

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B1)

(11) 特許番号

特許第5499227号
(P5499227)

(45) 発行日 平成26年5月21日 (2014. 5. 21)

(24) 登録日 平成26年3月14日 (2014. 3. 14)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 F 7/10 (2006. 01)

C O 7 F 7/10 C S P S

C O 9 K 11/06 (2006. 01)

C O 9 K 11/06

H O 1 L 33/50 (2010. 01)

H O 1 L 33/00 4 1 0

請求項の数 10 (全 31 頁)

(21) 出願番号 特願2013-557696 (P2013-557696)
 (86) (22) 出願日 平成25年8月9日 (2013. 8. 9)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2013/071624
 審査請求日 平成25年12月19日 (2013. 12. 19)
 (31) 優先権主張番号 特願2012-181997 (P2012-181997)
 (32) 優先日 平成24年8月21日 (2012. 8. 21)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000005315
 保土谷化学工業株式会社
 東京都中央区八重洲二丁目4番1号
 (73) 特許権者 504180239
 国立大学法人信州大学
 長野県松本市旭三丁目1番1号
 (74) 代理人 110001416
 特許業務法人 信栄特許事務所
 (72) 発明者 横山 紀昌
 東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土
 谷化学工業株式会社内
 (72) 発明者 長岡 誠
 茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷
 化学工業株式会社内

最終頁に続く

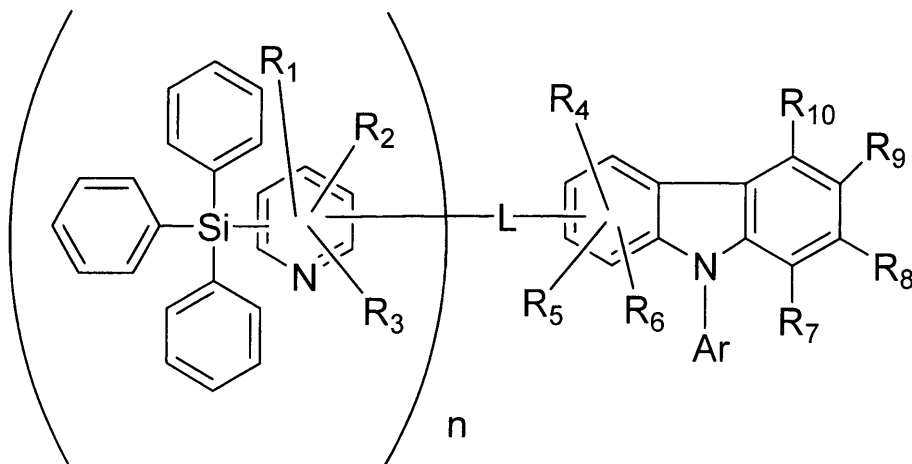
(54) 【発明の名称】 トリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物および有機エレクトロルミ
 ネッセンス素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式(1)で表される、トリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を
 有する化合物。

【化 1】



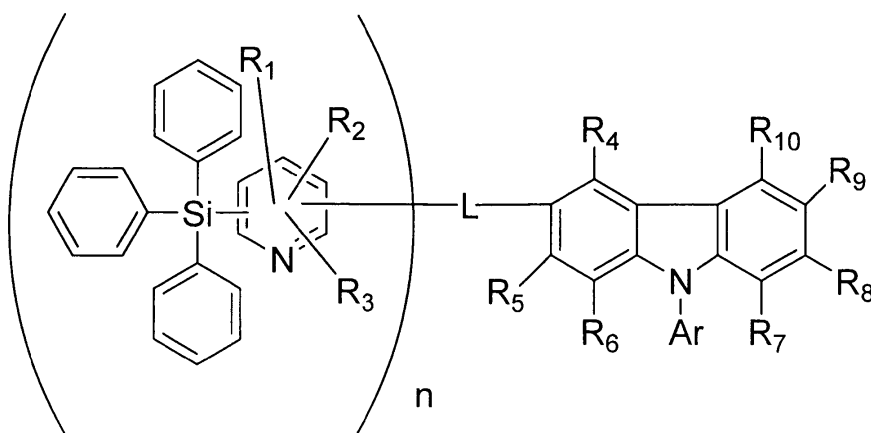
(1)

(式中、 $R_1 \sim R_{10}$ は、同一でも異なってもよく水素原子、重水素原子、シアノ基、ニトロ基、炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルコキシ基、トリフルオロメチル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、 Ar は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。 L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素、置換もしくは無置換の芳香族複素環または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族の 2 価基もしくは 3 価基を表し、 n は 1 または 2 を表す。)

【請求項 2】

下記一般式 (1 - 1) で表される、請求項 1 記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物。

【化 2】



(1 - 1)

【請求項 3】

前記一般式 (1) または一般式 (1 - 1) において、 L がベンゼンから水素原子を 2 個もしくは 3 個取り除いてできる 2 価基もしくは 3 価基である、請求項 1 または請求項 2 に記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物。

【請求項 4】

一対の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記請求項 1 または請求項 2 に記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物が、前記有機層の構成材料として用いられている、有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記した有機層が発光層である請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 6】

前記発光層が燐光性の発光材料を含有する、請求項 5 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

前記一対の電極の間に挟まれた発光層をさらに有する、請求項 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】

前記発光層が燐光性の発光材料を含有する、請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】

前記請求項 1 または請求項 2 に記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物が、該発光層中に、少なくとも一つの構成材料として用いられている、請求項 7 または請求項 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】

前記した燐光性の発光材料がイリジウムまたは白金を含む金属錯体である、請求項 6、請求項 8 および請求項 9 のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、各種の表示装置に好適な自己発光素子である有機エレクトロルミネッセンス素子に適した化合物と該素子に関するものであり、詳しくはトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物と、該化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

10

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子は自己発光性素子であるので、液晶素子にくらべて明るく視認性に優れ、鮮明な表示が可能であるため、活発な研究がなされてきた。

【0003】

近年、素子の発光効率を上げる試みとして、燐光発光体を用いて燐光を発生させる、すなわち三重項励起状態からの発光を利用する素子が開発されている。励起状態の理論によれば、燐光発光を用いた場合には、従来の蛍光発光の約 4 倍の発光効率が可能になるという、顕著な発光効率の向上が期待される。

1993 年に米国プリンストン大学の M. A. Baldoらは、イリジウム錯体を用いた燐光発光素子によって 8 % の外部量子効率を実現させた。

20

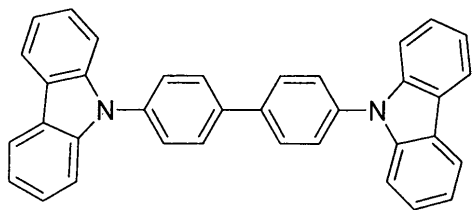
【0004】

燐光発光体は濃度消光を起こすため、一般的にホスト化合物と称される、電荷輸送性の化合物にドーブさせることによって担持される。担持される燐光発光体はゲスト化合物と称される。このホスト化合物としては、下記式で表される 4, 4' - ジ (N - カルバゾリル) ピフェニル (以後、CBP と略称する) が一般に用いられてきた (例えば、非特許文献 1 参照) 。

【0005】

【化 1】

30



【0006】

しかし、CBP はガラス転移点 (T g) が 62 と低く、結晶性が強いため、薄膜状態における安定性に乏しいことが指摘されていた。そのため高輝度発光など、耐熱性が必要とされる場面において、満足できる素子特性が得られていなかった。

40

【0007】

燐光発光素子の研究が進むとともに、燐光発光体とホスト化合物の間のエネルギー移動過程の解明が進み、発光効率を高めるためにはホスト化合物の励起三重項レベルが燐光発光体の励起三重項レベルよりも高くなくてはならないことが明らかとなった。

【0008】

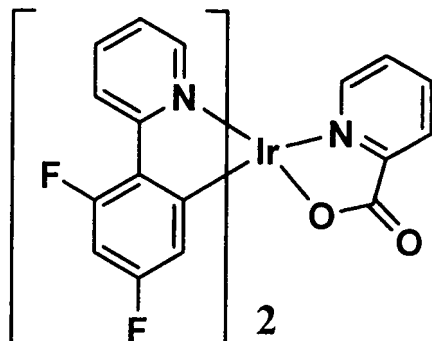
下記式で表される青色燐光発光材である F Ir p i c を前記 CBP にドーブして発光層のホスト化合物とした場合、燐光発光素子の外部量子効率は 6 % 程度に留まっている。これは F Ir p i c の励起三重項レベルが 2.67 eV であるのに対し、CBP の励起三重項レベルが 2.57 eV と低いことから、F Ir p i c による三重項励起子の閉じ込めが

50

、C B Pでは不十分であるからと考えられた。このことは、F I r p i cをC B Pにドーピングした薄膜のフォトルミネッセンス強度が温度依存性を示すことによって実証されている。(例えば、非特許文献2参照)

【0009】

【化2】

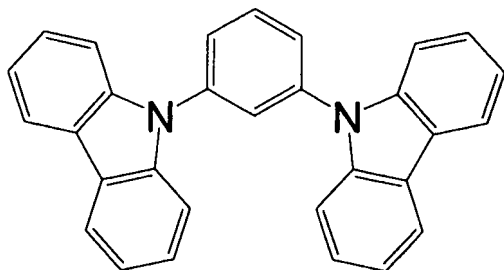


【0010】

C B Pよりも励起三重項レベルの高いホスト化合物としては、下記で示される1,3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン(以後、m C Pと略称する)が知られているが、m C Pもガラス転移点(T_g)が55と低く、結晶性が強いので、薄膜状態における安定性に乏しい。そのため高輝度発光など、耐熱性が要求される場面において、満足できる素子特性が得られていなかった。(例えば、非特許文献2参照)

【0011】

【化3】



【0012】

また、より高い励起三重項レベルを有するホスト化合物を検討する中から、電子輸送性もしくはバイポーラー輸送性のホスト化合物にイリジウム錯体をドーピングした場合、高い発光効率が得られることが分かってきている。(例えば、非特許文献3参照)

【0013】

このように、実用的な場面での燐光発光素子の発光効率を高めるため、励起三重項レベルが高く、薄膜安定性の高い、発光層のホスト化合物が必要とされてきている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0014】

【特許文献1】日本国特開2007-022986号公報

【非特許文献】

【0015】

【非特許文献1】Appl. Phys. Lett., 75, 4 (1999)

【非特許文献2】有機EL照明用材料の開発と評価技術 p102-106 サイエンス

10

20

30

40

50

&テクノロジー株式会社、(2010)

【非特許文献3】有機ELディスプレイ p90、株式会社オーム社(2005)

