(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2012-116784
(P2012-116784A)
(43)公開日　平成24年6月21日(2012.6.21)

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
C07D 471/04	(2006.01)	C07D 471/04	112T	3K107
H01L 51/50	(2006.01)	H05B 33/14	B	4C050
C09K 11/06	(2006.01)	H05B 33/22	B	4C065
C07D 491/048	(2006.01)	H05B 33/22	D	
		H05B 33/22	A	

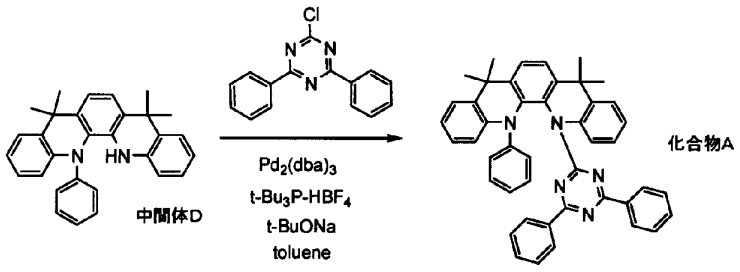
審査請求 未請求　請求項の数 22　ＯＬ　（全 71 頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2010-267575 (P2010-267575)
(22)出願日　平成22年11月30日 (2010.11.30)

(71)出願人　000183646
出光興産株式会社
東京都千代田区丸の内３丁目１番１号
(74)代理人　100078732
弁理士　大谷　保
(74)代理人　100081765
弁理士　東平　正道
(72)発明者　吉田　圭
千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地
(72)発明者　伊藤　光則
千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地
(72)発明者　池田　潔
千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地
(72)発明者　荻原　俊成
千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地
最終頁に続く

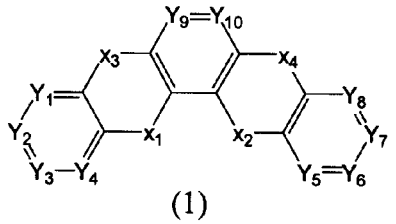
(54)【発明の名称】縮合多環化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

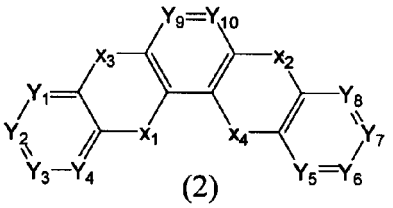
(57)【要約】　（修正有）
【課題】発光効率が高く、長寿命である有機ＥＬ素子、およびそれを実現するための縮合多環化合物の提供。
【解決手段】化合物Ａなどの縮合多環化合物。

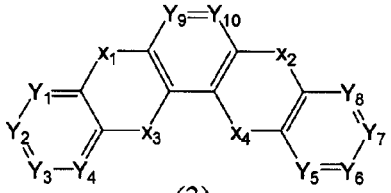


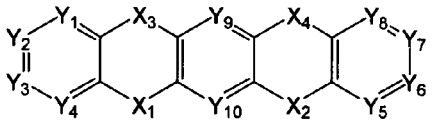
【選択図】なし

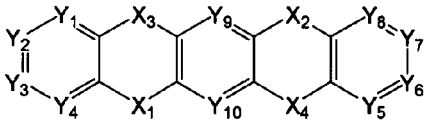
【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記一般式（１）～（５）のいずれかで表わされる縮合多環化合物。
【化１】


(1)


(2)


(3)


(4)


(5)

（前記一般式（１）～（５）において、
X_1、X_2は互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、硫黄原子、－Ｓ（＝Ｏ）－又は－SO_2－を表し、（ただし、X_1及びX_2の少なくとも一方は－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表す。）
X_3、X_4は互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_2－A_3（－A_4）$_r$］－、酸素原子、硫黄原子、－Ｓ（＝Ｏ）－又は－SO_2－を表し、（ただし、X_3及びX_4が同時に単結合を表わすことは無い。）
Y_1～Y_{10}は互いに独立して、Ｃ（R_7）もしくは窒素原子を表し、
R_1～R_7は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、炭素数１～１０の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、炭素数６～３０の置換もしくは無置換のアリールシリル基、炭素数２～２０の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表し、複数のR_1～R_7は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、
L_1、L_2は互いに独立して、単結合、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の二価の複素環基を表し、
A_1、A_3は互いに独立して、炭素数１～２０の置換もしくは無置換の飽和脂肪族炭化水素化合物、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素化合物、

環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環化合物のｑ＋１価又はｒ＋１価の残基を表し、

A_2、A_4は互いに独立して、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表し、

ｑ、ｒは互いに独立して、０～１０の整数を表す。）

【請求項２】

前記一般式（１）～（５）において、

X_1、X_2が互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、又は硫黄原子を表し、（ただし、X_1及びX_2の少なくとも一方は－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表す。）

X_3、X_4が互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、酸素原子、又は硫黄原子を表し、（ただし、X_3及びX_4が同時に単結合を表わすことは無い。）

Y_1～Y_{10}は互いに独立して、Ｃ（R_7）を表し、

R_1～R_7が互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、又は炭素数１～２０のアルキル基を表し、

L_1、L_2が互いに独立して、単結合、又は環形成炭素数６～３０の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基を表し、

A_1、A_3が互いに独立して、環形成炭素数６～３０の非縮合芳香族炭化水素化合物、環形成炭素数１０～３０の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の複素環化合物のｑ＋１価又はｒ＋１価の残基を表し、

A_2、A_4が互いに独立して、環形成炭素数６～３０の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の複素環基を表し、

ｑは０～５の整数を表す、請求項１に記載の縮合多環化合物。

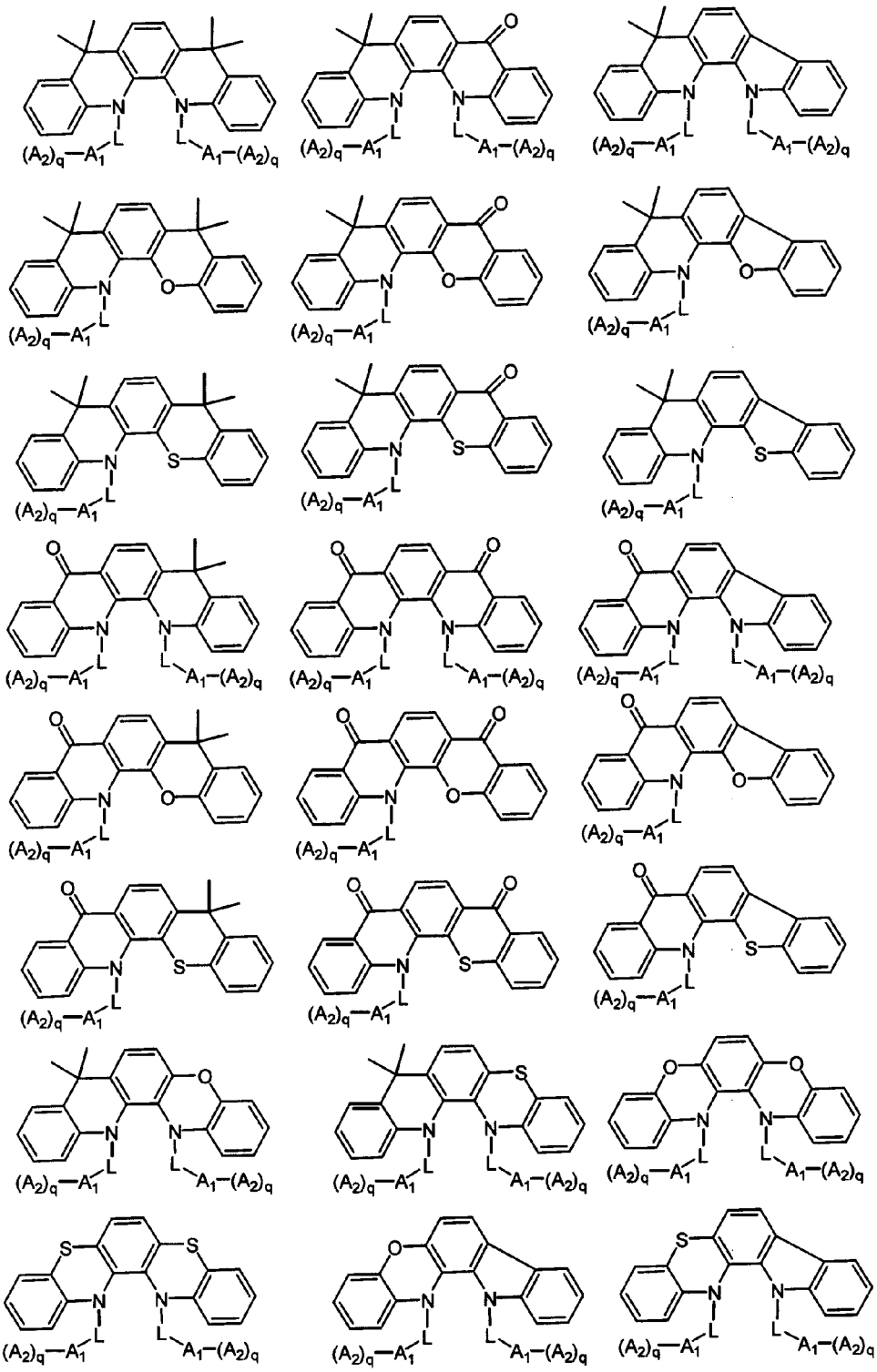
【請求項３】

前記一般式（１）～（５）において、ｑが２～５であり、かつ、X_1及びX_2が互いに異なる二価基である請求項２に記載の縮合多環化合物。

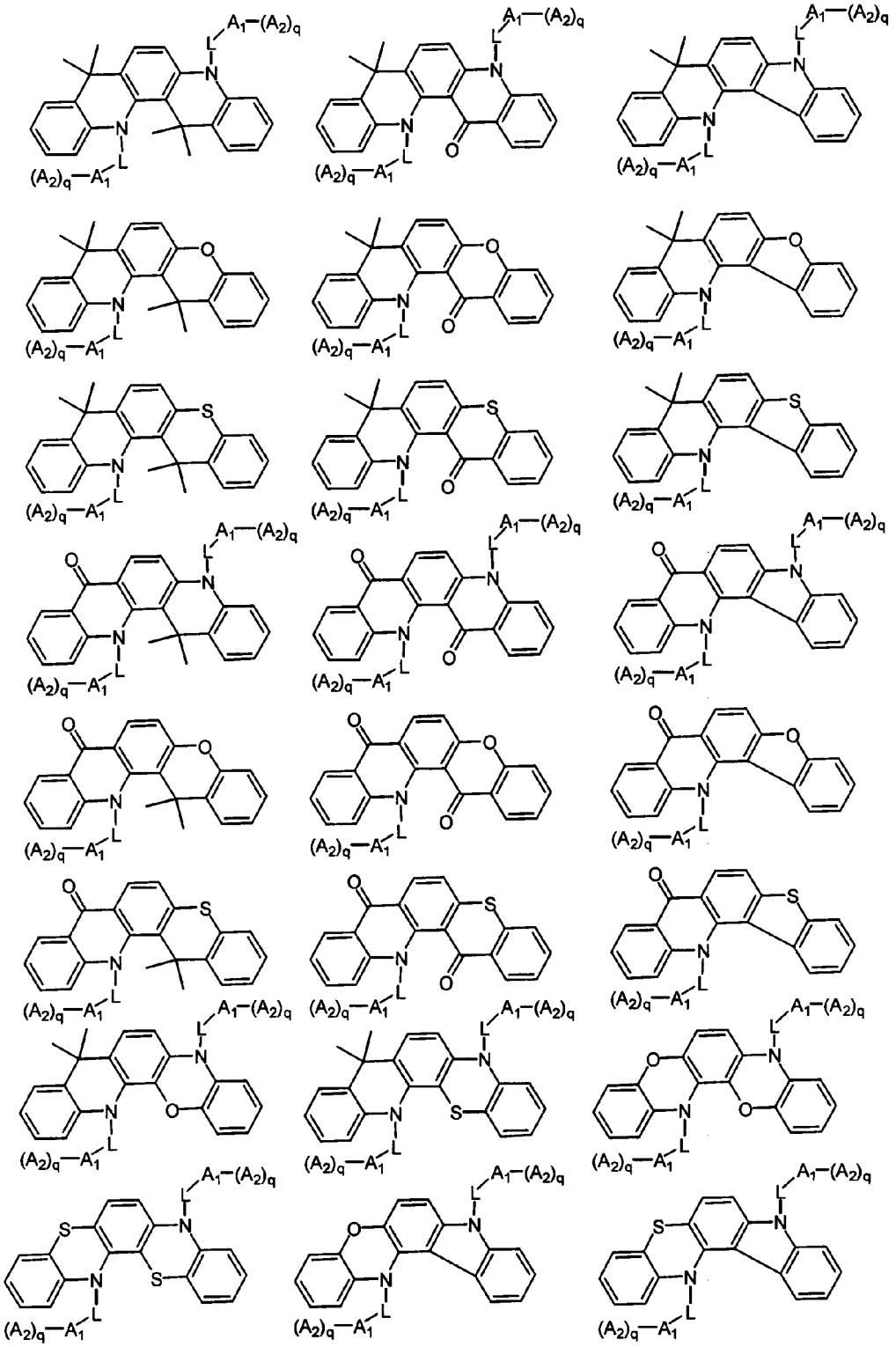
【請求項４】

下記式で表されるいずれかの部分構造を有する請求項１～３のいずれかに記載の縮合多環化合物。

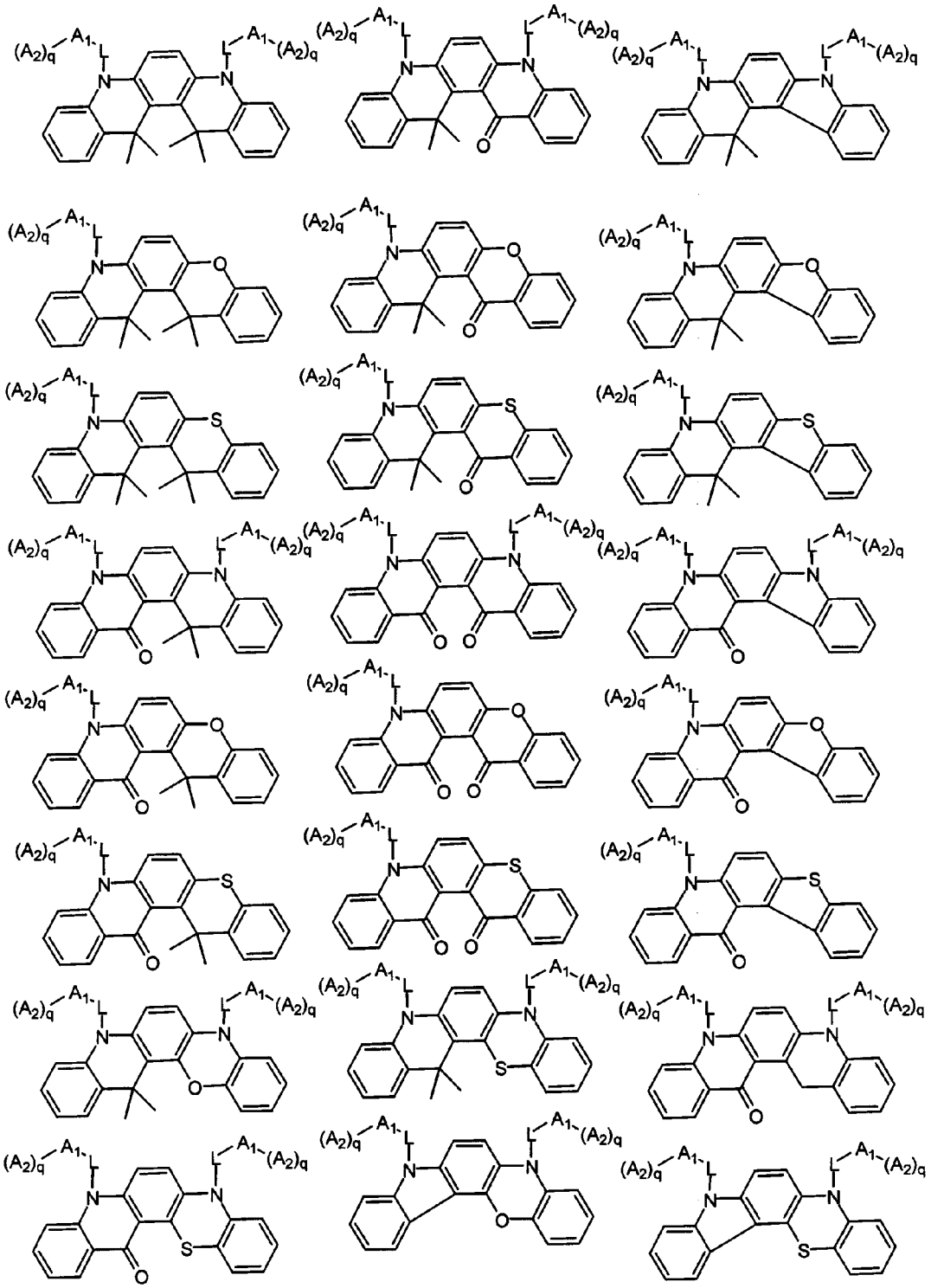
【化２】



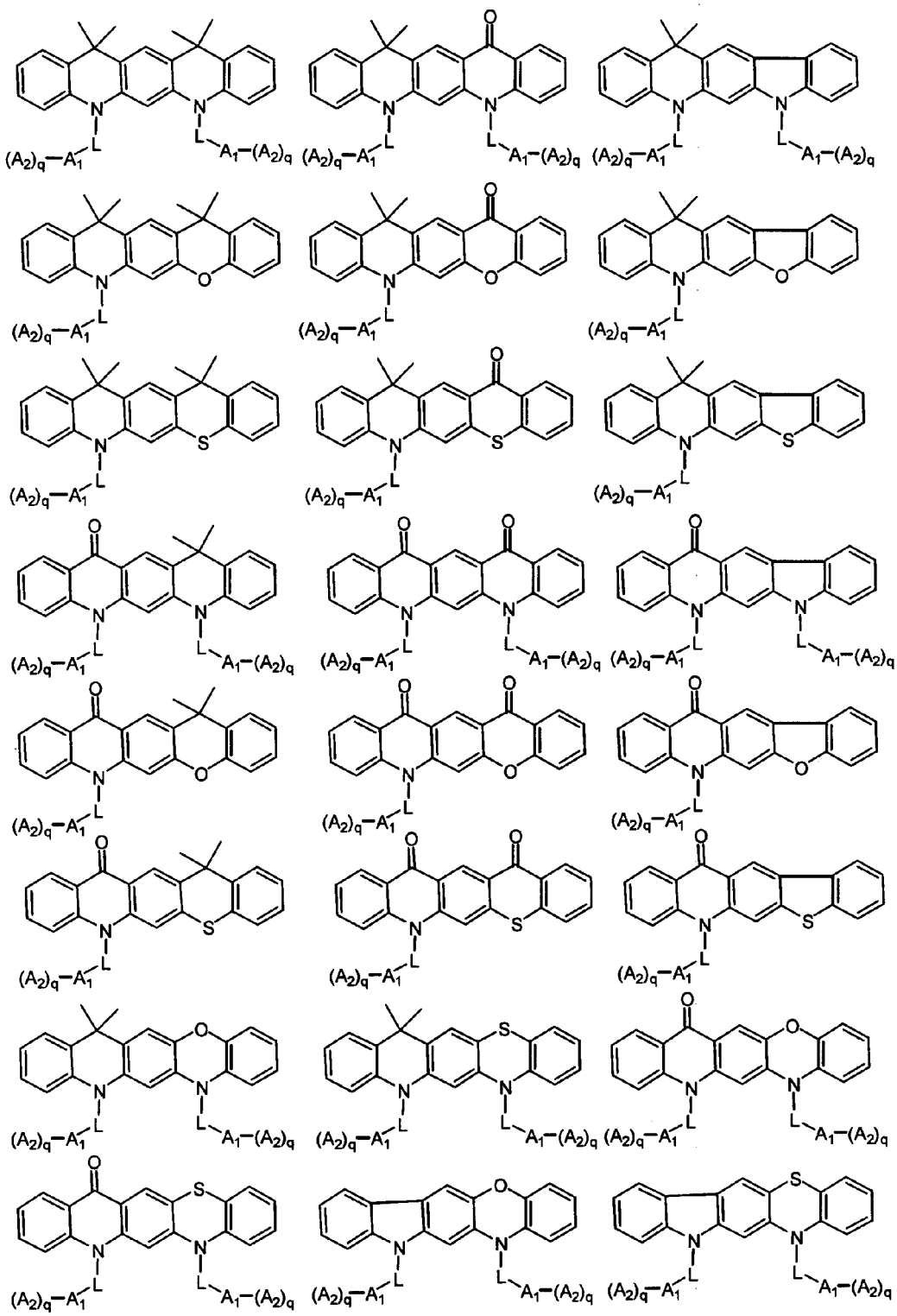
【化３】



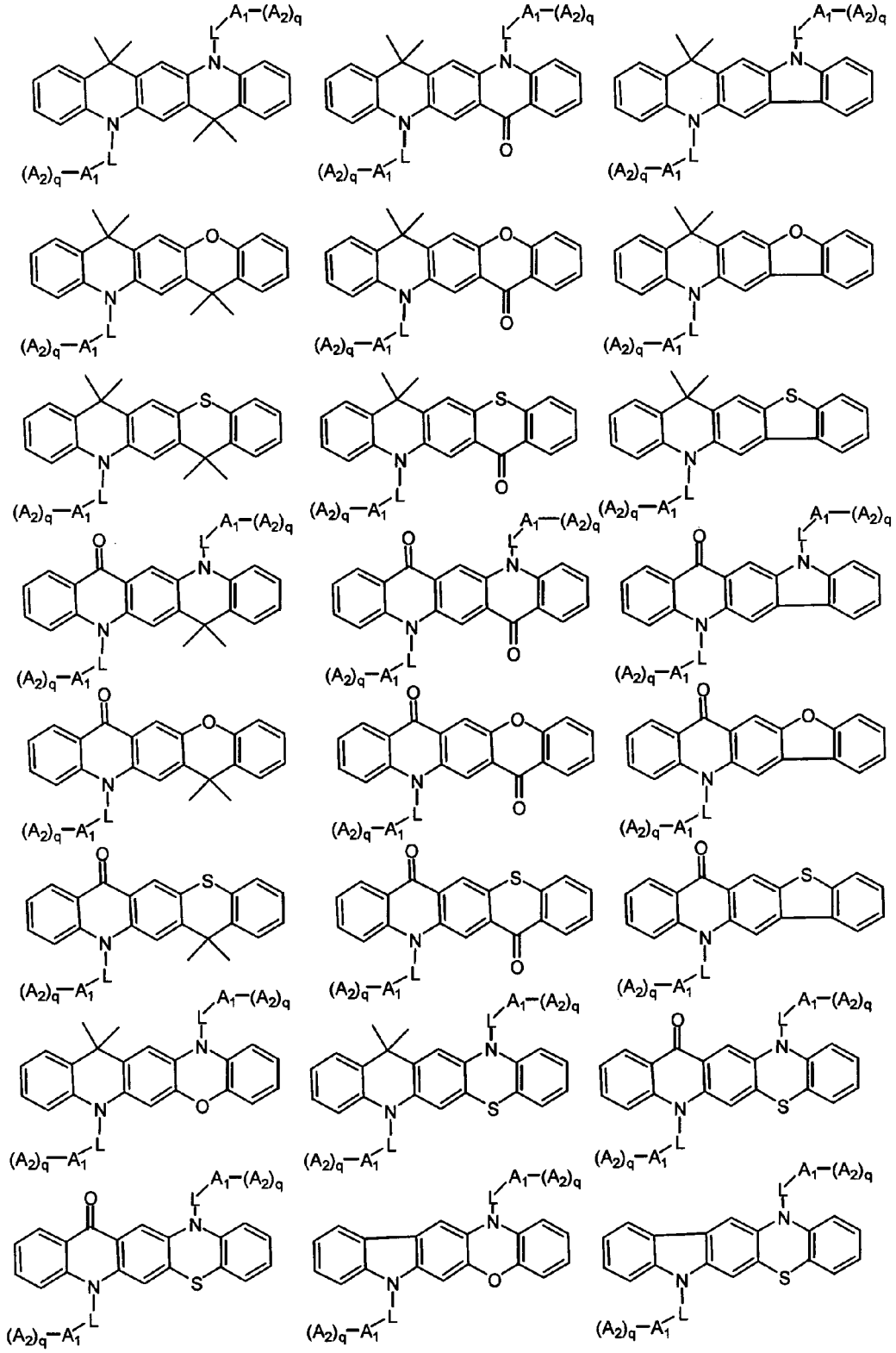
【化４】



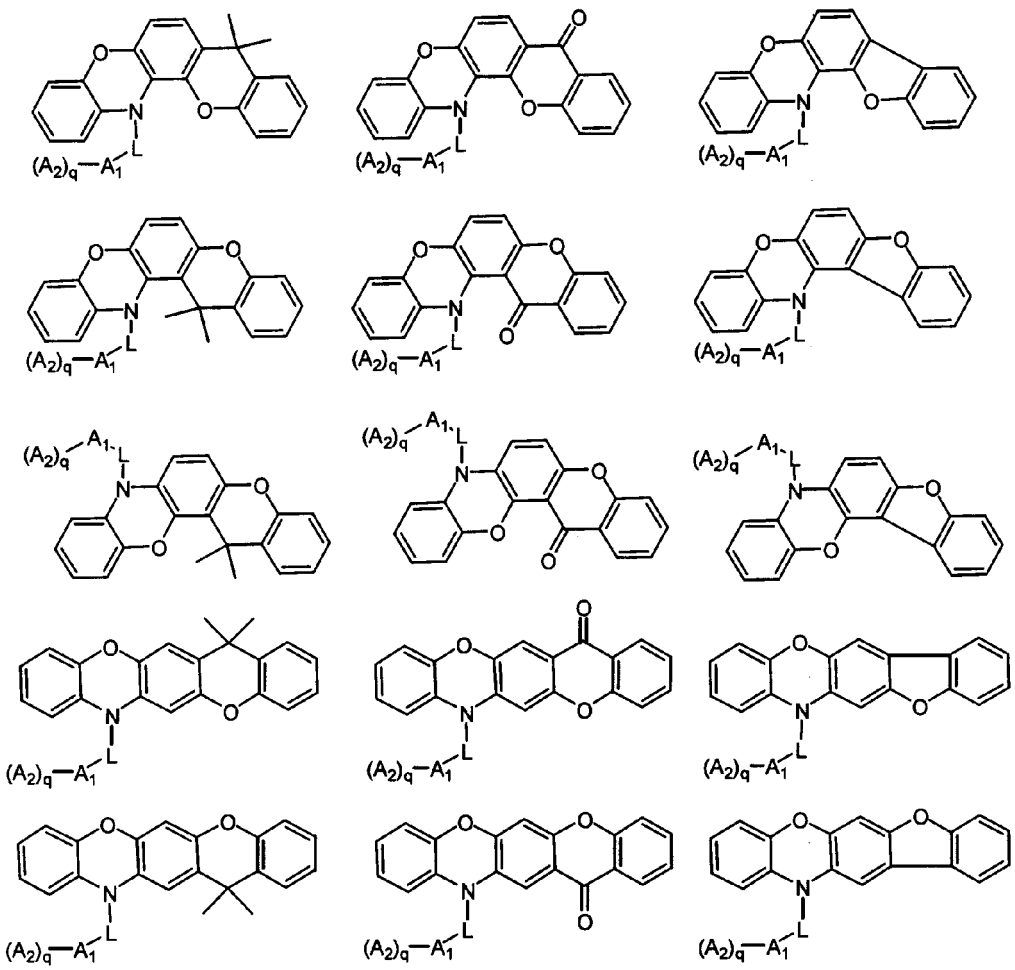
【化５】



【化６】



【化７】



【請求項５】

前記一般式（１）、（２）及び（３）のいずれかで表わされる請求項１～４のいずれかに記載の多環化合物。

【請求項６】

A_1～A_4の少なくともいずれか１つが環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環化合物の残基を表す請求項１～５のいずれかに記載の多環化合物。

