

(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2010-53364

(P2010-53364A)

(43) 公開日 平成22年3月11日 (2010.3.11)

| (51) Int.Cl. | F I | テーマコード (参考) |
|-----------------------------|----------------|-------------|
| C09K 11/06 (2006.01) | C09K 11/06 610 | 3K107 |
| C07C 15/20 (2006.01) | C07C 15/20 | 4H006 |
| H01L 51/50 (2006.01) | H05B 33/14 B | |
| H05B 33/12 (2006.01) | H05B 33/12 C | |

審査請求 有 請求項の数 11 O L (全 57 頁)

| | | | |
|--------------|------------------------------|----------|-------------------------------|
| (21) 出願番号 | 特願2009-277932 (P2009-277932) | (71) 出願人 | 000003067 |
| (22) 出願日 | 平成21年12月7日 (2009.12.7) | | T D K 株式会社 |
| (62) 分割の表示 | 特願平11-125044の分割 | | 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 |
| 原出願日 | 平成11年4月30日 (1999.4.30) | (74) 代理人 | 100095407 |
| (31) 優先権主張番号 | 特願平10-137505 | | 弁理士 木村 満 |
| (32) 優先日 | 平成10年5月1日 (1998.5.1) | (74) 代理人 | 100109449 |
| (33) 優先権主張国 | 日本国 (JP) | | 弁理士 毛受 隆典 |
| | | (72) 発明者 | 藤田 徹司 |
| | | | 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 T D K 株式会社内 |
| | | (72) 発明者 | 井上 鉄司 |
| | | | 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 T D K 株式会社内 |

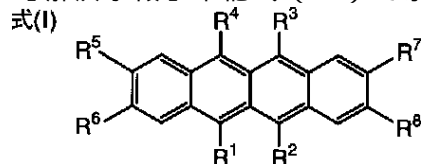
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機E L素子用化合物および有機E L素子

(57) 【要約】

【課題】十分な輝度の発光、特に長波長における発光が得られ、かつ良好な発光性能が長期にわたって持続する耐久性に優れた有機E L素子用化合物および有機E L素子を提供する。

【解決手段】下記式 (I) で示される基本骨格を有する有機E L素子用化合物。



(上記式 (I) 中、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ置換もしくは非置換のアリール基を表す。 R^5 及び R^6 はそれぞれ置換もしくは非置換のアリール基およびアルケニル基のいずれかを表す。 R^7 及び R^8 はそれぞれ水素または置換もしくは非置換のアリール基およびアルケニル基のいずれかを表し、 R^7 及び R^8 がそれぞれ水素のとき、 $R^1 \sim R^4$ の少なくとも2個以上のアリール基は、縮合環からなるアリール基を含む多環のアリール基である。)

【選択図】なし

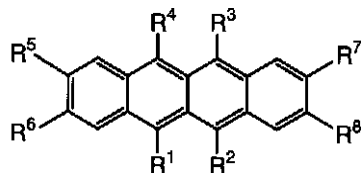
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記式 (I) で示される基本骨格を有する有機 EL 素子用化合物。

【化 1】

式(I)



(上記式 (I) 中、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ置換もしくは非置換のアリール基を表す。 R^5 及び R^6 はそれぞれ置換もしくは非置換のアリール基およびアルケニル基のいずれかを表す。 R^7 及び R^8 はそれぞれ水素または置換もしくは非置換のアリール基およびアルケニル基のいずれかを表し、 R^7 及び R^8 がそれぞれ水素のとき、 $R^1 \sim R^4$ の少なくとも 2 個以上のアリール基は、縮合環からなるアリール基を含む多環のアリール基である。)

10

【請求項 2】

ホール注入電極と、電子注入電極と、これらの電極間に少なくとも発光層を含有する有機層を有し、

前記発光層は、請求項 1 の有機 EL 素子用化合物を含有する有機 EL 素子。

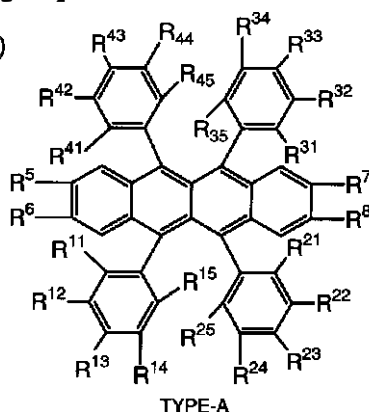
【請求項 3】

前記発光層に含有される化合物は、下記式 (II) で表される基本骨格を有する請求項 2 の有機 EL 素子。

20

【化 2】

式(II)



30

(上記式 (II) 中、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ のそれぞれは、水素または置換もしくは非置換のアルキル基、アリール基、アミノ基、複素環基もしくはフェノキシ基である。また、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ のそれぞれを群としたとき、これらのうちの少なくとも 2 群中のいずれかには置換または非置換基のアリール基、ヘテロ環基またはアリーロキシ基を置換基として有する。 R^5 および R^6 はアリール基であり、 R^7 および R^8 は水素またはアリール基である。また、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ の各群中のいずれか 2 個以上により縮合環を形成していてもよい。)

40

【請求項 4】

前記発光層は、さらに電子注入輸送性化合物および/またはホール注入輸送性化合物を含有する請求項 2 または 3 の有機 EL 素子。

【請求項 5】

前記発光層は、2 種以上の化合物を含有している請求項 2 ~ 4 のいずれかの有機 EL 素子。

【請求項 6】

前記発光層は、ドーパントを 2 種以上含有し、かつこれらドーパントの総含有量がホスト物質に対して 30 %wt 以下である請求項 2 ~ 5 のいずれかの有機 EL 素子。

50

【請求項 7】

前記発光層に含有される請求項 1 の化合物の総含有量は、ホスト物質に対して 30 %wt 以下である請求項 2 ~ 6 のいずれかの有機 EL 素子。

【請求項 8】

前記発光層は、それぞれキャリアトラップ性が異なる化合物を 2 種以上含有する請求項 6 または 7 の有機 EL 素子。

【請求項 9】

前記発光層は、少なくともホールトラップ性を有する化合物と電子トラップ性を有する化合物とを含有する請求項 7 ~ 8 のいずれかの有機 EL 素子。

【請求項 10】

前記発光層を 2 層以上有し、各発光層に含有されているドーパントは、それぞれキャリアトラップ性が異なっている請求項 2 ~ 9 のいずれかの有機 EL 素子。

【請求項 11】

前記発光層を 2 層以上有し、これらの発光層の少なくとも 1 層にはホールトラップ性のドーパントを有し、他の少なくとも 1 層には電子トラップ性のドーパントを有する請求項 2 ~ 10 のいずれかの有機 EL 素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機 EL (電界発光) 素子に関し、詳しくは、有機化合物からなる薄膜に電界を印加して光を放出する素子に用いられる化合物に関する。

【背景技術】

【0002】

有機 EL 素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、電子注入電極とホール注入電極とで挟んだ構成を有し、前記薄膜に電子およびホールを注入して再結合させることにより励起子 (エキシトン) を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出 (蛍光・燐光) を利用して発光する素子である。

【0003】

有機 EL 素子の特徴は、10 V 前後の電圧で数 100 から数 10000 cd/m² ときわめて高い輝度の面発光が可能であり、また蛍光物質の種類を選択することにより青色から赤色までの発光が可能なことである。

【0004】

有機 EL 素子の任意の発光色を得るための手法としてドーピング法があり、アントラセン結晶中に微量のテトラセンをドーピングすることで発光色を青色から緑色に変化させた報告 (非特許文献 1) がある。また積層構造を有する有機薄膜 EL 素子においては、発光機能を有するホスト物質に、その発光に応答しホスト物質とは異なる発光を放出する蛍光色素をドーパントとして微量混入させて発光層を形成し、緑色から橙～赤色へ発光色を変化させた報告 (特許文献 1) がなされている。

【0005】

黄～赤色の長波長発光に関しては、発光材料あるいはドーパント材料として、赤色発振を行うレーザー色素 (特許文献 2)、エキサイプレックス発光を示す化合物 (特許文献 3)、ペリレン化合物 (特許文献 4)、クマリン化合物 (特許文献 5)、ジシアノメチレン系化合物 (特許文献 6)、チオキサンテン化合物 (特許文献 7)、共役系高分子と電子輸送性化合物の混合物 (特許文献 8)、スクアリリウム化合物 (特許文献 9)、オキサジアゾール系化合物 (特許文献 10)、オキシネイト誘導体 (特許文献 11)、ピレン系化合物 (特許文献 12) がある。

【0006】

他の発光材料として縮合多環芳香族化合物 (特許文献 13、特許文献 14) も開示されている。またドーパント材料としても種々の縮合多環芳香族化合物 (特許文献 15) が提案されている。

10

20

30

40

50

【 0 0 0 7 】

しかし、いずれの発光においても、特に長波長において十分な輝度や安定な発光性能は得られておらず、更なる輝度の向上あるいは耐久性の向上が望まれている。

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 0 8 】

【 特許文献 1 】 特開昭 6 3 - 2 6 4 6 9 2 号 公 報

【 特許文献 2 】 E P O 2 8 1 3 8 1 号

【 特許文献 3 】 特開平 2 - 2 5 5 7 8 8 号 公 報

【 特許文献 4 】 特開平 3 - 7 9 1 号 公 報

10

【 特許文献 5 】 特開平 3 - 7 9 2 号 公 報

【 特許文献 6 】 特開平 3 - 1 6 2 4 8 1 号 公 報

【 特許文献 7 】 特開平 3 - 1 7 7 4 8 6 号 公 報

【 特許文献 8 】 特開平 6 - 7 3 3 7 4 号 公 報

【 特許文献 9 】 特開平 6 - 9 3 2 5 7 号 公 報

【 特許文献 1 0 】 特開平 6 - 1 3 6 3 5 9 号 公 報

【 特許文献 1 1 】 特開平 6 - 1 4 5 1 4 6 号 公 報

【 特許文献 1 2 】 特開平 6 - 2 4 0 2 4 6 号 公 報

【 特許文献 1 3 】 特開平 5 - 3 2 9 6 6 号 公 報

【 特許文献 1 4 】 特開平 5 - 2 1 4 3 3 4 号 公 報

20

【 特許文献 1 5 】 特開平 5 - 2 5 8 8 5 9 号 公 報

【 非特許文献 】

【 0 0 0 9 】

【 非特許文献 1 】 Jpn. J. Appl. Phys., 10,527(1971)

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 1 0 】

本発明の目的は、十分な輝度の発光、特に長波長における発光が得られ、かつ良好な発光性能が長期にわたって持続する耐久性に優れた有機 E L 素子用化合物および有機 E L 素子を提供することである。

30

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 1 1 】

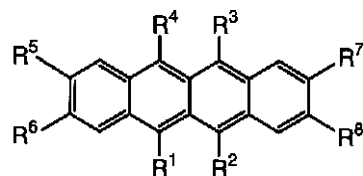
上記目的は、以下の構成により達成される。

(1) 下記式 (I) で示される基本骨格を有する有機 E L 素子用化合物。

【 0 0 1 2 】

【 化 1 】

式(I)



40

【 0 0 1 3 】

(上記式 (I) 中、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ置換もしくは非置換のアリール基を表す。 R^5 及び R^6 はそれぞれ置換もしくは非置換のアリール基およびアルケニル基のいずれかを表す。 R^7 及び R^8 はそれぞれ水素または置換もしくは非置換のアリール基およびアルケニル基のいずれかを表し、 R^7 及び R^8 がそれぞれ水素のとき、 $R^1 \sim R^4$ の少なくとも 2 個以上のアリール基は、縮合環からなるアリール基を含む多環のアリール基である。)

(2) ホール注入電極と、電子注入電極と、これらの電極間に少なくとも発光層を含有する有機層を有し、

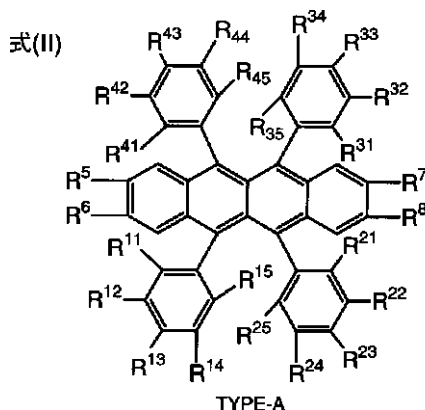
前記発光層は、上記 (1) の有機 E L 素子用化合物を含有する有機 E L 素子。

50

(3) 前記発光層に含有される化合物は、下記式(II)で表される基本骨格を有する上記(2)の有機EL素子。

【0014】

【化2】



10

【0015】

(上記式(II)中、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ のそれぞれは、水素または置換もしくは非置換のアルキル基、アリール基、アミノ基、複素環基もしくはフェノキシ基である。また、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ のそれぞれを群としたとき、これらのうちの少なくとも2群中のいずれかには置換または非置換基のアリール基、ヘテロ環基またはアリーロキシ基を置換基として有する。 R^5 および R^6 はアリール基であり、 R^7 および R^8 は水素またはアリール基である。また、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ の各群中のいずれか2個以上により縮合環を形成していてもよい。)

