

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015年1月29日(29.01.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/011924 A1

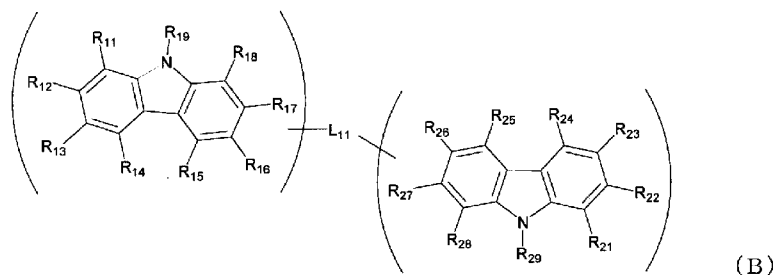
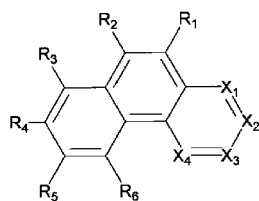
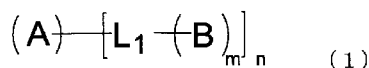
- (51) 国際特許分類:
C07D 403/14 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/003885
- (22) 国際出願日: 2014年7月23日(23.07.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-152753 2013年7月23日(23.07.2013) JP
- (71) 出願人: 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 池田 潔 (IKEDA, Kiyoshi); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 蓬田知行 (YOMOGITA, Akinori); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 河村 昌宏 (KAWAMURA, Masahiro); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 大野 英俊 (ONO, Hidetoshi); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 渡辺 喜平, 外 (WATANABE, Kihei et al.); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目26番 芝信神田ビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: NOVEL COMPOUND AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT PRODUCED USING SAME

(54) 発明の名称: 新規化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子



(57) Abstract: A compound represented by formula (1). (In the formula, L₁ represents a single bond or a linking group; A represents a group represented by formula (A); B represents a group represented by formula (B); m represents an integer of 1 to 3; and n represents an integer of 1 to 4.)

(57) 要約: 下記式(1)で表される化合物。(式中、L₁は単結合又は連結基であり、Aは式(A)で表される基であり、Bは下記式(B)で表される基であり、mは1~3の整数であり、nは1~4の整数である。)

WO 2015/011924 A1

明 細 書

発明の名称：

新規化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は、新規化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

背景技術

[0002] 一般に有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子は、陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟まれた1層以上の有機薄膜層から構成されている。両電極間に電圧が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が発光領域に注入され、注入された電子と正孔は発光領域において再結合して励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際に光を放出する。

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

[0003] 例えば、有機EL素子用の材料として、特許文献1～5には、ベンゾキノゾリン構造を有する化合物が開示されている。有機EL素子の分野においては、さらなる素子性能の向上を目指すため、新たな材料系の開発が求められている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：韓国特許公開第10-2012-0117693号

特許文献2：特開2009-246097号公報

特許文献3：米国特許公開第2004/076853号

特許文献4：国際公開第2004/039786号

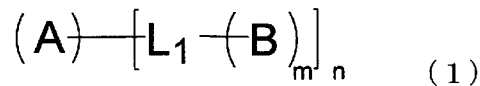
特許文献5：国際公開第2006/104118号

発明の概要

[0005] 本発明は、有機EL素子材料として有用な新規化合物を提供することを目的とする。

[0006] 本発明の一実施形態によれば、下記式(1)で表される化合物が提供される。

[化1]



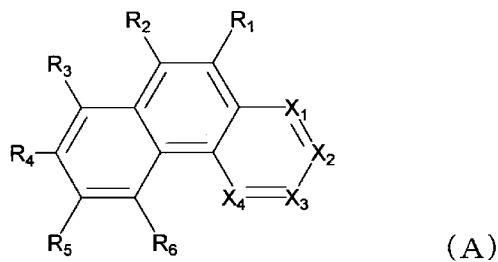
[式中、 L_1 は単結合又は連結基であり、 A は下記式(A)で表される基であり、 B は下記式(B)で表される基であり、 m は1~3の整数であり、 n は1~4の整数である。

m が2以上の場合、複数の B はそれぞれ同一でも異なってもよい。

n が2以上の場合、複数の L_1 はそれぞれ同一でも異なってもよく、複数の B はそれぞれ同一でも異なってもよい。

L_1 が単結合の場合、 A と B とが直接結合されることを示し、かつ、 m は1である。

[化2]

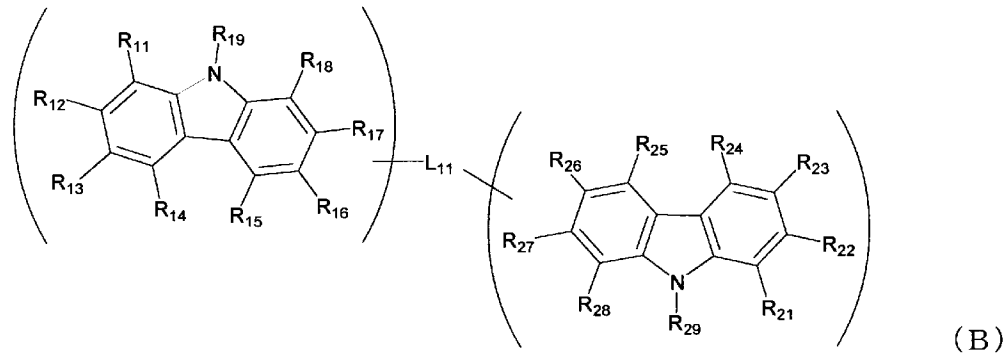


(式(A)中、 $X_1 \sim X_4$ はそれぞれ独立に、窒素原子(N)又はCRaであり、 $X_1 \sim X_4$ のうち2つは窒素原子である。

Ra及び $R_1 \sim R_6$ のn個は、それが置換する式(A)中の炭素原子と L_1 (又は L_1 が単結合の場合のB)とを直接結合させる単結合を表す。

Ra及び $R_1 \sim R_6$ のうち前記単結合ではないRa及び $R_1 \sim R_6$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。)

[化3]



(式 (B) 中、 L_{11} は単結合又は連結基である。

$R_{11} \sim R_{19}$ の 1 つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_1 (又は L_1 が単結合の場合の A) とを直接結合させる単結合を表し、他の 1 つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} とを直接結合させる単結合を表す。

$R_{11} \sim R_{19}$ のうち前記単結合以外の $R_{11} \sim R_{19}$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。

$R_{21} \sim R_{29}$ の 1 つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} とを直接結合させる単結合を表す。

$R_{21} \sim R_{29}$ のうち前記単結合以外の $R_{21} \sim R_{29}$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。

L_{11} が単結合の場合、 $R_{11} \sim R_{19}$ の 1 つ、及び、 $R_{21} \sim R_{29}$ の 1 つは、それぞれが置換する式 (B) 中の炭素原子どうしを直接結合させる単結合を表す。))

[0007] 本発明によれば、有機 EL 素子材料として有用な新規化合物を提供できる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]本発明に係る有機 EL 素子の一例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0009] 本明細書において、環形成炭素数とは、原子又は分子が環状に結合した構造の化合物 (例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、スピロ環化合物、炭素環化合物、複素環化合物) の当該環自体を構成する原子のうちの

炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素数には含まない。以下で示される「環形成炭素数」については、特筆しない限り同様とする。

例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が6であり、ナフタレン環は環形成炭素数が10であり、ピリジニル基は環形成炭素数5であり、フラニル基は環形成炭素数4である。また、ベンゼン環やナフタレン環に置換基として例えばアルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、環形成炭素数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の炭素数は環形成炭素数の数に含めない。

環形成原子数とは、原子又は分子が環状に結合した構造（例えば単環、縮合環、環集合）の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、スピロ環化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子の数を表す。環を構成しない原子（例えば、環を構成する原子の結合手を終端する水素原子）や、当該環が置換基によって置換される場合の置換基に含まれる原子は環形成原子数には含まない。以下で記される「環形成原子数」については、特筆しない限り同様とする。

例えば、ピリジン環は環形成原子数が6であり、キナゾリン環は環形成原子数が10であり、フラン環の環形成原子数が5である。ピリジン環やキナゾリン環の炭素原子にそれぞれ結合している水素原子や置換基を構成する原子については、環形成原子数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の原子数は環形成原子数の数に含めない。

また、隣接する置換基同士で環を形成する場合は、一方の置換基の炭素数が上記の範囲内で最小となる箇所当該環を切り離して、他方の置換基の炭素数も上記の範囲内となる構造が含まれる。以下で記される置換基の炭素数については、特筆しない限り同様とする。

「芳香族炭化水素環」とは炭素原子と水素原子のみからなり、芳香族性を

有する環（単環、縮合環及びこれらの複数の環が単結合を介して結合している場合を含む）を意味し、「複素芳香族環」とは炭素原子、水素原子の他に1以上のヘテロ原子を含み、芳香族性を有する環（単環、縮合環及びこれらの複数の環が単結合を介して結合している場合を含む）を意味し、「複素脂肪族環」とは炭素原子、水素原子の他に1以上のヘテロ原子を含み、芳香族性を有しない環（単環、縮合環及びこれらの複数の環が単結合を介して結合している場合を含む）を意味する。

「置換もしくは無置換の炭素数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「炭素数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。ここで、「 YY 」は「 XX 」よりも大きく、「 XX 」と「 YY 」はそれぞれ1以上の整数を意味する。

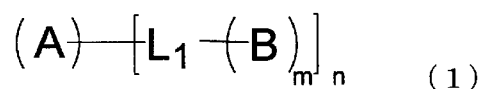
「置換もしくは無置換の原子数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「原子数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の原子数を表すものであり、置換されている場合の置換基の原子数は含めない。ここで、「 YY 」は「 XX 」よりも大きく、「 XX 」と「 YY 」はそれぞれ1以上の整数を意味する。

「置換もしくは無置換の・・・」における「無置換」とは、前記置換基で置換されておらず、水素原子が結合したことを意味する。

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

[0010] 本発明の一実施形態である化合物は、下記式（1）で表される。

[化4]



[0011] 式（1）中、 L_1 は単結合又は連結基であり、 A は下記式（A）で表される基であり、 B は下記式（B）で表される基であり、 m は1～3の整数であり

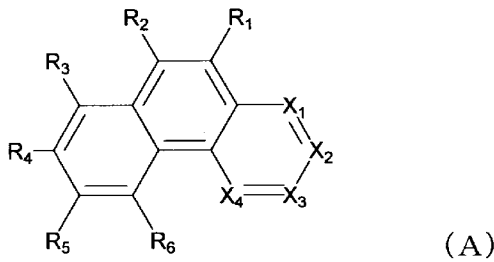
、 n は1～4の整数である。

m が2以上の場合、複数の B はそれぞれ同一でも異なってもよい。

n が2以上の場合、複数の L_1 はそれぞれ同一でも異なってもよく、複数の B はそれぞれ同一でも異なってもよい。

L_1 が単結合の場合、 A と B とが直接結合されることを示し、かつ、 m は1である。

[0012] [化5]

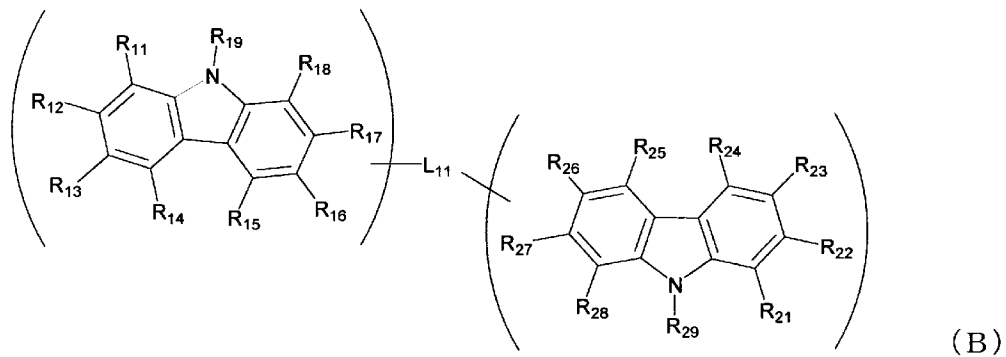


(式 (A) 中、 $X_1 \sim X_4$ はそれぞれ独立に、窒素原子 (N) 又はCRaであり、 $X_1 \sim X_4$ のうち2つは窒素原子である。

Ra 及び $R_1 \sim R_6$ の n 個は、それが置換する式 (A) 中の炭素原子と L_1 (又は L_1 が単結合の場合の B) とを直接結合させる単結合を表す。

Ra 及び $R_1 \sim R_6$ のうち前記単結合ではない Ra 及び $R_1 \sim R_6$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。)

[0013] [化6]



(式 (B) 中、 L_{11} は単結合又は連結基である。

$R_{11} \sim R_{19}$ の1つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_1 (又は L_1 が単結合の場合の A) とを直接結合させる単結合を表し、他の1つは、それ

が置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} とを直接結合させる単結合を表す。

$R_{11} \sim R_{19}$ のうち前記単結合以外の $R_{11} \sim R_{19}$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。

$R_{21} \sim R_{29}$ の1つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} とを直接結合させる単結合を表す。

$R_{21} \sim R_{29}$ のうち前記単結合以外の $R_{21} \sim R_{29}$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。

L_{11} が単結合の場合、 $R_{11} \sim R_{19}$ の1つ、及び、 $R_{21} \sim R_{29}$ の1つは、それぞれが置換する式 (B) 中の炭素原子どうしを直接結合させる単結合を表す。))

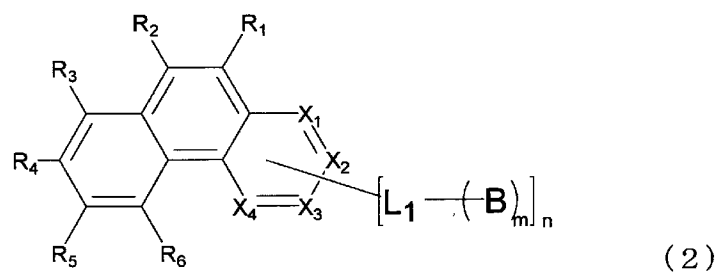
[0014] 式 (1) の化合物は、上記Aで示される構造と上記Bで示されるビスカルバゾール構造を有する。この構造により、化合物の正孔輸送性が向上する。従って、本化合物を適用した有機EL素子において駆動電圧を低電圧化することができる。

また、上記化合物ではキャリアバランスが向上する。これにより、本化合物を発光層のホスト材として用いた有機EL素子において、発光効率を向上することができる。

さらに、上記化合物は耐久性が高い。これにより、本化合物を適用した有機EL素子において発光寿命を向上することができる。

[0015] 上記式 (1) の化合物としては、例えば、下記式 (2) で表される化合物がある。

[化7]

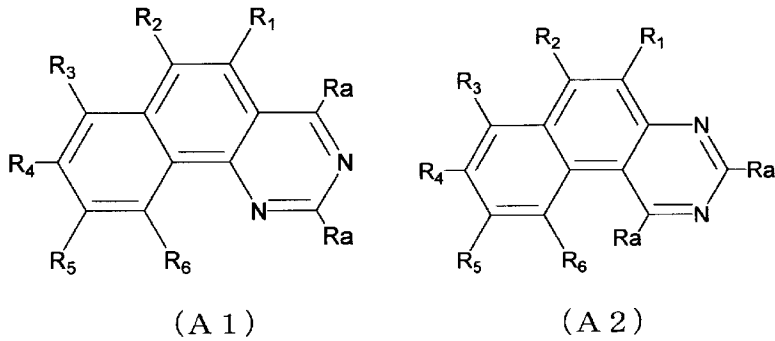


(式中、 $R_1 \sim R_6$ 、 $X_1 \sim X_4$ 、 L_1 、 B 、 m は、前記式 (1) と同様である。

nは1又は2であり、前記R aのn個は、それが置換する式(2)中の炭素原子とL₁(又はL₁が単結合の場合のB)とを直接結合させる単結合を表す。)

[0016] Aが示す構造としては、例えば、下記式(A1)又は(A2)で表されるベンゾキナゾリン構造が好ましい。これにより、優れたキャリアバランスとなり、発光効率が向上する。

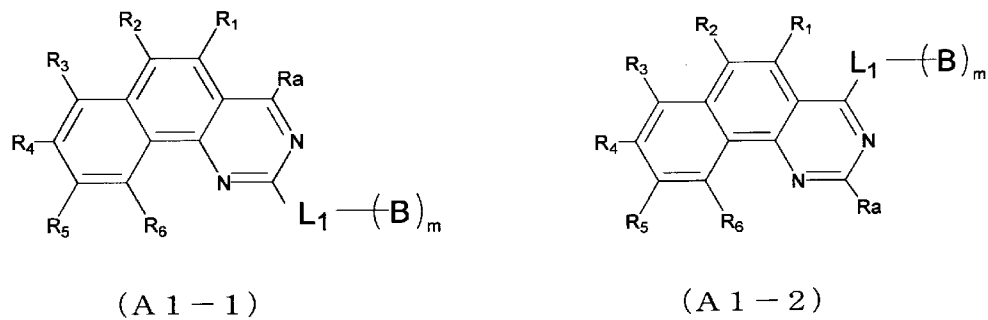
[化8]



(式中、R a、R₁~R₆は、前記式(A)と同様である。)

[0017] 上記式(A1)で表される基を有する化合物は、例えば、下記式(A1-1)又は(A1-2)で表される。

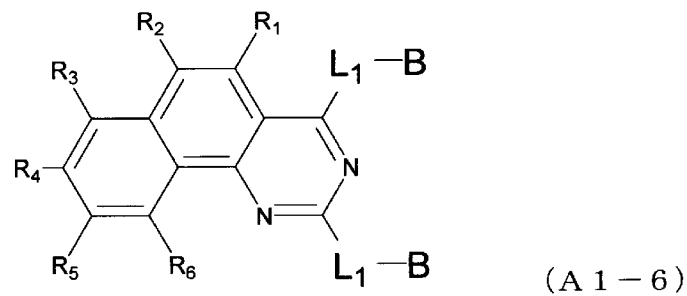
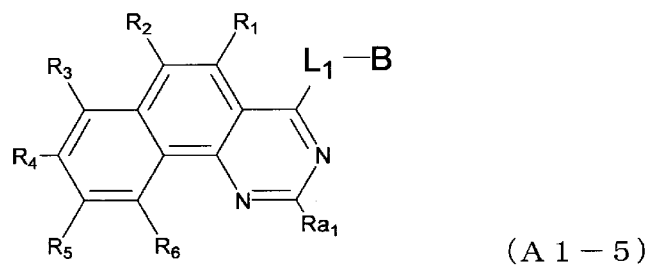
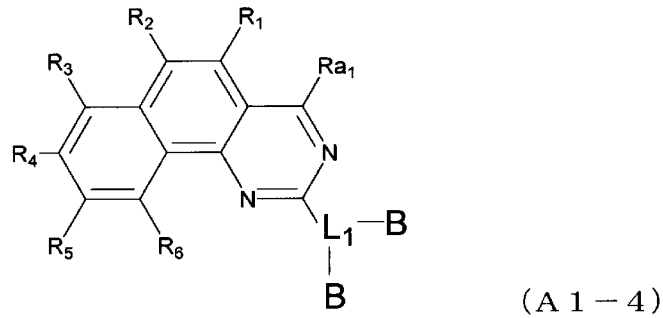
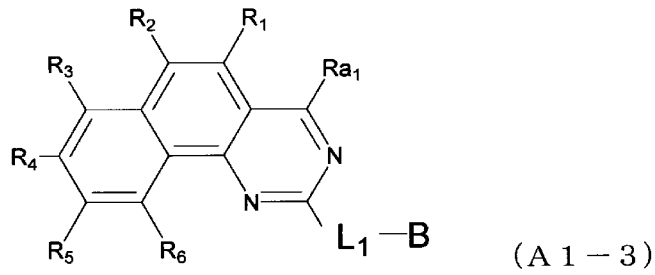
[化9]



(式中、R a、R₁~R₆、L₁、B及びmは、前記式(1)、及び(A1)と同様である。)

[0018] さらに、上記(A1)で表される基を有する化合物として、例えば、下記式(A1-3)~(A1-6)で表される化合物もある。

[化10]

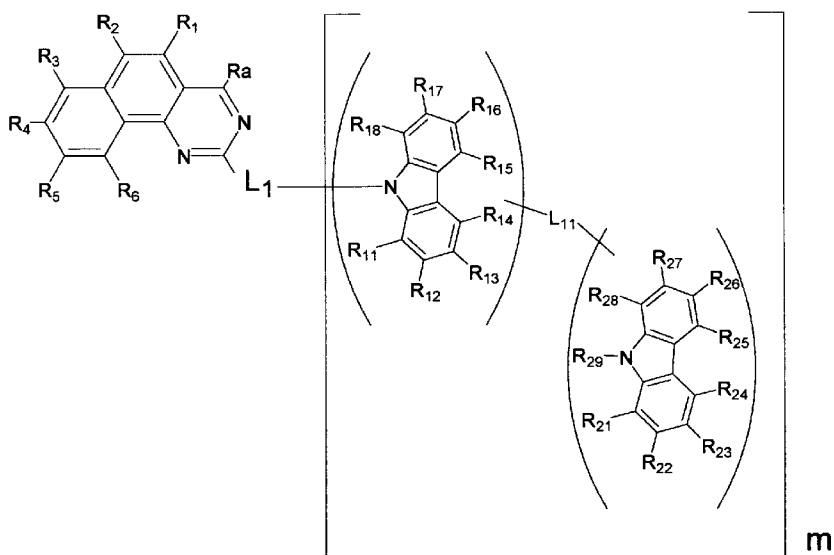


(式中、 $R_1 \sim R_6$ 、 L_1 、及び B は、前記式(1)、及び(A1)と同様である。2つの B は同一でも異なってもよい。 R_{a1} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基である。)

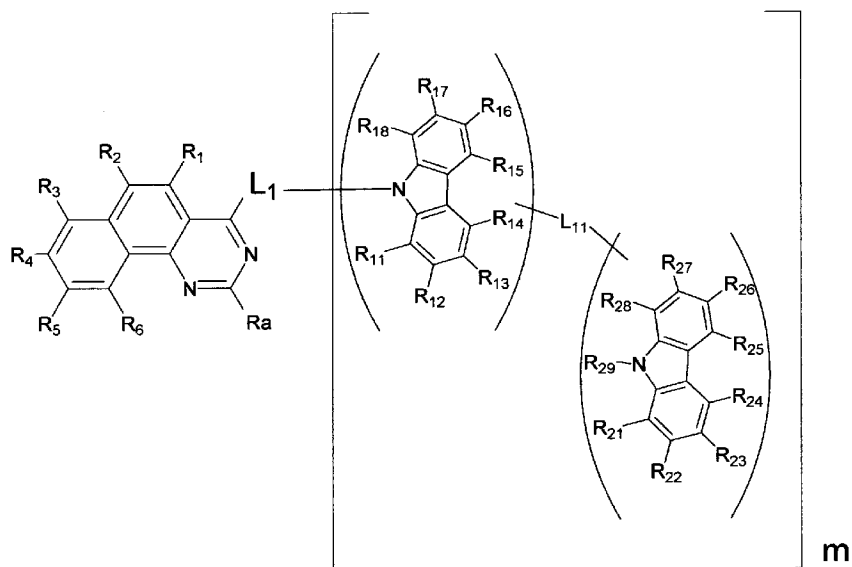
[0019] 上記式(A1)で表される基を有する化合物のうち、正孔輸送性向上の観点から、下記式(A1-7)又は(A1-8)で表される化合物が好ましい。

。

[化11]



(A1-7)

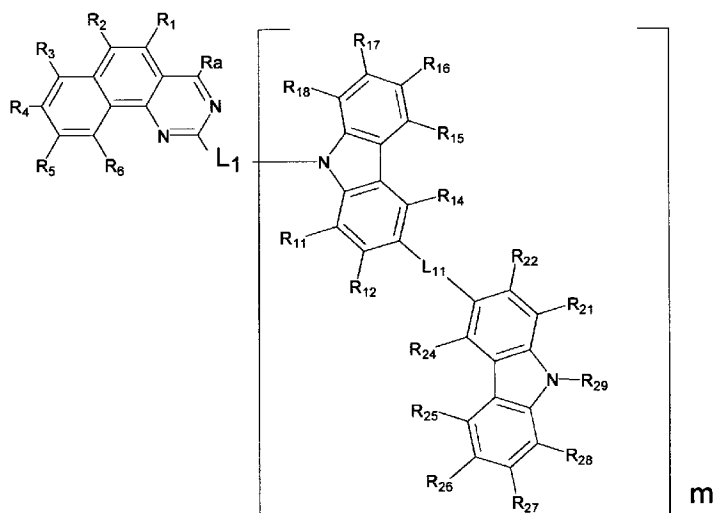


(A1-8)

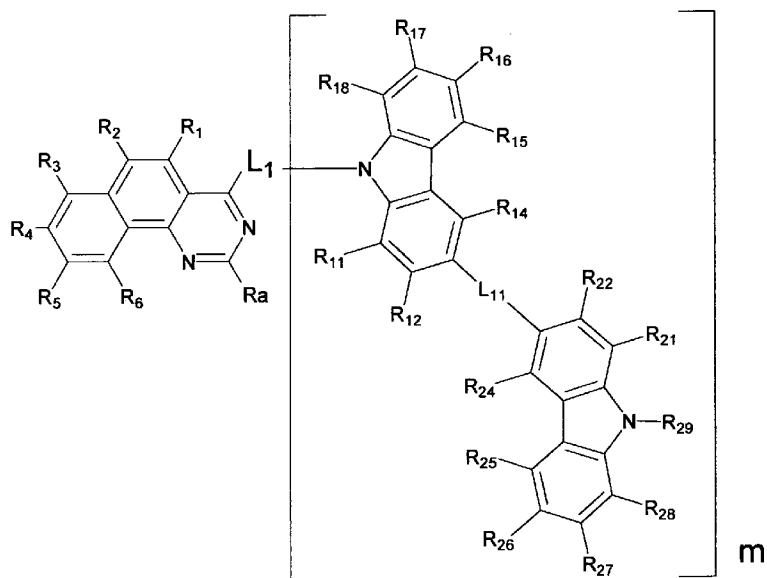
(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[0020] 正孔輸送能力と電子輸送能力を併せ持ち、優れたキャリアバランスにする目的のために、ビスカルバゾールにおいて2つのカルバゾール間の結合位置は3位と3位であることが好ましい。例えば、下記式(A1-9)、又は(A1-10)で表される化合物が好ましい。

[化12]



(A 1 - 9)

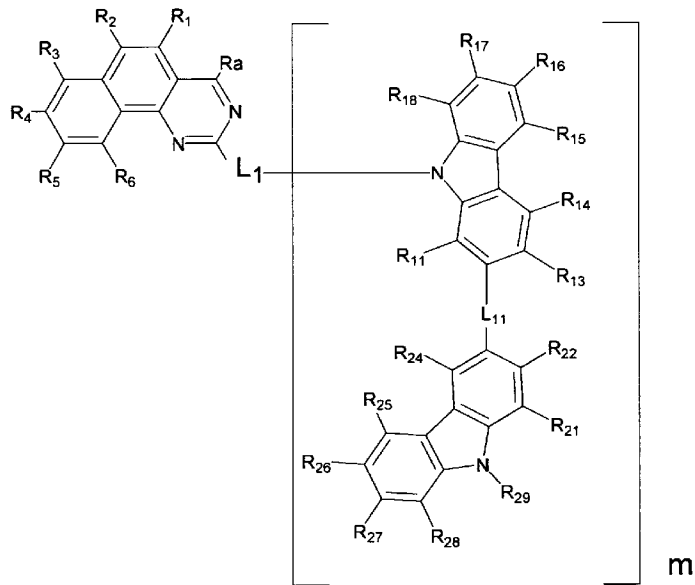


(A 1 - 10)

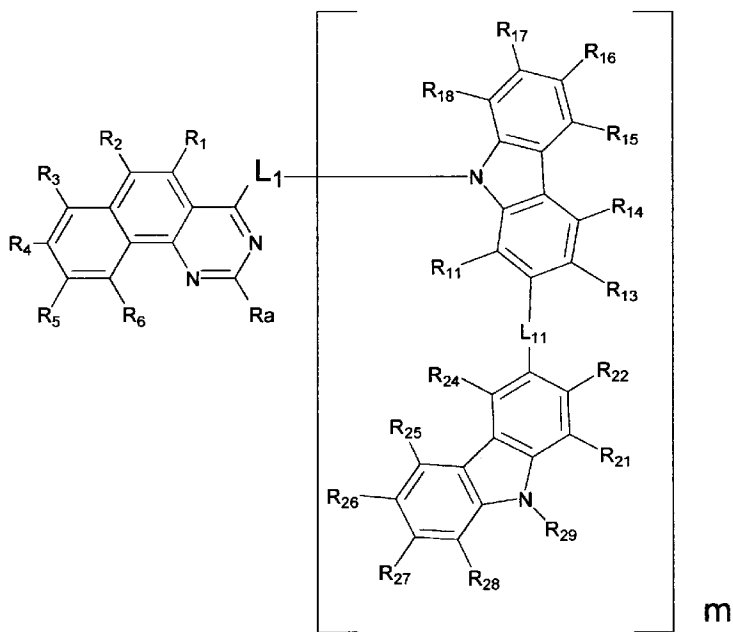
(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[0021] また、正孔輸送能力と電子輸送能力を併せ持ち、優れたキャリアバランスにする目的のために、ビスカルバゾールにおいて2つのカルバゾール間の結合位置は2位と3位であることが好ましい。例えば、下記式(A 1 - 11)又は(A 1 - 12)で表される化合物が好ましい。

[化13]



(A 1 - 1 1)

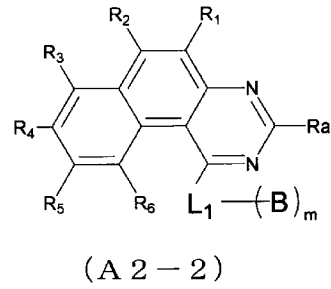
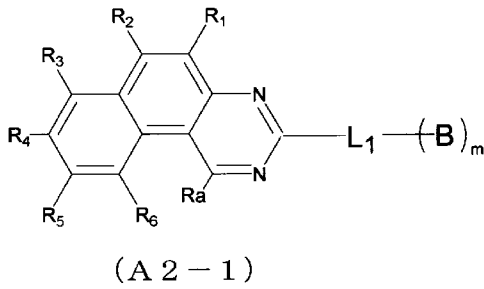


(A 1 - 1 2)

(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[0022] 上記式(A2)で表される基を有する化合物は、例えば、下記式(A2-1)又は(A2-2)で表される。

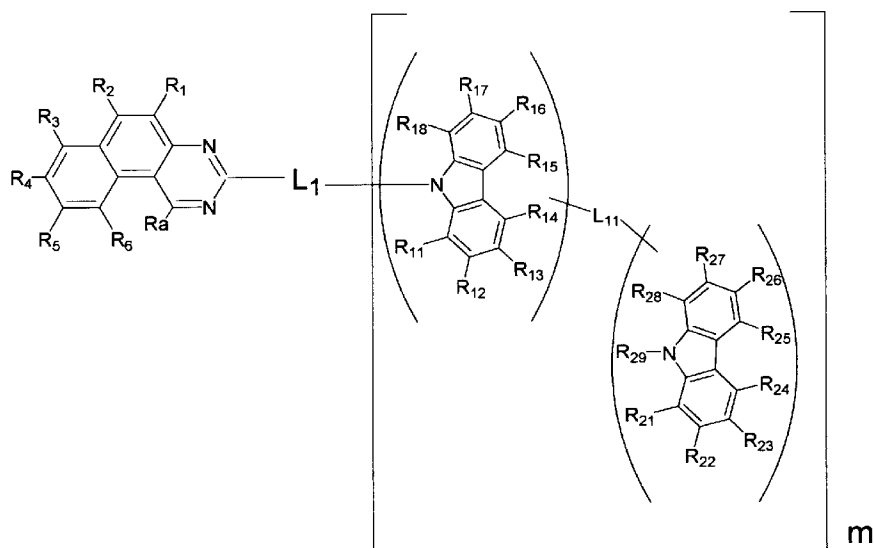
[化14]



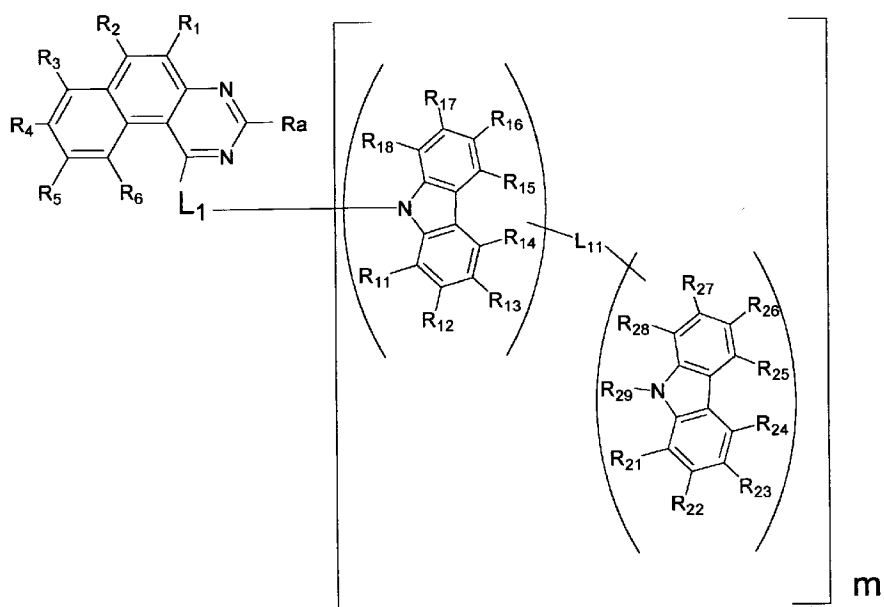
(式中、R_a、R₁~R₆、L₁、B及びmは、前記式(1)、及び(A2)と同様である。)

[0023] 正孔輸送性向上の観点から、下記式(A2-3)又は(A2-4)で表される化合物が好ましい。

[化15]



(A 2 - 3)

