

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5631559号
(P5631559)

(45) 発行日 平成26年11月26日(2014.11.26)

(24) 登録日 平成26年10月17日(2014.10.17)

(51) Int.Cl.	F I		
C07D 209/86	(2006.01)	C07D 209/86	CSP
C09K 11/06	(2006.01)	C09K 11/06	690
H01L 51/50	(2006.01)	H05B 33/14	B
		H05B 33/22	D

請求項の数 7 (全 66 頁)

(21) 出願番号	特願2009-116772 (P2009-116772)	(73) 特許権者	000153878
(22) 出願日	平成21年5月13日 (2009.5.13)		株式会社半導体エネルギー研究所
(65) 公開番号	特開2009-298779 (P2009-298779A)		神奈川県厚木市長谷398番地
(43) 公開日	平成21年12月24日 (2009.12.24)	(72) 発明者	野村 洸子
審査請求日	平成24年5月3日 (2012.5.3)		神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2008-130154 (P2008-130154)		半導体エネルギー研究所内
(32) 優先日	平成20年5月16日 (2008.5.16)	(72) 発明者	川上 祥子
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
		(72) 発明者	牛窪 孝洋
			神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
		(72) 発明者	尾坂 晴恵
			神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内

最終頁に続く

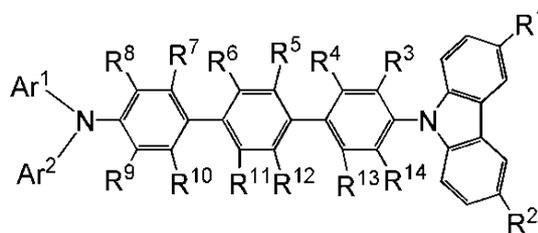
(54) 【発明の名称】 芳香族アミン化合物および発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)で表される芳香族アミン化合物。

【化1】



(1)

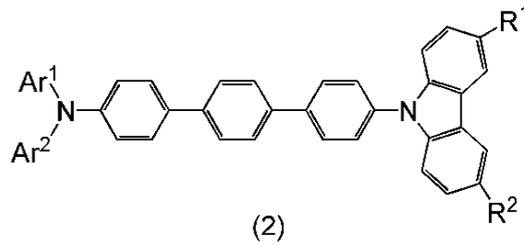
(式中、R¹及びR²は、それぞれ、水素原子、炭素数1~4のアルキル基、又は炭素数6~13のアリール基のいずれかを表す。前記炭素数6~13のアリール基は、さらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。また、R³~R¹⁴は、それぞれ、水素原子、又は炭素数1~4のアルキル基を表す。また、Ar¹及びAr²は、それぞれ炭素数6~13のアリール基を表す。ただし、Ar¹がフェニル基であり、且つ、Ar²が1-ナフチル基、2-ナフチル基、又はフェニル基である場合

を除く。)

【請求項 2】

一般式(2)で表される芳香族アミン化合物。

【化 2】



10

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。前記炭素数 6 ~ 13 のアリール基は、さらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。ただし、 Ar^1 がフェニル基であり、且つ、 Ar^2 が 1 - ナフチル基、2 - ナフチル基、又はフェニル基である場合を除く。)

【請求項 3】

陽極と陰極との間に、発光層と、正孔輸送層と、を有し、
前記正孔輸送層は、請求項 1 または 2 に記載の芳香族アミン化合物を有する発光素子。

20

【請求項 4】

請求項 3 において、
前記発光層は、燐光材料を有する発光素子。

【請求項 5】

請求項 3 において、
前記発光層は、蛍光材料を有する発光素子。

【請求項 6】

請求項 3 乃至 5 のいずれか一において、
前記陽極と前記正孔輸送層との間に、正孔注入層を有し、
前記正孔注入層は、有機化合物と、遷移金属酸化物と、を有する発光素子。

30

【請求項 7】

請求項 6 において、
前記有機化合物は、請求項 1 または 2 に記載の芳香族アミン化合物である発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、芳香族アミン化合物、および芳香族アミン化合物を用いた発光素子、発光装置、照明装置、及び電子機器に関する。

40

【背景技術】

【0002】

近年、発光性の化合物を用いた発光素子の研究開発が盛んに行われている。これら発光素子の基本的な構成は、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、一对の電極から電子および正孔がそれぞれ発光性の有機化合物を含む層に注入され、電流が流れる。そして、それらキャリア(電子および正孔)が再結合することにより、発光性の有機化合物が励起状態を形成し、その励起状態が基底状態に戻る際に発光する。このようなメカニズムから、このような発光素子は、電流励起型の発光素子と呼ばれる。

50

【0003】

このような発光素子は、例えば0.1 μm程度の有機薄膜で形成されるため、薄型軽量に作製できることが大きな利点である。また、キャリアが注入されてから発光に至るまでの時間は1 μ秒程度あるいはそれ以下であるため、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。これらの特性は、フラットパネルディスプレイ素子として好適であると考えられている。

【0004】

また、これらの発光素子は膜状に形成されるため、大面積の素子を形成することにより、面状の発光を容易に得ることができる。このことは、白熱電球やLEDに代表される点光源、あるいは蛍光灯に代表される線光源では得難い特色であるため、照明等に应用できる面光源としての利用価値も高い。

10

【0005】

このような発光素子に関しては、その素子特性を向上させる上で、材料に依存した問題が多く、これらを克服するために素子構造の改良や材料開発等が行われている。

【0006】

例えば、非特許文献1及び特許文献1では、青色の発光材料を用いた発光素子について記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開2007-284431号公報

【非特許文献】

【0008】

【非特許文献1】Meng - Huan Ho, Yao - Shan Wu and Chin H. Chen, 2005 SID International Symposium Digest of Technical Papers, Vol. XXXVI, p802 - 805

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

非特許文献1に記載の発光素子では、発光層と接する層として、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(略称:NPB)が用いられている。しかしながら、NPBは一重項励起エネルギーが低く、励起状態の発光材料からNPBへエネルギーが移動してしまう可能性がある。特に、短波長である青色を発光する発光材料の場合には、励起状態のエネルギー準位が高いため、NPBへエネルギーが移動してしまう可能性がより高い。NPBへエネルギーが移動すると、発光素子の発光効率が低下してしまう問題がある。

30

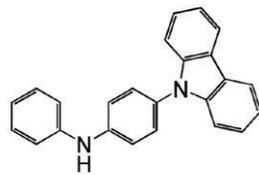
【0010】

また、特許文献1に記載の発光素子では、発光層と接する層として、下記構造式(10)で示される9-[4-(N-フェニルアミノ)フェニル]カルバゾール(略称:YGA)骨格を有する芳香族アミン化合物が用いられている。

40

【0011】

【化 1】



(10)

10

【0012】

YGA骨格を有する化合物は、いずれも最高被占有軌道(HOMO: Highest Occupied Molecular Orbital)準位が深い(絶対値が大きい)ため、当該化合物を発光層と接する層に用いることで、発光効率の高い発光素子を作製することができる。しかしながら、YGA骨格を有する芳香族アミン化合物を用いた場合、信頼性が高い発光素子の実現が困難である。

【0013】

以上を鑑みて、本発明の一態様は、新規芳香族アミン化合物を提供することを目的とする。

20

【0014】

また、本発明の一態様は、発光効率の高い発光素子および発光装置、電子機器を提供することを目的とする。

【0015】

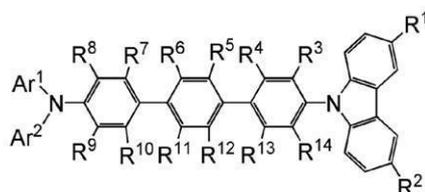
また、本発明の一態様は、信頼性の高い発光素子および発光装置、電子機器を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0016】

本発明の一態様は、一般式(1)で表される芳香族アミン化合物である。

【化 2】



(1)

30

【0017】

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。また、 $R^3 \sim R^{14}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を表す。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。)

【0018】

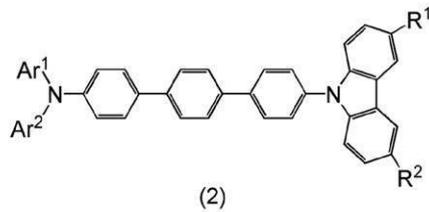
一般式(1)で表される芳香族アミン化合物のうち、一般式(2)で表される芳香族アミン化合物であることが好ましい。

40

【0019】

50

【化3】



10

【0020】

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。)

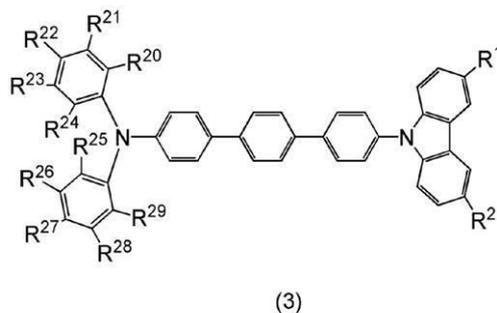
【0021】

より好ましくは、一般式 (3) で表される芳香族アミン化合物であることが好ましい。

【0022】

【化4】

20



【0023】

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。また、 $R^{20} \sim R^{29}$ は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、フェニル基、又はナフチル基のいずれかを表す。)

30

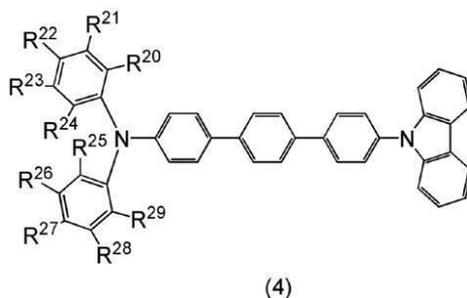
【0024】

さらに好ましくは、一般式 (4) で表される芳香族アミン化合物であることが好ましい。

【0025】

【化5】

40



50

【0026】

(式中、 $R^{20} \sim R^{29}$ は、それぞれ、水素原子、炭素数1～4のアルキル基、フェニル基、又はナフチル基のいずれかを表す。)

【0027】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に、上記の芳香族アミン化合物のいずれかを含む発光素子である。

【0028】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に、発光層と、発光層と接し、且つ上記の芳香族アミン化合物のいずれかを含む層を有する発光素子である。

【0029】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に、上記の芳香族アミン化合物のいずれかを含む発光層を有する発光素子である。

【0030】

上記構成において、発光層は、燐光を発光する燐光材料を含んでいても良い。

【0031】

または、上記構成において、発光層は、蛍光を発光する蛍光材料を含んでいてもよい。特に、青色の発光をする蛍光材料を含む場合、より効果を得ることができる。

【0032】

また、本発明の一態様は、上記の芳香族アミン化合物を含む発光素子を有する発光装置である。なお、本明細書中における発光装置とは、画像表示デバイス、発光デバイス、もしくは光源(照明装置含む)を含む。また、パネルにコネクタ、例えばFPC(Flexible printed circuit)もしくはTAB(Tape Automated Bonding)テープもしくはTCP(Tape Carrier Package)が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または発光素子にCOG(Chip On Glass)方式によりIC(集積回路)が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

【0033】

また、上記の発光素子を表示部に用いた電子機器も本発明の一態様である。したがって、本発明の一態様である電子機器は、表示部を有し、表示部は、上述した発光素子を有する。

【発明の効果】

【0034】

本発明の一態様の芳香族アミン化合物を用いて発光素子を作製することにより、発光材料からの励起エネルギーの移動を防ぐことができ、発光効率を向上させることができる。また、本発明の一態様の芳香族アミン化合物が励起されても、その芳香族アミン化合物から発光材料へエネルギーを移動させることができ、発光効率を向上させることができる。

【0035】

また、本発明の一態様の芳香族アミン化合物を用いて発光素子を作製することにより、安定して発光し、長寿命である信頼性の高い発光素子を提供することができる。

【0036】

また、本発明の一態様の芳香族アミン化合物を用いた発光素子を、発光装置、電子機器に用いることにより、発光効率の高い発光装置、電子機器を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【0037】

【図1】化合物1～3の最高被占有軌道を示す図。

【図2】本発明の一態様の発光素子を説明する図。

【図3】本発明の一態様の発光素子を説明する図。

【図4】本発明の一態様の発光素子を説明する図。

【図5】本発明の一態様の発光装置を説明する図。

【図6】本発明の一態様の発光装置を説明する図。

10

20

30

40

50

【図 7】本発明の一態様の電子機器を説明する図。

【図 8】本発明の一態様の電子機器を説明する図。

【図 9】本発明の一態様の発光装置を説明する図。

【図 10】本発明の一態様の発光装置を説明する図。

【図 11】N - (ビフェニル - 4 - イル) - 4' - (9H - カルバゾール - 9 - イル) - N - フェニル - [1, 1', 4', 1''] ターフェニル - 4 - アミン (略称: YGT A 1 B P) の ^1H NMR チャートを示す図。

【図 12】N - (ビフェニル - 4 - イル) - 4' - (9H - カルバゾール - 9 - イル) - N - フェニル - [1, 1', 4', 1''] ターフェニル - 4 - アミン (略称: YGT A 1 B P) の吸収及び発光スペクトルを示す図。

10

【図 13】実施例で作製した発光素子を説明する図。

【図 14】実施例で作製した発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。

【図 15】実施例で作製した発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。

【図 16】実施例で作製した発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。

【図 17】実施例で作製した発光素子の規格化輝度時間変化を示す図。

【図 18】実施例で作製した発光素子を説明する図。

【図 19】実施例で作製した発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。

【図 20】実施例で作製した発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。

【図 21】実施例で作製した発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。

【図 22】実施例で作製した発光素子の規格化輝度時間変化を示す図。

20

【図 23】4 - [4 - (9H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] 4' - フェニルトリフェニルアミン (略称: YGB A 1 B P) の ^1H NMR チャートを示す図。

【図 24】実施例で作製した発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。

【図 25】実施例で作製した発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。

【図 26】実施例で作製した発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。

【発明を実施するための形態】

【0038】

以下、本発明の実施の態様について図面を用いて詳細に説明する。但し、本発明は以下の説明に限定されず、本発明の趣旨及びその範囲から逸脱することなくその形態及び詳細を様々に変更し得ることは当業者であれば容易に理解される。従って、本発明は以下に示す実施の形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。

30

【0039】

(実施の形態 1)

本実施の形態では、本発明の一態様である芳香族アミン化合物について説明する。

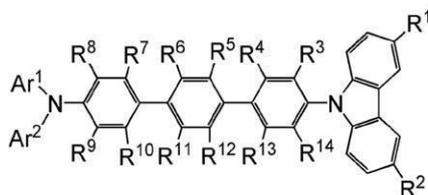
【0040】

本実施の形態の芳香族アミン化合物は、一般式(1)で表される芳香族アミン化合物である。

【0041】

【化 6】

40



(1)

【0042】

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数

50

6 ~ 13のアリール基のいずれかを表す。また、 $R^3 \sim R^{14}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数1 ~ 4のアルキル基を表す。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数6 ~ 13のアリール基を表す。炭素数6 ~ 13のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。)

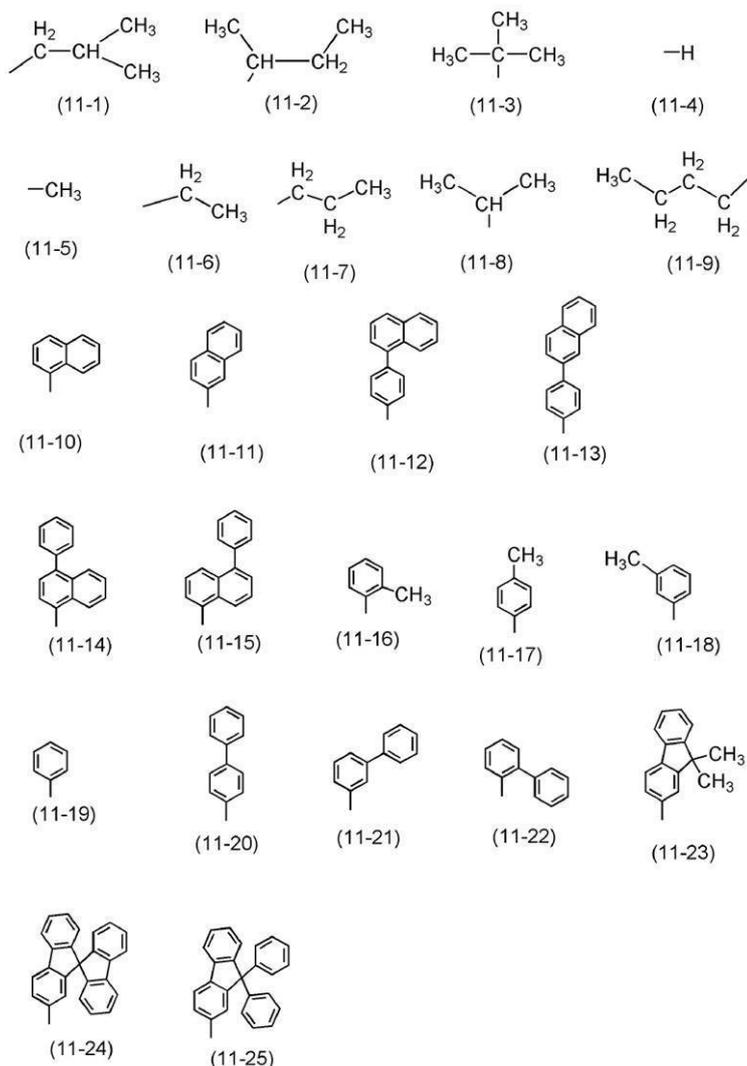
【0043】

一般式(1)において、 R^1 および R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数1 ~ 4のアルキル基、又は炭素数6 ~ 13のアリール基のいずれかを表す。また、炭素数6 ~ 13のアリール基は、例えば、炭素数1 ~ 4のアルキル基、又は炭素数6 ~ 13のアリール基といった置換基をさらに有していても良く、この置換基が互いに結合して環を形成していても良い。 R^1 および R^2 として具体的には、構造式(11-1) ~ 構造式(11-25)に示す置換基が挙げられる。

10

【0044】

【化7】



20

30

40

【0045】

一般式(1)において、 $R^3 \sim R^{14}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数1 ~ 4のアルキル基を表す。具体的には、構造式(12-1) ~ 構造式(12-9)に示す置換基が挙げられる。

【0046】

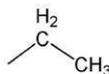
【化 8】



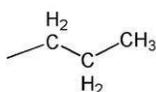
(12-1)



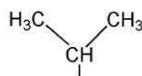
(12-2)



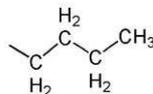
(12-3)



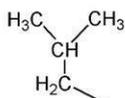
(12-4)



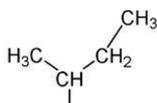
(12-5)



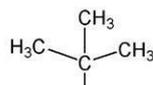
(12-6)



(12-7)



(12-8)



(12-9)

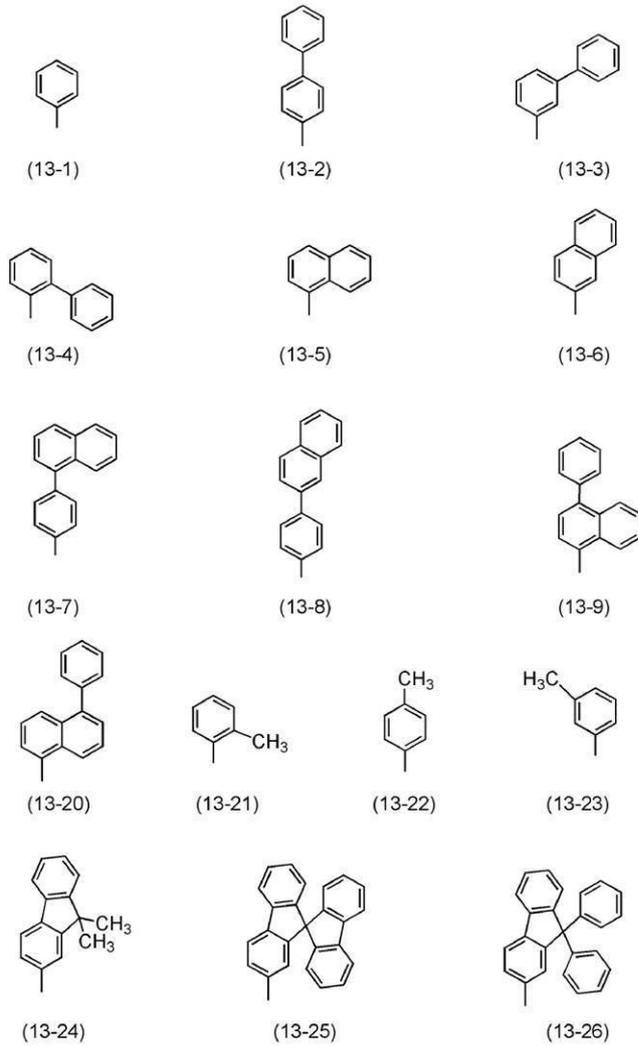
【 0 0 4 7 】

一般式(1)において、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。また、炭素数 6 ~ 13 のアリール基は、例えば、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基といった置換基をさらに有していても良く、この置換基が互いに結合して環を形成していても良い。 Ar^1 及び Ar^2 として具体的には、構造式(13-1) ~ 構造式(13-26)に示す置換基が挙げられる。

