

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6060095号  
(P6060095)

(45) 発行日 平成29年1月11日(2017.1.11)

(24) 登録日 平成28年12月16日(2016.12.16)

(51) Int. Cl.	F I		
<b>C07D 403/14</b>	<b>(2006.01)</b>	C07D 403/14	CSP
<b>H01L 51/50</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B 33/14	B
<b>C09K 11/06</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	660
		C09K 11/06	690

請求項の数 13 (全 72 頁)

(21) 出願番号	特願2013-556507 (P2013-556507)	(73) 特許権者	000183646
(86) (22) 出願日	平成25年1月31日 (2013.1.31)		出光興産株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2013/052277		東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(87) 国際公開番号	W02013/115340	(74) 代理人	110000637
(87) 国際公開日	平成25年8月8日 (2013.8.8)		特許業務法人樹之下知的財産事務所
審査請求日	平成27年7月16日 (2015.7.16)	(72) 発明者	水木 由美子
(31) 優先権主張番号	特願2012-22534 (P2012-22534)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(32) 優先日	平成24年2月3日 (2012.2.3)	(72) 発明者	井上 哲也
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	藪ノ内 伸浩
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	日比野 茎子
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	西村 和樹
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

最終頁に続く

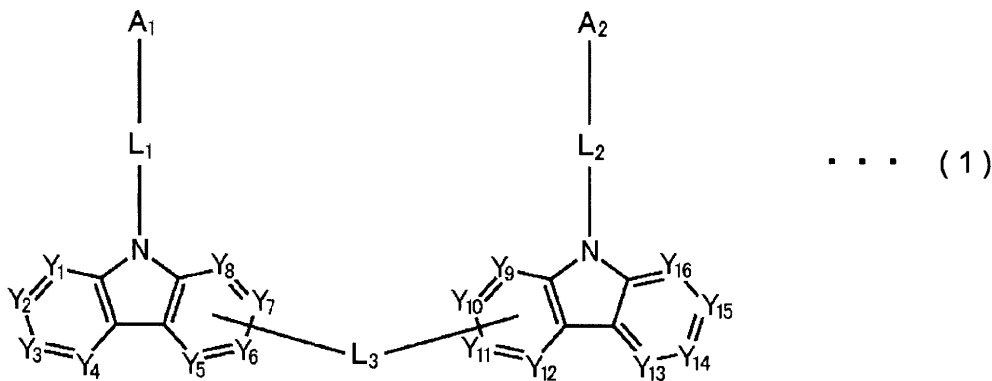
(54) 【発明の名称】 カルバゾール化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料および有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(1)で表される化合物。

【化1】



10

(前記一般式(1)において、 $A_1$  および  $A_2$  の一方は、置換もしくは無置換のピリミジニル基、置換もしくは無置換のトリアジニル基、または置換もしくは無置換のキナゾリニル基であり、他方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基を表す。

前記一般式(1)において、 $Y_1 \sim Y_{16}$  は、それぞれ独立に、CRまたは窒素原子を

20

表す。ただし、 $Y_5 \sim Y_{12}$ のうち、 $L_3$ と結合しているものは炭素原子である。前記C Rにおいて、Rは、互いに独立して、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数1～30の芳香族複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30の直鎖、分岐、もしくは環状のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、

置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルコキシ基、

置換もしくは無置換の炭素数3～30のアルキルシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数8～40のジアルキルアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数13～50のアルキルジアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数18～60のトリアリールシリル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルキニル基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ヒドロキシル基、

ニトロ基、又は

カルボキシ基を表す。Rが複数存在する場合、複数のRは、それぞれ同一または異なる。ただし、 $Y_1 \sim Y_{16}$ のうち、隣接する2つがCRである場合、隣接するCRにおけるRの一部同士が結合しない。

前記一般式(1)において、 $L_1$ および $L_2$ は、それぞれ独立に、単結合、または置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素化合物から誘導される二価の基を表す。

前記一般式(1)において、 $L_3$ は、下記一般式(2)～(4)のいずれかで表される連結基、または下記一般式(2)～(4)で表される連結基が組み合わされた複合連結基を表す。) 30

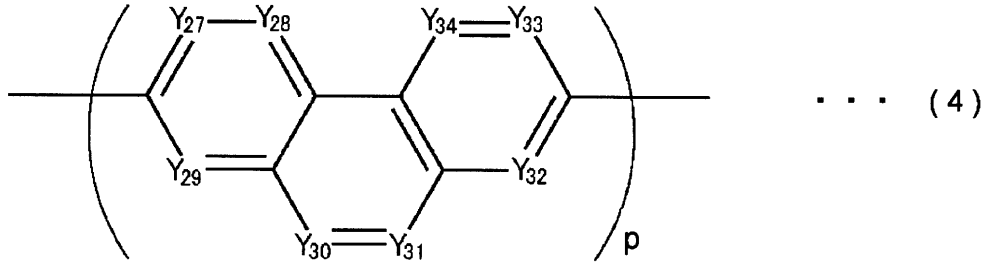
【化2】



【化3】



## 【化4】



(前記一般式(2)~(4)において、 $Y_{17} \sim Y_{34}$ は、それぞれ独立に、CH、または窒素原子を表す。 10

前記一般式(2)~(4)において、 $n$ 、 $m$ および $p$ は、それぞれ独立に、1~5の整数を表す。ただし、 $L_3$ が上記一般式(2)~(4)で表される連結基が組み合わせられた複合連結基である場合、 $n + m + p$ は、1~5の整数である。)

## 【請求項2】

請求項1に記載の化合物において、

前記一般式(1)における $A_1$ および $A_2$ の少なくともいずれかが、下記一般式(5)で表される

ことを特徴とする化合物。

## 【化5】



(前記一般式(5)において、 $X_1 \sim X_5$ は、それぞれ独立に、 $CR^b$ または窒素原子を表す。ただし、 $X_1 \sim X_5$ のうち少なくとも1つは窒素原子であり、 $X_1 \sim X_5$ のうち $L_1$ または $L_2$ と結合しているものは炭素原子である。 30

前記 $CR^b$ において、 $R^b$ は、水素原子または置換基を表す。ただし、 $X_1 \sim X_5$ のうち、隣接する2つが $CR^b$ である場合、隣接する $CR^b$ における $R^b$ の一部同士が結合して環構造を形成していてもよい。

$R^b$ が複数存在する場合、複数の $R^b$ はそれぞれ同一または異なる。)

## 【請求項3】

請求項1または請求項2に記載の化合物において、

前記一般式(2)~(4)における $Y_{17} \sim Y_{34}$ が、CHである

ことを特徴とする化合物。

## 【請求項4】

請求項1から請求項3までのいずれか一項に記載の化合物において、

前記一般式(1)における $A_1$ または $A_2$ の少なくともいずれかが、置換もしくは無置換のピリジニル基、または置換もしくは無置換のトリアジニル基である

ことを特徴とする化合物。

## 【請求項5】

請求項1から請求項4までのいずれか一項に記載の化合物において、

前記一般式(2)における $n$ 、前記一般式(3)における $m$ 、前記一般式(4)における $p$ が、それぞれ独立に、1~3の整数を表す

ことを特徴とする化合物。

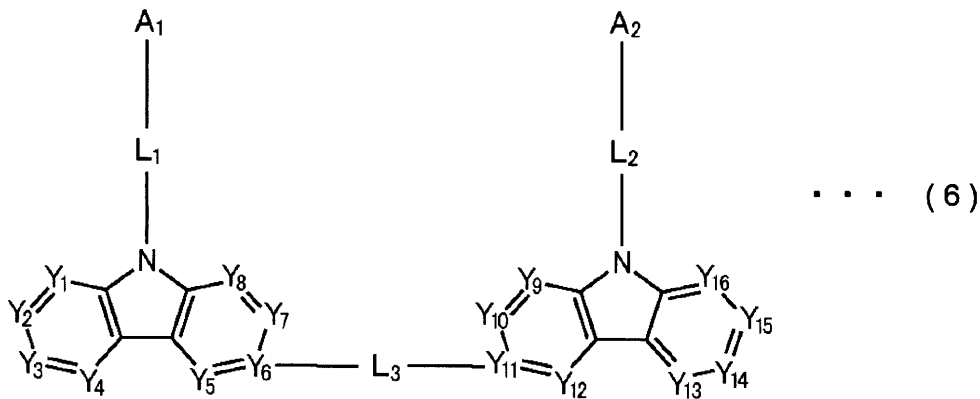
## 【請求項6】

請求項 1 から請求項 5 までのいずれか一項に記載の化合物において、  
前記一般式 ( 1 ) における  $L_3$  が、上記一般式 ( 2 ) で表される連結基である  
ことを特徴とする化合物。

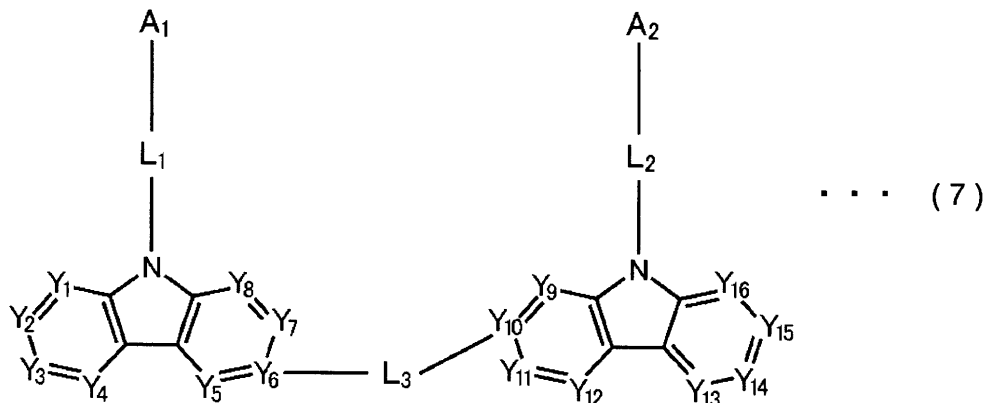
【請求項 7】

請求項 1 から請求項 6 までのいずれか一項に記載の化合物において、  
前記一般式 ( 1 ) で表される化合物が、下記一般式 ( 6 ) ~ ( 8 ) のいずれかで表され  
る  
ことを特徴とする化合物。

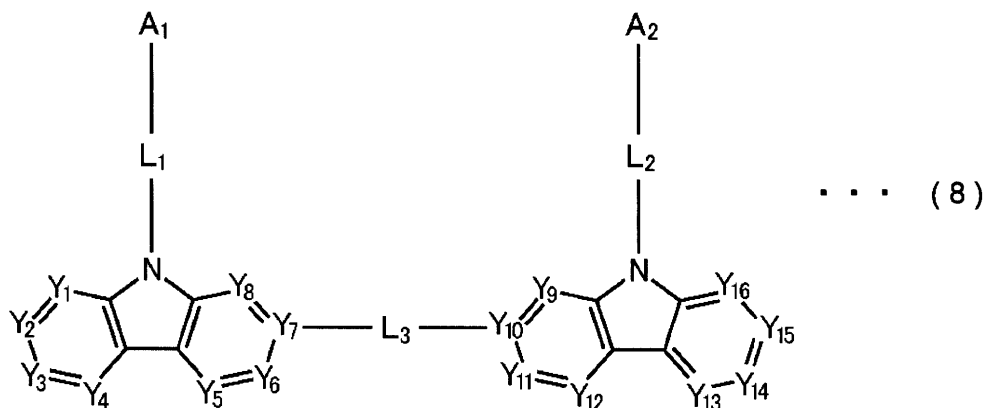
【化 6】



【化 7】



【化 8】



( 前記一般式 ( 6 ) において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_5$ 、 $Y_7 \sim Y_{10}$ 、 $Y_{12} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式 ( 1 ) と同義であり、 $Y_6$  および  $Y_{11}$  は炭素原子を表す。

前記一般式(7)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_5$ 、 $Y_7 \sim Y_9$ 、 $Y_{11} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_6$ および $Y_{10}$ は炭素原子を表す。

前記一般式(8)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_6$ 、 $Y_8 \sim Y_9$ 、 $Y_{11} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_7$ および $Y_{10}$ は炭素原子を表す。)

【請求項8】

請求項1から請求項7までのいずれか一項に記載の化合物において、

前記一般式(1)における $Y_5 \sim Y_{12}$ のうち、 $L_3$ と結合しているものが炭素原子であり、それ以外の $Y_5 \sim Y_{12}$ がCHである

10

ことを特徴とする化合物。

【請求項9】

請求項1から請求項8までのいずれか一項に記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項10】

陰極と、

陽極と、

前記陰極と前記陽極との間に配置され、発光層を含む1層以上の有機薄膜層と、を有し、

前記有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1から請求項8までのいずれか一項に記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項11】

請求項10に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層が、請求項1から請求項8までのいずれか一項に記載の化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】

請求項10または請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層が、燐光発光性材料を含有する

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】

請求項12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記燐光発光性材料が、イリジウム(Ir)、オスmium(Os)、および白金(Pt)から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、カルバゾール化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料および有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【背景技術】

40

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子ということもある。)に電圧を印加すると、陽極から正孔が、また陰極から電子が、それぞれ発光層に注入される。そして、発光層において、注入された正孔と電子とが再結合し、励起子が形成される。このとき、電子スピンの統計則により、一重項励起子及び三重項励起子が25%:75%の割合で生成する。発光原理に従って分類した場合、蛍光型では、一重項励起子による発光を用いるため、有機EL素子の内部量子効率(η<sub>int</sub>)は25%が限界といわれている。一方、燐光型では、三重項励起子による発光を用いるため、一重項励起子から項間交差が行われた場合には内部量子効率が100%まで高められることが知られている。

【0003】

50

従来、有機EL素子においては、蛍光型、及び燐光型の発光メカニズムに応じ、最適な素子設計がなされてきた。特に燐光型の有機EL素子については、その発光特性から、蛍光素子技術の単純な転用では高性能な素子が得られないことが知られている。その理由は、一般的に以下のように考えられている。

まず、燐光発光は、三重項励起子を利用した発光であるため、発光層に用いる化合物のエネルギーギャップが大きくなってはならない。何故なら、ある化合物の一重項エネルギー（最低励起一重項状態と基底状態とのエネルギー差をいう。）の値は、通常、その化合物の三重項エネルギー（最低励起三重項状態と基底状態とのエネルギー差をいう。）の値よりも大きいからである。

従って、燐光発光性ドーパント材料の三重項エネルギーを効率的に素子内に閉じ込めるためには、まず、燐光発光性ドーパント材料の三重項エネルギーよりも大きな三重項エネルギーを有するホスト材料を発光層に用いなければならない。さらに、発光層に隣接する電子輸送層及び正孔輸送層を設ける際に、電子輸送層及び正孔輸送層にも燐光発光性ドーパント材料よりも大きな三重項エネルギーを有する化合物を用いなければならない。このように、従来の有機EL素子の素子設計思想に基づく場合、燐光型の有機EL素子には、蛍光型の有機EL素子に用いる化合物と比べて、より大きなエネルギーギャップを有する化合物を用いることにつながる。その結果、燐光型の有機EL素子全体の駆動電圧が上昇する。

#### 【0004】

また、蛍光型の有機EL素子で有用であった酸化耐性や還元耐性の高い炭化水素系の化合物は、電子雲の拡がりが大きいため、エネルギーギャップが小さい。そのため、燐光型の有機EL素子では、このような炭化水素系の化合物が選択され難く、酸素や窒素などのヘテロ原子を含んだ有機化合物が選択される。しかし、ヘテロ原子を含んだ有機化合物を発光層に用いた燐光型の有機EL素子は、蛍光型の有機EL素子と比較して、寿命が短いという問題を有する。

#### 【0005】

さらに、燐光発光性ドーパント材料の三重項励起子の励起子緩和速度が一重項励起子と比較して非常に長いことも素子性能に大きな影響を与える。

即ち、一重項励起子からの発光は、発光に繋がる緩和速度が速いため、発光層の周辺層（例えば、正孔輸送層や電子輸送層）への励起子の拡散が起きにくく、効率的な発光が期待される。

一方、三重項励起子からの発光は、スピン禁制遷移に基づく発光であり、緩和速度が遅い。そのため、励起子が発光層の周辺層へ拡散し易く、特定の燐光発光性化合物以外からは熱的なエネルギー失活が起きてしまう。つまり、燐光型の有機EL素子においては、蛍光型の有機EL素子と比較して、電子及び正孔の再結合領域のコントロールがより重要となる。

以上のような理由より、燐光型の有機EL素子をより高性能化するためには、蛍光型の有機EL素子と異なる材料選択及び素子設計が必要となる。

#### 【0006】

燐光型の有機EL素子に用いられる化合物として、従来、カルバゾール誘導体が知られている。カルバゾール誘導体は、高い三重項エネルギーを示し、且つ正孔輸送性材料の主要骨格として知られるカルバゾール骨格を有する。カルバゾール誘導体は、有用な燐光ホスト材料として用いられていた。

特許文献1及び2には、2つのカルバゾール環が連結基を介して結合した化合物を、有機EL素子用材料として用いることが開示されている。また、特許文献3には、2つのカルバゾールの9位（N位）同士が連結基Zを介して連結され、さらに、この連結基Zに含窒素複素環基を導入したN,N-カルバゾール化合物を、有機EL素子用材料として用いることが開示されている。

しかし、依然として有機EL素子の発光効率を向上させることが求められており、発光効率を向上させることのできる化合物、および当該化合物を含む有機EL素子用材料の開

10

20

30

40

50

発が望まれている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開2004-217557号公報

【特許文献2】特開2004-273128号公報

【特許文献3】特開2006-199679号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明の目的は、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光効率を向上させることができる新規化合物、および当該化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供することである。さらに、本発明の目的は、当該化合物または当該有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用い、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光効率を向上させることである。

【課題を解決するための手段】

【0009】

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、2つのカルバゾールまたはアザカルバゾール（以下、これらをカルバゾール誘導体と称する。）が連結されたビスカルバゾール誘導体において、2つのカルバゾール誘導体を特定の連結基で連結し、さらに、連結された2つのカルバゾール誘導体のうち少なくともいずれかのカルバゾール誘導体の9位に置換もしくは無置換の窒素芳香族複素環基を直接または別の連結基を介して結合させることで、当該ビスカルバゾール誘導体を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の発光効率が向上することを見出した。

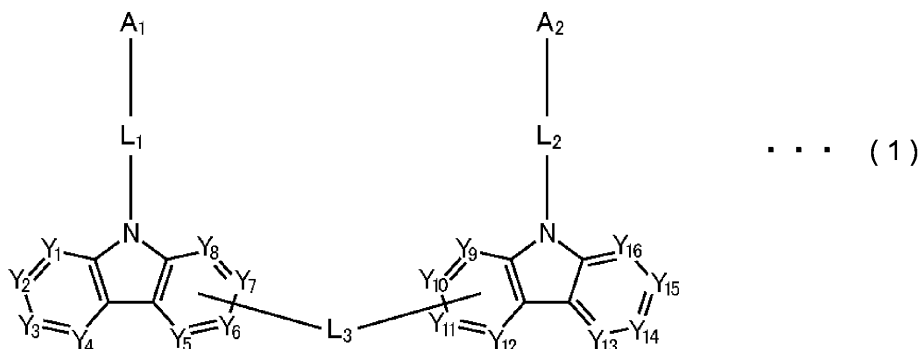
本発明者らは、このような知見に基づいて、本発明を完成させた。

【0010】

本発明の化合物は、下記一般式(1)で表される。

【0011】

【化1】



【0012】

（前記一般式(1)において、 $A_1$  および  $A_2$  の一方は、置換もしくは無置換のピリミジニル基、置換もしくは無置換のトリアジニル基、または置換もしくは無置換のキナゾリニル基であり、他方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基を表す。

前記一般式(1)において、 $Y_1 \sim Y_{16}$  は、それぞれ独立に、CRまたは窒素原子を表す。ただし、 $Y_5 \sim Y_{12}$  のうち、 $L_3$  と結合しているものは炭素原子である。前記CRにおいて、Rは、互いに独立して、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 1 ~ 30 の芳香族複素環基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 の直鎖、分岐、もしくは環状のアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、  
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリアルオキシ基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 30 のアラルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のハロアルキル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のハロアルコキシ基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 30 のアルキルシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 40 のジアルキルアリアルシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 13 ~ 50 のアルキルジアリアルシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 18 ~ 60 のトリアリアルシリル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルケニル基、  
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 30 のアルキニル基、  
 ハロゲン原子、  
 シアノ基、  
 ヒドロキシル基、  
 ニトロ基、又は

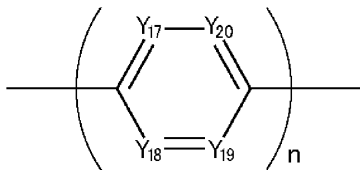
カルボキシ基を表す。R が複数存在する場合、複数の R は、それぞれ同一または異なる。ただし、 $Y_1 \sim Y_{16}$  のうち、隣接する 2 つが CR である場合、隣接する CR における R の一部同士が結合しない。

前記一般式 (1) において、 $L_1$  および  $L_2$  は、それぞれ独立に、単結合、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素化合物から誘導される二価の基を表す。

前記一般式 (1) において、 $L_3$  は、下記一般式 (2) ~ (4) のいずれかで表される連結基、または下記一般式 (2) ~ (4) で表される連結基が組み合わされた複合連結基を表す。) )

【0013】

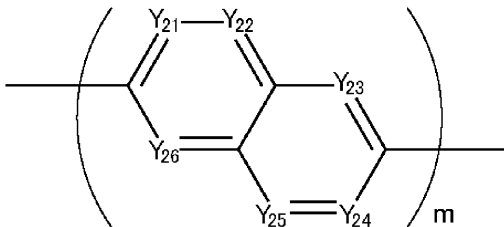
【化2】



... (2)

【0014】

【化3】



... (3)

