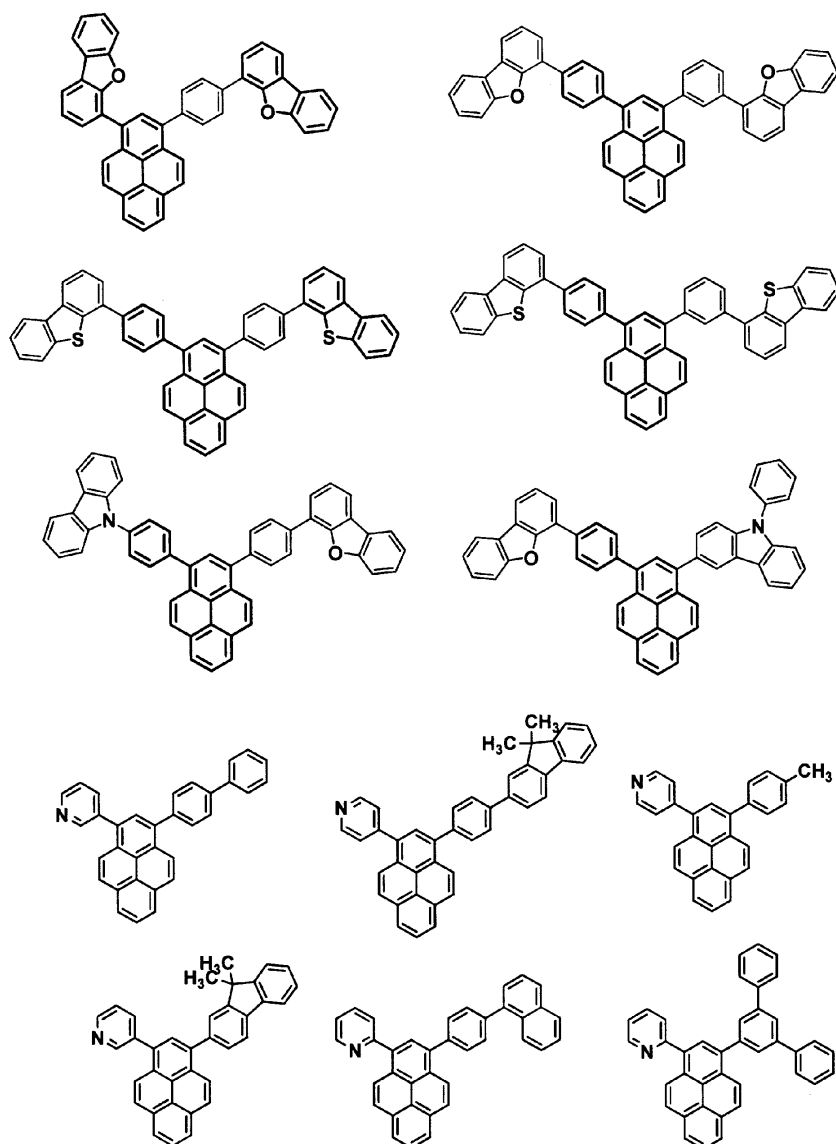
【0065】

【化 1 1】



【0 0 6 6】

【化 1 2】



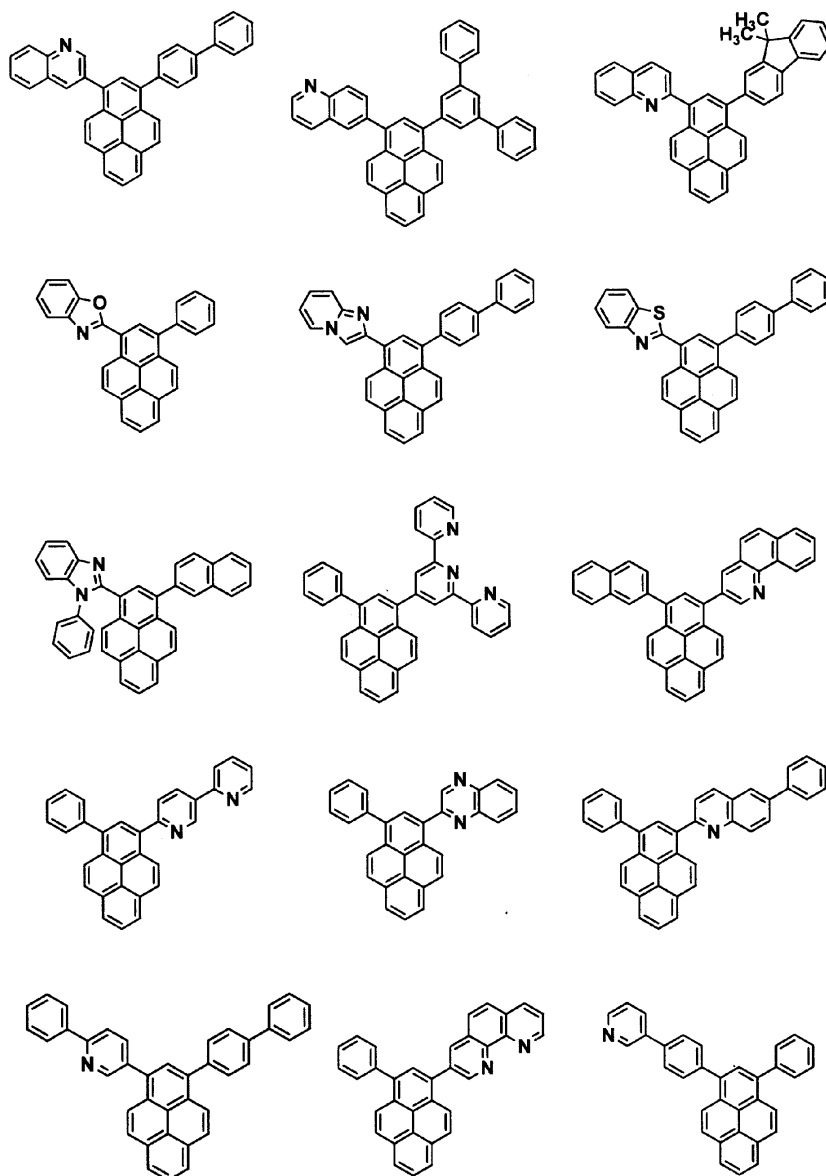
10

20

30

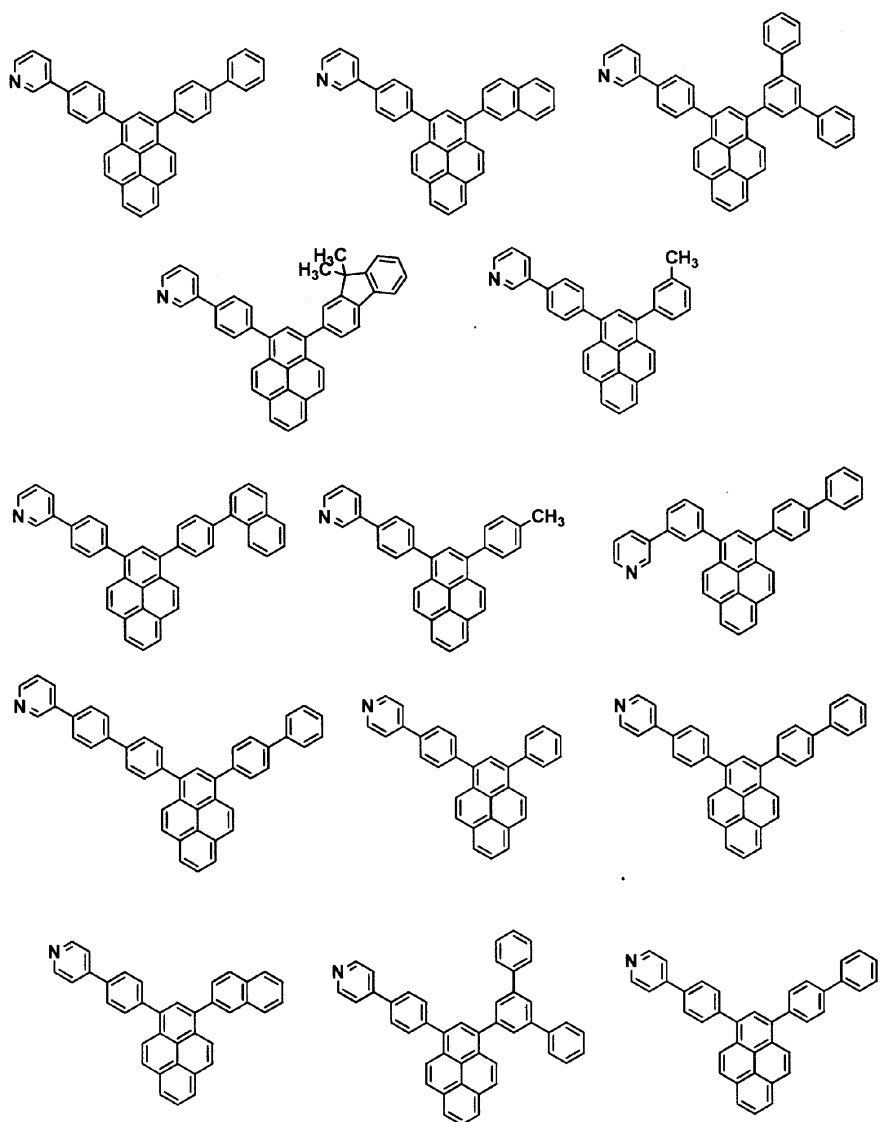
【 0 0 6 7】

【化 1 3】



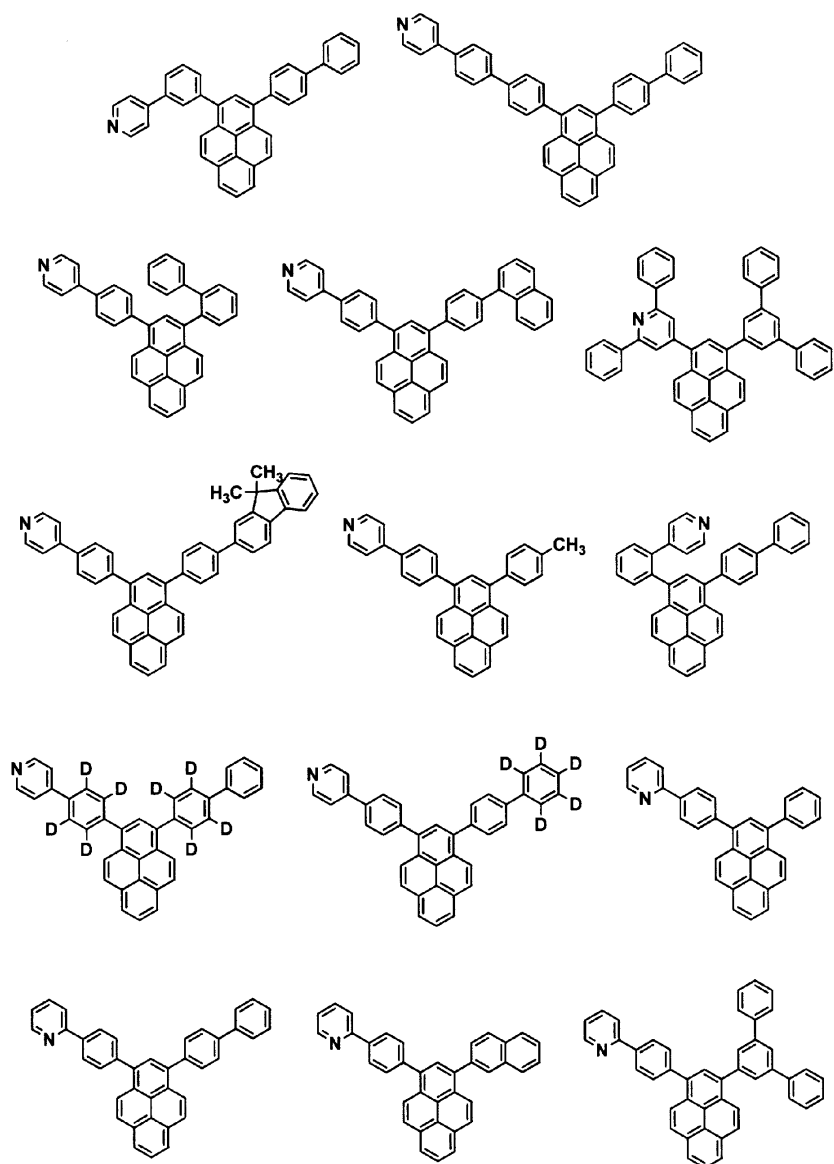
【0 0 6 8】

【化 1 4】



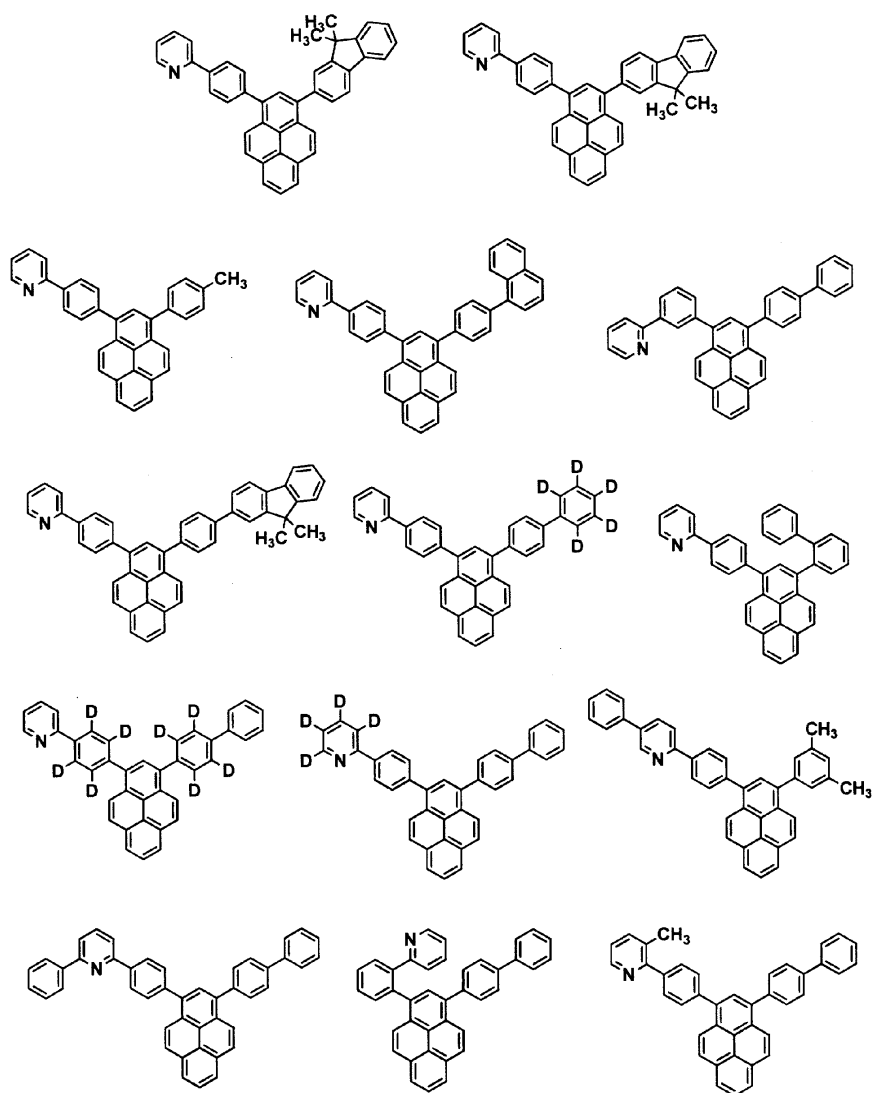
【 0 0 6 9】

【化 1 5】



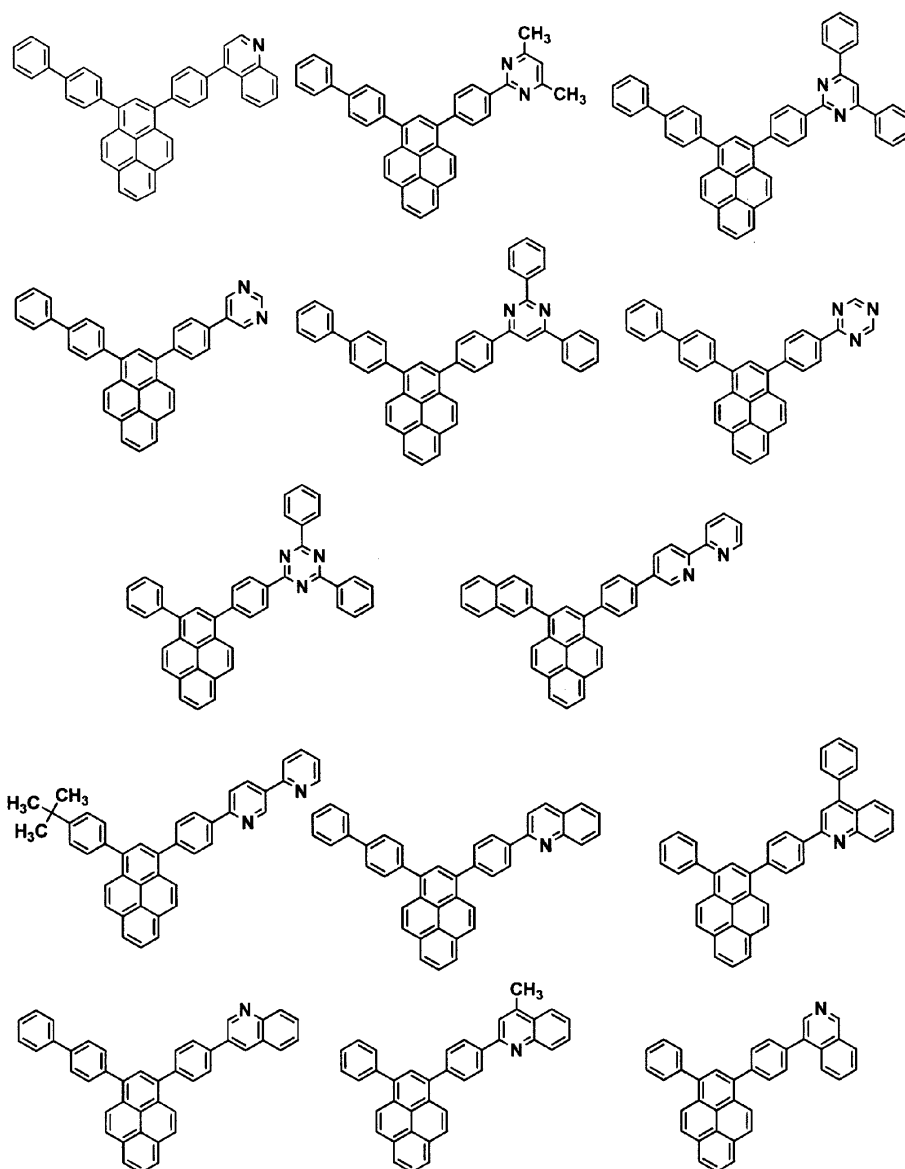
【0 0 7 0】

【化 1 6】



【0 0 7 1】

【化 1 7】



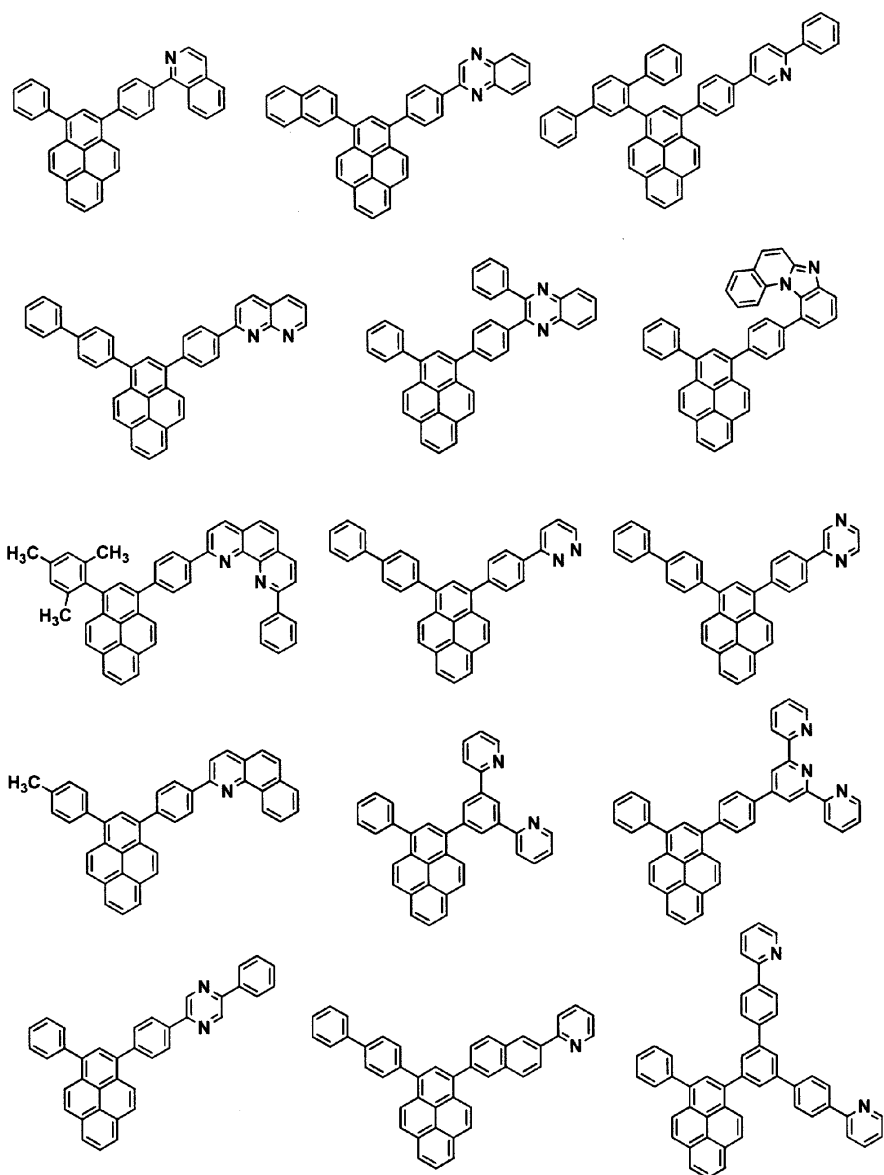
10

20

30

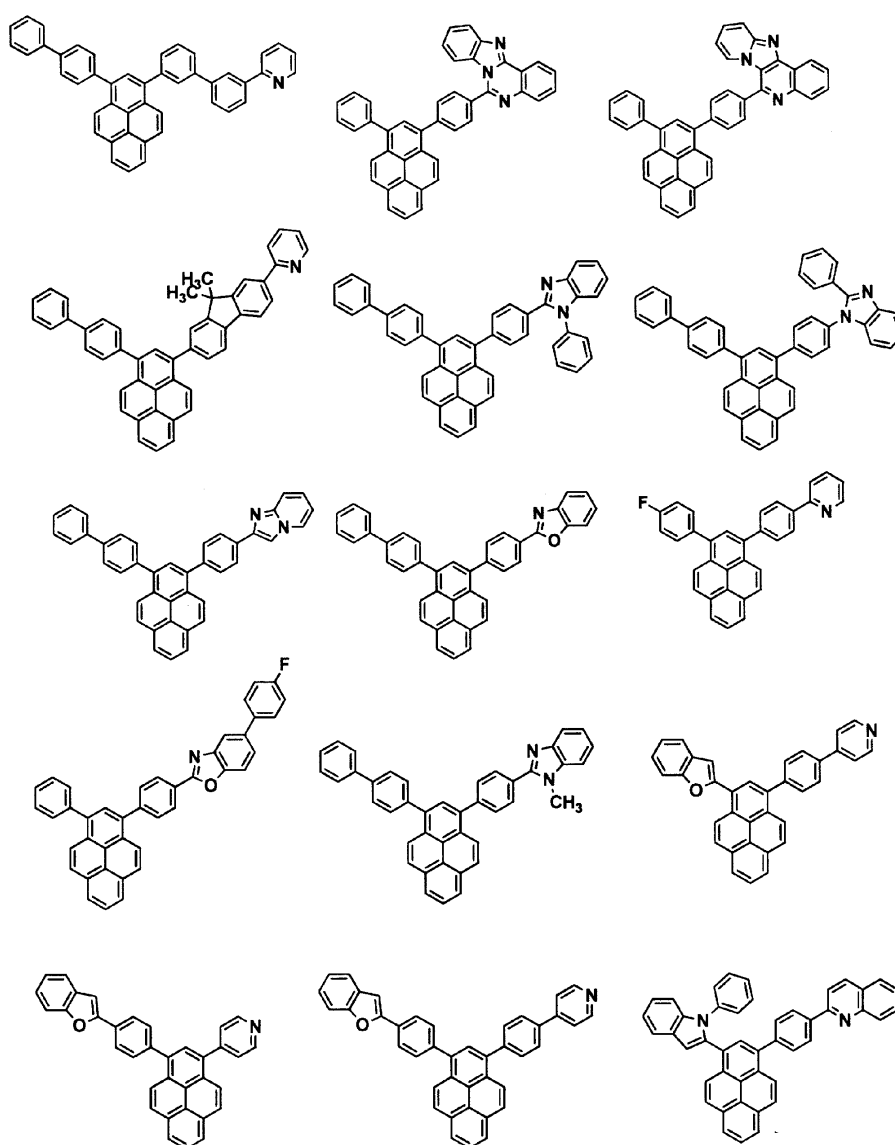
【 0 0 7 2 】

【化 1 8】



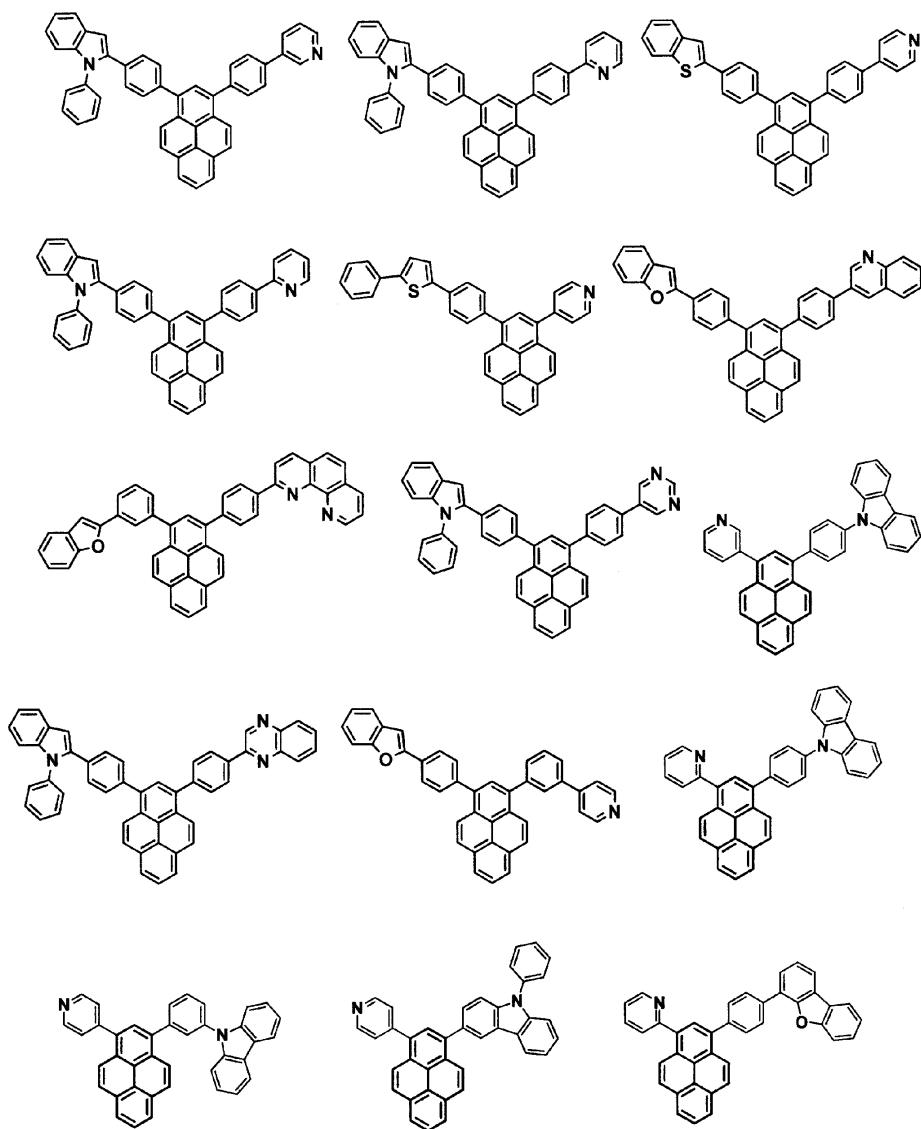
【 0 0 7 3 】

【化 1 9】



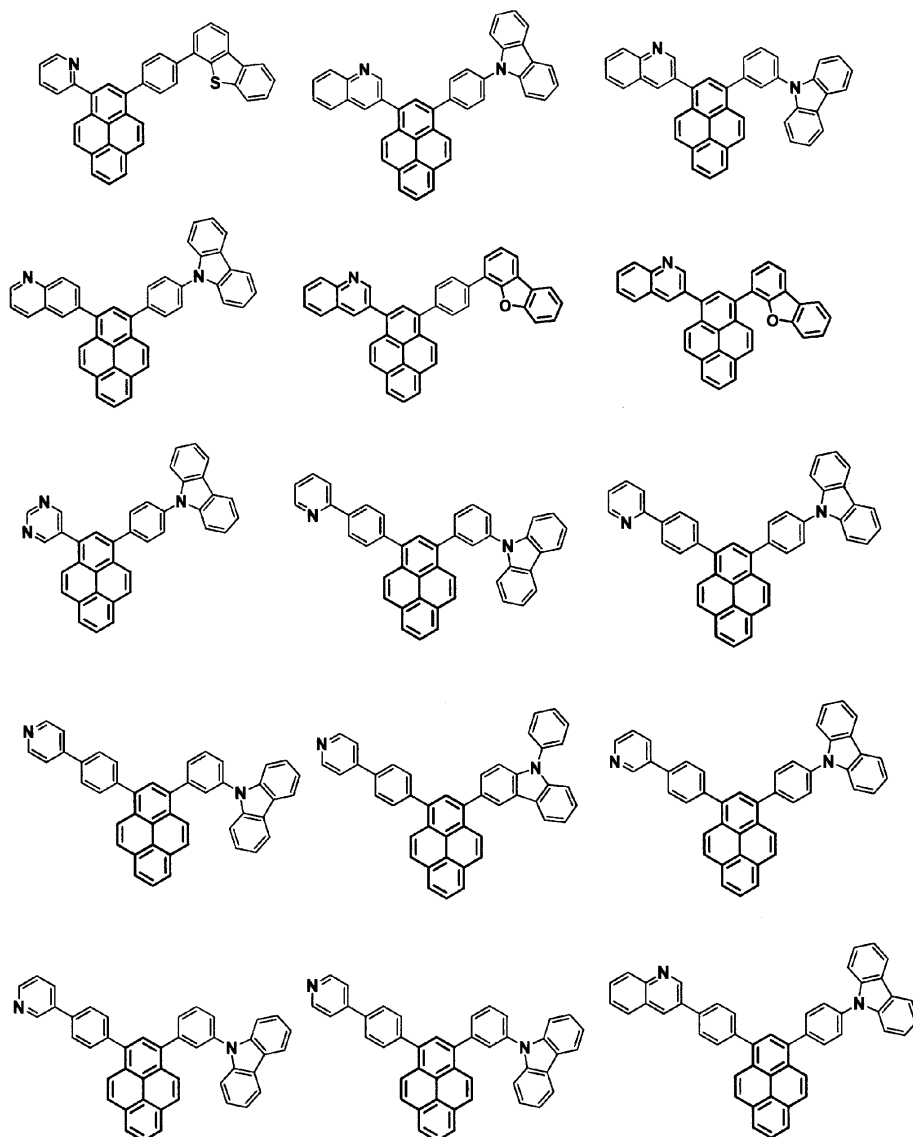
【 0 0 7 4 】

【化 2 0】



【 0 0 7 5】

【化 2 1】



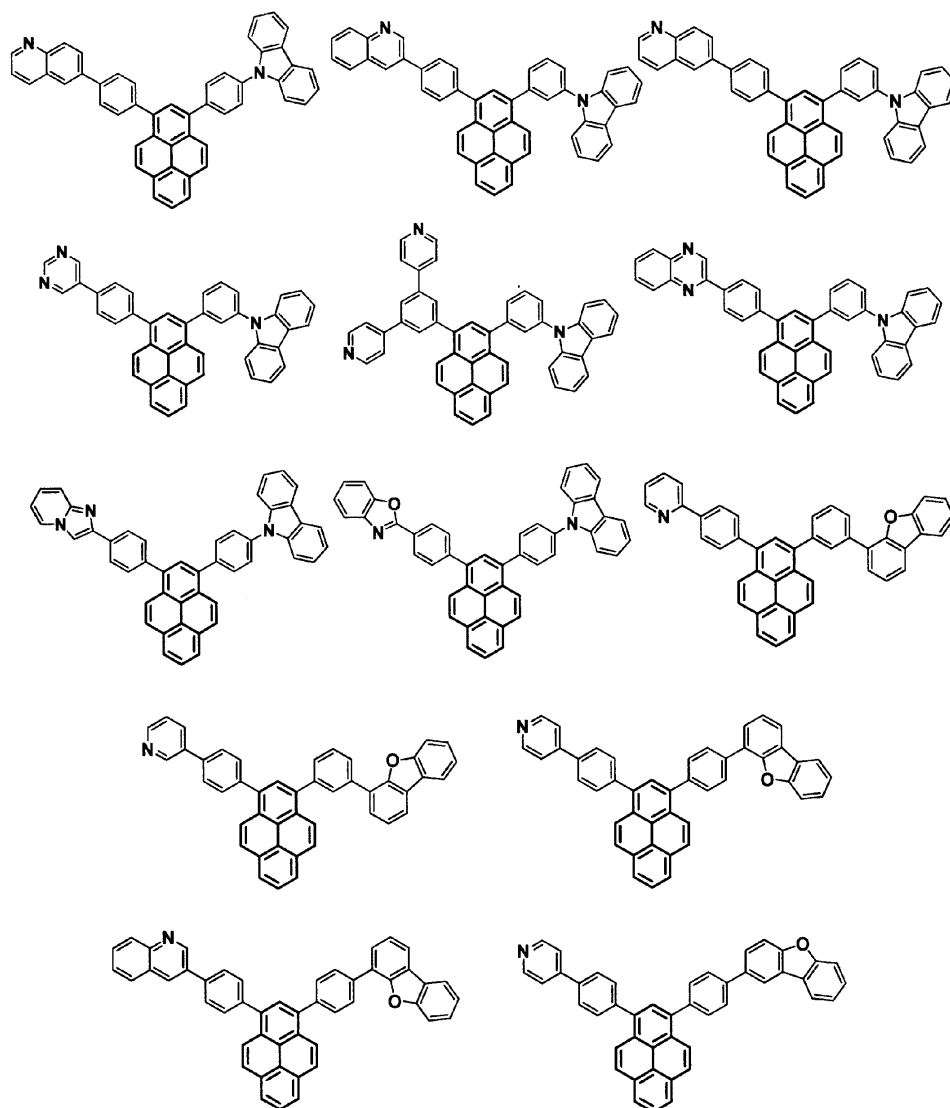
10

20

30

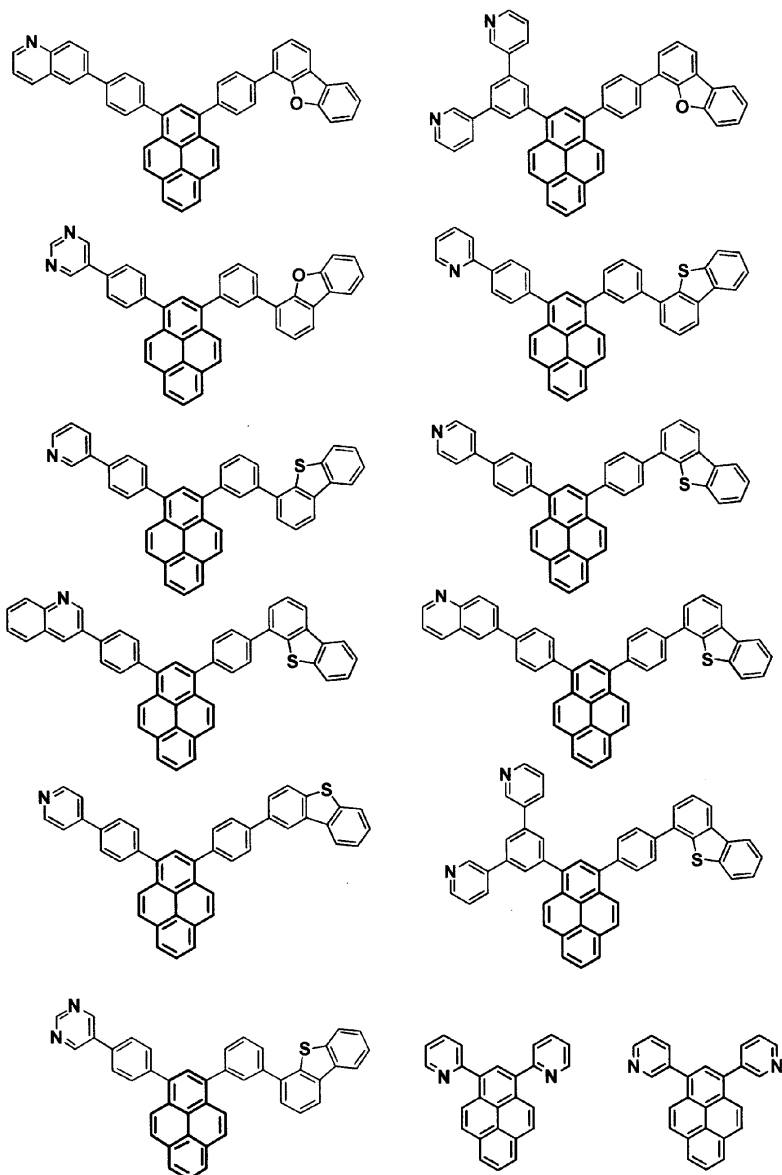
【 0 0 7 6】

【化 2 2】



【0077】

【化 2 3】



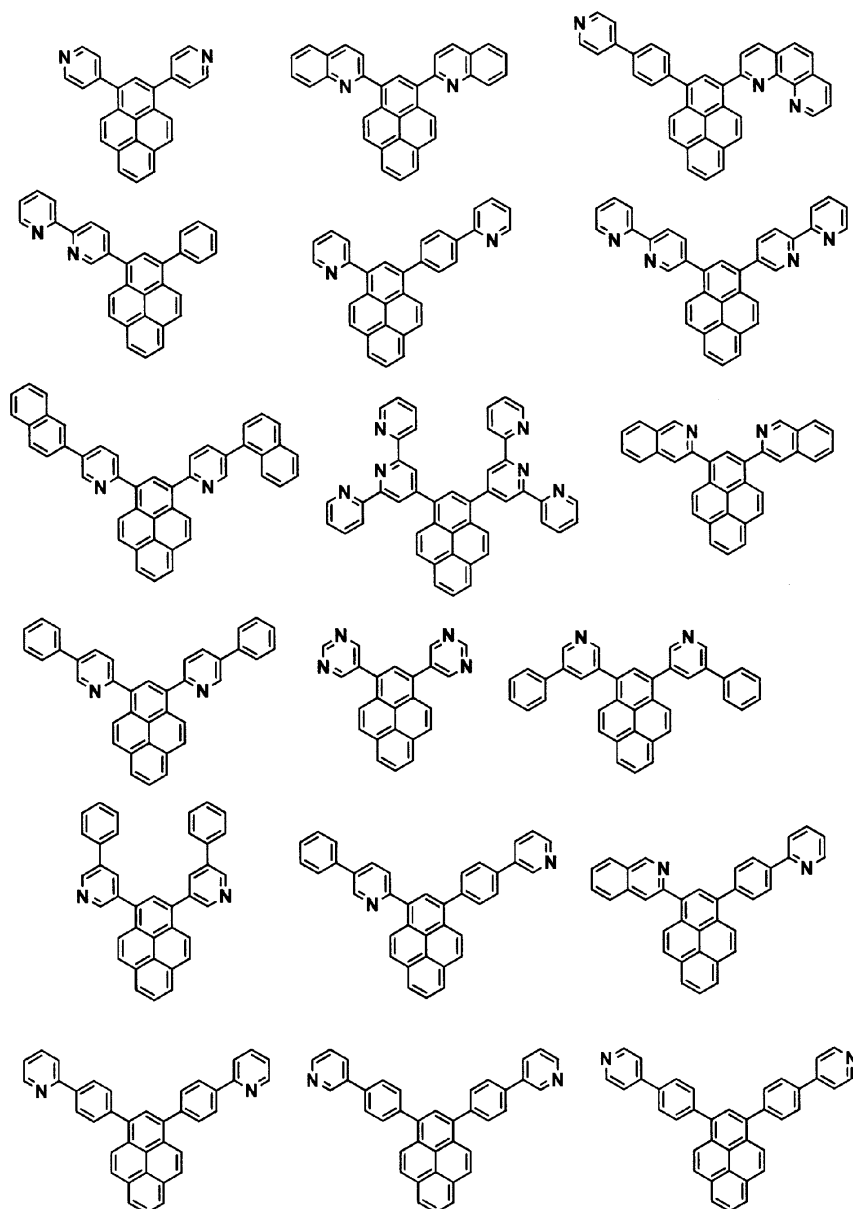
10

20

30

【0 0 7 8】

【化 2 4】



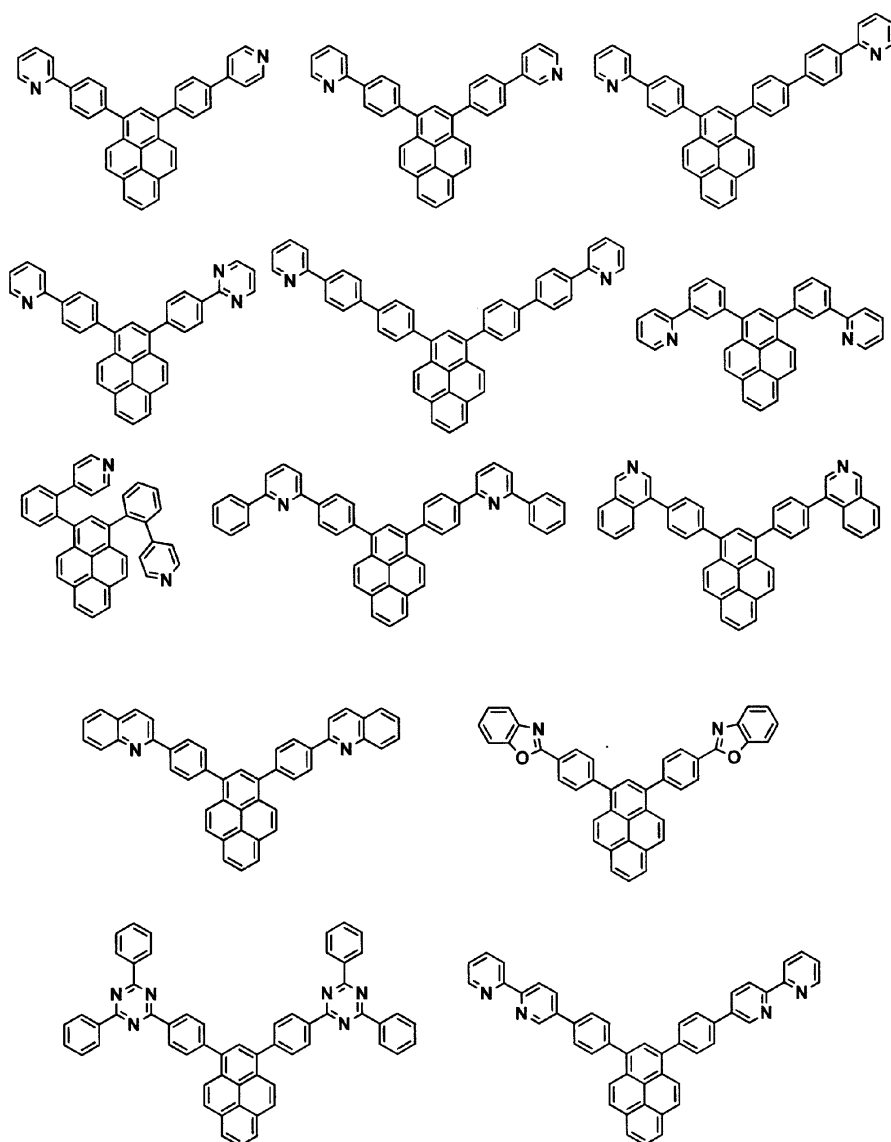
10

20

30

【 0 0 7 9 】

【化 2 5】



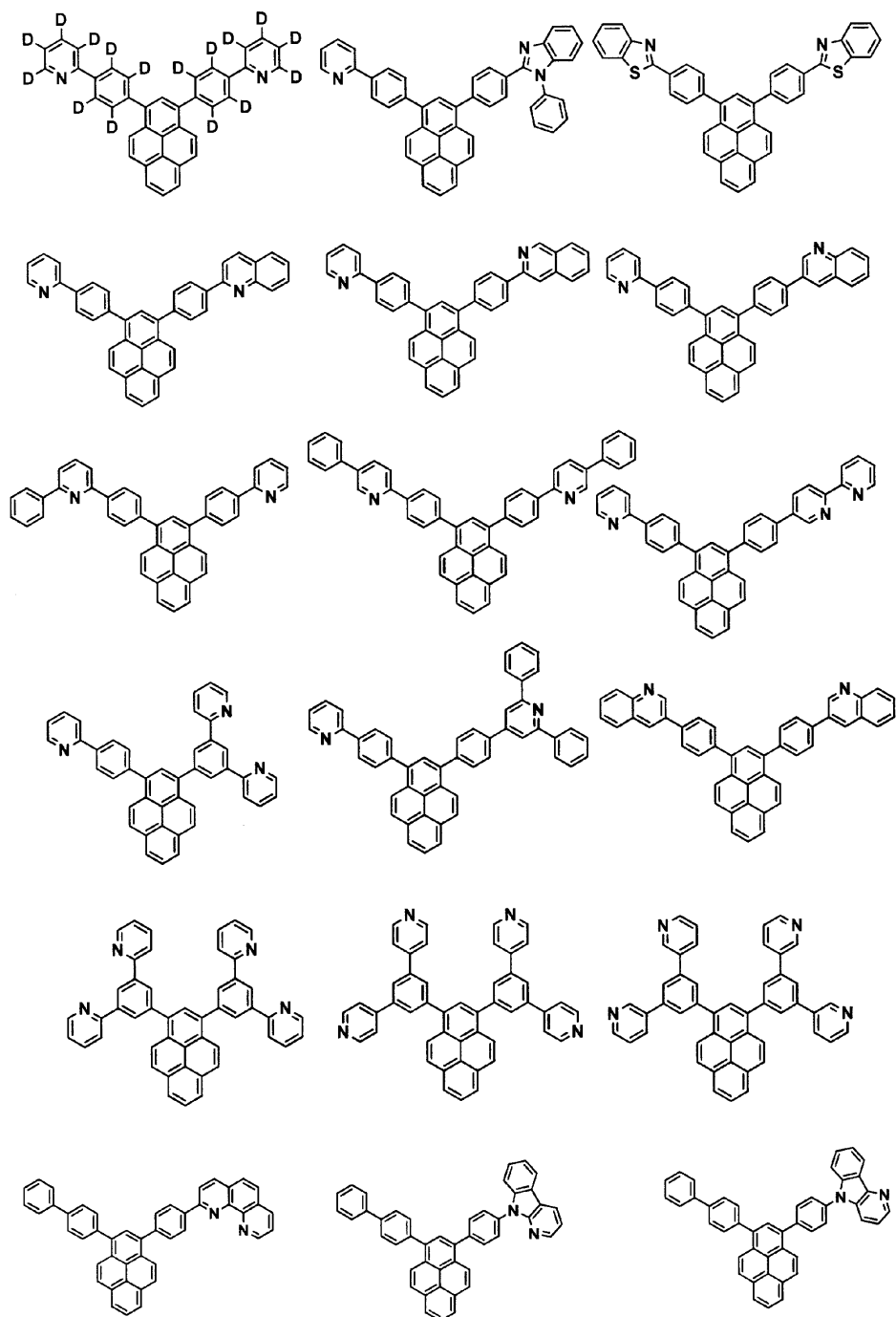
10

20

30

【 0 0 8 0 】

【化 2 6】



10

20

30

【0081】

一般式(1)で表されるピレン化合物は、発光素子材料として用いられる。ここで発光素子材料とは、発光素子のいずれかの層に使用される材料を表す。発光素子のいずれかの層とは、後述するように、正孔輸送層、発光層および電子輸送層から選ばれた層であるほか、陰極の保護膜も含む。一般式(1)で表されるピレン化合物を発光素子のいずれかの層に使用することにより、低駆動電圧かつ耐久性に優れた発光素子が得られる。

40

【0082】

一般式(1)で表されるピレン化合物は、高い電子注入輸送能、発光効率および薄膜安定性を有しているため、発光素子の発光層または電子輸送層に用いることが好ましい。

【0083】

一般式(1)で表されるピレン化合物を発光層に用いる場合、 X^1 および X^2 のうち少なくとも一つがアリール基もしくは電子受容性窒素を含まないヘテロアリール基であると

50

好ましい。発光層は正孔と電子をバランスよく伝達することが必要であるが、 X^1 または X^2 がアリール基もしくは電子受容性窒素を含まないヘテロアリール基であると、ピレン骨格の高い電子輸送性を活かしつつ正孔輸送性を向上させることができ、発光素子の低電圧化および高効率化に寄与するため好ましい。また X^1 および X^2 が、ともにアリール基もしくは電子受容性窒素を含まないヘテロアリール基であると、より正孔輸送性が向上するため好ましく、 X^1 および X^2 がともにアリール基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基およびジベンゾチオフェニル基から選ばれる基であるとさらに正孔輸送性が向上するため好ましい。