20

【 0 0 4 8 】

【化9】



10

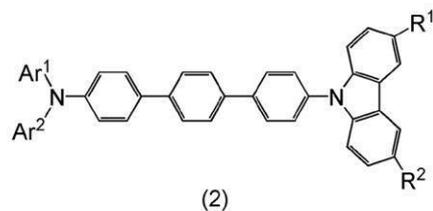
20

【0049】

一般式(1)で表される芳香族アミン化合物のうち、一般式(2)で表される芳香族アミン化合物であることが好ましい。

【0050】

【化10】



30

40

【0051】

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数1~4のアルキル基、又は炭素数6~13のアリール基のいずれかを表す。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数6~13のアリール基を表す。炭素数6~13のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。)

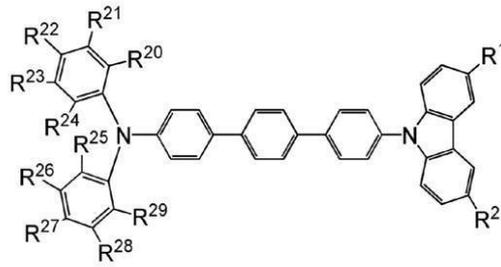
【0052】

より好ましくは、一般式(3)で表される芳香族アミン化合物であることが好ましい。

【0053】

50

【化 1 1】



(3)

10

【0054】

(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。また、 $R^{20} \sim R^{29}$ は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、フェニル基、又はナフチル基のいずれかを表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、前記置換基が互いに結合して環を形成してもよい。)

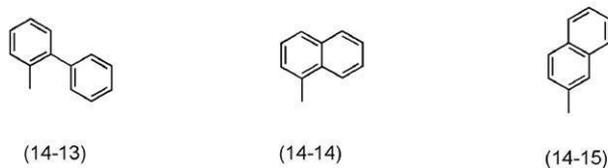
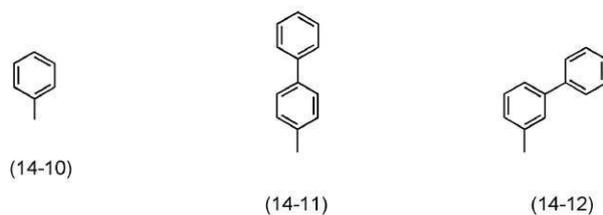
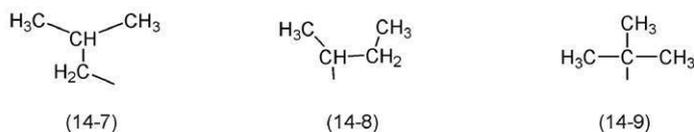
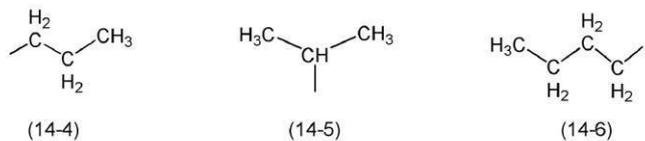
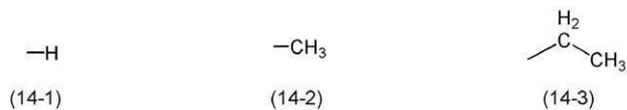
【0055】

一般式 (3) において、 $R^{20} \sim R^{29}$ は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、フェニル基、又はナフチル基のいずれかを表す。具体的には、構造式 (14 - 1) ~ 構造式 (14 - 15) に示す置換基が挙げられる。

20

【0056】

【化 1 2】

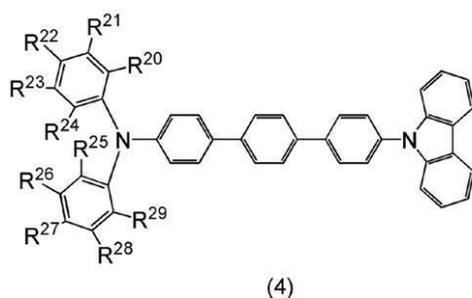


【 0 0 5 7】

さらに好ましくは、一般式(4)で表される芳香族アミン化合物であることが好ましい。

【 0 0 5 8】

【化 1 3】



【 0 0 5 9】

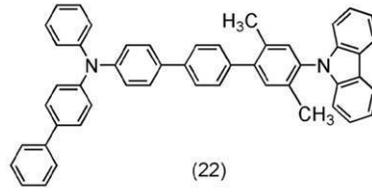
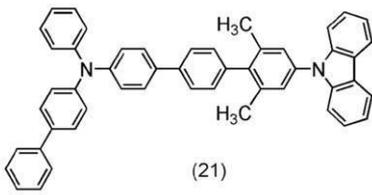
(式中、 $R^{20} \sim R^{29}$ は、それぞれ、水素原子、炭素数1～4のアルキル基、フェニル基、又はナフチル基のいずれかを表す。)

【 0 0 6 0】

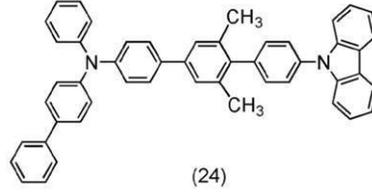
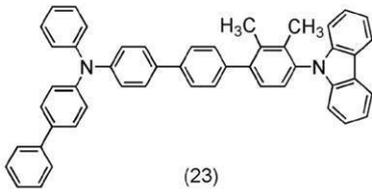
本実施の形態の芳香族アミン化合物の具体例としては、構造式(21)～(118)に示される芳香族アミン化合物を挙げることができる。ただし、本発明はこれらに限定されない。

【 0 0 6 1 】

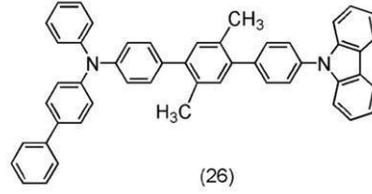
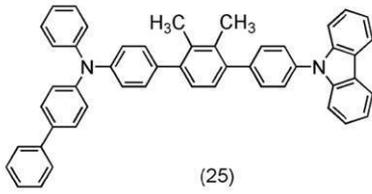
【 化 1 4 】



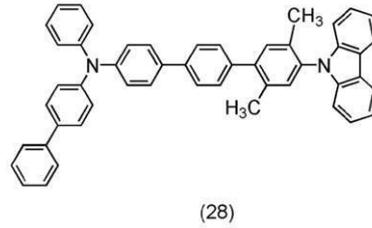
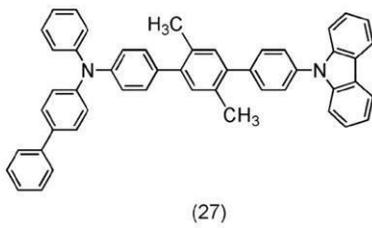
10



20

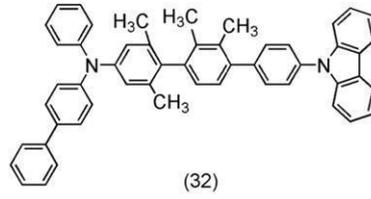
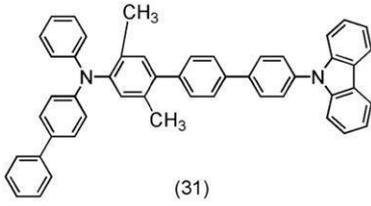
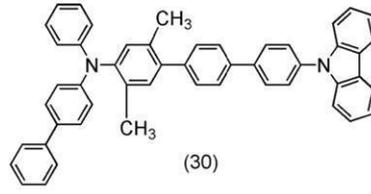
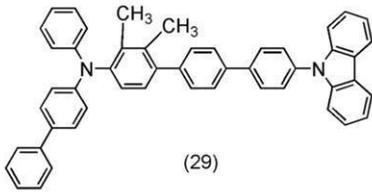


30

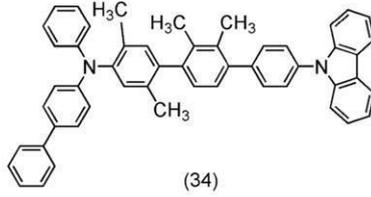
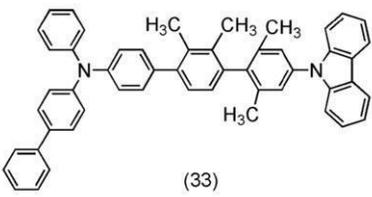


【 0 0 6 2 】

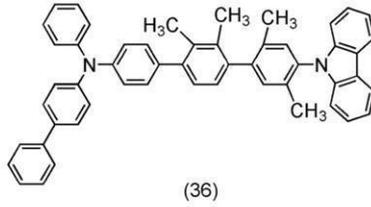
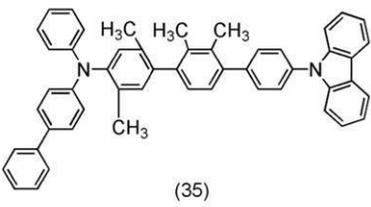
【化 1 5】



10



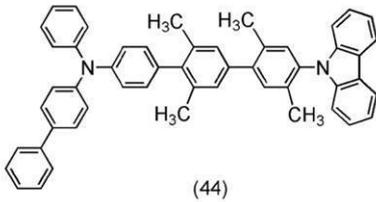
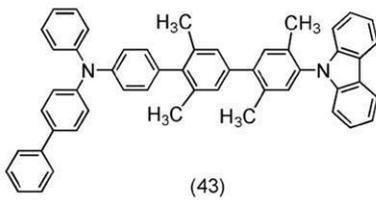
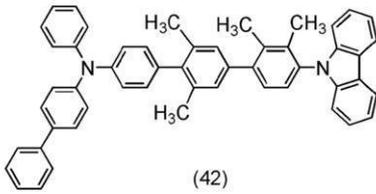
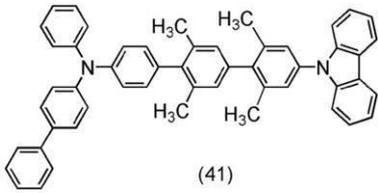
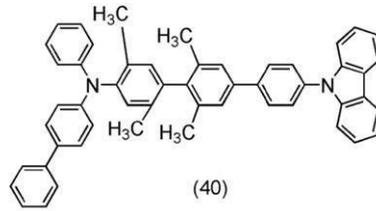
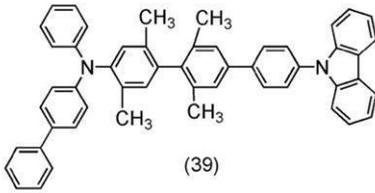
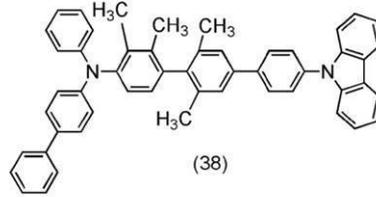
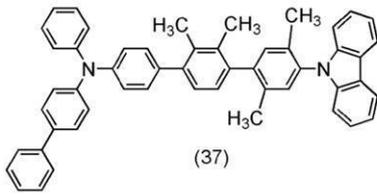
20



30

【 0 0 6 3 】

【化 1 6】



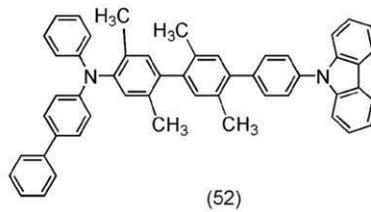
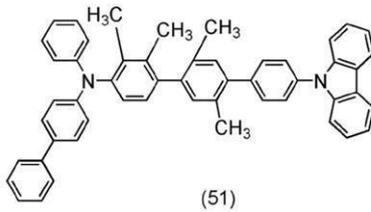
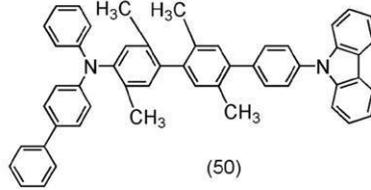
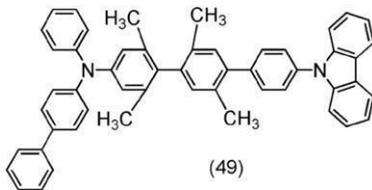
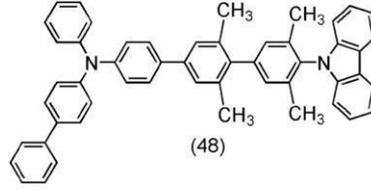
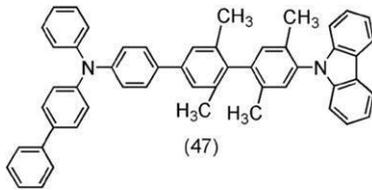
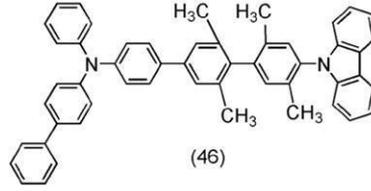
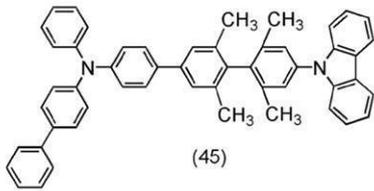
【 0 0 6 4 】

10

20

30

【化 17】



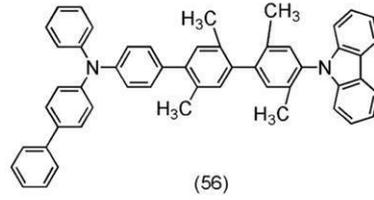
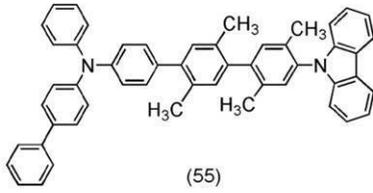
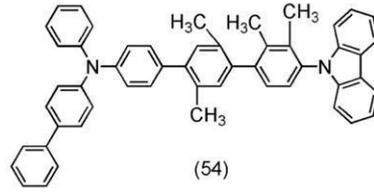
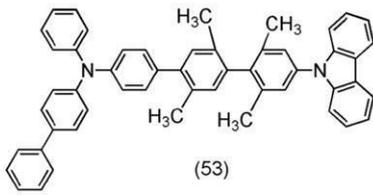
【 0 0 6 5 】

10

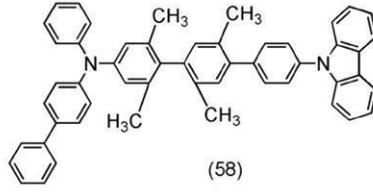
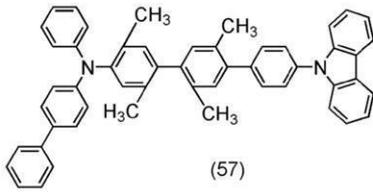
20

30

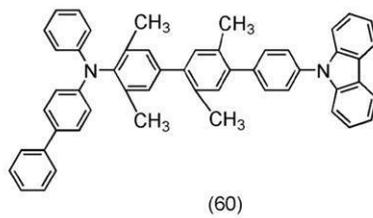
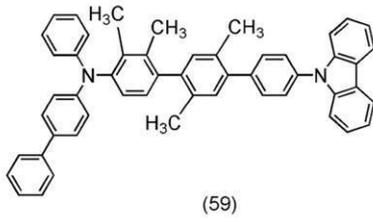
【化 1 8】



10



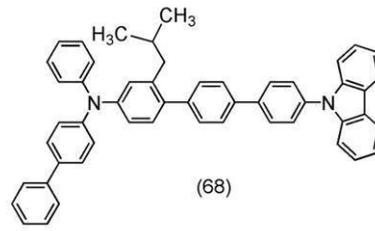
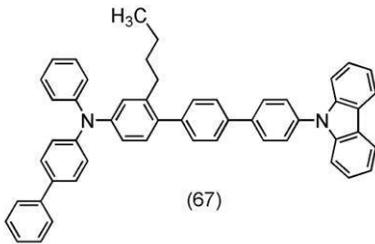
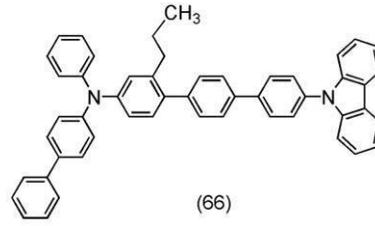
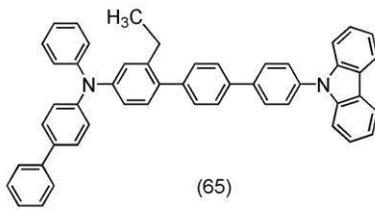
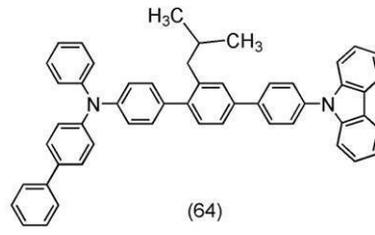
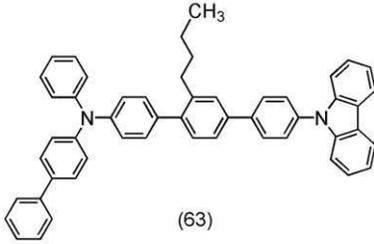
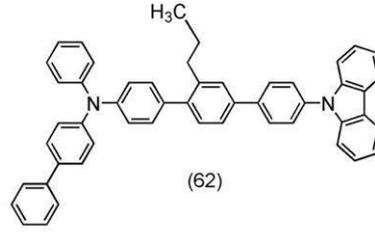
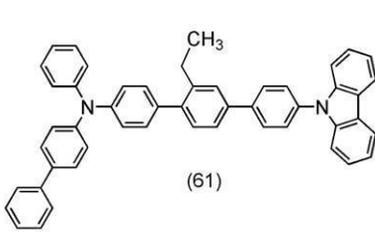
20



30

【 0 0 6 6 】

【化 1 9】



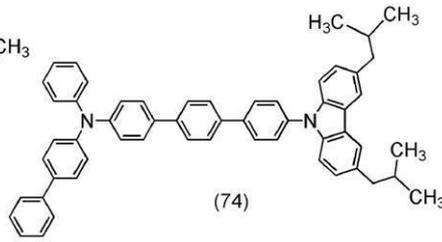
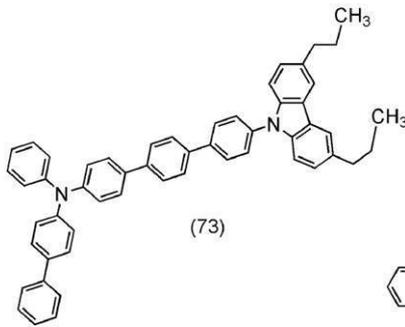
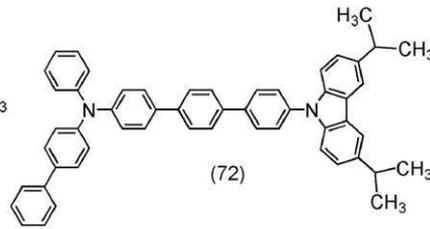
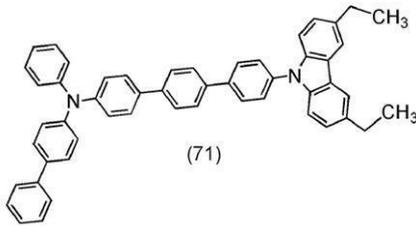
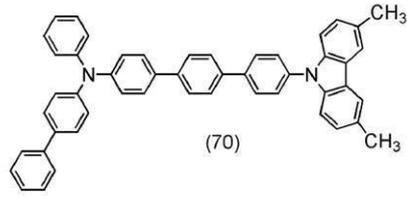
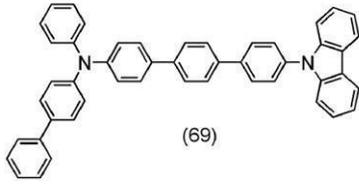
【 0 0 6 7 】