【請求項７】

A_1～A_4の少なくともいずれか１つが環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は置換もしくは無置換の含窒素複素環化合物の残基を表す請求項６に記載の多環化合物。

【請求項８】

A_1～A_4の少なくともいずれか１つが置換もしくは無置換の含窒素複素環化合物の残基を表す請求項７に記載の多環化合物。

【請求項９】

A_1～A_4の少なくともいずれか１つが置換もしくは無置換のピリジン、ピリミジン又はトリアジンの残基を表す請求項８に記載の多環化合物。

【請求項１０】

X_1及びX_2の少なくとも一方が、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表し、もう一方が、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、又は硫黄原子を表す請求項１～９のいずれかに記載の多環化合物。

【請求項１１】

X_3及びX_4が互いに独立して、単結合、－Ｃ（R_4）（R_5）－、又は－Ｃ（＝Ｏ）－を表す請求項１０に記載の多環化合物。
【請求項１２】
X_3及びX_4が互いに独立して、－Ｃ（R_4）（R_5）－、又は－Ｃ（＝Ｏ）－を表し、R_4及びR_5が互いに独立して、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルキル基を表す請求項１１に記載の多環化合物。
【請求項１３】
R_4及びR_5がメチル基を表す請求項１２に記載の多環化合物。
【請求項１４】
請求項１～１３のいずれかに記載の多環化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。
【請求項１５】
陰極と陽極の間に発光層を含む複数の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも１層が請求項１４に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
【請求項１６】
前記発光層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含む請求項１５に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
【請求項１７】
前記発光層が燐光発光材料を含有する請求項１５または１６に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
【請求項１８】
前記燐光発光材料がイリジウム（Ｉｒ），オスミウム（Ｏｓ）及び白金（Ｐｔ）から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である請求項１７に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
【請求項１９】
前記陰極と前記発光層の間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含む請求項１５～１８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。
【請求項２０】
前記陰極と前記発光層の間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む請求項１５～１９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。
【請求項２１】
前記陽極と前記発光層の間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む請求項１５～１９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。
【請求項２２】
前記陰極と前記有機薄膜層との界面に還元性ドーパントが添加されてなる請求項１５～２１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。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、縮合多環化合物、それを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、及び該材料を用いてなる有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に発光効率が高く、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する縮合多環化合物に関するものである。
【背景技術】
【０００２】
有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、エレクトロルミネッセンスをＥＬと略記することがある）は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入さ

れた電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。低電圧駆動の積層型有機ＥＬ素子が報告されて以来、有機材料を構成材料とする有機ＥＬ素子に関する研究が盛んに行われている。この積層型素子では、トリス（８－キノリノラト）アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機ＥＬ素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の２層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の３層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

【０００３】

有機ＥＬ素子の発光材料としてはトリス（８－キノリノラト）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている。

また、近年、有機ＥＬ素子の発光層に蛍光材料の他に、燐光発光材料を利用することも提案されている。このように有機ＥＬ素子の発光層において有機燐光発光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用し、高い発光効率が達成されている。有機ＥＬ素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが１：３の割合で生成すると考えられているので、燐光発光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子に比べて３～４倍の発光効率の達成が考えられる。

【０００４】

ところで、近年多環化合物や、インドロカルバゾール骨格を有する化合物が、有機ＥＬ素子用材料として有用であることが見出されている。例えば特定の多環化合物を電荷輸送成分として含む有機ＥＬデバイス（例えば、特許文献１参照）、特定のインドロカルバゾール骨格を有する有機電界発光素子用化合物、及び発光層が、燐光発光性ドーパントと上記発光素子用化合物をホスト材料として含有する有機電界発光素子（例えば、特許文献２、６及び７参照）、発光層が、燐光発光性ドーパントと特定のインドロカルバゾール骨格を有する化合物をホスト材料として含有する有機電界発光素子（例えば、特許文献３参照）、特定のインドロカルバゾール骨格を有する有機電界発光素子用化合物、及び上記発光素子用化合物を含む有機層を有する有機電界発光素子（例えば、特許文献４及び５参照）が開示されている。

しかしながら、これらの特許文献１～７に記載されている多環化合物又はインドロカルバゾール骨格を有する化合物は、いずれも多環構造中に２つの含窒素５員環を有するものである。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００５】

【特許文献１】特開平１１－１７６５７８号公報

【特許文献２】ＷＯ２００７／０６３７５４号パンフレット

【特許文献３】ＷＯ２００７／０６３７９６号パンフレット

【特許文献４】ＷＯ２００８／０５６７４６号パンフレット

【特許文献５】ＷＯ２００９／１３６５９５号パンフレット

【特許文献６】ＷＯ２００８／１４６８３９号パンフレット

【特許文献７】ＷＯ２００８／１４９６９１号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００６】

本発明は、このような状況下になされたもので、発光効率が高く、長寿命である有機ＥＬ素子、およびそれを実現するための縮合多環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】

【０００７】

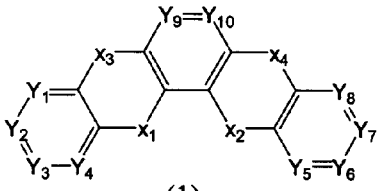
本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、５つの環が縮合した構造を有する特定の縮合多環化合物により、その目的を達成し得ることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

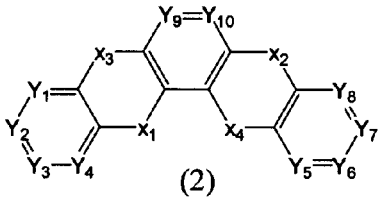
【０００８】

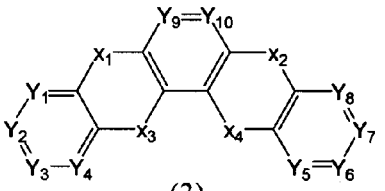
すなわち、本発明は、下記の縮合多環化合物、有機ＥＬ素子用材料及び有機ＥＬ素子を提供する。

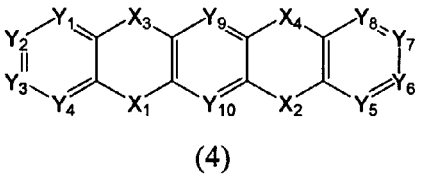
［１］　下記一般式（１）～（５）のいずれかで表わされる縮合多環化合物。

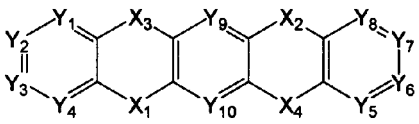
【化１】


(1)


(2)


(3)


(4)


(5)

（前記一般式（１）～（５）において、

X_1、X_2は互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、硫黄原子、－Ｓ（＝Ｏ）－又は－SO_2－を表し、（ただし、X_1及びX_2の少なくとも一方は－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表す。）

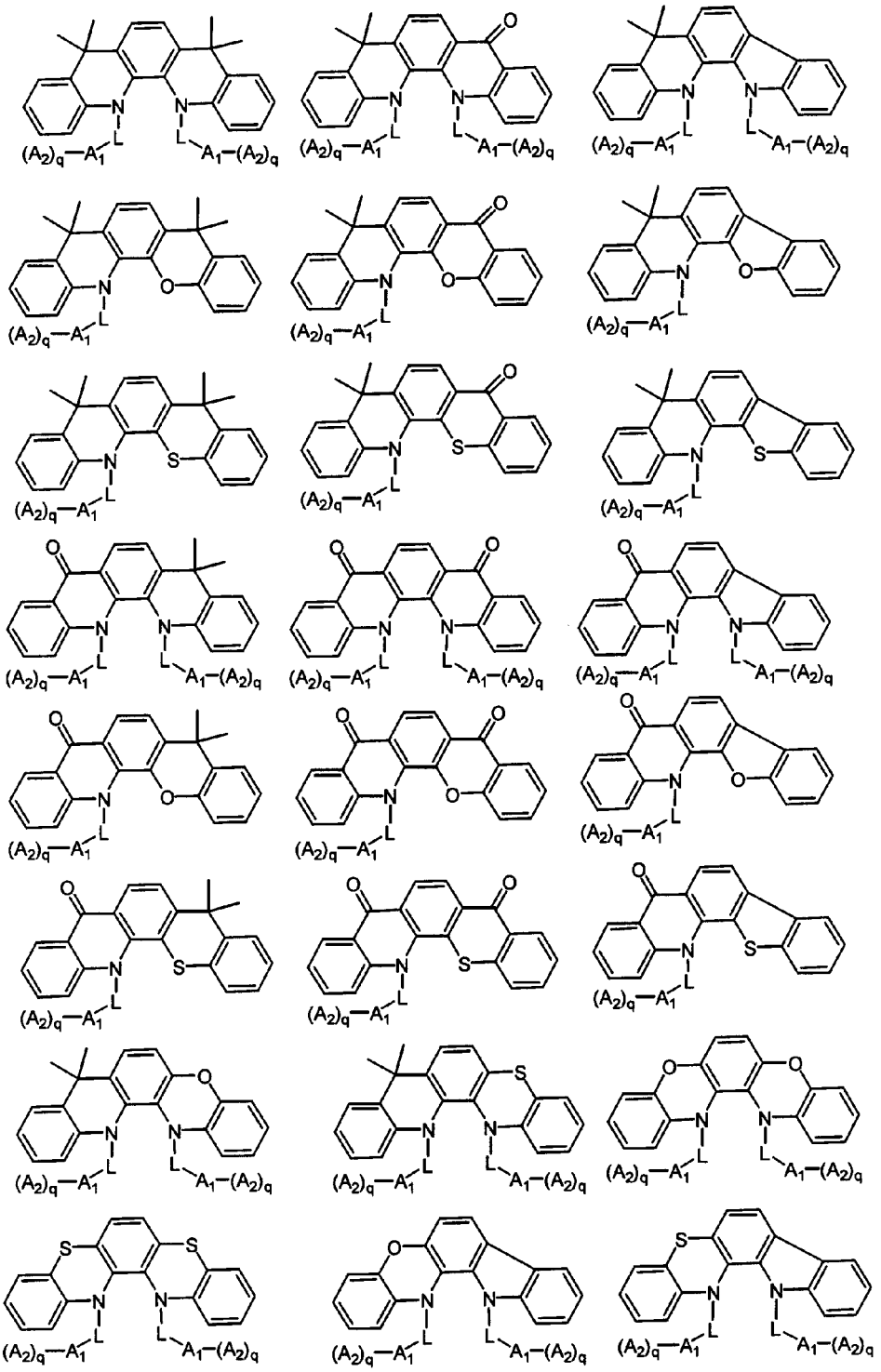
X_3、X_4は互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_2－A_3（－A_4）$_r$］－、酸素原子、硫黄原子、－Ｓ（＝Ｏ）－又は－SO_2－を表し、（ただし、X_3及びX_4が同時に単結合を表わすことは無い。）

Y_1～Y_{10}は互いに独立して、Ｃ（R_7）もしくは窒素原子を表し、

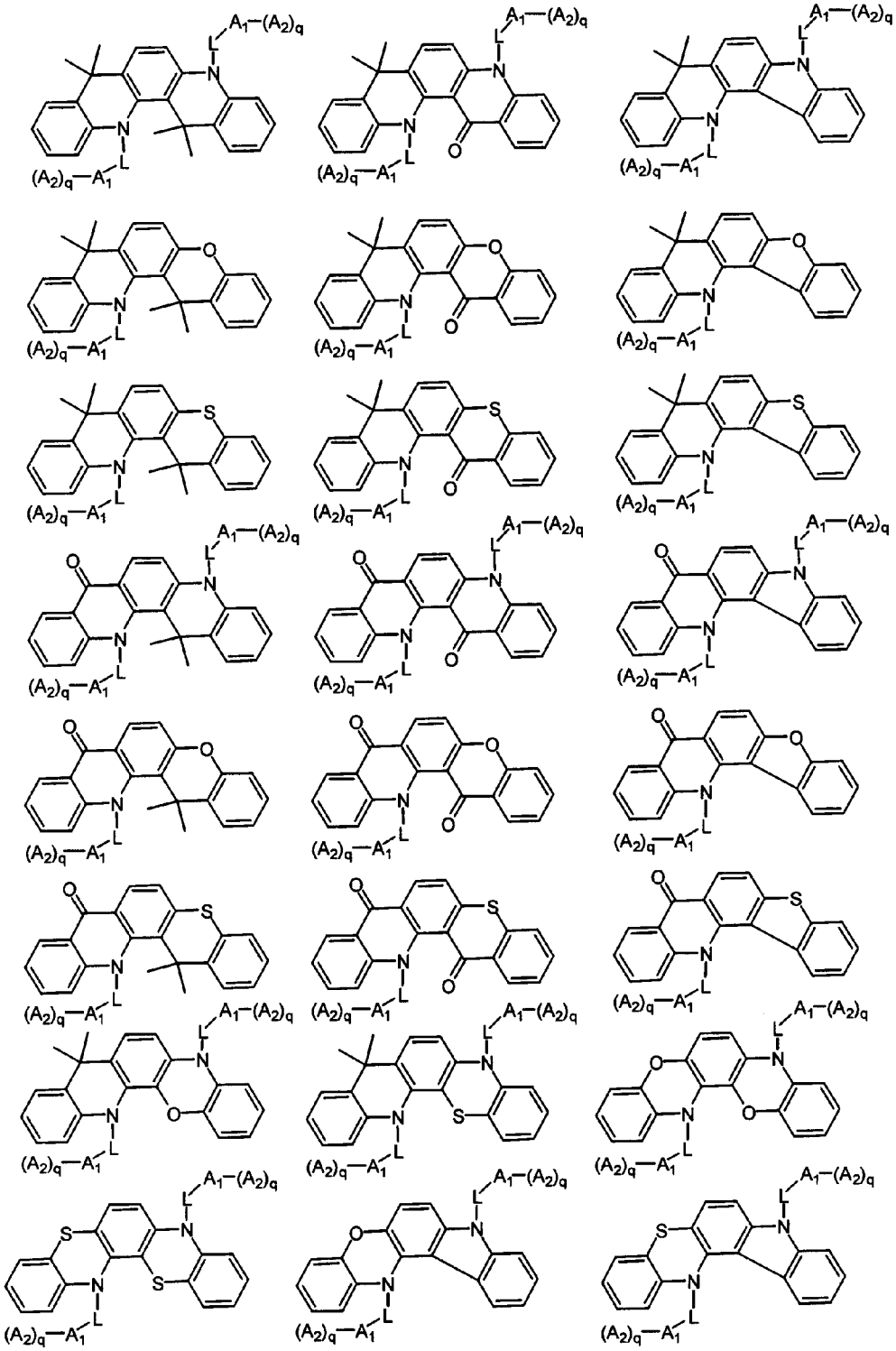
R_1～R_7は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、炭素数１～１０の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、炭素数６～３０の置換もしくは無置換のアリールシリル基、炭素数２～２０の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表し、複数のR_1～R_7は、それぞれ互いに同一

でも異なっていてもよく、
L_1、L_2は互いに独立して、単結合、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の二価の複素環基を表し、
A_1、A_3は互いに独立して、炭素数１～２０の置換もしくは無置換の飽和脂肪族炭化水素化合物、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素化合物、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環化合物のｑ＋１価又はｒ＋１価の残基を表し、
A_2、A_4は互いに独立して、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表し、
ｑ、ｒは互いに独立して、０～１０の整数を表す。）
［２］　前記一般式（１）～（５）において、
X_1、X_2が互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、又は硫黄原子を表し、（ただし、X_1及びX_2の少なくとも一方は－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表す。）
X_3、X_4が互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、酸素原子、又は硫黄原子を表し、（ただし、X_3及びX_4が同時に単結合を表わすことは無い。）
Y_1～Y_{10}は互いに独立して、Ｃ（R_7）を表し、
R_1～R_7が互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、又は炭素数１～２０のアルキル基を表し、
L_1、L_2が互いに独立して、単結合、又は環形成炭素数６～３０の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基を表し、
A_1、A_3が互いに独立して、環形成炭素数６～３０の非縮合芳香族炭化水素化合物、環形成炭素数１０～３０の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の複素環化合物のｑ＋１価又はｒ＋１価の残基を表し、
A_2、A_4が互いに独立して、環形成炭素数６～３０の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の複素環基を表し、
ｑは０～５の整数を表す、上記［１］に記載の縮合多環化合物。
［３］　前記一般式（１）～（５）において、ｑが２～５であり、かつ、X_1及びX_2が互いに異なる二価基である上記［２］に記載の縮合多環化合物。
［４］　下記式で表されるいずれかの部分構造を有する上記［１］～［３］のいずれかに記載の縮合多環化合物。

