

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

WO2007/142083

発行日 平成21年10月22日(2009.10.22)

(43) 国際公開日 平成19年12月13日(2007.12.13)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO1L 51/50 (2006.01)	HO5B 33/14 B	3K107
CO9K 11/06 (2006.01)	HO5B 33/22 B	4C063
CO7D 209/86 (2006.01)	HO5B 33/22 D	4C204
CO7D 403/10 (2006.01)	CO9K 11/06 690	4H049
CO7F 7/08 (2006.01)	CO9K 11/06 660	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 51 頁) 最終頁に続く

出願番号	特願2008-520508 (P2008-520508)	(71) 出願人	000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(21) 国際出願番号	PCT/JP2007/060921	(74) 代理人	100078732 弁理士 大谷 保
(22) 国際出願日	平成19年5月29日(2007.5.29)	(74) 代理人	100081765 弁理士 東平 正道
(31) 優先権主張番号	特願2006-154305 (P2006-154305)	(72) 発明者	岩隈 俊裕 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(32) 優先日	平成18年6月2日(2006.6.2)	(72) 発明者	松浦 正英 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(72) 発明者	中野 裕基 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	池田 秀嗣 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

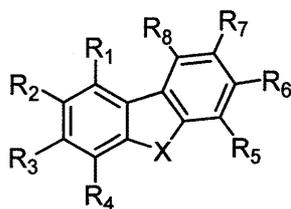
特定構造のヘテロ原子を含有する化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、陽極と陰極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機薄膜層が前記有機EL素子用材料体含有する有機エレクトロルミネッセンス素子によって、発光効率が高く、画素欠陥が無く、耐熱性に優れ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供する

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式(1)で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 1】

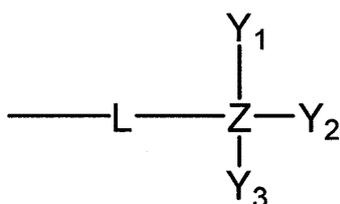


(1)

【一般式(1)において、 $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数3~20の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルコキシ基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数7~20のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~40のアルケニル基、置換基を有してもよい1~40のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数7~60のアラルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数7~40のケトアリール基、置換基を有してもよい炭素数1~40のハロゲン化アルキル基、シアノ基又は下記一般式(a)で表される構造であり、 $R_1 \sim R_8$ のうち少なくとも一つは下記一般式(a)で表される構造である。

20

【化 2】



(a)

(一般式(a)において、Lは、単結合又は置換基を有してもよい炭素数1~10のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリーレン基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリーレン基、置換基を有してもよい炭素数2個の炭素数3~40の芳香族複素環基であり、 $Y_1 \sim Y_3$ は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1~10のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基、置換基を有してもよい炭素数6~30の芳香族複素環基であり、Zはケイ素原子又はゲルマニウム原子である。)

40

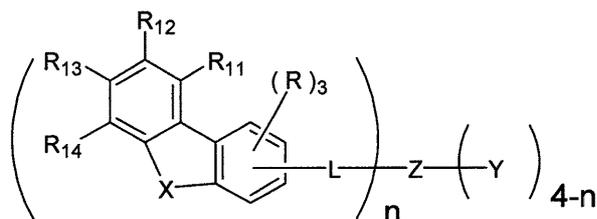
Xは、硫黄原子、酸素原子、 SiR_3R_3 で表される置換珪素原子又は GeR_2R_2 で表される置換ゲルマニウム原子であり、 R_1, R_2, R_3 及び R_4 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基又は置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基である。]

【請求項 2】

下記一般式(2)で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料

50

【化3】



(2)

【一般式(2)において、 $R_{11} \sim R_{14}$ 及び R は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数3~20の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルコキシ基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数7~20のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~40のアルケニル基、置換基を有してもよい1~40のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数7~60のアラルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数7~40のケトアリール基、置換基を有してもよい炭素数1~40のハロゲン化アルキル基又はシアノ基である。

20

X は、硫黄原子、酸素原子、 SiR_3R_4 で表される置換珪素原子又は GeR_3R_4 で表される置換ゲルマニウム原子であり、 R_3 、 R_4 、 R_5 及び R_6 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基又は置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基である。

L は、単結合又は置換基を有してもよい炭素数1~10のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリーレン基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリーレン基、置換基を有してもよい2価の炭素数3~40の芳香族複素環基である。

30

Y は、置換基を有してもよい炭素数1~10のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基、置換基を有してもよい炭素数6~30の芳香族複素環基であり、 Y が複数の場合は同一でも異なってもよい。

Z はケイ素原子又はゲルマニウム原子である。

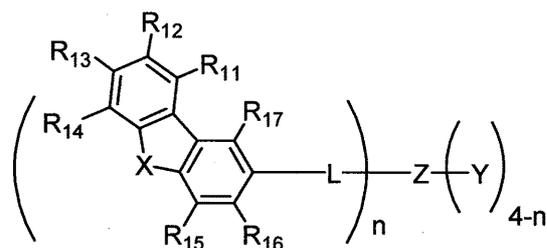
n は1~4の整数である。]

【請求項3】

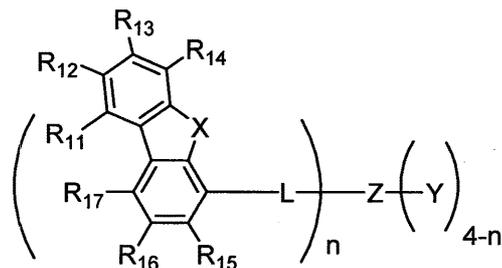
下記一般式(3)又は(4)で表される化合物からなる請求項2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

40

【化 4】



(3)



(4)

【一般式(3)及び(4)において、 $R_{11} \sim R_{17}$ は前記 $R_{11} \sim R_{14}$ 及び R と同じあり、 L 、 X 、 Z 、 Y 及び n は前記と同じである。】

【請求項 4】

陰極と陽極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機薄膜層の少なくとも一層が請求項 1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含有する請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項 6】

前記発光層がホスト材料とりん光性の発光材料を含有し、該ホスト材料が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料である請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

前記発光層がホスト材料とりん光性の発光材料を含有し、該りん光性の発光材料がイリジウム(Ir)、オスmium(Os)又は白金(Pt)金属を含有する化合物である請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】

前記発光層がホスト材料とりん光性の発光材料を含有し、該りん光性の発光材料が金属-カルベン炭素結合を有する発光材料である請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【請求項 9】

前記発光層が、最高発光輝度の波長が500nm以下である青色系金属錯体を含有する請求項 4 の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】

前記発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を主成分として含有する請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 11】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【請求項 12】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子が電子輸送層及び/又は正孔障壁層を有し、該電子輸送層及び/又は正孔障壁層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 13】

陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントが添加されてなる請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、発光効率が高く、画素欠陥が無く、耐熱性に優れ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関するものである。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある）は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告（C.W. Tang, S.A. Vanslyke, アプライドフィジックスレターズ(Applied Physics Letters), 51巻、913頁、1987年等）がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス（8-キノリノラト）アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

【0003】

有機EL素子の発光材料としてはトリス（8-キノリノラト）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルプタジエン誘導体、ジスチリルアアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特許文献1、特許文献2、特許文献3等参照）。

また、近年、有機EL素子の発光層に蛍光材料の他に、りん光材料を利用することも提案されている（例えば、非特許文献1、非特許文献2参照）。このように有機EL素子の発光層において有機りん光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用し、高い発光効率が達成されている。有機EL素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが1：3の割合で生成すると考えられているので、りん光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子に比べて3～4倍の発光効率の達成が考えられる。

【0004】

このような有機EL素子においては、3重項の励起状態又は3重項の励起子が消光しないように順次、陽極、正孔輸送層、有機発光層、電子輸送層（正孔阻止層）、電子輸送層、陰極のように層を積層する構成が用いられ、有機発光層にホスト材料とりん光発光性の化合物が用いられてきた（例えば、特許文献4～8）。ここにはジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン骨格を有するホスト材が記載されている。しかしながら、他のカルバゾリル骨格と比較して素子性能で優位性が示されてはならず、ケイ素，ゲルマニウム原子との組合せにおいてもななら記載がない。

また、特許文献9及び10には、アリールシリル基等の置換基を有する化合物が記載されているが、本発明のような化合物群の記載は無く、3重項のエネルギーギャップを広く保てること等、有機EL素子用材料特に青色系りん光素子用材料として有用な効果も記載されていない。

さらに、特許文献11～18には、アリールシラン，アリールゲルマン系化合物が記載

10

20

30

40

50

され、青色系りん光素子のホスト材料として実施例が記載されているが、本発明のような化合物群に関しては記載が無く、効果も不明である。

【 0 0 0 5 】

【特許文献 1】特開平 8 - 2 3 9 6 5 5 号公報

【特許文献 2】特開平 7 - 1 3 8 5 6 1 号公報

【特許文献 3】特開平 3 - 2 0 0 8 8 9 号公報

【特許文献 4】国際公開 WO 0 5 / 1 0 1 9 1 2 号公報

【特許文献 5】特開平 5 - 1 0 9 4 8 5 号公報

【特許文献 6】特開 2 0 0 4 - 0 0 2 3 5 1 号公報

【特許文献 7】国際公開 WO 0 4 / 0 9 6 9 4 5 号公報

10

【特許文献 8】特開 2 0 0 2 - 3 0 8 8 3 7 号公報

【特許文献 9】特開 2 0 0 3 - 1 3 8 2 5 1 号公報

【特許文献 10】特開 2 0 0 0 - 3 5 1 9 6 6 号公報

【特許文献 11】国際公開 WO 0 4 / 0 9 5 5 9 8 号公報

【特許文献 12】US 2 0 0 4 - 2 0 9 1 1 5 号公報

【特許文献 13】特開 2 0 0 4 - 1 0 3 4 6 3 号公報

【特許文献 14】特開 2 0 0 5 - 1 8 3 3 0 3 号公報

【特許文献 15】特開 2 0 0 5 - 3 1 7 2 7 5 号公報

【特許文献 16】特開 2 0 0 4 - 2 0 0 1 0 4 号公報

【特許文献 17】特開 2 0 0 5 - 3 1 0 6 7 2 号公報

20

【特許文献 18】特開 2 0 0 5 - 3 0 6 8 6 4 号公報

【非特許文献 1】D. F. O'Brien and M. A. Baldo et al. "Improved energy transferring electrophosphorescent devices" Applied Physics letters Vol. 74 No.3, pp442 444, January 18, 1999

【非特許文献 2】M. A. Baldo et al. "Very high efficiency green organic light emitting devices based on electrophosphorescence" Applied Physics letters Vol. 75 No. 1, pp4 6, July 5, 1999

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 6 】

30

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、発光効率が高く、画素欠陥が無く、耐熱性に優れ、長寿命である有機 EL 素子及びそれを実現する有機 EL 素子用材料を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 7 】

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、下記一般式 (1) 又は (2) で記載される化合物を有機 EL 素子材料として用いることにより、画素欠陥が無く、高効率、高耐熱かつ長寿命である有機 EL 素子が得られることを見出し、本発明を解決するに至った。

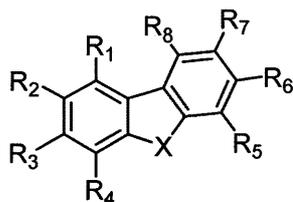
すなわち、本発明は、下記一般式 (1) 又は (2) で表される化合物からなる有機 EL 素子用材料を提供するものである。

40

下記一般式 (1) で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供するものである。

【 0 0 0 8 】

【化1】



(1)

【0009】

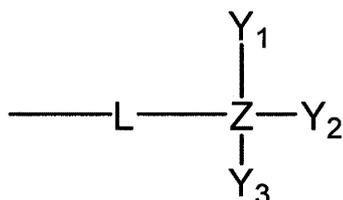
10

〔一般式(1)において、 $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数3~20の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルコキシ基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数7~20のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~40のアルケニル基、置換基を有してもよい1~40のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数7~60のアラルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数7~40のケトアリール基、置換基を有してもよい炭素数1~40のハロゲン化アルキル基、シアノ基又は下記一般式(a)で表される構造であり、 $R_1 \sim R_8$ のうち少なくとも一つは下記一般式(a)で表される構造である。

20

【0010】

【化2】



(a)

【0011】

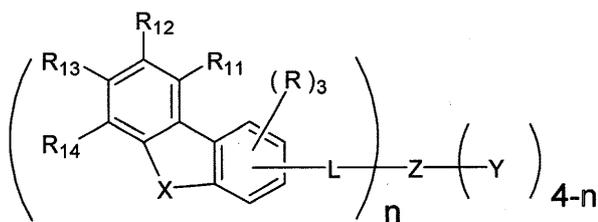
〔一般式(a)において、Lは、単結合又は置換基を有してもよい炭素数1~10のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリーレン基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリーレン基、置換基を有してもよい2価の炭素数3~40の芳香族複素環基であり、 $Y_1 \sim Y_3$ は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1~10のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基、置換基を有してもよい炭素数6~30の芳香族複素環基であり、Zはケイ素原子又はゲルマニウム原子である。〕

40

Xは、硫黄原子、酸素原子、 SiR_3R_3 で表される置換珪素原子又は GeR_2R_2 で表される置換ゲルマニウム原子であり、 R_1, R_2, R_3 及び R_4 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基又は置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基である。]

【0012】

【化 3】



(2)

【0013】

10

[一般式(2)において、 $R_{11} \sim R_{14}$ 及び R は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数3~20の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルコキシ基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数7~20のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~40のアルケニル基、置換基を有してもよい1~40のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数7~60のアラルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数7~40のケトアリール基、置換基を有してもよい炭素数1~40のハロゲン化アルキル基又はシアノ基である。

20

X 、 L 及び Z は、一般式(1)と同じであり、 Y は、一般式(1)の $Y_1 \sim Y_3$ と同じである。 n は1~4の整数である。]

【0014】

また、本発明は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、前記有機薄膜層の少なくとも一層が前記有機EL素子用材料を含有する有機EL素子を提供するものである。

30

【発明の効果】

【0015】

本発明の一般式(1)又は(2)で表される化合物からなる有機EL素子用材料を用いると、発光効率が高く、画素欠陥がなく、耐熱性に優れ、かつ寿命の長い有機EL素子が得られる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0016】

本発明の有機EL素子用材料は、下記一般式(1)又は(2)で表される化合物からなる。

まず、一般式(1)で表される化合物について説明する。

40

一般式(1)において、 $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数3~20の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~40のアルコキシ基、置換基を有してもよい炭素数6~40の非縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~12の縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数7~20のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~40のアルケニル基、置換基を有してもよい1~40のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数7~60のアラルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアリールシリル基、置換基を有してもよい炭素数8~40のアラルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数3~20のアルキルゲルマニ

50

ウム基、置換基を有しても良い炭素数 8 ~ 40 のアリールゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数 8 ~ 40 のアラキルゲルマニウム基、置換基を有しても良い炭素数 7 ~ 40 のケトアリール基、置換基を有しても良い炭素数 1 ~ 40 のハロゲン化アルキル基、シアノ基又は下記一般式 (a) で表される構造であり、 $R_1 \sim R_3$ のうち少なくとも一つは下記一般式 (a) で表される構造である。

【0017】

前記ハロゲン原子としては、例えば、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

前記アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモエチル基、1,3-ジブロモイソプロピル基、2,3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソプロピル基、2,3-ジヨード-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1,2-ジニトロエチル基、2,3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリニトロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3,5-テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

【0018】

これらの中でも好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3,5-テトラメチルシクロヘキシル基である。

【0019】

前記複素環基としては、例えば、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、1-イミダゾリル基、2-イミダゾリル基、1-ピラゾリル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-イン

ドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、
 1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソイン
 ドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 -
 フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフ
 ラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 -
 イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イ
 ソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノ
 リル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノ
 リル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル
 基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル
 基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバ
 ゴリル基、2 - カルバゴリル基、3 - カルバゴリル基、4 - カルバゴリル基、9 - カルバ
 ゴリル基、 - カルボリン - 1 - イル、 - カルボリン - 3 - イル、 - カルボリン - 4
 - イル、 - カルボリン - 5 - イル、 - カルボリン - 6 - イル、 - カルボリン - 7 -
 イル、 - カルボリン - 6 - イル、 - カルボリン - 9 - イル、1 - フェナントリジニル
 基、2 - フェナントリジニル基、3 - フェナントリジニル基、4 - フェナントリジニル基
 、6 - フェナントリジニル基、7 - フェナントリジニル基、8 - フェナントリジニル基、
 9 - フェナントリジニル基、10 - フェナントリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - ア
 クリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7
 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェ
 ナントロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナ
 ントロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナント
 ロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナントロ
 リン - 2 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナントロリン
 - 4 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 6
 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 9 - イ
 ル基、1, 8 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 2 - イル
 基、1, 9 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 4 - イル基、
 1, 9 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 6 - イル基、1,
 9 - フェナントロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 8 - イル基、1, 9 -
 フェナントロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 10
 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 4 - イル基、1, 10
 - フェナントロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェ
 ナントロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナ
 ントロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナント
 ロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナントロリ
 ン - 10 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナントロリン
 - 3 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 5
 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 7 - イ
 ル基、2, 8 - フェナントロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 10 - イル
 基、2, 7 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 3 - イル基、
 2, 7 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 5 - イル基、2,
 7 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 8 - イル基、2, 7 -
 フェナントロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 10 - イル基、1 - フェナ
 ジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3
 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェノチアジニル基、1 - フェ
 ノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジ
 ニル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基、5 - オ
 キサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザニル基、
 2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロー

