

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

WO2003/080760

発行日 平成17年7月21日(2005. 7. 21)

(43) 国際公開日 平成15年10月2日(2003. 10. 2)

(51) Int. Cl.⁷

F I

C09K 11/06

C09K 11/06 645

H05B 33/14

C09K 11/06 640

H05B 33/22

C09K 11/06 650

H05B 33/14 B

H05B 33/22 B

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 49 頁) 最終頁に続く

出願番号	特願2003-578493 (P2003-578493)	(71) 出願人	000183646
(21) 国際出願番号	PCT/JP2003/003329		出光興産株式会社
(22) 国際出願日	平成15年3月19日(2003. 3. 19)		東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(31) 優先権主張番号	特願2002-81234 (P2002-81234)	(74) 代理人	100078732
(32) 優先日	平成14年3月22日(2002. 3. 22)		弁理士 大谷 保
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(74) 代理人	100081765
(31) 優先権主張番号	特願2002-299810 (P2002-299810)		弁理士 東平 正道
(32) 優先日	平成14年10月15日(2002. 10. 15)	(72) 発明者	岩隈 俊裕
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(81) 指定国	EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), CN, IN, JP, KR	(72) 発明者	山本 弘志
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	弘中 義雄
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	池田 秀嗣
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
			最終頁に続く

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

(57) 【要約】

本発明は、アリールカルbazイル基又はカルbazイルアルキレン基に、窒素含有ヘテロ環基が結合した化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、及び、陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であり、色純度が高く、青色系に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供可能な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。

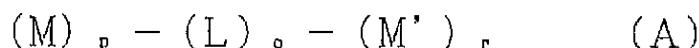
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式 (1) 又は (2) で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。



〔式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基、 A は、下記一般式 (A) で表される基である。 n 、 m は、それぞれ 1～3 の整数である。〕



(M 及び M' は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～40 の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、同一でも異なってもよい。 L は、単結合、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 5～30 のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数 2～30 のヘテロ芳香族環である。 p は 0～2、 q は 1～2、 r は 0～2 の整数である。ただし、 $p+r$ は 1 以上である。)

【請求項 2】

前記一般式 (1) において $n=1$ 、かつ前記一般式 (A) において $p=1$ 、 $r=0$ であり、

一般式 (1) 式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式 (A) 式中、 M は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 4～5 の窒素含有ヘテロ 6 員環又は 7 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～4 の窒素含有ヘテロ 5 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 8～11 の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジニル環であり、 L は、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 2～30 のヘテロ芳香族環である、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。

【請求項 3】

前記一般式 (1) において $n=2$ 、かつ前記一般式 (A) において $p=1$ 、 $r=0$ であり、

一般式 (1) 式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式 (A) 式中、 M は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 4～5 の窒素含有ヘテロ 6 員環又は 7 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～4 の窒素含有ヘテロ 5 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 8～11 の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジニル環であり、 L は、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 2～30 のヘテロ芳香族環である、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。

【請求項 4】

前記一般式 (1) において $n=1$ 、かつ前記一般式 (A) において $p=2$ 、 $r=0$ であり、

一般式 (1) 式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式 (A) 式中、 M は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～40 の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、 L は、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリール基もしくはアリーレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数 2～30 のヘテロ芳香族環である、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。

【請求項 5】

前記一般式 (2) において $m=2$ 、かつ前記一般式 (A) において $p=q=1$ であり、

一般式(2)式中、Czは、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式(A)式中、M及びM'は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数2～40の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、同一でも異なってもよい。Lは、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数2～30のヘテロ芳香族環である、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。

【請求項6】

Czが、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

10

【請求項7】

Czが、置換もしくは無置換のフェニルカルバゾイル基である請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項8】

アリールカルバゾイル基のアリール部位がカルバゾイル基で置換されている請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項9】

前記一般式(1)又は(2)で表される化合物の3重項のエネルギーギャップが、2.5～3.3 eVである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

20

【請求項10】

前記一般式(1)及び(2)で表される化合物の1重項のエネルギーギャップが、2.8～3.8 eVである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項11】

陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、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含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】

陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が請求項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含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【請求項13】

陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、電子輸送層が請求項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含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】

陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送層が請求項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含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項15】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が、有機ホスト材料である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【請求項16】

少なくとも一方の電極と前記有機薄膜層との間に無機化合物層を有する請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項17】

3重項励起又はそれ以上の多重項励起により発光する請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項18】

青色系発光する請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

【発明の詳細な説明】

技術分野

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（有機EL素子）に関し、特に、色純度が高く、青色系に発光する有機EL素子に関するものである。

背景技術

有機物質を使用した有機EL素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般に、有機EL素子は、発光層及び該層を挟んだ一対の対向電極から構成されている。

有機EL素子の発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入され、電子が発光層において正孔と再結合し、励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

発光材料としては、トリス（８－キノリノラート）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特開平８－２３９６５５号公報、特開平７－１３８５６１号公報及び特開平３－２００２８９号公報等）。

最近では、有機EL素子ディスプレイの実用化が開始されているものの、フルカラー表示素子は開発途中である。特に、色純度及び発光効率が高く、青色系に発光する有機EL素子が求められている。

これらを解決しようとするものとして、例えば、特開平８－１２６００号公報には、青色発光材料としてフェニルアントラセン誘導体を用いた素子開示されている。フェニルアントラセン誘導体は、青色発光材料として用いられ、通常、トリス（８－キノリノラート）アルミニウム（Alq）錯体層との前記青色材料層の積層体として用いられるが、発光効率、寿命、青色純度が実用に用いられるレベルとしては不十分であった。特開２００１－２８８４６２号公報には、アミン系芳香族化合物を発光層に用いた青色発光素子が開示されているが、発光効率が２～４cd/Aと不十分であった。特開２００１－１６０４８９号公報には、アザフルオランテン化合物を発光層に添加した素子が開示されているが、黄色から緑色の発光となり、十分に色純度の高い青色を発光するに至っていない。

発明の開示

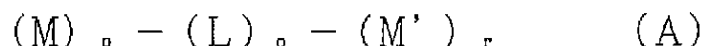
本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、色純度が高く、青色系に発光する有機EL素子用材料及びそれを利用した有機EL素子を提供することを目的とする。

本発明者らは、前記課題を解決するために鋭意検討した結果、アリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基に、窒素含有ヘテロ環基が結合した化合物をホスト材料として用いることにより、青色純度が高い有機EL素子が得られることを見出し本発明を解決するに至った。

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



〔式中、Czは、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基、Aは、下記一般式（A）で表される基である。n、mは、それぞれ１～３の整数である。〕



（M及びM'は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数２～４０の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、同一でも異なってもよい。Lは、単結合、置換もしくは無置換の炭素数６～３０のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数５～３０のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数２～３０のヘテ

10

20

30

40

50

ロ芳香族環である。pは0～2、qは1～2、rは0～2の整数である。ただし、p+rは1以上である。)]

また、本発明は、陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記有機EL素子用材料を含有する有機EL素子を提供するものである。前期有機薄膜層のうち、発光層、電子輸送層、又は正孔輸送層が前記有機EL素子用材料を含有していてもよい。

発明を実施するための最良の形態

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

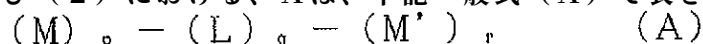


Czは、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又は置換もしくは無置換のカルバゾイルアルキレン基である。n及びmは、それぞれ1～3の整数である。

アリールカルバゾイル基におけるアリール基は、炭素数6～30であると好ましく、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、ピレニル基、フルオレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基等が挙げられ、これらのうち、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基が好ましい。

カルバゾイルアルキレン基におけるアルキレン基は、炭素数1～10であると好ましく、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、n-ブチレン基、s-ブチレン基、イソブチレン基、t-ブチレン基、n-ペンチレン基、n-ヘキシレン基、n-ヘプチレン基、n-オクチレン基、ヒドロキシメチレン基、クロロメチレン基、アミノメチレン基等が挙げられ、これらのうち、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、n-ブチレン基、t-ブチレン基、n-ペンチレン基が好ましい。

一般式(1)及び(2)における、Aは、下記一般式(A)で表される基である。



M及びM'は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数2～40の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、同一でも異なってもよい。

窒素含有ヘテロ芳香族環としては、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、アジリジン、アザインドリジン、インドリジン、イミダゾール、インドール、イソインドール、インダゾール、プリン、プテリジン、β-カルボリン、ナフチリジン、キノキサリン、ターピリジン、ビピリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、イミダゾピリジン等が挙げられ、特に、ピリジン、ターピリジン、ピリミジン、イミダゾピリジン、トリアジンが好ましい。

Lは、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシクロアルキレン基、置換もしくは無置換の炭素数2～30のヘテロ芳香族環である。

pは0～2、qは1～2、rは0～2の整数である。ただし、p+rは1以上である。

炭素数6～30のアリール基としては、例えば、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ビレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、パーフルオロアリール基等が挙げられ、これらのうちフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、パーフルオロアリール基が好ましい。

炭素数6～30のアリーレン基としては、例えば、フェニレン基、ピフェニレン基、ターフェニレン基、ナフチレン基、アントラニレン基、フェナンスリレン基、ビレニレン基、クリセニレン基、フルオランテニレン基、パーフルオロアリーレン基等が挙げられ、これらのうちフェニレン基、ピフェニレン基、ターフェニレン基、パーフルオロアリーレン基が好ましい。

炭素数5～30のシクロアルキレン基としては、例えばシクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロヘプチレン基などが挙げられ、これらのうちシクロヘキシレン基が好ま

20

30

40

50

しい。

炭素数 2 ～ 30 のヘテロ芳香族環としては、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、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、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-フェナンスロリン-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-フェナンスロリン-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

10

20

30

40

50

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、これらのうち、ピリジニル基、キノリル基が好ましい。

また、上記一般式(1)、(2)及び(A)におけるCz、M、M'の置換基としては、塩素、臭素、フッ素等のハロゲン原子、カルバゾール基、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、シリル基、トリフルオロメチル基、カルボニル基、カルボキシル基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のアリールアルキル基、置換もしくは無置換の芳香族基、置換もしくは無置換のヘテロ芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルキルオキシ基等が挙げられる。これらのうち、フッ素原子、メチル基、パーフルオロフェニレン基、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、アダマンチル基、ベンジル基、シアノ基、シリル基が好ましい。

前記一般式(1)又は(2)で表される化合物の結合様式としては、*n*、*m*の値に応じ、下記表1に示すようになる。

表 1

<i>n</i> = <i>m</i> =1	<i>n</i> =2	<i>n</i> =3	<i>m</i> =2	<i>m</i> =3
Cz—A	Cz—A—Cz	$\begin{array}{c} \text{Cz} \text{---} \text{A} \text{---} \text{Cz} \\ \\ \text{Cz} \end{array}$	A—Cz—A	$\begin{array}{c} \text{A} \text{---} \text{Cz} \text{---} \text{A} \\ \\ \text{A} \end{array}$

前記一般式(A)で表される基の結合様式としては、*p*、*q*、*r*の値に応じ、下記表2に示すようになる。

10

20

30

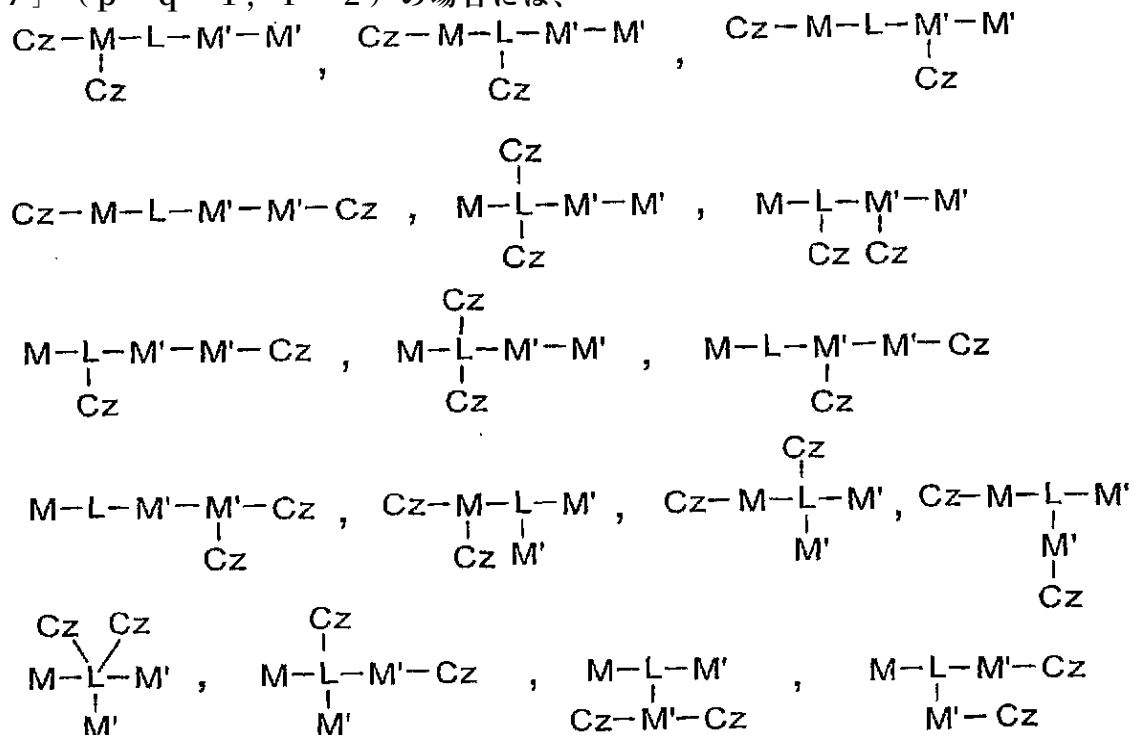
表 2

No	p	q	r	結 合 様 式
[1]	0	1	1	$L-M'$
[2]	0	1	2	$L-M'-M', M'-L-M'$
[3]	0	2	1	$L-L-M', L-M'-L$
[4]	0	2	2	$L-L-M'-M', M'-L-L-M',$ $L-\underset{\substack{ \\ L}}{M'}-\underset{\substack{ \\ L}}{M'}-L, M'-\underset{\substack{ \\ L}}{L}-M', L-\underset{\substack{ \\ M'}}{M'}-L$
[5]	1	1	0	[1]に同じ (M' をMと読み替える)
[6]	1	1	1	$M-L-M'$
[7]	1	1	2	$M-L-M'-M',$ $M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-M'$
[8]	1	2	0	[3]に同じ (M' をMと読み替える)
[9]	1	2	1	$M-L-L-M', L-M-L-M', M-L-M'-L$
[10]	1	2	2	$M-L-L-M'-M', M'-L-M-L-M',$ $M'-M'-L-M-L,$ $M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-M', L-\underset{\substack{ \\ M}}{L}-M-M', L-M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-M', M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-L$
[11]	2	1	0	[2]に同じ (M' をMと読み替える)
[12]	2	1	1	[7]に同じ (M' をMと、MをM' と読み替える)
[13]	2	1	2	$M-M-L-M'-M',$ $M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-\underset{\substack{ \\ M'}}{M'}, M-\underset{\substack{ \\ M}}{L}-M-M'$
[14]	2	2	0	[4]に同じ (M' をMと読み替える)
[15]	2	2	1	[10]に同じ (M' をMと、MをM' と読み替える)
[16]	2	2	2	$M-M-L-L-M'-M',$ $M-M-\underset{\substack{ \\ L}}{L}-M-M', M-\underset{\substack{ \\ M}}{L}-L-M-M',$ $M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-L, M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-M$ $M-M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-L-M', L-\underset{\substack{ \\ M}}{L}-\underset{\substack{ \\ M}}{L}-M-M', M-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-\underset{\substack{ \\ M'}}{L}-M$