【非特許文献4】Synth. Commun., 11, 513(1981)

【非特許文献5】第4版実験化学講座7 p384-398、日本化学会編、丸善(1992)

【非特許文献6】有機EL討論会第1回例会予稿集、19(2005)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0016】

本発明の目的は、高効率の有機エレクトロルミネッセンス素子用の材料として、高い励起三重項レベルを有し、燐光発光体の三重項励起子を十分に閉じ込めることができ、かつ薄膜安定性の高い、すなわちガラス転移点(T_g)の高い、発光層のホスト化合物を提供し、さらにこの化合物を用いて、高効率、高輝度の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。本発明が提供しようとする有機化合物が具備すべき物理的な特性としては、(1)励起三重項レベルが高いこと、(2)バイポーラ輸送性を有すること、(3)薄膜状態が安定であること、をあげることができる。また、本発明が提供しようとする有機エレクトロルミネッセンス素子が具備すべき物理的な特性としては、(1)発光効率が高いこと、(2)発光輝度が高いこと、(3)実用駆動電圧が低いことをあげることができる。

【課題を解決するための手段】

【0017】

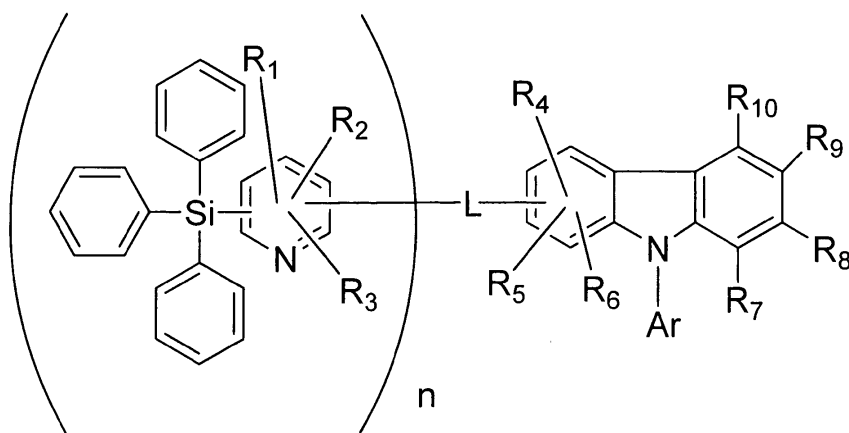
そこで本発明者らは上記の目的を達成するために、トリフェニルシリル基およびピリジン環構造が電子輸送能力を有していること、カルバゾール環構造が良好な耐熱性と正孔輸送能力を有しているということ、などに着目して、励起三重項レベルを指標に化合物を設計して化学合成し、実際に励起三重項レベルを測定することによって燐光発光素子に適した特性を有する新規なトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物を見出した。そして、該化合物を用いて種々の有機エレクトロルミネッセンス素子を試作し、素子の特性評価を鋭意行った結果、本発明を完成するに至った。

【0018】

1)すなわち本発明は、下記一般式(1)で表されるトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物を提供する。

【0019】

【化4】



(1)

【0020】

(式中、R₁ ~ R₁₀は、同一でも異なってもよく水素原子、重水素原子、シアノ基、ニトロ基、炭素原子数1ないし6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素原子数1ないし6の直鎖状もしくは分岐状のアルコキシ基、トリフルオロメチル基、置換もしくは無置

換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、Arは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。Lは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素、置換もしくは無置換の芳香族複素環または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族の2価基もしくは3価基を表し、nは1または2を表す。)

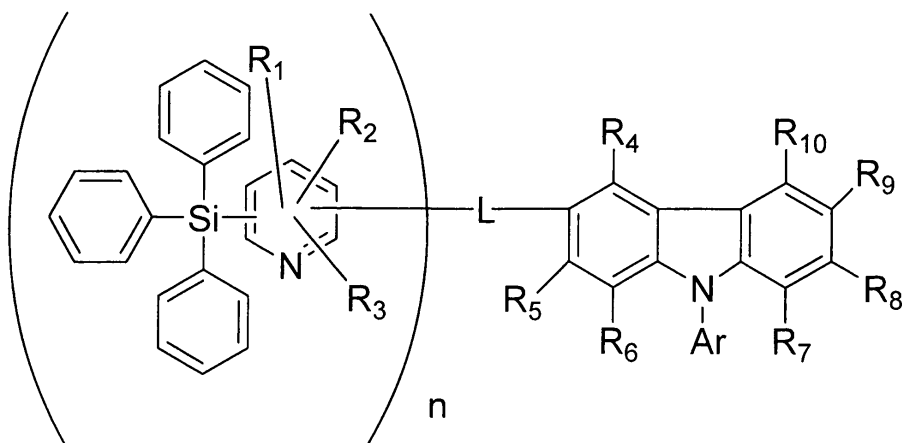
【0021】

2) 上記1)記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物は、下記一般式(1-1)で表される化合物であることが好ましい。

【0022】

【化5】

10



20

(1-1)

【0023】

3) 前記一般式(1)または一般式(1-1)において、Lがベンゼンから水素原子を2個もしくは3個取り除いてできる2価基もしくは3価基であることが好ましい。

【0024】

4) また本発明は、一対の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記1)または2)に記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物が、前記有機層の構成材料として用いられている、有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

30

【0025】

5) 上記4)における有機層は発光層であることが好ましい。

【0026】

6) 上記5)における発光層は、燐光性の発光材料を含有することが好ましい。

【0027】

7) 上記4)記載の有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記一対の電極の間に挟まれた発光層をさらに有することが好ましい。

【0028】

8) 上記7)における発光層は、燐光性の発光材料を含有することが好ましい。

40

【0029】

9) 上記7)または8)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記1)または2)に記載のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物が、該発光層中に、少なくとも一つの構成材料として用いられていることが好ましい。

【0030】

10) 上記6)、8)および9)のいずれか一つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記した燐光性の発光材料がイリジウムまたは白金を含む金属錯体であることが好ましい。

【0031】

一般式(1)および一般式(1-1)中のR₁~R₁₀で表される、「炭素原子数1な

50

いし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基」または「炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルコキシ基」としては、具体的に、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*i*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*i*-ペンチル基、*t*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*i*-ヘキシル基、*t*-ヘキシル基、メチルオキシ基、エチルオキシ基、*n*-プロピルオキシ基、*i*-プロピルオキシ基、*n*-ブチルオキシ基、*i*-ブチルオキシ基、*t*-ブチルオキシ基、*n*-ペンチルオキシ基、*i*-ペンチルオキシ基、*t*-ペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基、*i*-ヘキシルオキシ基、*t*-ヘキシルオキシ基のような基をあげることができる。これらの基は置換基を有していてもよく、これらの基同士が互いに結合して環を形成していてもよい。これらの基が有していてもよい置換基としては、 $R_1 \sim R_{10}$ として定義される基と同様のものをあげることができる。

10

【0032】

一般式 (1) および一般式 (1-1) 中の $R_1 \sim R_{10}$ で表される、「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基」の「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、具体的にフェニル基、ピフェニリル基、ターフェニリル基、テトラキスフェニル基、スチリル基、ナフチル基、アントリル基、アセナフテニル基、フェナントリル基、フルオレニル基、インデニル基、ピレニル基、ピリジル基、トリアジニル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、チエニル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基のような基をあげることができる。

20

【0033】

一般式 (1) および一般式 (1-1) 中の $R_1 \sim R_{10}$ で表される、「置換芳香族炭化水素基」、「置換芳香族複素環基」または「置換縮合多環芳香族基」における「置換基」としては、具体的に、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルコキシ基、トリフルオロメチル基、フェニル基、ピフェニリル基、ターフェニリル基、ナフチル基、フェナントリル基、アラリル基、フルオレニル基、インデニル基、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリル基、ベンゾオキサゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基のような基をあげることができ、これらの置換基はさらに前記例示した置換基が置換していてもよく、これらの置換基同士が互いに結合し、環を形成していてもよい。

30

【0034】

一般式 (1) および一般式 (1-1) 中の Ar で表される、「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基」の「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、具体的にフェニル基、ピフェニリル基、ターフェニリル基、テトラキスフェニル基、スチリル基、ナフチル基、アントリル基、アセナフテニル基、フェナントリル基、フルオレニル基、インデニル基、ピレニル基、ピリジル基、トリアジニル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、チエニル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基のような基をあげることができる。

40

【0035】

一般式 (1) および一般式 (1-1) 中の Ar で表される、「置換芳香族炭化水素基」

50

、「置換芳香族複素環基」または「置換縮合多環芳香族基」における「置換基」としては、具体的に、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、炭素原子数1ないし6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素原子数1ないし6の直鎖状もしくは分岐状のアルコキシ基、トリフルオロメチル基、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、アラルキル基、フルオレニル基、インデニル基、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリル基、ベンゾオキサゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基のような基をあげることができ、これらの置換基はさらに前記例示した置換基が置換していてもよく、これらの置換基同士が互いに結合し、環を形成していてもよい。

10

【0036】

一般式(1)および一般式(1-1)中のLで表される、「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族」の「芳香族炭化水素」、「芳香族複素環」または「縮合多環芳香族」としては、具体的に次のような基をあげることができる。ベンゼン、ピフェニル、ターフェニル、テトラキスフェニル、スチレン、ナフタレン、アントラセン、アセナフタレン、フルオレン、フェナントレン、インダン、ピレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、フラン、ピロール、チオフェン、キノリン、イソキノリン、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、インドリン、カルバゾール、カルボリン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、キノキサリン、ベンゾイミダゾール、ピラゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、ナフチリジン、フェナントロリン、アクリジニンなどをあげることができる。

20

そして、一般式(1)および一般式(1-1)中のLで表される「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素の2価基もしくは3価基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環の2価基もしくは3価基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族の2価基もしくは3価基」は、上記「芳香族炭化水素」、「芳香族複素環」または「縮合多環芳香族」から水素原子を2個取り除いてできる2価基、もしくは水素原子を3個取り除いてできる3価基を表す。

一般式(1)および一般式(1-1)中のLとしては、「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素の2価基もしくは3価基」が好ましく、特にベンゼンから誘導される2価基もしくは3価基がより好ましく、ベンゼンから誘導される2価基が特に好ましい。

30

【0037】

本発明の一般式(1)および一般式(1-1)で表される、トリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物は新規な化合物であり、従来の材料より励起三重項レベルが高く、優れた三重項励起子を閉じ込める能力を有し、かつ薄膜状態が安定である。

