

(19) 日本国特許庁 (JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02014/199637

発行日 平成29年2月23日 (2017. 2. 23)

(43) 国際公開日 平成26年12月18日 (2014. 12. 18)

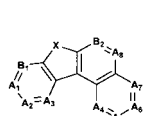
(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	3K107
C07D 491/048 (2006.01)	H05B 33/22 D	4C050
C07D 491/147 (2006.01)	H05B 33/22 B	4C072
C07D 519/00 (2006.01)	C07D 491/048	
	C07D 491/147	
審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 66 頁) 最終頁に続く		

出願番号	特願2015-522546 (P2015-522546)	(71) 出願人	000183646
(21) 国際出願番号	PCT/JP2014/003116		出光興産株式会社
(22) 国際出願日	平成26年6月11日 (2014. 6. 11)		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2013-122806 (P2013-122806)	(74) 代理人	100086759
(32) 優先日	平成25年6月11日 (2013. 6. 11)		弁理士 渡邊 喜平
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(74) 代理人	100112977
			弁理士 田中 有子
		(74) 代理人	100141944
			弁理士 佐藤 猛
		(74) 代理人	100123548
			弁理士 平山 晃二
		(72) 発明者	羽山 友治
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	河村 昌宏
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		最終頁に続く	

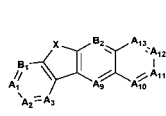
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、これを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

(57) 【要約】

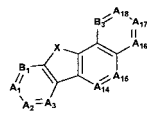
式(1)～(3)のいずれかで表される化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。



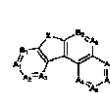
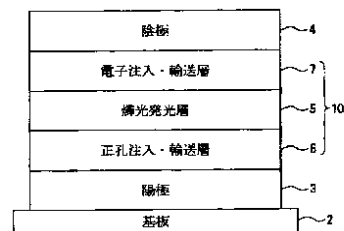
(1)



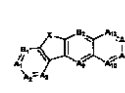
(2)



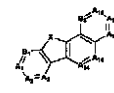
(3)



(1)



(2)



(3)

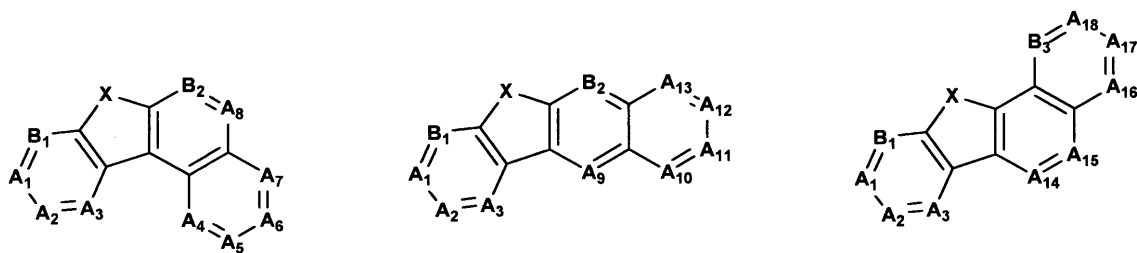
- 2 Substrate
3 Positive electrode
4 Negative electrode
5 Phosphorescent layer
6 Hole injection/transport layer
7 Electron injection/transport layer

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記式(1)～(3)のいずれかで表される化合物を含有する有機エレクトロルミネセンス素子用材料。

【化 59】



10

(1)

(2)

(3)

[式(1)～(3)において、

Xは、硫黄原子S又は酸素原子Oを表し、

A₁～A₁₈は、それぞれ独立に、CH、CR₁又は窒素原子Nを表し、R₁は置換基を表わす。

B₁、B₂及びB₃は、それぞれ独立に、CH、CR₂又は窒素原子Nを表し、R₂は置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、シアノ基又はハロゲン原子を表わす。

20

式(1)のA₁～A₈、B₁及びB₂のうち、少なくとも1つはNである。

式(2)のA₁～A₃、A₉～A₁₃、B₁及びB₂のうち、少なくとも1つはNである。

式(3)のA₁～A₃、A₁₄～A₁₈、B₁及びB₃のうち、少なくとも1つはNである。

R₁が複数存在する場合、複数のR₁は互いに同一でも異なってもよく、R₂が複数存在する場合、複数のR₂は互いに同一でも異なってもよい。

隣接するR₁同士、及びR₁とR₂同士は、それぞれ独立に、互いに結合して環構造を形成してもよい。]

30

【請求項 2】

前記式(1)のA₁～A₈の少なくとも1つは、CR₁であり、

前記式(2)のA₁～A₃及びA₉～A₁₃の少なくとも1つは、CR₁であり、

前記式(3)のA₁～A₃及びA₁₄～A₁₈の少なくとも1つは、CR₁であり、

前記R₁の少なくとも1つが、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基、又は、置換もしくは無置換の環形成原子数3～60の複素環基である請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子用材料。

【請求項 3】

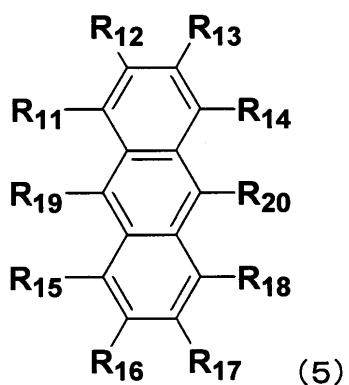
前記式(1)のA₁～A₈、B₁及びB₂の少なくとも2つ、前記式(2)のA₁～A₃、A₉～A₁₃、B₁及びB₂の少なくとも2つ、及び前記式(3)のA₁～A₃、A₁₄～A₁₈、B₁及びB₃の少なくとも2つは、窒素原子Nである、請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネセンス素子用材料。

40

【請求項 4】

前記R₁の少なくとも1つが、下記式(5)で表される構造を含む請求項1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子用材料。

【化 6 0】



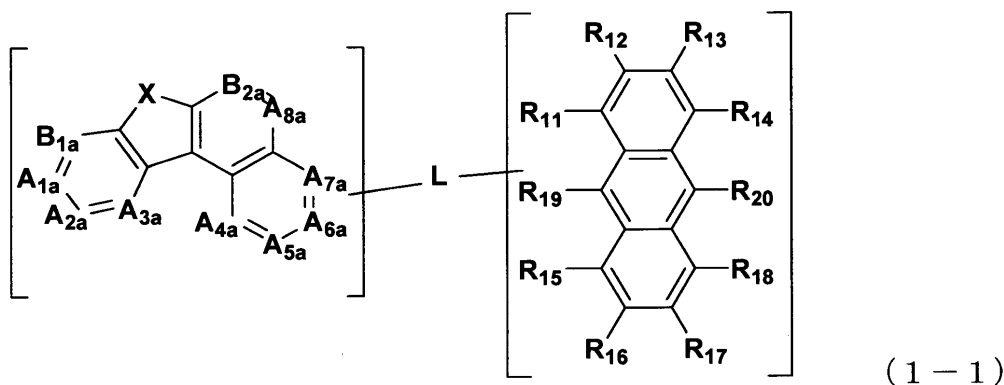
10

(式(5)において、 $R_{11} \sim R_{20}$ は、それぞれ独立に、単結合、水素原子、又は置換基を表し、少なくとも1つは単結合又は連結基を介して前記式(1)の $A_1 \sim A_8$ 、前記式(2)の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_9 \sim A_{13}$ 、前記式(3)の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_{14} \sim A_{18}$ のいずれかが示す炭素原子と結合する。)

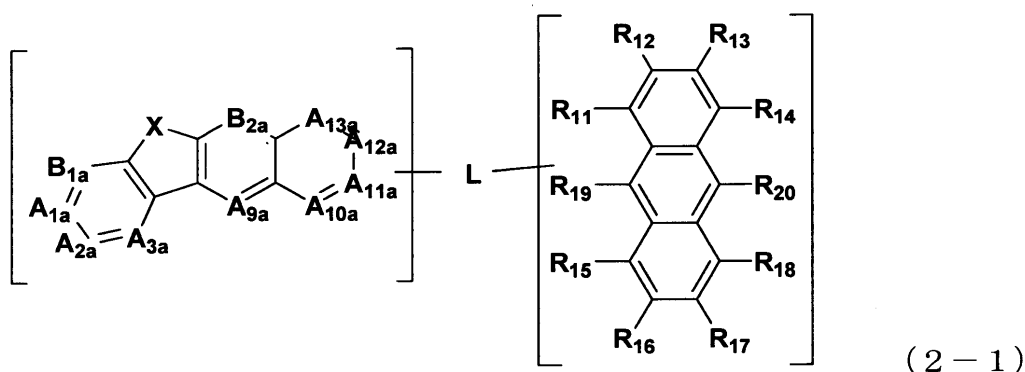
【請求項5】

下記式(1-1)～(3-1)のいずれかで表される化合物を含有する請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

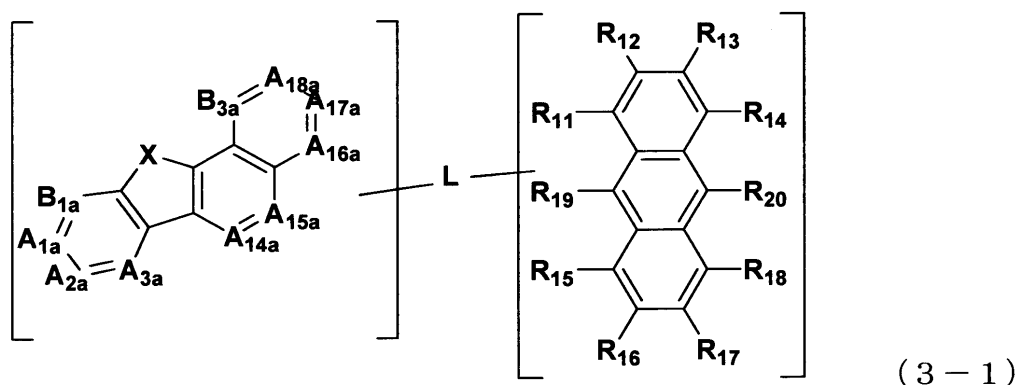
【化 6 1】



10



20



30

(式中、X、及び $R_{11} \sim R_{20}$ は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)又は(5)と同様な基を表す。

$A_{1a} \sim A_{18a}$ 、 B_{1a} 、 B_{2a} 、及び B_{3a} は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)の $A_1 \sim A_{18}$ 、 B_1 、 B_2 、及び B_3 と同様な基、又は、式(5)で示す構造を有する基もしくは L と結合する結合手を有する炭素原子である。

L は、単結合又は連結基である。各式において、2つの括弧内の基は、単結合又は連結基 L を介して結合している。

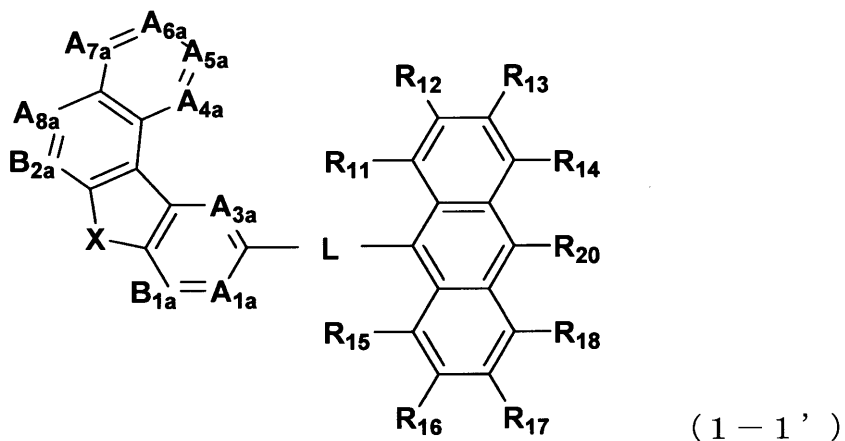
式(1-1)の $A_{1a} \sim A_{8a}$ のうち、少なくとも1つ、式(2-1)の $A_{1a} \sim A_{3a}$ 及び $A_{9a} \sim A_{13a}$ のうち、少なくとも1つ、並びに式(3-1)の $A_{1a} \sim A_{3a}$ 及び $A_{14a} \sim A_{18a}$ のうち、少なくとも1つは、 L 又は $R_{11} \sim R_{20}$ のいずれかが1つと結合する結合手を有する炭素原子である。 $R_{11} \sim R_{20}$ のいずれかが1つは単結合であり、 L 又は $A_{1a} \sim A_{18a}$ のいずれかが示す炭素原子と結合する。)

【請求項 6】

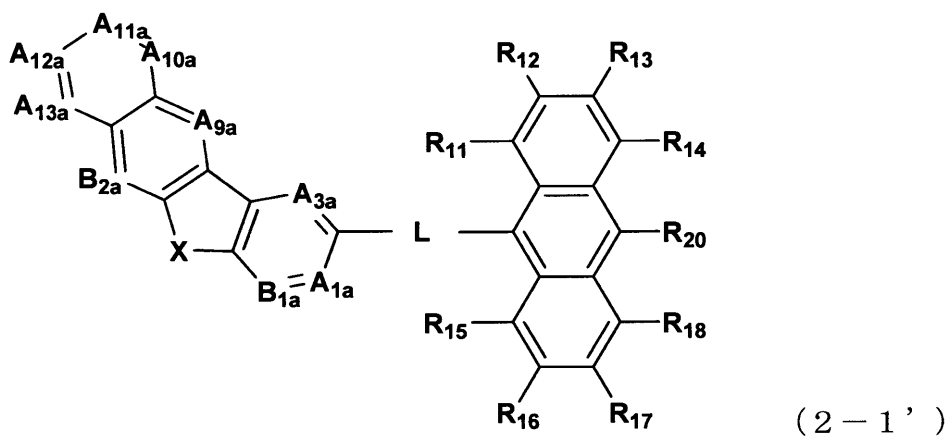
前記式(1-1)～(3-1)で表される化合物が、それぞれ、下記式(1-1')～(3-1')で表される化合物である請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

50

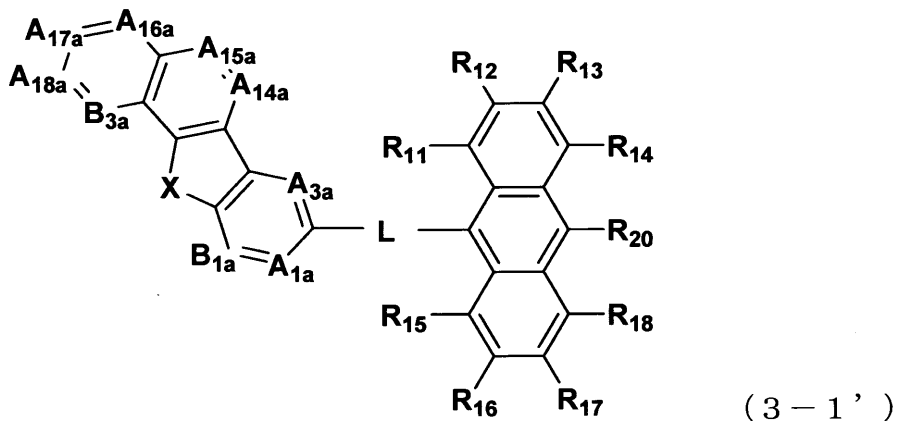
【化 6 2】



10



20



30

(式中、X、 $R_{11} \sim R_{20}$ 、 $A_{1a} \sim A_{18a}$ 、 B_{1a} 、 B_{2a} 、 B_{3a} 、及びLは、それぞれ、上述した式(1 - 1) ~ (3 - 1) と同様な基を表す。)

40

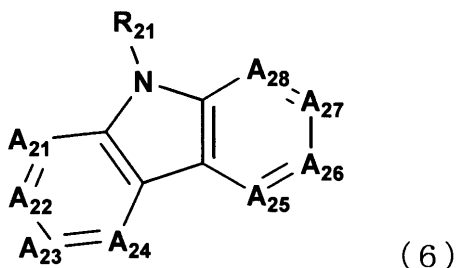
【請求項 7】

前記 R_{20} が置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基である請求項 4 ~ 6 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 8】

前記 R_1 の少なくとも 1 つが、下記式(6) で表される構造を含む請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 6 3】



(式(6)において、 $A_{21} \sim A_{28}$ は、それぞれ独立に、 CH 、 CR_{22} 又は窒素原子 N を表し、 R_{22} は単結合又は置換基を表す。 R_{22} が複数ある場合、複数の R_{22} は同一でも異なってもよく、隣接する R_{22} 同士が結合して環構造を形成してもよい。

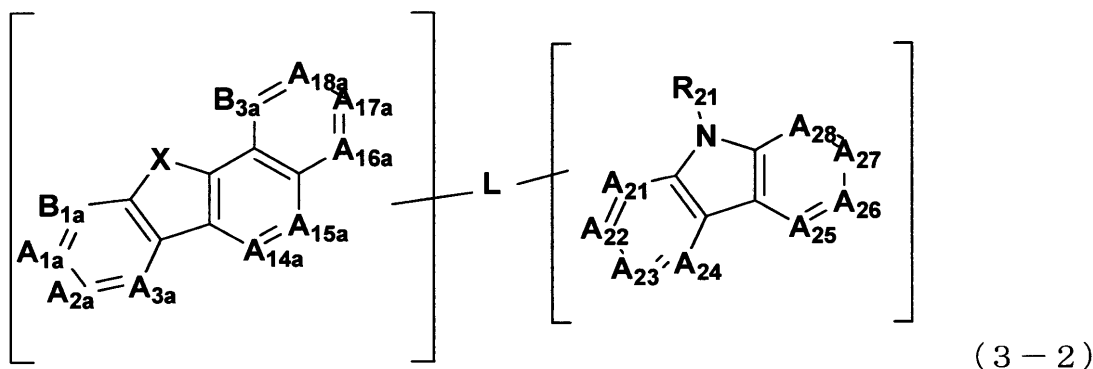
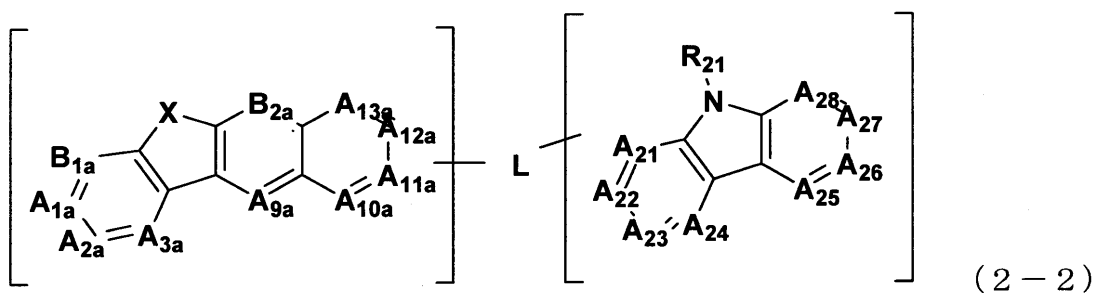
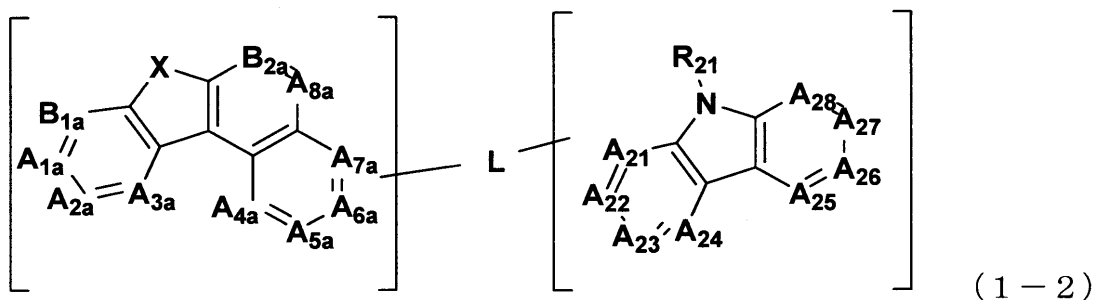
R_{21} は、単結合、水素原子又は置換基を表す。

R_{21} 及び R_{22} の少なくとも1つは単結合又は連結基を介して前記式(1)の $A_1 \sim A_8$ 、前記式(2)の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_9 \sim A_{13}$ 、前記式(3)の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_{14} \sim A_{18}$ のいずれかが示す炭素原子と結合する。)

【請求項 9】

式(1-2)～(3-2)のいずれかで表される化合物を含有する請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 6 4】



(式中、 X 、 $A_{21} \sim A_{28}$ 及び R_{21} は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)又は(6)と同様な基を表す。

$A_{1a} \sim A_{18a}$ 、 B_{1a} 、 B_{2a} 、及び B_{3a} は、それぞれ独立に、上述した式(1

) ~ (3) の $A_1 \sim A_{18}$ 、 B_1 、 B_2 及び B_3 と同様な基、又は、式 (6) で示す構造を有する基もしくは L と結合する結合手を有する炭素原子である。

L は、単結合又は連結基である。各式において、2つの括弧内の基は、単結合又は連結基 L を介して結合している。

式 (1 - 2) の $A_{1a} \sim A_{8a}$ のうち、少なくとも1つ、式 (2 - 2) の $A_{1a} \sim A_{3a}$ 及び $A_{9a} \sim A_{13a}$ のうち、少なくとも1つ、並びに式 (3 - 2) の $A_{1a} \sim A_{3a}$ 、 $A_{14a} \sim A_{18a}$ 及びのうちの、少なくとも1つは炭素原子であり、 L 又は $A_{21} \sim A_{28}$ 及び窒素原子 N のいずれか1つと結合する。

$A_{21} \sim A_{28}$ の R_{22} 及び R_{21} のいずれか1つは単結合であり、 L 又は $A_1 \sim A_9$ のいずれかが示す炭素原子と結合する。) 10

【請求項10】

前記 B_1 、 B_2 、 B_3 、 B_{1a} 、 B_{2a} 及び B_{3a} が、それぞれ独立に、窒素原子 N 又は $C-H$ である請求項1~9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項11】

陰極と陽極との間に発光層を含む1以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1~10のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】

前記発光層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。 20

【請求項13】

前記陽極と前記発光層との間に、さらに陽極側有機薄膜層を有し、該陽極側有機薄膜層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項11又は12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】

前記陰極と前記発光層との間に、さらに陰極側有機薄膜層を有し、該陰極側有機薄膜層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項11~13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】

前記発光層が蛍光発光材料を含有する請求項11~14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。 30

【請求項16】

前記発光層が燐光発光材料を含有する請求項11~14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17】

前記燐光発光材料が、イリジウム (Ir)、オスmium (Os) 及び白金 (Pt) から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である請求項16に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項18】

請求項11~17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を備える電子機器。 40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、アザナフトベンゾフラン誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、これを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器に関する。

【背景技術】

【0002】

一般に有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子は陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟 50

まれた１層以上の有機薄膜層から構成されている。両電極間に電圧が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が発光領域に注入され、注入された電子と正孔は発光領域において再結合して励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際に光を放出する。

有機ＥＬ素子は、発光層に種々の発光材料を用いることにより、多様な発光色を得ることが可能であることから、ディスプレイ等への実用化研究が盛んである。特に赤色、緑色、青色の三原色の発光材料の研究が最も活発であり、特性向上を目指して鋭意研究がなされている。

【０００３】

例えば、有機ＥＬ素子用の材料として、特許文献１～３には、ナフトベンゾフラン構造を有する化合物が開示されている。また、特許文献４には、ジベンゾフラン構造又はジナフトフラン構造を有する化合物を有機ＥＬ素子用の材料として使用することが開示されている。有機ＥＬ素子の分野においては、さらなる素子性能の向上を目指すため、新たな材料系の開発が求められている。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００４】

