

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02012/090967

発行日 平成26年6月5日(2014.6.5)

(43) 国際公開日 平成24年7月5日(2012.7.5)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	3K107
C09K 11/06 (2006.01)	H05B 33/22 D	4C050
C07D 519/00 (2006.01)	H05B 33/22 B	4C072
C07D 491/048 (2006.01)	C09K 11/06 660	
	C09K 11/06 690	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 83 頁) 最終頁に続く		

出願番号	特願2012-550954 (P2012-550954)	(71) 出願人	000183646
(21) 国際出願番号	PCT/JP2011/080133		出光興産株式会社
(22) 国際出願日	平成23年12月26日(2011.12.26)		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2010-293899 (P2010-293899)	(74) 代理人	100078732
(32) 優先日	平成22年12月28日(2010.12.28)		弁理士 大谷 保
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(74) 代理人	100135758
			弁理士 伊藤 高志
		(72) 発明者	沼田 真樹
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		Fターム(参考)	3K107 AA01 BB01 BB02 CC04 CC12
			CC22 DD53 DD59 DD64 DD67
			DD68 DD69 DD71 DD75 DD76
			DD78
			4C050 AA01 AA07 BB07 CC16 EE01
			FF01 GG04 HH02 HH04
			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】

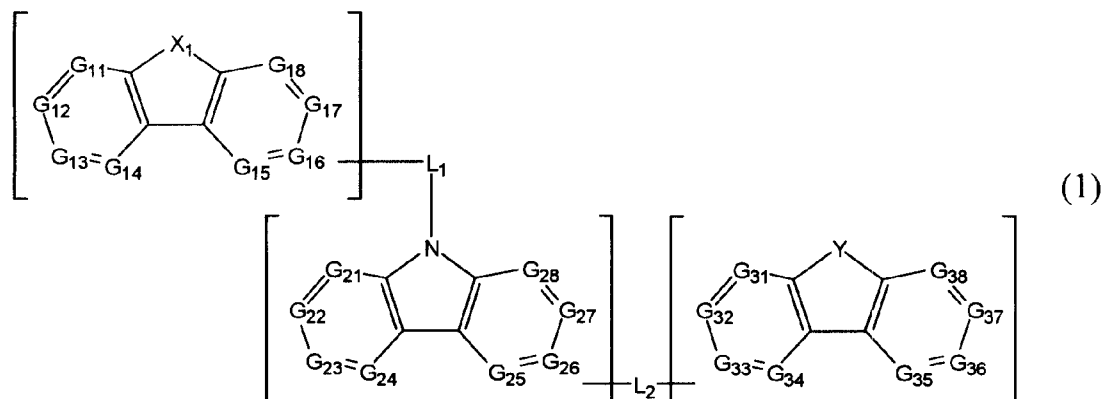
ジベンゾフラン、カルバゾールまたはジベンゾチオフェン骨格の芳香族環にヘテロ原子として窒素原子を有する部分構造を有する特定の構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、及び陰極と陽極との間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、該発光層が燐光発光性材料を含有し、前記有機薄膜層の少なくとも一層が、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子により、低電圧で駆動しても、外部量子効率が高くかつ長寿命な有機EL素子及びそれを実現する有機EL素子用材料を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式(1)で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 1】



10

(一般式(1)において、

$G_{11} \sim G_{18}$ の少なくとも1つは窒素原子を表し、それ以外のうち1つは L_1 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_1)$ を表す。

$G_{21} \sim G_{28}$ のうち1つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_2)$ 又は窒素原子を表す。

$G_{31} \sim G_{38}$ のうち1つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_3)$ 又は窒素原子を表す。

$R_1 \sim R_3$ は互いに独立して、水素原子、炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数3～20の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、環形成炭素数3～20の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルコキシ基、環形成炭素数6～18の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数5～18の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数6～18の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数0～20の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数0～30の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよい。

$R_1 \sim R_3$ の置換基は、それぞれ独立に、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、環形成炭素数3～20のシクロアルコキシ基、環形成炭素数6～18のアリール基、環形成原子数5～18のヘテロアリール基、環形成炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数0～20のアミノ基、炭素数0～30のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

X_1 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_4)-$ を表す。

R_4 は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリール基を表す。

L_1 は、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基(但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの2価基は除く)を表す。

L_2 は、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、環形成炭素数6～18のアリーレン基、環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基、窒素原子を含む2価の連結基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、又は硫黄原子を含む2価の連結基を表す。

Y は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(-L_3-R_5)-$ を表す。

L_3 は、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロア

40

50

リーレン基を表す。

R_5 は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリール基を表す。

但し、 X_1 が酸素原子又は硫黄原子である場合、 $G_{11} \sim G_{18}$ のいずれか1つのみが窒素原子を表す。また、 X_1 が $-N(R_4)-$ である場合、 Y は $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、かつ、 R_2 及び R_3 は水素原子を表す。)

【請求項2】

前記一般式(1)において、 G_{14} が窒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。

10

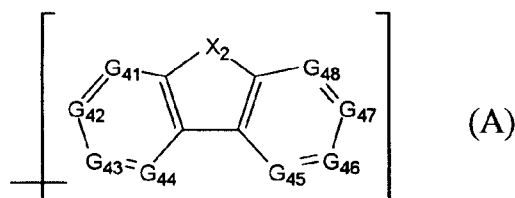
【請求項3】

前記一般式(1)において、 X_1 が酸素原子又は硫黄原子を表す請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項4】

前記一般式(1)において、 Y が $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、 R_5 が下記一般式(A)で表されるヘテロアリール基を表す請求項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2】



20

(一般式(A)において、

$G_{41} \sim G_{48}$ のうち1つは L_3 と結合する炭素原子を表し、それ以外は窒素原子又はC(R_6)を表す。

R_6 は、水素原子、炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数3～20の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルコキシ基、環形成炭素数3～20の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、環形成炭素数6～18の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数5～18の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数6～18の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数0～20の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数0～30の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の R_6 は、互いに同一でも異なってもよい。

30

R_6 の置換基は、それぞれ独立に、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、環形成炭素数3～20のシクロアルコキシ基、環形成炭素数6～18のアリール基、環形成原子数5～18のヘテロアリール基、環形成炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数0～20のアミノ基、炭素数0～20のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

40

X_2 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_7)-$ を表す。

R_7 は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリール基を表す。)

【請求項5】

前記一般式(1)において、 Y が酸素原子又は硫黄原子である請求項1～4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6】

50

前記一般式(1)において、 G_{16} が L_1 と結合する炭素原子を表す請求項1~5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7】

前記一般式(1)において、 L_1 が単結合、環形成炭素数6~18のアリーレン基、又は環形成原子数5~18のヘテロアリーレン基(但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの2価基は除く)を表す請求項1~6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 L_1 が環形成炭素数6~18のアリーレン基、又は環形成原子数5~18のヘテロアリーレン基(但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの2価基は除く)を表す請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

10

【請求項9】

前記 L_1 がフェニレン基を表す請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項10】

前記一般式(1)において、 L_2 が炭素数1~20のアルキレン基、環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、又は硫黄原子を含む2価の連結基を表す請求項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。

20

【請求項11】

前記一般式(1)において、 X_1 が $-N(R_4)-$ を表す請求項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。

【請求項12】

前記一般式(1)において、 G_{26} 及び G_{33} が L_2 と結合する炭素原子を表す請求項1~11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13】

前記一般式(1)において、 $G_{31} \sim G_{38}$ 及び $G_{41} \sim G_{48}$ のうち、少なくとも1つが窒素原子を表す請求項1~12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用材料。

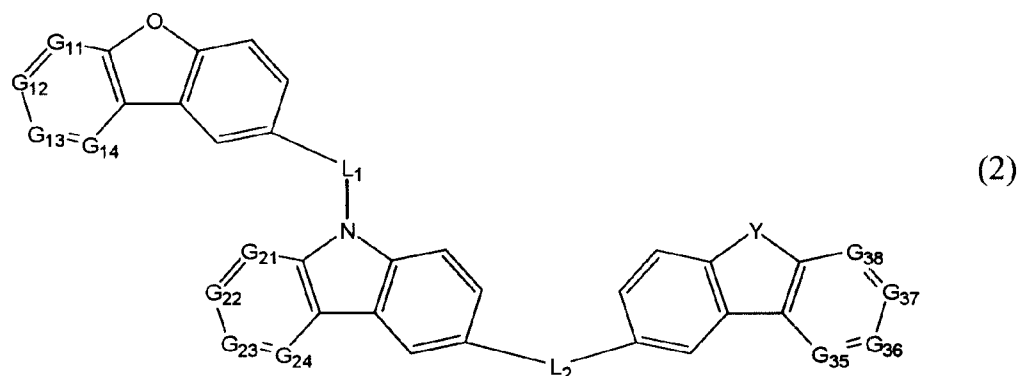
。

【請求項14】

下記一般式(2)で表される請求項1~13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用材料。

30

【化3】



40

(一般式(2)において、

$G_{11} \sim G_{14}$ のうち1つは窒素原子を表し、それ以外は $C(R_1)$ を表す。

$G_{21} \sim G_{24}$ は $C(R_2)$ 又は窒素原子を表す。

$G_{35} \sim G_{38}$ は $C(R_3)$ 又は窒素原子を表す。

$R_1 \sim R_3$ は互いに独立して、水素原子、炭素数1~20のアルキル基、環形成炭素数3

50

～ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ～ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ～ 18 のヘテロアリール基を表す。

L_1 は、単結合、環形成炭素数 6 ～ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ～ 18 のヘテロアリーレン基（但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの 2 価基は除く）を表す。

L_2 は、単結合、環形成炭素数 6 ～ 18 のアリーレン基、環形成原子数 5 ～ 18 のヘテロアリーレン基、窒素原子を含む 2 価の連結基、酸素原子を含む 2 価の連結基、ケイ素原子を含む 2 価の連結基、リン原子を含む 2 価の連結基、又は硫黄原子を含む 2 価の連結基を表す。

Y は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(-L_3-R_5)-$ を表す。

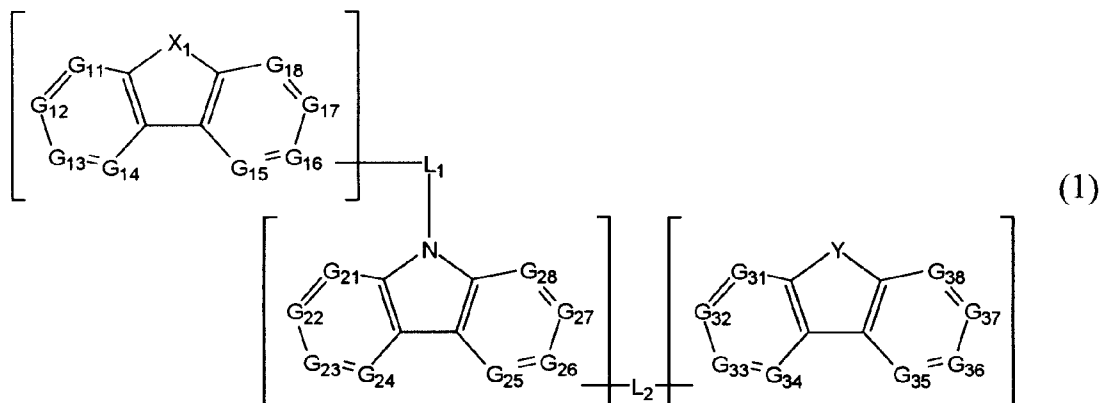
L_3 は、単結合、環形成炭素数 6 ～ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ～ 18 のヘテロアリーレン基を表す。

R_5 は、水素原子、炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ～ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ～ 18 のヘテロアリール基を表す。）

【請求項 15】

陰極と陽極との間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、該発光層が燐光発光性材料を含有し、該有機薄膜層の少なくとも一層が、下記一般式 (1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 4】



(一般式 (1) において、

$G_{11} \sim G_{18}$ の少なくとも 1 つは窒素原子を表し、それ以外のうち 1 つは L_1 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_1)$ を表す。

$G_{21} \sim G_{28}$ のうち 1 つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_2)$ 又は窒素原子を表す。

$G_{31} \sim G_{38}$ のうち 1 つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_3)$ 又は窒素原子を表す。

$R_1 \sim R_3$ は互いに独立して、水素原子、炭素数 1 ～ 20 の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、炭素数 1 ～ 20 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、環形成炭素数 6 ～ 18 の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数 5 ～ 18 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ～ 18 の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数 0 ～ 20 の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数 0 ～ 30 の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよい。

$R_1 \sim R_3$ の置換基は、それぞれ独立に、炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ～ 20 のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ～ 20 のシ

クロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

X_1 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_4)-$ を表す。

R_4 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。

L_1 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基（但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの 2 価基は除く）を表す。

L_2 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基、窒素原子を含む 2 価の連結基、酸素原子を含む 2 価の連結基、ケイ素原子を含む 2 価の連結基、リン原子を含む 2 価の連結基、又は硫黄原子を含む 2 価の連結基を表す。

Y は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(-L_3-R_5)-$ を表す。

L_3 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基を表す。

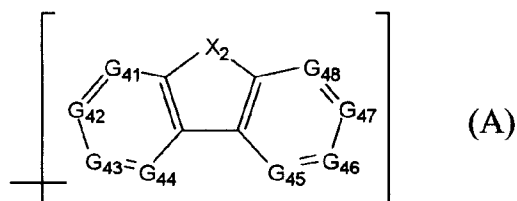
R_5 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。

但し、 X_1 が酸素原子又は硫黄原子である場合、 $G_{11} \sim G_{18}$ のいずれか 1 つのみが窒素原子を表す。また、 X_1 が $-N(R_4)-$ である場合、 Y は $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、かつ、 R_2 及び R_3 は水素原子を表す。）

【請求項 16】

前記一般式 (1) において、 Y が $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、 R_5 が下記一般式 (A) で表されるヘテロアリール基を表す請求項 15 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 5】



(一般式 (A) において、

$G_{41} \sim G_{48}$ のうち 1 つは L_3 と結合する炭素原子を表し、それ以外は窒素原子又は $C(R_6)$ を表す。

R_6 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の R_6 は、互いに同一でも異なってもよい。

R_6 の置換基は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロ

アルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

X_2 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_7)-$ を表す。

R_7 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。)

【請求項 17】

前記陽極と前記発光層との間に正孔輸送帯域を有し、前記発光層または該正孔輸送帯域が上記一般式 (1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項 15 又は 16 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 18】

前記発光層と前記陰極との間に電子輸送帯域を有し、該電子輸送帯域が上記一般式 (1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項 15 又は 16 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 19】

前記発光層が上記一般式 (1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項 15 又は 16 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 20】

前記陰極と前記電子輸送帯域との界面領域に電子供与性ドーパントを有する請求項 18 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項 21】

前記電子輸送帯域が電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素複素環誘導体を含む請求項 18 又は 20 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 22】

前記燐光発光性材料が、イリジウム (Ir)、オスミウム (Os) または白金 (Pt) から選ばれる金属を含む化合物である請求項 15 ~ 21 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】

30

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子 (以下、エレクトロルミネッセンスを EL と略記することがある) 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あるいは燐光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。低電圧駆動の積層型有機 EL 素子が報告されて以来、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。この積層型素子では、トリス (8 - キノリノラト) 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ブ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。

40

【0003】

有機 EL 素子の発光材料としてはトリス (8 - キノリノラト) アルミニウム錯体等のキ

50

レート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている。

従来、有機EL素子の発光材料として一重項励起子により発光する蛍光発光材料が用いられているが、近年、蛍光発光材料に加えて三重項励起子により発光する燐光発光材料利用することも提案されている。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一重項励起子と三重項励起子とが1:3の割合で生成すると考えられているので、燐光発光材料を用いた有機EL素子は、蛍光発光材料のみを使った有機EL素子に比べて3~4倍の発光効率を達成し得る。

10

【0004】

しかしながら、青色燐光発光では、高効率かつ長寿命の達成が困難であり、燐光発光性ドーパントの周辺に存在するホスト材料、正孔輸送材料、電子輸送材料については、高い発光内部量子効率のために、高い三重項励起エネルギーを有し、ワイドギャップにより発光性ドーパントの励起子のエネルギー的閉じ込めが出来ること、高い電力変換効率のために、高いキャリア注入性・輸送性を有し、低電圧駆動が可能であること、長寿命化のために、高い化学的・熱的安定性を有することなどが望まれている。また、材料の構造最適化によって素子性能最適化を行う場合、構造修飾と性能(具体的には主にキャリアバランス)変調の対応の単純性が材料に備わっていると材料検討において格段に利便性が高い。

20

【0005】

特許文献1及び2にはカルバゾール環を有する化合物が開示されているが、環中に不飽和の窒素原子を含むものは記載されていない。

また、特許文献3~5にはジベンゾフランやジベンゾチオフェンの環中に不飽和の窒素原子を含む環と、複数のカルバゾール環が9位の窒素原子と3位の炭素原子で連なって結合する構造が開示されており、該構造を用いることにより酸化還元電位を減少させ、且つ、電気化学的安定性を改善できるという旨が記載されている。しかしながら、ジベンゾフランやジベンゾチオフェンの環中に不飽和の窒素原子を含む環を用いた化合物については、化合物の物性やそれを用いた素子性能についての記載は無い。

特許文献6にはジベンゾフランやジベンゾチオフェンの環中に不飽和の窒素原子を含む環と、それらを結合させる中心の連結基とが、炭素原子同士で結合した化合物が開示されている。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開2008-135498

【特許文献2】特開2008-294161

【特許文献3】国際公開WO2009/086028

【特許文献4】米国公開公報US2009/153034

【特許文献5】米国公開公報US2009/134784

【特許文献6】特開2008-074939

40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は、上記課題を解決するためになされたもので、低電圧で駆動しても、外部量子効率が高くかつ長寿命な有機EL素子及びそれを実現する有機EL素子用材料を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、下記一般式(1)で表される化合物が、有機EL素子材料として用いた場合に、低電圧で駆動しても高い効率

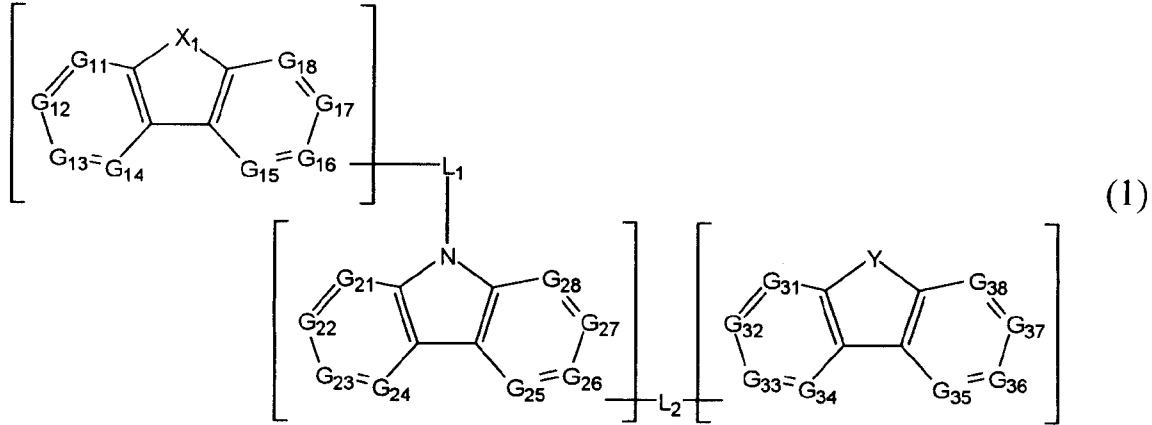
50

で燐光発光を生じさせ、かつ素子の長寿命化を達成できることを見出し、本発明を解決するに至った。

【 0 0 0 9 】

すなわち、本発明は、下記式 (1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供する。

【 化 1 】



10

【 0 0 1 0 】

20

(一般式 (1) において、

$G_{11} \sim G_{18}$ の少なくとも 1 つは窒素原子を表し、それ以外のうち 1 つは L_1 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_1)$ を表す。

$G_{21} \sim G_{28}$ のうち 1 つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_2)$ 又は窒素原子を表す。

$G_{31} \sim G_{38}$ のうち 1 つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_3)$ 又は窒素原子を表す。

$R_1 \sim R_3$ は互いに独立して、水素原子、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよい。

30

$R_1 \sim R_3$ の置換基は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

40

X_1 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_4)-$ を表す。

R_4 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。

L_1 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基 (但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの 2 価基は除く) を表す。

L_2 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基、窒素原子を含む 2 価の連結基、酸素原子を含む 2 価の連結基、ケイ素原子を含む

50

2 価の連結基、リン原子を含む 2 価の連結基、又は硫黄原子を含む 2 価の連結基を表す。

Y は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(-L_3-R_5)-$ を表す。

L_3 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基を表す。

R_5 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。 R_5 は、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、環形成炭素数 5 ~ 6 のシクロアルキル基、フェニル基、環形成原子数 6 ~ 14 のヘテロアリール基、であることがより好ましい。

10

但し、 X_1 が酸素原子又は硫黄原子である場合、 $G_{11} \sim G_{18}$ のいずれか 1 つのみが窒素原子を表す。また、 X_1 が $-N(R_4)-$ である場合、Y は $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、かつ、 R_2 及び R_3 は水素原子を表す。)

【0011】

さらに、本発明は、陰極と陽極との間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、該発光層が燐光発光性材料を含有し、該有機薄膜層の少なくとも一層が、上記一般式 (1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子をも提供する。

【発明の効果】

【0012】

本発明によれば、低電圧で駆動しても、外部量子効率が高くかつ長寿命な有機 EL 素子及びそれを実現する有機 EL 素子用材料を提供することができる。

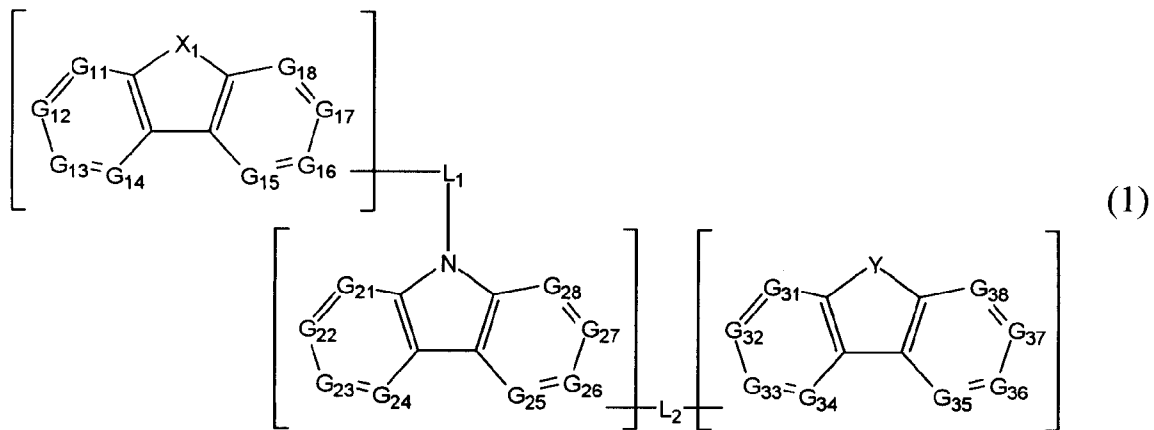
20

【発明を実施するための形態】

【0013】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、下記式 (1) で表される。

【化 2】



30

【0014】

(一般式 (1) において、

$G_{11} \sim G_{18}$ の少なくとも 1 つは窒素原子を表し、それ以外のうち 1 つは L_1 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_1)$ を表す。

$G_{21} \sim G_{28}$ のうち 1 つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_2)$ 又は窒素原子を表す。

$G_{31} \sim G_{38}$ のうち 1 つは L_2 と結合する炭素原子を表し、それ以外は $C(R_3)$ 又は窒素原子を表す。

$R_1 \sim R_3$ は互いに独立して、水素原子、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置

40

50

換のアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよい。

$R_1 \sim R_3$ の置換基は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

10

X_1 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_4)-$ を表す。

R_4 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。

L_1 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基（但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの 2 価基は除く）を表す。

L_2 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基、窒素原子を含む 2 価の連結基、酸素原子を含む 2 価の連結基、ケイ素原子を含む 2 価の連結基、リン原子を含む 2 価の連結基、又は硫黄原子を含む 2 価の連結基を表す。

20

Y は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(-L_3-R_5)-$ を表す。

L_3 は、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリーレン基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリーレン基を表す。

R_5 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。

但し、 X_1 が酸素原子又は硫黄原子である場合、 $G_{11} \sim G_{18}$ のいずれか 1 つのみが窒素原子を表す。また、 X_1 が $-N(R_4)-$ である場合、 Y は $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、かつ、 R_2 及び R_3 は水素原子を表す。）

