

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-272805

(P2005-272805A)

(43) 公開日 平成17年10月6日(2005.10.6)

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C09K 11/06	C09K 11/06 620	3K007
C07C 211/61	C07C 211/61	4H006
H05B 33/14	H05B 33/14 B	
H05B 33/22	H05B 33/22 D	

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 32 頁)

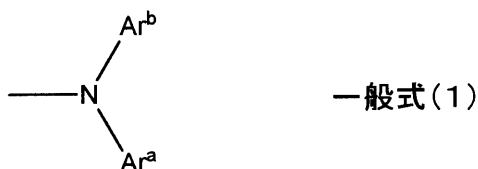
(21) 出願番号	特願2004-282959 (P2004-282959)	(71) 出願人	000002185 ソニー株式会社 東京都品川区北品川6丁目7番35号
(22) 出願日	平成16年9月29日(2004.9.29)	(74) 代理人	100086298 弁理士 船橋 國則
(31) 優先権主張番号	特願2004-47479 (P2004-47479)	(72) 発明者	松波 成行 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内
(32) 優先日	平成16年2月24日(2004.2.24)	(72) 発明者	高田 一範 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	Fターム(参考)	3K007 AB03 AB11 DB03 FA01 4H006 AA03 AB92

(54) 【発明の名称】 有機材料および有機電界発光素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 耐久性に優れた有機材料、およびこの有機材料を用いることにより発光寿命の向上が図られた有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 ベンゾフルオランテンの置換部位のうちの少なくとも一つが、下記一般式(1)で示される置換基で置換されていることを特徴とする有機電界発光素子用の有機材料。



10

〔一般式(1)中、Ar^a および Ar^b は、それぞれ独立に C30 以下のアリアル基を示す。また前記ベンゾフルオランテンにおける他の置換部位はそれぞれ独立に、水素、ハロゲン、ヒドロキシル基、C20 以下のカルボニル基、C20 以下のカルボニルエステル基、C20 以下のアルキル基、C20 以下のアルケニル基、C20 以下のアルコキシル基、C30 以下のアリアル基、C30 以下の複素環基、シアノ基、ニトロ基、またはシリル基で置換されている。〕

【選択図】 なし

20

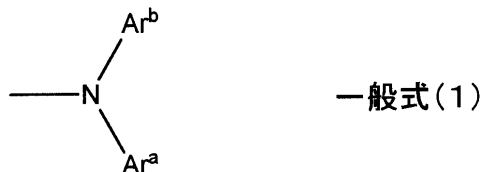
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ベンゾフルオランテンの置換部位のうちの少なくとも一つが、下記一般式(1)で示される置換基で置換されている

ことを特徴とする有機電界発光素子用の有機材料。

【化 1】



10

ただし、一般式(1)中、 Ar^a および Ar^b は、それぞれ独立に炭素数30以下の置換あるいは無置換のアリール基を示す。また前記ベンゾフルオランテンにおける他の置換部位はそれぞれ独立に、水素、ハロゲン、ヒドロキシル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のカルボニル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のカルボニルエステル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルキル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルケニル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルコキシル基、炭素数30以下の置換あるいは無置換のアリール基、炭素数30以下の置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基、ニトロ基、またはシリル基で置換されている。

20

【請求項 2】

請求項1記載の有機材料において、

前記ベンゾフルオランテンは、ベンゾ[k]フルオランテンである

ことを特徴とする有機材料。

【請求項 3】

請求項1記載の有機材料において、

前記一般式(1)で示される置換基を1つまたは2つ有する

ことを特徴とする有機材料。

【請求項 4】

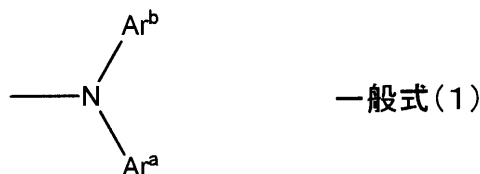
陽極と陰極との間に有機層を挟持してなる有機電界発光素子において、

前記有機層が、ベンゾフルオランテンの置換部位のうちの少なくとも一つを下記一般式(1)で示される置換基で置換してなる有機材料を用いて構成されている

ことを特徴とする有機電界発光素子。

30

【化 2】



40

ただし、一般式(1)中、 Ar^a および Ar^b は、それぞれ独立に炭素数30以下の置換あるいは無置換のアリール基を示す。また前記ベンゾフルオランテンにおける他の置換部位はそれぞれ独立に、水素、ハロゲン、ヒドロキシル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のカルボニル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のカルボニルエステル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルキル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルケニル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルコキシル基、炭素数30以下の置換あるいは無置換のアリール基、炭素数30以下の置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基、ニトロ基、またはシリル基で置換されている。

50

【請求項 5】

請求項 4 記載の有機電界発光素子において、
前記ベンゾフルオランテンは、ベンゾ [k] フルオランテンである
ことを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 6】

請求項 4 記載の有機電界発光素子において、
前記有機層が、前記一般式 (1) で示される置換基を 1 つまたは 2 つ有する
ことを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 7】

請求項 4 記載の有機電界発光素子において、
前記有機層が、前記有機材料を用いて構成された正孔輸送層を備えている
ことを特徴とする有機電界発光素子。

10

【請求項 8】

請求項 4 記載の有機電界発光素子において、
前記有機層が、前記有機材料を用いて構成された発光層を備えている
ことを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 9】

請求項 8 記載の有機電界発光素子において、
前記発光層に、前記有機材料が 30 体積 % 以下の割合で含まれている
ことを特徴とする有機電界発光素子。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機材料および有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、軽量で高効率のフラットパネルディスプレイが、例えばコンピュータやテレビジョンの画面表示用として盛んに研究、開発されている。最も代表的な表示装置であるブラウン管 (CRT) は、輝度が高く、色再現性が良いため、現在ディスプレイとして最も多く使われているが、嵩高く、重く、また消費電力も高いという問題がある。

30

【0003】

また、軽量で高効率のフラットパネルディスプレイとして、アクティブマトリクス駆動などの液晶ディスプレイが商品化されている。しかしながら、液晶ディスプレイは、視野角が狭く、また、自発光でないため周囲が暗い環境下ではバックライトの消費電力が大きいことや、今後実用化が期待されている高精細度の高速ビデオ信号に対して十分な応答性能を有しない等の問題点がある。特に、大画面サイズのディスプレイを製造することは困難であり、そのコストが高い等の課題もある。

【0004】

そこで、これらの諸課題を解決する可能性のあるフラットパネルディスプレイとして、最近、有機材料を用いた有機電界発光素子 (いわゆる有機 EL 素子) が注目されている。即ち、発光材料として有機化合物を用いることにより、自発光で、応答速度が高速であり、視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの実現が期待されている。

40

【0005】

一般的な有機電界発光素子の構成は、透光性の陽極と金属材料からなる陰極との間に、電流を流すことによって発光する有機材料を含む有機層を挟持してなる。この有機電界発光素子の歴史的背景としては、まず、有機層を正孔輸送性材料からなる薄膜と電子輸送性材料からなる薄膜との 2 層構造とし、この有機層を挟む状態で設けられた陽極および陰極から、有機層中にそれぞれ注入された正孔 (ホール) と電子とが再結合することにより発光する素子構造が開発された (例えば、下記非特許文献 1 参照)。

【0006】

50

その後、有機層が、正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料の3層構造からなる有機電界発光素子が開発され（例えば、下記非特許文献2参照）、さらに電子輸送材料中に発光材料を含ませた素子構造などが開発された（例えば、下記非特許文献3参照）。これらの研究により、有機電界発光素子において、低電圧で、高輝度の発光の可能性が検証され、近年、研究開発が非常に活発に行われている。

【0007】

図1は、このような有機電界発光素子の一構成例を示す断面図である。この図に示す有機電界発光素子1は、例えばガラス等からなる透明な基板2上に設けられており、基板2上に設けられたITO（Indium Tin Oxide：透明電極）からなる陽極3、陽極3上に設けられた有機層4、および有機層4上に設けられた陰極5により構成されている。有機層4は、陽極3側から、正孔注入層4a、正孔輸送層4bおよび電子輸送性の発光層4cを順次積層させた構成を有している。この有機電界発光素子1では、陰極5から注入された電子と陽極3から注入された正孔とが発光層4cにて再結合し、この再結合の際に生じる光が陽極3を介して基板2側から取り出される。

10

【0008】

有機電界発光素子1としては、このような構成を有するものの他に、基板側から順に、陰極、有機層、陽極を順次積層した構成のものや、上方に位置する電極（陰極または陽極としての上部電極）を透明材料で構成することによって、基板と反対側の上部電極側から光を取り出すようにした、いわゆる上面発光型の有機電界発光素子もある。

【0009】

特に、基板上に薄膜トランジスタ（Thin Film Transistor：TFT）を設けてなるアクティブマトリックス型の表示装置においては、TFTが形成された基板上に上面発光型の有機電界発光素子を設けた、いわゆるTAC（Top Emitting Adoptive Current drive）構造とすることが、発光部の開口率を向上させる上で有利になる。

20

【0010】

そして、このような構成の有機電界発光素子における有機材料については様々な検討がなされており、特に青色発色材料についてはスチリルアレンもしくはアントラセン誘導体について改良が進められてきた（例えば、下記非特許文献4参照）。

【0011】

また、青色から緑色の有機材料として、フルオランテン構造を有する有機材料の報告がなされている。その代表的な誘導体としてはアミノ基やアリール基を有するフルオランテンが示されている（例えば、下記特許文献1～4）。また、置換基としてアルキル部位もしくはアリール部位を有するベンゾフルオランテン誘導体も開示されている（例えば特許文献5）。

30

【0012】

【非特許文献1】Applied Physics Letters（米）1987年，第51巻，12号，p．913 - 915

【非特許文献2】Japanese Journal of Applied Physics，1988年，第27巻，2号，p．269 - 271

【非特許文献3】Journal of Applied Physics（米）1989年，第65巻，9号，p．3610 ~ 3616

40

【非特許文献4】Materials Science and Engineering: R: Reports Volume 39, Issues 5-6, Pages 143-222, 2002

【特許文献1】特開平10 - 125467号公報

【特許文献2】特開平10 - 189248号公報

【特許文献3】特開2002 - 43058号公報

【特許文献4】特開2003 - 81924号公報

【特許文献5】特開平10 - 189247号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

50

【0013】

ところで、上述した有機電界発光素子は自発光素子であるため、この有機電界発光素子を用いて表示装置を構成する場合、有機電界発光素子の長寿命化および信頼性の確保が最も重要な課題の一つである。このため、上述したように、有機電界発光素子を構成する有機材料に関する研究が進められているものの、発光効率や発光寿命においては実用性に達するものは未だになく、素子物性に優れた更なる改良が求められている。

【0014】

そこで本発明は、有機電界発光素子の有機層を構成する有機材料としての耐久性に優れた有機材料を提供すること、およびこの有機材料を用いることにより発光寿命の向上が図られた有機電界発光素子を提供することを目的とする。