【0084】

また X^1 および X^2 のうち少なくとも1つが電子受容性窒素を含む芳香族複素環基である場合、一般式(1)で表されるピレン化合物は優れた電子注入輸送能を有するため、電子輸送層に用いることが好ましい。

【0085】

次に、本発明の発光素子の実施の形態について詳細に説明する。発光素子は、陽極と陰極、およびそれら陽極と陰極との間に介在する有機層を有する。該有機層は少なくとも発光層を含み、該発光層が電気エネルギーにより発光する。

【0086】

有機層としては、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、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、以下の説明では特に言及しない限り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める。

【0087】

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。基板としては、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。 SiO_2 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、基板はガラスである必要はなく、例えば、プラスチック基板を用いても良い。

【0088】

発光素子において、陽極と陰極は素子の発光のために十分な電流を供給するための役割を有するものである。発光素子から光を取り出すために、陽極および陰極の少なくとも一方は透明または半透明であることが望ましい。通常、基板上に形成される陽極を透明電極とする。

【0089】

陽極に用いる材料としては、正孔を有機層に効率よく注入でき、かつ、光を取り出すために透明または半透明であれば、特に限定されず、酸化錫、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)、酸化亜鉛インジウム(IZO)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；ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリンなどの導電性ポリマーなどが挙げられる。ITOガラスやネサガラスを用いることが特に望ましい。これらの電極材料は、単独で用いてもよいし、複数の材料を積層または混合して用いてもよい。陽極の電気抵抗は素子の発光に十分な電流が供給できればよいので限定されないが、素子の消費電力の観点からは、低抵抗であることが望ましい。例えば電気抵抗が $300 \Omega/\square$ 以下のITO基板であれば素子電極として十分使用可能であるが、現在では $10 \Omega/\square$ 程度の基板の供給も可能になっていることから、 $20 \Omega/\square$ 以下の低抵抗の基板を使用することが特に望ましい。陽極の厚みは抵抗値に合わせて任意に選ぶことができるが、 $100 \sim 300 \text{ nm}$ の間で用いられることが多い。

10

20

30

40

50

【0090】

陰極に用いる材料は、電子を効率よく発光層に注入できる物質であれば特に限定されない。一般的には白金、金、銀、銅、鉄、錫、アルミニウム、インジウムなどの金属、またはこれらの金属とリチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウムなどの低仕事関数金属との合金や多層積層体などが好ましい。中でも、アルミニウム、銀およびマグネシウムから選ばれる金属が、電気抵抗値や製膜しやすさ、膜の安定性、発光効率などの面から好ましい。特に陰極がマグネシウムと銀で構成されると、電子輸送層および電子注入層への電子注入が容易になり、低電圧駆動が可能になるため好ましい。

