

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02011/108707

発行日 平成25年6月27日 (2013.6.27)

(43) 国際公開日 平成23年9月9日 (2011.9.9)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	3K107
C07D 401/14 (2006.01)	H05B 33/22 B	4C063
C07D 403/14 (2006.01)	H05B 33/22 A	4C204
C07D 209/86 (2006.01)	C07D 401/14	
C07D 235/18 (2006.01)	C07D 403/14	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 68 頁) 最終頁に続く

出願番号 特願2012-503289 (P2012-503289)	(71) 出願人 000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(21) 国際出願番号 PCT/JP2011/055077	
(22) 国際出願日 平成23年3月4日 (2011.3.4)	
(31) 優先権主張番号 特願2010-49839 (P2010-49839)	(74) 代理人 110000637 特許業務法人樹之下知的財産事務所
(32) 優先日 平成22年3月5日 (2010.3.5)	
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(72) 発明者 井上 哲也 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 日比野 茎子 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 吉田 圭 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 西村 和樹 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 岩隈 俊裕 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

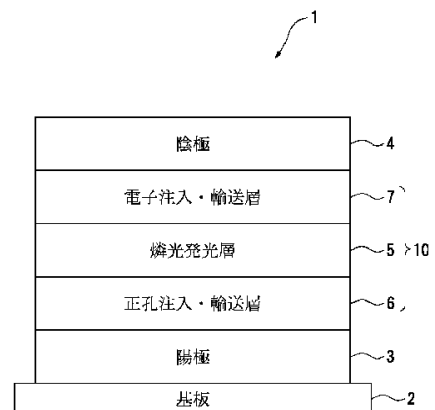
最終頁に続く

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

(57) 【要約】

少なくとも、3, 5 - ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニットおよび4 - カルバゾリルフェニル基を含むユニットと、それらを結合する含窒素芳香族複素環を含むユニットを有する化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【図1】



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

【特許請求の範囲】

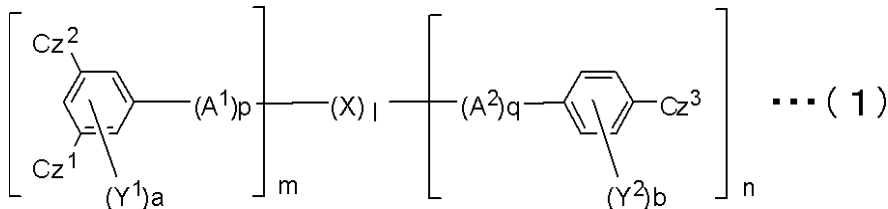
【請求項 1】

少なくとも、3,5-ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニットおよび4-カルバゾリルフェニル基を含むユニットと、それらを結合する含窒素芳香族複素環を含むユニットを有する化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 2】

下記一般式(1)で表される請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 1】



10

(式中、 A^1 および A^2 は置換または無置換の環形成炭素数 6 から 60 の芳香族炭化水素基を表し、

$Cz^1 \sim Cz^3$ は互いに独立して、置換または無置換のカルバゾリル基を表し、それぞれ同一でも異なってもよく、

20

X は置換または無置換の含窒素芳香族複素環を表し、

Y^1 、 Y^2 は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表し、

30

a は 0 ~ 3 の整数を表し、 b は 0 ~ 4 の整数

l 、 m 、 n は互いに独立して、1 ~ 3 の整数を表し、

l が 2 以上の場合、 X は同一でも異なってもよく、

m は X に直接結合する下記式(2)で表される置換基の置換数を表す 1 または 2 の整数であり、 m が 2 の場合、下記式(2)で表される構造は同一でも異なってもよく

n は X に直接結合する下記式(3)で表される置換基の置換数を表す 1 または 2 の整数であり、 n が 2 の場合、下記式(3)で表される構造は同一でも異なってもよく、

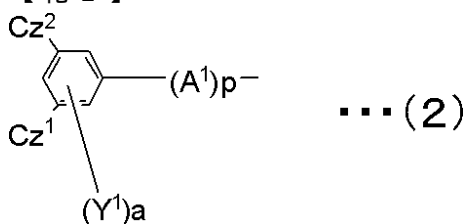
p 、 q は互いに独立して、0 ~ 3 の整数を表し、

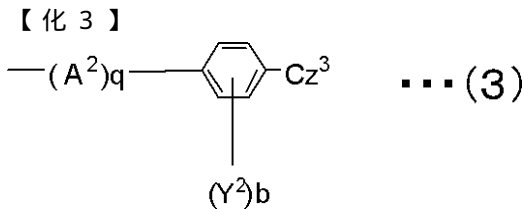
p が 2 以上の場合、 A^1 は同一でも異なってもよく、

q が 2 以上の場合、 A^2 は同一でも異なってもよい。))

40

【化 2】





【請求項 3】

前記一般式 (1) において、 $l = 1$ 、 $m = 1$ である請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 4】

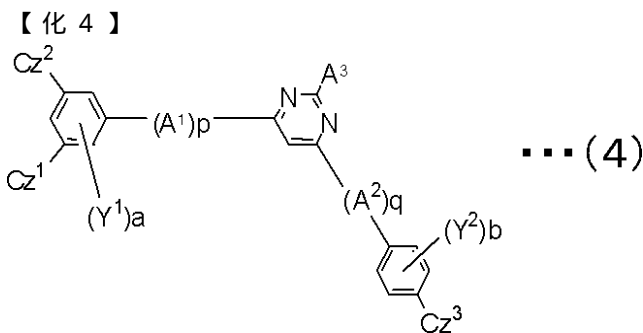
前記含窒素芳香族複素環が、置換もしくは無置換であるピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、インドール環から選ばれる窒素含有ヘテロ芳香族環を表す請求項 1 から請求項 3 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 5】

前記一般式 (1) において、 $n = 1$ である請求項 2 から請求項 4 のいずれか 1 項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】

下記式 (4) で表される請求項 1 から請求項 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

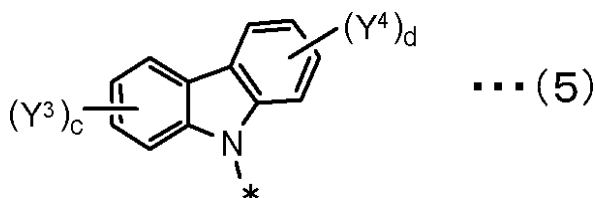


(式中、 A^3 は置換または無置換の環形成炭素数 6 から 30 の芳香族炭化水素基を表す。)

【請求項 7】

前記一般式 (1) または (4) において、 $Cz^1 \sim Cz^3$ が、互いに独立して、下記一般式 (5) または下記一般式 (6) で表される請求項 2 から請求項 6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【化 5】



(上記 (5) 式中、 Y^3 、 Y^4 は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳

10

20

30

40

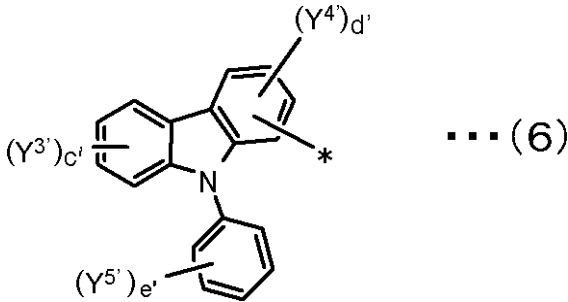
50

香族複素環基を表し、

c、d は互いに独立して、1 ~ 4 の整数を表す。

また、「*」は、ベンゼン環への結合位置を表す。)

【化 6】



10

(上記(6)式中、 $Y^{3'}$ 、 $Y^{4'}$ 、 $Y^{5'}$ は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表し、

20

c' は 1 ~ 4 の整数を表し、d' は 1 ~ 3 の整数を表し、e' は 1 ~ 5 の整数を表す。

また、「*」は、ベンゼン環への結合位置を表す。)

【請求項 8】

前記一般式(1)または(4)において、 $q = 0$ である請求項 2 から請求項 7 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 9】

陰極と陽極間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも一層が、請求項 1 から請求項 8 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【請求項 10】

前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を宿主材料として含有する請求項 9 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 11】

前記発光層が、さらに燐光材料を含有する請求項 9 または請求項 10 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 12】

前記発光層が宿主材料と燐光材料を含有し、該燐光材料がイリジウム(Ir)、オスミウム(Os)および白金(Pt)から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である請求項 11 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【請求項 13】

前記有機薄膜層は、前記陰極と前記発光層との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体含有する請求項 9 から請求項 12 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 14】

前記有機薄膜層は、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する請求項 9 から請求項 12 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 15】

50

前記陰極と前記有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントを添加されてなる請求項9から請求項14のいずれか1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、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】

陽極と陰極との間に発光層を含む有機薄膜層を備え、発光層に注入された正孔と電子との再結合によって生じる励起子（エキシトン）エネルギーから発光を得る有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている（例えば、特許文献1～5参照）。

10

このような有機エレクトロルミネッセンス素子は、自発光型素子としての利点を活かし、発光効率、画質、消費電力さらには薄型のデザイン性に優れた発光素子として期待されている。

【0003】

発光層を形成するにあたっては、ホストに、ドーパントとして発光材料をドーピングするドーピング法が知られている。

ドーピング法で形成した発光層では、ホストに注入された電荷から効率よく励起子を生成することができる。そして、生成された励起子の励起子エネルギーをドーパントに移動させ、ドーパントから高効率の発光を得ることができる。

20

そして、近年では有機エレクトロルミネッセンス素子の性能向上を果たすべく、ドーピング法に関してもさらなる研究が行われており、好適なホスト材料の探索が続いている。

【0004】

このようなホスト材料が記載された発明として、例えば、特許文献1～5が挙げられる。特許文献1～5には、以下の化合物I～VIに示すように、カルバゾリル基と含窒素芳香族環を同一分子内に含む化合物が記載されている。

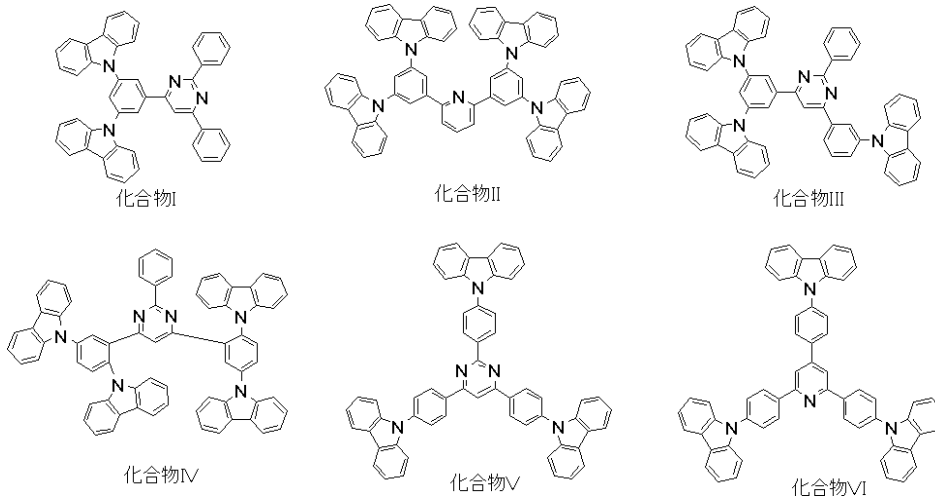
特許文献1に記載の化合物Iは2つのカルバゾール骨格が互いにベンゼン環のメタ位（3，5-位）に結合している構造と、電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環構造を有している。カルバゾール骨格は古くからポリビニルカルバゾールに代表されるように、正孔輸送性材料の主要骨格として知られている。また、電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環構造は反対に電子輸送能が高い構造として知られている。特許文献1に記載の化合物Iは正孔輸送性骨格と電子輸送性骨格を組み合わせることにより、電荷輸送のバランスを取るよう考えられた材料である。

30

特許文献1に記載の化合物IIは2つのカルバゾール骨格がベンゼン環のメタ位（3，5-位）に互いに結合している構造が、電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環であるピリジン環に対して2つ対称的に配置した構造である。

【0005】

【化 1】



10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】WO2003-080760

【特許文献2】特開2006-188493

【特許文献3】特開2006-199679

【特許文献4】特開2004-178895

【特許文献5】特開2000-169448

20

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかしながら、化合物Iはカルバゾール骨格がベンゼン環のメタ位に互いに結合している構造を有しており、ピリミジン環とベンゼン環（2つの共役する芳香族環）の結合軸に対してカルバゾリル基が左右に折れた構造となっているために分子間におけるカルバゾール骨格部分の重なりが阻害されるため、正孔輸送能が十分でなく、電荷の再結合位置が陽極側に偏る傾向があるため良好な発光特性、寿命特性が得られないという懸念がある。

30

化合物IIにおいてもカルバゾール骨格がベンゼン環のメタ位に互いに結合している構造を有しており、ピリミジン環とベンゼン環（2つの共役する芳香族環）の結合軸に対してカルバゾリル基が左右に折れた構造となっているために同様な理由で正孔輸送性が十分でない。

また、特許文献2に記載の化合物IIIにおいても同様である。すなわち、ピリミジン環と、カルバゾール骨格が結合するベンゼン環の結合軸に対して、カルバゾリル基が折れた構造となっているので、上記の理由により正孔輸送能が十分でない。

また、特許文献3に記載の化合物IVにおいては、ピリミジン環と、カルバゾール骨格が結合するベンゼン環（2つの共役する芳香族環）との結合軸に対して、立体的に混雑した結合位置であるベンゼン環の2, 5-位にカルバゾリル基が結合しているため、分子間のカルバゾール骨格同士の重なりはさらに阻害されることが予想され、十分な正孔輸送能が得られないという懸念がある。

40

一方、特許文献4に記載の化合物Vおよび特許文献5に記載の化合物VIは、それぞれ3つのカルバゾリル基が、カルバゾリル基が結合するベンゼン環とピリミジン環またはベンゼン環とピリミジン環（2つの共役する芳香族環）の結合軸に対してその延長線上に位置している（4-位、パラ位）。この場合はカルバゾリル基同士の分子間の重なりが大きくなるため、正孔輸送能は改善されると考えられる。事実、カルバゾリルフェニル基がパラ位で2つ結合した構造を有する4, 4'-N, N'-ジカルバゾリル-ビフェニル（CBP）は、非常に大きな正孔輸送能を有することが知られている。しかしながら、全てのカルバゾリル基が4-位（パラ位）に位置しているため、正孔輸送能が大きくなりすぎ、有

50

機 E L 素子の最適なキャリアバランスを得ることが困難になると考えられる。

【 0 0 0 8 】

そこで、本発明は、正孔輸送能力と電子輸送能力を併せ持ち、キャリアバランスに優れた新規な有機 E L 素子用材料、およびそれを用いた長寿命の燐光発光性有機 E L 素子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】

【 0 0 0 9 】

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、少なくとも 3, 5 - ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニット及び 4 - カルバゾリルフェニル基を含むユニットと、それらを結合する含窒素芳香族複素環を含む結合ユニットを有する化合物が有機 E L 素子の発光層内のキャリアバランスを最適化するために有効に働くことを見出し、発明を完成させたものである。尚、本明細書において、水素原子という場合、重水素原子も含まれる。

10

【 0 0 1 0 】

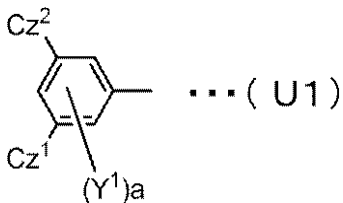
すなわち、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、少なくとも、3, 5 - ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニットおよび 4 - カルバゾリルフェニル基を含むユニットと、それらを結合する含窒素芳香族複素環を含むユニットを有する化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料である。

ここで 3, 5 - ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニットは、以下の一般式 (U 1) で表されることが好ましい。

20

【 0 0 1 1 】

【化 2】



【 0 0 1 2 】

(a は 0 ~ 3 の整数を表し、 Y ¹ は水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 2 0 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 2 0 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 2 0 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 2 0 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 1 0 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 3 0 のアリアルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 3 0 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 1 0 の芳香族複素環基を表し、 a が 2 以上の整数の場合 Y ¹ は同一でも異なってもよい。)

30

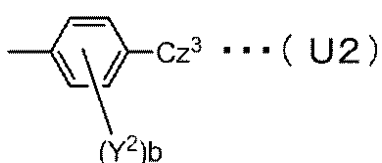
【 0 0 1 3 】

そして、4 - カルバゾリルフェニル基を含むユニットは、以下の一般式 (U 2) で表されることが好ましい。

40

【 0 0 1 4 】

【化 3】



【 0 0 1 5 】

(b は 0 ~ 4 の整数、 Y ² は水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 2 0 の直鎖状

50

、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリアルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表し、
b が 2 以上の整数の場合、 Y^2 は同一でも異なってもよい。)

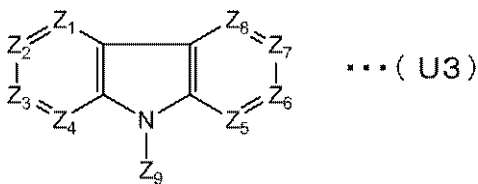
【0016】

Cz^1 、 Cz^2 、 Cz^3 は、それぞれ独立に、以下に示す一般式 (U3) における $Z_1 \sim Z_8$ を形成する $R \times_1 \sim R \times_8$ のいずれか一つを除いた一価残基、又は Z_9 を除いた一価残基を表すことが好ましい。特に $R \times_3$ 、 $R \times_7$ 又は Z_9 を除いた一価残基が好ましい。

10

【0017】

【化4】



【0018】

($Z_1 \sim Z_8$ は、それぞれ $CR \times_1 \sim CR \times_8$ または N を表す。

$R \times_1 \sim R \times_8$ はそれぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリアルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表す。

20

Z_1 と Z_2 、 Z_2 と Z_3 、 Z_3 と Z_4 、 Z_5 と Z_6 、 Z_6 と Z_7 、 Z_7 と Z_8 で環を形成しても良い。

Z_9 は水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表す。)

30

【0019】

さらに、含窒素芳香族複素環を有する化合物ユニットとは、単環の含窒素芳香族複素環式化合物及び縮合多環の含窒素芳香族複素環式化合物の 2 価または 2 価以上の基であることが好ましい。

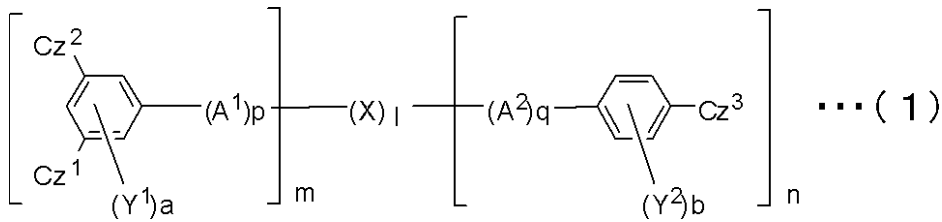
40

【0020】

本発明の前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、特に下記一般式 (1) で表されることが好ましい。

【0021】

【化5】



【0022】

(式中、 A^1 および A^2 は置換または無置換の環形成炭素数6から60の芳香族炭化水素基を表し、

$\text{Cz}^1 \sim \text{Cz}^3$ は互いに独立して、置換または無置換のカルbazolリル基を表し、それぞれ同一でも異なってもよく、

X は置換または無置換の含窒素芳香族複素環を表し、

Y^1 、 Y^2 は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、

a は0~3の整数を表し、 b は0~4の整数

l 、 m 、 n は互いに独立して、1~3の整数を表し、

l が2以上の場合、 X は同一でも異なってもよく、

m は X に直接結合する下記式(2)で表される置換基の置換数を表す1または2の整数であり、 m が2の場合、下記式(2)で表される構造は同一でも異なってもよく、

n は X に直接結合する下記式(3)で表される置換基の置換数を表す1または2の整数であり、 n が2の場合、下記式(3)で表される構造は同一でも異なってもよく、

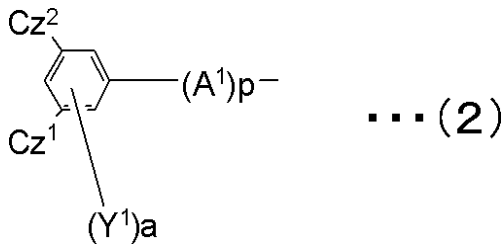
p 、 q は互いに独立して、0~3の整数を表し、

p が2以上の場合、 A^1 は同一でも異なってもよく、

q が2以上の場合、 A^2 は同一でも異なってもよい。)