【0015】

10

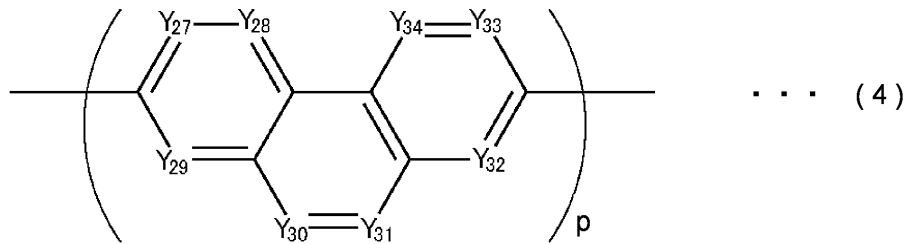
20

30

40



## 【化4】



## 【0016】

(前記一般式(2)~(4)において、 $Y_{17} \sim Y_{34}$ は、それぞれ独立に、CH、または窒素原子を表す。

前記一般式(2)~(4)において、 $n$ 、 $m$ および $p$ は、それぞれ独立に、1~5の整数を表す。ただし、 $L_3$ が上記一般式(2)~(4)で表される連結基が組み合わされた複合連結基である場合、 $n + m + p$ は、1~5の整数である。)

## 【0017】

本発明の化合物において、

前記一般式(1)における $A_1$ および $A_2$ の少なくともいずれかが、下記一般式(5)で表される

ことが好ましい。

## 【0018】

## 【化5】



## 【0019】

(前記一般式(5)において、 $X_1 \sim X_5$ は、それぞれ独立に、 $CR^b$ または窒素原子を表す。ただし、 $X_1 \sim X_5$ のうち少なくとも1つは窒素原子であり、 $X_1 \sim X_5$ のうち $L_1$ または $L_2$ と結合しているものは炭素原子である。

前記 $CR^b$ において、 $R^b$ は、水素原子または置換基を表す。ただし、 $X_1 \sim X_5$ のうち、隣接する2つが $CR^b$ である場合、隣接する $CR^b$ における $R^b$ の一部同士が結合して環構造を形成していてもよい。

$R^b$ が複数存在する場合、複数の $R^b$ はそれぞれ同一または異なる。)

## 【0020】

本発明の化合物において、

前記一般式(2)~(4)における $Y_{17} \sim Y_{34}$ が、CHである

ことが好ましい。

## 【0021】

本発明の化合物において、

前記一般式(1)における $A_1$ または $A_2$ の少なくともいずれかが、置換もしくは無置換のピリジニル基、または置換もしくは無置換のトリアジニル基である

ことが好ましい。

## 【0022】

本発明の化合物において、

前記一般式(2)における $n$ 、前記一般式(3)における $m$ 、前記一般式(4)におけ

10

20

30

40

50

る p が、それぞれ独立に、1 ~ 3 の整数を表す  
ことが好ましい。

【0023】

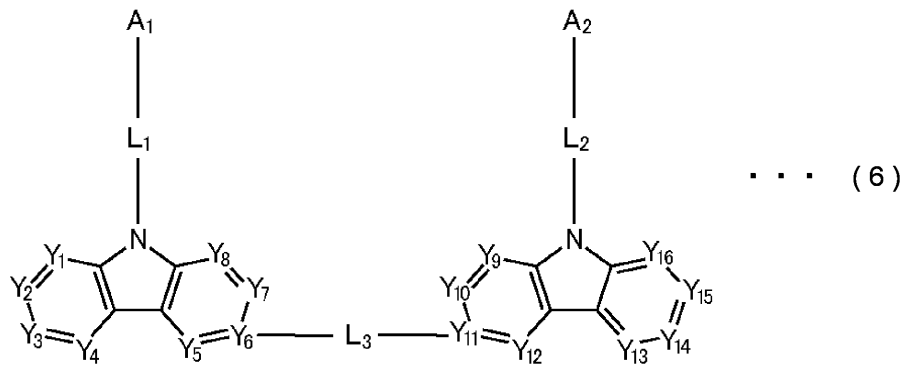
本発明の化合物において、  
前記一般式(1)における L<sub>3</sub> が、上記一般式(2)で表される連結基である  
ことが好ましい。

【0024】

本発明の化合物において、  
前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(6) ~ (8)のいずれかで表され  
ることが好ましい。

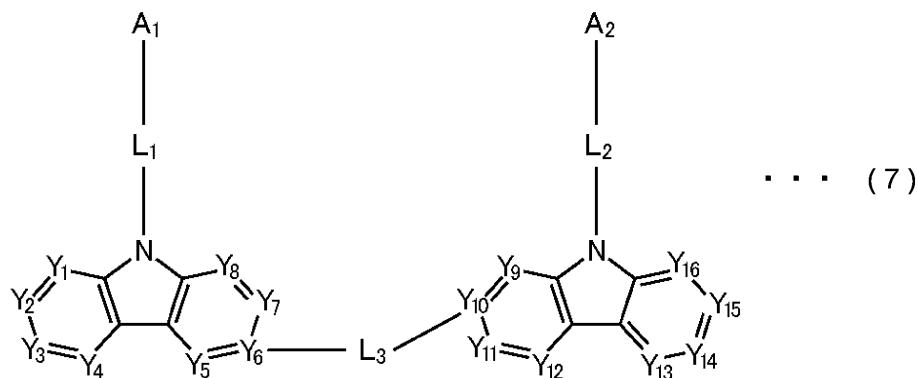
【0025】

【化6】



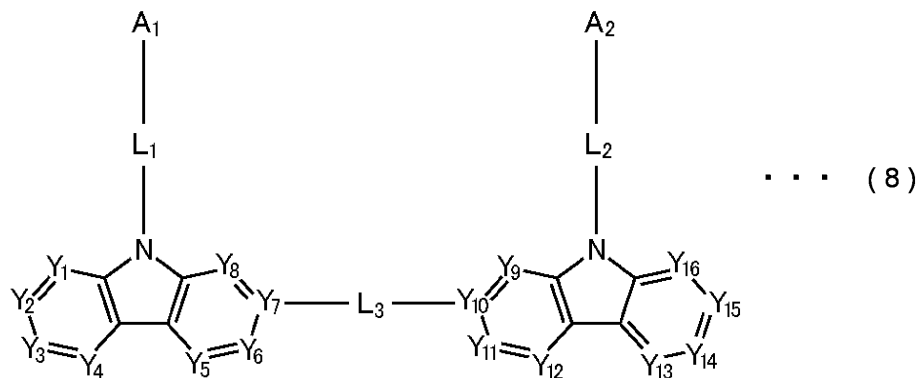
【0026】

【化7】



【0027】

【化8】



10

20

30

40

50

## 【0028】

(前記一般式(6)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_5$ 、 $Y_7 \sim Y_{10}$ 、 $Y_{12} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_6$  および  $Y_{11}$  は炭素原子を表す。

前記一般式(7)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_5$ 、 $Y_7 \sim Y_9$ 、 $Y_{11} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_6$  および  $Y_{10}$  は炭素原子を表す。

前記一般式(8)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_6$ 、 $Y_8 \sim Y_9$ 、 $Y_{11} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_7$  および  $Y_{10}$  は炭素原子を表す。) 10

## 【0029】

本発明の化合物において、

前記一般式(1)における $Y_5 \sim Y_{12}$ のうち、 $L_3$ と結合しているものが炭素原子であり、それ以外の $Y_5 \sim Y_{12}$ がCHである

ことが好ましい。

## 【0031】

本発明の有機EL素子用材料は、上記本発明の化合物のいずれかを含む。

## 【0032】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、

陰極と、 20

陽極と、

前記陰極と前記陽極との間に配置された、発光層を含む1層以上の有機薄膜層と、を有し、

前記有機薄膜層の少なくとも1層が、上記本発明の化合物のいずれかを含有する。

## 【0033】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層が、上記本発明の化合物のいずれかを含有する

ことが好ましい。

## 【0034】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、 30

前記発光層が、燐光発光性材料を含有する

ことが好ましい。

## 【0035】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記燐光発光性材料が、イリジウム(Ir)、オスmium(Os)、および白金(Pt)から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である

ことが好ましい。

## 【0036】

本発明によれば、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光効率を向上させることができる新規化合物、当該化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供することができる。さらに、本発明によれば、当該化合物または当該有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用い、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光効率を向上させることができる。 40

## 【図面の簡単な説明】

## 【0037】

【図1】本発明の実施形態に係る有機EL素子の一例の概略構成を示す図である。

【図2A】化合物Aの化学式を示す図である。

【図2B】前記化合物Aの分子軌道図を示す図である。

【図3A】化合物Bの化学式を示す図である。

【図3B】前記化合物Bの分子軌道図を示す図である。 50

## 【発明を実施するための形態】

【0038】

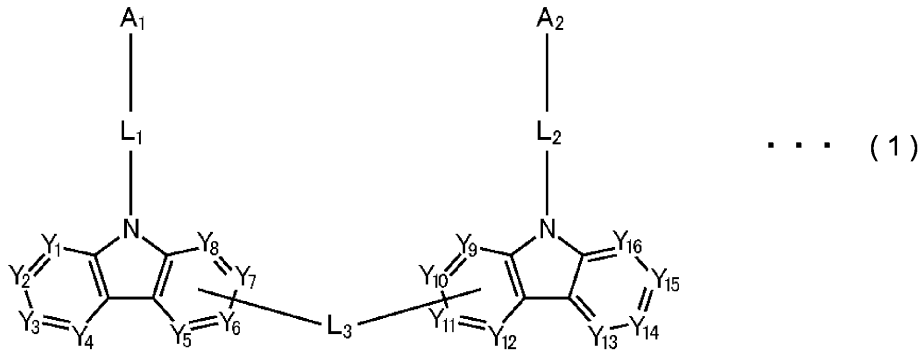
以下、本発明について具体的に説明する。

[化合物]

本発明の化合物は、下記一般式(1)で表される。

【0039】

【化9】



10

【0040】

前記一般式(1)において、 $A_1$ および $A_2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環基を表す。ただし、 $A_1$ および $A_2$ の少なくとも1つは、置換もしくは無置換の含窒素芳香族複素環基を表す。

20

【0041】

前記一般式(1)において、 $Y_1 \sim Y_{16}$ は、それぞれ独立に、CRまたは窒素原子を表す。ただし、 $Y_5 \sim Y_{12}$ のうち、 $L_3$ と結合しているものは炭素原子である。

前記CRは、炭素原子(C)に、Rが結合したものである。

前記CRにおいて、Rは、互いに独立して、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~30の直鎖、分岐、もしくは環状のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7~30のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数3~30のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8~40のジアルキルアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数13~50のアルキルジアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数18~60のトリアリールシリル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、又はカルボキシ基を表す。Rが複数存在する場合、複数のRは、それぞれ同一または異なる。ただし、 $Y_1 \sim Y_{16}$ のうち、隣接する2つがCRである場合、隣接するCRにおけるRの一部同士が結合して環構造を形成していてもよい。

30

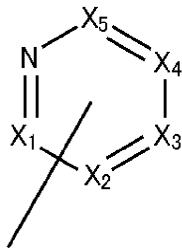
40

【0042】

本発明の化合物において、前記一般式(1)における $A_1$ および $A_2$ の少なくともいずれかが、下記一般式(5)で表されることが好ましい。

【0043】

## 【化10】



... (5)

## 【0044】

10

前記一般式(5)において、 $X_1 \sim X_5$ は、それぞれ独立に、 $CR^b$ または窒素原子を表す。この $CR^b$ は、炭素原子(C)に、 $R^b$ が結合したものである。

ただし、 $X_1 \sim X_5$ のうち少なくとも1つは窒素原子であり、 $X_1 \sim X_5$ のうち $L_1$ または $L_2$ と結合しているものは炭素原子である。

前記 $CR^b$ において、 $R^b$ は、水素原子または置換基を表す。ただし、 $X_1 \sim X_5$ のうち、隣接する2つが $CR^b$ である場合、隣接する $CR^b$ における $R^b$ の一部同士が結合して環構造を形成していてもよい。

$R^b$ が複数存在する場合、複数の $R^b$ はそれぞれ同一または異なる。

前記 $CR^b$ において、 $R^b$ である置換基としては、前記 $CR$ における $R$ で挙げた基から水素原子を除いた基が挙げられる。

20

前記一般式(5)の前記 $CR^b$ における $R^b$ は、水素、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環基であることが好ましい。

## 【0045】

前記一般式(5)で表される含窒素芳香族複素環基は、ピリミジン骨格を有する複素環基、またはトリアジン骨格を有する複素環基であることが好ましい。

ピリミジン骨格を有する複素環基としては、例えば、置換もしくは無置換のピリミジニル基が挙げられる。ピリミジニル基としては、2-ピリミジニル基、4-ピリミジニル基、5-ピリミジニル基、6-ピリミジニル基が挙げられる。

トリアジン骨格を有する複素環基としては、例えば、置換もしくは無置換のトリアジニル基が挙げられる。トリアジニル基は、トリアジン環から形成される基であって、トリアジン環には、1,2,3-トリアジン、1,2,4-トリアジン、1,3,5-トリアジンの3種がある。トリアジニル基としては、1,2,3-トリアジン-4-イル基、1,2,4-トリアジン-3-イル基、1,3,5-トリアジン-2-イル基などが挙げられる。

30

## 【0046】

本発明の化合物において、前記一般式(1)における $A_1$ または $A_2$ の少なくともいずれかが、置換もしくは無置換のピリミジニル基、または置換もしくは無置換のトリアジニル基であることが好ましい。

$A_1$ または $A_2$ の位置にピリミジニル基またはトリアジニル基を結合させることで、他の含窒素芳香族複素環基である、例えば、イミダゾピリジニル基の場合と比べて、ビスカルバゾール誘導体の正孔および電子に対する耐性が向上すると考えられる。

40

## 【0047】

前記一般式(1)において、 $L_1$ および $L_2$ は、それぞれ独立に、単結合もしくは連結基を表す。

前記一般式(1)の $L_1$ および $L_2$ における連結基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素化合物から誘導される二価の基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環式化合物から誘導される二価の基であることが好ましい。

$L_1$ および $L_2$ の少なくとも一方が、単結合である場合、正孔輸送性が向上する。

50

$L_1$  および  $L_2$  の少なくとも一方が、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素化合物から誘導される二価の基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数 1 ~ 30 の芳香族複素環式化合物から誘導される二価の基である場合、電子輸送性が向上する傾向がある。

それゆえ、本発明の化合物のキャリア輸送性のバランス調整を目的として、 $L_1$  および  $L_2$  を適宜選択することが望ましい。このように、 $L_1$  および  $L_2$  を適宜選択することは、本発明の化合物を有機 EL 素子における発光層のホスト材料に用いる場合にも有効である。

なお、 $L_1$  および  $L_2$  において、置換基を有する場合、この置換基としては、前記 CR における R で挙げた基から水素原子を除いた基が挙げられる。

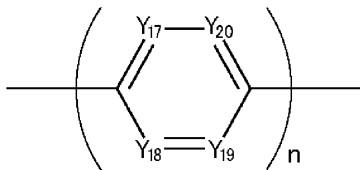
10

## 【0048】

前記一般式(1)において、 $L_3$  は、下記一般式(2)~(4)のいずれかで表される連結基、または下記一般式(2)~(4)で表される連結基が組み合わされた複合連結基を表す。

## 【0049】

## 【化11】

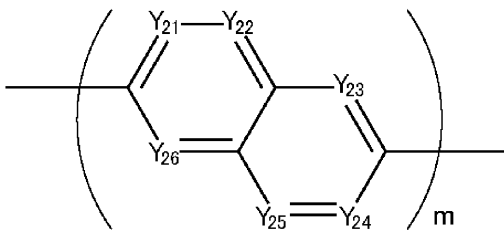


... (2)

20

## 【0050】

## 【化12】

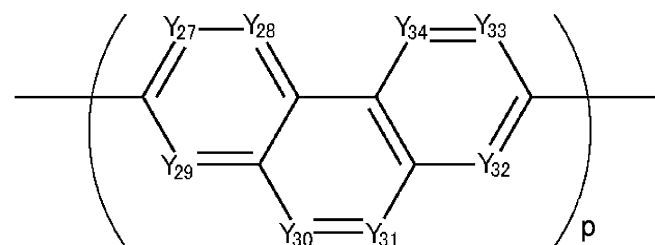


... (3)

30

## 【0051】

## 【化13】



... (4)

40

## 【0052】

前記一般式(2)~(4)において、 $Y_{17} \sim Y_{34}$  は、それぞれ独立に、CH、または窒素原子を表す。このCHは、炭素原子(C)に、水素原子(H)が結合したものを表す。

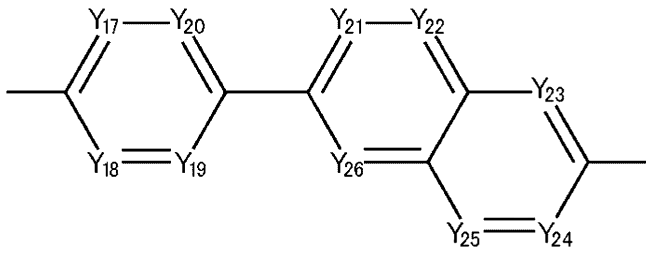
前記一般式(2)~(4)において、 $n$ 、 $m$  および  $p$  は、それぞれ独立に、1~5の整数を表す。ただし、 $L_3$  が上記一般式(2)~(4)で表される連結基が組み合わされた複合連結基である場合、 $n + m + p$  は、1~5の整数であり、好ましくは2~5の整数であり、より好ましくは2~4の整数であり、さらに好ましくは2又は3である。複合連結基としては、上記一般式(2)~(4)で表される連結基を任意に組み合わせて構成する

50

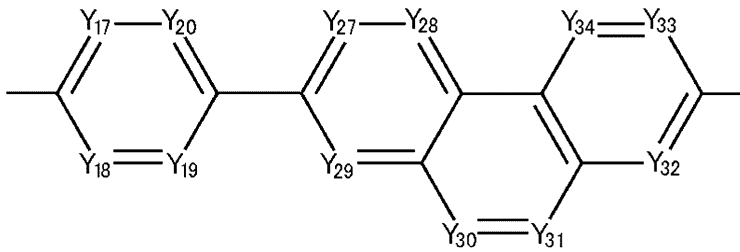
ことができる。好ましい複合連結基としては、例えば、次の組合せの構造が挙げられる。

【 0 0 5 3 】

【 化 1 4 】



10



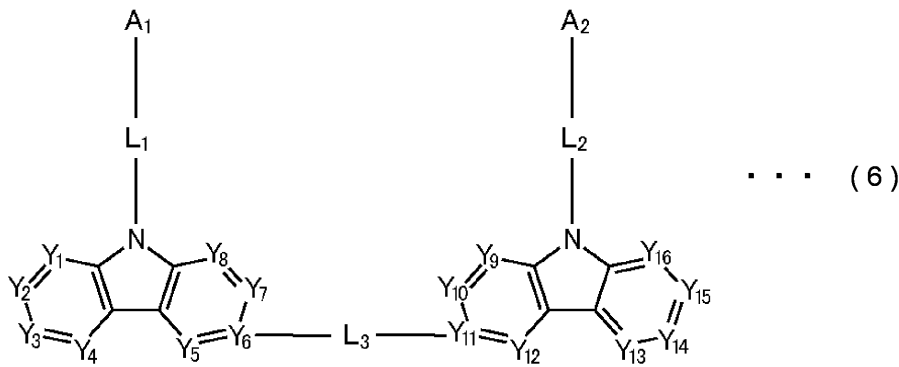
20

【 0 0 5 4 】

本発明の化合物において、前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(6)~(8)のいずれかで表されることが好ましい。

【 0 0 5 5 】

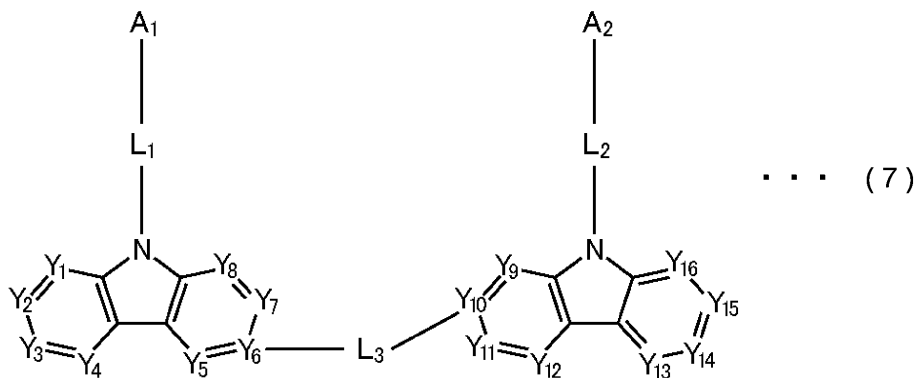
【 化 1 5 】



30

【 0 0 5 6 】

【 化 1 6 】

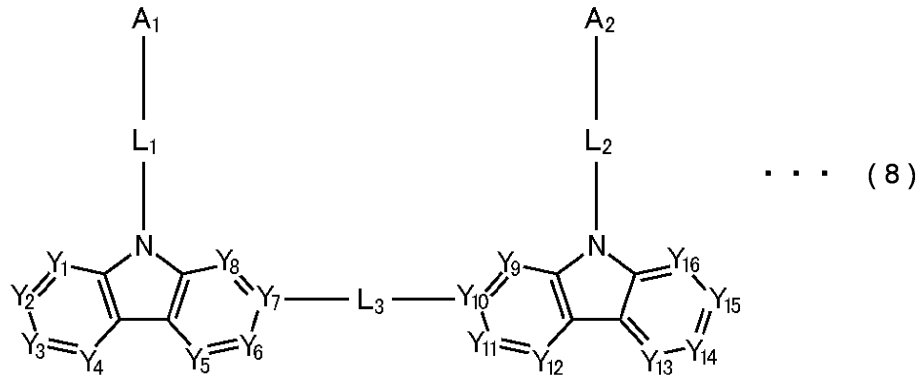


40

【 0 0 5 7 】

50

## 【化 17】



10

## 【0058】

前記一般式(6)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_5$ 、 $Y_7 \sim Y_{10}$ 、 $Y_{12} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_6$  および  $Y_{11}$  は炭素原子を表す。

前記一般式(7)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_5$ 、 $Y_7 \sim Y_9$ 、 $Y_{11} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_6$  および  $Y_{10}$  は炭素原子を表す。

前記一般式(8)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1 \sim Y_6$ 、 $Y_8 \sim Y_9$ 、 $Y_{11} \sim Y_{16}$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、それぞれ前記一般式(1)と同義であり、 $Y_7$  および  $Y_{10}$  は炭素原子を表す。

