

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5241183号
(P5241183)

(45) 発行日 平成25年7月17日(2013.7.17)

(24) 登録日 平成25年4月12日(2013.4.12)

(51) Int.Cl. F I
C O 7 D 241/42 (2006.01) C O 7 D 241/42
H O 1 L 51/50 (2006.01) H O 5 B 33/22 B
C O 9 K 11/06 (2006.01) H O 5 B 33/14 B
 C O 9 K 11/06 6 5 0

請求項の数 10 (全 56 頁)

(21) 出願番号	特願2007-238831 (P2007-238831)	(73) 特許権者	000153878
(22) 出願日	平成19年9月14日(2007.9.14)		株式会社半導体エネルギー研究所
(65) 公開番号	特開2008-106042 (P2008-106042A)		神奈川県厚木市長谷398番地
(43) 公開日	平成20年5月8日(2008.5.8)	(74) 代理人	100108741
審査請求日	平成22年8月30日(2010.8.30)		弁理士 渡邊 順之
(31) 優先権主張番号	特願2006-268356 (P2006-268356)	(72) 発明者	江川 昌和
(32) 優先日	平成18年9月29日(2006.9.29)		神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		半導体エネルギー研究所内
		(72) 発明者	徳田 篤史
			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
		(72) 発明者	下垣 智子
			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

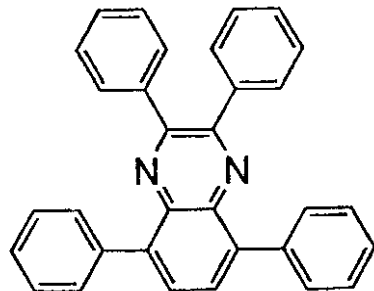
(54) 【発明の名称】キノキサリン誘導体、発光素子、発光装置及び電子機器

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

構造式(12)で表されるキノキサリン誘導体。

【化1】

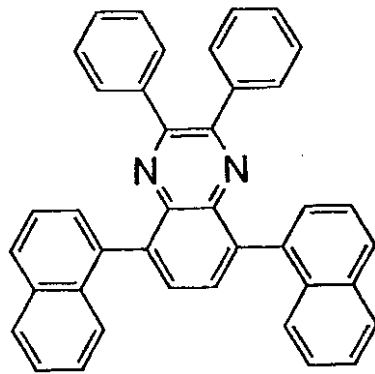


(12)

【請求項2】

構造式(24)で表されるキノキサリン誘導体。

【化 2】



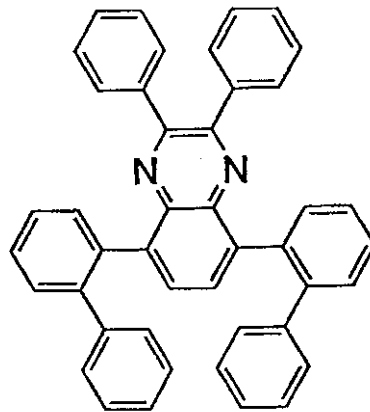
(24)

10

【請求項 3】

構造式(27)で表されるキノキサリン誘導体。

【化 3】



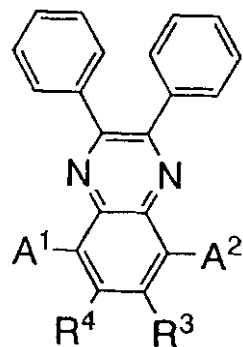
(27)

20

【請求項 4】

一般式(G3)で表されるキノキサリン誘導体。

【化 4】



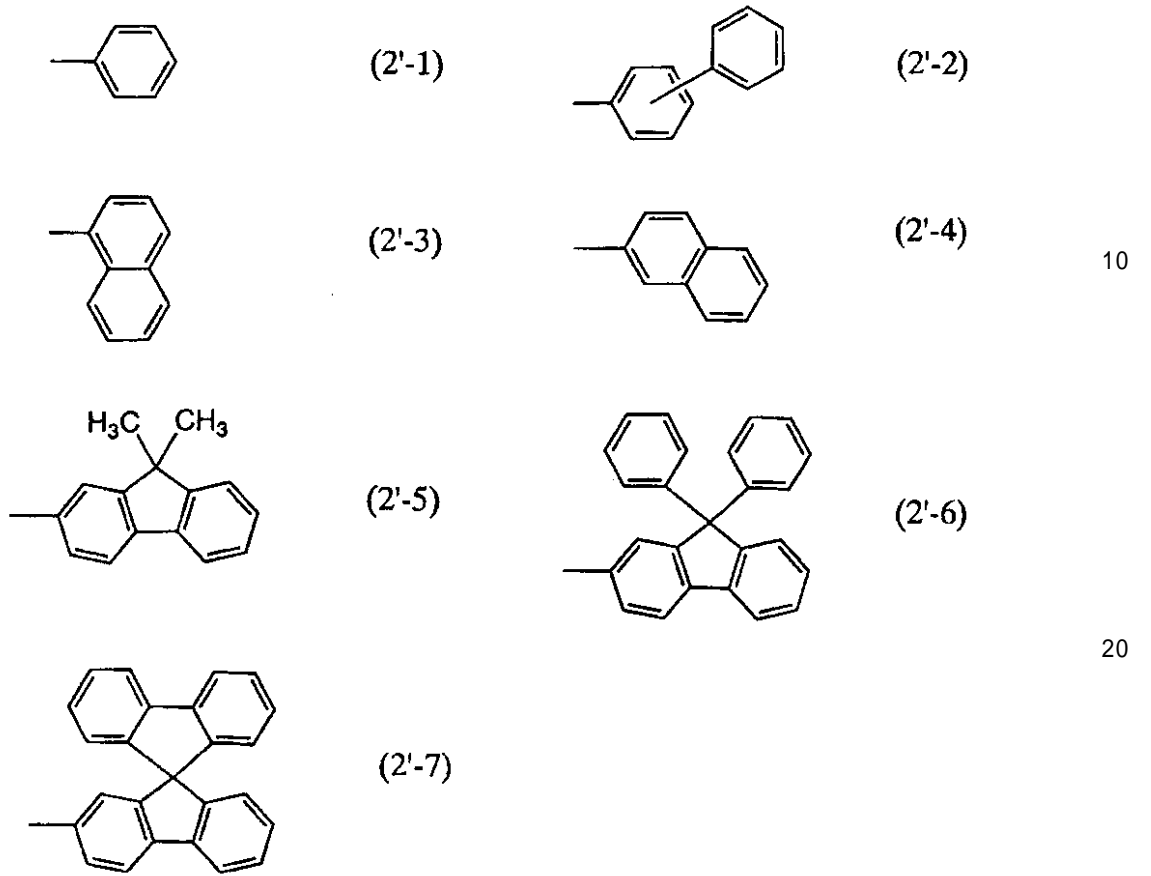
(G3)

30

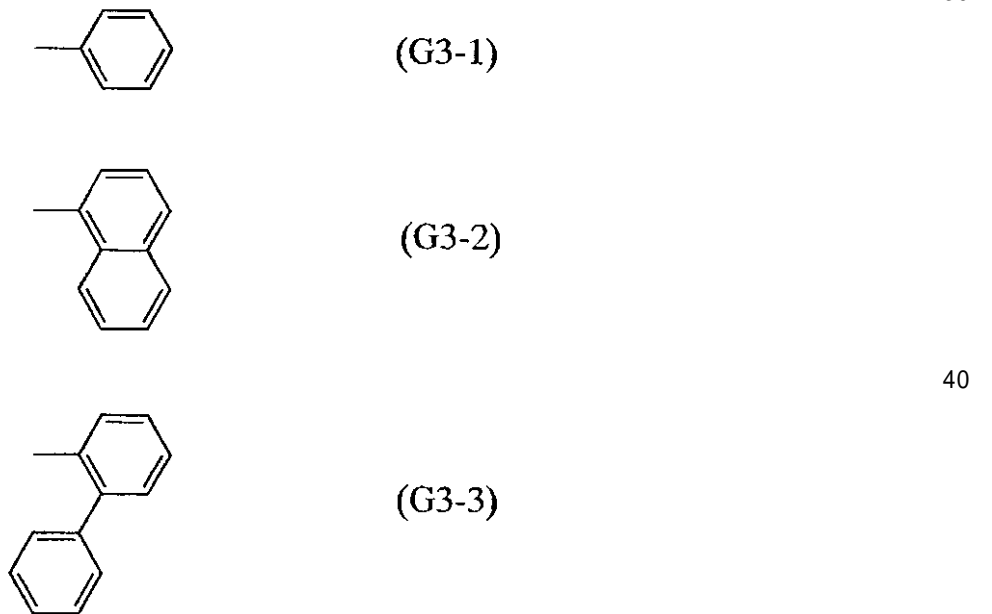
40

(式中、 R^3 及び R^4 はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基又は下記構造式(2'-1)~(2'-7)に示される構造のいずれかを表し、 A^1 及び A^2 はそれぞれ下記構造式(G3-1)~(G3-3)で示される構造のいずれかを表す。)

【化5】



【化6】



【請求項5】

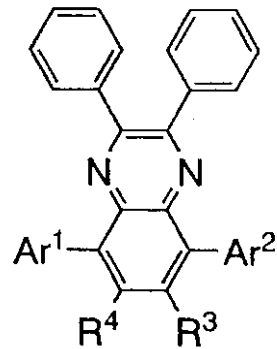
請求項4において、
前記一般式(G3)中のA¹及びA²が同じ構造であることを特徴とするキノキサリン誘 50

導体。

【請求項6】

一般式(G2)で表されるキノキサリン誘導体。

【化7】



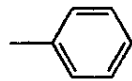
(G2)

10

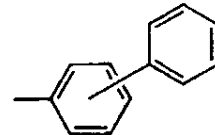
(式中、 R^3 及び R^4 はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基又は下記構造式(2'-1)~(2'-7)に示される構造のいずれかを表し、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ下記構造式(2'-1)~(2'-7)に示される構造のいずれかを表す。)

20

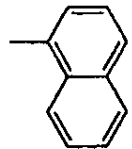
【化8】



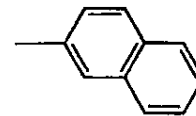
(2'-1)



(2'-2)

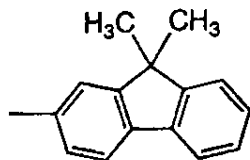


(2'-3)

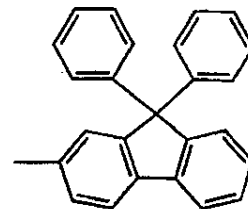


(2'-4)

30

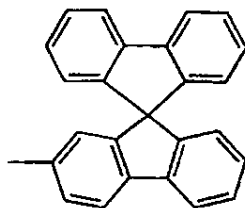


(2'-5)



(2'-6)

40



(2'-7)

【請求項7】

一对の電極間に、請求項1ないし請求項6のいずれか1項に記載のキノキサリン誘導体を有することを特徴とする発光素子。

【請求項8】

50

一对の電極間に、請求項 1 ないし請求項 6 のいずれか 1 項に記載のキノキサリン誘導体が電子輸送材料として用いられていることを特徴とする発光素子。

【請求項 9】

請求項 7 又は請求項 8 に記載の発光素子が複数配置されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 10】

請求項 9 に記載の発光装置を有することを特徴とする電子機器。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、キノキサリン誘導体、前記キノキサリン誘導体を用いた発光素子、前記発光素子を有する発光装置及び電子機器に関する。

より詳しくは、優れた電子輸送性を有するキノキサリン誘導体、前記キノキサリン誘導体を用いた発光素子、前記発光素子を有する発光装置及び電子機器に関する。

【背景技術】

【0002】

有機化合物は無機化合物に比べて材料系が多様であり、分子設計により様々な機能を有する材料を合成できる可能性を有している。そのため、近年、機能性有機材料を用いたエレクトロニクス（特にフォトエレクトロニクス）に注目が集まっている。例えば、有機化合物を機能性有機材料として用いたエレクトロニクスデバイスの例として、太陽電池や発光素子、有機トランジスタ等が挙げられる。これらは有機化合物の電気物性および光物性を利用したデバイスであり、特に発光素子はめざましい発展を見せている。

【0003】

このような発光素子は薄型軽量、高速応答性などの特徴を有し、次世代のフラットパネルディスプレイへの応用が期待されている。また、発光素子をマトリクス状に配置した発光装置は、従来の液晶表示装置と比較して、視野角が広く視認性が優れる点に特に優位性があると言われている。

【0004】

ところで、発光素子是一对の電極（陽極と陰極）間に発光物質を含む層が挟まれた構造を有する。このような発光素子では、両電極間に電圧を印加した際に陽極から注入される正孔（ホール）と陰極から注入される電子とが発光物質を含む層において再結合することにより発光物質の励起子が形成され、その励起子が基底状態に戻る際に発光すると言われている。

【0005】

このような発光素子の特性を向上させるに際し、材料に起因した問題が多く、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。

なかでも、有機半導体材料は一般に潜在的に正孔輸送性の材料が多く、正孔輸送性材料における正孔移動度の方が電子輸送性材料の電子移動度に比べて数桁大きいのが現状である。したがって、電子輸送性の優れた電子輸送性材料が望まれている。

【0006】

このような電子輸送性に優れた材料としてキノキサリン誘導体を用いた発光素子が報告されている（特許文献 1）。しかしながら、その発光素子の駆動電圧は高く、十分なものとは言えない。そのため、発光素子における電子輸送性を向上すべく、様々な研究がなされている（例えば、特許文献 2）。

【特許文献 1】特開平 9 - 13025 号公報

【特許文献 2】特開 2002 - 100479 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

そこで上記問題を鑑み、本発明では優れた電子輸送性を有するキノキサリン誘導体を提

10

20

30

40

50

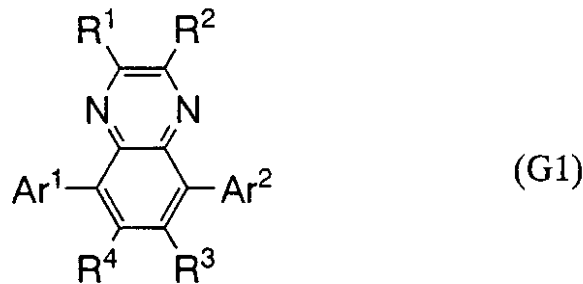
供することを課題とする。また、前記キノキサリン誘導体を用いることにより、駆動電圧が低い発光素子を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明の一は、一般式(G1)で表されるキノキサリン誘導体である。

【化1】



10

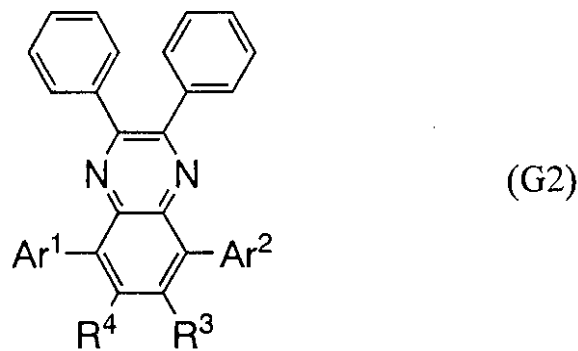
一般式(G1)において、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基または炭素数6~25のアリール基のいずれかを表し、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ炭素数6~25のアリール基のいずれかを表す。

20

【0009】

本発明の一は、一般式(G2)で表されるキノキサリン誘導体である。

【化2】



30

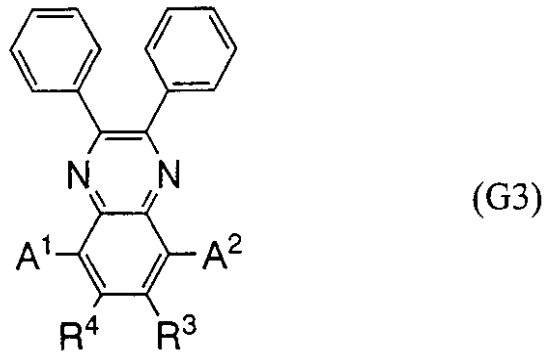
一般式(G2)において、 R^3 及び R^4 はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基または炭素数6~25のアリール基のいずれかを表し、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ炭素数6~25のアリール基のいずれかを表す。

【0010】

本発明の一は、一般式(G3)で表されるキノキサリン誘導体である。

40

【化3】



10

一般式 (G 3) において、 R^3 及び R^4 はそれぞれ水素、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基または炭素数 6 ~ 25 のアリール基のいずれかを表し、 A^1 及び A^2 はそれぞれ下記構造式 (G 3 - 1) ~ (G 3 - 3) で示される構造のいずれかを表す。

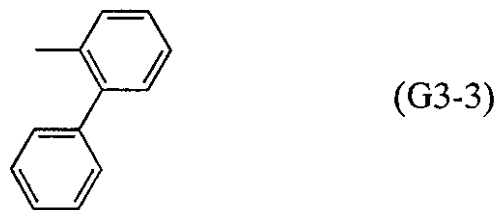
【化4】



20



30



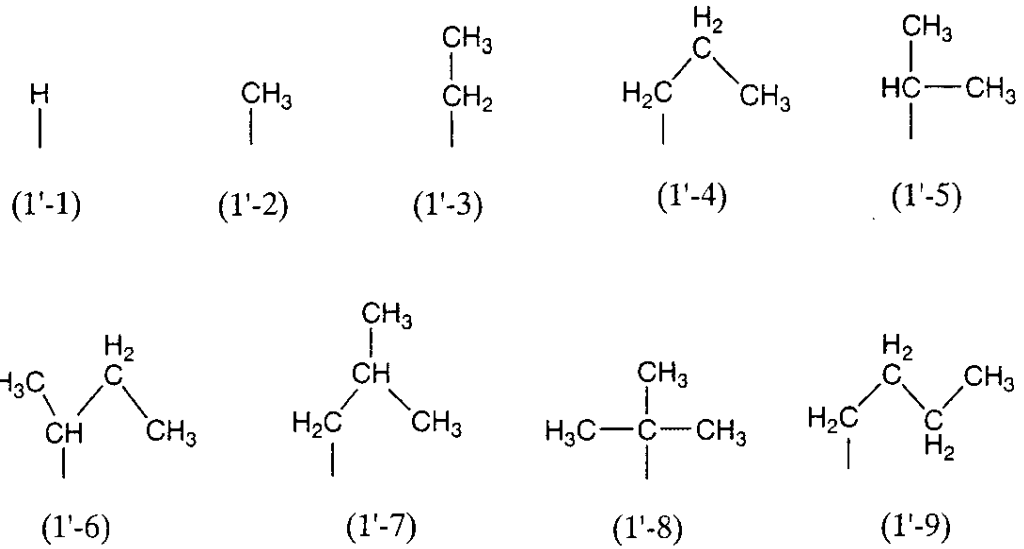
【0011】

本発明の一は、上記一般式 (G 3) 中の A^1 及び A^2 が同じ構造であることを特徴とするキノキサリン誘導体である。

40

上記構成において、水素または炭素数 1 ~ 4 のアルキル基のいずれかを表す置換基には、例えば構造式 (1' - 1) ~ (1' - 9) を用いることができる。

【化5】



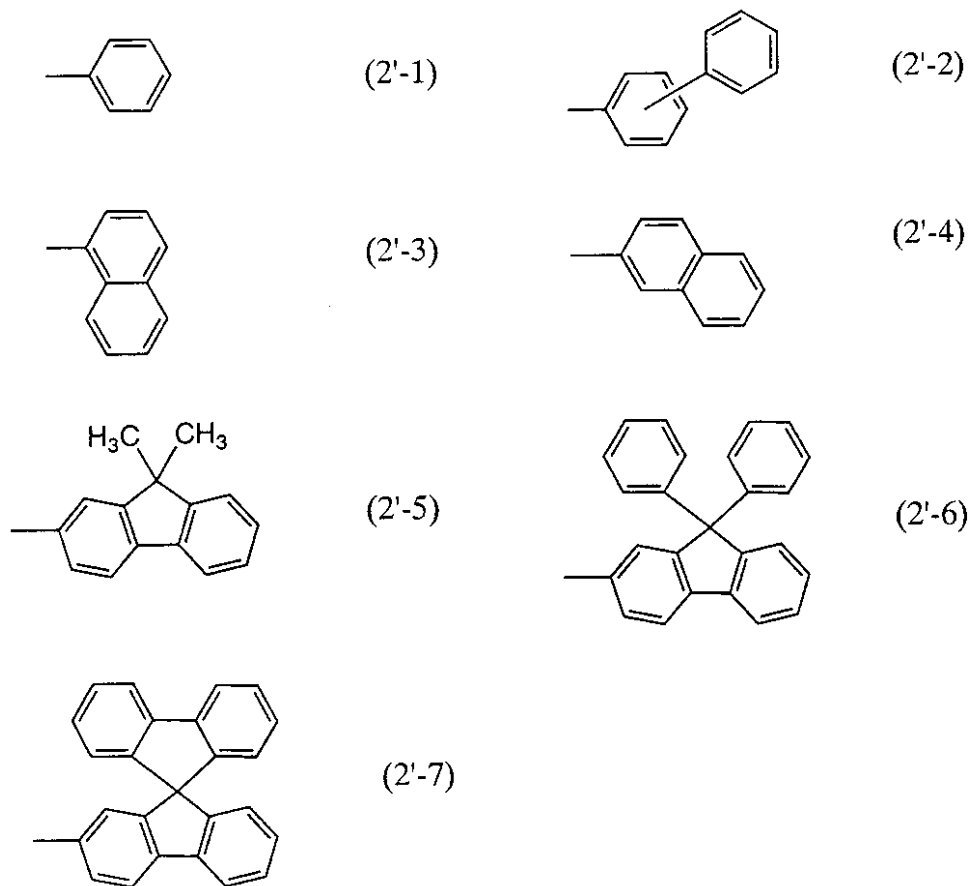
10

【0012】

また、上記構成において炭素数6～25のアリール基のいずれかを表す置換基には、例えば構造式(2'-1)～(2'-7)を用いることができる。

20

【化6】



30

40

【0013】

本発明の一は、一对の電極間に上述したキノキサリン誘導体を有する発光素子である。

さらに、本発明の一は、一对の電極間に上述したキノキサリン誘導体が電子輸送材料として用いられていることを特徴とする発光素子である。

50

【 0 0 1 4 】

また、本発明の一は、一对の電極間に発光層を有し、発光層は上述したキノキサリン誘導体を有することを特徴とする発光素子である。

さらに、本発明の一は、一对の電極間に発光層を有し、発光層は上述したキノキサリン誘導体と蛍光を発光する物質とを有することを特徴とする発光素子である。なお、発光層は上述したキノキサリン誘導体と燐光を発光する物質とを有することを特徴としていても良い。