20

(4) 前記発光層は、さらに電子注入輸送性化合物および/またはホール注入輸送性化合物を含有する上記(2)または(3)の有機EL素子。

(5) 前記発光層は、2種以上の化合物を含有している上記(2)～(4)のいずれかの有機EL素子。

(6) 前記発光層は、ドーパントを2種以上含有し、かつこれらドーパントの総含有量がホスト物質に対して30%wt以下である上記(2)～(5)のいずれかの有機EL素子。

30

(7) 前記発光層に含有される請求項1の化合物の総含有量は、ホスト物質に対して30%wt以下である上記(2)～(6)のいずれかの有機EL素子。

(8) 前記発光層は、それぞれキャリアトラップ性が異なる化合物を2種以上含有する上記(6)または(7)の有機EL素子。

(9) 前記発光層は、少なくともホールトラップ性を有する化合物と電子トラップ性を有する化合物とを含有する上記(7)～(8)のいずれかの有機EL素子。

(10) 前記発光層を2層以上有し、各発光層に含有されているドーパントは、それぞれキャリアトラップ性が異なっている上記(2)～(9)のいずれかの有機EL素子。

(11) 前記発光層を2層以上有し、これらの発光層の少なくとも1層にはホールトラップ性のドーパントを有し、他の少なくとも1層には電子トラップ性のドーパントを有する上記(2)～(10)のいずれかの有機EL素子。

40

【発明の効果】

【0016】

本発明によれば、十分な輝度の発光、特に長波長における発光が得られ、かつ良好な発光性能が長期にわたって持続する耐久性に優れた有機EL素子用化合物および有機EL素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】本発明の有機EL素子の基本構成を示す概略断面図である。

50

- 【図 2】本発明の化合物 IV - 2 5 6 の質量分析スペクトルを示した図である。
 【図 3】本発明の化合物 IV - 2 5 6 の ^1H - NMR スペクトルを示した図である。
 【図 4】本発明の化合物 IV - 2 5 6 の赤外吸収スペクトルを示した図である。
 【図 5】本発明の化合物 IV - 2 5 7 の質量分析スペクトルを示した図である。
 【図 6】本発明の化合物 IV - 2 5 7 の ^1H - NMR スペクトルを示した図である。
 【図 7】本発明の化合物 IV - 2 5 7 の赤外吸収スペクトルを示した図である。
 【図 8】本発明の化合物 IV - 2 1 3 の質量分析スペクトルを示した図である。
 【図 9】本発明の化合物 IV - 2 1 3 の ^1H - NMR スペクトルを示した図である。
 【図 10】本発明の化合物 IV - 2 1 3 の赤外吸収スペクトルを示した図である。

10

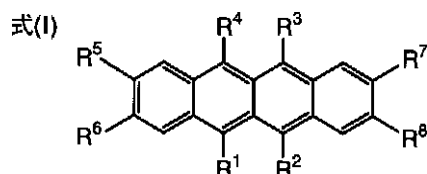
【発明を実施するための形態】

【0018】

本発明の化合物は、下記式 (I) で表される基本骨格を有する。

【0019】

【化 3】



【0020】

20

発光層に式 (I) で表される化合物を含有させることにより、特に長波長域に極大発光波長をもつ有機 EL 素子が得られる。特に、式 (I) の化合物は、発光層において、それ自体で発光機能を有するホスト物質のドーパントとして、あるいは電子注入輸送性化合物と正孔注入輸送性化合物とで形成された発光機能を有する混合層のドーパントとして使用することによって、青～赤色の発光、特に長波長発光が可能であり、しかも十分な輝度が得られ、発光性能が持続する。

【0021】

式 (I) 中、 $R^1 \sim R^8$ はそれぞれ水素、もしくは置換または非置換のアリール基、アルケニル基のいずれかを表す。また、 $R^1 \sim R^8$ のうちの少なくとも 6 個はアリール基、またはアルケニル基である。

30

【0022】

$R^1 \sim R^8$ で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであって良く、縮合環や環集合も含まれる。総炭素数は、6～30 のものが好ましく、置換基を有していても良い。

【0023】

$R^1 \sim R^4$ で表されるアリール基としては、好ましくはフェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ピレニル基、ペリレニル基、コロネニル基、(1-, および 2-)ナフチル基、アントリル基、(o-, m-, p-)ピフェニリル基、ターフェニル基、フェナントリル基等である。

【0024】

40

$R^1 \sim R^4$ で表されるアルケニル基としては、少なくとも置換基の 1 つにフェニル基を有する (1-, および 2-) フェニルエテニル基、(1, 2-, および 2, 2-)ジフェニルエテニル基、(1, 2, 2-)トリフェニルエテニル基等が好ましいが、非置換のものであっても良い。

【0025】

$R^1 \sim R^4$ が置換基を有する場合、これらの置換基のうちの少なくとも 2 つがアリール基、アミノ基、複素環基、アルケニル基およびアリーロキシ基のいずれかであることが好ましい。アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基については上記 $R^1 \sim R^4$ と同様である。

【0026】

50

$R^1 \sim R^4$ の置換基となるアリーロキシ基としては、総炭素数 6 ～ 18 のアリール基を有するものが好ましく、具体的には (o-, m-, p-) フェノキシ基等である。

【0027】

$R^1 \sim R^4$ の置換基となるアミノ基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基等いずれでも良い。これらは、総炭素数 1 ～ 6 の脂肪族、および / または 1 ～ 4 環の芳香族炭素環を有することが好ましい。具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ビスジフェニルアミノ基、ビスナフチルアミノ基等が挙げられる。

【0028】

$R^1 \sim R^4$ の置換基となる複素環基としては、ヘテロ原子として O, N, S を含有する 5 員または 6 員環の芳香族複素環基、および炭素数 2 ～ 20 の縮合多環芳香複素環基等が挙げられる。

10

【0029】

$R^1 \sim R^4$ の置換基となる芳香族複素環基および縮合多環芳香複素環基としては、例えばチエニル基、フリル基、ピロリル基、ピリジル基、キノリル基、キノキサリル基等が挙げられる。

【0030】

これら置換基の 2 種以上が縮合環を形成していてもよい。また、さらに置換されていても良く、その場合の好ましい置換基としては上記と同様である。

【0031】

$R^1 \sim R^4$ が置換基を有する場合、少なくともその 2 種以上が上記置換基を有することが好ましい。その置換位置としては特に限定されるものではなく、メタ、パラ、オルト位のいずれでも良い。また、 R^1 と R^4 、 R^2 と R^3 はそれぞれ同じものであることが好ましいが異なってもよい。

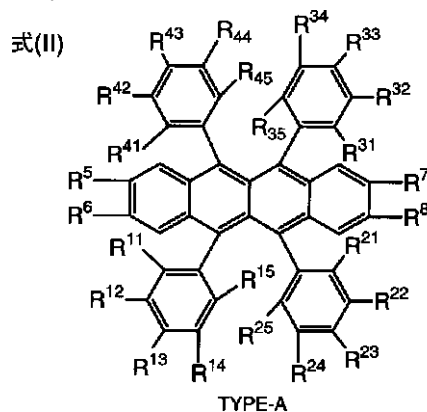
20

【0032】

また、本発明の有機 EL 素子の化合物はさらに下記の式 (II) で表される基本骨格を有するものが好ましい。

【0033】

【化 4】



30

40

【0034】

上記式 (II) 中、 $R^{11} \sim R^{15}$ 、 $R^{21} \sim R^{25}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ および $R^{41} \sim R^{45}$ は水素、アリール基、アミノ基、複素環基、アリーロキシ基およびアルケニル基のいずれかである。また、これらのうちの少なくとも 1 群中にはアリール基、アミノ基、複素環基およびアリーロキシ基のいずれかを置換基として有することが好ましい。これらの 2 種以上が縮合環を形成していてもよい。 R^5 、 R^6 、 R^7 および R^8 は水素、またはアリール基、アルケニル基であり、そのうちの少なくとも 2 個はアリール基、アルケニル基である。

【0035】

アリール基、アミノ基、複素環基およびアリーロキシ基の好ましい態様としては上記 R

50

R^1 ~ R^4 の置換基と同様である。また、 R^{11} ~ R^{13} と R^{41} ~ R^{43} 、 R^{21} ~ R^{23} と R^{31} ~ R^{33} は、それぞれ同じであることが好ましいが異なってもよい。

【0036】

R^{11} ~ R^{15} 、 R^{21} ~ R^{25} 、 R^{31} ~ R^{35} および R^{41} ~ R^{45} の置換基となるアミノ基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラキルアミノ基等いずれでも良い。これらは、総炭素数 1 ~ 6 の脂肪族、および / または 1 ~ 4 環の芳香族炭素環を有することが好ましい。具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ビスビフェニルアミノ基等が挙げられる。

【0037】

形成される縮合環としては、例えばインデン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、キノリン、*iso*キノリン、キノキサリン、フェナジン、アクリジン、インドール、カルバゾール、フェノキサジン、フェノチアジン、ベンゾチアゾール、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、アクリドン、ベンズイミダゾール、クマリン、フラボン等を挙げることができる。

【0038】

本発明の特に好ましい化合物の具体例を以下の表 1 ~ 37 に示す。但し、各置換基 R^1 ~ R^8 を R^{10} ~ R^{80} として表した。

【0039】

【表 1】

| 表 1 | 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|-----|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| | I-239 | | | | | | | | |
| | I-240 | | | | | | | | |
| | I-241 | | | | | | | | |
| | I-245 | | | | | | | | |
| | I-246 | | | | | | | | |
| | I-247 | | | | | | | | |

10

20

30

40

【 0 0 4 0 】

【表 2】

| 表 2 | 化合物 No. | 置換基 | | | | | |
|-----|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁸⁰ |
| | I-257 | | | | | | H |
| | I-258 | | | | | | H |
| | I-259 | | | | | | H |
| | I-263 | | | | | | |
| | I-264 | | | | | | |
| | I-265 | | | | | | |

10

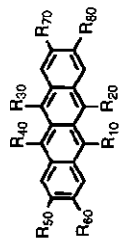
20

30

40

【 0 0 4 1 】

【表 3】



置換基

表 3

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|------------------|------------------|
| I-251 | | | | | | | -CH ₃ | -CH ₃ |
| I-252 | | | | | | | -CH ₃ | -CH ₃ |
| I-253 | | | | | | | -CH ₃ | -CH ₃ |
| I-269 | | | | | | | -CH ₃ | -CH ₃ |
| I-270 | | | | | | | -CH ₃ | -CH ₃ |
| I-271 | | | | | | | -CH ₃ | -CH ₃ |

10

20

30

40

【 0 0 4 2 】


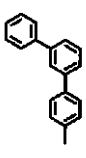
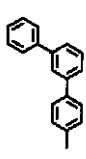




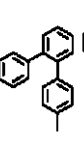
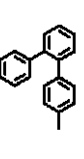




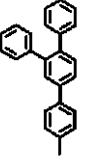
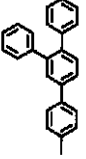




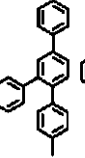
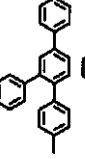




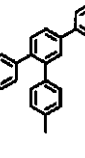
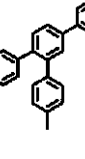




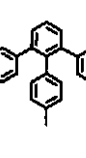
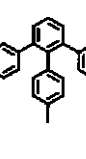



10

20

30

表 4


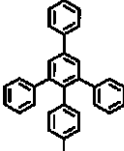
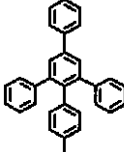




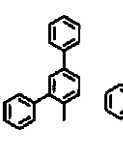
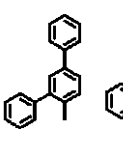




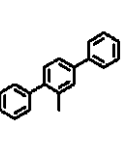
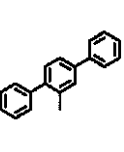




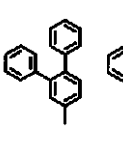
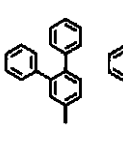




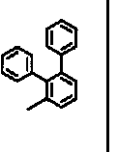
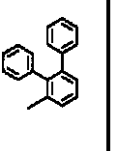



【表 4】

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|---|---|---|---|---|---|-----------------|-----------------|
| I-272 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-273 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-274 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-275 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-276 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-277 |  |  |  |  |  |  | H | H |

【 0 0 4 3 】

【表 5】

表 5

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|---|--|---|---|---|---|-----------------|-----------------|
| I-278 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-279 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-280 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-281 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| I-282 |  |  |  |  |  |  | H | H |