【0091】

さらに、陰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；これらの金属を用いた合金；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などを、保護膜層として陰極上に積層することが好ましい例として挙げられる。また、一般式（1）で表される化合物もこの保護膜層として利用できる。ただし、陰極側から光を取り出す素子構造（トップエミッション構造）の場合は、保護膜層は可視光領域で光透過性のある材料から選択される。

【0092】

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特に制限されない。

【0093】

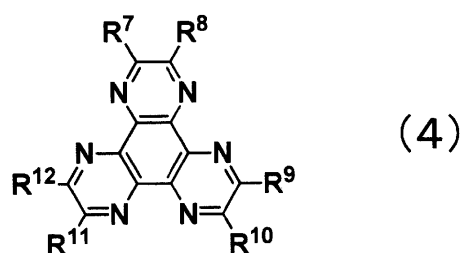
正孔輸送層は、電界を与えられた電極間において陽極から注入された正孔を効率良く輸送することが必要である。したがって、正孔輸送材料は、正孔注入効率が高く、注入された正孔を効率良く輸送することが望ましい。そのためには、正孔輸送材料は、適切なイオン化ポテンシャルを持ち、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが要求される。このような条件を満たす物質として、特に限定されるものではないが、4, 4'-ビス（N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ）ビフェニル、4, 4'-ビス（N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ）ビフェニル、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；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；フラレン誘導体；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。

【0094】

さらにp型Si、p型SiC等の無機化合物も使用できる。また、下記一般式（4）で表される化合物、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン（4F-TCNQ）または酸化モリブデンも用いることができる。

【0095】

【化27】



【0096】

$R^7 \sim R^{12}$ はそれぞれ同じでも異なってもよく、ハロゲン、スルホニル基、カル

10

20

30

40

50

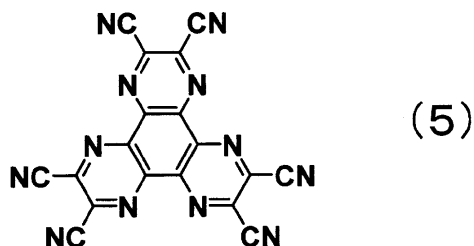
ボニル基、ニトロ基、シアノ基およびトリフルオロメチル基からなる群より選ばれる基である。

【0097】

中でも、化合物(5)(1, 4, 5, 8, 9, 12-ヘキサアザトリフェニレンヘキサカルボニトリル)が正孔輸送層または正孔注入層に含まれると、より低電圧駆動となるため好ましい。

【0098】

【化28】



10

【0099】

正孔輸送層は、正孔輸送材料の一種のみで形成しても、二種以上の正孔輸送材料を積層または混合して形成しても良い。また、正孔輸送材料と高分子結着剤の混合物を用いて正孔輸送層を形成しても良い。また、正孔輸送材料に塩化鉄(III)のような無機塩を添加して正孔輸送層を形成してもよい。

20

【0100】