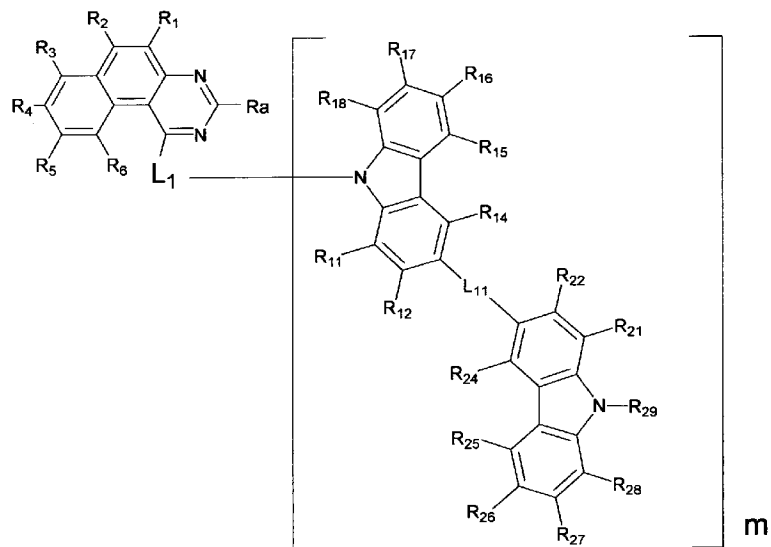
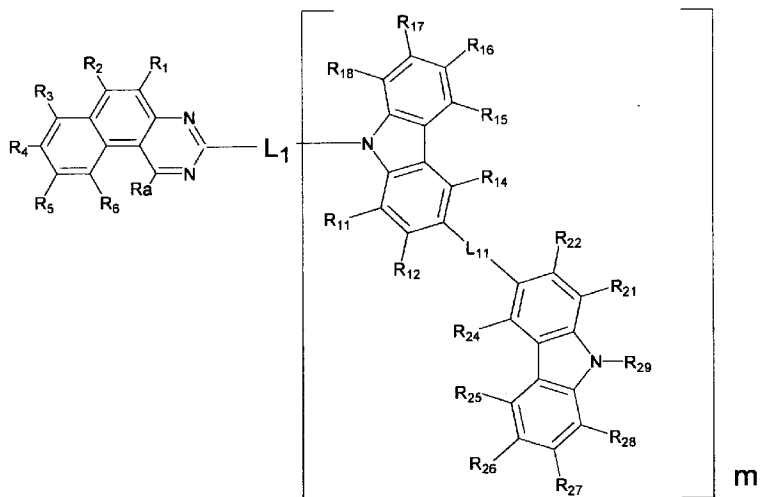


(A 2 - 4)

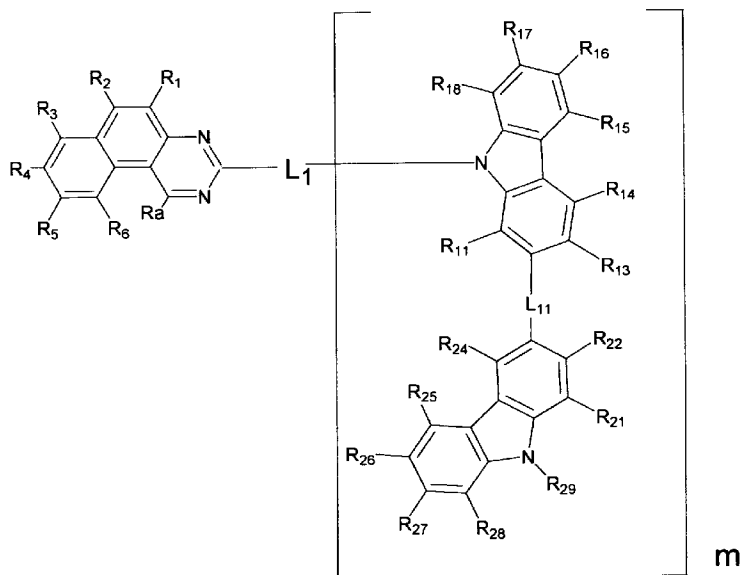
(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[0024] また、上述した式(A 1 - 9) ~ (A 1 - 12)と同様に、ビスカルバゾールにおいて2つのカルバゾール間の結合位置は2位と3位、又は3位と3位が好ましい。具体的には、下記式(A 2 - 5) ~ (A 2 - 8)で表される化合物が好ましい。

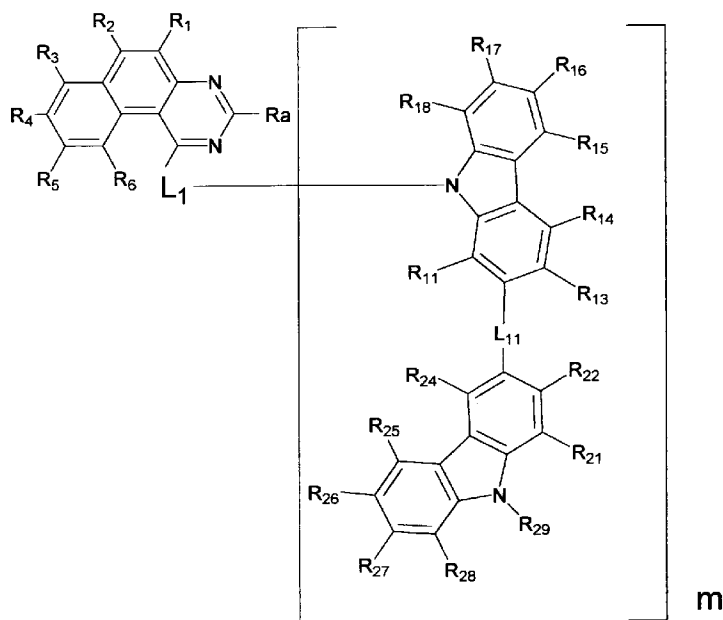
[化16]



[化17]



(A2-7)



(A2-8)

(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[0025] 上記式(A1-1)～(A1-12)、(A2-1)～(A2-8)において、 $R_1 \sim R_{29}$ 、 R_a の示す置換基としては、それぞれ独立に、下記(A)群から選択されるものが好ましく、下記(B)群から選択されるものがより好ましく、下記(C)群から選択されるものがさらに好ましい。

上記（A）群とは、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基（「芳香族炭化水素基」と同義、以下同様）、置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基（「複素環基」と同義、以下同様）、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基、カルボキシル基、ビニル基、（メタ）アクリロイル基、エポキシ基、並びにオキセタニル基からなる群である。

[0026] 上記（B）群とは、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリー

ル基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、並びに置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基からなる群である。

[0027] 上記(C)群とは、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、並びにニトロ基からなる群である。

[0028] 前記炭素数1～50(好ましくは炭素数1～18、より好ましくは炭素数1～8)のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-

ブチル基、ペンチル基（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、オクチル基（異性体を含む）、ノニル基（異性体を含む）、デシル基（異性体を含む）、ウンデシル基（異性体を含む）、及びドデシル基（異性体を含む）、トリデシル基、テトラデシル基、オクタデシル基、テトラコサニル基、テトラコンタニル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、オクチル基（異性体を含む）、ノニル基（異性体を含む）、デシル基（異性体を含む）、ウンデシル基（異性体を含む）、ドデシル基（異性体を含む）、トリデシル基、テトラデシル基、及びオクタデシル基が好ましく、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、及びオクチル基（異性体を含む）がより好ましい。

[0029] 前記環形成炭素数3～50（好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6）のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基等が挙げられ、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

[0030] 前記環形成炭素数6～60（好ましくは環形成炭素数6～25、より好ましくは環形成炭素数6～18）のアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9'-スピロピフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、*s*-インダセニル基、*a*

s-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、及びジベンゾアントリル基等が挙げられる。好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、トリフェニレニル基、フルオレニル基である。

[0031] 置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基としては、上述の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基を有するアラルキル基が挙げられる。

[0032] 置換もしくは無置換の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基が挙げられる。

[0033] 置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基としては、上述の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基を有するアルコキシ基が挙げられる。

[0034] 置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基としては、上述の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基を有するアリールオキシ基が挙げられる。

[0035] 置換もしくは無置換の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基が挙げられる。

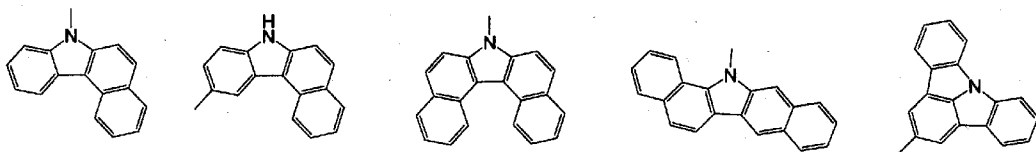
[0036] 環形成原子数5～60（好ましくは5～24、より好ましくは環形成原子数5～13）のヘテロアリール基は、少なくとも1個、好ましくは1～5個

(より好ましくは1～3個、さらに好ましくは1～2個)のヘテロ原子、例えば、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子を含むものである。

当該ヘテロアリアル基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、イソベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ベンゾフラノベンゾチオフェニル基、ベンゾチエノベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフェニル基等が挙げられる。好ましくは、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基である。

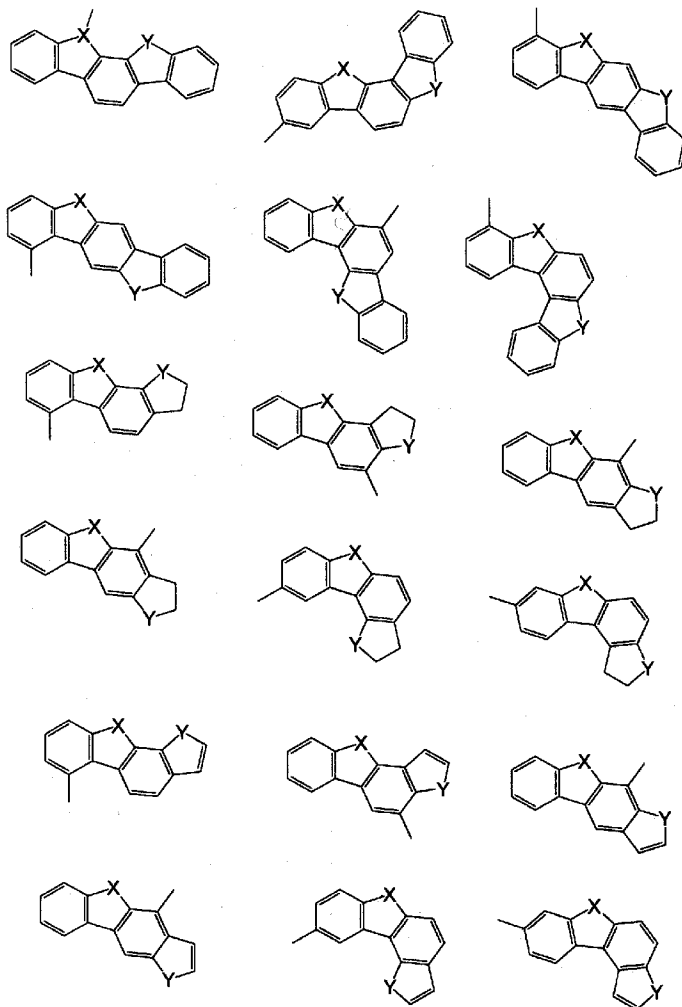
[0037] 上記の「カルバゾリル基」には以下の構造も含まれる。

[化18]



[0038] また、上記のヘテロアリアル基には以下の構造も含まれる。

[化19]

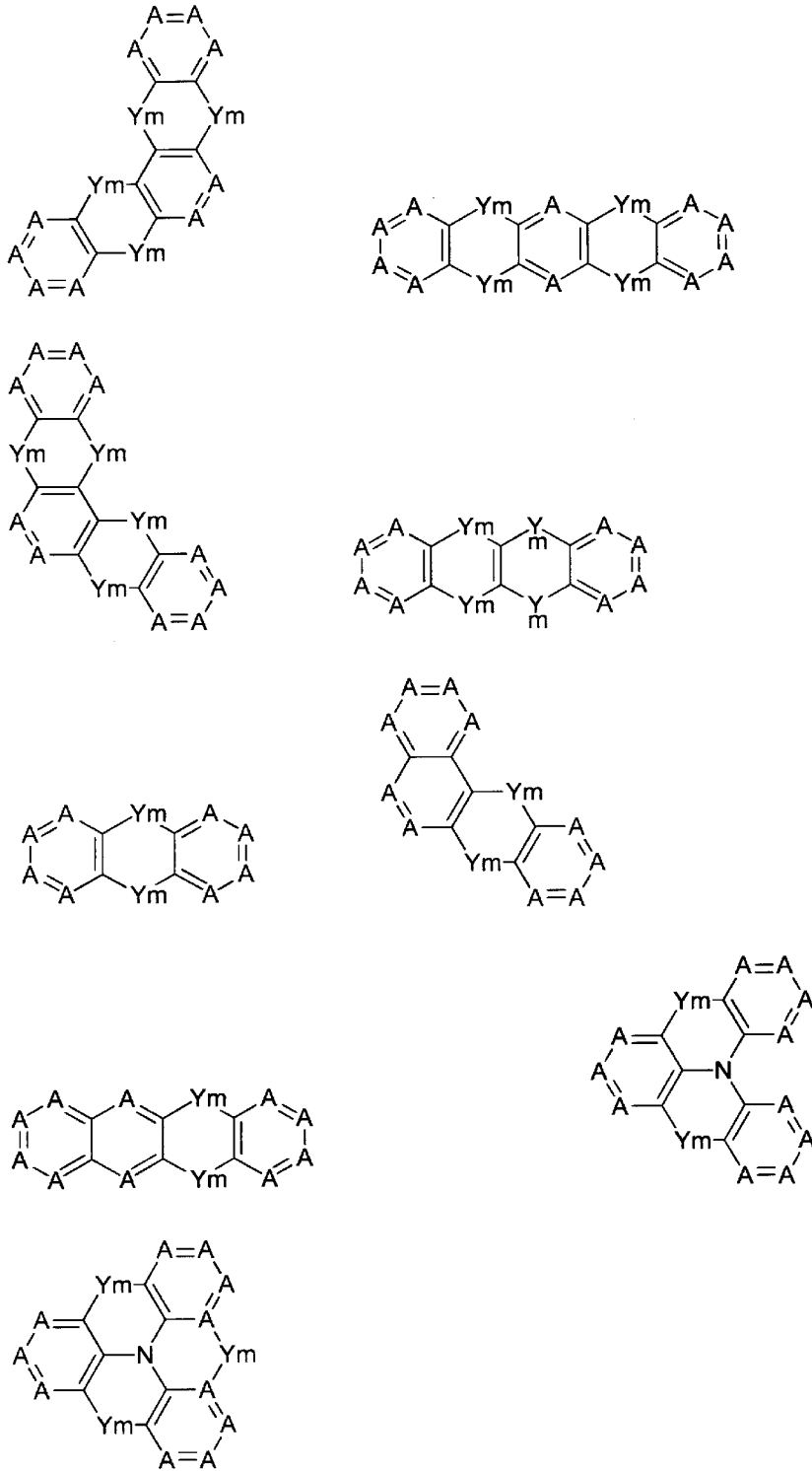


(式中、X、Yはそれぞれ酸素原子、硫黄原子、窒素原子又は-NH-基である。)

[0039] また、上記環形成原子数5～60のヘテロアリアル基の具体例としては、下記式で表されるいずれかの化合物より水素原子を1つ除いてなる1価の基も好ましい。

[0040]

[化20]



[式中、Aは、それぞれ独立に、 CR^{100} 、又は窒素原子を表し、 R^{100} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、

Yは、それぞれ独立に、単結合、 $C(R^{101})(R^{102})$ 、酸素原子、硫黄

原子又はN (R¹⁰³) を表し、

R¹⁰¹、R¹⁰²及びR¹⁰³は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表わし、mは、それぞれ独立に、0又は1を表す。]

上記式中における置換基としては、上述のものと同様のものが挙げられる。

[0041] 置換もしくは無置換の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のハロアルキル基としては、上記アルキル基の水素原子の1以上が、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）により置換されたものが挙げられる。

[0042] 置換もしくは無置換の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基としては、上記アルキル基又は上記アリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。

[0043] 置換もしくは無置換の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基が挙げられる。

[0044] 上記の置換基のうち、置換もしくは無置換のアリール基又は置換もしくは無置換のヘテロアリールが好ましい。

R^aの示す置換基は、置換もしくは無置換のアリール基が好ましい。例えば、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9'-スピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペ

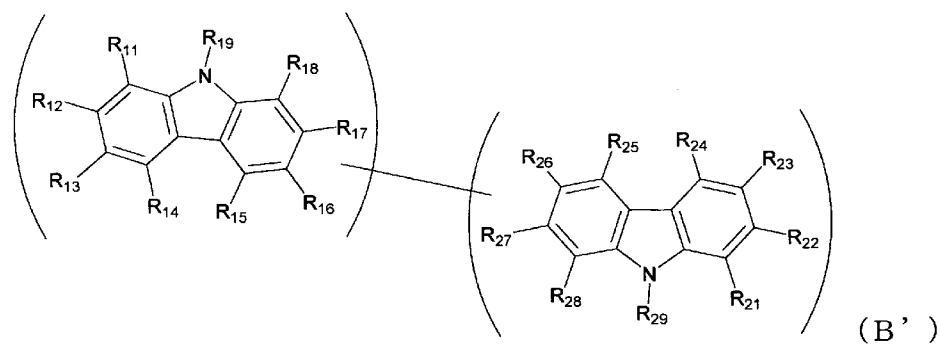
ンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダセニル基、a s-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、及びジベンゾアントリル基からなる群より選ばれるアリール基が挙げられる。

[0045] L_1 及び L_{11} が示す連結基としては、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環が好ましい。芳香族炭化水素環基としては、上述した R_1 等が示す置換基の環形成炭素数 6～50 のアリール基から水素原子を 1 つ除いた二価の基が挙げられる。

L_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリーレン基であることが好ましく、例えば、フェニレン基、ビフェニレン基、又は、ナフチレン基が好ましい。フェニレンでは m-フェニレンが好ましい。

[0046] L_{11} は単結合であることが好ましい。例えば、式 (B) は下記式 (B') で表される。

[化21]



(式中、 $R_{11} \sim R_{19}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ は、前記式 (B) と同様である。)

[0047] 尚、「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基は、炭素数 1～50 (好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8) のアルキル基；環形成炭素数 3～50 (好ましくは 3～10、より好ましくは 3～8、さらに好ましくは 5 又は 6) のシクロアルキル基；環形成炭素数 6～50 (好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18) のアリール基；環形成炭素数 6～50 (好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18) のアリール基を有する炭素

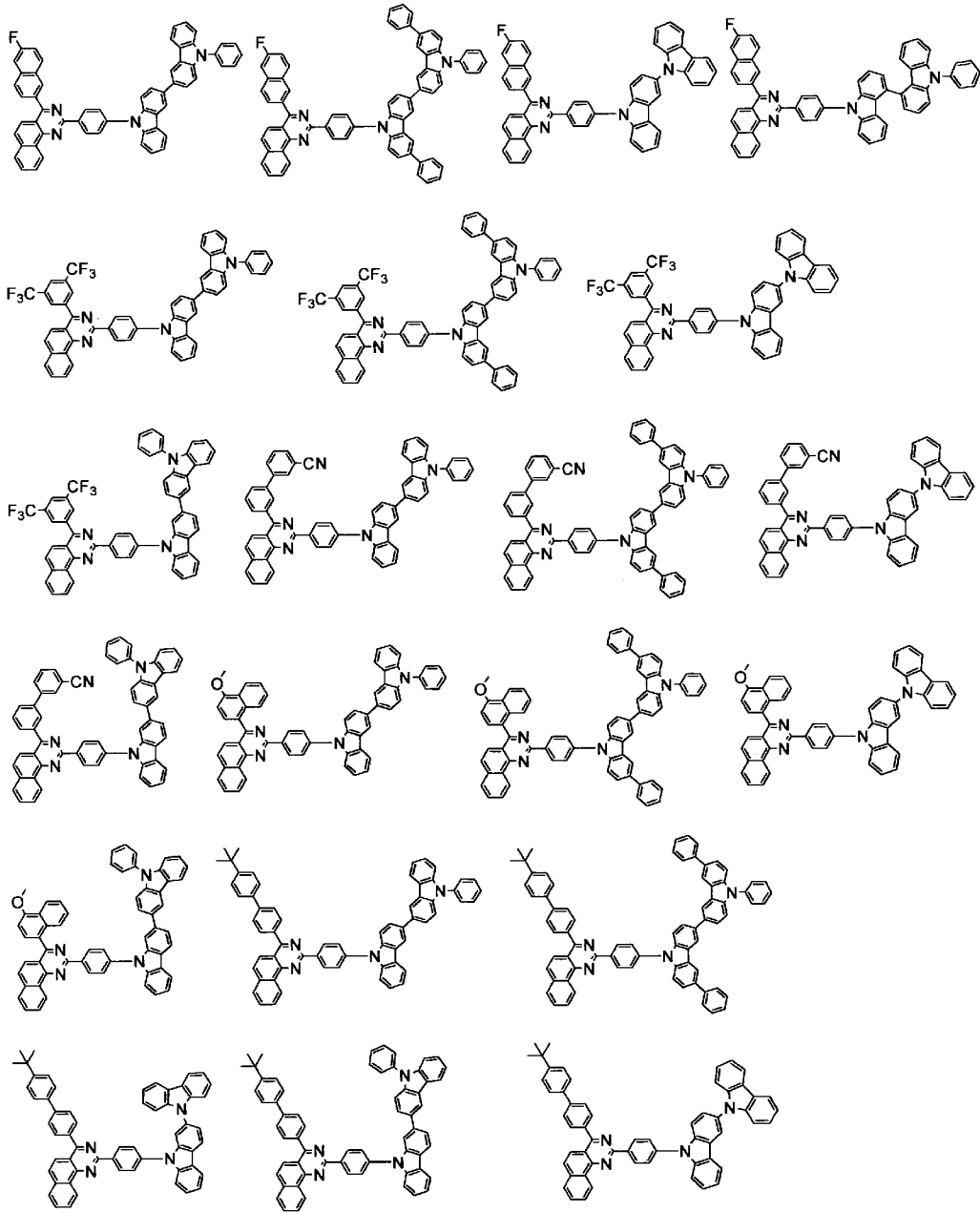
数7～51（好ましくは7～30、より好ましくは7～20）のアラルキル基；アミノ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基を有するアリーロキシ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基；環形成原子数5～50（好ましくは5～24、より好ましくは5～13）のヘテロアリール基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のハロアルキル基；ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）；シアノ基；ニトロ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基；、アルキルスルホニルオキシ基；アリールスルホニルオキシ基；アルキルカルボニルオキシ基；アリールカルボニルオキシ基；ホウ素含有基；亜鉛含有基；スズ含有基；ケイ素含有基；マグネシウム含有基；リチウム含有基；ヒドロキシ基；アルキル置換又はアリール置換カルボニル基；カルボキシル基；ビニル基；（メタ）アクリロイル基；エポキシ基；並びにオキセタニル基からなる群より選ばれるものが好ましい。

これらの置換基は、さらに上述の任意の置換基により、さらに置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成しても

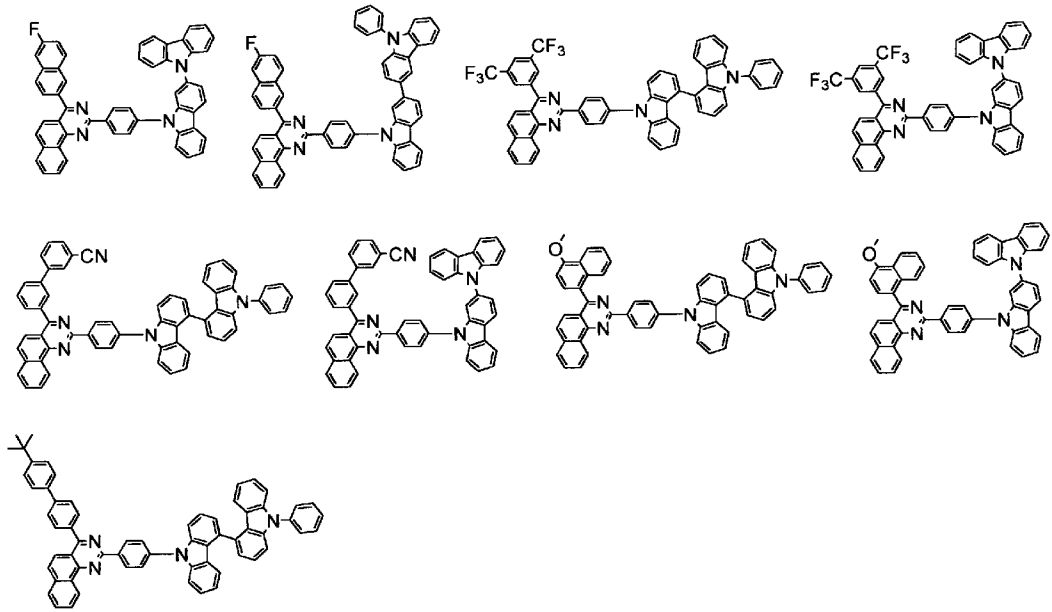
よい。

以下に、本発明の一態様である化合物の一例を示す。

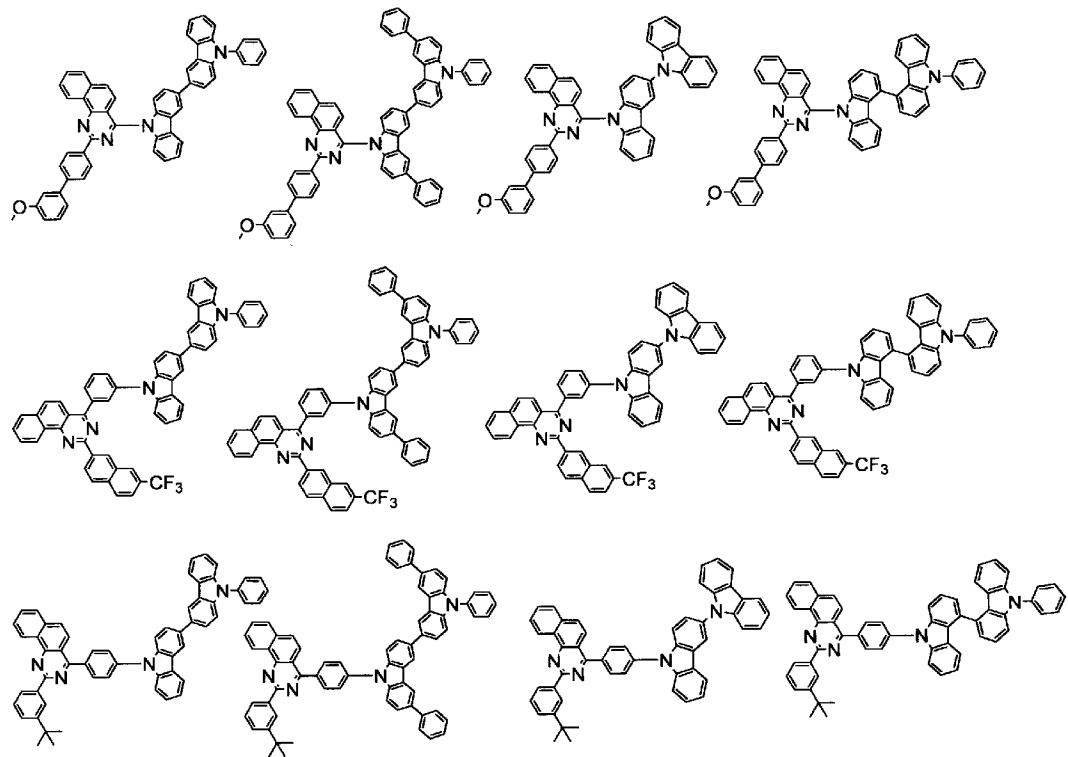
[0048] [化22]



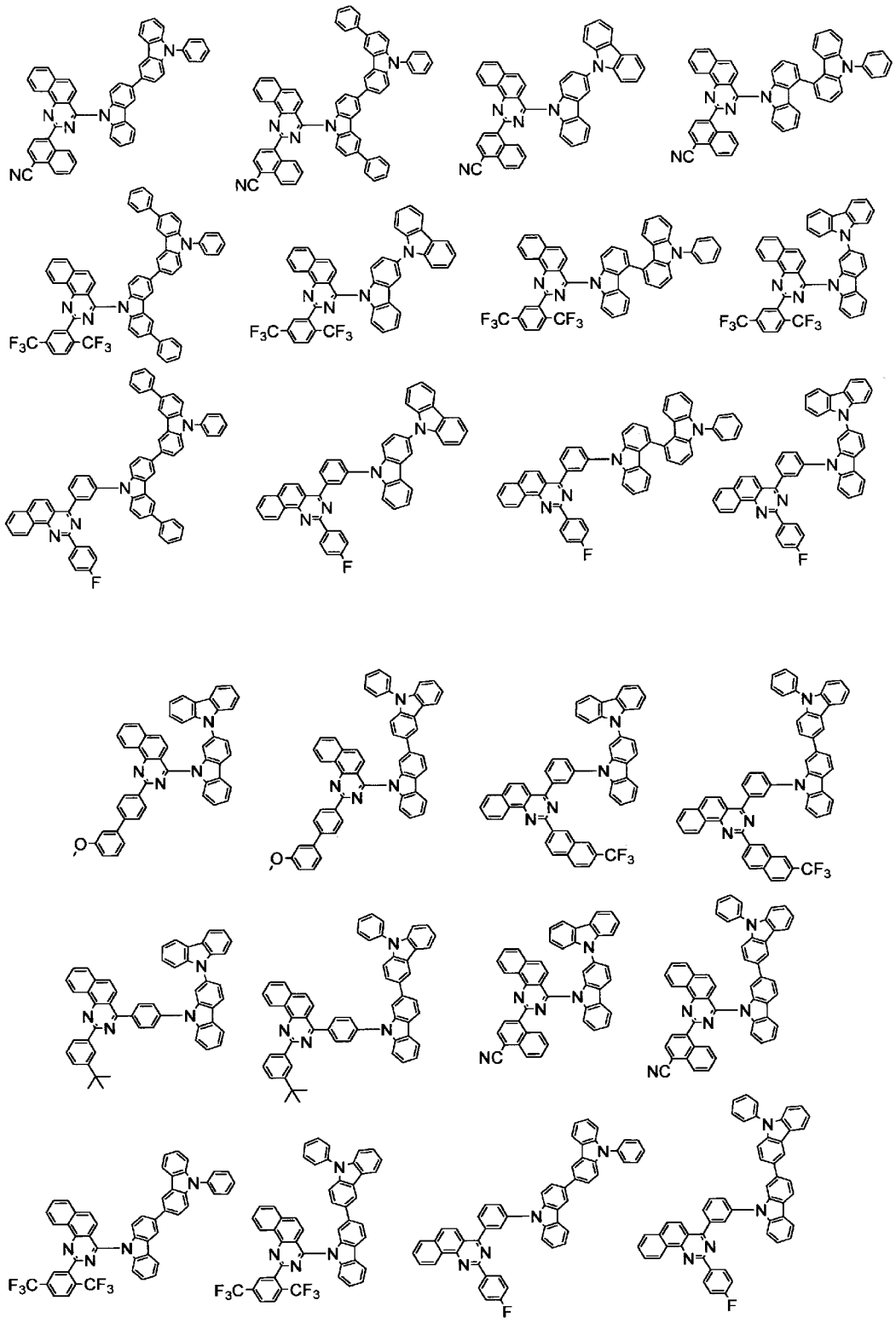
[化23]



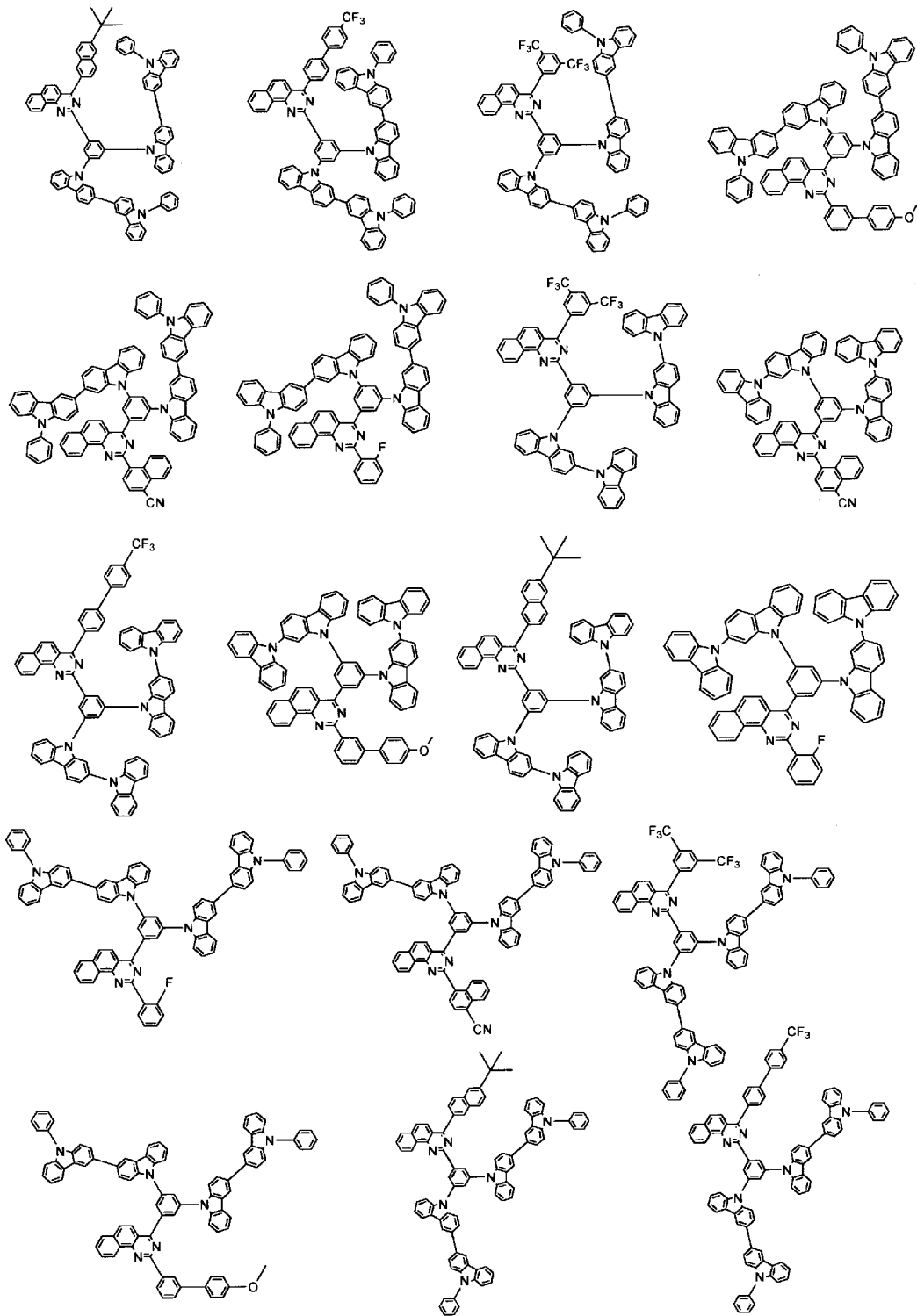
[化24]