【 0 0 1 5 】

また、本発明の一は上述した発光素子を有する発光装置及び電子機器である。

【 発明の効果 】

10

【 0 0 1 6 】

本発明により、電子輸送性に優れたキノキサリン誘導体を得ることができる。また、本発明のキノキサリン誘導体を発光素子に用いることで、駆動電圧の低い素子を提供することが可能となる。

さらに、本発明のキノキサリン誘導体を有する発光素子を用いることで、消費電力が低い発光装置及びそれを具備した電子機器を提供することができる。

【 発明を実施するための最良の形態 】

【 0 0 1 7 】

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。

20

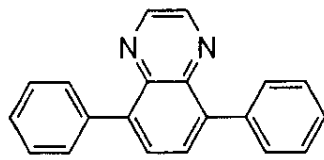
【 0 0 1 8 】

(実施の形態 1)

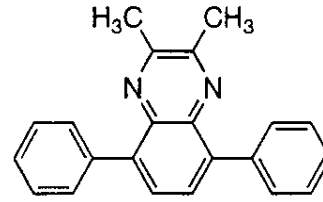
本発明の一態様は下記構造式(1)～(83)で表されるキノキサリン誘導体である。ただし、本発明のキノキサリン誘導体は以下の構造式で表されるものに限定されるものではない。

【 0 0 1 9 】

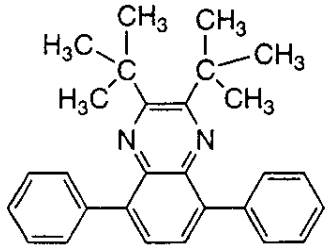
【化 7】



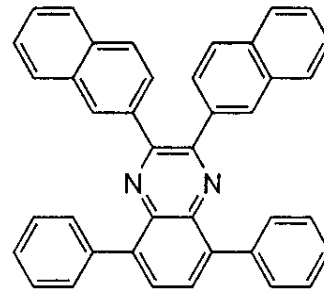
(1)



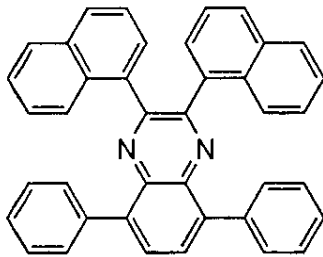
(2)



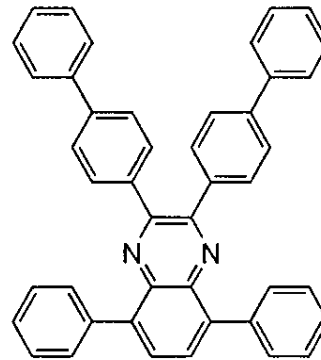
(3)



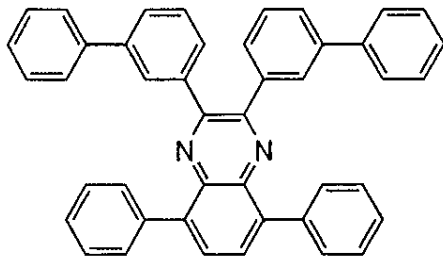
(4)



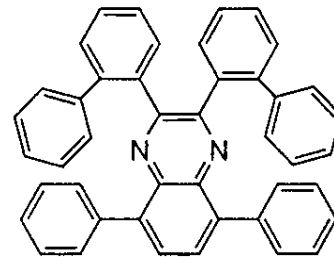
(5)



(6)



(7)



(8)

10

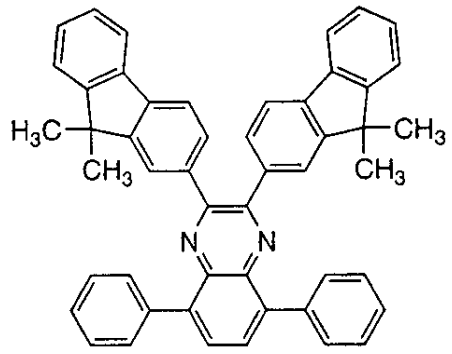
20

30

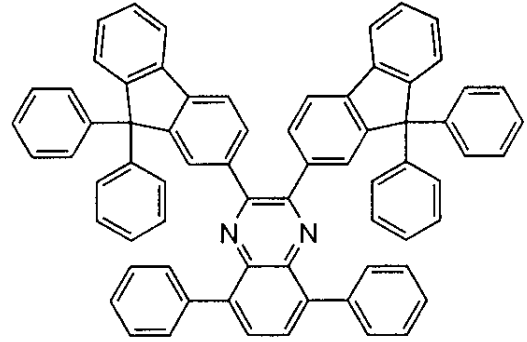
40

【 0 0 2 0 】

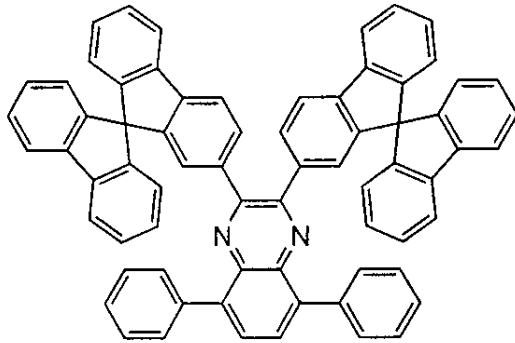
【化 8】



(9)



(10)



(11)

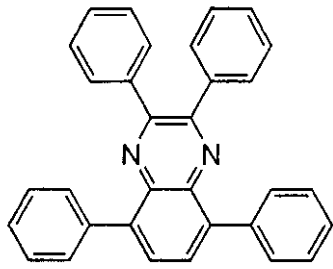
【 0 0 2 1 】

10

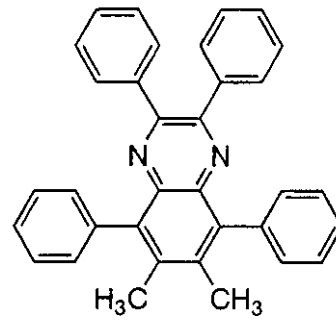
20

30

【化9】

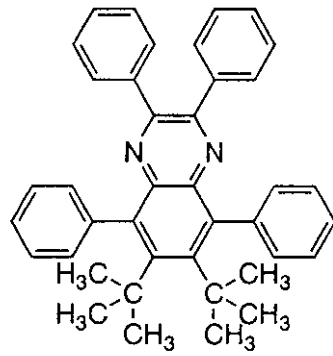


(12)

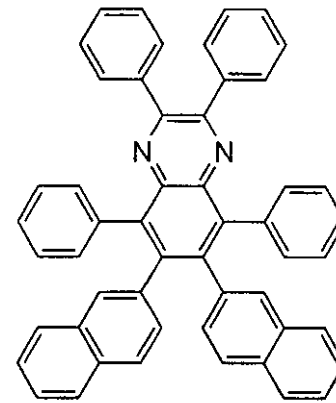


(13)

10

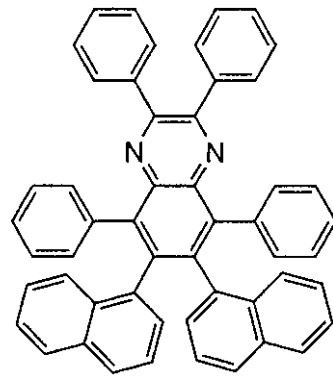


(14)

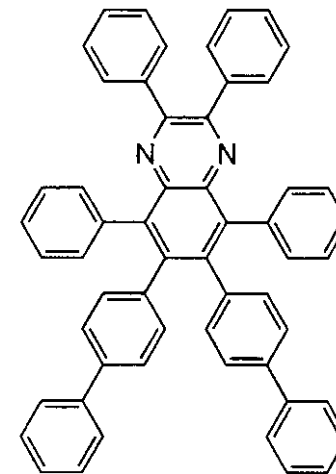


(15)

20



(16)



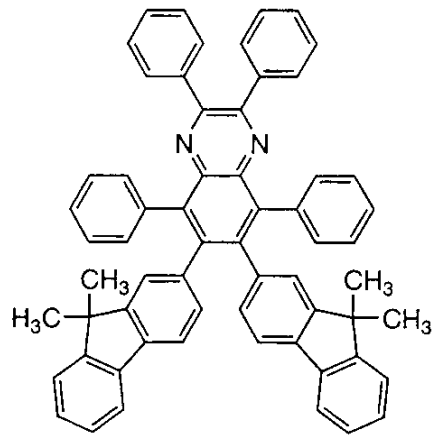
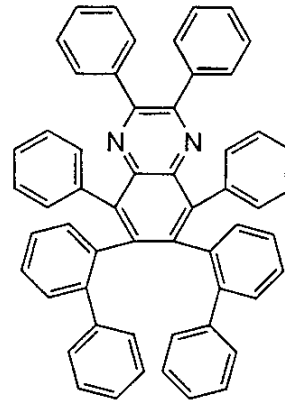
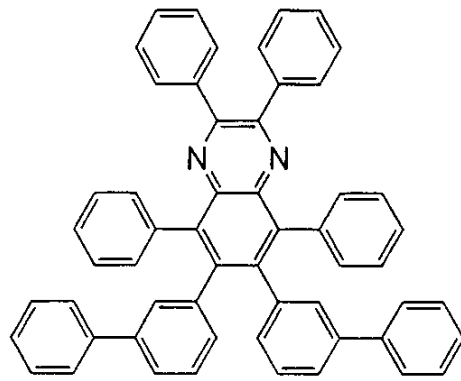
(17)

30

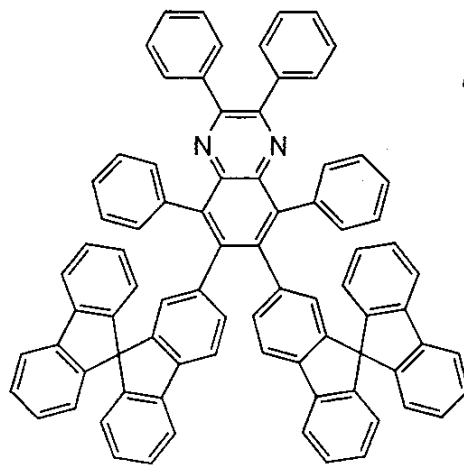
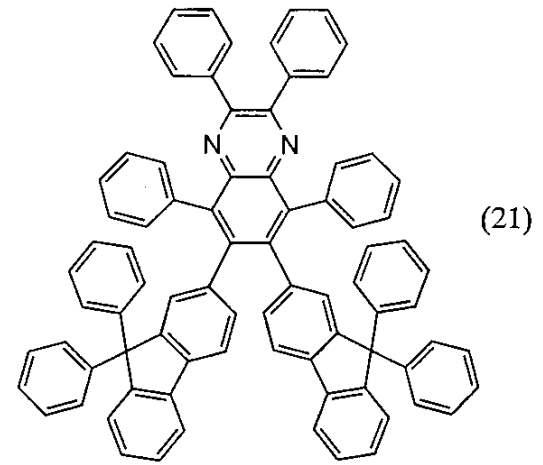
40

【0022】

【化 1 0】

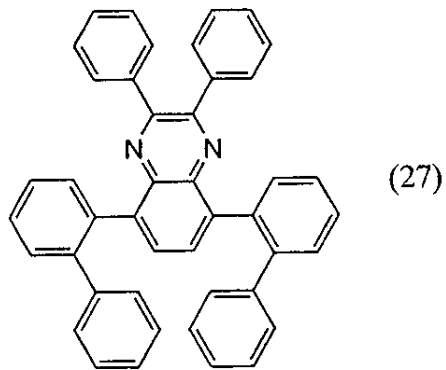
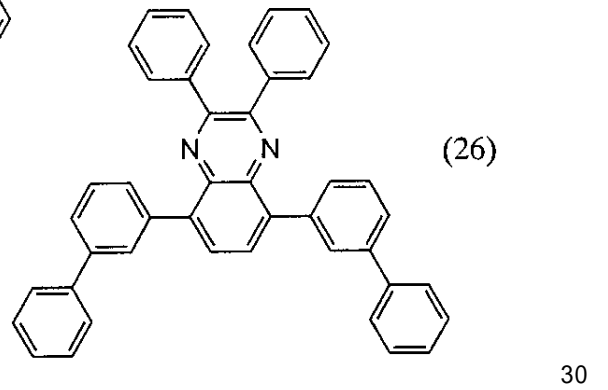
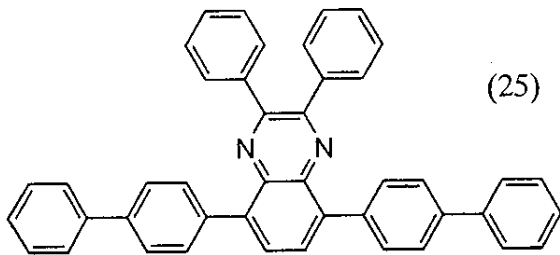
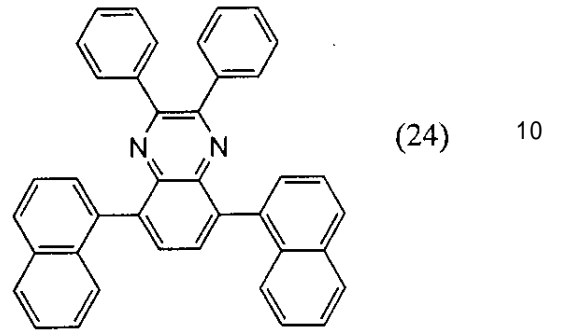
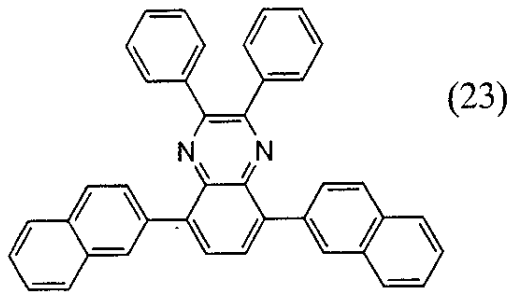


(20)



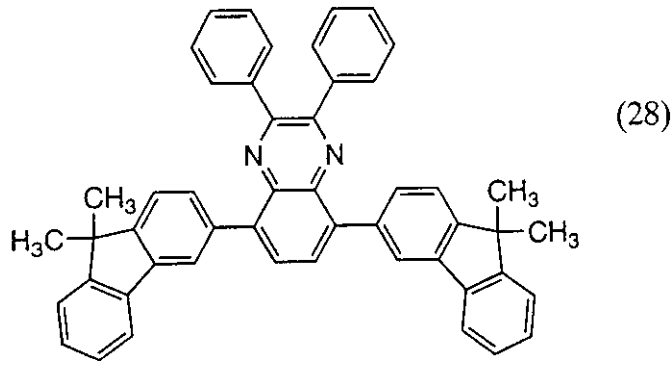
【 0 0 2 3】

【化 1 1】

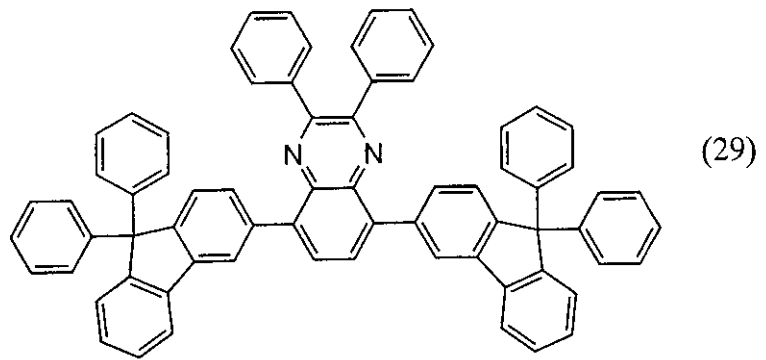


【 0 0 2 4 】

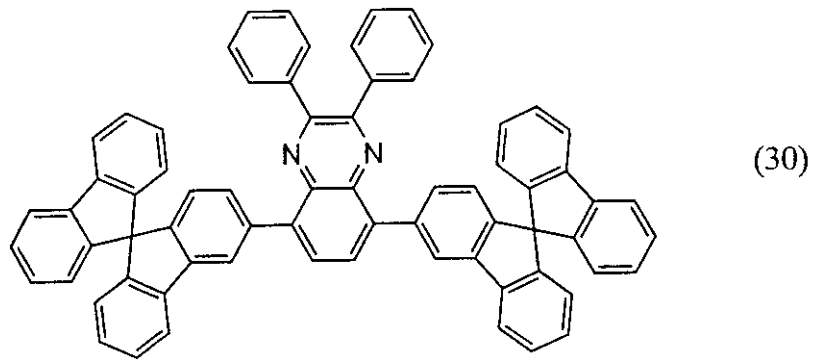
【化 1 2】



10



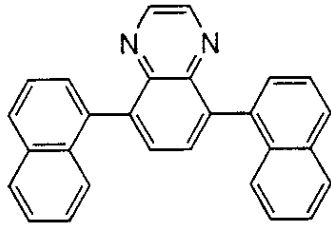
20



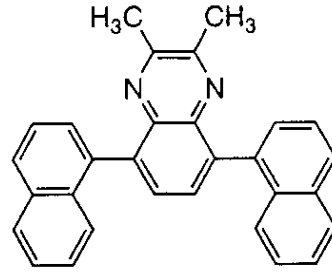
30

【 0 0 2 5 】

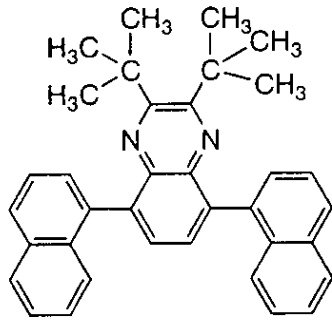
【化 1 3】



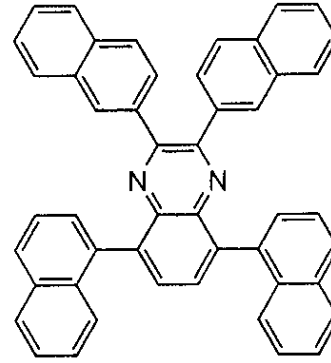
(31)



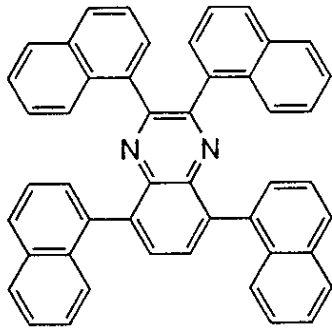
(32)



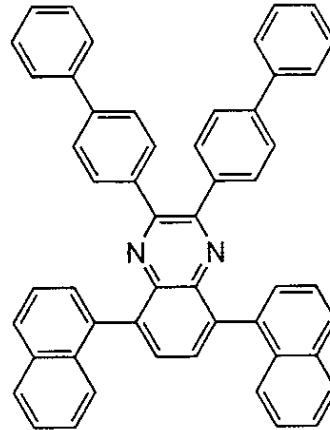
(33)



(34)



(35)



(36)

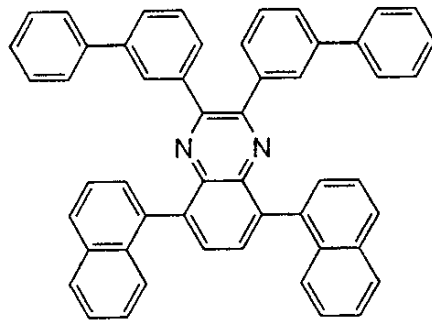
10

20

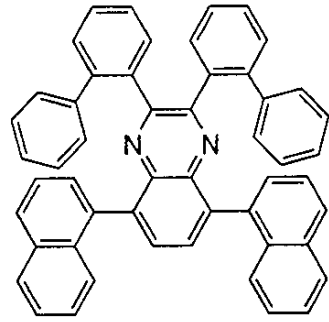
30

【 0 0 2 6 】

【化 1 4】

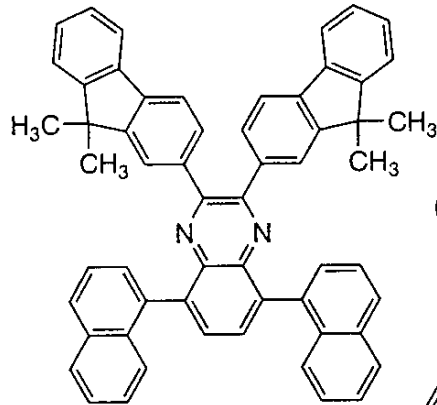


(37)



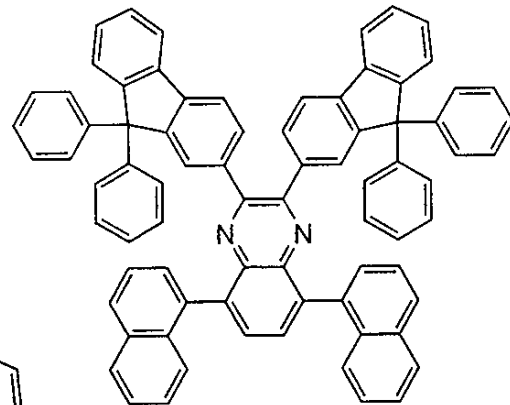
(38)