発光層は、単一層、複数層のどちらでもよい。発光材料は、ホスト材料とドーパント材料との混合物であっても、ホスト材料単独であっても、いずれでもよい。発光層において、ホスト材料もしくはドーパント材料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。電気エネルギーを効率よく利用し、高色純度の発光を得るという観点からは、発光層はホスト材料とドーパント材料の混合物からなることが好ましい。また、ホスト材料とドーパント材料は、それぞれ一種類であっても、複数の組み合わせであっても、いずれでもよい。ドーパント材料はホスト材料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。ドーパント材料は、ホスト材料からなる層と積層されていても、ホスト材料中に分散されていても、いずれでもよい。ホスト材料とドーパント材料を混合することにより、発光色の制御ができる。この場合、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。ホスト材料とドーパント材料を混合する方法としては、ホスト材料とドーパント材料を共蒸着してもよいし、ホスト材料とドーパント材料を予め混合してから蒸着してもよい。

30

【0101】

発光材料としては、具体的には、アントラセンやピレンなどの縮合環誘導体；トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを始めとする金属キレート化オキシノイド化合物；ビスチリルアントラセン誘導体やジスチリルベンゼン誘導体などのビスチリル誘導体；テトラフェニルプタジエン誘導体、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、チアジアゾロピリジン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体；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、そして、ポリチオフエン誘導体などが使用できるが、特に限定されるものではない。

40

【0102】

一般式(1)で表される化合物は、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、一般式(1)で表される化合物は、紫外～青色領域(300～450nm領域)に強い発光を示すことから、青色発光材料として特に好適に用いることができる。一般式(1)で表される化合物は、ドーパント材料として用いてもよいが、薄膜安

50

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。

【0103】

ホスト材料は、化合物一種のみに限る必要はなく、複数の化合物を混合して用いてもよい。ホスト材料としては、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、クリセン、ナフタセン、トリフェニレン、ペリレン、フルオランテン、フルオレン、インデンなどの縮合アリール環を有する化合物やその誘導体；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、ピロロピロール誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、トリアジン誘導体；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、ポリチオフェン誘導体などが使用できるが特に限定されるものではない。中でも、発光層がりん光発光を行う際に用いられるホスト材料としては、金属キレート化オキシノイド化合物、ジベンゾフラン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、トリアジン誘導体などが好適に用いられる。