【特許文献１】国際公開第２０１０／０３６０２７号

【特許文献２】国際公開第２０１０／１３７２８５号

【特許文献３】国際公開第２０１１／１３７１５７号

【特許文献４】国際公開第２００６／１２８８００号

20

【発明の概要】

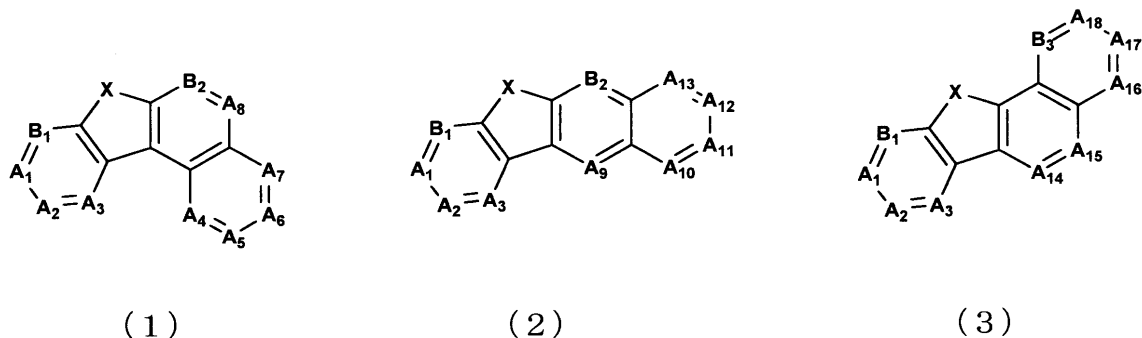
【０００５】

本発明は、有機ＥＬ素子材料として有用な新規材料を提供することを目的とする。

【０００６】

本発明の一態様によれば、式（１）～（３）のいずれかで表される化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が提供される。

【化１】



30

【０００７】

本発明によれば、有機ＥＬ素子材料として有用な新規材料が提供できる。

【図面の簡単な説明】

【０００８】

40

【図１】本発明の有機ＥＬ素子の一例を示す概略断面図である。

【発明を実施するための形態】

【０００９】

本発明において、「置換もしくは無置換の炭素数 a ～ b の X 基」という表現における「炭素数 a ～ b」は、X 基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、X 基が置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。

【００１０】

また、本発明において、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわち、軽水素 (protium)、重水素 (deuterium) 及び三重水素 (tritium) を包含する。

50

【 0 0 1 1 】

更に、「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基は、炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基；環形成炭素数 3 ~ 5 0 (好ましくは 3 ~ 1 0、より好ましくは 3 ~ 8、さらに好ましくは 5 又は 6) のシクロアルキル基；環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基；環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基を有する炭素数 7 ~ 5 1 (好ましくは 7 ~ 3 0、より好ましくは 7 ~ 2 0) のアラルキル基；アミノ基；炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基；炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基を有するアリールオキシ基；炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基；環形成原子数 5 ~ 5 0 (好ましくは 5 ~ 2 4、より好ましくは 5 ~ 1 3) のヘテロアリール基；炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のハロアルキル基；ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子) ；シアノ基；ニトロ基；炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基；炭素数 1 ~ 5 0 (好ましくは 1 ~ 1 8、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 5 0 (好ましくは 6 ~ 2 5、より好ましくは 6 ~ 1 8) のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基；、アルキルスルホニルオキシ基；アリールスルホニルオキシ基；アルキルカルボニルオキシ基；アリールカルボニルオキシ基；ホウ素含有基；亜鉛含有基；スズ含有基；ケイ素含有基；マグネシウム含有基；リチウム含有基；ヒドロキシ基；アルキル置換又はアリール置換カルボニル基；カルボキシ基；ビニル基；(メタ) アクリロイル基；エポキシ基；並びにオキセタン基からなる群より選ばれるものが好ましい。

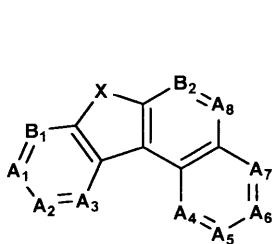
これらの置換基は、さらに上述の任意の置換基により置換されていてもよい。

【 0 0 1 2 】

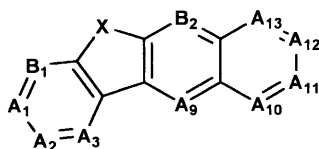
[有機エレクトロルミネッセンス素子用材料]

本発明の一態様である有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、下記式 (1) ~ (3) のいずれかで表される化合物を含有することを特徴とする。

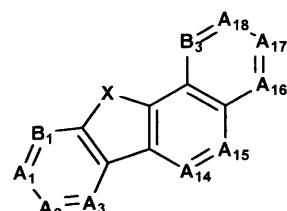
【 化 2 】



(1)



(2)



(3)

【 0 0 1 3 】

式 (1) ~ (3) において、X は、硫黄原子 S 又は酸素原子 O を表す。

A₁ ~ A₁₈ は、それぞれ独立に、C H、C R₁ 又は窒素原子 N を表し、R₁ は置換基を表す。

B₁、B₂ 及び B₃ は、それぞれ独立に、C H、C R₂ 又は窒素原子 N を表し、R₂ は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 5 0 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 5 0 のハロアルキル基、シアノ基又はハロゲン原子を表す。

式 (1) の A₁ ~ A₈、B₁ 及び B₂ のうち、少なくとも 1 つは N である。

式(2)の $A_1 \sim A_3$ 、 $A_9 \sim A_{13}$ 、 B_1 及び B_2 のうち、少なくとも1つはNである。

式(3)の $A_1 \sim A_3$ 、 $A_{14} \sim A_{18}$ 、 B_1 及び B_3 のうち、少なくとも1つはNである。

R_1 が複数存在する場合、複数の R_1 は互いに同一でも異なってもよく、 R_2 が複数存在する場合、複数の R_2 は互いに同一でも異なってもよい。

隣接する R_1 同士、及び R_1 と R_2 同士は、それぞれ独立に、互いに結合して環構造を形成してもよい。

【0014】

上記式(1)～(3)において、 R_1 で表される置換基としては、それぞれ独立に、下記(A)群から選択されるものが好ましく、下記(B)群から選択されるものがより好ましく、下記(C)群から選択されるものがさらに好ましい。

【0015】

上記(A)群とは、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基、カルボキシル基、ビニル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、並びにオキセタニル基からなる群である。

【0016】

上記(B)群とは、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、並びに置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基からなる群である。

【0017】

上記(C)群とは、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは

10

20

30

40

50

無置換の環形成炭素数 3 ~ 50 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 51 のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、並びにニトロ基からなる群である。

10

【0018】

R_2 は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のハロアルキル基、シアノ基又はハロゲン原子を表わす。

以下、 R_1 、 R_2 及び後述する R_{11} 等の基の具体例を示す。

【0019】

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは炭素数 1 ~ 18、より好ましくは炭素数 1 ~ 8) のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体を含む)、ヘキシル基 (異性体を含む)、ヘプチル基 (異性体を含む)、オクチル基 (異性体を含む)、ノニル基 (異性体を含む)、デシル基 (異性体を含む)、ウンデシル基 (異性体を含む)、及びドデシル基 (異性体を含む)、トリデシル基、テトラデシル基、オクタデシル基、テトラコサニル基、テトラコンタニル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体を含む)、ヘキシル基 (異性体を含む)、ヘプチル基 (異性体を含む)、オクチル基 (異性体を含む)、ノニル基 (異性体を含む)、デシル基 (異性体を含む)、ウンデシル基 (異性体を含む)、ドデシル基 (異性体を含む)、トリデシル基、テトラデシル基、及びオクタデシル基が好ましく、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体を含む)、ヘキシル基 (異性体を含む)、ヘプチル基 (異性体を含む)、及びオクチル基 (異性体を含む) がより好ましい。

20

30

【0020】

前記環形成炭素数 3 ~ 50 (好ましくは 3 ~ 10、より好ましくは 3 ~ 8、さらに好ましくは 5 又は 6) のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基等が挙げられ、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

【0021】

前記環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは環形成炭素数 6 ~ 25、より好ましくは環形成炭素数 6 ~ 18) のアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9'-スピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、*s*-インダセニル基、*as*-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、ジベンゾアントリル基等が挙げられる。

40

また、前記環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは環形成炭素数 6 ~ 25、より好ましくは環形成炭素数 6 ~ 18) のアリーレン基としては、上記アリール基より水素原子を除いてなるものが挙げられる。

【0022】

50

環形成原子数 5 ~ 50 (好ましくは 5 ~ 24、より好ましくは環形成原子数 5 ~ 13) のヘテロアリアル基は少なくとも 1 個、好ましくは 1 ~ 5 個 (より好ましくは 1 ~ 3 個、さらに好ましくは 1 ~ 2 個) のヘテロ原子、例えば、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子を含む。該ヘテロアリアル基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、イソベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ベンゾフラノベンゾチオフェニル基、ベンゾチエノベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフェニル基等が挙げられる。

10

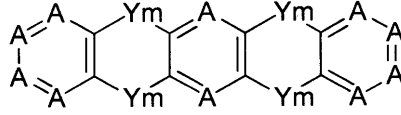
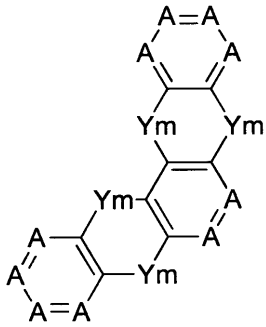
【0023】

また、上記環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリアル基の具体例としては、下記式で表されるいずれかの化合物より水素原子を 1 つ除いてなる 1 価の基も好ましい。

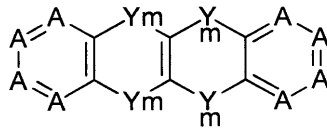
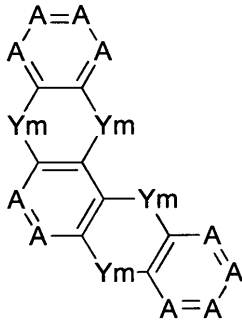
20

【0024】

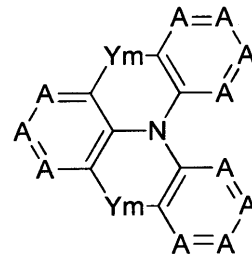
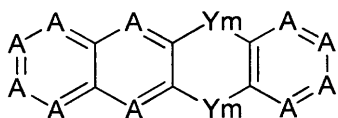
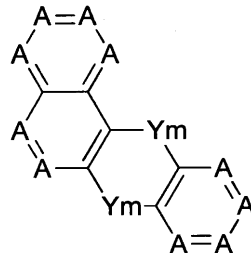
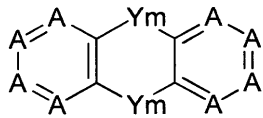
【化 3】



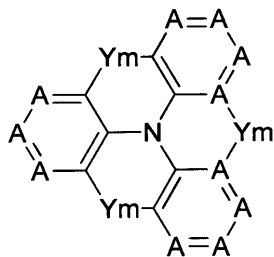
10



20



30



40

[式中、A は、それぞれ独立に、 CR^{200} 、又は窒素原子を表し、 R^{200} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、

Y は、それぞれ独立に、単結合、 $C(R^{201})(R^{202})$ 、酸素原子、硫黄原子又は $N(R^{203})$ を表し、

R^{201} 、 R^{202} 及び R^{203} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表わし、m は、それぞれ独立に、0 又は 1 を表す。

上記式中、複数の A は互いに同一でも異なってもよく、複数の Y は互いに同一でも

50

異なっているとしてもよく、複数の m は互いに同一でも異なっているとしてもよい。

m が 0 の場合、 Y は存在しない。]

上記式中における置換基としては、上述のものと同様のものが挙げられる。

【0025】

前記環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリール基を有する総炭素数 7 ~ 51 のアラルキル基としては、上記アリール基を有するアラルキル基が挙げられる。

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基が挙げられる。

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基を有するアルコキシ基としては、上記アルキル基を有するアルコキシ基が挙げられる。

前記環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリール基を有するアリールオキシ基としては、上記アリール基を有するアリールオキシ基が挙げられる。

【0026】

炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基が挙げられる。

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のハロアルキル基としては、上記アルキル基の水素原子の 1 以上が、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子) により置換されたものが挙げられる。

【0027】

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び前記環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基としては、上記アルキル基又は上記アリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基及び前記環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基が挙げられる。

【0028】

前記式 (1) ~ (3) において、隣接する置換基同士が互いに結合して形成する環構造は、飽和の環でも不飽和の環でもよい。

飽和の環としては、それぞれ、環形成炭素数 3 ~ 50 (好ましくは 3 ~ 6、より好ましくは 5 又は 6) の脂肪族炭化水素環が好ましい。

また、不飽和の環としては、それぞれ、環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 24、より好ましくは 6 ~ 18) の芳香族炭化水素環、又は環形成原子数 5 ~ 50 (好ましくは 5 ~ 24、より好ましくは 5 ~ 13) の芳香族複素環が好ましい。

【0029】

上記環形成炭素数 3 ~ 50 の脂肪族炭化水素環の具体例としては、シクロプロパン環、シクロブタン環、シクロペンタン環、シクロヘキサン環、シクロヘプタン環、シクロオクタン環、アダマンタン環等が挙げられ、シクロペンタン環及びシクロヘキサン環が好ましい。

【0030】

上記環形成炭素数 6 ~ 50 の芳香族炭化水素環の具体例としては、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、ベンゾアントラセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナント

10

20

30

40

50

レン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、ジベンゾフルオレン環、ピセン環、テトラセン環、ペンタセン環、ピレン環、クリセン環、ベンゾクリセン環、s - インダセン環、as - インダセン環、フルオランテン環、ベンゾフルオランテン環、トリフェニレン環、ベンゾトリフェニレン環、ペリレン環、コロネン環、ジベンゾアントラセン環等が挙げられる。

【0031】

上記環形成原子数5～50の芳香族複素環の具体例としては、ピロール環、ピラゾール環、イソインドール環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフエン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環、イソキノリン環、シンノリン環、キノキサリン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、イミダゾピリジン環、インドール環、インダゾール環、ベンズイミダゾール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサン環、ビペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフエン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環、ベンゾ[c]ジベンゾフラン環、プリン環、アクリジン環等が挙げられる。

10

【0032】

本発明の一態様において、式(1)の $A_1 \sim A_8$ の少なくとも1つは、 CR_1 であり、 R_1 の少なくとも1つが、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基、又は、置換もしくは無置換の環形成原子数3～60の複素環基であることが好ましい。

20

同様に、式(2)の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_9 \sim A_{13}$ の少なくとも1つは、 CR_1 であり、式(3)の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_{14} \sim A_{18}$ の少なくとも1つは、 CR_1 であり、 R_1 の少なくとも1つが、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基、又は、置換もしくは無置換の環形成原子数3～60の複素環基であることが好ましい。

【0033】

環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基としては、置換基の例として上述した環形成炭素数6～50のアリール基が挙げられる。

環形成原子数3～60の複素環基としては、置換基の例として上述した環形成原子数5～50のヘテロアリール基が挙げられる。

30

【0034】

式(1)～(3)において、 B_1 、 B_2 及び B_3 が、それぞれ独立に、窒素原子N、C-H、又は CR^2 (R^2 は、置換もしくは無置換の炭素数1～50の直鎖状アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子)であることが好ましい。尚、アルキル基の例は、上述した R_1 等と同様である。

さらに、 $B_1 \sim B_3$ が、それぞれ独立に、窒素原子N、C-H、又は立体障害の小さい直鎖アルキル基(炭素数1～2)であることが好ましい。これにより、Xと隣接分子のHとの間に水素結合が生じ、配向性を持った分子が基板に平行な面を形成する。結果として、層間をキャリアが高速で移動し、素子が低電圧で動作する。

40

【0035】

より好ましくは、 B_1 、 B_2 及び B_3 は、それぞれ独立に、窒素原子N又はC-Hである。

【0036】

式(1)の $A_1 \sim A_8$ の少なくとも2つは窒素原子Nであることが好ましい。同様に、式(2)の $A_1 \sim A_3$ 、 $A_9 \sim A_{13}$ 、 B_1 及び B_2 の少なくとも2つ、及び式(3)の $A_1 \sim A_3$ 、 $A_{14} \sim A_{18}$ 、 B_1 及び B_3 の少なくとも2つは、窒素原子Nであることが好ましい。

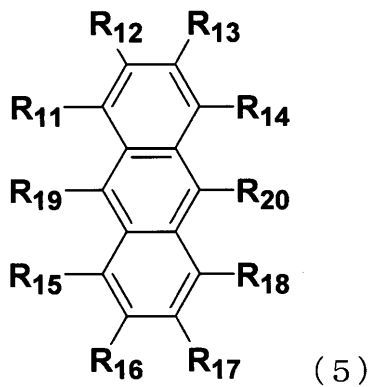
【0037】

本発明の一態様では、式(1)～(3)において、 R_1 の少なくとも1つが、下記式(

50

5) で表される構造 (アントラセン構造) を含むことが好ましい。

【化 4】



10

【0038】

式 (1) ~ (3) で表され、アントラセン構造を有する化合物は、例えば、発光層に好適である。

式 (5) において、 $R_{11} \sim R_{20}$ は、それぞれ独立に、単結合、水素原子、又は置換基を表し、少なくとも 1 つは単結合又は連結基を介して前記式 (1) の $A_1 \sim A_8$ 、前記式 (2) の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_9 \sim A_{13}$ 、前記式 (3) の $A_1 \sim A_3$ 及び $A_{14} \sim A_{18}$ のいずれかが示す炭素原子と結合する。

20

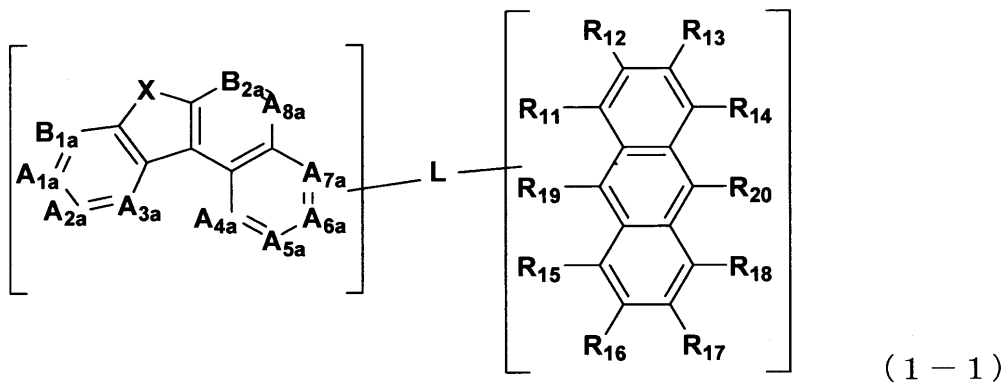
置換基の例は、上述した R_1 等と同様である。

【0039】

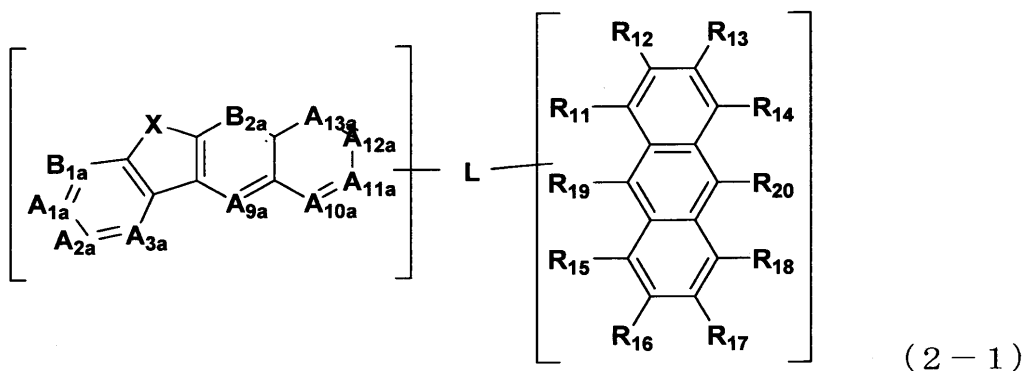
例えば、下記式 (1-1) ~ (3-1) で表される化合物が挙げられる。

【0040】

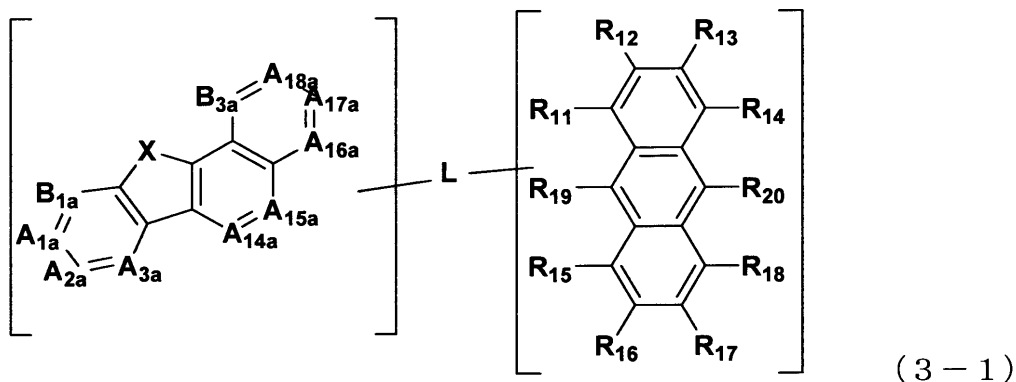
【化 5】



10



20



30

【0041】

式(1-1)～(3-1)において、X、及び $R_{11} \sim R_{20}$ は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)又は(5)と同様な基を表わす。

$A_{1a} \sim A_{18a}$ 、 B_{1a} 、 B_{2a} 、及び B_{3a} は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)の $A_1 \sim A_{18}$ 、 B_1 、 B_2 、及び B_3 と同様な基、又は、式(5)で示す構造を有する基もしくはLと結合する結合手を有する炭素原子である。

Lは、単結合又は連結基である。連結基としては、置換若しくは無置換の芳香族環が好ましく、例えば、フェニレン基等が好ましい。各式において、2つの括弧内の基は、単結合又は連結基Lを介して結合している。

式(1-1)の $A_{1a} \sim A_{8a}$ のうち、少なくとも1つ、式(2-1)の $A_{1a} \sim A_{3a}$ 及び $A_{9a} \sim A_{13a}$ のうち、少なくとも1つ、並びに式(3-1)の $A_{1a} \sim A_{3a}$ 及び $A_{14a} \sim A_{18a}$ のうち、少なくとも1つは、L又は $R_{11} \sim R_{20}$ のいずれかが1つと結合する結合手を有する炭素原子である。 $R_{11} \sim R_{20}$ のいずれかが1つは単結合であり、L又は $A_{1a} \sim A_{18a}$ のいずれかが示す炭素原子と結合する。

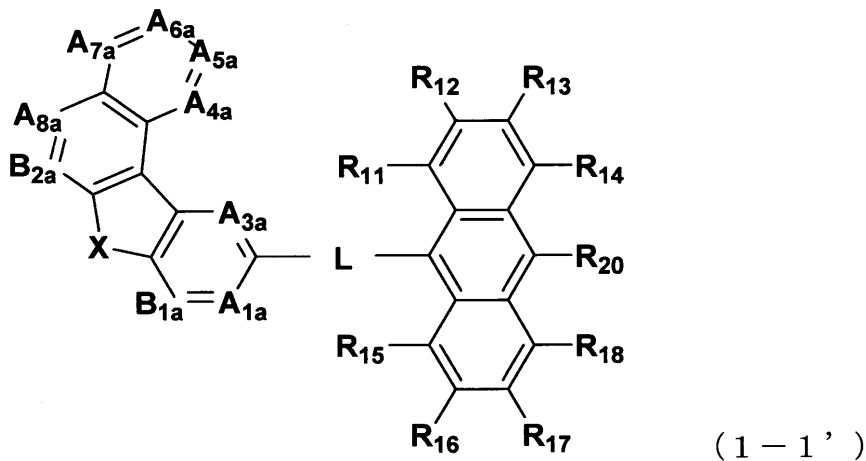
【0042】

本発明の一態様として、 R_{19} が単結合であり、L又は $A_{1a} \sim A_{18a}$ のいずれかと結合することが好ましい。例えば、下記式(1-1')～(3-1')で表される化合物