Aと結合しているCzは、Aを表す一般式(A)のM、L、M'のいずれに結合していてもよい。

例えば、一般式(1)もしくは(2)において、 $m=n=1$ である $Cz-A$ で、(A)が表2[6] ($p=q=r=1$)の場合には、 $Cz-M-L-M'$ 、 $M-L(Cz)-M'$ 及び $M-L-M'-Cz$ の3つの結合様式が挙げられる。

また、例えば、一般式 (1) において、 $n = 2$ である $Cz - A - Cz$ で、(A) が表 2 [7] ($p = q = 1$, $r = 2$) の場合には、



のような結合様式が挙げられる。

以上のような、一般式 (1)、(2) 及び (A) の結合様式、並びに各基の例示の組み合わせにおいて、下記▲1▼～▲4▼で表される化合物からなる有機 EL 素子用材料が好ましい。

▲1▼前記一般式 (1) において $n = 1$ 、かつ前記一般式 (A) において $p = 1$, $r = 0$ であり、

一般式 (1) 式中、Cz は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式 (A) 式中、M は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 4～5 の窒素含有ヘテロ 6 員環又は 7 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～4 の窒素含有ヘテロ 5 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 8～11 の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジニル環であり、L は、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 2～30 のヘテロ芳香族環である有機 EL 素子用材料。

30

▲2▼前記一般式 (1) において $n = 2$ 、かつ前記一般式 (A) において $p = 1$, $r = 0$ であり、

一般式 (1) 式中、Cz は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式 (A) 式中、M は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 4～5 の窒素含有ヘテロ 6 員環又は 7 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～4 の窒素含有ヘテロ 5 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 8～11 の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジニル環であり、L は、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 2～30 のヘテロ芳香族環である有機 EL 素子用材料。

40

▲3▼前記一般式 (1) において $n = 1$ 、かつ前記一般式 (A) において $p = 2$, $r = 0$ であり、

一般式 (1) 式中、Cz は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

一般式 (A) 式中、M は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2～40 の窒素含有

50

ヘテロ芳香族環であり、Lは、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリール基もしくはアリーレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数2～30のヘテロ芳香族環である有機EL素子用材料。

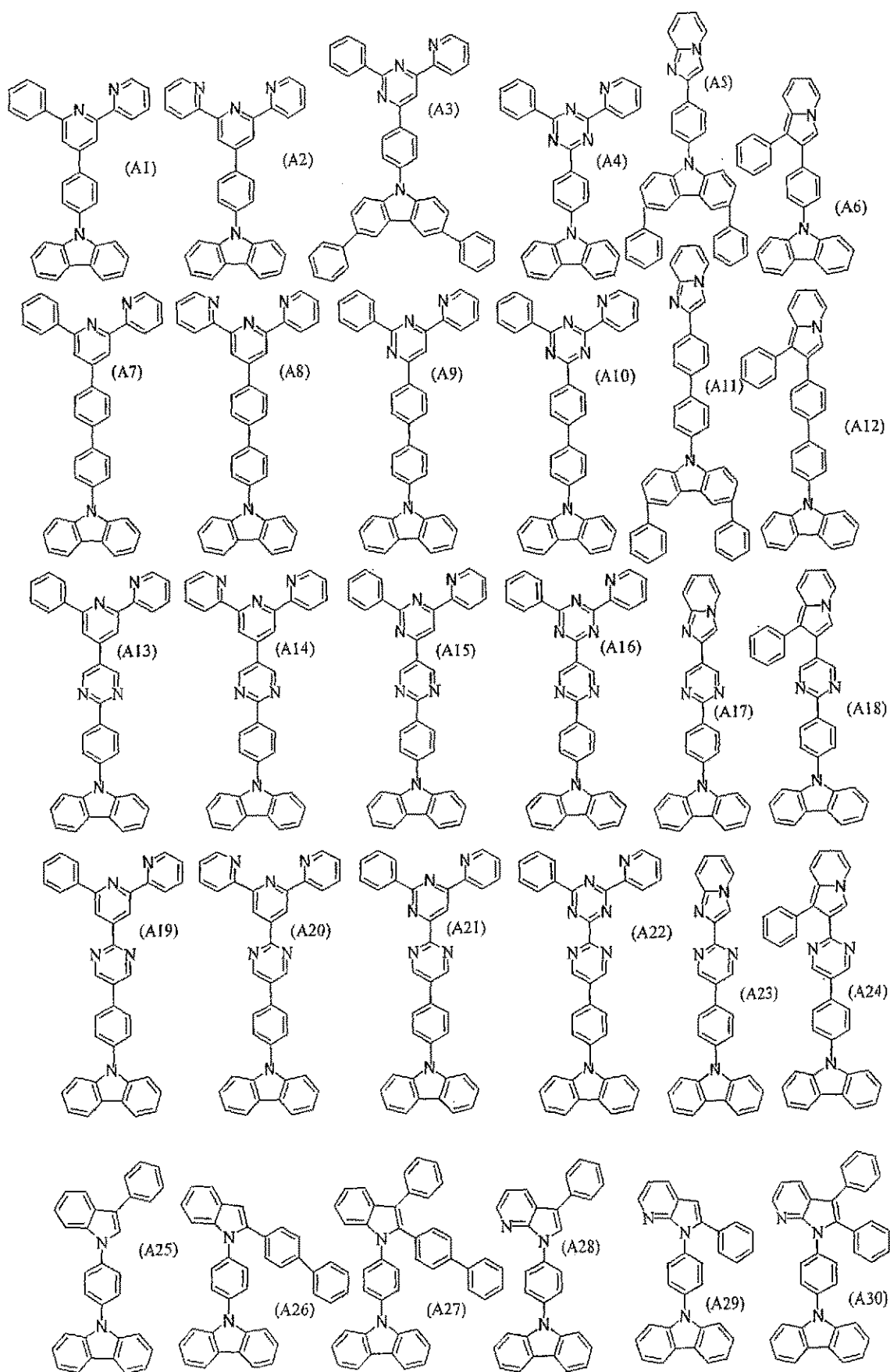
▲4▼前記一般式(2)において $m=2$ 、かつ前記一般式(A)において $p=q=1$ であり、

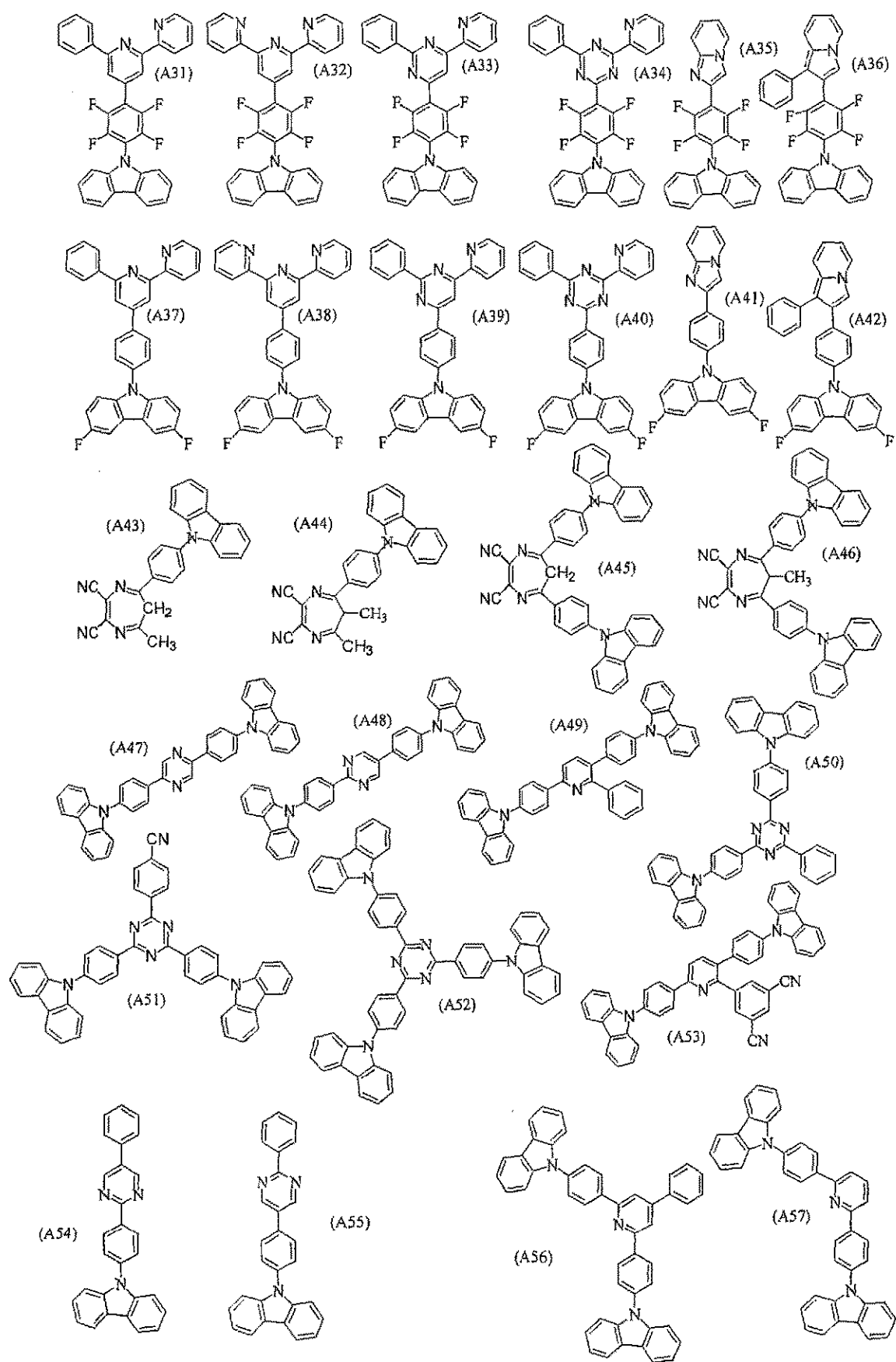
一般式(2)式中、Czは、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基又はカルバゾイルアルキレン基であり、

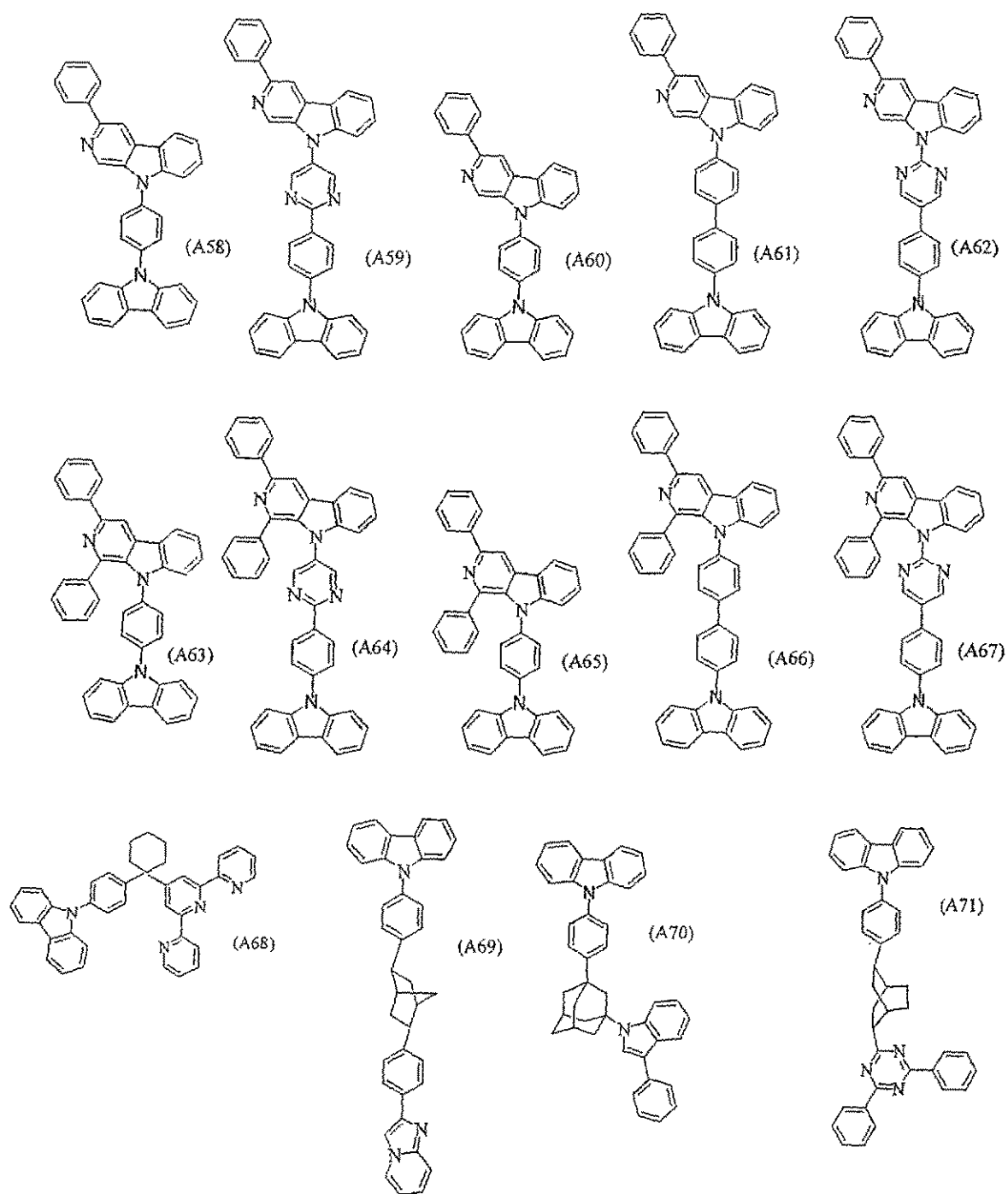
一般式(A)式中、M及びM'は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数2～40の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、同一でも異なってもよい。Lは、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリール基もしくはアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数2～30のヘテロ芳香族環である有機EL素子用材料。