10

【0104】

ドーパント材料としては、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、クリセン、トリフェニレン、ペリレン、フルオランテン、フルオレン、インデンなどの縮合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、チオフェン、シロール、9-シラフルオレン、9，9'-ススピロビシラフルオレン、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、インドール、ジベンゾチオフェン、ジベンゾフラン、イミダゾピリジン、フェナントロリン、ピリジン、ピラジン、ナフチリジン、キノキサリン、ピロロピリジン、チオキサント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；ボラン誘導体；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）エチニル）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-g h〕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。

20

30

【0105】

また、発光層がりん光発光を行う際に用いられるドーパント材料としては、イリジウム（Ir）、ルテニウム（Ru）、パラジウム（Pd）、白金（Pt）、オスミウム（Os）、およびレニウム（Re）からなる群から選択される少なくとも一つの金属を含む金属錯体化合物であることが好ましい。配位子は、フェニルピリジン骨格またはフェニルキノリン骨格などの含窒素芳香族複素環を有することが好ましい。しかしながら、これらに限定されるものではなく、要求される発光色、素子性能およびホスト化合物との関係から適切な錯体を選ばれる。

40

【0106】

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、電子注入効率がよく、注入された電子を効率良く輸送することが望まれる。そのため電子輸送材料は、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

50

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あることが要求される。特に膜厚を厚く積層する場合には、低分子量の化合物は結晶化するなどして膜質が劣化しやすいため、安定な膜質を保つために分子量400以上の化合物が好ましい。一方、正孔と電子の輸送バランスを考えた場合に、陽極からの正孔が再結合せずに陰極側へ流れることを効率よく阻止できる役割を電子輸送層が果たすならば、電子輸送能力がそれ程高くない材料で電子輸送層が構成されていても、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。

【0107】

電子輸送材料は、化合物各一種のみに限る必要はなく、複数の化合物を混合して用いてもよい。電子輸送材料としては、特に限定されないが、ナフタレン、アントラセン、ピレンなどの縮合アリール環を有する化合物やその誘導体；4,4'-ビス（ジフェニルエチニル）ビフェニルに代表されるスチリル系芳香環誘導体；ペリレン誘導体；ペリノン誘導体；クマリン誘導体；ナフタルイミド誘導体；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；カルバゾール誘導体およびインドール誘導体；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やヒドロキシフェニルオキサゾール錯体などの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が挙げられる。

10

【0108】

一般式（1）で表される化合物は、高い電子注入輸送能を有することから電子輸送材料として、特に好適に用いられる。また、電子輸送層に、さらにドナー性化合物を含む場合に、ドナー性化合物との薄膜状態における相溶性が高く、より高い電子注入輸送能を発現する。この混合物層の働きにより、陰極から発光層への電子の輸送が促進され、高発光効率と低駆動電圧の効果がさらに向上する。

20

【0109】

ドナー性化合物は、電子注入障壁の改善により、陰極または電子注入層から電子輸送層への電子注入を容易にし、さらに電子輸送層の電気伝導性を向上させる化合物である。そのため、電子輸送層は、一般式（1）で表される化合物に加えて、電子輸送能力を向上させるためにドナー性化合物を含むことがより好ましい。

【0110】

ドナー性化合物の好ましい例としては、アルカリ金属、アルカリ金属を含有する無機塩、アルカリ金属と有機物との錯体、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属を含有する無機塩またはアルカリ土類金属と有機物との錯体などが挙げられる。アルカリ金属およびアルカリ土類金属の好ましい種類としては、低仕事関数で電子輸送能向上の効果が大きいリチウム、ナトリウム、セシウムといったアルカリ金属や、マグネシウム、カルシウムといったアルカリ土類金属が挙げられる。

30

【0111】

また、真空中での蒸着が容易で取り扱いに優れることから、ドナー性化合物は、金属単体よりも無機塩、あるいは金属と有機物との錯体の状態であることが好ましい。さらに、大気中での取扱の容易性や、添加濃度の制御のし易さの点で、アルカリ金属と有機物との錯体またはアルカリ土類金属と有機物との錯体がより好ましい。無機塩の例としては、LiO、Li₂O等の酸化物；窒化物；LiF、NaF、KF等のフッ化物；Li₂CO₃、Na₂CO₃、K₂CO₃、Rb₂CO₃、Cs₂CO₃等の炭酸塩などが挙げられる。また、アルカリ金属またはアルカリ土類金属の好ましい例としては、原料が安価で合成が容易な点から、リチウムが挙げられる。また、金属と有機物との錯体における有機物の好ましい例としては、キノリノール、ベンゾキノリノール、フラボノール、ヒドロキシイミダゾピリジン、ヒドロキシベンズアゾール、ヒドロキシトリアゾールなどが挙げられる。中でも、アルカリ金属と有機物との錯体が好ましく、リチウムと有機物との錯体がより好ましく、リチウムキノリノールが特に好ましい。

40

【0112】

また、電子輸送層中のドナー性化合物の含有割合が適切であると、陰極または電子注入

50

層から電子輸送層への電子の注入割合が増加し、陰極と電子注入層間または電子注入層と電子輸送層間でのエネルギー障壁が軽減され低駆動電圧化する。ドナー性化合物の好適な含有割合は、材料やドーピング領域の膜厚によっても異なるが、電子輸送材料とドナー性化合物の蒸着速度比が100:1~1:100の範囲となるように蒸着して電子輸送層を形成することが好ましい。蒸着速度比は10:1~1:10がより好ましく、7:3~3:7が特に好ましい。

【0113】

電子輸送層にドナー性化合物をドーピングして電子輸送能を向上させる方法は、有機層の膜厚が厚い場合に特に効果を発揮するものである。電子輸送層および発光層の合計膜厚が50nm以上の場合に特に効果大きい。例えば、発光効率を向上させるために干渉効果を利用する方法があるが、これは発光層から直接放射される光と、陰極で反射された光の位相を整合させて光の取り出し効率を向上させるものである。この最適条件は光の発光波長に応じて変化するが、電子輸送層および発光層の合計膜厚が50nm以上となる場合がある。また、発光が赤色などの長波長発光の場合には、電子輸送層および発光層の合計膜厚が100nm近くの厚膜になる場合がある。

10

【0114】

ドナー性化合物をドーピングする電子輸送層の膜厚は、電子輸送層の一部分および全部のどちらでも構わないが、電子輸送層全体の膜厚が厚いほどドーピングする濃度も濃い方がよい。電子輸送層の一部分にドーピングする場合、少なくとも電子輸送層/陰極界面にはドーピング領域を設けることが、低電圧化の効果は得られるので望ましい。一方、ドナー性化合物が発光層にまでドーピングされると発光効率を低下させる悪影響を及ぼす場合には、発光層/電子輸送層界面にノンドープ領域を設けることが望ましい。

20

【0115】

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。

【0116】

有機層全体の厚みは、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であることが好ましい。発光層、電子輸送層および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。

30

【0117】

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を得られるよう選ばれるべきである。

【0118】

本発明の発光素子は、例えば、マトリクス方式および/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。

【0119】

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方式である。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、緑および青の画素を並べて表示させる。この場合、典型的な画素の配列にはデルタタイプとストライプタイプがある。また、マトリクスの駆動方法は、線順次駆動およびアクティブマトリクスのどちらでもよい。線順次駆動は、ディスプレイの構造が簡単であるが、動作特性は、アクティブマトリクスの方が優れるので、用途によって使い分けることが必要である。

40

50

【0120】

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。セグメント方式のディスプレイの例としては、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。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。

【0121】

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、

10

【実施例】

【0122】

以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0123】

合成例1

化合物[1]の合成

ピレン150g、*t*-ブチルクロリド75.52gおよびジクロロメタン742mlからなる混合溶液を、窒素気流下、0℃に冷やし、塩化アルミニウム98.9gを加えた。この混合溶液を室温で3時間攪拌した後、水1100mlを注入し、ジクロロメタン1100mlで抽出した。得られた有機層を水750mlで3回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、エバポレートした。得られた固体をメタノール洗浄により精製し、ろ過した。得られた固体を真空乾燥することにより、2-*t*-ブチルピレンを65重量%含有する褐色固体272gを得た。

20

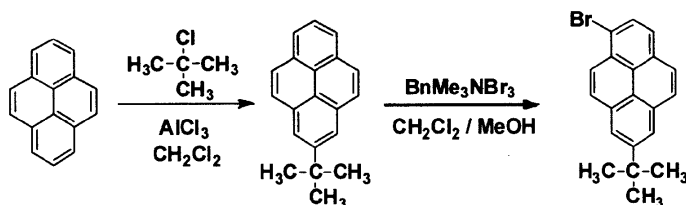
【0124】

次に、上記の褐色固体6g（2-*t*-ブチルピレンの含有率65%）、ジクロロメタン100mlおよびメタノール30mlの混合溶液を窒素気流下、0℃に冷やし、ジクロロメタン20ml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6.6gを滴下した。この混合溶液を室温で2時間攪拌した後、水100mlを注入し、ジクロロメタン100mlで抽出した。得られた有機層を水100mlで2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、ろ過した。ろ液をエバポレートし、得られた固体にメタノール20mlを加え、10分攪拌した後、ろ過した。得られた固体にヘキサン60mlを加え、30分攪拌した後、ろ過した。得られた固体を真空乾燥することにより、1-ブromo-7-*t*-ブチルピレン4.6gを79.2重量%含有した固体を得た。

30

【0125】

【化29】



40

【0126】

次に、1-ブromo-7-*t*-ブチルピレンを含有した固体4.6g（含有率79.2%）、4-クロロフェニル硼酸1.9g、1,2-ジメトキシエタン54mLおよび1.5M炭酸ナトリウム水溶液16mLの混合溶液を窒素置換した後、ビス（トリフェニルホスフィン）パラジウムジクロリド76mgを加え、60℃で4時間加熱攪拌した。反応

50

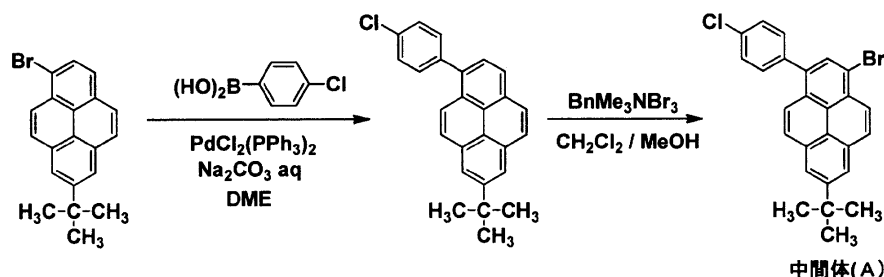
混合物を室温に冷却した後、トルエン100mlで抽出した。得られた有機層を水50mlで3回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、ろ過した。ろ液をエバポレートし、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。溶出液をエバポレートした後、得られた固体にメタノール50mlを加え、ろ過した。得られた固体を真空乾燥することにより、7-tert-ブチル-1-(4-クロロフェニル)ピレン3.2g (収率81%)を得た。

【0127】

次に、7-tert-ブチル-1-(4-クロロフェニル)ピレン3.2g、ジクロロメタン50mlおよびメタノール16mlの混合溶液を窒素気流下、0℃に冷やし、ジクロロメタン10ml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3.9gを滴下した。この混合溶液を室温で2時間攪拌した後、水40mlを注入し、ジクロロメタン40mlで抽出した。得られた有機層を水40mlで2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、エバポレートした。得られた固体にメタノール20mlを加え、一晩放置した。析出した固体をろ過し、真空乾燥することにより、中間体(A)4.3g (収率97%)を得た。

【0128】

【化30】



【0129】

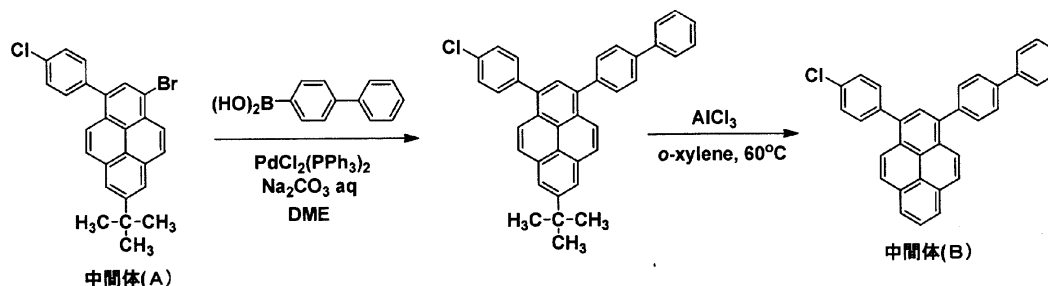
次に、中間体(A)4.3g、4-ビフェニルボロン酸2.1g、1,2-ジメトキシエタン48mlおよび1.5M炭酸ナトリウム水溶液14mlの混合溶液を窒素置換した後、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウムジクロリド67mgを加え、還流下で2時間加熱攪拌した。反応混合物を室温に冷却した後、トルエン50mlで抽出した。得られた有機層を水50mlで2回洗浄した後、硫酸マグネシウムと活性炭を加え、室温で30分攪拌した後、セライトろ過した。ろ液をエバポレートした後、得られた固体にトルエン8mlを加えて溶解させた溶液に、ヘキサン20mlを滴下した。析出した固体をろ過し、真空乾燥することにより、1-(4-ビフェニル)-7-tert-ブチル-3-(4-クロロフェニル)ピレン4.5g (収率89%)を得た。

【0130】

次に、1-(4-ビフェニル)-7-tert-ブチル-3-(4-クロロフェニル)ピレン4.5g、三塩化アルミニウム1.7gおよびオルトキシレン170mlの混合溶液を窒素気流下、60℃で6時間加熱攪拌した。反応混合物を室温に冷却した後、水80mlを注入し、トルエン100mlを加えて抽出した。得られた有機層を水100mlで2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、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。溶出液をエバポレートした後、得られた固体をトルエン50mlに加熱溶解させた。この溶液に、さらに酢酸エチル50mlを加えて室温で5時間攪拌した後、析出した固体をろ過した。メタノールで固体を洗浄した後、真空乾燥し、中間体(B)2.5g (収率63%)を得た。