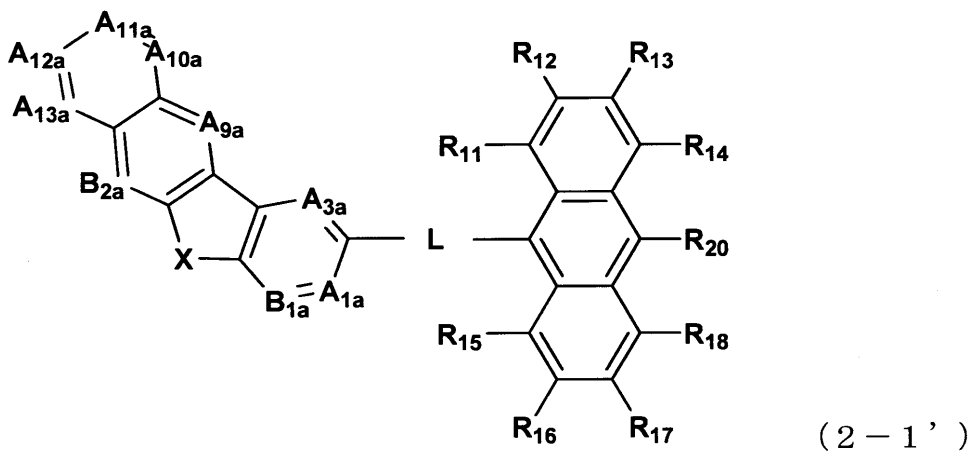
50

が好ましい。

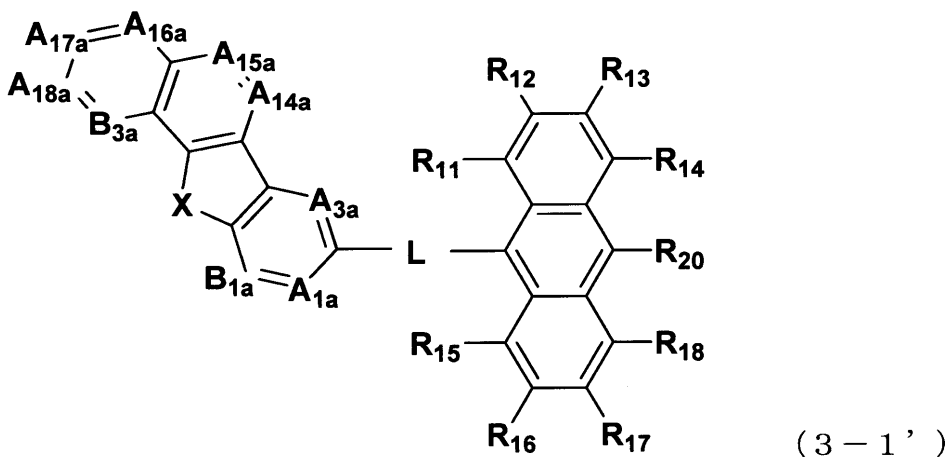
【化 6】



10



20



30

40

(式中、X、 $R_{11} \sim R_{20}$ 、 $A_{1a} \sim A_{18a}$ 、 B_{1a} 、 B_{2a} 、 B_{3a} 、及び L は、それぞれ、上述した式 (1 - 1) ~ (3 - 1) と同様な基を表す。)

【 0 0 4 3 】

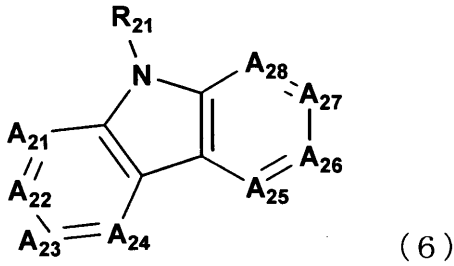
また、 R_{20} が置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基であることが好ましい。アリール基及びヘテロアリール基の例は上述した R_1 と同様である。

【 0 0 4 4 】

また、本発明の一態様では、 R_1 の少なくとも 1 つが、下記式 (6) で表される構造 (カルバゾール構造) を含むことが好ましい。

50

【化 7】



【 0 0 4 5 】

10

式 (1) ~ (3) で表され、カルバゾール構造を有する化合物は、例えば、陰極又は陽極と、発光層との間に形成される有機薄膜層に好適である。

式 (6) において、A₂₁ ~ A₂₈ は、それぞれ独立に、C H、C R₂₂ 又は N を表し、R₂₂ は単結合又は置換基を表す。置換基の例は、上述した R₁ 等と同様である。

R₂₂ が複数ある場合、複数の R₂₂ は同一でも異なってもよく、隣接する R₂₂ 同士が結合して環構造を形成してもよい。環構造は、飽和の環でも不飽和の環でもよく、具体例は上述した式 (1) 等の置換基の場合と同様である。

R₂₁ は、単結合、水素原子又は置換基を表す。置換基の例は、上述した R₁ 等と同様である。

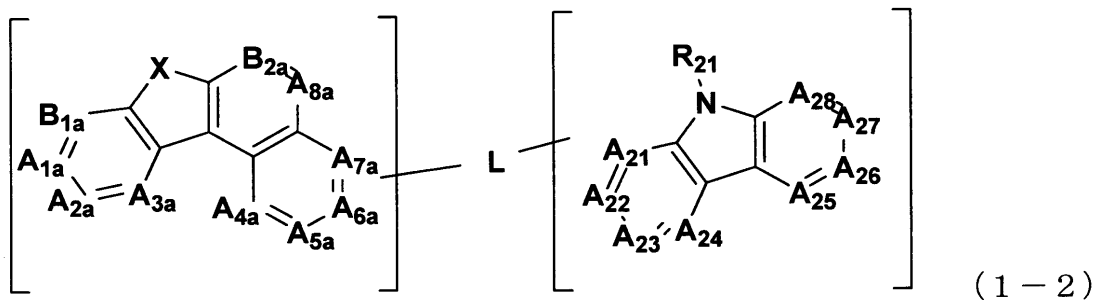
R₂₁ 及び R₂₂ の少なくとも 1 つは、単結合又は連結基を介して前記式 (1) の A₁ ~ A₈、前記式 (2) の A₁ ~ A₃ 及び A₉ ~ A₁₃、前記式 (3) の A₁ ~ A₃ 及び A₁₄ ~ A₁₈ のいずれかが示す炭素原子と結合する。

20

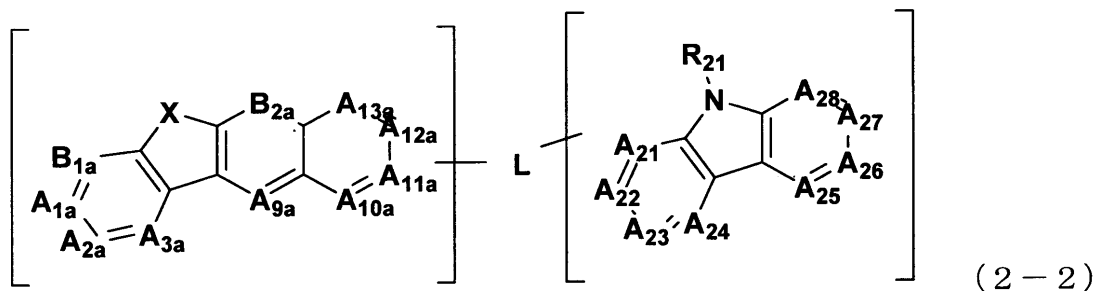
【 0 0 4 6 】

例えば、下記式 (1 - 2) ~ (3 - 2) で表される化合物が挙げられる。

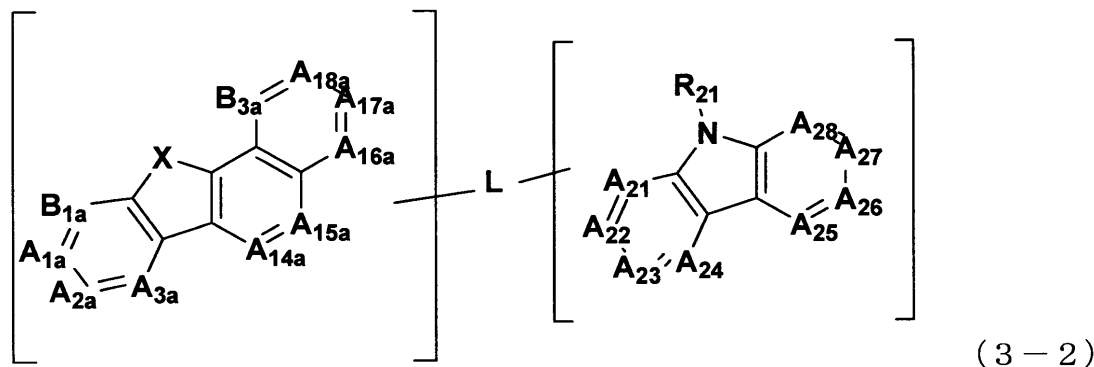
【化 8】



10



20



【0047】

30

式(1-2)～(3-2)において、X、A₂₁～A₂₈及びR₂₁は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)又は(6)と同様な基を表わす。

A_{1a}～A_{18a}、B_{1a}、B_{2a}、及びB_{3a}は、それぞれ独立に、上述した式(1)～(3)のA₁～A₁₈、B₁、B₂及びB₃と同様な基、又は、式(6)で示す構造を有する基もしくはLと結合する結合手を有する炭素原子である。

Lは、単結合又は連結基である。連結基としては、置換若しくは無置換の芳香族環が挙げられる。各式において、2つの括弧内の基は、単結合又は連結基Lを介して結合している。

式(1-2)のA_{1a}～A_{8a}のうち、少なくとも1つ、式(2-2)のA_{1a}～A_{3a}及びA_{9a}～A_{13a}のうち、少なくとも1つ、並びに式(3-2)のA_{1a}～A_{3a}、A_{14a}～A_{18a}及びのうちの、少なくとも1つは炭素原子であり、L又はA₂₁～A₂₈及び窒素原子Nのいずれか1つと結合する。

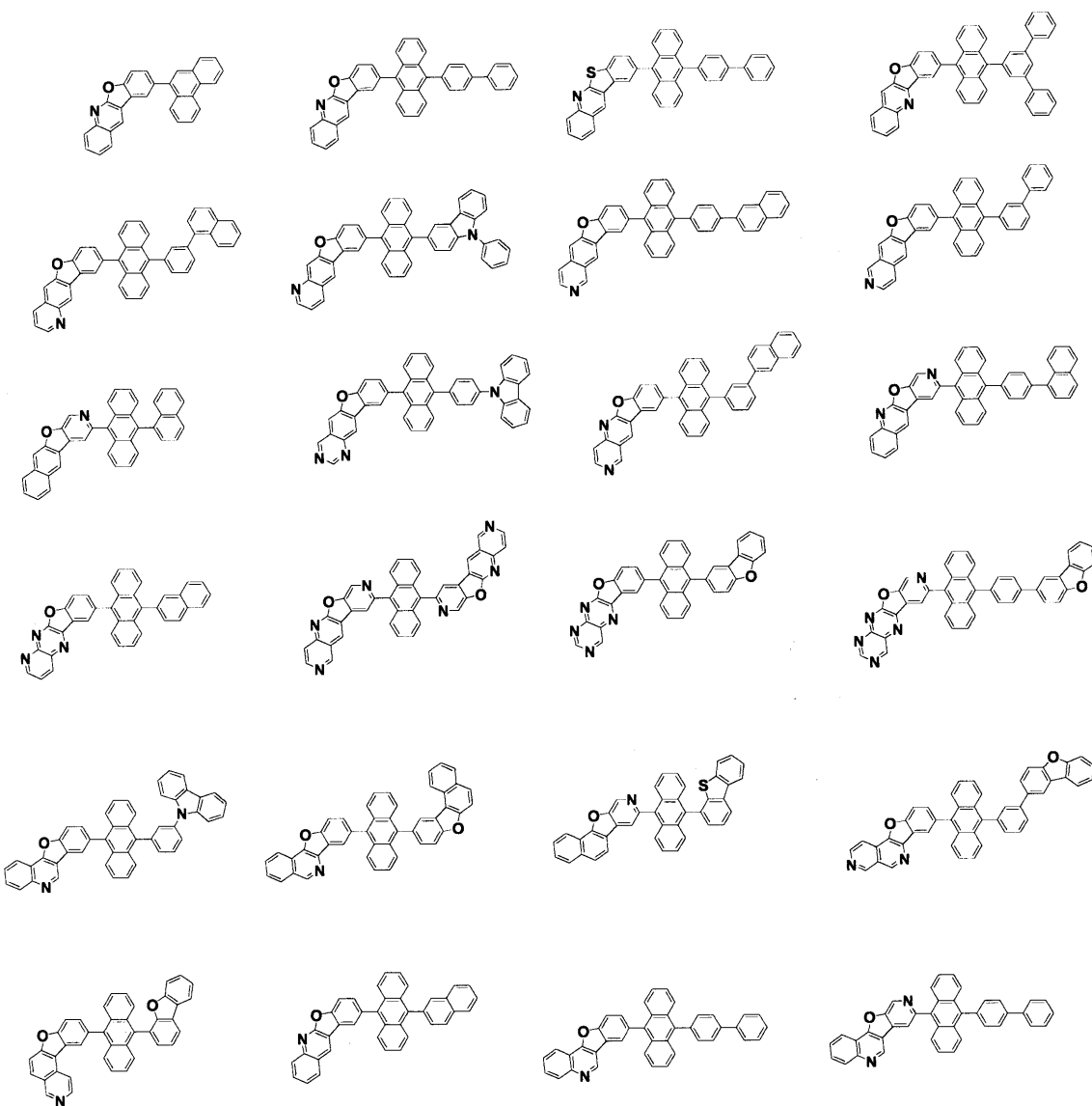
A₂₁～A₂₈のR₂₂及びR₂₁のいずれか1つは単結合であり、L又はA₁～A₁₉のいずれかが示す炭素原子と結合する。

