

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6152053号  
(P6152053)

(45) 発行日 平成29年6月21日(2017.6.21)

(24) 登録日 平成29年6月2日(2017.6.2)

(51) Int.Cl.

F 1

<b>H01L 51/50</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B 33/22	B
<b>C09K 11/06</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B 33/14	B
<b>C07D 405/10</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	690
<b>C07D 405/14</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	660
<b>C07D 409/10</b>	<b>(2006.01)</b>	C07D 405/10	CSP

請求項の数 9 (全 122 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2013-520912 (P2013-520912)  
 (86) (22) 出願日 平成24年11月21日(2012.11.21)  
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2012/080156  
 (87) 国際公開番号 W02013/077352  
 (87) 国際公開日 平成25年5月30日(2013.5.30)  
 審査請求日 平成27年5月26日(2015.5.26)  
 (31) 優先権主張番号 特願2011-255472 (P2011-255472)  
 (32) 優先日 平成23年11月22日(2011.11.22)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)  
 (31) 優先権主張番号 特願2012-193349 (P2012-193349)  
 (32) 優先日 平成24年9月3日(2012.9.3)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

前置審査

(73) 特許権者 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  
 (74) 代理人 110000637  
 特許業務法人樹之下知的財産事務所  
 (72) 発明者 水谷 清香  
 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地  
 (72) 発明者 佐土 貴康  
 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地  
 審査官 小西 隆

最終頁に続く

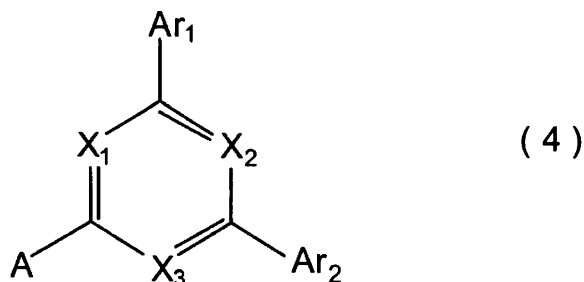
(54) 【発明の名称】 芳香族複素環誘導体、および有機エレクトロルミネッセンス素子用材料

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(4)で表される芳香族複素環誘導体。

【化5】



(前記一般式(4)において、 $X_1$  から  $X_3$  までは、窒素原子または  $CR_1$  である。  
 ただし、 $X_1$  から  $X_3$  までのうち、少なくともいずれか1つは、窒素原子である。

$R_1$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーールシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアラルキル基、または  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーールオキシ基である。

前記一般式 (4) において、A は、下記一般式 (5) で表される。) 10

【化 6】



(前記一般式 (5) において、HAr は下記一般式 (6) で表される。

前記一般式 (5) において、a は、1 または 2 である。

a が 1 のとき、L<sub>1</sub> は、置換もしくは無置換のフェニレン基である。

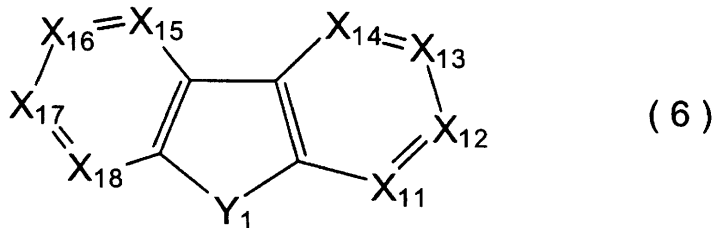
a が 2 のとき、L<sub>1</sub> は、三価の連結基であり、HAr は、同一または異なる。

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーール基、または 20

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基のいずれかから誘導される三価の残基である。)

【化 7】



(前記一般式 (6) において、Y<sub>1</sub> は、酸素原子、または硫黄原子である。

前記一般式 (6) において、X<sub>11</sub>、X<sub>12</sub>、X<sub>14</sub>、X<sub>15</sub>、X<sub>17</sub>、および X<sub>18</sub> は、窒素原子または CR<sub>13</sub> である。

前記一般式 (6) において、X<sub>13</sub> および X<sub>16</sub> のうち的一方は、L<sub>1</sub> に対して単結合で結合する炭素原子であり、他方は、窒素原子または CR<sub>13</sub> である。

R<sub>13</sub> は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーール基、 40

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーールオキシ基

である。複数の R<sub>13</sub> は互いに同一または異なる。また、隣り合う R<sub>13</sub> は互いに結合し 50

て環を形成していてもよい。

前記一般式(4)において、

前記一般式(5)におけるaが1のとき、 $A r_1$  および  $A r_2$  は、それぞれ独立に、前記一般式(5)で表され、

前記一般式(5)におけるaが2のとき、 $A r_1$  および  $A r_2$  は、それぞれ独立に、前記一般式(5)で表されるか、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基である。) )

【請求項2】

請求項1に記載の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(6)における $Y_1$ が、酸素原子であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

10

【請求項3】

請求項1または請求項2に記載の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(6)における $Y_1$ が、酸素原子であり、

前記一般式(6)における $X_{11}$ 、 $X_{12}$ 、 $X_{14}$ 、 $X_{15}$ 、 $X_{17}$ 、および $X_{18}$ が、 $C R_{13}$ であり、

前記一般式(6)における $X_{13}$ および $X_{16}$ のうち的一方が、 $L_1$ に対して単結合で結合する炭素原子であり、他方は、 $C R_{13}$ である

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

20

【請求項4】

請求項1から請求項3までのいずれか一項に記載の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(4)における $X_1$ から $X_3$ までのうち、いずれか2つもしくは3つが窒素原子である

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【請求項5】

請求項1から請求項4までのいずれか一項に記載の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(5)におけるaが2であり、

前記一般式(5)における $L_1$ が、ベンゼン、ピフェニル、ターフェニル、ナフタレン、及びフェナントレンのいずれかから誘導される三価の残基である

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

30

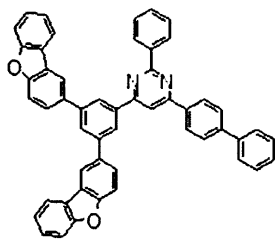
【請求項6】

請求項1、請求項4、および請求項5のいずれか一項に記載の芳香族複素環誘導体であって、

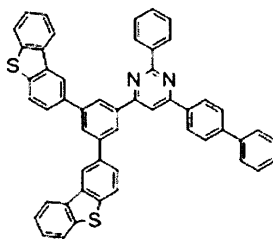
前記芳香族複素環誘導体が、下記一般式(4A)、下記一般式(4B)、および下記一般式(4C)のいずれかで表される

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

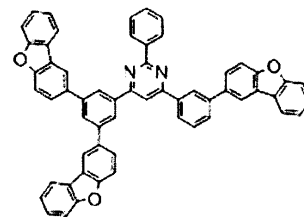
【化8】



(4A)



(4B)



(4C)

40

【請求項7】

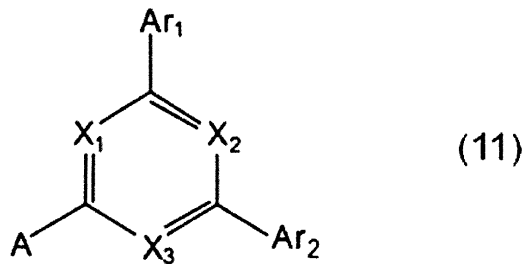
請求項1から請求項6までのいずれか一項に記載の芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

50

## 【請求項 8】

下記一般式(11)で表される芳香族複素環誘導体。

## 【化 9】



10

(前記一般式(11)において、 $X_1$  から  $X_3$  までは、窒素原子または  $CR_1$  である。

ただし、 $X_1$  から  $X_3$  までのうち、少なくともいずれか 1 つは、窒素原子である。

$R_1$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基である。

前記一般式(11)において、A は、下記一般式(12)で表される。)

## 【化 10】



20

30

(前記一般式(12)において、HAr は、下記一般式(13)で表される。

前記一般式(12)において、a は、1 以上 5 以下の整数である。

a が 1 のとき、 $L_1$  は、単結合または二価の連結基である。

a が 2 以上 5 以下のとき、 $L_1$  は、三価以上六価以下の連結基であり、HAr は、同一または異なる。

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、

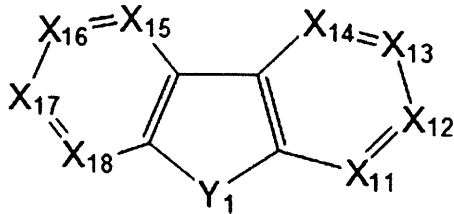
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、または、

これらの基が互いに 2 つ、もしくは 3 つ結合した基のいずれかから誘導される二価以上六価以下の残基である。

なお、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。)

40

【化 1 1】



(13)

(前記一般式(13)において、 $X_{11}$ および $X_{18}$ のうちの一方は、 $L_1$ に対して単結合で結合する炭素原子であり、他方は、窒素原子または $CR_{13}$ である。

10

前記一般式(13)において、 $X_{12}$ から $X_{17}$ までは、それぞれ独立に、窒素原子、または $CR_{13}$ である。

前記一般式(13)において、 $Y_1$ は、酸素原子、硫黄原子、または $SiR_{11}R_{12}$ である。

$R_{11}$ および $R_{12}$ は、前記一般式(11)における $R_1$ と同義である。 $R_{11}$ および $R_{12}$ は、同一または異なる。

$R_{13}$ は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

20

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2~30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2~30のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数3~30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールオキシ基

30

である。複数の $R_{13}$ は互いに同一または異なる。また、隣り合う $R_{13}$ は互いに結合して環を形成していてもよい。

前記一般式(11)において、 $Ar_1$ および $Ar_2$ は、それぞれ独立に、

前記一般式(12)で表されるか、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または、

置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基である。

ただし、 $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくともいずれかは、置換基を有する環形成炭素数6~30のアリール基であり、当該置換基は、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、ベンズアントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、ナフタセニル基、ピレニル基、1-クリセニル基、2-クリセニル基、3-クリセニル基、4-クリセニル基、5-クリセニル基、6-クリセニル基、ベンゾ[c]フェナントリル基、ベンゾ[g]クリセニル基、1-トリフェニレニル基、2-トリフェニレニル基、3-トリフェニレニル基、4-トリフェニレニル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基、3-フルオレニル基、4-フルオレニル基、9-フルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、2-ピフェニルイル基、3-ピフェニルイル基、4-ピフェニルイル基、o-ターフェニル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-クウォーターフェニル基、3-フルオランテニル基、4-フルオランテニル基、8-フル

40

50

オランテニル基、9-フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、2,3-キシリル基、3,4-キシリル基、2,5-キシリル基、メシチル基、o-クメニル基、m-クメニル基、p-クメニル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、4'-メチルビフェニル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、9,9-ジメチル-1-フルオレニル基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、9,9-ジメチル-3-フルオレニル基、9,9-ジメチル-4-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-1-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-2-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-3-フルオレニル基、および9,9-ジフェニル-4-フルオレニル基から選択される。)

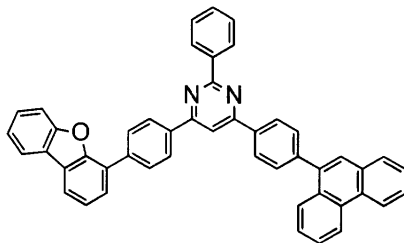
【請求項9】

請求項8に記載の芳香族複素環誘導体であって、

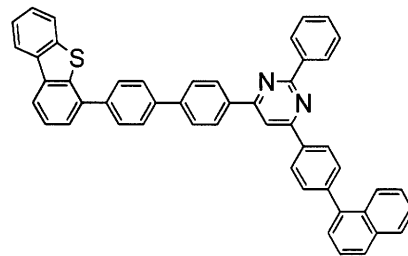
前記芳香族複素環誘導体が下記一般式(11A)または下記一般式(11B)で表される

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【化12】



(11A)



(11B)

【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に用いることができる芳香族複素環誘導体、および当該芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関する。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子という場合がある。)をその発光原理に従って分類すると、蛍光型とリン光型の二種類に分けることができる。有機EL素子に電圧を印加すると、陽極から正孔が、また陰極から電子が注入され、発光層においてこれらが再結合し励起子を形成する。電子スピンの統計則により、一重項励起子と三重項励起子が25%:75%の割合で生成する。蛍光型では、一重項励起子による発光を用いるため、内部量子効率25%が限界といわれていた。蛍光材料を用いた蛍光型素子は、最近、長寿命化技術が進展し、携帯電話やテレビ等のフルカラーディスプレイへ応用されつつあるものの、燐光型素子と比較して高効率化が課題であった。

【0003】

これに対して、蛍光型素子の高効率化技術に関連し、2つの三重項励起子の衝突融合により1重項励起子が生成する現象、すなわちTTF(Triplet-Triplet Fusion)現象により、三重項励起子に由来する発光を取り出す技術が開示されている。TTF現象を効果的に誘引する障壁層には、三重項エネルギーを大きくするためにワイドギャップであると共に、電子を輸送するための層として電子耐性の高い化合物が求められている。このような観点から、炭化水素環で構成される化合物が好ましいと考えられていた。

【0004】

特許文献1には、蛍光発光層に隣接する電子輸送層に、ピレン骨格又はアントラセン骨

10

20

30

40

50

格を有し、さらにカルbazリル基、ジベンゾフラニル基又はジベンゾチオフェニル基から選ばれる置換基を有する化合物を用いた有機EL素子が開示されている。

また、特許文献2には、TTF現象を効果的に誘引するため、フルオランテン誘導体を障壁層に用いた有機EL素子が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】国際公開第2010/001817号

【特許文献2】国際公開第2010/134350号

【発明の概要】

10

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、高効率で発光し、かつ、より低い駆動電圧で駆動する有機EL素子に用いることができる芳香族複素環誘導体、および当該芳香族複素環誘導体を含む有機EL素子用材料を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

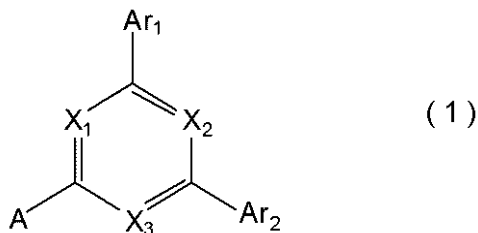
[1] 陽極、発光層、電子輸送帯域、および陰極をこの順に備え、

前記電子輸送帯域が、下記一般式(1)で表される芳香族複素環誘導体を含んでいる有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【0008】

【化1】



【0009】

30

(前記一般式(1)において、 $X_1$  から  $X_3$  までは、窒素原子またはCR<sub>1</sub>である。

ただし、 $X_1$  から  $X_3$  までのうち、少なくともいずれか1つは、窒素原子である。

$R_1$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2~30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2~30のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数3~30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアラルキル基、または

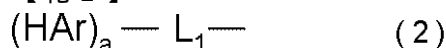
置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールオキシ基である。

40

前記一般式(1)において、Aは、下記一般式(2)で表される。)

【0010】

【化2】



50

## 【 0 0 1 1 】

(前記一般式(2)において、H A r は、下記一般式(3)で表される。

前記一般式(2)において、a は、1以上5以下の整数である。

a が1のとき、L<sub>1</sub> は、単結合または二価の連結基である。

a が2以上5以下のとき、L<sub>1</sub> は、三価以上六価以下の連結基であり、H A r は、同一または異なる。

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

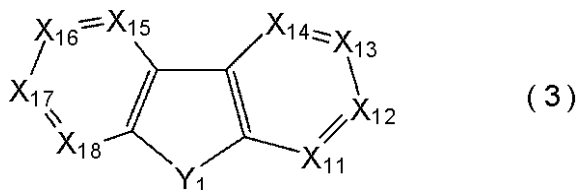
置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、または、

これらの基が互いに2つ、もしくは3つ結合した基のいずれかから誘導される二価以上六価以下の残基である。

なお、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。) 10

## 【 0 0 1 2 】

## 【化3】



## 【 0 0 1 3 】

(前記一般式(3)において、X<sub>11</sub>からX<sub>18</sub>までは、それぞれ独立に、窒素原子、C R<sub>13</sub>、またはL<sub>1</sub>に対して単結合で結合する炭素原子である。

前記一般式(3)において、Y<sub>1</sub>は、酸素原子、硫黄原子、S i R<sub>11</sub> R<sub>12</sub>、またはR<sub>11</sub>及びL<sub>1</sub>に対してそれぞれ単結合で結合するケイ素原子である。

ただし、L<sub>1</sub>に対して結合するのは、X<sub>11</sub>からX<sub>18</sub>まで、およびR<sub>11</sub>からR<sub>12</sub>までにおける炭素原子、並びにY<sub>1</sub>におけるケイ素原子のいずれか一つである。

R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>は、前記一般式(1)におけるR<sub>1</sub>と同義である。R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>は、同一または異なる。

R<sub>13</sub>は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数3～30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基

である。複数のR<sub>13</sub>は互いに同一または異なる。また、隣り合うR<sub>13</sub>は互いに結合して環を形成していてもよい。

前記一般式(1)において、A r<sub>1</sub>およびA r<sub>2</sub>は、それぞれ独立に、

前記一般式(2)で表されるか、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基である。) 40

## 【 0 0 1 4 】

[ 2 ] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、 50

前記一般式(3)における $X_{13}$ または $X_{16}$ が $L_1$ に対して単結合で結合する炭素原子である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0015】

[3] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(3)における $X_{11}$ または $X_{18}$ が、 $L_1$ に対して単結合で結合する炭素原子である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0016】

[4] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(2)における $a$ が1以上3以下の整数であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

[5] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(2)における $a$ が1または2であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0017】

[6] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(2)における $a$ が1であり、前記一般式(2)における $L_1$ が、連結基であって、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基の二価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基の二価の残基であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【0018】

[7] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(2)における $a$ が2であり、前記一般式(2)における $L_1$ が、連結基であって、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基の三価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基の三価の残基であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0019】

[8] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(3)における $Y_1$ が、酸素原子又は硫黄原子であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【0020】

[9] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(3)における $Y_1$ が、酸素原子又は硫黄原子であり、 $X_{11}$ から $X_{18}$ までのうち一つが、 $L_1$ に対して単結合で結合する炭素原子であり、それ以外は、 $CR_{13}$ であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0021】

[10] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(1)における $X_1$ から $X_3$ までのうち、いずれか2つもしくは3つが窒素原子であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【0022】

[11] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(2)における $L_1$ が、ベンゼン、ピフェニル、ターフェニル、ナフタレン、及びフェナントレンのいずれかから誘導される二価または三価の残基であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0023】

50

【 1 2 】 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、  
前記電子輸送帯域は、障壁層を含み、前記障壁層が、前記一般式(1)で表される芳香族複素環誘導体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 2 4 】

【 1 3 】 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、  
前記障壁層と前記陰極との間に、電子注入層および電子輸送層のうち少なくともいずれか一方を備え、

前記電子注入層および前記電子輸送層のうち少なくともいずれか一方が、電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかを含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【 0 0 2 5 】

【 1 4 】 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、  
前記電子供与性ドーパント材料は、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、および希土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される1種又は2種以上であり、

前記有機金属錯体は、アルカリ金属を含む有機金属錯体、アルカリ土類金属を含む有機金属錯体、および希土類金属を含む有機金属錯体からなる群から選択される1種又は2種以上である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【 0 0 2 6 】

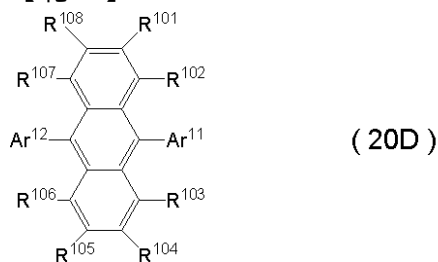
【 1 5 】 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層が、前記芳香族複素環誘導体を含有する前記電子輸送帯域と接していることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 2 7 】

【 1 6 】 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層が、下記式(20D)で表されるアントラセン誘導体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 2 8 】

【化4】



30

【 0 0 2 9 】

(前記一般式(20D)において、Ar<sup>11</sup>およびAr<sup>12</sup>は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の単環基、

置換もしくは無置換の環形成原子数10~30の縮合環基、または

前記単環基と前記縮合環基との組合せから構成される基

である。

前記一般式(20D)において、R<sup>101</sup>からR<sup>108</sup>までは、それぞれ独立に、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基

置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の単環基、

置換もしくは無置換の環形成原子数10~30の縮合環基、

前記単環基と前記縮合環基との組合せから構成される基、

40

50

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 30 のシクロアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 8 ~ 30 のアリールシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 30 のアラルキル基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基、または  
 置換もしくは無置換のシリル基

である。)

【0030】

10

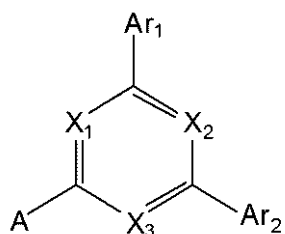
[17] 前述した本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、  
 前記発光層が、主ピーク波長が 500 nm 以下の蛍光発光性ドーパント材料を含有する  
 ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0031】

[18] 下記一般式(4)で表される芳香族複素環誘導体。

【0032】

【化5】



(4)

20

【0033】

(前記一般式(4)において、 $X_1$  から  $X_3$  までは、窒素原子または  $CR_1$  である。  
 ただし、 $X_1$  から  $X_3$  までのうち、少なくともいずれか 1 つは、窒素原子である。  
 $R_1$  は、それぞれ独立して、

水素原子、  
 ハロゲン原子、  
 シアノ基、

30

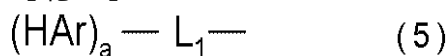
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、  
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアラルキル基、または  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基である。

40

前記一般式(4)において、A は、下記一般式(5)で表される。)

【0034】

【化6】



【0035】

(前記一般式(5)において、HAr は下記一般式(6)で表される。

前記一般式(5)において、a は、1 以上 5 以下の整数である。

a が 1 のとき、 $L_1$  は、二価の連結基である。

50

a が 2 以上 5 以下のとき、 $L_1$  は、三価以上六価以下の連結基であり、 $HAr$  は、同一または異なる。

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、

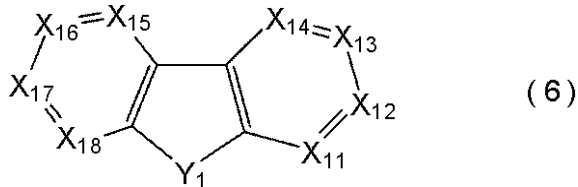
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、または、

これらの基が互いに 2 つ、もしくは 3 つ結合した基のいずれかから誘導される二価以上六価以下の残基である。

なお、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。)

【0036】

【化7】



10

【0037】

(前記一般式(6)において、 $Y_1$  は、酸素原子、または硫黄原子である。

前記一般式(6)において、 $X_{11}$  および  $X_{18}$  は、窒素原子または  $CR_{13}$  である。

前記一般式(6)において、 $X_{12}$  から  $X_{17}$  までのうち一つは、 $L_1$  に対して単結合で結合する炭素原子であり、それ以外は、窒素原子または  $CR_{13}$  である。

20

$R_{13}$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基

30

である。複数の  $R_{13}$  は互いに同一または異なる。また、隣り合う  $R_{13}$  は互いに結合して環を形成していてもよい。

前記一般式(4)において、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は、それぞれ独立に、

前記一般式(5)で表されるか、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、または、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基である。)

40

【0038】

[19] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(6)における  $X_{13}$  または  $X_{16}$  が、 $L_1$  に対して単結合で結合する炭素原子である

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0039】

[20] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(5)における a が 1 以上 3 以下の整数である

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

[21] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

50

前記一般式(5)におけるaが1または2であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0040】

[22] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(5)におけるaが1であり、前記一般式(5)における $L_1$ が、連結基であって、

連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基の二価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基の二価の残基であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0041】

[23] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(5)におけるaが2であり、前記一般式(5)における $L_1$ が、連結基であって、

連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基の三価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の複素環基の三価の残基であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0042】

[24] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(6)における $Y_1$ が、酸素原子であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0043】

[25] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(6)における $Y_1$ が、酸素原子であり、

前記一般式(6)における $X_{11}$ および $X_{18}$ が、 $CR_{13}$ であり、

前記一般式(6)における $X_{12}$ から $X_{17}$ までのうち一つが、 $L_1$ に対して単結合で結合する炭素原子であり、それ以外は、 $CR_{13}$ である。

ことを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0044】

[26] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(4)における $X_1$ から $X_3$ までのうち、いずれか2つもしくは3つが窒素原子であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0045】

[27] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体において、

前記一般式(5)における $L_1$ が、ベンゼン、ピフェニル、ターフェニル、ナフタレン、及びフェナントレンのいずれかから誘導される二価または三価の残基であることを特徴とする芳香族複素環誘導体。

【0046】

[28] 前述した本発明の芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【0047】

本発明によれば、高効率で発光し、かつ、より低い駆動電圧で駆動する有機EL素子、当該有機EL素子に用いることができる芳香族複素環誘導体、および当該芳香族複素環誘導体を含む有機EL素子用材料を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0048】

【図1】本発明の第一実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す図である。

【図2】本発明の各層のエネルギーギャップの関係を示す図である。

【図3】本発明の各層のエネルギーギャップの関係に基づく作用を示す図である。

【図4】ホスト材料のアフィニティ(Ah) > ドーパント材料のアフィニティ(Ad)を満たす場合のエネルギーバンド図である。

10

20

30

40

50

【図5】  $A_h < A_d$  であって、その差が  $0.2 \text{ eV}$  より小さな場合のエネルギーバンド図である。

【図6】  $A_h < A_d$  であって、その差が  $0.2 \text{ eV}$  より大きな場合のエネルギーバンド図である。

【図7】  $A_h < A_d$  を満たすドーパント材料と  $A_h > A_d$  を満たすドーパント材料とが共存する場合のエネルギーバンド図である。

【図8】 本発明の第二実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す図である。

【図9】 本発明の第三実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す図である。

【図10】 本発明の第四実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す図である。

【図11】 本発明の第五実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す図である。

【図12】 本発明の第六実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す図である。

【図13】 過渡EL波形の測定系を示す図である。

【図14A】 TTF由来の発光強度比の測定方法を示す図であり、EL素子の発光強度の時間変化を示すグラフである。

【図14B】 TTF由来の発光強度比の測定方法を示す図であり、光強度の平方根の逆数の時間変化を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

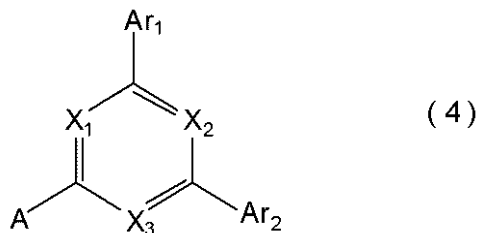
【0049】

〔芳香族複素環誘導体〕

本発明の芳香族複素環誘導体は、下記一般式(4)で表される。

【0050】

【化8】



【0051】

(前記一般式(4)において、 $X_1$  から  $X_3$  までは、窒素原子または  $CR_1$  である。

ただし、 $X_1$  から  $X_3$  までのうち、少なくともいずれか1つは、窒素原子である。

$R_1$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数3～30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基である。

前記一般式(4)において、Aは、下記一般式(5)で表される。)

【0052】

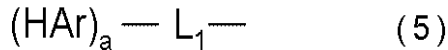
10

20

30

40

【化 9】



【0053】

(前記一般式(5)において、HArは下記一般式(6)で表される。

前記一般式(5)において、aは、1以上5以下の整数である。

aが1のとき、L<sub>1</sub>は、二価の連結基である。

aが2以上5以下のとき、L<sub>1</sub>は、三価以上六価以下の連結基であり、HArは、同一または異なる。

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

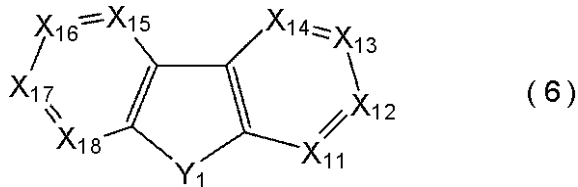
置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、または、

これらの基が互いに2つ、もしくは3つ結合した基のいずれかから誘導される二価以上六価以下の残基である。

なお、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。) 10

【0054】

【化10】



【0055】

(前記一般式(6)において、Y<sub>1</sub>は、酸素原子、または硫黄原子である。

前記一般式(6)において、X<sub>11</sub>およびX<sub>18</sub>は、窒素原子またはCR<sub>13</sub>である。

前記一般式(6)において、X<sub>12</sub>からX<sub>17</sub>までのうち一つは、L<sub>1</sub>に対して単結合で結合する炭素原子であり、それ以外は、窒素原子またはCR<sub>13</sub>である。

R<sub>13</sub>は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数3～30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基

である。複数のR<sub>13</sub>は互いに同一または異なる。また、隣り合うR<sub>13</sub>は互いに結合して環を形成していてもよい。 40

前記一般式(4)において、Ar<sub>1</sub>およびAr<sub>2</sub>は、それぞれ独立に、

前記一般式(5)で表されるか、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基である。) 50

【0056】

前記一般式(6)において、X<sub>13</sub>またはX<sub>16</sub>が、L<sub>1</sub>に対して単結合で結合する炭素原子であることが好ましい。

## 【 0 0 5 7 】

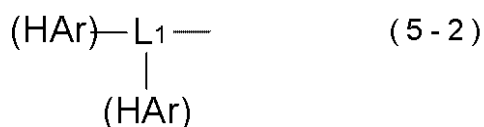
前記一般式(5)において、aは、1以上5以下の整数であり、1以上3以下であることがより好ましく、1または2であることが特に好ましい。

aが1のとき、L<sub>1</sub>は、二価の連結基であり、前記一般式(5)は、下記一般式(5-1)で表される。

aが2以上5以下のとき、L<sub>1</sub>は、三価以上六価以下の連結基である。aが2のとき、L<sub>1</sub>は、三価の連結基であり、前記一般式(5)は、下記一般式(5-2)で表される。このとき、HArは、同一または異なる。

## 【 0 0 5 8 】

## 【 化 1 1 】



## 【 0 0 5 9 】

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、または、

これらの基が互いに2つ、もしくは3つ結合した基のいずれかから誘導される二価もしくは三価の残基である。

## 【 0 0 6 0 】

前記一般式(5)、(5-1)、(5-2)のL<sub>1</sub>において、これらの基が互いに2つ、もしくは3つ結合した基とは、前記環形成炭素数6～30のアリール基および環形成原子数5～30の複素環基から誘導される二価もしくは三価の残基が互いに単結合で、2つもしくは3つ結合した基である。この連結基において、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。

## 【 0 0 6 1 】

前記一般式(5)、(5-1)、(5-2)において、L<sub>1</sub>とは、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基であることが好ましい。

さらに、前記一般式(5)、(5-1)、(5-2)において、L<sub>1</sub>としては、ベンゼン、ピフェニル、ターフェニル、ナフタレンおよびフェナントレンのいずれかから誘導される二価または三価の残基であることが好ましい。

## 【 0 0 6 2 】

前記一般式(5)において、aは1であり、かつ、L<sub>1</sub>が、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基の二価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基の二価の残基であることがより好ましい。

また、前記一般式(5)において、aは2であり、かつ、L<sub>1</sub>が、連結基であって、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基の三価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基の三価の残基であることがより好ましい。

## 【 0 0 6 3 】

前記一般式(6)において、X<sub>13</sub>またはX<sub>16</sub>が、L<sub>1</sub>に対して単結合で結合する炭素原子であることが好ましい。

前記一般式(6)において、Y<sub>1</sub>は、酸素原子であることが好ましい。

さらに、前記一般式(6)において、Y<sub>1</sub>は、酸素原子であり、X<sub>11</sub>およびX<sub>18</sub>が、CR<sub>13</sub>であり、X<sub>12</sub>からX<sub>17</sub>までのうち一つが、L<sub>1</sub>に対して単結合で結合する

10

20

30

40

50

炭素原子であり、それ以外は、 $CR_{13}$ であることがより好ましい。

【0064】

前記一般式(4)における $X_1$ から $X_3$ までのうち、いずれか2つもしくは3つが窒素原子であることが好ましい。

【0065】

以下、前記一般式(4)~(6)および(5-1)~(5-2)における $Ar_1$ ,  $Ar_2$ ,  $L_1$ ,  $R_1$ ,  $R_{11}$ ~ $R_{13}$ , について説明する。

【0066】

前記一般式(4)~(6)および(5-1)~(5-2)における環形成炭素数6~30のアリール基としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、ベンズアントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、ナフタセニル基、ピレニル基、1-クリセニル基、2-クリセニル基、3-クリセニル基、4-クリセニル基、5-クリセニル基、6-クリセニル基、ベンゾ[c]フェナントリル基、ベンゾ[g]クリセニル基、1-トリフェニレニル基、2-トリフェニレニル基、3-トリフェニレニル基、4-トリフェニレニル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基、3-フルオレニル基、4-フルオレニル基、9-フルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、o-ターフェニル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-クウォーターフェニル基、3-フルオランテニル基、4-フルオランテニル基、8-フルオランテニル基、9-フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、2,3-キシリル基、3,4-キシリル基、2,5-キシリル基、メシチル基、o-クメニル基、m-クメニル基、p-クメニル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、9,9-ジメチル-1-フルオレニル基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、9,9-ジメチル-3-フルオレニル基、9,9-ジメチル-4-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-1-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-2-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-3-フルオレニル基、9,9-ジフェニル-4-フルオレニル基が挙げられる。

前記一般式(4)~(6)および(5-1)~(5-2)におけるアリール基としては、環形成炭素数が6~20であることが好ましく、より好ましくは6~12であることが好ましい。上記アリール基の中でもフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ターフェニル基、フルオレニル基、トリフェニレニル基が特に好ましい。1-フルオレニル基、2-フルオレニル基、3-フルオレニル基および4-フルオレニル基については、9位の炭素原子に、前記一般式(4)における置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルキル基が置換されていることが好ましい。

【0067】

前記一般式(4)~(6)および(5-1)~(5-2)における環形成原子数5~30の複素環基としては、例えば、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、イミダゾリル基、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、ジベンゾチオフェニル基、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、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、ベンゾチオフェニル基、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、ジオキササン環、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。

【0068】

さらに具体的には、1 - ピロリル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、2 - ピリミジニル基、4 - ピリミジニル基、5 - ピリミジニル基、6 - ピリミジニル基、1, 2, 3 - トリアジン - 4 - イル基、1, 2, 4 - トリアジン - 3 - イル基、1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル基、1 - イミダゾリル基、2 - イミダゾリル基、1 - ピラゾリル基、1 - インドリジニル基、2 - インドリジニル基、3 - インドリジニル基、5 - インドリジニル基、6 - インドリジニル基、7 - インドリジニル基、8 - インドリジニル基、2 - イミダゾピリジニル基、3 - イミダゾピリジニル基、5 - イミダゾピリジニル基、6 - イミダゾピリジニル基、7 - イミダゾピリジニル基、8 - イミダゾピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - インドリル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、9 - カルバゾリル基、アザカルバゾリル - 1 - イル基、アザカルバゾリル - 2 - イル基、アザカルバゾリル - 3 - イル基、アザカルバゾリル - 4 - イル基、アザカルバゾリル - 5 - イル基、アザカルバゾリル - 6 - イル基、アザカルバゾリル - 7 - イル基、アザカルバゾリル - 8 - イル基、アザカルバゾリル - 9 - イル基、1 - フェナントリジニル基、2 - フェナントリジニル基、3 - フェナントリジニル基、4 - フェナントリジニル基、6 - フェナントリジニル基、7 - フェナントリジニル基、8 - フェナントリジニル基、9 - フェナントリジニル基、10 - フェナントリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 4 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナントロリン -

10

20

30

40

50

3 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 3 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル - 1 - インドリル基、4 - t - ブチル - 1 - インドリル基、2 - t - ブチル - 3 - インドリル基、4 - t - ブチル - 3 - インドリル基、1 - ジベンゾフラニル基、2 - ジベンゾフラニル基、3 - ジベンゾフラニル基、4 - ジベンゾフラニル基、1 - ジベンゾチオフェニル基、2 - ジベンゾチオフェニル基、3 - ジベンゾチオフェニル基、4 - ジベンゾチオフェニル基、1 - シラフルオレニル基、2 - シラフルオレニル基、3 - シラフルオレニル基、4 - シラフルオレニル基、1 - ゲルマフルオレニル基、2 - ゲルマフルオレニル基、3 - ゲルマフルオレニル基、4 - ゲルマフルオレニル基が挙げられる。

10

20

## 【0069】

前記一般式(4)~(6)および(5-1)~(5-2)における複素環基の環形成原子数は、5~20であることが好ましく、5~14であることがさらに好ましい。上記複素環基の中でも1 - ジベンゾフラニル基、2 - ジベンゾフラニル基、3 - ジベンゾフラニル基、4 - ジベンゾフラニル基、1 - ジベンゾチオフェニル基、2 - ジベンゾチオフェニル基、3 - ジベンゾチオフェニル基、4 - ジベンゾチオフェニル基、2 - ピリジニル基、2 - イミダゾピリジニル基、3 - イミダゾピリジニル基、5 - イミダゾピリジニル基、6 - イミダゾピリジニル基、7 - イミダゾピリジニル基、8 - イミダゾピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - イミダゾリル基、2 - イミダゾリル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、フェナントロリニル基、トリアジン環、またはベンゾイミダゾール環から形成される基が好ましい。

30

## 【0070】

前記一般式(4)および(6)における炭素数1~30のアルキル基としては、直鎖、分岐鎖又は環状のいずれであってもよい。直鎖または分岐鎖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、ヒドロキシメチル基、1 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシイソブチル基、1, 2 - ジヒドロキシエチル基、1, 3 - ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3 - ジヒドロキシ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヒ

40

50

ドロキシプロピル基、クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1, 2 - ジクロロエチル基、1, 3 - ジクロロイソプロピル基、2, 3 - ジクロロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1, 2 - ジプロモエチル基、1, 3 - ジプロモイソプロピル基、2, 3 - ジプロモ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1, 2 - ジヨードエチル基、1, 3 - ジヨードイソプロピル基、2, 3 - ジヨード - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1, 2 - ジアミノエチル基、1, 3 - ジアミノイソプロピル基、2, 3 - ジアミノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1, 2 - ジシアノエチル基、1, 3 - ジシアノイソプロピル基、2, 3 - ジシアノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 - ニトロエチル基、2 - ニトロエチル基、1, 2 - ジニトロエチル基、2, 3 - ジニトロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリニトロプロピル基が挙げられる。

10

環状のアルキル基(シクロアルキル基)としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4 - メチルシクロヘキシル基、1 - アダマンチル基、2 - アダマンチル基、1 - ノルボルニル基、2 - ノルボルニル基等が挙げられる。

#### 【0071】

20

前記一般式(4)および(6)における直鎖または分岐鎖のアルキル基の炭素数は、1 ~ 10であることが好ましく、1 ~ 6であることがさらに好ましい。上記直鎖または分岐鎖のアルキル基の中でもメチル基、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 - ヘキシル基が好ましい。

前記一般式(4)および(6)におけるシクロアルキル基の環形成炭素数は、3 ~ 10であることが好ましく、5 ~ 8であることがさらに好ましい。上記シクロアルキル基の中でも、シクロペンチル基やシクロヘキシル基が好ましい。

アルキル基がハロゲン原子で置換されたハロゲン化アルキル基としては、例えば、上記炭素数1 ~ 30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。具体的には、フルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、フルオロエチル基、トリフルオロメチルメチル基等が挙げられる。

30

#### 【0072】

前記一般式(4)および(6)における炭素数2 ~ 30のアルケニル基としては、直鎖、分岐鎖又は環状のいずれであってもよく、例えば、ビニル、プロペニル、ブテニル、オレイル、エイコサペンタエニル、ドコサヘキサエニル、スチリル、2, 2 - ジフェニルビニル、1, 2, 2 - トリフェニルビニル、2 - フェニル - 2 - プロペニル等が挙げられる。上述したアルケニル基の中でもビニル基が好ましい。

#### 【0073】

前記一般式(4)および(6)における炭素数2 ~ 30のアルキニル基としては、直鎖、分岐鎖又は環状のいずれであってもよく、例えば、エチニル、プロピニル、2 - フェニルエチニル等が挙げられる。上述したアルキニル基の中でもエチニル基が好ましい。

40

#### 【0074】

前記一般式(4)および(6)における炭素数3 ~ 30のアルキルシリル基としては、上記炭素数1 ~ 30のアルキル基で例示したアルキル基を有するトリアルキルシリル基が挙げられ、具体的にはトリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリ - n - ブチルシリル基、トリ - n - オクチルシリル基、トリエチルシリル基、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 - n - プロピルシリル基、ジメチル - n - ブチルシリル基、ジメチル - t - ブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、トリエチルシリル基等が挙げられ

50

る。3つのアルキル基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

【0075】

前記一般式(4)および(6)における環形成炭素数6~30のアリールシリル基としては、ジアルキルアリールシリル基、アルキルジアリールシリル基、トリアリールシリル基が挙げられる。

ジアルキルアリールシリル基は、例えば、上記炭素数1~30のアルキル基で例示したアルキル基を2つ有し、上記環形成炭素数6~30のアリール基を1つ有するジアルキルアリールシリル基が挙げられる。ジアルキルアリールシリル基の炭素数は、8~30であることが好ましい。2つのアルキル基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

アルキルジアリールシリル基は、例えば、上記炭素数1~30のアルキル基で例示したアルキル基を1つ有し、上記環形成炭素数6~30のアリール基を2つ有するアルキルジアリールシリル基が挙げられる。ジアルキルアリールシリル基の炭素数は、13~30であることが好ましい。2つのアリール基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

トリアリールシリル基は、例えば、上記環形成炭素数6~30のアリール基を3つ有するトリアリールシリル基が挙げられる。ジアルキルアリールシリル基の炭素数は、18~30であることが好ましい。3つのアリール基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

【0076】

前記一般式(4)および(6)における炭素数1~30のアルコキシ基は、-OYと表される。このYの例として、上記炭素数1~30のアルキル基が挙げられる。アルコキシ基は、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基があげられる。

アルコキシ基がハロゲン原子で置換されたハロゲン化アルコキシ基としては、例えば、上記炭素数1~30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。

【0077】

前記一般式(4)および(6)における環形成炭素数6~30のアラルキル基は、-Y-Zと表される。このYの例として、上記炭素数1~30のアルキル基に対応するアルキレン基が挙げられる。このZの例として、上記環形成炭素数6~30のアリール基の例が挙げられる。このアラルキル基は、炭素数7~30アラルキル基(アリール部分は炭素数6~30、好ましくは6~20、より好ましくは6~12)、アルキル部分は炭素数1~30(好ましくは1~20、より好ましくは1~10、さらに好ましくは1~6)であることが好ましい。このアラルキル基としては、例えば、ベンジル基、2-フェニルプロパン-2-イル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、-ナフチルメチル基、1--ナフチルエチル基、2--ナフチルエチル基、1--ナフチルイソプロピル基、2--ナフチルイソプロピル基、-ナフチルメチル基、1--ナフチルエチル基、2--ナフチルエチル基、1--ナフチルイソプロピル基、2--ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基が挙げられる。

【0078】

前記一般式(4)および(6)における環形成炭素数6~30のアリールオキシ基は、-OZと表される。このZの例として、上記環形成炭素数6~30アリール基または後述

10

20

30

40

50

する単環基および縮合環基が挙げられる。このアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基が挙げられる。

【0079】

前記一般式(4)および(6)におけるハロゲン原子として、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。

【0080】

本発明において、「環形成炭素」とは飽和環、不飽和環、又は芳香環を構成する炭素原子を意味する。「環形成原子」とはヘテロ環(飽和環、不飽和環、および芳香環を含む)を構成する炭素原子およびヘテロ原子を意味する。

【0081】

また、「置換もしくは無置換の」という場合における置換基としては、上述のようなアリール基、複素環基、アルキル基(直鎖または分岐鎖のアルキル基、シクロアルキル基、ハロゲン化アルキル基)、アルケニル基、アルキニル基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルコキシ基、ハロゲン化アルコキシ基、アラルキル基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基に加え、ヒドロキシル基、ニトロ基、カルボキシ基等が挙げられる。ここで挙げた置換基の中では、アリール基、複素環基、アルキル基、ハロゲン原子、アルキルシリル基、アリールシリル基、シアノ基が好ましく、さらには、各置換基の説明において好ましいとした具体的な置換基が好ましい。また、これらの置換基は、さらに上述の置換基により置換されていてもよい。