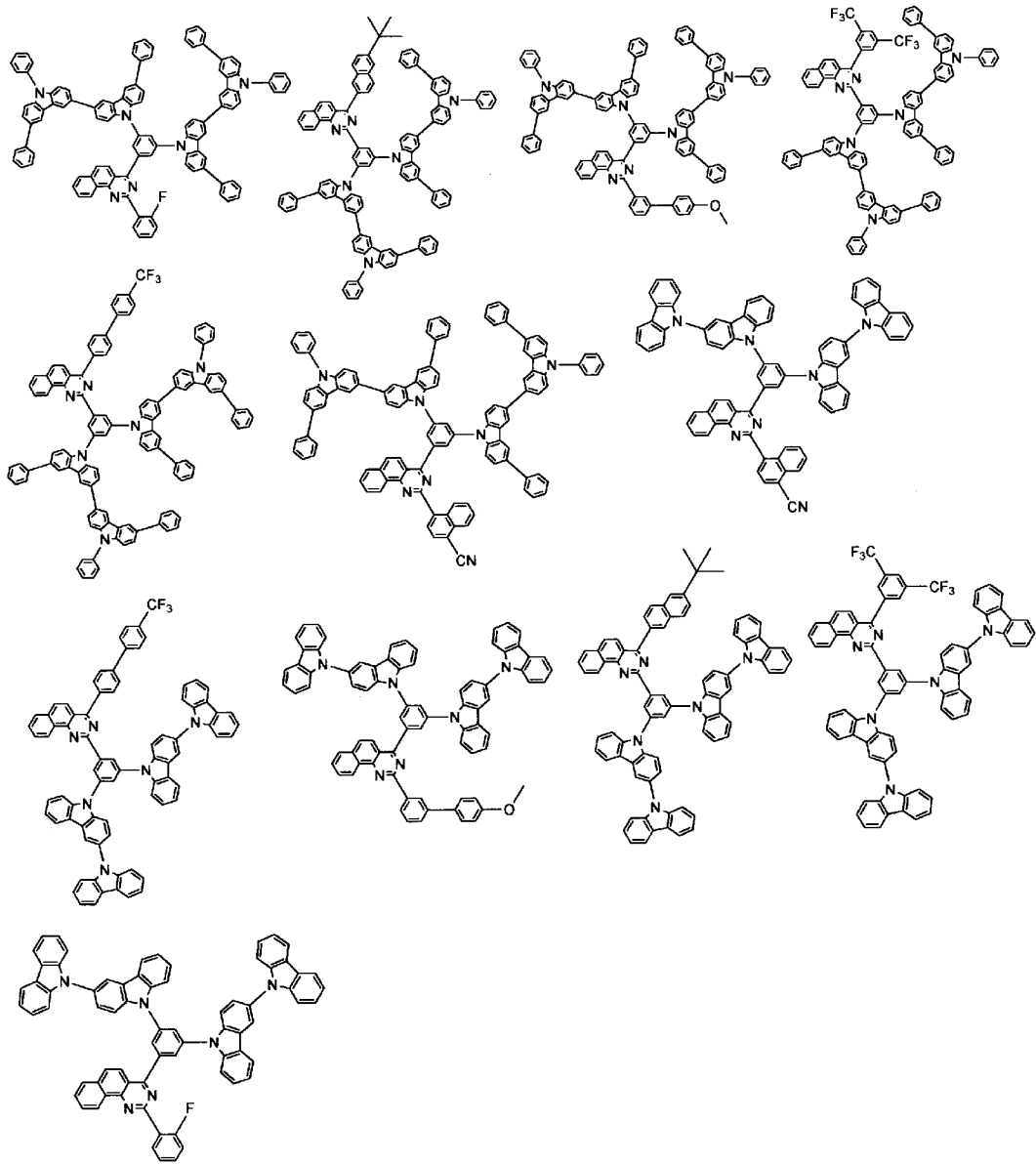
[化25]



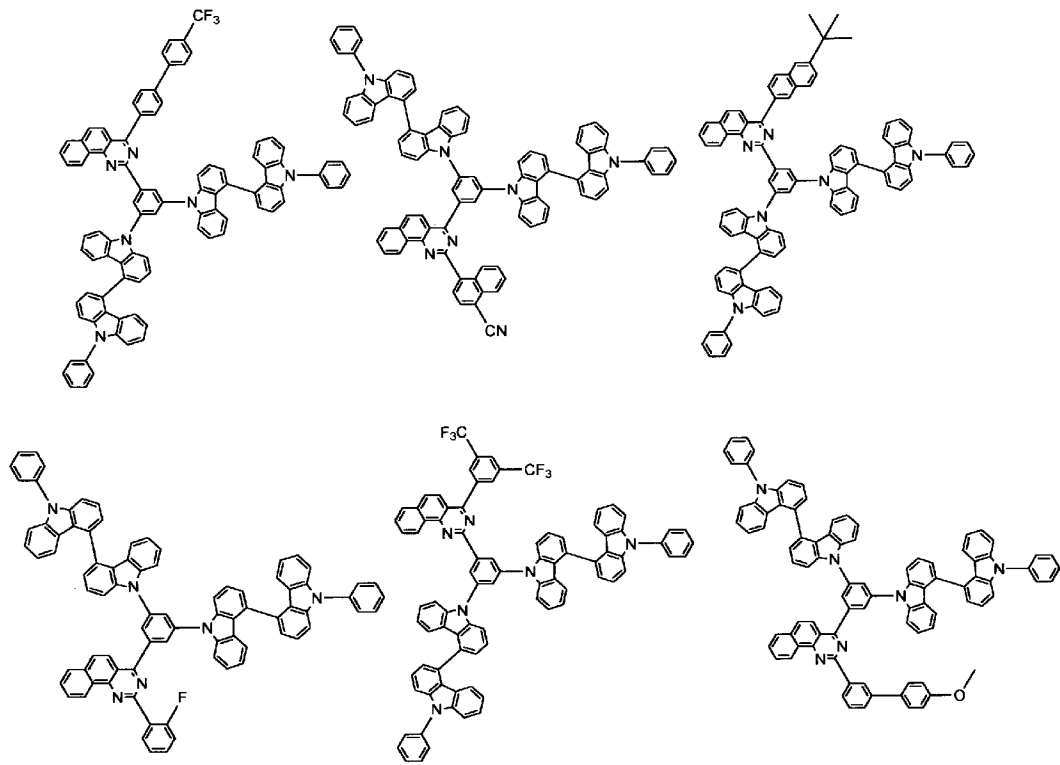
[化26]



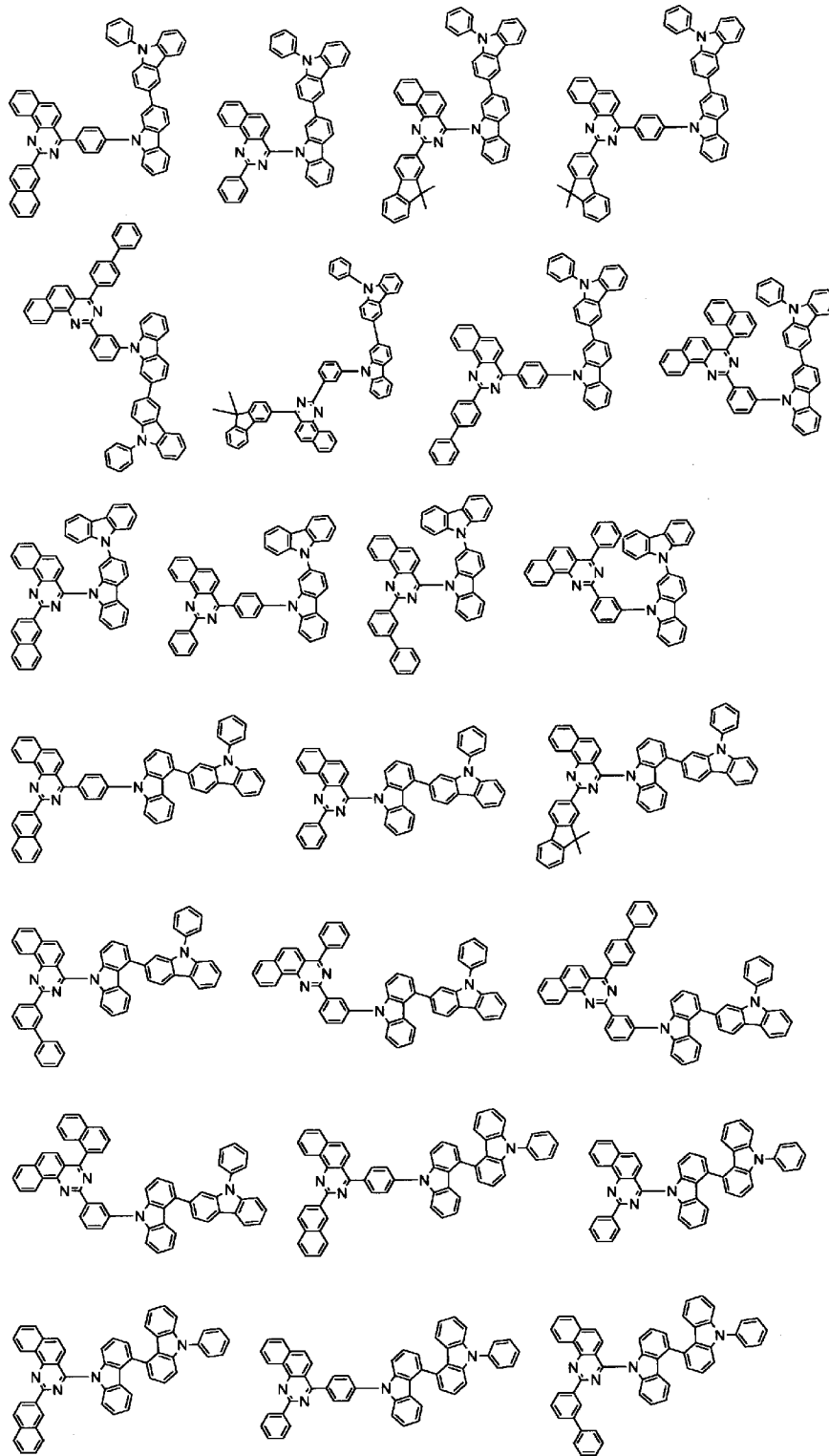
[化27]



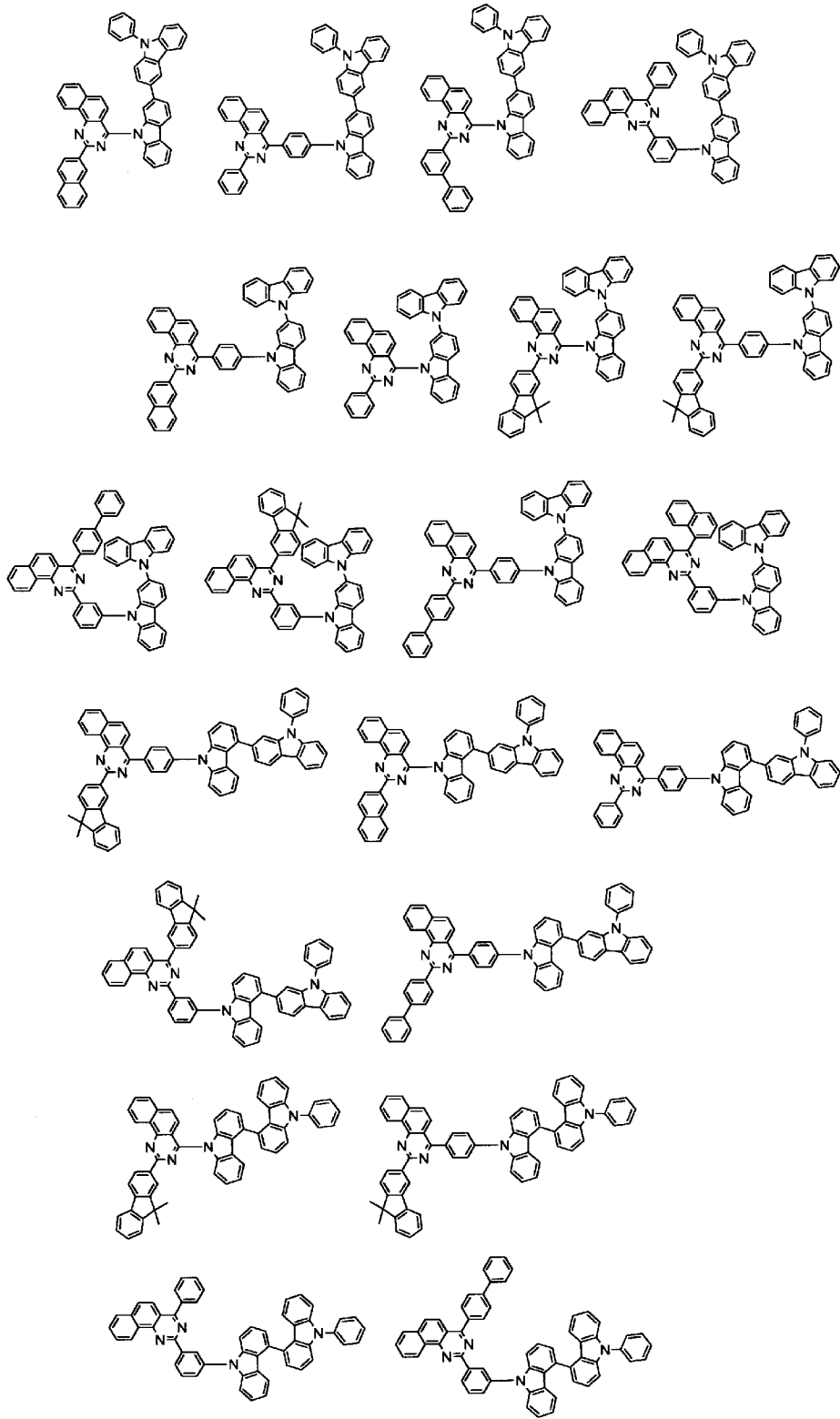
[化28]



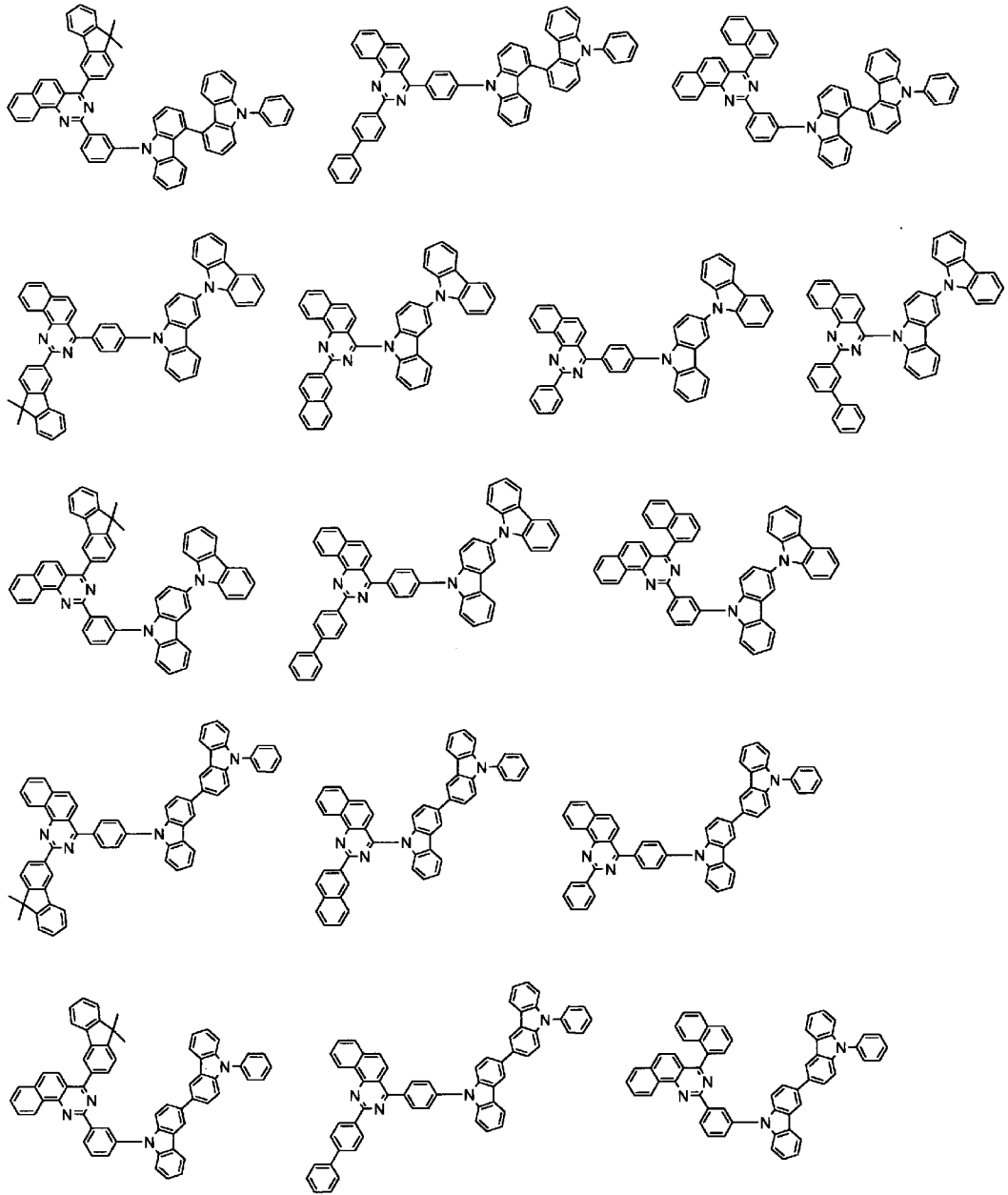
[化29]



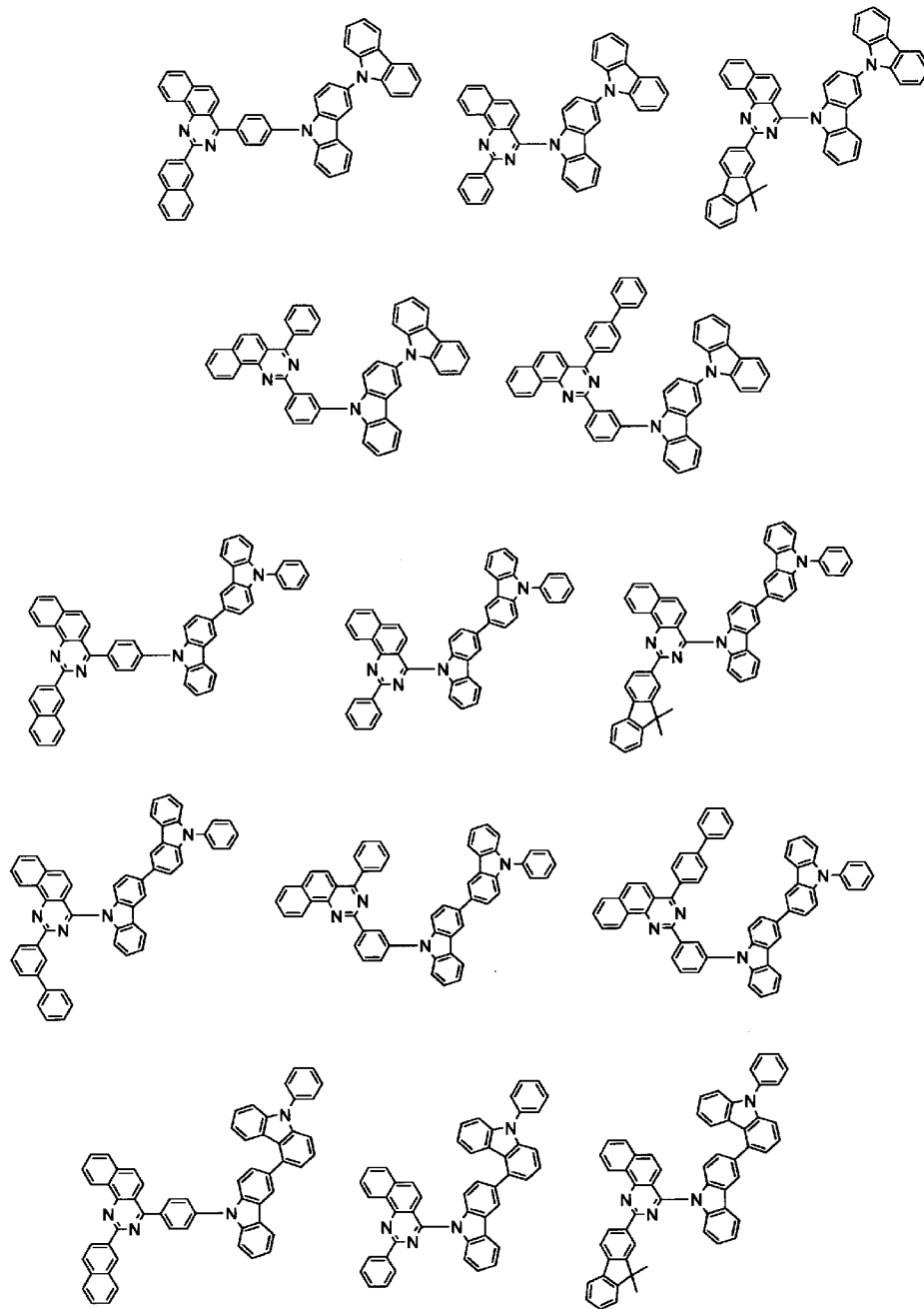
[化30]



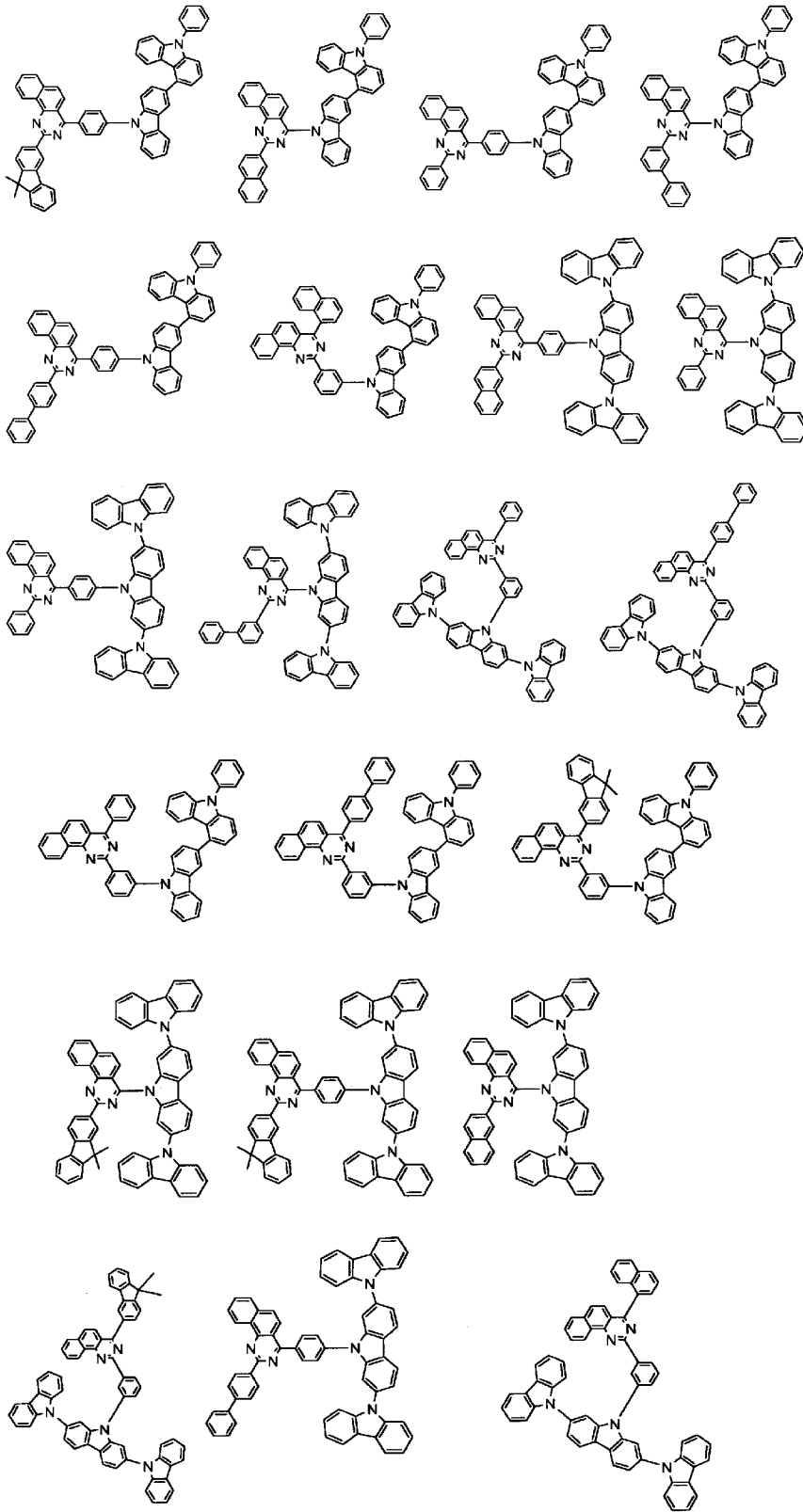
[化31]



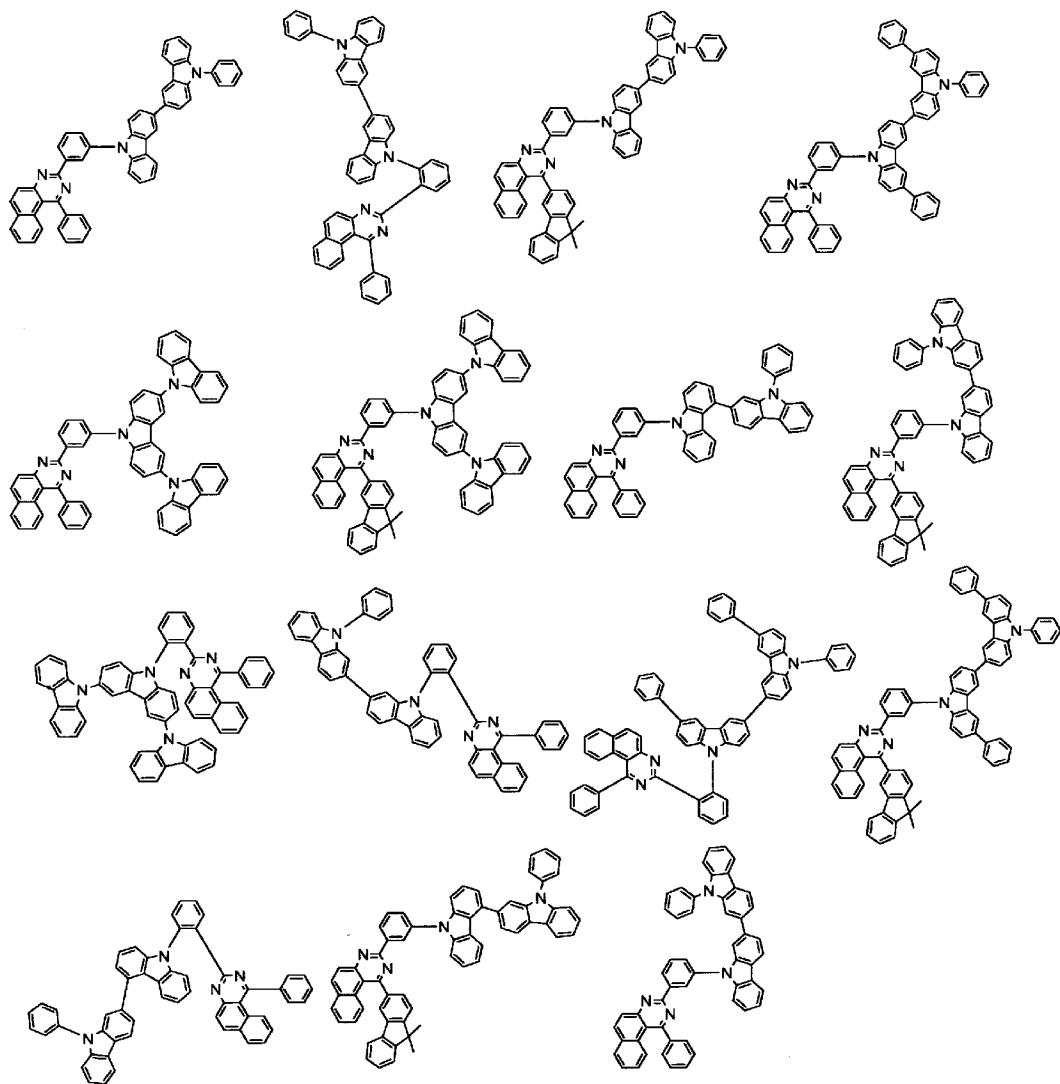
[化32]



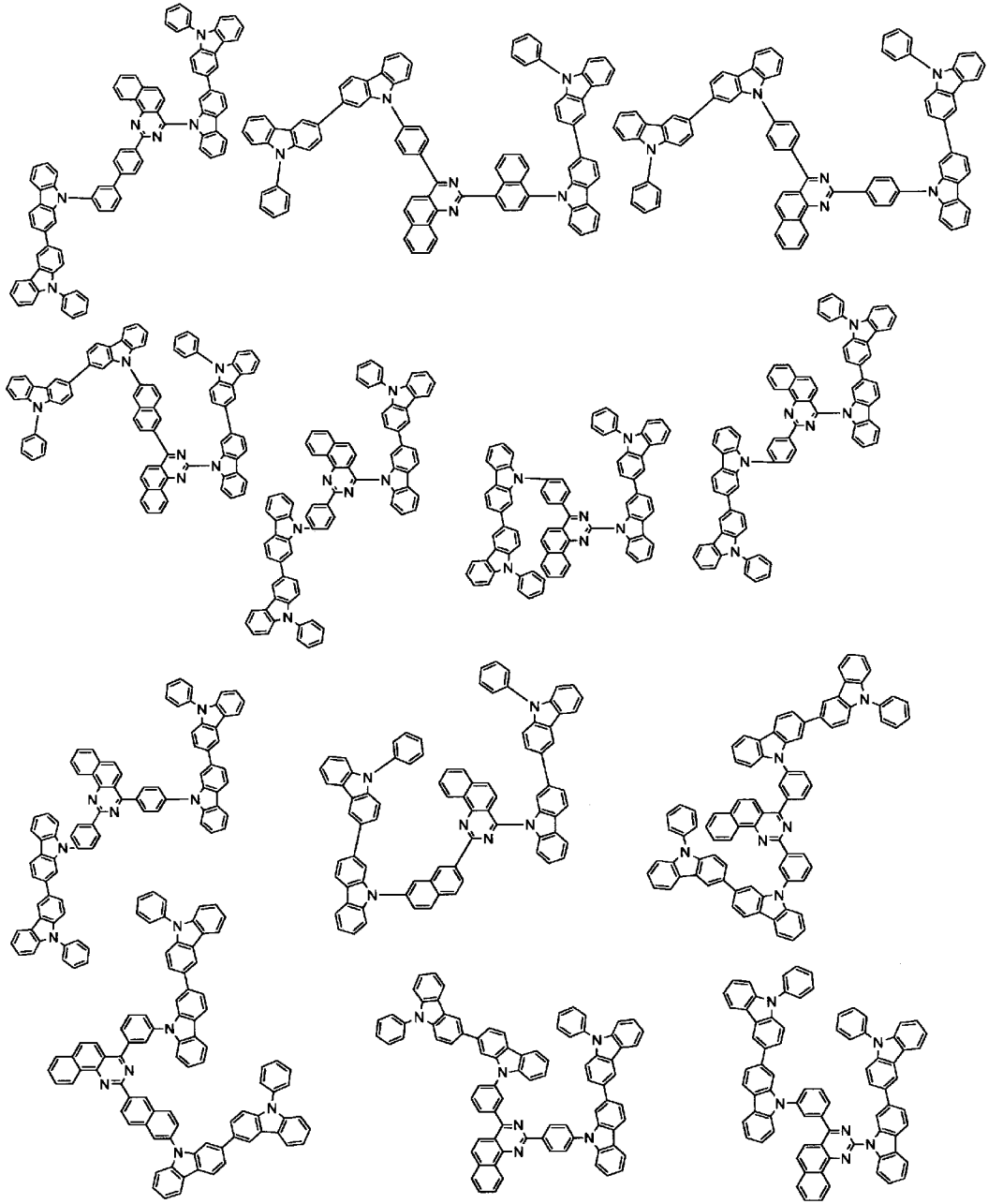
[化33]



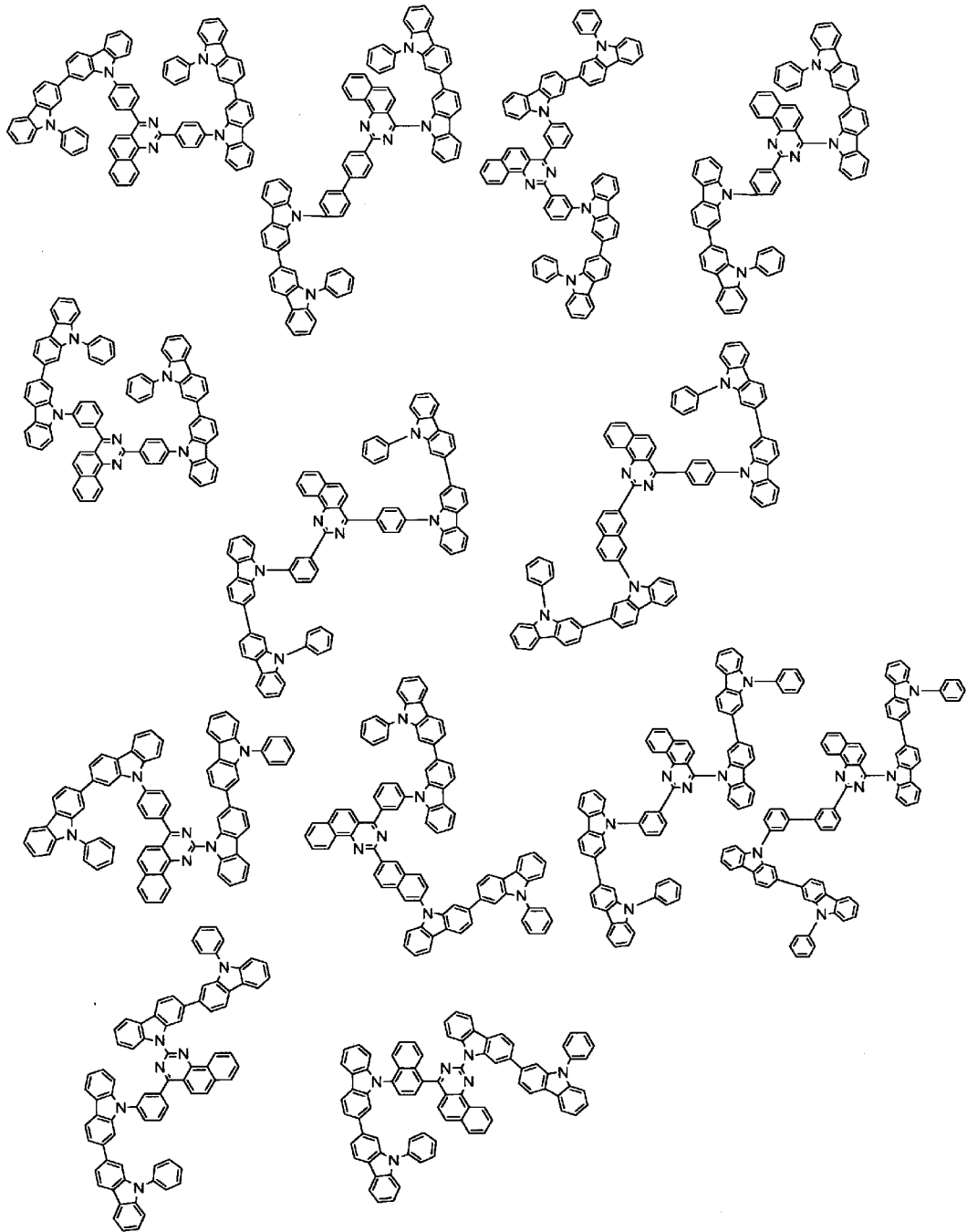
[化34]