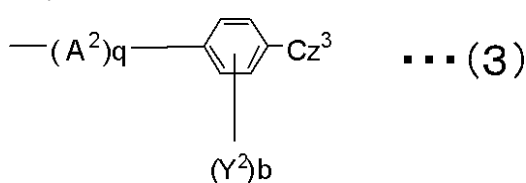
【0023】

【化6】



【0024】

【化7】



【0025】

さらに、本発明では、前記一般式(1)において、 $l = 1$ 、 $m = 1$ であることが好まし

10

20

30

40

50

い。

【0026】

そして、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、前記含窒素芳香族複素環は、置換もしくは無置換のピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、インドール環から選ばれる窒素含有ヘテロ芳香族環であることが好ましい。

【0027】

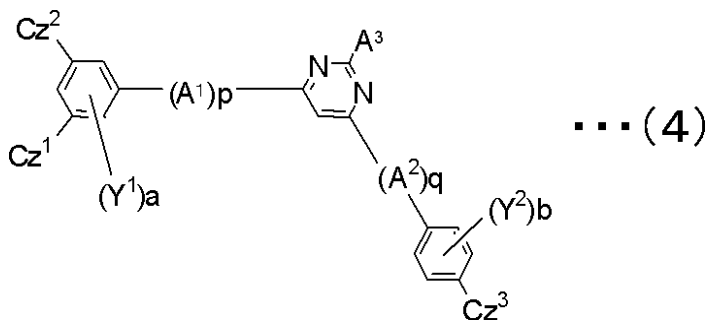
さらに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、前記一般式(1)において、 $n = 1$ であることが好ましい。

さらに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、前記一般式(1)において、 X が置換もしくは無置換のピリミジン環であることがより好ましい。

そして、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が、下記式(4)で表されることが好ましい。

【0028】

【化8】



【0029】

(式中、 A^3 は置換または無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基を表す。)

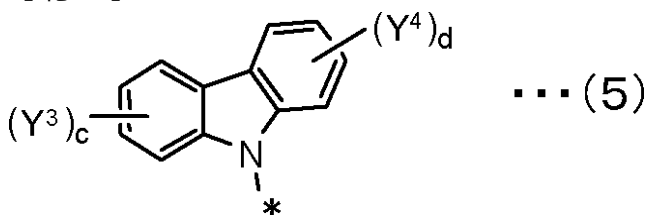
【0030】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、前記一般式(1)または(4)において、 $Cz^1 \sim Cz^3$ が、互いに独立して、下記一般式(5)または下記一般式(6)で表されるものであることが好ましい。

以下の式中、「*」は、ベンゼン環への結合位置を表している。

【0031】

【化9】



【0032】

上記(5)式中、 Y^3 、 Y^4 は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、

c 、 d は互いに独立して、1~4の整数を表す。

【0033】

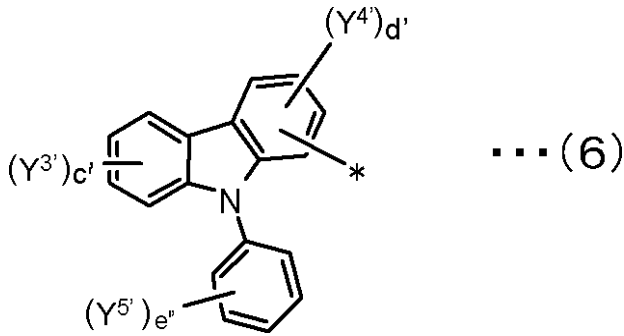
10

20

30

40

【化 1 0】



10

【 0 0 3 4】

上記(6)式中、 $Y^{3'}$ 、 $Y^{4'}$ 、 $Y^{5'}$ は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリアルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、

20

c' は1~4の整数を表し、 d' は1~3の整数を表し、 e' は1~5の整数を表す。

【 0 0 3 5】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、前記一般式(1)または(4)において、 $q = 0$ であることが好ましい。

【 0 0 3 6】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、陰極と陽極間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも一層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有することが好ましい。

【 0 0 3 7】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を宿主材料として含有することが好ましい。

30

【 0 0 3 8】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記発光層が、さらに燐光材料を含有することが好ましい。

【 0 0 3 9】

さらに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記発光層が宿主材料と燐光材料を含有し、該燐光材料がイリジウム(Ir)、オスmium(Os)および白金(Pt)から選択される金属原子のオルトメタル化錯体であることが好ましい。

【 0 0 4 0】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含有することが好ましい。

40

【 0 0 4 1】

さらに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有することが好ましい。

【 0 0 4 2】

さらに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記陰極と前記有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントを添加されてなることが好ましい。

【発明の効果】

【 0 0 4 3】

50

本発明によれば、前記式(1)で表される化合物を有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として用いるので、長寿命の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができる。さらに、この有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、有機太陽電池、有機半導体レーザー、有機物を用いるセンサー、有機TFT用の有機電子素子用材料としても有効である。

【図面の簡単な説明】

【0044】

【図1】本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の概略構成を示す図である。

【発明を実施するための形態】

10

【0045】

以下、本発明について具体的に説明する。

(有機EL素子の構成)

まず、有機EL素子の素子構成について説明する。

有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極 / 発光層 / 陰極
- (2) 陽極 / 正孔注入層 / 発光層 / 陰極
- (3) 陽極 / 発光層 / 電子注入・輸送層 / 陰極
- (4) 陽極 / 正孔注入層 / 発光層 / 電子注入・輸送層 / 陰極
- (5) 陽極 / 有機半導体層 / 発光層 / 陰極
- (6) 陽極 / 有機半導体層 / 電子障壁層 / 発光層 / 陰極
- (7) 陽極 / 有機半導体層 / 発光層 / 付着改善層 / 陰極
- (8) 陽極 / 正孔注入・輸送層 / 発光層 / 電子注入・輸送層 / 陰極
- (9) 陽極 / 絶縁層 / 発光層 / 絶縁層 / 陰極
- (10) 陽極 / 無機半導体層 / 絶縁層 / 発光層 / 絶縁層 / 陰極
- (11) 陽極 / 有機半導体層 / 絶縁層 / 発光層 / 絶縁層 / 陰極
- (12) 陽極 / 絶縁層 / 正孔注入・輸送層 / 発光層 / 絶縁層 / 陰極
- (13) 陽極 / 絶縁層 / 正孔注入・輸送層 / 発光層 / 電子注入・輸送層 / 陰極

20

などの構造を挙げることができる。

上記の中で(8)の構成が好ましく用いられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

30

【0046】

図1に、本発明の実施形態における有機EL素子の一例の概略構成を示す。

有機EL素子1は、透明な基板2と、陽極3と、陰極4と、陽極3と陰極4との間に配置された有機薄膜層10と、を有する。

有機薄膜層10は、ホスト材料としての燐光ホスト及び燐光材料としての燐光ドーパントを含む燐光発光層5を有するが、燐光発光層5と陽極3との間に正孔注入・輸送層6等、燐光発光層5と陰極4との間に電子注入・輸送層7等を備えていてもよい。

また、燐光発光層5の陽極3側に電子障壁層を、燐光発光層5の陰極4側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。

40

これにより、電子や正孔を燐光発光層5に閉じ込めて、燐光発光層5における励起子の生成確率を高めることができる。

【0047】

なお、本明細書において、蛍光ホスト及び燐光ホストの用語は、蛍光ドーパントと組み合わせられたときには蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたときには燐光ホストと称するものであり、分子構造のみから一義的に蛍光ホストや燐光ホストに限定的に区分されるものではない。

言い換えると、本明細書において、蛍光ホストとは、蛍光ドーパントを含有する蛍光発光層を構成する材料を意味し、蛍光発光材料のホストにしか利用できないものを意味しているわけではない。

50

同様に燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を構成する材料を意味し、燐光材料のホストにしか利用できないものを意味しているわけではない。

【0048】

また、本明細書中で「正孔注入・輸送層」は「正孔注入層及び正孔輸送層のうち少なくともいずれか一方」を意味し、「電子注入・輸送層」は「電子注入層及び電子輸送層のうち少なくともいずれか一方」を意味する。

【0049】

(透明性基板)

本実施形態の有機EL素子1は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、400nm～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上で平滑な基板が好ましい。

10

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。

ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を原料として用いてなるものを挙げられる。

またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を原料として用いてなるものを挙げることができる。

【0050】

(陽極及び陰極)

有機EL素子1の陽極は、正孔を正孔注入層、正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上の仕事関数を有することが効果的である。

20

陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。

本実施形態のように、発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10nm～1μm、好ましくは10nm～200nmの範囲で選択される。

30

【0051】

陰極としては、電子注入層、電子輸送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。

陰極も、陽極と同様に、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、陰極側から、発光を取り出す態様を採用することもできる。

40

【0052】

(発光層)

有機EL素子1の発光層は以下の機能を併せ持つものである。

すなわち、

(1) 注入機能；電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能、

(2) 輸送機能；注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能、

(3) 発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、がある。

【0053】

50

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよい。

この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。

【0054】

発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。

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

また、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

【0055】

本実施形態の有機EL素子は陰極と陽極との間に、1層または複数層からなる有機薄膜層を備え、該有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、該有機薄膜層の少なくとも1層が、燐光材料少なくとも1種と、後述の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を少なくとも1種含む。また、発光層の少なくとも1つが本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料と、燐光材料少なくとも1種とを含むことが好ましい。

【0056】

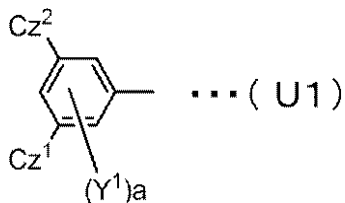
(有機エレクトロルミネッセンス素子用材料)

本実施形態の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、少なくとも、3,5-ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニットおよび4-カルバゾリルフェニル基を含むユニットと、それらを結合する含窒素芳香族複素環を含むユニット有する化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料である。

ここで3,5-ビスカルバゾリルフェニル基を含むユニットは、以下の一般式(U1)で表される。

【0057】

【化11】



【0058】

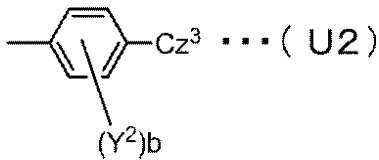
(aは0~3の整数を表し、Y¹は水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、aが2以上の整数の場合Y¹は同一でも異なってもよい。)

【0059】

4-カルバゾリルフェニル基を含むユニットは、以下の一般式(U2)で表される。

【0060】

【化 1 2】



【 0 0 6 1】

(b は 0 ~ 4 の 整 数、

Y² は水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表し、

10

b が 2 以上 の 整 数 の 場 合、Y² は 同 一 で も 異 な っ て も よ い。)

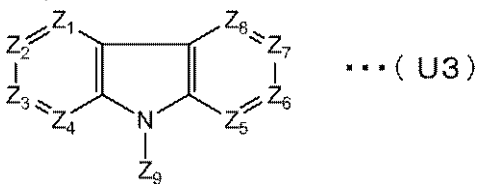
【 0 0 6 2】

Cz¹、Cz²、Cz³ は、それぞれ独立に、以下に示す一般式 (U3) における Z₁ ~ Z₈ を形成する R_{x1} ~ R_{x8} のいずれか一つを除いた一価残基、又は Z₉ を除いた一価残基を表す。特に R_{x3}、R_{x7} 又は Z₉ を除いた一価残基が好ましい。

20

【 0 0 6 3】

【化 1 3】



【 0 0 6 4】

(Z₁ ~ Z₈ は、それぞれ CR_{x1} ~ CR_{x8} または N を表す。

R_{x1} ~ R_{x8} はそれぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表す。

30

Z₁ と Z₂、Z₂ と Z₃、Z₃ と Z₄、Z₅ と Z₆、Z₆ と Z₇、Z₇ と Z₈ で環を形成しても良い。

40

Z₉ は水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基を表す。)

【 0 0 6 5】

本実施形態において、含窒素芳香族複素環を有する化合物ユニットとは、単環の含窒素芳香族複素環式化合物及び縮合多環の含窒素芳香族複素環式化合物の 2 価または 2 価以上の基である。

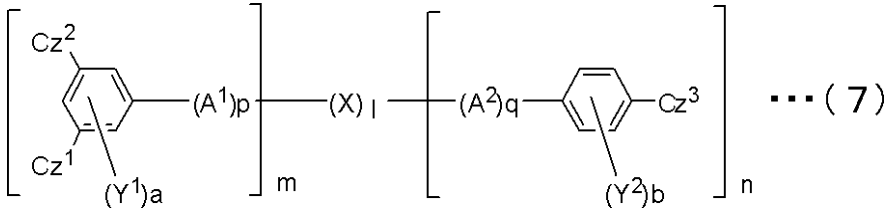
【 0 0 6 6】

50

本実施形態の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、特に、下記式(7)で表されることが好ましい。

【0067】

【化14】



10

【0068】

前記式中、 A^1 および A^2 は置換または無置換の環形成炭素数6から60の芳香族炭化水素基を表し、

$Cz^1 \sim Cz^3$ は互いに独立して、置換または無置換のカルbazolリル基を表し、それぞれ同一でも異なっていてもよく、

X は置換または無置換の含窒素芳香族複素環を表し、

Y^1 、 Y^2 は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、

20

a は0~3の整数を表し、 b は0~4の整数

l 、 m 、 n は互いに独立して、1~3の整数を表し、

l が2以上の場合、 X は同一でも異なっていてもよく、

m は X に直接結合する下記式(8)で表される置換基の置換数を表す1または2の整数であり、 m が2の場合、下記式(8)で表される構造は同一でも異なっていてもよく、

30

n は X に直接結合する下記式(9)で表される置換基の置換数を表す1または2の整数であり、 n が2の場合、下記式(9)で表される構造は同一でも異なっていてもよく、

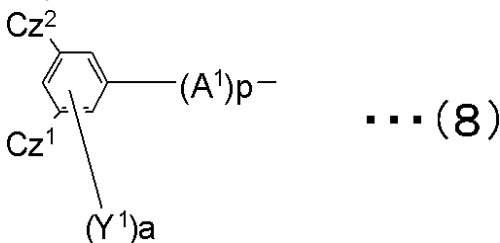
p 、 q は互いに独立して、0~3の整数を表し、

p が2以上の場合、 A^1 は同一でも異なっていてもよく、

q が2以上の場合、 A^2 は同一でも異なっていてもよい。))

【0069】

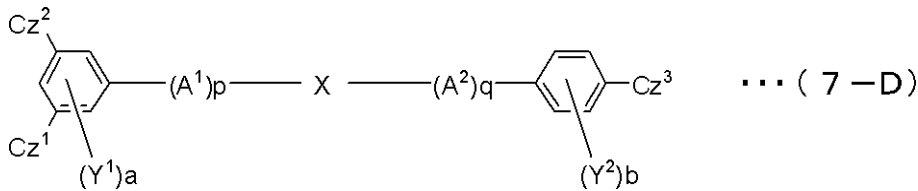
【化15】



40

【0070】

【化 1 8】



【0075】

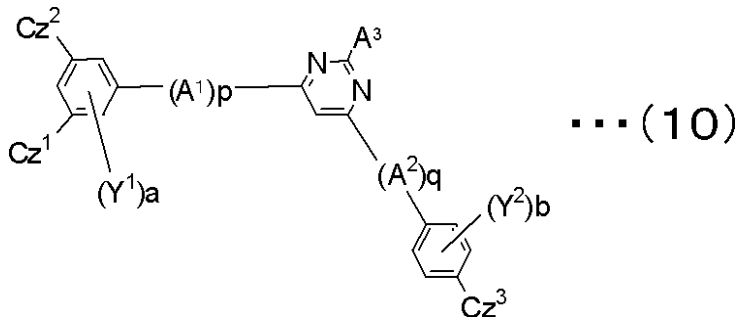
そして、前記一般式(7)において、Xが置換もしくは無置換のピリミジン環であることがさらに好ましい。

そして、前記一般式(7)は、下記式(10)で表されることがより好ましい。

10

【0076】

【化 1 9】



20

【0077】

(式中、A³は置換または無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基を表す。)

【0078】

前記一般式(7)、(7-A)、(7-B)、(7-C)、(7-D)または(10)において、A¹又はA²としては、ベンゼン環が好ましい。

【0079】

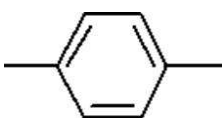
前記一般式(7)、(7-A)、(7-B)、(7-C)、(7-D)または(10)において、ベンゼン環は、置換基Y¹、Y²を有していてもよく、無置換(すなわち、a = 0かつb = 0)でもよい。

前記一般式(7)、(7-A)、(7-B)、(7-C)、(7-D)または(10)において、A²が、置換もしくは無置換のベンゼン環である場合、A²に結合しているXとベンゼン環は、互いにオルト位又はパラ位にあるのが好ましい。特に、qが1以上でA²がベンゼン環の場合、A²は下記式で表される置換または無置換のパラ-フェニレンが好ましい。

30

【0080】

【化 2 0】



【0081】

なお、前記一般式(7)、(7-A)、(7-B)、(7-C)、(7-D)または(10)において、q = 0であることが好ましい。

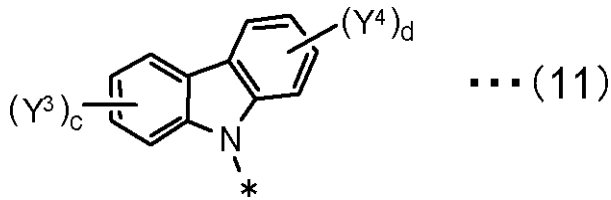
40

【0082】

また、Cz¹~Cz³は、互いに独立して、下記一般式(11)または下記一般式(12)で表されることが好ましい。尚、以下の式中、「*」は、ベンゼン環への結合位置を表している。

【0083】

【化 2 1】



【 0 0 8 4】

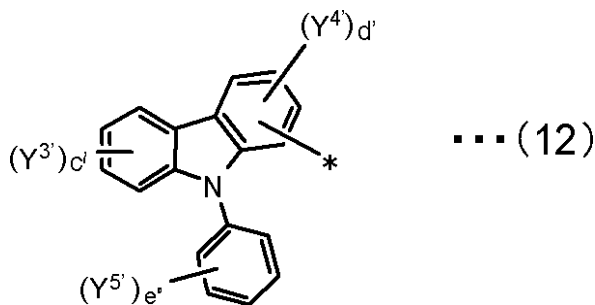
上記(11)式中、 Y^3 、 Y^4 は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、 c 、 d は互いに独立して、1~4の整数を表す。

10

【 0 0 8 5】

20

【化 2 2】



【 0 0 8 6】

30

上記(12)式中、 Y^3' 、 Y^4' 、 Y^5' は互いに独立して、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基を表し、 c' は1~4の整数を表し、 d' は1~3の整数を表し、 e' は1~5の整数を表す。

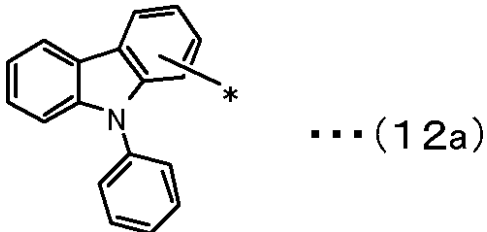
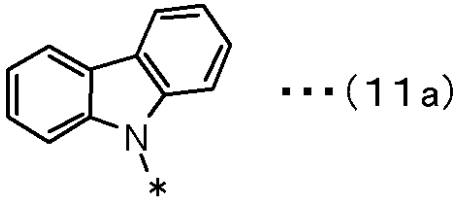
40

【 0 0 8 7】

さらには、 Cz^1 ~ Cz^3 が互いに独立して、下記一般式(11a)または下記一般式(12a)で表されるものが好ましい。

【 0 0 8 8】

【化23】



【0089】

前記一般式(7)~(12)における A^1 、 A^2 、 A^3 、 $Y^1 \sim Y^4$ 、 $Y^{3'}$ 、 Y^5 、において、炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基としては、例えば、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、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3,5-ジメチルシクロヘキシル基、3,3,5,5-テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状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る。

【0090】

炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルキル基としては、例えば、前記炭素数1~20のアルキル基が1以上のハロゲン基で置換されたものが挙げられる。

炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状または環状のハロアルコキシ基としては、例えば、前記炭素数1~20のアルコキシ基が1以上のハロゲン基で置換されたものが挙げられる。

炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基、ジメチルエチルシリル基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチルプロピルシリル基、ジメチルブチルシリル基、ジメチルターシャリーブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基等が挙げられる。

炭素数6~30のアリールシリル基としては、例えば、フェニルジメチルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、ジフェニルターシャリーブチルシリル基、トリフェニルシリル基等が挙げられる。

【0091】

環形成炭素数2~10の芳香族複素環基としては、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフエニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、チエニル基、およびピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、インドール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキ

10

20

30

40

50

サン環、ピペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環から形成される基が挙げられる。

前記環形成炭素数 6 ~ 60 の芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ピフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、フルオランテニル基、ベンゾ [b] フルオランテニル基、トリフェニレニル基、フェナントレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、ピセニル基、フルオレニル基、ピナフチル基、フルオレニル基が挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられ、なかでもフッ素原子が好ましい。

10

【 0 0 9 2 】

また、前記一般式 (7) ~ (1 2) における X、A¹、A²、ベンゼン環、C_Z¹ ~ C_Z³、Y¹ ~ Y⁴、Y^{3'} ~ Y^{5'} が、1つ又は複数の置換基を有する場合、前記置換基は、炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキルシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、または環形成炭素数 2 ~ 30 の芳香族複素環基であることが好ましい。これらの基の具体例としては、前記一般式 (7) ~ (1 2) における A¹、A²、A³、Y¹ ~ Y⁴、Y^{3'} ~ Y^{5'} において挙げたものが当てはまる。

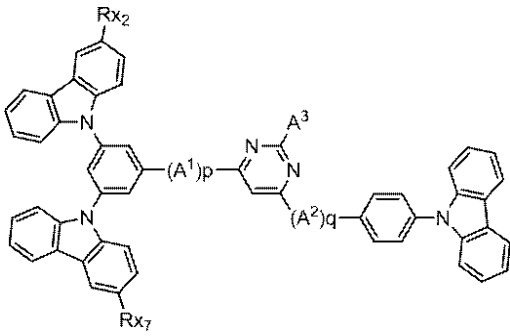
20

【 0 0 9 3 】

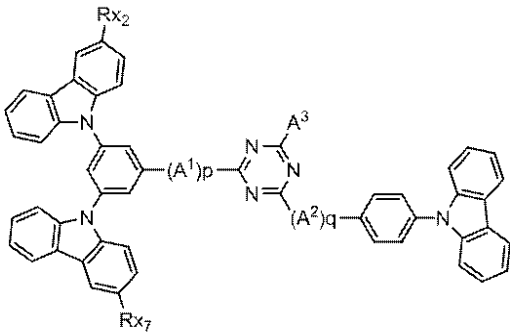
前記一般式 (7) ~ (1 2) で表される化合物は、さらに以下の一般式で示される化合物であると好ましい。

【 0 0 9 4 】

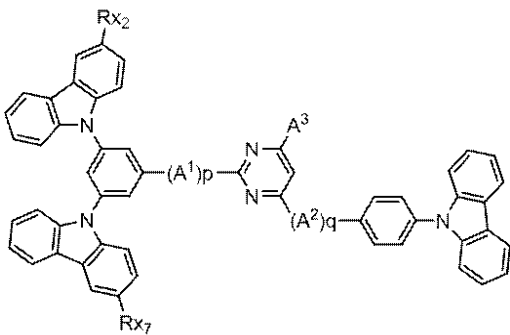
【化 2 4】



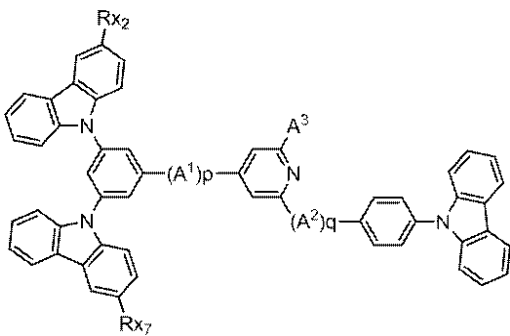
10



20



30



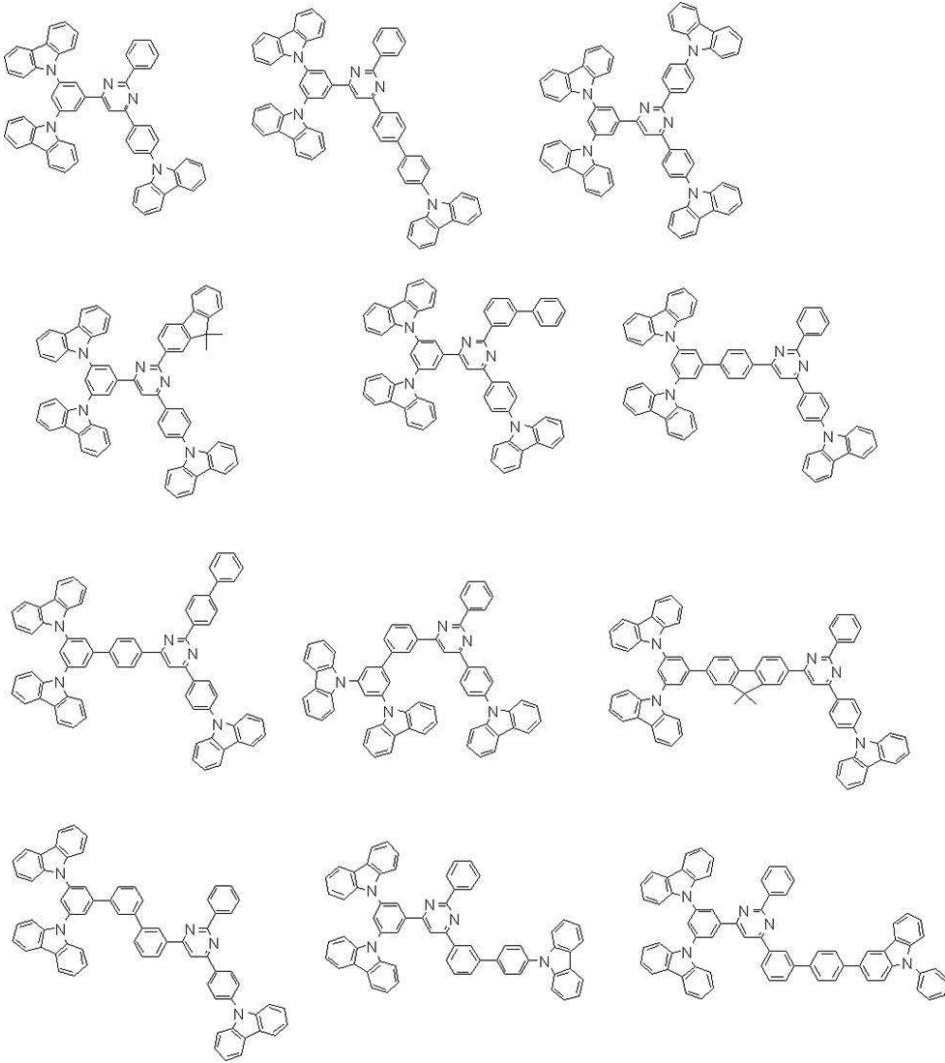
【 0 0 9 5】

前記一般式(7)および(12)で表される本発明の有機EL素子用材料としては、例えば、次の化合物が具体例として挙げられる。

40

【 0 0 9 6】

【化 2 5】



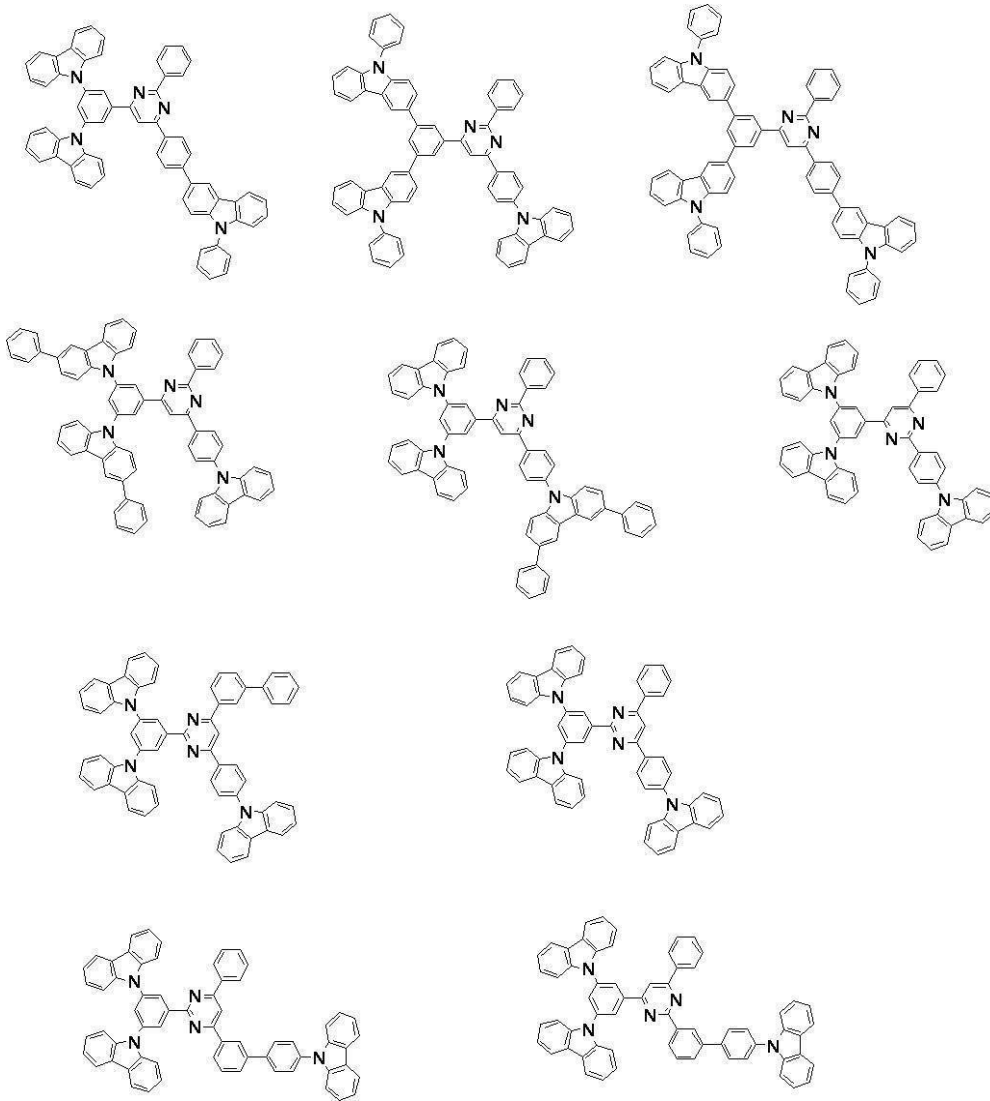
10

20

30

【 0 0 9 7 】

【化 2 6】



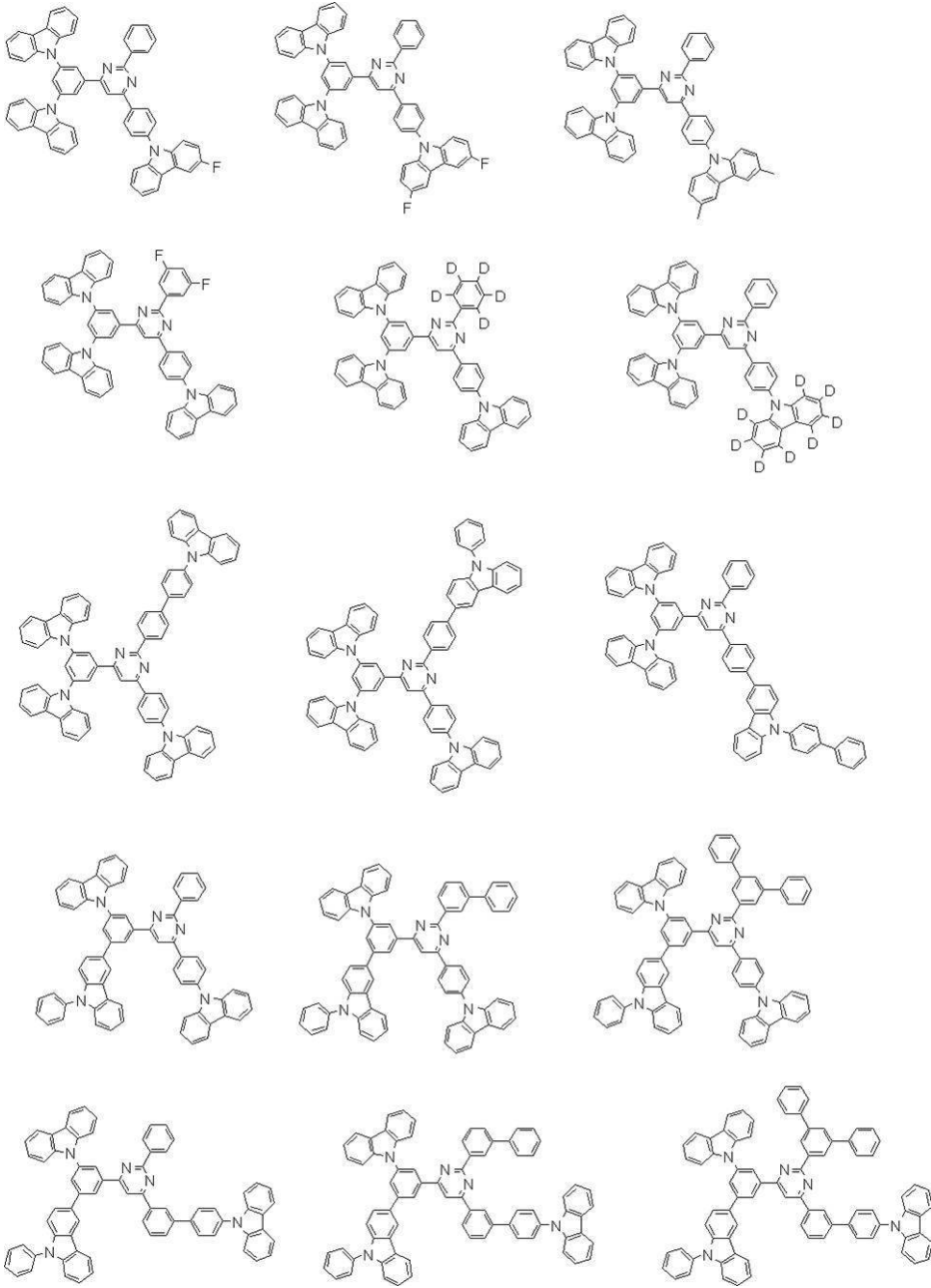
10

20

30

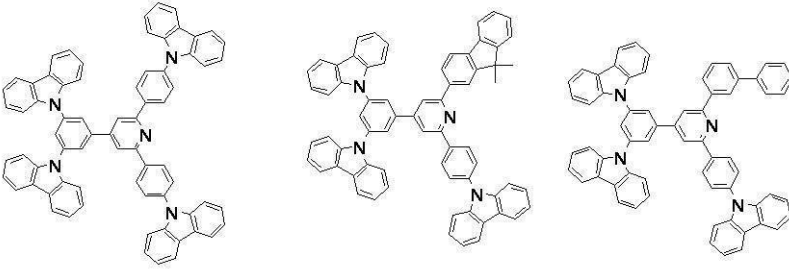
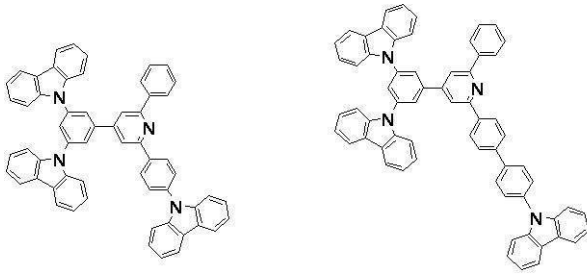
【 0 0 9 8 】