10

「置換もしくは無置換の」という場合における「無置換」とは、水素原子が置換したことを意味する。

20

以下に説明する化合物またはその部分構造において、「置換もしくは無置換の」という場合についても、上記と同様である。

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

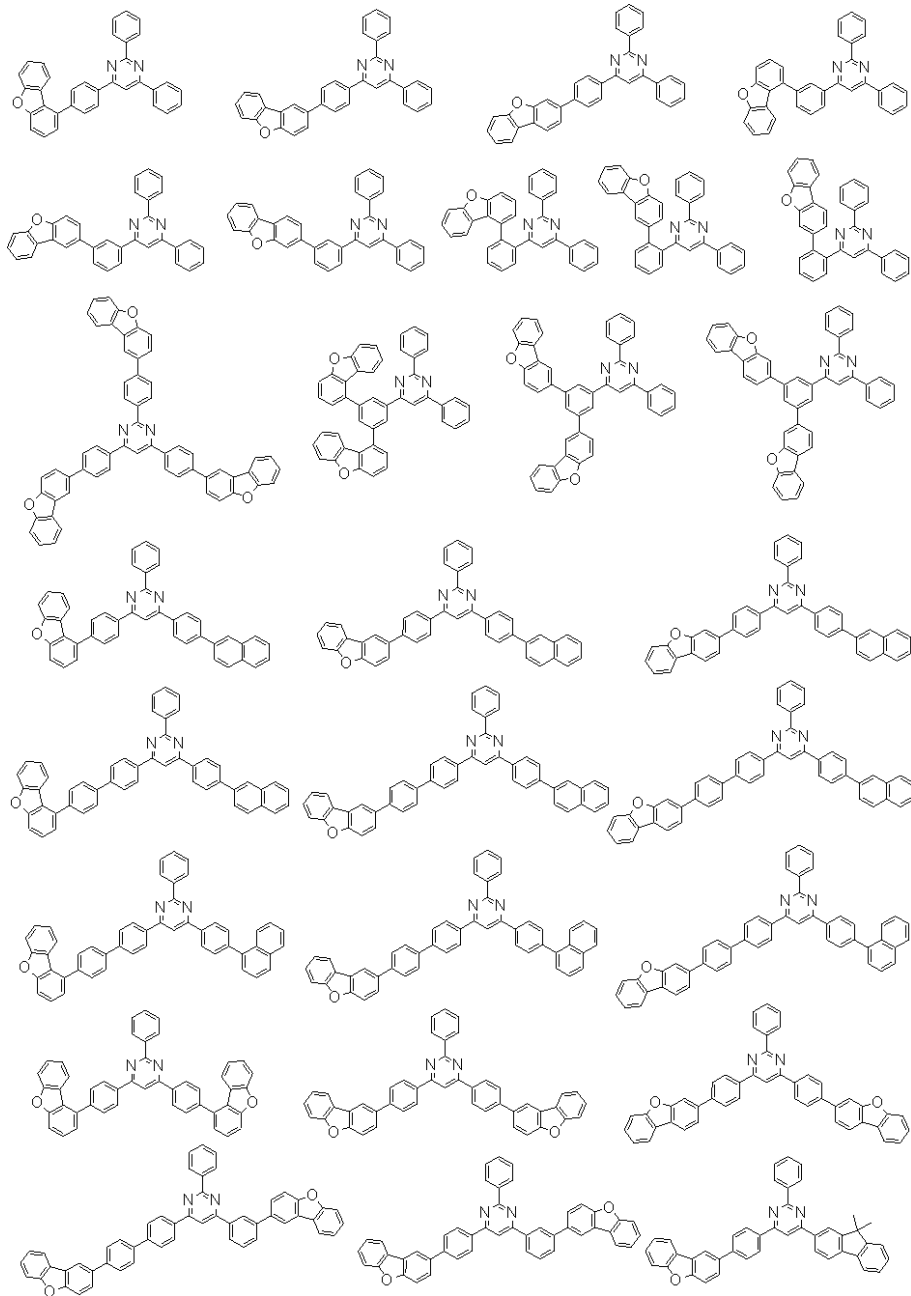
【0082】

本発明の前記一般式(4)で表される芳香族複素環誘導体の具体的な構造としては、例えば、次のようなものが挙げられる。但し、本発明は、これらの構造の芳香族誘導体に限定されない。

【0083】

30

【化 1 2】



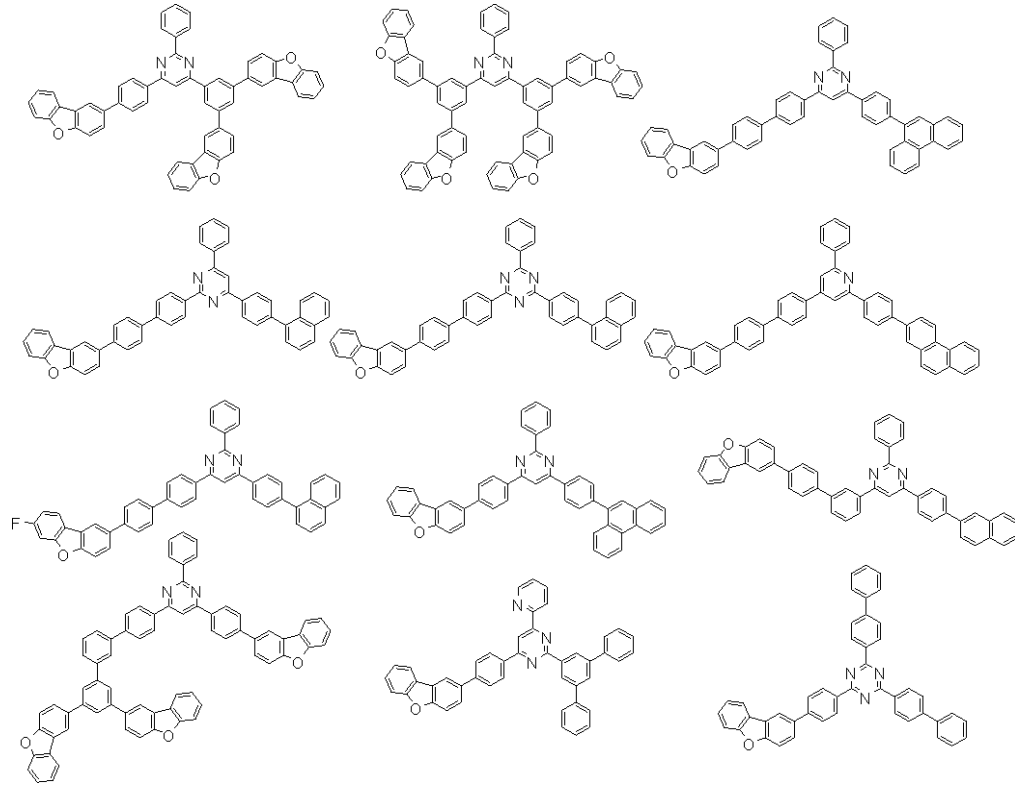
10

20

30

【 0 0 8 4 】

【化 1 3】

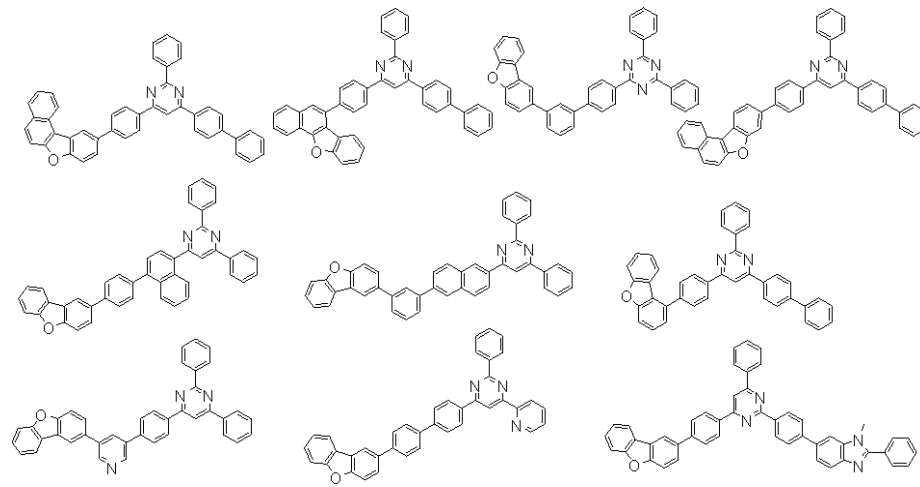


10

20

【 0 0 8 5】

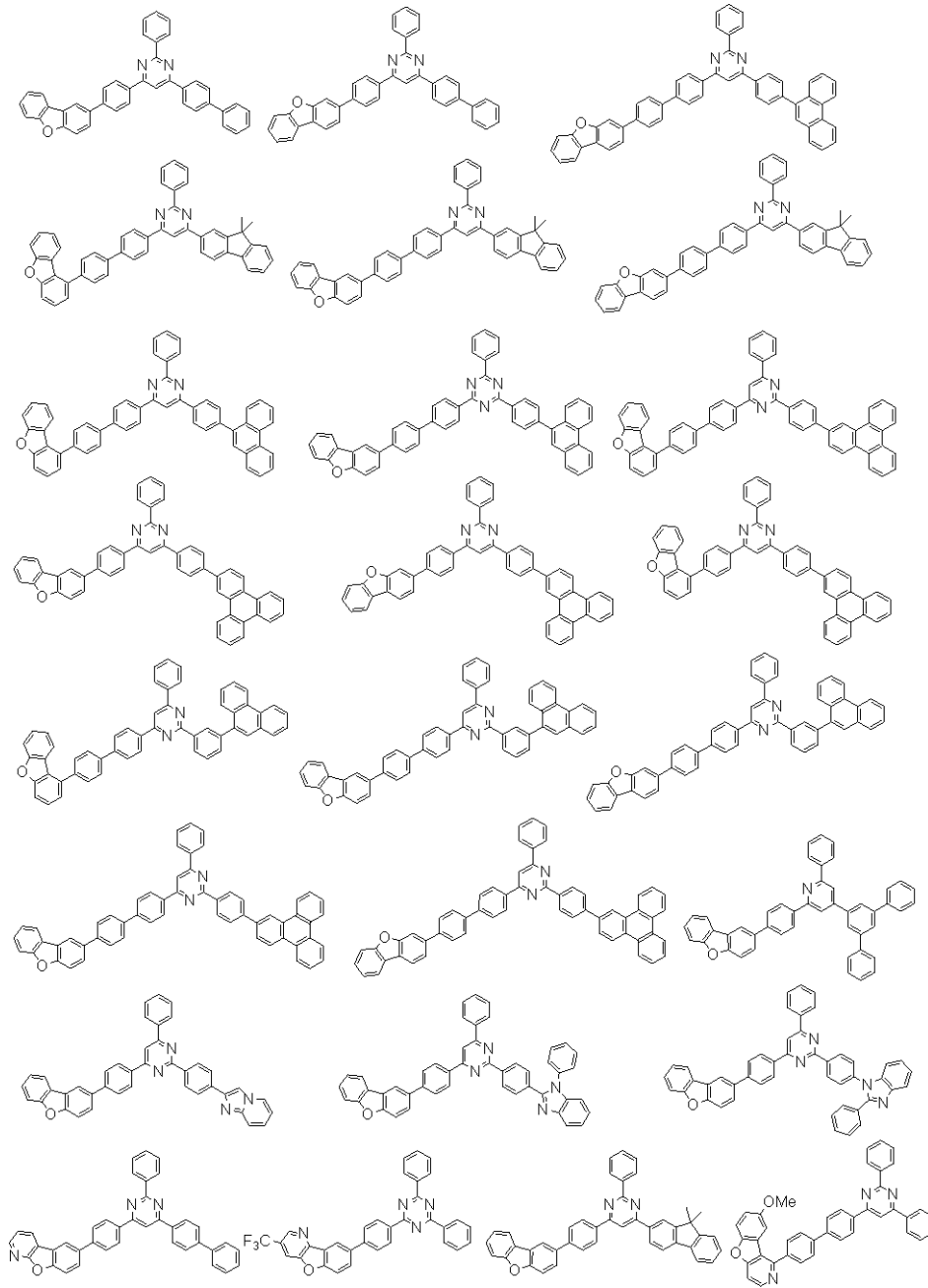
【化 1 4】



30

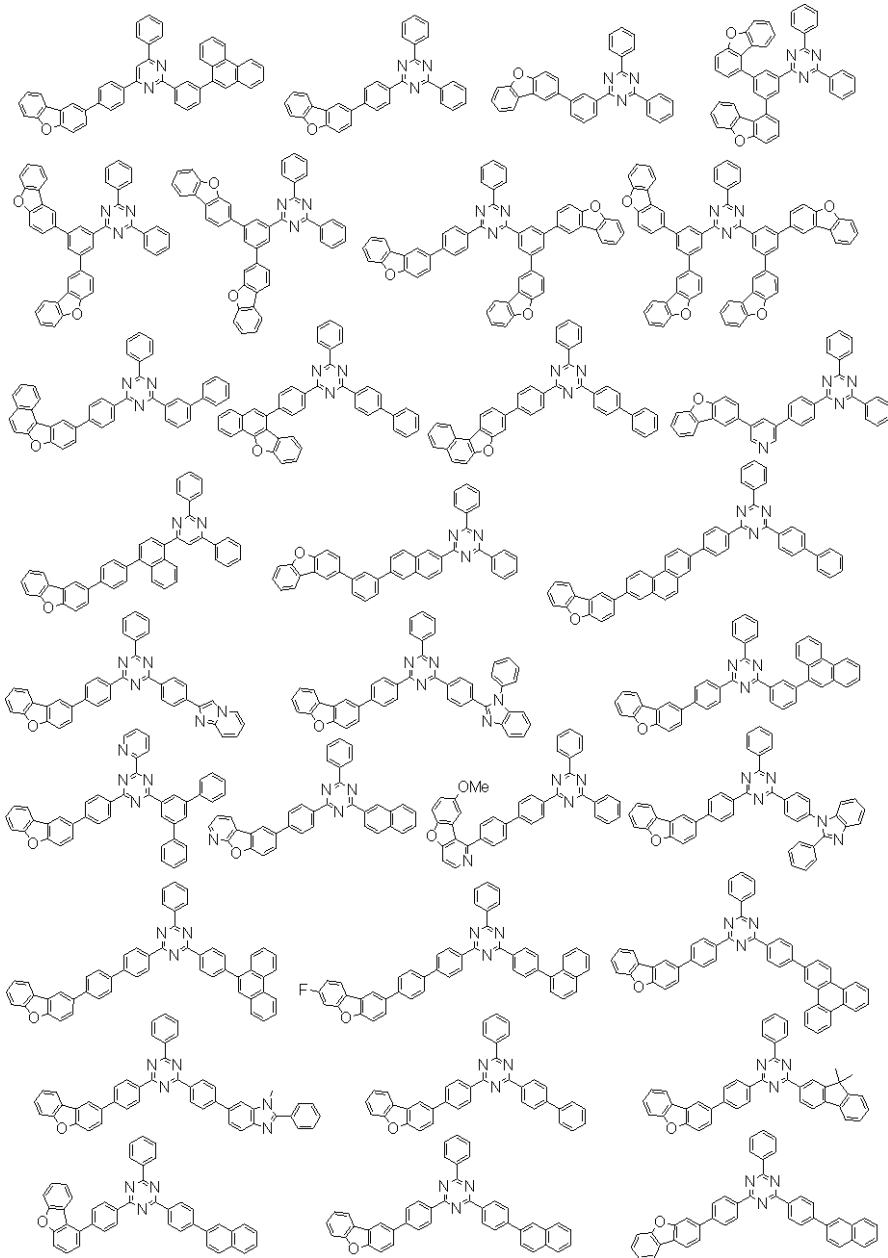
【 0 0 8 6】

【化 1 5】



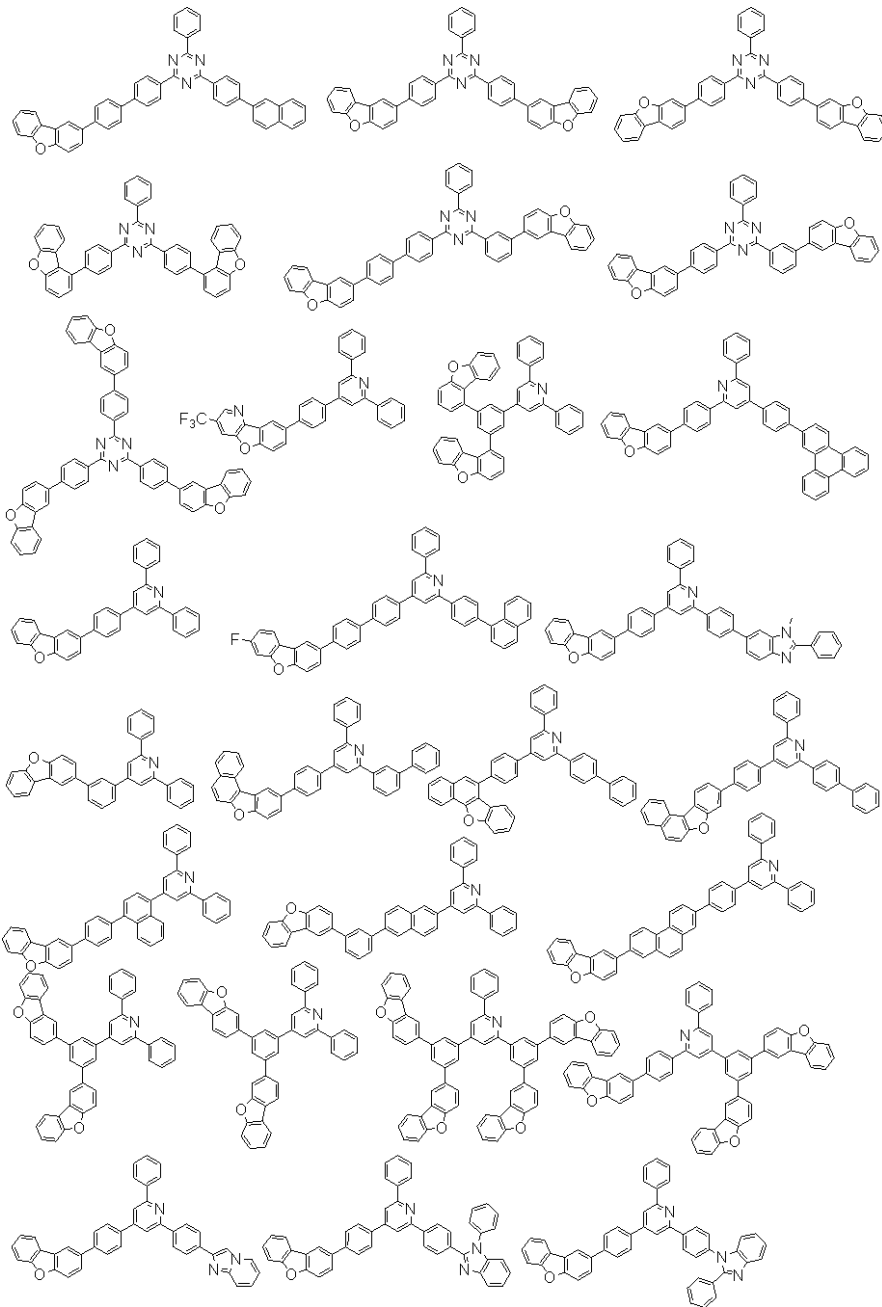
【 0 0 8 7 】

【化 1 6】



【 0 0 8 8 】

【化 17】



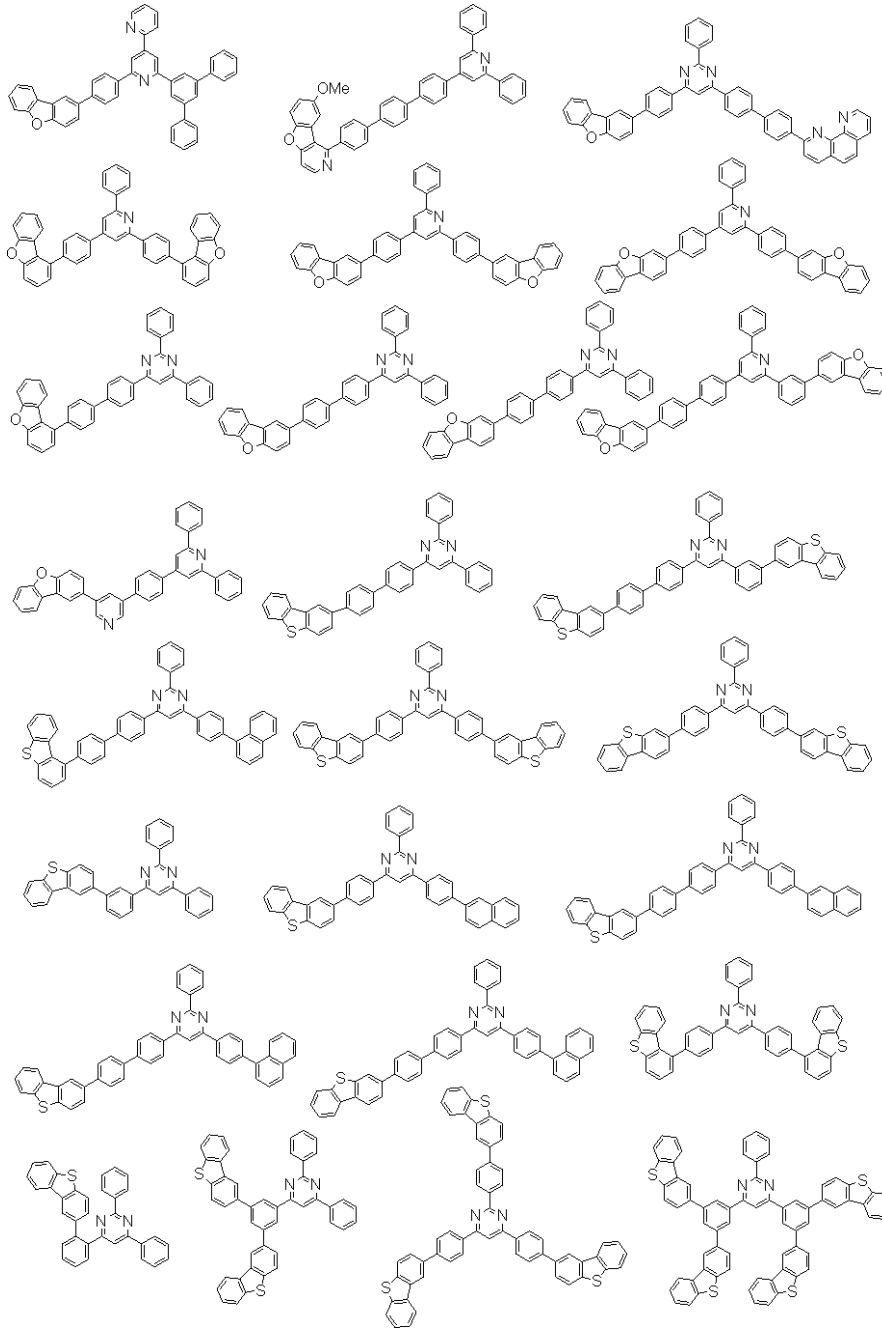
10

20

30

【 0 0 8 9 】

【化 18】



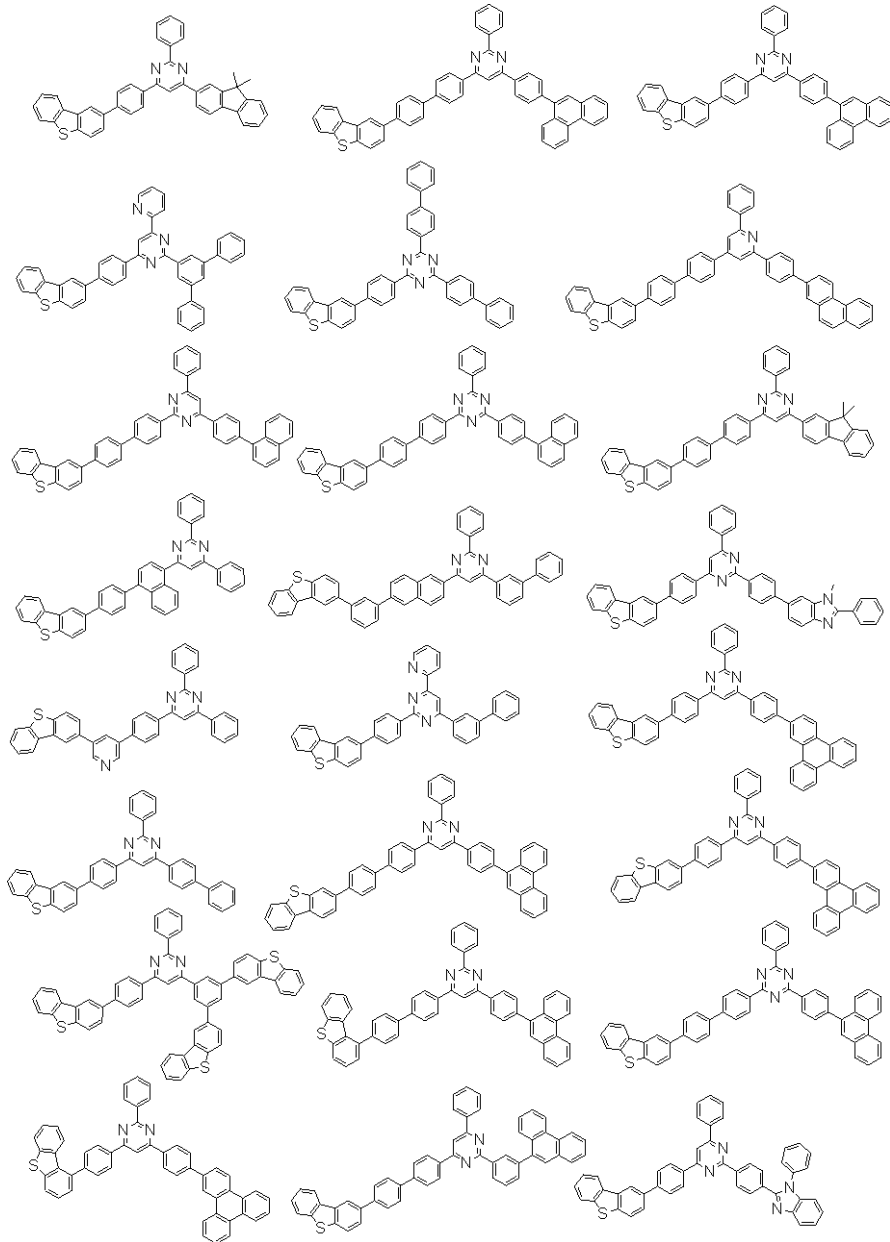
10

20

30

【 0 0 9 0 】

【化 1 9】



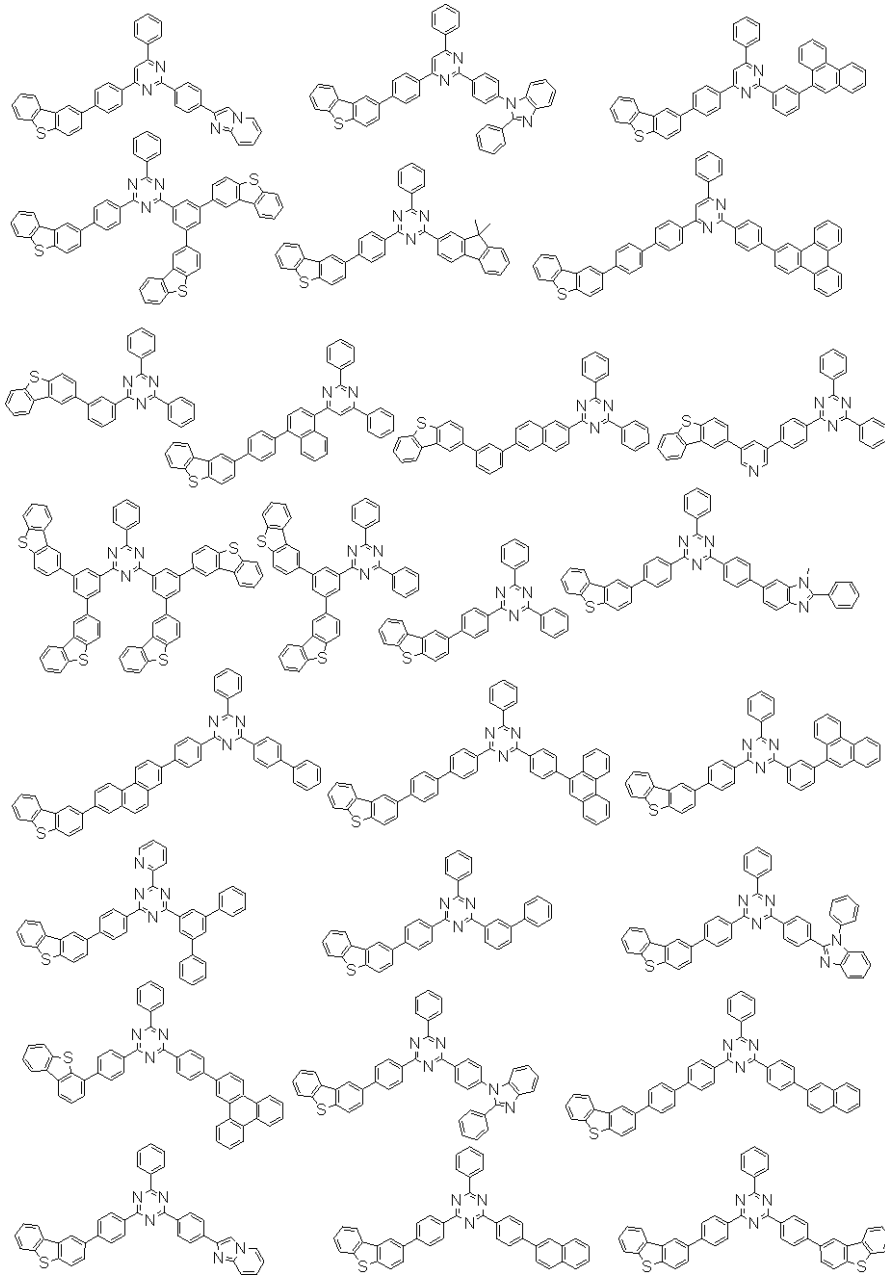
10

20

30

【 0 0 9 1】

【化 2 0】



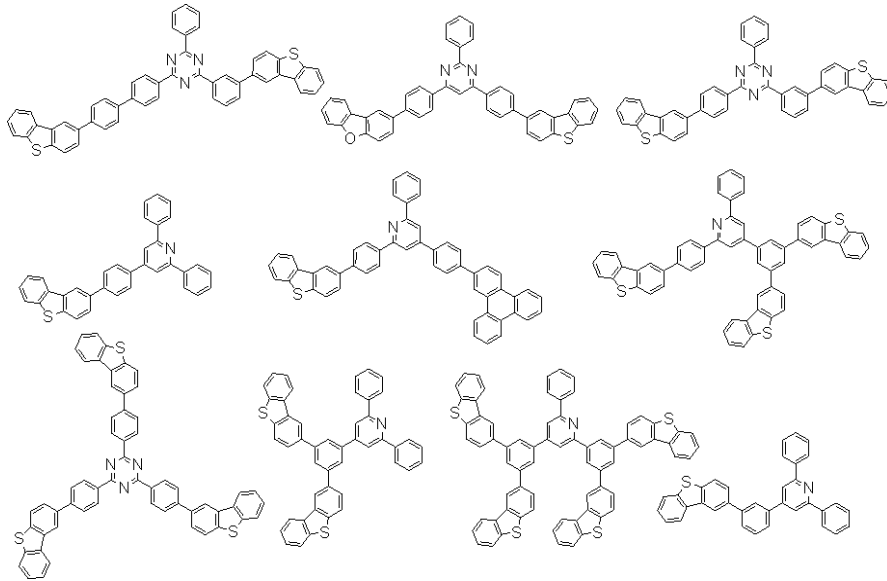
10

20

30

【 0 0 9 2】

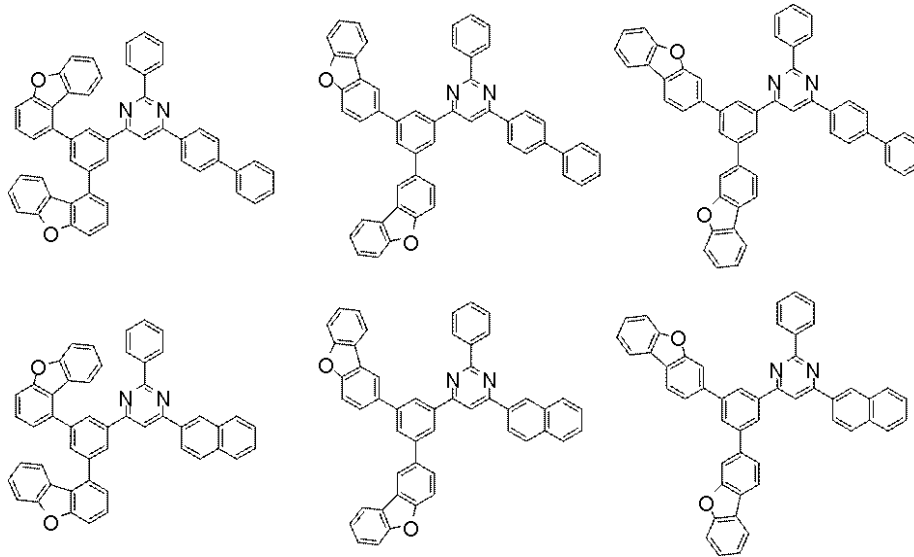
【化 2 1】



10

【 0 0 9 3】

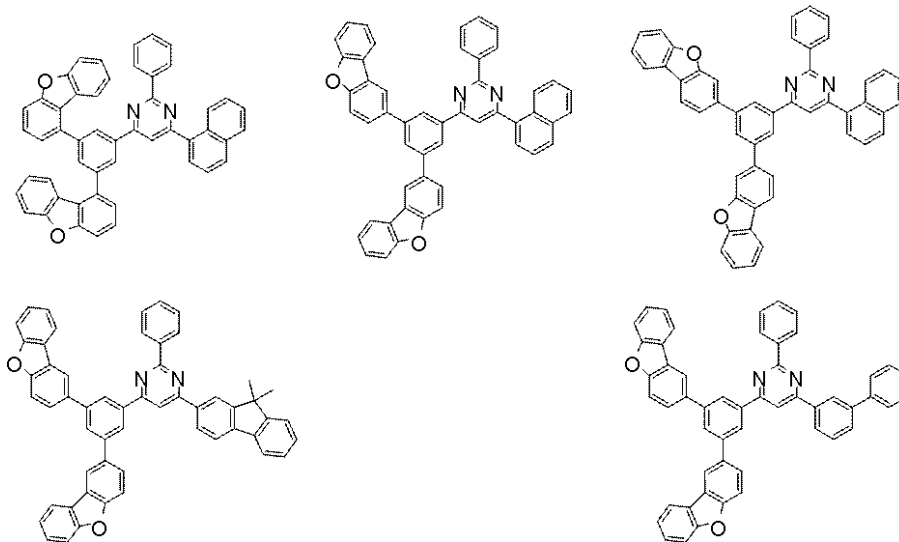
【化 2 2】



20

【 0 0 9 4】

【化 2 3】

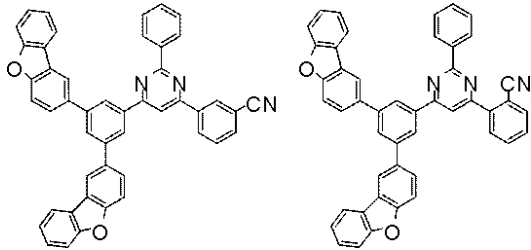
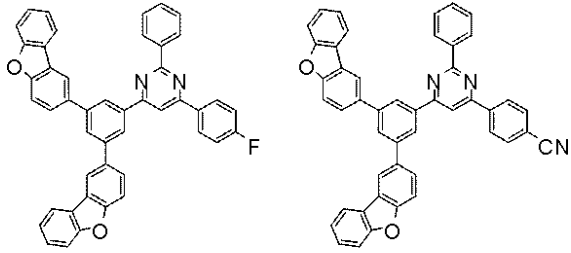


40

【 0 0 9 5】

50

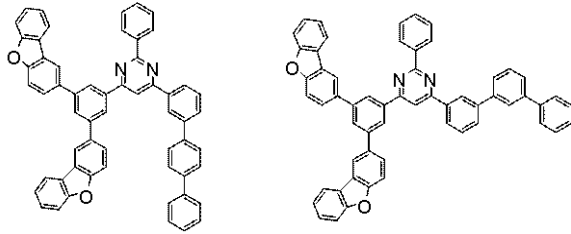
【化 2 4】



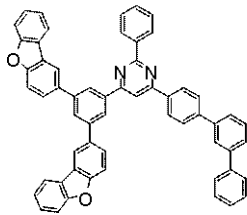
10

【 0 0 9 6】

【化 2 5】



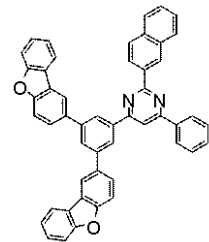
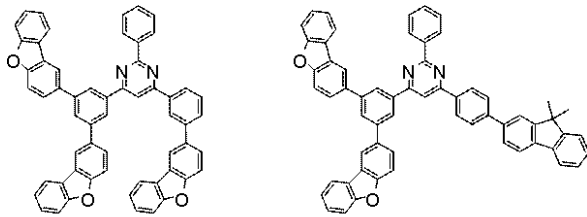
20



30

【 0 0 9 7】

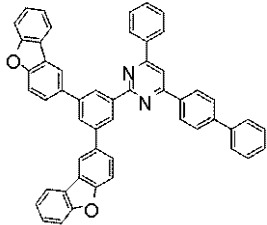
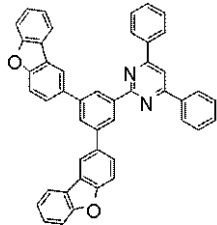
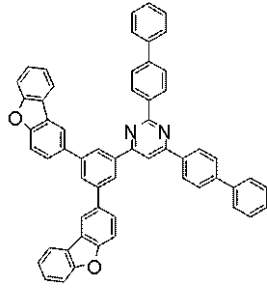
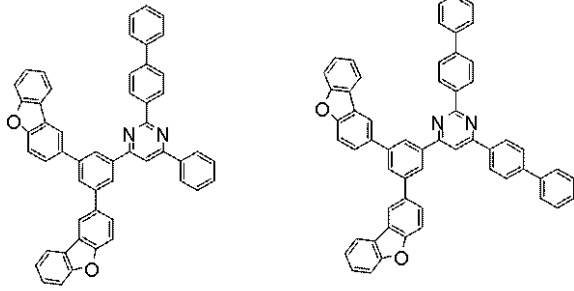
【化 2 6】



40

【 0 0 9 8】

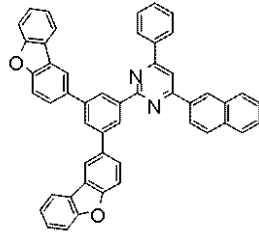
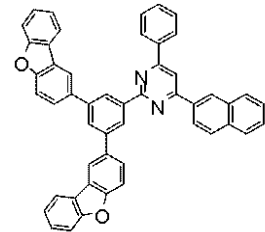
【化 2 7】



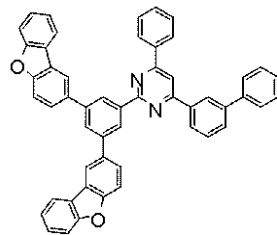
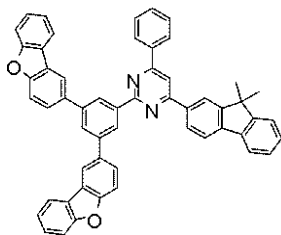
10

【 0 0 9 9】

【化 2 8】



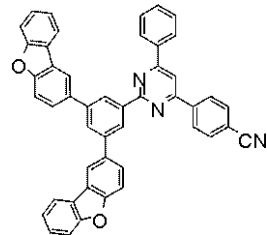
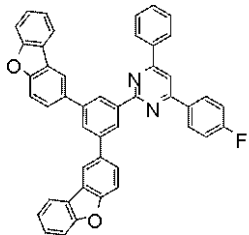
20



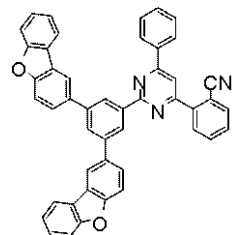
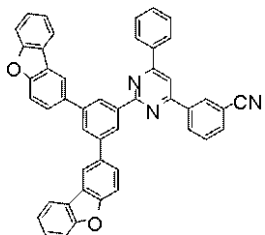
30

【 0 1 0 0】

【化 2 9】

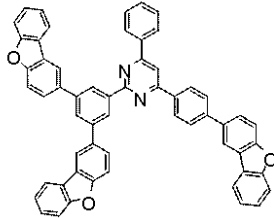
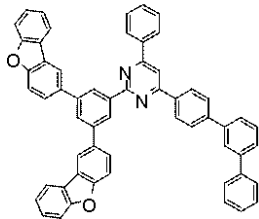
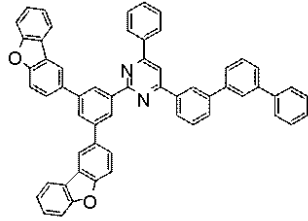
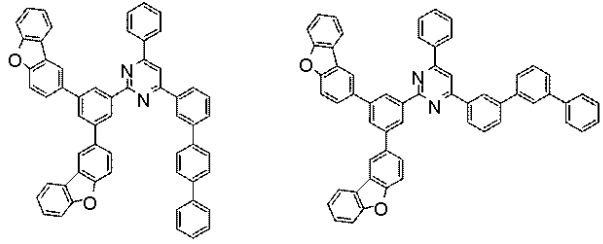


40



【 0 1 0 1】

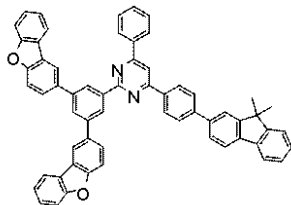
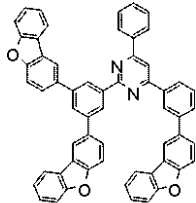
【化30】



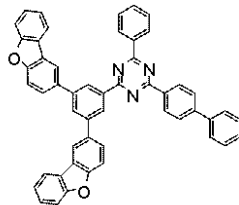
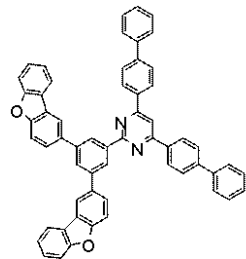
10

【0102】

【化31】

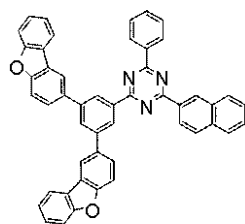
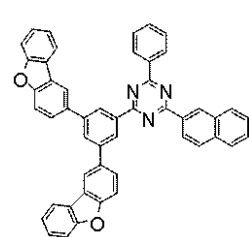


20

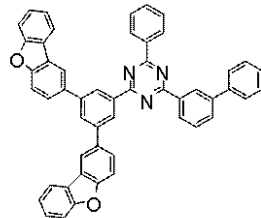
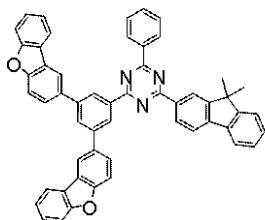


【0103】

【化32】



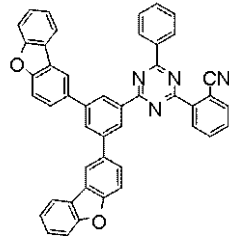
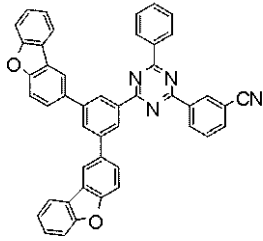
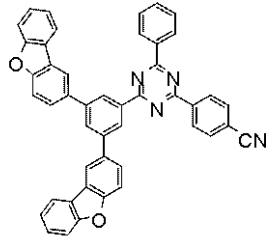
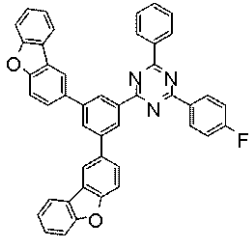
30



40

【0104】

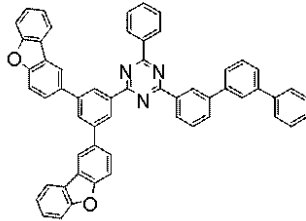
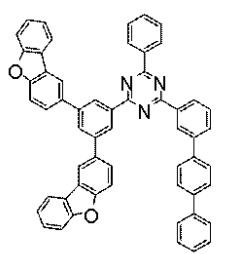
【化 3 3】



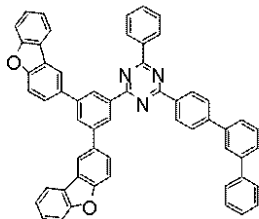
10

【 0 1 0 5】

【化 3 4】

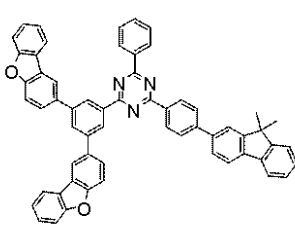
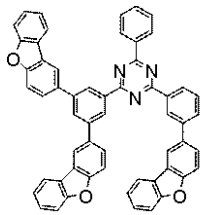


20

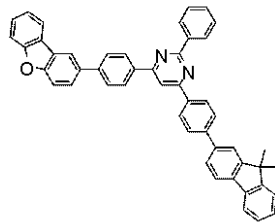
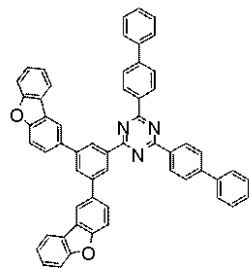


【 0 1 0 6】

【化 3 5】



30

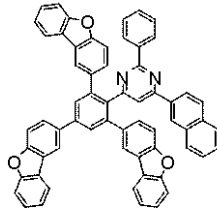
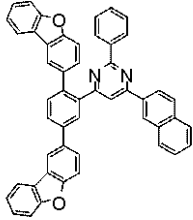
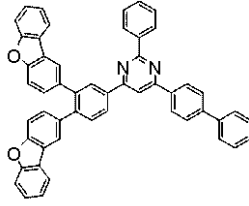
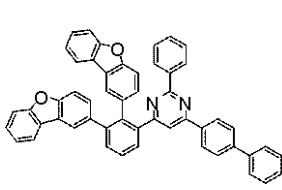