【0038】

本発明の一般式(1)および一般式(1-1)において、nは1または2を表すが、nが1であることが、より好ましい。

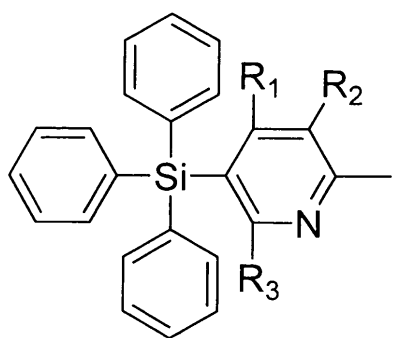
本発明の一般式(1)および一般式(1-1)において、Lがベンゼンから誘導される2価基である場合の、トリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造の結合位置は、1,3-位(メタ結合)、もしくは1,2-位(オルト結合)が好ましく、1,2-位(オルト結合)がより好ましい。

40

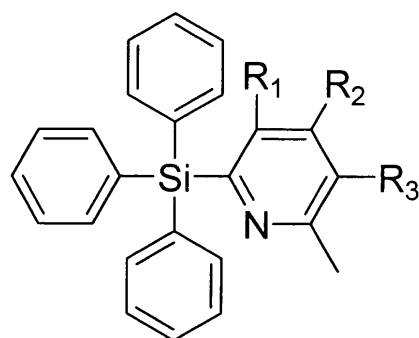
本発明の一般式(1)および一般式(1-1)において、トリフェニルシリルピリジル基としては、下記に示す基a)~e)のいずれかであることが好ましい。

【0039】

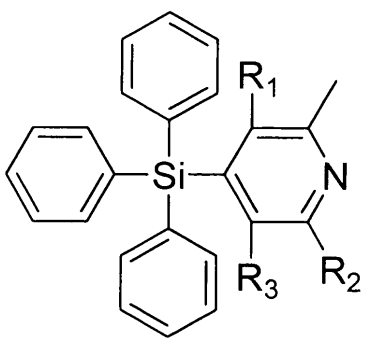
【化 6】



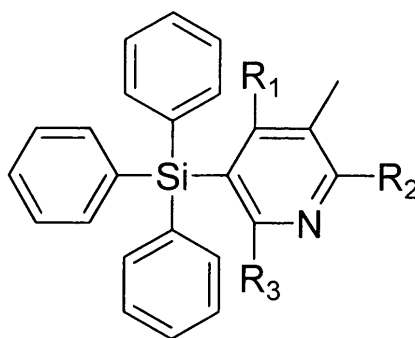
a)



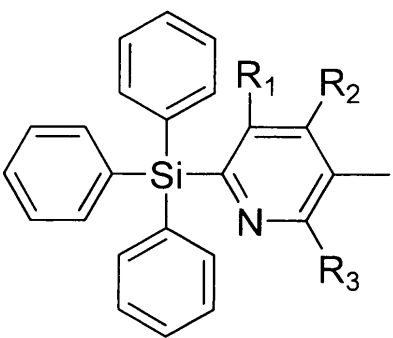
b)



c)



d)



e)

【 0 0 4 0 】

本発明の一般式(1)および一般式(1-1)で表される、トリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物は、有機エレクトロルミネッセンス素子(以後、有機EL素子と略称する。)の有機層、特に発光層、さらに好ましくは燐光性の発光材料を含有する発光層の構成材料として使用することができる。従来の材料に比べてパイボータ輸送性に優れている本発明の化合物を用いることにより、発光効率が向上し、実用駆動電圧が低下するという作用を有する。

【発明の効果】

【 0 0 4 1 】

本発明のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物は、有機EL素子の発光層のホスト化合物として有用であり、該化合物を用いて有機EL素子を作製することにより、高効率、高輝度、低駆動電圧の有機EL素子を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 4 2 】

【図1】図1は、本発明実施例1の化合物(化合物10)の¹H-NMRチャート図である。

【図2】図2は、本発明実施例2の化合物(化合物3)の¹H-NMRチャート図である。

【図3】図3は、実施例6、比較例1のEL素子構成を示した図である。

【発明を実施するための形態】

【0043】

本発明のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物は、新規な化合物であり、これらの化合物は例えば、以下のように合成できる。まず、相当するカルバゾール誘導体と相当するハロゲン化ベンゼン誘導体とのSuzukiカップリングなどのクロスカップリング反応（例えば、非特許文献4参照）を行うことによって、相当するカルバゾリルフェニル中間体を合成することができる。この相当するカルバゾリルフェニル中間体を対応するホウ酸エステル化体とした後、相当するジハロゲン化ピリジル誘導体とのSuzukiカップリングなどのクロスカップリング反応を行った後、対応するホウ酸エステル化体やリチオ化体とし、さらにトリフェニルシリルクロライドなどと反応させることによって、本発明のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物を合成することができる。

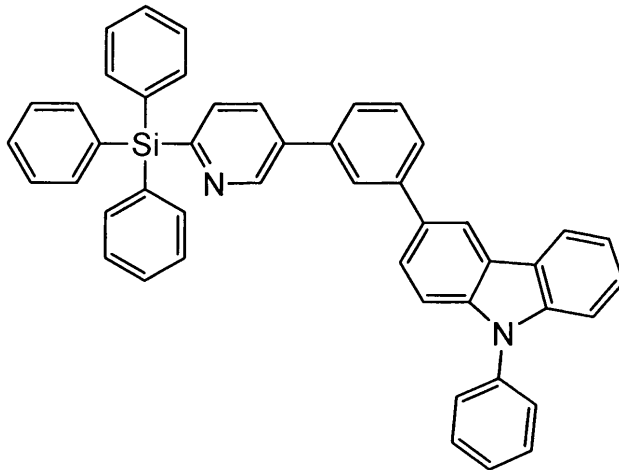
10

【0044】

一般式(1)で表されるトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物の中で、好ましい化合物の具体例を以下に示すが、本発明は、これらの化合物に限定されるものではない。

【0045】

【化7】



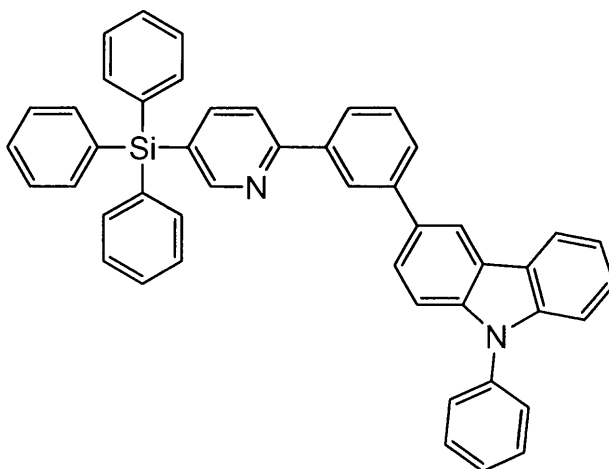
20

(化合物2)

30

【0046】

【化8】

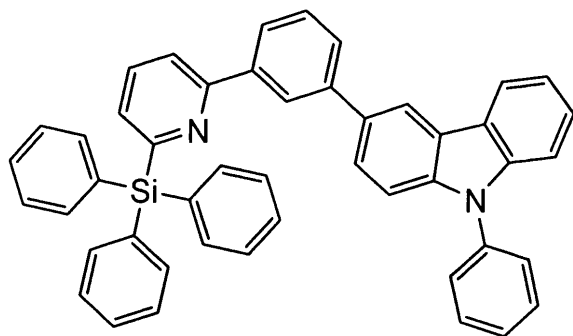


40

(化合物3)

【0047】

【化 9】

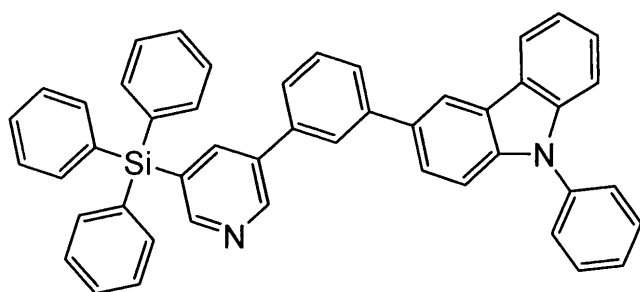


(化合物 4)

10

【 0 0 4 8】

【化 1 0】

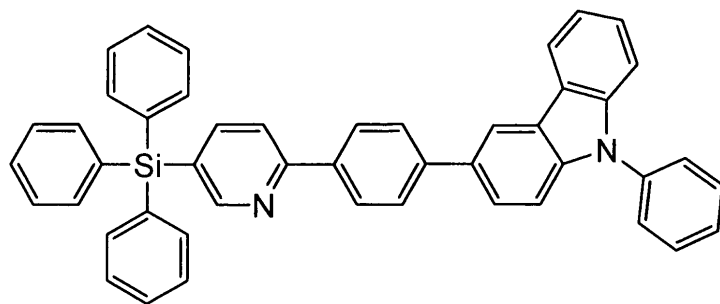


(化合物 5)

20

【 0 0 4 9】

【化 1 1】

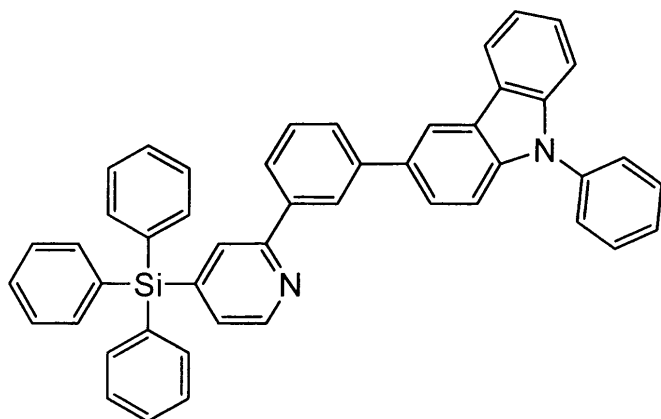


(化合物 6)

30

【 0 0 5 0】

【化 1 2】

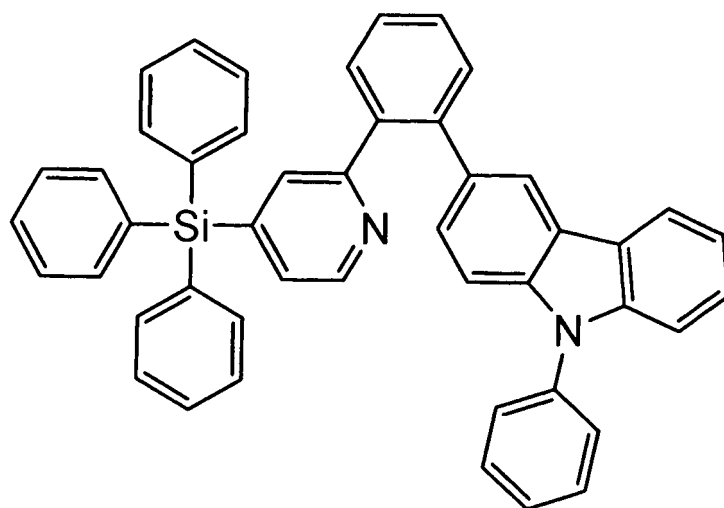


10

(化合物 7)

