

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2008年12月11日 (11.12.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/149691 A1(51) 国際特許分類:
C09K 11/06 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)

鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 宮崎 浩 (MIYAZAKI, Hiroshi) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜 4 6 番地の 8 0 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/059523

(22) 国際出願日: 2008年5月23日 (23.05.2008)

(74) 代理人: 成瀬 勝夫, 外 (NARUSE, Katsuo et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋 2 丁目 1 1 番 5 号 T K K 西新橋ビル 5 階 Tokyo (JP).

(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2007-142994 2007年5月30日 (30.05.2007) 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 新日鐵化学株式会社 (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目 1 4 番 1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 古森 正樹 (KOMORI, Masaki) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜 4 6 番地の 8 0 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 山本 敏浩 (YAMAMOTO, Toshihiro) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜 4 6 番地の 8 0 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 甲斐 孝弘 (KAI, Takahiro) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜 4 6 番地の 8 0 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 野口 勝秀 (NOGUCHI, Katsuhide) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜 4 6 番地の 8 0 新日

(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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(54) Title: COMPOUND FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(54) 発明の名称: 有機電界発光素子用化合物及び有機電界発光素子

(57) Abstract: Disclosed is a compound for organic electroluminescent device (organic EL device) having a simple structure, which enables to improve the luminous efficiency of the device, while securing sufficient driving stability thereof. Also disclosed is an organic EL device using such a compound for organic electroluminescent device. Specifically disclosed is a compound for organic EL device having two indolocarbazole skeletons each bonded with an aromatic group or two similar skeletons. Also specifically disclosed is an organic electroluminescent device comprising a light-emitting layer between an anode and a cathode arranged on a substrate, wherein the light-emitting layer contains a phosphorescent dopant and the compound for organic EL device as a host material.

(57) 要約: 素子の発光効率を改善し、駆動安定性を十分に確保し、かつ簡略な構成をもつ有機電界発光素子 (有機 EL 素子) 用化合物及びこれを使用した有機 EL 素子を提供する。この有機 EL 素子用化合物は、芳香族基に結合するインドロカルバゾール骨格又はそれに類似する骨格を 2 つ有する化合物である。この有機 EL 素子は、基板上に積層された陽極と陰極の間に、発光層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、燐光発光性ドーパントと上記 EL 素子用化合物をホスト材料として含有する。

WO 2008/149691 A1

明 細 書

有機電界発光素子用化合物及び有機電界発光素子

技術分野

[0001] 本発明は新規な有機電界発光素子用化合物及び有機電界発光素子(以下、有機EL素子という)に関するものであり、詳しくは、燐光発光ドーパントと特定の構造を有するホスト化合物を併用することにより、高輝度を示す有機EL素子に関するものである。

背景技術

[0002] 一般に、有機EL素子は、その最も簡単な構造としては発光層及び該層を挟んだ一対の対向電極から構成されている。すなわち、有機EL素子では、両電極間に電界が印加されると、陰極から電子が注入され、陽極から正孔が注入され、これらが発光層において再結合エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーとして光を放出する現象を利用する。

[0003] 近年、有機薄膜を用いたEL素子の開発が行われるようになった。特に発光効率を高めるため、電極からキャリアー注入の効率向上を目的として電極の種類の最適化を行い、芳香族ジアミンからなる正孔輸送層と8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体(以下、Alq3という)からなる発光層とを電極間に薄膜として設けた素子の開発により、従来のアントラセン等の単結晶を用いた素子と比較して大幅な発光効率の改善がなされたことから、自発光・高速応答性といった特徴を持つ高性能フラットパネルへの実用を目指して進められてきた。

[0004] また、素子の発光効率を上げる試みとして、蛍光ではなく燐光を用いることも検討されている。上記の芳香族ジアミンからなる正孔輸送層とAlq3からなる発光層とを設けた素子をはじめとした多くの素子が蛍光発光を利用したものであったが、燐光発光を用いる、すなわち、三重項励起状態からの発光を利用すれば、従来の蛍光(一重項)を用いた素子と比べて、3倍程度の効率向上が期待される。この目的のためにクマリン誘導体やベンゾフェノン誘導体を発光層とすることが検討されてきたが、極めて低い輝度しか得られなかった。その後、三重項状態を利用する試みとして、ユーロピウ

ム錯体を用いることが検討されてきたが、これも高効率の発光には至らなかった。燐光発光ドーパントとしては、特許文献1に挙げられるような提案が多数なされている。

[0005] 特許文献1:特表2003-515897号公報

特許文献2:特開2001-313178号公報

特許文献3:特開2002-305083号公報

特許文献4:特開2002-352957号公報

特許文献5:特開平11-162650号公報

特許文献6:特開平11-176578号公報

特許文献7:特開2003-142264号公報

[0006] 有機EL素子開発において発光層に用いるホスト材料として提案されているのは、特許文献2で紹介されているカルバゾール化合物のCBPである。緑色燐光発光材料のトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体(以下、Ir(ppy)₃という)のホスト材としてCBPを用いると、CBPは正孔を流し易く電子を流しにくい特性上、電荷注入バランスが崩れ、過剰の正孔は電子輸送側に流出し、結果としてIr(ppy)₃からの発光効率が低下する。

[0007] 上記の解決手段として、例えば特許文献3のように、発光層と電子輸送層の間に正孔阻止層を設ける手段がある。この正孔阻止層により正孔を発光層中に効率よく蓄積することによって、発光層中での電子との再結合確率を向上させ、発光の高効率化を達成することができる。現状一般的に用いられている正孔阻止材料として、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(以下、BCPという)及びp-フェニルフェノラート-ビス(2-メチル-8-キノリノラート-N1,O8)アルミニウム(以下、BALqという)が挙げられる。これにより電子輸送層で電子と正孔の再結合が起こることを防止できるが、BCPは室温でも結晶化し易く材料としての信頼性に欠けるため、素子寿命が極端に短い。また、BALqはTgが約100℃と比較的良好な素子寿命結果が報告されているが、正孔阻止能力が十分でなく、Ir(ppy)₃からの発光効率は低下する。

[0008] 一方、特許文献4で紹介されている3-フェニル-4-(1'-ナフチル)-5-フェニル-1,2,4-トリアゾール(以下、TAZという)も燐光有機EL素子のホスト材として提案されているが、電子を流しやすく正孔を流しにくい特性上、発光領域が正孔輸送層側となる。従

って、正孔輸送層の材料によってはIr(ppy)₃との相性問題により、Ir(ppy)₃からの発光効率が低下することも考えられる。例えば、正孔輸送層として高性能、高信頼性、高寿命の点から最も良く使用されている4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニル(以下、NPBという)は、Ir(ppy)₃との相性が悪く、Ir(ppy)₃からNPBにエネルギー遷移が起き、発光効率が低下するという問題がある。

また、特許文献7では、適度な電子輸送能力を有する上記BALqを燐光有機EL素子のホスト材料として用いることが提案されている。本文献によれば、層構成を複雑にすることなく長寿命な燐光有機EL素子の実現できるとされているが、実用上十分なものとはいえない。

[0009] また、特許文献5及び6でインドロカルバゾール化合物の開示がなされているが、本発明の化合物に関しては、開示されていない。また、特許文献5及び6で開示されているインドロカルバゾール化合物は、正孔輸送材料としての使用が推奨されており、化合物の安定性も謳われているが、燐光ホスト材料としての使用を教えるものはない。

発明の開示

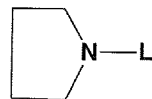
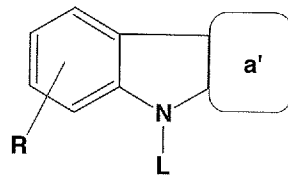
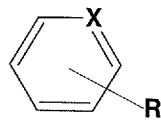
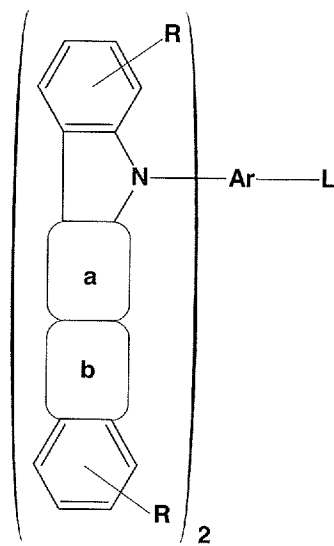
発明が解決しようとする課題

[0010] 有機EL素子をフラットパネル・ディスプレイ等の表示素子に応用するためには、素子の発光効率を改善すると同時に駆動時の安定性を十分に確保する必要がある。本発明は、上記現状に鑑み、高効率かつ高い駆動安定性を有した実用上有用な有機EL素子及びそれに適する化合物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、鋭意検討した結果、特定のインドロカルバゾール骨格又はそれに類似する骨格を有する化合物を有機EL素子に使用することで、上記課題を解決することができることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0012] 本発明の有機電界発光素子用化合物は、下記一般式(I)で表される。



[0013] ここで、

環aは、2つの隣接環と縮合する式(a1)又は(a2)で表される芳香環又は複素環を示し、環a'は、3つの隣接環と縮合する式(a1)で表される芳香環又は複素環を示し、Xは、CH又はNを示す。環bは、2つの隣接環と縮合する式(b1)で表される複素環を示す。

