

(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2019-4058
(P2019-4058A)

(43) 公開日 平成31年1月10日(2019.1.10)

(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)	H05B 33/14 B	
	C09K 11/06 610	

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 25 頁)

(21) 出願番号	特願2017-118092 (P2017-118092)	(71) 出願人	000003300 東ソー株式会社 山口県周南市開成町4560番地
(22) 出願日	平成29年6月15日 (2017.6.15)	(71) 出願人	504139662 国立大学法人名古屋大学 愛知県名古屋市千種区不老町1番
		(72) 発明者	森中 裕太 神奈川県綾瀬市早川2743番地1 東 ソー株式会社 東京研究センター内
		(72) 発明者	田中 剛 神奈川県綾瀬市早川2743番地1 東 ソー株式会社 東京研究センター内
		(72) 発明者	伊丹 健一郎 愛知県名古屋市千種区不老町1 国立大学 法人名古屋大学内

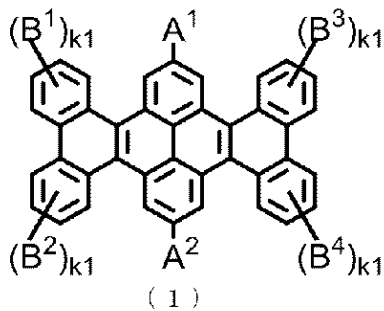
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多環性芳香族化合物を構成成分とする有機電界発光素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 長寿命性、又は駆動電圧に優れる有機エレクトロルミネッセンス素子を提供すること。

【解決手段】 陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極の間に、複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層のうち少なくとも1層が下記式(1)で表される多環性芳香族化合物を含むことを特徴とする、有機エレクトロルミネッセンス素子を用いる。



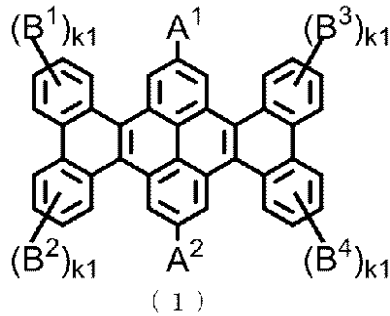
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

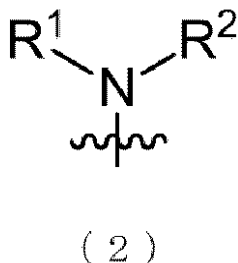
陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極の間に、複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層のうち少なくとも 1 層が下記式 (1) で表される多環性芳香族化合物を含むことを特徴とする、有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 1】



(式中、 A^1 及び A^2 は、同じか又は異なり、それぞれ、水素原子、メチル基、エチル基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基を示す。 $B^1 \sim B^4$ は、同じか又は異なり、それぞれ、炭素数 6 ~ 18 の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基、炭素数 3 ~ 36 の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基 (これらの基は、各々独立して、フッ素原子、メチル基、エチル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基から成る群より選ばれる 1 種以上の置換基を有していてもよい)、メチル基、エチル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基、又は下記一般式 (2))

【化 2】



(式中、 R^1 及び R^2 は、同じか又は異なり、それぞれ、炭素数 6 ~ 18 の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基、炭素数 3 ~ 36 の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基 (これらの基は、各々独立して、フッ素原子、メチル基、エチル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基から成る群より選ばれる 1 種以上の置換基を有していてもよい)、水素原子、メチル基、エチル基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基を表す。)

で表される基を表す。

$k^1 \sim k^4$ は、同じか又は異なり、それぞれ、0 ~ 4 の整数である。)

【請求項 2】

正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層が、正孔注入層、正孔輸送層、又は電子阻止層、及び発光層を有し、当該正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、又は発光層が、前記化合物 (1) を含むことを特徴とする、請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】

10

20

30

40

50

正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層が、正孔注入層、正孔輸送層、又は電子阻止層、及び発光層を有し、当該正孔注入層、正孔輸送層、又は電子阻止層が、前記化合物(1)の単層であることを特徴とする、請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、多環性芳香族化合物を用いた有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

有機電界発光素子は、発光材料を含有する発光層を、正孔輸送性層と電子輸送性層で挟み、さらにその外側に陽極と陰極を取付けたものを基本構成とし、発光層に注入された正孔及び電子の再結合により生ずる励起子が失活する際の光の放出(蛍光又は燐光)を利用する発光素子である。既に小型のディスプレイだけでなく大型テレビや照明等の用途へ用いられている。なお、前記正孔輸送性層は正孔輸送層と正孔注入層等に、前記発光層は発光ホストと発光ドーパントに、若しくは電子ブロック層と発光層と正孔ブロック層等に、前記電子輸送層は電子輸送層と電子注入層等に分割して構成される場合もある。また、有機電界発光素子のキャリア輸送層(電子輸送層又は正孔輸送層)として、金属、有機金属化合物又はその他有機化合物をドープした共蒸着膜を用いる場合もある。

10

【0003】

ここで、近年、汎用の低分子化合物から、有機反応によって単一の構造を有するグラフェン類のボトムアップ合成に向けた研究が盛んに行われている(例えば、特許文献1、及び非特許文献1及び2)。これら研究過程において製造された多環性芳香族化合物は、共役系が高度に拡張された構造を有するものの、グラフェンには無いバンドギャップを有しているため、有機半導体デバイスとしての応用が期待できる。しかしながら、上記文献中には、これら多環性芳香族化合物の応用に関する、具体的な使用方法、及びその性能に関する記述は一切ない。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特許第5988051号公報

【非特許文献】

【0005】

【非特許文献1】Nature Communications, 2015年, 6号, 6251頁.

【非特許文献2】Synlett, 2016年, 27号, 2081頁.

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、駆動電圧、発光効率、及び素子寿命に優れた高性能な有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。

40

【課題を解決するための手段】

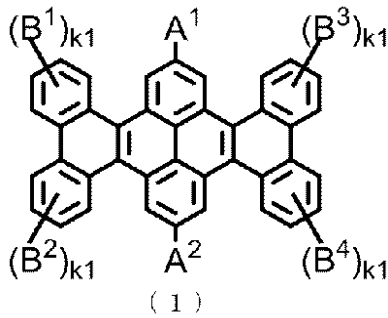
【0007】

本発明者は上記の問題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、下記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物が、優れた電荷輸送特性を示すこと、及び駆動電圧、発光効率、及び素子寿命に優れた高性能な有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できることを見出し、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極の間に、複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層のうち少なくとも1層が下記式(1)で表される多環性芳香族化合物を含むことを特徴とする、有機エレクトロルミネッセンス素子に関する

50

。【0008】

【化1】



10

【0009】

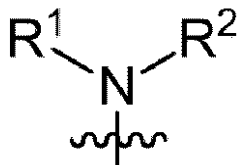
(式中、 A^1 及び A^2 は、同じか又は異なり、それぞれ、水素原子、メチル基、エチル基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基を示す。

$B^1 \sim B^4$ は、同じか又は異なり、それぞれ、炭素数 6 ~ 18 の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基、炭素数 3 ~ 36 の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基(これらの基は、各々独立して、フッ素原子、メチル基、エチル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基から成る群より選ばれる 1 種以上の置換基を有していてもよい)、メチル基、エチル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基、又は下記一般式(2)

20

【0010】

【化2】



(2)

30

【0011】

(式中、 R^1 及び R^2 は、同じか又は異なり、それぞれ、炭素数 6 ~ 18 の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基、炭素数 3 ~ 36 の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基(これらの基は、各々独立して、フッ素原子、メチル基、エチル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基から成る群より選ばれる 1 種以上の置換基を有していてもよい)、水素原子、メチル基、エチル基、又は炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基を表す。)

40

で表される基を表す。

$k^1 \sim k^4$ は、同じか又は異なり、それぞれ、0 ~ 4 の整数である。)

【発明の効果】

【0012】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を構成成分とすることで、安定なアモルファス層、高い耐熱性、低駆動電圧、及び長寿命などが実現できる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いることにより、ディスプレイ及び照明器具等、様々な用途での展開が可能である。

【0013】

50

本発明における一般式(1)で表される多環性芳香族化合物は、汎用溶媒に対する溶解性に優れる。そのため、クロロホルムやクロロベンゼンなどハロゲン系溶媒のみならず、トルエンやキシレンなどの非ハロゲン系溶媒への溶解性も高い。そのため、蒸着プロセスによる成膜だけでなく、溶媒を用いた塗布プロセスにも適する。

【0014】

加えて、一般式(1)で表される多環性芳香族化合物に対する貧溶媒に溶解した別の材料を用いることで、一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を含む層を侵食せずに別の材料の膜を上塗りすることができる。したがって、本発明は、一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を用いた連続塗布成膜プロセスで作製される有機エレクトロルミネッセンス素子も提供できる。

【発明を実施するための形態】

【0015】

以下、本発明をさらに詳細に説明する。

【0016】

上記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物において、 A^1 及び A^2 は、同じか又は異なり、それぞれ、水素原子、メチル基、エチル基、又は炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基を示す。

【0017】

上記炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基としては、特に限定するものではないが、例えば、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*i*-ブチル基、*n*-ヘキシル基、シクロヘキシル基、シクロヘキサジエニル基、オクチル基、トリフルオロメチル基、ベンジル基、又はフェネチル基等が挙げられる。

【0018】

A^1 及び A^2 としては、原料入手性の観点から、水素原子、メチル基、*tert*-ブチル基、又は*n*-ブチル基が好ましく、水素原子、又はメチル基がより好ましい。