10



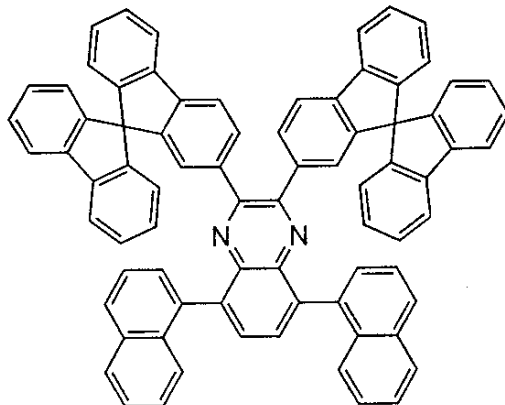
(39)

20



(40)

30

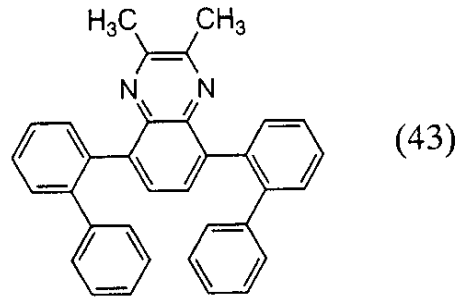
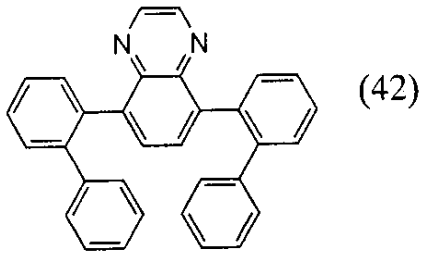


(41)

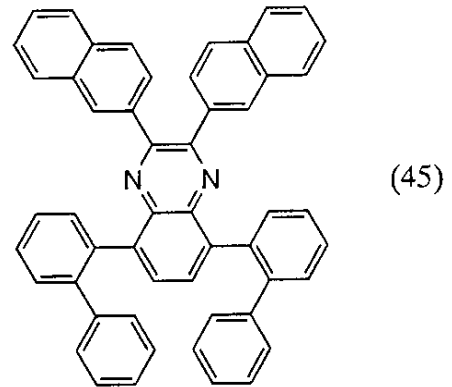
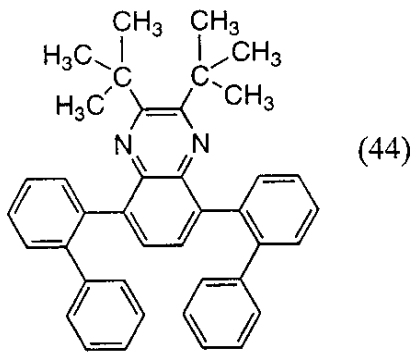
40

【 0 0 2 7】

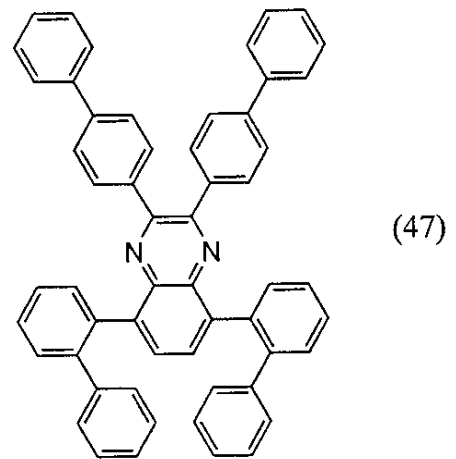
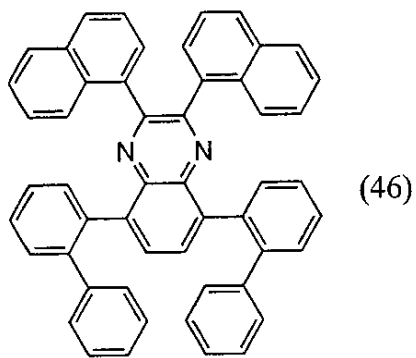
【化 1 5】



10



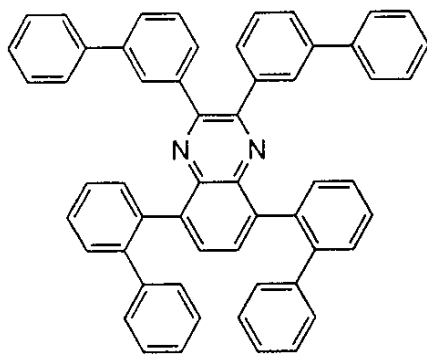
20



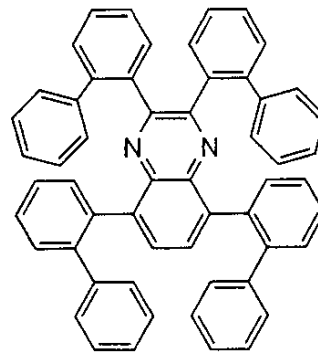
30

【 0 0 2 8 】

【化 1 6】

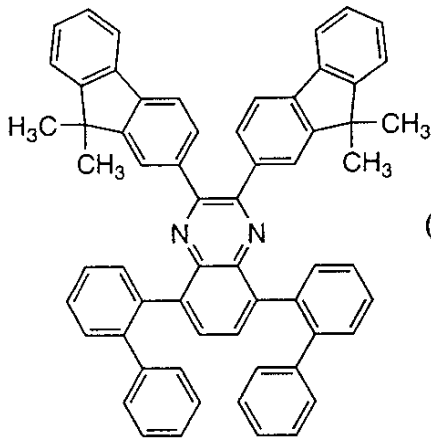


(48)



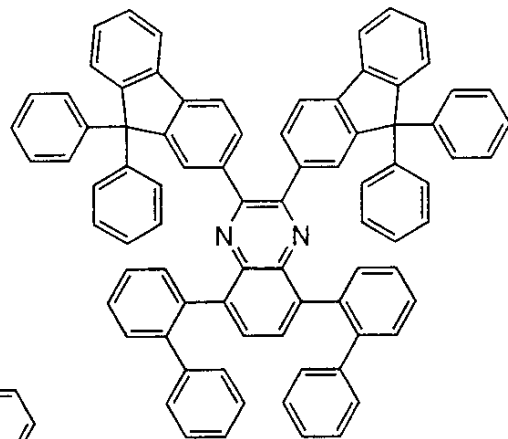
(49)

10



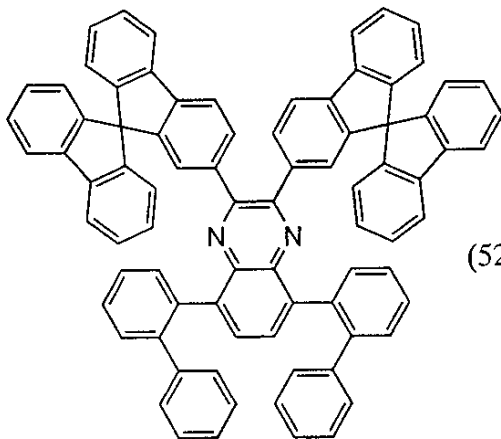
(50)

20



(51)

30

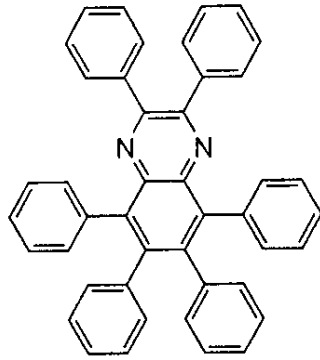


(52)

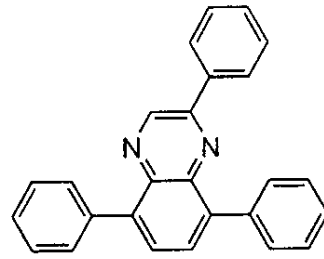
40

【 0 0 2 9】

【化 17】

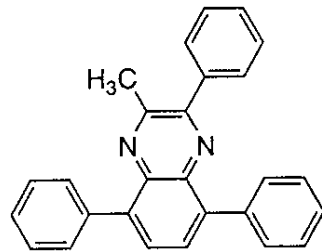


(53)

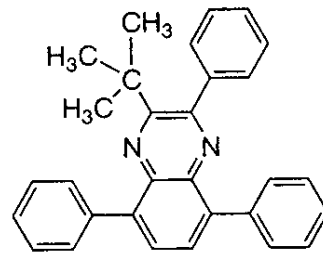


(54)

10

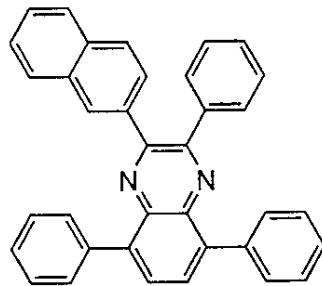


(55)

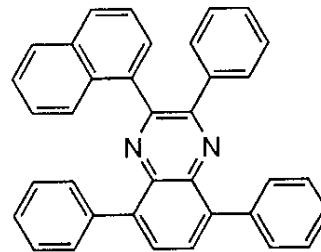


(56)

20

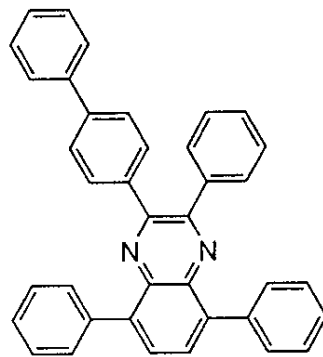


(57)

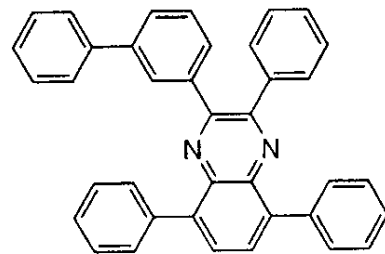


(58)

30



(59)

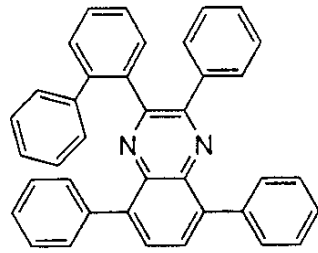


(60)

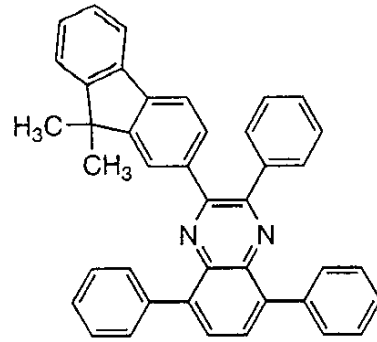
40

【 0 0 3 0 】

【化 1 8】

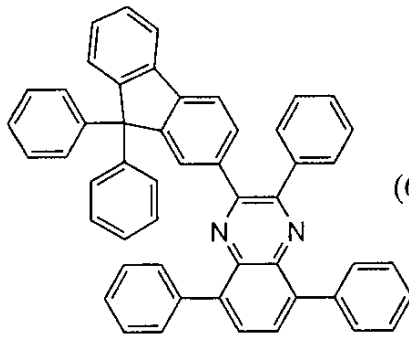


(61)

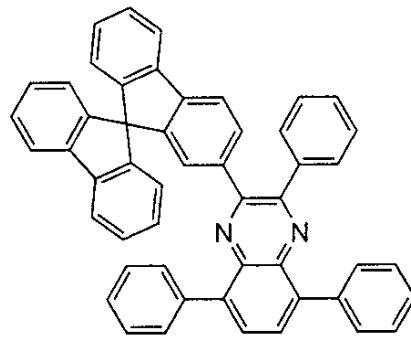


(62)

10



(63)

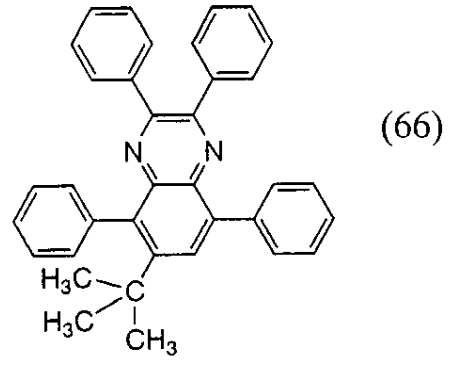
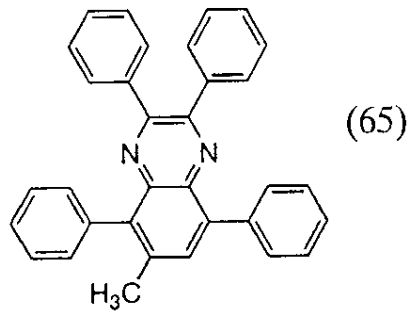


(64)

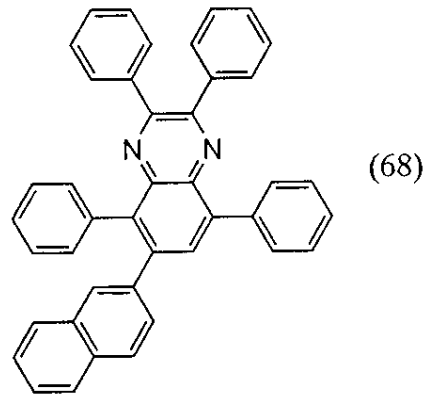
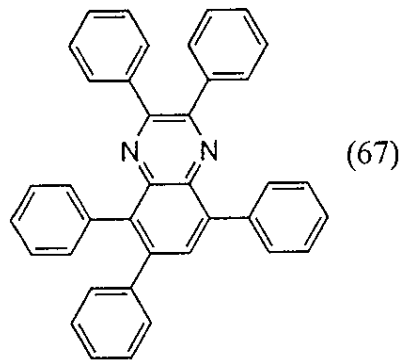
20

【 0 0 3 1】

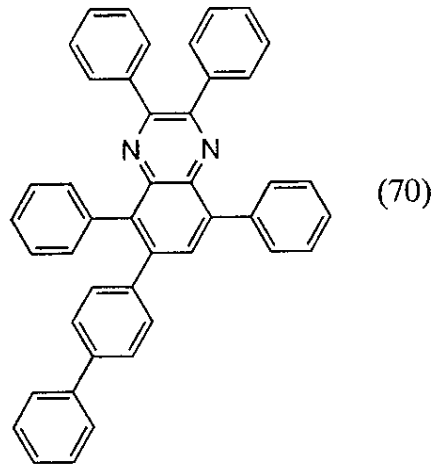
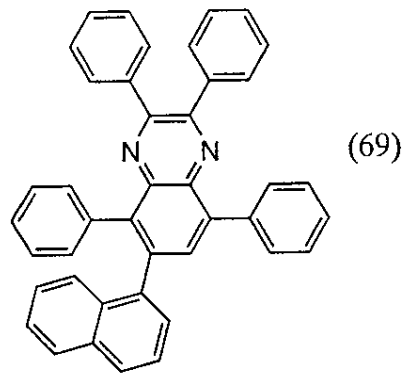
【化 1 9】



10



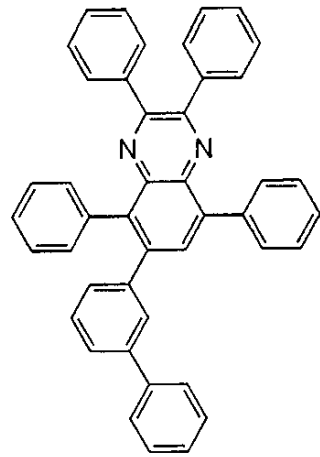
20



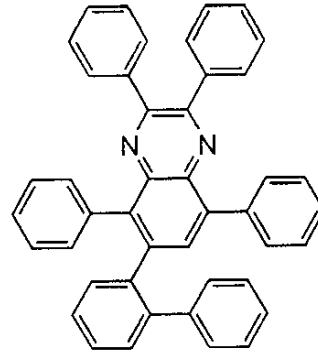
30

【 0 0 3 2 】

【化 2 0】

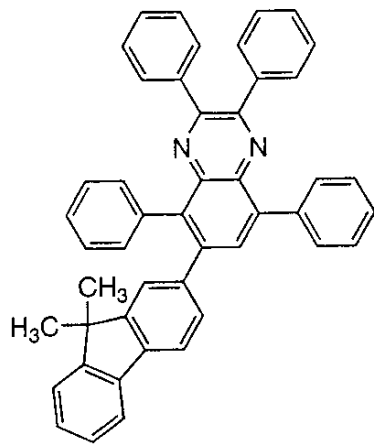


(71)

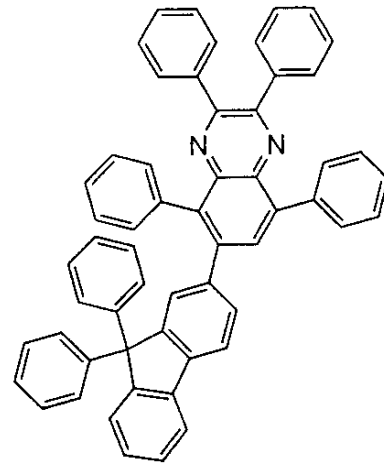


(72)

10

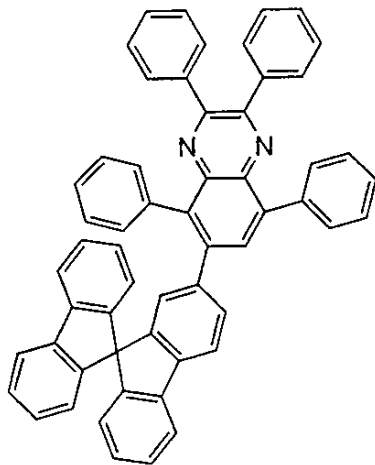


(73)



(74)

20

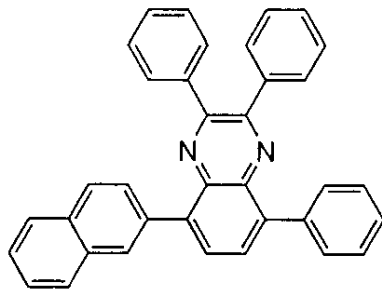


(75)

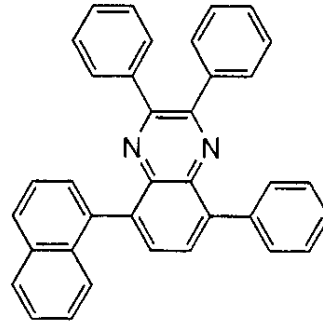
30

【 0 0 3 3】

【化 2 1】

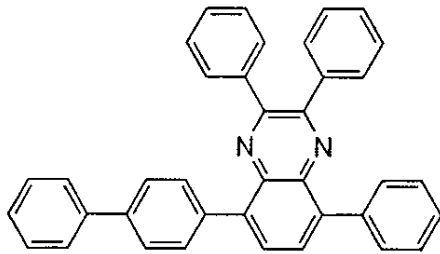


(76)

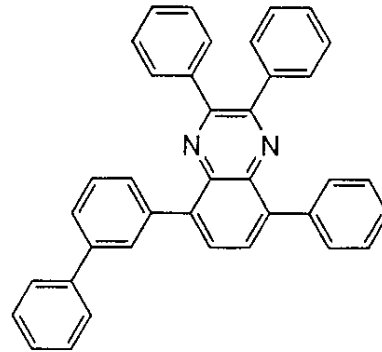


(77)

10

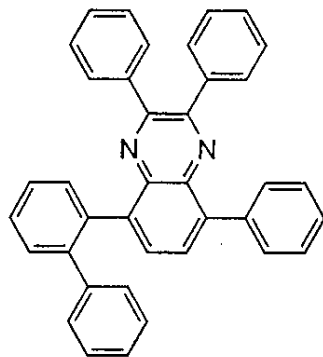


(78)

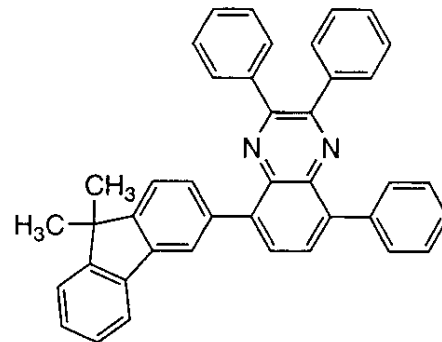


(79)

20

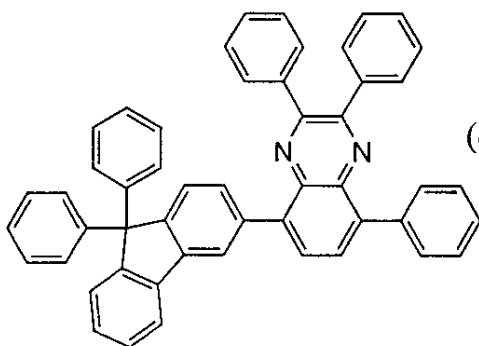


(80)

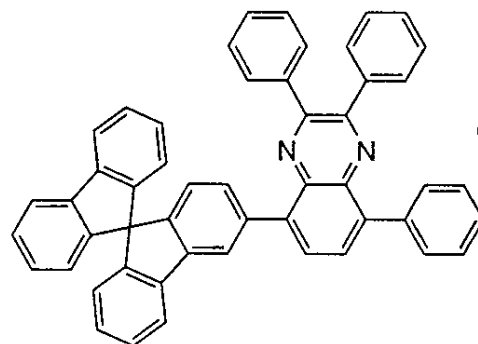


(81)

30



(82)



(83)

40

【0034】

以上に述べた本発明のキノキサリン誘導体は、電子輸送性に優れている。そのため、発光素子等における電子輸送材料として非常に有用である。また、発光材料として用いることも可能である。さらに、蛍光に限らず燐光を発光する物質に対するホスト材料としても使用することができる。

【0035】

(実施の形態 2)