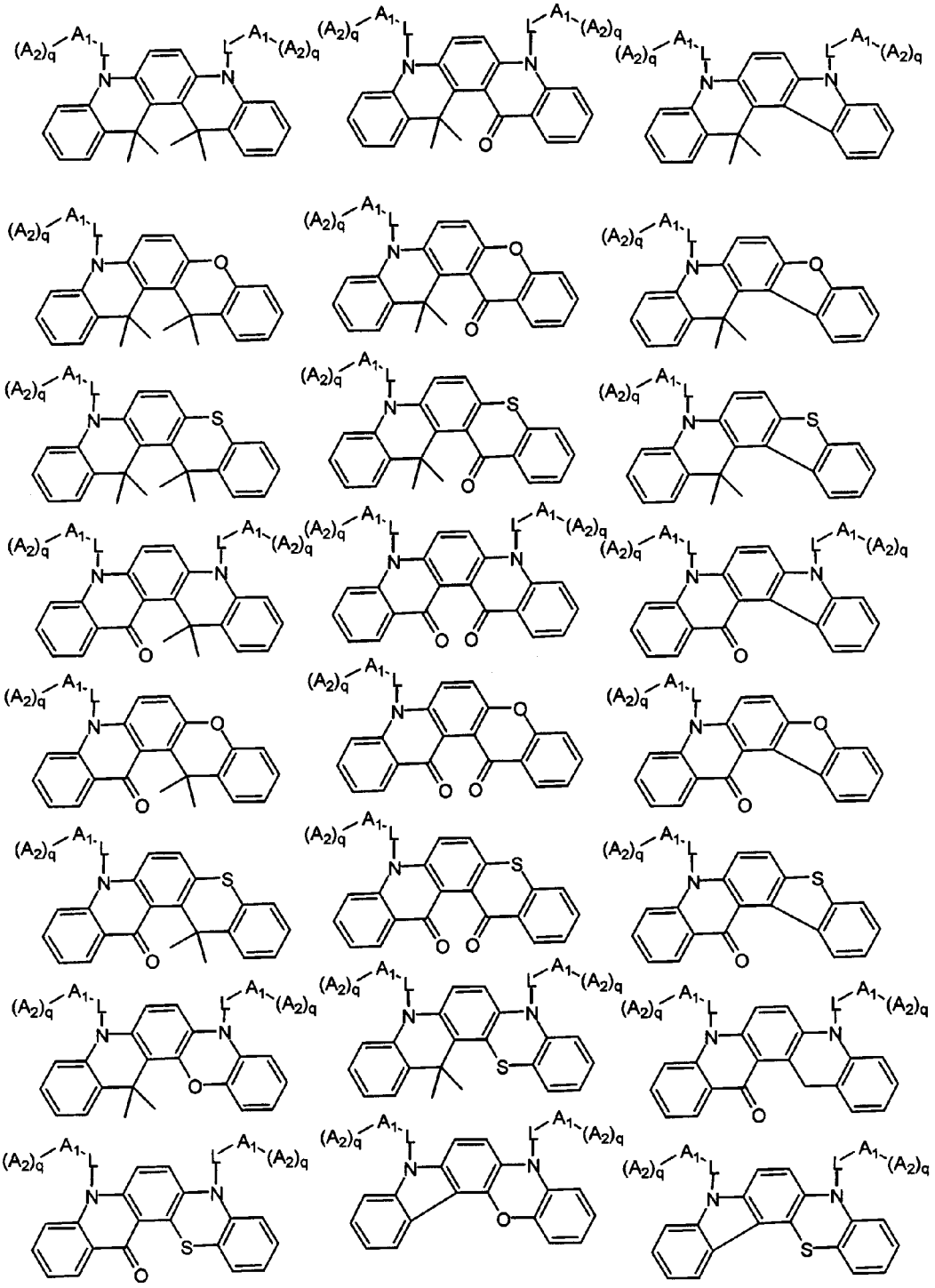
【化２】



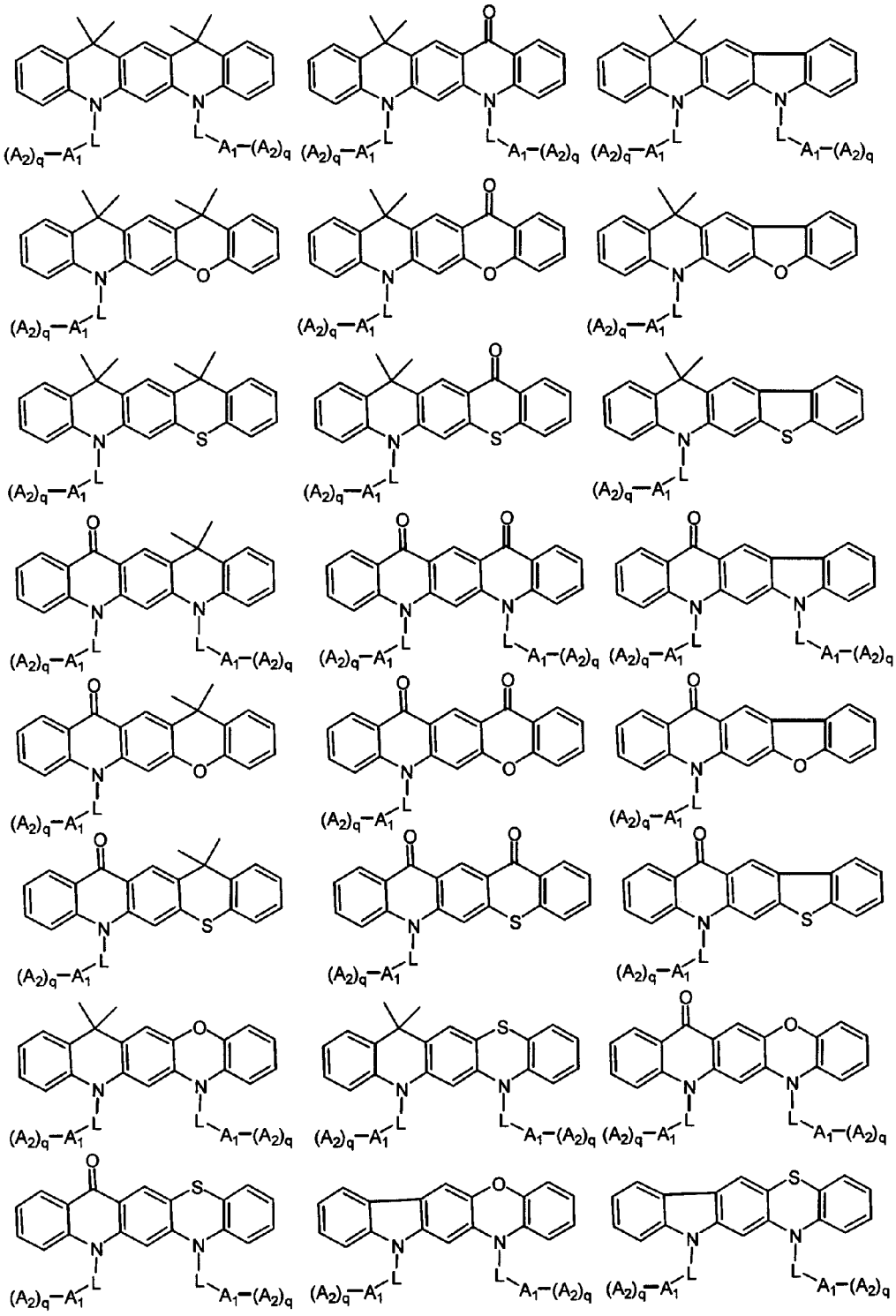
【化３】



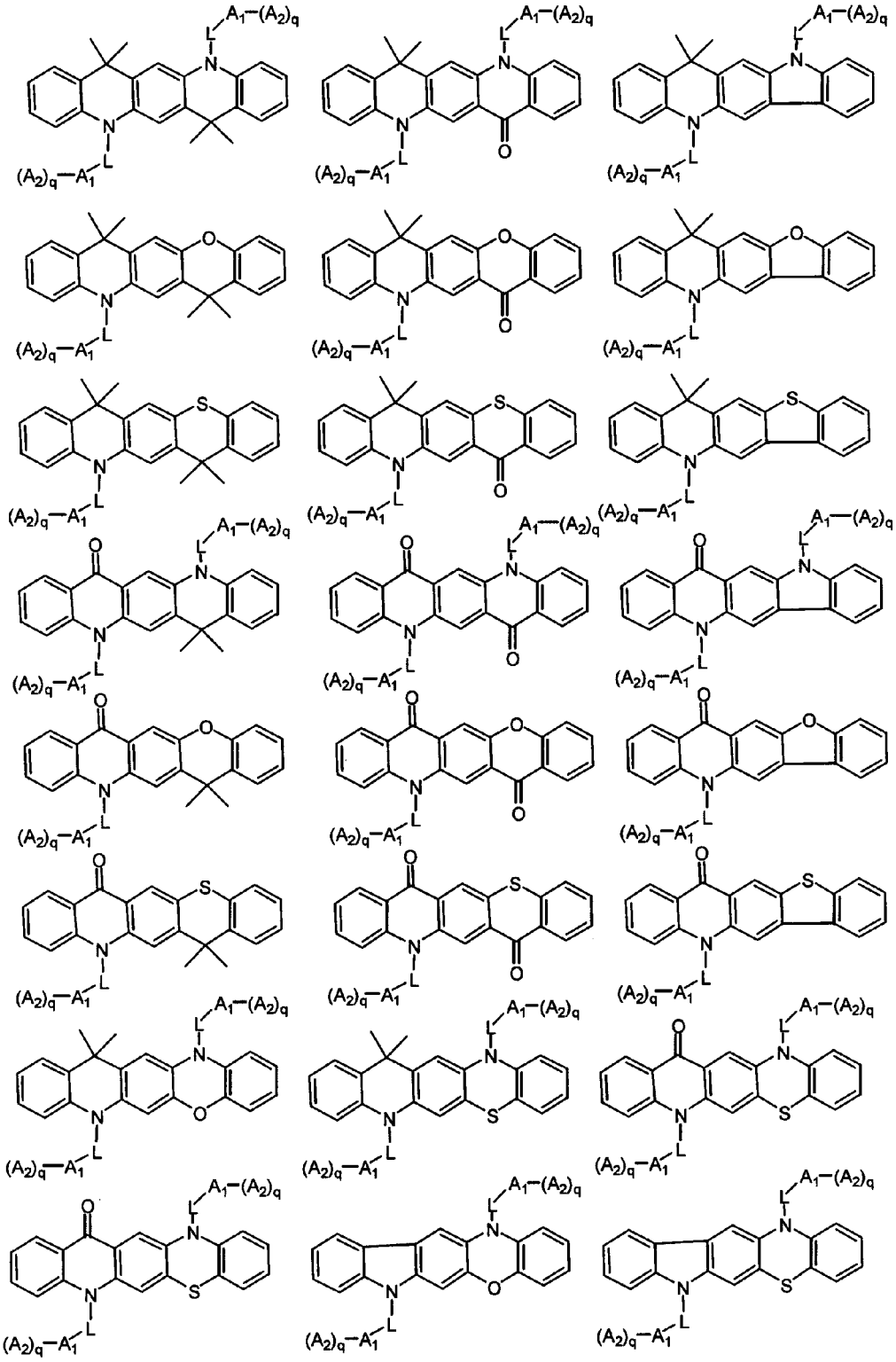
【化４】



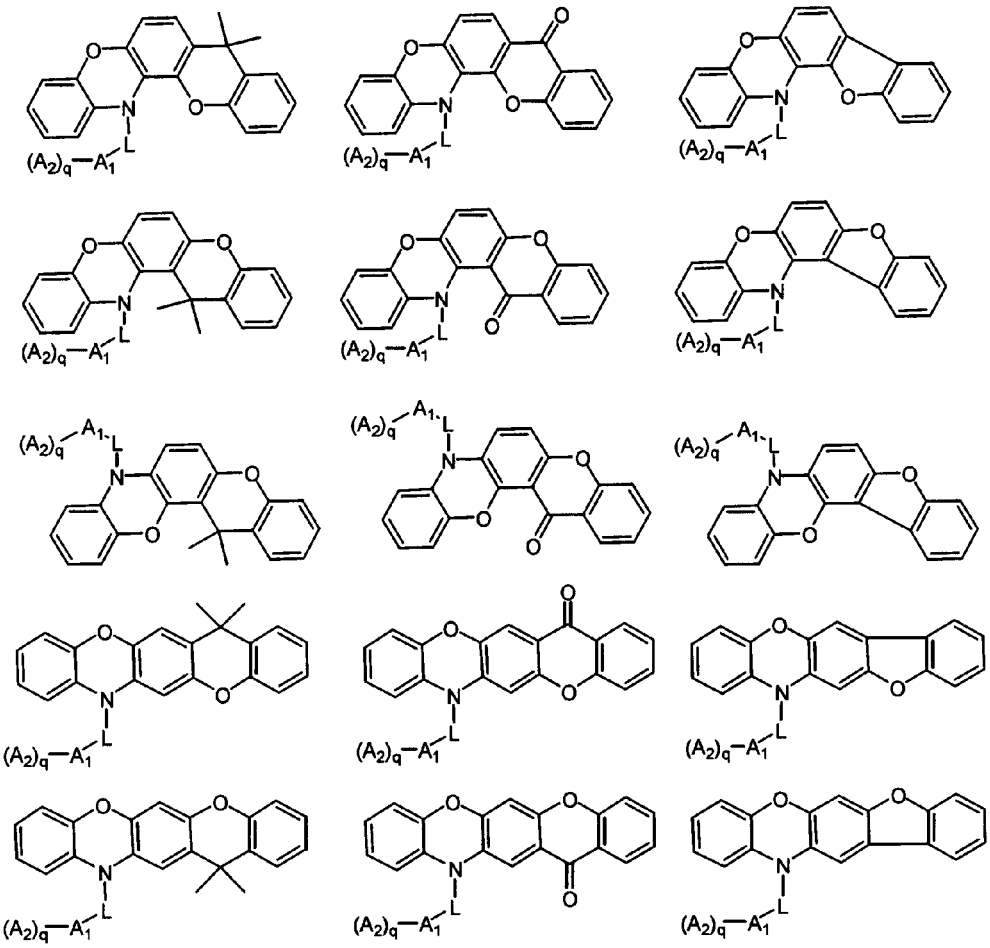
【化５】



【化６】



【化７】



［５］　前記一般式（１）、（２）及び（３）のいずれかで表わされる上記［１］～［４］のいずれかに記載の多環化合物。

［６］　A_1～A_4の少なくともいずれか１つが環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環化合物の残基を表す上記［１］～［５］のいずれかに記載の多環化合物。

［７］　A_1～A_4の少なくともいずれか１つが環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は置換もしくは無置換の含窒素複素環化合物の残基を表す上記［６］に記載の多環化合物。

［８］　A_1～A_4の少なくともいずれか１つが置換もしくは無置換の含窒素複素環化合物の残基を表す上記［７］に記載の多環化合物。

［９］　A_1～A_4の少なくともいずれか１つが置換もしくは無置換のピリジン、ピリミジン又はトリアジンの残基を表す上記［８］に記載の多環化合物。

［１０］　X_1及びX_2の少なくとも一方が、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表し、もう一方が、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、又は硫黄原子を表す上記［１］～［９］のいずれかに記載の多環化合物。

［１１］　X_3及びX_4が互いに独立して、単結合、－Ｃ（R_4）（R_5）－、又は－Ｃ（＝Ｏ）－を表す上記［１０］に記載の多環化合物。

［１２］　X_3及びX_4が互いに独立して、－Ｃ（R_4）（R_5）－、又は－Ｃ（＝Ｏ）－を表し、R_4及びR_5が互いに独立して、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルキル基を表す上記［１１］に記載の多環化合物。

［１３］　R_4及びR_5がメチル基を表す上記［１２］に記載の多環化合物。

［１４］　上記［１］～［１３］のいずれかに記載の多環化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

［１５］　陰極と陽極の間に発光層を含む複数の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも１層が上記［１４］に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
［１６］　前記発光層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含む上記［１５］に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
［１７］　前記発光層が燐光発光材料を含有する上記［１５］または［１６］に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
［１８］　前記燐光発光材料がイリジウム（Ｉｒ），オスミウム（Ｏｓ）及び白金（Ｐｔ）から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である上記［１７］に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
［１９］　前記陰極と前記発光層の間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含む上記［１５］～［１８］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。
［２０］　前記陰極と前記発光層の間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む上記［１５］～［１９］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。
［２１］　前記陽極と前記発光層の間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む上記［１５］～［１９］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。
［２２］　前記陰極と前記有機薄膜層との界面に還元性ドーパントが添加されてなる上記［１５］～［２１］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。

【発明の効果】

【０００９】

本発明によれば、発光効率が高く、長寿命である有機ＥＬ素子、及びそれを実現するための縮合多環化合物と、それを用いた有機ＥＬ素子用材料を提供することができる。

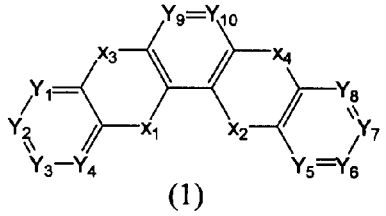
【発明を実施するための形態】

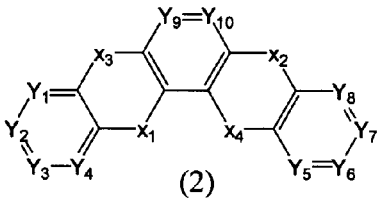
【００１０】

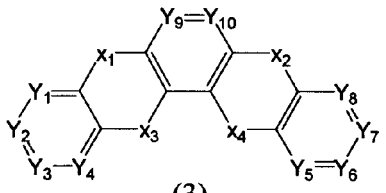
まず、本発明の縮合多環化合物について説明する。
本発明の縮合多環化合物は、下記一般式（１）～（５）のいずれかで表される。

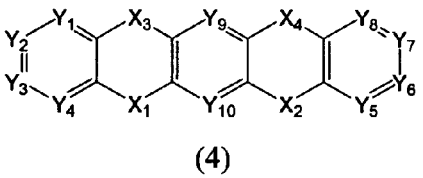
【００１１】

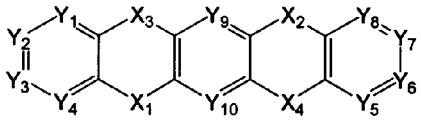
【化８】


(1)


(2)


(3)


(4)


(5)

【００１２】

前記一般式（１）～（５）において、X_1、X_2は互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、硫黄原子、－Ｓ（＝Ｏ）－又は－SO_2－を表し、好ましくは、互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子又は硫黄原子であり、さらに好ましくは、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－又は酸素原子である。

X_3、X_4は互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_2－A_3（－A_4）$_r$］－、酸素原子、硫黄原子、－Ｓ（＝Ｏ）－又は－SO_2－を表し、好ましくは、互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－又は－Ｃ（＝Ｏ）－である。ただし、X_3、X_4が同時に単結合を表す場合は無い。

Y_1～Y_{10}は互いに独立して、Ｃ（R_7）もしくは窒素原子を表し、好ましくは、Y_1～Y_{10}のうち、８個以上がＣ（R_7）であり、さらに好ましくは、９個以上がＣ（R_7）である。複数のＣ（R_7）は互いに同一であっても異なっていてもよい。

【００１３】

R_1～R_7は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、炭素数１～１０の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、炭素数６～３０の置換もしくは無置換のアリールシリル基、炭素数２～２０の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表す。また、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基が前記より除かれる場合が好ましい。さらには、R_1～R_7としては、互いに独立して、置換もしくは無置換の炭素数１～４のアルキル基もしくは環形成炭素数６～１８の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基であることが好ましく、特に、メチル基もしくはフェニル基であることが好ましい。

【００１４】
本発明の縮合多環化合物が、前記一般式（５）で表わされる場合、R_5、R_6は互いに独立して、フッ素原子、シアノ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、炭素数１～１０の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、炭素数６～３０の置換もしくは無置換のアリールシリル基、炭素数２～２０の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表すことが好ましい。
また、本発明の縮合多環化合物が、前記一般式（２）もしくは（４）で表され、X_3が－Ｃ（R_5）（R_6）－を、X_4が単結合をそれぞれ表す場合、R_5、R_6は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルキル基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、炭素数１～１０の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、炭素数６～３０の置換もしくは無置換のアリールシリル基、炭素数２～２０の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、環形成炭素数１２～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基（ただし、トリアジン環を除く）を表すことが好ましい。
【００１５】
R_1～R_7について具体例を以下に示す。
前記炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、ｓ－ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、ｎ－ヘプチル基、ｎ－オクチル基、ｎ－ノニル基、ｎ－デシル基、ｎ－ウンデシル基、ｎ－ドデシル基、ｎ－トリデシル基、ｎ－テトラデシル基、ｎ－ペンタデシル基、ｎ－ヘキサデシル基、ｎ－ヘプタデシル基、ｎ－オクタデシル基、ネオペンチル基、１－メチルペンチル基、２－メチルペンチル基、１－ペンチルヘキシル基、１－ブチルペンチル基、１－ヘプチルオクチル基、３－メチルペンチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、３，５－テトラメチルシクロヘキシル基などが挙げられる。
【００１６】
前記炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基などが挙げられる。
前記炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）のハロアルキル基としては、例えば、前記炭素数１～２０のアルキル基の水素原子の１つ以上がハロゲン原子で置換されたものが挙げられ、炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）のハロアルコキシ基としては、例えば、前記炭素数１～２０のアルコキシ基の水素原子の１以上がハロゲン原子で置換されたものが挙げられる。
前記炭素数１～１０（好ましくは炭素数１～４）のアルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基、ジメチルエチルシリル基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチルプロピルシリル基、ジメチルブチルシリル基、ジメチルターシャリーブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基などが挙げられる。
前記炭素数６～３０（好ましくは炭素数６～１２）の置換もしくは無置換のアリールシリル基としては、例えば、フェニルジメチルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、ジフェニルターシャリーブチルシリル基、トリフェニルシリル基などが挙げられる。
前記炭素数２～２０（好ましくは炭素数２～８）の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基としては、例えば、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ－ｎ－プロピルアミ

ノ基などが挙げられる。
前記炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基としては、例えば、ジフェニルアミノ基、Ｎ－フェニル－Ｎ－（１－ナフチル）アミノ基、Ｎ－フェニル－Ｎ－（２－ナフチル）アミノ基などが挙げられる。
【００１７】
前記環形成炭素数６～３０（好ましくは環形成炭素数６～２４、さらに好ましくは環形成炭素数６～１８）の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基などが挙げられる。
前記環形成炭素数１０～３０（好ましくは環形成炭素数１０～２０）の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基としては、例えば、ナフチル基、フェナントリル基、ナフタセニル基、ピレニル基、ベンゾフェナントリル基、ジベンゾフェナントリル基、ベンゾクリセニル基、ジベンゾクリセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ジベンゾトリフェニレニル基、ピセニル基、ベンゾピセニル基、ジベンゾピセニル基、フルオレニル基などが挙げられる。
前記環形成炭素数１～３０（好ましくは環形成炭素数２～１８、さらに好ましくは環形成炭素数３～１５）の置換もしくは無置換の複素環基としては、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、チエニル基、及びピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、インドール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサン環、ピペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、イソキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環、ジヒドロアクリジン環、フェノキサジン環、テトラジン環、アザトリフェニレン環、カルボリン環、イミダゾピリジン環から形成される芳香族複素環基や非芳香族複素環基が挙げられる。
【００１８】
L_1、L_2は、互いに独立して、単結合、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の二価の複素環基を表す。
L_1、L_2は、好ましくは、単結合、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基である。
L_1、L_2の具体例としては、R_1～R_7として挙げられた対応する基を二価基としたものが挙げられる。
【００１９】
A_1、A_3は互いに独立して、炭素数１～２０の置換もしくは無置換の飽和脂肪族炭化水素化合物、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素化合物、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環化合物のｑ＋１価又はｒ＋１価の残基を表す。
A_1、A_3は、好ましくは、置換もしくは無置換のベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、フェナントレン、ナフタセン、フルオランテン、ベンゾフルオランテン、トリフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、カルバゾール又はジベンゾフランから形成される残基である。
A_2、A_4は互いに独立して、環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香

族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環基を表し、それぞれ、上述の非縮合芳香族炭化水素化合物、縮合芳香族炭化水素化合物、又は複素環化合物から形成される１価の基が用いられる。

A_2、A_4は、好ましくは、置換もしくは無置換のベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、フェナントレン、ナフタセン、フルオランテン、ベンゾフルオランテン、トリフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、カルバゾール又はジベンゾフランから形成される基である。

【００２０】

前記環形成炭素数６～３０の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素化合物としては、例えば、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、クォーターフェニルなどが挙げられる。

前記環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素化合物としては、例えば、ナフタレン、フェナントレン、ナフタセン、ピレン、ベンゾフェナントレン、ジベンゾフェナントレン、ベンゾクリセン、ジベンゾクリセン、フルオランテン、ベンゾフルオランテン、トリフェニレン、ベンゾトリフェニレン、ジベンゾトリフェニレン、ピセン、ベンゾピセン、ジベンゾピセンなどが挙げられる。

前記環形成炭素数１～３０の置換もしくは無置換の複素環化合物としては、ピロール、ピラジン、ピリジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インドール、イソインドール、フラン、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、カルバゾール、フェナントリジン、アクリジン、フェナントロリン、チオフェン、ピロリジン、ジオキサン、ピペリジン、モルフォリン、ピペラジン、オキサゾール、イソキサゾール、オキサジアゾール、ベンゾオキサゾール、チアゾール、イソチアゾール、チアジアゾール、ベンゾチアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ベンゾイミダゾール、ピラン、ジベンゾフラン、ジヒドロアクリジン、フェノキサジン、テトラジン、アザトリフェニレン、カルボリン、イミダゾピリジンなどが挙げられる。

【００２１】

ｑ、ｒは互いに独立して０～１０の整数を表し、好ましくは、互いに独立して、０～５であり、より好ましくは２～５である。

【００２２】

前記した各基が置換基を有する場合の置換基としては、フッ素原子、シアノ基、炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数１～２０の置換もしくは無置換のハロアルキル基、炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～４）の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、炭素数１～１０（好ましくは炭素数１～４）の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、炭素数６～３０（好ましくは炭素数６～１２）の置換もしくは無置換のアリールシリル基、炭素数２～２０（好ましくは炭素数２～８）の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、環形成炭素数６～３０（好ましくは環形成炭素数６～１８）の置換もしくは無置換の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０（好ましくは環形成炭素数１０～２０）の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１～３０（好ましくは環形成炭素数３～１８）の置換もしくは無置換の複素環基が挙げられ、その具体的例示は、前記に従う。ただし、炭素数１２～２０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基は除かれることが好ましい。

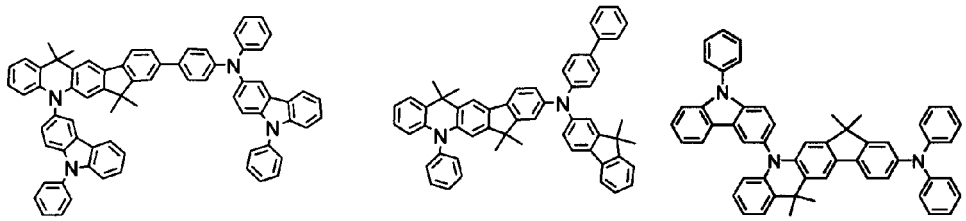
【００２３】

本発明の縮合多環化合物の分子量は３０００以下であることが好ましく、２０００以下であることがより好ましく、１５００以下であることがさらに好ましい。

【００２４】

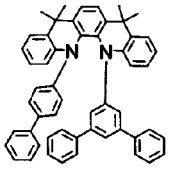
また、本発明の縮合多環化合物からは、以下の化合物は除かれる。

【００２５】
【化９】



【００２６】
本発明の縮合多環化合物としては、前記一般式（１）、（２）又は（３）で表わされるものが好ましい。
また、本発明の縮合多環化合物としては、より具体的には以下の規定を満たすものが挙げられる。
【００２７】
前記一般式（１）～（５）において、X_1、X_2が互いに独立して、－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－、酸素原子、又は硫黄原子を表し、（ただし、X_1及びX_2の少なくとも一方は－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表す。）
X_3、X_4が互いに独立して、単結合、－Ｎ（R_4）－、－Ｃ（R_5）（R_6）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、酸素原子、又は硫黄原子を表し、（ただし、X_3及びX_4が同時に単結合を表わすことは無い。）
Y_1～Y_{10}は互いに独立して、Ｃ（R_7）を表し、
R_1～R_7は互いに独立して、水素原子、フッ素原子、シアノ基、又は炭素数１～２０のアルキル基を表し、
L_1、L_2は互いに独立して、単結合、又は環形成炭素数６～３０の二価の非縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１０～３０の置換もしくは無置換の二価の縮合芳香族炭化水素環基を表し、
A_1、A_3は互いに独立して、環形成炭素数６～３０の非縮合芳香族炭化水素化合物、環形成炭素数１０～３０の縮合芳香族炭化水素化合物、又は環形成炭素数１～３０の複素環化合物のｑ＋１価又はｒ＋１価の残基を表し、
A_2、A_4は、環形成炭素数６～３０の非縮合芳香族炭化水素環基、環形成炭素数１０～３０の縮合芳香族炭化水素環基、又は環形成炭素数１～３０の複素環基を表し、
ｑは０～５の整数を表し、好ましくは２～５の整数を表す。
【００２８】
上記一般式（１）～（５）において、X_1及びX_2が互いに異なる二価基であることが好ましく、より具体的には、X_1及びX_2の一方のみが－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表し、他方が－Ｎ（R_1）－、－Ｃ（R_2）（R_3）－、－Ｃ（＝Ｏ）－、酸素原子、又は硫黄原子を表すか、もしくは、互いに独立したX_1、X_2が－Ｎ［－L_1－A_1（－A_2）$_q$］－を表すがそれが同一でない場合、共に縮合多環化合物の分子構造の対称性が低くなるため、結晶化の観点から好ましい。
X_1及びX_2が互いに異なる二価基である本発明の縮合多環化合物の例としては、以下に示す化合物が挙げられる。
【００２９】

【化１０】

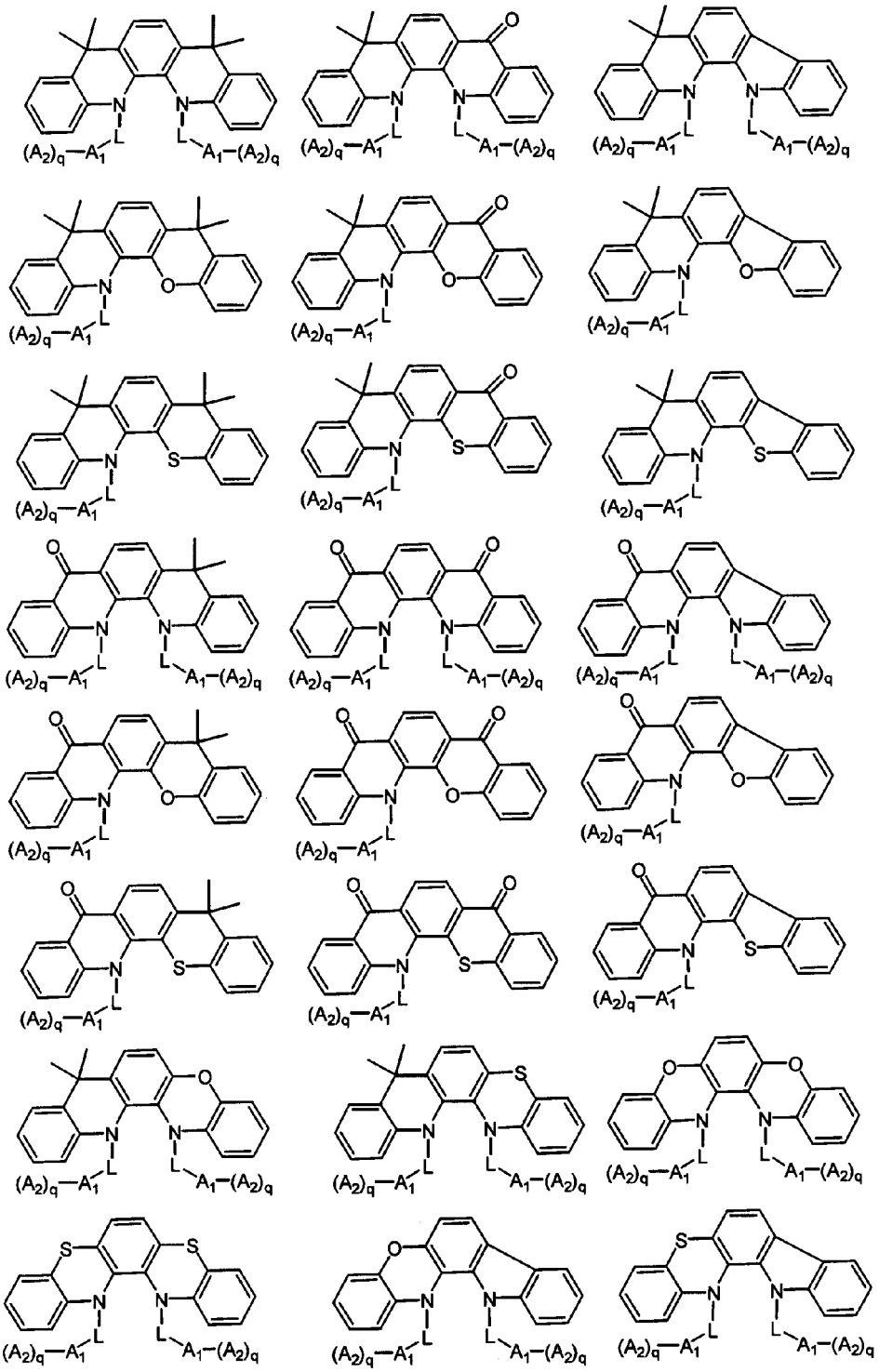


【００３０】

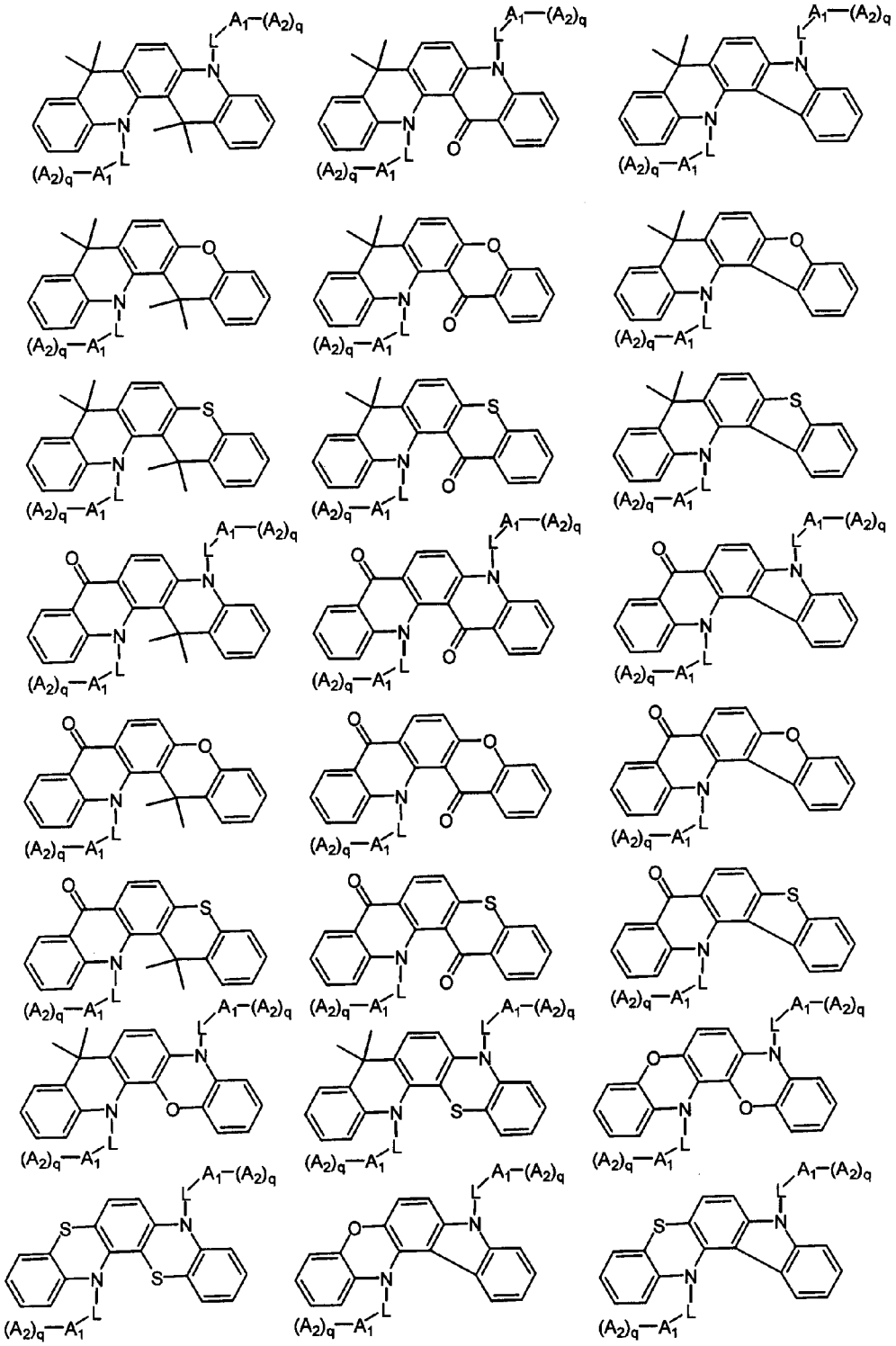
一般式（１）～（５）で表される本発明の縮合多環化合物としては、以下に示す部分構造を有し、かつ、A_1～A_4の少なくともいずれか（より好ましくは全て）が置換もしくは無置換のベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、フェナントレン、ナフタセン、フルオランテン、ベンゾフルオランテン、トリフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、カルバゾール、又はジベンゾフランから形成される残基であることが好ましい。