10

20

30

【化 2 0】



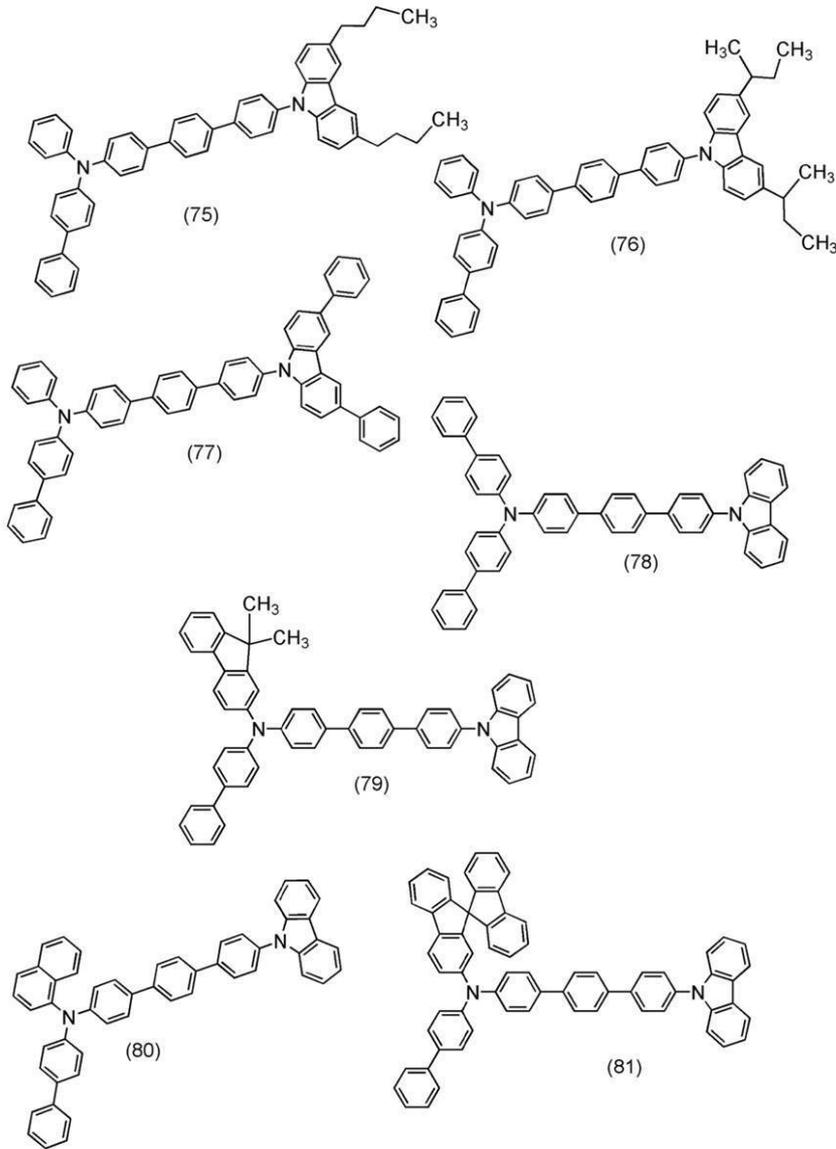
【 0 0 6 8 】

10

20

30

【化 2 1】



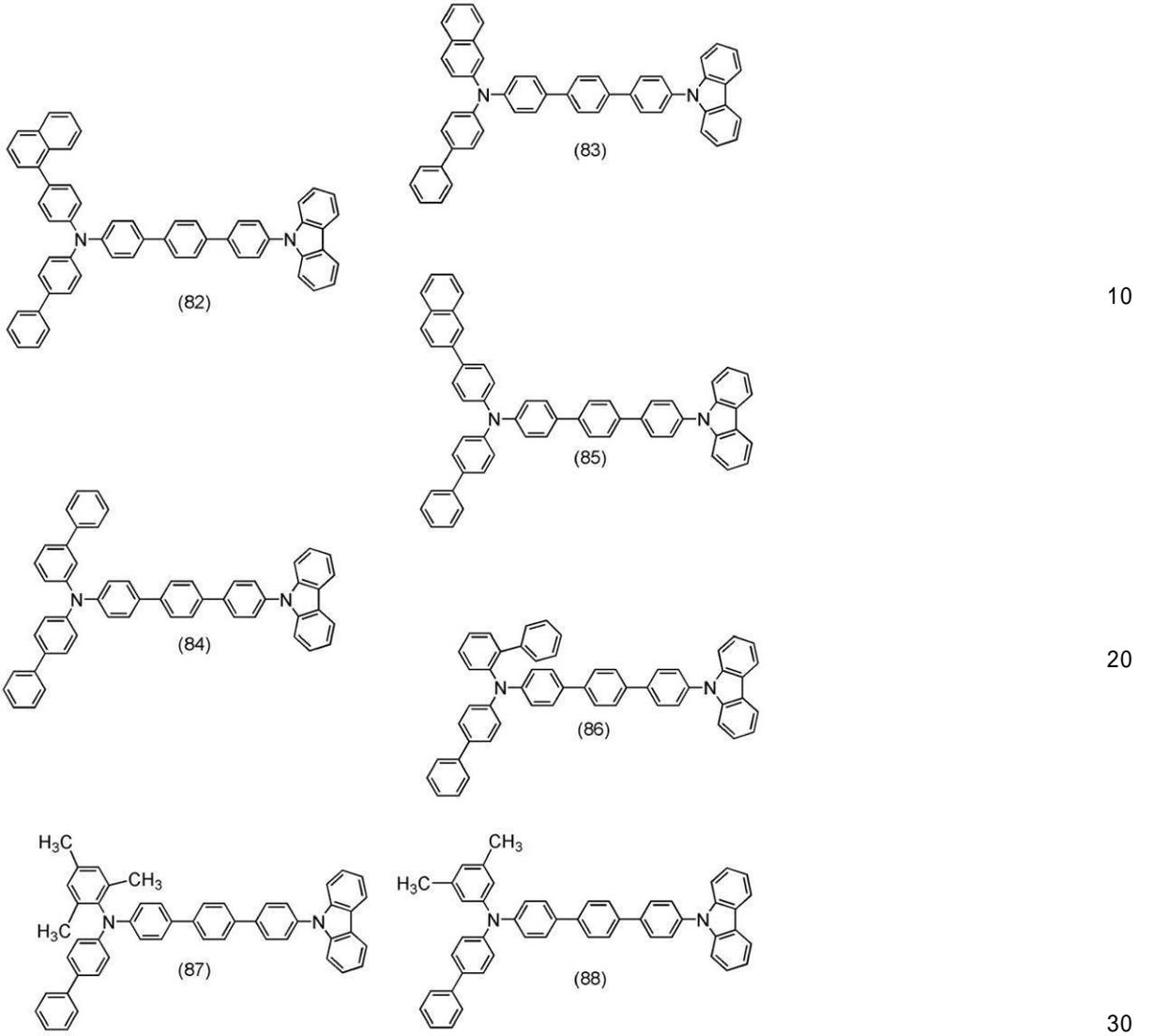
10

20

30

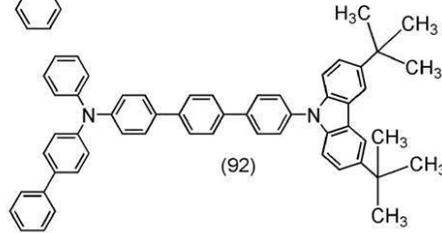
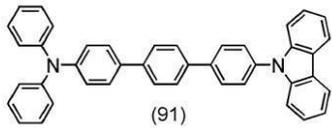
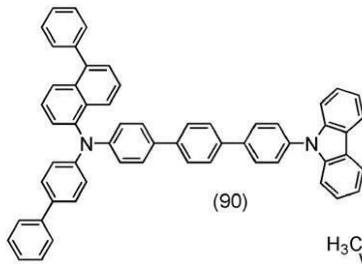
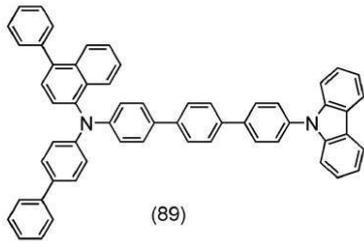
【 0 0 6 9 】

【化 2 2】

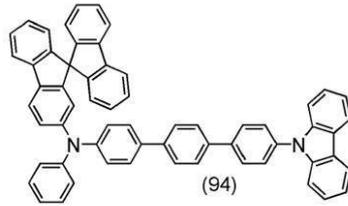
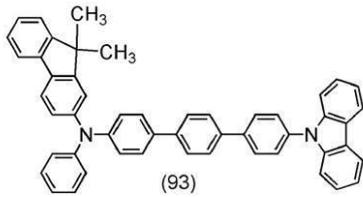


【 0 0 7 0 】

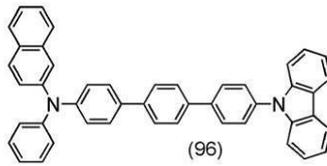
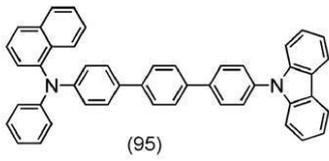
【化 2 3】



10



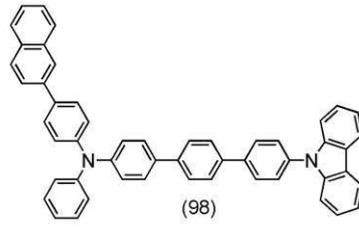
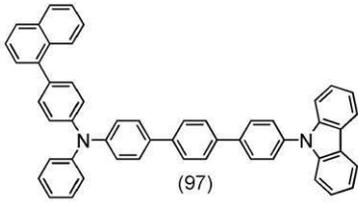
20



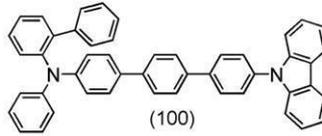
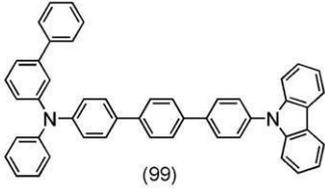
30

【 0 0 7 1 】

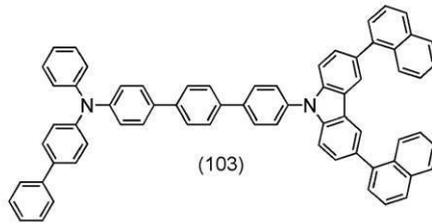
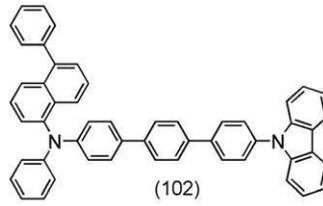
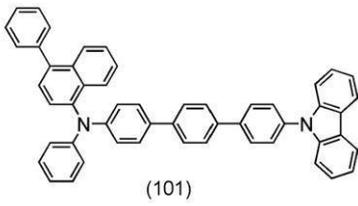
【化 2 4】



10



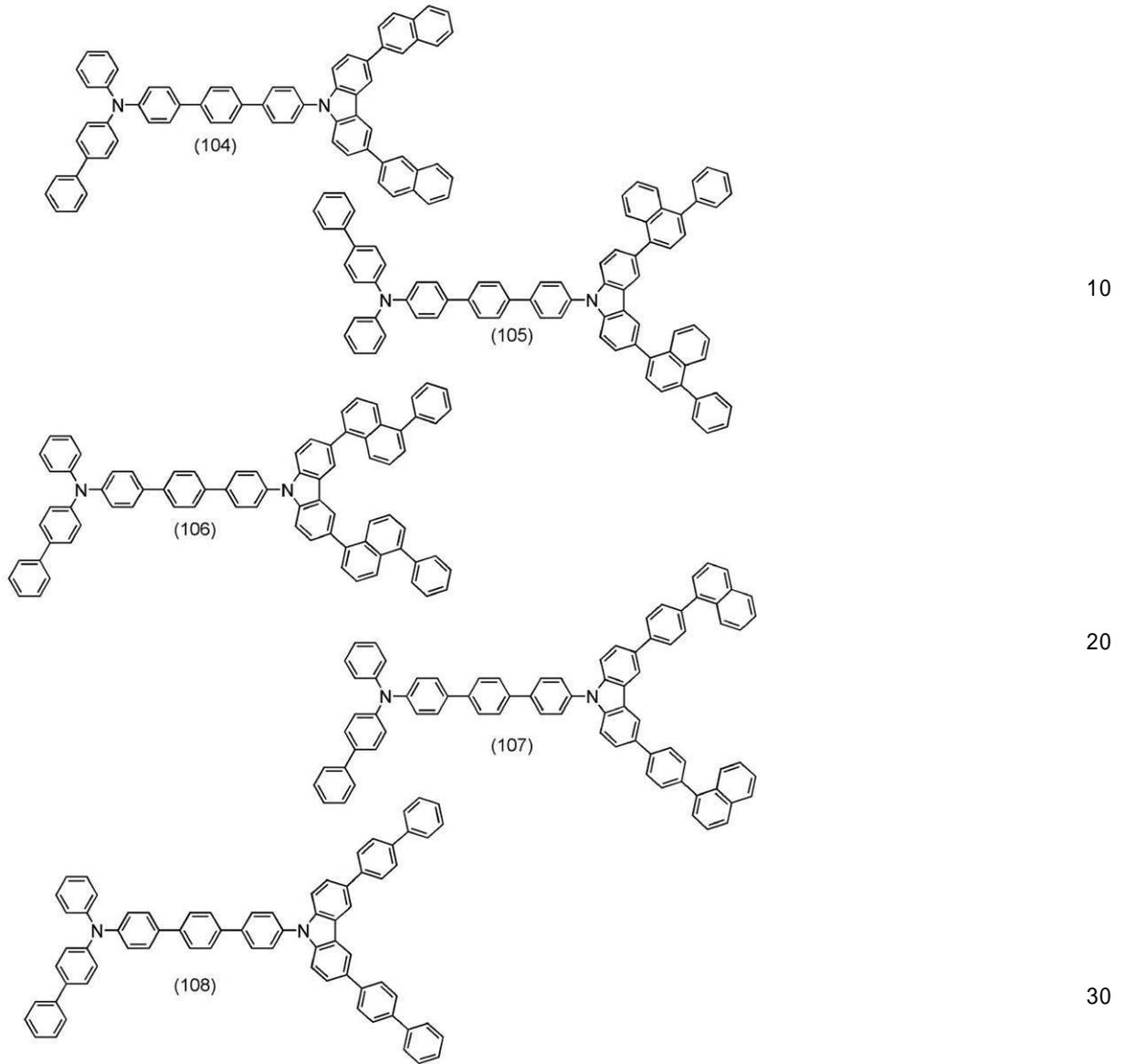
20



30

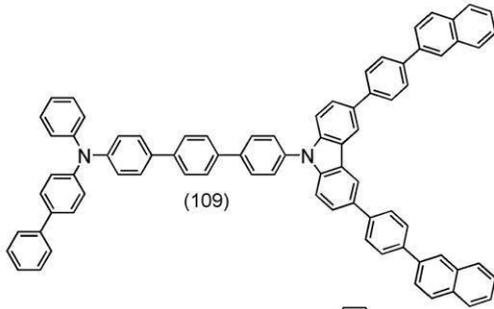
【 0 0 7 2 】

【化 2 5】

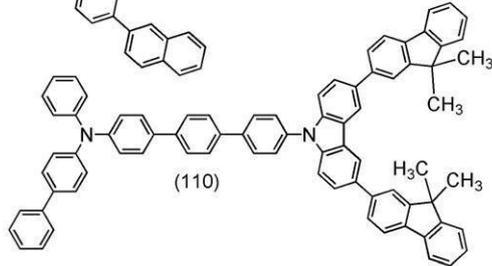


【 0 0 7 3 】

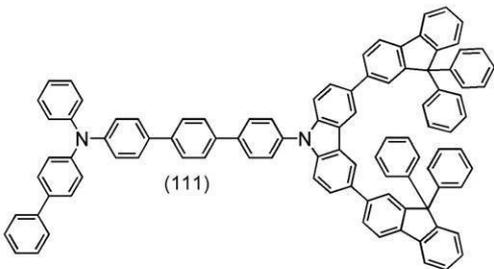
【化 2 6】



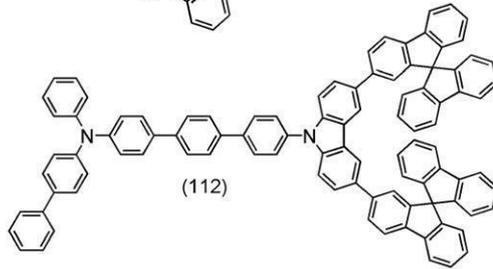
(109)



(110)



(111)



(112)

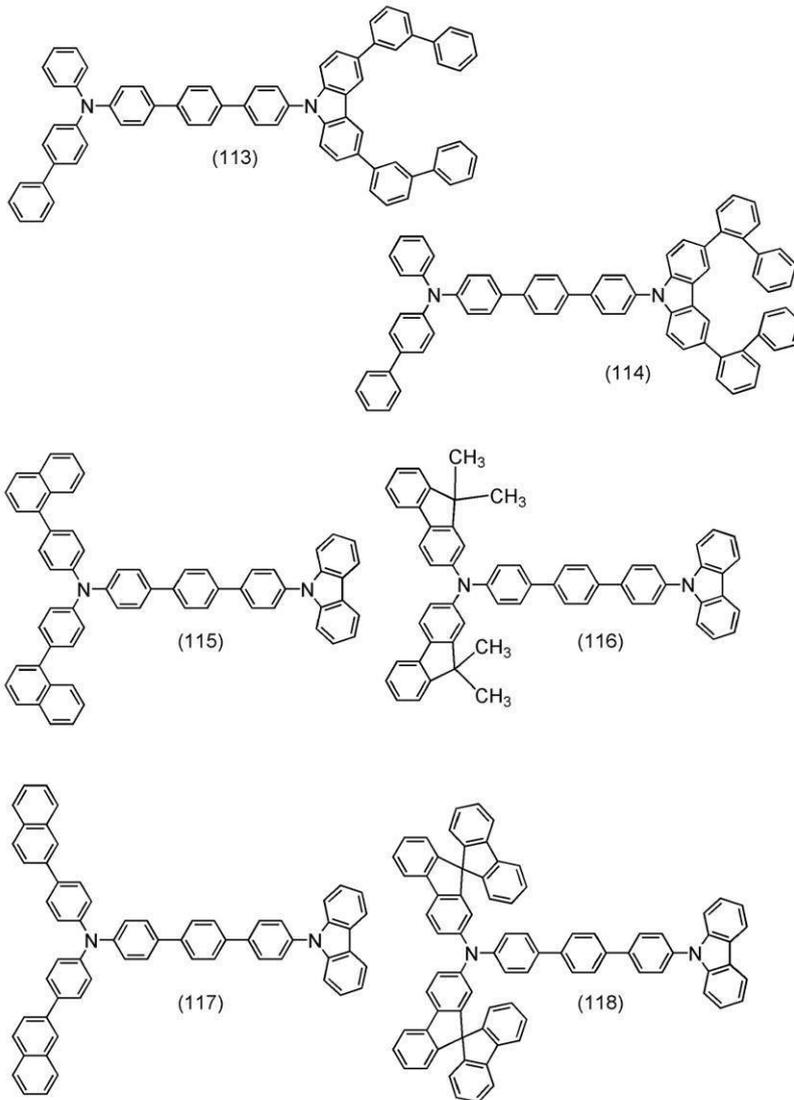
10

20

30

【 0 0 7 4 】

【化 2 7】



10

20

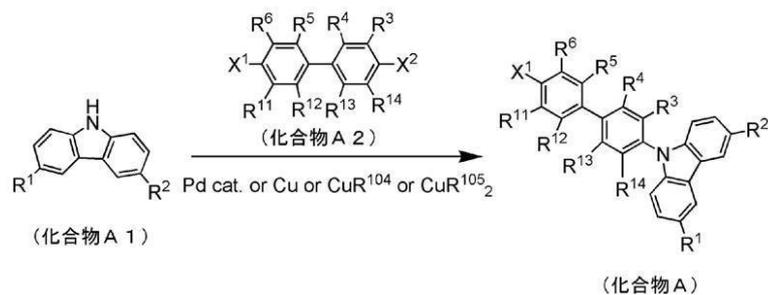
30

【 0 0 7 5】

一般式(1)で表される本実施の形態の芳香族アミン化合物は、合成スキーム(A-1)および合成スキーム(B-1)~合成スキーム(B-3)で表される合成方法によって合成することができる。

【 0 0 7 6】

【化 2 8】



(A-1)

40

50

【 0 0 7 7 】

まず、化合物 A で表されるハロゲン化した 9 - アリール - 9 H - カルバゾール化合物を合成する。合成スキーム (A - 1) で示すように、化合物 A は、9 H - カルバゾール化合物 (化合物 A 1) とジハロゲン化アリール化合物 (化合物 A 2) とを、塩基存在下で、パラジウム触媒を用いたハートウィック・ブッフバルト反応、または、銅や銅化合物を用いたウルマン反応によりカップリングすることで得ることができる。

【 0 0 7 8 】

なお、上記合成スキーム (A - 1) において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、この置換基が互いに結合して環を形成してもよい。また、 $R^3 \sim R^6$ 及び $R^{11} \sim R^{14}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を表す。 X^1 及び X^2 は、ハロゲン、又は、トリフラート基を示す。また、 X^1 及び X^2 がハロゲンである場合は塩素、臭素、ヨウ素が好ましい。

【 0 0 7 9 】

合成スキーム (A - 1) において、ハートウィック・ブッフバルト反応を行う場合、用いることができるパラジウム触媒としては、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0)、酢酸パラジウム (II) 等が挙げられる。また、合成スキーム (A - 1) において用いることができるパラジウム触媒の配位子としては、トリ (tert - ブチル) ホスフィンや、トリ (n - ヘキシル) ホスフィンや、トリシクロヘキシルホスフィン等が挙げられる。合成スキーム (A - 1) において、用いることができる塩基としては、ナトリウム tert - ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム等の無機塩基等が挙げられる。また、合成スキーム (A - 1) において用いることができる溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼン、テトラヒドロフラン等が挙げられる。