【 0 0 5 1】

【化 1 3】



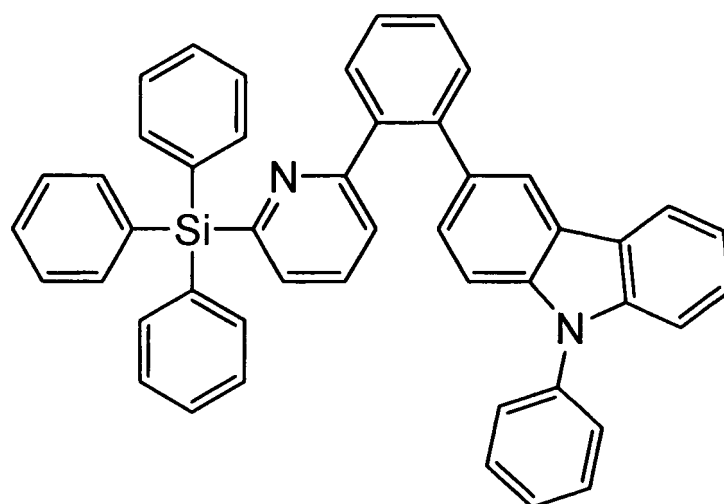
20

(化合物 8)

30

【 0 0 5 2】

【化 1 4】



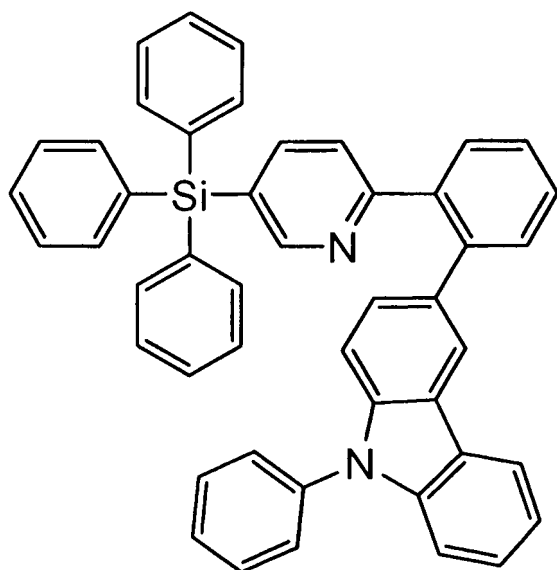
40

(化合物 9)

50

【 0 0 5 3 】

【 化 1 5 】

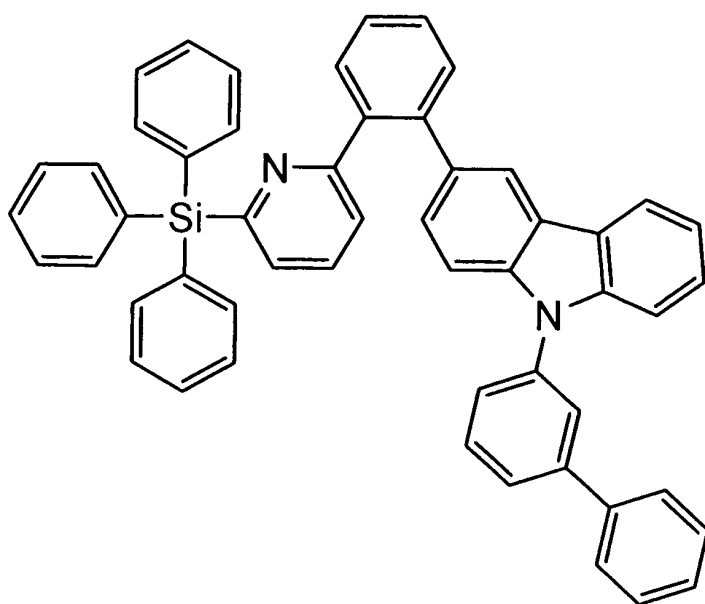


10

(化合物 1 0)

【 0 0 5 4 】

【 化 1 6 】



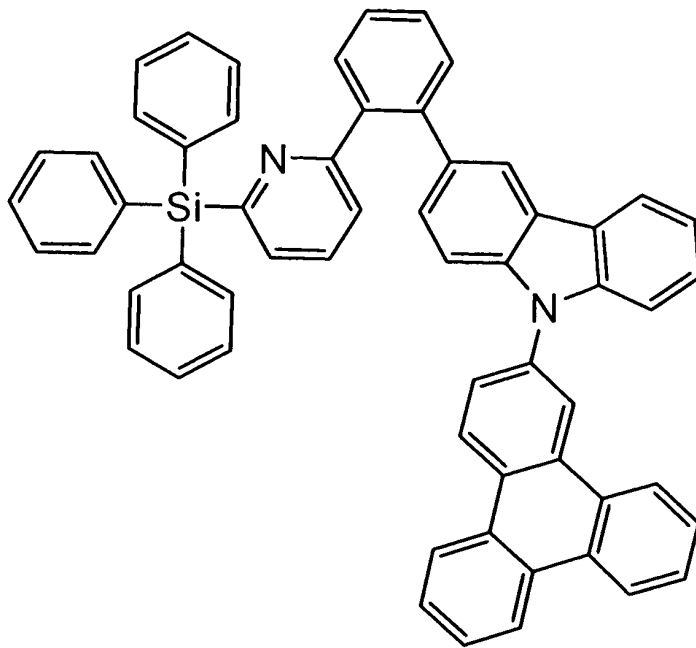
30

(化合物 1 1)

【 0 0 5 5 】

40

【化 1 7】



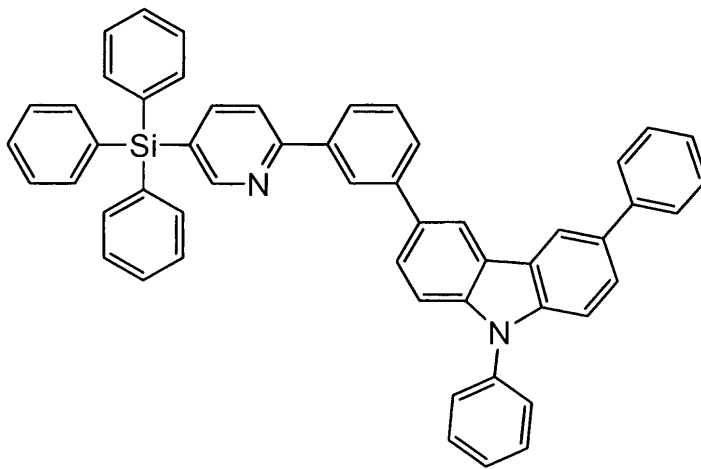
10

(化合物 1 2)

20

【 0 0 5 6】

【化 1 8】

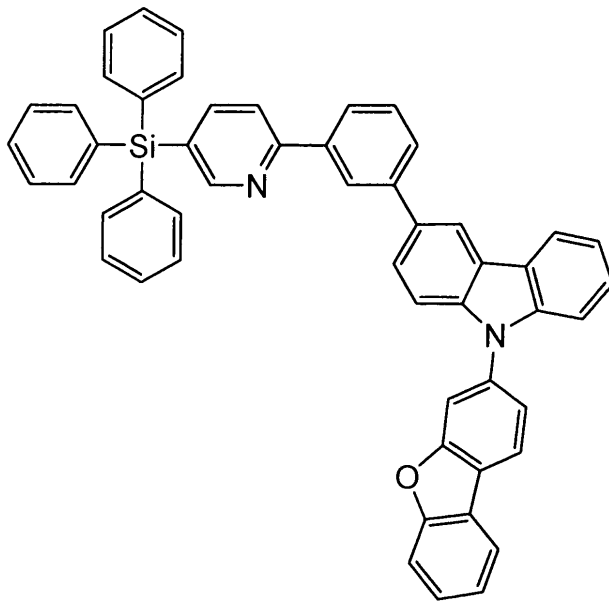


30

(化合物 1 3)

【 0 0 5 7】

【化 1 9】



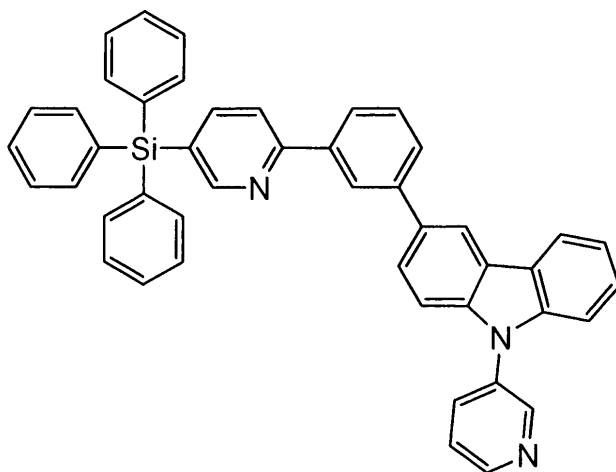
10

(化合物 1 4)

【 0 0 5 8】

20

【化 2 0】

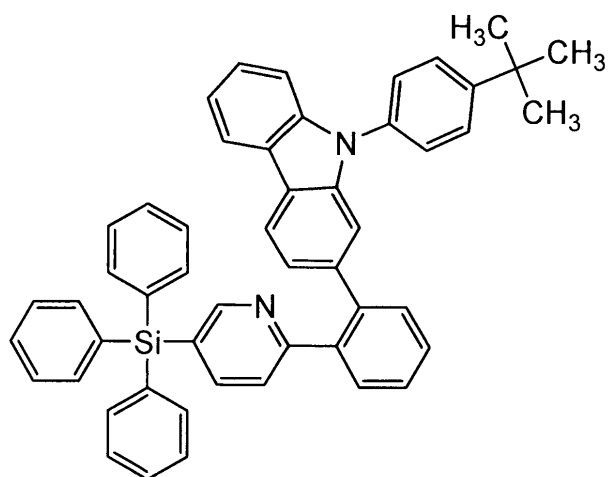


30

(化合物 1 5)