30

【0015】

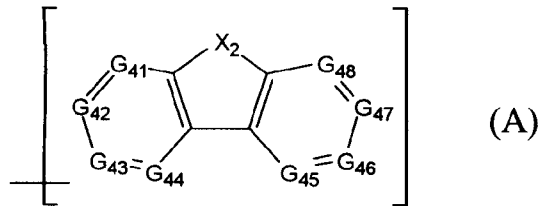
特に式 (1) のように、（アザ化された）カリバゾリル基の N 位（9 位）でアザ化されたカルバゾリル基、アザ化されたジベンゾフラニル基あるいはアザ化されたジベンゾチオフェニル基が直接又は結合基を介して結合することで、アザ化されたカルバゾール骨格、アザ化されたジベンゾフラン骨格あるいはアザ化されたジベンゾチオフェン骨格の LUM O 準位が深くなり、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いた有機 EL 素子の発光層などへの電子の注入が容易になる。これにより、キャリアバランス調整を容易とすることが可能となり、本発明の効果が良好に奏される。

【0016】

40

前記一般式 (1) において、 Y が $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、 R_5 が環形成原子数 6 ~ 14 のヘテロアリール基を表すことが好ましい。さらに、前記一般式 (1) において、 Y が $-N(-L_3-R_5)-$ を表し、 R_5 が下記一般式 (A) で表されるヘテロアリール基を表すことが特に好ましい。

【化 3】



【0017】

10

(一般式 (A) において、

$G_{41} \sim G_{48}$ のうち 1 つは L_3 と結合する炭素原子を表し、それ以外は窒素原子又は C (R_6) を表す。

R_6 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 の置換もしくは無置換のシクロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 の置換もしくは無置換のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 の置換もしくは無置換のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 の置換もしくは無置換のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基を表し、複数の R_6 は、互いに同一でも異なってもよい。

20

R_6 の置換基は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 20 のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

R_6 のうち、0 ~ 4 個が水素原子以外の上記置換もしくは無置換の置換基を表すことが好ましく、0 ~ 2 個が水素原子以外の上記置換もしくは無置換の置換基を表すことが特に好ましい。また、 R_6 のいずれか 1 つ以上が上記置換された置換基である場合、 R_6 のうち 1 ~ 2 個が置換された置換基を表すことが好ましい。

30

R_6 の置換基は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルコキシ基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 0 ~ 30 のアミノ基、炭素数 0 ~ 30 のシリル基、フルオロ基、又はシアノ基である。

X_2 は、酸素原子、硫黄原子又は $-N(R_7)-$ を表す。

R_7 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6 ~ 18 のアリール基、又は環形成原子数 5 ~ 18 のヘテロアリール基を表す。)

【0018】

40

一方、前記一般式 (1) において Y が酸素原子又は硫黄原子であると、 $-N(R_4)-$ である場合に比べて、本発明の効果を損なうことなく分子量を小さくでき、素子作製時の蒸着に要する温度を低くすることができるため、材料の熱分解に対する負担を軽減することが出来る。

【0019】

また、前記一般式 (1) において、 X_1 が $-N(R_4)-$ であると、 X_1 が酸素原子や硫黄原子の場合よりもイオン化ポテンシャルが浅くなり、本発明の効果を損なうことなくホール注入性、ホール輸送性に優れるため好ましい。

【0020】

$G_{11} \sim G_{18}$ のうち、1 ~ 4 個が窒素原子であることが好ましく、1 個又は 2 個が窒素原

50

子であることが特に好ましい。また、 G_{14} が窒素原子であることが好ましく、さらに $G_{11} \sim G_{13}$ がC(R_1)であることがより好ましい。

$G_{21} \sim G_{28}$ のうち、0～2個が窒素原子であることが好ましく、0個又は1個が窒素原子であることが特に好ましい。

$G_{31} \sim G_{38}$ のうち、0～2個が窒素原子であることが好ましく、0個又は1個が窒素原子であることが特に好ましい。

$G_{41} \sim G_{48}$ のうち、少なくとも1個が窒素原子であることが好ましく、0～4個が窒素原子であることがより好ましく、0～2個が窒素原子であることが特に好ましい。

【0021】

$R_1 \sim R_7$ のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 s -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 n -ノニル基、 n -デシル基、 n -ウンデシル基、 n -ドデシル基、 n -トリデシル基、 n -テトラデシル基、 n -ペンタデシル基、 n -ヘキサデシル基、 n -ヘプタデシル基、 n -オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基等が挙げられ、このうち炭素数1～6のものが好ましい。

【0022】

$R_1 \sim R_7$ のシクロアルキル基の例としては、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、ノルボルニル基、アダマンチル基等が挙げられ、このうち環形成炭素数5又は6のものが好ましい。

$R_1 \sim R_7$ のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基等が挙げられ、炭素数が3以上のものは直鎖状、環状又は分岐を有するものでもよく、このうち炭素数1～6のものが好ましい。

【0023】

$R_1 \sim R_7$ のシクロアルコキシ基としては、シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等が挙げられ、このうち環形成炭素数5又は6のものが好ましい。

$R_1 \sim R_7$ のアリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基、メシチル基、 o -ビフェニル基、 m -ビフェニル基、 p -ビフェニル基、 o -ターフェニル基、 m -ターフェニル基、 p -ターフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、トリフェニレン基などが挙げられる。中でもフェニル基が好ましい。

$R_1 \sim R_7$ のアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ビフェニルオキシ基等が挙げられ、フェノキシ基が好ましい。

【0024】

$R_1 \sim R_7$ のヘテロアリール基としては、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、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、インドリル基、ベンゾフリル基、ベンゾチオフェニル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ピリミジル基、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、アザフェナントレン基、フェナントロリン基が挙げられ、このうち環形成原子数6～14のものが好ましい。

$R_1 \sim R_7$ のアミノ基及びシリル基は既述のように置換基で置換されていてもよい。置換シリル基としては、トリメチルシリル基が好ましい。

【0025】

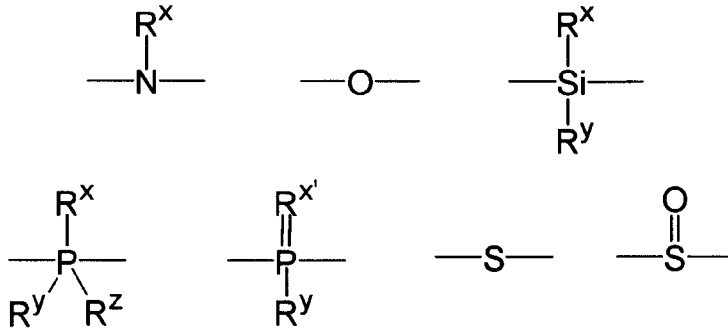
$L_1 \sim L_3$ のアルキレン基、環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、環形成炭素数6～18のアリーレン基、環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基としては、 $R_1 \sim R_7$ の対応する基の1つの水素原子を結合手で置き換えたものが挙げられる。また、本発明においてはアリーレン基には9,9-フルオレニリデン基も含まれる。

アリーレン基としては後述する他、 p -フェニレン基、 m -フェニレン基、ビフェニレン基が好適であり、アミノ基としては後述する他、ビフェニルアミノ基が好適である。

【0026】

L_2 の、窒素原子を含む2価の連結基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、硫黄原子を含む2価の連結基としては、下記のような基が挙げられる。

【化4】



10

(上記各式中、 R^x 、 R^y 及び R^z はそれぞれ独立に、水素原子又は既述の置換基Rから選ばれる基である。また、 $R^{x'}$ は酸素である。)上記の中でも「-S-」基、ホスホキシド基、エーテル基が好ましい。

【0027】

L_1 及び L_3 は、互いに独立して、単結合、環形成炭素数6～18のアリーレン基、環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基であると好ましく、より好ましくは単結合、フェニレン基、又は環形成原子数6～14のヘテロアリーレン基である。 L_1 が環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基(但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフエンの2価基は除く)であることにより、本発明の効果を損なうことなく、分子が取り得るコンフォメーション数が増すことでアモルファス性が高くなり、素子の欠陥や短寿命原因となりやすい結晶化を抑制し易いため好ましい。

20

L_2 は、単結合、窒素原子を含む2価の連結基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、硫黄原子を含む2価の連結基、環形成炭素数6～18のアリーレン基、環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基であると好ましく、より好ましくは単結合、窒素原子を含む2価の連結基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、硫黄原子を含む2価の連結基、フェニレン基、又は環形成原子数6～14のヘテロアリーレン基である。 L_2 が炭素数1～20のアルキレン基、環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、又は硫黄原子を含む2価の連結基であると、これら連結基が非共役性の構造であるために三重項エネルギーがワイドギャップとなり、発光ドーバントの三重項励起子に対する閉じ込め効果がより大きくなり高効率化に有利となる。このことはまた、より高エネルギーの発光波長(短波長)の発光ドーバントの選択を可能にするため好ましい。

30

【0028】

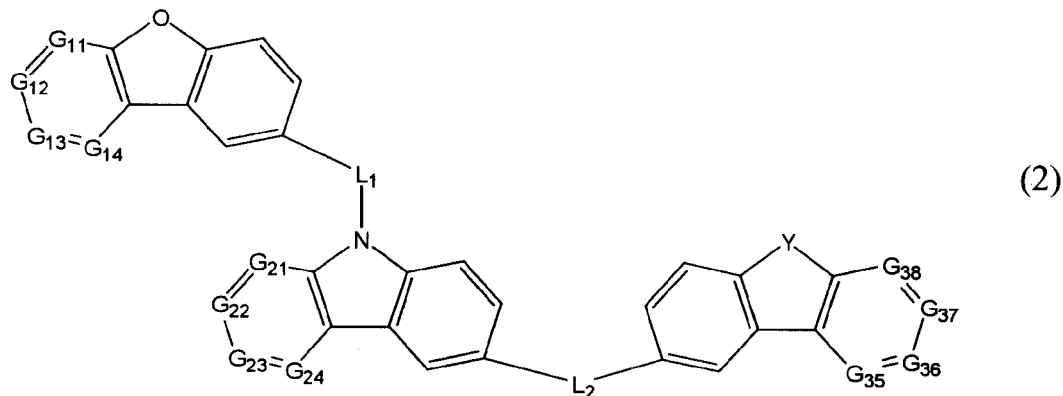
本発明の有機EL素子用材料は、りん光発光性材料と共に用いるホスト材料、正孔輸送材料または電子輸送材料であることが好ましい。より好ましくはホスト材料または発光層に直接隣接する正孔輸送材料または発光層に直接隣接する電子輸送材料であることが好ましい。また、三重項のエネルギーレベルが2.5 eV以上であることが好ましく、2.8 eV以上であることがより好ましい。

40

【0029】

本発明の有機EL素子用材料は、下記式(2)で表されるものであることが好ましい。

【化 5】



10

(一般式(2)において、

$G_{11} \sim G_{14}$ のうち1つは窒素原子を表し、それ以外はC(R_1)を表す。

$G_{21} \sim G_{24}$ はC(R_2)又は窒素原子を表す。

$G_{35} \sim G_{38}$ はC(R_3)又は窒素原子を表す。

$R_1 \sim R_3$ は互いに独立して、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリール基を表す。

20

L_1 は、単結合、環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基(但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの2価基は除く)を表す。

L_2 は、単結合、環形成炭素数6～18のアリーレン基、環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基、窒素原子を含む2価の連結基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、又は硫黄原子を含む2価の連結基を表す。

Yは、酸素原子、硫黄原子又は-N($-L_3-R_5$)-を表す。

L_3 は、単結合、環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基を表す。

30

R_5 は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリール基を表す。)

【0030】

また、本発明の有機EL素子用材料においては、以下の態様が好ましい。

(1) G_{16} が L_1 と結合する炭素原子を表す。

(2) L_1 が単結合、環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基(但し、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェンの2価基は除く)を表す。特に、 L_1 がフェニレン基を表す。

40

(3) L_2 が単結合、酸素原子、環形成炭素数6～18のアリーレン基、又は環形成原子数5～18のヘテロアリーレン基を表す。

(4) X_1 が硫黄原子又は酸素原子を表す。特に、 X_1 が酸素原子を表す。

(5) G_{26} 及び G_{33} が L_2 と結合する炭素原子を表す。

(6) $G_{31} \sim G_{38}$ 及び $G_{41} \sim G_{48}$ のうち、少なくとも1つが窒素原子を表す。

(7) L_2 が炭素数1～20のアルキレン基、環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、酸素原子を含む2価の連結基、ケイ素原子を含む2価の連結基、リン原子を含む2価の連結基、又は硫黄原子を含む2価の連結基を表す。

【0031】

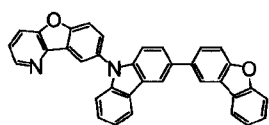
本発明の一般式(1)で表される有機EL素子用材料の具体例を以下に示すが、本発明

50

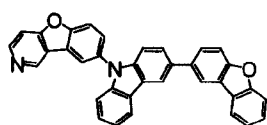
は、これら例示化合物に限定されるものではない。なお、下記具体例に示されている置換基は、本発明において好ましい置換基として挙げることができる。