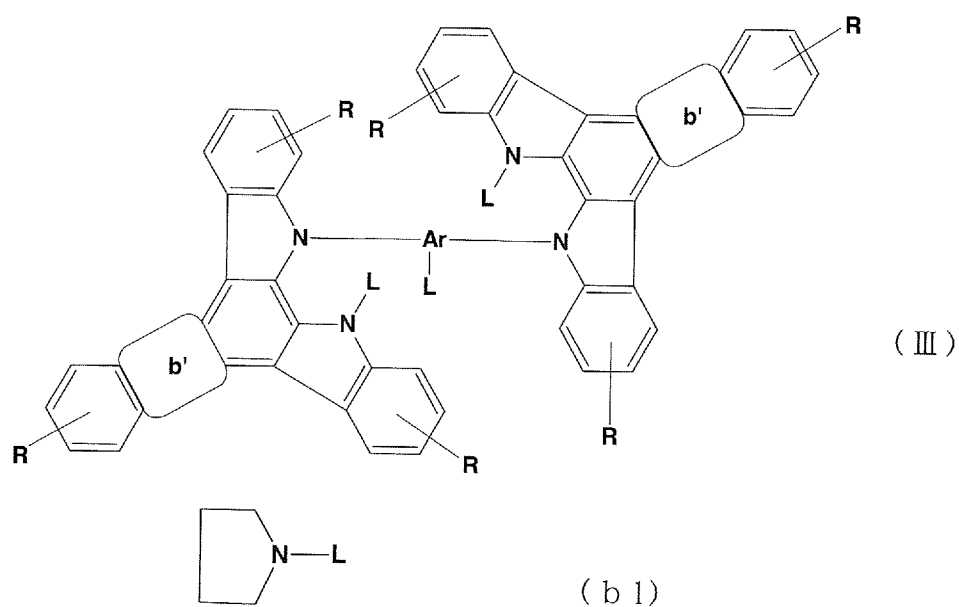
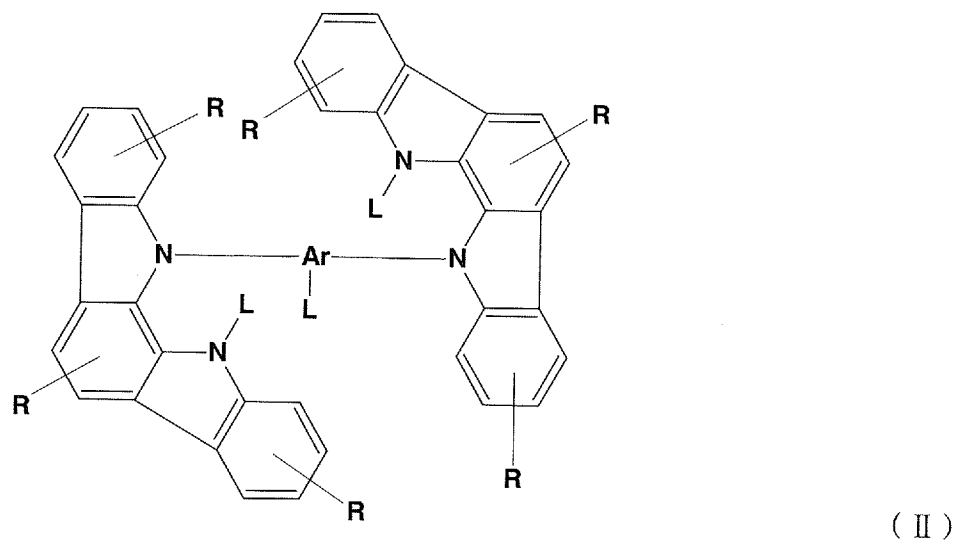
Arは芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基からなる3価の基を示す。

Lは独立に、置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示し、少なくとも一つは縮環構造を有する。

Rは独立に、水素、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジアラルキルアミノ基、アミノ基、ニトロ基

、アシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、アルコキシル基、アルキルスルホニル基、ハロアルキル基、水酸基、アミド基、置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示す。

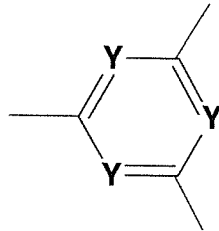
[0014] 一般式(I)で表される有機電界発光素子用化合物には、一般式(II)又は(III)で表される化合物がある。



一般式(II)及び(III)において、
Ar、L及びRは、一般式(I)のAr、L及びRと同じ意味を有する。

環b'は独立に、2つの隣接環と縮合する式(b1)で表される複素環を示す。

[0015] 式(II)又は式(III)において、Arが下記式(IV)で表される3価の基であることが好ましい。



(IV)

ここで、

Yは独立にCH又は窒素(N)を示し、少なくとも一つはNである。

[0016] また、本発明は、基板上に積層された陽極と陰極の間に、発光層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、燐光発光性ドーパントと上記の有機電界発光素子用化合物をホスト材料として含有することを特徴とする有機電界発光素子に関する。

[0017] 上記有機電界発光素子は、陽極と発光層の間に正孔注入輸送層を有し、陰極と発光層の間に電子注入輸送層を有してなることが好ましい。また、発光層と電子注入輸送層の間に正孔阻止層を有してなることが好ましい。

[0018] 以下、本発明の実施の形態を詳細に説明する。

[0019] 本発明の有機電界発光素子用化合物は、前記一般式(I)で表される。一般式(I)で表される化合物の好ましい例として一般式(II)及び(III)で表される化合物がある。一般式(II)及び(III)において、Arが一般式(IV)で表される3価の基であることが好ましい。

[0020] 一般式(I)において、環aは、2つの隣接環と縮合する式(a1)又は(a2)で表される芳香環又は複素環を示し、環a'は、3つの隣接環と縮合する式(a1)で表される芳香環又は複素環を示し、Xは、CH又はNを示す。環bは、2つの隣接環と縮合する式(b1)で表される複素環を示す。これらの環の好ましい例は、一般式(II)及び一般式(III)から理解される。Arは芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基からなる3価の基を

示す。なお、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基からなる3価の基とは、少なくとも一つの結合が芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基にあればよく、他の結合は芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を連結する基又は原子にあってもよい。Arの好ましい例は、ベンゼン環又はヘテロ原子を含む芳香族複素環であり、より好ましくは一般式(IV)に示される。

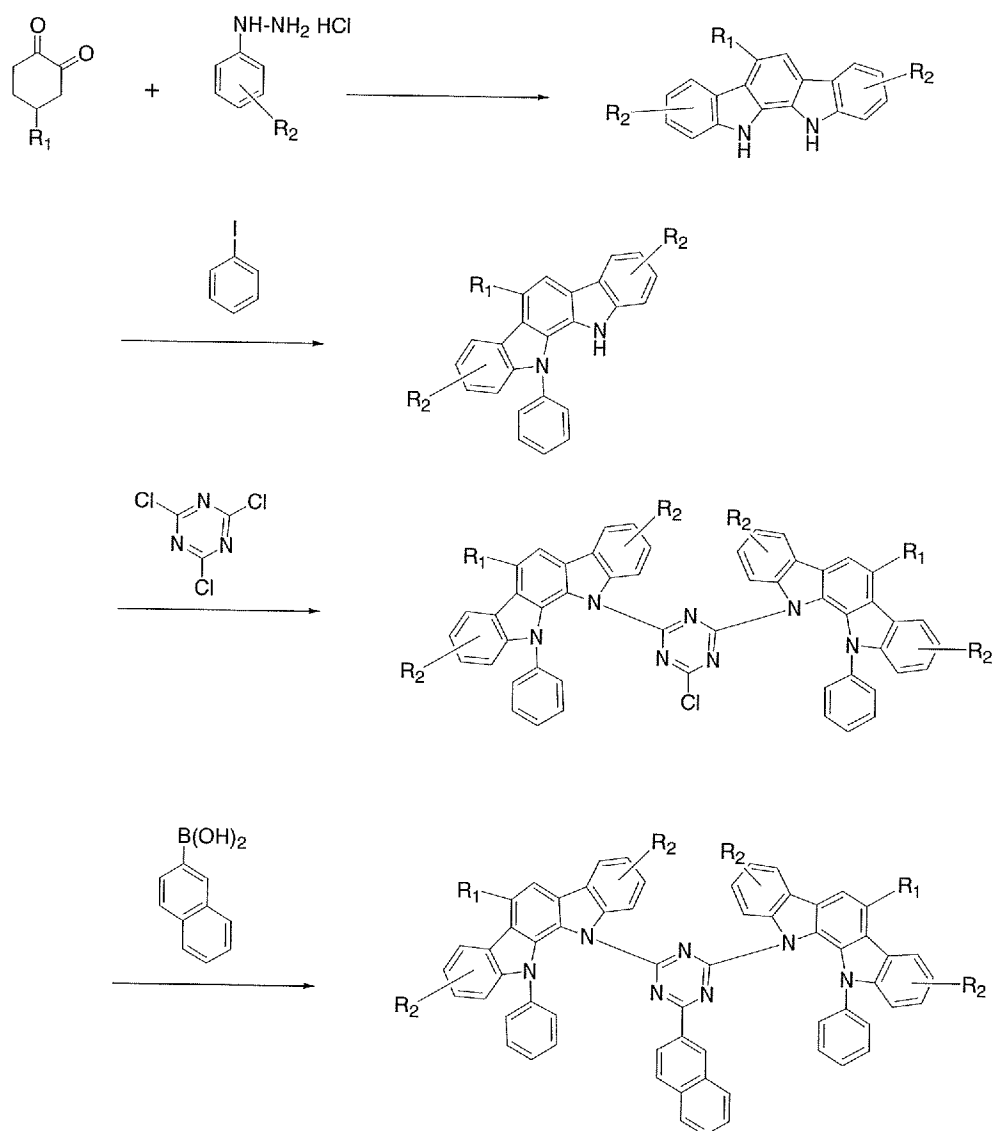
[0021] Lは独立に、置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示し、少なくとも一つは縮環構造を有する。縮環構造としては、芳香族環が2～3縮合した芳香族炭化水素環又は芳香族複素環がある。芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基が置換基を有する場合、好ましい置換基としては、下記Rで説明するような基が挙げられる。