40

【 0 1 0 7】



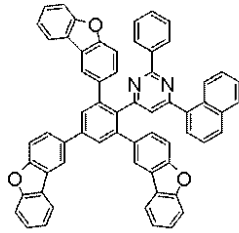
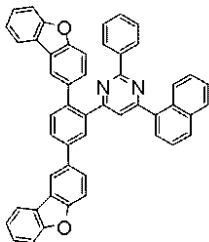
【化39】



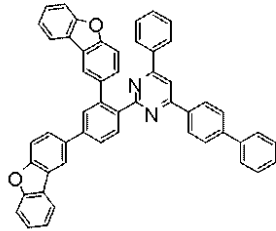
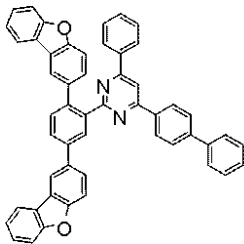
10

【0111】

【化40】



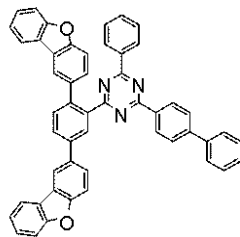
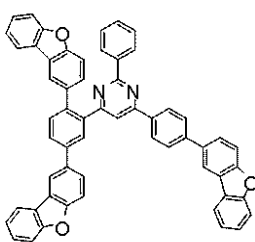
20



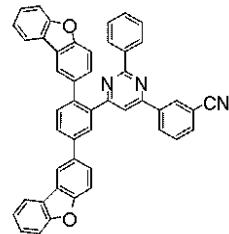
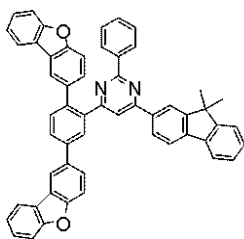
30

【0112】

【化41】

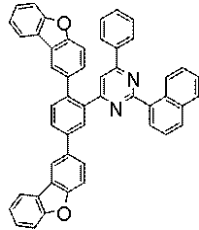
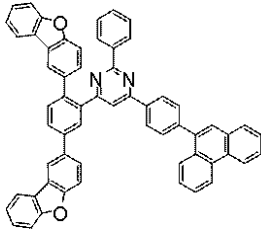


40



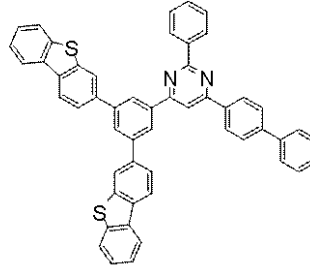
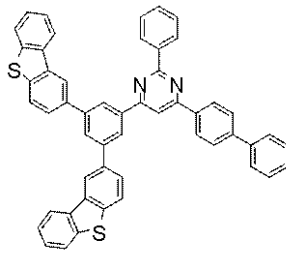
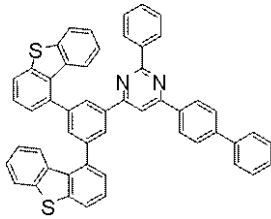
【0113】

【化 4 2】

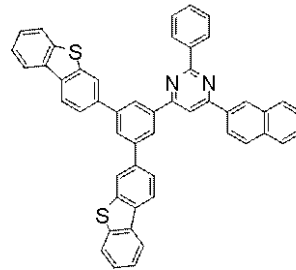
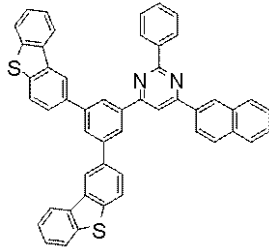
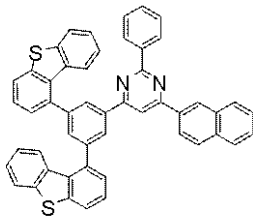


【 0 1 1 4】

【化 4 3】



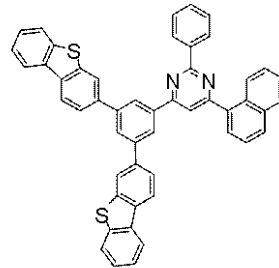
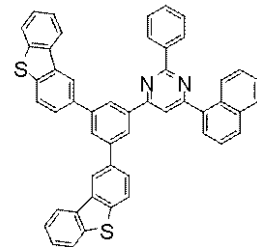
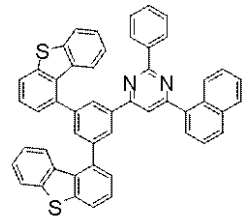
10



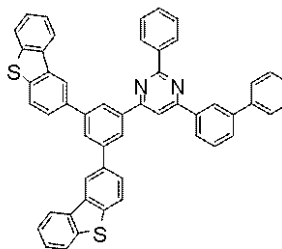
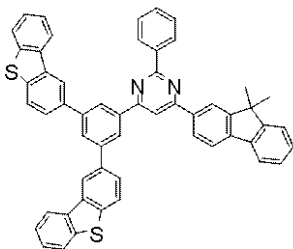
20

【 0 1 1 5】

【化 4 4】



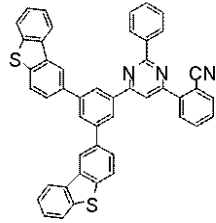
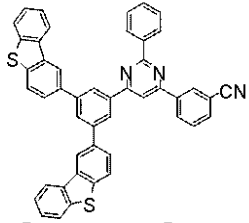
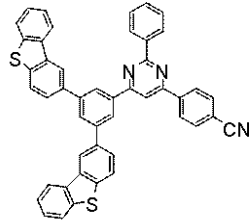
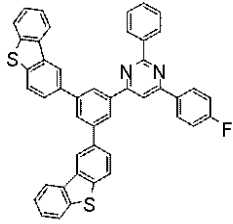
30



40

【 0 1 1 6】

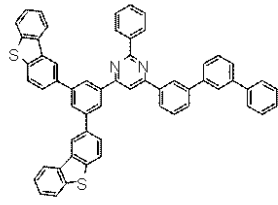
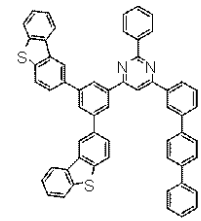
【化45】



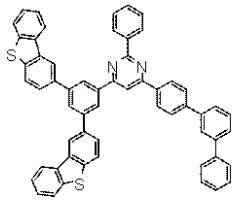
10

【0117】

【化46】

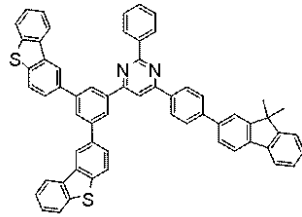
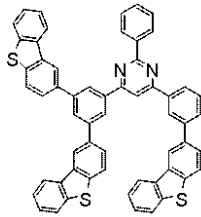


20

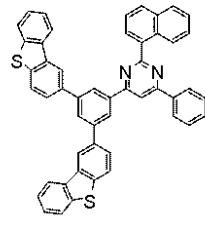
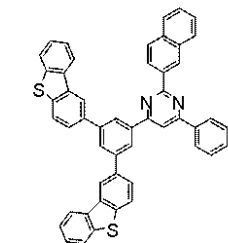


【0118】

【化47】



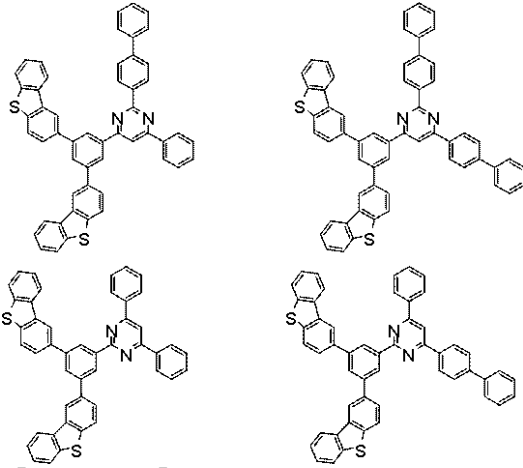
30



40

【0119】

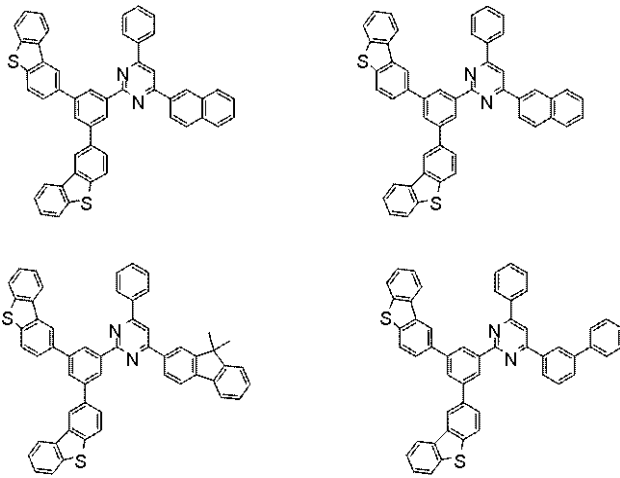
【化 4 8】



10

【 0 1 2 0】

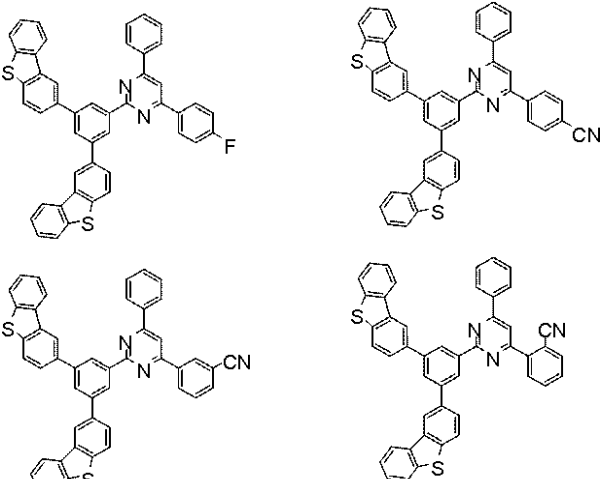
【化 4 9】



20

【 0 1 2 1】

【化 5 0】



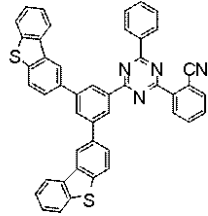
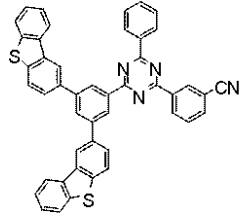
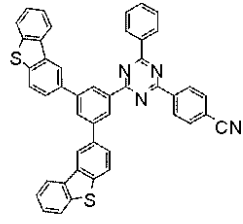
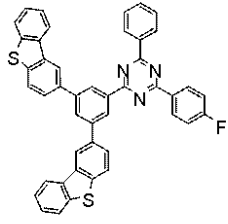
30

40

【 0 1 2 2】



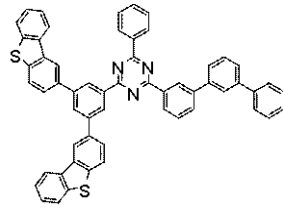
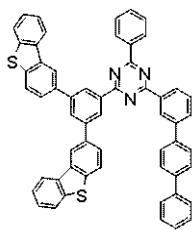
【化 5 4】



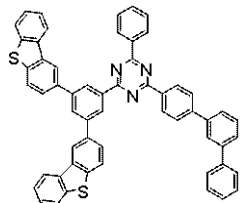
10

【 0 1 2 6】

【化 5 5】

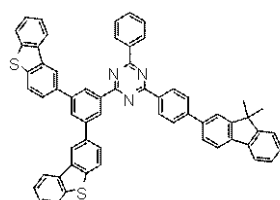
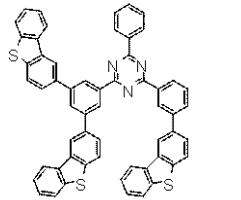


20

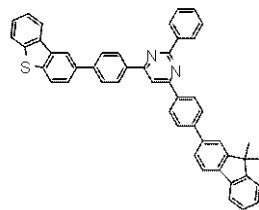
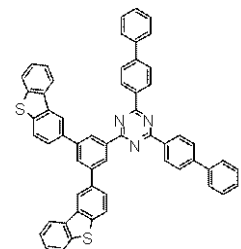


【 0 1 2 7】

【化 5 6】



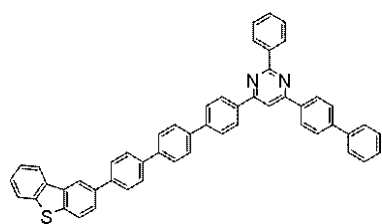
30



40

【 0 1 2 8】

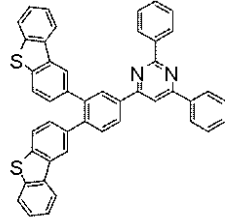
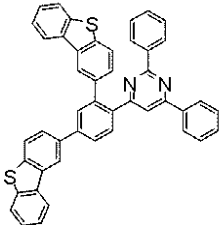
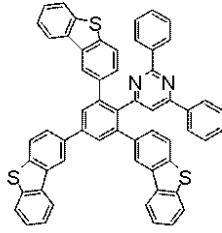
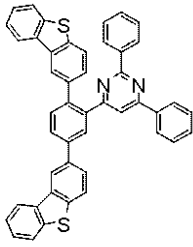
【化 5 7】



【 0 1 2 9】

50

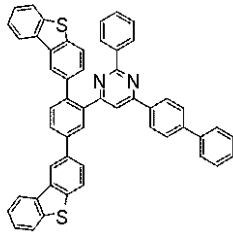
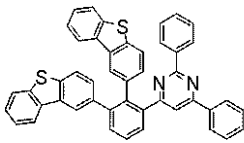
【化58】



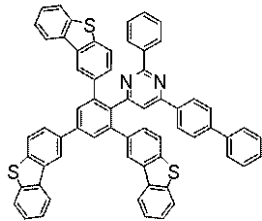
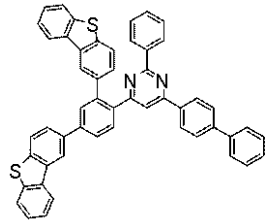
10

【0130】

【化59】

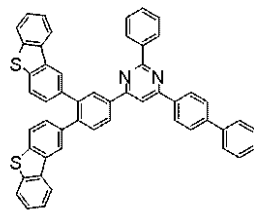
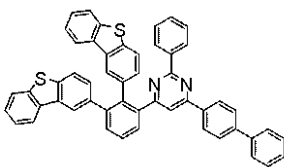


20

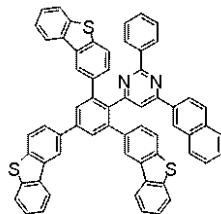
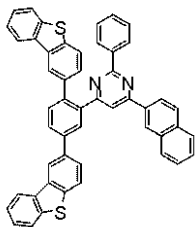


【0131】

【化60】



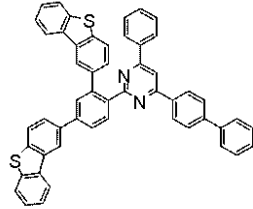
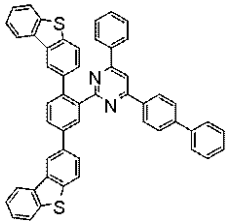
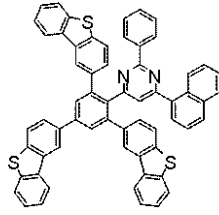
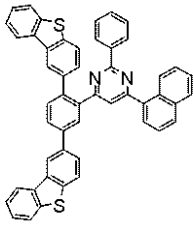
30



40

【0132】

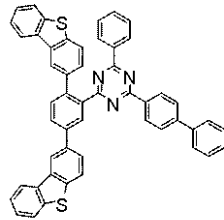
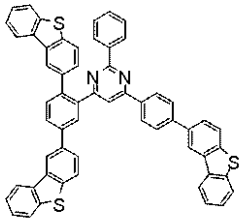
【化 6 1】



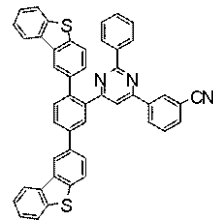
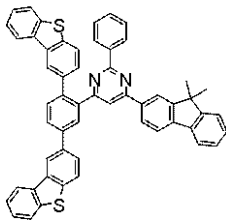
10

【 0 1 3 3】

【化 6 2】



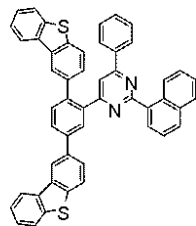
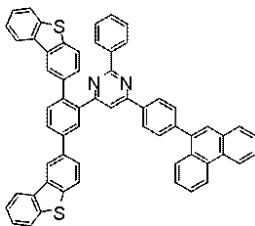
20



30

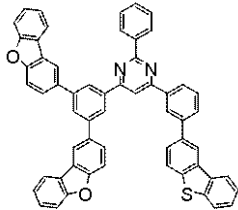
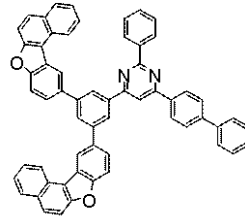
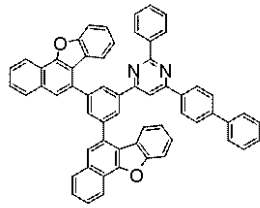
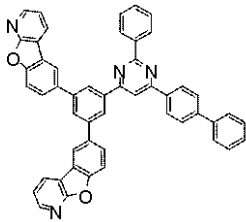
【 0 1 3 4】

【化 6 3】



【 0 1 3 5】

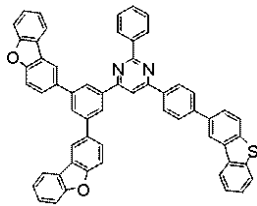
## 【化64】



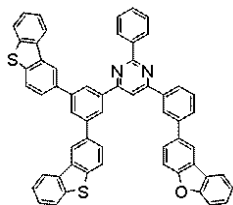
10

## 【0136】

## 【化65】

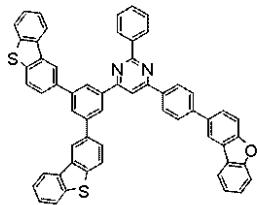


20

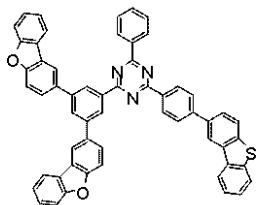


## 【0137】

## 【化66】



30



40

## 【0138】

〔有機EL素子用材料〕

本発明の芳香族複素環誘導体は、有機EL素子用材料として用いることができる。有機EL素子用材料は、本発明の芳香族複素環誘導体を単独で含んでも良いし、他の化合物を含んでも良い。本発明の芳香族複素環誘導体を含む有機EL素子用材料は、例えば、電子輸送帯域用材料として使用でき、例えば障壁層用材料として使用できる。なお、本発明において、電子輸送帯域とは、電子輸送層、電子注入層、障壁層のいずれかもしくはこれらの層のうち2つ以上の層の組合せを意味する。

## 【0139】

50

〔有機EL素子〕

<第一実施形態>

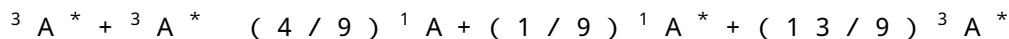
本実施形態は、TTF現象を利用したものである。まず、以下にTTF現象を説明する。

陽極、陰極から注入された正孔、電子は、発光層内で再結合し励起子を生成する。そのスピン状態は、従来から知られているように、一重項励起子が25%、三重項励起子が75%の比率である。従来から知られている蛍光素子においては、25%の一重項励起子が基底状態に緩和するときに光を発するが、残りの75%の三重項励起子については、光を発することなく熱的失活過程を経て基底状態に戻る。従って、従来の蛍光素子の内部量子効率の理論的限界値は、25%といわれていた。

10

【0140】

一方、有機物内部で生成した三重項励起子の挙動が理論的に調べられている。S. M. Bachiloらによれば(J. Phys. Chem. A, 104, 7711 (2000))、五重項等の高次の励起子がすぐに三重項に戻ると仮定すると、三重項励起子(以下、 $^3A^*$ と記載する)の密度が上がってきたとき、三重項励起子同士が衝突し下記式のような反応が起きる。ここで、 $^1A$ は基底状態、 $^1A^*$ は最低励起一重項励起子を表す。



すなわち、 $5^3A^* \rightarrow 4^1A + ^1A^*$ となり、当初生成した75%の三重項励起子のうち、 $1/5$ (20%)が一重項励起子に変化することが予測されている。従って、光として寄与する一重項励起子は、当初生成する25%分に75% $\times$ ( $1/5$ )=15%を加えた40%ということになる。このとき、全発光強度中に占めるTTF由来の発光比率(TTF比率)は、 $15/40$ 、すなわち37.5%となる。また、当初生成した75%の三重項励起子のお互いが衝突して一重項励起子が生成した(2つの三重項励起子から1つの一重項励起子が生成した)とすると、当初生成する一重項励起子25%分に75% $\times$ ( $1/2$ )=37.5%を加えた62.5%という非常に高い内部量子効率を得られることとなる。このとき、TTF比率は、 $37.5/62.5 = 60\%$ となる。

20

【0141】

図1は、本発明の第一実施形態の一例を示す有機EL素子の概略構成図である。図2は、第一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層および電子輸送帯域における三重項エネルギーの関係を示す図である。なお、本実施形態で三重項エネルギーは、最低励起三重項状態におけるエネルギーと基底状態におけるエネルギーの差をいい、一重項エネルギー(エネルギーギャップという場合もある。)は、最低励起一重項状態におけるエネルギーと基底状態におけるエネルギーの差をいう。

30

【0142】

図1に示す有機EL素子1は、陽極10側から順に、正孔輸送帯域60、発光層20、電子輸送帯域70、および陰極50を備える。本実施形態の有機EL素子1では、これらが互いに隣接している。本実施形態における電子輸送帯域70は、障壁層30と電子注入層40とで構成される。陽極10と発光層20との間に正孔輸送帯域60が設けられていることが好ましい。正孔輸送帯域には、正孔注入層および正孔輸送層の少なくともいずれかが含まれる。

40

なお、本発明において単に障壁層といったときは、三重項エネルギーに対する障壁機能を有する層をいう。したがって、正孔障壁層や電荷障壁層とはその機能が異なるものである。

【0143】

発光層は、ホスト材料およびドーパント材料を含む。ドーパント材料としては、蛍光発光を示すドーパント材料(以下、蛍光発光性ドーパント材料ともいう。)が好ましい。主ピーク波長が550nm以下の蛍光発光性ドーパント材料が好ましく、主ピーク波長が500nm以下の蛍光発光性ドーパント材料がより好ましい。主ピーク波長とは、濃度 $10^{-5}$ モル/リットル以上 $10^{-6}$ モル/リットル以下のトルエン溶液中で測定した発光スペクトラムにおける発光強度が最大となる発光スペクトルのピーク波長をいう。主ピーク

50

波長 550 nm とは、緑色発光程度に相当し、当該波長領域では、TTF 現象を利用した蛍光発光素子の発光効率の向上が望まれる。また、480 nm 以下の青色発光を示す蛍光発光素子においては、より高い発光効率の向上が期待できる。なお、550 nm 以上の赤色発光については、内部量子効率の高いリン光発光素子が既に実用水準にあることから、蛍光素子として発光効率の向上は望まれていない。

【0144】

図2において、陽極から注入された正孔は、正孔輸送帯域を通して発光層へ注入され、陰極から注入された電子は、電子注入層および障壁層を通して発光層へ注入される。その後、発光層で正孔と電子が再結合し、一重項励起子と三重項励起子が生成する。再結合は、ホスト材料分子上で起こる場合と、ドーパント材料分子上で起こる場合の2通りがある。

10

本実施形態では、図2に示されるように、ホスト材料、ドーパント材料の三重項エネルギーをそれぞれ  $E^T_h$ 、 $E^T_d$  とするとき、次式(2A)の関係を満たす。

$$E^T_h < E^T_d \quad \dots (2A)$$

この式(2A)の関係を満たすことにより、さらに、図3に示されるように、ホスト材料上で再結合し発生した三重項励起子は、より高い三重項エネルギーを持つドーパント材料には移動しない。また、ドーパント材料の分子上で再結合し発生した三重項励起子は、速やかにホスト材料の分子にエネルギー移動する。すなわち、ホスト材料の三重項励起子がドーパント材料に移動することなくTTF現象によって効率的にホスト材料上で三重項励起子同士が衝突することで一重項励起子が生成される。さらに、ドーパント材料の一重項エネルギー  $E^S_d$  は、ホスト材料の一重項エネルギー  $E^S_h$  より小さいため、すなわち、

20

次式(2B)の関係を満たす。

$$E^S_d < E^S_h \quad \dots (2B)$$

この式(2B)の関係を満たすため、TTF現象によって生成された一重項励起子は、ホスト材料からドーパント材料へエネルギー移動し、ドーパント材料の蛍光性発光に寄与する。本来、蛍光型素子に用いられるドーパント材料においては、励起三重項状態から基底状態への遷移は禁制であり、このような遷移では三重項励起子は、光学的なエネルギー失活をせず、熱的失活を起こしていた。しかし、ホスト材料とドーパント材料の三重項エネルギーの関係を上記のようにすることにより、三重項励起子が熱的失活を起こす前に、互いの衝突により効率的に一重項励起子を生成できる。その結果、発光効率が向上することになる。

30

【0145】

本実施形態では、障壁層は、発光層に隣接する。障壁層は、発光層で生成する三重項励起子が電子輸送帯域へ拡散することを防止し、三重項励起子を発光層内に閉じ込めることにより三重項励起子の密度を高め、TTF現象を効率よく引き起こす機能を有する。

また、障壁層は、発光層へ効率よく電子を注入する役割も担っている。発光層への電子注入性が下がる場合、発光層における電子・正孔の再結合が減ることで、三重項励起子の密度が小さくなる。三重項励起子の密度が小さくなると、三重項励起子の衝突頻度が減り、効率よくTTF現象が起きない。

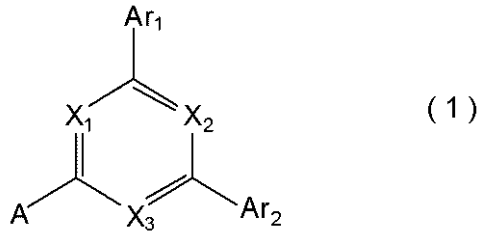
【0146】

40

本実施形態の有機EL素子の障壁層は、下記一般式(1)で表される芳香族複素環誘導体を含んでいる。

【0147】

## 【化67】



## 【0148】

(前記一般式(1)において、 $X_1$  から  $X_3$  までは、窒素原子または  $CR_1$  である。ただし、 $X_1$  から  $X_3$  までのうち、少なくともいずれか1つは、窒素原子である。

10

$R_1$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルキニル基、

20

置換もしくは無置換の炭素数3～30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

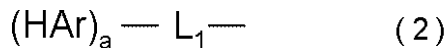
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアラルキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基である。

(前記一般式(1)において、Aは、下記一般式(2)で表される。)

## 【0149】

## 【化68】



## 【0150】

30

(前記一般式(2)において、HArは、下記一般式(3)で表される。

前記一般式(2)において、aは、1以上5以下の整数である。

aが1のとき、 $L_1$ は、単結合または二価の連結基である。

aが2以上5以下のとき、 $L_1$ は、三価以上六価以下の連結基であり、HArは、同一または異なる。

前記連結基は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、または、

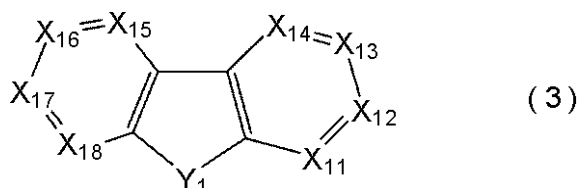
これらの基が互いに2つ、もしくは3つ結合した基のいずれかから誘導される二価以上六価以下の残基である。

40

(なお、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。)

## 【0151】

## 【化69】



## 【0152】

(前記一般式(3)において、 $X_{11}$  から  $X_{18}$  までは、それぞれ独立に、窒素原子、C

50

$R_{13}$ 、または  $L_1$  に対して単結合で結合する炭素原子である。

前記一般式(3)において、 $Y_1$  は、酸素原子、硫黄原子、 $SiR_{11}R_{12}$ 、または  $R_{11}$  及び  $L_1$  に対してそれぞれ単結合で結合するケイ素原子である。

ただし、 $L_1$  に対して結合するのは、 $X_{11}$  から  $X_{18}$  まで、および  $R_{11}$  から  $R_{12}$  までにおける炭素原子、並びに  $Y_1$  におけるケイ素原子のいずれか一つである。

$R_{11}$  および  $R_{12}$  は、前記一般式(1)における  $R_1$  と同義である。 $R_{11}$  および  $R_{12}$  は、同一または異なる。

$R_{13}$  は、それぞれ独立して、

水素原子、

ハロゲン原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアラールキル基、または

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基

である。複数の  $R_{13}$  は互いに同一または異なる。また、隣り合う  $R_{13}$  は互いに結合して環を形成していてもよい。

前記一般式(1)において、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は、それぞれ独立に、

前記一般式(2)で表されるか、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、または、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基である。

#### 【0153】

前記一般式(3)において、 $X_{13}$  または  $X_{16}$  が、 $L_1$  に対して単結合で結合する炭素原子であることが好ましい。もしくは、前記一般式(3)において、 $X_{11}$  または  $X_{18}$  が、 $L_1$  に対して単結合で結合する炭素原子であることが好ましい。

#### 【0154】

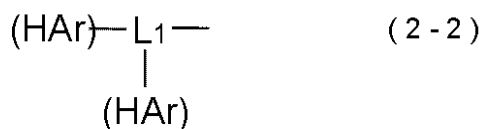
前記一般式(2)において、 $a$  は、1以上5以下の整数であるが、1以上3以下であることがより好ましく、1または2であることが特に好ましい。

$a$  が1のとき、 $L_1$  は、単結合または二価の連結基であり、前記一般式(2)は、下記一般式(2-1)で表される。

$a$  が2以上5以下のとき、 $L_1$  は、三価以上六価以下の連結基である。 $a$  が2のとき、前記一般式(2)は、下記一般式(2-2)で表される。このとき  $HAr$  は、同一または異なる。

#### 【0155】

#### 【化70】



#### 【0156】

前記連結基は、

10

20

30

40

50

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、  
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、または、  
これらの基が互いに 2 つ、もしくは 3 つ結合した基のいずれかから誘導される二価もしくは三価の残基である。

これらの基が互いに 2 つ、もしくは 3 つ結合した基としては、前記環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基および環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基から誘導される二価もしくは三価の残基が互いに単結合で、2 つもしくは 3 つまで結合した基である。この連結基において、互いに結合した基は、互いに同一または異なる。

【0157】

また、前記一般式 (2), (2-1), (2-2) において、 $L_1$  としては、連結基であることが好ましく、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基、またはこれらの基が互いに 2 つ、もしくは 3 つ結合した基のいずれかから誘導される二価または三価の残基であることが好ましい。さらに、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基であることが好ましい。

10

【0158】

前記一般式 (2) において、 $a$  が 1 であり (前記一般式 (2-1) 参照)、 $L_1$  が、連結基である場合、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基の二価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基の二価の残基であることが好ましい。より具体的には、 $L_1$  が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレンおよびフェナントレンのいずれかから誘導される二価の残基であることが好ましい。

20

前記一般式 (2) において、 $a$  が 2 であり (前記一般式 (2-2) 参照)、 $L_1$  が、連結基である場合、連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基の三価の残基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基の三価の残基であることが好ましい。より具体的には、 $L_1$  が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレンおよびフェナントレンのいずれかから誘導される二価の残基であることが好ましい。

【0159】

30

前記一般式 (3) における  $Y_1$  が、酸素原子又は硫黄原子であることが好ましい。さらに、前記一般式 (3) における  $Y_1$  が酸素原子又は硫黄原子であり、 $X_{11}$  から  $X_{18}$  までのうち一つが、 $L_1$  に対して単結合で結合する炭素原子であり、それ以外は、 $CR_{13}$  であることが好ましい。

前記一般式 (1) における  $X_1$  から  $X_3$  までのうち、いずれか 2 つもしくは 3 つが窒素原子であることがより好ましい。

前記一般式 (2) における  $L_1$  が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレン、及びフェナントレンのいずれかから誘導される二価または三価の残基であることが好ましい。

【0160】

40

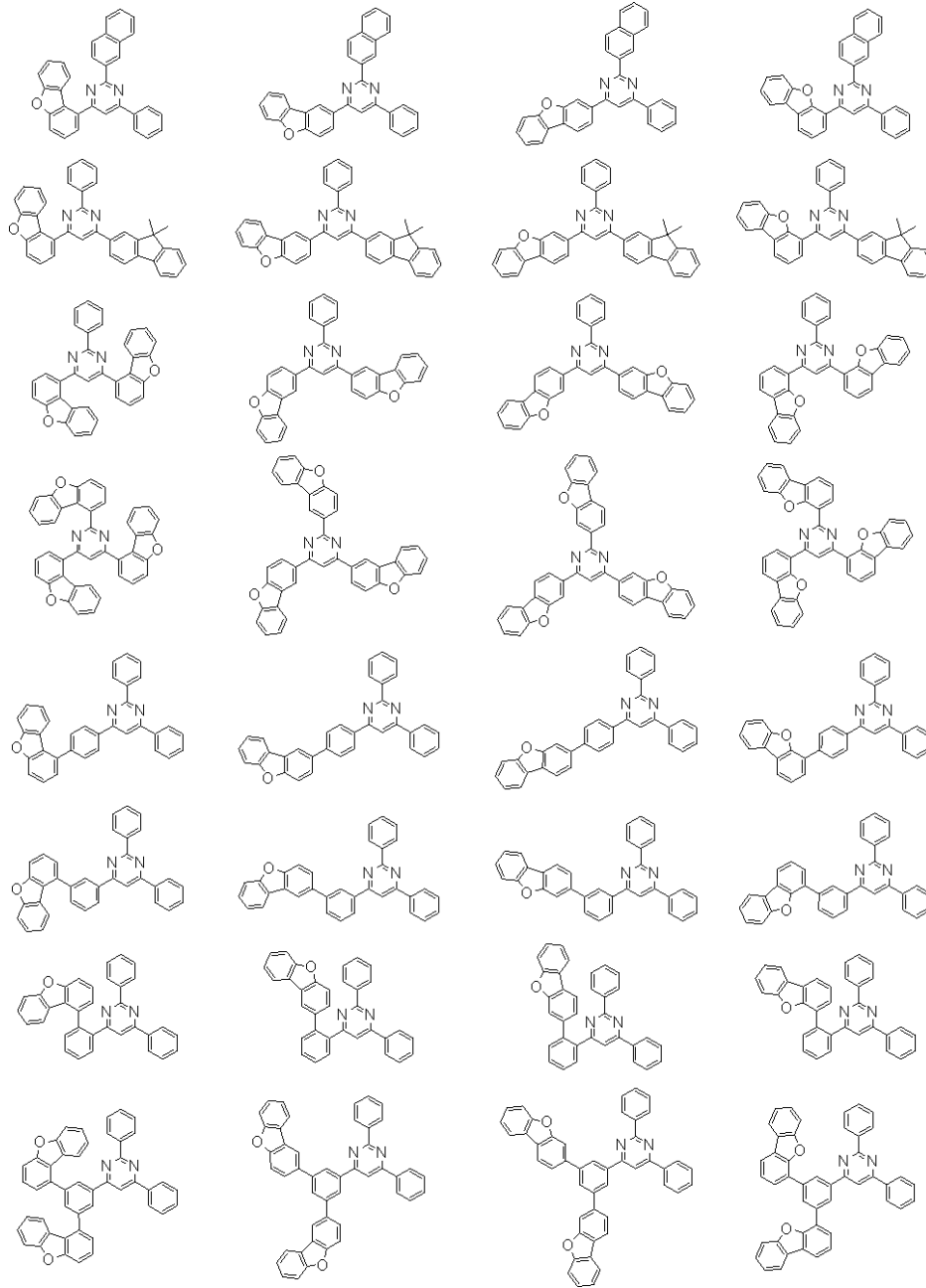
前記一般式 (1) から (3) および (2-1) ~ (2-2) における  $Ar^1$ ,  $Ar^2$ ,  $L_1$ ,  $R_1$ ,  $R_{11} \sim R_{13}$ ,  $X_{11} \sim X_{18}$ ,  $Y_1$  における各基の具体例としては、一般式 (4) で表される芳香族複素環誘導体において説明した各基を用いることができる。

【0161】

本実施形態の有機 EL 素子の障壁層に含まれる、前記一般式 (1) で表される芳香族複素環誘導体の具体的な構造としては、例えば、次のようなものが挙げられる。但し、本実施形態は、これらの構造の芳香族誘導体に限定されない。