尚、下記部分構造を有する本発明の縮合多環化合物は、前記一般式（１）～（５）で表される構造を部分的に有するものであって、ベンゼン環の各環形成炭素上のR_7は、水素原子以外の前述の各種置換基であってもよい。

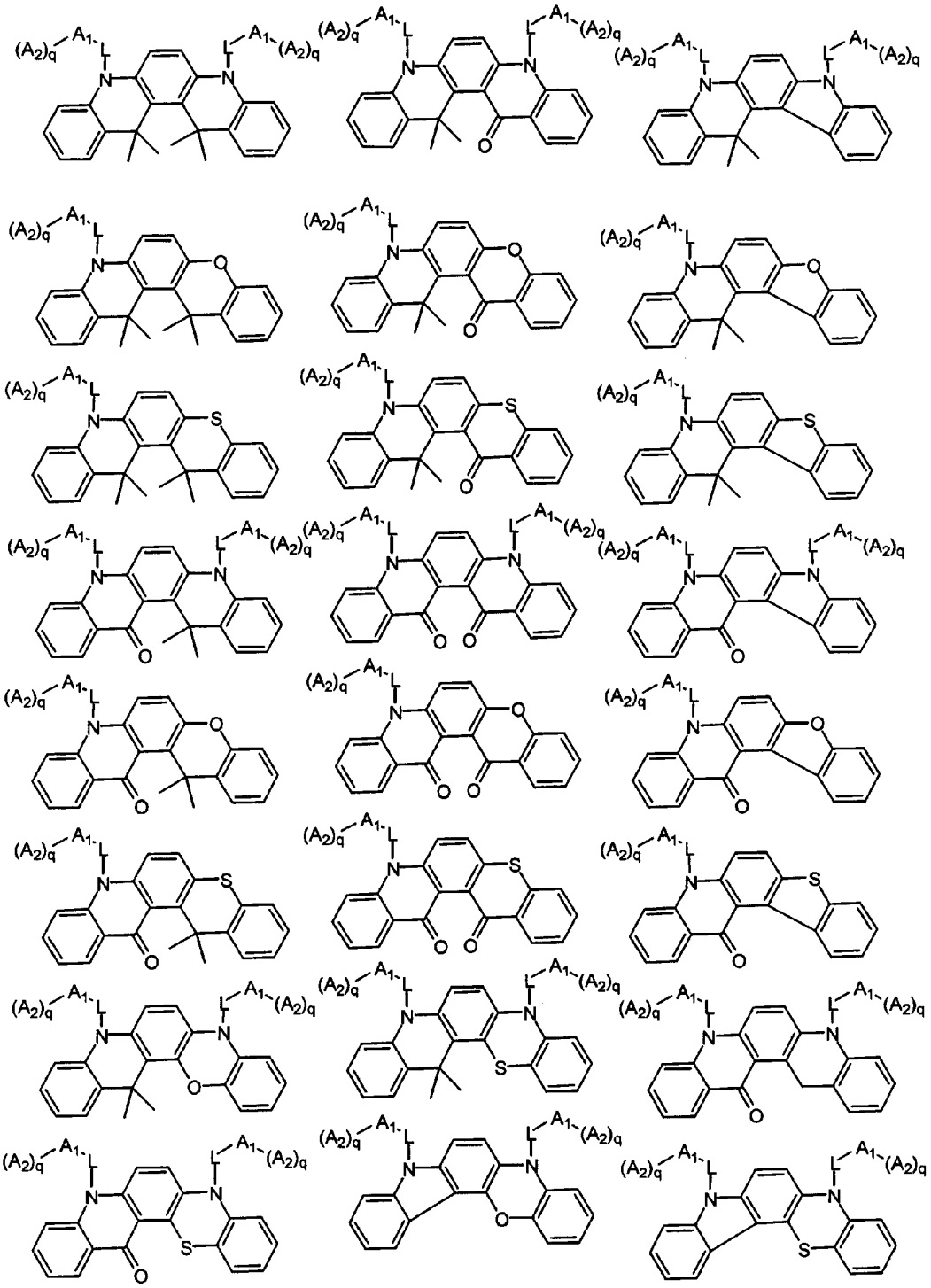
【化１１】



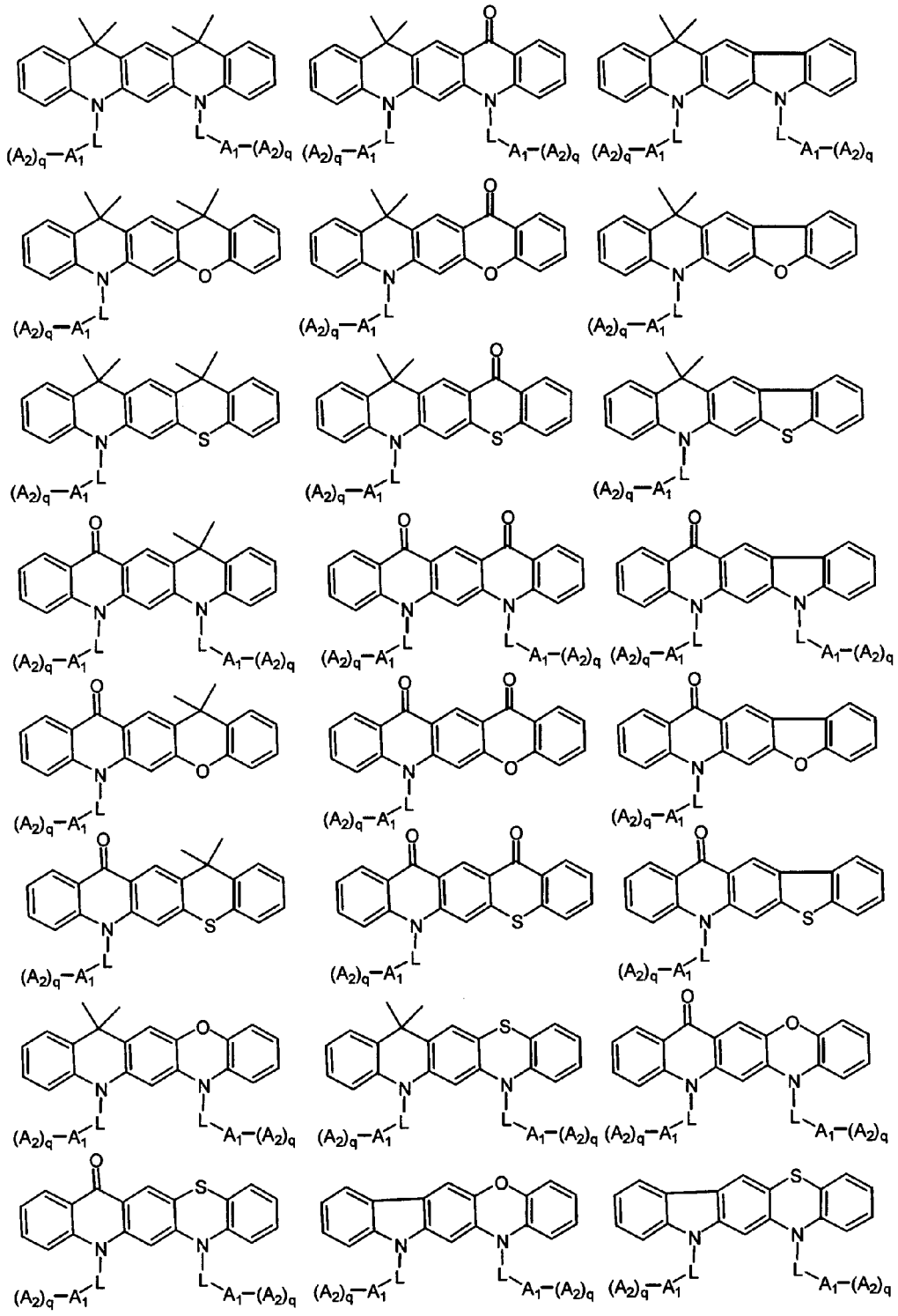
【化１２】



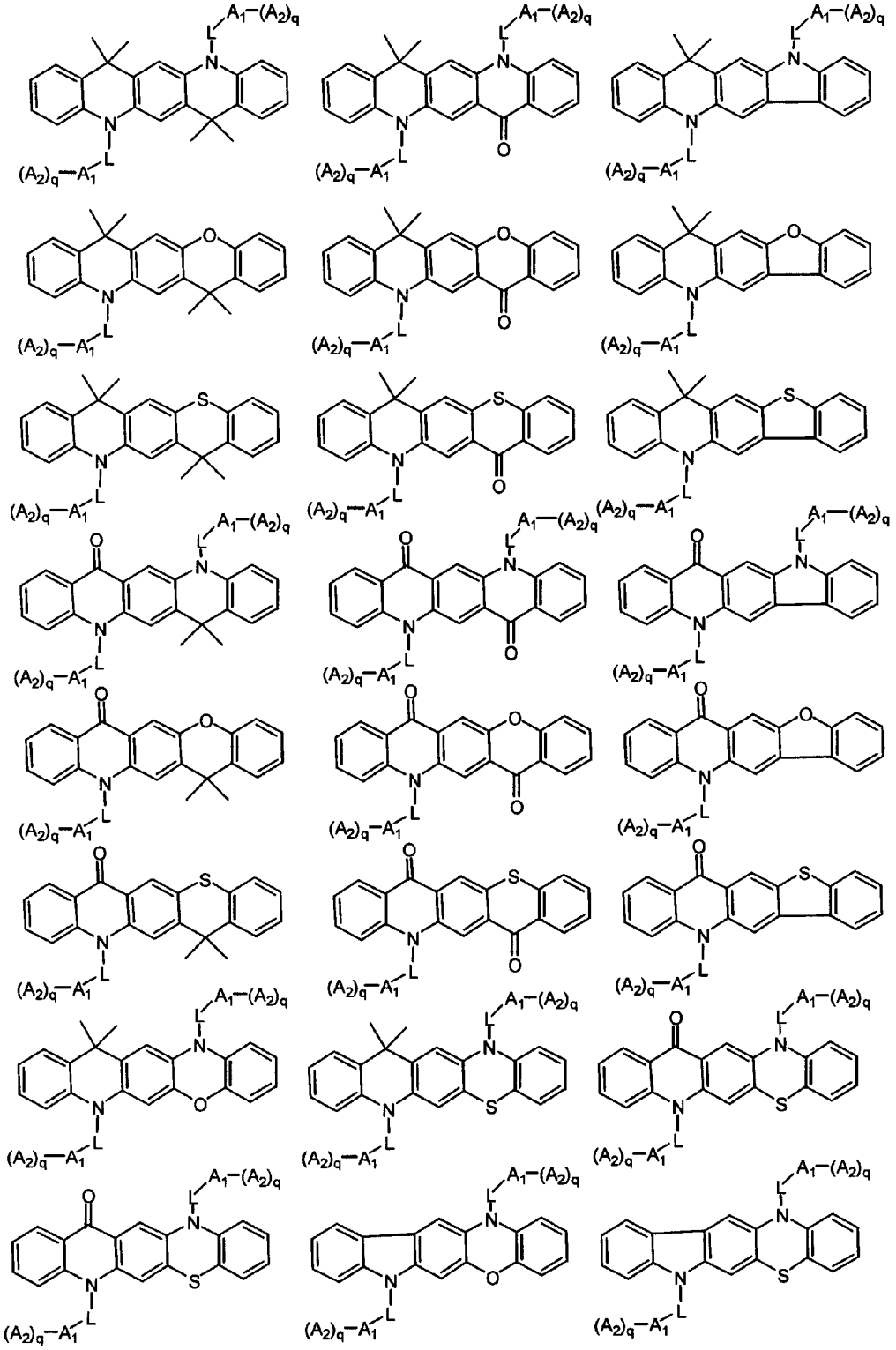
【化１３】



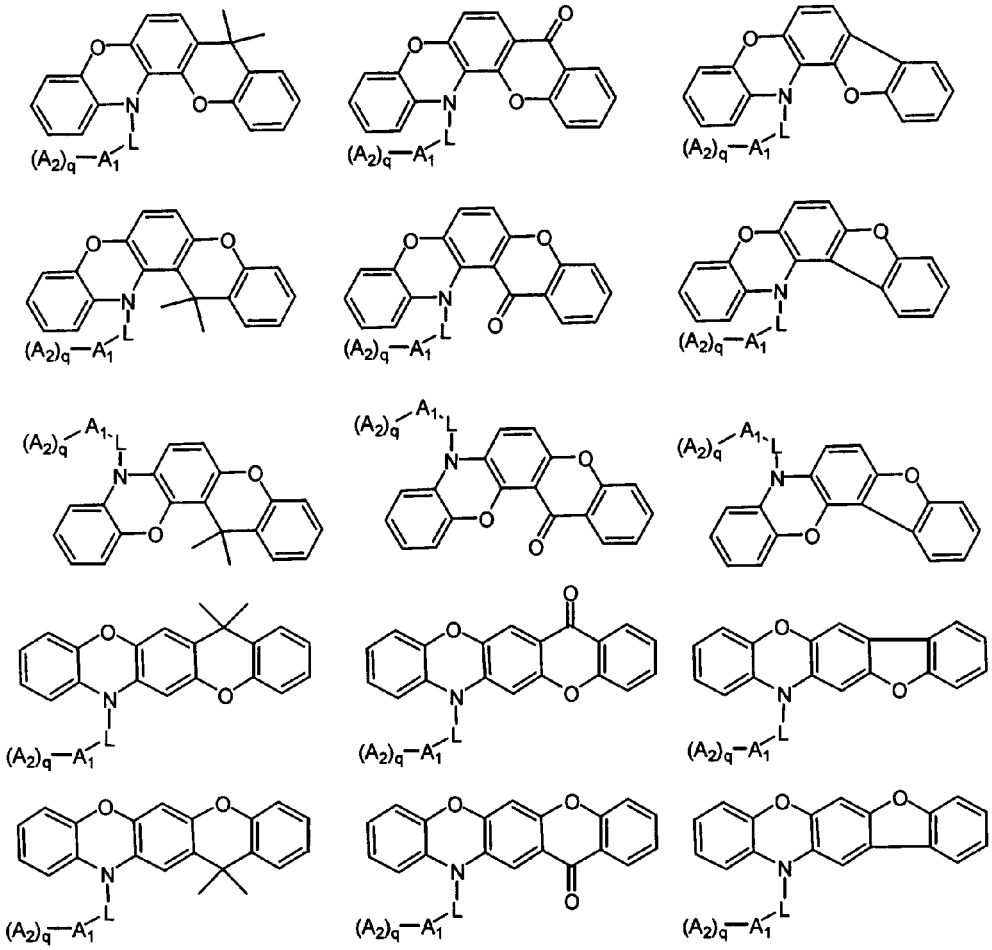
【化１４】



【化１５】



【化１６】

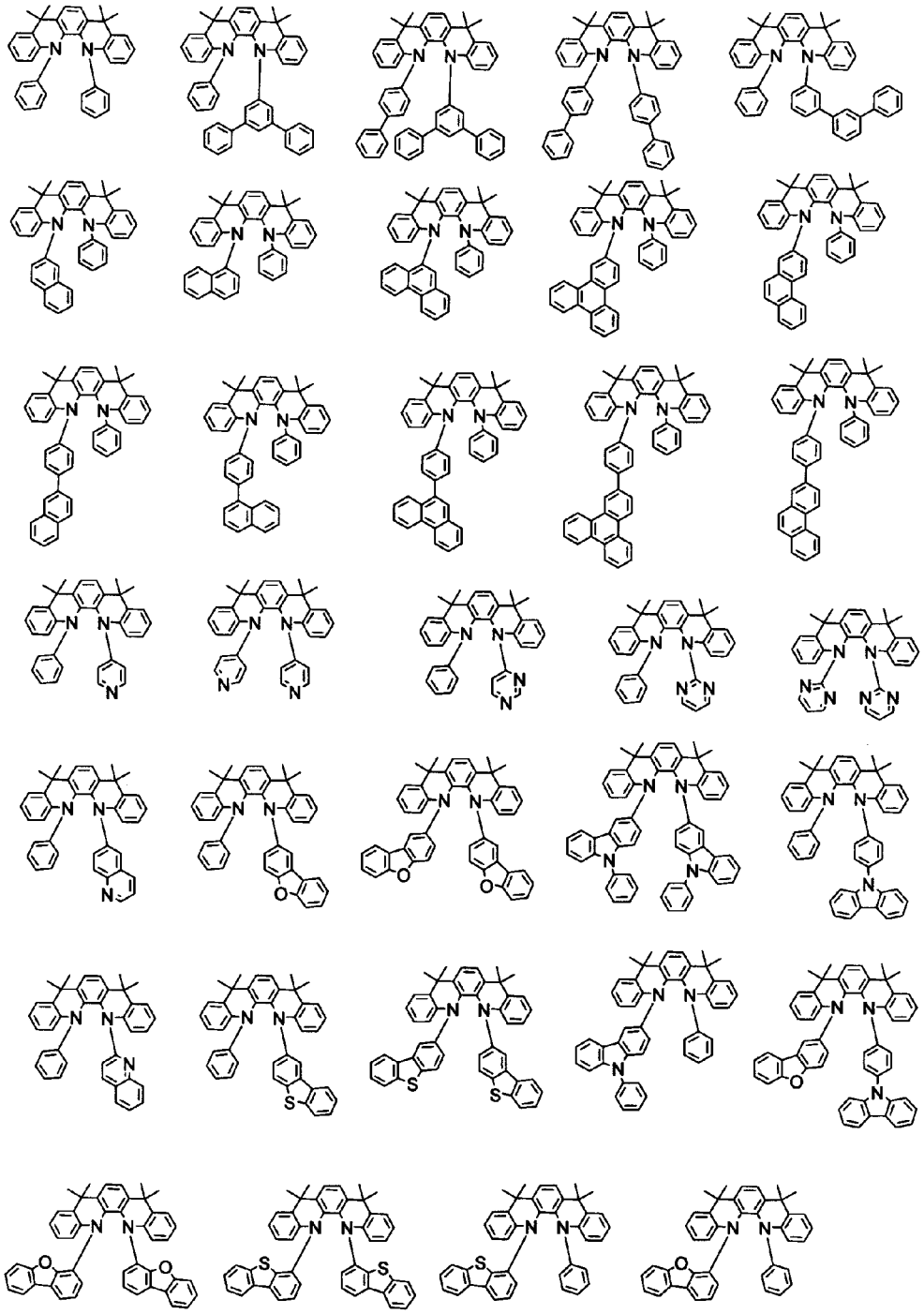


【００３１】

前記一般式（１）～（５）で表される本発明の縮合多環化合物の具体例を以下に示すが、本発明の化合物はこれらの例示化合物に限定されるものではない。

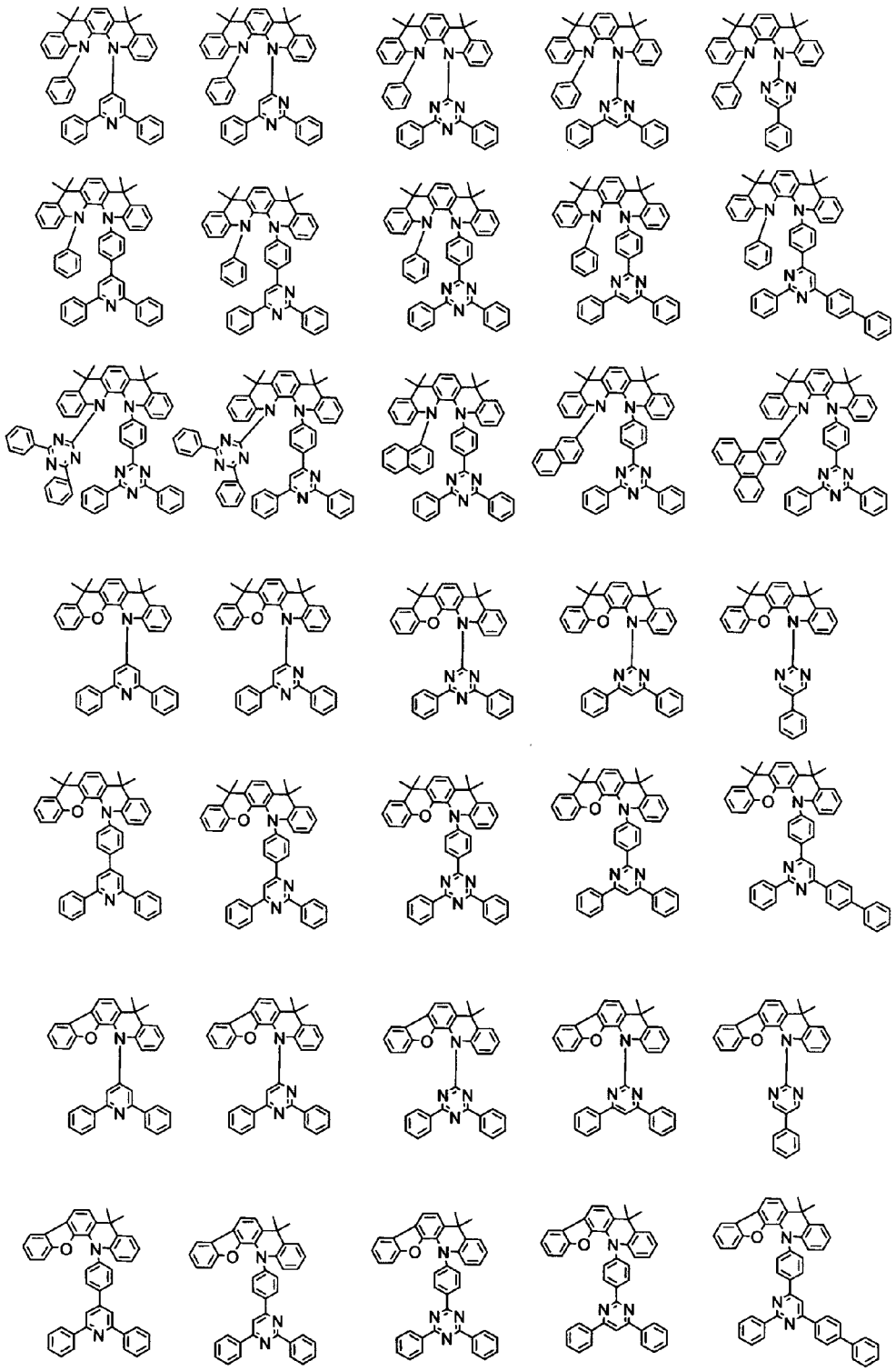
【００３２】

【化１７】



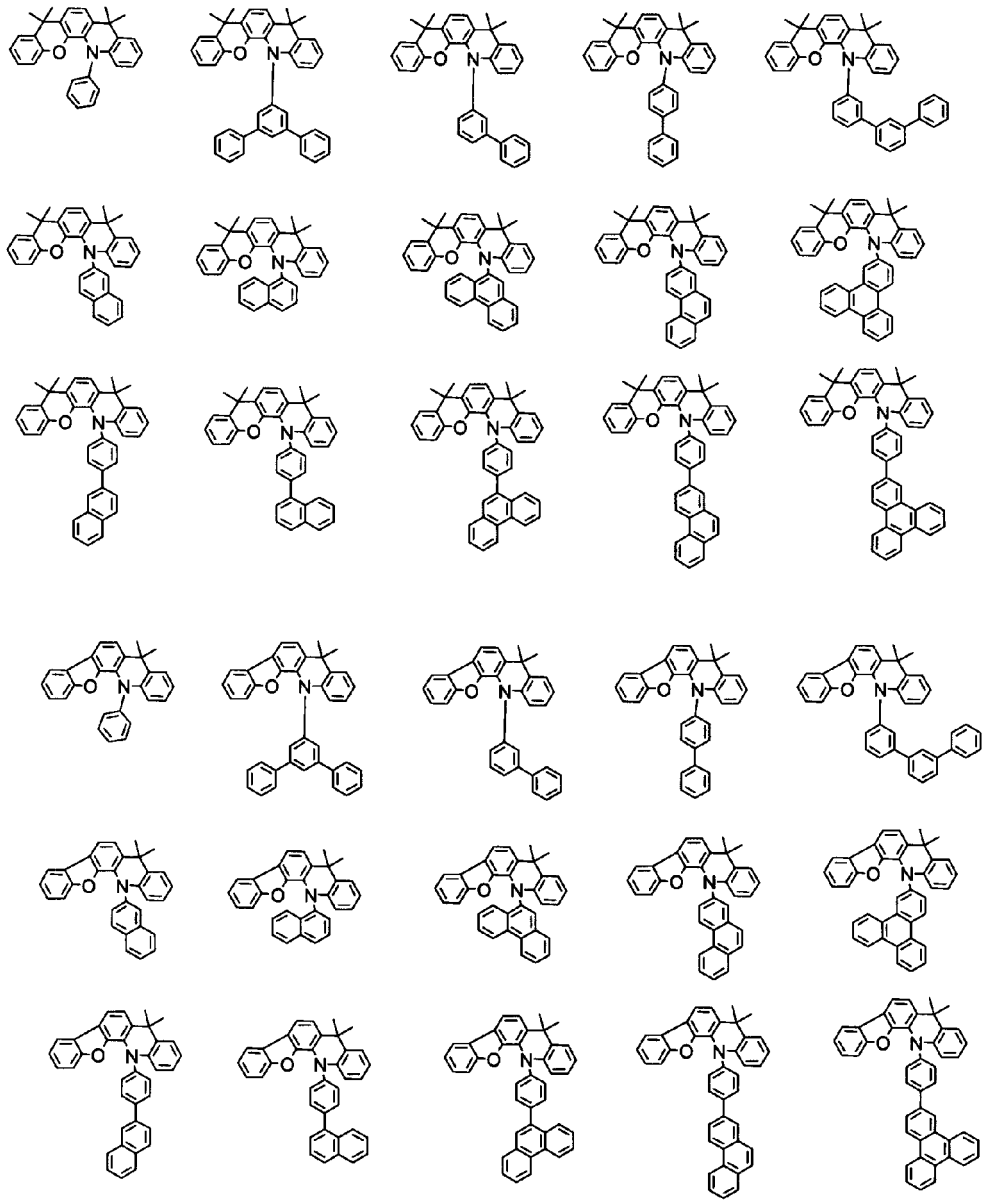
【００３３】

【化１８】



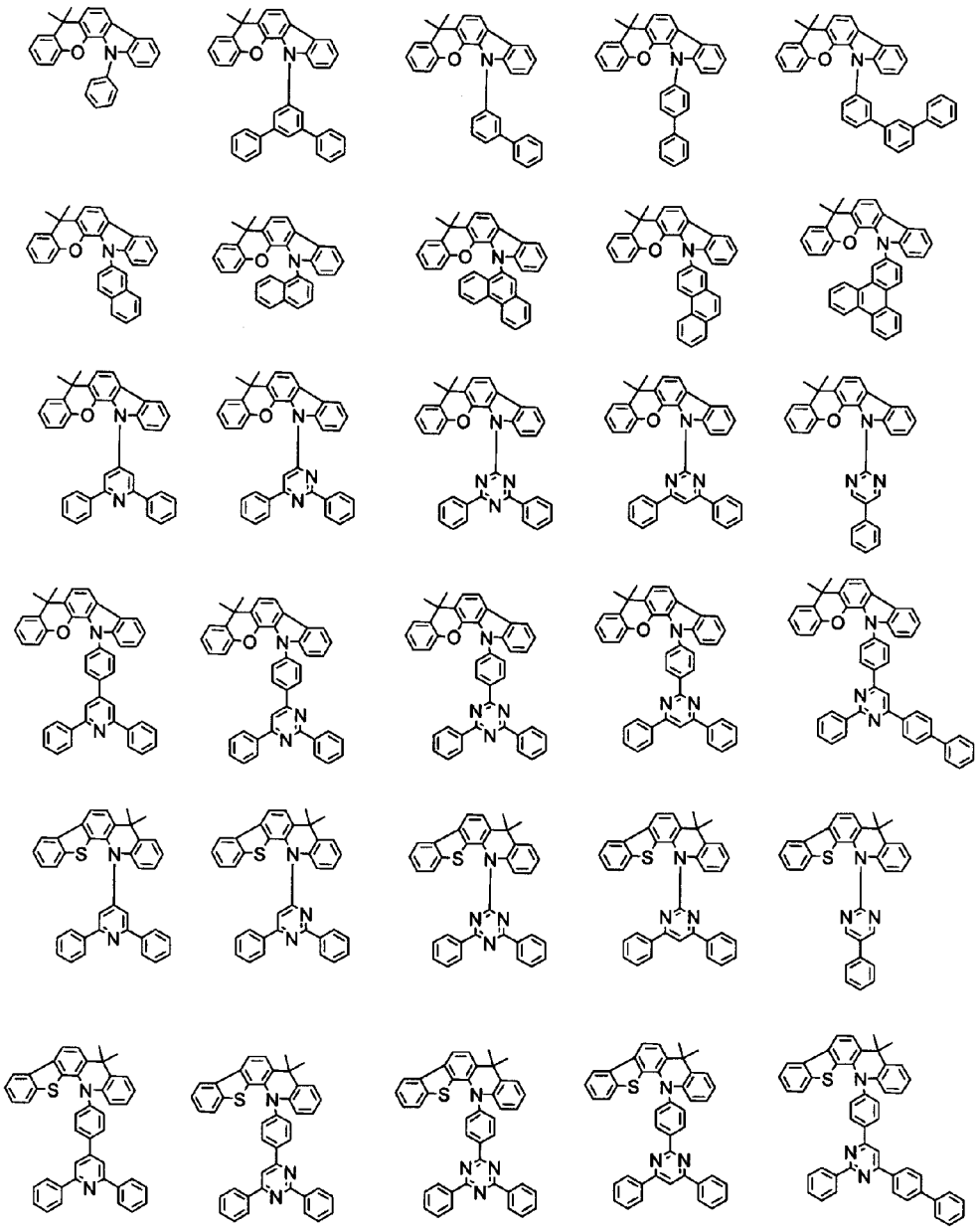
【００３４】

【化１９】



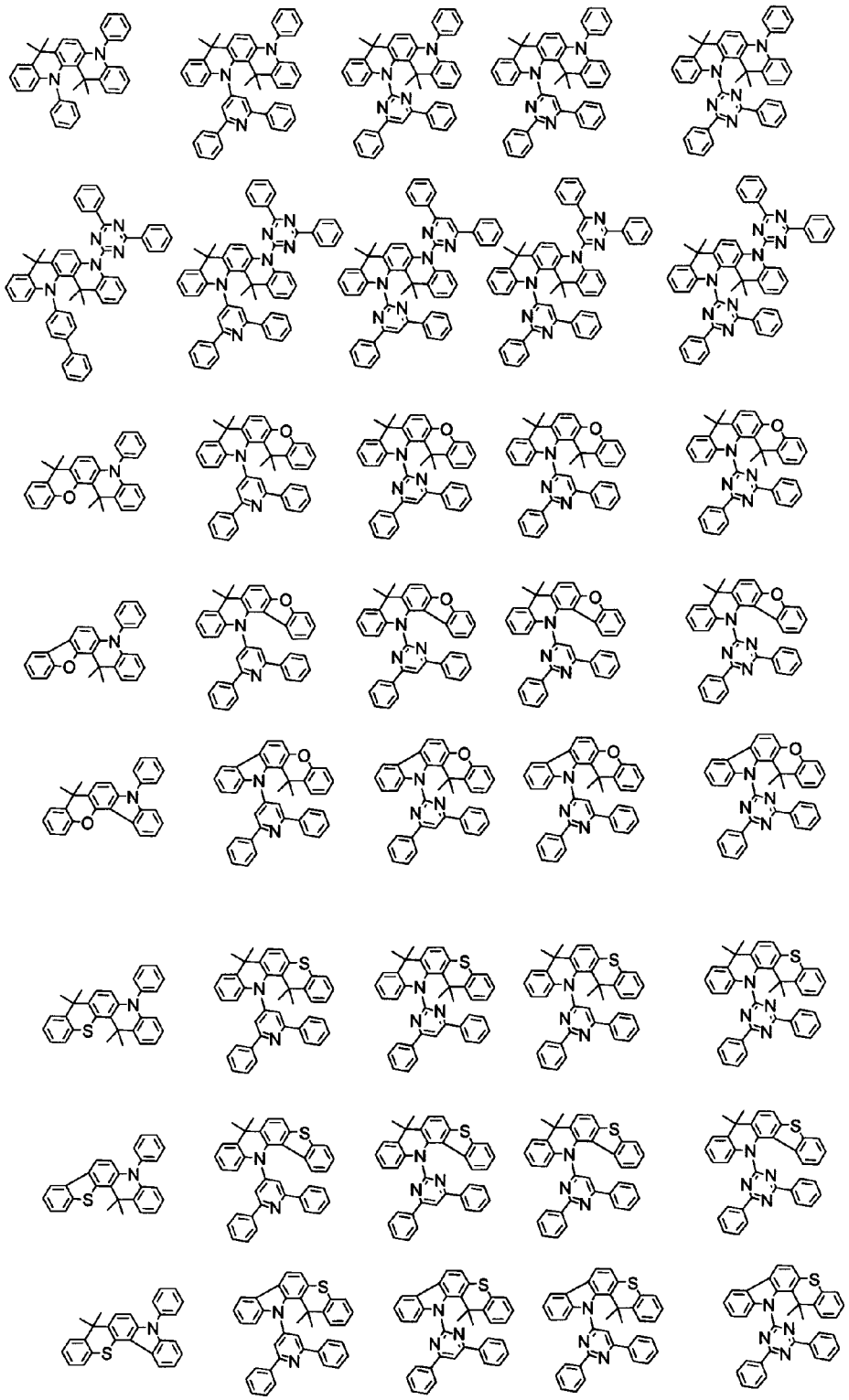
【００３５】

【化２０】



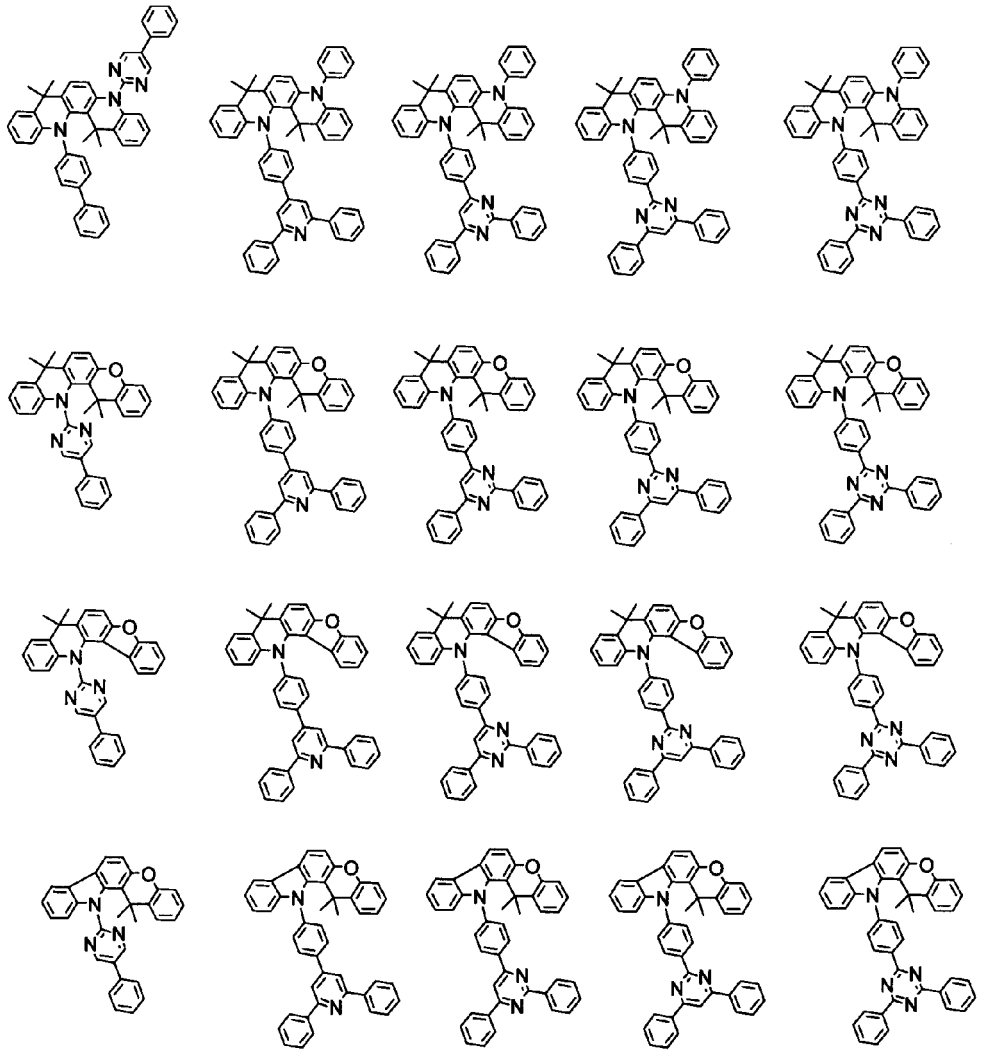
【００３６】

【化２１】



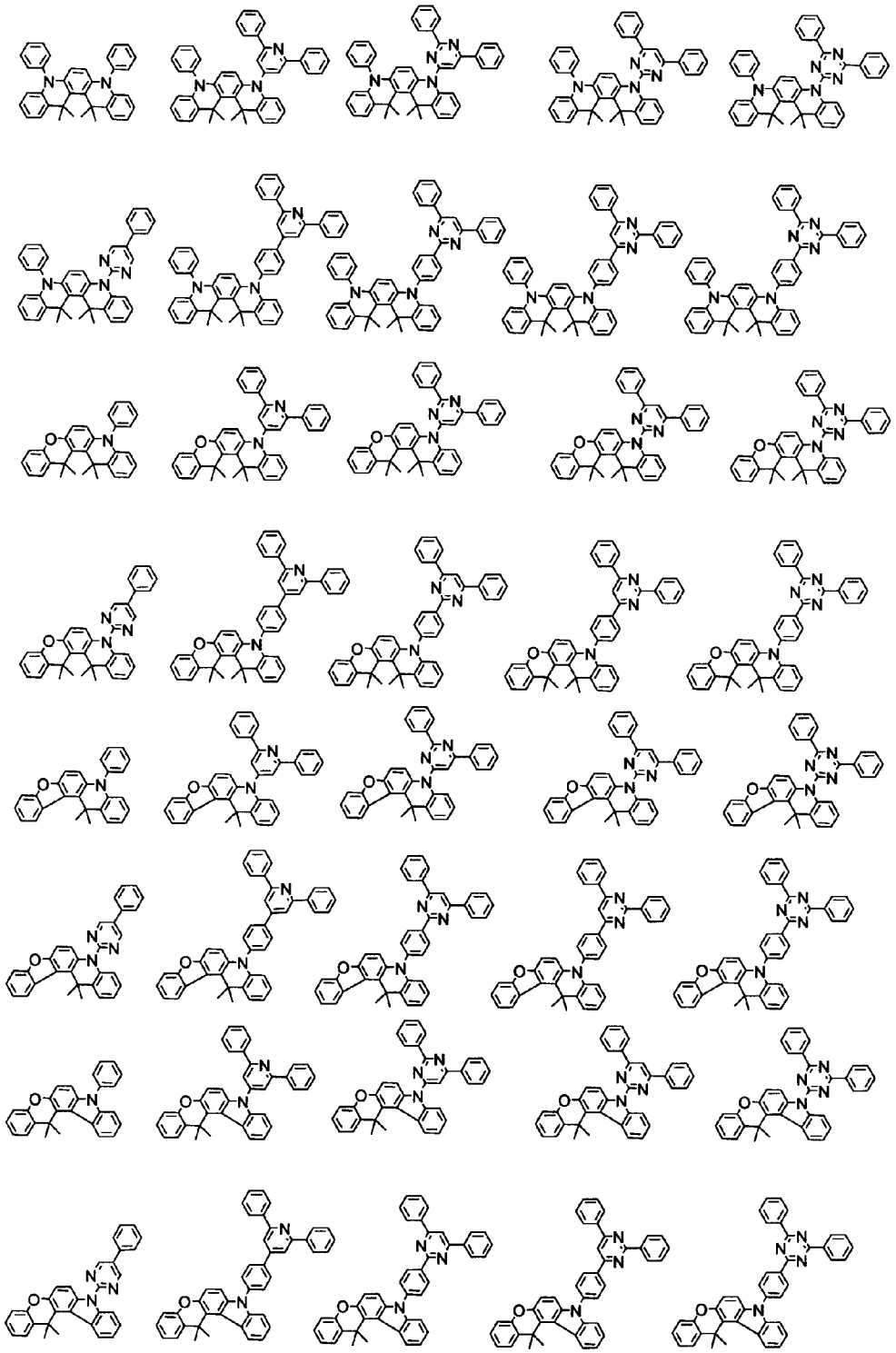
【００３７】

【化２２】



