

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

WO2004/053019

発行日 平成18年4月13日 (2006. 4. 13)

(43) 国際公開日 **平成16年6月24日 (2004. 6. 24)**

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO9K 11/06 (2006.01)	CO9K 11/06 645	3K007
CO7D 471/04 (2006.01)	CO9K 11/06 650	4C065
CO7D 519/00 (2006.01)	CO9K 11/06 660	4C072
HO1L 51/50 (2006.01)	CO9K 11/06 690	
	CO7D 471/04 103H	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 37 頁) 最終頁に続く		

出願番号 特願2004-558476 (P2004-558476)	(71) 出願人 000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(21) 国際出願番号 PCT/JP2003/015874	
(22) 国際出願日 平成15年12月11日 (2003.12.11)	
(31) 優先権主張番号 特願2002-360134 (P2002-360134)	(74) 代理人 100078732 弁理士 大谷 保
(32) 優先日 平成14年12月12日 (2002.12.12)	(74) 代理人 100081765 弁理士 東平 正道
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(72) 発明者 岩隈 俊裕 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, RO, SE, SI, SK, TR), CN, IN, JP, KR, US	(72) 発明者 富田 誠司 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 荒金 崇士 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB11 DB03
	最終頁に続く

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

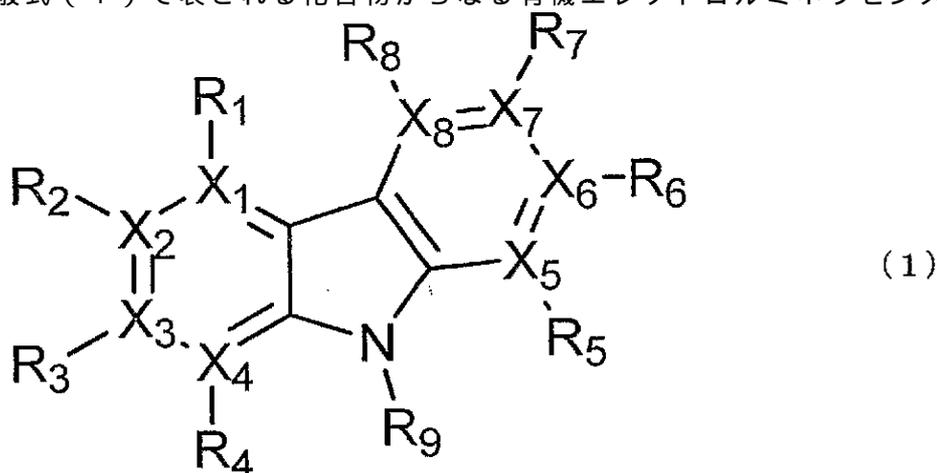
(57) 【要約】

特定構造の含窒素縮合環構造を有する化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス (EL) 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素子である。燐光性の発光を利用し、発光効率が高く、長寿命の有機EL素子を提供可能な有機EL素子用材料及びそれを用いた有機EL素子を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

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



(式中、 $X_1 \sim X_8$ は、それぞれ炭素原子又は窒素原子を表し、少なくとも1つは窒素原子である。 $X_1 \sim X_8$ のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合している $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ置換基を表す。その場合、隣り合った $R_1 \sim R_8$ は、互いに結合して環を形成してもよい。 $X_1 \sim X_8$ のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合している $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ非共有電子対を表す。 R_9 は置換基を表す。)

20

【請求項 2】

$R_1 \sim R_9$ が、それぞれ、 $-L$ 又は $-L-Y$

(L は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数2~40の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖又は分岐のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6~40のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2~40のアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~40の直鎖又は分岐のアルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基、又は置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数2~40の2価の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖又は分岐のアルキレン基、置換もしくは無置換の炭素数6

30

Y は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数2~40の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖又は分岐のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6~40のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2~40のアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~40の直鎖又は分岐のアルコキシ基、ハロゲン原子又はニトロ基)で表される請求項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】

$X_1 \sim X_8$ のうち1~3つが窒素原子であり、残りが炭素原子である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

40

【請求項 4】

$X_1 \sim X_8$ のうち、 X_3 及び/又は X_6 が窒素原子であり、残りが炭素原子である請求項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】

$R_1 \sim R_8$ の少なくとも1つが、 $-$ カルボリニル基である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 6】

L 及び/又は Y が、 $-$ カルボリニル基である請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 7】

50

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。

【請求項8】

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9】

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10】

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。

【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、電子輸送層及び/又は電子注入層が、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、正孔輸送層及び/又は正孔注入層が、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13】

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9 ~ 12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】

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9 ~ 12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項15】

前記有機薄膜層が燐光発光性化合物を含有する請求項9 ~ 12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項16】

青色系発光する請求項9 ~ 12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【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、燐光性の発光を利用し、発光効率が高い有機EL素子用材料及び有機EL素子に関するものである。

【背景技術】

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

10

20

30

40

50

輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

有機EL素子の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、テトラフェニルプタジエン誘導体、ビススチリルアアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特開平8-239655号公報、特開平7-138561号公報、特開平3-200289号公報等参照）。

また、近年、有機EL素子の発光層に、発光材料の他に有機燐光材料を利用することも提案されている（例えば、D.F.O'Brien and M.A.Baldo et al "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices" Applied Physics letters Vol. 74 No. 3, pp442-444, January 18, 1999、M.A.Baldo et al "Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence" Applied Physics letters Vol. 75 No. 1, pp4-6, July 5, 1999参照）。

このように有機EL素子の発光層において、有機燐光材料の励起状態の1重項状態と3重項状態とを利用することにより、高い発光効率が達成されている。有機EL素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから1重項励起子と3重項励起子とが3:1の割合で生成すると考えられているので、燐光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子の3~4倍の発光効率の達成が考えられる。

このような燐光性の発光を利用した有機EL素子は研究途上であり、高発光効率を有し、長寿命な有機EL素子についても研究されている。その1つとして、例えば、特開2002-100476号公報には、発光層に燐光発光性化合物を含有し、外部量子効率が10%の水色発光素子が開示されている。しかしながら、特開2002-100476号公報では、その素子の発光効率や輝度等まで言及されておらず、実用性能を有しているかどうかは不明であり、実用レベルの発光効率や寿命を有する燐光性の発光を利用した有機EL素子が求められていた。

【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、燐光性の発光を利用し、発光効率が高い有機EL素子用材料及びそれを用いた有機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、特定構造の含窒素縮合環構造を有する化合物を有機EL素子用材料として用いることにより、燐光性の発光を利用し、発光効率が高い有機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。

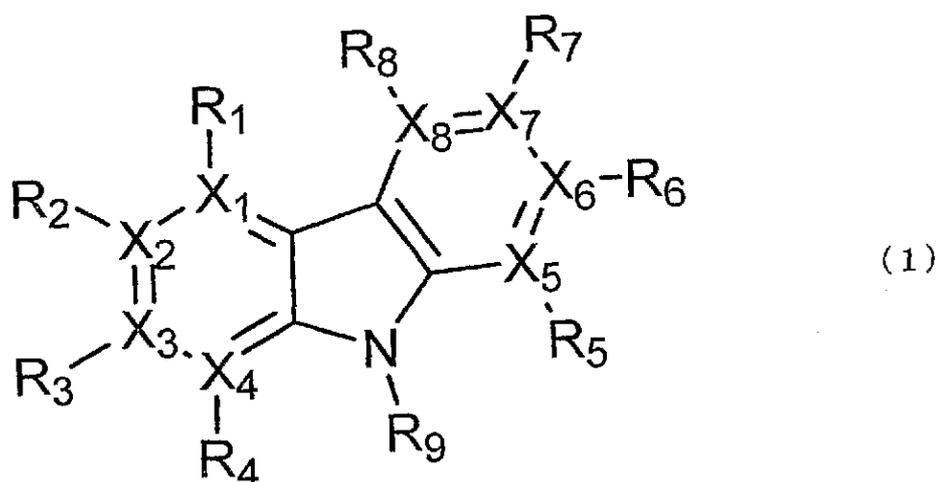
すなわち、本発明は、下記一般式（1）で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供するものである。

10

20

30

40



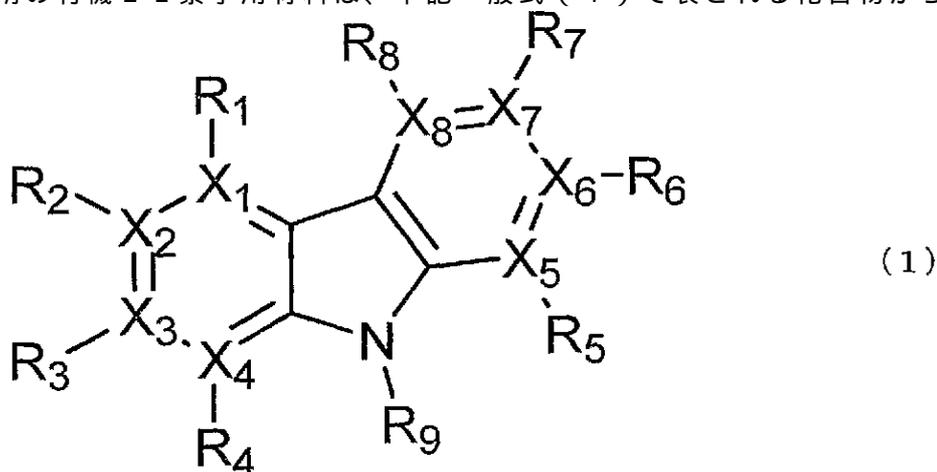
(式中、 $X_1 \sim X_8$ は、それぞれ炭素原子又は窒素原子を表し、少なくとも1つは窒素原子である。 $X_1 \sim X_8$ のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合している $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ置換基を表す。その場合、隣り合った $R_1 \sim R_8$ は、互いに結合して環を形成してもよい。 $X_1 \sim X_8$ のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合している $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ非共有電子対を表す。 R_9 は置換基を表す。)

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、電子輸送層及び/又は電子注入層、もしくは正孔輸送層及び/又は正孔注入層が前記有機EL素子用材料を含有しているとよい。

20

【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)で表される化合物からなる。



$X_1 \sim X_8$ は、それぞれ炭素原子又は窒素原子を表し、少なくとも1つは窒素原子である。 $X_1 \sim X_8$ のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合している $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ置換基を表す。その場合、隣り合った $R_1 \sim R_8$ は、互いに結合して環を形成してもよい。 $X_1 \sim X_8$ のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合している $R_1 \sim R_8$ は、それぞれ非共有電子対を表す。 R_9 は置換基を表す。

40

$R_1 \sim R_9$ で表される置換基は、それぞれ、 $-L$ 又は $-L-Y$ で表すことができ、 L は、 $X_1 \sim X_8$ ($R_1 \sim R_9$ の場合)のいずれか、又は N (R_9 の場合)に直接結合する。

L は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数2~40の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖又は分岐のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6~40のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2~40のアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~40の直鎖又は分岐のアルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基、又は置換もしくは無置換の炭素数6~40

50

のアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 40 の 2 価の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖又は分岐のアルキレン基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のシクロアルキレン基である。

Y は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 40 の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖又は分岐のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 40 のアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の直鎖又は分岐のアルコキシ基、ハロゲン原子又はニトロ基である。

前記 L のアリアル基の例としては、フェニル基、1 - ナフチル基、2 - ナフチル基、1 - アントリル基、2 - アントリル基、9 - アントリル基、1 - フェナントリル基、2 - フェナントリル基、3 - フェナントリル基、4 - フェナントリル基、9 - フェナントリル基、1 - ナфтаセニル基、2 - ナфтаセニル基、9 - ナфтаセニル基、1 - ピレニル基、2 - ピレニル基、4 - ピレニル基、2 - ビフェニルイル基、3 - ビフェニルイル基、4 - ビフェニルイル基、p - ターフェニル - 4 - イル基、p - ターフェニル - 3 - イル基、p - ターフェニル - 2 - イル基、m - ターフェニル - 4 - イル基、m - ターフェニル - 3 - イル基、m - ターフェニル - 2 - イル基、o - トリル基、m - トリル基、p - トリル基、p - t - ブチルフェニル基、p - (2 - フェニルプロピル)フェニル基、3 - メチル - 2 - ナフチル基、4 - メチル - 1 - ナフチル基、4 - メチル - 1 - アントリル基、4' - メチルビフェニルイル基、4'' - t - ブチル - p - ターフェニル - 4 - イル基、フルオレニル基、パーフルオロアリアル基等が挙げられる。