[0022] Rは独立に、水素、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジアラルキルアミノ基、アミノ基、ニトロ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、アルコキシル基、アルキルスルホニル基、ハロアルキル基、水酸基、アミド基、置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示す。好ましいRは水素である。なお、アルキル基、アルコキシル基、アルキルスルホニル基、ハロアルキル基、アルコキシカルボニル基である場合、炭素数は1～6であることが好ましく、アルケニル基、アルキニル基である場合、炭素数は2～6であることが好ましい。アシル基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジアラルキルアミノ基である場合、炭素数は2～16であることが好ましい。

[0023] 次に説明する製造方法を採用する場合、Arに対して対象の位置にある環又は置換基は相互に同一であることが有利である。例えば、一般式(I)における各2つの環a及び環bはそれぞれ同一であることが有利である。同様に、一般式(II)～(III)におけるArに対して対象の位置にある各3つのR及び各2つのLについても同一であることが有利である。

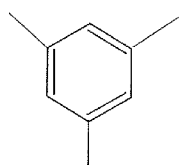
[0024] 一般式(I)～(III)で表される化合物は公知の方法で容易に製造することが出来る。例えば、一般式(I)で表される化合物は、Tetrahedron, 1991, vol.47, No.37, p7739-7750に示される合成例を参考にして製造することが出来る。

[0025]

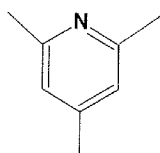


[0026] 一般式(I)～(III)中のArは、Lが置換した芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基からなる3価の基であり、好ましくは以下に示すAr-1～Ar-20で表される基が挙げられる。ここで、1つの結合はLと結合し、2つの結合は2つの環構成窒素原子と結合する。

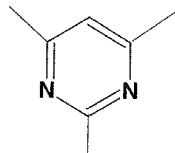
[0027]



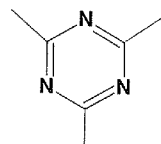
A r - 1



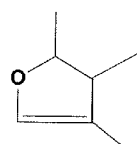
A r - 2



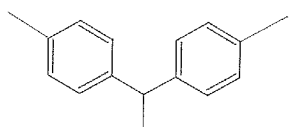
A r - 3



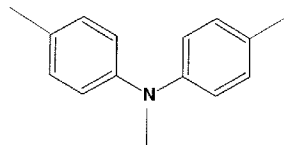
A r - 4



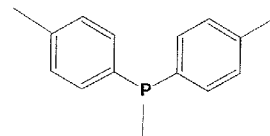
A r - 5



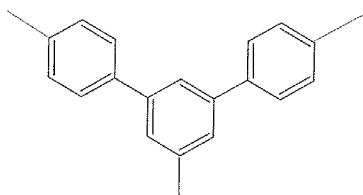
A r - 6



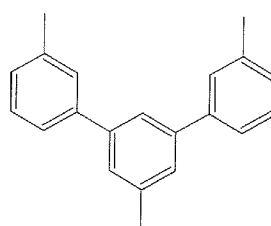
A r - 7



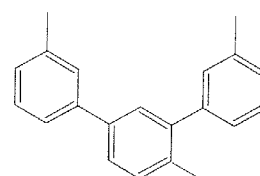
A r - 8



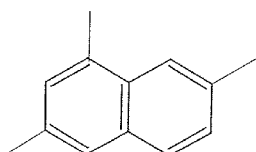
A r - 9



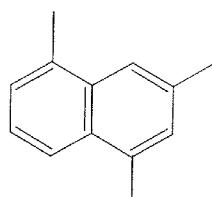
A r - 1 0



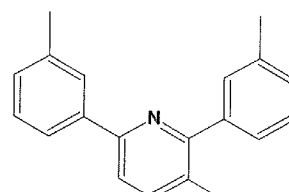
A r - 1 1



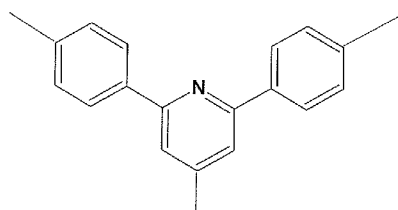
A r - 1 2



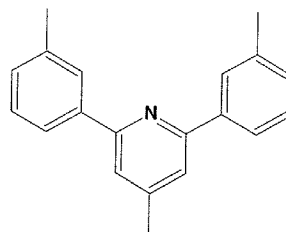
A r - 1 3



A r - 1 4

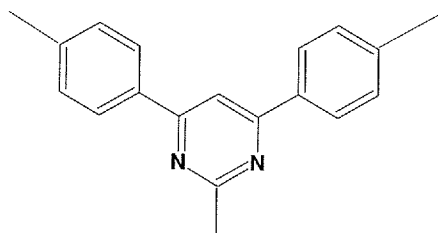


A r - 1 5

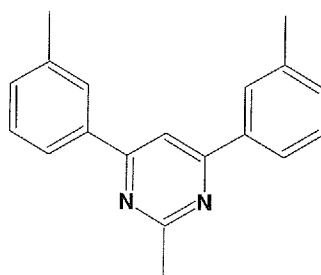


A r - 1 6

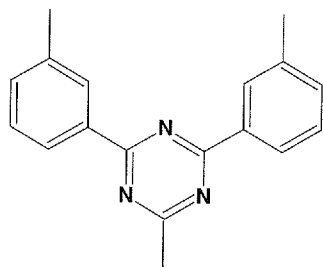
[0028]



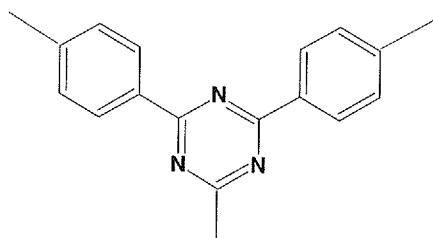
A r - 1 7



A r - 1 8



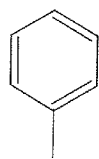
A r - 1 9



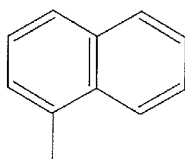
A r - 2 0

[0029] また、置換基Lは、置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示し、縮環構造であることが好ましい。好ましい例として下記に示すL-1～L-15が挙げられる。より好ましい例として下記に示すL-2～L-15が挙げられる。

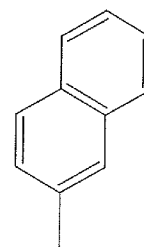
[0030]



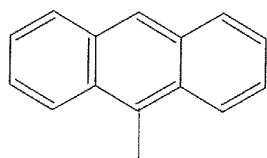
L - 1



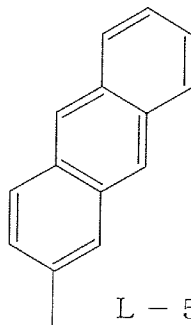
L - 2



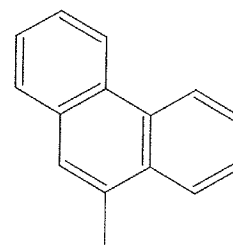
L - 3



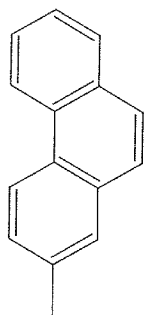
L - 4



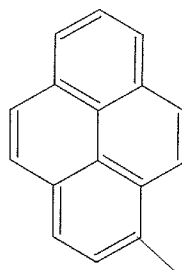
L - 5



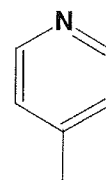
L - 6



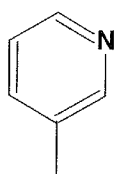
L - 7



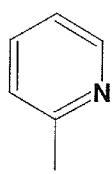
L - 8



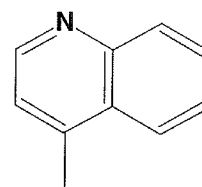
L - 9



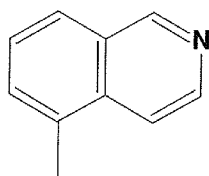
L - 1 0



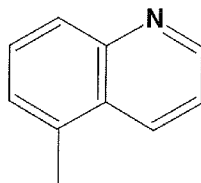
L - 1 1



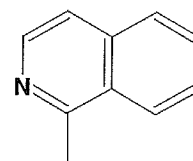
L - 1 2



L - 1 3



L - 1 4

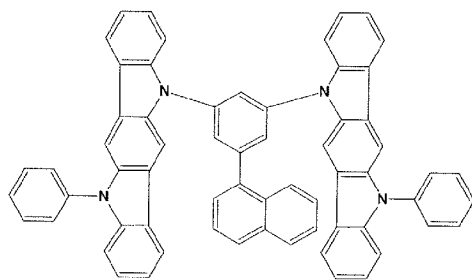


L - 1 5

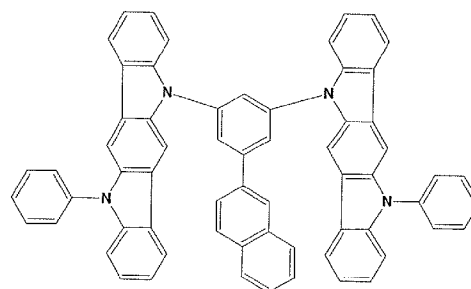
[0031] 前記一般式(I)～(III)で表わされる化合物の好ましい具体例を以下に示すが、これ

らに限定するものではない。

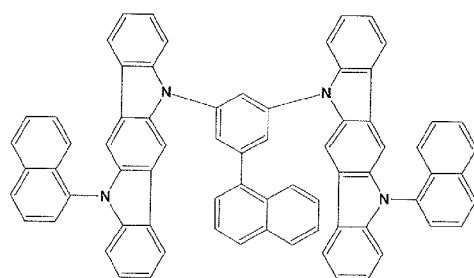
[0032]