【化 2 7】

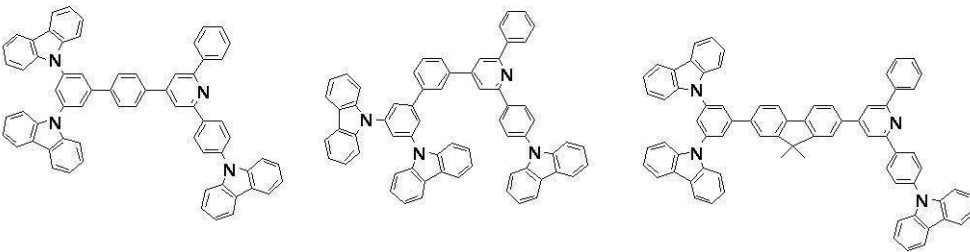


【 0 0 9 9 】

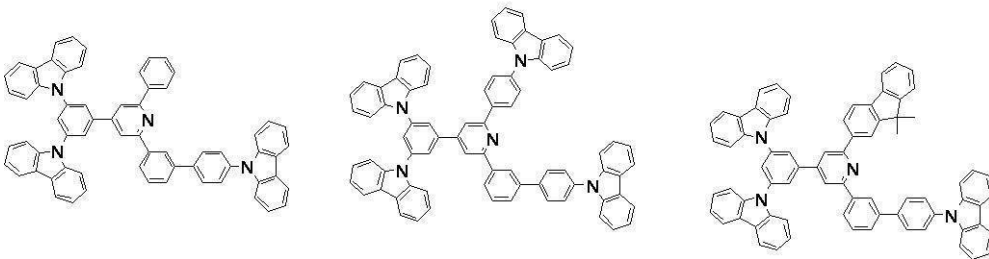
【化 2 8】



10



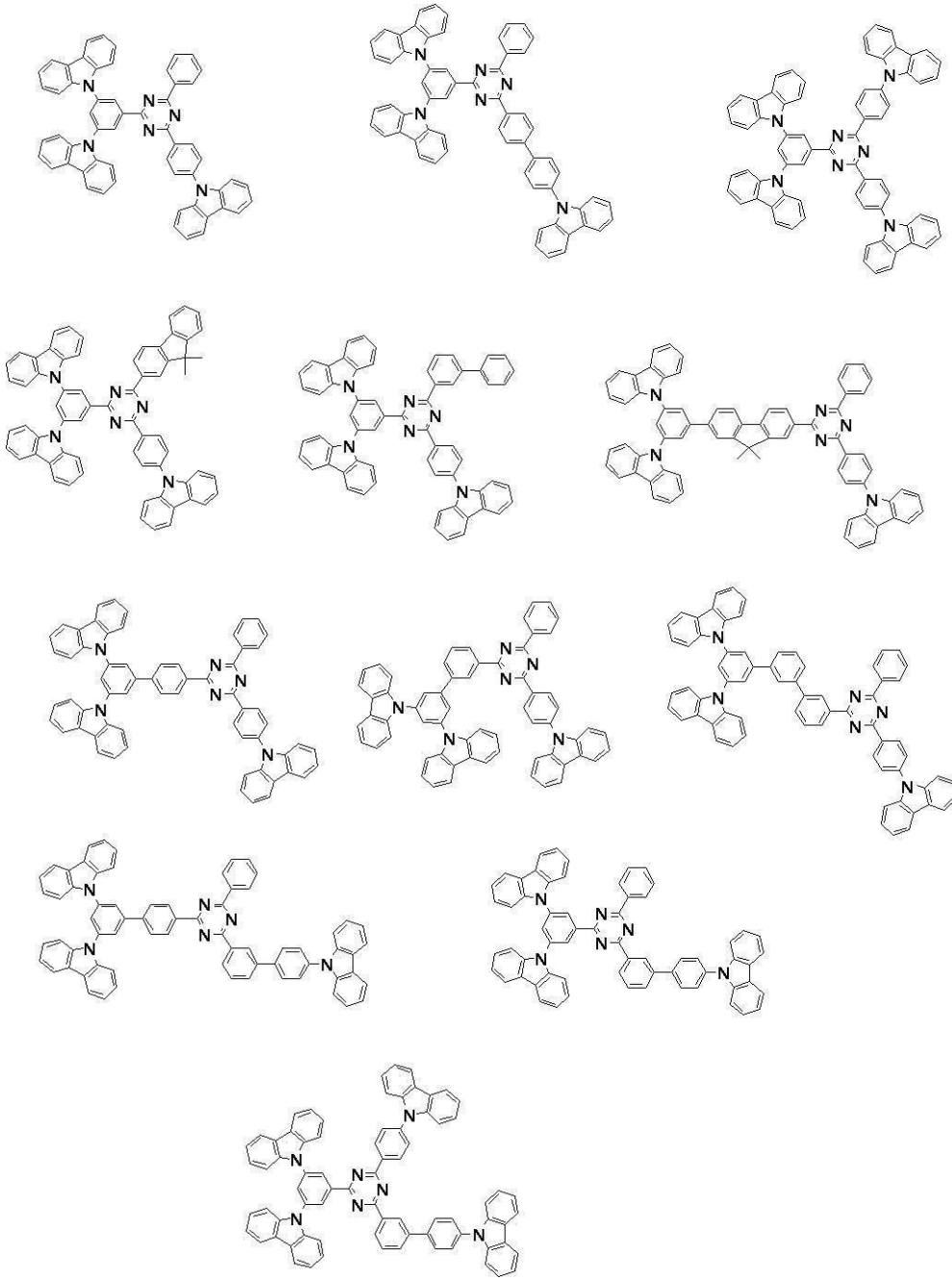
20



30

【 0 1 0 0 】

【化 2 9】



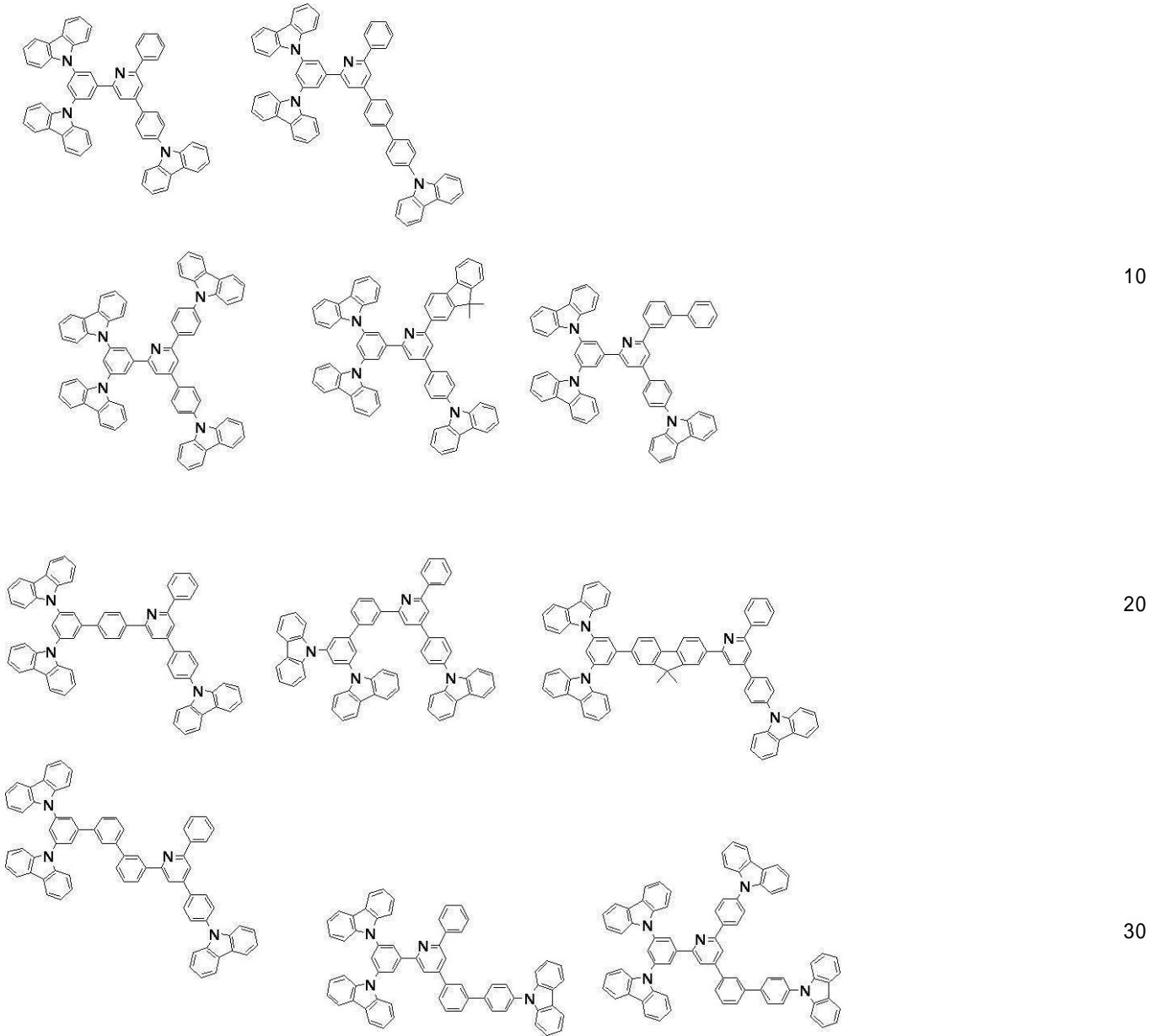
10

20

30

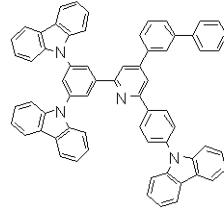
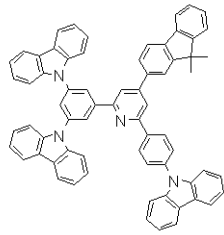
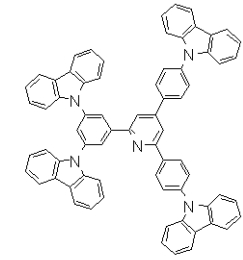
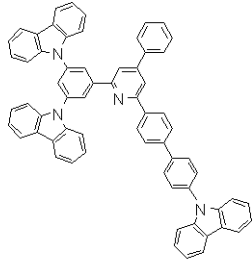
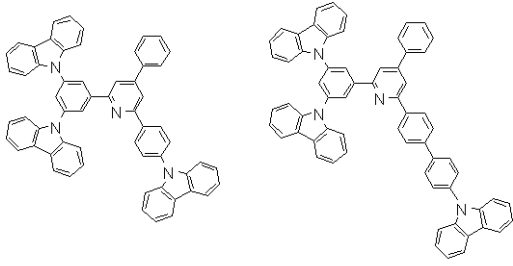
【 0 1 0 1 】

【化 3 0】

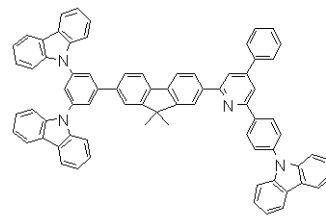
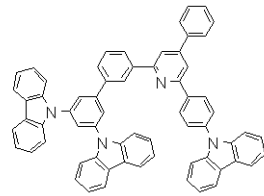
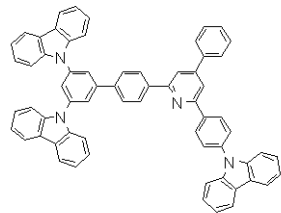


【 0 1 0 2】

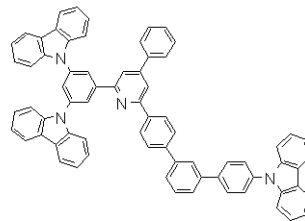
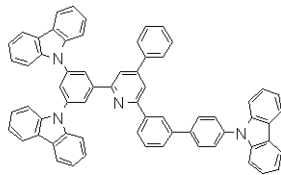
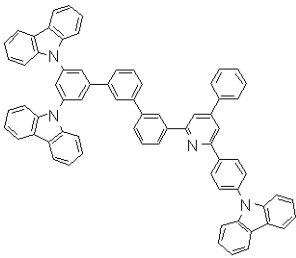
【化 3 1】



10



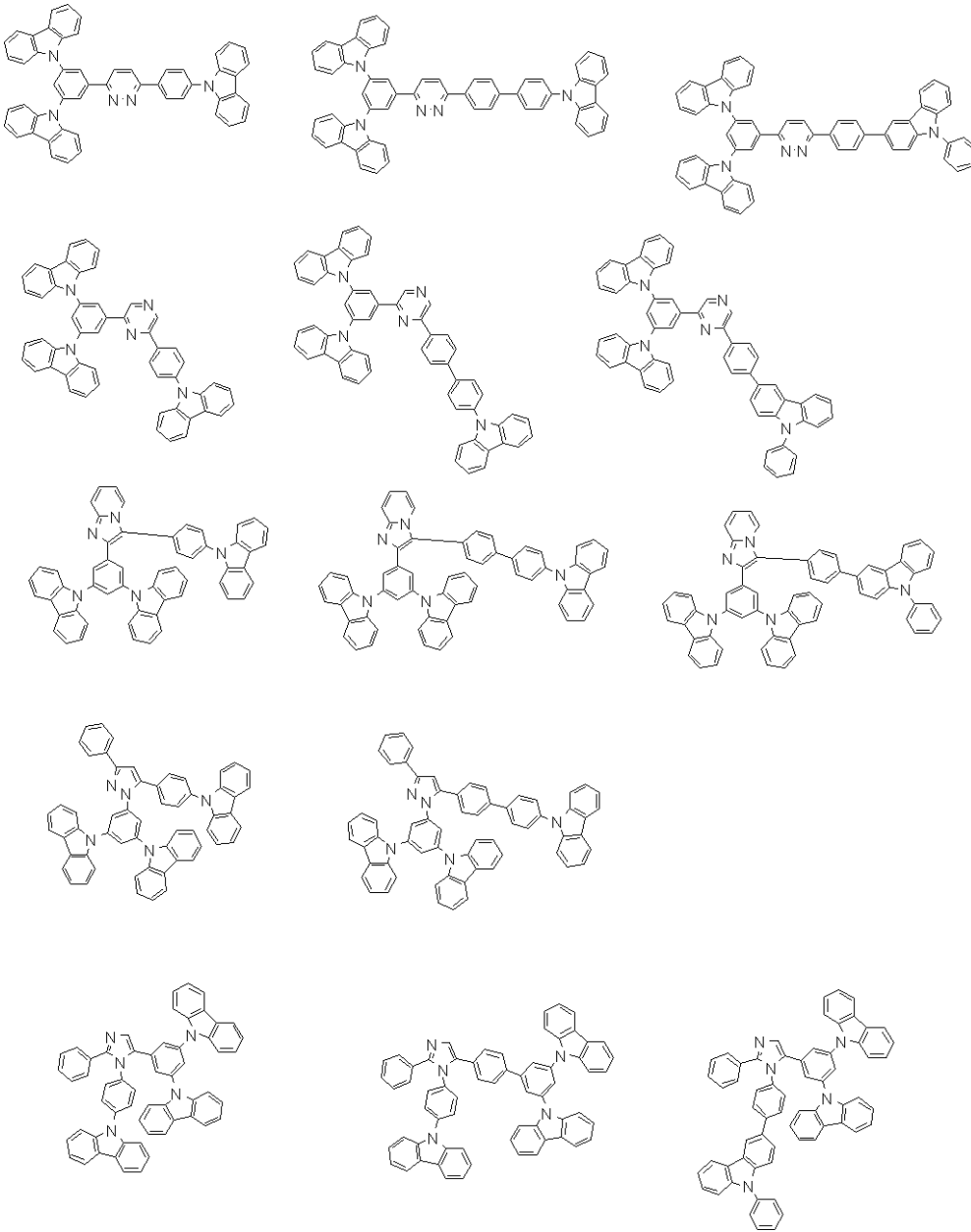
20



30

【 0 1 0 3 】

【化 3 2】



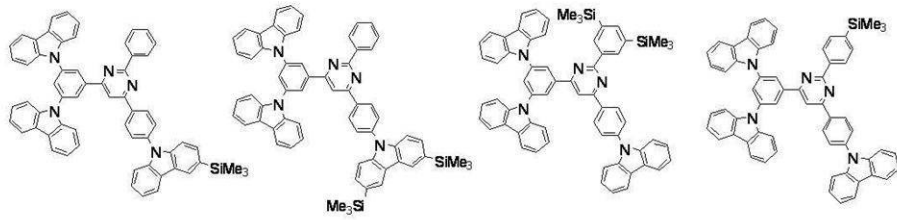
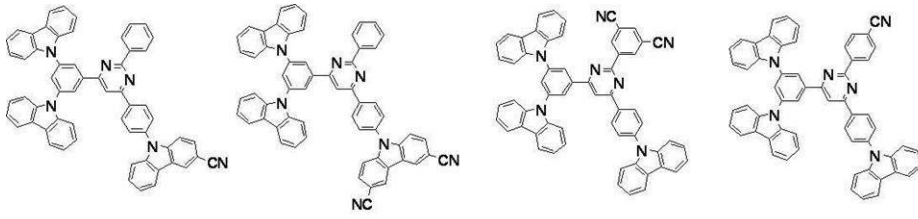
10

20

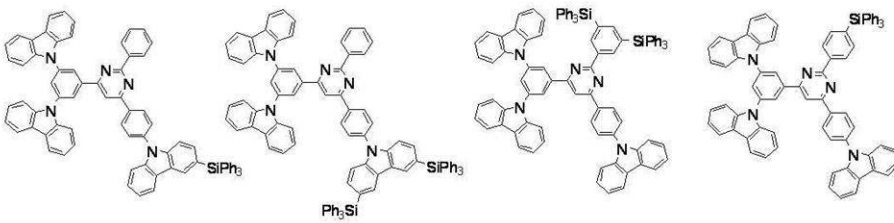
30

【 0 1 0 4 】

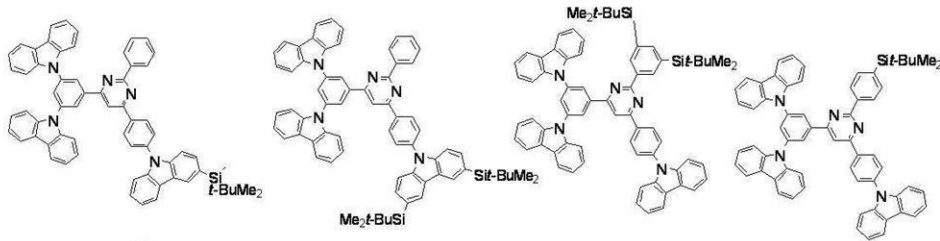
【化 3 3】



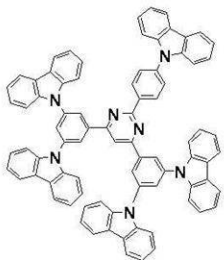
10



20

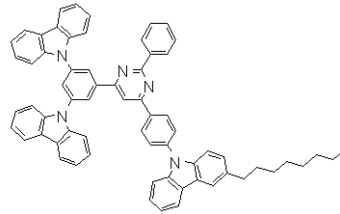
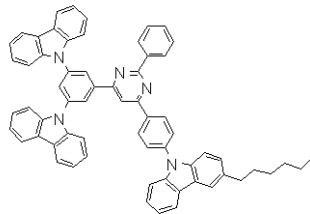
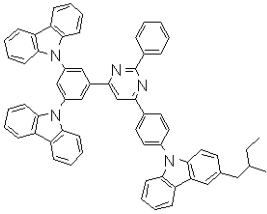
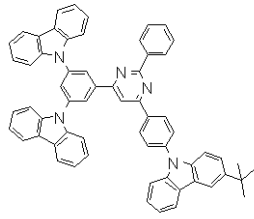
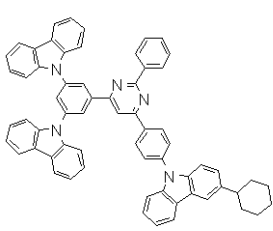


30

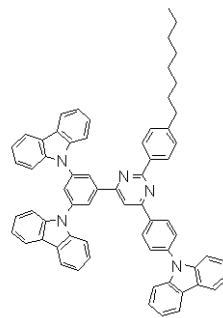
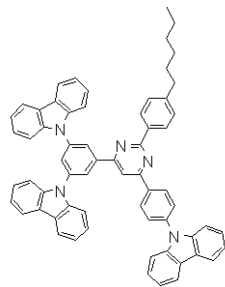
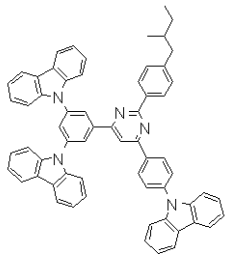