10

20

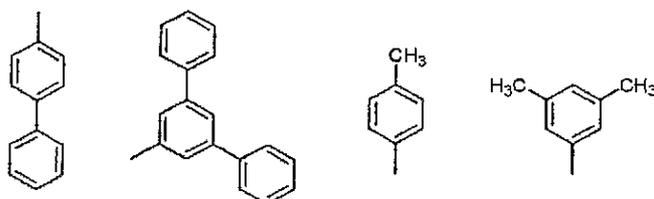
前記 L の複素環基の例としては、ピロール、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、アジリジン、アザインドリジン、インドリジン、イミダゾール、インドール、イソインドール、インダゾール、プリン、プテリジン、カルボリン等が挙げられる。

前記 L のアルキル基の例としては、メチル基、トリフルオロメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、イソブチル基、t - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基、ヒドロキシメチル基、1 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシイソブチル基、1, 2 - ジヒドロキシエチル基、1, 3 - ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3 - ジヒドロキシ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1, 2 - ジクロロエチル基、1, 3 - ジクロロイソプロピル基、2, 3 - ジクロロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1, 2 - ジプロモエチル基、1, 3 - ジプロモイソプロピル基、2, 3 - ジプロモ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1, 2 - ジヨードエチル基、1, 3 - ジヨードイソプロピル基、2, 3 - ジヨード - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1, 2 - ジアミノエチル基、1, 3 - ジアミノイソプロピル基、2, 3 - ジアミノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1, 2 - ジシアノエチル基、1, 3 - ジシアノイソプロピル基、2, 3 - ジシアノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 - ニトロエチル基、2 - ニトロエチル基、2 - ニトロイソブチル基、1, 2 - ジニトロエチル基、1, 3 - ジニトロイソプロピル基、2, 3 - ジニトロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリニトロプロピル基等が挙げられる。

30

40

また、置換アリアル基として、例えば、炭素数 6 のフェニル基がフェニル基、メチル基の置換基で置換されていた場合、以下のような構造が挙げられる。



前記Lのシクロアルキル基の例としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル、アダマンチル基、ノルボルニル基等が挙げられる。

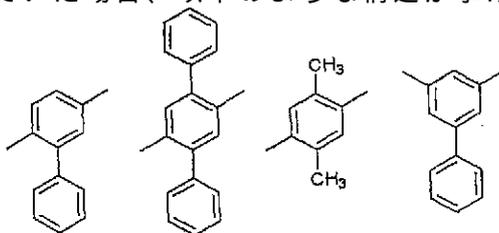
前記Lのアミノ基の例としては、ジメチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ビス-ジフェニルアミノ基、カルバゾイル基、ジエチルアミノ基、ジトリルアミノ基、インドリル基、ピペリジニル基、ピロリジニル基等が挙げられる。

前記Lのアルコキシ基は、 $-OY^1$ で表される基であり、 Y^1 の例としては、メチル基、トリフルオロメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1,2-ジプロモエチル基、1,3-ジプロモイソプロピル基、2,3-ジプロモ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソプロピル基、2,3-ジヨード-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1,2-ジニトロエチル基、1,3-ジニトロイソプロピル基、2,3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

前記Lのハロゲン原子の例としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

前記Lのアリーレン基の例としては、前記アリール基の例を2価基にしたものが挙げられる。

また、置換アリール基として、例えば、炭素数6のフェニレン基がフェニル基、メチル基の置換基で置換されていた場合、以下のような構造が挙げられる。



前記Lの2価の置換もしくは無置換の炭素数2~40の複素環基としては、前記複素環基の例を2価の基にしたものが挙げられる。

前記Lのアルキレン基としては、前記アルキル基の例を2価基にしたものが挙げられる。

。

10

20

30

50

前記 L のシクロアルキレン基としては、前記シクロアルキル基の例を 2 価基にしたものが挙げられる。

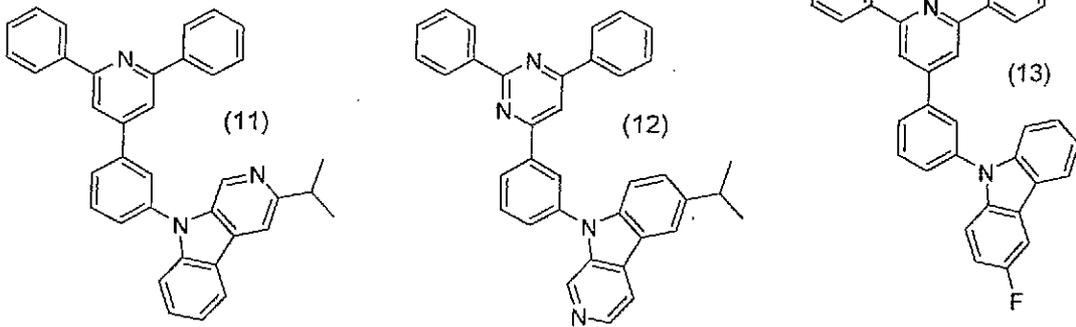
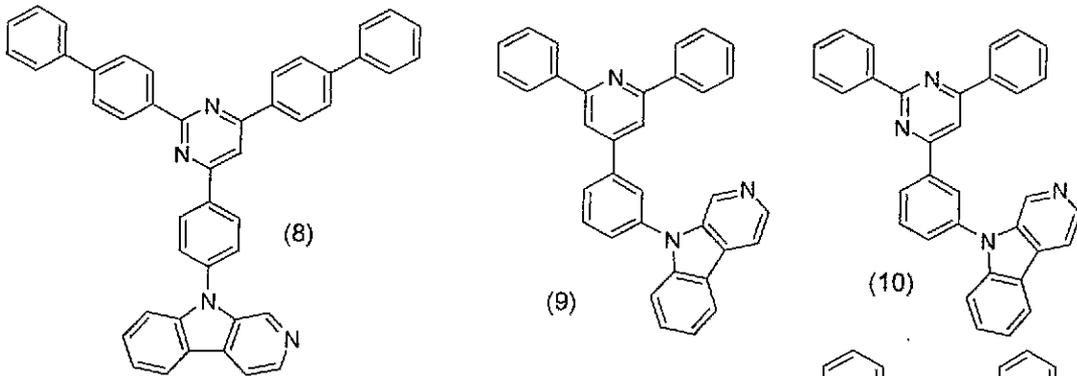
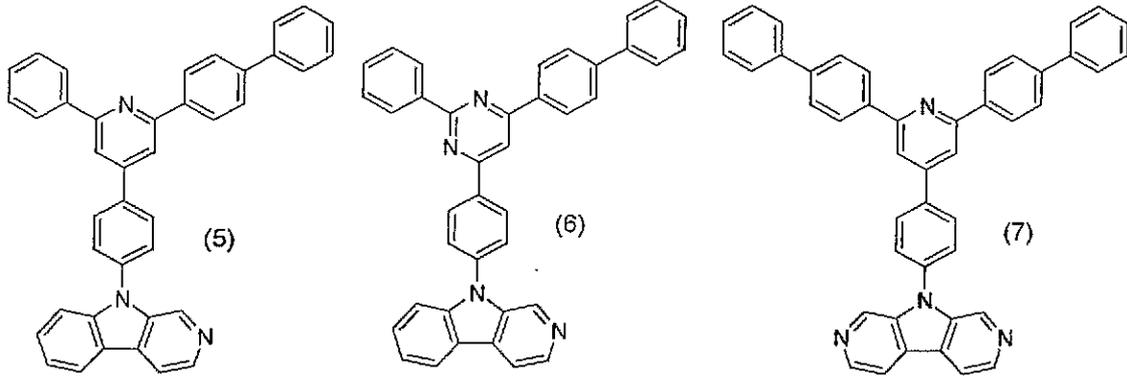
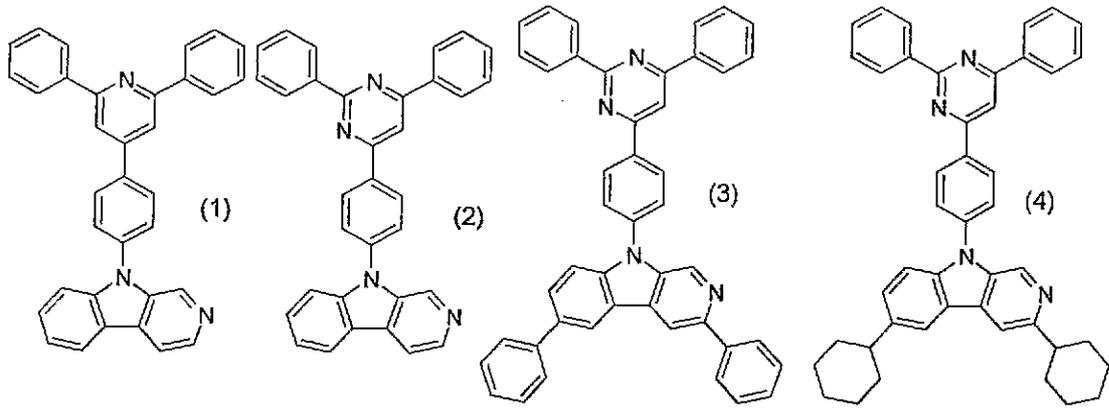
Y の示すアリール基、複素環基、アルキル基、シクロアルキル基、アミノ基、アルコキシ基及びハロゲン原子の例としては、前記 L で挙げたものと同様のものが挙げられる。