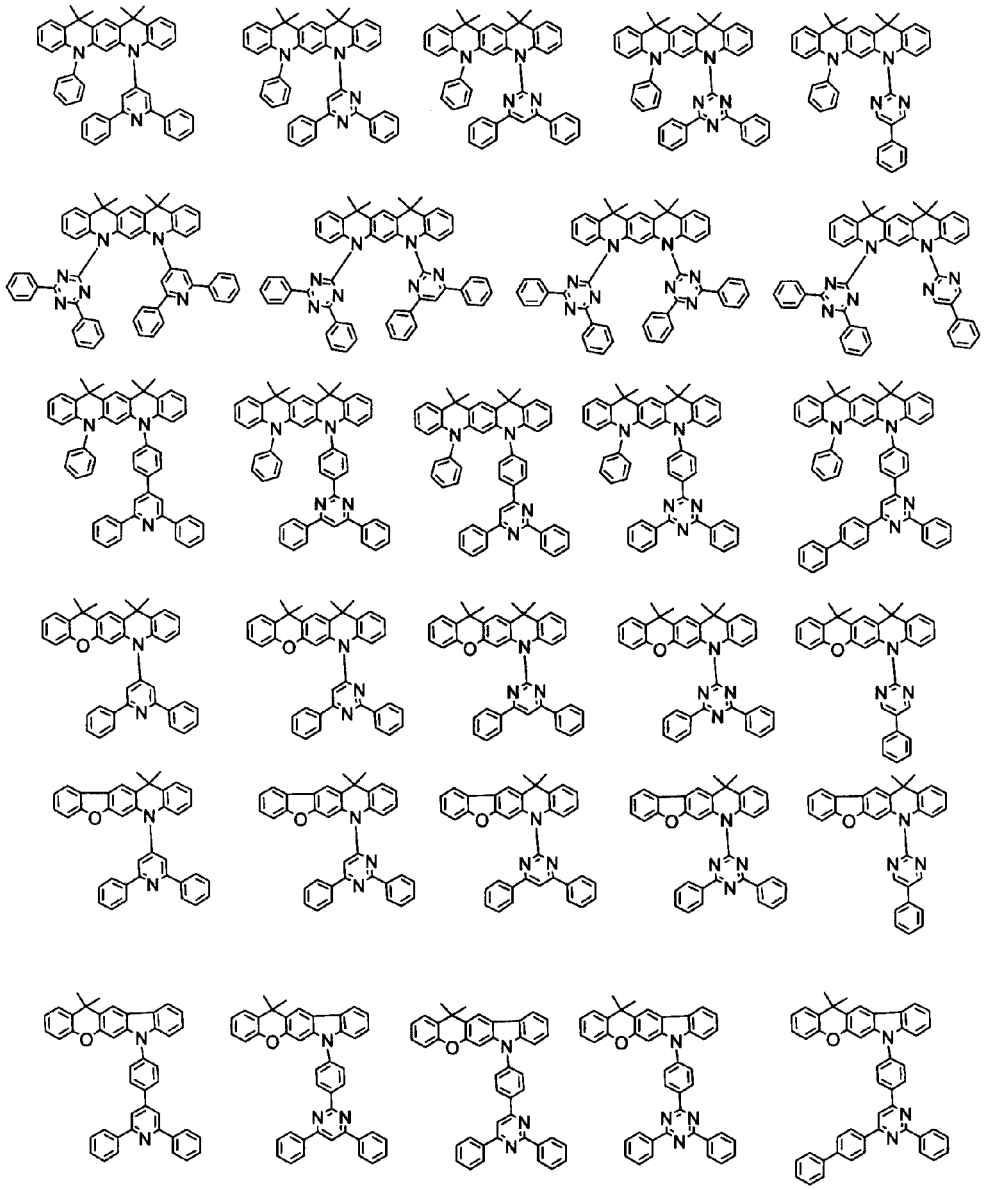
【００３８】

【化２３】



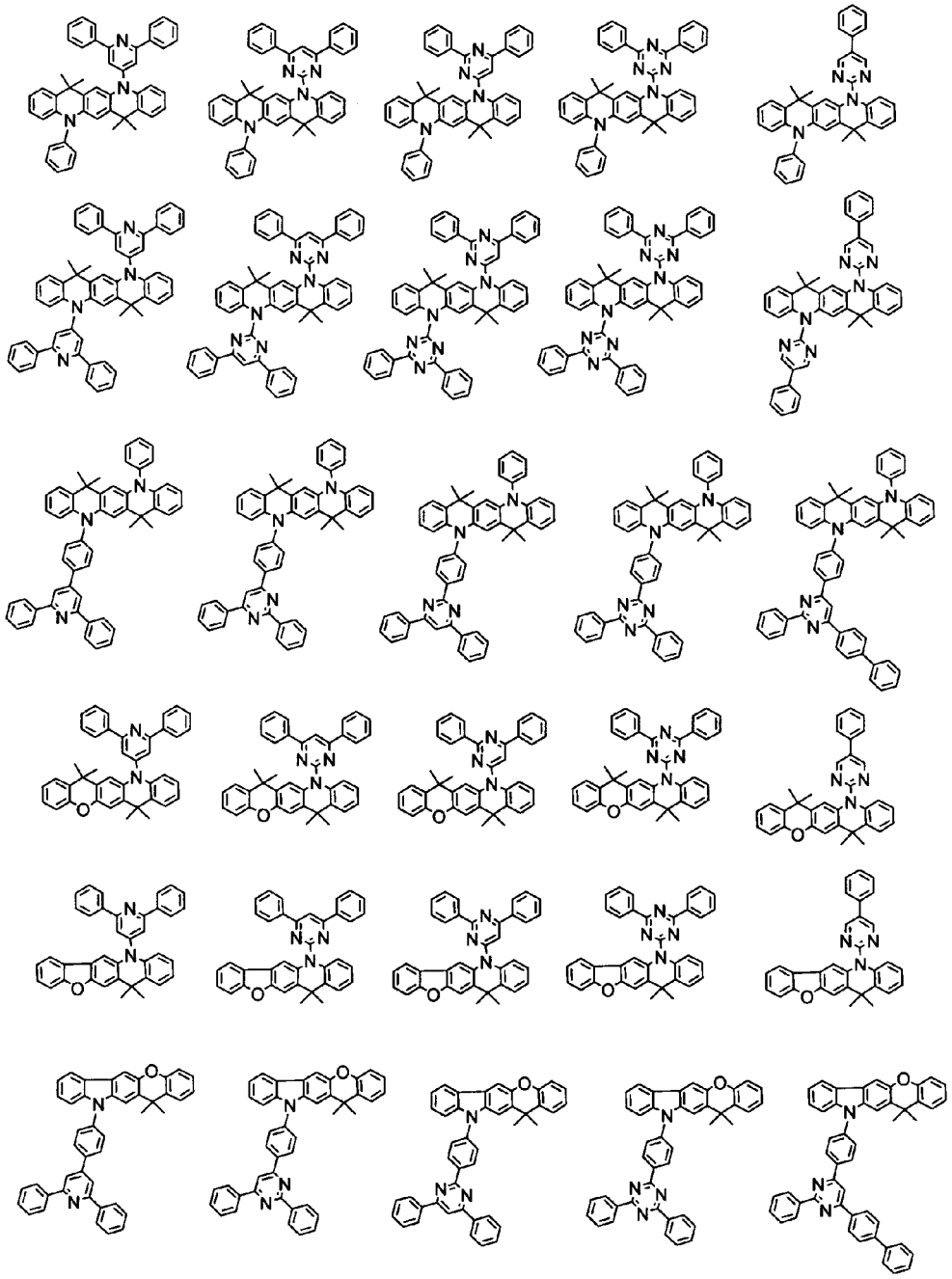
【００３９】

【化２４】



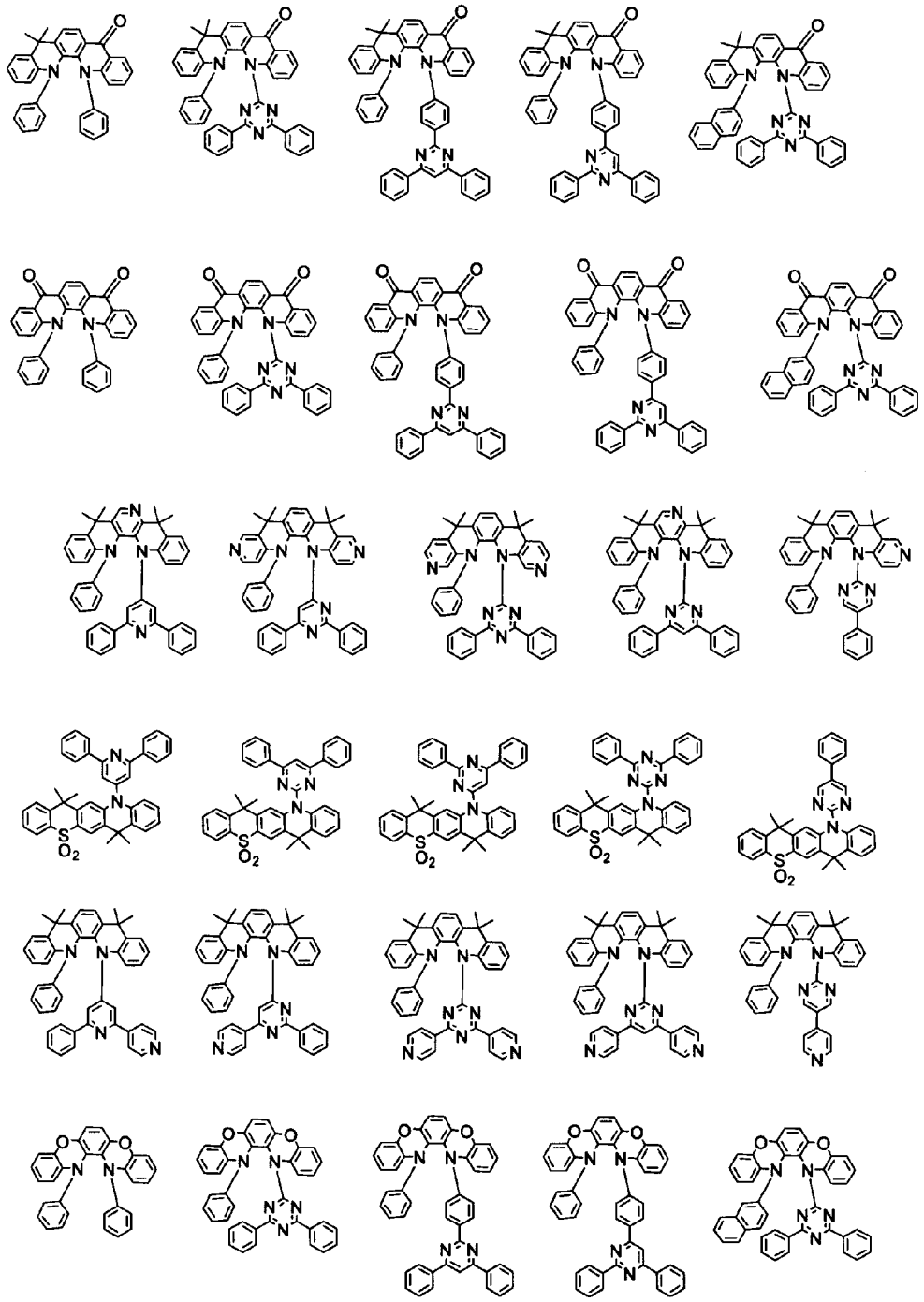
【００４０】

【化２５】



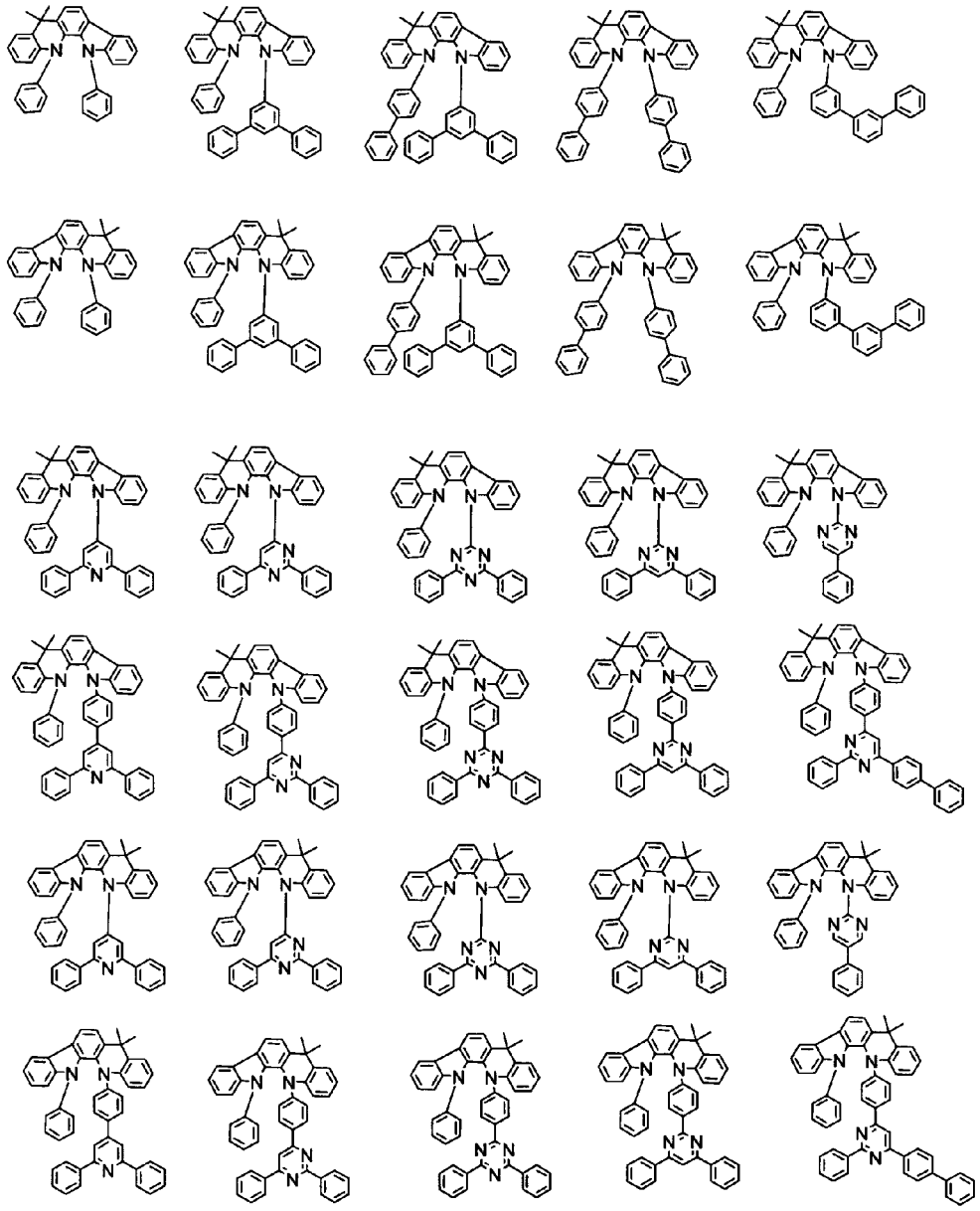
【００４１】

【化２６】



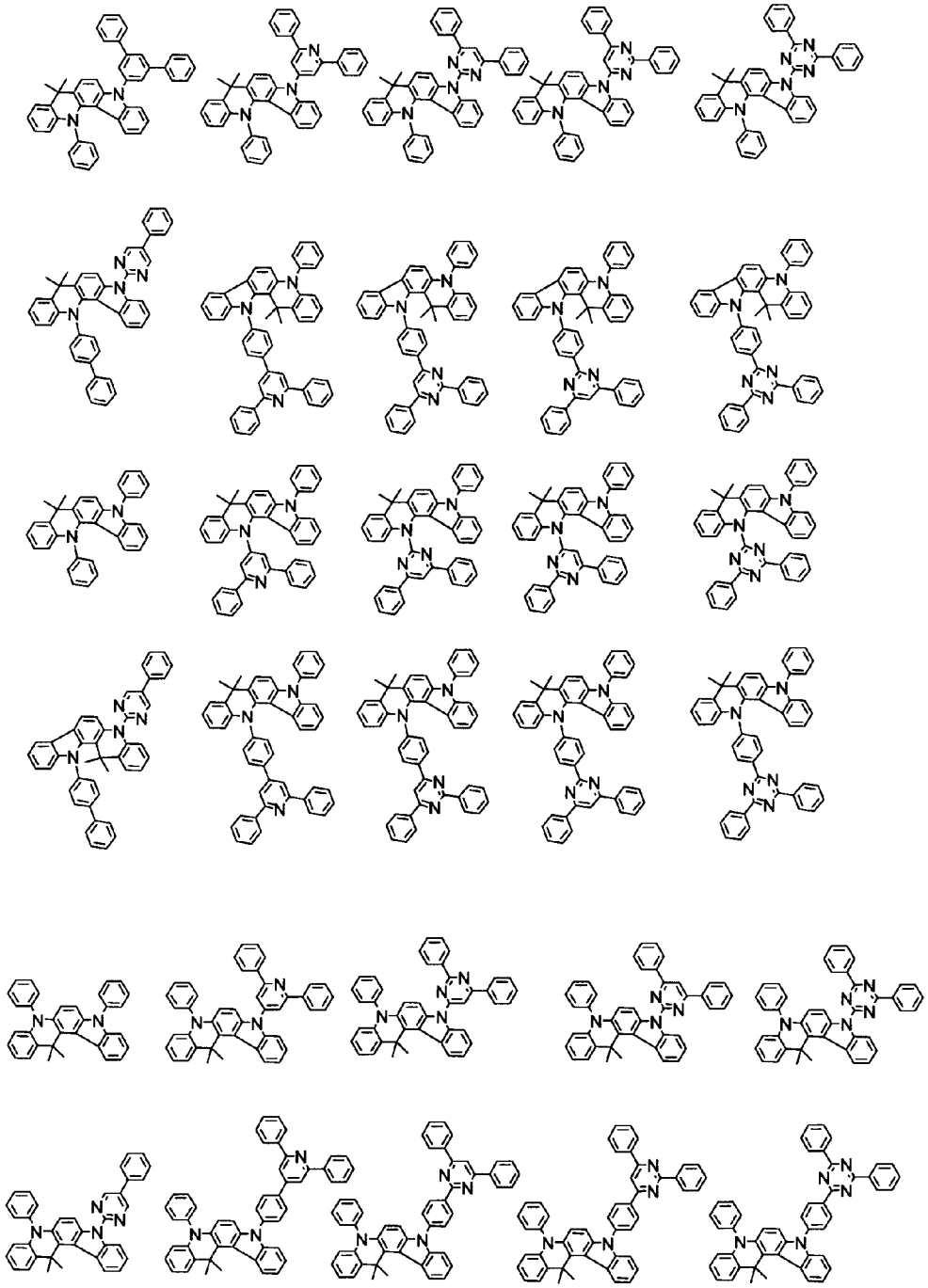
【００４２】

【化２７】



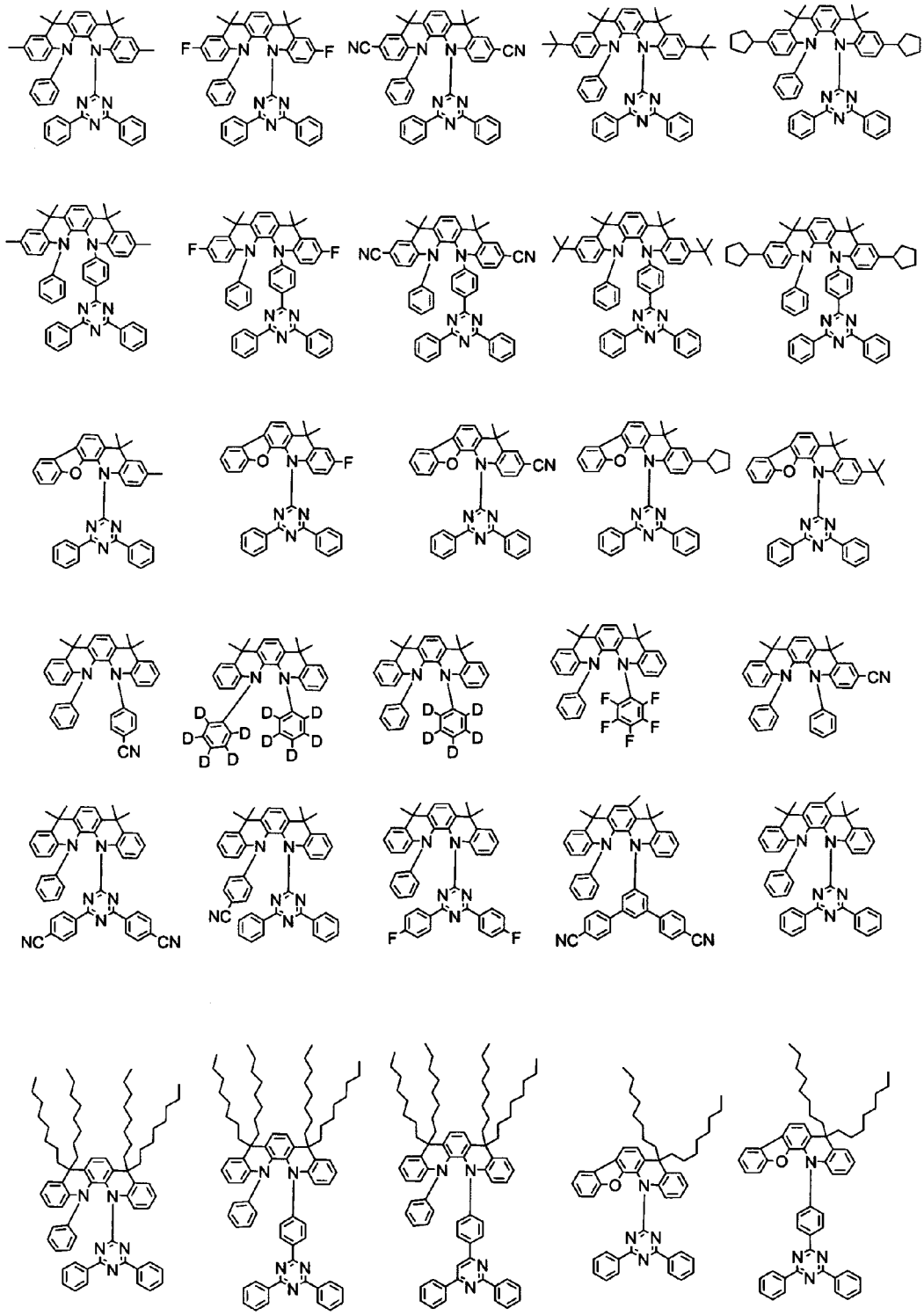
【００４３】

【化２８】



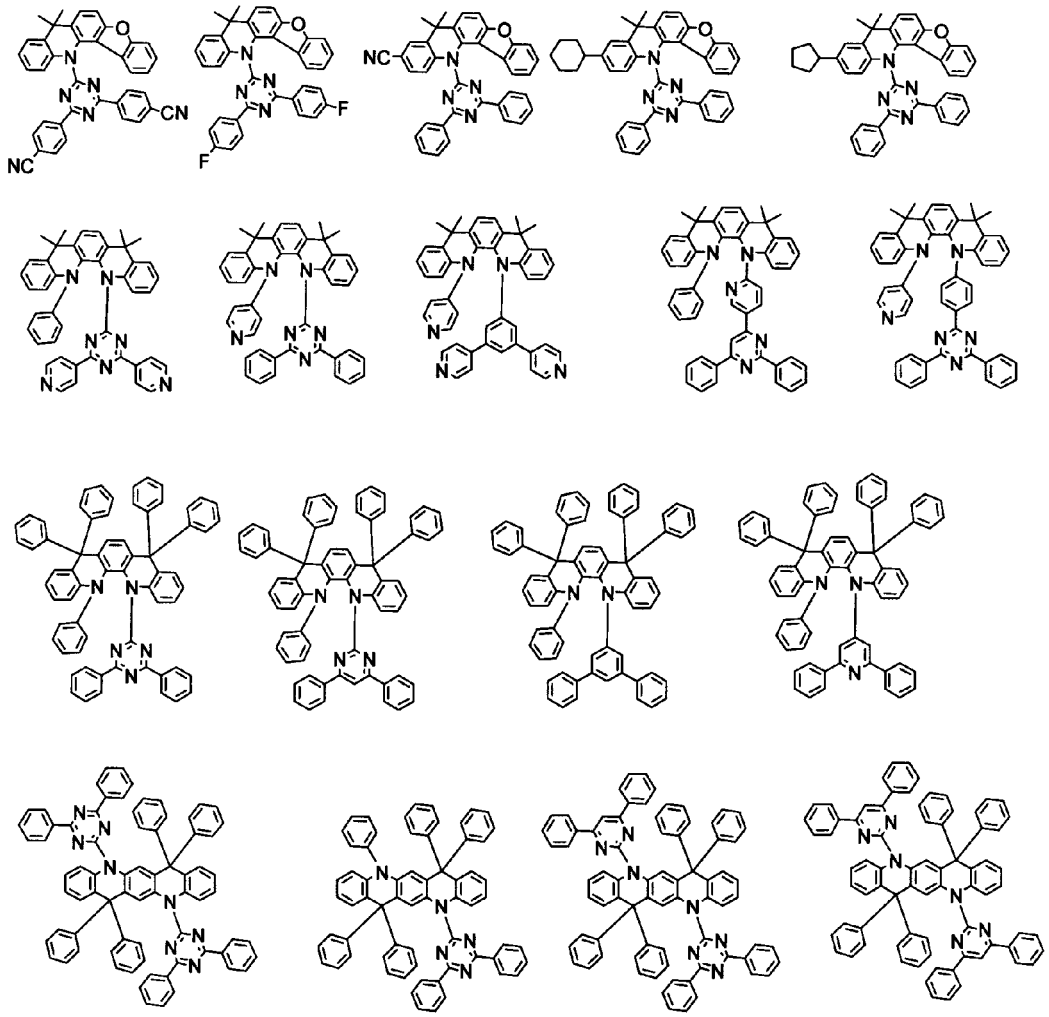
【００４４】

【化２９】



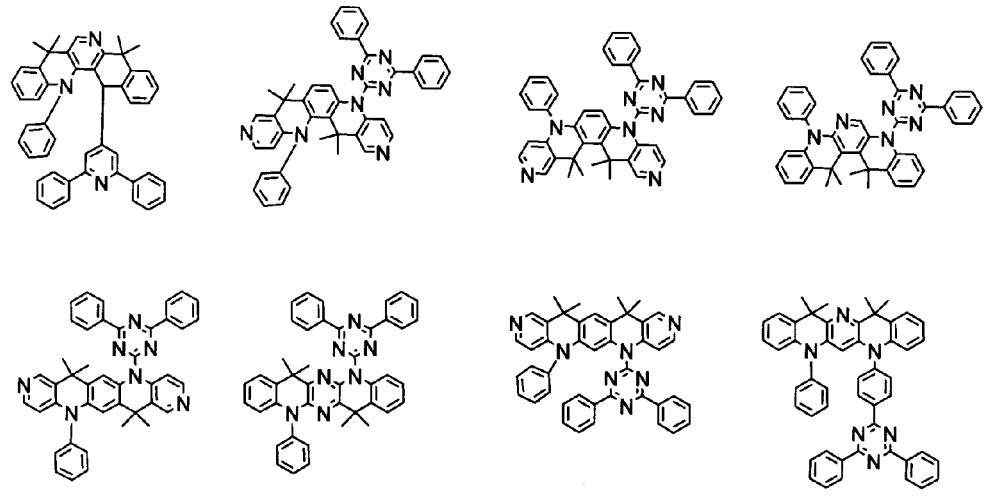
【００４５】

【化３０】



【００４６】

【化３１】



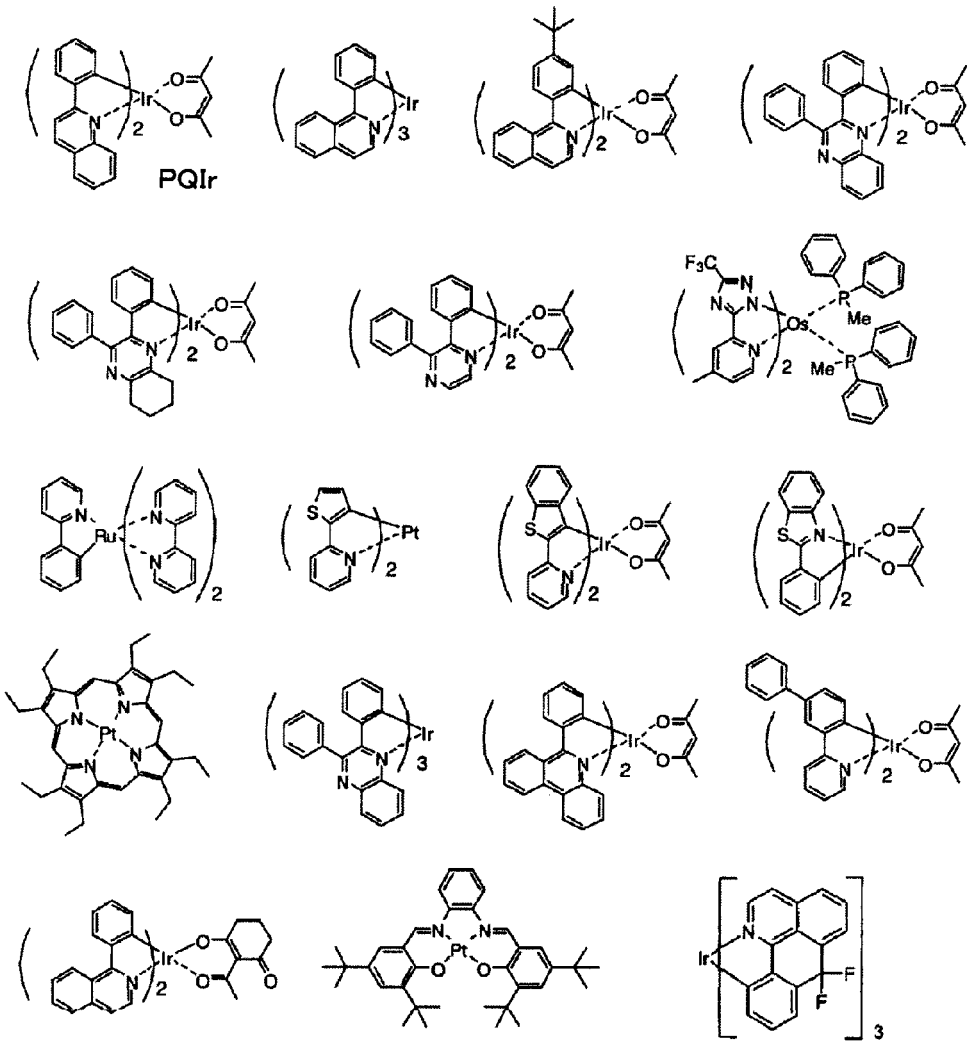
【００４７】

本発明の縮合多環化合物は有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として有用であり、これを用いた本発明の有機ＥＬ素子は、発光効率が高く、長寿命を有している。

【００４８】

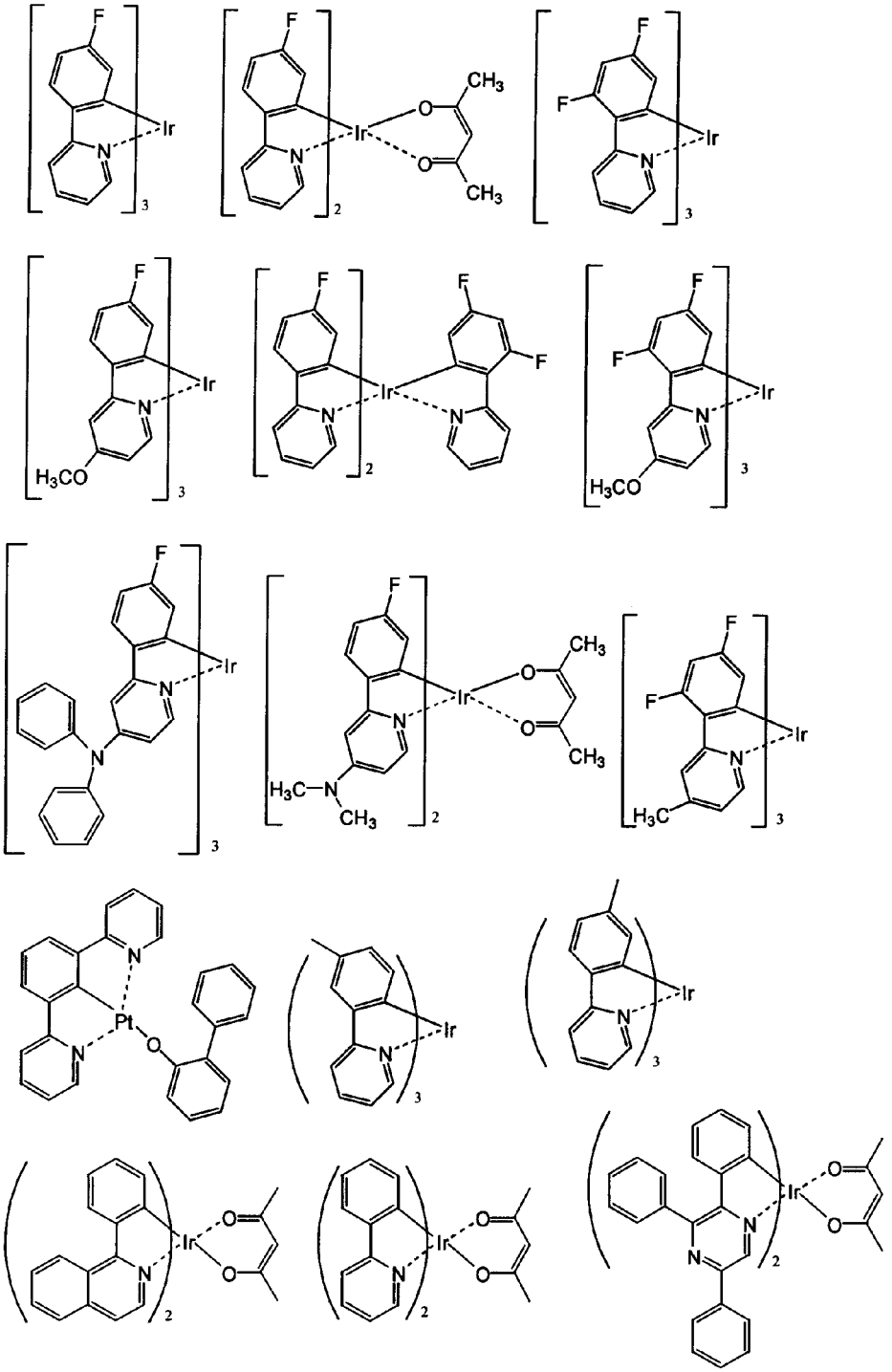
次に、本発明の有機ＥＬ素子用材料及び有機ＥＬ素子について説明する。
本発明の有機ＥＬ素子用材料は、前述した本発明の縮合多環化合物を含むことを特徴とし、本発明の有機ＥＬ素子は、陰極と陽極の間に発光層を含む複数の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうちの少なくとも１層が前記有機ＥＬ素子用材料を含むことを特徴とする。