20

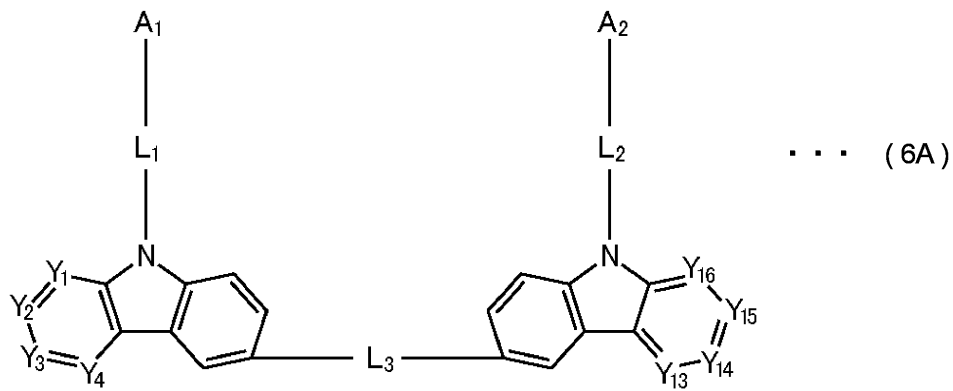
## 【0059】

本発明の化合物において、前記一般式(1)における $Y_5 \sim Y_{12}$ のうち、 $L_3$ と結合しているものが炭素原子であり、それ以外の $Y_5 \sim Y_{12}$ がCHであることが好ましい。この場合、例えば、前記一般式(6)～(8)は、次の一般式(6A)～(9A)で表される。

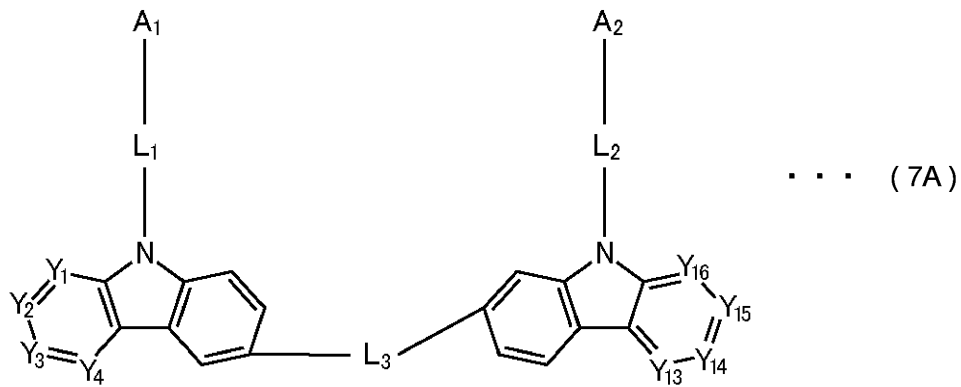
## 【0060】



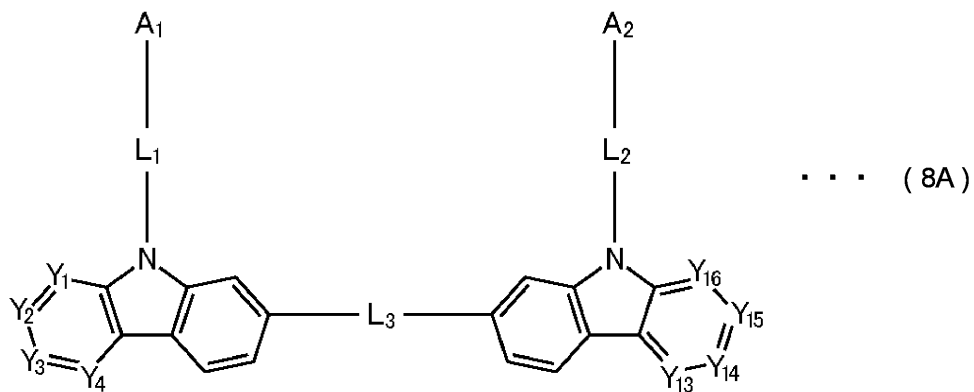
## 【化 1 8】



10



20



30

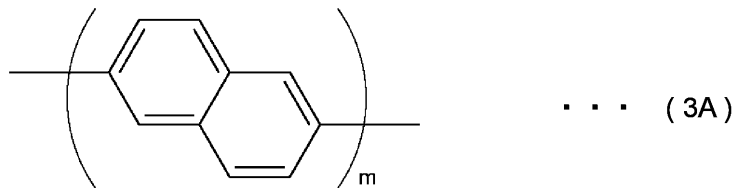
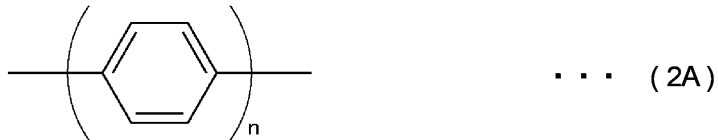
## 【0061】

本発明の化合物において、前記一般式(2)~(4)における $Y_{1,7} \sim Y_{3,4}$ が、C H であることが好ましく、それぞれ、下記一般式(2A)~(4A)で表される。

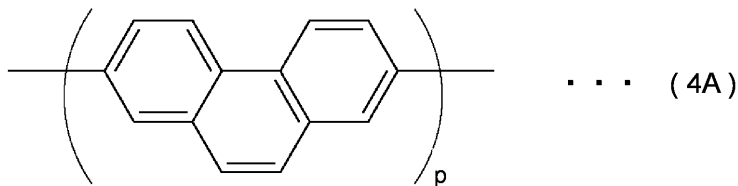
40

## 【0062】

## 【化 19】



10



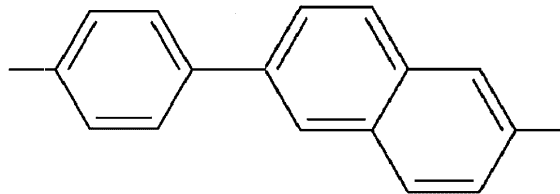
## 【0063】

20

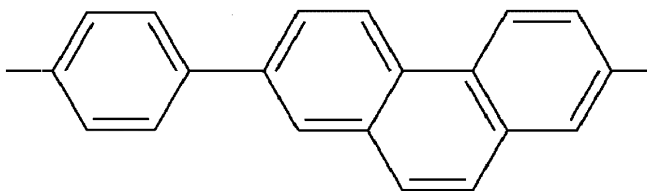
また、複合連結基においても  $Y_{17} \sim Y_{34}$  が、CHであることが好ましく、例えば、次のような構造が挙げられる。

## 【0064】

## 【化 20】



30



## 【0065】

40

本発明の化合物において、前記一般式(2)における  $n$ 、前記一般式(3)における  $m$ 、前記一般式(4)における  $p$  が、それぞれ独立に、1~3の整数を表すことが好ましい。

## 【0066】

本発明の化合物において、前記一般式(1)における  $L_3$  が、上記一般式(2)で表される連結基であることが好ましく、上記一般式(2A)で表される連結基であることがさらに好ましい。そして、上記一般式(2A)において  $n$  が1または2であることがより好ましく、 $n$  が1であることが特に好ましい。

## 【0067】

前記一般式(1)、(6)~(8)における環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、

50

2 - アントリル基、9 - アントリル基、ベンズアントリル基、1 - フェナントリル基、2 - フェナントリル基、3 - フェナントリル基、4 - フェナントリル基、9 - フェナントリル基、ナフタセニル基、ピレニル基、1 - クリセニル基、2 - クリセニル基、3 - クリセニル基、4 - クリセニル基、5 - クリセニル基、6 - クリセニル基、ベンゾ [ c ] フェナントリル基、ベンゾ [ g ] クリセニル基、1 - トリフェニレニル基、2 - トリフェニレニル基、3 - トリフェニレニル基、4 - トリフェニレニル基、1 - フルオレニル基、2 - フルオレニル基、3 - フルオレニル基、4 - フルオレニル基、9 - フルオレニル基、2 - スピロピフルオレニル基、3 - スピロピフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、2 - ビフェニルイル基、3 - ビフェニルイル基、4 - ビフェニルイル基、o - ターフェニル基、m - ターフェニル - 4 - イル基、m - ターフェニル - 3 - イル基、m - ターフェニル - 2 - イル基、p - ターフェニル - 4 - イル基、p - ターフェニル - 3 - イル基、p - ターフェニル - 2 - イル基、m - クウオーターフェニル基、3 - フルオランテニル基、4 - フルオランテニル基、8 - フルオランテニル基、9 - フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、o - トリル基、m - トリル基、p - トリル基、2, 3 - キシリル基、3, 4 - キシリル基、2, 5 - キシリル基、メシチル基、o - クメニル基、m - クメニル基、p - クメニル基、p - t - ブチルフェニル基、p - (2 - フェニルプロピル) フェニル基、4' - メチルビフェニルイル基、4" - t - ブチル - p - ターフェニル - 4 - イル基が挙げられる。

10

前記一般式 (1), (6) ~ (8) における芳香族炭化水素基としては、環形成炭素数が 6 ~ 20 であることが好ましく、6 ~ 12 であることがより好ましい。上記芳香族炭化水素基の中でもフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ターフェニル基、フルオレニル基、トリフェニレニル基が特に好ましい。1 - フルオレニル基、2 - フルオレニル基、3 - フルオレニル基および 4 - フルオレニル基については、9 位の炭素原子に、前記一般式 (1), (6) ~ (8) における置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、または環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基が置換されていることが好ましい。

20

#### 【0068】

前記一般式 (1), (6) ~ (8) における環形成炭素数 1 ~ 30 の芳香族複素環基としては、例えば、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、イミダゾリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、ベンゾチオフェニル基、およびピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、インドール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサン環、ペリリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環から形成される基が挙げられる。

30

40

#### 【0069】

さらに具体的には、1 - ピロリル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、2 - ピリミジニル基、4 - ピリミジニル基、5 - ピリミジニル基、6 - ピリミジニル基、1, 2, 3 - トリアジン - 4 - イル基、1, 2, 4 - トリアジン - 3 - イル基、1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル基、1 - イミダゾリル基、2 - イミダゾリル基、1 - ピラゾリル基、1 - インドリジニル基、2 - インドリジニル基、3 - インドリジニル基、5 - インドリジニル基、6 - インドリジニル基、7 - インドリジニル基、8 - インドリジニル基、2 - イミダゾピリジニル基、3 - イミダゾピリジニル基、5 - イミダゾピリジニル基、6 - イミダゾピリジニル基、7 - イミダゾピリジニル基、8 - イミダゾピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - インドリル基、2 - インド

50

リル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、  
 7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル  
 基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソイ  
 ンドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル  
 基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾ  
 フラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフ  
 ラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフ  
 ラニル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノ  
 リル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、  
 4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、  
 8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニ  
 ル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリ  
 ル基、9 - カルバゾリル基、アザカルバゾリル - 1 - イル基、アザカルバゾリル - 2 - イ  
 ル基、アザカルバゾリル - 3 - イル基、アザカルバゾリル - 4 - イル基、アザカルバゾリ  
 ル - 5 - イル基、アザカルバゾリル - 6 - イル基、アザカルバゾリル - 7 - イル基、アザ  
 カルバゾリル - 8 - イル基、アザカルバゾリル - 9 - イル基、1 - フェナントリジニル基  
 、2 - フェナントリジニル基、3 - フェナントリジニル基、4 - フェナントリジニル基、  
 6 - フェナントリジニル基、7 - フェナントリジニル基、8 - フェナントリジニル基、9  
 - フェナントリジニル基、10 - フェナントリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アク  
 リジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 -  
 フェナントロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェ  
 ナントロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナン  
 トロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナントロ  
 リン - 9 - イル基、1, 7 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナントロリ  
 ン - 2 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナントロリン -  
 4 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 6 -  
 イル基、1, 8 - フェナントロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナントロリン - 9 - イル  
 基、1, 8 - フェナントロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 2 - イル基  
 、1, 9 - フェナントロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 4 - イル基、1  
 , 9 - フェナントロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 6 - イル基、1, 9  
 - フェナントロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナントロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェ  
 ナントロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 2 - イル基、1, 10 -  
 フェナントロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナントロリン - 4 - イル基、1, 10 -  
 フェナントロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェ  
 ナントロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナン  
 トロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナントロ  
 リン - 7 - イル基、2, 9 - フェナントロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナントロリン  
 - 10 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナントロリン -  
 3 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 5 -  
 イル基、2, 8 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 7 - イル  
 基、2, 8 - フェナントロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナントロリン - 10 - イル基  
 、2, 7 - フェナントロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 3 - イル基、2  
 , 7 - フェナントロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 5 - イル基、2, 7  
 - フェナントロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェ  
 ナントロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナントロリン - 10 - イル基、1 - フェナジ  
 ニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 -  
 フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェノチアジニル基、1 - フェノ  
 キサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジニ  
 ル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基、5 - オキ  
 サゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザニル基、2

10

20

30

40

50

- チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル - 1 - インドリル基、4 - t - ブチル - 1 - インドリル基、2 - t - ブチル - 3 - インドリル基、4 - t - ブチル - 3 - インドリル基、1 - ジベンゾフラニル基、2 - ジベンゾフラニル基、3 - ジベンゾフラニル基、4 - ジベンゾフラニル基、1 - ジベンゾチオフェニル基、2 - ジベンゾチオフェニル基、3 - ジベンゾチオフェニル基、4 - ジベンゾチオフェニル基、1 - シラフルオレニル基、2 - シラフルオレニル基、3 - シラフルオレニル基、4 - シラフルオレニル基、1 - ゲルマフルオレニル基、2 - ゲルマフルオレニル基、3 - ゲルマフルオレニル基、4 - ゲルマフルオレニル基が挙げられる。

10

## 【0070】

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

20

## 【0071】

前記一般式(1)，(6)～(8)における炭素数1～30のアルキル基としては、直鎖、分岐鎖又は環状のいずれであってもよい。直鎖または分岐鎖のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、イソブチル基、t - ブチル基、n - ペンチル基、n - ヘキシル基、n - ヘプチル基、n - オクチル基、n - ノニル基、n - デシル基、n - ウンデシル基、n - ドデシル基、n - トリデシル基、n - テトラデシル基、n - ペンタデシル基、n - ヘキサデシル基、n - ヘプタデシル基、n - オクタデシル基、ネオペンチル基、1 - メチルペンチル基、2 - メチルペンチル基、1 - ペンチルヘキシル基、1 - ブチルペンチル基、1 - ヘプチルオクチル基、3 - メチルペンチル基、ヒドロキシメチル基、1 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシイソブチル基、1，2 - ジヒドロキシエチル基、1，3 - ジヒドロキシイソプロピル基、2，3 - ジヒドロキシ - t - ブチル基、1，2，3 - トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1，2 - ジクロロエチル基、1，3 - ジクロロイソプロピル基、2，3 - ジクロロ - t - ブチル基、1，2，3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1，2 - ジプロモエチル基、1，3 - ジプロモイソプロピル基、2，3 - ジプロモ - t - ブチル基、1，2，3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1，2 - ジヨードエチル基、1，3 - ジヨードイソプロピル基、2，3 - ジヨード - t - ブチル基、1，2，3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1，2 - ジアミノエチル基、1，3 - ジアミノイソプロピル基、2，3 - ジアミノ - t - ブチル基、1，2，3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1，2 - ジシアノエチル基、1，3 - ジシア

30

40

50

ノイソプロピル基、2,3-ジシアノ-t-ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1,2-ジニトロエチル基、2,3-ジニトロ-t-ブチル基、1,2,3-トリニトロプロピル基が挙げられる。

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

#### 【0072】

前記一般式(1),(6)~(8)における直鎖または分岐鎖のアルキル基の炭素数は、1~10であることが好ましく、1~6であることがさらに好ましい。上記直鎖または分岐鎖のアルキル基の中でもメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基が好ましい。

10

前記一般式(1),(6)~(8)におけるシクロアルキル基の環形成炭素数は、3~10であることが好ましく、5~8であることがさらに好ましい。上記シクロアルキル基の中でも、シクロペンチル基やシクロヘキシル基が好ましい。

#### 【0073】

前記一般式(1),(6)~(8)における炭素数1~30のハロアルキル基としては、例えば、上記炭素数1~30のアルキル基が1以上のハロゲン基で置換されたものが挙げられる。具体的には、フルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、フルオロエチル基、トリフルオロメチルメチル基等が挙げられる。

20

前記一般式(1),(6)~(8)における炭素数2~30のアルケニル基としては、直鎖、分岐鎖又は環状のいずれであってもよく、例えば、ビニル、プロペニル、ブテニル、オレイル、エイコサペンタエニル、ドコサヘキサエニル、スチリル、2,2-ジフェニルビニル、1,2,2-トリフェニルビニル、2-フェニル-2-プロペニル等が挙げられる。上述したアルケニル基の中でもビニル基が好ましい。

前記一般式(1),(6)~(8)における炭素数2~30のアルキニル基としては、直鎖、分岐鎖又は環状のいずれであってもよく、例えば、エチニル、プロピニル、2-フェニルエチニル等が挙げられる。上述したアルキニル基の中でもエチニル基が好ましい。

30

#### 【0074】

前記一般式(1),(6)~(8)における炭素数3~30のアルキルシリル基としては、上記炭素数1~30のアルキル基で例示したアルキル基を有するトリアルキルシリル基が挙げられ、具体的にはトリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリ-n-ブチルシリル基、トリ-n-オクチルシリル基、トリエチルシリル基、ジメチルエチルシリル基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチル-n-プロピルシリル基、ジメチル-n-ブチルシリル基、ジメチル-t-ブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、トリエチルシリル基等が挙げられる。トリアルキルシリル基における3つのアルキル基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

40

#### 【0075】

前記一般式(1),(6)~(8)における炭素数8~40のジアルキルアリアルシリル基としては、例えば、上記炭素数1~30のアルキル基で例示したアルキル基を2つ有し、上記環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基を1つ有するジアルキルアリアルシリル基が挙げられる。ジアルキルアリアルシリル基の炭素数は、8~30であることが好ましい。ジアルキルアリアルシリル基における2つのアルキル基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

前記一般式(1),(6)~(8)における炭素数13~50のアルキルジアリアルシリル基としては、例えば、上記炭素数1~30のアルキル基で例示したアルキル基を1つ有し、上記環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基を2つ有するアルキルジアリアルシ

50

リル基が挙げられる。アルキルジアリールシリル基の炭素数は、13～30であることが好ましい。アルキルジアリールシリル基において、2つのアリール基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

前記一般式(1)、(6)～(8)における炭素数18～60のトリアリールシリル基としては、例えば、上記環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基を3つ有するトリアリールシリル基が挙げられる。トリアリールシリル基の炭素数は、18～30であることが好ましい。トリアリールシリル基において、3つの芳香族炭化水素基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

【0076】

前記一般式(1)、(6)～(8)における炭素数1～30のアルコキシ基は、 $-OY^1$ と表される。この $Y^1$ の例として、上記炭素数1～30のアルキル基が挙げられる。アルコキシ基は、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基があげられる。

10

【0077】

前記一般式(1)、(6)～(8)における炭素数1～30のハロアルコキシ基としては、例えば、上記炭素数1～30のアルコキシ基が1以上のハロゲン基で置換されたものが挙げられる。

【0078】

前記一般式(1)、(6)～(8)における炭素数7～30のアラルキル基は、 $-Y^2-Z^2$ と表される。この $Y^2$ の例として、上記炭素数1～30のアルキル基に対応するアルキレン基が挙げられる。この $Z^2$ の例として、上記環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基の例が挙げられる。このアラルキル基において、芳香族炭化水素基部分は炭素数が6～30、好ましくは6～20、より好ましくは6～12である。また、このアラルキル基において、アルキル基部分は炭素数が1～30、好ましくは1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～6である。このアラルキル基としては、例えば、ベンジル基、2-フェニルプロパン-2-イル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、-ナフチルメチル基、1--ナフチルエチル基、2--ナフチルエチル基、1--ナフチルイソプロピル基、2--ナフチルイソプロピル基、-ナフチルメチル基、1--ナフチルエチル基、2--ナフチルエチル基、1--ナフチルイソプロピル基、2--ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-プロモベンジル基、m-プロモベンジル基、o-プロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基が挙げられる。

20

30

40

【0079】

前記一般式(1)、(6)～(8)における環形成炭素数6～30のアリールオキシ基は、 $-OZ^3$ と表される。この $Z^3$ の例として、上記環形成炭素数6～30芳香族炭化水素基または後述する単環基および縮合環基が挙げられる。このアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基が挙げられる。

【0080】

前記一般式(1)、(6)～(8)におけるハロゲン原子として、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。

【0081】

本発明において、「環形成炭素」とは飽和環、不飽和環、又は芳香環を構成する炭素原

50

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

また、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわち、軽水素（protium）、重水素（deuterium）及び三重水素（tritium）を包含する。

【0082】

また、「置換もしくは無置換の」という場合における置換基としては、上述のような芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アルキル基（直鎖または分岐鎖のアルキル基、シクロアルキル基、ハロアルキル基）、アルコキシ基、アリーロキシ基、アラルキル基、ハロアルコキシ基、アルキルシリル基、ジアルキルアリーロシリル基、アルキルジアアリーロシリル基、トリアアリーロシリル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヒドロキシル基、ニトロ基、およびカルボキシ基が挙げられる。その他、アルケニル基やアルキニル基も挙げられる。

10

ここで挙げた置換基の中では、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アルキル基、ハロゲン原子、アルキルシリル基、アリーロシリル基、シアノ基が好ましく、さらには、各置換基の説明において好ましいとした具体的な置換基が好ましい。

「置換もしくは無置換の」という場合における「無置換」とは前記置換基で置換されておらず、水素原子が結合していることを意味する。また、本発明において、「置換もしくは無置換の炭素数 a ~ b の X 基」という表現における「炭素数 a ~ b」は、X 基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、X 基が置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。