【0162】

【化 7 1】



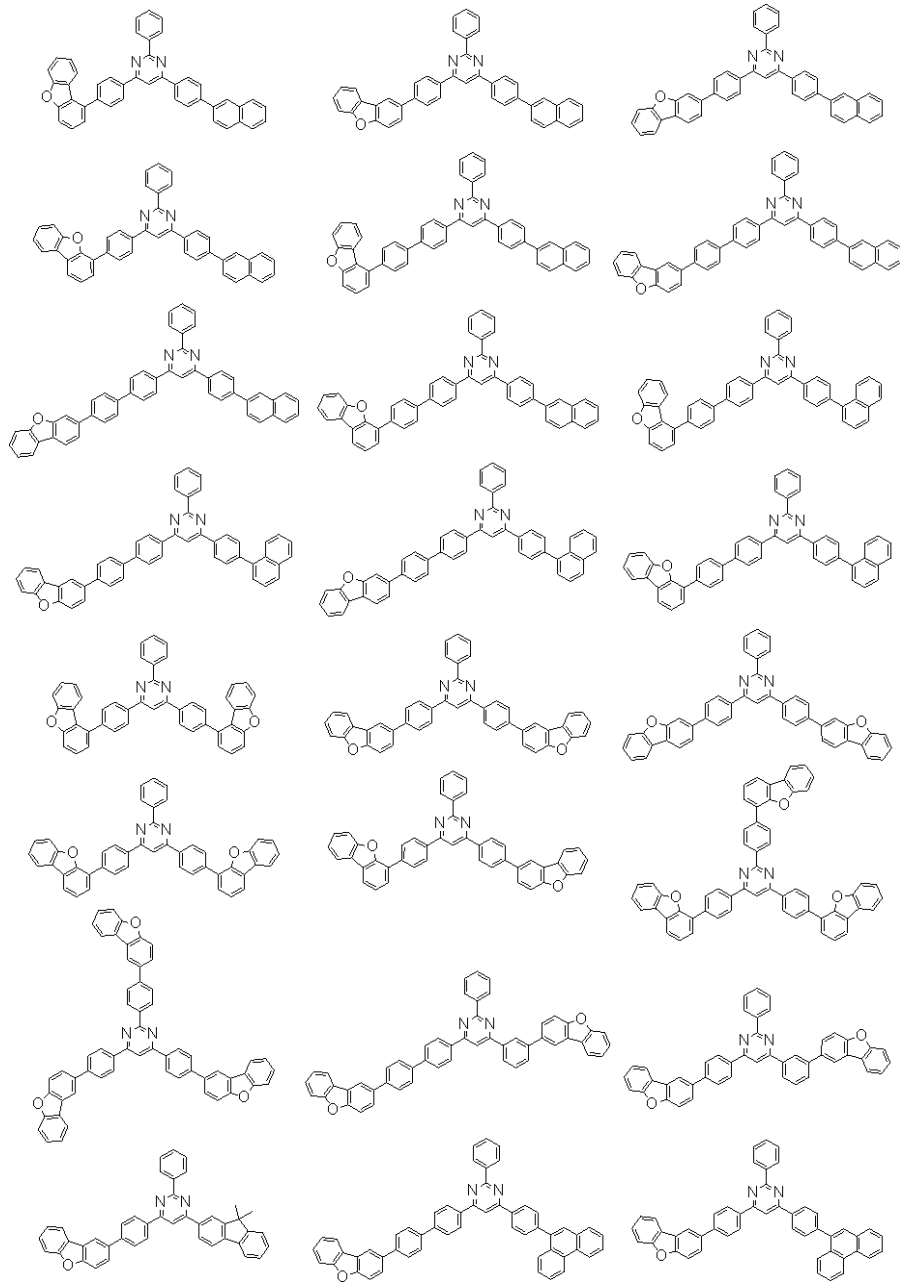
10

20

30

【 0 1 6 3】

【化72】



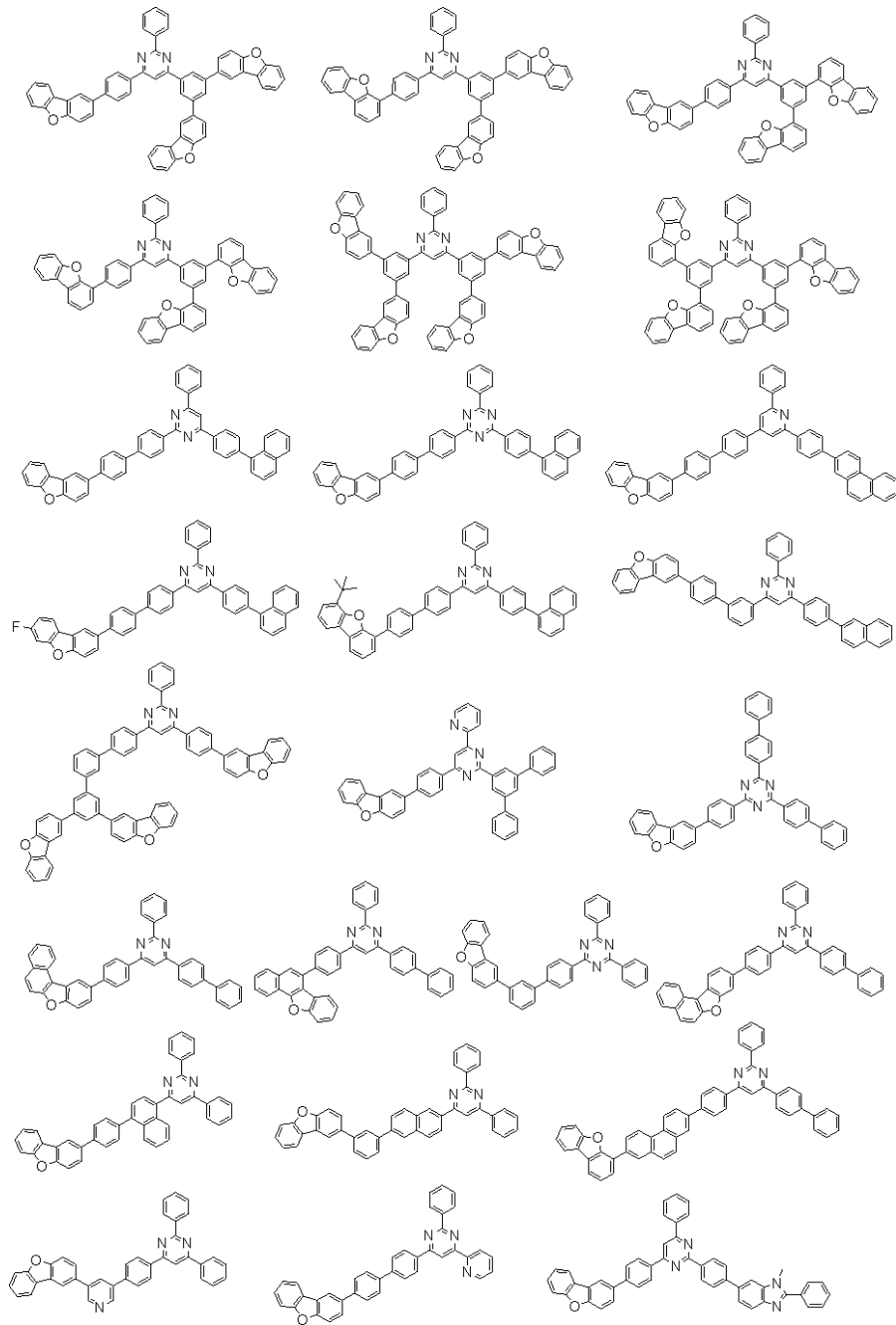
10

20

30

【0164】

【化 7 3】



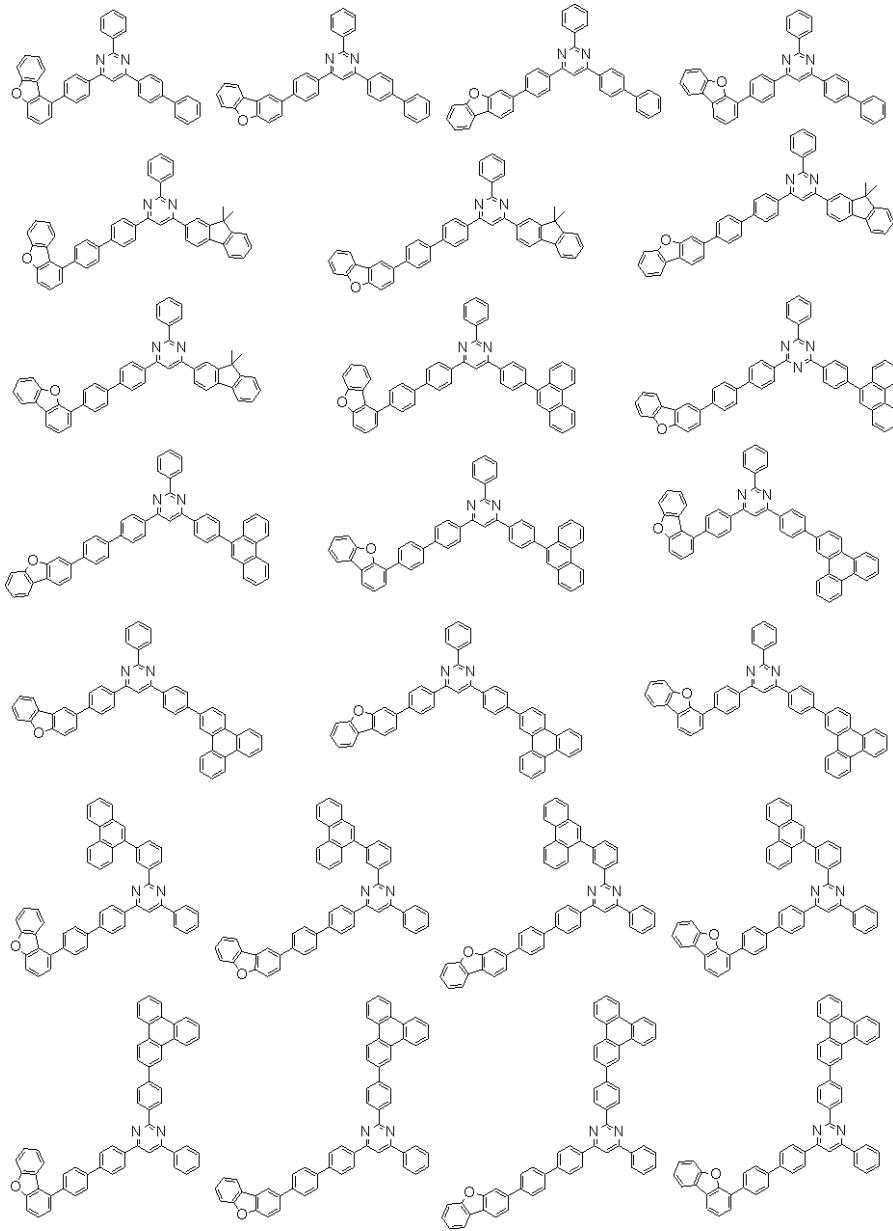
10

20

30

【 0 1 6 5 】

【化 7 4】



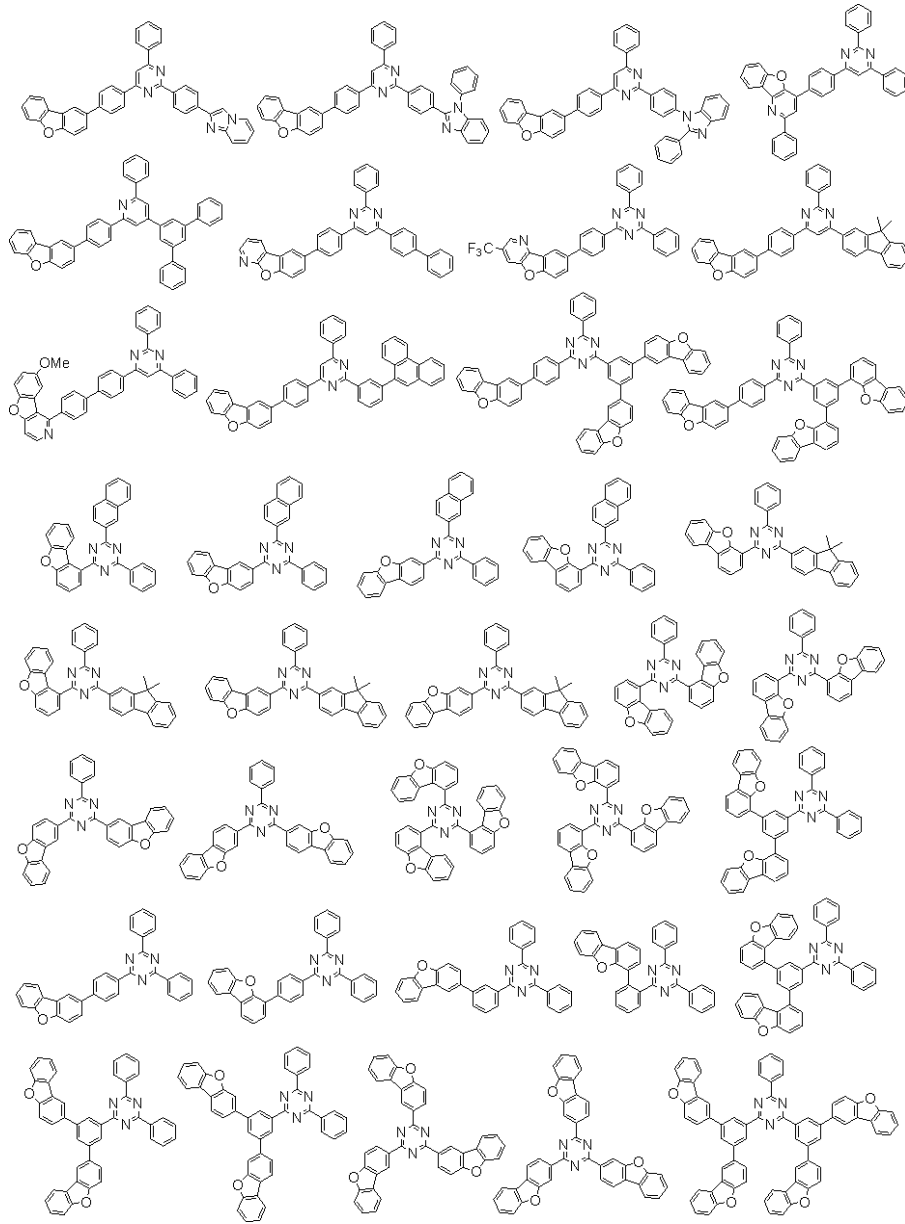
10

20

30

【 0 1 6 6 】

【化 7 5】



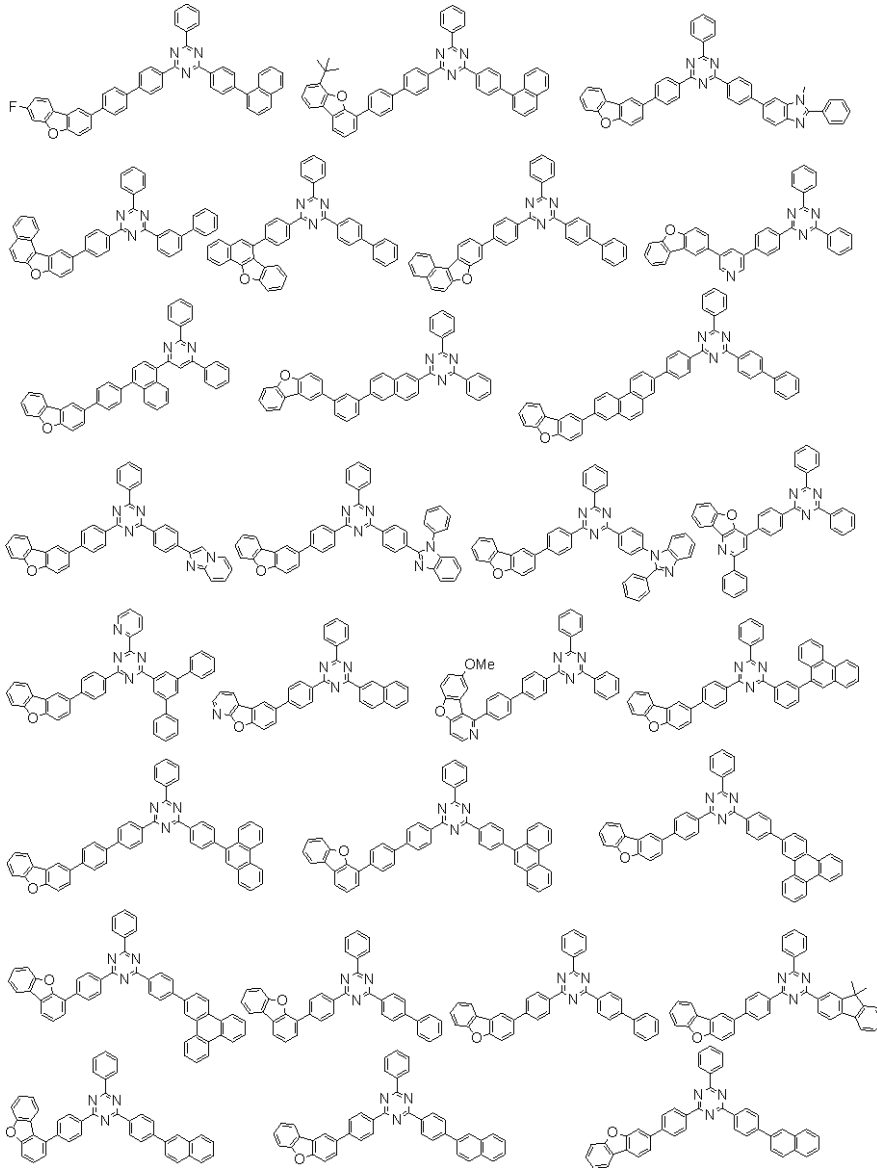
10

20

30

【 0 1 6 7 】

【化76】



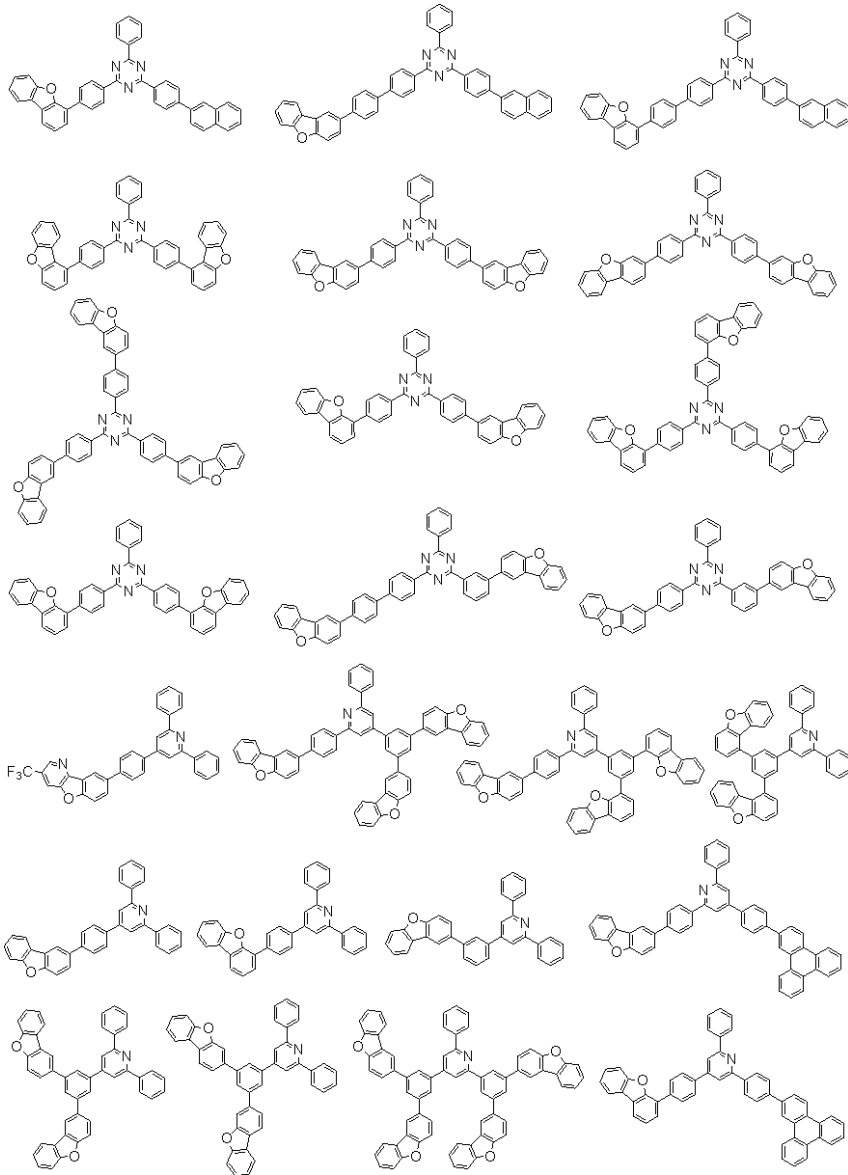
10

20

30

【0168】

【化 7 7】



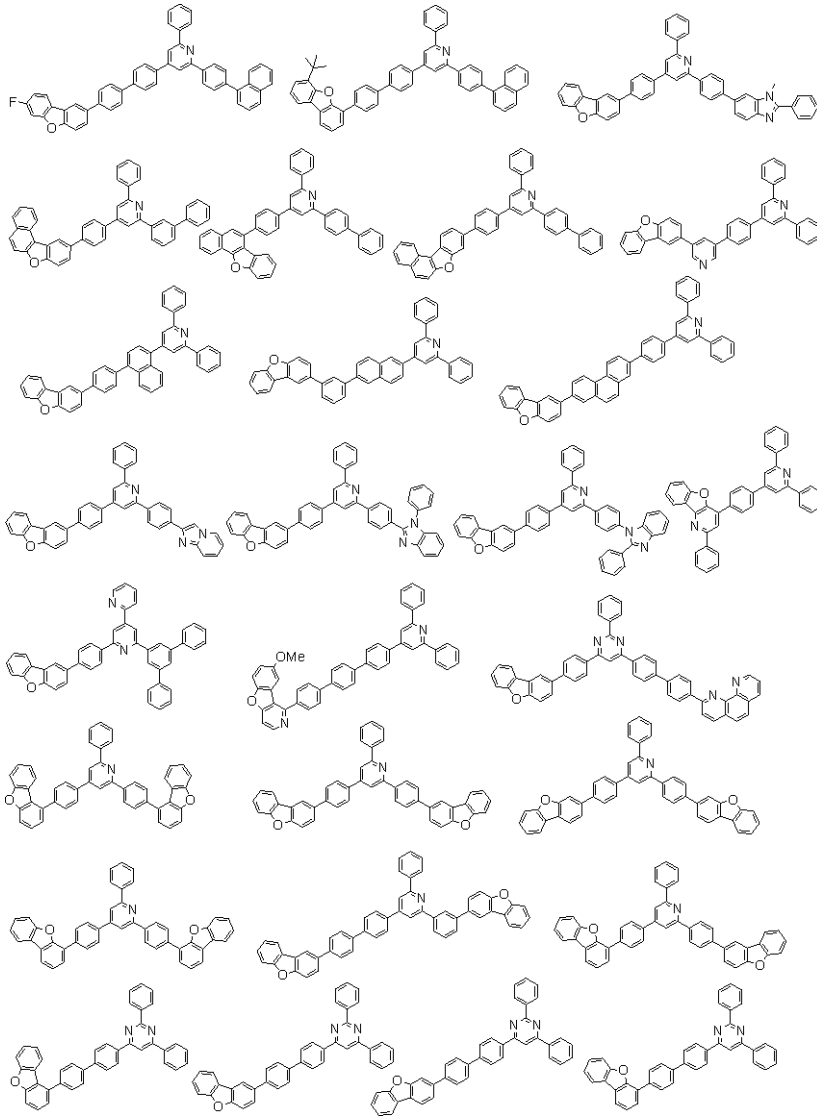
10

20

30

【 0 1 6 9 】

【化 7 8】



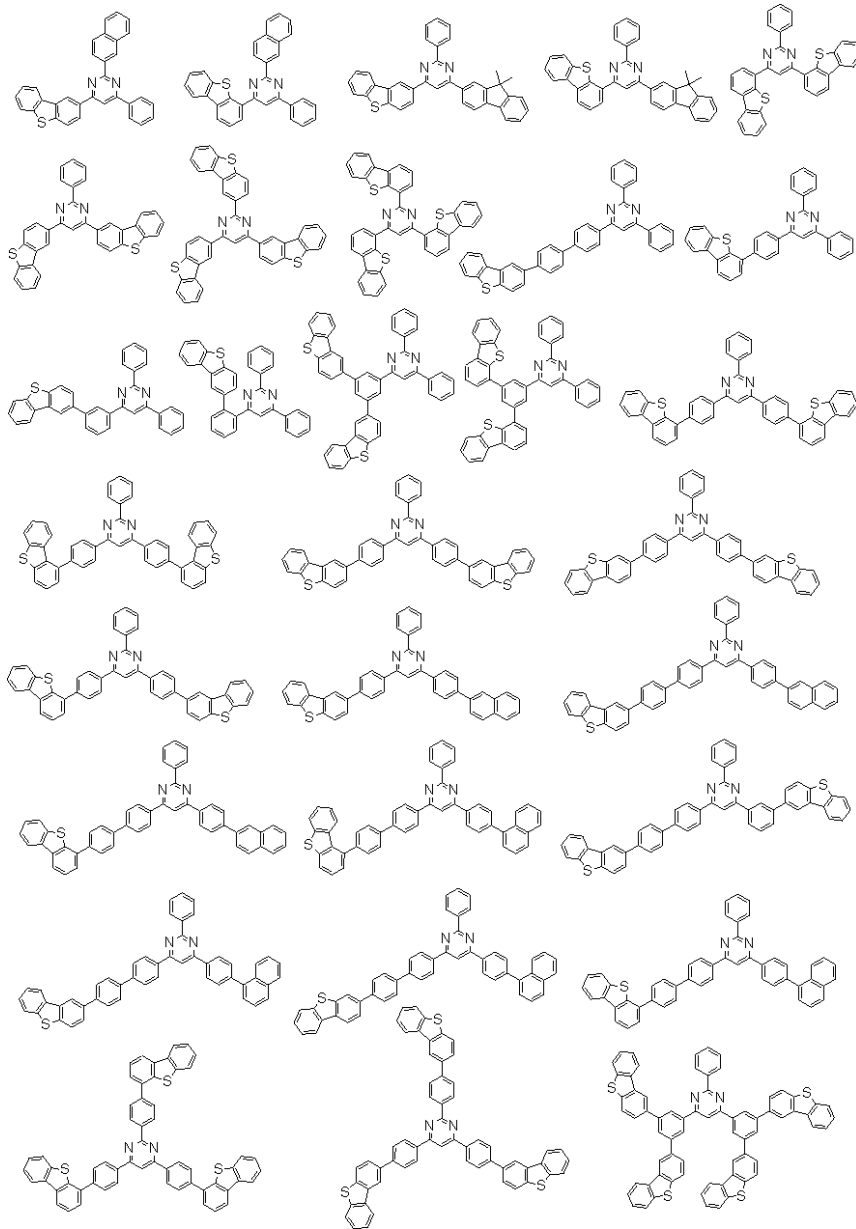
10

20

30

【 0 1 7 0 】

【化79】



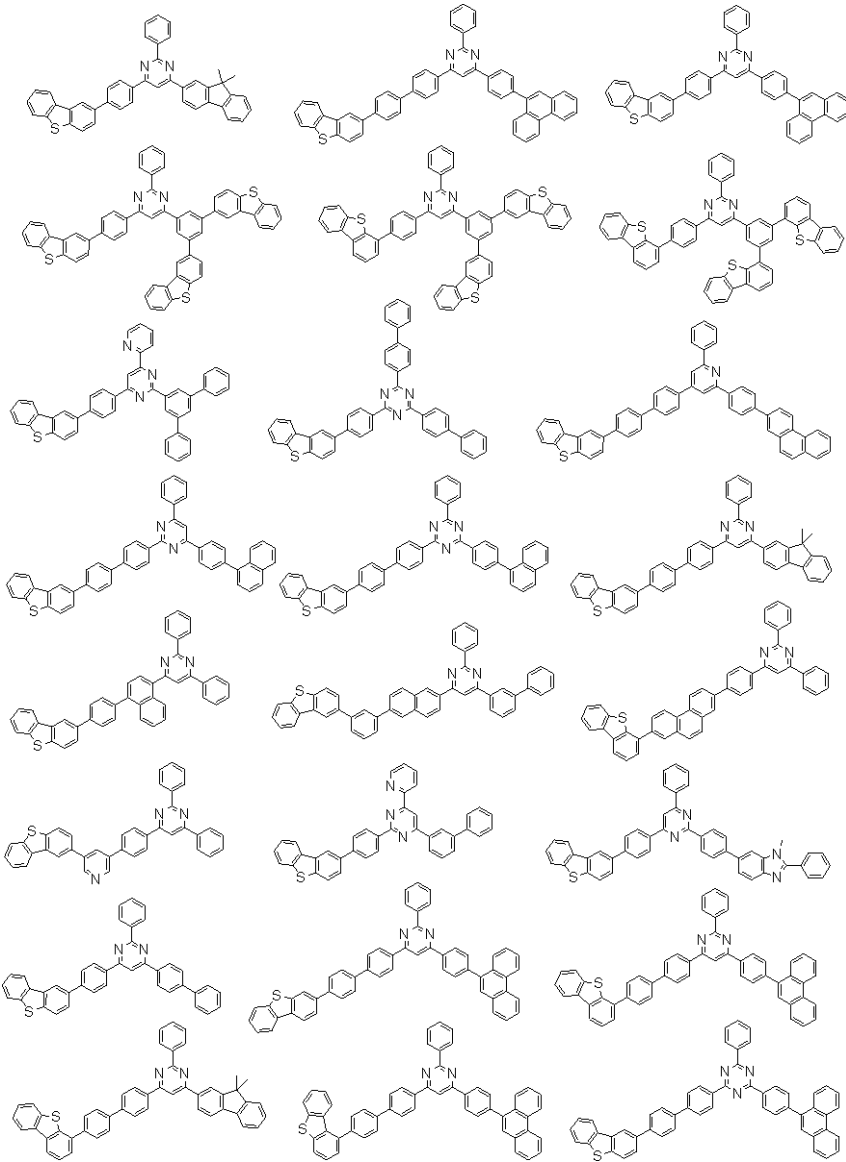
10

20

30

【0171】

【化 8 0】



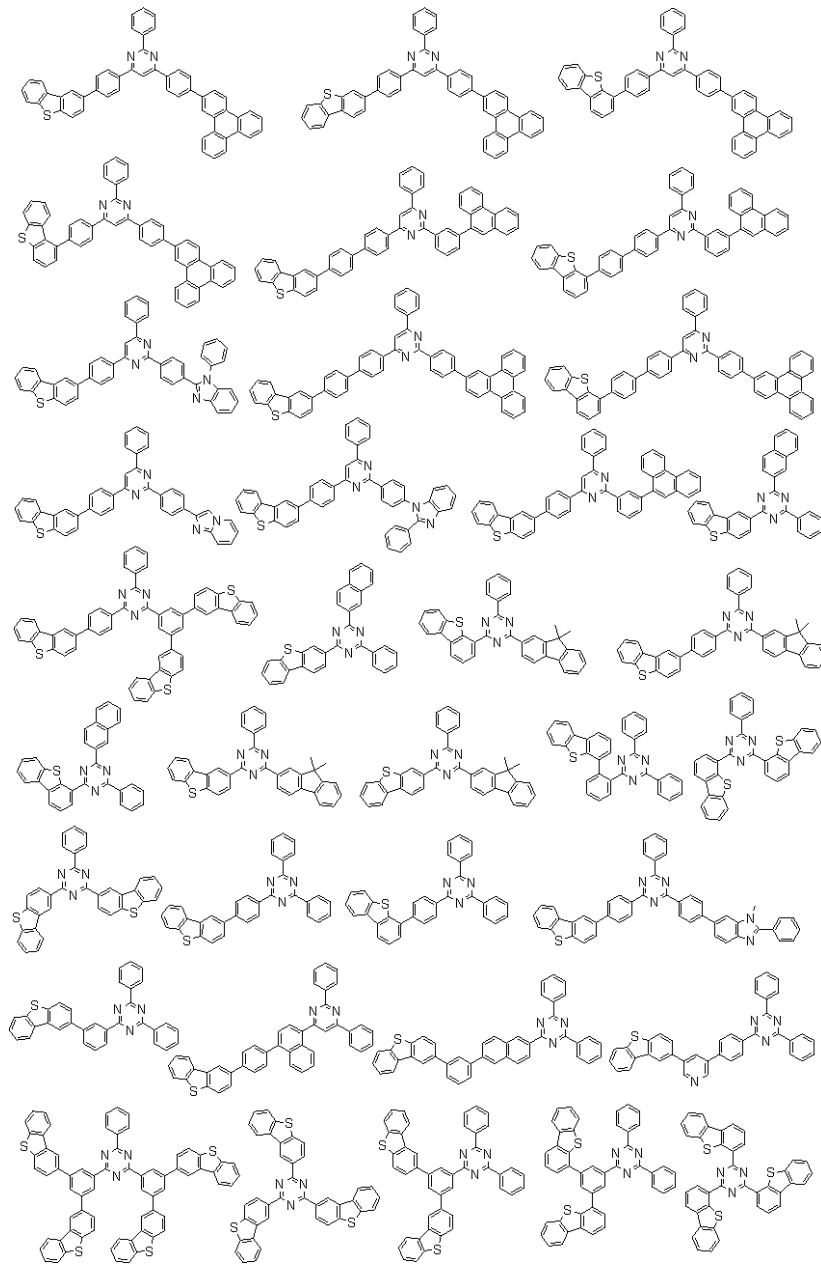
10

20

30

【 0 1 7 2】

【化 8 1】



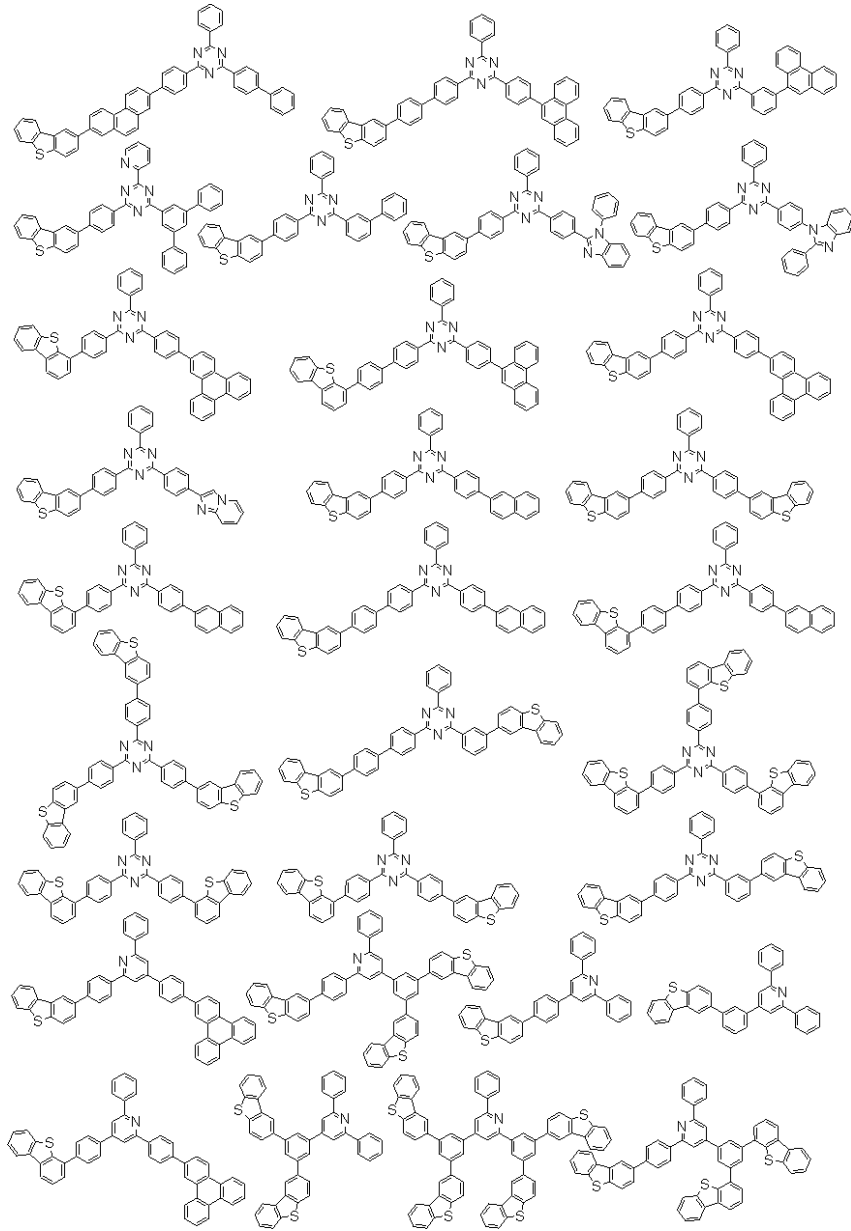
10

20

30

【 0 1 7 3】

【化 8 2】



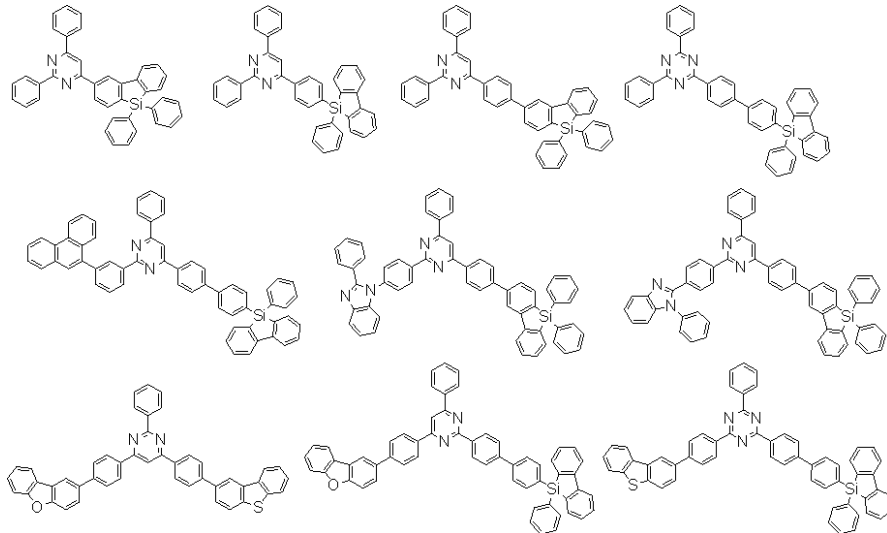
10

20

30

【 0 1 7 4】

【化 8 3】

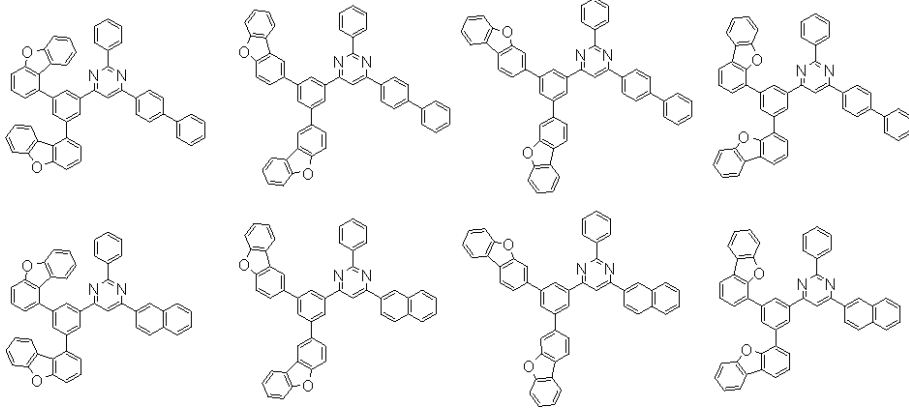


40

【 0 1 7 5】

50

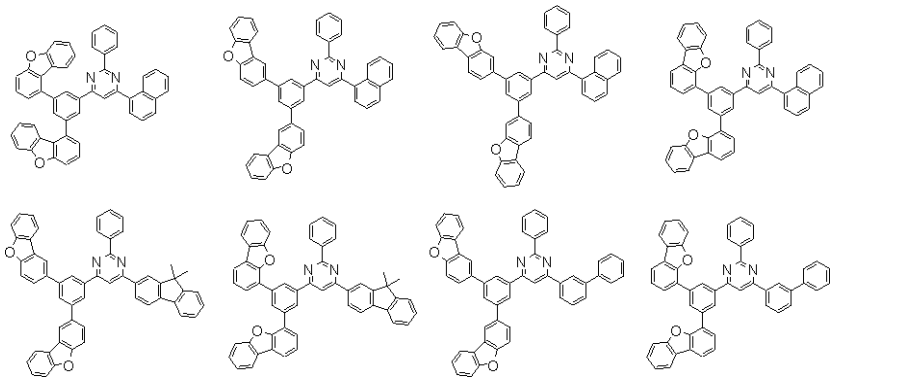
【化 8 4】



10

【 0 1 7 6】

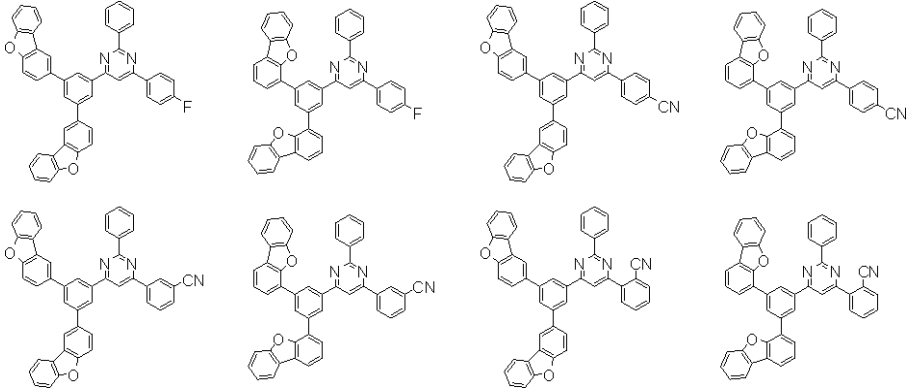
【化 8 5】



20

【 0 1 7 7】

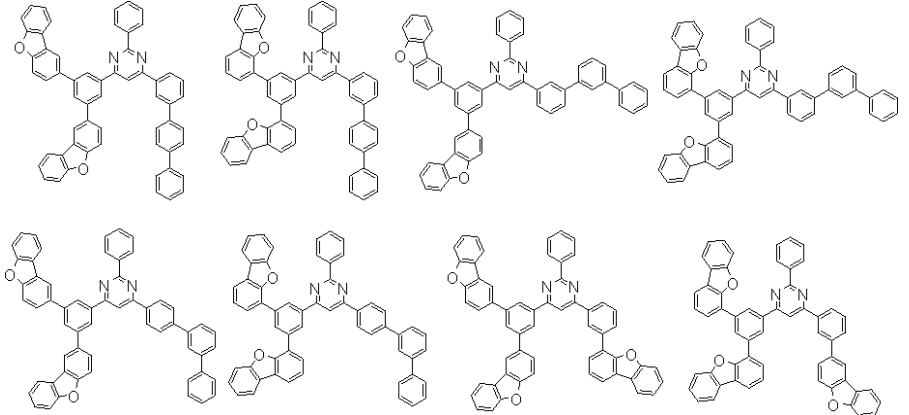
【化 8 6】



30

【 0 1 7 8】

【化 8 7】

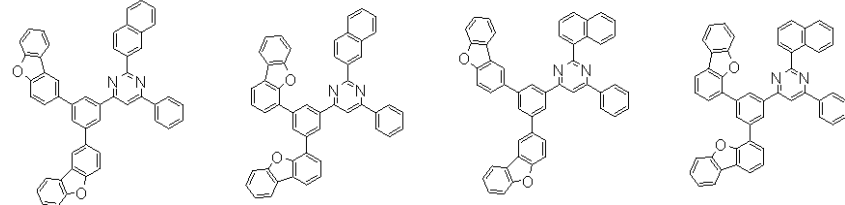
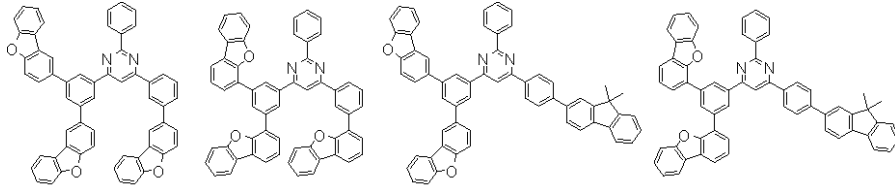