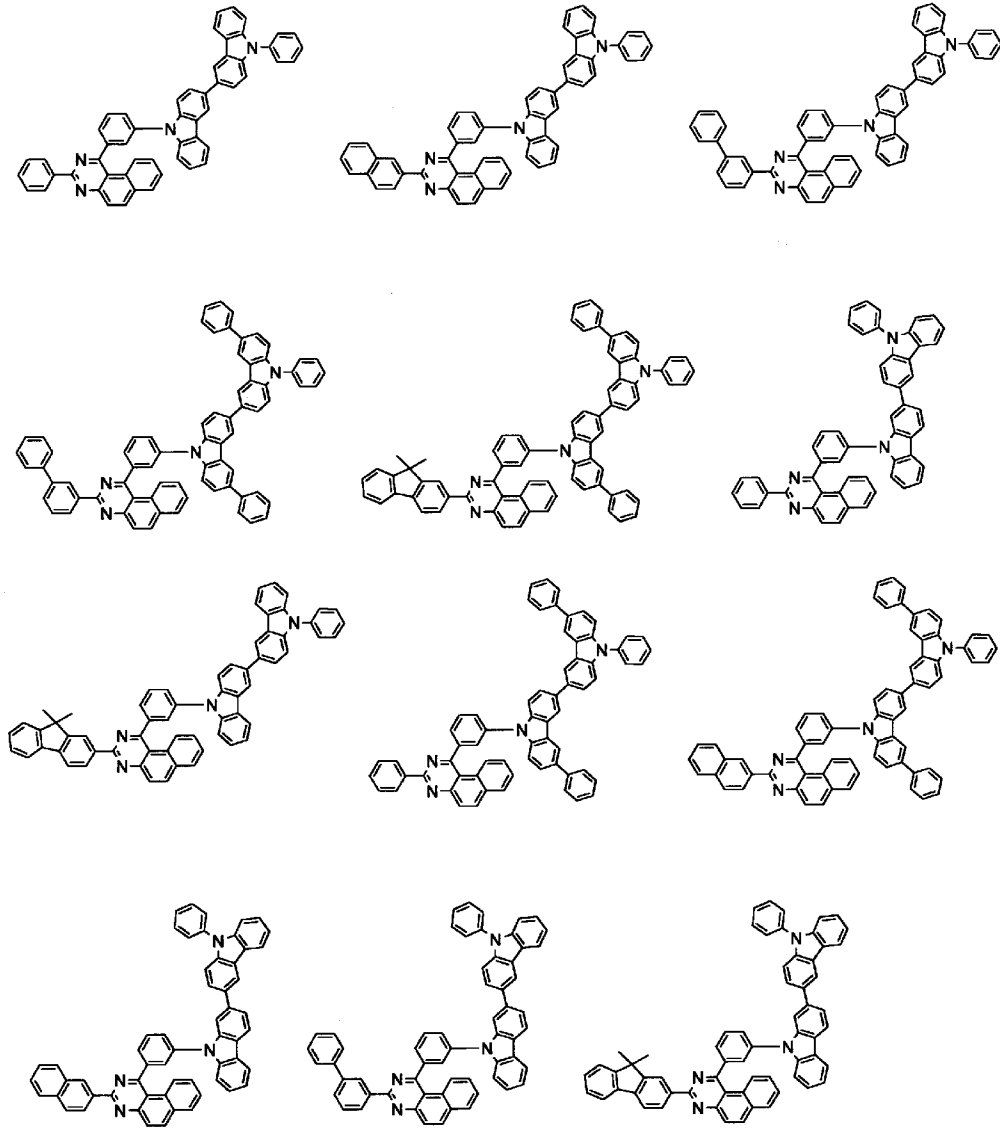
[化35]



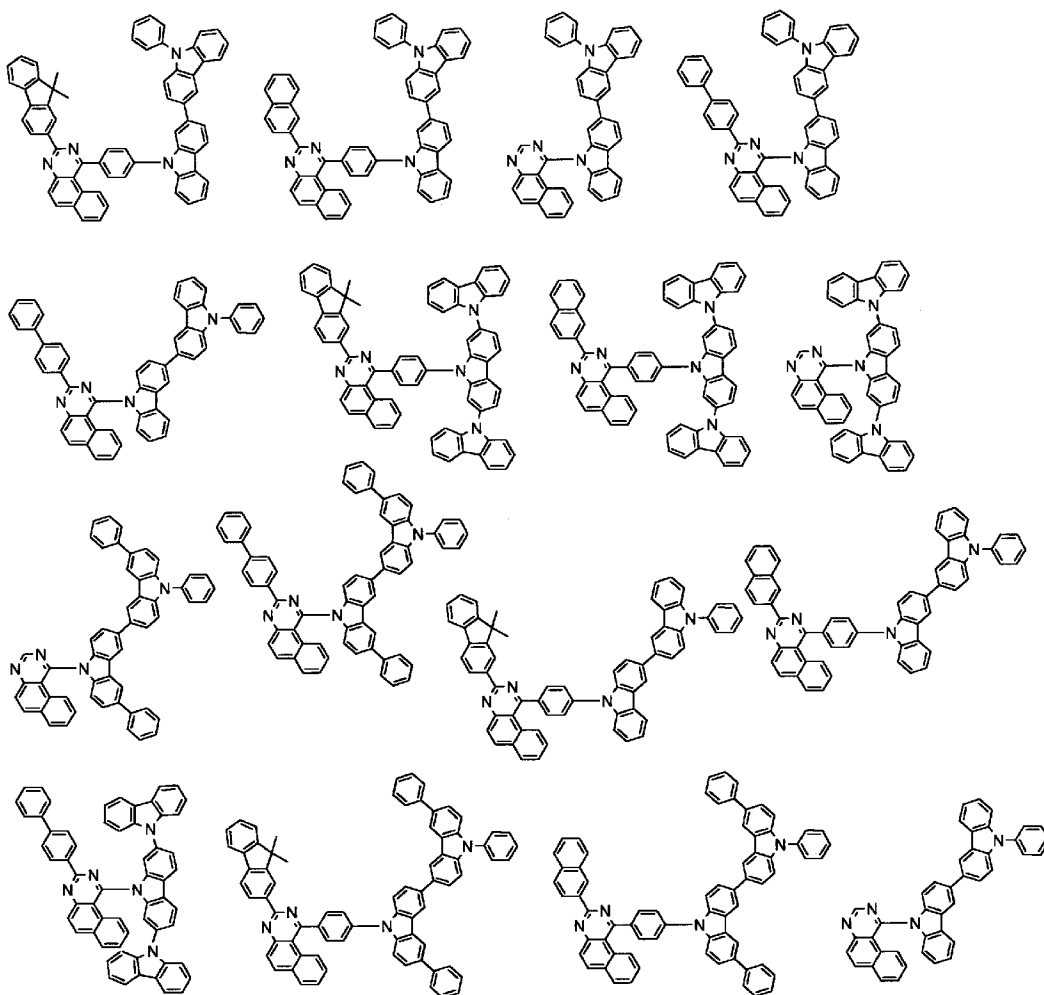
[化36]



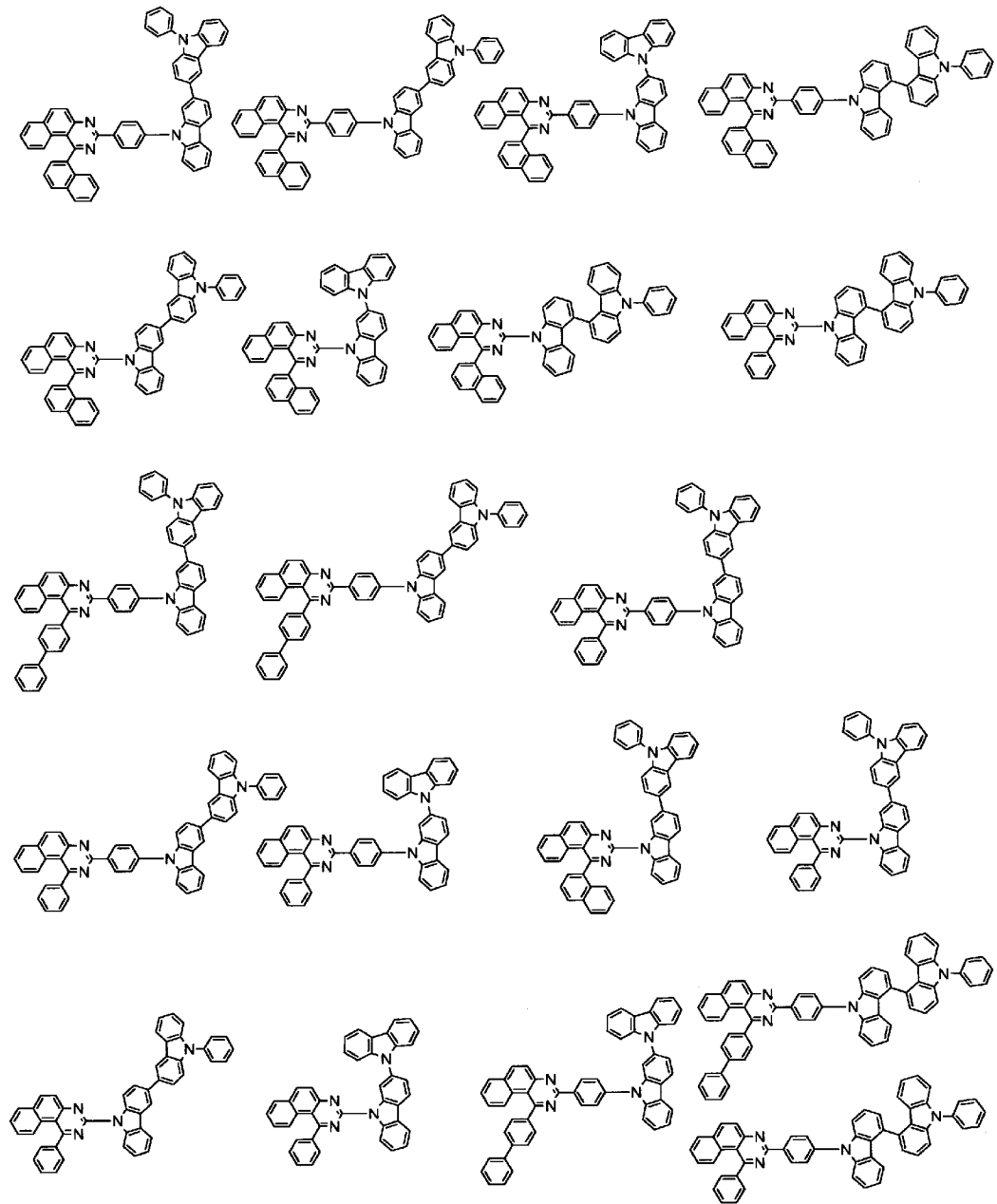
[化37]



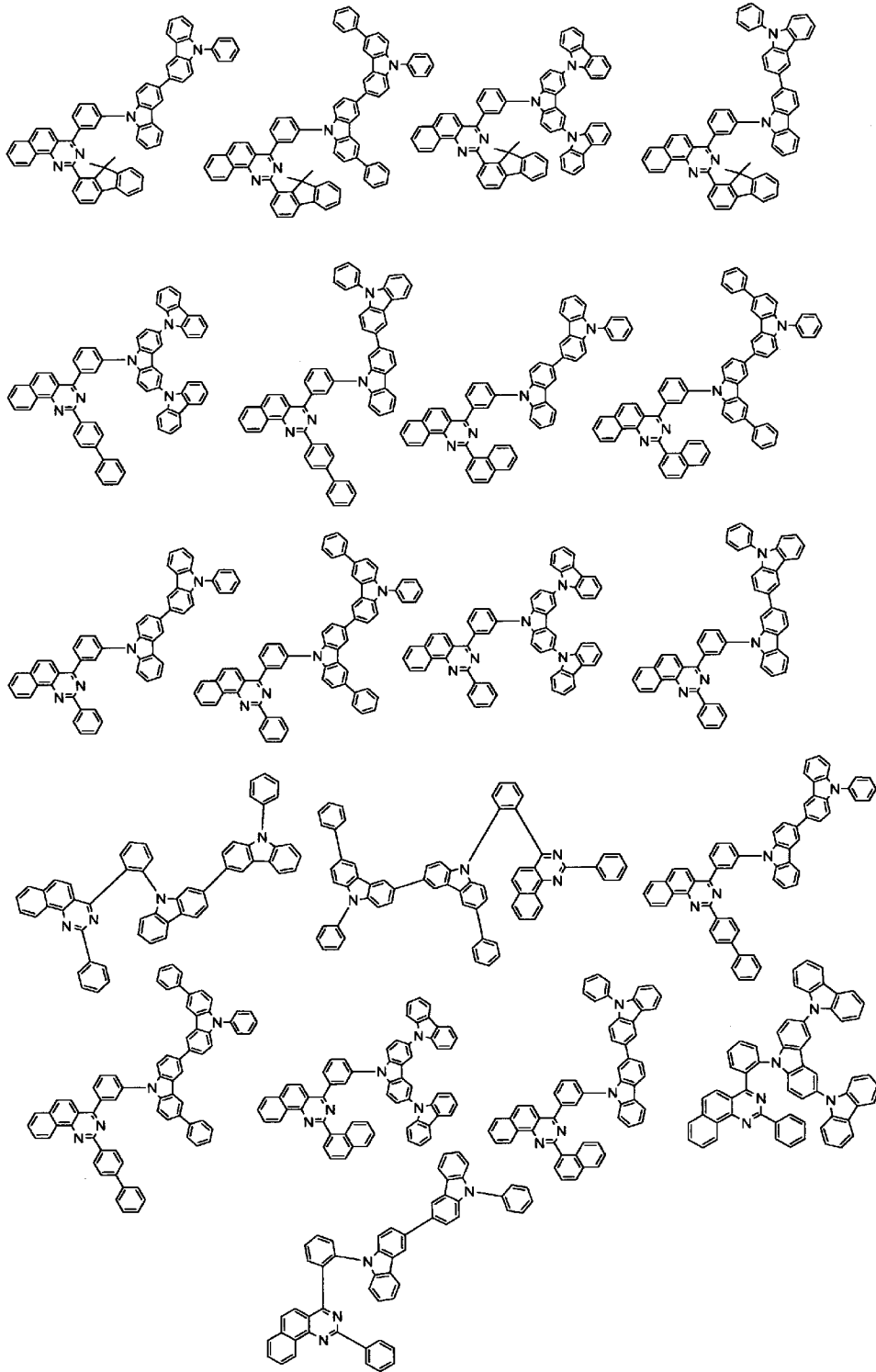
[化38]



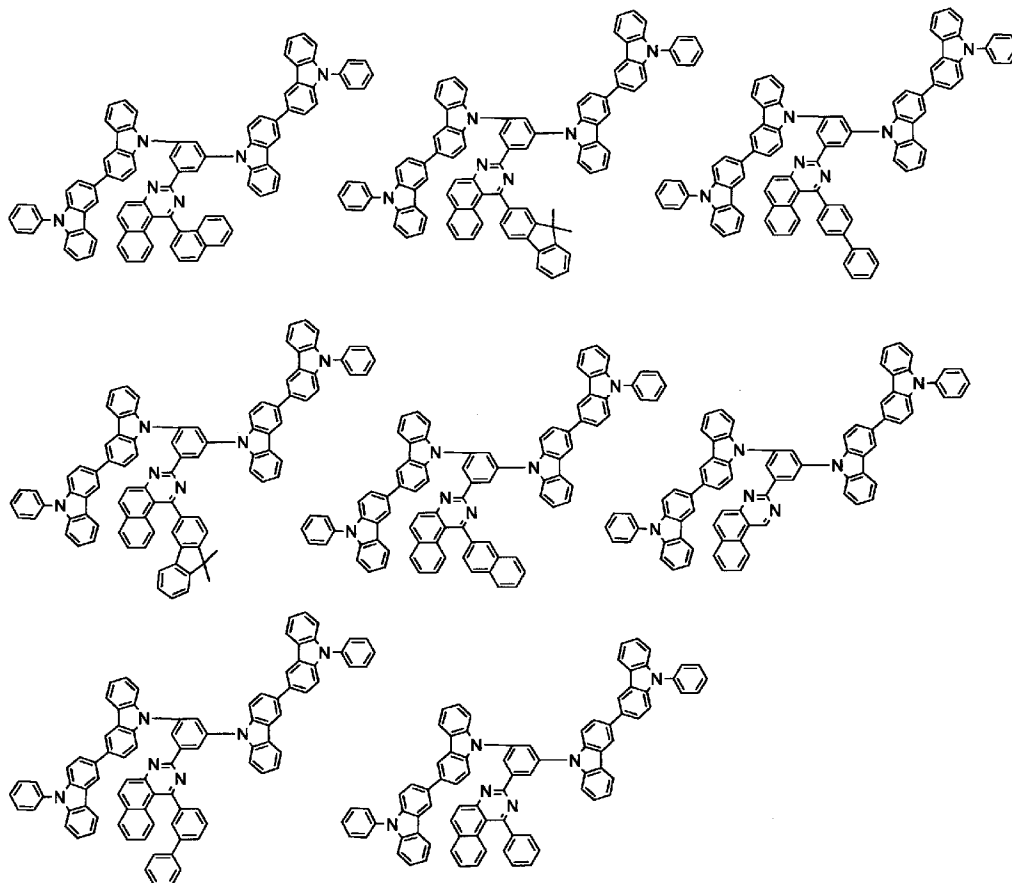
[化39]



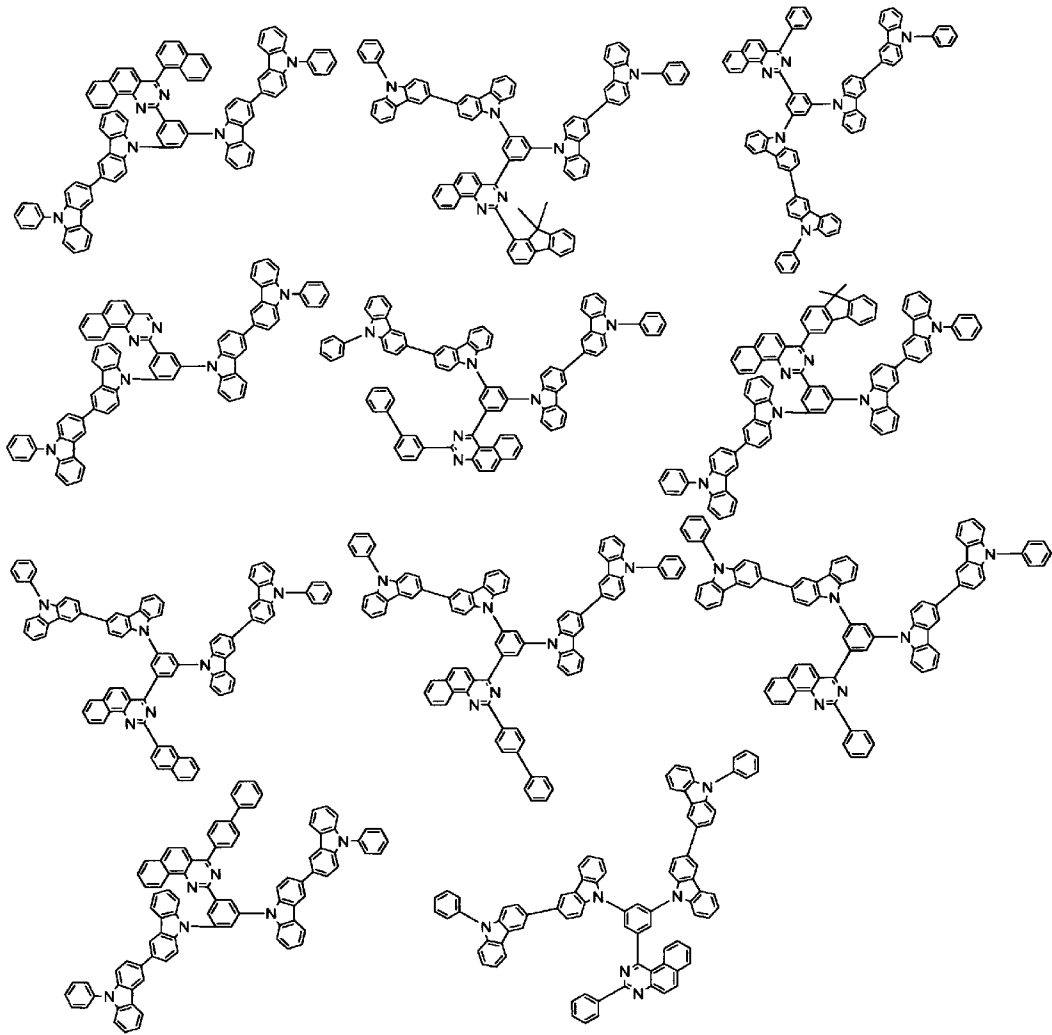
[化40]



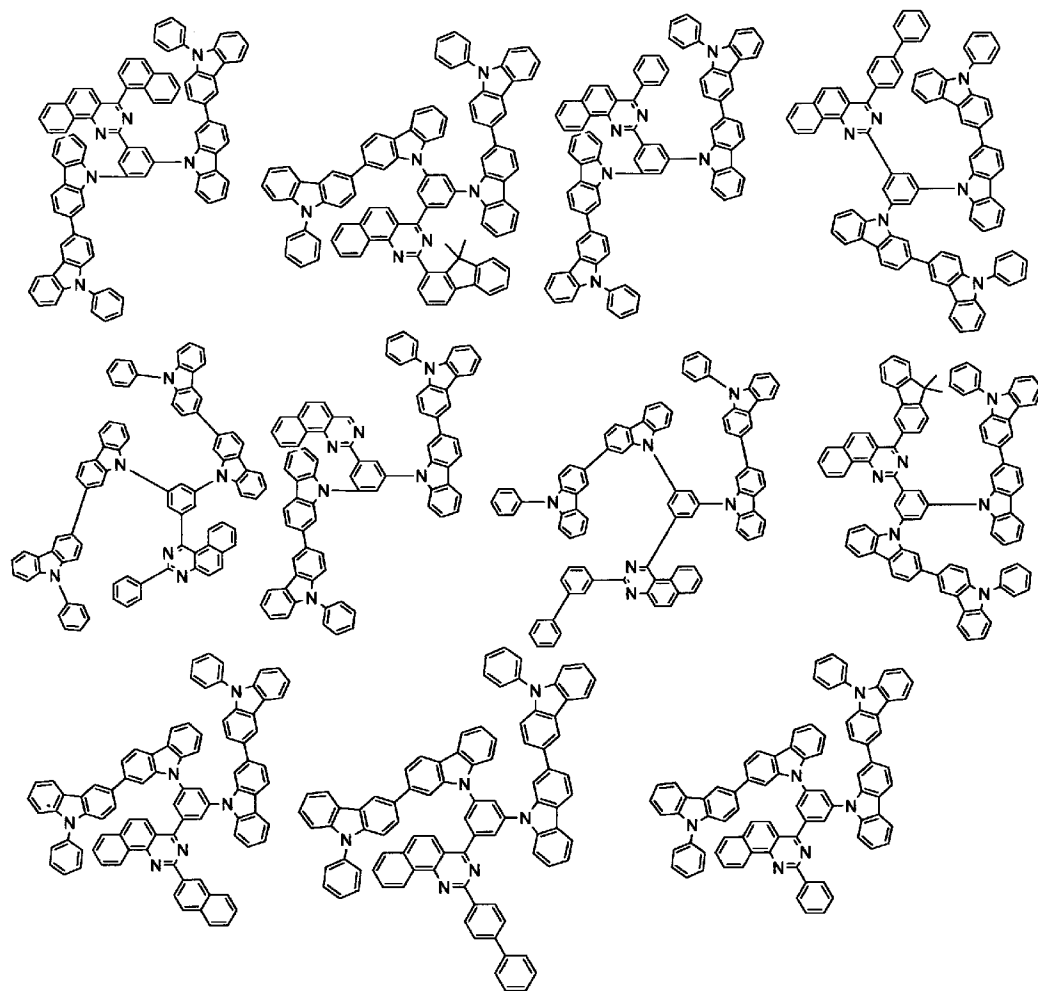
[化41]



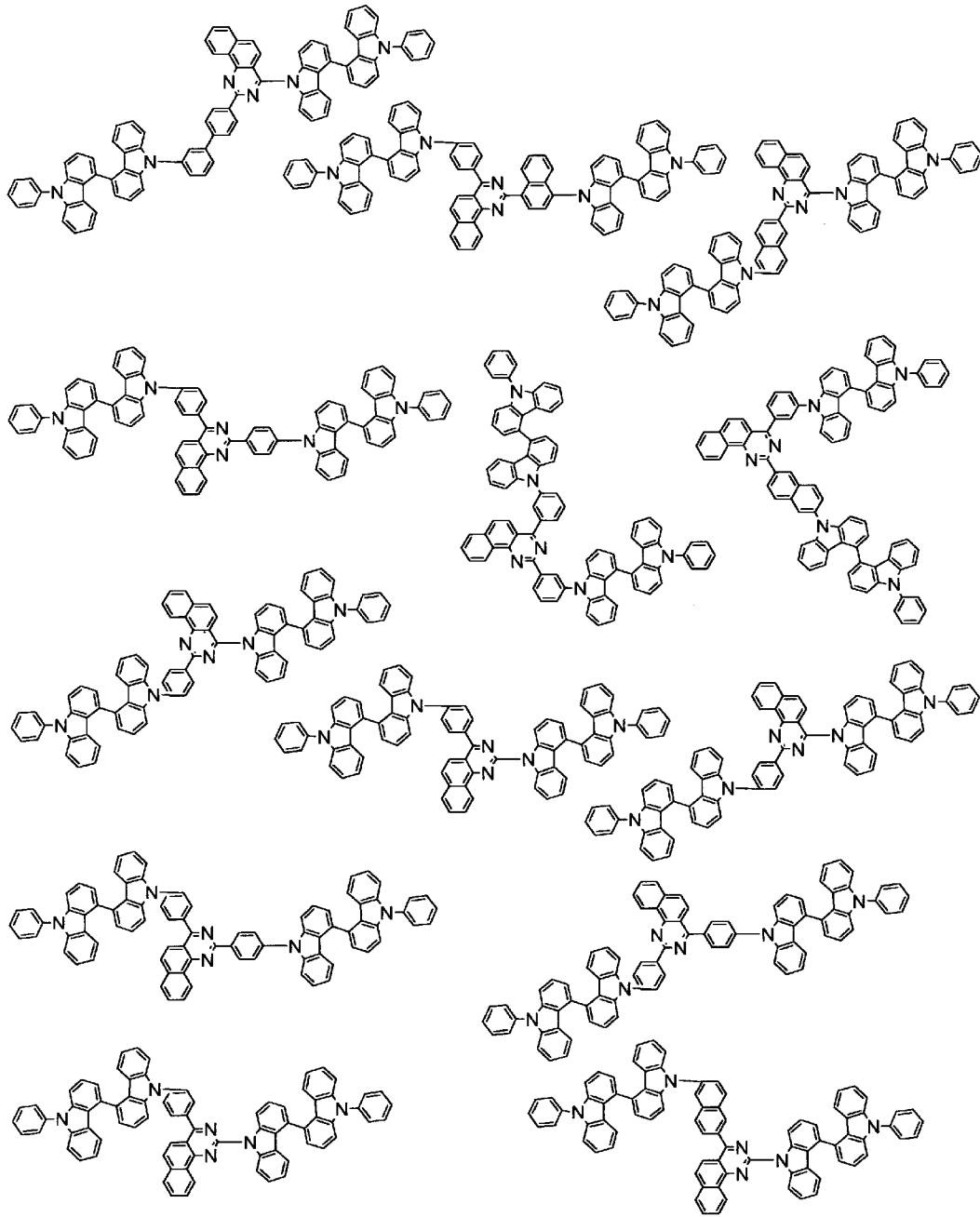
[化42]



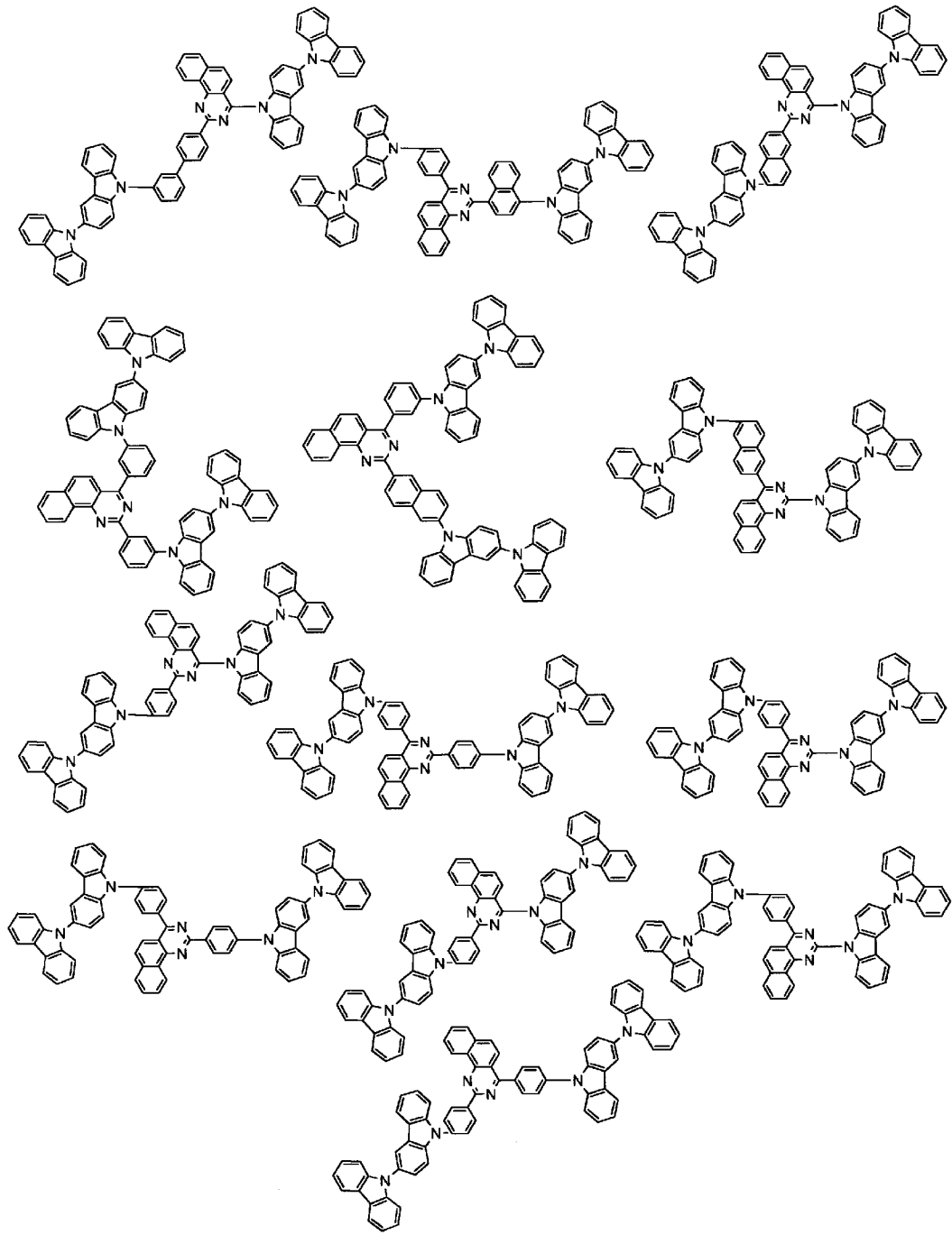
[化43]