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

20

【0083】

本発明の化合物は、2つのカルバゾールまたはアザカルバゾールであるカルバゾール誘導体（以下、C<sub>z</sub>と略記する場合がある。）を連結するL<sub>3</sub>で表される連結基または複合連結基が、置換基を有さず、かつ連結基または複合連結基の特定の位置で2つのカルバゾール誘導体と結合している。そのため、本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体においては、L<sub>3</sub>とC<sub>z</sub>との間の立体障害が小さく、L<sub>3</sub>とC<sub>z</sub>との平面性が保たれ、C<sub>z</sub>-L<sub>3</sub>-C<sub>z</sub>部位において共役系を拡げることができる。共役系が拡がることにより、C<sub>z</sub>-L<sub>3</sub>-C<sub>z</sub>部位にHOMO（highest occupied molecular orbital, 最高被占分子軌道）が拡がる。そのため、有機EL素子の有機薄膜層中で本発明の化合物であるビス

30

カルバゾール誘導体が成膜されて積み重なると、ビスカルバゾール誘導体の分子間の電子の重なりが大きくなり、当該有機薄膜層の正孔輸送性が向上する。

【0084】

本発明の化合物において、L<sub>3</sub>が、例えばフェニレン基である場合には、一方のC<sub>z</sub>が結合する部位に対して、他方のC<sub>z</sub>がフェニレンのp位（パラ位）で結合している。そのため、m位（メタ位）やo位（オルト位）で結合する場合と比較して、p位で結合する方が電子の共役が切れにくく、共役系を拡げることができる。この点について、図2A、図2B、図3A及び図3Bを参照して説明する。図2Aには、化合物Aが記載されている。この化合物Aにおいては、一方のC<sub>z</sub>が結合する部位に対して、他方のC<sub>z</sub>がフェニレン基のp位（パラ位）で結合している。そして、図2Bには、この化合物Aの分子軌道図が示されている。図3Aには、化合物Bが記載されている。この化合物Bにおいては、一方のC<sub>z</sub>が結合する部位に対して、他方のC<sub>z</sub>がフェニレン基のm位（メタ位）で結合している。そして、図3Bには、この化合物Bの分子軌道図が示されている。化合物Aと化合物Bの分子軌道図を比較すると、化合物Bでは、図3Bに示されているように、フェニレン基の2位、及び5位の炭素原子の位置で電子の共役が切れている。一方で、化合物Aでは、図2Bに示されているように、フェニレン基において電子の共役が広がっている。

40

【0085】

また、本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体は、一般式(2)~(4)のいずれかで表される特定構造のL<sub>3</sub>で連結されていることにより、燐光ホスト材料として適度

50



な三重項エネルギーを有する。そのため、本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体は、燐光ホスト材料として好適であり、特に、赤色、黄色、緑色で発光する燐光発光性ドーパント材料に適した燐光ホスト材料となる。

【0086】

また、本発明の化合物は、 $A_1$  および  $A_2$  の少なくともいずれかに、置換もしくは無置換の含窒素芳香族複素環基を有する。そのため、有機EL素子の有機薄膜層中に本発明の化合物を含有させることで、当該有機薄膜層の電子注入性が向上する。したがって、本発明の化合物を有機EL素子の発光層に含有させることにより、当該発光層内の電荷バランスが向上し、有機EL素子の発光効率を向上させることができる。

また、カルバゾールまたはアザカルバゾールのN位(9位)に置換もしくは無置換の含窒素芳香族複素環基を導入することで、含窒素芳香族複素環にLUMO(lowest unoccupied molecular orbital, 最低空分子軌道)が分布する。その結果、Cz-L<sub>3</sub>-Cz部位のHOMOと、当該含窒素芳香族複素環のLUMOとを分離させることができる。それゆえ、本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体は、正孔および電子に対する耐性が優れると考えられる。

さらにまた、本発明の化合物は、前記一般式(1)における $A_1$  および  $A_2$  の一方が、置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環基であり、他方が、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基であることも好ましい。すなわち、

(a) 前記一般式(1)における $A_1$  が置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環基であり、且つ前記一般式(1)における $A_2$  が置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基である、

または、

(b) 前記一般式(1)における $A_2$  が置換もしくは無置換の環形成炭素数1~30の芳香族複素環基であり、且つ前記一般式(1)における $A_1$  が置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基である、

ことが好ましい。

【0087】

本発明の前記一般式(1)、(6)~(8)で表される化合物の具体的な構造としては、例えば、次のようなものが挙げられる。但し、本発明は、これらの構造の化合物に限定

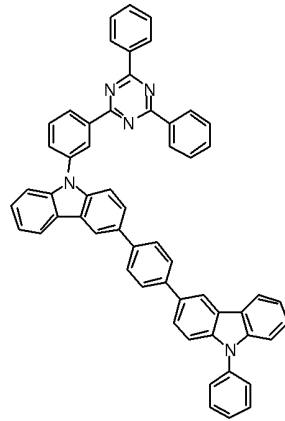
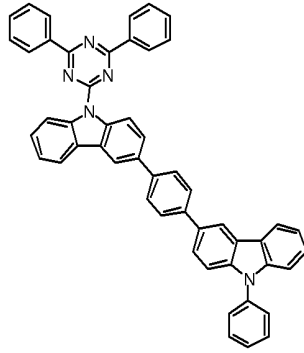
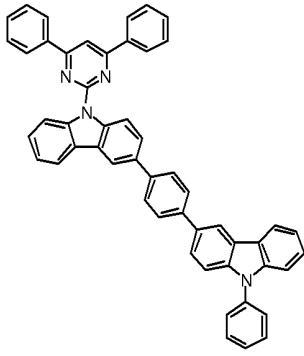
【0088】

10

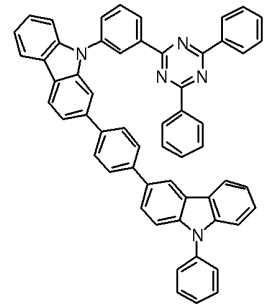
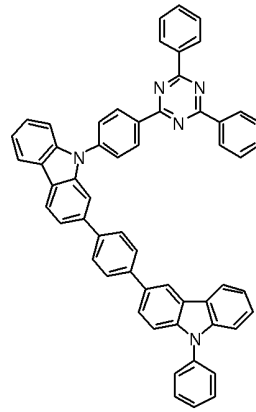
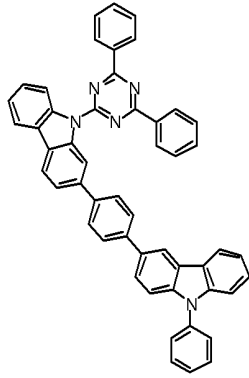
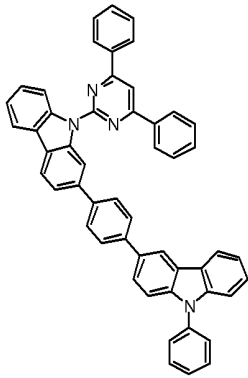
20

30

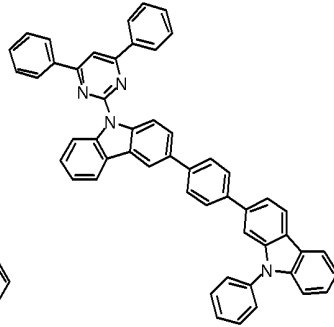
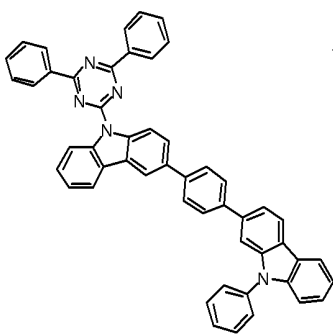
【化 2 1】



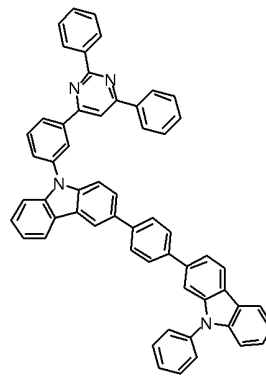
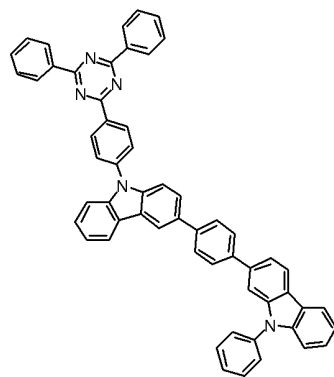
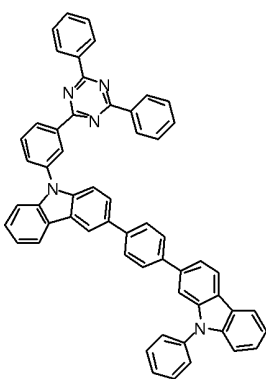
10



20



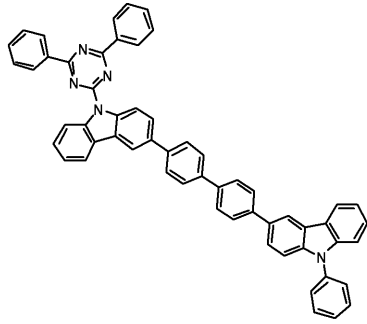
30



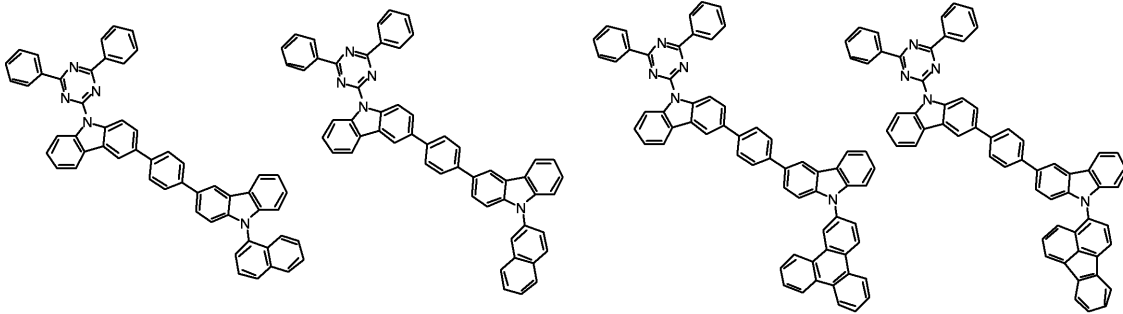
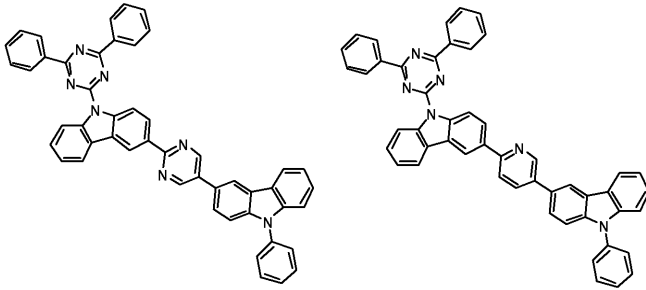
40