【 0 0 5 9】

【化 2 1】

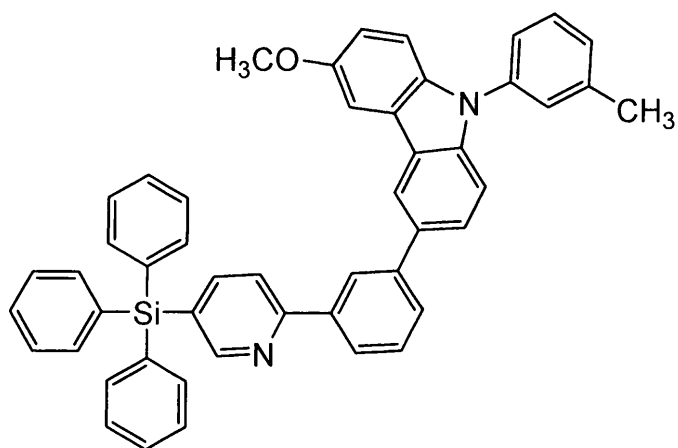


10

(化合物 1 6)

【 0 0 6 0】

【化 2 2】

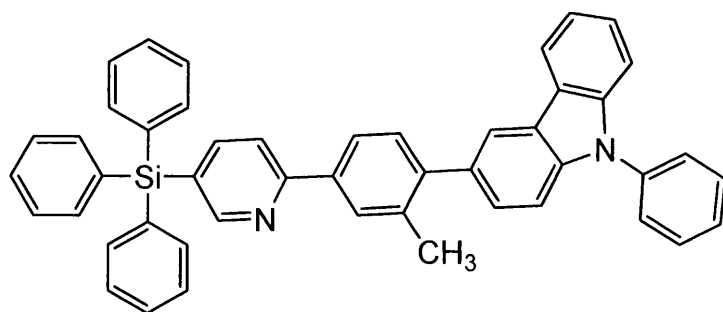


20

(化合物 1 7)

【 0 0 6 1】

【化 2 3】

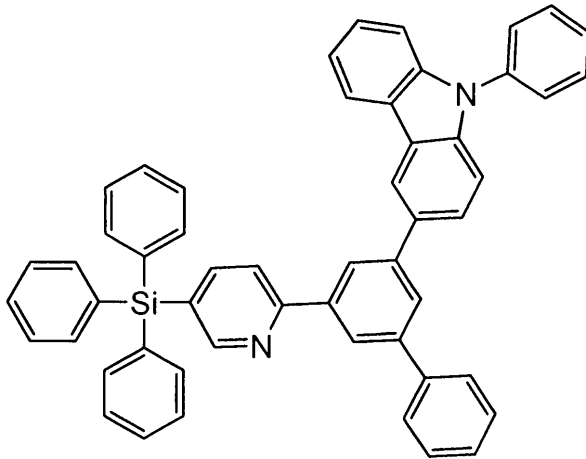


40

(化合物 1 8)

【 0 0 6 2】

【化 2 4】

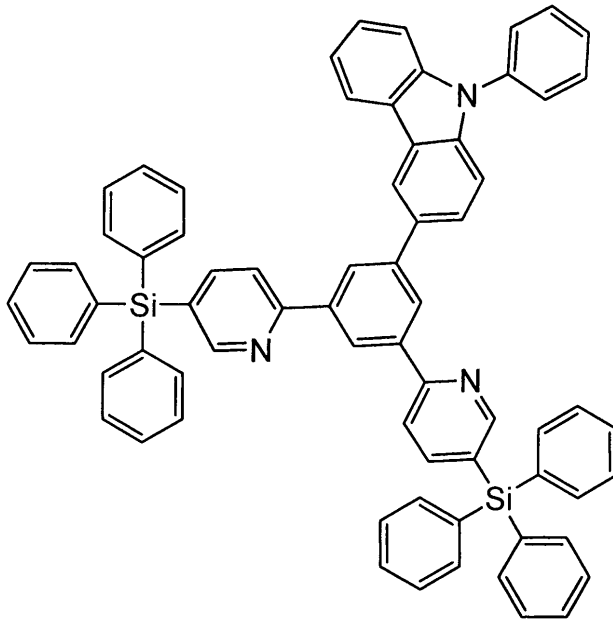


10

(化合物 1 9)

【 0 0 6 3】

【化 2 5】



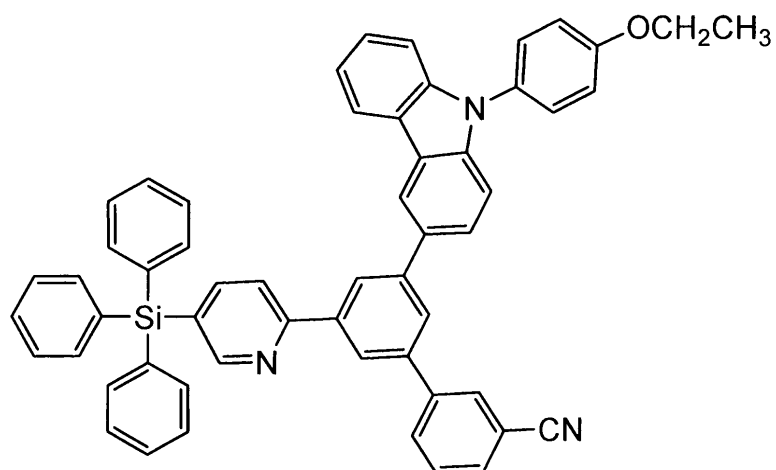
20

30

(化合物 2 0)

【 0 0 6 4】

【化 2 6】

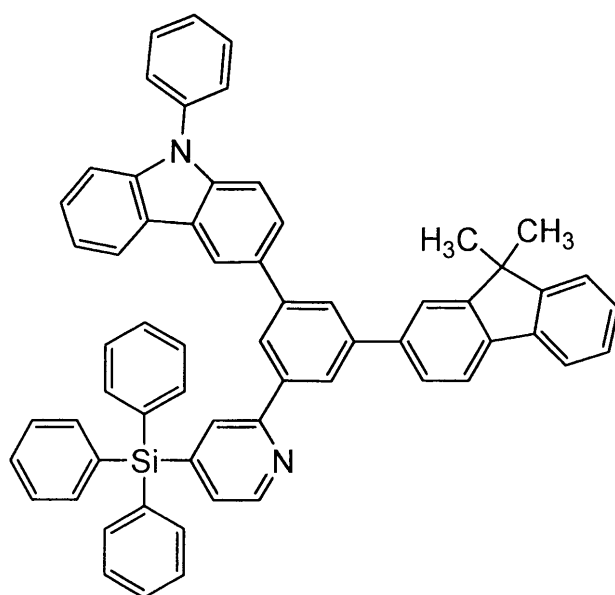


10

(化合物 2 1)

【 0 0 6 5】

【化 2 7】



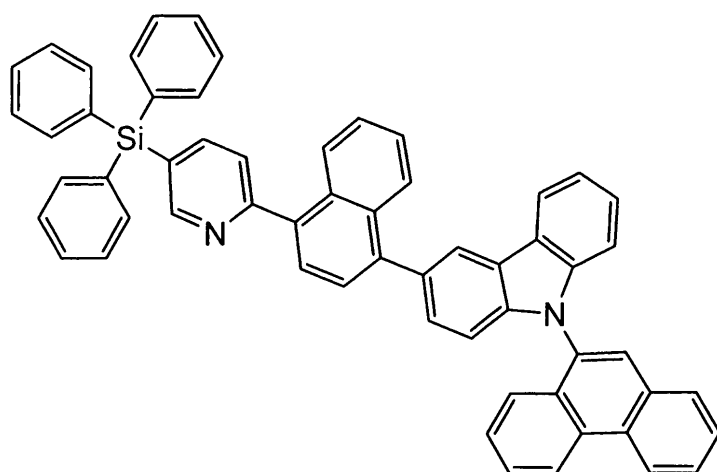
20

30

(化合物 2 2)

【 0 0 6 6】

【化 2 8】

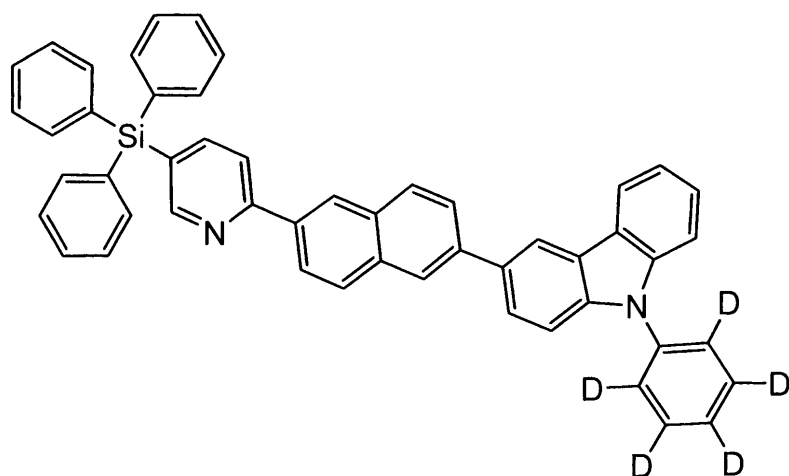


10

(化合物 2 3)

【 0 0 6 7】

【化 2 9】



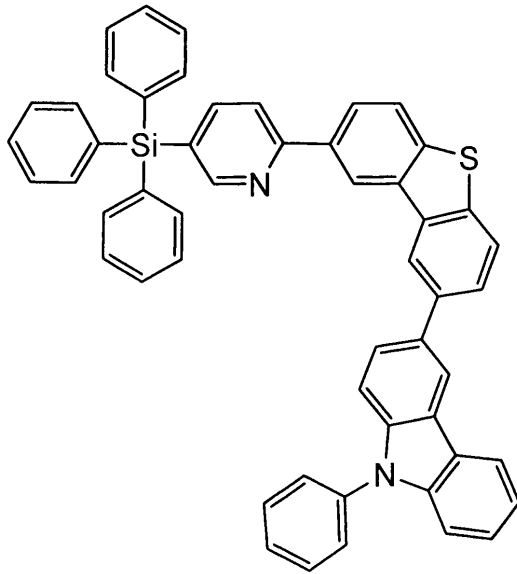
20

30

(化合物 2 4)