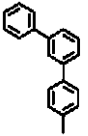
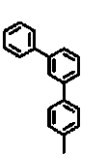






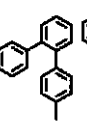
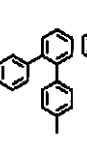






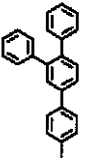
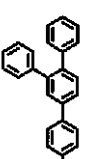






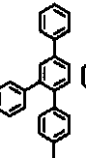
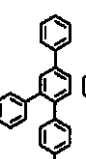






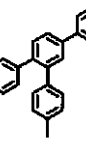
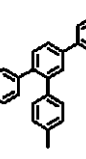






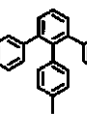
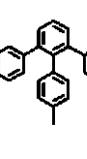





10

20

30

【 0 0 4 4 】

【表 6】

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|---|---|---|---|---|---|---|---|
| I-283 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-284 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-285 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-286 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-287 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-288 |  |  |  |  |  |  |  |  |


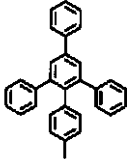
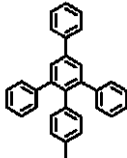






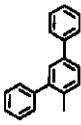
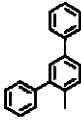






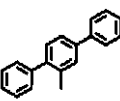
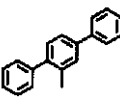






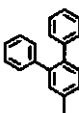
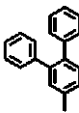






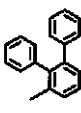
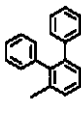





10

20

30

【 0 0 4 5 】

【表 7】

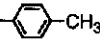
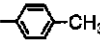






































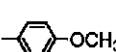
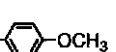






| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|---|---|---|---|---|---|---|---|
| I-289 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-290 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-291 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-292 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| I-293 |  |  |  |  |  |  |  |  |

10

20

30

【表 8】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-31 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-32 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-33 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-34 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-35 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-36 |  |  |  |  |  |  |  |  |

【 0 0 4 7 】

10

20

【表 9】

表 9

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-39 | | | | | | | | |
| IV-40 | | | | | | | | |
| IV-41 | | | | | | | | |
| IV-42 | | | | | | | | |
| IV-43 | | | | | | | | |
| IV-44 | | | | | | | | |
| IV-45 | | | | | | | | |
| IV-46 | | | | | | | | |
| IV-47 | | | | | | | | |
| IV-48 | | | | | | | | |

10

20

30

【 0 0 4 8 】

【表 10】

表 10

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-49 | | | | | | | | |
| IV-50 | | | | | | | | |
| IV-51 | | | | | | | | |
| IV-52 | | | | | | | | |
| IV-53 | | | | | | | | |
| IV-54 | | | | | | | | |
| IV-55 | | | | | | | | |
| IV-56 | | | | | | | | |
| IV-57 | | | | | | | | |
| IV-58 | | | | | | | | |
| IV-59 | | | | | | | | |
| IV-60 | | | | | | | | |
| IV-61 | | | | | | | | |
| IV-62 | | | | | | | | |

































































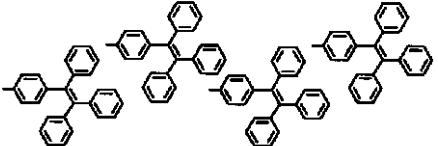




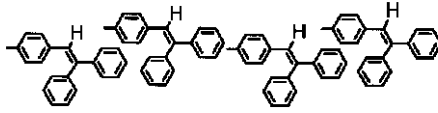




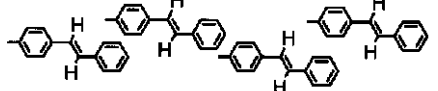












【 0 0 4 9 】

10

20

30

【表 1 1】

| 表 1 1 | | 置換基 | | | | | | |
|---------|---|---|---|---|---|---|---|--|
| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-63 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-64 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-65 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-66 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-67 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-68 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-69 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-70 |  |  |  |  |  |  |  |  |
| IV-71 |  | | | |  |  |  |  |
| IV-72 |  | | | |  |  |  |  |
| IV-73 |  | | | |  |  |  |  |
| IV-74 |  |  |  |  |  |  |  |  |

















































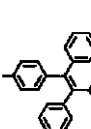
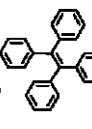
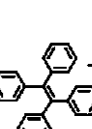
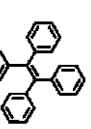


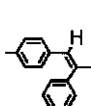
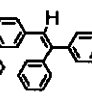
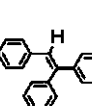
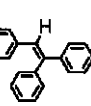


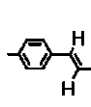
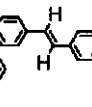
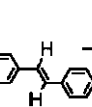
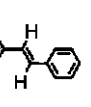








【 0 0 5 0 】

10

20

30

【表 1 2】

| 表 1 2 | | 置換基 | | | | | | |
|---------|---|---|---|---|---|---|-----------------|-----------------|
| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-75 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-76 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-77 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-78 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-79 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-80 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-81 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-82 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-83 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-84 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-85 |  |  |  |  |  |  | H | H |
| IV-86 |  |  |  |  |  |  | H | H |

【 0 0 5 1 】

10

20

30

【表 1 3】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-87 | | | | | | | H | H |
| IV-88 | | | | | | | H | H |
| IV-89 | | | | | | | H | H |
| IV-90 | | | | | | | H | H |
| IV-91 | | | | | | | H | H |
| IV-92 | | | | | | | H | H |
| IV-93 | | | | | | | H | H |
| IV-94 | | | | | | | H | H |
| IV-95 | | | | | | | H | H |
| IV-96 | | | | | | | H | H |
| IV-97 | | | | | | | H | H |
| IV-98 | | | | | | | H | H |
| IV-99 | | | | | | | H | H |

10

20

30

【 0 0 5 2 】

【表 1 4】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-212 | | | | | | | | |
| IV-213 | | | | | | | | |
| IV-214 | | | | | | | | |
| IV-215 | | | | | | | | |
| IV-216 | | | | | | | | |
| IV-217 | | | | | | | | |

40

【 0 0 5 3 】

50

【表 1 5】

表 1 5

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-218 | | | | | | | | |
| IV-219 | | | | | | | | |
| IV-220 | | | | | | | | |
| IV-221 | | | | | | | | |
| IV-222 | | | | | | | | |
| IV-223 | | | | | | | | |
| IV-224 | | | | | | | | |
| IV-225 | | | | | | | | |
| IV-226 | | | | | | | | |

10

20

【 0 0 5 4 】

【表 1 6】

表 1 6

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-227 | | | | | | | | |
| IV-228 | | | | | | | | |
| IV-229 | | | | | | | | |
| IV-230 | | | | | | | | |
| IV-231 | | | | | | | | |
| IV-232 | | | | | | | | |
| IV-233 | | | | | | | | |
| IV-234 | | | | | | | | |
| IV-235 | | | | | | | | |

30

40

【 0 0 5 5 】

【表 1 7】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-236 | | | | | | | | |
| IV-237 | | | | | | | | |
| IV-238 | | | | | | | | |
| IV-239 | | | | | | | | |

10

【 0 0 5 6 】

【表 1 8】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-240 | | | | | | | | |
| IV-241 | | | | | | | | |
| IV-242 | | | | | | | | |
| IV-243 | | | | | | | | |
| IV-244 | | | | | | | | |
| IV-245 | | | | | | | | |
| IV-246 | | | | | | | | |
| IV-247 | | | | | | | | |

20

30

【 0 0 5 7 】

【表 1 9】

表 1 9

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-248 | | | | | | | | |
| IV-249 | | | | | | | | |
| IV-250 | | | | | | | | |
| IV-251 | | | | | | | | |
| IV-252 | | | | | | | | |
| IV-253 | | | | | | | | |
| IV-254 | | | | | | | | |
| IV-255 | | | | | | | | |

10

20

【 0 0 5 8 】

【表 2 0】

表 2 0

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-256 | | | | | | | H | H |
| IV-257 | | | | | | | H | H |
| IV-258 | | | | | | | H | H |
| IV-259 | | | | | | | H | H |
| IV-260 | | | | | | | H | H |
| IV-261 | | | | | | | H | H |
| IV-262 | | | | | | | H | H |
| IV-263 | | | | | | | H | H |
| IV-264 | | | | | | | H | H |
| IV-265 | | | | | | | H | H |

30

40

【 0 0 5 9 】

【表 2 1】

表 2 1

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-266 | | | | | | | H | H |
| IV-267 | | | | | | | H | H |
| IV-268 | | | | | | | H | H |
| IV-269 | | | | | | | H | H |
| IV-270 | | | | | | | H | H |
| IV-271 | | | | | | | H | H |
| IV-272 | | | | | | | H | H |
| IV-273 | | | | | | | H | H |
| IV-274 | | | | | | | H | H |
| IV-275 | | | | | | | H | H |

10

20

【0 0 6 0】

【表 2 2】

表 2 2

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-276 | | | | | | | H | H |
| IV-277 | | | | | | | H | H |
| IV-278 | | | | | | | H | H |
| IV-279 | | | | | | | H | H |
| IV-280 | | | | | | | H | H |
| IV-281 | | | | | | | H | H |
| IV-282 | | | | | | | H | H |
| IV-283 | | | | | | | H | H |
| IV-284 | | | | | | | H | H |

30

40

【0 0 6 1】

【表 2 3】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-285 | | | | | | | H | H |
| IV-286 | | | | | | | H | H |
| IV-287 | | | | | | | H | H |
| IV-288 | | | | | | | H | H |

【 0 0 6 2 】

【表 2 4】

| 化合物 No. | 置換基 | | | | | | | |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
| IV-289 | | | | | | | H | H |
| IV-290 | | | | | | | H | H |
| IV-291 | | | | | | | H | H |
| IV-292 | | | | | | | H | H |
| IV-293 | | | | | | | H | H |
| IV-294 | | | | | | | H | H |
| IV-295 | | | | | | | H | H |
| IV-296 | | | | | | | H | H |

【 0 0 6 3 】

10

20

30

【表 2 5】

表 2 5

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-297 | | | | | | | H | H |
| IV-298 | | | | | | | H | H |
| IV-299 | | | | | | | H | H |
| IV-300 | | | | | | | H | H |
| IV-301 | | | | | | | H | H |
| IV-302 | | | | | | | H | H |
| IV-303 | | | | | | | H | H |
| IV-304 | | | | | | | H | H |

10

20

【0064】

【表 2 6】

表 2 6

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-305 | | | | | | | H | H |
| IV-306 | | | | | | | H | H |
| IV-307 | | | | | | | H | H |
| IV-308 | | | | | | | H | H |
| IV-309 | | | | | | | H | H |
| IV-310 | | | | | | | H | H |
| IV-311 | | | | | | | H | H |
| IV-312 | | | | | | | H | H |
| IV-313 | | | | | | | H | H |
| IV-314 | | | | | | | H | H |

30

40

【0065】

【表 2 7】

表 2 7

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-315 | | | | | | | H | H |
| IV-316 | | | | | | | H | H |
| IV-317 | | | | | | | H | H |
| IV-318 | | | | | | | H | H |
| IV-319 | | | | | | | H | H |
| IV-320 | | | | | | | H | H |
| IV-321 | | | | | | | H | H |
| IV-322 | | | | | | | H | H |
| IV-323 | | | | | | | H | H |
| IV-324 | | | | | | | H | H |

10

20

【 0 0 6 6 】

【表 2 8】

表 2 8

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-325 | | | | | | | H | H |
| IV-326 | | | | | | | H | H |
| IV-327 | | | | | | | H | H |

30

【 0 0 6 7 】

【表 2 9】

表 2 9

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-328 | | | | | | | H | H |
| IV-329 | | | | | | | H | H |
| IV-330 | | | | | | | H | H |
| IV-331 | | | | | | | H | H |

40

50

【 0 0 6 8 】

【 表 3 0 】

表 3 0

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-332 | | | | | | | H | H |
| IV-333 | | | | | | | H | H |
| IV-334 | | | | | | | H | H |
| IV-335 | | | | | | | H | H |
| IV-336 | | | | | | | H | H |
| IV-337 | | | | | | | H | H |
| IV-338 | | | | | | | H | H |
| IV-339 | | | | | | | H | H |

10

20

【 0 0 6 9 】

【 表 3 1 】

表 3 1

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-340 | | | | | | | H | H |
| IV-341 | | | | | | | H | H |
| IV-342 | | | | | | | H | H |
| IV-343 | | | | | | | H | H |
| IV-344 | | | | | | | H | H |
| IV-345 | | | | | | | H | H |
| IV-346 | | | | | | | H | H |
| IV-347 | | | | | | | H | H |