【 0 0 8 9 】

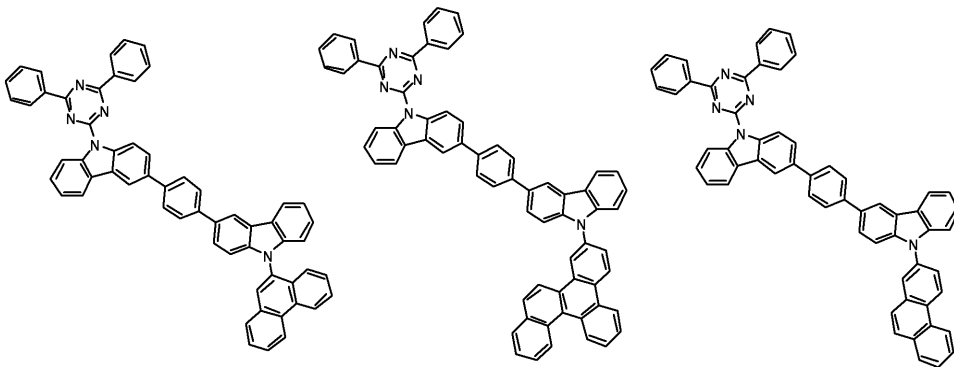
【化 2 2】



10



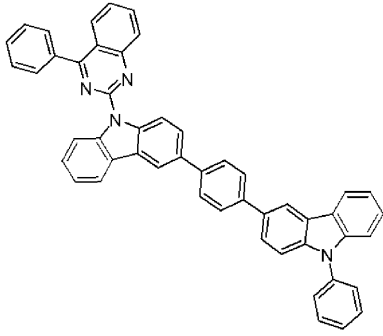
20



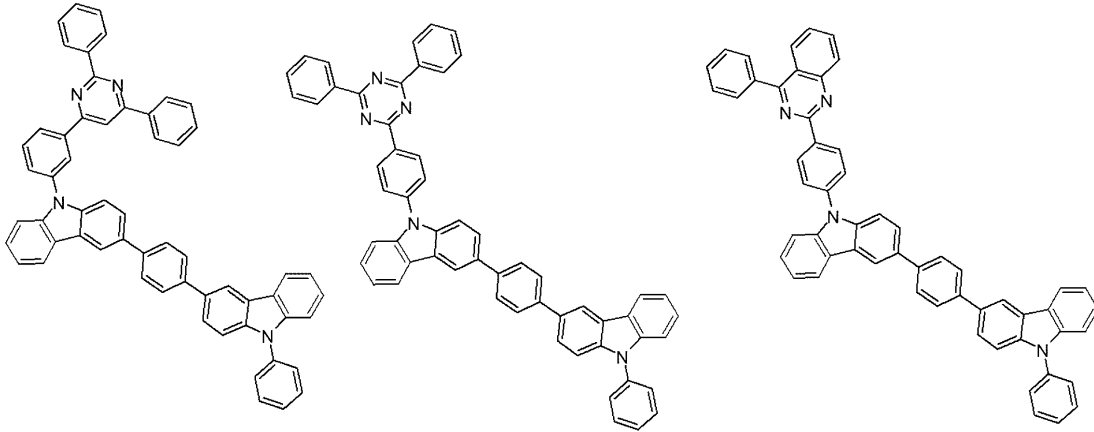
30

【 0 0 9 0 】

【化 2 3】



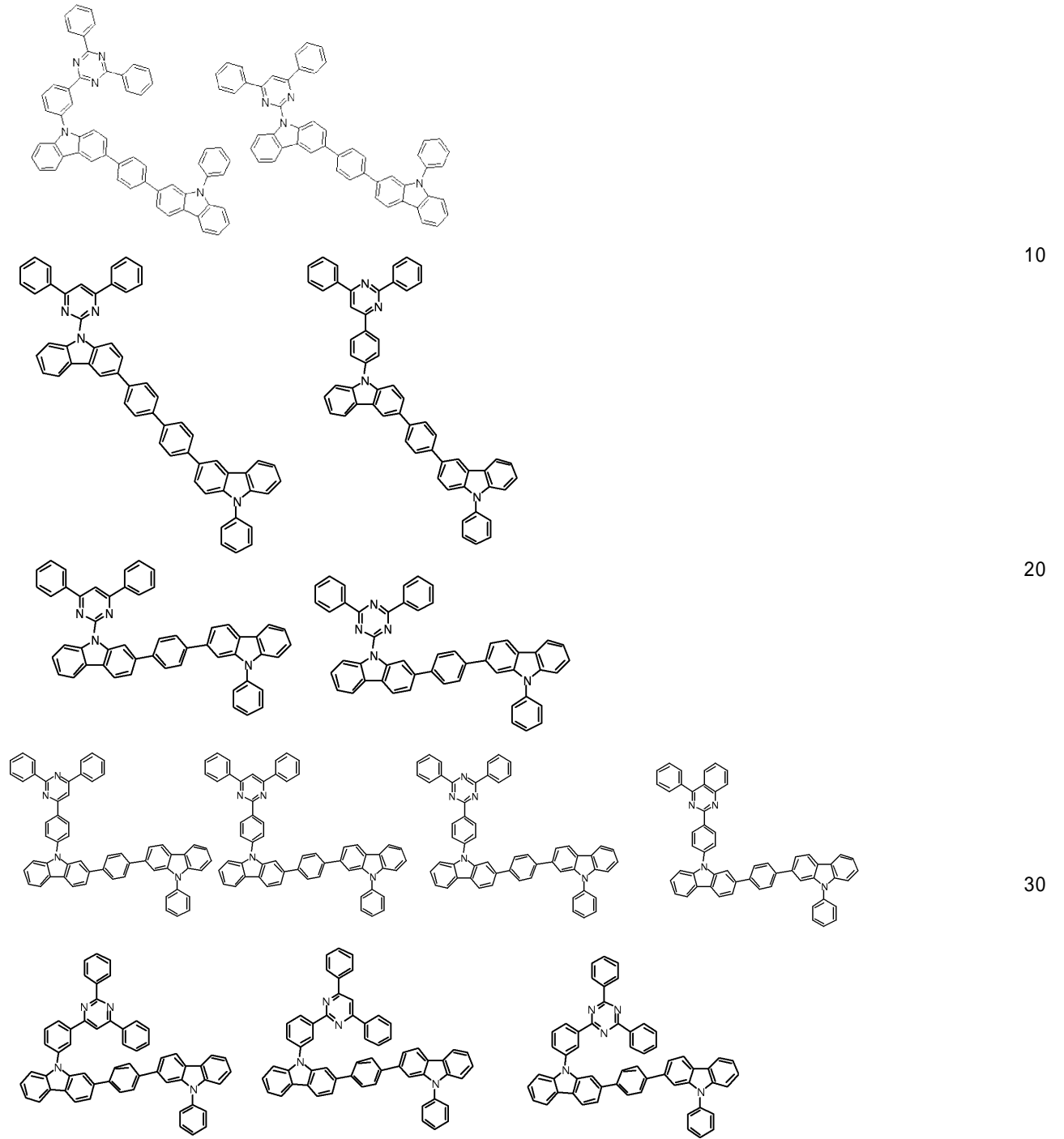
10



20

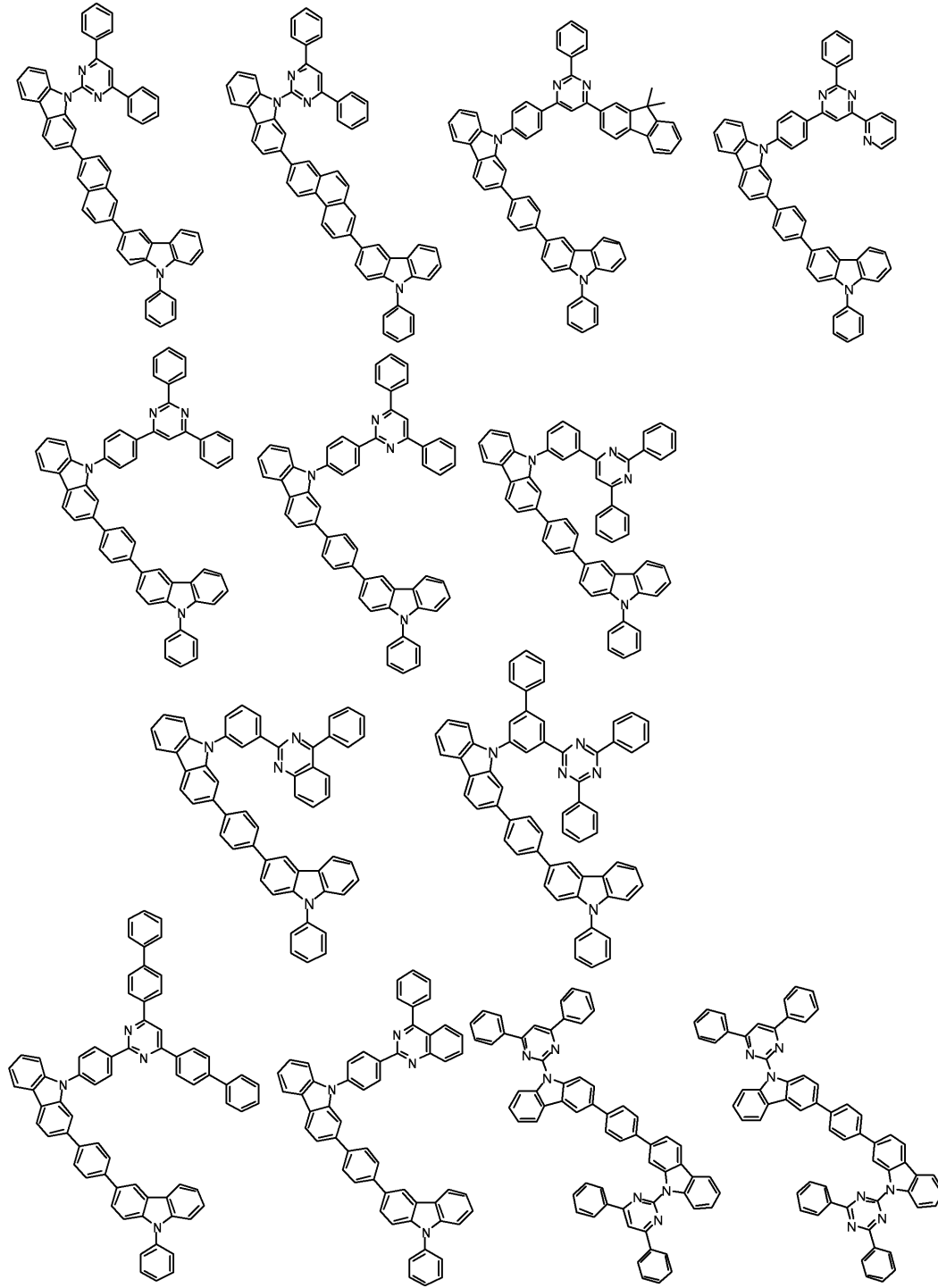
【 0 0 9 1】

【化 2 4】



【 0 0 9 2 】

【化 2 5】



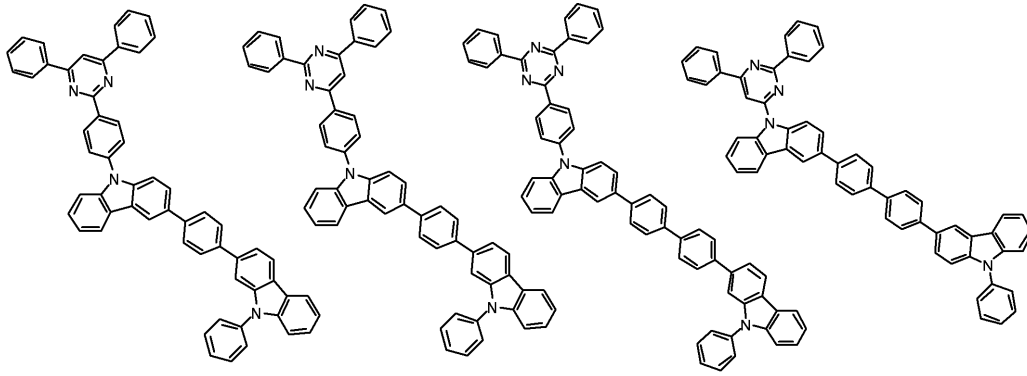
10

20

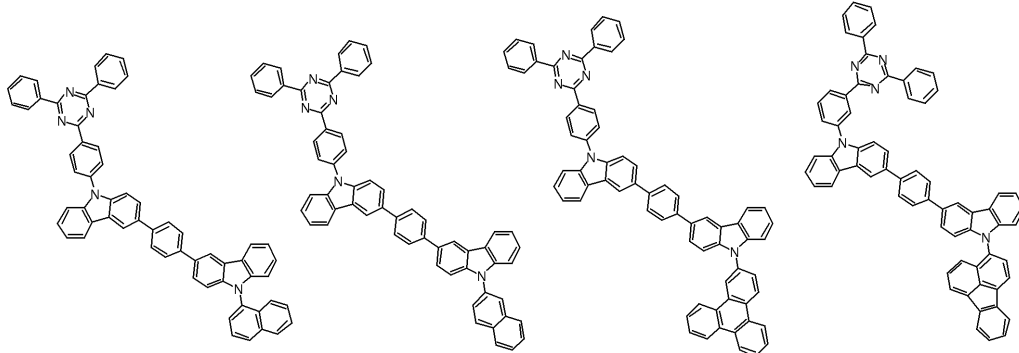
30

【 0 0 9 3】

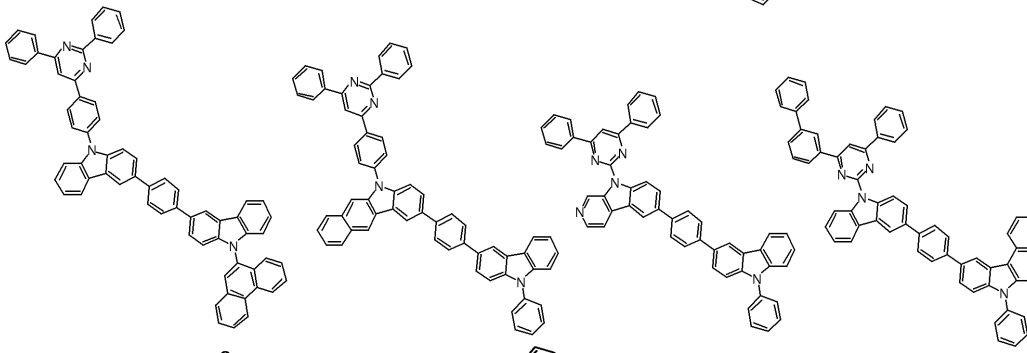
【化 2 6】



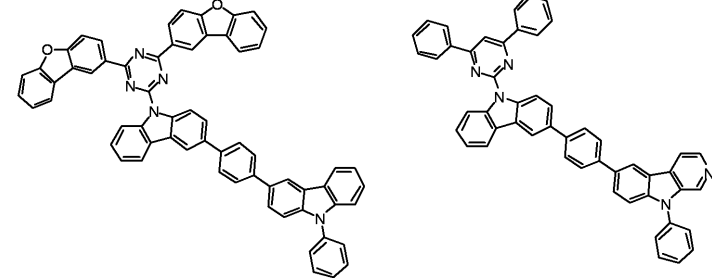
10



20

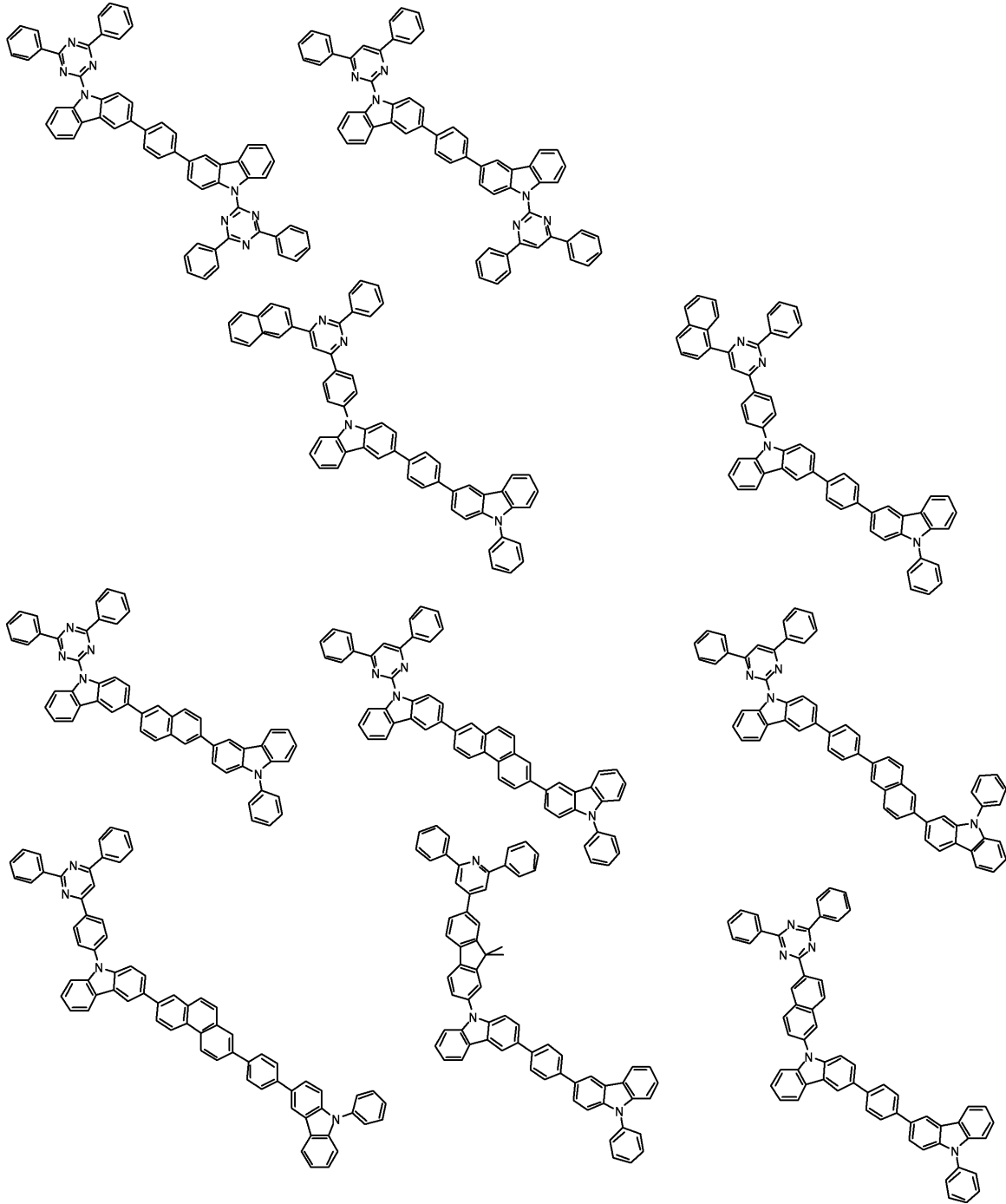


30



【 0 0 9 4】

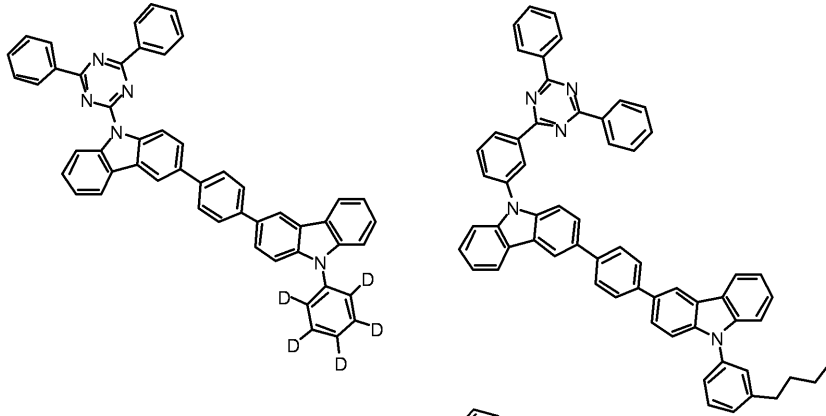
【化 27】



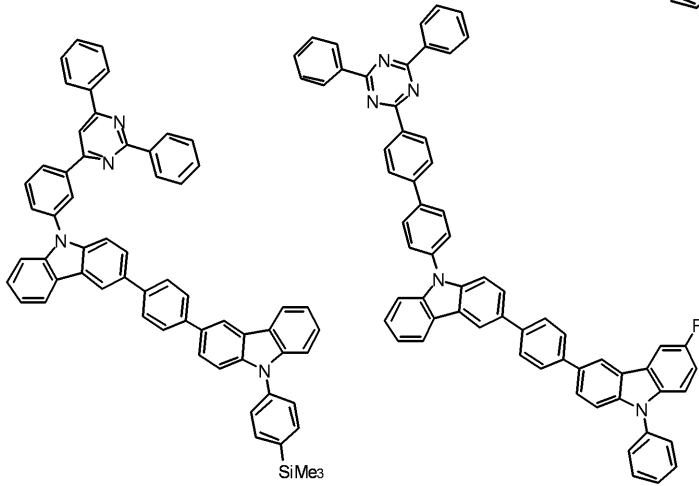
【 0 0 9 5 】



【化28】



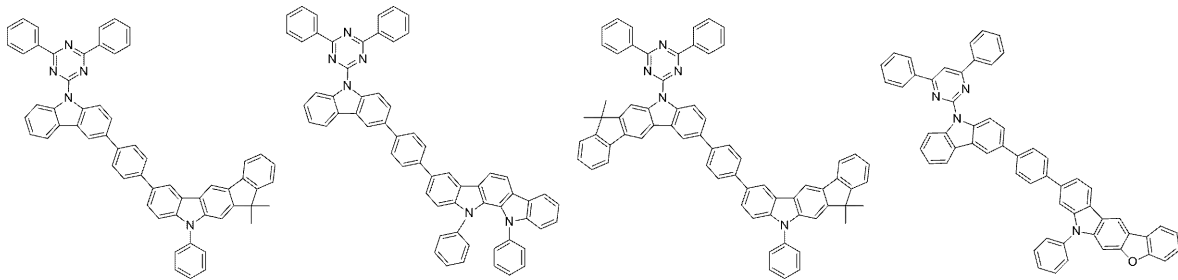
10



20

【0096】

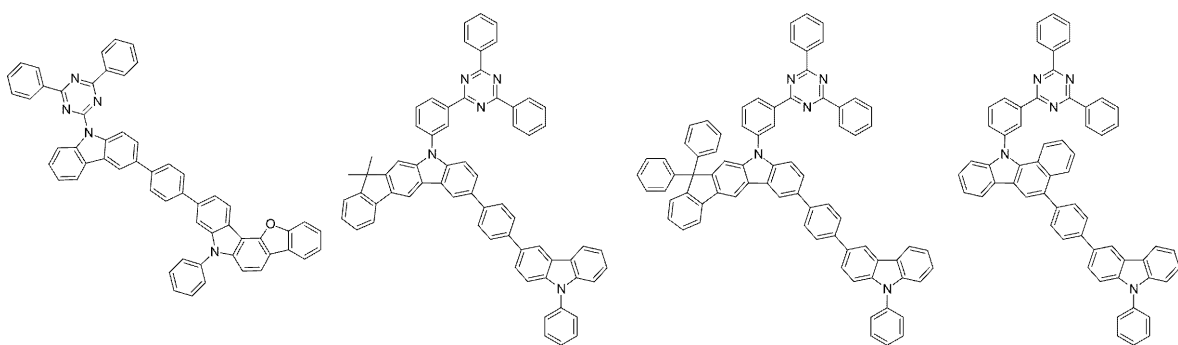
【化29】



30

【0097】

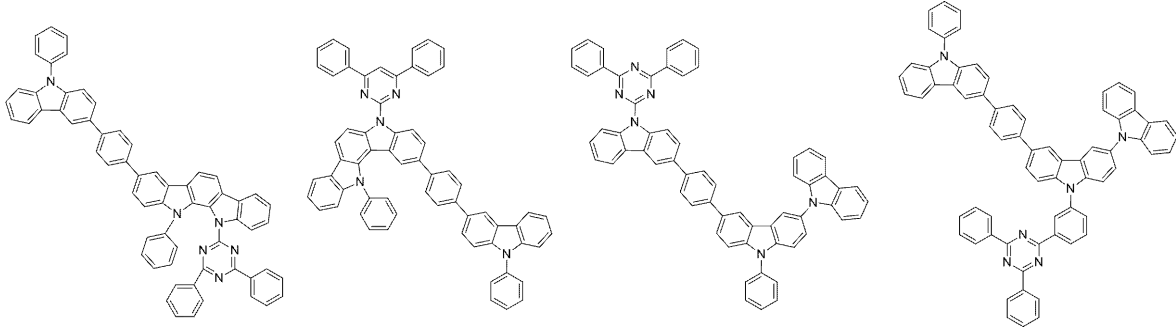
【化30】



40

【0098】

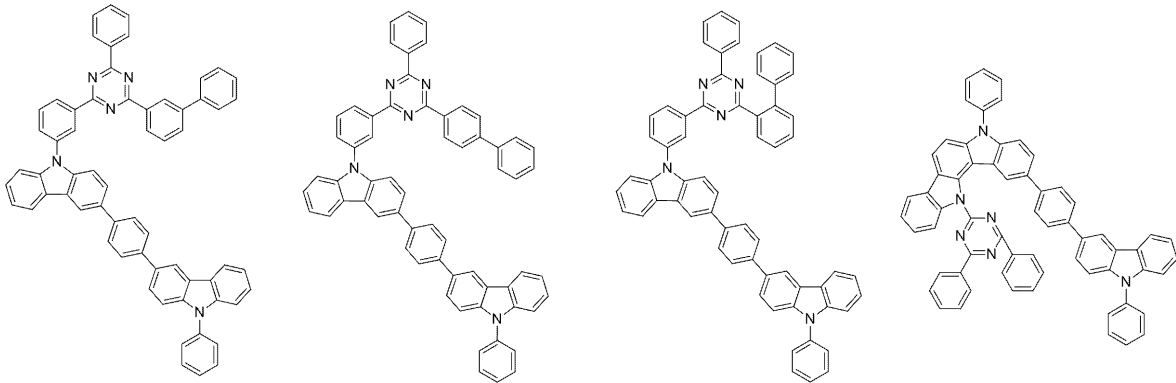
## 【化 3 1】



10

## 【 0 0 9 9】

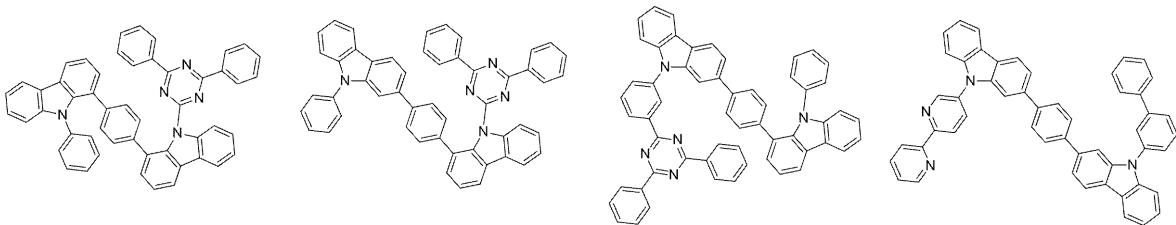
## 【化 3 2】



20

## 【 0 1 0 0】

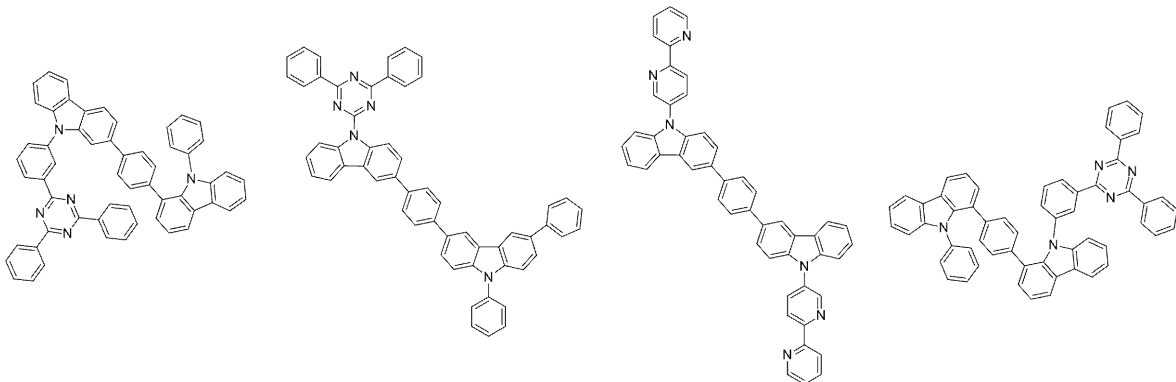
## 【化 3 3】



30

## 【 0 1 0 1】

## 【化 3 4】



40

## 【 0 1 0 2】

本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体の製造方法は、特に限定されず、公知の方法で製造すればよい。例えば、カルバゾール誘導体と含窒素六員環化合物に対し、「テトラヘドロン (Tetrahedron)、第 40 巻 (1984 年)、P. 1435 ~ 1456」に記載される銅触媒、又は「ジャーナル オブ アメリカン ケミカル ソサイエティ (Journal of the American Chemical Society)、123 (2001)、P. 7727 ~ 7729」に記載されるパラジウム触媒を用いたカップリング反応で製造することができる。

50

## 【 0 1 0 3 】

## [ 有機 E L 素子用材料 ]

本発明の化合物は、有機 E L 素子用材料として用いることができる。

本発明の有機 E L 素子用材料は、本発明の化合物を含む。本発明の有機 E L 素子用材料は、本発明の化合物を単独で含んでも良いし、本発明の化合物に加えて他の化合物を含んでも良い。本発明の有機 E L 素子用材料は、有機 E L 素子の有機薄膜層の形成に用いることができる。

## 【 0 1 0 4 】

## [ 有機 E L 素子 ]

本発明の有機 E L 素子は、陰極と、陽極と、陰極と陽極との間に配置された有機薄膜層とを有する。有機薄膜層は、一層又は複数層で構成される。

また、本発明の有機 E L 素子において、有機薄膜層のうち少なくとも 1 層は、発光層である。そのため、有機薄膜層は、例えば、一層の発光層で構成されていてもよいし、正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、正孔障壁層、電子障壁層等の公知の有機 E L 素子で採用される層を有していてもよい。有機薄膜層は、無機化合物を含んでもよい。

本発明の化合物は、有機薄膜層に含まれる。有機薄膜層が複数であれば、少なくともいずれかの層に本発明の化合物が単独または混合物の成分として含まれている。好ましくは、発光層が、本発明の化合物を含有する。この場合、発光層は、本発明の化合物をホスト材料として含み、さらにドーパント材料を含んで構成することが好ましい。

有機薄膜層は、本発明の化合物を含む有機 E L 素子用材料を用いて形成されてもよい。

## 【 0 1 0 5 】

有機 E L 素子の代表的な素子構成としては、例えば、次の ( a ) ~ ( e ) などの構成を挙げることができる。

( a ) 陽極 / 発光層 / 陰極

( b ) 陽極 / 正孔注入・輸送層 / 発光層 / 陰極

( c ) 陽極 / 発光層 / 電子注入・輸送層 / 陰極

( d ) 陽極 / 正孔注入・輸送層 / 発光層 / 電子注入・輸送層 / 陰極

( e ) 陽極 / 正孔注入・輸送層 / 発光層 / 障壁層 / 電子注入・輸送層 / 陰極

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

なお、上記「発光層」とは、発光機能を有する有機層であって、ドーピングシステムを採用する場合、ホスト材料とドーパント材料を含んでいる。このとき、ホスト材料は、主に電子と正孔の再結合を促し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有し、ドーパント材料は、再結合で得られた励起子を効率的に発光させる機能を有する。燐光素子の場合、ホスト材料は主にドーパントで生成された励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。

上記「正孔注入・輸送層」は「正孔注入層および正孔輸送層のうち少なくともいずれか 1 つ」を意味し、「電子注入・輸送層」は「電子注入層および電子輸送層のうち少なくともいずれか 1 つ」を意味する。ここで、正孔注入層および正孔輸送層を有する場合には、陽極側に正孔注入層が設けられていることが好ましい。また、電子注入層および電子輸送層を有する場合には、陰極側に電子注入層が設けられていることが好ましい。

本発明において電子輸送層といった場合には、発光層と陰極との間に存在する電子輸送領域の有機層のうち、最も電子移動度の高い有機層をいう。電子輸送領域が一層で構成されている場合には、当該層が電子輸送層である。また、燐光型の有機 E L 素子においては、構成 ( e ) に示すように発光層で生成された励起エネルギーの拡散を防ぐ目的で必ずしも電子移動度が高くない障壁層を発光層と電子輸送層との間に採用することがあり、発光層に隣接する有機層が電子輸送層に必ずしも該当しない。

## 【 0 1 0 6 】

図 1 に、本発明の実施形態における有機 E L 素子の一例の概略構成を示す。

図 1 に示す有機 E L 素子 1 は、透明な基板 2 と、陽極 3 と、陰極 4 と、陽極 3 と陰極 4

10

20

30

40

50

との間に配置された有機薄膜層 10 と、を有する。

有機薄膜層 10 は、陽極 3 側から順に、正孔注入層 5、正孔輸送層 6、発光層 7、電子輸送層 8、電子注入層 9 を備える。

【0107】

(基板)