【 0 0 6 8】

【化 3 0】



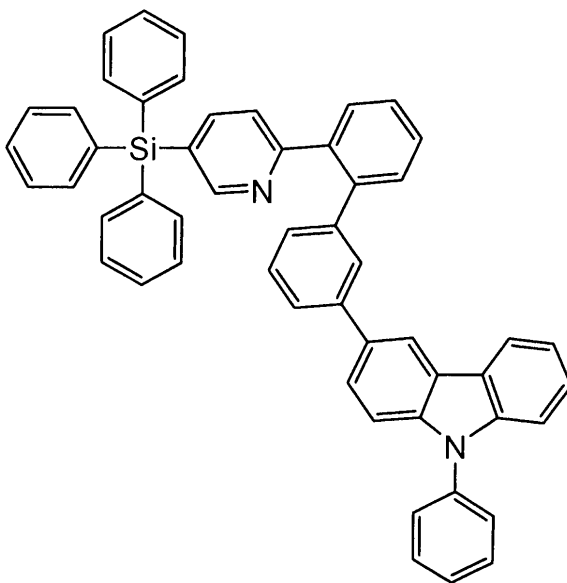
10

(化合物 2 5)

【 0 0 6 9】

20

【化 3 1】



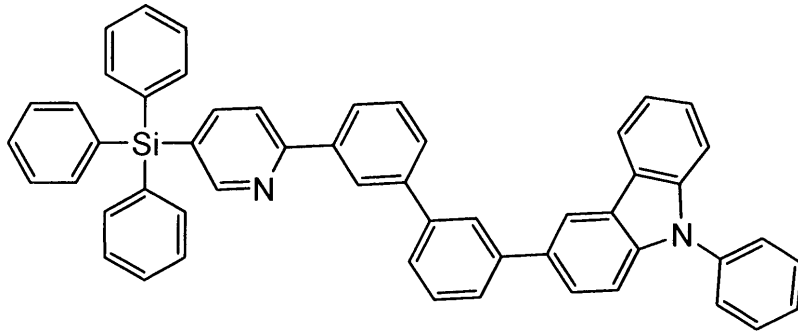
30

(化合物 2 6)

【 0 0 7 0】

40

【化 3 2】

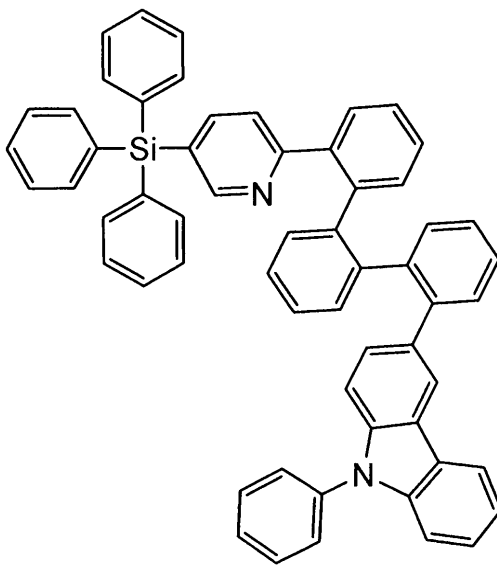


(化合物 2 7)

10

【 0 0 7 1】

【化 3 3】



(化合物 2 8)

20

30

【 0 0 7 2】

これらの化合物の精製はカラムクロマトグラフによる精製、シリカゲル、活性炭、活性白土などによる吸着精製、溶媒による再結晶や晶析法などによって行った。化合物の同定は、NMR 分析によって行った。物性値として、ガラス転移点 (T_g) と仕事関数の測定を行った。ガラス転移点 (T_g) は薄膜状態の安定性の指標となるものであり、仕事関数は発光ホスト材料としてのエネルギー準位の指標となるものである。

【 0 0 7 3】

ガラス転移点 (T_g) は、粉体を用いて高感度示差走査熱量計 (セイコー・インスツルメント製、DSC 6200) によって測定した。

40

【 0 0 7 4】

また仕事関数は、ITO 基板の上に 100 nm の薄膜を作製して、大気中光電子分光装置 (理研計器製、AC-3 型) を用いて測定した。

【 0 0 7 5】

本発明の化合物の励起三重項レベルは、測定した燐光スペクトルより算出できる。燐光スペクトルは市販の分光光度計を用いて測定できる。一般的な燐光スペクトルの測定方法としては、試料を溶媒に溶解し、低温下励起光を照射して測定する方法 (例えば、非特許文献 5 参照)、あるいは、試料をシリコン基板上に蒸着して薄膜とし、低温下励起光を照射して燐光スペクトルを測定する方法などがある (例えば、特許文献 1 参照)。励起三重項レベルは、燐光スペクトルの短波長側の第 1 ピークの波長あるいは短波長側の立ち上が

50

り位置の波長を読み取り、下記の式に従って光のエネルギー値に換算することによって算出できる。励起三重項レベルは燐光発光体の三重項励起子の閉じ込めの指標となる。

【0076】

【数1】

$$E \text{ (eV)} = hc / \lambda$$

【0077】

ここで、Eは光エネルギーの値を、hはプランク定数(6.63×10^{-34} J s)を、cは光速(3.00×10^8 m/s)を、 λ は燐光スペクトルの短波長側の立ち上がる場所の波長(nm)を表す。そして、1 eVは 1.60×10^{-19} Jとなる。

【0078】

本発明の有機EL素子の構造としては、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、陰極からなるもの、また、電子輸送層と陰極の間にさらに電子注入層を有するものがあげられる。これらの多層構造においては有機層を何層か省略することが可能であり、例えば基板上に順次に、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極とすることや、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極とすることもできる。

【0079】

前記発光層、前記正孔輸送層、前記電子輸送層においては、それぞれが2層以上積層された構造であっても良い。

【0080】

本発明の有機EL素子の陽極としては、ITOや金のような仕事関数の大きな電極材料が用いられる。本発明の有機EL素子の正孔注入層として、銅フタロシアニンに代表されるポルフィリン化合物のほか、ナフタレンジアミン誘導体、スターバースト型のトリフェニルアミン誘導体、分子中にトリフェニルアミン構造を3個以上、単結合またはヘテロ原子を含まない2価基で連結した構造を有するアリールアミン化合物などのトリフェニルアミン3量体および4量体、ヘキサシアノアザトリフェニレンのようなアクセプター性の複素環化合物や塗布型の高分子材料を用いることができる。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0081】

本発明の有機EL素子の正孔輸送層として、m-カルバゾリルフェニル基を含有する化合物のほか、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(以後、TPDと略称する)やN,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(α -ナフチル)-ベンジジン(以後、NPDと略称する)、N,N,N',N'-テトラビフェニルベンジジンなどのベンジジン誘導体、1,1-ビス[(ジ-4-トリルアミノ)フェニル]シクロヘキサン(以後、TAPCと略称する)、種々のトリフェニルアミン3量体および4量体やカルバゾール誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、単独で成膜した層同士、混合して成膜した層同士、または単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。また、正孔の注入・輸送層として、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)(以後、PEDOTと略称する)/ポリ(スチレンスルフォネート)(以後、PSSと略称する)などの塗布型の高分子材料を用いることができる。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0082】

また、正孔注入層あるいは正孔輸送層において、該層に通常使用される材料に対し、さ

10

20

30

40

50

らにトリスプロモフェニルアミンヘキサクロルアンチモンをPドーピングしたものや、TPDの構造をその部分構造に有する高分子化合物などを用いることができる。

【0083】

本発明の有機EL素子の電子阻止層として、4,4',4''-トリ(N-カルバゾール)トリフェニルアミン(以後、TC TAと略称する)、9,9-ビス[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]フルオレン、1,3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン(以後、mCPと略称する)、2,2-ビス(4-カルバゾール-9-イルフェニル)アダマンタン(以後、Ad-Czと略称する)などのカルバゾール誘導体、9-[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]-9-[4-(トリフェニルシリル)フェニル]-9H-フルオレンに代表されるトリフェニルシリル基とトリアリールアミン構造を有する化合物などの電子阻止作用を有する化合物を用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、単独で成膜した層同士、混合して成膜した層同士、または単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

10

【0084】

本発明の有機EL素子の発光層として、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(以後、Alq₃と略称する)をはじめとするキノリノール誘導体の金属錯体などの各種金属錯体、アントラセン誘導体、ビススチリルベンゼン誘導体、ビレン誘導体、オキサゾール誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体などを用いることができる。また、発光層をホスト材料とドーパント材料とで構成してもよく、この場合、ホスト材料として本発明の一般式(1)で表されるトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物、mCP、チアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ポリジアルキルフルオレン誘導体などを用いることができる。またドーパント材料としては、キナクリドン、クマリン、ルブレン、アントラセン、ペリレンおよびそれらの誘導体、ベンゾピラン誘導体、ローダミン誘導体、アミノスチリル誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、単独で成膜した層同士、混合して成膜した層同士、または単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。

20

【0085】

また、発光材料として燐光性の発光材料を使用することも可能である。燐光性の発光体としては、イリジウムや白金などの金属錯体の燐光発光体を使用することができる。Ir(ppy)₃などの緑色の燐光発光体、F Irpic、F Ir6などの青色の燐光発光体、Btp₂Ir(acac)、Ir(piq)₃などの赤色の燐光発光体などが用いられ、このときのホスト材料としては本発明の一般式(1)で表されるトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物のほか、正孔注入・輸送性のホスト材料として、CBPやTC TA、mCPなどのカルバゾール誘導体などを用いることができる。電子輸送性のホスト材料として、p-ビス(トリフェニルシリル)ベンゼン(以後、UGH₂と略称する)や2,2',2''-(1,3,5-フェニレン)-トリス(1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール)(以後、TPBIと略称する)などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、単独で成膜した層同士、混合して成膜した層同士、または単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。

30

40

【0086】

燐光性の発光材料のホスト材料へのドーブは濃度消光を避けるため、発光層全体に対して1~30重量パーセントの範囲で、共蒸着によってドーブすることが好ましい。

【0087】

これらの材料は蒸着法、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0088】

50

また、本発明の化合物を用いて作製した発光層に、仕事関数の異なる化合物をホスト材料として用いて作製した発光層を隣接させて積層した構造の素子を作製することができる（例えば、非特許文献 6 参照）。

【0089】

本発明の有機 EL 素子の正孔阻止層として、バソクプロイン（以後、BCP と略称する）などのフェナントロリン誘導体や、アルミニウム（III）ビス（2 - メチル - 8 - キノリナート） - 4 - フェニルフェノレート（以後、BALq と略称する）などのキノリノール誘導体の金属錯体のほか、各種の希土類錯体、オキサゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体など、正孔阻止作用を有する化合物を用いることができる。これらの材料は電子輸送層の材料を兼ねてもよい。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、単独で成膜した層同士、混合して成膜した層同士、または単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0090】

本発明の有機 EL 素子の電子輸送層として、Alq₃、BALq をはじめとするキノリノール誘導体の金属錯体のほか、各種金属錯体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、カルボジイミド誘導体、キノキサリン誘導体、フェナントロリン誘導体、シロール誘導体、TPBI などのベンズイミダゾール誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、単独で成膜した層同士、混合して成膜した層同士、または単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0091】

