

(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2016-86155

(P2016-86155A)

(43) 公開日 平成28年5月19日 (2016.5.19)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/22 D	3K107
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06 690	4C037
C07D 333/76 (2006.01)	C07D 333/76 CSP	
C07D 307/91 (2006.01)	C07D 307/91	
	H05B 33/14 A	
審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 117 頁)		

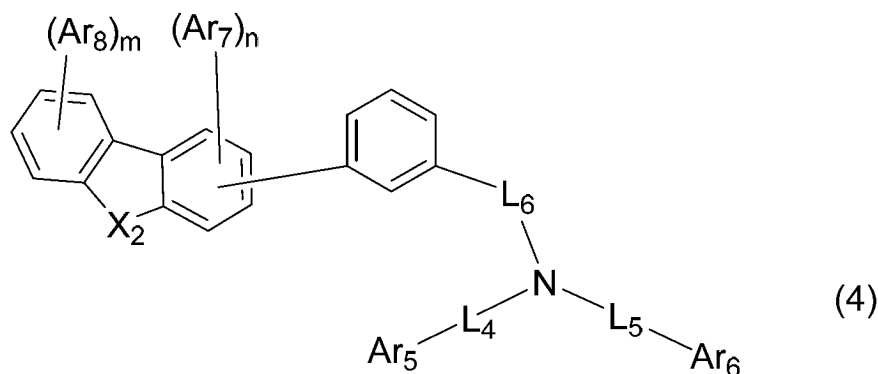
(21) 出願番号	特願2015-92410 (P2015-92410)	(71) 出願人	512187343
(22) 出願日	平成27年4月28日 (2015.4.28)		三星ディスプレイ株式会社
(11) 特許番号	特許第5848480号 (P5848480)		Samsung Display Co., Ltd.
(45) 特許公報発行日	平成28年1月27日 (2016.1.27)		大韓民国京畿道龍仁市器興区三星路1
(31) 優先権主張番号	特願2014-219497 (P2014-219497)	(74) 代理人	110000408
(32) 優先日	平成26年10月28日 (2014.10.28)		特許業務法人高橋・林アンドパートナーズ
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	糸井 裕亮
			神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン日本研究所内
		(72) 発明者	高田 一範
			神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン日本研究所内
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】 (修正有)

【課題】 高い発光効率及び長寿命の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の提供。

【解決手段】 一般式 (4) で表される有機エレクトロルミネッセンス用材料。



[X_2 は O または S であり、 Ar_5 及び Ar_6 はそれぞれ独立にアリール基等； Ar_7 及び Ar_8 はアリール基等； L_4 及び L_5 はそれぞれ独立にアリーレン基等、 L_6 はアリーレン基等； n は 0 以上 3 以下の整数； m は 0 以上 4 以下の整数； $n+m \geq 1$ である]

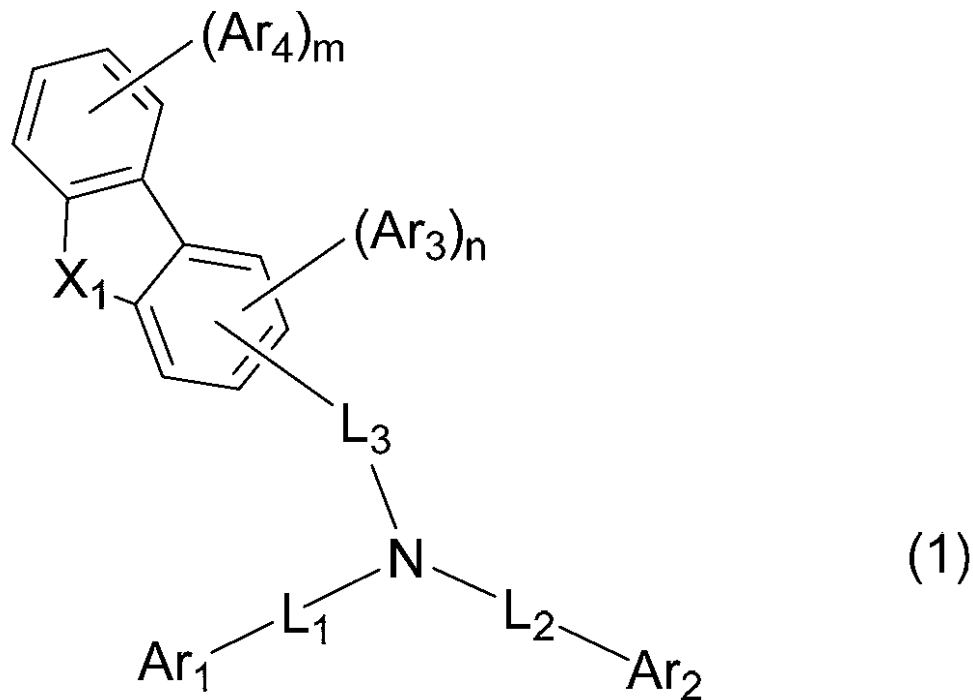
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の一般式（１）で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 1】



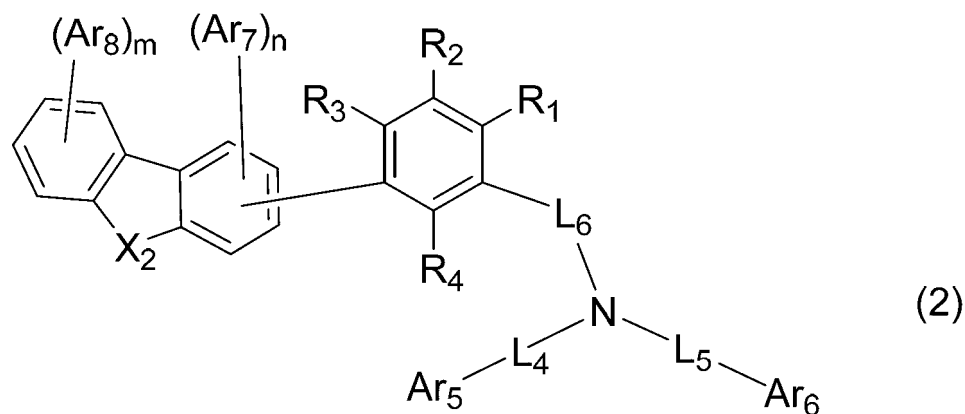
〔一般式（１）中、 X_1 はOまたはSであり、 Ar_1 及び Ar_2 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、 Ar_3 及び Ar_4 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、シリル基であり、 L_1 及び L_2 はそれぞれ独立に単結合、又は環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の2価基からなる群より選択され、 L_3 は環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の2価基からなる群より選択され、 n は0以上3以下の整数であり、 m は0以上4以下の整数であり、 $n+m \geq 1$ である。〕

【請求項 2】

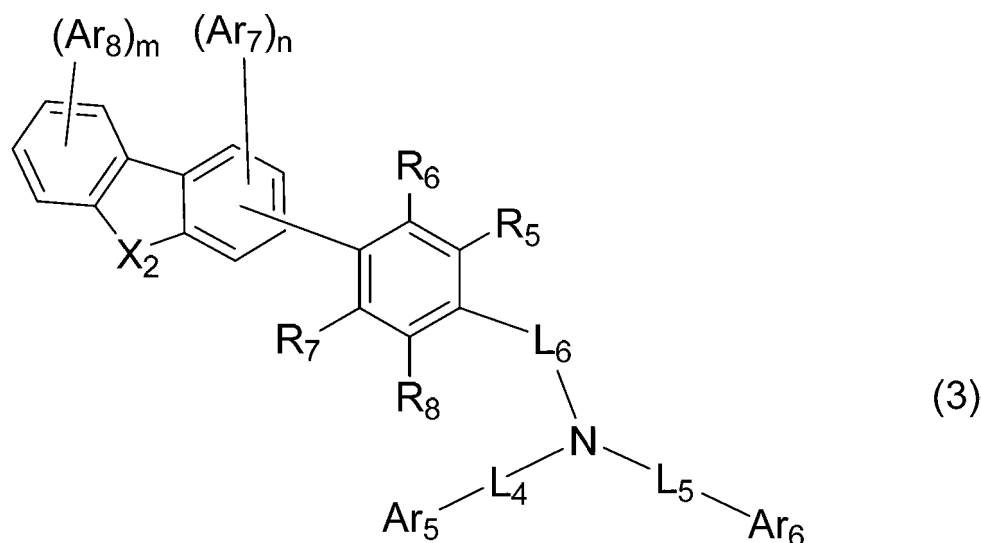
前記一般式（１）で表わされる化合物は、以下の一般式（２）又は（３）で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

。

【化 2】



10



20

〔一般式（２）及び（３）中、 X_2 はOまたはSであり、 Ar_5 及び Ar_6 はそれぞれ独立に環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数１０以上３０以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、 Ar_7 及び Ar_8 はそれぞれ独立に環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリール基、シリル基であり、 L_4 及び L_5 はそれぞれ独立に単結合、又は環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリール基及びシリル基の２価基からなる群より選択され、 L_6 は単結合、又は環形成炭素数６以上２４以下の置換若しくは無置換のアリール基及びシリル基からなる群より選ばれた２価の基であり、 $R_1 \sim R_8$ はそれぞれ独立に環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、環形成炭素数５以上３０以下のヘテロアリール基、炭素数１以上１５以下のアルキル基、シリル基、ハロゲン原子、水素原子又は重水素原子であり、 n は０以上３以下の整数であり、 m は０以上４以下の整数であり、 $n+m \geq 1$ である。〕

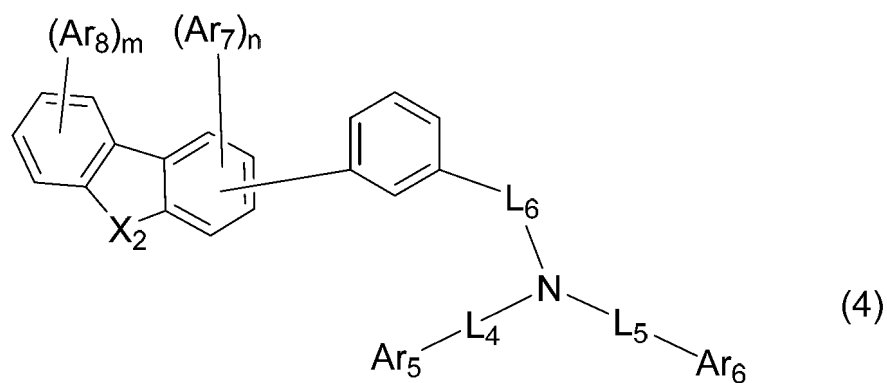
30

40

【請求項 3】

前記一般式（２）で表わされる化合物は、以下の一般式（４）で表わされる化合物であることを特徴とする請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 3】

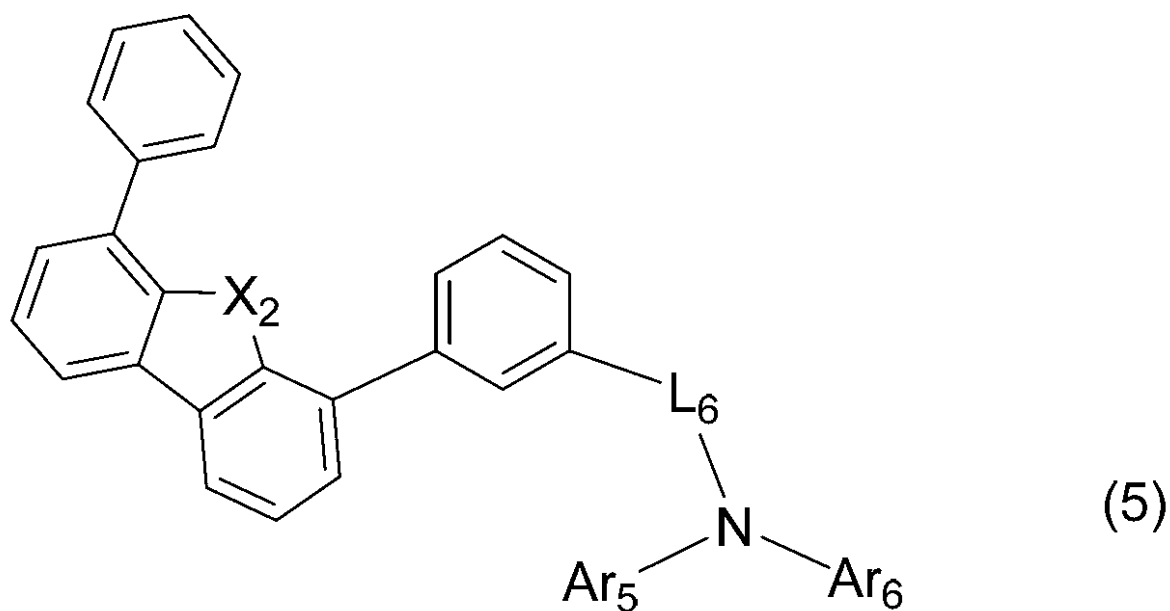


10

【請求項 4】

前記一般式（４）で表わされる化合物は、以下の一般式（５）で表わされる化合物であることを特徴とする請求項 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 4】



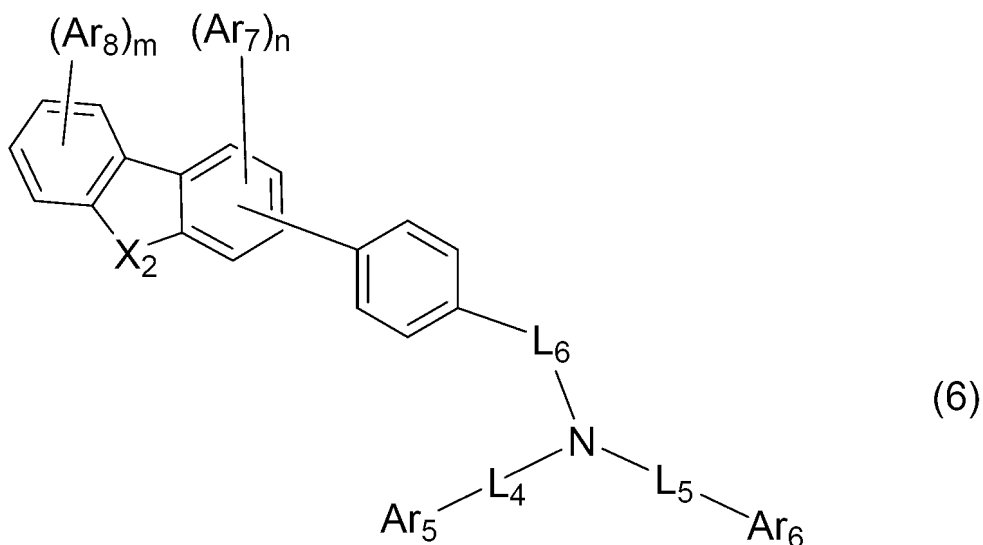
20

30

【請求項 5】

前記一般式（３）で表わされる化合物は、以下の一般式（６）で表わされる化合物であることを特徴とする請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 5】



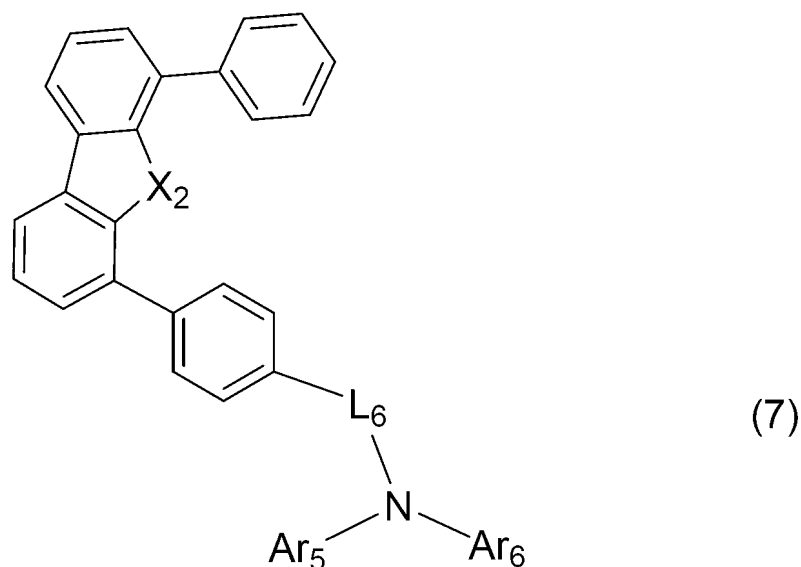
10

【請求項 6】

前記一般式 (6) で表わされる化合物は、以下の一般式 (7) で表わされる化合物であることを特徴とする請求項 5 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

20

【化 6】



30

【請求項 7】

前記請求項 1 乃至請求項 6 に記載の何れかの有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【請求項 8】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む第 1 の層が前記発光層に隣接して配置された、請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】

前記積層膜は、LUMO 準位が -9.0 eV 以上 -4.0 eV 以下である電子受容性化合物を含む第 2 の層を有し、

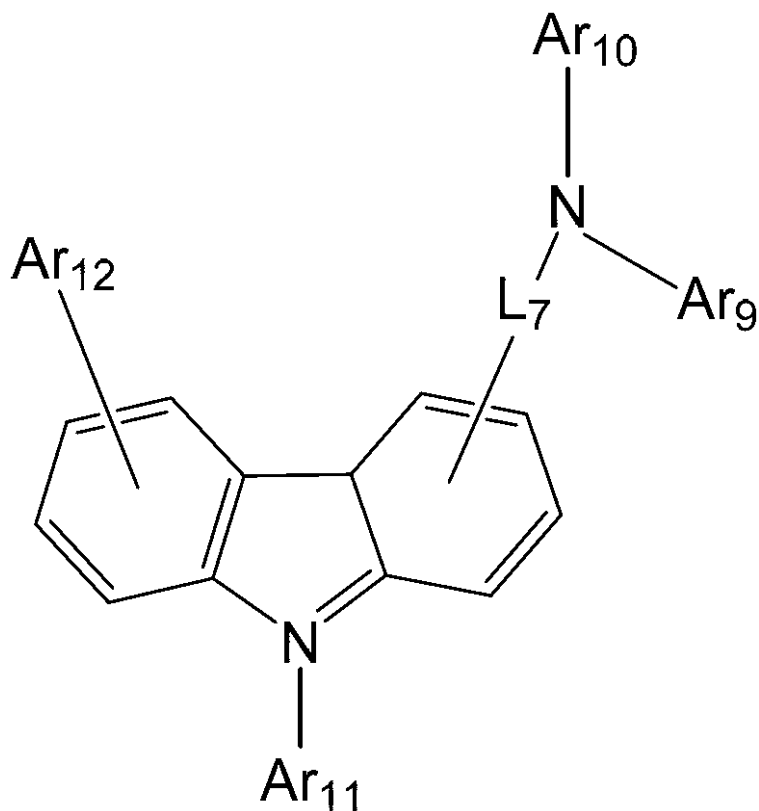
前記第 2 の層は、前記陽極と前記第 1 の層との間に配置される、請求項 7 又は 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】

50

前記積層膜は、以下の一般式（９）で表わされるアミン誘導体を含む第３の層を有し、前記第３の層は、前記第１の層と前記第２の層との間に配置される、請求項７乃至９の何れか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化７】



〔一般式（９）中、 Ar_9 、 Ar_{10} 及び Ar_{11} は置換もしくは無置換の環形成炭素数６以上５０以下のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数５以上５０以下のヘテロアリール基であり、 Ar_{12} は置換もしくは無置換の環形成炭素数６以上５０以下のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数５以上５０以下のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の炭素数１以上５０以下のアルキル基であり、 L_7 は単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６以上１８以下のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数５以上１５以下のヘテロアリーレン基である。〕

【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する。特に、高発光効率、長寿命の有機エレクトロルミネッセンス素子用の正孔輸送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する。

【背景技術】

【０００２】

近年、画像表示装置として、有機エレクトロルミネッセンス表示装置（Organic Electroluminescence Display：有機ＥＬ表示装置）の開発が盛んになってきている。有機ＥＬ表示装置は、液晶表示装置等とは異なり、陽極及び陰極から注入された正孔及び電子を発光層において再結合させることにより、発光層における有機化合物を含む発光材料を発光させて表示を実現するいわゆる自発光型の表示装置である。

【０００３】

有機エレクトロルミネッセンス素子（有機ＥＬ素子）としては、例えば、陽極、陽極上に

配置された正孔輸送層、正孔輸送層上に配置された発光層、発光層上に配置された電子輸送層及び電子輸送層上に配置された陰極から構成された有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。陽極からは正孔が注入され、注入された正孔は正孔輸送層を移動して発光層に注入される。一方、陰極からは電子が注入され、注入された電子は電子輸送層を移動して発光層に注入される。発光層に注入された正孔と電子とが再結合することにより、発光層内で励起子が生成される。有機エレクトロルミネッセンス素子は、その励起子の輻射失活によって発生する光を利用して発光する。尚、有機エレクトロルミネッセンス素子は、以上に述べた構成に限定されず、種々の変更が可能である。

【0004】

有機エレクトロルミネッセンス素子を表示装置に応用するにあたり、有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化及び長寿命化が求められている。特に、青色発光領域では、緑色発光領域及び赤色発光領域に比べて、有機エレクトロルミネッセンス素子の駆動電圧が高く、発光効率が十分なものとは言い難い。有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化及び長寿命化を実現するために、正孔輸送層の定常化、安定化、耐久性の向上などが検討されている。

10

【0005】

正孔輸送層に用いられる正孔輸送材料としては、芳香族アミン系化合物等の様々な化合物が知られているが、素子寿命に課題があった。有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化に有利な材料として、例えば、特許文献1及び特許文献2には、アリール基又はヘテロアリール基が置換されたアミン誘導体が提案されている。しかしながら、これらの材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子も十分な発光寿命を有しているとは言い難い。そのため、現在では一層、高効率で、発光寿命の長い有機エレクトロルミネッセンス素子が望まれている。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開2009-267255号公報

【特許文献2】特開2009-029726号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

30

【0007】

本発明は、上述の問題を解決するものであって、高発光効率及び長寿命の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を提供することを目的とする。

【0008】

特に、本発明は、緑色～青色発光領域において、発光層と陽極との間に配置される積層膜のうちの少なくとも一つの膜に用いる高発光効率及び長寿命の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。

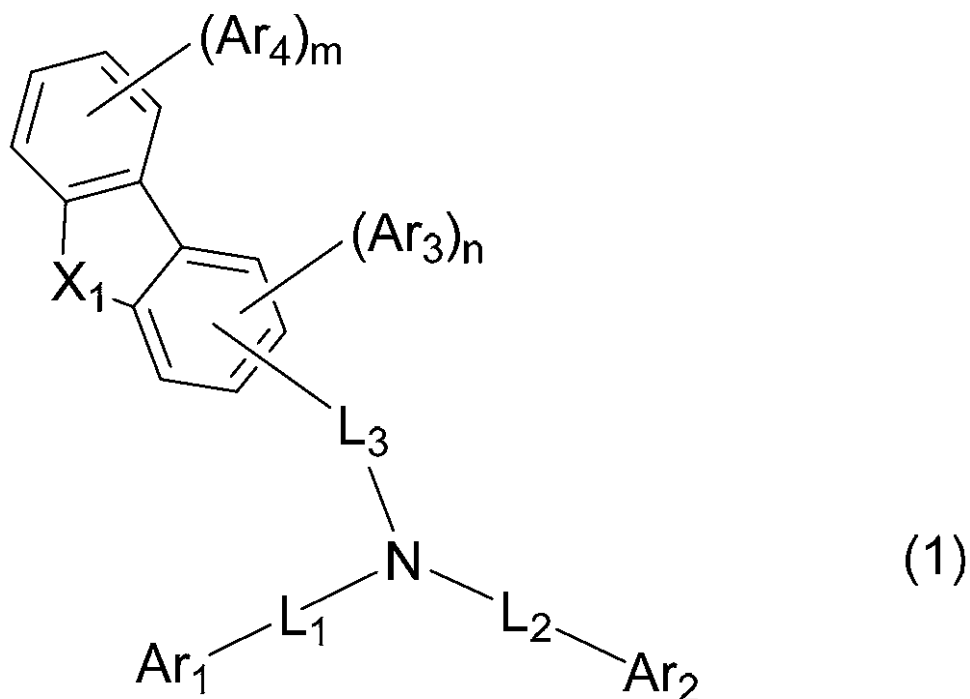
【課題を解決するための手段】

40

【0009】

本発明の一実施形態によると、以下の一般式(1)で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が提供される。

【化 1】



10

20

一般式（１）中、X₁はOまたはSであり、Ar₁及びAr₂はそれぞれ独立に環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数１０以上３０以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、Ar₃及びAr₄はそれぞれ独立に環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリール基、シリル基であり、L₁及びL₂はそれぞれ独立に単結合、又は環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の２価基からなる群より選択され、L₃は環形成炭素数６以上３０以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の２価基からなる群より選択され、nは０以上３以下の整数であり、mは０以上４以下の整数であり、n+m≧１である。

30

【００１０】

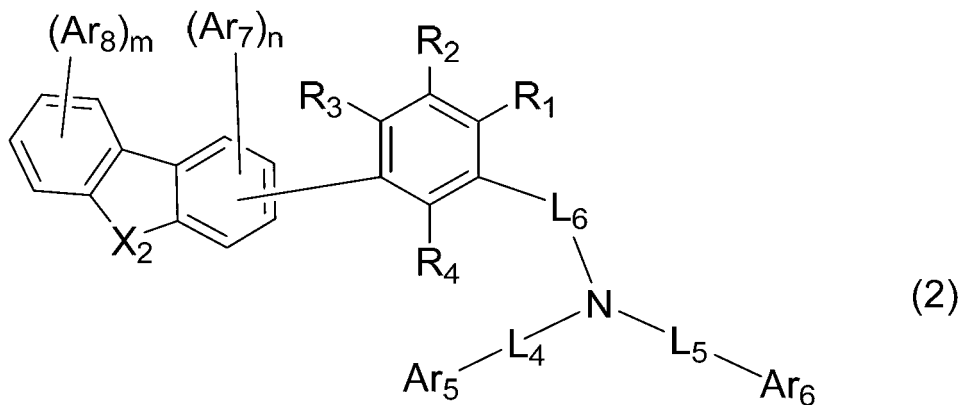
本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、電子耐性の高い置換されたジベンゾヘテロール部位をアミンに導入することによって、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いる層の長寿命化を実現することができ、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化を達成することができる。また、ジベンゾヘテロールが置換基を有しているため、材料のアモルファス性が向上して電荷の移動度が高くなり、高い発光効率を実現することができる。

【００１１】

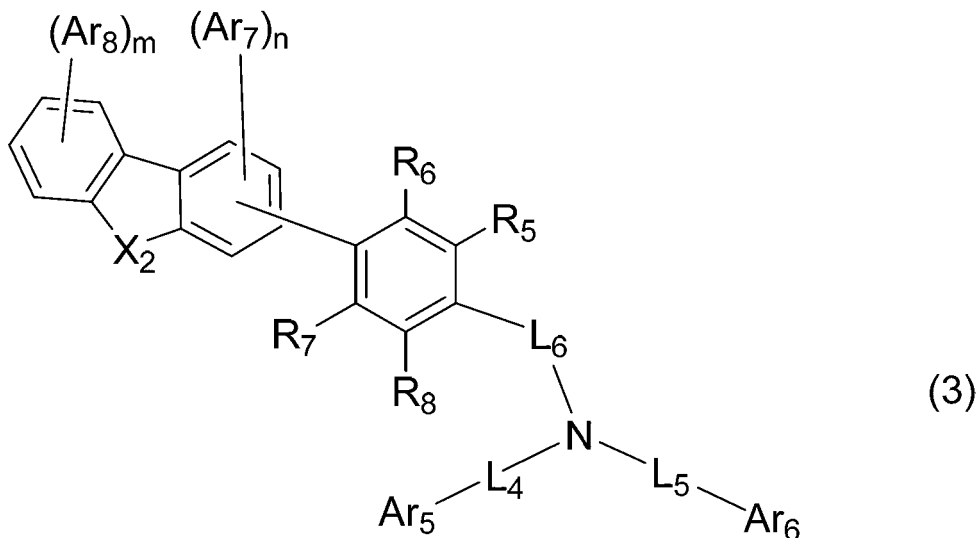
一般式（１）で表される化合物は、以下の一般式（２）又は（３）で表される化合物であってもよい。

40

【化 2】



10



20

一般式（２）及び（３）中、 X_2 は0またはSであり、 Ar_5 及び Ar_6 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、 Ar_7 及び Ar_8 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、シリル基であり、 L_4 及び L_5 はそれぞれ独立に単結合、又は環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリレン基及びシリル基の2価基からなる群より選択され、 L_6 は単結合、又は環形成炭素数6以上24以下の置換若しくは無置換のアリール基及びシリル基からなる群より選ばれた2価の基であり、 $R_1 \sim R_8$ はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下のアリール基、環形成炭素数5以上30以下のヘテロアリール基、炭素数1以上15以下のアルキル基、シリル基、ハロゲン原子、水素原子又は重水素原子であり、 n は0以上3以下の整数であり、 m は0以上4以下の整数であり、 $n+m \geq 1$ である。

30

40

【0012】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式（１）における L_3 に m -フェニレン基または p -フェニレン基が含まれることにより、アミンに直接又は L_6 を介して結合するフェニレン基の m 位または p 位にジベンゾヘテロール部位を導入することによって、分子の対称性が崩れ、材料のアモルファス性がさらに向上して電荷の移動度が高くなるため、有機エレクトロルミネッセンス素子のさらなる長寿命化と高い発光効率を実現することができる。

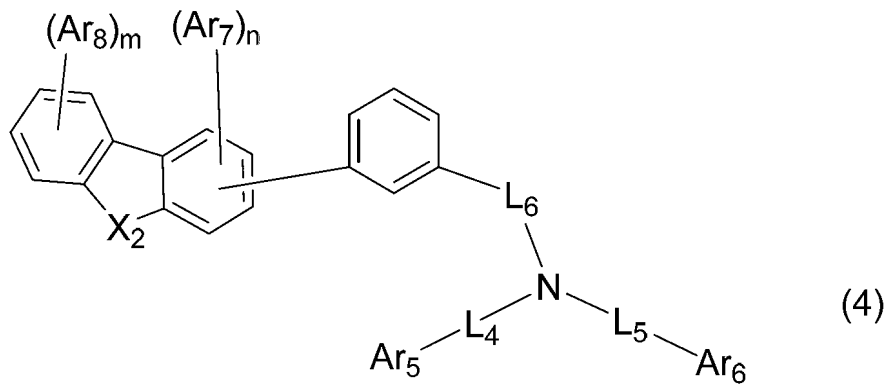
【0013】

一般式（２）で表わされる化合物は、以下の一般式（４）で表わされる化合物であって

50

もよい。

【化 3】



10

【0014】

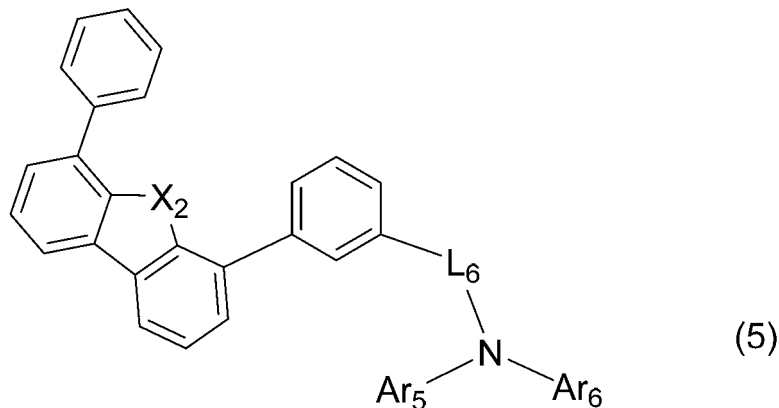
本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式(2)における $R_1 \sim R_4$ がそれぞれ水素原子であることにより、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化及び高効率化を達成することができる。

【0015】

一般式(4)で表わされる化合物は、以下の一般式(5)で表わされる化合物であってもよい。

20

【化 4】



30

【0016】

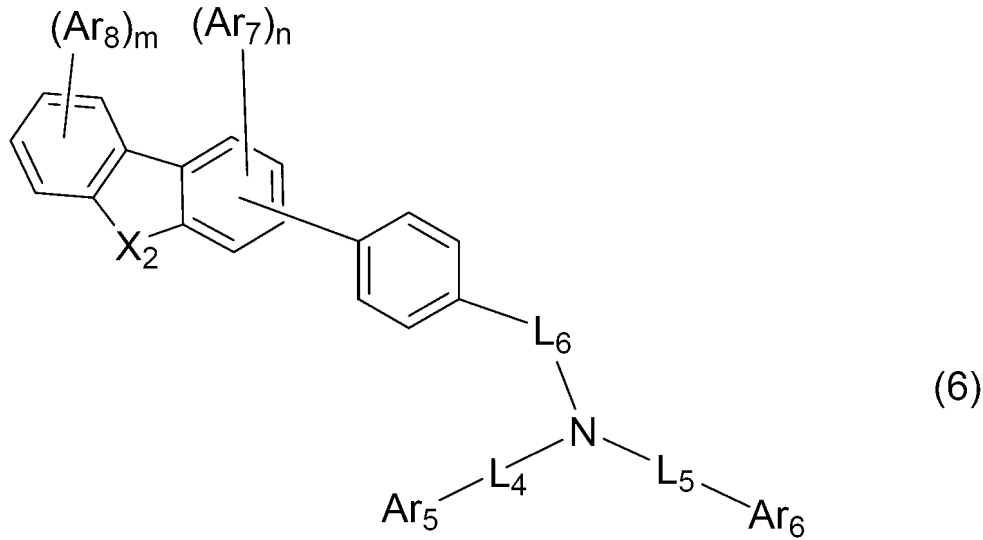
本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式(4)における L_4 及び L_5 がそれぞれ単結合であり、 Ar_8 がフェニル基であり、 m が1であり、 n が0であり、ジベンゾヘテロール基の4位が m -フェニレン基と結合することにより、ジベンゾヘテロール基の高電子密度部位が置換されることで材料が安定化し、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化及び高効率化を達成することができる。

40

【0017】

一般式(3)で表わされる化合物は、以下の一般式(6)で表わされる化合物であってもよい。

【化 5】



10

【0018】

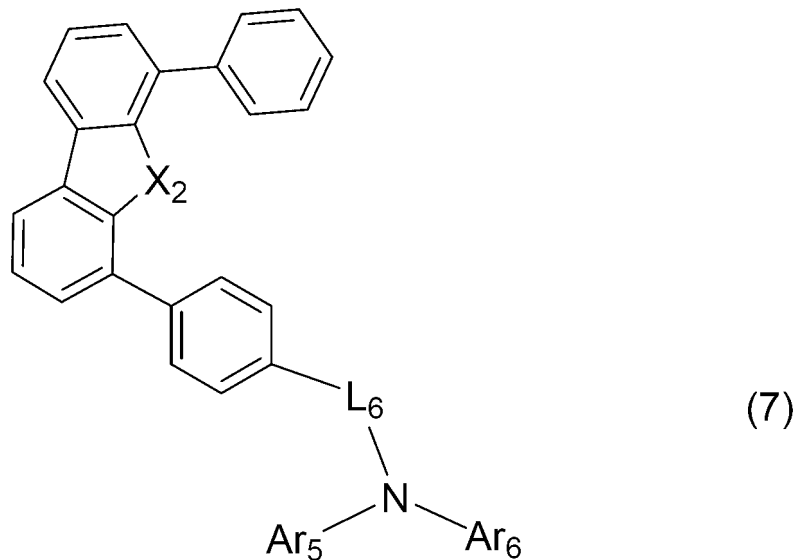
20

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式（3）における $R_5 \sim R_8$ がそれぞれ水素原子であることにより、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化及び高効率化を達成することができる。

【0019】

一般式（6）で表わされる化合物は、以下の一般式（7）で表わされる化合物であってもよい。

【化 6】



30

40

【0020】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式（6）における L_4 及び L_5 がそれぞれ単結合であり、 Ar_8 がフェニル基であり、 m が1であり、 n が0であり、ジベンゾヘテロール基の4位がp-フェニレン基と結合することにより、ジベンゾヘテロール基の高電子密度部位が置換されることで材料が安定化し、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化及び高効率化を達成することができる。

50

【0021】

本発明の一実施形態によると、前記何れか一の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に含む有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。

【0022】

本発明の一実施形態による有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む第1の層が前記発光層に隣接して配置されてもよい。

【0023】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、第1の層を発光層に隣接して配置することにより、第1の層と陽極との間に位置する正孔輸送性の層を発光層で消費されなかった電子から保護することができ、発光層で発生した励起状態のエネルギーが正孔輸送性の層に拡散することを防止し、さらに素子全体の電荷バランスを整えることができるため、発光効率の向上及び長寿命化を達成することができる。

【0024】

本発明の一実施形態による有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記積層膜は、LUMO準位が -9.0 eV 以上 -4.0 eV 以下である電子受容性化合物を含む第2の層を有し、前記第2の層は、前記陽極と前記第1の層との間に配置されてもよい。

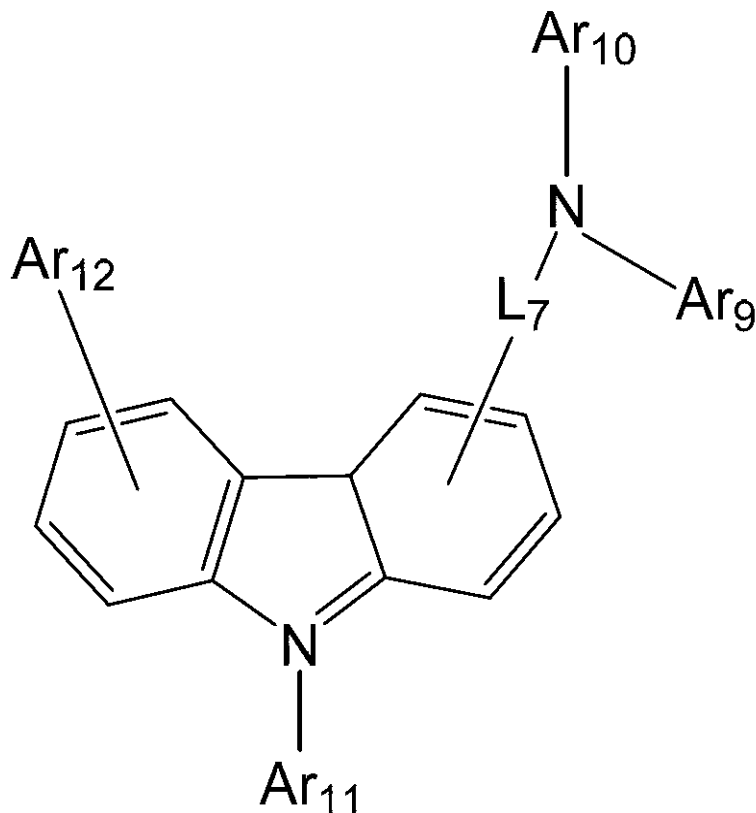
【0025】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、第2の層を含むことにより、陽極からの正孔注入性を向上させることができ、発光効率の向上を達成することができる。

【0026】

本発明の一実施形態による有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記積層膜は、以下の一般式(9)で表わされるアミン誘導体を含む第3の層を有し、前記第3の層は、前記第1の層と前記第2の層との間に配置されてもよい。

【化7】



(9)

一般式(9)中、 Ar_9 、 Ar_{10} 及び Ar_{11} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上50以下のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5以上50以下のヘテロアリール基であり、 Ar_{12} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上50以下のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数5以上50以下のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の炭素数1以上50以下のアルキル基であり、 L_7 は単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上18以下のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5以上15以下のヘテロアリーレン基である。

【0027】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、正孔輸送性の層にカルバゾリル基を有する化合物を含むことにより、正孔輸送性及び通電耐久性を向上することができる、発光効率の向上及び長寿命化を達成することができる。

【0028】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光層と陽極との間に配置される積層膜のうちの少なくとも一つの膜に前記何れかの有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いることにより、高い発光効率及び長寿命を実現することができる。特に、緑色～青色発光領域において顕著な効果を得ることができる。

【発明の効果】

【0029】

本発明によると、高発光効率及び長寿命を実現する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を提供することができる。特に、本発明によると、緑色～青色発光領域において、発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に用いる、高発光効率及び長寿命を実現する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を提供することができる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、電子耐性の高い置換されたジベンゾヘテロール部位をアミンに導入することによって、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いる層の高効率化及び長寿命化を実現することができる、有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化及び長寿命化を達成することができる。

【図面の簡単な説明】

【0030】

【図1】本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子100を示す概略図である。

【図2】本発明の別の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子200を示す概略図である。

【図3】本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子300を示す概略図である。

【図4】本発明の別の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子400を示す概略図である。

【発明を実施するための形態】

【0031】

上述の問題を解決すべく鋭意検討した結果、本発明者らは、電子耐性の高い置換されたジベンゾヘテロール部位をアミンに導入することによって、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いる層の高効率化及び長寿命化を実現することができ、有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化及び長寿命化を達成することができることを見出した。

【0032】

以下、図面を参照して本発明に係る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ついて説明する。但し、本発明の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は多くの異なる態様で実施することが可能であり、以下に示す実施の形態の記載内容に限定

10

20

30

40

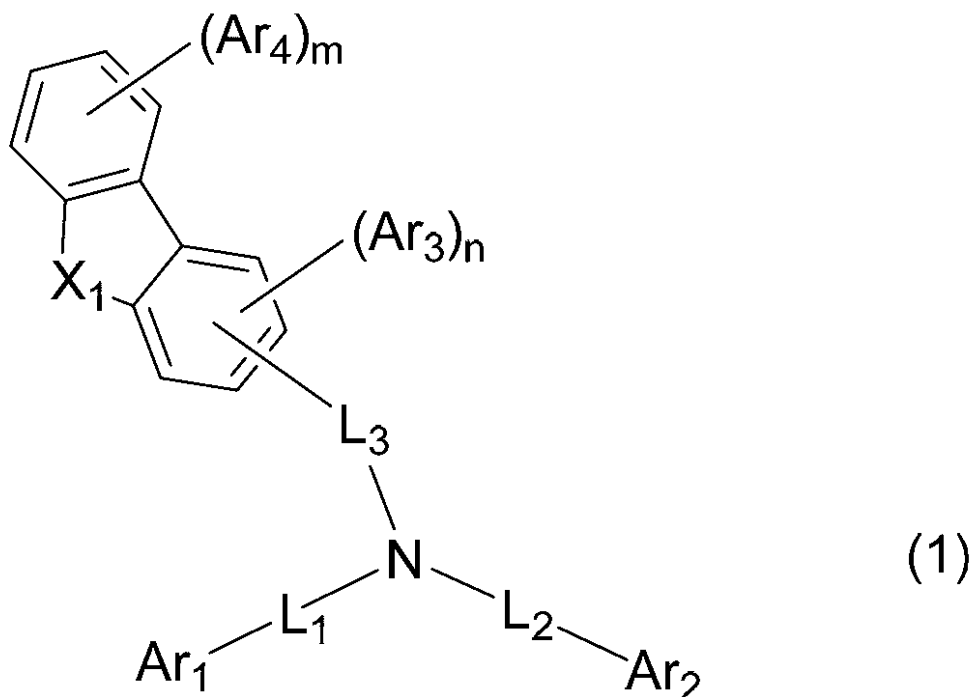
50

して解釈されるものではない。なお、本実施の形態で参照する図面において、同一部分又は同様な機能を有する部分には同一の符号を付し、その繰り返しの説明は省略する。

【0033】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、以下の一般式(1)で表される、置換されたジベンゾヘテロール部位が導入されたアミン化合物である。