【 0 0 3 2 】

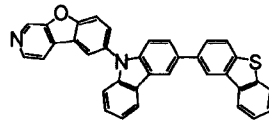
【 化 6 】



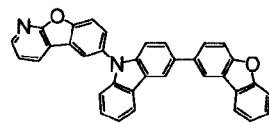
H-1



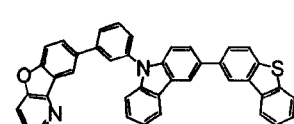
H-2



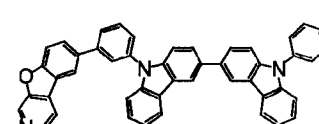
H-3



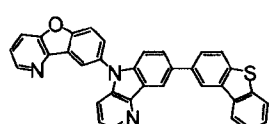
H-4



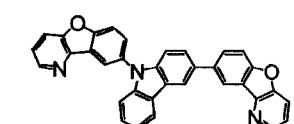
H-5



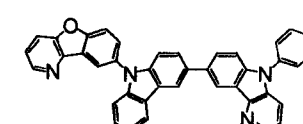
H-6



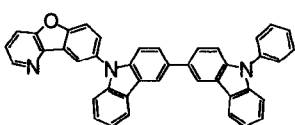
H-7



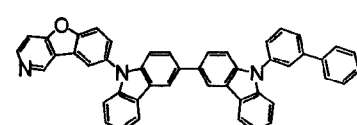
H-8



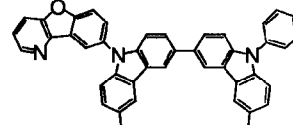
H-9



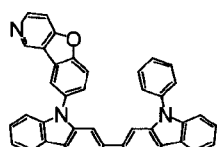
H-10



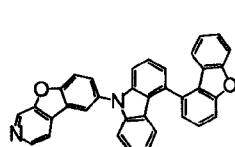
H-11



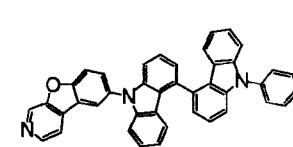
H-12



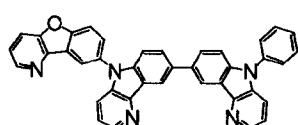
H-13



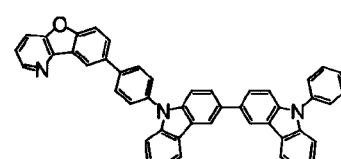
H-14



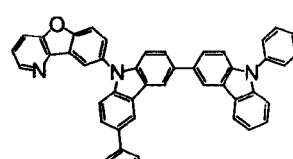
H-15



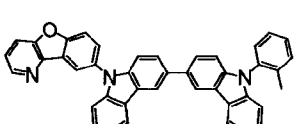
H-16



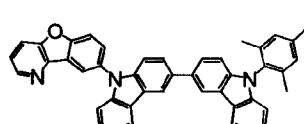
H-17



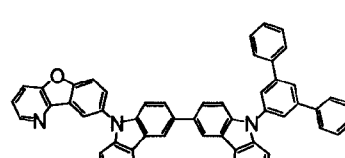
H-18



H-19



H-20



H-21

10

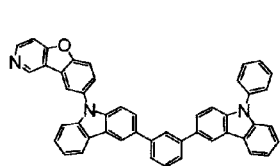
20

30

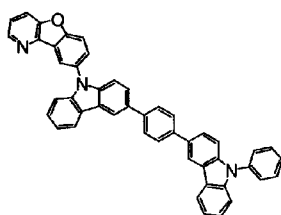
40

【 0 0 3 3 】

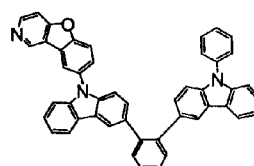
【化 7】



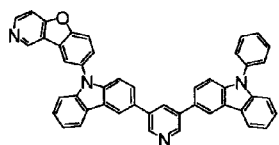
H-22



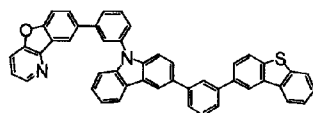
H-23



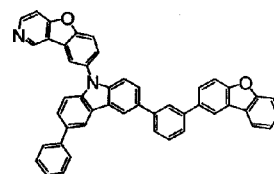
H-24



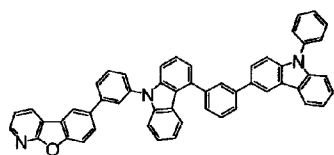
H-25



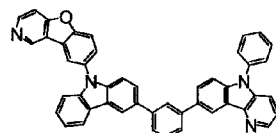
H-26



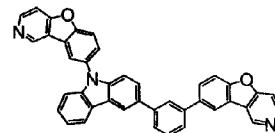
H-27



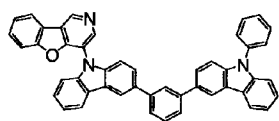
H-28



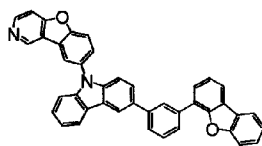
H-29



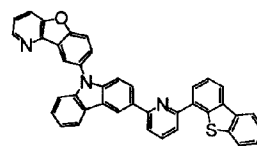
H-30



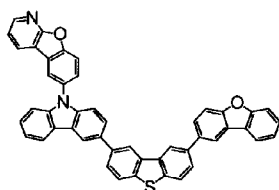
H-31



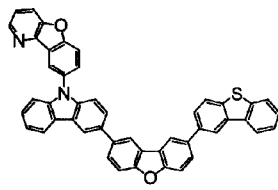
H-32



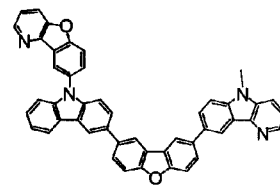
H-33



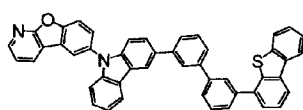
H-34



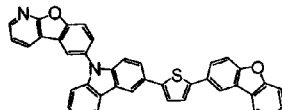
H-35



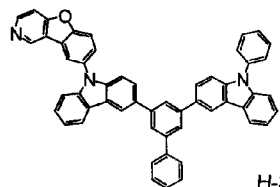
H-36



H-37



H-38



H-39

【 0 0 3 4 】

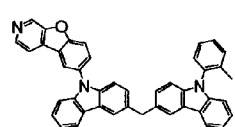
10

20

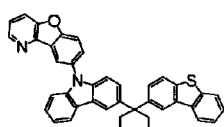
30

40

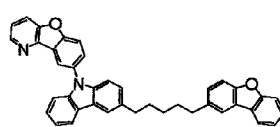
【化 8】



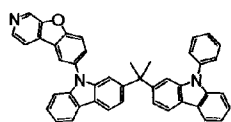
H-40



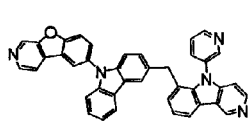
H-41



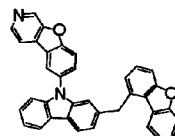
H-42



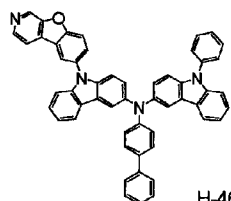
H-43



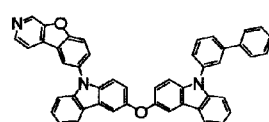
H-44



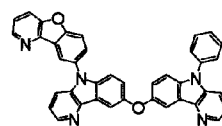
H-45



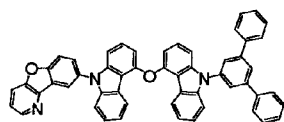
H-46



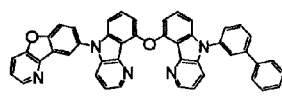
H-47



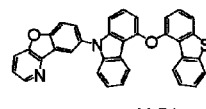
H-48



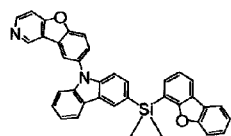
H-49



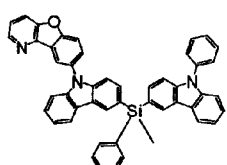
H-50



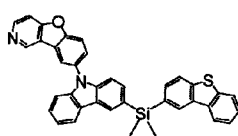
H-51



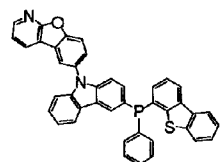
H-52



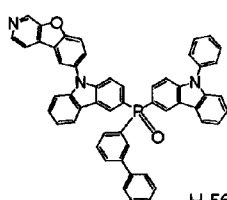
H-53



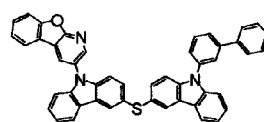
H-54



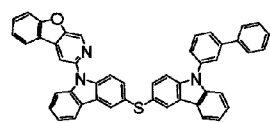
H-55



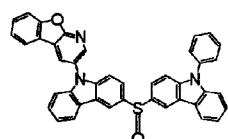
H-56



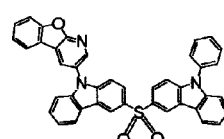
H-57



H-58



H-59



H-60

10

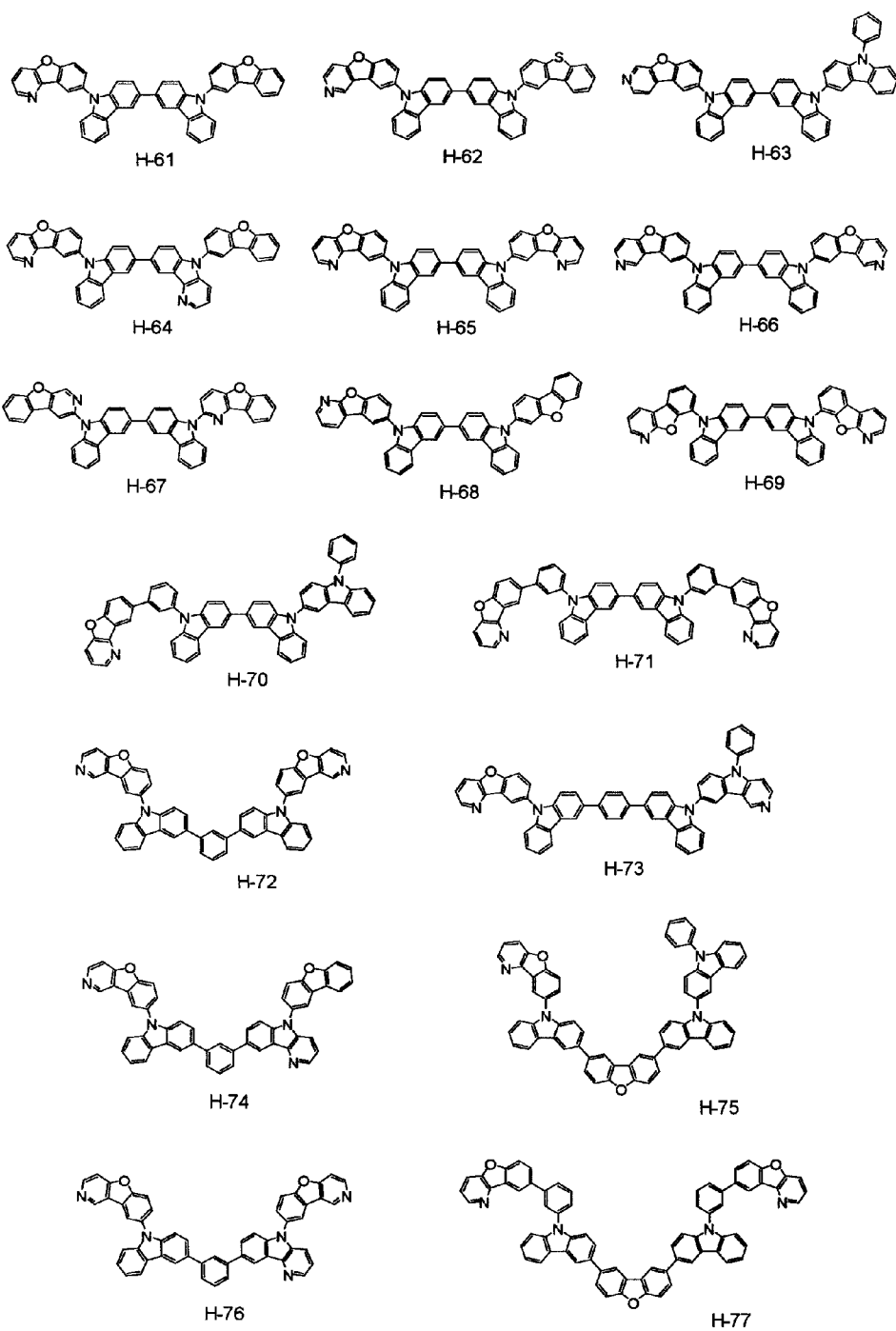
20

30

40

【 0 0 3 5 】

【化 9】



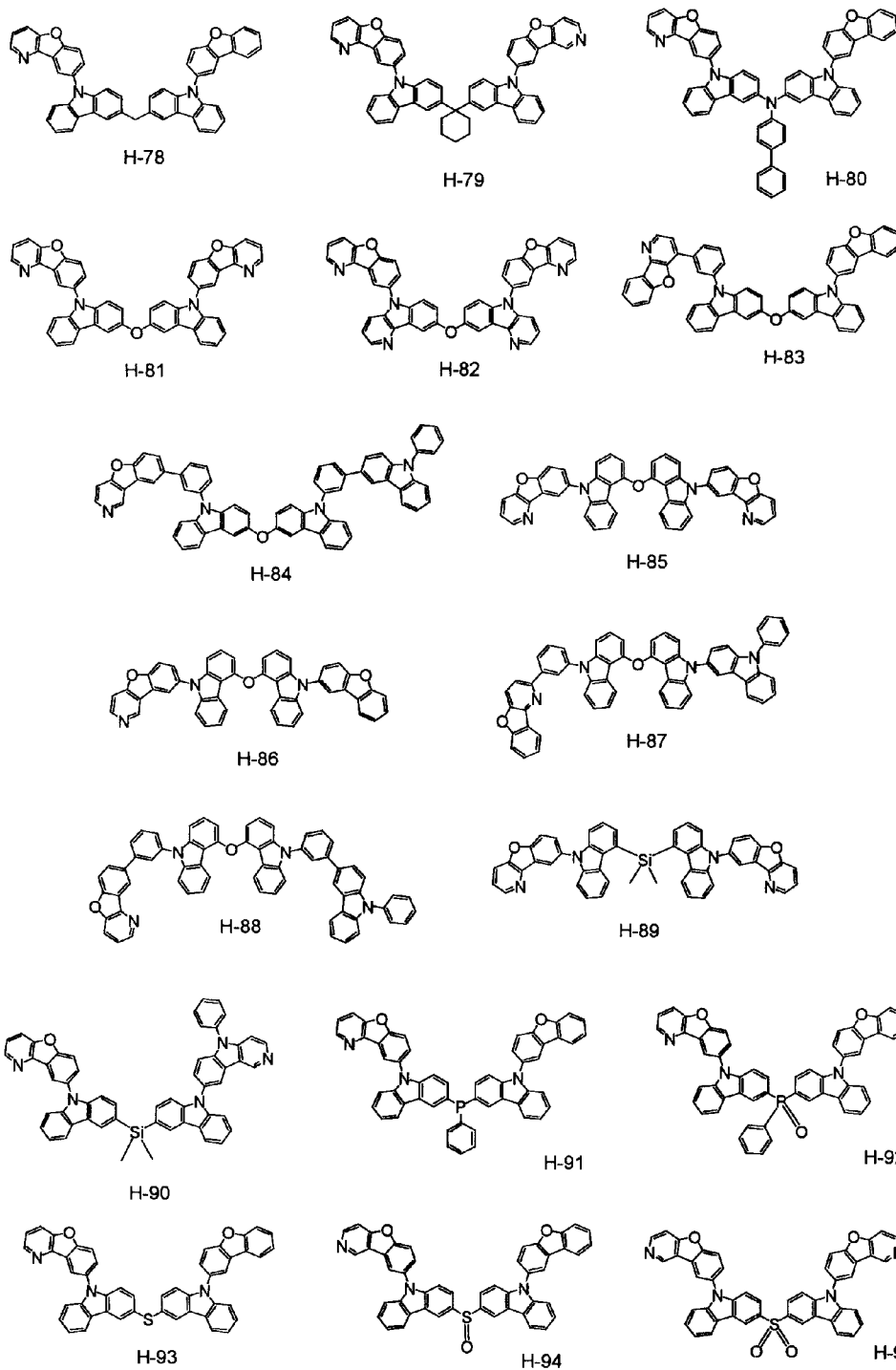
10

20

30

【 0 0 3 6 】

【化 1 0】



10

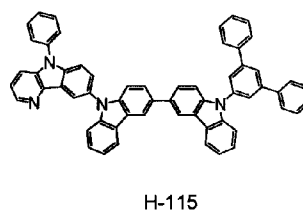
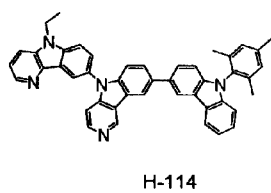
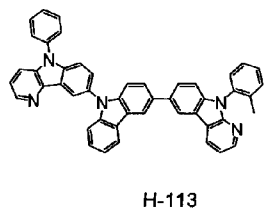
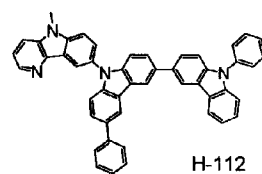
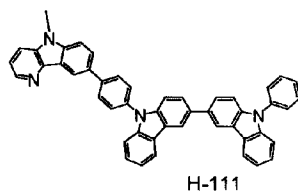
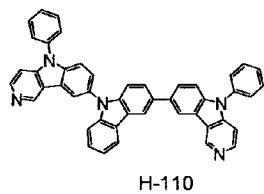
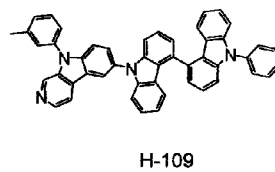
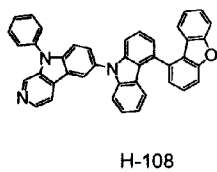
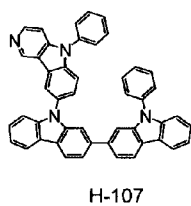
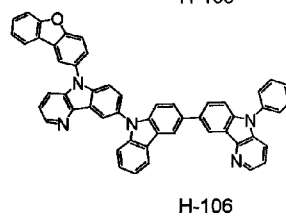
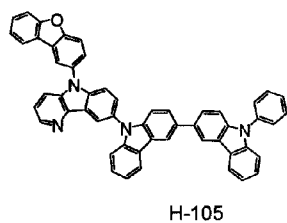
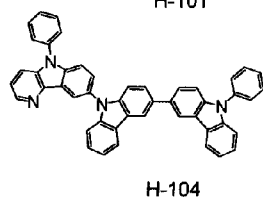
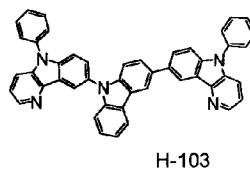
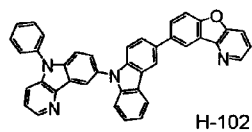
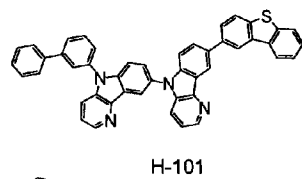
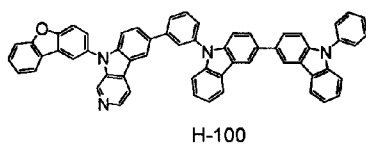
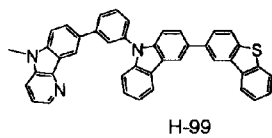
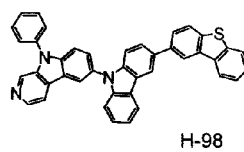
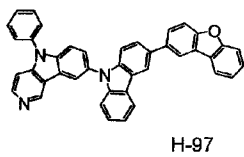
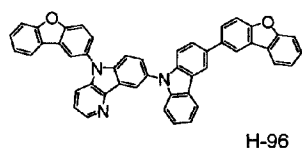
20

30

40

【 0 0 3 7 】

【化 1 1】



10

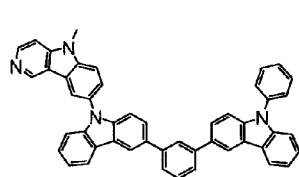
20

30

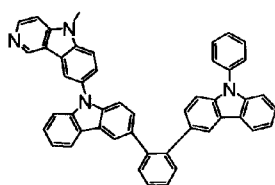
40

【 0 0 3 8 】

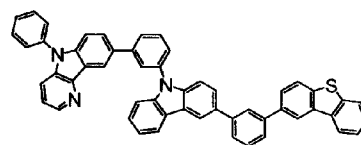
【化 1 2】



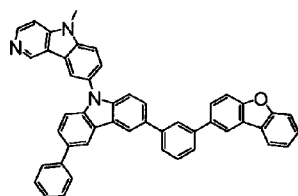
H-116



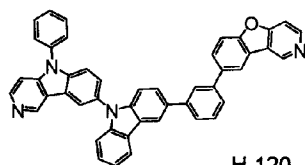
H-117



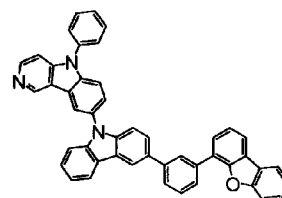
H-118



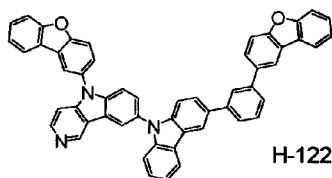
H-119



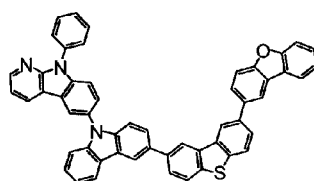
H-120



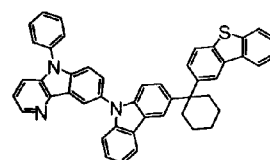
H-121



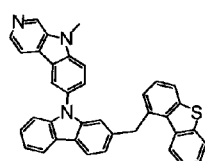
H-122



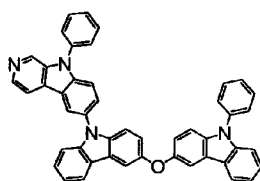
H-123



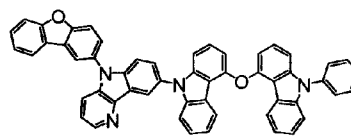
H-124



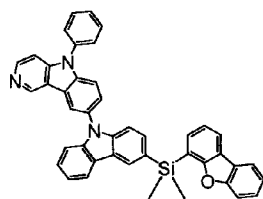
H-125



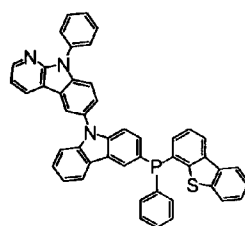
H-126



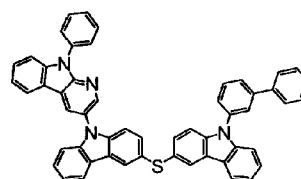
H-127



H-128



H-129



H-130

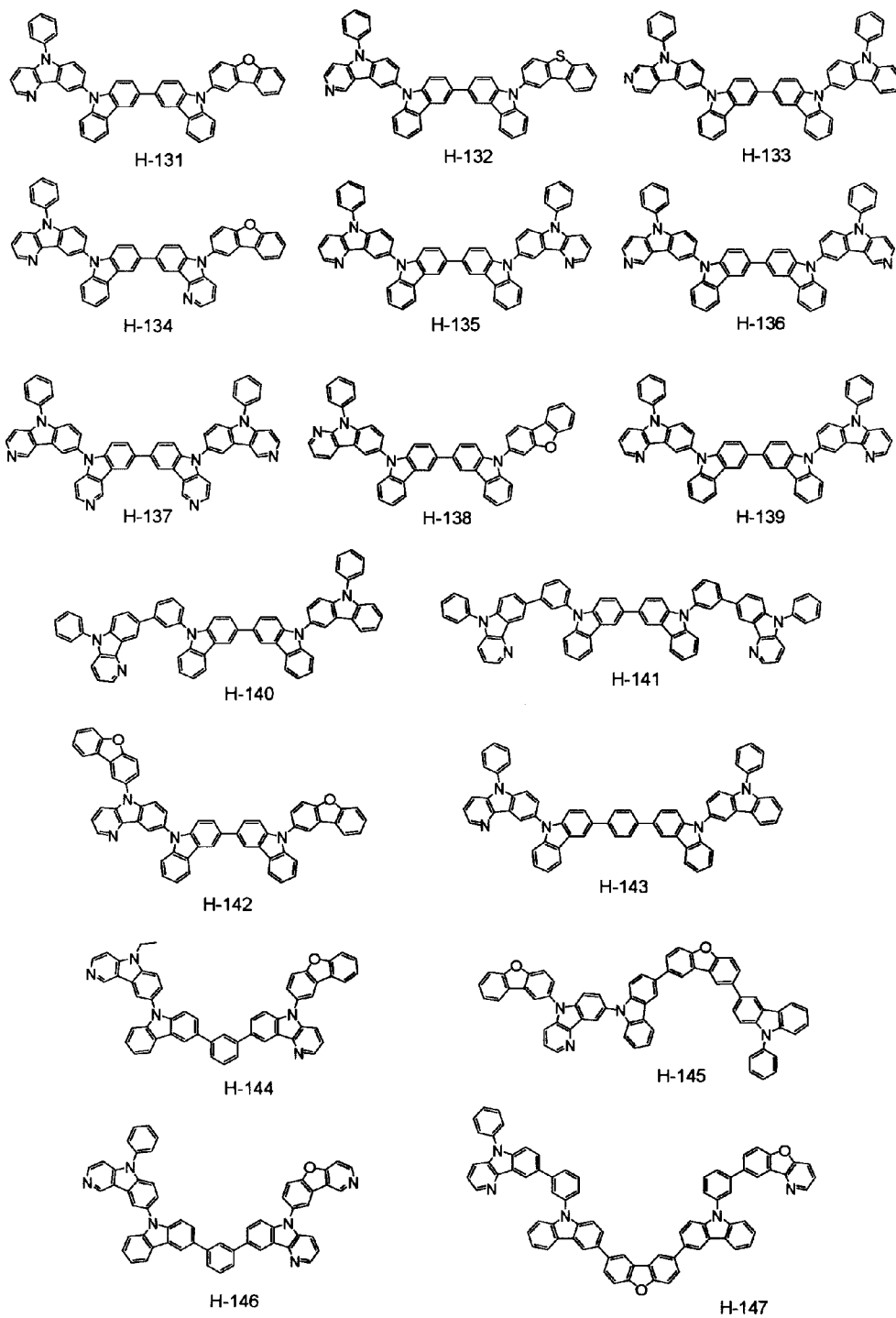
10

20

30

【 0 0 3 9 】

【化 1 3】



10

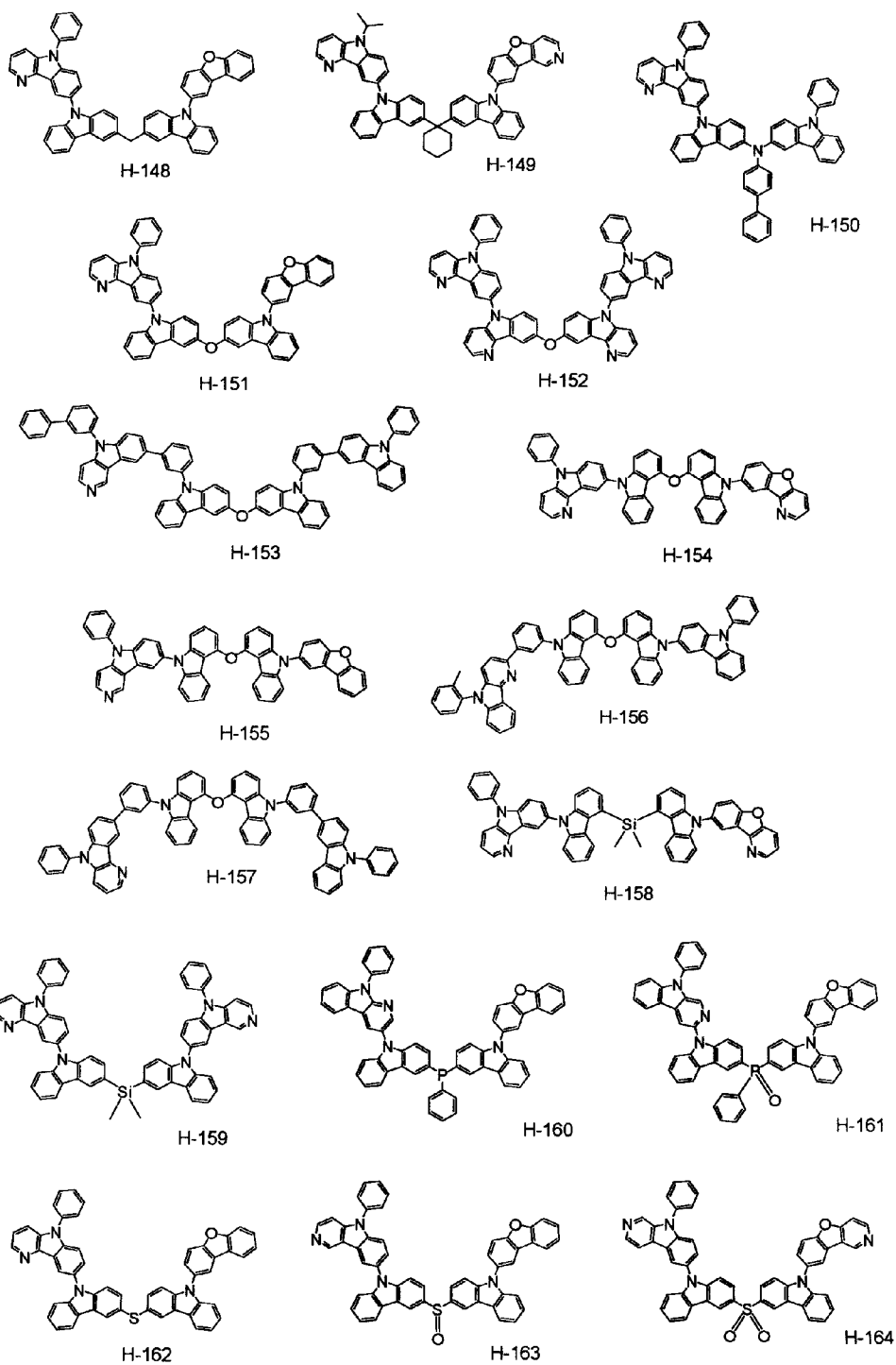
20

30

40

【 0 0 4 0 】

【化 1 4】



10

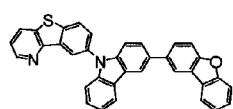
20

30

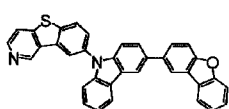
40

【 0 0 4 1】

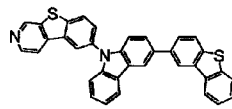
【化 1 5】



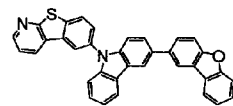
H-165



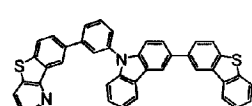
H-166



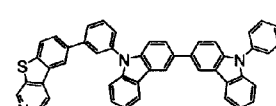
H-167



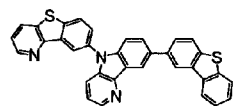
H-168



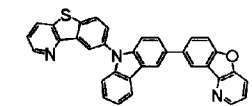
H-169



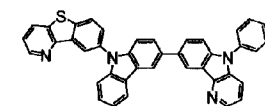
H-170



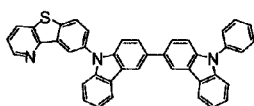
H-171



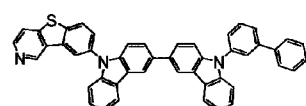
H-172



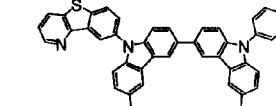
H-173



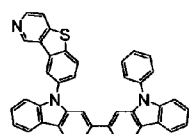
H-174



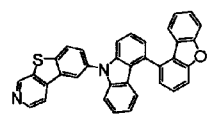
H-175



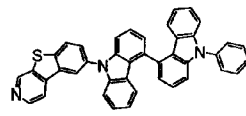
H-176



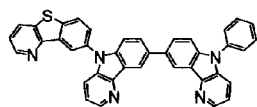
H-177



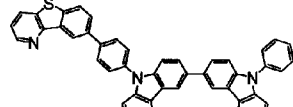
H-178



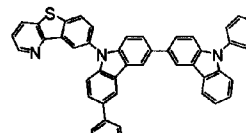
H-179



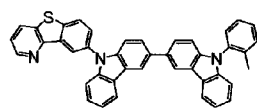
H-180



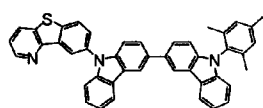
H-181



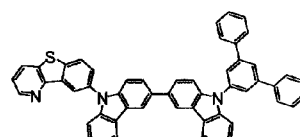
H-182



H-183



H-184



H-185

10

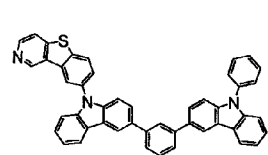
20

30

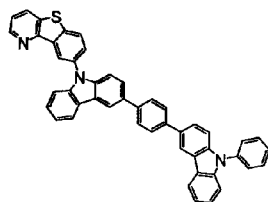
40

【 0 0 4 2 】

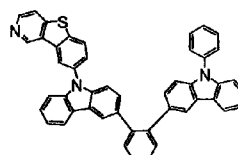
【化 1 6】



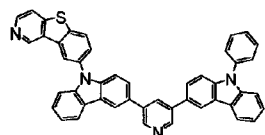
H-186



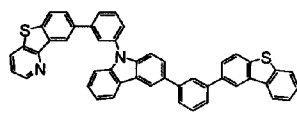
H-187



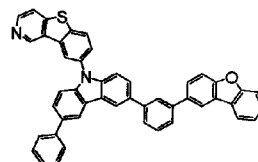
H-188



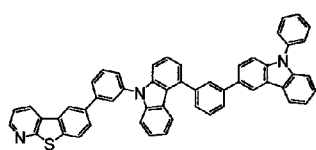
H-189



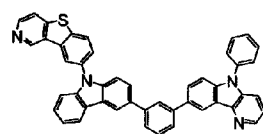
H-190



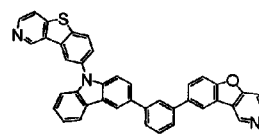
H-191



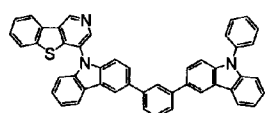
H-192



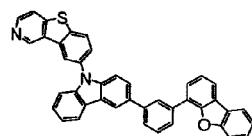
H-193



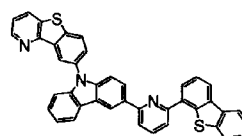
H-194



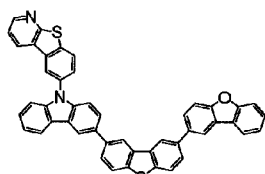
H-195



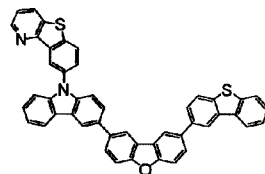
H-196



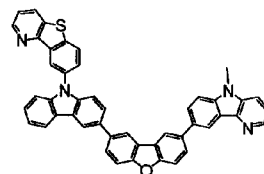
H-197



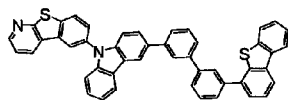
H-198



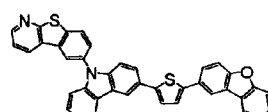
H-199



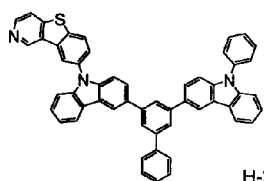
H-200



H-201



H-202



H-203

【 0 0 4 3 】

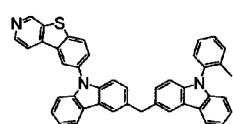
10

20

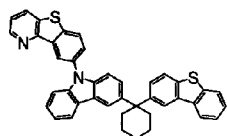
30

40

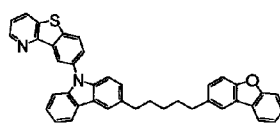
【化 1 7】



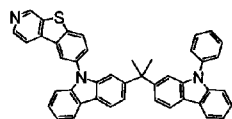
H-204



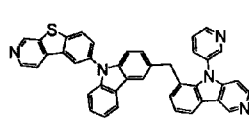
H-205



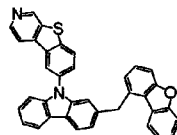
H-206



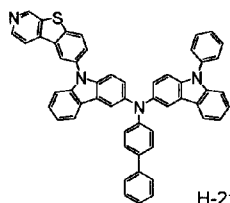
H-207



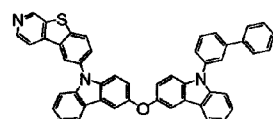
H-208



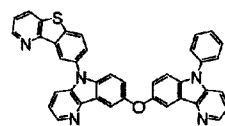
H-209



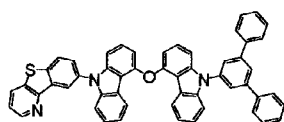
H-210



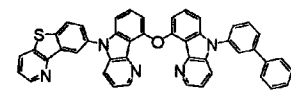
H-211



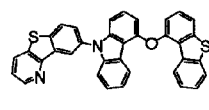
H-212



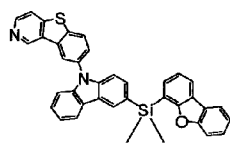
H-213



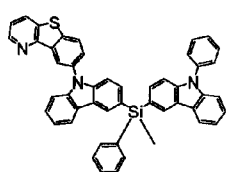
H-214



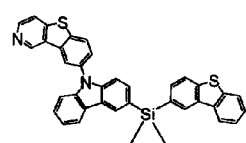
H-215



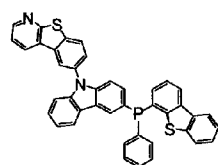
H-216



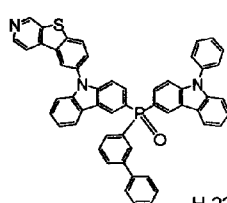
H-217



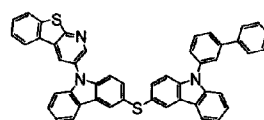
H-218



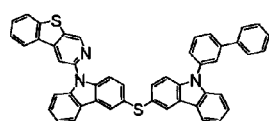
H-219



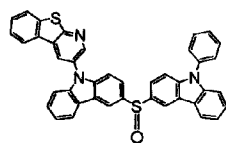
H-220



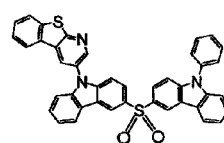
H-221



H-222



H-223



H-224

10

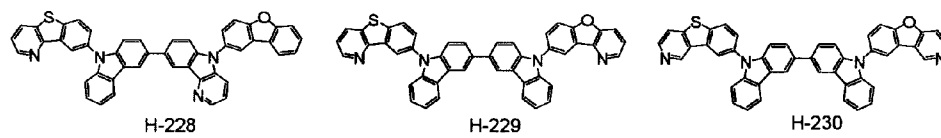
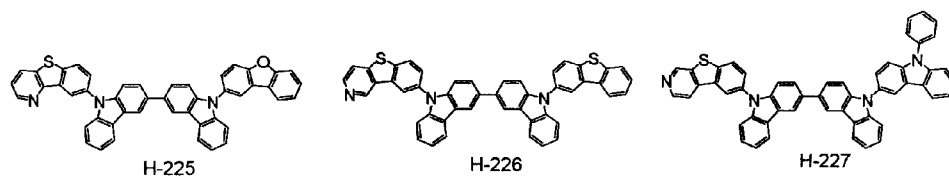
20