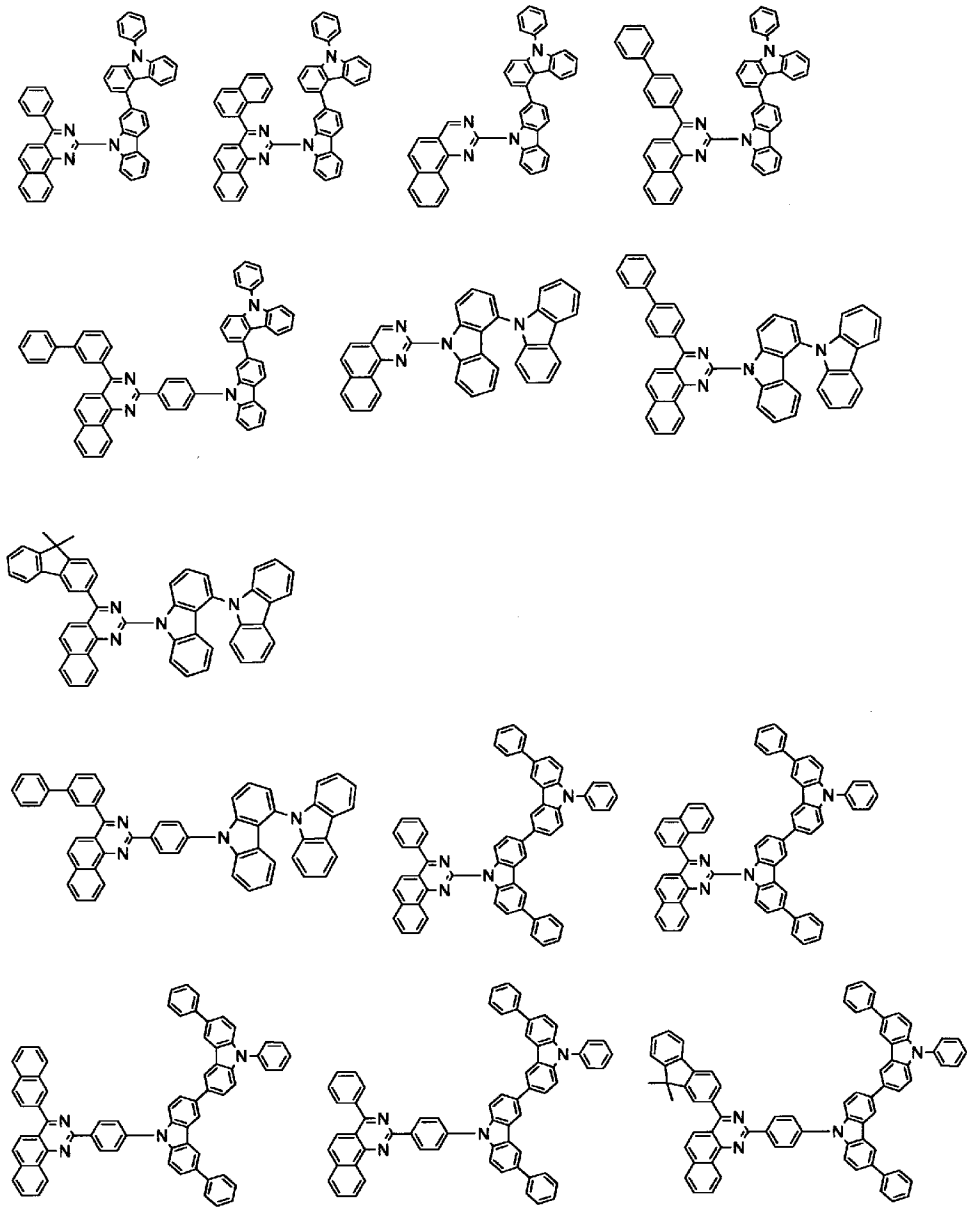
[化44]



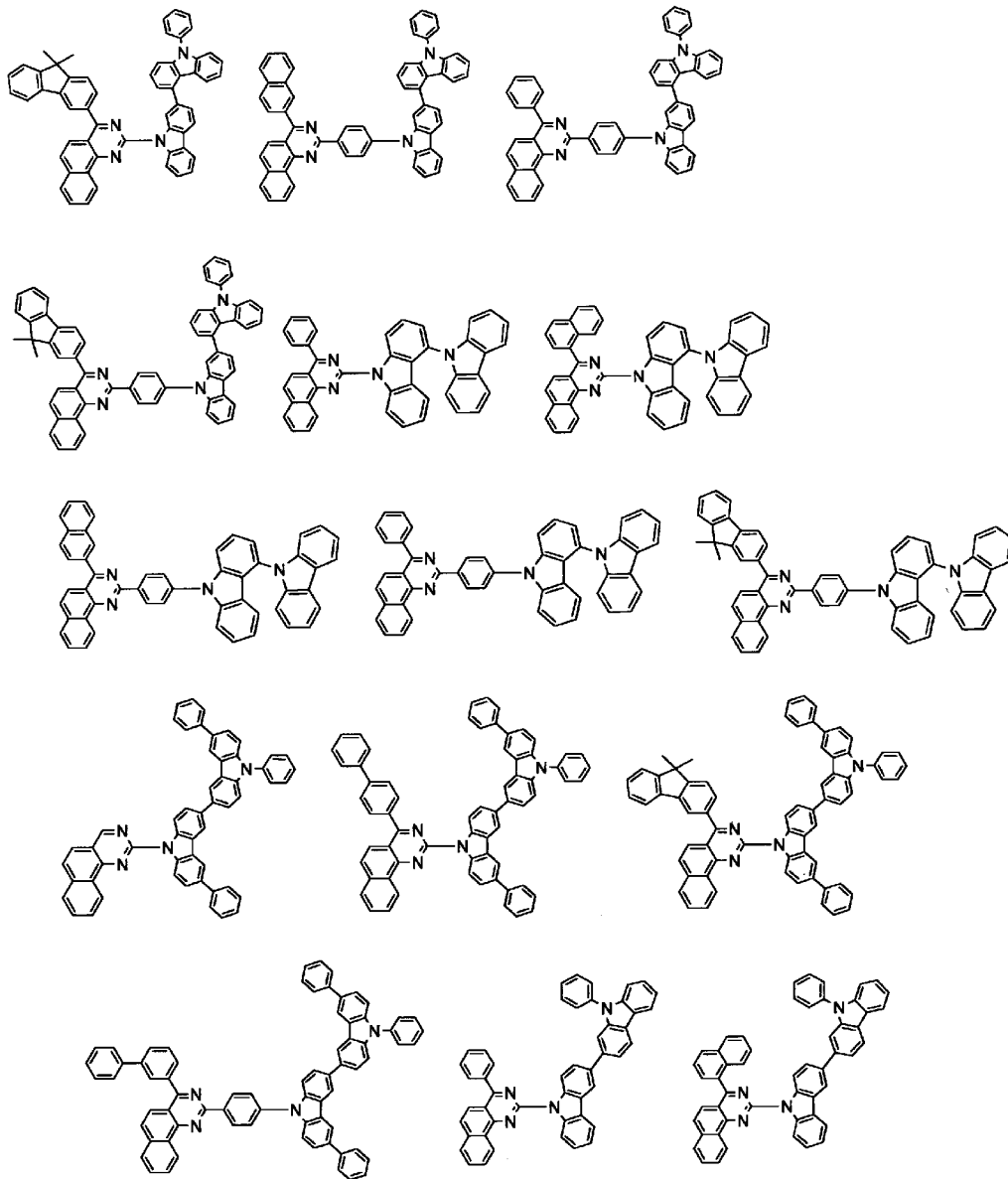
[化45]



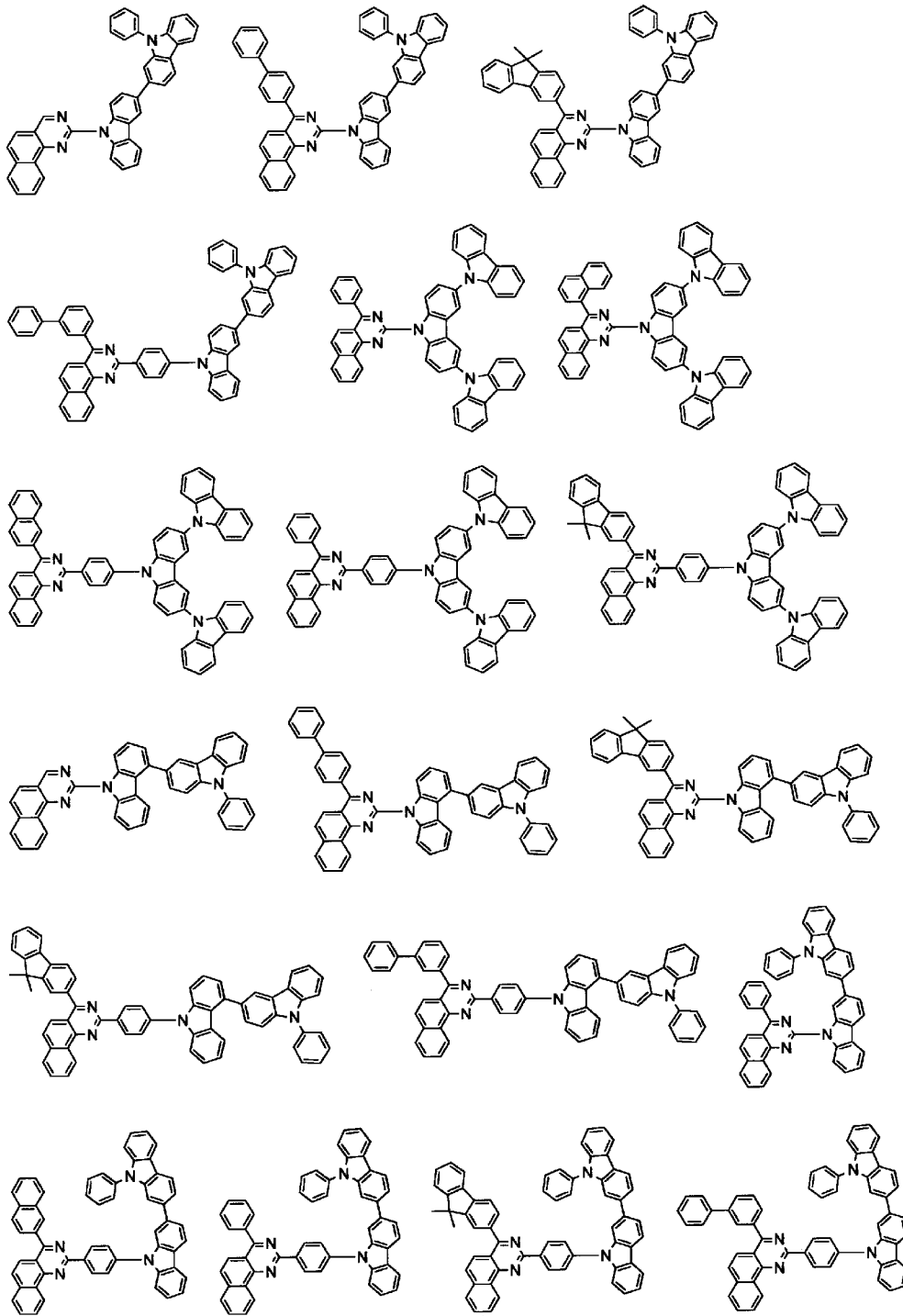
[化46]



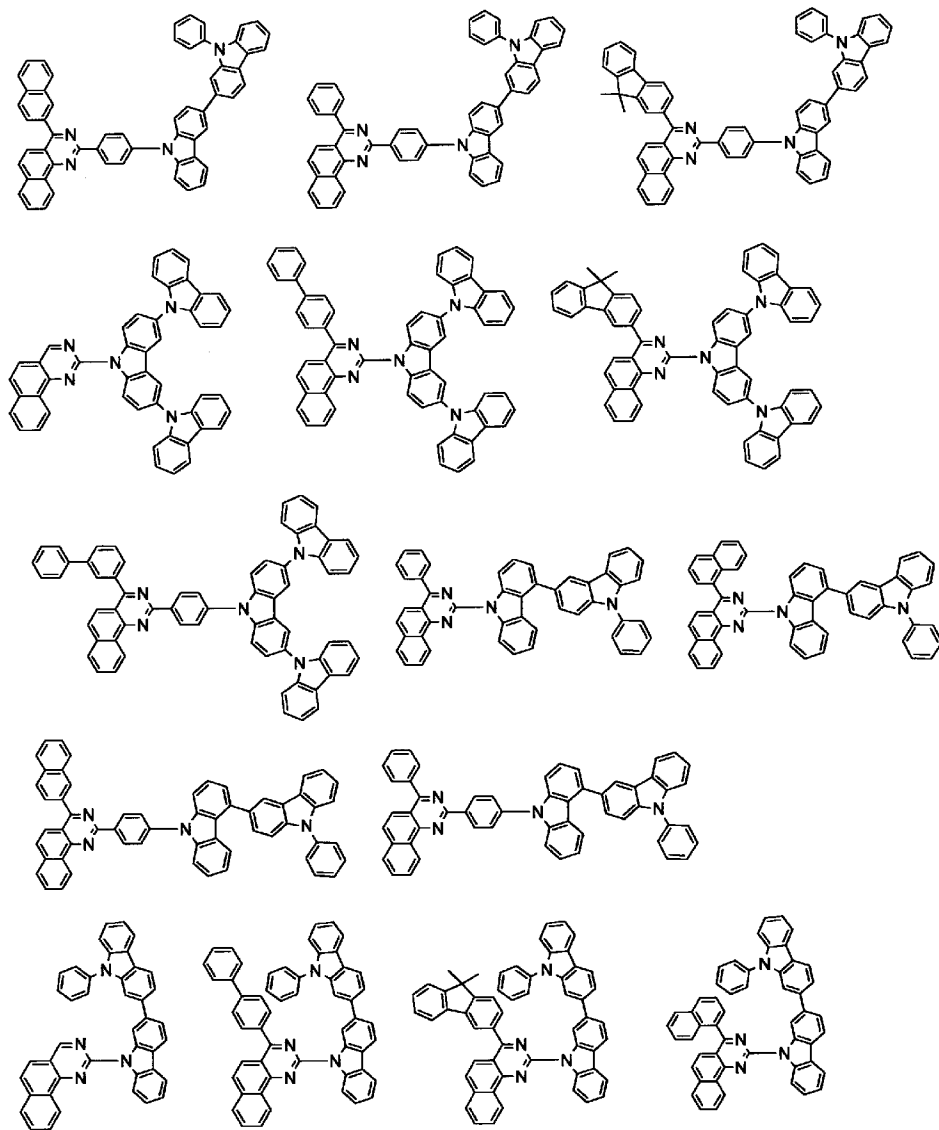
[化47]



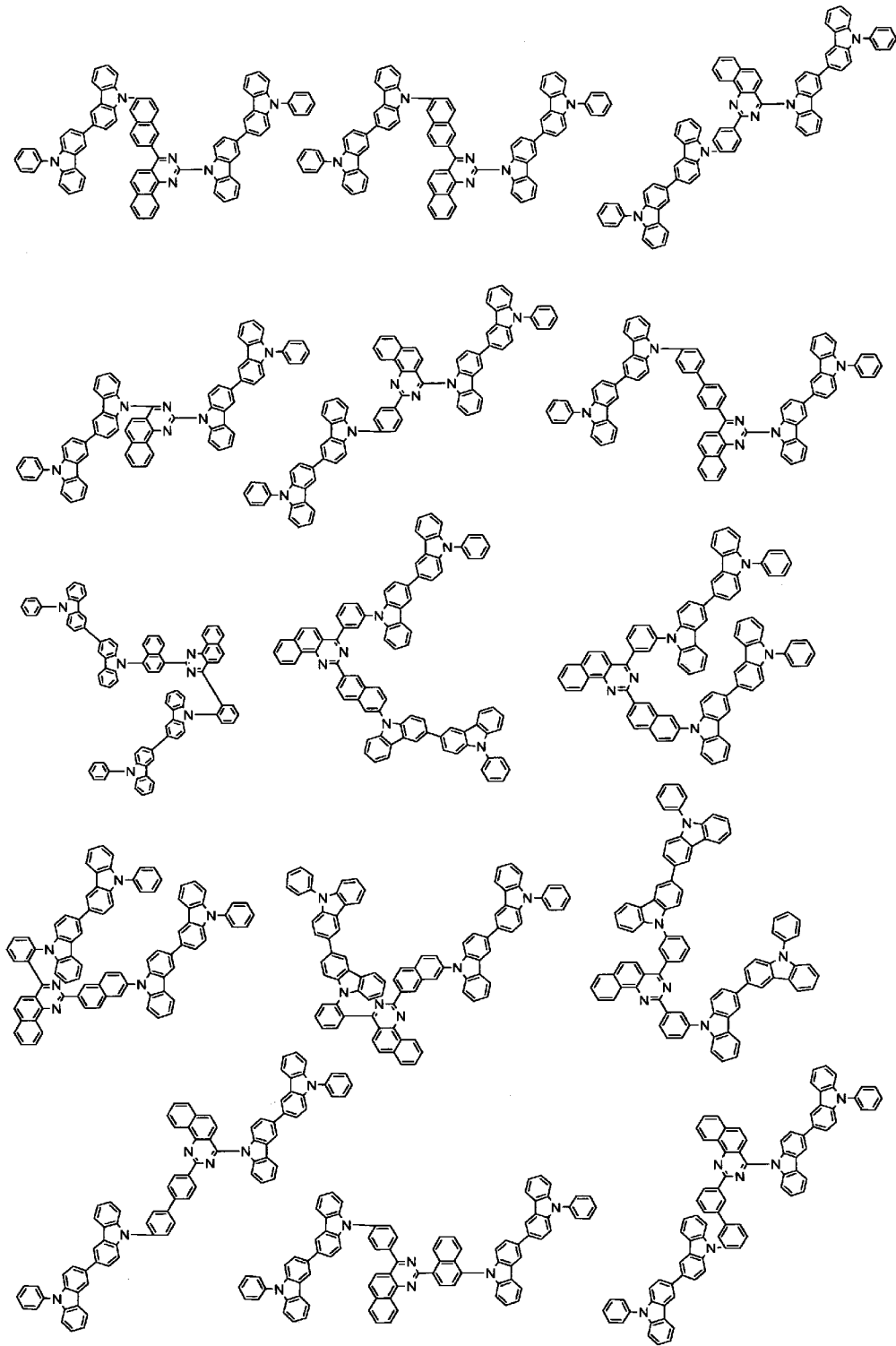
[化48]



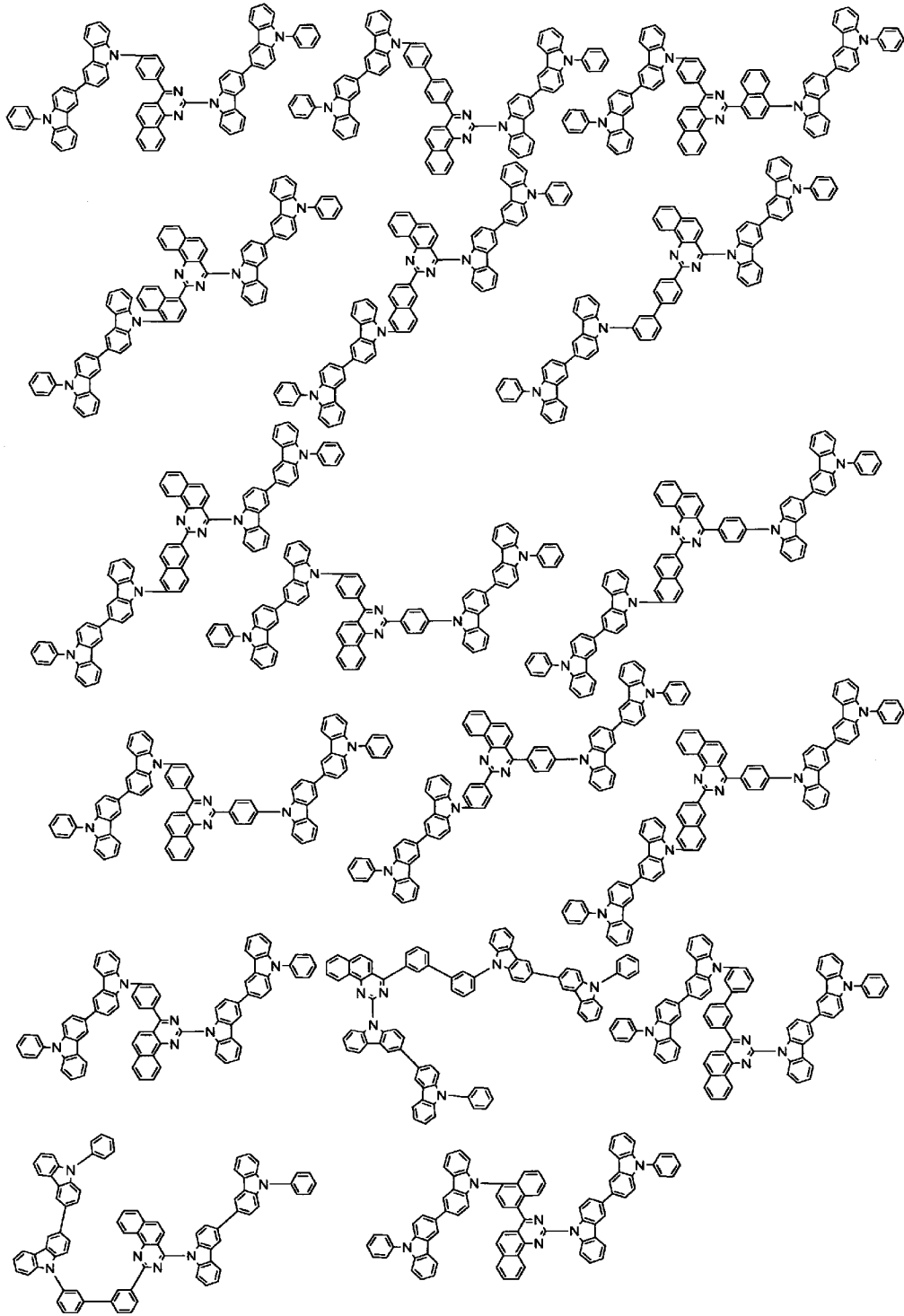
[化49]



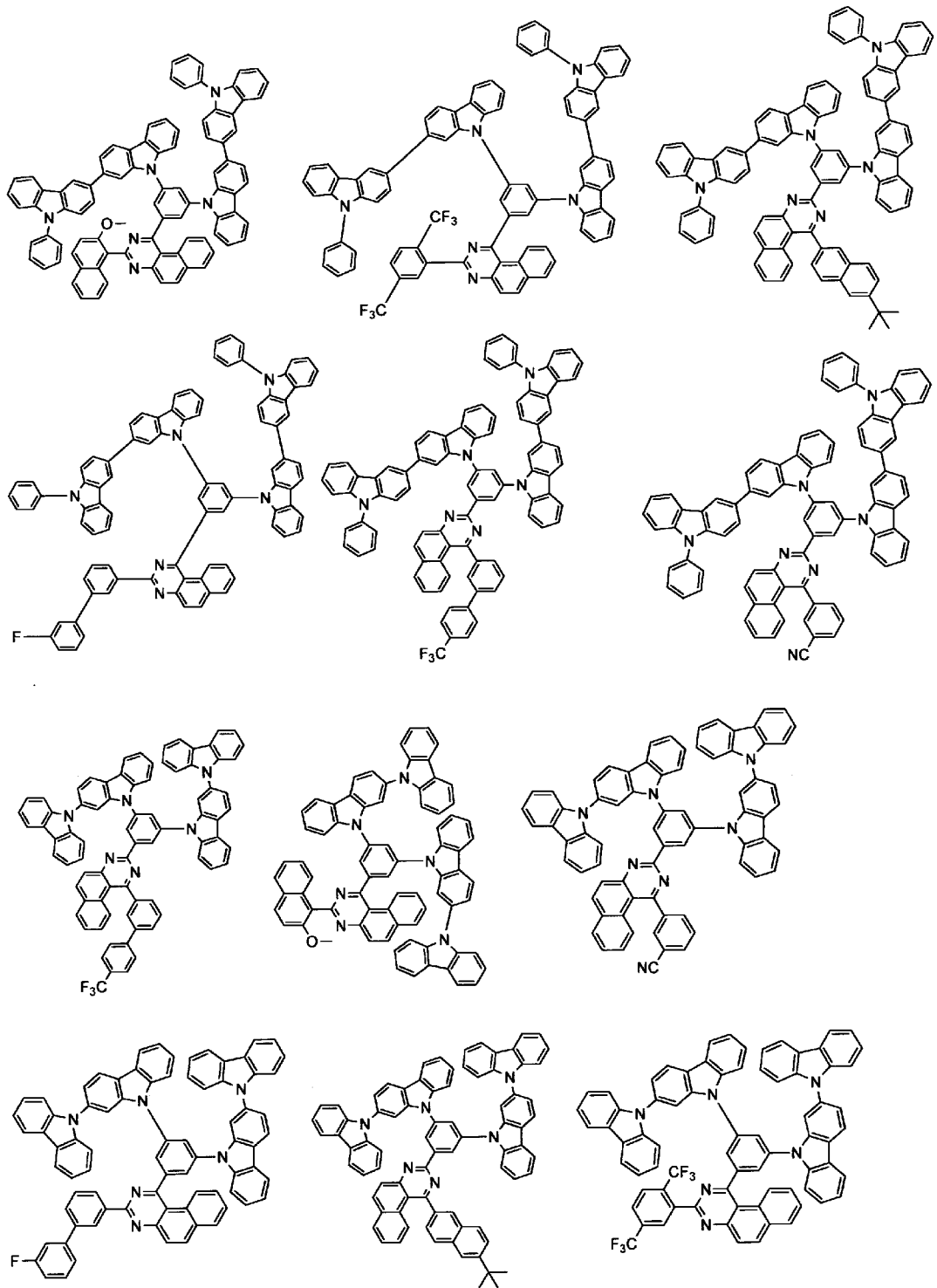
[化50]



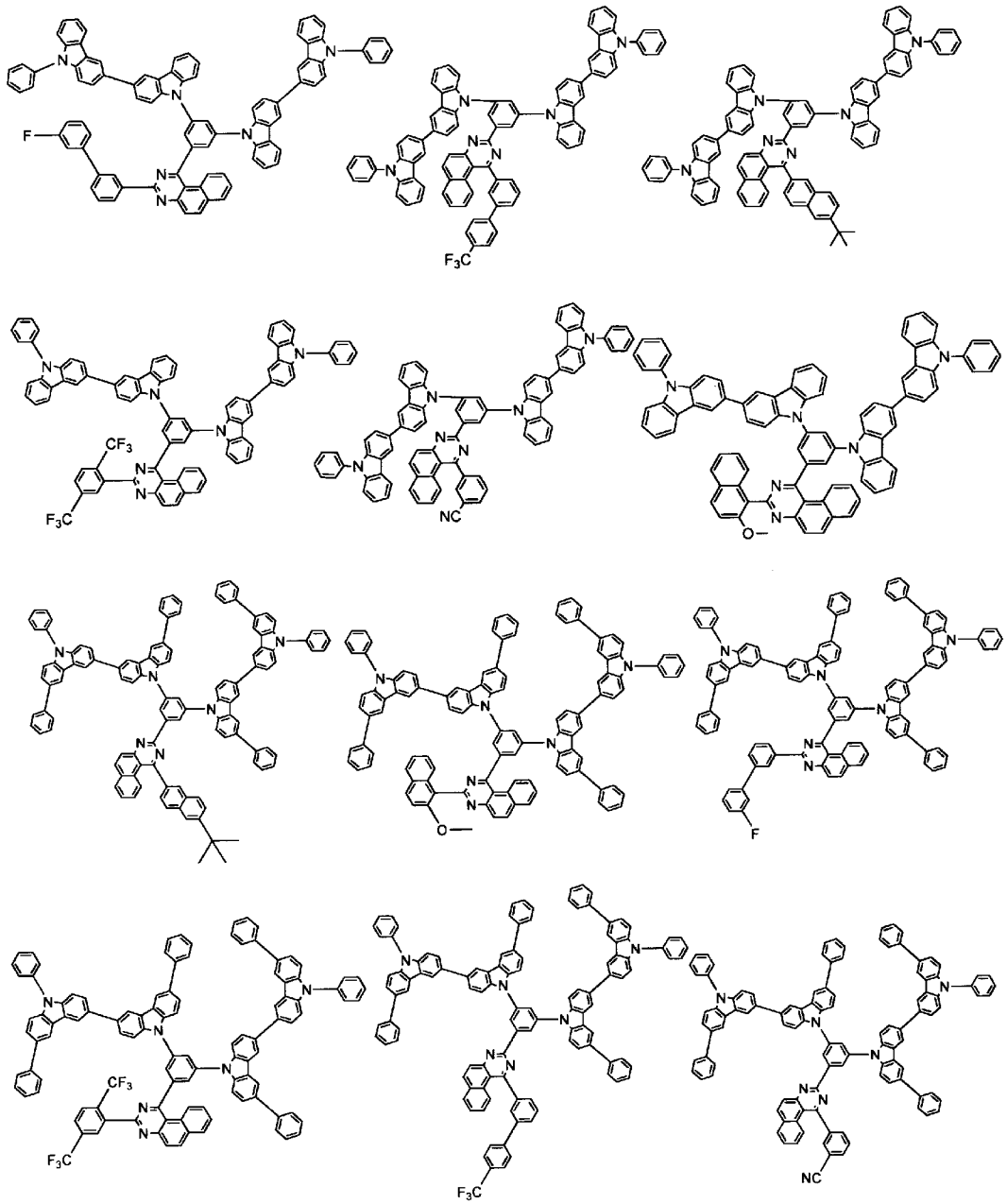
[化51]



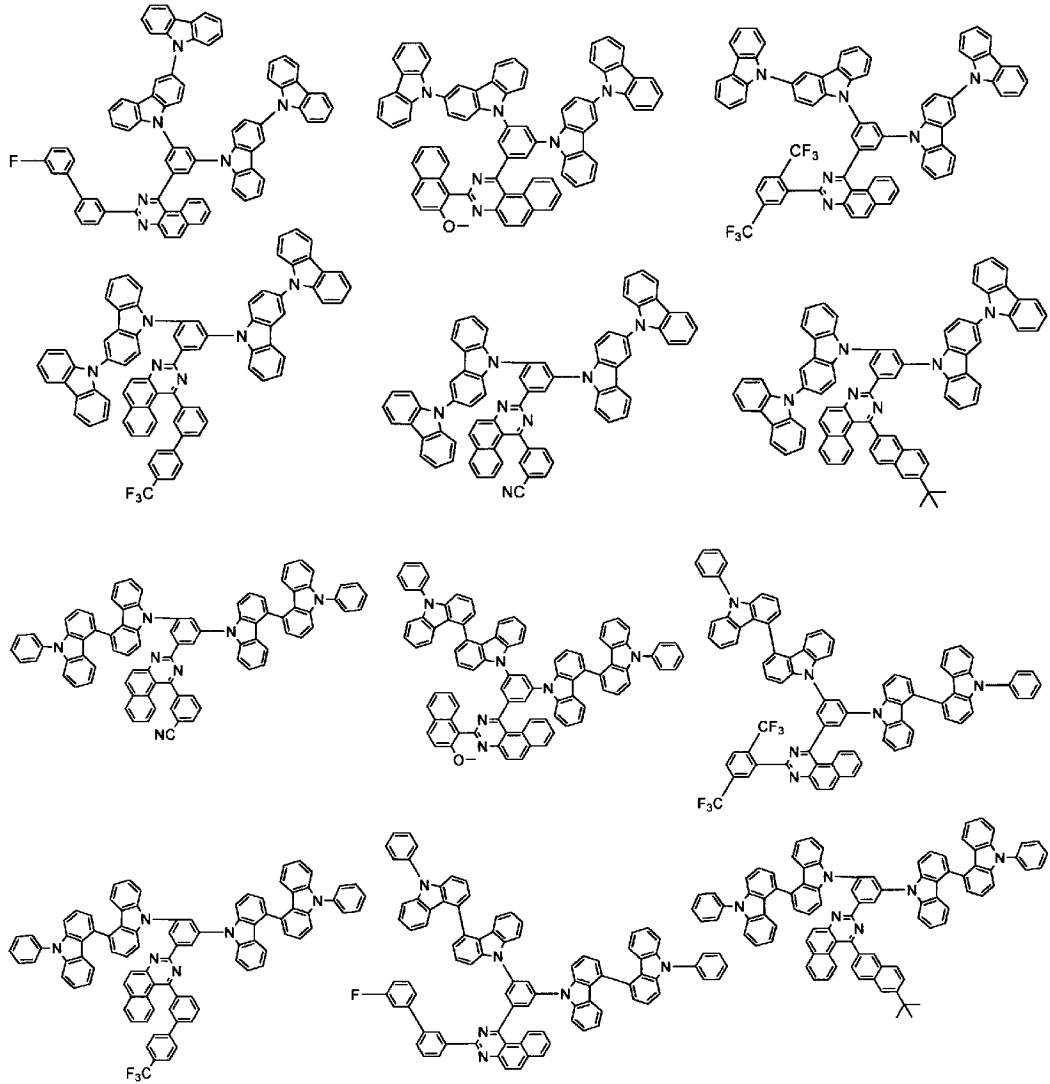
[化52]



[化53]



[化54]



[0049] 式(1)で表される化合物は、有機EL素子用材料として好適である。有機EL素子用材料における上記化合物の含有量は、特に制限されず、例えば、1質量%以上であればよく、10質量%以上であることが好ましく、50質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましく、90質量%以上であることが特に好ましく、100質量%でもよい。尚、上記化合物以外の材料としては、後述する発光層、電子輸送層、正孔輸送層等で使用する材料が挙げられる。

[0050] 本発明の化合物は、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料及びドーパント材料や、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料と

して用いることができる。また、蛍光発光ユニット及び燐光発光ユニットのいずれにおいても、有機EL素子の陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層や、有機EL素子の陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層の材料、即ち、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層、電子阻止層等の材料としても有用である。

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

[0051] 本発明の他の態様である有機EL素子は、陰極と陽極の間に発光層を含有する1以上の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層のうちの少なくとも1層が前述した本発明の化合物を含むことを特徴とする。

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

本発明の化合物は、特に、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料として好適である。

[0052] 本発明の有機EL素子は、蛍光又は燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光／燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよく、中でも、燐光発光型であることが好ましい。

[0053] シンプル型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(1) 陽極／発光ユニット／陰極

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

- (a) 正孔輸送層／発光層（／電子輸送層）
- (b) 正孔輸送層／第一燐光発光層／第二燐光発光層（／電子輸送層）
- (c) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）
- (d) 正孔輸送層／第一燐光発光層／第二燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）
- (e) 正孔輸送層／第一燐光発光層／スペース層／第二燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）
- (f) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／第一蛍光発光層／第二蛍光発光層（／電子輸送層）
- (g) 正孔輸送層／電子障壁層／発光層（／電子輸送層）
- (h) 正孔輸送層／発光層／正孔障壁層（／電子輸送層）
- (i) 正孔輸送層／蛍光発光層／トリプレット障壁層（／電子輸送層）

[0054] 上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光層（d）において、正孔輸送層／第一燐光発光層（赤色発光）／第二燐光発光層（緑色発光）／スペース層／蛍光発光層（青色発光）／電子輸送層といった層構成等が挙げられる。

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

[0055] タンデム型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

- (2) 陽極／第一発光ユニット／中間層／第二発光ユニット／陰極

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

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

[0056] 図1に、本発明に係る有機EL素子の一例の概略構成を示す。有機EL素子1は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット10とを有する。発光ユニット10は、燐光ホスト材料と燐光ドーパントを含む少なくとも1つの燐光発光層を含む発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔注入・輸送層6等、発光層5と陰極4との間に電子注入・輸送層7等を形成してもよい。また、発光層5の陽極3側に電子障壁層を、発光層5の陰極4側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における励起子の生成確率を高めることができる。