【 0 0 8 0 】

また、合成スキーム (A - 1) においてウルマン反応を行う場合について説明する。合成スキーム (A - 1) において R^{104} と R^{105} は、ハロゲンやアセトキシ基等を表し、ハロゲンとしては塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。また、 R^{104} がヨウ素であるヨウ化銅 (I)、又は R^{105} がアセトキシ基である酢酸銅 (II) が好ましい。反応に用いられる銅化合物はこれらに限られるものではない。また、銅化合物の他に銅を用いることができる。合成スキーム (A - 1) において、用いることができる塩基としては、炭酸カリウム等の無機塩基が挙げられる。合成スキーム (A - 1) において、用いることができる溶媒としては、1, 3 - ジメチル - 3, 4, 5, 6 - テトラヒドロ - 2 (1 H) ピリミジノン (DMPU)、トルエン、キシレン、ベンゼン等が挙げられる。ウルマン反応では、反応温度が 100 以上の方がより短時間かつ高収率で目的物が得られるため、沸点の高い DMPU、キシレンを用いることが好ましい。また、反応温度は 150 以上のより高い温度が更に好ましいため、より好ましくは DMPU を用いる。

【 0 0 8 1 】

【 化 2 9 】



(B-1)

【 0 0 8 2 】

次いで、化合物 B で表されるハロゲン化 3 級アリールアミン化合物を合成する。化合物 B は、合成スキーム (B - 1) のようにして合成することができる。すなわち、3 級アリー

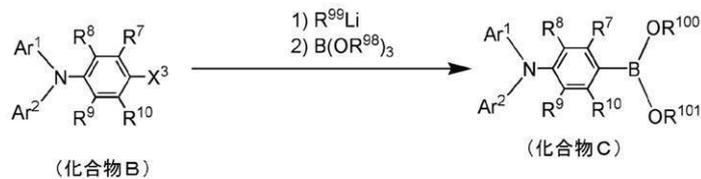
ルアミン化合物（化合物 B 1）をハロゲン化剤によりハロゲン化することで、ハロゲン化 3 級アリールアミン化合物（化合物 B）を得ることができる。なお、ハロゲン化剤としては、N - プロモスクシンイミド（NBS）や N - ヨードスクシンイミド（NIS）、臭素、ヨウ素、ヨウ化カリウム等を用いることができる。

【0083】

なお、上記反応式（B - 1）において、 $R^7 \sim R^{10}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を表す。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、この置換基が互いに結合して環を形成してもよい。 X^3 は、ハロゲン、又は、トリフラート基を示す。また、 X^3 がハロゲンである場合は塩素、臭素、又はヨウ素が好ましい。

【0084】

【化30】



(B-2)

【0085】

次いで、合成スキーム（B - 2）に示すように、合成スキーム（B - 1）によって合成したハロゲン化 3 級アリールアミン化合物（化合物 B）にアルキルリチウム試薬とホウ素試薬を用いてボロン酸、または有機ホウ素と変換することにより、3 級アミンボロン酸又は、3 級アミン化合物の 3 位が有機ホウ素で置換された化合物（化合物 C）を得ることができる。アルキルリチウム試薬としては n - ブチルリチウム、メチルリチウム等を用いることができる。ホウ素試薬としてはホウ酸トリメチル、ホウ酸イソプロピルなどを用いることができる。

【0086】

なお、上記反応式（B - 2）において、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、この置換基が互いに結合して環を形成してもよい。また、 $R^7 \sim R^{10}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を表す。 X^3 は、ハロゲン、又は、トリフラート基を示す。また、 X^3 がハロゲンである場合は塩素、臭素、又はヨウ素が好ましい。また、 R^{98} 及び R^{99} は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を表す。また、 R^{100} 及び R^{101} は、水素又は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を表す。 R^{100} 及び R^{101} は互いに結合して環を形成していても良い。

【0087】

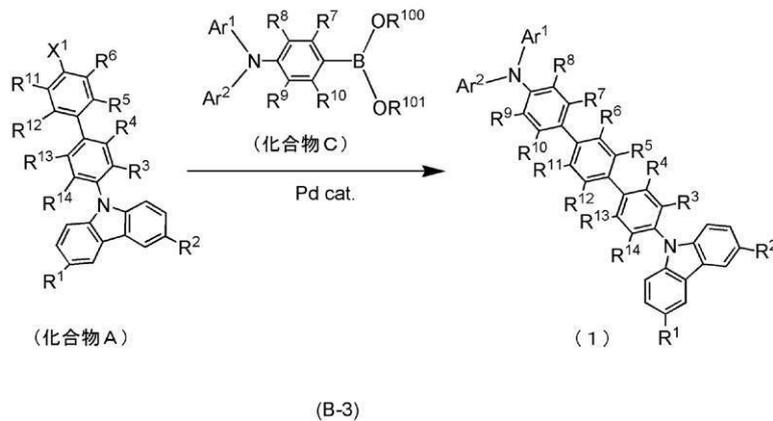
10

20

30

40

【化 3 1】



10

【0088】

次いで、合成スキーム (B - 3) で示すように、ハロゲン化した 9 - アリール - 9 H - カルバゾール化合物 (化合物 A) と 3 級アリールアミンボロン酸又は、3 級アリールアミン化合物が有機ホウ素で置換された化合物 (化合物 C) とを、塩基存在下で、パラジウム触媒を用いた鈴木・宮浦反応によりカップリングし、一般式 (1) で示される本実施の形態の芳香族アミン化合物を得ることができる。

20

【0089】

なお、上記反応式 (B - 3) において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 のアリール基のいずれかを表す。また、 $R^3 \sim R^{14}$ は、それぞれ、水素原子、又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を表す。また、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ炭素数 6 ~ 13 のアリール基を表す。炭素数 6 ~ 13 のアリール基はさらに置換基を有していてもよく、この置換基が互いに結合して環を形成してもよい。 X^1 は、ハロゲン、又は、トリフラート基を示す。また、 X^1 がハロゲンである場合は塩素、臭素、又は、ヨウ素が好ましい。また、 R^{100} 及び R^{101} は、水素又は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を表す。 R^{100} 及び R^{101} は互いに結合して環を形成していてもよい。

30

【0090】

また、合成スキーム (B - 3) において、用いることができるパラジウム触媒としては、酢酸パラジウム (II)、テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0) 等が挙げられる。また、合成スキーム (B - 3) において用いることができるパラジウム触媒の配位子としては、トリ (オルトトトリル) ホスフィンや、トリフェニルホスフィンや、トリシクロヘキシルホスフィン等が挙げられる。

【0091】

合成スキーム (B - 3) において用いることができる塩基としては、ナトリウム tert - ブトキッド等の有機塩基や、炭酸カリウム等の無機塩基等が挙げられる。合成スキーム (B - 3) において用いることができる溶媒としては、トルエンと水の混合溶媒、トルエンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、キシレンと水の混合溶媒、キシレンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、ベンゼンと水の混合溶媒、ベンゼンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、エチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類と水の混合溶媒等が挙げられる。なお、トルエンと水、又はトルエンとエタノールと水の混合溶媒がより好ましい。

40

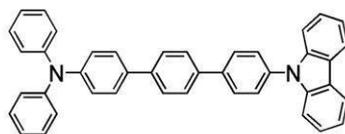
【0092】

図 1 (A) に、本実施の形態の芳香族アミン化合物の一例である、下記構造式 (120) で表される化合物 1 の、計算によって求めた最高被占有軌道を示す。本実施の形態の芳香族化合物の一例である化合物 1 は、カルバゾール基とアミン骨格との間に 3 つのベンゼン環を有する。

50

【 0 0 9 3 】

【 化 3 2 】



(120)

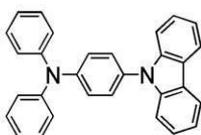
10

【 0 0 9 4 】

また、図 1 (B) に、 Y G A 骨格を有する化合物の一例である、下記構造式 (1 2 1) で示す化合物 2 の、計算によって求めた最高被占有軌道を示す。化合物 2 はカルバゾール基とアミン骨格との間に 1 つのベンゼン環を有する。

【 0 0 9 5 】

【 化 3 3 】



(121)

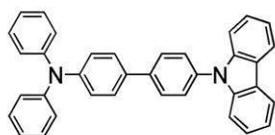
20

【 0 0 9 6 】

また、図 1 (C) に、 Y G A 骨格を有する化合物の一例である、下記構造式 (1 2 2) で示す化合物 3 の、計算によって求めた最高被占有軌道を示す。化合物 3 はカルバゾール基とアミン骨格との間に 2 つのベンゼン環を有する。

【 0 0 9 7 】

【 化 3 4 】



(122)

30

【 0 0 9 8 】

なお、化合物 1 ~ 3 の基底状態における最適分子構造は、密度汎関数法 (D F T) の B 3 L Y P / 6 - 3 1 1 (d , p) により計算した。D F T は、電子相関を考慮しないハートリー・フォック (H F) 法に比較して計算精度が良く、同レベルの計算精度である摂動法 (M P) 法よりも計算コストが小さいため、本計算で採用した。計算は、ハイパフォーマンスコンピュータ (H P C) (S G I 社製、A l t i x 3 7 0 0 D X) を用いて行った。図 1 は、この計算結果の可視化が可能なソフトウェア G a u s s V i e w 3 . 0 によって、最適分子構造の計算結果を可視化したものである。

40

【 0 0 9 9 】

図 1 (B) 及び (C) に示すように、化合物 2 及び化合物 3 においては、カルバゾール基の窒素原子とフェニル基の炭素原子の結合部位に、最高被占有軌道が存在している。

【 0 1 0 0 】

芳香族アミン化合物のカルバゾール基は、電荷の移動に弱く、カルバゾール基に正孔が入ると、カルバゾール基の窒素原子とカルバゾール基に結合したフェニル基の炭素との結合

50

が弱くなると考えられる。従って、当該結合部位に最高被占有軌道が存在している化合物 2 及び化合物 3 を用いて発光素子を作製した場合、電圧の印加によって発光素子の経時的な劣化が起こり、信頼性の高い素子を作製するのが困難であると推測される。

【 0 1 0 1 】

一方、図 1 (A) に示すように、化合物 1 においては、カルバゾール基の窒素原子と、カルバゾール基に結合したフェニル基の炭素原子と、の結合部位において、最高被占有軌道が存在しない。従って、本実施の形態の芳香族アミン化合物を用いて作製された発光素子は、電圧の印加による経時的な劣化が起こりにくく、高い信頼性を実現することができると考えられる。

【 0 1 0 2 】

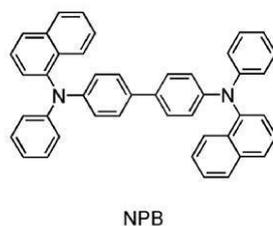
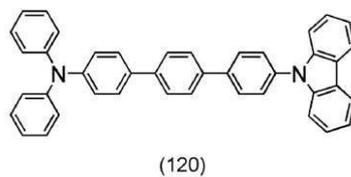
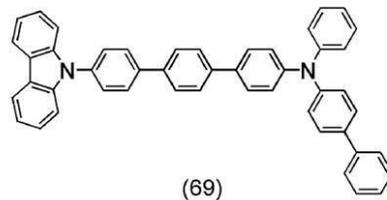
また、この計算結果から得られた構造式 (1 2 0) で表される化合物 1 の最高被占有軌道 (H O M O) 準位の値は 5 . 2 2 e V であり、構造式 (1 2 1) で表される化合物 2 の H O M O 準位は 5 . 2 5 e V であり、構造式 (1 2 2) で表される化合物 3 の H O M O 準位は 5 . 2 2 e V であり、いずれの化合物も H O M O 準位の値は大きく変わらず、深い値を示した。

【 0 1 0 3 】

また、本実施の形態の芳香族アミン化合物の一例である構造式 (6 9) 及び構造式 (1 2 0) で表される化合物、及び燐光材料に対するホスト材料の一例として 4 , 4 ' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ビフェニル (略称 : N P B) の三重項状態の最安定構造を密度汎関数法で計算した。

【 0 1 0 4 】

【 化 3 5 】



【 0 1 0 5 】

計算に使用した量子化学計算プログラムは Gaussian 03 である。基底関数は、H、C、N 原子に、6-311G(d,p) を用いた。汎関数は B3LYP である。励起エネルギーについては、上記で得られたそれぞれの三重項状態の最安定構造を用い、時間依存密度汎関数法で計算した。基底関数、汎関数は上記と同じである。

【0106】

計算で得られた三重項状態の第一励起エネルギーは、構造式(69)で表される本実施の形態の芳香族アミン化合物は 1.76 eV、構造式(120)で表される本実施の形態の芳香族アミン化合物は 1.75 eV、また、NPB は 1.74 eV であり、いずれの化合物もほぼ同等の第 1 励起エネルギーを示した。

【0107】

NPB は蛍光及び燐光材料に対するホスト材料としても使用することができ、また、以上の計算結果より、構造式(69)又は構造式(120)で表される本実施の形態の芳香族アミン化合物も、NPB と同程度に燐光ゲストを励起することが示された。従って、構造式(69)又は構造式(120)で表される本実施の形態の芳香族アミン化合物は、燐光材料に対するホスト材料として使用できると考えられる。

【0108】

以上示したように、本実施の形態の芳香族アミン化合物は、深い最高被占有軌道準位を保ちつつ、カルバゾール基の窒素原子とカルバゾール基に結合したフェニル基の炭素原子との結合部位において最高被占有軌道が存在しない構造を有している。従って、発光素子の発光効率の向上と高い信頼性と、を同時に実現させることができると考えられる。

【0109】

また、本実施の形態の芳香族アミン化合物は、短波長の発光を示す発光材料のホスト材料として用いることができる。また、短波長の発光を示す発光材料と接する層に用いることができる。

【0110】

より具体的には、本実施の形態の芳香族アミン化合物は、青色などの短波長の蛍光を示す蛍光材料に対してホスト材料として用いることができる。また、短波長の蛍光を示す蛍光材料が含まれる層に接する層に用いることができる。なお、本実施の形態の芳香族アミン化合物を、蛍光材料が含まれる層に接する層に用いる場合には、発光領域が本実施の形態の芳香族アミン化合物を含む層と距離が近くなるようにするとより効果的である。また、より長波長の発光を示す蛍光材料であれば、本実施の形態の芳香族アミン化合物を用いることにより、同様の効果を得ることができる。

【0111】

また、具体的には、本実施の形態の芳香族アミン化合物は、緑色などの比較的短波長の燐光を示す燐光材料に対してホスト材料として用いることができる。また、比較的短波長の燐光を示す燐光材料が含まれる層に接する層に用いることができる。なお、本実施の形態の芳香族アミン化合物を、燐光材料が含まれる層に接する層に用いる場合には、発光領域が本実施の形態の芳香族アミン化合物を含む層と距離が近くなるようにするとより効果的である。また、より長波長の発光を示す燐光材料であれば、本実施の形態の芳香族アミン化合物を用いることにより、同様の効果を得ることができる。

【0112】

また、本実施の形態の芳香族アミン化合物は、正孔輸送性に優れている。よって、発光素子の正孔輸送層として用いることができ、良好な特性を有する発光素子を得ることができる。

【0113】

(実施の形態 2)

本実施の形態では、実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物を用いた発光素子の一態様について図 2(A) を用いて以下に説明する。

【0114】

本実施の形態の発光素子は、一对の電極間に複数の層を有する。当該複数の層は、電極か

10

20

30

40

50

ら離れたところに発光領域が形成されるように、つまり電極から離れた部位でキャリアの再結合が行われるように、キャリア注入性の高い物質やキャリア輸送性の高い物質からなる層を組み合わせて積層されたものである。

【0115】

本実施の形態において、発光素子は、第1の電極102と、第1の電極102の上に順に積層した第1の層103、第2の層104、第3の層105、第4の層106と、さらにその上に設けられた第2の電極107とから構成されている。なお、本実施の形態では第1の電極102は陽極として機能し、第2の電極107は陰極として機能するものとして以下説明をするが、これに限られるものではない。

【0116】

基板101は発光素子の支持体として用いられる。基板101としては、例えばガラス、またはプラスチックなどを用いることができる。なお、発光素子の作製工程において支持体として機能するものであれば、これら以外のものでもよい。

【0117】

第1の電極102としては、仕事関数の大きい(具体的には4.0eV以上)金属、合金、導電性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム-酸化スズ(ITO: Indium Tin Oxide)、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ、酸化インジウム-酸化亜鉛(IZO: Indium Zinc Oxide)、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム(IWZO)等が挙げられる。これらの導電性金属酸化物膜は、通常スパッタにより成膜されるが、ゾル-ゲル法などを応用して作製しても構わない。例えば、酸化インジウム-酸化亜鉛(IZO)は、酸化インジウムに対し1~20wt%の酸化亜鉛を加えたターゲットを用いてスパッタリング法により形成することができる。また、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム(IWZO)は、酸化インジウムに対し酸化タングステンを0.5~5wt%、酸化亜鉛を0.1~1wt%含有したターゲットを用いてスパッタリング法により形成することができる。この他、金、白金、ニッケル、タングステン、クロム、モリブデン、鉄、コバルト、銅、パラジウム、または金属材料の窒化物(例えば、窒化チタン)等が挙げられる。

【0118】

第1の層103は、正孔注入性の高い物質を含む層である。モリブデン酸化物やバナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。この他、フタロシアニン(略称: H₂Pc)や銅フタロシアニン(CuPc)等のフタロシアニン系の化合物、或いはポリ(エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(スチレンスルホン酸)(PEDOT/PSS)等の高分子等によっても第1の層103を形成することができる。

【0119】

また、第1の層103として、有機化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料を用いることができる。特に、有機化合物と、有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを含む複合材料は、有機化合物と無機化合物との間で電子の授受が行われ、キャリア密度が増大するため、正孔注入性、正孔輸送性に優れている。

【0120】

また、第1の層103として有機化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料を用いた場合、第1の電極102とオーム接触をすることが可能となるため、仕事関数に関わらず第1の電極を形成する材料を選ぶことができる。

【0121】

複合材料に用いる無機化合物としては、遷移金属の酸化物であることが好ましい。また元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリブデン、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化ルテニウムは電子受容性が高いため好ましい。中でも特に、酸化モリブデンは大気中でも安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため好ましい。

10

20

30

40

50

【0122】

複合材料に用いる有機化合物としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、芳香族炭化水素、高分子化合物（オリゴマー、 dendリマー、ポリマー等）など、種々の化合物を用いることができる。なお、複合材料に用いる有機化合物としては、正孔輸送性の高い有機化合物であることが好ましい。具体的には、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。以下では、複合材料に用いることのできる有機化合物を具体的に列挙する。

【0123】

例えば、芳香族アミン化合物としては、N, N' - ジ(p - トリル) - N, N' - ジフェニル - p - フェレンジアミン（略称：DTDPPA）、4, 4' - ビス[N - (4 - ジフェニルアミノフェニル) - N - フェニルアミノ]ピフェニル（略称：DPAB）、4, 4' - ビス(N - {4 - [N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニルアミノ]フェニル} - N - フェニルアミノ)ピフェニル（略称：DNTPD）、1, 3, 5 - トリス[N - (4 - ジフェニルアミノフェニル) - N - フェニルアミノ]ベンゼン（略称：DPA3B）等を挙げることができる。また、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いることもできる。

10

【0124】

複合材料に用いることのできるカルバゾール誘導体としては、具体的には、3 - [N - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル) - N - フェニルアミノ] - 9 - フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA1）、3, 6 - ビス[N - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル) - N - フェニルアミノ] - 9 - フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA2）、3 - [N - (1 - ナフチル) - N - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル)アミノ] - 9 - フェニルカルバゾール（略称：PCzPCN1）等を挙げることができる。

20

【0125】

また、4, 4' - ジ(N - カルバゾリル)ピフェニル（略称：CBP）、1, 3, 5 - トリス[4 - (N - カルバゾリル)フェニル]ベンゼン（略称：TCPB）、9 - [4 - (N - カルバゾリル)]フェニル - 10 - フェニルアントラセン（略称：CzPA）、1, 4 - ビス[4 - (N - カルバゾリル)フェニル] - 2, 3, 5, 6 - テトラフェニルベンゼン等を用いることができる。

30

【0126】

また、複合材料に用いることのできる芳香族炭化水素としては、例えば、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ジ(2 - ナフチル)アントラセン（略称：t - BuDNA）、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ジ(1 - ナフチル)アントラセン、9, 10 - ビス(3, 5 - ジフェニルフェニル)アントラセン（略称：DPPA）、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ビス(4 - フェニルフェニル)アントラセン（略称：t - BuDBA）、9, 10 - ジ(2 - ナフチル)アントラセン（略称：DNA）、9, 10 - ジフェニルアントラセン（略称：DPAnth）、2 - tert - ブチルアントラセン（略称：t - BuAnth）、9, 10 - ビス(4 - メチル - 1 - ナフチル)アントラセン（略称：DMNA）、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ビス[2 - (1 - ナフチル)フェニル]アントラセン、9, 10 - ビス[2 - (1 - ナフチル)フェニル]アントラセン、2, 3, 6, 7 - テトラメチル - 9, 10 - ジ(1 - ナフチル)アントラセン、2, 3, 6, 7 - テトラメチル - 9, 10 - ジ(2 - ナフチル)アントラセン、9, 9' - ビアントリル、10, 10' - ジフェニル - 9, 9' - ビアントリル、10, 10' - ビス(2 - フェニルフェニル) - 9, 9' - ビアントリル、10, 10' - ビス[(2, 3, 4, 5, 6 - ペンタフェニル)フェニル] - 9, 9' - ビアントリル、アントラセン、テトラセン、ルブレン、ペリレン、2, 5, 8, 11 - テトラ(tert - ブチル)ペリレン等が挙げられる。また、この他、ペンタセン、コロネン等も用いることができる。このように、 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有し、炭素数14 ~ 42である芳香族炭化水素を用いることがより好ましい。