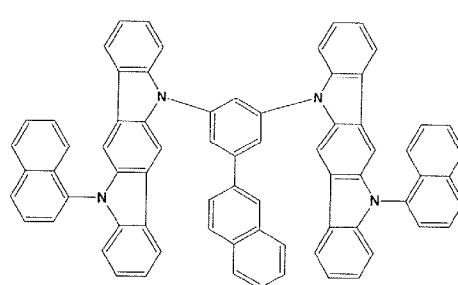
1



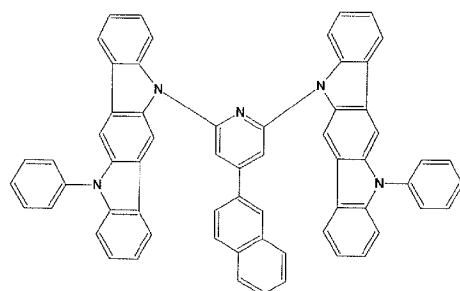
2



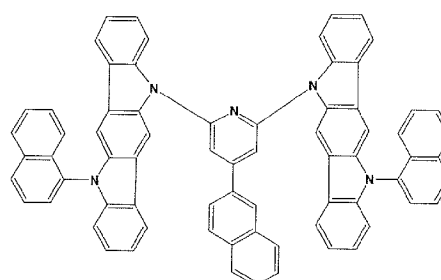
3



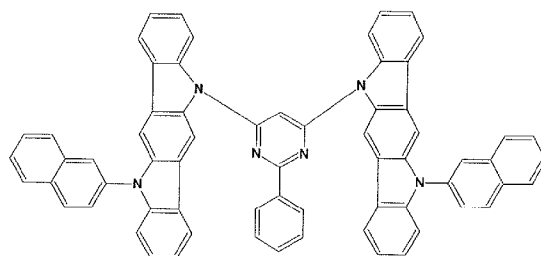
4



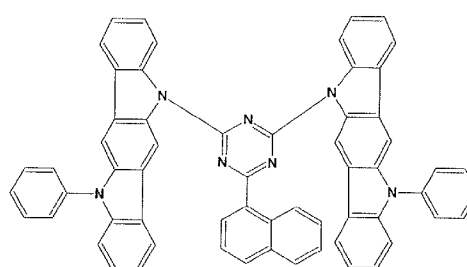
5



6

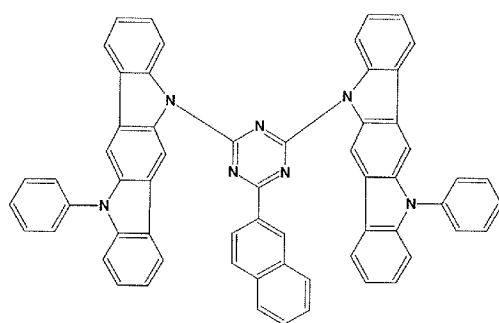


7

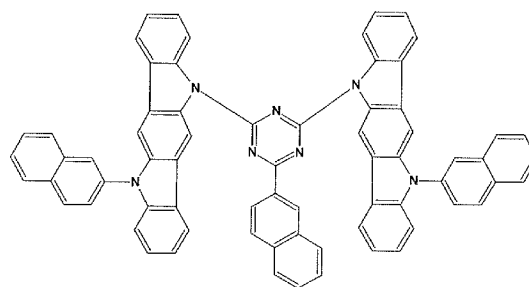


8

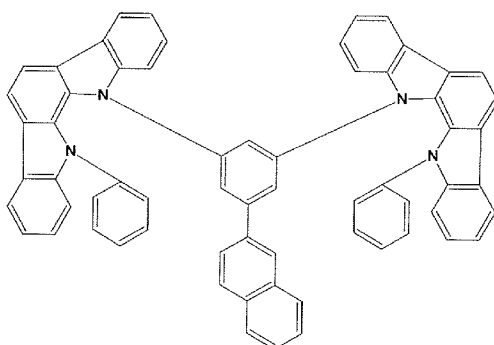
[0033]



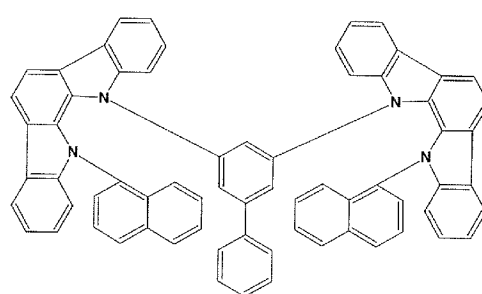
9



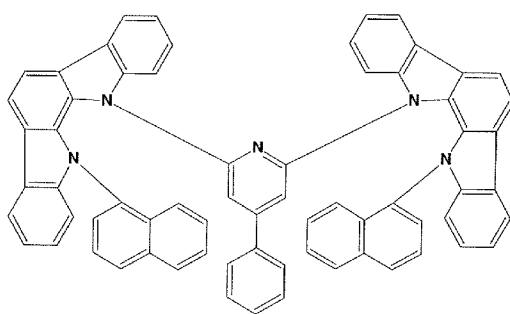
10



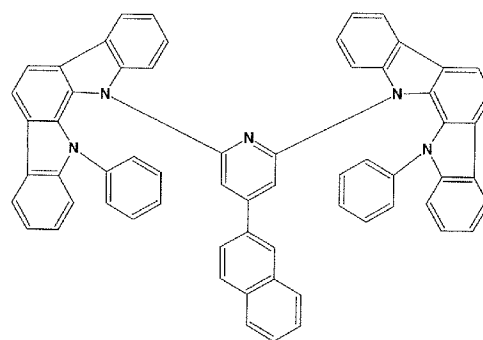
11



12

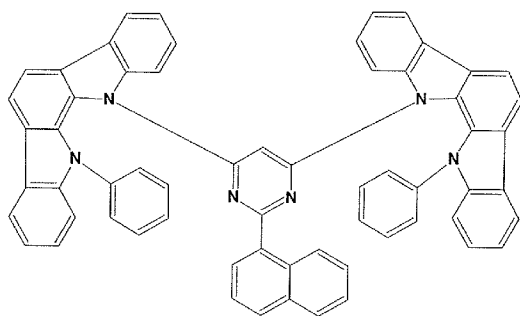


13

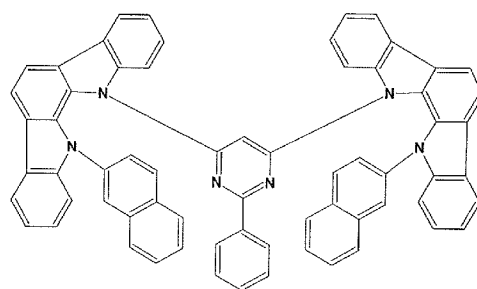


14

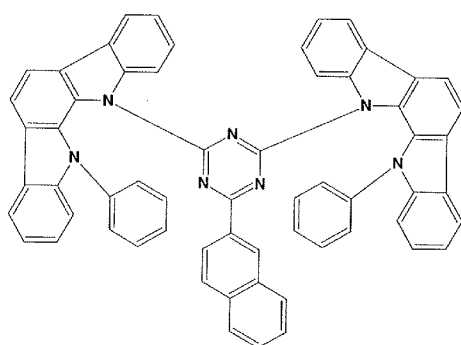
[0034]



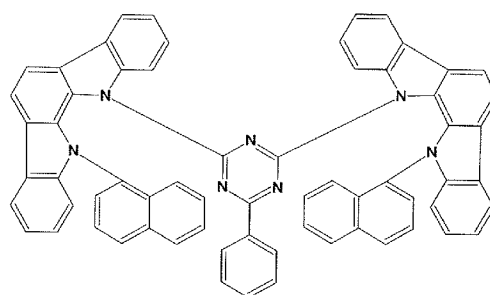
1 5



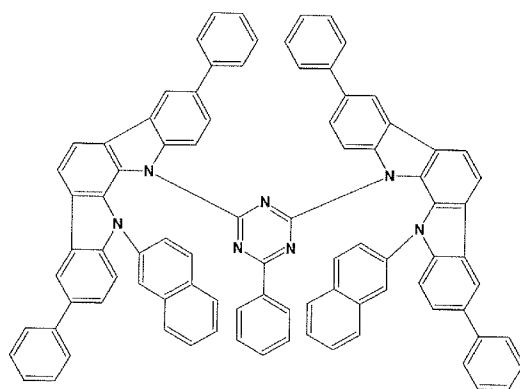
1 6



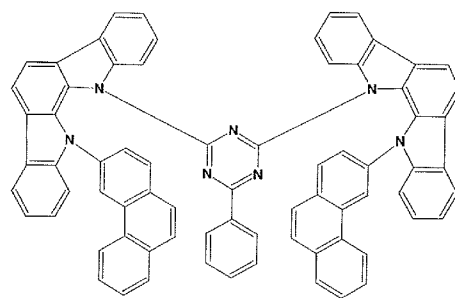
1 7



1 8

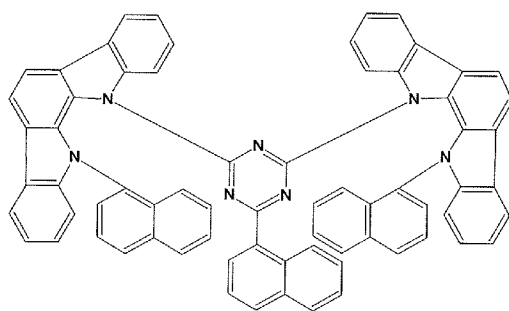


1 9

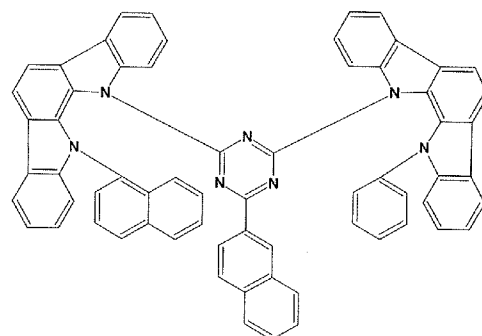


2 0

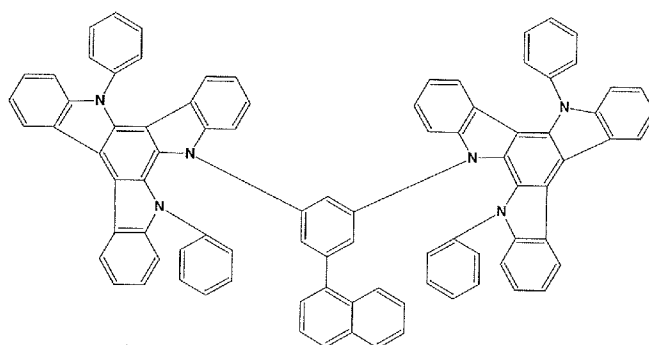
[0035]