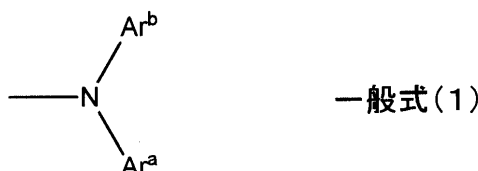
10

【課題を解決するための手段】

【0015】

このような目的を達成するための本発明の有機材料は、有機電界発光素子用の有機材料であり、ベンゾフルオランテンの置換部位のうちの少なくとも一つが、下記一般式(1)で示される置換基で置換されているものである。

【化3】



20

【0016】

ただし、一般式(1)中、 Ar^a および Ar^b は、それぞれ独立に炭素数30以下の置換あるいは無置換のアリール基を示す。このアリール基としては、芳香環が窒素原子を含むものであっても良い。

【0017】

そして一般式(1)中における Ar^a および Ar^b のアリール基における各置換部位に置換される置換基としては、アルキル基、環状アルキル基、アリール基、複素環基またはアミノ基から選ばれるものであり、 Ar^a および Ar^b が、それぞれ独立に炭素数30以下に保たれれば、これらの置換基がさらにアルキル基、環状アルキル基、アリール基、複素環基またはアミノ基から選ばれた置換基で置換されていても良い。

30

【0018】

このような一般式(1)で示される置換基(芳香族アミノ基)は、有機材料中に1つまたは2つ含まれていることが好ましい。

【0019】

また前記ベンゾフルオランテンにおける、一般式(1)で置換されている以外の他の置換部位は、それぞれ独立に、水素、ハロゲン、ヒドロキシル基、炭素数20以下の置換あるいは未置換のカルボニル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のカルボニルエステル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルキル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルケニル基、炭素数20以下の置換あるいは無置換のアルコキシ基、炭素数30以下の置換あるいは無置換のアリール基、炭素数30以下の置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基、ニトロ基、またはシリル基で置換されている。

40

【0020】

このうち、カルボニル基は、アルデヒド基、ケトン基およびカルボキシ基を含む。そして、アルキル基は、直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基を含む。

【0021】

尚、上述した置換基を有しても良い基、すなわち、カルボニル基、カルボニルエステル基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アリール基、および複素環基に対する

50

置換基としては、ハロゲン、ヒドロキシル基、カルボニル基、カルボニルエステル基、環状アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、シアノ基、ニトロ基、またはシリル基を挙げることができる。

【0022】

尚、ベンゾフルオランテンは、ベンゾ[*k*]フルオランテンであることが好ましい。

【0023】

また、本発明は、このような有機材料を用いた有機電界発光素子（有機EL素子）でもある。有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に有機層を挟持してなり、この有機層が上記一般式（1）の芳香族アミノ基で置換されたベンゾフルオランテン化合物からなる有機材料を用いて構成されている。さらに詳しくは、有機層が、このようなベンゾフルオランテン化合物からなる有機材料を用いて構成された正孔輸送層や発光層を備えている。尚、発光層における、当該有機材料の含有率は、30体積%以下であることが好ましい。

10

【0024】

以上のような構成の本発明の有機材料は、上記ベンゾフルオランテン構造を分子内に有するため、熱的な物性が良好であり、外部からの力や熱的な耐久性に優れており、電圧による変動力にも安定性を有している。また、この有機材料は、芳香族アミン化合物の形態となっていることから、良好な正孔輸送性が得られる。さらに、フルオランテン特有の高い蛍光性に基づく緑色の電界発光が得られる。

【0025】

したがって、このような有機材料を用いて有機層を構成した本発明の有機電界発光素子は、長時間駆動において有機層の耐久性が優れたものになる。また、特に有機層のうちの正孔輸送層にこの有機材料を用いることにより、正孔輸送層における正孔輸送性が向上し発光効率の向上が図られる。そして、この有機材料を有機層のうちの発光層に用いた場合には、緑色の発光領域において優れた発光特性を示すものともなる。

20

【発明の効果】

【0026】

以上説明したように、本発明の有機材料を有機電界発光素子の有機層に用いることにより、有機層の耐久性の向上を図ることができるため、有機電界発光素子における発光寿命の向上を図ることが可能になる。そして特に、有機層を構成する発光層に、この有機材料を用いることにより、緑色の発光領域において発光効率の向上を図ることが可能になる。この結果、この有機電界発光素子と共に、赤色発光素子および青色発光素子を1組にして画素を構成することにより、色再現性の高いフルカラー表示が可能になる。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0027】

以下、本発明の有機材料および有機電界発光素子の構成をさらに詳しく説明する。

【0028】

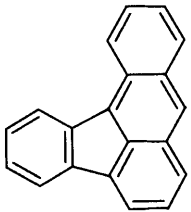
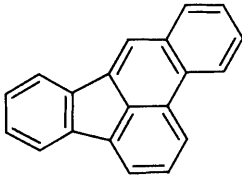
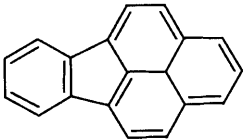
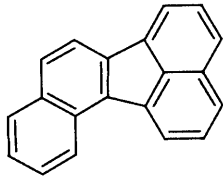
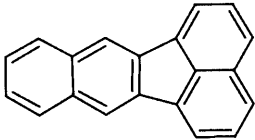
<有機材料>

本発明の有機材料は、ベンゾフルオランテンの置換部位のうちの少なくとも一つが、上述した一般式（1）で示される芳香族アミノ基で置換されている芳香族アミン系のベンゾフルオランテン化合物である。ベンゾフルオランテン化合物は、その母骨格となるフルオランテン部位に対してベンゼン環が縮合する位置によって取り得る骨格が種々存在し、例えば下記表1の骨格（1）～（5）に示すように、ベンゾ[*k*]フルオランテン誘導体、ベンゾ[*b*]フルオランテン誘導体、ベンゾ[*j*]フルオランテン誘導体、ベンゾ[*a*]フルオランテン誘導体、またはベンゾ[*g h i*]フルオランテン誘導体などが挙げられる。中でも、工業的製造上の観点からすれば、ベンゾ[*k*]フルオランテン誘導体を用いることが好ましい。

40

【0029】

【表 1】

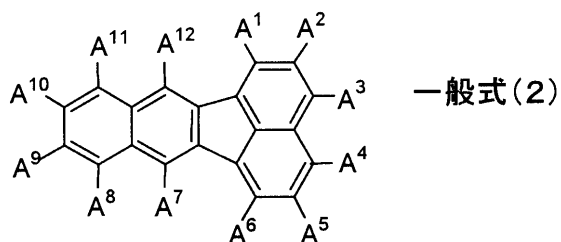
骨格(1)	 <p>ベンゾ[a] フルオランテン</p>	骨格(2)	 <p>ベンゾ[b] フルオランテン</p>	10
骨格(3)	 <p>ベンゾ[ghi] フルオランテン</p>	骨格(4)	 <p>ベンゾ[j] フルオランテン</p>	20
骨格(5)	 <p>ベンゾ[k] フルオランテン</p>			30

【0030】

そして、本発明の有機材料として示されるベンゾ[k]フルオランテン誘導体は、下記一般式(2)に示すベンゾ[k]フルオランテン骨格のうち、 $A^1 \sim A^{12}$ の少なくとも1

40

【化4】



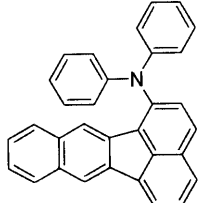
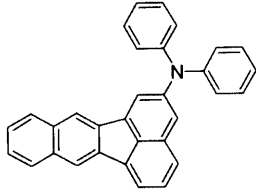
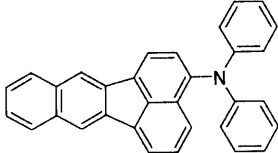
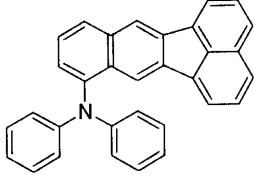
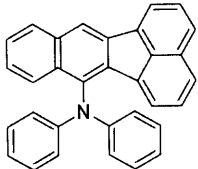
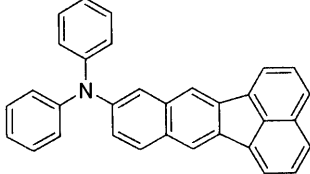
50

【0031】

具体的には、下記表2の構造式(1)~(6)に示すように、ベンゾ[k]フルオランテンの各置換部位を、上記一般式(1)で示される芳香族アミノ基の1つであるジフェニルアミンで置換したN,N-ジフェニルアミノ-ベンゾ[k]フルオランテンを例示できる。

【0032】

【表2】

構造式(1)		構造式(2)	
構造式(3)		構造式(4)	
構造式(5)		構造式(6)	

10

20

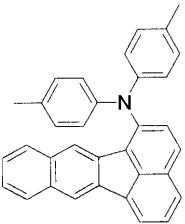
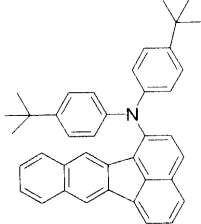
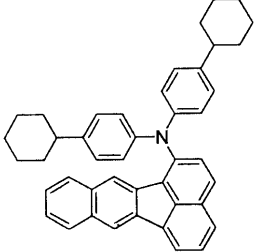
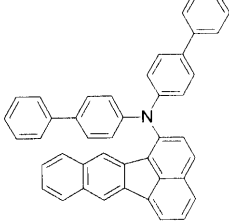
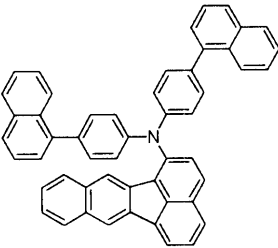
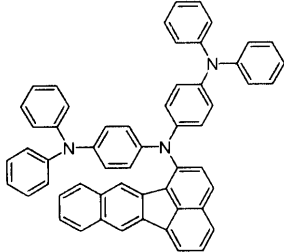
【0033】

そして、下記表3の構造式(7)~(12)に示すように、ベンゾフルオランテンの各置換部位を置換する上記一般式(1)の芳香族アミノ基(ここではジフェニルアミノ基)が、さらに他の置換基で置換されていても良い。尚、構造式(7)~(12)においては、上記一般式(2)のベンゾ[k]フルオランテンにおけるA¹の部位を芳香族アミノ基で置換した例を示した。そして、構造式(7)は、ジフェニルアミノ基が直鎖上アルキル基で置換されている例を示し、構造式(8)はジフェニルアミノ基が分岐鎖状アルキル基で置換されている例を示し、構造式(12)はジフェニルアミノ基がさらに芳香族アミノ基(ジフェニルアミノ基)で置換されている例を示した。

30

【0034】

【表 3】

構造式(7)		構造式(8)	
構造式(9)		構造式(10)	
構造式(11)		構造式(12)	