【化8】



10

20

【0034】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、一般式(1)中、X₁はOまたはSであり、Ar₁及びAr₂はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、Ar₃及びAr₄はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、シリル基であり、L₁及びL₂はそれぞれ独立に単結合、又は環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の2価基からなる群より選択され、L₃は環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の2価基からなる群より選択され、nは0以上3以下の整数であり、mは0以上4以下の整数であり、n+m≥1である。

30

【0035】

一般式(1)におけるAr₁及びAr₂に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントリル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、フルオレニル基、トリフェニレン基、ビフェニレン基、ピレニル基、ベンゾフルオランテニル基、クリセニル基、フェニルナフチル基、ナフチルフェニル基等を挙げられるが、これらに限定されるものではない。

40

【0036】

また、Ar₁及びAr₂に用いる環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有するジベンゾヘテロール基としては、ジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基等が挙げられる。

【0037】

また、Ar₁及びAr₂に用いるシリル基としては、トリアルキルシリル基、トリアリールシ

50

リル基、モノアルキルジアリールシリル基、ジアルキルモノアリールシリル基であってもよく、例えば、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基等が挙げられる。

【0038】

また、 Ar_1 及び Ar_2 に用いるハロゲン原子としては、フッ素原子(F)、塩素原子(Cl)、臭素原子(Br)であってもよい。

【0039】

一般式(1)における Ar_1 及び Ar_2 としては、環形成炭素数6以上30以下のアリール基又は水素原子が好ましい。

【0040】

一般式(1)における Ar_3 及び Ar_4 に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリール基としては、上述した Ar_1 及び Ar_2 に用いるアリール基と同一である。また、 Ar_3 及び Ar_4 に用いるシリル基としては、上述した Ar_1 及び Ar_2 に用いるシリル基と同一である。

【0041】

一般式(1)における $L_1 \sim L_3$ に用いる2価の連結基のうち、環形成炭素数6以上30以下のアリーレン基としては、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、フルオレニレン基、トリフェニレン基等が挙げられるが、これらに限定されるわけではない。

【0042】

また、 $L_1 \sim L_3$ に用いる2価の連結基のうち、シリル基の2価基としては、ジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基が挙げられる。

【0043】

Ar_1 及び Ar_2 に用いるアリール基、酸素原子或は硫黄原子を含有するジベンゾヘテロール基、シリル基と、 Ar_3 及び Ar_4 に用いるアリール基、シリル基と、 $L_1 \sim L_3$ に用いるアリーレン基との置換基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントリル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、フルオレニル基、トリフェニレン基、ビフェニレン基、ピレニル基、ベンゾフルオランテニル基、クリセニル基、フェニルナフチル基、ナフチルフェニル基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフエニル基が挙げられ、好ましくはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、フェニルナフチル基、ナフチルフェニル基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基である。

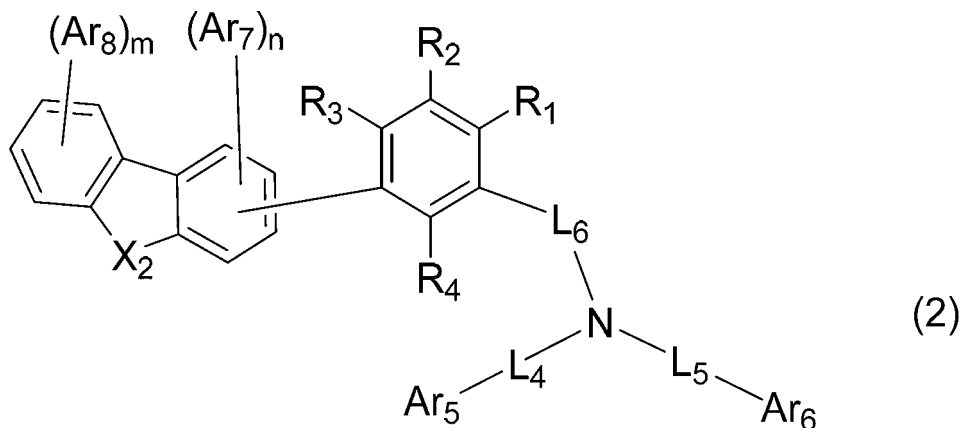
【0044】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、アミンの窒素原子(N)に L_3 を介して置換されたジベンゾヘテロール部位が導入されている。置換されたジベンゾヘテロールは電子耐性が高いため、発光層において消費されなかった電子による材料の劣化を抑制することができる。また、ジベンゾヘテロールが置換基を有しているため、材料のアモルファス性が向上して電荷の移動度が高くなる。そのため、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化及び高効率化を達成することができる。

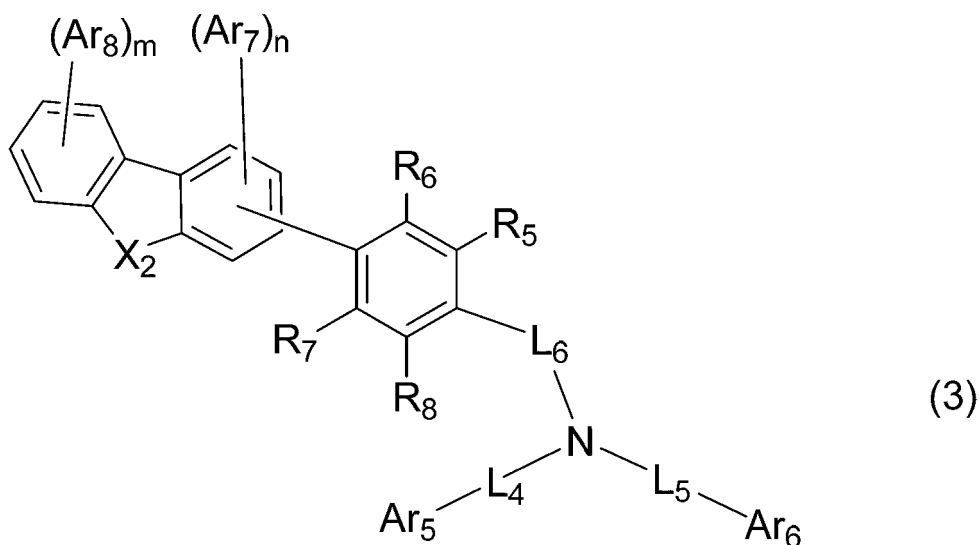
【0045】

また、本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式(1)における L_3 にm-フェニレン基またはp-フェニレン基が含まれることが好ましい。即ち、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、以下の一般式(2)または(3)で表されるアミン化合物であることが好ましい。

【化 9】



10



20

【0046】

30

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、一般式(2)中、 X_2 はOまたはSであり、 Ar_5 及び Ar_6 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、 Ar_7 及び Ar_8 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、シリル基であり、 L_4 及び L_5 はそれぞれ独立に単結合、又は環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリーレン基及びシリル基の2価基からなる群より選択され、 L_6 は単結合、又は環形成炭素数6以上24以下の置換若しくは無置換のアリール基及びシリル基からなる群より選ばれた2価の基であり、 $R_1 \sim R_8$ はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数5以上30以下の置換若しくは無置換のヘテロアリール基、炭素数1以上15以下のアルキル基、シリル基、ハロゲン原子、水素原子又は重水素原子であり、 n は0以上3以下の整数であり、 m は0以上4以下の整数であり、 $n+m \geq 1$ である。

40

【0047】

一般式(2)及び(3)における Ar_5 及び Ar_6 に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有するジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子としては、一般式(1)で表わされる化合物における Ar_1 及び Ar_2 に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有するジベンゾヘテロール基、シリル基、ハロゲン原子と同一である。

50

【0048】

一般式(2)及び(3)における Ar_5 及び Ar_6 としては、環形成炭素数6以上30以下のアリール基又は水素原子が好ましい。

【0049】

一般式(2)及び(3)における Ar_7 及び Ar_8 に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリール基としては、一般式(1)で表わされる化合物における Ar_1 及び Ar_2 に用いるアリール基と同一である。また、 Ar_3 及び Ar_4 に用いるシリル基としては、一般式(1)で表わされる化合物における Ar_1 及び Ar_2 に用いるシリル基と同一である。

【0050】

一般式(2)及び(3)における L_4 及び L_5 に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリーレン基及びシリル基の2価基としては、一般式(1)で表わされる化合物における $L_1 \sim L_3$ に用いるアリーレン基及びシリル基の2価基と同一である。

10

【0051】

一般式(2)及び(3)における L_6 に用いる環形成炭素数6以上24以下のアリーレン基としては、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、フルオレニレン基、トリフェニレン基等が挙げられるが、これらに限定されるわけではない。

【0052】

また、 L_6 に用いるシリル基の2価基としては、一般式(1)で表わされる化合物における $L_1 \sim L_3$ に用いるシリル基の2価基と同一である。

20

【0053】

一般式(2)及び(3)における $R_1 \sim R_8$ に用いる環形成炭素数6以上30以下のアリーレン基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントリル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、フルオレニル基、トリフェニレン基、ビフェニレン基、ピレニル基、ベンゾフルオランテニル基、クリセニル基、フェニルナフチル基、ナフチルフェニル基等を挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0054】

また、 $R_1 \sim R_8$ に用いる環形成炭素数5以上30以下のヘテロアリーレン基としては、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基等が挙げられるが、これらに限定されるわけではない。

30

【0055】

また、 $R_1 \sim R_8$ に用いる炭素数1以上15以下のアルキル基としては、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、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、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

40

50

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-ノルボルニル基等が挙げられるが
、これらに限定されるものではない。

【0056】

また、 $R_1 \sim R_8$ に用いるシリル基としては、トリアルキルシリル基、トリアリールシリル
基、モノアルキルジアリールシリル基、ジアルキルモノアリールシリル基であってもよく
、例えば、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基等が挙げられる。

【0057】

また、 $R_1 \sim R_8$ に用いるハロゲン原子としては、フッ素原子 (F)、塩素原子 (Cl)、臭
素原子 (Br) であってもよい。

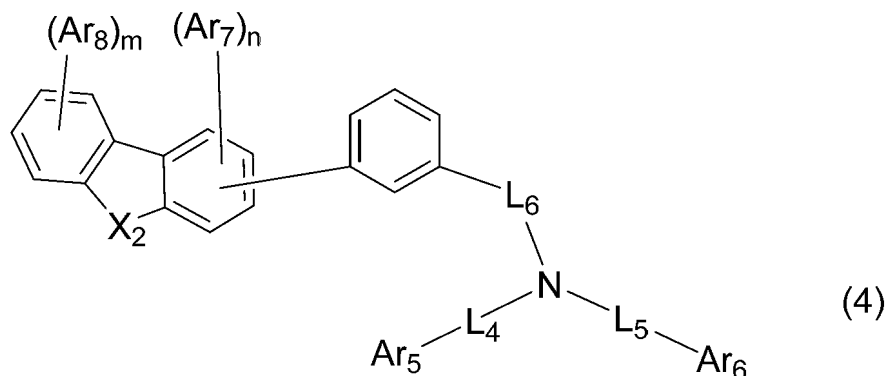
【0058】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式 (1) における L_3 に
 m -フェニレン基または p -フェニレン基が含まれることが好ましい。一般式 (2) または
(3) で表わされる本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、アミンに
直接又は L_6 を介して結合するフェニレン基の m 位または p 位にジベンゾヘテロール部位が導
入されることによって、分子の対称性が崩れ、材料のアモルファス性がさらに向上する。
そのため、電荷の移動度が高くなり、有機エレクトロルミネッセンス素子のさらなる長寿
命化及び高効率化を実現することができる。

【0059】

また、本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式
(2) における $R_1 \sim R_4$ がそれぞれ水素原子であることが好ましい。即ち、本発明に係る有
機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、以下の一般式 (4) で表されるアミン化合物
であることが好ましい。

【化10】



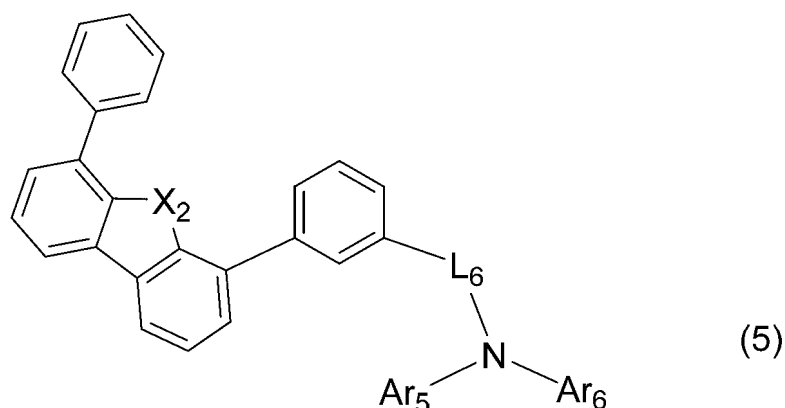
【0060】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式 (2) における $R_1 \sim$
 R_4 がそれぞれ水素原子であることにより、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化
及び高効率化を達成することができる。

【0061】

また、本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式
(4) における L_4 及び L_5 がそれぞれ単結合であり、 Ar_8 がフェニル基であり、 m が 1 であり
、 n が 0 であり、ジベンゾヘテロール基の 4 位が m -フェニレン基と結合していることが好
ましい。即ち、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、以下の一般式
(5) で表されるアミン化合物であることが好ましい。

【化 1 1】



10

【0062】

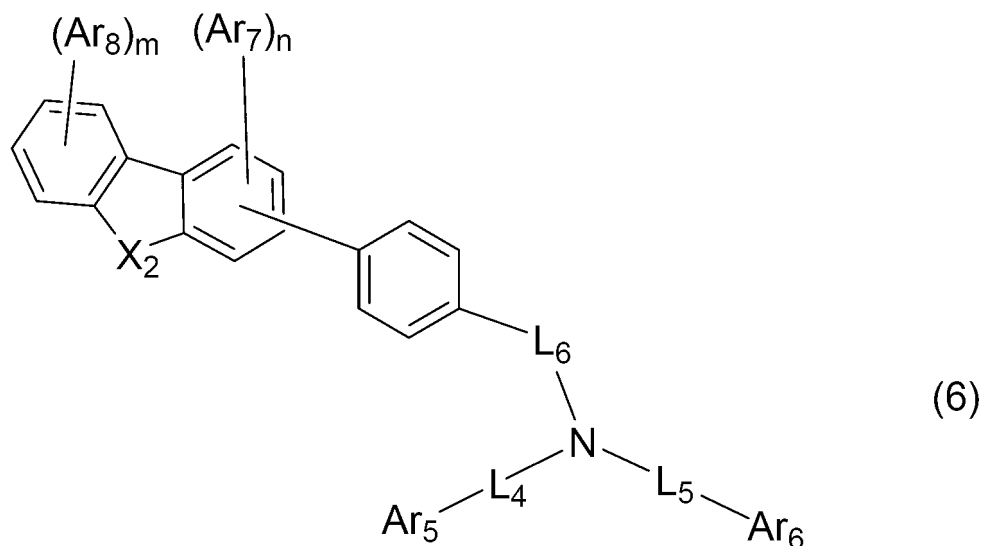
本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式（４）における L_4 及び L_5 がそれぞれ単結合であり、 Ar_8 がフェニル基であり、 m が１であり、 n が０であり、ジベンゾヘテロール基の４位が m -フェニレン基と結合している。ジベンゾヘテロール基の４位は高電子密度部位であり、反応性が高い。この反応性が高いジベンゾヘテロール基の４位が置換されることによって、化合物が安定化する。そのため、本発明の有機エレクト

20

【0063】

また、本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式（３）における $R_5 \sim R_8$ がそれぞれ水素原子であることが好ましい。即ち、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、以下の一般式（６）で表されるアミン化合物であることが好ましい。

【化 1 2】



30

40

【0064】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式（３）における $R_5 \sim R_8$ がそれぞれ水素原子であることにより、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化及び高効率化を達成することができる。

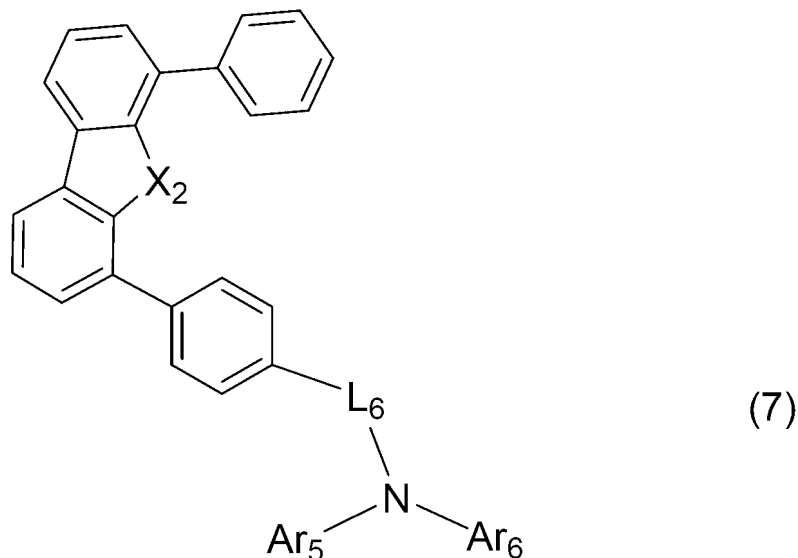
【0065】

また、本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式

50

(6)における L_4 及び L_5 がそれぞれ単結合であり、 Ar_8 がフェニル基であり、 m が1であり、 n が0であり、ジベンゾヘテロール基の4位がp-フェニレン基と結合していることが好ましい。即ち、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、以下の一般式(7)で表されるアミン化合物であることが好ましい。

【化13】



10

20

【0066】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一般式(6)における L_4 及び L_5 がそれぞれ単結合であり、 Ar_8 がフェニル基であり、 m が1であり、 n が0であり、ジベンゾヘテロール基の4位がp-フェニレン基と結合していることにより、化合物が安定化する。そのため、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いる層の長寿命化を実現することができ、有機エレクトロルミネッセンス素子のさらなる長寿命化を達成することができる。

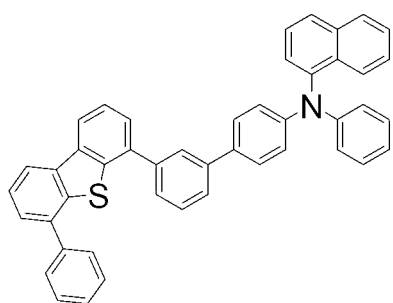
【0067】

30

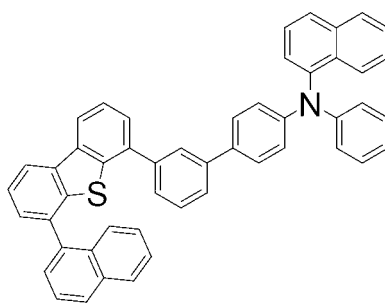
本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、一例として、以下の構造式により示された物質である。

【0068】

【化 1 4】

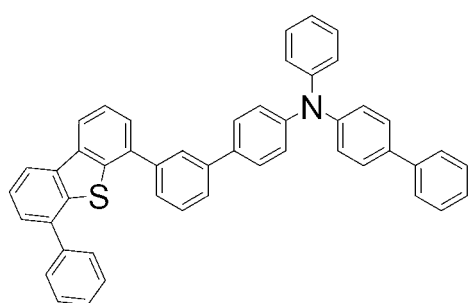


1

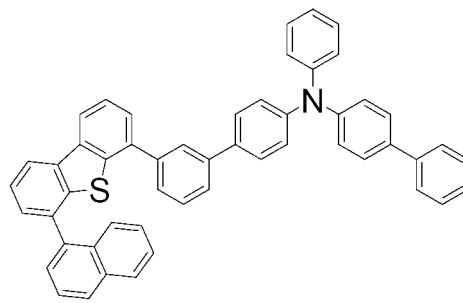


2

10

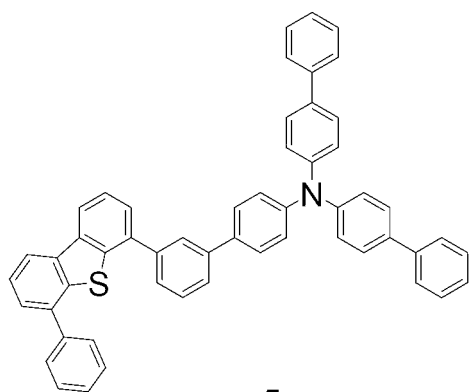


3

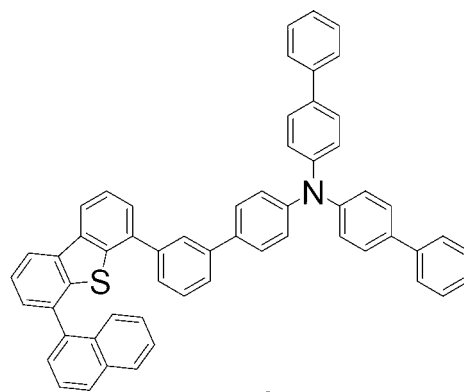


4

20



5

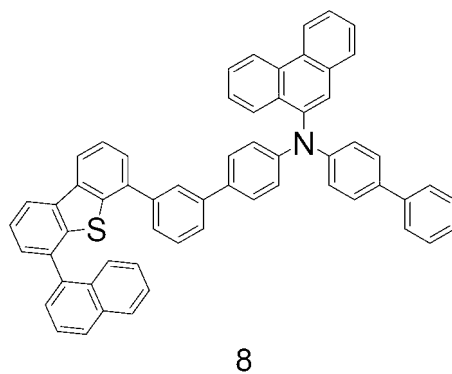
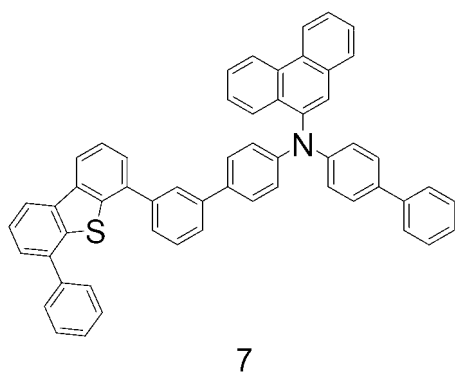


6

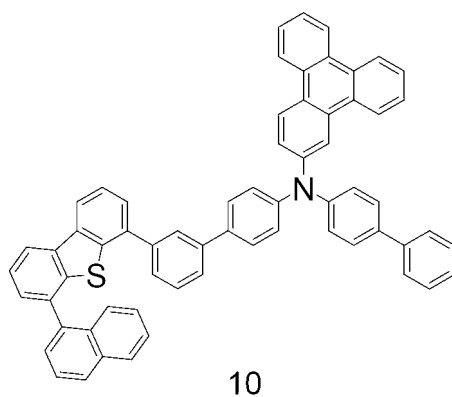
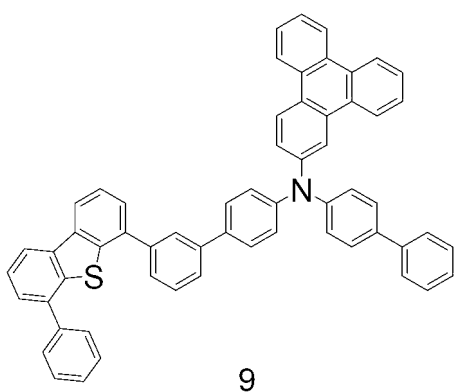
30

【0069】

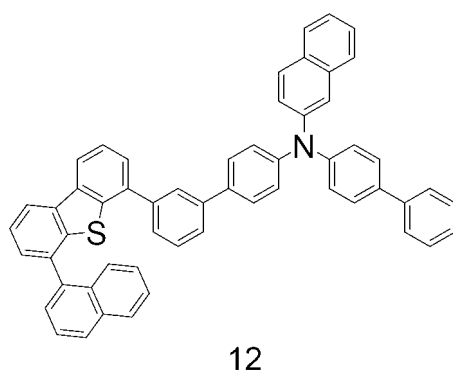
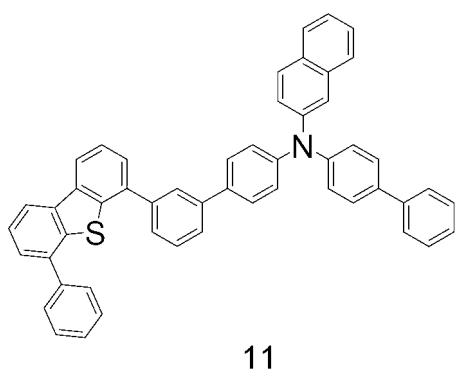
【化 1 5】



10



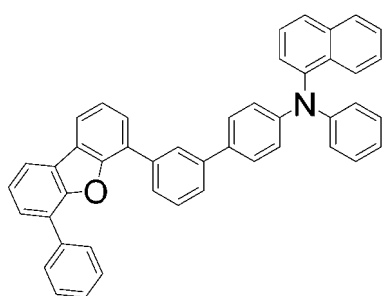
20



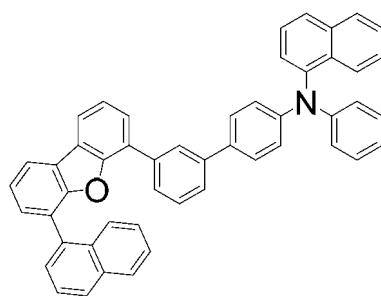
30

【0070】

【化 1 6】

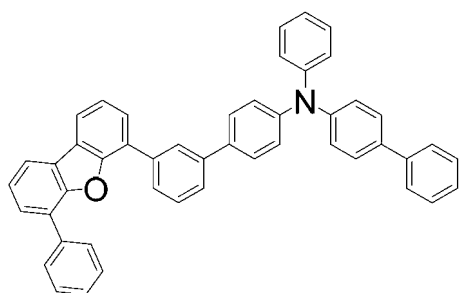


13

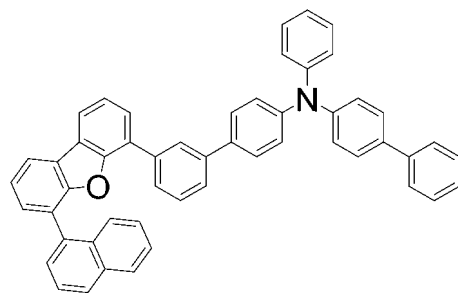


14

10

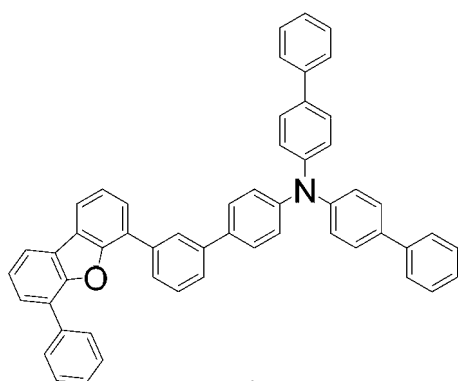


15

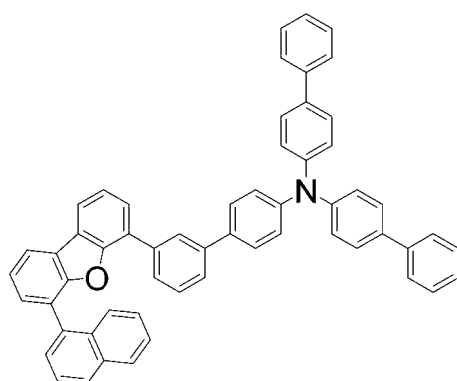


16

20



17

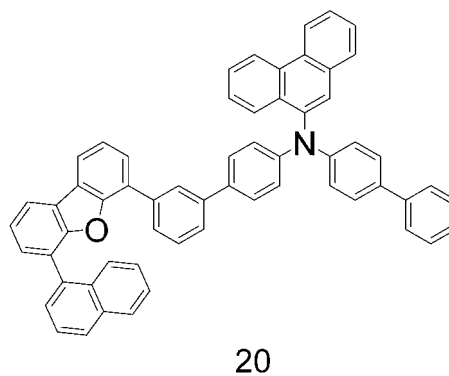
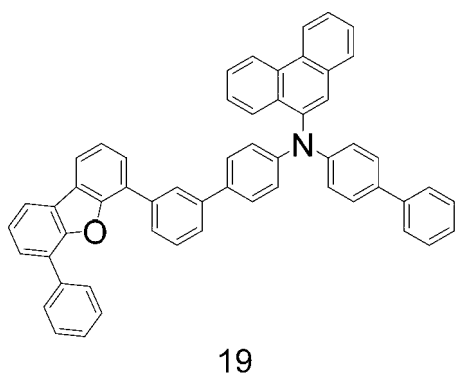


18

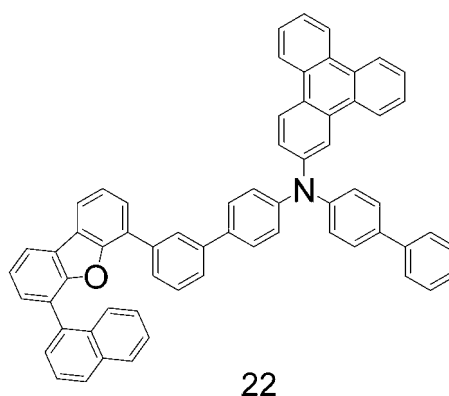
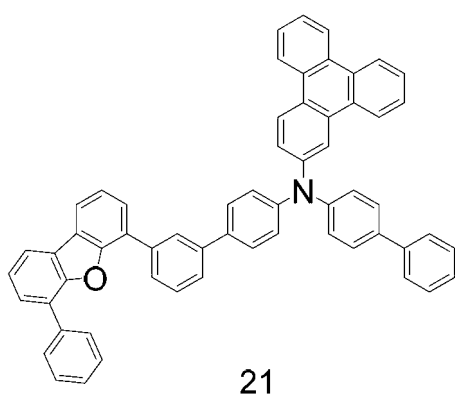
30

【 0 0 7 1 】

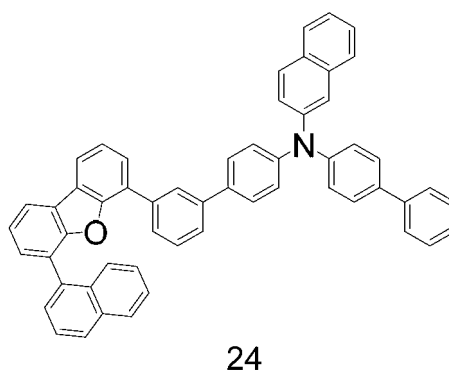
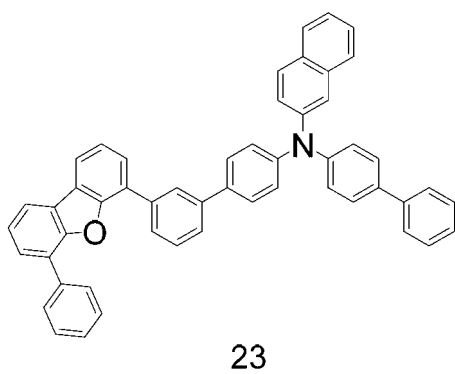
【化 1 7】