[0057] 尚、本明細書において、蛍光ドーパントと組み合わせられたホストを蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたホストを燐光ホストと称する。蛍光ホストと燐光ホストは分子構造のみにより区分されるものではない。即ち、燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を構成する材料を意味し、蛍光発光層を構成する材料として利用できないことを意味しているわけではない。蛍光ホストについても同様である。

[0058] 本発明の有機EL素子では、上述した本発明の化合物を使用した層を有していればよく、他の構成については、特に限定されずに、公知の材料等を使用できる。以下、素子の構成要素について簡単に説明するが、本発明の有機EL素子に適用される材料は以下に限定されない。

(基板)

基板は、発光素子の支持体として用いられる。基板としては、例えば、ガラス、石英、プラスチック等を用いることができる。また、可撓性基板を用いてもよい。可撓性基板とは、折り曲げることができる（フレキシブル）基

板のことであり、例えば、ポリカーボネート、ポリ塩化ビニルからなるプラスチック基板等が挙げられる。

[0059] (陽極)

基板上に形成される陽極には、仕事関数の大きい（具体的には4.0 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物等を用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム－酸化スズ（ITO: Indium Tin Oxide）、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ、酸化インジウム－酸化亜鉛、酸化タングステン、及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、グラフェン等が挙げられる。その他、金（Au）、白金（Pt）、又は金属材料の窒化物（例えば、窒化チタン）等が挙げられる。

[0060] (正孔注入層)

正孔注入層は、正孔注入性の高い物質を含む層である。正孔注入性の高い物質としては、モリブデン酸化物、チタン酸化物、バナジウム酸化物、レニウム酸化物、ルテニウム酸化物、クロム酸化物、ジルコニウム酸化物、ハフニウム酸化物、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物、芳香族アミン化合物、又は高分子化合物（オリゴマー、 dendrogram、ポリマー等）等も使用できる。

[0061] (正孔輸送層)

正孔輸送層は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。正孔輸送層には、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体等を使用することができる。ポリ（N-ビニルカルバゾール）（略称：PVK）やポリ（4-ビニルトリフェニルアミン）（略称：PVTPA）等の高分子化合物を用いることもできる。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。尚、正孔輸送性の高い物質を含む層は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が二層以上積層したものとしてもよい。

[0062] (発光層のゲスト材料)

発光層は、発光性の高い物質を含む層であり、種々の材料を用いることができる。例えば、発光性の高い物質としては、蛍光を発光する蛍光性化合物や燐光を発光する燐光性化合物を用いることができる。蛍光性化合物は一重項励起状態から発光可能な化合物であり、燐光性化合物は三重項励起状態から発光可能な化合物である。

発光層に用いることができる青色系の蛍光発光材料として、ピレン誘導体、スチリルアミン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、フルオレン誘導体、ジアミン誘導体、トリアリールアミン誘導体等が使用できる。発光層に用いることができる緑色系の蛍光発光材料として、芳香族アミン誘導体等を使用できる。発光層に用いることができる赤色系の蛍光発光材料として、テトラセン誘導体、ジアミン誘導体等が使用できる。

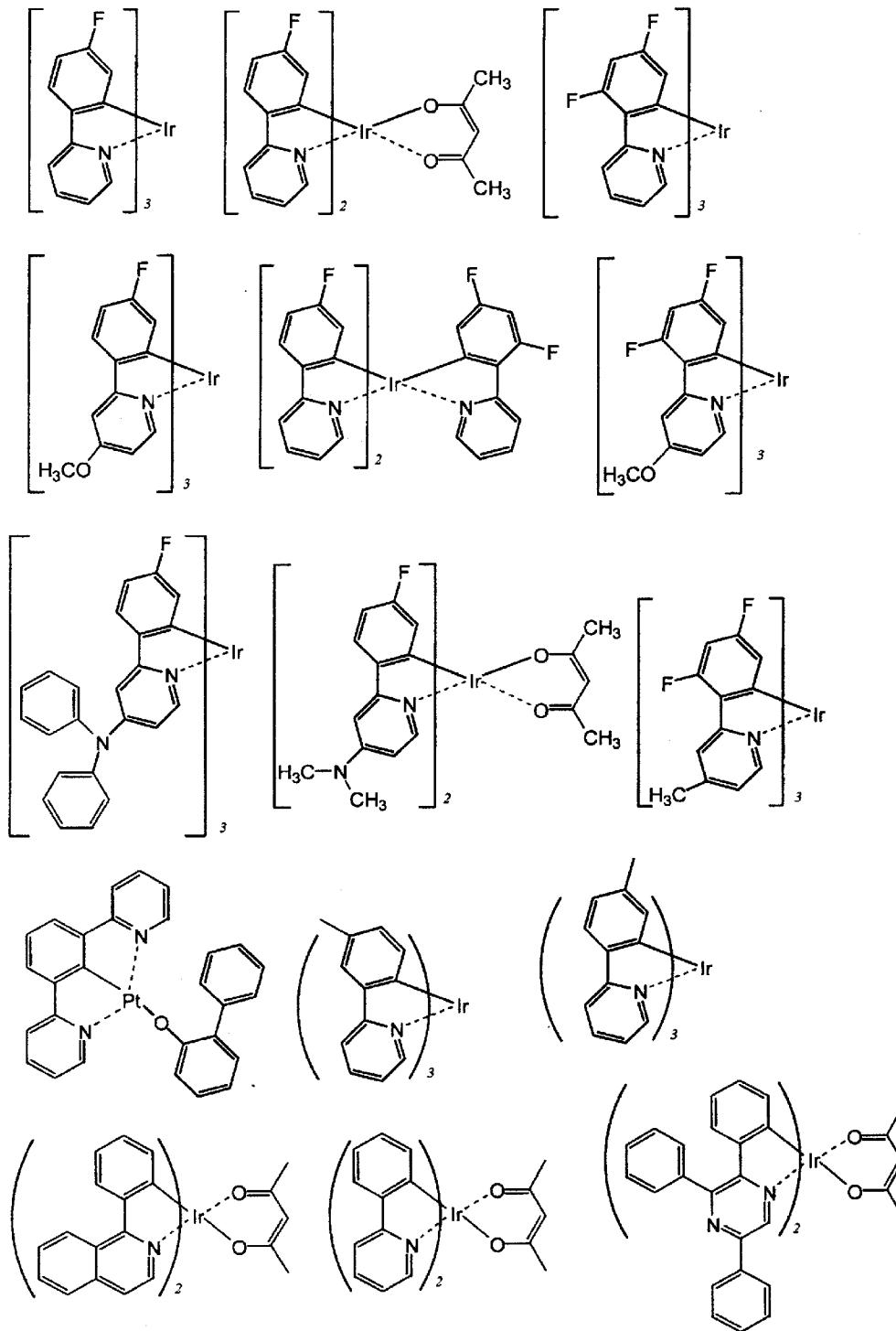
発光層に用いることができる青色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体を使用される。発光層に用いることができる緑色系の燐光発光材料としてイリジウム錯体等が使用される。発光層に用いることができる赤色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、白金錯体、テルビウム錯体、ユーロピウム錯体等の金属錯体を使用される。

[0063] 本発明の有機EL素子において、前記発光層が、本発明の化合物をホスト材料として含有すると好ましい。また、前記発光層が、ホスト材料と燐光発光材料からなり、該ホスト材料が本発明の化合物であると好ましい。

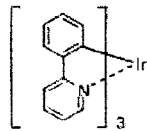
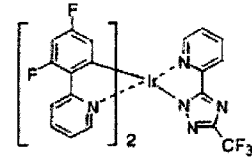
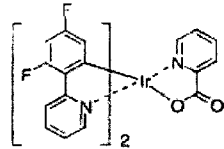
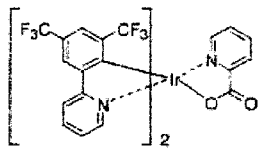
[0064] また、本発明の化合物は最低励起3重項エネルギーが2.2~3.2 eVであると好ましく、2.5~3.2 eVであるとより好ましい。「3重項エネルギー」とは、最低励起3重項状態と基底状態のエネルギー差をいう。

[0065] 燐光発光材料としては、燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、イリジウム(Ir)、オスミウム(Os)、ルテニウム(Ru)又は白金(Pt)を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、ルテニウム錯体、白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体が

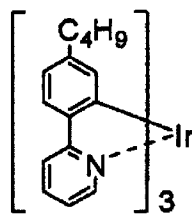
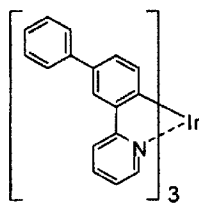
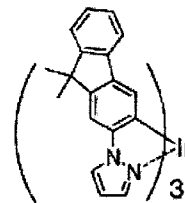
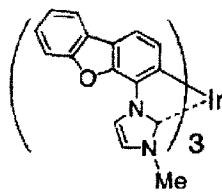
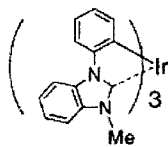
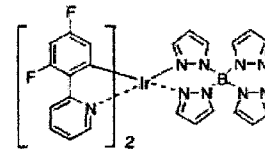
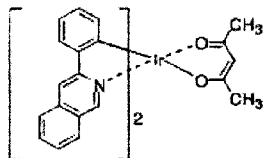
[化56]



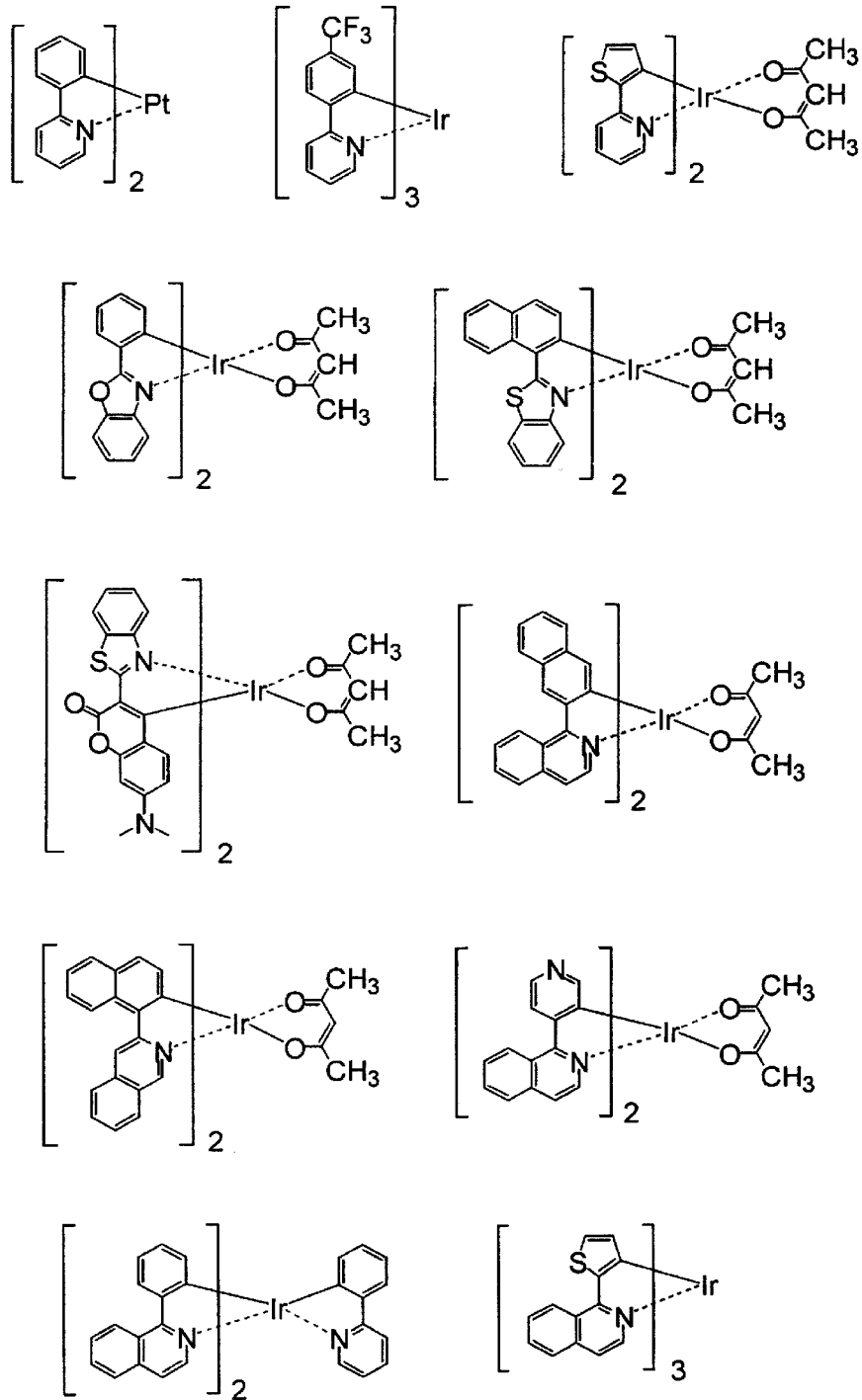
[化57]



$\text{Ir}(\text{ppy})_3$

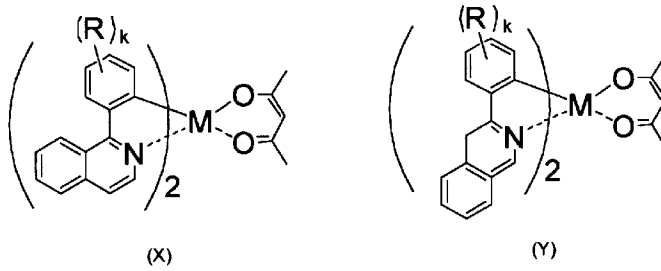


[化58]



[0067] さらに、本発明の有機EL素子においては、燐光発光材料として、下記式 (X) 又は (Y) で表される錯体が好ましい。

[化59]



[0068] 式 (X)、(Y) において、R は、水素原子又は置換基であり、k は、1～4 の整数である。M は、I r、O s、又は P t である。

R の示す置換基としては、上記式 (1) の R₁ 等で例示した置換基と同様のものが挙げられる。

[0069] (発光層のホスト材料)

発光層としては、上述した発光性の高い物質 (ゲスト材料) を他の物質 (ホスト材料) に分散させた構成としてもよい。発光性の高い物質を分散させるための物質としては、各種のものを用いることができ、発光性の高い物質よりも最低空軌道準位 (LUMO 準位) が高く、最高被占有軌道準位 (HOMO 準位) が低い物質を用いることが好ましい。

発光性の高い物質を分散させるための物質 (ホスト材料) としては、1) アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、若しくは亜鉛錯体等の金属錯体、2) オキサジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、若しくはフェナントロリン誘導体等の複素環化合物、3) カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、若しくはクリセン誘導体等の縮合芳香族化合物、3) トリアリールアミン誘導体、若しくは縮合多環芳香族アミン誘導体等の芳香族アミン化合物が使用される。

[0070] (電子輸送層)

電子輸送層は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送層には、1) アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、亜鉛錯体等の金属錯体、2) イミダゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、アジン誘導体、カルバゾール誘導体、フェナントロリン誘導体等の複素芳香族化合物、3) 高分子化合物

を使用することができる。

[0071] (電子注入層)

電子注入層は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層には、リチウム (Li)、フッ化リチウム (LiF)、フッ化セシウム (CsF)、フッ化カルシウム (CaF₂)、リチウム酸化物 (LiO_x) 等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、又はそれらの化合物を用いることができる。

[0072] (陰極)

陰極には、仕事関数の小さい (具体的には 3.8 eV 以下) 金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物等を用いることが好ましい。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の第 1 族又は第 2 族に属する元素、即ちリチウム (Li) やセシウム (Cs) 等のアルカリ金属、及びマグネシウム (Mg) 等のアルカリ土類金属、及びこれらを含む合金 (例えば、MgAg、AlLi) 等の希土類金属及びこれらを含む合金等が挙げられる。

[0073] 本発明の有機 EL 素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機 EL 素子に用いる、本発明の化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法 (MBE 法)、あるいは本発明の化合物を溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

[0074] 本発明の有機 EL 素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数 nm から 1 μm の範囲が好ましい。

本発明の化合物を含有する層 (特に発光層) を形成する方法としては、例えば、本発明の化合物及び必要に応じてドーパント等のその他の材料からなる

溶液を成膜する方法が好ましい。

[0075] 成膜方法としては、公知の塗布法を有効に利用することができ、例えばスピコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、スリットコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェット法、ノズルプリンティング法等が挙げられる。パターン形成をする場合には、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェット印刷法が好ましい。これらの方法による成膜は、当業者に周知の条件により行うことができる。

成膜後は、真空下に加熱（上限250℃）乾燥して、溶媒を除去すればよく、光や250℃を超える高温加熱による重合反応は不要である。従って、光や250℃を超える高温加熱による素子の性能劣化の抑制が可能である。

[0076] 成膜用溶液は、少なくとも1種類の本発明の化合物を含有していればよく、また他の正孔輸送材料、電子輸送材料、発光材料、アクセプター材料、溶媒、安定剤等の添加剤を含んでいてもよい。

成膜用溶液は、粘度及び／又は表面張力を調節するための添加剤、例えば、増粘剤（高分子量化合物等）、粘度降下剤（低分子量化合物等）、界面活性剤等を含有していてもよい。また、保存安定性を改善するために、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等、有機EL素子の性能に影響しない酸化防止剤を含有していてもよい。

上記成膜用溶液中の本発明の化合物の含有量は、成膜用溶液全体に対して0.1～15質量%が好ましく、0.5～10質量%がより好ましい。

[0077] 増粘剤として使用可能な高分子量化合物としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂及びそれらの共重合体、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂が挙げられる。

[0078] 成膜用溶液の溶媒としては、例えばクロロホルム、塩化メチレン、1, 2-ジクロロエタン、1, 1, 2-トリクロロエタン、クロロベンゼン、*o*-ジクロロベンゼン等の塩素系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジオキソラン、アニソール等のエーテル系溶媒；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒；シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、ベンゾフェノン、アセトフェノン等のケトン系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート、安息香酸メチル、酢酸フェニル等のエステル系溶媒；エチレングリコール、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジメトキシエタン、プロピレングリコール、ジエトキシメタン、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、グリセリン、1, 2-ヘキサジオール等の多価アルコール及びその誘導体；メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、シクロヘキサノール等のアルコール系溶媒；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶媒；*N*-メチル-2-ピロリドン、*N,N*-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒が挙げられる。また、これらの溶媒は、1種を単独で又は2種以上を併用することができる。

[0079] これらの溶媒のうち、溶解性、成膜の均一性及び粘度特性等の観点から、芳香族炭化水素系溶媒、エーテル系溶媒、脂肪族炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、ケトン系溶媒が好ましく、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、トリメチルベンゼン、*n*-プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン、*n*-ブチルベンゼン、イソブチルベンゼン、5-ブチルベンゼン、*n*-ヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン、1-メチルナフタレン、テトラリン、1, 3-ジオキサン、1, 4-ジオキサン、1, 3-ジオキソラン、アニソール、エトキシベンゼン、シクロヘキサン、ビスクロヘキシル、シクロヘキセニルシクロヘキサノン、*n*-ヘプチルシクロヘキサン

、*n*-ヘキシルシクロヘキサン、デカリン、安息香酸メチル、シクロヘキサノン、2-プロピルシクロヘキサノン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2-オクタノン、2-ノナノン、2-デカノン、ジシクロヘキシルケトン、アセトフェノン、ベンゾフェノンがより好ましい。

[0080] 本発明の有機EL素子は、発光素子として各種ディスプレイ等に使用されるパネルモジュールに使用できる。

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

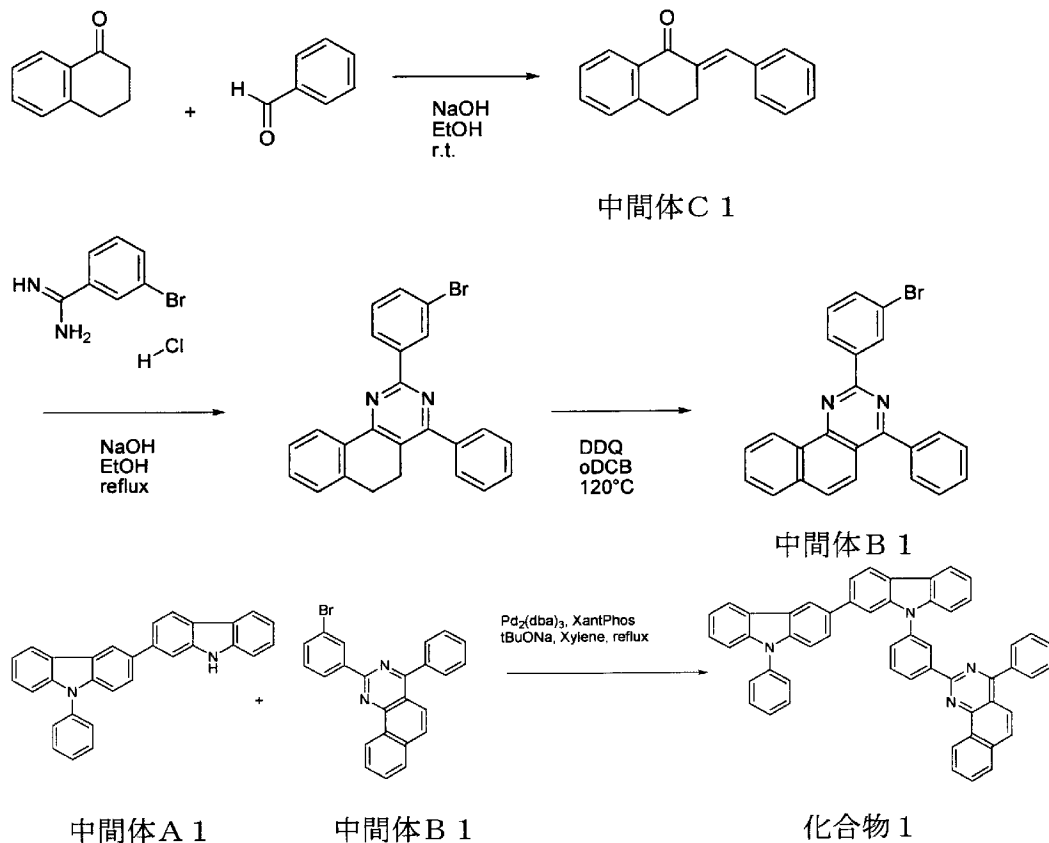
実施例

[0081] 以下の反応に倣い、目的物に合わせた既知の代替反応や原料を用いることで、請求項の範囲内である化合物を合成することができる。

[0082] [化合物の合成]

実施例 1 (化合物 1 の合成)

[化60]



[0083] α テトラロン (3, 4-ジヒドロ-1 (2H) -ナフタレノン) (7.62 g、52 mmol)、ベンズアルデヒド (5.53 g、52 mmol) をエタノール (100 mL) に溶解し、水酸化ナトリウム (0.20 g、5.0 mmol) を加え、室温で8時間攪拌した。生成した粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでメタノールで洗浄し、真空乾燥してカルコン中間体C1 (9.13 g、収率75%) を得た。このカルコン中間体C1 (4.43 g、18.9 mmol)、3-ブロモベンズアミジン塩酸塩 (4.45 g、18.9 mmol)、水酸化ナトリウム (0.83 g、20.8 mmol) をエタノール (190 mL) 中、加熱還流下8時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン (100 mL) 中、2, 3-ジクロロ-5, 6-ジシアノ-p-ベンゾキノン (DDQ) (4.90 g、21.6 mmol) を加えて120°Cで5時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体B1 (5.45 g、収率70%) を得た。

アルゴン雰囲気下、ビスカルバゾリル中間体A1 (1.29 g、3.15 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B1 (1.23 g、3.00 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム ($\text{Pd}_2(\text{dba})_3$) (55 mg、0.06 mmol)、4, 5'-ビス (ジフェニルホスフィノ) -9, 9'-ジメチルキサンテン (XantPhos) (69 mg、0.12 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.43 g、4.5 mmol)、無水キシレン (60 mL) を順次加えて12時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物1 (1.78 g、収率80%) を得た。

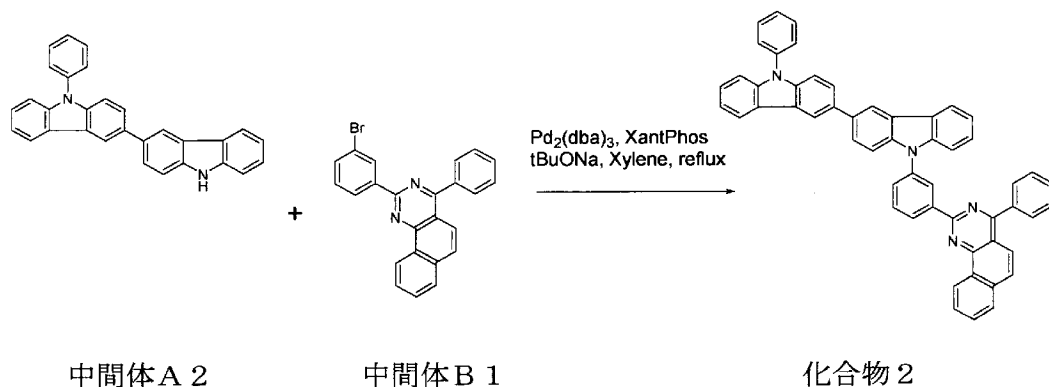
HPLC (高速液体クロマトグラフィー) : 純度99.45%

FD-MS (電界脱離質量分析法) : calcd for $\text{C}_{54}\text{H}_{34}\text{N}_4 = 738$

found $m/z = 738$ (M^+ , 100)

[0084] 実施例 2 (化合物 2 の合成)

[化61]



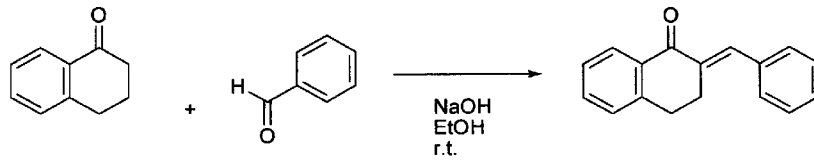
[0085] ビスカルバゾリル中間体 A 1 のかわりに、ビスカルバゾリル中間体 A 2 (1.29 g、3.15 mmol) を用いること以外は、実施例 1 と同様の操作を行い、目的の化合物 2 (1.64 g、収率 74%) を得た。

HPLC : 純度 99.70%

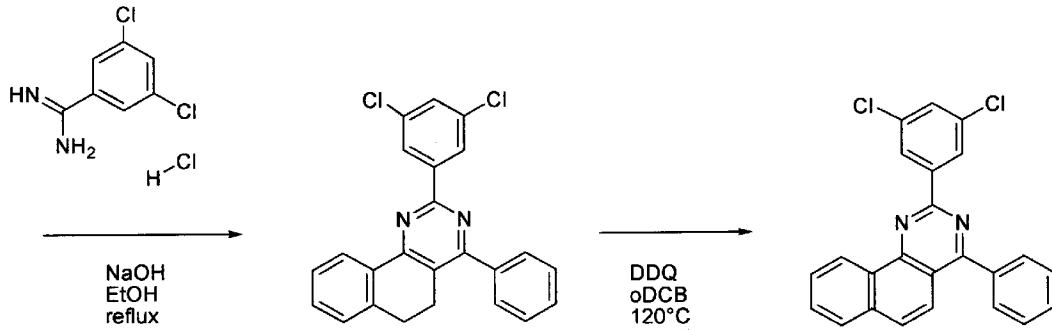
FD-MS : calcd for $C_{54}H_{34}N_4 = 738$ 、
found $m/z = 738$ (M^+ , 100)

[0086] 実施例 3 (化合物 3 の合成)

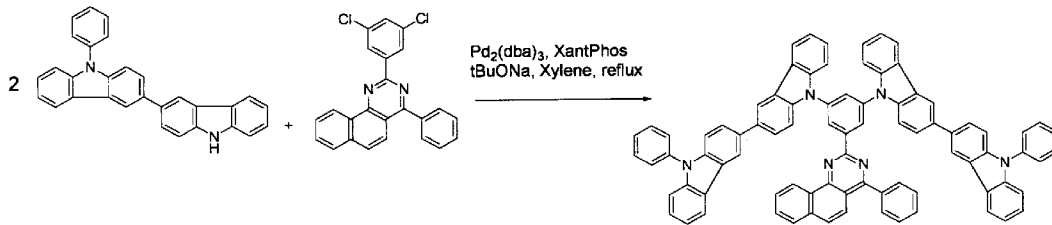
[化62]



中間体C 1



中間体B 2



中間体A 2

中間体B 2

化合物3

[0087] 実施例1で合成したカルコン中間体C 1 (4.69 g、20.0 mmol)、3,5-ジクロロベンズアミジン塩酸塩 (4.52 g、20.0 mmol)、水酸化ナトリウム (0.88 g、22 mmol) をエタノール (200 mL) 中、加熱還流下8時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン (100 mL) 中、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノン (5.0 g、22 mmol) を加えて120°Cで5時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体B 2 (4.81 g、収率60%) を得た。

アルゴン雰囲気下、ピカルバゾリル中間体A 2 (1.80 g、4.40 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B 2 (0.84 g、2.10 mmol)

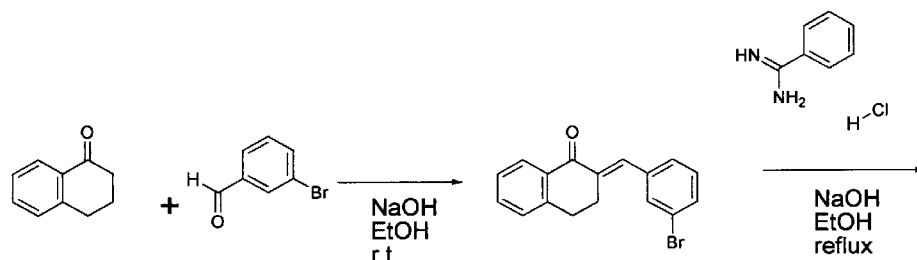
、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（ $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ ）（39 mg、0.04 mmol）、4, 5'-ビス（ジフェニルホスフィノ）-9, 9'-ジメチルキサンテン（49 mg、0.08 mmol）、*t*-ブトキシナトリウム（0.61 g、6.3 mmol）、無水キシレン（42 mL）を順次加えて12時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物3（2.02 g、収率84%）を得た。

HPLC：純度99.20%

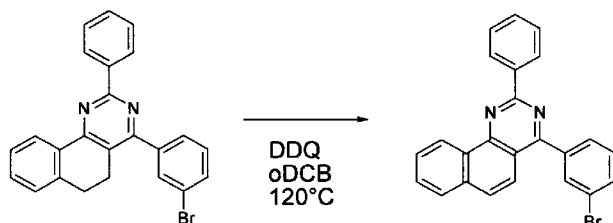
FD-MS：calcd for $\text{C}_{84}\text{H}_{52}\text{N}_6=1144$ 、
found $m/z=1144$ (M+, 100)

[0088] 実施例4（化合物4の合成）

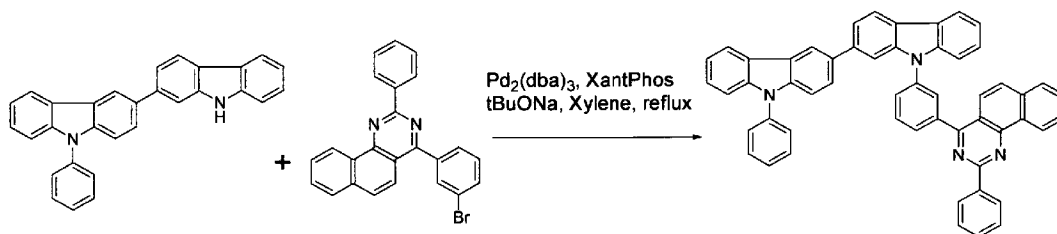
[化63]



中間体 C 2



中間体 B 3



中間体 A 1

中間体 B 3

化合物 4

[0089] α テトラロン（3,4-ジヒドロ-1(2H)-ナフタレノン）（7.50 g、51.3 mmol）、3-ブロモベンズアルデヒド（9.49 g、51.3 mmol）をエタノール（100 mL）に溶解し、水酸化ナトリウム（0.20 g、5 mmol）を加え、室温で8時間攪拌した。生成した粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでメタノールで洗浄し、真空乾燥してカルコン中間体C 2（14.10 g、収率88%）を得た。

カルコン中間体C 2（6.26 g、20.0 mmol）、ベンズアミジン塩酸塩（3.13 g、20.0 mmol）、水酸化ナトリウム（0.88 g、22 mmol）をエタノール（100 mL）中、加熱還流下8時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン（100 mL）中、2,3-ジクロロ-5,6

ージシアノ-p-ベンゾキノン (5.0 g、22 mmol) を加えて120 °Cで5時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体B3 (5.52 g、収率67%) を得た。

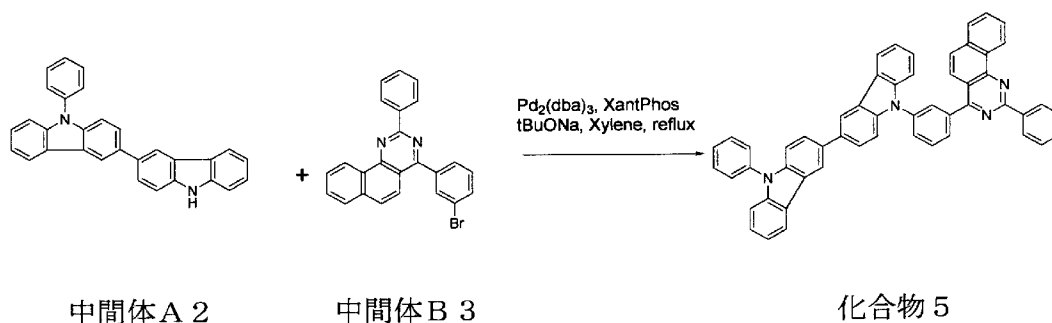
アルゴン雰囲気下、ビスカルバゾリル中間体A1 (1.29 g、3.15 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B3 (1.23 g、3.00 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (55 mg、0.06 mmol)、4,5'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9'-ジメチルキサンテン (69 mg、0.12 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.43 g、4.5 mmol)、無水キシレン (60 mL) を順次加えて12時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物4 (1.64 g、収率74%) を得た。

HPLC : 純度99.76%

FD-MS : calcd for $C_{54}H_{34}N_4 = 738$ 、
found $m/z = 738$ (M+, 100)

[0090] 実施例5 (化合物5の合成)

[化64]