本発明の有機 EL 素子の電子注入層として、フッ化リチウム、フッ化セシウムなどのアルカリ金属塩、フッ化マグネシウムなどのアルカリ土類金属塩、酸化アルミニウムなどの金属酸化物などを用いることができるが、電子輸送層と陰極の好ましい選択においては、これを省略することができる。

【0092】

さらに、電子注入層あるいは電子輸送層において、該層に通常使用される材料に対し、さらにセシウムなどの金属を N ドーピングしたものをを用いることができる。

【0093】

本発明の有機 EL 素子の陰極として、アルミニウムのような仕事関数の低い電極材料や、マグネシウム銀合金、マグネシウムインジウム合金、アルミニウムマグネシウム合金のような、より仕事関数の低い合金が電極材料として用いられる。

【実施例】

【0094】

以下、本発明の実施の形態について、実施例により具体的に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されるものではない。

【実施例 1】

【0095】

< 3 - [2 - { 5 - (トリフェニルシリル)ピリジン - 2 - イル } フェニル] - 9 - フェニル - 9H - カルバゾール (化合物 10) の合成 >

窒素置換した反応容器に、9 - フェニル - 3 - (4, 4, 5, 5 - テトラメチル - [1, 3, 2] ジオキサボロラン - 2 - イル) - 9H - カルバゾール 30 g、2 - ブロモ - ヨードベンゼン 68.9 g、1 M 炭酸カリウム水溶液 75 ml、2 - エトキシエタノール 30 ml、ジオキサソ 45 ml を加え、窒素を通気した。テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 2.34 g を加え、攪拌しながら加熱し、還流を 24 時間行った。反応液を室温まで冷却し、有機層を分液操作によって採取し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水

した後、減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：シリカゲル、溶離液：ヘキサン／トルエン）によって精製し、3 - (2 - ブロモフェニル) - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾールの白色粉体 28 g（収率 88%）を得た。

【0096】

得られた、3 - (2 - ブロモフェニル) - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール 13 g、無水 THF 130 ml を窒素置換した反応容器に加え、-60℃まで冷却した。続いて、n - ブチルリチウムのヘキサン溶液（1.65 mol/L）40 ml を滴下し、2 時間撹拌した後、ホウ酸トリメチル 6.8 g を滴下して 3 時間撹拌した。室温まで昇温させた後、10% 塩化アンモニウム水溶液 30 ml を加え、1 時間撹拌した。反応液をトルエンを用いて抽出し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水した後、減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：シリカゲル、溶離液：トルエン／メタノール）によって精製し、2 - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) フェニルボロン酸の白色粉体 7.8 g（収率 88%）を得た。

10

【0097】

得られた 2 - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) フェニルボロン酸 3.0 g、2,5 - ジブロモピリジン 2.0 g、2 M 炭酸カリウム水溶液 12 ml、トルエン 24 ml、エタノール 6 ml を窒素置換した反応容器に加え、超音波を照射しながら 1 時間窒素を通気した。続いて、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）0.3 g を加え、撹拌しながら加熱し、還流を 20 時間行った。反応液を室温まで冷却し、有機層を分液操作によって採取し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水した後、減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：シリカゲル、溶離液：トルエン）によって精製し、3 - [2 - (5 - ブロモピリジン - 2 - イル) フェニル] - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾールの白色粉体 1.7 g（収率：43%）を得た。

20

【0098】

得られた 3 - [2 - (5 - ブロモピリジン - 2 - イル) フェニル] - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール 7.5 g、脱水シクロペンチルメチルエーテル 120 ml を窒素置換した反応容器に加え、-5℃まで冷却した。続いて、n - ブチルリチウムのヘキサン溶液（1.65 mol/L）18 ml を滴下した後、トリフェニルシリルクロライド 9.0 g を加え、1 時間撹拌した後、室温まで昇温させ、さらに 7 時間撹拌した。

30

有機層を分液操作によって採取し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水した後、減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：NH シリカゲル、溶離液：酢酸エチル／シクロヘキサン）によって精製し、さらに晶析を行って、3 - [2 - {5 - (トリフェニルシリル) ピリジン - 2 - イル} フェニル] - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾールの白色粉体 1.8 g（収率：17%）を得た。

【0099】

得られた白色粉体について NMR を使用して構造を同定した。¹H - NMR 測定結果を図 1 に示した。

【0100】

¹H - NMR (THF - d₈) で以下の 34 個の水素のシグナルを検出した。δ (ppm) = 8.69 (1H)、8.05 (1H)、8.01 (1H)、7.76 (1H)、7.65 (2H)、7.60 (2H)、7.56 (1H)、7.51 - 7.34 (15H)、7.30 - 7.20 (8H)、7.14 (1H)、6.91 (1H)。

40

【実施例 2】

【0101】

< 3 - [3 - {5 - (トリフェニルシリル) ピリジン - 2 - イル} フェニル] - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール（化合物 3）の合成 >

窒素置換した反応容器に、(9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) ボロン酸 46.0 g、3 - ブロモ - ヨードベンゼン 49.9 g、2 M 炭酸カリウム水溶液 81 ml

50

、トルエン 368 ml、エタノール 92 ml、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 2.8 g を加え、撹拌しながら加熱し、還流を 9 時間行った。反応液を室温まで冷却し、有機層を分液操作によって採取し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水した後、減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：シリカゲル、溶離液：ヘキサン/トルエン）によって精製し、3-（3-ブロモフェニル）-9-フェニル-9H-カルバゾールの白色粉体 23.4 g（収率 65%）を得た。

【0102】

得られた 3-（3-ブロモフェニル）-9-フェニル-9H-カルバゾール 31.3 g、ビス（ピナコレート）ジボラン 23.8 g、酢酸カリウム 23.0 g、トルエン 626 ml、[1, 1'-ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン]パラジウム(II)ジクロライド 1.9 g を窒素置換した反応容器に加え、撹拌しながら加熱し、還流を 6.5 時間行った。反応液を室温まで冷却し、濾過して得た濾液を減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：ジオールシリカゲル、溶離液：ヘキサン/トルエン）によって精製し、3-〔3-（4, 4, 5, 5-テトラメチル-[1, 3, 2]ジオキサボロラン-2-イル）フェニル〕-9-フェニル-9H-カルバゾールの無色油状物 37.3 g（収率 107%）を得た。

【0103】

得られた 3-〔3-（4, 4, 5, 5-テトラメチル-[1, 3, 2]ジオキサボロラン-2-イル）フェニル〕-9-フェニル-9H-カルバゾール 35.3 g、2, 5-ジブロモピリジン 18.8 g、2 M 炭酸カリウム水溶液 150 ml、トルエン 600 ml、エタノール 150 ml、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム 4.6 g を窒素置換した反応容器に加え、撹拌しながら加熱し、還流を 5 時間行った。反応液を室温まで冷却し、有機層を分液操作によって採取し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水した後、減圧下で濃縮することによって粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：NHシリカゲル、溶離液：ヘキサン/トルエン）によって精製し、3-〔3-（5-ブロモピリジン-2-イル）フェニル〕-9-フェニル-9H-カルバゾールの白色粉体 25.1 g（収率：67%）を得た。

【0104】

得られた 3-〔3-（5-ブロモピリジン-2-イル）フェニル〕-9-フェニル-9H-カルバゾール 19.7 g、脱水シクロペンチルメチルエーテル 450 ml を窒素置換した反応容器に加え、-60℃まで冷却した。n-ブチルリチウムのヘキサン溶液（1.6 mol/L）51 ml を滴下した後、トリフェニルシリルクロライド 24.4 g を加えた後、室温まで昇温させ、7 時間撹拌した。

有機層を分液操作によって採取し、無水硫酸マグネシウムを用いて脱水した後、減圧下で濃縮して粗生成物を得た。粗生成物をカラムクロマトグラフ（担体：NHシリカゲル、溶離液：ヘキサン/トルエン）によって精製し、3-〔3-〔5-（トリフェニルシリル）ピリジン-2-イル〕フェニル〕-9-フェニル-9H-カルバゾールの白色粉体 3.5 g（収率：10%）を得た。

【0105】

得られた白色粉体について NMR を使用して構造を同定した。¹H-NMR 測定結果を図 2 に示した。

【0106】

¹H-NMR（THF-d₈）で以下の 34 個の水素のシグナルを検出した。δ（ppm）= 8.80（1H）、8.59（1H）、8.54（1H）、8.25（1H）、8.08（1H）、8.00（1H）、7.96（1H）、7.81（1H）、7.78（1H）、7.68-7.58（10H）、7.55（1H）、7.51-7.38（13H）、7.25（1H）。

【実施例 3】

【0107】

本発明の化合物について、高感度示差走査熱量計（セイコー・インスツルメント製、DS

10

20

30

40

50

C 6 2 0 0) によってガラス転移点を求めた。

ガラス転移点

本発明実施例 1 の化合物	1 0 2
---------------	-------

【 0 1 0 8 】

本発明の化合物は 1 0 0 以上のガラス転移点を有している。このことは、本発明の化合物において薄膜状態が安定であることを示すものである。

【実施例 4】

【 0 1 0 9 】

10

本発明の化合物を用いて、ITO 基板の上に膜厚 1 0 0 n m の蒸着膜を作製して、大気中光電子分光装置（理研計器製、A C - 3 型）で仕事関数を測定した。

仕事関数

本発明実施例 1 の化合物	5 . 7 0 e V
本発明実施例 2 の化合物	5 . 7 1 e V
C B P	6 . 0 0 e V

【 0 1 1 0 】

このように本発明の化合物は、発光ホストとして一般的に用いられる C B P と比較し、好適なエネルギー準位を示している。

20

【実施例 5】

【 0 1 1 1 】

本発明の化合物について、1 0 0 n m の薄膜を製膜し、7 7 K に冷却した後、蛍光リン光分光光度計（堀場製作所製、F l u o r o M a x - 4 型）を用い、励起光を照射して燐光スペクトルを測定した。燐光スペクトルの短波長側の立ち上がり位置の波長を読み取り、該波長値を光のエネルギーに換算して励起三重項レベルを算出した。

励起三重項レベル

本発明実施例 1 の化合物	2 . 6 4 e V
本発明実施例 2 の化合物	2 . 7 0 e V
C B P	2 . 5 7 e V

30

【 0 1 1 2 】

このように本発明の化合物は一般的に用いられている C B P がもつ三重項エネルギーより大きい値を有しており、発光層で励起された三重項エネルギーを充分閉じ込める能力を有している。