【００４９】
前記縮合多環化合物は、本発明の有機ＥＬ素子の有機薄膜層のうち、少なくとも一層に含有される。特に前記縮合多環化合物は発光層におけるホスト材料又は電子輸送層、正孔輸送層に係る材料として用いた場合、素子の高発光効率、長寿命化が期待できる。
【００５０】
＜第１の実施形態＞
多層型の有機ＥＬ素子の構造としては、例えば、陽極／正孔輸送層（正孔注入層）／発光層／陰極、陽極／発光層／電子輸送層（電子注入層）／陰極、陽極／正孔輸送層（正孔注入層）／発光層／電子輸送層（電子注入層）／陰極、陽極／正孔輸送層（正孔注入層）／発光層／正孔障壁層／電子輸送層（電子注入層）／陰極、等の多層構成で積層したものが挙げられる。
【００５１】
本発明の有機ＥＬ素子において、前記発光層が、本発明の縮合多環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、該ホスト材料が前記縮合多環化合物であると好ましい。
また、本発明の縮合多環化合物は、燐光発光材料と共に用いるホスト材料または燐光発光材料と共に用いる電子輸送材料であっても良く、３重項のエネルギーギャップが２．２～３．２ｅＶであると好ましく、２．５～３．２ｅＶであるとより好ましい。
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より好ましく、イリジウム，オスミウムＯｓ、白金Ｐｔから選択される金属原子のオルトメタル化錯体が最も好ましい。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の具体例を以下に示す。
【００５２】