40

50

【0127】

なお、複合材料に用いることのできる芳香族炭化水素は、ビニル骨格を有していてもよい。ビニル基を有している芳香族炭化水素としては、例えば、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ピフェニル(略称:DPVBi)、9,10-ビス[4-(2,2-ジフェニルビニル)フェニル]アントラセン(略称:DPVPA)等が挙げられる。

【0128】

また、ポリ(N-ビニルカルバゾール)(略称:PVK)やポリ(4-ビニルトリフェニルアミン)(略称:PVTPA)等の高分子化合物を用いることもできる。

【0129】

第2の層104は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は正孔輸送性に優れているため、第2の層104に好適に用いることができる。実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を第2の層104に用いることにより、良好な特性の発光素子を得ることができる。

10

【0130】

第3の層105は、発光性の物質を含む層である。発光性の物質については、特に制限させることなく各種のものが使用できる。例えば、蛍光を発光する蛍光材料としては、クマリン6やクマリン545Tなどのクマリン誘導体、N,N'-ジメチルキナクリドンやN,N'-ジフェニルキナクリドンなどのキナクリドン誘導体、N-フェニルアクリドンやN-メチルアクリドンなどのアクリドン誘導体、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-BuDNA)、9,10-ジフェニルアントラ 20
セン(略称:DPhA)、ルブレネン、ペリフランテン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブチル)ペリレン(略称:TBP)などの縮合芳香族化合物、4-ジシアノメチレン-2-[p-(ジメチルアミノ)スチリル]-6-メチル-4H-ピランなどのピラン誘導体、4-(2,2-ジフェニルビニル)トリフェニルアミン、9-(4-{N-[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]-N-フェニルアミノ}フェニル)-10-フェニルアントラセン(略称:YGAPA)、4-(10-フェニル-9-アントリル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン(略称:PCBAPA)などのアミン誘導体などが挙げられる。燐光を発光する燐光材料としては、トリス(2-フェニルピリジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(ppy)₃)、ビス(2-フェニルピリジナト)イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:Ir(ppy)₂(acac))、ビス{2-(p-トリル)ピリジナト}イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:Ir(tpy)₂(acac))、ビス{2-(2'-ベンゾチエニル)ピリジナト}イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:Ir(btp)₂(acac))、ビス{2-(4,6-ジフルオロフェニル)ピリジナト}イリジウム(III)ピコリナート(略称:Firpic)などのイリジウム錯体、2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポルフィリン-白金錯体(pt(OEP))などの白金錯体、4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリントリス(2-テノイルトリフルオロアセトナト)ユーロピウム(III)などの希土類錯体などが挙げられる。

20

30

【0131】

本実施の形態で示す発光素子は、第3の層105に含まれる発光性の物質が青色の蛍光を発光する材料であるときに効果的である。具体的には、上述したt-BuDNA、DPhA、TBP、YGAPA、PCBAPAなどの青色を発光する蛍光材料を用いることが好ましい。

40

【0132】

また、本発明は、第3の層105に含まれる発光性の物質が緑色の燐光を発光する材料であるときに効果的である。具体的には、上述したIr(ppy)₃、Ir(ppy)₂(acac)、Ir(tpy)₂(acac)などの緑色を発光する燐光材料、Firpicなどの青緑色を発光する燐光材料を用いることが好ましい。

【0133】

50

また、第3の層105は上述した発光性の物質を分散させて構成してもよい。発光性の物質を分散させるための材料としては、各種のものを用いることができ、発光性の物質よりもLUMO準位が高く、HOMO準位が低い物質を用いることが好ましい。具体的には、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(略称:NPB)、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Alq)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(略称:BA1q)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンズオキサゾラト]亜鉛(略称:Zn(BOX)₂)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-BuDNA)、9-[4-(N-カルバゾリル)]フェニル-10-フェニルアントラセン(略称:CzPA)、2-(4-{N-[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]-N-フェニルアミノ}フェニル)-5-フェニル-1,3,4-オキサジアゾール(略称:YGAO11)等を用いることができる。また、発光性の物質を分散させるための材料は複数種用いることができる。例えば、結晶化を抑制するためにルブレン等の結晶化を抑制する物質をさらに添加してもよい。また、発光性の物質へのエネルギー移動をより効率良く行うためにNPB、あるいはAlq等をさらに添加してもよい。

【0134】

第4の層106は、電子輸送性の高い物質を用いることができる。例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Alq)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Almq₃)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(略称:BeBq₂)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(略称:BA1q)など、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等からなる層である。また、この他、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンズオキサゾラト]亜鉛(略称:Zn(BOX)₂)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンズチアゾラト]亜鉛(略称:Zn(BTZ)₂)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体なども用いることができる。さらに、金属錯体以外にも、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称:PAD)や、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン(略称:OXD-7)、3-(4-ピフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称:TAZ)、バソフェナントロリン(略称:BPhen)、バソキュープロイン(略称:BCP)なども用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層として用いても構わない。また、電子輸送層は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が二層以上積層したものとしてもよい。

【0135】

第2の電極107を形成する物質としては、仕事関数の小さい(具体的には3.8eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることができる。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の1族または2族に属する元素、すなわちリチウムやセシウム等のアルカリ金属、およびマグネシウム、カルシウム、ストロンチウム等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金(MgAg、AlLi)、ユウロピウム、イッテルビウム等の希土類金属およびこれらを含む合金等が挙げられる。しかしながら、第2の電極107と第4の層106との間に、電子注入を促す機能を有する層を、当該第2の電極と積層して設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、ITO、珪素を含むITO等様々な導電性材料を第2の電極107として用いることができる。

【0136】

なお、電子注入を促す機能を有する層としては、フッ化リチウム(LiF)、フッ化セシウム(CsF)、フッ化カルシウム(CaF₂)等のようなアルカリ金属又はアルカリ土類金属又はそれらの化合物を用いることができる。例えば、電子輸送性を有する物質から

10

20

30

40

50

なる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属又はそれらの化合物を含有させたもの、例えばA1q中にマグネシウムを含有させたもの等を用いることができる。なお、電子注入層として、電子輸送性を有する物質からなる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属を含有させたものを用いることにより、第2の電極107からの電子注入が効率良く行われるため、より好ましい。

【0137】

また、第1の層103、第2の層104、第3の層105、第4の層106の形成方法は、蒸着法その他、例えばインクジェット法またはスピンコート法などの種々の方法を用いることができる。また各電極または各層ごとに異なる成膜方法を用いて形成しても構わない。

10

【0138】

以上のような構成を有する本実施の形態の発光素子は、第1の電極102と第2の電極107との間に生じた電位差により電流が流れ、発光性の物質を含む層である第3の層105において正孔と電子とが再結合し、発光するものである。つまり第3の層105に発光領域が形成されるような構成となっている。

【0139】

発光は、第1の電極102または第2の電極107のいずれか一方または両方を通して外部に取り出される。従って、第1の電極102または第2の電極107のいずれか一方または両方は、透光性を有する物質で成る。第1の電極102のみが透光性を有する物質からなるものである場合、図2(A)に示すように、発光は第1の電極102を通過して基板側から取り出される。また、第2の電極107のみが透光性を有する物質からなるものである場合、図2(B)に示すように、発光は第2の電極107を通過して基板と逆側から取り出される。第1の電極102および第2の電極107がいずれも透光性を有する物質からなるものである場合、図2(C)に示すように、発光は第1の電極102および第2の電極107を通過して、基板側および基板と逆側の両方から取り出される。

20

【0140】

なお第1の電極102と第2の電極107との間に設けられる層の構成は、上記のものには限定されない。発光領域と金属とが近接することによって生じる消光が抑制されるように、第1の電極102および第2の電極107から離れた部位に正孔と電子とが再結合する発光領域を設けた構成であれば、上記以外のものでよい。

30

【0141】

つまり、層の積層構造については特に限定されず、電子輸送性の高い物質または正孔輸送性の高い物質、電子注入性の高い物質、正孔注入性の高い物質、バイポーラ性の(電子及び正孔の輸送性の高い)物質、正孔ブロック材料等から成る層を、実施の形態1の芳香族アミン化合物と自由に組み合わせて構成すればよい。

【0142】

図3に示す発光素子は、陰極として機能する第1の電極302の上に電子輸送性の高い物質からなる第1の層303、発光性の物質を含む第2の層304、正孔輸送性の高い物質からなる第3の層305、正孔注入性の高い物質からなる第4の層306、陽極として機能する第2の電極307とが順に積層された構成となっている。なお、301は基板である。

40

【0143】

本実施の形態においては、ガラス、プラスチックなどからなる基板上に発光素子を作製している。一基板上にこのような発光素子を複数作製することで、パッシブマトリクス型の発光装置を作製することができる。また、ガラス、プラスチックなどからなる基板上に、例えば薄膜トランジスタ(TFT)を形成し、TFTと電氣的に接続された電極上に発光素子を作製してもよい。これにより、TFTによって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置を作製できる。なお、TFTの構造は、特に限定されない。スタガ型のTFTでもよいし逆スタガ型のTFTでもよい。また、TFTに用いる半導体の結晶性についても特に限定されず、非晶質半導体を用いてもよいし、結晶性半導体を用い

50

てもよい。また、TFT基板に形成される駆動用回路についても、N型およびP型のTFTからなるものでもよいし、若しくはN型またはP型のいずれか一方からのみなるものであってもよい。

【0144】

実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、深いHOMO準位を有している。また、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、最高被占有軌道がカルバゾール基の窒素とフェニル基の炭素との結合部位に存在しない構造を有していると考えられる。従って、この芳香族アミン化合物を発光素子に適用することにより、発光素子の発光効率の向上と高い信頼性を同時に実現させることができる。

【0145】

また、本実施の形態の発光素子は、発光効率が高いため、消費電力を低減することができる。

【0146】

(実施の形態3)

本実施の形態では、実施の形態2で示した構成と異なる構成の発光素子について説明する。

【0147】

実施の形態1の芳香族アミン化合物は、発光性の物質を分散させるためのホスト材料として用いることができる。つまり、実施の形態2で示した第3の層105のホスト材料に用いることができる。実施の形態1で示した芳香族アミン化合物に分散する発光性の物質としては、種々の蛍光材料、燐光材料を用いることができる。

【0148】

本発明の一態様の芳香族アミン化合物を第3の層105に用いた場合、第2の層104を形成する物質としては、種々の材料を用いることができる。例えば、種々の芳香族アミン化合物を用いることができる。広く用いられている材料として、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、その誘導体である4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:NPB)、4,4',4''-トリス(N,N-ジフェニル-アミノ)トリフェニルアミン、4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンなどのスターバースト型芳香族アミン化合物が挙げられる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。なお、第2の層104は、単層のものだけでなく、上記物質の混合層、あるいは二層以上積層したものであってもよい。

【0149】

実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、深いHOMO準位を有している。また、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、最高被占有軌道がカルバゾール基の窒素とフェニル基の炭素との結合部位に存在しない構造を有していると考えられる。従って、この芳香族アミン化合物を発光素子に適用することにより、発光素子の発光効率の向上と高い信頼性を同時に実現させることができる。

【0150】

また、本実施の形態の発光素子は、発光効率が高いため、消費電力を低減することができる。

【0151】

(実施の形態4)

本実施の形態では、実施の形態2~実施の形態3で示した構成と異なる構成の発光素子について説明する。

【0152】

実施の形態2で示した第3の層105に実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いることにより、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物からの発光を得ることができる

10

20

30

40

50

。実施の形態 1 の芳香族アミン化合物は紫～青色の発光を示すため、紫～青色の発光を示す発光素子を得ることができる。

【0153】

第 3 の層 105 は、実施の形態 1 の芳香族アミン化合物のみで構成してもよいし、実施の形態 1 の芳香族アミン化合物を他の物質に分散させて構成してもよい。実施の形態 1 の芳香族アミン化合物を分散させる物質としては、種々の材料を用いることができ、実施の形態 2 で述べた正孔輸送性の高い物質や電子輸送性の高い物質の他、3 - (4 - ビフェニル) - 4 - フェニル - 5 - (4 - tert - ブチルフェニル) - 1, 2, 4 - トリアゾール (略称: TAZ)、4, 4' - ジ(N - カルバゾール)ピフェニル (略称: CBP) や、2, 2', 2'' - (1, 3, 5 - ベンゼントリ - イル) - トリス [1 - フェニル - 1H - ベンゾイミダゾール] (略称: TPBI) などが挙げられる。

10

【0154】

実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物は、深い HOMO 準位を有している。また、実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物は、最高被占有軌道がカルバゾール基の窒素とフェニル基の炭素との結合部位に存在しない構造を有していると考えられる。従って、この芳香族アミン化合物を発光素子に適用することにより、発光素子の発光効率の向上と高い信頼性を同時に実現させることができる。

【0155】

また、本実施の形態の発光素子は、発光効率が高いため、消費電力を低減することができる。

20

【0156】

なお、第 3 の層 105 以外は、実施の形態 2 ~ 実施の形態 3 に示した構成を適宜用いることができる。

【0157】

(実施の形態 5)

本実施の形態では、実施の形態 2 ~ 実施の形態 4 で示した構成と異なる構成の発光素子について説明する。

【0158】

実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物は正孔注入性を有するため、実施の形態 2 で示した第 1 の層 103 に用いることができる。また、実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物と無機化合物とを複合した複合材料を第 1 の層 103 に用いることができる。複合材料に用いる無機化合物としては、遷移金属の酸化物であることが好ましい。また元素周期表における第 4 族乃至第 8 族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリブデン、酸化タンゲステン、酸化マンガン、酸化レニウムは電子受容性が高いため好ましい。中でも特に、酸化モリブデンは大気中でも安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため好ましい。

30

【0159】

実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料は、有機化合物と無機化合物との間で電子の授受が行われ、キャリア密度が増大するため、正孔注入性、正孔輸送性に優れている。また、第 1 の層 103 として実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料を用いた場合、第 1 の電極 102 とオーム接触をすることが可能となるため、仕事関数に関わらず第 1 の電極を形成する材料を選ぶことができる。

40

【0160】

実施の形態 1 で示した芳香族アミン化合物を第 1 の層 103 に用いた場合、第 2 の層 104 を形成する物質としては、種々の材料を用いることができる。例えば、芳香族アミン (すなわち、ベンゼン環 - 窒素の結合を有するもの) の化合物を用いることができる。広く用いられている材料として、4, 4' - ビス [N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニルアミノ] ピフェニル、その誘導体である 4, 4' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ピフェニル (略称: NPB)、4, 4', 4'' - トリス (N, N - ジ

50

フェニル - アミノ)トリフェニルアミン、4, 4', 4'' - トリス[N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニルアミノ]トリフェニルアミンなどのスターバースト型芳香族アミン化合物が挙げられる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。なお、第2の層104は、単層のものだけでなく、上記物質の混合層、あるいは二層以上積層したものであってもよい。

【0161】

また、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を、第1の層103および第2の層104に用いてもよい。

【0162】

実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、正孔注入性を有するため、発光素子の正孔注入層として好適に用いることができる。

【0163】

実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、深いHOMO準位を有している。また、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物は、最高被占有軌道がカルバゾール基の窒素とフェニル基の炭素との結合部位に存在しない構造を有していると考えられる。従って、この芳香族アミン化合物を発光素子に適用することにより、発光素子の発光効率の向上と高い信頼性を同時に実現させることができる。

【0164】

また、本実施の形態の発光素子は、発光効率が高いため、消費電力を低減することができる。

【0165】

なお、第1の層103以外は、実施の形態2～実施の形態4に示した構成を適宜用いることができる。

【0166】

(実施の形態6)

本実施の形態は、複数の発光ユニットを積層した構成の発光素子(以下、積層型素子という)の態様について、図4を参照して説明する。この発光素子は、第1の電極と第2の電極との間に、複数の発光ユニットを有する発光素子である。発光ユニットとしては、実施の形態2で示した発光物質を含む層と同様な構成を用いることができる。つまり、実施の形態2で示した発光素子は、1つの発光ユニットを有する発光素子であり、本実施の形態では、複数の発光ユニットを有する発光素子について説明する。

【0167】

図4において、第1の電極501と第2の電極502との間には、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512が積層されている。第1の電極501と第2の電極502は実施の形態2と同様なものを適用することができる。また、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512は同じ構成であっても異なる構成であってもよく、その構成は実施の形態2～実施の形態5と同様なものを適用することができる。

【0168】

電荷発生層513には、有機化合物と金属酸化物の複合材料が含まれている。この有機化合物と金属酸化物の複合材料は、実施の形態2で示した有機化合物と酸化バナジウムや酸化モリブデンや酸化タングステン等の金属酸化物を含む。有機化合物としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、芳香族炭化水素、高分子化合物(オリゴマー、 dendリマー、ポリマー等)など、種々の化合物を用いることができる。なお、有機化合物としては、正孔輸送性有機化合物として正孔移動度が $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上であるものを適用することが好ましい。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。有機化合物と金属酸化物の複合体は、キャリア注入性、キャリア輸送性に優れているため、低電圧駆動、低電流駆動を実現することができる。

【0169】

なお、電荷発生層513は、有機化合物と金属酸化物の複合体と他の材料とを組み合わせ

10

20

30

40

50

て形成してもよい。例えば、有機化合物と金属酸化物の複合体を含む層と、電子供与性物質の中から選ばれた一の化合物と電子輸送性の高い化合物とを含む層とを組み合わせ形成してもよい。また、有機化合物と金属酸化物の複合体を含む層と、透明導電膜とを組み合わせ形成してもよい。

【0170】

いずれにしても、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512に挟まれる電荷発生層513は、第1の電極501と第2の電極502に電圧を印加したときに、一方の側の発光ユニットに電子を注入し、他方の側の発光ユニットに正孔を注入するものであれば良い。

【0171】

本実施の形態では、2つの発光ユニットを有する発光素子について説明したが、同様に、3つ以上の発光ユニットを積層した発光素子についても、本実施の形態を適用することが可能である。本実施の形態に係る発光素子のように、一对の電極間に複数の発光ユニットを電荷発生層で仕切って配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度領域での長寿命素子を実現できる。また、また、低電圧駆動が可能で消費電力が低い発光装置を実現することができる。

【0172】

なお、本実施の形態は、他の実施の形態と適宜組み合わせることが可能である。

【0173】

(実施の形態7)

本実施の形態では、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いて作製された発光装置について図5を用いて説明する。

【0174】

図5(A)は、発光装置を示す上面図、図5(B)は図5(A)をA-A'およびB-B'で切断した断面図である。この発光装置は、発光素子の発光を制御するものとして、点線で示された601は駆動回路部(ソース側駆動回路)、602は画素部、603は駆動回路部(ゲート側駆動回路)を含んでいる。また、604は封止基板、605はシール材であり、シール材605で囲まれた内側は、空間607になっている。

【0175】

なお、引き回し配線608はソース側駆動回路601及びゲート側駆動回路603に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC(フレキシブルプリントサーキット)609からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基板(PWB)が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

【0176】

次に、断面構造について図5(B)を用いて説明する。素子基板610上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路601と、画素部602中の一つの画素が示されている。

【0177】

なお、ソース側駆動回路601はnチャンネル型TFT623とpチャンネル型TFT624とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路は、種々のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー体型を示すが、必ずしもその必要はなく、駆動回路を基板上ではなく外部に形成することもできる。

【0178】

また、画素部602はスイッチング用TFT611と、電流制御用TFT612とそのドレインに電気的に接続された第1の電極613とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極613の端部を覆って絶縁物614が形成されている。ここでは、ポジ型

10

20

30

40

50

の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

【0179】

また、被覆性を良好なものとするため、絶縁物614の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物614の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物614の上端部のみに曲率半径(0.2 μm ~ 3 μm)を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物614として、光の照射によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光の照射によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

【0180】

第1の電極613上には、発光物質を含む層616、および第2の電極617がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極613に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO膜、または珪素を含有したインジウム錫酸化物膜、2~20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム膜、窒化チタン膜、クロム膜、タングステン膜、Zn膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタンとアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれるため、好ましい。

【0181】

また、発光物質を含む層616は、蒸着マスクを用いた蒸着法、インクジェット法、スピコート法等の種々の方法によって形成される。発光物質を含む層616は、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を含んでいる。また、発光物質を含む層616を構成する他の材料としては、低分子化合物、または高分子化合物(オリゴマー、 dendrimer、ポリマーを含む)であっても良い。

【0182】

さらに、発光物質を含む層616上に形成され、陰極として機能する第2の電極617に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料(Al、Mg、Li、Ca、またはこれらの合金や化合物MgAg、MgIn、AlLi、LiF、CaF₂等)を用いることが好ましい。なお、発光物質を含む層616で生じた光が第2の電極617を透過させる場合には、第2の電極617として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜(ITO、2~20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム、珪素を含有したインジウム錫酸化物、酸化亜鉛(ZnO)等)との積層を用いるのが良い。

【0183】

さらにシール材605で封止基板604を素子基板610と貼り合わせることにより、素子基板610、封止基板604、およびシール材605で囲まれた空間607に発光素子618が備えられた構造になっている。なお、空間607には、充填材が充填されており、不活性気体(窒素やアルゴン等)が充填される場合の他、シール材605で充填される場合もある。