10



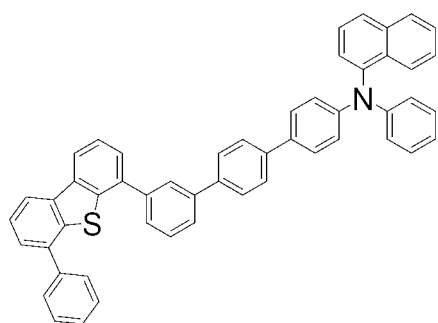
20



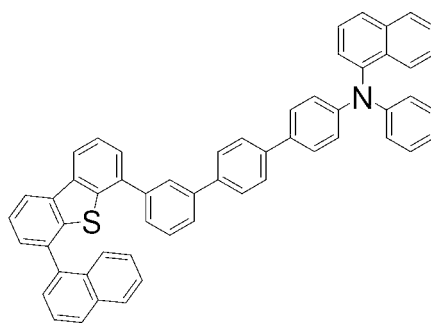
30

【 0 0 7 2 】

【化 1 8】

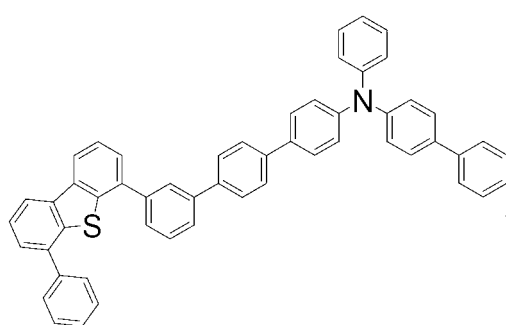


25

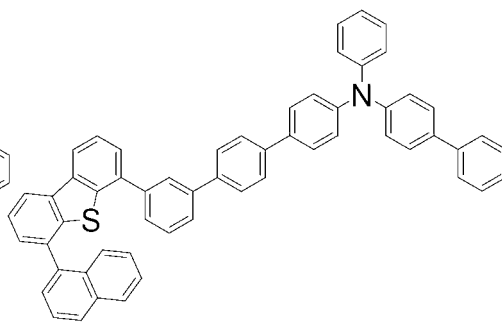


26

10

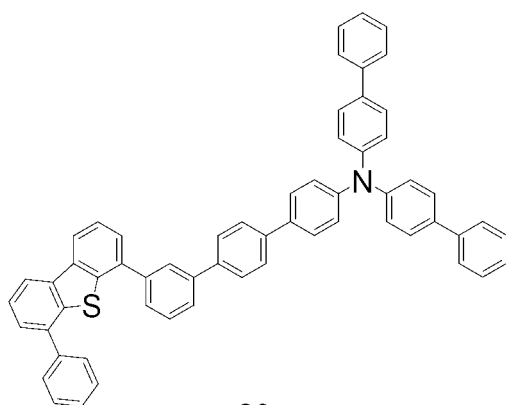


27

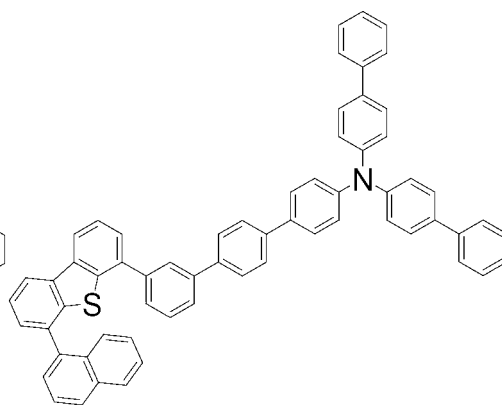


28

20



29

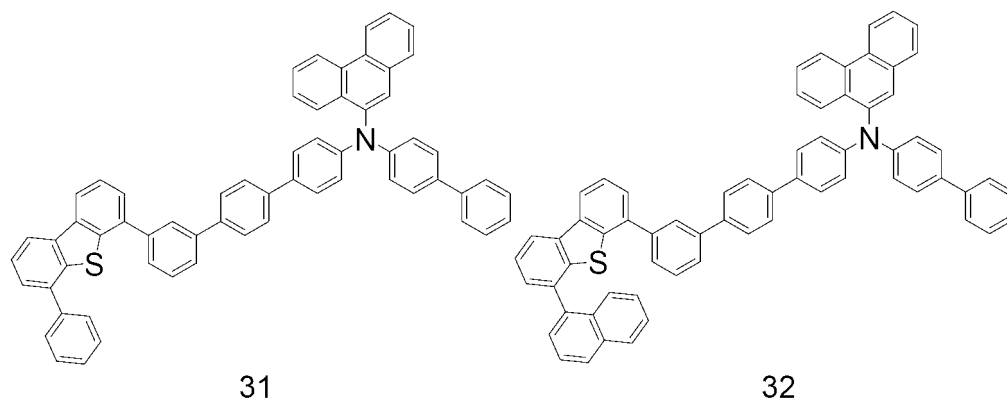


30

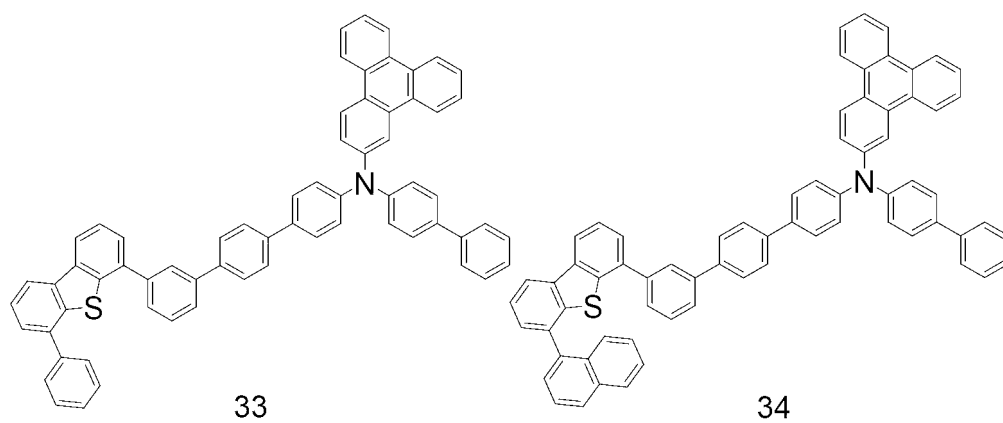
30

【 0 0 7 3 】

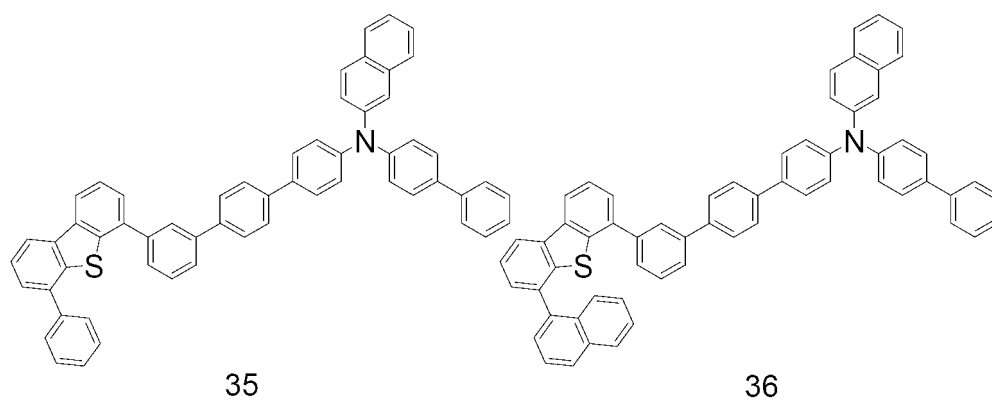
【化 1 9】



10



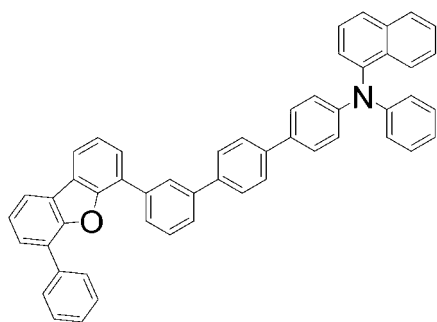
20



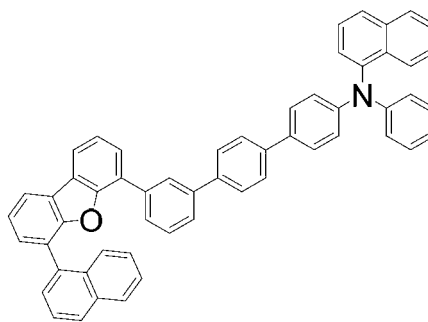
30

【 0 0 7 4 】

【化 20】

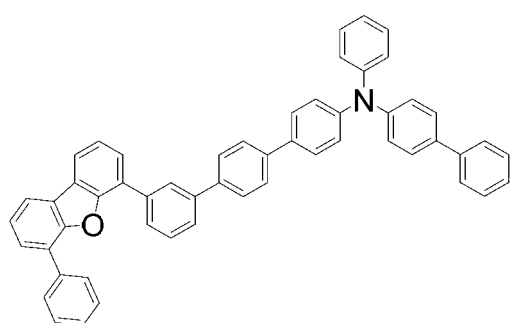


37

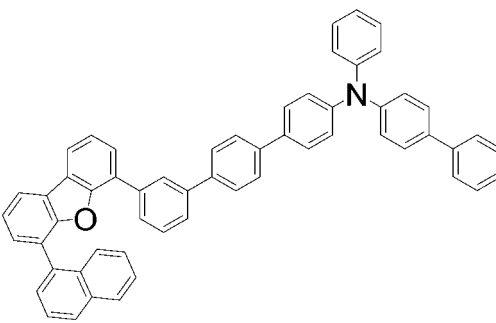


38

10

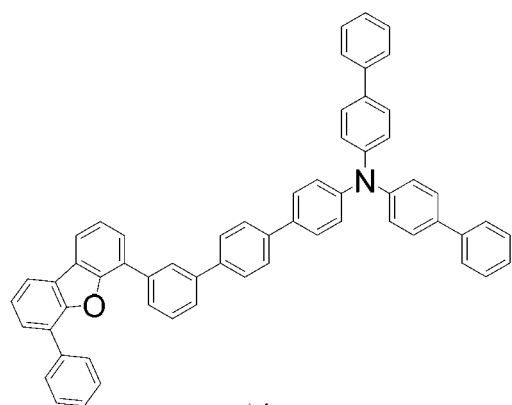


39

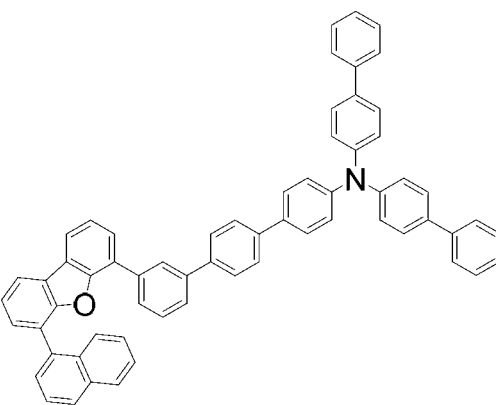


40

20



41

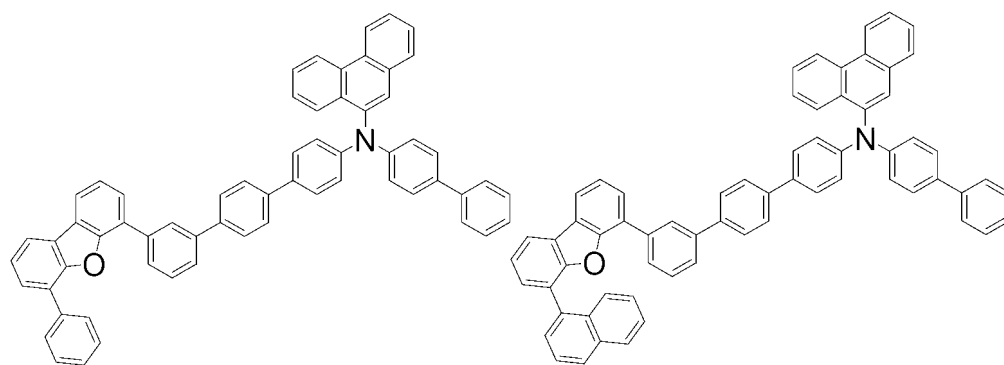


42

30

【0075】

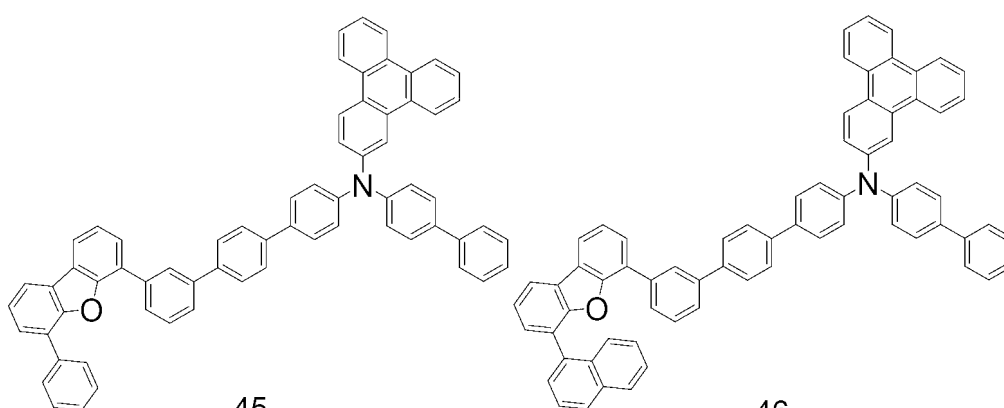
【化 2 1】



43

44

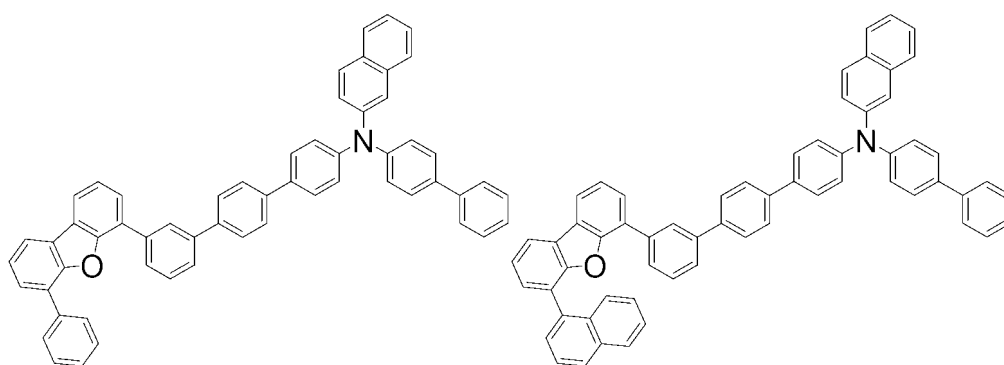
10



45

46

20



47

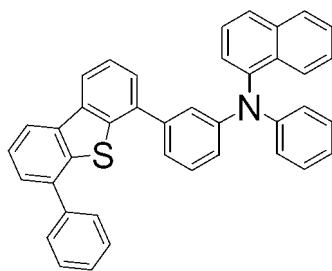
48

30

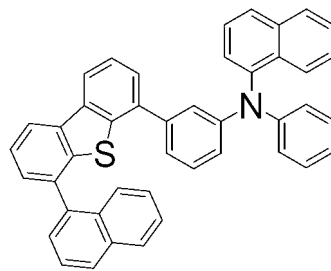
【 0 0 7 6 】

40

【化 2 2】

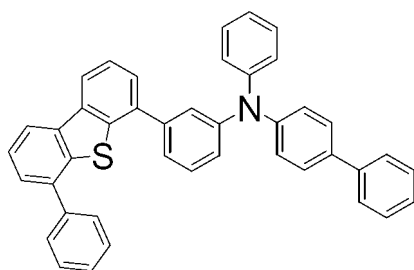


49

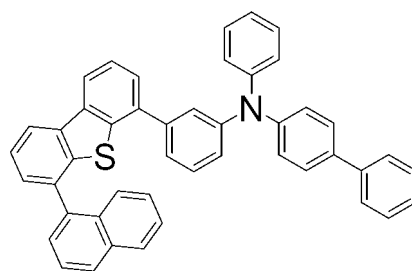


50

10

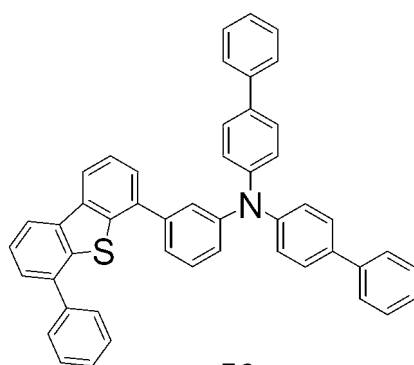


51

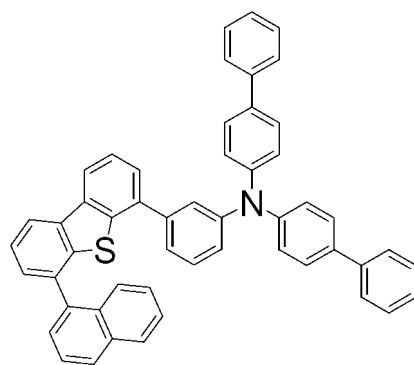


52

20



53

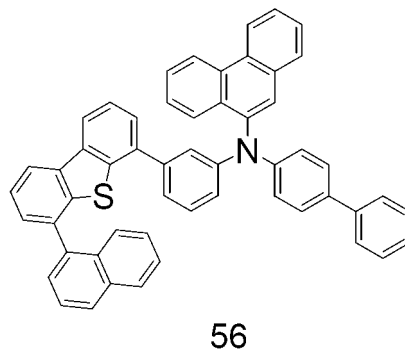
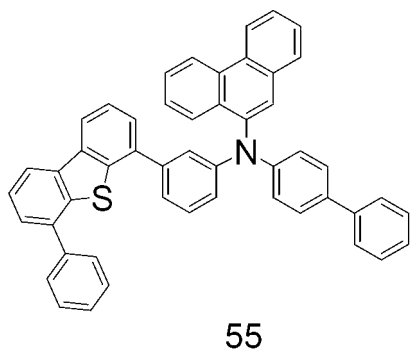


54

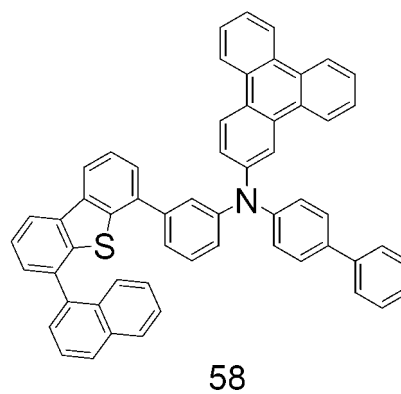
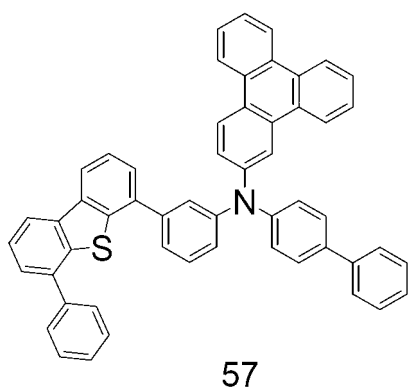
30

【 0 0 7 7】

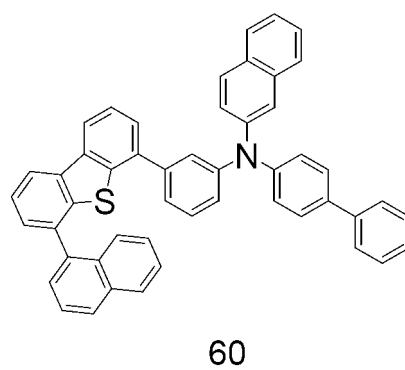
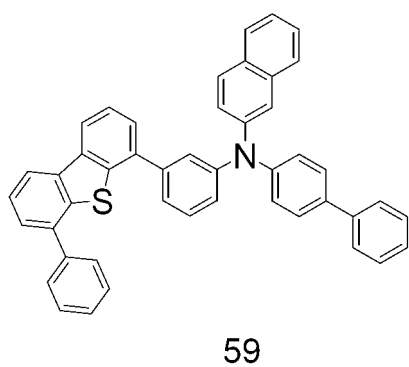
【化 2 3】



10



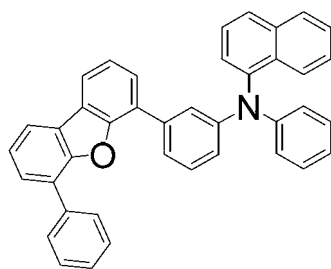
20



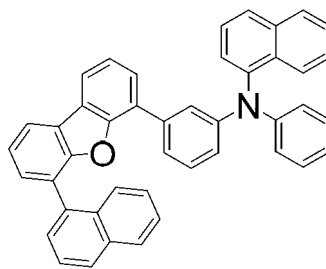
30

【 0 0 7 8】

【化 2 4】

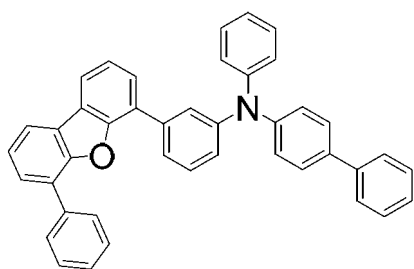


61

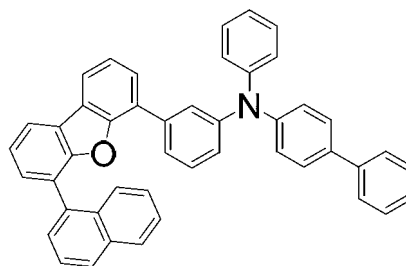


62

10

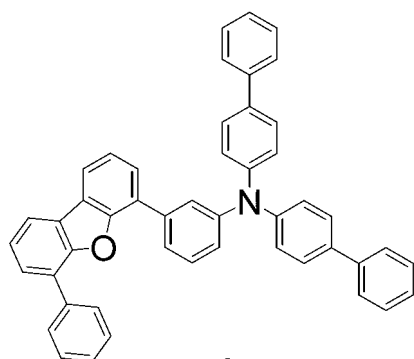


63

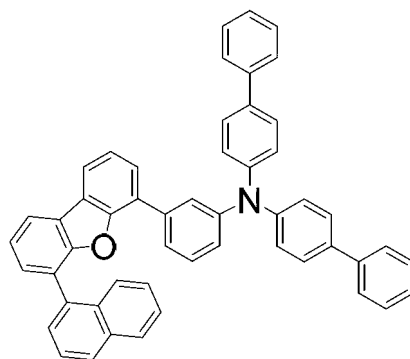


64

20



65

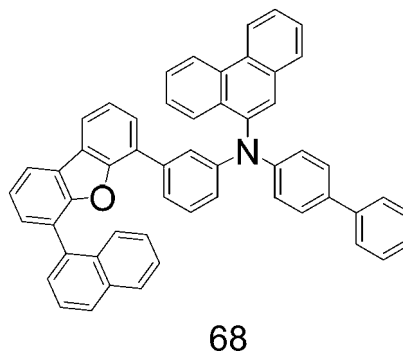
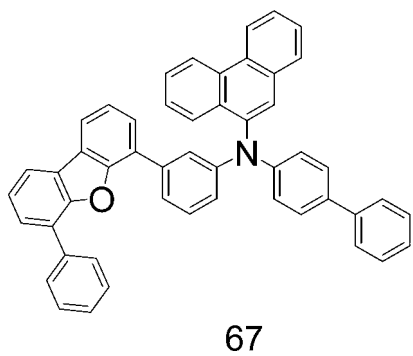


66

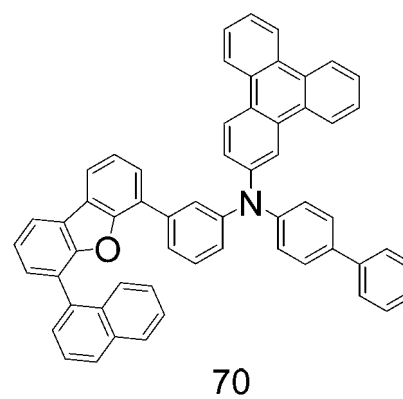
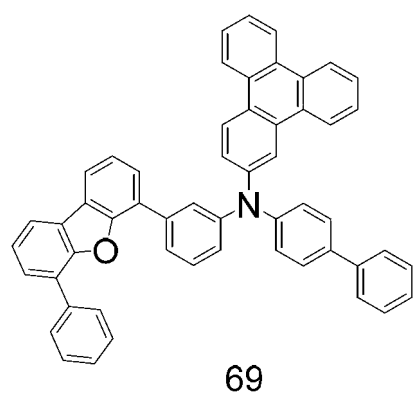
30

【0079】

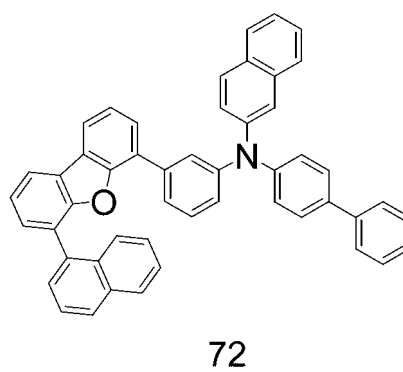
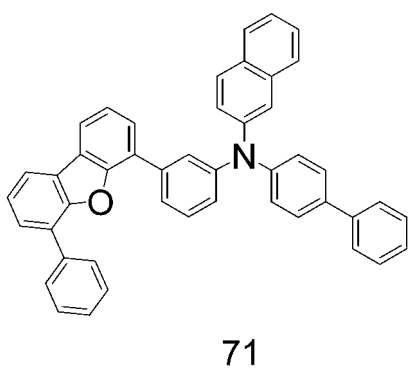
【化 2 5】