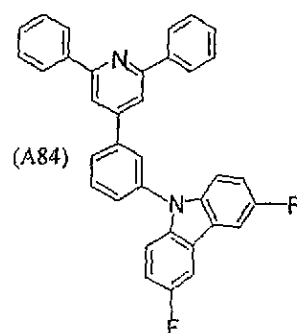
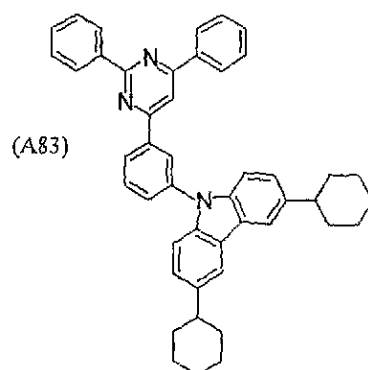
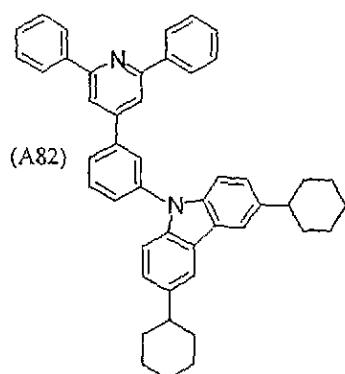
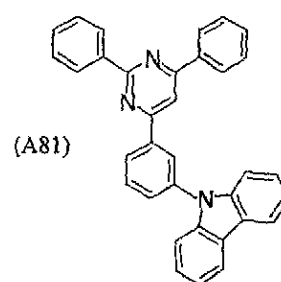
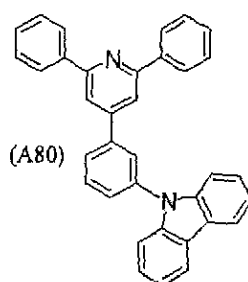
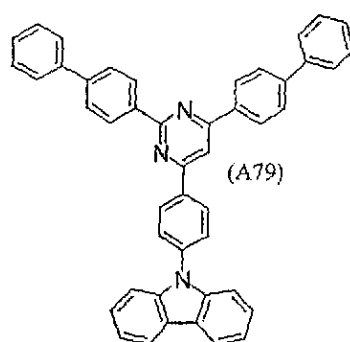
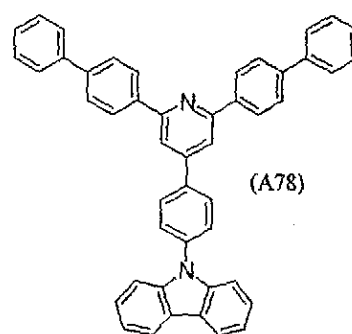
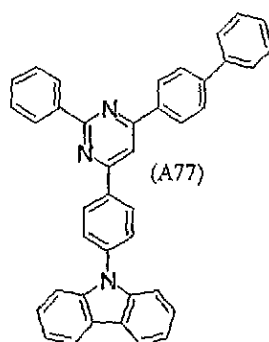
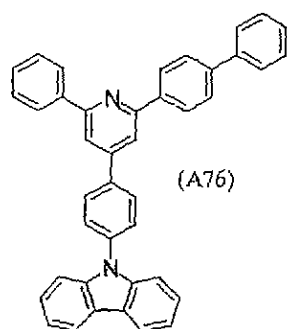
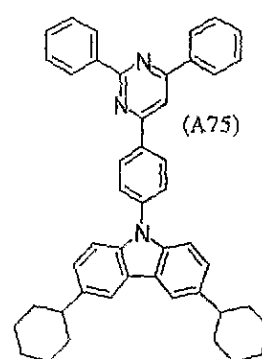
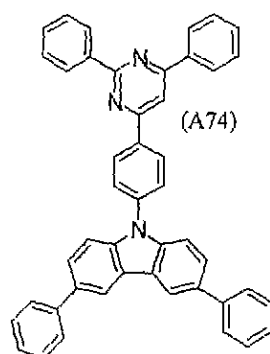
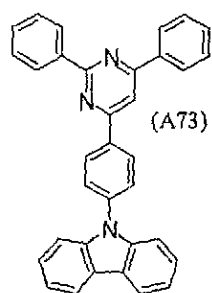
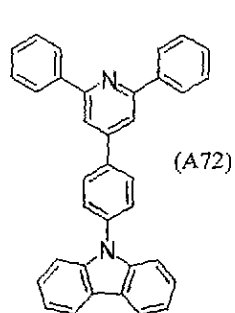
前記一般式(1)及び(2)において、Czは、置換もしくは無置換のアリールカルバゾイル基であると好ましく、フェニルカルバゾイル基であるとさらに好ましい。また、アリールカルバゾイル基のアリール部位がカルバゾイル基で置換されていると好ましい。

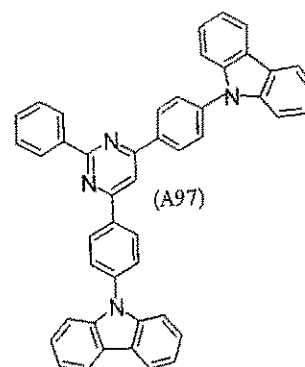
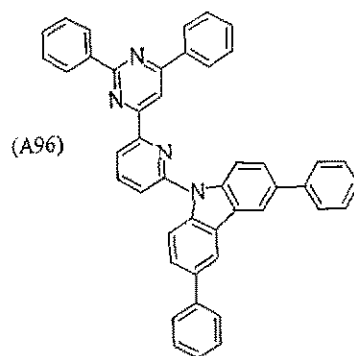
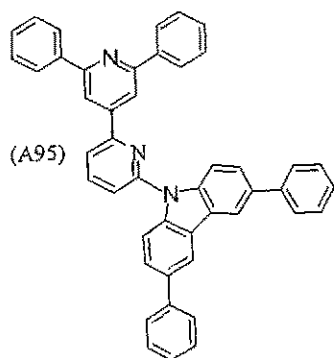
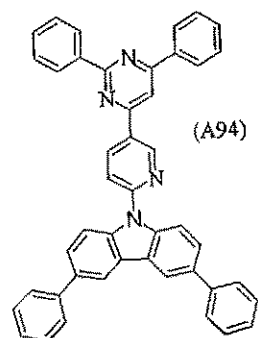
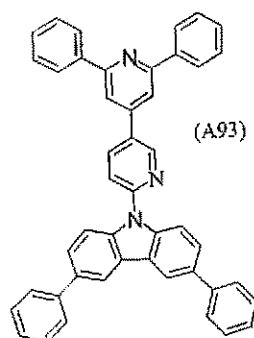
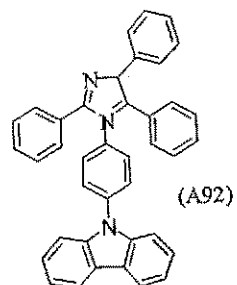
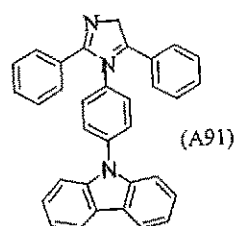
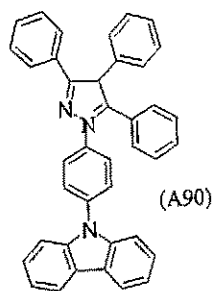
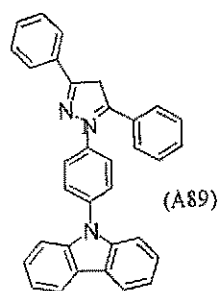
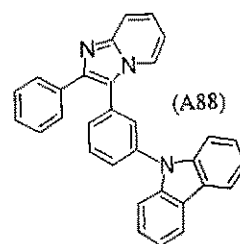
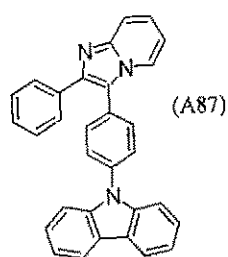
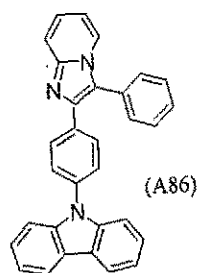
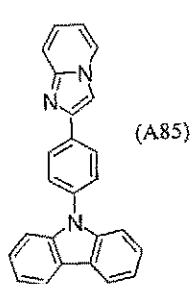
本発明の一般式(1)で表される化合物の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

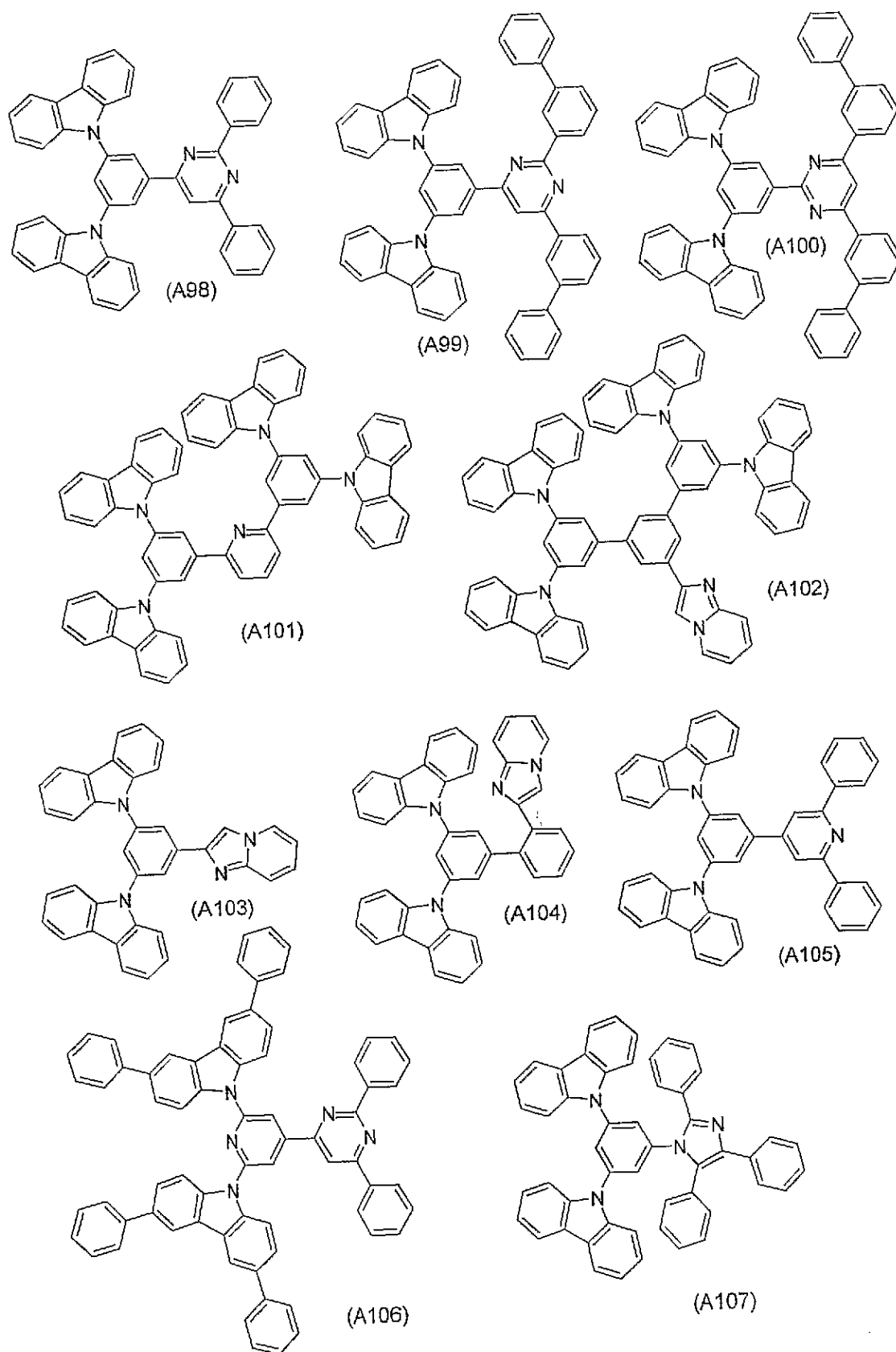


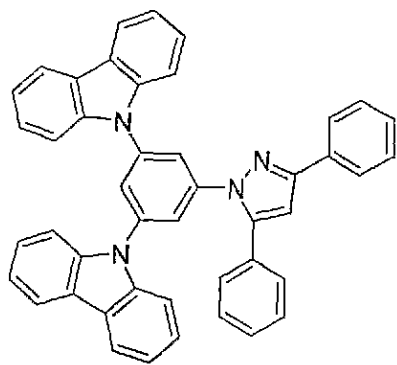




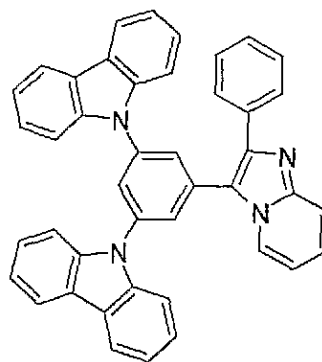




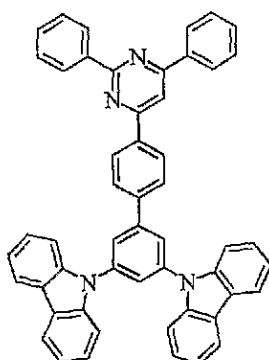




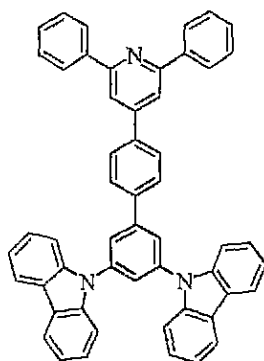
(A108)



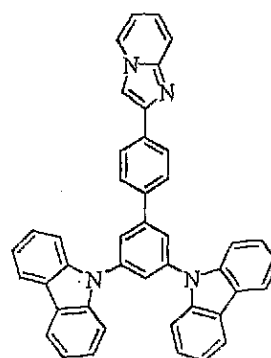
(A109)



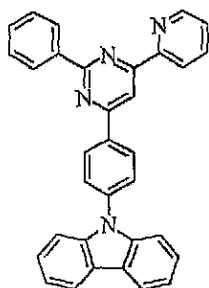
(A110)



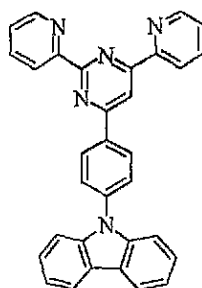
(A111)



(A112)

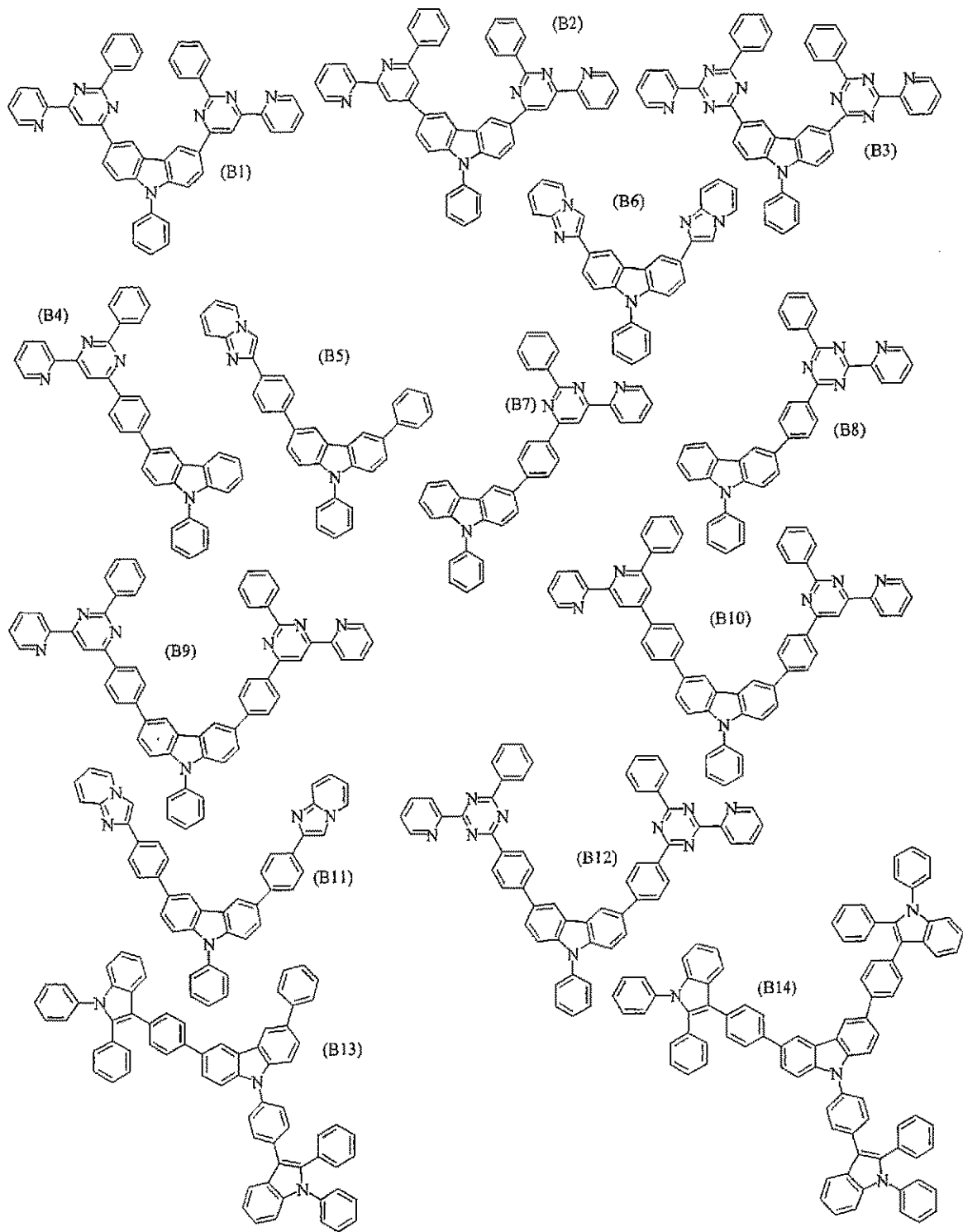


(A113)