【0184】

なお、シール材605にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板604に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP(Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF(ポリビニルフロライド)、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

【0185】

以上のようにして、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いて作製された発光装置を得ることができる。

【0186】

本実施の形態の発光装置は、実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いているため、良好な特性を備えた発光装置を得ることができる。具体的には、信頼性及び発光効率の高い発光装置を得ることができる。

10

20

30

40

50

【0187】

以上のように、本実施の形態では、トランジスタによって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置について説明したが、この他、パッシブマトリクス型の発光装置であってもよい。図6には上記実施の形態を適用して作製したパッシブマトリクス型の発光装置の斜視図を示す。図6において、基板951上には、電極952と電極956との間には発光物質を含む層955が設けられている。電極952の端部は絶縁層953で覆われている。そして、絶縁層953上には隔壁層954が設けられている。隔壁層954の側壁は、基板面に近くなるに伴って、一方の側壁と他方の側壁との間隔が狭くなっていくような傾斜を有する。つまり、隔壁層954の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接する辺）の方が上辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接しない辺）よりも短い。このように、隔壁層954を設けることで、静電気等に起因した発光素子の不良を防ぐことができる。また、パッシブマトリクス型の発光装置においても、発光効率の高い本発明の発光素子を含むことによって、信頼性及び発光効率の高い発光装置を得ることができる。また、発光効率が高いため、消費電力を低減することも可能である。

10

【0188】

(実施の形態8)

本実施の形態では、実施の形態7に示す発光装置をその一部に含む電子機器について説明する。本実施の形態の電子機器は、実施の形態1に示した芳香族アミン化合物を含み、信頼性が高い表示部を有する。また、発光効率の高い表示部を有する。また、発光効率が高いため、消費電力を低減できるという効果もある。

20

【0189】

実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いて作製された発光素子を有する電子機器として、ビデオカメラ、デジタルカメラ等のカメラ、ゴーグル型ディスプレイ、ナビゲーションシステム、音響再生装置（カーオーディオ、オーディオコンポ等）、コンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末（モバイルコンピュータ、携帯電話、携帯型ゲーム機または電子書籍等）、記録媒体を備えた画像再生装置（具体的にはDigital Versatile Disc (DVD)等の記録媒体を再生し、その画像を表示しうる表示装置を備えた装置）などが挙げられる。これらの電子機器の具体例を図7に示す。

【0190】

図7(A)は本実施の形態に係るテレビ装置であり、筐体9101、支持台9102、表示部9103、スピーカー部9104、ビデオ入力端子9105等を含む。このテレビ装置において、表示部9103は、実施の形態2~6で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、発光効率が高いという特徴を有している。また、信頼性が高いという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部9103も同様の特徴を有するため、このテレビ装置は画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、テレビ装置において、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができるので、筐体9101や支持台9102の小型軽量化を図ることが可能である。本実施の形態に係るテレビ装置は、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られている。

30

40

【0191】

図7(B)は本実施の形態に係るコンピュータであり、本体9201、筐体9202、表示部9203、キーボード9204、外部接続ポート9205、ポインティングデバイス9206等を含む。このコンピュータにおいて、表示部9203は、実施の形態2~6で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、発光効率が高いという特徴を有している。また、信頼性が高いという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部9203も同様の特徴を有するため、このコンピュータは画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、コンピュータにおいて、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができるので、本体9201や筐体9202の小型軽量化を図ることが可能である。本実施

50

の形態に係るコンピュータは、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、環境に適合した製品を提供することができる。

【0192】

図7(C)は本実施の形態に係る携帯電話であり、本体9401、筐体9402、表示部9403、音声入力部9404、音声出力部9405、操作キー9406、外部接続ポート9407、アンテナ9408等を含む。この携帯電話において、表示部9403は、実施の形態2～6で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、発光効率が高いという特徴を有している。また、信頼性が高いという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部9403も同様の特徴を有するため、この携帯電話は画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、携帯電話において、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができるので、本体9401や筐体9402の小型軽量化を図ることが可能である。本実施の形態に係る携帯電話は、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、携帯に適した製品を提供することができる。

10

【0193】

図7(D)は本実施の形態に係るカメラであり、本体9501、表示部9502、筐体9503、外部接続ポート9504、リモコン受信部9505、受像部9506、バッテリー9507、音声入力部9508、操作キー9509、接眼部9510等を含む。このカメラにおいて、表示部9502は、実施の形態2～6で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、発光効率が高いという特徴を有している。また、信頼性が高いという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部9502も同様の特徴を有するため、このカメラは画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、カメラにおいて、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができるので、本体9501の小型軽量化を図ることが可能である。本実施の形態に係るカメラは、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、携帯に適した製品を提供することができる。

20

【0194】

以上の様に、本発明の一態様である発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。実施の形態1で示した芳香族アミン化合物を用いることにより、発光効率が高く、信頼性の高い表示部を有する電子機器を提供することが可能となる。

30

【0195】

また、本発明の一態様である発光装置は、照明装置として用いることもできる。実施の形態2～6で示した発光素子を照明装置として用いる一態様を、図8を用いて説明する。

【0196】

図8は、本発明の一態様である発光装置をバックライトとして用いた液晶表示装置の一例である。図8に示した液晶表示装置は、筐体901、液晶層902、バックライト903、筐体904を有し、液晶層902は、ドライバIC905と接続されている。また、バックライト903は、本発明の一態様である発光装置が用いられおり、端子906により、電流が供給されている。

40

【0197】

本発明の一態様である発光装置を液晶表示装置のバックライトとして用いることにより、発光効率の高いバックライトが得られる。また、本発明の一態様である発光装置は、面発光の照明装置であり大面積化も可能であるため、バックライトの大面積化が可能であり、液晶表示装置の大面積化も可能になる。さらに、本発明の一態様である発光装置は薄型で低消費電力であるため、表示装置の薄型化、低消費電力化も可能となる。また、本発明の一態様である発光装置は信頼性に優れているため、その発光装置を用いた液晶表示装置も信頼性に優れている。

【0198】

図9は、本発明の一態様を適用した発光装置を、照明装置である電気スタンドとして用い

50

た例である。図 9 に示す電気スタンドは、筐体 2001 と、光源 2002 を有し、光源 2002 として、本発明の一態様である発光装置が用いられている。当該発光装置は、高輝度の発光が可能であるため、細かい作業をする場合など、手元を明るく照らすことが可能である。

【0199】

図 10 は、実施の形態 7 を適用した発光装置を、室内の照明装置 3001 として用いた例である。本発明の一態様である発光装置は大面積化が可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。また、本発明の一態様である発光装置は、薄型で低消費電力であるため、薄型化、低消費電力化の照明装置として用いることが可能となる。このように、本発明の一態様である発光装置を、室内の照明装置 3001 として用いた部屋に、図 7 (A) で説明したような、テレビ装置 3002 を設置して公共放送や映画を鑑賞することができる。

10

【実施例 1】

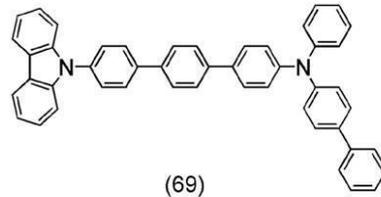
【0200】

本実施例では、本発明の一態様である、構造式 (69) で表される N - (ビフェニル - 4 - イル) - 4' - (9H - カルバゾール - 9 - イル) - N - フェニル - [1, 1', 4', 1''] ターフェニル - 4 - アミン (略称: YGTA1BP) の合成方法について説明する。

【0201】

【化 36】

20



【0202】

30

[ステップ 1]

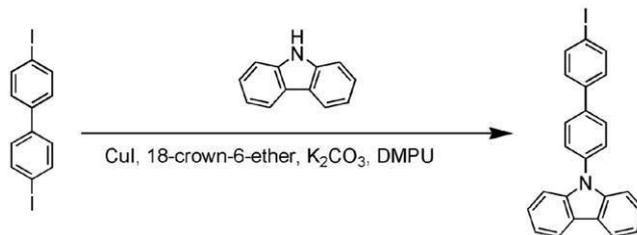
9 - (4' - ヨードビフェニル - 4 - イル) - 9H - カルバゾールの合成

【0203】

9 - (4' - ヨードビフェニル - 4 - イル) - 9H - カルバゾールの合成スキーム (C-1) を以下に示す。

【0204】

【化 37】



40

(C-1)

【0205】

まず、ジヨードビフェニル 49 g (120 mmol)、カルバゾール 17 g (100 mmol)、よう化銅 (I) 1.0 g (5.0 mmol)、18 - クラウン - 6 - エーテル 1

50

、3 g (5.0 mmol)、炭酸カリウム 10 g (75 mmol)、1,3-ジメチル-3,4,5,6-テトラヒドロ-2(1H)-ピリジノン(略称:DMPU) 40 mLを500 mL三口フラスコへ入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物を窒素雰囲気下、170 で6.5時間攪拌した。攪拌後、この混合物に水を加えてろ過し、ろ物を得た。このろ物を1 M塩酸、水、炭酸水素ナトリウム水溶液、水の順で洗浄し、トルエンとヘキサンの混合溶液で再結晶を行った。得られた固体をさらにクロロホルムで再結晶を行ったところ、目的物である9-(4'-ヨードビフェニル-4-イル)-9H-カルバゾールの白色粉末を収量40 g、収率89%で得た。

【0206】

[ステップ2] 4-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニルボロン酸の合成

10

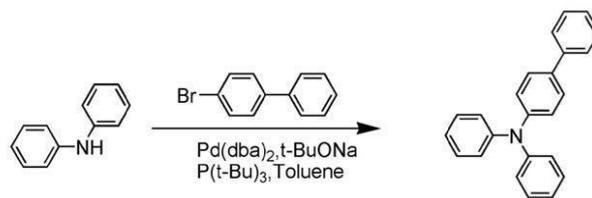
【0207】

(i) 4-フェニルトリフェニルアミンの合成

4-フェニルトリフェニルアミンの合成スキーム(C-2)を以下に示す。

【0208】

【化38】



(C-2)

20

【0209】

まず、4-ブロモビフェニル 14 g (59 mmol)、ジフェニルアミン 10 g (59 mmol)、ナトリウム tert-ブトキシド 11 g (118 mmol)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0) 0.30 g (0.52 mmol)を100 mL三口フラスコへ入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物へ、トルエン 100 mL、トリ(tert-ブチル)ホスフィン(10 wt%ヘキサン溶液) 0.50 mLを加えた。この混合物を減圧下で攪拌しながら脱気し、脱気後、80 で5時間加熱攪拌した。攪拌後、この混合物にトルエンを加え、この懸濁液を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水により洗浄した。次いで、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。この混合物をセライト(和光純薬工業株式会社、カタログ番号:531-16855)、アルミナ、フロリジル(和光純薬工業株式会社、カタログ番号:540-00135)を通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、固体を得た。得られた固体をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒で再結晶したところ、目的物である4-フェニルトリフェニルアミンの粉末状淡褐色固体を収量18 g、収率95%で得た。

30

【0210】

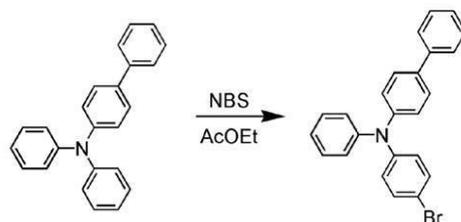
(ii) 4-プロモ-4'-フェニルトリフェニルアミンの合成

40

4-プロモ-4'-フェニルトリフェニルアミンの合成スキーム(C-3)を以下に示す。

【0211】

【化39】



(C-3)

10

【0212】

まず、4-フェニルトリフェニルアミン10g(31mmol)を500mL三角フラスコに入れ、酢酸エチル300mLを加えて室温で撹拌した。この溶液にN-プロモコハク酸イミド(略称:NBS)5.5g(31mmol)を少量ずつ加え、この混合溶液を室温で24時間撹拌した。撹拌後、この溶液を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄した。洗浄後、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物を吸引ろ過して硫酸マグネシウムを除去し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、乾燥したところ、目的物である4-プロモ-4'-フェニルトリフェニルアミンの粉末状淡褐色固体を収量12g、収率97%で得た。

20

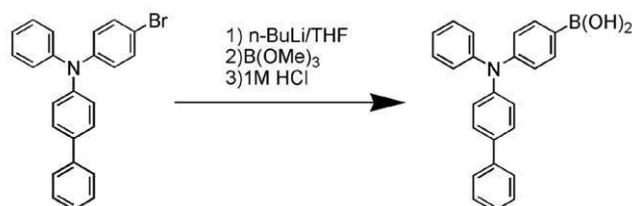
【0213】

(iii) 4-[N-(ピフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニルボロン酸の合成

4-[N-(ピフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニルボロン酸の合成スキーム(C-4)を以下に示す。

【0214】

【化40】



(C-4)

30

【0215】

まず、4-プロモ-4'-フェニルトリフェニルアミン7.0g(18mmol)を300mL三口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換したのち、テトラヒドロフラン(略称:THF)80mLを加えて、-78で10分撹拌した。この溶液に1.63mol/Lのn-ブチルリチウムヘキサン溶液13mL(21mmol)をシリンジにより滴下し、-78で1時間撹拌した。所定時間経過後、反応混合物にホウ酸トリメチル3.5mLを加え、-78で1時間撹拌し、その後、-78から徐々に室温に戻しながら24時間撹拌した。撹拌後、この溶液に1M希塩酸100mLを加えて室温で1時間撹拌した。撹拌後、この溶液に酢酸エチルを加え、酢酸エチルで抽出した。抽出後、有機層と抽出溶液を合わせて飽和食塩水で洗浄した。洗浄後、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、吸引ろ過により硫酸マグネシウムを除去してろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、クロロホルムとヘキサンの混合溶媒で再結晶したところ、目的物である4-[N-(ピフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニルボロン酸を収量4.0g、収率61%得た。

40

50

【 0 2 1 6 】

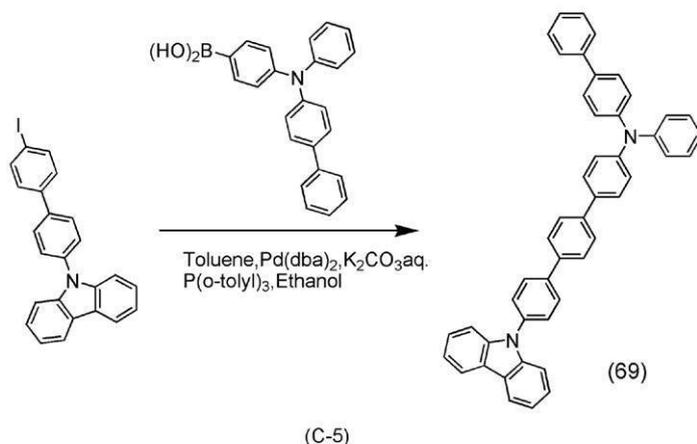
[ステップ3] YGT A 1 B Pの合成

【 0 2 1 7 】

YGT A 1 B Pの合成スキーム (C - 5) を以下に示す。

【 0 2 1 8 】

【化41】



10

【 0 2 1 9 】

9 - (4 ' - ヨードピフェニル - 4 - イル) - 9 H - カルバゾール 1 . 1 g (2 . 5 m m o l)、4 - [N - (ピフェニル - 4 - イル) - N - フェニルアミノ] フェニルボロン酸 0 . 9 2 g (2 . 5 1 m m o l)、酢酸パラジウム (0) 0 . 0 1 0 g (0 . 0 4 5 m m o l)、トリ (o - トリル) ホスフィン 0 . 1 0 g (0 . 3 3 m m o l) を 1 0 0 m L 三口フラスコに入れ、この混合物に 2 . 0 m o l / L 炭酸カリウム水溶液 1 0 m L、トルエン 3 0 m L、エタノール 5 m L を加えた。この混合物を、減圧下で撹拌しながら脱気し、フラスコ内を窒素置換した後、90 で 5 時間加熱撹拌した。撹拌後、反応混合物にトルエンを加え、この懸濁液の有機層と水層を分離した。分離後、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水により洗浄した。有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物をセライト、アルミナ、フロリジールを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製を行った。

20

30

【 0 2 2 0 】

カラムクロマトグラフィーはまずトルエン：ヘキサン = 1 : 9 の混合溶媒を展開溶媒として用い、次いで、トルエン：ヘキサン = 2 : 3 の混合溶媒を展開溶媒として用いることにより行った。得られたフラクションを濃縮して得た固体をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒により再結晶したところ、粉末状白色固体を収量 0 . 8 0 g、収率 5 0 % で得た。

【 0 2 2 1 】

得られた白色固体 0 . 8 0 g をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は 7 . 0 P a の減圧下、アルゴンの流量を 3 m L / m i n とし、315 で 1 5 時間行った。昇華精製後、目的の化合物を、収量 0 . 6 2 g、収率 7 8 % で得た。

40

【 0 2 2 2 】

核磁気共鳴法 (N M R) によって、この化合物が N - (ピフェニル - 4 - イル) - 4 ' ' - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) - N - フェニル - [1 , 1 ' , 4 ' , 1 ' '] ターフェニル - 4 - アミン (略称 : Y G T A 1 B P) であることを確認した。

【 0 2 2 3 】

この化合物の ^1H NMR データを以下に示す。

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : δ = 7 . 0 5 - 7 . 1 2 (m , 1 H)、7 . 1 8 - 7 . 2 5 (m , 6 H)、7 . 2 7 - 7 . 3 6 (m , 5 H)、7 . 3 9 - 7 . 6 3 (m , 1 2 H)、7 . 6 6 (d , J = 8 . 3 H z , 2 H)、7 . 7 0 - 7 . 8 0 (m , 4

50

H)、7.87 (d, J = 7.8 Hz, 2H)、8.16 (d, J = 7.8 Hz, 2H)。

【0224】

また、¹H NMRチャートを図11(A)、(B)に示す。なお、図11(B)は、図11(A)における6.5 ppm ~ 8.5 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0225】

また、YGT A 1 B Pのトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを図12(A)に示す。また、YGT A 1 B Pの薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを図12(B)に示す。図12において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度または吸収強度(任意単位)を表し、実線のグラフが吸収スペクトルを、破線のグラフが発光スペクトルをそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製し、それぞれ石英の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを図12(A)および(B)に示した。トルエン溶液の場合では355 nm付近に吸収が見られ、薄膜の場合では348 nm付近に吸収が見られた。また、図12(A)及び(B)において、YGT A 1 B Pの最大発光波長はトルエン溶液の場合では415 nm(励起波長340 nm)、薄膜の場合で449 nm(励起波長343 nm)であった。

10

【0226】

また、YGT A 1 B Pの薄膜状態におけるHOMO準位を大気中の光電子分光法(理研計器社製、AC-2)で測定した結果、-5.51 eVであった。さらに、図12のYGT A 1 B Pの薄膜の吸収スペクトルのデータを用い、Taucプロットから吸収端を求め、その吸収端を光学的エネルギーギャップとして見積もったところ、そのエネルギーギャップは3.11 eVであった。したがって、LUMO準位は-2.40 eVである。

20

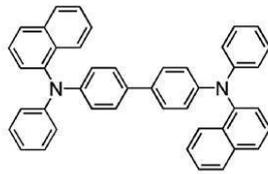
【実施例2】

【0227】

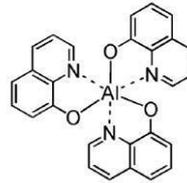
本実施例では、本発明の一態様である発光素子について、図13を用いて説明する。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。

【0228】

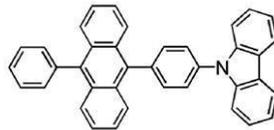
【化 4 2】



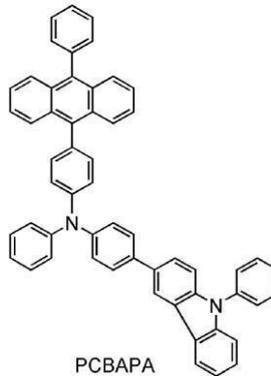
NPB



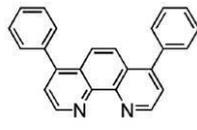
Alq



CzPA



PCBAPA



BPhen

【 0 2 2 9 】

(発光素子 1)

まず、ガラス基板 2 1 0 1 上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物をスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 2 1 0 2 を形成した。なお、その膜厚は 1 1 0 n m とし、電極面積は 2 m m × 2 m m とした。

【 0 2 3 0 】

次に、第 1 の電極が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 2 1 0 2 が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 10^{-4} Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 2 1 0 2 上に、NPB と酸化モリブデン (VI) とを共蒸着することにより、有機化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料を含む層 2 1 0 3 を形成した。その膜厚は 5 0 n m とし、NPB と酸化モリブデン (VI) との比率は、重量比で 4 : 1 (= NPB : 酸化モリブデン) となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で複数の蒸発源から同時に複数の材料の蒸着を行う蒸着法である。

【 0 2 3 1 】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、複合材料を含む層 2 1 0 3 上に、実施例 1 で合成した構造式 (6 9) で表される N - (ピフェニル - 4 - イル) - 4 ' ' - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) - N - フェニル - [1 , 1 ' , 4 ' , 1 ' '] ターフェニル - 4 - アミン (略称 : Y G T A 1 B P) を 1 0 n m の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層 2 1 0 4 を形成した。