本発明のキノキサリン誘導体について、その合成方法を以下において説明する。なお、

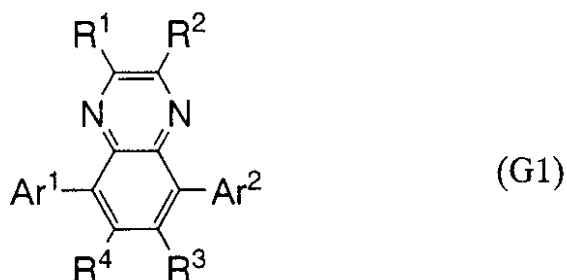
50

本発明のキノキサリン誘導体は、本実施形態に記載した合成方法に限定されるものではなく、その他の合成方法によって合成しても良い。

【0036】

本実施形態では、下記一般式(G1)で表される本発明のキノキサリン誘導体を例に挙げ説明する。

【化22】



10

なお、一般式(G1)において、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基または炭素数6~25のアリール基のいずれかを表し、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ炭素数6~25のアリール基のいずれかを表す。

20

【0037】

下記合成スキーム(a-1)に表されるように、[2,1,3]-ベンゾチアジアゾールの4位及び7位がハロゲン化された[2,1,3]-ベンゾチアジアゾールのハロゲン化物(化合物A)とアリールボロン酸誘導体もしくはアリール有機ホウ素化合物とを塩基存在下で金属触媒を用いたカップリング反応を行うことにより4,7-ジアリール-[2,1,3]-ベンゾチアジアゾール誘導体(化合物B)を得ることができる。さらに、この4,7-ジアリール-[2,1,3]-ベンゾチアジアゾール誘導体(化合物B)を亜鉛等を用いて還元することによりジアミン体(化合物C)を得ることができる。

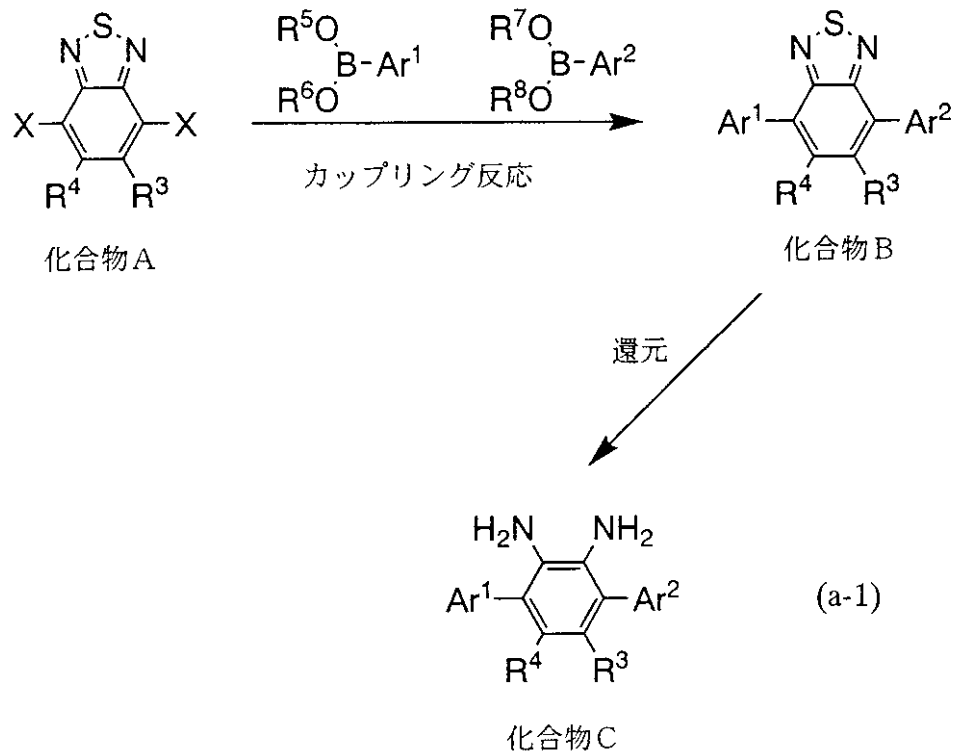
【0038】

なお、カップリング時の金属触媒としては、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)、ビス(トリシクロヘキシルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド等のパラジウム触媒が好ましい。また、塩基としては、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基やナトリウム-tert-ブトキシド、カリウム-tert-ブトキシド等の金属アルコキシドなどの有機塩基等を用いることができる。

30

【0039】

【化23】



10

20

【0040】

なお、合成スキーム(a-1)において、 R^3 及び R^4 はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基または炭素数6~25のアリール基のいずれかを表し、 X はハロゲン基を表す。なかでも、 X はより反応性が高い臭素またはヨウ素が好ましい。また、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ炭素数6~25のアリール基のいずれかを表し、 R^5 ~ R^8 は水素または炭素数1~10のアルキル基のいずれかを表す。なお、 R^5 及び R^6 、 R^7 及び R^8 は互いに結合し、環を形成していても良い。

30

【0041】

上記において Ar^1 及び Ar^2 が異なる場合には、2段階のカップリング反応により4,7-ジアリール-[2,1,3]-ベンゾチアジアゾール誘導体(化合物B)を得ることが好ましい。さらに、[2,1,3]-ベンゾチアジアゾールのハロゲン化物(化合物A)における4位及び7位の置換基、即ち X には、それぞれ異なるハロゲン基を用いた方が好ましい。もちろん、 Ar^1 及び Ar^2 が同じ構造式で示される場合は1段階のカップリング反応により4,7-ジアリール-[2,1,3]-ベンゾチアジアゾール誘導体(化合物B)を得ることができる。

【0042】

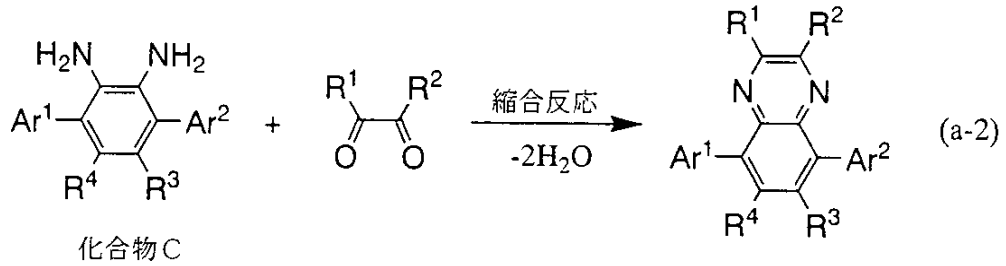
次に、下記合成スキーム(a-2)に表すように合成スキーム(a-1)より得られるジアミン体(化合物C)と α -ジケトン誘導体とを縮合させることで、本発明のキノキサリン誘導体を得ることができる。

40

なお、合成スキーム(a-2)において、 R^1 ~ R^4 はそれぞれ水素、炭素数1~4のアルキル基または炭素数6~25のアリール基のいずれかを表し、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ炭素数6~25のアリール基のいずれかを表す。

【0043】

【化 2 4】



10

【 0 0 4 4】

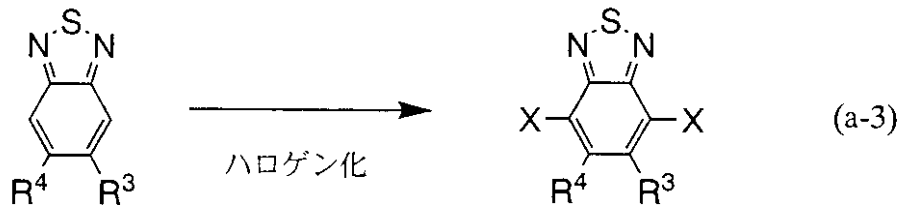
なお、合成スキーム (a - 1) で用いられるベンゾチアジアゾールのハロゲン化物 (化合物 A) は、例えば下記合成スキーム (a - 3) で表されるような方法によって得られる。合成スキーム (a - 3) において、 R^3 及び R^4 はそれぞれ水素、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基または炭素数 6 ~ 25 のアリール基のいずれかを表す。また、X はハロゲン基を表し、なかでもよりハロゲン化しやすい臭素が好ましい。

合成スキーム (a - 3) で表されるように、ベンゾチアジアゾールをハロゲン化することによりベンゾチアジアゾールの 4 位及び 7 位がハロゲン化されたベンゾチアジアゾールのハロゲン化物 (化合物 A) を得ることができる。

20

【 0 0 4 5】

【化 2 5】



30

【 0 0 4 6】

以上のようにして、本発明のキノキサリン誘導体を得ることができる。なお、本発明のキノキサリン誘導体は、電子輸送性に優れている。そのため、発光素子等における電子輸送材料として非常に有用である。また、発光材料として用いることも可能である。さらに、蛍光に限らず燐光を発光する物質に対するホスト材料としても使用することができる。

【 0 0 4 7】

(実施の形態 3)

本発明のキノキサリン誘導体を用いた発光素子の態様について図 1 を用いて説明する。

図 1 には、第 1 の電極 101 と第 2 の電極 102 との間に発光層 113 を有する発光素子が表されている。そして、第 1 の電極 101 と第 2 の電極 102 との間には、発光層 113 の他、正孔注入層 111、正孔輸送層 112、電子輸送層 114、電子注入層 115 が設けられている。これらの層は、第 1 の電極 101 の電位が第 2 の電極 102 の電位よりも高くなるように電圧を印加したときに、第 1 の電極 101 側から正孔が注入され第 2 の電極 102 側から電子が注入されるように積層されている。

40

【 0 0 4 8】

このような発光素子において、第 1 の電極 101 から注入された正孔と、第 2 の電極 102 から注入された電子とは発光層 113 において再結合し発光物質を励起状態にする。そして、励起状態の発光物質が基底状態に戻るときに発光する。発光物質は、ルミネセンス (エレクトロルミネセンス) が得られる物質であれば良い。

50

【 0 0 4 9 】

なお、発光層 1 1 3 を形成する物質については特に限定されることはなく、発光物質のみから形成された層であっても良いが、濃度消光を生じる場合には発光物質が有するエネルギーギャップよりも大きいエネルギーギャップを有する物質（ホスト）からなる層中に発光物質が分散するように混合された層であることが好ましい。これによって、発光物質の濃度消光を防ぐことができる。

なお、濃度消光とは発光分子の濃度が高くなるに従い発光が低下することをいう。また、エネルギーギャップとは最低空分子軌道（LUMO: Lowest Unoccupied Molecular Orbital）準位と最高被占分子軌道（HOMO: Highest Occupied Molecular Orbital）準位とのエネルギー差をいう。

10

【 0 0 5 0 】

また、発光物質についても上述のように特に限定されることはなく、所望の発光波長の発光をし得る物質を用いればよい。例えば、赤色系の発光を得たいときには、4 - ジシアノメチレン - 2 - イソプロピル - 6 - [2 - (1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチルジユロリジン - 9 - イル) エテニル] - 4 H - ピラン（略称：DCJTI）、4 - ジシアノメチレン - 2 - メチル - 6 - [2 - (1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチルジユロリジン - 9 - イル) エテニル] - 4 H - ピラン（略称：DCJT）、4 - ジシアノメチレン - 2 - tert - ブチル - 6 - [2 - (1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチルジユロリジン - 9 - イル) エテニル] - 4 H - ピラン（略称：DCJTB）やペリフランテン、2 , 5 - ジシアノ - 1 , 4 - ビス [2 - (1 0 - メトキシ - 1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチルジユロリジン - 9 - イル) エテニル] ベンゼン等、6 0 0 nm から 6 8 0 nm に発光スペクトルのピークを有する発光を呈する物質を用いることができる。

20

【 0 0 5 1 】

また、緑色系の発光を得たいときは、N , N ' - ジメチルキナクリドン（略称：DMQd）、クマリン 6 やクマリン 5 4 5 T、トリス（8 - キノリノラト）アルミニウム（略称：Alq₃）、N , N ' - ジフェニルキナクリドン（略称：DPQd）等、5 0 0 nm から 5 5 0 nm に発光スペクトルのピークを有する発光を呈する物質を用いることができる。

【 0 0 5 2 】

また、青色系の発光を得たいときは、9 , 1 0 - ビス（2 - ナフチル） - tert - ブチルアントラセン（略称：t - BuDNA）、9 , 9 ' - ビアントリル、9 , 1 0 - ジフェニルアントラセン（略称：DPA）や 9 , 1 0 - ビス（2 - ナフチル）アントラセン（略称：DNA）、ビス（2 - メチル - 8 - キノリノラト） - 4 - フェニルフェノラト - ガリウム（BGaq）、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（BAIq）、9 - (4 - { N - [4 - (9 - カルバゾリル) フェニル] - N - フェニルアミノ } フェニル) - 1 0 - フェニルアントラセン（略称：YGAPA）等、4 2 0 nm から 5 0 0 nm に発光スペクトルのピークを有する発光を呈する物質を用いることができる。

30

【 0 0 5 3 】

また、発光物質を分散状態にするために用いる物質（以後、ホスト材料と記す）についても特に限定はなく、例えば、9 , 1 0 - ジ（2 - ナフチル） - 2 - tert - ブチルアントラセン（略称：t - BuDNA）、9 - [4 - (N - カルバゾリル)] フェニル - 1 0 - フェニルアントラセン（略称：CzPA）等のアントラセン誘導体、または 4 , 4 ' - ビス（N - カルバゾリル）ピフェニル（略称：CBP）等のカルバゾール誘導体の他、ビス [2 - (2 - ヒドロキシフェニル) ピリジナト] 亜鉛（略称：Znpp₂）、ビス [2 - (2 - ヒドロキシフェニル) ベンゾオキサゾラト] 亜鉛（略称：ZnBOX）等の金属錯体等を用いることができる。

40

【 0 0 5 4 】

第 1 の電極 1 0 1 を形成する陽極材料についても特に限定はされないが、仕事関数の大きい（仕事関数 4 . 0 e V 以上）金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物な

50

どを用いることが好ましい。このような陽極材料の具体例としては、金属材料の酸化物としてインジウム錫酸化物（略称：ITO）、酸化珪素を含有するインジウム錫酸化物（略称：ITSO）、酸化インジウムに2～20 [wt%]の酸化亜鉛（ZnO）を混合したターゲットを用いて形成されるインジウム亜鉛酸化物（略称：IZO）の他、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タングステン（W）、クロム（Cr）、モリブデン（Mo）、鉄（Fe）、コバルト（Co）、銅（Cu）、パラジウム（Pd）、または金属材料の窒化物（例えば、窒化チタン）等を挙げることができる。

【0055】

一方、第2の電極102を形成する物質としては、仕事関数の小さい（仕事関数3.8 eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物、及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、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（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属またはマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、及びこれらを含む合金（Mg：Ag、Al：Li）が挙げられる。

10

【0056】

また、第2の電極102と発光層113との間に、電子注入性に優れた層を当該第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やITSO等の第1の電極101の材料として挙げた材料も含めた様々な導電性材料を第2の電極102として用いることができる。また、後述する電子注入層115に、特に電子を注入する機能に優れた材料を用いることにより同様の効果を得ることができる。

20

【0057】

なお、発光した光を外部に取り出すために、第1の電極101と第2の電極102のいずれか一または両方がITO等の透明電極、または可視光が透過出来るような数～数十nmの厚さで形成された電極であることが好ましい。

さらに、第1の電極101及び第2の電極102は、それぞれ上述した陽極材料もしくは陰極材料を蒸着法、スパッタリング法等により形成する。膜厚は、10～500nmとすることが好ましい。

【0058】

第2の電極102と発光層113の間には、図1に示すように電子輸送層114を有する。電子輸送層とは、第2の電極102から注入された電子を発光層113へ輸送する機能を有する層である。このように電子輸送層114を設け、第2の電極102と発光層113とを離すことによって、発光が金属に起因して消光することを防ぐことができる。

30

なお、電子輸送層114には、一般式（G1）～（G3）のいずれか一で表される本発明のキノキサリン誘導体によって形成された層を用いる。本発明のキノキサリン誘導体は、電子輸送性に優れているため電子輸送層の形成材料として好適であり、発光素子の駆動電圧を低減することができる。

【0059】

本発明の発光素子においては、電子輸送層114は、一般式（G1）～（G3）で表される本発明のキノキサリン誘導体の少なくとも一種を有する層であれば良く、その層は本発明のキノキサリン誘導体と他の物質とが混合された層であっても良い。このような混合層とした場合における、本発明のキノキサリン誘導体と混合される物質（以後、混合物と記す）には、電子輸送性に優れた物質を用いることが好ましく、特に $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質を用いることが好ましい。なお、電子輸送性の高い物質とは、正孔よりも電子の移動度が高い物質をいう。

40

また、電子輸送層114は必ずしも単層である必要はなく、本発明のキノキサリン誘導体を有する層が含まれていれば二層以上の多層構造の層であっても良い。

【0060】

電子輸送層114における混合物の具体例としては、例えば、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（略称：Alq₃）、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

50

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）、ビス[2 - （2 - ヒドロキシフェニル）ベンゾオキサゾラト]亜鉛（略称：Zn（BOX）₂）、ビス[2 - （2 - ヒドロキシフェニル）ベンゾチアゾラト]亜鉛（略称：Zn（BTZ）₂）等の金属錯体を用いることができる。

【0061】

さらに、その他に、2 - （4 - ビフェニル） - 5 - （4 - tert - ブチルフェニル） - 1, 3, 4 - オキサジアゾール（略称：PBD）、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 - tert - ブチルフェニル） - 4 - フェニル - 5 - （4 - ビフェニル） - 1, 2, 4 - トリアゾール（略称：TAZ）、3 - （4 - tert - ブチルフェニル） - 4 - （4 - エチルフェニル） - 5 - （4 - ビフェニル） - 1, 2, 4 - トリアゾール（略称：p - EtTAZ）、バソフェナントロリン（略称：BPhen）、バソキュプロイン（略称：BCP）、4, 4 - ビス（5 - メチルベンゾオキサゾル - 2 - イル）スチルベン（略称：BzOs）等を用いることができる。

【0062】

第1の電極101と発光層113との間には、図1に示すように正孔輸送層112を設けてもよい。ここで、正孔輸送層とは、第1の電極101側から注入された正孔を発光層113へ輸送する機能を有する層である。このように、正孔輸送層112を設けることによって、第1の電極101と発光層113との距離を離すことができ、その結果、第1の電極101に含まれている金属に起因して発光が消光することを防ぐことができる。正孔輸送層112は、正孔輸送性の高い物質を用いて形成することが好ましく、特に $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質を用いて形成することが好ましい。なお、正孔輸送性の高い物質とは、電子よりも正孔の移動度が高い物質をいう。

【0063】

正孔輸送層112を形成するのに用いることができる物質の具体例としては、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' - ビス[N - （3 - メチルフェニル） - N - フェニルアミノ]ビフェニル（略称：TPD）、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（略称：TDATA）、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（略称：MTDATA）、4, 4' - ビス{N - [4 - （N, N - ジ - m - トリルアミノ）フェニル] - N - フェニルアミノ}ビフェニル（略称：DNTPD）等が挙げられる。

【0064】

さらに、1, 3, 5 - トリス[N, N - ジ（m - トリル）アミノ]ベンゼン（略称：m - MTDA B）、4, 4', 4'' - トリス（N - カルバゾリル）トリフェニルアミン（略称：CTTA）、フタロシアニン（略称：H₂Pc）、銅フタロシアニン（略称：CuPc）、バナジルフタロシアニン（略称：VOPc）等も挙げられる。また、正孔輸送層112は、以上に述べた物質からなる層を二以上組み合わせ形成した多層構造の層であってもよいし、二以上が混合された混合層であってもよい。

【0065】

なお、正孔輸送層112を、先に記載した物質の他にバイポーラ性の物質を用いて形成してもよい。バイポーラ性の物質とは、電子または正孔のいずれか一方のキャリアの移動度と他方のキャリアの移動度とを比較したときに、一方のキャリアの移動度に対する他方のキャリアの移動度の比の値が100以下、好ましくは10以下である物質をいう。バイポーラ性の物質として、例えば、2, 3 - ビス（4 - ジフェニルアミノフェニル）キノキサリン（略称：TPAQn）、2, 3 - ビス{4 - [N - （1 - ナフチル） - N - フェニルアミノ]フェニル} - ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：NPADiBzQn）等が挙げられる。このようなバイポーラ性の物質の中でも、特に正孔の移動度が $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の物質を正孔輸送層112を形成する材料として用いることが好まし

10

20

30

40

50

い。

【0066】

また、電子輸送層114が本発明のキノキサリン誘導体と他の物質との混合層である場合には、本発明のキノキサリン誘導体と混合する物質、即ち混合物として先に記載した物質の他、バイポーラ性の物質を用いて形成してもよい。特に、バイポーラ性の物質の中でも電子の移動度が $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の物質を用いることが好ましい。

【0067】

さらに、第1の電極101と正孔輸送層112との間には、図1に示すように、正孔注入層111を有してもよい。正孔注入層111は、第1の電極101から正孔輸送層112へ正孔の注入を補助する機能を有する層である。正孔注入層111を設けることによつて、第1の電極101と正孔輸送層112との間のイオン化ポテンシャルの差が緩和され、正孔が注入され易くなる。正孔注入層111は、正孔輸送層112を形成している物質よりもイオン化ポテンシャルが小さく、第1の電極101を形成している物質よりもイオン化ポテンシャルが大きい物質、または正孔輸送層112と第1の電極101との間に1~2nmの薄膜として設けたときにエネルギーバンドが曲がるような物質を用いて形成することが好ましい。

【0068】

正孔注入層111を形成するのに用いることのできる物質の具体例として、フタロシアニン(略称： H_2Pc)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)水溶液(PEDOT/ PSS)等の高分子等が挙げられる。つまり、正孔注入層111におけるイオン化ポテンシャルが正孔輸送層112におけるイオン化ポテンシャルよりも相対的に小さくなるような物質を選択することによって、正孔注入層111を形成することができる。