10



20

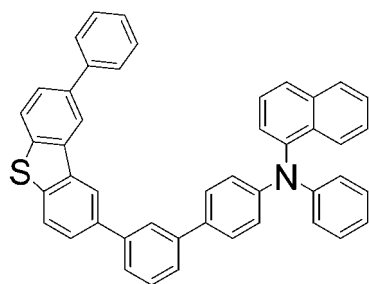


30

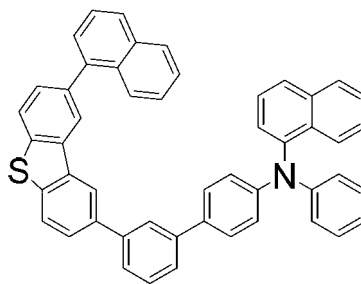
【0080】

40

【化 2 6】

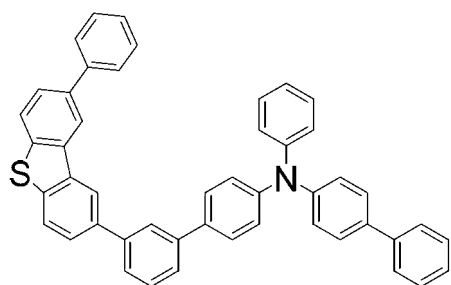


73

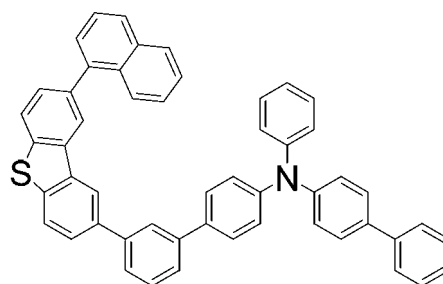


74

10

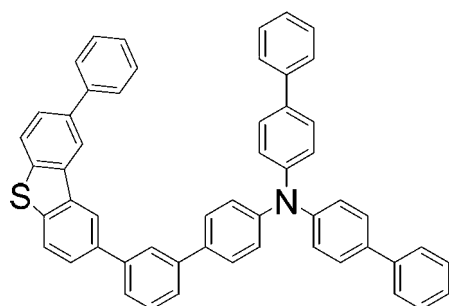


75

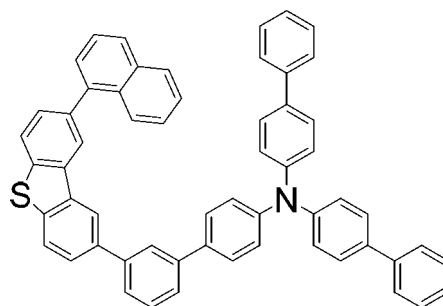


76

20



77

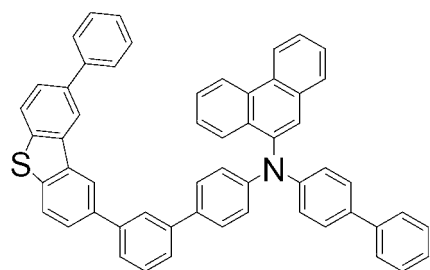


78

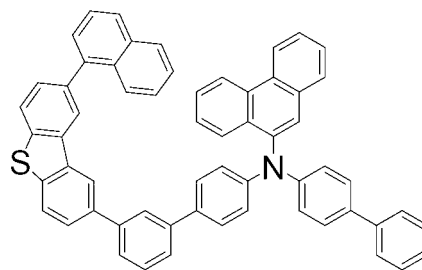
30

【0081】

【化 2 7】

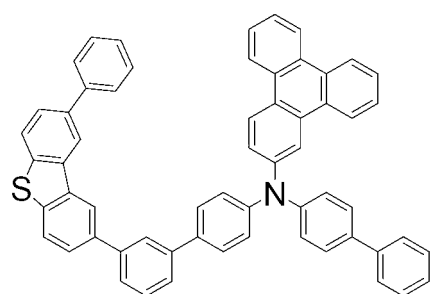


79

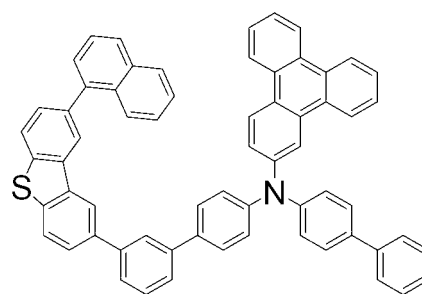


80

10

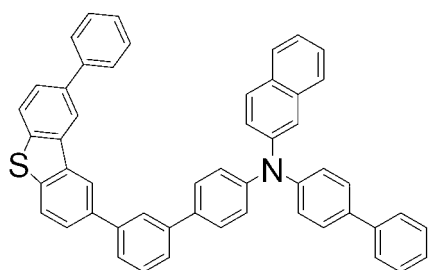


81

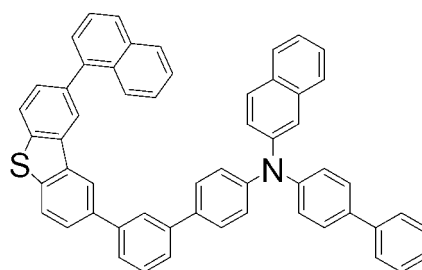


82

20



83

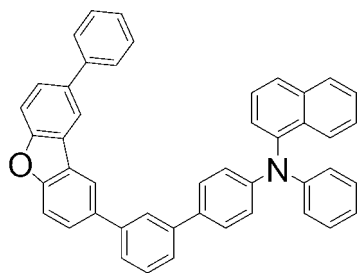


84

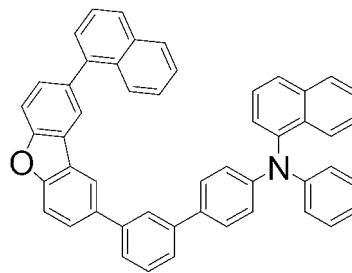
30

【 0 0 8 2 】

【化 2 8】

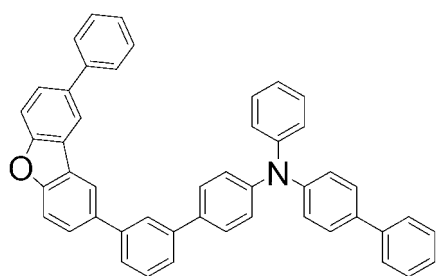


85

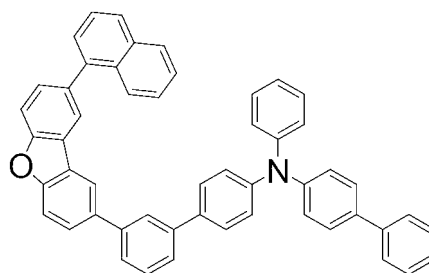


86

10

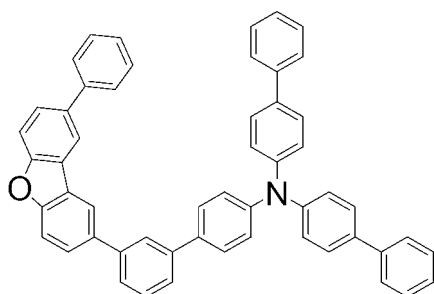


87

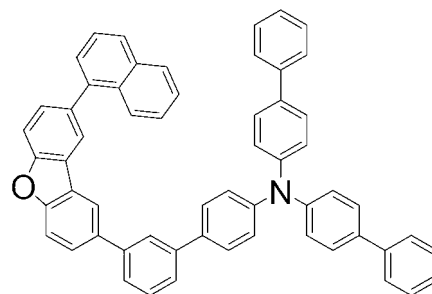


88

20



89

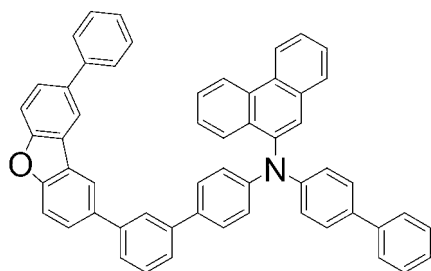


90

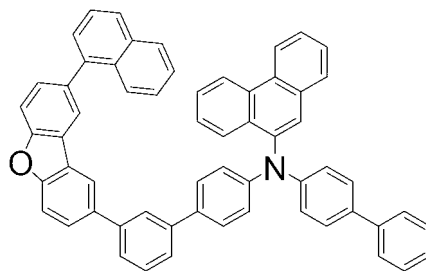
30

【0083】

【化 2 9】

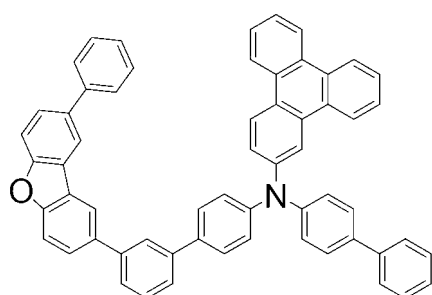


91

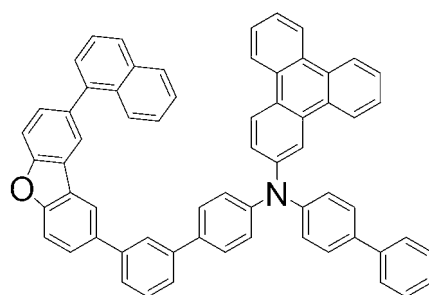


92

10

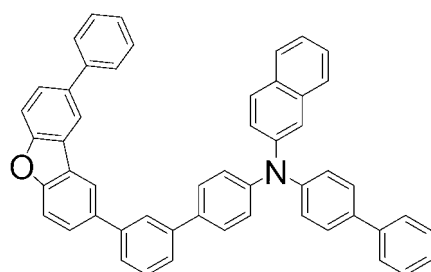


93

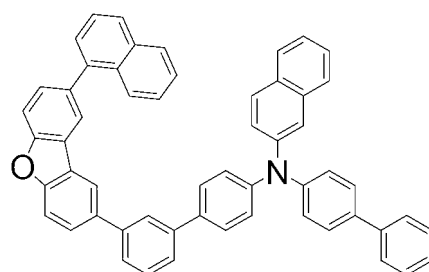


94

20



95

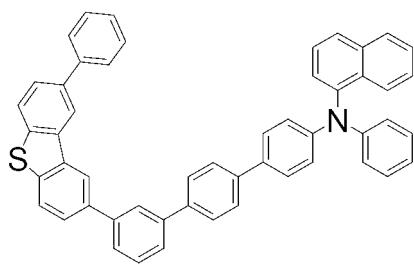


96

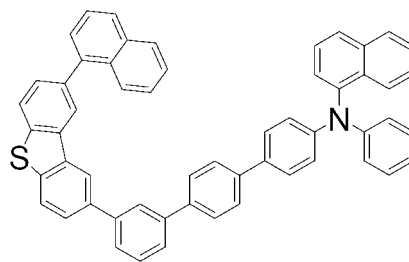
30

【 0 0 8 4 】

【化 3 0】

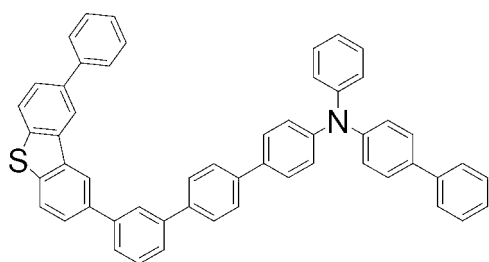


97

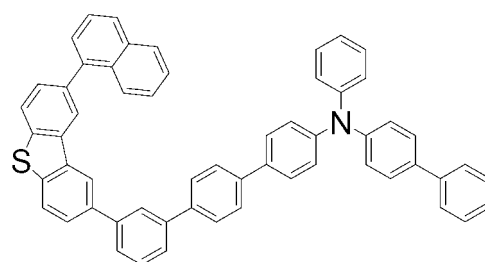


98

10

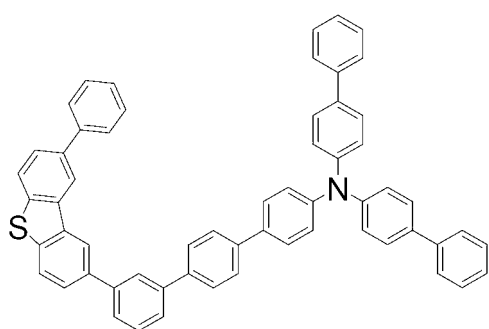


99

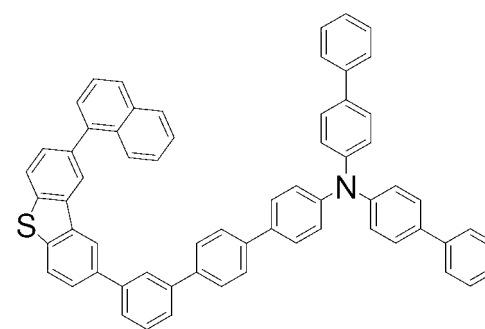


100

20



101

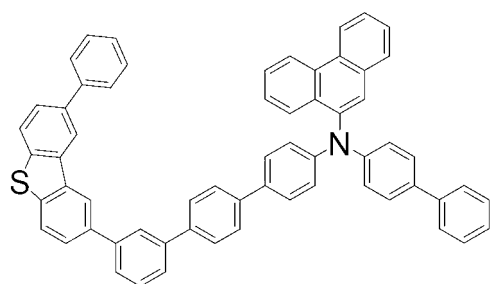


102

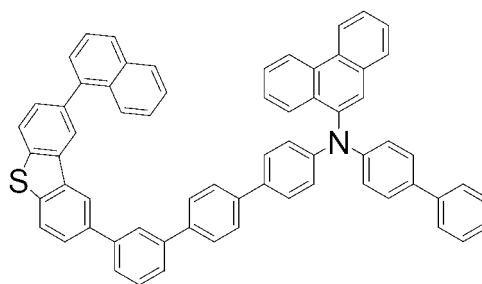
30

【 0 0 8 5】

【化 3 1】

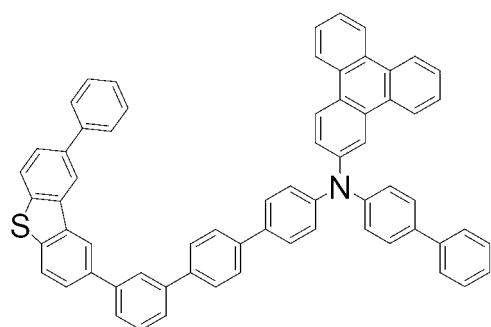


103

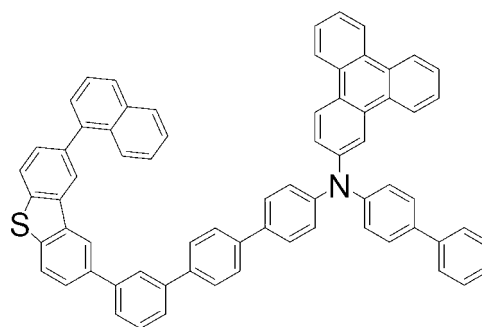


104

10

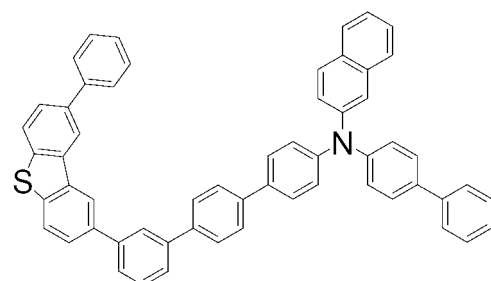


105

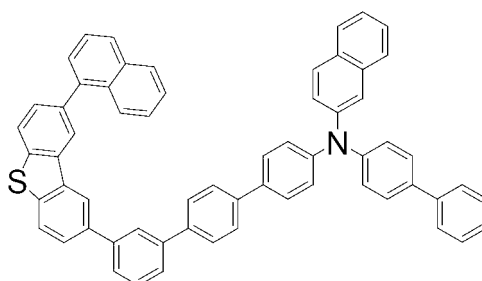


106

20



107



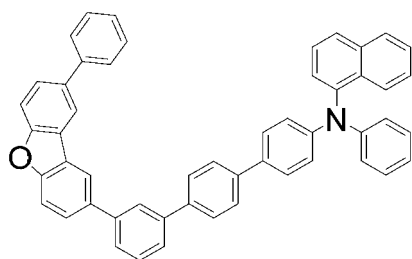
108

30

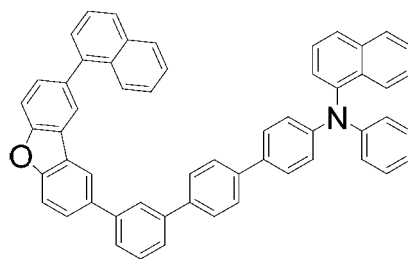
【0086】

40

【化 3 2】

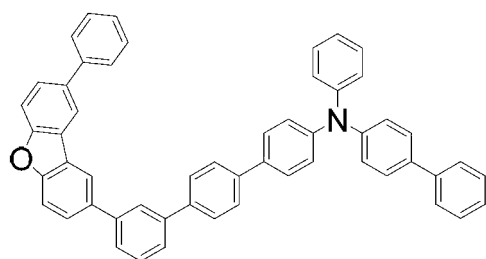


109

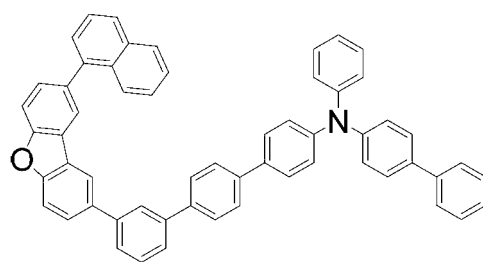


110

10

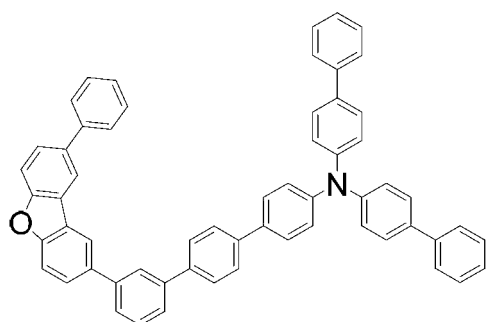


111

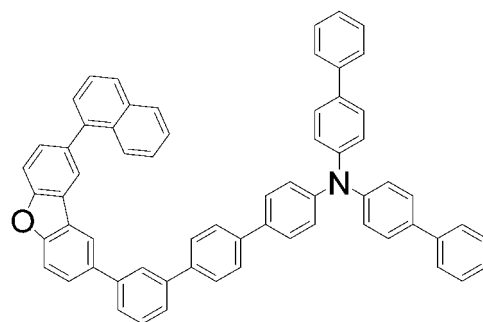


112

20



113

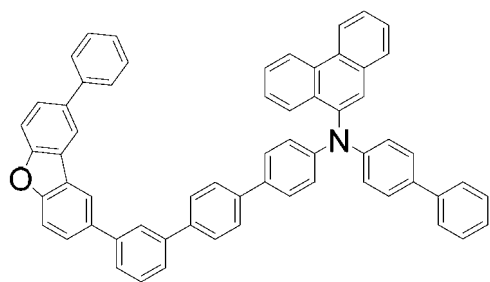


114

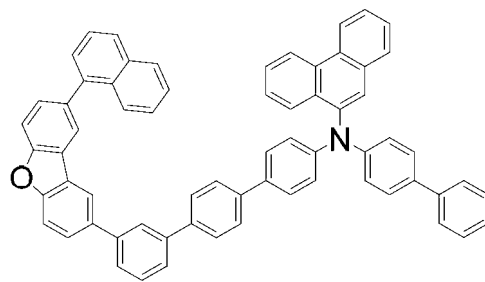
30

【 0 0 8 7 】

【化 3 3】

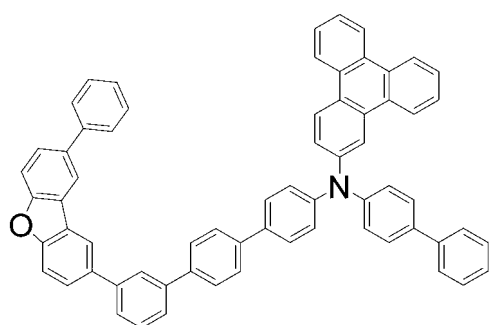


115

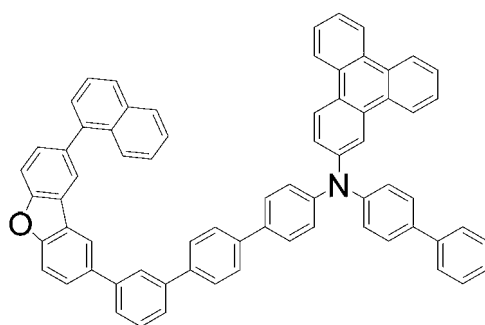


116

10

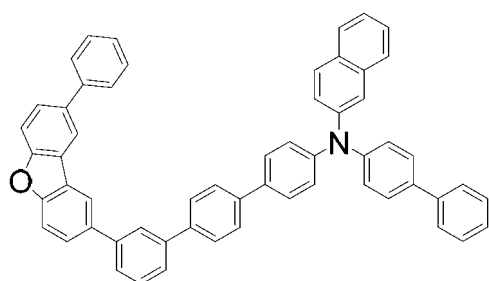


117

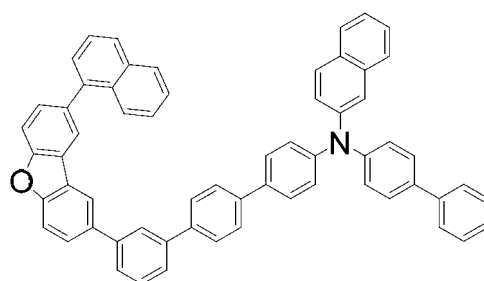


118

20



119



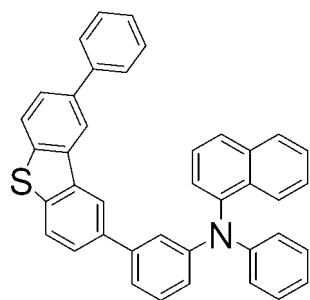
120

30

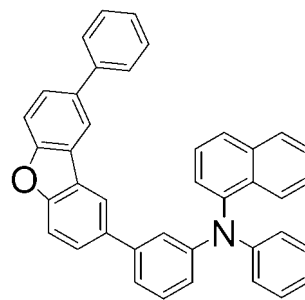
【 0 0 8 8 】

40

【化 3 4】

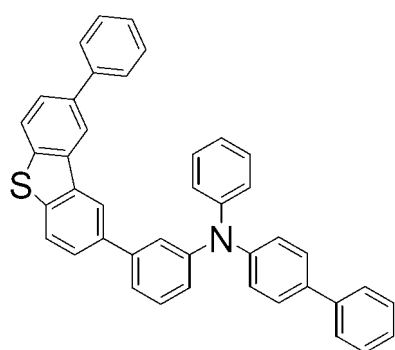


121

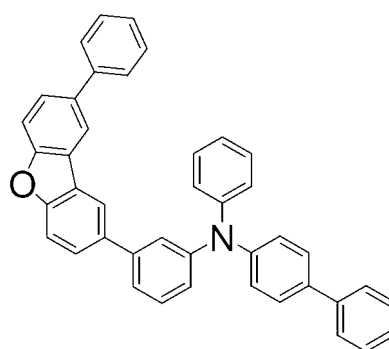


122

10

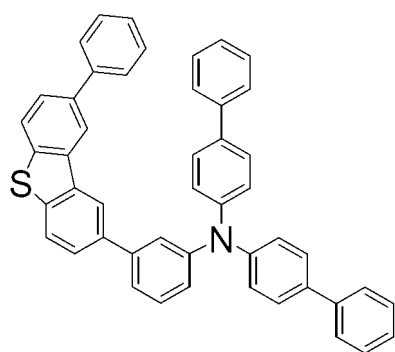


123

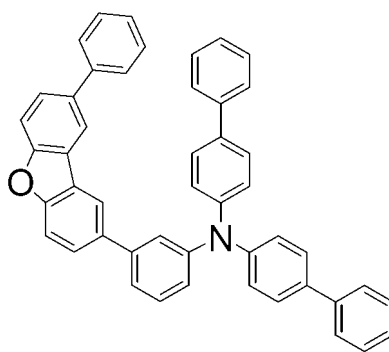


124

20



125



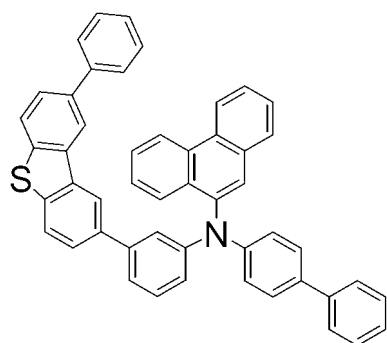
126

30

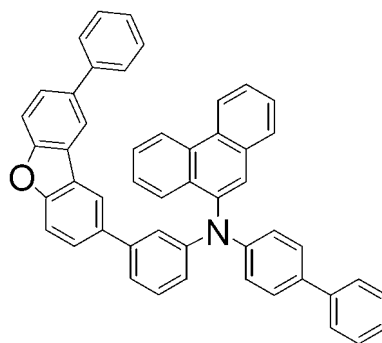
40

【 0 0 8 9 】

【化 3 5】

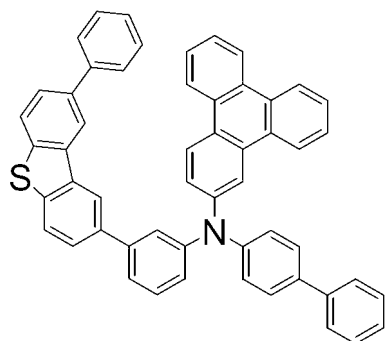


127

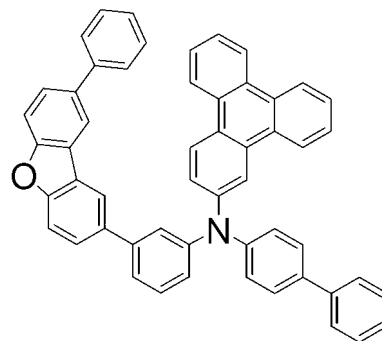


128

10

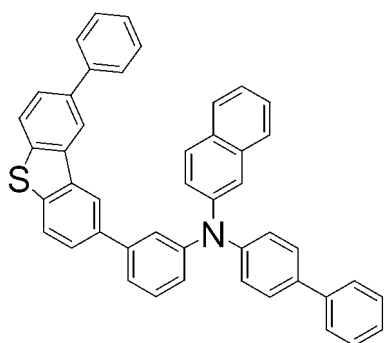


129

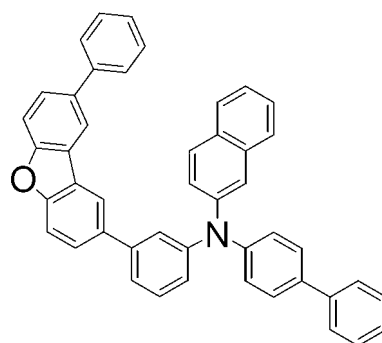


130

20



131



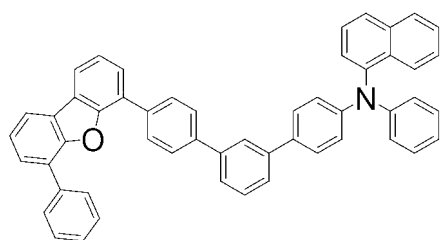
132

30

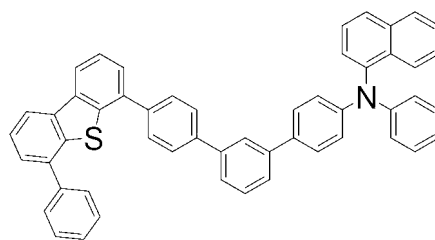
40

【0090】

【化 3 6】

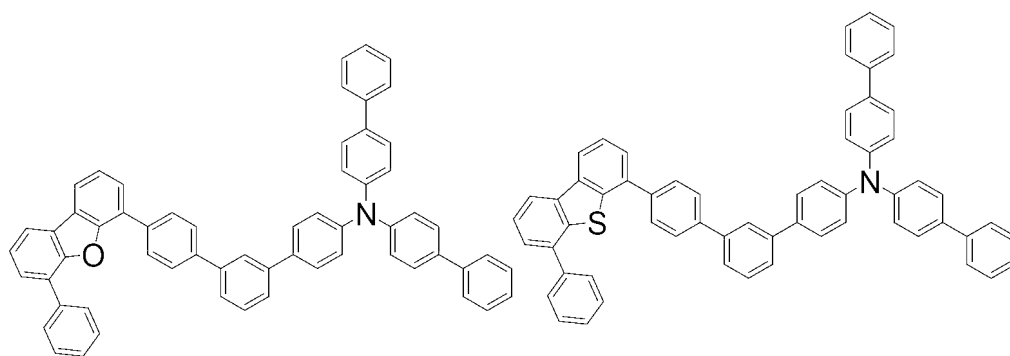


133

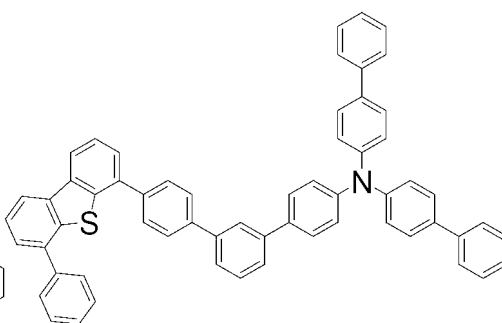


134

10

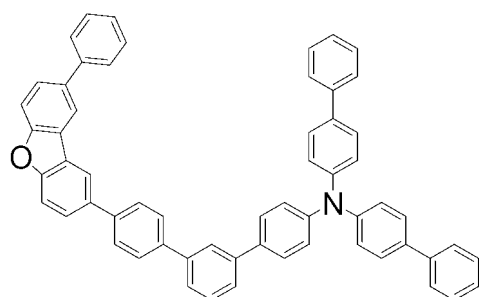


135

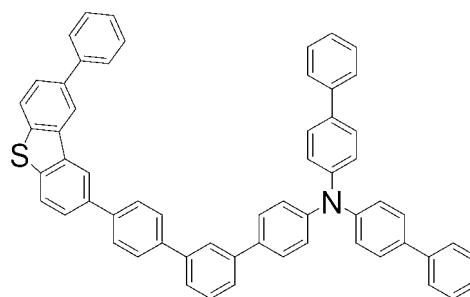


136

20



137

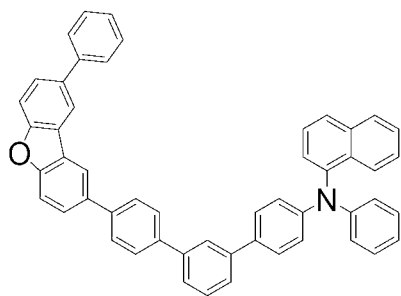


138

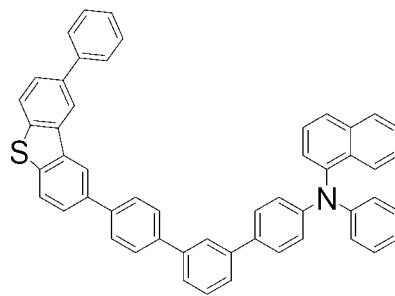
30

【 0 0 9 1 】

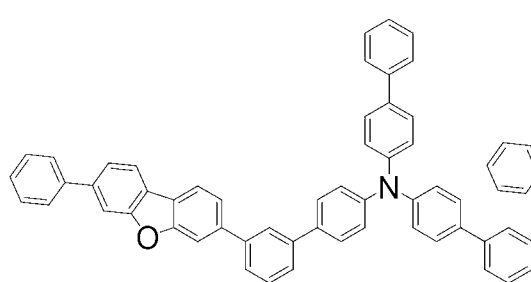
【化 3 7】



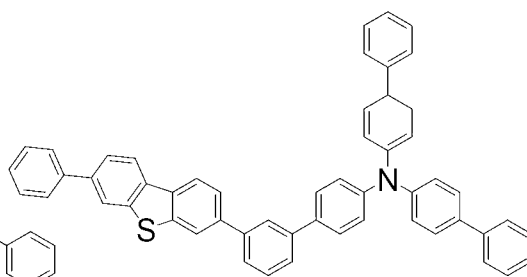
139



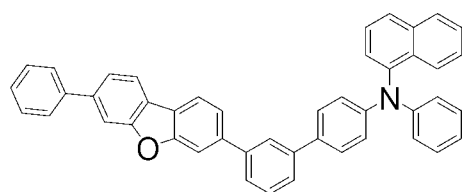
140



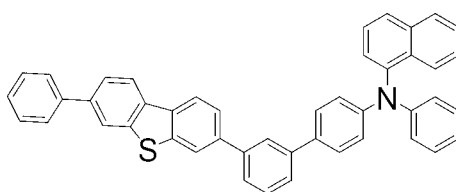
141



142



143



144

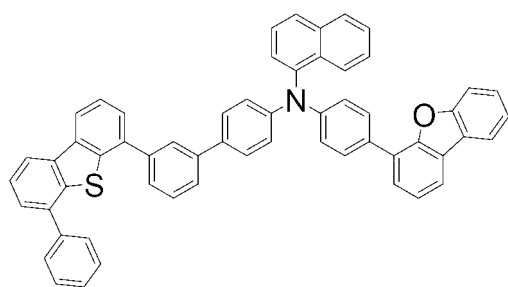
【 0 0 9 2 】

10

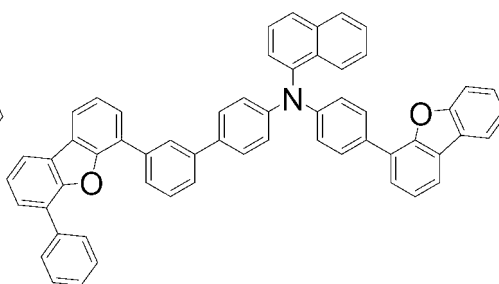
20

30

【化 3 8】

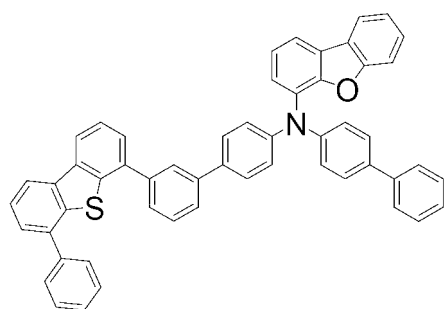


145

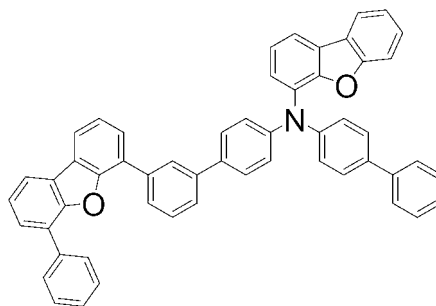


146

10

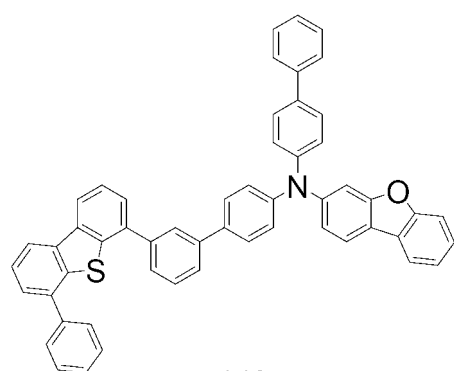


147

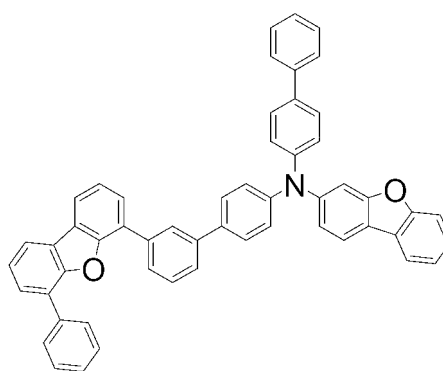


148

20



149

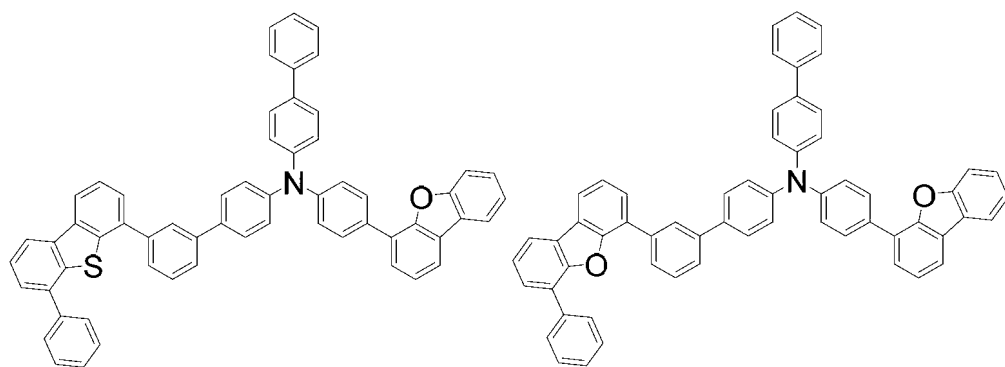


150

30

【 0 0 9 3】

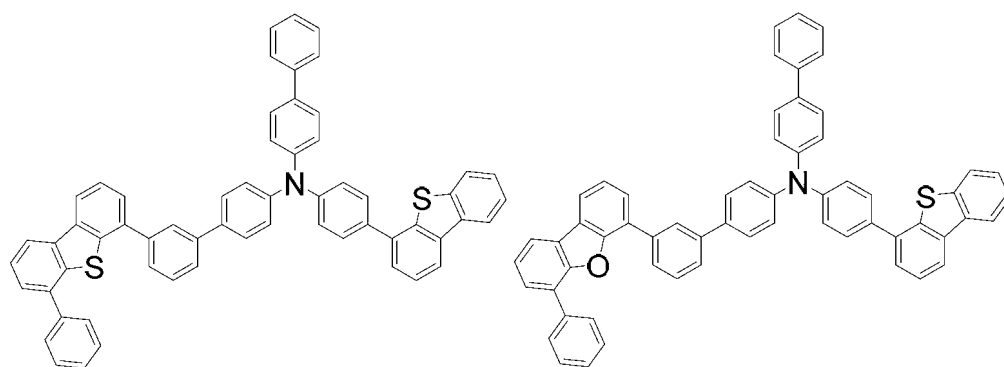
【化 3 9】



151

152

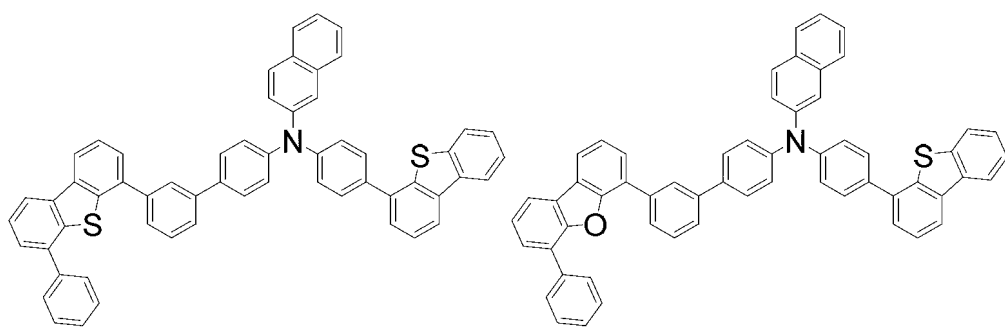
10



153

154

20



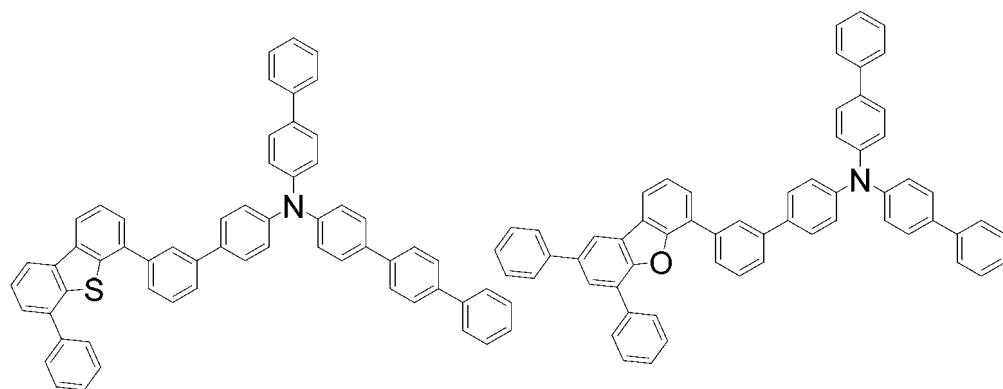
155

156

30

【 0 0 9 4 】

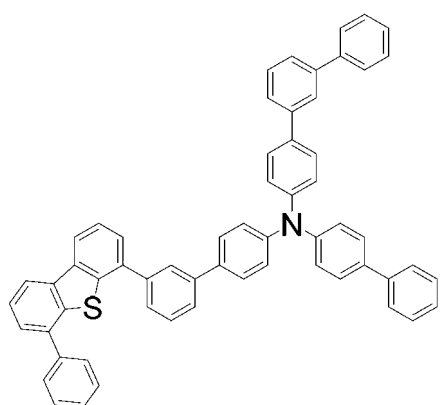
【化 4 0】



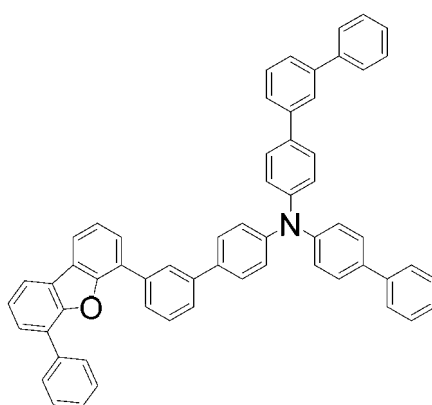
157

158

10

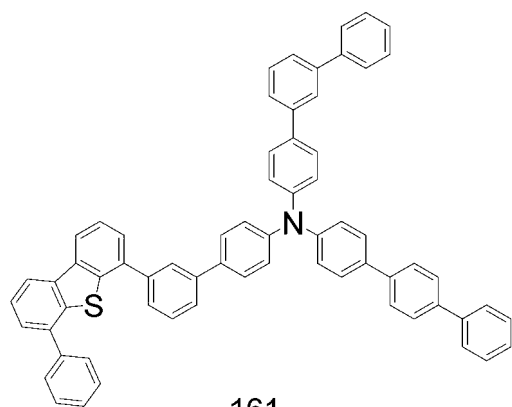


159

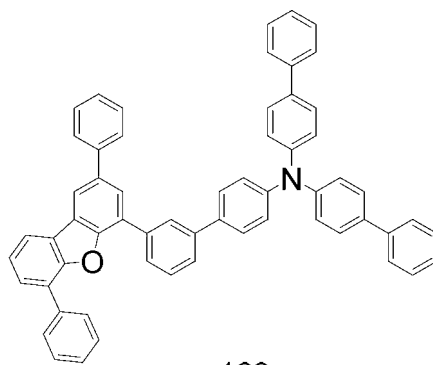


160

20



161

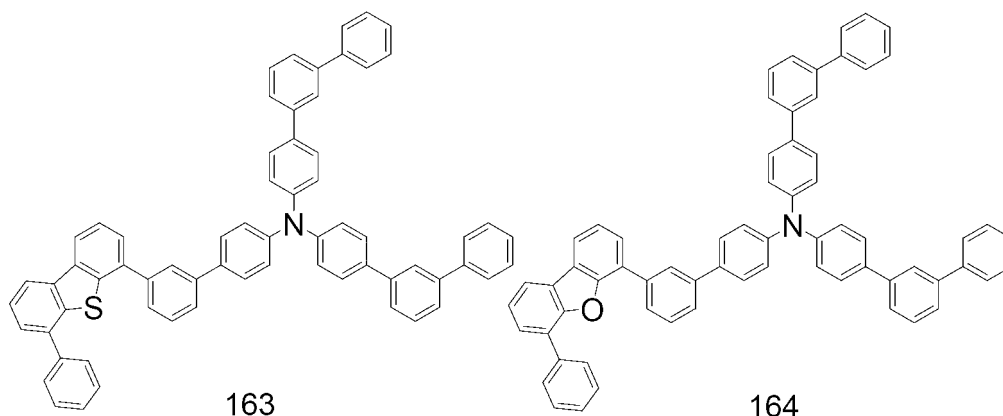


162

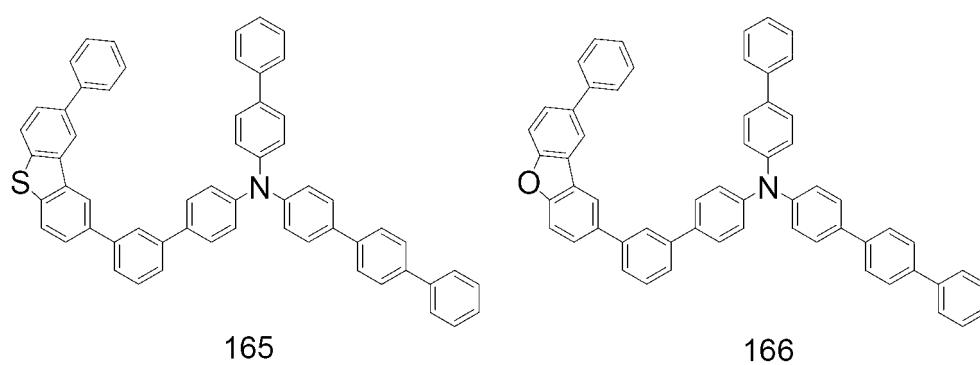
30

【 0 0 9 5】

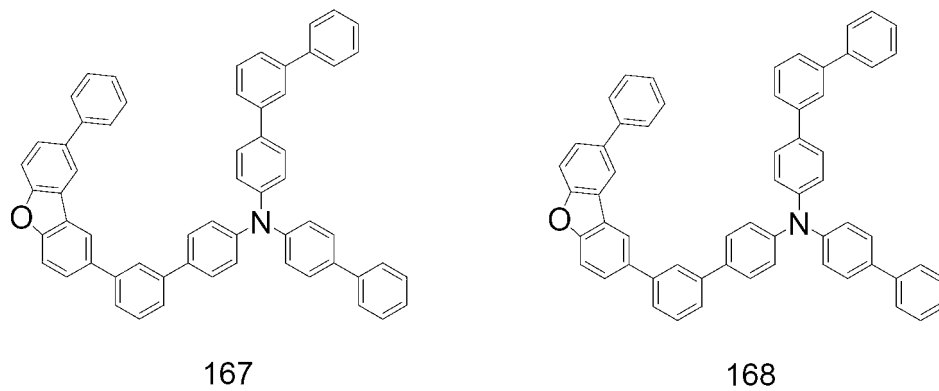
【化 4 1】



10



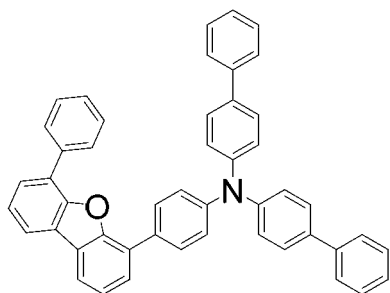
20



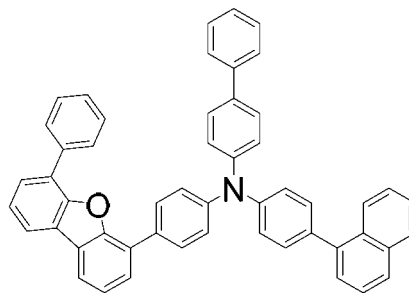
30

【 0 0 9 6 】

【化 4 2】

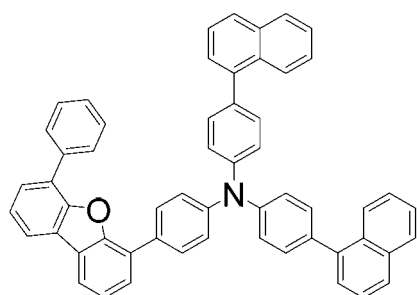


169

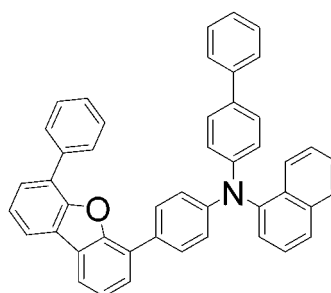


170

10

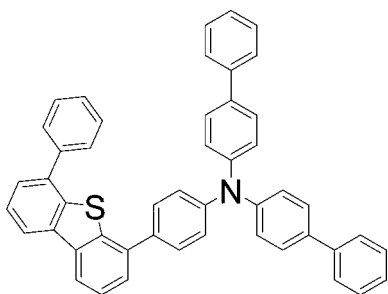


171

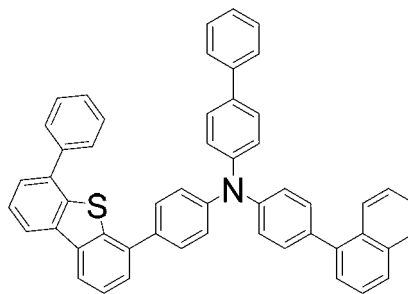


172

20



173

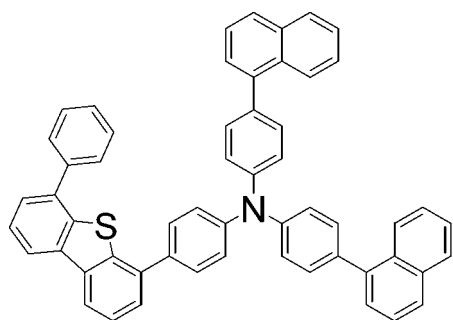


174

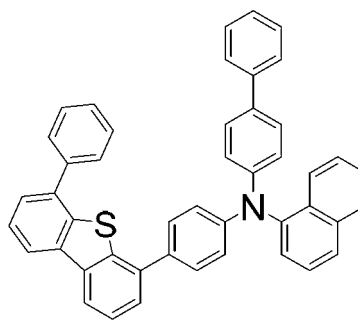
30

【0097】

【化 4 3】

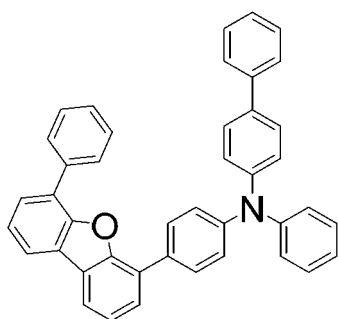


175

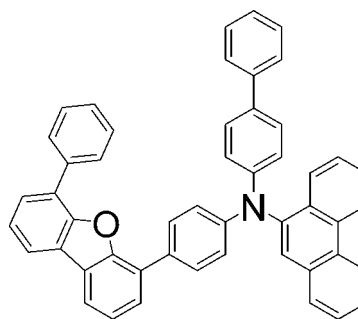


176

10

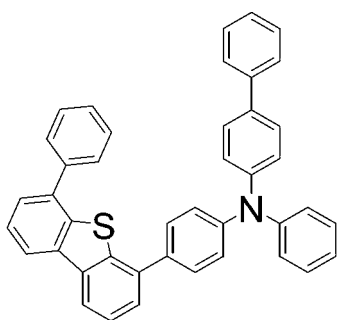


177

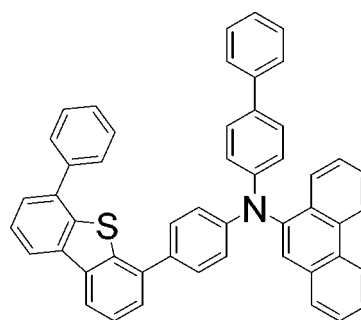


178

20



179



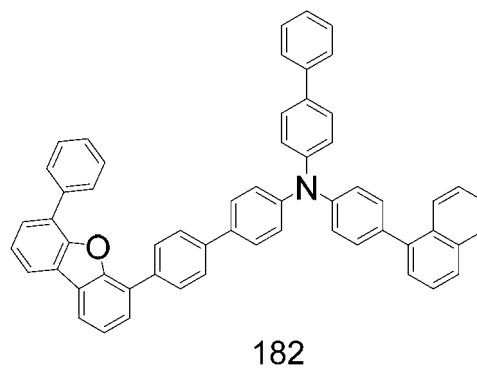
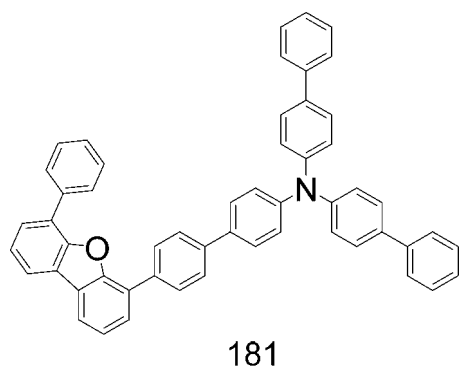
180

30

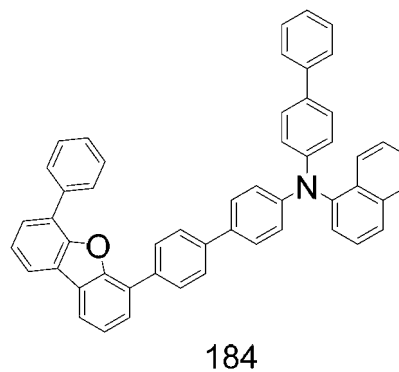
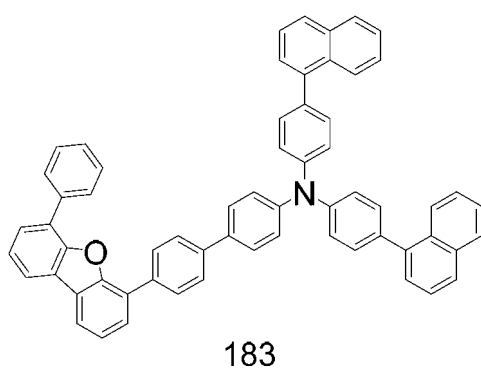
40

【 0 0 9 8 】

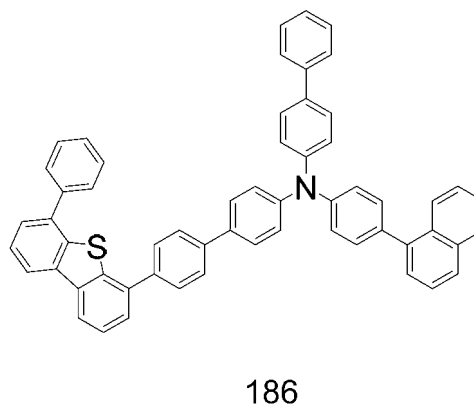
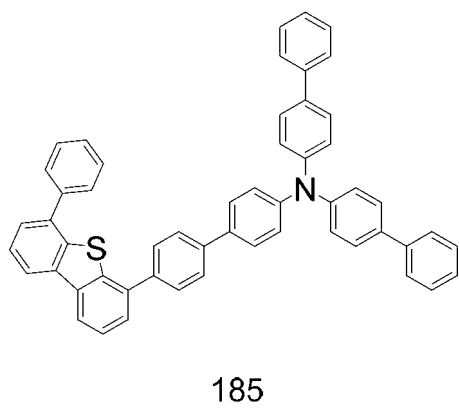
【化 4 4】



10



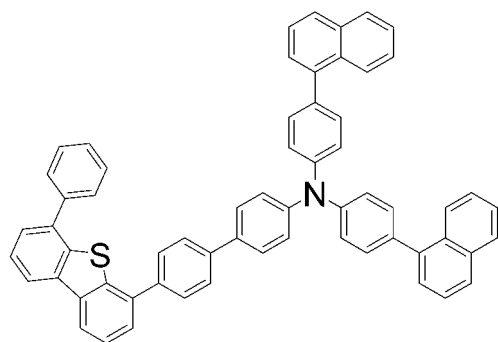
20



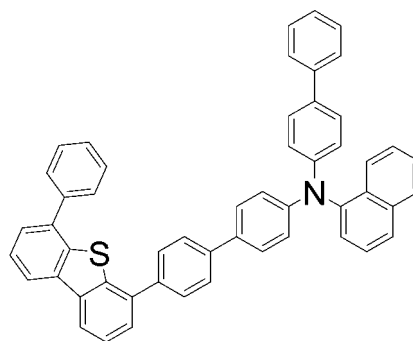
30

【0099】

【化 4 5】

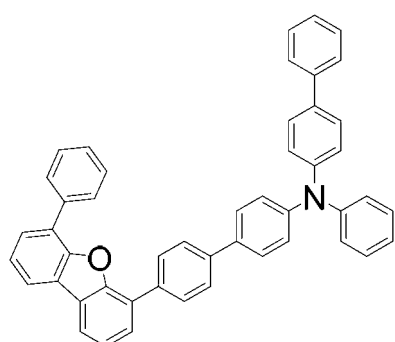


187

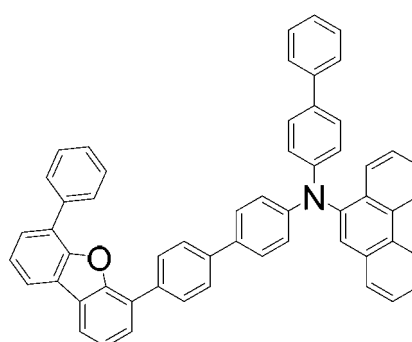


188

10

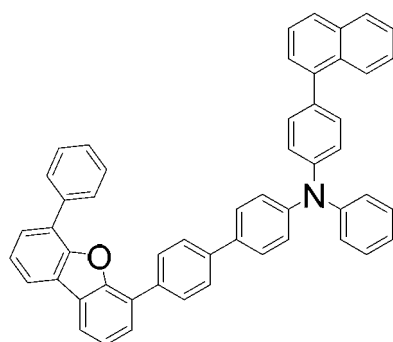


189

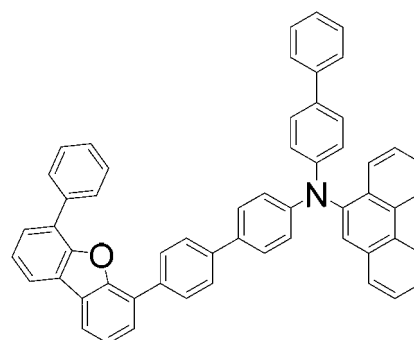


190

20



191



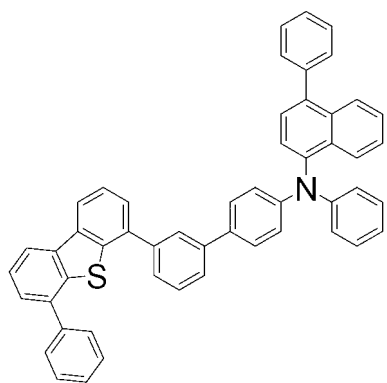
192

30

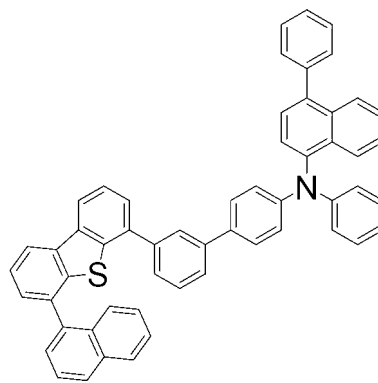
【 0 1 0 0 】

40

【化 4 6】

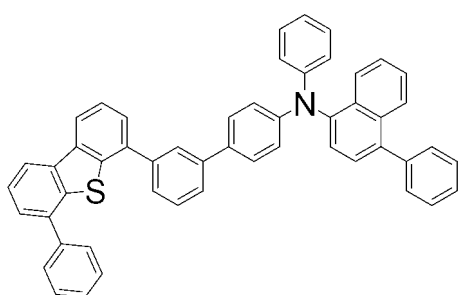


193

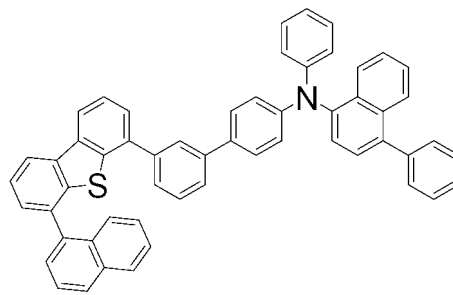


194

10

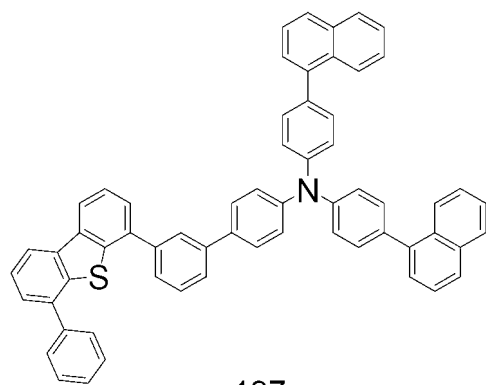


195

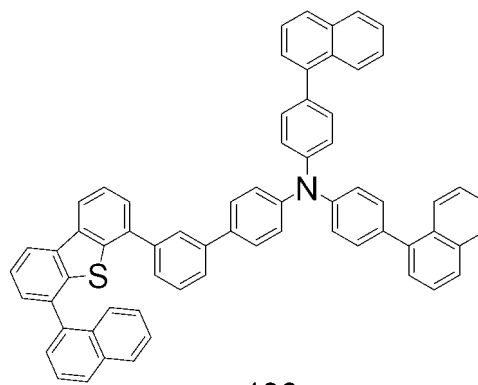


196

20



197

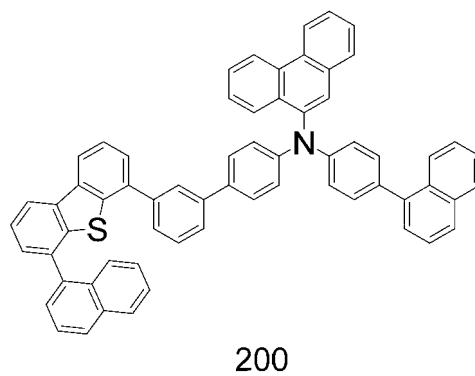
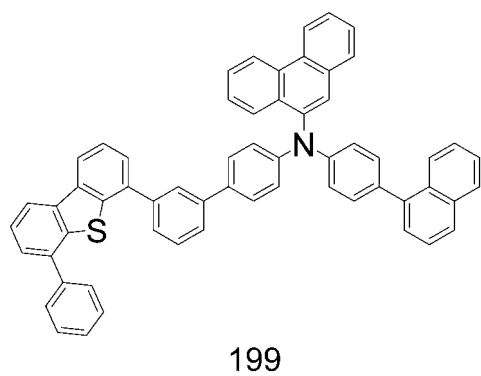


198

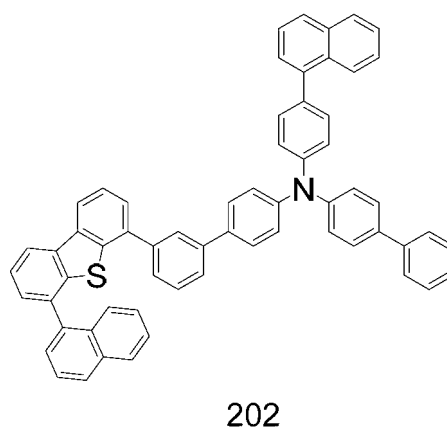
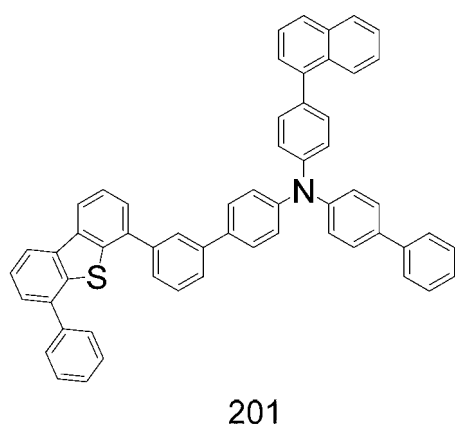
30

【 0 1 0 1 】

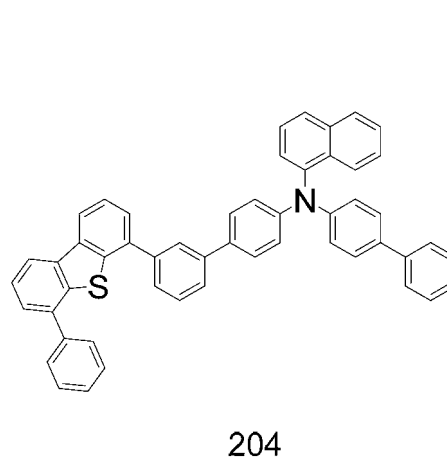
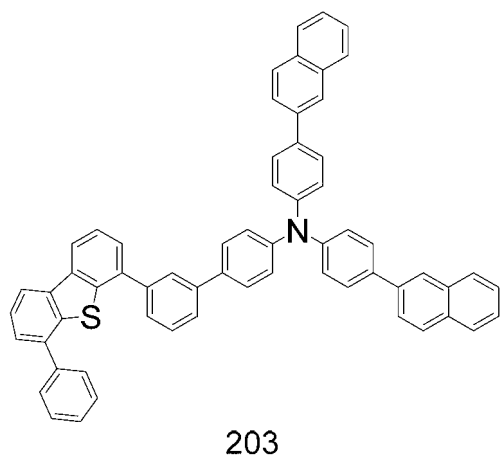
【化 4 7】