30

40

【 0 0 7 0 】

【表 3 2】

表 3 2

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-348 | | | | | | | | |
| IV-349 | | | | | | | | |
| IV-350 | | | | | | | | |
| IV-351 | | | | | | | | |
| IV-352 | | | | | | | | |
| IV-353 | | | | | | | | |
| IV-354 | | | | | | | | |
| IV-355 | | | | | | | | |
| IV-356 | | | | | | | | |
| IV-357 | | | | | | | | |

10

20

【0071】

【表 3 3】

表 3 3

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-358 | | | | | | | | |
| IV-359 | | | | | | | | |
| IV-360 | | | | | | | | |
| IV-361 | | | | | | | | |
| IV-362 | | | | | | | | |
| IV-363 | | | | | | | | |
| IV-364 | | | | | | | | |
| IV-365 | | | | | | | | |
| IV-366 | | | | | | | | |
| IV-367 | | | | | | | | |

30

40

【0072】

【表 3 4】

表 3 4

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-368 | | | | | | | | |
| IV-369 | | | | | | | | |
| IV-370 | | | | | | | | |
| IV-371 | | | | | | | | |
| IV-372 | | | | | | | | |
| IV-373 | | | | | | | | |
| IV-374 | | | | | | | | |
| IV-375 | | | | | | | | |

10

20

【 0 0 7 3 】

【表 3 5】

表 3 5

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-376 | | | | | | | | |
| IV-377 | | | | | | | | |
| IV-378 | | | | | | | | |
| IV-379 | | | | | | | | |
| IV-380 | | | | | | | | |
| IV-381 | | | | | | | | |
| IV-382 | | | | | | | | |
| IV-383 | | | | | | | | |

30

40

【 0 0 7 4 】

【表 3 6】

表 3 6

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-384 | | | | | | | | |
| IV-385 | | | | | | | | |
| IV-386 | | | | | | | | |

10

【 0 0 7 5 】

【表 3 7】

表 3 7

置換基

| 化合物 No. | R ¹⁰ | R ²⁰ | R ³⁰ | R ⁴⁰ | R ⁵⁰ | R ⁶⁰ | R ⁷⁰ | R ⁸⁰ |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| IV-387 | | | | | | | | |
| IV-388 | | | | | | | | |
| IV-389 | | | | | | | | |
| IV-390 | | | | | | | | |

20

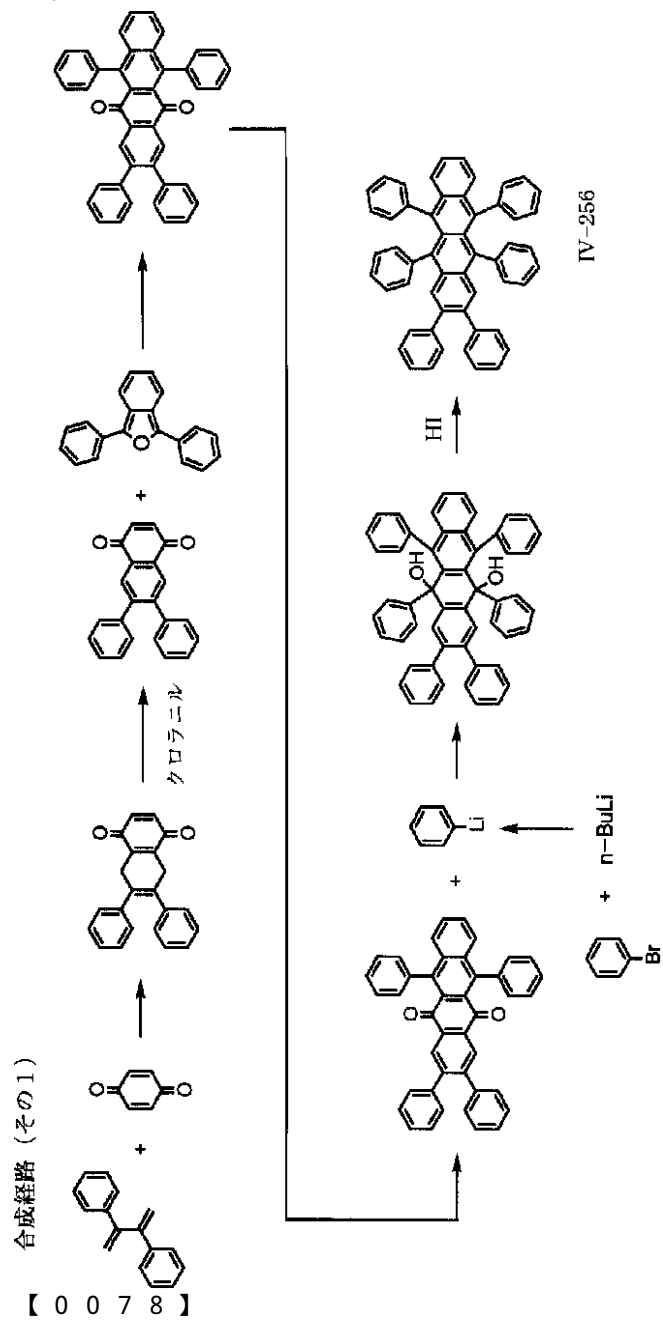
【 0 0 7 6 】

本発明の化合物を得るには、例えば、ジフェニルナフトキノンをを用いて合成することができる。以下に代表的な合成スキームを示す。

30

【 0 0 7 7 】

【化 5】

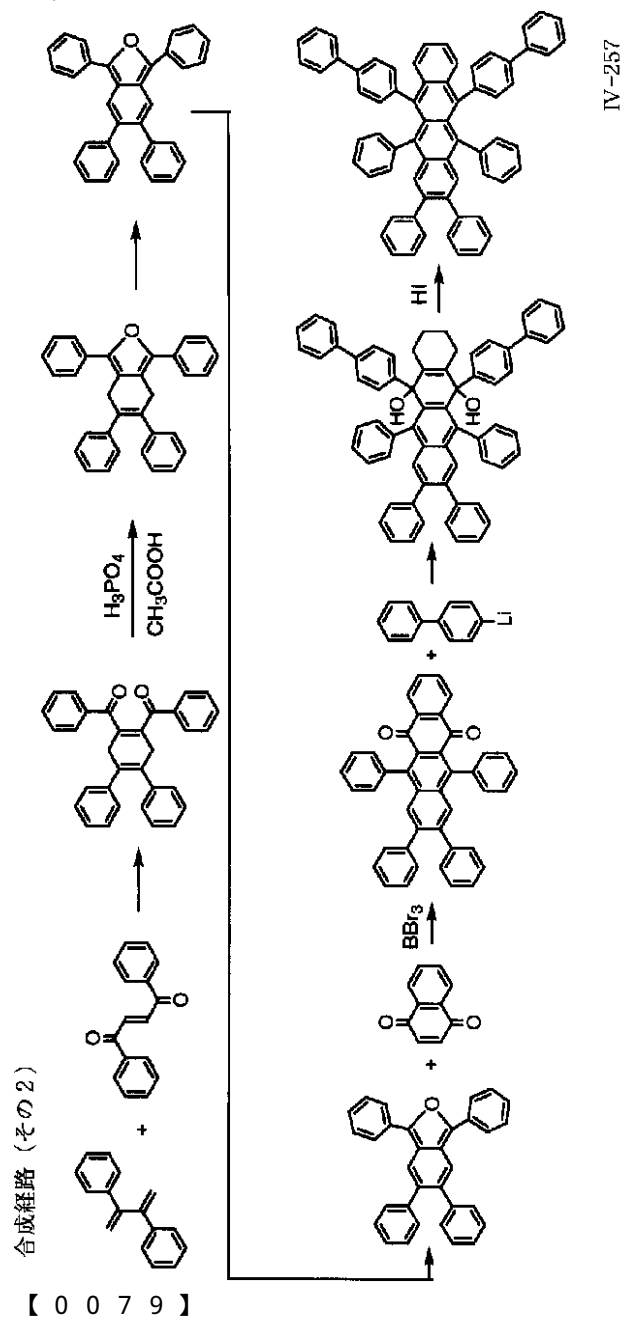


10

20

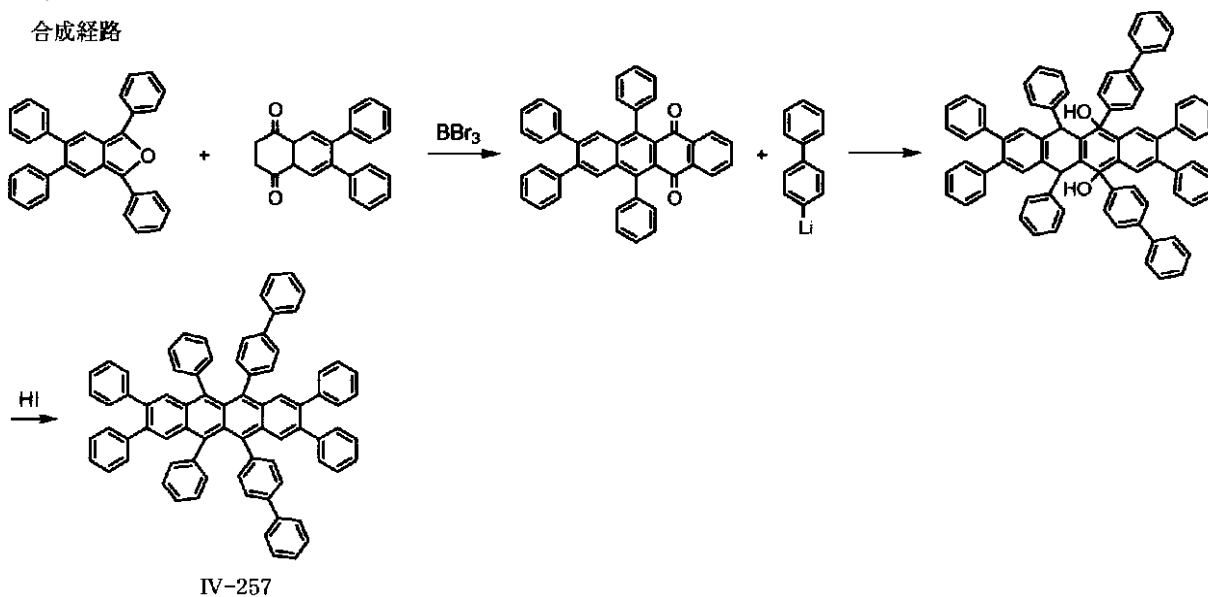
30

【化 6】



【化 7】

合成経路



10

【0080】

本発明の化合物を含有する発光層は、ホール（正孔）および電子の注入機能、それらの輸送機能、ホールと電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する。発光層は本発明の化合物の他、比較的電子的にニュートラルな化合物を用いることで、電子とホールを容易かつバランスよく注入・輸送することができる。

20

【0081】

本発明の有機EL素子の発光層には、それ自体で発光が可能なホスト物質と組み合わせて使用することが好ましく、ドーパントとしての使用が好ましい。このような場合の発光層における本発明の化合物の含有量は0.01～10wt%、さらには0.1～5wt%であることが好ましい。ホスト物質と組み合わせて使用することによって、ホスト物質の発光波長特性を変化させることができ、長波長に移行した発光が可能になるとともに、素子の発光効率や安定性が向上する。

【0082】

ホスト物質としては、キノリノラト錯体が好ましく、さらには8-キノリノールないしその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体が好ましい。このようなアルミニウム錯体としては、特開昭63-264692号、特開平3-255190号、特開平5-70733号、特開平5-258859号、特開平6-215874号等が開示されているものを挙げることができる。

30

【0083】

具体的には、まず、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム、ビス（8-キノリノラト）マグネシウム、ビス（ベンゾ{f}-8-キノリノラト）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノラト）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム、8-キノリノラトリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノラト）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノラト）カルシウム、5,7-ジクロロ-8-キノリノラトアルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-ヒドロキシキノリノラト）アルミニウム、ポリ〔亜鉛(II)-ビス（8-ヒドロキシ-5-キノリニル）メタン〕、等がある。

40

【0084】

また、8-キノリノールないしその誘導体のほかに他の配位子を有するアルミニウム錯体であってもよく、このようなものとしては、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（フェノラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（オルト-クレゾラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（メタ-クレゾラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（パラ-クレゾラト

50

) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(オルト-フェニルフェ
 ノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(メタ-フェニル
 フェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(パラ-フェ
 ニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,3
 -ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(
 2,6-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラ
 ト)(3,4-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノ
 リノラト)(3,5-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8
 -キノリノラト)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(
 2-メチル-8-キノリノラト)(2,6-ジフェニルフェノラト)アルミニウム(III)
 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,4,6-トリフェニルフェノラト)アル
 ミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,3,6-トリメチルフェ
 ノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,3,5,6
 -テトラメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラ
 ト)(1-ナフトラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2
 -ナフトラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(オ
 ルト-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-8-キノ
 リノラト)(パラ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-
 8-キノリノラト)(メタ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-
 ジメチル-8-キノリノラト)(3,5-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビ
 ス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラト)アル
 ミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラト)(パラ-クレゾ
 ラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラト)(パ
 ラ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キ
 ノリノラト)(オルト-クレゾラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-6-トリ
 フルオロメチル-8-キノリノラト)(2-ナフトラト)アルミニウム(III) 等がある。