40

【 0 1 7 9】

50

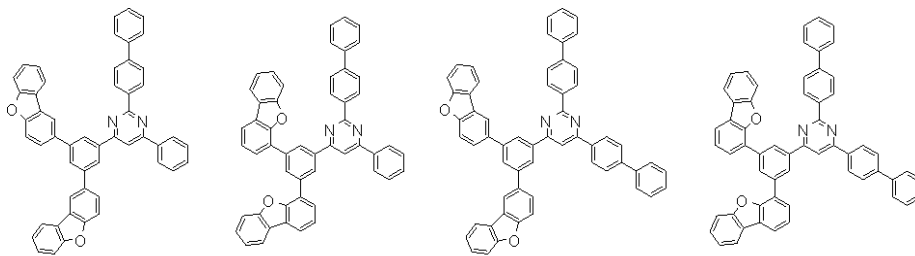
【化 8 8】



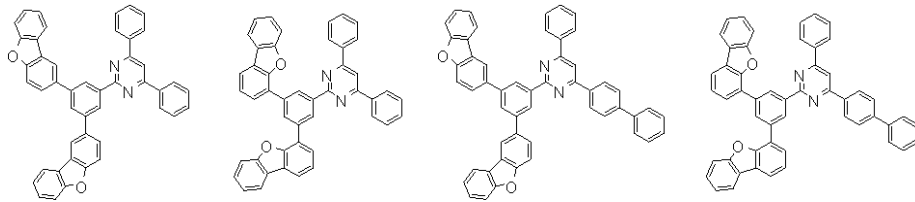
10

【 0 1 8 0】

【化 8 9】

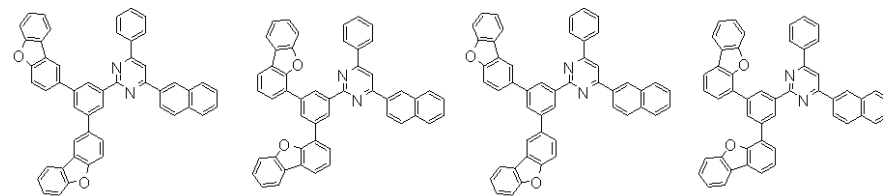


20

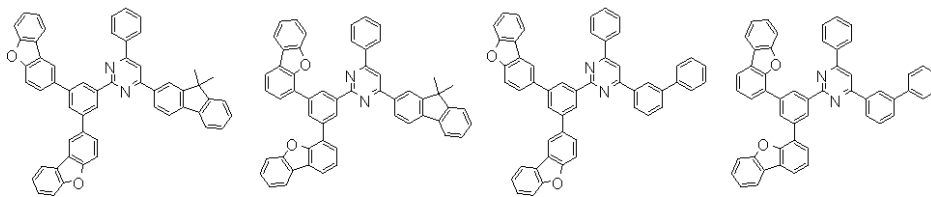


【 0 1 8 1】

【化 9 0】



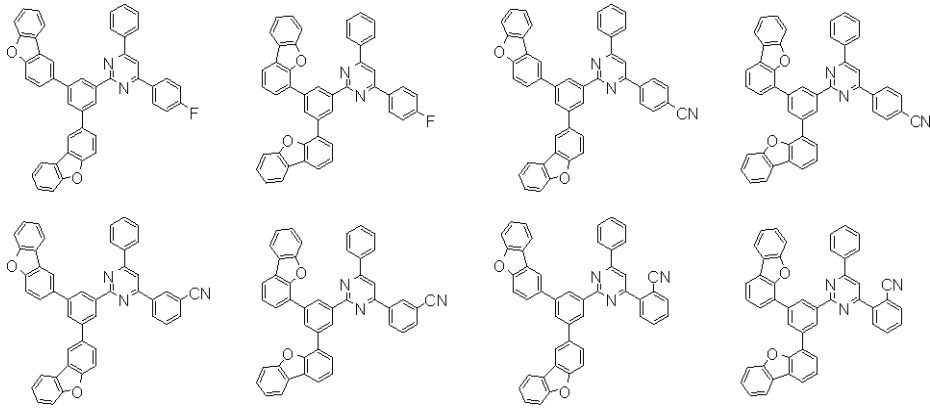
30



【 0 1 8 2】

40

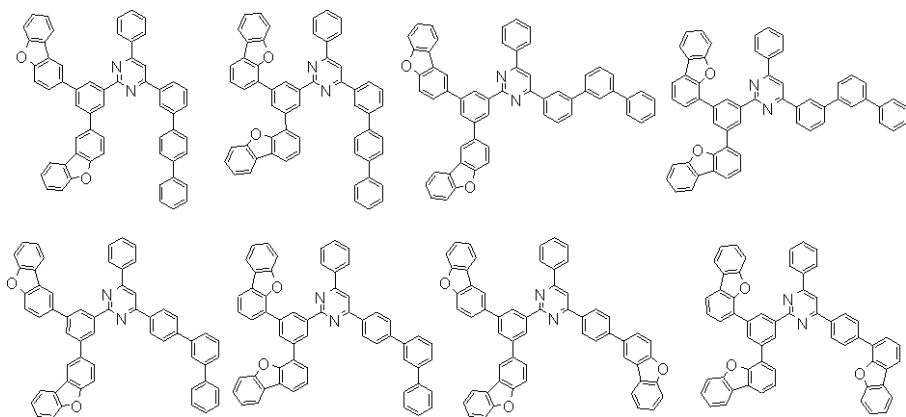
【化 9 1】



10

【 0 1 8 3】

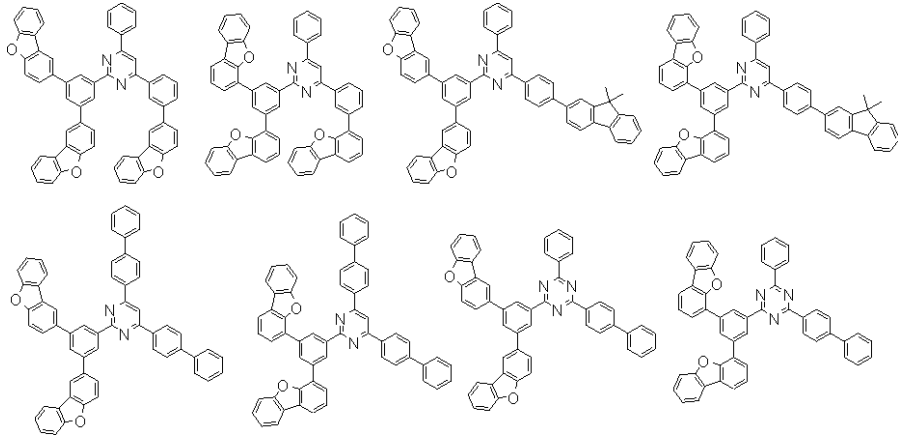
【化 9 2】



20

【 0 1 8 4】

【化 9 3】

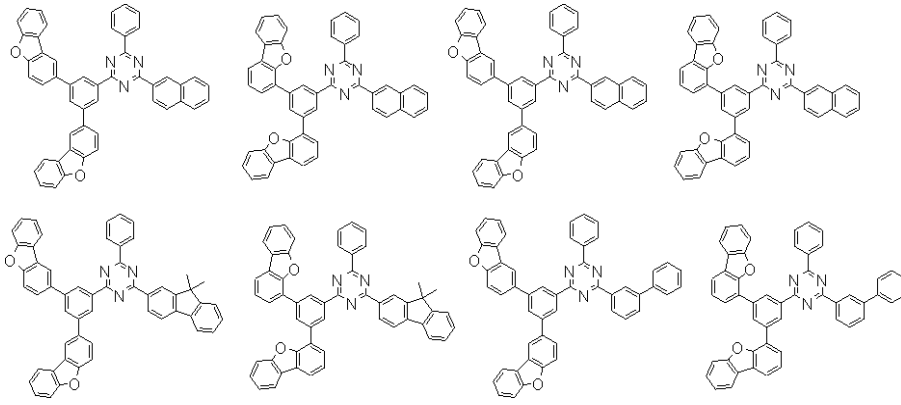


30

【 0 1 8 5】

40

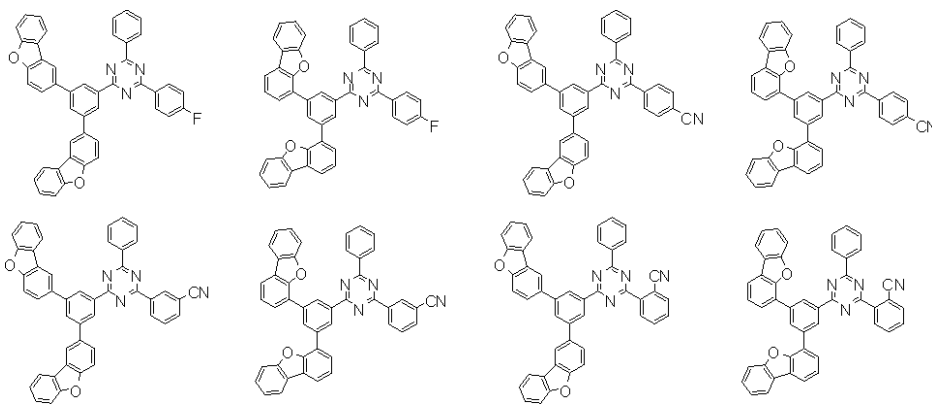
【化94】



10

【0186】

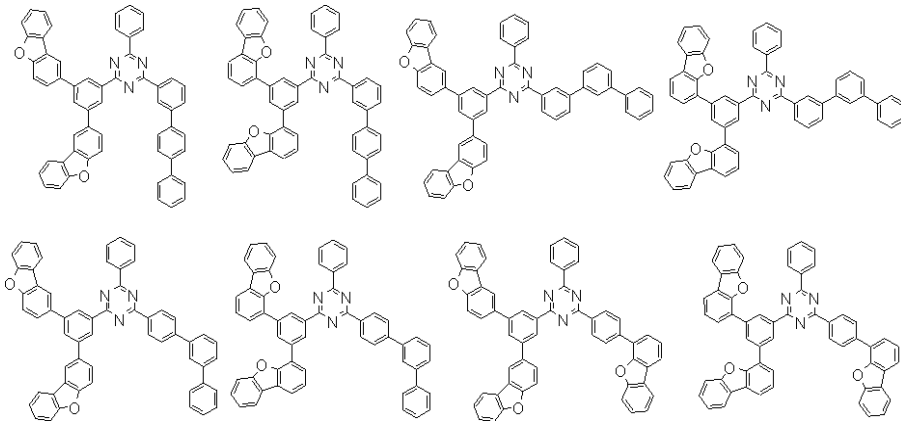
【化95】



20

【0187】

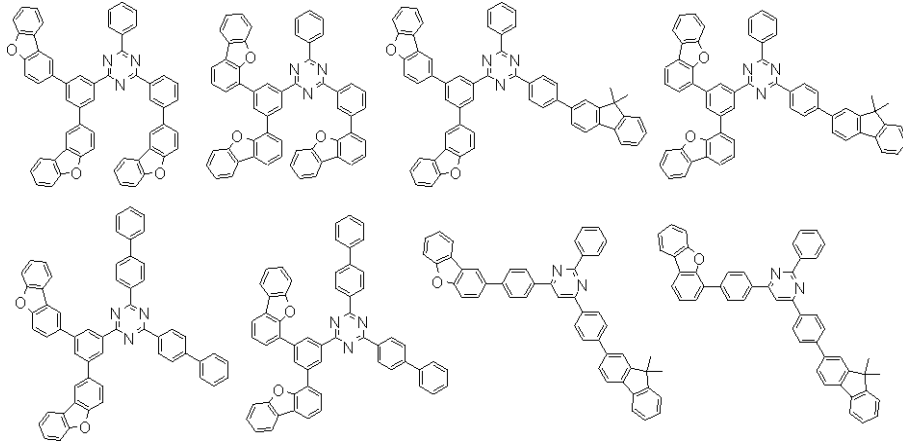
【化96】



30

【0188】

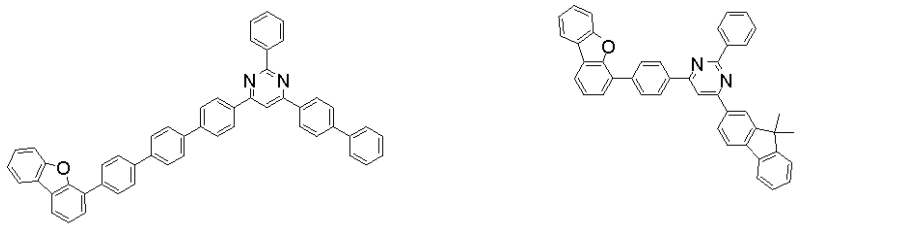
【化97】



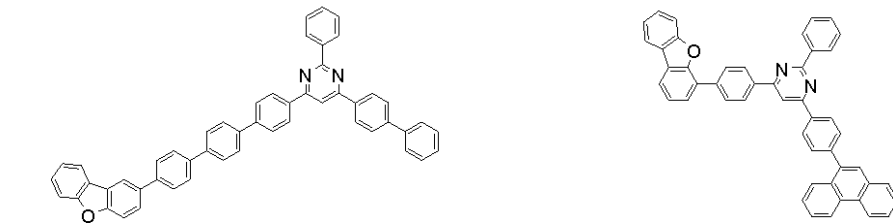
10

【0189】

【化98】



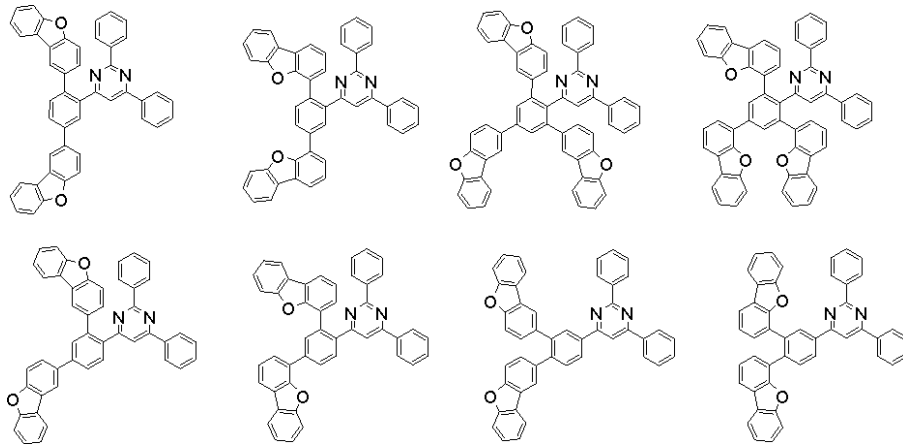
20



30

【0190】

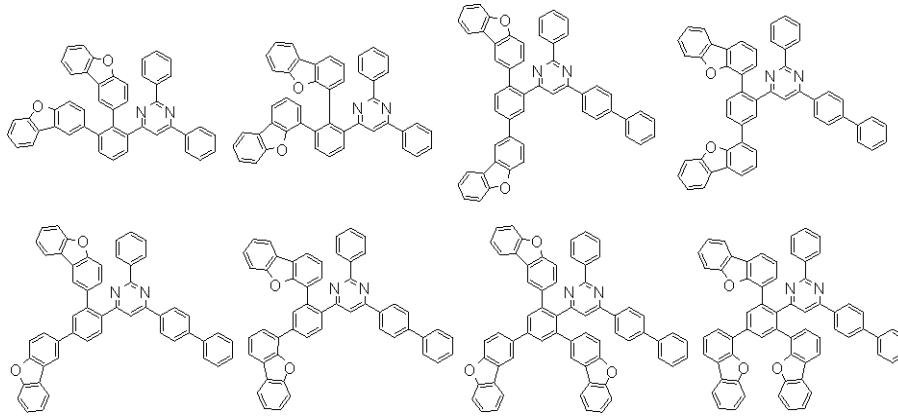
【化99】



40

【0191】

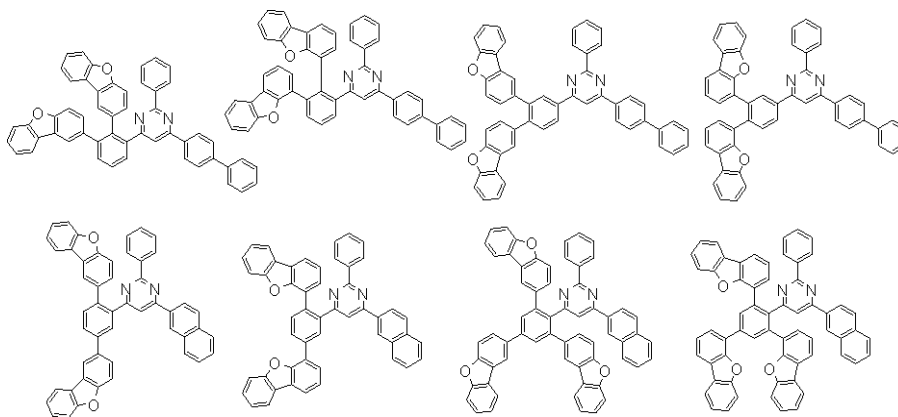
【化100】



10

【0192】

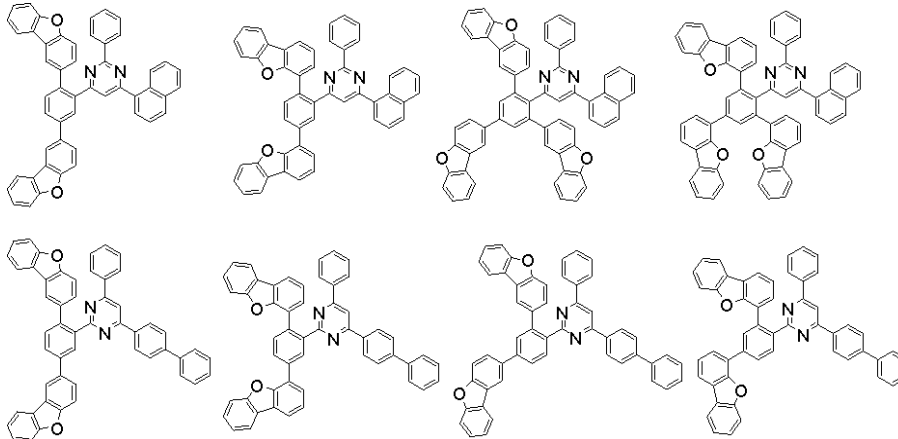
【化101】



20

【0193】

【化102】

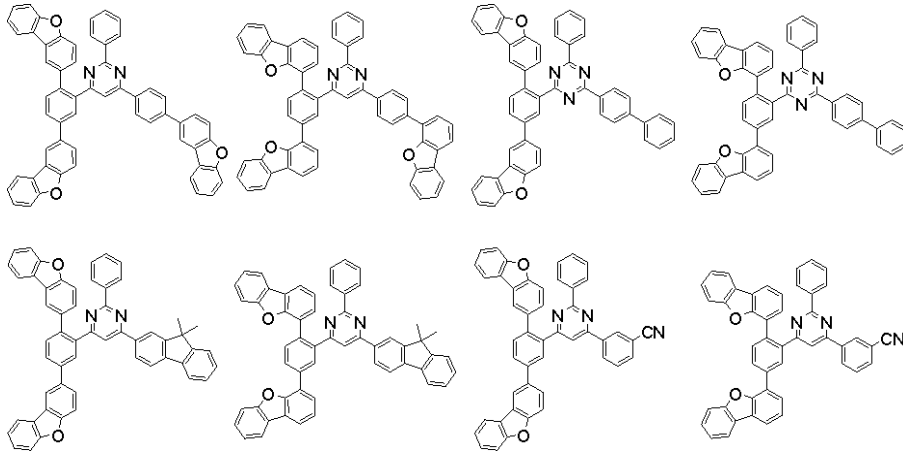


30

【0194】

40

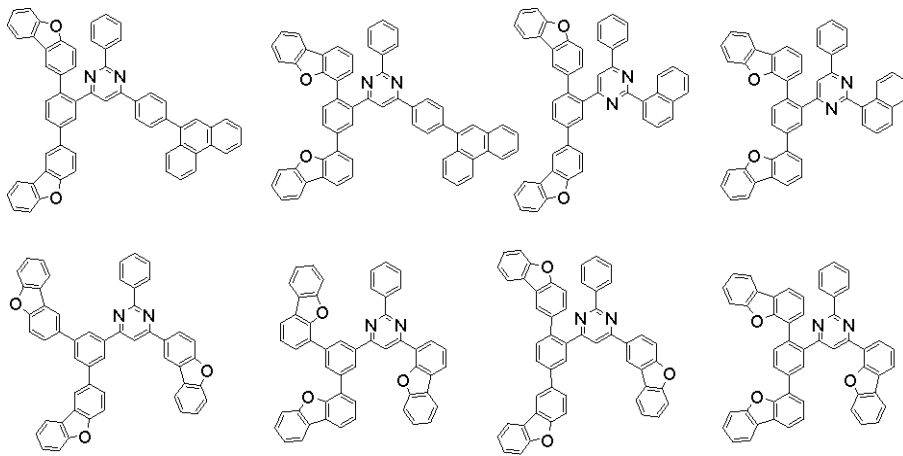
【化103】



10

【0195】

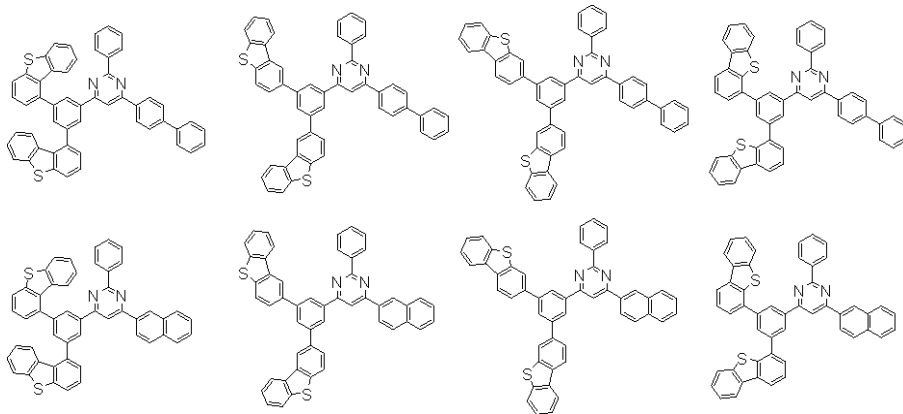
【化104】



20

【0196】

【化105】

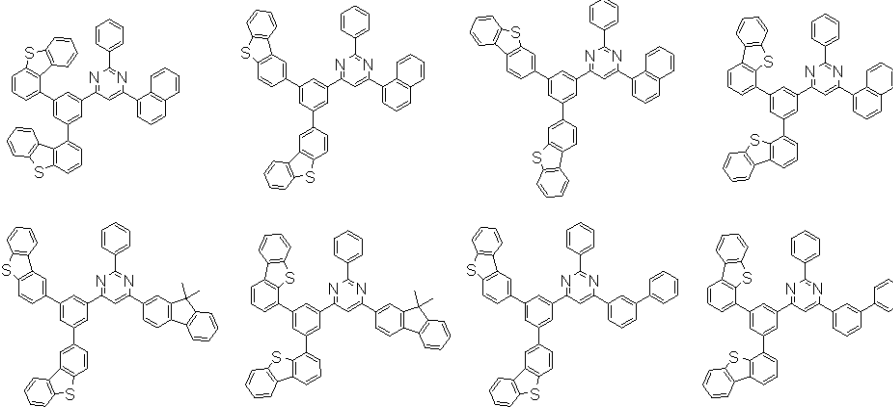


30

【0197】

40

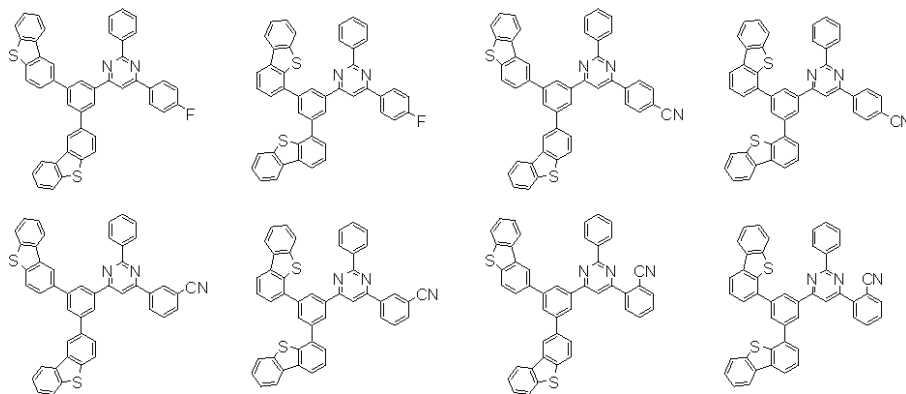
【化106】



10

【0198】

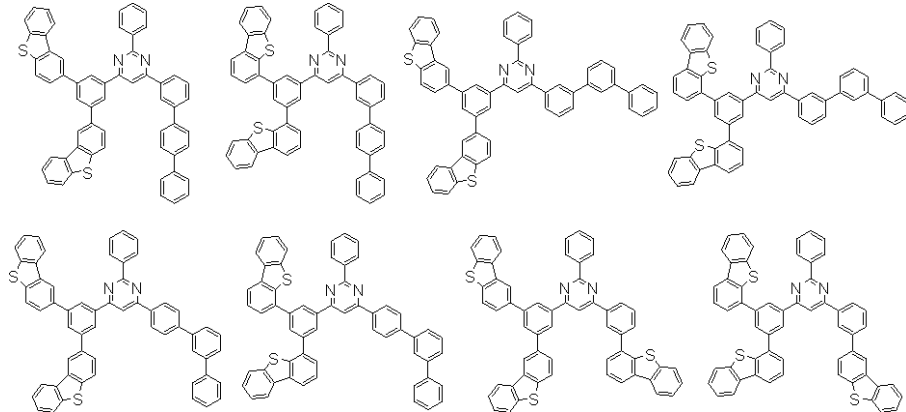
【化107】



20

【0199】

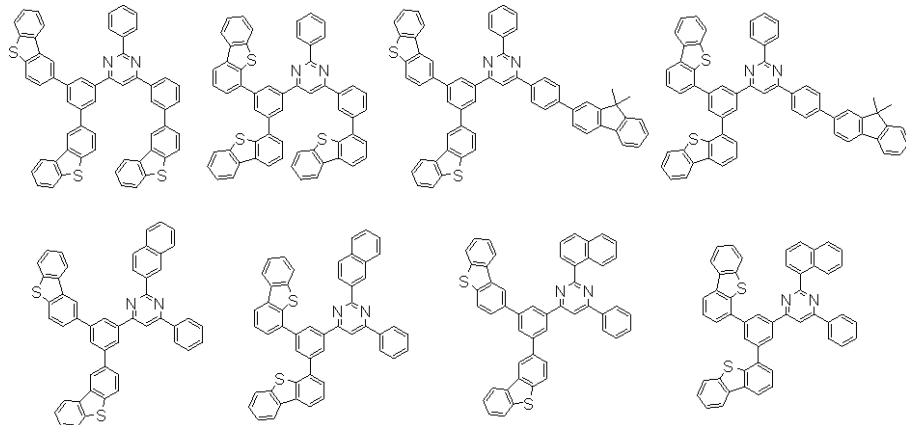
【化108】



30

【0200】

【化109】

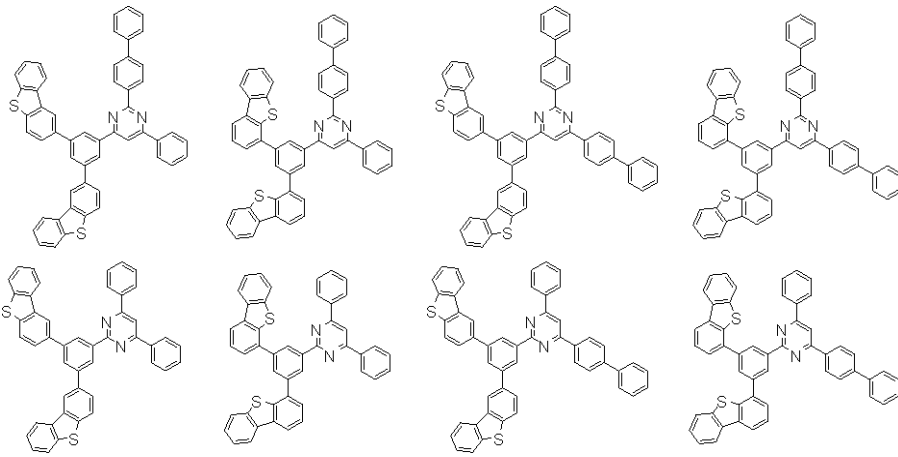


40

50

【 0 2 0 1 】

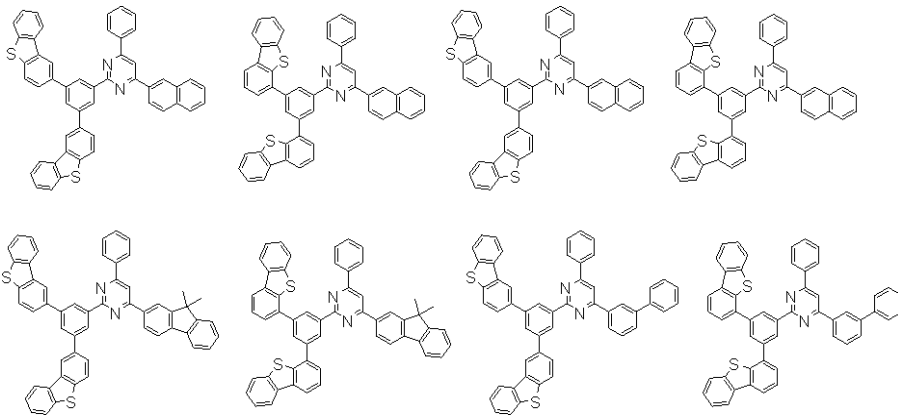
【 化 1 1 0 】



10

【 0 2 0 2 】

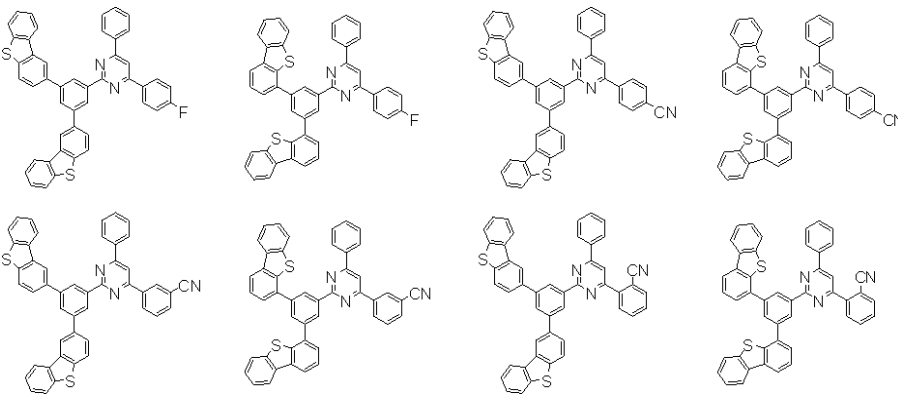
【 化 1 1 1 】



20

【 0 2 0 3 】

【 化 1 1 2 】

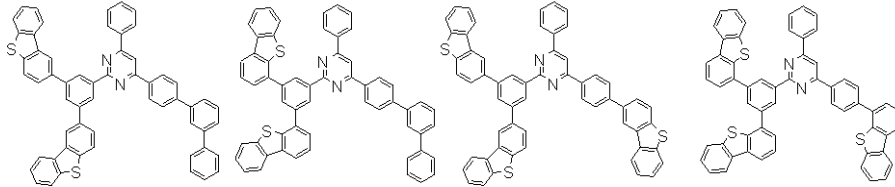
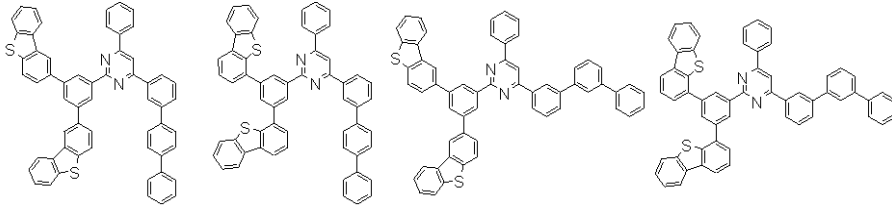


30

【 0 2 0 4 】

40

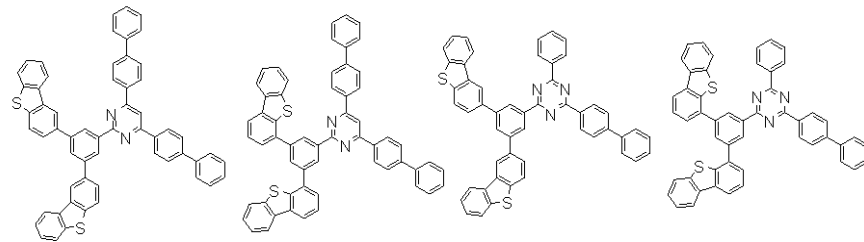
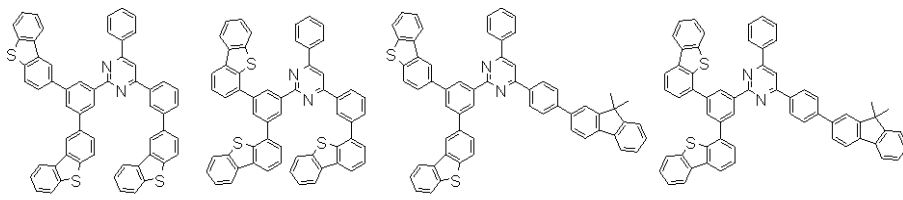
【化 1 1 3】



10

【 0 2 0 5】

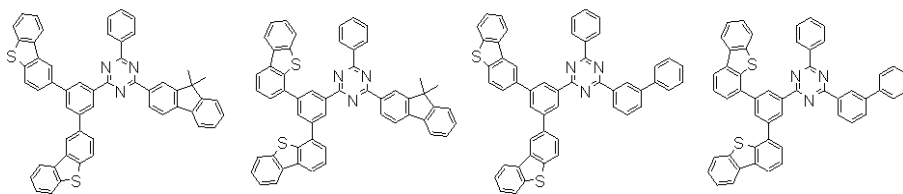
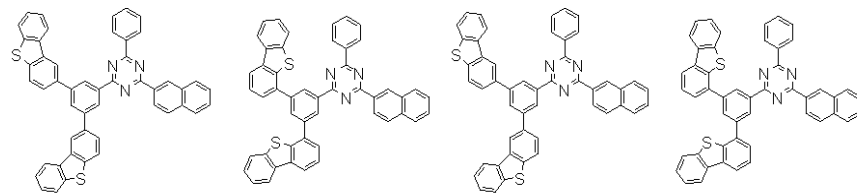
【化 1 1 4】



20

【 0 2 0 6】

【化 1 1 5】

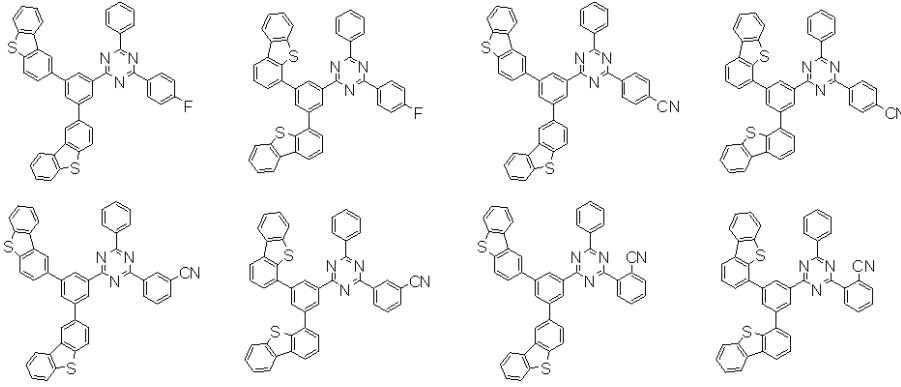


30

【 0 2 0 7】

40

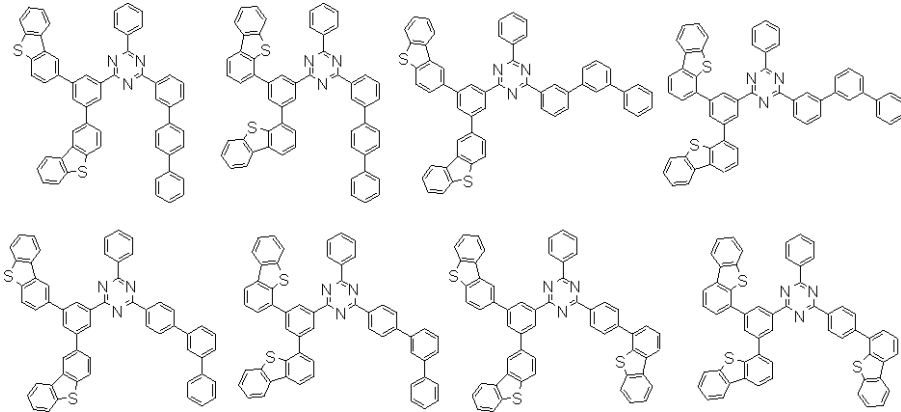
【化 1 1 6】



10

【 0 2 0 8】

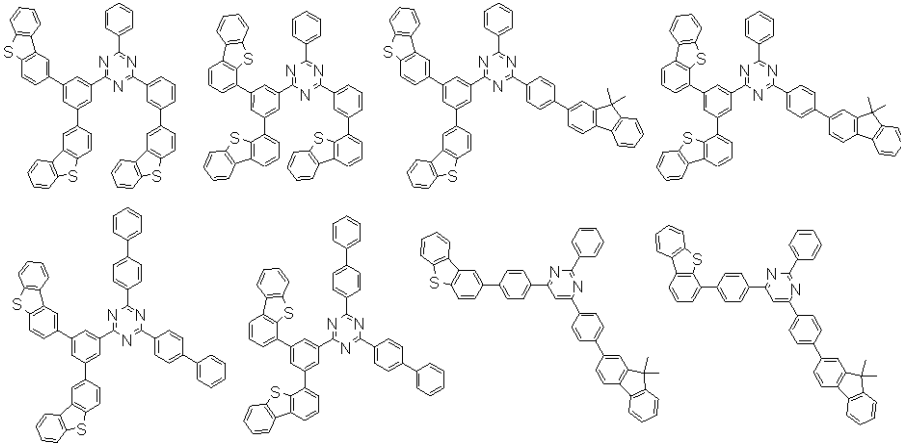
【化 1 1 7】



20

【 0 2 0 9】

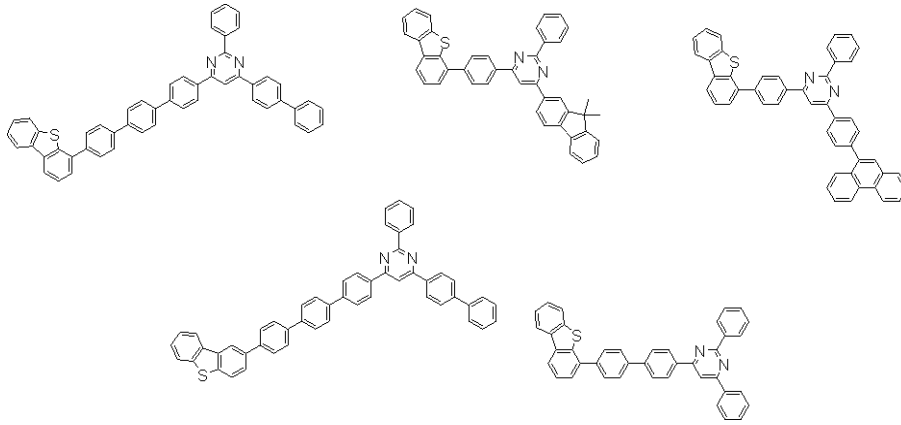
【化 1 1 8】



30

【 0 2 1 0】

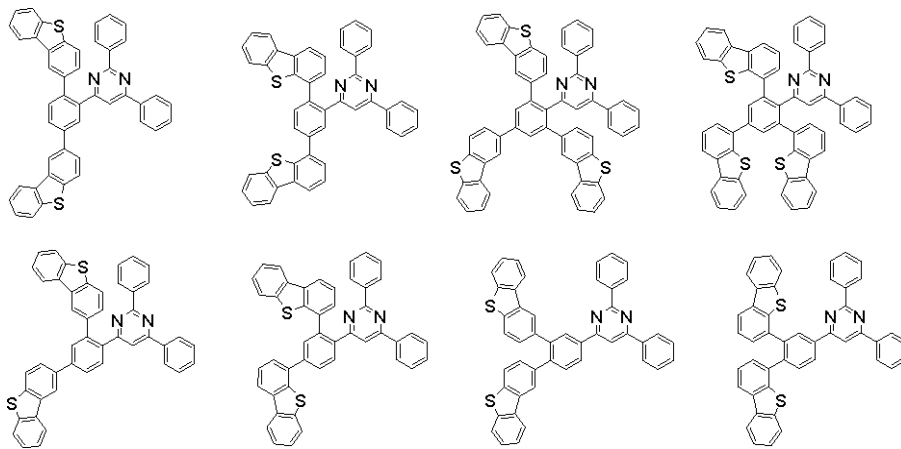
【化119】



10

【0211】

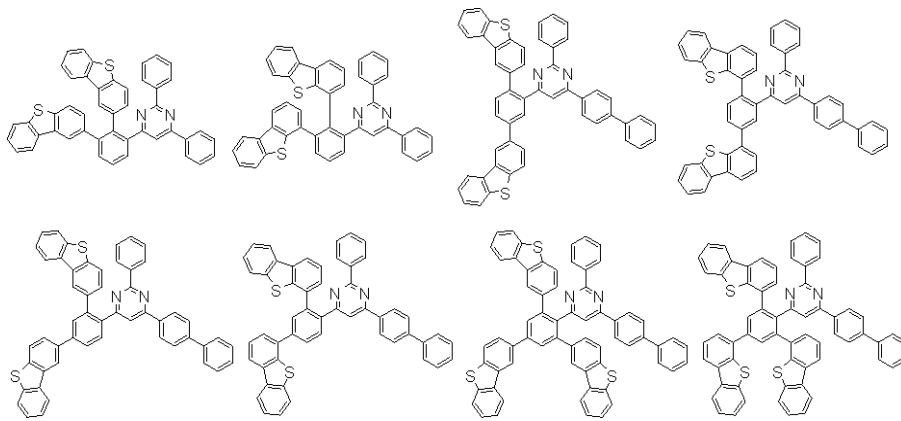
【化120】



20

【0212】

【化121】

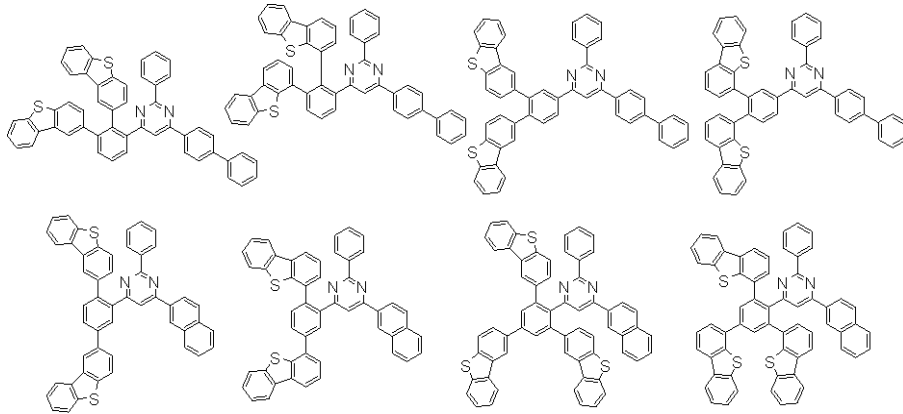


30

【0213】

40

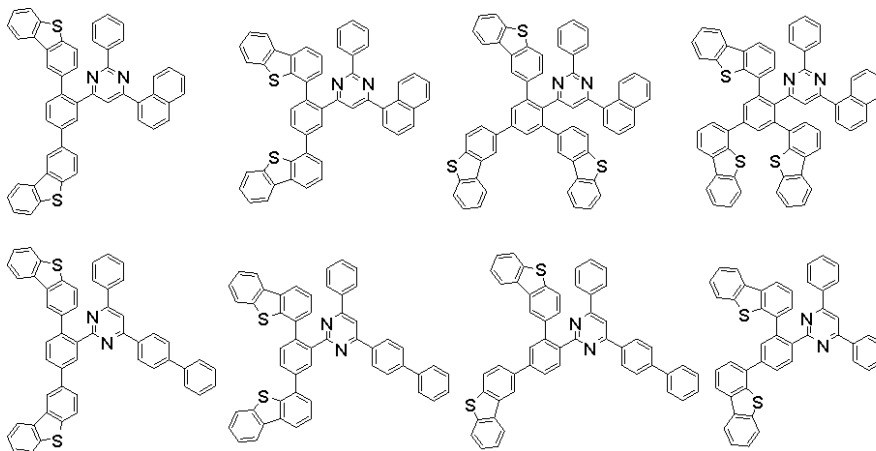
【化 1 2 2】



10

【 0 2 1 4】

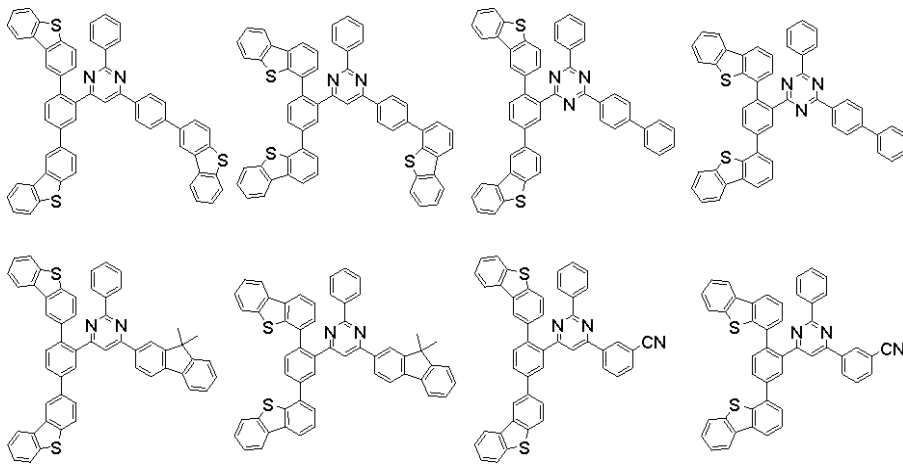
【化 1 2 3】



20

【 0 2 1 5】

【化 1 2 4】



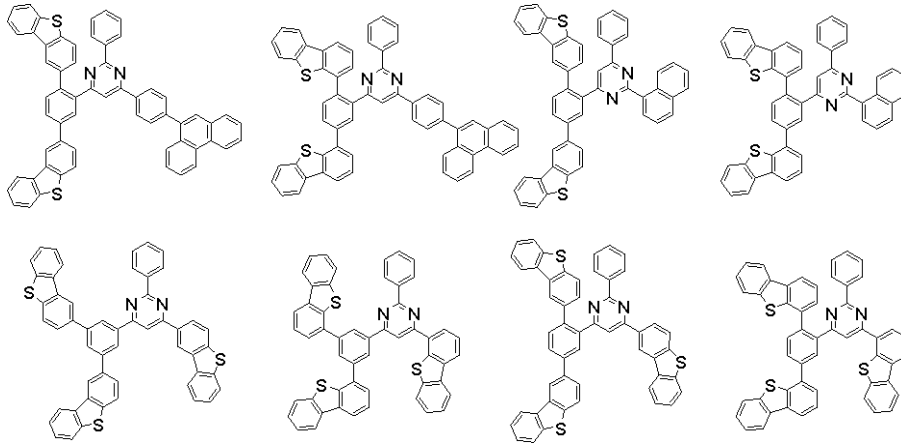
30

【 0 2 1 6】



40

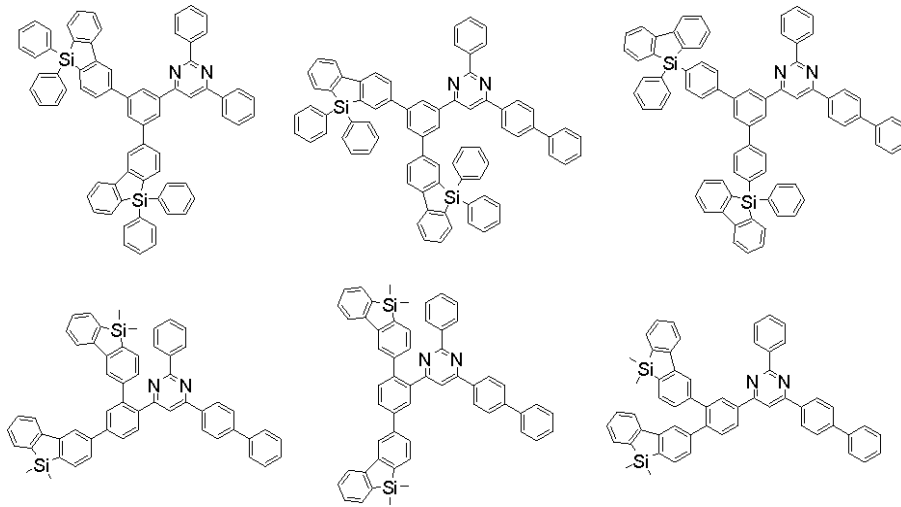
【化 1 2 5】



10

【 0 2 1 7】

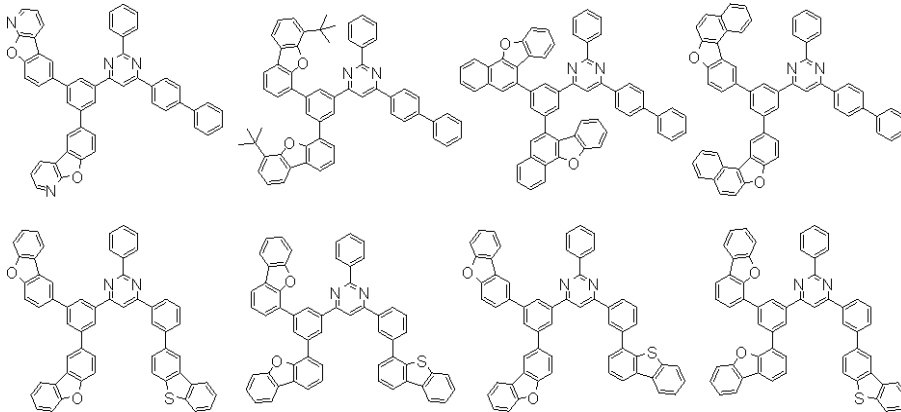
【化 1 2 6】



20

【 0 2 1 8】

【化 1 2 7】

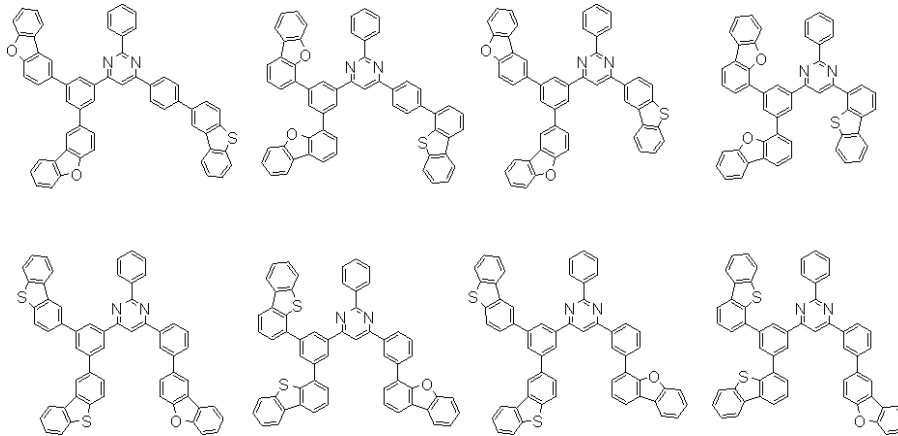


30

【 0 2 1 9】

40

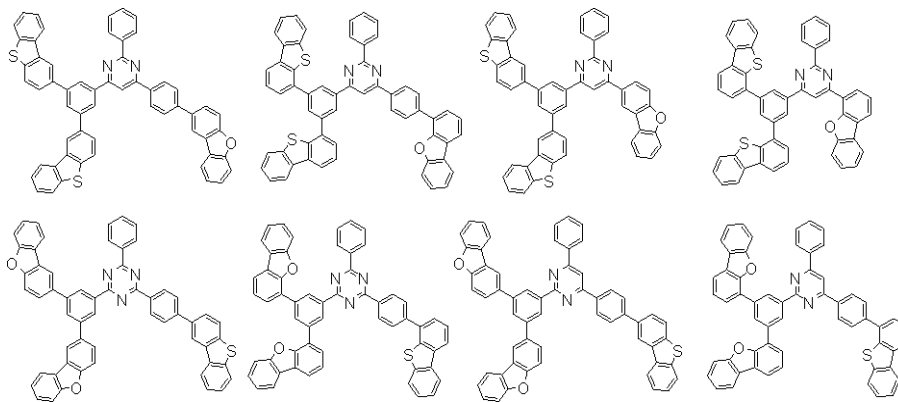
## 【化 1 2 8】



10

## 【 0 2 2 0】

## 【化 1 2 9】



20

## 【 0 2 2 1】

本実施形態の有機 E L 素子 1 は、上述のとおり障壁層 3 0 と陰極 5 0 との間に、電子注入層 4 0 を備える。この電子注入層 4 0 に、上記一般式 ( 1 ) で表される芳香族複素環誘導体を含むことが好ましい。この場合、障壁層 3 0 に含まれる芳香族複素環誘導体と、電子注入層 4 0 に含まれる芳香族複素環誘導体とが同一としてもよいし、異なるものであってもよい。

30

## 【 0 2 2 2】

電子注入層は、陰極からの電子注入を容易にするためのものである。具体例としては、通常の電子輸送材と、電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかとの積層したものや、障壁層を形成する材料に、電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかを電子注入層の中の陰極界面近傍に添加したものをを用いることができる。

## 【 0 2 2 3】

電子供与性ドーパント材料としては、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、および希土類金属化合物などから選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

40

有機金属錯体としては、アルカリ金属を含む有機金属錯体、アルカリ土類金属を含む有機金属錯体、および希土類金属を含む有機金属錯体などから選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