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

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。

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

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

【0108】

(陽極および陰極)

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

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 (NES)、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

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

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

【0109】

陰極としては、電子注入層、電子輸送層または発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。

陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム - インジウム合金、マグネシウム - アルミニウム合金、アルミニウム - リチウム合金、アルミニウム - スカンジウム - リチウム合金、マグネシウム - 銀合金等が使用できる。

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

【0110】

(発光層)

有機 EL 素子の発光層は電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能を有する。

発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。

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

また、特開昭 57 - 51781 号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

【0111】

10

20

30

40

50

(ホスト材料)

ホスト材料は、本発明の化合物、または本発明の化合物を含む上記本発明の有機EL素子用材料であることが好ましい。

上述のとおり、本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体は、有機EL素子の有機薄膜層中で成膜されて積み重なると、ビスカルバゾール誘導体の分子間の電子の重なりが大きくなり、当該有機薄膜層の正孔輸送性が向上する。また、本発明の化合物は、 $A_1$  および  $A_2$  の少なくともいずれかが電子注入特性を有する含窒素複素環基である。そのため、本発明の化合物を含む有機薄膜層は、電子注入性も向上する。したがって、本発明の化合物を有機EL素子の発光層に含有させることにより、当該発光層内の電荷バランスが向上し、有機EL素子の発光効率を向上させることができる。

10

また、本発明の化合物によれば、 $Cz-L_3-Cz$  部位のHOMOと、当該含窒素芳香族複素環のLUMOとを分離できるため、本発明の化合物は、正孔および電子に対する耐性が優れると考えられる。それゆえ、有機薄膜層中に本発明の化合物を含有させることで、有機EL素子の寿命を向上させることができる。

なお、発光層には、ホスト材料として、本発明の化合物または本発明の有機EL素子用材料に加えて、従来公知のホスト材料が含有されていてもよい。

【0112】

(ドーパント材料)

ドーパント材料としては、公知の蛍光型発光を示す蛍光発光性材料または燐光型発光を示す燐光発光性材料から選ばれる。

20

ドーパント材料として用いられる蛍光発光性材料(以下、蛍光ドーパント材料と称する。)としては、フルオランテン誘導体、ピレン誘導体、アリアルアセチレン誘導体、フルオレン誘導体、硼素錯体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アントラセン誘導体、クリセン誘導体等から選ばれる。好ましくは、フルオランテン誘導体、ピレン誘導体、硼素錯体が挙げられる。

【0113】

本発明の有機EL素子のドーパント材料としては、燐光発光性材料が好ましい。ドーパント材料として用いられる燐光発光性材料(以下、燐光ドーパント材料と称する。)は、金属錯体を含有するものが好ましい。該金属錯体としては、イリジウム(Ir)、白金(Pt)、オスミウム(Os)、金(Au)、レニウム(Re)、およびルテニウム(Ru)から選択される金属原子と配位子とを有するものが好ましい。特に、配位子と金属原子とが、オルトメタル結合を形成しているオルトメタル化錯体が好ましい。燐光ドーパント材料としては、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)および白金(Pt)から選ばれる金属を含有するオルトメタル化錯体が好ましい。また、発光効率などの観点からフェニルキノリン、フェニルイソキノリン、フェニルピリジン、フェニルピリミジン、フェニルピラジンおよびフェニルイミダゾールから選択される配位子から構成される金属錯体が好ましい。

30

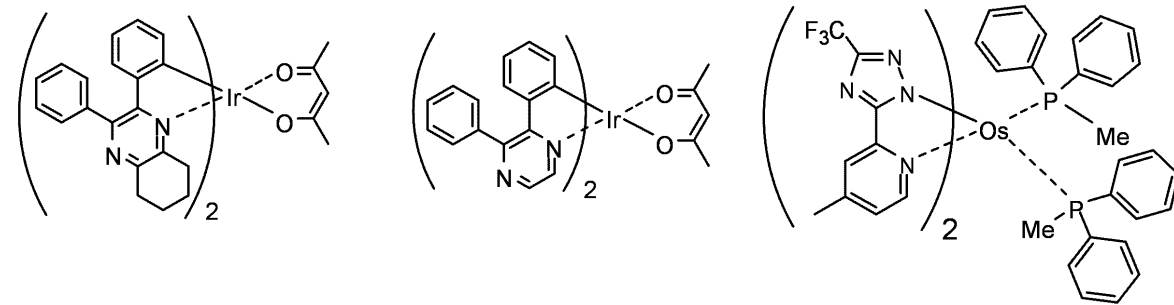
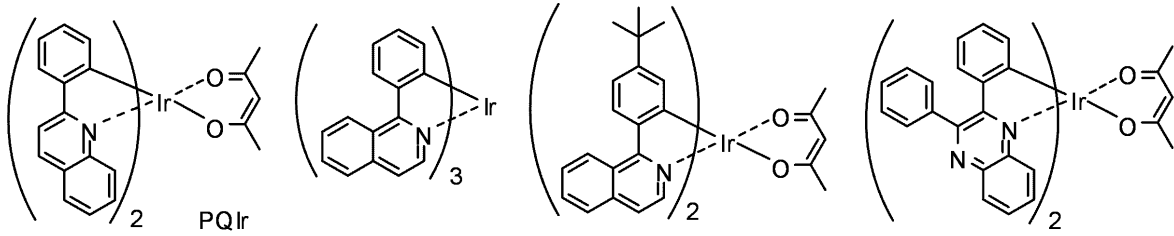
ドーパント材料の発光層における含有量は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1質量%以上70質量%以下が好ましく、1質量%以上30質量%以下がより好ましい。ドーパント材料の含有量が0.1質量%以上であると十分な発光が得られ、70質量%以下であると濃度消光を避けることができる。

40

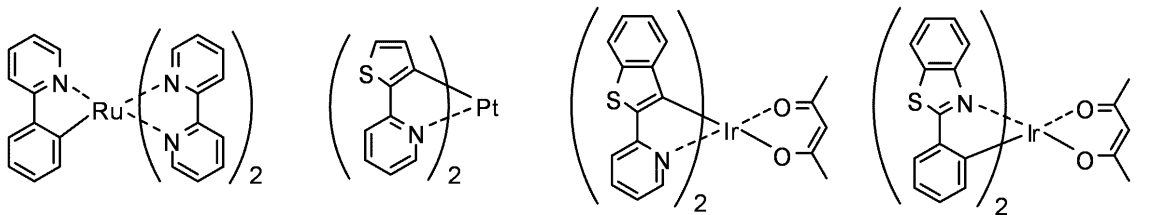
燐光ドーパント材料の具体例を次に示す。

【0114】

【化 3 5】



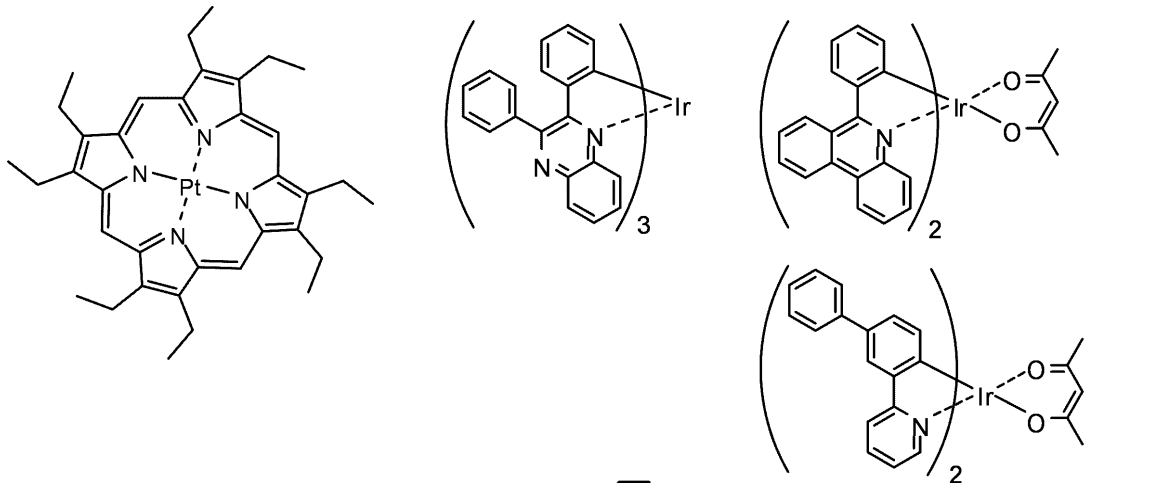
10



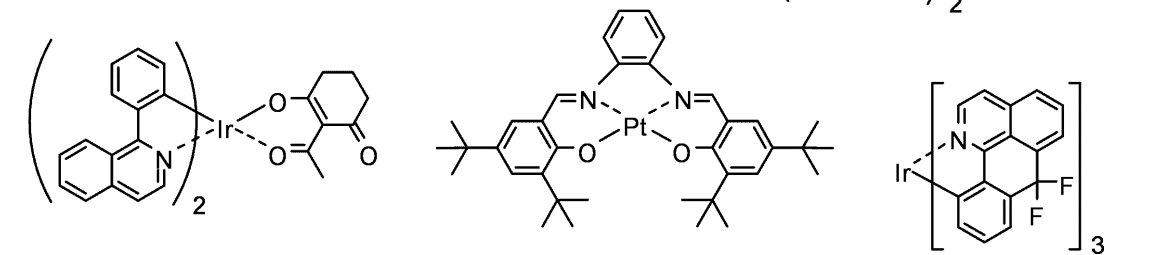
20

【 0 1 1 5】

【化 3 6】



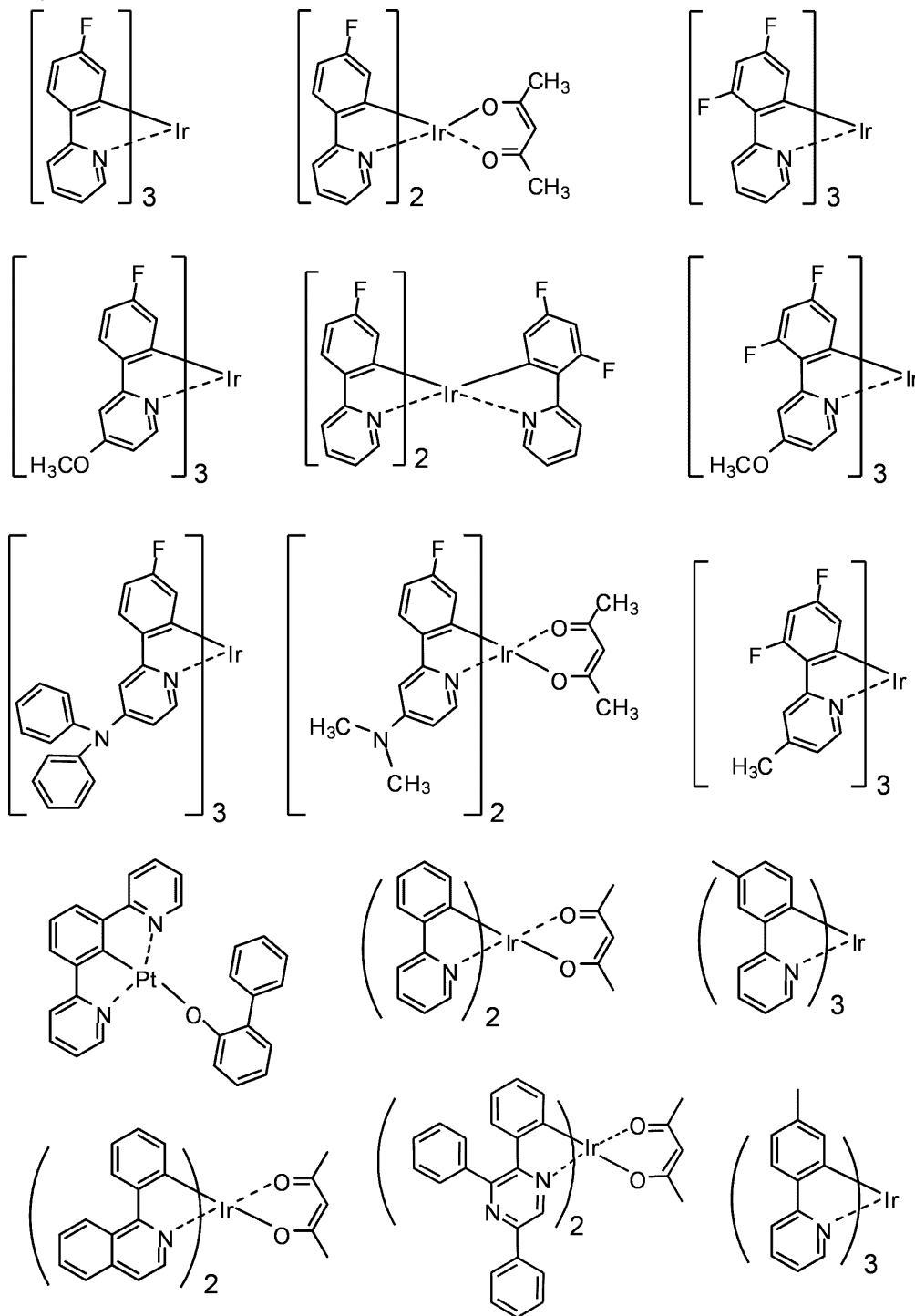
30



40

【 0 1 1 6】

【化 3 7】



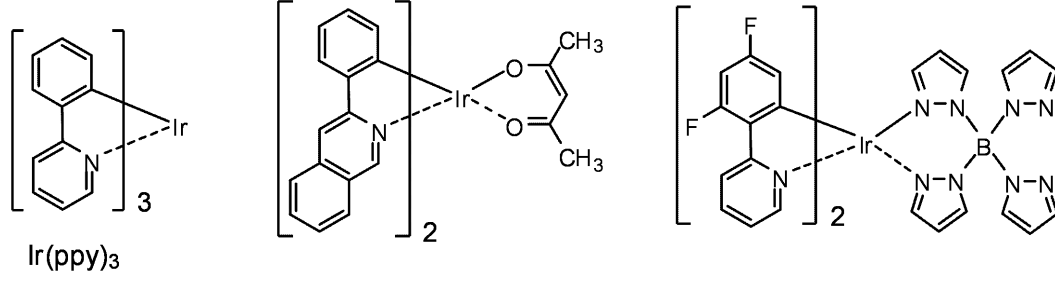
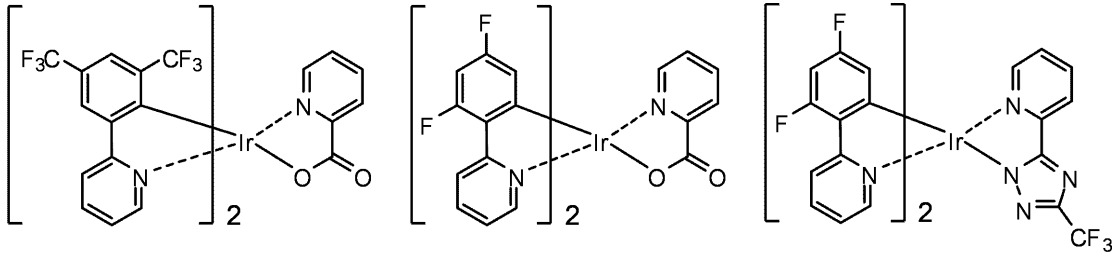
10

20

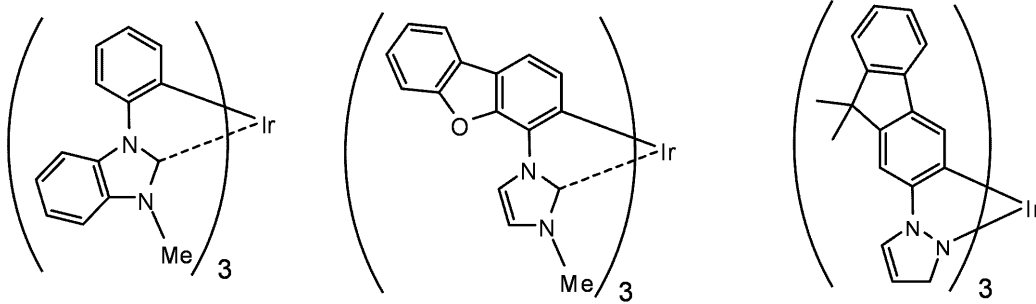
30

【 0 1 1 7】

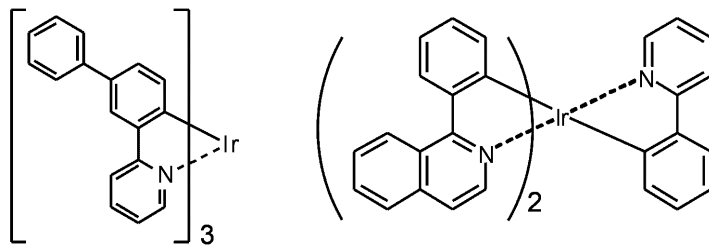
【化 3 8】



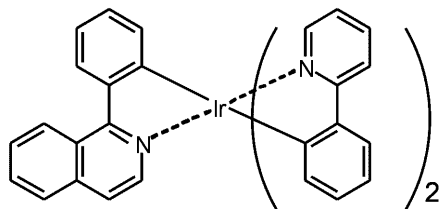
10



20



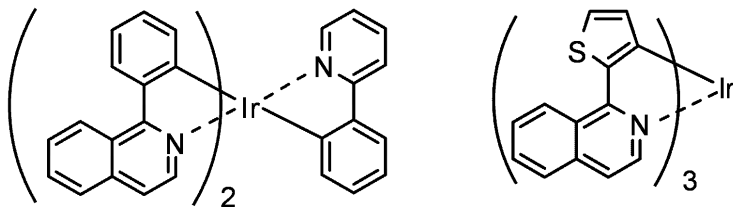
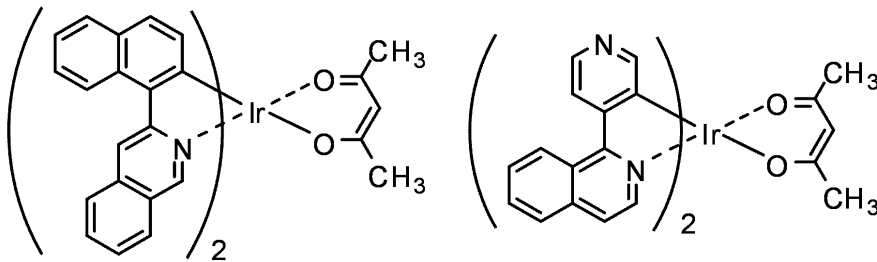
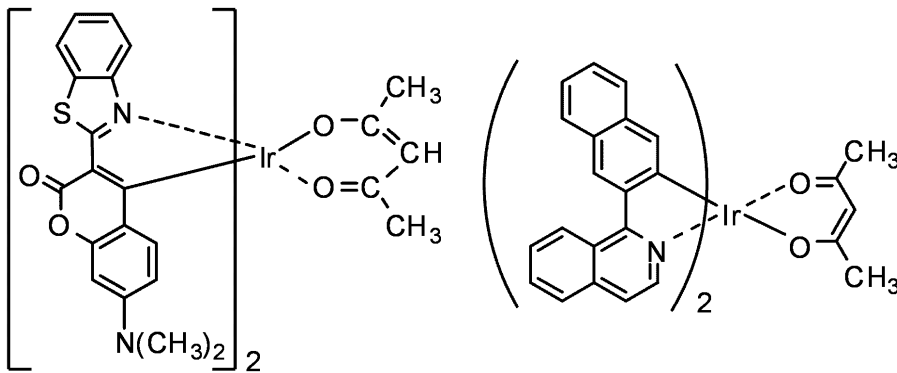
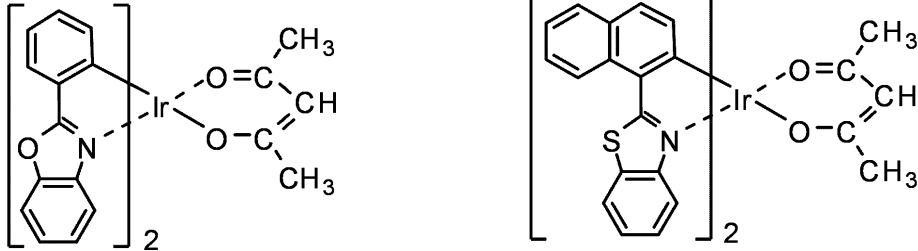
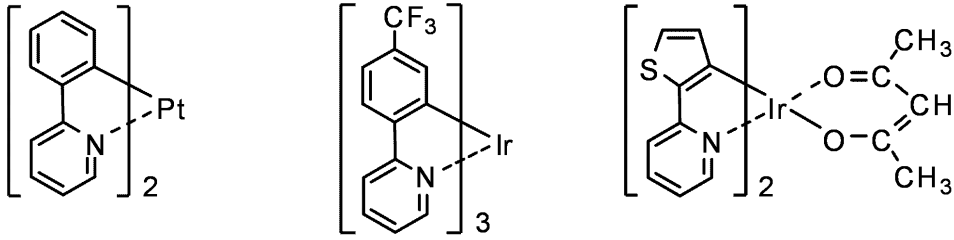
30



【 0 1 1 8】

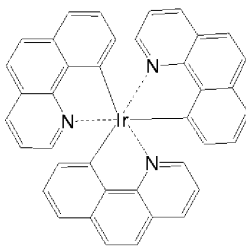


【化 3 9】



【 0 1 1 9】

【化 4 0】



Ir(bzq)<sub>3</sub>

【 0 1 2 0】

10

20

30

40

50

上述のとおり、本発明の化合物であるビスカルバゾール誘導体は、燐光ホスト材料として適度な三重項エネルギーを有する。そのため、燐光ホスト材料として好適であり、特に、赤色、黄色、緑色で発光する燐光ドーパント材料に適した燐光ホスト材料となる。

燐光ドーパント材料は、単独で使用しても良いし、2種以上を併用しても良い。

発光層に含まれる燐光ドーパント材料の発光波長は特に限定されないが、発光層に含まれる前記燐光ドーパント材料のうち少なくとも1種は、発光波長のピークが490 nm以上700 nm以下であることが好ましく、490 nm以上650 nm以下であることがより好ましい。発光層の発光色としては、例えば、赤色、黄色、緑色が好ましい。ホスト材料として本発明の化合物を用い、このような発光波長の燐光ドーパント材料をドーピングして発光層を構成することにより、高効率かつ長寿命な有機EL素子とすることができる。