10

20

30

40

50

ル - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル 1 - インドリル基、4 - t - ブチル 1 - インドリル基、2 - t - ブチル 3 - インドリル基、4 - t - ブチル 3 - インドリル基、1 - ジベンゾフラニル基、2 - ジベンゾフラニル基、3 - ジベンゾフラニル基、4 - ジベンゾフラニル基、1 - ジベンゾチオフェニル基、2 - ジベンゾチオフェニル基、3 - ジベンゾチオフェニル基、4 - ジベンゾチオフェニル基、1 - シラフルオレニル基、2 - シラフルオレニル基、3 - シラフルオレニル基、4 - シラフルオレニル基、1 - ゲルマフルオレニル基、2 - ゲルマフルオレニル基、3 - ゲルマフルオレニル基、4 - ゲルマフルオレニル基等が挙げられる。

10

【0020】

これらの中でも好ましくは、2 - ピリジニル基、1 - インドリジニル基、2 - インドリジニル基、3 - インドリジニル基、5 - インドリジニル基、6 - インドリジニル基、7 - インドリジニル基、8 - インドリジニル基、2 - イミダゾピリジニル基、3 - イミダゾピリジニル基、5 - イミダゾピリジニル基、6 - イミダゾピリジニル基、7 - イミダゾピリジニル基、8 - イミダゾピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - インドリル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、9 - カルバゾリル基、1 - ジベンゾフラニル基、2 - ジベンゾフラニル基、3 - ジベンゾフラニル基、4 - ジベンゾフラニル基、1 - ジベンゾチオフェニル基、2 - ジベンゾチオフェニル基、3 - ジベンゾチオフェニル基、4 - ジベンゾチオフェニル基、1 - シラフルオレニル基、2 - シラフルオレニル基、3 - シラフルオレニル基、4 - シラフルオレニル基、1 - ゲルマフルオレニル基、2 - ゲルマフルオレニル基、3 - ゲルマフルオレニル基、4 - ゲルマフルオレニル基である。

20

【0021】

前記アルコキシ基は - O Y と表される基であり、Y の具体例としては、前記アルキル基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。

30

前記非縮合アリール基としては、例えば、フェニル基、2 - ビフェニルイル基、3 - ビフェニルイル基、4 - ビフェニルイル基、p - ターフェニル - 4 - イル基、p - ターフェニル - 3 - イル基、p - ターフェニル - 2 - イル基、m - ターフェニル - 4 - イル基、m - ターフェニル - 3 - イル基、m - ターフェニル - 2 - イル基、o - トリル基、m - トリル基、p - トリル基、p - t - ブチルフェニル基、p - (2 - フェニルプロピル)フェニル基、4' - メチルビフェニルイル基、4'' - t - ブチル - p - ターフェニル - 4 - イル基、o - クメニル基、m - クメニル基、p - クメニル基、2, 3 - キシリル基、3, 4 - キシリル基、2, 5 - キシリル基、メシチル基、m - クウォーターフェニル基等が挙げられる。

40

これらの中でも好ましくは、フェニル基、2 - ビフェニルイル基、3 - ビフェニルイル基、4 - ビフェニルイル基、m - ターフェニル - 4 - イル基、m - ターフェニル - 3 - イル基、m - ターフェニル - 2 - イル基、p - トリル基、3, 4 - キシリル基、m - クウォーターフェニル - 2 - イル基である。

前記縮合アリール基の例としては、1 - ナフチル基、2 - ナフチル基が挙げられる。

【0022】

前記アリールオキシ基は - O A r と表される基であり、A r の具体例としては、前記非縮合アリール基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。

前記アラルキル基としては、例えば、ベンジル基、1 - フェニルエチル基、2 - フェニ

50

ルエチル基、1 - フェニルイソプロピル基、2 - フェニルイソプロピル基、フェニル - t - ブチル基、 - ナフチルメチル基、1 - - ナフチルエチル基、2 - - ナフチルエチル基、1 - - ナフチルイソプロピル基、2 - - ナフチルイソプロピル基、 - ナフチルメチル基、1 - - ナフチルエチル基、2 - - ナフチルエチル基、1 - - ナフチルイソプロピル基、2 - - ナフチルイソプロピル基、1 - ピロリルメチル基、2 - (1 - ピロリル)エチル基、p - メチルベンジル基、m - メチルベンジル基、o - メチルベンジル基、p - クロロベンジル基、m - クロロベンジル基、o - クロロベンジル基、p - ブロモベンジル基、m - ブロモベンジル基、o - ブロモベンジル基、p - ヨードベンジル基、m - ヨードベンジル基、o - ヨードベンジル基、p - ヒドロキシベンジル基、m - ヒドロキシベンジル基、o - ヒドロキシベンジル基、p - アミノベンジル基、m - アミノベンジル基、o - アミノベンジル基、p - ニトロベンジル基、m - ニトロベンジル基、o - ニトロベンジル基、p - シアノベンジル基、m - シアノベンジル基、o - シアノベンジル基、1 - ヒドロキシ - 2 - フェニルイソプロピル基、1 - クロロ - 2 - フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

10

これらの中でも好ましくは、ベンジル基、p - シアノベンジル基、m - シアノベンジル基、o - シアノベンジル基、1 - フェニルエチル基、2 - フェニルエチル基、1 - フェニルイソプロピル基、2 - フェニルイソプロピル基である。

【0023】

前記アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、1 - ブテニル基、2 - ブテニル基、3 - ブテニル基、1, 3 - ブタンジエニル基、1 - メチルビニル基、スチリル基、2, 2 - ジフェニルビニル基、1, 2 - ジフェニルビニル基、1 - メチルアリル基、1, 1 - ジメチルアリル基、2 - メチルアリル基、1 - フェニルアリル基、2 - フェニルアリル基、3 - フェニルアリル基、3, 3 - ジフェニルアリル基、1, 2 - ジメチルアリル基、1 - フェニル - 1 - ブテニル基、3 - フェニル - 1 - ブテニル基等が挙げられ、好ましくは、スチリル基、2, 2 - ジフェニルビニル基、1, 2 - ジフェニルビニル基等が挙げられる。

20

【0024】

前記アルキルアミノ基、及び置換基を有しても良い炭素数7 ~ 60のアラルキルアミノ基は、 $-N(Q_1)Q_2$ と表され、 Q_1 及び Q_2 の具体例としては、それぞれ独立に、前記アルキル基、前記アリール基、前記アラルキル基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。

30

前記アルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、t - ブチルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基等が挙げられる。

前記アリールシリル基としては、例えば、トリフェニルシリル基、トリビフェニルシリル基、ジ - ターフェニル - フェニルシリル基、フェニルジメチルシリル基、t - ブチルジフェニルシリル基等が挙げられる。

前記アラルキルシリル基としては、例えば、トリベンジルシリル基、ベンジルジメチルシリル基、t - ブチルジベンジルシリル基等が挙げられる。

【0025】

前記アルキルゲルマニウム基としては、例えば、トリメチルゲルマニウム基、トリエチルゲルマニウム基、t - ブチルジメチルゲルマニウム基、ビニルジメチルゲルマニウム基、プロピルジメチルゲルマニウム基等が挙げられる。

40

前記アリールゲルマニウム基としては、例えば、トリフェニルゲルマニウム基、トリビフェニルゲルマニウム基、ジ - ターフェニル - フェニルゲルマニウム基、フェニルジメチルゲルマニウム基、t - ブチルジフェニルゲルマニウム基等が挙げられる。

前記アラルキルゲルマニウム基としては、例えば、トリベンジルゲルマニウム基、ベンジルジメチルゲルマニウム基、t - ブチルジベンジルゲルマニウム基等が挙げられる。

前記ケトアリール基は $-COAr_2$ と表され、 Ar_2 の具体例としては、前記アリール基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。

50

前記ハロゲン化アルキル基としては、例えば、前記アルキル基の少なくとも一個の水素原子をハロゲン原子で置換したものが挙げられ、好ましい例も同様である。

【0026】

一般式(1)において、Xは、硫黄原子、酸素原子、SiR₃R₃で表される置換珪素原子又はGeR₃R₃で表される置換ゲルマニウム原子であり、R₁、R₂、R₃及びR₄は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い炭素数1~40のアルキル基又は置換基を有しても良い炭素数6~20のアリール基である。

R₁、R₂、R₃及びR₄のアルキル基としては、前記R₁~R₄のアルキル基と同じものが挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基及びブチル基である。

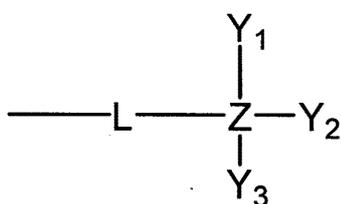
R₁、R₂、R₃及びR₄の炭素数6~20のアリール基としては、前記R₁~R₄の非縮合アリール基と同じものが挙げられ、好ましくはフェニル基、p-トリル基、4-ピフェニル基である。

10

【0027】

また、一般式(a)は下記構造である。

【化4】



(a)

【0028】

一般式(a)において、Lは、単結合又は置換基を有しても良い炭素数1~10のアルキレン基、置換基を有しても良い炭素数6~40の非縮合アリーレン基、置換基を有しても良い炭素数6~12の縮合アリーレン基、置換基を有しても良い2価の炭素数3~40の芳香族複素環基である。

Lのアルキレン基としては、前記R₁~R₄で説明したアルキル基の例を2価の基としたものが挙げられ、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、2価のシクロヘキサン基、2価のアダマンタン基、2価のノルボルネン基が好ましい。

30

Lの非縮合アリーレン基としては、前記R₁~R₄で説明した非縮合アリール基の例を2価の基としたものが挙げられ、フェニレン基、パラピフェニレン基、メタピフェニレン基、オルトピフェニレン基、オルトターフェニレン基、メタターフェニレン基、パラターフェニレン基の2価の基が好ましい。

Lの縮合アリーレン基としては、ナフタレン等の2価の残基が挙げられる。

Lの芳香族複素環基としては、ピリジン、ピラジン、キノリン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、シロール、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、キノリン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、イソチアゾール、イソキサゾール、イソキノリン、キナゾリン、キノリジン、キノキサリン、シンノリン、ベンズイミダゾール、イミダゾピリジン、ナフチリジン、1,2-ベンゾイソキサゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、オキサゾロピリジン、イソチアゾロピリジン、ベンゾチエニル骨格を母骨格とする2価の残基が挙げられ、ピリジン、ピラジン、キノリン、ピリミジン、チオフェン、シロール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、イミダゾピリジン、ベンズイミダゾール骨格を母骨格とする2価の基が好ましい。

40

【0029】

一般式(a)において、Y₁~Y₃は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い炭素数1~10のアルキル基、置換基を有しても良い炭素数6~20のアリール基、置換基を有し

50

ても良い炭素数 6 ~ 30 の芳香族複素環基である。

Y₁ ~ Y₃ のアルキル基としては、前記 R₁ ~ R₃ と同様の例が挙げられる。

Y₁ ~ Y₃ のアリール基としては、前記 R₁ ~ R₃ の非縮合アリール基及び縮合アリール基と同様の例が挙げられる。

Y₁ ~ Y₃ の芳香族複素環基としては、例えば、フリル基、チエニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、イソチアゾリル基、イソキサゾリル基、ピリジル基、ピリミジニル基、キノリル基、イソキノリル基、キナゾリニル基、キノリジニル基、キノキサリニル基、シンノリニル基、ベンズイミダゾリル基、イミダゾピリジル基、ベンゾフラニル基、ナフチリジニル基、1, 2 - ベンゾイソキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、オキサゾロピリジル基、イソチアゾロピリジル基、ベンゾチエニル基等が挙げられる。

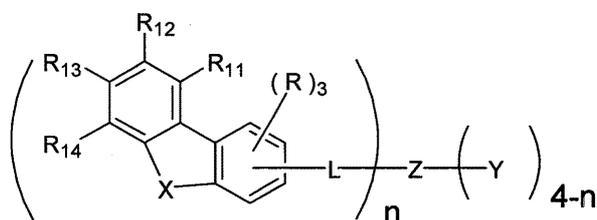
10

一般式 (a) において、Z はケイ素原子又はゲルマニウム原子である。

【 0 0 3 0 】

次に、一般式 (2) で表される化合物について説明する。

【 化 5 】



(2)

【 0 0 3 1 】

一般式 (2) において、R₁₁ ~ R₁₄ 及び R は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数 1 ~ 40 のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数 3 ~ 20 の複素環基、置換基を有してもよい炭素数 1 ~ 40 のアルコキシ基、置換基を有してもよい炭素数 6 ~ 40 の非縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数 6 ~ 12 の縮合アリール基、置換基を有してもよい炭素数 6 ~ 20 のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数 7 ~ 20 のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数 2 ~ 40 のアルケニル基、置換基を有してもよい 1 ~ 40 のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数 7 ~ 60 のアラルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数 3 ~ 20 のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数 8 ~ 40 のアリールシリル基、置換基を有してもよい炭素数 8 ~ 40 のアラルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数 3 ~ 20 のアルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数 8 ~ 40 のアリールゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数 8 ~ 40 のアラルキルゲルマニウム基、置換基を有してもよい炭素数 7 ~ 40 のケトアリール基、置換基を有してもよい炭素数 1 ~ 40 のハロゲン化アルキル基又はシアノ基である。

30

これら各基の具体的としては、一般式 (1) の R₁ ~ R₃ で説明したものと同様の例が挙げられる。

40

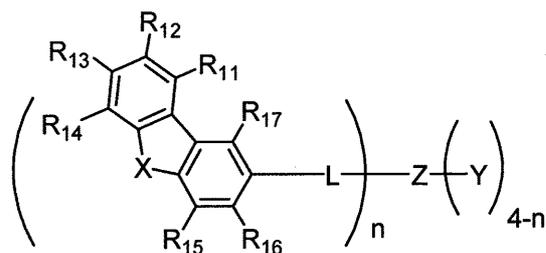
一般式 (2) において、X、L 及び Z は、一般式 (1) と同じであり、Y は、一般式 (1) の Y₁ ~ Y₃ と同じであり、具体例及び好ましい例も同様である。

一般式 (2) において、n は 1 ~ 4 の整数であり、2 ~ 3 であると適当な分子量となり、昇華性、熱安定性の両方を十分に満たすため好ましい。

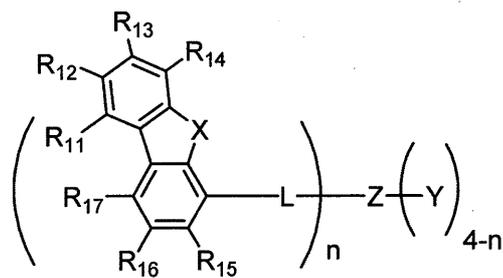
【 0 0 3 2 】

前記一般式 (2) で表される化合物は、下記一般式 (3) 又は (4) で表される化合物であると製造が容易となるため好ましい。

【化 6】



(3)



(4)

一般式 (3) 及び (4) において、R₁₁ ~ R₁₇ は一般式 (2) の R₁₁ ~ R₁₇ 及び R と同じであり、具体例及び好ましい例も同様である。また、L、X、Z、Y 及び n も同じである。

【 0 0 3 3 】

一般式 (1) ~ (4) の示す各基の置換基としては、例えば、アルキル基 (メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、イソブチル基、t - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基、ヒドロキシメチル基、1 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシイソブチル基、1, 2 - ジヒドロキシエチル基、1, 3 - ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3 - ジヒドロキシ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1, 2 - ジクロロエチル基、1, 3 - ジクロロイソプロピル基、2, 3 - ジクロロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1, 2 - ジプロモエチル基、1, 3 - ジプロモイソプロピル基、2, 3 - ジプロモ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1, 2 - ジヨードエチル基、1, 3 - ジヨードイソプロピル基、2, 3 - ジヨード - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1, 2 - ジアミノエチル基、1, 3 - ジアミノイソプロピル基、2, 3 - ジアミノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1, 2 - ジシアノエチル基、1, 3 - ジシアノイソプロピル基、2, 3 - ジシアノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 - ニトロエチル基、2 - ニトロエチル基、2 - ニトロイソブチル基、1, 2 - ジニトロエチル基、1, 3 - ジニトロイソプロピル基、2, 3 - ジニトロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリニトロプロピル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4 - メチルシクロヘキシル基、1 - アダマンチル基、2 - アダマンチル基、1 - ノルボルニル基、2 - ノルボルニル基等)、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基 (エトキシ基、メトキシ基、i - プロポキシ基、n - プロポキシ基、s - ブトキシ基、t - ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、核原子数 5 ~ 40 のアリアル基、核原子数 5 ~ 40 のアリアル基で置換されたアミノ基、核原子数 5 ~ 40 のアリアル基を有するエステル基、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を有するエステル基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