10

20

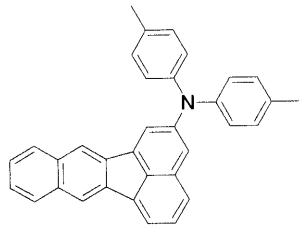
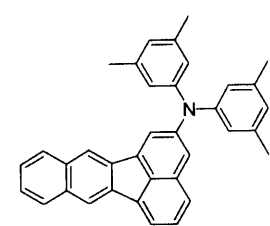
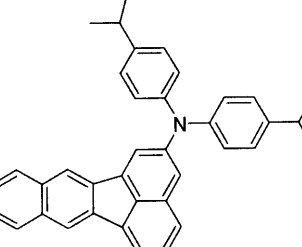
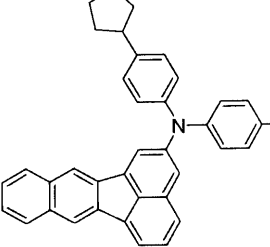
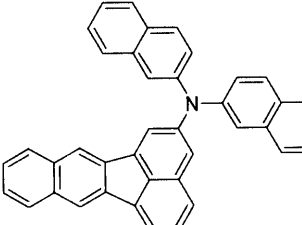
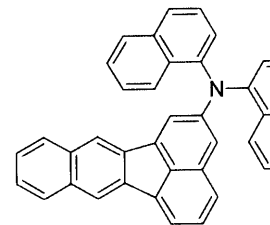
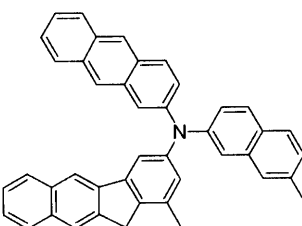
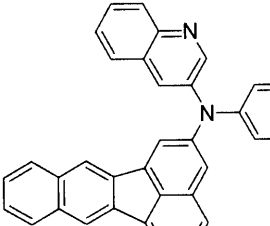
【0035】

また、下記表 4 の構造式 (13) ~ (20) に示すように、以上のような置換形態は、ベンゾ [k] フルオランテンの他の置換部位を、上記一般式 (1) の芳香族アミノ基で置換する場合であっても同様である。これらの構造式 (13) ~ (20) では、上記一般式 (2) のベンゾ [k] フルオランテンにおける A² の部位を芳香族アミノ基で置換した例を示した。また、構造式 (17) ~ (20) に示すようにベンゾフルオランテンの各置換部位を置換する芳香族アミノ基は、ジフェニルアミンに限定されることはない。特に、構造式 (20) に示すように、ベンゾフルオランテンの各置換部位を置換する芳香族アミノ基は、芳香族性を有する基であれば、芳香環が窒素原子を含むものであっても良い。

30

【0036】

【表 4】

構造式(13)		構造式(14)	
構造式(15)		構造式(16)	
構造式(17)		構造式(18)	
構造式(19)		構造式(20)	

10

20

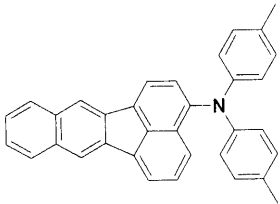
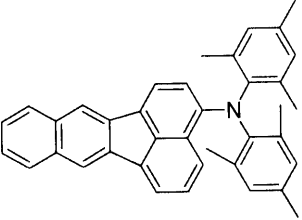
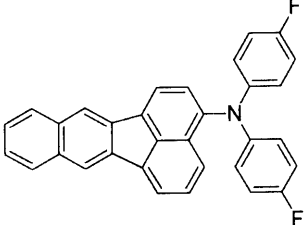
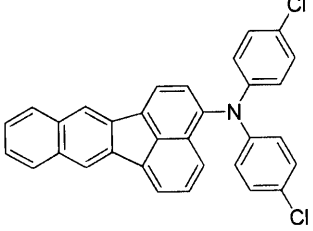
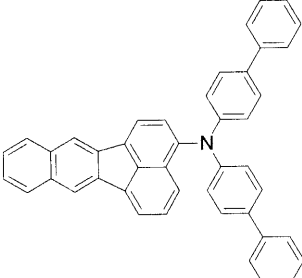
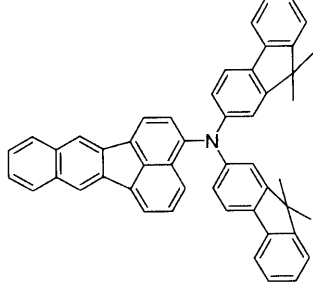
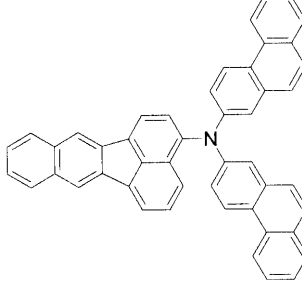
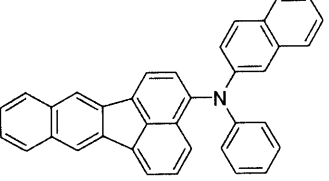
30

【0037】

下記表5の構造式(21)~(28)には、上記一般式(2)のベンゾ[k]フルオランテンにおけるA³の部位が芳香族アミノ基で置換された例を示した。

【0038】

【表 5】

構造式(21)		構造式(22)	
構造式(23)		構造式(24)	
構造式(25)		構造式(26)	
構造式(27)		構造式(28)	

10

20

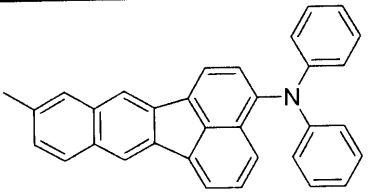
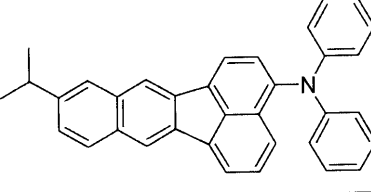
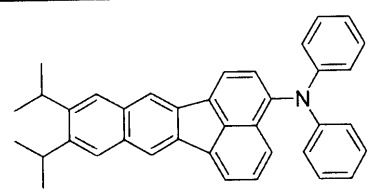
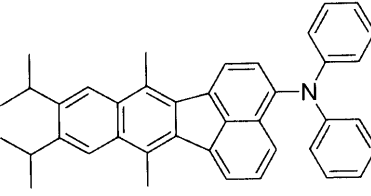
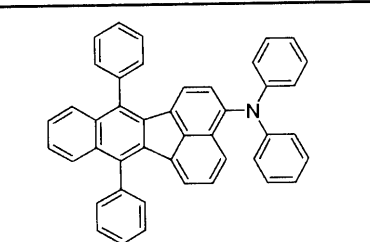
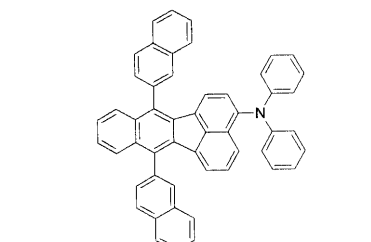
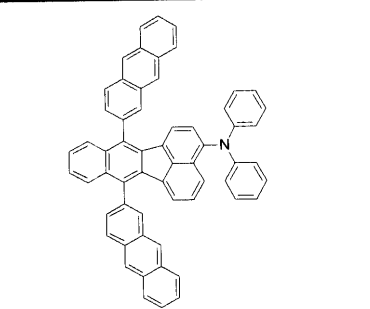
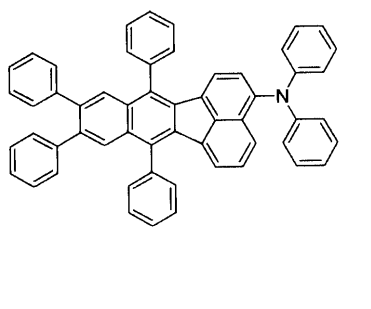
30

【0039】

下記表6の構造式(29)~(36)には、上記一般式(2)のベンゾ[k]フルオランテンにおけるA³の部位が芳香族アミノ基で置換され、さらに他の部位が他の置換基で置換された例を示した。

【0040】

【表 6】

構造式(29)		構造式(30)	
構造式(31)		構造式(32)	
構造式(33)		構造式(34)	
構造式(35)		構造式(36)	

10

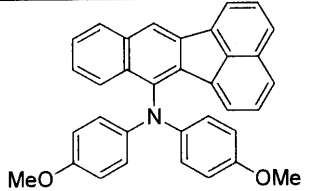
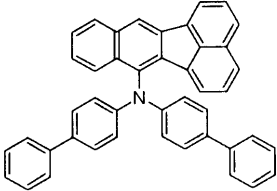
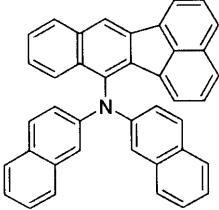
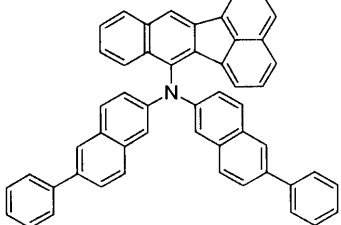
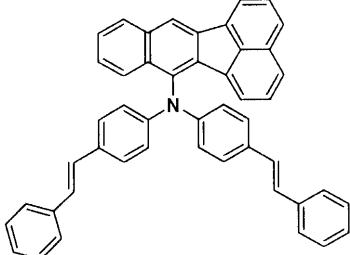
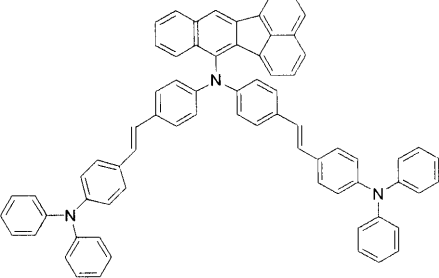
20

30

【0041】

下記表7の構造式(37)~(42)には、上記一般式(2)のベンゾ[k]フルオランテンにおけるA⁷の部位を芳香族アミノ基で置換した例を示した。

【表 7】

構造式 (37)		構造式 (38)	
構造式 (39)		構造式 (40)	
構造式 (41)		構造式 (42)	

10

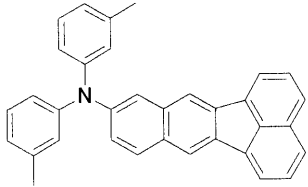
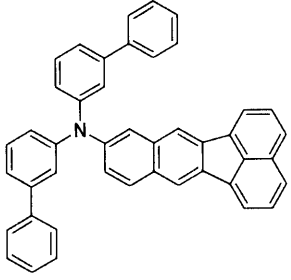
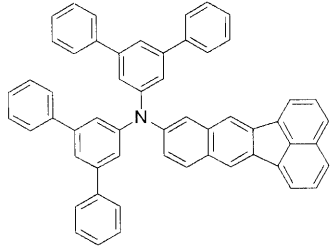
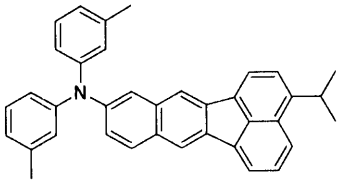
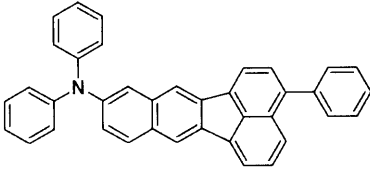
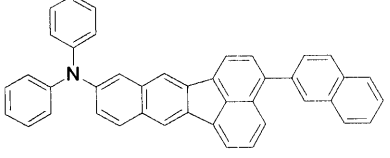
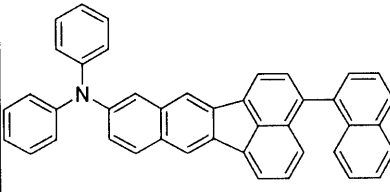
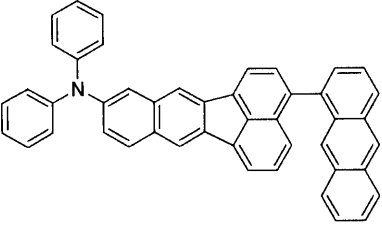
20