## 【 0 2 2 4】

アルカリ金属としては、リチウム ( L i ) ( 仕事関数 : 2 . 9 3 e V ) 、ナトリウム ( N a ) ( 仕事関数 : 2 . 3 6 e V ) 、カリウム ( K ) ( 仕事関数 : 2 . 2 8 e V ) 、ルビジウム ( R b ) ( 仕事関数 : 2 . 1 6 e V ) 、セシウム ( C s ) ( 仕事関数 : 1 . 9 5 e V ) などが挙げられ、仕事関数が 2 . 9 e V 以下のものが特に好ましい。これらのうち好

50

ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRbまたは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、カルシウム(Ca) (仕事関数: 2.9 eV)、ストロンチウム(Sr) (仕事関数: 2.0 eV以上2.5 eV以下)、バリウム(Ba) (仕事関数: 2.52 eV)などが挙げられ、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、スカンジウム(Sc)、イットリウム(Y)、セリウム(Ce)、テルビウム(Tb)、イッテルビウム(Yb)などが挙げられ、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。

#### 【0225】

アルカリ金属化合物としては、酸化リチウム(Li<sub>2</sub>O)、酸化セシウム(Cs<sub>2</sub>O)、酸化カリウム(K<sub>2</sub>O)などのアルカリ酸化物、フッ化リチウム(LiF)、フッ化ナトリウム(NaF)、フッ化セシウム(CsF)、フッ化カリウム(KF)などのアルカリハロゲン化合物などが挙げられ、フッ化リチウム(LiF)、酸化リチウム(Li<sub>2</sub>O)、フッ化ナトリウム(NaF)が好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、酸化バリウム(BaO)、酸化ストロンチウム(SrO)、酸化カルシウム(CaO)およびこれらを混合したストロンチウム酸バリウム(Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>O) (0 < x < 1)、カルシウム酸バリウム(Ba<sub>x</sub>Ca<sub>1-x</sub>O) (0 < x < 1)などが挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。

希土類金属化合物としては、フッ化イッテルビウム(YbF<sub>3</sub>)、フッ化スカンジウム(ScF<sub>3</sub>)、酸化スカンジウム(ScO<sub>3</sub>)、酸化イットリウム(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化セリウム(Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、フッ化ガドリニウム(GdF<sub>3</sub>)、フッ化テルビウム(TbF<sub>3</sub>)などが挙げられ、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>が好ましい。

#### 【0226】

有機金属錯体としては、上記の通り、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、 $\beta$ -ジケトン類、アゾメチン類、およ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。

#### 【0227】

電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の添加形態としては、界面領域に層状または島状に形成することが好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体還元ドーパント材料の少なくともいずれかを分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で有機物:電子供与性ドーパント,有機金属錯体 = 100:1から1:100まで、好ましくは5:1から1:5までである。

電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれか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以上15 nm以下で形成する。

電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかを単独で抵抗加熱蒸着法により

10

20

30

40

50

蒸着し、好ましくは島の厚み 0.05 nm 以上 1 nm 以下で形成する。

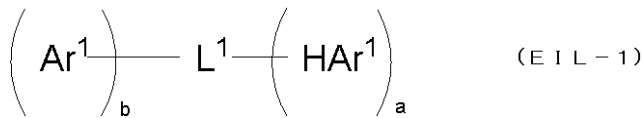
また、本実施形態の有機 EL 素子における、主成分と電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体の少なくともいずれかとの割合としては、モル比で主成分：電子供与性ドーパント、有機金属錯体 = 5 : 1 から 1 : 5 までであると好ましく、2 : 1 から 1 : 2 までであるとさらに好ましい。

【0228】

また、電子注入層に用いられる電子供与性ドーパント材料および有機金属錯体以外の化合物としては、下記一般式 (EIL-1) で表される化合物が挙げられる。

【0229】

【化130】

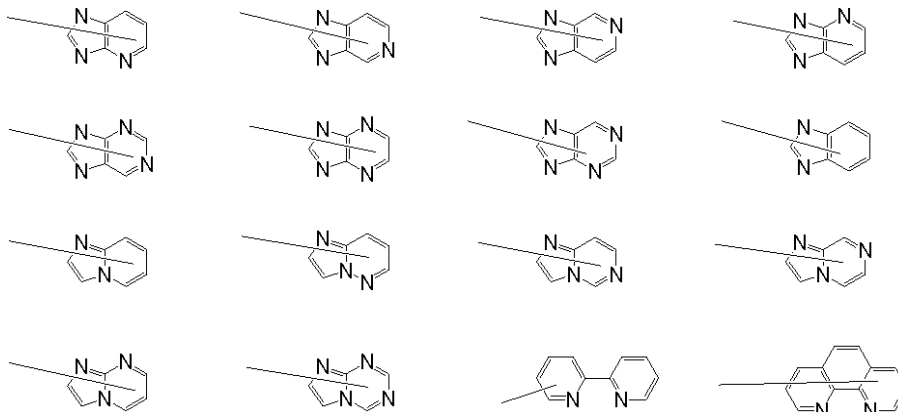


【0230】

一般式 (EIL-1) において、HAr<sup>1</sup> は、置換もしくは無置換の含窒素複素環基であり、好ましくは下記式の構造である。

【0231】

【化131】



【0232】

一般式 (EIL-1) における HAr<sup>1</sup> の置換基としては、

フッ素原子、

シアノ基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 30 のアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基

などが挙げられる。

【0233】

一般式 (EIL-1) において、Ar<sup>1</sup> は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 10 ~ 30 の縮合環基であり、好ましくは下記の縮合環構造を有する物である。

【0234】

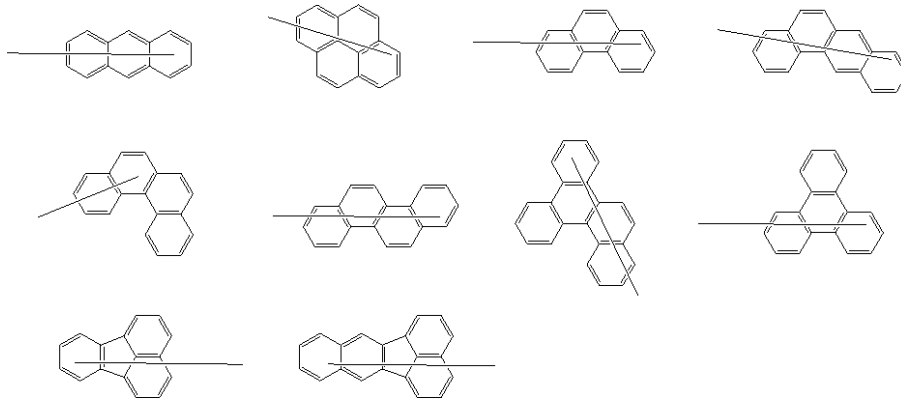
10

20

30

40

## 【化 1 3 2】



10

## 【 0 2 3 5】

一般式 ( E I L - 1 ) における  $A r^1$  の置換基としては、  
 フッ素原子、  
 シアノ基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 のアルキルシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 30 のアリールシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリールオキシ基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、又は  
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基

20

などが挙げられる。

## 【 0 2 3 6】

一般式 ( E I L - 1 ) において  $L^1$  は、  
 単結合、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の a + b 価の炭化水素環基、  
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の a + b 価の複素環基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の炭化水素環基、又は  
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基が複数連結して形成される a + b 価の基を示す。

30

一般式 ( E I L - 1 ) における  $L^1$  の置換基としては、  
 フッ素原子、  
 シアノ基、

置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 のアルキルシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 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 のアリール基、又は  
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の複素環基

40

などが挙げられる。

一般式 ( E I L - 1 ) において a は、1 ~ 3 の整数であり、好ましくは、a = 1 である。

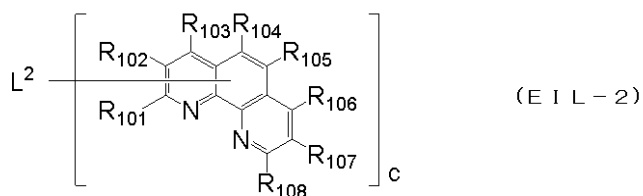
一般式 ( E I L - 1 ) において b は、1 ~ 3 の整数であり、好ましくは、b = 1 である。

## 【 0 2 3 7】

また、電子注入層に用いられる化合物としては、下記一般式 ( E I L - 2 ) で表される化合物が挙げられる。

## 【 0 2 3 8】

## 【化133】



## 【0239】

一般式(EIL-2)において、 $R_{101} \sim R_{108}$ のうち1つは単結合で $L^2$ と結合し、他は水素原子又は置換基である。

10

一般式(EIL-2)における $R_{101} \sim R_{108}$ の置換基としては、前記一般式(EIL-1)で挙げたものと同様のものが挙げられ、好ましくは炭素数1~20のアルキル基又は環形成炭素数6~30のアリール基である。

一般式(EIL-2)において、 $L^2$ は、単結合もしくは連結基を表し、連結基は $c$ 個の芳香族炭化水素基もしくは、下記一般式(EIL-2-1)により示される構造を有する $c$ 個の基である。

## 【0240】

## 【化134】



20

## 【0241】

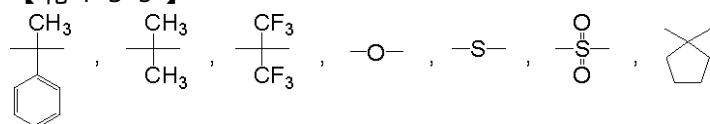
一般式(EIL-2-1)において、 $R_{109} \sim R_{110}$ は、水素原子または置換基である。

一般式(EIL-2-1)において、 $d$ 及び $e$ は、それぞれ独立に1~5の整数である。

一般式(EIL-2-1)において、 $X$ は、下記式に示される構造より選ばれる。

## 【0242】

## 【化135】



30

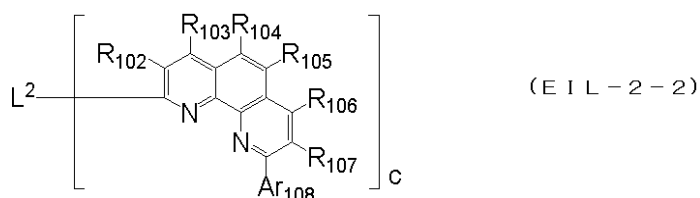
## 【0243】

一般式(EIL-2)において、 $c$ は2~4の整数であり、好ましくは $c$ は2である。

一般式(EIL-2)で示された化合物の内、好ましくは、 $R_{101}$ において $L^2$ と結合した下記一般式(EIL-2-2)で示される化合物である。

## 【0244】

## 【化136】



40

## 【0245】

一般式(EIL-2-2)において、 $R_{102} \sim R_{107}$ は水素原子又は置換基であり、好ましくは水素原子である。

一般式(EIL-2-2)において、 $c$ 及び $L^2$ は上記一般式(EIL-2)と同様である。

50

一般式 ( E I L - 2 - 2 ) において、 c は、好ましくは 2 である。

一般式 ( E I L - 2 - 2 ) において、 L <sup>2</sup> は、好ましくは置換もしくは無置換のフェニレン基又は置換もしくは無置換のナフチレン基である。

一般式 ( E I L - 2 - 2 ) において、 A r <sup>1 0 8</sup> は、水素原子、炭素数 1 ~ 2 0 のアルキル基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 3 0 のアリール基であり、さらに好ましくは、メチル基、 t - ブチル基、置換もしくは無置換のフェニル基または置換もしくは無置換のナフチル基である。

#### 【 0 2 4 6 】

さらに、 T T F 現象を効率的に起こすには、ホスト材料とドープメント材料のアフィニティの関係を以下に説明するように調整することが好ましい。以下では、ホスト材料のアフィニティを A <sub>h</sub>、ドープメント材料のアフィニティを A <sub>d</sub>、ホスト材料のイオン化ポテンシャルを I <sub>h</sub>、ドープメント材料のイオン化ポテンシャルを I <sub>d</sub> と記載する。

ここで、以下のように場合分けして説明する。

[ 1 ] A <sub>h</sub> > A <sub>d</sub> の場合

[ 2 ] A <sub>h</sub> < A <sub>d</sub> の場合

[ 3 ] A <sub>h</sub> < A <sub>d</sub> を満たすドープメント材料と A <sub>h</sub> > A <sub>d</sub> を満たすドープメント材料とが共存する場合

#### 【 0 2 4 7 】

[ 1 ] A <sub>h</sub> > A <sub>d</sub> の場合

まず、 A <sub>h</sub> > A <sub>d</sub> という関係を満たす場合について説明する。本実施形態で用いるドープメント材料は、主ピーク波長が 5 5 0 n m 以下の蛍光発光を示す蛍光発光性ドープメント材料であり、エネルギーギャップは、比較的大きくなる。したがって、 A <sub>h</sub> > A <sub>d</sub> という関係を満たすとき、同時に I <sub>h</sub> > I <sub>d</sub> という関係を満たす。そのため、ドープメント材料は、正孔トラップとして機能し易くなる。

#### 【 0 2 4 8 】

このときの発光層におけるホスト材料とドープメント材料の I <sub>p</sub> (イオン化ポテンシャル) - A <sub>f</sub> (アフィニティ) の関係を、例として図 4 に示す。図 4 において、発光層の斜線部分は、励起子密度分布を示す。図 5 ~ 図 7 についても同様である。なお、図 4 においては、 A <sub>h</sub> > A <sub>b</sub> > A <sub>e</sub> の場合における関係が示されている。

ホスト材料とのイオン化ポテンシャル差が大きくなると、ドープメント材料は、正孔トラップ性を有するようになり、三重項励起子は、ホスト材料分子上ばかりではなく、直接ドープメント材料分子上でも生成されるようになる。その結果、直接ドープメント材料上で生成する三重項励起子が多くなる。 E <sup>T</sup> <sub>h</sub> < E <sup>T</sup> <sub>d</sub> という関係になっていれば、ドープメント材料分子上の三重項励起子エネルギーは、デクスターエネルギー移動により、ホスト材料分子上に移り、結果としてすべての三重項励起子がホスト材料上に集まる。その結果、効率よく T T F 現象が起きるようになる。

#### 【 0 2 4 9 】

本実施形態において、正孔輸送帯域内に、発光層に隣接して正孔輸送層が設けられ、正孔輸送層の三重項エネルギー E <sup>T</sup> <sub>h o</sub> が、ホスト材料の三重項エネルギー E <sup>T</sup> <sub>h</sub> よりも大きいことが好ましい。

ドープメント材料が正孔トラップ性を有する場合には、正孔輸送帯域から発光層に注入された正孔は、ドープメント材料にトラップされる。そのため、再結合は、発光層中の陽極側で多く起きるようになる。従来知られている正孔輸送帯域に用いる正孔輸送材料の三重項エネルギーは、もともとホスト材料の三重項エネルギーより大きな場合が多く、正孔側における三重項励起子の拡散は、問題となっていなかった。

一方、陽極側で多く再結合が起きているとはいえ、電子輸送帯域界面での三重項励起子の密度も無視できず、このような状況においても、障壁層の三重項エネルギーを大きくすることで高効率化を図ることができるようになる。

#### 【 0 2 5 0 】

また、再結合領域を決める他の要因としては、正孔輸送帯域や電子輸送帯域のキャリア

移動度やイオン化ポテンシャル、アフィニティ、さらには膜厚がある。例えば、正孔輸送帯域よりも電子輸送帯域の膜厚が大きい場合には相対的には発光層への電子注入量が小さくなり、その結果、再結合領域が電子輸送帯域側へ偏る。このような場合に、本願のように三重項エネルギーの大きな障壁層を用いると、TTF現象をより効率的に起こすことが可能となる。

【0251】

以上のようなアフィニティの関係を満たすホスト材料とドーパント材料としては、例えば、以下の化合物から選択できる（特開2010-50227号公報（特願2008-212102）等参照）。

ホスト材料は、アントラセン誘導体、多環芳香族骨格含有化合物、好ましくはアントラセン誘導体である。

ドーパント材料は、ピレン誘導体、アミノアントラセン誘導体、アミノクリセン誘導体、およびアミノピレン誘導体からなる群から選ばれた少なくとも1種の化合物である。

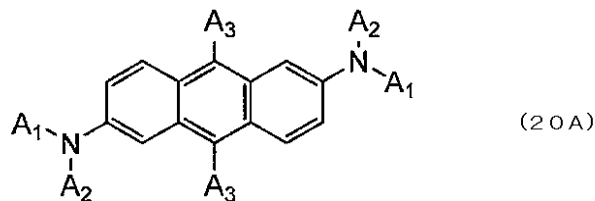
ホスト材料とドーパント材料との組み合わせの好ましい例としては、ホスト材料としてのアントラセン誘導体と、ドーパント材料として、ピレン誘導体、アミノアントラセン誘導体、アミノクリセン誘導体、およびアミノピレン誘導体からなる群から選ばれた少なくとも1種の化合物の組み合わせである。

【0252】

具体的なアミノアントラセン誘導体の例として以下の式(20A)で表される化合物が挙げられる。

【0253】

【化137】



【0254】

式(20A)中、 $A_1$  および  $A_2$  は、それぞれ独立に置換基を有してもよい炭素数1～6の脂肪族炭化水素基、置換基を有してもよい環形成炭素数6～20の芳香族炭化水素基、又は窒素、又は硫黄又は酸素原子を含む置換基を有してもよい環形成原子数5～19の複素芳香族炭化水素基である。

$A_3$  は、それぞれ独立に置換基を有してもよい炭素数1～6の脂肪族炭化水素基、置換基を有してもよい環形成炭素数6～20の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい環形成原子数5～19の複素芳香族炭化水素基又は水素原子である。この複素芳香族炭化水素基は、窒素、硫黄又は酸素原子を含む。

【0255】

具体的なアミノクリセン誘導体の例として以下の式(20B)で表される化合物が挙げられる。

【0256】

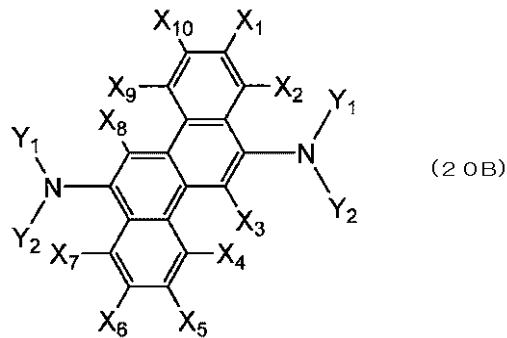
10

20

30

40

## 【化 1 3 8】



10

## 【0 2 5 7】

式(20B)中、 $X_1 \sim X_{10}$ は、それぞれ水素原子又は置換基であり、 $Y_1, Y_2$ は、それぞれ置換基である。

好ましくは、 $X_1 \sim X_{10}$ は、水素原子である。好ましくは、 $Y_1, Y_2$ は、置換基を有してもよい環形成炭素数6~30の芳香族環である。この芳香族環の置換基として、好ましくは、炭素数1~6のアルキル基である。また、この芳香族環として、環形成炭素数6~10の芳香族環又はフェニル基が好ましい。

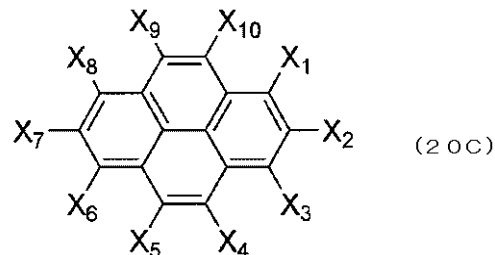
## 【0 2 5 8】

具体的なアミノピレン誘導体の例として以下の式(20C)で表される化合物が挙げら

20

## 【0 2 5 9】

## 【化 1 3 9】



30

## 【0 2 6 0】

式(20C)中、 $X_1 \sim X_{10}$ は、それぞれ水素原子又は置換基であり、ただし、 $X_3$ と $X_8$ 又は $X_2$ と $X_7$ が、それぞれ $-NY_1Y_2$ ( $Y_1, Y_2$ は置換基である)である。好ましくは、 $X_3$ と $X_8$ がそれぞれ $-NY_1Y_2$ であるとき、 $X_2, 4, 5, 7, 9, 10$ は、水素原子であり、 $X_1, X_6$ は水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基である。好ましくは、 $X_2$ と $X_7$ がそれぞれ $-NY_1Y_2$ であるとき、 $X_1, 3-6, 8-10$ は、水素原子である。好ましくは、 $Y_1, Y_2$ は、置換基を有してもよい芳香族環であって、例えば、フェニル基やナフチル基である。この芳香族環の置換基としては、例えば、炭素数1~6のアルキル基が挙げられる。

40

## 【0 2 6 1】

アントラセン誘導体は、前記一般式(20D)で表される化合物が好ましい。

前記一般式(20D)において、 $Ar^{11}$ および $Ar^{12}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の単環基、置換もしくは無置換の環形成原子数10~30の縮合環基、または前記単環基と前記縮合環基との組合せから構成される基である。

## 【0 2 6 2】

前記一般式(20D)における、単環基とは、縮合構造を持たない環構造のみで構成される基である。

前記単環基の環形成原子数は、5~30であり、好ましくは5~20である。前記単環

50

基として、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基等の芳香族基と、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、フリル基、チエニル基等の複素環基が挙げられる。これらの中でも、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基が好ましい。

【0263】

前記一般式(20D)における、縮合環基とは、2環以上の環構造が縮環した基である。

前記縮合環基の環形成原子数は、10~30であり、好ましくは10~20である。前記縮合環基として、例えば、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、クリセニル基、ベンゾアントリル基、ベンゾフェナントリル基、トリフェニレニル基、ベンゾクリセニル基、インデニル基、フルオレニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基等の縮合芳香族環基や、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、キノリル基、フェナントロリル基等の縮合複素環基が挙げられる。これらの中でも、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾアントリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、カルバゾリル基が好ましい。

【0264】

前記一般式(20D)における、前記単環基と前記縮合環基との組合せから構成される基としては、例えば、アントラセン環側から順にフェニル基、ナフチル基、フェニル基が結合して組み合わせられた基が挙げられる。

【0265】

前記一般式(20D)における $R^{101}$ から $R^{108}$ までのアルキル基、シリル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アラルキル基、ハロゲン原子の具体例は、前記一般式(1)における $R_1$ にて説明したものと同様であり、シクロアルキル基は、上記例示と同様である。さらにこれらの置換基における「置換もしくは無置換の」の場合についても、上記説明と同様である。

【0266】

前記一般式(20D)における $A_{r11}$ および $A_{r12}$ 、並びに $R^{101}$ から $R^{108}$ までの「置換もしくは無置換」の好ましい置換基として、単環基、縮合環基、アルキル基、シクロアルキル基、シリル基、アルコキシ基、シアノ基、ハロゲン原子(特にフッ素)が挙げられる。特に好ましくは、単環基、縮合環基であり、好ましい具体的な置換基は上述の一般式(20D)の各基および上述の一般式(1)における各基と同様である。

【0267】

[2]  $A_h < A_d$  の場合

$A_h < A_d$  となるようなホスト材料とドーパント材料との組み合わせにすると、電子輸送帯域内に設けた障壁層の効果が顕著に現れ、TTF現象による高効率化を図ることができる。そこで、以下の[2-1]および[2-2]のように場合を分けて説明する。なお、一般に有機材料は、測定されるアフィニティレベルよりも0.2eV程度大きな範囲にLUMOレベルの広がりを持つ。

【0268】

[2-1]  $A_d$  と  $A_h$  との差が 0.2 eV よりも小さな場合

図5は、この場合のエネルギーバンド図の一例である。発光層内に示している点線は、ドーパント材料のエネルギー準位を表す。図5のように、 $A_d$  と  $A_h$  との差が 0.2 eV よりも小さな場合、ホスト材料のLUMOレベルの広がりの中にドーパント材料のLUMOレベルが入るため、発光層内を伝導する電子は、ドーパント材料にトラップされにくい。すなわち、このドーパント材料は、電子トラップ性を示しにくい。また、本実施形態のドーパント材料は、主ピーク波長550nm以下の蛍光性の光を発するワイドギャップなドーパント材料であるため、 $A_h < A_d$  の関係を満たす場合、 $A_d$  と  $A_h$  との差が 0.2 eV 程度であるので、ホスト材料のイオン化ポテンシャルとドーパント材料のイオン化ポ

10

20

30

40

50

テンシャルとの差が小さくなる。その結果、ドーパント材料は、顕著な正孔トラップ性を有さない傾向にある。なお、図5においては、 $A_h > A_b > A_e$ の場合における関係が示されている。

【0269】

すなわち、この場合のドーパント材料は、電子、正孔のいずれにも顕著なトラップ性を有さない傾向にある。この場合、図5の発光層に付した斜線部分のように、電子-正孔の再結合は、発光層内の広い全域において主としてホスト材料分子上で起こり、25%の一重項励起子と75%の三重項励起子が主としてホスト材料分子上に生成する。ホスト材料上で生成した一重項励起子の持つエネルギーは、フェルスター型エネルギー移動によりドーパント材料に移動し、ドーパント材料分子の蛍光性発光に寄与する。一方、三重項励起子の持つエネルギーは、ホスト材料、ドーパント材料の三重項エネルギーの関係によってその行方が決まる。その間系が、 $E^T_h > E^T_d$ となっている場合、ホスト材料で生成した三重項励起子は、近傍に存在するドーパント材料にデクスター型のエネルギー移動をしてしまう。蛍光素子において発光層中のドーパント材料濃度は、通常数質量%から20質量%程度と低く、ドーパント材料に移った三重項励起子は、互いに衝突する頻度が小さくなりTTF現象が生じにくくなる。しかし、本実施形態のように、 $E^T_h < E^T_d$ となっていれば、三重項励起子は、ホスト材料分子上に存在するため、衝突頻度が上がり効率的にTTF現象が生じ易くなる。

10

【0270】

また、本実施形態においては、発光層に隣接して障壁層が設けられている。障壁層の三重項エネルギー $E^T_b$ がホスト材料の三重項エネルギー $E^T_h$ よりも大きく設定されているため、三重項励起子が電子輸送帯域へ拡散するのを防止し、発光層内で効率よくTTF現象を引き起こすことが可能となる。

20

【0271】

[2-2]  $A_d$ と $A_h$ との差が0.2 eVよりも大きな場合

このときのエネルギーバンド図の一例を図6に示す。ドーパント材料とホスト材料とのアフィニティ差が大きくなり、ホスト材料のLUMOレベルの広がりよりさらに高い位置にドーパント材料のLUMOレベルが存在することになる。そのため、ドーパント材料は、顕著な電子トラップ性を示す傾向が強くなる。ドーパント材料にトラップされた電子は、正孔がホスト材料からドーパント材料に移動するのを待って再結合することになる。すなわち、図5での状況とは異なり、電子-正孔対は、ホスト材料分子上ばかりでなく、ドーパント材料分子上でも再結合するようになる。その結果、三重項励起子がホスト材料分子上ばかりでなく、直接ドーパント材料分子上でも生成するようになる。このような状況において、本実施形態のように $E^T_h < E^T_d$ という関係であれば、直接ドーパント材料上で生成した三重項励起子もデクスター型エネルギー移動によりホスト材料上に集まるため、効率よくTTF現象が起きるようになる。

30

このようなアフィニティの関係にある場合には、ドーパント材料による電子のトラップ確率は、発光層と障壁層との界面付近程高くなり、その結果、再結合も発光層と障壁層との界面付近で多く起きるようになる。この場合、三重項励起子の障壁層による閉じ込め効果は、[2-1]の場合に比べて大きくなり、障壁層との界面における三重項励起子の密度が高くなる。なお、図6においては、 $A_h > A_b > A_e$ の場合における関係が示されている。

40

【0272】

以上のような、 $A_h < A_d$ の関係を満たすホスト材料およびドーパント材料としては、例えば、以下の化合物から選択できる(特開2010-50227号公報(特願2008-212102)等参照)。

ホスト材料としては、アントラセン誘導体および多環芳香族骨格含有化合物、好ましくは、アントラセン誘導体が挙げられる。

ドーパント材料としては、フルオランテン誘導体、ピレン誘導体、アリアルアセチレン誘導体、フルオレン誘導体、ハウ素錯体、ベリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体およ

50

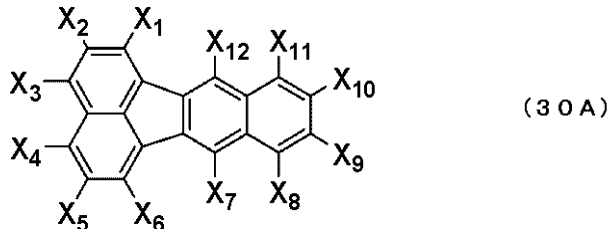
びアントラセン誘導体、好ましくは、フルオランテン誘導体、ピレン誘導体およびホウ素錯体、より好ましくは、フルオランテン誘導体およびホウ素錯体が挙げられる。ホスト材料とドーパント材料との組合せとしては、ホスト材料がアントラセン誘導体であり、ドーパント材料がフルオランテン誘導体又はホウ素錯体である場合が好ましい。

【0273】

具体的なフルオランテン誘導体の例として以下の化合物が挙げられる。

【0274】

【化140】



10

【0275】

式(30A)中、 $X_1 \sim X_{12}$ は、水素又は置換基である。好ましくは、 $X_1 \sim X_2$ 、 $X_4 \sim X_6$ 及び $X_8 \sim X_{11}$ が水素原子であり、 $X_3$ 、 $X_7$ 及び $X_{12}$ が置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリール基である化合物である。より好ましくは、 $X_1 \sim X_2$ 、 $X_4 \sim X_6$ 及び $X_8 \sim X_{11}$ が水素原子であり、 $X_7$ 及び $X_{12}$ が置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリール基、 $X_3$ が $-Ar_1-Ar_2$ である化合物であり、 $Ar_1$ は、置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリーレン基、 $Ar_2$ は、置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリール基である。

20

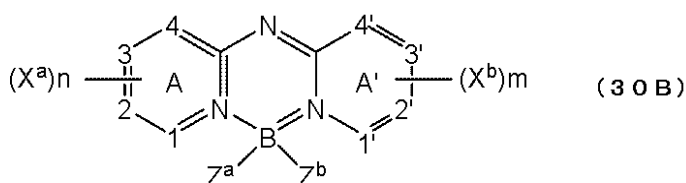
また、好ましくは、 $X_1 \sim X_2$ 、 $X_4 \sim X_6$ 及び $X_8 \sim X_{11}$ が水素原子であり、 $X_7$ 及び $X_{12}$ が置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリール基、 $X_3$ が $-Ar_1-Ar_2-Ar_3$ である化合物であり、 $Ar_1$ 及び $Ar_3$ は、それぞれ、置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリーレン基、 $Ar_2$ は、置換基を有してもよい環形成原子数5～50のアリール基である。

【0276】

具体的なホウ素錯体化合物の例として以下の化合物が挙げられる。

【0277】

【化141】



30

【0278】

式(30B)中、A及びA'は、少なくとも1つの窒素を含有する6員芳香族環系に相当する独立したアジン環系を表わし、 $X^a$ 及び $X^b$ は、各々独立に選ばれた置換基であって、その2つが連結することによりそれぞれ環A又は環A'に対して縮合環を形成するものを表わし、その際、該縮合環はアリール又はヘテロアリール置換基を含み、m及びnは、各々独立に0～4を表わし、 $Z^a$ 及び $Z^b$ は、各々独立に選ばれたハロゲン化物を表わし、そして1、2、3、4、1'、2'、3'及び4'は、各々独立に選ばれた炭素原子又は窒素原子を表わす。

40

【0279】

望ましくは、該アジン環は、1、2、3、4、1'、2'、3'及び4'がすべて炭素原子であり、m及びnが2以上であり、そして $X^a$ 及び $X^b$ が連結して芳香族環を形成する炭素原子数2以上の置換基を表わすような、キノリニル又はイソキノリニル環である。 $Z^a$ 及び $Z^b$ はフッ素原子であることが望ましい。

【0280】

50

〔 2 〕の場合のホスト材料としてのアントラセン誘導体は、上記「〔 1 〕 $A_h > A_d$ の場合」で説明したものと同様である。

【 0 2 8 1 〕

〔 3 〕 $A_h < A_d$ を満たすドーパント材料と $A_h > A_d$ を満たすドーパント材料とが共存する場合

図 7 は、発光層に $A_h < A_d$ を満たすドーパント材料と $A_h > A_d$ を満たすドーパント材料の双方が含まれる場合のエネルギーバンド図の一例を示している。このような場合には、電子、正孔のいずれもほどよくトラップされ、結果として発光層内全域で再結合が起きる。したがって、陰極側においても多く再結合が起きており、三重項エネルギーの大きな障壁層を設けることにより、効率よく TTF 現象が起きるようになる。なお、図 7 においては、 $A_h > A_b > A_e$ の場合における関係が示されている。

10

【 0 2 8 2 〕

本実施形態では、発光層と障壁層との界面における励起子密度が大きい。この場合、発光層内で再結合に寄与しなかった正孔が障壁層内へ注入される確率が大きくなる。そのため、障壁層に用いる材料としては、上記芳香族複素環誘導体の中でも酸化耐久性に優れた材料であることが好ましい。

【 0 2 8 3 〕

障壁層材料は、サイクリックボルタンメトリー測定で可逆な酸化過程を示すものが望ましい。

【 0 2 8 4 〕

発光層は、主ピーク波長 550 nm 以下の 2 以上の蛍光発光性ドーパント材料を含むことができる。2 以上の蛍光発光性ドーパント材料を含むとき、少なくとも 1 つのドーパント材料のアフィニティ $A_d$ がホスト材料のアフィニティ $A_h$ 以上であり、このドーパント材料の三重項エネルギー $E^T_d$ がホスト材料の三重項エネルギー $E^T_h$ より大きい。例えば、他の少なくとも 1 つのドーパント材料のアフィニティ $A_d$ がホスト材料のアフィニティ $A_h$ より小さい。このような 2 種類のドーパント材料を含むことは前述したように $A_h < A_d$ を満たすドーパント材料と $A_h > A_d$ を満たすドーパント材料を共に含むことであり三重項エネルギーの大きな障壁層を設けることにより効率を顕著に改善できる。

20

【 0 2 8 5 〕

ドーパント材料のアフィニティ $A_d$ がホスト材料のアフィニティ $A_h$ より小さいドーパント材料としては、ピレン誘導体、アミノアントラセン誘導体、アミノクリセン誘導体、アミノピレン誘導体等が挙げられる。

30

【 0 2 8 6 〕

なお、上記に記載したホスト材料の他、WO 0 5 / 1 1 3 5 3 1、JP 2 0 0 5 - 3 1 4 2 3 9 記載のジベンゾフラン化合物、WO 0 2 / 1 4 2 4 4 記載のフルオレン化合物、WO 0 8 / 1 4 5 2 3 9 記載のベンズアントラセン化合物も使用できる。

【 0 2 8 7 〕

上記に記載したドーパント材料の他、JP 2 0 0 4 - 2 0 4 2 3 8、WO 0 5 / 1 0 8 3 4 8、WO 0 4 / 8 3 1 6 2、WO 0 9 / 8 4 5 1 2、KR 1 0 - 2 0 0 8 - 7 9 9 5 6、KR 1 0 - 2 0 0 7 - 1 1 5 5 8 8、KR 1 0 - 2 0 1 0 - 2 4 8 9 4 記載のピレン化合物、WO 0 4 / 4 4 0 8 8 記載のクリセン化合物、WO 0 7 / 2 1 1 1 7 記載のアントラセン化合物も使用できる。

40

【 0 2 8 8 〕

ホスト材料、ドーパント材料は、環式構造又は単一原子同士が結合してなる化合物（環式構造と単一原子の結合も含む）であって、前記結合が単結合である化合物が好ましい。好ましくない例としては、環式構造以外で炭素 - 炭素二重結合が存在する化合物があげられる。その理由は、ホスト材料、ドーパント材料上で生成した三重項励起子のエネルギーが、TTF 現象に使われず 2 重結合の構造変化に消費されてしまうからである。

【 0 2 8 9 〕

（有機 EL 素子の各層の形成方法）

50

本実施形態の有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレATING等の乾式成膜法やスピコーティング、ディッピング、フローコーティング、インクジェット等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。

【0290】

湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、エタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解又は分散させて薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであってもよい。

このような湿式成膜法に適した溶液として、有機EL素子用材料として本発明の芳香族アミン誘導体と溶媒とを含有する有機EL材料含有溶液を用いることができる。

【0291】

いずれの有機薄膜層においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用してもよい。

【0292】

(有機EL素子の各層の膜厚)

膜厚は特に限定されるものではないが、適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても十分な発光輝度が得られない。障壁層の膜厚としては、20nm以下であることが好ましい。その他の層の膜厚は、通常5nm以上10 $\mu$ m以下の範囲が適しているが、10nm以上0.2 $\mu$ m以下の範囲がさらに好ましい。

【0293】

<第二実施形態>

図8に第二実施形態にかかる有機EL素子2の一例を示す。

本実施形態の有機EL素子は、電子注入層を設けなくてもよく、図8に示した第二実施形態に係る有機EL素子2は、陽極10と、正孔輸送帯域60と、発光層20と、電子輸送帯域(本実施形態においては、障壁層30)と、陰極50とをこの順に備える。本実施形態の有機EL素子では、これらの層が互いに隣接している。

有機EL素子2の障壁層30も、第一実施形態と同様に、上記一般式(1)で表される芳香族複素環誘導体を含む。また、有機EL素子2を構成するその他の層についても、第一実施形態と同様である。

【0294】

<第三実施形態>

図9に第三実施形態にかかる有機EL素子3の一例を示す。

本発明の有機EL素子は、電子輸送層の陰極側に電子注入層を設けてもよく、図9に示した第三実施形態に係る有機EL素子3は、陽極10と、正孔輸送帯域60と、発光層20と、電子輸送帯域(本実施形態においては、障壁層30、電子輸送層41、および電子注入層40)と、陰極50とをこの順に備える。本実施形態においては、これらの層が互いに隣接している。

有機EL素子3において、電子注入層40および電子輸送層41の少なくともいずれか一方が、上述した本発明の芳香族複素環誘導体を含むことが好ましい。電子輸送層に含まれる材料としては、上述の電子注入層で説明した材料や公知の電子輸送性材料を用いることができる。また、電子注入層40および電子輸送層41は、上述した本発明の芳香族複素環誘導体を含む他にさらに他の材料を含んで構成されていても良い。

有機EL素子3の障壁層30も、第一実施形態と同様に、上記一般式(1)で表される芳香族複素環誘導体を含む。また、有機EL素子3を構成するその他の層についても、第一実施形態と同様である。

【0295】

<第四実施形態>

本実施形態の有機EL素子は、発光層を含む有機層ユニットを少なくとも2つ有するタンデム素子構成とすることができる。2つの発光層の間には、中間層(中間導電層、電化

10

20

30

40

50

発生層、CGLとも呼ぶ)が介在する。ユニット毎に電子輸送帯域を設けることができる。少なくとも1つの発光層が蛍光発光層であり、その発光層を含むユニットが上記の要件を満たす。

【0296】

図10に第四実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す。有機EL素子4は、陽極10と、発光層22, 24と、陰極50とをこの順に備え、発光層22, 24の間には、中間層80がある。障壁層32は、発光層24に隣接している。電子注入層40は、障壁層32と陰極50との間にある。障壁層32、電子注入層40および発光層24が本発明の要件を満たす障壁層、電子注入層および蛍光発光層である。他方の発光層は、蛍光型でもリン光型でもよい。発光層22の隣に別の障壁層および電子注入層を順次隣接させて設け、この別の障壁層および電子注入層、並びに発光層22を本発明の要件を満たす障壁層、電子注入層および蛍光発光層としてもよい。

10

なお、本実施形態においては、障壁層32と電子注入層40が電子輸送帯域に相当する。

【0297】

なお、2つの発光層22, 24の間に電子輸送帯域および正孔輸送帯域の少なくともいずれかが介在していてもよい。また、発光層は3以上あってもよく、中間層も2以上あってもよい。発光層が3以上あるとき、全ての発光層の間に中間層があっても、なくてもよい。

【0298】

中間層は、中間導電層及び電荷発生層の少なくともいずれかを含む層、又は中間導電層及び電荷発生層の少なくともいずれかであり、発光ユニットに注入する電子又は正孔の供給源となる。一対の電極から注入される電荷に加えて、中間層から供給される電荷が発光ユニット内に注入されることになるので、中間層を設けることによって、注入した電流に対する発光効率(電流効率)が向上する。

20

中間層としては、金属、金属酸化物、金属酸化物の混合物、複合酸化物、電子受容性有機化合物が挙げられる。金属としては、Mg、Al、MgやAgの共蒸着膜等が好ましい。金属酸化物としては、ZnO、WO<sub>3</sub>、MoO<sub>3</sub>、MoO<sub>2</sub>などが挙げられる。金属酸化物の混合物としては、ITOやIZO(登録商標)、ZnO:Al等が挙げられる。電子受容性有機化合物としては、CN基を置換基に持つ有機化合物が挙げられる。CN基を含む有機化合物としては、トリフェニレン誘導体やテトラシアノキノジメタン誘導体、インデノフルオレン誘導体等が好ましい。トリフェニレン誘導体としては、ヘキサシアノヘキサザトリフェニレンが好ましい。テトラシアノキノジメタン誘導体としてはテトラフルオロキノジメタン、ジシアノキノジメタンが好ましい。インデノフルオレン誘導体としては国際公開第2009/011327号、国際公開第2009/069717号又は国際公開第2010/064655号に示されるような化合物が好ましい。なお、電子受容性物質は単独物質でも、他の有機化合物と混合されたものでもよい。

30

好適には、電荷発生層からの電子の受け取りを容易にするため、電子輸送層の中の電荷発生層界面近傍にアルカリ金属で代表される電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体の少なくともいずれかを添加する。電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体としては、上述の第一実施形態で説明したものが挙げられる。

40

電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体に使用できる化合物の具体例として、特許出願番号PCT/JP2010/003434(国際公開第2010/134352号)の公報に記載の化合物が挙げられる。

【0299】

<第五実施形態>

第五実施形態では、陽極と、複数の発光層と、発光層に隣接する障壁層およびこの障壁層に隣接する電子注入層を有する電子輸送帯域と、陰極とをこの順に備え、複数の発光層のいずれか二つの発光層の間に電荷障壁層を有する。電荷障壁層に接する発光層が蛍光発光層である。蛍光発光層、電子輸送帯域の障壁層および電子注入層が上記の要件を満たす

50

## 【0300】

第五実施形態にかかる好適な有機EL素子の構成として、特許第4134280号公報、米国公開特許公報US2007/0273270A1、国際公開公報WO2008/023623A1に記載されているような、陽極、第1発光層、電荷障壁層、第2発光層および陰極がこの順に積層された構成において、第2発光層と陰極の間に三重項励起子の拡散を防止するための障壁層および電子注入層を有する電子輸送帯域を有する構成が挙げられる。ここで電荷障壁層とは、隣接する発光層との間でHOMOレベルおよびLUMOレベルのエネルギー障壁を設けることにより、発光層へのキャリア注入を調整し、発光層の注入される電子と正孔のキャリアバランスを調整する目的を有する層である。

10

## 【0301】

このような構成の具体的な例を以下に示す。

陽極 / 第1発光層 / 電荷障壁層 / 第2発光層 / 電子輸送帯域 / 陰極

陽極 / 第1発光層 / 電荷障壁層 / 第2発光層 / 第3発光層 / 電子輸送帯域 / 陰極

なお、陽極と第1発光層の間には、他の実施形態と同様に正孔輸送帯域を設けることが好ましい。

## 【0302】

図11に本実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す。図11の上図は、素子構成および各層のHOMOおよびLUMOエネルギー準位を表す図である。図11の下図は第3発光層と障壁層とのエネルギーギャップの関係を示す。なお、図11の上図においては、 $A_h > A_b > A_e$ の場合における関係が示されている。

20

この有機EL素子は、陽極と、第1発光層、第2発光層、第3発光層と、電子輸送帯域と、陰極をこの順に備え、第1発光層と第2発光層の間には、電荷障壁層がある。電子輸送帯域は障壁層からなる。この障壁層および第3発光層が本発明の要件を満たす障壁層および蛍光発光層である。第1発光層および第2発光層は、蛍光型でもリン光型でもよい。

## 【0303】

本実施形態の素子は、白色発光素子として好適であり、第1発光層、第2発光層および第3発光層の発光色を調整して白色とすることができる。また、発光層を第1発光層および第2発光層だけとして、2つの発光層の発光色を調整して白色としてもよい。このとき第2発光層が本発明の要件を満たす蛍光発光層となる。

30

## 【0304】

特に、第1発光層のホスト材料を正孔輸送性材料とし、主ピーク波長が550nmより大きな蛍光発光性ドーパント材料を添加し、第2発光層（および第3発光層）のホスト材料を電子輸送性材料とし、主ピーク波長550nm以下の蛍光発光性ドーパント材料を添加することにより、全て蛍光材料で構成された構成でありながら、従来技術よりも高い発光効率を示す白色発光素子を実現することができる。

## 【0305】

発光層と隣接する正孔輸送層に特に言及をすると、TTF現象を効果的に起こすためには、正孔輸送材料の三重項エネルギーとホスト材料の三重項エネルギーとを比較した場合に、正孔輸送材料の三重項エネルギーが大きいことが好ましい。

40

## 【0306】

<第六実施形態>

第六実施形態では、青色画素、緑色画素および赤色画素を、基板上に並べて設ける。これら3色の画素のうち、青色画素および緑色画素の少なくともいずれかが第一実施形態又は第二実施形態の構成を有する。