【 0 2 3 2 】

さらに、9 - [4 - (N - カルバゾリル)] フェニル - 1 0 - フェニルアントラセン (略称 : C z P A) と 4 - (1 0 - フェニル - 9 - アントリル) - 4 ' - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) トリフェニルアミン (略称 : P C B A P A) とを共蒸着することにより、正孔輸送層 2 1 0 4 上に 3 0 n m の膜厚の発光層 2 1 0 5 を形成した。こ

10

20

30

40

50

ここで、CzPAとPCBAPAとの重量比は、1 : 0.1 (= CzPA : PCBAPA) となるように調節した。

【0233】

その後抵抗加熱による蒸着法を用いて、発光層2105上にAlqを10nmの膜厚となるように成膜し、第1の電子輸送層2106aを形成した。

【0234】

さらに、抵抗加熱による蒸着法を用い、第1の電子輸送層2106a上にバソフェナントロリン(略称: BPhen)を20nmの膜厚となるように成膜し、第2の電子輸送層2106bを形成した。

【0235】

さらに、抵抗加熱による蒸着法を用い、第2の電子輸送層2106b上に、フッ化リチウムを蒸着することにより、1nmの膜厚で電子注入層2107を形成した。

【0236】

最後に、抵抗加熱による蒸着法を用い、電子注入層2107上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように成膜することにより、第2の電極2108を形成することで、発光素子1を作製した。

【0237】

(比較発光素子1)

正孔輸送層2104として、NPBを10nmの膜厚となるように成膜した。正孔輸送層2104以外は、発光素子1と同様に形成した。

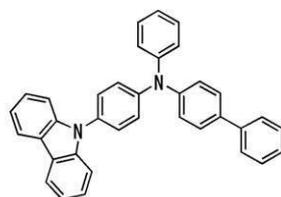
【0238】

(比較発光素子2)

正孔輸送層2104として、YGA骨格を有する化合物であり、下記構造式(131)で表される4-(カルバゾール-9-イル)フェニル-4'-フェニルトリフェニルアミン(略称: YGA1BP)を10nmの膜厚となるように成膜した。正孔輸送層2104以外は、発光素子1と同様に形成した。

【0239】

【化43】



(131)

【0240】

(比較発光素子3)

正孔輸送層2104として、YGA骨格を有する化合物であり、下記構造式(132)で表される4-[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]4'-フェニルトリフェニルアミン(略称: YGBA1BP)を10nmの膜厚となるように成膜した。正孔輸送層2104以外は、発光素子1と同様に形成した。

【0241】

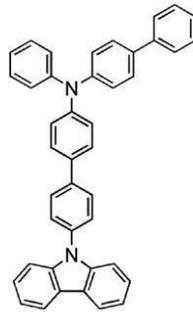
10

20

30

40

【化44】



(132)

10

【0242】

本実施例で作製した発光素子1及び比較発光素子1～3の素子構成を表1に示す。表1では、混合比は全て重量比で表している。

【0243】

【表1】

	第1の電極 2102	複合材料を含む層 2103	正孔輸送層 2104	発光層 2105	第1の電子輸送層 2106a	第2の電子輸送層 2106b	電子注入層 2107	第2の電極 2108
発光素子1	ITSO 110nm	NPB:MoOx (=4:1) 50nm	YGTA1BP 10nm	CzPA:PCBAPA (=1:0.1) 30nm	Alq 10nm	Bphen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
比較発光素子1	ITSO 110nm	NPB:MoOx (=4:1) 50nm	NPB 10nm	CzPA:PCBAPA (=1:0.1) 30nm	Alq 10nm	Bphen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
比較発光素子2	ITSO 110nm	NPB:MoOx (=4:1) 50nm	YGA1BP 10nm	CzPA:PCBAPA (=1:0.1) 30nm	Alq 10nm	Bphen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
比較発光素子3	ITSO 110nm	NPB:MoOx (=4:1) 50nm	YGBA1BP 10nm	CzPA:PCBAPA (=1:0.1) 30nm	Alq 10nm	Bphen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

*混合比は全て重量比

20

30

【0244】

作製した発光素子1及び比較発光素子1～3は、いずれも青色発光材料であるPCBAPA由来の発光波長が観測された。CIE色度座標はいずれの素子も、 $(x, y) = (0.15, 0.22)$ 程度であった。

【0245】

発光素子1および比較発光素子1～3の電流密度-輝度特性を図14に示す。図14において、横軸は電流密度(mA/cm^2)を、縦軸は輝度(cd/m^2)を表す。また、電圧-輝度特性を図15に示す。図15において、横軸は印加した電圧(V)、縦軸は発光輝度(cd/m^2)を表している。また、輝度-電流効率特性を図16に示す。図16において、横軸は発光輝度(cd/m^2)、縦軸は電流効率(cd/A)を表している。

40

【0246】

発光素子1において、 $1026 \text{ cd}/\text{m}^2$ の輝度を得るために必要な電圧は3.8Vであり、その時流れた電流は0.52mA(電流密度は $12.9 \text{ mA}/\text{cm}^2$)であった。また、この時の電流効率は $8.0 \text{ cd}/\text{A}$ であった。

【0247】

また、比較発光素子1において、 $690 \text{ cd}/\text{m}^2$ の輝度を得るために必要な電圧は3.6Vであり、その時流れた電流は0.57mA(電流密度は $14.2 \text{ mA}/\text{cm}^2$)であった。また、この時の電流効率は $4.9 \text{ cd}/\text{A}$ であった。

【0248】

50

また、比較発光素子 2 において、 910 cd/m^2 の輝度を得るために必要な電圧は 3.6 V であり、その時流れた電流は 0.51 mA (電流密度は 12.8 mA/cm^2) であった。また、この時の電流効率は 7.0 cd/A であった。

【0249】

また、比較発光素子 3 において、 920 cd/m^2 の輝度を得るために必要な電圧は 3.8 V であり、その時流れた電流は 0.46 mA (電流密度は 11.4 mA/cm^2) であった。また、この時の電流効率は 8.1 cd/A であった。

【0250】

以上から、本発明の一態様である芳香族アミン化合物を用いた発光素子は、YGA 骨格を有する化合物である YGA1BP を用いた比較発光素子 2、又は、YGA 骨格を有する化合物である YGBA1BP を用いた比較発光素子 3 と同様に、高い電流効率を示すことがわかる。

10

【0251】

次いで、発光素子 1 及び比較発光素子 1 ~ 3 の規格化輝度時間変化のグラフを図 17 に示す。なお、規格化輝度時間変化とは、定電流駆動で初期輝度を約 1000 cd/m^2 とし、輝度の変化を規格化したものである。

【0252】

図 17 より、発光素子 1 は、比較発光素子 2 及び比較発光素子 3 よりも時間経過による輝度の低下が起こりにくく、比較発光素子 1 と同様に長寿命であることがわかる。

【0253】

以上より、本発明の一態様である芳香族アミン化合物を用いて正孔輸送層を形成することにより、素子特性に優れ、且つ素子寿命の長い発光素子を形成することができることが示された。

20

【実施例 3】

【0254】

本実施例では、上記実施例 2 とは、別の構成の発光素子について、図 18 を用いて説明する。

【0255】

(発光素子 2)

まず、ガラス基板 2201 上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物をスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 2202 を形成した。なお、その膜厚は 110 nm とし、電極面積は $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ とした。

30

【0256】

次に、第 1 の電極 2202 が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 2202 が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 10^{-4} Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 2202 上に、NPB と酸化モリブデン (VI) とを共蒸着することにより、有機化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料を含む層 2203 を形成した。その膜厚は 50 nm とし、NPB と酸化モリブデン (VI) との比率は、重量比で $4:1$ (= NPB : 酸化モリブデン) となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で複数の蒸発源から同時に複数の材料の蒸着を行う蒸着法である。

40

【0257】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法を用い、複合材料を含む層 2203 上に構造式 (69) で表される N - (ピフェニル - 4 - イル) - 4',4' - (9H - カルバゾール - 9 - イル) - N - フェニル - [1,1',4',1''] - ターフェニル - 4 - アミン (略称: YGTA1BP) を 10 nm の膜厚となるように成膜し、第 1 の正孔輸送層 2204a を形成した。

【0258】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法を用い、第 1 の正孔輸送層 2204a 上に NPB を 10 nm の膜厚となるように成膜し、第 2 の正孔輸送層 2204b を形成した。

【0259】

50

さらに、9 - [4 - (N - カルバゾリル)] フェニル - 10 - フェニルアントラセン (略称 : C z P A) と 4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) - 4 ' - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) トリフェニルアミン (略称 : P C B A P A) とを共蒸着することにより、第2の正孔輸送層2204b上に30nmの膜厚の発光層2205を形成した。ここで、CzPAとPCBAPAとの重量比は、1 : 0.1 (= CzPA : PCBAPA)となるように調節した。

【0260】

その後抵抗加熱による蒸着法を用いて、発光層2205上にAlqを10nmの膜厚となるように成膜し、第1の電子輸送層2206aを形成した。

【0261】

さらに、抵抗加熱による蒸着法を用い、第1の電子輸送層2206a上にバソフェナントロリン (略称 : B P h e n) を 20nmの膜厚となるように成膜し、第2の電子輸送層2206bを形成した。

【0262】

さらに、抵抗加熱による蒸着法を用い、第2の電子輸送層2206b上に、フッ化リチウムを蒸着することにより、1nmの膜厚で電子注入層2207を形成した。

【0263】

最後に、抵抗加熱による蒸着法を用い、電子注入層2207上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように成膜することにより、第2の電極2208を形成することで、発光素子2を作製した。

【0264】

本実施例で作製した発光素子2の素子構成を表2に示す。表2では、混合比は全て重量比で表している。

【0265】

【表2】

	第1の電極 2202	複合材料を含む層2203	第1の正孔輸送層 2204a	第2の正孔輸送層 2204b	発光層 2205	第1の電子輸送層 2206a	第2の電子輸送層 2206b	電子注入層 2207	第2の電極 2208
発光素子2	ITSO 110nm	NPB:MoOx (=4:1) 30nm	YGTAIBP 10nm	NPB 20nm	CzPA:PCBAPA (=1:0.1) 30nm	Alq 10nm	Bphen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

*混合比は全て重量比

【0266】

作製した発光素子2は青色発光材料であるPCBAPA由来の発光波長が観測された。CIE色度座標は、(x , y) = (0.15 , 0.22) であった。

【0267】

発光素子2の電流密度 - 輝度特性を図19に示す。図19において、横軸は電流密度 (mA / cm²) を、縦軸は輝度 (cd / m²) を表す。また、電圧 - 輝度特性を図20に示す。図20において、横軸は印加した電圧 (V) 、縦軸は発光輝度 (cd / m²) を表している。また、輝度 - 電流効率特性を図21に示す。図21において、横軸は発光輝度 (cd / m²) 、縦軸は電流効率 (cd / A) を表している。

【0268】

発光素子2において、940cd/m²の輝度を得るために必要な電圧は4.4Vであり、その時流れた電流は0.48mA (電流密度は12.1mA/cm²) であった。また、この時の電流効率は7.8cd/Aであった。

【0269】

次いで、発光素子2の規格化輝度時間変化のグラフを図22に示す。図22より、発光素子2は、初期輝度1000cd/m²で駆動して1100時間後でも初期輝度の58%の輝度を保っており、長寿命な発光素子であることがわかった。

【0270】

以上の結果から、本発明の一態様である芳香族アミン化合物を発光素子の正孔輸送層に用

10

20

30

40

50

いることにより、素子特性に優れ、且つ素子寿命の長い発光素子を形成することができることが示された。

【実施例 4】

【0271】

本実施例では、他の実施例で用いた材料の合成例について説明する。

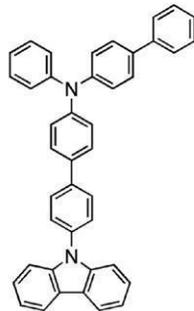
【0272】

YGBA1BPの合成例

以下では、下記構造式(132)で表される4-[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]4'-フェニルトリフェニルアミン(略称:YGBA1BP)の合成方法について説明する。

【0273】

【化45】



(132)

【0274】

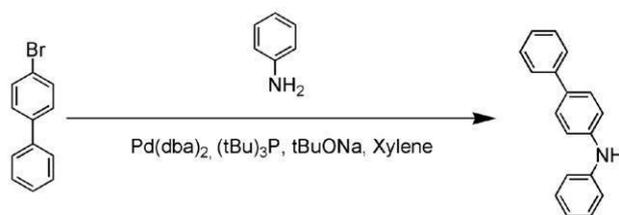
[ステップ1] 4-フェニル-ジフェニルアミンの合成

【0275】

4-フェニル-ジフェニルアミンの合成スキーム(D-1)を以下に示す。

【0276】

【化46】



(D-1)

【0277】

まず、4-ブromo-1,1'-ビフェニルを51g(220mmol)、アニリンを23g(250mmol)、ナトリウム tert-ブトキシドを50g(500mmol)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を250mg(0.4mmol)、1000mLのフラスコへ入れ、フラスコ内の雰囲気窒素置換した。この混合物へ、脱水トルエン500mLを加えた。この混合物を、減圧下で攪拌しながら脱気し、脱気後、トリ(tert-ブチル)ホスフィン(10wt%ヘキサン溶液)3.0mL(1.5mmol)を加えた。次いで、この混合物を、窒素雰囲気下にて90で4.5時間加熱攪拌し、反応させた。

10

20

30

40

50

【0278】

反応後、この反応混合物にトルエン600 mLを加え、この懸濁液をフロリジール、セライトを通してろ過した。得られたる液を水で洗浄し、硫酸マグネシウムを加えて水分を取り除いた。この懸濁液をフロリジール、セライトを通してろ過してろ液を得た。得られたる液を濃縮し、ヘキサンを加えて超音波をかけたのち、再結晶したところ、目的物である4-フェニル-ジフェニルアミンの白色粉末を収量40 g、収率73%で得た。

【0279】

[ステップ2] YGBA1BPの合成

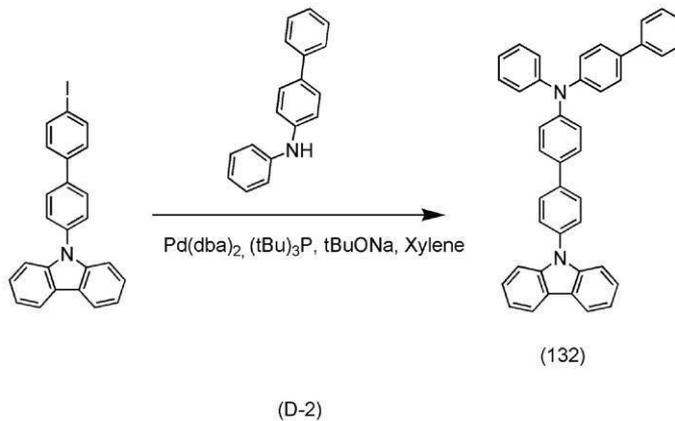
【0280】

YGBA1BPの合成スキーム(D-2)を以下に示す。

10

【0281】

【化47】



20

【0282】

まず、実施例1のステップ1で得た9-(4'-ヨードビフェニル-4-イル)-9H-カルバゾールを1.8 g (4.0 mmol)、4-フェニル-ジフェニルアミンを1.0 g (4.0 mmol)、ナトリウム tert-ブトキシドを0.8 g (8.0 mmol)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を5.0 mg (0.01 mmol)、100 mL三口フラスコへ入れ、フラスコ内の雰囲気窒素置換した。この混合物へ、脱水キシレン40 mLを加えた。この混合物を、減圧下で攪拌しながら脱気し、脱気後、トリ(tert-ブチル)ホスフィン(10 wt%ヘキサン溶液)0.06 mL (0.03 mmol)を加えた。この混合物を、窒素雰囲気下、120 で5時間加熱攪拌し、反応させた。

30

【0283】

反応後、この反応混合物にトルエン200 mLを加え、この懸濁液をフロリジール、アルミナ、セライトを通してろ過した。得られたる液を水で洗浄し、硫酸マグネシウムを加えて水分を取り除いた。この懸濁液をフロリジール、アルミナ、セライトを通してろ過してろ液を得た。得られたる液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒 トルエン:ヘキサン=1:1)による精製を行った。得られたフラクションを濃縮し、アセトンとメタノールを加えて超音波をかけた後、再結晶したところ、目的物である4-[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]4'-フェニルトリフェニルアミン(略称:YGBA1BP)の白色粉末を収量1.6 g、収率95%で得た。

40

【0284】

なお、シリカゲル薄層クロマトグラフィー(TLC)でのRf値(展開溶媒 酢酸エチル:ヘキサン=1:10)は、目的物は0.39、9-(4'-ヨードビフェニル-4-イル)-9H-カルバゾールは0.64、4-フェニル-ジフェニルアミンは0.25だった。

【0285】

50

上記ステップ2で得られた化合物を核磁気共鳴法(NMR)により測定した。以下に¹H NMRの測定データを示す。

¹H NMR(CDC1₃, 300MHz): (ppm) = 7.08 (t, J = 7.2 Hz, 1H), 7.20 - 7.62 (m, 25H), 7.78 (d, J = 8.1 Hz, 2H), 8.15 (d, J = 7.8 Hz, 2H)。

【0286】

また、¹H NMRチャートを図23に示す。測定結果から、上述の構造式(132)で表される4-[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]4'-フェニルトリフェニルアミン(略称: YGTA1BP)が得られたことがわかった。なお、図23(B)は、図23(A)における6.5 ppm ~ 8.5 ppmの範囲を拡大して表したチャート

10

【実施例5】

【0287】

本実施例では、上記実施例2及び実施例3とは、別の構成の発光素子について、図13を用いて説明する。なお、本実施例で示す発光素子において、先に述べた実施例1と同一部分又は同様な機能を有する部分には同一の符号を付し、その繰り返しの説明は省略する。素子構造に関しては実施例1と同様であり、図13を参照されたい。

【0288】

(発光素子3)

本実施例の発光素子3は、複合材料を含む層2103以外は、実施例1の発光素子1と同様に形成した。発光素子3は、第1の電極2102が形成された面が下方となるように、第1の電極2102が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、10⁻⁴ Pa程度まで減圧した後、第1の電極2102上に、YGTA1BPと酸化モリブデン(VI)とを共蒸着することにより、有機化合物と無機化合物とを複合してなる複合材料を含む層2103を形成した。その膜厚は50 nmとし、YGTA1BPと酸化モリブデン(VI)との比率は、重量比で4:1(=YGTA1BP:酸化モリブデン)となるように調節した。

20

【0289】

本実施例で作製した発光素子3の素子構成を表3に示す。表3では、混合比は全て重量比で表している。

30

【0290】

【表3】

	第1の電極 2102	複合材料を含む層 2103	正孔輸送層 2104	発光層 2105	第1の電子輸送層 2106a	第2の電子輸送層 2106b	電子注入層 2107	第2の電極 2108
発光素子3	ITO 110nm	YGTA1BP:MoO _x (=4:1) 50nm	YGTA1BP 10nm	CzPA:PCBAPA (=1:0.1) 30nm	Alq 10nm	Bphen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

*混合比は全て重量比

【0291】

作製した発光素子3は青色発光材料であるPCBAPA由来の発光波長が観測された。CIE色度座標は、(x, y) = (0.16, 0.18)であった。

40

【0292】

発光素子3の電流密度-輝度特性を図24に示す。図24において、横軸は電流密度(mA/cm²)を、縦軸は輝度(cd/m²)を表す。また、電圧-輝度特性を図25に示す。図25において、横軸は印加した電圧(V)、縦軸は発光輝度(cd/m²)を表している。また、輝度-電流効率特性を図26に示す。図26において、横軸は発光輝度(cd/m²)、縦軸は電流効率(cd/A)を表している。

【0293】

発光素子3において、830 cd/m²の輝度を得るために必要な電圧は4.2 Vであり、その時流れた電流は0.51 mA(電流密度は12.7 mA/cm²)であった。また

50

、この時の電流効率は6.5 cd/Aであった。

【0294】

以上の結果から、本発明の一態様である芳香族アミン化合物を、発光素子の複合材料を含む層及び正孔輸送層に用いた場合にも、素子特性に優れた発光素子を形成することができることが示された。