【0042】

下記表 8 の構造式 (43) ~ (50) には、上記一般式 (2) のベンゾ [k] フルオランテンにおける A⁹ の部位を芳香族アミノ基で置換した例を示した。特に構造式 (46) ~ (50) には、さらに他の部位が他の置換基で置換された例を示した。

【0043】

【表 8】

構造式(43)		構造式(44)	
構造式(45)		構造式(46)	
構造式(47)		構造式(48)	
構造式(49)		構造式(50)	

10

20

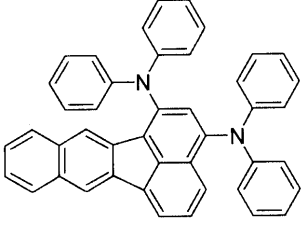
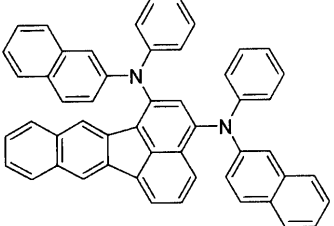
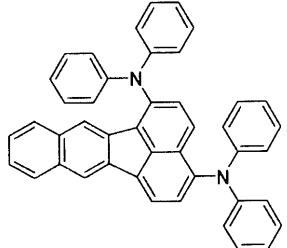
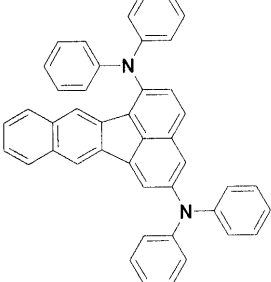
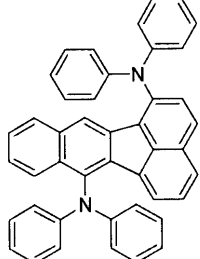
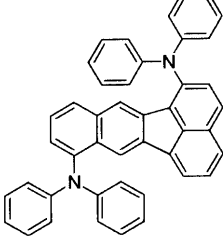
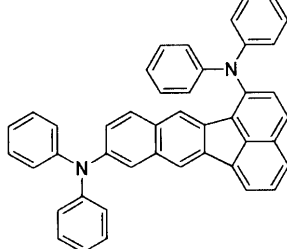
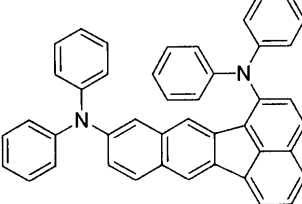
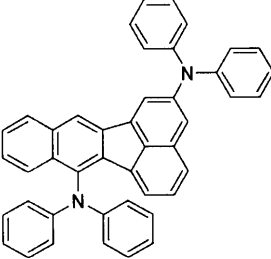
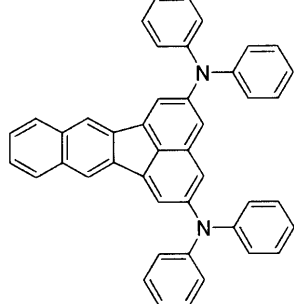
30

【0044】

そして、下記表9～表11の構造式(51)～(78)に示すように、ベンゾ[k]フルオランテンにおける複数の置換部位が上記一般式(1)で示される芳香族アミノ基で置換されていても良い。

【0045】

【表 9】

構造式(51)		構造式(52)	
構造式(53)		構造式(54)	
構造式(55)		構造式(56)	
構造式(57)		構造式(58)	
構造式(59)		構造式(60)	

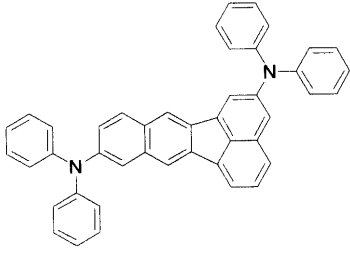
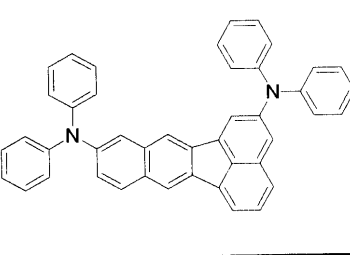
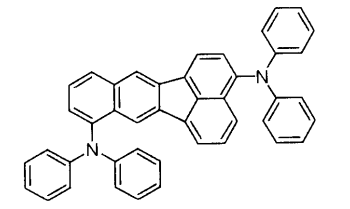
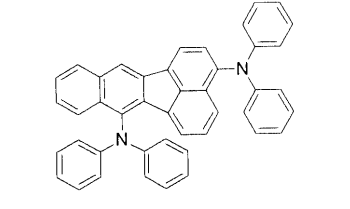
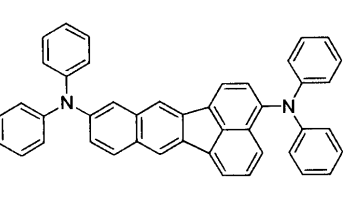
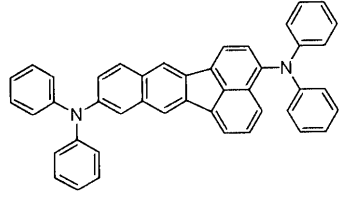
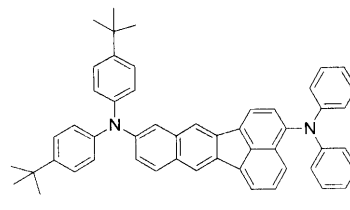
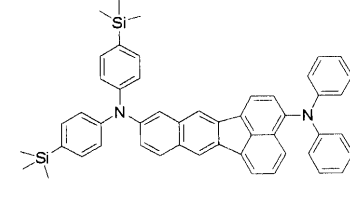
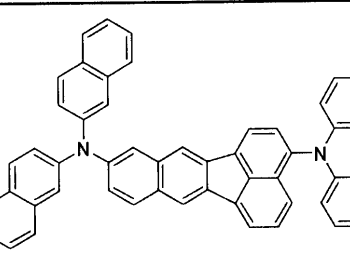
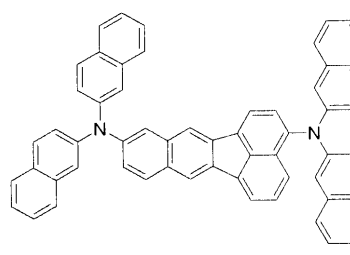
10

20

30

40

【表 10】

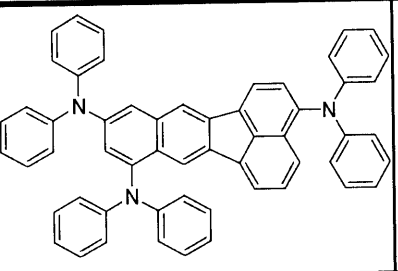
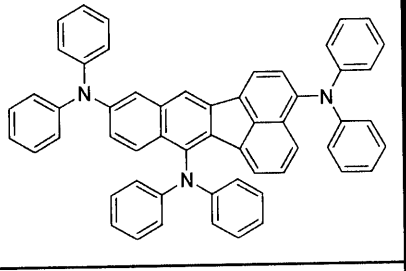
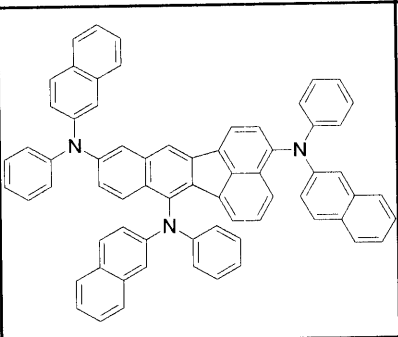
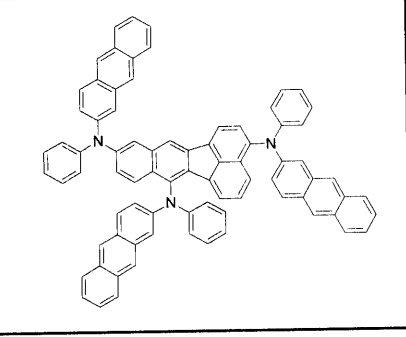
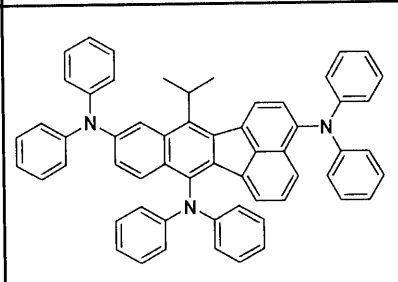
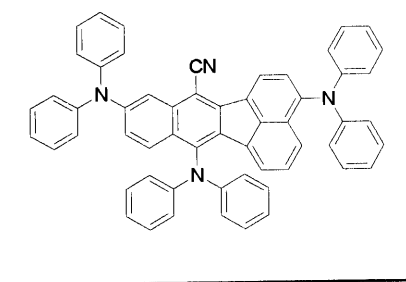
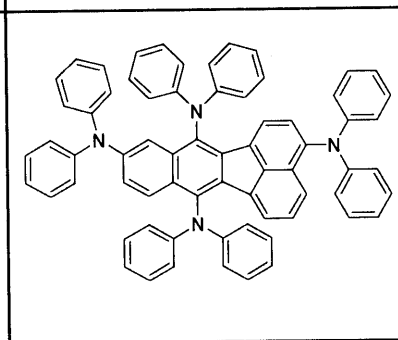
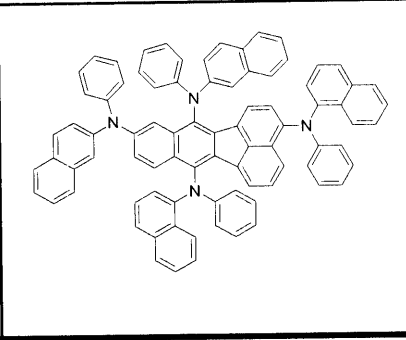
構造式(61)		構造式(62)	
構造式(63)		構造式(64)	
構造式(65)		構造式(66)	
構造式(67)		構造式(68)	
構造式(69)		構造式(70)	

10

20

30

【表 1 1】

構造式(71)		構造式(72)	
構造式(73)		構造式(74)	
構造式(75)		構造式(76)	
構造式(77)		構造式(78)	

10

20

30

【0046】

以上については、ベンゾ[k]フルオランテン骨格を例に取り、本発明の有機材料におけるベンゾフルオランテンの置換形態の具体的な構造を例示したが、このような置換形態は、他のベンゾフルオランテン骨格にも同様に適用される。