(A114)

本発明の一般式（２）で表される化合物の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。



本発明における一般式（１）又は（２）で表される化合物は、３重項のエネルギーギャップが２．５～３．３ eVであり、２．５～３．２ eVであると好ましい。

本発明における一般式（１）又は（２）で表される化合物は、１重項のエネルギーギャップが２．８～３．８ eVであり、２．９～３．７ eVであると好ましい。

本発明の有機ＥＬ素子は、陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機ＥＬ素子において、該有機薄膜層の少なくとも１層が、前記一般式（１）又は（２）の化合物からなる有機ＥＬ素子用材料を含有する。

また、本発明の有機ＥＬ素子は、発光層、電子輸送層、正孔輸送層に、前記一般式（１）又は（２）のいずれかの化合物からなる有機ＥＬ素子用材料を含有すると好ましい。

本発明の有機ＥＬ素子は、青色系発光し、その純度が（０．１２，０．１０）～（０．１７，０．２０）と高いものである。これは、本発明の一般式（１）又は（２）の化合物か

らなる有機EL素子用材料が、広いエネルギーギャップを有しているからである。
本発明の有機EL素子は、3重項励起又はそれ以上の多重項励起により発光すると好ましい。

本発明の有機EL素子用材料は、有機EL素子のホスト材料であると好ましい。このホスト材料とは、正孔と電子の注入が可能であって、正孔と電子が輸送され、再結合して蛍光を発する機能を有するものである。

また、本発明における一般式(1)及び(2)の化合物は、1重項のエネルギーギャップが2.8~3.8 eVと高く、3重項のエネルギーギャップも2.5~3.3 eVと高いため、燐光素子用の有機ホスト材料としても有用である。

ここで、燐光素子とは、3重項準位のエネルギー状態から基底1重項準位の状態への遷移に基づく発光の強度が他の物質に比べて高い物質、例えば、周期律表7~11族から選ばれる少なくとも1つの金属を含む有機金属錯体などの燐光物質を含む、いわゆる燐光を利用した有機電界発光素子のことである。

有機EL素子の発光層において、生成される分子励起子には、1重項励起子と三重項励起子とが混合していて、1重項励起子及び3重項励起子は、一般的には1:3の割合で、3重項励起子の方が多く生成されていると言われている。また、通常の蛍光を使った有機EL素子では、発光に寄与する励起子は1重項励起子であって、3重項励起子は非発光性である。このため、3重項励起子は最終的には熱として消費されてしまい、生成率の低い1重項励起子から発光が生じている。したがって、有機EL素子においては、正孔と電子との再結合によって発生するエネルギーのうち、3重項励起子の方へ移動したエネルギーは大きな損失となっている。

このため、本発明の化合物を燐光素子に利用することにより、3重項励起子のエネルギーを発光に使用できるので、蛍光を使った素子の3倍の発光効率の得られると考えられる。また、本発明の化合物は、燐光素子の発光層に用いると、該層に含まれる7~11族から選ばれる金属を含有する燐光性有機金属錯体の励起3重項準位より高いエネルギー状態の励起3重項準位を有し、さらに安定な薄膜形状を与え、高いガラス転移温度(T_g: 80~160℃)を有し、正孔及び/又は電子を効率よく輸送することができ、電気化学的かつ化学的に安定であり、トラップとなったり発光を消光したりする不純物が製造時或使用時に発生しにくいと考えられる。

本発明の有機EL素子は、前記したように陽極と陰極間に一層もしくは多層の有機薄膜層を形成した素子である。一層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を設けている。発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔、もしくは陰極から注入した電子を発光材料まで輸送させるために、正孔注入材料もしくは電子注入材料を含有してもよい。また、発光材料は、極めて高い蛍光量子効率、高い正孔輸送能力及び電子輸送能力を併せ持ち、均一な薄膜を形成することが好ましい。多層型の有機EL素子としては、(陽極/正孔注入層/発光層/陰極)、(陽極/発光層/電子注入層/陰極)、(陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極)等の多層構成で積層したものがある。

発光層には、必要に応じて、本発明の一般式(1)又は(2)の化合物に加えてさらなる公知のホスト材料、発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料や電子注入材料を使用し、組み合わせて使用することもできる。有機EL素子は、多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができ、他のドーピング材料により、発光輝度や発光効率を向上させたり、燐光発光に寄与する他のドーピング材料と組み合わせて用いることにより、従来の発光輝度や発光効率を向上させることができる。

また、本発明の有機EL素子における正孔注入層、発光層、電子注入層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されてもよい。その際、正孔注入層の場合、電極から正孔を注入する層を正孔注入層、正孔注入層から正孔を受け取り発光層まで正孔を輸送する層を正孔輸送層と呼ぶ。同様に、電子注入層の場合、電極から電子を注入する層を電子注入層、電子注入層から電子を受け取り発光層まで電子を輸送する層を電子輸送層と呼ぶ。これらの各層は、材料のエネルギー準位、耐熱性、有機薄膜層もしくは金属電極との密着性等の各要因により選択されて使用される。

10

20

30

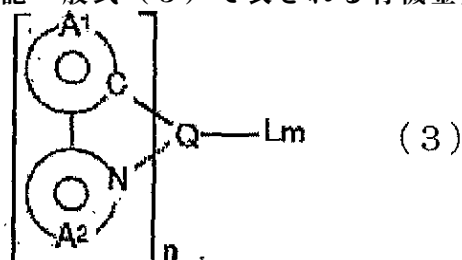
40

50

本発明の有機EL素子は、電子輸送層や正孔輸送層が、一般式(1)及び(2)のいずれかの化合物からなる本発明の有機EL素子用材料を含有してもよく、さらに、正孔注入層、電子注入層、正孔障壁層が本発明の有機EL素子用材料を含有してもよく、燐光発光性化合物と本発明の有機EL素子用材料とを混合して用いてもよい。

本発明の一般式(1)又は(2)の化合物と共に有機薄膜層に使用できる発光材料又はホスト材料としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン、スチルベン系誘導体及び蛍光色素等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

発光材料としては、素子の外部量子効率をより向上させることができる点で燐光性の有機金属錯体が好ましく、有機金属錯体の金属原子として、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金を含有するものが挙げられる。これらの有機金属錯体は下記一般式(3)で表される有機金属錯体であるのが好ましい。



(式中、 A^1 は、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環基又は芳香族複素環基を表し、好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、チエニル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基であり、前記置換基としては、フッ素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基等の炭素数1～30のアルキル基；ビニル基等のアルケニル基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1～30のアルコキシカルボニル基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～30のアルコキシ基；フェノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリールオキシ基；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のジアルキルアミノ基、アセチル基等のアシル基、トリフルオロメチル基等のハロアルキル基、シアノ基を表す。

A^2 は、窒素を複素環を形成する原子として含有する置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表し、好ましくは、ピリジル基、ピリミジル基、ピラジン基、トリアジン基、ベンゾチアゾール基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾイミダゾール基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリン基、フェナントリジン基であり、前記置換基としては、 A^1 と同様で挙げられる。

A^1 を含む環と A^2 を含む環は一つの縮合環を形成してもよく、このようなものとしては、例えば、7,8-ベンゾキノリン基等が挙げられる。

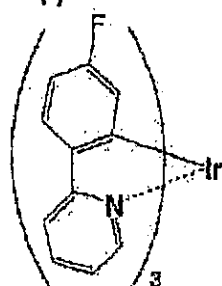
Qは、周期表7～11族から選ばれる金属であり、好ましくは、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金を表す。

Lは、2座型の配子を表し、好ましくは、アセチルアセトナート等の β -ジケト型の配位子又はピロメリット酸から選ばれる。

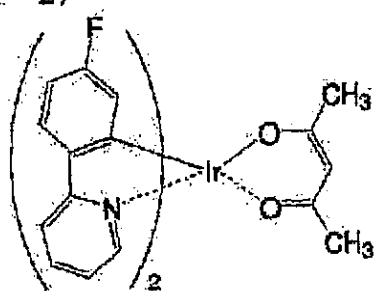
m及びnは整数を表し、Qが二価金属の場合は、 $n=2$ 、 $m=0$ であり、Qが三価金属の場合は、 $n=3$ かつ $m=0$ 、又は $n=2$ かつ $m=1$ である。))

前記一般式(3)で示される有機金属錯体の具体例を以下に示すが、何ら下記の化合物に限定されるものではない。

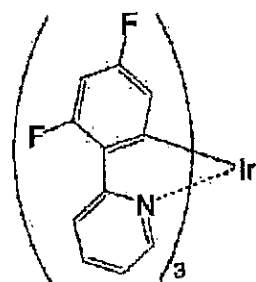
(K-1)



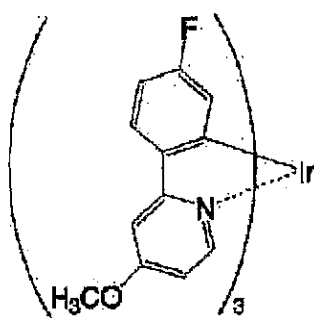
(K-2)



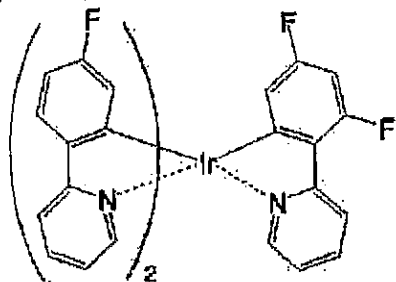
(K-3)



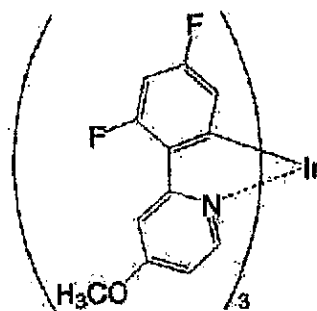
(K-4)



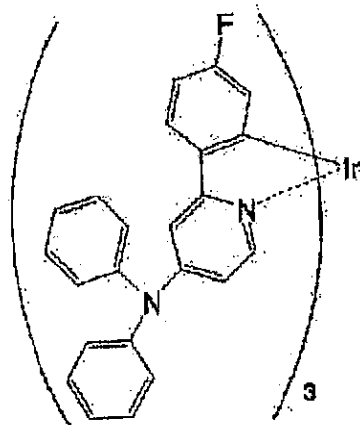
(K-5)



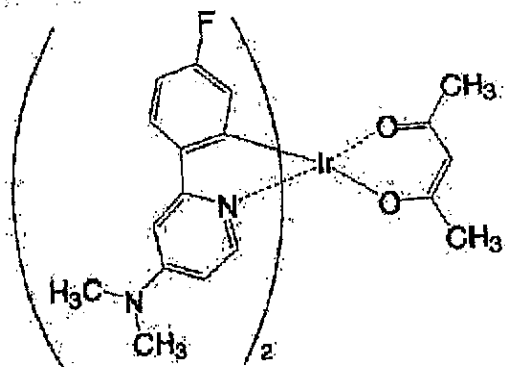
(K-6)



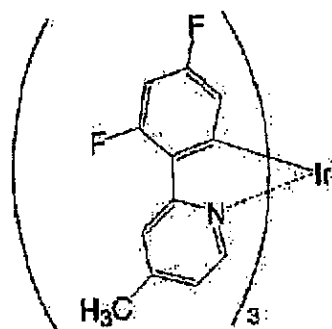
(K-7)

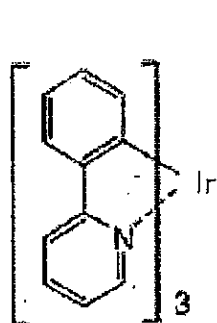


(K-8)

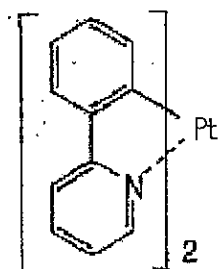


(K-9)

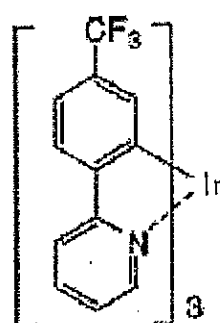




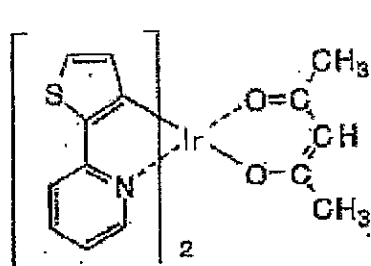
(K-10)



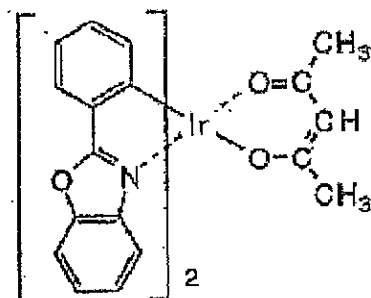
(K-11)



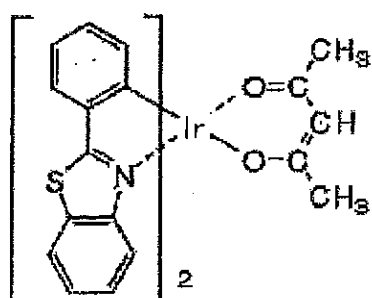
(K-12)



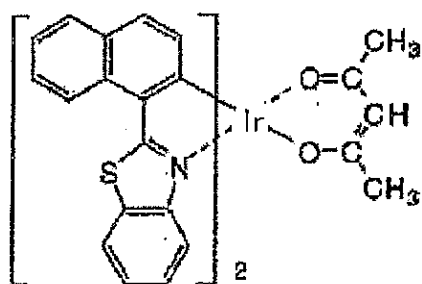
(K-13)



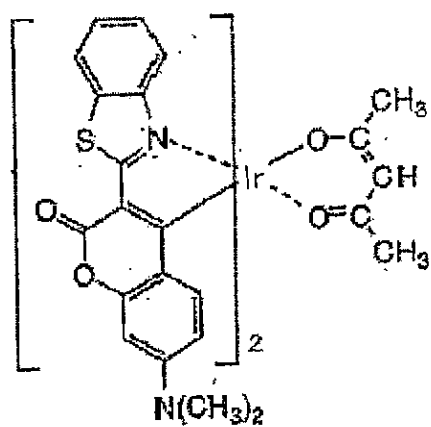
(K-14)



(K-15)

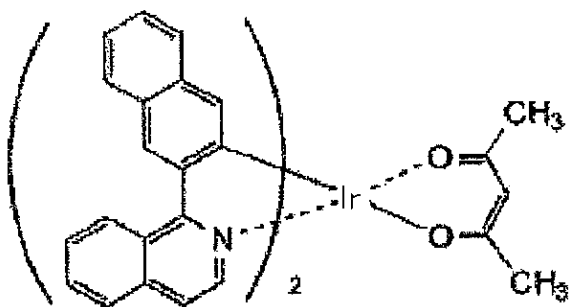


(K-16)

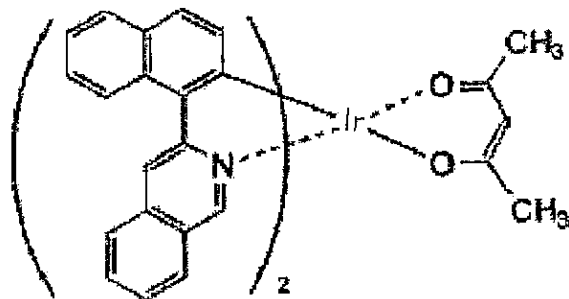


(K-17)