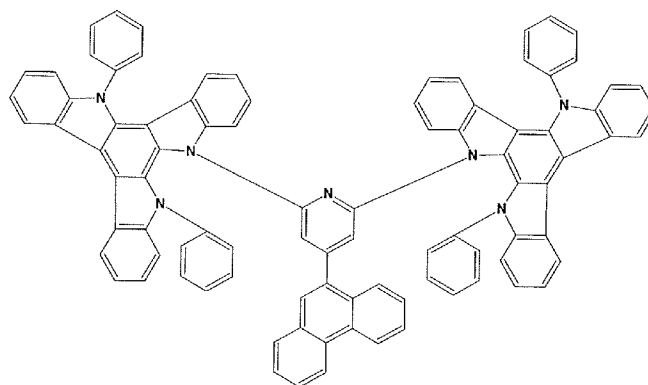
2 1



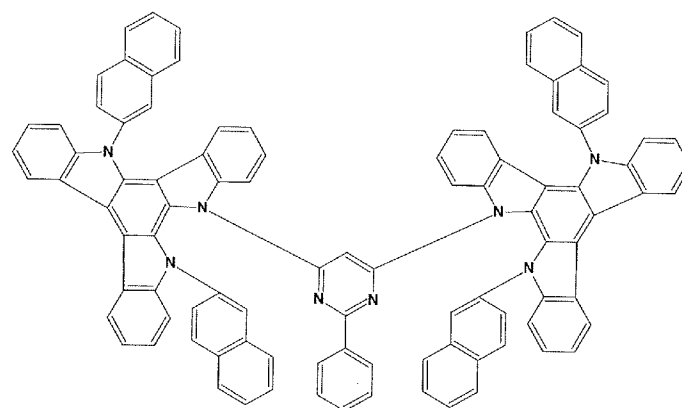
2 2



2 3

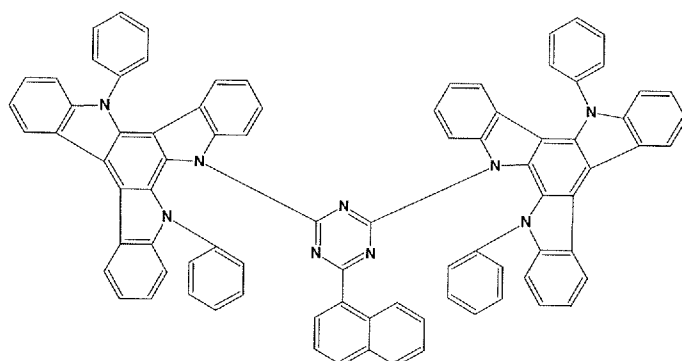


2 4

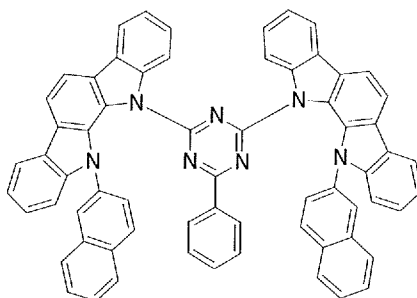


2 5

[0036]



2 6



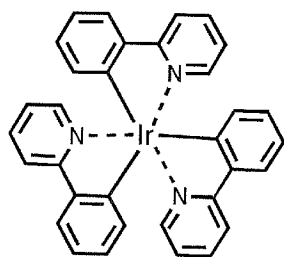
2 7

[0037] 本発明の有機EL素子は、基板上に積層された陽極と陰極の間に、少なくとも1つの発光層を有し、該発光層中に燐光発光性ドーパントと上記一般式(I)～(III)で表わされる有機EL素子用化合物をホスト材料として含有する。そして、陽極と発光層の間に正孔注入輸送層及び陰極と発光層の間に電子注入輸送層を有することがよい。また、発光層と電子注入輸送層の間に正孔阻止層を有することがよい。

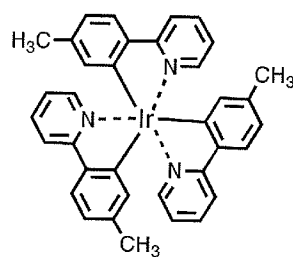
[0038] 発光層における燐光発光ドーパント材料としては、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金から選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体を含有するものがよい。かかる有機金属錯体は、前記特許文献等で公知であり、これらが選択されて使用可能である。

[0039] 好ましい燐光発光ドーパントとしては、Ir等の貴金属元素を中心金属として有するIr(ppy)₃等の錯体類、Ir(bt)₂・acac₃等の錯体類、PtOEt₃等の錯体類が挙げられる。これらの錯体類の具体例を以下に示すが、下記の化合物に限定されない。

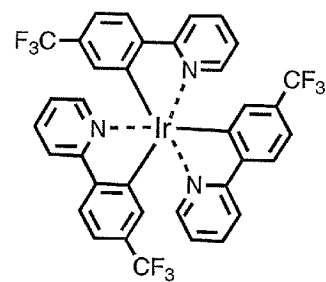
[0040]