10

20

30

40

50

【0085】

このほか、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) - μ - オキソ -
 ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-
 8-キノリノラト)アルミニウム(III) - μ - オキソ - ビス(2,4-ジメチル-8-キ
 ノリノラト)アルミニウム(III)、ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト)
 アルミニウム(III) - μ - オキソ - ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト)
 アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラト)アルミニウム(III)
) - μ - オキソ - ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラト)アルミニウム(III)、
 ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) - μ - オキソ -
 ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メ
 チル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) - μ - オキソ -
 ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) 等
 であってもよい。

【0086】

このほかのホスト物質としては、特願平6-110569号に記載のフェニルアントラ
 セン誘導体や特願平6-114456号に記載のテトラアリアルエテン誘導体なども好ま
 しい。また、TPDに代表されるようなトリフェニルアミン誘導体もホスト物質に好まし
 しい。

【0087】

この他、他の蛍光性物質を含有させることも可能である。このような蛍光性物質として
 は、例えば、特開昭63-264692号公報に開示されているような化合物、例えばキ
 ナクリドン、スチリル系色素等の化合物から選択される少なくとも1種が挙げられる。ま
 た、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム等の8-キノリノールないしその誘導体を
 配位子とする金属錯体色素などのキノリン誘導体、テトラフェニルブタジエン、アントラ

セン、ペリレン、コロネン、12-フタロペリノン誘導体等が挙げられる。さらには、特願平6-110569号のフェニルアントラセン誘導体、特願平6-114456号のテトラアリアルエテン誘導体等を用いることができる。

【0088】

発光層は電子注入輸送層を兼ねたものであってもよく、このような場合はトリス(8-キノリノラト)アルミニウム等を使用することが好ましい。これらの蛍光性物質を蒸着すればよい。

【0089】

また、必要に応じて発光層は、少なくとも一種以上のホール注入輸送性化合物と少なくとも一種以上の電子注入輸送性化合物との混合層とすることも好ましく、この混合層中にドーパントを含有させることが好ましい。このような混合層における化合物の含有量は、0.01~20wt%、さらには0.1~15wt%とすることが好ましい。

10

【0090】

混合層では、キャリアのホッピング伝導パスができるため、各キャリアは極性的に優勢な物質中を移動し、逆の極性のキャリア注入は起こり難くなり、有機化合物がダメージを受け難くなり、素子寿命がのびるという利点があるが、前述のドーパントをこのような混合層に含有させることにより、混合層自体のもつ発光波長特性を変化させることができ、発光波長を長波長に移行させることができるとともに、発光強度を高め、かつ素子の安定性を向上させることができる。特に、本発明の化合物は電子注入、ホール注入ともに安定でありドーパントとして2wt%程度ドーブするだけで飛躍的に発光寿命を延ばすことができる。

20

【0091】

また、ドーパントのキャリアトラップ性が、電子側もしくはホール側に偏っている場合、再結合を向上させるためキャリアトラップ性の異なる2種以上のドーパントを用いて再結合確率を向上させてもよい。キャリアトラップ性の異なるドーパントを用いることで、発光層でのホールと電子の再結合確率が向上し、発光効率、発光輝度が向上する。特に好ましい組み合わせは、ホスト材料に対して、電子トラップ性の高いドーパントと、ホスト材料に対して、ホールトラップ性の高いドーパントとの組み合わせである。

【0092】

混合層に用いられるホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物は、各々、後述のホール注入輸送層用の化合物および電子注入輸送層用の化合物の中から選択すればよい。なかでも、ホール注入輸送層用の化合物としては、強い蛍光を持ったアミン誘導体、例えばホール輸送材料であるトリフェニルジアミン誘導体(TPD)、さらにはスチリルアミン誘導体、芳香族縮合環を持つアミン誘導体を用いるのが好ましい。

30

【0093】

電子注入輸送性の化合物としては、キノリン誘導体、さらには8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする金属錯体、特にトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(Alq3)を用いることが好ましい。また、上記のフェニルアントラセン誘導体、テトラアリアルエテン誘導体を用いるのも好ましい。

【0094】

ホール注入輸送層用の化合物としては、強い蛍光を持ったアミン誘導体、例えば上記のホール輸送材料であるトリフェニルジアミン誘導体、さらにはスチリルアミン誘導体、芳香族縮合環を持つアミン誘導体を用いるのが好ましい。

40

【0095】

この場合の混合比は、それぞれのキャリア移動度とキャリア濃度を考慮する事で決定するが、一般的には、ホール注入輸送性化合物の化合物/電子注入輸送機能を有する化合物の重量比が、1/99~99/1、さらには10/90~90/10、特に20/80~80/20程度)となるようにすることが好ましい。

【0096】

また、混合層の厚さは、分子層一層に相当する厚みから、有機化合物層の膜厚未満とす

50

ることが好ましく、具体的には1～85nmとすることが好ましく、さらには5～60nm、特に5～50nmとすることが好ましい。

【0097】

また、混合層の形成方法としては、異なる蒸着源より蒸発させる共蒸着が好ましいが、蒸気圧（蒸発温度）が同程度あるいは非常に近い場合には、予め同じ蒸着ボード内で混合させておき、蒸着することもできる。混合層は化合物同士が均一に混合している方が好ましいが、場合によっては、化合物が島状に存在するものであってもよい。発光層は、一般的には、有機蛍光物質を蒸着するか、あるいは樹脂バインダー中に分散させてコーティングすることにより、発光層を所定の厚さに形成する。

【0098】

本発明の化合物を用いて製造される有機EL発光素子の構成例として、例えば、基板上に、ホール注入電極、ホール注入・輸送層、発光および電子注入輸送層、電子注入電極を順次有する。また、必要により電子注入電極上に補助電極や封止層を有していてもよい。

【0099】

本発明の有機EL素子は、上記例に限らず、種々の構成とすることができ、例えば発光層を単独で設け、この発光層と電子注入電極との間に電子注入輸送層を介在させた構造とすることもできる。また、必要に応じ、ホール注入・輸送層と発光層とを混合しても良い。

【0100】

発光層の厚さ、ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは特に限定されず、形成方法によっても異なるが、通常、5～500nm程度、特に10～300nmとすることが好ましい。

【0101】

ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは、再結合・発光領域の設計によるが、発光層の厚さと同程度もしくは1/10～10倍程度とすればよい。ホールもしくは電子の、各々の注入層と輸送層を分ける場合は、注入層は1nm以上、輸送層は1nm以上とするのが好ましい。このときの注入層、輸送層の厚さの上限は、通常、注入層で500nm程度、輸送層で500nm程度である。このような膜厚については注入輸送層を2層設けるときも同じである。

【0102】

ホール注入輸送層は、ホール注入電極からのホールの注入を容易にする機能、ホールを安定に輸送する機能および電子を妨げる機能を有し、電子注入輸送層は、電子注入電極からの電子の注入を容易にする機能、電子を安定に輸送する機能およびホールを妨げる機能を有するものであり、これらの層は、発光層に注入されるホールや電子を増大・閉じこめさせ、再結合領域を最適化させ、発光効率を改善する。

【0103】

また、ホール注入輸送層には、例えば、特開昭63-295695号公報、特開平2-191694号公報、特開平3-792号公報、特開平5-234681号公報、特開平5-239455号公報、特開平5-299174号公報、特開平7-126225号公報、特開平7-126226号公報、特開平8-100172号公報、EP0650955A1等に記載されている各種有機化合物を用いることができる。例えば、テトラアリアルベンジシン化合物（トリアリアルジアミンないしトリフェニルジアミン：TPD）、芳香族三級アミン、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、アミノ基を有するオキサジアゾール誘導体、ポリチオフェン等である。これらの化合物は2種以上を併用してもよく、併用するときは別層にして積層したり、混合したりすればよい。

【0104】

ホール注入輸送層をホール注入層とホール輸送層とに分けて設ける場合は、ホール注入輸送層性の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いることができる。このとき、ホール注入電極（ITO等）側からイオン化ポテンシャルの小さい化合物の層の順に積

10

20

30

40

50

層することが好ましい。またホール注入電極表面には薄膜性の良好な化合物を用いることが好ましい。このような積層順については、ホール注入輸送層を2層以上設けるときの同様である。このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下し、電流リークの発生やダークスポットの発生・成長を防ぐことができる。また、素子化する場合、蒸着を用いているので1～10nm程度の薄い膜も、均一かつピンホールフリーとすることができるため、ホール注入層にイオン化ポテンシャルが小さく、可視部に吸収をもつような化合物を用いても、発光色の色調変化や再吸収による効率の低下を防ぐことができる。ホール注入輸送層は、発光層等と同様に上記の化合物を蒸着することにより形成することができる。

【0105】

また、必要に応じて設けられる電子注入輸送層には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(Alq3)等の8-キノリノールなしいその誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体等を用いることができる。電子注入輸送層は発光層を兼ねたものであってもよく、このような場合はトリス(8-キノリノラト)アルミニウム等を使用することが好ましい。電子注入輸送層の形成は発光層と同様に蒸着等によればよい。

【0106】

電子注入輸送層を電子注入層と電子輸送層とに分けて積層する場合には、電子注入輸送層性の化合物の中から好ましい組み合わせを選択して用いることができる。このとき、電子注入電極側から電子親和力の値の大きい化合物の順に積層することが好ましい。このような積層順については電子注入輸送層を2層以上設けるときの同様である。

【0107】

ホール注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の形成には、均質な薄膜が形成できることから真空蒸着法を用いることが好ましい。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が0.1μm以下の均質な薄膜が得られる。結晶粒径が0.1μmを超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、ホールの注入効率も著しく低下する。

【0108】

真空蒸着の条件は特に限定されないが、 10^{-4} Pa以下の真空度とし、蒸着速度は0.01～1nm/sec程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げるため、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くしたり、ダークスポットの成長・発生を抑えたりすることができる。

【0109】

これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して共蒸着することが好ましい。

【0110】

電子注入電極は、好ましくは仕事関数が4eV以下の金属、合金または金属間化合物から構成される。仕事関数が4eVを超えると、電子の注入効率が低下し、ひいては発光効率も低下する。仕事関数が4eV以下の電子注入電極膜の構成金属としては、例えば例えば、Li、Na、K等のアルカリ金属、Mg、Ca、Sr、Ba等のアルカリ土類金属、La、Ce等の希土類金属や、Al、In、Ag、Sn、Zn、Zr等が挙げられる。仕事関数が4eV以下の膜の構成合金としては、例えばAg・Mg(Ag:0.1～50at%)、Al・Li(Li:0.01～12at%)、In・Mg(Mg:50～80at%)、Al・Ca(Ca:0.01～20at%)等が挙げられる。これらは単独で、あるいは2種以上の組み合わせとして存在してもよく、これらを2種以上組み合わせた場合の混合比は任意である。また、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属の酸化物やハロゲン化合物を薄く成膜し、アルミニウム等の支持電極(補助電極、配線電極)を用いてもよい。

【0111】

この電子注入電極は蒸着法やスパッタ法等によって形成できる。

10

20

30

40

50

【 0 1 1 2 】

このような電子注入電極の厚さは、電子注入を十分行える一定以上の厚さとすればよく、0.5 nm以上、好ましくは1 nm以上とすればよい。また、その上限値には特に制限はないが、通常膜厚は1 ~ 500 nm程度とすればよい。

【 0 1 1 3 】

ホール注入電極としては、好ましくは発光した光の透過率が80%以上となるような材料および厚さを決定することが好ましい。具体的には、酸化物透明導電薄膜が好ましく、例えば、錫ドーパ酸化インジウム (ITO)、亜鉛ドーパ酸化インジウム (IZO)、酸化インジウム (In_2O_3)、酸化スズ (SnO_2) および酸化亜鉛 (ZnO) のいずれかを主組成としたものが好ましい。これらの酸化物はその化学量論組成から多少偏倚していてもよい。 In_2O_3 に対し SnO_2 の混合比は、1 ~ 20 wt% が好ましく、さらには5 ~ 12 wt% が好ましい。 In_2O_3 に対し ZnO の混合比は、12 ~ 32 wt% が好ましい。

10

【 0 1 1 4 】

ホール注入電極は、発光波長帯域、通常350 ~ 800 nm、特に各発光光に対する光透過率が80%以上、特に90%以上であることが好ましい。通常、発光光はホール注入電極を通して取り出されるため、その透過率が低くなると、発光層からの発光自体が減衰され、発光素子として必要な輝度が得られなくなる傾向がある。ただし、発光光を取り出す側が80%以上であればよい。