【 0 0 3 4 】

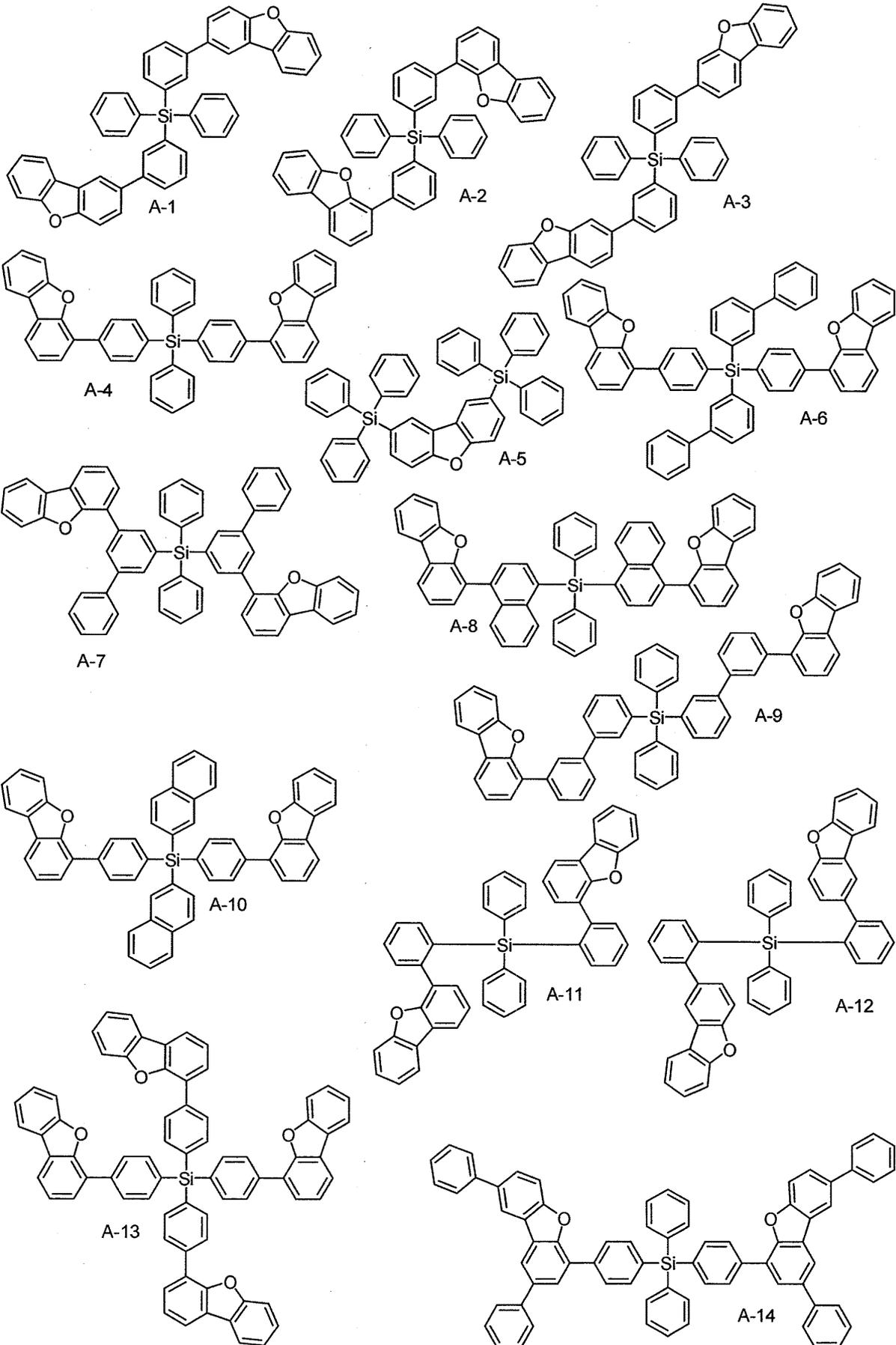
本発明の一般式 (1) ~ (4) のいずれかで表される化合物からなる有機 EL 素子用材料の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

20

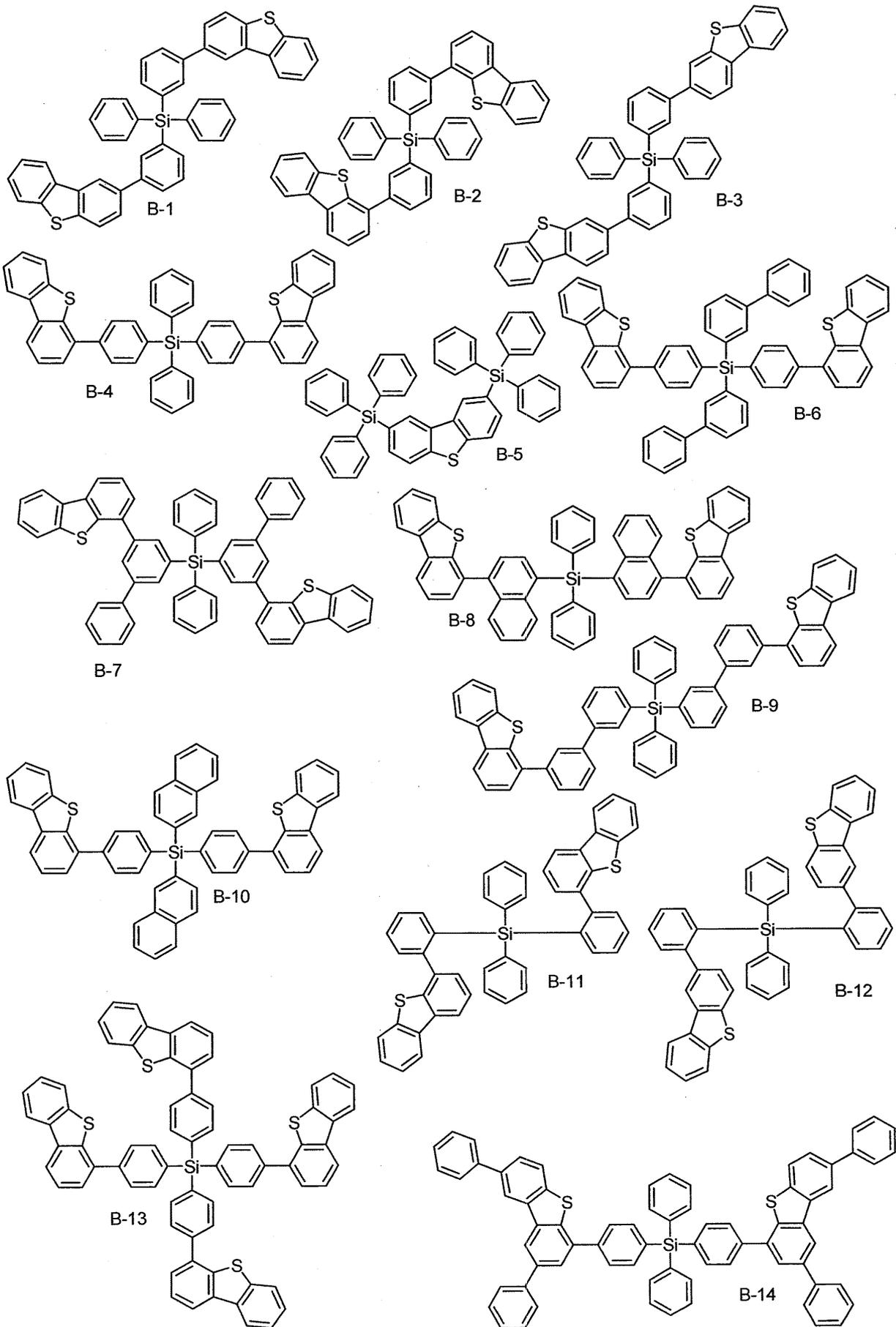
30

40

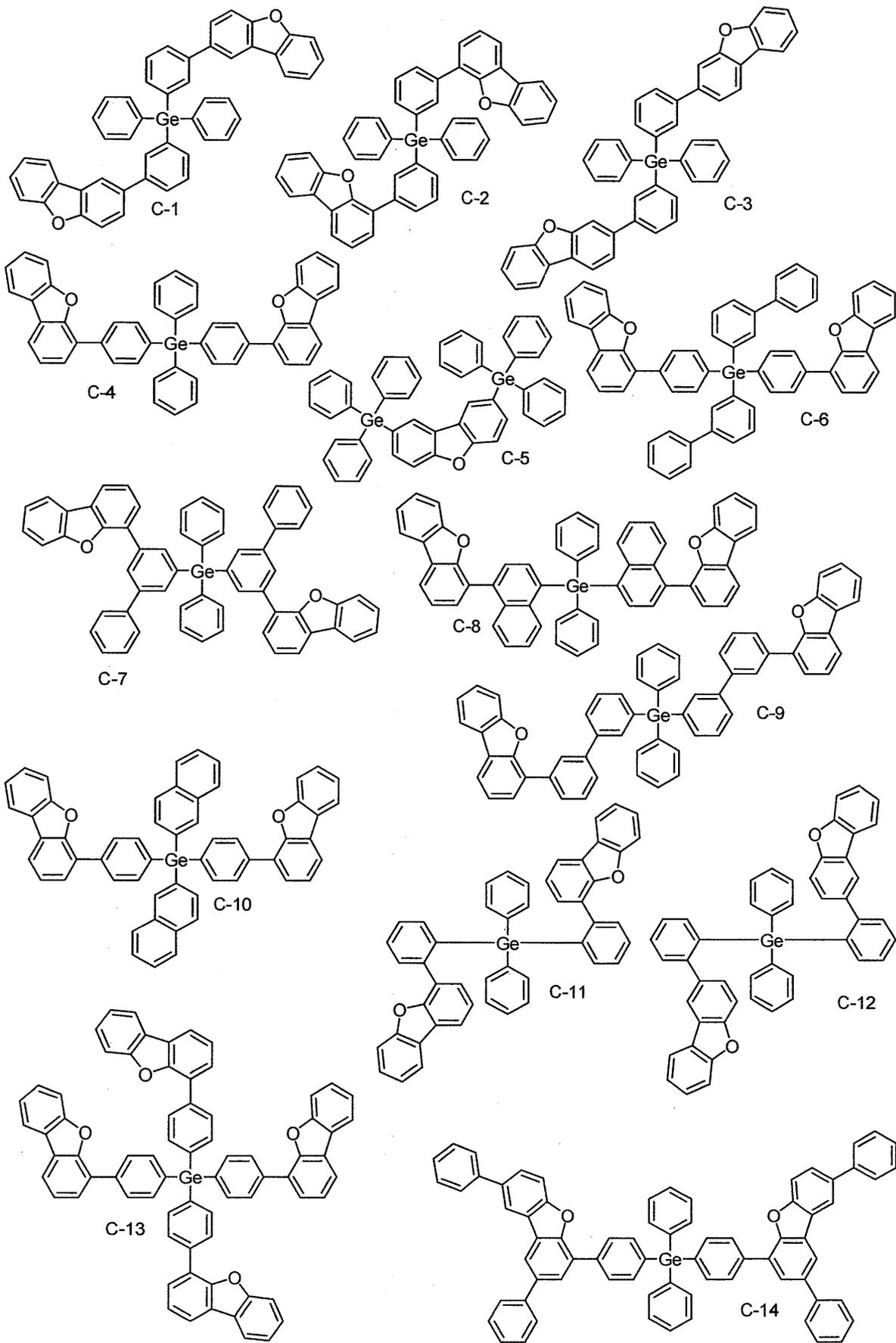
【化7】



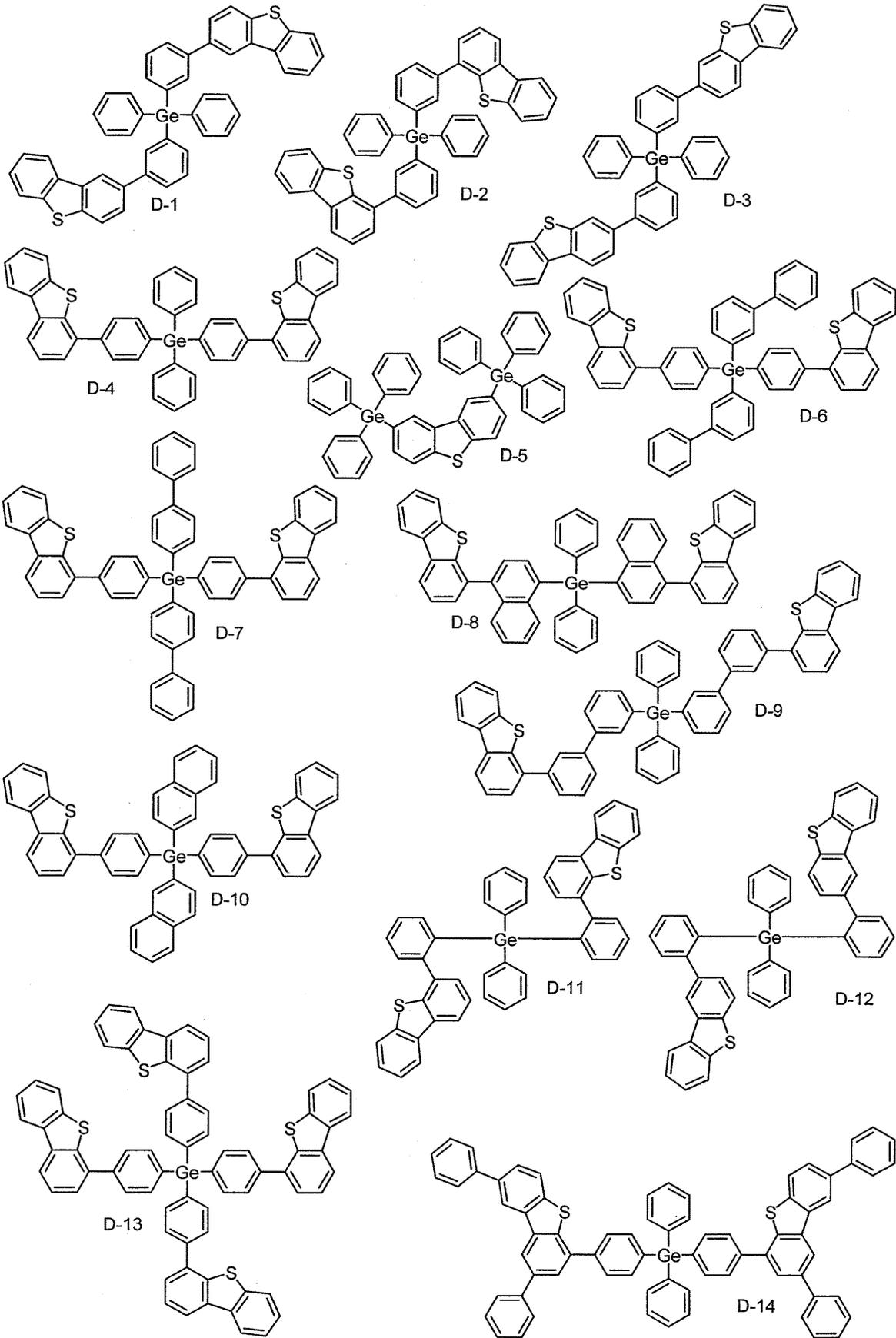
【化 8】



【化 9】

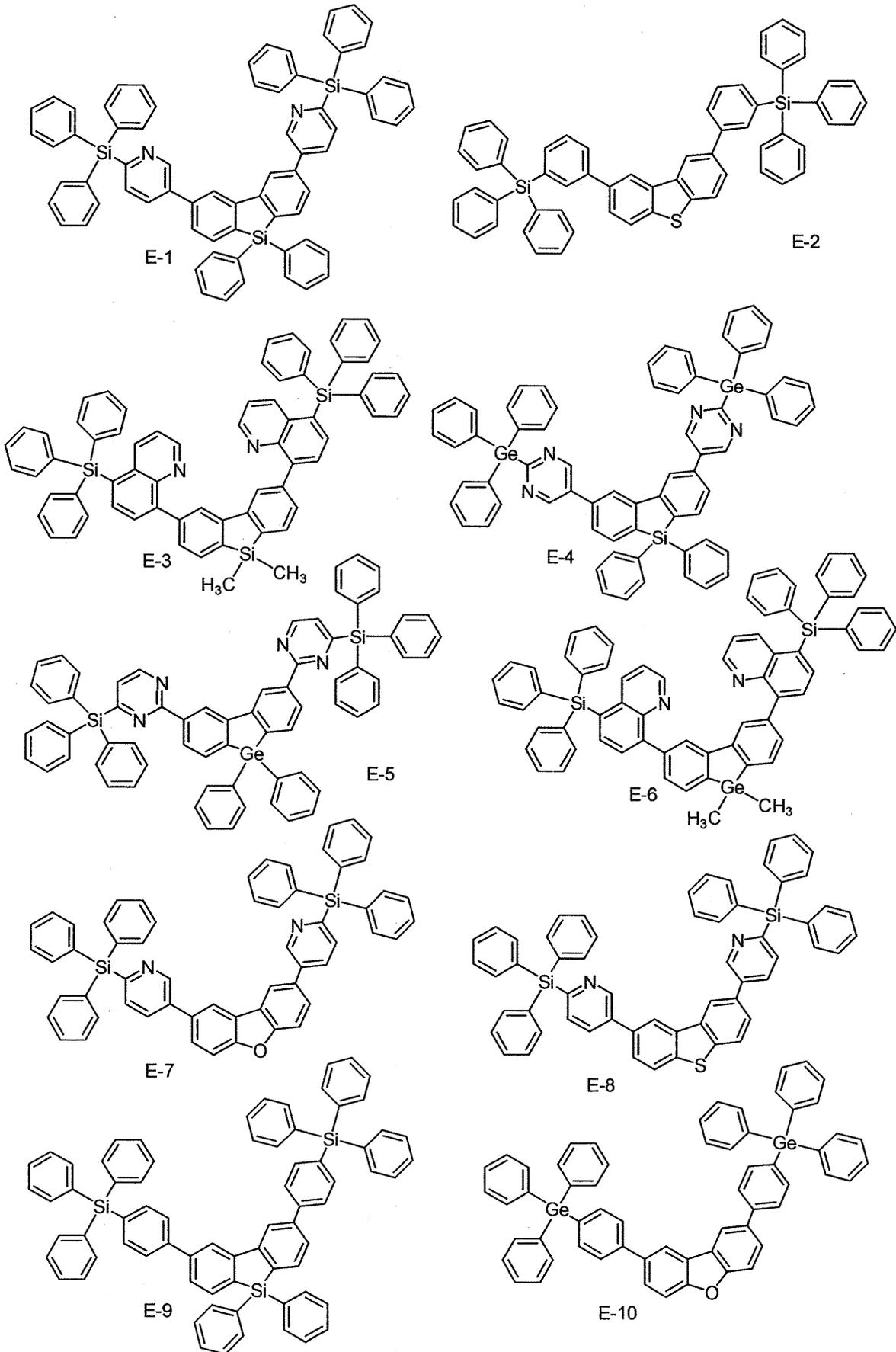


【化10】



【0038】

【化 1 1】



【 0 0 3 9 】

本発明の有機 E L 素子用材料は、有機 E L 素子の発光層に含まれるホスト材料であると

好ましい。

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、本発明の有機EL素子用材料を含有する。

多層型の有機EL素子の構造としては、例えば、陽極/正孔輸送層(正孔注入層)/発光層/陰極、陽極/発光層/電子輸送層(電子注入層)/陰極、陽極/正孔輸送層(正孔注入層)/発光層/電子輸送層(電子注入層)/陰極、陽極/正孔輸送層(正孔注入層)/発光層/正孔障壁層/電子輸送層(電子注入層)/陰極、等の多層構成で積層したものが挙げられる。