【0069】

また、第2の電極102と電子輸送層114との間には、図1に示すように、電子注入層115を有するのが好ましい。ここで、電子注入層115は、第2の電極102から電子輸送層114へ電子の注入を補助する機能を有する層である。電子注入層115を設けることによって、第2の電極102と電子輸送層114との間の電子親和力の差が緩和され、電子が注入され易くなる。電子注入層115は、電子輸送層114を形成している物質よりも電子親和力が大きく第2の電極102を形成している物質よりも電子親和力が小さい物質、または電子輸送層114と第2の電極102との間に1~2nmの薄膜として設けたときにエネルギーバンドが曲がるような物質を用いて形成することが好ましい。

【0070】

電子注入層115を形成するのに用いることのできる物質の具体例として、アルカリ金属またはアルカリ土類金属、アルカリ金属のフッ化物、アルカリ土類金属のフッ化物、アルカリ金属の酸化物、アルカリ土類金属の酸化物等の無機物が挙げられる。また、無機物の他、 BPhen 、 BCP 、 $p\text{-EtTAZ}$ 、 TAZ 、 BzOs 等の電子輸送層114を形成するのに用いることのできる物質も、適宜選択することによって、電子注入層115を形成する物質として用いることができる。つまり、電子注入層115における電子親和力が電子輸送層114における電子親和力よりも相対的に大きくなるような物質を選択することによって、電子注入層115を形成することができる。

【0071】

以上に述べた本発明の発光素子において、正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113、電子輸送層114、電子注入層115は、それぞれ、蒸着法、またはインクジェット法、または塗布法等、いずれの方法で形成しても構わない。

また、正孔注入層111に換えて正孔発生層を設けてもよいし、または電子注入層115に換えて電子発生層を設けてもよい。

なお、ここで、正孔発生層とは、正孔を発生する層である。電子よりも正孔の移動度が高い物質及びバイポーラ性の物質の中から選ばれた少なくとも一の物質と、これらの物質に対して電子受容性を示す物質とを混合することによって正孔発生層を形成することがで

10

20

30

40

50

きる。

【 0 0 7 2 】

ここで、電子よりも正孔の移動度が高い物質としては、正孔輸送層 1 1 2 を形成するのに用いることのできる物質と同様の物質を用いることができる。また、バイポーラ性の物質についても、T P A Q n 等の上述したバイポーラ性の物質を用いることができる。また、電子よりも正孔の移動度が高い物質及びバイポーラ性の物質の中でも、特にトリフェニルアミンを骨格に含む物質を用いることが好ましい。トリフェニルアミンを骨格に含む物質を用いることによって、正孔をより発生し易くなる。また、電子受容性を示す物質としては、モリブデン酸化物、バナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、レニウム酸化物等のような化合物や 2 , 3 , 5 , 6 - テトラフルオロ - 7 , 7 , 8 , 8 , 8 - テトラシアノキノジメタン ((略称 : F₄ T C N Q)) のような有機化合物を用いることが好ましい。

10

【 0 0 7 3 】

このような正孔発生層は、厚膜化しても駆動電圧の上昇を伴わないため、正孔発生層の膜厚を調整することでマイクロキャピティ効果や光の干渉効果を利用した光学設計を行うことができる。そのため、色純度に優れ、視野角に依存する色変化などが小さい高品質な発光素子を作製することができる。また、第 1 の電極 1 0 1 の表面に成膜時に発生する凹凸や電極表面に残った微小な残渣の影響で第 1 の電極 1 0 1 と第 2 の電極 1 0 2 がショートすることを防ぐ膜厚を選ぶことができる。

【 0 0 7 4 】

また、電子発生層とは、電子を発生する層である。正孔よりも電子の移動度が高い物質及びバイポーラ性の物質の中から選ばれた少なくとも一の物質と、これらの物質に対して電子供与性を示す物質とを混合することによって電子発生層を形成することができる。ここで、正孔よりも電子の移動度が高い物質としては電子輸送層 1 1 4 を形成するのに用いることのできる物質と同様の物質を用いることができる。また、バイポーラ性の物質についても、T P A Q n 等の上述したバイポーラ性の物質を用いることができる。

20

【 0 0 7 5 】

電子供与性を示す物質としては、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の中から選ばれた物質、具体的にはリチウム (L i) 、カルシウム (C a) 、ナトリウム (N a) 、カリウム (K) 、マグネシウム (M g) 等を用いることができる。また、アルカリ金属酸化物またはアルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属窒化物、アルカリ土類金属窒化物等、具体的にはリチウム酸化物 (L i₂O) 、カルシウム酸化物 (C a O) 、ナトリウム酸化物 (N a₂O) 、カリウム酸化物 (K₂O) 、マグネシウム酸化物 (M g O) から選ばれる少なくとも一の物質も電子供与性を示す物質として用いることができる。また、アルカリ金属フッ化物、アルカリ土類金属フッ化物、具体的にはフッ化リチウム (L i F) 、フッ化セシウム (C s F) 、フッ化カルシウム (C a F₂) 等のフッ化物を用いることも可能である。

30

【 0 0 7 6 】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、発光物質を分散状態にするために用いる物質 (即ち、ホスト材料) として使用することもできる。その場合には、電子輸送層 1 1 4 に必ずしも本発明のキノキサリン誘導体を用いる必要はなく、電子輸送層 1 1 4 には電子輸送性に優れた物質を用いれば良い。

40

なお、本発明のキノキサリン誘導体をホスト材料として用いた場合、発光物質が青色発光を呈する物質であっても本発明のキノキサリン誘導体をホスト材料として好適に用いることができる。

以上のように本発明のキノキサリン誘導体を用いることにより、駆動電圧が低い発光素子を得ることができる。

【 0 0 7 7 】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、燐光を発光する種々の発光物質に対するホスト材料としても用いることができる。その場合、特にビス [2 - (2 ' - ベンゾ [4 , 5 -] チエニル) ピリジナト - N , C³'] イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称

50

: $\text{Ir}(\text{bt p})_2(\text{acac})$ 、ビス(1-フェニルイソキノリナト-N, $\text{C}^{2'}$)イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称: $\text{Ir}(\text{pi q})_2(\text{acac})$)、(2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-ポルフィリナト)白金(略称: PtOEP)のような赤色の燐光を発光する物質に対するホスト材料として用いることが好ましい。

【0078】

また、本発明のキノキサリン誘導体を発光物質に用いることも可能である。その場合には、必ずしも他の層に本発明のキノキサリン誘導体を有する必要はない。なお、発光層113は、発光物質に本発明のキノキサリン誘導体を用いた場合であっても、発光物質のみから形成された層であっても良いし、濃度消光を生じる場合には発光物質が有するエネルギーギャップよりも大きいエネルギーギャップを有する物質(ホスト)からなる層中に発光物質が分散するように混合された層であっても良い。

10

【0079】

(実施の形態4)

本実施の形態では、本発明を適用した発光装置について図2を用いて説明する。なお、図2(A)は、発光装置を示す上面図、図2(B)は図2(A)中A-A'線断面図(A-A'で切断した断面図)である。図2(A)、(B)のそれぞれにおいて、対応するものは同一の符号を用いて表している。

まず、図2(A)を用いて説明すると、200は基板、点線で示された201は駆動回路部(ソース側駆動回路)、202は画素部、201と同様に点線で示された203は駆動回路部(ゲート側駆動回路)である。また、204は封止基板、205はシール材である。

20

【0080】

なお、207は、ソース側駆動回路201またはゲート側駆動回路203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)208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しか図示していないが、このFPCにはプリント配線基盤(PWB)が取り付けられていてもよい。本発明の発光装置には、発光装置本体だけの場合は勿論、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。

【0081】

次に、断面構造について図2(B)を用いて説明する。基板200上には駆動回路部およ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201と、画素部202が示されている。

30

なお、ソース側駆動回路201はnチャンネル型薄膜トランジスタ221とpチャンネル型薄膜トランジスタ222とを組み合わせたCMOS回路で形成されている。また、薄膜トランジスタで形成された駆動回路は、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成してもよい。また、本形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー体型を示しているが、必ずしもその必要はなく駆動回路を外部に形成することもできる。

【0082】

また、画素部202はスイッチング用薄膜トランジスタ211と、電流制御用薄膜トランジスタ212と、そのドレインに電氣的に接続された第1の電極213とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極213の端部を覆って絶縁物214が形成されている。

40

絶縁物214は、後に形成される発光物質を含む層215の成膜を良好なものとするため、その上端部または下端部、あるいは上下端部が曲率を有する曲面となるように形成することが好ましい。

【0083】

絶縁物214の材料については、例えばポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物214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214として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となる

50

ネガ型、あるいは光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。さらには、絶縁物 2 1 4 の材料として有機物に限らず酸化珪素、酸化窒素等の無機物も用いることができる。

【 0 0 8 4 】

また、第 1 の電極 2 1 3 上には、発光物質を含む層 2 1 5、および第 2 の電極 2 1 6 がそれぞれ形成されている。

第 1 の電極 2 1 3 と発光物質を含む層 2 1 5 と第 2 の電極 2 1 6 とを有する発光素子 2 1 7 は、本発明のキノキサリン誘導体を有する発光素子である。発光物質を含む層 2 1 5 に、一般式 (G 1) ~ (G 3) で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも 1 種を有していれば、積層構造等については特に限定されない。なお、第 1 の電極 2 1 3、発光物質を含む層 2 1 5、及び第 2 の電極 2 1 6 は、実施の形態 3 に記載した各々の材料を適宜選択して用いることができる。

【 0 0 8 5 】

さらに、シール材 2 0 5 で封止基板 2 0 4 を基板 2 0 0 と貼り合わせることにより、基板 2 0 0、封止基板 2 0 4、およびシール材 2 0 5 で囲まれた空間 2 0 6 に発光素子 2 1 7 が備えられた構造になっている。なお、空間 2 0 6 には、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 2 0 5 で充填される構成も含むものとする。

【 0 0 8 6 】

シール材 2 0 5 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 2 0 4 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。以上のように発光装置を作製することができる。

【 0 0 8 7 】

なお、第 1 の電極 2 1 3 および第 2 の電極 2 1 6 がいずれも透光性を有する物質で構成されている場合、第 1 の電極 2 1 3 側と第 2 の電極 2 1 6 側の両方から発光を取り出すことができる。また、第 2 の電極 2 1 6 のみが透光性を有する物質で構成されている場合、第 2 の電極 2 1 6 側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第 1 の電極 2 1 3 は反射率の高い材料で構成されているか、または反射率の高い材料から成る膜 (反射膜) が第 1 の電極 2 1 3 の下方に設けられていることが好ましい。また、第 1 の電極 2 1 3 のみが透光性を有する物質で構成されている場合、第 1 の電極 2 1 3 側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第 2 の電極 2 1 6 は反射率の高い材料で構成されているか、または反射膜が第 2 の電極 2 1 6 の上方に設けられていることが好ましい。

【 0 0 8 8 】

発光素子 2 1 7 は、第 1 の電極 2 1 3 の電位よりも第 2 の電極 2 1 6 の電位が高くなるように電圧を印加したときに動作するように発光物質を含む層 2 1 5 が積層されたものであってもよいし、第 1 の電極 2 1 3 の電位よりも第 2 の電極 2 1 6 の電位が低くなるように電圧を印加したときに動作するように発光物質を含む層 2 1 5 が積層されたものであってもよい。

【 0 0 8 9 】

本発明の発光装置は、本発明のキノキサリン誘導体を有する駆動電圧の低い発光素子を用いることで、消費電力を低減することが可能となる。

なお、本実施形態は、実施の形態 1 ~ 3 並びに後述する実施の形態のいずれかと適宜組み合わせることが可能である。

【 0 0 9 0 】

(実施の形態 5)

前記した実施の形態 4 は本発明を適用したアクティブマトリクス型の発光装置を示すが、本実施の形態では、本発明を適用したパッシブマトリクス型の発光装置について図 3 (A)、(B)を用いて説明する。図 3 (A)、(B)は、それぞれ、本発明を適用したパッシブマトリクス型の発光装置の斜視図と上面図である。なお、図 3 (A)は、図 3 (B

10

20

30

40

50

)の点線308で囲まれた部分について斜視した図である。図3(A)、(B)のそれぞれにおいて、対応するものは同一の符号を用いて表している。図3(A)において、第1の基板301上には、複数の第1の電極302が並列に設けられている。

【0091】

第1の電極302のそれぞれの端部は、隔壁層303で覆われている。最も手前に位置している第1の電極302においても端部が隔壁層303によって覆われているが、図3(A)では第1の基板301上に設けられた第1の電極302と隔壁層303とが配置されている様子を分かり易くする為に図示していない。

第1の電極302の上方には複数の第2の電極305が、第1の電極302と交差するように並列に設けられている。なお、第1の電極302と第2の電極305との間には発光物質を含む層304が設けられている。

10

【0092】

第1の電極302と第2の電極305とが交差した部分は、電極間に発光物質を含む層304を挟んでなる、本発明の発光素子を構成している。発光物質を含む層304に、一般式(G1)~(G3)で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも1種を有していれば、積層構造等については特に限定されない。なお、第1の電極302、発光物質を含む層304、及び第2の電極305は、実施の形態3に記載した各々の材料を適宜選択して用いることができる。第2の電極305の上には第2の基板309が設けられている。

【0093】

20

図3(B)に表されるように、第1の電極302は第1の駆動回路306に接続し、第2の電極305は第2の駆動回路307に接続している。そして、第1の駆動回路306および第2の駆動回路307からの信号によって選択された本発明の発光素子が発光する。発光は、第1の電極302及び/又は第2の電極305を介して外部へ取り出される。そして、複数の発光素子からの発光が組み合わせり映像が映し出される。なお、図3(B)では、第1の電極302及び第2の電極305それぞれの配置を分かり易くする為に隔壁層303及び第2の基板309については図示していない。

【0094】

第1の電極302および第2の電極305がいずれも透光性を有する物質で構成されている場合、第1の電極302側と第2の電極305側の両方から発光を取り出すことができる。また、第2の電極305のみが透光性を有する物質で構成されている場合、第2の電極305側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第1の電極302は反射率の高い材料で構成されているか、または反射率の高い材料から成る膜(反射膜)が第1の電極302の下方に設けられていることが好ましい。また、第1の電極302のみが透光性を有する物質で構成されている場合、第1の電極302側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第2の電極305は反射率の高い材料で構成されているか、または反射膜が第2の電極305の上方に設けられていることが好ましい。隔壁層303は、実施の形態4に記載されている絶縁物214と同様の材料を用いて形成することができる。

30

【0095】

40

本発明の発光装置は、本発明のキノキサリン誘導体を有する駆動電圧の低い発光素子を用いることで、消費電力を低減することが可能となる。

なお、本実施形態は、実施の形態1~3及び後述する実施の形態のいずれかと適宜組み合わせることが可能である。

【0096】

(実施の形態6)

本実施形態では、本発明の発光素子を有する発光装置を用いて完成させた様々な電子機器について説明する。なお、本発明の発光装置に本発明のキノキサリン誘導体を有する駆動電圧の低い発光素子を用いることで、消費電力の低い電子機器を提供することが可能となる。

50

【 0 0 9 7 】

本発明の発光装置を用いて作製された電子機器として、テレビジョン、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（ヘッドマウントディスプレイ）、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）、ノート型パーソナルコンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末（モバイルコンピュータ、携帯電話器、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（具体的にはデジタルビデオディスク（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。電子機器のいくつかの具体例を図4を用いて説明する。本発明の発光装置を用いた電子機器はこれら例示の具体例に限定されない。

【 0 0 9 8 】

図4（A）は表示装置であり、筐体400、支持台401、表示部402、スピーカー部403、ビデオ入力端子404等を含む。本発明を用いて形成される発光装置をその表示部402に用いることにより作製される。なお、表示装置は、パーソナルコンピュータ用、TV放送受信用、広告表示用などの全ての情報表示用装置が含まれる。

表示部402には本発明の発光素子が設けられている。当該発光素子が有する発光物質を含む層には、一般式（G1）～（G3）で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも1種を有している。よって、本発明の発光素子を用いることで、消費電力の低い表示装置を得ることができる。

【 0 0 9 9 】

図4（B）はノート型パーソナルコンピュータであり、本体410、筐体411、表示部412、キーボード413、外部接続ポート414、ポインティングデバイス等を含む。

表示部412には本発明の発光素子が設けられている。当該発光素子が有する発光物質を含む層には、一般式（G1）～（G3）で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも1種を有している。よって、本発明の発光素子を用いることで、消費電力の低いノート型パーソナルコンピュータを得ることができる。

【 0 1 0 0 】

図4（C）はビデオカメラであり、本体420、表示部421、筐体422、外部接続ポート423、リモコン受信部424、受像部425、バッテリー426、音声入力部427、操作キー428、接眼部429等を含む。

表示部421には本発明の発光素子が設けられている。当該発光素子が有する発光物質を含む層には、一般式（G1）～（G3）で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも1種を有している。よって、本発明の発光素子を用いることで、消費電力の低いビデオカメラを得ることができる。

【 0 1 0 1 】

図4（D）は携帯電話機であり、本体430、筐体431、表示部432、音声入力部433、音声出力部434、操作キー435、外部接続ポート436、アンテナ437等を含む。

表示部432には本発明の発光素子が設けられている。当該発光素子が有する発光物質を含む層には、一般式（G1）～（G3）で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも1種を有している。よって、本発明の発光素子を用いることで、消費電力の低い携帯電話を得ることができる。

【 0 1 0 2 】

また、図4（E）はデジタルカメラであり、本体440、表示部441、シャッターボタン442、操作キー443、アンテナ444、撮像部等を含む。なお、図4（E）は表示部441側からの図であり、撮像部は示していない。

本発明のデジタルカメラは、アンテナ444から映像信号や音声信号等の信号を受信することにより、テレビ受像器などの表示媒体として表示部441を機能させてもよい。なお、表示媒体として機能させる場合のスピーカー、操作スイッチ等は適宜設ければよい。

なお、表示部441には本発明の発光素子が設けられている。当該発光素子が有する発

10

20

30

40

50

光物質を含む層には、一般式 (G 1) ~ (G 3) で表される本発明のキノキサリン誘導体のうちの少なくとも 1 種を有している。よって、本発明の発光素子を用いることで、消費電力の低いデジタルカメラを得ることができる。

【 0 1 0 3 】

以上の様に、本発明の適用範囲は極めて広く、あらゆる分野の表示装置に用いることが可能である。また、本実施形態の電子機器は実施の形態 1 ~ 5 のいずれかの構成と適宜組み合わせることが可能である。

【実施例 1】

【 0 1 0 4 】

本発明のキノキサリン誘導体について、その合成例を以下に示す。ただし、本発明は、その合成例によって何等限定されるものではない。

(合成例 1)

本発明のキノキサリン誘導体である構造式 (1 2) で表される 2 , 3 , 5 , 8 - テトラフェニルキノキサリン (略称 : T P Q) の合成方法について説明する。

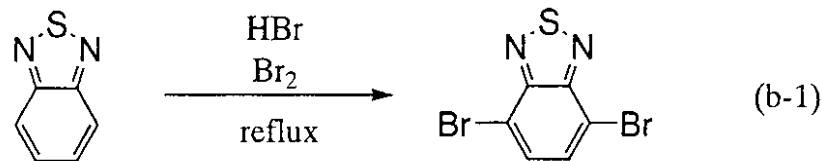
【 0 1 0 5 】

まず、ベンゾ [2 , 1 , 3] チアジアゾール 2 0 . 0 g (1 4 6 m m o l) 及び臭化水素酸 (4 8 % 水溶液) 1 6 0 m L を 5 0 0 m L 三口フラスコに入れた。この反応溶液を 1 1 0 で還流しながら臭素 2 3 m L (4 4 6 m m o l) を滴下した。滴下終了後、さらに 1 1 0 で 1 時間還流した。反応終了後、反応混合物を水で洗浄し、析出物を吸引ろ過により回収した。得られた固体をメタノールにより再結晶したところ、4 , 7 - ジブロモベンゾ [2 , 1 , 3] チアジアゾールの淡褐色粉末状固体 3 1 . 0 g を得た (収率 7 2 %) 。

【 0 1 0 6 】

以下に、4 , 7 - ジブロモベンゾ [2 , 1 , 3] チアジアゾールの合成スキーム (b - 1) を示す。

【化 2 6】



【 0 1 0 7 】

次に、上記で得られた 4 , 7 - ジブロモベンゾ [2 , 1 , 3] チアジアゾール 8 . 8 g (3 0 m m o l) 、フェニルボロン酸 8 . 3 g (6 9 m m o l) 及びテトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0) 0 . 6 9 g (6 . 0 m m o l) を 5 0 0 m L 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 1 0 0 m L 、エタノール 4 0 m L 及び炭酸ナトリウム水溶液 (2 . 0 m o l / L) 4 5 m L (9 0 m m o l) を加えた。この混合物を窒素気流下、9 0 で 6 時間撹拌した。