【 0 1 1 5 】

ホール注入電極の厚さは、ホール注入を十分行える一定以上の厚さを有すれば良く、好ましくは50 ~ 500 nm、さらには50 ~ 300 nmの範囲が好ましい。また、その上限は特に制限はないが、あまり厚いと剥離などの心配が生じる。厚さが薄すぎると、製造時の膜強度やホール輸送能力、抵抗値の点で問題がある。

20

【 0 1 1 6 】

ホール注入電極を成膜するにはスパッタ法が好ましい。スパッタ法としてはRF電源を用いた高周波スパッタ法等も可能であるが、成膜するホール注入電極の膜物性の制御のし易さや、成膜面の平滑度等を考慮するとDCスパッタ法を用いることが好ましい。

【 0 1 1 7 】

また、必要に応じて保護膜を形成してもよい。保護膜は SiO_x 等の無機材料、テフロン(登録商標)等の有機材料等を用いて形成することができる。保護膜は透明でも不透明であってもよく、保護膜の厚さは50 ~ 1200 nm程度とする。保護膜は前記した反応性スパッタ法の他に、一般的なスパッタ法、蒸着法等により形成すればよい。

30

【 0 1 1 8 】

さらに、素子の有機層や電極の酸化を防ぐために素子上に封止層を設けることが好ましい。封止層は、湿気の侵入を防ぐために市販の低吸湿性の光硬化性接着剤、エポキシ系接着剤、シリコン系接着剤、架橋エチレン-酢酸ビニル共重合体接着剤シート等の接着性樹脂層を用いて、ガラス板等の封止板を接着し密封する。ガラス板以外にも金属板、プラスチック板等を用いることもできる。

【 0 1 1 9 】

基板材料としては、基板側から発光した光を取り出す構成の場合、ガラスや石英、樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。また、基板に色フィルター膜や蛍光性物質を含む色変換膜、あるいは誘電体反射膜を用いて発光色をコントロールしてもよい。また、前記逆積層の場合には、基板は透明でも不透明であってもよく、不透明である場合にはセラミックス等を使用してもよい。

40

【 0 1 2 0 】

カラーフィルター膜には、液晶ディスプレイ等で用いられているカラーフィルターを用いれば良いが、有機ELの発光する光に合わせてカラーフィルターの特性を調整し、取り出し効率・色純度を最適化すればよい。

【 0 1 2 1 】

50

また、E L 素子材料や蛍光変換層が光吸収するような短波長の外光をカットできるカラーフィルターを用いれば、素子の耐光性・表示のコントラストも向上する。

【0122】

また、誘電体多層膜のような光学薄膜を用いてカラーフィルターの代わりにしても良い。

【0123】

蛍光変換フィルター膜は、E L 発光の光を吸収し、蛍光変換膜中の蛍光体から光を放出させることで、発光色の色変換を行うものであるが、組成としては、バインダー、蛍光材料、光吸収材料の三つから形成される。

【0124】

蛍光材料は、基本的には蛍光量子収率が高いものを用いれば良く、E L 発光波長域に吸収が強いことが望ましい。実際には、レーザー色素などが適しており、ローダミン系化合物・ペリレン系化合物・シアニン系化合物・フタロシアニン系化合物（サブフタロ等も含む）ナフトロイミド系化合物・縮合環炭化水素系化合物・縮合複素環系化合物・スチリル系化合物・クマリン系化合物等を用いればよい。

【0125】

バインダーは基本的に蛍光を消光しないような材料を選べば良く、フォトリソグラフィ・印刷等で微細なパターンニングが出来るようなものが好ましい。また、ITOの成膜時にダメージを受けないような材料が好ましい。

【0126】

光吸収材料は、蛍光材料の光吸収が足りない場合に用いるが、必要の無い場合は用いなくても良い。また、光吸収材料は、蛍光性材料の蛍光を消光しないような材料を選べば良い。

【0127】

本発明により製造される有機E L 素子の構成例を図1に示す。図1に示される有機E L 素子は、基板1上に、ホール注入電極2、ホール注入輸送層3、発光層4、電子注入輸送層5、電子注入電極6を順次有する。本発明の有機E L 素子は、図示例に限らず、種々の構成とすることができる。

【0128】

本発明の有機E L 素子は、通常、直流駆動型、パルス駆動型のE L 素子として用いられるが、交流駆動とすることもできる。印加電圧は、通常、2～30V程度とされる。

【実施例】

【0129】

以下、本発明の具体的実施例を比較例とともに示し、本発明をさらに詳細に説明する。

【0130】

<合成例1>

2, 3, 5, 6, 11, 12 - ヘキサフェニルナフタセン（例示化合物：IV - 256）の合成。

1, 4 - ベンゾキノンと、2, 3 - ジメチルブタジエンとのDiels-Alder反応により、6, 7 - ジフェニル - 1, 4 - ナフトキノンを合成した。

【0131】

次いで、塩化メチレン中、6, 7 - ジフェニル - 1, 4 - ナフトキノンを5.2g（16.7mmol）と、1, 3 - ジフェニルイソベンゾフラン5.4g（20mmol）との混合溶液に、三臭化ホウ素を、1時間かけて添加することにより、2, 3, 6, 11 - テトラフェニル - 5, 12 - ナフトキノンを7.5gを得た。（黄色針状結晶：80%）

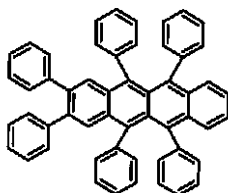
【0132】

さらに、上記2, 3, 6, 11 - テトラフェニル - 1, 4 - ナフトキノンを、プロモベンゼンとから、ジオール体1.6g（白色粉末：86%）を得、下記構造の目的物1.2gを得た（赤色固体：78%）。この赤色固体1gを昇華精製したところ、赤色固体0.8gを得た。得られた赤色固体の分析結果を下記に示す。

【 0 1 3 3 】

【 化 8 】

IV - 256



【 0 1 3 4 】

質量分析： m/e 685 [(M+1)⁺] (スペクトルを図2に示す)

¹H - NMRスペクトル：図3に示す。

赤外吸収スペクトル：図4に示す。

10

【 0 1 3 5 】

< 合成例 2 >

6, 11 - ビス (ピフェニリル) - 2, 3, 5, 12 - テトラフェニル - ナфтаセン (例示化合物：IV - 257) の合成。

ジベンゾイルエチレンと、2, 3 - ジフェニルブタジエとのDiels-Alder反応により、4, 5 - ジフェニル - 1, 2 - ジベンゾイルベンゼンのテトラヒドロ体を合成した。

【 0 1 3 6 】

次いで、このテトラヒドロ体を無水酢酸中リン酸触媒で環化反応を行い、4, 7 - ジヒドロ - 1, 3, 5, 6 - テトラフェニルイソベンゾフランを得た。

20

【 0 1 3 7 】

次いで、上記フランのジヒドロ体と、テトラクロロ - p - ベンゾキノン (クロラニル) をトルエン中で加熱環流して脱水素化を行い、1, 3, 5, 6 - テトラフェニルイソベンゾフランを得た。

【 0 1 3 8 】

次いで、合成例1と同様にして、上記1, 3, 5, 6 - テトラフェニルイソベンゾフランと、1, 4 - ナフトキノンより、6, 8, 9, 11 - テトラフェニル - 5, 12 - ナфтаセンキノン合成した。

【 0 1 3 9 】

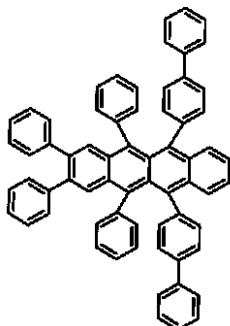
さらに、上記6, 8, 9, 11 - テトラフェニル - 5, 12 - ナфтаセンキノンと、p - ブロモピフェニルとから、ジオール体1.7g (白色粉末：73%)を得、下記構造の目的物1.1gを得た (赤色固体：71%)。この赤色固体1gを昇華精製したところ、赤色固体0.9gを得た。得られた赤色固体の分析結果を下記に示す。

30

【 0 1 4 0 】

【 化 9 】

IV - 257



40

【 0 1 4 1 】

質量分析： m/e 837 [(M+1)⁺] (スペクトルを図5に示す)

¹H - NMRスペクトル：図6に示す。

赤外吸収スペクトル：図7に示す。

【 0 1 4 2 】

< 合成例 3 >

50

5, 12 - ビス(ビフェニル) - 2, 3, 6, 8, 9, 11 - ヘキサフェニル - ナフタセン(例示化合物: IV - 213)の合成。

合成例 1 と同様にして、5, 6 - ジフェニル - 1, 4 - ナフトキノンと、1, 3, 5, 6 - テトラフェニルイソベンゾフランから、2, 3, 6, 8, 9, 11 - ヘキサフェニル - 5, 12 - ナフタセンキノンを合成した。

【0143】

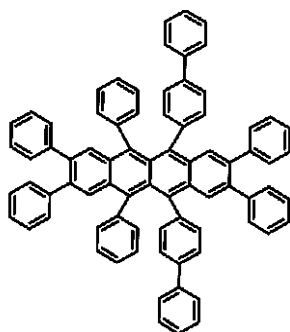
次いで、上記 2, 3, 6, 8, 9, 11 - ヘキサフェニル - 5, 12 - ナフタセンキノンと、p - プロモビフェニルとから、ジオール体 1.8g (白色粉末: 83%) を得、下記構造の目的物 1.1g を得た(赤色固体: 65%)。この赤色固体 1g を昇華精製したところ、赤色固体 0.8g を得た。得られた赤色固体の分析結果を下記に示す。

10

【0144】

【化10】

IV - 213



20

【0145】

質量分析: m/e 989 $[(M+1)^+]$ (スペクトルを図 8 に示す)

1H - NMR スペクトル: 図 9 に示す。

赤外吸収スペクトル: 図 10 に示す。

【0146】

< 実施例 1 >

ガラス基板上に RF スパッタ法で、ITO 透明電極薄膜を 100 nm の厚さに成膜し、パターンニングした。この ITO 透明電極付きガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄し、煮沸エタノール中から引き上げて乾燥した。透明電極表面を UV/O₃ 洗浄した後、真空蒸着装置の基板ホルダーに固定して、槽内を 1×10^{-4} Pa 以下まで減圧した。

30

【0147】

次いで減圧状態を保ったまま、N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス[N - (4 - メチルフェニル) - N - フェニル - (4 - アミノフェニル)] - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミンを蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の膜厚に蒸着し、ホール注入層とした。

【0148】

次いで、N, N, N', N' - テトラキス(m - ビフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン(TPD)を蒸着速度 0.2 nm/sec で 20 nm の厚さに蒸着し、ホール輸送層とした。

40

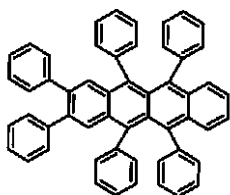
【0149】

さらに、減圧を保ったまま、下記構造の化合物(例示化合物 IV - 256)とトリス(8 - キノリノラト)アルミニウム(Alq3)を、重量比を 2:100 で、全体の蒸着速度 0.2 nm/sec として 70 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送性発光層とした。

【0150】

【化 1 1】

IV - 256



【 0 1 5 1】

次いで、減圧状態を保ったまま、Mg・Al（重量比10：1）を蒸着速度0.2 nm/secで200 nmの厚さに蒸着し、電子注入電極とし、保護電極としてAlを100 nm蒸着し有機EL素子を得た。

10

【 0 1 5 2】

この有機EL素子に直流電圧を印加したところ、10 mA/cm²の電流密度で、駆動電圧が8.88 Vで、675 cd/m²の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\max} = 574$ nm、色度座標は(x, y) = (0.53, 0.46)であった。

【 0 1 5 3】

また、実施例1と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 = 145 cd/m²、極大波長 $\lambda_{\max} = 620$ nm、色度座標は(x, y) = (0.66, 0.34)の赤色発光が確認できた。

【 0 1 5 4】

また、この素子に50 mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は3000時間以上の高寿命特性を示した。

20

【 0 1 5 5】

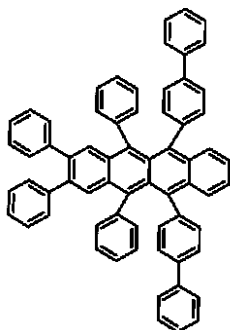
< 実施例 2 >

実施例1において、電子注入輸送・発光層にAlq3と共に用いる化合物を、下記構造の化合物（例示化合物IV-257）とした他は実施例1と同様にして有機EL素子を得た。

【 0 1 5 6】

【化 1 2】

IV - 257



30

【 0 1 5 7】

この有機EL素子に直流電圧を印加したところ、10 mA/cm²の電流密度で、駆動電圧が9.0 Vで、720 cd/m²の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\max} = 580$ nm、色度座標は(x, y) = (0.54, 0.46)であった。