## 【0307】

図12に本実施形態にかかる有機EL素子の一例を示す。

図12に示す上面発光型有機EL素子5は、共通基板100上に、青色画素B、緑色画素Gおよび赤色画素Rが並列に形成されている。

## 【0308】

50

青色画素Bは、陽極10、正孔輸送帯域60、青色発光層20B、障壁層32、電子注入層40、陰極50および保護層90を基板100側からこの順に備えている。

緑色画素Gは、陽極10、正孔輸送帯域60、緑色発光層20G、障壁層32、電子注入層40、陰極50および保護層90を基板100側からこの順に備えている。

赤色画素Rは、陽極10、正孔輸送帯域60、赤色発光層20R、障壁層32、電子注入層40、陰極50および保護層90を基板100側からこの順に備えている。

それぞれの隣接する画素の陽極間に絶縁膜200が形成され、画素間の絶縁を保持している。電子輸送帯域は、障壁層32および電子注入層40からなる。

有機EL素子5では、障壁層が青色画素B、赤色画素Rおよび緑色画素Gに共通に設けられている。

10

#### 【0309】

障壁層の効果は、青色蛍光素子において従来得られていた発光効率に比べて顕著なものである。そして、緑色蛍光素子や赤色蛍光素子においても、三重項エネルギーを発光層内に閉じ込める同様の効果を得ることが可能であり、発光効率の向上が期待できる。

一方、リン光発光層においては、三重項励起子を発光層内に閉じ込める効果を得ることが可能であり、三重項エネルギーの拡散を防ぎ、リン光発光性ドーパント材料の発光効率の向上に寄与する。

#### 【0310】

正孔輸送帯域としては、例えば、正孔輸送層からなるものや、正孔輸送層と正孔注入層との組み合わせからなるものがある。正孔輸送帯域は、青色画素B、赤色画素Rおよび緑色画素Gにおいて、共通でも異なってもよい。通常、正孔輸送帯域は、それぞれ発光色に適した構成にする。

20

発光層20B、G、Rと障壁層から構成される有機層は、図に示す構成に限定されず適宜変更できる。

#### 【0311】

本実施形態で用いることのできるホスト材料およびドーパント材料については上述したものをを用いることができるが、特に各色発光層について以下に説明する。

緑色発光層は、以下のホスト材料およびドーパント材料から構成されるのが好ましい。

ホスト材料としては、縮合芳香族環誘導体が好ましい。縮合芳香族環誘導体としては、アントラセン誘導体、ピレン誘導体等が、発光効率や発光寿命の点でさらに好ましい。

30

#### 【0312】

また、ホスト材料としては、含ヘテロ環化合物が挙げられる。含ヘテロ環化合物としては、カルバゾール誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ラダー型フラン化合物、ピリジン誘導体が挙げられる。

#### 【0313】

ドーパント材料としては、その機能を有するものであれば、特に限定されないが、発光効率等の点で、芳香族アミン誘導体が好ましい。芳香族アミン誘導体としては、置換されてもよいアリアルアミノ基を有する縮合芳香族環誘導体が好ましい。このような化合物として、例えば、アリアルアミノ基を有する、ピレン、アントラセン、クリセンが挙げられる。

40

#### 【0314】

また、ドーパント材料として、スチリルアミン化合物も好ましい。スチリルアミン化合物としては、例えば、スチリルアミン、スチリルジアミン、スチリルトリアミン、スチリルテトラアミンが挙げられる。ここでスチリルアミンとは、置換されてもよいアリアルアミンに少なくとも1つのアリアルビニル基が置換されている化合物のことであり、前記アリアルビニル基は置換されていてもよく、置換基としてはアリアル基、シリル基、アルキル基、シクロアルキル基、アリアルアミノ基があり、これらの置換基は、さらに置換基を有してもよい。

#### 【0315】

また、ドーパント材料として、ホウ素錯体やフルオランテン化合物も好ましい。また、

50

ドーパント材料として、金属錯体も好ましい。金属錯体としては、例えば、イリジウム錯体や白金錯体が挙げられる。

【0316】

赤色発光層は、以下のホスト材料およびドーパント材料から構成されるのが好ましい。ホスト材料は、縮合芳香族環誘導体が好ましい。縮合芳香族環誘導体としては、ナフタセン誘導体、ペンタセン誘導体等が、発光効率や発光寿命の点でさらに好ましい。

【0317】

また、ホスト材料は、縮合多環芳香族化合物が挙げられる。縮合多環芳香族化合物としては、ナフタレン化合物、フェナントレン化合物、フルオランテン化合物が挙げられる。

【0318】

ドーパント材料としては、芳香族アミン誘導体が好ましい。芳香族アミン誘導体としては、置換されてもよいアリアルアミノ基を有する縮合芳香族環誘導体が好ましい。このような化合物として、例えば、アリアルアミノ基を有するペリフランテンが挙げられる。

【0319】

また、ドーパント材料として、金属錯体も好ましい。金属錯体としては、例えば、イリジウム錯体や白金錯体が挙げられる。

【0320】

第六実施形態の有機EL素子は、例えば以下のようにして作製される。

基板上に、銀合金層であるAPC(Ag-Pd-Cu)層(反射層)、酸化亜鉛膜(IZO)や酸化錫膜等の透明導電層をこの順に成膜する。続いて通常のリソグラフィ技術を用いて、レジストパターンをマスクに用いたエッチングにより、この導電材料層をパターンニングし、陽極を形成する。次に、陽極の上にスピンコート法により、ポリイミド等の感光性樹脂からなる絶縁膜を塗布形成する。その後、露光、現像、硬化することで、陽極を露出させることにより青発光領域、緑発光領域および赤発光領域をパターンニングする。

【0321】

電極は、赤色画素用、緑色画素用および青色画素用の3種類であり、それぞれ青発光領域、緑発光領域および赤発光領域に対応し、それぞれ陽極に相当する。イソプロピルアルコール中で洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なう。その後、正孔注入層および正孔輸送層を形成するときは、正孔注入層を基板全面にかけて積層し、さらにその上に正孔輸送層を積層する。各発光層を、赤色画素用、緑色画素用および青色画素用の陽極の各位置に対応して配置するように形成する。真空蒸着法を用いる場合、青色発光層、緑色発光層および赤色発光層を、シャドウマスクを用いて微細パターン化する。

【0322】

次に、障壁層を全面にかけて積層する。続いて、電子注入層を全面にかけて積層する。その後、MgとAgを蒸着成膜し、半透過性のMgAg合金からなる陰極を形成する。

【0323】

本実施形態で用いる基板、陽極、陰極、正孔注入層、正孔輸送層等のその他の部材は、PCT/JP2009/053247、PCT/JP2008/073180、US特願12/376,236、US特願11/766,281、US特願12/280,364等に記載の公知のものを適宜選択して用いることができる。

【0324】

好ましくは、正孔輸送層は、下記式(a-1)~(a-5)のいずれかで表わされる芳香族アミン誘導体を含有する。

【0325】

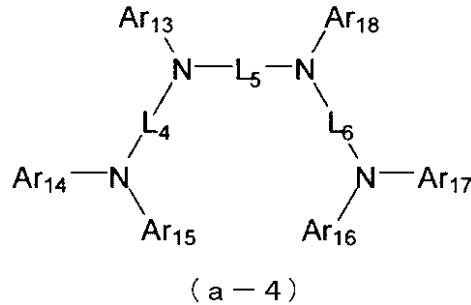
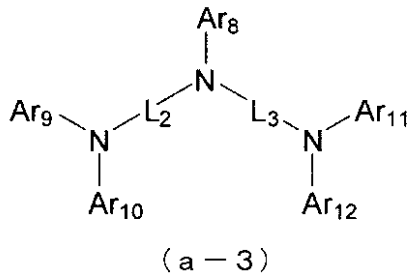
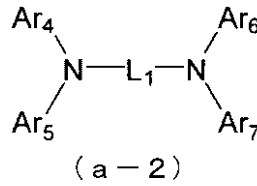
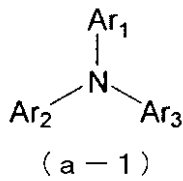
10

20

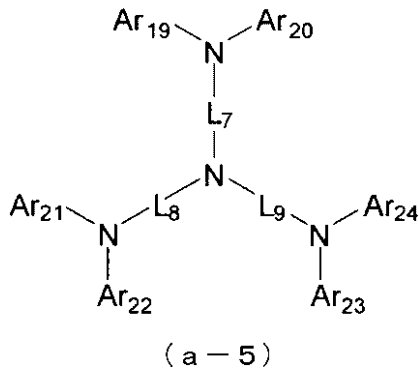
30

40

## 【化 1 4 2】



10



20

## 【0326】

(式(a-1)~式(a-5)中、 $Ar_1 \sim Ar_{24}$ は、各々独立して、置換基を有してもよい環形成炭素数6~50のアリール基、又は置換基を有してもよい環形成原子数5~50のヘテロアリール基を表わす。

30

$L_1 \sim L_9$ は、各々独立して、置換基を有してもよい環形成炭素数6~50のアリーレン基、又は置換基を有してもよい環形成原子数5~50のヘテロアリーレン基を表わす。

$Ar_1 \sim Ar_{24}$ 、 $L_1 \sim L_9$ が有してもよい置換基は、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~15のシクロアルキル基、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6~14のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基および環形成炭素数6~14のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6~50のアリール基、環形成原子数5~50のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の置換基は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。)

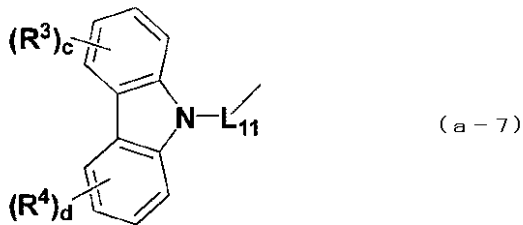
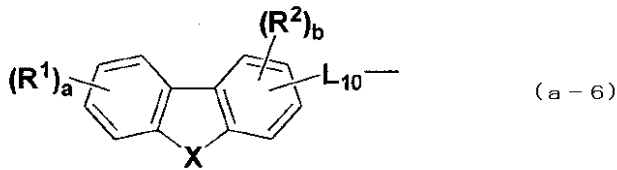
40

## 【0327】

好ましくは、前記 $Ar_1 \sim Ar_{24}$ の少なくとも1つは、下記式(a-6)又は(a-7)のいずれかで表される置換基である。

## 【0328】

## 【化143】



10

## 【0329】

(式(a-6)中、Xは、酸素原子、硫黄原子、又はN-Raを表わし、Raは、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~15のシクロアルキル基、環形成炭素数6~50のアリール基、又は環形成原子数5~50のヘテロアリール基を表す。

L<sub>10</sub>は、単結合、置換基を有してもよい環形成炭素数6~50のアリーレン基、又は置換基を有してもよい環形成原子数5~50のヘテロアリーレン基を表わす。

20

式(a-7)中、L<sub>11</sub>は、置換基を有してもよい環形成炭素数6~50のアリーレン基、又は置換基を有してもよい環形成原子数5~50のヘテロアリーレン基を表わす。

式(a-6)および式(a-7)中、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は、各々独立して、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~15のシクロアルキル基、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6~14のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1~15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基および環形成炭素数6~14のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6~14のアリール基、環形成原子数5~50のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。また、隣接した複数のR<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は互いに結合して環を形成してもよい。

30

a、cおよびdは、0~4の整数を表わす。

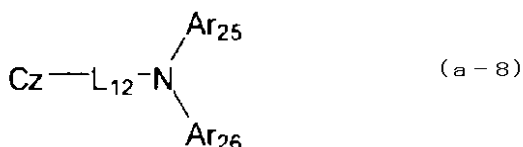
bは、0~3の整数を表わす。

## 【0330】

式(a-1)で表される化合物は、好ましくは、下記式(a-8)で表される化合物である。

## 【0331】

## 【化144】



40

## 【0332】

(式(a-8)中、Czは置換基を有してもよいカルバゾリル基を表わす。

L<sub>12</sub>は置換基を有してもよい環形成炭素数6~50のアリーレン基、又は置換基を有してもよい環形成原子数5~50のヘテロアリーレン基を表わす。

Ar<sub>25</sub>およびAr<sub>26</sub>は、各々独立して、置換基を有してもよい環形成炭素数6~50のアリール基、又は置換基を有してもよい環形成原子数5~50のヘテロアリール基を表わす。)

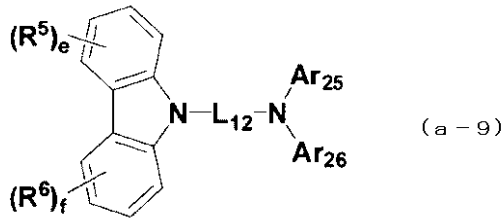
50

## 【 0 3 3 3 】

式 ( a - 8 ) で表される化合物は、好ましくは、下記式 ( a - 9 ) で表される化合物である。

## 【 0 3 3 4 】

## 【 化 1 4 5 】



10

## 【 0 3 3 5 】

( 式 ( a - 9 ) 中、 $R^5$  および  $R^6$  は、各々独立して、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 15 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基および環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。また、隣接した複数の  $R^5$  および  $R^6$  は、互いに結合して環を形成してもよい。

20

$e$  および  $f$  は、0 ~ 4 の整数を表わす。

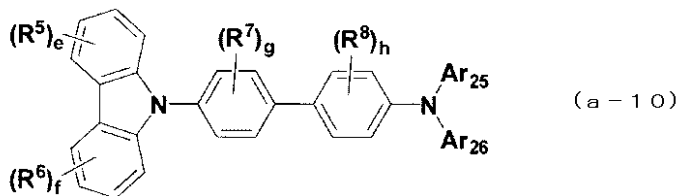
$L_{12}$ 、 $Ar_{25}$  および  $Ar_{26}$  は、式 ( a - 8 ) における  $L_{12}$ 、 $Ar_{25}$  および  $Ar_{26}$  と同義である。)

## 【 0 3 3 6 】

式 ( a - 9 ) で表される化合物は、好ましくは、下記式 ( a - 10 ) で表される化合物である。

## 【 0 3 3 7 】

## 【 化 1 4 6 】



30

## 【 0 3 3 8 】

( 式 ( a - 10 ) 中、 $R^7$  および  $R^8$  は、各々独立して、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 15 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基および環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。また、隣接した複数の  $R^5$  および  $R^6$  は、互いに結合して環を形成してもよい。

40

$g$  および  $h$  は、0 ~ 4 の整数を表わす。

$R^5$ 、 $R^6$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $Ar_{25}$  および  $Ar_{26}$  は、式 ( a - 9 ) における  $R^5$ 、 $R^6$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $Ar_{25}$  および  $Ar_{26}$  と同義である。)

## 【 0 3 3 9 】

< 第七実施形態 >

本実施形態の有機 EL 素子は、図 8 に示す第二実施形態に係る有機 EL 素子 2 において

50

、電子輸送帯域として、障壁層 30 の代わりに電子輸送層を設けてもよい。すなわち、第七実施形態に係る有機 EL 素子は、図示は省略するが、陽極 10 と、正孔輸送帯域 60 と、発光層 20 と、電子輸送層と、陰極 50 とをこの順に備える。そして、電子輸送層が、本発明の芳香族複素環誘導体を含み、さらに他の材料を含んでいてもよい。第七実施形態において、発光層 20 は、ドーパント材料として、燐光発光を示すドーパント材料を含むことが好ましい。

なお、本実施形態における有機 EL 素子を構成するその他の層については、第一実施形態および二実施形態と同様である。

#### 【実施例】

#### 【0340】

以下、本発明に係る実施例を説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されない。

#### 【0341】

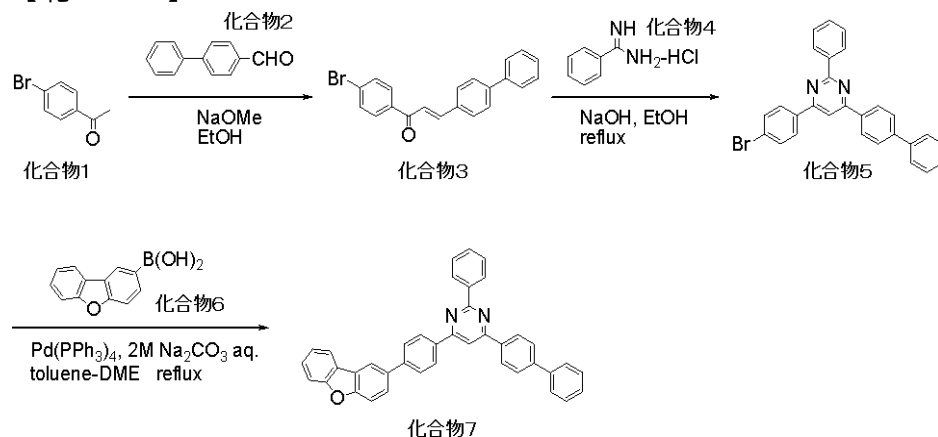
< 化合物の合成 >

・合成例 1：(化合物 7) の合成

(化合物 7) の合成スキームを次に示す。

#### 【0342】

#### 【化 147】



#### 【0343】

(1-1) 化合物 3 の合成

4'-プロモアセトフェノン(化合物 1)(22 g、120 mmol)、4-フェニルベンズアルデヒド(化合物 2)(25 g、126 mmol)、ナトリウムメトキシド(8.4 g、156 mmol)、およびエタノール(200 mL)を混合し、室温で 12 時間攪拌した。析出した固体をろ取り、エタノールで懸濁洗浄後、減圧乾燥することにより化合物 3(42 g、収率 96%)を白色固体として得た。

#### 【0344】

(1-2) 化合物 5 の合成

エタノール(450 mL)に化合物 3(40 g、111 mmol)、ベンズアミジン塩酸塩(化合物 4)(26 g、166 mmol)、および水酸化ナトリウム(12 g、299 mmol)を添加して、9 時間加熱還流した。反応終了後、析出物をろ取り、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒;トルエン)で精製した。さらに、トルエンを用いて再結晶することにより、化合物 5(24 g、収率 47%)を白色固体として得た。

#### 【0345】

(1-3) 化合物 7 の合成

化合物 5(6.0 g、13 mmol)および化合物 6(3.3 g、16 mmol)をトルエン(200 mL)および 1,2-ジメトキシエタン(200 mL)に溶かし、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.75 g、0.65 mmol)、および 2 M 炭酸ナトリウム水溶液(26 mL)を加え、15 時間加熱還流した。反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、トルエンで抽出し、得られた有機層を水、飽和食塩水で

10

20

30

40

50

順次洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。残渣にトルエンを加え、加熱還流して溶かし、放冷して析出した結晶をろ取し、トルエンで洗浄した後、減圧乾燥し、化合物 7 ( 5 . 5 g、収率 7 7 % ) を白色固体として得た。FD - MS ( フィールドディソープションマスペクトル ) の分析により、化合物 7 と同定した。

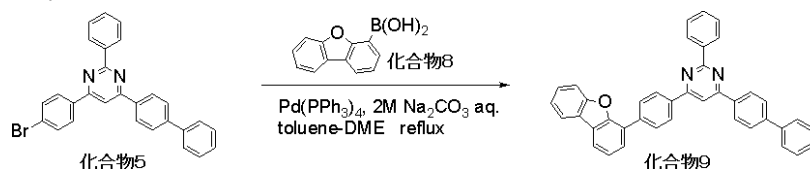
【 0 3 4 6 】

・合成例 2 : 化合物 9 の合成

化合物 9 の合成スキームを次に示す。

【 0 3 4 7 】

【 化 1 4 8 】



10

【 0 3 4 8 】

( 2 - 1 ) 化合物 9 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 3 ) において、化合物 6 の代わりに化合物 8 ( 2 . 7 g、1 3 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物 9 ( 5 . 5 g、収率 9 2 % ) を白色固体として得た。FD - MS ( フィールドディソープションマスペクトル ) の分析により、化合物 9 と同定した。

20

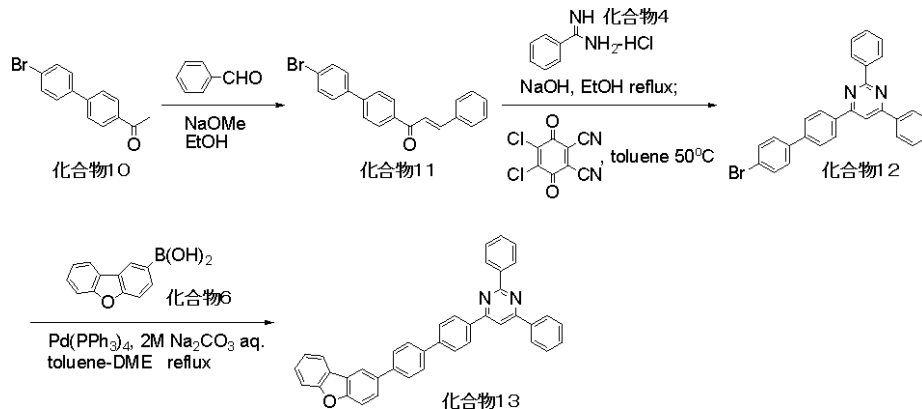
【 0 3 4 9 】

・合成例 3 : 化合物 1 3 の合成

化合物 1 3 の合成スキームを次に示す。

【 0 3 5 0 】

【 化 1 4 9 】



30

【 0 3 5 1 】

( 3 - 1 ) 化合物 1 2 の合成

4' - ( p - プロモフェニル ) アセトフェノン ( 化合物 1 0 ) ( 3 0 g、1 1 0 m m o l )、およびベンズアルデヒド ( 1 2 g、1 1 0 m m o l ) をエタノール ( 3 0 0 m L ) に溶かし、ナトリウムメトキシド ( 約 5 M メタノール溶液 ) ( 8 0 m L ) を滴下し、室温で 3 時間攪拌し、化合物 1 1 を合成した。次いで、ベンズアミジン塩酸塩 ( 化合物 4 ) ( 1 7 g、1 1 0 m m o l )、および水酸化ナトリウム ( 5 . 3 g、1 3 2 m m o l ) を添加して、1 8 時間加熱還流した。反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、析出物をろ取し、メタノールで洗浄した。粗生成物、2, 3 - ジクロロ - 5, 6 - ジシアノ - p - ベンゾキノン ( 1 9 g、8 4 m m o l ) およびトルエン ( 4 0 0 m L ) を混合し、5 0 で 1 時間攪拌した。反応終了後、メタノールを加え、析出物をろ取し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( 展開溶媒 ; トルエン ) で精製し、化合物 1 2 ( 2 6 g、収率 5 1 % ) を白色固体として得た。

40

【 0 3 5 2 】

50

## (3-2) 化合物13の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物12(6.0g、13mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物13(4.9g、収率69%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物13と同一した。

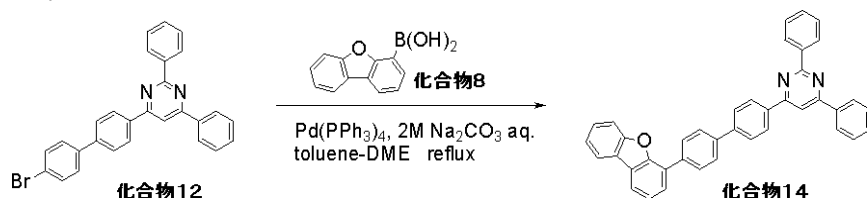
【0353】

・合成例4：化合物14の合成

化合物14の合成スキームを次に示す。

【0354】

【化150】



10

【0355】

## (4-1) 化合物14の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物12(5.0g、11mmol)を用い、化合物6の代わりに化合物8(2.7g、13mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物14(5.5g、収率93%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物14と同一した。

20

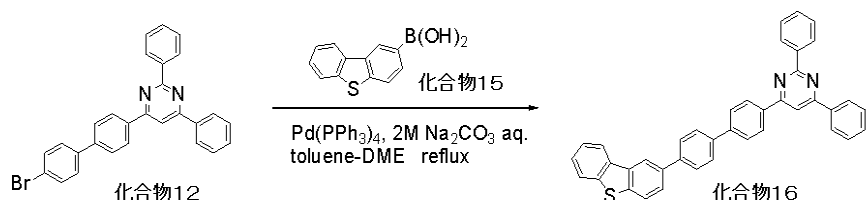
【0356】

・合成例5：化合物16の合成

化合物16の合成スキームを次に示す。

【0357】

【化151】



30

【0358】

## (5-1) 化合物16の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物12(5.0g、11mmol)を用い、化合物6の代わりに化合物15(3.0g、13mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物16(4.5g、収率74%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物16と同一した。

40

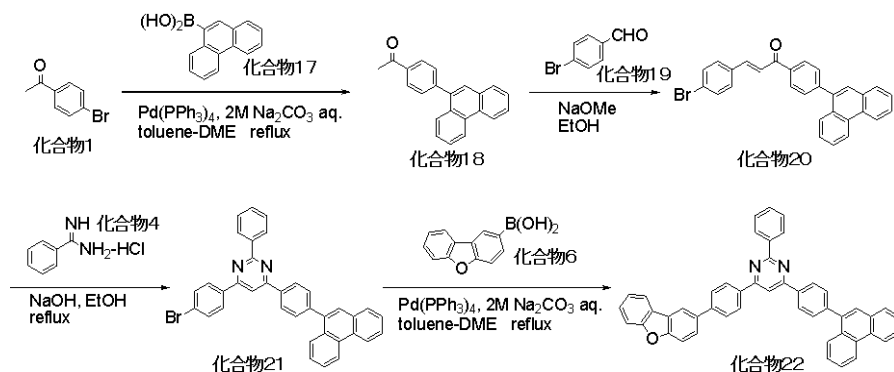
【0359】

・合成例6：化合物22の合成

化合物22の合成スキームを次に示す。

【0360】

## 【化152】



10

## 【0361】

## (6-1) 化合物18の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物1(20g、100mmol)、化合物6の代わりに化合物17(22g、100mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物18(25g、収率85%)を白色固体として得た。

## 【0362】

## (6-2) 化合物20の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物2の代わりに4-ブロモベンズアルデヒド(化合物19)(17g、89mmol)、化合物1の代わりに化合物18(25g、85mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物20(38g、収率97%)を白色固体として得た。

20

## 【0363】

## (6-3) 化合物21の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物20(38g、82mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物21(16g、収率34%)を白色固体として得た。

## 【0364】

## (6-4) 化合物22の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物21(5.0g、8.9mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物22(3.9g、収率68%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物22と同定した。

30

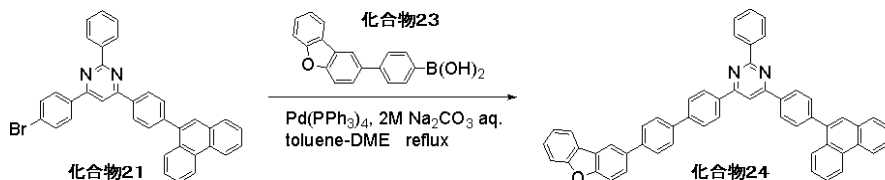
## 【0365】

## ・合成例7：化合物24の合成

化合物22の合成スキームを次に示す。

## 【0366】

## 【化153】



40

## 【0367】

## (7-1) 化合物24の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物21(5.0g、8.9mmol)、化合物6の代わりに化合物23(2.8g、9.8mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物24(5.0g、収率78%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物24と同定した。

50

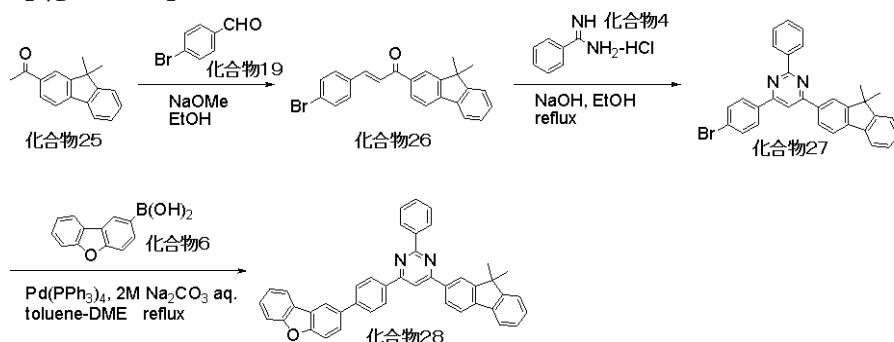
## 【 0 3 6 8 】

・合成例 8 : 化合物 2 8 の合成

化合物 2 8 の合成スキームを次に示す。

## 【 0 3 6 9 】

## 【 化 1 5 4 】



10

## 【 0 3 7 0 】

( 8 - 1 ) 化合物 2 6 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 1 ) において、化合物 2 の代わりに化合物 1 9 ( 2 0 g、1 0 9 m m o l )、化合物 1 の代わりに化合物 2 5 ( 2 5 g、1 0 6 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し化合物 2 6 ( 2 7 g、収率 6 4 % ) を白色固体として得た。

## 【 0 3 7 1 】

( 8 - 2 ) 化合物 2 7 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 2 ) において、化合物 3 の代わりに化合物 2 6 ( 2 7 g、6 8 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し化合物 2 7 ( 6 . 7 g、収率 2 0 % ) を白色固体として得た。

## 【 0 3 7 2 】

( 8 - 3 ) 化合物 2 8 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 3 ) において、化合物 5 の代わりに化合物 2 7 ( 3 . 4 g、6 . 8 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物 2 8 ( 3 . 3 g、収率 8 2 % ) を白色固体として得た。F D - M S ( フィールドディソープションマスペクトル ) の分析により、化合物 2 8 と同定した。

30

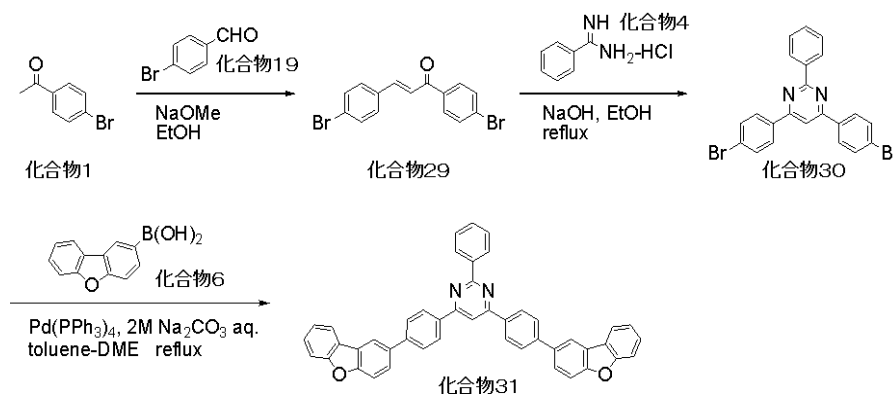
## 【 0 3 7 3 】

・合成例 9 : 化合物 3 1 の合成

化合物 3 1 の合成スキームを次に示す。

## 【 0 3 7 4 】

## 【 化 1 5 5 】



40

## 【 0 3 7 5 】

( 9 - 1 ) 化合物 2 9 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 1 ) において、化合物 2 の代わりに化合物 1 9 ( 2 3 g、1 2 5 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し化合物 2 9 ( 4 1 g、収率 9 5 % ) を白色固体として得た。

50

## 【0376】

## (9-2) 化合物30の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物29(20g、55mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物30(15g、収率61%)を白色固体として得た。

## 【0377】

## (9-3) 化合物31の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物30(6.9g、15mmol)を用い、化合物6を化合物30に対して2.1モル当量用いたた以外は同様の方法で合成し、化合物31(5.3g、収率56%)を白色固体として得た。FD-M

10

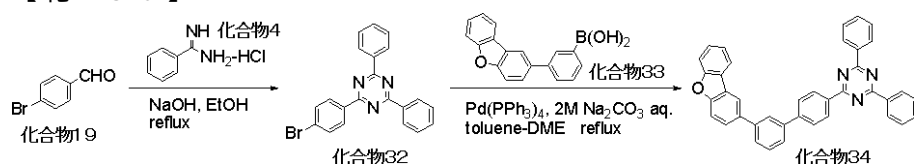
## 【0378】

## ・合成例10：化合物34の合成

化合物34の合成スキームを次に示す。

## 【0379】

## 【化156】



20

## 【0380】

## (10-1) 化合物32の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物19(20g、108mmol)を用い、化合物4を化合物19に対して2モル当量用いた以外は同様の方法で合成し化合物32(11g、収率26%)を白色固体として得た。

## 【0381】

## (10-2) 化合物34の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物32(5.5g、14mmol)、化合物6の代わりに化合物33(4.9g、17mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物34(6.1g、収率78%)を白色固体として得た。FD-M

30

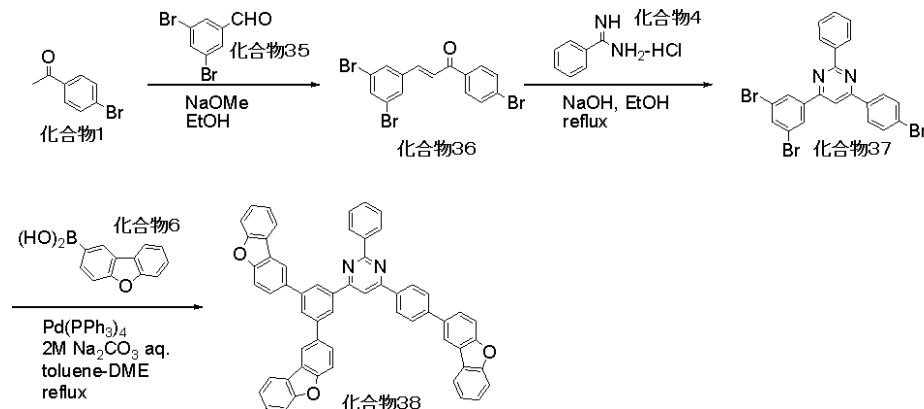
## 【0382】

## ・合成例11：化合物38の合成

化合物38の合成スキームを次に示す。

## 【0383】

## 【化157】



40

## 【0384】

50

## (11-1) 化合物36の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物2の代わりに化合物35(28g、105mmol)、を用いた以外は同様の方法で合成し化合物36(44g、収率98%)を白色固体として得た。

## 【0385】

## (11-2) 化合物37の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物36(44g、98mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物37(17g、収率23%)を白色固体として得た。

## 【0386】

## (11-3) 化合物38の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物37(5.0g、9.2mmol)を用い、化合物6を化合物37に対して3.1モル当量用いたた以外は同様の方法で合成し、化合物38(4.7g、収率64%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物38と同一した。

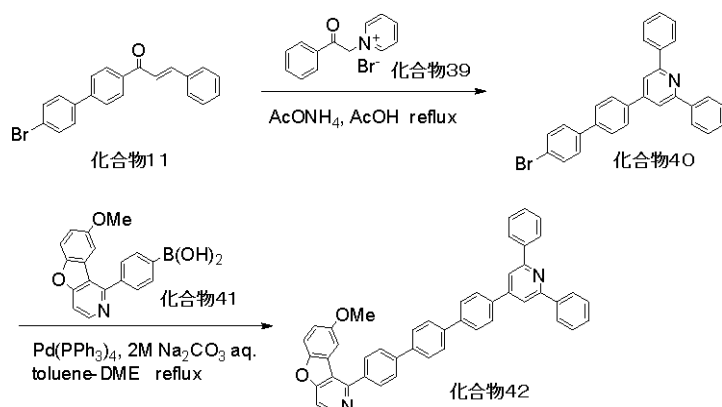
## 【0387】

## ・合成例12: 化合物42の合成

化合物42の合成スキームを次に示す。

## 【0388】

## 【化158】



## 【0389】

## (12-1) 化合物40の合成

化合物11(11g、31mmol)、1-フェナシルピリジニウムブロミド(化合物39)(8.7g、31mmol)、および酢酸アンモニウム(19g、250mmol)を酢酸(27mL)に懸濁し、12時間加熱還流した。反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、水を加えてトルエンで抽出し、得られた有機層を10質量%水酸化ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥し溶媒を減圧留去した。残渣にエタノールを加え、加熱還流して溶かし、放冷して析出した結晶をろ取り、エタノールで洗淨した後、減圧乾燥し、化合物40(13g、収率88%)を淡黄色固体として得た。

## 【0390】

## (12-2) 化合物42の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物40(5.0g、11mmol)、化合物6の代わりに化合物41(3.8g、12mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物42(4.4g、収率62%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物42と同一した。

## 【0391】

## ・合成例13: 化合物46の合成

10

20

30

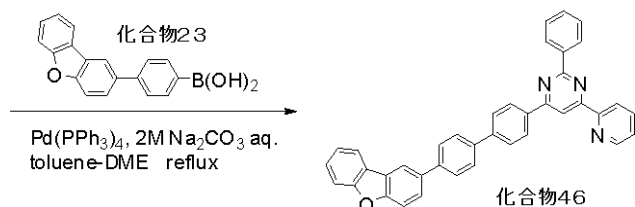
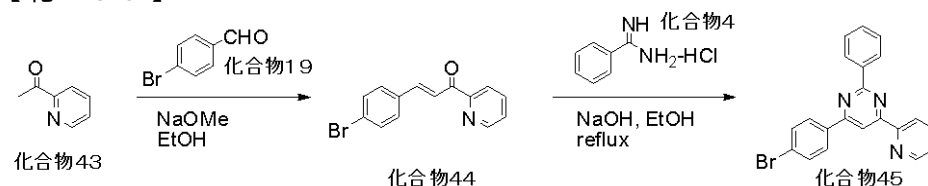
40

50

化合物46の合成スキームを次に示す。

【0392】

【化159】



10

【0393】

(13-1) 化合物44の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物1の代わりに化合物43(9.8g、81mmol)、化合物2の代わりに化合物19(16g、85mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物44(9.5g、収率41%)を淡黄色固体として得た。

【0394】

(13-2) 化合物45の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物44(9.5g、33mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物45(3.5g、収率27%)を白色固体として得た。

20

【0395】

(13-3) 化合物46の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物45(3.5g、9.0mmol)、化合物6の代わりに化合物23(2.9g、9.9mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物46(2.9g、収率58%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物46

30

と同定した。

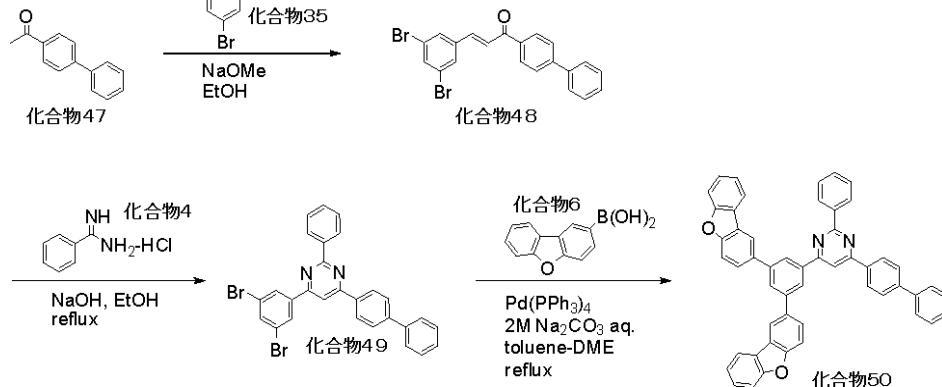
【0396】

・合成例14: 化合物50の合成

化合物50の合成スキームを次に示す。

【0397】

【化160】



40

【0398】

(14-1) 化合物48の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物1の代わりに化合物47(37g、19

50

1 mmol)、化合物2の代わりに化合物35(50g、191mmol)、を用いた以外は同様の方法で合成し化合物48(82g、収率98%)を黄色固体として得た。

【0399】

(14-2) 化合物49の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物48(82g、186mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物49(40g、収率40%)を白色固体として得た。

【0400】

(14-3) 化合物50の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物49(6.0g、11mmol)を用い、化合物6を化合物49に対して2.2モル当量用いたた以外は同様の方法で合成し、化合物50(4.2g、収率53%)を白色固体として得た。FD-M S(フィールドディソープシオンマススペクトル)の分析により、化合物50と同一した。

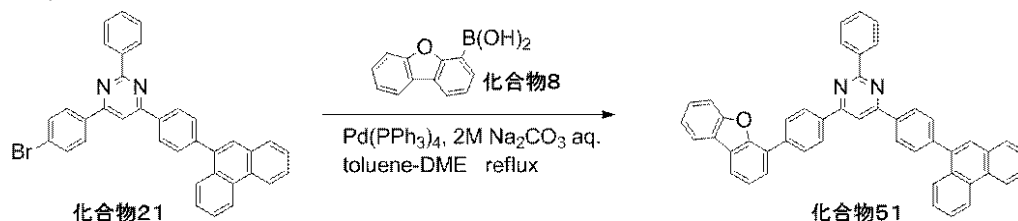
【0401】

・合成実施例15: 化合物51の合成

化合物51の合成スキームを次に示す。

【0402】

【化161】



【0403】

(15-1) 化合物51の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物21(6.0g、11mmol)、化合物6の代わりに化合物8(2.7g、13mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物51(2.7g、収率39%)を白色固体として得た。FD-M S(フィールドディソープシオンマススペクトル)の分析により、化合物51と同一した。

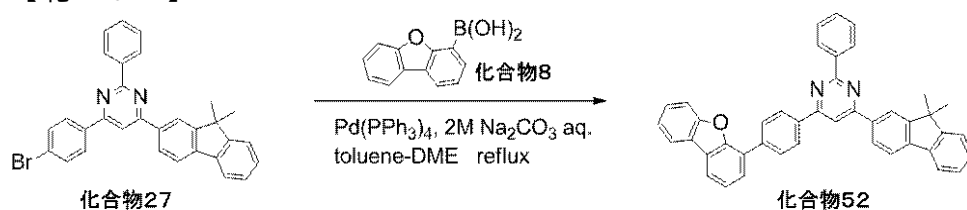
【0404】

・合成実施例16: 化合物52の合成

化合物52の合成スキームを次に示す。

【0405】

【化162】



【0406】

(16-1) 化合物52の合成

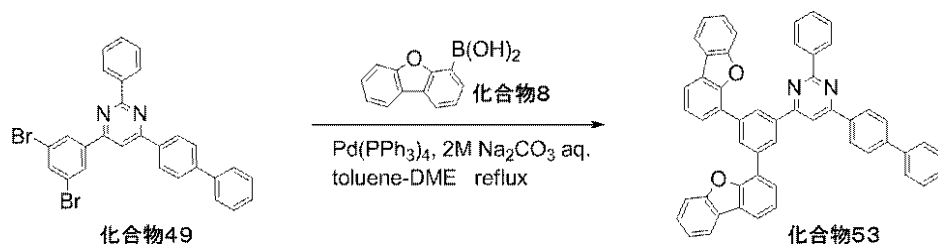
化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物27(6.0g、12mmol)、化合物6の代わりに化合物8(3.0g、14mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物52(5.6g、収率79%)を白色固体として得た。FD-M S(フィールドディソープシオンマススペクトル)の分析により、化合物52と同一した。

## 【0407】

・合成実施例17：化合物53の合成  
化合物53の合成スキームを次に示す。

## 【0408】

## 【化163】



## 【0409】

(17-1) 化合物53の合成

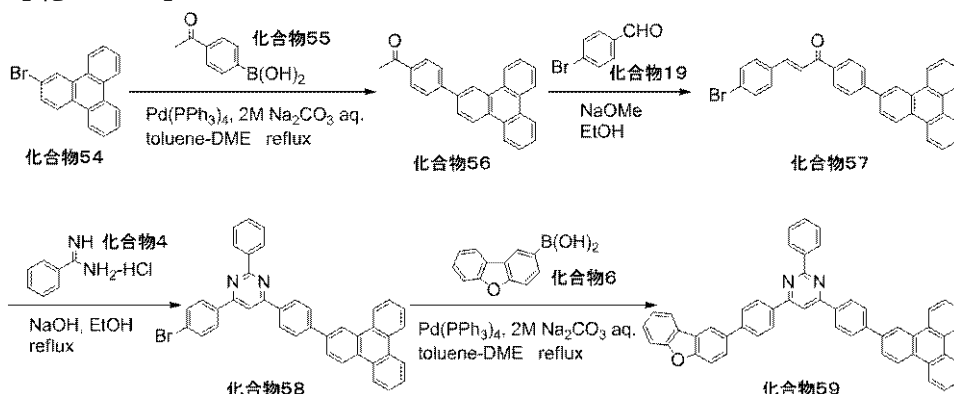
化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物49(6.0g、11mmol)、化合物6の代わりに化合物8(5.2g、24mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物53(4.9g、収率61%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物53と同一した。

## 【0410】

・合成実施例18：化合物59の合成  
化合物59の合成スキームを次に示す。

## 【0411】

## 【化164】



## 【0412】

(18-1) 化合物56の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物54(54g、176mmol)、化合物6の代わりに化合物55(32g、194mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物56(58g、収率95%)を白色固体として得た。

## 【0413】

(18-2) 化合物57の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物1の代わりに化合物56(42g、122mmol)、化合物2の代わりに4-プロモベンズアルデヒド(化合物19)(24g、128mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物57の粗精製物(78g)を黄色固体として得た。これ以上精製せず次反応を行った。

## 【0414】

(18-3) 化合物58の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物57の粗精製物(78g)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物58(27g、収率36%)を白色固体として得た。

## 【0415】

## (18-4) 化合物59の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物58(6.0g、9.8mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物59(3.2g、収率47%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物59と同一した。