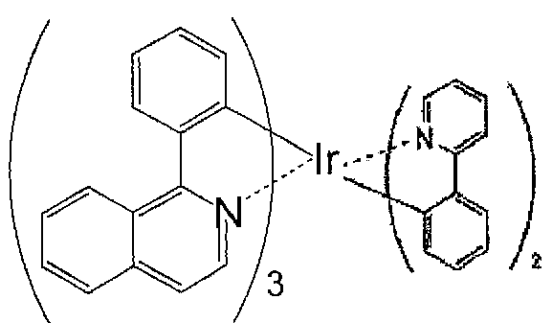
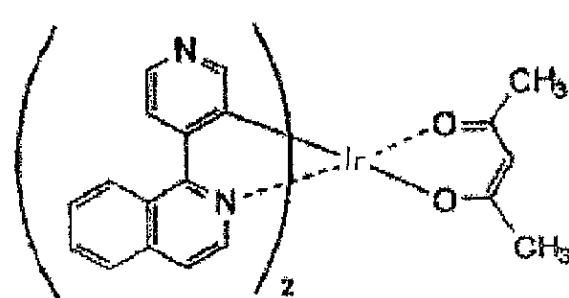
(K-18)



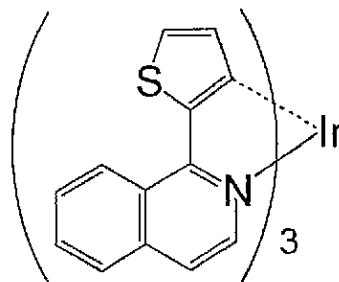
(K-19)



(K-20)



(K-21)



(K-22)

正孔注入材料としては、正孔を輸送する能力を持ち、陽極からの正孔注入効果、発光層又は発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入層又は電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が好ましい。具体的には、フタロシアニン誘導体、ナフタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、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、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリーラルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン

型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、及びポリビニルカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

これらの正孔注入材料の中で、さらに効果的な正孔注入材料は、芳香族三級アミン誘導体又はフタロシアニン誘導体である。芳香族三級アミン誘導体の具体例としては、トリフェニルアミン、トリトリルアミン、トリルジフェニルアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチルフェニル)-1, 1'-フェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジナフチル-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N'-(メチルフェニル)-N, N'-(4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9, 10-ジアミン、N, N-ビス(4-ジ-4-トリルアミノフェニル)-4-フェニル-シクロヘキササン等、又はこれらの芳香族三級アミン骨格を有したオリゴマーもしくはポリマーであるが、これらに限定されるものではない。フタロシアニン(Pc)誘導体の具体例は、H₂Pc、CuPc、CoPc、NiPc、ZnPc、PdPc、FePc、MnPc、ClAlPc、ClGaPc、ClInPc、ClSnPc、Cl₂SiPc、(HO)AlPc、(HO)GaPc、VOPc、TiOPc、MoOPc、GaPc-O-GaPc等のフタロシアニン誘導体及びナフタロシアニン誘導体であるが、これらに限定されるものではない。

10

電子注入材料としては、電子を輸送する能力を持ち、陰極からの電子注入効果、発光層又は発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入層への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が好ましい。具体的には、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、キノキサリン、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

20

これらの電子注入材料の中で、さらに効果的な電子注入材料は、金属錯体化合物又は含窒素五員環誘導体である。金属錯体化合物の具体例は、8-ヒドロキシキノリナートリチウム、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)ガリウム等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

30

また、含窒素五員誘導体は、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールもしくはトリアゾール誘導体が好ましい。具体的には、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-オキサゾール、ジメチルPOPOP、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-チアゾール、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-チアジアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-チアジアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-トリアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-トリアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

40

50

また、正孔注入材料に電子受容物質を、電子注入材料に電子供与性物質を添加することにより電荷注入性を向上させることもできる。

本発明の有機EL素子の陽極に使用される導電性材料としては、4 e Vより大きな仕事関数を持つものが適しており、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等及びそれらの合金、ITO基板、NE SA基板に使用される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。陰極に使用される導電性物質としては、4 e Vより小さな仕事関数を持つものが適しており、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン、アルミニウム等及びそれらの合金が用いられるが、これらに限定されるものではない。合金としては、マグネシウム／銀、マグネシウム／インジウム、リチウム／アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、蒸着源の温度、雰囲気、真空度等により制御され、適切な比率に選択される。陽極及び陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていてもよい。

10

本発明の有機EL素子は、少なくとも一方の電極と前記有機薄膜層との間に無機化合物層を有していてもよい。無機化合物層に使用される好ましい無機化合物としては、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_x 、 AlO_x 、 SiN_x 、 SiON 、 AlON 、 GeO_x 、 LiO_x 、 LiON 、 TiO_x 、 TiON 、 TaO_x 、 TaON 、 TaN_x 、Cなど各種酸化物、窒化物、酸化窒化物である。特に陽極に接する層の成分としては、 SiO_x 、 AlO_x 、 SiN_x 、 SiON 、 AlON 、 GeO_x 、Cが安定な注入界面層を形成して好ましい。また、特に陰極に接する層の成分としては、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、 MgF_2 、 NaF が好ましい。

20

本発明の有機EL素子は、効率良く発光させるために、少なくとも一方の面は素子の発光波長領域において充分透明にすることが望ましい。また、基板も透明であることが望ましい。

透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性が確保するように設定する。発光面の電極は、光透過率を10%以上にすることが望ましい。基板は、機械的、熱的強度を有し、透明性を有するものであれば限定されるものではないが、ガラス基板及び透明性樹脂フィルムが挙げられる。透明性樹脂フィルムとしては、ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-ビニルアルコール共重合体、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリメチルメタアクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラル、ナイロン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリサルホン、ポリエーテルサルフォン、テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、ポリビニルフルオリド、テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリビニリデンフルオリド、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリウレタン、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリプロピレン等が挙げられる。

30

本発明の有機EL素子は、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル、樹脂等により素子全体を保護することも可能である。

40

本発明の有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピニング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。各層の膜厚は特に限定されるものではないが、適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり発光効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても十分な発光輝度が得られない。通常膜厚は5 nm～10 μmの範囲が適しているが、10 nm～0.2 μmの範囲がさらに好ましい。

湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、エタノール、クロロホルム、テトラヒドロフ

50

ラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解又は分散させて薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであってもよい。また、いずれの層においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用してもよい。使用の可能な樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂及びそれらの共重合体、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂が挙げられる。また、添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等が挙げられる。

以上のように、有機EL素子の有機薄膜層に本発明の一般式(1)又は(2)の化合物を用いることにより、色純度が高く、青色系に発光する有機EL素子を得ることができ、この有機EL素子は、例えば電子写真感光体、壁掛けテレビ用フラットパネルディスプレイ等の平面発光体、複写機、プリンター、液晶ディスプレイのバックライト又は計器類等の光源、表示板、標識灯、アクセサリ等に好適に用いられる。

10

次に、実施例を用いて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

なお、化合物の3重項エネルギーギャップ及び1重項エネルギーギャップは、以下のようにして測定した。

(1) 3重項エネルギーギャップの測定

最低励起3重項エネルギー準位T1を測定した。すなわち、試料の燐光スペクトルを測定し(10 μ mol/リットル EPA (ジエチルエーテル:イソペンタン:エタノール=5:5:2容積比)溶液、77K、石英セル、SPEX社FLUOROLOG II)、燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き横軸との交点である波長(発光端)を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

20

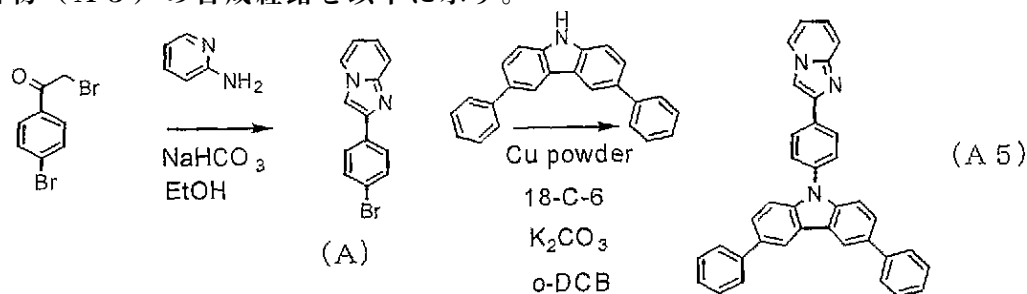
(2) 1重項エネルギーギャップの測定

励起1重項エネルギーギャップの値を測定した。すなわち、試料のトルエン溶液(10⁻⁵モル/リットル)を用い日立社製紫外可視吸光計を用い吸収スペクトルを測定した。スペクトルの長波長側の立ち上りに対し接線を引き横軸との交点である波長(吸収端)を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

合成例1 (化合物(A5)の合成)

化合物(A5)の合成経路を以下に示す。

30



(1) 中間体(A)の合成

2,4'-ジブロモアセトフェノン15g(54mmol)をエタノール100ミリリットルに溶かし、炭酸水素ナトリウム7.0g、2-アミノピリジン5.2g(55mmol)を加え、9時間加熱還流した。反応終了後、室温まで冷却し、析出した結晶をろ別し、水、エタノールで洗浄し、中間体(A)12.5g(収率85%)を得た。

40

(2) 化合物(A5)の合成

3,6-ジフェニルカルバゾール6.1g(19mmol)、中間体(A)6.3g(23mmol)、銅粉0.2g、18-クラウン-6 1.7g、及び炭酸カリウム2.9g(21mmol)を入れ、溶媒としてo-ジクロロベンゼン30ミリリットルを加え、窒素気流下、シリコンオイルバスを用いて200℃にまで加熱し、48時間反応させた。反応終了後、冷却前に吸引濾過し、得られた濾液をエバポレータで濃縮した。得られた油状物にメタノール30ミリリットルを加え、析出した固体を一減圧濾過し、灰色の固形物

50

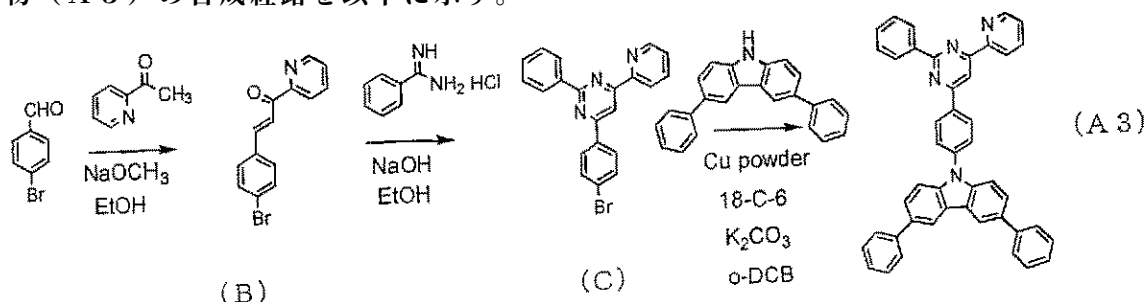
を得た。得られた固形物をベンゼンで再結晶し、白色結晶 3.0 g (収率 31%) を得た。得られた結晶は、90 MHz ^1H -NMR 及び FD-MS (フィールドディソープションマス分析) により目的物 (A5) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $C_{37}H_{25}N_3 = 511$, found, $m/z = 511$ (M^+ , 100).

さらに、前述の測定方法によりエネルギーギャップの値を求め、表3に示した。

合成例 2（化合物（A3）の合成）

化合物 (A 3) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (B) の合成

4-ブロモベンズアルデヒド 15 g (81 mmol) をエタノール 300 ミリリットルに溶かし、2-アセチルピリジン 10 g (83 mmol)、28% ナトリウムメトキシドメタノール溶液 15 g (81 mmol) を加え、室温で 7 時間攪拌した。反応終了後、析出した固体をろ過し、メタノールで洗浄し、中間体 (B) 9.5 g (収率 41%) を得た。

(2) 中間体 (C) の合成

中間体 (B) 9.5 g (33 mmol) をエタノール 80 ミリリットルに溶かし、ベンズ
アミジン塩酸塩 5.2 g (34 mmol)、水酸化ナトリウム 2.6 g (65 mmol)
を加え、15 時間加熱環流した。反応終了後、室温まで冷却し、析出した結晶をろ別し、
水、メタノールで洗浄し、中間体 (C) 3.46 g (収率 27%) を得た。

(3) 化合物 (A3) の合成

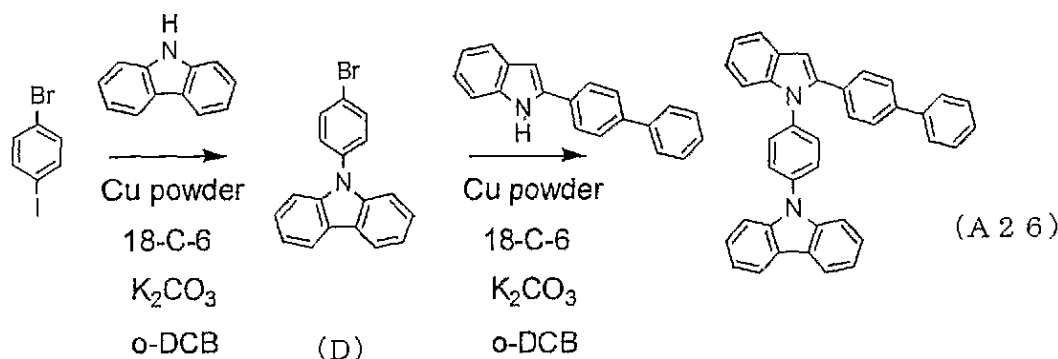
3, 6-ジフェニルカルバゾール 6. 1 g (19 mmol)、中間体 (C) 8. 9 g (23 mmol)、銅粉 0. 2 g、18-クラウン-6 1. 7 g、及び炭酸カリウム 2. 9 g (21 mmol) を入れ、溶媒として *o*-ジクロロベンゼン 30 ミリリットルを加え、窒素気流下、シリコンオイルバスを用いて 200 °C にまで加熱し、48 時間反応させた。反応終了後、冷却前に吸引濾過し、得られた濾液をエバポレータで濃縮した。得られた油状物にメタノール 30 ミリリットルを加え、析出した固体を減圧濾過し、灰色の固形物を得た。得られた固形物をベンゼンで再結晶し、白色結晶 3. 9 g (収率 33%) を得た。得られた結晶は、90 MHz ¹H-NMR 及び FD-MS により目的物 (A3) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $C_{45}H_{30}N_4 = 626$, found, $m/z = 626$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 3 (化合物 (A 2 6) の合成)

化合物（A 2 6）の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (D) の合成

カルバゾール 3.3 g (0.020 mol)、p-ブロモヨードベンゼン 6.8 g (0.024 mol)、銅粉 2.0 g、18-クラウン-6 1.8 g、及び炭酸カリウム 3.0 g (0.022 mol) を入れ、溶媒として o-ジクロロベンゼン 300 ミリリットルを加え、窒素気流下、シリコンオイルバスを用いて 200℃ にまで加熱し、24 時間反応させた。反応終了後、冷却前にヌッチェを用いて吸引濾過し、得られた濾液をエバポレータで濃縮した。得られた油状物にメタノール 30 ミリリットルを加え、析出した固体を一減圧濾過し、灰色の固形物を得た。得られた固形物をベンゼンで再結晶し、白色結晶 3.1 g (収率 49%) を得た。