40

【 0 1 5 8】

また、実施例1と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 = 155 cd/m²、極大波長 $\lambda_{\max} = 620$ nm、色度座標は(x, y) = (0.66, 0.34)の赤色発光が確認できた。

【 0 1 5 9】

また、この素子に50 mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は3000時間以上の高寿命特性を示した。

【 0 1 6 0】

< 実施例 3 >

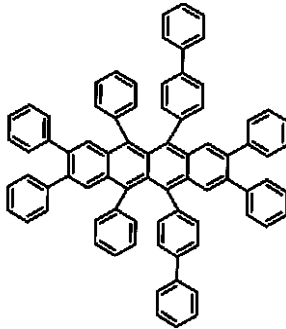
50

実施例 1 において、電子注入輸送・発光層に A 1 q 3 と共に用いる化合物を、下記構造の化合物（例示化合物 IV - 2 1 3）とした他は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 1 6 1 】

【 化 1 3 】

IV - 213



10

【 0 1 6 2 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 9.3 V で、 500 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\text{max} = 590 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.58, 0.42)$ であった。

【 0 1 6 3 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 135 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\text{max} = 620 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.68, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

20

【 0 1 6 4 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 3000 時間以上の高寿命特性を示した。

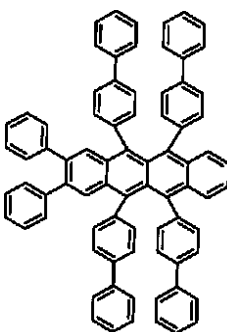
【 0 1 6 5 】

< 実施例 4 >

実施例 1 において、電子注入輸送・発光層に A 1 q 3 と共に用いる化合物を、下記構造の化合物（例示化合物 IV - 7 8）とした他は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 1 6 6 】

【 化 1 4 】



30

40

【 0 1 6 7 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 8.6 V で、 750 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\text{max} = 578 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.54, 0.46)$ であった。

【 0 1 6 8 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 152 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\text{max} = 620 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.66, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 1 6 9 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間

50

は 4 0 0 0 時間以上の高寿命特性を示した。

【 0 1 7 0 】

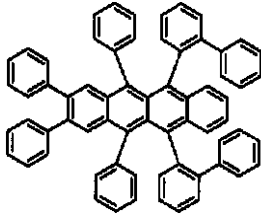
< 実施例 5 >

実施例 1 において、電子注入輸送・発光層に A 1 q 3 と共に用いる化合物を、下記構造の化合物（例示化合物 IV - 2 5 9 ）とした他は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 1 7 1 】

【 化 1 5 】

IV - 259



10

【 0 1 7 2 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 8.5 V で、 700 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\text{max} = 585 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.56, 0.44)$ であった。

【 0 1 7 3 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 155 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\text{max} = 620 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.66, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 1 7 4 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 3 0 0 0 時間以上の高寿命特性を示した。

【 0 1 7 5 】

< 実施例 6 >

実施例 1 において、電子注入輸送・発光層に A 1 q 3 と共に用いる化合物を、上記各実施例で用いた例示化合物以外の I ~ IV の化合物を用いて有機 E L 素子を得たところ、ほぼ同様の効果が得られた。

【 0 1 7 6 】

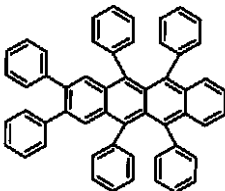
< 実施例 7 >

実施例 1 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物を下記構造の化合物（IV - 2 5 6 ）とし、TPD と下記構造の化合物を重量比で 2 : 1 0 0 の比率で蒸着し、A 1 q 3 は単層で蒸着した他は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 1 7 7 】

【 化 1 6 】

IV - 256



40

【 0 1 7 8 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.72 V で、 810 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\text{max} = 572 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.48, 0.50)$ であった。

【 0 1 7 9 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 141 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\text{max} = 615 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.61, 0.37)$ の赤色

50

発光が確認できた。

【 0 1 8 0 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1800 時間以上の高寿命特性を示した。

【 0 1 8 1 】

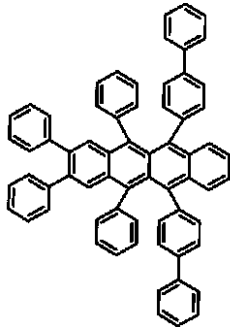
< 実施例 8 >

実施例 7 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物を下記構造の化合物 (IV - 257) とした他は実施例 7 と同様にして有機 EL 素子を得た。

【 0 1 8 2 】

【 化 1 7 】

IV - 257



10

20

【 0 1 8 3 】

この有機 EL 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.94 V で、 866 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 578 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.51, 0.47)$ であった。

【 0 1 8 4 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 = 145 cd/m^2 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 616 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.62, 0.37)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 1 8 5 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 2000 時間以上の高寿命特性を示した。

【 0 1 8 6 】

< 実施例 9 >

実施例 7 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物を上記実施例 1 ~ 8 で用いた以外の表 1 ~ 32 に示す例示化合物を用いて有機 EL 素子を得たところ、ほぼ同様の効果が得られた。

【 0 1 8 7 】

< 実施例 10 >

実施例 1 と同様にホール注入層を形成した後、キャリアトラップ性の異なる下記構造の本発明の化合物 (I - 1) および (IV - 213) と、N, N, N', N' - テトラキス (m - ピフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン (TPD) を、重量比 2 : 2 : 100 で、蒸着速度 0.2 nm/sec とし、40 nm の厚さに蒸着して発光層とした。

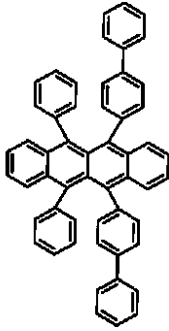
【 0 1 8 8 】

30

40

【化 18】

I-1

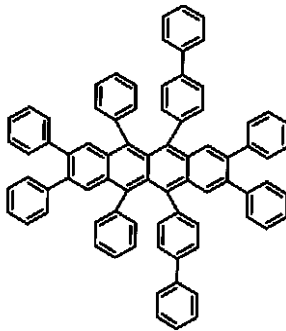


10

【0189】

【化 19】

IV-213



20

【0190】

さらに、減圧を保ったまま、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（Alq3）を蒸着速度 0.2 nm/sec として 30 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0191】

次いで、実施例 1 と同様に、Mg・Ag（重量比 10 : 1）電子注入電極、および Al 保護電極を成膜し、有機 EL 素子を得た。

【0192】

この有機 EL 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 6.3 V で、 1000 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 585 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.57, 0.40)$ であった。

30

【0193】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 153 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 620 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.66, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

【0194】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 4000 時間以上と、極めて優れた高寿命特性を示した。

【0195】

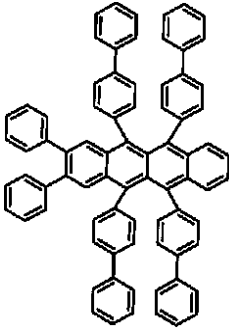
< 実施例 11 >

実施例 7 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物を下記構造の化合物（IV-78）とした他は実施例 7 と同様にして有機 EL 素子を得た。

40

【0196】

【化 2 0】



10

【 0 1 9 7】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.7 V で、 950 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 570 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.51, 0.46)$ であった。

【 0 1 9 8】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 153 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 615 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.61, 0.37)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 1 9 9】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 3000 時間以上の高寿命特性を示した。

20

【 0 2 0 0】

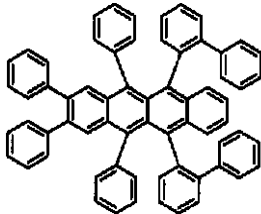
< 実施例 1 2 >

実施例 7 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物を下記構造の化合物 (IV - 259) とした他は実施例 7 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 2 0 1】

【化 2 1】

IV - 259



30

【 0 2 0 2】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.75 V で、 900 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 577 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.45, 0.52)$ であった。

【 0 2 0 3】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 160 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 615 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.61, 0.37)$ の赤色発光が確認できた。

40

【 0 2 0 4】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 2500 時間以上の高寿命特性を示した。

【 0 2 0 5】

< 比較例 1 >

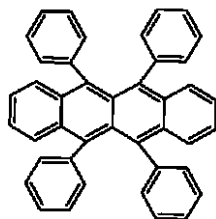
実施例 1 において、電子注入輸送・発光層に Alq3 と共に用いる化合物を、下記構造のルブレンとした他は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 2 0 6】

50

【化 2 2】

ルブレ



【 0 2 0 7 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 9.0 V で、 700 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 max = 558 nm 、色度座標は $(x, y) = (0.48, 0.51)$ であった。

10

【 0 2 0 8 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 = 90 cd/m^2 、極大波長 max = 620 nm 、色度座標は $(x, y) = (0.65, 0.35)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 2 0 9 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1500 時間未満であった。

【 0 2 1 0 】

< 比較例 2 >

20

ガラス基板上に R F スパッタ法で、ITO 透明電極薄膜を 100 nm の厚さに成膜し、パターンニングした。この ITO 透明電極付きガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄し、煮沸エタノール中から引き上げて乾燥した。透明電極表面を UV/O_3 洗浄した後、真空蒸着装置の基板ホルダーに固定して、槽内を $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 以下まで減圧した。

【 0 2 1 1 】

次いで減圧状態を保ったまま、N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス [N - (4 - メチルフェニル) - N - フェニル - (4 - アミノフェニル)] - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミンを蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の膜厚に蒸着し、ホール注入層とした。

30

【 0 2 1 2 】

次いで、N, N, N', N' - テトラキス (m - ビフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン (T P D) を蒸着速度 0.2 nm/sec で 20 nm の厚さに蒸着し、ホール輸送層とした。

【 0 2 1 3 】

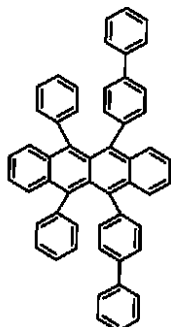
さらに、減圧を保ったまま、下記構造の化合物 (I - 1) とトリス (8 - キノリノラト) アルミニウム (A l q 3) を、重量比を $2 : 100$ で、全体の蒸着速度 0.2 nm/sec として 70 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送性発光層とした。

【 0 2 1 4 】

【化 2 3】

40

I-1



【 0 2 1 5 】

50

次いで、減圧状態を保ったまま、Mg・Ag（重量比10：1）を蒸着速度0.2 nm/secで200 nmの厚さに蒸着し、電子注入電極とし、保護電極としてAlを100 nm蒸着し有機EL素子を得た。

【0216】

この有機EL素子に直流電圧を印加し、初期には10 mA/cm²の電流密度で、駆動電圧が9.0 Vで、800 cd/m²の発光が確認できた。このときの発光極大波長 max = 572 nm、色度座標は(x, y) = (0.53, 0.46)であった。

【0217】

さらに、この素子に10 mA/cm²の一定電流を流して発光させながら、LCD用赤色フィルターを輝度計に装着して測定したところ、輝度 = 153 cd/m²、極大波長 max = 620 nm、色度座標は(x, y) = (0.66, 0.34)の赤色発光が確認できた。なお、使用した赤色用フィルターは、波長590 nm以下を遮断し、波長600 nmでの透過率は30%である。

10

【0218】

また、この素子に50 mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は2500時間以下であった。

【0219】

< 比較例 3 >

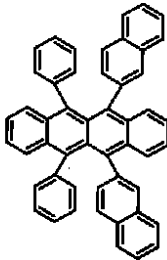
比較例2において、電子注入輸送・発光層にAlq3と共に用いる化合物を、下記構造の化合物(I-85)とした他は比較例2と同様にして有機EL素子を得た。

20

【0220】

【化24】

I-85



【0221】

この有機EL素子に直流電圧を印加したところ、10 mA/cm²の電流密度で、駆動電圧が9.4 Vで、870 cd/m²の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 max = 570 nm、色度座標は(x, y) = (0.52, 0.47)であった。

30

【0222】

また、実施例1と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 = 147 cd/m²、極大波長 max = 620 nm、色度座標は(x, y) = (0.66, 0.34)の赤色発光が確認できた。

【0223】

また、この素子に50 mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は2500時間以下であった。

40

【0224】

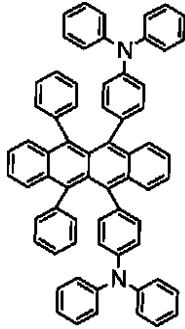
< 比較例 4 >

比較例2において、電子注入輸送・発光層にAlq3と共に用いる化合物を、下記構造の化合物(II-40)とした他は比較例2と同様にして有機EL素子を得た。

【0225】

【化 2 5】

II-40



10

【0 2 2 6】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 8.2 V で、 790 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\text{max} = 583 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.54, 0.45)$ であった。