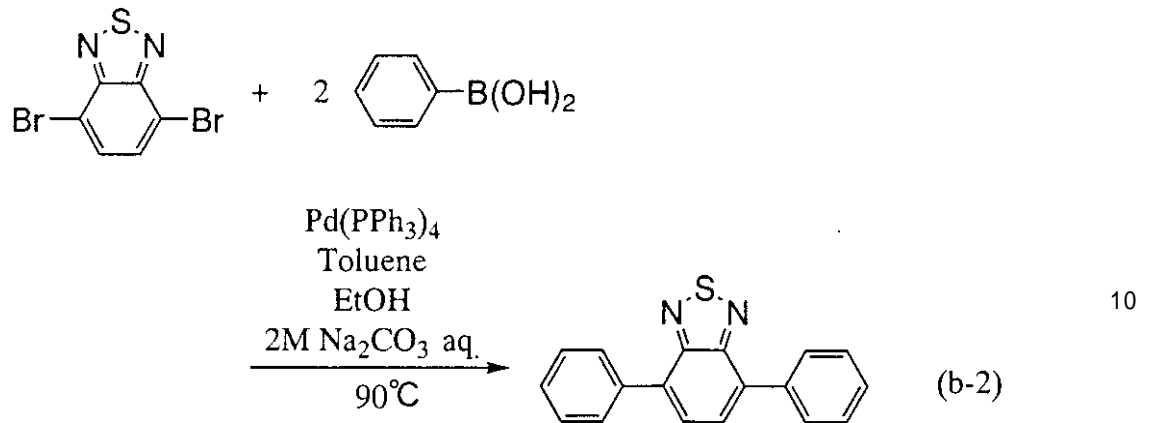
【 0 1 0 8 】

反応終了後、反応混合物の有機層を水で洗浄し、洗浄に用いた水から酢酸エチルを用いて生成物を抽出した。この抽出溶液と水で洗浄した後の有機層とを合わせて、硫酸マグネシウムで乾燥した。乾燥後、吸引ろ過を行い、ろ液を濃縮した。得られた残渣をトルエンに溶かし、この溶液をフロリジール、セライト、アルミナを通して吸引ろ過した。ろ液を濃縮して得られ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、4 , 7 - ジフェニルベンゾ [2 , 1 , 3] チアジアゾールの白色粉末状固体 8 . 4 g を得た (収率 9 7 %) 。

【 0 1 0 9 】

以下に、4 , 7 - ジフェニルベンゾ [2 , 1 , 3] チアジアゾールの合成スキーム (b - 2) を示す。

【化27】



【0110】

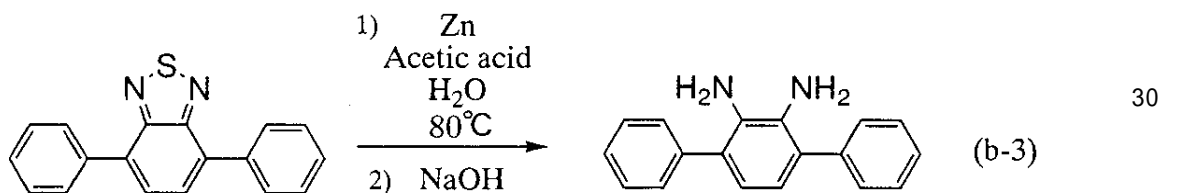
上記で得られた4,7-ジフェニルベンゾ[2,1,3]チアジアゾール8.65g (30.0mmol)、亜鉛19.6g (300mmol)、氷酢酸105mL及び水45mLを500mL三口フラスコへ入れた。この混合物を80で7時間攪拌した。反応終了後、反応溶液を約150mLの水酸化ナトリウム水溶液(約2.0mol/L)中に注ぎ、室温で2時間攪拌した。混合物中の析出物を吸引る過により回収し、回収した固体を水で洗浄した。洗浄後の固体を酢酸エチルに溶かし、不溶物を吸引る過により回収して、亜鉛を除去した。得られたる液を濃縮し、[1,1';4',1'']ターフェニル-2',3'-ジアミンの白色粉末状固体7.6gを得た(収率96%)。

20

【0111】

以下に、[1,1';4',1'']ターフェニル-2',3'-ジアミンの合成スキーム(b-3)を示す。

【化28】



【0112】

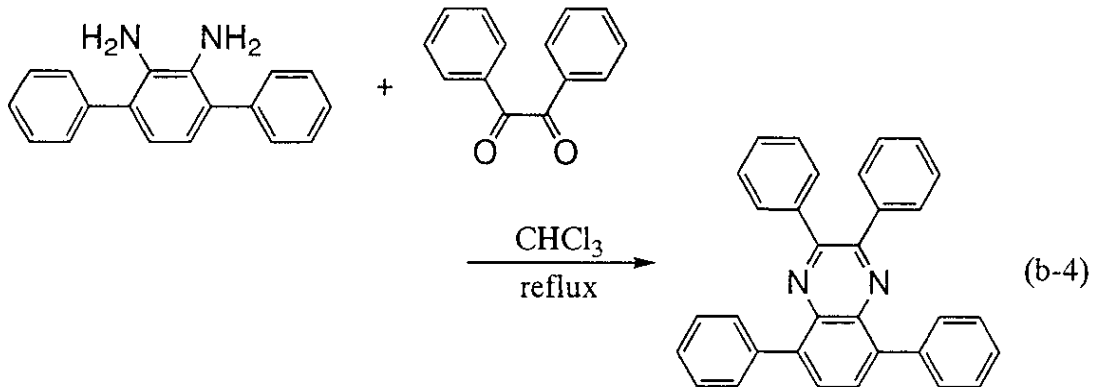
さらに、上記で得られた[1,1';4',1'']ターフェニル-2',3'-ジアミン3.9g (15mmol)、ベンジル3.1g (15mmol)及びクロロホルム50mLを200mL三口フラスコへ入れた。この溶液を窒素気流下、80で6時間還流した。反応終了後、反応混合物中の析出物を吸引る過により回収したところ、黄色粉末状固体3.5gを得た(収率53%)。なお、得られた黄色粉末状固体は、核磁気共鳴法(NMR)によって2,3,5,8-テトラフェニルキノキサリン(略称:TPQ)であることを確認した。

40

【0113】

以下に2,3,5,8-テトラフェニルキノキサリンの合成スキーム(b-4)を示す。

【化29】



【0114】

次に、この化合物の ^1H NMRを示す。

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : δ = 7.25 - 7.32 (m, 4H), 7.42 - 7.46 (m, 3H), 7.51 - 7.61 (m, 8H), 7.86 - 7.90 (m, 7H)。

また、図5(A)、(B)には、 ^1H NMRチャートを示す。なお、図5(B)は図5(A)における7.0 ppm ~ 8.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0115】

また、TPQの吸収スペクトルを図6に示す。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。図6において横軸は波長(nm)、縦軸は吸収強度[任意単位: arbitrary unit (a.u.)]を表す。また、図6(a)は、薄膜状態における吸収スペクトルであり、図6(b)はトルエン溶液に溶解させた状態における吸収スペクトルである。なお、溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着することでサンプルを作製し、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である。また、t a u cプロットを用いて薄膜状態における吸収スペクトル(図6(a))よりTPQのエネルギーギャップを求めたところ3.09 eVであることがわかった。

【0116】

また、TPQの発光スペクトルを図7に示す。図7において横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、図7(a)は、薄膜状態における発光スペクトル(励起波長337 nm)であり、図7(b)はトルエン溶液に溶解させた状態における発光スペクトル(励起波長358 nm)である。図7から、TPQからの発光は、薄膜状態において467 nmにピークを有し、トルエン溶液中において454 nmにピークを有することが分かる。そしてこれらの発光は、青色の発光色として視認された。

【0117】

また、得られたTPQを蒸着法によって成膜し、薄膜状態における当該化合物のイオン化ポテンシャルを光電子分光装置(理研計器社製、AC-2)を用いて測定したところ、6.30 eVであった。この結果からHOMO準位は-6.30 eVであることが分かった。また、エネルギーギャップ(3.09 eV)を用いてLUMO準位を求めたところ、LUMO準位は-3.21 eVであった。

【0118】

さらに、得られたTPQに対し熱重量測定-示差熱分析(TG-DTA: Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。示差熱熱重量同時測定装置(セイコー電子株式会社製、TG/DTA 320型)により測定したところ、測定開始時における重量に対し95%以下の重量になる温度は317 °Cであり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【実施例 2】

【0119】

本実施例では、実施例 1 とは異なる本発明のキノキサリン誘導体について、その合成例を以下に示す。ただし、本発明は、その合成例によって何等限定されるものではない。

(合成例 2)

本発明のキノキサリン誘導体である構造式(24)で表される 2,3-ジフェニル-5,8-ジ(1-ナフチル)キノキサリン(略称:DNPQ)の合成方法について説明する。なお、DNPQを合成するに際し、必要となる 4,7-ジブromoベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの合成方法については実施例 1 における合成スキーム(b-1)に示したのでここでは省略する。

10

【0120】

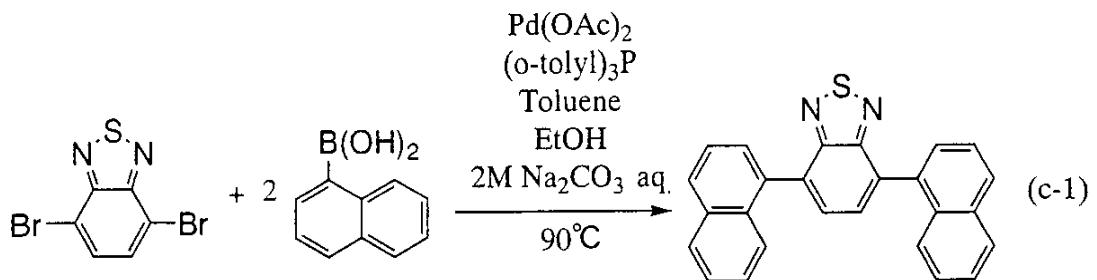
まず、4,7-ジ(1-ナフチル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの合成方法について説明する。4,7-ジブromoベンゾ[2,1,3]チアジアゾール 8.8 g (30 mmol)、1-ナフチルボロン酸 11 g (66 mmol)、酢酸パラジウム(II) 0.067 g (0.30 mmol) 及びトリ(オルト-トリル)ホスフィン 0.63 g (2.1 mmol) を 500 mL 三口フラスコへ入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物へトルエン 100 mL、エタノール 40 mL 及び炭酸ナトリウム水溶液(2.0 mol/L) 45 mL (90 mmol) を加えた。この混合物を窒素気流下、90 で 10 時間撹拌した。反応終了後、反応混合物中の析出物を吸引ろ過により回収した。得られ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、4,7-ジ(1-ナフチル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの白色粉末状固体 11 g を得た(収率 98%)。

20

【0121】

以下に、4,7-ジ(1-ナフチル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの合成スキーム(c-1)を示す。

【化 30】



30

【0122】

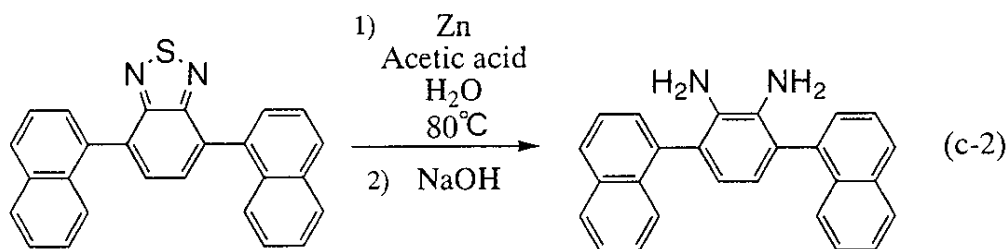
次に、上記で得られた 4,7-ジ(1-ナフチル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾール 11.3 g (29.1 mmol)、亜鉛 17.2 g (262 mmol)、氷酢酸 140 mL 及び水 60 mL を 500 mL 三口フラスコへ入れた。この混合物を 80 で 7 時間撹拌した。反応終了後、反応混合物を約 150 mL の水酸化ナトリウム水溶液(約 2.0 mol/L)中に注ぎ、室温で 2 時間撹拌した。混合物中の析出物を吸引ろ過により回収し、回収した固体を水で洗浄した。洗浄後の固体を酢酸エチルに溶かし、不溶物を吸引ろ過により回収して亜鉛を除去した。得られたる液を濃縮し、3,6-ジ(1-ナフチル)ベンゼン-1,2-ジアミンの白色粉末状固体 2.60 g を得た(収率 25%)。

40

【0123】

以下に、3,6-ジ(1-ナフチル)ベンゼン-1,2-ジアミンの合成スキーム(c-2)を示す。

【化31】



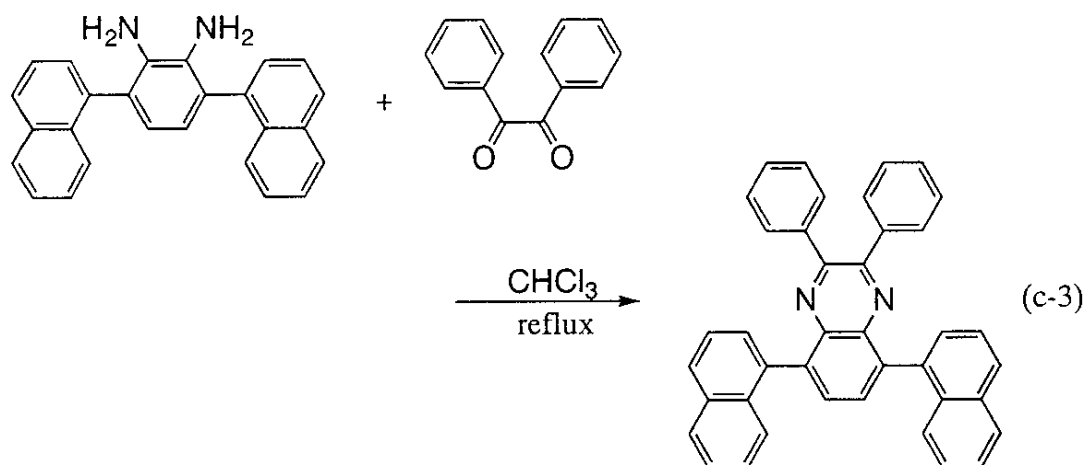
【0124】

さらに、上記で得られた3,6-ジ(1-ナフチル)ベンゼン-1,2-ジアミン2.6g(7.2mmol)、ベンジル1.5g(7.1mmol)及びクロロホルム40mLを200mL三口フラスコへ入れた。この溶液を窒素気流下、80℃で10時間還流した。反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、水で洗浄した。そして、洗浄に用いた水からクロロホルムを用いて生成物を抽出し、この抽出溶液と水で洗浄した後の有機層とを合わせて硫酸マグネシウムでこれらの溶液を乾燥した。乾燥後、吸引ろ過を行い、ろ液を濃縮した。得られた残渣をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒により再結晶し、黄色粉末状固体2.5gを得た(収率67%)。なお、得られた黄色粉末状固体は、核磁気共鳴法(NMR)によって2,3-ジフェニル-5,8-ジ(1-ナフチル)キノキサリン(略称:DNPQ)であることを確認した。

【0125】

以下に2,3-ジフェニル-5,8-ジ(1-ナフチル)キノキサリンの合成スキーム(c-3)を示す。

【化32】



【0126】

次に、この化合物の¹H NMRを示す。

¹H NMR(CDCl₃, 300MHz): δ = 7.03 - 7.25 (m, 10H), 7.40 - 7.46 (m, 2H), 7.50 - 7.56 (m, 2H), 7.60 - 7.73 (m, 5H), 7.80 - 7.83 (m, 1H), 7.89 - 7.99 (m, 6H)。

また、図8(A)、(B)には、¹H NMRチャートを示す。なお、図8(B)は図8(A)における6.0ppm~9.0ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0127】

また、DNPQの吸収スペクトルを図9に示す。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。図9において横軸は波長(nm)、縦軸は吸収強度〔任意単位:arbitrary unit(a.u.)〕を表す。また、図9(a)は、薄膜状態

10

20

30

40

50

における吸収スペクトルであり、図9(b)はトルエン溶液に溶解させた状態における吸収スペクトルである。なお、溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着することでサンプルを作製し、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である。また、 $t a u c$ プロットを用いて薄膜状態における吸収スペクトル(図9(a))よりDNPQのエネルギーギャップを求めたところ2.92 eVであることがわかった。

【0128】

また、DNPQの発光スペクトルを図10に示す。図10において横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、図10(a)は、薄膜状態における発光スペクトル(励起波長371 nm)であり、図10(b)はトルエン溶液に溶解させた状態における発光スペクトル(励起波長359 nm)である。図10から、DNPQからの発光は、薄膜状態において465 nm付近にピークを有し、トルエン溶液中において460 nmにピークを有することが分かる。そして、これらの発光は水色の発光色として視認された。

10

【0129】

また、得られたDNPQを蒸着法によって成膜し、薄膜状態における当該化合物のイオン化ポテンシャルを光電子分光装置(理研計器社製、AC-2)を用いて測定したところ、5.24 eVであった。この結果からHOMO準位は-5.24 eVであることが分かった。また、エネルギーギャップ(2.92 eV)を用いてLUMO準位を求めたところ、LUMO準位は-2.32 eVであった。

さらに、得られたDNPQに対し熱重量測定-示差熱分析(TG-DTA: Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。示差熱重量同時測定装置(セイコー電子株式会社製、TG/DTA 320型)により測定したところ、測定開始時における重量に対し9.5%以下の重量になる温度は363 であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

20

【実施例3】

【0130】

本実施例では、実施例1及び2とは異なる本発明のキノキサリン誘導体について、その合成例を示す。ただし、本発明は、以下に示す合成例によって何等限定されるものではない。

(合成例3)

30

本発明のキノキサリン誘導体である構造式(27)で表される2,3-ジフェニル-5,8-ビス(2-ピフェニル)キノキサリン(略称: BPPQ)の合成方法について説明する。なお、BPPQを合成するに際し、必要となる4,7-ジプロモベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの合成方法については実施例1における合成スキーム(b-1)に示したのでここでは省略する。

【0131】

まず、4,7-ジ(2-ピフェニル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの合成方法について説明する。4,7-ジプロモベンゾ[2,1,3]チアジアゾール4.4 g(15 mmol)、2-ピフェニルボロン酸6.7 g(34 mmol)及びテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)0.35 g(0.3 mmol)を300 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。

40

【0132】

この混合物へトルエン50 mL、エタノール20 mL及び炭酸ナトリウム水溶液(2.0 mol/L)22 mL(44 mmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、90 で8時間還流した。反応終了後、反応混合物中の析出物を吸引ろ過により回収した。得られ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、4,7-ジ(2-ピフェニル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの白色粉末状固体4.5 gを得た(収率69%)。

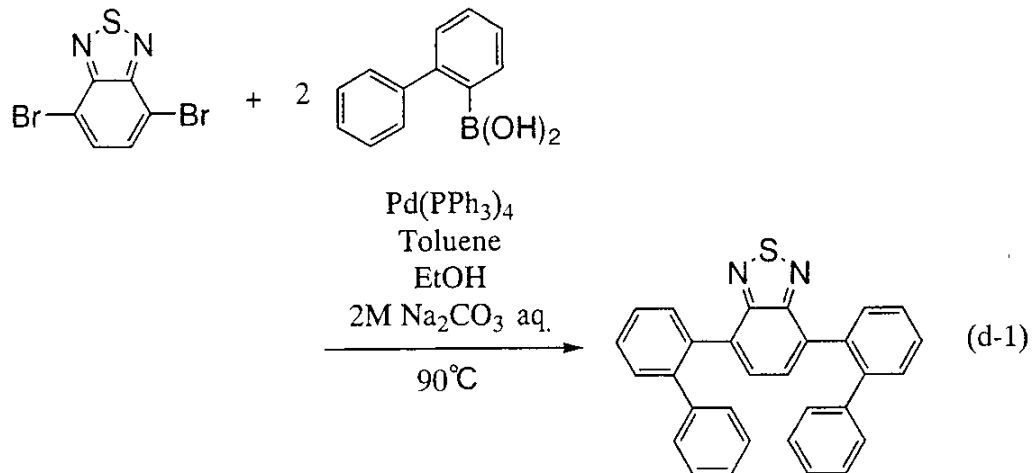
【0133】

以下に、4,7-ジ(2-ピフェニル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾールの合成

50

スキーム (d-1) を示す。

【化33】



【0134】

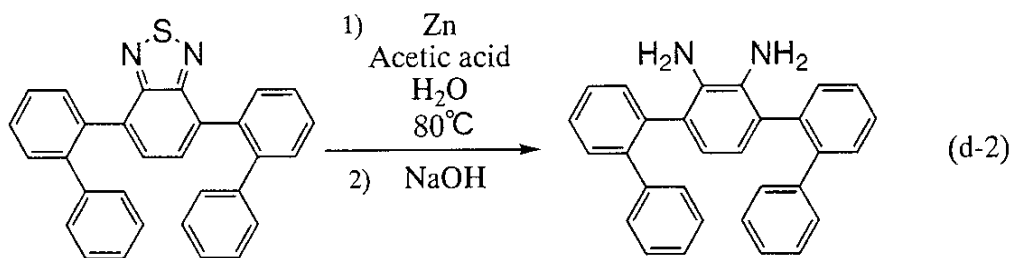
次に、上記で得られた 4,7-ジ(2-ピフェニリル)ベンゾ[2,1,3]チアジアゾール 2.2 g (5.0 mmol)、亜鉛 3.3 g (50 mmol)、氷酢酸 10 mL、水 5 mL を 100 mL 三口フラスコへ入れた。この混合物を、80 で 6 時間攪拌した。反応終了後、反応混合物を約 20 mL の水酸化ナトリウム水溶液 (約 2.0 mol/L) 中に注ぎ、室温で 2 時間攪拌した。混合物中の析出物を吸引ろ過により回収し、回収した固体を水で洗浄した。洗浄後の固体を酢酸エチルに溶かし、不溶物を吸引ろ過により回収して亜鉛を除去した。得られたろ液を濃縮し、3,6-ジ(2-ピフェニリル)ベンゼン-1,2-ジアミン 2.1 g を得た (収率 99% 以上)。