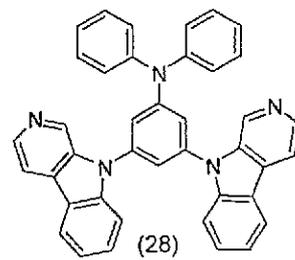
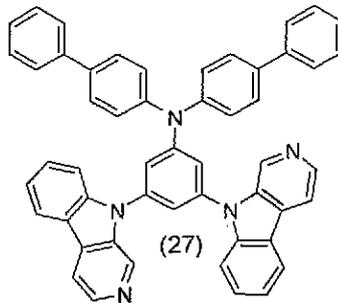
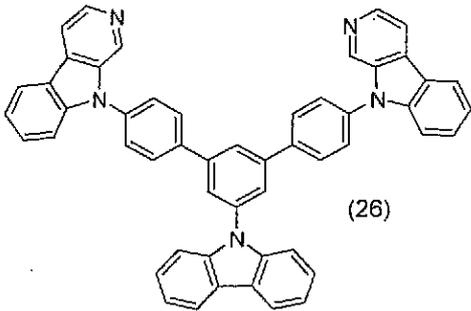
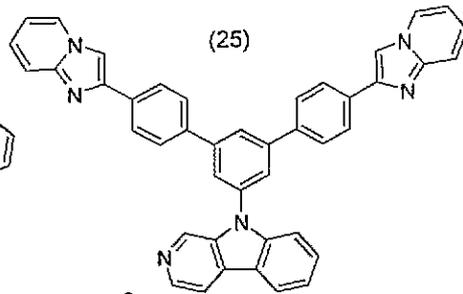
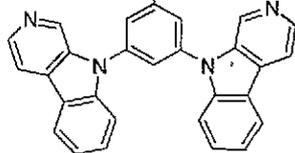
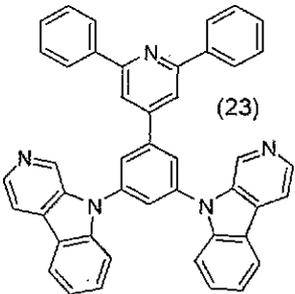
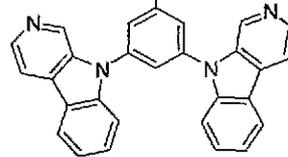
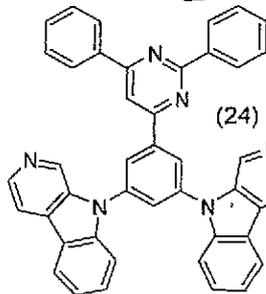
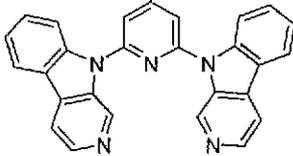
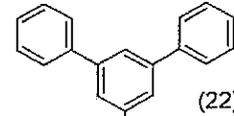
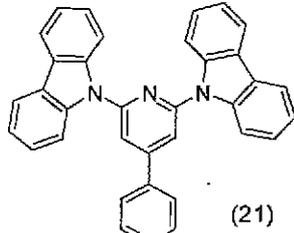
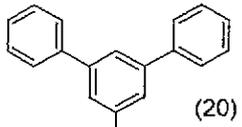
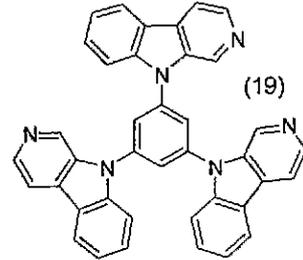
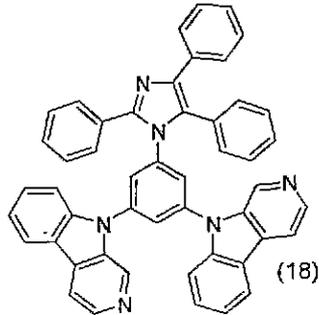
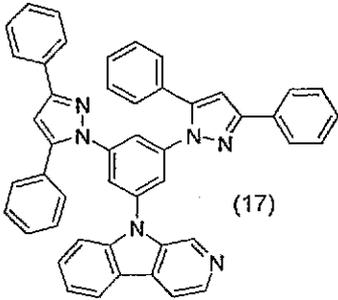
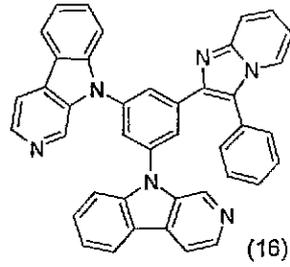
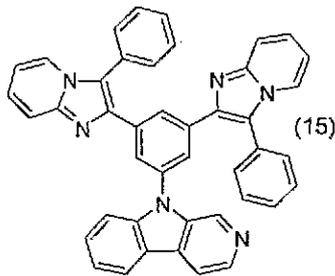
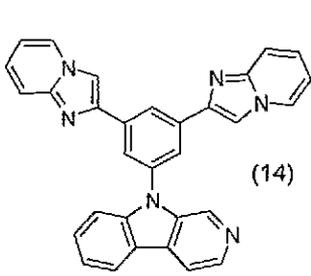
前記一般式 (1) で表される化合物において、 $X_1 \sim X_8$ のうち 1 ~ 3 つが窒素原子であり、残りが炭素原子であるものが好ましく、 X_3 及び / 又は X_6 が窒素原子であり、残りが炭素原子であるとさらに好ましい。

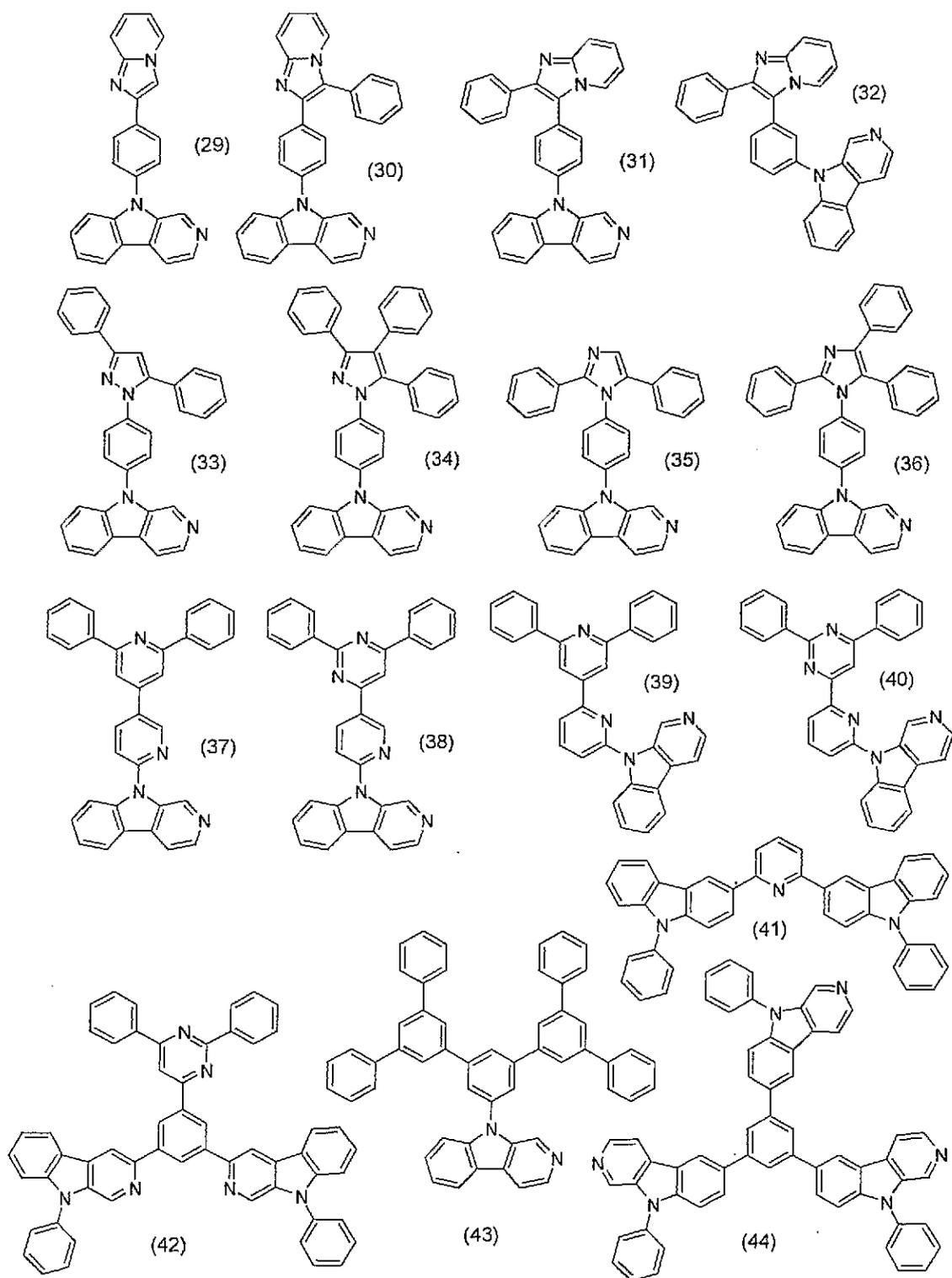
また、前記 $R_1 \sim R_8$ の少なくとも 1 つが、 $\text{-C}(\text{R})_2$ - カルボリニル基である、すなわち、前記 L 及び / 又は Y が、 $\text{-C}(\text{R})_2$ - カルボリニル基であるとさらに好ましい。

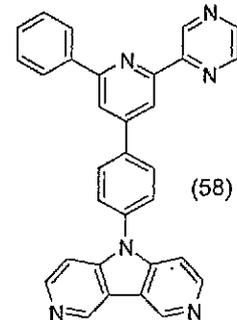
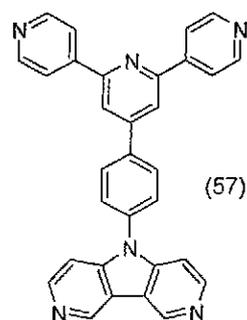
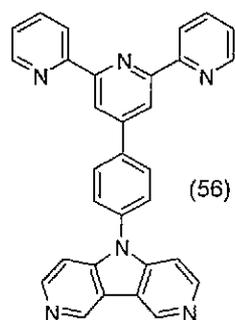
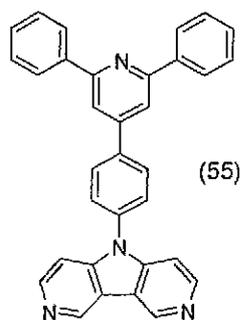
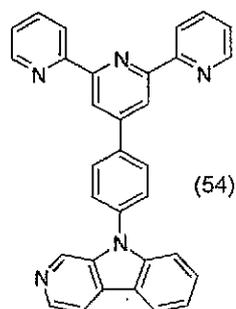
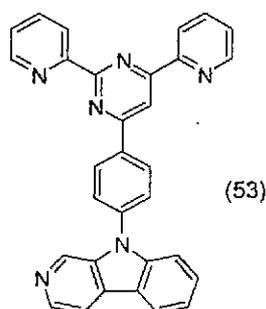
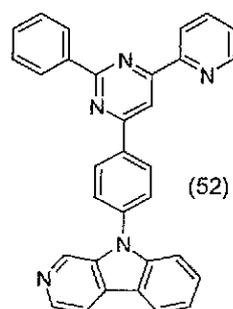
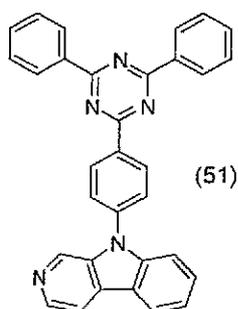
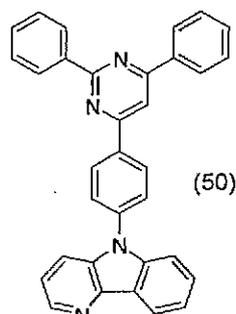
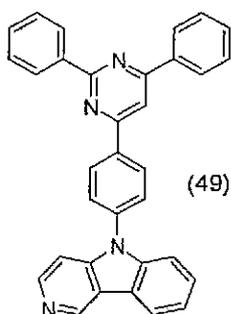
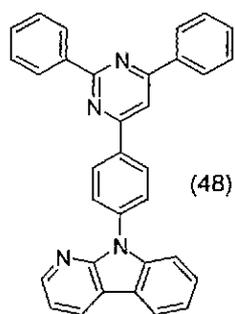
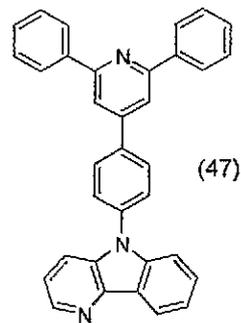
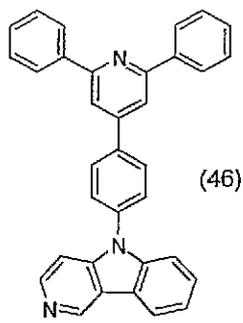
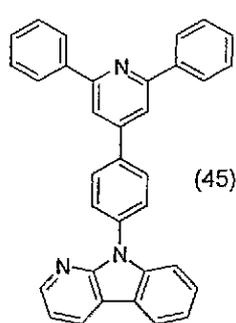
前記 $X_1 \sim X_8$ 及び $R_1 \sim R_9$ で表される置換基の水素原子を置換する基としては、それぞれ、ハロゲン原子 (フッ素、塩素、臭素等)、シアノ基、シリル基、アミノ基、アリール基、アリールオキシ基、複素環基、アルキル基、アルコキシ基、アラルキル基、又はシクロアルキル基等が挙げられる。