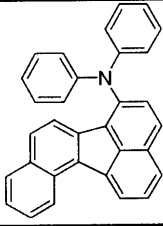
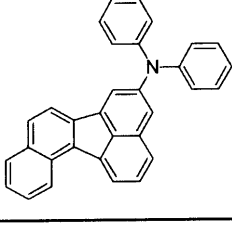
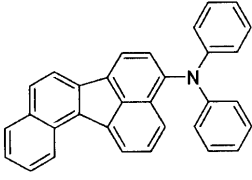
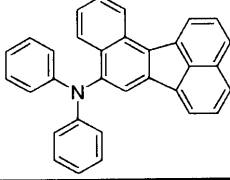
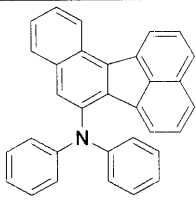
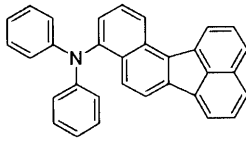
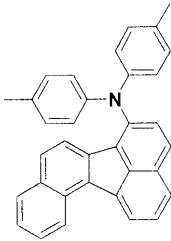
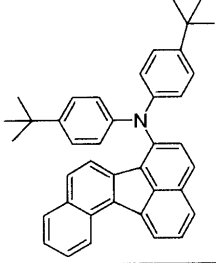
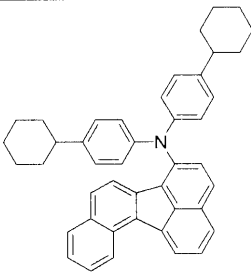
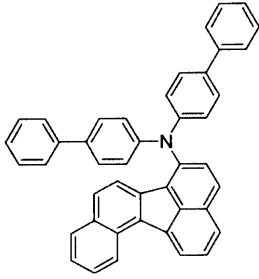
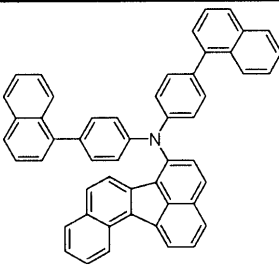
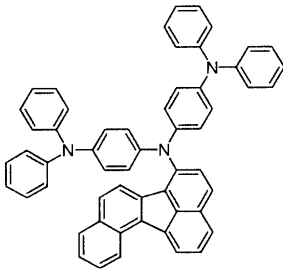
【0047】

例えば下記表12～表15の構造式(79)～(118)には、ベンゾ[j]フルオランテン誘導体の例を示したが、他のベンゾフルオランテン骨格の誘導体についても、上述した置換形態が適用される。

【0048】

40

【表 1 2】

構造式(79)		構造式(80)	
構造式(81)		構造式(82)	
構造式(83)		構造式(84)	
構造式(85)		構造式(86)	
構造式(87)		構造式(88)	
構造式(89)		構造式(90)	

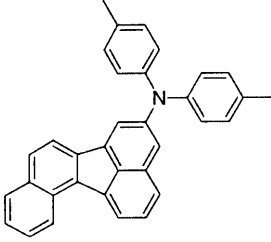
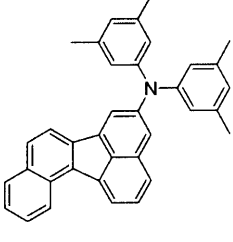
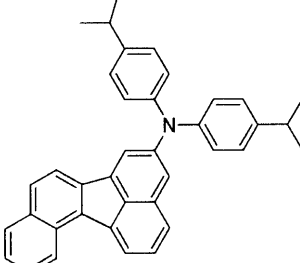
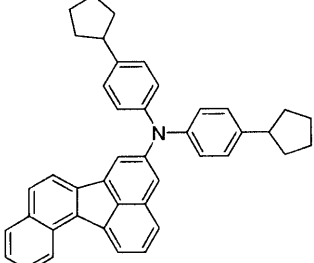
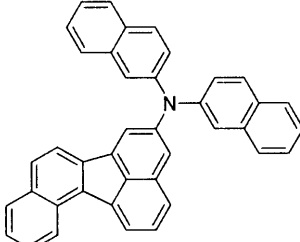
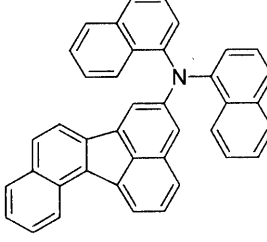
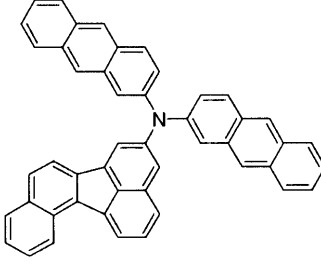
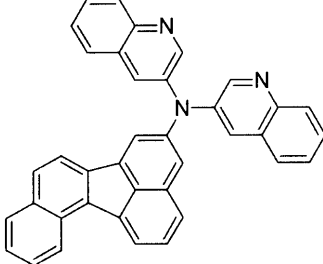
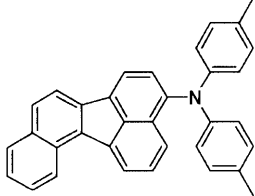
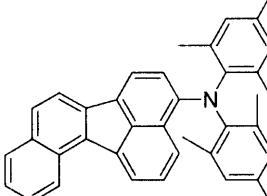
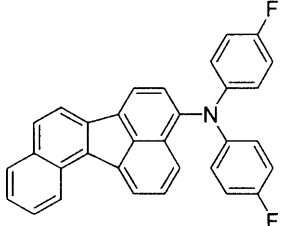
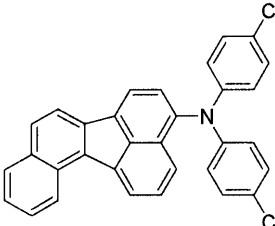
10

20

30

40

【表 1 3】

構造式(91)		構造式(92)	
構造式(93)		構造式(94)	
構造式(95)		構造式(96)	
構造式(97)		構造式(98)	
構造式(99)		構造式(100)	
構造式(101)		構造式(102)	

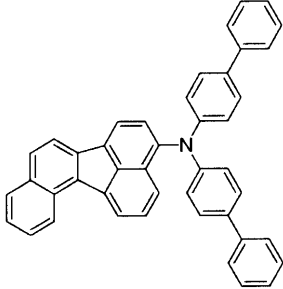
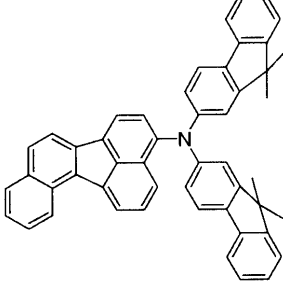
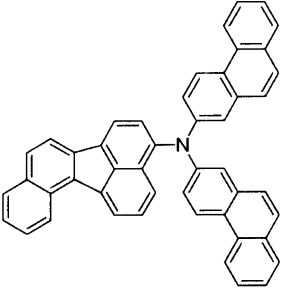
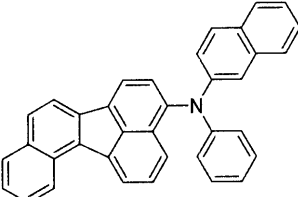
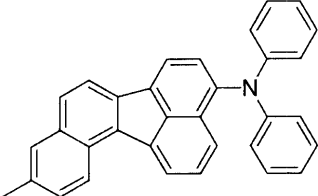
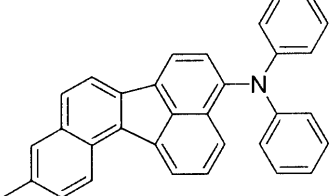
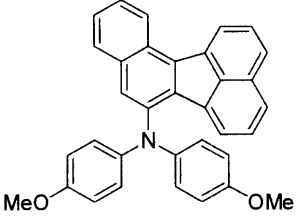
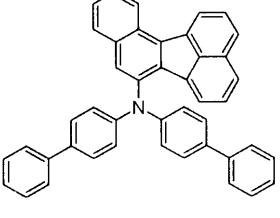
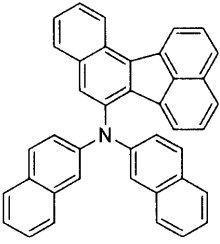
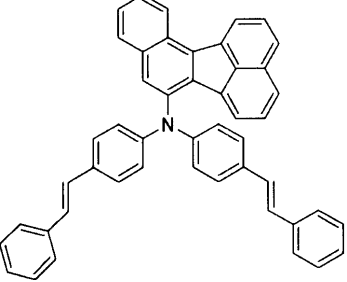
10

20

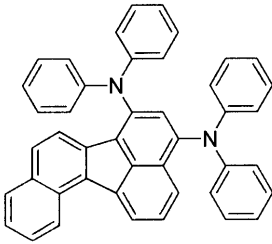
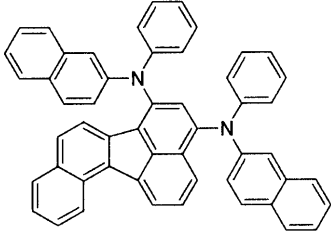
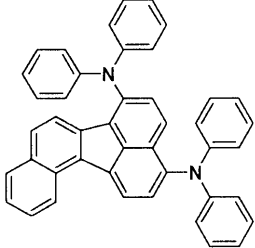
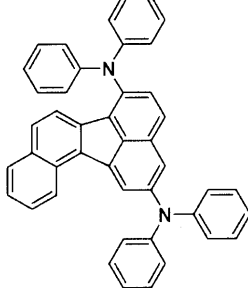
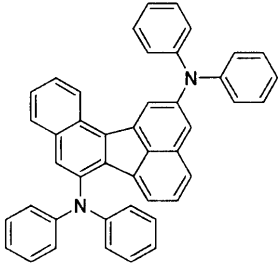
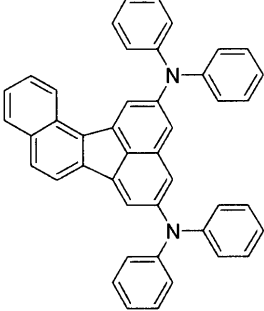
30

40

【表 1 4】

構造式 (103)		構造式 (104)		10
構造式 (105)		構造式 (106)		20
構造式 (107)		構造式 (108)		30
構造式 (109)		構造式 (110)		40
構造式 (111)		構造式 (112)		

【表 15】

構造式 (113)		構造式 (114)		10
構造式 (115)		構造式 (116)		20
構造式 (117)		構造式 (118)		

【0049】

以上で一例を示した本発明の有機材料は、種々の方法によって合成が可能であり、例えば次の1)、2)の方法が例示される。

- 1) ハロゲン化されたベンゾフルオランテンとアリールアミンとを銅触媒存在下でウルマン反応によってカップリングさせる方法。
- 2) ハロゲン化されたベンゾフルオランテンとアリールアミンとをパラジウム触媒存在下でカップリングさせる方法。