以下に、式(1)～(3)で表される化合物の一例を示す。

【0048】

40

【化 9】



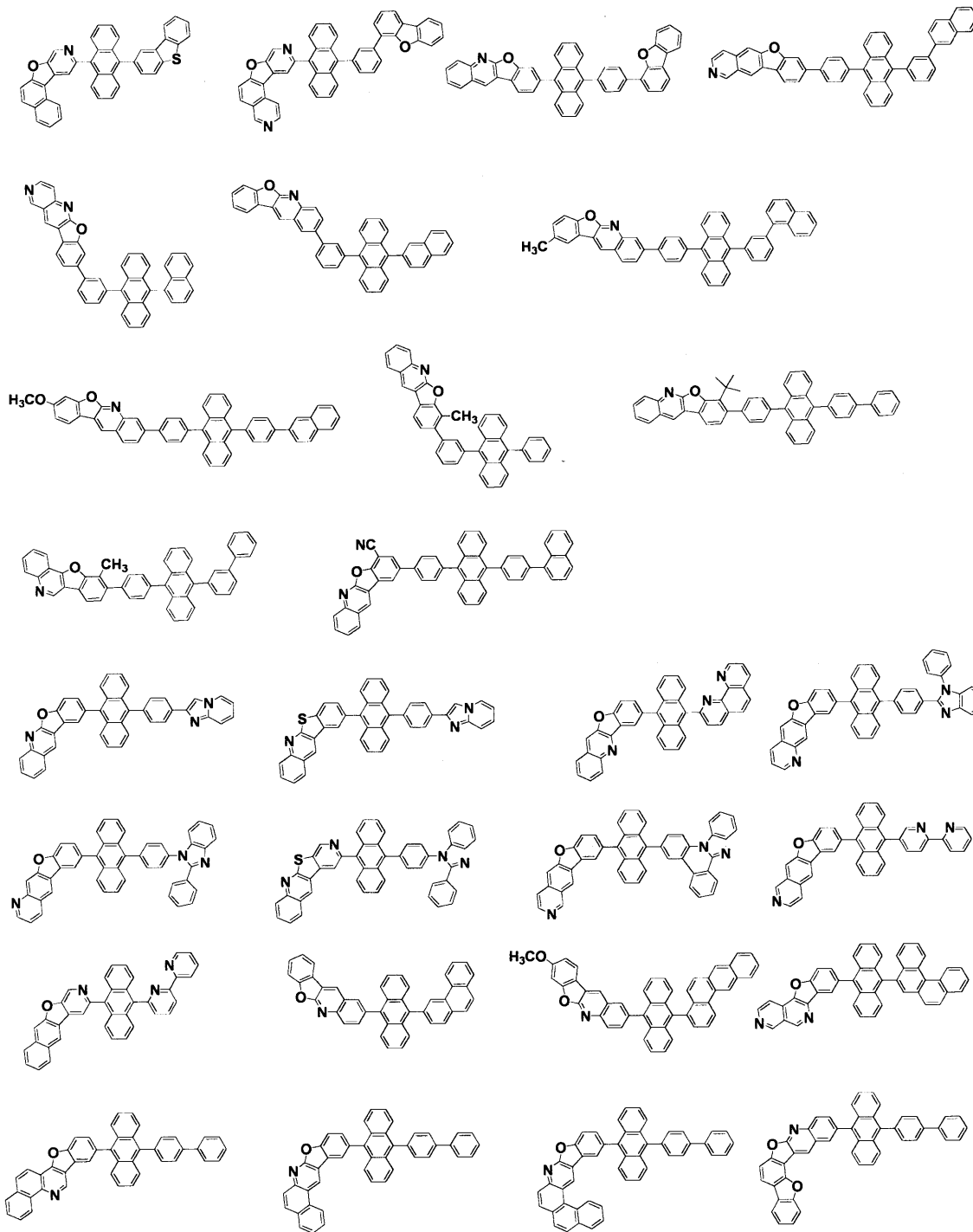
10

20

30

【 0 0 4 9 】

【化 1 0】



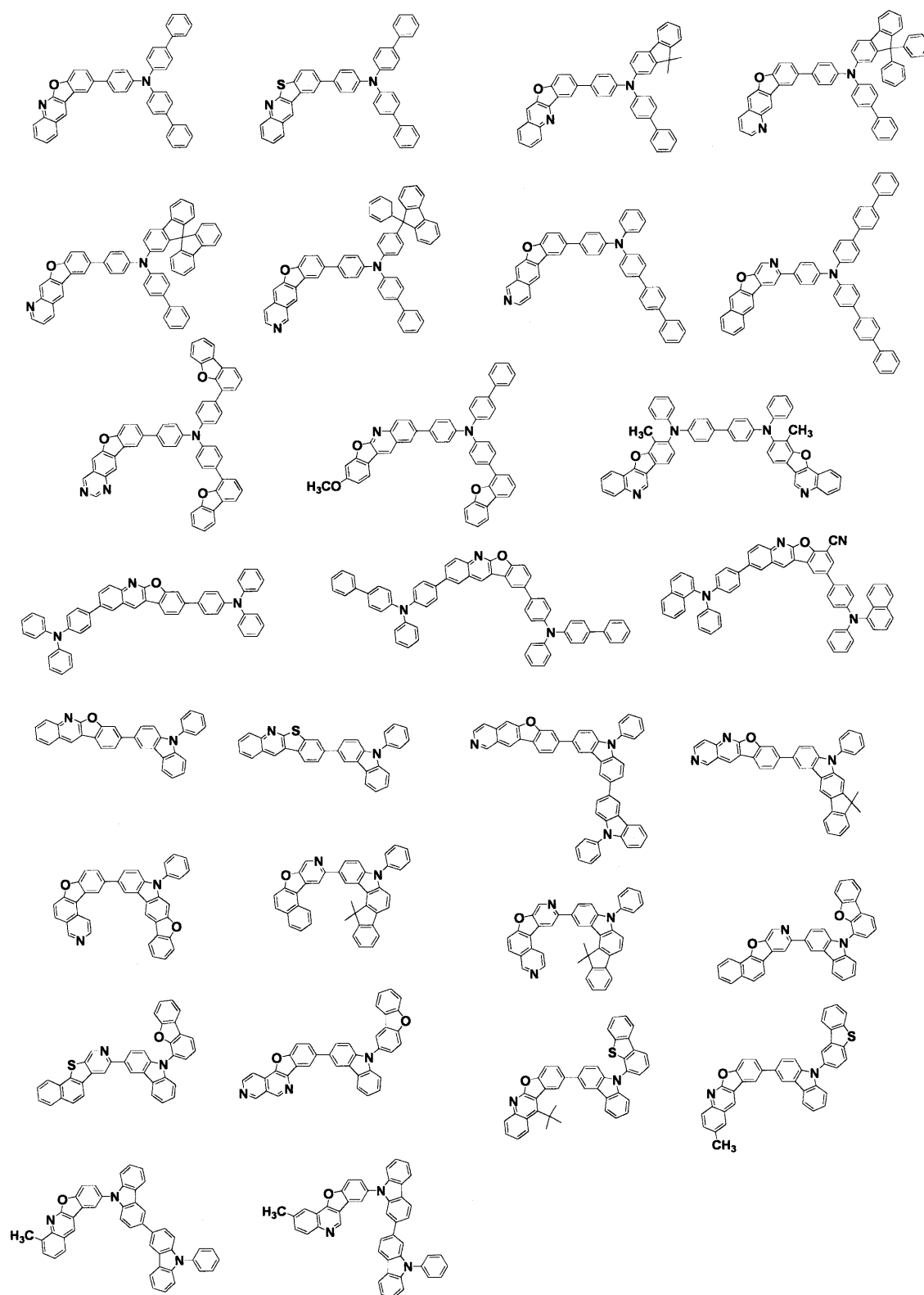
10

20

30

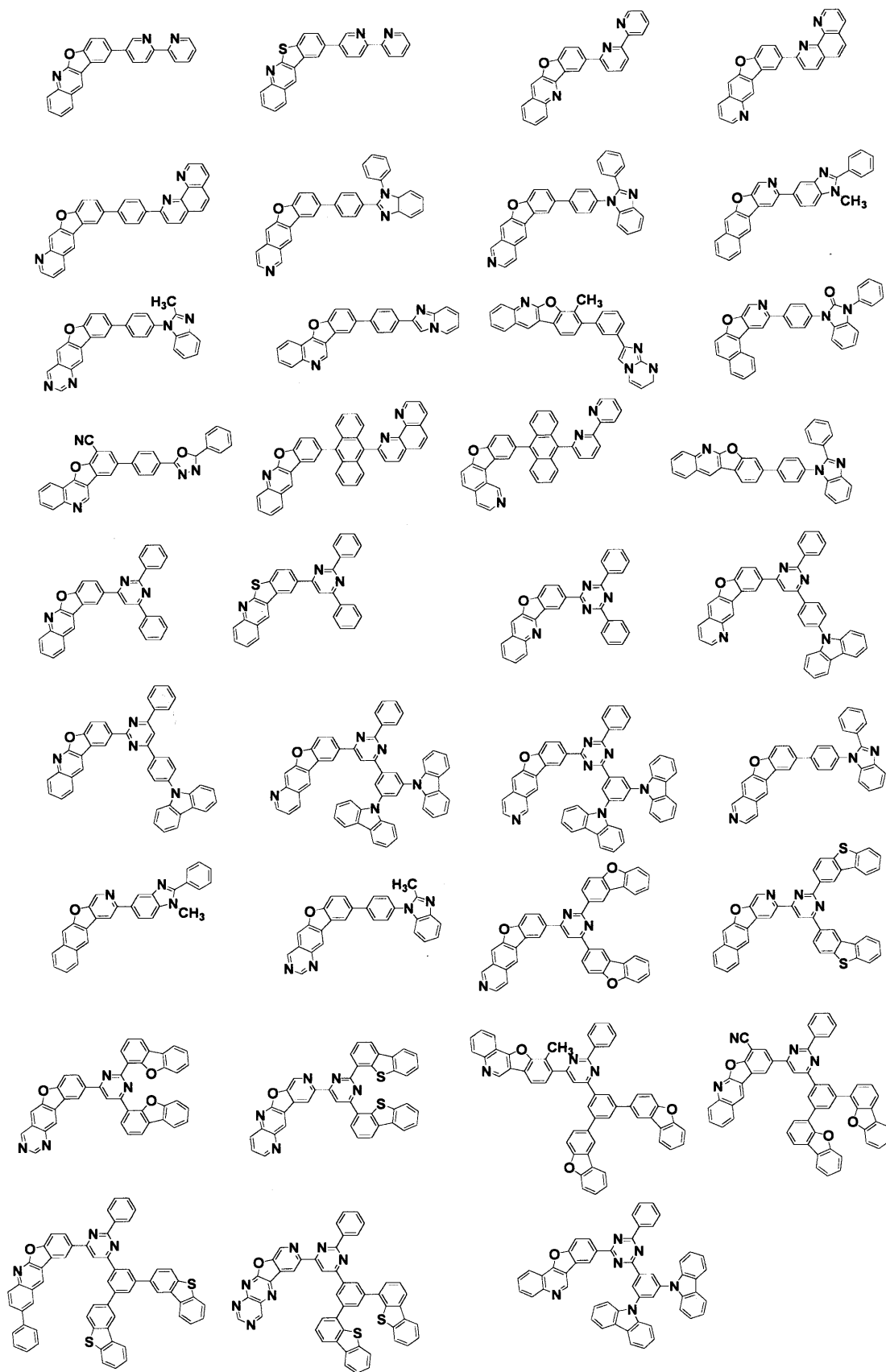
【 0 0 5 0】

【化 1 1】



【 0 0 5 1】

【化 1 2】



10

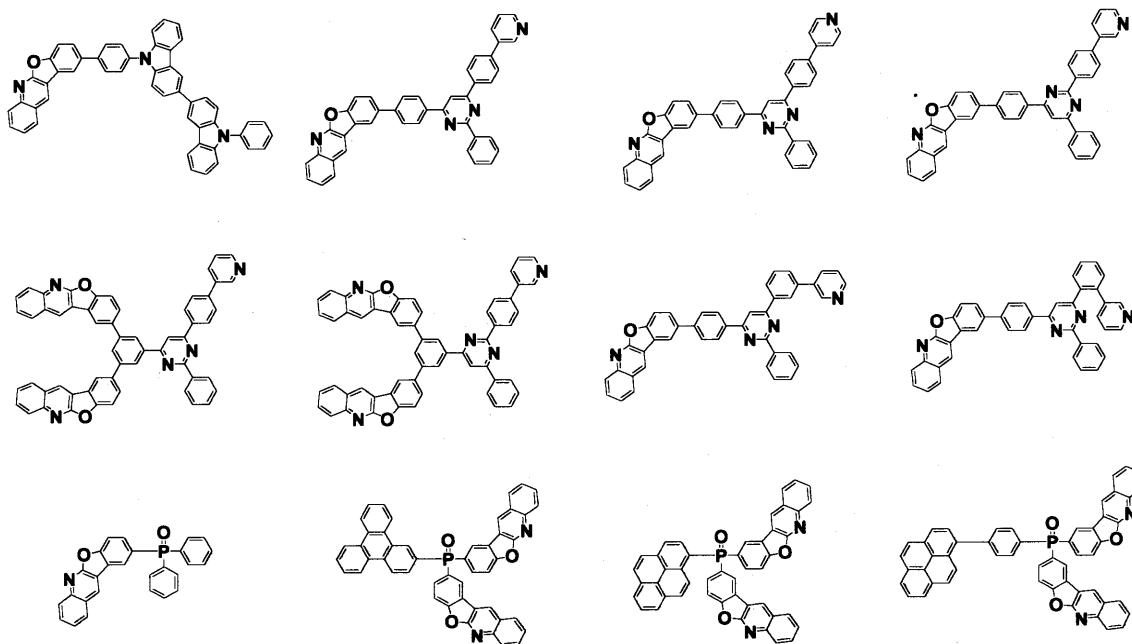
20

30

40

【 0 0 5 2】

【化 1 3】



10

【0053】

本発明の有機EL素子用材料は、上記式(1)～(3)で表される化合物を含む。有機EL素子用材料における上記化合物の含有量は、特に制限されず、例えば、1質量%以上であればよく、10質量%以上であることが好ましく、50質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましく、90質量%以上であることが特に好ましく、100質量%でもよい。尚、上記式(1)～(3)で表される化合物以外の材料としては、後述する発光層、電子輸送層、正孔輸送層等を使用する材料が挙げられる。

20

本発明の有機EL素子用材料は、有機EL素子における材料として有用であり、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料及びドーパント材料や、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料として用いることができる。また、蛍光発光ユニット及び燐光発光ユニットのいずれにおいても、有機EL素子の陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層や、有機EL素子の陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層の材料、すなわち、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層、電子阻止層等の材料としても有用である。

30

尚、「発光ユニット」とは、一層以上の有機層を含み、そのうちの一層が発光層であり、注入された正孔と電子が再結合することにより発光することができる最小単位をいう。

【0054】

〔有機EL素子〕

本発明の一態様である有機EL素子は、陰極と陽極の間に発光層を含有する1以上の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層のうちの少なくとも1層が前述した有機EL素子用材料を含むことを特徴とする。

40

前述の有機EL素子用材料が含まれる有機薄膜層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層(正孔輸送層、正孔注入層等)、発光層、陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層(電子輸送層、電子注入層等)、スペア層、障壁層等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。前述の有機EL素子用材料は、上記いずれの層に含まれていてもよく、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料やドーパント材料、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料、発光ユニットの正孔輸送層、電子輸送層等として用いることができる。

【0055】

本発明の有機EL素子は、蛍光又は燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光/燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル

50

型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよく、中でも、燐光発光型であることが好ましい。

【0056】

シンプル型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(1) 陽極 / 発光ユニット / 陰極

また、上記発光ユニットは、燐光発光層や蛍光発光層を複数有する積層型であってもよく、その場合、各発光層の間に、燐光発光層で生成された励起子が蛍光発光層に拡散することを防ぐ目的で、スペース層を有していてもよい。発光ユニットの代表的な層構成を以下に示す。

(a) 正孔輸送層 / 発光層 (/ 電子輸送層)

(b) 正孔輸送層 / 第一燐光発光層 / 第二燐光発光層 (/ 電子輸送層)

(c) 正孔輸送層 / 燐光発光層 / スペース層 / 蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(d) 正孔輸送層 / 第一燐光発光層 / 第二燐光発光層 / スペース層 / 蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(e) 正孔輸送層 / 第一燐光発光層 / スペース層 / 第二燐光発光層 / スペース層 / 蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(f) 正孔輸送層 / 燐光発光層 / スペース層 / 第一蛍光発光層 / 第二蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(g) 正孔輸送層 / 電子障壁層 / 発光層 (/ 電子輸送層)

(h) 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔障壁層 (/ 電子輸送層)

(i) 正孔輸送層 / 蛍光発光層 / トリプレット障壁層 (/ 電子輸送層)

【0057】

上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光層(d)において、正孔輸送層 / 第一燐光発光層 (赤色発光) / 第二燐光発光層 (緑色発光) / スペース層 / 蛍光発光層 (青色発光) / 電子輸送層といった層構成等が挙げられる。

尚、各発光層と正孔輸送層あるいはスペース層との間には、適宜、電子障壁層を設けてもよい。また、各発光層と電子輸送層との間には、適宜、正孔障壁層を設けてもよい。電子障壁層や正孔障壁層を設けることで、電子又は正孔を発光層内に閉じ込めて、発光層における電荷の再結合確率を高め、寿命を向上させることができる。

【0058】

タンデム型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(2) 陽極 / 第一発光ユニット / 中間層 / 第二発光ユニット / 陰極

ここで、上記第一発光ユニット及び第二発光ユニットとしては、例えば、それぞれ独立に上述の発光ユニットと同様のものを選択することができる。

上記中間層は、一般的に、中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、第一発光ユニットに電子を、第二発光ユニットに正孔を供給する、公知の材料構成を用いることができる。

【0059】

図1に、本発明の有機EL素子の一例の概略構成を示す。有機EL素子1は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット10とを有する。発光ユニット10は、燐光ホスト材料と燐光ドーパントを含む少なくとも1つの燐光発光層を含む発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔注入・輸送層6等、発光層5と陰極4との間に電子注入・輸送層7等を形成してもよい。また、発光層5の陽極3側に電子障壁層を、発光層5の陰極4側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における励起子の生成確率を高めることができる。

【0060】

10

20

30

40

50

尚、本明細書において、蛍光ドーパントと組み合わせられたホストを蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたホストを燐光ホストと称する。蛍光ホストと燐光ホストは分子構造のみにより区分されるものではない。即ち、燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を構成する材料を意味し、蛍光発光層を構成する材料として利用できないことを意味しているわけではない。蛍光ホストについても同様である。

【0061】

(基板)

本発明の有機EL素子は、透光性基板上に作製する。透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、400nm～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上で平滑な基板が好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を原料として用いてなるものを挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルホン等を原料として用いてなるものを挙げることができる。

10

【0062】

(陽極)

有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上の仕事関数を有するものを用いることが効果的である。陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅等が挙げられる。陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10nm～1 μ m、好ましくは10nm～200nmの範囲で選択される。

20

【0063】

(陰極)

陰極は電子注入層、電子輸送層又は発光層に電子を注入する役割を担うものであり、仕事関数の小さい材料により形成するのが好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。陰極も、陽極と同様に、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、必要に応じて、陰極側から発光を取り出してもよい。

30

【0064】

(発光層)

発光機能を有する有機層であって、ドーピングシステムを採用する場合、ホスト材料とドーパント材料を含んでいる。このとき、ホスト材料は、主に電子と正孔の再結合を促し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有し、ドーパント材料は、再結合で得られた励起子を効率的に発光させる機能を有する。

40

燐光素子の場合、ホスト材料は主にドーパントで生成された励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。

【0065】

ここで、上記発光層は、例えば、電子輸送性のホストと正孔輸送性のホストを組み合わせる等して、発光層内のキャリアバランスを調整するダブルホスト(ホスト・コホストともいう)を採用してもよく、発光層が第1ホスト材料と第2ホスト材料とを含有し、前記第1ホスト材料が本発明の有機EL素子用材料であると好ましい。

また、量子収率の高いドーパント材料を二種類以上入れることによって、それぞれのドーパントが発光するダブルドーパントを採用してもよい。具体的には、ホスト、赤色ドー

50

パント及び緑色ドーパントを共蒸着することによって、発光層を共通化して黄色発光を実現する態様が挙げられる。

【0066】

上記発光層は、複数の発光層を積層した積層体とすることで、発光層界面に電子と正孔を蓄積させて、再結合領域を発光層界面に集中させて、量子効率を向上させることができる。

発光層への正孔の注入し易さと電子の注入し易さは異なってもよく、また、発光層中での正孔と電子の移動度で表される正孔輸送能と電子輸送能が異なってもよい。

【0067】

発光層は、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法(Langmuir Blodgett法)等の公知の方法により形成することができる。また、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かした溶液をスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことである。通常、この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは、凝集構造の相違や、高次構造の相違、またはそれに起因する機能的な相違により区分することができる。

【0068】

ドーパント材料としては、公知の蛍光型発光を示す蛍光ドーパント又は燐光型発光を示す燐光ドーパントから選ばれる。

【0069】

発光層を形成する燐光ドーパント(燐光発光材料)は三重項励状態から発光することのできる化合物であり、三重項励状態から発光する限り特に限定されないが、Ir、Pt、Os、Au、Cu、Re及びRuから選択される少なくとも一つの金属と配位子とを含む有機金属錯体であることが好ましい。前記配位子は、オルトメタル結合を有することが好ましい。燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、Ir、Os及びPtから選ばれる金属原子を含有する金属錯体が好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体、特にオルトメタル化錯体がより好ましく、イリジウム錯体及び白金錯体がさらに好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が特に好ましい。

【0070】

燐光ドーパントの発光層における含有量は特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1~70質量%が好ましく、1~30質量%がより好ましい。燐光ドーパントの含有量が0.1質量%以上であると十分な発光が得られ、70質量%以下であると濃度消光を避けることができる。

燐光ドーパントとして好ましい有機金属錯体の具体例を、以下に示す。

具体例の下にある略号PQIr(iridium(III)bis(2-phenylquinoly-1-N, C^{2'})acetylacetonate)及びIr(ppy)₃(トリス(2-フェニルピリジナト-N, C^{2'})イリジウム(III))は、その略号の上にある有機金属錯体の略号である。

【0071】

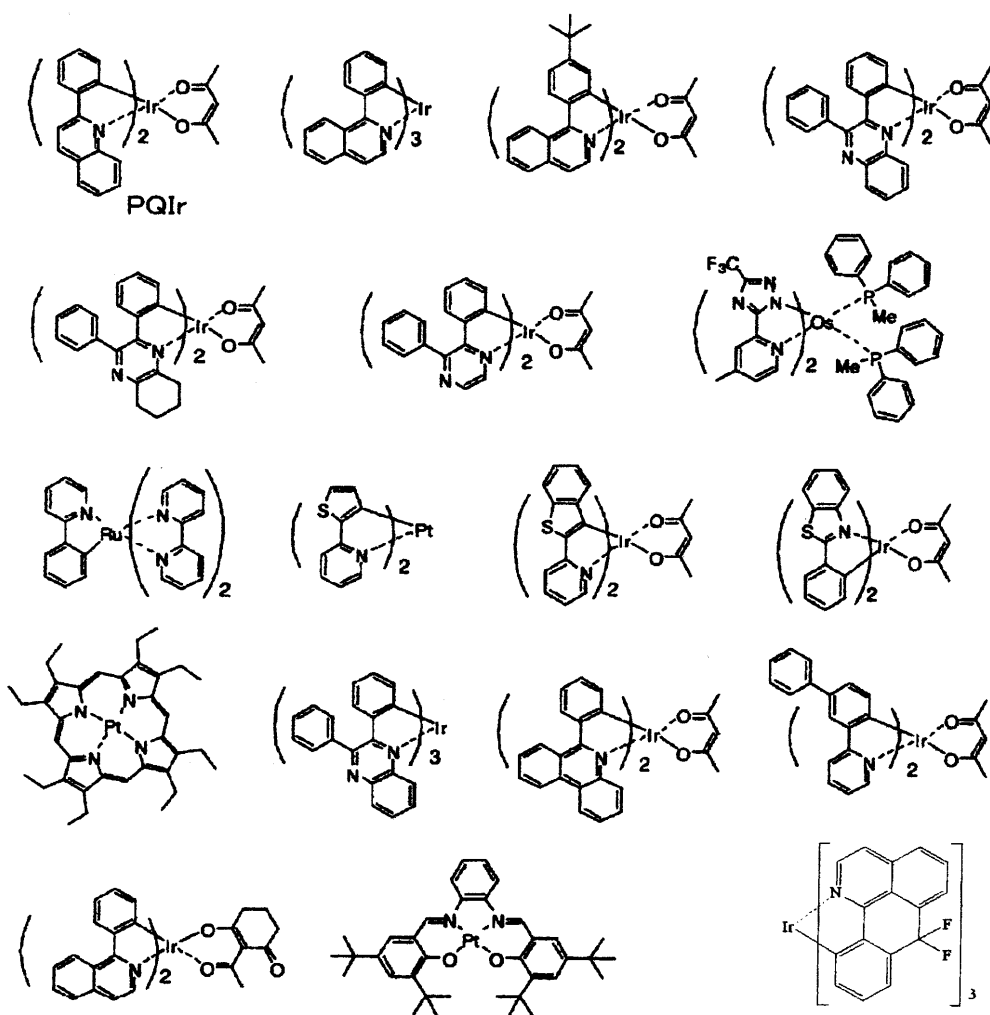
10

20

30

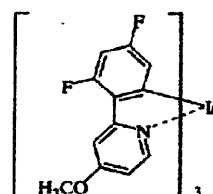
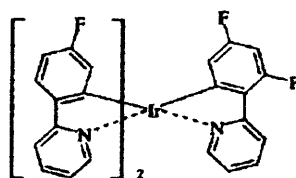
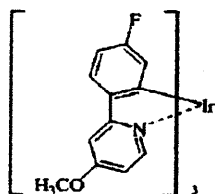
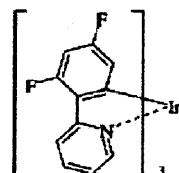
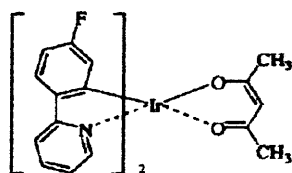
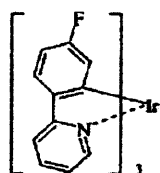
40

【化 1 4】

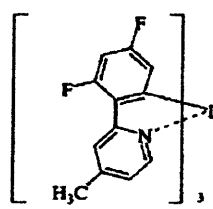
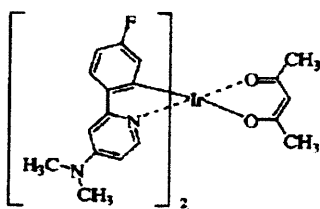
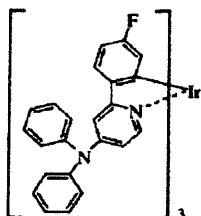


【 0 0 7 2 】

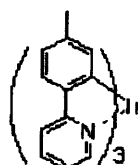
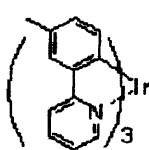
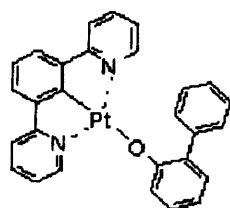
【化 1 5】



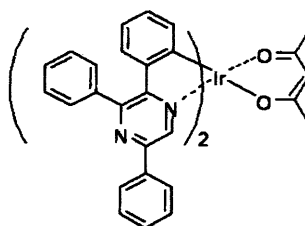
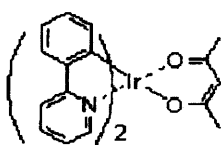
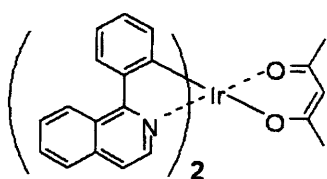
10



20

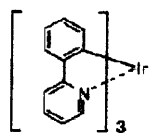
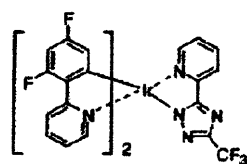
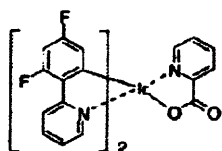
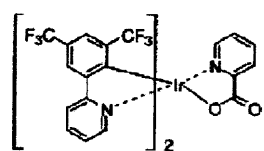
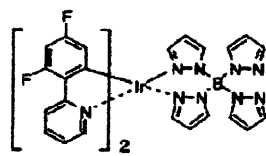
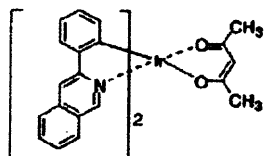


30

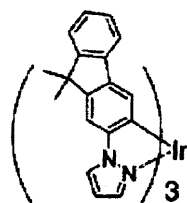
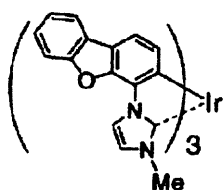
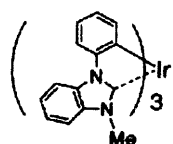


【 0 0 7 3 】

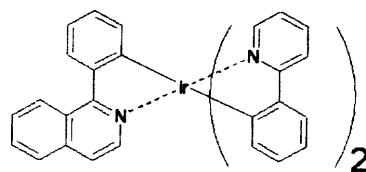
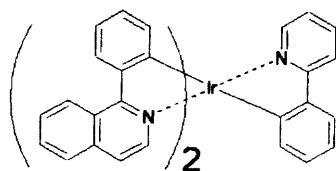
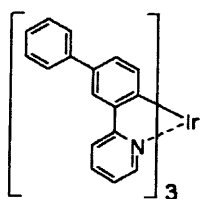
【化 1 6】

**Ir(ppy)₃**

10

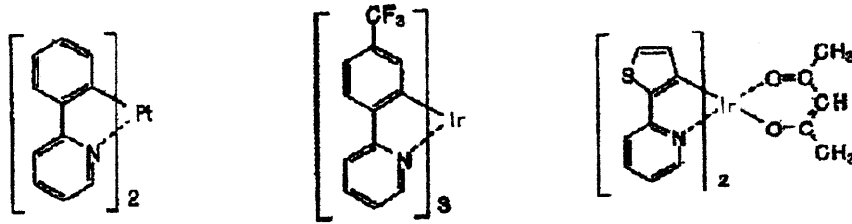


20



【 0 0 7 4 】

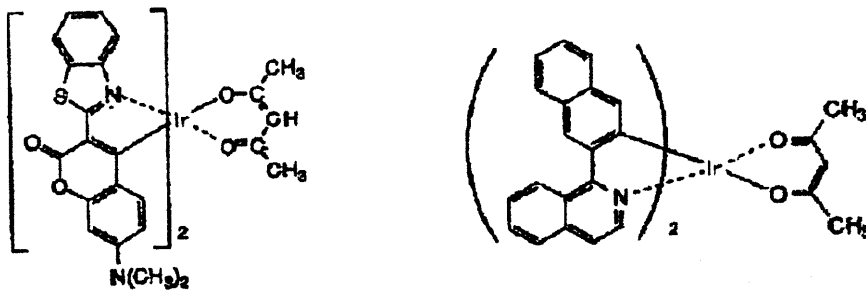
【化 17】



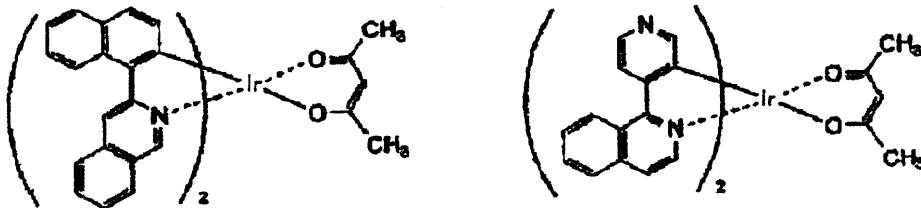
10



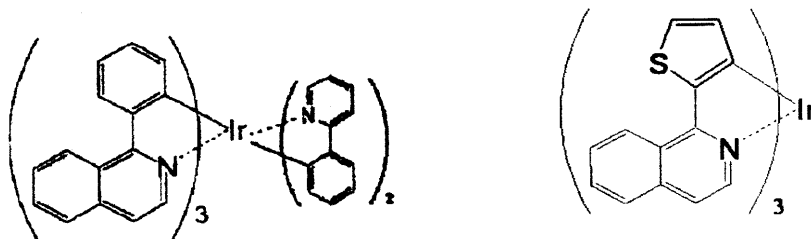
20



30



40



【0075】

燐光ホストは、燐光ドーパントの三重項エネルギーを効率的に発光層内に閉じ込めることにより、燐光ドーパントを効率的に発光させる機能を有する化合物である。本発明の有機EL素子用材料は燐光ホストとして好適である。発光層は、本発明の有機EL素子用材料を1種含有していてもよく、本発明の有機EL素子用材料を2種以上含有していてもよい。

50

【 0 0 7 6 】

本発明の有機 E L 素子用材料を発光層のホスト材料として用いる場合、発光層に含まれる燐光ドーパント材料の発光波長は特に限定されない。なかでも、発光層に含まれる前記燐光ドーパント材料のうち少なくとも 1 種は、発光波長のピークが 490 nm 以上 700 nm 以下であることが好ましく、490 nm 以上 650 nm 以下であることがより好ましい。発光層の発光色としては、例えば、赤色、黄色、緑色が好ましい。ホスト材料として本発明の化合物を用い、このような発光波長の燐光ドーパント材料をドーブして発光層を構成することにより、長寿命な有機 E L 素子とすることができる。