【0131】

【化 3 1】



10

【0 1 3 2】

次に、中間体 (B) 2.5 g、4-ピリジンボロン酸 0.99 g、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム 62 mg、トリシクロヘキシルホスフィン・テトラフルオロボレート 37 mg および 1, 4-ジオキサン 27 ml の混合溶液を窒素置換した後、1.27 M リン酸三カリウム水溶液 7.2 ml を加え、窒素気流下、還流下で 3 時間加熱撹拌した。反応混合物を室温に冷却した後、水 27 ml を加え、析出物をろ過し、得られた析出物を真空乾燥機で乾燥した。析出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、溶出液をエバポレートした後、得られた固体にメタノール 20 ml を加え、ろ過した。得られた固体を真空乾燥した後、トルエン 80 ml を用いて再結晶にて精製し、黄色結晶 1.7 g (収率 62%) を得た。

20

【0 1 3 3】

得られた黄色結晶の $^1\text{H-NMR}$ 分析結果は次の通りであり、上記で得られた黄色結晶が化合物 [1] であることが確認された。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ 7.40 (1H, t, $J = 3.8 \text{ Hz}$)、7.48–7.56 (2H, m)、7.65 (2H, dd, $J = 1.6 \text{ Hz}$, 5.9 Hz)、7.70–7.89 (10H, m)、8.01–8.12 (4H, m)、8.22 (2H, d, $J = 9.7 \text{ Hz}$)、8.28 (2H, dd, $J = 10.8 \text{ Hz}$, 17.0 Hz)、8.73 (2H, dd, $J = 1.6 \text{ Hz}$, 6.5 Hz)。

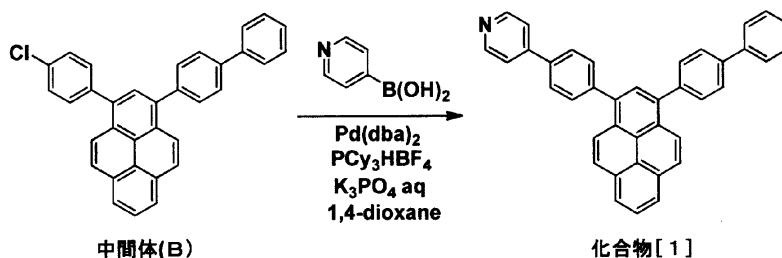
【0 1 3 4】

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

30

【0 1 3 5】

【化 3 2】



40

【0 1 3 6】

合成例 2

化合物 [2] の合成

中間体 (A) 10.0 g、3-(9-カルバズリル) フェニルボロン酸 7.1 g、1, 2-ジメトキシエタン 111 mL および 1.5 M 炭酸ナトリウム水溶液 33 mL の混合溶液を窒素置換した後、ビス (トリフェニルホスフィン) パラジウムジクロリド 157 mg を加え、還流下で 2 時間加熱撹拌した。反応混合物を室温に冷却した後、トルエン 100

50

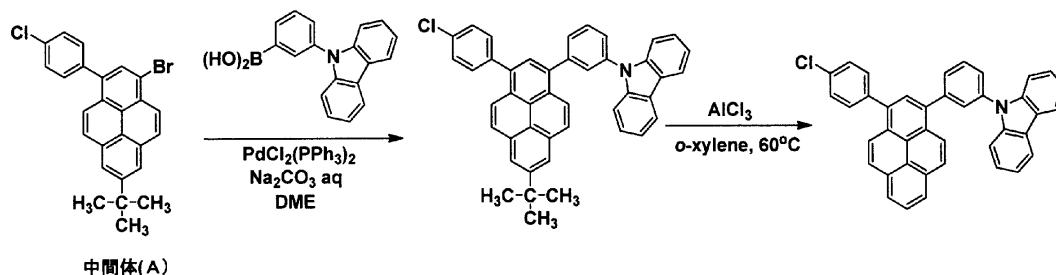
mLで抽出した。得られた有機層を水100mLで2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、ろ過した。ろ液をエバポレートし、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。溶出液をエバポレートした後、得られた固体にメタノール100mLを加え、ろ過した。得られた固体を真空乾燥することにより、7-tert-ブチル-1-(3-(9-カルバゾリルフェニル))-3-(4-クロロフェニル)ピレン11.5g(収率85%)を得た。

【0137】

次に、7-tert-ブチル-1-(3-(9-カルバゾリルフェニル))-3-(4-クロロフェニル)ピレン6.0g、三塩化アルミニウム1.6gおよびオルトキシレン197mLの混合溶液を窒素気流下、60℃で4時間加熱撹拌した。反応混合物を室温に冷却した後、水200mLを注入し、トルエン100mLを加えて抽出した。得られた有機層を水200mLで2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、ろ過した。ろ液をエバポレートし、得られた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た。溶出液をエバポレートした後、得られた固体をメタノール100mLを加えてろ過した。得られた固体を真空乾燥することにより、1-(3-(9-カルバゾリルフェニル))-3-(4-クロロフェニル)ピレン3.8g(収率70%)を得た。

【0138】

【化33】



【0139】

次に、1-(3-(9-カルバゾリルフェニル))-3-(4-クロロフェニル)ピレン3.8g、4-ピリジンボロン酸1.3g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム79mg、トリシクロヘキシルホスフィン・テトラフルオロボレート48mgおよび1,4-ジオキサン34mLの混合溶液を窒素置換した後、1.27Mリン酸三カリウム水溶液9.2mLを加え、窒素気流下、還流下で6時間加熱撹拌した。反応混合物を室温に冷却した後、水34mLを加え、トルエン34mLで抽出した。得られた有機層を水50mLで2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、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。溶出液をエバポレートした後、得られた固体をトルエン150mLを用いて再結晶にて精製した。得られた固体を再度トルエン120mLを用いて再結晶にて精製し、真空乾燥することにより、黄色結晶1.8g(収率44%)を得た。

【0140】

得られた黄色結晶の¹H-NMR分析結果は次の通りであり、上記で得られた黄色結晶が化合物[2]であることが確認された。

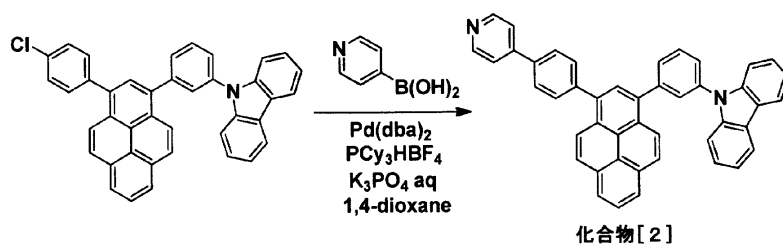
¹H-NMR(CDC1₃) δ 7.30(2H, dt, J=0.84Hz, 7.3Hz)、7.44(2H, dt, J=1.4Hz, 7.0Hz)、7.55-7.64(4H, m)、7.68-7.93(8H, m)、8.04-8.26(9H, m)、8.35(1H, d, J=9.2Hz)、8.72(2H, dd, J=4.1Hz, 1.6Hz)。

【0141】

なお、この化合物[2]は、油拡散ポンプを用いて1×10⁻³Pa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。化合物[2]のHPLC純度(測定波長254nmにおける面積%)は、昇華精製前が99.7%、昇華精製後が99.8%であった。

【0142】

【化34】



10

【0143】

合成例3

化合物[3]の合成

中間体(B) 2.8 g、1-ナフタレンボロン酸 1.3 g、リン酸三カリウム 3.8 g およびトルエン 30 ml の混合溶液を窒素置換した後、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム 172 mg およびトリ-*t*-ブチルホスフィン・テトラフルオロボレート 208 mg を加え、窒素気流下、還流下で4時間加熱攪拌した。反応混合物を室温に冷却した後、水 30 ml を加え、トルエン 34 ml で抽出した。得られた有機層を水 30 ml で2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、ろ過した。ろ液をエバポレートした後、得られた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た。溶出液をエバポレートした

20

後、得られた固体をヘプタン 27 ml とトルエン 27 ml の混合液を用いて再結晶にて精製した。得られた固体を再度ヘプタン 27 ml とトルエン 27 ml の混合液を用いて再結晶にて精製し、真空乾燥することにより、黄色結晶 1.8 g (収率 54%) を得た。

【0144】

得られた黄色結晶の $^1\text{H-NMR}$ 分析結果は次の通りであり、上記で得られた黄色結晶が化合物[3]であることが確認された。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): 7.41 (1H, tt, $J=7.6\text{ Hz}$, 0.81 Hz)、7.48–7.64 (6H, m)、7.68–7.86 (10H, m)、7.88–7.98 (2H, m)、8.02–8.17 (5H, m)、8.18–8.24 (2H, m)、8.33 (1H, d, $J=9.2\text{ Hz}$)、8.40 (1H, d, $J=9.5\text{ Hz}$)。

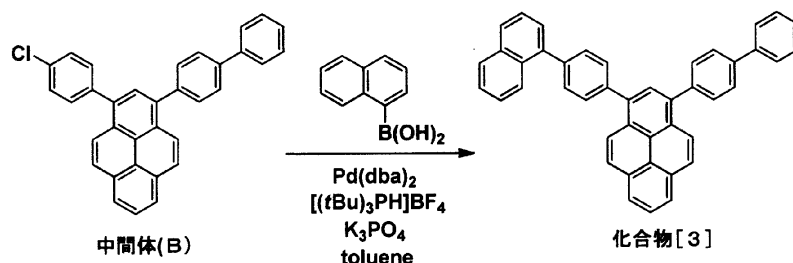
30

【0145】

なお、この化合物[3]は、油拡散ポンプを用いて $1 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ の圧力下、約 280 °C で昇華精製を行ってから発光素子材料として使用した。化合物[3]の HPLC 純度 (測定波長 254 nm における面積%) は昇華精製前が 99.7%、昇華精製後が 99.8% であった。

【0146】

【化35】



40

【0147】

実施例1

ITO 透明導電膜を 165 nm 堆積させたガラス基板 (ジオマテック (株) 製、11 Ω / $\square$ 、スパッタ品) を $38 \times 46\text{ mm}$ に切断した後、エッチングを行い、ITO 透明導電膜を所定の電極形状に形成した。得られた基板を “セミコクリーン 56” (商品名、フル

50

ウチ化学（株）製）を用いて15分間超音波洗浄してから、超純水で洗浄した。この基板を素子を作製する直前に1時間UV-オゾン処理し、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。ITO透明導電膜上に、抵抗加熱法によって、まず正孔注入層として、1, 4, 5, 8, 9, 12-ヘキサアザトリフェニレンヘキサカルボニトリルを5 nmの厚さ、正孔輸送層として、4, 4'-ビス（N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ）ビフェニルを60 nmの厚さで、それぞれ蒸着した。次に、発光層として、ホスト材料である化合物（H-1）およびドーパント材料である化合物（D-1）を混合した層を、ドーパント濃度が5重量%になるようにして40 nmの厚さに蒸着した。次に、電子輸送層として、化合物〔1〕とドナー性化合物であるフッ化リチウムを混合した層を、蒸着速度比1：1（0.05 nm/s：0.05 nm/s）で25 nmの厚さに蒸着した。

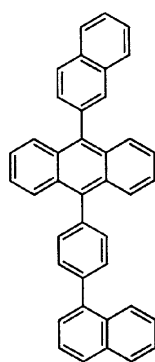
10

【0148】

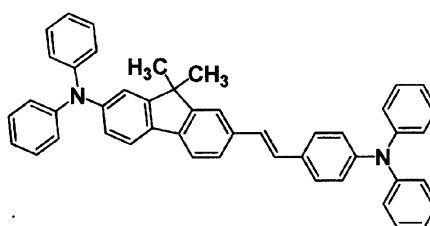
次に、フッ化リチウムを0.5 nmの厚さに蒸着した後、アルミニウムを1000 nmの厚さに蒸着して陰極とし、発光面が 5×5 mm角の発光素子を作製した。ここで言う膜厚は、水晶発振式膜厚モニター表示値である。この発光素子を10 mA/cm²で直流駆動したところ、駆動電圧4.6 V、外部量子効率5.3%、輝度半減時間6500時間の、低駆動電圧かつ高効率発光する耐久性に優れた青色発光素子が得られた。

【0149】

【化36】



(H-1)



(D-1)

20

30

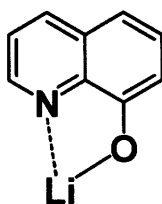
【0150】

実施例または参考例 2～9

電子輸送層として表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。結果は表1に示した。なお、表1中、(2E-1)は下記に示す化合物である。

【0151】

【化37】



(2E-1)

40

【0152】

比較例 1～6

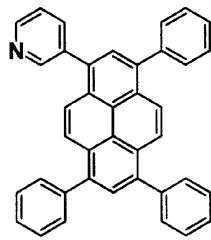
電子輸送層として表1に記載した材料を用いた以外は、実施例1と同様にして発光素子

50

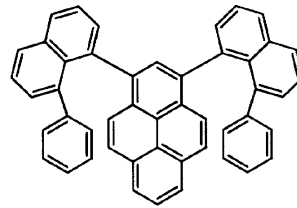
を作製した。結果は表 1 に示した。なお、表 1 中、(E-1)、(E-2) は下記に示す化合物である。

【0153】

【化38】



(E-1)



(E-2)

10

【0154】

【表1】

【表1】

	発光材料			電子輸送層		陰極	外部量子効率 (%)	駆動電圧 (V)	輝度半減時間 (h)
	ホスト材料	ドーパント材料	発光色	化合物	ドナー性化合物	金属			
実施例 1	H-1	D-1	青色	化合物 [1]	フッ化リチウム	Al	5.3	4.6	6500
実施例 2			青色	化合物 [1]	なし	Al	4.1	5.2	5000
実施例 3			青色	化合物 [2]	フッ化リチウム	Al	5.4	4.7	6400
実施例 4			青色	化合物 [2]	なし	Al	4.2	5.2	5100
参考例 5			青色	化合物 [3]	フッ化リチウム	Al	5.2	4.8	6700
参考例 6			青色	化合物 [3]	なし	Al	4.3	5.3	5300
実施例 7			青色	化合物 [1]	2E-1	Al	5.9	4.1	7300
実施例 8			青色	化合物 [2]	2E-1	Al	5.7	4.3	7400
参考例 9			青色	化合物 [3]	2E-1	Al	5.8	4.0	7500
比較例 1			青色	E-1	フッ化リチウム	Al	3.8	6.9	4100
比較例 2			青色	E-1	2E-1	Al	4.2	6.2	4600
比較例 3			青色	E-1	なし	Al	2.8	7.3	3000
比較例 4			青色	E-2	フッ化リチウム	Al	3.6	7.1	3800
比較例 5			青色	E-2	2E-1	Al	4.3	6.5	4200
比較例 6			青色	E-2	なし	Al	2.9	7.9	2600