【 0 1 0 5 】

【化 3 4】



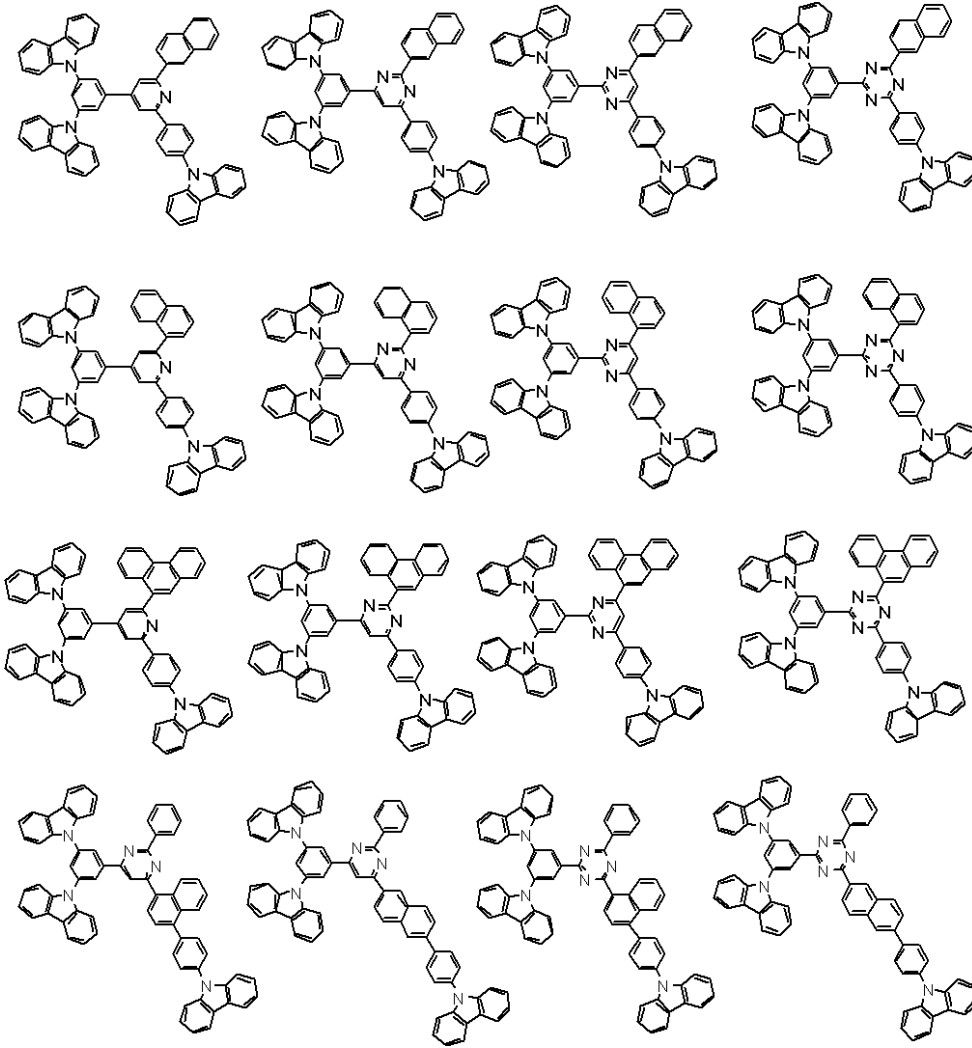
10



20

【 0 1 0 6】

【化 3 5】



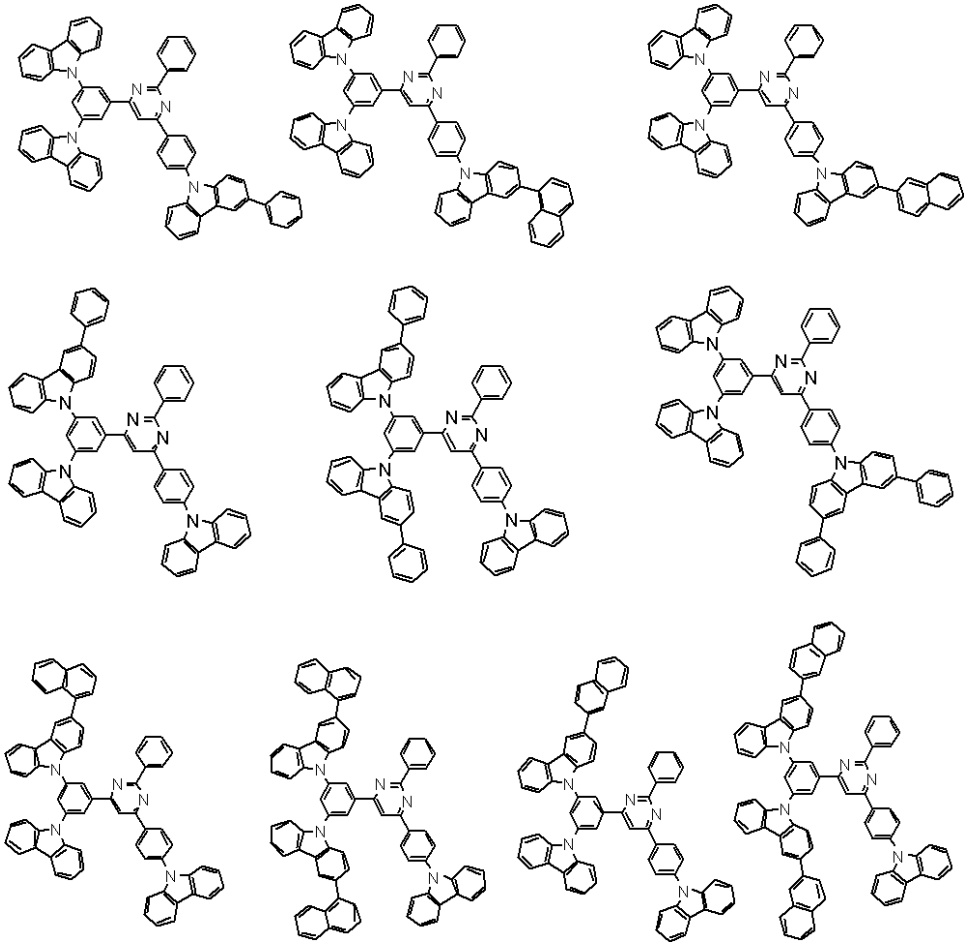
10

20

30

【 0 1 0 7】

【化 3 6】

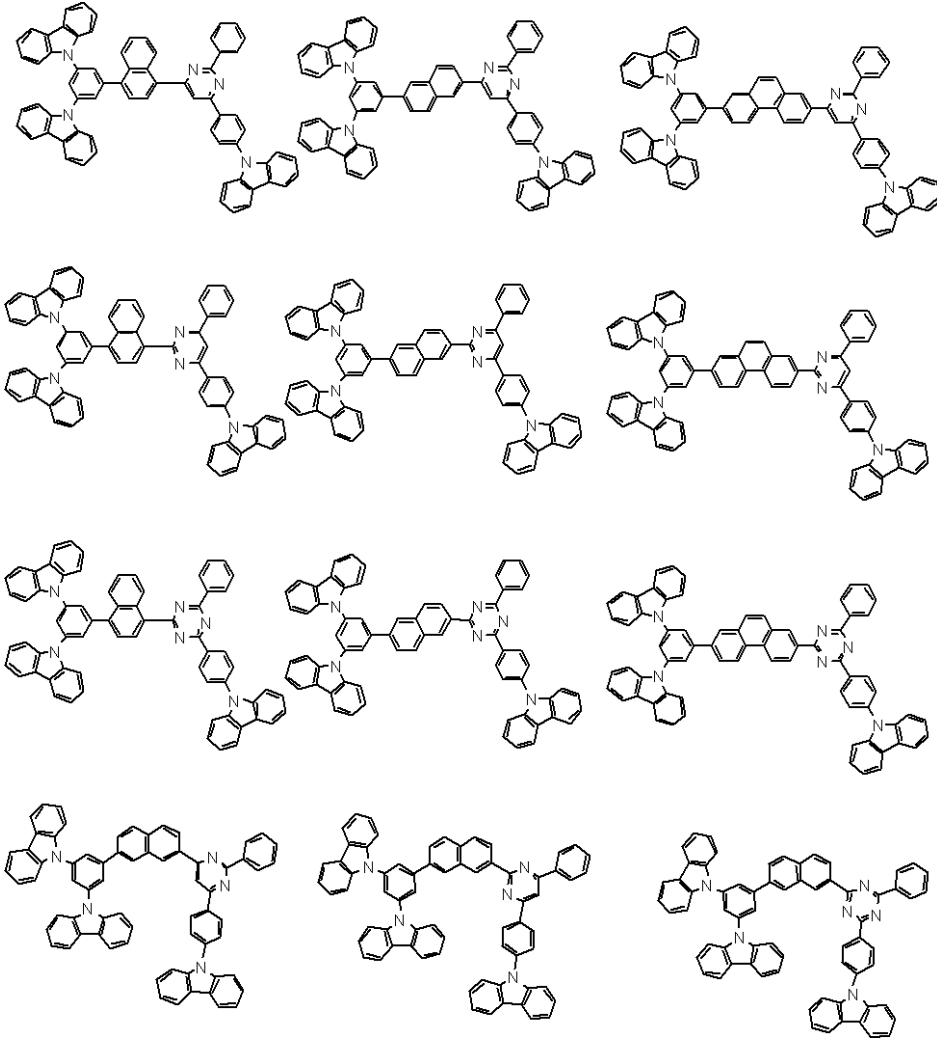


10

20

【 0 1 0 8 】

【化 3 7】



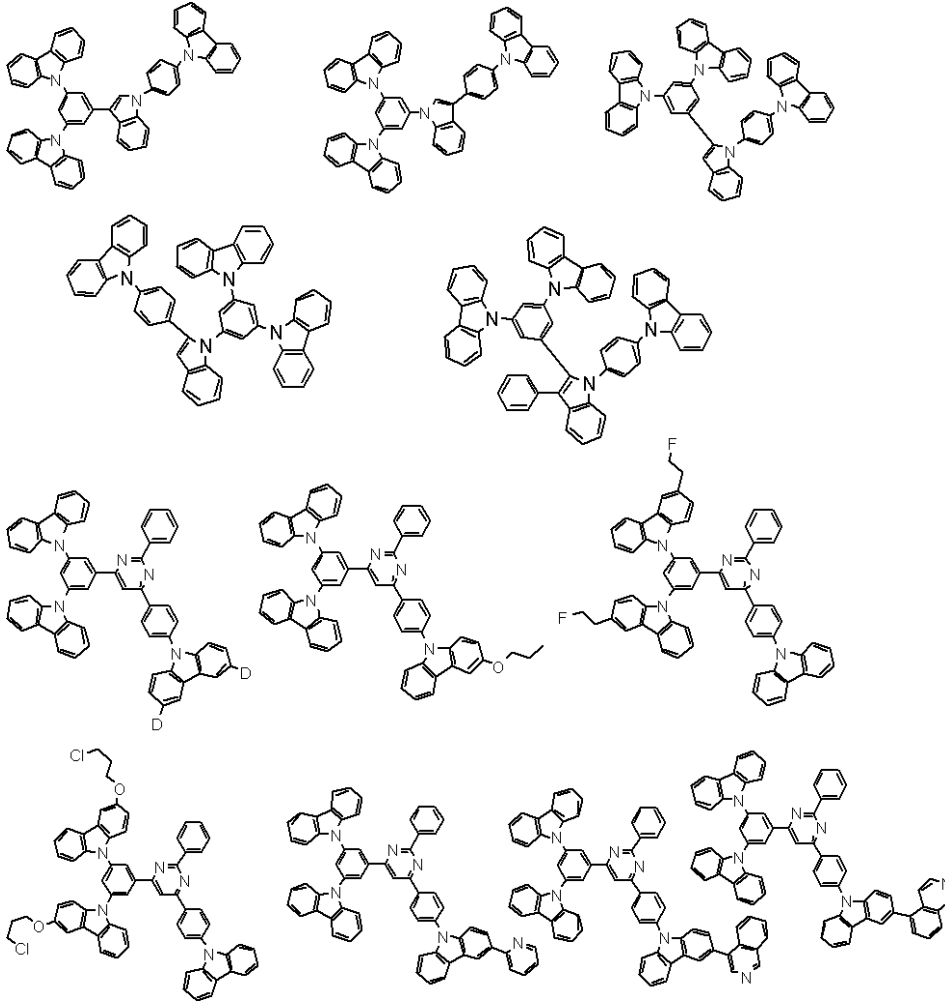
10

20

30

【 0 1 0 9】

【化 3 8】

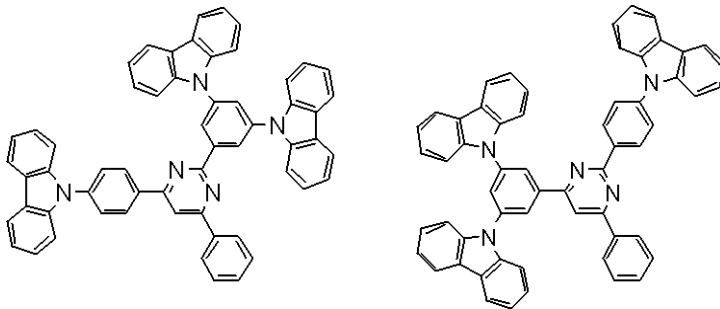


10

20

【 0 1 1 0】

【化 3 9】



30

【 0 1 1 1】

本発明の有機EL素子は、電子輸送層を有し、該電子輸送層が本発明の有機EL素子用材料を含有していても好ましい。

40

また、本発明の有機EL素子が電子輸送層及び正孔障壁層のうち少なくともいずれか一方を有し、該電子輸送層及び正孔障壁層のうち少なくともいずれか一方が、本発明の有機EL素子用材料を含有しても好ましい。

また、本発明の有機EL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EL素子用材料を含有しても好ましい。

【 0 1 1 2】

(燐光材料)

本発明において、前記燐光材料は、金属錯体を含有し、前記金属錯体は、Ir, Pt, Os, Au, Cu, Re及びRuから選択される金属原子と、配位子と、を有することが好ましい。特に、前記配位子は、オルトメタル結合を有することが好ましい。

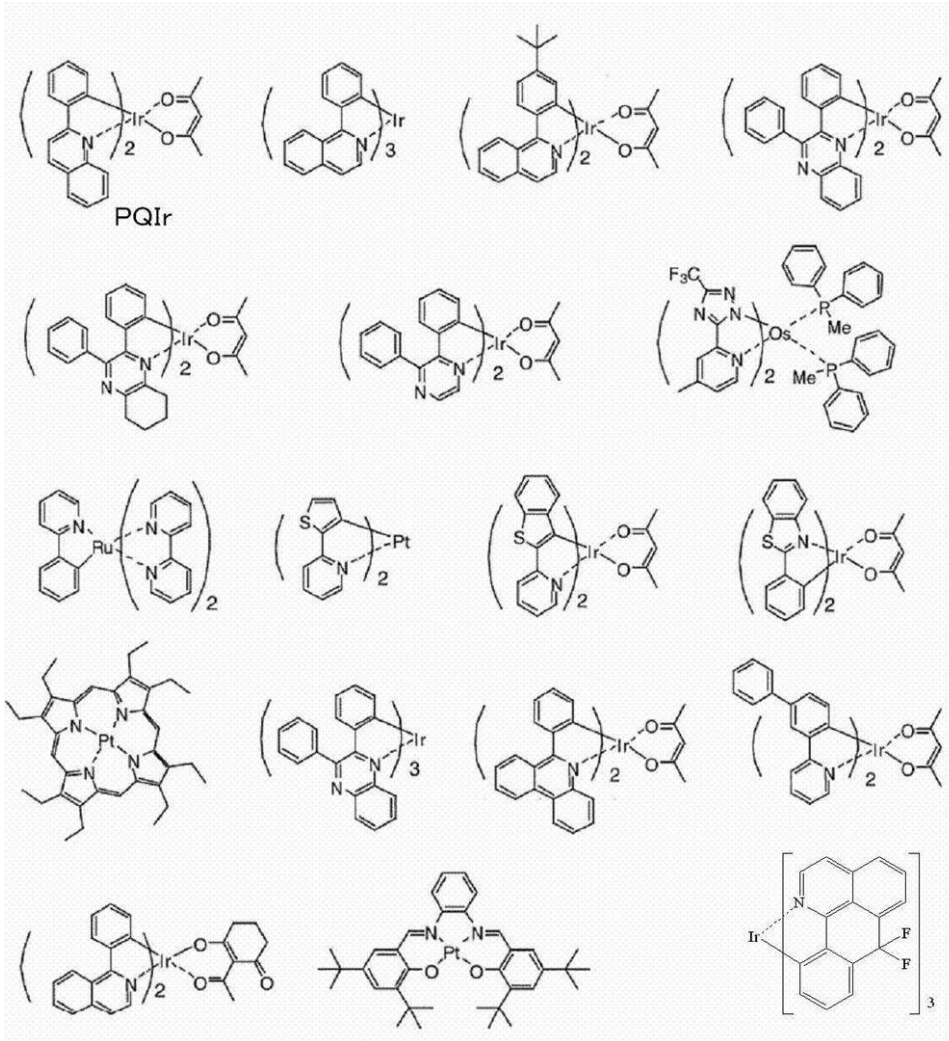
50

燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、Ir、Os及びPtから選ばれる金属原子を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスmium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く、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。

好ましい金属錯体の具体例を、以下に示す。

【0113】

【化40】



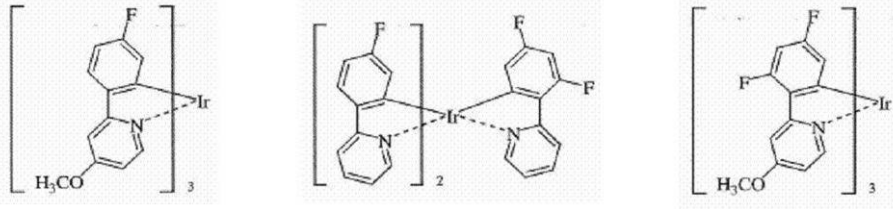
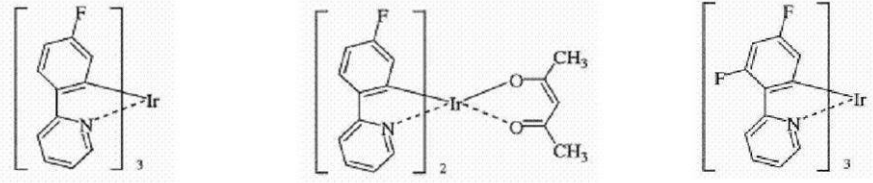
10

20

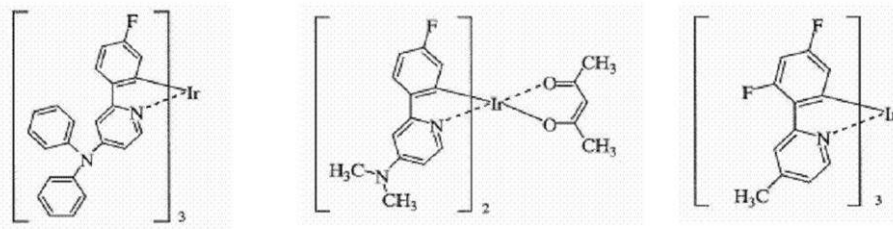
30

【0114】

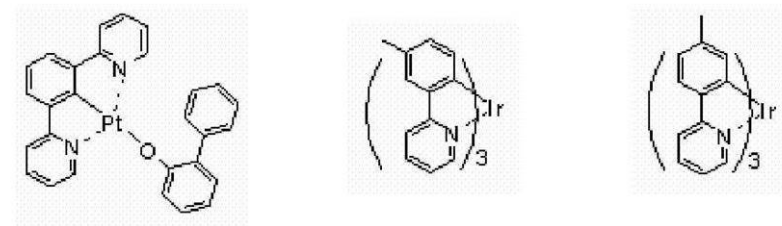
【化 4 1】



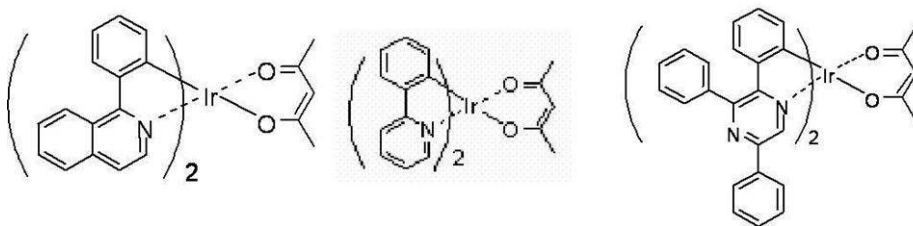
10



20

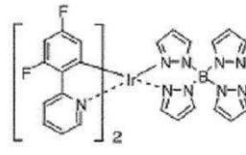
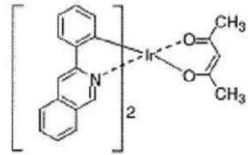
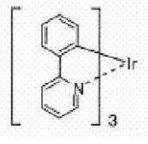
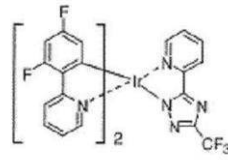
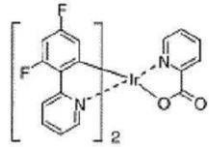
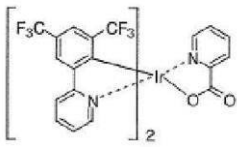


30



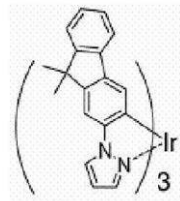
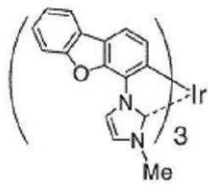
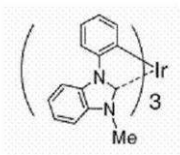
【 0 1 1 5 】

【化 4 2】

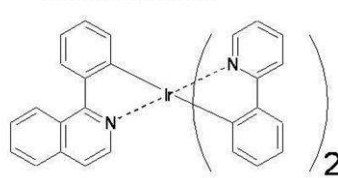
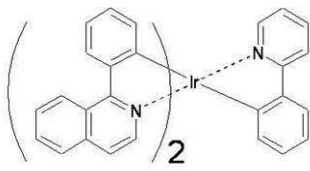
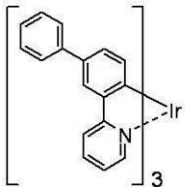


Ir(ppy)₃

10

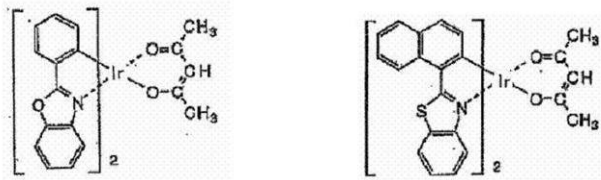
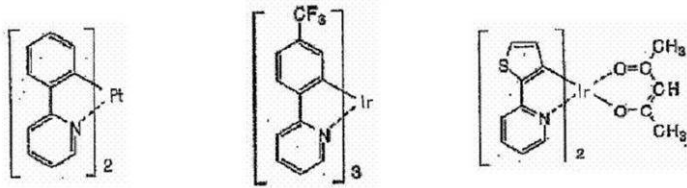


20

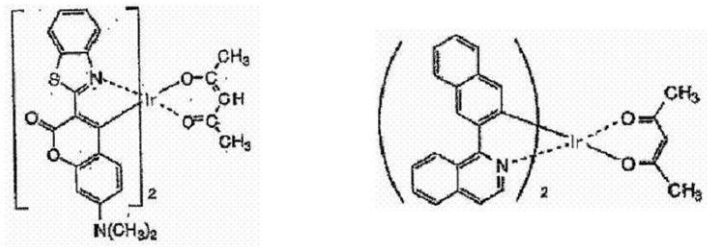


【 0 1 1 6 】

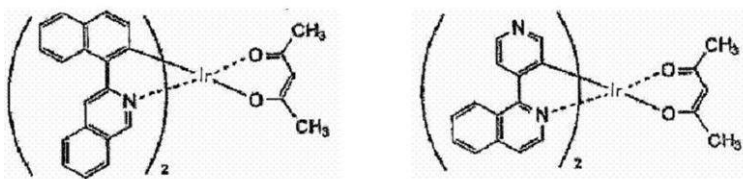
【化 4 3】



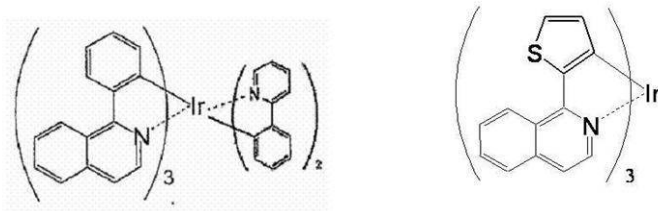
10



20



30



【 0 1 1 7】

本発明では、前記発光層に含まれる前記燐光材料のうち少なくとも1種は、発光波長の極大値が450nm以上720nm以下であることが好ましい。

40

このような発光波長の燐光材料(燐光ドーパント)を、本発明で用いる特定のホスト材料にドーピングして発光層を構成することにより、高効率な有機EL素子とできる。

【 0 1 1 8】

(還元性ドーパント)

本発明の有機EL素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントを有することも好ましい。

このような構成によれば、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土

50

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。

【0119】

アルカリ金属としては、Na（仕事関数：2.36 eV）、K（仕事関数：2.28 eV）、Rb（仕事関数：2.16 eV）、Cs（仕事関数：1.95 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

アルカリ土類金属としては、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0 eV～2.5 eV）、Ba（仕事関数：2.52 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