【0050】

尚、本発明のベンゾフルオランテン化合物からなる有機材料は、有機電界発光素子の有機層を構成する材料として用いられるものであり、有機電界発光素子の製造プロセスに供する前に純度を高めておくことが好ましく、該純度が95%以上、より好ましくは99%以上とするのがよい。かかる高純度の有機化合物を得る方法としては有機化合物の合成後の精製である再結晶法、再沈殿法、もしくはシリカやアルミナを用いたカラム精製のほかに、昇華精製やゾーンメルト法による公知の高純度化方法を用いることができる。

【0051】

また、これらの精製方法を繰り返し行うことや異なる精製法を組み合わせることで本発明における有機材料中の未反応物、反応副生成物、触媒残渣、もしくは残存溶媒などの混合物を低減させ、よりデバイス特性の優れた有機電界発光素子を得ることが可能となる。

【0052】

さらに本化合物は、光や酸素といった外因から以下に掲げるa)~c)の保管方法をとることによって、その酸化、分解からの劣化反応を抑制し、特にこの有機材料を用いて構

30

40

50

成される有機電界発光素子において、より優れた発光特性をもたらすことだけでなく、製造装置の負荷の軽減などに効果を発揮する。

a) 有機材料を合成した後、速やかに冷所に静置させる。その保管温度は - 100 から 100 の範囲が好ましく、より好ましくは - 50 から 50 の温度範囲で保管させる。

b) 有機材料を合成した後、速やかに遮光性を有する容器に保管する。

c) 有機材料を合成した後、合成した有機材料を窒素、二酸化炭素、アルゴンなどの不活性ガス雰囲気下で保管する。

【0053】

以上説明した本発明の有機材料は、ベンゾフルオランテン構造を分子内に有するため、熱的な物性が良好であり、外部からの力や熱的な耐久性に優れており、電圧による変動力にも安定性を有している。また、この有機材料は、芳香族アミン化合物の形態となっていることから、良好な正孔輸送性が得られる。さらに、フルオランテン特有の高い蛍光性に基づく緑色の電界発光が得られる。

10

【0054】

したがって、このような構造の有機材料を、次に説明する有機電界発光素子の有機層に用いることにより、有機層の耐久性の向上を図り有機電界発光素子における発光寿命の向上を図ることが可能になると共に、特に青色から緑色の発光領域にわたる発光効率の向上を図ることが可能になる。

【0055】

また、このベンゾフルオランテンに、上述したように炭素数を規定した適切な置換基を導入することによって、発光効率と発光寿命の向上をさらに図ることが可能になる。

20

【0056】

また、本発明に基づくベンゾフルオランテン化合物からなる有機材料は、電子輸送性能と正孔輸送性能の両方を持つ。このため、以下に詳しく説明するように、有機電界発光素子の有機層のうち、電子輸送層を兼ねた発光層としても、或いは正孔輸送層と兼ねた発光層としても用いることが可能である。そして上述したように特に正孔輸送性が良好であるため、正孔輸送層を構成する材料として好適に用いることができる。また、本発明に基づくベンゾフルオランテン化合物を発光層として、電子輸送層と正孔輸送層とで挟み込んだ構成とすることも可能である。

30

【0057】

<有機電界発光素子>

次に、上述した有機材料を用いた有機電界発光素子(有機EL素子)の構成を、図2に基づいて詳細に説明する。

【0058】

図2に示す有機電界発光素子11は、基板12上に陽極13、有機層14、および陰極15をこの順に積層してなり、基板12と反対側から光を取り出す上面発光型の素子として構成されている。

【0059】

ここで、基板12は、その一主面側に有機電界発光素子11が配列形成される支持体であって、公知のものであって良く、例えば、石英、ガラス、金属箔、もしくは樹脂製のフィルムやシートなどが用いられるこの中でも石英やガラスが好ましく、樹脂製の場合には、その材質としてポリメチルメタクリレート(PMMA)に代表されるメタクリル樹脂類、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリブチレンナフタレート(PBN)などのポリエステル類、もしくはポリカーボネート樹脂などが挙げられるが、透水性や透ガス性を抑える積層構造、表面処理を行うことが必要である。

40

【0060】

この基板12上に設けられる陽極13には、効率良く正孔を注入するために電極材料の真空準位からの仕事関数が大きいもの、例えばクロム(Cr)、モリブデン(Mo)、タ

50

ングステン (W)、銅 (Cu)、銀 (Ag)、金 (Au)、酸化スズ (SnO₂) とアンチモン (Sb) との合金、酸化亜鉛 (ZnO) とアルミニウム (Al) との合金、さらにはこれらの金属や合金の酸化物等が、単独または混在させた状態で用いられる。この陽極 13 は例えばスパッタリング法等により作製することができる。

【0061】

そして、この有機電界発光素子 11 を用いて構成される表示装置の駆動方式がアクティブマトリクス方式である場合には、陽極 13 は画素毎にパターンニングされ、基板 12 に設けられた駆動用の薄膜トランジスタに接続された状態で設けられている。また、この陽極 13 の上には、ここでの図示を省略したが絶縁膜が設けられ、この絶縁膜の開口部から、各画素の陽極 13 の表面が露出されるように構成されていることとする。

10

【0062】

そして、この陽極 13 上に設けられた有機層 14 が、本発明に特有の有機材料を用いて構成された層となる。この有機層 14 は、例えば陽極 13 側から順に、正孔注入層 14 a、正孔輸送層 14 b、発光層 14 c、および電子輸送層 14 d の 4 層を積層してなるものである。

【0063】

そして、本発明の有機電界発光素子 11 においては、正孔輸送層 14 b、発光層 14 c、および電子輸送層 14 d の少なくとも一層が、上述した有機材料を用いて構成されているのである。特に、発光層 14 c が、上述した有機材料を用いて構成されることが好ましい。

20

【0064】

ここで、正孔注入層 14 a および正孔輸送層 14 b は、それぞれ発光層 14 c への正孔注入効率を高めるためのものである。このような正孔注入層 14 a、もしくは正孔輸送層 14 b の材料としては、例えば、ベンジン、スチリルアミン、トリフェニルアミン、ポルフィリン、トリアゾール、イミダゾール、オキサジアゾール、ポリアリーールアルカン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、オキサゾール、アントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、あるいはこれらの誘導体、またはポリシラン系化合物、ビニルカルバゾール系化合物、チオフェン系化合物あるいはアニリン系化合物等の複素環式共役系のモノマー、オリゴマーあるいはポリマーを用いることができる。

【0065】

具体的には、
 - ナフチルフェニルフェニレンジアミン、ポルフィリン、金属テトラフェニルポルフィリン、金属ナフトロシアニン、4, 4, 4 - トリス (3 - メチルフェニルフェニルアミノ) トリフェニルアミン、N, N, N', N' - テトラキス (p - トリル) p - フェニレンジアミン、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノビフェニル、N - フェニルカルバゾール、4 - ジ - p - トリルアミノスチルベン、ポリ (パラフェニレンビニレン)、ポリ (チオフェンビニレン)、ポリ (2, 2' - チエニルピロール) 等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

30

【0066】

そして、発光層 14 c は、陽極 13 と陰極 15 による電圧印加時に、陽極 13 と陰極 15 のそれぞれから正孔および電子が注入され、さらにこれらが再結合する領域である。このような発光層 14 c は、発光効率が高い材料、例えば、低分子蛍光色素、蛍光性の高分子、金属錯体等の有機材料から構成されている。具体的には、例えば、アントラセン、ナフタレン、インデン、フェナントレン、ピレン、ナフタセン、トリフェニレン、クリセン、ペリレン、ピセン、フルオランテン、アセフェナントリレン、ペンタフェン、ペンタセン、コロネン、ブタジエン、クマリン、アクリジン、スチルベン、あるいはこれらの誘導体、トリス (8 - キノリノラト) アルミニウム錯体、ビス (ベンゾキノリノラト) ベリリウム錯体、トリ (ジベンゾイルメチル) フェナントロリンユーロピウム錯体ジトルイルビフェニルが挙げられる。

40

【0067】

そして、この発光層 14 c には、一般式 (1) を用いて説明した上述のベンゾフルオラ

50

ンテン化合物からなる有機材料がゲスト材料（もしくはドーパント材料）として添加されることとする。この際の有機材料の添加量は、30体積%以下であることとする。

【0068】

また、電子輸送層14dは、陰極15から注入される電子を発光層14cに輸送するためのものである。電子輸送層14dの材料としては、例えば、キノリン、ペリレン、ピスチリル、ピラジン、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、またはこれらの誘導体が挙げられる。具体的には、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(略称Alq3)、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン、ブタジエン、クマリン、アクリジン、スチルベン、またはこれらの誘導体が挙げられる。

10

【0069】

これらの各層は、例えば真空蒸着法や、スピンコート法などの方法によって形成することができる。特に、発光層14cの形成においては、発光層14cでの発光スペクトルの制御を目的として、発光層14cを形成する際に微量の蛍光分子の共蒸着を行っても良い。この場合、例えば蛍光分子として、ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、ピレン誘導体、ナフタセン誘導体、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ピラン系色素等の有機物質を微量含む有機薄膜により発光層14cを形成するようにしてもよい。

【0070】

尚、有機層14は、このような層構造に限定されることはなく、少なくとも発光層14cと共に、陽極13と発光層14cとの間に、正孔輸送層14aまたは正孔注入層14bを有する構成であれば、必要に応じた積層構造を選択することができる。

20

【0071】

また、発光層14cは、正孔輸送性の発光層や電子輸送性の発光層として有機電界発光素子11に設けられていても良い。さらに、以上の有機層14を構成する各層、例えば正孔注入層14a、正孔輸送層14b、発光層14c、および電子輸送層14dは、それぞれが複数層からなる積層構造であっても良い。

【0072】

そして、このような有機層14を構成する有機化合物は、電場が印加されることによって蛍光やリン光が発光する化合物を用いることのほかに、電子、若しくは正孔(ホール)の輸送能を有する化合物が適宜用いられることとする。

30

【0073】

次に、このような構成の有機層14上に設けられる陰極15は、例えば、有機層14側から順に第1層15a、第2層15bを積層させた2層構造で構成されている。

【0074】

第1層15aは、仕事関数が小さく、かつ光透過性の良好な材料を用いて構成される。このような材料としては、例えばリチウム(Li)の酸化物である酸化リチウム(Li₂O)や、セシウム(Cs)の酸化物である酸化セシウム(Cs₂O)、さらにはこれらの酸化物の混合物を用いることができる。また、第1層15aは、このような材料に限定されることはなく、例えば、カルシウム(Ca)、バリウム(Ba)等のアルカリ土類金属、リチウム、セシウム等のアルカリ金属、さらにはインジウム(In)、マグネシウム(Mg)等の仕事関数の小さい金属、さらにはこれらの金属の酸化物等を、単体でまたはこれらの金属および酸化物の混合物や合金として安定性を高めて使用しても良い。

40

【0075】

第2層15bは、例えば、MgAgなどの光透過性を有する層を用いた薄膜により構成されている。この第2層15bは、さらに、アルミキノリン錯体、スチリルアミン誘導体、フタロシアニン誘導体等の有機材料を含有した混合層であっても良い。この場合には、さらに第3層としてMgAgのような光透過性を有する層を別途有していてもよい。