10



20

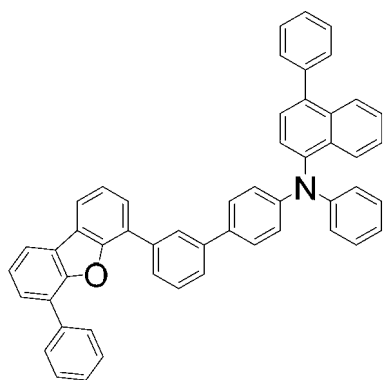


30

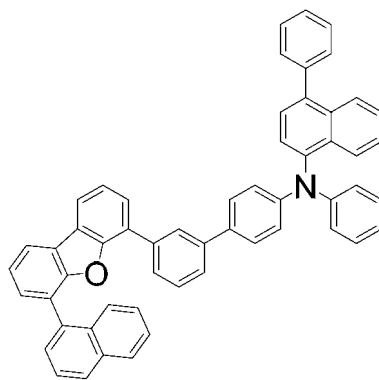
【 0 1 0 2】

40

【化 4 8】

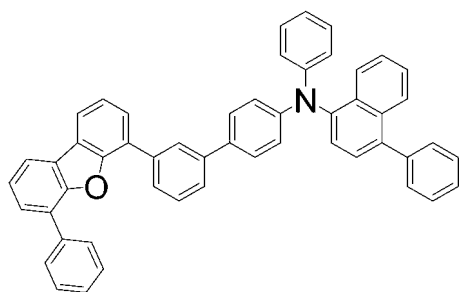


205

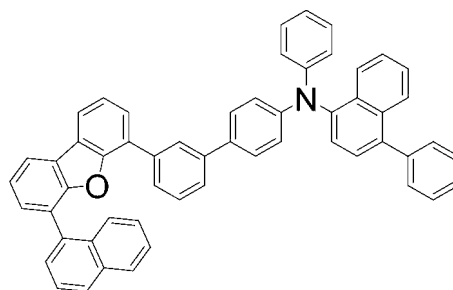


206

10

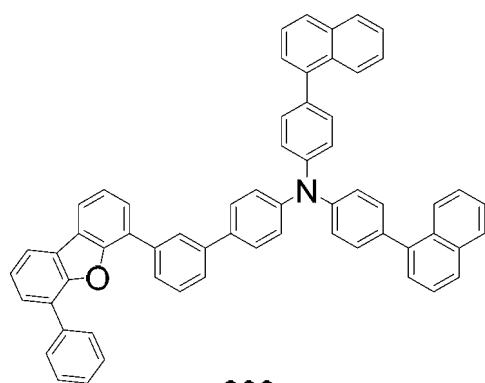


207

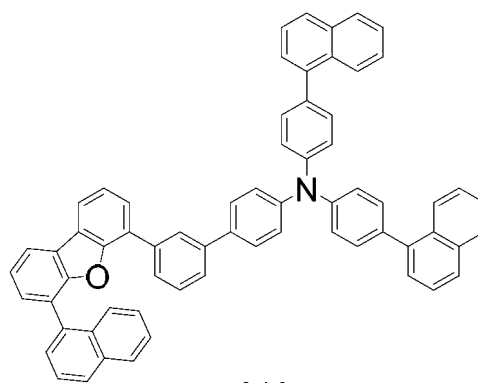


208

20



209



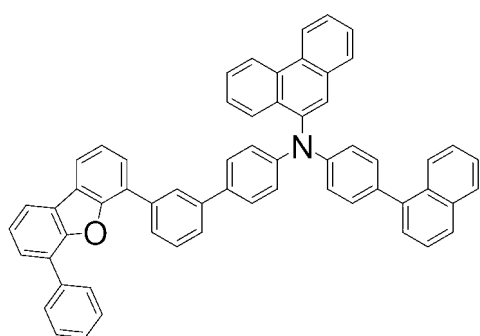
210

30

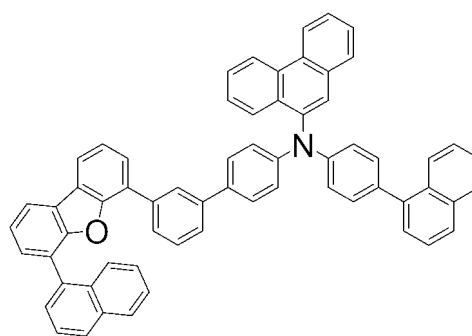
【 0 1 0 3】

40

【化 4 9】

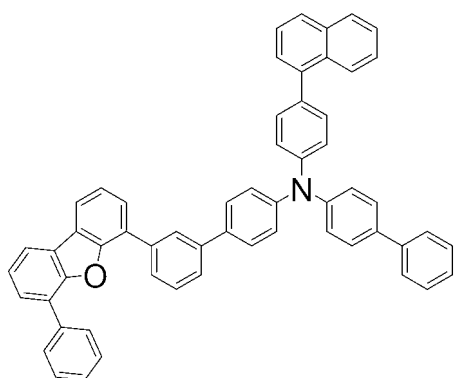


211

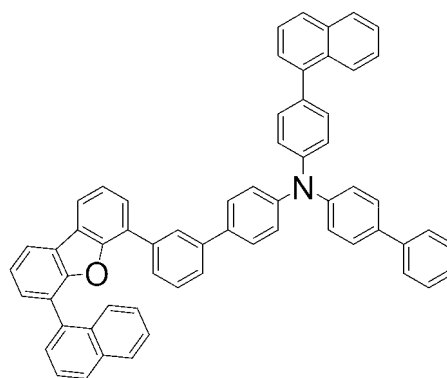


212

10

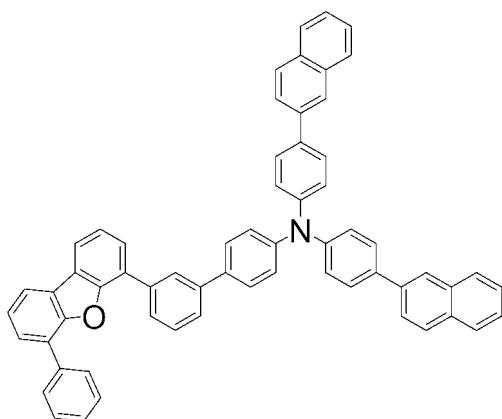


213

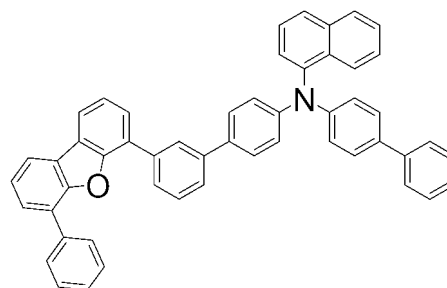


214

20



215



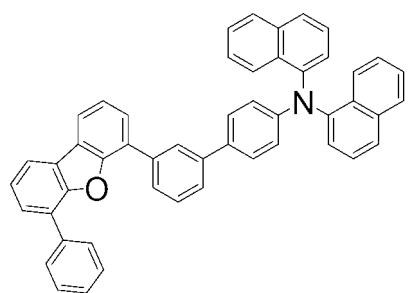
216

30

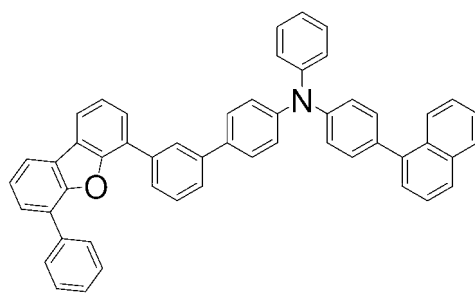
【 0 1 0 4】

40

【化 5 0】

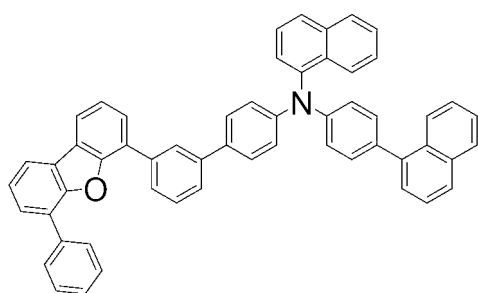


217

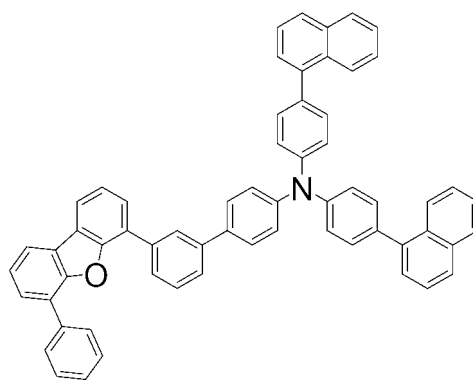


218

10

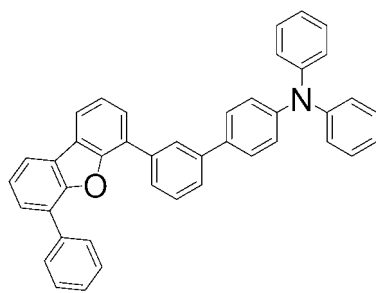


219

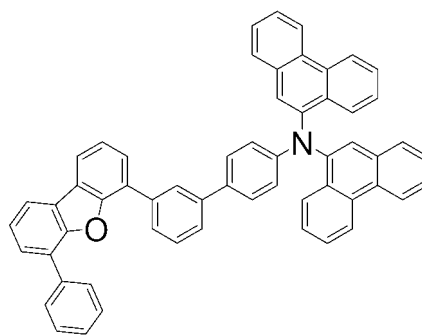


220

20



221

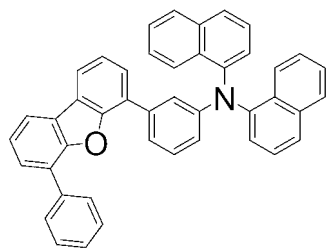


222

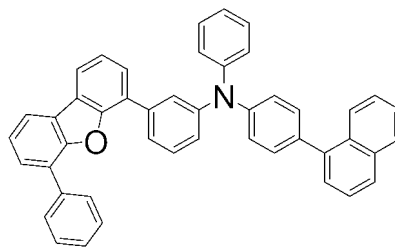
30

【 0 1 0 5】

【化 5 1】

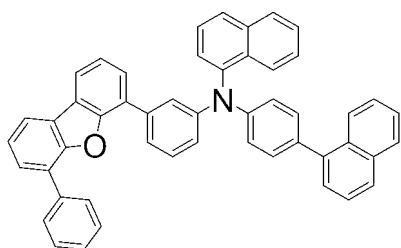


223

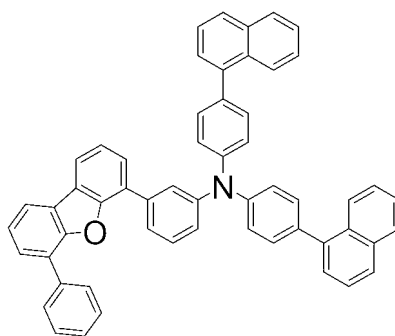


224

10

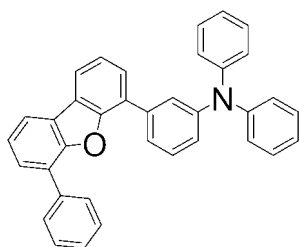


225

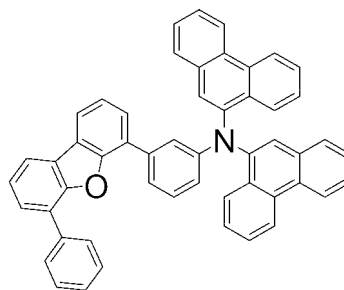


226

20



227

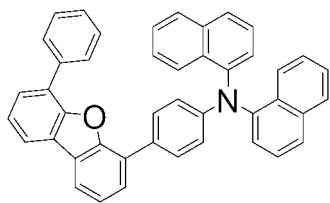


228

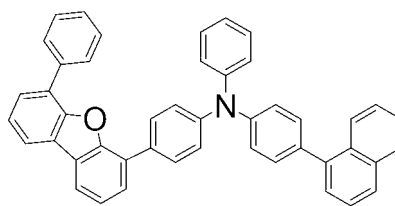
30

【 0 1 0 6】

【化 5 2】

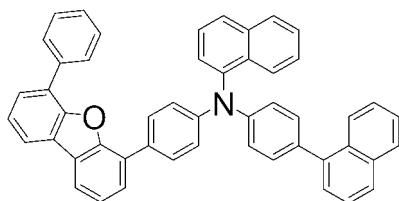


229

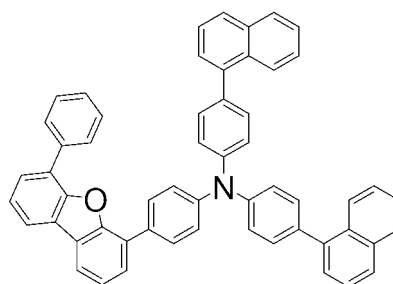


230

10

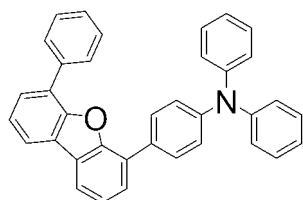


231

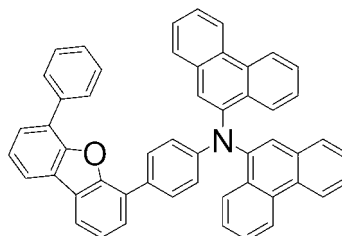


232

20



233

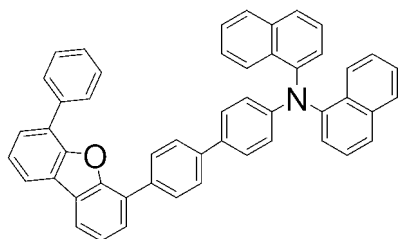


234

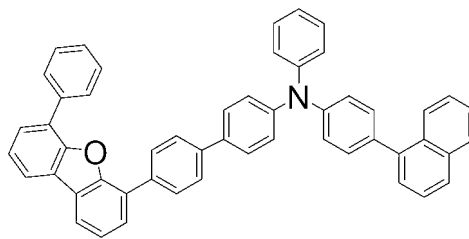
30

【 0 1 0 7】

【化 5 3】

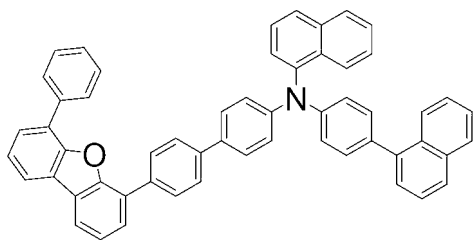


235

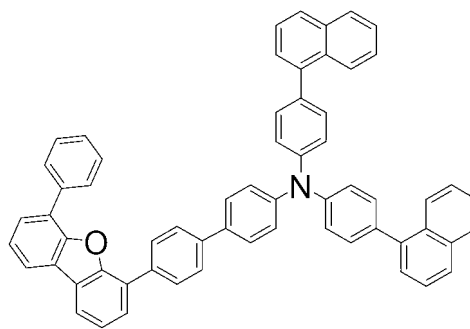


236

10

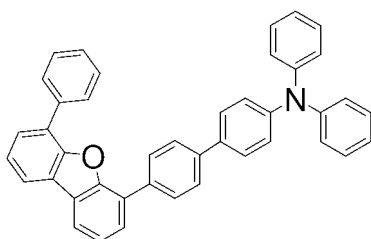


237

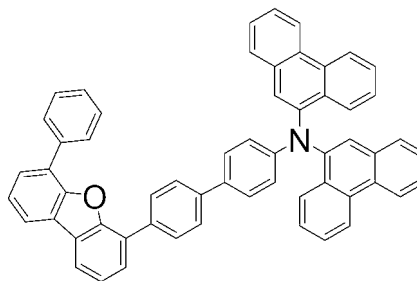


238

20



239

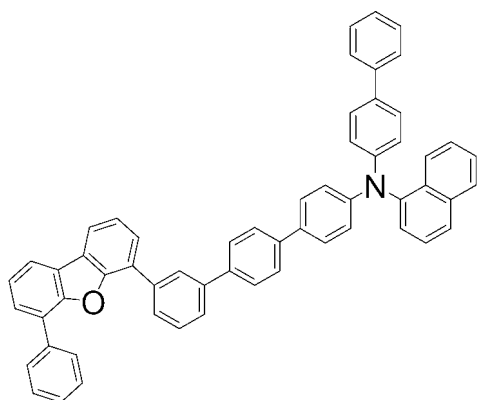


240

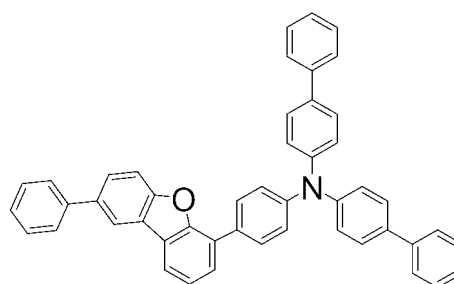
30

【 0 1 0 8】

【化 5 4】

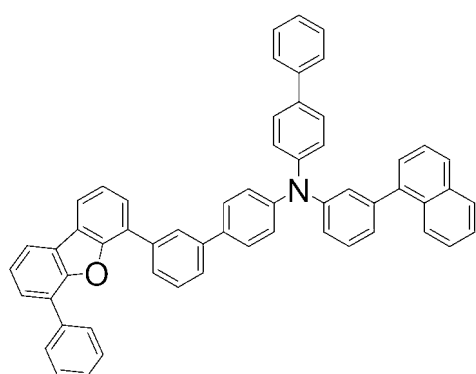


241

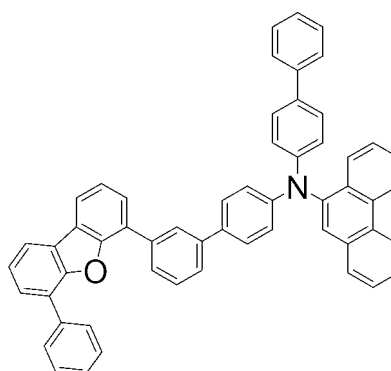


242

10

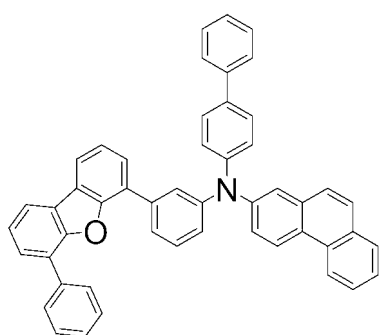


243

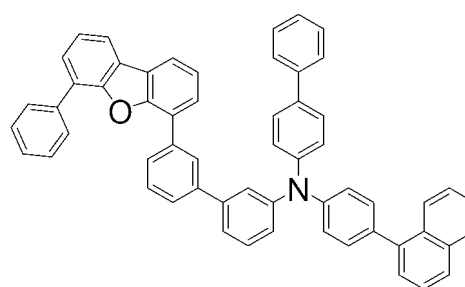


244

20



245



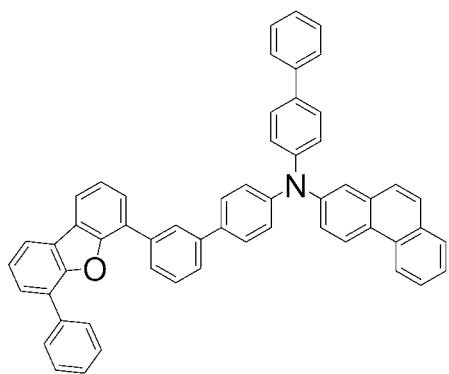
246

30

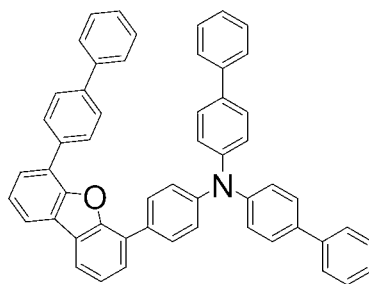
40

【 0 1 0 9】

【化 5 5】

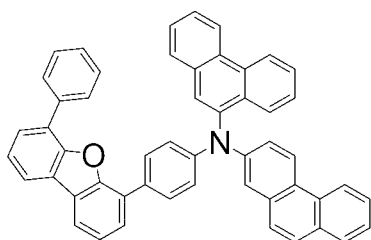


247

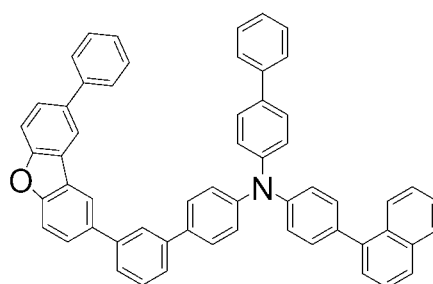


248

10

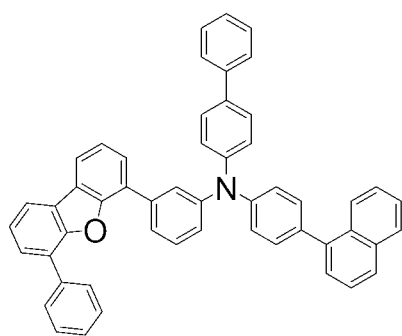


249

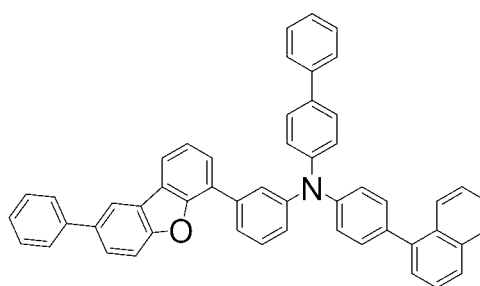


250

20



251



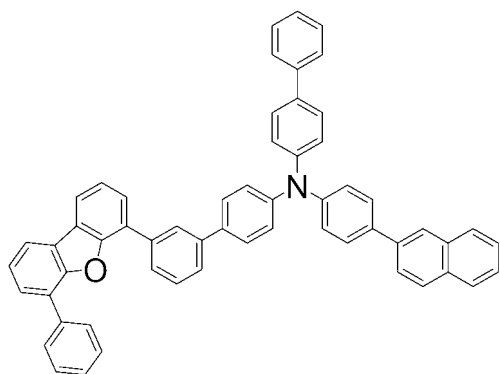
252

30

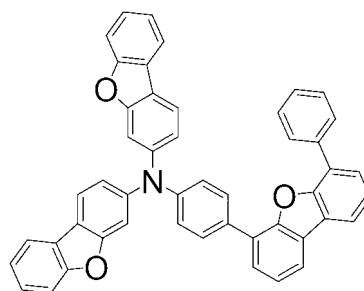
【0 1 1 0】

40

【化 5 6】

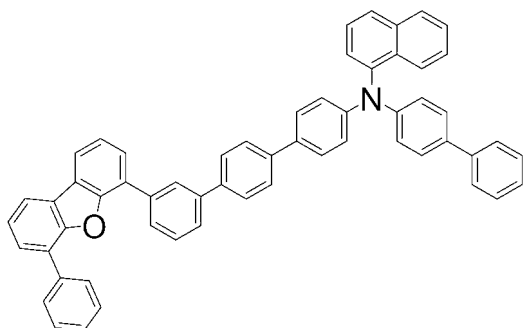


253

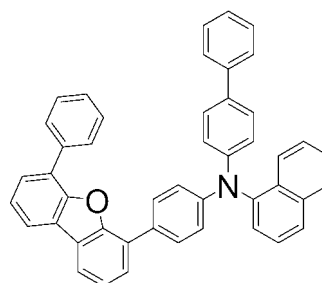


254

10

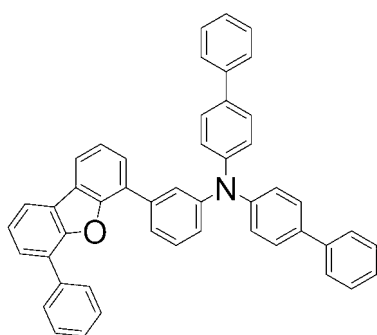


255

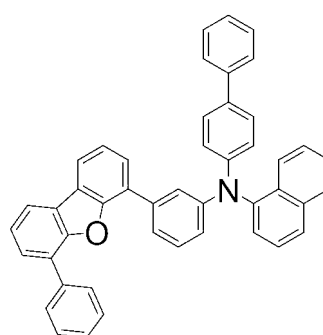


256

20



257



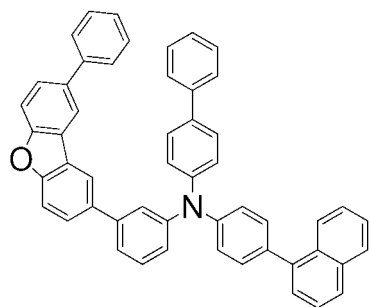
258

30

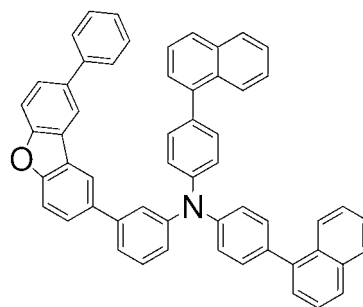
【 0 1 1 1】

40

【化 5 7】

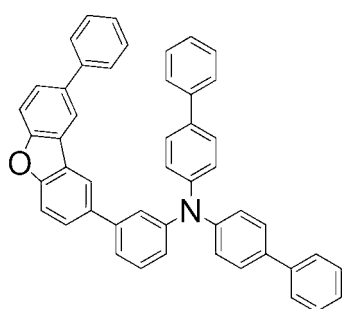


259

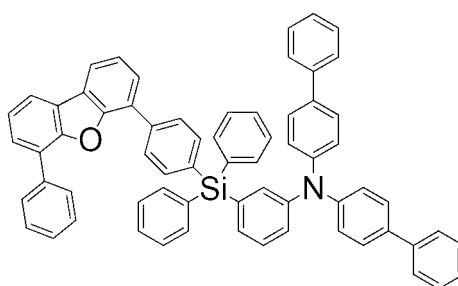


260

10

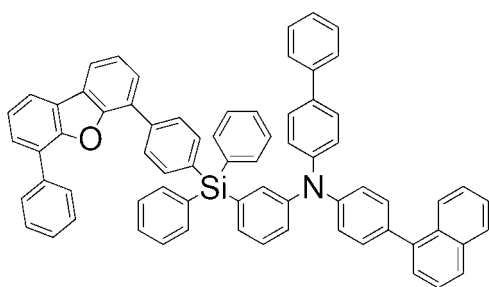


261

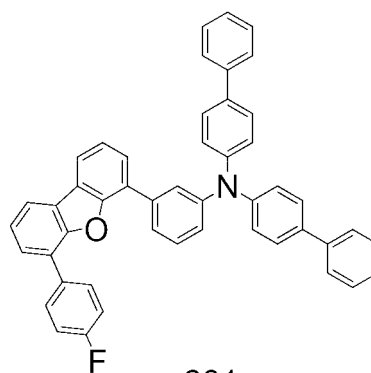


262

20



263



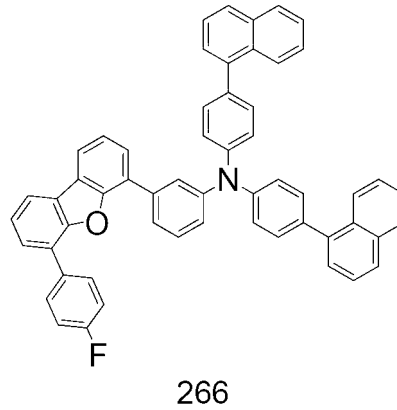
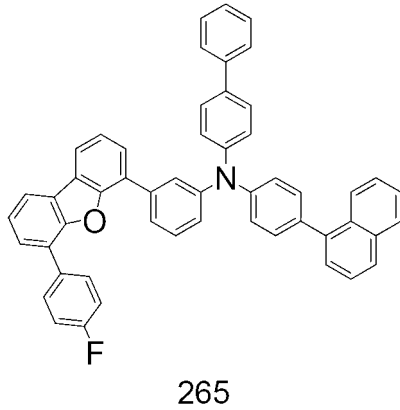
264

30

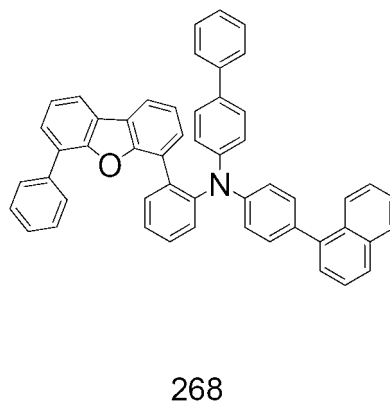
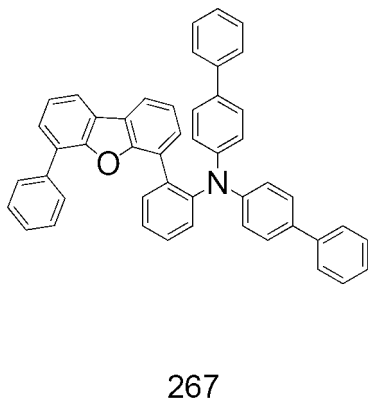
【 0 1 1 2】

40

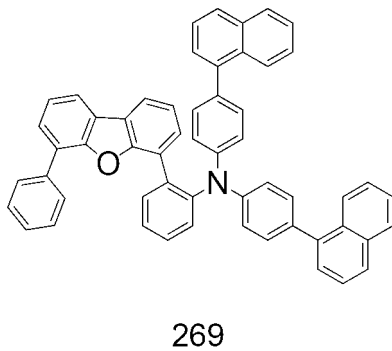
【化 5 8】



10



20



30

【0113】

40

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に用いることができる。上述したように、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、アミンの窒素原子（N）に電子耐性が高い置換されたジベンゾヘテロール部位が連結基を介して導入されている。これにより、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いる層の電子耐性が向上し、耐久性が向上され、有機エレクトロルミネッセンス素子の長寿命化を実現することができる。また、ジベンゾヘテロールが置換基を有しているため、材料のアモルファス性が向上して電荷の移動度が高くなり、高い発光効率を実現することができる。

【0114】

50

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む層は、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層と陽極との間に配置された積層膜のうち、発光層に隣接していることが好ましい。電子耐性を有する本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む層が発光層に隣接して配置されることにより、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む層と陽極との間に配置される層の電子による劣化を効果的に抑制することができる。

【0115】

(有機エレクトロルミネッセンス素子1)

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の一例について説明する。図1は、本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子100を示す概略図である。有機エレクトロルミネッセンス素子100は、例えば、基板102、陽極104、正孔注入層106、正孔輸送層108、発光層110、電子輸送層112、電子注入層114及び陰極116を備える。一実施形態において、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に用いることができる。

10

【0116】

ここでは一例として、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を正孔輸送層108に用いる場合について説明する。

【0117】

基板102は、例えば、透明ガラス基板や、シリコン等から成る半導体基板樹脂等のフレキシブルな基板であってもよい。

20

【0118】

陽極(Anode)104は、基板102上に配置され、酸化インジウムスズ(ITO)やインジウム亜鉛酸化物(IZO)等を用いて形成することができる。

【0119】

正孔注入層(HIL)106は、陽極104上に10nm以上150nm以下の厚さで公知の材料を用いて形成することができる。例えば、トリフェニルアミン含有ポリエーテルケトン(TPAPEK)、4-イソプロピル-4'-メチルジフェニルヨードニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボラート(PPBI)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス-[4-(フェニル-m-トリル-アミノ)-フェニル]-ビフェニル-4,4'-ジアミン(DNTPD)、銅フタロシアニン等のフタロシアニン化合物、4,4',4"-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(m-MTDATA)、N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジン(NPB)、4,4',4"-トリス{N,N'-ジフェニルアミノ}トリフェニルアミン(TDATA)、4,4',4"-トリス(N,N'-2-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(2-TNATA)、ポリアニリン/ドデシルベンゼンスルホン酸(PANI/DBSA)、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(4-スチレンスルホネート)(PEDOT/PSS)、ポリアニリン/カンファースルホン酸(PANI/CSA)、又は、ポリアニリン/ポリ(4-スチレンスルホネート)(PANI/PSS)等を含んでもよい。

30

【0120】

正孔輸送層(HTL)108は、正孔注入層106上に、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いて10nm以上150nm以下の厚さで形成される。本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む正孔輸送層108は、真空蒸着により形成される。

40

【0121】

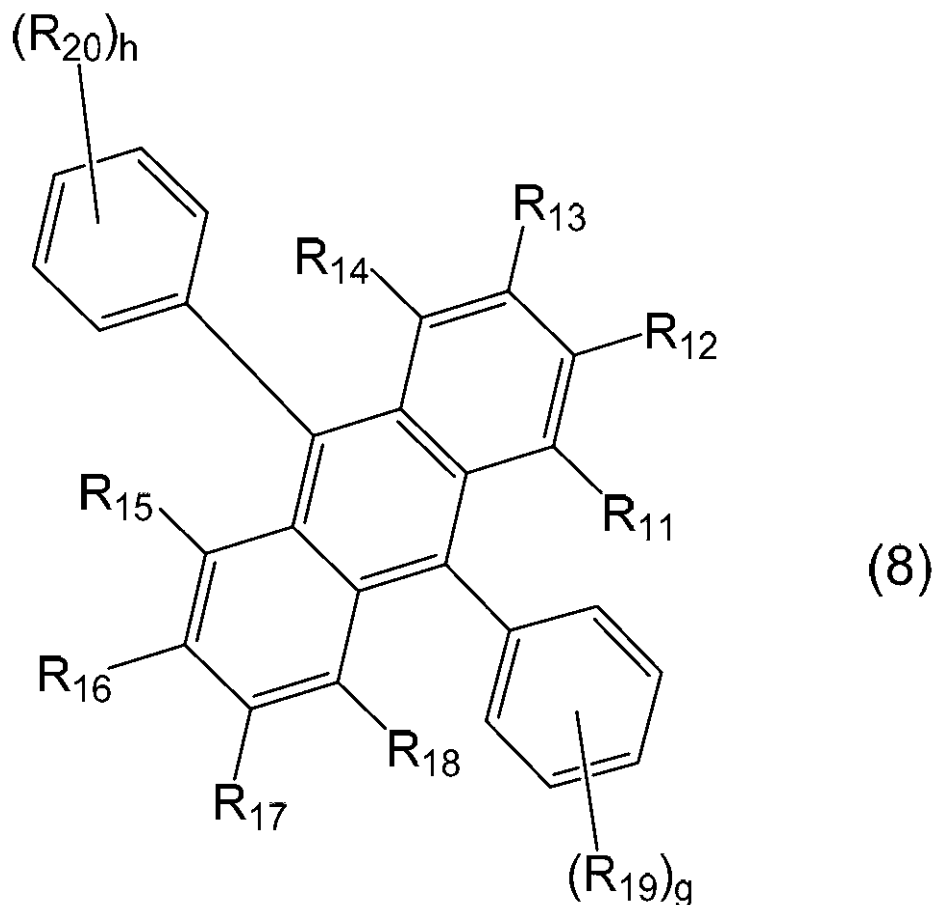
発光層(EL)110は、正孔輸送層108上に、公知のホスト材料を用いて厚さ10nm以上60nm以下で形成される。発光層110に用いられる公知のホスト材料として、例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(Alq₃)、4,4'-N,N'-ジカバゾール-ビフェニル(CBP)、ポリ(n-ビニルカルバゾール)(PVK)、9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン(ADN)、4,4',4"-トリス(N-カルバゾリル)

50

トリフェニルアミン (TCTA)、1, 3, 5-トリス (N-フェニルベンズイミダゾール-2-イル) ベンゼン (TPBI)、3-tert-ブチル-9, 10-ジ (ナフト-2-イル) アントラセン (TBADN)、ジスチリルアリーレン (DSA)、4, 4'-ビス (9-カルバゾール) -2, 2'-ジメチル-ピフェニル (dmCBP) が挙げられる。発光層 110 に用いられるホスト材料としては、アントラセン誘導体、ピレン誘導体、フルオラレンテン誘導体、クリセン誘導体、ベンゾアントラセン誘導体及びトリフェニレン誘導体から選択されることが好ましい。特に、発光層 110 は、アントラセン誘導体又はピレン誘導体を含むことが好ましい。発光層 110 に用いるアントラセン誘導体としては、以下の一般式 (8) で示される化合物が挙げられる。

【0122】

【化59】



【0123】

式 (8) 中、 $R_{11} \sim R_{20}$ は置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 1 以上 30 以下のヘテロアリール基、炭素数 1 以上 15 以下のアルキル基、シリル基、ハロゲン原子、水素原子あるいは重水素原子である。また、 g 及び h は 0 以上 5 以下の整数である。なお、隣接した複数の $R_{11} \sim R_{20}$ は結合し、飽和若しくは不飽和の環を形成してもよい。

【0124】

$R_{11} \sim R_{20}$ に用いる置換若しくは無置換の環形成炭素数 1 以上 30 以下のヘテロアリール基としては、ベンゾチアゾリル基、チオフェニル基、チエノチオフェニル基、チエノチエノチオフェニル基、ベンゾチオフェニル基、ベンゾフリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフリル基、N-アリールカルバゾリル基、N-ヘテロアリールカルバゾリル基、N-アルキルカルバゾリル基、フェノキサジル基、フェノチアジル基、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジル基、キノリニル基、キノキサリル基等を例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【0125】

$R_{11} \sim R_{20}$ に用いる置換若しくは無置換の環形成炭素数1以上30以下のヘテロアリール基としては、ベンゾチアゾリル基、チオフェニル基、チエノチオフェニル基、チエノチエノチオフェニル基、ベンゾチオフェニル基、ベンゾフリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフリル基、N-アリールカルバゾリル基、N-ヘテロアリールカルバゾリル基、N-アルキルカルバゾリル基、フェノキサジル基、フェノチアジル基、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジル基、キノリニル基、キノキサリル基等を例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【0126】

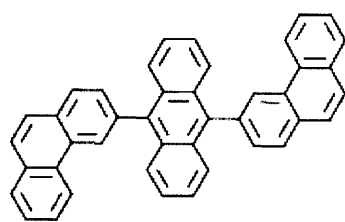
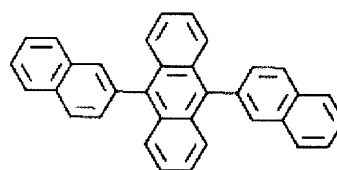
また、 $R_{11} \sim R_{20}$ に用いる炭素数1以上15以下のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-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-ノルボルニル基等が挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。

【0127】

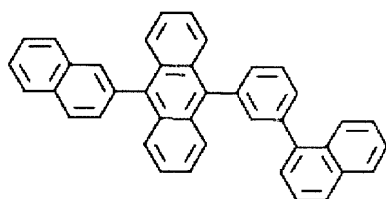
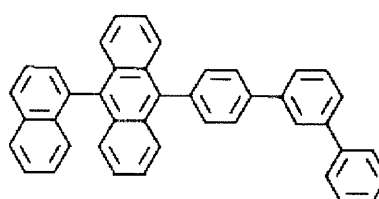
本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層110に用いるアントラセン誘導体は、一例として、以下の構造式により示された物質である。

【0128】

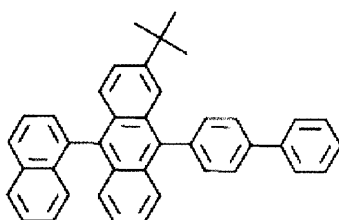
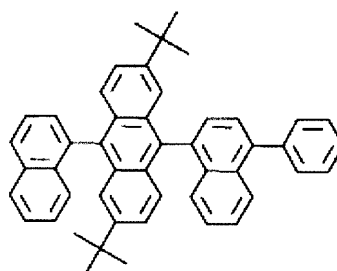
【化 6 0】

**a-1****a-2**

10

**a-3****a-4**

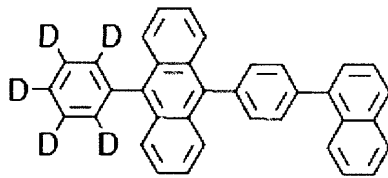
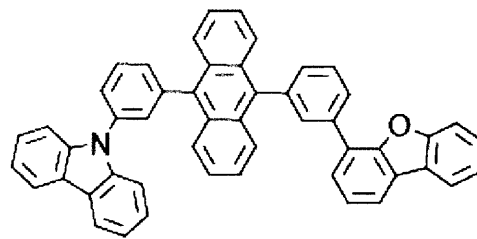
20

**a-5****a-6**

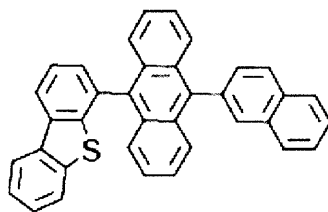
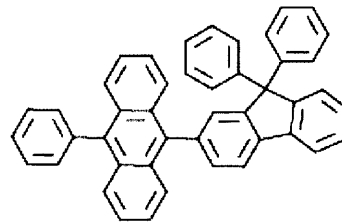
30

【 0 1 2 9】

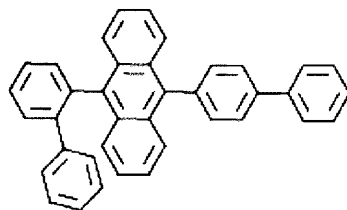
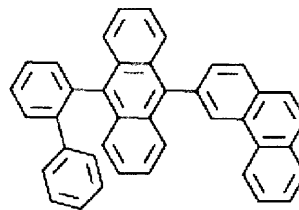
【化 6 1】

**a-7****a-8**

10

**a-9****a-10**

20

**a-11****a-12**

30

【0130】

発光層 110 はドーパント材料として、スチリル誘導体（例えば、1,4-bis[2-(3-N-ethylcarbazonyl)vinyl]benzene (BCzVB)、4-(di-p-tolylamino)-4'-[(di-p-tolylamino)styryl]stilbene (DPAVB)、N-(4-((E)-2-(6-((E)-4-(diphenylamino)styryl)naphthalene-2-yl)vinyl)phenyl)-N-phenylbenzenamine (N-BDAVB))、ペリレンおよびその誘導体（例えば、2,5,8,11-Tetra-t-butylperylene (TBPe)、ピレンおよびその誘導体（例えば、1,1-dipyrene、1,4-dipyrenylbenzene、1,4-Bis(N,N-Diphenylamino)pyrene）等のドーパントを含んでもよいが、これらに限定されるわけではない。

40

【0131】

電子輸送層 (ETL) 112 は、発光層 110 上に15nm以上50nm以下の厚さで、例えば、Tris(8-hydroxyquinolino)aluminium (Alq₃) や含窒素芳香環を有する材料（例えば、1,3,5-tri[(3-pyridyl)-phen-3-yl]benzeneといったピリジン環を含む材料や、2,4,6-tris(3'-(pyridine-3-yl)biphenyl-3-yl)1,3,5-triazineといったトリアジン環を含む材料、2-(4-N-phenylbenzoimidazolyl-1-yl)phenyl)-9,10-dinaphthylanthraceneといったイミダゾール誘導体を含む材料）を含む材料により形成される。

50

【0132】

電子注入層（EIL）114は、電子輸送層112上に0.3nm以上9nm以下の厚さで、例えば、フッ化リチウム（LiF）、リチウム－8－キノリナート（LiQ）等を含む材料により形成される。

【0133】

陰極（Cathode）116は、電子注入層114上に配置され、アルミニウム（Al）や銀（Ag）、リチウム（Li）、マグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）等の金属、これらの混合物、及び酸化インジウムスズ（ITO）及びインジウム亜鉛酸化物（IZO）等の透明材料により形成される。

【0134】

以上に述べた本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子100を構成する各電極及び各層は、真空蒸着、スパッタ、各種塗布など材料に応じた適切な成膜方法を選択することにより、形成することができる。尚、上述したように、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いて形成される正孔輸送層108は、真空蒸着により形成される。

【0135】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子100においては、上述した本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いることにより、長寿命化と高効率化を実現可能な正孔輸送層を形成することができる。

【0136】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子100においては、上述した本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は正孔注入層の材料として用いられてもよい。上述したように、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に用いることにより、有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化及び長寿命化を実現することができる。

【0137】

（有機エレクトロルミネッセンス素子2）

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いた別の有機エレクトロルミネッセンス素子について説明する。図2は、本発明の別の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子200を示す概略図である。尚、図2において、図1に示した有機エレクトロルミネッセンス素子100と同一部分又は同様な機能を有する部分には同一の符号を付し、その繰り返しの説明は省略する。

【0138】

有機エレクトロルミネッセンス素子200は、基板102、陽極104、正孔輸送帯域201、発光層110、電子輸送層112、電子注入層114及び陰極116を備える。正孔輸送帯域201は、少なくとも、陽極側に配置された第1の層203と、第1の層203と発光層110との間に配置され、発光層110に隣接した第2の層207と、を含む。また、正孔輸送帯域201において、陽極104と第2の層207との間に第3の正層205が配置されてもよい。第3の層205の位置は特に限定されないが、第1の層203と第2の層207との間に配置されることが好ましい。尚、正孔輸送帯域201において、第1の層203と第3の層205との間、及び第3の層205と第2の層207との間に、他の正孔輸送性の層が配置されてもよい。有機エレクトロルミネッセンス素子200において、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、発光層110に隣接する第2の層207に好適に用いられる。

【0139】

正孔輸送帯域201の陽極側に配置された第1の層203は、LUMO準位が－9.0 eV以上－4.0 eV以下である電子受容性化合物を含む。第1の層203は、該電子化合物がドーブされた正孔輸送性化合物から構成されてもよく、該電子化合物のみから構成されてもよい。電子受容性化合物は、一例として、以下のac1～ac14の構造式により示された化合物である。但し、本発明に係る電子受容性化合物は以下に限定されるわけ

10

20

30

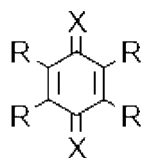
40

50

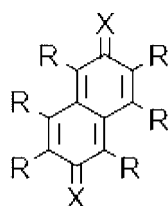
ではない。

【0140】

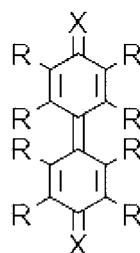
【化62】



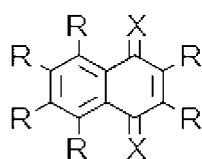
ac1



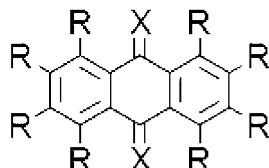
ac2



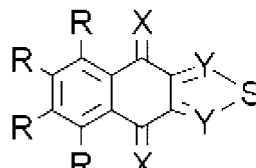
ac3



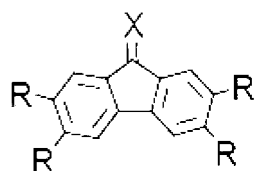
ac4



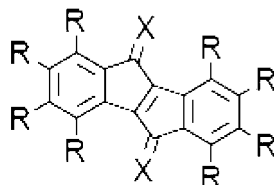
ac5



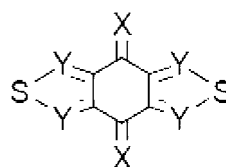
ac6



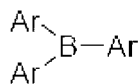
ac7



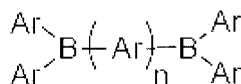
ac8



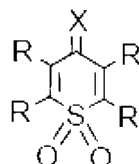
ac9



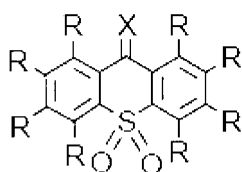
ac10



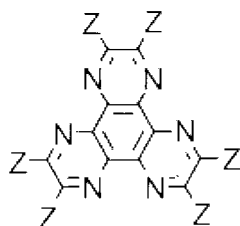
ac11



ac12



ac13



ac14

10

20

30

40

50

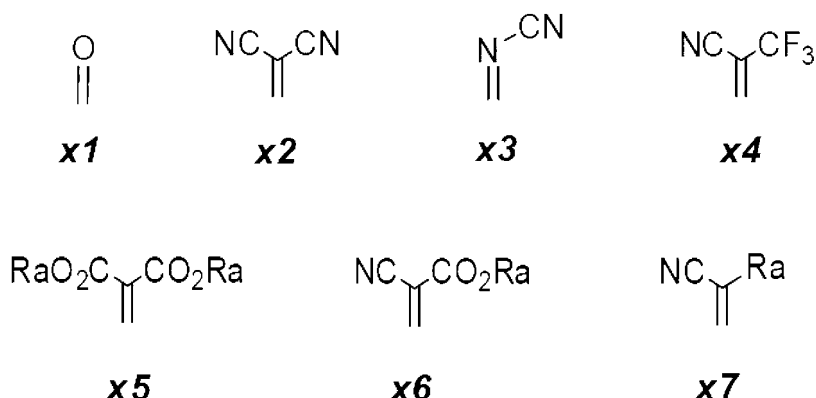
【0141】

以上の電子受容性化合物 ac1～ac14において、Rは水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、炭素数1以上10以下のフッ化アルキル基、シアノ基、炭素数1以上10以下のアルコキシ基、炭素数1以上10以下のアルキル基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基である。ただし、同一分子内で全てが水素原子、重水素原子又はフッ素原子で置換されることはない。Arはそれぞれ独立的に、電子吸引性の置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数3以上30以下のヘテロアリール基である。Yはメチン基（-CH=）又は窒素原子（-N=）である。Zは擬ハロゲン又は硫黄原子（S）である。Xは以下に示すX1～X7の