【 0 0 7 7 】

本発明の有機 E L 素子において、本発明の有機 E L 素子用材料以外の化合物も、燐光ホストとして、上記目的に応じて適宜選択することができる。

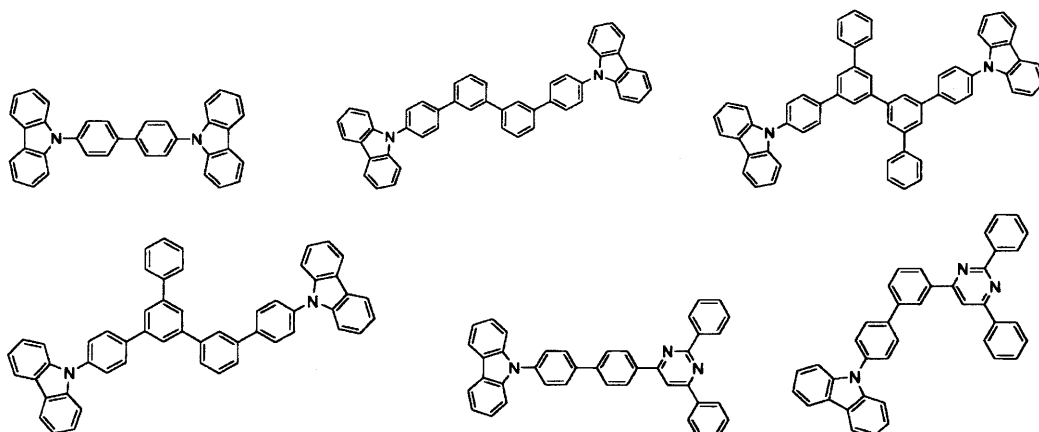
本発明の有機 E L 素子用材料とそれ以外の化合物を同一の発光層内の燐光ホスト材料として併用してもよいし、複数の発光層がある場合には、そのうちの一つの発光層の燐光ホスト材料として本発明の有機 E L 素子用材料を用い、別の一つの発光層の燐光ホスト材料として本発明の有機 E L 素子用材料以外の化合物を用いてもよい。また、本発明の有機 E L 素子用材料は発光層以外の有機層にも使用しうるものであり、その場合には発光層の燐光ホストとして、本発明の有機 E L 素子用材料以外の化合物を用いてもよい。

【 0 0 7 8 】

本発明の有機 E L 素子用材料以外の化合物で、燐光ホストとして好適な化合物の具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8 - キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体ポリシラン系化合物、ポリ(N - ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。燐光ホストは単独で使用してもよいし、2 種以上を併用してもよい。具体例としては、以下のような化合物が挙げられる。

【 0 0 7 9 】

【 化 1 8 】



【 0 0 8 0 】

発光層が、第 1 ホスト材料と第 2 ホスト材料とを含有する場合、第 1 ホスト材料として本発明の有機 E L 素子用材料を用い、第 2 ホスト材料として本発明の有機 E L 素子用材料以外の化合物を用いてもよい。尚、本発明における「第 1 ホスト材料」及び「第 2 ホスト材料」という用語は、発光層に含有されている複数のホスト材料が、互いに構造が異なるという意味であり、発光層中の各ホスト材料の含有量で規定されるものではない。

前記第 2 ホスト材料としては、特に限定されず、本発明の有機 E L 素子用材料以外の化合物であり、かつ燐光ホストとして好適な化合物として前記した化合物と同じものが挙げられる。第 2 ホストとしては、カルバゾール誘導体、アリールアミン誘導体、フルオレノン誘導体、芳香族第三アミン化合物が好ましい。

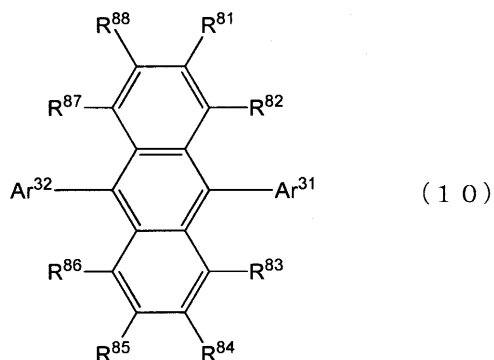
【 0 0 8 1 】

本発明の有機 E L 素子は、蛍光発光材料を含有する発光層、つまり蛍光発光層を有していてもよい。蛍光発光層としては、公知の蛍光発光材料を使用できる。該蛍光発光材料としては、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体及びアリールアミン誘導体から選択される少なくとも 1 種が好ましく、アントラセン誘導体、アリールアミン誘導体がより好ましい。特に、ホスト材料としてはアントラセン誘導体が好ましく、ドーパントとしてはアリールアミン誘導体が好ましい。具体的には、国際公開第 2 0 1 0 / 1 3 4 3 5 0 号や国際公開第 2 0 1 0 / 1 3 4 3 5 2 号に記載する好適な材料が選択される。本発明の有機 E L 素子用材料は、蛍光発光層の蛍光発光材料として用いてもよく、蛍光発光層のホスト材料として用いてもよい。

【 0 0 8 2 】

蛍光発光材料としての前記アントラセン誘導体の環形成炭素数は、好ましくは 2 6 ~ 1 0 0、より好ましくは 2 6 ~ 8 0、さらに好ましくは 2 6 ~ 6 0 である。該アントラセン誘導体としては、より具体的には下記式 (1 0) で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

【 化 1 9 】



【 0 0 8 3 】

(上記式 (1 0) 中、 Ar^{31} 及び Ar^{32} は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 5 0 のアリール基又は環形成原子数 5 ~ 5 0 の複素環基である。

$R^{81} \sim R^{88}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 5 0 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 5 0 の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 5 0 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 5 0 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 5 0 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 5 0 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 5 0 のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 5 0 のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシル基である。)

上記環形成炭素数 6 ~ 5 0 のアリール基としては、いずれも、環形成炭素数 6 ~ 4 0 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 3 0 のアリール基がより好ましい。

上記環形成原子数 5 ~ 5 0 の複素環基としては、いずれも、環形成原子数 5 ~ 4 0 の複素環基が好ましく、環形成原子数 5 ~ 3 0 の複素環基がより好ましい。

上記炭素数 1 ~ 50 のアルキル基としては、炭素数 1 ~ 30 のアルキル基が好ましく、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基がより好ましく、炭素数 1 ~ 5 のアルキル基がさらに好ましい。

上記炭素数 1 ~ 50 のアルコキシ基としては、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基が好ましく、炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基がより好ましく、炭素数 1 ~ 5 のアルコキシ基がさらに好ましい。

上記炭素数 7 ~ 50 のアラルキル基としては、炭素数 7 ~ 30 のアラルキル基が好ましく、炭素数 7 ~ 20 のアラルキル基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーロキシ基としては、環形成炭素数 6 ~ 40 のアリーロキシ基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーロキシ基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6 ~ 50 のアリールチオ基としては、環形成炭素数 6 ~ 40 のアリールチオ基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールチオ基がより好ましい。

上記炭素数 2 ~ 50 のアルコシカルボニル基としては、炭素数 2 ~ 30 のアルコシカルボニル基が好ましく、炭素数 2 ~ 10 のアルコシカルボニル基がより好ましく、炭素数 2 ~ 5 のアルコシカルボニル基がさらに好ましい。

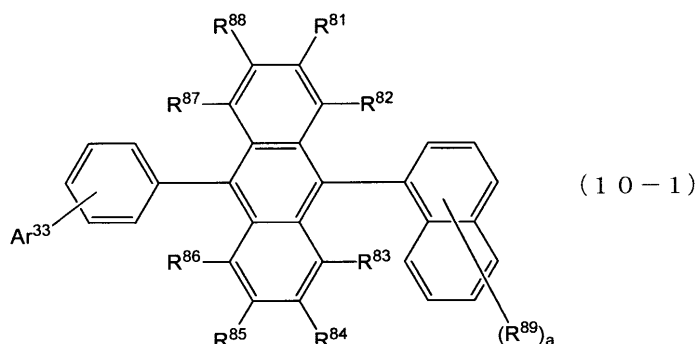
上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

特に、 Ar^{31} 及び Ar^{32} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基であることが好ましい。

【0084】

また、式 (10) で表されるアントラセン誘導体としては、下記式 (10-1) で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

【化20】



【0085】

(上記式 (10-1) 中、 Ar^{33} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は環形成原子数 5 ~ 50 の複素環基である。 $R^{81} \sim R^{88}$ は、前記定義の通りである。 R^{89} は、 $R^{81} \sim R^{88}$ の定義と同じである。 a は、1 ~ 7 の整数である。)

$R^{81} \sim R^{88}$ は、好ましいものも前記同様である。また、 R^{89} の好ましいものも、 $R^{81} \sim R^{88}$ と同様である。 a は 1 ~ 3 の整数が好ましく、1 又は 2 がより好ましい。

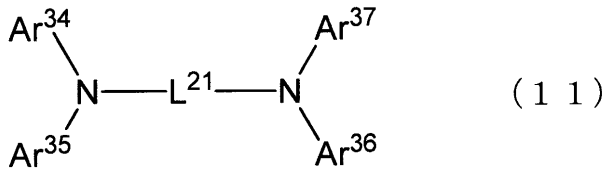
Ar^{33} が表す環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基としては、環形成炭素数 6 ~ 40 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6 ~ 20 のアリール基がさらに好ましく、環形成炭素数 6 ~ 12 のアリール基が特に好ましい。

【0086】

蛍光発光材料としての前記アリールアミン誘導体としては、アリールジアミン誘導体が好ましく、ピレン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がより好ましく、ピレン骨格及びジベンゾフラン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がさらに好ましい。

アリールジアミン誘導体としては、より具体的には、下記式 (11) で表されるアリールジアミン誘導体が好ましい。

【化 2 1】



【 0 0 8 7 】

(式 (1 1) 中、 $\text{Ar}^{34} \sim \text{Ar}^{37}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基を表す。

L^{21} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリーレン基を表す。)

上記環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基としては、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 20 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6 ~ 12 のアリール基がさらに好ましく、フェニル基、ナフチル基が特に好ましい。

上記環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基としては、環形成原子数 5 ~ 40 のヘテロアリール基が好ましく、環形成原子数 5 ~ 30 のヘテロアリール基がより好ましく、環形成原子数 5 ~ 20 のヘテロアリール基がさらに好ましい。ヘテロアリール基としては、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基などが挙げられ、ジベンゾフラニル基が好ましい。該ヘテロアリール基の好ましい置換基としては、環形成炭素数 6 ~ 30 (好ましくは 6 ~ 20、より好ましくは 6 ~ 12) のアリール基が挙げられ、フェニル基、ナフチル基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基としては、環形成炭素数 6 ~ 40 のアリーレン基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーレン基がより好ましく、環形成炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基がさらに好ましく、ピレニル基が特に好ましい。

【 0 0 8 8 】

発光層の膜厚は、好ましくは 5 ~ 50 nm、より好ましくは 7 ~ 50 nm、さらに好ましくは 10 ~ 50 nm である。5 nm 以上であると発光層の形成が容易であり、50 nm 以下であると駆動電圧の上昇が避けられる。

【 0 0 8 9 】

(電子供与性ドーパント)

本発明の有機 EL 素子は、陰極と発光ユニットとの界面領域に電子供与性ドーパントを有することも好ましい。このような構成によれば、有機 EL 素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。ここで、電子供与性ドーパントとは、仕事関数 3 . 8 eV 以下の金属を含有するものをいい、その具体例としては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも一種が挙げられる。

【 0 0 9 0 】

アルカリ金属としては、Na (仕事関数 : 2 . 36 eV)、K (仕事関数 : 2 . 28 eV)、Rb (仕事関数 : 2 . 16 eV)、Cs (仕事関数 : 1 . 95 eV) 等が挙げられ、仕事関数が 2 . 9 eV 以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくは K、Rb、Cs、さらに好ましくは Rb 又は Cs であり、最も好ましくは Cs である。アルカリ土類金属としては、Ca (仕事関数 : 2 . 9 eV)、Sr (仕事関数 : 2 . 0 eV ~ 2 . 5 eV)、Ba (仕事関数 : 2 . 52 eV) 等が挙げられ、仕事関数が 2 . 9 eV 以下のものが特に好ましい。希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb 等が挙げられ、仕事関数が 2 . 9 eV 以下のものが特に好ましい。

【 0 0 9 1 】

アルカリ金属化合物としては、 Li_2O 、 Cs_2O 、 K_2O 等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF 等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、 Li_2O 、

10

20

30

40

50

NaFが好ましい。アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合した $Ba_xSr_{1-x}O$ ($0 < x < 1$)、 $Ba_xCa_{1-x}O$ ($0 < x < 1$)等が挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。希土類金属化合物としては、 YbF_3 、 ScF_3 、 ScO_3 、 Y_2O_3 、 Ce_2O_3 、 GdF_3 、 TbF_3 等が挙げられ、 YbF_3 、 ScF_3 、 TbF_3 が好ましい。

【0092】

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

10

【0093】

電子供与性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する有機化合物（発光材料や電子注入材料）を同時に蒸着させ、有機化合物に電子供与性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で有機化合物：電子供与性ドーパント = 100 : 1 ~ 1 : 100、好ましくは5 : 1 ~ 1 : 5である。

20

【0094】

電子供与性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1 nm ~ 15 nmで形成する。電子供与性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05 nm ~ 1 nmで形成する。

本発明の有機EL素子における、主成分と電子供与性ドーパントの割合は、モル比で主成分：電子供与性ドーパント = 5 : 1 ~ 1 : 5であると好ましく、2 : 1 ~ 1 : 2であるとさらに好ましい。

30

【0095】

（電子輸送層）

電子輸送層は、発光層と陰極との間に形成される有機層であって、電子を陰極から発光層へ輸送する機能を有する。電子輸送層が複数層で構成される場合、陰極に近い有機層を電子注入層と定義することがある。電子注入層は、陰極から電子を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。本発明の有機EL素子用材料は、電子輸送層を形成する電子輸送層用材料としても好適である。

【0096】

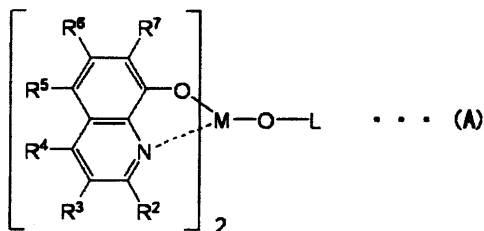
本発明の有機EL素子用材料以外で、電子輸送層に用いる電子輸送性材料としては、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。また、含窒素環誘導体としては、含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する芳香族環、又は含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する縮合芳香族環化合物が好ましい。

40

この含窒素環誘導体としては、例えば、下記式(A)で表される含窒素環金属キレート錯体が好ましい。

【0097】

【化 2 2】



【 0 0 9 8】

含窒素環金属キレート錯体である式 (A) における $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、アミノ基、炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基、炭素数 1 ~ 40 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 50 のアリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、又は、環形成炭素数 5 ~ 50 の芳香族複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

10

【 0 0 9 9】

ハロゲン原子としては、例えば、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

置換されていてもよいアミノ基の例としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基が挙げられる。

アルキルアミノ基及びアラルキルアミノ基は $-N Q^1 Q^2$ と表される。 Q^1 及び Q^2 は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 20 のアラルキル基を表す。 Q^1 及び Q^2 の一方は水素原子又は重水素原子であってもよい。

20

アリールアミノ基は $-N A r^1 A r^2$ と表され、 $A r^1$ 及び $A r^2$ は、それぞれ独立に、炭素数 6 ~ 50 の非縮合芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を表す。 $A r^1$ 及び $A r^2$ の一方は水素原子又は重水素原子であってもよい。

【 0 1 0 0】

炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基はアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、及びアラルキル基を含む。

アルコキシカルボニル基は $-C O O Y'$ と表され、 Y' は炭素数 1 ~ 20 のアルキル基を表す。

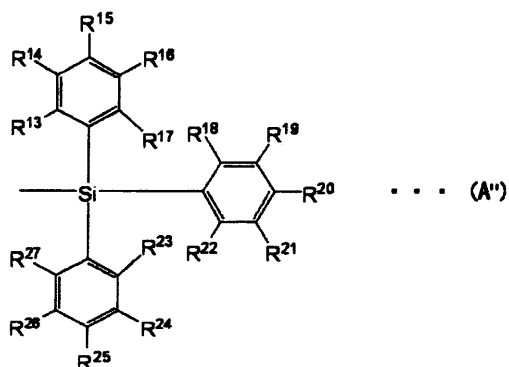
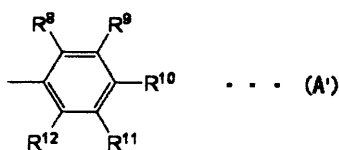
M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、In であると好ましい。

30

L は、下記式 (A') 又は (A'') で表される基である。

【 0 1 0 1】

【化 2 3】



40

【 0 1 0 2】

50

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

【0103】

式(A')及び式(A'')の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数1～40の炭化水素基は、含窒素環金属キレート錯体である前記式(A)中の $R^2 \sim R^7$ が示す炭化水素基と同様である。また、 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の2価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

10

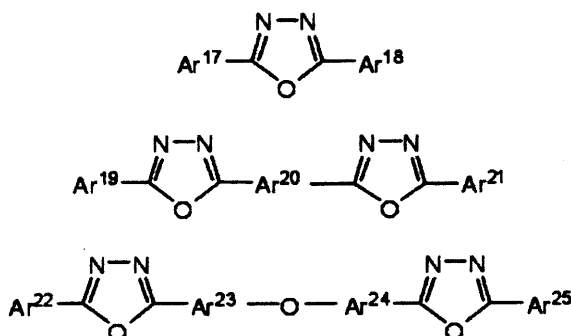
【0104】

電子輸送層に用いられる電子伝達性化合物としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環誘導体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシン(一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウムを用いることができる。そして、オキサジアゾール誘導体としては、下記のことを挙げるができる。

20

【0105】

【化24】



30

【0106】

前記式中、 Ar^{17} 、 Ar^{18} 、 Ar^{19} 、 Ar^{21} 、 Ar^{22} 及び Ar^{25} は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{17} と Ar^{18} 、 Ar^{19} と Ar^{21} 、 Ar^{22} と Ar^{25} は、たがいに同一でも異なってもよい。芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基等が挙げられる。これらの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

【0107】

Ar^{20} 、 Ar^{23} 及び Ar^{24} は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数6～50の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{23} と Ar^{24} は、たがいに同一でも異なってもよい。2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基等が挙げられる。これらの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

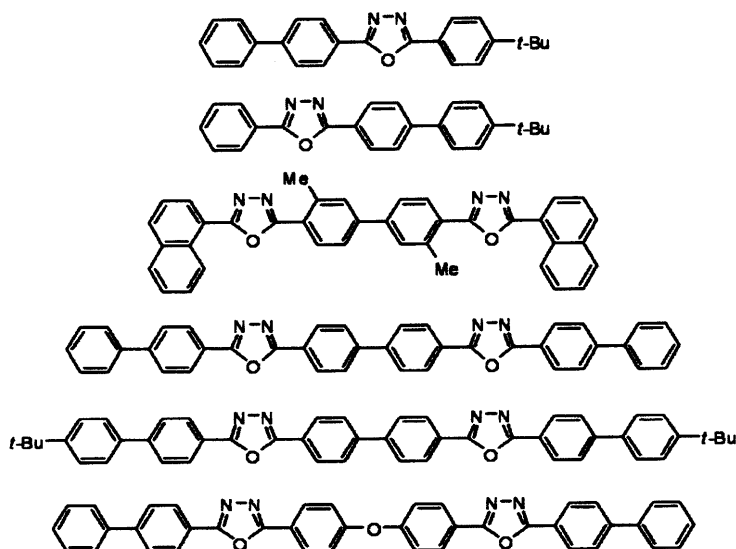
40

【0108】

これらの電子伝達性化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のことを挙げるができる。

【0109】

【化 2 5】



10

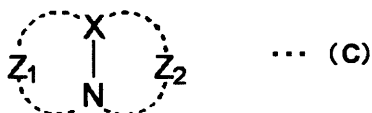
【0 1 1 0】

電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、下記式（B）に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記式（C）に示す構造のものが挙げられる。

20

【0 1 1 1】

【化 2 6】



【0 1 1 2】

前記式（C）中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z₁ならびにZ₂は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

30

【0 1 1 3】

含窒素複素環誘導体は、さらに好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物である。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記式（B）と（C）もしくは上記式（B）と下記式（D）を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物が好ましい。

【0 1 1 4】

【化 2 7】



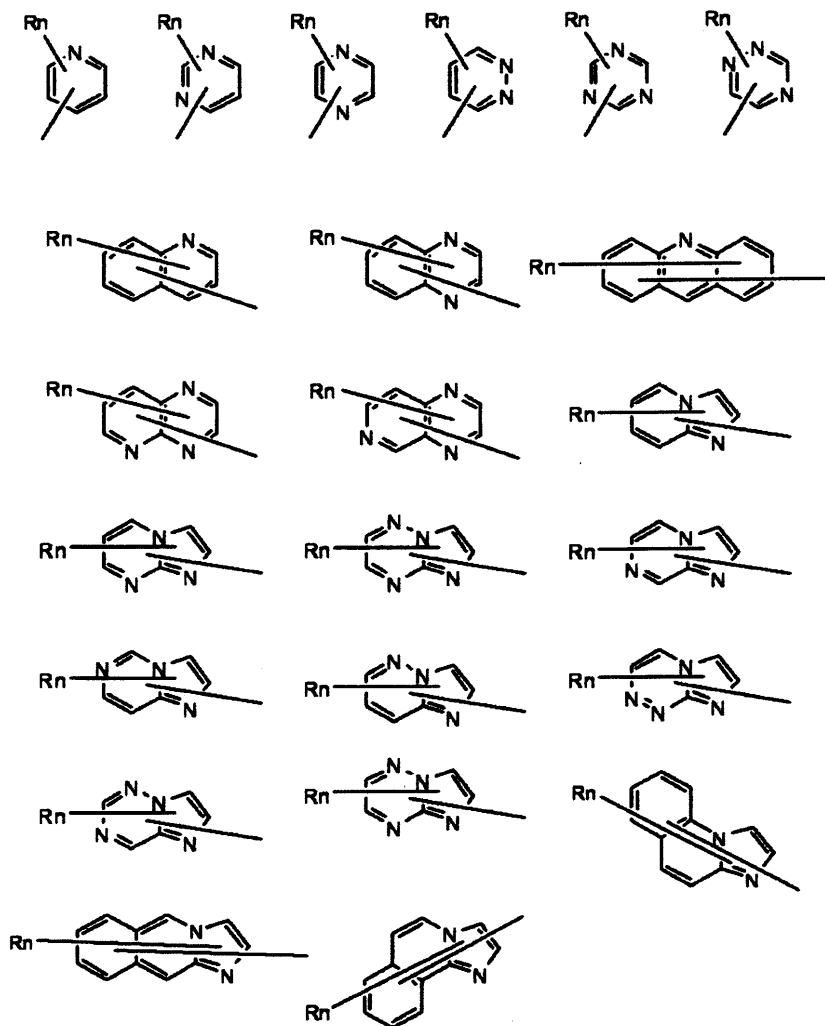
40

【0 1 1 5】

前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の式で表される含窒素複素環基から選択される。

【0 1 1 6】

【化 28】



10

20

【0117】

前記各式中、Rは、炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、炭素数1～20のアルキル基、又は炭素数1～20のアルコキシ基であり、nは0～5の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数のRは互いに同一又は異なってもよい。

30

【0118】

さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式(D1)で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。