30

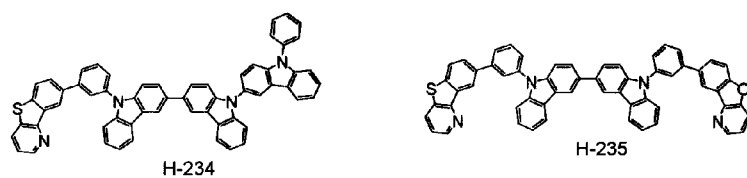
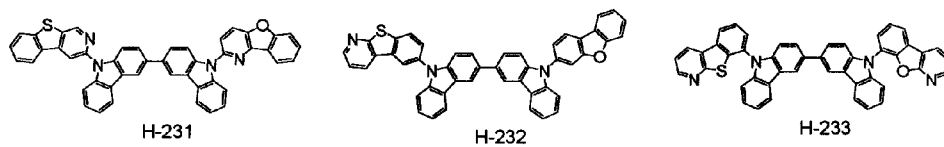
40

【 0 0 4 4 】

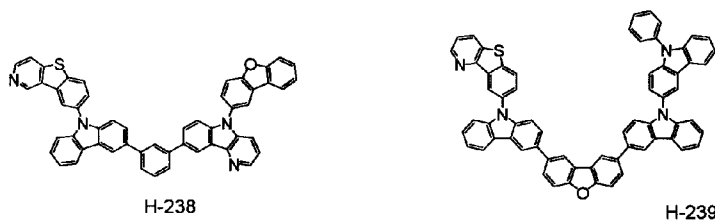
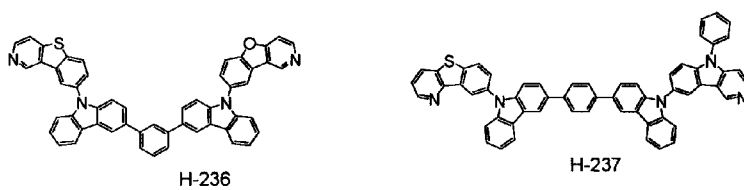
【化 1 8】



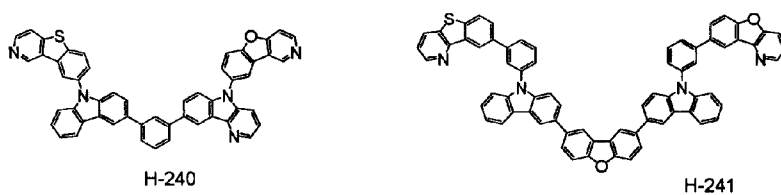
10



20



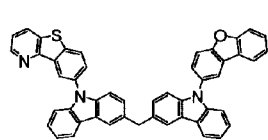
30



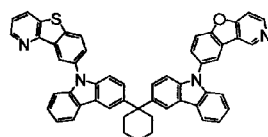
【 0 0 4 5】

40

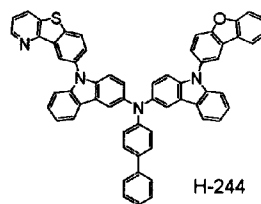
【化 1 9】



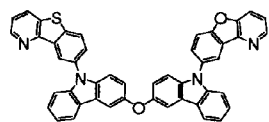
H-242



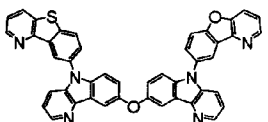
H-243



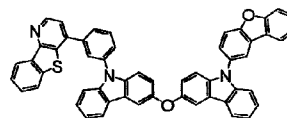
H-244



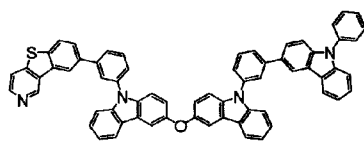
H-245



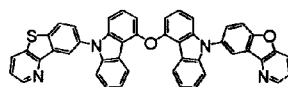
H-246



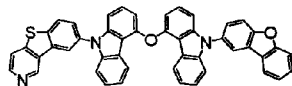
H-247



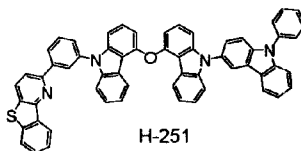
H-248



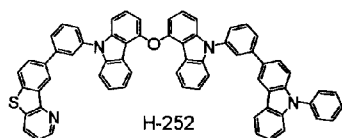
H-249



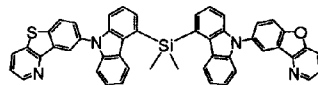
H-250



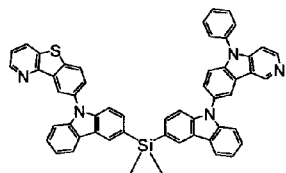
H-251



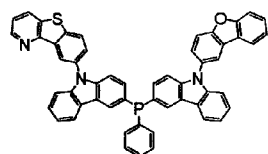
H-252



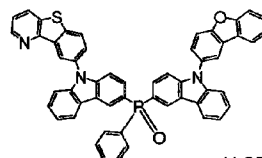
H-253



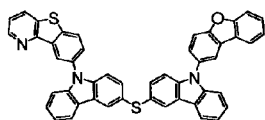
H-254



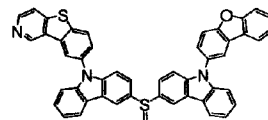
H-255



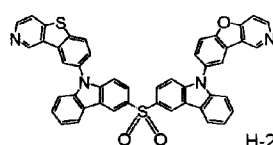
H-256



H-257



H-258



H-259

10

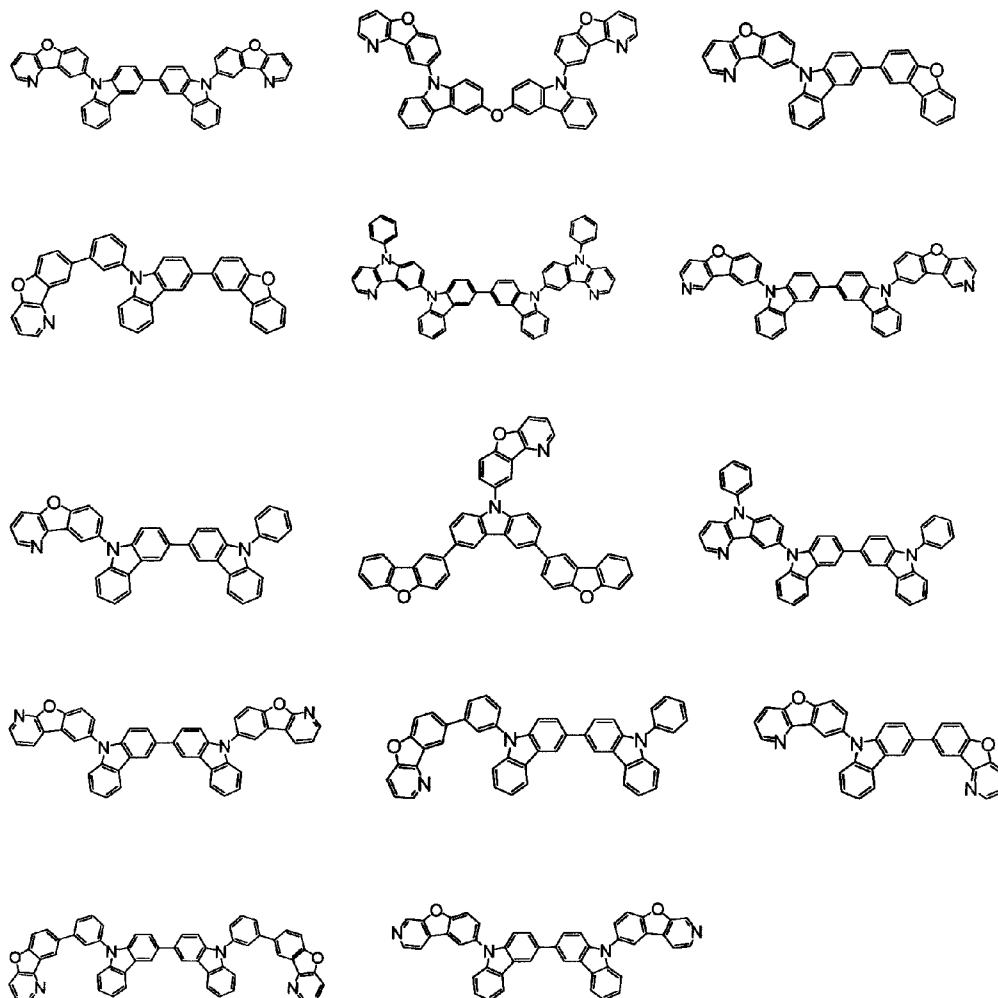
20

30

40

【 0 0 4 6】

【化 2 0】



10

20

【0047】

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極との間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、この発光層が燐光発光性材料を含有し、また、この有機薄膜層の少なくとも一層が、本発明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。

多層型の有機EL素子の構造としては、例えば、陽極／正孔輸送帯域（正孔注入層および／又は正孔輸送層）／発光層／陰極、陽極／発光層／電子輸送帯域（障壁層、電子輸送層および／又は電子注入層）／陰極、陽極／正孔輸送帯域／発光層／電子輸送帯域／陰極等の多層構成で積層したものが挙げられる。

また、有機EL素子の構造は、発光層を含む有機層ユニットを少なくとも2つ有するタンデム素子構成とすることができる。有機層ユニットの構造としては、正孔輸送帯域／発光層、発光層／電子輸送帯域、正孔輸送帯域／発光層／電子輸送帯域が挙げられる。

2つの発光層の間には中間層（中間導電層、電荷発生層、CGLとも呼ぶ）が介在し、ユニット毎に電子輸送帯域を設けることができる。タンデム素子構成では、少なくとも1つの発光層が燐光発光層である。タンデム素子構成の具体的な積層順の例としては、陽極／燐光発光層／中間層／燐光発光層／電子輸送帯域（好適には障壁層を含む）／陰極、陽極／燐光発光層／電子輸送帯域（好適には障壁層を含む）／中間層／燐光発光層／陰極、陽極／燐光発光層／電子輸送帯域（好適には障壁層を含む）／中間層／燐光発光層／陰極、陽極／燐光発光層／電子輸送帯域（好適には障壁層を含む）／中間層／燐光発光層／電子輸送帯域（好適には障壁層を含む）／陰極等が挙げられる。

30

40

50

なお、本発明において「正孔注入・輸送層」は、正孔輸送層の態様に含まれる。また、上記発光層は、複数の発光層の積層体であってもよい。

【0048】

本発明の有機EL素子は、上述のように、陽極と発光層との間に正孔輸送帯域を有し、発光層または正孔輸送帯域が本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有してもよく、また、発光層と前記陰極との間に電子輸送帯域を有し、電子輸送帯域が本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有してもよい。

本発明の有機EL素子は、前記一般式(1)で表される有機EL素子用材料を、前記発光層、正孔輸送帯域(正孔輸送層、正孔注入層)、電子輸送帯域(電子輸送層、電子注入層、障壁層)のいずれか一層以上に含むことが好ましく、特に少なくとも発光層又は電子輸送帯域に含むことがより好ましい。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む有機薄膜層において、該材料を50体積%(v/v)以上で含有することが好ましく、70体積%(v/v)以上で含有することがより好ましく、90体積%(v/v)以上で含有することがさらに好ましい。

【0049】

上記電子輸送帯域は、発光層に隣接する部分に障壁層を有することが好ましい。障壁層は、後述するように、発光層で生成する三重項励起子が電子輸送帯域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プメント以外の電子輸送帯域の分子上でのエネルギー失活を抑制する機能を有する。

本発明の理解を容易にするために説明すると、本発明化合物を電子輸送帯域の障壁層として使用することにより、発光層に効率よく電子注入しつつ、三重項励起子が電子輸送帯域でエネルギー失活することを防ぐことが可能であると推測される。すなわち、本発明化合物を障壁層に用いることで、電子・正孔の再結合領域を制御することが容易になると推測される。また、本発明化合物は正孔注入・正孔輸送に対する高い電気化学的安定性も兼ね備えるため、本発明化合物を障壁層として使用すれば、同障壁層の電気化学的劣化を防ぐことができると推測され、耐久性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができると考えられる。

本発明の化合物を障壁層として用いる場合、発光層中の燐光発光性ドープメントの三重項エネルギーを E^T_d 、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、燐光発光性ドープメ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)、該ドープメ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 $E^T = E^T_{TB} - E^T_d$ 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 E^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ため、本発明の化合物を障壁層に用いることは燐光素子の高効率化のために効果的であると推測される。室温の熱エネルギーに対してこのエネルギー差 E^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。

【0050】

本発明における三重項エネルギーとは、試料をEPA溶媒(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))に10 $\mu\text{mol/L}$ で溶解させ、燐光測定用試料とする。この燐光測定用試料を石英セルに入れ、温度77 Kで励起光を照射し、放射される燐光の燐光スペクトルを測定する。これを基に換算式 $E^T(\text{eV}) = 1239.85 / \lambda_{\text{edge}}$ によって求めた値と定義する。「 λ_{edge} 」とは、縦軸にりん光強度、横軸に波長をとって、りん光スペクトルを表したときに、りん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、その接線と横軸の交点の波長値(単位: nm)を意味する。

発光層のホスト材料としては、 $A_b - A_h$ 0.1 eVとなるものが好ましい。ここで、

A_b は障壁層材料のアフィニティ準位を表し、 A_h は発光層ホスト材料のアフィニティ準位を表す。

本発明におけるアフィニティ準位 A_f (電子親和力) とは、材料の分子に電子を一つ与えた時に放出または吸収されるエネルギーをいい、放出の場合は正、吸収の場合は負と定義する。アフィニティ準位 A_f は、イオン化ポテンシャル I_p と光学エネルギーギャップ $E_g(S)$ とにより次のように規定する。

$$A_f = I_p - E_g(S)$$

ここで、イオン化ポテンシャル I_p は、各材料の化合物から電子を取り去ってイオン化するために要するエネルギーを意味し、本発明では大気中光電子分光装置 (AC-3、理研計器株式会社製) で測定した正の符号を持つ値である。光学エネルギーギャップ $E_g(S)$ は、伝導レベルと価電子レベルとの差をいい、本発明では各材料のジクロロメタン希薄溶液の紫外・可視光吸収スペクトルの長波長側接線とベースライン (吸収ゼロ) との交点の波長値をエネルギーに換算して求めた正の符号を持つ値である。

また、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。

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注入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。

【0051】

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、ガラス転移点が 140 以上、より好ましくは 150 以上のものであると、熱的安定性に優れるため好ましい。ガラス転移点の上限としては、通常、 260 程度である。ここで、本発明における上記ガラス転移点とは、 3 mg 程度の試料を用い、Perkin Elmer 社製 DSC 8500 を用い、以下の (1) ~ (6) までの 2 サイクルの昇降温プロセスを行い、(6) の昇温時の DSC 曲線のベースラインが段状に変化している変曲点の立ち上がり温度として定義できる。

- (1) 30 で 1 分間保持する。
- (2) 30 から試料の熱分解温度未満の一定温度まで昇温速度 $10 / \text{min}$ で加熱する。
- (3) 三分間該一定温度にて 3 分間保持する。
- (4) 該一定温度から 0 まで $200 / \text{min}$ で冷却する。
- (5) 0 で 10 分間保持する。
- (6) 0 から 200 まで昇温速度 $10 / \text{min}$ で加熱する。

【0052】

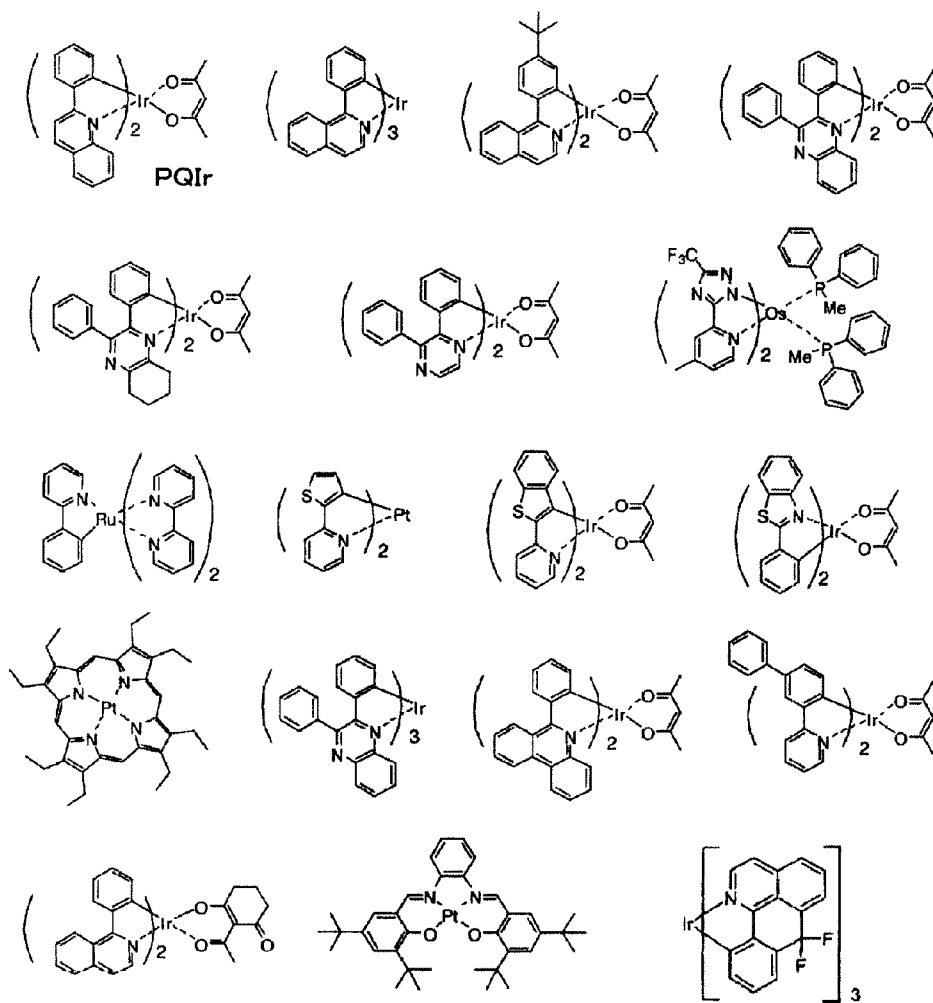
上記発光層はホスト材料と、ドーパント (燐光発光性材料) から形成されることが好ましく、上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含有することが好ましい。

【0053】

りん光発光性材料としては、りん光量子収率が高く、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、イリジウム (Ir)、オスミウム (Os) および白金 (Pt) から選ばれる金属を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体がより好ましい。前記金属錯体は、中心金属原子と配位子に含まれる炭素原子とがオルトメタル結合しているオルトメタル化金属錯体であることが好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体がより好ましい。オルトメタル化金属錯体のさらに好ましい形態としては、以下に示すイリジウム錯体が挙げられる。