【化３２】



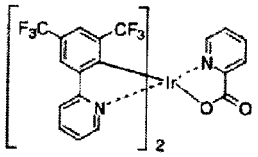
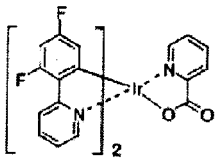
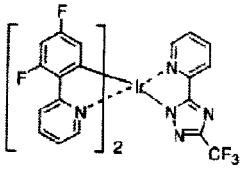
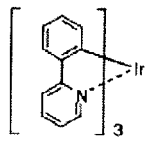
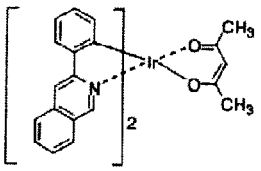
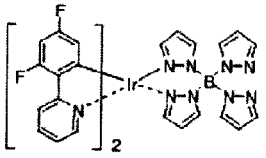
【００５３】

【化３３】

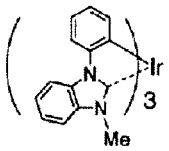
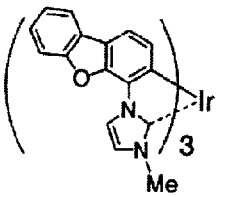
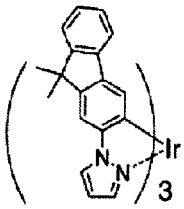
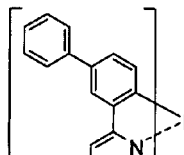


【００５４】

【化３４】

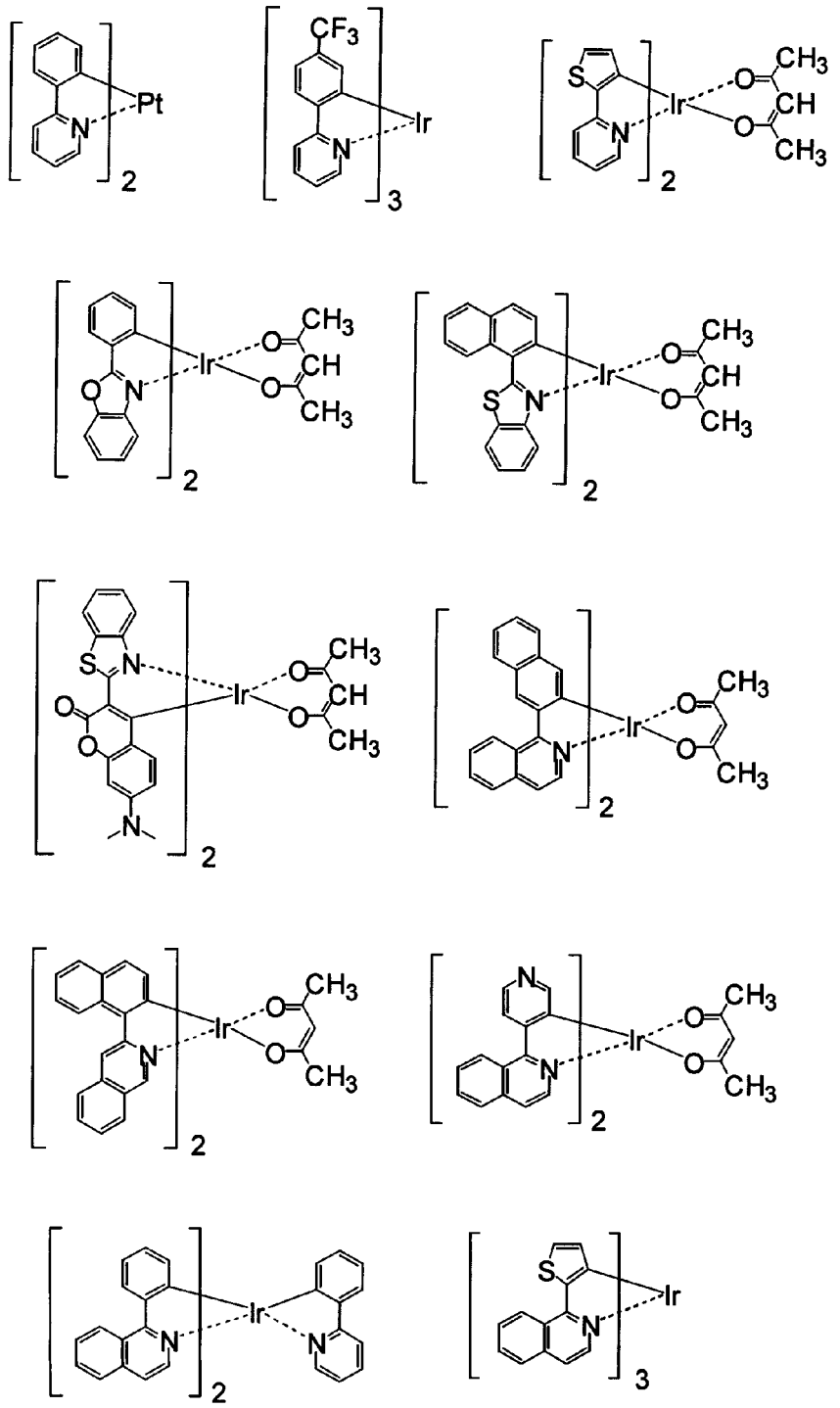







Ir(ppy)$_3$

【００５５】

【化３５】



【００５６】

また、本発明の有機ＥＬ素子は、前記発光層が、ホスト材料と燐光発光材料を含有し、且つ、発光波長の極大値が４５０ｎｍ以上７２０ｎｍ以下である金属錯体を含有すると好ましい。

【００５７】

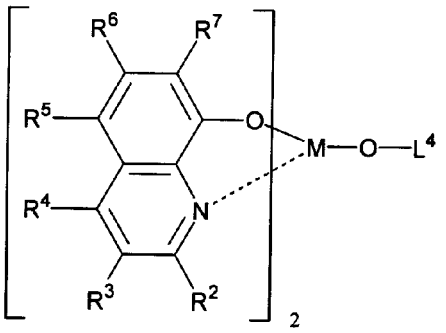
本発明の有機ＥＬ素子は、前記陰極と有機薄膜層（例えば電子注入層や発光層など。）との界面領域に還元性ドーパントを有することが好ましい。還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれる少なくとも一種が挙げられる。

【００５８】
アルカリ金属としては、仕事関数が２．９ｅＶ以下である、Ｎａ（仕事関数：２．３６ｅＶ）、Ｋ（仕事関数：２．２８ｅＶ）、Ｒｂ（仕事関数：２．１６ｅＶ）、Ｃｓ（仕事関数：１．９５ｅＶ）等が好ましく挙げられる。これらのうち、より好ましくはＫ、Ｒｂ、Ｃｓであり、さらに好ましくはＲｂ又はＣｓであり、最も好ましくはＣｓである。
アルカリ土類金属としては、仕事関数が２．９ｅＶ以下である、Ｃａ（仕事関数：２．９ｅＶ）、Ｓｒ（仕事関数：２．０～２．５ｅＶ）、Ｂａ（仕事関数：２．５２ｅＶ）等が好ましく挙げられる。
希土類金属としては、仕事関数が２．９ｅＶ以下である、Ｓｃ、Ｙ、Ｃｅ、Ｔｂ、Ｙｂ等が好ましく挙げられる。
以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機ＥＬ素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。
【００５９】
アルカリ金属化合物としては、Li_2O、Cs_2O、K_2O等のアルカリ酸化物、ＬｉＦ、ＮａＦ、ＣｓＦ、ＫＦ等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、これらの中でも、ＬｉＦ、Li_2O、ＮａＦが好ましい。
アルカリ土類金属化合物としては、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＣａＯ及びこれらを混合した$Ba_mSr_{1-m}O$（０＜ｍ＜１）、$Ba_mCa_{1-m}O$（０＜ｍ＜１）等が挙げられ、これらの中でも、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＣａＯが好ましい。
希土類金属化合物としては、YbF_3、ScF_3、ScO_3、Y_2O_3、Ce_2O_3、GdF_3、TbF_3等が挙げられ、これらの中でも、YbF_3、ScF_3、TbF_3が好ましい。
【００６０】
アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、β－ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。
【００６１】
還元性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度は、モル比で、有機物：還元性ドーパント＝１００：１～１：１００が好ましく、５：１～１：５がより好ましい。
還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み０．１～１５ｎｍで形成する。
還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み０．０５～１ｎｍで形成する。
【００６２】
本発明の有機ＥＬ素子は、発光層と陰極との間に電子注入層を有する場合、該電子注入層に用いる電子輸送材料としては、分子内にヘテロ原子を１個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく、特に含窒素環誘導体が好ましい。
【００６３】
この含窒素環誘導体としては、例えば、下記一般式（Ａ）で表される含窒素環金属キレ

ート錯体が好ましい。

【００６４】

【化３６】



(A)

【００６５】

Ｒ[2]～Ｒ[7]は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素数１～４０の炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、又は複素環基を表し、これらは置換されていてもよい。

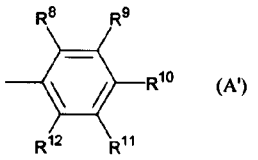
【００６６】

Ｍは、アルミニウム（Ａｌ）、ガリウム（Ｇａ）又はインジウム（Ｉｎ）であり、インジウムであることが好ましい。

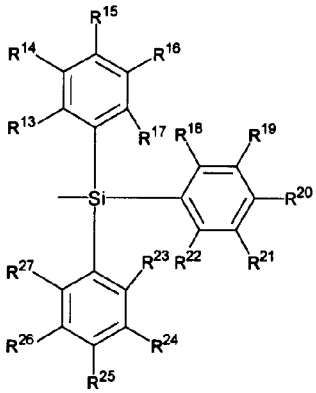
式（Ａ）のＬ[4]は、下記式（Ａ’）又は（Ａ’’）で表される基である。

【００６７】

【化３７】



(A')



(A")

【００６８】

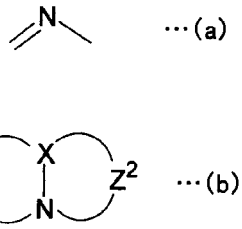
（式中、Ｒ[8]～Ｒ[12]は、それぞれ独立して、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数１～４０の炭化水素基を示し、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、Ｒ[13]～Ｒ[27]は、それぞれ独立して、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数１～４０の炭化水素基を示し、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。）

【００６９】

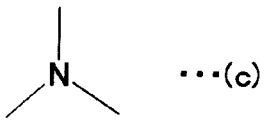
含窒素複素環誘導体としては、以下の一般式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物も挙げられる。例えば、（ａ）に示す骨格を含有する５員環もしくは６員環や、式（ｂ）に示す構造のものが挙げられる。

【００７０】

【化３８】

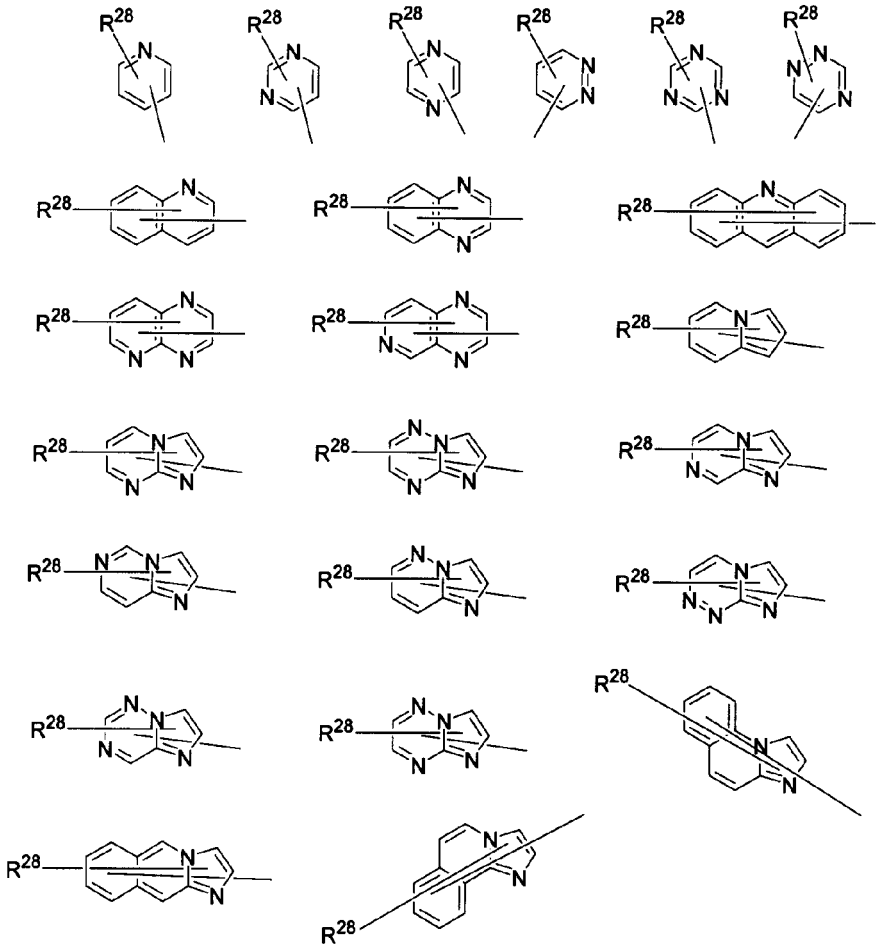


【００７１】
（式（ｂ）中、Ｘは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Ｚ^{1}ならびにＺ^{2}は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。）
【００７２】
【化３９】



【００７３】
好ましくは、５員環もしくは６員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記（ａ）と（ｂ）もしくは（ａ）と（ｃ）を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物。
【００７４】
含窒素有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の一般式で表される含窒素複素環基から選択される。
【００７５】

【化４０】



【００７６】

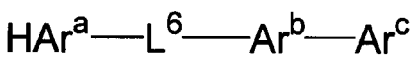
（各式中、R^{28}は、炭素数６～４０のアリール基、炭素数３～４０のヘテロアリール基、炭素数１～２０のアルキル基又は炭素数１～２０のアルコキシ基であり、ｎは０～５の整数であり、ｎが２以上の整数であるとき、複数のR^{28}は互いに同一又は異なっていてもよい。）

【００７７】

さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。

【００７８】

【化４１】



【００７９】

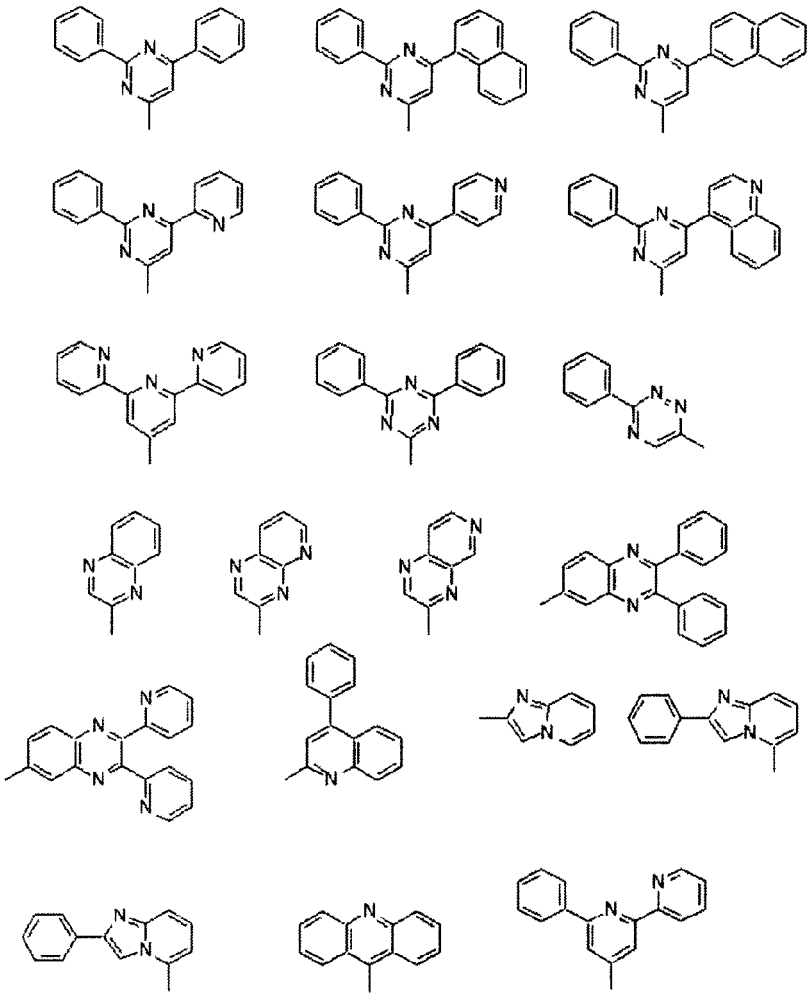
（式中、HAr^aは、置換基を有していてもよい炭素数３～４０の含窒素複素環であり、L^6は単結合、置換基を有していてもよい炭素数６～４０のアリーレン基又は置換基を有していてもよい炭素数３～４０のヘテロアリーレン基であり、Ar^bは置換基を有していてもよい炭素数６～４０の２価の芳香族炭化水素基であり、Ar^cは置換基を有していてもよい炭素数６～４０のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数３～４０のヘテロアリール基である。）

【００８０】

HAr^aは、例えば、下記の群から選択される。

【００８１】

【化４２】



【００８２】

L^6は、例えば、下記の群から選択される。

【００８３】

【化４３】

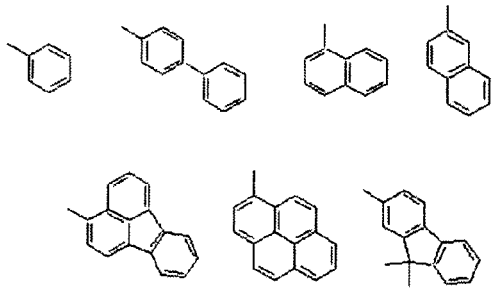


【００８４】

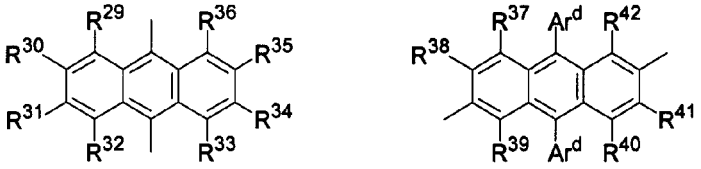
Ar^cは、例えば、下記の群から選択される。

【００８５】

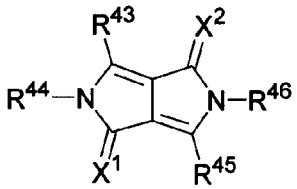
【化４４】



【００８６】
Ａｒ[b]は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。
【００８７】
【化４５】

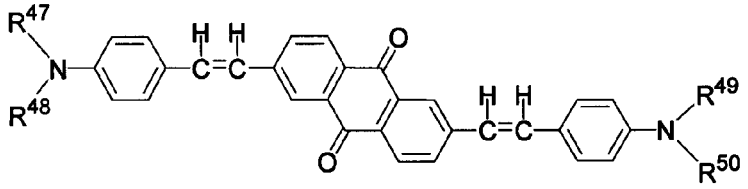


【００８８】
（式中、Ｒ[29]～Ｒ[42]は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数１～２０のアルキル基、炭素数１～２０のアルコキシ基、炭素数６～４０のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数６～４０のアリール基又は炭素数３～４０のヘテロアリール基であり、Ａｒ[d]は、置換基を有していてもよい炭素数６～４０のアリール基又は炭素数３～４０のヘテロアリール基である。）
また、上記式で表されるＡｒ[b]において、Ｒ[29]～Ｒ[36]は、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体が好ましい。
【００８９】
この他、下記の化合物（特開平９－３４４８号公報参照）も好適に用いられる。
【００９０】
【化４６】



【００９１】
（式中、Ｒ[43]～Ｒ[46]は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは未置換の脂肪族基、置換もしくは未置換の脂肪族式環基、置換もしくは未置換の炭素環式芳香族環基、置換もしくは未置換の複素環基を表し、Ｘ[1]、Ｘ[2]は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子もしくはジシアノメチレン基を表す。）
【００９２】
また、下記の化合物（特開２０００－１７３７７４号公報参照）も好適に用いられる。
【００９３】

【化４７】

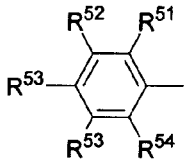


【００９４】

式中、Ｒ^{47}、Ｒ^{48}、Ｒ^{49}及びＲ^{50}は互いに同一の又は異なる基であって、下記式で表わされるアリール基である。

【００９５】

【化４８】



【００９６】

（式中、Ｒ^{51}、Ｒ^{52}、Ｒ^{53}、Ｒ^{54}及びＲ^{55}は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、或いはそれらの少なくとも１つが飽和または不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基又はアルキルアミノ基である。）

【００９７】

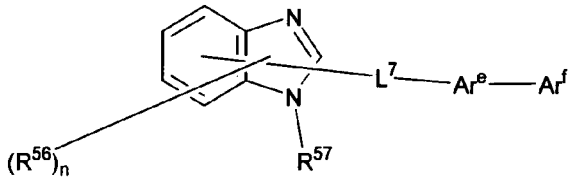
さらに、該含窒素複素環基もしくは含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

【００９８】

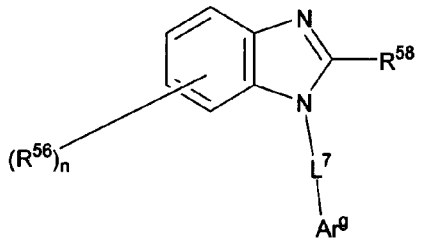
また、電子輸送層は、下記一般式（２０１）～（２０３）で表される含窒素複素環誘導体の少なくともいずれか１つを含有することが好ましい。

【００９９】

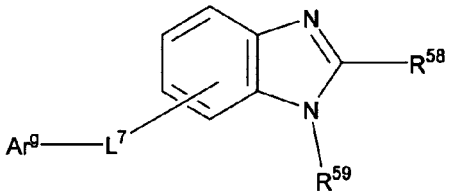
【化４９】



・・・(201)



・・・(202)



・・・(203)

【０１００】

式（２０１）～（２０３）中、R^{56}は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルコキシ基で、ｎは０～４の整数であり、R^{57}は、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基又は炭素数１～２０のアルコキシ基であり、R^{58}及びR^{59}は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルコキシ基であり、L^{7}は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、Ar^{e}は、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基であり、Ar^{f}は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルコキシ基である。

Ar^{g}は、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルコキシ基、又は－Ar^{e}－Ar^{f}で表される基（Ar^{e}及びAr^{f}は、それぞれ前記と同じ）である。

【０１０１】

前記式（２０１）において、R^{57}は、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基又は炭素数１～２０のアルコキシ基である。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記Ｒについて説明したも

のと同様である。

【０１０２】

前記式（２０２）及び（２０３）において、R^{58}及びR^{59}は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数１～２０のアルコキシ基である。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記R^{56}について説明したものと同様である。

【０１０３】

前記式（２０１）～（２０３）において、L^{7}は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基である。

【０１０４】

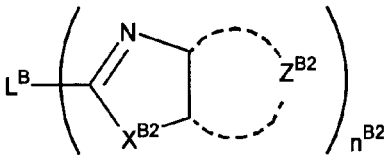
前記式（２０１）において、Ar^{e}は、置換基を有していてもよい炭素数６～６０のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基である。Ar^{e}及びAr^{g}の示す各基の置換基としては、それぞれ前記R^{56}について説明したものと同様である。

【０１０５】

また、含窒素環誘導体としては、含窒素５員環誘導体も好ましく挙げられる。該含窒素５員環としては、例えばイミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素５員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記一般式（Ｂ）で表されるものである。

【０１０６】

【化５０】



（Ｂ）

【０１０７】

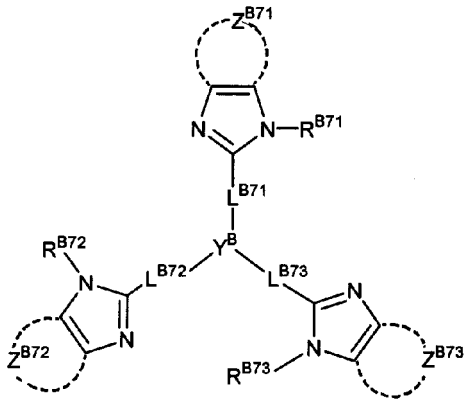
一般式（Ｂ）中、L^{B}は二価以上の連結基を表し、例えば、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、金属原子（例えば、バリウム原子、ベリリウム原子）、芳香族炭化水素環、芳香族複素環等が挙げられる。

【０１０８】

前記一般式（Ｂ）で表される含窒素５員環誘導体のうち、さらに好ましくは下記一般式（Ｂ’）で表されるものが好ましい。

【０１０９】

【化５１】



(B')

【０１１０】

一般式（Ｂ’）中、R^{B71}、R^{B72}及びR^{B73}は、それぞれ一般式（Ｂ）におけるR^{B2}と同様である。

Z^{B71}、Z^{B72}及びZ^{B73}は、それぞれ一般式（Ｂ）におけるZ^{B2}と同様である。

L^{B71}、L^{B72}及びL^{B73}は、それぞれ連結基を表し、一般式（Ｂ）におけるL^{B}の例を二価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。L^{B71}、L^{B72}及びL^{B73}は置換基を有していてもよく、置換基としては前記一般式（Ｂ）におけるL^{B}で表される基の置換基として挙げたものと同様である。

Y^{B}は、窒素原子、１，３，５－ベンゼントリイル基又は２，４，６－トリアジントリイル基を表す。

【０１１１】

電子注入層及び電子輸送層を構成する化合物としては、本発明の縮合多環化合物の他、電子欠乏性含窒素５員環又は電子欠乏性含窒素６員環骨格と、置換又は無置換のインドール骨格、置換又は無置換のカルバゾール骨格、置換又は無置換のアザカルバゾール骨格を組み合わせた構造を有する化合物等も挙げられる。また、好適な電子欠乏性含窒素５員環又は電子欠乏性含窒素６員環骨格としては、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、トリアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、キノキサリン、ピロール骨格及び、それらがお互いに縮合したベンズイミダゾール、イミダゾピリジン等の分子骨格が挙げられる。これらの組み合わせの中でも、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン骨格と、カルバゾール、インドール、アザカルバゾール、キノキサリン骨格が好ましく挙げられる。前述の骨格は置換されていてもよいし、無置換でもよい。