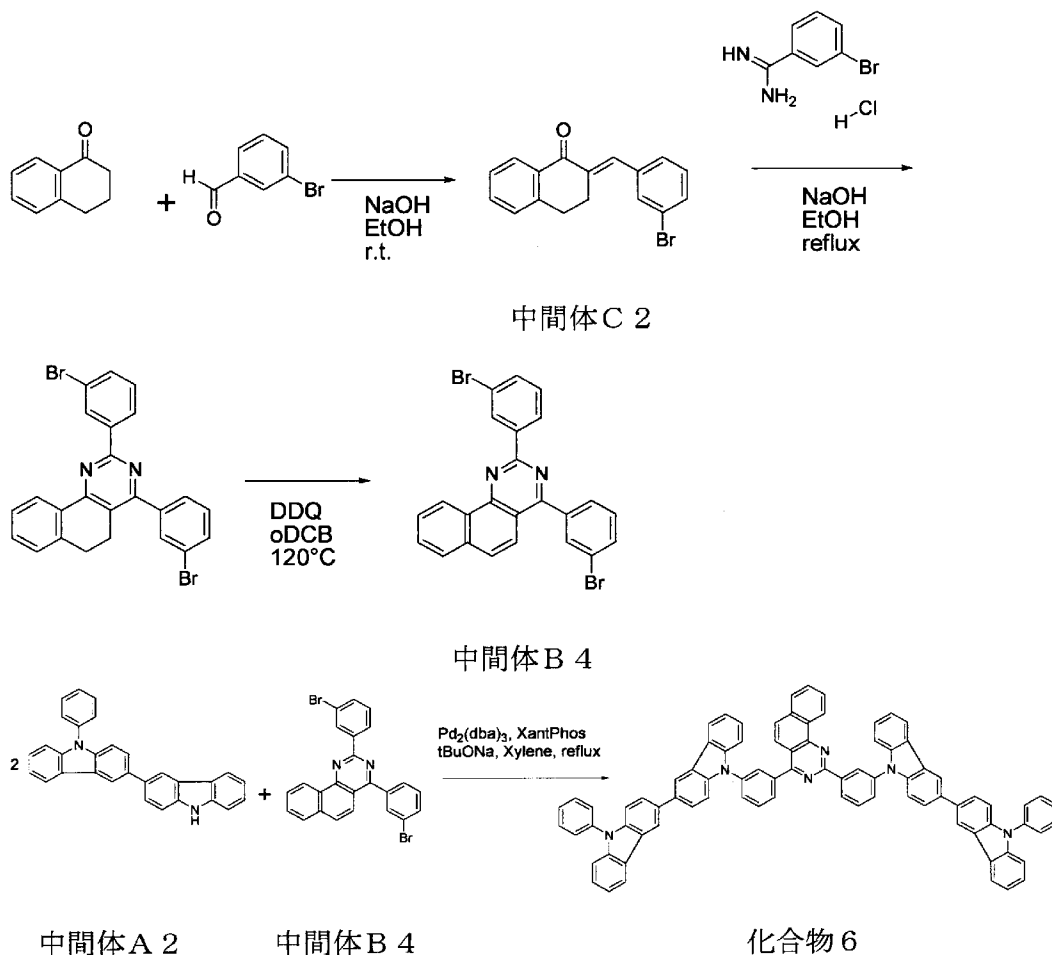
[0091] ビスカルバゾリル中間体A1のかわりに、ビスカルバゾリル中間体A2 (1.29 g、3.15 mmol) を用いること以外は、実施例4と同様の操作を行い、目的の化合物5 (1.81 g、収率82%) を得た。

HPLC : 純度99.23%

FD-MS: calcd for $C_{54}H_{34}N_4 = 738$,
found $m/z = 738$ (M^+ , 100)

[0092] 実施例 6 (化合物 6 の合成)

[化65]



[0093] 実施例 4 で合成したカルコン中間体 C 2 (6.26 g、20.0 mmol)、3-ブロモベンズアミジン塩酸塩 (4.71 g、20.0 mmol)、水酸化ナトリウム (0.88 g、22 mmol) をエタノール (100 mL) 中、加熱還流下 8 時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン (100 mL) 中、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノン (5.0 g、22 mmol) を加えて 120°C で 5 時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体 B 4 (5.59 g、収率 57%) を得た。

アルゴン雰囲気下、ビスカルバゾリル中間体 A 2 (1.80 g、4.40 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体 B 4 (1.03 g、2.10 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(39 mg、0.04 mmol)、4,5'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9'-ジメチルキサンテン(49 mg、0.08 mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.61 g、6.3 mmol)、無水キシレン(42 mL)を順次加えて12時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物 6 (2.12 g、収率 88%)を得た。

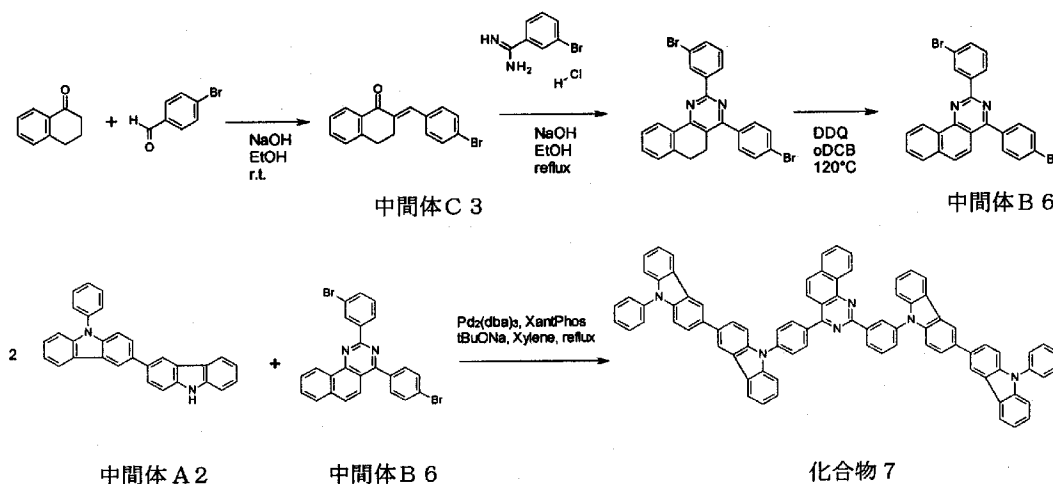
HPLC: 純度 99.07%

FD-MS: calcd for $C_{84}H_{52}N_6 = 1144$

found $m/z = 1144 (M^+, 100)$

[0094] 実施例 7 (化合物 7 の合成)

[化 66]



[0095] 3-ブロモベンズアルデヒドのかわりに4-ブロモベンズアルデヒドを用いること以外は実施例 4 と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体 B 6 を得た。

ビスカルバゾリル中間体 A 2 (1.80 g、4.40 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体 B 6 (1.03 g、2.10 mmol) を用いて実施例 6 と同様の操作を行い、化合物 7 (2.02 g、収率 84%) を得た。

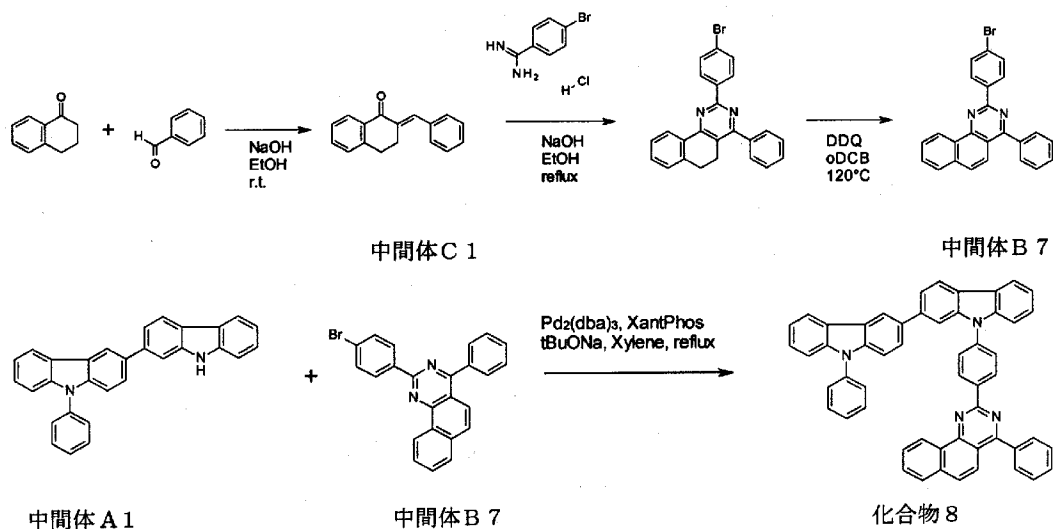
HPLC : 純度 99.97%

FD-MS : calcd for $C_{84}H_{52}N_6 = 1144$

found $m/z = 1144$ (M^+ , 100)

[0096] 実施例 8 (化合物 8 の合成)

[化67]



[0097] 3-ブロモベンズアミジン塩酸塩のかわりに4-ブロモベンズアルデヒドを用いること以外は実施例 1 と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体 B 7 を得た。

ビカルバゾリル中間体 A 1 (1.29 g、3.15 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体 B 7 (1.23 g、3.00 mmol) を用いて実施例 1 と同様の操作を行い、化合物 8 (1.68 g、収率 76%) を得た。

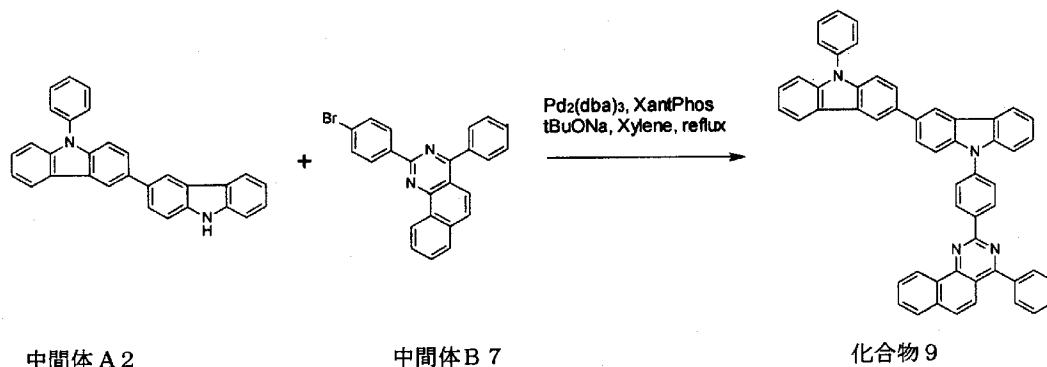
HPLC : 純度 99.52%

FD-MS : calcd for $C_{54}H_{34}N_4 = 738$

found $m/z = 738$ (M^+ , 100)

[0098] 実施例 9 (化合物 9 の合成)

[化68]



[0099] ビカルバゾリル中間体 A 1 のかわりにビカルバゾリル中間体 A 2 を用いること以外は実施例 8 と同様の操作を行い、化合物 9 (1.95 g、収率 88%) を得た。

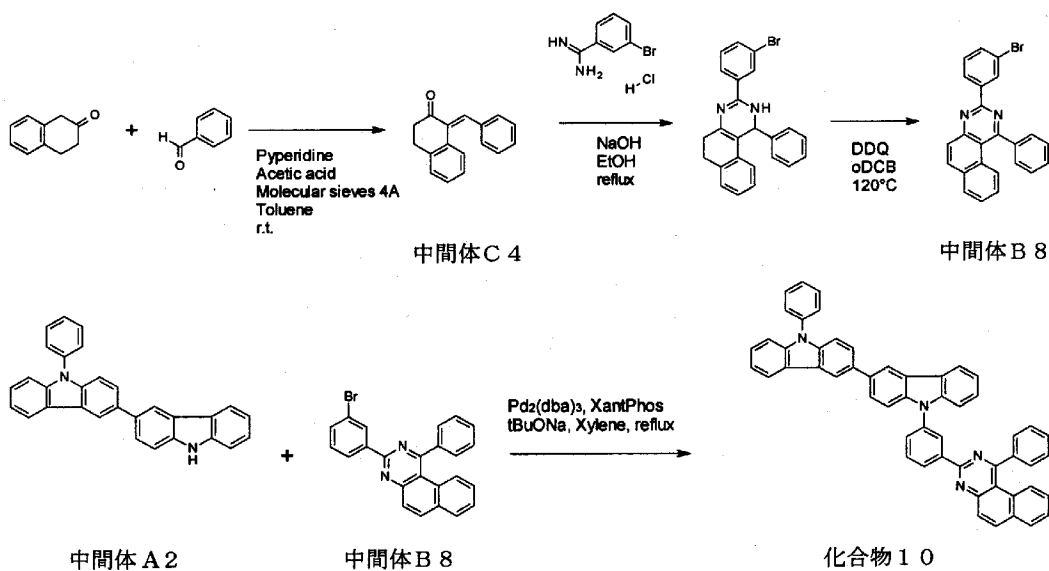
HPLC : 純度 99.71%

FD-MS : calcd for $\text{C}_{54}\text{H}_{34}\text{N}_4 = 738$

found $m/z = 738$ (M^+ , 100)

[0100] 実施例 10 (化合物 10 の合成)

[化69]



[0101] βテトラロン (7.31 g、50 mmol)、ベンズアルデヒド (5.31 g、50 mmol) をトルエン (150 mL) に溶解し、ピペリジン (250 mg)、酢酸 (250 mg)、モレキュラーシーブス 4 A (12.5 g

)を加え、室温で12時間攪拌した。反応液を、セライトを用いて濾過し、酢酸エチルで希釈した後、飽和亜硫酸ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を分離し、硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を溜去した後シリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、中間体C4(8.19g、収率70%)を得た。この中間体C4(4.69g、20mmol)、3-ブロモベンズアミジン塩酸塩(4.71g、20mmol)、水酸化ナトリウム(0.88g、22mmol)をエタノール(200mL)中、加熱還流下8時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン(80mL)中、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノー-p-ベンゾキノ(DDQ)(9.08g、40mmol)を加えて120℃で5時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体B8(5.14g、収率63%)を得た。

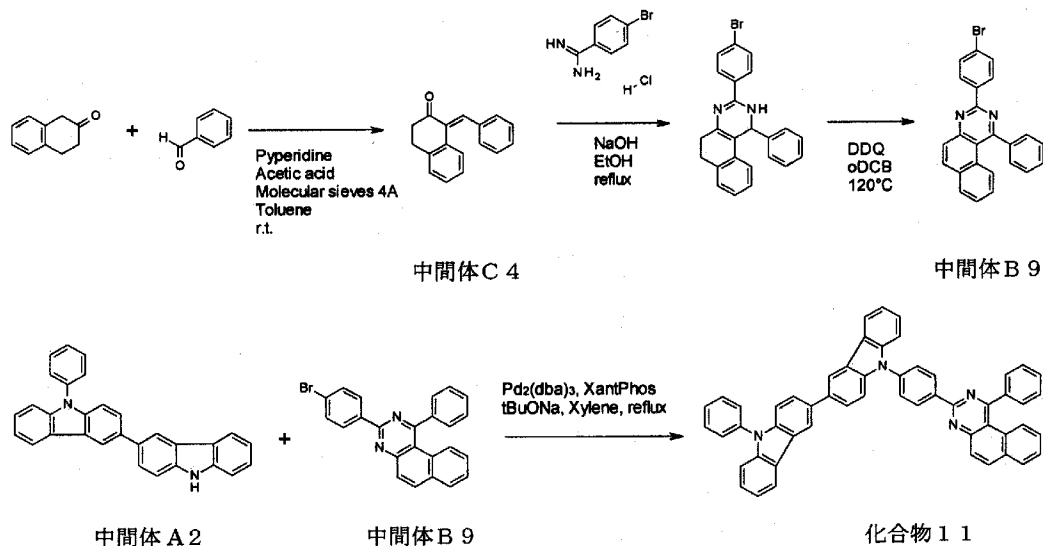
ビカルバゾリル中間体A2(1.29g、3.15mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B8(11.23g、3.00mmol)を用いて実施例1と同様の操作を行い、化合物10(1.78g、収率80%)を得た。

HPLC: 純度99.76%

FD-MS: calcd for $C_{54}H_{34}N_4 = 738$
found $m/z = 738$ (M+, 100)

[0102] 実施例11 (化合物11の合成)

[化70]



[0103] 3-ブロモベンズアミジン塩酸塩に代えて、4-ブロモベンズアミジン塩酸塩を用いた以外は実施例10と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体B9(4.32g、収率52%)を得た。

ビカルバゾリル中間体A2(1.29g、3.15mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B9(1.23g、3.00mmol)を用いて実施例1と同様の操作を行い、化合物11(1.82g、収率82%)を得た。

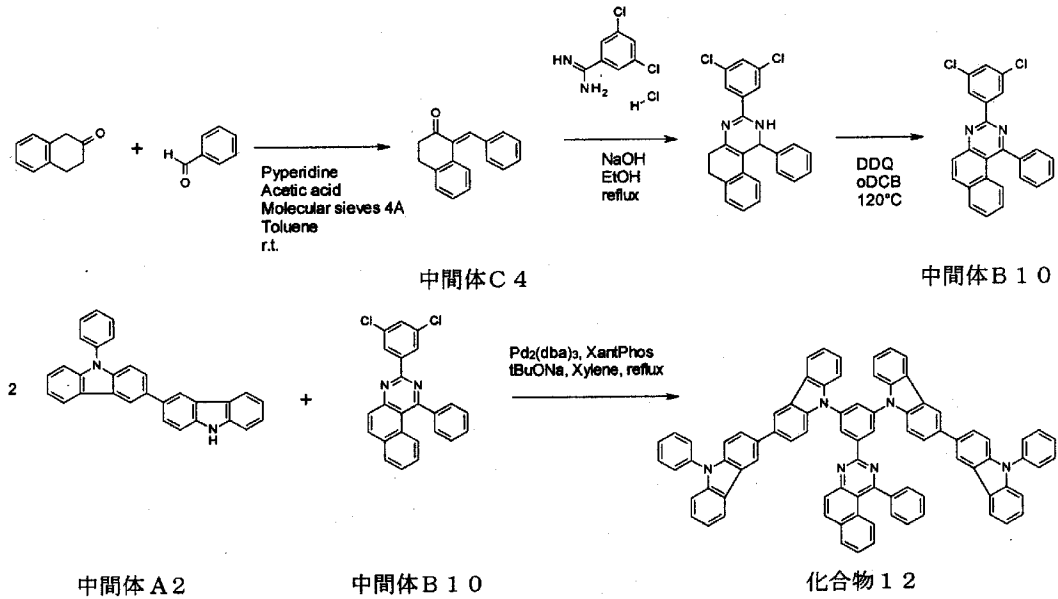
HPLC: 純度99.65%

FD-MS: calcd for $C_{54}H_{34}N_4 = 738$

found $m/z = 738 (M^+, 100)$

[0104] 実施例12(化合物12の合成)

[化71]



[0105] 3-ブロモベンズアミジン塩酸塩に代えて、3,5-ジクロロブロモベンズアミジン塩酸塩 (4.52 g、20 mmol) を用いた以外は実施例 10 と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体 B 10 (4.10 g、収率 51%) を得た。

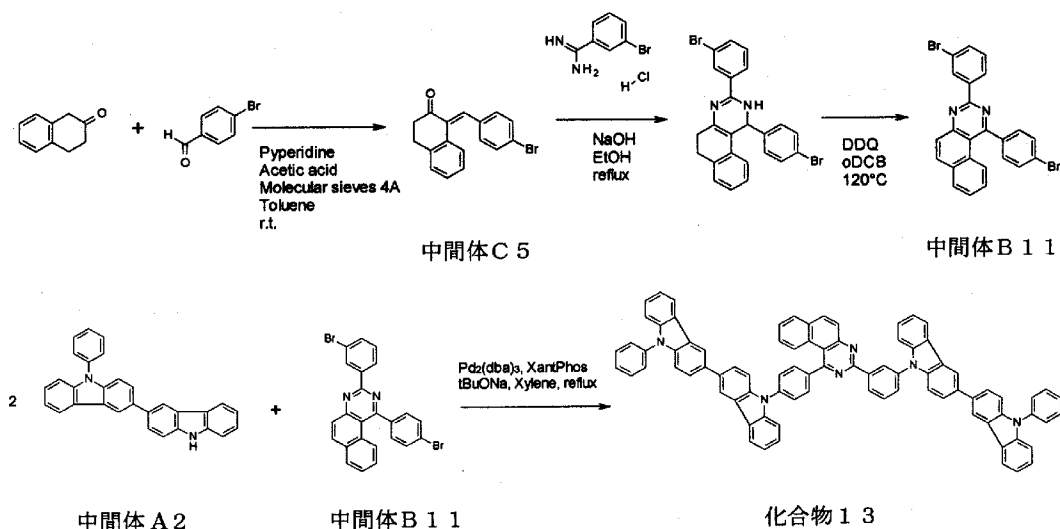
ビカルバゾリル中間体 A 2 (1.80 g、4.40 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体 B 10 (0.84 g、2.10 mmol) を用いて実施例 3 と同様の操作を行い、化合物 12 (2.00 g、収率 83%) を得た。

HPLC: 純度 99.23%

FD-MS: calcd for $C_{84}H_{52}N_6 = 1144$,
found $m/z = 1144$ (M^+ , 100)

[0106] 実施例 13 (化合物 13 の合成)

[化72]



[0107] ベンズアルデヒドに代えて、4-ブロモベンズアルデヒド (9.25 g、50 mmol) を用いた以外は実施例 10 と同様の操作を行い、中間体 C 5 (9.65 g、収率 31%) を得た。この中間体 C 5 (6.26 g、20 mmol) と 3-ブロモベンズアミジン塩酸塩 (4.71 g、20 mmol) を用いて実施例 10 と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体 B 1 1 (6.76 g、収率 69%) を得た。

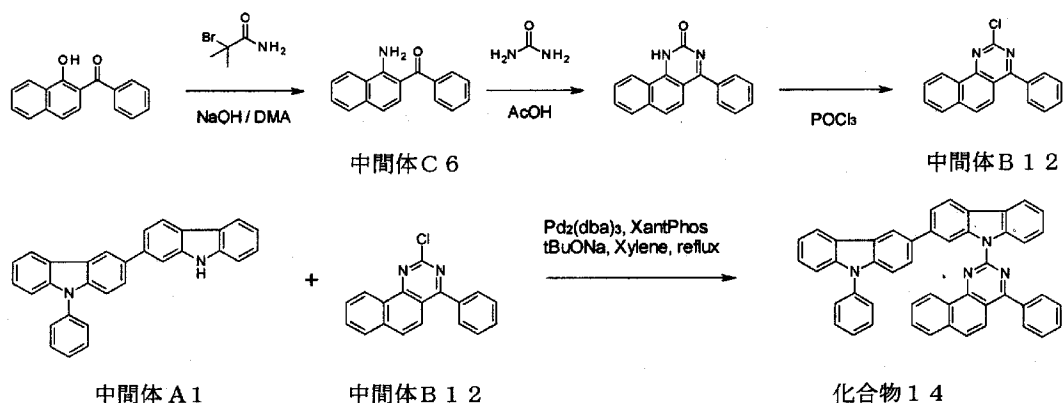
ビカルバゾリル中間体 A 2 (1.80 g、4.40 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体 B 1 1 (1.03 g、2.10 mmol) を用いて実施例 3 と同様の操作を行い、化合物 1 3 (2.05 g、収率 85%) を得た。

HPLC : 純度 99.68%

FD-MS : calcd for $\text{C}_{84}\text{H}_{52}\text{N}_6 = 1144$ 、
found $m/z = 1144$ (M+, 100)

[0108] 実施例 14 (化合物 14 の合成)

[化73]



[0109] 2-ベンゾイル-1-ナフトール (12.44 g、50 mmol)、水酸化ナトリウム (6.0 g、150 mmol) をN, N-ジメチルアセトアミド (DMA) (75 mL) に溶解し、室温で1時間攪拌した後、2-ブロモイソブチルアミド (24.9 g、150 mmol) を加え、さらに室温で5時間攪拌した。反応液に水酸化ナトリウム (18.0 g、450 mmol) を追加し、50℃に加熱して1時間反応させ、その後、水 (75 mL) を加え、さらに温度を上げて1時間加熱還流した。室温まで冷却し、酢酸エチルで抽出し、硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を溜去した後シリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、中間体C6 (11.62 g、収率94%) を得た。この中間体C6 (9.89 g、40 mmol)、尿素 (4.80 g、40 mmol) を酢酸 (20 mL) 中、加熱還流下5時間反応させた。100℃以下まで冷却した後に水 (80 mL) を加え、生成した粉末を濾取し、水で洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオキシ塩化リン (20 mL) に加えて、加熱還流下5時間反応させた。室温まで冷却した後、氷水200 mL中に添加し、生じた粉末を水洗し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体B12 (7.21 g、収率62%) を得た。

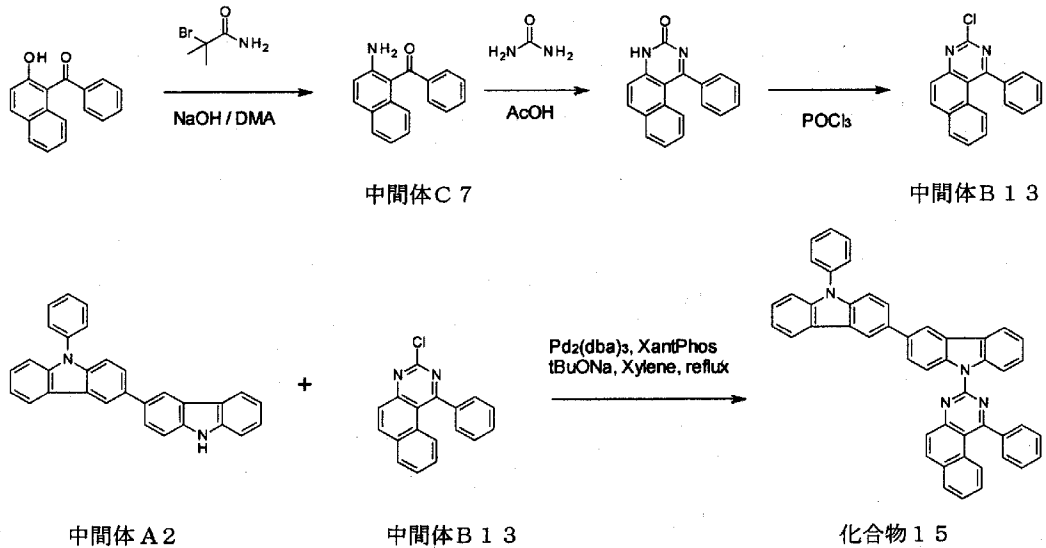
ビカルバゾリル中間体A1 (1.29 g、3.15 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B12 (0.87 g、3.00 mmol) を用いて実施例1と同様の操作を行い、化合物14 (1.78 g、収率90%) を得た。

HPLC：純度99.58%

FD-MS: calcd for $C_{48}H_{30}N_4 = 662$
 found $m/z = 662$ (M^+ , 100)

[0110] 実施例 15 (化合物 15 の合成)

[化74]



[0111] 2-ベンゾイル-1-ナフトールに代えて、1-ベンゾイル-2-ナフトールを用いること以外は実施例 14 と同様の操作を行い、中間体 C7 (10.75 g、収率 87%) を得た。この中間体 C7 (9.89 g、40 mmol) を用いて実施例 14 と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体 B13 (6.86 g、収率 59%) を得た。

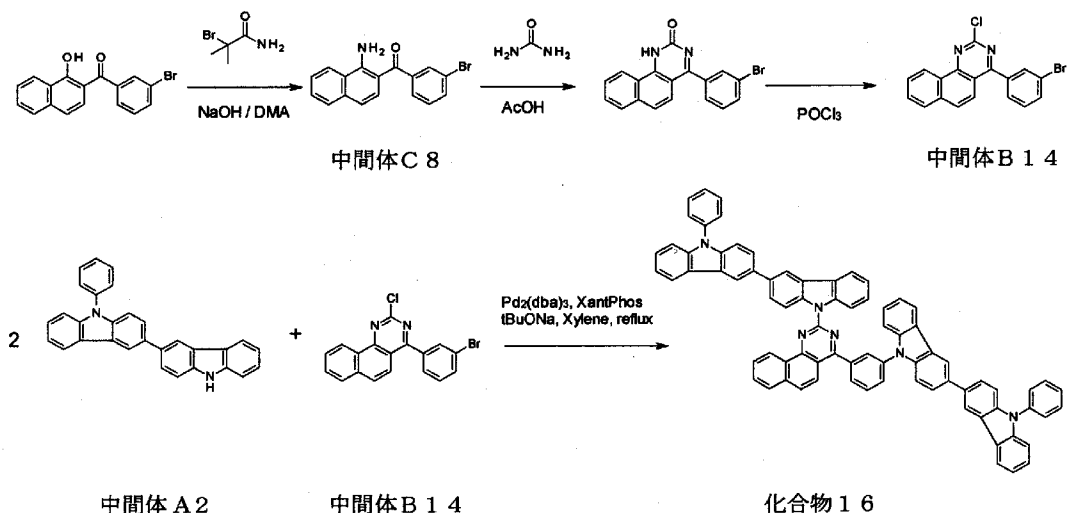
ピカルバゾリル中間体 A2 (1.29 g、3.15 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体 B13 (0.87 g、3.00 mmol) を用いて実施例 1 と同様の操作を行い、化合物 15 (1.82 g、収率 92%) を得た。

HPLC: 純度 99.49%

FD-MS: calcd for $C_{48}H_{30}N_4 = 662$
 found $m/z = 662$ (M^+ , 100)

[0112] 実施例 16 (化合物 16 の合成)

[化75]



[0113] 2-ベンゾイル-1-ナフトールに代えて、2-(3-ブロモベンゾイル)-1-ナフトール(16.36g、50mmol)を用いること以外は実施例14と同様の操作を行い、中間体C8(13.86g、収率85%)を得た。この中間体C8(13.05g、40mmol)を用いて実施例14と同様の操作を行い、ベンゾキナゾリン中間体B14(9.31g、収率63%)を得た。

ビカルバゾリル中間体A2(1.80g、4.40mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B14(0.78g、2.10mmol)を用いて実施例3と同様の操作を行い、化合物16(1.91g、収率85%)を得た。

HPLC: 純度99.78%

FD-MS: calcd for $C_{78}H_{48}N_6 = 1069$,
found $m/z = 1069$ (M+, 100)

[0114] [有機EL素子の作製]

実施例17

25mm×75mm×厚さ1.1mmのITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック株式会社製)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130nmの透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基

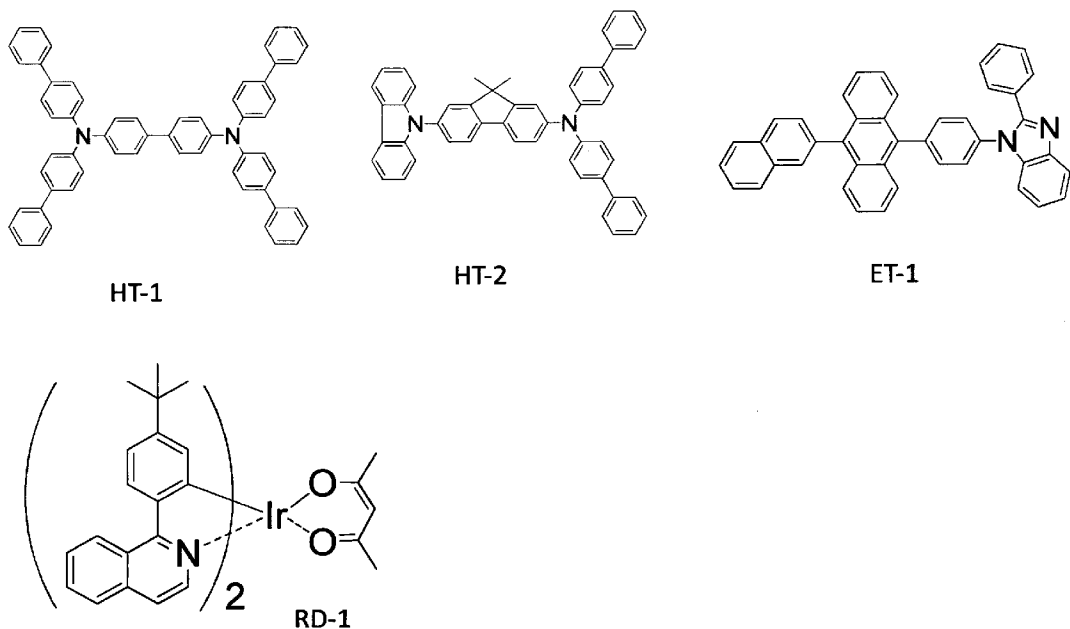
板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして第1正孔輸送材料として下記化合物HT-1を蒸着し、膜厚45nmの第1正孔輸送層を成膜した。第1正孔輸送層の成膜に続けて、第2正孔輸送材料として下記化合物HT-2を蒸着し、膜厚10nmの第2正孔輸送層を成膜した。

さらに、この第2正孔輸送層上に、ホスト材料として実施例4で得た化合物4と、燐光発光材料として下記化合物RD-1とを共蒸着し、膜厚40nmの燐光発光層を成膜した。発光層内における化合物RD-1の濃度は5.0質量%であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。尚、発光層の成膜にかかる全ての操作は窒素雰囲気グローブボックス中で実施した。

そして、この発光層成膜に続けて下記化合物ET-1を膜厚40nmで成膜した。この化合物ET-1膜は第1電子輸送層として機能する。

次に、LiFを電子注入性電極（陰極）として成膜速度0.1オングストローム/minで成膜し、膜厚を1nmとした。このLiF膜上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚80nmで形成した。全ての蒸着工程を完了させた後、窒素雰囲気グローブボックス中でザグリガラスによる封止を行い、有機EL素子を作製した。

[0115] [化76]



[0116] 実施例 1 8

実施例 1 7 において、発光層のホスト材料として化合物 4 を用いる代わりに、実施例 5 で得た化合物を用いて発光層を形成した以外は実施例 1 7 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

[0117] 実施例 1 9 ~ 2 7

実施例 1 7 において、発光層のホスト材料として化合物 4 を用いる代わりに、表 1 の化合物を用いて発光層を形成した以外は実施例 1 7 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

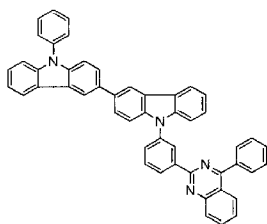
[0118] 比較例 1

実施例 1 7 において、発光層のホスト材料として化合物 4 を用いる代わりに、下記比較化合物 1 を用いて発光層を形成した以外は実施例 1 7 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

上記各例で作製した有機 EL 素子の外部量子効率の測定結果を表 1 に示す。

。

[化77]



比較化合物 1

[0119]

[表1]