20

【0135】

以下に、3,6-ジ(2-ピフェニリル)ベンゼン-1,2-ジアミンの合成スキーム (d-2) を示す。

【化34】



【0136】

さらに、上記で得られた 3,6-ジ(2-ピフェニリル)ベンゼン-1,2-ジアミン 2.1 g (5.0 mmol)、ベンジル 0.94 g (4.5 mmol) 及びクロロホルム 40 mL を 200 mL 三口フラスコへ入れた。この溶液を窒素気流下、80 で 10 時間還流した。反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、水で洗浄した。そして、洗浄に用いた水からクロロホルムを用いて生成物を抽出し、この抽出溶液と水で洗浄した後の有機層とを合わせて硫酸マグネシウムでこれらの溶液を乾燥した。乾燥後、吸引ろ過を行い、ろ液を濃縮した。得られた残渣をクロロホルムとヘキサンとの混合溶媒により再結晶したところ、黄色粉末状固体 1.6 g を得た (収率 60%)。なお、得られた黄色粉末状固体は、核磁気共鳴法 (NMR) によって 2,3-ジフェニル-5,8-ビス(2-ピフェニリル)

40

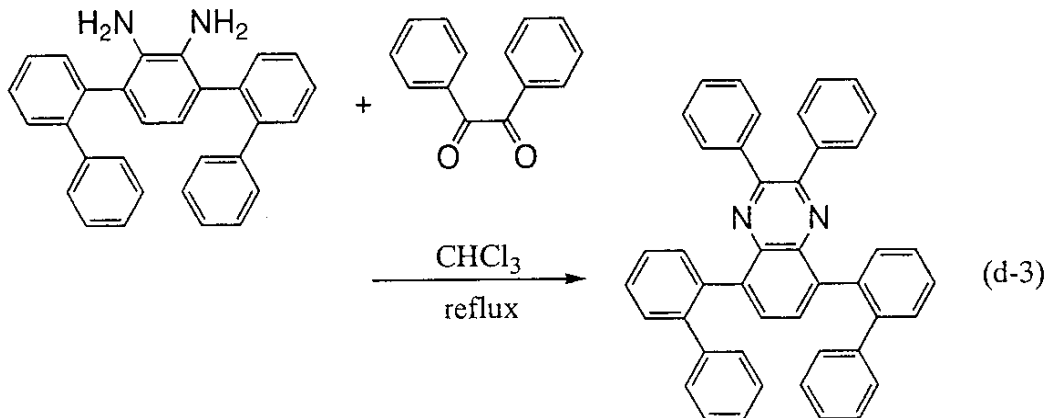
50

)キノキサリン(略称: B P P Q)であることを確認した。

【0137】

以下に2,3-ジフェニル-5,8-ビス(2-ピフェニル)キノキサリンの合成スキーム(d-3)を示す。

【化35】



10

【0138】

次に、この化合物の ^1H NMRを示す。

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): δ = 6.99 - 7.07 (m, 10H), 7.18 - 7.28 (m, 6H), 7.31 - 7.33 (m, 4H), 7.42 (s, 2H), 7.44 - 7.53 (m, 6H), 7.58 - 7.61 (m, 2H)。

また、図11(A)、(B)には ^1H NMRチャートを示す。なお、図11(B)は図11(A)における7.0 ppm ~ 8.5 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0139】

また、B P P Qの吸収スペクトルを図12に示す。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。図12において横軸は波長(nm)、縦軸は吸収強度[任意単位: arbitrary unit (a.u.)]を表す。また、図12(a)は、薄膜状態における吸収スペクトルであり、図12(b)はトルエン溶液に溶解させた状態における吸収スペクトルである。なお、溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着することでサンプルを作製し、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である。また、t a u cプロットを用いて薄膜状態における吸収スペクトル(図12(a))よりB P P Qのエネルギーギャップを求めたところ2.99 eVであることがわかった。

30

【0140】

また、B P P Qの発光スペクトルを図13に示す。図13において横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、図13(a)は、薄膜状態における発光スペクトル(励起波長371 nm)であり、図13(b)はトルエン溶液に溶解させた状態における発光スペクトル(励起波長358 nm)である。図13から、B P P Qからの発光は、薄膜状態において454 nmにピークを有し、トルエン溶液中において453 nmにピークを有することが分かる。そして、これらの発光は青色の発光色として視認された。

40

【0141】

また、得られたB P P Qを蒸着法によって成膜し、薄膜状態における当該化合物のイオン化ポテンシャルを光電子分光装置(理研計器社製、AC-2)を用いて測定したところ、5.39 eVであった。この結果からHOMO準位は-5.39 eVであることが分かった。また、エネルギーギャップ(2.99 eV)を用いてLUMO準位を求めたところ

50

、LUMO準位は - 2 . 4 0 e Vであった。

【 0 1 4 2 】

さらに、得られたBPPQに対し熱重量測定 - 示差熱分析 (TG - DTA : Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis) を行った。示差熱熱重量同時測定装置 (セイコー電子株式会社製, TG / DTA 320型) により測定したところ、測定開始時における重量に対し95%以下の重量になる温度は331 であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【実施例4】

【 0 1 4 3 】

本実施例では、合成例1において合成された2, 3, 5, 8 - テトラフェニルキノキサリン (略称: TPQ) を電子輸送層に用いた発光素子の作製方法を図14を用いて示し、その発光素子の動作特性について説明する。

【 0 1 4 4 】

まず、ガラス基板500上に、スパッタ法を用いて酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (略称: ITO) を成膜し、第1の電極501とした。なお、電極の大きさは2mm x 2mmとした。

その後、第1の電極501が形成されたガラス基板500を、真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに、第1の電極501が形成された面を下方となるように固定した。そして、第1の電極501上に、DNTPDと三酸化モリブデンとを共蒸着によって50nmの膜厚となるように成膜し、正孔注入層511を形成した。なお、DNTPDと三酸化モリブデンとの質量比は、4 : 2 (= DNTPD : 三酸化モリブデン) となるようにした。

【 0 1 4 5 】

次に、正孔注入層511上に、蒸着法を用いて膜厚10nmとなるようにNPBを成膜し、正孔輸送層512を形成した。

正孔輸送層512上に、CzPAとYGAPAとを共蒸着により30nmの膜厚となるよう成膜し、発光層513を形成した。なお、CzPAとYGAPAとの質量比は、1 : 0 . 04 (= CzPA : YGAPA) となるようにした。これにより、YGAPAはCzPAから成る層中に分散した状態となる。

【 0 1 4 6 】

発光層513上には、膜厚10nmとなるようにTPQを成膜し、その後さらにBPhenを20nmとなるように成膜することで、TPQ及びBPhenが積層された電子輸送層514を形成した。なお、各々の層は、蒸着法によって形成した。

形成された電子輸送層514上に、蒸着法を用いて膜厚2nmとなるようにLiFを成膜し、電子注入層515を形成した。

その後、電子注入層515上に、蒸着法を用いてアルミニウムを成膜し、第2の電極502を形成した。

【 0 1 4 7 】

以上のようにして、第1の電極501と第2の電極502の間に、正孔注入層511、正孔輸送層512、発光層513、電子輸送層514、電子注入層515を積層して発光素子を作製し、得られた発光素子を大気に曝さずにシール材を用いて窒素雰囲気下で封止を行った。なお、これらの層に用いたDNTPD、NPB、CzPA、YGAPA及びBPhenの構造式を以下に示す。

【 0 1 4 8 】

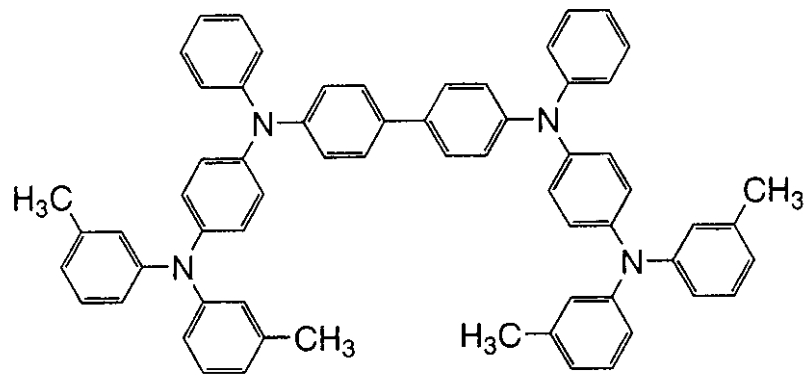
10

20

30

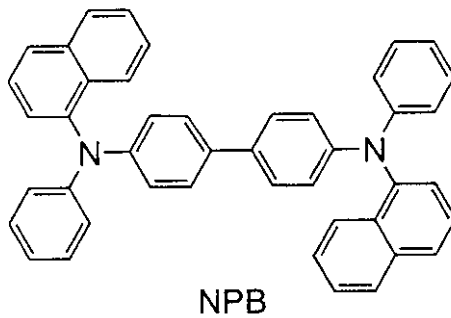
40

【化 3 6】

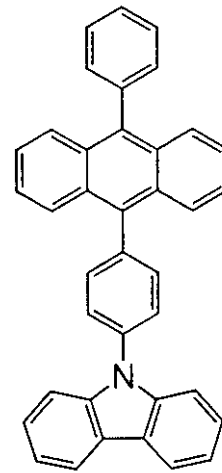


10

DNTPD

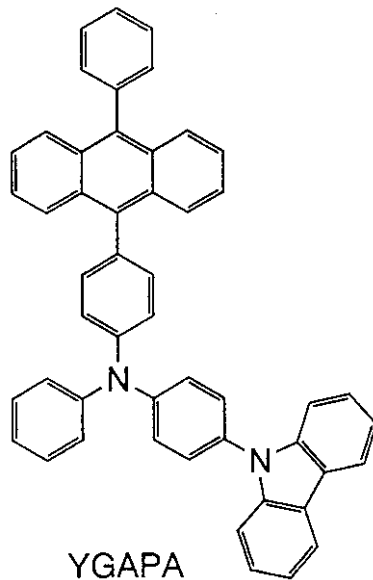


NPB



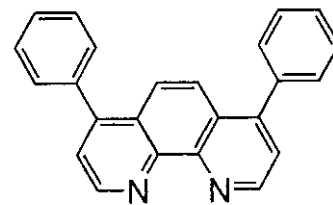
20

CzPA



YGAPA

30



BPhen

40

【 0 1 4 9 】

(比較例 1)

本実施例における発光素子の比較例として、本発明のキノキサリン誘導体であるTPQのかわりにAlq₃を有する発光素子を作製した。本比較例では、電子輸送層514を膜厚10nmのAlq₃とその上に形成された膜厚20nmのBPhenとからなる積層構造とした。なお、それ以外は、実施例4と同様の物質かつ手法を用いて作製した。

【 0 1 5 0 】

50

具体的には、ITOからなる第1の電極501上にDNTPDと三酸化モリブデンとを共蒸着によって50nmの膜厚となるように正孔注入層511を形成した。なお、DNTPDと三酸化モリブデンとの質量比は、4:2(=DNTPD:三酸化モリブデン)となるようにした。その上に、正孔輸送層512としてNPBを10nmの膜厚となるように成膜し、さらに正孔輸送層512上にCzPAとYGAPAとを共蒸着により30nmの膜厚となるよう発光層513を形成した。CzPAとYGAPAとの質量比は、1:0.04(=CzPA:YGAPA)となるようにした。

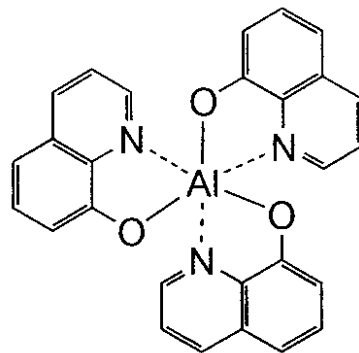
【0151】

発光層513上には、膜厚10nmとなるようにAlq₃を成膜し、その後さらに膜厚20nmとなるようにBPhenを成膜することで電子輸送層514を形成した。電子輸送層514上には、2nmの膜厚となるようにLiFを成膜することで電子注入層515を形成し、その上には蒸着法を用いてアルミニウムを成膜することで第2の電極502を形成した。以上のようにして、得られた発光素子を大気に曝さずにシール材を用いて窒素雰囲気下で封止を行った。

【0152】

なお、Alq₃の構造式を以下に示す。

【化37】



Alq₃

【0153】

本実施例及び比較例1における発光素子に対し、第2の電極502の電位よりも第1の電極501の電位の方が高くなるように電圧を印加し、発光素子の動作特性について調べた。なお、測定は室温(25℃)になるように保った状態で行った。結果を図15に示す。図15(a)は電圧-輝度特性について、図15(b)は電圧-電流特性について示した図であり、本実施例及び比較例1におけるそれぞれの結果をあわせて示している。なお、図15(a)における横軸は電圧(V)を表し、縦軸は輝度(cd/m²)を表し、図15(b)における横軸は電圧(V)を表し、縦軸は電流(mA)を表す。

【0154】

これらの結果から比較例1より本実施例で作製した発光素子の方が低い電圧で高い輝度が得られた。よって、本実施例の発光素子の方が駆動電圧が低いことがわかった。また、比較例1より本実施例で作製した発光素子の方が電圧-電流特性に優れており、Alq₃よりも本発明のキノキサリン誘導体の方が電子輸送性に優れていることがわかった。

以上のように電子輸送材料として本発明のキノキサリン誘導体を用いることにより、駆動電圧が低い発光素子を得ることができた。

【0155】

なお、1000cd/m²において本実施例で作製した発光素子より得られた発光のCIE色度座標は(x, y) = (0.15, 0.15)であり、比較例1の発光素子より得

10

20

30

40

50

られた発光のCIE色度座標は $(x, y) = (0.16, 0.15)$ であった。いずれの場合においても発光物質であるYGA PAからの発光が得られていた。

【実施例5】

【0156】

本実施例では、合成例2において合成された2,3-ジフェニル-5,8-ジ(1-ナフチル)キノキサリン(略称:DN PQ)を電子輸送層に用いた発光素子の作製方法を図14を用いて示し、その発光素子の動作特性について説明する。

【0157】

まず、ガラス基板500上に、スパッタ法を用いて酸化珪素を含むインジウム錫酸化物(略称:IT SO)を成膜し、第1の電極501とした。なお、電極の大きさは2mm×2mmとした。

10

続いて、第1の電極501が形成されたガラス基板500を、真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに、第1の電極501が形成された面を下方となるように固定した。そして、第1の電極501上に、DN TP Dと三酸化モリブデンとを共蒸着によって50nmの膜厚となるように成膜し、正孔注入層511を形成した。なお、DN TP Dと三酸化モリブデンとの質量比は、4:2(=DN TP D:三酸化モリブデン)となるようにした。

【0158】

次に、正孔注入層511上に、蒸着法を用いて膜厚10nmとなるようにNP Bを成膜し、正孔輸送層512を形成した。

20

その後、正孔輸送層512上に、Cz PAとYGA PAとを共蒸着により30nmの膜厚となるよう成膜し、発光層513を形成した。なお、Cz PAとYGA PAとの質量比は、1:0.04(=Cz PA:YGA PA)となるようにした。これにより、YGA PAはCz PAから成る層中に分散した状態となる。

【0159】

次いで、発光層513上には、膜厚10nmとなるようにDN PQを成膜し、その後さらにB Phenを20nmとなるように成膜することで、DN PQ及びB Phenが積層された電子輸送層514を形成した。なお、各々の層は、蒸着法によって形成した。

さらに、電子輸送層514上に、蒸着法を用いて膜厚2nmとなるようにLi Fを成膜し、電子注入層515を形成した。

30

その後、電子注入層515上に、蒸着法を用いてアルミニウムを成膜し、第2の電極502を形成した。

【0160】

以上のようにして、第1の電極501と第2の電極502の間に、正孔注入層511、正孔輸送層512、発光層513、電子輸送層514、電子注入層515を積層して発光素子を作製し、得られた発光素子を大気に曝さずにシール材を用いて窒素雰囲気下で封止を行った。

本実施例の発光素子に対し第2の電極502の電位よりも第1の電極501の電位の方が高くなるように電圧を印加し、発光素子の動作特性について調べた。なお、測定は室温(25℃)になるように保った状態で行った。

40

【0161】

その測定結果を図16に示す。なお、本実施例においても本発明のキノキサリン誘導体であるDN PQのかわりにAl q₃を有する実施例4に記載した比較例1の発光素子と比較した。図16(a)は電圧-輝度特性について、図16(b)は電圧-電流特性について示した図であり、本実施例においても比較例1におけるそれぞれの結果をあわせて示している。なお、図16(a)における横軸は電圧(V)を表し、縦軸は輝度(cd/m²)を表し、図16(b)における横軸は電圧(V)を表し、縦軸は電流(mA)を表す。

【0162】

これらの結果から比較例1より本実施例で作製した発光素子の方が低い電圧で高い輝度を得られた。よって、本実施例の発光素子の方が駆動電圧が低いことがわかった。また、

50

比較例 1 より本実施例で作製した発光素子の方が電圧 - 電流特性に優れており、 $A l q_3$ よりも本発明のキノキサリン誘導體の方が電子輸送性に優れていることがわかった。

以上のように電子輸送材料として本発明のキノキサリン誘導體を用いることにより、駆動電圧が低い発光素子を得ることができた。

なお、 1000 cd/m^2 において本実施例で作製した発光素子より得られた発光の CIE 色度座標は $(x, y) = (0.16, 0.16)$ であった。

【実施例 6】

【0163】

本実施例では、合成例 3 において合成された 2,3-ジフェニル-5,8-ビス(2-ピフェニル)キノキサリン(略称: BPPQ)を電子輸送層に用いた発光素子の作製方法を図 14 を用いて示し、その発光素子の動作特性について説明する。

【0164】

まず、ガラス基板 500 上に、スパッタ法を用いて酸化珪素を含むインジウム錫酸化物(略称: ITSO)を成膜し、第 1 の電極 501 とした。なお、電極の大きさは $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ とした。

その後、第 1 の電極 501 が形成されたガラス基板 500 を、真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに、第 1 の電極 501 が形成された面を下方となるように固定した。そして、第 1 の電極 501 上に、DNTPD と三酸化モリブデンとを共蒸着によって 50 nm の膜厚となるように成膜し、正孔注入層 511 を形成した。なお、DNTPD と三酸化モリブデンとの質量比は、 $4:2 (= \text{DNTPD} : \text{三酸化モリブデン})$ となるようにした。

【0165】

次に、正孔注入層 511 上に、蒸着法を用いて膜厚 10 nm となるように NPB を成膜し、正孔輸送層 512 を形成した。

正孔輸送層 512 上に、CzPA と YGAPA とを共蒸着により 30 nm の膜厚となるよう成膜し、発光層 513 を形成した。なお、CzPA と YGAPA との質量比は、 $1:0.04 (= \text{CzPA} : \text{YGAPA})$ となるようにした。これにより、YGAPA は CzPA から成る層中に分散した状態となる。

【0166】

次いで、発光層 513 上には、膜厚 10 nm となるように BPPQ を成膜し、その後さらに BPhen を 20 nm となるように成膜することで、BPPQ 及び BPhen が積層された電子輸送層 514 を形成した。なお、各々の層は、蒸着法によって形成した。

その後、電子輸送層 514 上に、蒸着法を用いて膜厚 2 nm となるように LiF を成膜し、電子注入層 515 を形成した。

さらに、電子注入層 515 上に、蒸着法を用いてアルミニウムを成膜し、第 2 の電極 502 を形成した。

【0167】

以上のようにして、第 1 の電極 501 と第 2 の電極 502 の間に、正孔注入層 511、正孔輸送層 512、発光層 513、電子輸送層 514、電子注入層 515 を積層して発光素子を作製し、得られた発光素子を大気に曝さずにシール材を用いて窒素雰囲気下で封止を行った。

本実施例の発光素子に対し第 2 の電極 502 の電位よりも第 1 の電極 501 の電位の方が高くなるように電圧を印加し、発光素子の動作特性について調べた。なお、測定は室温 (25°C になるように保った状態)で行った。

【0168】

その測定結果を図 17 に示す。なお、本実施例においても本発明のキノキサリン誘導體である BPPQ のかわりに $A l q_3$ を有する実施例 4 に記載した比較例 1 の発光素子と比較した。図 17 (a) は電圧 - 輝度特性について、図 17 (b) は電圧 - 電流特性について示した図であり、本実施例においても比較例 1 におけるそれぞれの結果をあわせて示している。なお、図 17 (a) における横軸は電圧 (V) を表し、縦軸は輝度 (cd/m^2)

10

20

30

40

50

)を表し、図17(b)における横軸は電圧(V)を表し、縦軸は電流(mA)を表す。
【0169】

これらの結果から比較例1より本実施例で作製した発光素子の方が低い電圧で高い輝度
が得られた。よって、本実施例の発光素子の方が駆動電圧が低いことがわかった。また、
比較例より本実施例で作製した発光素子の方が電圧-電流特性に優れており、Alq₃よ
りも本発明のキノキサリン誘導体の方が電子輸送性に優れていることがわかった。