10

【0040】

本発明の有機EL素子において、前記発光層が、本発明の有機EL素子用材料を宿主材料として含有すると好ましい。また、前記発光層が、宿主材料とりん光性の発光材料からなり、該宿主材料が前記有機EL素子用材料であると好ましい。

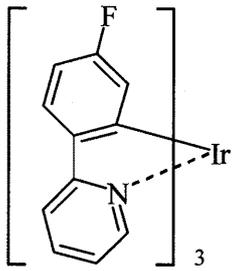
りん光性の発光材料としては、りん光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、イリジウム(Ir)、オスmium(Os)又は白金(Pt)金属を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスmium錯体、白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。オルトメタル化金属錯体のさらに好ましい形態としては、以下に示すイリジウム錯体が挙げられる。

20

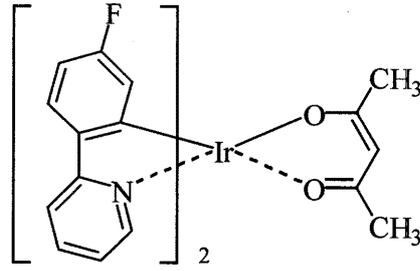
【0041】

【化 1 2】

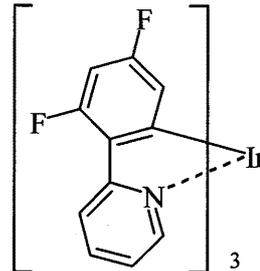
(K-1)



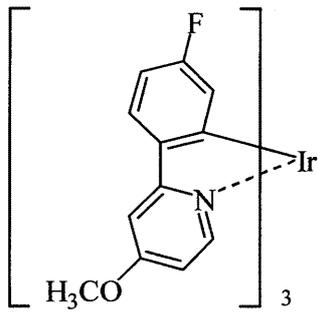
(K-2)



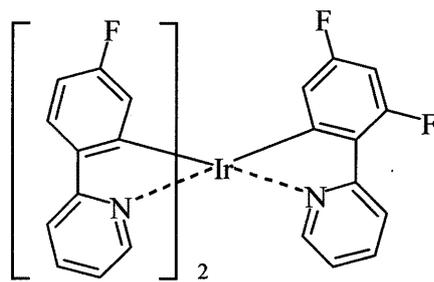
(K-3)



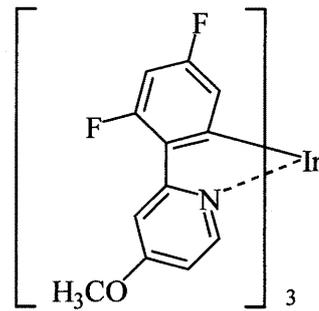
(K-4)



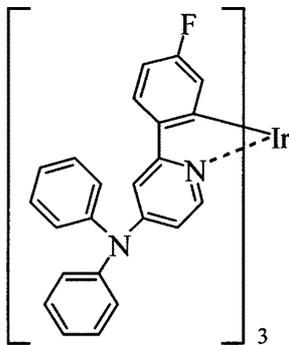
(K-5)



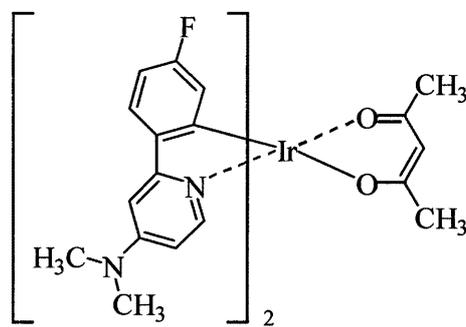
(K-6)



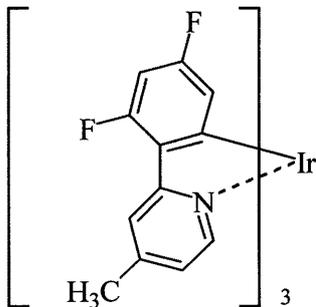
(K-7)



(K-8)



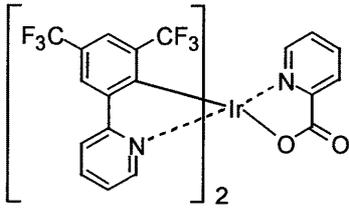
(K-9)



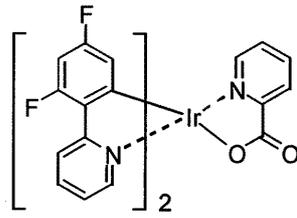
【 0 0 4 2】

【化 1 3】

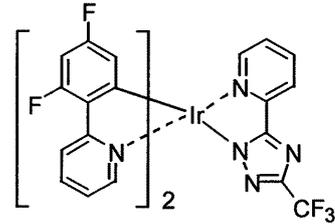
(K-10)



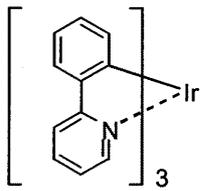
(K-11)



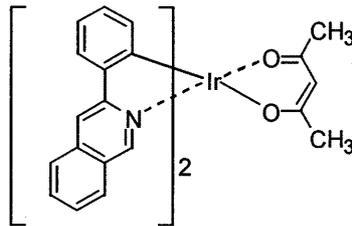
(K-12)



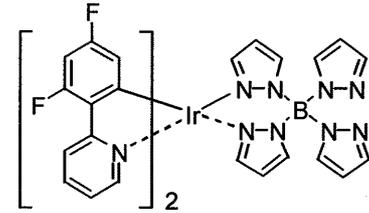
(K-13)



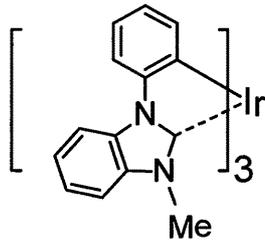
(K-14)



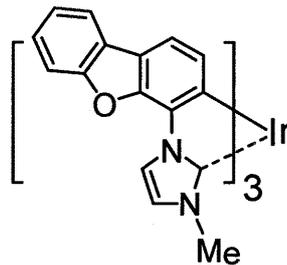
(K-15)



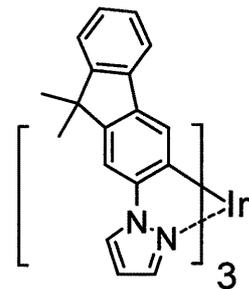
(K-16)



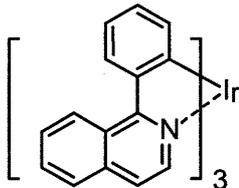
(K-17)



(K-18)



(K-19)



【 0 0 4 3】

また、本発明の有機EL素子は、前記発光層がホスト材料とりん光性の発光材料を含有し、該りん光性の発光材料が金属-カルベン炭素結合を有する発光材料であっても好ましい。

40

さらに、前記発光層が、最高発光輝度の波長が500nm以下である青色系金属錯体を含有すると好ましく、このような青色系金属錯体としては、例えば、前述したK-1、K-2、K-3、K-10、K-11、K-12、K-15、K-16及びK-17等が挙げられる。

本発明の有機EL素子は、正孔輸送層（正孔注入層）を有し、該正孔輸送層（正孔注入層）が本発明の有機EL素子用材料を含有しても好ましく、本発明の有機EL素子が電子輸送層（電子注入層）及び/又は正孔障壁層を有し、該電子輸送層（電子注入層）及び/又は正孔障壁層が、本発明の有機EL素子用材料を含有しても好ましい。

【 0 0 4 4】

50

正孔注入層は、陽極から有機 E L 素子内に正孔を効率よく注入させるために設けられる層で、陽極から正孔をスムーズに層内に注入することにより、駆動電圧を低下させることができ、駆動によるキャリアバランスの変化を抑えることができる。正孔注入層に用いられる材料としては、一般的には陽極金属の仕事関数に近いイオン化ポテンシャルエネルギーを有する化合物が用いられる。例えば、アリアルアミン化合物、銅、イリジウムなどの種々の金属錯体、或いはヘキサアザトレフェニレン誘導体などを挙げることができる。

【 0 0 4 5 】

正孔輸送層は、陽極から注入された正孔を輸送し、発光層に到達させる機能を有する層である。正孔輸送層を設けることにより、発光層で正孔と電子が効率よく再結合し、発光効率を高めることができる。このため、正孔輸送層に用いられる材料には、発光層に効率よく正孔を伝達させる機能が要求される。一般的に正孔輸送層に用いられる材料としてはアリアルアミン系材料が用いられている。一般的に電界強度の 2 分の 1 乗の値が $300 \sim 800 (V/cm)^{1/2}$ の範囲で $10^5 cm^2/Vs$ 以上を有する正孔移動度が得られる材料が好ましい。正孔注入層や正孔輸送層に本発明の有機 E L 素子用材料を含有しても好ましい。

10

【 0 0 4 6 】

正孔障壁層は、電子と正孔を発光層内で効率良く再結合させるため、発光層と陰極の間に設けられる層である。正孔障壁層には、発光層材料より第一酸化電位の大きい物質を用いられ、これにより電子輸送層への正孔の注入を防ぐことができる。正孔障壁層に用いる材料としては、例えば、特許第 2673261 号公報に記載の正孔阻止層用材料を挙げることができる。

20

【 0 0 4 7 】

電子輸送層は、陰極から注入された電子を輸送し、発光層に到達させる機能を担う層である。電子輸送層を設けることにより、発光層で正孔と電子が効率よく再結合し、発光効率を高めることができる。効率よく E L 発光をするためには、発光層に効率よく電子を伝達させる必要がある。電子輸送層に用いられる材料としては、含窒素系芳香族化合物材料や、シロール化合物等の窒素以外のヘテロ化合物、或いはアルミニウム、ガリウム等の金属錯体や、縮合芳香族炭化水素等が一般に用いられる。このような材料の電子移動度は、一般的に電界強度の 2 分の 1 乗の値が $300 \sim 800 (V/cm)^{1/2}$ の範囲で $10^6 cm^2/Vs$ 以上である。電子輸送材料としては、後記する材料が好ましく挙げられる。電子輸送層や正孔障壁層に本発明の有機 E L 素子用材料を含有しても好ましい。

30

【 0 0 4 8 】

電子注入層は、陰極から有機 E L 素子内に電子を効率よく注入するために設けられる層である。電子注入層を設けることにより、陰極から電子をスムーズに注入することができるため、駆動電圧を低下させることができ、駆動によるキャリアバランスの変化を抑えることができる。電子注入層を構成する材料としては、後記する材料を好ましく挙げられる。

【 0 0 4 9 】

本発明の有機 E L 素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントが添加されてなると好ましい。

40

前記還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

【 0 0 5 0 】

前記アルカリ金属としては、Na (仕事関数: $2.36 eV$)、K (仕事関数: $2.28 eV$)、Rb (仕事関数: $2.16 eV$)、Cs (仕事関数: $1.95 eV$) 等が挙げられ、仕事関数が $2.9 eV$ 以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくは K、Rb、Cs、さらに好ましくは Rb 又は Cs であり、最も好ましくは Cs である。

前記アルカリ土類金属としては、Ca (仕事関数: $2.9 eV$)、Sr (仕事関数: $2.0 \sim 2.5 eV$)、Ba (仕事関数: $2.52 eV$) 等が挙げられ、仕事関数が 2.9

50

e V以下のものが特に好ましい。

前記希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 e V以下のものが特に好ましい。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

【0051】

前記アルカリ金属化合物としては、Li₂O、Cs₂O、K₂O等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、Li₂O、NaFのアルカリ酸化物又はアルカリフッ化物が好ましい。

前記アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa_xSr_{1-x}O (0 < x < 1) や、Ba_xCa_{1-x}O (0 < x < 1) 等が挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。

前記希土類金属化合物としては、YbF₃、ScF₃、ScO₃、Y₂O₃、Ce₂O₃、GdF₃、TbF₃等が挙げられ、YbF₃、ScF₃、TbF₃が好ましい。

【0052】

前記アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビビリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、ケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

【0053】

還元性ドーパントの添加形態としては、前記界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度としてはモル比で有機物：還元性ドーパント = 100 : 1 ~ 1 : 100、好ましくは5 : 1 ~ 1 : 5である。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1 ~ 15 nmで形成する。

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05 ~ 1 nmで形成する。

また、本発明の有機EL素子における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント = 5 : 1 ~ 1 : 5であると好ましく、2 : 1 ~ 1 : 2であるとさらに好ましい。

【0054】

本発明の有機EL素子は、前記発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を主成分として含有すると陰極との密着性を向上させる分子骨格が多くなるため好ましい。

前記電子注入層に用いる電子輸送材料としては、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。

【0055】

この含窒素環誘導体としては、例えば、一般式(A)で表されるものが好ましい。

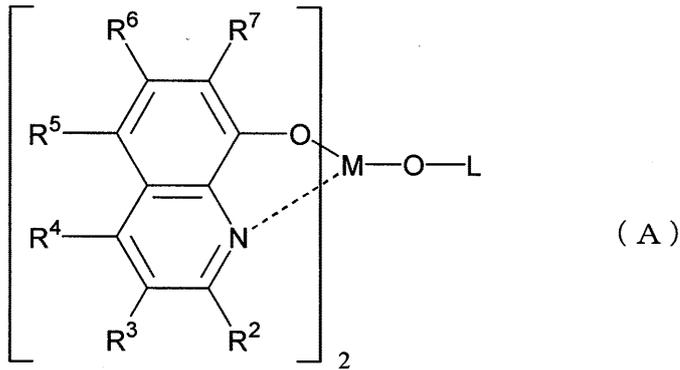
10

20

30

40

【化14】



【0056】

$R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、又は炭素数1～40の炭化水素基であり、これらは置換基を有していてもよい。

このハロゲン原子の例としては、前記と同様のものが挙げられる。また、置換基を有するアミノ基の例としては、前記アルキルアミノ基、アリアルアミノ基、アラルキルアミノ基と同様のものが挙げられる。

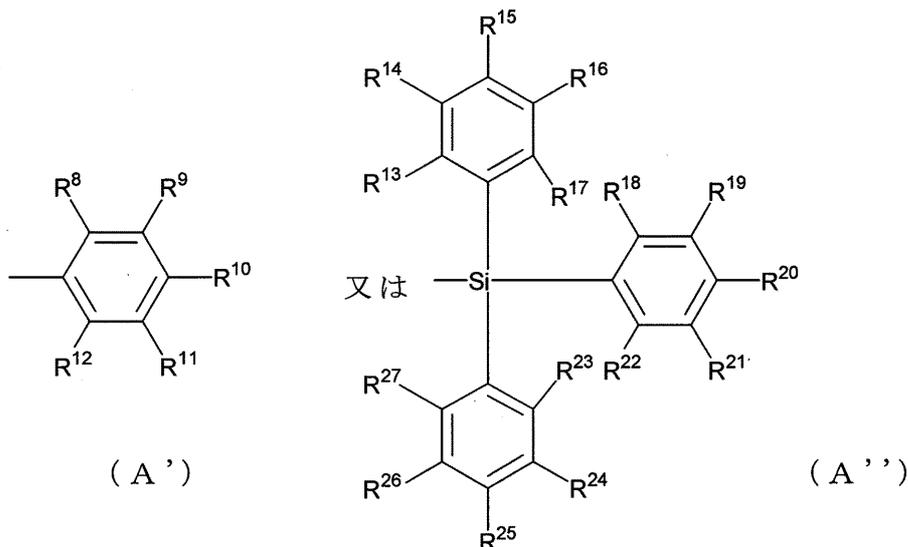
炭素数1～40の炭化水素基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリアル基、複素環基、アラルキル基、アリアルオキシ基、アルコキシカルボニル基等が挙げられる。このアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリアル基、複素環基、アラルキル基、アリアルオキシ基の例としては、前記と同様のものが挙げられ、アルコキシカルボニル基は $-COOY'$ と表され、 Y' の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。

【0057】

Mは、アルミニウム(A1)、ガリウム(Ga)又はインジウム(In)であり、Inであると好ましい。

一般式(A)のLは、下記一般式(A')又は(A'')で表される基である。

【化15】



(式中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。)