【0 2 2 7】

また、比較例 2 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 156 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\text{max} = 621 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.66, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

【0 2 2 8】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1500 時間以下であった。

20

【0 2 2 9】

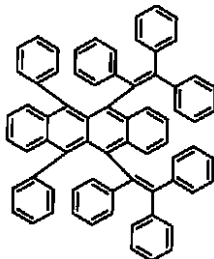
< 比較例 5 >

実施例 2 において、電子注入輸送・発光層に A 1 q 3 と共に用いる化合物を、下記構造の化合物 (III - 38) とした他は比較例 2 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【0 2 3 0】

【化 2 6】

III-38



30

【0 2 3 1】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 8.3 V で、 580 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\text{max} = 591 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.53, 0.45)$ であった。

【0 2 3 2】

また、比較例 2 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 125 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\text{max} = 622 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.66, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

40

【0 2 3 3】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1500 時間以下であった。

【0 2 3 4】

< 比較例 6 >

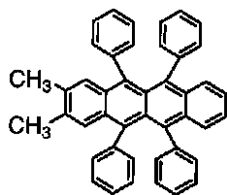
比較例 2 において、電子注入輸送・発光層に A 1 q 3 と共に用いる化合物を、下記構造の化合物 (IV - 114) とした他は比較例 2 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【0 2 3 5】

50

【化 2 7】

IV - 114



【 0 2 3 6 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 8.7 V で、 810 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 567 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.52, 0.47)$ であった。

10

【 0 2 3 7 】

また、比較例 2 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 141 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 620 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.66, 0.34)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 2 3 8 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1000 時間以下であった。

【 0 2 3 9 】

< 比較例 7 >

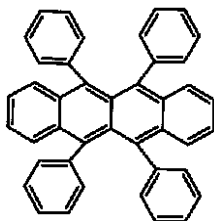
実施例 7 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物を、下記構造のルブレンとした他は実施例 7 と同様にして有機 E L 素子を得た。

20

【 0 2 4 0 】

【化 2 8】

ルブレン



30

【 0 2 4 1 】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.46 V で、 788 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 553 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.43, 0.54)$ であった。

【 0 2 4 2 】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 80 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 612 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.59, 0.39)$ の赤色発光が確認できた。

【 0 2 4 3 】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 900 時間未満であった。

40

【 0 2 4 4 】

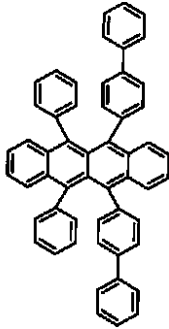
< 比較例 8 >

比較例 7 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD と下記構造の化合物 (I - 1) を重量比で $2 : 100$ の比率で蒸着し、Alq3 は単層で蒸着した他は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【 0 2 4 5 】

【化 2 9】

I-1



10

【0 2 4 6】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.77 V で、 974 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 563 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.44, 0.53)$ であった。

【0 2 4 7】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 140 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 615 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.61, 0.37)$ の赤色発光が確認できた。

【0 2 4 8】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1700 時間以下であった。 20

【0 2 4 9】

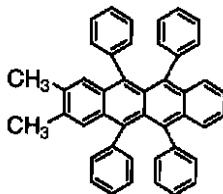
< 比較例 9 >

比較例 8 において、ホール注入輸送層を蒸着する際に、TPD とともに蒸着する化合物 (IV-114) を下記構造の化合物とした他は比較例 8 と同様にして有機 E L 素子を得た。

【0 2 5 0】

【化 3 0】

IV-114



30

【0 2 5 1】

この有機 E L 素子に直流電圧を印加したところ、 10 mA/cm^2 の電流密度で、駆動電圧が 5.73 V で、 1005 cd/m^2 の発光が確認できた。また、このときの発光極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 560 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.45, 0.52)$ であった。

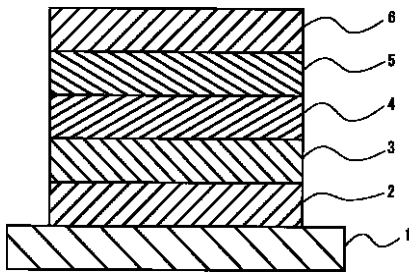
【0 2 5 2】

また、実施例 1 と同じ赤色フィルターを用いて同様の測定を行うと、輝度 $= 138 \text{ cd/m}^2$ 、極大波長 $\lambda_{\text{max}} = 615 \text{ nm}$ 、色度座標は $(x, y) = (0.61, 0.37)$ の赤色発光が確認できた。 40

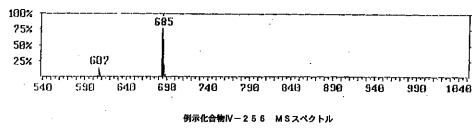
【0 2 5 3】

また、この素子に 50 mA/cm^2 の一定電流を流し、連続発光させたところ輝度半減時間は 1700 時間以下であった。

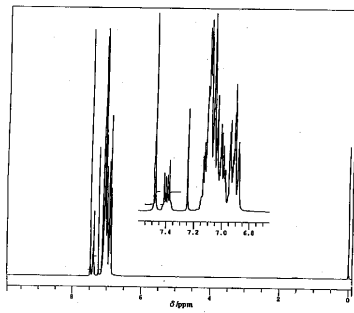
【図 1】



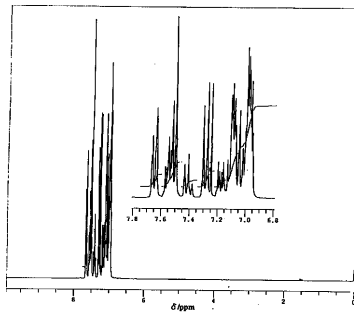
【図 2】



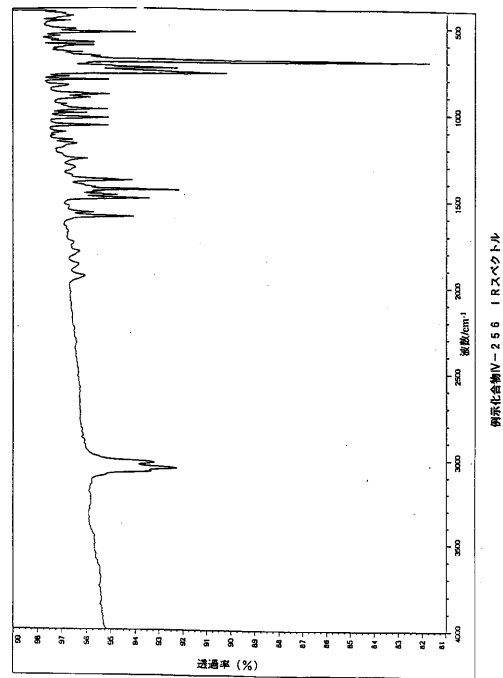
【図 3】



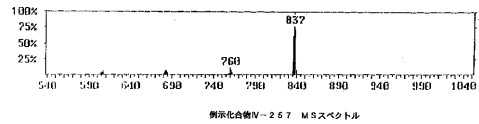
【図 6】



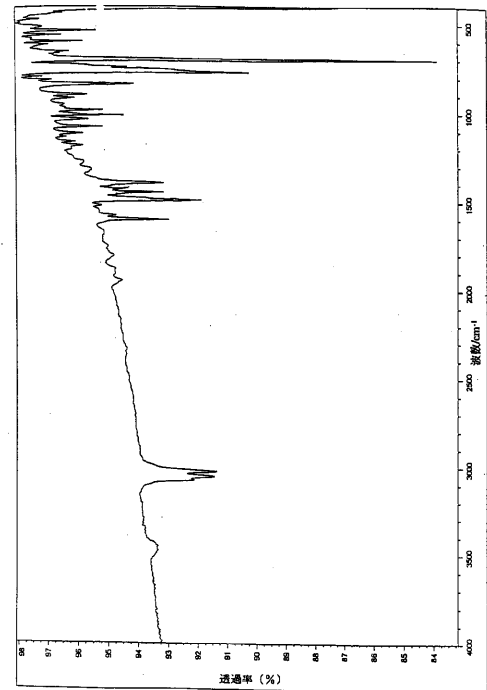
【図 4】



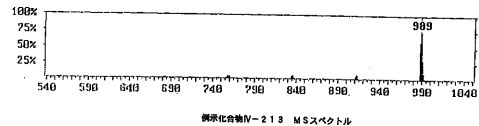
【図 5】



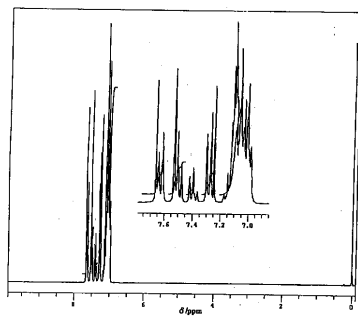
【図 7】



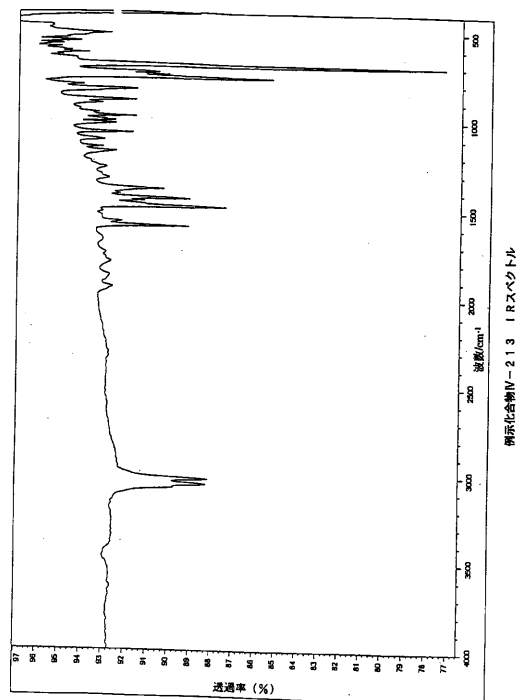
【図 8】



【図 9】



【図 10】



フロントページの続き

(72)発明者 青谷 淳司

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC02 CC06 CC22 DD51 DD53 DD59 DD68 DD69

FF14

4H006 AA03 AB92

| | | | |
|----------------|---|---------|------------|
| 专利名称(译) | 用于有机EL器件和有机EL器件的化合物 | | |
| 公开(公告)号 | JP2010053364A | 公开(公告)日 | 2010-03-11 |
| 申请号 | JP2009277932 | 申请日 | 2009-12-07 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 东京电气化学工业株式会社 | | |
| 申请(专利权)人(译) | TDK株式会社 | | |
| [标]发明人 | 藤田 徹司 井上 鉄司 青谷 淳司 | | |
| 发明人 | 藤田 徹司 井上 鉄司 青谷 淳司 | | |
| IPC分类号 | C09K11/06 C07C15/20 H01L51/50 H05B33/12 C07C15/38 C07C15/62 C07C43/20 C07C43/257 C07C211/50 C07C211/54 C07C211/58 C07D215/04 C07D215/38 C07D217/02 C07D217/04 C07D219/02 C07D239/46 C07D239/74 C07D241/48 C07D311/18 H01L51/00 H01L51/52 H05B33/14 | | |
| CPC分类号 | H01L51/0058 C07C15/38 C07C2603/44 C07D215/38 C07D217/04 C07D219/02 C07D241/48 C07D311/18 C09K11/06 C09K2211/1011 H01L51/0054 H01L51/006 H01L51/0061 H01L51/0065 H01L51/0067 H01L51/0071 H01L51/5012 H01L51/5048 H01L51/5088 H01L51/5206 H01L51/5231 H05B33/14 Y10S428/917 | | |
| FI分类号 | C09K11/06.610 C07C15/20 H05B33/14.B H05B33/12.C C07C15/38.CSP H01L27/32 | | |
| F-TERM分类号 | 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC06 3K107/CC22 3K107/DD51 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/FF14 4H006/AA03 4H006/AB92 | | |
| 代理人(译) | 木村 充 | | |
| 优先权 | 1998137505 1998-05-01 JP | | |
| 其他公开文献 | JP4788821B2 | | |
| 外部链接 | Espacenet | | |

摘要(译)

解决的问题：提供一种用于有机EL元件的化合物和有机EL元件，其能够获得具有足够亮度的发光，特别是长波长的发光，并具有优异的耐久性，其中良好的发光性能可长时间持续。具有下式（I）表示的基本骨架的有机EL元件用化合物。（式（I）中，R1～R4分别表示取代或未取代的芳基。R5和R6分别表示取代或未取代的芳基和烯基。R7和R8分别表示氢或取代或未取代的芳基或烯基，并且当R7和R8均为氢时，（R1至R4的至少两个或更多个芳基是包括具有稠环的芳基的多环芳基。）[选择图]无

【解決手段】下記式（I）で示