【0076】

以上の陰極15を構成する各層は、真空蒸着法、スパッタリング法、更にはプラズマCVD法などの手法によって形成することができる。また、この有機電界発光素子11を用

50

いて構成される表示装置の駆動方式がアクティブマトリックス方式である場合、陰極 1 5 は、有機層 1 4 とここでの図示を省略した上述の絶縁膜とによって、陽極 1 3 と絶縁された状態で基板 1 2 上にベタ膜状に形成され、各画素の共通電極として用いられる。

【0077】

なお、陰極 1 5 は上記のような積層構造に限定されることはない。この積層構造は電極各層の機能分離（例えば、電子注入用の電極層や陰極としての電極層等に機能分離）を行った際に必要なものである。したがって、第 2 層 1 5 b のみで構成したり、第 1 層 1 5 a を形成した後に I T O などの透明電極を形成したりすることも可能であり、作製されるデバイスの構造に応じて最適な組み合わせ、積層構造を取れば良いことは言うまでもない。

【0078】

そして上記した構成の有機電界発光素子 1 1 に印加する電流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いてもよい。電流値、電圧値は、素子は介しない範囲内であれば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率良く発光させることが望ましい。

【0079】

なお、図 1 に示した有機電界発光素子においては、陽極 1 3 に I T O 等よりなる透明電極を用いることにより上下の両サイドから光を取り出す構成であっても良い。

【0080】

また、この有機電界発光素子 1 1 が、キャビティ構造となっている場合、有機層 1 4 と透明材料あるいは半透明材料からなる電極層との合計膜厚は、発光波長によって規定され、多重干渉の計算から導かれた値に設定されることになる。そして、T F T が形成された基板上に上面発光型の有機電界発光素子を設けた、いわゆる T A C (Top Emitting Adaptive Current drive) 構造では、このキャビティ構造を積極的に用いることにより、外部への光取り出し効率の改善や発光スペクトルの制御を行うことが可能である。

【0081】

以上説明した構成の有機電界発光素子 1 1 によれば、一般式 (1) を用いて説明したベンゾフルオランテン化合物を用いて有機層 1 4 を構成した。これにより、有機層 1 4 の耐久性および安定性の向上を図ることが可能になると共に、フルオランテン特有の高い蛍光性に基づく電界発光が得られる。この結果、有機電界発光素子 1 1 における発光寿命の向上を図ることが可能になると共に、特に緑色の発光領域において発光効率の向上を図ることが可能になる。

【0082】

そして、このような本発明の有機電界発光素子と共に、赤色発光素子および青色発光素子を 1 組にして画素を構成することにより、色再現性の高いフルカラー表示が可能になる。

【0083】

尚、以上の実施形態においては、本発明の有機材料を発光層（電子輸送性発光層、正孔輸送性発光層、および両電荷輸送性発光層を含む）の構成材料として用いることのみを説明した。しかしながら、本発明の有機材料が、上述したように耐久性に優れておりまた、電子輸送性および正孔輸送性を有していることからすれば、この有機材料を、発光層以外の層、例えば電子輸送層や正孔輸送層さらには正孔注入層等を構成する材料として用いることもでき、これによってこれらの層における耐久性の向上を図ることが可能になる。

【0084】

さらに、本発明の有機材料が、芳香族アミン化合物の形態となっていることにより良好な正孔輸送性が得られることからすれば、この有機材料を用いて正孔輸送層を構成することにより、正孔輸送層の正孔輸送性が向上する。これにより、発光層への正孔の注入量を増加させて発光効率の向上を図ることが可能になる。尚、この有機材料を用いて正孔輸送層を構成する場合には、該アミノベンゾフルオランテンを単独で使用できるほかに、必要に応じて他の正孔輸送材料、例えば、 β -ナフチルフェニルフェニレンジアミン、ポルフィリン、金属テトラフェニルポルフィリン、金属ナフトロシアニン、4, 4, 4-トリス

10

20

30

40

50

(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン、N, N, N', N' - テトラキス(p-トリル)p-フェニレンジアミン、N, N, N', N' - テトラフェニル-4, 4' - ジアミノピフェニル、N-フェニルカルバゾール、4-ジ-p-トリルアミノスチルベン、ポリ(パラフェニレンビニレン)、ポリ(チオフェンビニレン)、ポリ(2, 2' - チエニルピロール)と適宜の比率で混合させてもよい。このことによって、正孔移動を調整することができる。

【0085】

また、本発明の有機電界発光素子は、上面発光型、これを用いたTAC構造への適用に限定されるものではなく、陽極と陰極との間に少なくとも発光層を有する有機層を挟持してなる構成に広く適用可能である。したがって、基板側から順に、陰極、有機層、陽極を順次積層した構成のものや、基板側に位置する電極(陰極または陽極としての下部電極)を透明材料で構成することによって、基板と反対側の上部電極側から光を取り出すようにした、いわゆる透過型有機電界発光素子にも適用可能である。このような構成であっても、一般式(1)を用いて説明したベンゾフルオランテン化合物を有する有機材料を有機層に用いることにより、同様の効果を得ることが可能である。

10

【0086】

さらに、本発明の有機電界発光素子とは、一对の電極(陽極と陰極)、およびその電極間に有機層が挟持されることによって形成される素子であれば良い。このため、一对の電極および有機層のみで構成されたものに限定されることはなく、本発明の効果を損なわない範囲で他の構成要素(例えば、無機化合物層や無機成分)が共存することを排除するものではない。

20

【実施例】

【0087】

本発明の有機材料の合成例、およびこの有機材料を用いた本発明の有機電界発光素子の実施例について具体的に説明する。尚ここでは先ず、本発明の有機材料の合成例1~合成例7を説明し、次いでこれらの有機材料を用いた有機電界発光素子および比較例の有機電界発光素子の作製手順、さらにはこれらの評価結果を説明する。

【0088】

<有機材料の合成例1>

表2の構造式(1)で示される1-N, N-ジフェニルアミノ-ベンゾ[k]フルオランテンを次の手順で合成した。

30

【0089】

メカニカルスターラーを装着させた500mlの三口フラスコ内を窒素で十分に置換した後に、当該三口フラスコ内にてN, N-ジフェニルアミン(8.5g、50mmol)、1-プロモベンゾ[k]フルオランテン(16.5g、50mmol)、ナトリウム-tert-ブトキシド(5g、50mmol)を100mLのトルエンに溶解させた。その混合溶液を窒素にて10分間パブリングして溶液中の溶存酸素を十分に排気させた。

【0090】

続いてパラジウム触媒成分として酢酸パラジウム(1.1g、5mmol)を一括で加え、攪拌しながらトルエン20mlに溶解させたトリ-t-ブチルフォスフィン(4.0g、20mmol)を滴下し、全量の投入が終了した後に昇温を開始して還流温度で8時間反応させた。反応終了後に室温まで冷却し、セライトにて不溶部を分離させた後に有機層を水で5回洗浄し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた。この溶液を濃縮させた後にヘキサン/トルエンの混合溶媒にてシリカカラムを通し、黄色固体15g(収率72%)を得た。

40

【0091】

得られた固体を¹H-NMR、¹³C-NMR、およびFD-MSにて測定した結果、目的物である1-N, N-ジフェニルアミノ-ベンゾ[k]フルオランテン[構造式(1)]であることを確認した。

【0092】

50

< 有機材料の合成例 2 >

合成例 1 において原料として 1 - ブロモベンゾ [k] フルオランテンの代わりに 2 - ブロモベンゾ [k] フルオランテンを用いたほかは合成例 1 と同様の反応条件にて行い、表 2 の構造式 (2) で示される 2 - N , N - ジフェニルアミノ - ベンゾ [k] フルオランテンを得た。

【 0 0 9 3 】

< 有機材料の合成例 3 >

合成例 1 において原料として 1 - ブロモベンゾ [k] フルオランテンの代わりに 3 - ブロモベンゾ [k] フルオランテンを用いたほかは合成例 1 と同様の反応条件にて行い、表 2 の構造式 (3) で示される 3 - N , N - ジフェニルアミノ - ベンゾ [k] フルオランテンを得た。

10

【 0 0 9 4 】

< 有機材料の合成例 4 >

合成例 1 において原料として 1 - ブロモベンゾ [k] フルオランテンの代わりに 9 - ブロモベンゾ [k] フルオランテンを用いたほかは合成例 1 と同様の反応条件にて行い、表 2 の構造式 (6) で示される 9 - N , N - ジフェニルアミノ - ベンゾ [k] フルオランテンを得た。

【 0 0 9 5 】

< 有機材料の合成例 5 >

表 9 の構造式 (6 0) で示される 2 , 5 - ビス (N , N - ジフェニルアミノ) ベンゾ [k] フルオランテンを次の手順で合成した。

20

【 0 0 9 6 】

メカニカルスターラーを装着させた 5 0 0 m l の三口フラスコ内を窒素で十分に置換した後に、当該三口フラスコ内にて N , N - ジフェニルアミン (1 7 g 、 1 0 0 m m o l) 、 2 , 5 - ジプロモベンゾ [k] フルオランテン (2 0 . 5 g 、 5 0 m m o l) 、 ナトリウム - t e r t - ブトキシド (5 g 、 5 0 m m o l) を 2 0 0 m l のトルエンに溶解させた。その混合溶液を窒素にて 1 0 分間バブリングして溶液中の溶存酸素を十分に排気させた。

【 0 0 9 7 】

続いてパラジウム触媒成分として酢酸パラジウム (1 . 1 g 、 5 m m o l) を一括で加え、攪拌しながらトルエン 2 0 m l に溶解させたトリ - t - ブチルフォスフィン (4 . 0 g 、 2 0 m m o l) を滴下し、全量の投入が終了した後に昇温を開始して還流温度で 8 時間反応させた。反応終了後に室温まで冷却し、セライトにて不溶部を分離させた後に有機層を水で 5 回洗浄し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた。この溶液を濃縮させた後にヘキサン / トルエンの混合溶媒にてシリカカラムを通し、黄色固体 1 9 g (収率 6 5 %) を得た。

30

【 0 0 9 8 】

得られた固体を ^1H - N M R 、 ^{13}C - N M R 、 および F D - M S にて測定いた結果、目的物である 2 , 5 - ビス (N , N - ジフェニルアミノ) ベンゾ [k] フルオランテン [構造式 (6 0)] であることを確認した。

40

【 0 0 9 9 】

< 有機材料の合成例 6 >

合成例 5 において原料として 2 , 5 - ジプロモベンゾ [k] フルオランテンの代わりに 3 , 7 - ジプロモベンゾ [k] フルオランテンを用いたほかは合成例 5 と同様の反応条件にて行い、表 1 0 の構造式 (6 4) で示される 3 , 7 - ビス (N , N - ジフェニルアミノ) ベンゾ [k] フルオランテンを得た。

【 0 1 0 0 】

< 有機材料の合成例 7 >

合成例 5 において原料として 2 , 5 - ジプロモベンゾ [k] フルオランテンの代わりに 3 , 9 - ジプロモベンゾ [k] フルオランテンを用いたほかは合成例 5 と同様の反応条件にて