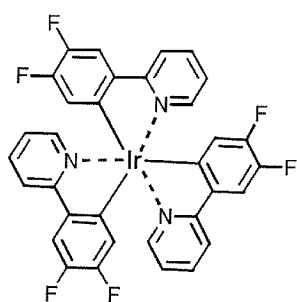
3 0



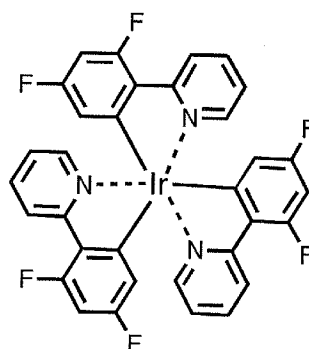
3 1



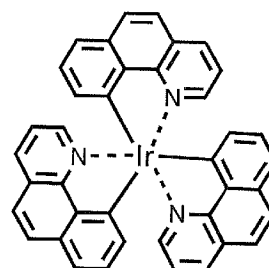
3 2



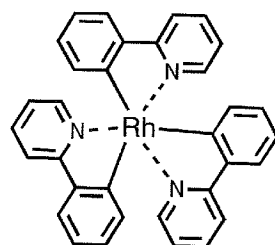
3 3



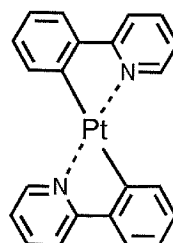
3 4



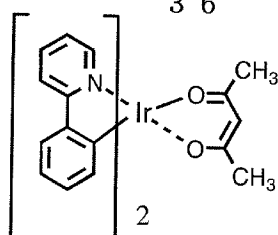
3 5



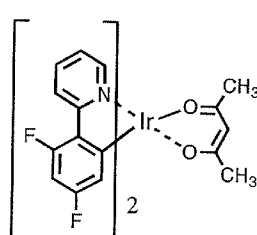
3 6



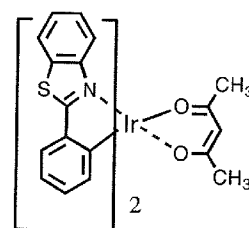
3 7



3 8

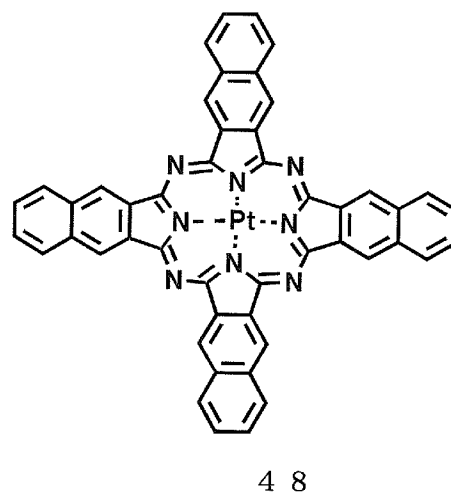
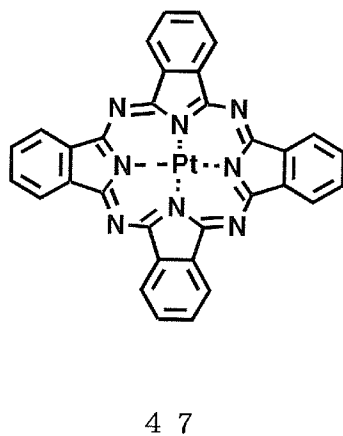
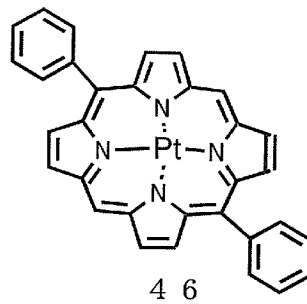
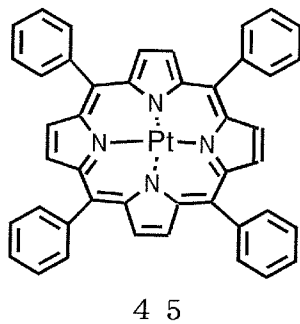
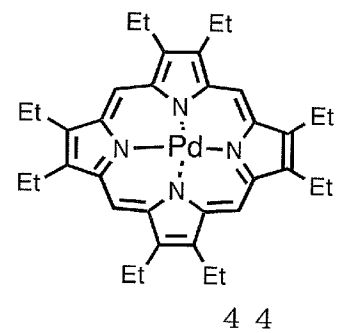
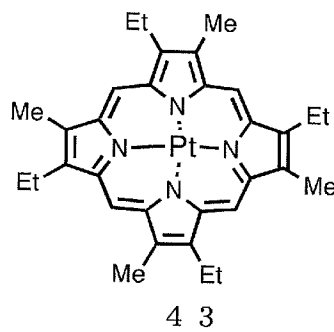
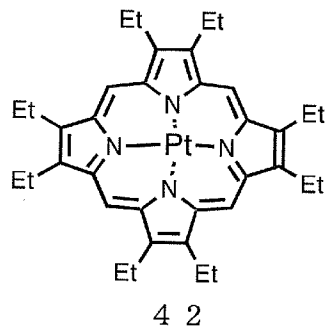
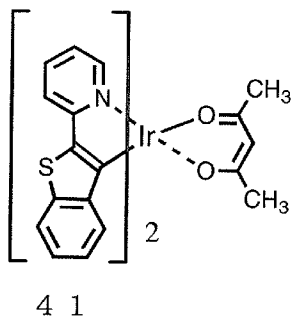


3 9



4 0

[0041]



[0042] 前記燐光発光ドーパントが発光層中に含有される量は、5～10重量%の範囲にあることが好ましい。

図面の簡単な説明

[0043] [図1]図1は、有機EL素子の一例を示した模式断面図である。

符号の説明

[0044] 1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を示す。

発明を実施するための最良の形態

[0045] 次に、本発明の有機EL素子の構造について、図面を参照しながら説明するが、本発明の有機EL素子の構造は何ら図示のものに限定されるものではない。

[0046] 図1は本発明に用いられる一般的な有機EL素子の構造例を模式的に示す断面図であり、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を各々表わす。本発明の有機EL素子では、基板、陽極、発光層及び陰極を必須の層として有するが、必須の層以外の層以外に、正孔注入輸送層、電子注入輸送層を有することがよく、更に発光層と電子注入輸送層の間に正孔阻止層を有することがよい。なお、正孔注入輸送層は、正孔注入層と正孔輸送層のいずれか又は両者を意味し、電子注入輸送層は、電子注入層と電子輸送層のいずれか又は両者を意味する。

[0047] なお、図1とは逆の構造、すなわち、基板1上に陰極7、電子輸送層6、発光層5、正孔輸送層4、陽極2の順に積層することも可能であり、既述したように少なくとも一方が透明性の高い2枚の基板の間に本発明の有機EL素子を設けることも可能である。この場合も、必要により層を追加したり、省略したりすることが可能である。

[0048] 本発明は、有機EL素子が、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。本発明の有機EL素子によれば、発光層に特定の骨格を有する化合物と、燐光発光ドーパントを含有させることにより、従来の一重項状態からの発光を用いた素子よりも発光効率が高かつ駆動安定性においても大きく改善された素子が得られ、フルカラーあるいはマルチカラーのパネルへの応用において優れた性能を発揮できる。

実施例

[0049] 以下、本発明につき、実施例によって更に詳しく説明するが、本発明は勿論、これ

らの実施例に限定されるものではなく、その要旨を越えない限りにおいて、種々の形態で実施することが可能である。

[0050] 実施例1

(化合物17の合成)

脱気窒素置換した200ml三口フラスコに1,2-シクロヘキサンジオン33.3g(0.297mol)、フェニルヒドラジン塩酸塩86.0g(0.595mol)を加え、これにエタノール1000mlを加えて攪拌させた。その後、同フラスコ内に濃硫酸3.0g(0.03mol)を5分間かけ滴下した。その後65℃まで加熱し、4時間攪拌した。室温まで冷却した後、生じた紫茶色結晶を濾取した後、濾取した結晶をエタノール500mlで二回、リズラー洗浄をおこなった。これを、減圧乾燥して紫茶色粉末80.0g(0.286mol、収率96.3%)を得た。

次に、上記紫茶色粉末72.0g(0.258mol)に、これに酢酸720g、トリフルオロ酢酸72.0gを加えて攪拌させた。その後100℃まで加熱し、15時間攪拌した。室温まで冷却した後、生じた黄色結晶を濾取した後、濾取した結晶を酢酸200mlでリンス洗浄をおこなった後、ヘキサン200mlでリンス洗浄をおこなった。これを、減圧乾燥して白色粉末A 30.0g(0.117mol、収率45.3%)を得た。

[0051] 次に、脱気窒素置換した1000ml三口フラスコに上記で得た白色粉末A 26.0g(0.101mol)、ヨードベンゼン122.7g(0.601mol)、よう化銅54.7g(0.287mol)、炭酸カリウム66.7g(0.482mol)、これにキノリン800mlを加えて攪拌させた。その後190℃まで加熱し、72時間攪拌した。一旦、室温まで冷却した後、水500ml、ジクロロメタン500mlを加え、攪拌を行った後、生じた黄色結晶を濾取した。濾液を2000ml分液ロートへ移し、有機層と水層に分画した。有機層を500mlの水で三回洗浄し、その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで脱水を行い、一旦、硫酸マグネシウムを濾別した後、溶媒を減圧留去した。その後、カラムクロマトグラフィーで精製して白色粉末B 13.7g(0.04mol、収率40.8%)を得た。

[0052] 次に、脱気窒素置換した500ml三口フラスコに55%水素化ナトリウム2.16g(0.0495mol)、脱水N,N'-ジメチルホルムアミド70mlを加え、窒素気流中下で攪拌を行う。上記で得た白色粉末B 13.7g(0.04mol)に脱水N,N'-ジメチルホルムアミド70mlを加え、溶解させ、その後、同フラスコ内に15分間かけ滴下した。滴下終了後、1時間攪拌を

継続した。その後、塩化シアヌル3.76g (0.02mol) に脱水N,N'-ジメチルホルムアミド70mlを加え、溶解させ、その後、同フラスコ内に15分間かけ滴下した。滴下終了後、2時間攪拌を継続した後、水350gを加え、析出した結晶を濾取した。濾取した結晶を水300gで二回リンスを行い、その後、メタノール300gにてリンスを行った。これを減圧乾燥した後、カラムクロマトグラフィーで精製して白色粉末C 10.9g (0.014mol、収率70.0%)を得た。

- [0053] 次に、300ml三口フラスコに上記で得た白色粉末C 10.0g (0.013mol)、2-ナフチルボロン酸2.8g (0.016mol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 1.5g (0.0013mol) エタノール50ml、トルエン100mlを加えて攪拌させた。その後、炭酸ナトリウム6.5gを水50mlに溶解させ、同フラスコ内に加え85℃まで加熱し、5時間攪拌した。一旦、室温まで冷却した後、水100ml、トルエン100mlを加え、攪拌を行った後、不溶物を濾別した。濾液を1000ml分液ロートへ移し、有機層と水層に分画した。有機層を100mlの水で三回洗浄し、その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで脱水を行い、一旦、硫酸マグネシウムを濾別した後、溶媒を減圧留去した。その後、カラムクロマトグラフィーで精製して黄色固体の例示化合物17を34.7g (0.04mol、収率40.8%)得た。

例示化合物17のEI-MS (M+1)は868、融点は398℃であった。

[0054] 実施例2

正孔注入層に銅フタロシアニン(CuPC)を用い、正孔輸送層に α -NPD及び電子輸送層にAlq3を用いた。膜厚150nmのITOからなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 5.0×10^{-4} Paで積層させた。まず、ITO上に正孔注入層としてCuPCを $3.0 \text{ \AA} / \text{秒}$ で25nmの膜厚で成膜した。次いで、正孔注入層上に、正孔輸送層として α -NPDを蒸着速度 $3.0 \text{ \AA} / \text{秒}$ にて55nmの厚さに形成した。

次に、正孔輸送層上に、発光層として(例示化合物17)と(Btp)2Iracac (例示化合物41)とを異なる蒸着源から共蒸着し、47.5nmの厚さに形成した。この時、(Btp)2Iracacの濃度は8.0 %であった。

次に、電子輸送層としてAlq3を蒸着速度 $3.0 \text{ \AA} / \text{秒}$ にて30nmの厚さに形成した。更に、電子輸送層上に、電子注入層としフッ化リチウム(LiF)を蒸着速度 $0.1 \text{ \AA} / \text{秒}$ にて

1nmの厚さに形成した。最後に、電子注入層上に、電極としてアルミニウム(Al)を蒸着速度10 Å／秒にて200nmの厚さに形成し、有機EL素子を作成した。

[0055] 実施例3

(化合物27の合成)