【0058】

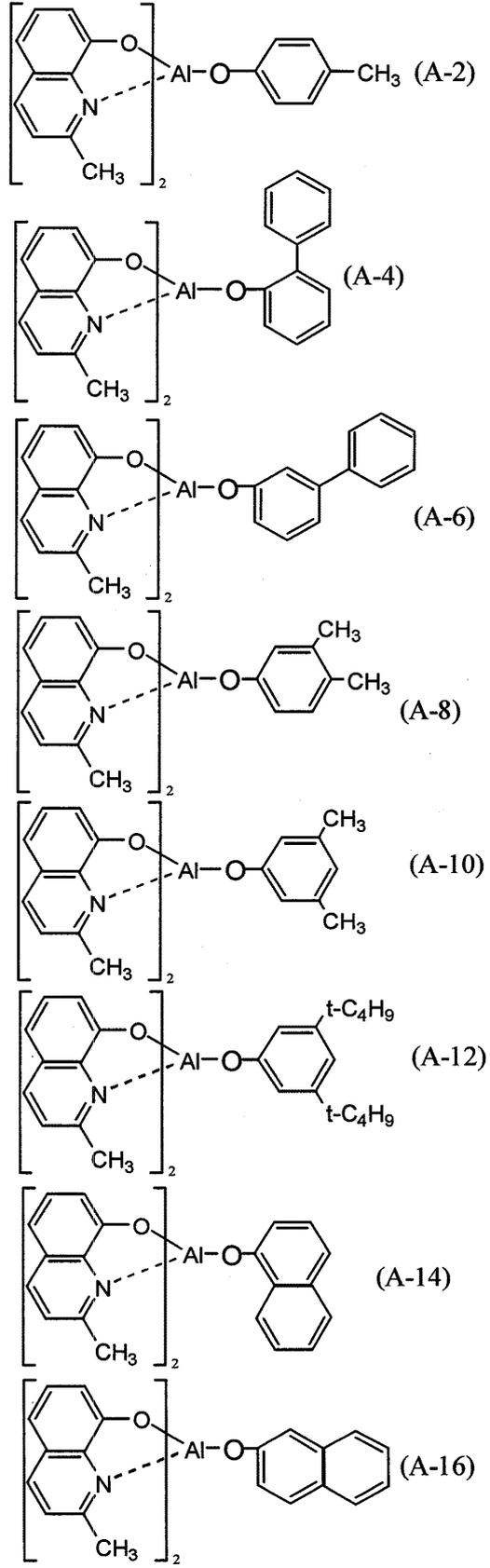
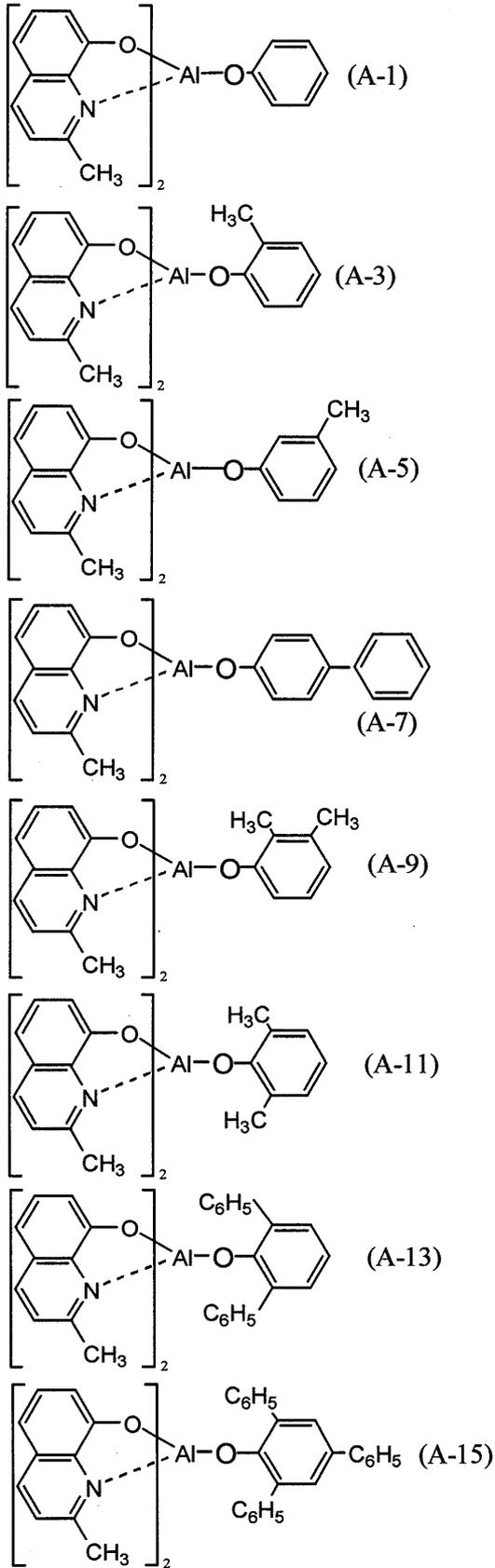
一般式 (A') 及び (A'') の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基としては、前記 $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

また、前記 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の 2 価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン - 2, 2' - ジイル基、ジフェニルエタン - 3, 3' - ジイル基、ジフェニルプロパン - 4, 4' - ジイル基等が挙げられる。

【0059】

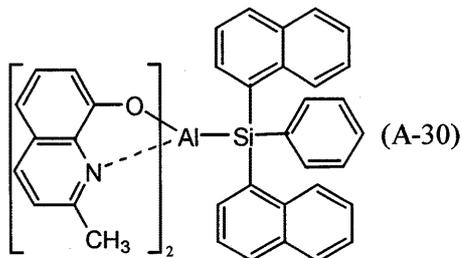
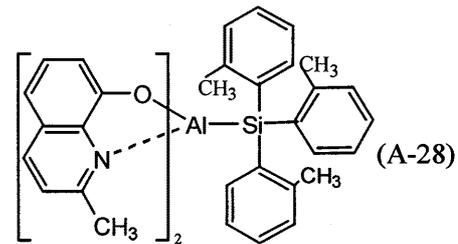
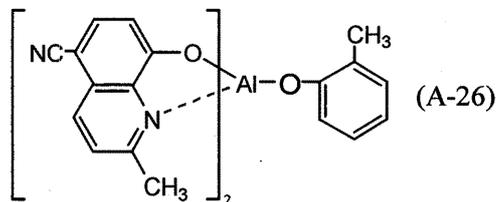
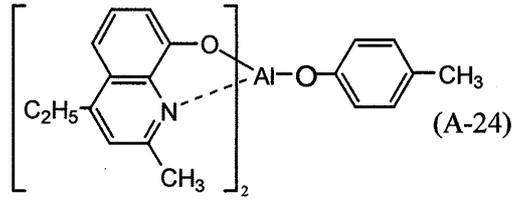
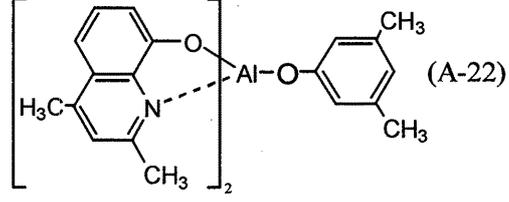
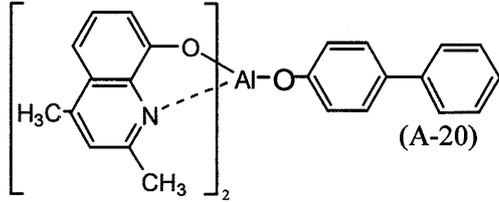
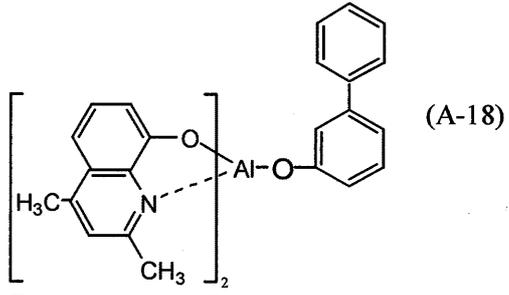
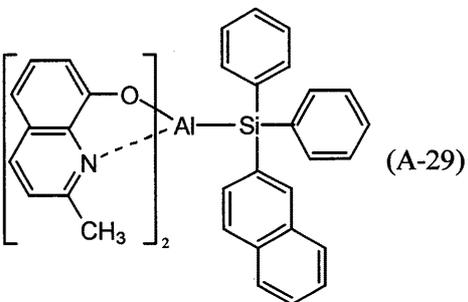
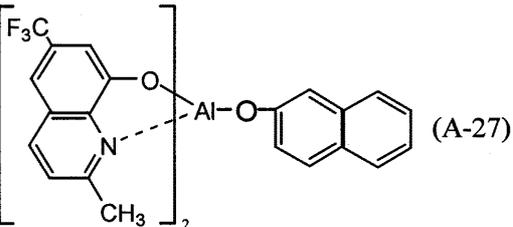
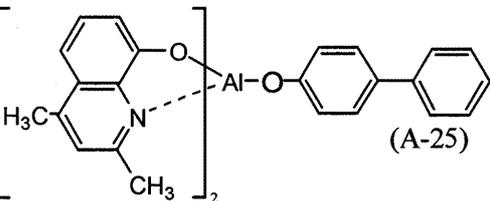
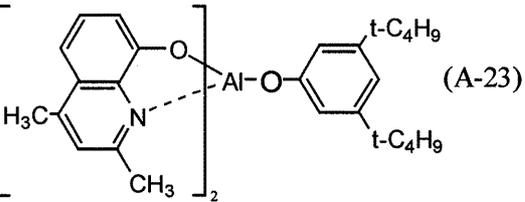
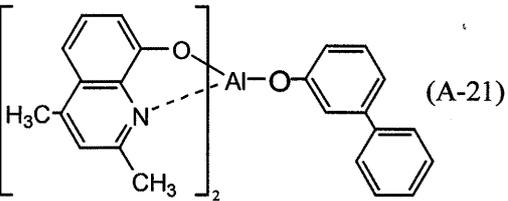
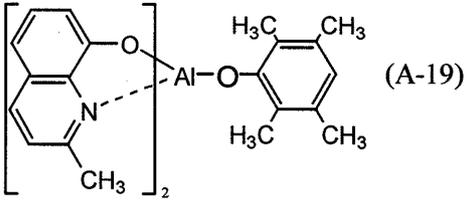
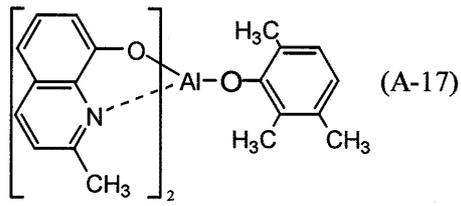
一般式 (A) で表される含窒素環の金属キレート錯体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【化 1 6】



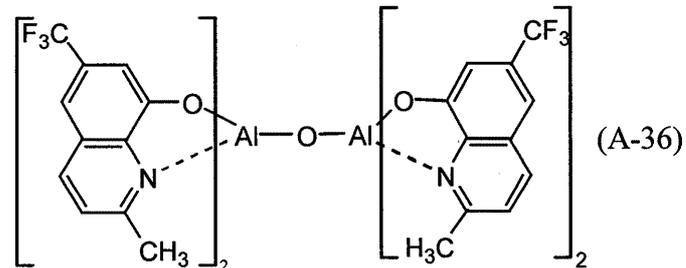
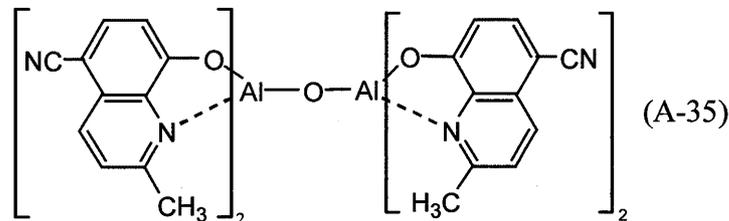
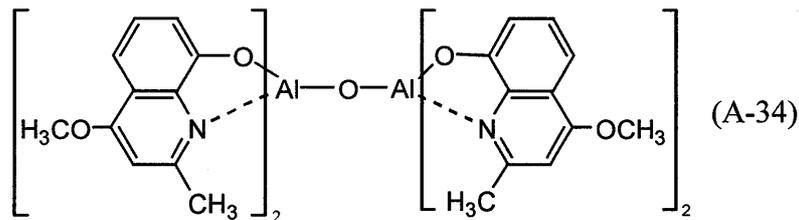
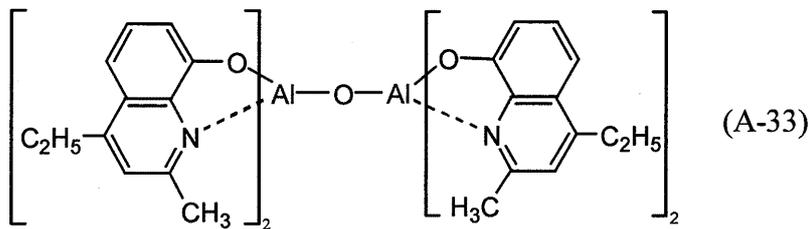
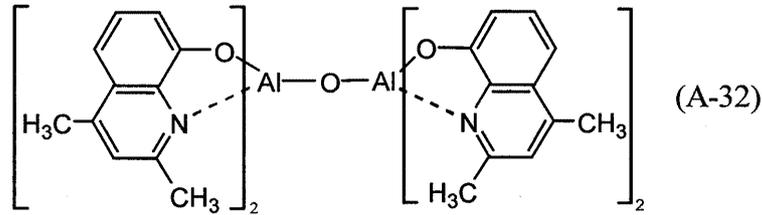
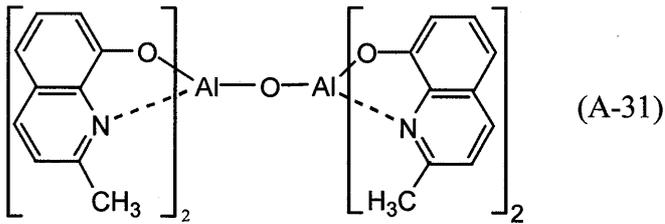
【 0 0 6 0 】

【化 17】



【 0 0 6 1 】

【化18】

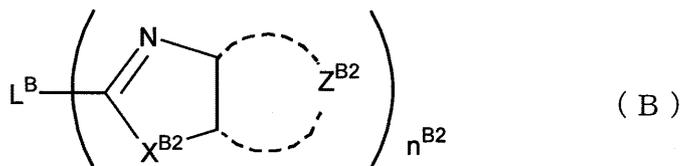


【0062】

前記含窒素環誘導体としては、含窒素5員環誘導体も好ましく、含窒素5員環としては、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素5員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記一般式(B)で表されるものである。

【0063】

【化 19】



【 0 0 6 4 】

一般式 (B) 中、 L^B は二価以上の連結基を表し、例えば、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属 (例えば、バリウム、ベリリウム)、芳香族炭化水素環、芳香族複素環等が挙げられ、これらのうち炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、アリール基、芳香族複素環基が好ましく、炭素原子、ケイ素原子、アリール基、芳香族複素環基がさらに好ましい。

10

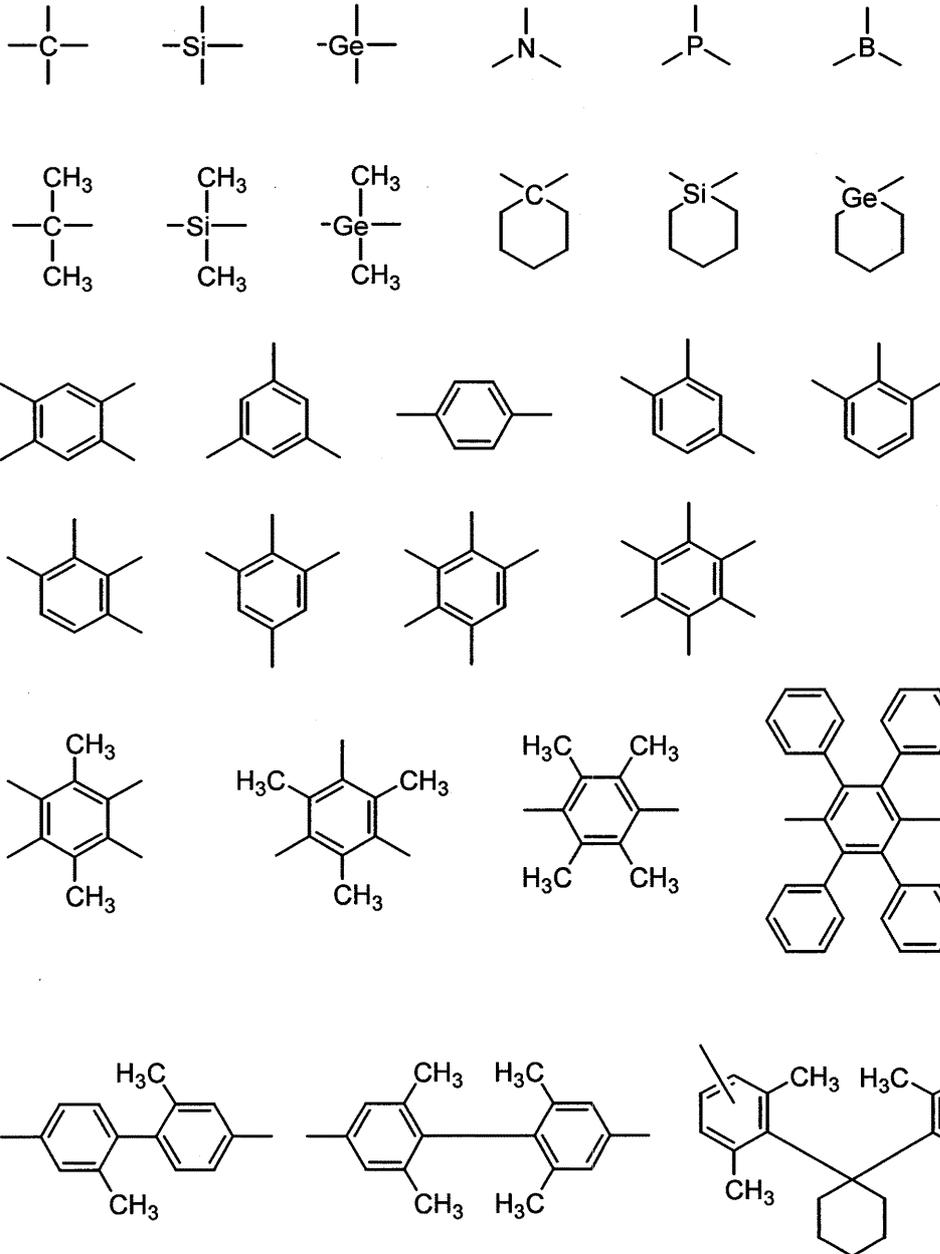
L^B のアリール基及び芳香族複素環基は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