10

#### 【0121】

(正孔注入層及び正孔輸送層)

正孔注入層及び正孔輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが小さい化合物が用いられる。

正孔注入層及び正孔輸送層を形成する材料としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、例えば、芳香族アミン化合物が好適に用いられる。また、正孔注入層の材料としては、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物またはスチリルアミン化合物を用いることが好ましく、特に、ヘキサシアノヘキサアザトリフェニレン(HAT)などの芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

#### 【0122】

20

(電子注入層及び電子輸送層)

電子注入層及び電子輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きい化合物が用いられる。

電子注入層及び電子輸送層に用いられる化合物としては、例えば、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。含窒素環誘導体としては、含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する複素環化合物が好ましい。

#### 【0123】

本発明の有機EL素子において、発光層以外の、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、障壁層等の有機薄膜層には、上述の例示した化合物以外に、従来の有機EL素子において使用される公知のものの中から任意の化合物を選択して用いることができる。

30

#### 【0124】

(正孔注入・輸送層)

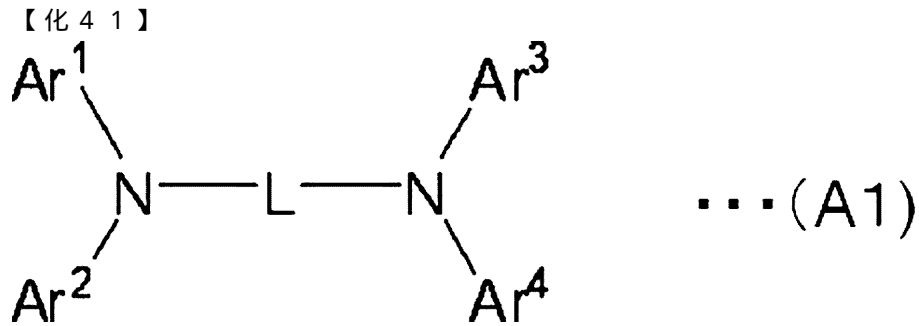
正孔注入・輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが小さい。

正孔注入・輸送層は、正孔注入層、または正孔輸送層で構成してもよいし、正孔注入層および正孔輸送層を積層させて構成してもよい。

正孔注入・輸送層を形成する材料としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、芳香族アミン化合物、例えば、下記一般式(A1)で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

40

#### 【0125】



## 【 0 1 2 6 】

10

前記一般式 ( A 1 ) において、 Ar <sup>1</sup> から Ar <sup>4</sup> までは、それぞれ独立に、  
 環形成炭素数 6 以上 5 0 以下の芳香族炭化水素基、  
 環形成炭素数 2 以上 4 0 以下の芳香族複素環基、  
 それら芳香族炭化水素基とそれら芳香族複素環基とを結合させた基、または  
 それら芳香族炭化水素基とそれら芳香族複素環基とを結合させた基  
 を表す。但し、ここで挙げた芳香族炭化水素基、および芳香族複素環基は、置換基を有し  
 てもよい。

## 【 0 1 2 7 】

前記一般式 ( A 1 ) において、 L は、連結基であり、  
 環形成炭素数 6 以上 5 0 以下の 2 価の芳香族炭化水素基、  
 環形成炭素数 5 以上 5 0 以下の 2 価の芳香族複素環基、  
 2 個以上の芳香族炭化水素基または芳香族複素環基を  
 単結合、  
 エーテル結合、  
 チオエーテル結合、  
 炭素数 1 以上 2 0 以下のアルキレン基、  
 炭素数 2 以上 2 0 以下のアルケニレン基、もしくは  
 アミノ基

20

で結合して得られる 2 価の基、  
 を表す。但し、ここで挙げた 2 価の芳香族炭化水素基、および 2 価の芳香族複素環基は、  
 置換基を有してもよい。

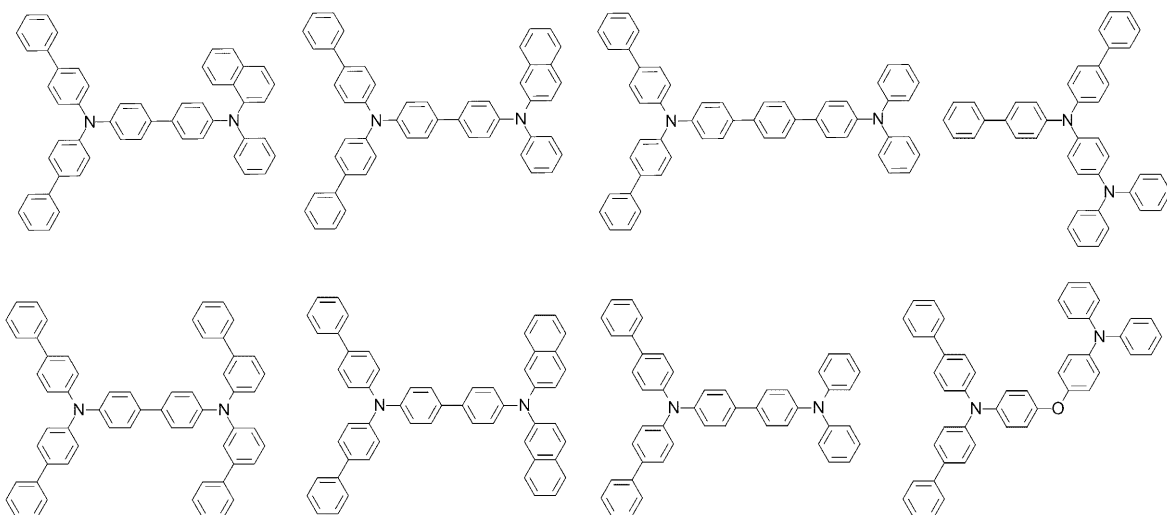
30

## 【 0 1 2 8 】

前記一般式 ( A 1 ) で表される化合物の具体例を以下に記すが、これらに限定されるも  
 のではない。

## 【 0 1 2 9 】

## 【化 4 2】

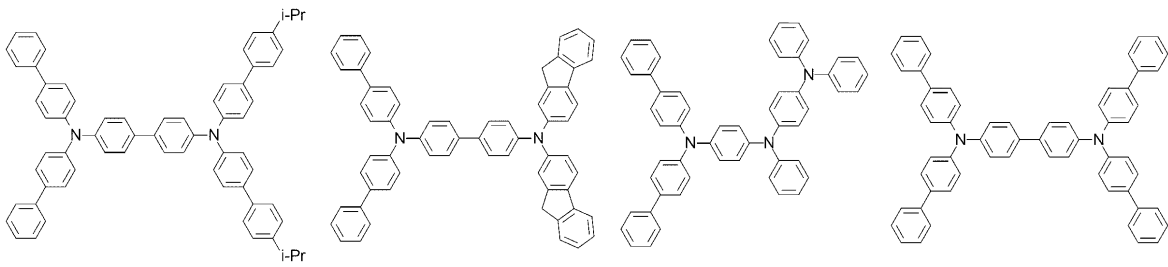


40

50

【 0 1 3 0 】

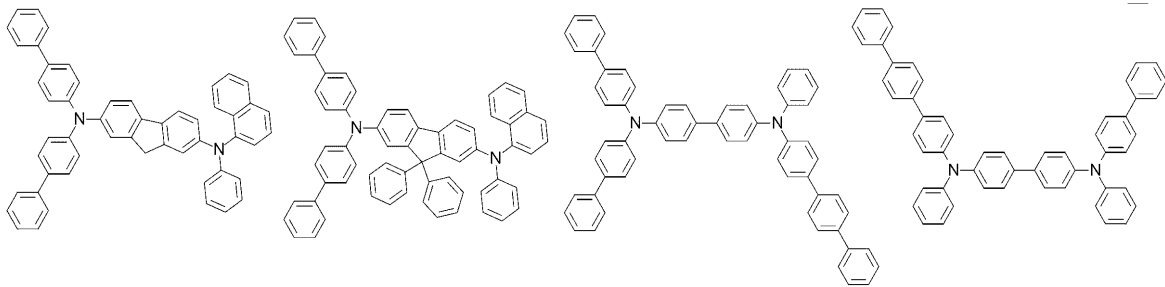
【 化 4 3 】



10

【 0 1 3 1 】

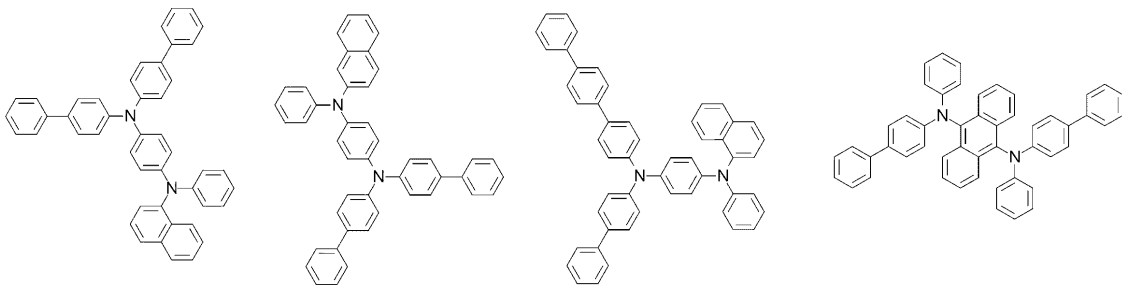
【 化 4 4 】



20

【 0 1 3 2 】

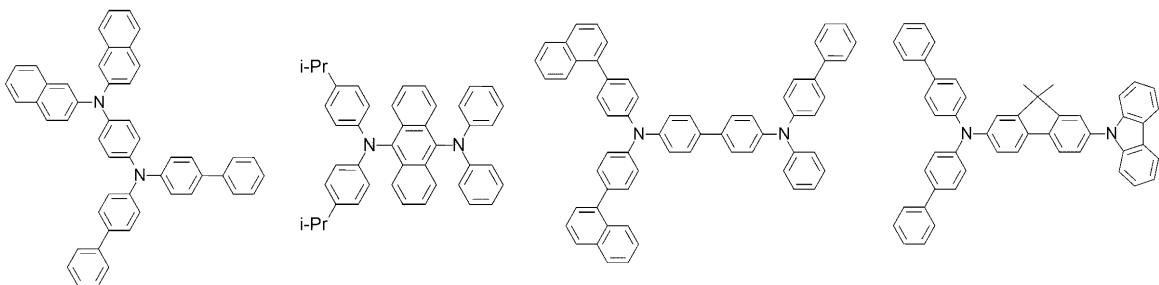
【 化 4 5 】



30

【 0 1 3 3 】

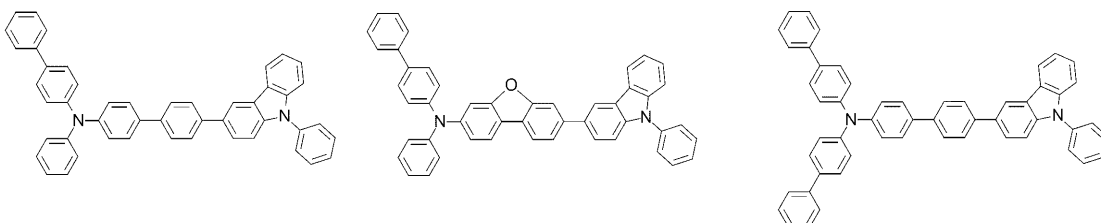
【 化 4 6 】



40

【 0 1 3 4 】

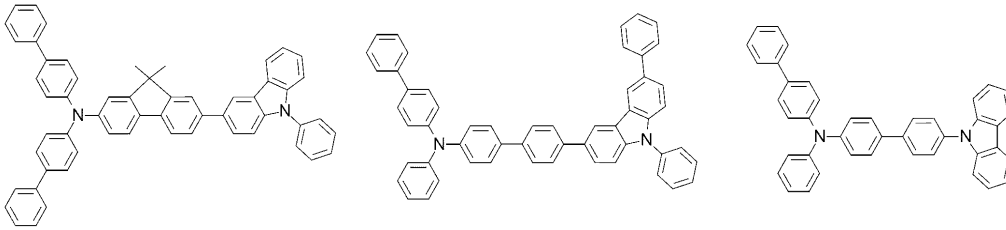
【 化 4 7 】



【 0 1 3 5 】

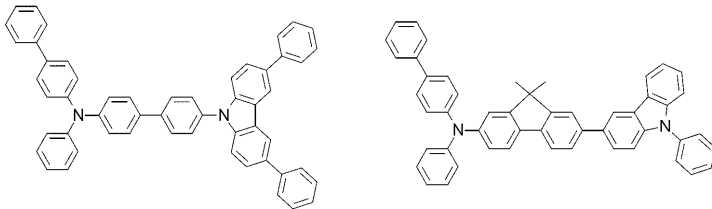
50

【化48】



【0136】

【化49】



10

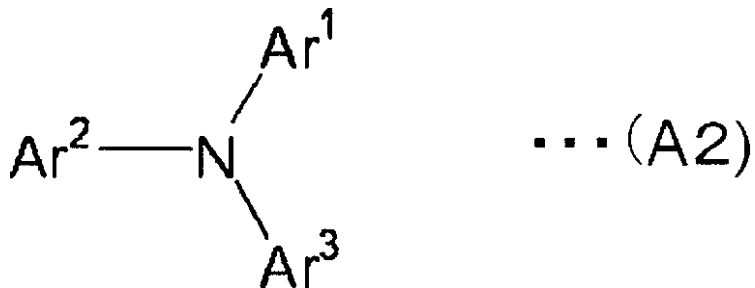
【0137】

また、下記一般式(A2)で表される芳香族アミンも、正孔注入・輸送層の形成に好適に用いられる。

【0138】

【化50】

20



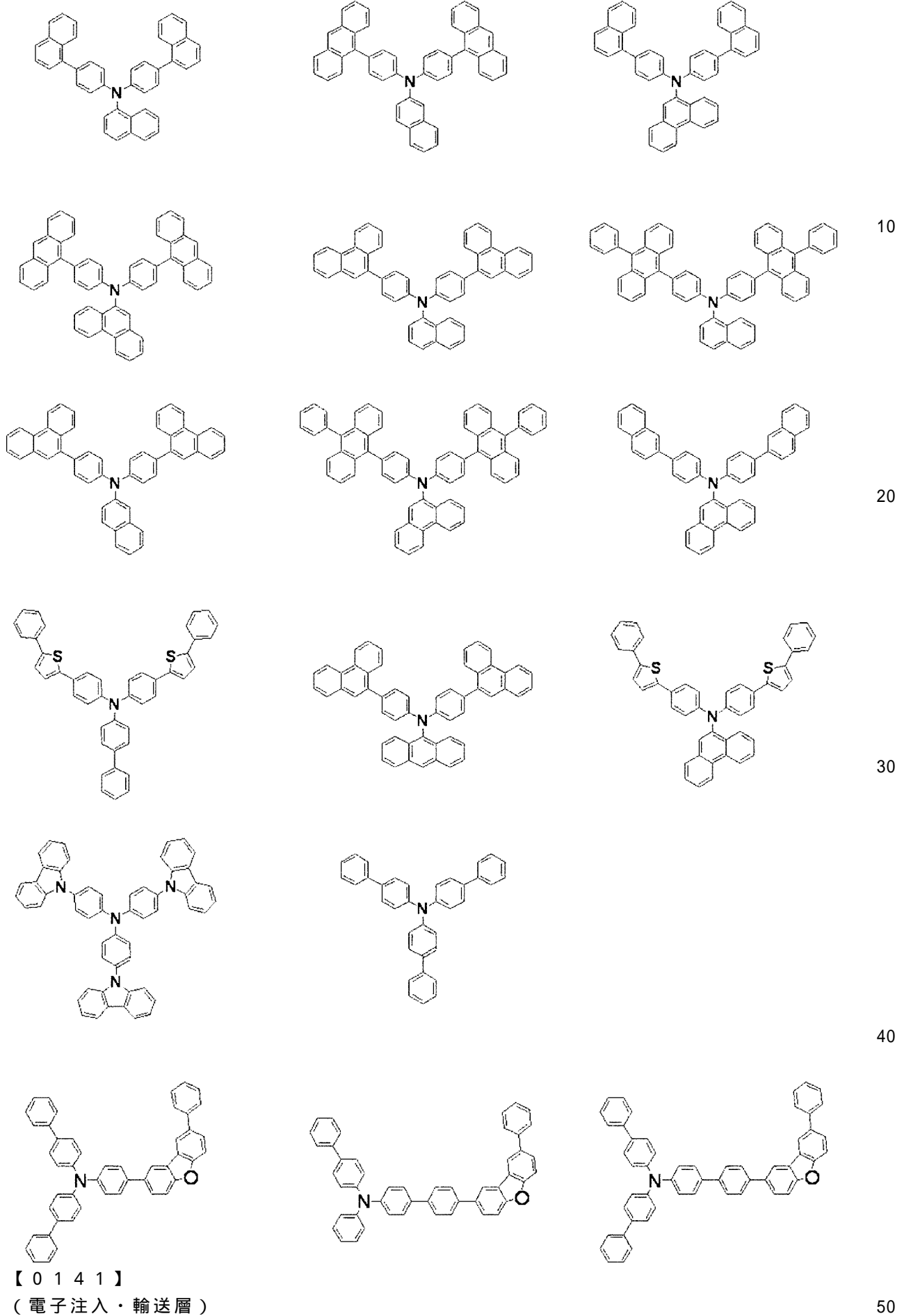
【0139】

前記一般式(A2)において、Ar<sup>1</sup>からAr<sup>3</sup>までの定義は前記一般式(A1)のAr<sup>1</sup>からAr<sup>4</sup>までの定義と同様である。以下に一般式(A2)で表される化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

30

【0140】

【化51】



【0141】

(電子注入・輸送層)

電子注入・輸送層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きい。電子注入層はエネルギーレベルの急な変化を緩和するなど、エネルギーレベルを調整するために設ける。電子注入・輸送層は、電子注入層と電子輸送層とのうちの少なくともいずれか一方を備える。

本実施形態の有機EL素子においては、発光層と陰極との間に電子注入層を有し、前記電子注入層は、含窒素環誘導体を主成分として含有することが好ましい。ここで、電子注入層は電子輸送層として機能する層であってもよい。

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

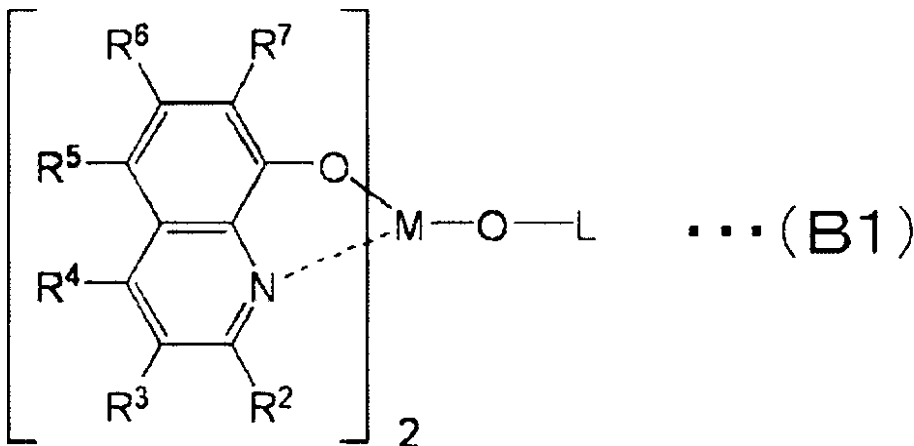
【0142】

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

この含窒素環誘導体としては、例えば、下記一般式(B1)で表される含窒素環金属キレート錯体が好ましい。

【0143】

【化52】



【0144】

一般式(B1)におけるR<sup>2</sup>からR<sup>7</sup>までは、それぞれ独立に、  
 水素原子、  
 ハロゲン原子、  
 オキシ基、  
 アミノ基、  
 炭素数1以上40以下の炭化水素基、  
 アルコキシ基、  
 アリールオキシ基、  
 アルコキシカルボニル基、または、  
 芳香族複素環基であり、

これらは置換基を有してもよい。

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

【0145】

アルコキシカルボニル基は-COOY'と表され、Y'の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。アルキルアミノ基およびアラルキルアミノ基は-NQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>と表される。Q<sup>1</sup>およびQ<sup>2</sup>の具体例としては、独立に、前記アルキル基、前記アラルキル基(アルキル基の水素原子がアリール基で置換された基)で説明したものと同様のものが

10

20

30

40

50

挙げられ、好ましい例も同様である。Q<sup>1</sup> および Q<sup>2</sup> の一方は水素原子であってもよい。なお、アラルキル基は、前記アルキル基の水素原子が前記アリアル基で置換された基である。

アリアルアミノ基は -NAr<sup>1</sup>Ar<sup>2</sup> と表され、Ar<sup>1</sup> および Ar<sup>2</sup> の具体例としては、それぞれ独立に前記非縮合芳香族炭化水素基で説明した基と同様である。Ar<sup>1</sup> および Ar<sup>2</sup> の一方は水素原子であってもよい。

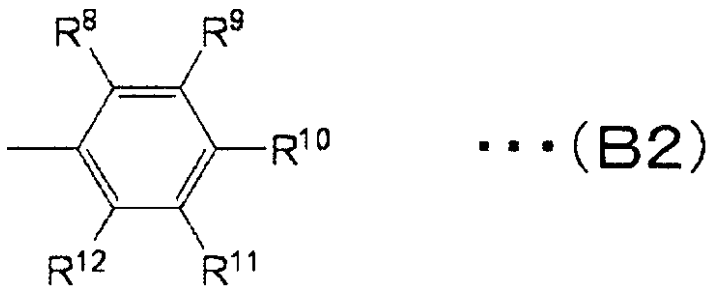
【0146】

上記一般式 (B1) の M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) またはインジウム (In) であり、In であると好ましい。