50

行い、表10の構造式(66)で示される3,9-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)ベンゾ[k]フルオランテンを得た。

【0101】

<実施例1>

合成例1によって得られた1-N,N-ジフェニルアミノ-ベンゾ[k]フルオランテン[表2の構造式(1)]を用い、以下のように有機電界発光素子(図2参照)を作製した。

【0102】

まず、30mm×30mmのガラス板からなる基板12上に、陽極13としてクロム(Cr)よりなる膜(膜厚約100nm)を形成し、さらに二酸化ケイ素(SiO₂)を蒸着させることにより、2mm×2mmの発光領域以外に絶縁膜でマスクした有機電界発光素子用のセルを作製した。

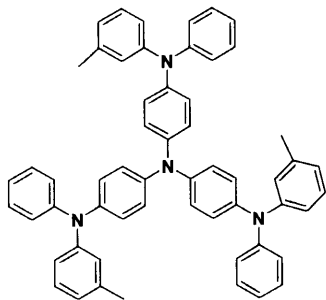
10

【0103】

次に、真空蒸着法により、有機層14の正孔注入層14aとして、下記式(1)に示されるm-MTDATAよりなる膜を30nmの膜厚(蒸着速度0.2~0.4nm/sec)で形成した。ただし、m-MTDATAは、4,4',4''-トリス(フェニル-m-トリルアミノ)トリフェニルアミンである。

【化5】

m-MTDATA



式(1)

20

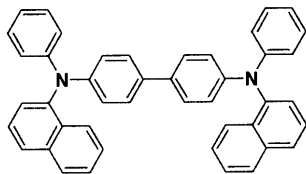
【0104】

次いで、正孔輸送層14bとして、下記式(2)に示されるα-NPDよりなる膜を30nmの膜厚(蒸着速度0.2~0.4nm/sec)で形成した。ただし、α-NPDは、N,N'-ビス(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミンである。

30

【化6】

α-NPD



式(2)

40

【0105】

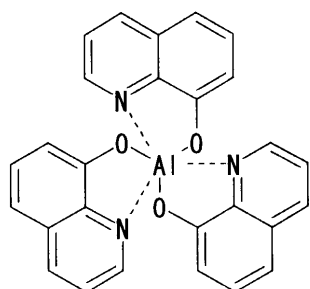
このようにして形成された正孔注入層14aおよび正孔輸送層14b上に、発光層14cとして、上記合成例1によって得られた1-N,N-ジフェニルアミノ-ベンゾ[k]フルオランテン[表2の構造式(1)]を20nmの膜厚で蒸着した。

【0106】

次いで、電子輸送層14dとして、下記式(3)に示すAlq₃(8-ヒドロキシキノリンアルミニウム)を20nmの膜厚で蒸着した。

【化 7】

Alq3



式(3)

10

【0107】

以上のようにして、正孔注入層14a、正孔輸送層14b、発光層14c、および電子輸送層14dを順次積層してなる有機層14を形成した後、陰極15の第1層15aとして、 Li_2O よりなる膜を真空蒸着法により約0.3nm(蒸着速度0.01nm/sec)の膜厚で形成した。

【0108】

最後に、真空蒸着法により、第2層15a上に陰極15の第2層15bとして膜厚10nmのMgAg膜を形成した。

【0109】

こうして作製した有機電界発光素子を直流電圧駆動したところ、下記表16に示すように、緑色の発色を確認し、発光輝度は駆動電圧5Vで280cd/m²であった。また、この発光素子を初期輝度300cd/m²で定電流駆動したところ、発光寿命(輝度の半減寿命)は600時間であった。

20

【0110】

【表 1 6】

	発光層材料 1 4 C	電圧 (V)	発光輝度 (cd/m ²)	発光色	発光寿命 (時間)
実施例 1	構造式 (1)	5. 0	2 8 0	緑	6 0 0
実施例 2	構造式 (2)	5. 0	2 9 0	緑	7 0 0
実施例 3	構造式 (3)	5. 1	2 6 5	緑	6 5 0
実施例 4	構造式 (6)	5. 1	2 8 0	緑	5 0 0
実施例 5	構造式 (6 0)	5. 0	3 4 0	緑	8 5 0
実施例 6	構造式 (6 4)	5. 1	3 2 0	緑	9 0 0
実施例 7	構造式 (6 6)	5. 1	3 2 5	緑	8 0 0
比較例 1	3-N, N- ジフェニルア ミノフルオラ ンテン	5. 1	1 5 0	緑	4 0 0

10

20

30

40

【 0 1 1 1 】

< 実施例 2 ~ 7 >

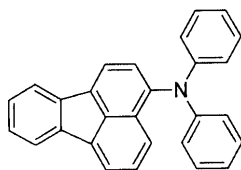
実施例 1 記載の発光層 1 4 c の有機材料として、上記表 1 6 に記載した各構造式の化合物をした使用したほかは、実施例 1 と全く同様に有機電界発光素子を作製し、同様の評価を行った。尚、上記表 1 6 には、評価結果も合わせて示した。

【 0 1 1 2 】

< 比較例 1 >

実施例 1 記載の正孔輸送層 1 4 b の有機材料として、下記式 (4) に示す 3 - N , N - ジフェニルアミノフルオランテン (特開平 1 0 - 1 2 5 4 6 7 号公報参照) を使用した他は、実施例 1 と全く同様に有機電界発光素子を作製し同じく評価を行った。その結果を合わせて上記表 1 6 に示した。

【 化 8 】



式(4)

【 0 1 1 3 】

以上の表 1 6 に示した結果から、本発明の有機材料を用いて有機層 1 4 における発光層 1 4 c が構成された実施例 1 ~ 7 の有機電界発光素子は、式 (4) の化合物を用いて有機

50

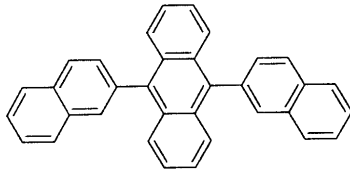
層 1 4 における発光層 1 4 c が構成された比較例 1 の有機電界発光素子と比較して、定電圧 (5 V) 駆動での発光輝度の向上が図られ、発光寿命も大幅に向上していることが確認された。

【 0 1 1 4 】

< 実施例 8 >

実施例 1 記載の発光層 1 4 c として、下記式 (5) に示される 9 , 1 0 - ジ (2 - ナフチル) アントラセン (A D N) を蒸着し、膜厚 5 0 n m の膜を形成した。その際、A D N には合成例 2 で製造された [表 2 の構造式 (2)] を相対膜厚比 (すなわち体積比) 4 体積 % でドーピングして発光層 1 4 c とした。

【 化 9 】



式(5)

10

【 0 1 1 5 】

次いで、電子輸送層 1 4 d として、A l q 3 を 2 0 n m の膜厚で蒸着した。こうして作製した有機電界発光素子を直流電圧駆動したところ、緑色の発色を確認し、発光輝度は駆動電圧 5 V で 1 1 0 0 c d / m² であった。また、この有機電界発光素子を初期輝度 3 0 0 c d / m² で定電流駆動したところ、発光寿命 (輝度の半減寿命) は下記表 1 7 に示す通りとなった。

20

【 0 1 1 6 】

【 表 1 7 】

	ドーピング濃度	電圧 (V)	発光輝度 (cd/m ²)	発光色	発光寿命 (時間)
実施例 8	4 %	5. 1	1 1 0 0	緑	2 8 0 0
実施例 9	1 0 %	5. 2	1 0 0 0	緑	2 6 0 0
実施例 1 0	3 0 %	5. 1	1 1 5 0	緑	2 7 0 0
実施例 1 1	6 0 %	5. 1	9 5 0	緑	1 2 0 0

30

【 0 1 1 7 】

< 実施例 9 ~ 1 1 >

実施例 8 記載における A D N に対する表 2 の構造式 (2) のドーピング濃度を、上記表 1 7 記載の濃度に変更した以外は、実施例 8 と同様な素子構成として評価を行った。その結果を合わせて上記表 1 7 に示した。

【 0 1 1 8 】

以上の表 1 7 に示した結果から、本発明の有機材料を発光層 1 4 c にドーピングする場合、ドーピング量 3 0 体積 % 以下の範囲では、発光輝度 (発光効率) も高く維持され、かつより優れた発光寿命が得られることが確認できた。

【 図面の簡単な説明 】

40

50

【0119】

【図1】有機電界発光素子の一構成を示す断面図である。

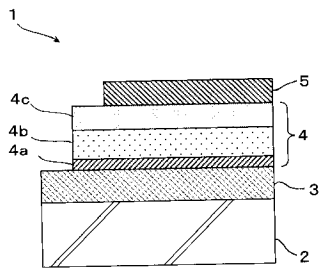
【図2】本発明を適用した実施形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図である。

【符号の説明】

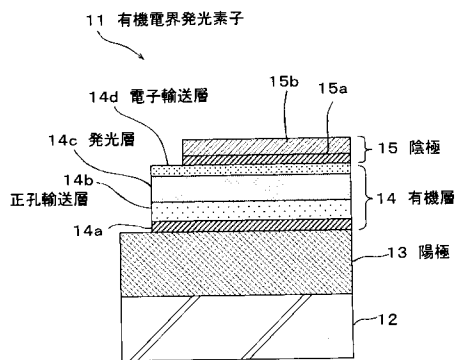
【0120】

11 ... 有機電界発光素子、 13 ... 陽極、 14 ... 有機層、 15 ... 陰極、 14b ... 正孔輸送層、 14c ... 発光層、 14d ... 電子輸送層

【図1】



【図2】



专利名称(译)	有机材料和有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2005272805A	公开(公告)日	2005-10-06
申请号	JP2004282959	申请日	2004-09-29
[标]申请(专利权)人(译)	索尼公司		
申请(专利权)人(译)	索尼公司		
[标]发明人	松波成行 高田一範		
发明人	松波 成行 高田 一範		
IPC分类号	H01L51/50 C07C211/61 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	C09K11/06.620 C07C211/61 H05B33/14.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB11 3K007/DB03 3K007/FA01 4H006/AA03 4H006/AB92 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/CC24 3K107/DD59 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD78 3K107/FF14		
代理人(译)	船桥 国则		
优先权	2004047479 2004-02-24 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

通过使用有机材料，提供了一种耐久性优异的有机材料以及具有提高的发光寿命的有机电致发光器件。苯并荧蒽的取代位中的至少一个被以下通式(1)表示的取代基取代，该通式为用于有机电致发光装置的有机材料。[通式(1)中，Ar¹和Ar²分别独立地表示碳原子数为30以下的芳基。此外，苯并荧蒽中的其他取代位点分别独立地为氢，卤素，羟基，C₂₀以下羰基，C₂₀以下羰基酯基，C₂₀以下烷基，C₂₀以下链烯基，C₂₀以下。被烷氧基，碳原子数为30以下的芳基，碳原子数为30以下的杂环基，氰基，硝基或甲硅烷基取代。][选择图]无



一般式(1)