【0054】

【化 2 1】



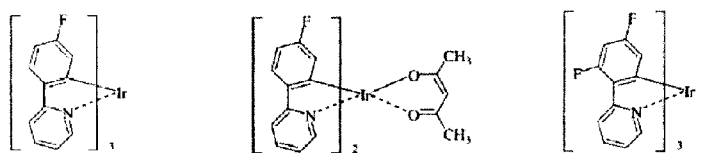
10

20

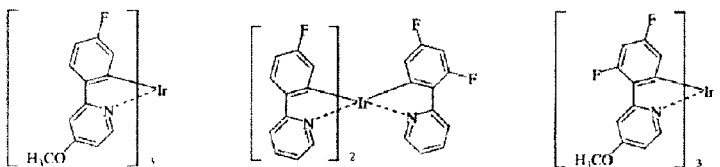
【 0 0 5 5 】

30

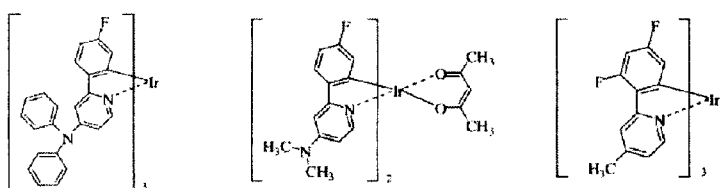
【化 2 2】



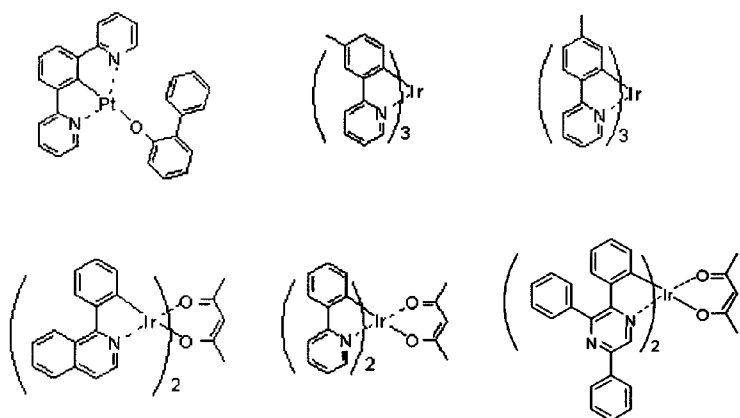
10



20

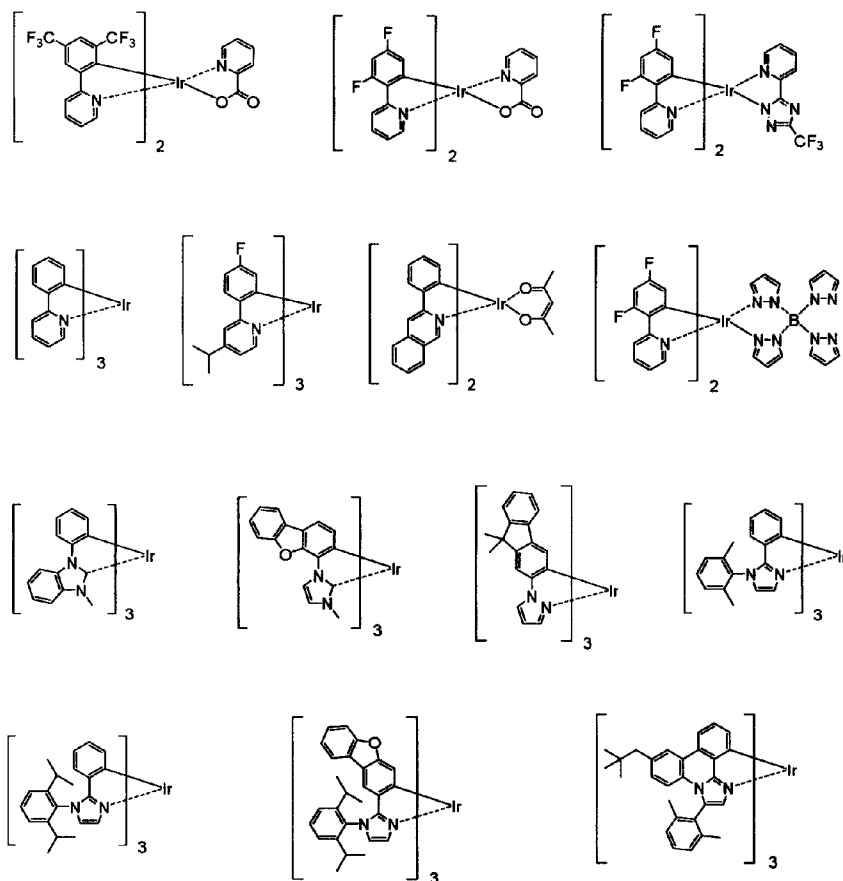


30



【 0 0 5 6 】

【化 2 3】

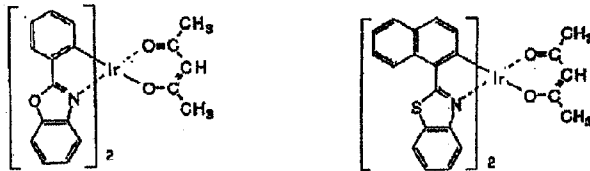
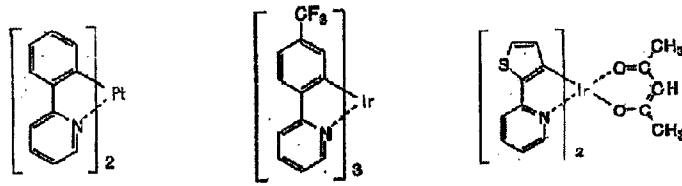


10

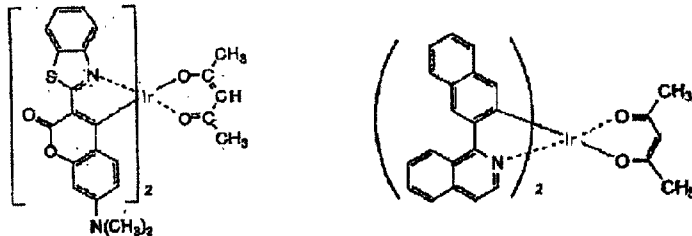
20

【 0 0 5 7 】

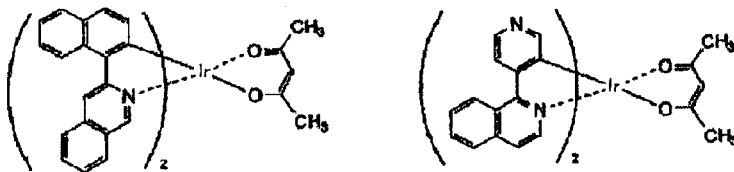
【化 2 4】



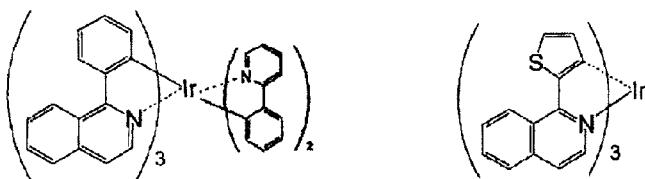
10



20



30



【 0 0 5 8 】

また、本発明の有機 E L 素子は、前記発光層が本発明の有機 E L 用素子用材料を含有するホスト材料とりん光発光性材料を含有し、りん光発光性材料として発光波長の極大値が 550 nm、好ましくは 500 nm 以下である青色系金属錯体を含有することが好ましい。

40

【 0 0 5 9 】

本発明の有機 E L 素子は、正孔輸送層（正孔注入層）を有し、該正孔輸送層（正孔注入層）が本発明の有機 E L 素子用材料を含有しても好ましい。

【 0 0 6 0 】

本発明の有機 E L 素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に電子供与性ドーパントを有するのが好ましく、陰極と電子輸送帯域との界面領域に電子供与性ドーパントを有することがより好ましい。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化合物をいい、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

50

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類が挙げられる。

【0061】

アルカリ金属としては、Li（仕事関数：2.9 eV）、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 ~ 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。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

【0062】

アルカリ金属化合物としては、Li₂O、Cs₂O、K₂O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、Li₂O、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、YbF₃、ScF₃、ScO₃、Y₂O₃、Ce₂O₃、GdF₃、TbF₃等が挙げられ、YbF₃、ScF₃、TbF₃が好ましい。

【0063】

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、ピピリジル、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、ージケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

【0064】

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発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中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。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、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、好ましくは層の厚み0.1 ~ 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 ~ 1 nmで形成する。

【0065】

本発明の有機EL素子は、発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素複素環誘導体を（より好ましくは50質量%以上で）含有すると好ましい。電子注入

10

20

30

40

50

層に用いる電子輸送材料としては、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、特に含窒素複素環誘導体が好ましい。

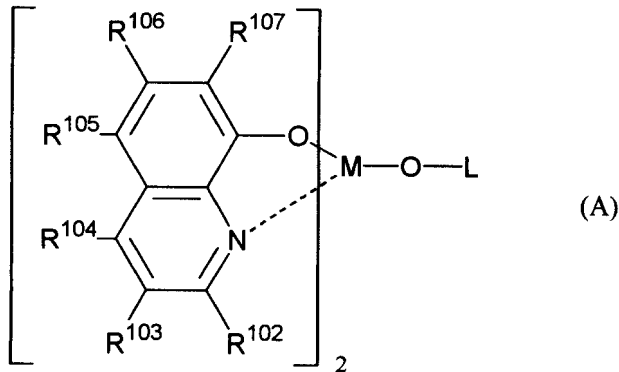
【００６６】

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

【００６７】

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

【化２５】



10

20

【００６８】

$R^{102} \sim R^{107}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素数１～４０の炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、または、複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

ハロゲン原子の例としては、前記と同様のものが挙げられる。また、置換されていてもよいアミノ基の例としては、前記アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基と同様のものが挙げられる。

炭素数１～４０の炭化水素基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、等が挙げられる。アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基の例としては、前記と同様のものが挙げられ、アルコキシカルボニル基は $-COOY'$ と表され、 Y' の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。

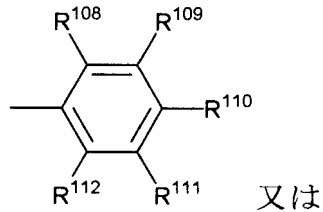
30

【００６９】

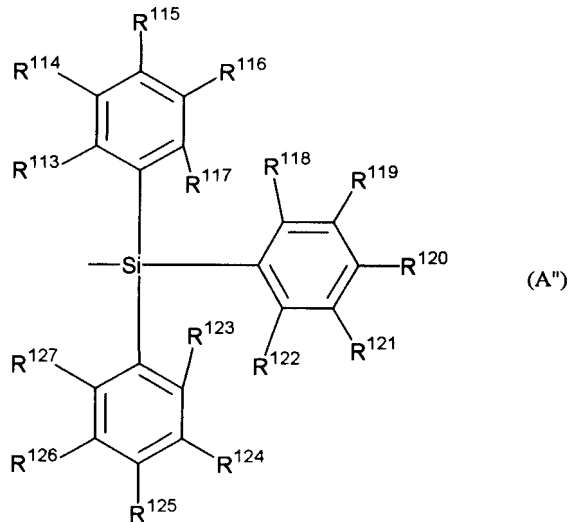
M は、アルミニウム（Al）、ガリウム（Ga）又はインジウム（In）であり、In であると好ましい。

式（Ａ）の L は、下記式（Ａ'）又は（Ａ''）で表される基である。

【化 2 6】



又は



10

20

【 0 0 7 0】

(式中、 $R^{108} \sim R^{112}$ は、それぞれ独立に、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、 $R^{113} \sim R^{127}$ は、それぞれ独立に、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。)

【 0 0 7 1】

式 (A') 及び式 (A'') の $R^{108} \sim R^{112}$ 及び $R^{113} \sim R^{127}$ が示す炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基としては、 $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

30

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。

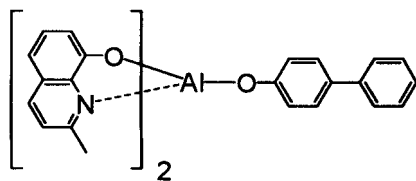
【 0 0 7 2】

式 (A) で表される含窒素複素環の金属キレート錯体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。

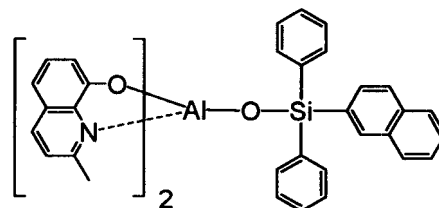
【 0 0 7 3】

【化 2 7】

40



(A-1)



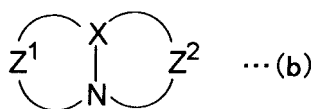
(A-2)

【 0 0 7 4】

50

含窒素複素環誘導体としては、以下の一般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も挙げられる。例えば、(a)に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、式(b)に示す構造のものが挙げられる。

【化28】



10

【0075】

(式(b)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。)

【0076】

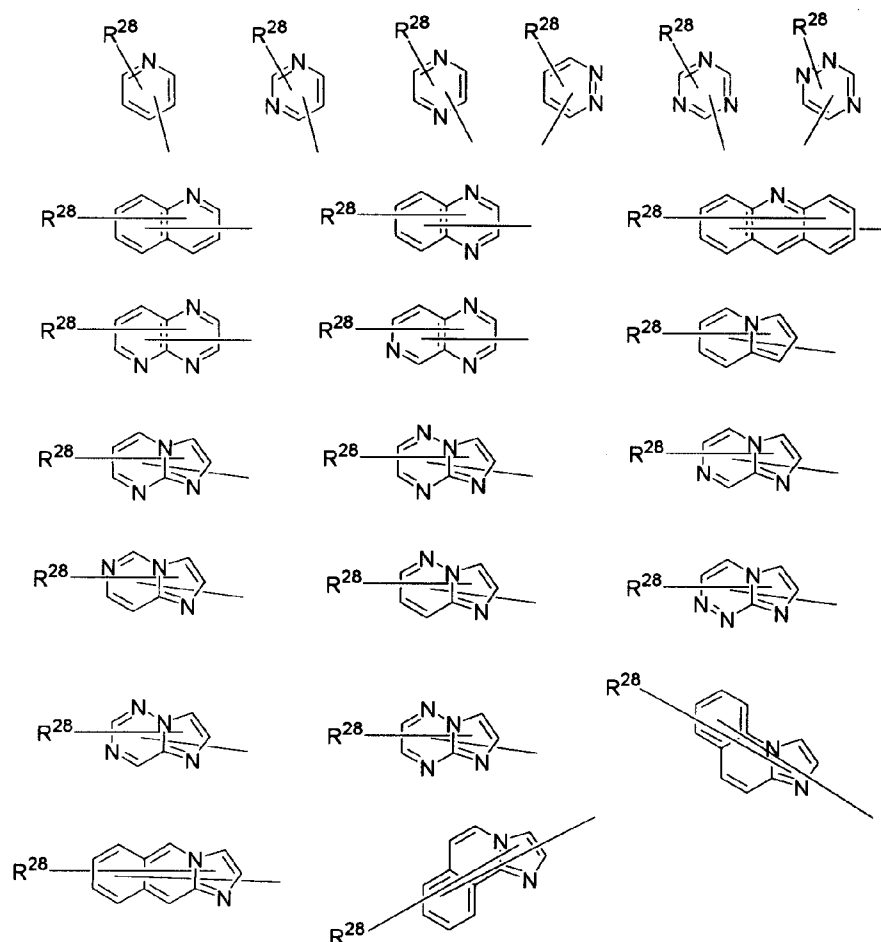
好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記(a)と(b)を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物。

20

【0077】

含窒素有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の一般式で表される含窒素複素環基から選択される。

【化29】



30

40

50

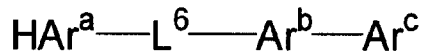
【 0 0 7 8 】

(各式中、 R^{28} は、炭素数 6 ~ 4 0 のアリール基、炭素数 3 ~ 4 0 のヘテロアリール基、炭素数 1 ~ 2 0 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 2 0 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^{28} は互いに同一又は異なってもよい。)

【 0 0 7 9 】

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

【 化 3 0 】



10

【 0 0 8 0 】

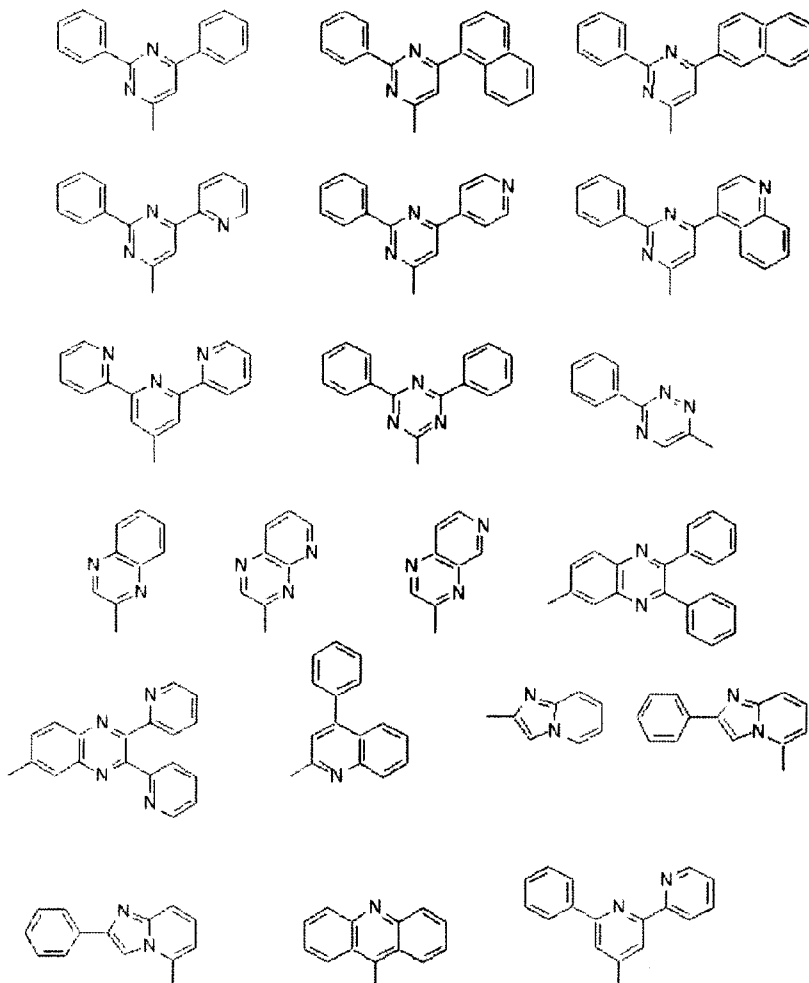
(式中、 HAr^a は、置換基を有していてもよい炭素数 3 ~ 4 0 の含窒素複素環であり、 L^b は単結合、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 4 0 のアリーレン基又は置換基を有していてもよい炭素数 3 ~ 4 0 のヘテロアリーレン基であり、 Ar^b は置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 4 0 の 2 価の芳香族炭化水素基であり、 Ar^c は置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 4 0 のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数 3 ~ 4 0 のヘテロアリール基である。)

20

【 0 0 8 1 】

HAr^a は、例えば、下記の群から選択される。

【 化 3 1 】



30

40

50

【 0 0 8 2 】

L^6 は、例えば、下記の群から選択される。

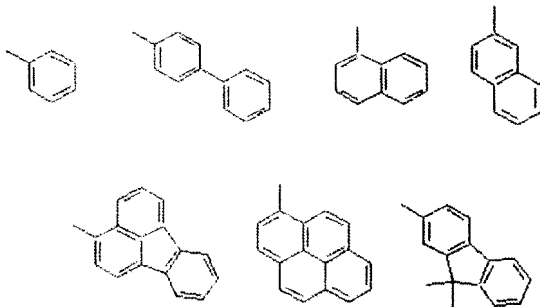
【 化 3 2 】



【 0 0 8 3 】

Ar^o は、例えば、下記の群から選択される。

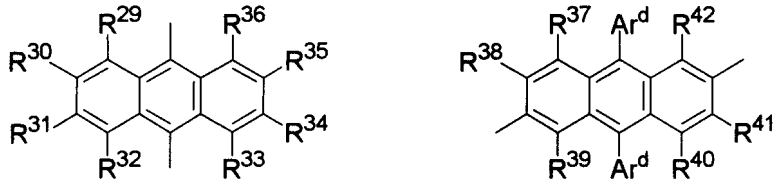
【 化 3 3 】



【 0 0 8 4 】

Ar^b は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。

【 化 3 4 】



【 0 0 8 5 】

(式中、 $R^{29} \sim R^{42}$ は、それぞれ独立して、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、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 のアリール基又は炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基であり、 Ar^d は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 のアリール基又は炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基である。)

また、上記式で表される Ar^b において、 $R^{29} \sim R^{36}$ は、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体が好ましい。

【 0 0 8 6 】

また、電子輸送層は、下記一般式 (201) ~ (203) で表される含窒素複素環誘導体の少なくともいずれか 1 つを含有することが好ましい。

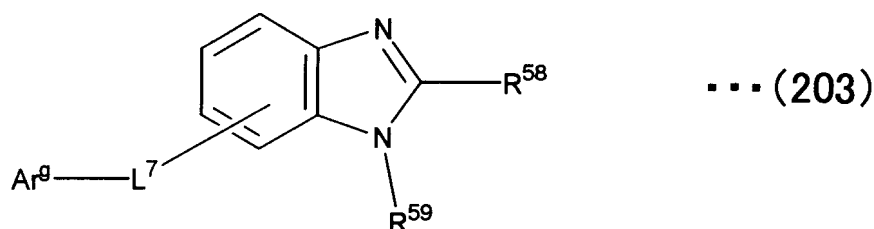
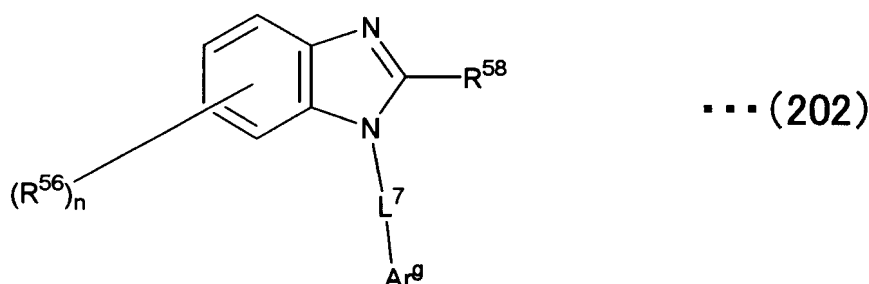
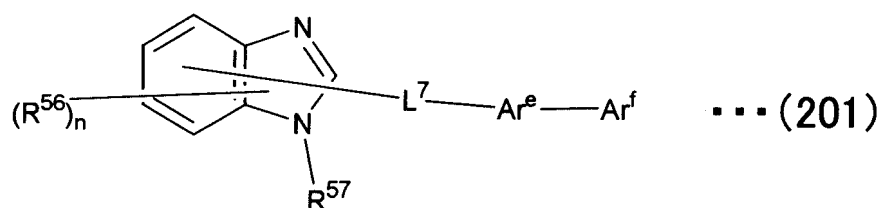
10

20

30

40

【化 3 5】



【0087】

式(201)～(203)中、 R^{56} は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基で、 n は0～4の整数であり、 R^{57} は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数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、 R^{58} 及び R^{59} は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基であり、 L^7 は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、 Ar^e は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基であり、 Ar^f は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基である。

Ar^g は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、又は $-Ar^e-Ar^f$ で表される基(Ar^e 及び Ar^f は、それぞれ前記と同じ)である。

【0088】

なお、前記式(201)～(203)において、 R^{56} は、水素原子、置換基を有してい

てもよい炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

【0089】

前記炭素数 6 ~ 60 のアリール基としては、炭素数 6 ~ 40 のアリール基が好ましく、炭素数 6 ~ 20 のアリール基がさらに好ましく、具体的には、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、ビレニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、トリル基、*t*-ブチルフェニル基、(2-フェニルプロピル)フェニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、スピロビフルオレンからなる 1 価の基、パーフルオロフェニル基、パーフルオロナフチル基、パーフルオロアントリル基、パーフルオロピフェニル基、9-フェニルアントラセンからなる 1 価の基、9-(1'-ナフチル)アントラセンからなる 1 価の基、9-(2'-ナフチル)アントラセンからなる 1 価の基、6-フェニルクリセンからなる 1 価の基、9-[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]アントラセンからなる 1 価の基等が挙げられ、フェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、ターフェニル基、9-(10-フェニル)アントリル基、9-[10-(1'-ナフチル)]アントリル基、9-[10-(2'-ナフチル)]アントリル基等が好ましい。

10

【0090】

炭素数 1 ~ 20 のアルキル基としては、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基が好ましく、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等の他、トリフルオロメチル基等のハロアルキル基が挙げられ、炭素数が 3 以上のものは直鎖状、環状又は分岐を有するものでもよい。

20

炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基としては、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基が好ましく、具体的には、メトキシ基、エトキシ基、プロボキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基等が挙げられ、炭素数が 3 以上のものは直鎖状、環状又は分岐を有するものでもよい。

【0091】

R⁵⁶の示す各基の置換基としては、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基等が挙げられる。

30

ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

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 のアリール基としては、前記と同様のものが挙げられる。

【0092】

炭素数 6 ~ 40 のアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ピフェニルオキシ基等が挙げられる。

炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基としては、例えば、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、トリアゾーリル基等が挙げられる。

40

n は 0 ~ 4 の整数であり、0 ~ 2 であると好ましい。

【0093】

前記式(201)において、R⁵⁷は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記 R について説明したものと同様である。

50

【 0 0 9 4 】

前記式(202)及び(203)において、 R^{58} 及び R^{59} は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基である。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記 R^{56} について説明したものと同様である。

【 0 0 9 5 】

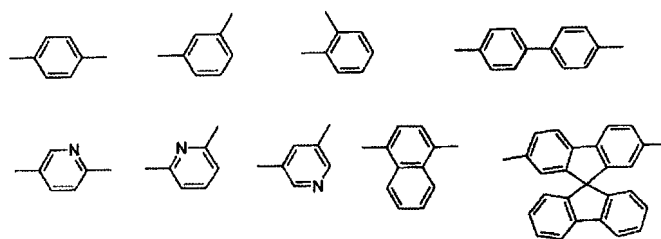
前記式(201)～(203)において、 L^7 は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基である。

炭素数6～60のアリーレン基としては、炭素数6～40のアリーレン基が好ましく、炭素数6～20のアリーレン基がさらに好ましく、具体的には、前記Rについて説明したアリール基から水素原子1個を除去して形成される2価の基が挙げられる。 L^7 の示す各基の置換基としては、前記 R^{56} について説明したものと同様である。

【 0 0 9 6 】

また、 L^7 は、

【化36】



【 0 0 9 7 】

からなる群から選択される基であると好ましい。

前記式(201)において、 Ar^e は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基である。 Ar^e 及び Ar^g の示す各基の置換基としては、それぞれ前記Rについて説明したものと同様である。