【0019】

上記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物において、 B^1 ~ B^4 は、同じか又は異なり、それぞれ、炭素数6~18の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基、炭素数3~36の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基(これらの基は、各々独立して、フッ素原子、メチル基、エチル基、炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、又は炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基から成る群より選ばれる1種以上の置換基を有していてもよい)、メチル基、エチル基、炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基、又は前記一般式(2)で表される基を表す。

【0020】

上記 B^1 ~ B^4 の、炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基としては、上記 A^1 及び A^2 における炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基の定義と同じである。

【0021】

上記 B^1 ~ B^4 の、炭素数3~18の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基は、特に限定するものではないが、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、又はシクロヘブチルオキシ基等が挙げられる。

【0022】

上記 B^1 ~ B^4 の、炭素数6~18の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基としては、特に限定するものではないが、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、ベンゾフルオレニル基、ピレニル基、又はトリフェニレニル基等が挙げられる。

【0023】

10

20

30

40

50

上記 B¹ ~ B⁴ の、炭素数 3 ~ 36 の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基としては、特に限定するものではないが、例えば、少なくとも一つの酸素原子、窒素原子、又は硫黄原子を含有する炭素数 3 ~ 36 の連結又は縮合していてもよいヘテロ芳香族基を挙げることができ、より好ましくは、酸素原子、窒素原子、及び硫黄原子からなる群より選ばれる原子を少なくとも一つ芳香環上に含有する炭素数 3 ~ 36 の連結又は縮合していてもよいヘテロ芳香族基を挙げることができ、特に限定するものではないが、例えば、ピロリル基、チエニル基、フリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、イソチアゾリル基、オキサゾリル基、イソオキサゾリル基、ピリジル基、フェニルピリジル基、ピリジルフエニル基、ピリミジル基、ピラジリル基、1, 3, 5 - トリアジリル基、インドリル基、ベンゾチエニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾイミダゾリル基、インダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾイソチアゾリル基、2, 1, 3 - ベンゾチアジアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾイソオキサゾリル基、2, 1, 3 - ベンゾオキサジアゾリル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリル基、キナゾリル基、カルバゾリル基、ジベンゾチエニル基、ジベンゾフラニル基、フェノキサジニル基、フェノチアジニル基、フェナジン基、又はチアントレニル基等が挙げられる。

【0024】

また、上述の通り、上記 B¹ ~ B⁴ は、上記一般式(2)で表される基とすることもできる。

【0025】

上記一般式(2)の R¹ 及び R² において、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルキル基、炭素数 3 ~ 18 の直鎖、環状、若しくは分岐のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 18 の単環、連結、若しくは縮環の芳香族炭化水素基、炭素数 3 ~ 36 の単環、連結、若しくは縮環のヘテロ芳香族基の定義は、それぞれ上記 A¹ 及び A² における定義と同じである。

【0026】

B¹ ~ B⁴ の具体例としては、メチル基、エチル基、tert - ブチル基、n - ブチル基、フェニル基、4 - メチルフェニル基、3 - メチルフェニル基、2 - メチルフェニル基、2, 4 - ジメチルフェニル基、2, 5 - ジメチルフェニル基、3, 4 - ジメチルフェニル基、3, 5 - ジメチルフェニル基、2, 6 - ジメチルフェニル基、2, 3, 5 - トリメチルフェニル基、2, 3, 6 - トリメチルフェニル基、3, 4, 5 - トリメチルフェニル基、4 - ビフェニル基、3 - ビフェニル基、2 - ビフェニル基、2 - メチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、3 - メチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2' - メチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、3' - メチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、4' - メチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2, 6 - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2, 2' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2, 3' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2, 4' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、3, 2' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2', 3' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2', 4' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2', 5' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、2', 6' - ジメチル - 1, 1' - ビフェニル - 4 - イル基、4 - フェニルビフェニル基、2 - フェニルビフェニル基、1 - ナフチル基、2 - ナフチル基、2 - メチルナフタレン - 1 - イル基、4 - メチルナフタレン - 1 - イル基、6 - メチルナフタレン - 2 - イル基、4 - (1 - ナフチル)フェニル基、4 - (2 - ナフチル)フェニル基、3 - (1 - ナフチル)フェニル基、3 - (2 - ナフチル)フェニル基、3 - メチル - 4 - (1 - ナフチル)フェニル基、3 - メチル - 4 - (2 - ナフチル)フェニル基、4 - (2 - メチルナフタレン - 1 - イル)フェニル基、3 - (2 - メチルナフタレン - 1 - イル)フェニル基、4 - フェニルナフタレン - 1 - イル基、4 - (2 - メチルフェニル)ナフタレン - 1 - イル基、4 - (3 - メチルフェニル)ナフタレン - 1 - イル基、4 - (4 - メチルフェニル)ナフタレン - 1 - イル基、6 - フェニルナフタレン - 2 - イル基、4 - (2 - メチルフェニル)ナフタレン - 2 - イル基、4 - (3 - メチルフェニル)ナフタレン - 2

10

20

30

40

50

- イル基、4 - (4 - メチルフェニル) ナフタレン - 2 - イル基、2 - フルオレニル基、
9, 9 - ジメチル - 2 - フルオレニル基、9, 9' - スピロピフルオレニル基、9 - フェ
ナントリル基、2 - フェナントリル基、11, 11' - ジメチルベンゾ [a] フルオレン
- 9 - イル基、11, 11' - ジメチルベンゾ [a] フルオレン - 3 - イル基、11, 1
1' - ジメチルベンゾ [b] フルオレン - 9 - イル基、11, 11' - ジメチルベンゾ [b]
フルオレン - 3 - イル基、11, 11' - ジメチルベンゾ [c] フルオレン - 9 - イ
ル基、11, 11' - ジメチルベンゾ [c] フルオレン - 2 - イル基、3 - フルオランテ
ニル基、8 - フルオランテニル基、1 - イミダゾリル基、2 - フェニル - 1 - イミダゾリ
ル基、2 - フェニル - 3, 4 - ジメチル - 1 - イミダゾリル基、2, 3, 4 - トリフェニ
ル - 1 - イミダゾリル基、2 - (2 - ナフチル) - 3, 4 - ジメチル - 1 - イミダゾリル
基、2 - (2 - ナフチル) - 3, 4 - ジフェニル - 1 - イミダゾリル基、1 - メチル - 2
- イミダゾリル基、1 - エチル - 2 - イミダゾリル基、1 - フェニル - 2 - イミダゾリ
ル基、1 - メチル - 4 - フェニル - 2 - イミダゾリル基、1 - メチル - 4, 5 - ジメチル -
2 - イミダゾリル基、1 - メチル - 4, 5 - ジフェニル - 2 - イミダゾリル基、1 - フェ
ニル - 4, 5 - ジメチル - 2 - イミダゾリル基、1 - フェニル - 4, 5 - ジフェニル - 2
- イミダゾリル基、1 - フェニル - 4, 5 - ジピフェニル - 2 - イミダゾリル基、1 -
メチル - 3 - ピラゾリル基、1 - フェニル - 3 - ピラゾリル基、1 - メチル - 4 - ピラゾ
リル基、1 - フェニル - 4 - ピラゾリル基、1 - メチル - 5 - ピラゾリル基、1 - フェニ
ル - 5 - ピラゾリル基、2 - チアゾリル基、4 - チアゾリル基、5 - チアゾリル基、3 -
イソチアゾリル基、4 - イソチアゾリル基、5 - イソチアゾリル基、2 - オキサゾリル基
、4 - オキサゾリル基、5 - オキサゾリル基、3 - イソオキサゾリル基、4 - イソオキサ
ゾリル基、5 - イソオキサゾリル基、2 - ピリジル基、3 - メチル - 2 - ピリジル基、4
- メチル - 2 - ピリジル基、5 - メチル - 2 - ピリジル基、6 - メチル - 2 - ピリジル基
、3 - ピリジル基、4 - メチル - 3 - ピリジル基、4 - ピリジル基、2 - ピリミジル基、
2, 2' - ビピリジン - 3 - イル基、2, 2' - ビピリジン - 4 - イル基、2, 2' - ビ
ピリジン - 5 - イル基、2, 3' - ビピリジン - 3 - イル基、2, 3' - ビピリジン - 4
- イル基、2, 3' - ビピリジン - 5 - イル基、5 - ピリミジル基、ピラジル基、1, 3
, 5 - トリアジル基、4, 6 - ジフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル基、1 -
ベンゾイミダゾリル基、2 - メチル - 1 - ベンゾイミダゾリル基、2 - フェニル - 1 - ベ
ンゾイミダゾリル基、1 - メチル - 2 - ベンゾイミダゾリル基、1 - フェニル - 2 - ベン
ゾイミダゾリル基、1 - メチル - 5 - ベンゾイミダゾリル基、1, 2 - ジメチル - 5 - ベ
ンゾイミダゾリル基、1 - メチル - 2 - フェニル - 5 - ベンゾイミダゾリル基、1 - フェ
ニル - 5 - ベンゾイミダゾリル基、1, 2 - ジフェニル - 5 - ベンゾイミダゾリル基、1
- メチル - 6 - ベンゾイミダゾリル基、1, 2 - ジメチル - 6 - ベンゾイミダゾリル基、
1 - メチル - 2 - フェニル - 6 - ベンゾイミダゾリル基、1 - フェニル - 6 - ベンゾイミ
ダゾリル基、1, 2 - ジフェニル - 6 - ベンゾイミダゾリル基、1 - メチル - 3 - インダ
ゾリル基、1 - フェニル - 3 - インダゾリル基、
2 - ベンゾチアゾリル基、4 - ベンゾチアゾリル基、5 - ベンゾチアゾリル基、6 - ベン
ゾチアゾリル基、7 - ベンゾチアゾリル基、3 - ベンゾイソチアゾリル基、4 - ベンゾイ
ソチアゾリル基、5 - ベンゾイソチアゾリル基、6 - ベンゾイソチアゾリル基、7 - ベン
ゾイソチアゾリル基、2, 1, 3 - ベンゾチアジアゾール - 4 - イル基、2, 1, 3 - ベ
ンゾチアジアゾール - 5 - イル基、2 - ベンゾオキサゾリル基、4 - ベンゾオキサゾリル
基、5 - ベンゾオキサゾリル基、6 - ベンゾオキサゾリル基、7 - ベンゾオキサゾリル基
、3 - ベンゾイソオキサゾリル基、4 - ベンゾイソオキサゾリル基、5 - ベンゾイソオキ
サゾリル基、6 - ベンゾイソオキサゾリル基、7 - ベンゾイソオキサゾリル基、2, 1,
3 - ベンゾオキサジアゾリル - 4 - イル基、2, 1, 3 - ベンゾオキサジアゾリル - 5 -
イル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、1 - イソ
キノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、2 - キノキサリル基、3 - フェ
ニル - 2 - キノキサリル基、6 - キノキサリル基、2, 3 - ジメチル - 6 - キノキサリル
基、2, 3 - ジフェニル - 6 - キノキサリル基、2 - キナゾリル基、4 - キナゾリル基、