20

【 0 0 6 5 】

L^B の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

【化 2 0】



【0066】

一般式 (B) における X^{B2} は、 -O- 、 -S- 又は =N-R^{B2} を表す。 R^{B2} は、水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基を表す。

R^{B2} の脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐又は環状のアルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 12、特に好ましくは炭素数 1 ~ 8 のアルキル基であり、例えば、メチル、エチル、イソプロピル、*t*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。) 、アルケニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 12、特に好ましくは炭素数 2 ~ 8 のアルケニル基であり、例えば、ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。) 、アルキニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 12、特に好ましくは炭素数 2 ~ 8 のアルキニル基であり、例えば、プロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。) であり、アルキル基であると好ましい。

【0067】

R^{B2} のアリール基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、さらに好ましくは炭素数 6 ~ 12 のアリール基であり、例えば、フ

エニル、2 - メチルフェニル、3 - メチルフェニル、4 - メチルフェニル、2 - メトキシフェニル、3 - トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1 - ナフチル、2 - ナフチル等が挙げられる。

【0068】

R^{B1}の複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、さらに好ましくは炭素数2~10の複素環基であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族複素環基である。この複素環基の例としては、例えば、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

10

【0069】

R^{B1}で表される脂肪族炭化水素基、アリール基及び複素環基は置換基を有していてもよく、置換基としては前記L^Bで表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

20

R^{B1}として好ましくは脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基であり、より好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、さらに好ましくは炭素数6~12のもの）又はアリール基であり、さらに好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、さらに好ましくは炭素数2~10のもの）である。

X^{B1}として好ましくは-O-、=N-R^{B1}であり、より好ましくは=N-R^{B1}であり、特に好ましくは=N-R^{B1}である。

【0070】

Z^{B1}は、芳香族環を形成するために必要な原子群を表す。Z^{B1}で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族複素環のいずれでもよく、具体例としては、例えば、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

30

【0071】

Z^{B1}で形成される芳香族環は、さらに他の環と縮合環を形成してもよく、置換基を有していてもよい。置換基としては前記L^Bで表される基の置換基として挙げたものと同様であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

40

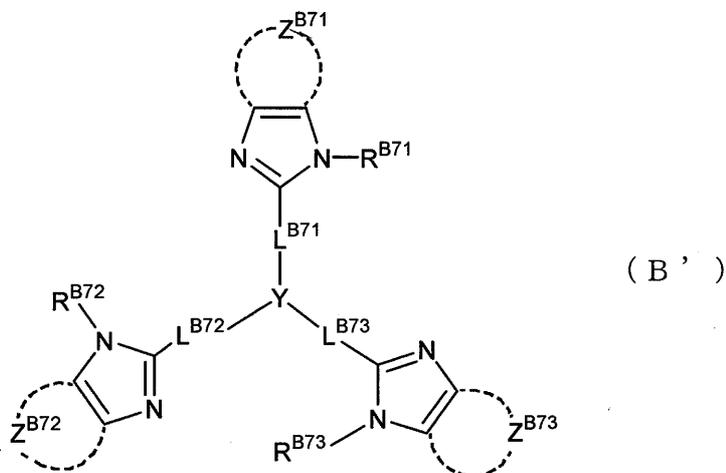
50

n^{B1} は、1 ~ 4 の整数であり、2 ~ 3 であると好ましい。

【0072】

前記一般式 (B) で表される含窒素 5 員環誘導体のうち、さらに好ましくは下記一般式 (B') で表されるものが好ましい。

【化21】



【0073】

20

一般式 (B') 中、 R^{B1} 、 R^{B2} 及び R^{B3} は、それぞれ一般式 (B) における R^{B2} と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

Z^{B1} 、 Z^{B2} 及び Z^{B3} は、それぞれ一般式 (B) における Z^{B2} と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

L^{B1} 、 L^{B2} 及び L^{B3} は、それぞれ連結基を表し、一般式 (B) における L^B の例を二価としたもの及び単結合が挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。 L^{B1} 、 L^{B2} 及び L^{B3} は置換基を有していてもよく、置換基としては前記一般式 (B) における L^B で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

30

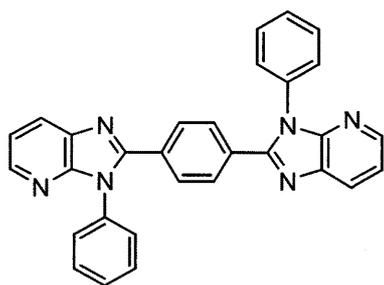
Y は、窒素原子、1, 3, 5 - ベンゼントリイル基又は 2, 4, 6 - トリアジントリイル基を表す。1, 3, 5 - ベンゼントリイル基は 2, 4, 6 - 位に置換基を有していてもよく、置換基としては、例えば、アルキル基、芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子などが挙げられる。

【0074】

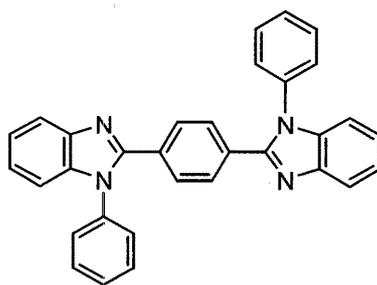
一般式 (B) 又は (B') で表される含窒素 5 員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【化 2 2】

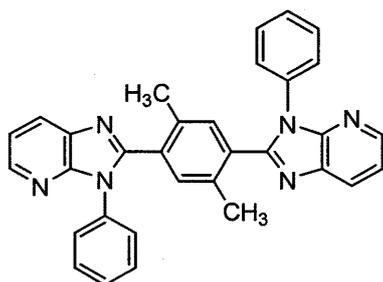
(B-1)



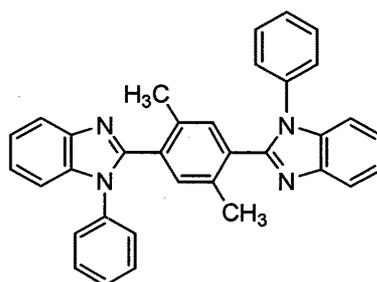
(B-5)



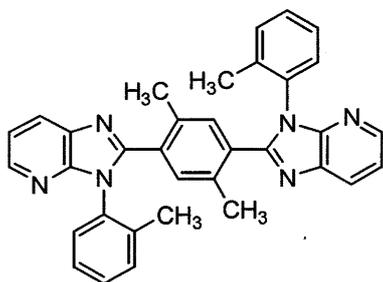
(B-2)



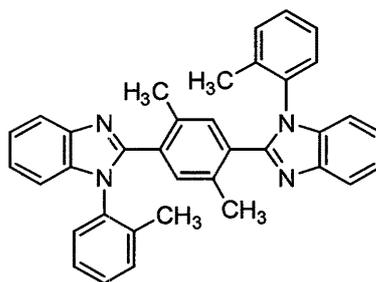
(B-6)



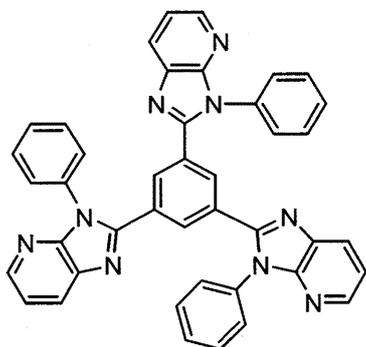
(B-3)



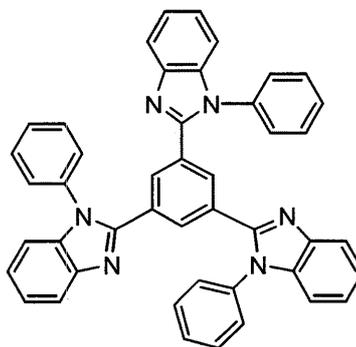
(B-7)



(B-4)



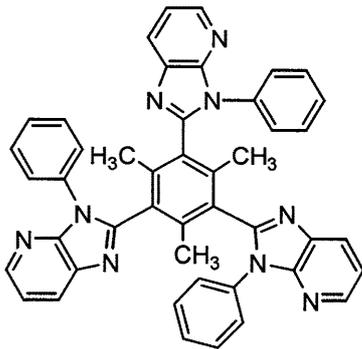
(B-8)



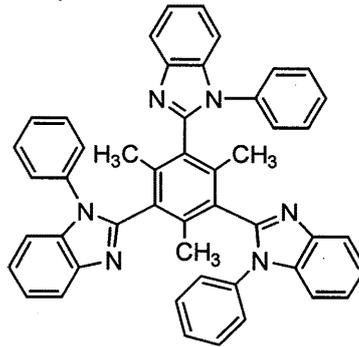
【 0 0 7 5 】

【化 2 3】

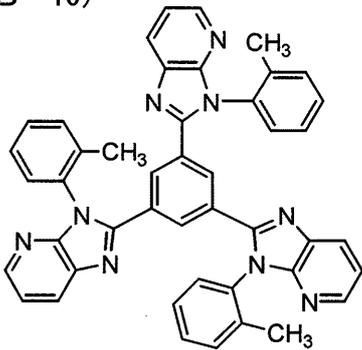
(B-9)



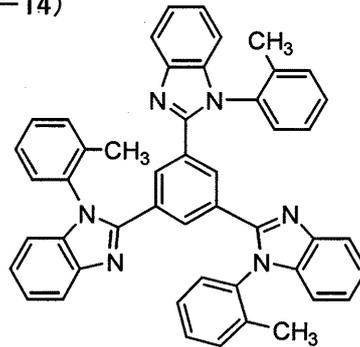
(B-13)



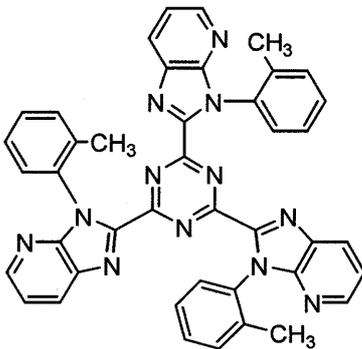
(B-10)



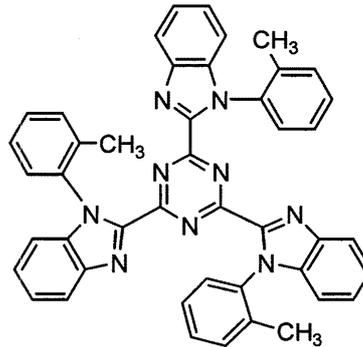
(B-14)



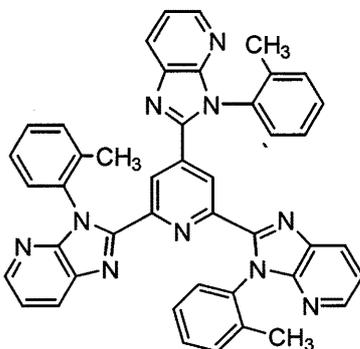
(B-11)



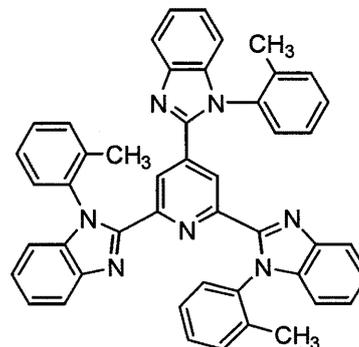
(B-15)



(B-12)



(B-16)



【 0 0 7 6 】

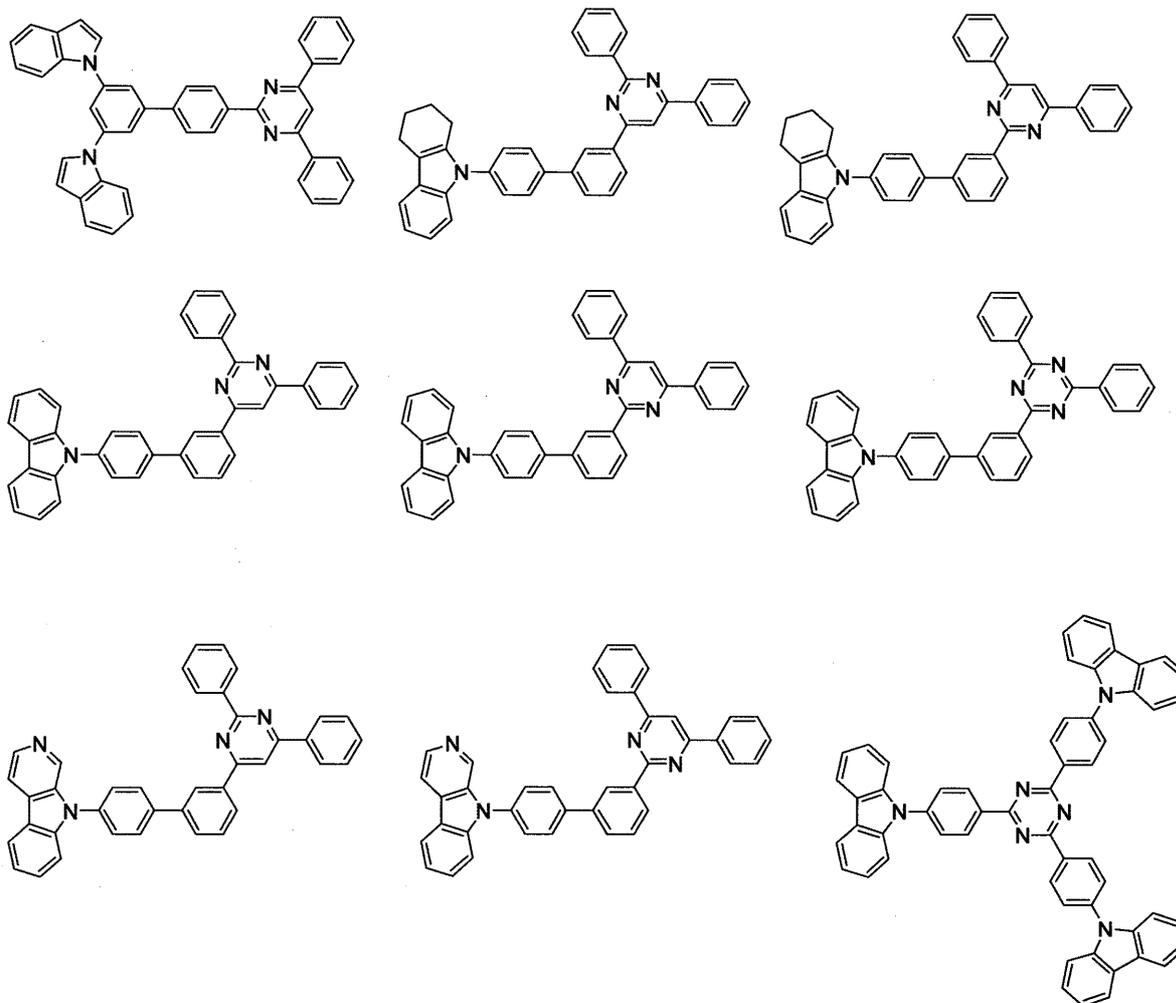
電子注入層及び電子輸送層を構成する化合物としては、本発明の有機EL素子用材料の他、電子欠乏性含窒素5員環または電子欠乏性含窒素6員環骨格と、置換又は無置換のインドール骨格、置換又は無置換のカルバゾール骨格、置換又は無置換のアザカルバゾール骨格を組み合わせた構造を有する化合物等も挙げられる。また、好適な電子欠乏性含窒素5員環または電子欠乏性含窒素6員環骨格としては、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、

トリアジン、トリアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、キノキサリン、ピロール骨格及び、それらがお互いに縮合したベンズイミダゾール、イミダゾピリジン等の分子骨格が挙げられる。これらの組み合わせの中で好ましくはピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン骨格と、カルバゾール、インドール、アザカルバゾール、キノキサリン骨格が挙げられる。前述の骨格は置換されていても無置換であってもよい。