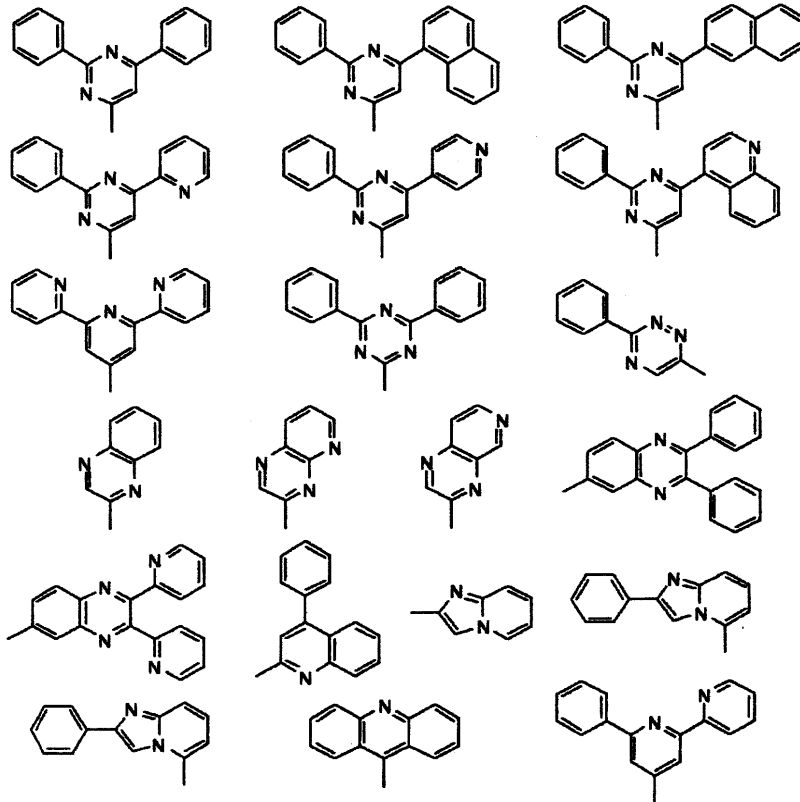
前記式(D1)中、HArは、置換もしくは無置換の炭素数3～40の含窒素複素環基であり、L¹は単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、Ar²は置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

40

【0119】

HArは、例えば、下記の群から選択される。

【化 29】



10

20

【0120】

前記式 (D1) における L^1 は、例えば、下記の群から選択される。

【化 30】

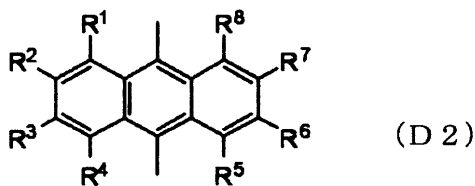


30

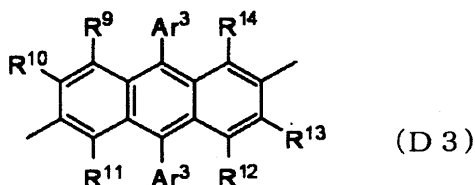
【0121】

前記式 (D1) における Ar^1 は、例えば、下記式 (D2)、式 (D3) のアリールアセントラニル基から選択される。

【化 31】



(D2)



(D3)

40

【0122】

前記式 (D2)、式 (D3) 中、 $R^1 \sim R^{14}$ は、それぞれ独立して、水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 40 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、 Ar^3 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40

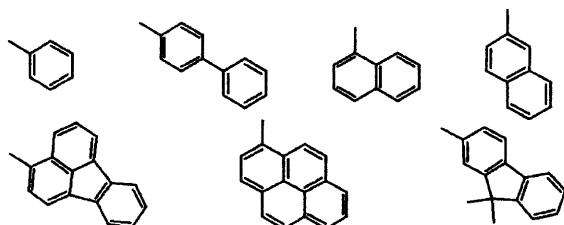
50

の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。また、 $R^1 \sim R^8$ は、いずれも水素原子又は重水素原子である含窒素複素環誘導体であってもよい。

【0123】

前記式 (D1) における Ar^2 は、例えば、下記の群から選択される。

【化32】



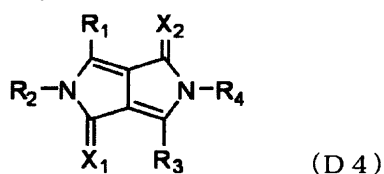
10

【0124】

電子伝達性化合物としての含窒素芳香多環有機化合物には、この他、下記の化合物も好適に用いられる。

【0125】

【化33】



20

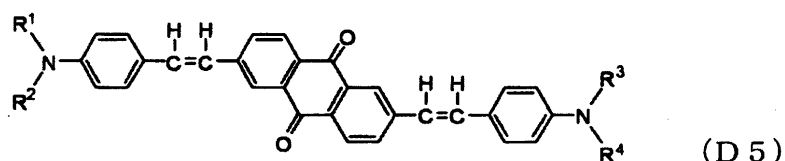
【0126】

前記式 (D4) 中、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の脂肪族基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 の脂肪族式環基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 の芳香族環基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 の複素環基を表し、 X_1 、 X_2 は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、又はジシアノメチレン基を表す。

【0127】

また、電子伝達性化合物として、下記の化合物も好適に用いられる。

【化34】

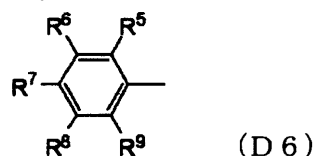


30

【0128】

前記式 (D5) 中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は互いに同一の又は異なる基であって、下記式 (D6) で表される芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である。

【化35】



40

【0129】

前記式 (D6) 中、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 は互いに同一又は異なる基であって、水素原子、重水素原子、飽和もしくは不飽和の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシル基、飽和もしくは不飽和の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、アミノ基、又は炭素数 1 ~ 20 のアルキルアミノ基である。 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 の少なくとも 1 つは水素原子、重

50

水素原子以外の基である。

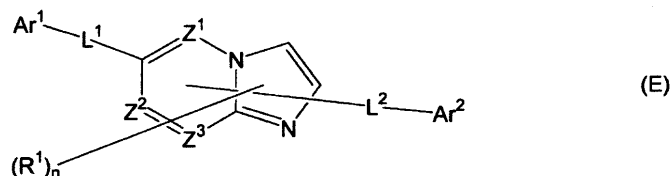
【 0 1 3 0 】

さらに、電子伝達性化合物は、該含窒素複素環基又は含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

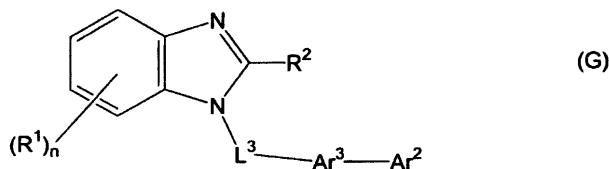
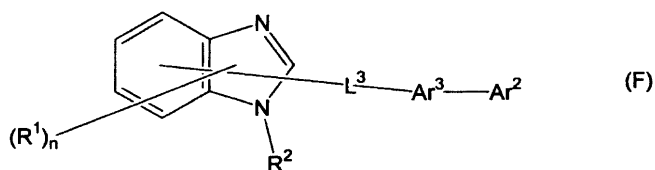
【 0 1 3 1 】

本発明の有機 E L 素子の電子輸送層は、下記式 (E) ~ (G) で表される含窒素複素環誘導体を少なくとも 1 種含むことが特に好ましい。

【 化 3 6 】



10



20

【 0 1 3 2 】

(式 (E) ~ 式 (G) 中、 Z^1 、 Z^2 及び Z^3 は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

30

【 0 1 3 3 】

n は、0 ~ 5 の整数であり、 n が 2 以上の整数であるとき、複数の R^1 は互いに同一でも異なってもよい。また、隣接する 2 つの R^1 同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の炭化水素環を形成していてもよい。

Ar^1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基である。

Ar^2 は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基である。

40

【 0 1 3 4 】

但し、 Ar^1 、 Ar^2 のいずれか一方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 10 ~ 50 の縮合芳香族炭化水素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 9 ~ 50 の縮合芳香族複素環基である。

Ar^3 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリーレン基である。

L^1 、 L^2 及び L^3 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 9 ~ 50 の 2 価の縮合芳香族複素環基である。

【 0 1 3 5 】

50

環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基としては、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、クリセニル基、ピレニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、トリル基、フルオランテニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基としては、ピローリル基、フリル基、チエニル基、シローリル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、イミダゾリル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、セレノフェニル基、オキサジアゾリル基、トリアゾーリル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キノキサリニル基、アクリジニル基、イミダゾ[1, 2 - a]ピリジニル基、イミダゾ[1, 2 - a]ピリミジニル基等が挙げられる。

【0136】

炭素数 1 ~ 20 のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等が挙げられる。

炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基としては、前記アルキル基の 1 又は 2 以上の水素原子をフッ素、塩素、ヨウ素及び臭素から選ばれる少なくとも 1 のハロゲン原子で置換して得られる基が挙げられる。

炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基としては、前記アルキル基をアルキル部位としては有する基が挙げられる。

環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基としては、前記アリール基から水素原子 1 個を除去して得られる基が挙げられる。

環形成原子数 9 ~ 50 の 2 価の縮合芳香族複素環基としては、前記ヘテロアリール基として記載した縮合芳香族複素環基から水素原子 1 個を除去して得られる基が挙げられる。

【0137】

電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは 1 nm ~ 100 nm である。

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

【0138】

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

【0139】

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

【0140】

このような絶縁体又は半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、0.1 nm ~

10

20

30

40

50

15 nm程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の電子供与性ドーパントを含有していても好ましい。

【0141】

(正孔輸送層)

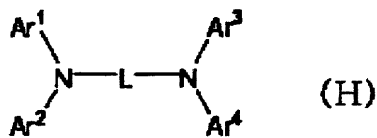
発光層と陽極との間に形成される有機層であって、正孔を陽極から発光層へ輸送する機能を有する。正孔輸送層が複数層で構成される場合、陽極に近い有機層を正孔注入層と定義することがある。正孔注入層は、陽極から正孔を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

【0142】

正孔輸送層を形成する他の材料としては、芳香族アミン化合物、例えば、下記式(H)で表される芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

10

【化37】



【0143】

前記式(H)において、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、又は、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基が結合した基を表す。

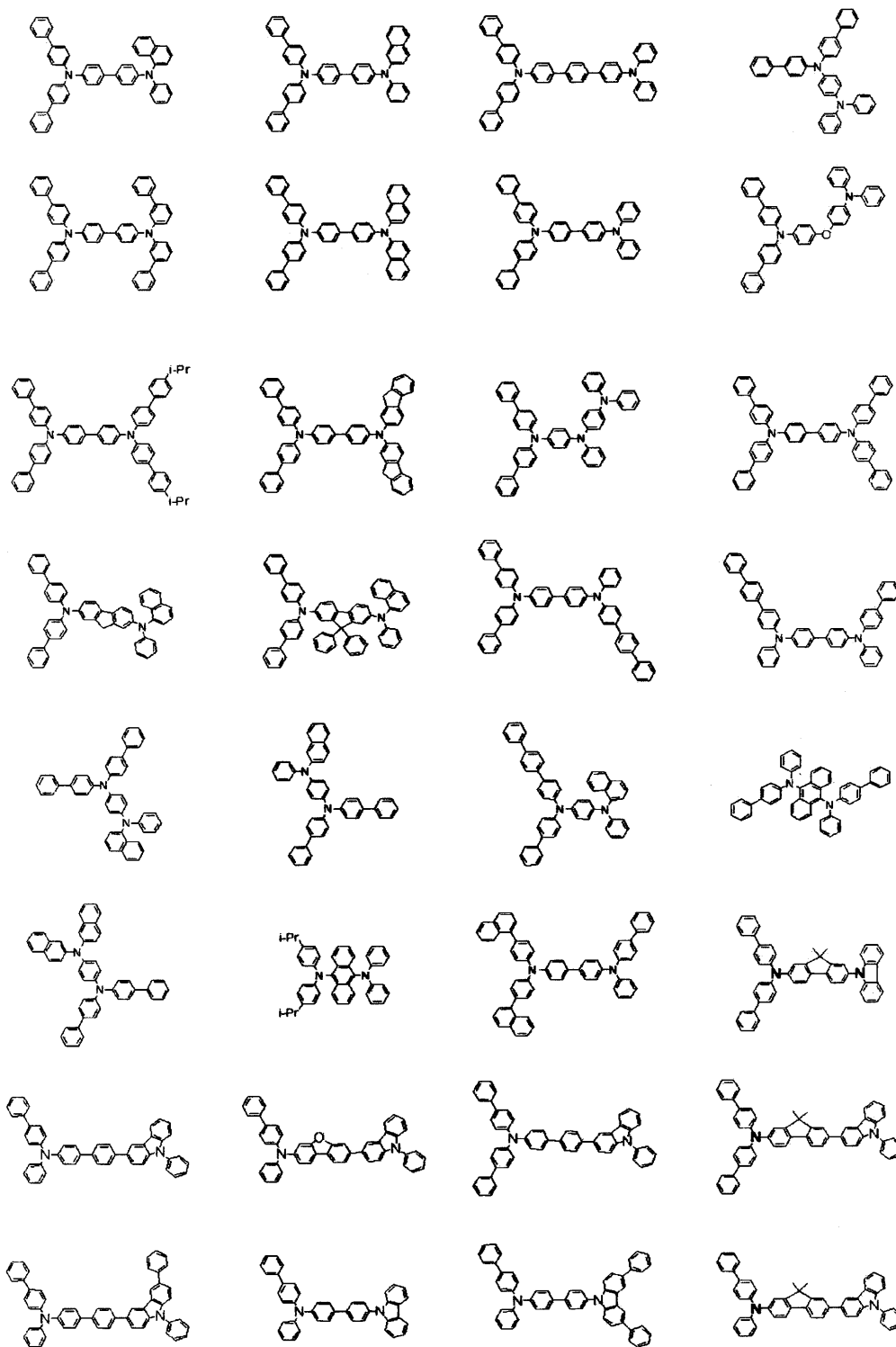
20

また、前記式(H)において、Lは置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

【0144】

式(H)の化合物の具体例を以下に記す。

【化 3 8】



10

20

30

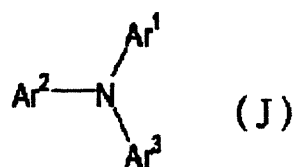
40

【 0 1 4 5】

また、下記式 (J) の芳香族アミンも正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

【 0 1 4 6】

【化 3 9】



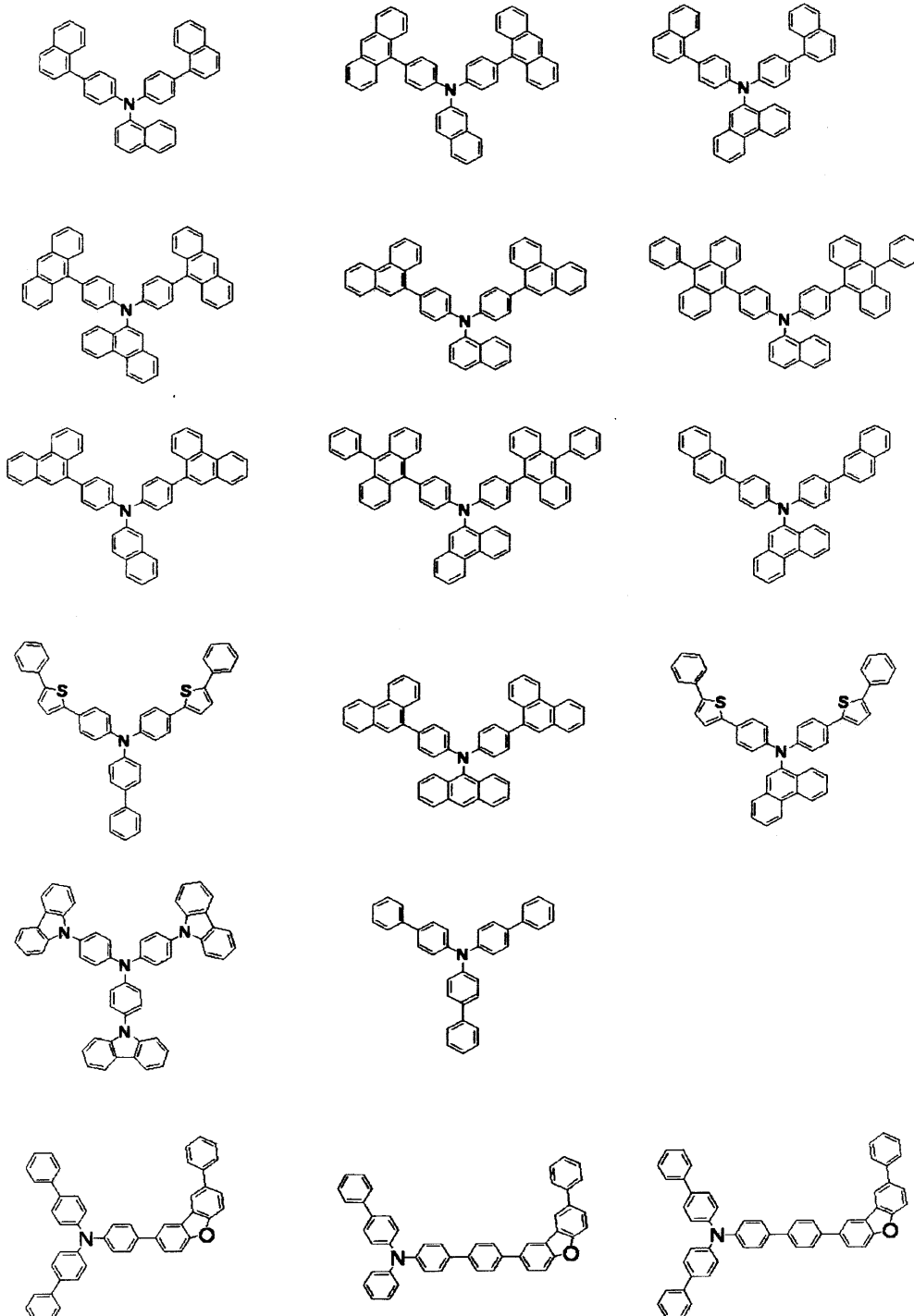
【 0 1 4 7】

50

前記式(J)において、 $Ar^1 \sim Ar^3$ の定義は前記式(H)の $Ar^1 \sim Ar^4$ の定義と同様である。以下に式(J)の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

【 0 1 4 8 】

【 化 4 0 】



10

20

30

40

【 0 1 4 9 】

本発明の有機 E L 素子の正孔輸送層は第 1 正孔輸送層 (陽極側) と第 2 正孔輸送層 (陰極側) の 2 層構造にしてもよい。

正孔輸送層の膜厚は特に限定されないが、10 ~ 200 nm であるのが好ましい。

【 0 1 5 0 】

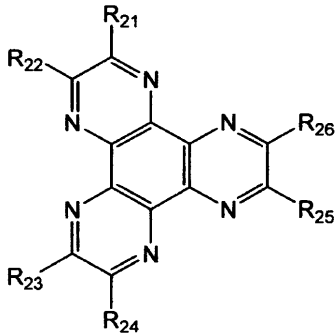
本発明の有機 E L 素子では、正孔輸送層又は第 1 正孔輸送層の陽極側にアクセプター材料を含む層を接合してもよい。これにより駆動電圧の低下及び製造コストの低減が期待される。

50

前記アクセプター材料としては下記式 (K) で表される化合物が好ましい。

【0151】

【化41】



(K)

10

【0152】

(上記式 (K) 中、 $R_{21} \sim R_{26}$ は互いに同一でも異なってもよく、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシ基、又は $-\text{COOR}_{27}$ (R_{27} は炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基を表す) を表す。ただし、 R_{21} 及び R_{22} 、 R_{23} 及び R_{24} 、並びに R_{25} 及び R_{26} の 1 又は 2 以上の対が一緒になって $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を形成してもよい。)

R_{27} としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

20

アクセプター材料を含有する層の膜厚は特に限定されないが、5 ~ 20 nm であるのが好ましい。

【0153】

(n/p ドーピング)

上述の正孔輸送層や電子輸送層においては、特許第 3695714 号明細書に記載されているように、ドナー性材料のドーピング (n) やアクセプター性材料のドーピング (p) により、キャリア注入能を調整することができる。

n ドーピングの代表例としては、電子輸送材料に Li や Cs 等の金属をドーピングする方法が挙げられ、 p ドーピングの代表例としては、正孔輸送材料に F_4TCNQ (2, 3, 5, 6-Tetrafluoro-7, 7, 8, 8-tetracyanoquinodimethane) 等のアクセプター材料をドーピングする方法が挙げられる。

30

【0154】

(スペース層)

上記スペース層とは、例えば、蛍光発光層と燐光発光層とを積層する場合に、燐光発光層で生成する励起子を蛍光発光層に拡散させない、あるいは、キャリアバランスを調整する目的で、蛍光発光層と燐光発光層との間に設けられる層である。また、スペース層は、複数の燐光発光層の間に設けることもできる。

スペース層は発光層間に設けられるため、電子輸送性と正孔輸送性を兼ね備える材料であることが好ましい。また、隣接する燐光発光層内の三重項エネルギーの拡散を防ぐため、三重項エネルギーが 2.6 eV 以上であることが好ましい。スペース層に用いられる材料としては、上述の正孔輸送層に用いられるものと同様のものが挙げられる。

40

【0155】

(障壁層)

本発明の有機 EL 素子は、発光層に隣接する部分に、電子障壁層、正孔障壁層、トリプレット障壁層といった障壁層を有することが好ましい。ここで、電子障壁層とは、発光層から正孔輸送層へ電子が漏れることを防ぐ層であり、正孔障壁層とは、発光層から電子輸送層へ正孔が漏れることを防ぐ層である。

トリプレット障壁層は、発光層で生成する三重項励起子が、周辺の層へ拡散することを防止し、三重項励起子を発光層内に閉じ込めることによって三重項励起子の発光ドーパ

50

ト以外の電子輸送層の分子上でのエネルギー失活を抑制する機能を有する。

【 0 1 5 6 】

トリプレット障壁層を設ける場合、燐光素子においては、発光層中の燐光発光性ドーパントの三重項エネルギーを E^T_d 、トリプレット障壁層として用いる化合物の三重項エネルギーを E^T_{TB} とすると、 $E^T_d < E^T_{TB}$ のエネルギー大小関係であれば、エネルギー関係上、燐光発光性ドーパントの三重項励起子が閉じ込められ（他分子へ移動できなくなり）、該ドーパント上で発光する以外のエネルギー失活経路が断たれ、高効率に発光することができると推測される。ただし、 $E^T_d < E^T_{TB}$ の関係が成り立つ場合であってもこのエネルギー差 $\Delta E^T = E^T_{TB} - E^T_d$ が小さい場合には、実際の素子駆動環境である室温程度の環境下では、周辺の熱エネルギーにより吸熱的にこのエネルギー差 ΔE^T を乗り越えて三重項励起子が他分子へ移動することが可能であると考えられる。特に燐光発光の場合は蛍光発光に比べて励起子寿命が長いため、相対的に吸熱的励起子移動過程の影響が現れやすくなる。室温の熱エネルギーに対してこのエネルギー差 ΔE^T は大きい程好ましく、 0.1 eV 以上であるとさらに好ましく、 0.2 eV 以上であると特に好ましい。一方、蛍光素子においては、国際公開 W O 2 0 1 0 / 1 3 4 3 5 0 A 1 に記載する T T F 素子構成のトリプレット障壁層として、本発明の有機 E L 素子用材料を用いることもできる。

10

【 0 1 5 7 】

また、トリプレット障壁層を構成する材料の電子移動度は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。有機材料の電子移動度の測定方法としては、Time of Flight 法等幾つかの方法が知られているが、ここではインピーダンス分光法で決定される電子移動度をいう。

20

電子注入層は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。これにより陰極からの電子輸送層への電子注入が促進され、ひいては隣接する障壁層、発光層への電子注入も促進し、より低電圧での駆動を可能にするためである。