10

20

30

40

50

2 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 10 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 5 - イル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - ベンゾチエニル基、3 - ベンゾチエニル基、2 - ジベンゾチエニル基、4 - ジベンゾチエニル基、2 - フラニル基、3 - フラニル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、2 - ジベンゾフラニル基、4 - ジベンゾフラニル基、9 - メチルカルバゾール - 2 - イル基、9 - メチルカルバゾール - 3 - イル基、9 - メチルカルバゾール - 4 - イル基、9 - フェニルカルバゾール - 2 - イル基、9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル基、9 - フェニルカルバゾール - 4 - イル基、9 - ビフェニルカルバゾール - 2 - イル基、9 - ビフェニルカルバゾール - 3 - イル基、9 - ビフェニルカルバゾール - 4 - イル基、2 - チアントリル基、10 - フェニルフェノチアジン - 3 - イル基、10 - フェニルフェノチアジン - 2 - イル基、10 - フェニルフェノキサジン - 3 - イル基、10 - フェニルフェノキサジン - 2 - イル基、1 - メチルインドール - 2 - イル基、1 - フェニルインドール - 2 - イル基、9 - フェニルカルバゾール - 4 - イル基、1 - メチルインドール - 2 - イル基、1 - フェニルインドール - 2 - イル基、4 - (2 - ピリジル)フェニル基、4 - (3 - ピリジル)フェニル基、4 - (4 - ピリジル)フェニル基、3 - (2 - ピリジル)フェニル基、3 - (3 - ピリジル)フェニル基、3 - (4 - ピリジル)フェニル基、4 - (2 - フェニルイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、4 - (1 - フェニルイミダゾール - 2 - イル)フェニル基、4 - (2, 3, 4 - トリフェニルイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、4 - (1 - メチル - 4, 5 - ジフェニルイミダゾール - 2 - イル)フェニル基、4 - (2 - メチルベンゾイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、4 - (1 - メチルベンゾイミダゾール - 2 - イル)フェニル基、4 - (2 - フェニルベンゾイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、3 - (2 - メチルベンゾイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、3 - (2 - フェニルベンゾイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、3 - (1 - メチルベンゾイミダゾール - 2 - イル)フェニル基、3 - (2 - フェニルベンゾイミダゾール - 1 - イル)フェニル基、4 - (3, 5 - ジフェニルトリアジン - 1 - イル)フェニル基、4 - (2 - チエニル)フェニル基、4 - (2 - フラニル)フェニル基、5 - フェニルチオフエン - 2 - イル基、5 - フェニルフラン - 2 - イル基、4 - (5 - フェニルチオフエン - 2 - イル)フェニル基、4 - (5 - フェニルフラン - 2 - イル)フェニル基、3 - (5 - フェニルチオフエン - 2 - イル)フェニル基、3 - (5 - フェニルフラン - 2 - イル)フェニル基、4 - (2 - ベンゾチエニル)フェニル基、4 - (3 - ベンゾチエニル)フェニル基、3 - (2 - ベンゾチエニル)フェニル基、3 - (3 - ベンゾチエニル)フェニル基、4 - (2 - ジベンゾチエニル)フェニル基、4 - (4 - ジベンゾチエニル)フェニル基、3 - (2 - ジベンゾチエニル)フェニル基、3 - (4 - ジベンゾチエニル)フェニル基、4 - (2 - ジベンゾフラニル)フェニル基、4 - (4 - ジベンゾフラニル)フェニル基、3 - (2 - ジベンゾフラニル)フェニル基、3 - (4 - ジベンゾフラニル)フェニル基、5 - フェニルピリジン - 2 - イル基、4 - フェニルピリジン - 2 - イル基、5 - フェニルピリジン - 3 - イル基、4 - (9 - カルバゾリル)フェニル基、又は3 - (9 - カルバゾリル)フェニル基、N, N' - ジメチルアミノ基、N, N' - ジフェニルアミノ基、N, N' - ビスピフェニルアミノ基、N - (4 - ビフェニル) - 4 - p - ターフェニルアミノ基、N - [4 - (カルバゾール - 9 - イル)フェニル] - 4 - ビフェニルアミノ基、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。

【0027】

前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物において、原料入手性の観点から、 $B^1 \sim B^4$ は、各々独立して、メチル基、tert-ブチル基、n-ブチル基、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、又はフェナントリル基であることが好ましく、メチル基、又はフェニル基であることがより好ましい。

【0028】

$k^1 \sim k^4$ は、同じか又は異なり、それぞれ0~4の整数である。 $k^1 \sim k^4$ は、原料入手性、及び一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を収率良く製造する観点から、

10

20

30

40

50

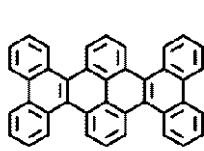
同一の整数であることが好ましく、全て0又は全て1であることがより好ましい。

【0029】

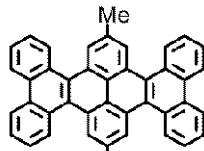
以下に、有機エレクトロルミネッセンス素子の低い駆動電圧、高い発光効率、及び長い寿命の観点から、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子に含まれる一般式(1)で表される多環性芳香族化合物について、好ましい化合物を例示するが、本願発明はこれらの化合物に限定されるものではない。

【0030】

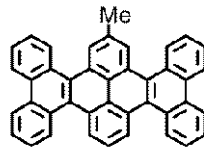
【化3】



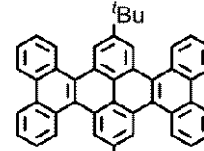
(H1)



(H2)

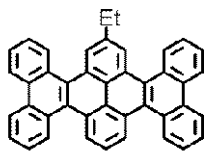


(H3)

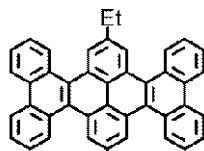


(H4)

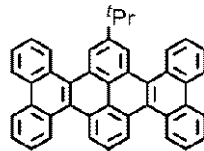
10



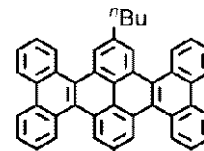
(H5)



(H6)

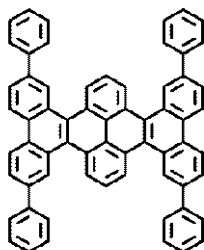


(H7)

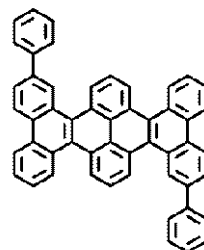


(H8)

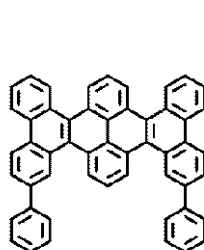
20



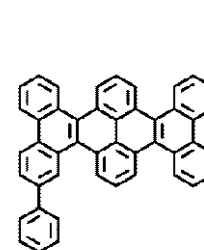
(H9)



(H10)

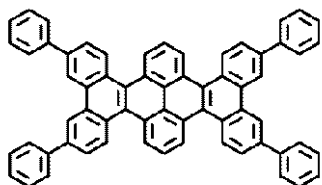


(H11)

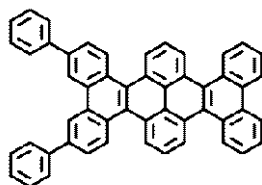


(H12)

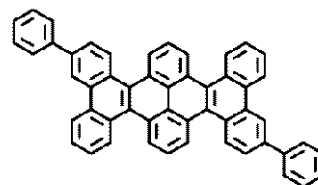
30



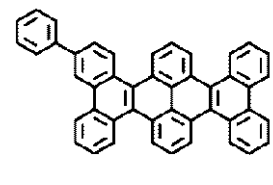
(H13)



(H14)

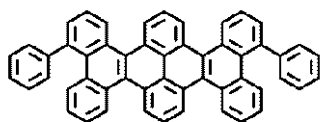


(H15)