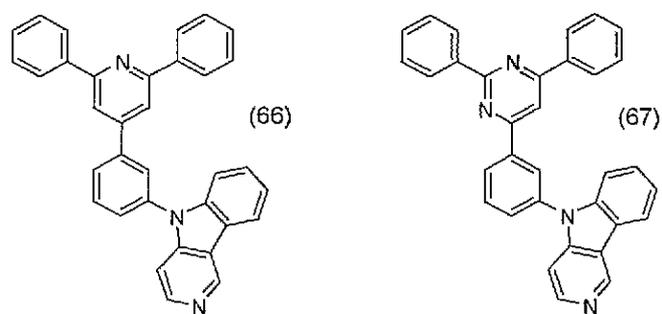
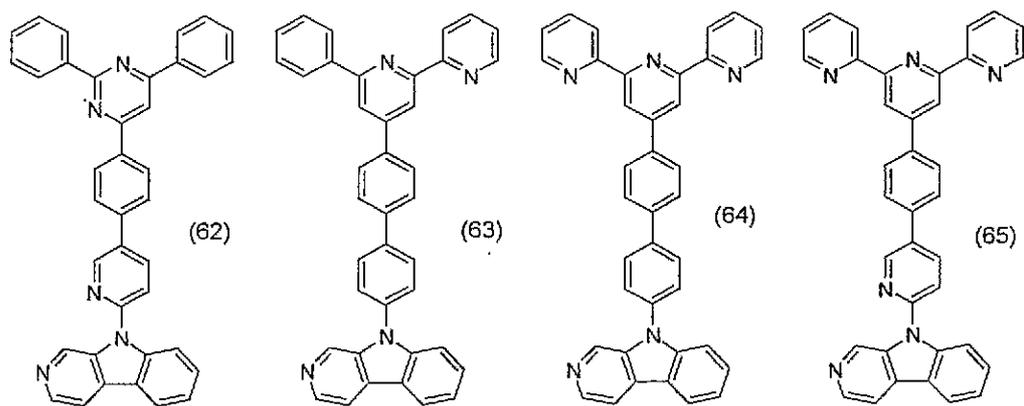
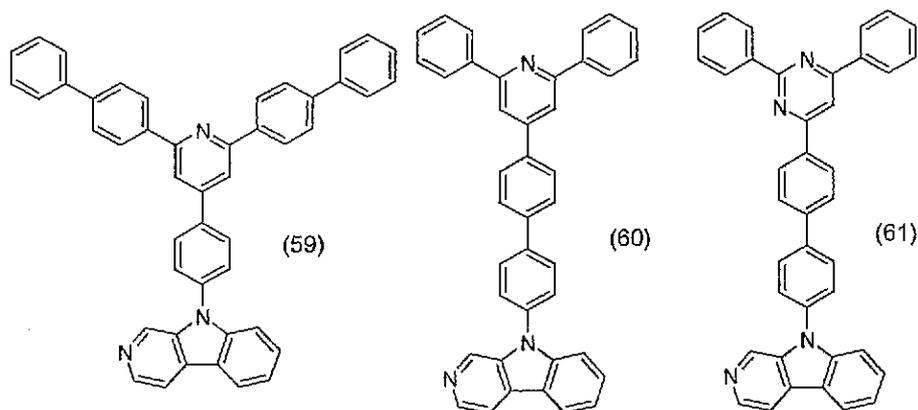
本発明の一般式 (1) で表される有機 EL 素子用材料の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

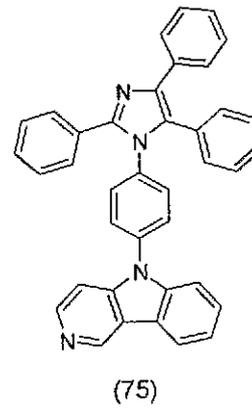
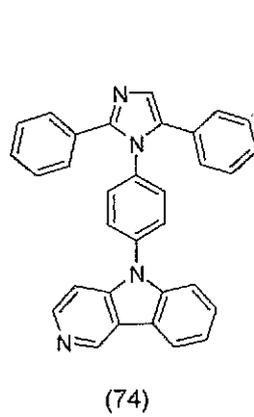
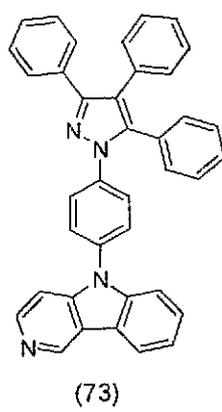
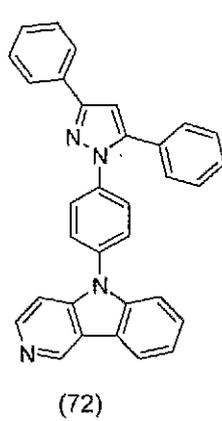
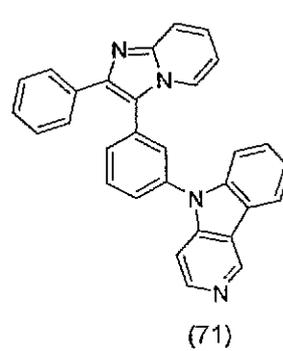
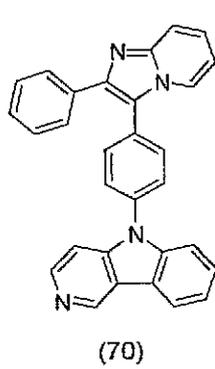
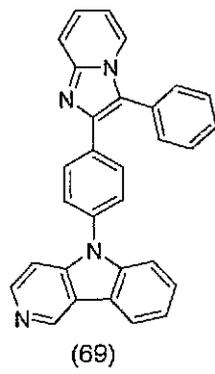
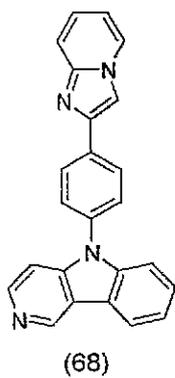


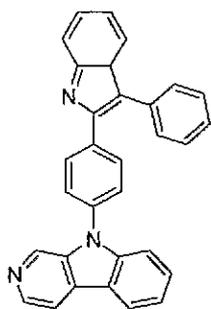




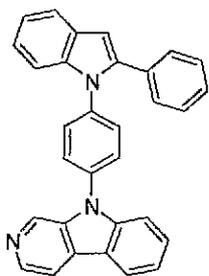




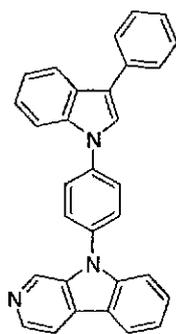




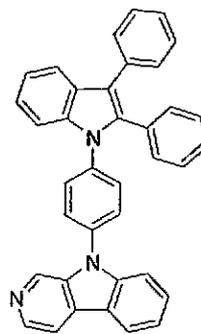
(76)



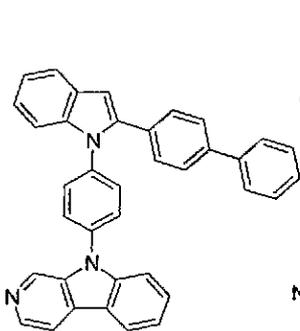
(77)



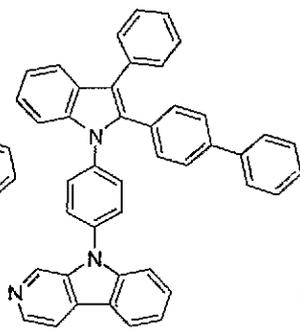
(78)



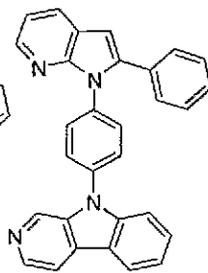
(79)



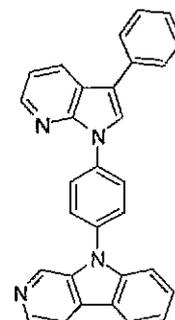
(80)



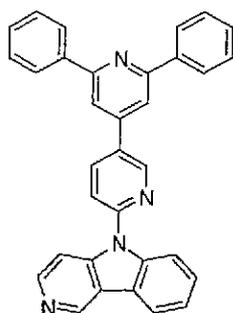
(81)



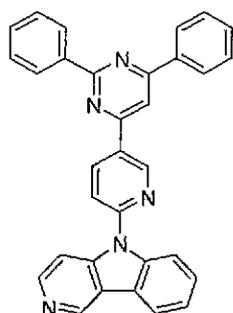
(82)



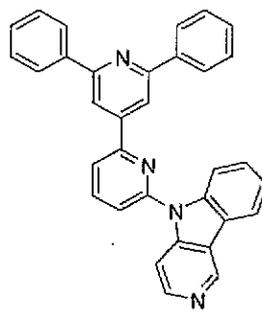
(83)



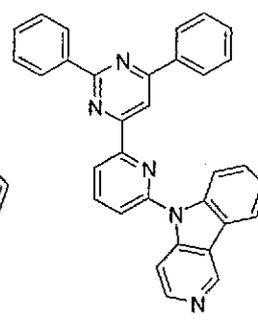
(84)



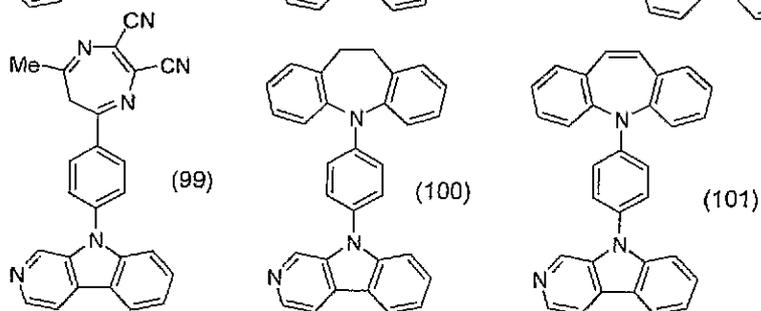
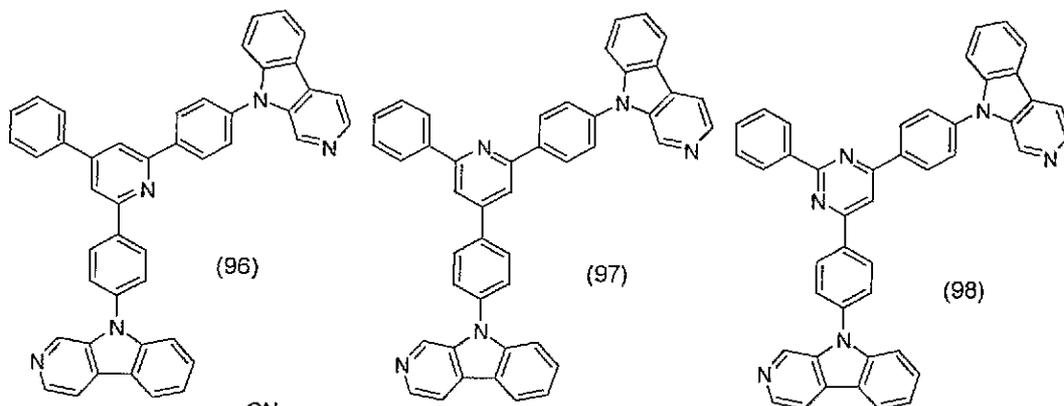
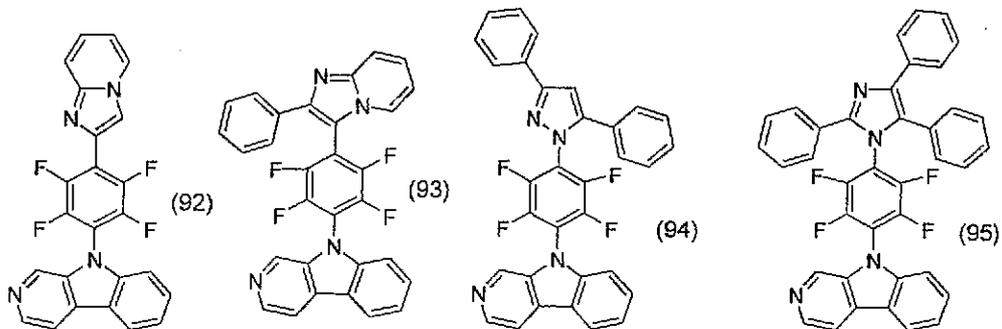
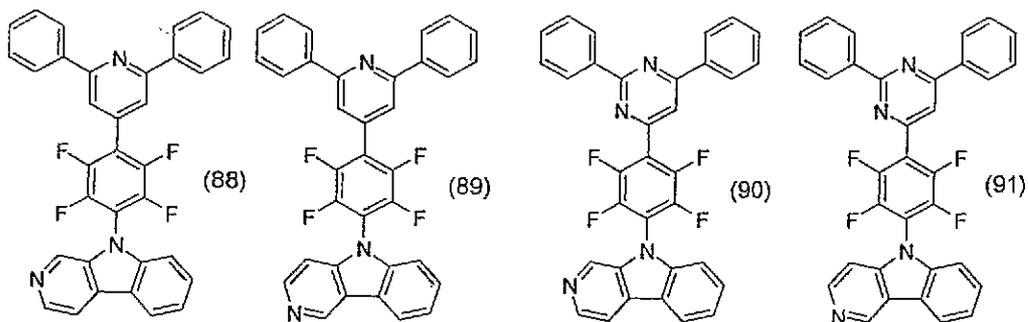
(85)