窒素置換した200ml三口フラスコに実施例1で得られた白色粉末A10.0g(0.036mol)、炭酸カリウム12.9g(0.093mol)、銅粉5.7g(0.090mol)、テトラグライム50.0gを加え、窒素気流下で攪拌した。同フラスコ内に2-ブロモナフタレン9.87g(0.047mol)をテトラグライム10.0gに溶解させた溶液を10分間かけ滴下した。滴下終了後、195℃で1時間攪拌を継続した。その後、室温まで冷却し、不溶物を濾取した。濾液にメタノール30gおよび水150gを加え、2時間攪拌した。その後、析出物を濾取し、これを水100gで2回、更に、メタノール100gで1回リスラリー洗浄した。減圧乾燥後、カラムクロマトグラフィーで精製して白色粉末D 13.0g(0.034mol、収率94.7%)を得た。

[0056] 次に、窒素置換した200ml三口フラスコに、マグネシウム9.7g(0.399mol)、脱水THF 20.6ml、ヨウ素0.01gを加え、窒素気流下で攪拌した。60℃まで昇温した後、ブロモベンゼン64.0g(0.408mol)の脱水THF(120.0ml)溶液を1時間かけ滴下した。その後、加熱還流下、2時間攪拌を続けた。室温まで冷却をし、34.5%臭化フェニルマグネシウム／THF溶液を209.5g(反応溶液A)得た。

次に、窒素置換した500ml三口フラスコに塩化シアヌル70.0g(0.380mol)、脱水THF 240mlを加え、窒素気流下で攪拌した。氷浴にて10℃以下に保ちながら、上記で得た反応溶液Aを50分間かけ滴下した。滴下終了後、10℃以下で更に2時間攪拌を続けた。その後、同フラスコを氷浴に浸し、15℃以下に保ちながら10%塩酸130.0gを30分間で滴下した。氷浴を外し、トルエンを200ml投入を加え、1000ml分液ロートにて、有機層と水層に分画した。有機層を150mlの水で三回洗浄し、その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで脱水し、一旦、硫酸マグネシウムを濾別した後、溶媒を減圧留去することにより得られた濃縮物をヘキサンにて再結晶し、61.6g(0.272mol、収率71.7%)の淡褐色結晶を得た。

[0057] 次に、窒素置換した500ml三口フラスコに60.8%水素化ナトリウム1.61g(0.040mol)、脱水N,N'-ジメチルホルムアミド140mlを加え、窒素気流下で攪拌した。これに、上記

で得た白色粉末D 13.0g (0.034mol) の脱水N,N'-ジメチルホルムアミド (20ml) 溶液を20分間かけて滴下し、滴下終了後、更に1時間攪拌した。その後、上記で得た淡褐色結晶 3.84g (0.017mol) の脱水N,N'-ジメチルホルムアミド (10ml) 溶液を20分間かけて滴下し、滴下終了後、更に65時間攪拌した。その後、その後、水230g、メタノール200gを加え、析出した結晶を濾取した。これをメタノール100gにてリズラリー洗浄した後、減圧乾燥し、淡黄色結晶の例示化合物27を 13.5g (0.015mol、収率80.4%) 得た。

例示化合物27のAPCI-MSはm/Z 918[M+H]⁺、融点は331°Cであった。

[0058] 実施例4

発光層のホスト材料として例示化合物17に代えて例示化合物27を用いた以外は実施例2と同様にして有機EL素子を作成した。

[0059] 比較例1

発光層のホスト材料として例示化合物17に代えてBAIqを用いた以外は実施例2と同様にして有機EL素子を作成した。

[0060] 実施例及び比較例で得られた有機EL素子各々の発光ピーク波長、最高発光効率、輝度半減寿命(初期輝度2,000cd/m²)を表1に示す。

[0061] [表1]

	発光ピーク波長 (nm)	最高発光効率 (cd/A)	輝度半減時間 (hr)
実施例 2	620	9.2	3000
実施例 4	620	9.1	2500
比較例 1	620	8.8	1500

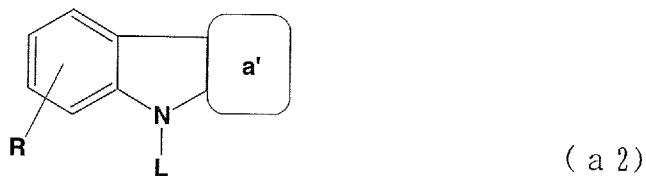
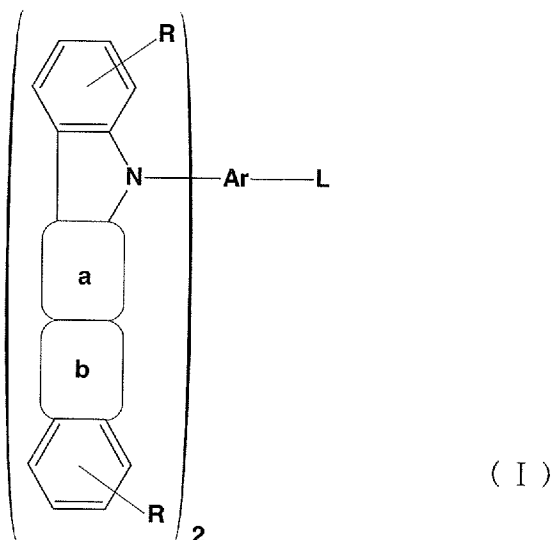
産業上の利用の可能性

[0062] 本発明の有機EL素子は、低電圧において高輝度・高効率で発光させることが可能となる。したがって、本発明による有機EL素子はフラットパネル・ディスプレイ(例えばOAコンピュータ用や壁掛けテレビ)、車載表示素子、携帯電話表示や面発光体とし

ての特徴を生かした光源（例えば、複写機の光源、液晶ディスプレイや計器類のバックライト光源）、表示板、標識灯への応用が考えられ、その技術的価値は大きいものである。

請求の範囲

[1] 下記一般式 (I) で表される有機電界発光素子用化合物。



ここで、

環aは、2つの隣接環と縮合する式(a1)又は(a2)で表される芳香環又は複素環を示し、環a'は、3つの隣接環と縮合する式(a1)で表される芳香環又は複素環を示し、Xは、CH又はNを示す。環bは、2つの隣接環と縮合する式(b1)で表される複素環を示し、

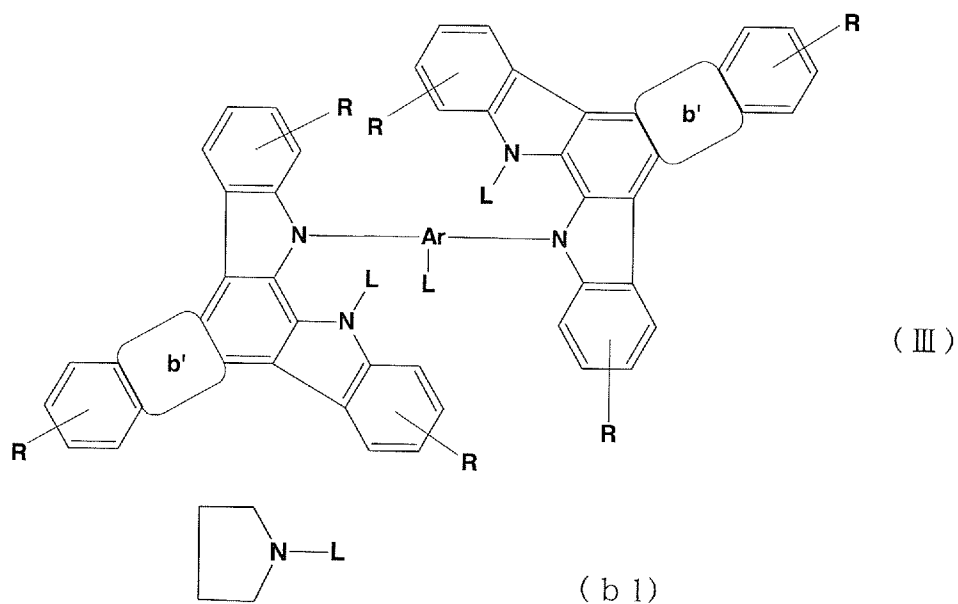
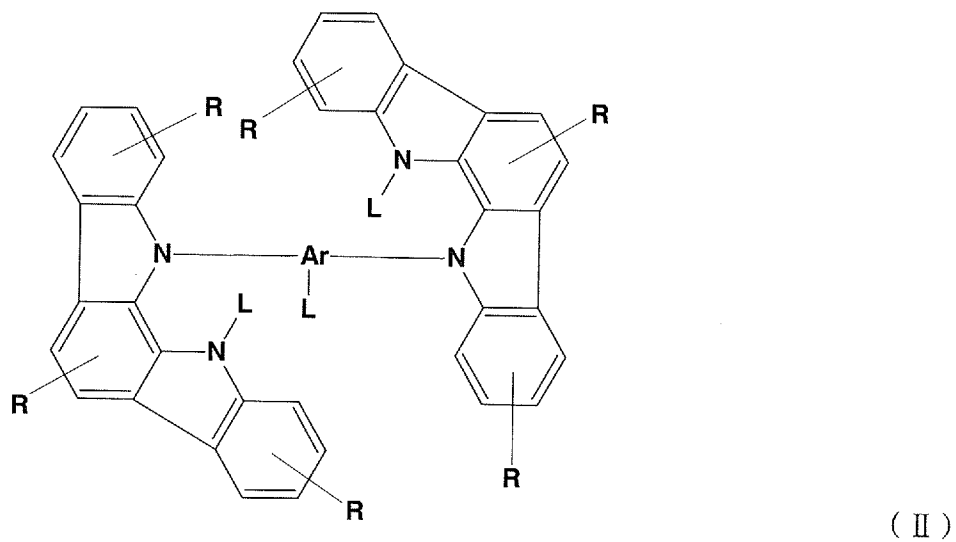
Arは芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基からなる3価の基を示し、