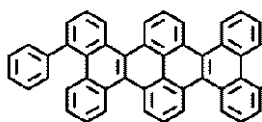


(H16)

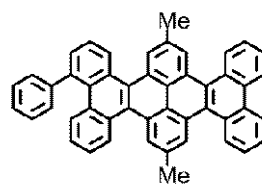
40



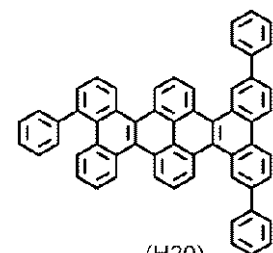
(H17)



(H18)



(H19)

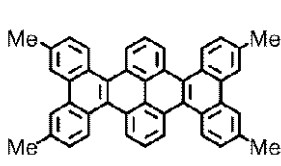


(H20)

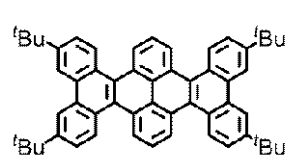
50

【 0 0 3 1 】

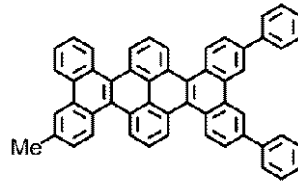
【 化 4 】



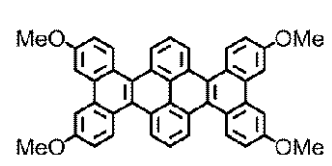
(H21)



(H22)

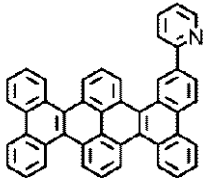


(H23)

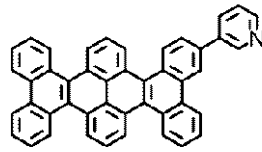


(H24)

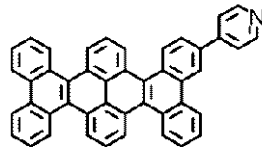
10



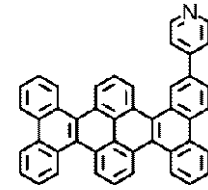
(H25)



(H26)

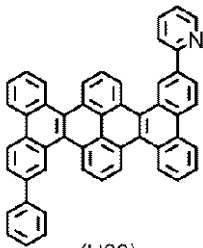


(H27)

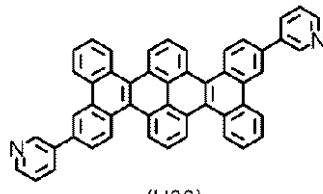


(H28)

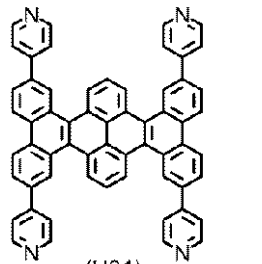
20



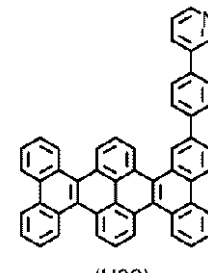
(H29)



(H30)

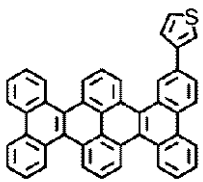


(H31)

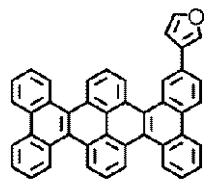


(H32)

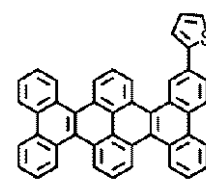
30



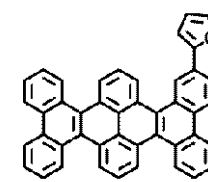
(H33)



(H34)



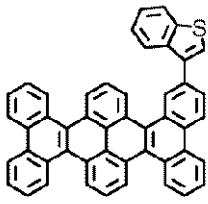
(H35)



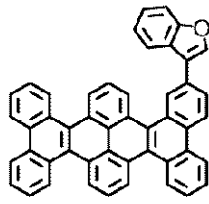
(H36)

【 0 0 3 2 】

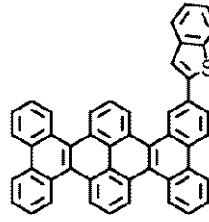
【化 5】



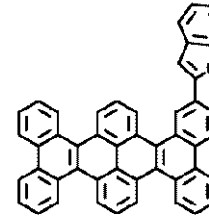
(H37)



(H38)

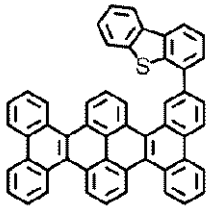


(H39)

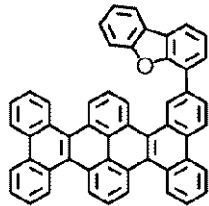


(H40)

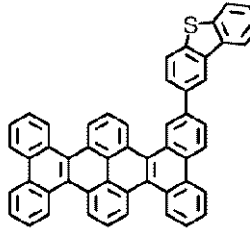
10



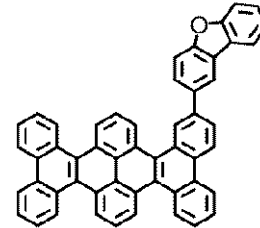
(H41)



(H42)

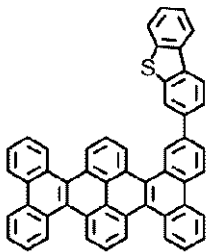


(H43)

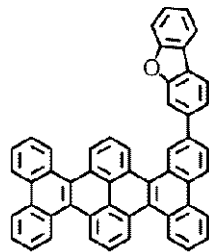


(H44)

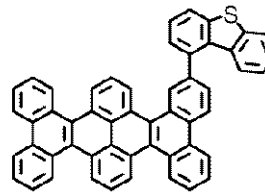
20



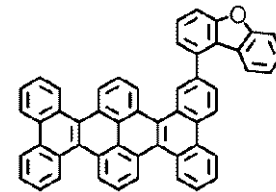
(H45)



(H46)

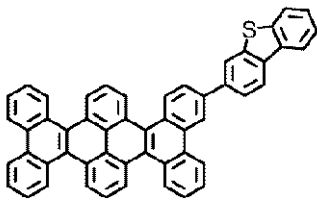


(H47)

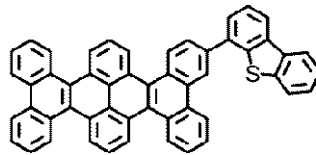


(H48)

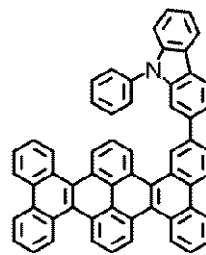
30



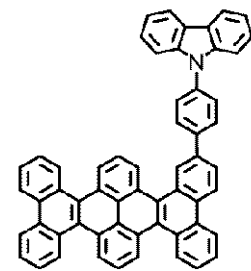
(H49)



(H50)



(H51)

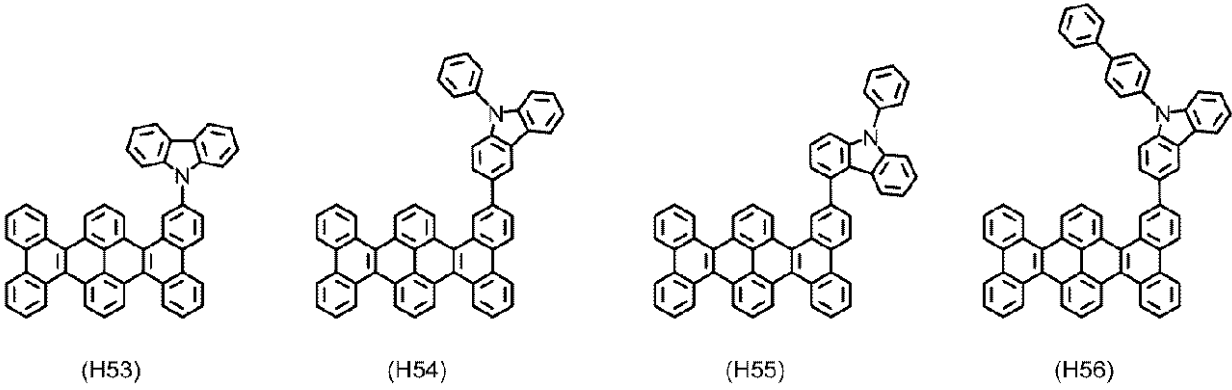


(H52)