	発光層のホスト 材料	発光効率 (EQE) (%)
実施例 17	化合物 4	15.9
実施例 18	化合物 5	16.1
実施例 19	化合物 1	15.5
実施例 20	化合物 2	16.4
実施例 21	化合物 6	16.0
実施例 22	化合物 8	16.2
実施例 23	化合物 9	15.9
実施例 24	化合物 10	16.0
実施例 25	化合物 11	15.6
実施例 26	化合物 14	16.1
実施例 27	化合物 15	16.3
比較例 1	比較化合物 1	14.0

[0120] 実施例 28

25 mm × 25 mm × 厚さ 1.1 mm の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック株式会社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行った後、UV オゾン洗浄を 5 分間行った。

正孔輸送材料として CLEVIOUS A14083 (HERAEUS 社製) を用い、30 nm の厚さで前記の ITO 基板の上にスピコート法により正孔輸送層を成膜した。成膜後、アセトンにより不要部分を除去し、次いで大気中 200 °C のホットプレートで 10 分間焼成し、下地基板を作製した。

ホスト材料として実施例 3 で得た化合物 3 を、ドーパント材料として上記化合物 RD-1 を用い、化合物 3 : 化合物 RD-1 が重量比で 95 : 5 となるような混合比で、1.6 質量% のトルエン溶液を作製した。このトルエン溶液を用い、前記下地基板上にスピコート法により、50 nm の膜厚にな

るように塗布積層した。塗布成膜後、不要部分をトルエンにて除去し、150°Cのホットプレート上で加熱乾燥し、発光層を成膜した塗布積層基板を作製した。尚、発光層の成膜にかかる全ての操作は窒素雰囲気グローブボックス中で実施した。

塗布積層基板を蒸着チャンバー中に搬送し、電子輸送材料として上記化合物ET-1を50nm蒸着し電子輸送層を成膜した。

さらに、フッ化リチウムを1nm、アルミニウムを80nm蒸着積層した。全ての蒸着工程を完了させた後、窒素雰囲気グローブボックス中でザグリガラスによる封止を行い、有機EL素子を製造した。

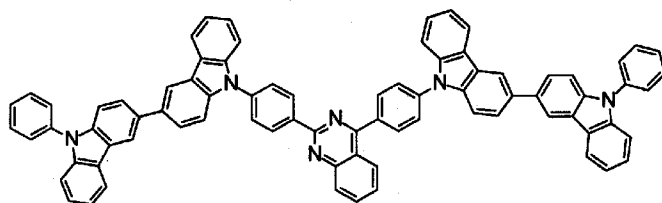
[0121] 実施例29～32

実施例28において、ホスト材料として化合物3を用いる代わりに、表2の化合物を用いて発光層を形成した以外は実施例28と同様にして有機EL素子を作製した。

[0122] ホスト材料として化合物3の代わりに、下記比較化合物2を用いたこと以外は、実施例28と同様の方法で有機EL素子を作製した。

上記各例で作製した有機EL素子の外部量子効率の測定結果を表2に示す。

[化78]



比較例化合物2

[0123]

[表2]

	発光層のホスト 材料	発光効率 (EQE) (%)
実施例 28	化合物 3	5.1
実施例 29	化合物 7	5.2
実施例 30	化合物 12	4.9
実施例 31	化合物 13	5.6
実施例 32	化合物 16	5.8
比較例 2	比較化合物 2	3.5

[0124] 本実施例の化合物は、キナゾリン構造をビスカルバゾールで置換した比較化合物に比べ、キャリアバランスが向上する。その結果、本実施例の化合物を発光層のホスト材として用いた有機EL素子では、発光効率が向上した。

[0125] 上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

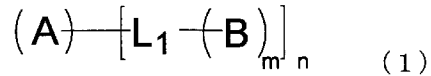
本願のパリ優先の基礎となる日本出願明細書の内容を全てここに援用する

。

請求の範囲

[請求項1] 下記式(1)で表される化合物。

[化79]



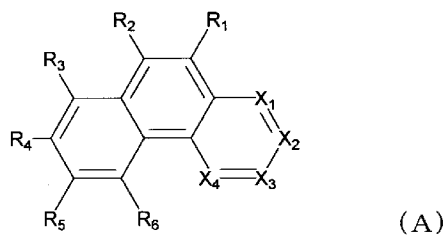
[式中、 L_1 は単結合又は連結基であり、 A は下記式(A)で表される基であり、 B は下記式(B)で表される基であり、 m は1～3の整数であり、 n は1～4の整数である。

m が2以上の場合、複数の B はそれぞれ同一でも異なってもよい。

n が2以上の場合、複数の L_1 はそれぞれ同一でも異なってもよく、複数の B はそれぞれ同一でも異なってもよい。

L_1 が単結合の場合、 A と B とが直接結合されることを示し、かつ、 m は1である。

[化80]

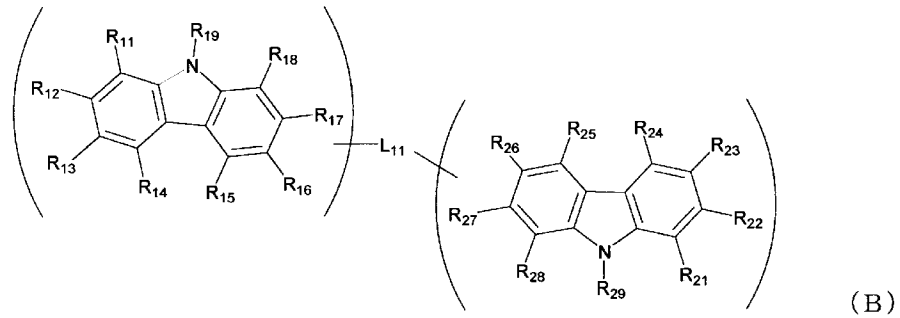


(式(A)中、 $X_1 \sim X_4$ はそれぞれ独立に、窒素原子(N)又はC Raであり、 $X_1 \sim X_4$ のうち2つは窒素原子である。

Ra及び $R_1 \sim R_6$ のn個は、それが置換する式(A)中の炭素原子と L_1 (又は L_1 が単結合の場合の B)とを直接結合させる単結合を表す。

Ra及び $R_1 \sim R_6$ のうち前記単結合ではないRa及び $R_1 \sim R_6$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。)

[化81]



(式 (B) 中、 L_{11} は単結合又は連結基である。

$R_{11} \sim R_{19}$ の 1 つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} (又は L_{11} が単結合の場合の A) とを直接結合させる単結合を表し、他の 1 つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} とを直接結合させる単結合を表す。

$R_{11} \sim R_{19}$ のうち前記単結合以外の $R_{11} \sim R_{19}$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。

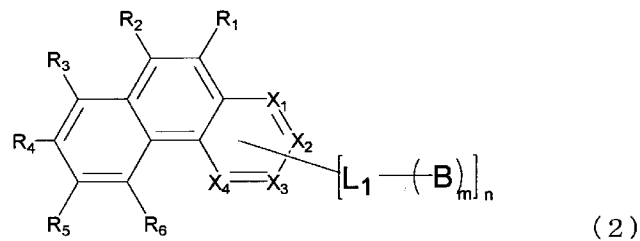
$R_{21} \sim R_{29}$ の 1 つは、それが置換する式 (B) 中の炭素原子と L_{11} とを直接結合させる単結合を表す。

$R_{21} \sim R_{29}$ のうち前記単結合以外の $R_{21} \sim R_{29}$ はそれぞれ独立に、水素原子又は置換基である。

L_{11} が単結合の場合、 $R_{11} \sim R_{19}$ の 1 つ、及び、 $R_{21} \sim R_{29}$ の 1 つは、それぞれが置換する式 (B) 中の炭素原子どうしを直接結合させる単結合を表す。))

[請求項2] 下記式 (2) で表される化合物である、請求項 1 に記載の化合物。

[化82]

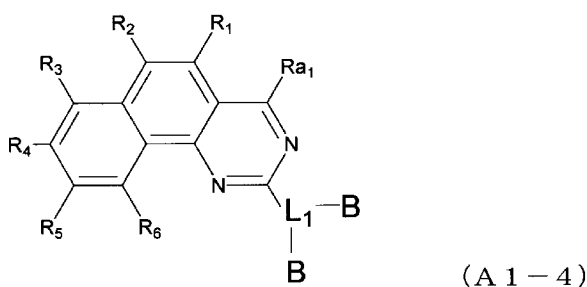


(式中、 $R_1 \sim R_6$ 、 $X_1 \sim X_4$ 、 L_1 、 B 、 m は、前記式 (1) と同様

(式中、 $R_1 \sim R_6$ 、 L_1 、及び B は、前記式(1)、及び(A1)と同様である。 R_{a1} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基である。)

[請求項6] 下記式(A1-4)で表される化合物である、請求項3又は4に記載の化合物。

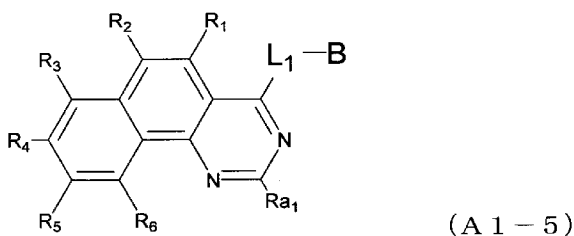
[化86]



(式中、 $R_1 \sim R_6$ 、 L_1 、及び B は、前記式(1)、及び(A1)と同様である。2つの B は同一でも異なってもよい。 R_{a1} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基である。)

[請求項7] 下記式(A1-5)で表される化合物である、請求項3又は4に記載の化合物。

[化87]

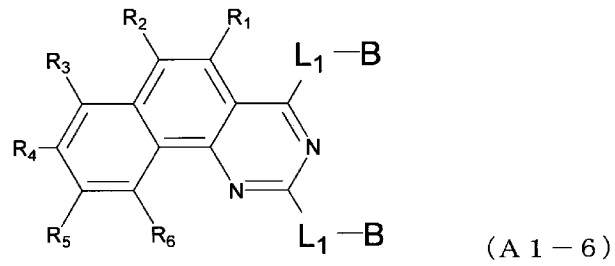


(式中、 $R_1 \sim R_6$ 、 L_1 、及び B は、前記式(1)、及び(A1)と同様である。 R_{a1} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基である。)

[請求項8] 下記式(A1-6)で表される化合物である、請求項3に記載の化

合物。

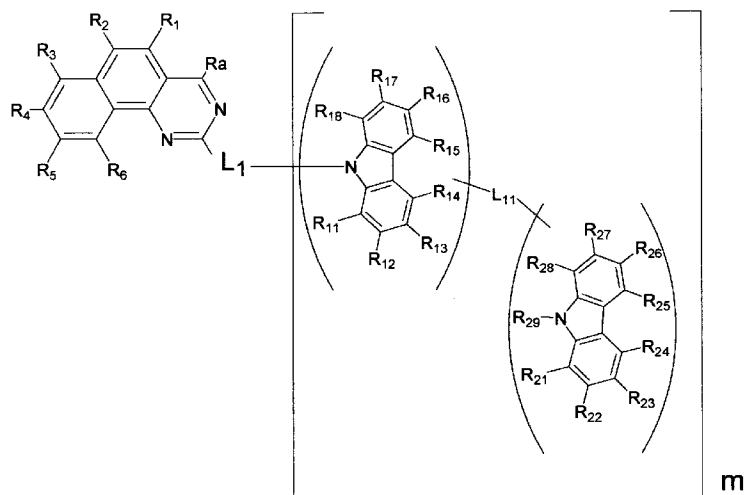
[化88]



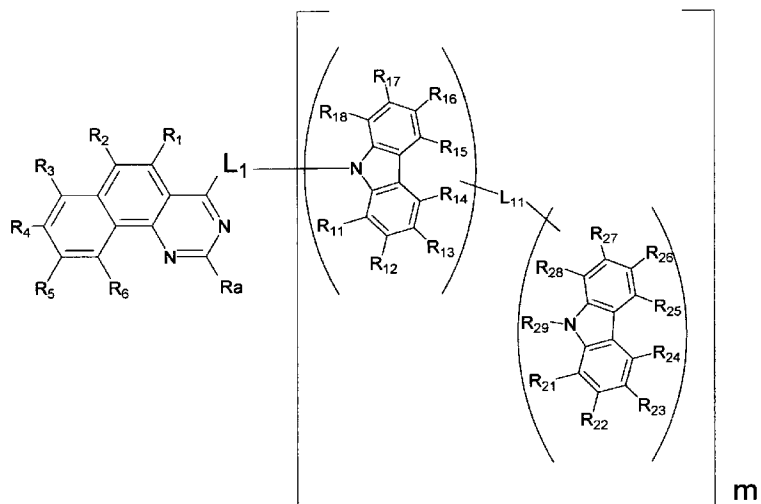
(式中、R₁~R₆、L₁、及びBは、前記式(1)、及び(A1)と同様である。2つのBは同一でも異なってもよい。)

[請求項9] 下記式(A1-7)又は(A1-8)で表される、請求項4に記載の化合物。

[化89]



(A1-7)

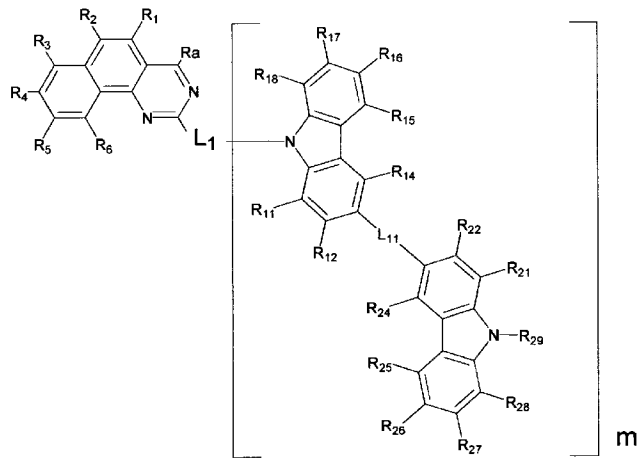


(A1-8)

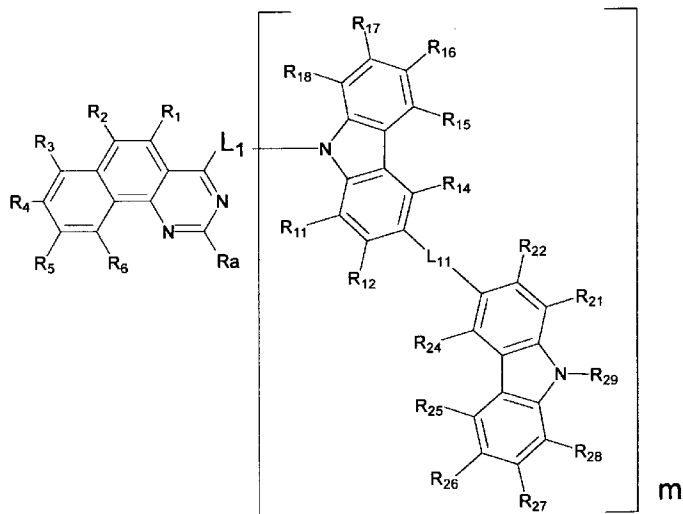
(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[請求項10] 下記式(A1-9)又は(A1-10)で表される、請求項9に記載の化合物。

[化90]



(A1-9)

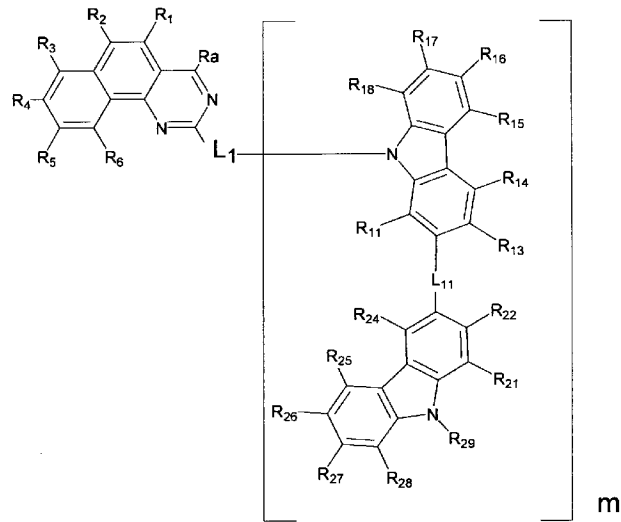


(A1-10)

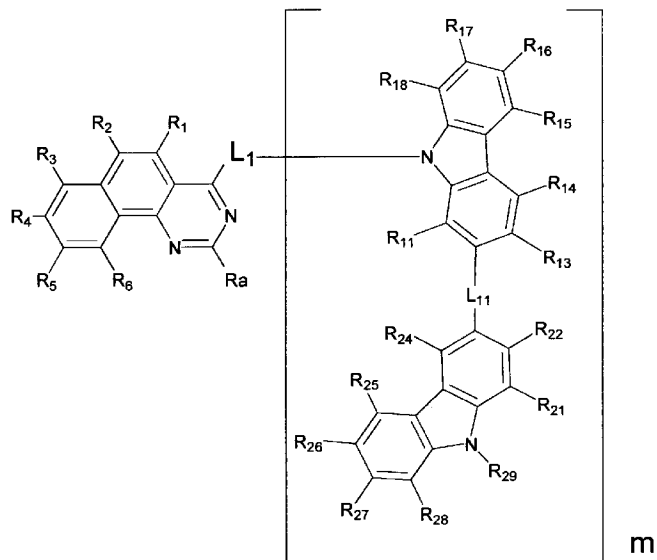
(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[請求項11] 下記式(A1-11)又は(A1-12)で表される、請求項9に記載の化合物。

[化91]



(A1-11)

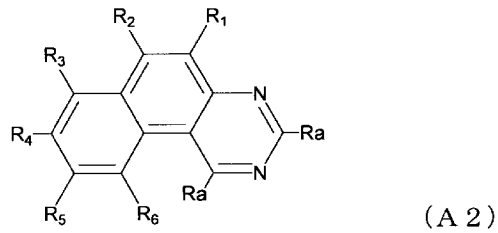


(A1-12)

(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

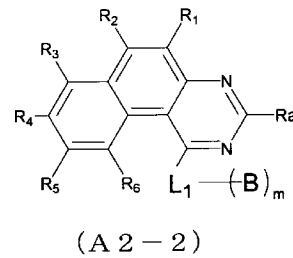
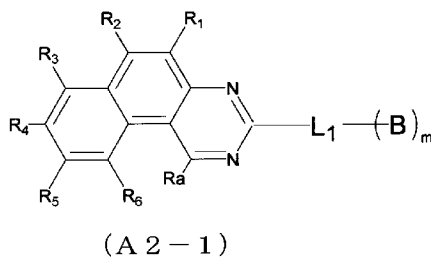
[請求項12] 前記Aが下記式(A2)で表される基である、請求項1又は2に記載の化合物。

[化92]

(式中、R a、R₁～R₆は、前記式(A)と同様である。)

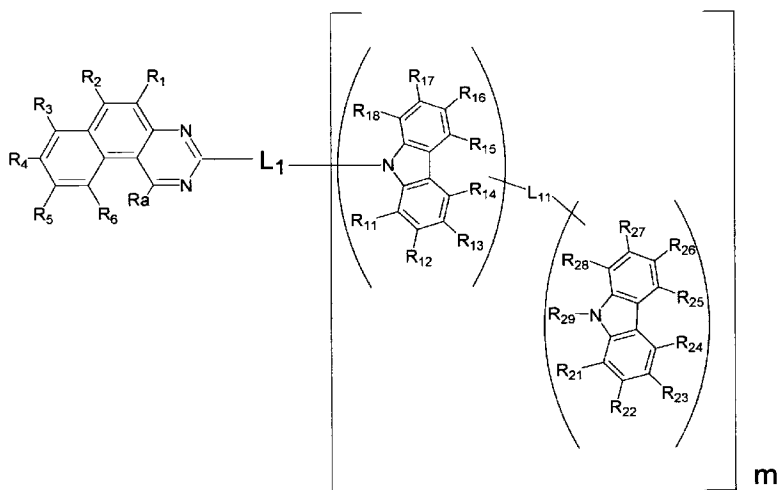
[請求項13] 下記式(A 2-1)又は(A 2-2)で表される、請求項12に記載の化合物。

[化93]

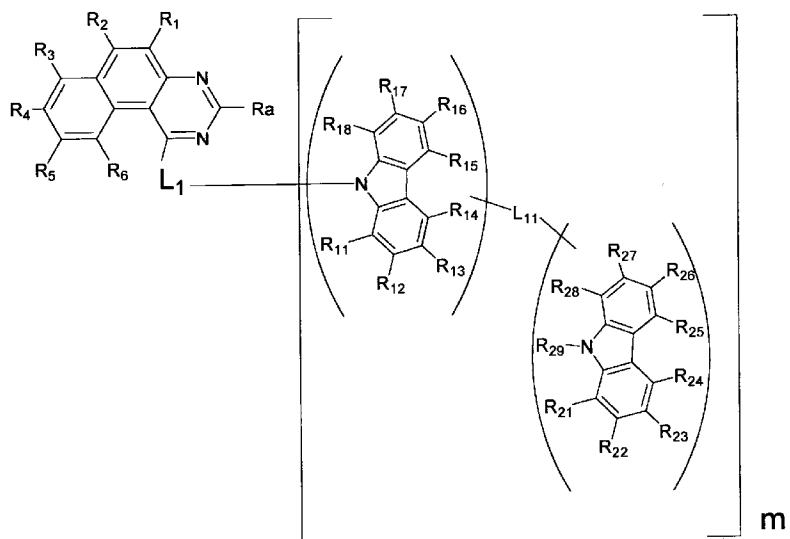
(式中、R a、R₁～R₆、L₁、B及びmは、前記式(1)、及び(A 2)と同様である。)

[請求項14] 下記式(A 2-3)又は(A 2-4)で表される、請求項13に記載の化合物。

[化94]



(A 2 - 3)

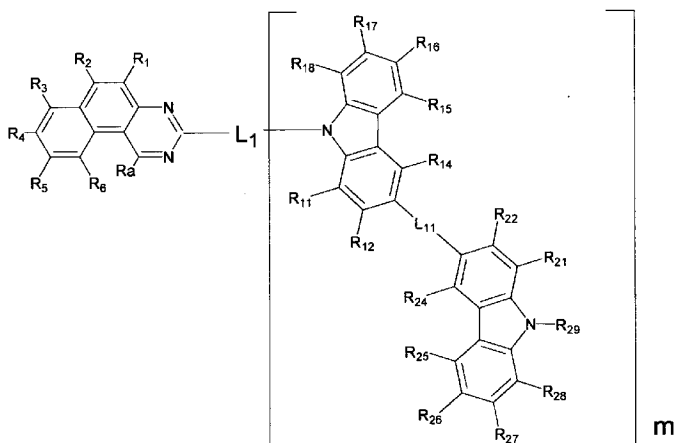


(A 2 - 4)

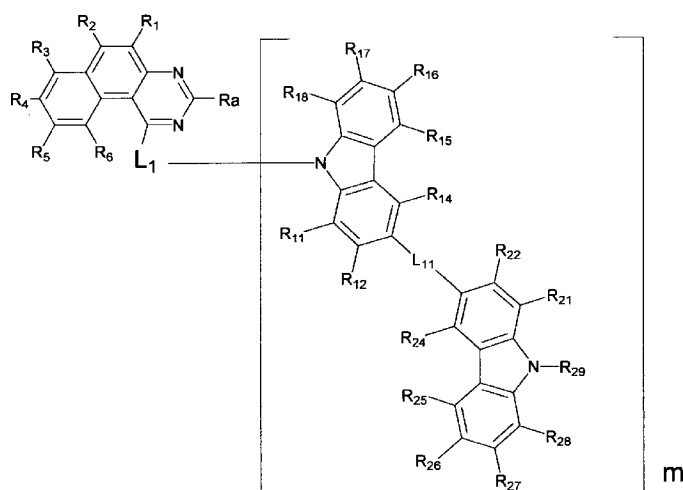
(式中、L₁、m、Ra、R₁~R₆、R₁₁~R₁₈、R₂₁~R₂₉、及びL₁₁は、前記式(1)と同様である。)

[請求項15] 下記式(A2-5)又は(A2-6)で表される、請求項14に記載の化合物。

[化95]



(A 2 - 5)

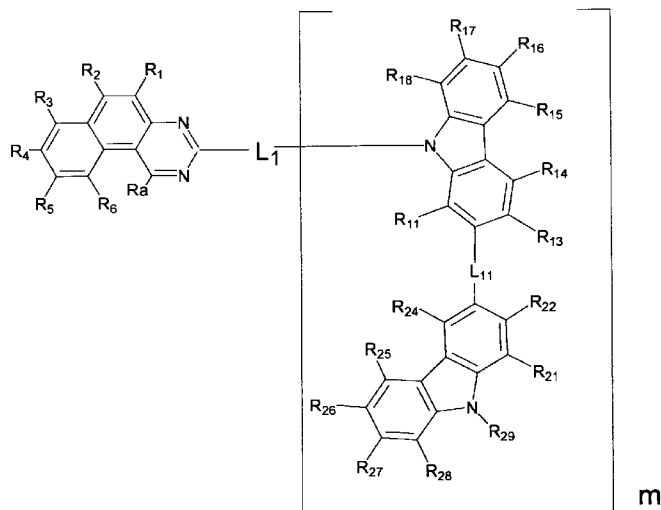


(A 2 - 6)

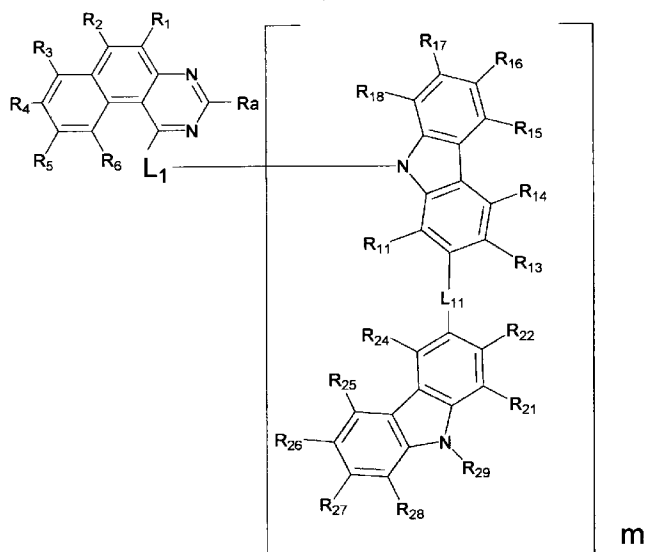
(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[請求項16] 下記式(A2-7)又は(A2-8)で表される、請求項14に記載の化合物。

[化96]



(A 2 - 7)

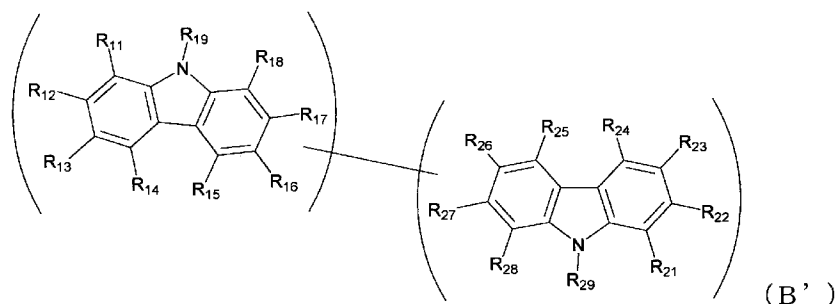


(A 2 - 8)

(式中、 L_1 、 m 、 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ 、及び L_{11} は、前記式(1)と同様である。)

[請求項17] 前記Bが下記式(B')で表される、請求項1~8、12、13のいずれかに記載の化合物。

[化97]



(式中、 $R_{11} \sim R_{19}$ 、 $R_{21} \sim R_{29}$ は、前記式(B)と同様である。

)

[請求項18] 前記 L_1 が、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基である、請求項1～17のいずれかに記載の化合物。

[請求項19] 前記 L_1 が、フェニレン基、ビフェニレン基、又は、ナフチレン基である、請求項1～18のいずれかに記載の化合物。

[請求項20] 前記 L_1 が、*m*-フェニレンである、請求項1～19のいずれかに記載の化合物。

[請求項21] 前記 R_a 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{11} \sim R_{19}$ 、及び $R_{21} \sim R_{29}$ の示す置換基が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ

基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換カルボニル基、アリール置換カルボニル基、カルボキシ基、ビニル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、並びにオキセタニル基からなる群から選択される基である、請求項1～20のいずれかに記載の化合物。

[請求項22]

前記置換基が、置換もしくは無置換のアリール基又は置換もしくは無置換のヘテロアリールであって、

前記アリール基はフェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9,9'-スピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、プレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダセニル基、as-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、及びジベンゾアントリル基からなる群より選ばれるアリール基であり、

前記ヘテロアリール基はピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリ

ル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、イソベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサントニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ベンゾフラノベンゾチオフェニル基、ベンゾチエノベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフェニル基からなる群より選ばれるヘテロアリール基である、請求項21に記載の化合物。

[請求項23]

前記R aの示す置換基が、置換もしくは無置換のアリール基であって、

前記アリール基はフェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9'-スピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダセニル基、as-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニ

ル基、ペリレニル基、コロニル基、及びジベンゾアントリル基からなる群より選ばれるアリール基である、請求項 1～4, 9～22 のいずれかに記載の化合物。

[請求項24] 陰極と陽極との間に発光層を含む 1 以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層の少なくとも 1 層が、請求項 1～23 のいずれかに記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

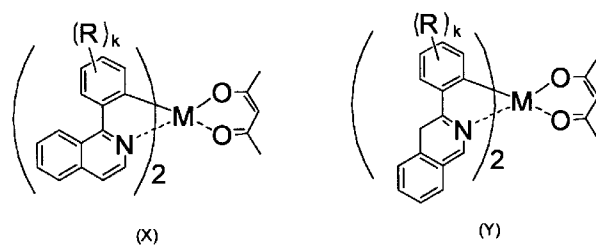
[請求項25] 前記発光層が前記化合物を含有する請求項 24 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項26] 前記発光層が燐光発光材料を含有する請求項 24 又は 25 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項27] 前記燐光発光材料が、イリジウム (I r)、オスミウム (O s) 及び白金 (P t) から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である請求項 26 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項28] 前記燐光発光材料が、下記式 (X) 又は (Y) で表される錯体である、請求項 27 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

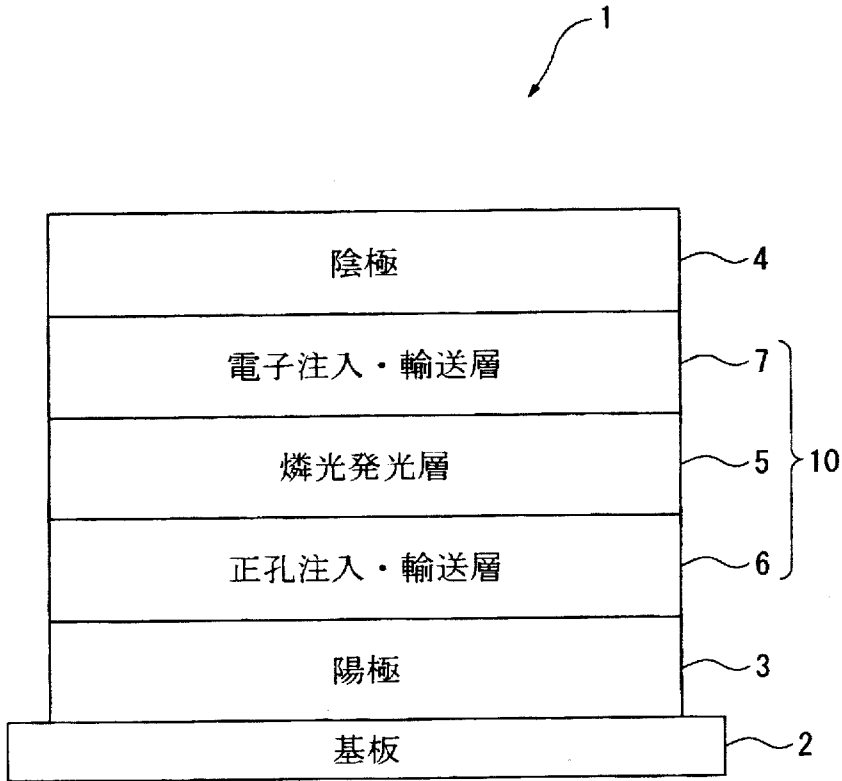
[化98]



(式 (X) 及び (Y) において、R は、水素原子又は置換基であり、k は 1～4 の整数である。M は I r、O s、又は P t である。)

[請求項29] 請求項 24～28 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備える電子機器。

[圖1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/003885

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C07D403/14(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C07D403/14, C09K11/06, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2013/062075 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 02 May 2013 (02.05.2013), claims; paragraphs [0152], [0195] & TW 201326120 A	1-29
A	US 2012/0211736 A1 (CHEIL INDUSTRIES, INC.), 23 August 2012 (23.08.2012), claims; page 6, [CF17]; page 32, [CF N-49] & CN 102597158 A & EP 2497811 A2 & JP 2013-510141 A & KR 10-2011-0048840 A & WO 2011/055934 A2	1-29

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 06 October, 2014 (06.10.14)	Date of mailing of the international search report 21 October, 2014 (21.10.14)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/003885

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2012/121561 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.), 13 September 2012 (13.09.2012), claims & CN 103502243 A & JP 2014-513064 A & KR 10-2012-0102374 A & US 2014/0107338 A1	1-29
A	KR 10-2012-0117693 A (SFC CO., LTD.), 24 October 2012 (24.10.2012), claims (Family: none)	1-29

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. C07D403/14(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. C07D403/14, C09K11/06, H01L51/50		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2014年 日本国実用新案登録公報 1996-2014年 日本国登録実用新案公報 1994-2014年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） REGISTRY (STN) Caplus (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2013/062075 A1（出光興産株式会社）2013.05.02, 請求の範囲、段落[0152]、[0195] & TW 201326120 A	1-29
A	US 2012/0211736 A1（CHEIL INDUSTRIES, INC.,）2012.08.23, 請求の範囲、第6頁[CF17]、第32頁[CF N-49] & CN 102597158 A & EP 2497811 A2 & JP 2013-510141 A & KR 10-2011-0048840 A & WO 2011/055934 A2	1-29
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 06.10.2014	国際調査報告の発送日 21.10.2014	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 江間 正起 電話番号 03-3581-1101 内線 3492	4 P 4048

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2012/121561 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 2012. 09. 13, 請求の範囲 & CN 103502243 A & JP 2014-513064 A & KR 10-2012-0102374 A & US 2014/0107338 A1	1-29
A	KR 10-2012-0117693 A (SFC CO LTD.) 2012. 10. 24, 請求の範囲 (ファミリーなし)	1-29