(2) 化合物 (A 2 6) の合成

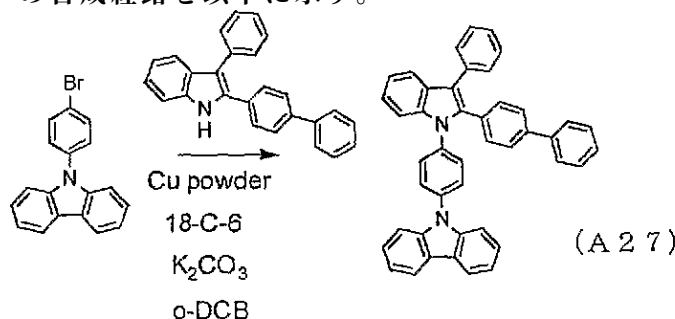
2-ビフェニルインドール 5.4 g (0.020 mol)、中間体 (D) 7.7 g (0.024 mol)、銅粉 0.2 g、18-クラウン-6 1.8 g、及び炭酸カリウム 3.0 g (0.022 mol) を入れ、溶媒として o-ジクロロベンゼン 30 ミリリットルを加え、窒素気流下、シリコンオイルバスを用いて 200℃ にまで加熱し、48 時間反応させた。反応終了後、冷却前に吸引濾過し、得られた濾液をエバポレータで濃縮した。得られた油状物にメタノール 30 ミリリットルを加え、析出した固体を一減圧濾過し、灰色の固形物を得た。得られた固形物をベンゼンで再結晶し、白色結晶 1.7 g (収率 17%) を得た。得られた結晶は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A 2 6) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $\text{C}_{38}\text{H}_{26}\text{N}_2 = 510$, found, $m/z = 510$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 4 (化合物 (A 2 7) の合成)

化合物 (A 2 7) の合成経路を以下に示す。



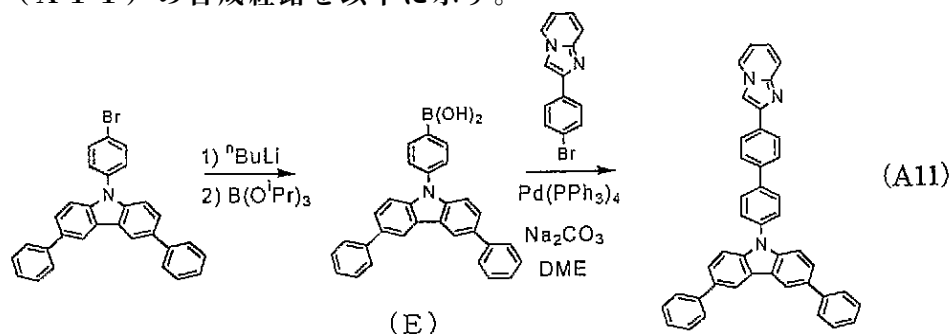
合成例 3 の (2) において、2-ビフェニルインドールの代わりに 2-ビフェニル-3-フェニルインドールを用いた以外は、同様の操作を行うことにより、白色結晶 2.2 g (収率 19%) を得た。得られた結晶は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A 2 7) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $\text{C}_{44}\text{H}_{30}\text{N}_2 = 586$, found, $m/z = 586$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 5 (化合物 (A 1 1) の合成)

化合物 (A 1 1) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (E) の合成

3, 6-ビフェニル-9-p-ブロモフェニルカルバゾール 7.6 g (16 mmol) をエーテル 70 ミリリットルに溶かし、-60℃でn-ブチルリチウムヘキサン溶液 (1.6 M) 12 ミリリットルを加え、-60℃から0℃で2時間攪拌した後、再度-60℃まで冷却し、ホウ酸トリイソプロピル 8.8 g をエーテル 10 ミリリットルに希釈した溶液を滴下した。さらに-60℃から0℃で2時間攪拌した後、5%塩酸水溶液を加えてクエンチした。析出した固体をろ過し、水、メタノールで洗浄し、中間体 (E) 4.0 g (収率 58%) を得た。

20

(2) 化合物 (A 1 1) の合成

2-(4'-ブロモフェニル)-イミダゾ[1,2-a]ピリジン 2.0 g (7.3 mmol)、中間体 (E) 3.5 g (8.0 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 0.17 g を 1,2-ジメトキシエタン 30 ミリリットルに溶かし、2.0 M 炭酸ナトリウム水溶液 12 ミリリットルを加え、8時間加熱環流した。反応終了後、析出した固体をジクロロメタンに溶かし、水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を留去し得られた生成物をメタノールで洗浄することにより、2.0 g (収率 47%) の黄白色固体を得た。得られた固体は、90 MHz ¹H-NMR 及び FD-MS により目的物 (A 1 1) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

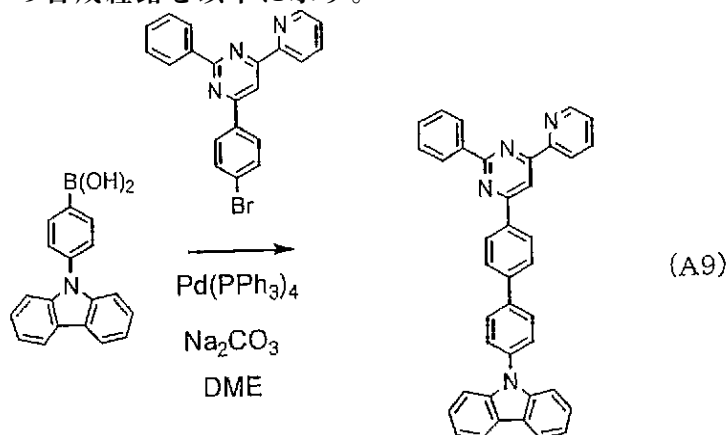
30

FD-MS, calcd for C₄₃H₂₉N₃ = 587, found, m/z = 587 (M⁺, 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 6 (化合物 (A 9) の合成)

化合物 (A 9) の合成経路を以下に示す。



合成例 2 で得られた中間体 (C) 2.0 g (5.2 mmol)、4-(9'-カルバゾリル)-フェニルボロン酸 1.7 g (5.8 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィ

50

ン) パラジウム 0.11 g を 1, 2-ジメトキシエタン (20 ミリリットル) に溶かし、2.0 M 炭酸ナトリウム水溶液 9 ミリリットルを加え、8 時間還流した。反応終了後、析出した固体をジクロロメタンに溶かし、水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を留去し得られた生成物をメタノールで洗浄することにより、1.8 g (収率 62%) の黄白色固体を得た。得られた固体は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A9) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

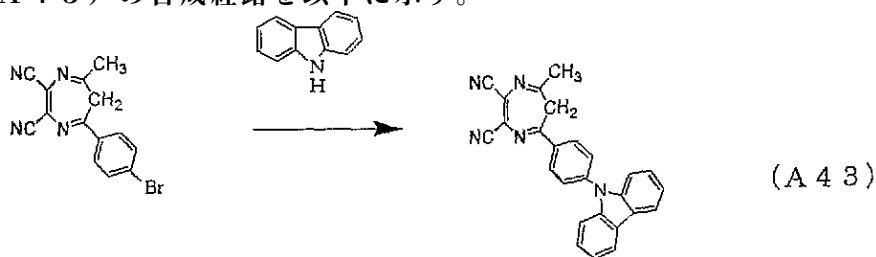
FD-MS, calcd for $\text{C}_{39}\text{H}_{26}\text{N}_4 = 550$, found, $m/z = 550$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

10

合成例 7 (化合物 (A43) の合成)

化合物 (A43) の合成経路を以下に示す。



Ar 気流下、冷却管付き 200 ミリリットル三口フラスコ中に、2, 3-ジシアノ-5-(p-プロモフェニル)-7-メチル-6H-1, 4-ジアゼピン 2.33 g (10 mmol)、カルバゾール 2 g (12 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム 0.14 g (1.5 mol %)、トリ-*t*-ブチルホスフィン 0.06 g (3 mol %)、*t*-ブトキシナトリウム 2.0 g (22 mmol)、乾燥トルエン 100 ミリリットルを加えた後、100 °C にて一晩加熱攪拌した。反応終了後、析出した結晶を濾取し、メタノール 100 ミリリットルにて洗浄し、淡黄色粉末 1.2 g (3 mmol) (収率 30%) を得た。このものは、NMR、IR 及び FD-MS の測定により、目的物 (A43) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

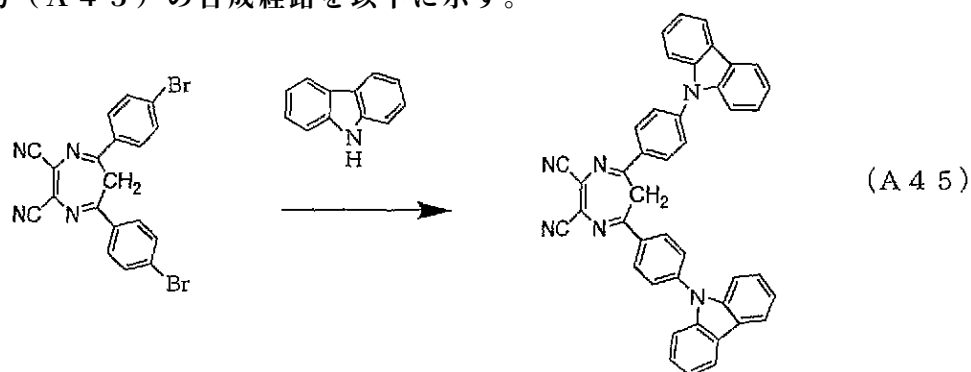
20

FD-MS, calcd for $\text{C}_{26}\text{H}_{17}\text{N}_5 = 399$, found, $m/z = 399$ (M^+ , 100).

30

合成例 8 (化合物 (A45) の合成)

化合物 (A45) の合成経路を以下に示す。



Ar 気流下、冷却管付き 20 ミリリットル三口フラスコ中に、2, 3-ジシアノ-5, 7-ビス (p-プロモフェニル)-6H-1, 4-ジアゼピン 4.5 g (10 mmol)、カルバゾール 4 g (24 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム 0.28 (1.5 mol %)、トリ-*t*-ブチルホスフィン 0.12 g (3 mol %)、*t*-ブトキシナトリウム 4.2 g (44.2 mmol)、乾燥トルエン 160 ミリリットルを加えた後、100 °C にて 18 時間加熱攪拌した。反応終了後、析出した結晶を濾取し、メタノール 100 ミリリットルで洗浄し、白色粉末 1.8 g (2.9 mmol) (収率 29%) を得た。このものは、NMR、IR 及び FD-MS の測定により、目的物 (A45) であることを確認した。

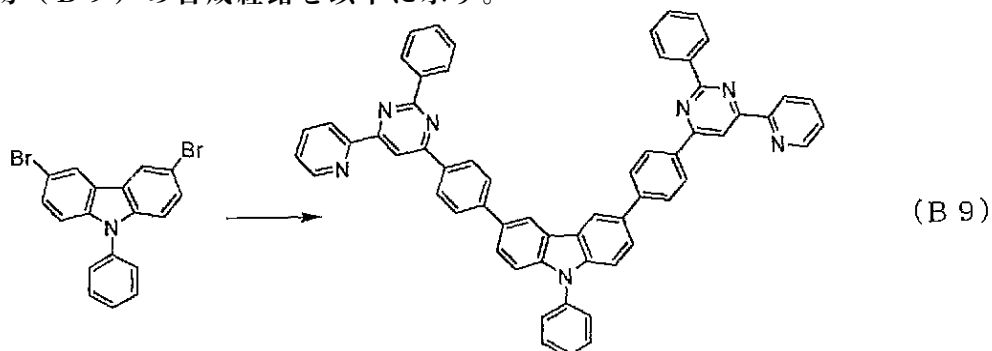
50

であることを確認した。また、FD-MSの測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $C_{43}H_{26}N_6 = 626$, found, $m/z = 626$ (M^+ , 100).

合成例 9 (化合物 (B 9) の合成)

化合物 (B 9) の合成経路を以下に示す。



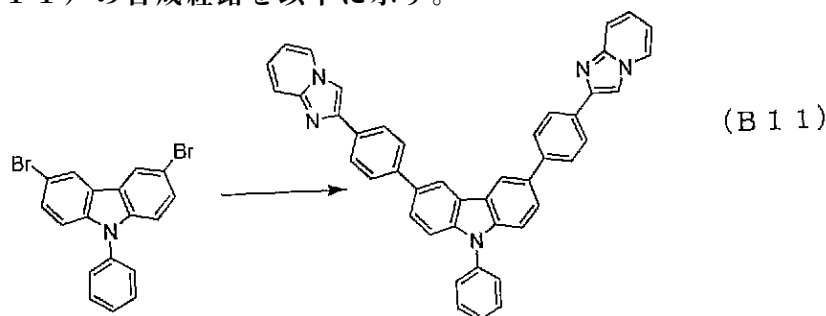
Ar 雰囲気下、4-(2'-フェニル-4'-ピリジルピリミジン-6'-イル)フェニルボロン酸 (11 g, 32 mmol, 2.6 eq)、3,6-ジブロモ-9-フェニルカルバゾール (5 g, 12 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (O) (0.55 g, 0.48 mmol, 2% Pd) を 1,2-ジメトキシエタン (100 ミリリットル) に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液 (2 M, 10.2 g, 96 mmol, 3 eq / 50 ミリリットル) を加えて 10 時間還流した。有機層を分取し、濃縮後、カラムクロマトグラフィーで精製して白色固体 (8.5 g 収率 83%) を得た。得られた固体は、90 MHz 1H -NMR 及び FD-MS により目的物 (B 9) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $C_{60}H_{39}N_7 = 857$, found, $m/z = 857$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 10 (化合物 (B 11) の合成)

化合物 (B 11) の合成経路を以下に示す。



Ar 雰囲気下、4-(イミダゾピリジン-2'-イル)フェニルボロン酸 (7.6 g, 32 mmol, 2.6 eq)、3,6-ジブロモ-9-フェニルカルバゾール (5 g, 12 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (O) (0.55 g, 0.48 mmol, 2% Pd) を 1,2-ジメトキシエタン (100 ミリリットル) に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液 (2 M, 10.2 g, 96 mmol, 3 eq / 50 ミリリットル) を加えて 10 時間還流した。有機層を分取し、濃縮後、カラムクロマトグラフィーで精製して白色固体 (5.7 g, 76%) を得た。得られた固体は、90 MHz 1H -NMR 及び FD-MS により目的物 (B 11) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

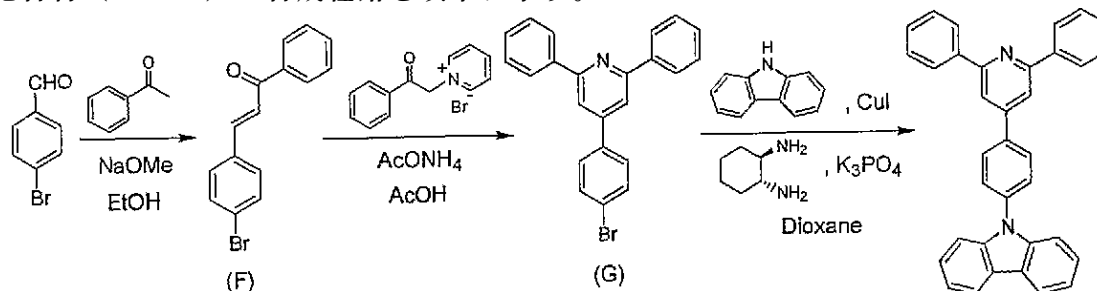
FD-MS, calcd for $C_{44}H_{29}N_5 = 627$, found, $m/z = 627$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、

表 3 に示した。

合成例 11 (化合物 (A 7 2) の合成)

化合物 (A 7 2) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (F) の合成

合成例 2 の (1) において、2-アセチルピリジンの代わりにアセトフェノンを用いた以外は、同様の操作を行うことにより、中間体 (F) 29.4 g (収率 84%) を得た。

(2) 中間体 (G) の合成

中間体 (F) 9.0 g (31 mmol)、1-フェナシルピリジニウムブロミド 8.7 g (31 mmol)、酢酸アンモニウム 19.3 g (250 mmol) を酢酸 27 ミリリットルに懸濁し、12 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、トルエン、水を加え、二層分離した後、有機層を 10% 水酸化ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、エタノール 27 ミリリットルを加え、析出した結晶を濾過し、エタノールで洗浄し、中間体 (G) 10.6 g (収率 88%) を得た。