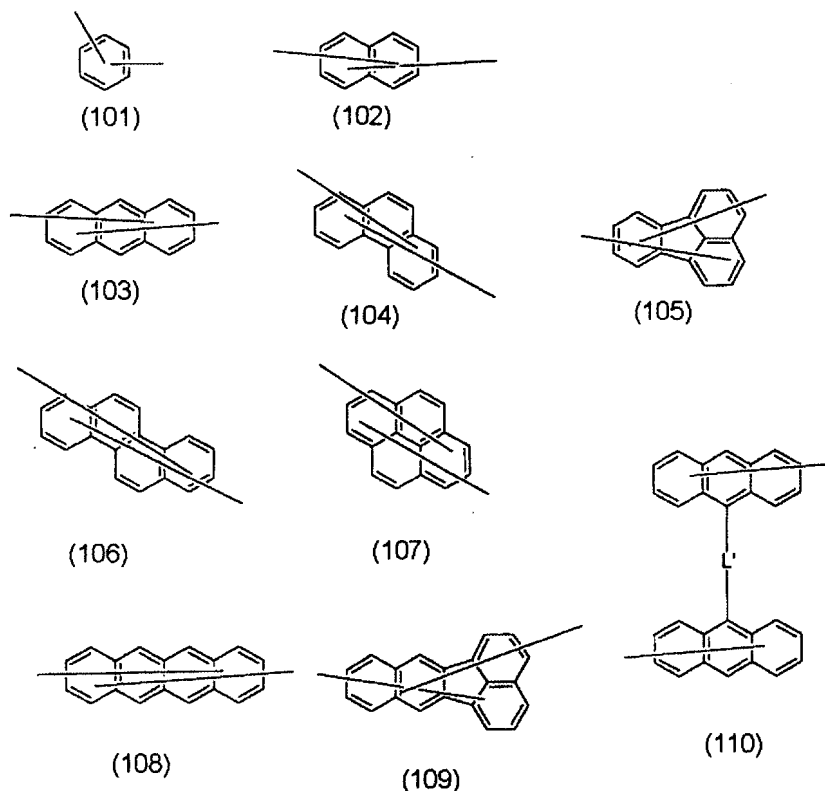
また、 Ar^e は、下記式(101)～(110)で表される縮合環基から選択されるいずれかの基であると好ましい。

10

20

30

【化 3 7】



10

20

【0098】

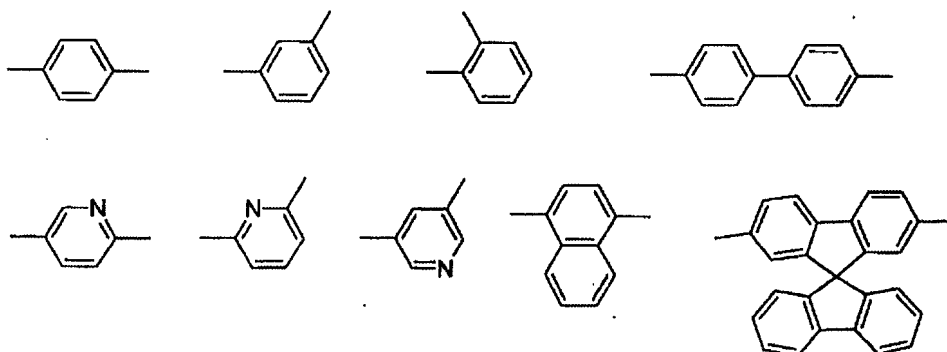
前記式(101)～(110)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

30

前記式(110)において、L'は、単結合、又は

【0099】

【化 3 8】



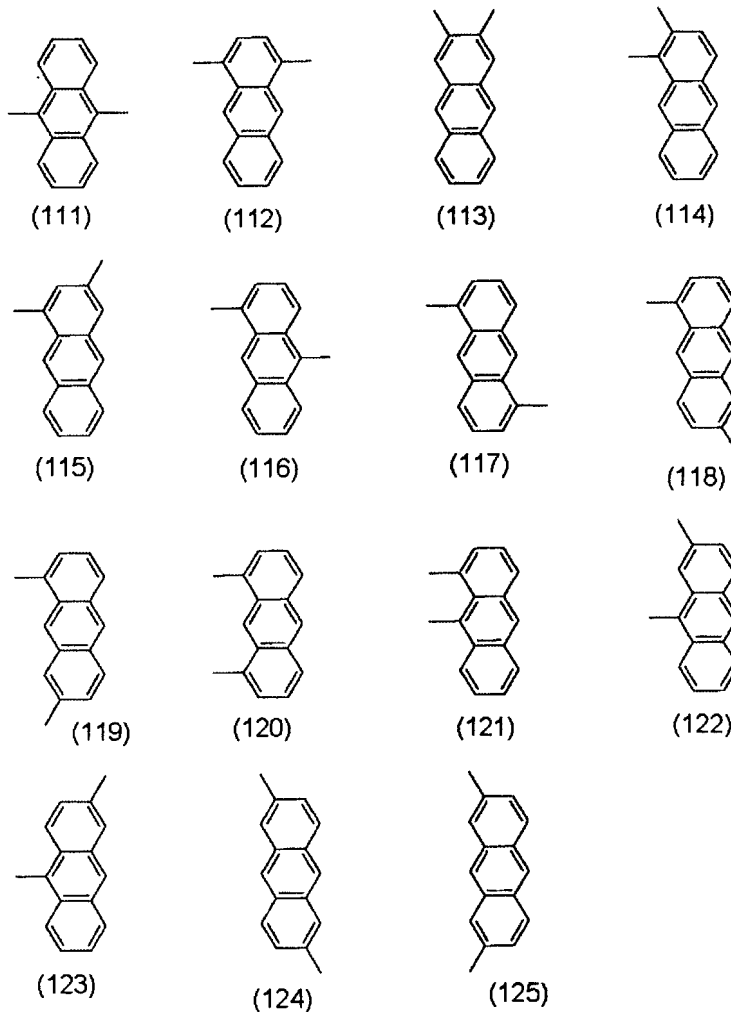
40

【0100】

からなる群から選択される基である。

Ar^oの示す前記式(103)が、下記式(111)～(125)で表される縮合環基であると好ましい。

【化 3 9】



10

20

【0101】

30

前記式(111)～(125)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

【0102】

40

前記式(201)において、 Ar^f は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基である。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記 R^{56} について説明したものと同様である。

【0103】

前記式(202)及び(203)において、 Ar^g は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、又は $-Ar^e-Ar^f$ で表される基(Ar^e 及び Ar^f は、それぞれ前記と同じ)である。

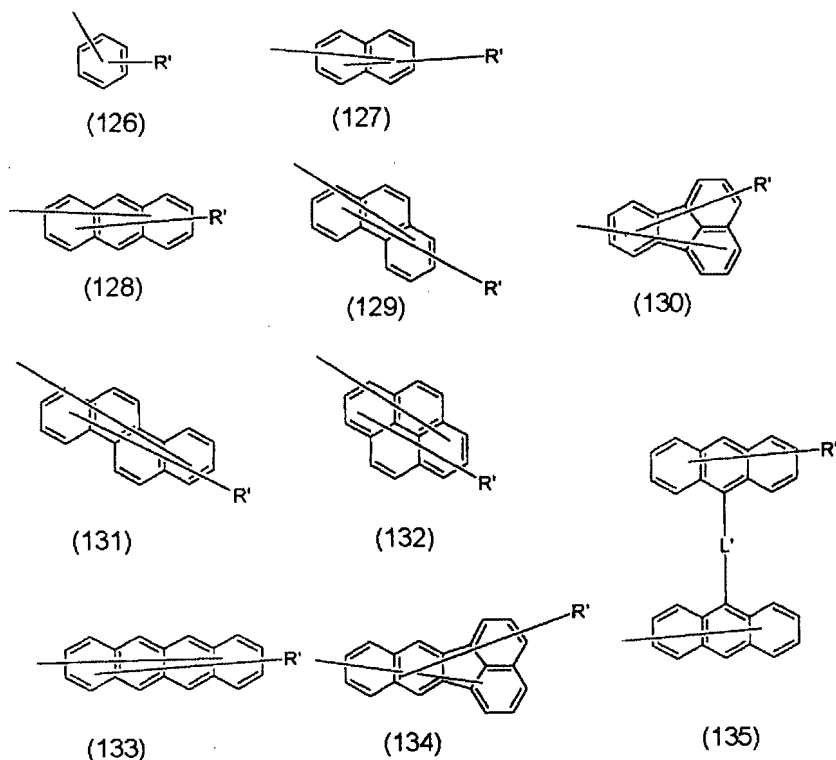
50

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記 R⁵⁶ について説明したものと同様である。

また、Ar⁹は、下記式(126)～(135)で表される縮合環基から選択されるいずれかの基であると好ましい。

【0104】

【化40】



10

20

【0105】

30

前記式(126)～(135)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

前記式(135)において、L'は、前記と同じである。

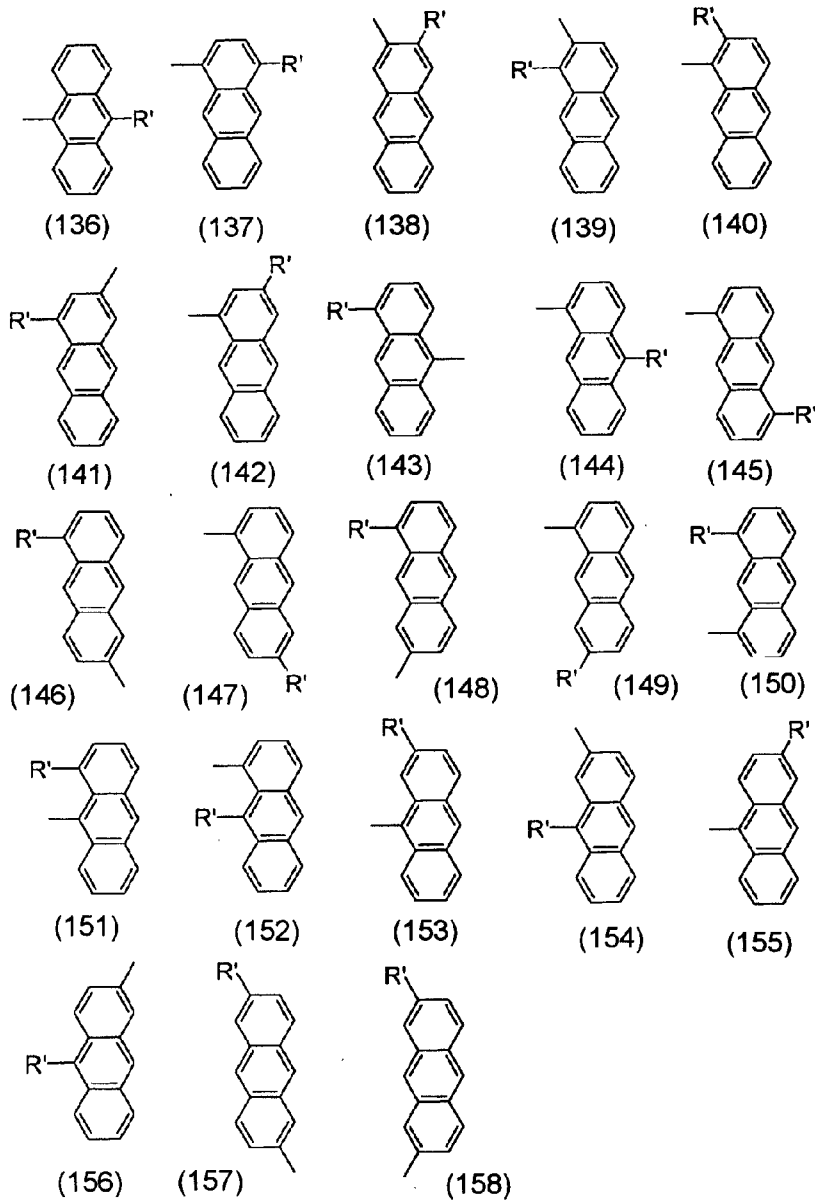
前記式(126)～(135)において、R'は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基である。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

40

Ar⁹の示す一般式(128)が、下記式(136)～(158)で表される縮合環基であると好ましい。

【0106】

【化 4 1】



10

20

30

40

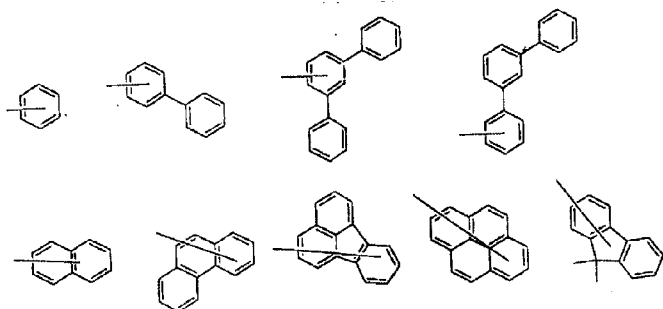
【0107】

前記式(136)～(158)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。R'は、前記と同じである。

また、Ar^f及びAr^gは、それぞれ独立に、

【0108】

【化 4 2】



10

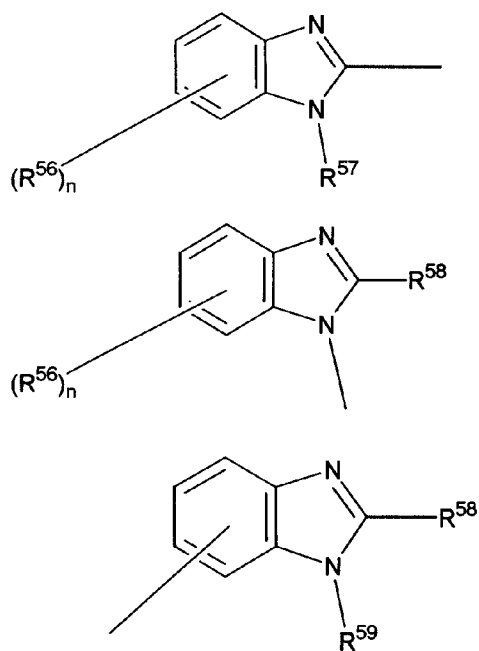
【 0 1 0 9】

からなる群から選択される基であると好ましい。

前記式(201)～(203)で示される含窒素複素環誘導体の具体例を下記に示すが、本発明はこれらの例示化合物に限定されるものではない。

なお、下記表において、HArは、前記式(201)～(203)における、

【化 4 3】



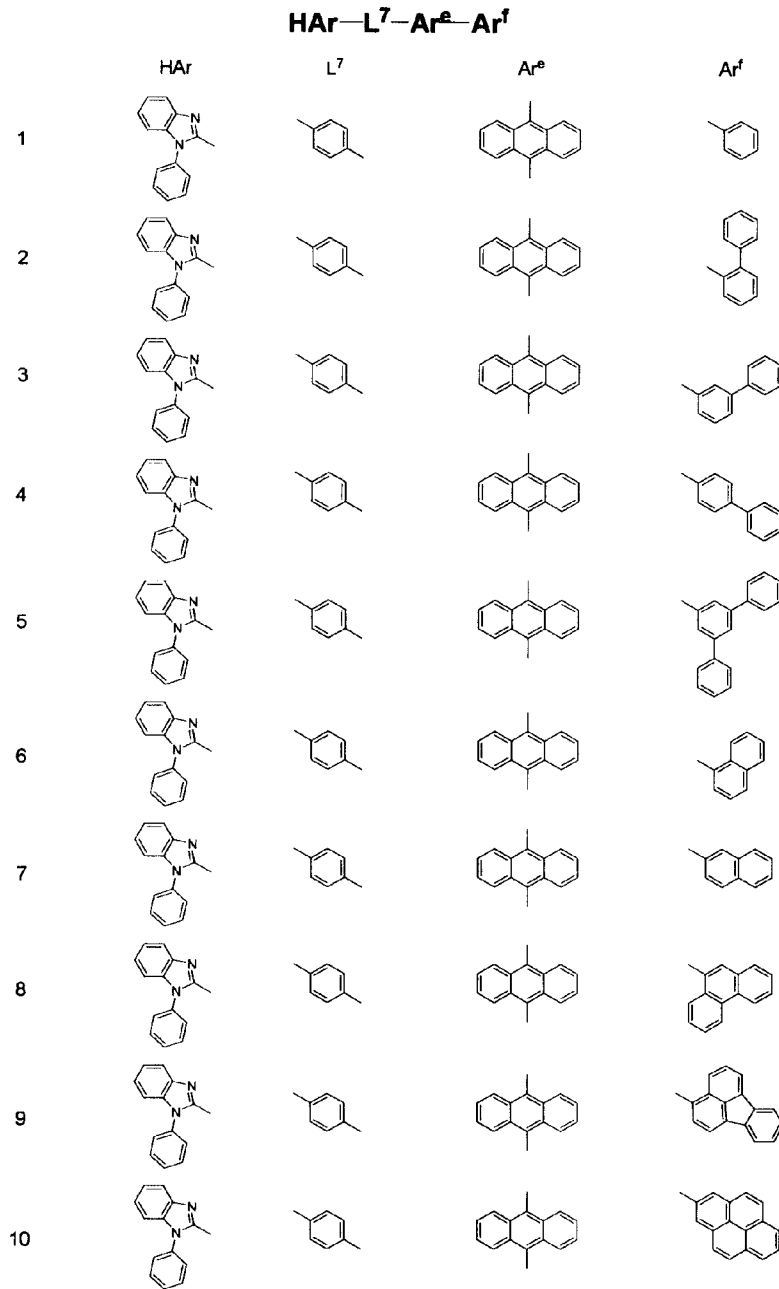
20

30

を示す。

【 0 1 1 0】

【化 4 4】



10

20

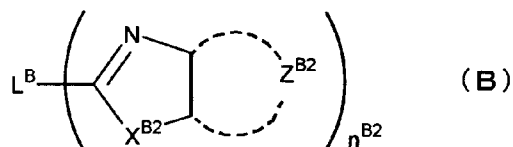
30

【0 1 1 1】

また、含窒素複素環誘導体としては、含窒素 5 員環誘導体も好ましく挙げられる。該含窒素 5 員環としては、例えばイミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素 5 員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記一般式 (B) で表されるものである。

40

【化 4 5】



50

【 0 1 1 2 】

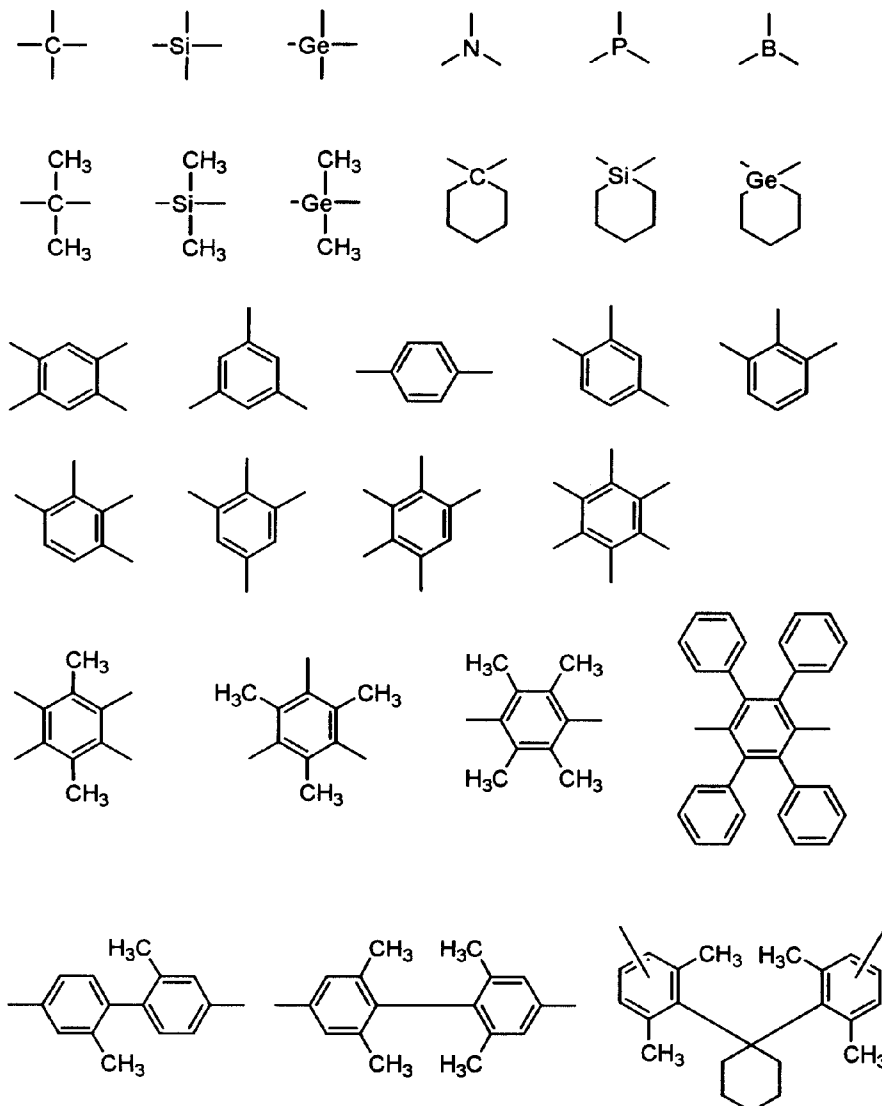
一般式 (B) 中、 L^B は二価以上の連結基を表し、例えば、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、金属原子 (例えば、バリウム原子、ベリリウム原子)、芳香族炭化水素環、芳香族複素環等が挙げられ、これらのうち炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、芳香族炭化水素環、芳香族複素環基が好ましく、炭素原子、ケイ素原子、芳香族炭化水素環、芳香族複素環基がさらに好ましい。

L^B の芳香族炭化水素環及び芳香族複素環基は置換基を有していてもよく、かかる置換基としては、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

【 0 1 1 3 】

L^B の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

【 化 4 6 】



【 0 1 1 4 】

一般式 (B) における X^{B^2} は、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $-N(R^{B^2})-$ を表す。 R^{B^2} は、水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基を表す。

R^{B^2} の脂肪族炭化水素基は、直鎖状又は分岐状アルキル基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 12、特に好ましくは炭素数 1 ~ 8 のアルキル基であり、例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基、*n*-オクチル基、*n*-デシル基、*n*-ヘキサデシル基等が挙げられる。）、シクロアルキル基（好ましくは環形成炭素数 3 ~ 10 であり、例えば、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 12、特に好ましくは炭素数 2 ~ 8 のアルケニル基であり、例えば、ビニル基、アリル基、2-ブテニル基、3-ペンテニル基等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 12、特に好ましくは炭素数 2 ~ 8 のアルキニル基であり、例えばプロパルギル基、3-ペンチニル基等が挙げられる。）であり、アルキル基が好ましい。

10

【 0 1 1 5 】

R^{B^2} のアリール基は単環又は縮合環であり、好ましくは環形成炭素数 6 ~ 30、より好ましくは環形成炭素数 6 ~ 20、さらに好ましくは環形成炭素数 6 ~ 12 のアリール基であり、例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、2-メトキシフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、ペンタフルオロフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基等が挙げられ、フェニル基、2-メチルフェニル基が好ましい。

20

【 0 1 1 6 】

R^{B^2} の複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは環形成炭素数 1 ~ 20、より好ましくは環形成炭素数 1 ~ 12、さらに好ましくは環形成炭素数 2 ~ 10 の複素環基であり、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つのヘテロ原子を含む芳香族複素環基である。この複素環基の例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等から誘導される基が挙げられ、好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン及びキノリンから誘導される基であり、さらに好ましくはキノリニル基である。

30

【 0 1 1 7 】

R^{B^2} で表される脂肪族炭化水素基、アリール基及び複素環基は置換基を有していてもよく、かかる置換基としては、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

40

R^{B^2} としては、好ましくは脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基であり、より好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20

50

、さらに好ましくは炭素数 6 ~ 12 のもの) 又はアリール基であり、さらに好ましくは脂肪族炭化水素基 (好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 12、さらに好ましくは炭素数 2 ~ 10 のもの) である。

X^{B2} としては、好ましくは - O - 又は $N(R^{B2})$ - であり、より好ましくは - $N(R^{B2})$ - である。

【0118】

Z^{B2} は、芳香族環を形成するために必要な原子群を表す。 Z^{B2} で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族複素環のいずれでもよく、具体例としては、例えば、ベンゼン環、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、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレンオフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

10

【0119】

Z^{B2} で形成される芳香族環は、さらに他の環と縮合環を形成してもよく、置換基を有していてもよい。置換基としては前記 L^B で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

20

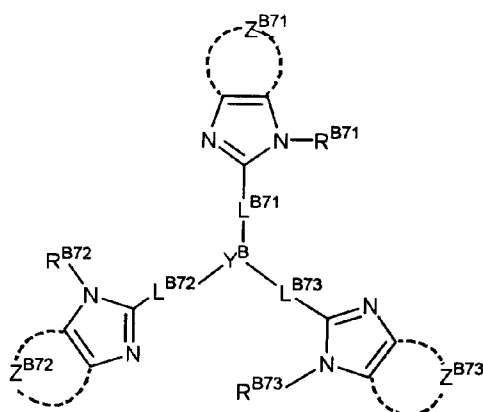
n^{B2} は、1 ~ 4 の整数であり、2 ~ 3 であると好ましい。

【0120】

前記一般式 (B) で表される含窒素 5 員環誘導体のうち、さらに好ましくは下記一般式 (B') で表されるものが好ましい。

30

【化 47】



(B')