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。

【0120】

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。

【0121】

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。

【0122】

還元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還元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、有機物中に還元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：還元性ドーパント = 100 : 1 ~ 1 : 100、好ましくは5 : 1 ~ 1 : 5である。

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

還元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、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05 nm ~ 1 nmで形成する。

また、本発明の有機EL素子における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント = 5 : 1 ~ 1 : 5であると好ましく、2 : 1 ~ 1 : 2であるとさらに好ましい。

【0123】

（電子注入層および電子輸送層）

10

20

30

40

50

電子注入層又は電子輸送層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きい。電子注入層はエネルギーレベルの急な変化を緩和する等、エネルギーレベルを調整するために設ける。

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、前記電子注入層は、含窒素環誘導体を主成分として含有することが好ましい。ここで、電子注入層は電子輸送層として機能する層であってもよい。

なお、「主成分として」とは、電子注入層が50質量%以上の含窒素環誘導体を含有していることを意味する。

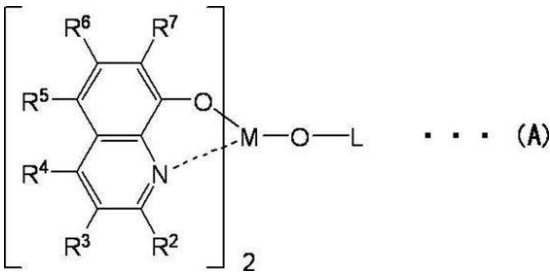
【0124】

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

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

【0125】

【化44】



【0126】

一般式(A)における $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、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、芳香族複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

ハロゲン原子としては、例えば、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。また、置換されていてもよいアミノ基の例としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラキルアミノ基が挙げられる。

【0127】

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。アルキルアミノ基及びアラキルアミノ基は $-NQ^1Q^2$ と表される。 Q^1 及び Q^2 の具体例としては、それぞれ独立に、前記アルキル基、前記アラキル基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。

アリールアミノ基は $-NAr^1Ar^2$ と表され、 Ar^1 及び Ar^2 の具体例としては、それぞれ独立に前記非縮合芳香族炭化水素基及び縮合芳香族炭化水素基で説明した基と同様である。

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。

上記式(A)のLは、下記式(A')又は(A'')で表される基である。

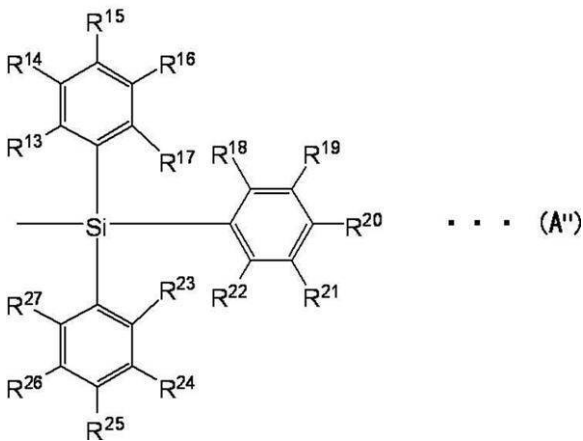
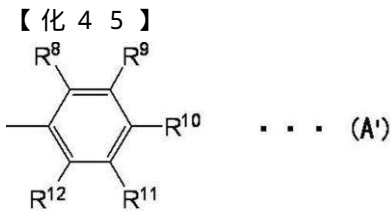
【0128】

10

20

30

40



10

【 0 1 2 9 】

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

20

前記式 (A') 及び式 (A'') の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基としては、前記式 (A) 中の $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

また、 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の 2 価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン - 2, 2' - ジイル基、ジフェニルエタン - 3, 3' - ジイル基、ジフェニルプロパン - 4, 4' - ジイル基等が挙げられる。

30

【 0 1 3 0 】

一方、本発明では、電子輸送層として、前記一般式 (1) および (3) (または (4) および (6)) に示された芳香族化合物を含有することが好ましい。

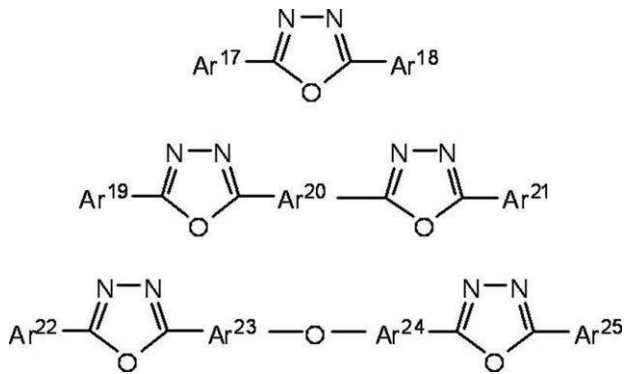
【 0 1 3 1 】

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

40

【 0 1 3 2 】

【化46】



10

【0133】

前記式中、 Ar^{17} 、 Ar^{18} 、 Ar^{19} 、 Ar^{21} 、 Ar^{22} 及び Ar^{25} は、それぞれ置換基を有するもしくは有さない芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{17} と Ar^{18} 、 Ar^{19} と Ar^{21} 、 Ar^{22} と Ar^{25} は、たがいに同一でも異なってもよい。芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

Ar^{20} 、 Ar^{23} 及び Ar^{24} は、それぞれ置換基を有するもしくは有さない 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{23} と Ar^{24} は、たがいに同一でも異なってもよい。

20

2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ピフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

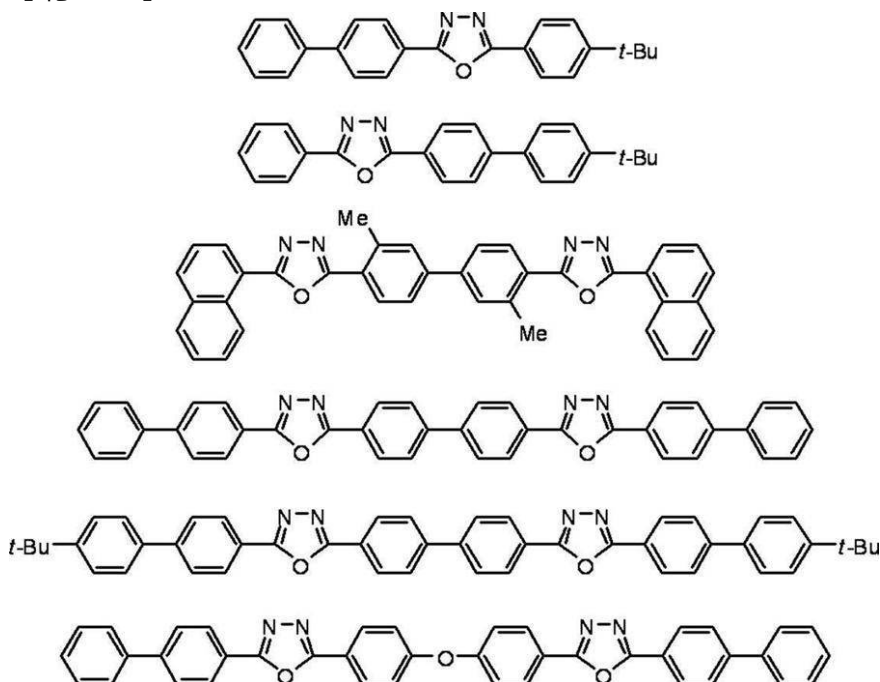
【0134】

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

【0135】

30

【化47】



40

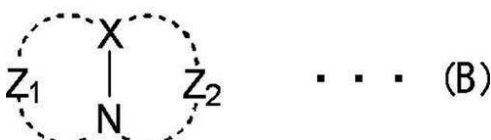
【0136】

50

電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の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が挙げられる。例えば、下記式(A)に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記式(B)に示す構造のものが挙げられる。

【0137】

【化48】



10

【0138】

前記式(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。

【0139】

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

20

【0140】

【化49】



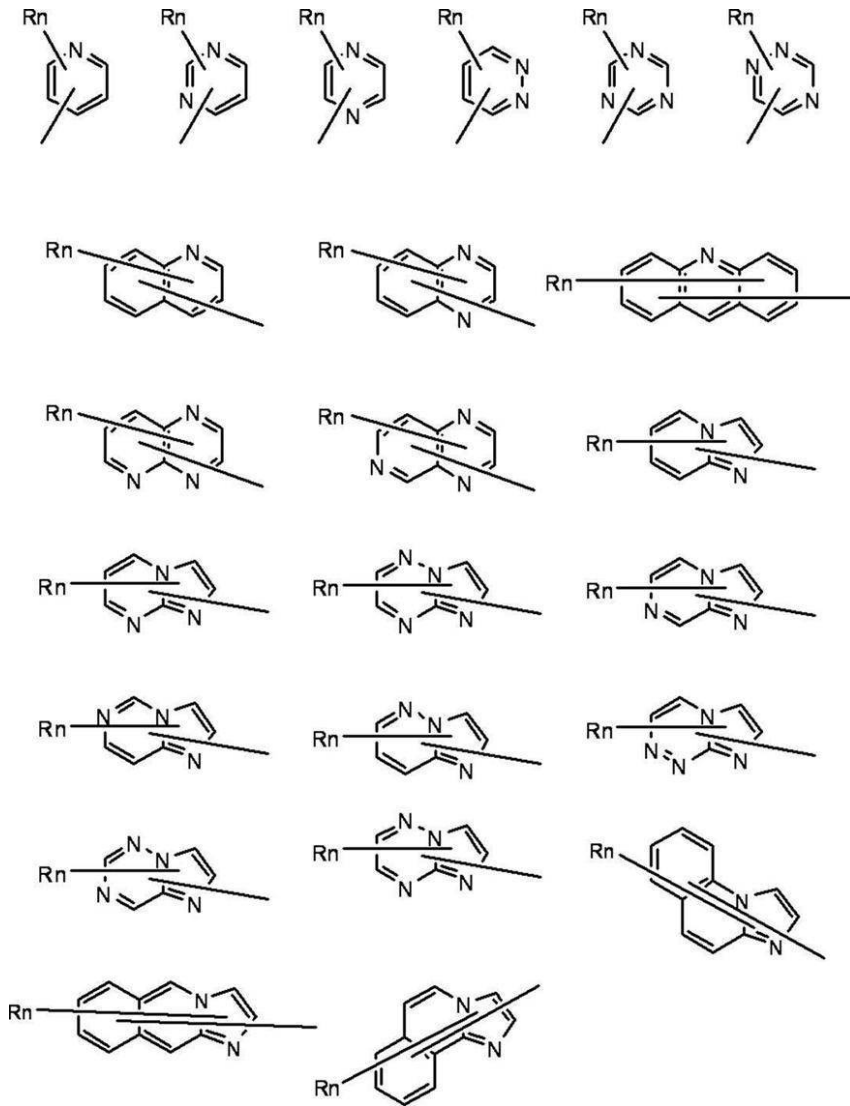
【0141】

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

30

【0142】

【化 5 0】



10

20

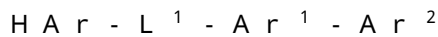
30

【0143】

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

【0144】

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。



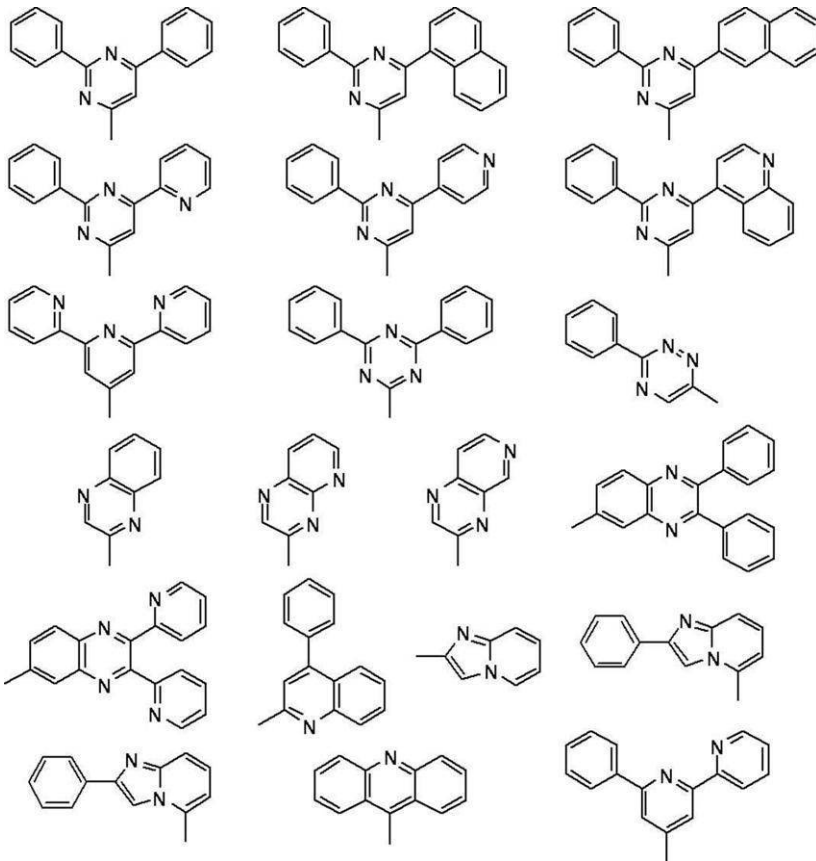
前記式中、HArは、置換基を有していてもよい炭素数3～40の含窒素複素環基であり、L¹は単結合、置換基を有していてもよい炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、Ar¹は置換基を有していてもよい炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、Ar²は置換基を有していてもよい炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

HArは、例えば、下記の群から選択される。

【0145】

40

【化 5 1】



10

20

【0146】

L¹ は、例えば、下記の群から選択される。

【0147】

【化 5 2】



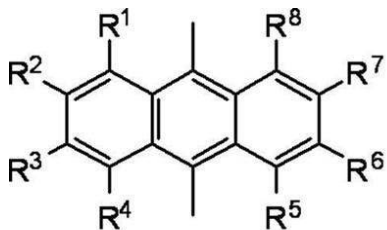
30

【0148】

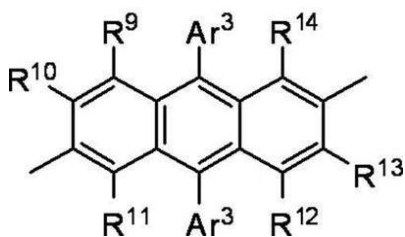
Ar¹ は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。

【0149】

【化 5 3】



40



【0150】

前記式中、R¹ ~ R¹⁴ 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

50

、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、 Ar^3 は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基または炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

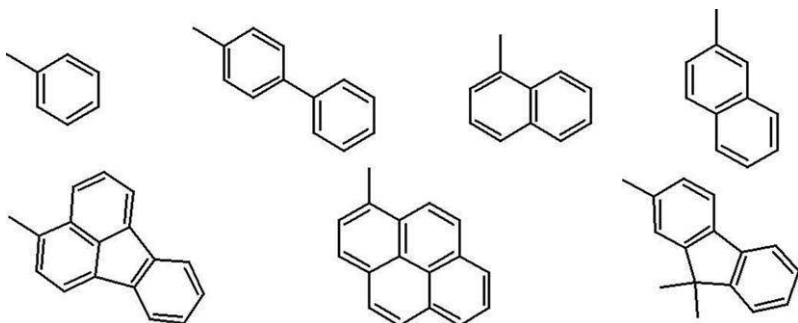
また、 $R^1 \sim R^8$ は、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体であってもよい。

【0151】

Ar^2 は、例えば、下記の群から選択される。

【0152】

【化54】



10

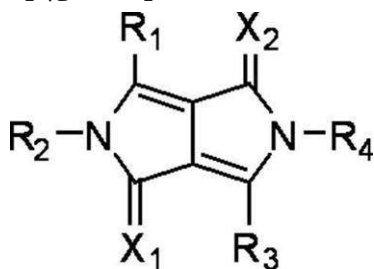
【0153】

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

20

【0154】

【化55】



30

【0155】

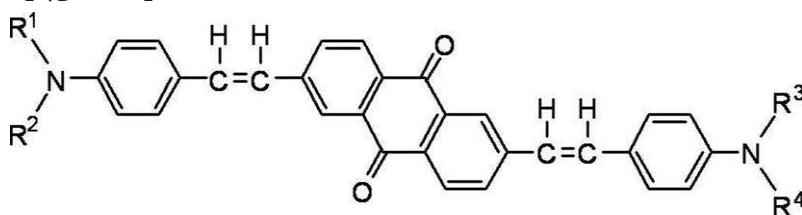
前記式中、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の脂肪族基、置換もしくは無置換の脂肪族式環基、置換もしくは無置換の炭素環式芳香族環基、置換もしくは無置換の複素環基を表し、 X_1 、 X_2 は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、またはジシアノメチレン基を表す。

【0156】

また、電子伝達性化合物として、下記の化合物も好適に用いられる。

【0157】

【化56】



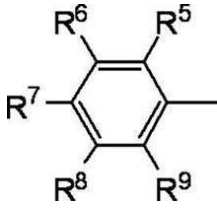
40

【0158】

前記式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は互いに同一のまたは異なる基であって、下記式で表わされる芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である。

【0159】

【化 5 7】



【0160】

前記式中、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸及びR⁹は互いに同一のまたは異なる基であって、水素原子、或いはそれらの少なくとも1つが飽和もしくは不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基、またはアルキルアミノ基である。

10

【0161】

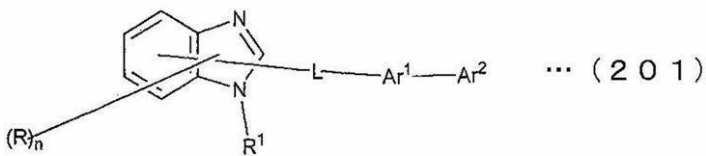
さらに、電子伝達性化合物は、該含窒素複素環基または含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

【0162】

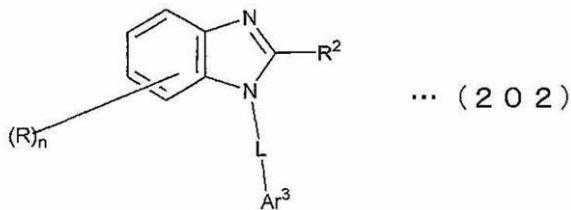
また、電子輸送層は、下記式(201)~(203)で表される含窒素複素環誘導体の少なくともいずれか1つを含有することが好ましい。

【0163】

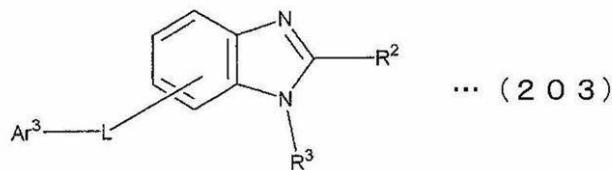
【化 5 8】



20



30



【0164】

前記式(201)~(203)中、Rは、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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、また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、

40

R¹は、置換基を有していてもよい炭素数6~60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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。または炭素数1~20のアルコキシ基であり、

R²及びR³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の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、

50

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、また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 は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 60 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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、または置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、

Ar¹ は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 60 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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、Ar² は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 60 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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、また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。

10

【0165】

Ar³ は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 60 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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、または - Ar¹ - Ar² で表される基 (Ar¹ 及び Ar² は、それぞれ前記と同じ) である。

なお、前記式 (201) ~ (203) 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 6 ~ 60 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、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、また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。

20

【0166】

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

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

【0167】

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、Li₂O、K₂O、Na₂S、Na₂Se 及び Na₂O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、CaO、BaO、SrO、BeO、BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、LiF、NaF、KF、LiCl、KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF₂、BaF₂、SrF₂、MgF₂ 及び BeF₂ 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

30

40

【0168】

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

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

50

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

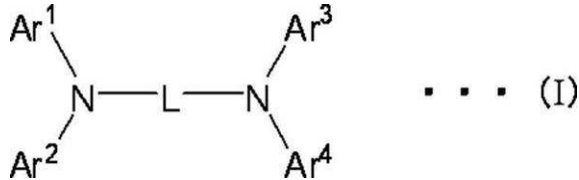
【0169】

(正孔注入層および正孔輸送層)

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、下記一般式(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。これらの本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料と併せて発光層に用いてもよい。

【0170】

【化59】



10

【0171】

前記一般式(I)において、Ar¹ ~ Ar⁴は置換もしくは無置換の環形成炭素数6 ~ 50の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の核原子数5 ~ 50の芳香族複素環基、または、それら芳香族炭化水素基と芳香族複素環基を結合させた基を表す。