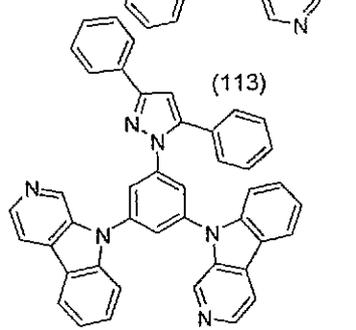
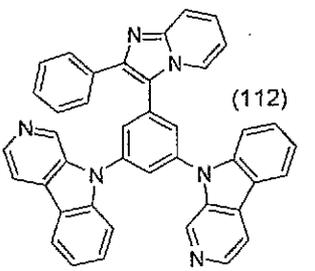
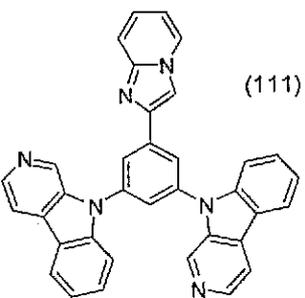
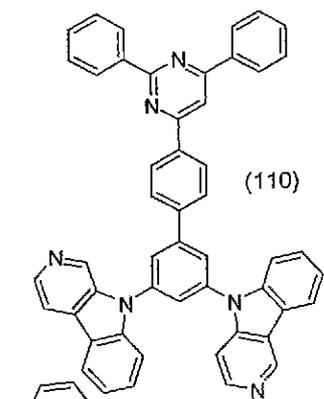
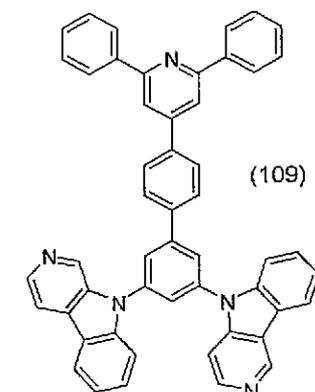
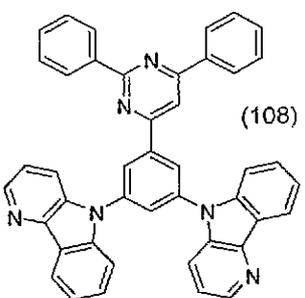
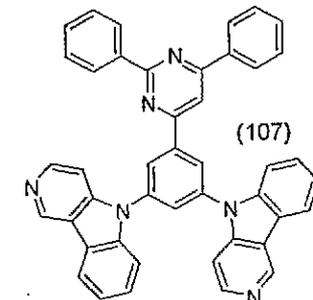
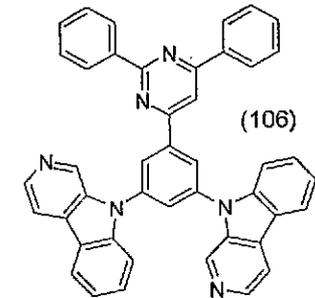
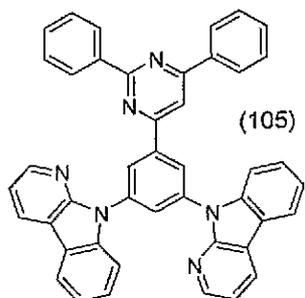
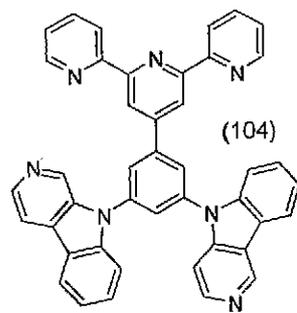
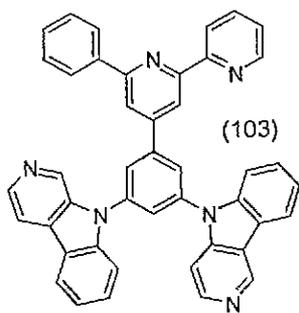
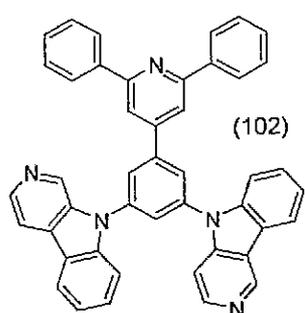


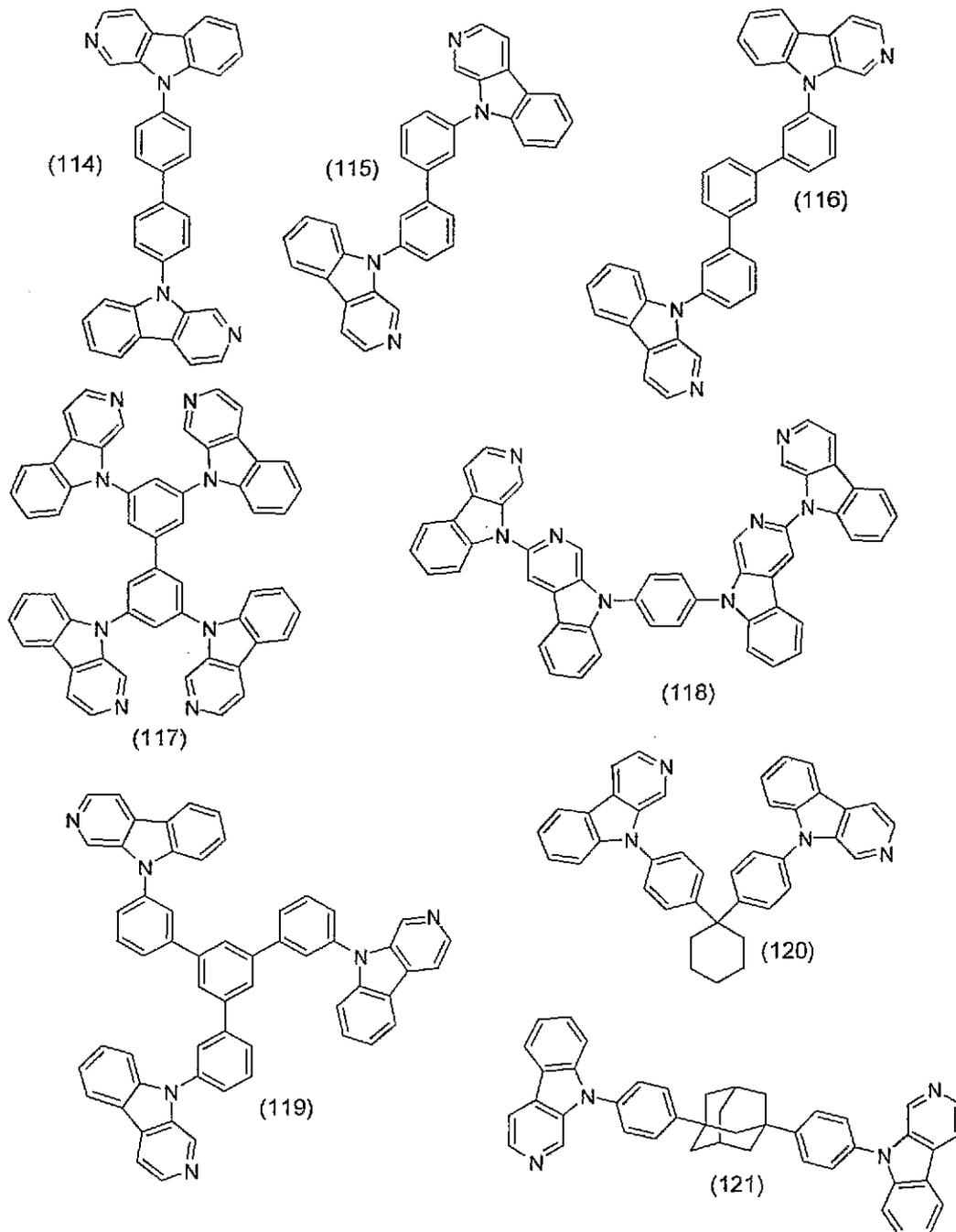
(86)



(87)







本発明における一般式(1)で表される化合物からなる有機EL素子用材料は、3重項のエネルギーギャップが2.5~3.3 eVであり、2.6~3.2 eVであると好ましい。

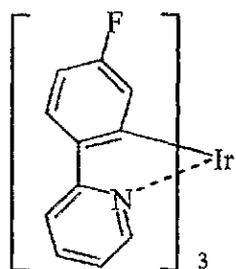
本発明における一般式(1)で表される化合物からなる有機EL素子用材料は、1重項のエネルギーギャップが2.8~3.8 eVであり、2.9~3.6 eVであると好ましい。

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)の化合物からなる有機EL素子用材料を含有する。

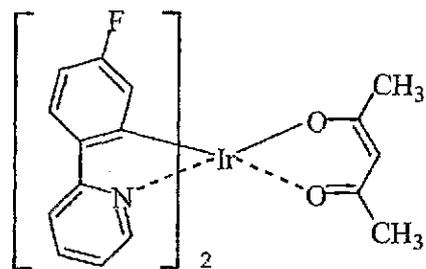
また、本発明の有機EL素子は、発光層、電子輸送層及び/又は電子注入層、もしくは正孔輸送層及び/又は正孔注入層に、前記一般式(1)の化合物からなる有機EL素子用材料を含有すると好ましい。

本発明の有機EL素子は、前記有機薄膜層が燐光発光性化合物を含有すると好ましく、燐光発光性化合物としては3重項励起又はそれ以上の多重項励起により発光する金属錯体等が好ましく、例えば、以下のような例が挙げられる。

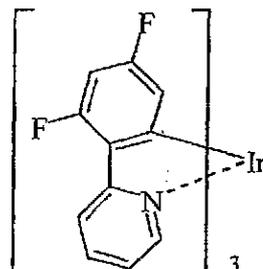
(K-1)



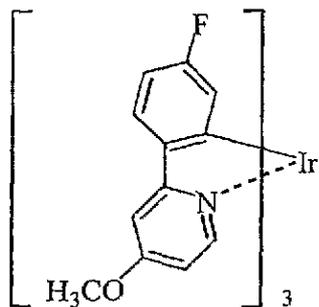
(K-2)



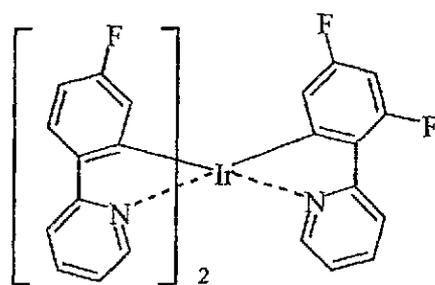
(K-3)



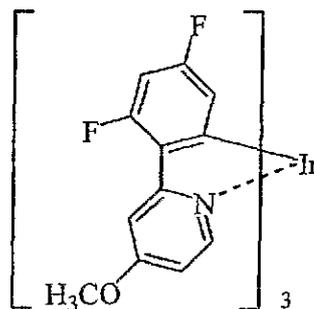
(K-4)



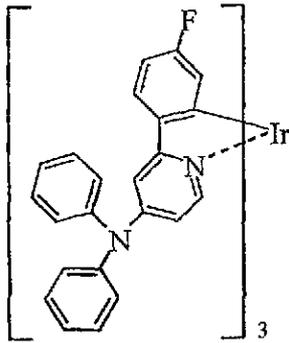
(K-5)



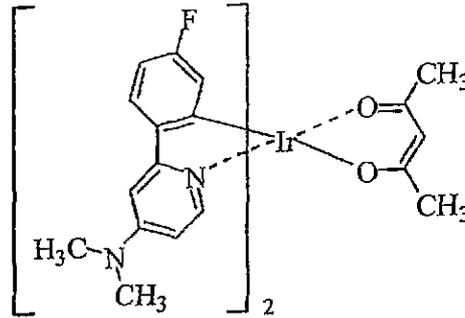
(K-6)