40

【0121】

一般式 (B') 中、 R^{B71} 、 R^{B72} 及び R^{B73} は、それぞれ一般式 (B) における R^{B2} と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

Z^{B71} 、 Z^{B72} 及び Z^{B73} は、それぞれ一般式 (B) における Z^{B2} と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は、それぞれ連結基を表し、一般式 (B) における L^B の例を二

50

価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。 L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は置換基を有していてもよく、置換基としては前記一般式(B)における L^B で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

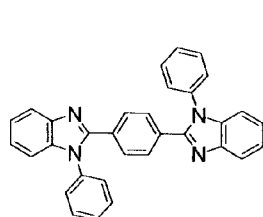
Y^B は、窒素原子、1, 3, 5 - ベンゼントリイル基又は2, 4, 6 - トリアジントリイル基を表す。1, 3, 5 - ベンゼントリイル基は2, 4, 6 - 位に置換基を有していてもよく、置換基としては、例えばアルキル基、芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子などが挙げられる。

【0122】

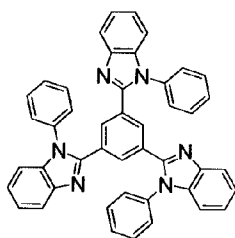
10

一般式(B)又は一般式(B')で表される含窒素5員環誘導体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。

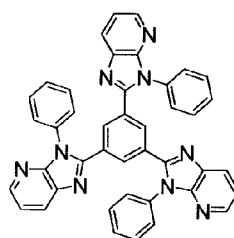
【化48】



(B-1)



(B-2)



(B-3)

20

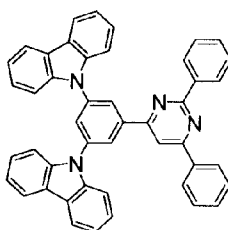
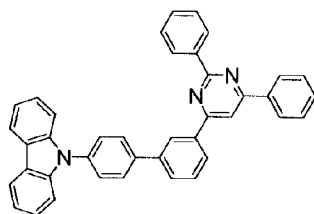
【0123】

電子注入層及び電子輸送層を構成する化合物としては、電子欠乏性含窒素5員環又は電子欠乏性含窒素6員環骨格と、置換又は無置換のインドール骨格、置換又は無置換のカルバゾール骨格、置換又は無置換のアザカルバゾール骨格を組み合わせた構造を有する化合物等も挙げられる。また、好適な電子欠乏性含窒素5員環又は電子欠乏性含窒素6員環骨格としては、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、トリアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、キノキサリン、ピロール骨格及び、それらがお互いに縮合したベンズイミダゾール、イミダゾピリジン等の分子骨格が挙げられる。これらの組み合わせの中でも、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン骨格と、カルバゾール、インドール、アザカルバゾール、キノキサリン骨格が好ましく挙げられる。前述の骨格は置換されていてもよいし、無置換でもよい。

30

【0124】

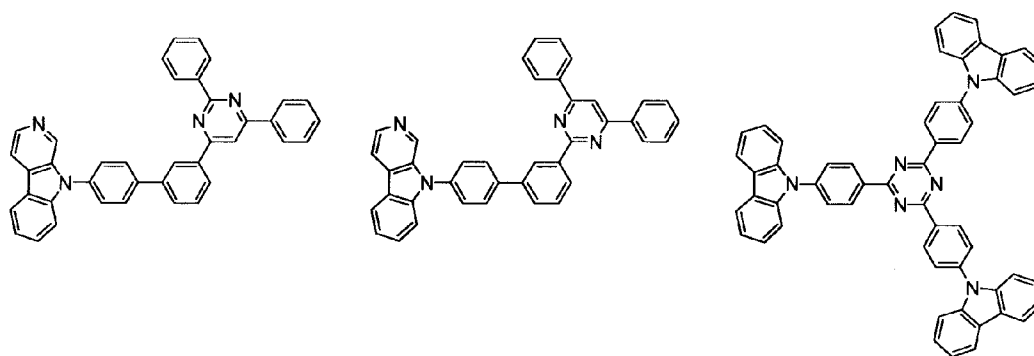
【化49】



40

電子輸送性化合物の具体例を以下に示すが、特にこれらに限定されない。

【化 5 0】



10

【 0 1 2 5】

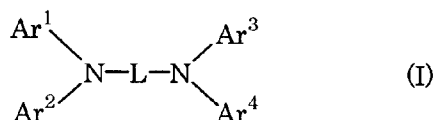
電子注入層及び電子輸送層は、前記材料の 1 種又は 2 種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。これらの層の材料は、電子欠乏性含窒素ヘテロ環基を有していることが好ましい。

【 0 1 2 6】

正孔注入層又は正孔輸送層（正孔注入輸送層も含む）には芳香族アミン化合物、例えば、一般式（I）で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

【化 5 1】

20



【 0 1 2 7】

一般式（I）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 のアリール基または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基を表す。

【 0 1 2 8】

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基としては、例えば、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 - ビフェニル基、3 - ビフェニル基、4 - ビフェニル基、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' - メチルビフェニル基、4'' - t - ブチル - p - ターフェニル - 4 - イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

30

40

【 0 1 2 9】

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基としては、例えば、1 - ピロリル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - インドリル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾ

50

フラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾ
 フラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、キノリル基、3 - キ
 ノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キ
 ノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキ
 ノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキ
 サリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 -
 カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、9 - カルバゾリル基、1 -
 フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 - フェ
 ナンスリジニル基、6 - フェナンスリジニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェ
 ナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - アク
 リジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アク
 リジニル基、1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3 -
 イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル
 基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、
 1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1
 , 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 8
 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェ
 ナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナ
 ンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナ
 ンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナンスロ
 リン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン
 - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 8
 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 2
 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 4
 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 1 -
 イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル
 基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、
 2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2,
 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 8
 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェ
 ナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナ
 ンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンス
 ロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナンスロ
 リン - 3 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン
 - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 8
 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 10 -
 イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェ
 ノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェノチア
 ジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基
 、4 - フェノキサジニル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキ
 サゾリル基、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、
 3 - フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基
 、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロ
 ール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基
 、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチル
 ピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチ
 ル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基
 、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル 1 - インドリル基、4 - t - ブチル 1
 - インドリル基、2 - t - ブチル 3 - インドリル基、4 - t - ブチル 3 - インドリル基等
 が挙げられる。好ましくはフェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、アントラニル基、フ

ェナンスリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

【0130】

Lは連結基である。具体的に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、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、または、2個以上のアリーレン基もしくはヘテロアリーレン基を単結合、エーテル結合、チオエーテル結合、炭素数1～20のアルキレン基、炭素数2～20のアルケニレン基、アミノ基で結合して得られる2価の基である。環形成炭素数6～50のアリーレン基としては、例えば、1,4-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,4-ナフチレン基、2,6-ナフチレン基、1,5-ナフチレン基、9,10-アントラニレン基、9,10-フェナントレニレン基、3,6-フェナントレニレン基、1,6-ピレニレン基、2,7-ピレニレン基、6,12-クリセニレン基、4,4'-ビフェニレン基、3,3'-ビフェニレン基、2,2'-ビフェニレン基、2,7-フルオレニレン基等が挙げられる。環形成原子数5～50のアリーレン基としては、例えば、2,5-チオフェニレン基、2,5-シローリレン基、2,5-オキサジアゾーリレン基等が挙げられる。好ましくは1,4-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,4-ナフチレン基、9,10-アントラニレン基、6,12-クリセニレン基、4,4'-ビフェニレン基、3,3'-ビフェニレン基、2,2'-ビフェニレン基、2,7-フルオレニレン基である。

10

20

【0131】

Lが2個以上のアリーレン基またはヘテロアリーレン基からなる連結基である場合、隣り合うアリーレン基またはヘテロアリーレン基は2価の基を介して互いに結合して新たな環を形成してもよい。環を形成する2価基の例としては、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。

【0132】

$Ar^1 \sim Ar^4$ およびLの置換基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基、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炭素数3～50のシクロアルキル基、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炭素数7～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基または置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基で置換されたアミノ基、ハロゲン基、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基等である。

30

【0133】

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

40

50

【 0 1 3 4 】

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の複素環基の例としては、1 - ピロリル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - インドリル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、9 - カルバゾリル基、1 - フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 - フェナンスリジニル基、6 - フェナンスリジニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 -

10

20

30

40

50

フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル 1 - インドリル基、4 - t - ブチル 1 - インドリル基、2 - t - ブチル 3 - インドリル基、4 - t - ブチル 3 - インドリル基等が挙げられる。

【0135】

置換又は無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、イソブチル基、t - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基、ヒドロキシメチル基、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。

【0136】

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 のシクロアルキル基の例としては、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、4 - メチルシクロヘキシル基、1 - アダマンチル基、2 - アダマンチル基、1 - ノルボルニル基、2 - ノルボルニル基等が挙げられる。

【0137】

置換又は無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルコキシ基は、- OY で表される基である。Y の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、イソブチル基、t - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基、ヒドロキシメチル基、1 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシイソブチル基、1, 2 - ジヒドロキシエチル基、1, 3 - ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3 - ジヒドロキシ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1, 2 - ジクロロエチル基、1, 3 - ジクロロイソプロピル基、2, 3 - ジクロロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1, 2 - ジプロモエチル基、1, 3 - ジプロモイソプロピル基、2, 3 - ジプロモ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、

10

20

30

40

50

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。

10

【0138】

置換又は無置換の炭素数7～50のアラルキル基の例としては、ベンジル基、1 - フェニルエチル基、2 - フェニルエチル基、1 - フェニルイソプロピル基、2 - フェニルイソプロピル基、フェニル - t - ブチル基、 - ナフチルメチル基、1 - - ナフチルエチル基、2 - - ナフチルエチル基、1 - - ナフチルイソプロピル基、2 - - ナフチルイソプロピル基、 - ナフチルメチル基、1 - - ナフチルエチル基、2 - - ナフチルエチル基、1 - - ナフチルイソプロピル基、2 - - ナフチルイソプロピル基、1 - ピロリルメチル基、2 - (1 - ピロリル)エチル基、p - メチルベンジル基、m - メチルベンジル基、o - メチルベンジル基、p - クロロベンジル基、m - クロロベンジル基、o - クロロベンジル基、p - ブロモベンジル基、m - ブロモベンジル基、o - ブロモベンジル基、p - ヨードベンジル基、m - ヨードベンジル基、o - ヨードベンジル基、p - ヒドロキシベンジル基、m - ヒドロキシベンジル基、o - ヒドロキシベンジル基、p - アミノベンジル基、m - アミノベンジル基、o - アミノベンジル基、p - ニトロベンジル基、m - ニトロベンジル基、o - ニトロベンジル基、p - シアノベンジル基、m - シアノベンジル基、o - シアノベンジル基、1 - ヒドロキシ - 2 - フェニルイソプロピル基、1 - クロロ - 2 - フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

20

【0139】

置換又は無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基は、 - O Y ' と表され、Y ' 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 - イル基等が挙げられる。

30

【0140】

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリールオキシ基は、 - O Z ' と表され、Z ' の例としては2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノ

40

50

リル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソ
 キノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソ
 キノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キ
 ノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3
 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、1 - フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリ
 ジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 - フェナンスリジニル基、6 - フェナンスリジ
 ニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニ
 ル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - ア
 クリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 - フェナンスロリン -
 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 -
 イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル
 基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、
 1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1
 , 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8
 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フ
 ェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナ
 ンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナ
 ンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロ
 リン - 5 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン
 - 7 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 1
 0 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン -
 3 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン -
 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 -
 イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル
 基、2, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、
 2, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2
 , 8 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8
 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フ
 ェナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナ
 ンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナ
 ンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 7 - フェナンスロ
 リン - 4 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン
 - 6 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9
 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナ
 ジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基
 、4 - フェノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フ
 ェノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基
 、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザ
 ニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチ
 ルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 -
 イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチ
 ルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール -
 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - イ
 ンドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチ
 ル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル 1 - インドリル基、4 - t - ブチル 1 - インドリ
 ル基、2 - t - ブチル 3 - インドリル基、4 - t - ブチル 3 - インドリル基等が挙げられ
 る。

【0141】

置換又は無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基は、-SY”と表され、Y”
 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

10

20

30

40

50

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 - イル基等が挙げられる。

10

【0142】

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリールチオ基は、-SZ''と表され、Z''の例としては2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、1 - フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 - フェナンスリジニル基、6 - フェナンスリジニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナンス

20

30

40

50

スロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル 1 - インドリル基、4 - t - ブチル 1 - インドリル基、2 - t - ブチル 3 - インドリル基、4 - t - ブチル 3 - インドリル基等が挙げられる。

10

【0143】

置換又は無置換の炭素数 2 ~ 50 のアルコキシカルボニル基は - COOZ と表され、Z の例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、イソブチル基、t - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基、ヒドロキシメチル基、1 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシイソブチル基、1, 2 - ジヒドロキシエチル基、1, 3 - ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3 - ジヒドロキシ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1, 2 - ジクロロエチル基、1, 3 - ジクロロイソプロピル基、2, 3 - ジクロロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1, 2 - ジプロモエチル基、1, 3 - ジプロモイソプロピル基、2, 3 - ジプロモ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1, 2 - ジヨードエチル基、1, 3 - ジヨードイソプロピル基、2, 3 - ジヨード - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1, 2 - ジアミノエチル基、1, 3 - ジアミノイソプロピル基、2, 3 - ジアミノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1, 2 - ジシアノエチル基、1, 3 - ジシアノイソプロピル基、2, 3 - ジシアノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 - ニトロエチル基、2 - ニトロエチル基、2 - ニトロイソブチル基、1, 2 - ジニトロエチル基、1, 3 - ジニトロイソプロピル基、2, 3 - ジニトロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリニトロプロピル基等が挙げられる。

20

30

40

【0144】

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の複素環基で置換されたアミノ基は - NPQ と表わされ、P、Q 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

50

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' - メチルピフェニルイル基、4 - t - ブチル - p - ターフェニル - 4 - イル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、1 - フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 - フェナンスリジニル基、6 - フェナンスリジニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル

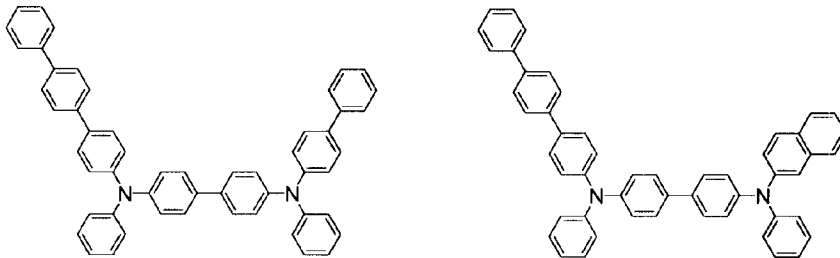
基、4 - オキサゾリル基、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル 1 - インドリル基、4 - t - ブチル 1 - インドリル基、2 - t - ブチル 3 - インドリル基、4 - t - ブチル 3 - インドリル基等が挙げられる。

10

【0145】

一般式 (I) の化合物の具体例を以下に記すが、これらに限定されるものではない。

【化52】

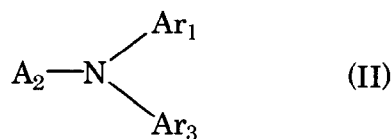


20

【0146】

また、下記一般式 (II) の芳香族アミンも正孔注入層または正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

【化53】

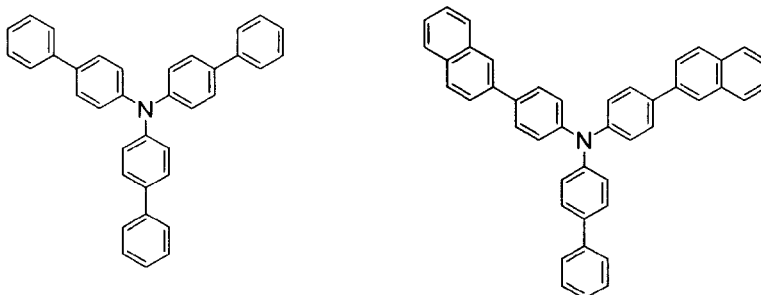


30

【0147】

一般式 (II) において、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_3$ の定義は前記一般式 (I) の $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ の定義と同様である。以下に一般式 (II) 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。

【化54】



40

【0148】

本発明において、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、4.5 eV 以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられ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 (NES

50

A)、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。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。

【0149】

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記式(1)で表される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、パーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が好ましい。

【実施例】

【0150】

次に、合成例および実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明する。ただし、本発明は以下の合成例、実施例に限定されない。

【0151】

有機EL素子の評価方法は下記の通りである。

(1) 外部量子効率(%)

23、乾燥窒素ガス雰囲気下で、輝度1000cd/m²時の外部量子効率を輝度計(ミノルタ社製分光輝度放射計CS-1000)を用いて測定した。

(2) 半減寿命(時間)

初期輝度1000cd/m²で連続通電試験(直流)をおこない、初期輝度が半減するまでの時間を測定した。

(3) 電圧(V)

23、乾燥窒素ガス雰囲気下で、KEITHLY 236 SOURCE MEASURE UNITを用いて、電気配線された素子に電圧を印加して発光させ、素子以外の配線抵抗にかかる電圧を差し引いて素子印加電圧を測定した。電圧の印加・測定と同時に輝度計(ミノルタ社製分光輝度放射計CS-1000)を用いて輝度測定も行い、これらの測定結果から素子輝度が100cd/m²時の電圧を読み取った。

(4) 三重項エネルギー

試料をEPA溶媒(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))に10μmol/Lで溶解させ、燐光測定用試料とする。この燐光測定用試料を石英セルに入れ、温度77Kで励起光を照射し、放射される燐光の燐光スペクトルを測定する。これを基に換算式 $E^T(\text{eV}) = 1239.85 / \lambda_{\text{edge}}$ によって求めた値と定義する。「 λ_{edge} 」とは、縦軸にりん光強度、横軸に波長をとって、りん光スペクトルを表したときに、りん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、その接線と横軸の交点の波長値(単位: nm)を意味する。

(5) ガラス転移点

3mg程度の試料を用い、Perkin Elmer社製DSC8500を用い、以下の(1)~(6)までの2サイクルの昇降温プロセスを行い、(6)の昇温時のDSC曲線のベースラインが段状に変化している変曲点の立ち上がり温度を持って定義した。

(1) 30 で1分間保持する。

(2) 30 から試料の熱分解温度未満の一定温度まで昇温速度10 /minで加熱する。

(3) 三分間該一定温度にて3分間保持する。

(4) 該一定温度から0 まで200 /minで冷却する。

(5) 0 で10分間保持する。

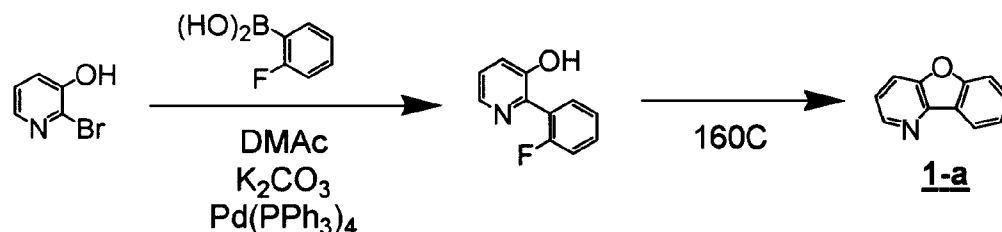
(6) 0 から200 まで昇温速度10 /minで加熱する。

【0152】

合成例1(化合物(1)の合成)

(1) 化合物(1-a)の合成

【化55】



10

【0153】

三口フラスコに2-ブロモ 3-ヒドロキシピリジン100.1g(575mmol)、2-フルオロフェニルボロン酸88.5g(632.5mmol)、炭酸カリウム88.5g(2300mmol)、N,N-ジメチルアセトアミド1150ml、Pd(PPh₃)₄13.3g(11.5mmol)を入れ、窒素雰囲気下にて90 で12時間加熱撹拌した後、160 で8時間過熱撹拌した。

20

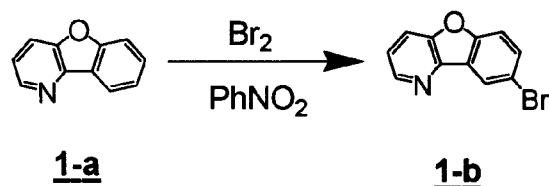
反応終了後、室温まで冷却した後、試料溶液にトルエン1L、水1Lを加え、分液ローに移して良く振り、トルエン相を回収し、水相からトルエンで数回抽出した。このトルエン溶液をさらに水で数回洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、シリカゲルショートカラムを通し、濃縮した。得られた試料をヘキサン200mlから再結晶して薄く黄色を帯びた固体を得た。

同定は¹H-NMRによって行った。収量は54.4g、収率は56%であった。

【0154】

(2) 化合物(1-b)の合成

【化56】



30

【0155】

三口フラスコに化合物1-a 52.6g(310mmol)、ニトロベンゼン155ml、臭素19.1ml(372mmol)を入れ、大気雰囲気下140 で12時間加熱撹拌した。

40

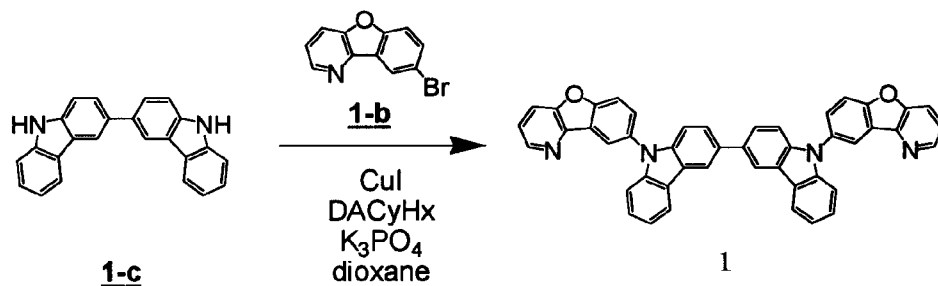
反応終了後、室温まで冷却した後、試料溶液を氷水浴で冷やしながらチオ硫酸ナトリウム水溶液を加えて残存臭素を失活し、さらに水酸化ナトリウム水溶液を加えて水相がpH10になるよう調整した。溶液を分液ローに移し、トルエンにて数回抽出した。これを無水硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過、濃縮した。これをシリカゲルクロマトグラフィー(CH₂Cl₂:AcOEt=8:2)にて精製し、得られた試料をヘキサンで分散洗浄、ろ取、真空乾燥(40、6時間)して薄く黄色を帯びた固体を得た。

同定は¹H-NMRによって行った。収量は32.1g、収率は42%であった。

【0156】

(3) 化合物(1)の合成

【化 5 7】



10

【0157】

三口フラスコに化合物 1 - c 6.65 g (20 mmol)、化合物 1 - b 10.92 g (44 mmol)、 K_3PO_4 16.98 g (80 mmol)、 CuI 3.81 g (20 mmol)、*trans*-1,2-ジアミノシクロヘキサン 7.2 ml (60 mmol)、1,4-ジオキサン 80 ml を入れ、窒素雰囲気下にて 24 時間還流させた。

反応終了後、試料溶液にメタノール 80 ml と水 80 ml を加え、超音波洗浄を 10 分間行った後、析出試料をろ取し、メタノールと水で洗浄した。試料を乾燥させた後、*o*-キシレン 1 l に加熱して溶解させ、室温まで冷却した後、すぐにシリカゲルショートカラムを通して原点不純物を除去し、溶液を濃縮した。これを *o*-キシレン：酢酸エチル = 1 : 1 混合溶媒から 3 回再結晶して白色の固体を得た。

20

同定は ^1H -NMR と FD / MS による分子量測定によって行った。収量は 4.5 g、収率は 34% であった。また、三重項エネルギー及びガラス転移点を測定し、結果を表 2 に示す。

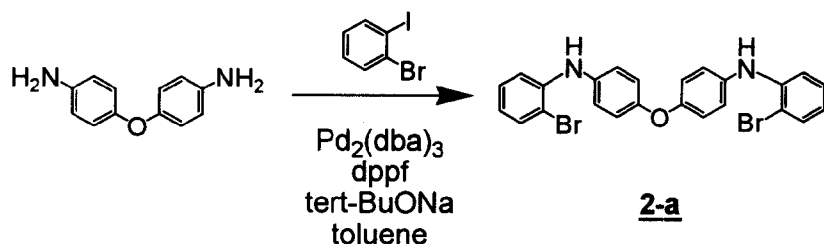
【0158】

合成例 2 (化合物 (2) の合成)