(3) 化合物 (A 7 2) の合成

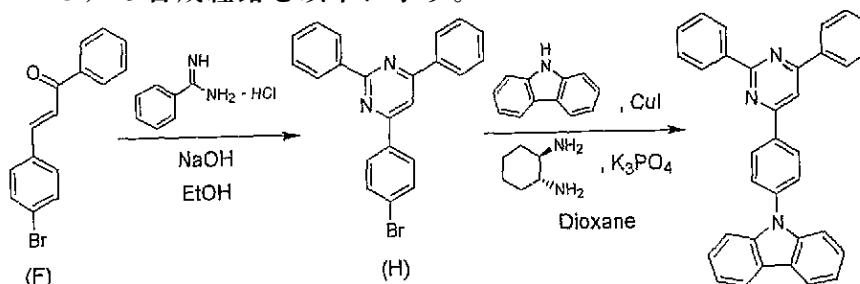
中間体 (G) 3.5 g (9 mmol)、1.7 g (10 mmol)、よう化銅 0.09 g (0.5 mmol)、リン酸カリウム 4.0 g (19 mmol) を 1,4-ジオキサン 18 ミリリットルに懸濁し、トランス-1,2-シクロヘキサジアミン 0.5 ミリリットル (4 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、18 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン、水を加え、二層分離した後、有機層を 5% 塩酸水溶液、水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、酢酸エチル 15 ミリリットルを加え、析出した結晶を濾過し、酢酸エチルで洗浄し、黄白色結晶 3.5 g (収率 83%) を得た。得られた結晶は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A 7 2) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $\text{C}_{35}\text{H}_{24}\text{N}_2 = 472$, found, $m/z = 472$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 12 (化合物 (A 7 3) の合成)

化合物 (A 7 3) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (H) の合成

合成例 2 の (2) において、中間体 (B) の代わりに合成例 11 で得られた中間体 (F) を用いた以外は、同様の操作を行うことにより、中間体 (H) 7.8 g (収率 61%) を得た。

20

30

50

(2) 化合物 (A 7 3) の合成

合成例 1 1 の (3) において、中間体 (G) の代わりに中間体 (H) を用いた以外は、同様の操作を行うことにより、黄白色結晶 3.3 g (収率 76%) を得た。得られた結晶は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A 7 3) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

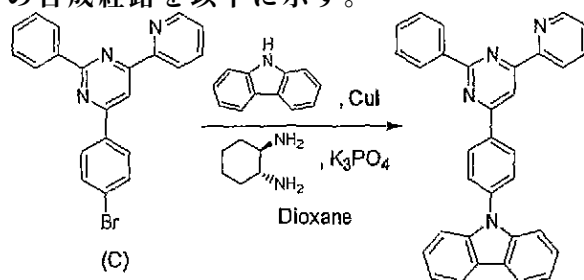
FD-MS, calcd for $\text{C}_{34}\text{H}_{23}\text{N}_3 = 473$, found, $m/z = 473$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 1 3 (化合物 (A 1 1 3) の合成)

10

化合物 (A 1 1 3) の合成経路を以下に示す。



合成例 1 1 の (3) において、中間体 (G) の代わりに合成例 2 で得られた中間体 (C) を用いた以外は、同様の操作を行うことにより、黄白色結晶 1.5 g (収率 50%) を得た。得られた結晶は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A 1 1 3) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

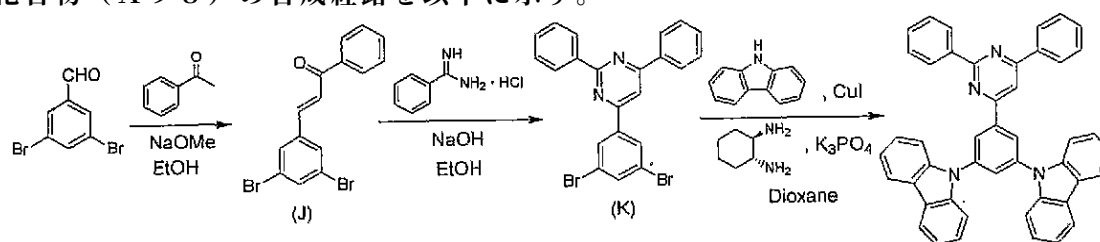
20

FD-MS, calcd for $\text{C}_{33}\text{H}_{22}\text{N}_4 = 474$, found, $m/z = 474$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 1 4 (化合物 (A 9 8) の合成)

化合物 (A 9 8) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (J) の合成

合成例 2 の (1) において、4-ブロモベンズアルデヒドの代わりに 3,5-ジブロモベンズアルデヒドを用い、2-アセチルピリジンの代わりにアセトフェノンを用いた以外は、同様の操作を行うことにより、中間体 (J) 19.2 g (収率 92%) を得た。

40

(2) 中間体 (K) の合成

合成例 2 の (2) において、中間体 (B) の代わりに中間体 (J) を用いた以外は、同様の操作を行うことにより、中間体 (K) 5.5 g (収率 45%) を得た。

(3) 化合物 (A 9 8) の合成

中間体 (K) 3.0 g (6 mmol)、カルバゾール 2.3 g (14 mmol)、よう化銅 0.12 g (0.6 mmol)、リン酸カリウム 4.2 g (20 mmol) を 1,4-ジオキサン 21 ミリリットルに懸濁し、トランス-1,2-シクロヘキサジアミン 0.8 ミリリットル (6 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、18 時間加熱還流した。反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン、水を加え、二層分離した後、水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、蒸留残渣を 1,4-ジオキサン 21 ミ

50

リリットルに懸濁し、よう化銅 0.12 g (0.6 mmol)、リン酸カリウム 2.9 g (14 mmol)、トランス-1, 2-シクロヘキサジアミン 0.8 ミリリットル (6 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、18 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン、水を加え、二層分離した後、水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、酢酸エチル 30 ミリリットルを加え、析出した結晶を濾過し、酢酸エチルで洗浄し、黄白色結晶 3.3 g (収率 80%) を得た。得られた結晶は、 $90\text{ MHz } ^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A98) であることを確認した。また、 FD-MS の測定結果を以下に示す。

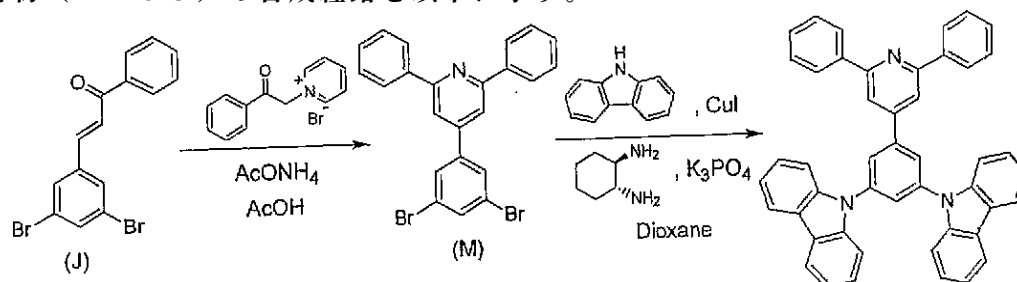
$\text{FD-MS, calcd for } \text{C}_{46}\text{H}_{30}\text{N}_4 = 638, \text{ found, } m/z = 638 (\text{M}^+, 100).$

10

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 15 (化合物 (A105) の合成)

化合物 (A105) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (M) の合成

合成例 11 の (2) において、中間体 (F) の代わりに合成例 14 の (1) で (A) 得られた中間体 (J) を用いた以外は、同様の操作を行うことにより、中間体 (M) 10.0 g (収率 88%) を得た。

(2) 化合物 (A105) の合成

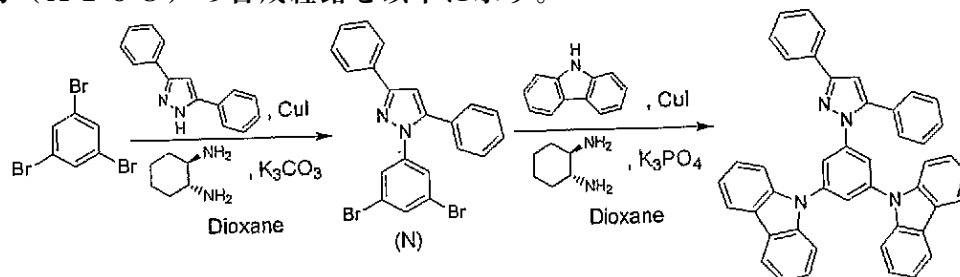
合成例 14 の (3) において、中間体 (K) の代わりに中間体 (M) を用いた以外は、同様の操作を行うことにより、黄白色結晶 2.9 g (収率 71%) を得た。得られた結晶は、 $90\text{ MHz } ^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A105) であることを確認した。また、 FD-MS の測定結果を以下に示す。 $\text{FD-MS, calcd for } \text{C}_{47}\text{H}_{31}\text{N}_3 = 637, \text{ found, } m/z = 637 (\text{M}^+, 100).$

30

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

合成例 16 (化合物 (A108) の合成)

化合物 (A108) の合成経路を以下に示す。



(1) 中間体 (N) の合成

1, 3, 5-トリブロモベンゼン 13.0 g (41 mmol)、3, 5-ジフェニルピラゾール 10.0 g (45 mmol)、よう化銅 0.8 g (4 mmol)、炭酸カリウム 11.9 g (86 mmol) を 1, 4-ジオキサン 50 ミリリットルに懸濁し、トランス-1, 2-シクロヘキサジアミン 4.9 ミリリットル (41 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、18 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン、水を加え

50

、二層分離した後、水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、中間体 (N) 2.0 g (収率 11%) を得た。

(2) 化合物 (A108) の合成

中間体 (N) 2.0 g (4 mmol)、カルバゾール 1.4 g (8 mmol)、よう化銅 0.08 g (0.4 mmol)、リン酸カリウム 2.9 g (14 mmol) を 1,4-ジオキサン 15 ミリリットルに懸濁し、トランス-1,2-シクロヘキサジアミン 0.5 ミリリットル (4 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、18 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン、水を加え、二層分離した後、水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、蒸留残滓を 1,4-ジオキサン 15 ミリリットルに懸濁し、よう化銅 0.08 g (0.4 mmol)、リン酸カリウム 2.9 g (14 mmol)、トランス-1,2-シクロヘキサジアミン 0.5 ミリリットル (4 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、14 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン、水を加え、二層分離した後、水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を減圧留去後、エタノール 5 ミリリットル及び酢酸エチル 15 ミリリットルを加え、析出した結晶を濾過し、酢酸エチル及びエタノールを容量比 5:2 で洗浄し、黄白色結晶 2.4 g (収率 87%) を得た。得られた結晶は、90 MHz $^1\text{H-NMR}$ 及び FD-MS により目的物 (A108) であることを確認した。また、FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS, calcd for $\text{C}_{45}\text{H}_{30}\text{N}_4 = 626$, found, $m/z = 626$ (M^+ , 100).

さらに、得られた化合物について合成例 1 と同様にしてエネルギーギャップの値を求め、表 3 に示した。

表 3

	化合物	1 重項のエネルギーギャップ (eV)	3 重項のエネルギーギャップ (eV)
合成例 1	A 5	3.2	2.7
合成例 2	A 3	3.1	2.7
合成例 3	A 26	3.1	2.6
合成例 4	A 27	3.0	2.6
合成例 5	A 11	3.0	2.7
合成例 6	A 9	3.1	2.5
合成例 9	B 9	3.2	2.6
合成例 10	B 11	3.2	2.7
合成例 11	A 72	3.5	2.8
合成例 12	A 73	3.3	2.8
合成例 13	A 113	3.2	2.7
合成例 14	A 98	3.5	2.9
合成例 15	A 105	3.4	2.9
合成例 16	A 108	3.7	3.0

実施例 1

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマティック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 60 nm の N, N'-ビス (N, N'-ジフェニル-4-アミノフェニル)-N, N'-ジフェニル-4,4'-ジアミノ-1,1'-ビフェニル膜 (TPD232 膜) を成膜した。この TPD232 膜は、正孔注入層として機能する。次に、この TPD232 膜上に膜厚 20 nm の 4,4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル膜 (NPD 膜) を成膜した。この NPD 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、

10

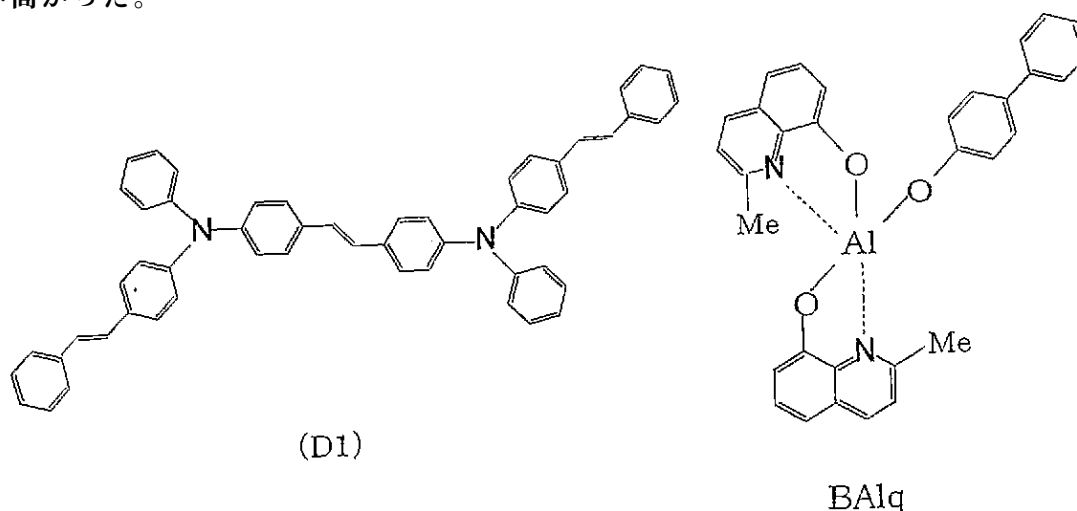
20

50

このNPD膜上に膜厚40nmの上記化合物(A5)を蒸着し成膜した。この時、同時に下記化合物(D1)を、(A5):(D1)の重量比40:3で蒸着した。なお、化合物(D1)は、青色を発光させるため、1重項のエネルギーが2.79eVと低い発光性分子である。化合物(A5)と(D1)との混合膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚20nmで下記BA1q(Meはメチル基)を成膜した。BA1q膜は、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントであるLi(Li源:サエスゲッター社製)とAlqを二元蒸着させ、第2の電子注入層(陰極)としてAlq:Li膜(膜厚10nm)を形成した。このAlq:Li膜上に金属Alを蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を製造した。

この素子は、直流電圧5.0Vで発光輝度150cd/m²、発光効率6.3cd/Aの高効率な青色発光が得られた。また、色度座標は(0.14, 0.16)であり、色純度が高かった。

10



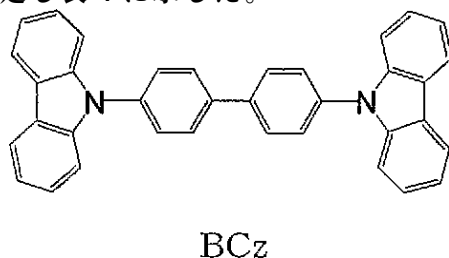
実施例 2～8

実施例1において、化合物(A5)の代わりに、表4に記載の化合物を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に直流電圧、発光輝度、発光効率、発光色、色純度を測定し表4に示した。

30

比較例 1

実施例1において、化合物(A5)の代わりに、従来公知の化合物である下記化合物BCzを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に直流電圧、発光輝度、発光効率、発光色、色純度を測定し表4に示した。



比較例 2

実施例1において、化合物(A5)の代わりに、特開2001-288462号公報に記載の下記化合物(C2)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に直流電圧、発光輝度、発光効率、発光色、色純度を測定し表4に示した。