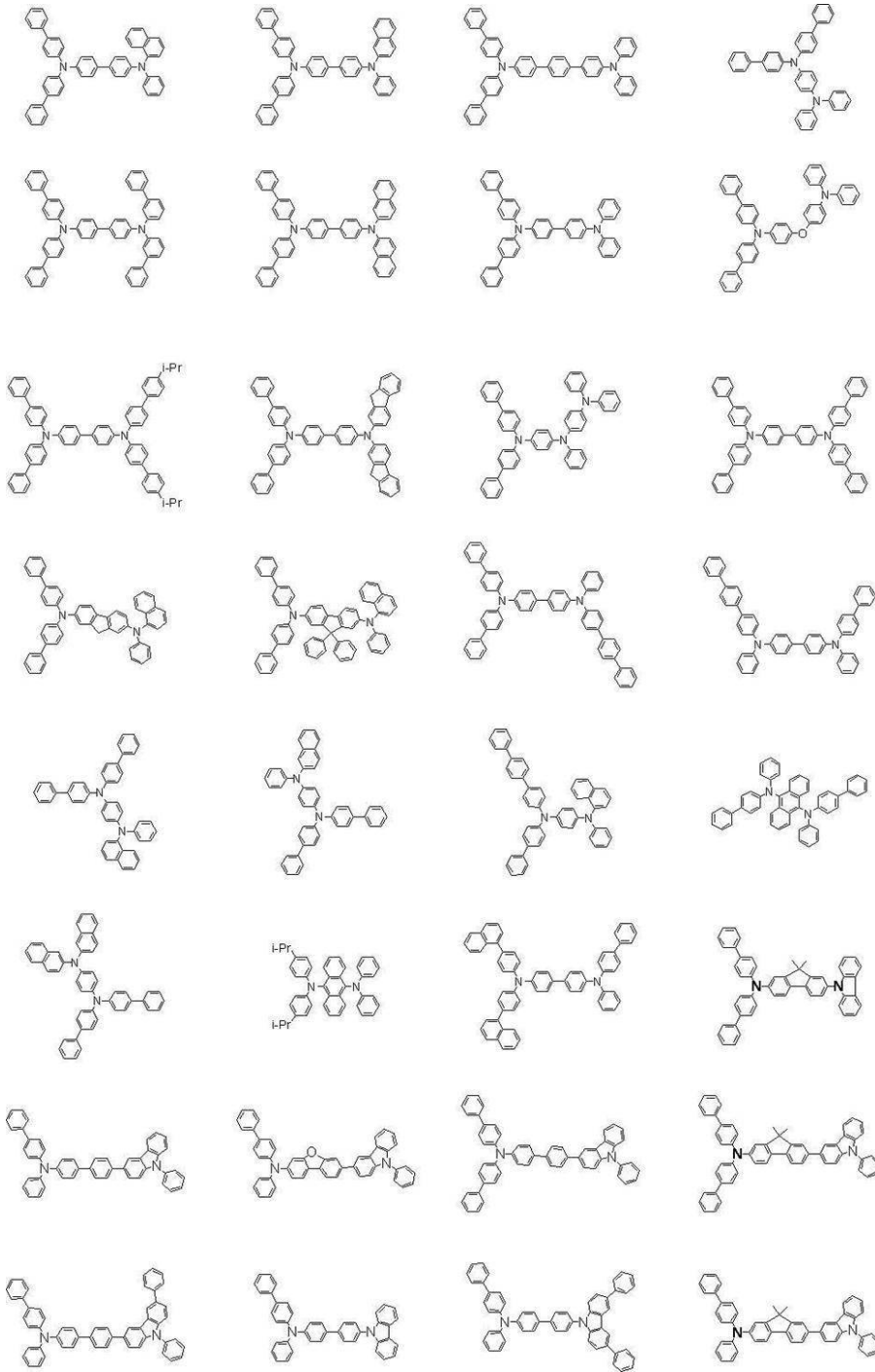
【0172】

前記一般式(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。

20

【0173】

【化60】



10

20

30

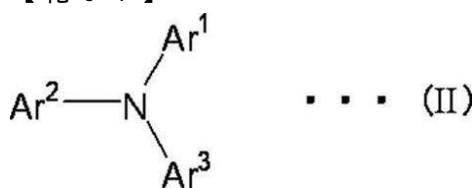
【0174】

また、下記一般式(II)の芳香族アミンも正孔注入層又は正孔輸送層の形成に好適に用いられる。これらを本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料と併せて発光層に用いてもよい。

40

【0175】

【化61】



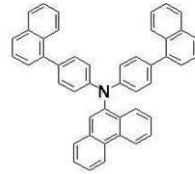
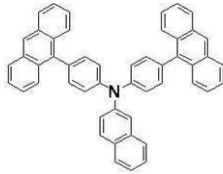
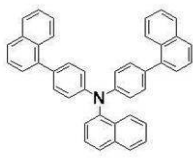
【0176】

50

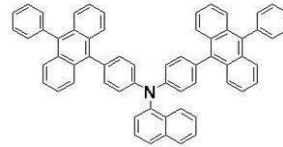
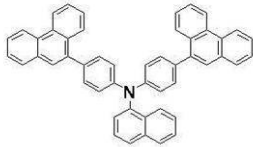
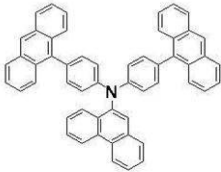
前記一般式 (I I) において、 $Ar^1 \sim Ar^3$ の定義は前記一般式 (I) の $Ar^1 \sim Ar^4$ の定義と同様である。以下に一般式 (I I) の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

【 0 1 7 7 】

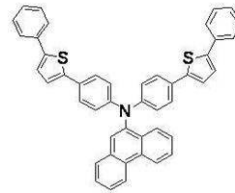
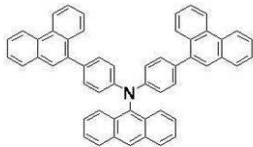
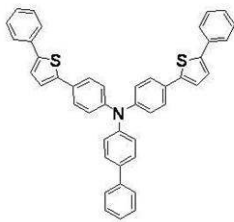
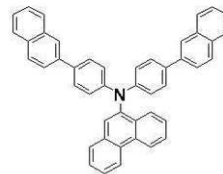
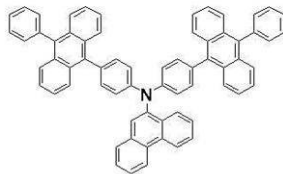
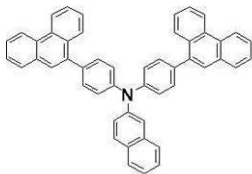
【 化 6 2 】



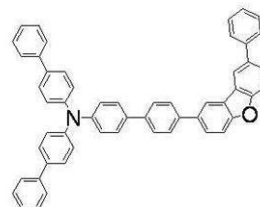
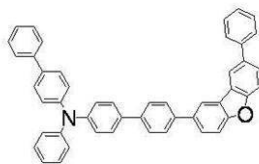
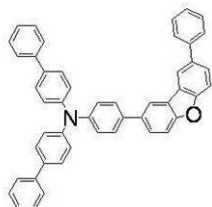
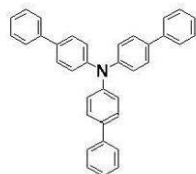
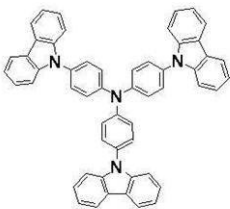
10



20



30



40

【 0 1 7 8 】

なお、本発明は、上記の説明に限られるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲での変更は本発明に含まれる。

例えば次のような変更も本発明の好適な変形例である。

【 0 1 7 9 】

本発明では、前記発光層が電荷注入補助材を含有していることも好ましい。

エネルギーギャップが広いホスト材料を用いて発光層を形成した場合、ホスト材料のイオン化ポテンシャル (I p) と正孔注入・輸送層等の I p との差が大きくなり、発光層への正孔の注入が困難となり、十分な輝度を得るための駆動電圧が上昇するおそれがある。

50

このような場合、発光層に、正孔注入・輸送性の電荷注入補助材を含有させることで、発光層への正孔注入を容易にし、駆動電圧を低下させることができる。

【0180】

電荷注入補助材としては、例えば、一般的な正孔注入・輸送材料等が利用できる。

具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体)、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、ポリシラン系、アニリン系共重合体、導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。

10

【0181】

正孔注入性の材料としては上記のものを挙げることができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物が好ましい。

【0182】

また、2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニル(以下NP Dと略記する)、またトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4''-トリス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下MT D A T Aと略記する)等を挙げることができる。

20

また、ヘキサザトリフェニレン誘導体等も正孔注入性の材料として好適に用いることができる。

【0183】

また、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入材料として使用することができる。

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、スピニ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、スピニング法、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。

30

【0184】

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】

【0185】

次に、実施例および比較例を挙げて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容になんら制限されるものではない。

【0186】

化合物No.1の合成

3,5-ジプロモベンズアルデヒド(8g, 30mmol)、4-プロモアセトフェノン(6g, 30mmol)をエタノール(30mL)に加え、さらに3M水酸化カリウム水溶液(30mL)を加えて室温で7時間攪拌した。析出した固体をろ過し、この固体をメタノールで洗浄した。白色固体の中間体1-1(11.7g、収率87%)を得た。

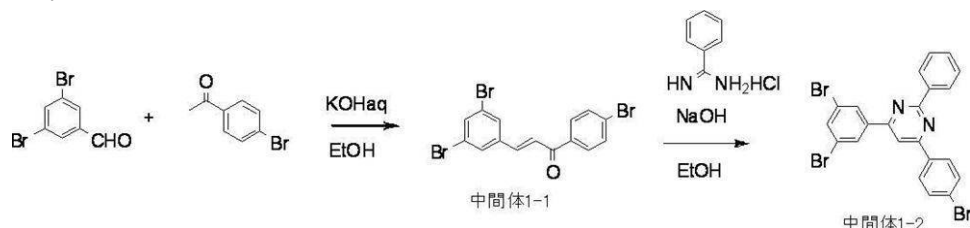
40

中間体1-1(11.7g, 26mmol)、ベンズアミジン塩酸塩(4.1g, 26mmol)をエタノール(300mL)に加え、さらに水酸化ナトリウム(2.1g, 53mmol)を加えて6時間加熱還流した。析出した固体をろ過し、この固体をヘキサンので洗浄した。白色固体の中間体1-2(4.3g、収率30%)を得た。

50

【 0 1 8 7 】

【 化 6 3 】



【 0 1 8 8 】

アルゴン雰囲気下、3つ口フラスコに中間体1-2 (4.0 g, 7.3 mmol)、カルバゾール (4.1 g, 24 mmol)、CuI (1.4 g, 7.34 mmol)、炭酸カリウム (6.1 g, 44 mmol)、無水ジオキサン (30 mL)、シクロヘキサンジアミン (0.84 g, 7.3 mmol) の順に加えて100 で8時間攪拌した。

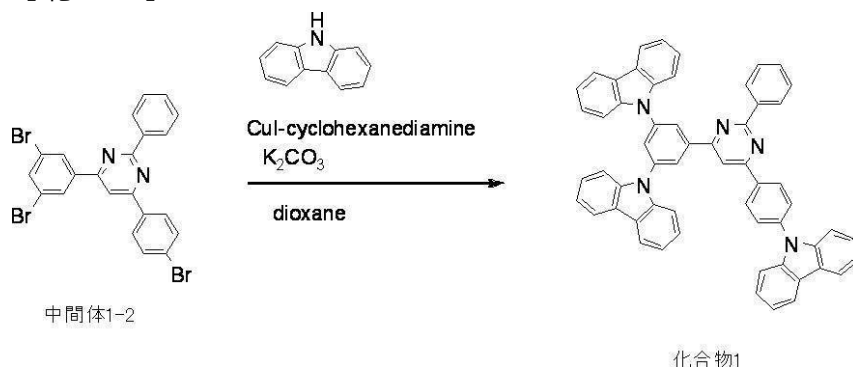
10

反応液に水を加えて固体を析出させ、この固体をヘキサン、次いでメタノールで洗浄した。さらに、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、白色固体の化合物1 (3.8 g, 収率64%)を得た。

FD-MS分析の結果、分子量804に対して $m/e = 804$ であった。

【 0 1 8 9 】

【 化 6 4 】



20

30

【 0 1 9 0 】

化合物 No. 2 の合成

中間体1-1 (10 g, 22.6 mmol)、フェナシルピリジニウムブロミド (12.7 g, 45.6 mmol)、酢酸アンモニウム (45 g)、酢酸 (200 mL)、N,N-ジメチルホルムアミド (200 mL) を加熱還流下、8時間攪拌した。

反応液を氷水中に投入し、析出した沈殿をろ過し、メタノールで洗浄した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (溶出溶媒: ヘキサン/塩化メチレン) で精製し、中間体2-2 (5.8 g, 収率47%)を得た。

アルゴン雰囲気下、3つ口フラスコに中間体2-2 (3.9 g, 7.3 mmol)、カルバゾール (4.1 g, 24 mmol)、CuI (1.4 g, 7.34 mmol)、炭酸カリウム (6.1 g, 44 mmol)、無水ジオキサン (30 mL)、シクロヘキサンジアミン (0.84 g, 7.3 mmol) の順に加えて100 で8時間攪拌した。

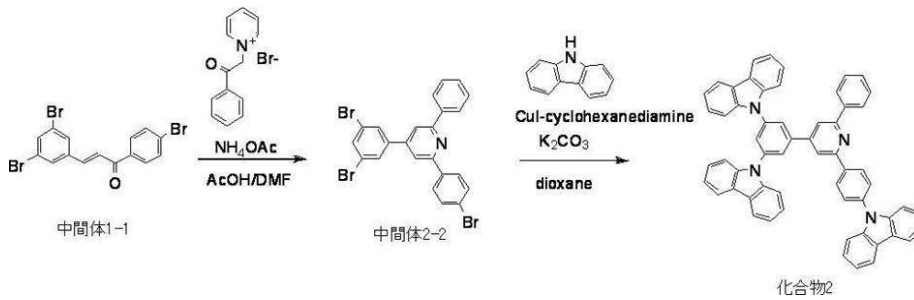
40

反応液に水を加えて固体を析出させ、この固体をヘキサン、次いでメタノールで洗浄した。さらに、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物2 (3.5 g, 収率60%)を得た。

FD-MS分析の結果、分子量802に対して $m/e = 802$ であった。

【 0 1 9 1 】

【化65】



【0192】

10

化合物 No. 3 の合成

窒素雰囲気下、トリクロロトリアジン (10 g, 54.7 mmol)、4-(N-カルバゾリル)フェニルボロン酸 (14.1 g, 49.2 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (1.1 g, 1 mmol)、トルエン (160 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (80 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体3-1 (8.7 g, 収率22.3%) を得た。

窒素雰囲気下、中間体3-1 (8 g, 20.5 mmol)、3,5-ジ(N-カルバゾリル)フェニルボロン酸 (9.3 g, 20.5 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.43 g, 0.4 mmol)、トルエン (60 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (30 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

20

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体3-2 (7.9 g, 収率50.6%) を得た。

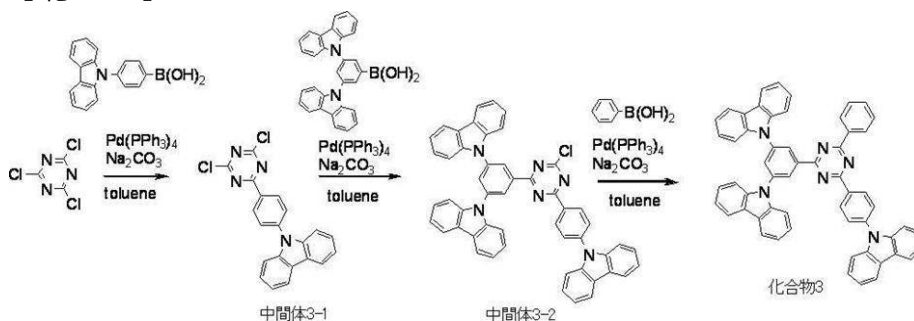
窒素雰囲気下、中間体3-2 (7 g, 9.8 mmol)、フェニルボロン酸 (1.3 g, 10.8 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.21 g, 0.2 mmol)、トルエン (30 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (15 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物3 (5.2 g, 収率66%) を得た。FD-MS分析の結果、分子量804に対して $m/e = 804$ であった。

30

【0193】

【化66】



40

【0194】

化合物 4 の合成

窒素雰囲気下、4-プロモアセトフェノン (19.8 g, 100 mmol)、N-フェニルカルバゾリル-3-ボロン酸 (28.7 g, 100 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (2.1 g, 2 mmol)、トルエン (300 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (150 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体4-1 (18.3 g, 収

50

率 50.7%) を得た。

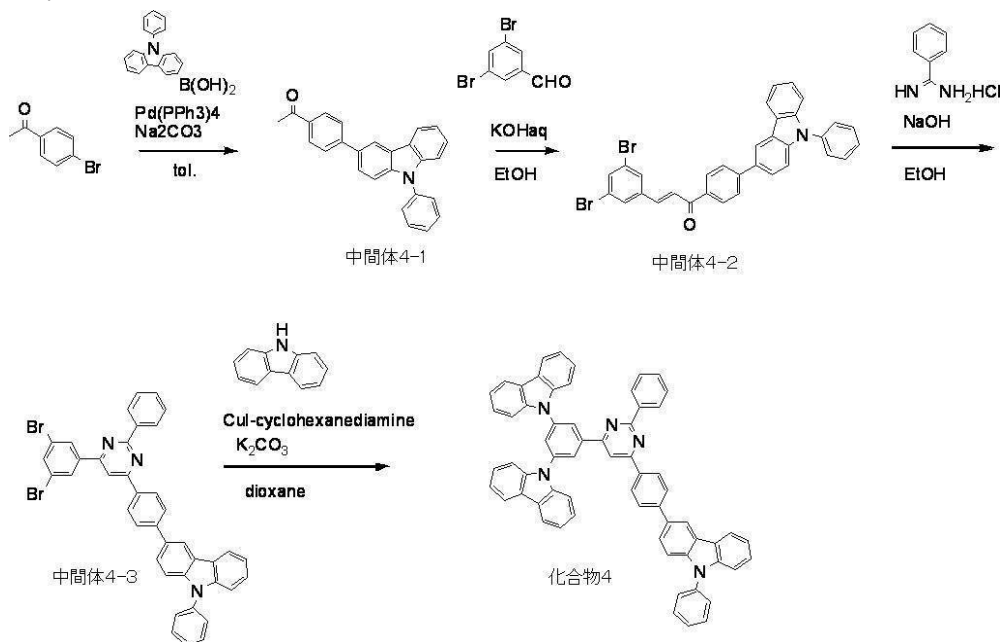
3,5-ジブロモベンズアルデヒド (13.1 g, 50 mmol)、中間体 4-1 (18.1 g, 50 mmol) をエタノール (80 mL) に加え、さらに 3 M 水酸化カリウム水溶液 (40 mL) を加えて室温で 7 時間攪拌した。析出した固体をろ過し、この固体をメタノールで洗浄した。白色固体の中間体 4-2 (20.3 g、収率 67%) を得た。中間体 4-2 (15.7 g, 26 mmol)、ベンズアミジン塩酸塩 (4.1 g, 26 mmol) をエタノール (300 mL) に加え、さらに水酸化ナトリウム (2.1 g, 53 mmol) を加えて 8 時間加熱還流した。析出した固体をろ過し、この固体をヘキサンで洗浄した。白色固体の中間体 4-3 (6.2 g、収率 34%) を得た。

アルゴン雰囲気下、三口フラスコに中間体 4-3 (5.1 g, 7.3 mmol)、カルバゾール (3.1 g, 18.3 mmol)、CuI (1.4 g, 7.34 mmol)、炭酸カリウム (6.1 g, 44 mmol)、無水ジオキサン (30 mL)、シクロヘキサジアミン (0.84 g, 7.3 mmol) の順で加えて 100 で 8 時間攪拌した。反応液に水を加えて固体を析出させ、この固体をヘキサン、次いでメタノールで洗浄した。さらに、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物 4 (2.7 g, 収率 42%) を得た。

FD-MS 分析の結果、分子量 880 に対して $m/e = 880$ であった。

【0195】

【化67】



【0196】

化合物 5 の合成

窒素雰囲気下、3-アセチルフェニルボロン酸 (16.4 g, 100 mmol)、4-プロモヨードベンゼン (28.2 g, 100 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (2.1 g, 2 mmol)、トルエン (300 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (150 mL) を順次加えて 8 時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体 5-1 (18.7 g, 収率 68%) を得た。

3,5-ジブロモベンズアルデヒド (13.1 g, 50 mmol)、中間体 5-1 (13.8 g, 50 mmol) をエタノール (80 mL) に加え、さらに 3 M 水酸化カリウム水溶液 (40 mL) を加えて室温で 7 時間攪拌した。析出した固体をろ過し、この固体をメタノールで洗浄した。中間体 5-2 (20.3 g、収率 78%) を得た。