置換基の何れかである。

【0142】

【化63】



10

ここで、Raは水素原子、重水素原子ハロゲン原子、炭素数1以上10以下のフッ化アルキル基、シアノ基、炭素数1以上10以下のアルコキシ基、炭素数1以上10以下のアルキル基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数3以上30以下のヘテロアリール基である。

【0143】

20

R、Ar、Raが示す置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数3以上30以下のヘテロアリール基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、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、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、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、フルオランテニル基、フルオレニル基、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、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、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-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリ

30

40

50

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-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イ
 ル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基
 、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1
 , 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1,
 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-
 フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェ
 ナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナ
 スロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンス
 ロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリ
 ン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-
 6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-
 イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-
 イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-
 イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イ
 ル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基
 、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2
 , 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-
 フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-
 フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェ
 ナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナ
 スロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロ
 リン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリ
 ン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-
 5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-
 イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-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-インドリル基等が
 挙げられる。

【0144】

R、Raが示す炭素数1以上10以下のフッ化アルキル基の例としては、トリフルオロメ
 チル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基、ヘプタデカフルオロオク
 タン基等のパーフルオロアルキル基、またはモノフルオロメチル基、ジフルオロメチル基
 、トリフルオロエチル基、テトラフルオロプロピル基、オクタフルオロペンチル基など
 が挙げられる。

【0145】

R、Raが示す炭素数1以上10以下のアルキル基の例としては、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、ヒドロキシメ

10

20

30

40

50

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-ノルボルニル基等が挙げられる。

10

20

【0146】

R、Raが示す炭素数1以上10以下のアルコキシ基は-OYで表される基であり、Yの例としては、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、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等が挙げられる。

30

40

【0147】

R、Raが示すハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

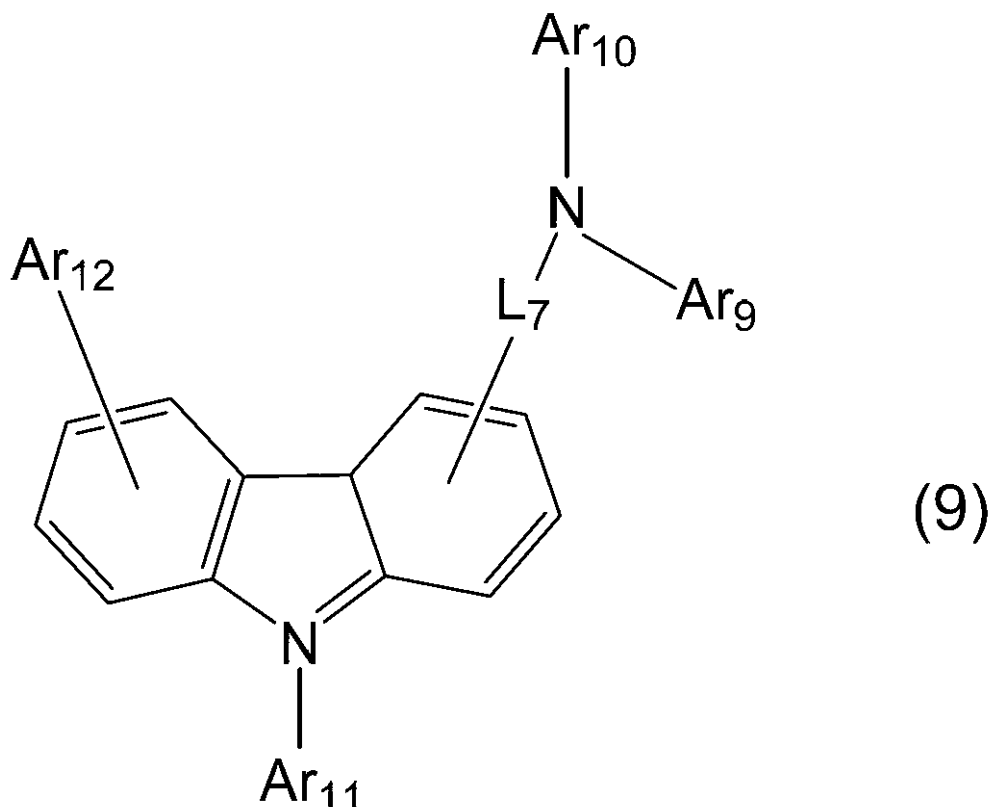
【0148】

ここで、該電子受容性化合物が、他の正孔輸送性化合物にドーブされる場合、第1の層121に含まれる正孔輸送性化合物としては、既知の正孔輸送性化合物を用いることができる。既知の正孔輸送性化合物としては、特に限定されるわけではないが、カルバゾリル

50

基を有する化合物を用いることが好ましい。カルバゾリル基を有する正孔輸送性化合物としては、例えば、以下の一般式（９）で表わされるアミン誘導体であってもよい。

【化６４】



10

20

【０１４９】

一般式（９）中、 Ar_9 、 Ar_{10} 及び Ar_{11} は置換もしくは無置換の環形成炭素数６以上５０以下のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数５以上５０以下のヘテロアリール基であり、 Ar_{12} は置換もしくは無置換の環形成炭素数６以上５０以下のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数５以上５０以下のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の炭素数１以上５０以下のアルキル基であり、 L_7 は単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６以上１８以下のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数５以上１５以下のヘテロアリーレン基である。

30

【０１５０】

$Ar_9 \sim Ar_{11}$ として具体的には、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、フルオレニル基、インデニル基、ピレニル基、アセトナフテニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピラニル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ジベンゾフラニル基、およびジベンゾチエニル基などを挙げることができる。好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基などを挙げることができる。

40

【０１５１】

Ar_{12} としては、アリール基及びヘテロアリール基は $Ar_9 \sim Ar_{11}$ として具体的に挙げた官能基と同様であり、アルキル基は好ましくはメチル基又はエチル基である。

【０１５２】

L_7 は、単結合のほか、具体的には、フェニレン基、ビフェニリレン基、ターフェニリレン基、ナフチレン基、アントリレン基、フェナントリレン基、フルオリレン基、インダン

50

ジイル基、ピレンジイル基、アセナフテンジイル基、フルオランテンジイル基、トリフェニレンジイル基、ピリジンジイル基、ピランジイル基、キノリンジイル基、イソキノリンジイル基、ベンゾフランジイル基、ベンゾチオフェンジイル基、インドールジイル基、カルバゾールジイル基、ベンゾオキサゾールジイル基、ベンゾチアゾールジイル基、キノキサリンジイル基、ベンゾイミダゾールジイル基、ジベンゾフランジイル基を挙げることができる。好ましくは、フェニレン基、ターフェニレン基、フルオレンジイル基、カルバゾールジイル基、ジベンゾフランジイル基などを挙げることができる。

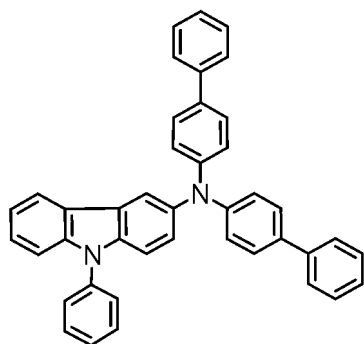
【0153】

一般式(9)で表される化合物は、一例として、以下の構造式により示された化合物である。但し、一般式(9)で表される化合物は以下に限定されるわけではない。

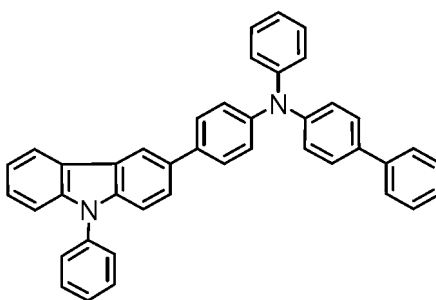
10

【0154】

【化 6 5】

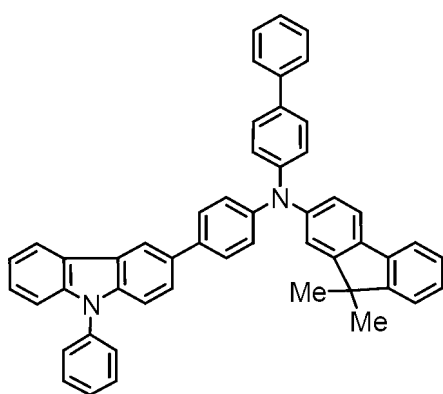


270

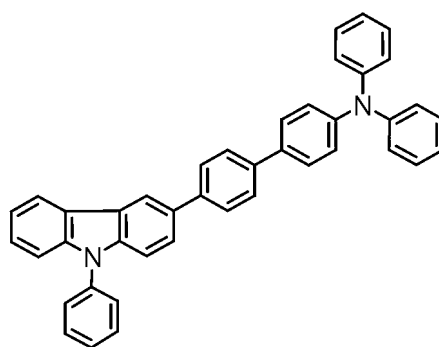


271

10

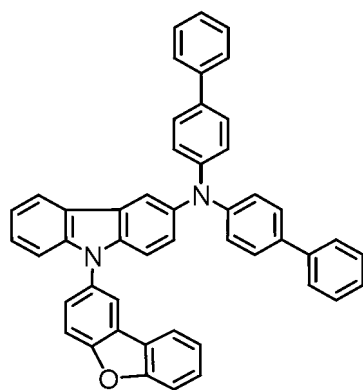


272

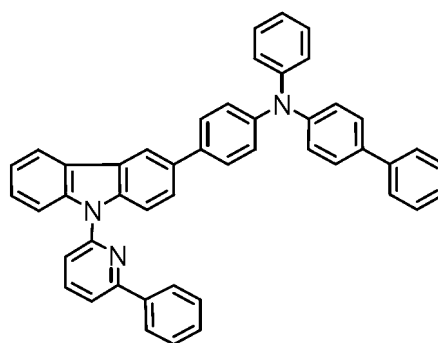


273

20



274



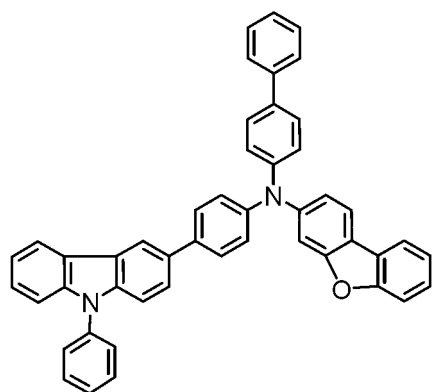
275

30

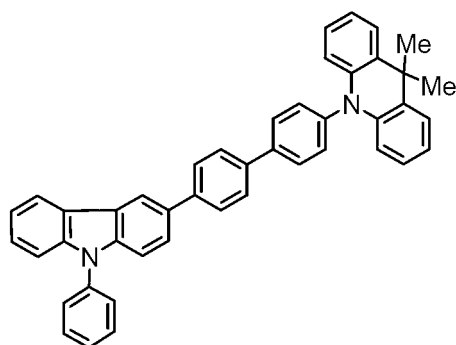
40

【 0 1 5 5】

【化 6 6】

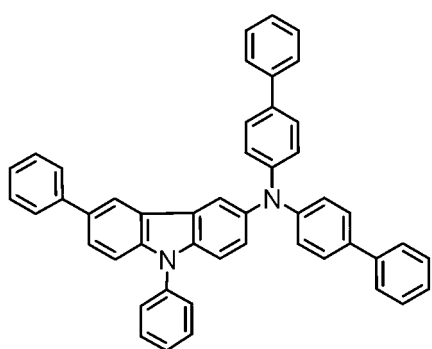


276

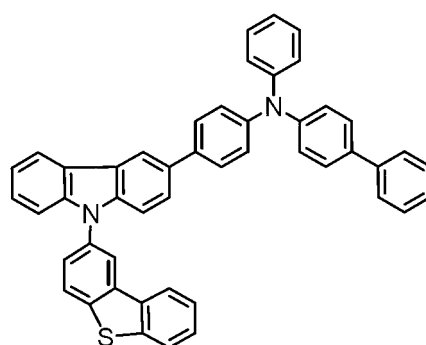


277

10

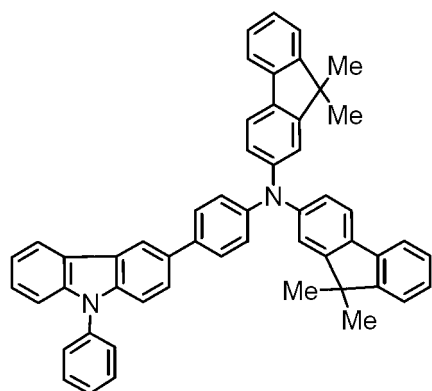


278

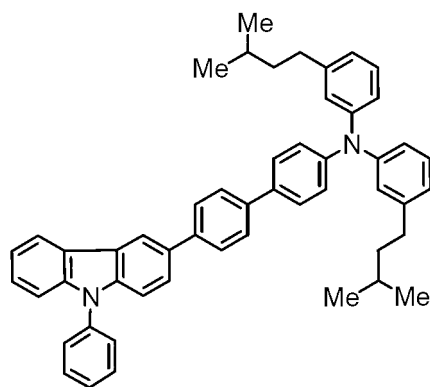


279

20



280



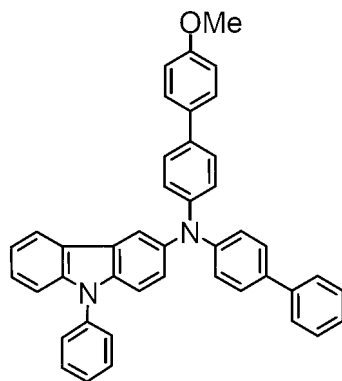
281

30

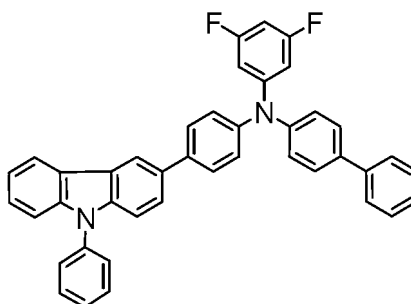
40

【 0 1 5 6】

【化 6 7】

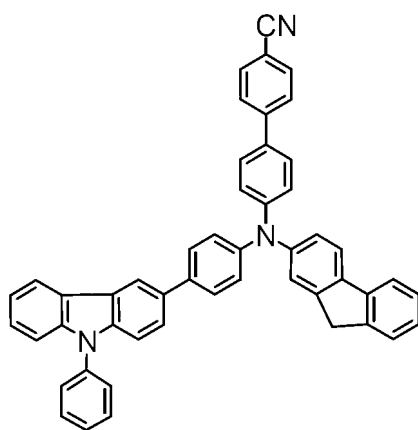


282

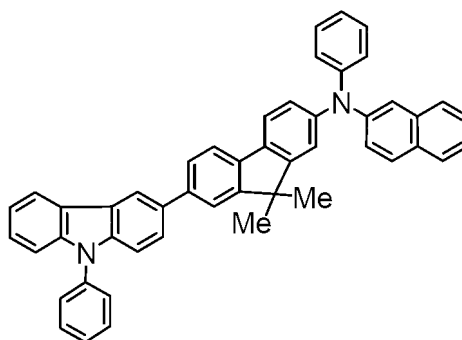


283

10



284



285

20

【0157】

30

また、正孔輸送帯域 201 における、第 3 の層 205 は、前記一般式 (9) で表わされる化合物を含んでもよい。第 3 の層 205 に含まれる一般式 (9) で表わされる化合物は、上述した化合物 270 乃至化合物 285 であってもよい。

【0158】

以上に述べた本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子 200 を構成する各電極及び各層は、真空蒸着、スパッタ、各種塗布など材料に応じた適切な成膜方法を選択することにより、形成することができる。尚、上述したように、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いて形成される第 2 の層 207 は、真空蒸着により形成される。

【0159】

40

有機エレクトロルミネッセンス素子 200 においては、正孔輸送帯域 201 において、陽極 104 側に LUMO 準位が -9.0 eV 以上 -4.0 eV 以下である電子受容性化合物を含む第 1 の層 203 を少なくとも一層配置し、発光層 110 に隣接して、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む第 2 の層 207 を少なくとも一層配置する。本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子 200 は、電子耐性が高く、アモルファス性が向上された、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が、正孔輸送帯域 201 における、発光層 110 に隣接して配置された正孔輸送性の第 2 の層 207 に含まれることにより、発光層 110 で消費されなかった電子から陽極 104 と第 2 の層 207 との間の正孔輸送性の層を保護することができる。また、発光層 110 で発生した励起状態のエネルギーが陽極 104 と第 2 の層 207 との間の正孔輸送性の層に拡散

50

することを防止し、有機エレクトロルミネッセンス素子200全体の電荷バランスを整えることができる。さらに、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む第2の層207が発光層110に隣接して配置されることにより、第1の層203に含まれる電子受容性化合物が発光層110に拡散することを抑制することができる。

【0160】

第2の層207に含まれる本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料としては、一般式(1)におけるジベンゾヘテロール部位がジベンゾフランであり、L₃にm-フェニレン基またはp-フェニレン基が含まれ、且つアミン部位にナフチル基、ビフェニル基、ナフチルフェニル基が置換されている化合物が好ましい。第2の層207に含まれる本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料としては、特に、一般式(4)または(6)で表わされ、アミン部位にナフチル基、ビフェニル基、ナフチルフェニル基が置換されている化合物が好ましい。

10

【0161】

有機エレクトロルミネッセンス素子200においては、電子受容性化合物を含む第1の層203が、陽極104側、特に陽極104に隣接して配置されることが好ましい。陽極104に隣接して電子受容性化合物を含む層を配置することにより、陽極104からの正孔注入性を向上させることができる。また、一般式(9)で表される、カルバゾリル基を有する正孔輸送性化合物が第1の層203に含まれる場合、電荷輸送性及び通電耐久性を向上することができる。

【0162】

有機エレクトロルミネッセンス素子200においては、一般式(9)で表される、カルバゾリル基を有する化合物を含む第3の層205が、第1の層203よりも発光層110側に配置されることが好ましい。正孔輸送帯域201にカルバゾリル基を有する化合物を含むことにより、電荷輸送性及び通電耐久性を向上することができる。また、第3の層205が一般式(9)で表される化合物を含むことにより、発光層110で消費されなかった電子から陽極104と第3の層205との間にある正孔輸送性の層を保護するとともに、発光層110で発生した励起状態のエネルギーが陽極104と第3の層205との間にある正孔輸送性の層に拡散するのを防止することができる。また、カルバゾリル基を有するアミン誘導体である一般式(9)で表される化合物は、第1の層203に含まれる電子受容性化合物が発光層110に拡散することを抑制する。

20

30

【0163】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子200においては、上述した本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を発光層110に隣接する第2の層207の材料として用い、さらに、電子受容性化合物を第1の層203を陽極側104に配置し、第1の層203と第2の層207との間に一般式(9)で表わされる化合物を含む第3の層205を配置することにより、有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化及び長寿命化を実現することができる。

【0164】

尚、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、TFTを用いたアクティブマトリクス有機エレクトロルミネッセンス発光装置にも適用することができる。

40

【0165】

(製造方法)

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0166】

化合物17の合成方法

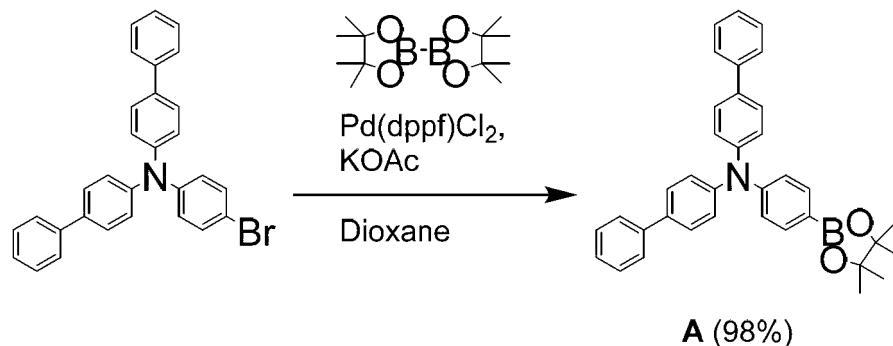
(化合物Aの合成)

まず、以下に示す化合物Aを合成した。Ar雰囲気下で、2LのフラスコにN-[1,1'-biphenyl]-4-yl-N-(4-bromophenyl)-[1,1'-Biphenyl]-4-amineを53.8g、Pd(dppf)Cl₂・CH₂Cl₂を6.46g、KOAcを33.3g、及びBis(pinacolato)diboronを33.0g入れ、750mLのDioxane溶媒中で

50

真空脱気後に100℃で12時間攪拌した。その後溶媒留去し、CH₂Cl₂と水を加え、有機相を分取し、硫酸マグネシウム及び活性白土を加えた後に、吸引ろ過し溶媒留去を行った。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタン／ヘキサンの混合溶媒を使用）で精製を行い、白色固体の化合物Aを56.8g（収率98％）得た。FAB-MS測定によって測定された化合物Aの分子量は523であった。

【化 6 8】



10

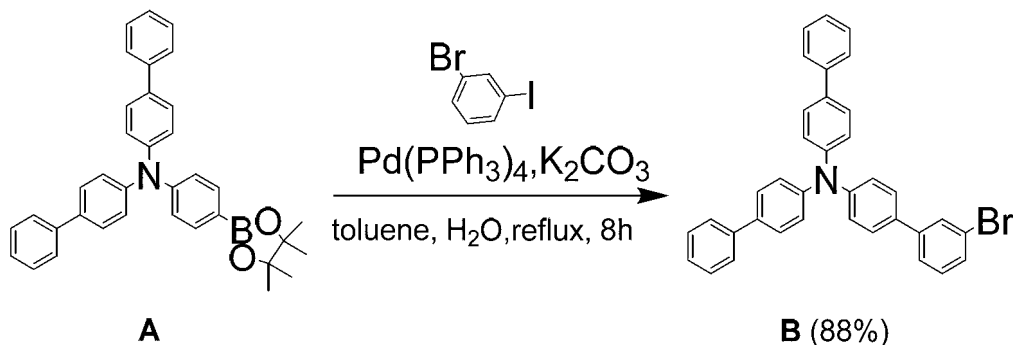
【 0 1 6 7】

（化合物Bの合成）

次に、以下に示す化合物Bを合成した。Ar雰囲気下、300mLの三つ口フラスコに、化合物Aを10.0g、1-iodo-3-bromobenzeneを6.00g、Pd(PPh₃)₄を1.54g、及び炭酸カリウムを5.25g加えて、トルエン450mL及び水60mLの混合溶媒中で90℃で8時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンとの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物Bを9.29g（収率88％）得た。FAB-MS測定によって測定された化合物Bの分子量は553であった。

20

【化 6 9】



30

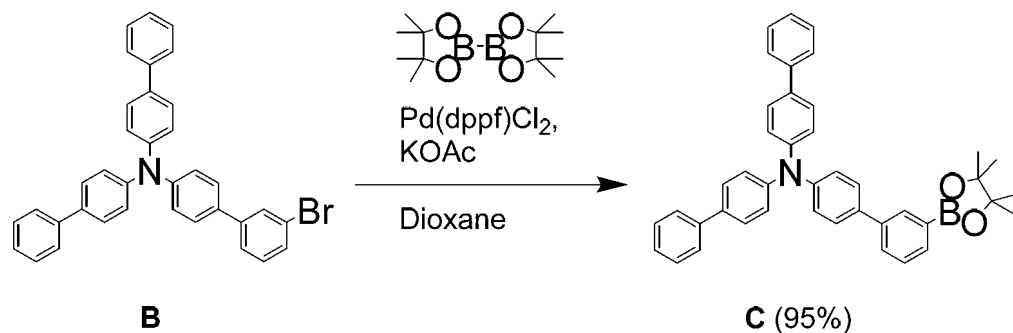
【 0 1 6 8】

（化合物Cの合成）

次に以下に示す化合物Cを合成した。N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-N-(4-bromophenyl)-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの代わりに化合物Bを4.00g使用したこと以外は、上述の化合物Aの合成と同様な方法で薄黄色固体の化合物Cを4.12g（収率95％）得た。FAB-MS測定によって測定された化合物Cの分子量は599であった。

40

【化 7 0】



10

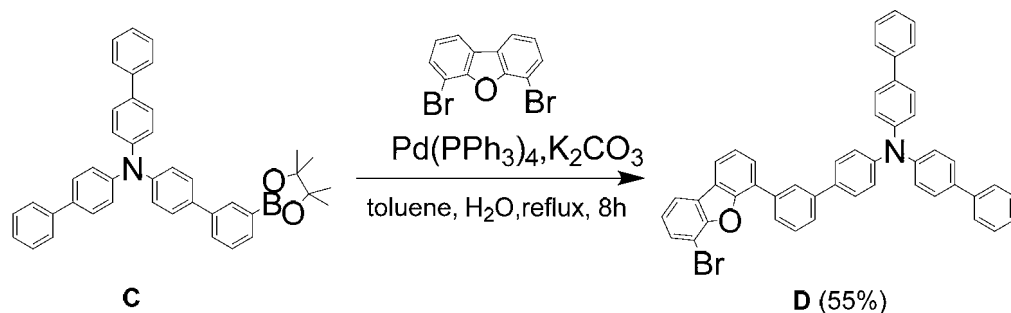
【0169】

(化合物Dの合成)

次に以下に示す化合物Dを合成した。Ar雰囲気下、300mLの三つ口フラスコに、化合物Cを2.70g、4,6-dibromodibenzofuranを3.70g、Pd(PPh₃)₄を0.34g、炭酸カリウムを1.25g加えて、トルエン50mL及び水20mLの混合溶媒中で90℃で8時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物Dを1.78g（収率55%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Dの分子量は686であった。

20

【化 7 1】



30

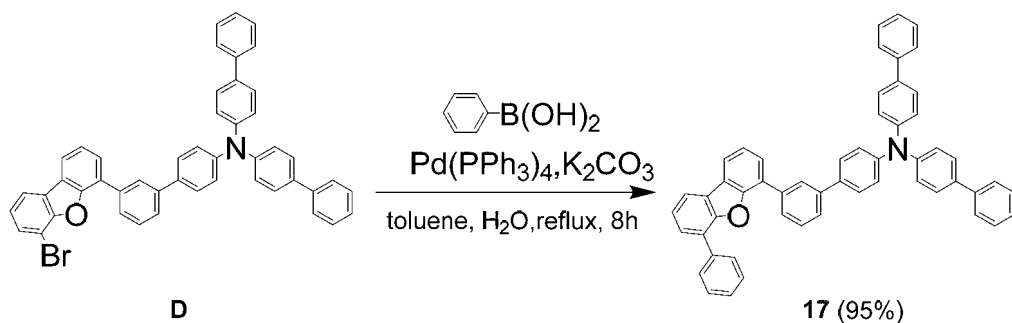
【0170】

(化合物17の合成)

次に、Ar雰囲気下、300mLの三つ口フラスコに、化合物Dを7.18g、フェニルボロン酸を2.10g、Pd(PPh₃)₄を1.14g、炭酸カリウムを3.55gを加えて、トルエン150mL及び水60mLの混合溶媒中で90℃で8時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物17を6.79g（収率95%）得た。

40

【化 7 2】



50

【0171】

FAB-MS測定により測定された化合物17の分子量は、715であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物17のケミカルシフト値 δ は、7.85 (d, 2H, $J = 7.80 \text{ Hz}$)、7.81 (d, 2H, $J = 7.90 \text{ Hz}$)、7.70 (s, 1H)、7.58-7.50 (m, 19H)、7.48-7.41 (m, 7H)、6.69-6.65 (m, 6H)であった。

【0172】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

10

【0173】

化合物5の合成方法

以上に述べた化合物17の合成方法において、4,6-dibromodibenzofuranの代わりに4,6-dibromodibenzothiopheneを用いたこと以外は化合物17の合成方法と同様に化合物5を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物5の分子量は、732であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物5のケミカルシフト値 δ は、7.89 (d, 2H, $J = 7.90 \text{ Hz}$)、7.83 (d, 2H, $J = 7.70 \text{ Hz}$)、7.72 (s, 1H)、7.68-7.55 (m, 19H)、7.48-7.41 (m, 7H)、6.71-6.67 (m, 6H)であった。以上の結果より、合成された白色固体は、化合物5であることが同定された。

20

【0174】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0175】

化合物77の合成方法

以上に述べた化合物17の合成方法において、4,6-dibromodibenzofuranの代わりに2,8-dibromodibenzothiopheneを用いたこと以外は化合物17の合成と同様に化合物77を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物77の分子量は、732であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物77のケミカルシフト値 δ は、7.80 (d, 2H, $J = 7.90 \text{ Hz}$)、7.73 (d, 2H, $J = 7.70 \text{ Hz}$)、7.70 (d, 2H, $J = 7.90 \text{ Hz}$)、7.79 (s, 1H)、7.64-7.55 (m, 17H)、7.48-7.41 (m, 7H)、6.71-6.67 (m, 6H)であった。以上の結果より、合成された白色固体は、化合物77であることが同定された。

30

【0176】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0177】

化合物89の合成方法

以上に述べた化合物17の合成方法において、4,6-dibromodibenzofuranの代わりに2,8-dibromodibenzofuranを用いたこと以外は化合物17の合成と同様に化合物89を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物89の分子量は、715であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物89のケミカルシフト値 δ は、7.82 (d, 2H, $J = 7.84 \text{ Hz}$)、7.78 (d, 2H, $J = 7.90 \text{ Hz}$)、7.70 (d, 2H, $J = 7.88 \text{ Hz}$)、7.68 (s, 1H)、7.66-7.57 (m, 17H)、7.51-7.41 (m, 7H)、6.68-6.64 (m, 6H)であった。以上の結果より、合成された白色固体は、化合物89であることが同定された。

40

【0178】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0179】

50

化合物 1 4 1 の合成方法

以上に述べた化合物 1 7 の合成方法において、4,6-dibromodibenzofuranの代わりに3,7-dibromodibenzofuranを用いたこと以外は化合物 1 7 の合成と同様に化合物 1 4 1 を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物 1 4 1 の分子量は、715であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)測定で測定された化合物 1 4 1 のケミカルシフト値δは、7.95 (d, 2H, J = 7.80 Hz)、7.75 (d, 2H, J = 7.70 Hz)、7.70 (s, 1H)、7.64 (d, 2H, J = 7.90 Hz)、7.57-7.51 (m, 19H)、7.48-7.40 (m, 5H)、6.72-6.65 (m, 6H)であった。以上の結果より、合成された白色固体は、化合物 1 4 1 であることが同定された。

【0180】

10

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0181】

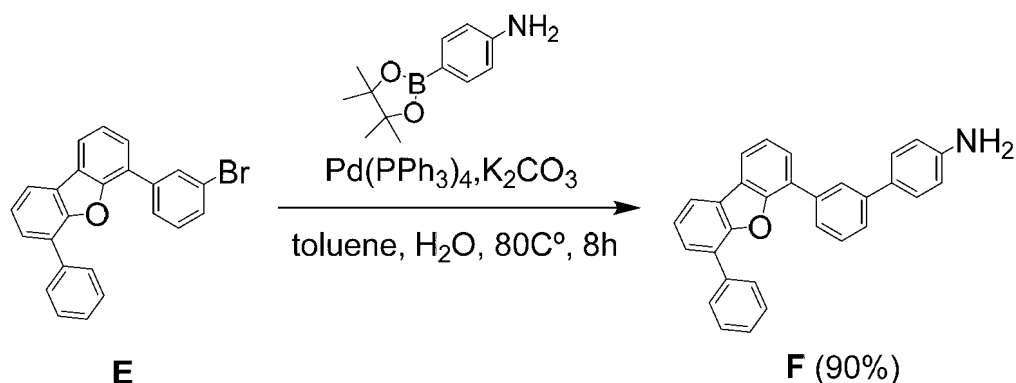
化合物 2 1 3 の合成方法

(化合物Fの合成)

まず、以下に示す化合物Fを合成した。Ar雰囲気下、1000mLの三つ口フラスコに、化合物Eを30.0g、4-(4,4,5,5-Tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)anilineを16.4g、Pd(PPh₃)₄を4.34g、K₃PO₄を31.8 g加えて、トルエン400mL及び水70mLの混合溶媒中で80℃で8時間加熱撹拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサン）の混合溶媒を使用して精製後、トルエン／アセトニトリル混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の化合物Fを27.7g（収率90%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Fの分子量は、411であった。

20

【化73】



30

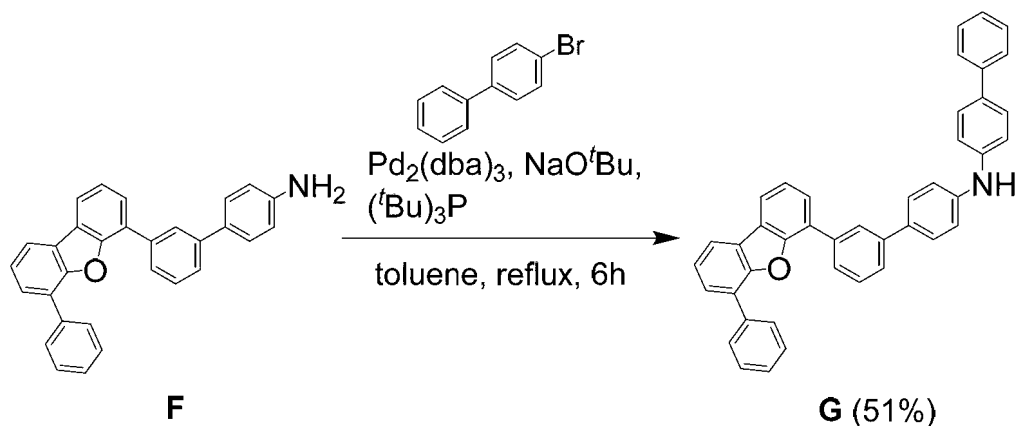
【0182】

(化合物Gの合成)

次に、以下に示す化合物Gを合成した。Ar雰囲気下、1000mLの三つ口フラスコに、化合物Fを25.0gと4-Bromobiphenylを14.2g、Pd₂(dba)₃を1.99g、トリ-tert-ブチルホスフィン（トリス-tert-ブチルホスフィン）を1.20g、NaOtBuを8.89gを加えて、300mLトルエンの混合溶媒中で8時間加熱還流撹拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／エタノール混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の化合物Gを17.5g（収率51%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Gの分子量は、564であった。

40

【化 7 4】



10

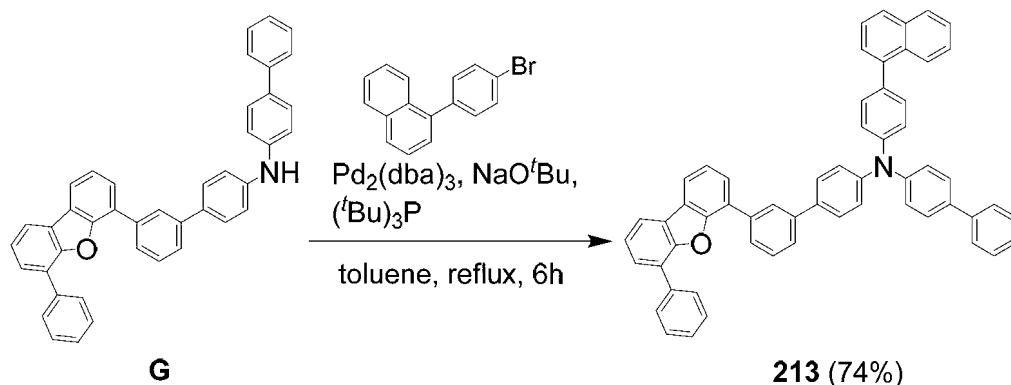
【0183】

(化合物 213 の合成)

次に、Ar雰囲気下、200mLの三口フラスコに、化合物Gを4.00gと1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンを2.0g、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ を0.31g、トリ-tert-ブチルホスフィン $(\text{tBu})_3\text{P}$ を0.52g、 NaOtBu を1.09gを加えて、60mLトルエンの混合溶媒中で6時間加熱還流撹拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／エタノール混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の化合物213を4.025g（収率74%）得た。

20

【化 7 5】



30

【0184】

FAB-MS測定により測定された化合物213の分子量は、766であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物213のケミカルシフト値 δ は、8.31 (s, 1H)、8.16 (d, 1H, $J=6.10\text{ Hz}$)、7.99 (d, 1H, $J=7.00\text{ Hz}$)、7.96 (d, 1H, $J=7.20\text{ Hz}$)、7.96-7.88 (m, 3H)、7.87-7.82 (m, 2H)、7.73 (d, 1H, $J=7.10\text{ Hz}$)、7.67-7.53 (m, 10H)、7.51-7.42 (m, 9H)、7.37-7.25 (m, 10H)であった。

40

【0185】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0186】

化合物 169 の合成

以上に述べた化合物17の合成方法における化合物Dの合成において、化合物Cの代わりに化合物Aを用いて中間体を合成し、該中間体を用いて化合物17の合成と同様に化合物

50

169を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物169の分子量は、640であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物169のケミカルシフト値 δ は、8.01-7.89 (m, 6H)、7.68-7.61 (m, 6H)、7.56-7.41 (m, 12H)、7.39-7.27 (m, 9H)であった。

【0187】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0188】

化合物181の合成

以上に述べた化合物169の合成方法における中間体の合成において、化合物Aの代わりにN,N-bis([1,1'-biphenyl]-4-yl)-4'-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-[1,1'-Biphenyl]-4-amineを用いたこと以外は化合物169の合成と同様に化合物181を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物181の分子量は、716であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物181のケミカルシフト値 δ は、8.03-7.85 (m, 6H)、7.71-7.67 (m, 8H)、7.53-7.40 (m, 14H)、7.37-7.29 (m, 9H)であった。

【0189】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0190】

化合物216の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに1-ヨードナフタレンを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物216を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物216の分子量は、690であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物216のケミカルシフト値 δ は、8.27 (s, 1H)、8.03 (d, 1H, $J=7.10\text{ Hz}$)、7.99-7.88 (m, 3H)、7.86-7.78 (m, 4H)、7.72 (d, 1H, $J=6.80\text{ Hz}$)、7.62 (d, 1H, $J=6.80\text{ Hz}$)、7.58-7.38 (m, 16H)、7.32-7.22 (m, 3H)、7.20-7.09 (m, 5H)であった。

【0191】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

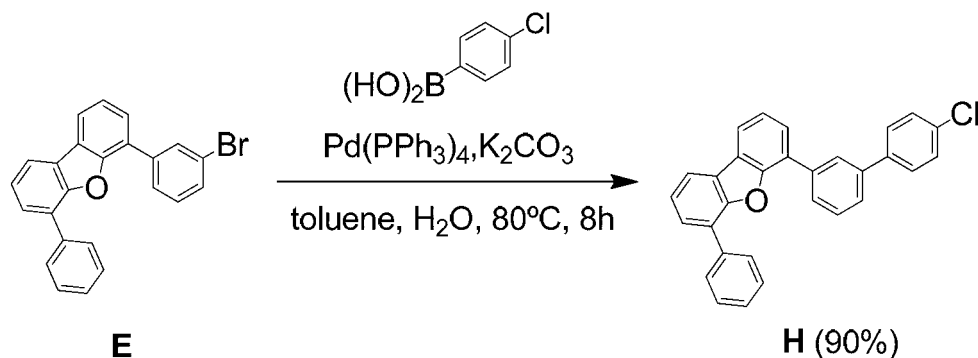
【0192】

化合物13の合成

(化合物Hの合成)

まず、以下に示す化合物Hを合成した。Ar雰囲気下、1000mLの三つ口フラスコに、化合物Eを29.0g、4-クロロフェニルボロン酸を13.4g、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ を3.14g、 K_2CO_3 を38.8g加えて、トルエン300mL及び水60mLの混合溶媒中で80℃で4時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン/アセトニトリル混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物Hを28.2g（収率90%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Hの分子量は、430であった。

【化 7 6】



10

【0193】

(化合物 1 3 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物 H を用い、化合物 G の代わりに N-Phenyl-1-naphthylamine を用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 1 3 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 1 3 の分子量は、614 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 1 3 のケミカルシフト値 δ は、8.27–8.26 (2 H, m), 8.02–7.89 (6 H, m), 7.83–7.78 (2 H, m), 7.72 (2 H, d, $J = 6.0 \text{ Hz}$), 7.63 (2 H, d, $J = 6.6 \text{ Hz}$), 7.56–7.39 (11 H, m), 7.27–7.21 (3 H, m), 7.14–7.09 (3 H, m), 7.06 (2 H, d, $J = 7.8 \text{ Hz}$), 6.97 (1 H, d, $J = 6.0 \text{ Hz}$) であった。

20

【0194】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0195】

化合物 2 3 の合成

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに 2-ブロモナフタレンを用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 3 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 2 3 の分子量は、690 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 3 のケミカルシフト値 δ は、8.25 (s, 1 H)、8.00 (d, 1 H, $J = 7.10 \text{ Hz}$)、7.99–7.88 (m, 3 H)、7.82–7.75 (m, 4 H)、7.73 (d, 1 H, $J = 6.90 \text{ Hz}$)、7.62 (d, 1 H, $J = 6.80 \text{ Hz}$)、7.60–7.48 (m, 16 H)、7.32–7.22 (m, 3 H)、7.18–7.11 (m, 5 H) であった。