以上のように電子輸送材料として本発明のキノキサリン誘導体を用いることにより、駆
動電圧が低い発光素子を得ることができた。

なお、1000cd/m²において本実施例で作製した発光素子より得られた発光のC
IE色度座標は(x, y) = (0.15, 0.16)であった。

10

【図面の簡単な説明】

【0170】

【図1】本発明の発光素子の素子構造を説明する図

【図2】本発明の発光素子を用いた発光装置の図

【図3】本発明の発光素子を用いた発光装置の図

【図4】本発明の発光素子を用いた電子機器の図

【図5】合成例1で得られたキノキサリン誘導体(TPQ)の¹H NMRチャート

【図6】TPQの吸収スペクトルを示す図

【図7】TPQの発光スペクトルを示す図

【図8】合成例2で得られたキノキサリン誘導体(DNPQ)の¹H NMRチャート

20

【図9】DNPQの吸収スペクトルを示す図

【図10】DNPQの発光スペクトルを示す図

【図11】合成例3で得られたキノキサリン誘導体(BPPQ)の¹H NMRチャート

【図12】BPPQの吸収スペクトルを示す図

【図13】BPPQの発光スペクトルを示す図

【図14】実施例で作製した発光素子の素子構造を説明する図

【図15】実施例4で作製した発光素子の動作特性を示す図

【図16】実施例5で作製した発光素子の動作特性を示す図

【図17】実施例6で作製した発光素子の動作特性を示す図

【符号の説明】

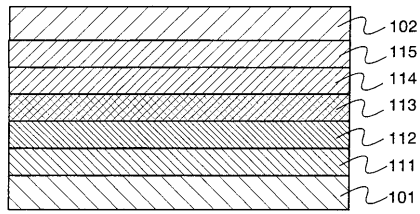
30

【0171】

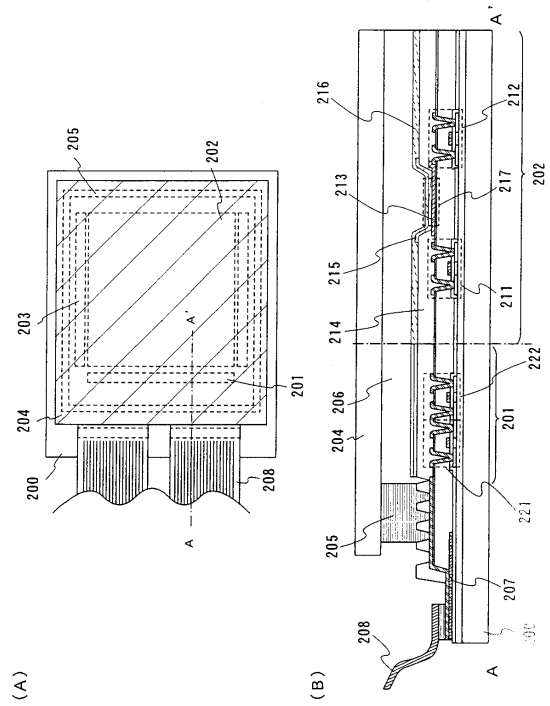
- 101 第1の電極
- 102 第2の電極
- 111 正孔注入層
- 112 正孔輸送層
- 113 発光層
- 114 電子輸送層
- 115 電子注入層
- 500 ガラス基板
- 501 第1の電極
- 502 第2の電極
- 511 正孔注入層
- 512 正孔輸送層
- 513 発光層
- 514 電子輸送層
- 515 電子注入層

40

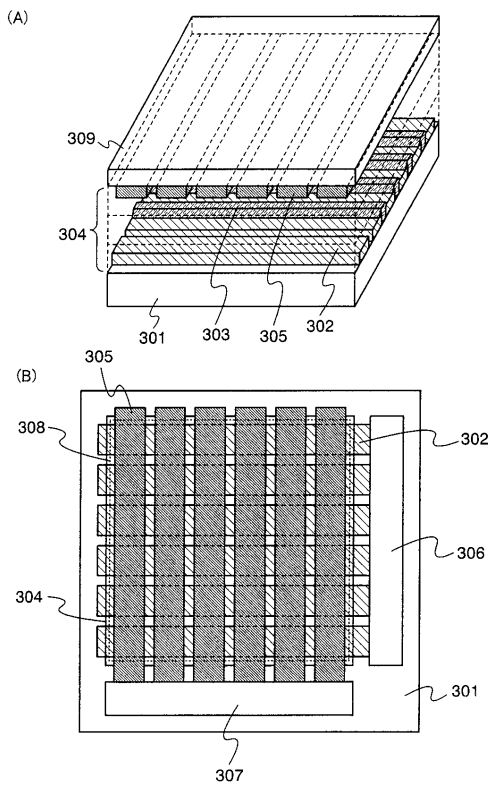
【 図 1 】



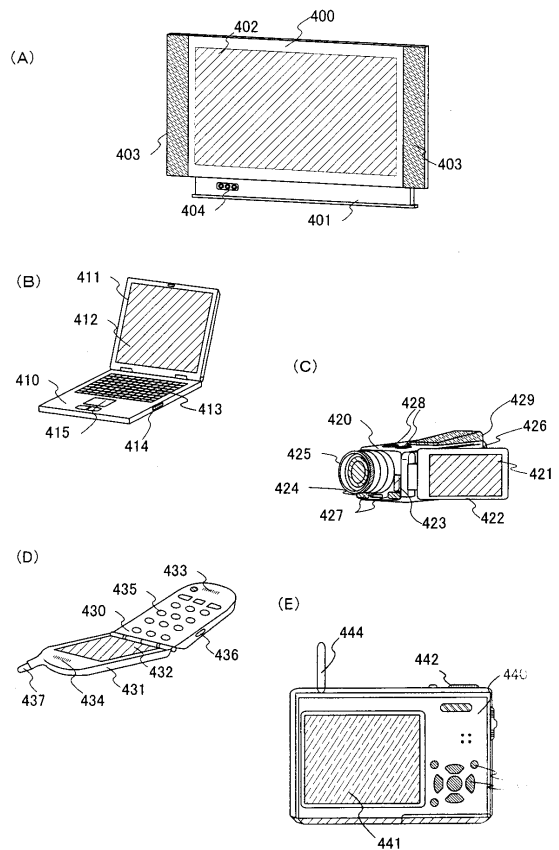
【 図 2 】



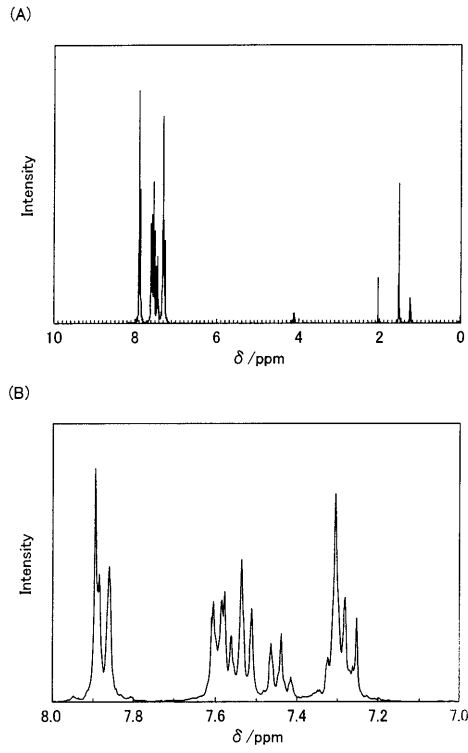
【 図 3 】



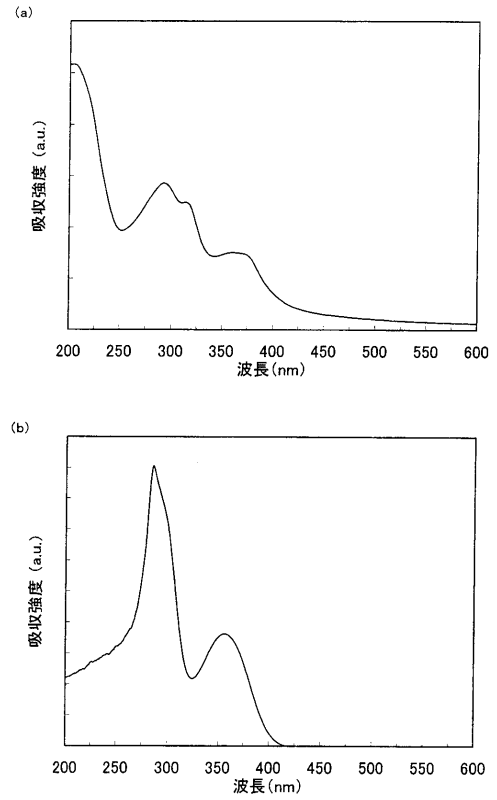
【 図 4 】



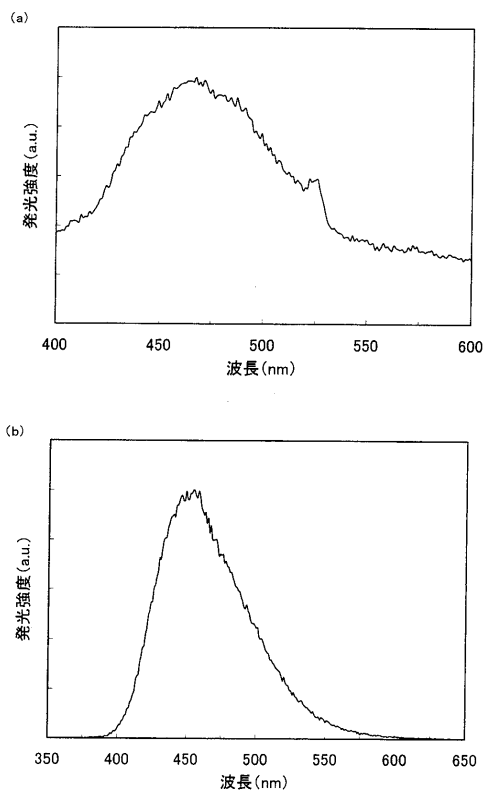
【 図 5 】



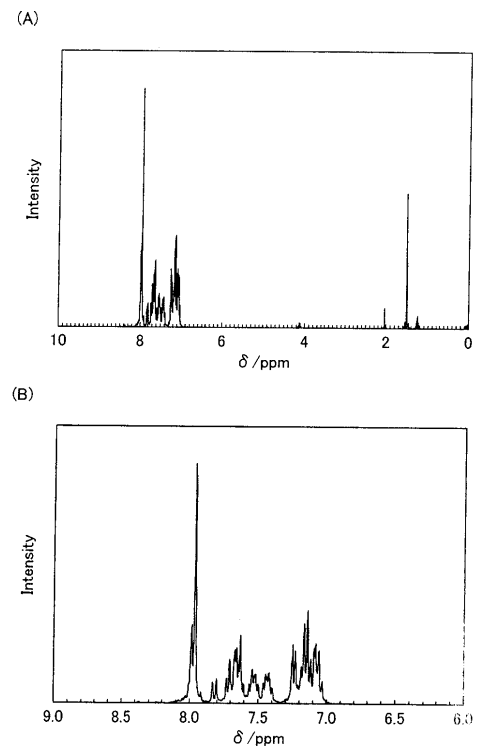
【 図 6 】



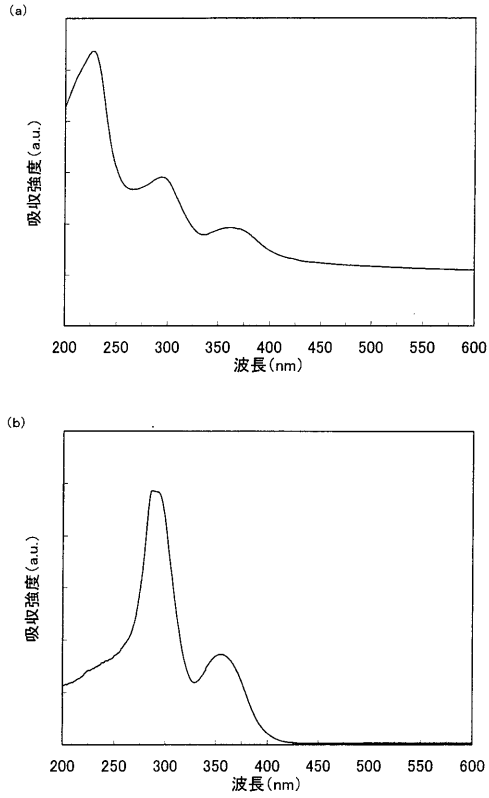
【 図 7 】



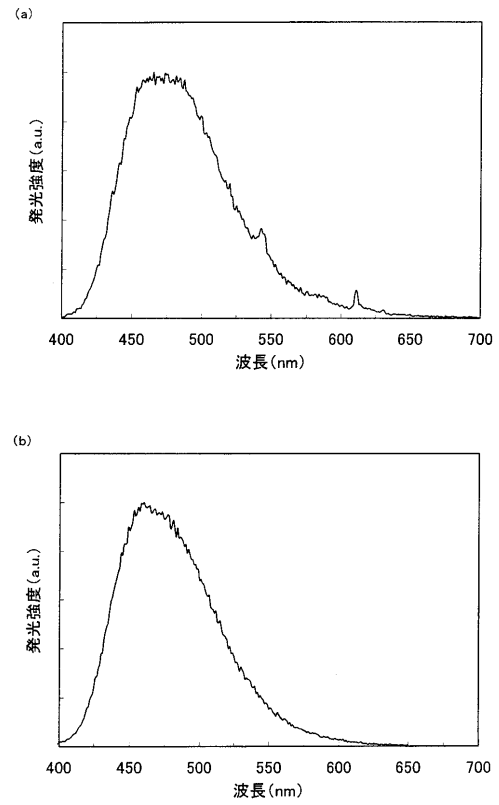
【 図 8 】



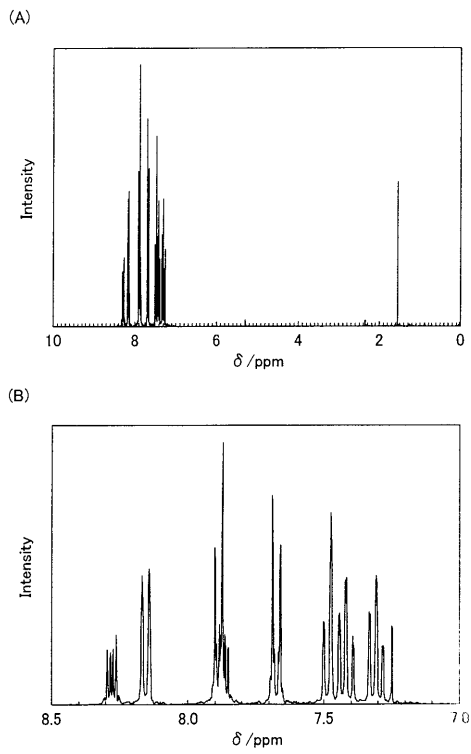
【 図 9 】



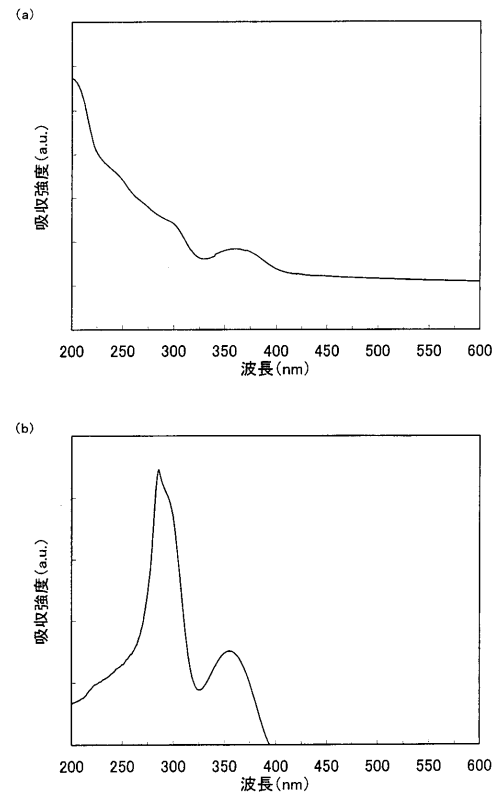
【 図 10 】



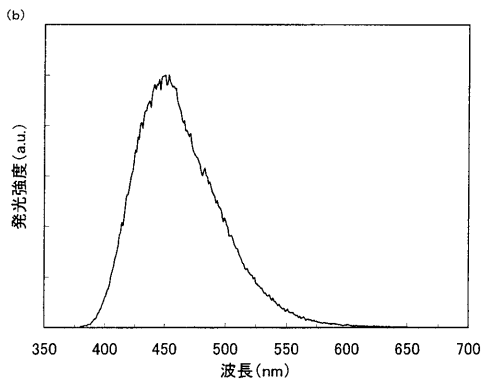
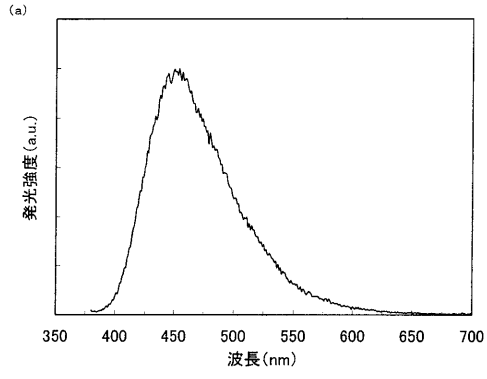
【 図 11 】



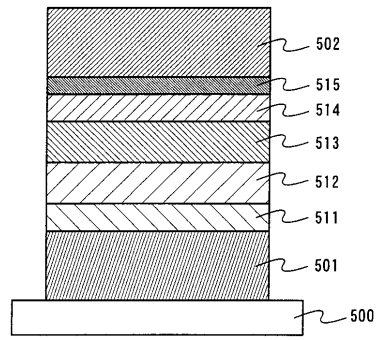
【 図 12 】



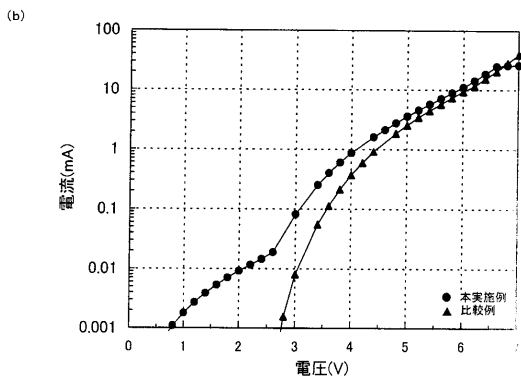
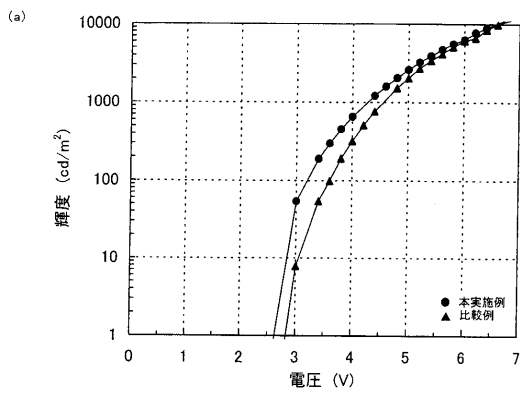
【図13】



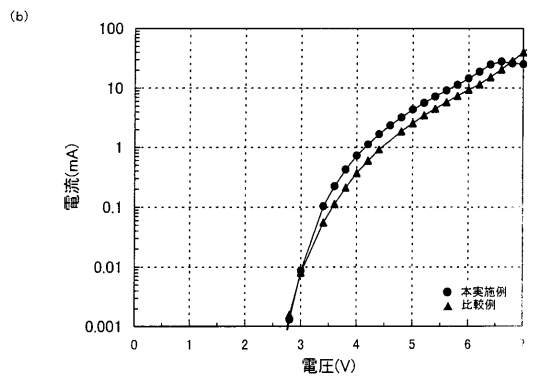
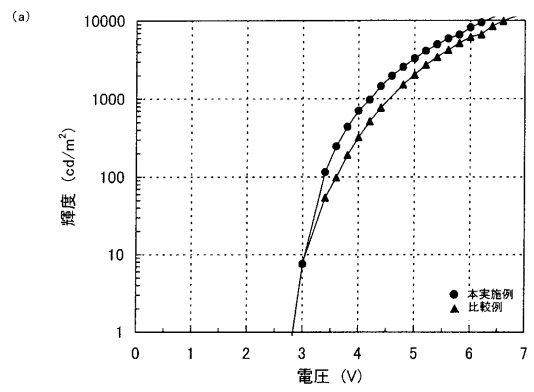
【図14】



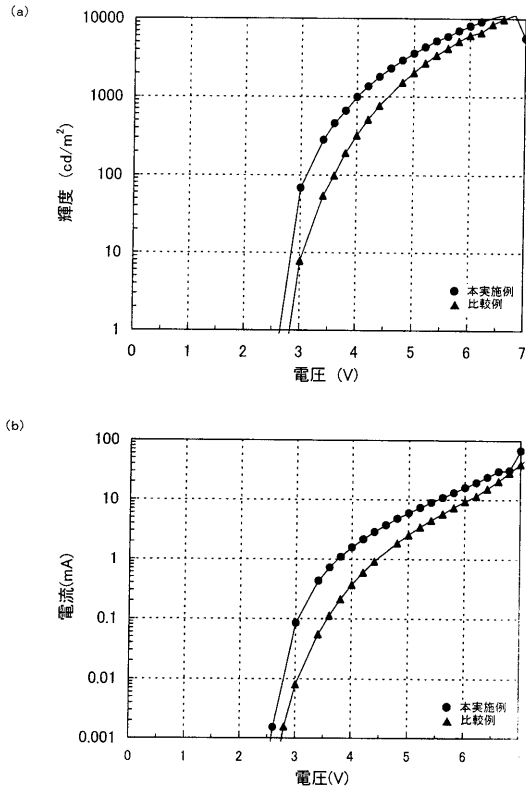
【図15】



【図16】



【 図 17 】



フロントページの続き

審査官 清水 紀子

- (56)参考文献 特開平07 - 053956 (JP, A)
特開2002 - 100479 (JP, A)
国際公開第2007 / 065678 (WO, A1)
特開2006 - 219394 (JP, A)
特表2004 - 500464 (JP, A)
MANCILHA, F.S. et al, Are molecular 5,8- -extended quinoxaline derivatives good chromophores for photoluminescence applications?, European Journal of Organic Chemistry, 2006年, No.21, p.4924-33
NG, P.K. et al, Quinoxaline-based conjugated polymers containing ruthenium(II) bipyridine metal complex, Macromolecular Rapid Communications, 1997年, Vol.18, No.12, p.1009-16
ALDAKOV, D. et al., Chem. Mater., 2005年, Vol.17, No.21, p.5238-41

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 241/42

C09K 11/06

H01L 51/50

CAPLUS / REGISTRY (STN)

JSTPlus / JMEDPlus / JST7580 (JDreamII)