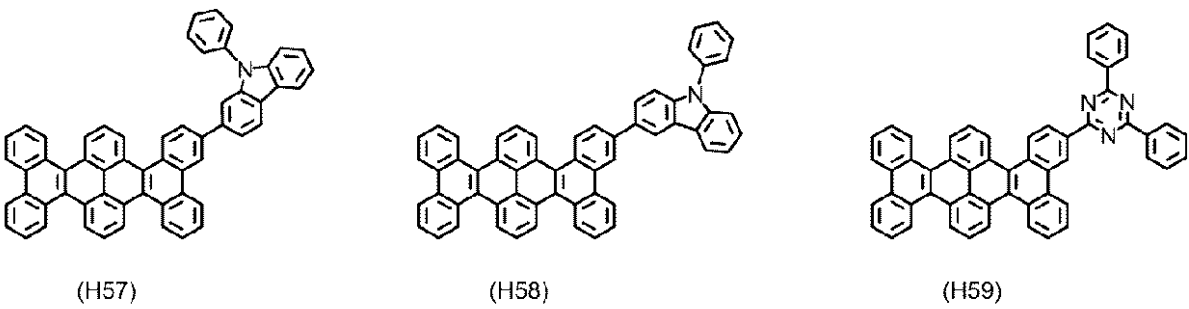
40

【 0 0 3 3 】

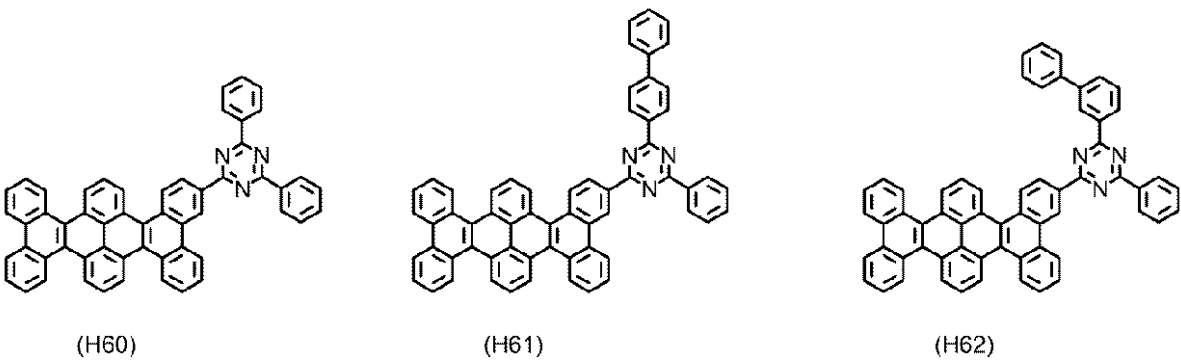
【化 6】



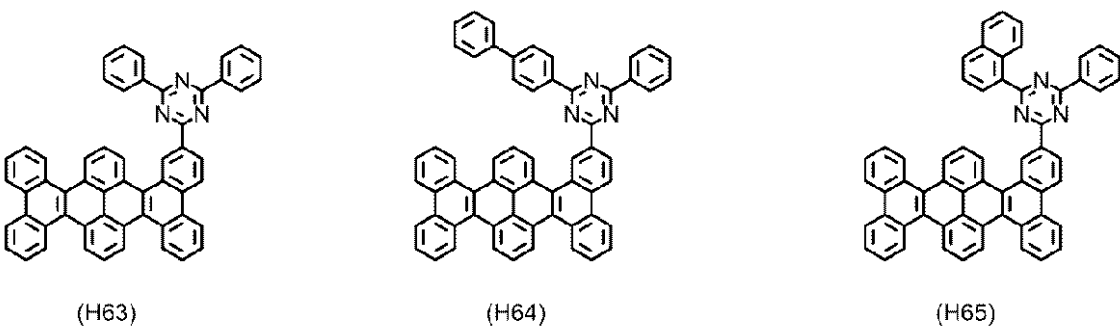
10



20



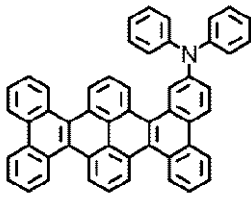
30



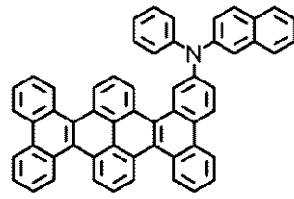
40

【 0 0 3 4 】

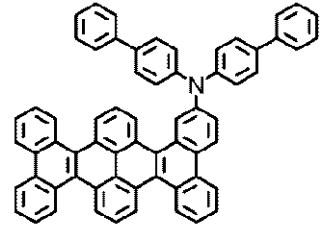
【化7】



(H66)

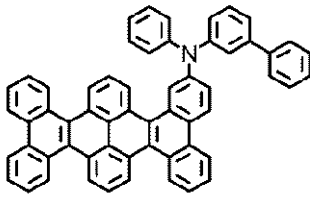


(H67)

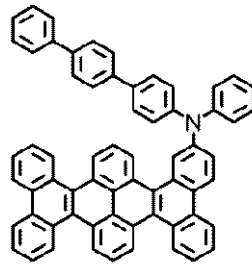


(H68)

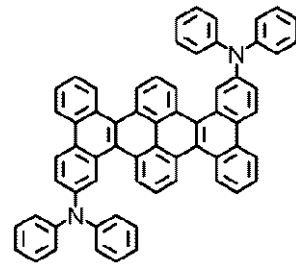
10



(H69)

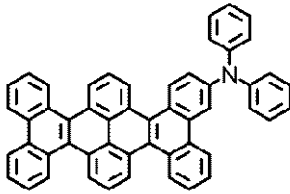


(H70)

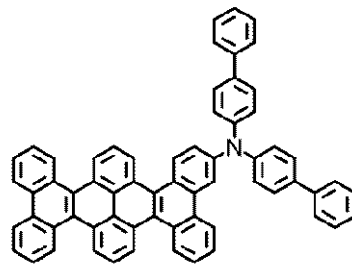


(H71)

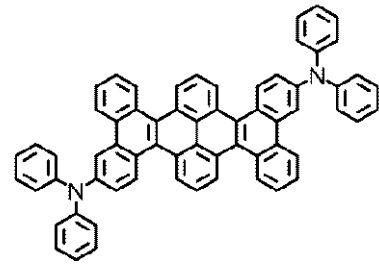
20



(H72)

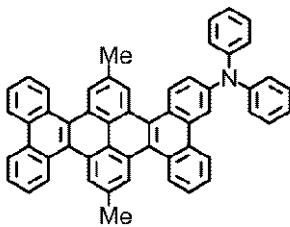


(H73)

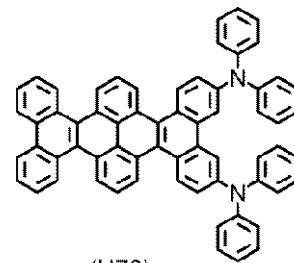


(H74)

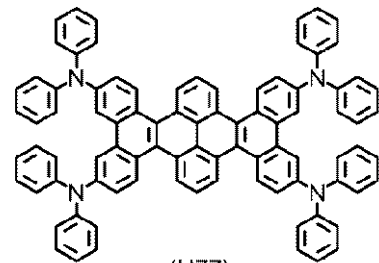
30



(H75)



(H76)

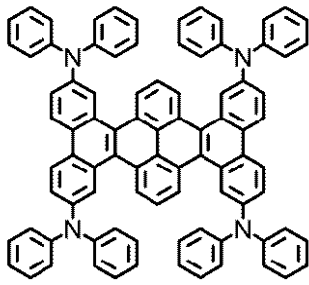


(H77)

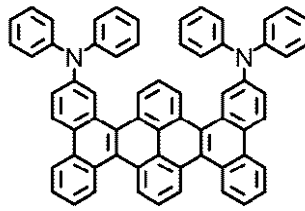
40

【0035】

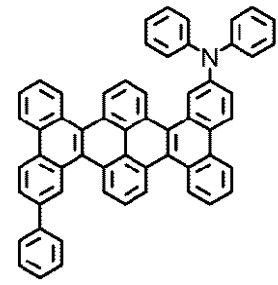
【化 8】



(H78)



(H79)



(H80)

10

【0036】

前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物は、無置換あるいは置換された縮合環化合物と、無置換あるいは置換されたシロール化合物を原料として用い、公知の方法(例えば、Nature Communications, 2015年, 6号, 6251頁.)によって合成することができる。

【0037】

例えば、下記のルートにより、合成することができる。

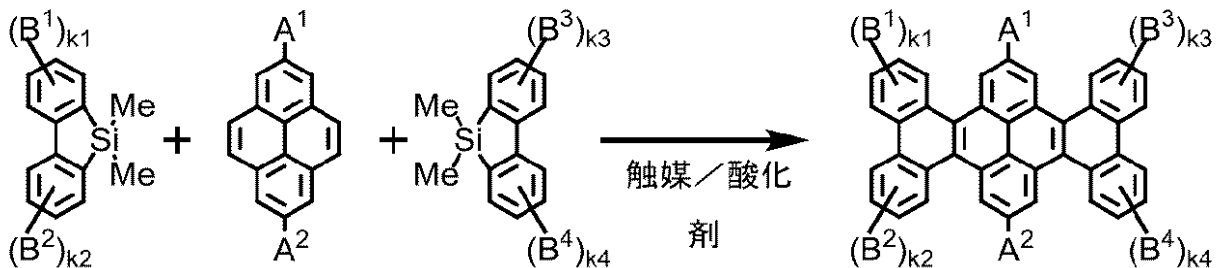
【0038】

一般式(3)、(3')、又は(3'')で表されるシロール化合物と、一般式(4)、(4')、又は(4'')で表される縮合環化合物を、酸化剤の存在下、パラジウム触媒を用いて反応させる。一般式(3)と(3')、及び(4')と(4'')は、同一でも、相異でも良い。一般式(3)と(3')、及び(4')と(4'')は、それぞれ一般式(4)、及び(3'')に段階的に反応させても、同時に反応させても良いが、反応選択性の観点から、段階的に反応させることが好ましい。

20

【0039】

【化 9】



(3)

(4)