Lは独立に、少なくとも一つの縮環構造を有する置換若しくは未置換の芳香族炭化

水素基又は芳香族複素環基を示し、

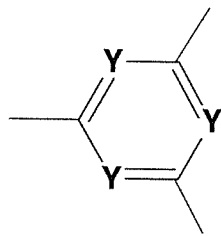
Rは独立に、水素、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジアラルキルアミノ基、アミノ基、ニトロ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、アルコキシル基、アルキルスルホニル基、ハロアルキル基、水酸基、アミド基、又は置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基を示す。

[2] 下記一般式(II)又は(III)で表される請求項1記載の有機電界発光素子用化合物。



一般式(II)及び(III)において、
Ar、L及びRは、一般式(I)のAr、L及びRと同じ意味を有し、
環b'は独立に、2つの隣接環と縮合する式(b1)で表される複素環を示す。

- [3] 一般式(II)又は(III)において、Arが下記式(IV)で表される3価の基である請求項2に記載の有機電界発光素子用化合物。

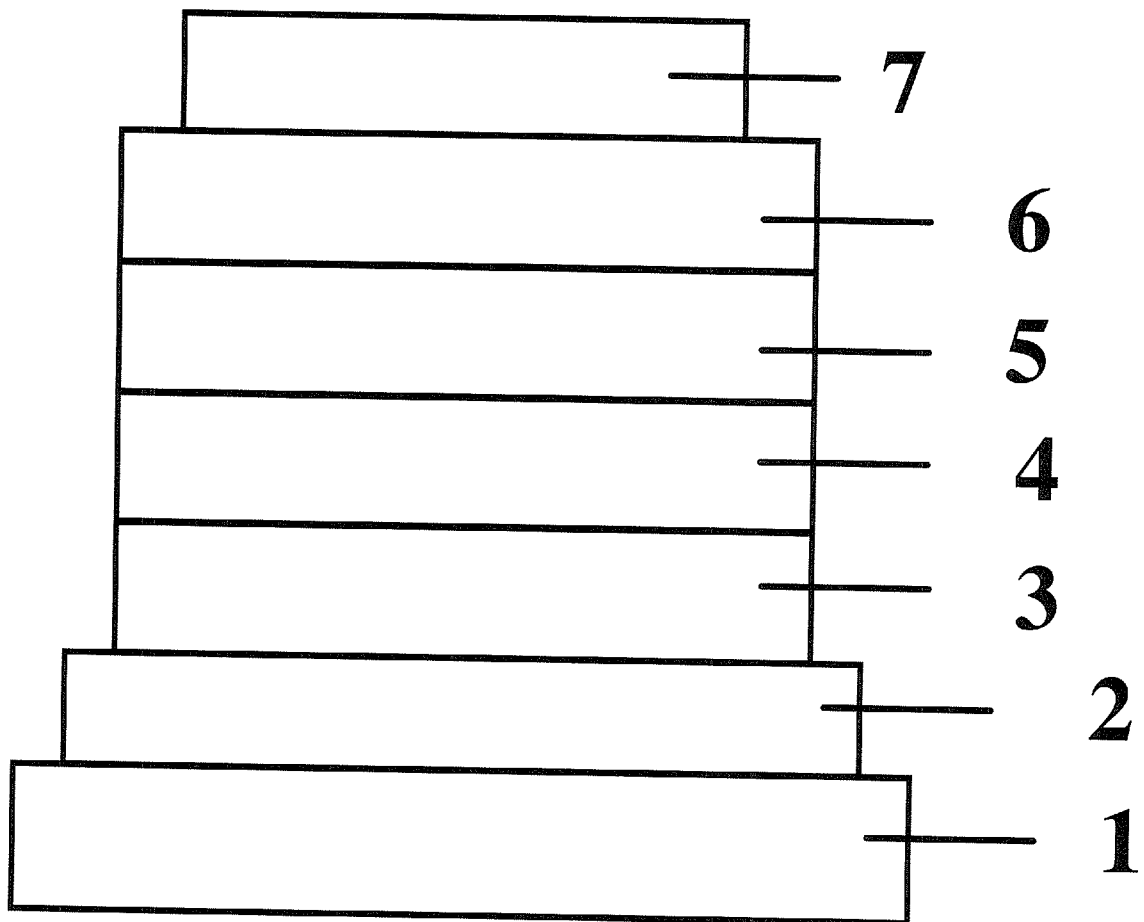


(IV)

ここで、
Yは独立に、CH又Nであり、少なくとも一つはNである。

- [4] 基板上に積層された陽極と陰極の間に、発光層を有する有機電界発光素子であつて、該発光層が、燐光発光性ドーパントと請求項1～3のいずれかに記載の有機電界発光素子用化合物をホスト材料として含有することを特徴とする有機電界発光素子。
- [5] 陽極と発光層の間に正孔注入輸送層を有し、陰極と発光層の間に電子注入輸送層を有してなる請求項4記載の有機電界発光素子。
- [6] 発光層と電子注入輸送層の間に正孔阻止層を有してなる請求項5記載の有機電界発光素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/059523

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

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)

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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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

CA, REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2005-174917 A (Canon Inc.), 30 June, 2005 (30.06.05), Claims; Par. Nos. [0012] to [0013]; Par. No. [0060], table 16; Par. Nos. [0074] to [0075] & WO 2005/051046 A1 & US 2007/0057250 A1	1-6
Y	JP 2005-213188 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 11 August, 2005 (11.08.05), Claims; Par. Nos. [0041] to [0042], [0083] to [0084], [0117] (Family: none)	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 August, 2008 (05.08.08)

Date of mailing of the international search report
12 August, 2008 (12.08.08)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/059523

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-013469 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 12 January, 2006 (12.01.06), Claims; Par. Nos. [0022] to [0024], [0055] to [0058], [0061] to [0065], [0083], [0143] to [0146], [0178], [0206], [0212] (Family: none)	1-6
Y	JP 11-162650 A (Xerox Corp.), 18 June, 1999 (18.06.99), Claims; Par. Nos. [0011], [0020] & US 5952115 A & EP 906948 A1 & DE 69811303 E	1-6
Y	JP 11-176578 A (Xerox Corp.), 02 July, 1999 (02.07.99), Claims; Par. Nos. [0011] to [0012], [0021] & US 5942340 A & EP 906947 A1 & DE 69814781 E	1-6
A	JP 2004-204234 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 22 July, 2004 (22.07.04), Claims & US 2004/0137271 A1 & KR 2004-056662 A & CN 1551694 A	1-6
A	WO 2006/033538 A1 (LG CHEM. LTD.), 30 March, 2006 (30.03.06), Claims; Par. Nos. [0060] to [0063] & JP 2008-513441 A & US 2006/0063037 A1 & KR 2006-051418 A & EP 1805280 A1 & IN 200702032 P1 & CN 101023148 A	1-6
P,A	WO 2007/063754 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 07 June, 2007 (07.06.07), Claims (Family: none)	1-6
P,A	WO 2007/063796 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 07 June, 2007 (07.06.07), Claims (Family: none)	1-6
P,A	WO 2008/056746 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 15 May, 2008 (15.05.08), Claims (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. 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 (I P C))

Int.Cl. 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	1971-2008年
日本国実用新案登録公報	1996-2008年
日本国登録実用新案公報	1994-2008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)

C A, R E G I S T R Y (S T N)

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 請求の範囲の番号
Y	J P 2 0 0 5 - 1 7 4 9 1 7 A (キヤノン株式会社) 2005.06.30, 特許請求の範囲, 【0012】～【0013】, 【0060】表16, 【0074】～【0075】&WO 2005/051046 A1&US 2007/0057250 A1	1-6
Y	J P 2 0 0 5 - 2 1 3 1 8 8 A (三菱化学株式会社) 2005.08.11, 特許請求の範囲, 【0041】～【0042】, 【0083】～【0084】, 【0117】 (ファミリーなし)	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ 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

の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

05.08.2008

国際調査報告の発送日

12.08.2008

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / 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)

天野 宏樹

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

4V

9272

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 請求の範囲の番号
Y	J P 2006-013469 A (三菱化学株式会社) 2006. 01. 12, 特許請求の範囲, 【0022】～【0024】, 【0055】～【0058】, 【0061】～【0065】, 【0083】, 【0143】～【0146】, 【0178】, 【0206】, 【0212】 (ファミリーなし)	1-6
Y	J P 11-162650 A (ゼロックス コーポレーション) 1999. 06. 18, 特許請求の範囲, 【0011】, 【0020】&US 5952115 A&EP 906948 A1&DE 69811303 E	1-6
Y	J P 11-176578 A (ゼロックス コーポレーション) 1999. 07. 02, 特許請求の範囲, 【0011】～【0012】, 【0021】&US 5942340 A&EP 906947 A1&DE 69814781 E	1-6
A	J P 2004-204234 A (三星エスディアイ株式会社) 2004. 07. 22, 特許請求の範囲&US 2004/0137271 A1&KR 2004-056662 A&CN 1551694 A	1-6
A	WO 2006/033538 A1 (LG CHEM. LTD.) 2006. 03. 30, 特許請求の範囲, [60]～[63]&J P 2008-513441 A&US 2006/0063037 A1&KR 2006-051418 A&EP 1805280 A1&IN 200702032 P1&CN 101023148 A	1-6
PA	WO 2007/063754 A1 (新日鐵化学株式会社) 2007. 06. 07, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6
PA	WO 2007/063796 A1 (新日鐵化学株式会社) 2007. 06. 07, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6
PA	WO 2008/056746 A1 (新日鐵化学株式会社) 2008. 05. 15, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6