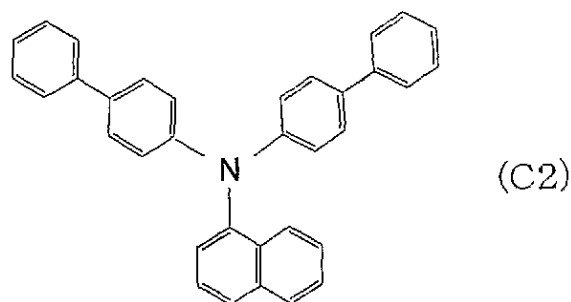


表 4

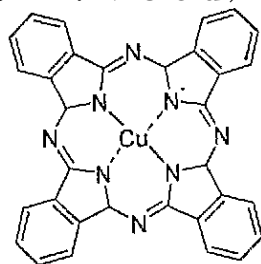
	発光層の有機 ホスト材料	電 圧 (V)	発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (cd/A)	発光色	色度座標
実施例 1	A 5	5. 0	1 5 0	6. 3	青	(0. 14, 0. 16)
実施例 2	A 3	5. 8	1 6 0	5. 8	青	(0. 15, 0. 17)
実施例 3	A 2 6	6. 0	1 3 2	5. 2	青	(0. 14, 0. 16)
実施例 4	A 2 7	6. 0	1 5 4	5. 9	青	(0. 14, 0. 16)
実施例 5	A 1 1	5. 2	1 8 0	6. 3	青	(0. 15, 0. 17)
実施例 6	A 9	6. 2	1 4 5	5. 1	青	(0. 15, 0. 16)
実施例 7	B 9	5. 7	1 5 1	5. 7	青	(0. 15, 0. 17)
実施例 8	B 1 1	5. 0	1 8 1	6. 9	青	(0. 15, 0. 17)
比較例 1	B C z	8. 5	7 0	2. 4	青	(0. 14, 0. 16)
比較例 2	C 2	6. 5	6 5	2. 6	青	(0. 14, 0. 16)

表 4 に示したように、比較例 1 及び 2 の従来公知の化合物 B C z 及び (C 2) に対して、本発明の化合物を用いた有機 E L 素子は、低電圧駆動であり、かつ高効率の青色発光が得られる。また、本発明の化合物は、エネルギーギャップが広いので、エネルギーギャップの広い発光性分子を発光層に混合し発光させることができる。

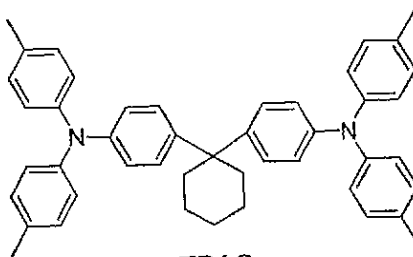
実施例 9

2 5 mm × 7 5 mm × 0. 7 mm 厚の I T O 透明電極付きガラス基板（ジオマティック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、U V オゾン洗浄を 3 0 分間行なった。洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極が形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 1 0 n m の下記銅フタロシアニン膜（C u P c 膜）を成膜した。この C u P c 膜は、正孔注入層として機能する。C u P c 膜上に膜厚 3 0 n m の 1, 1' - ビス [4 - N, N - ジ（パラトリル）アミノフェニル] シクロヘキサン膜（T P A C 膜）を成膜した。この T P A C 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、この T P A C 膜上に膜厚 3 0 n m の上記化合物（A 7 2）を蒸着し発光層を成膜した。この時、同時に燐光性の I r 金属錯体として I r ビス [(4, 6 - ジフルオロフェニル) - ピリジナート - N, C^{2'}] ピコリナート（下記 F I r p i c）を添加した。発光層中における F I r p i c の濃度は 7 重量%とした。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚 3 0 n m の A l q 膜を成膜した。この A l q 膜は電子注入層として機能する。この後、ハロゲン化アルカリ金属である L i F を 0. 2 n m の厚さに蒸着し、次いでアルミニウムを 1 5 0 n m の厚さに蒸着した。この A l

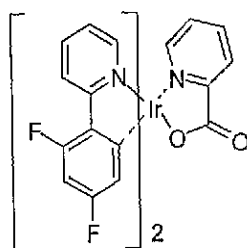
：LiFは陰極として機能する。このようにして有機EL発光素子を作製した。
この素子について、通電試験を行なったところ、電圧6.6V、電流密度0.59mA/cm²にて、89cd/m²の青緑色発光が得られ、色度座標は(0.18, 0.39)、発光効率は14.98cd/Aであった。



CuPc



TPAC



Firpic

実施例10～12

実施例9において、化合物(A72)の代わりに、表5に記載の化合物を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に直流電圧、電流密度、発光輝度、発光効率、発光色、色純度を測定し表5に示した。

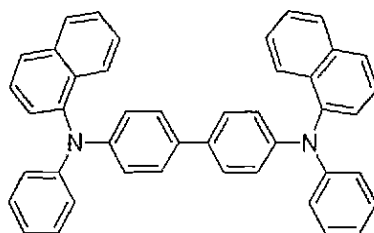
比較例3

実施例9において、化合物(A72)の代わりに、従来公知の前記化合物BCzを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に直流電圧、電流密度、発光輝度、発光効率、発光色、色純度を測定し表5に示した。

比較例4

比較例3において、正孔輸送層の化合物TPACに代えて、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(下記α-NPD)を用い、電子輸送層の化合物A1qに代えて、前記BA1qを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に直流電圧、電流密度、発光輝度、発光効率、発光色、色純度を測定し表5に示した。

。



α-NPD

表 5

	発光層の有機 ホスト材料	電 圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (cd/A)	発光色	色度座標
実施例 9	A 7 2	6. 6	0. 5 9	8 9	14. 98	青緑色	(0. 18, 0. 39)
実施例10	A 9 8	6. 4	0. 5 4	8 6	15. 89	青緑色	(0. 18, 0. 40)
実施例11	A 1 0 5	6. 9	0. 8 4	9 9	11. 76	青緑色	(0. 17, 0. 40)
実施例12	A 7 3	6. 0	1. 0 0	9 9	9. 91	青緑色	(0. 16, 0. 39)
比較例 3	B C z	7. 8	1. 7 0	9 8	5. 80	青緑色	(0. 16, 0. 37)
比較例 4	B C z	7. 6	1. 0 9	9 9	9. 15	青緑色	(0. 17, 0. 37)

表 5 に示したように、比較例 3 及び 4 の従来公知の化合物 B C z に対して、本発明の化合物を用いた有機 E L 素子は、低電圧駆動であり、かつ高効率の青色発光が得られる。また、本発明の化合物は、エネルギーギャップが広いので、エネルギーギャップの広い発光性分子を発光層に混合し発光させることができる。

産業上の利用可能性

以上詳細に説明したように、本発明の一般式 (1) 又は (2) で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を利用すると、発光効率及び色純度が高く、青色系に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。このため、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、各種電子機器の光源等として極めて有用である。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/03329

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl. ⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl. ⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CA (STN), REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2001-247858 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 14 September, 2001 (14.09.01), Claim 1; Par. Nos. [0039] to [0046]; example 1 (Family: none)	1, 2, 6, 7, 9-18 3, 4, 5, 8
X A	WO 01/72927 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 04 October, 2001 (04.10.01), & EP 1205527 A1 & US 2002/45061 A1	1, 5-7, 9-18 2-4, 8
X A	JP 2000-68059 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 03 March, 2000 (03.03.00), Claims; page 5 (Family: none)	1-3, 6, 7, 9-18 4, 5, 8
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 30 May, 2003 (30.05.03)		Date of mailing of the international search report 17 June, 2003 (17.06.03)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International application No.
PCT/JP03/03329

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2000-169448 A (Minolta Co., Ltd.), 20 June, 2000 (20.06.00), Claims; Par. Nos. [0032] to [0045] (Family: none)	1,2,6-18 3,4,5
X A	JP 11-111460 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 23 April, 1999 (23.04.99), Claims; Par. Nos. [0035] to [0047] (Family: none)	1,8-18 2-7
X A	JP 2001-64640 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 13 March, 2001 (13.03.01), Claims; Par. Nos. [0036] to [0041] (Family: none)	1,2,6,7,9-18 3-5,8
X A	JP 2001-192653 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 17 July, 2001 (17.07.01), Claims; Par. Nos. [0089] to [0108] (Family: none)	1-3,6,7,9-18 4,5,8
X A	JP 2001-207167 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 31 July, 2001 (31.07.01), Claims; Par. No. [0055] (Family: none)	1,6,9-18 2-5,7,8
X A	WO 01/019939 A1 (Ciba Specialty Chemicals Holding Inc.), 22 March, 2001 (22.03.01), & JP 2003-509441 A & US 6258954 A & EP 1216285 A1	1-3,6,7,9-18 4,5,8
X A	EP 926216 A1 (CHISSO CORP.), 30 June, 1999 (30.06.99), & JP 11-222590 A	1,3,6,7,9-18 2,4,5,8
P,X	EP 1202608 A2 (Kabushiki Kaisha Toyota Chuo Kenkyusho), 02 May, 2002 (02.05.02), & JP 2002-203683 A	1,6,7,9-18
P,X	JP 2003-31371 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 31 January, 2003 (31.01.03), Claims; Par. Nos. [0047] to [0058] (Family: none)	1,6-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03329

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The claim of this application includes two groups of inventions having the following matters as the "technical feature":

(I) a material for organic electroluminescent devices consisting of a compound of the general formula (1) or (2) wherein Cz is a substituted or unsubstituted arylcarbazole group, and

(II) a material for organic electroluminescent devices consisting of a compound of the general formula (1) or (2) wherein Cz is a substituted or unsubstituted carbazoylalkylene group.

The "technical feature" common to any two of the groups (I) and (II) is (continued to extra sheet)

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03329

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

amaterialfororganicelectroluminescent devices consisting of a compound having a structure wherein a group having carbazoyl skeleton and a substituent of the general formula (A) are bonded directly to each other, but such materials for organic electroluminescent devices are known (see Japanese Patent Laid-Open No. 2001-247858) and are therefore not considered as a "special technical feature" within the meaning of PCT Rule 13.2.

Thus, the groups (I) and (II) do not have any "special technical feature" in common.

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JPO3/03329	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))			
Int. Cl ⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22			
B. 調査を行った分野			
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))			
Int. Cl ⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの			
国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)			
CA (STN)、REGISTRY (STN)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
X A	JP 2001-247858 A(富士写真フイルム株式会社)2001.09.14、請求項 1, 【0039】 - 【0046】 欄、実施例 1 (ファミリーなし)	1, 2, 6, 7, 9-18 3, 4, 5, 8	
X A	WO 01/72927 A1(出光興産株式会社)2001.10.04 & EP 1205527 A1 & US 2002/45061 A1	1, 5-7, 9-18 2-4, 8	
X A	JP 2000-68059 A(東洋インキ製造株式会社)2000.03.03、特許請求 の範囲, 第 5 頁 (ファミリーなし)	1-3, 6, 7, 9-18 4, 5, 8	
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献	
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの		「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの		「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)		「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献	
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願			
国際調査を完了した日 30.05.03		国際調査報告の発送日 17.06.03	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 渡辺 陽子 電話番号 03-3581-1101 内線 3483	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JPO3/03329
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP 2000-169448 A(ミノルタ株式会社)2000.06.20, 特許請求の範囲, 【0032】 - 【0045】 欄 (ファミリーなし)	1, 2, 6-18 3, 4, 5
X A	JP 11-111460 A(東洋インキ製造株式会社)1999.04.23, 特許請求の範囲, 【0035】 - 【0047】 欄 (ファミリーなし)	1, 8-18 2-7
X A	JP 2001-64640 A(東洋インキ製造株式会社)2001.03.13, 特許請求の範囲, 【0036】 - 【0041】 欄 (ファミリーなし)	1, 2, 6, 7, 9-18 3-5, 8
X A	JP 2001-192653 A(富士写真フイルム株式会社)2001.07.17, 特許請求の範囲, 【0089】 - 【0108】 欄 (ファミリーなし)	1-3, 6, 7, 9-18 4, 5, 8
X A	JP 2001-207167 A(東洋インキ製造株式会社)2001.07.31, 特許請求の範囲, 【0055】 欄 (ファミリーなし)	1, 6, 9-18 2-5, 7, 8
X A	WO 01/019939 A1(Ciba Specialty Chemicals Holding Inc.)2001.03.22&JP 2003-509441 A &US 6258954 A&EP 1216285 A1	1-3, 6, 7, 9-18 4, 5, 8
X A P X	EP 926216 A1(CHISSO CORPORATION)1999.06.30&JP 11-222590 A EP 1202608 A2(Kabusiki Kaisha Toyota Chuo Kenkyusho)2002.05.02 & JP 2002-203683 A	1, 3, 6, 7, 9-18 2, 4, 5, 8 1, 6, 7, 9-18
P X	JP 2003-31371 A(三菱化学株式会社)2003.01.31, 特許請求の範囲【0047】 - 【0058】 欄 (ファミリーなし)	1, 6-18

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO3/03329

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときの国際調査機関は認めた。

本願請求の範囲には次の事項を「技術的特徴」とする2つの発明群が包含されている。

①本願式(1)(2)で表される化合物のうち、C₂は置換もしくは無置換のアリールカルバゾール基を表す化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

②本願式(1)(2)で表される化合物のうち、C₂は置換もしくは無置換のカルバゾイルアルキレン基を表す化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

①、②のうちいずれか2つの発明群に共通する「技術的特徴」は、カルバゾイル骨格を有する基と本願式(A)で表される置換基が直接結合している有機エレクトロルミネッセンス素子材料であるが、そのような有機エレクトロルミネッセンス素子材料は知られている (例えば特開2001-247858号公報) ので、
特別ページに続く

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

様式PCT/ISA/210 (第1ページの続葉(1)) (1998年7月)

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP03/03329

第Ⅱ欄の続き

当該「技術的特徴」はPCT規則13.2における「特別な技術的特徴」に該当するとは認められない。

したがって、①、②は互いに共通する「特別な技術的特徴」を持たない。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

F I

H 0 5 B 33/22

D

(72)発明者 細川 地潮

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

(72)発明者 富田 誠司

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

(72)発明者 荒金 崇士

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

(注) この公表は、国際事務局 (W I P O) により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願 (日本語実用新案登録出願) の国際公開の効果は、特許法第 1 8 4 条の 1 0 第 1 項 (実用新案法第 4 8 条の 1 3 第 2 項) により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的材料和使用其的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JPWO2003080760A1	公开(公告)日	2005-07-21
申请号	JP2003578493	申请日	2003-03-19
[标]申请(专利权)人(译)	出光兴产株式会社		
申请(专利权)人(译)	出光兴产株式会社		
[标]发明人	岩隈俊裕 山本弘志 弘中義雄 池田秀嗣 細川地潮 富田誠司 荒金崇士		
发明人	岩隈 俊裕 山本 弘志 弘中 義雄 池田 秀嗣 細川 地潮 富田 誠司 荒金 崇士		
IPC分类号	C09K11/06 C07D401/10 C07D401/14 C07D403/10 C07D403/14 C07D471/04 C07F15/00 H01L51/00 H01L51/30 H01L51/50 H05B33/14 H05B33/22		
CPC分类号	C07D471/04 C07D401/10 C07D401/14 C07D403/10 C07D403/14 C07F15/0046 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1014 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1059 C09K2211/185 H01L51/0059 H01L51/0067 H01L51/0072 H01L51/0081 H01L51/0085 H01L51/5012 H01L51/5016 H01L51/5048 H01L2251/308 H05B33/14		
FI分类号	C09K11/06.645 C09K11/06.640 C09K11/06.650 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D		
优先权	2002081234 2002-03-22 JP 2002299810 2002-10-15 JP		
其他公开文献	JP4316387B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

1.一种有机电致发光元件用材料，其特征在于，在氮原子上具有氮原子的杂环基与芳基吡啶基或羧基亚烷基结合而成的化合物，以及具有阳极，阴极和有机薄膜层的有机电致发光元件，在所述阳极和所述阴极之间，其中所述有机薄膜层中的至少一层包含上述有机电致发光装置用材料。该材料可以提供发射具有高纯度颜色的蓝光的有机电致发光器件。有机电致发光装置使用该材料。