【０１１２】

電子注入層及び電子輸送層は、前記材料の１種又は２種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。これらの層の材料は、π電子欠乏性含窒素ヘテロ環基を有していることが好ましい。

【０１１３】

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

【０１１４】

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えばLi_2O、K_2O、Na_2S、Na_2Se及びNa_2Oが挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カ

ルコゲニドとしては、例えばＣａＯ、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＢｅＯ、ＢａＳ及びＣａＳｅが挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えばＬｉＦ、ＮａＦ、ＫＦ、ＬｉＣｌ、ＫＣｌ及びＮａＣｌ等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えばCaF_2、BaF_2、SrF_2、MgF_2及びBeF_2等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

【０１１５】

また、半導体としては、例えばＢａ、Ｃａ、Ｓｒ、Ｙｂ、Ａｌ、Ｇａ、Ｉｎ、Ｌｉ、Ｎａ、Ｃｄ、Ｍｇ、Ｓｉ、Ｔａ、Ｓｂ及びＺｎからなる群から選択される少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等が挙げられ、これらは一種を単独で使用してもよいし、二種以上を組み合わせて使用してもよい。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、例えばアルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

【０１１６】

また、本発明における電子注入層には、前述の還元性ドーパントを好ましく含有させることができる。

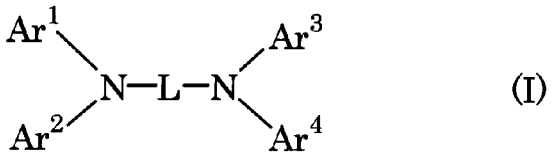
なお、電子注入層又は電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは、１～１００ｎｍである。

【０１１７】

正孔注入層又は正孔輸送層（正孔注入輸送層も含む）には芳香族アミン化合物、例えば、一般式（Ｉ）で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

【０１１８】

【化５２】



(I)

【０１１９】

一般式（Ｉ）において、Ar^1～Ar^4は置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基または置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０のヘテロアリール基を表す。

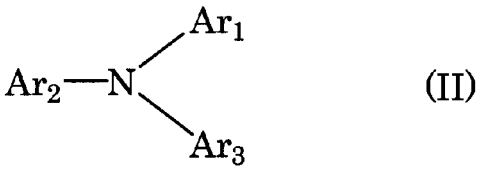
【０１２０】

Ｌは連結基である。具体的には置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０のヘテロアリーレン基、または、２個以上のアリーレン基もしくはヘテロアリーレン基を単結合、エーテル結合、チオエーテル結合、炭素数１～２０のアルキレン基、炭素数２～２０のアルケニレン基、アミノ基で結合して得られる２価の基である。

【０１２１】

また、下記一般式（ＩＩ）の芳香族アミンも正孔注入層または正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

【化５３】



(II)

【０１２２】
一般式（ＩＩ）において、Ａｒ$_1$～Ａｒ$_3$の定義は前記一般式（Ｉ）のＡｒ^1～Ａｒ^{4}の定義と同様である。

【０１２３】
本発明の縮合多環化合物は、正孔および電子を輸送する化合物であるため、正孔注入層または輸送層、電子注入層または輸送層にも用いることができる。

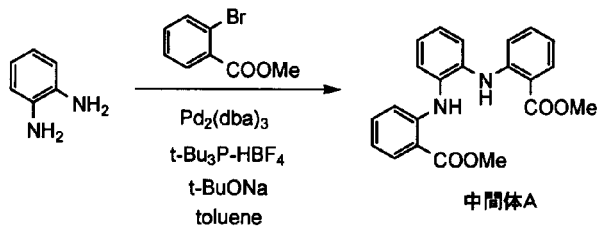
【０１２４】
本発明において、有機ＥＬ素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、４．５ｅＶ以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ＩＴＯ）、酸化錫（ＮＥＳＡ）、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、アルミニウム－リチウム合金、アルミニウム－スカンジウム－リチウム合金、マグネシウム－銀合金等が使用できる。

【０１２５】
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、スピン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、前記縮合多環化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（ＭＢＥ法）あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスティング法、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。
本発明の有機ＥＬ素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数ｎｍから１μｍの範囲が好ましい。

【０１２６】
＜第２の実施形態＞
本実施形態の有機ＥＬ素子は、発光層又は発光層を含むユニットを少なくとも２つ有するタンデム素子構成を有する。
このような有機ＥＬ素子では、例えば、２つのユニット間に電荷発生層（ＣＧＬとも呼ぶ）を介在させ、ユニット毎に電子輸送帯域を設けることができる。
このようなタンデム素子構成の具体的な構成の例を以下に示す。
（１１）陽極／正孔注入・輸送層／燐光発光層／電荷発生層／蛍光発光層／電子注入・輸送層／陰極
（１２）陽極／正孔注入・輸送層／蛍光発光層／電子注入・輸送層／電荷発生層／燐光発光層／陰極

【０１２７】
これらのような有機ＥＬ素子において、燐光発光層には本発明の縮合多環化合物および第１実施形態で説明した燐光発光材料を用いることができる。これにより、有機ＥＬ素子の発光効率、および素子寿命をさらに向上させることができる。また、陽極、正孔注入・輸送層、電子注入・輸送層、陰極には第１実施形態で説明した材料を用いることができる。また、蛍光発光層の材料としては、公知の材料を用いることができる。そして、電荷発生層の材料としては、公知の材料を用いることができる。

【０１２８】
＜第３の実施形態＞
本実施形態の有機ＥＬ素子は、複数の発光層を備え、複数の発光層のいずれか２つの発光層の間に電荷障壁層を有する。本実施形態にかかる好適な有機ＥＬ素子の構成として、特許第４１３４２８０号公報、米国公開特許公報ＵＳ２００７／０２７３２７０Ａ１、国際公開公報ＷＯ２００８／０２３６２３Ａ１に記載されているような構成が挙げられる。
具体的には、陽極、第１発光層、電荷障壁層、第２発光層及び陰極がこの順に積層された構成において、第２発光層と陰極の間に三重項励起子の拡散を防止するための電荷障壁層を有する電子輸送帯域を有する構成が挙げられる。ここで電荷障壁層とは隣接する発光層との間でＨＯＭＯ準位、ＬＵＭＯ準位のエネルギー障壁を設けることにより、発光層へのキャリア注入を調整し、発光層に注入される電子と正孔のキャリアバランスを調整する目的を有する層である。
【０１２９】
このような構成の具体的な例を以下に示す。
（２１）陽極／正孔注入・輸送層／第１発光層／電荷障壁層／第２発光層／電子注入・輸送層／陰極
（２２）陽極／正孔注入・輸送層／第１発光層／電荷障壁層／第２発光層／第３発光層／電子注入・輸送層／陰極
【０１３０】
これらの第１発光層、第２発光層、および第３発光層のうちの少なくともいずれかに本発明の縮合多環化合物および第１実施形態で説明した燐光発光材料を用いることができる。これにより、有機ＥＬ素子の発光効率、及び素子寿命を向上させることができる。
また、例えば、第１発光層を赤色に発光させ、第２の発光層を緑色に発光させ、第３の発光層を青色に発光させることにより、素子全体として白色に発光させることができる。このような有機ＥＬ素子は、照明やバックライトなどの面光源として好適に利用できる。なお、陽極、正孔注入・輸送層、電子注入・輸送層、陰極には第１実施形態で説明した材料を用いることができる。
また、電荷障壁層の材料としては、公知の材料を用いることができる。
【実施例】
【０１３１】
次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。
【０１３２】
実施例１　化合物Ａの合成
（１）中間体Ａの合成
【０１３３】
【化５４】



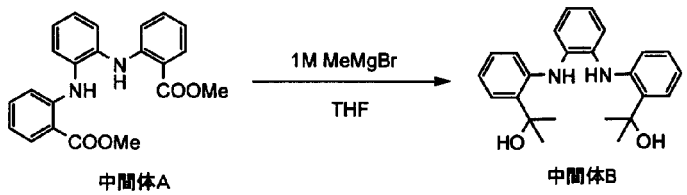
【０１３４】
アルゴン雰囲気下、１，２－フェニレンジアミン１０．８ｇ（１００ｍｍｏｌ）、２－ブロモ安息香酸メチル４５．２ｇ（２１０ｍｍｏｌ）、$Pd_2(dba)_3$３．７ｇ(４ｍｍｏｌ)、ｔ－Bu_3P－$HBF_4$４．６ｇ(１６ｍｍｏｌ)、ナトリウムｔ－ブトキシド２６．９ｇ（２８０ｍｍｏｌ）を脱水トルエン２５０ｍｌに加えて、２４時間加熱還流攪拌し

た。さらにトルエン５００ｍｌを加えてから、１２０℃で１時間加熱攪拌し、不溶物を濾別した。濾液を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体Ａ　１１．３ｇ（収率３０％）を固体として得た。

【０１３５】

（２）中間体Ｂの合成

【化５５】



中間体A　　中間体B

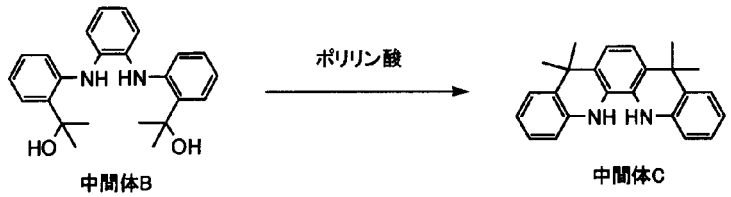
【０１３６】

アルゴン雰囲気下、中間体Ａ　１１．３ｇ（３０ｍｍｏｌ）、脱水ＴＨＦ２００ｍｌを反応容器に加え、－１０℃で攪拌した。次いで、１Ｍ臭化メチルマグネシウム－ＴＨＦ溶液７２ｍｌを滴下で加えた。滴下終了後、－１０℃で１時間攪拌し、４０℃で８時間攪拌した。反応溶液を氷水に注ぎ、塩化アンモニウム水溶液で中和した後、酢酸エチルを加えて有機相を分離した。有機相を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体Ｂ　４．５ｇ（収率４０％）を固体として得た。

【０１３７】

（３）中間体Cの合成

【化５６】



中間体B　　中間体C

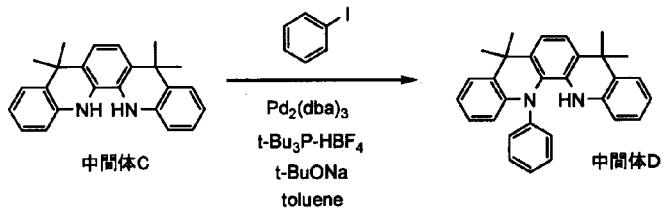
【０１３８】

アルゴン雰囲気下、中間体Ｂ　４．５ｇ（１２ｍｍｏｌ）をポリリン酸５０ｍｌに加え、室温で２４時間攪拌した。水を加え、炭酸水素ナトリウムで中和した後、酢酸エチルを加えて有機相を分離した。有機相を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体Ｃ　２．０ｇ（収率５０％）を固体として得た。

【０１３９】

（４）中間体Ｄの合成

【化５７】



中間体C　　中間体D

【０１４０】

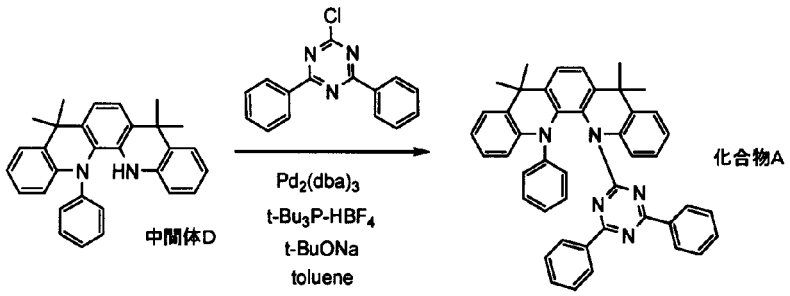
アルゴン雰囲気下、中間体Ｃ　２．０ｇ（６ｍｍｏｌ）、ヨードベンゼン１．６ｇ（８ｍｍｏｌ）、$Pd_2(dba)_3$０．１１ｇ(２ｍｏｌ％)、ｔ－Bu_3P－$HBF_4$０．１４ｇ

(８ｍｏｌ％)、ナトリウムｔ－ブトキシド０．８１ｇ（８．４ｍｍｏｌ）を脱水トルエン３０ｍｌに加えて、２４時間加熱還流攪拌した。さらにトルエン３００ｍｌを加えてから、１２０℃で１時間加熱攪拌し、不溶物を濾別した。濾液を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体Ｄ　１．０ｇ（収率４０％）を固体として得た。

【０１４１】

（５）化合物Ａの合成

【化５８】



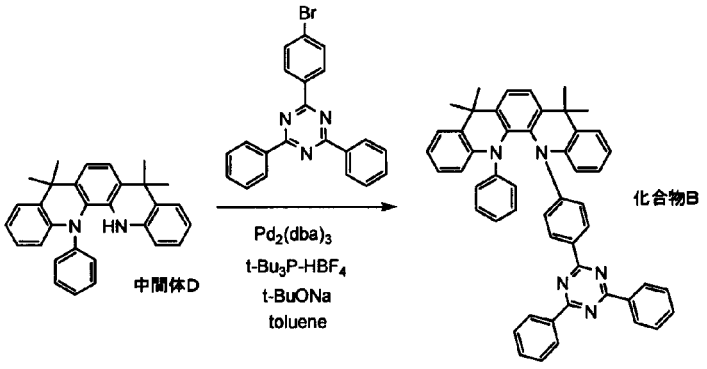
アルゴン雰囲気下、中間体Ｄ　２．０ｇ（４．８ｍｍｏｌ）、２－クロロ－４，６－ジフェニルトリアジン１．９３ｇ（７．２ｍｍｏｌ）、$Pd_2(dba)_3$０．１７ｇ(４ｍｏｌ％)、ｔ－Bu_3P－$HBF_4$０．１４ｇ(１０ｍｏｌ％)、ナトリウムｔ－ブトキシド０．６５ｇ（６．７ｍｍｏｌ）を脱水トルエン６０ｍｌに加えて、２４時間加熱還流攪拌した。さらにトルエン５００ｍｌを加えてから、１２０℃で１時間加熱攪拌し、不溶物を濾別した。濾液を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物Ａ　１．１ｇ（収率３５％）を固体として得た。

ＦＤ－ＭＳ分析の結果、分子量６４７に対してｍ／ｅ＝６４７であった。

【０１４２】

実施例２　化合物Ｂの合成

【化５９】



【０１４３】

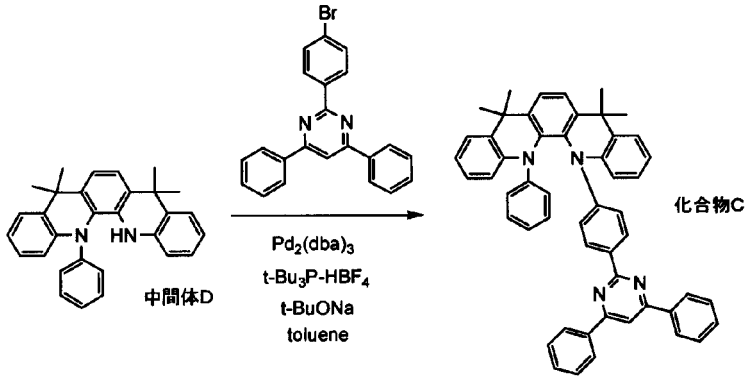
実施例１の条件に従い、化合物Ｂを合成した。

ＦＤ－ＭＳ分析の結果、分子量７２３に対してｍ／ｅ＝７２３であった。

【０１４４】

実施例３　化合物Ｃの合成

【化６０】



【０１４５】

実施例１の条件に従い、化合物Ｃを合成した。

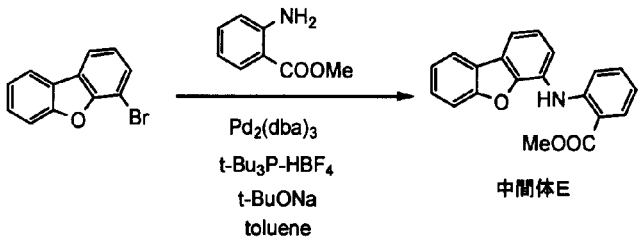
ＦＤ－ＭＳ分析の結果、分子量７２２に対してｍ／ｅ＝７２２であった。

【０１４６】

実施例４　化合物Ｄの合成

（１）中間体Ｅの合成

【化６１】



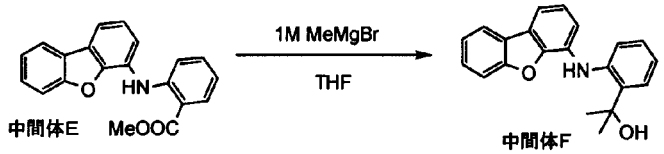
【０１４７】

４－ブロモジベンゾフラン（Ｊ．Ａｍ．Ｃｈｅｍ．Ｓｏｃ．２８３６ページ（１９３９年）の方法に従い合成）２４．７ｇ（１００ｍｍｏｌ）、アントラニル酸メチル１５．９ｇ（１０５ｍｍｏｌ）$Pd_2(dba)_3$１．８ｇ(２ｍｍｏｌ)、ｔ－Bu_3P－$HBF_4$２．３ｇ(８ｍｍｏｌ)、ナトリウムｔ－ブトキシド１３．５ｇ（１４０ｍｍｏｌ）を脱水トルエン２００ｍｌに加えて、２４時間加熱還流攪拌した。さらにトルエン５００ｍｌを加えてから、１２０℃で１時間加熱攪拌し、不溶物を濾別した。濾液を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体Ｅ１５．９ｇ（収率５０％）を固体として得た。

【０１４８】

（２）中間体Ｆの合成

【化６２】



【０１４９】

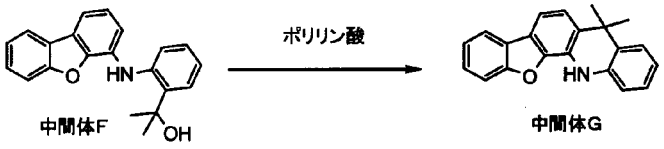
アルゴン雰囲気下、中間体Ｅ１５．９ｇ（５０ｍｍｏｌ）、脱水ＴＨＦ１５０ｍｌを反応容器に加え、－１０℃で攪拌した。次いで、１Ｍ臭化メチルマグネシウム－ＴＨＦ溶液６０ｍｌを滴下で加えた。滴下終了後、－１０℃で１時間攪拌し、４０℃で８時間攪拌した。反応溶液を氷水に注ぎ、塩化アンモニウム水溶液で中和した後、酢酸エチルを加えて

有機相を分離した。有機相を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体Ｆ９．５ｇ（収率６０％）を固体として得た。

【０１５０】

（３）中間体Ｇの合成

【化６３】



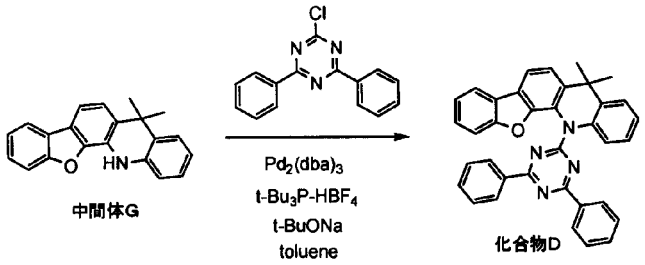
【０１５１】

中間体Ｆ９．５ｇ（３０ｍｍｏｌ）を出発原料として、実施例１の（３）に記載した条件に従うことにより、中間体Ｇ３．６ｇ（収率４０％）を固体として得た。

【０１５２】

（４）化合物Ｄの合成

【化６４】



【０１５３】

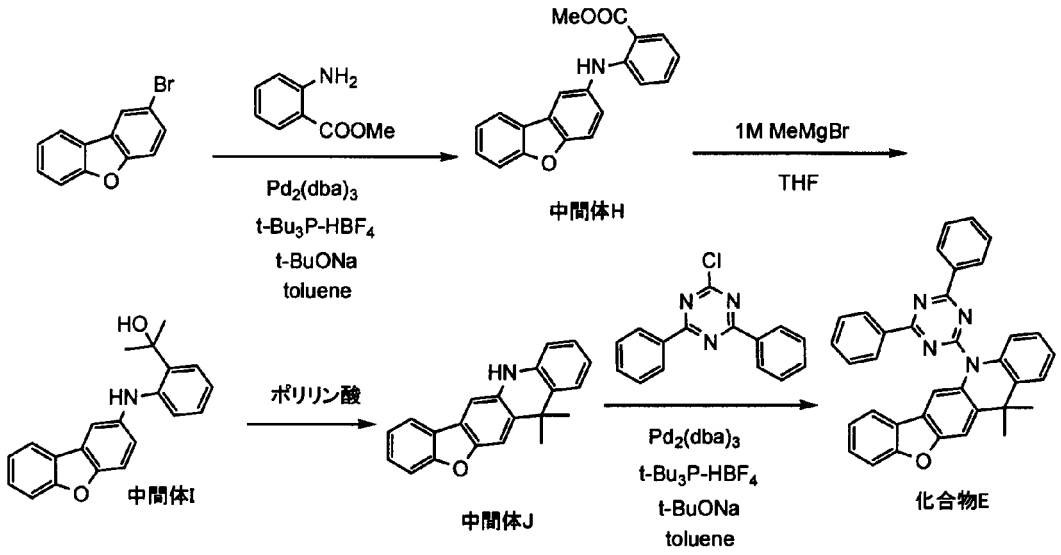
中間体Ｇ３．６ｇ（１２ｍｍｏｌ）を出発原料として、実施例１の（５）に記載した条件に従うことにより、化合物Ｄ１．９ｇ（収率３０％）を固体として得た。

ＦＤ－ＭＳ分析の結果、分子量５３０に対してｍ／ｅ＝５３０であった。

【０１５４】

実施例５　化合物Eの合成

【化６５】



【０１５５】

２－ブロモジベンゾフランを出発原料として、実施例４に記載の方法と同様にして、化合物Ｅを固体として得た。

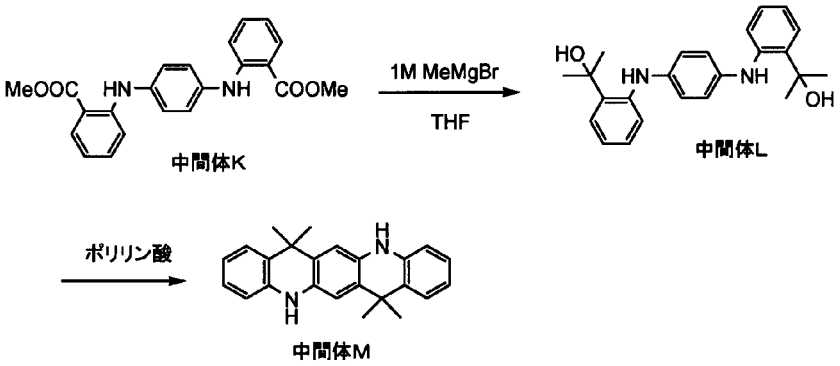
ＦＤ－ＭＳ分析の結果、分子量５３０に対してｍ／ｅ＝５３０であった。

【０１５６】

実施例６　化合物Ｆの合成

（１）中間体Ｍの合成

【化６６】



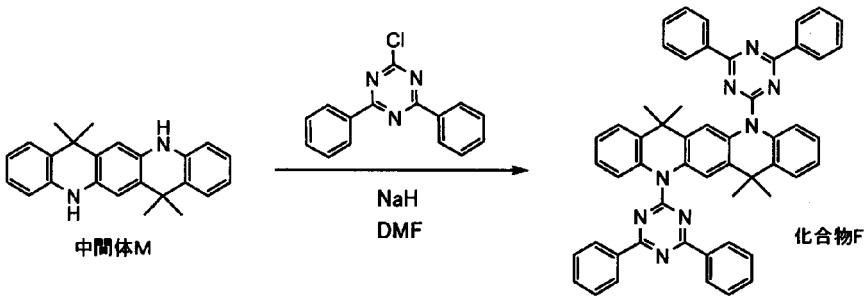
【０１５７】

中間体Ｋ（特開２００９－５２０３２公報に記載の方法に従って合成）を出発原料として、実施例４に記載の方法と同様にして、中間体Ｍまで合成し、中間体Ｍを固体として得た。

【０１５８】

（２）化合物Ｆの合成

【化６７】



水素化ナトリウム（油中６０質量％）１．２ｇ（３０ｍｍｏｌ）、脱水ＤＭＦ１００ｍｌを反応容器に加え、室温で攪拌した。次いで、中間体Ｍ　３．４ｇ（１０ｍｍｏｌ）を反応溶液に加えて、室温で１時間攪拌した。さらに、脱水ＤＭＦ３０ｍｌに溶解した２－クロロ－４，６－ジフェニルトリアジン５．９ｇ（２２ｍｍｏｌ）を滴下して加えた。室温で６時間、次いで６０℃で３時間攪拌した。反応溶液に氷水浴下でゆっくりと水を加えた後、トルエンを加えて有機相を分離した。有機相を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下で濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物Ｆ３．２ｇ（収率４０％）を固体として得た。

ＦＤ－ＭＳ分析の結果、分子量８０２に対してｍ／ｅ＝８０２であった。

【産業上の利用可能性】

【０１５９】

本発明の縮合多環化合物を含む有機ＥＬ素子用材料を用いることにより、発光効率が高く、長寿命の有機ＥＬ素子が得られる。

このため、本発明の有機ＥＬ素子は、各種電子機器の光源等として極めて有用である。また、本発明の縮合多環化合物は有機電子素子用材料としても有効に活用でき、有機太陽電池、有機半導体レーザー、有機物を用いるセンサー、有機ＴＦＴにおいても極めて有用

である。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	FI		テーマコード（参考）
	Ｃ０９Ｋ 11/06	６９０	
	Ｃ０９Ｋ 11/06	６６０	
	Ｃ０７Ｄ 491/048	ＣＳＰ	
	Ｃ０７Ｄ 471/04	１１２Ｚ	

Ｆターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 CC04 CC22 DD53 DD59 DD64 DD67
DD68 DD71 DD74 DD76 DD78 DD80 DD84 DD86
4C050 AA01 AA08 BB07 CC16 FF02 GG01 HH04
4C065 AA04 BB09 CC09 DD02 EE02 HH02 HH09 JJ01 KK02 KK09
LL01 PP03 PP11 PP14