【 0 1 5 8 】

本発明の有機 E L 素子は、発光素子として各種ディスプレイ等に使用されるパネルモジュールに使用できる。

また、本発明の有機 E L 素子は、テレビ、携帯端末、パーソナルコンピュータ等の表示装置や、照明等の電子機器に使用できる。

30

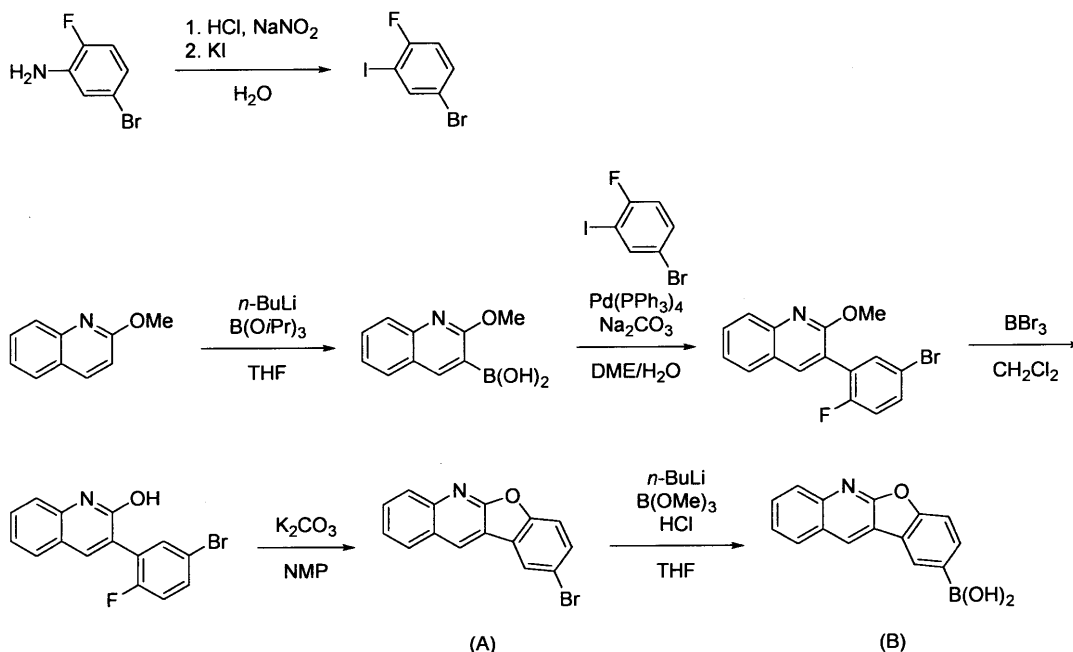
【実施例】

【 0 1 5 9 】

[中間体 (A) ~ (J) の合成]

合成例 1 (中間体 (A) 及び (B) の合成)

【化 4 2】



10

【 0 1 6 0】

(1) 5 - ブロモ - 2 - フルオロヨードベンゼンの合成

20

アルゴン雰囲気下、5 - ブロモ - 2 - フルオロアニリン (45 . 6 g , 240 mmol) に水 (120 mL) を加え攪拌し、濃塩酸 (120 mL) を加えた後、- 20 °C まで冷却し、亜硝酸ナトリウム (19 . 9 g , 288 mmol) と水 (80 mL) の水溶液を滴下した。 - 20 °C で20分攪拌した後、ヨウ化カリウム (59 . 8 g , 360 mmol) と水 (60 mL) の水溶液を加え、30分攪拌した。ヘキサンで抽出した後、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、亜硫酸ナトリウム水溶液で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、5 - ブロモ - 2 - フルオロヨードベンゼン (54 . 6 g , 181 mmol) (収率 76 %) を得た。

【 0 1 6 1】

30

(2) 2 - メトキシキノリン - 3 - ボロン酸の合成

2 - メトキシキノリン (20 . 0 g , 126 mmol)、トリイソプロポキシボラン (59 . 1 g , 314 mmol、テトラヒドロフラン (脱水) (200 mL) を混合し、- 78 °C に冷却した。そこへ *n* - ブチルリチウム (1 . 6 M in hexane , 86 mL , 138 mmol) を加え、- 78 °C で4時間攪拌し、室温に5時間掛けて昇温した。反応終了後、飽和 NH_4Cl 溶液 (100 mL) を加え、 HCl (3 M) 溶液を pH が 5 になるまで加えた。その後、有機層を濃縮して得た固体を水で懸濁洗浄し、濾過回収して 2 - メトキシキノリン - 3 - ボロン酸 (19 . 7 g , 97 . 0 mmol) (収率 77 %) を得た。

【 0 1 6 2】

40

(3) 2 - メトキシ - 3 - (2 - フルオロ - 5 - ブロモフェニル) キノリンの合成

アルゴン雰囲気下、2 - メトキシキノリン - 3 - ボロン酸 (12 . 0 g , 59 . 1 mmol)、5 - ブロモ - 2 - フルオロヨードベンゼン (18 . 7 g , 62 . 1 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (1 . 37 g , 1 . 18 mmol)、1 , 2 - ジメトキシエタン (100 mL)、炭酸ナトリウム水溶液 (2 M , 100 mL) を混合し、6時間加熱還流下で攪拌した。室温まで冷却後、反応溶液をトルエンで抽出し、水層を除去した後、有機層を飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して 2 - メトキシ - 3 - (2 - フルオロ - 5 - ブロモフェニル) キノリン (12 . 8 g , 38 . 4 mmol) (収率 65 %) を得た。

50

【0163】

(4) 2-ヒドロキシ-3-(2-フルオロ-5-ブロモフェニル)キノリンの合成

2-メトキシ-3-(2-フルオロ-5-ブロモフェニル)キノリン(12.0g, 36.1mmol)、ジクロロメタン(脱水)(360mL)を混合し、-78℃に冷却した。 BBr_3 (1M in dichloromethane, 54.2mL, 54.2mmol)を加え、その後室温まで3時間掛けて昇温した。反応終了後、溶液を-78℃に冷却し、メタノールで慎重に失活し、さらに十分量の水で失活した。溶液をジクロロメタンで抽出し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、短いシリカゲルショートカラムクロマトグラフィーに通した。その後、溶液を濃縮乾燥し、2-ヒドロキシ-3-(2-フルオロ-5-ブロモフェニル)キノリン(5.05g, 15.9mmol)(収率44%)を得た。

10

【0164】

(5) 中間体(A)の合成

2-ヒドロキシ-3-(2-フルオロ-5-ブロモフェニル)キノリン(7.30g, 22.9mmol)、N-メチル-2-ピロリジノン(脱水)(70mL)、 K_2CO_3 (6.33g, 45.8mmol)を混合し、120℃で2時間攪拌した。反応終了後、溶液を室温まで冷却し、トルエンで希釈した後、水で洗浄した。この溶液を硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、中間体(A)(4.92g, 16.5mmol)(収率72%)を得た。

20

【0165】

(6) 中間体(B)の合成

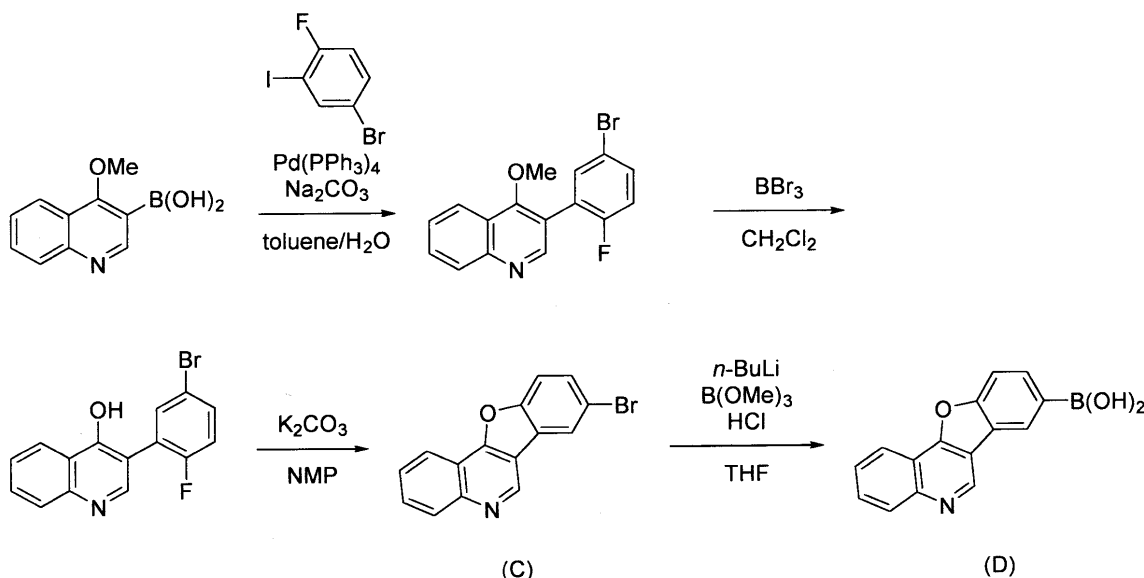
中間体(A)(2.65g, 8.90mmol)、テトラヒドロフラン(脱水)(100mL)を混合し、-78℃に冷却した。その後、n-ブチル(n-Bu)Li(1.60M in hexane, 5.85mL, 9.35mmol)を加え、0℃まで2時間掛けて昇温した。次に再度-78℃に冷却し、トリメトキシボラン(2.31g, 22.3mmol)を加えて-78℃で10分間攪拌した後、室温まで5時間掛けて昇温した。反応終了後、HCl溶液(1M, 25mL)を加え、室温で1時間攪拌し、酢酸エチルで抽出した。この溶液を硫酸マグネシウムで乾燥した後、濃縮し、ヘキサンで懸濁洗浄、濾過回収して中間体(B)(960mg, 3.65mmol)(収率41%)を得た。

30

【0166】

合成例2(中間体(C)及び(D)の合成)

【化43】



40

【0167】

中間体(B)の合成において、2-メトキシキノリン-3-ボロン酸の代わりに4-メトキシキノリン-3-ボロン酸を用い、上記スキームに従って同様の方法で中間体(C)

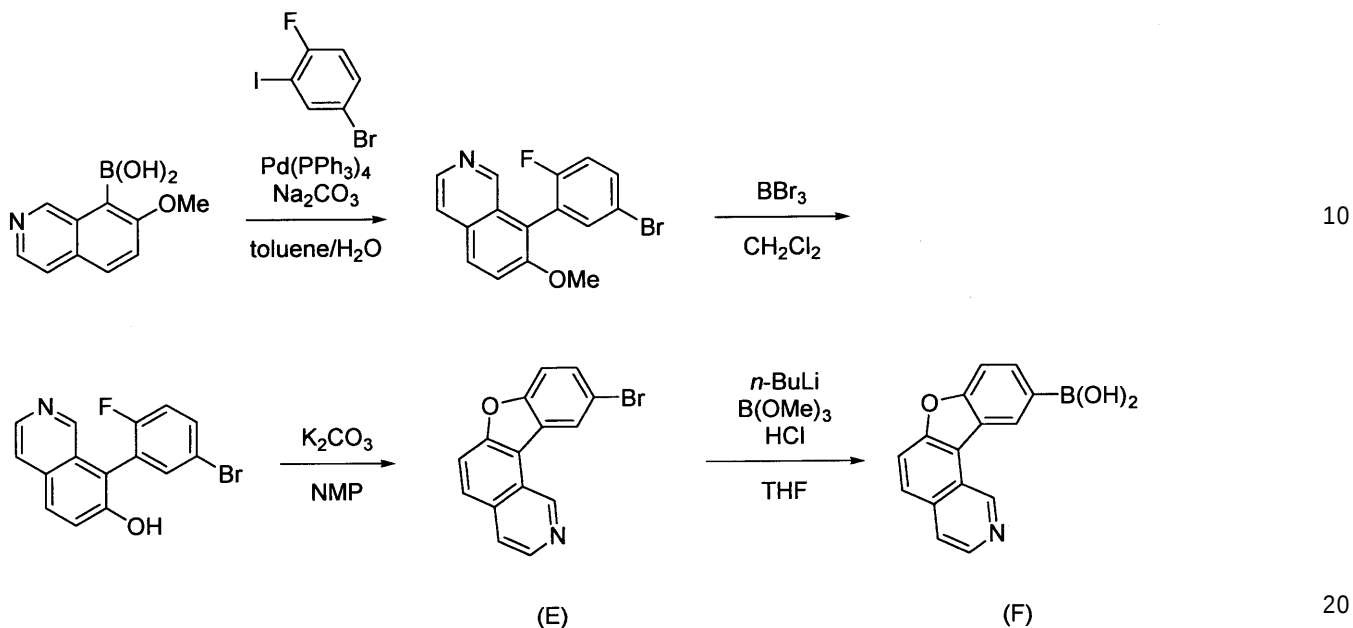
50

と中間体 (D) を合成した。

【 0 1 6 8 】

合成例 3 (中間体 (E) 及び (F) の合成)

【 化 4 4 】



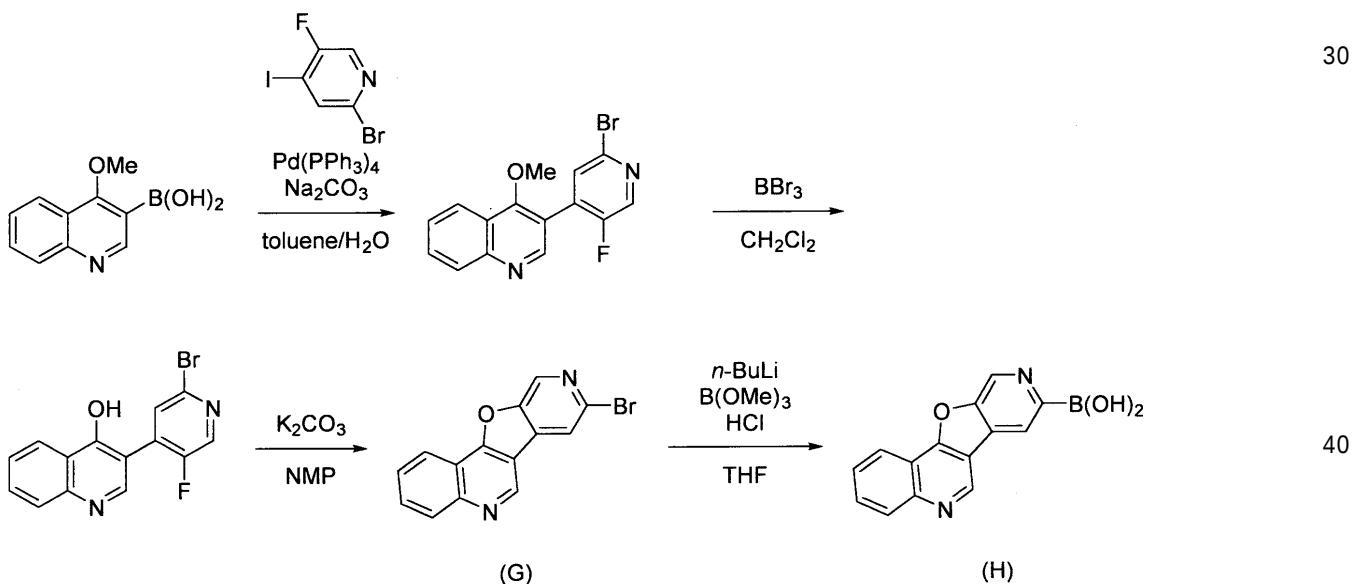
【 0 1 6 9 】

中間体 (B) の合成において、2 - メトキシキノリン - 3 - ボロン酸の代わりに 7 - メトキシイソキノリン - 8 - ボロン酸を用い、上記スキームに従って同様の方法で中間体 (E) と中間体 (F) を合成した。

【 0 1 7 0 】

合成例 4 (中間体 (G) 及び (H) の合成)

【 化 4 5 】



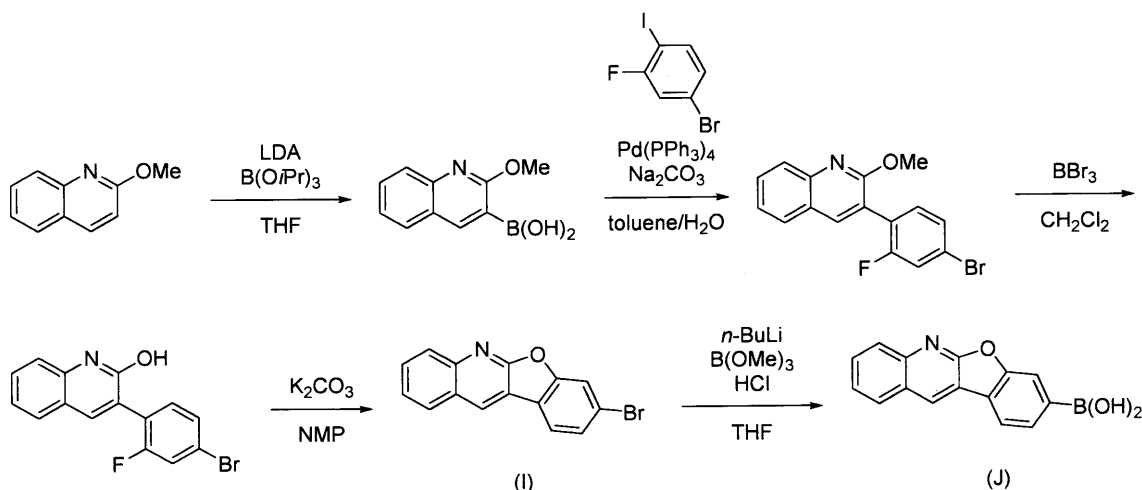
【 0 1 7 1 】

中間体 (D) の合成において、5 - プロモ - 2 - フルオロヨードベンゼンの代わりに 2 - プロモ - 5 - フルオロ - 4 - ヨードピリジンを用い、上記スキームに従って同様の方法で中間体 (G) と中間体 (H) を合成した。

【 0 1 7 2 】

合成例 5 (中間体 (I) 及び (J) の合成)

【化 4 6】



10

【 0 1 7 3】

中間体 (B) の合成において、5 - ブロモ - 2 - フルオロヨードベンゼンの代わりに 4 - ブロモ - 2 - フルオロヨードベンゼンを用い、上記スキームに従って同様の方法で中間体 (I) と中間体 (J) を合成した。

【 0 1 7 4】

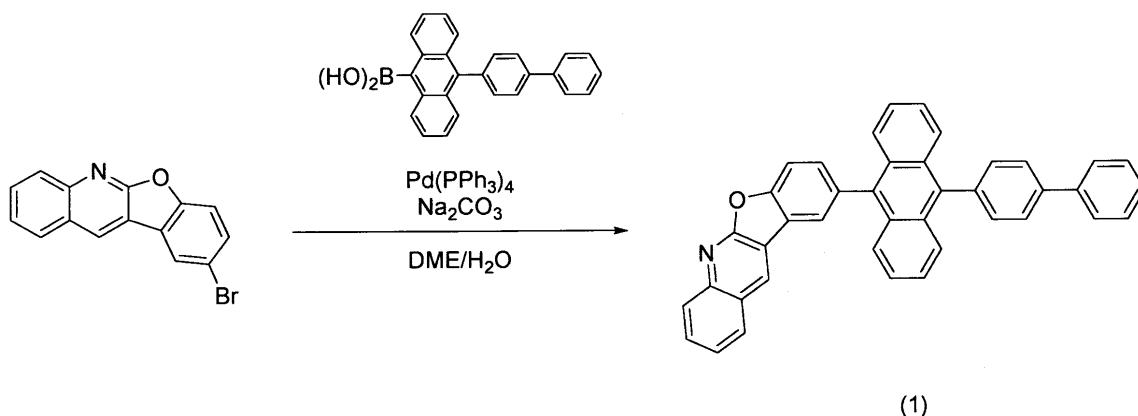
[アザナフトベンゾフラン誘導体の合成]

20

【 0 1 7 5】

合成例 6 (化合物 1 の合成)

【化 4 7】



30

【 0 1 7 6】

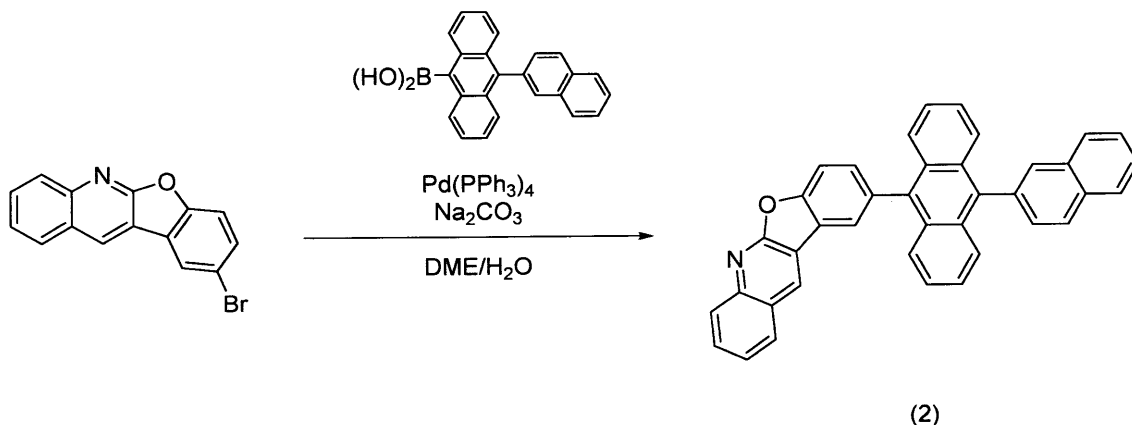
アルゴン雰囲気下、中間体 (A) (2 . 0 0 g , 6 . 7 1 m m o l)、10 - (4 - ビフェニル) アントラセン - 9 - ボロン酸 (2 . 5 1 g , 6 . 7 1 m m o l)、テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (3 8 8 m g , 0 . 3 3 6 m m o l)、1 , 2 - ジメトキシエタン (2 0 m L)、炭酸ナトリウム水溶液 (2 M , 2 0 m L) を混合し、8 時間加熱還流下で撹拌した。室温まで冷却後、析出した固体をろ別した。得られた固体を水、メタノールで洗浄した後、トルエンで再結晶し、化合物 1 (2 . 0 2 g , 3 . 6 9 m m o l) (収率 5 5 %) を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 5 4 7 . 6 6 に対し、 $m/e = 547$ であった。

40

【 0 1 7 7】

合成例 7 (化合物 2 の合成)

【化 4 8】



10

【 0 1 7 8 】

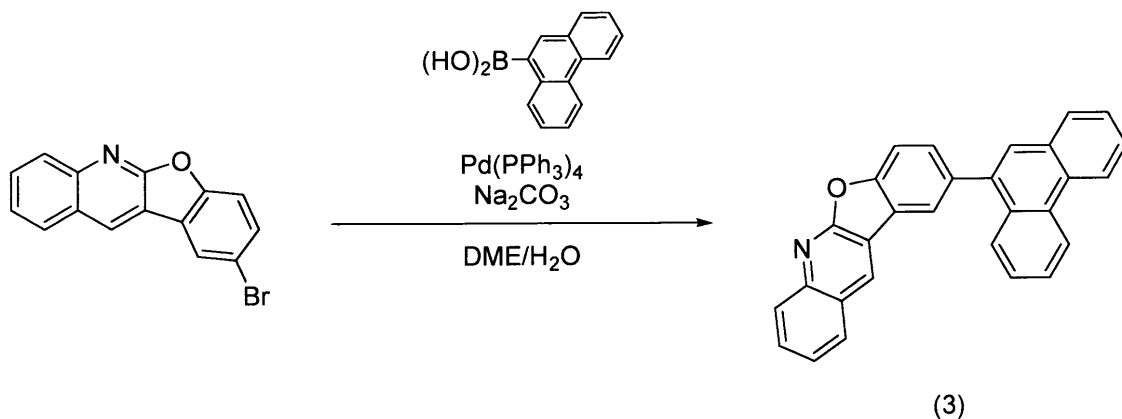
化合物 1 の合成において、10 - (4 - ビフェニル) アントラセン - 9 - ボロン酸の代わりに既知の方法で合成した 10 - (2 - ナフチル) アントラセン - 9 - ボロン酸を用いた他は同様に合成し、化合物 2 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 521.62 に対し、 $m/e = 521$ であった。

【 0 1 7 9 】

合成例 8 (化合物 3 の合成)