電子輸送性化合物の具体例を以下に示す。

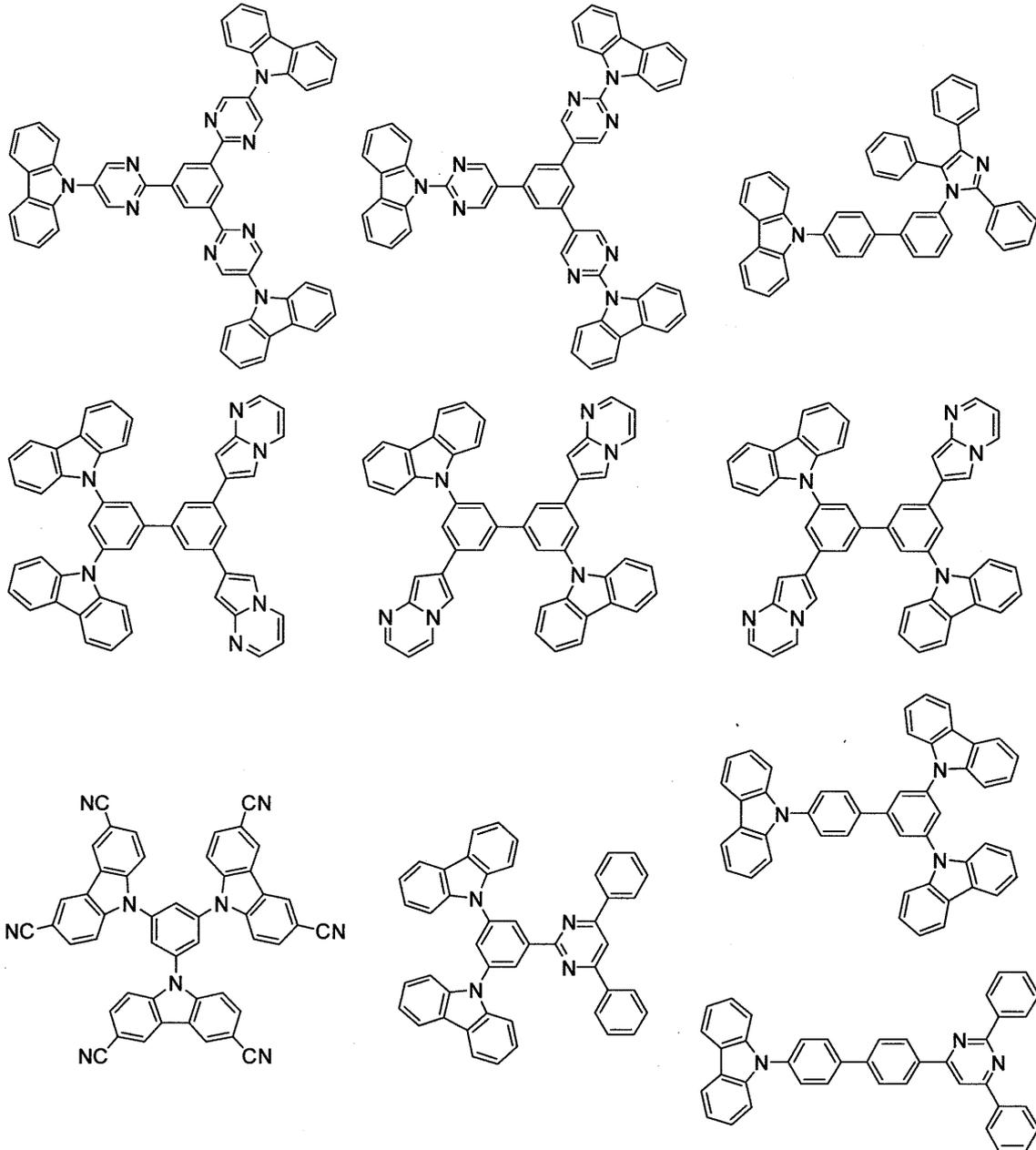
【 0 0 7 7 】

【 化 2 4 】



【 0 0 7 8 】

【化 2 5】



【0079】

電子注入層及び電子輸送層は、前記材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。これらは電子欠乏性含窒素ヘテロ環基であることが好ましい。

【0080】

また、前記電子注入層の構成成分として、前記含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe

が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、LiF、NaF、KF、LiCl、KCl及びNaCl等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF₂、BaF₂、SrF₂、MgF₂及びBeF₂等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、前記アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

また、本発明における電子注入層は、前述の還元性ドーパントを含有していても好ましい。

【0081】

本発明において、有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ITO）、酸化錫（NES A）、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。

【0082】

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記一般式（1）又は（2）で表される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、パーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1µmの範囲が好ましい。

【実施例】

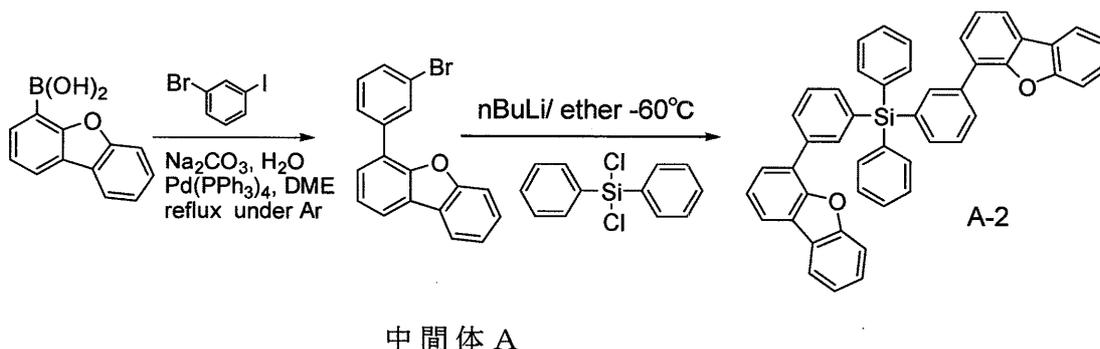
【0083】

次に、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明する。

合成例1：化合物A-2の合成

下記の合成経路により化合物A-2を合成した。

【化26】



【0084】

10

20

30

50

4 - ジベンゾフランボロン酸 3.12 g、1 - ブロモ - 3 - ヨードベンゼン 4.07 g、テトラキス - トリフェニルホスフィンパラジウム (0) 0.33 g、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 25 g、ジメトキシエタン 70 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、8 時間加熱還流した。薄層クロマトグラフ (TLC) で反応終了を確認後、ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで有機層を乾燥後、ろ過して濃縮し、黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、4.13 g の白色固体 (収率 89%, 中間体 A) を得た。このものについて、FD - MS (フィールドディソープションマス分析) 測定を行った結果を以下に示す。

FD - MS : calcd $C_{11}H_{11}BrO$ 323.18, found 323

次に中間体 A 全量をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水ジエチルエーテル 40 ml、脱水テトラヒドロフラン 30 ml を加えて攪拌しながら溶解し、MeOH - ドライアイス浴で -60 に冷却し、そこへ 1.6 M ノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 10 ml をシリンジで滴下した。15 分攪拌後、ジクロロジフェニルシラン 1.35 ml を脱水テトラヒドロフラン 10 ml に溶かした溶液を滴下した。5 まで昇温後 TLC で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥後、ろ過して濃縮し、無色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで再度洗浄、乾燥して化合物 A - 2 2.42 g (収率 56%) を得た。このものについて、FD - MS 測定を行った結果を以下に示す。

FD - MS : calcd $C_{14}H_{12}O_2Si$ 668.85, found 668

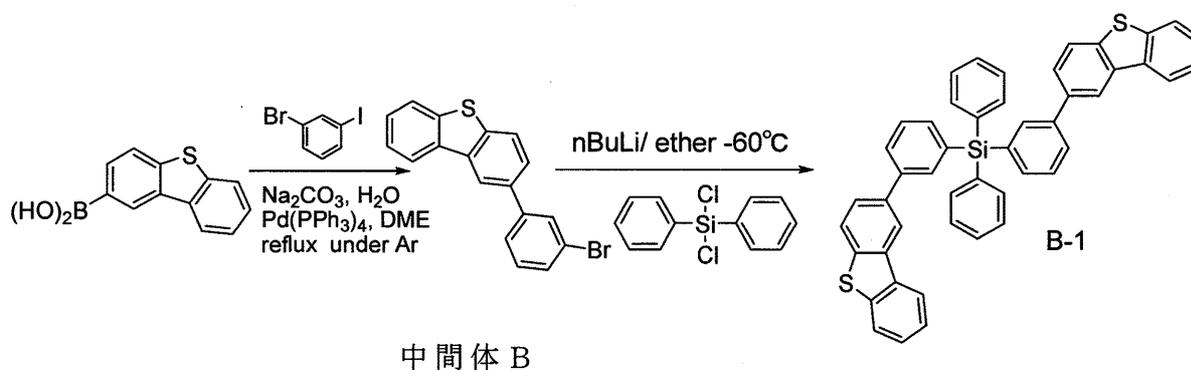
得られた化合物 A - 2 は 320、 1.3×10^{-3} Torr で昇華精製して蒸着に用いた。高速液体クロマトグラフィー (HPLC) 純度は 99.5% であった。

【0085】

合成例 2 : 化合物 B - 1 の合成

下記の合成経路により化合物 B - 1 を合成した。

【化 27】



【0086】

2 - ジベンゾチオフェンボロン酸 3.3 g、1 - ブロモ - 3 - ヨードベンゼン 4.0 g、テトラキス - トリフェニルホスフィンパラジウム (0) 0.31 g、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 25 ml、ジメトキシエタン 70 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、9 時間加熱還流した。TLC で反応終了を確認後、ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで有機層を乾燥後、ろ過して濃縮し、黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、3.96 g の白色固体 (収率 83%, 中間体 B) を得た。このものについて、FD - MS 測定を行った結果を以下に示す。

FD - MS : calcd $C_{11}H_{11}BrS$ 339.25, found 339

中間体 B 3.96 g をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水テトラヒドロフラン 40 ml を加えて攪拌しながら溶解し、MeOH - ドライアイス浴で -70 に冷却し、そこへ 1.6 M ノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 8 ml をシリンジで滴下した。15 分

攪拌後、ジクロロジフェニルシラン 1.35 ml を脱水テトラヒドロフラン 10 ml に溶かした溶液を滴下した。5 まで昇温後 T L C で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥後、ろ過して濃縮し、無色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで 3 回洗浄、乾燥して化合物 B - 1 2.49 g (収率 68%) を得た。このものについて、F D - M S 測定を行った結果を以下に示す。

F D - M S : calcd $C_{24}H_{22}S_2Si$ 700.98, found 700

得られた化合物 B - 1 は 310、 5.0×10^{-6} Torr で昇華精製して蒸着に用いた。H P L C 純度は 99.3% であった。

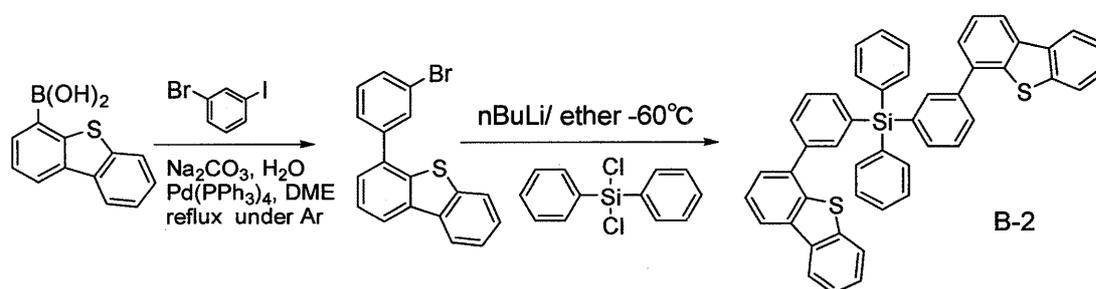
10

【0087】

合成例 3 : 化合物 B - 2 の合成

下記の合成経路により化合物 B - 2 を合成した。

【化 28】



中間体 C

【0088】

4 - ジベンゾチオフェンボロン酸 3.3 g、1 - ブロモ - 3 - ヨードベンゼン 4.0 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0) 0.31 g、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 25 ml、ジメトキシエタン 70 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、9 時間加熱還流した。T L C で反応終了を確認後、ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで有機層を乾燥後、ろ過して濃縮し、黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、4.2 g の白色固体 (収率 88%, 中間体 C) を得た。このものについて、F D - M S 測定を行った結果を以下に示す。

30

F D - M S : calcd $C_{24}H_{21}BrS$ 339.25, found 339

中間体 C 4.0 g をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水テトラヒドロフラン 40 ml を加えて攪拌しながら溶解し、MeOH - ドライアイス浴で -70 に冷却し、そこへ 1.6 M ノルマルブチリチウムヘキサン溶液 8 ml をシリンジで滴下した。15 分攪拌後、ジクロロジフェニルシラン 1.4 ml を脱水テトラヒドロフラン 10 ml に溶かした溶液を滴下した。5 まで昇温後 T L C で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥後、ろ過して濃縮し、無色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで 3 回洗浄、乾燥して化合物 B - 2 2.52 g (収率 69%) を得た。このものについて、F D - M S 測定を行った結果を以下に示す。

40

F D - M S : calcd $C_{24}H_{22}S_2Si$ 700.98, found 700

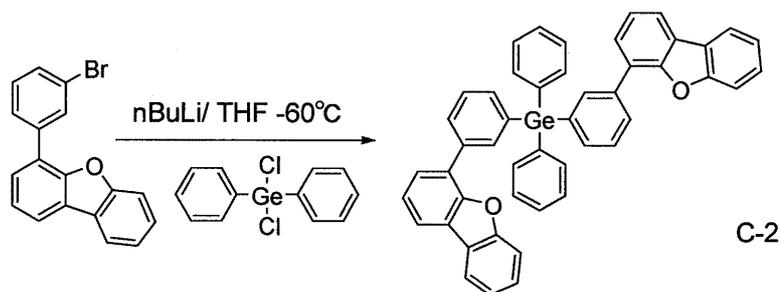
得られた化合物 B - 2 は 310、 5.5×10^{-6} Torr で昇華精製して蒸着に用いた。H P L C 純度は 99.3% であった。

【0089】

合成例 4 : C - 2 の合成

下記の合成経路により化合物 C - 2 を合成した。

【化29】



中間体 A

【0090】

中間体 A 2.48 g をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水テトラヒドロフラン 30 ml を加えて攪拌しながら溶解し、MeOH - ドライアイス浴で -60°C に冷却し、そこへ 1.6 M ノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 5 ml をシリンジで滴下した。15 分攪拌後、ジフェニルジクロロゲルマン 1.0 g を脱水テトラヒドロフラン 13 ml に溶かした溶液を滴下した。5 まで昇温後 TLC で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥後、ろ過して濃縮し、無色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで再度洗浄、乾燥して化合物 C - 2 1.61 g (収率 67%) を得た。このものについて、FD - MS 測定を行った結果を以下に示す。

FD - MS : calcd $\text{C}_{44}\text{H}_{30}\text{O:Ge}$ 713.41, found 713

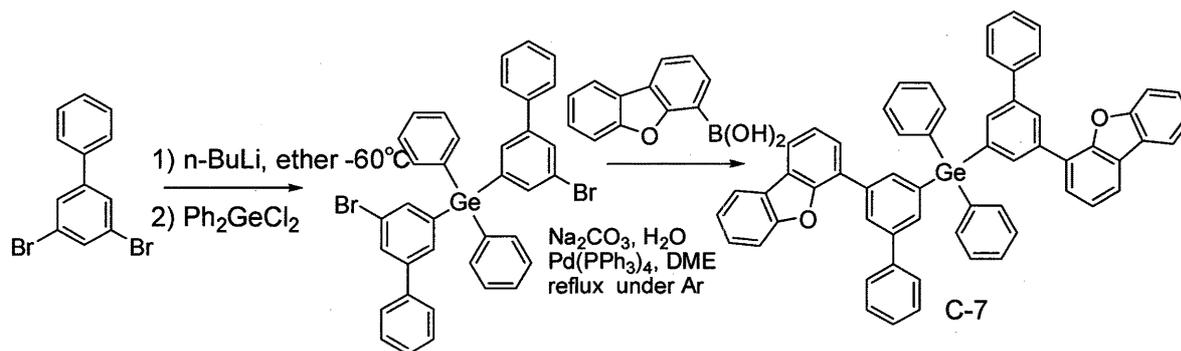
得られた化合物 C - 2 は 340°C 、 1.9×10^{-3} Torr で昇華精製して蒸着に用いた。HPLC 純度は 99.7% であった。

【0091】

合成例 5 : 化合物 C - 7 の合成

下記の合成経路により化合物 C - 7 を合成した。

【化30】



中間体 D

【0092】

3,5 - ジブロモピフェニル 3.08 g をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水ジエチルエーテル 40 ml を加えて攪拌しながら溶解し、MeOH - ドライアイス浴で -60°C に冷却し、そこへ 1.6 M ノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 6.2 ml をシリンジで滴下した。 -10°C まで昇温した後、 -40°C に冷却してジフェニルジクロロゲルマン 1.36 g を脱水ジエチルエーテル 10 ml に溶かした溶液を滴下した。 -10°C まで昇温後 TLC で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥

後、ろ過して濃縮し、黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで再度洗浄、乾燥して中間体 D - 2 (2 . 8 5 g (収率 9 0 %)) を得た。このものについて、F D - M S 測定を行った結果を以下に示す。

F D - M S : calcd $C_{33}H_{23}Br_2Ge$ 691.01, found 691

中間体 D 全量 2 . 8 5 g、4 - ジベンゾフランボロン酸 1 . 8 5 g、テトラキス - トリフェニルホスフィンパラジウム (0) 0 . 1 9 g、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 1 9 g、ジメトキシエタン 5 0 m l をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、9 時間加熱還流した。T L C で反応終了を確認後、ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで有機層を乾燥後、ろ過して濃縮し、橙色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、2 . 8 6 g の白色固体として化合物 C - 7 (収率 8 0 %) を得た。このものについて、F D - M S 測定を行った結果を以下に示す。

10

F D - M S : calcd $C_{33}H_{23}GeO_2$ 865.60, found 865

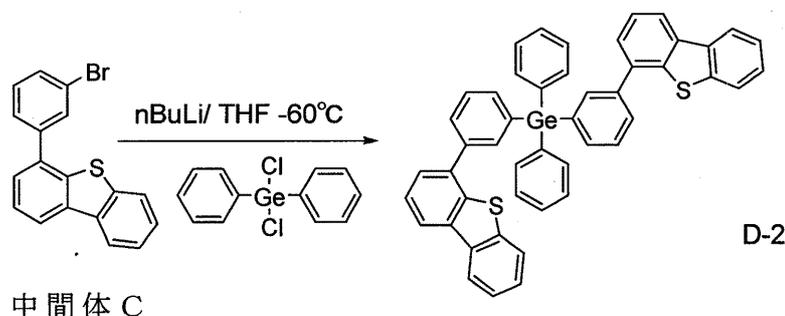
得られた化合物 C - 7 は 3 6 0 、 $3 . 7 \times 10^{-6}$ T o r r で昇華精製して蒸着に用いた。H P L C 純度は 9 9 . 1 % であった。