【実施例 6】

【 0 1 1 3 】

有機 E L 素子は、図 3 に示すように、ガラス基板 1 上に透明陽極 2 として I T O 電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔輸送層 3、発光層 4、電子輸送層 5、電子注入層 6、陰極（アルミニウム電極）7 の順に蒸着して作製した。

40

【 0 1 1 4 】

具体的には、膜厚 1 5 0 n m の I T O を成膜したガラス基板 1 を有機溶媒で洗浄した後に、酸素プラズマ処理にて表面を洗浄した。その後、この I T O 電極付きガラス基板を真空蒸着機内に取り付け 0 . 0 0 1 P a 以下まで減圧した。

続いて、透明陽極 2 を覆うように正孔輸送層 3 として、T A P C を蒸着速度 1 . 0 / s e c で膜厚 3 0 n m となるように形成した。この正孔輸送層 3 の上に、発光層 4 として本発明実施例 1 の化合物（化合物 1 0 ）と緑色燐光発光体 I r (p p y) ₃ を、蒸着速度比が本発明実施例 1 の化合物（化合物 1 0 ）：I r (p p y) ₃ = 9 3 : 7 となる蒸着速

50

度で二元蒸着を行い、膜厚 40 nm となるように形成した。この発光層 4 の上に、電子輸送層 5 として前記 TPBI を蒸着速度 1.0 / sec で膜厚 45 nm となるように形成した。この電子輸送層 5 の上に、電子注入層 6 としてフッ化リチウムを蒸着速度 0.1 / sec で膜厚 0.5 nm となるように形成した。最後に、アルミニウムを膜厚 150 nm となるように蒸着して陰極 7 を形成した。作製した有機 EL 素子について、大気中、常温で特性測定を行った。

【0115】

本発明の実施例 1 の化合物（化合物 10）を使用して作製した有機 EL 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

【0116】

【比較例 1】

比較のために、実施例 6 における発光層 4 の材料を、実施例 1 の化合物（化合物 10）から CBP に代え、同様の条件で有機 EL 素子を作製した。作製した有機 EL 素子について、大気中、常温で特性測定を行った。作製した有機 EL 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

【0117】

【表 1】

	化合物	電圧[V] (@10mA/cm ²)	輝度[cd/m ²] (@10mA/cm ²)	発光効率[cd/A] (@10mA/cm ²)	外部量子効率[%] (@10mA/cm ²)
実施例6	化合物10	5.9	4160	41.6	13
比較例1	CBP	7.7	3200	31.8	9

【0118】

表 1 に示す様に、電流密度 10 mA / cm² の電流を流したときの駆動電圧は、CBP を用いた有機 EL 素子の 7.7 V に対して本発明実施例 1 の化合物（化合物 10）を用いた有機 EL 素子では 5.9 V と低電圧化した。また、電流密度 10 mA / cm² の電流を流したときの輝度が大きく向上した。また、発光効率、外部量子効率も向上した。

【0119】

以上のように、本発明の化合物は高い励起三重項レベルを有し、燐光発光体にエネルギーを良好に伝達し、燐光発光体の三重項励起子を十分に閉じ込めており、さらに薄膜安定性も良好であるので、発光層のホスト化合物として優れているといえる。

【0120】

本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

本出願は、2012 年 8 月 21 日出願の日本特許出願 2012 - 181997 に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

【産業上の利用可能性】

【0121】

本発明のトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物は、高い励起三重項レベルを有し、燐光発光体の三重項励起子を十分に閉じ込めることができ、薄膜安定性も良好なため、発光層のホスト化合物として優れている。また、該化合物を用いて有機 EL 素子を作製することにより、従来の有機 EL 素子の輝度と発光効率を格段に改良することができる、そのため、移動型電子製品の性能を向上させることができる。

【符号の説明】

【0122】

- 1 ガラス基板
- 2 透明陽極

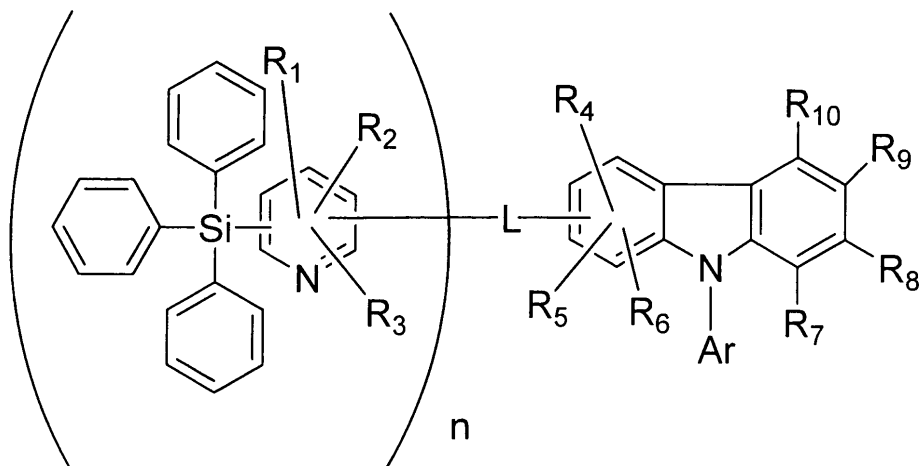
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 電子注入層
- 7 陰極

【要約】

本発明は、一般式（１）で表されるトリフェニルシリルピリジル基とカルバゾール環構造を有する化合物に関し、また、一对の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該化合物が、少なくとも１つの有機層の構成材料として用いられている有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

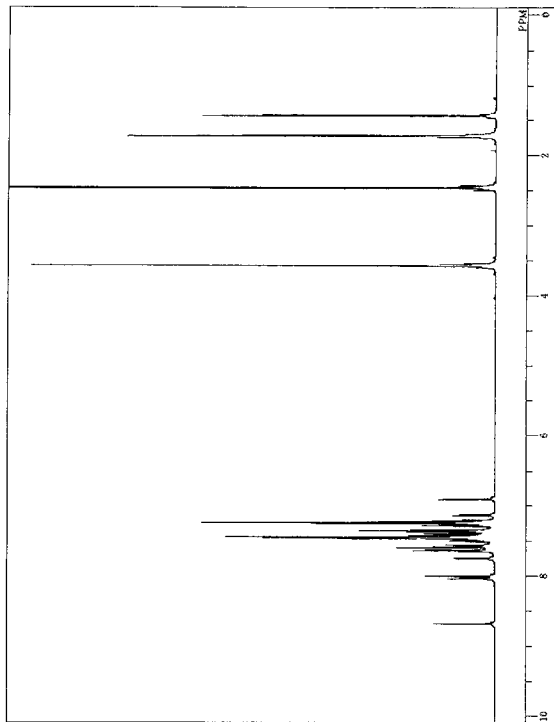
10

【化１】

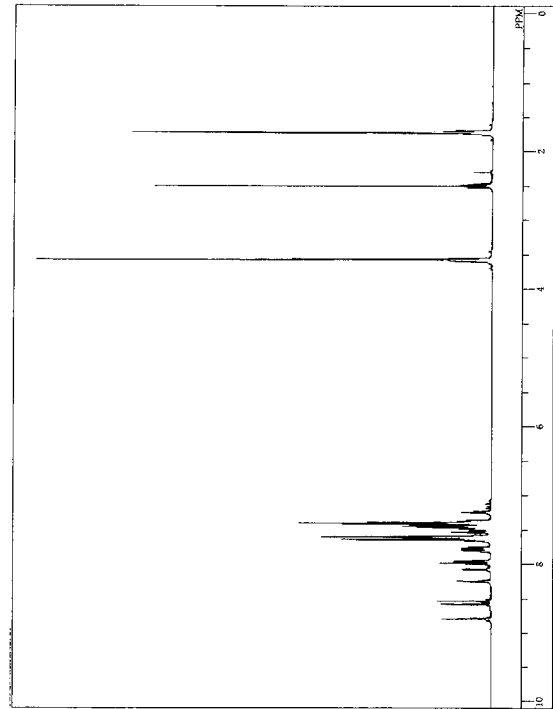


20

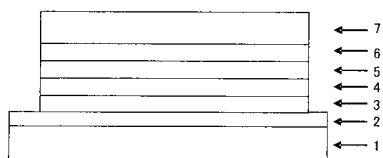
【図 1】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

- (72)発明者 神田 大三
東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内
- (72)発明者 加瀬 幸喜
茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業株式会社内
- (72)発明者 市川 結
長野県上田市常田三丁目15番1号 国立大学法人信州大学繊維学部内

審査官 水島 英一郎

- (56)参考文献 特開2013-93432(JP,A)
国際公開第2010/052932(WO,A1)
韓国公開特許第10-2012-0042634(KR,A)
韓国公開特許第10-2012-0021215(KR,A)
国際公開第2010/126234(WO,A1)
米国特許出願公開第2010/0140603(US,A1)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|---------------|-------|
| C07F | 7/10 |
| C09K | 11/06 |
| H01L | 33/00 |
| CAplus(STN) | |
| REGISTRY(STN) | |

专利名称(译)	具有三苯基甲硅烷基吡啶基和咪唑环结构的化合物和有机电致发光元素		
公开(公告)号	JP5499227B1	公开(公告)日	2014-05-21
申请号	JP2013557696	申请日	2013-08-09
[标]申请(专利权)人(译)	保土谷化学工业株式会社 国立大学法人信州大学		
申请(专利权)人(译)	保土谷化学工业株式会社 国立大学法人信州大学		
当前申请(专利权)人(译)	保土谷化学工业株式会社 国立大学法人信州大学		
[标]发明人	横山紀昌 長岡誠 神田大三 加瀬幸喜 市川結		
发明人	横山 紀昌 長岡 誠 神田 大三 加瀬 幸喜 市川 結		
IPC分类号	C09K11/06 H01L33/50 C07F7/10		
CPC分类号	H01L51/0054 C09K2211/1088 H01L51/0067 C09K2211/1014 H01L51/0094 H01L51/5016 H01L51/0073 C09K2211/1007 H01L51/0085 C09K11/06 C07F7/10 H01L51/0074 C09K2211/1092 H01L51/0072 H05B33/14 C09K2211/1029 H01L51/0052 C07F7/0814		
FI分类号	C09K11/06 H01L33/00.410 C07F7/10.CSP.S		
审查员(译)	水島 英一郎		
优先权	2012181997 2012-08-21 JP		
其他公开文献	JPWO2014030554A1		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明涉及具有通式(1)表示的三苯基甲硅烷基吡啶基和咪唑环结构的化合物，并且涉及一种具有一对电极和至少一个夹在它们之间的有机层的有机电致发光器件。本发明涉及一种有机电致发光器件，其中该化合物被用作至少一个有机层的构成材料。[化学1]