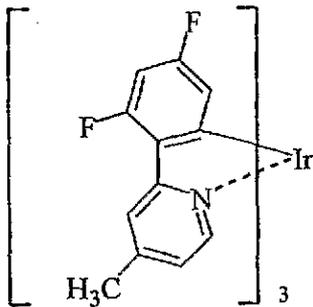
(K-7)



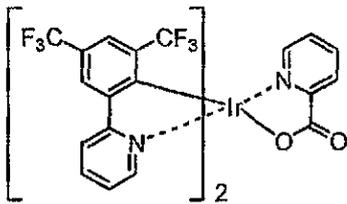
(K-8)



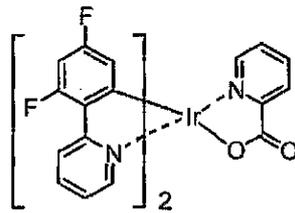
(K-9)



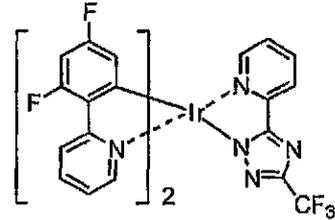
(K-10)



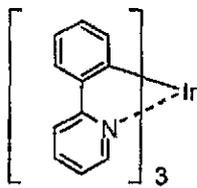
(K-11)



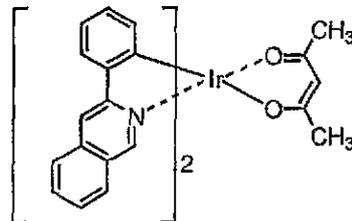
(K-12)



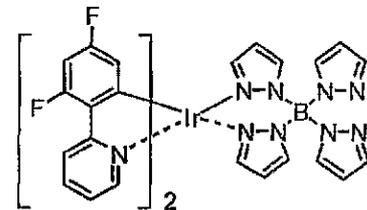
(K-13)



(K-14)



(K-15)



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)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3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重項励起子是非発光性である。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い損失となっている。

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倍の発光効率が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や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/正孔輸送層/発光層/陰極）、（陽極/発光層/電子輸送層/陰極）、（陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/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）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、正孔輸送材料や電子輸送材料を使用し、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素子における正孔輸送層、発光層、電子輸送層は、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、正孔輸送層の場合、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言う。同様に、電子輸送層の場合、電極から電子を注入する層を電子注入層、電子輸送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言う。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。

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）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）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、メロシアニン、イミダ

10

20

30

40

50

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。

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、ナフトロシアニン誘導体、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、ポリアリーールアルカン、スチルベン、プタジエン、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ト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。

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。

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。

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POPPOP、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

10

20

30

40

50

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。

10

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 eV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、NESEA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 eV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。

20

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。

30

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%以上にするのが望ましい。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、ポリビニルブチラール、ナイロン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、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、ポリビニルフルオライド、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ライド、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。

40

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

50

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。

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。通常の膜厚は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)の化合物からなる有機EL素子用材料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。

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重項エネルギー及び1重項エネルギーは、以下のようにして測定した。

(1) 3重項エネルギーの測定

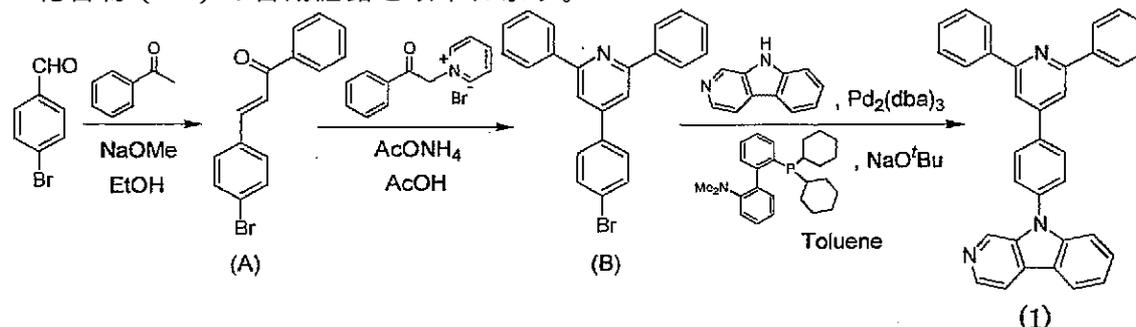
最低励起3重項エネルギー準位T1を測定した。すなわち、試料の蛍光スペクトルを測定し(10 μmol/リットル EPA(ジエチルエーテル:イソペンタン:エタノール=5:5:2容積比)溶液、77 K、石英セル、SPEX社FLUOROLOGII)、蛍光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き横軸との交点である波長(発光端)を求めた。この波長をエネルギー値に換算した。

(2) 1重項エネルギー(エネルギーギャップ)の測定

励起1重項エネルギーの値を測定した。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(1)の合成)

化合物(1)の合成経路を以下に示す。



(1) 合成中間体(A)の合成

4 - ブロモベンズアルデヒド 15.0 g (81 mmol)、アセトフェノン 9.7 g (81 mmol) をエタノール 300 ml に溶解し、28% ナトリウムメトキシドメタノール溶液 16.6 ml (81 mmol) を加え、室温で 9 時間攪拌した。反応終了後、析出した結晶を濾過してエタノールで洗浄し、合成中間体 (A) 19.6 g (収率 84%) を得た。

(2) 合成中間体 (B) の合成

合成中間体 (A) 9.0 g (31 mmol)、1 - フェナシルピリジニウムプロミド 8.7 g (31 mmol)、酢酸アンモニウム 19.3 g (250 mmol) を酢酸 27 ml 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 ml を加え、析出した結晶を濾過し、エタノールで洗浄し、合成中間体 (B) 10.6 g (収率 88%) を得た。

10

(3) 化合物 (1) の合成

合成中間体 (B) 3.0 g (8 mmol)、 β -カルボリン 1.4 g (8 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.18 g (0.2 mmol)、2 - ジシクロヘキシルホスフィノ - 2' - (N,N - ジメチルアミノ)ピフェニル 0.23 g (0.6 mmol)、ナトリウム tert - ブトキシド 1.0 g (11 mmol) をトルエン 15 ml に懸濁し、アルゴン雰囲気下、20 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、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、結晶 1.7 g (収率 46%) を得た。

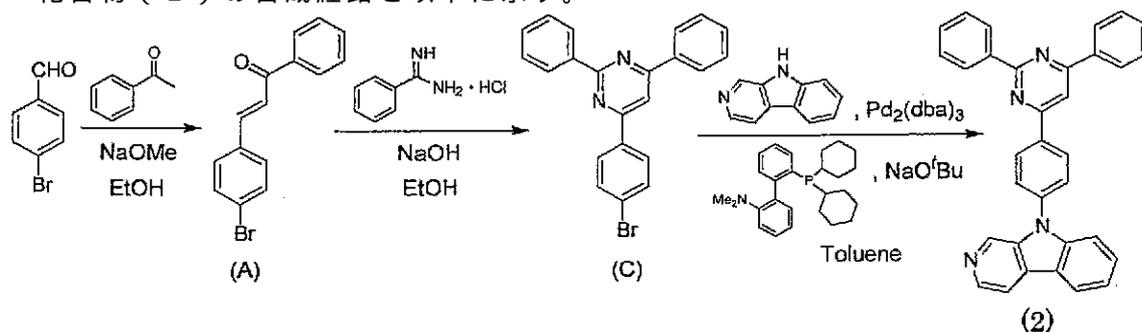
20

得られた結晶は、 $90 \text{ MHz}^1 \text{H-NMR}$ 及び FD - MS (フィールドディソープションマスペクトル) により目的物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)

合成例 2 (化合物 (2) の合成)

化合物 (2) の合成経路を以下に示す。



(1) 合成中間体 (C) の合成

合成中間体 (A) 10.0 g (35 mmol)、ベンズアミジン塩酸塩 5.5 g (35 mmol) をエタノール 75 ml に懸濁し、水酸化ナトリウム 2.8 g (70 mmol) を加え、18 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、水 50 ml を加え、1 時間攪拌した後、析出した結晶を濾過してエタノールで洗浄し、合成中間体 (C) 8.2 g (収率 61%) を得た。

40

(2) 化合物 (2) の合成

化合物 (2) は、合成中間体 (B) の代わりに合成中間体 (C) を用いた以外は、上記合成例 1 と同様の操作を行うことにより結晶 1.8 g (収率 45%) 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。

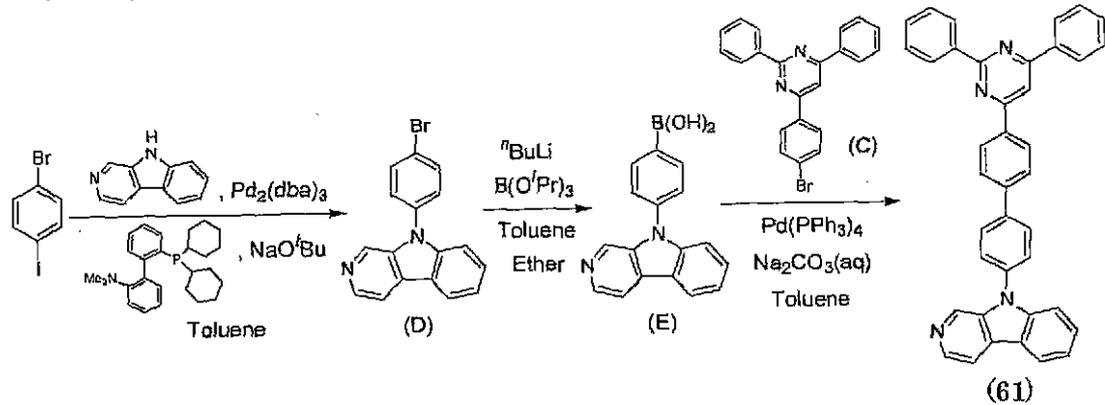
FD - MS, calcd for $\text{C}_{33}\text{H}_{22}\text{N}_4 = 474$, found, $m/z = 4$

50

74 (M^+ , 100)

合成例3 (化合物(61)の合成)

化合物(61)の合成経路を以下に示す。



(1) 合成中間体(D)の合成

4-ブロモヨードベンゼン 25.4 g (90 mmol)、 ρ -カルボリン 10.1 g (60 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.55 g (0.6 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2'-(N,N-ジメチルアミノ)ピフェニル 0.71 g (1.8 mmol)、ナトリウム *tert*-ブトキシド 8.1 g (84 mmol) をトルエン 60 ml に懸濁し、アルゴン雰囲気下、20 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、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、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、結晶 11.4 g (収率 59%) を得た。

(2) 合成中間体(E)の合成

合成中間体(D) 8.1 g (25 mmol) をトルエン 50 ml、エーテル 50 ml に溶解し、アルゴン雰囲気下 -40°C でノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 (1.6 M) 21 ml (32 mmol) を加え、 -40°C から 0°C で 1 時間攪拌した。次に反応溶液を -70°C まで冷却し、ホウ酸トリイソプロピル 17 ml (74 mmol) をエーテル 25 ml に希釈した溶液を滴下し、 -70°C で 1 時間攪拌した後、室温まで昇温して 6 時間攪拌した。更に反応溶液に 5% 塩酸 70 ml を滴下した後、室温で 45 分間攪拌した。反応溶液を二層分離した後、有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。有機溶媒を 5 分の 1 程度まで減圧留去後、析出した結晶を濾過し、トルエン-ノルマルヘキサン混合溶媒、ノルマルヘキサンで順次洗浄し、合成中間体(E) 3.2 g (収率 45%) を得た。

(3) 化合物(61)の合成

合成中間体(C) 2.7 g (6.9 mmol)、合成中間体(E) 2.0 g (6.9 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 0.16 g (0.14 mmol) を 1,2-ジメトキシエタン 21 ml に懸濁し、炭酸ナトリウム 2.2 g (21 mmol) を水 11 ml に溶解した溶液を加え、9 時間加熱環流した。反応溶液を二層分離した後、有機層を飽和食塩水で洗浄し、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 12 ml を加え、析出した結晶を濾過し、酢酸エチルで洗浄し、結晶 2.7 g (収率 72%) 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。