【 0 0 9 3 】

合成例 6 : 化合物 D - 2 の合成

下記の合成経路により化合物 D - 2 を合成した。

【 化 3 1 】



【 0 0 9 4 】

中間体 C 2 . 5 7 g をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水テトラヒドロフラン 3 0 m l を加えて攪拌しながら溶解し、Me O H - ドライアイス浴で - 7 0 に冷却し、そこへ 1 . 6 M ノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 5 m l をシリンジで滴下した。1 5 分攪拌後、ジクロロジフェニルゲルマン 1 . 0 g を脱水テトラヒドロフラン 1 5 m l に溶かした溶液を滴下した。- 1 2 まで昇温後 T L C で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥後、ろ過して濃縮し、淡黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで 2 回洗浄、乾燥して化合物 D - 2 (1 . 9 7 g (収率 7 9 %)) を得た。このものについて、F D - M S 測定を行った結果を以下に示す。

30

F D - M S : calcd $C_{33}H_{23}S_2Ge$ 745.54, found 745

得られた化合物 D - 2 は 3 2 0 、 $7 . 7 \times 10^{-6}$ T o r r で昇華精製して蒸着に用いた。H P L C 純度は 9 9 . 8 % であった。

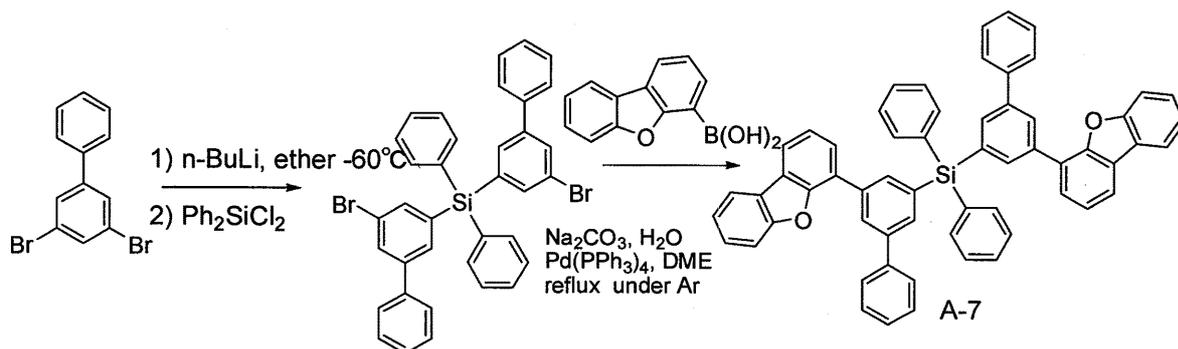
40

【 0 0 9 5 】

合成例 7 : 化合物 A - 7 の合成

下記の合成経路により化合物 A - 7 を合成した。

【化 3 2】



中間体 E

【0096】

3, 5 - ジブロモビフェニル 3.0 g をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、脱水ジエチルエーテル 40 ml を加えて攪拌しながら溶解し、MeOH - ドライアイス浴で - 70 に冷却し、そこへ 1.6 M ノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 6.0 ml をシリンジで滴下した。- 10 まで昇温した後、- 40 に冷却してジフェニルジクロロシラン 0.92 g を脱水ジエチルエーテル 10 ml に溶かした溶液を滴下した。0 まで昇温後 TLC で反応終了を確認して飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を終了した。ジクロロメタンを加え、水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで溶液を乾燥後、ろ過して濃縮し、黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、白色固体を得た。これをヘキサンで再度洗浄、乾燥して中間体 E 1.64 g (収率 58%) を得た。このものについて、FD - MS 測定を行った結果を以下に示す。

20

FD - MS : calcd $C_{21}H_{15}Br_2Si$ 646.46, found 646

中間体 E 全量 1.64 g、4 - ジベンゾフランボロン酸 1.07 g、テトラキス - トリフェニルホスフィンパラジウム (0) 0.12 g、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 10 g、ジメトキシエタン 40 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、8 時間加熱還流した。TLC で反応終了を確認後、ジクロロメタンを加え、水、飽和食塩水で洗浄後、有機層を分離し、硫酸マグネシウムで有機層を乾燥後、ろ過して濃縮し、黄色オイル状物質を得た。カラムクロマトグラフィーで精製後、1.87 g の白色固体 A - 7 (収率 90%) を得た。このものについて、FD - MS 測定を行った結果を以下に示す。

30

FD - MS : calcd $C_{28}H_{20}SiO_2$ 821.04, found 821

化合物 A - 7 は 350、 6.1×10^6 Torr で昇華精製して蒸着に用いた。HPLC 純度は 99.3% であった。

【0097】

なお、合成実施例 1 ~ 7 において FD - MS の測定に用いた装置及び測定条件を以下に示す。

< FD - MS 測定 >

装置 : HX 110 (日本電子社製)

40

条件 : 加速電圧 8 kV

スキャンレンジ m/z = 50 ~ 1500

エミッタ種 : カーボン

エミッタ電流 : 0 mA 2 mA / 分 40 mA (10 分保持)

【0098】

実施例 1 (有機 EL 素子の作製)

25 mm x 75 mm x 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極を覆うよう

50

にして膜厚 95 nm の下記材料 H T M を成膜した。この H T M 膜は正孔注入輸送層として機能する。さらに、正孔注入輸送層上に膜厚 30 nm で、ホスト材料として合成例 1 で得られた化合物 A - 2 と上記錯体 K - 1 を抵抗加熱により共蒸着成膜した。錯体 K - 1 の濃度は 7 重量%であった。この膜は、発光層として機能する。この発光層上に続けて、下記材料 E T M 1 を膜厚 25 nm、さらに、この E T M 1 の上に下記材料 E T M 2 を 5 nm 積層成膜した。この E T M 1 層、E T M 2 層はそれぞれ電子輸送層、電子注入層として機能する。この後、L i F を電子注入性電極（陰極）として成膜速度 1 / m i n で膜厚 1 n m 形成した。この L i F 層上に金属 A l を蒸着させ、金属陰極を膜厚 150 nm 形成し有機 E L 素子を作製した。

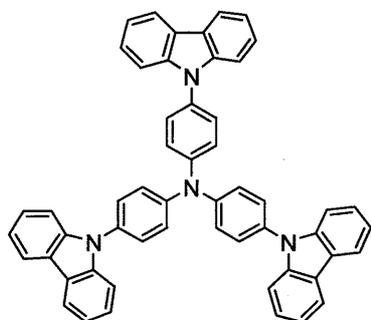
（有機 E L 素子の発光性能評価）

10

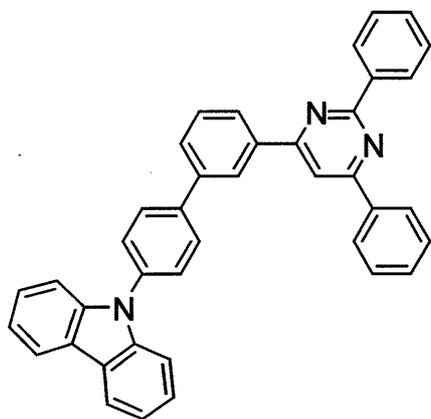
以上のように作製した有機 E L 素子を直流電流駆動により発光させて通電試験を行い、発光波長（）、輝度（L）、電流密度（J）を測定し、電流効率（L / J）を求めた。その結果を表 1 に示す。また、寿命について、初期輝度 1500 c d / m² が半減する時間を測定し、比較例 1 を 100 とした相対値で表 1 に示す。

【0099】

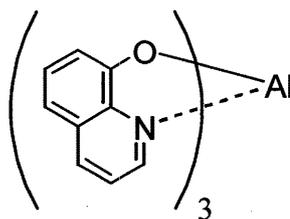
【化33】



H T M



E T M 1



E T M 2

【0100】

実施例 2 ~ 7

実施例 1 において、ホスト材料として化合物 A - 2 の代わりに表 1 に記載に記載した合成例 2 ~ 7 で得られたホスト材料を用いた以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。得られたそれぞれの有機 E L 素子について、実施例 1 と同様にして通電試験及び寿命の測定を行った。それらの結果を表 1 に示す。

【0101】

比較例 1 ~ 4

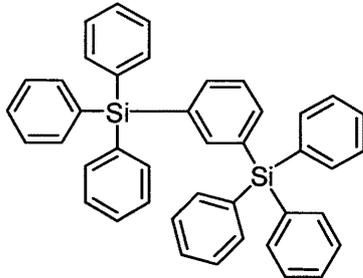
実施例 1 において、ホスト材料として化合物 A - 2 の代わりに、国際公開 W O 2 0 0 4

50

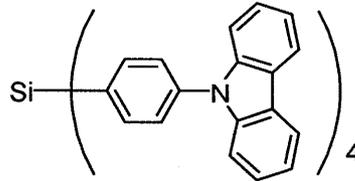
/ 0 9 5 5 9 8 号 公 報、 特 開 2 0 0 5 - 3 1 0 6 7 2 号 公 報、 特 開 2 0 0 5 - 3 0 6 8 6 4 号 公 報 及 び 特 開 2 0 0 5 - 3 1 7 2 7 5 号 公 報 に 各 々 記 載 さ れ て い る 下 記 比 較 化 合 物 1 ~ 4 を 用 い た 以 外 は 同 様 に し て 有 機 E L 素 子 を 作 製 し た。 得 ら れ た 各 々 の 有 機 E L 素 子 に つ い て、 実 施 例 1 と 同 様 に し て 通 電 試 験 及 び 寿 命 の 測 定 を 行 っ た。 そ れ ら の 結 果 を 表 1 に 示 す。

【 0 1 0 2 】

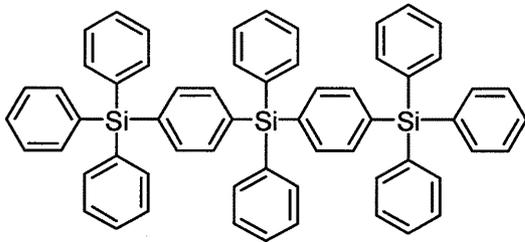
【 化 3 4 】



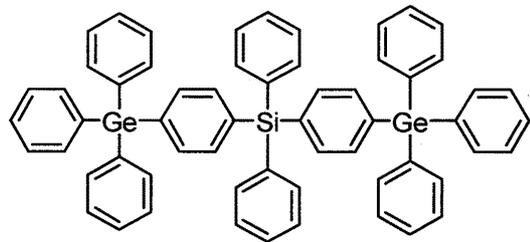
比較化合物1



比較化合物2



比較化合物3



比較化合物4

【 0 1 0 3 】

【 表 1 】

表 1

実施例	ホスト材料	輝度(cd/m ²)	電圧(V)	電流効率(cd/A)	発光波長(nm)	寿命
実施例1	A-2	112	6.4	28	483	261
実施例2	B-1	100	6.0	32	484	268
実施例3	B-2	102	5.8	29	483	327
実施例4	C-2	108	6.0	35	484	251
実施例5	C-7	110	6.4	38	483	330
実施例6	D-2	102	6.2	35	484	292
実施例7	A-7	110	6.4	32	484	284
比較例1	比較化合物1	98	7.0	20	484	100
比較例2	比較化合物2	102	6.4	24	484	147
比較例3	比較化合物3	104	6.9	22	484	94
比較例4	比較化合物4	100	7.0	21	484	67

表 1 に 示 し た よ う に、 実 施 例 で 用 い た ホ ス ト 材 料 に 比 べ て 比 較 例 で 用 い た ホ ス ト 材 料 い ず れ も 電 流 効 率 が 低 い 値 を 示 し て お り、 電 圧 も 高 く、 寿 命 も 短 か っ た。

【 産 業 上 の 利 用 可 能 性 】

【 0 1 0 4 】

以 上 詳 細 に 説 明 し た よ う に、 本 発 明 の 一 般 式 (1) 又 は (2) で 表 さ れ る 化 合 物 か ら な る 有 機 E L 素 子 用 材 料 を 利 用 す る と、 発 光 効 率 が 高 く、 画 素 欠 陥 が な く、 耐 熱 性 に 優 れ、 かつ 寿 命 の 長 い 有 機 E L 素 子 が 得 ら れ る。

こ の た め、 本 発 明 の 有 機 E L 素 子 は、 各 種 電 子 機 器 の 光 源 等 と し て 極 め て 有 用 で あ る。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2007/060921
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, C07F7/08(2006.01)n, C07F7/10(2006.01)n, C07F7/30(2006.01)n According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01L51/50, C09K11/06, C07F7/08, C07F7/10, C07F7/30 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2007 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2007 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2007 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus (STN), REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-97301 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 14 April, 2005 (14.04.05), Full text; all drawings & US 2005/0064238 A1 Full text; all drawings & KR 2005029769 A & CN 1600787 A	1-13
A	JP 2001-332385 A (Toray Industries, Inc.), 30 November, 2001 (30.11.01), Full text; all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2003-133075 A (Toray Industries, Inc.), 09 May, 2003 (09.05.03), Par. Nos. [0024] to [0035] (Family: none)	1-13
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 22 August, 2007 (22.08.07)		Date of mailing of the international search report 04 September, 2007 (04.09.07)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/060921

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-317275 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 10 November, 2005 (10.11.05), Full text (Family: none)	1-13
E,A	JP 2007-134677 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 31 May, 2007 (31.05.07), Full text (Family: none)	1-13
E,A	WO 2007/069569 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 21 June, 2007 (21.06.07), Full text (Family: none)	1-13

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2007/060921	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, C07F7/08(2006.01)n, C07F7/10(2006.01)n, C07F7/30(2006.01)n			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06, C07F7/08, C07F7/10, C07F7/30			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2007年 日本国実用新案登録公報 1996-2007年 日本国登録実用新案公報 1994-2007年			
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAplus (STN), REGISTRY (STN)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
A	J P 2005-97301 A (三星エスディアイ株式会社) 2005.04.14, 全文, 全図 & US 2005/0064238 A1, 全文, 全図 & KR 2005029769 A & CN 1600787 A	1-13	
A	J P 2001-332385 A (東レ株式会社) 2001.11.30, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献	
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの		「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの		「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)		「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献	
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願			
国際調査を完了した日 22.08.2007		国際調査報告の発送日 04.09.2007	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 20 2905 本田 博幸 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 0 7 / 0 6 0 9 2 1
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 2 0 0 3 - 1 3 3 0 7 5 A (東レ株式会社) 2 0 0 3 . 0 5 . 0 9 , 段落【0024】 - 【0035】 (ファミリーなし)	1 - 1 3
A	J P 2 0 0 5 - 3 1 7 2 7 5 A (富士写真フイルム株式会社) 2 0 0 5 . 1 1 . 1 0 , 全文 (ファミリーなし)	1 - 1 3
E, A	J P 2 0 0 7 - 1 3 4 6 7 7 A (富士フイルム株式会社) 2 0 0 7 . 0 5 . 3 1 , 全文 (ファミリーなし)	1 - 1 3
E, A	W O 2 0 0 7 / 0 6 9 5 6 9 A 1 (出光興産株式会社) 2 0 0 7 . 0 6 . 2 1 , 全文 (ファミリーなし)	1 - 1 3

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I	テーマコード(参考)	
C 0 7 F	7/30	(2006.01)	C 0 7 D 209/86		
			C 0 7 D 403/10		
			C 0 7 F 7/08	S	
			C 0 7 F 7/08	R	
			C 0 7 F 7/30	F	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MT,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SV,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC04 CC21 CC24 CC45 DD53 DD59 DD64 DD67
DD68 DD69 DD71 DD74 DD75 DD76 DD78
4C063 AA01 BB06 CC29 DD08 EE10
4C204 BB05 BB09 CB25 EB01 FB16 GB01
4H049 VN01 VN02 VP01 VQ58 VQ62 VR24 VS12 VS13 VT03 VT17
VT26 VT30 VU29 VW02

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的材料和使用其的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JPWO2007142083A1	公开(公告)日	2009-10-22
申请号	JP2008520508	申请日	2007-05-29
[标]申请(专利权)人(译)	出光兴产株式会社		
申请(专利权)人(译)	出光兴产株式会社		
[标]发明人	岩隈俊裕 松浦正英 中野裕基 池田秀嗣		
发明人	岩隈 俊裕 松浦 正英 中野 裕基 池田 秀嗣		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07D209/86 C07D403/10 C07F7/08 C07F7/30		
CPC分类号	H01L51/0094 C07F7/0812 C07F7/30 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/185 H01L51/0061 H01L51/0072 H01L51/0073 H01L51/0074 H01L51/0077 H01L51/0081 H01L51/0085 H01L51/5012 H01L51/5036 H01L2251/308 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D C09K11/06.690 C09K11/06.660 C07D209/86 C07D403/10 C07F7/08.S C07F7/08.R C07F7/30.F		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/CC24 3K107/CC45 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD75 3K107/DD76 3K107/DD78 4C063/AA01 4C063/BB06 4C063/CC29 4C063/DD08 4C063/EE10 4C204/BB05 4C204/BB09 4C204/CB25 4C204/EB01 4C204/FB16 4C204/GB01 4H049/VN01 4H049/VN02 4H049/VP01 4H049/VQ58 4H049/VQ62 4H049/VR24 4H049/VS12 4H049/VS13 4H049/VT03 4H049/VT17 4H049/VT26 4H049/VT30 4H049/VU29 4H049/VW02		
优先权	2006154305 2006-06-02 JP		
其他公开文献	JP5081821B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

一种有机电致发光元件，其特征在于，具有含有具有杂原子的特定结构的化合物和有机电致发光元件，该有机电致发光元件具有阴极，阳极和有机薄膜层，该有机薄膜层至少具有一层，该有机薄膜层至少包含发光层，阴极和阳极，其中有机薄膜层中的至少一层包含上述化合物。该器件具有出色的发光效率，不会形成像素缺陷，具有优异的耐热性，寿命长。