20

30

【0155】

実施例 10

電子輸送層として、化合物 [1] とドナー性化合物である (2E-1) を混合した層を、蒸着速度比 1 : 1 (0.05 nm/s : 0.05 nm/s) で 25 nm の厚さに蒸着し、次に、(2E-1) を 0.5 nm の厚さに蒸着した後、陰極として、マグネシウムと銀の共蒸着膜を蒸着速度比がマグネシウム : 銀 = 10 : 1 (0.5 nm/s : 0.05 nm/s) で 15 nm の厚さに蒸着した以外は実施例 1 と同様にして発光素子を作製した。

【0156】

この発光素子を 10 mA/cm² で直流駆動したところ、駆動電圧 3.7 V、外部量子効率 5.9%、輝度半減時間 7600 時間の、低駆動電圧かつ高効率発光する耐久性に優れた青色発光素子が得られた。

【0157】

40

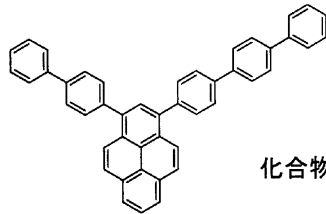
50

実施例または参考例 11～60

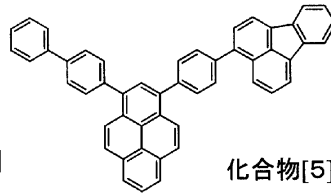
電子輸送層として表2、表3に記載した材料を用いた以外は、実施例10と同様にして発光素子を作製した。結果は表2、表3に示した。なお、表2中、化合物[4]～化合物[51]は下記に示す化合物である。

【0158】

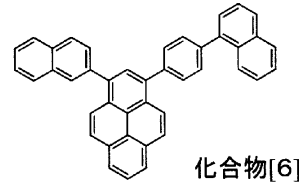
【化39】



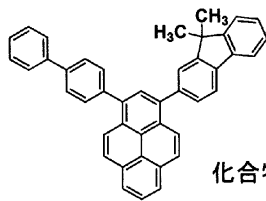
化合物[4]



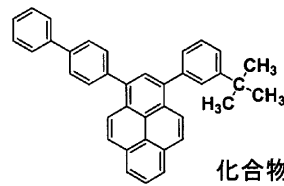
化合物[5]



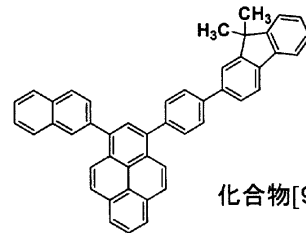
化合物[6]



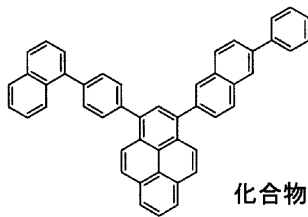
化合物[7]



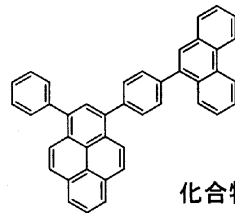
化合物[8]



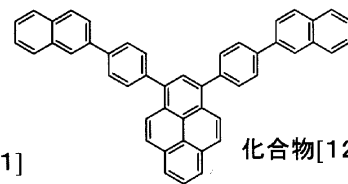
化合物[9]



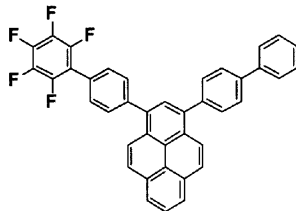
化合物[10]



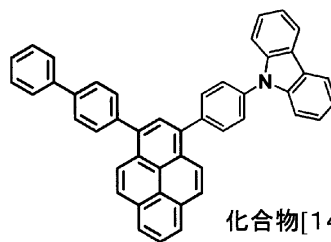
化合物[11]



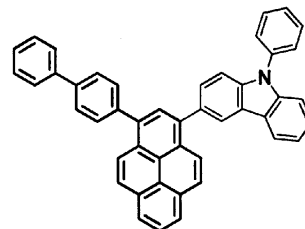
化合物[12]



化合物[13]



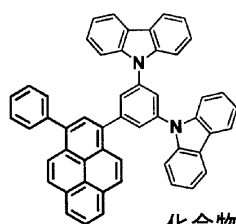
化合物[14]



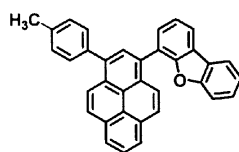
化合物[15]

【0159】

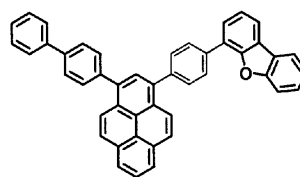
【化 4 0】



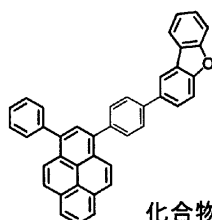
化合物[16]



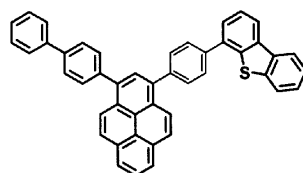
化合物[17]



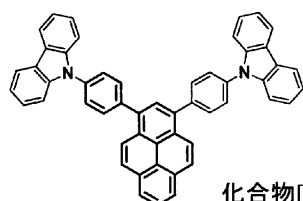
化合物[18]



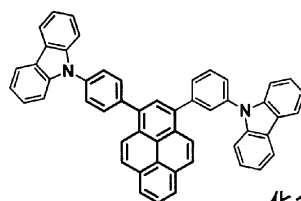
化合物[19]



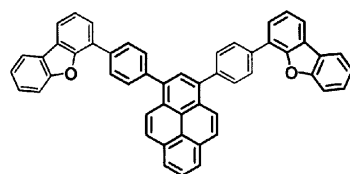
化合物[20]



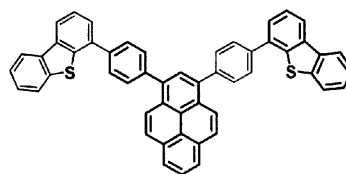
化合物[21]



化合物[22]



化合物[23]



化合物[24]

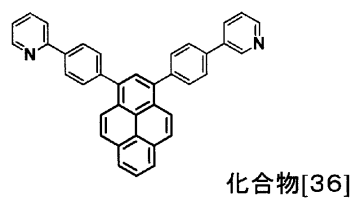
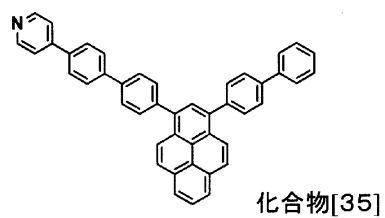
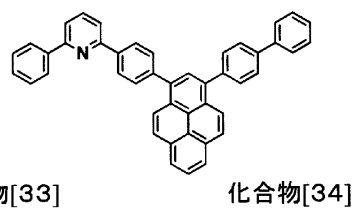
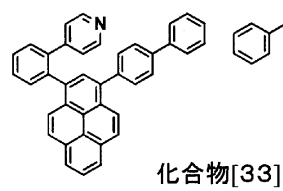
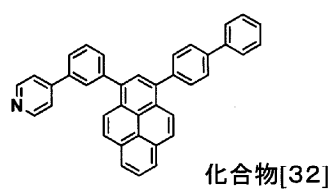
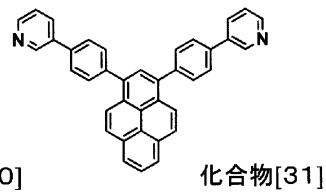
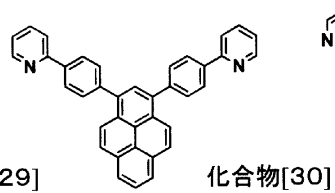
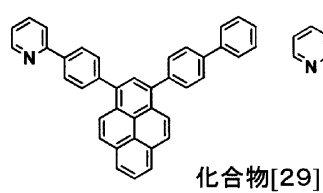
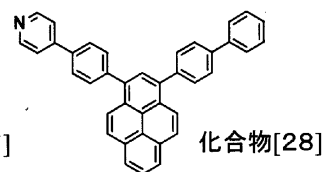
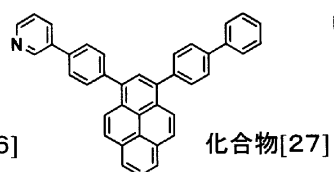
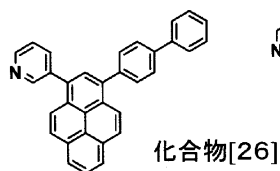
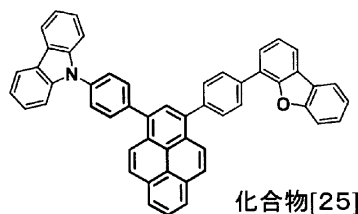
【 0 1 6 0】

10

20

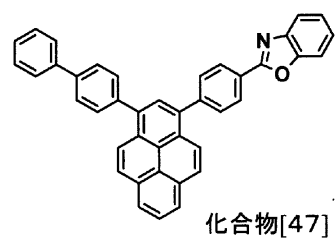
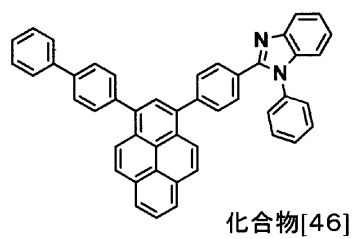
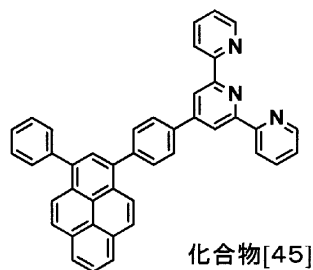
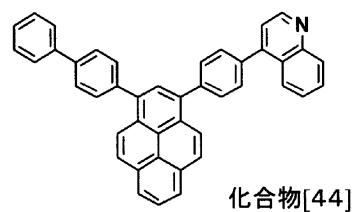
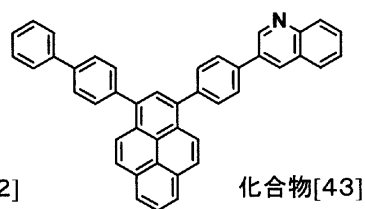
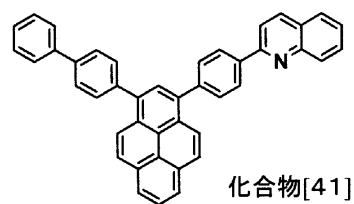
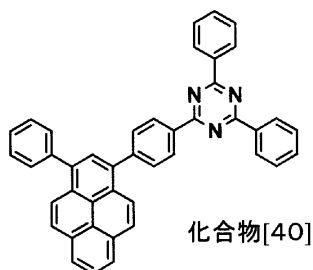
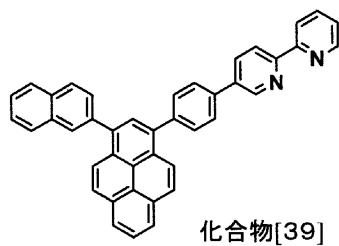
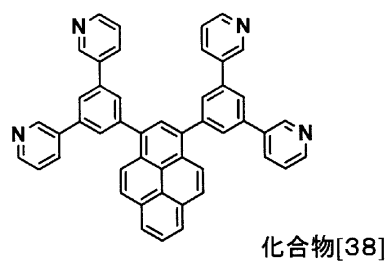
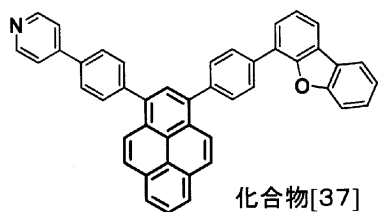
30

【化 4 1】



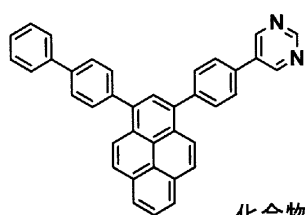
【 0 1 6 1】

【化 4 2】

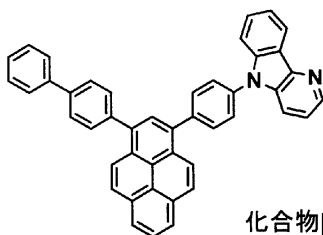


【 0 1 6 2】

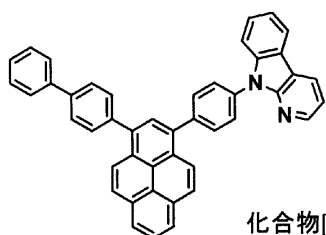
【化 4 3】



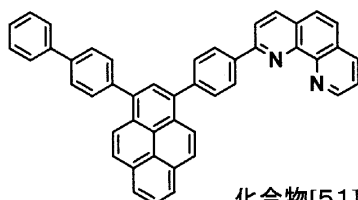
化合物[48]



化合物[49]



化合物[50]



化合物[51]

10

【 0 1 6 3】

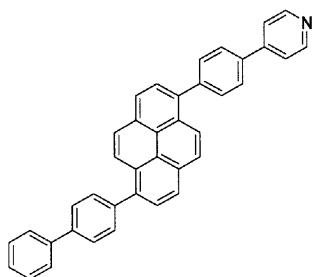
比較例 7 ～ 1 0

電子輸送層として表 3 に記載した材料を用いた以外は、実施例 1 0 と同様にして発光素子を作製した。結果は表 3 に示した。なお、表 3 中、(E-3)、(E-4) は下記に示す化合物である。

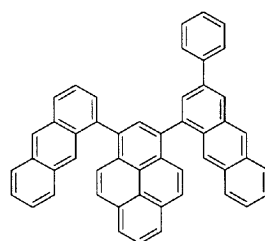
20

【 0 1 6 4】

【化 4 4】



(E-3)



(E-4)