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

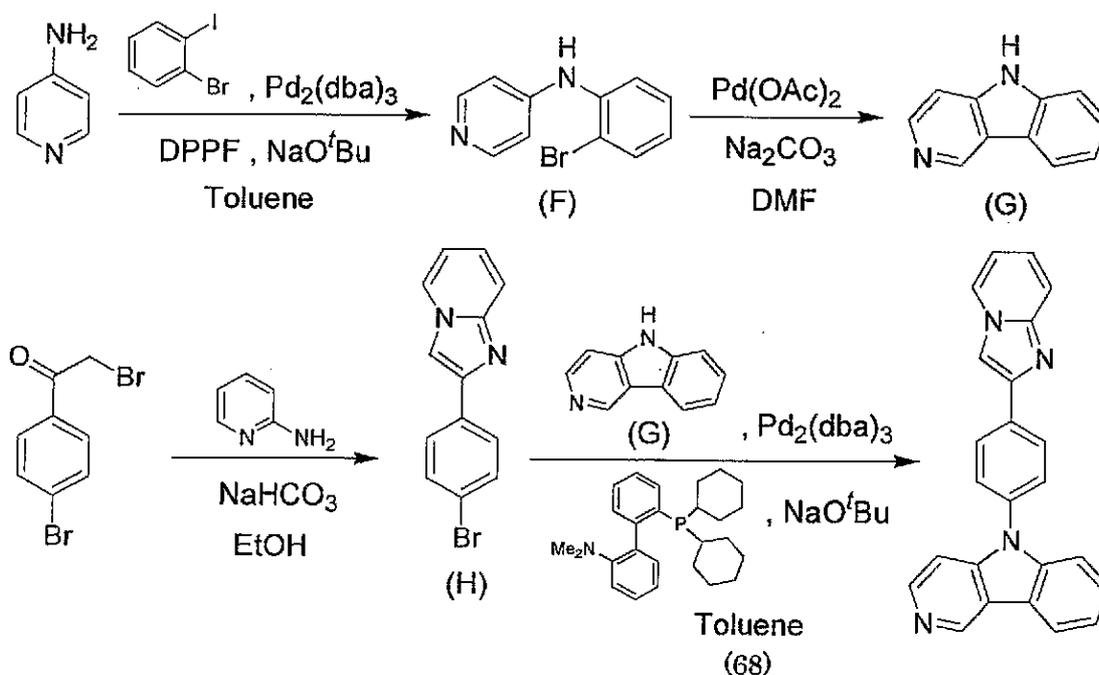
合成例4 (化合物(68)の合成)

化合物(68)の合成経路を以下に示す。

20

30

40



(1) 合成中間体 (F) の合成

4 - アミノピリジン 7.9 g (84 mmol)、2 - ブロモヨードベンゼン 25.0 g (88 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 1.5 g (1.6 mmol)、1, 1' - ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン 1.8 g (3.2 mmol)、ナトリウム *tert* - ブトキシド 11.3 g (118 mmol) をトルエン 210 ml に懸濁し、アルゴン雰囲気下、19 時間加熱環流した。反応溶液を室温まで冷却し、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 50 ml を加え、析出した結晶を濾過し、エタノールで洗浄し、合成中間体 (F) 20.5 g (収率 98%) を得た。

20

(2) 合成中間体 (G) の合成

合成中間体 (F) 10.0 g (40 mmol)、酢酸パラジウム 0.90 g (4.0 mmol)、炭酸ナトリウム 5.9 g (56 mmol) を *N,N* - ジメチルホルムアミド 80 ml に懸濁し、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、酢酸エチル、水を加え、二層分離した後、水、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、トルエンから再結晶して析出した結晶を濾過し、トルエンで洗浄し、合成中間体 (G) 4.4 g (収率 66%) を得た。

30

(3) 合成中間体 (H) の合成

2, 4' - ジブromoアセトフェノン 15.0 g (54 mmol)、2 - アミノピリジン 5.2 g (55 mmol) をエタノール 100 ml に懸濁し、炭酸水素ナトリウム 7.0 g (83 mmol) を加え、9 時間加熱還流した。反応溶液を室温まで冷却し、析出した結晶を濾過し、水、エタノールで順次洗浄し、合成中間体 (H) を 12.5 g (収率 85%) を得た。

40

(4) 化合物 (68) の合成

化合物 (68) は、合成中間体 (B) の代わりに合成中間体 (H)、*p* - カルボリンの代わりに合成中間体 (G) を用いた以外は、上記合成例 1 の (3) と同様の操作を行うことにより、結晶 1.8 g (収率 49%) を得た。

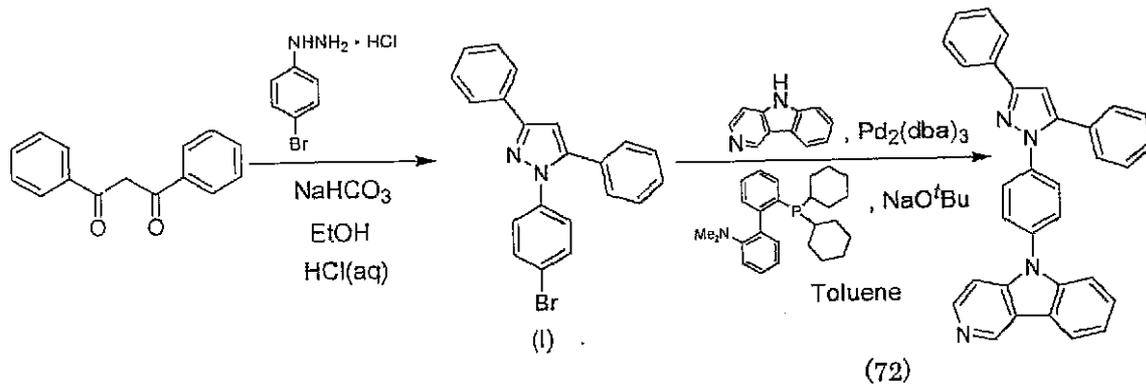
得られた結晶は、90 MHz ¹H - NMR 及び FD - MS により目的物であることを確認した。また、FD - MS の測定結果を以下に示す。

FD - MS, calcd for C₂₄H₁₆N₄ = 360, found, m/z = 360 (M⁺, 100)

合成例 5 (化合物 (72) の合成)

化合物 (72) の合成経路を以下に示す。

50



(1) 合成中間体 (I) の合成

4 - プロモフェニルヒドラジン塩酸塩 5.0 g (22 mmol)、炭酸水素ナトリウム 1.9 g (22 mmol) をエタノール 100 ml に懸濁し、1 時間攪拌した後、ジベンゾイルメタン 5.0 g (22 mmol) を加え、8 時間加熱還流した。次に濃塩酸 2 ml (23 mmol) を加え、12 時間加熱還流した。反応溶液を室温まで冷却し、30% 水酸化ナトリウム水溶液 2.3 ml (23 mmol)、水 50 ml を加え、1 時間攪拌して析出した結晶を濾過し、エタノールで洗浄し、合成中間体 (I) を 7.6 g (収率 定量的) を得た。

(2) 化合物 (72) の合成

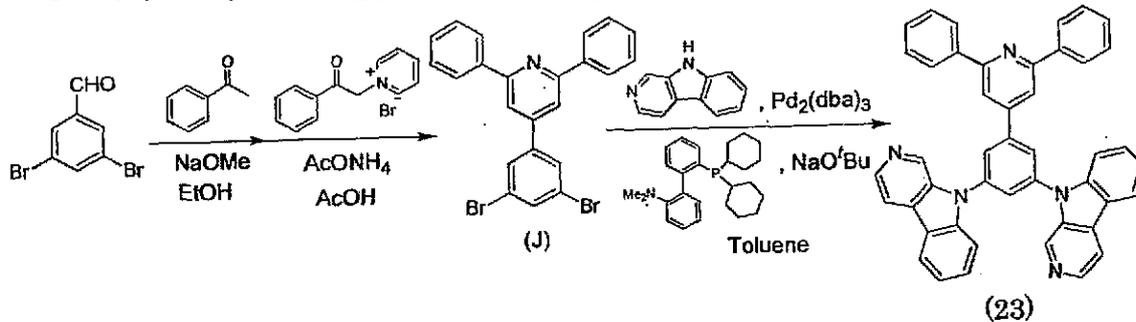
化合物 (72) は、合成中間体 (B) の代わりに合成中間体 (I) を用いた以外は、上記合成例 1 の (3) と同様の操作を行うことにより、結晶 1.8 g (収率 46%) を得た。

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。

$\text{FD-MS, calcd for } \text{C}_{32}\text{H}_{22}\text{N}_4 = 462, \text{ found, } m/z = 462 (\text{M}^+, 100)$

合成例 6 (化合物 (23) の合成)

化合物 (23) の合成経路を以下に示す。



上記合成例 1 の (1) で、4 - プロモベンズアルデヒドの代わりに、3,5 - ジプロモベンズアルデヒドを用いた以外は合成例 (1)、(2) と同様にして合成した合成中間体 (J) 2.5 g (5 mmol)、 $\text{P}(\text{C}_6\text{H}_5)_3$ 1.0 g (6 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.18 g (0.2 mmol)、2 - ジシクロヘキシルホスフィノ - 2' - (N,N - ジメチルアミノ)ピフェニル 0.23 g (0.6 mmol)、ナトリウム *tert* - ブトキシド 1.0 g (11 mmol) をトルエン 15 ml に懸濁し、アルゴン雰囲気下、20 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、蒸留残渣をトルエン 15 ml に懸濁し、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.18 g (0.2 mmol)、2 - ジシクロヘキシルホスフィノ - 2' - (N,N - ジメチルアミノ)ピフェニル 0.23 g (0.6 mmol)、ナトリウム *tert* - ブトキシド 1.0 g (11 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、20 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、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、結晶 1.7 g (収率 53%) 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。

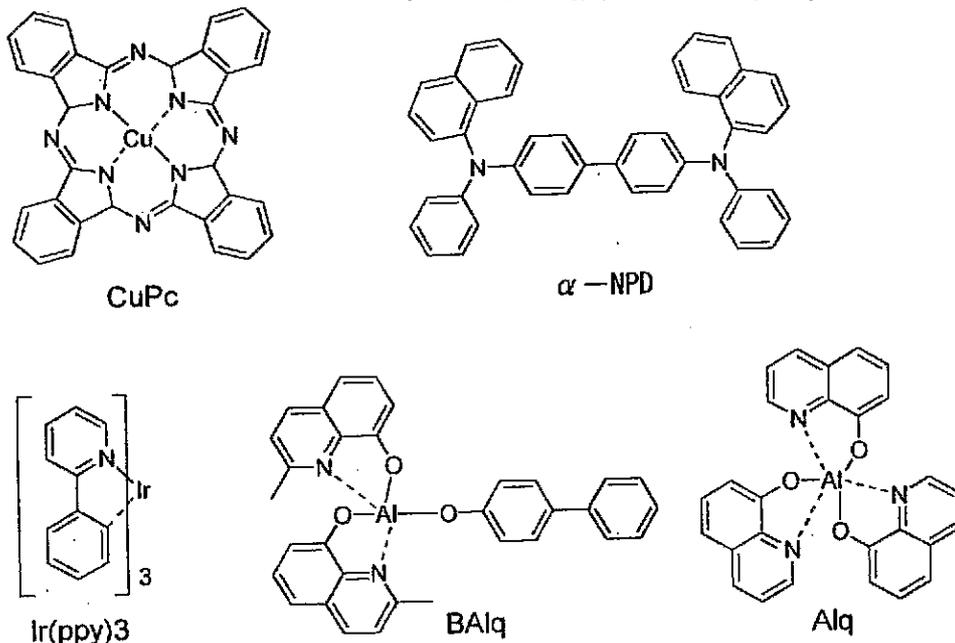
$\text{FD-MS, calcd for } \text{C}_{45}\text{H}_{29}\text{N}_5 = 639, \text{ found, } m/z = 639 (\text{M}^+, 100)$

実施例 1 (有機 EL 素子の製造)