中間体 5-2 (13.5 g, 26 mmol)、ベンズアミジン塩酸塩 (4.1 g,

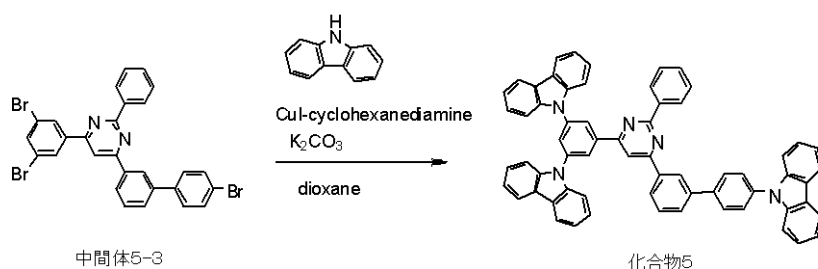
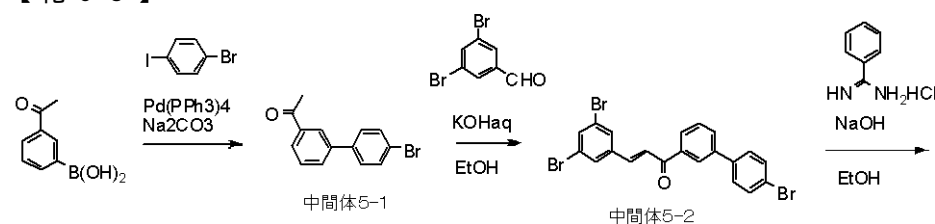
26 mmol) をエタノール (300 mL) に加え、さらに水酸化ナトリウム (2.1 g, 53 mmol) を加えて8時間加熱還流した。析出した固体をろ過し、この固体をヘキサンで洗浄した。中間体 5-3 (4.5 g、収率 28%) を得た。

アルゴン雰囲気下、3つ口フラスコに中間体 4-3 (4.5 g, 7.3 mmol)、カルバゾール (3.1 g, 18.3 mmol)、CuI (1.4 g, 7.34 mmol)、炭酸カリウム (6.1 g, 44 mmol)、無水ジオキサン (30 mL)、シクロヘキサジアミン (0.84 g, 7.3 mmol) の順で加えて100 で8時間攪拌した。反応液に水を加えて固体を析出させ、この固体をヘキサン、次いでメタノールで洗浄した。さらに、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物 5 (3.5 g, 収率 55%) を得た。

FD-MS分析の結果、分子量 878 に対して $m/e = 878$ であった

【0197】

【化68】



【0198】

化合物 6 の合成

窒素雰囲気下、トリクロロピリミジン (18.2 g, 100 mmol)、フェニルボロン酸 (12.2 g, 100 mmol)、酢酸パラジウム (0.45 g, 2 mmol)、トルエン (300 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (150 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体 6-1 (16.2 g、収率 72%) を得た。

窒素雰囲気下、中間体 6-1 (15.7 g, 70 mmol)、4-(N-カルバゾリル)フェニルボロン酸 (20.1 g, 70 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (1.62 g, 1.4 mmol)、トルエン (200 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (105 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体 6-2 (20.6 g、収率 68%) を得た。

窒素雰囲気下、中間体 6-2 (4.3 g, 10 mmol)、3,5-ジ(N-カルバゾリル)フェニルボロン酸 (4.5 g, 10 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.23 g, 0.2 mmol)、トルエン (30 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (15 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物 6 (4.8 g、収率 60%) を得た。

10

20

30

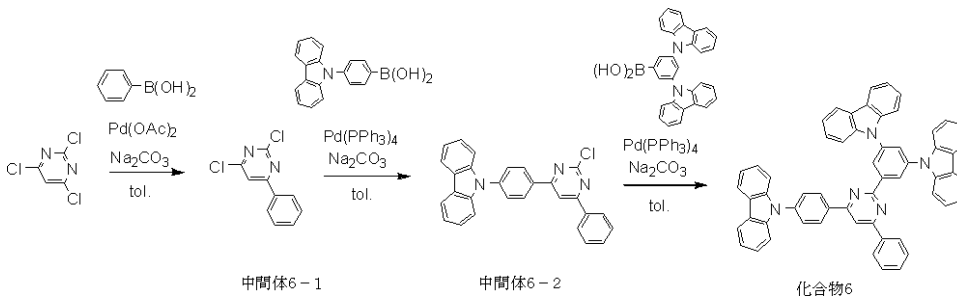
40

50

FD - MS 分析の結果、分子量 804 に対して $m/e = 804$ であった。

【0199】

【化69】



10

【0200】

化合物7の合成

窒素雰囲気下、中間体6-1 (9 g、40 mmol)、3,5-ジ(N-カルバゾリル)フェニルボロン酸 (18.1 g、40 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.92 g、0.8 mmol)、トルエン (120 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (60 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体7-1 (13.1 g、収率55%)を得た。

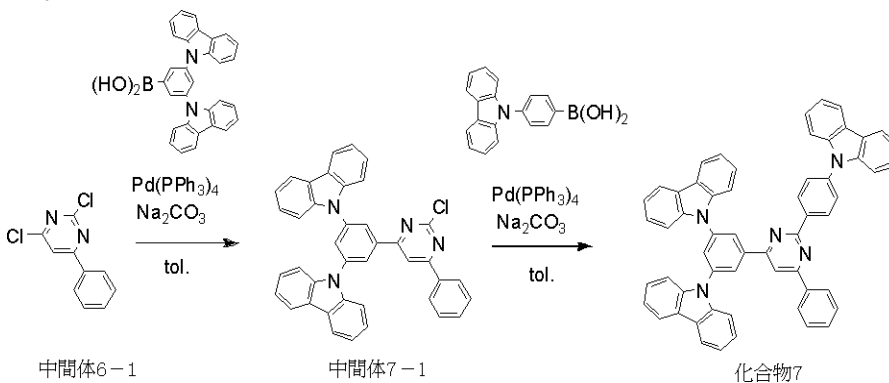
窒素雰囲気下、中間体7-1 (6.0 g、10 mmol)、4-(N-カルバゾリル)フェニルボロン酸 (2.9 g、10 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.23 g、0.2 mmol)、トルエン (30 mL)、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (15 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物7 (5.9 g、収率74%)を得た。

FD - MS 分析の結果、分子量 804 に対して $m/e = 804$ であった。

【0201】

【化70】



30

40

【0202】

実施例1 (有機EL素子1の作成)

25 mm × 75 mm × 1.1 mm のITO透明電極付きガラス基板 (ジオマティック社製) に、イソプロピルアルコール中にて5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV (Ultraviolet) オゾン洗浄を施した。

このようにして洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして、化合物Aを厚さ40 nmで蒸着し、正孔注入層を得た。次いで、この膜上に、化合物Bを厚さ20 nmで蒸着し、正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、燐光用ホストである化合物1と燐光用ドーパントであるIr (P

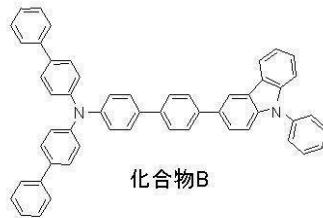
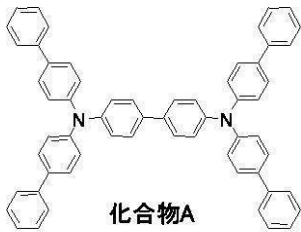
50

h - p p y)₃ とを厚さ 40 nm で共蒸着し、燐光発光層を得た。I r (P h - p p y)₃ の濃度は、20 質量 % であった。

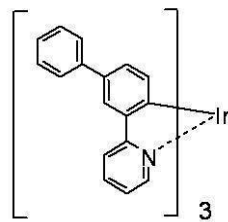
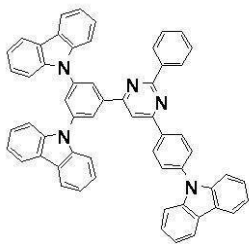
続いて、この燐光発光層上に、厚さ 30 nm の化合物 C、厚さ 1 nm の L i F、厚さ 80 nm の金属 A l を順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極である L i F については、1 / m i n の速度で形成した。

【 0 2 0 3 】

【 化 7 1 】



10



20

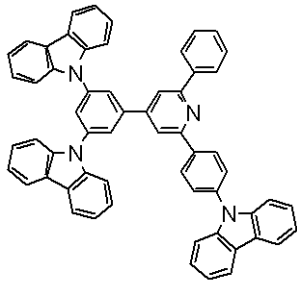
【 0 2 0 4 】

実施例 2 ~ 7 (有機 E L 素子 2 ~ 7 の作成)

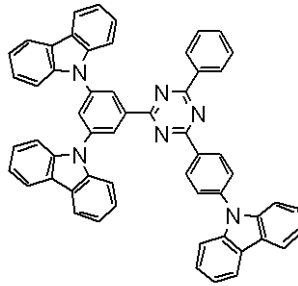
上記実施例 1 において、化合物 N o . 1 の代わりに以下に示す化合物 N o . 2 から 7 を用いて有機 E L 素子 2 ~ 7 を作成した。

【 0 2 0 5 】

【化72】

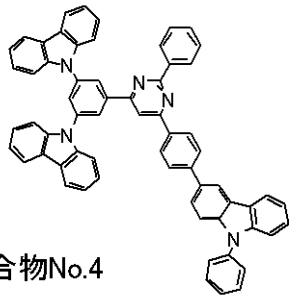


化合物No.2

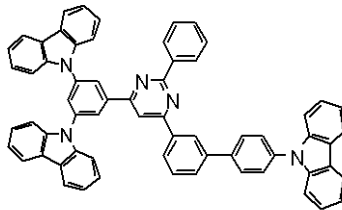


化合物No.3

10

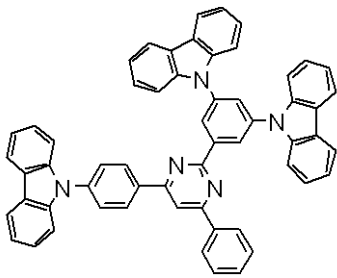


化合物No.4

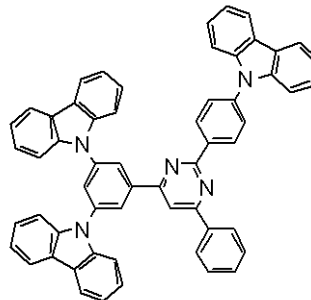


化合物No.5

20



化合物No.6



化合物No.7

【0206】

(有機EL素子の発光性能評価)

30

以上のように作製した有機EL素子1~5を直流電流駆動により発光させ、発光性能評価ならびに初期輝度20,000cd/m²における輝度半減寿命初期輝度を測定した。結果を表1に示す。

【0207】

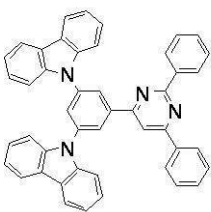
比較例1~3

実施例1においてホスト材料として、化合物1を用いる代わりに、下記に示す比較化合物1~3を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製し、発光性能評価ならびに初期輝度20,000cd/m²における輝度半減寿命初期輝度を測定した。結果を表1に示す。

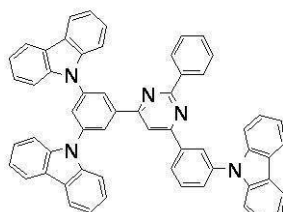
【0208】

40

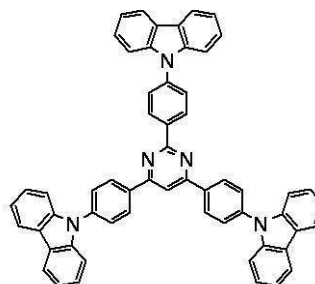
【化73】



比較化合物 1



比較化合物 2



比較化合物 3

50

【 0 2 0 9 】

【 表 1 】

	ホスト化合物	電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	輝度半減寿命
		@1mA/cm ²	@1mA/cm ²	(hrs)
実施例 1	化合物No. 1	4.2	65	820
実施例 2	化合物No. 2	4.2	63	750
実施例 3	化合物No. 3	4.1	60	700
実施例 4	化合物No. 4	4.3	61	680
実施例 5	化合物No. 5	4.2	58	710
実施例 6	化合物No. 6	4.2	57	710
実施例 7	化合物No. 7	4.2	55	730
比較例 1	比較化合物 1	4.5	54	450
比較例 2	比較化合物 2	5	50	410
比較例 3	比較化合物 3	4.6	48	350

10

【 0 2 1 0 】

表 1 から、比較例 1 ~ 3 に対し、本発明の化合物を用いた実施例 1 ~ 7 は、輝度半減寿命が大幅に長く、かつ低電圧駆動が可能であり、発光効率も高いことがわかった。

20

【 産業上の利用可能性 】

【 0 2 1 1 】

本発明は、長寿命であり、発光効率が高く、省消費電力化に必要な低電圧での駆動が可能な有機 EL 素子及びそれを実現する有機 EL 素子用材料として利用できる。

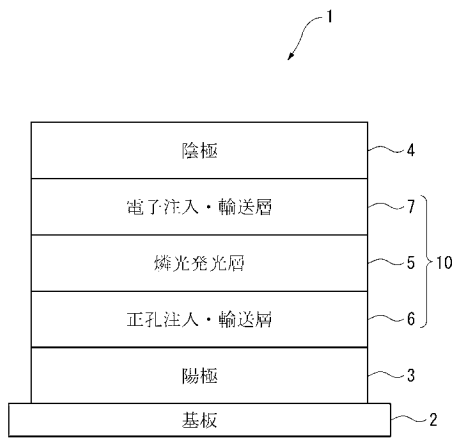
【 符号の説明 】

【 0 2 1 2 】

- 1 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 2 基板
- 3 陽極
- 4 陰極
- 5 燐光発光層
- 6 正孔注入・輸送層
- 7 電子注入・輸送層
- 10 有機薄膜層

30

【 図 1 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2011/055077
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L51/50(2006.01)i, C07D401/14(2006.01)i, C07F15/00(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, C07D401/14, C07F15/00, 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 1996-2011 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2008/127057 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.), 23 October 2008 (23.10.2008), description, pages 15 to 16 (compounds 23 to 27, 29 to 31); page 19, line 5; page 20, lines 3 to 11; page 20, lines 3 to 11; page 20, line 22 to page 21, line 4; page 28, line 13 to page 40, line 5 (compounds 21, 22; examples 3, 6); fig. 2 & JP 2010-523648 A & US 2010/0155706 A & EP 2134809 A & KR 10-2008-0092890 A & CN 101657517 A	1-5, 7-15 6
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "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 25 April, 2011 (25.04.11)		Date of mailing of the international search report 10 May, 2011 (10.05.11)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/055077

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2009/031855 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.), 12 March 2009 (12.03.2009), description, pages 10 to 20 (chemical structural formulae 9, 13, 23 to 25, 35 to 37); page 20, lines 7 to 16; page 21, lines 11 to 20; page 22, lines 18 to 23; page 27, line 2 to page 31, line 19 (compound 10; example 1-2); page 32, line 20 to page 35, line 2 (examples 1-2, 2-2); fig. 2 & US 2010/0163857 A & KR 10-2009-0024998 A & CN 101784635 A	1-5,7-15 6
X A	WO 2009/057978 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.), 07 May 2009 (07.05.2009), description, page 22 (chemical structural formulae 1-48 to 1-51); page 22, line 9 to page 24, line 12; page 25, lines 4 to 9; page 34, line 9 to page 37, line 4 (compound 51; example 1-4); page 40, line 21 to page 42, line 5 (example 2-2); page 43, line 21 to page 47, line 6 (example 2-2); fig. 2 & US 2010/0213826 A & KR 10-2009-0044752 A & CN 101809117 A	1-5,7-15 6

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2011/055077												
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, C07D401/14(2006.01)i, C07F15/00(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, C07D401/14, C07F15/00, 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2011年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2011年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2011年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2011年	日本国実用新案登録公報	1996-2011年	日本国登録実用新案公報	1994-2011年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2011年													
日本国実用新案登録公報	1996-2011年													
日本国登録実用新案公報	1994-2011年													
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAplus (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 A	WO 2008/127057 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2008.10.23, 明細書第 15-16 頁(化合物(23)-(27), (29)-(31)), 第 19 頁第 5 行, 第 20 頁第 3-11 行, 第 20 頁第 3-11 行, 第 20 頁第 22 行-第 21 頁 第 4 行, 第 28 頁第 13 行-第 40 頁第 5 行(化合物(21), (22), ex. 3, 6), FIG. 2 & JP 2010-523648 A & US 2010/0155706 A & EP 2134809 A & KR 10-2008-0092890 A & CN 101657517 A	1-5, 7-15 6												
<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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>の日の後に公表された文献</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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)</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td>「&」同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献	「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献	「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	
* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献													
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの													
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの													
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献													
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願														
国際調査を完了した日 25.04.2011	国際調査報告の発送日 10.05.2011													
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号	特許庁審査官 (権限のある職員) 小西 隆	20 4081												
	電話番号 03-3581-1101 内線 3271													

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 5 5 0 7 7
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
X A	WO 2009/031855 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2009.03.12, 明細書第 10-20 頁(化学構造式[9], [13], [23]-[25], [35]-[37]), 第 20 頁第 7-16 行, 第 21 頁第 11-20 行, 第 22 頁第 18-23 行, 第 27 頁 第 2 行-第 31 頁第 19 行(化合物(10), ex. 1-2), 第 32 頁第 20 行- 第 35 頁第 2 行(ex. 1-2, 2-2), FIG. 2 & US 2010/0163857 A & KR 10-2009-0024998 A & CN 101784635 A	1-5, 7-15 6
X A	WO 2009/057978 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2009.05.07, 明細書第 22 頁(化学構造式[1-48]-[1-51]), 第 22 頁第 9 行-第 24 頁 第 12 行, 第 25 頁第 4-9 行, 第 34 頁第 9 行-第 37 頁第 4 行(化合物(51), ex. 1-4), 第 40 頁第 21 行-第 42 頁第 5 行(ex. 2-2), 第 43 頁第 21 行- 第 47 頁第 6 行(ex. 2-2), FIG. 2 & US 2010/0213826 A & KR 10-2009-0044752 A & CN 101809117 A	1-5, 7-15 6

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 209/86
 C 0 7 D 235/18

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, T M), 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, R S, 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, I D, 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, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC01 CC11 CC21 DD53 DD59 DD64 DD67 DD68
 DD69 DD74 DD76 DD78
 4C063 AA05 BB06 CC12 CC29 CC43 DD08 EE10
 4C204 BB05 CB25 EB01 FB08 GB13

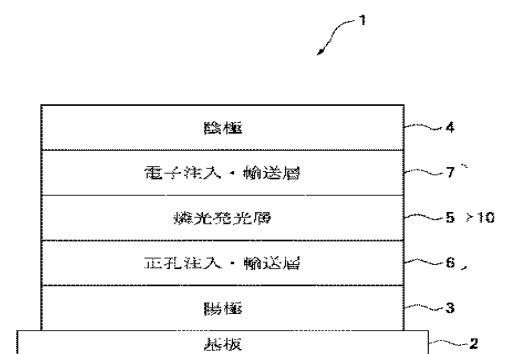
(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

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	JPWO2011108707A1	公开(公告)日	2013-06-27
申请号	JP2012503289	申请日	2011-03-04
[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	井上 哲也 日比野 茎子 吉田 圭 西村 和樹 岩隈 俊裕		
发明人	井上 哲也 日比野 茎子 吉田 圭 西村 和樹 岩隈 俊裕		
IPC分类号	H01L51/50 C07D401/14 C07D403/14 C07D209/86 C07D235/18		
CPC分类号	C07D401/14 C07D403/14 C07F7/0812 C07F7/0814 C09K11/06 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1059 H01L51/0067 H01L51/0072 H01L51/5012 H01L51/5048 H05B33/14 Y10S428/917		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.A C07D401/14 C07D403/14 C07D209/86 C07D235/18		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC01 3K107/CC11 3K107/CC21 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD74 3K107/DD76 3K107/DD78 4C063/AA05 4C063/BB06 4C063/CC12 4C063/CC29 4C063/CC43 4C063/DD08 4C063/EE10 4C204/BB05 4C204/CB25 4C204/EB01 4C204/FB08 4C204/GB13		
优先权	2010049839 2010-03-05 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

一种有机电致发光器件，其包括至少具有包含3, 5-双咪唑基苯基的单元和包含4-咪唑基苯基的单元的化合物以及包含连接它们的含氮芳族杂环的单元的化合物。 材料。

【圖1】



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