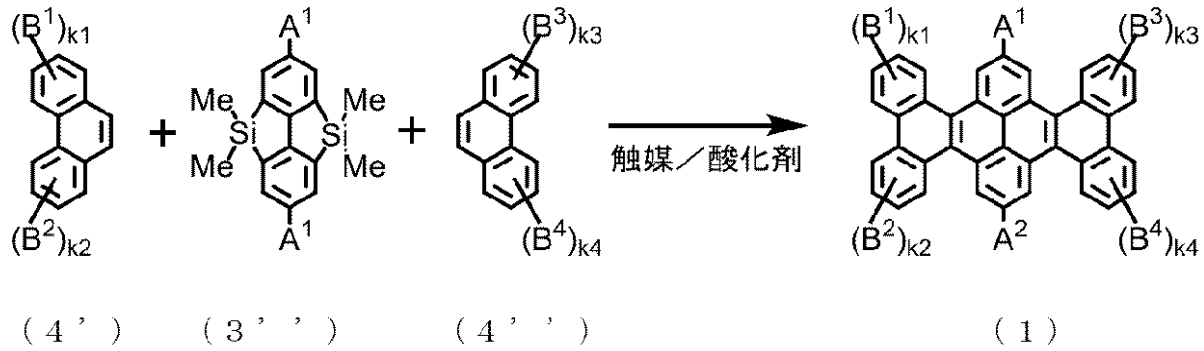
(3')

(1)

30

【0040】

【化10】



10

【0041】

(式中、 A^1 及び A^2 、 $B^1 \sim B^4$ 、及び $k^1 \sim k^4$ は、前記一般式(1)と同じ定義を表わす。

【0042】

一般式(3)、(3')、(3'')、(4)、(4')、及び(4'')で表される化合物は、一般公知の方法に基づいて合成することができるし、市販されている化合物を用いることもできる(例えば、Nature Communications, 2015年, 6号, 6251頁.)。

20

【0043】

本発明の前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として使用することができる。なお、前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物は、電荷輸送特性や素子寿命の点で、高純度であることが好ましい。具体的には、ハロゲン原子や遷移金属元素による不純物や、製造原料や副生成物等の不純物が極力少ないものが好ましい。

【0044】

本発明は、陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極の間に、複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、正孔輸送領域(例えば、具体的には、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層等で構成される)、及び発光領域(例えば、具体的には、発光層等で構成される)を構成する層のうち少なくとも1層が下記式(1)で表される多環性芳香族化合物を含むことを特徴とする、有機エレクトロルミネッセンス素子である。

30

【0045】

本発明は、素子寿命に優れる点で、正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層が、正孔注入層、正孔輸送層、又は電子阻止層、及び発光層を有し、当該正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、又は発光層が、前記化合物(1)を含むことが好ましく、正孔輸送領域、及び発光領域を構成する層が、正孔注入層、正孔輸送層、又は電子阻止層、及び発光層を有し、当該正孔注入層、正孔輸送層、又は電子阻止層が、前記化合物(1)の単層であることがより好ましい。

【0046】

前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を、有機エレクトロルミネッセンス素子の正孔輸送領域(例えば、具体的には、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層等で構成される)、又は発光領域(例えば、具体的には、発光層等で構成される)として使用する際の発光層には、従来から使用されている公知の蛍光発光材料、燐光発光材料、又は熱活性化遅延蛍光発光材料を使用することができる。発光層は1種類の発光材料のみで形成されていても、ホスト材料中に1種類以上の発光材料がドーブされていてもよい。

40

【0047】

前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を含む正孔輸送領域(例えば、具体的には、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層等で構成される)を形成する際には、単層であってもよいし、他の単数又は複数の公知の材料を含有又は積層させてもよく、当該公知

50

の材料としては、例えば、酸化モリブデン等の酸化物、7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン、2,3,5,6-テトラフルオロ-7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン、ヘキサシアノヘキサアザトリフェニレン等の公知の電子受容性材料を含有又は積層させてもよい。

【0048】

前記一般式(1)で表され多環性芳香族化合物を有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層として使用する場合には、単独で使用してもよいし、公知の発光ホスト材料にドーブして使用してもよいし、又は公知の発光ドーパントをドーブして使用してもよい。

【0049】

前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物については、電子輸送領域(例えば、具体的には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等で構成される)に用いることもできる。前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を含む電子輸送領域(例えば、具体的には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等で構成される)を形成する際には、単層であってもよいし、他の単数又は複数の公知の材料を含有又は積層させてもよく、当該公知の材料としては、例えば、アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、土類金属錯体等が挙げられる。アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、又は土類金属錯体としては、例えば、8-ヒドロキシキノリナートリチウム(Liq)、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)亜鉛、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)銅、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)マンガン、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)ガリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリナート)クロロガリウム、ビス(2-メチル-8-キノリナート)(o-クレゾラート)ガリウム、ビス(2-メチル-8-キノリナート)-1-ナフトラートアルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリナート)-2-ナフトラートガリウム等の公知の電子受容性材料が挙げられ、これらを含有又は積層させてもよい。

10

20

【0050】

前記一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を含有する正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、又は電子注入層を形成する方法としては、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法等の公知の方法を適用することができる。

30

【0051】

本発明の効果が得られる有機エレクトロルミネッセンス素子の基本的な構造としては、基板、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、及び陰極を含むものが好ましく、一部の層が省略されていても、また逆に追加されていてもよい。

【0052】

有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極及び陰極は、電気的な導体を介して電源に接続されている。陽極と陰極との間に電位を加えることにより、有機エレクトロルミネッセンス素子は作動、発光する。

【0053】

正孔は陽極から有機エレクトロルミネッセンス素子内に注入され、電子は陰極で有機エレクトロルミネッセンス素子内に注入される。

40

【0054】

有機エレクトロルミネッセンス素子は典型的には基板に被せられ、陽極又は陰極は基板と接触することができる。基板と接触する電極は便宜上、下側電極と呼ばれる。一般的には、下側電極は陽極であるが、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、そのような形態に限定されるものではない。

【0055】

基板は、意図される発光方向に応じて、光透過性又は不透明であってもよい。光透過性は、基板を通してエレクトロルミネッセンス発光により確認できる。一般的には、透明

50

ガラス又はプラスチックがこのような場合に基板として採用される。基板は、多重の材料層を含む複合構造であってもよい。

【0056】

エレクトロルミネッセンス発光を、陽極を通して確認する場合、陽極は当該発光を通すか又は実質的に通すもので形成される。

【0057】

本発明において使用される一般的な透明アノード（陽極）材料は、特に限定するものではないが、インジウム - 錫酸化物（ITO）、インジウム - 亜鉛酸化物（IZO）、又は酸化錫等が挙げられる。その他の金属酸化物、例えばアルミニウム又はインジウム・ドーブ型酸化錫、マグネシウム - インジウム酸化物、又はニッケル - タングステン酸化物も使用可能である。これらの酸化物に加えて、金属窒化物である、例えば窒化ガリウム、金属セレン化物である、例えばセレン化亜鉛、又は金属硫化物である、例えば硫化亜鉛を陽極として使用することができる。

10

【0058】

陽極は、プラズマ蒸着されたフルオロカーボンで改質することができる。陰極を通してだけエレクトロルミネッセンス発光が確認される場合、陽極の透過特性は重要ではなく、透明、不透明又は反射性の任意の導電性材料を使用することができる。この用途のための導体の一例としては、金、イリジウム、モリブデン、パラジウム、白金等が挙げられる。

【0059】

陽極と発光層の間には、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層といった正孔輸送性の層を複数層設けることができる。正孔注入層や正孔輸送層は、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、これらの層を陽極と発光層の間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔を発光層に注入することができる。

20

【0060】

公知の正孔輸送材料（正孔注入材料、正孔輸送材料、電子阻止材料等を含む）としては、特に限定するものではないが、例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、又、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマーなどが挙げられる。これらのうち、ボルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物が好ましい。

30

【0061】

上記芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノフェニル、N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス(3 - メチルフェニル) - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン(TPD)、2, 2 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)プロパン、1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N' - テトラ - p - トリル - 4, 4' - ジアミノビフェニル、1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン、ビス(4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(4 - メトキシフェニル) - 4, 4' - ジアミノビフェニル、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノジフェニルエーテル、4, 4' - ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N, N, N - トリ(p - トリル)アミン、4 - (ジ - p - トリルアミノ) - 4' - [4 - (ジ - p - トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビニル)ベンゼン、3 - メトキシ - 4' - N, N - ジフェニルアミノスチルベンゼン、N - フェニルカルバゾール、4, 4' - ビス[N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、4, 4', 4'' - トリス[N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニル

40

50

アミノ)トリフェニルアミン(MTDATA)などがあげられる。

【0062】

又、p型-Si、p型-SiCなどの無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。正孔注入層、正孔輸送層は、上記材料の一種又は二種以上からなる一層構造であってもよく、同一組成又は異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

【0063】

有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層は、燐光発光材料、蛍光発光材料、又は熱活性化遅延蛍光発光材料を含み、この領域で電子・正孔対が再結合された結果として発光を生ずる。

【0064】

発光層は、低分子及びポリマー双方を含む単一材料から成っていてもよいが、より一般的には、ゲスト化合物でドーピングされたホスト材料から成っており、発光は主としてドーパントから生じ、任意の色を有することができる。

【0065】

発光層のホスト材料としては、例えば、ビフェニル基、フルオレニル基、トリフェニルシリル基、カルバゾール基、ピレニル基、又はアントラニル基を有する化合物が挙げられる。例えば、DPVBi(4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)-1,1'-ビフェニル)、BCzVBi(4,4'-ビス(9-エチル-3-カルバゾビニレン)1,1'-ビフェニル)、TBADN(2-ターシャルブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン)、ADN(9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン)、CBP(4,4'-ビス(カルバゾール-9-イル)ビフェニル)、CDBP(4,4'-ビス(カルバゾール-9-イル)-2,2'-ジメチルビフェニル)、又は9,10-ビス(ビフェニル)アントラセン等が挙げられる。