25 mm × 75 mm × 0.7 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極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 10 nm の下記銅フタロシアニン膜 (以下「CuPc 膜」と略記する。) を成膜した。この CuPc 膜は、正孔注入層として機能する。この CuPc 膜上に膜厚 30 nm の下記 4, 4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル膜 (以下「 α -NPD 膜」と略記する。) を成膜した。この α -NPD 膜は正孔輸送層として機能する。さらに、 α -NPD 膜上に膜厚 30 nm の上記化合物 (1) をホスト材料として蒸着し発光層を成膜した。同時に燐光発光性の Ir 金属錯体ドーパントとして下記トリス (2-フェニルピリジン) Ir (以下「Ir(ppy)₃」) と略記する。) を添加した。発光層中における Ir(ppy)₃ の濃度は 5 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 10 nm の下記 (1, 1'-ビスフェニル)-4-オラート) ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム (以下、「BAIq 膜」と略記する。) を成膜した。この BAIq 膜は正孔障壁層として機能する。さらにこの膜上に膜厚 40 nm の下記 8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体 (以下、「Alq 膜」と略記する。) を成膜した。この Alq 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 LiF を 0.2 nm の厚さに蒸着し、次いでアルミニウムを 150 nm の厚さに蒸着した。この Al/LiF は陰極として働く。このようにして有機 EL 素子を作製した。

発光層で使用したホスト材料の 3 重項エネルギー及び 1 重項エネルギーを上記 (1) 及び (2) の測定方法により測定した結果を表 1 に示す。

この素子について、通電試験を行なったところ、電圧 5.2 V, 電流密度 0.26 mA/cm² にて、99 cd/m² の緑色発光が得られ、色度座標は (0.32, 0.62)、効率 は 38.6 cd/A であった。これらの結果を表 1 に示す。



実施例 2 及び 3

実施例 1 において、化合物 (1) の代わりに表 1 に記載の化合物を用いた以外は同様に

10

20

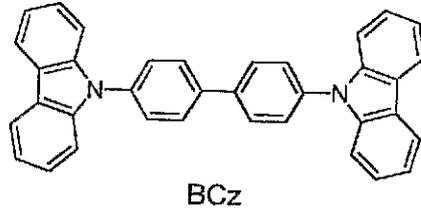
30

50

して有機EL素子を作製し、同様に3重項エネルギー及び1重項エネルギー、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度を測定した結果を表1に示す。

比較例1

実施例1において、化合物(1)の代わりに下記化合物(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3重項エネルギー及び1重項エネルギー、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度を測定した結果を表1に示す。



比較例2

実施例1において、化合物(1)の代わりに、米国特許公開公報2002-28329号明細書に記載の下記化合物(A-10)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、実施例1と同様にして特性を評価した。それらの結果を表1に示す。

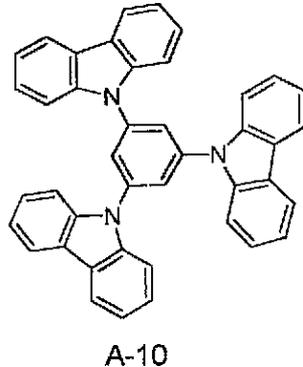


表 1

	発光層 のホスト 材料	3重項エ ネルギー (eV)	1重項エ ネルギー (eV)	電圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (cd/A)	色度座標 (x,y)	発光色
実施例1	(1)	2.8	3.4	5.2	0.26	99	38.6	(0.32,0.62)	緑
実施例2	(61)	2.6	3.3	5.5	0.24	102	42.8	(0.32,0.61)	緑
実施例3	(68)	2.7	3.5	5.6	0.27	100	37.2	(0.32,0.61)	緑
比較例1	(BCz)	2.8	3.6	5.4	0.31	101	32.6	(0.32,0.61)	緑
比較例2	(A-10)	3.1	3.7	5.9	0.32	100	31.8	(0.32,0.61)	緑

表1に示したように、比較例1, 2の従来公知の化合物(BCz, A-10)に対して、本発明の有機EL素子用材料を用いた有機EL素子は、高効率の緑色発光が得られる。また、本発明の有機EL素子用材料は、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。

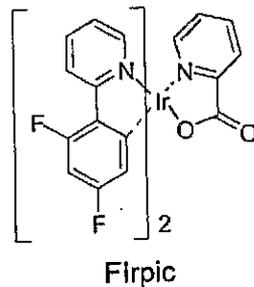
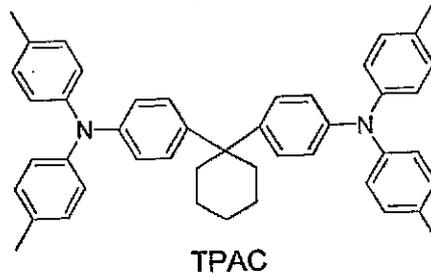
【実施例4】

25mm×75mm×0.7mm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10nmのCuPc膜を成膜した。このCuPc膜は、正孔注入層として機能する。次に、CuPc膜上に膜厚30nmの下記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(以下「TPAC膜」と略記する。)を成膜した。このTPAC膜は正孔輸送層として機能する。さらに、TPAC膜上に膜厚30nmの上記化合物(1)を蒸着し発光層を成膜した。同時に燐光発光性のIr金属錯体としてIr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(以下「FIrpic」と略記する。)を添加した。発光層中におけるFIrpic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30nmのAlq膜を成膜した。このAlq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LiFを0.2nmの厚さに蒸着し、次いでアルミニウムを150nmの厚さに蒸着した。このAl/LiFは陰極として働く。このようにして有機EL素子を作製した。

発光層で使用したホスト材料の3重項エネルギー及び1重項エネルギーを上記(1)及び(2)の測定方法により測定した結果を表1に示す。

この素子について、通電試験を行なったところ、電圧6.4V、電流密度0.65mA/cm²にて、101cd/m²の青色発光が得られ、色度座標は(0.17, 0.39)、効率は15.6cd/Aであった。



実施例5及び6

実施例4において、化合物(1)の代わりに表2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3重項エネルギー及び1重項エネルギー、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度を測定した結果を表2に示す。

比較例3

実施例4において、化合物(1)の代わりに上記化合物(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3重項エネルギー及び1重項エネルギー、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度を測定した結果を表2に示す。

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、上記化合物(-NPD)を使用し、さらに電子注入層の化合物(Alq)に代えて、上記化合物(BAlq)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製し、同様に3重項エネルギー及び1重項エネルギー、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度を測定した結果を表2に示した。

表2

	発光層のホスト材料	3重項エネルギー (eV)	1重項エネルギー (eV)	電圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (cd/A)	色度座標 (x,y)	発光色
実施例4	(1)	2.8	3.4	6.4	0.65	101	15.6	(0.17,0.39)	青
実施例5	(2)	2.8	3.4	6.8	0.57	103	18.2	(0.18,0.39)	青
実施例6	(3)	2.7	3.2	6.9	0.73	97	13.3	(0.18,0.39)	青
比較例3	(BCz)	2.8	3.6	7.8	1.70	98	5.8	(0.16,0.37)	青
比較例4	(BCz)	2.8	3.6	7.6	1.09	99	9.2	(0.17,0.37)	青

表2に示したように、比較例3, 4の従来公知の化合物(BCz)に対して、本発明の有機EL素子用材料を用いた有機EL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、本発明の有機EL素子用材料は、エネルギーギャップが広いので、エ

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)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、燐光性の発光を利用し、低電圧で、発光効率が高い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/JP03/15874

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	JP 2001-160488 A (Konica Corp.), 12 June, 2001 (12.06.01), Claim 7; pages 27 to 28; examples	1-3, 7-13, 15, 16
Y	Claim 7; pages 27 to 28; examples	14
A	(Family: none)	5, 6
X	JP 54-11736 A (Ricoh Co., Ltd.), 29 January, 1979 (29.01.79),	1-3, 7-10, 12, 15, 16
Y	Claims; page 2, upper left column, line 11 to upper right column, line 5 (Family: none)	14
X	JP 2-108058 A (Canon Inc.), 19 April, 1990 (19.04.90),	1-3, 7-10, 12, 15, 16
Y	Claims; page 2, upper left column, line 18 to upper right column, line 2 (Family: none)	14
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents:		"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		"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
"E" earlier document but published on or after the international filing date		"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
"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)		"&" document member of the same patent family
"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		
Date of the actual completion of the international search 04 March, 2004 (04.03.04)		Date of mailing of the international search report 16 March, 2004 (16.03.04)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/15874

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 63-293550 A (Canon Inc.), 30 November, 1988 (30.11.88),	1-4, 7-10, 12, 15, 16
Y	Claims; page 2, upper right column, lines 13 to 17 (Family: none)	14
Y	EP 1246510 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.), 26 November, 2001 (26.11.01), Par. No. [0038] & JP 2002-164178 A & WO 02/043448 A1 & CN 1397147 T	14

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JPO3/15874
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		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
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	JP 2001-160488 A (コニカ株式会社) 2001.06.12、請求項7、第27頁~第28頁、実施例 (ファミリーなし)	1-3, 7-13, 15 16
Y		14
A		5, 6
X	JP 54-11736 A (株式会社リコー) 1979.01.29、特許請求の範囲、第2頁左上欄11行~同頁右上欄5行 (ファミリーなし)	1-3, 7-10, 12, 15, 16
Y		14
X	JP 2-108058 A (キャノン株式会社) 1990.04.19、特許請求の範囲、第2頁左上欄18行~同頁右上欄2行 (ファミリーなし)	1-3, 7-10, 12, 15, 16
Y		14
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「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 「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 「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) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		
の日の後に公表された文献 「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 「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 「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 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	04.03.2004	国際調査報告の発送日
		16.3.2004
国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官 (権限のある職員)	4V 9279
日本国特許庁 (ISA/JP)	渡辺 陽子	
郵便番号100-8915		
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	電話番号 03-3581-1101	内線 3483

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO3/15874

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	JP 63-293550 A (キャノン株式会社) 1988.11.30、 特許請求の範囲、第2頁右上欄13行~17行(ファミリーなし)	1-4, 7-10, 12, 15, 16
Y	.	14
Y	EP 1246510 A1 (IDEMITSU KOSAN C O., LTD.) 2001.11.26、[0038] 欄 & JP 2002-164178 A & WO 02/043448 A1 & CN 1397147 T	14

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
	C 0 7 D 471/04	1 0 3 S
	C 0 7 D 519/00	3 1 1
	H 0 5 B 33/14	B
	H 0 5 B 33/22	B
	H 0 5 B 33/22	D

Fターム(参考) 4C065 AA05 BB04 CC09 DD02 EE02 HH01 JJ01 KK09 LL01 PP03
PP12 PP14
4C072 MM02 UU05

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

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的材料和使用其的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JPWO2004053019A1	公开(公告)日	2006-04-13
申请号	JP2004558476	申请日	2003-12-11
[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 富田誠司 荒金崇士		
发明人	岩隈 俊裕 富田 誠司 荒金 崇士		
IPC分类号	C09K11/06 C07D471/04 C07D519/00 H01L51/50 H01L51/00 H01L51/30 H05B33/14		
CPC分类号	H05B33/14 C07D209/86 C07D471/04 C07D471/14 C07D519/00 C09K11/06 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/185 H01L51/0059 H01L51/006 H01L51/0067 H01L51/0071 H01L51/0078 H01L51/0081 H01L51/0085 H01L51/5016 H01L51/5048		
FI分类号	C09K11/06.645 C09K11/06.650 C09K11/06.660 C09K11/06.690 C07D471/04.103.H C07D471/04.103. S C07D519/00.311 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB04 3K007/AB11 3K007/DB03 4C065/AA05 4C065/BB04 4C065/CC09 4C065 /DD02 4C065/EE02 4C065/HH01 4C065/JJ01 4C065/KK09 4C065/LL01 4C065/PP03 4C065/PP12 4C065/PP14 4C072/MM02 4C072/UU05		
优先权	2002360134 2002-12-12 JP		
其他公开文献	JP4541152B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

一种用于有机电致发光 (EL) 元件的材料，包括具有特定结构的含氮稠环结构的化合物，和包含夹在阴极和阳极之间的一层或多层的有机薄膜层，至少一层有机薄膜层是包含有机EL元件材料的有机EL元件。本发明公开了一种有机EL器件用材料，该材料能够通过利用磷光发光提供具有高发光效率和长寿命的有机EL器件，以及使用该材料的有机EL器件。