30

【0196】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

40

【0197】

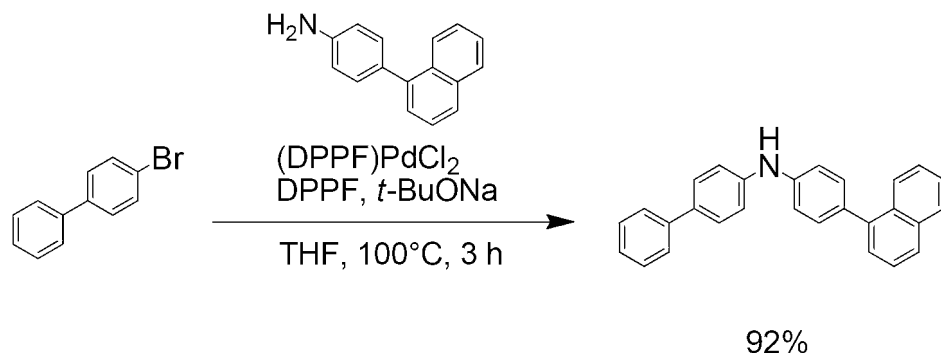
化合物 1 7 0 の合成

(N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amine の合成)

まず、以下に示す N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amine を合成した。Ar 雰囲気下、300mL の三口フラスコに、4-ブロモビフェニルを 4.22g と 1-(4-アミノフェニル)ナフタレンを 4.05g、(DPPF)PdCl₂ を 0.78 g、DPPF を 1.60g、NaOtBu を 1.77g を加えて、120mL の THF の混合溶媒中で 3 時間加熱還流撹拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／エタノール混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の目的物を 6.31g（収率 92%）得た。

50

【化 7 7】



10

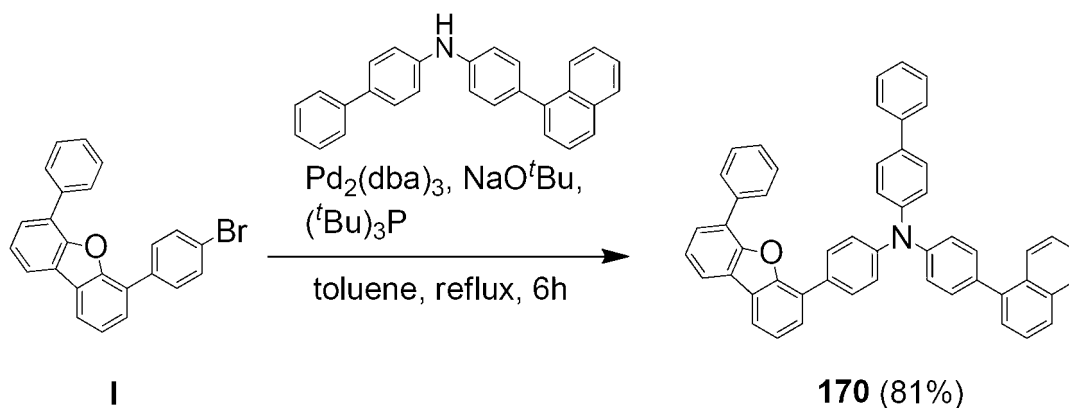
【0198】

(化合物 170 の合成)

次に、Ar雰囲気下、200mLの三つ口フラスコに、化合物Iを3.59gとN-[4-(1-naphthaleny)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineを2.71g、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ を0.30g、トリ-tert-ブチルホスフィン $\text{P}(\text{t-Bu})_3$ を0.54g、 NaOtBu を2.18gを加えて、65mLトルエンの混合溶媒中で4時間加熱還流攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／エタノール混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の化合物170を4.19g（収率81%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物170の分子量は、689であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物170のケミカルシフト値 δ は、8.01-7.92 (m, 7H)、7.69-7.42 (m, 20H)、7.38-7.33 (m, 8H)であった。

20

【化 7 8】



30

【0199】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

40

【0200】

化合物 217 の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに1-ヨードナフタレンを用い、化合物Gの代わりに化合物Fを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物217を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物217の分子量は、664であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物217のケミカルシフト値 δ は、8.24 (t, 1H, $J = 1.2 \text{ Hz}$)、8.11 (d, 2H, $J = 8.6 \text{ Hz}$)、7.98-7.84 (m, 6H)、7.78-7.69 (m, 4H)、7.63-7.31 (m, 15H)、7.20 (t, 2H, $J = 7.5 \text{ Hz}$)、6.98 (t, 1H, $J = 7.4 \text{ Hz}$)、6.72 (d, 2H, $J = 8.7 \text{ Hz}$)であった。

50

。

【0201】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0202】

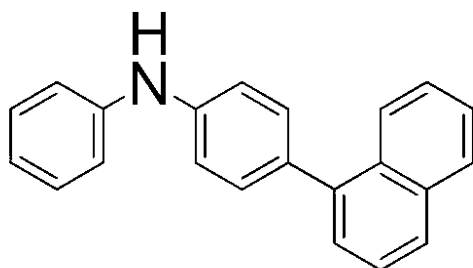
化合物218の合成

(N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-phenyl-4-amineの合成)

まず、以下に示すN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-phenyl-4-amineを合成した。以上に
述べたN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成方法において、4-
ブロモビフェニルの代わりにプロモベンゼンを用いたこと以外は同様な方法で合成した。
FAB-MS測定により測定された分子量は、295であった。

10

【化79】



20

【0203】

(化合物218の合成)

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Hを用い、化合物Gの代わりにN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-phenyl-4-amin
eを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物218を合成した。FAB-MS測定
により測定された化合物218の分子量は、690であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定
で測定された化合物218のケミカルシフト値 δ は、8.31 (s, 1H)、8.08 –
8.02 (m, 1H)、7.99 – 7.78 (m, 7H)、7.72 (d, 1H, $J = 7$
5 Hz)、7.64 – 7.21 (m, 24H)、7.09 (t, 1H, $J = 7.2$)で
あった。

30

【0204】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0205】

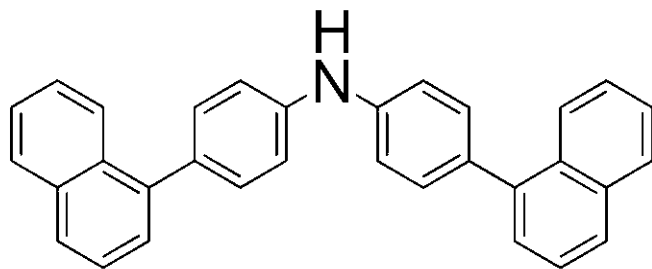
化合物220の合成

(4-(1-naphthalenyl)-N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-benzenamineの合成)

まず、以下に示す4-(1-naphthalenyl)-N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-benzenamineを
合成した。以上に述べたN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成
方法において、4-ブロモビフェニルの代わりに1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンを用いた
こと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS測定により測定された分子量は、421であ
った。

40

【化 8 0】



10

【0 2 0 6】

(化合物 2 2 0 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物Hを用い、化合物Gの代わりに4-(1-naphthalenyl)-N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-benzenamineを用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 2 0 を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物 2 2 0 の分子量は、8 1 6 であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)測定で測定された化合物 2 2 0 のケミカルシフト値δは、8. 7 8 (d, J = 7. 8 Hz, 2 H), 8. 7 0 (d, J = 7. 8 Hz, 2 H), 8. 2 9 (d, J = 8. 1 Hz, 2 H), 8. 2 4 (t, J = 1. 5 Hz, 1 H), 7. 9 5 (d, J = 7. 8 Hz, 2 H), 7. 8 4 (d, J = 7. 8 Hz, 2 H), 7. 7 9 (d, J = 8. 0 Hz, 1 H), 7. 7 3-7. 3 8 (m, 2 0 H), 7. 1 8 (t, J = 7. 5 Hz, 2 H), 6. 9 8 (t, J = 7. 5 Hz, 1 H), 6. 8 9 (d, J = 7. 8 Hz, 2 H) であった。

20

【0 2 0 7】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のように合成することができる。

【0 2 0 8】

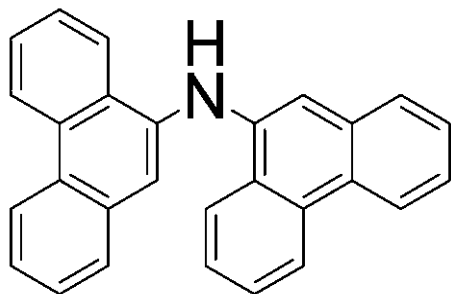
化合物 2 2 2 の合成

(N-9-phenanthrenyl-9-phenanthrenamine の合成)

まず、以下に示すN-9-phenanthrenyl-9-phenanthrenamineを合成した。以上に述べたN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成方法において、4-ブロモビフェニルの代わりに9-ブロモフェナンスレン、また1-(4-アミノフェニル)ナフタレンの代わりに9-アミノフェナンスレンを用いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS測定により測定された分子量は、3 6 9 であった。

30

【化 8 1】



40

【0 2 0 9】

(化合物 2 2 2 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物Hを用い、化合物Gの代わりにN-9-phenanthrenyl-9-phenanthrenamineを用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 2 2 を合成した。FAB-MS測定により

50

測定された化合物 2 2 2 の分子量は、7 6 4 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 2 2 のケミカルシフト値 δ は、8. 7 8 (d, $J = 7. 8 \text{ Hz}$, 2 H), 8. 7 0 (d, $J = 7. 8 \text{ Hz}$, 2 H), 8. 2 9 (d, $J = 8. 1 \text{ Hz}$, 2 H), 8. 2 4 (t, $J = 1. 5 \text{ Hz}$, 1 H), 7. 9 5 (d, $J = 7. 8 \text{ Hz}$, 2 H), 7. 8 4 (d, $J = 7. 8 \text{ Hz}$, 2 H), 7. 7 9 (d, $J = 8. 0 \text{ Hz}$, 1 H), 7. 7 3 – 7. 3 8 (m, 2 0 H), 7. 1 8 (t, $J = 7. 5 \text{ Hz}$, H), 6. 9 8 (t, $J = 7. 5 \text{ Hz}$, 1 H), 6. 8 9 (d, $J = 7. 8 \text{ Hz}$, 2 H) であった。

【0 2 1 0】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

10

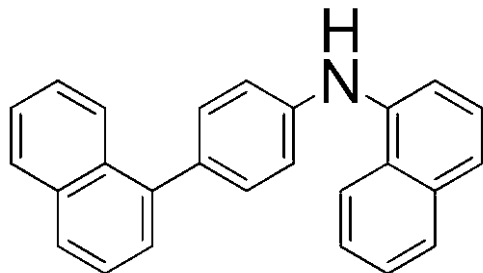
【0 2 1 1】

化合物 2 2 5 の合成

(N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-1-Naphthalenamine の合成)

まず、以下に示す N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-1-Naphthalenamine を合成した。以上に述べた N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amine の合成方法において、4-プロモビフェニルの代わりに 1-ヨードナフタレンを用いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS 測定により測定された分子量は、3 4 5 であった。

【化 8 2】



20

【0 2 1 2】

(化合物 2 2 5 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-プロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物 E を使い、化合物 G の代わりに N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-1-Naphthalenamine を用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 2 5 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 2 2 5 の分子量は、6 6 4 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 2 5 のケミカルシフト値 δ は、8. 0 8 (d, 1 H, $J = 8. 1 \text{ Hz}$)、7. 9 8 – 7. 8 4 (m, 7 H)、7. 8 3 – 7. 7 5 (m, 3 H)、7. 6 4 (d, 1 H, $J = 7. 5 \text{ Hz}$)、7. 5 6 (d, 1 H, $J = 7. 8 \text{ Hz}$)、7. 5 4 – 7. 4 3 (m, 8 H)、7. 4 3 – 7. 3 3 (m, 6 H)、7. 2 5 (m, 3 H)、7. 1 6 (d, 2 H, $J = 8. 4 \text{ Hz}$)、7. 1 2 (m, 1 H) であった。

30

【0 2 1 3】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

40

【0 2 1 4】

化合物 2 2 6 の合成

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-プロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物 E を使い、化合物 G の代わりに 4-(1-naphthalenyl)-N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-benzenamine を用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 2 6 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 2 2 6 の分子量は、7 4 0 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 2 6 のケミカルシフト値 δ は、8. 0 2 (d, 2 H, $J = 8. 4$)、7. 9 6 – 7. 8 1 (m, 9 H)、7. 6 9 – 7. 5 6 (m, 3 H

50

）、7.54－7.30（m，23H）であった。

【0215】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0216】

化合物229の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Iを用い、化合物Gの代わりに1,1'-Dinaphthylamineを用いたこと以外は化合
物213の合成と同様に化合物229を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物
229の分子量は、588であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)測定で測定された化合物22
9のケミカルシフト値δは、8.12（d，2H，J=8.70Hz）、7.95－7.
86（m，6H）、7.77－7.73（m，4H）、7.65（dd，1H，J=1.
20，7.60Hz）、7.58（dd，1H，J=1.20，7.60Hz）、7.5
2－7.47（m，2H）、7.46－7.28（m，11H）、6.81（d，1H，
J=9.00Hz）であった。

10

【0217】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0218】

化合物231の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Iを用い、化合物Gの代わりにN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-1-Naphthalena
mineを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物231を合成した。FAB-MS
測定により測定された化合物231の分子量は、664であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)
測定で測定された化合物231のケミカルシフト値δは、8.09（d，J=8.0Hz
，1H），8.05（d，J=8.1Hz，1H），8.00－7.81（m，10H）
，7.66（d，J=7.8Hz，1H），7.62（d，J=7.8Hz，1H），7
.60－7.33（m，15H），7.29－7.2（m，4H）であった。

20

【0219】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

30

【0220】

化合物232の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Iを用い、化合物Gの代わりに4-(1-naphthalenyl)-N-[4-(1-naphthalenyl)ph
enyl]-benzenamineを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物232を合成
した。FAB-MS測定により測定された化合物232の分子量は、740であった。また、¹
H-NMR(CDCl₃)測定で測定された化合物232のケミカルシフト値δは、8.10（m，
2H）、7.95－8.05（m，7H）、7.87（d，2H，J=7.90Hz）、
7.70（dd，1H，J₁=1.20Hz，J₂=3.70Hz）、7.67（dd，
1H，J₁=1.20Hz，J₂=3.70Hz）、7.58－7.34（m，21H）
、7.24－7.28（m，2H）、7.17（d，1H，J=7.10Hz）であった
。

40

【0221】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0222】

化合物243の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに1-(3-ブロモフェニル)ナフタレンを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に

50

化合物 2 4 3 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 2 4 3 の分子量は、7 6 6 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 4 3 のケミカルシフト値 δ は、8. 2 9 (t, 1 H, $J = 1. 2 \text{ Hz}$)、8. 0 1 - 7. 8 1 (m, 8 H)、7. 7 3 (dd, 1 H, $J = 7. 6 2 \text{ Hz}$)、7. 6 6 - 7. 4 0 (m, 1 8 H)、7. 3 5 - 7. 2 8 (m, 8 H)、7. 2 2 - 7. 1 6 (m, 3 H) であった。

【0 2 2 3】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

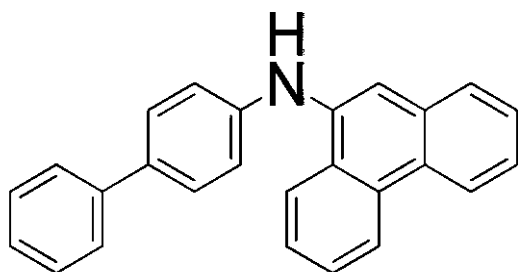
【0 2 2 4】

化合物 2 4 4 の合成

(N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-9-phenanthrenamine の合成)

まず、以下に示す N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-9-phenanthrenamine を合成した。以上に述べた N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amine の合成方法において、1-(4-アミノフェニル)ナフタレンの代わりに 9-アミノフェナンスレンを用いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS 測定により測定された分子量は、3 4 5 であった。

【化 8 3】



【0 2 2 5】

(化合物 2 4 4 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物 H を使い、化合物 G の代わりに N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-9-phenanthrenamine を用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 4 4 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 2 4 4 の分子量は、7 4 0 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 4 4 のケミカルシフト値 δ は、8. 7 8 (d, $J = 8. 0 \text{ Hz}$, 1 H), 8. 7 4 (d, $J = 8. 0 \text{ Hz}$, 1 H), 8. 2 8 (t, $J = 1. 2 \text{ Hz}$, 1 H), 8. 1 3 (d, $J = 8. 0 \text{ Hz}$, 1 H), 7. 9 7 (d, $J = 8. 0 \text{ Hz}$, 2 H), 7. 8 7 (d, $J = 8. 1 \text{ Hz}$, 2 H), 7. 8 1 (d, $J = 8. 1 \text{ Hz}$, 2 H), 7. 7 5 - 7. 3 6 (m, 1 9 H), 7. 3 4 - 7. 1 6 (m, 6 H), 7. 1 1 (t, $J = 7. 5 \text{ Hz}$, 2 H) であった。

【0 2 2 6】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

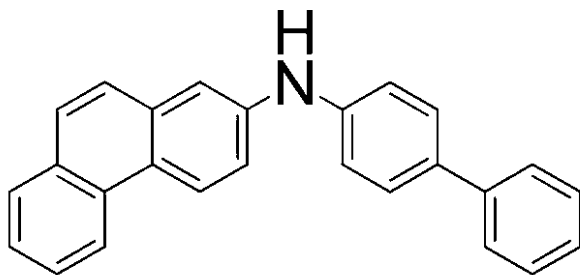
【0 2 2 7】

化合物 2 4 5 の合成

(N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-2-phenanthrenamine の合成)

まず、以下に示す N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-2-phenanthrenamine を合成した。以上に述べた N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amine の合成方法において、1-(4-アミノフェニル)ナフタレンの代わりに 2-アミノフェナンスレンを用いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS 測定により測定された分子量は、3 4 5 であった。

【化 8 4】



10

【0 2 2 8】

(化合物 2 4 5 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物Eを用い、化合物Gの代わりにN-[1,1'-biphenyl]-4-yl-2-phenanthrenamineを用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 4 5 を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物 2 4 5 の分子量は、664であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物 2 4 5 のケミカルシフト値 δ は、8.56 (d, $J = 7.8 \text{ Hz}$, 1 H), 8.52 (d, $J = 8.0 \text{ Hz}$, 1 H), 8.00–7.91 (m, 4 H), 7.83 (d, $J = 8.0 \text{ Hz}$, 1 H), 7.77 (t, $J = 1.5 \text{ Hz}$, 1 H), 7.71–7.24 (m, 25 H)であった。

20

【0 2 2 9】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0 2 3 0】

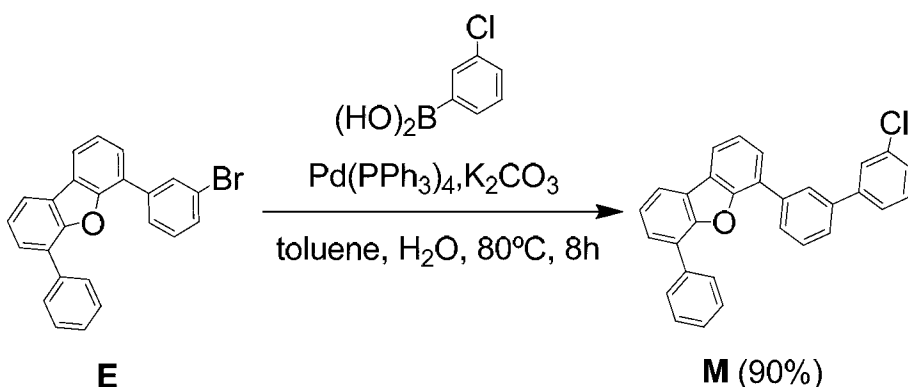
化合物 2 4 6 の合成

(化合物Mの合成)

まず、以下に示す化合物Mを合成した。Ar雰囲気下、1000mLの三つ口フラスコに、化合物Eを29.0g、3-クロロフェニルボロン酸を13.4g、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ を3.14g、 K_2CO_3 を38.8g加えて、トルエン300mL及び水60mLの混合溶媒中で80℃で4時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／アセトニトリル混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物Mを28.2g（収率90%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Mの分子量は、430であった。

30

【化 8 5】



40

【0 2 3 1】

(化合物 2 4 6 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物Mを用い、化合物Gの代わりにN-[4-(1-naphthaleny)phenyl]-[1,1'-Bipheny

50

1]-4-amineを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物246を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物246の分子量は766であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定された化合物246のケミカルシフト値 δ は、8.28 (s、1H)、8.05–7.80 (m、8H)、7.70 (t、2H、 $J=8.2\text{ Hz}$)、7.62–7.25 (m、28H)であった。

【0232】

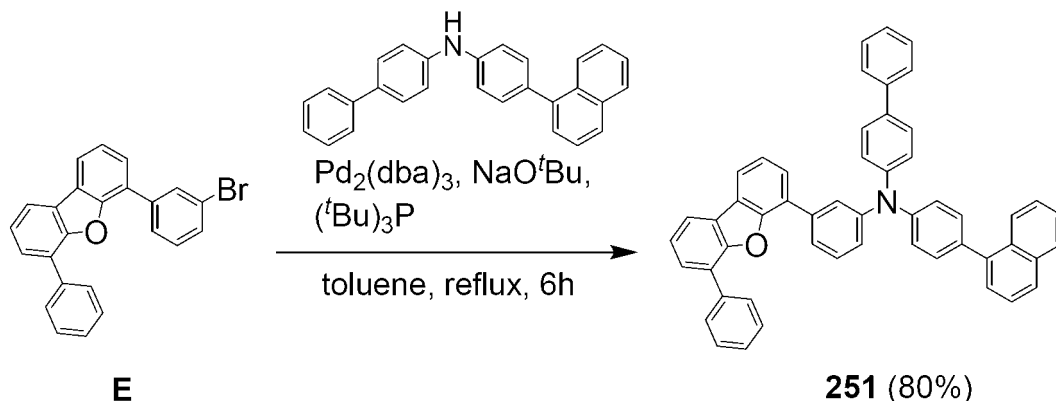
また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0233】

化合物251の合成

Ar雰囲気下、200mLの三口フラスコに、化合物Eを4.79gとN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineを3.71g、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ を0.40g、トリ-tert-ブチルホスフィン
を0.72g、 NaOtBu を2.90gを加えて、87mLトルエンの混合溶媒中で5時間加熱還流撹拌した。
空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカ
ラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トル
エン／エタノール混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物251を5.50g（収率80%）
得た。FAB-MS測定により測定された化合物251の分子量は、689であった。また、 1
 H-NMR (CDCl_3)測定で測定された化合物251のケミカルシフト値 δ は、8.00 (d,
 $J=8.4\text{ Hz}$, 1H), 7.98–7.93 (m, 4H), 7.89 (d, $J=8.1\text{ Hz}$, 1H), 7.83 (d, $J=8.4\text{ Hz}$, 1H), 7.79 (t, $J=2.1\text{ Hz}$, 1H), 7.68–7.65 (m, 2H), 7.62–7.53 (m, 3H), 7.52–7.26 (m, 22H)であった。

【化86】



【0234】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

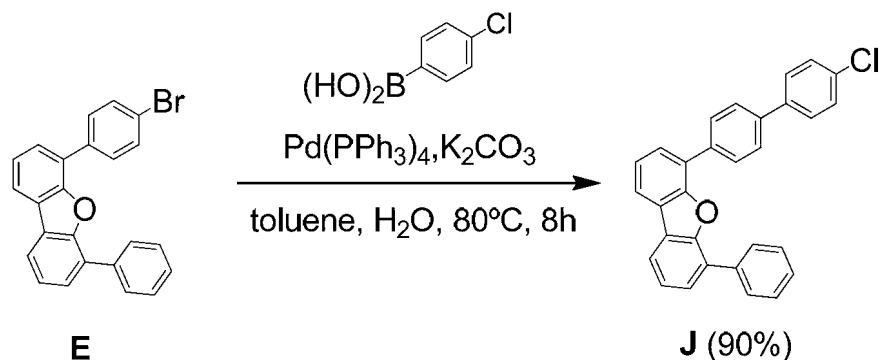
【0235】

化合物235の合成

（化合物Jの合成）

まず、以下に示す化合物Jを合成した。Ar雰囲気下、1000mLの三口フラスコに、化合物Eを27.6 g、4-クロロフェニルボロン酸を12.4g、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ を3.10g、 K_2CO_3 を37.8 g加えて、トルエン300mL及び水60mLの混合溶媒中で80℃で4時間加熱撹拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／アセトニトリル混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物Jを26.8 g（収率90%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Jの分子量は、430であった。

【化 8 7】



10

【0 2 3 6】

(化合物 2 3 5 の合成)

以上に述べた化合物 2 1 3 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物 J を用い、化合物 G の代わりに 1,1'-Dinaphthylamine を用いたこと以外は化合物 2 1 3 の合成と同様に化合物 2 3 5 を合成した。FAB-MS 測定により測定された化合物 2 3 5 の分子量は、664 であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 2 3 5 のケミカルシフト値 δ は、8.22-8.15 (4 H, m), 8.07 (2 H, d, $J = 7.80 \text{ Hz}$), 8.03-7.90 (4 H, m), 7.81-7.69 (8 H, m), 7.50-7.35 (9 H, m), 7.37-7.28 (6 H, m) であった。

20

【0 2 3 7】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0 2 3 8】

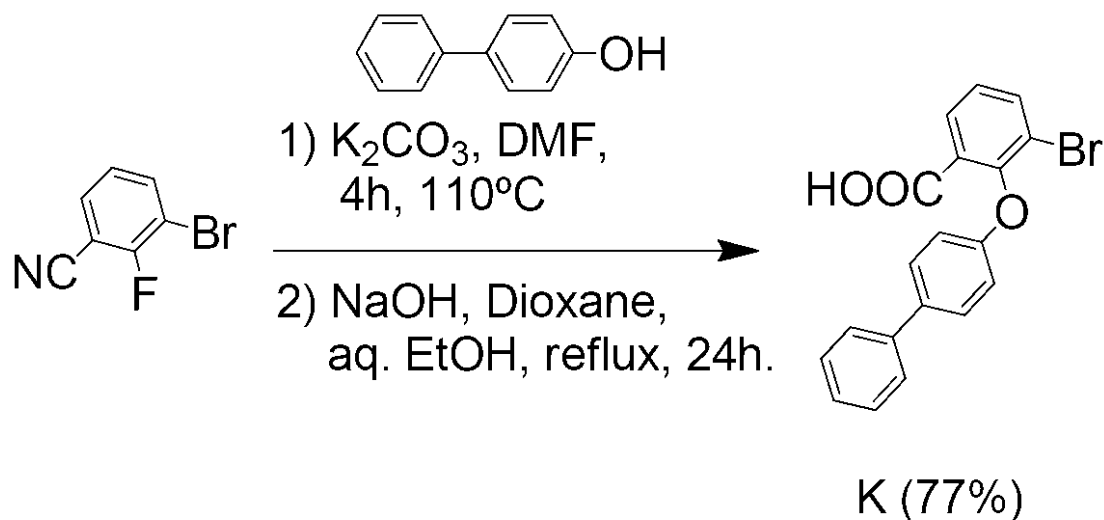
化合物 2 4 2 の合成

(化合物 K の合成)

まず、Ar 雰囲気下、200mL の三つ口フラスコに、4-フェニルフェノールを 8.51g と 3-bromo-2-fluorobenzonitrile を 10.0g、炭酸カリウムを 13.8g 加えて、72mL の DMF の混合溶媒中で 3 時間加熱還流撹拌した。空冷後、水と酢酸エチルを加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物に水酸化ナトリウムを 20.0g、ジオキサン 140mL、エタノール 140mL、水 60mL の混合溶媒中で 20 時間加熱還流撹拌した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ジクロロメタンとメタノールの混合溶媒を使用) で精製後、トルエン/エタノール混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の目的物 (化合物 K) を 14.2g (収率 77%) 得た。

30

【化 8 8】



10

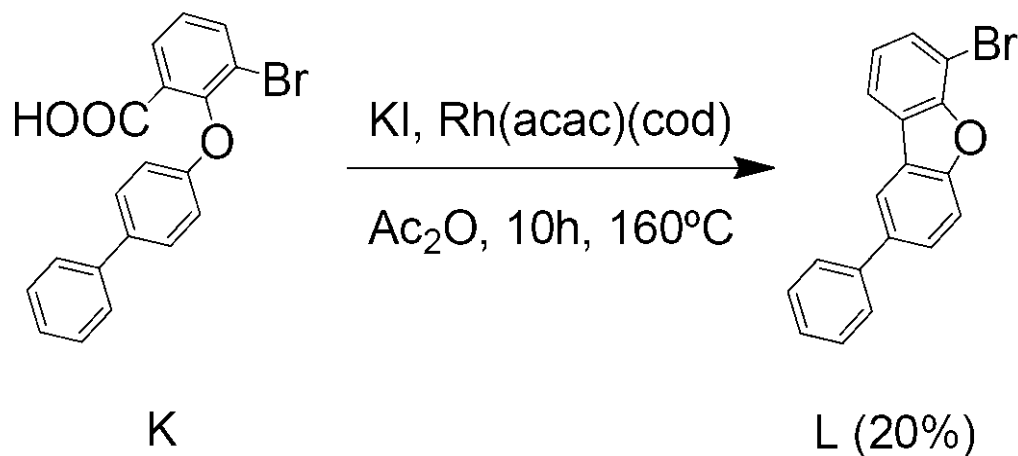
【0 2 3 9】

(化合物Lの合成)

次に、Ar雰囲気下、30mLの二つ口フラスコに、化合物Kを6.80gとRh(acac)(cod)を0.343g、ヨウ化カリウムを1.53g加えて、5.22mLの Ac_2O の溶媒中で 160°C で10時間加熱攪拌した。空冷後、水とクロロホルムを加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行い、黄色固体の目的物（化合物L）を1.19g（収率20%）得た。

20

【化 8 9】



30

40

【0 2 4 0】

(化合物242の合成)

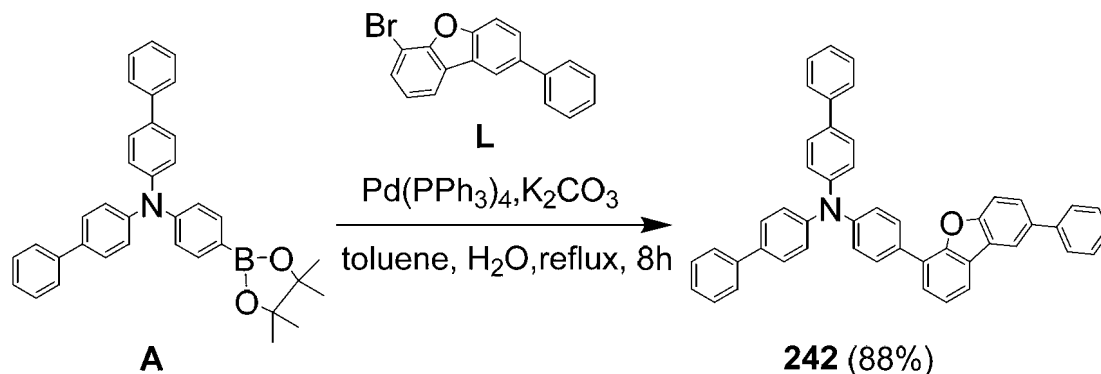
次に、以下に示す化合物242を合成した。Ar雰囲気下、300mLの三つ口フラスコに、化合物Aを1.51g、化合物Lを0.85g、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ を1.54g、及び炭酸カリウムを1.65g加えて、トルエン20mL及び水5mLの混合溶媒中で 90°C で8時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンとの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物242を1.48g（収率88%）得た。FAB-MS測定によって測定された242の分子量は640であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3)測定で測定され

50

た化合物 242 のケミカルシフト値 δ は、8.15 (d, 1H, $J = 1.20$ Hz)、8.01 (d, 1H, $J = 8.10$ Hz)、7.79 (d, 1H, $J = 0.90$ Hz)、7.71–7.68 (m, 3H)、7.65–7.51 (m, 13H)、7.47 (d, 1H, $J = 7.80$ Hz)、7.43–7.21 (m, 13H) であった。

【0241】

【化90】



10

【0242】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

20

【0243】

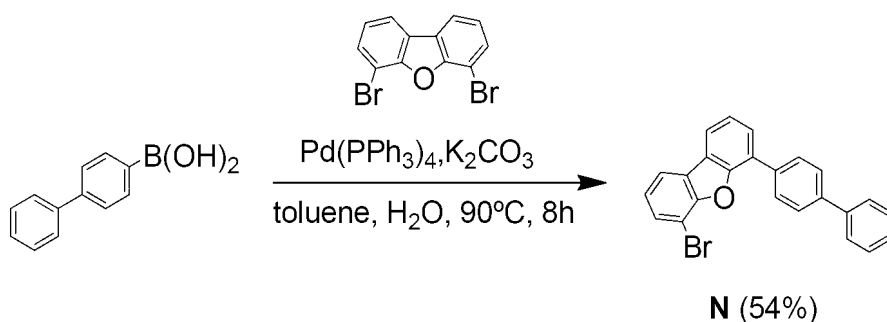
化合物 248 の合成方法

(化合物Nの合成)

まず、以下に示す化合物Nを合成した。Ar雰囲気下、300mLの三つ口フラスコに、ビフェニルボロン酸を1.02g、4,6-dibromodibenzofuranを3.70g、Pd(PPh₃)₄を0.24g、炭酸カリウムを1.00g加えて、トルエン50mL及び水20mLの混合溶媒中で90℃で8時間加熱攪拌した。空冷後、水を加えて有機層を分取し溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物Nを1.08g（収率54%）得た。FAB-MS測定により測定された化合物Nの分子量は399であった。

30

【化91】



40

【0244】

(化合物 248 の合成方法)

以上に述べた化合物Dの合成方法において、4,6-dibromodibenzofuranの代わりに化合物Nを用い、化合物Cの代わりに化合物Aを用いたこと以外は化合物Dの合成方法と同様に化合物248を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物248の分子量は、716であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)測定で測定された化合物248のケミカルシフト値 δ は、8.09 (d, 2H, $J = 8.40$ Hz)、8.01–7.89 (m, 4H)、7.74–7.72 (m, 3H)、7.68–7.42 (m, 17H)、7.37–7.21 (m, 11H) であった。以上の結果より、合成された白色固体は、化合物248であること

50

が同定された。

【0245】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0246】

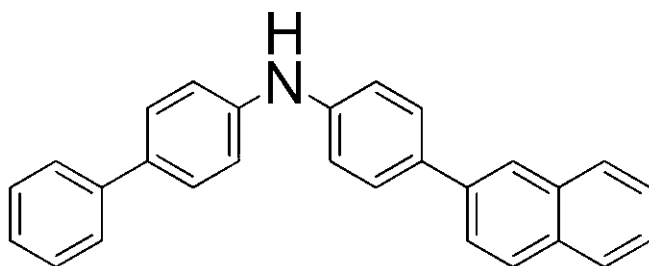
化合物253の合成

(N-[4-(2-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成)

まず、以下に示すN-[4-(2-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineを合成した。
以上に述べたN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成方法にお
いて、1-(4-アミノフェニル)ナフタレンの代わりに2-(4-アミノフェニル)ナフタレンを用
いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS測定により測定された分子量は、371
であった。

10

【化92】



20

【0247】

(化合物253の合成)

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Hを用い、化合物Gの代わりにN-[4-(2-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Bipheny
l]-4-amineを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物253を合成した。FA
B-MS測定により測定された化合物253の分子量は、766であった。また、¹H-NMR(C
DCl₃)測定で測定された化合物253のケミカルシフト値δは、8.32 (t, J = 1.5
Hz, 1H), 8.05 (s, 1H), 8.02-7.97 (m, 2H), 7.96-
7.82 (m, 6H), 7.78-7.73 (m, 2H), 7.72-7.53 (m, 1
H), 7.52-7.41 (m, 6H), 7.37-7.24 (m, 10H)であった。
。

30

【0248】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0249】

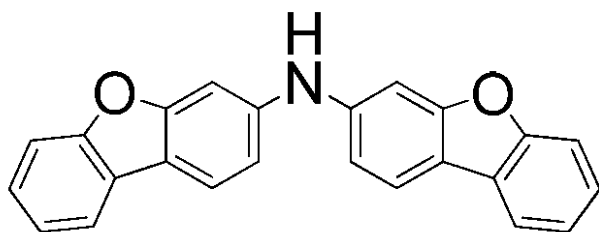
化合物254の合成

(N-2-dibenzofuranyl-2-Dibenzofuranamineの合成)

まず、以下に示すN-2-dibenzofuranyl-2-Dibenzofuranamineを合成した。以上に述べた
N-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成方法において、4-ブロモ
ビフェニルの代わりに3-ブロモジベンゾフラン、また1-(4-アミノフェニル)ナフタレン
の代わりに3-アミノジベンゾフランを用いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-M
S測定により測定された分子量は、349であった。

40

【化 9 3】



10

【0250】

(化合物 254 の合成)

以上に述べた化合物 213 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物Hを用い、化合物Gの代わりにN-2-dibenzofuranyl-2-Dibenzofuranamineを用いたこと以外は化合物 213 の合成と同様に化合物 254 を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物 254 の分子量は、668であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 254 のケミカルシフト値 δ は、7.99–7.95 (m, 8 H)、7.83 (d, 2 H, $J = 8.4 \text{ Hz}$)、7.66 (d, 2 H, $J = 7.8 \text{ Hz}$)、7.54–7.29 (m, 15 H)、7.23 (d, 2 H, $J = 8.4 \text{ Hz}$) であった。

20

【0251】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0252】

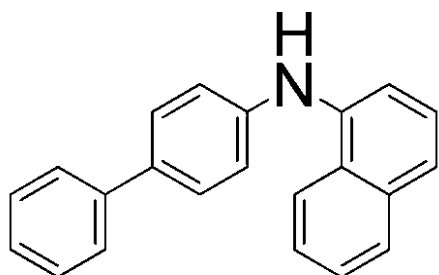
化合物 256 の合成

(N-[1,1'-biphenyl]-4-yl-1-Naphthalenamine の合成)

まず、以下に示すN-[1,1'-biphenyl]-4-yl-1-Naphthalenamineを合成した。以上に述べたN-[4-(1-naphthalenyl)phenyl]-[1,1'-Biphenyl]-4-amineの合成方法において、1-(4-アミノフェニル)ナフタレンの代わりに1-アミノナフタレンを用いたこと以外は同様な方法で合成した。FAB-MS測定により測定された分子量は、295であった。

30

【化 9 4】



40

【0253】

(化合物 256 の合成)

以上に述べた化合物 213 の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代わりに化合物Iを用い、化合物Gの代わりにN-[1,1'-biphenyl]-4-yl-1-Naphthalenamineを用いたこと以外は化合物 213 の合成と同様に化合物 256 を合成した。FAB-MS測定により測定された化合物 256 の分子量は、614であった。また、 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ 測定で測定された化合物 256 のケミカルシフト値 δ は、8.02 (d, 1 H, $J = 8.50 \text{ Hz}$)、7.90–7.88 (m, 5 H)、7.84–7.80 (m, 3 H)、7.68–7.37 (m, 17 H)、7.29 (d t, 1 H, $J = 9.10, 2.30 \text{ Hz}$)、7.