20

【化 4 9】



30

【 0 1 8 0 】

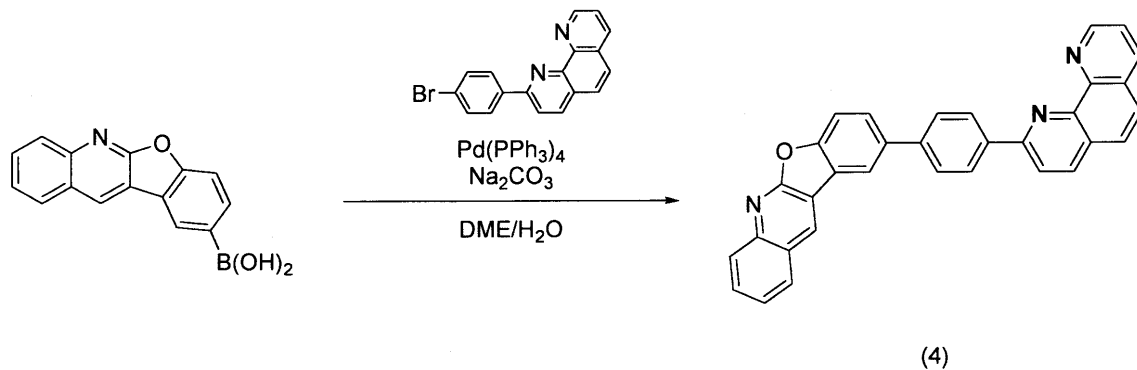
化合物 1 の合成において、10 - (4 - ビフェニル) アントラセン - 9 - ボロン酸の代わりに既知の方法で合成した 9 - フェナントレンボロン酸を用いた他は同様に合成し、化合物 3 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 395.46 に対し、 $m/e = 395$ であった。

【 0 1 8 1 】

合成例 9 (化合物 4 の合成)

40

【化 5 0】



50

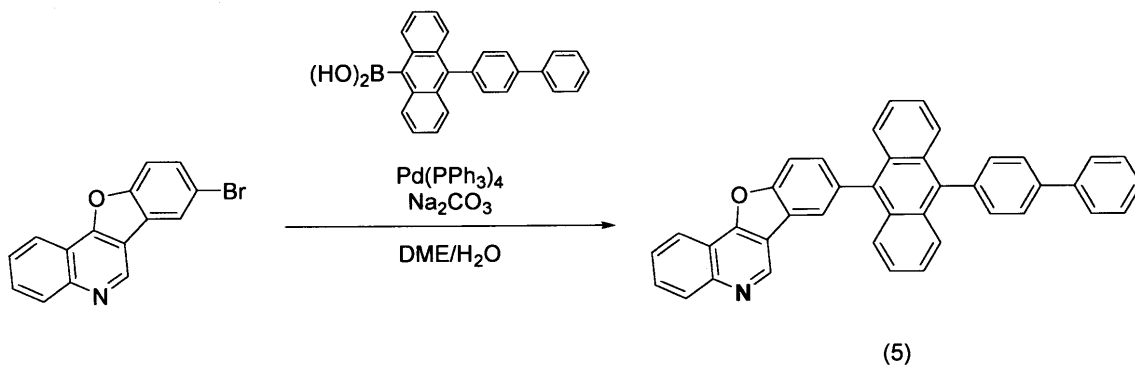
【 0 1 8 2 】

化合物 1 の合成において、中間体 A の代わりに既知の方法で合成した 2 - (4 - ブロモフェニル) - 1 , 1 0 - フェナントロリンを、10 - (4 - ビフェニル) アントラセン - 9 - ボロン酸の代わりに中間体 B を用いた他は同様に合成し、化合物 4 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 4 7 3 . 5 4 に対し、 $m/e = 473$ であった。

【 0 1 8 3 】

合成例 1 0 (化合物 5 の合成)

【 化 5 1 】



10

【 0 1 8 4 】

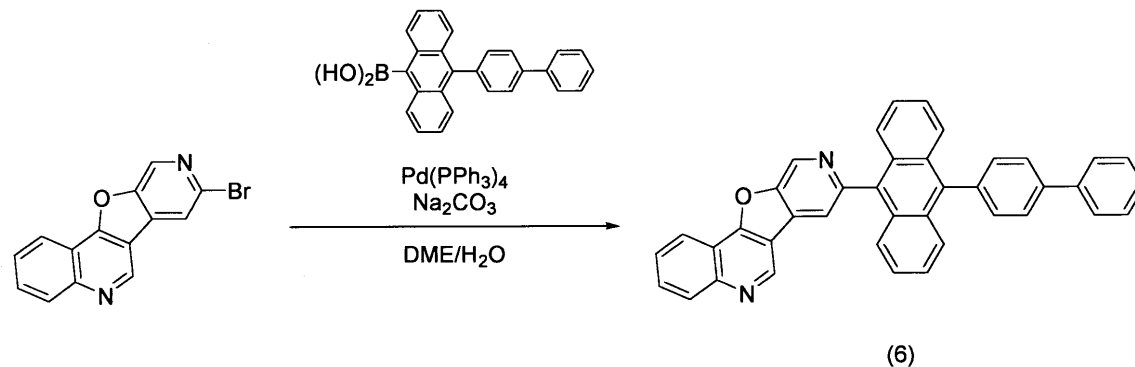
化合物 1 の合成において、中間体 A の代わりに中間体 C を用いた他は同様に合成し、化合物 5 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 5 4 7 . 6 6 に対し、 $m/e = 547$ であった。

20

【 0 1 8 5 】

合成例 1 1 (化合物 6 の合成)

【 化 5 2 】



30

【 0 1 8 6 】

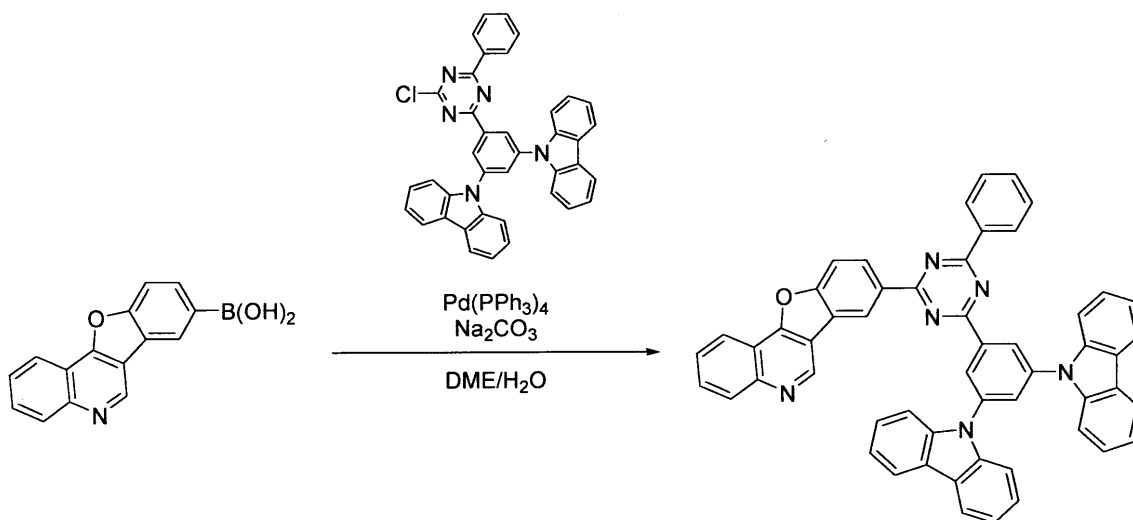
化合物 1 の合成において、中間体 A の代わりに中間体 G を用いた他は同様に合成し、化合物 6 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 5 4 8 . 6 4 に対し、 $m/e = 548$ であった。

40

【 0 1 8 7 】

合成例 1 2 (化合物 7 の合成)

【化 5 3】



10

(7)

【 0 1 8 8 】

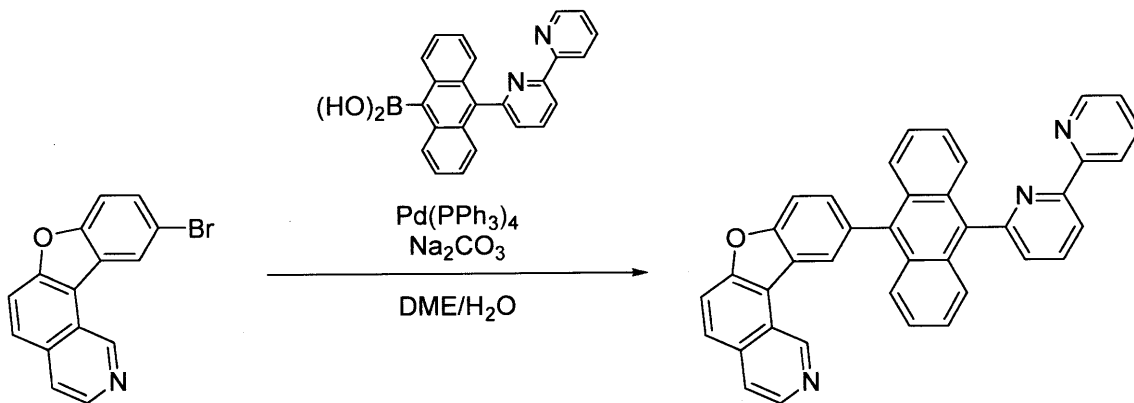
化合物 1 の合成において、中間体 A の代わりに既知の方法で合成した 2 - (3 , 5 - ビスカルバゾリルフェニル) - 4 - クロロ - 6 - フェニル - [1 , 3 , 5] トリアジン、10 - (4 - ビフェニル) アントラセン - 9 - ボロン酸の代わりに中間体 D を用いた他は同様に合成し、化合物 7 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 780.89 に対し、 $m/e = 780$ であった。

20

【 0 1 8 9 】

合成例 1 3 (化合物 8 の合成)

【化 5 4】



30

(8)

【 0 1 9 0 】

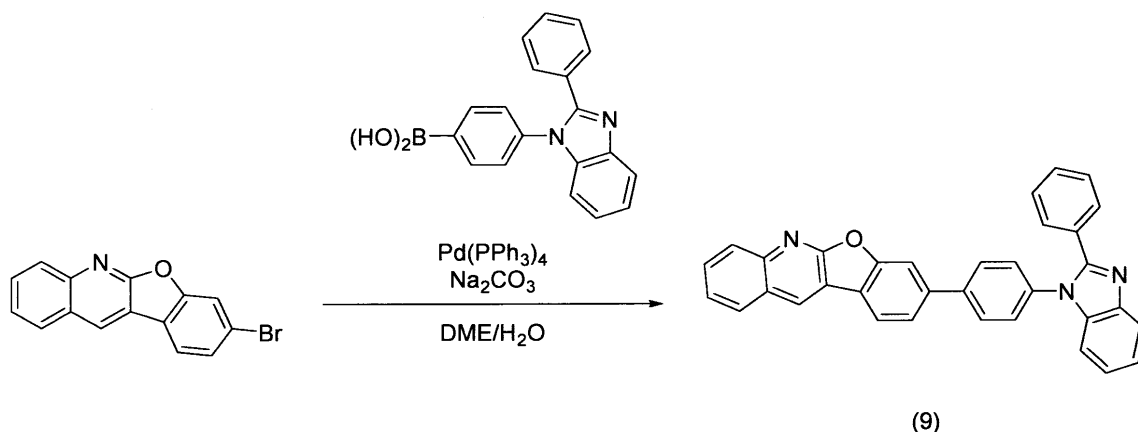
化合物 1 の合成において、中間体 A の代わりに中間体 E を、10 - (4 - ビフェニル) アントラセン - 9 - ボロン酸の代わりに既知の方法で合成した 10 - (2 , 2' - ビピリジン - 6 - イル) アントラセン - 9 - ボロン酸を用いた他は同様に合成し、化合物 8 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 780.89 に対し、 $m/e = 780$ であった。

40

【 0 1 9 1 】

合成例 1 4 (化合物 9 の合成)

【化 5 5】



10

【0192】

化合物 1 の合成において、中間体 A の代わりに中間体 I を、10 - (4 - ビフェニル)アントラセン - 9 - ボロン酸の代わりに既知の方法で合成した (4 - (2 - フェニル - 1H - ベンゾ [d] イミダゾル - 1 - イル)フェニル)ボロン酸を用いた他は同様に合成し、化合物 9 を得た。本化合物は、質量分析の結果、目的物であり、分子量 487.56 に対し、 $m/e = 487$ であった。

【0193】

20

[有機EL素子]

実施例 1

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極 (陽極) 付きガラス基板 (ジオマテック社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 60 nm の化合物 A - 1 を成膜した。A - 1 膜の成膜に続けて、この A - 1 膜上に膜厚 20 nm の A - 2 を成膜した。

【0194】

さらに、この A - 2 膜上に膜厚 40 nm で下記ホスト H - 1 とドーパント D - 1 を 40 : 2 の膜厚比で成膜し、発光層とした。発光層上に電子輸送層として上記合成例 8 で合成した化合物 3 を膜厚 20 nm で蒸着により成膜した。その後、LiF を膜厚 1 nm で成膜し、この LiF 膜上に金属 Al を 150 nm 蒸着させ金属陰極を形成することにより、有機 EL 素子を形成した。

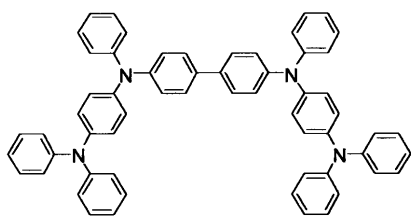
30

【0195】

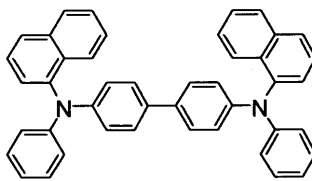
以上のように作製した有機 EL 素子を、10 mA / cm² の直流電流により発光させ、駆動電圧及び発光効率を測定した。また、初期輝度 1000 cd / m² で直流の連続通電試験を行って半減寿命を測定した。駆動電圧及び半減寿命の結果を表 1 に示す。

【0196】

【化 5 6】

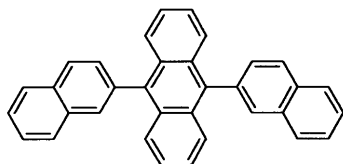


A-1

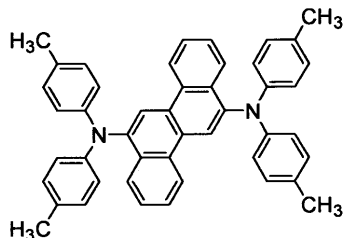


A-2

10



H-1



D-1

【 0 1 9 7】

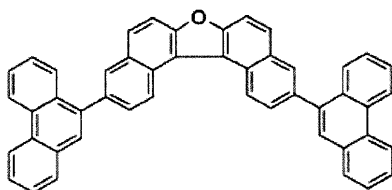
比較例 1

実施例 1 において、化合物 3 の代わりに下記構造の化合物 (A) を用いた以外は同様に
して有機 EL 素子を作製し、評価した。結果を表 1 に示す。

20

【 0 1 9 8】

【化 5 7】



(A)

30

【 0 1 9 9】

【表 1】

	電子輸送層	電圧 (V) (10mA/cm ² 時)	寿命 (h)	発光色
実施例 1	化合物 3	4.8	2000	青色
比較例 1	化合物 A	8.0	1000	青色

40

【 0 2 0 0】

以上より、本発明の化合物を用いると、有機 EL 素子の低電圧化を実現できることが分かる。比較例 1 で用いた化合物 (A) との比較により、アザ化されたナフトベンゾフラン誘導体を用いた有機 EL 素子の方が低電圧で動作する。

【 0 2 0 1】

実施例 2

実施例 1 と同様に、発光層までを成膜した。発光層上に電子輸送層として上記合成例 6 で合成した化合物 1 及びリチウム 8 - ヒドロキシキノレート (Li q) を、1 : 1 の膜厚比で共蒸着により、膜厚 35 nm で成膜した。この電子輸送層上に金属 Al を 80 nm 蒸

50

着させ金属陰極を形成することにより、有機ＥＬ素子を形成した。評価は、実施例１と同様に行った。駆動電圧及び発光効率の結果を表２に示す。

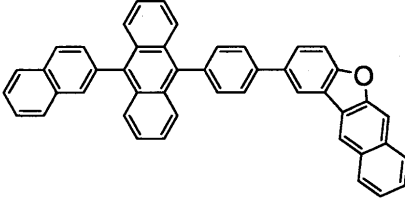
【０２０２】

比較例２

実施例２において、化合物１の代わりに下記構造の化合物（Ｂ）を用いた以外は同様にして有機ＥＬ素子を作製し、評価した。結果を表２に示す。

【０２０３】

【化５８】



(B)

【０２０４】

【表２】

	電子輸送層	電圧(V) (10mA/cm ² 時)	効率(%)	発光色
実施例２	化合物１	4.8	8.7	青色
比較例２	化合物Ｂ	6.1	7.9	青色

【０２０５】

以上より、ナフトベンゾフラン骨格をアザ化した、本発明の化合物を用いることにより、有機ＥＬ素子の低電圧化と高効率化を実現できることが分かる。

【０２０６】

上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

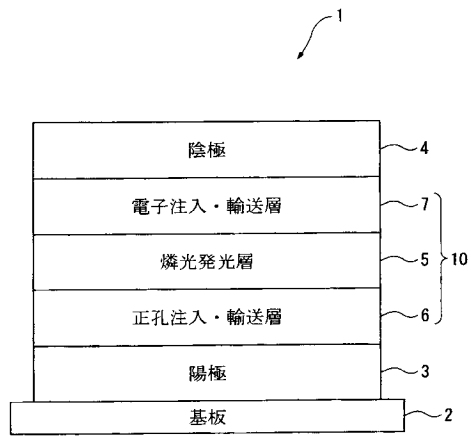
本願のパリ優先の基礎となる日本出願明細書の内容を全てここに援用する。

10

20

30

【 図 1 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2014/003116
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01L51/50, C09K11/06 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2014 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAPLUS/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2012/070226 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 31 May 2012 (31.05.2012), entire text & US 2013/0306958 A1 & EP 2644607 A1 & CN 103221407 A & TW 201229048 A	1-18
A	WO 2010/137285 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 02 December 2010 (02.12.2010), entire text & JP 5280526 B & JP 2013-209397 A & US 2012/0138914 A1 & EP 2436679 A1 & CN 102448945 A & TW 201105679 A & KR 10-2012-0038402 A	1-18
☒ 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 application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 14 August, 2014 (14.08.14)		Date of mailing of the international search report 26 August, 2014 (26.08.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/003116

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP 2013-232520 A (UDC Ireland Ltd.), 14 November 2013 (14.11.2013), paragraphs [0067], [0081] to [0082] (Family: none)	1,10-15,18
P,X	JP 2013-234183 A (Samsung Display Co., Ltd.), 21 November 2013 (21.11.2013), paragraphs [0129], [0135] to [0140], [0211] to [0238]; compounds 16 to 17 & US 2013/0292653 A1 & EP 2666768 A2 & KR 10-2013-0127567 A & CN 103382178 A & TW 201345896 A	1-2,10-13, 15-18
P,X	US 2014/0034915 A1 (SAMSUNG DISPLAY CO., LTD.), 06 February 2014 (06.02.2014), paragraphs [0060], [0062] to [0074], [0093]; compounds 50 to 56, 134 to 140 & CN 103570653 A	1-2,8-18

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 0 3 1 1 6	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2014年 日本国実用新案登録公報 1996-2014年 日本国登録実用新案公報 1994-2014年			
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) CAplus/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 請求項の番号	
A	W0 2012/070226 A1 (出光興産株式会社) 2012.05.31, 全文 & US 2013/0306958 A1 & EP 2644607 A1 & CN 103221407 A & TW 201229048 A	1-18	
A	W0 2010/137285 A1 (出光興産株式会社) 2010.12.02, 全文 & JP 5280526 B & JP 2013-209397 A & US 2012/0138914 A1 & EP 2436679 A1 & CN 102448945 A & TW 201105679 A & KR 10-2012-0038402 A	1-18	
☒ 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 「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 14.08.2014		国際調査報告の発送日 26.08.2014	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 大竹 秀紀 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 0 3 1 1 6
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 請求項の番号
P, X	JP 2013-232520 A (ユー・ディー・シー アイランド リミテッド) 2013.11.14, 段落【0067】、【0081】－【0082】 (ファミリーなし)	1, 10-15, 18
P, X	JP 2013-234183 A (三星ディスプレイ株式会社) 2013.11.21, 段落【0129】【0135】－【0140】、【0211】－【0238】、化合物16－17 & US 2013/0292653 A1 & EP 2666768 A2 & KR 10-2013-0127567 A & CN 103382178 A & TW 201345896 A	1-2, 10-13, 15-18
P, X	US 2014/0034915 A1 (SAMSUNG DISPLAY CO. LTD.,) 2014.02.06, 段落【0060】、【0062】－【0074】、【0093】、化合物50－56, 134－140 & CN 103570653 A	1-2, 8-18

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 519/00 3 0 1

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

(72)発明者 水木 由美子

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

(72)発明者 伊藤 裕勝

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

(72)発明者 羽毛田 匡

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

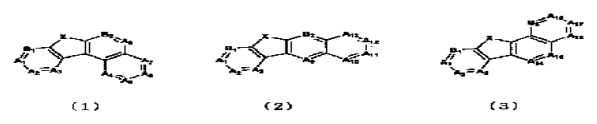
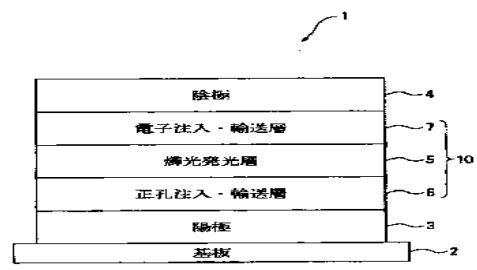
F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC04 CC12 DD53 DD59 DD64 DD66 DD67
DD68 DD69
4C050 AA01 AA07 AA08 BB07 CC07 CC16 DD07 EE01 EE02 FF05
GG01 HH01 HH04
4C072 MM08 UU10

(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，有机电致发光器件和使用其的电子器件		
公开(公告)号	JPWO2014199637A1	公开(公告)日	2017-02-23
申请号	JP2015522546	申请日	2014-06-11
[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	羽山友治 河村昌宏 水木由美子 伊藤裕勝 羽毛田匡		
发明人	羽山 友治 河村 昌宏 水木 由美子 伊藤 裕勝 羽毛田 匡		
IPC分类号	H01L51/50 C07D491/048 C07D491/147 C07D519/00		
CPC分类号	C07D491/048 C07D491/147 C07D519/00 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1029 C09K2211/1033 C09K2211/1037 C09K2211/1044 C09K2211/1048 C09K2211/1059 C09K2211/1062 C09K2211/1088 C09K2211/1092 H01L51/0052 H01L51/0072 H01L51/0073 H01L51/5012 C09K2211/1014 H01L51/0054 H01L51/0058 H01L51/006 H01L51/0067 H01L51/0071 H01L51/5016 H01L51/5072		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/22.D H05B33/22.B C07D491/048 C07D491/147 C07D519/00.301		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC04 3K107/CC12 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD66 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 4C050/AA01 4C050/AA07 4C050/AA08 4C050/BB07 4C050/CC07 4C050/CC16 4C050/DD07 4C050/EE01 4C050/EE02 4C050/FF05 4C050/GG01 4C050/HH01 4C050/HH04 4C072/MM08 4C072/UU10		
代理人(译)	佐藤 猛		
优先权	2013122806 2013-06-11 JP		
其他公开文献	JP6157617B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

用于有机电致发光器件的材料，其包含由式(1)至(3)中的任何一个表示的化合物。



- 2 Substrate
- 3 Positive electrode
- 4 Negative electrode
- 5 Phosphorescent layer
- 6 Hole injection/transport layer
- 7 Electron injection/transport layer