【0066】

発光層内のホスト材料としては、下記に定義する電子輸送材料、上記に定義する正孔輸送材料、正孔・電子再結合を助ける(サポート)別の材料、又はこれら材料の組み合わせであってもよい。

【0067】

蛍光ドーパントの一例としては、アントラセン、ピレン、テトラセン、キサントン、ペリレン、ルブレン、クマリン、ローダミン、キナクリドン、ジシアノメチレンピラン化合物、チオピラン化合物、ポリメチン化合物、ピリリウム又はチアピリリウム化合物、フルオレン誘導体、ペリフランテン誘導体、インデノペリレン誘導体、ビス(アジニル)アミンホウ素化合物、ビス(アジニル)メタン化合物、カルボスチリル化合物等が挙げられる。

【0068】

燐光ドーパントの一例としては、イリジウム、白金、パラジウム、オスミウム等の遷移金属の有機金属錯体が挙げられる。

【0069】

ドーパントの一例として、Alq₃(トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム)、DPAVBi(4,4'-ビス[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]ビフェニル)、ペリレン、Ir(ppy)₃(トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(III))、又はFlrPic(ビス(3,5-ジフルオロ-2-(2-ピリジル)フェニル-(2-カルボキシピリジル)イリジウム(III))等が挙げられる。

【0070】

電子輸送性材料としては、前述に記載の公知の電子受容性材料等が挙げられる。

【0071】

発光層と電子輸送層との間に、キャリアバランスを改善させる目的で、正孔阻止層を設けてもよい。正孔阻止層として望ましい化合物は、BCP(2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン)、Bphen(4,7-ジフェニル-1,1

10

20

30

40

50

0 - フェナントロリン)、BA1q (ビス(2 - メチル - 8 - キノリノラート) - 4 - (フェニルフェノラート)アルミニウム)、又はビス(10 - ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム)等が挙げられる。

【0072】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、電子注入性を向上させ、素子特性(例えば、発光効率、定電圧駆動、又は高耐久性)を向上させる目的で、電子注入層を設けてもよい。

【0073】

電子注入層として望ましい化合物としては、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキシド、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等が挙げられる。また、上記に記した金属錯体やアルカリ金属酸化物、アルカリ土類酸化物、希土類酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類ハロゲン化物、希土類ハロゲン化物、 SiO_2 、 AlO 、 SiN 、 $SiON$ 、 $AlON$ 、 GeO 、 LiO 、 $LiON$ 、 TiO 、 $TiON$ 、 TaO 、 $TaON$ 、 TaN 、 C などの各種酸化物、窒化物、及び酸化窒化物のような無機化合物等も使用できる。

【0074】

発光が陽極を通してのみ確認される場合、本発明において使用される陰極は、任意の導電性材料から形成することができる。望ましい陰極材料としては、ナトリウム、ナトリウム - カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム / 銅混合物、マグネシウム / 銀混合物、マグネシウム / アルミニウム混合物、マグネシウム / インジウム混合物、アルミニウム / 酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム / アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。

【図面の簡単な説明】

【0075】

【図1】実施例1又は2で作製する有機エレクトロルミネッセンス素子の断面模式図である。

【図2】実施例3で作製する有機エレクトロルミネッセンス素子の断面模式図である。

【実施例】

【0076】

以下、本発明を実施例に基づき、さらに詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に何ら限定されて解釈されるものではない。

【0077】

なお、本実施例で用いた分析機器及び測定方法を以下に列記する。

【0078】

[材料純度測定(HP LC分析)]

測定装置: 東ソー製 マルチステーション LC - 8020

測定条件: カラム Inertsil ODS - 3V
(4.6 mm x 250 mm)

検出器 UV検出(波長 254 nm)

溶離液 メタノール / テトラヒドロフラン = 9 / 1 (v / v比)

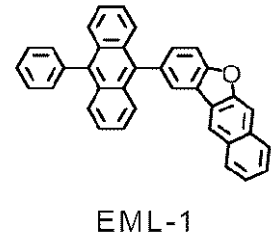
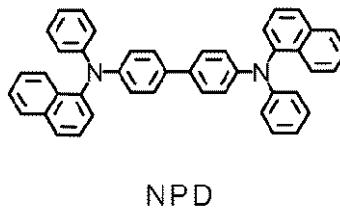
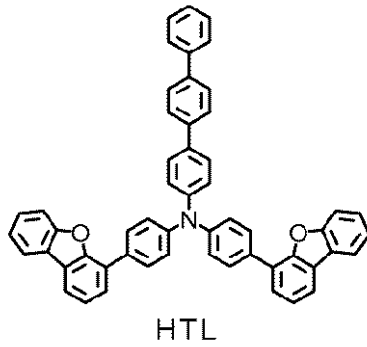
[有機エレクトロルミネッセンス素子の発光特性]

測定装置: TOPCON社製 LUMINANCE METER (BM - 9)

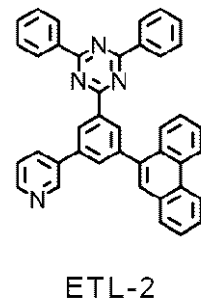
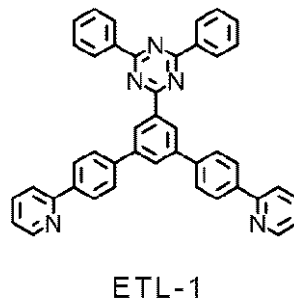
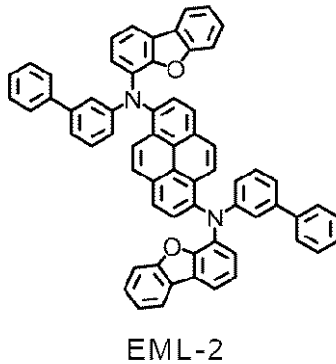
素子評価に用いた化合物の構造式及びその略称を以下に示す。

【0079】

【化 1 1】



10



20

【0080】

素子実施例 1

基板には、2 mm 幅の酸化インジウム - スズ (ITO) 膜 (膜厚 110 nm) がストライプ状にパターンされた ITO 透明電極付きガラス基板を用いた。この基板をイソプロピルアルコールで洗浄した後、オゾン紫外線洗浄にて表面処理を行った。洗浄後の基板に、スピンコートによる塗布成膜、次いで真空蒸着法による各層の蒸着成膜を行い、断面模式図を図 1 に示すような発光面積 4 mm² 有機電界発光素子を作製した。なお、真空蒸着法において、各有機材料は抵抗加熱方式により成膜した。

30

【0081】

まず、図 1 の 1 で示す ITO 透明電極付きガラス基板の上に有機化合物層として、第一正孔注入層 2 を成膜した。第一正孔注入層 2 としては、Clevis (ヘレウス社製) を 1000 rpm、120 秒間の条件でスピンコートし、70 nm 成膜した成膜基板を得た。

【0082】

次に、真空蒸着槽内に前記成膜基板を導入し、 1.0×10^{-4} Pa まで減圧した。

【0083】

その後、図 1 の 2 で示す第一正孔注入層 2 上に、有機化合物層として、第二正孔注入層 3、正孔輸送層 4、発光層 5、電子輸送層 6、電子注入層 7、及び陰極層 8 を、この順番に積層させながら、いずれも真空蒸着で成膜した。

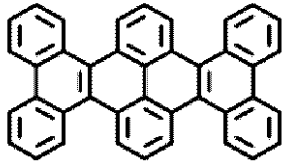
40

【0084】

第二正孔注入層 3 としては、昇華精製した化合物 (H1) (HPLC 純度 99.69%) を 0.15 nm/秒の速度で 10 nm 成膜した。

【0085】

【化 1 2】



(H1)

【0086】

10

正孔輸送層 4としては、HTLを0.15nm/秒の速度で10nm成膜した。

【0087】

発光層 5としては、EML-1及びEML-2を93:7(重量比)の割合で40nm成膜した(成膜速度0.16nm/秒)。

【0088】

電子輸送層 6としては、ETL-1を0.15nm/秒の速度で10nm成膜した。

【0089】

電子注入層 7としては、LiFを0.01nm/秒の速度で1nm成膜した。

【0090】

最後に、ITOストライプと直行するようにメタルマスクを配し、陰極層 8を成膜した。陰極層 8は、アルミニウムを0.30nm/秒の速度で100nm成膜した。 20

【0091】

それぞれの膜厚は、触針式膜厚測定計(DEKTA K)で測定した。

【0092】

さらに、この素子を酸素及び水分濃度1ppm以下の窒素雰囲気グローブボックス内で封止した。封止は、ガラス製の封止キャップと前記成膜基板エポキシ型紫外線硬化樹脂(ナガセケムテックス社製)を用いた。

【0093】

上記のようにして作製した有機電界発光素子に直流電流を印加し、TOPCON社製のLUMINANCE METER(BM-9)の輝度計を用いて発光特性を評価した。発光特性として、電流密度10mA/cm²を流した時の電圧(V)、電流効率(cd/A)を測定し、連続点灯時の素子寿命(h)を測定した。なお、表1の素子寿命(h)は、作製した素子を初期輝度1000cd/m²で駆動したときの連続点灯時の輝度減衰時間を測定し、輝度(cd/m²)が10%減じるまでに要した時間を測定した。電圧、電流効率、及び素子寿命は、後述の素子比較例1における結果を基準値(100)とした相対値で示した。結果を表1に示す。 30