【符号の説明】

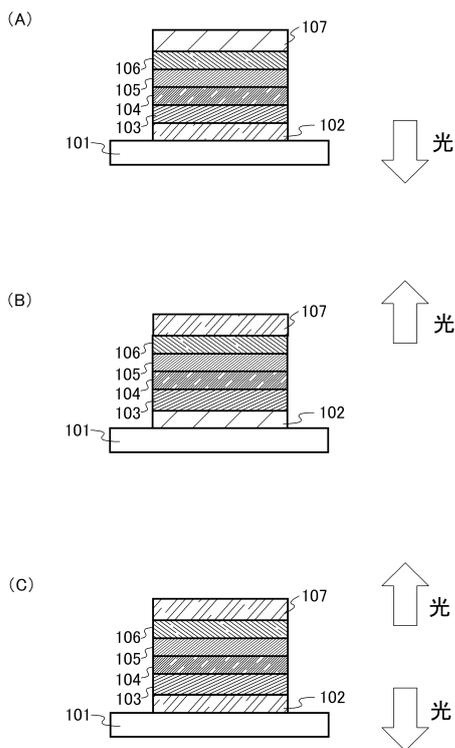
【0295】

101	基板	
102	第1の電極	
103	第1の層	10
104	第2の層	
105	第3の層	
106	第4の層	
107	第2の電極	
302	第1の電極	
303	第1の層	
304	第2の層	
305	第3の層	
306	第4の層	
307	第2の電極	20
501	第1の電極	
502	第2の電極	
511	第1の発光ユニット	
512	第2の発光ユニット	
513	電荷発生層	
601	ソース側駆動回路	
602	画素部	
603	ゲート側駆動回路	
604	封止基板	
605	シール材	30
607	空間	
608	配線	
609	FPC(フレキシブルプリントサーキット)	
610	素子基板	
611	スイッチング用TFT	
612	電流制御用TFT	
613	第1の電極	
614	絶縁物	
616	発光物質を含む層	
617	第2の電極	40
618	発光素子	
623	nチャンネル型TFT	
624	pチャンネル型TFT	
901	筐体	
902	液晶層	
903	バックライト	
904	筐体	
905	ドライバIC	
906	端子	
951	基板	50

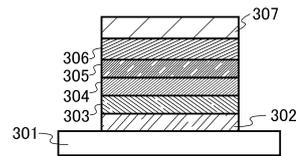
9 5 2	電極	
9 5 3	絶縁層	
9 5 3	絶縁層	
9 5 4	隔壁層	
9 5 5	発光物質を含む層	
9 5 6	電極	
2 0 0 1	筐体	
2 0 0 2	光源	
2 1 0 1	ガラス基板	
2 1 0 2	第 1 の電極	10
2 1 0 3	複合材料を含む層	
2 1 0 4	正孔輸送層	
2 1 0 5	発光層	
2 1 0 6 a	第 1 の電子輸送層	
2 1 0 6 b	第 2 の電子輸送層	
2 1 0 7	電子注入層	
2 1 0 8	第 2 の電極	
2 2 0 1	ガラス基板	
2 2 0 2	第 1 の電極	
2 2 0 3	複合材料を含む層	20
2 2 0 4 a	第 1 の正孔輸送層	
2 2 0 4 b	第 2 の正孔輸送層	
2 2 0 5	発光層	
2 2 0 6 a	第 1 の電子輸送層	
2 2 0 6 b	第 2 の電子輸送層	
2 2 0 7	電子注入層	
2 2 0 8	第 2 の電極	
3 0 0 1	照明装置	
3 0 0 2	テレビ装置	
9 1 0 1	筐体	30
9 1 0 2	支持台	
9 1 0 3	表示部	
9 1 0 4	スピーカ部	
9 1 0 5	ビデオ入力端子	
9 2 0 1	本体	
9 2 0 2	筐体	
9 2 0 3	表示部	
9 2 0 4	キーボード	
9 2 0 5	外部接続ポート	
9 2 0 6	ポインティングデバイス	40
9 4 0 1	本体	
9 4 0 2	筐体	
9 4 0 3	表示部	
9 4 0 4	音声入力部	
9 4 0 5	音声出力部	
9 4 0 6	操作キー	
9 4 0 7	外部接続ポート	
9 4 0 8	アンテナ	
9 5 0 1	本体	
9 5 0 2	表示部	50

- 9 5 0 3 筐体
- 9 5 0 4 外部接続ポート
- 9 5 0 5 リモコン受信部
- 9 5 0 6 受像部
- 9 5 0 7 バッテリー
- 9 5 0 8 音声入力部
- 9 5 0 9 操作キー
- 9 5 1 0 接眼部

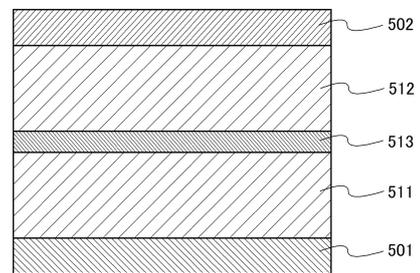
【 図 2 】



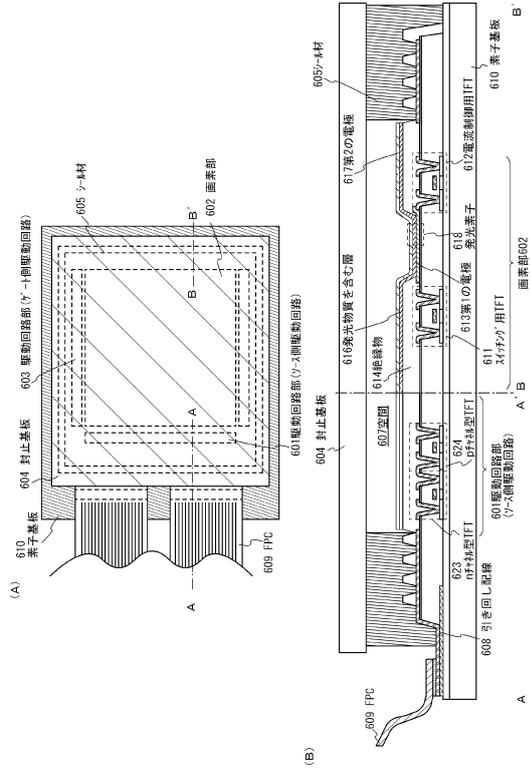
【 図 3 】



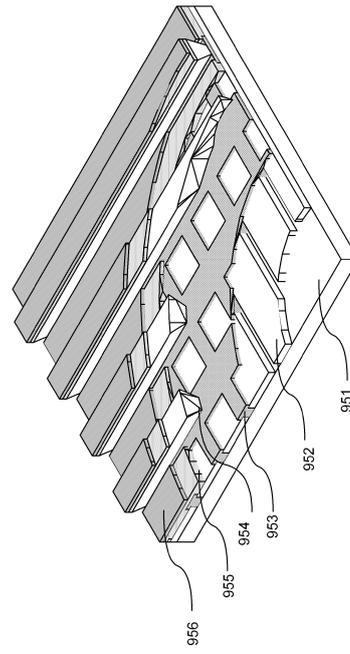
【 図 4 】



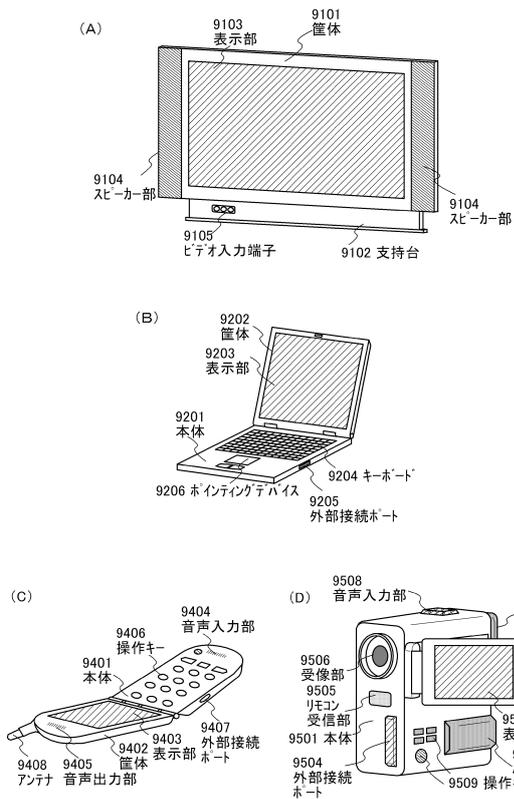
【図5】



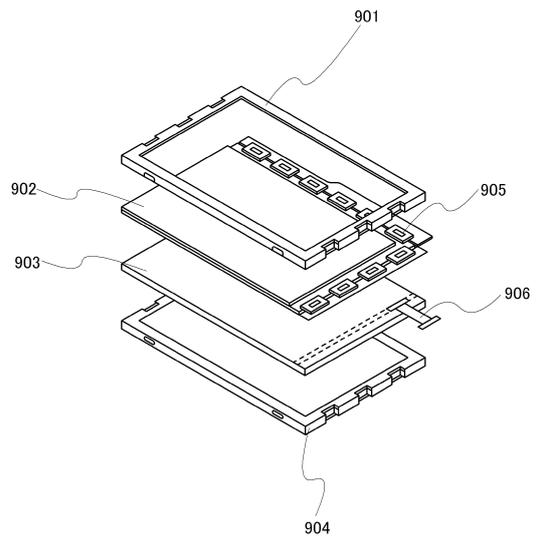
【図6】



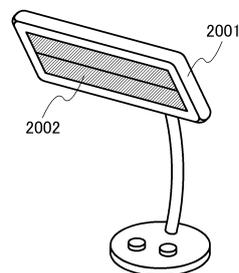
【図7】



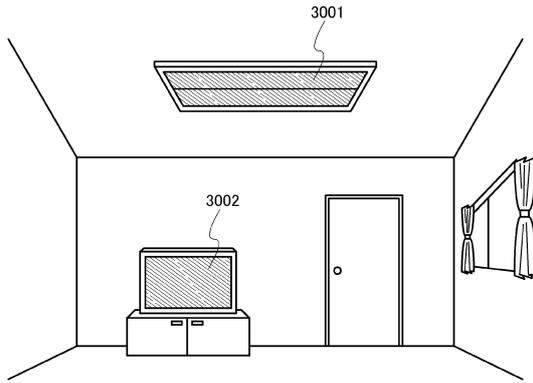
【図8】



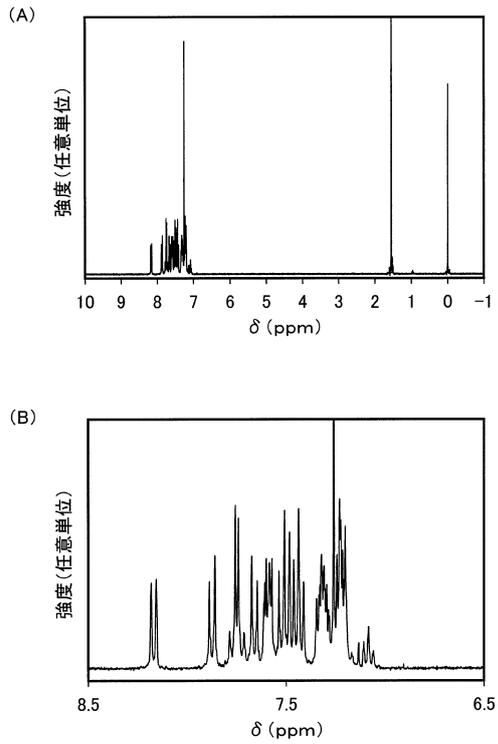
【図9】



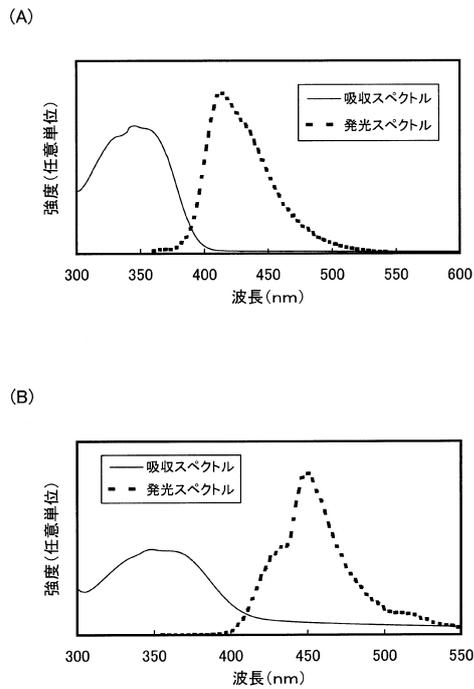
【図10】



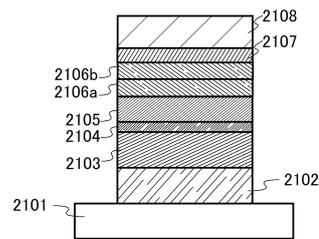
【図11】



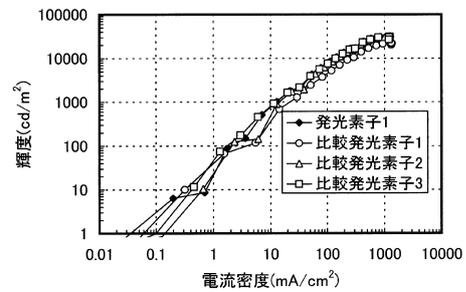
【図12】



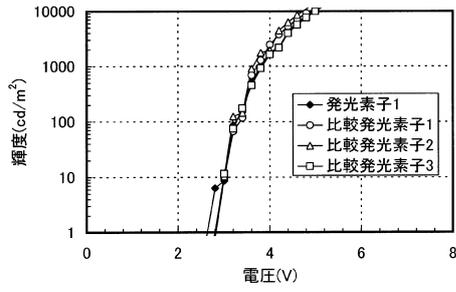
【図13】



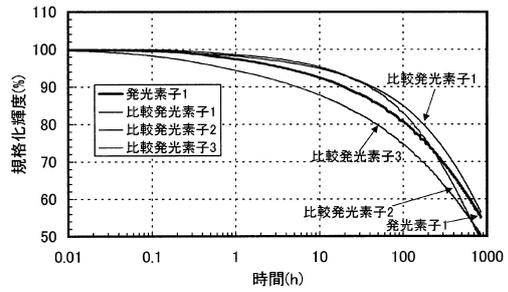
【図14】



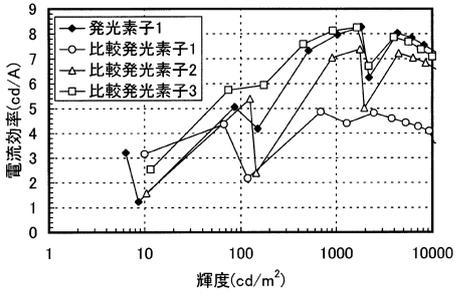
【図15】



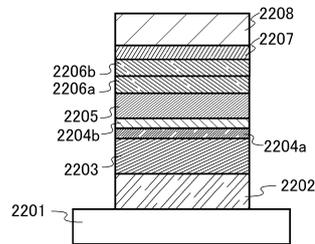
【図17】



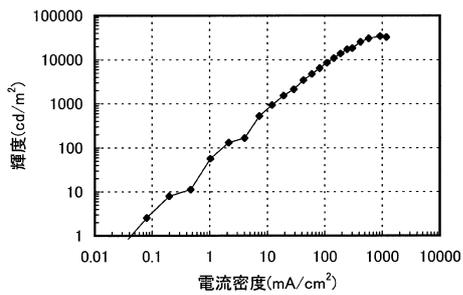
【図16】



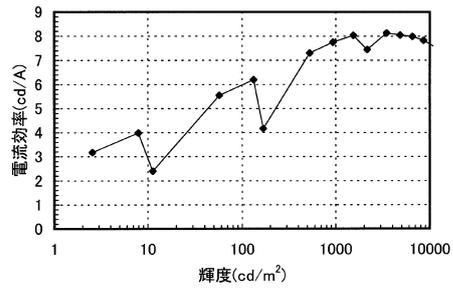
【図18】



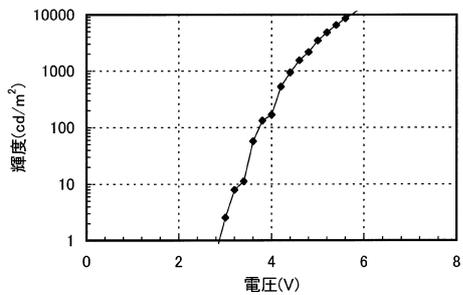
【図19】



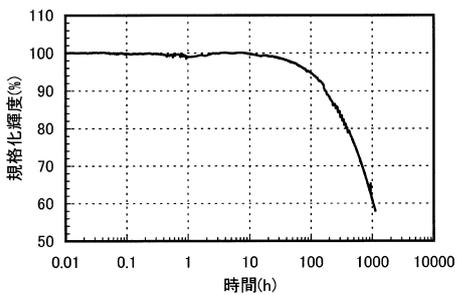
【図21】



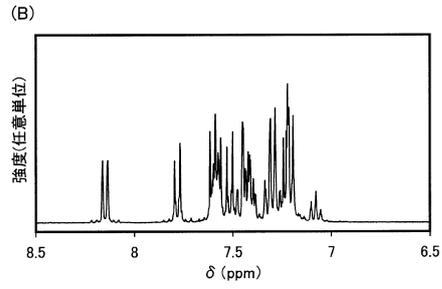
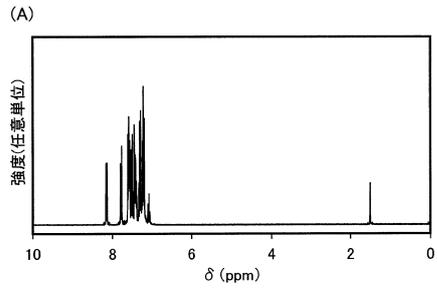
【図20】



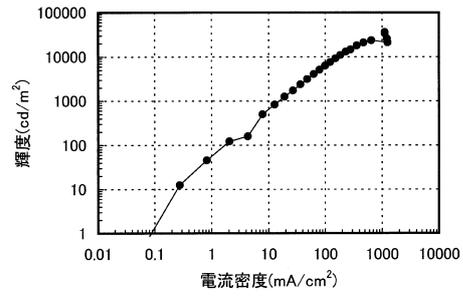
【図22】



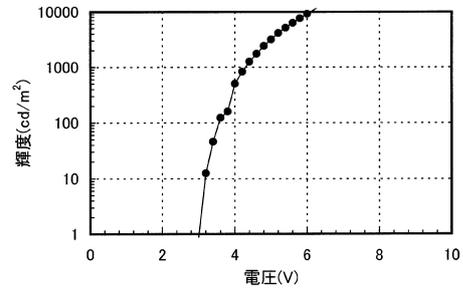
【 図 2 3 】



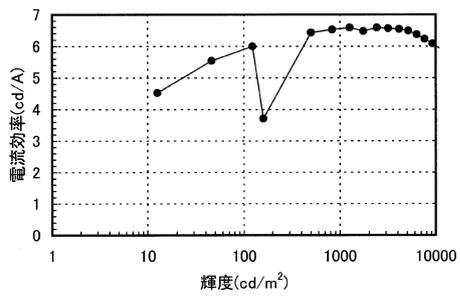
【 図 2 4 】



【 図 2 5 】

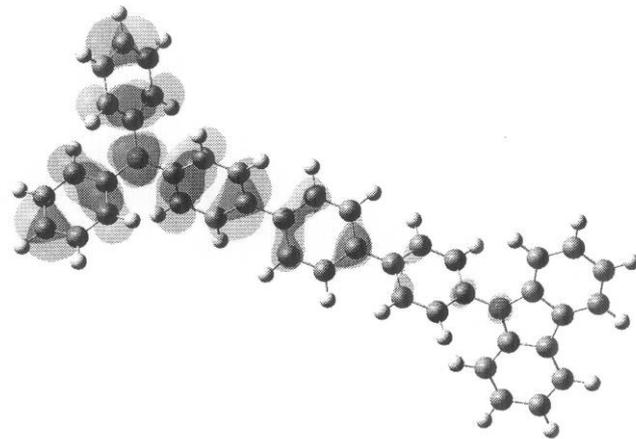


【 図 2 6 】

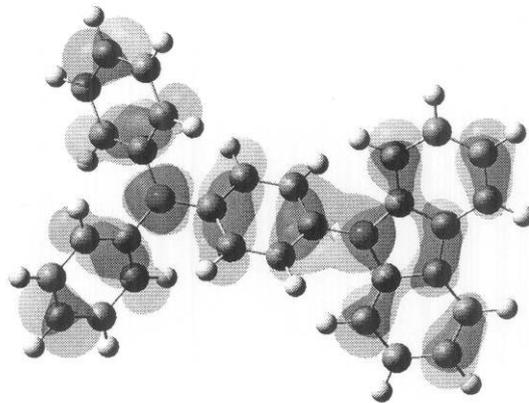


【 図 1 】

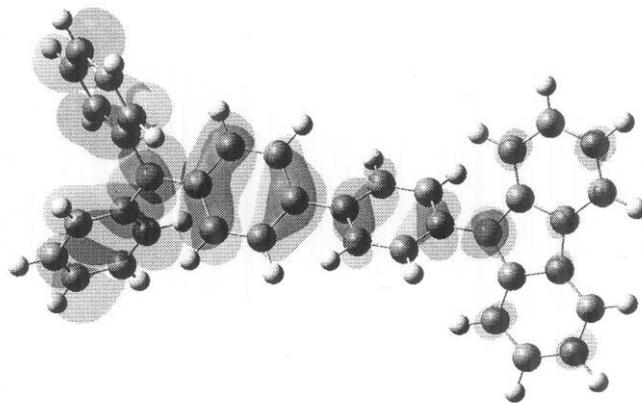
(A)



(B)



(C)



フロントページの続き

(72)発明者 瀬尾 哲史

神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

審査官 高橋 直子

(56)参考文献 特開2009-076817(JP,A)

特表2006-518545(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 209/86

C09K 11/06

H01L 51/50

CAplus/REGISTRY(STN)