【0159】

(1) 化合物 (2 - a) の合成

【化 5 8】



30

【0160】

三口フラスコに 4,4'-ジアミノジフェニルエーテル 48.1 g (240 mmol)、2-ブロモヨードベンゼン 149.4 g (528 mmol)、*tert*-BuONa 92.3 g (960 mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ 2.2 g (2.4 mmol)、1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン 2.66 g (4.8 mmol)、トルエン 960 ml を入れて、窒素雰囲気下、8 時間還流させた。

40

反応終了後、水 500 ml を加えた後、分液ロートに移し、酢酸エチルにて数回抽出した。これを無水硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ過、濃縮した。これをシリカゲルクロマトグラフィー (トルエン：ヘキサン = 3 : 7) で精製し、無色の粘体を得た。

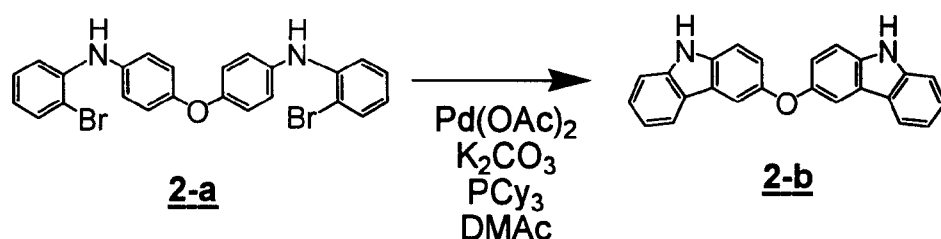
同定は ^1H -NMR と FD / MS による分子量測定によって行った。収量は 109.6 g、収率は 90% であった。

【0161】

(2) 化合物 (2 - b) の合成

50

【化 5 9】



10

【0162】

三口フラスコに化合物 2 - a 28.01 g (54.9 mmol)、酢酸パラジウム 2.47 g (10.98 mmol)、炭酸カリウム 30.35 g (mmol)、N, N - ジメチルアセトアミド 274 ml、トリシクロヘキシルホスフィン(トルエン溶液(20 wt %)) 30.8 ml (21.96 mmol)を入れ、窒素雰囲気下で150℃、8時間加熱撹拌した。

反応終了後、試料溶液をセライトを通して無機塩をろ別し、ろ液を水1 lに注ぎ込み、析出した試料をろ取した。試料をメタノール：酢酸エチル = 200 ml : 200 mlの混合溶媒で分散洗浄し、ろ取、真空乾燥(60℃、4時間)を行い白色の固体を得た。

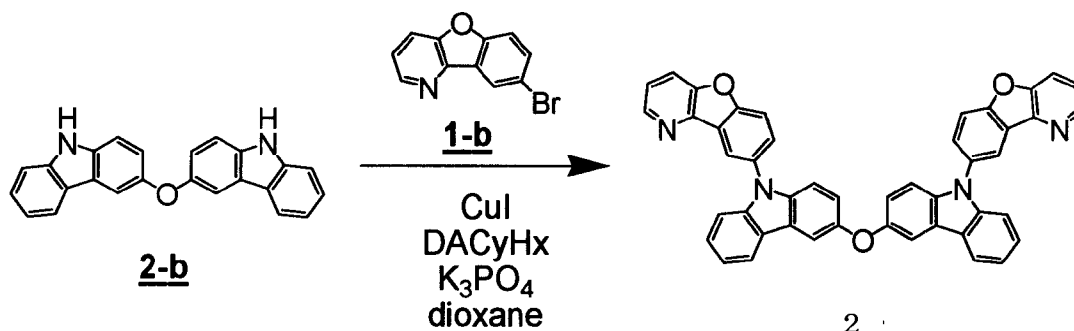
同定は¹H - NMRとFD / MSによる分子量測定によって行った。収量は13.63 g、収率は71%であった。

20

【0163】

(3) 化合物(2)の合成

【化 6 0】



30

【0164】

原料として化合物 1 - c に代えて化合物 2 - b を用いた以外は合成例 1 - (3) 化合物(1)の合成と同様にして合成した。また、三重項エネルギーを測定し、結果を表2に示す。

【0165】

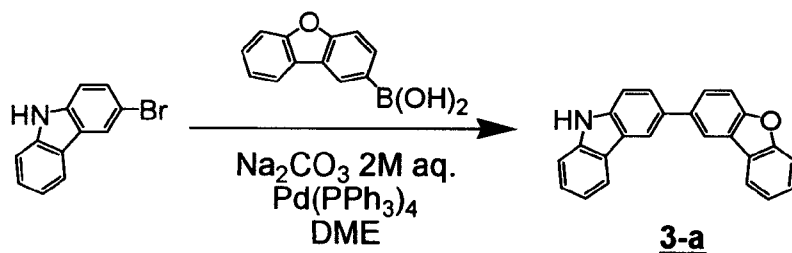
合成例 3 (化合物(3)の合成)

40

【0166】

(1) 化合物(3 - a)の合成

【化 6 1】



10

【0167】

三口フラスコに 3 - プロモカルバゾール 12.31 g (50 mmol)、2 - ジベンゾフランボロン酸 11.66 g (55 mmol)、炭酸ナトリウム 2 M 水溶液 50 ml、1, 2 - ジメトキシエタン 50 ml、Pd(PPh₃)₄ 1.16 g (1.0 mmol) を入れ、窒素雰囲気下にて 12 時間還流させた。

反応終了後、試料溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタンにて数回抽出した。これを無水硫酸マグネシウムで乾燥、ろ過、濃縮した。これを酢酸エチル：メタノール = 1：2 混合溶媒で分散洗浄して白色の固体を得た。

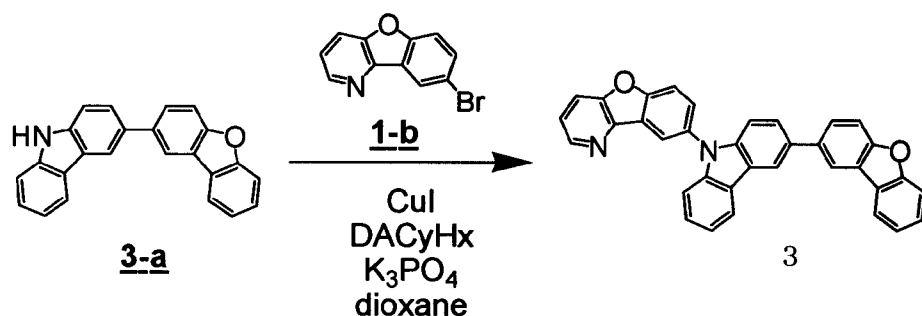
収量は 16.27 g、収率は 65 % であった。

20

【0168】

(2) 化合物 (3) の合成

【化 6 2】



30

【0169】

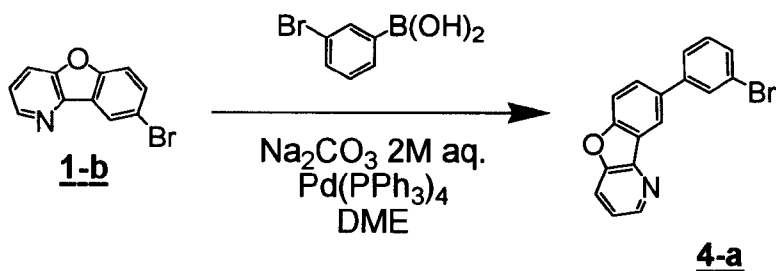
原料として化合物 1 - c に代えて化合物 3 - a を用いた以外は合成例 1 - (3) 化合物 (1) の合成と同様にして合成した。また、三重項エネルギーを測定し、結果を表 2 に示す。

【0170】

合成例 4 (化合物 (4) の合成)

(1) 化合物 (4 - a) の合成

【化 6 3】



40

【0171】

三口フラスコに化合物 1 - b 12.40 g (50 mmol)、3 - プロモフェニルボ

50

ロン酸 12.04 g (60 mmol)、炭酸ナトリウム 2 M 水溶液 50 ml、1, 2 - ジメトキシエタン 50 ml、Pd (PPh₃)₄ 1.16 g (1.0 mmol) を入れ、窒素雰囲気下にて 12 時間還流させた。

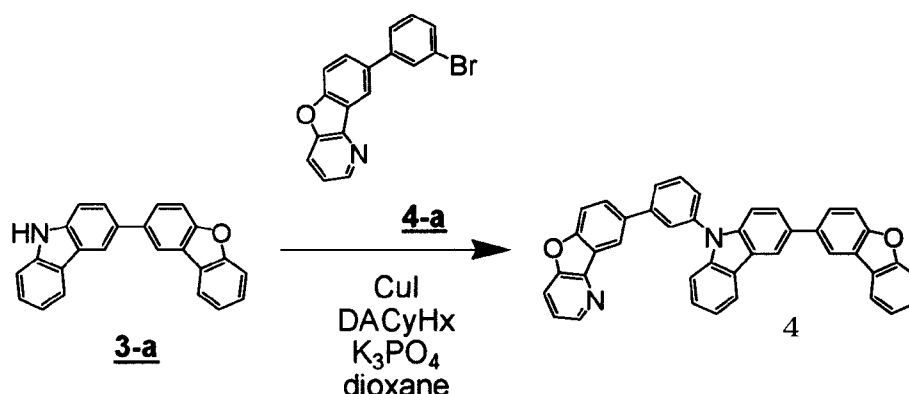
反応終了後、試料溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタンにて数回抽出した。これを無水硫酸マグネシウムで乾燥、ろ過、濃縮した。これをシリカゲルクロマトグラフィー (ジクロロメタン：酢酸エチル = 9 : 1) で精製し、無色の粘体を得た。

収量は 5.02 g、収率は 31 % であった。

【0172】

(2) 化合物 (4) の合成

【化64】



10

20

【0173】

原料として化合物 1 - c に代えて化合物 3 - a、化合物 1 - b に代えて化合物 4 - a を用いた以外は合成例 1 - (3) 化合物 (1) の合成と同様にして合成した。また、三重項エネルギーを測定し、結果を表 2 に示す。

【0174】

合成例 5 ~ 10

合成例 1 ~ 4 と同様にして、パラジウム触媒や銅触媒等を用いたカップリング反応や閉環反応、その他当業者に公知の有機合成反応により、後述の化合物 (5) ~ (10) を合成した。

30

【0175】

実施例 1

膜厚 130 nm の ITO 電極ライン付きガラス基板 (ジオマティック社製) を、イソプロピルアルコール中で 5 分間、超音波洗浄した後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。

洗浄後の ITO 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 ITO 電極ラインが形成されている側の面上に、ITO 電極ラインを覆うようにして化合物 (HI1) を厚さ 20 nm で、次いで化合物 (HT1) を厚さ 60 nm で抵抗加熱蒸着し、順次薄膜を成膜した。成膜レートは 1 / s とした。これらの薄膜は、それぞれ正孔注入層及び正孔輸送層として機能する。

40

次に、正孔注入・輸送層上に、化合物 (H1) と化合物 (BD1) を同時に抵抗加熱蒸着して膜厚 50 nm の薄膜を成膜した。このとき、化合物 (BD1) を、化合物 (H1) と化合物 (BD1) の総質量に対し質量比で 20 % になるように蒸着した。成膜レートはそれぞれ 1.2 / s、0.3 / s とした。この薄膜は、燐光発光層として機能する。尚、化合物 (BD1) の三重項エネルギーを表 2 に示す。

次に、この燐光発光層上に、化合物 (1) を抵抗加熱蒸着して膜厚 10 nm の薄膜を成膜した。成膜レートは 1.2 / s とした。この薄膜は障壁層として機能する。

次に、この障壁層上に、化合物 (ET1) を抵抗加熱蒸着して膜厚 10 nm の薄膜を成膜した。成膜レートは 1 / s とした。この膜は電子注入層として機能する。

次に、この電子注入層上に膜厚 1.0 nm の LiF を成膜レート 0.1 / s で蒸着し

50

た。

次に、このLiF膜上に金属アルミニウムを成膜レート8.0 / sにて蒸着し、膜厚80 nmの金属陰極を形成して有機EL素子を得た。

【0176】

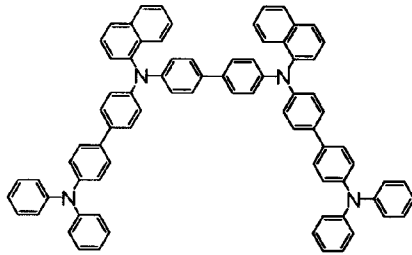
実施例2～4及び比較例1

実施例1において、化合物(1)を用いる代わりに表1に記載の化合物を用いて障壁層を形成した以外は実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。

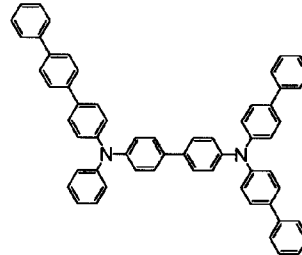
【0177】

【化65】

10

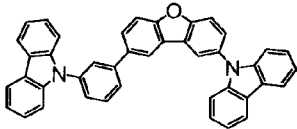


化合物 (HI1)

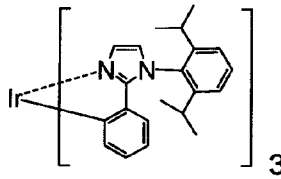


化合物 (HT1)

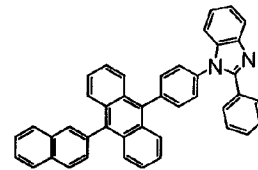
20



化合物 (HI)

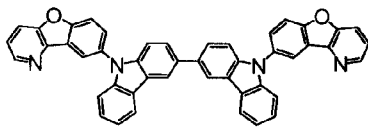


化合物 (BD1)

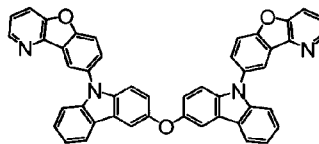


化合物 (ET1)

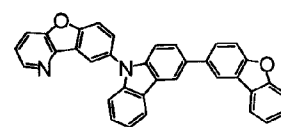
30



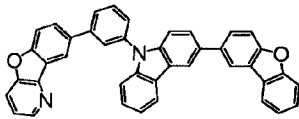
化合物 (1)



化合物 (2)



化合物 (3)



化合物 (4)

40

【0178】

【表 1】

表 1

	障壁層	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	半減寿命 (時間)
実施例 1	化合物 (1)	3. 2	1 8. 5	4 8 0 0
実施例 2	化合物 (2)	3. 4	1 8. 0	4 2 0 0
実施例 3	化合物 (3)	3. 3	1 8. 3	5 3 0 0
実施例 4	化合物 (4)	3. 5	1 7. 5	5 2 0 0
比較例 1	化合物 (H 1)	5. 7	1 4. 3	5 0 0 0

10

【 0 1 7 9 】

【表 2】

表 2

化合物	三重項エネルギー (eV)	ガラス転移点 (℃)
化合物 (1)	2. 94	162
化合物 (2)	2. 97	149
化合物 (3)	2. 95	111
化合物 (4)	2. 95	118
化合物 (H 1)	3. 03	126
化合物 (B D 1)	2. 64	—

20

【 0 1 8 0 】

表 1 より、本発明の化合物 (1) ~ (4) は、長寿命であり、かつ、比較例の化合物よりも低電圧且つ高効率で駆動する有機 E L 素子を提供できることがわかる。

30

また、本発明の有機 E L 素子は、障壁層を構成する化合物 (1) ~ (4) の三重項エネルギーと、燐光性ドーパントである化合物 (B D 1) の三重項エネルギーとが、 $0.2 \text{ eV} < E^T = E^T_{TB} - E^T_d$ の関係を満たし、効率の高いものである。

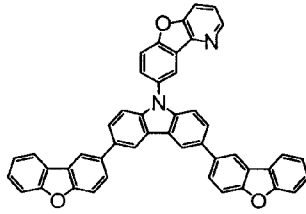
【 0 1 8 1 】

実施例 5 ~ 10 及び比較例 2 ~ 3

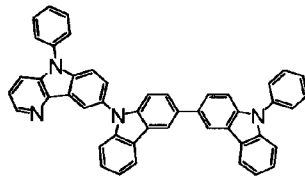
実施例 1 において、化合物 (1) を用いる代わりに表 3 に記載の化合物を用いて障壁層を形成した以外は実施例 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 8 2 】

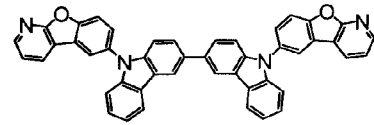
【化 6 6】



化合物 (5)

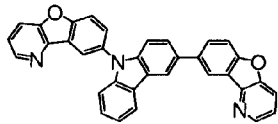


化合物 (6)

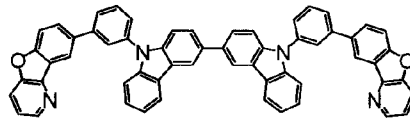


化合物 (7)

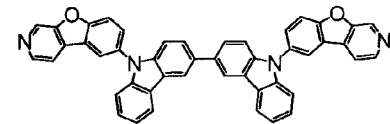
10



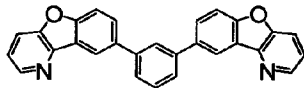
化合物 (8)



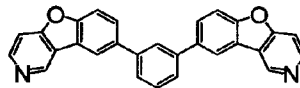
化合物 (9)



化合物 (10)



化合物 (H2)



化合物 (H3)

20

【0183】

【表 3】

表 3

	障壁層	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	半減寿命 (時間)
実施例 5	化合物 (5)	4.1	16.7	4700
実施例 6	化合物 (6)	4.6	16.4	5000
実施例 7	化合物 (7)	5.3	16.2	4800
実施例 8	化合物 (8)	4.2	15.8	4000
実施例 9	化合物 (9)	4.1	18.9	4900
実施例 10	化合物 (10)	4.8	15.8	3400
比較例 2	化合物 (H2)	4.4	18.0	2500
比較例 3	化合物 (H3)	5.0	15.3	200

30

40

【0184】

【表 4】

表 4

化合物	三重項エネルギー (eV)	ガラス転移点 (°C)
化合物 (5)	2.97	149
化合物 (6)	2.92	150
化合物 (7)	2.88	—
化合物 (8)	2.95	121
化合物 (9)	2.92	159
化合物 (10)	2.91	171
化合物 (H2)	3.03	71
化合物 (H3)	3.04	検出されず

10

【0185】

表 2 及び 4 より、一般式 (1) において G 1 1 ~ G 1 4 のなかで G 1 4 が窒素原子である場合が最も三重項エネルギーが高く、高効率化に有利であることが分かる。

表 1 及び 2 より、一般式 (1) において G 1 1 ~ G 1 4 のなかで G 1 4 が窒素原子である場合が最も低電圧且つ長寿命であることが分かる。

20

表 2 より、L₂ が酸素原子を含む 2 価の連結基である化合物 (2) が、これが単結合である化合物 (1) と比較して、より高い三重項エネルギーを有することがわかる。

【産業上の利用可能性】

【0186】

以上詳細に説明したように、本発明の有機 EL 素子用材料を利用すると、発光効率が高く、かつ寿命の長い有機 EL 素子が得られる。このため、本発明の有機 EL 素子は、各種電子機器のディスプレイ、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/JP2011/080133

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAplus (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	WO 2009/060780 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.),	1, 3, 5-7, 12, 15, 17-19, 22
Y	14 May 2009 (14.05.2009),	20, 21
A	paragraphs [0023], [0024], [0045], [0121] (illustrative compounds 1 to 61); paragraphs [0134], [0160], [0286] (Family: none)	2, 4, 8-11, 13, 14, 16
Y	JP 2001-102175 A (Junji KIDO), 13 April 2001 (13.04.2001), paragraph [0037]; fig. 1 & US 6589673 B1 & EP 1089361 A3 & TW 474114 B & KR 10-2001-0050711 A & CN 1290119 A	20, 21

☒ 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
13 February, 2012 (13.02.12)Date of mailing of the international search report
21 February, 2012 (21.02.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/080133

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 2011-84531 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 28 April 2011 (28.04.2011), paragraphs [0016] to [0036], [0094], compound 38; paragraph [0102], compound 82; paragraph [0121], compound 191; paragraphs [0214], [0233], [0372] to [0375], [0389] to [0394], [0406], [0407]; paragraph [0412], Organic Electroluminescence Device 3-3 (Family: none)	1-4, 6, 7, 12-22

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/080133

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

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

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

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

The matter to define the inventions of claims 1, 3, 5-7 and 12 of the present application is disclosed in the document 1 (WO 2009/060780 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 14 May 2009 (14.05.2009), paragraphs [0023], [0024], [0045], [0121] (illustrative compounds 1 to 61); paragraphs [0134], [0160], [0286]). Therefore, since the inventions of claims 1, 3, 5-7 and 12 is not considered to be novel in the light of the invention disclosed in the document 1 and does not have a special technical feature, the inventions of claims 1-22 are lack in unity.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 8 0 1 3 3	
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 1971-2012年 日本国実用新案登録公報 1996-2012年 日本国登録実用新案公報 1994-2012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(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 請求項の番号	
X	WO 2009/060780 A1（コニカミノルタホールディングス株式会社）2009.05.14, [0023], [0024], [0045], [0121]（例示化合物1-61）, [0134], [0160], [0286]（ファミリーなし）	1, 3, 5-7, 12, 15, 17-19, 22	
Y		20, 21	
A		2, 4, 8-11, 13, 14, 16	
<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 13.02.2012		国際調査報告の発送日 21.02.2012	
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） 本田 博幸 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 2905

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2011/080133
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
Y	JP 2001-102175 A (城戸 淳二) 2001. 04. 13, 【0037】, 【図1】 & US 6589673 B1 & EP 1089361 A3 & TW 474114 B & KR 10-2001-0050711 A & CN 1290119 A	20, 21
P, X	JP 2011-84531 A (コニカミノルタホールディング ス株式会社) 2011. 04. 28, 【0016】-【0036】, 【0094】化合物38, 【0102】化合物82, 【0121】 化合物191, 【0214】, 【0233】, 【0372】-【0375】, 【0389】-【0394】, 【0406】, 【0407】, 【0412】 有機EL素子3-3 (ファミリーなし)	1-4, 6, 7, 12-22

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 8 0 1 3 3

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

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

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

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

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

文献1(WO 2009/060780 A1(コニカミノルタホールディングス株式会社) 2009.05.14, [0023], [0024], [0045], [0121] (例示化合物1-61), [0134], [0160], [0286])には、本願の請求項1、3、5-7、12に係る発明の発明特定事項が記載されている。

したがって、請求項1、3、5-7、12に係る発明は、文献1に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しないので、請求項1-22に係る発明は、発明の単一性が欠如している。

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

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

様式PCT/ISA/210 (第1ページの続葉(2)) (2009年7月)

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

C 0 7 D 491/048

(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, MD, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, 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, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN

(出願人による申告) 国等の委託研究の成果に係る特許出願(平成21年度独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構「次世代高効率・高品質照明の基盤技術開発」プロジェクトの委託研究、産業技術力強化法第19条の適用を受ける特許出願)

Fターム(参考) 4C072 MM06 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	JPWO2012090967A1	公开(公告)日	2014-06-05
申请号	JP2012550954	申请日	2011-12-26
[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	沼田真樹		
发明人	沼田 真樹		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07D519/00 C07D491/048		
CPC分类号	H01L51/0072 C07D471/04 C07D491/044 C07D495/04 C07D519/00 C07F7/0814 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1014 C09K2211/1029 C09K2211/1088 C09K2211/1092 H01L51/0071 H01L51/0073 H01L51/0085 H01L51/5016 H01L51/5056 H01L51/5072		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/22.D H05B33/22.B C09K11/06.660 C09K11/06.690 C07D519/00 C07D491/048		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC04 3K107/CC12 3K107/CC22 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD75 3K107/DD76 3K107/DD78 4C050/AA01 4C050/AA07 4C050/BB07 4C050/CC16 4C050/EE01 4C050/FF01 4C050/GG04 4C050/HH02 4C050/HH04 4C072/MM06 4C072/UU05		
代理人(译)	伊藤 高志		
优先权	2010293899 2010-12-28 JP		
其他公开文献	JP6034196B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

一种具有特定结构的有机电致发光装置用材料，其特征在于，二苯并咪喃骨架，咔唑骨架或二苯并噻吩骨架的芳香环具有氮原子作为杂原子，并且该有机电致发光元件包括具有有机薄膜层的有机电致发光元件。在阴极和阳极之间的一层或多层。有机薄膜层包括发光层，该发光层包括磷光发光材料。有机薄膜层的至少一层包括用于有机电致发光器件的材料。采用有机EL器件的材料的有机EL器件即使在低电压下驱动器件时也具有高的外部量子效率，并且具有长的寿命。