50

2.3-7.15 (m, 4H)であった。

【0254】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0255】

化合物257の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Eを用い、化合物Gの代わりにN-[1,1'-biphenyl]-4-yl-[1,1'-Biphenyl]-4-a
mineを用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物257を合成した。FAB-MS
測定により測定された化合物257の分子量は、640であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)
測定で測定された化合物257のケミカルシフト値δは、7.95 (m, 4H)、7.7
4 (m, 1H)、7.66 (m, 1H)、7.64 (m, 1H)、7.58 (m, 2H)
、7.55 (m, 3H)、7.54-7.15 (m, 21H)であった。

10

【0256】

また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、例えば、以下のよう
に合成することができる。

【0257】

化合物258の合成

以上に述べた化合物213の合成方法における、1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの代
わりに化合物Eを用い、化合物Gの代わりにN-[1,1'-biphenyl]-4-yl-1-Naphthalenamineを
用いたこと以外は化合物213の合成と同様に化合物258を合成した。FAB-MS測定に
より測定された化合物258の分子量は、614であった。また、¹H-NMR(CDCl₃)測定で
測定された化合物258のケミカルシフト値δは、8.01 (d, 1H, J = 8.44 Hz)
、7.99-7.90 (m, 4H)、7.88 (d, 1H, J = 8.44 Hz)、7
.77 (d, 1H, J = 7.92 Hz)、7.71 (t, 1H, J = 1.98 Hz)、7
.64 (dd, 1H, J = 1.23, 7.61 Hz)、7.57-7.22 (m, 19H
)、7.11 (dt, 2H, J = 9.14, 2.39 Hz)、7.04 (ddd, 1H,
J = 8.13, 2.31, 1.00 Hz)であった。

20

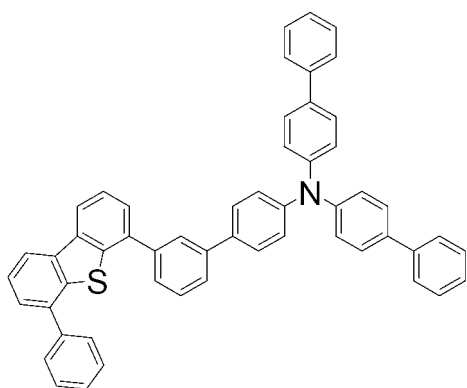
【実施例】

【0258】

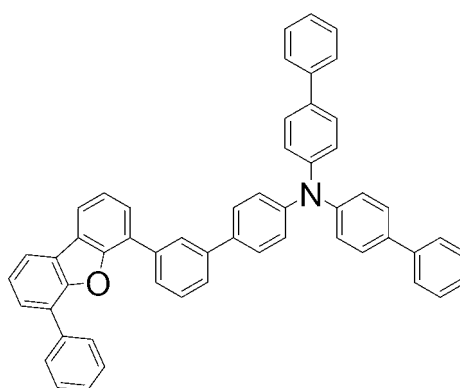
上述した化合物5、化合物17、化合物77、化合物89、化合物141、化合物16
9、化合物181、化合物213及び化合物216を正孔輸送材料として用いて、上述し
た製造方法により、実施例1乃至9の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

30

【化 9 5】

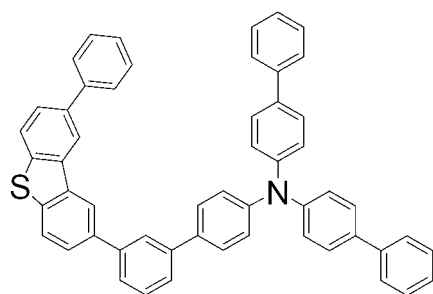


5

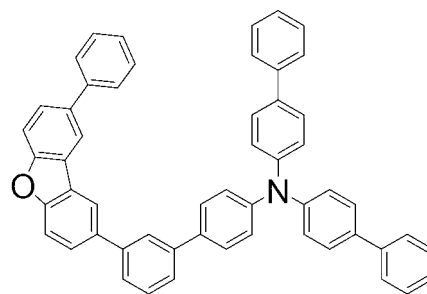


17

10

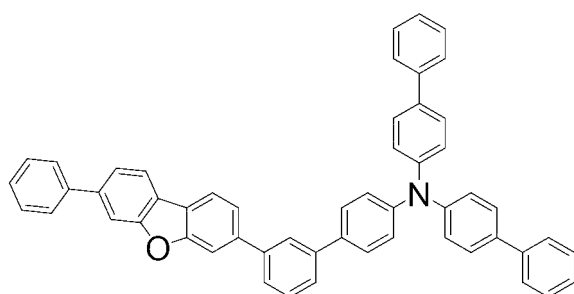


77

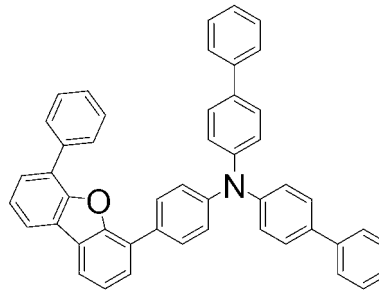


89

20



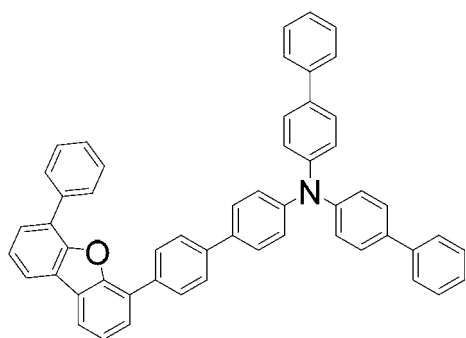
141



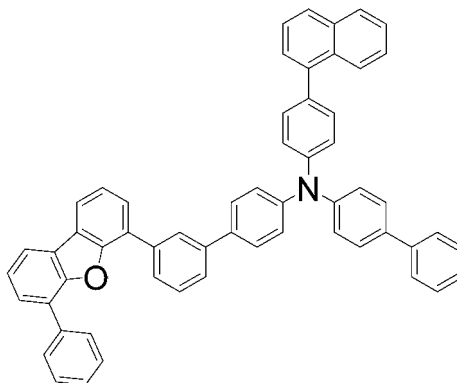
169

30

【化 9 6】

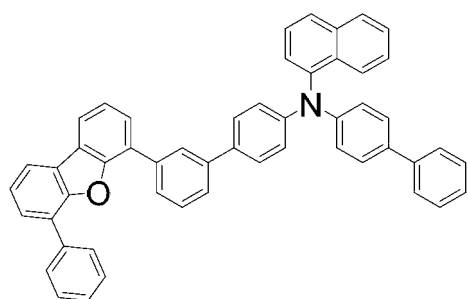


181



213

10



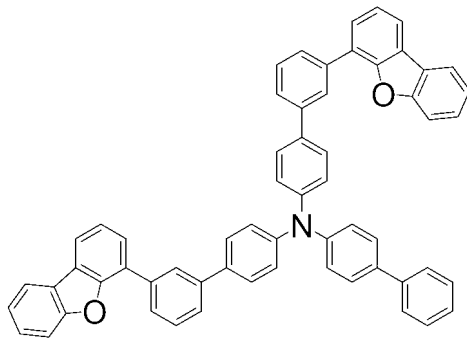
216

20

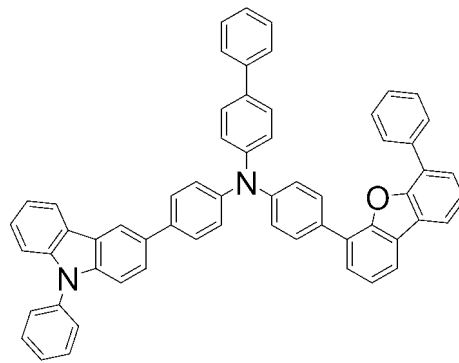
【 0 2 5 9】

また、比較例として、以下に示す比較例化合物 C 1 ～ C 5 を正孔輸送材料として用いて、比較例 1 乃至 5 の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

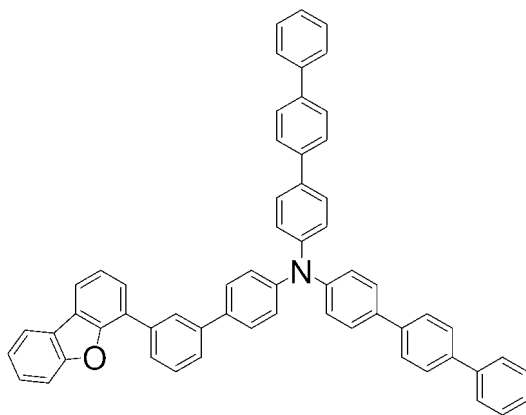
【化 9 7】



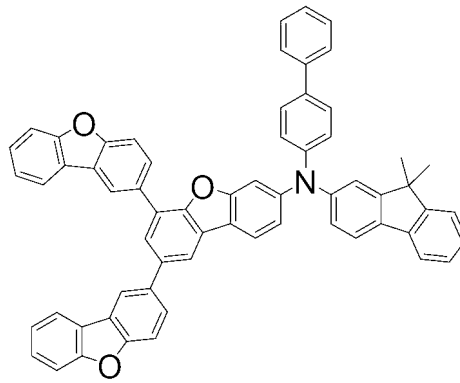
C-1



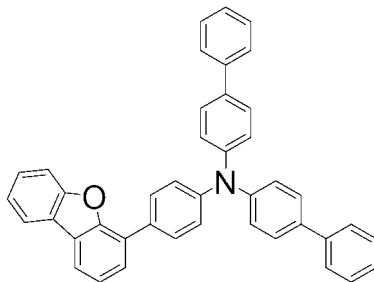
C-2



C-3



C-4



C-5

【0260】

実施例 1～9に係る有機エレクトロルミネッセンス素子 300を図 3に示す。実施例 1～9においては、基板 302には透明ガラス基板を用い、150nmの膜厚のITOで陽極 304を形成し、60nmの膜厚の2-TNATAで正孔注入層 306を形成し、30nmの膜厚の正孔輸送層 308を形成し、ADNにTBPを3%ドープした25nmの膜厚の発光層 310を形成し、Alq₃で25nmの膜厚の電子輸送層 312を形成し、LiFで1nmの膜厚の電子注入層 314を形成し、Alで100nmの膜厚の陰極 316を形成した。

【0261】

作製した有機エレクトロルミネッセンス素子 300について、駆動電圧及び半減寿命を評価した。なお、電圧及び発光効率は電流密度が10mA/cm²における値を示し、半

10

20

30

40

50

減寿命は初期輝度 $1,000 \text{ cd/m}^2$ からの輝度半減時間を示す。評価結果を表 1 に示す。

【0262】

【表 1】

素子作成例	正孔輸送層	電圧	発光効率	寿命
		(V)	(cd/A)	LT50(h)
実施例 1	化合物 5	5.6	6.7	2,200
実施例 2	化合物 17	5.6	6.7	2,250
実施例 3	化合物 77	5.4	6.8	2,000
実施例 4	化合物 89	5.3	6.8	2,050
実施例 5	化合物 141	5.5	6.5	2,000
実施例 6	化合物 169	5.5	6.7	2,200
実施例 7	化合物 181	5.5	6.7	2,150
実施例 8	化合物 213	5.5	6.7	2,150
実施例 9	化合物 216	5.5	6.7	2,100
比較例 1	比較例化合物 C1	6.3	5.2	1,600
比較例 2	比較例化合物 C2	6.5	5.0	1,450
比較例 3	比較例化合物 C3	6.6	5.2	1,500
比較例 4	比較例化合物 C4	6.6	5.1	1,600
比較例 5	比較例化合物 C5	6.6	5.3	1,600

10

20

【0263】

表 1 の結果を参照すると、実施例 1～9 は、比較例 1～5 に比して長寿命を示し、発光効率が向上していることが認められた。実施例 1～9 では、正孔輸送性のアミンに、電子耐性の高い置換されたジベンゾヘテロール部位を導入することで、正孔輸送層の電子耐性が向上され、長寿命化している。また、実施例 1～4 では、アミンに m-フェニレン基及び置換されたジベンゾヘテロール基を置換することで分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上し、高い素子効率を示している。また、実施例 5～9 では、アミンに p-フェニレン基及び置換されたジベンゾヘテロール基を置換することでも、分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上し、高い素子効率を示している。比較例 1、比較例 3、比較例 4 及び比較例 5 のように無置換のジベンゾヘテロール部位があると、ジベンゾヘテロールの高電子密度部位が置換基によって置換されていないため、材料の劣化が起きやすく、素子寿命が低下していると推測される。また、比較例 1、比較例 3 及び比較例 5 では、比較例化合物 C1、比較例化合物 C3 及び比較例化合物 C5 がジベンゾフラン上に置換基を有していないため、実施例 1～9 に比してアモルファス性が十分でないことで、素子寿命が短かく、発光効率も低くなったと考えられる。比較例 2 では、カルバゾール部位を有することにより、正孔輸送層の電子受容性が増し、正孔輸送層に電子が溜まり素子寿命が低下していると考えられる。

30

40

【0264】

表 1 の結果から、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を正孔輸送材料として用いた場合、比較例の化合物に比して長寿命及び高効率を示すことが認められた。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、アミンに置換されたジベンゾヘテロール部位を導入することにより、正孔輸送性を示すアミンの特性を維持しつつ、材料の電子耐性とアモルファス性を向上させ、高い発光効率及び長寿命を実現していることが分かる。

【0265】

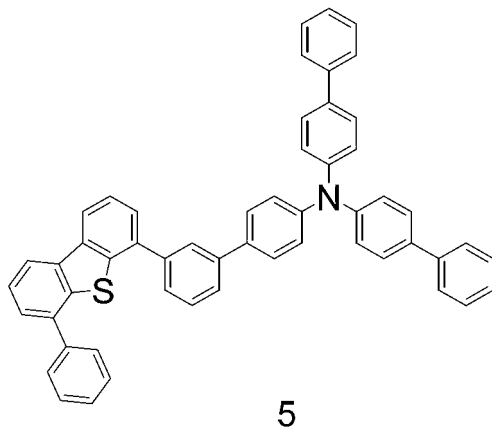
また、上述した化合物 5、化合物 13、化合物 17、化合物 23、化合物 77、化合物

50

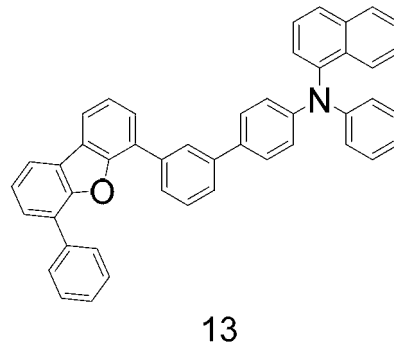
89、化合物141、化合物169、化合物170、化合物181、化合物213、化合物216、化合物217、化合物218、化合物220、化合物222、化合物225、化合物226、化合物229、化合物231、化合物232、化合物235、化合物242、化合物243、化合物244、化合物245、化合物246、化合物248、化合物251、化合物253、化合物254、化合物256、化合物257、及び化合物258を正孔輸送材料として用いて、上述した製造方法により、実施例10乃至実施例43の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

【0266】

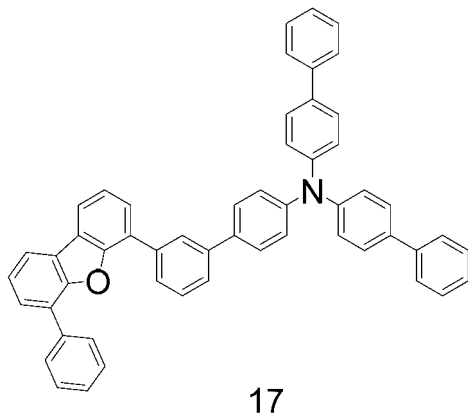
【化98】



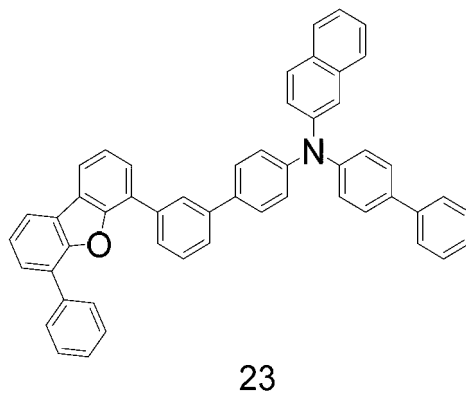
5



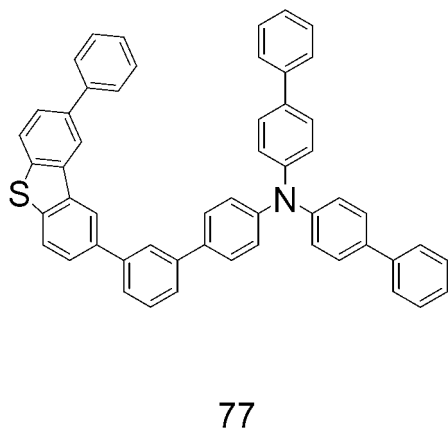
13



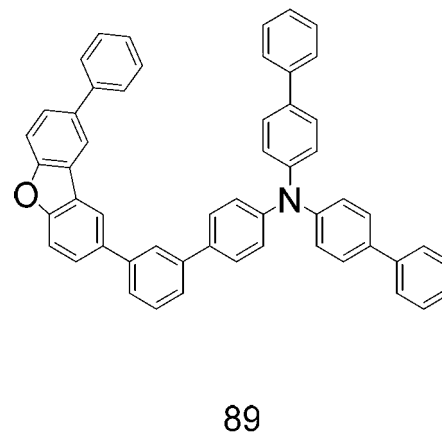
17



23



77



89

【0267】

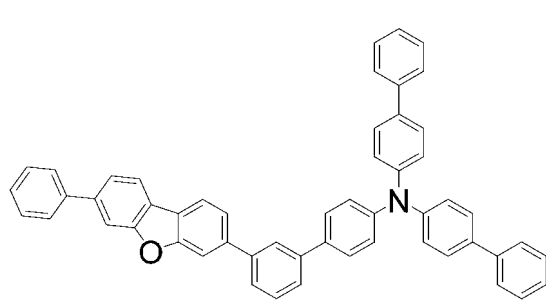
10

20

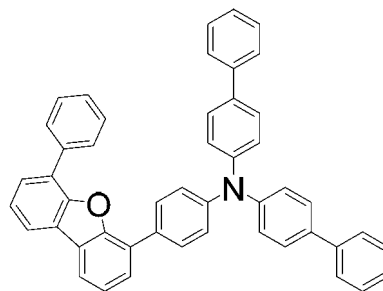
30

40

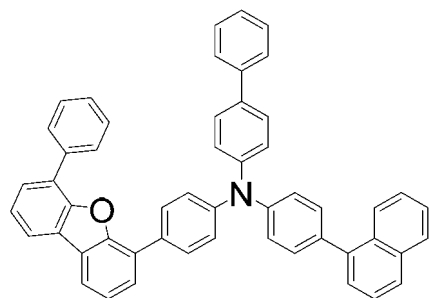
【化 9 9】



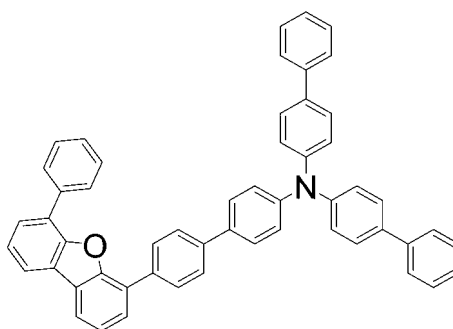
141



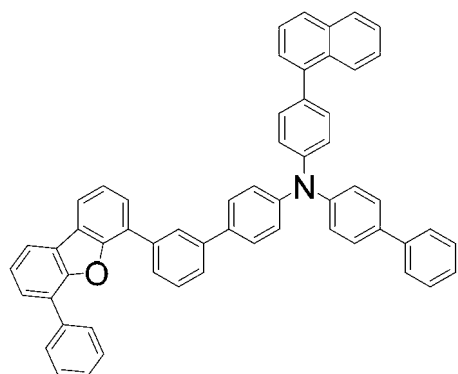
169



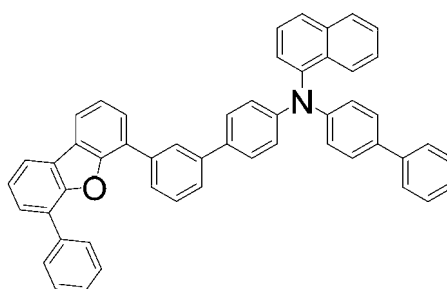
170



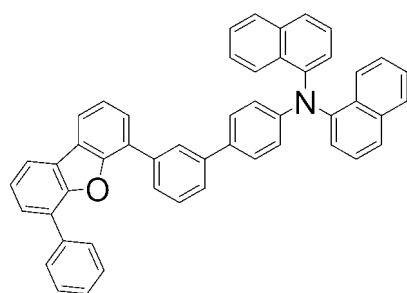
181



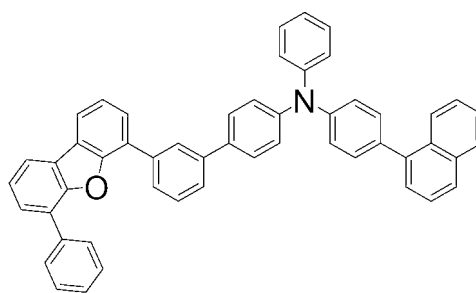
213



216



217



218

【 0 2 6 8】

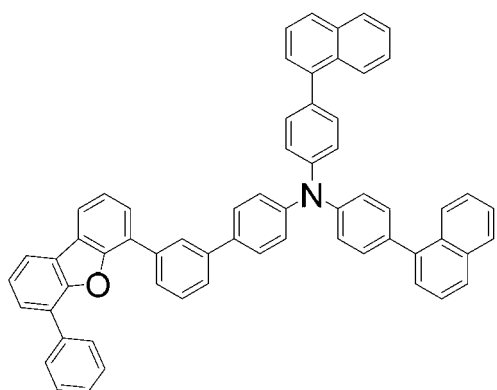
10

20

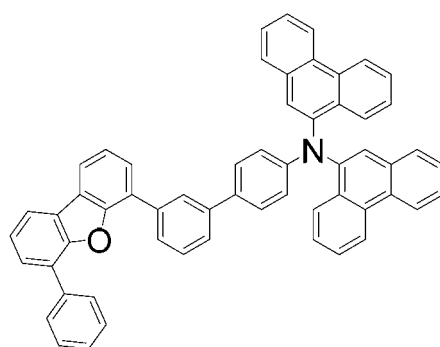
30

40

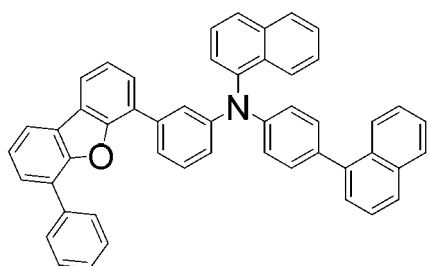
10



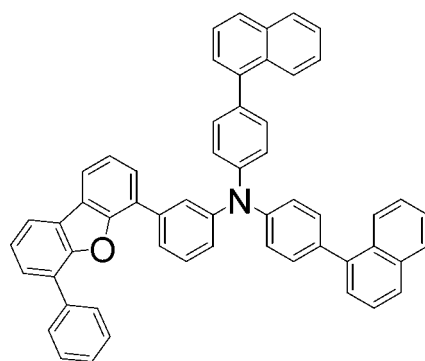
220



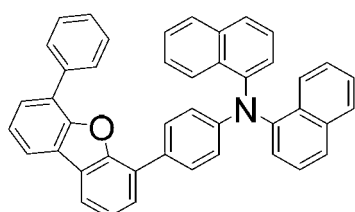
222



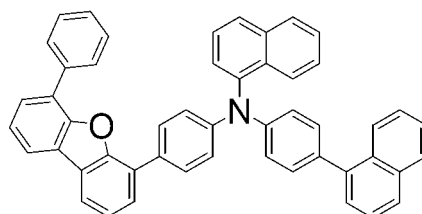
225



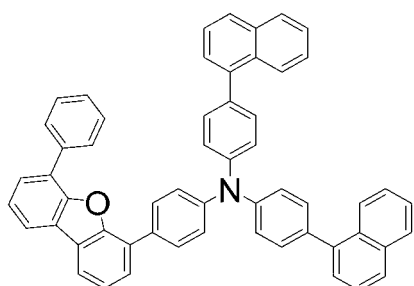
20



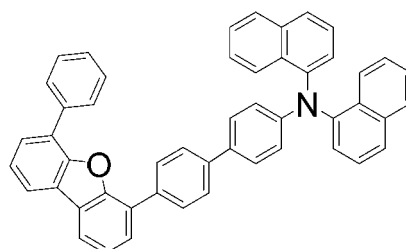
229



30



232

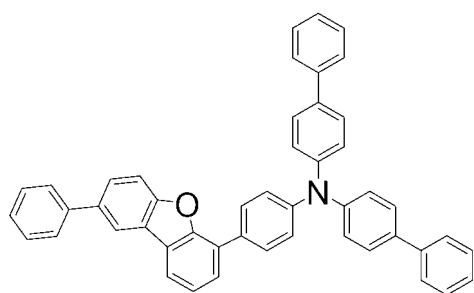


40

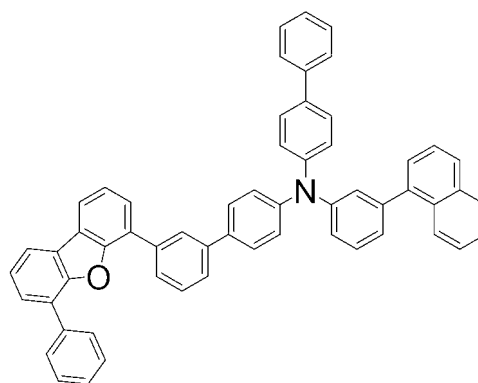
235

50

【化 1 0 1】

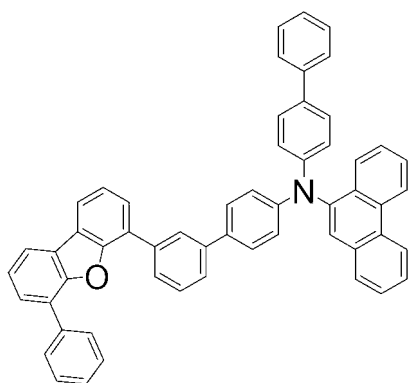


242

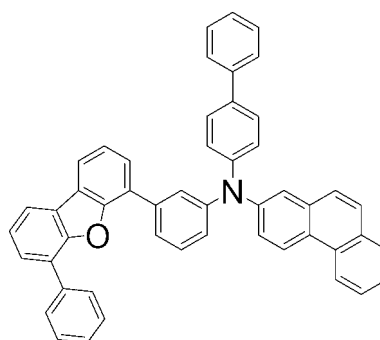


243

10

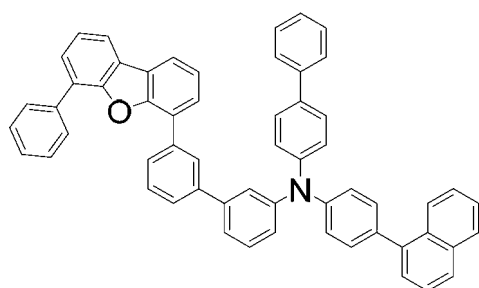


244

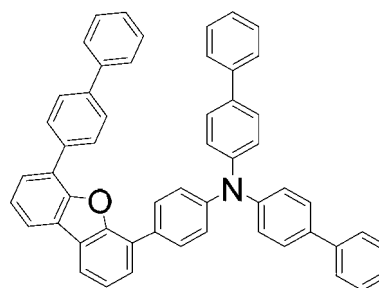


245

20



246

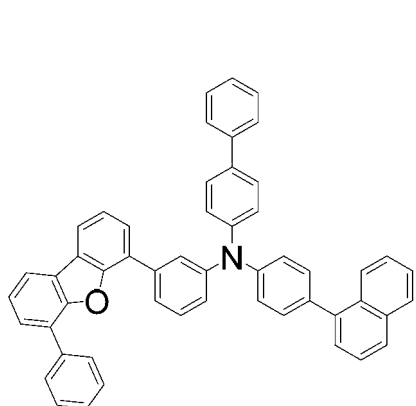


248

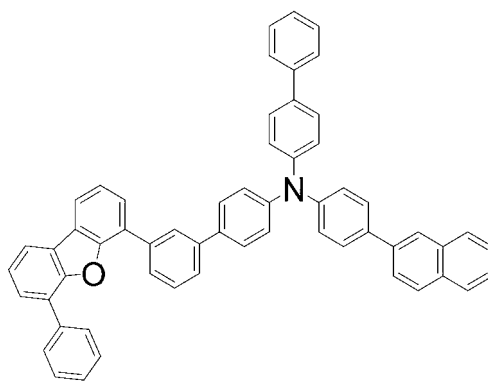
30

【 0 2 7 0】

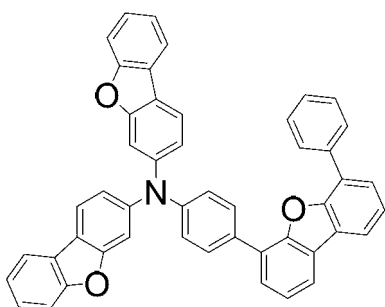
【化 1 0 2】



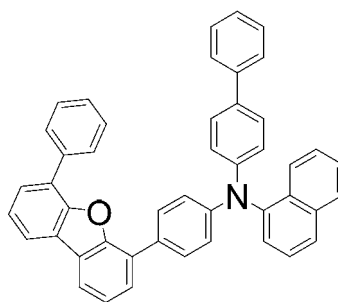
251



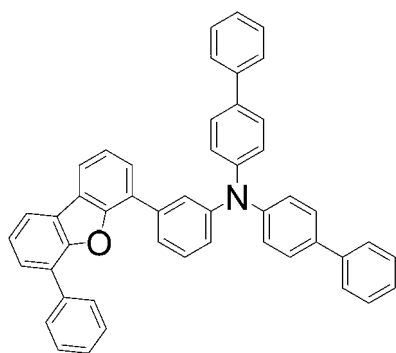
253



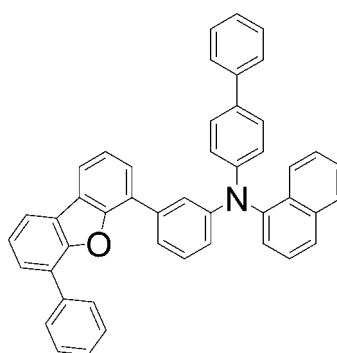
254



256



257



258

【0 2 7 1】

図4は、実施例10～43に係る有機エレクトロルミネッセンス素子400を示す模式図である。実施例10～43においては、150nmの膜厚のITOで陽極404を形成した。陽極404上に10nmの膜厚の層を形成し、電子受容性化合物として構造式ac14で表される以下に示す化合物286をドーブして正孔注入送層408としてHTL1を形成した。正孔注入送層408上に第1の正孔輸送層410として10nmの膜厚の化合物272でHTL2を形成した。また、第1の正孔輸送層410上に、上述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いて、10nmの膜厚のでHTL3を形成して第2の正孔輸送層412とした。続いて、ホスト材料として化合物a-7、発光材料（ドーブ材料）として化合物287を共蒸着にて3%ドーブし25nmの膜厚の発光層414を形成した。Alq₃で25nmの膜厚の電子輸送層416を形成し、LiFで1nmの膜厚の電子注入層418を形成し、Alで100nmの膜厚の陰極420を形成した。

10

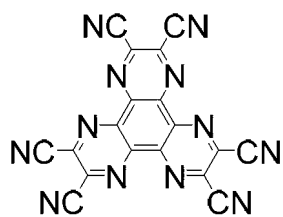
20

30

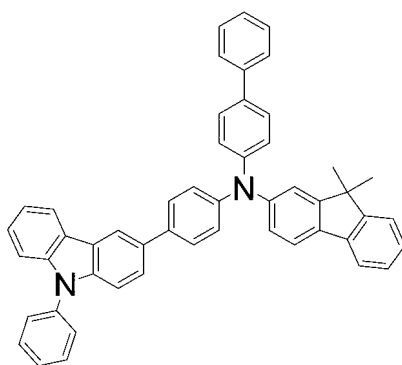
40

50

【化 1 0 3】

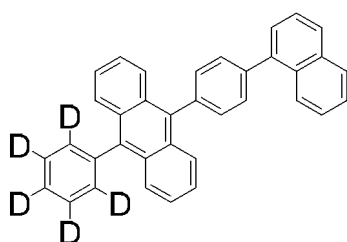


286

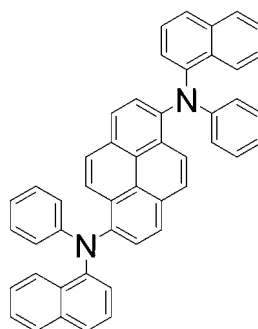


272

10



a-7



287

20

【 0 2 7 2】

また、比較例として、比較例化合物 C 1 ～ C 5 を正孔輸送材料として用いて、比較例 6 乃至 1 0 の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

【 0 2 7 3】

作製した有機エレクトロルミネッセンス素子 4 0 0 について、駆動電圧及び半減寿命を評価した。なお、電圧及び発光効率は電流密度が $10 \text{ mA} / \text{cm}^2$ における値を示し、半減寿命は初期輝度 $1,000 \text{ cd} / \text{m}^2$ からの輝度半減時間を示す。評価結果を表 2 に示す。

30

【 0 2 7 4】

【表 2】

素子作成例	第2正孔輸送層	電圧	発光効率	寿命
		(V)	(cd/A)	LT50(h)
実施例 10	化合物 5	5.6	6.74	2,000
実施例 11	化合物 13	5.5	6.8	1,900
実施例 12	化合物 17	5.6	6.74	2,150
実施例 13	化合物 23	5.4	6.7	2,000
実施例 14	化合物 77	5.4	6.7	2,000
実施例 15	化合物 89	5.3	6.74	2,000
実施例 16	化合物 141	5.5	6.7	2,000
実施例 17	化合物 169	5.5	6.5	2,050
実施例 18	化合物 170	5.6	6.6	2,050
実施例 19	化合物 181	5.5	6.5	2,050
実施例 20	化合物 213	5.5	6.7	2,000
実施例 21	化合物 216	5.5	6.8	1,950
実施例 22	化合物 217	5.7	6.9	1,900
実施例 23	化合物 218	5.5	6.8	1,950
実施例 24	化合物 220	5.6	6.8	1,950
実施例 25	化合物 222	5.7	6.7	1,900
実施例 26	化合物 225	5.5	6.8	1,950
実施例 27	化合物 226	5.6	6.8	1,950
実施例 28	化合物 229	5.6	6.8	2,000
実施例 29	化合物 231	5.5	6.6	2,000
実施例 30	化合物 232	5.6	6.6	2,050
実施例 31	化合物 235	5.6	6.6	2,050
実施例 32	化合物 242	5.6	6.6	2,000
実施例 33	化合物 243	5.5	6.8	1,950
実施例 34	化合物 244	5.6	6.7	1,900
実施例 35	化合物 245	5.6	6.7	1,950
実施例 36	化合物 246	5.7	6.7	1,950
実施例 37	化合物 248	5.6	6.5	2,000
実施例 38	化合物 251	5.5	6.8	2,000
実施例 39	化合物 253	5.5	6.7	1,950
実施例 40	化合物 254	5.6	6.4	2,050
実施例 41	化合物 256	5.6	6.6	2,050
実施例 42	化合物 257	5.6	6.7	1,900
実施例 43	化合物 258	5.7	6.8	1,950
比較例 6	比較例化合物 C1	6.3	5.2	1,550
比較例 7	比較例化合物 C2	6.5	5.0	1,450
比較例 8	比較例化合物 C3	6.6	5.2	1,500
比較例 9	比較例化合物 C4	6.6	5.1	1,550
比較例 10	比較例化合物 C5	6.6	5.3	1,550

10

20

30

40

【0275】

表 2 の結果を参照すると、実施例 10～43 は、比較例 6～10 に比して長寿命を示し、発光効率が向上していることが認められた。実施例 10～43 では、正孔輸送性のアミ

50

ンに、電子耐性の高い置換されたジベンゾヘテロール部位を導入した本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料から形成された第2の正孔輸送層412は、電子耐性が向上され、長寿命化している。また、第2の正孔輸送層412を発光層414に隣接して配置することで、発光層414で消費されなかった電子が第2の正孔輸送層412よりも陽極404側の正孔輸送帯域406に拡散されないため、正孔輸送帯域406の層を保護することができ、長寿命化に寄与する。本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、アミンにm-フェニレン基が結合した化合物を用いた、基実施例10～16、20～27、33～36、38、39、42及び43では、相対的により高い素子効率を示した。また、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、アミンにp-フェニレン基が結合した化合物を用いた、実施例17～19、28～32、37、40、41では、相対的により長寿命を示した。

10

【0276】

比較例6、比較例8、比較例9及び比較例10のように無置換のジベンゾヘテロール部位があると、ジベンゾヘテロールの高電子密度部位が置換基によって置換されていないため、材料の劣化が起きやすく、素子寿命が低下していると推測される。また、比較例6、比較例8及び比較例10では、比較例化合物C1、比較例化合物C3及び比較例化合物C5がジベンゾフラン上に置換基を有していないため、実施例10～43に比してアモルファス性が十分でないことで、素子寿命が短かく、発光効率も低くなったと考えられる。比較例7では、アミンがカルバゾール部位を有することにより、第2の正孔輸送層412の電子受容性が増し、第2の正孔輸送層412に電子が溜まり素子寿命が低下していると考えられる。

20

【0277】

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、アミンに置換されたジベンゾヘテロールを導入することにより、材料の電子耐性及びアモルファス性が向上される。そのため、有機エレクトロルミネッセンス素子の高い発光効率及び長寿命を実現することができる。尚、本発明におけるに係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、広いエネルギーギャップを有しているため、赤色領域への適用することも可能である。

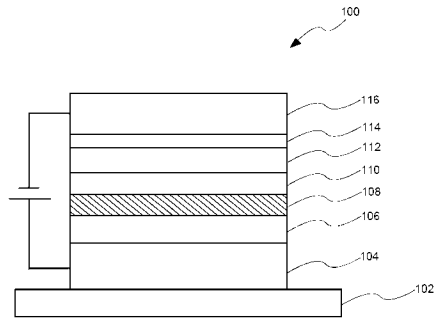
【符号の説明】

【0278】

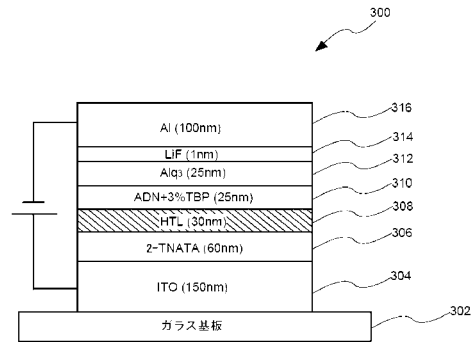
100 有機EL素子、102 基板、104 陽極、106 正孔注入層、108 正孔輸送層、110 発光層、112 電子輸送層、114 電子注入層、116 陰極、200 有機EL素子、201 正孔輸送帯域、203 第1の層、205 第3の層、207 第2の層

30

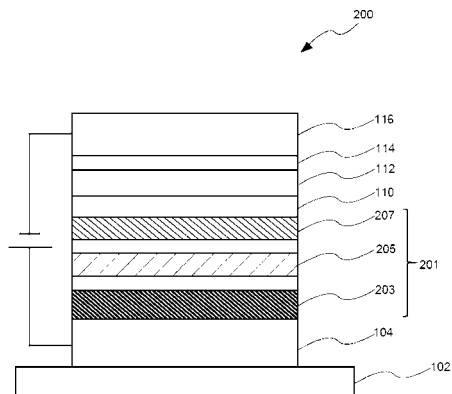
【図 1】



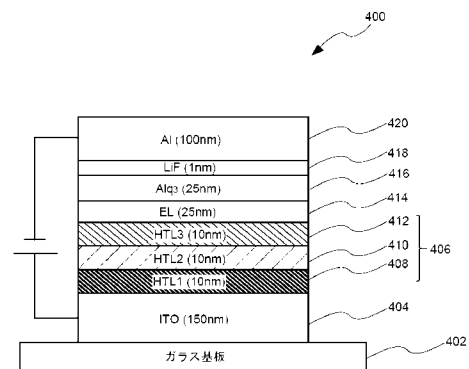
【図 3】



【図 2】



【図 4】



【手続補正書】

【提出日】平成27年9月24日(2015.9.24)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

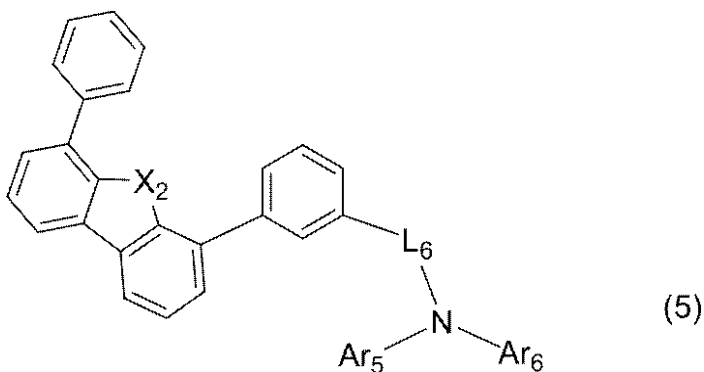
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の一般式（5）で表わされる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 1】



〔一般式（5）において、 X_2 はOまたはSであり、 Ar_5 及び Ar_6 はそれぞれ独立に環形成炭素数6以上30以下の置換若しくは無置換のアリール基、環形成炭素数10以上30以下の酸素原子或は硫黄原子を含有する置換若しくは無置換のジベンゾヘテロール基、シリル基

、ハロゲン原子、重水素原子又は水素原子であり、 L_6 は単結合、又は環形成炭素数6以上24以下の置換若しくは無置換のアリール基及びシリル基からなる群より選ばれた2個の基である。]

【請求項2】

前記請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を発光層と陽極との間に配置された積層膜のうちの少なくとも一層に含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む第1の層が前記発光層に隣接して配置された、請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】

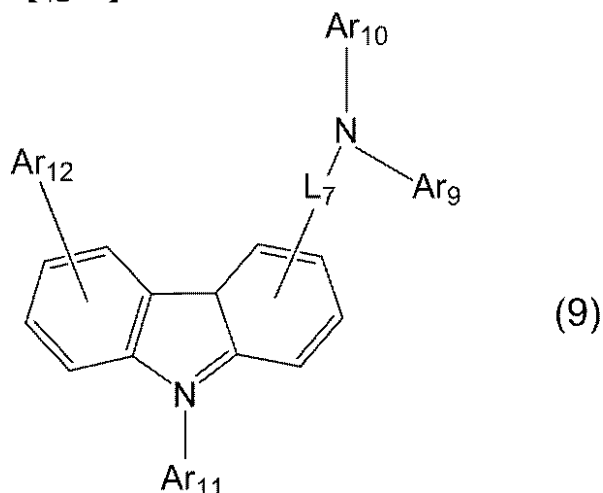
前記積層膜は、LUMO準位が -9.0 eV 以上 -4.0 eV 以下である電子受容性化合物を含む第2の層を有し、

前記第2の層は、前記陽極と前記第1の層との間に配置される、請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】

前記積層膜は、以下の一般式(9)で表わされるアミン誘導体を含む第3の層を有し、前記第3の層は、前記第1の層と前記第2の層との間に配置される、請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化2】



[一般式(9)中、 Ar_9 、 Ar_{10} 及び Ar_{11} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上50以下のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5以上50以下のヘテロアリール基であり、 Ar_{12} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上50以下のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数5以上50以下のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の炭素数1以上50以下のアルキル基であり、 L_7 は単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上18以下のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5以上15以下のヘテロアリーレン基である。]

フロントページの続き

- (72)発明者 松岡 光進
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 上野 雅嗣
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 坂本 直也
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 大山 裕美
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 赤司 信隆
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 三宅 秀夫
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 金 秀蘭
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 坂本 亜沙美
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- (72)発明者 瀧脇 純太
神奈川県横浜市鶴見区菅沢町 2-7 株式会社サムスン日本研究所内
- F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC04 CC21 DD72 DD73 DD78 FF19
4C037 SA10

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	JP2016086155A	公开(公告)日	2016-05-19
申请号	JP2015092410	申请日	2015-04-28
[标]申请(专利权)人(译)	三星显示有限公司		
申请(专利权)人(译)	三星显示器的股票会社		
[标]发明人	糸井裕亮 高田一範 松岡光進 上野雅嗣 坂本直也 大山裕美 赤司信隆 三宅秀夫 金秀蘭 坂本亜沙美 淵脇純太		
发明人	糸井 裕亮 高田 一範 松岡 光進 上野 雅嗣 坂本 直也 大山 裕美 赤司 信隆 三宅 秀夫 金 秀蘭 坂本 亜沙美 淵脇 純太		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07D333/76 C07D307/91		
FI分类号	H05B33/22.D C09K11/06.690 C07D333/76.CSP C07D307/91 H05B33/14.A H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/DD72 3K107/DD73 3K107/DD78 3K107/FF19 4C037/SA10		
优先权	2014219497 2014-10-28 JP		
其他公开文献	JP5848480B1		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种具有高发光效率和长寿命的用于有机电致发光器件的材料，以及使用该材料的有机电致发光器件。通式(4)表示的用于有机电致发光的材料。[X2是O或S，Ar5和Ar6各自独立地是芳基等；Ar7和Ar8是芳基等；L4和L5各自独立地为亚芳基等，L6为亚芳基等；n为0至3之间的整数；m为0至4之间的整数；n + m ≥ 1] [选择图]无

(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2016-86155

(P2016-86155A)

(43) 公開日 平成28年5月19日(2016.5.19)

(S1) Int. Cl.	F 1	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/22 D	3K107
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06 690	4C037
C07D 333/76 (2006.01)	C07D 333/76 CSP	
C07D 307/91 (2006.01)	C07D 307/91	
	H05B 33/14 A	

審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 117 頁)

(2) 出願番号	特願2015-92410 (P2015-92410)	(7) 出願人	51218743
(2) 出願日	平成27年4月28日 (P2015. 4. 28)		三星ディスプレイ株式会社
(11) 特許番号	特許5848480 (P5848480)		S a m s u n g D i s p l a y C o . ,
(45) 特許公報発行日	平成28年1月27日 (P2016. 1. 27)		L t d .
(3) 優先権主張発行日	特願2014-219497 (P2014-219497)		大韓民国京畿道龍仁市器興区三星路 1
(3) 優先日	平成26年10月28日 (P2014. 10. 28)	(74) 代理人	110000408
(53) 優先権主張国	日本国 (JP)		特許業務法人高橋・林アンドパートナーズ

(74) 代理人	110000408 特許業務法人高橋・林アンドパートナーズ
(72) 発明者	糸井 裕亮 神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン日本研究所内
(72) 発明者	高田 一範 神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン日本研究所内

[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