30

【 0 1 6 5】

【表 2】

【表 2】

	発光材料			電子輸送層		陰極	外部量子効率 (%)	駆動電圧 (V)	輝度半減時間 (h)
	ホスト材料	ドーパント材料	発光色	化合物	ドナー性化合物	金属			
実施例 10	H-1	D-1	青色	化合物 [1]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	3.7	7600
実施例 11			青色	化合物 [2]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.5	8200
参考例 12			青色	化合物 [3]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	4.3	7700
参考例 13			青色	化合物 [4]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	4.2	7800
参考例 14			青色	化合物 [5]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	4.0	7800
参考例 15			青色	化合物 [6]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	4.3	7600
参考例 16			青色	化合物 [7]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	4.3	7500
参考例 17			青色	化合物 [8]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	4.4	7700
参考例 18			青色	化合物 [9]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	4.2	7500
参考例 19			青色	化合物 [10]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	4.4	7600
参考例 20			青色	化合物 [11]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	4.3	7500
参考例 21			青色	化合物 [12]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	4.4	7100
参考例 22			青色	化合物 [13]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	4.1	7300
参考例 23			青色	化合物 [14]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	4.2	7900
参考例 24			青色	化合物 [15]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	4.3	8000
参考例 25			青色	化合物 [16]	2 E-1	Mg/Ag	5.4	4.5	7800
参考例 26			青色	化合物 [17]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	4.3	7700
参考例 27			青色	化合物 [18]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	4.4	7700
参考例 28			青色	化合物 [19]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	4.4	7700
参考例 29			青色	化合物 [20]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	4.3	7600
参考例 30			青色	化合物 [21]	2 E-1	Mg/Ag	5.5	4.5	7000
参考例 31			青色	化合物 [22]	2 E-1	Mg/Ag	5.5	4.5	7500
参考例 32			青色	化合物 [23]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	4.6	7100
参考例 33			青色	化合物 [24]	2 E-1	Mg/Ag	5.4	4.6	7000
参考例 34			青色	化合物 [25]	2 E-1	Mg/Ag	5.4	4.4	7500
実施例 35			青色	化合物 [26]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	3.9	7800
実施例 36			青色	化合物 [27]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	3.6	7900
実施例 37			青色	化合物 [28]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	3.8	8100

10

20

30

40

【0166】

【表 3】

【表 3】

	発光材料			電子輸送層		陰極	外部量子効率 (%)	駆動電圧 (V)	輝度半減時間 (h)
	ホスト材料	ドーパント材料	発光色	化合物	ドナー性化合物	金属			
実施例 3 8	H-1	D-1	青色	化合物 [2 9]	2 E-1	Mg/Ag	5.4	3.6	7700
実施例 3 9			青色	化合物 [3 0]	2 E-1	Mg/Ag	5.2	3.3	6100
実施例 4 0			青色	化合物 [3 1]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.6	8200
実施例 4 1			青色	化合物 [3 2]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	3.6	8000
実施例 4 2			青色	化合物 [3 3]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	3.8	8100
実施例 4 3			青色	化合物 [3 4]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	3.8	8100
実施例 4 4			青色	化合物 [3 5]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	3.4	8100
実施例 4 5			青色	化合物 [3 6]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.5	8200
実施例 4 6			青色	化合物 [3 7]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	3.5	8100
実施例 4 7			青色	化合物 [3 8]	2 E-1	Mg/Ag	5.4	3.6	7200
実施例 4 8			青色	化合物 [3 9]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.8	8000
実施例 4 9			青色	化合物 [4 0]	2 E-1	Mg/Ag	5.7	3.7	8000
実施例 5 0			青色	化合物 [4 1]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	3.7	7900
実施例 5 1			青色	化合物 [4 2]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	3.8	8000
実施例 5 2			青色	化合物 [4 3]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.6	7800
実施例 5 3			青色	化合物 [4 4]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.7	8000
実施例 5 4			青色	化合物 [4 5]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.8	7600
実施例 5 5			青色	化合物 [4 6]	2 E-1	Mg/Ag	5.6	4.0	8200
実施例 5 6			青色	化合物 [4 7]	2 E-1	Mg/Ag	5.5	4.0	7900
実施例 5 7			青色	化合物 [4 8]	2 E-1	Mg/Ag	5.9	4.2	7800
実施例 5 8			青色	化合物 [4 9]	2 E-1	Mg/Ag	6.0	3.9	7700
実施例 5 9			青色	化合物 [5 0]	2 E-1	Mg/Ag	6.1	3.7	7600
実施例 6 0			青色	化合物 [5 1]	2 E-1	Mg/Ag	5.8	3.8	7500
比較例 7			青色	E-1	2 E-1	Mg/Ag	4.3	5.7	4700
比較例 8			青色	E-2	2 E-1	Mg/Ag	3.5	7.4	2600
比較例 9			青色	E-3	2 E-1	Mg/Ag	4.0	5.1	4700
比較例 1 0			青色	E-4	2 E-1	Mg/Ag	3.9	5.5	2000

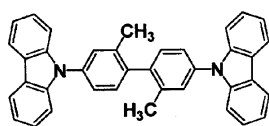
【0 1 6 7】

実施例 6 1 ~ 7 1

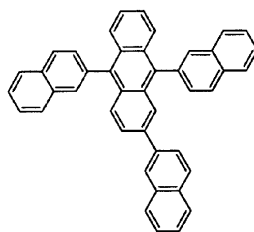
ホスト材料、ドーパント材料および電子輸送層として表 4 に記載した材料を用いた以外は、実施例 1 と同様にして発光素子を作製した。結果は表 4 に示した。なお、表 4 中、(H-2) ~ (H-8)、(D-2) ~ (D-10) は下記に示す化合物である。

【0 1 6 8】

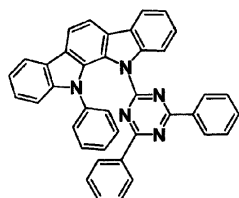
【化 4 5】



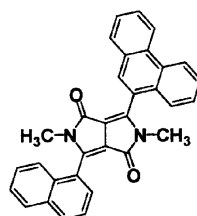
(H-2)



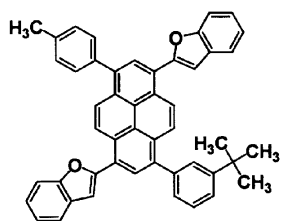
(H-3)



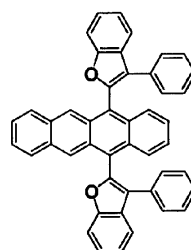
(H-4)



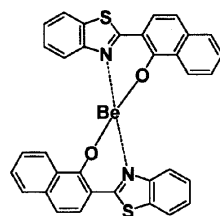
(H-5)



(H-6)



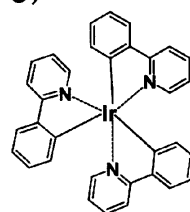
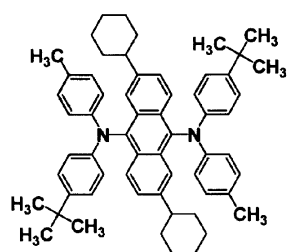
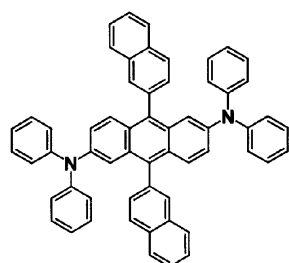
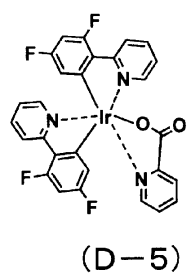
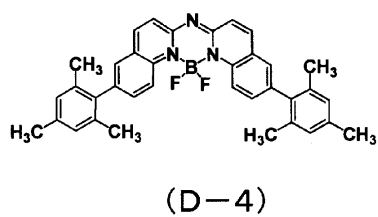
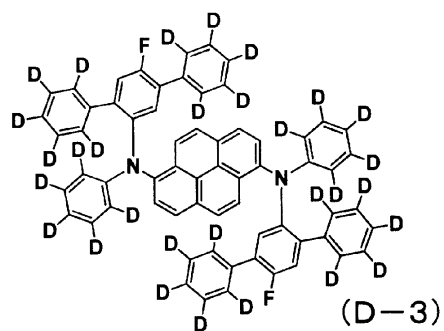
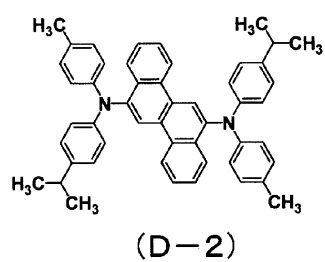
(H-7)



(H-8)

【 0 1 6 9 】

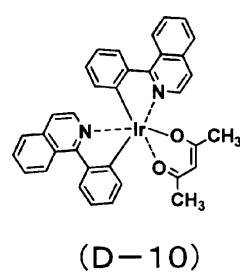
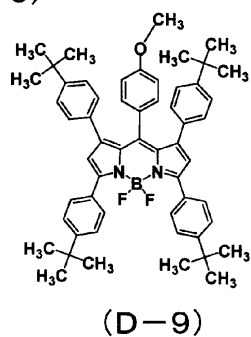
【化 4 6】



(D-6)

(D-7)

(D-8)



【 0 1 7 0 】

【表 4】

【表 4】

	発光材料			電子輸送層		陰極	外部量子効率 (%)	駆動電圧 (V)	輝度半減時間 (h)
	ホスト材料	ドーパント材料	発光色	化合物	ドナー性化合物	金属			
実施例 6 1	H-1	D-2	青色	化合物 [1]	2E-1	Al	5.9	4.3	6900
実施例 6 2		D-3	青色			Al	6.0	4.2	7000
実施例 6 3		D-4	青色			Al	5.6	4.1	6800
実施例 6 4	H-2	D-5	青色			Al	8.2	4.9	4000
実施例 6 5	H-3	D-6	緑色	化合物 [1]	2E-1	Al	7.5	4.1	6400
実施例 6 6		D-7	緑色			Al	7.2	4.2	5500
実施例 6 7	H-4	D-8	緑色			Al	12.0	5.3	6600
実施例 6 8	H-5	D-9	赤色	化合物 [1]	2E-1	Al	5.6	4.4	5100
実施例 6 9	H-6		赤色			Al	5.7	4.3	7300
実施例 7 0	H-7		赤色			Al	6.0	4.3	7400
実施例 7 1	H-8	D-10	赤色			Al	11.8	5.2	7200

【0171】

実施例 7 2

ホスト材料として化合物 [1]、電子輸送層としてトリス（8-キノリノラート）アルミニウム（III）（Alq₃）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。この発光素子を 10 mA/cm² で直流駆動したところ、駆動電圧 4.8 V、外部量子効率 4.9%、輝度半減時間 7900 時間の低駆動電圧かつ高効率発光する耐久性に優れた青色発光素子が得られた。

【0172】

実施例または参考例 7 3～8 0

ホスト材料として表 5 に記載した材料を用いた以外は、実施例 7 2 と同様にして発光素子を作製した。結果は表 5 に示した。

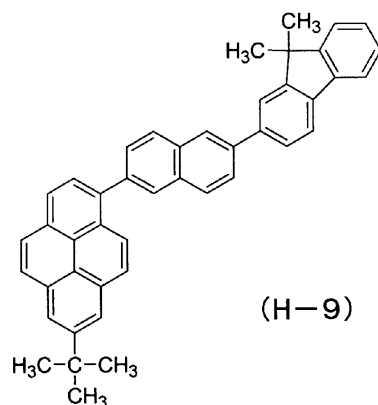
【0173】

比較例 1 1～1 4

ホスト材料として表 5 に記載した材料を用いた以外は、実施例 7 2 と同様にして発光素子を作製した。結果は表 5 に示した。なお、表 5 中、（H-9）は下記に示す化合物である。

【0174】

【化 4 7】



10

20

30

40

50

【0175】

【表5】

【表5】

	発光材料			電子輸送層	陰極	外部量子効率 (%)	駆動電圧 (V)	輝度半減時間 (h)
	ホスト材料	ドーパント材料	発光色	化合物	金属			
実施例73	化合物[1]	D-1	青色	Alq3	Al	4.9	4.8	7900
実施例74	化合物[2]		青色	Alq3	Al	4.8	4.7	7800
参考例75	化合物[3]		青色	Alq3	Al	5.1	5.0	8000
参考例76	化合物[12]		青色	Alq3	Al	4.4	5.3	7100
参考例77	化合物[14]		青色	Alq3	Al	5.3	5.0	8300
参考例78	化合物[18]		青色	Alq3	Al	5.5	5.1	7900
参考例79	化合物[22]		青色	Alq3	Al	5.8	5.5	8400
参考例80	化合物[25]		青色	Alq3	Al	5.8	5.4	8300
比較例11	E-1		青色	Alq3	Al	3.1	5.8	4200
比較例12	E-2		青色	Alq3	Al	3.2	5.9	3800
比較例13	E-4		青色	Alq3	Al	3.0	6.3	3000
比較例14	H-9		青色	Alq3	Al	3.5	6.3	3500

【産業上の利用可能性】

【0176】

本発明は、高効率発光および低電圧駆動が可能であり、かつ、耐久性に優れた有機薄膜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。本発明の発光素子材料は、発光素子の電子輸送層または発光層に好ましく用いることができる。

10

20

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I		
	C 0 9 K	11/06	6 5 0
	C 0 9 K	11/06	6 5 5
	C 0 9 K	11/06	6 9 0
	C 0 7 C	15/38	

審査官 中山 佳美

(56)参考文献 特開2006-298793 (JP, A)
特開2010-61824 (JP, A)
特開2009-4351 (JP, A)
米国特許出願公開第2011/309343 (US, A1)
特開2011-173972 (JP, A)
特開2012-79892 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H 0 1 L 5 1 / 5 0 - 5 1 / 5 6
H 0 1 L 2 7 / 3 2
H 0 5 B 3 3 / 0 0 - 3 3 / 2 8
CAp l u s / R E G I S T R Y (S T N)

专利名称(译)	发光元件材料和发光元件		
公开(公告)号	JP6020166B2	公开(公告)日	2016-11-02
申请号	JP2012527928	申请日	2012-06-11
[标]申请(专利权)人(译)	东丽株式会社		
申请(专利权)人(译)	东丽株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	东丽株式会社		
[标]发明人	上岡耕司 長尾和真 杉本和則 富永剛		
发明人	上岡 耕司 長尾 和真 杉本 和則 富永 剛		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07C15/38		
CPC分类号	H01L51/0054 C07C13/567 C07C13/66 C07C15/38 C07C25/22 C07C2603/18 C07C2603/26 C07C2603/40 C07C2603/50 C07D209/86 C07D213/16 C07D307/80 C07D401/10 C07D487/04 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1029 C09K2211/1033 C09K2211/1037 C09K2211/1044 C09K2211/1088 C09K2211/1092 H01L51/0058 H01L51/0067 H01L51/0071 H01L51/0072 H01L51/0073 H01L51/0074 H01L51/5012 H01L51/5072 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/22.B H05B33/14.B C09K11/06.610 C09K11/06.635 C09K11/06.645 C09K11/06.650 C09K11/06.655 C09K11/06.690 C07C15/38		
审查员(译)	中山 佳美		
优先权	2011132851 2011-06-15 JP		
其他公开文献	JPWO2012173073A1 JPWO2012173073A5		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

一种发光器件材料，其能够通过包含具有特定茈结构和优异耐久性的化合物的发光器件材料实现高效发光和低电压驱动的有机薄膜发光器件和使用该发光器件材料的发光器件材料发射元素。