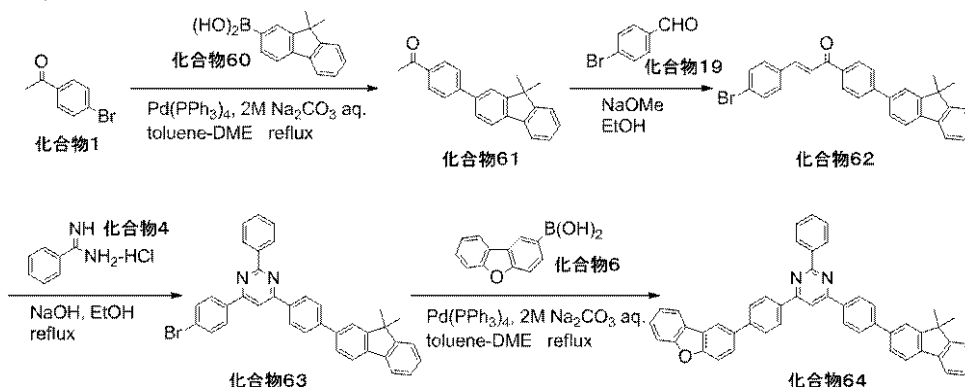
## 【0416】

## ・合成実施例19：化合物64の合成

化合物64の合成スキームを次に示す。

## 【0417】

## 【化165】



10

20

## 【0418】

## (19-1) 化合物61の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物1(50g、251mmol)、化合物6の代わりに化合物60(66g、276mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物61(72g、収率92%)を白色固体として得た。

## 【0419】

## (19-2) 化合物62の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物1の代わりに化合物61(72g、230mmol)、化合物2の代わりに4-プロモベンズアルデヒド(化合物19)(43g、230mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物62(107g、収率97%)を白色固体として得た。

30

## 【0420】

## (19-3) 化合物63の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物62(107g、223mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物63(47g、収率36%)を白色固体として得た。

## 【0421】

## (19-4) 化合物64の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物63(7.0g、12mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物64(4.9g、収率61%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物64と同一した。

40

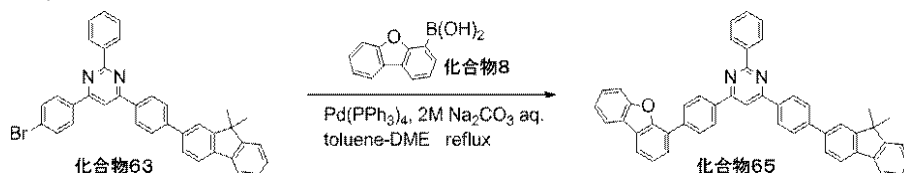
## 【0422】

## ・合成実施例20：化合物65の合成

化合物65の合成スキームを次に示す。

## 【0423】

## 【化166】



## 【0424】

## (20-1) 化合物65の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物63(7.0g、12mmol)、化合物6の代わりに化合物8(2.8g、13mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物65(4.3g、収率53%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマススペクトル)の分析により、化合物65と同一した。

10

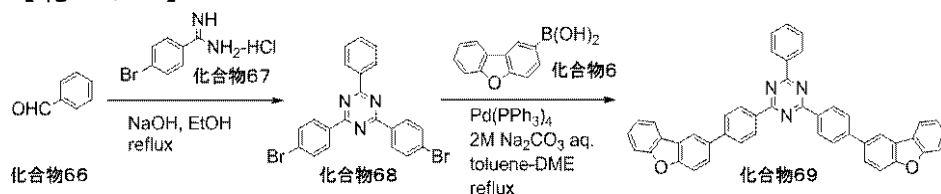
## 【0425】

## ・合成実施例21: 化合物69の合成

化合物69の合成スキームを次に示す。

## 【0426】

## 【化167】



20

## 【0427】

## (21-1) 化合物68の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物66(7.7g、72mmol)を用い、化合物4の代わりに化合物67(34g、145mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物68(9.4g、収率32%)を白色固体として得た。

## 【0428】

## (21-2) 化合物69の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物68(4.5g、9.6mmol)を用い、化合物6を化合物68に対して2.2モル当量用いたた以外は同様の方法で合成し、化合物69(4.4g、収率71%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマススペクトル)の分析により、化合物69と同一した。

30

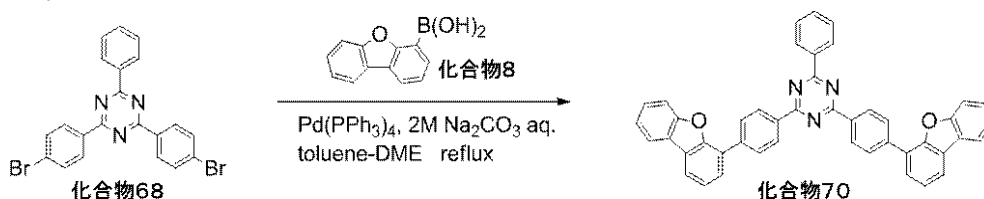
## 【0429】

## ・合成実施例21: 化合物70の合成

化合物70の合成スキームを次に示す。

## 【0430】

## 【化168】



## 【0431】

## (22-1) 化合物70の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物68(4.9g、10mmol)、化合物6の代わりに化合物8(4.9g、23mmol)を用いた以外は

40

50

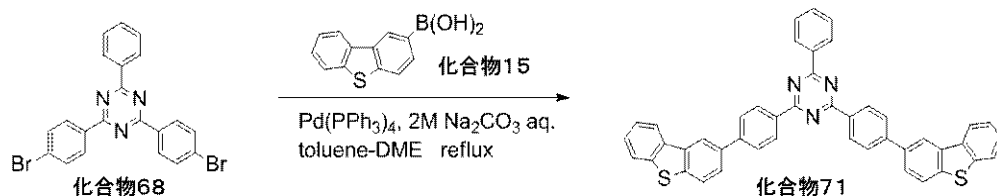
同様の方法で合成し、化合物70(3.1g、収率46%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物70と同一した。

【0432】

・合成実施例23: 化合物71の合成  
化合物71の合成スキームを次に示す。

【0433】

【化169】



10

【0434】

(23-1) 化合物71の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物68(4.5g、9.6mmol)、化合物6の代わりに化合物15(4.8g、21mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物71(3.4g、収率53%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物71と同一した。

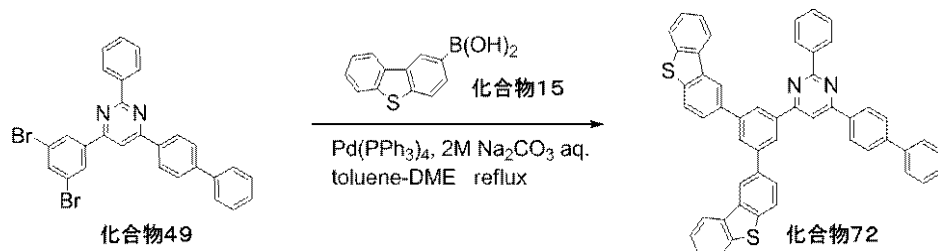
20

【0435】

・合成実施例24: 化合物72の合成  
化合物72の合成スキームを次に示す。

【0436】

【化170】



30

【0437】

(24-1) 化合物72の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物49(10g、18mmol)、化合物6の代わりに化合物15(9.3g、41mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物72(9.7g、収率70%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物72と同一した。

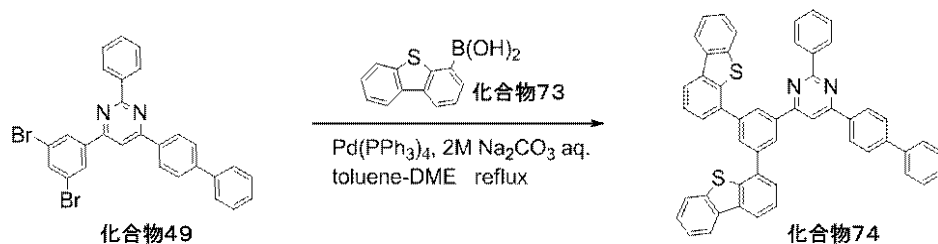
【0438】

・合成実施例25: 化合物74の合成  
化合物74の合成スキームを次に示す。

【0439】

40

## 【化171】



## 【0440】

## (25-1) 化合物74の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物49(10g、18mmol)、化合物6の代わりに化合物73(9.3g、41mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物74(9.5g、収率68%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物74と同定した。

10

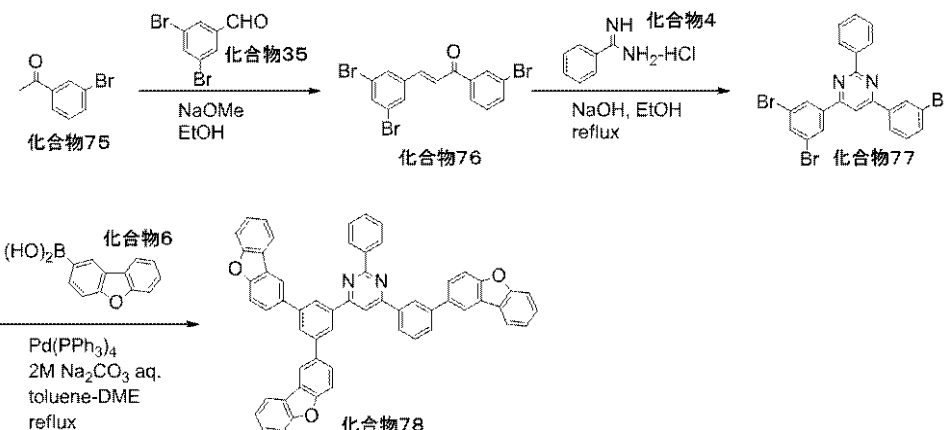
## 【0441】

## ・合成実施例26：化合物78の合成

化合物78の合成スキームを次に示す。

## 【0442】

## 【化172】



20

30

## 【0443】

## (26-1) 化合物76の合成

化合物7の合成の(1-1)において、化合物1の代わりに化合物75(38g、193mmol)、化合物2の代わりに化合物35(50g、189mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物76(75g、収率89%)を白色固体として得た。

## 【0444】

## (26-2) 化合物77の合成

化合物7の合成の(1-2)において、化合物3の代わりに化合物76(71g、158mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し化合物77(31g、収率33%)を白色固体として得た。

40

## 【0445】

## (26-3) 化合物78の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物77(15g、28mmol)を用い、化合物6を化合物77に対して3.5当量用いたた以外は同様の方法で合成し、化合物78(5.0g、収率23%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物78と同定した。

## 【0446】

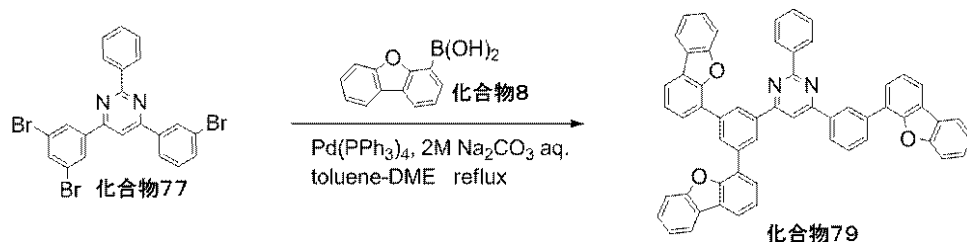
## ・合成実施例27：化合物79の合成

化合物79の合成スキームを次に示す。

50

【 0 4 4 7 】

【 化 1 7 3 】



【 0 4 4 8 】

( 2 7 - 1 ) 化合物 7 9 の 合成

化合物 7 の 合成 の ( 1 - 3 ) に お い て 、 化 合 物 5 の 代 わ り に 化 合 物 7 7 ( 1 5 g 、 2 8 mmol ) 、 化 合 物 6 の 代 わ り に 化 合 物 8 ( 2 0 g 、 9 6 mmol ) を 用 い た 以 外 は 同 様 の 方 法 で 合 成 し 、 化 合 物 7 9 ( 1 2 g 、 収 率 5 2 % ) を 白 色 固 体 と し て 得 た 。 F D - M S ( フ ィ ー ル ド デ ィ ソ ー プ シ ョ ン マ ス ス ペ ク ト ル ) の 分 析 に よ り 、 化 合 物 7 9 と 同 定 し た 。

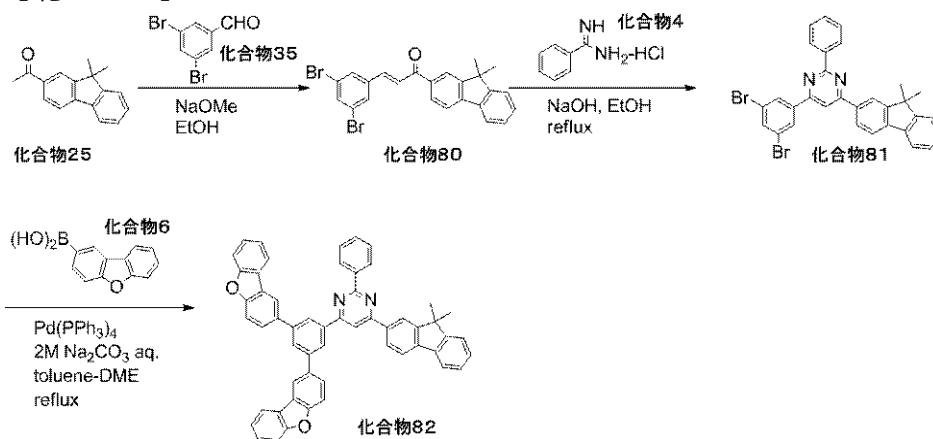
【 0 4 4 9 】

・ 合成実施例 28 : 化合物 82 の 合成

化合物 82 の 合成 スキーム を 次 に 示 す 。

【 0 4 5 0 】

【 化 1 7 4 】



【 0 4 5 1 】

( 2 8 - 1 ) 化合物 80 の 合成

化合物 7 の 合成 の ( 1 - 1 ) に お い て 、 化 合 物 1 の 代 わ り に 化 合 物 2 5 ( 3 4 g 、 1 4 4 mmol ) 、 化 合 物 2 の 代 わ り に 化 合 物 3 5 ( 4 2 g 、 1 5 8 mmol ) を 用 い た 以 外 は 同 様 の 方 法 で 合 成 し 化 合 物 8 0 ( 6 9 g 、 収 率 1 0 0 % ) を 淡 褐 色 固 体 と し て 得 た 。

【 0 4 5 2 】

( 2 8 - 2 ) 化合物 81 の 合成

化合物 7 の 合成 の ( 1 - 2 ) に お い て 、 化 合 物 3 の 代 わ り に 化 合 物 8 0 ( 6 9 g 、 1 4 4 mmol ) を 用 い た 以 外 は 同 様 の 方 法 で 合 成 し 化 合 物 8 1 ( 1 8 g 、 収 率 2 2 % ) を 淡 黄 色 固 体 と し て 得 た 。

【 0 4 5 3 】

( 2 8 - 3 ) 化合物 82 の 合成

化合物 7 の 合成 の ( 1 - 3 ) に お い て 、 化 合 物 5 の 代 わ り に 化 合 物 8 1 ( 9 . 1 g 、 1 6 mmol ) を 用 い 、 化 合 物 6 を 化 合 物 8 1 に 対 し て 2 . 2 モ ル 当 量 用 い た 以 外 は 同 様 の 方 法 で 合 成 し 、 化 合 物 8 2 ( 9 . 4 g 、 収 率 7 9 % ) を 淡 黄 色 固 体 と し て 得 た 。 F D - M S ( フ ィ ー ル ド デ ィ ソ ー プ シ ョ ン マ ス ス ペ ク ト ル ) の 分 析 に よ り 、 化 合 物 8 2 と 同 定 し た 。

【 0 4 5 4 】

10

20

30

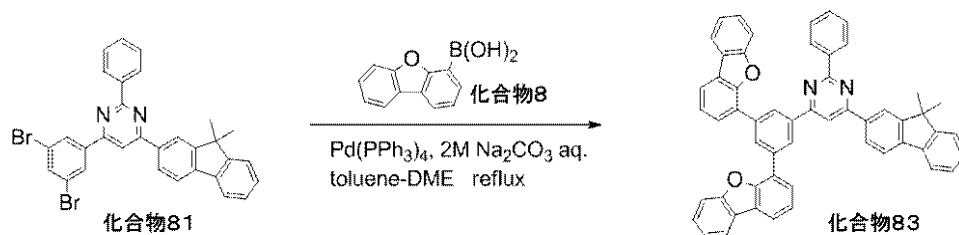
40

50

- ・合成実施例 29 : 化合物 83 の合成  
化合物 83 の合成スキームを次に示す。

【 0 4 5 5 】

【 化 1 7 5 】



10

【 0 4 5 6 】

( 2 9 - 1 ) 化合物 83 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 3 ) において、化合物 5 の代わりに化合物 81 ( 9 . 0 g、1 5 m m o l )、化合物 6 の代わりに化合物 8 ( 7 . 2 g、3 4 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物 83 ( 8 . 1 g、収率 6 9 % ) を淡黄色固体として得た。F D - M S ( フィールドディソープションマスペクトル ) の分析により、化合物 83 と同定した。

【 0 4 5 7 】

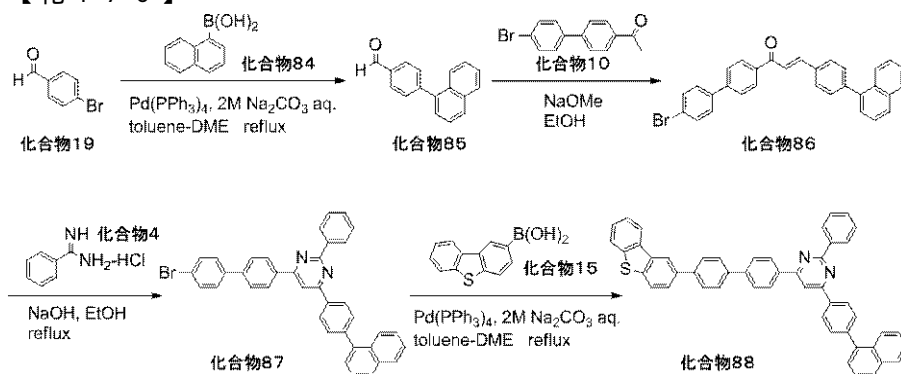
- ・合成実施例 30 : 化合物 88 の合成

化合物 88 の合成スキームを次に示す。

20

【 0 4 5 8 】

【 化 1 7 6 】



30

【 0 4 5 9 】

( 3 0 - 1 ) 化合物 85 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 3 ) において、化合物 5 の代わりに化合物 19 ( 5 0 g、2 7 0 m m o l )、化合物 6 の代わりに化合物 84 ( 5 6 g、3 2 5 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物 85 ( 5 3 g、収率 8 5 % ) を白色固体として得た。

【 0 4 6 0 】

( 3 0 - 2 ) 化合物 86 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 1 ) において、化合物 1 の代わりに化合物 10 ( 6 5 g、2 3 5 m m o l )、化合物 2 の代わりに化合物 85 ( 5 3 g、2 2 9 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し化合物 86 ( 1 0 9 g ) を淡黄色固体として得た。

40

【 0 4 6 1 】

( 3 0 - 3 ) 化合物 87 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 2 ) において、化合物 3 の代わりに化合物 86 ( 1 0 8 g、2 2 1 m m o l ) を用いた以外は同様の方法で合成し化合物 87 ( 4 4 g、収率 3 4 % ) を白色固体として得た。

【 0 4 6 2 】

( 3 0 - 4 ) 化合物 88 の合成

化合物 7 の合成の ( 1 - 3 ) において、化合物 5 の代わりに化合物 87 ( 6 . 0 g、1 0

50

mmol)、化合物6の代わりに化合物15(2.8g、12mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物88(5.9g、収率84%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物88と同一した。

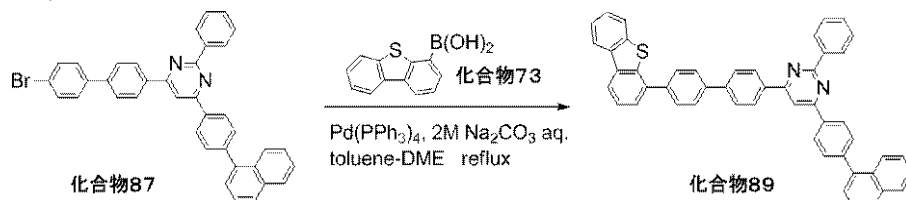
【0463】

・合成実施例31：化合物89の合成

化合物89の合成スキームを次に示す。

【0464】

【化177】



【0465】

(31-1) 化合物89の合成

化合物7の合成の(1-3)において、化合物5の代わりに化合物87(6.0g、10mmol)、化合物6の代わりに化合物73(2.8g、12mmol)を用いた以外は同様の方法で合成し、化合物89(6.4g、収率91%)を白色固体として得た。FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)の分析により、化合物89と同一した。

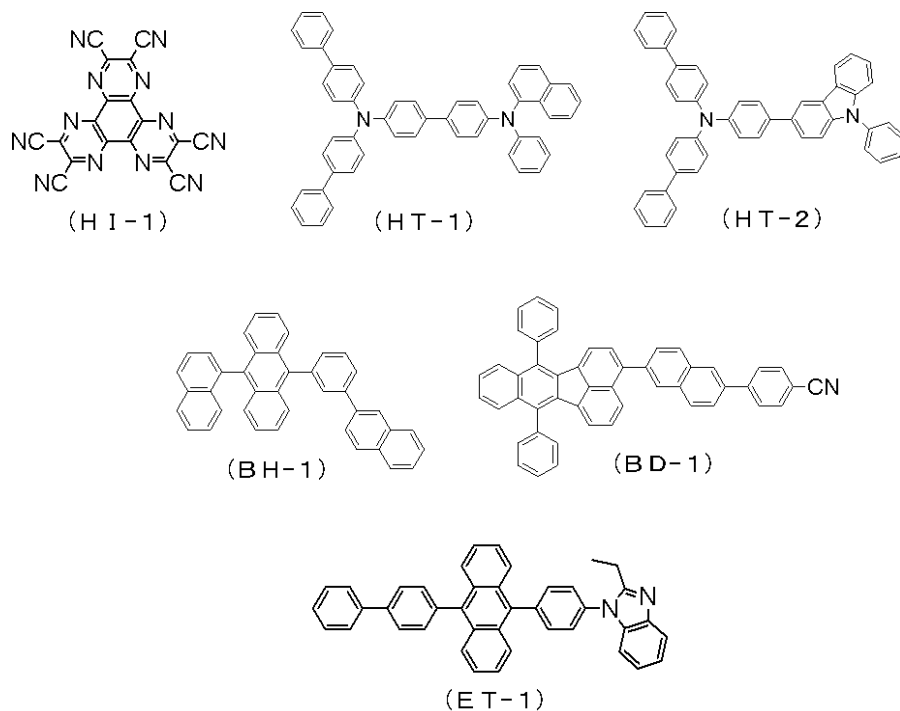
【0466】

<有機EL素子の作製>

有機EL素子の作製には、上記合成例で合成した化合物の他、以下に示す化合物を用いた。

【0467】

【化178】



【0468】

・実施例1

25mm×75mm×0.7mm厚のITO透明電極(陽極)付きガラス基板(ジオマ

ティック社製)をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に透明電極を覆うようにしてHI-1を蒸着し、膜厚5nmのHI-1膜を形成した。このHI-1膜は、正孔注入層として機能する。

このHI-1膜の成膜に続けて、HT-1を蒸着し、HI-1膜上に膜厚80nmのHT-1膜を成膜した。このHT-1膜は、第一の正孔輸送層として機能する。

このHT-1膜の成膜に続けて、化合物HT-2を蒸着し、HT-1膜上に膜厚15nmのHT-2膜を成膜した。このHT-2膜は、第二の正孔輸送層として機能する。

このHT-2膜上にBH-1(ホスト材料)およびBD-1(ドーパント材料)を20:1の質量比で共蒸着し、膜厚25nmの発光層を成膜した。

この発光層上に(化合物7)を蒸着し、膜厚20nmの障壁層を形成した。

この障壁層上に電子輸送材料であるET-1を蒸着して、膜厚5nmの電子注入層を形成した。

この電子注入層上にLiFを蒸着して、膜厚1nmのLiF膜を形成した。

このLiF膜上に金属Alを蒸着して、膜厚80nmの金属陰極を形成した。

このようにして、実施例1の有機EL素子を作製した。

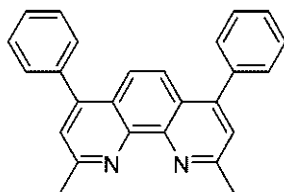
#### 【0469】

・実施例2～実施例19および比較例1

実施例2～実施例19および比較例1の有機EL素子は、障壁層の材料として表1に示す材料に代えた以外は、実施例1の有機EL素子と同様にして作製した。比較例1の有機EL素子の障壁層の材料として、次に示すBCPを用いた。

#### 【0470】

#### 【化179】



BCP

#### <素子評価>

作製した有機EL素子について、以下の評価を行った。結果を表1に示す。

・初期性能

電流密度が $10\text{ mA/cm}^2$ となるように有機EL素子に電圧を印加し、そのときの電圧値(V)を測定した。また、そのときのEL発光スペクトルを分光放射輝度計(CS-1000:コニカミノルタ社製)にて計測した。得られた分光放射輝度スペクトルから、色度CIE<sub>x</sub>, CIE<sub>y</sub>、電流効率L/J(cd/A)、および外部量子効率EQE(%)を算出した。

#### 【0471】

・TTF比率の測定

ホスト材料、ドーパント材料及び障壁層材料の三重項エネルギーが所定の関係を満たすことにより、全発光に対するTTF由来の発光強度比を高い値とすることができ、従来知られていた蛍光素子では達成できなかった高効率化を可能とすることができる。

#### 【0472】

TTF由来の発光強度比は、過渡EL法により測定することができる。過渡EL法とは、素子に印加しているDC電圧を除去したあとのEL発光の減衰挙動(過渡特性)を測定する手法である。EL発光強度は、最初の再結合で生成する一重項励起子からの発光成分と、TTF現象を経由して生成する一重項励起子からの発光成分に分類される。一重項励

10

20

30

40

50

起子の寿命はナノ秒オーダーであり非常に短いためDC電圧除去後速やかに減衰する。

【0473】

一方、TTF現象は寿命の長い三重項励起子を経由して生成する一重項励起子からの発光のため、ゆるやかに減衰する。このように一重項励起子からの発光と三重項励起子からの発光は時間的に大きな差があるため、TTF由来の発光強度を求めることができる。具体的には以下の方法により決定することができる。

【0474】

過渡EL波形は以下のようにして測定する(図13を参照)。電圧パルスジェネレータ(PG)から出力されるパルス電圧波形をEL素子に印加する。印加電圧波形をオシロスコープ(OSC)に取り込む。パルス電圧をEL素子に印加すると、EL素子はパルス発光を生じる。この発光を、光電子増倍管(PMT)を経由してオシロスコープ(OSC)に取り込む。電圧波形とパルス発光を同期させてパーソナルコンピュータ(PC)に取り込む。

10

【0475】

さらに、過渡EL波形の解析によりTTF由来の発光強度比を以下のようにして決定する。

【0476】

三重項励起子の減衰挙動のレート方程式を解いて、TTF現象に基づく発光強度の減衰挙動をモデル化する。発光層内部の三重項励起子密度 $n_T$ の時間減衰は、三重項励起子の寿命による減衰速度 $\alpha$ と三重項励起子の衝突による減衰速度 $\gamma$ を用いて次のようなレート方程式で表すことができる。

20

【0477】

【数1】

$$\frac{dn_T}{dt} = -\alpha \cdot n_T - \gamma \cdot n_T^2$$

【0478】

この微分方程式を近似的に解くと、次の式が得られる。ここで、 $I_{TTF}$ はTTF由来の発光強度であり、 $A$ は定数である。このように、過渡EL発光がTTFに基づくものであれば、その強度の平方根の逆数が直線近似で表されることになる。そこで、測定した過渡EL波形データを下記近似式にフィッティングし定数 $A$ を求める。このときDC電圧を除去した時刻 $t = 0$ における発光強度 $1/A^2$ がTTF由来の発光強度比と定義する。

30

【0479】

【数2】

$$\frac{1}{\sqrt{I_{TTF}}} \propto A + \gamma \cdot t$$

40

【0480】

図14Aのグラフは、EL素子に所定のDC電圧を印加し、その後電圧を除去した時の測定例であり、EL素子の発光強度の時間変化を表したものである。図14Aのグラフにて時刻約 $3 \times 10^{-8}$ 秒のところでDC電圧を除去した。なお、グラフは、電圧を除去した時の輝度を1として表したものである。その後約 $2 \times 10^{-7}$ 秒までの急速な減衰の後、緩やかな減衰成分が現れる。図14Bのグラフは、電圧除去時点を原点にとり、電圧除去後、 $10^{-5}$ 秒までの光強度の平方根の逆数をプロットしたグラフであり、直線によく近似できることがわかる。直線部分を時間原点へ延長したときの縦軸との交点Aの値は2.41である。すると、この過渡EL波形から得られるTTF由来発光強度比は、 $1/2$

50

$.41^2 = 0.17$  となり、全発光強度のうちの 17% が TTF 由来であることになる。

直線へのフィッティングは、最小二乗法により行うことが好ましい。この場合に、 $10^{-5}$  秒までの値を用いてフィッティングすることが好ましい。

【0481】

パルスジェネレータ（アジレントテクノロジー社製、8114A）から出力した電圧パルス波形（パルス幅：500マイクロ秒、周波数：20Hz、電圧：0.1～100mA/cm<sup>2</sup>相当の電圧）を印加し、EL発光を光電子増倍管（浜松ホトニクス社製R928）に入力し、パルス電圧波形とEL発光とを同期させてオシロスコープ（テクトロニクス社製2440）に取り込んで過渡EL波形を得た。これを解析してTTF比率を決定した。

実施例1の有機EL素子に対して、室温下で通電し、時刻約 $3 \times 10^{-8}$ 秒のところでパルス電圧を除去した。

電圧除去時点を原点にとり、電圧除去後、 $1.5 \times 10^{-5}$ 秒までの光強度の平方根の逆数をプロットしたこのグラフからTTF比率を求めた。他の実施例及び比較例についても同様に測定した。結果を表1に示す。

【0482】

【表 1】

	障壁層材料	電圧	色度CIE		L/J	EQE	TTF比率
		(V)	x	y	(cd/A)	(%)	(%)
実施例1	化合物7	3.38	0.144	0.131	10.32	9.21	28
実施例2	化合物9	3.51	0.142	0.137	10.39	9.06	32
実施例3	化合物13	3.65	0.142	0.151	10.63	8.64	33
実施例4	化合物14	3.52	0.145	0.131	9.84	8.76	29
実施例5	化合物16	3.55	0.145	0.127	9.76	8.81	32
実施例6	化合物22	3.61	0.143	0.137	11.09	9.65	32
実施例7	化合物31	3.75	0.143	0.134	10.05	8.87	35
実施例8	化合物50	4.08	0.144	0.128	9.76	8.87	29
実施例9	化合物51	3.59	0.143	0.137	11.10	9.64	31
実施例10	化合物52	3.81	0.143	0.132	11.17	9.96	33
実施例11	化合物53	4.15	0.143	0.134	11.03	9.72	33
実施例12	化合物24	3.71	0.143	0.131	10.53	9.42	30
実施例13	化合物72	3.81	0.141	0.138	10.03	8.74	32
実施例14	化合物74	3.64	0.143	0.135	11.34	9.96	30
実施例15	化合物78	3.75	0.142	0.130	11.04	9.96	31
実施例16	化合物79	4.02	0.142	0.132	10.50	9.40	34
実施例17	化合物83	3.78	0.143	0.134	11.21	9.87	36
実施例18	化合物88	3.58	0.142	0.136	11.05	9.69	31
実施例19	化合物89	3.56	0.143	0.135	10.78	9.43	28
比較例1	BCP	4.30	0.144	0.128	8.43	7.65	25

10

20

30

## 【0483】

実施例1～19の有機EL素子では、障壁層に本発明の芳香族複素環化合物を用いているので、比較例1の有機EL素子に比べて、TTF比率が高く、高い電流効率および外部量子効率を示した。また、実施例1～19の有機EL素子の駆動電圧も、比較例1の有機EL素子に比べて低かった。

40

## 【産業上の利用可能性】

## 【0484】

本発明の有機EL素子は、ディスプレイや照明装置に利用できる。

## 【符号の説明】

## 【0485】

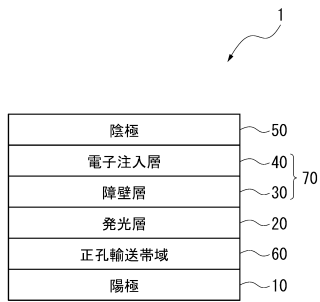
1, 2, 3, 4, 5 ... 有機EL素子

10 ... 陽極

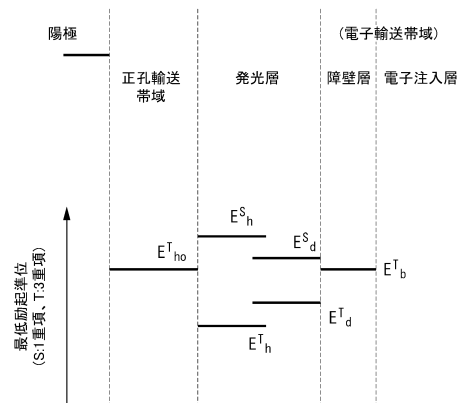
50

- 2 0 , 2 2 , 2 4 ... 発光層
- 3 0 , 3 2 ... 障壁層
- 4 0 ... 電子注入層
- 4 1 ... 電子輸送層
- 5 0 ... 陰極
- 6 0 ... 正孔輸送帯域
- 7 0 ... 電子輸送帯域

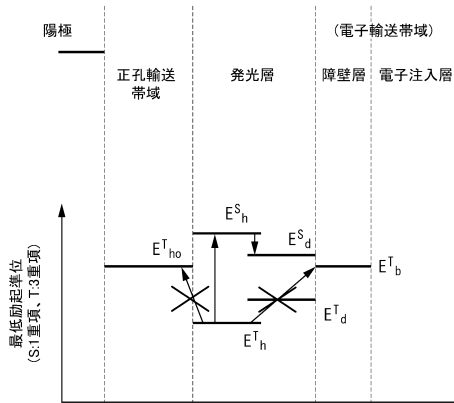
【 図 1 】



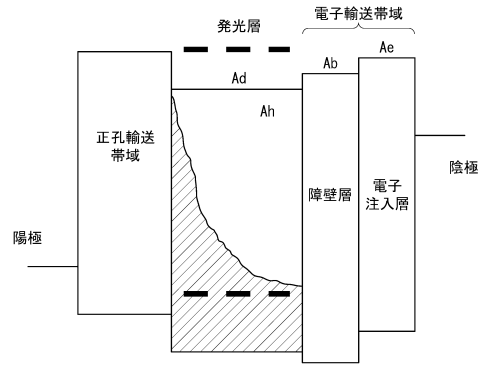
【 図 2 】



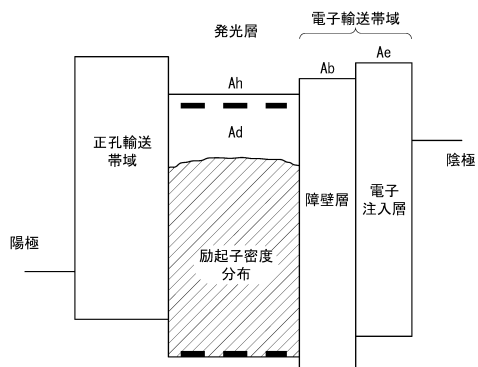
【 図 3 】



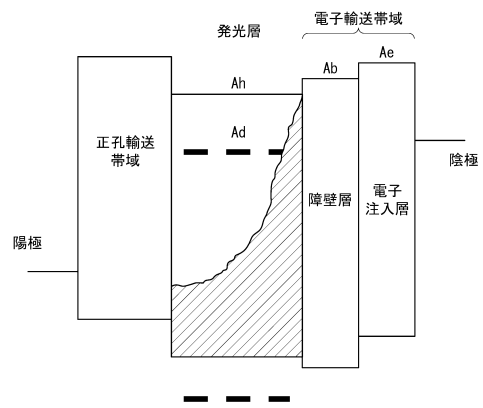
【 図 4 】



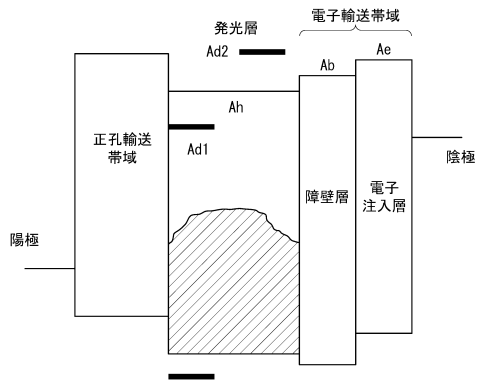
【 図 5 】



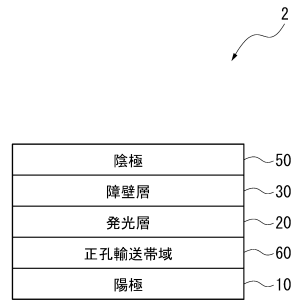
【 図 6 】



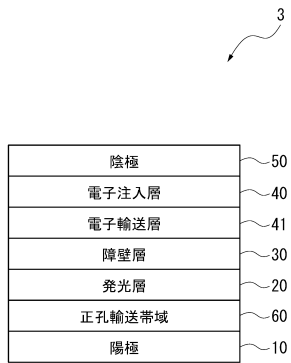
【 図 7 】



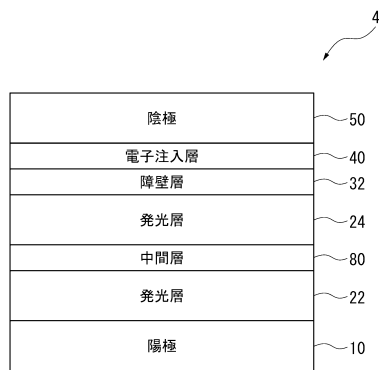
【 図 8 】



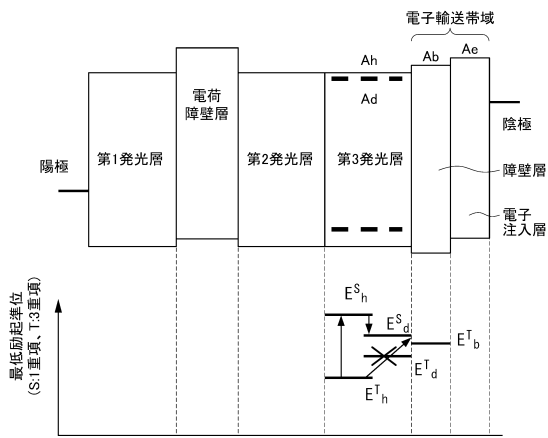
【 図 9 】



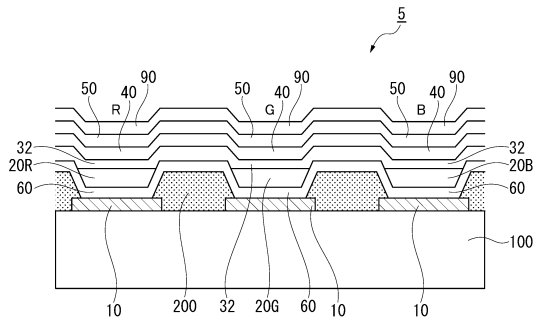
【 図 10 】



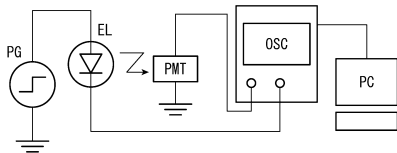
【図 1 1】



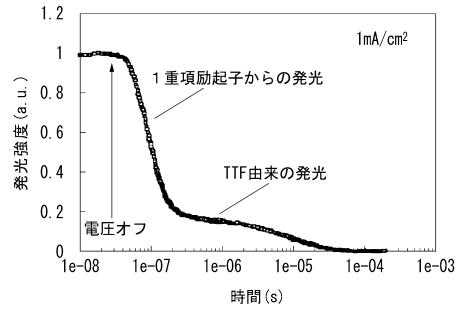
【図 1 2】



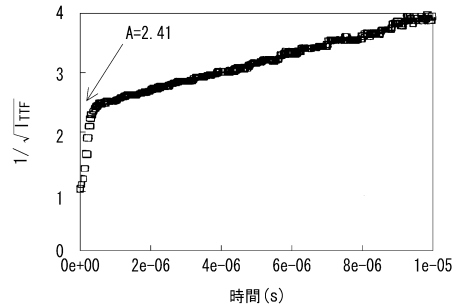
【図 1 3】



【図 1 4 A】



【図 1 4 B】



---

フロントページの続き

(51) Int.Cl. F I  
C 0 7 D 409/14 (2006.01) C 0 7 D 405/14  
C 0 7 D 491/048 (2006.01) C 0 7 D 409/10  
C 0 7 D 409/14  
C 0 7 D 491/048

(56) 参考文献 国際公開第 2 0 1 0 / 1 3 6 1 0 9 ( W O , A 1 )  
特表 2 0 1 2 - 5 2 8 0 8 8 ( J P , A )  
国際公開第 2 0 0 7 / 0 6 9 5 6 9 ( W O , A 1 )  
国際公開第 2 0 1 0 / 0 4 4 3 4 2 ( W O , A 1 )  
国際公開第 2 0 1 0 / 1 3 4 3 5 0 ( W O , A 1 )  
特開 2 0 1 2 - 0 9 7 0 0 6 ( J P , A )

(58) 調査した分野(Int.Cl. , D B 名)  
H 0 1 L 5 1 / 5 0 - 5 1 / 5 6  
H 0 1 L 2 7 / 3 2  
H 0 5 B 3 3 / 0 0 - 3 3 / 2 8  
C A p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )

专利名称(译)	芳族杂环衍生物和用于有机电致发光器件的材料		
公开(公告)号	<a href="#">JP6152053B2</a>	公开(公告)日	2017-06-21
申请号	JP2013520912	申请日	2012-11-21
[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		
当前申请(专利权)人(译)	出光兴产株式会社		
[标]发明人	水谷清香 佐土貴康		
发明人	水谷 清香 佐土 貴康		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07D405/10 C07D405/14 C07D409/10 C07D409/14 C07D491/048		
CPC分类号	C07D405/10 C07D405/14 C07D409/10 C07D409/14 C07D471/04 C07D491/048 C07D519/00 C07F7/0816 C09K11/025 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1059 C09K2211/1088 C09K2211/1092 C09K2211/1096 H01L51/0052 H01L51/0054 H01L51/0062 H01L51/0067 H01L51/0071 H01L51/0072 H01L51/0073 H01L51/0074 H01L51/50 H01L51/5004 H01L51/5072 H01L51/0055 H01L51/5016 H01L51/5092 H01L51/5096 H01L2251/305 H01L2251/552 H01L2251/558		
FI分类号	H05B33/22.B H05B33/14.B C09K11/06.690 C09K11/06.660 C07D405/10.CSP C07D405/14 C07D409/10 C07D409/14 C07D491/048		
审查员(译)	小西孝		
优先权	2011255472 2011-11-22 JP 2012193349 2012-09-03 JP		
其他公开文献	JPWO2013077352A1		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

有机EL器件依次包括阳极，发光层，电子传输区和阴极，电子传输区含有由下列通式(1)表示的芳族杂环衍生物。在下面的通式(1)中，从X1到X3是氮原子或CR1，A是以下一般它由等式(2)表示。在下面的通式(2)中，L1是单键或连接基团，并且HAr由以下通式(3)表示。在下列通式(3)中，Y1是氧原子，硫原子等，并且在X11至X18中一个是通过单键与L1键合的碳原子，另一个是氮原子或CR13。

(19) 日本国特許庁(JP)	(12) 特許公報(B2)	(11) 特許番号 特許第6152053号 (P6152053)
(45) 発行日 平成29年6月21日(2017.6.21)	(24) 登録日 平成29年6月2日(2017.6.2)	
(5) Int. Cl. F I		
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/22 B	
C09K 11/06 (2006.01)	H05B 33/14 B	
C07D 405/10 (2006.01)	C09K 11/06 690	
C07D 405/14 (2006.01)	C09K 11/06 660	
C07D 409/10 (2006.01)	C07D 405/10 CSP	
請求項の数 9 (全 122 頁) 最終頁に続く		
(21) 出願番号 特願2013-520912(P2013-520912)	(73) 特許権者 000183646	
(86) (22) 出願日 平成24年11月21日(2012.11.21)	出光興産株式会社	
(86) 国際出願番号 PCT/JP2012/080156	東京都千代田区丸の内3丁目1番1号	
(87) 国際公開番号 W02013/077352	11000637	
(87) 国際公開日 平成25年5月30日(2013.5.30)	特許業務法人徳之下知的財産事務所	
審査請求日 平成27年5月26日(2015.5.26)	(74) 代理人 水谷 清香	
(31) 優先権主張番号 特願2011-255472(P2011-255472)	千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地	
(32) 優先日 平成23年11月22日(2011.11.22)	(72) 発明者 佐土 貴康	
(33) 優先権主張国 日本国(JP)	千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地	
(31) 優先権主張番号 特願2012-193349(P2012-193349)	(72) 発明者 水谷 清香	
(32) 優先日 平成24年9月3日(2012.9.3)	審査官 小西 隆	
(33) 優先権主張国 日本国(JP)		
前置審査		
最終頁に続く		
(54) 【発明の名称】 芳族複素環誘導体、および有機エレクトロルミネッセンス素子用材料		