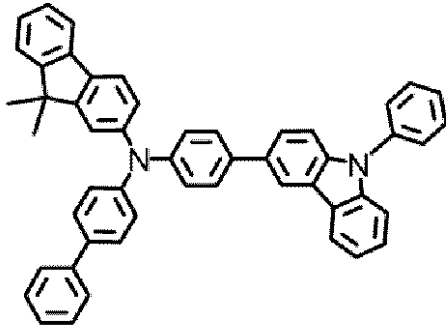
【0094】

素子比較例1

素子実施例1において、化合物(H1)の代わりに化合物(X1)を用いた以外は、素子実施例1と同じ方法で有機電界発光素子を作製し、評価した。結果を表1に示した。なお、電圧、電流効率、及び素子寿命については、本素子比較例1の結果を基準値(100)とした。 40

【0095】

【化 1 3】



(X 1)

10

【0096】

【表 1】

	第二正孔注入層 3 化合物	電圧 (V)	電流効率 (cd/A)	素子寿命
素子実施例 1	H 1	100	95	157
素子比較例 1	X 1	100	100	100

20

【0097】

素子実施例 2

素子実施例 1 において、化合物 (X 1) を第二正孔注入層 3 に用い、化合物 (H 1) を正孔輸送層 4 に用い、電子輸送層 6 (ETL-1) の膜厚を 40 nm にした以外は、素子実施例 1 と同じ方法で有機電界発光素子を作製し、評価した。電圧、及び電流効率は、後述の素子比較例 2 における結果を基準値 (100) とした相対値で示した。結果を表 2 に示す。

【0098】

素子比較例 2

素子実施例 2 において、第二正孔注入層 3、及び正孔輸送層 4 に化合物 (X 1) を用いた以外は、素子実施例 2 と同じ方法で有機電界発光素子を作製し、評価した。結果を表 2 に示した。なお、電圧、及び電流効率については、本素子比較例 2 の結果を基準値 (100) とした。

30

【0099】

【表 2】

	第二正孔注入層 3 化合物	正孔輸送層 4 化合物	電圧 (V)	電流効率 (cd/A)
素子実施例 2	X 1	H 1	99	119
素子比較例 2	X 1	X 1	100	100

40

【0100】

素子実施例 3

用いる基板、洗浄、及び表面処理工程は、実施例 1 と同様に実施した。

【0101】

図 2 の 1 で示す ITO 透明電極付きガラス基板上に有機化合物層として、第一正孔注入層 2 を成膜した。第一正孔注入層 2 としては、Clevis (ヘレウス社製) を 4000 rpm、120 秒間の条件でスピコートし、35 nm 成膜した。

【0102】

次に、真空蒸着槽内に前記成膜基板を導入し、 1.0×10^{-4} Pa まで減圧した。

【0103】

50

その後、図2の2で示す正孔注入層2上に有機化合物層として、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、電子注入層7、及び陰極層8を、この順番に積層させながら、いずれも真空蒸着で成膜した。

【0104】

正孔輸送層4としては、NPDを0.15nm/秒の速度で50nm成膜した。

【0105】

発光層5としては、化合物(H1)及びEML-2を90:10(重量比)の割合で40nm成膜した(成膜速度0.16nm/秒)。

【0106】

電子輸送層6としては、ETL-2を0.15nm/秒の速度で20nm成膜した。

10

【0107】

電子注入層7としては、LiFを0.01nm/秒の速度で1nm成膜した。

【0108】

最後に、ITOストライプと直行するようにメタルマスクを配し、陰極層8を成膜した。陰極層8は、アルミニウムを0.30nm/秒の速度で100nm成膜した。

【0109】

膜厚測定、封止工程、及び発光特性については、実施例1と同様に実施した。電圧、及び電流効率は、後述の素子比較例3における結果を基準値(100)とした相対値で示した。結果を表3に示す。

【0110】

20

素子比較例3

素子実施例3において、化合物(H1)の代わりにEML-1を用いた以外は、素子実施例3と同じ方法で有機電界発光素子を作製し、評価した。結果を表3に示した。なお、電圧、及び電流効率については、本素子比較例3の結果を基準値(100)とした。

【0111】

【表3】

	発光層5 ホスト化合物	電圧 (V)	電流効率 (cd/A)
素子実施例3	H1	69	96
素子比較例3	EML-1	100	100

30

【産業上の利用可能性】

【0112】

本発名の有機エレクトロルミネッセンス素子は、一般式(1)で表される多環性芳香族化合物を構成成分とすることで、従来公知材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子と比較して、駆動電圧、又は素子寿命に優れる。

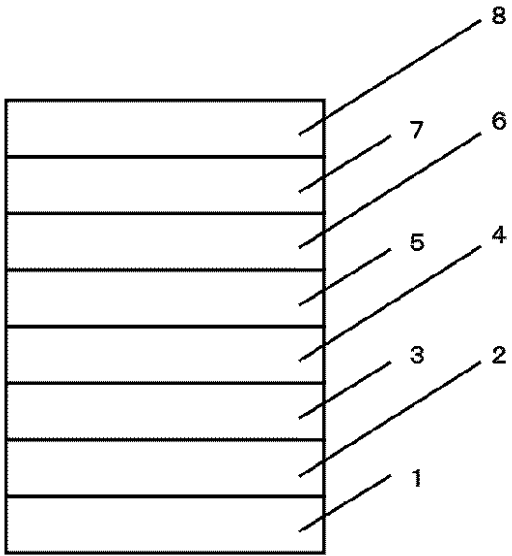
【符号の説明】

【0113】

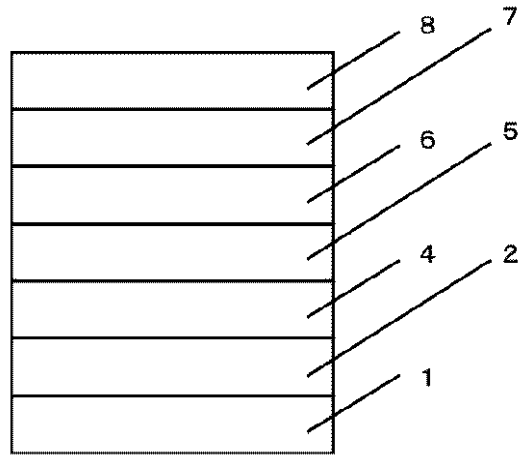
1. ITO透明電極付きガラス基板
2. 第一正孔注入層
3. 第二正孔注入層
4. 正孔輸送層
5. 発光層
6. 電子輸送層
7. 電子注入層
8. 陰極層

40

【 図 1 】



【 図 2 】



フロントページの続き

(72)発明者 伊藤 英人

愛知県名古屋市千種区不老町1 国立大学法人名古屋大学内

(72)発明者 瀬川 泰知

愛知県名古屋市千種区不老町1 国立大学法人名古屋大学内

(72)発明者 矢野 裕太

愛知県名古屋市千種区不老町1 国立大学法人名古屋大学内

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC04 CC12 CC21 CC24 CC45 DD58 DD68
DD69 DD71 DD78

专利名称(译)	一种有机电致发光器件，包含多环芳族化合物作为组分		
公开(公告)号	JP2019004058A	公开(公告)日	2019-01-10
申请号	JP2017118092	申请日	2017-06-15
[标]申请(专利权)人(译)	东曹株式会社 国立大学法人名古屋大学		
申请(专利权)人(译)	Tosoh公司 国立大学法人名古屋大学		
[标]发明人	森中裕太 田中剛 伊丹健一郎 伊藤英人 瀬川泰知		
发明人	森中 裕太 田中 剛 伊丹 健一郎 伊藤 英人 瀬川 泰知 矢野 裕太		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06		
FI分类号	H05B33/22.D H05B33/14.B C09K11/06.610		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC04 3K107/CC12 3K107/CC21 3K107/CC24 3K107/CC45 3K107/DD58 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD78		
其他公开文献	JP2019004058A5		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)
 解决的问题：提供寿命长或驱动电压优异的有机电致发光元件。一种有机电致发光器件，其具有阳极和阴极以及在阳极和阴极之间的多个有机层，其中空穴传输区和发光区的至少一层是 使用包含由式 (1) 表示的多环芳族化合物的有机电致发光器件。 [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2019-4058 (P2019-4058A)
	(43) 公開日	平成31年1月10日 (2019.1.10)
(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考) 3 K 1 0 7
<i>H01L 51/50 (2006.01)</i> <i>C09K 11/06 (2006.01)</i>	H05B 33/22 H05B 33/14 C09K 11/06	D B 610
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 25 頁)		
(21) 出願番号 (22) 出願日	特願2017-118092 (P2017-118092) 平成29年6月15日 (2017.6.15)	(71) 出願人 000003300 東ソー株式会社 山口県周南市開成町4560番地 504139662 国立大学法人名古屋大学 愛知県名古屋市千種区不老町1番
		(72) 発明者 森中 裕太 神奈川県横浜市早川2743番地1 東 ソー株式会社 東京研究センター内
		(72) 発明者 田中 剛 神奈川県横浜市早川2743番地1 東 ソー株式会社 東京研究センター内
		(72) 発明者 伊丹 健一郎 愛知県名古屋市千種区不老町1 国立大 学法人名古屋大学内
		最終頁に続く
(54) 【発明の名称】 多環性芳香族化合物を構成成分とする有機電界発光素子		