上記一般式 (B1) の L は、下記一般式 (B2) または (B3) で表される基である。

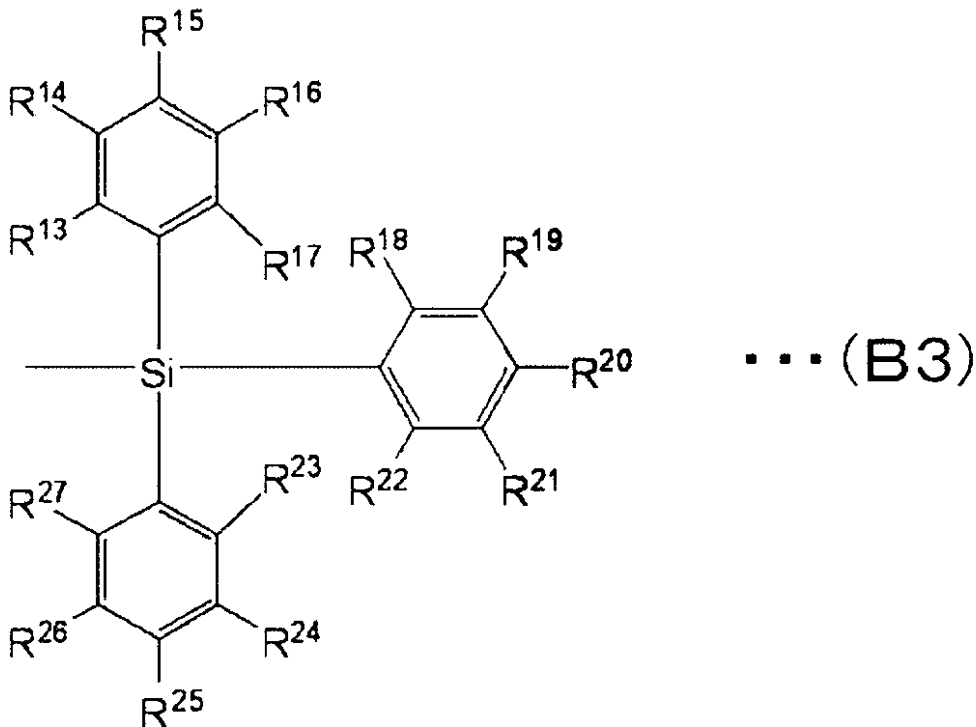
【0147】

【化53】



10

20



30

40

【0148】

前記一般式 (B2) 中、R<sup>8</sup> から R<sup>12</sup> までは、それぞれ独立に、

水素原子、または炭素数 1 以上 40 以下の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。この炭化水素基は、置換基を有してもよい。

また、前記一般式 (B3) 中、R<sup>13</sup> から R<sup>27</sup> までは、それぞれ独立に、

水素原子、または炭素数 1 以上 40 以下の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。この炭化水素基は、置換基を有してもよい。

前記一般式 (B2) および一般式 (B3) の R<sup>8</sup> から R<sup>12</sup> まで、および R<sup>13</sup> から R

50



<sup>2</sup> から <sup>7</sup> までが示す炭素数 1 以上 40 以下の炭化水素基としては、前記一般式 (B1) 中の <sup>2</sup> から <sup>7</sup> までの具体例と同様のものが挙げられる。

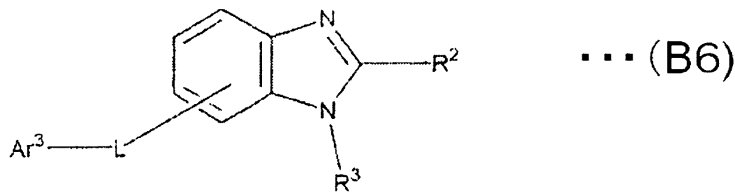
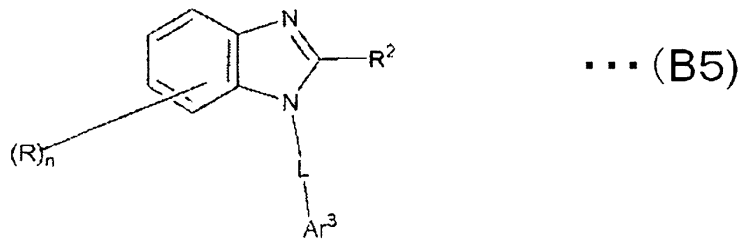
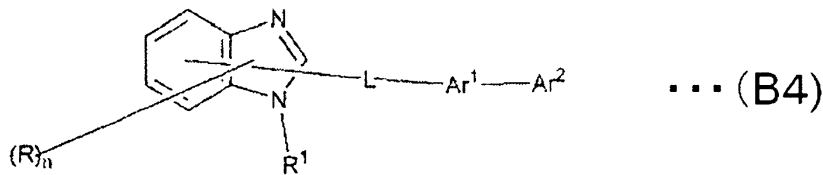
また、前記一般式 (B2) における <sup>8</sup> から <sup>12</sup> まで、および前記一般式 (B3) における <sup>13</sup> から <sup>27</sup> までの互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の 2 価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン - 2, 2' - ジイル基、ジフェニルエタン - 3, 3' - ジイル基、ジフェニルプロパン - 4, 4' - ジイル基などが挙げられる。

【0149】

また、電子輸送層は、下記一般式 (B4) から (B6) まで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。

【0150】

【化54】



【0151】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、R は、  
 水素原子、  
 環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基、  
 ピリジル基、  
 キノリル基、  
 炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、または  
 炭素数 1 以上 20 以下のアルコキシ基である。  
 n は 0 以上 4 以下の整数である。

【0152】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、<sup>1</sup> R は、  
 環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基  
 ピリジル基、  
 キノリル基、  
 炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、または

10

20

30

40

50

炭素数 1 以上 20 以下のアルコキシ基である。

【0153】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、 $R^2$  および  $R^3$  は、それぞれ独立に、水素原子、環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基、ピリジル基、キノリル基、炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、または炭素数 1 以上 20 以下のアルコキシ基である。

【0154】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、L は、環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基、ピリジニレン基、キノリニレン基、またはフルオレニレン基である。

10

【0155】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、 $Ar^1$  は、環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基、ピリジニレン基、キノリニレン基である。

20

【0156】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、 $Ar^2$  は、環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基、ピリジル基、キノリル基、炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、または炭素数 1 以上 20 以下のアルコキシ基である。

【0157】

前記一般式 (B4) から (B6) までの式中、 $Ar^3$  は、環形成炭素数 6 以上 60 以下の芳香族炭化水素基、ピリジル基、キノリル基、炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、炭素数 1 以上 20 以下のアルコキシ基、または

30

「 $-Ar^1 - Ar^2$ 」で表される基 ( $Ar^1$  および  $Ar^2$  は、それぞれ前記と同じ) である。

【0158】

また、前記一般式 (B4) から (B6) までの式中の  $R$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、L、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、および  $Ar^3$  の説明で挙げた芳香族炭化水素基、ピリジル基、キノリル基、アルキル基、アルコキシ基、ピリジニレン基、キノリニレン基、フルオレニレン基は、置換基を有してもよい。

40

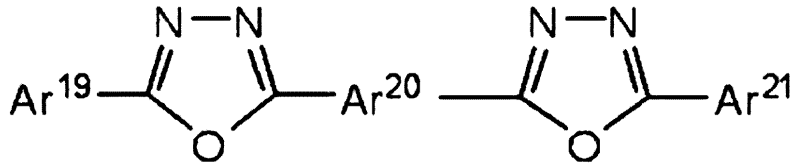
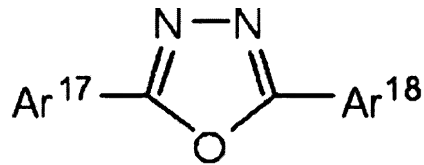
【0159】

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

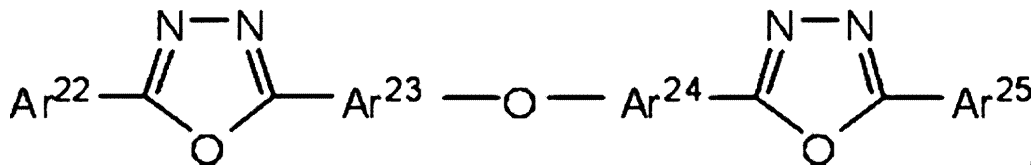
【0160】

50

【化55】



10



【0161】

これらオキサジアゾール誘導体の各一般式中、Ar<sup>17</sup>、Ar<sup>18</sup>、Ar<sup>19</sup>、Ar<sup>21</sup>、Ar<sup>22</sup>およびAr<sup>25</sup>は、環形成炭素数6以上40以下の芳香族炭化水素基である

20

但し、ここで挙げた芳香族炭化水素基は置換基を有してもよい。また、Ar<sup>17</sup>とAr<sup>18</sup>、Ar<sup>19</sup>とAr<sup>21</sup>、Ar<sup>22</sup>とAr<sup>25</sup>は、互いに同一でも異なってもよい。

ここで挙げた芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数1以上10以下のアルキル基、炭素数1以上10以下のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。

【0162】

これらオキサジアゾール誘導体の各一般式中、Ar<sup>20</sup>、Ar<sup>23</sup>およびAr<sup>24</sup>は、環形成炭素数6以上40以下の2価の芳香族炭化水素基である。

30

但し、ここで挙げた芳香族炭化水素基は置換基を有してもよい。

また、Ar<sup>23</sup>とAr<sup>24</sup>は、互いに同一でも異なってもよい。

ここで挙げた2価の芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数1以上10以下のアルキル基、炭素数1以上10以下のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。

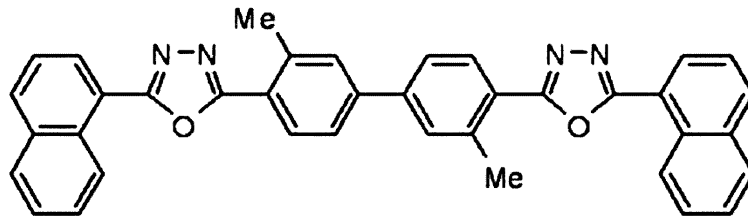
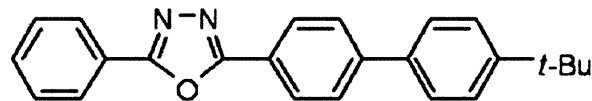
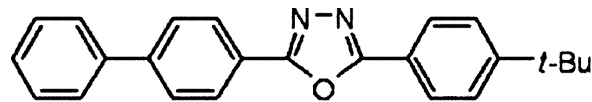
【0163】

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

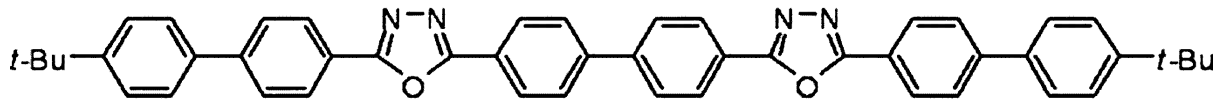
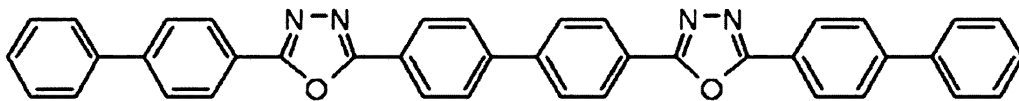
40

【0164】

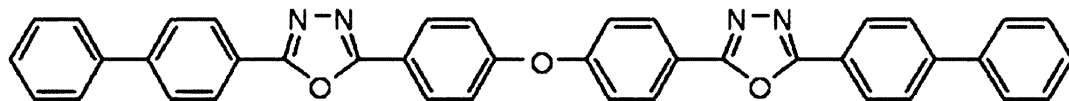
【化56】



10



20



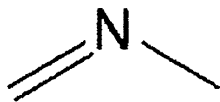
【0165】

電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の一般式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、下記一般式(B7)に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記一般式(B8)に示す構造のものが挙げられる。

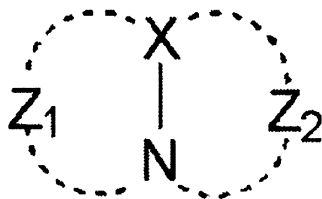
30

【0166】

【化57】



... (B7)



... (B8)

40

【0167】

前記一般式(B8)中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z<sub>1</sub>ならびにZ<sub>2</sub>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。

【0168】

含窒素複素環誘導体は、さらに好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物である。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳

50

香多環族の場合は、上記一般式 ( B 7 ) と ( B 8 ) もしくは上記一般式 ( B 7 ) と下記一般式 ( B 9 ) を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物が好ましい。

【 0 1 6 9 】

【 化 5 8 】



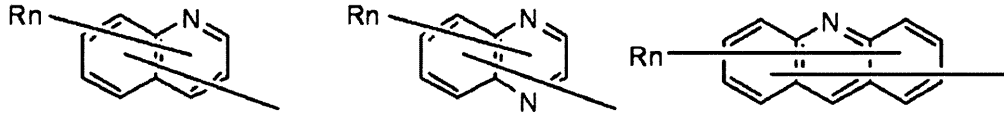
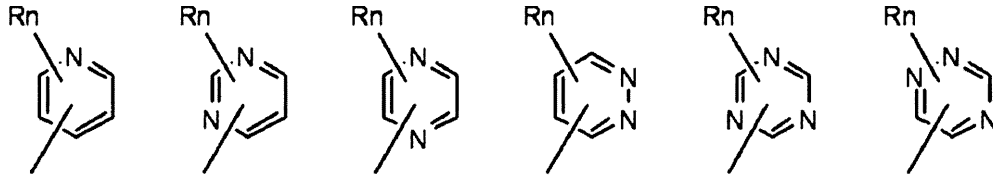
10

【 0 1 7 0 】

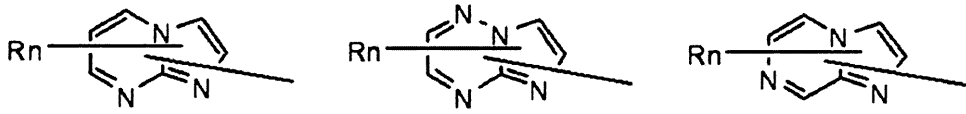
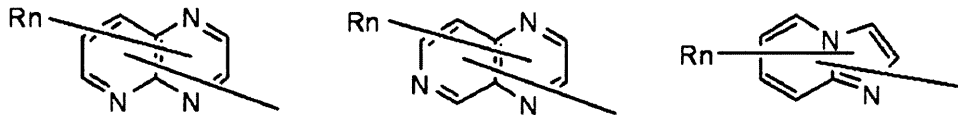
前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の一般式で表される含窒素複素環基から選択される。

【 0 1 7 1 】

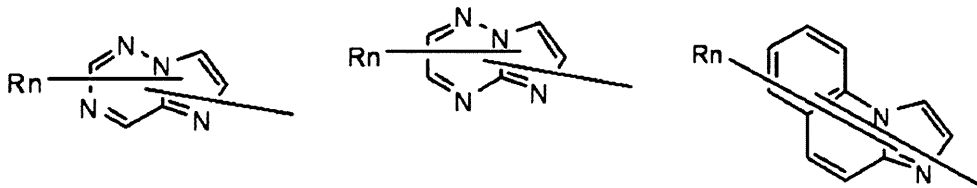
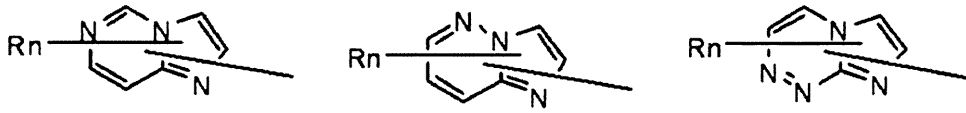
【化59】



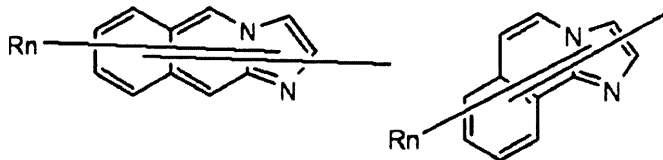
10



20



30



【0172】

これら含窒素複素環基の各一般式中、Rは、  
 環形成炭素数6以上40以下の芳香族炭化水素基、  
 環形成炭素数2以上40以下の芳香族複素環基、  
 炭素数1以上20以下のアルキル基、または  
 炭素数1以上20以下のアルコキシ基

40

である。

これら含窒素複素環基の各一般式中、nは0以上5以下の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数のRは互いに同一または異なってもよい。

【0173】

さらに、好ましい具体的な化合物として、下記一般式(B10)で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。



50

前記一般式 ( B 1 0 ) 中、H A r は、  
環形成炭素数 1 以上 4 0 以下の含窒素複素環基である。

前記一般式 ( B 1 0 ) 中、L<sup>1</sup> は、  
単結合、  
環形成炭素数 6 以上 4 0 以下の芳香族炭化水素基、または  
環形成炭素数 2 以上 4 0 以下の芳香族複素環基である。

【 0 1 7 4 】

前記一般式 ( B 1 0 ) 中、A r<sup>1</sup> は、環形成炭素数 6 以上 4 0 以下の 2 価の芳香族炭化水素基である。

前記一般式 ( B 1 0 ) 中、A r<sup>2</sup> は、  
環形成炭素数 6 以上 4 0 以下の芳香族炭化水素基、または  
環形成炭素数 2 以上 4 0 以下の芳香族複素環基である。

10

【 0 1 7 5 】

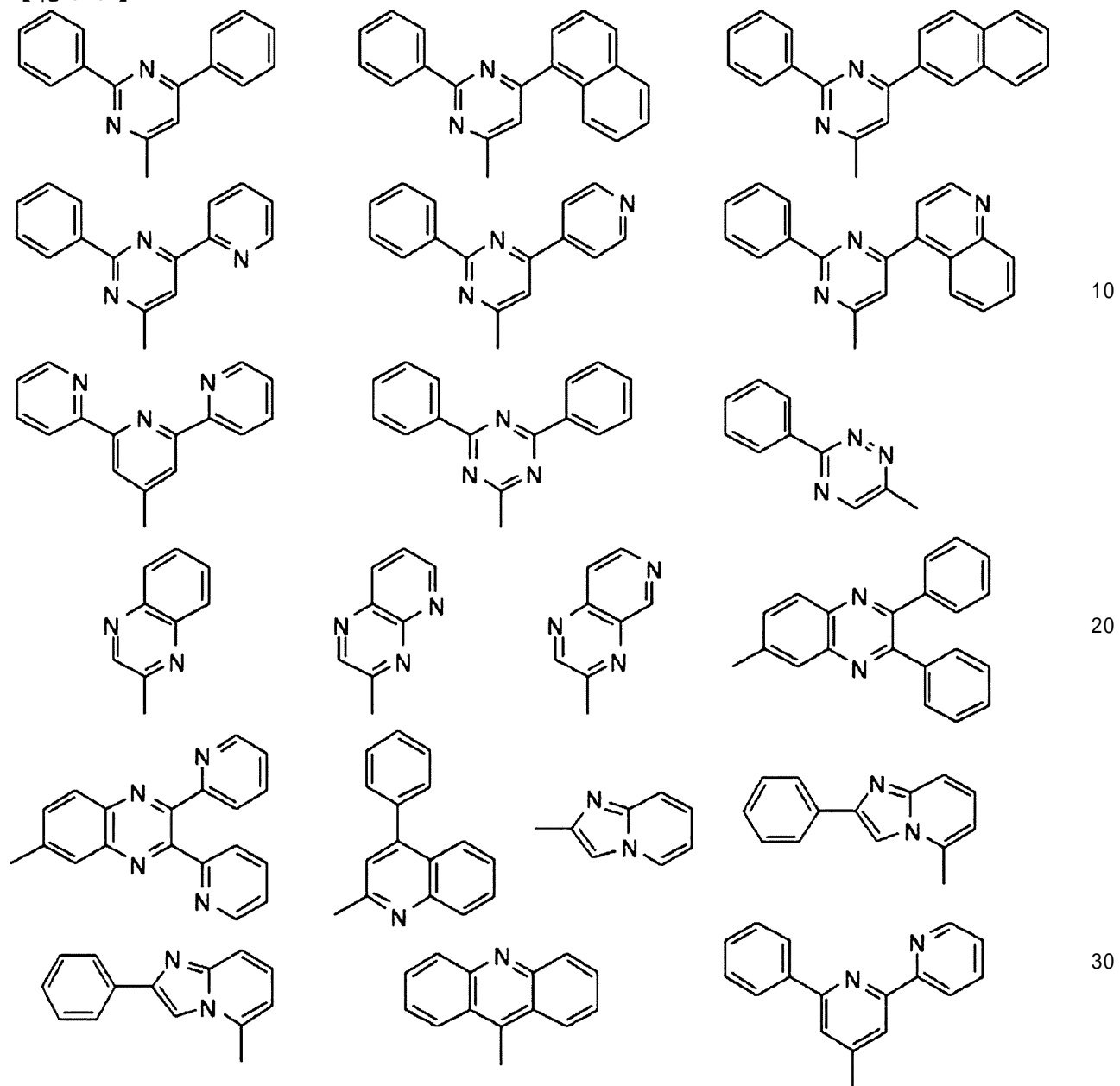
また、前記一般式 ( B 1 0 ) の式中の H A r、L<sup>1</sup>、A r<sup>1</sup>、および A r<sup>2</sup> の説明で挙げた含窒素複素環基、芳香族炭化水素基、および芳香族複素環基は置換基を有してもよい。

【 0 1 7 6 】

前記一般式 ( B 1 0 ) の式中の H A r は、例えば、下記の群から選択される。

【 0 1 7 7 】

【化60】

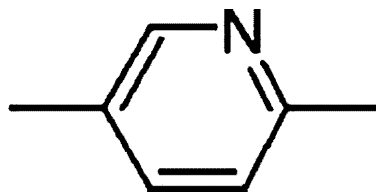
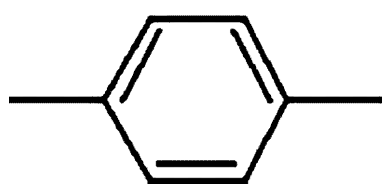


【0178】

前記一般式(B10)の式中の $L^1$ は、例えば、下記の群から選択される。

【0179】

【化61】



【0180】

前記一般式(B10)の式中の $Ar^1$ 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。

【0181】

10

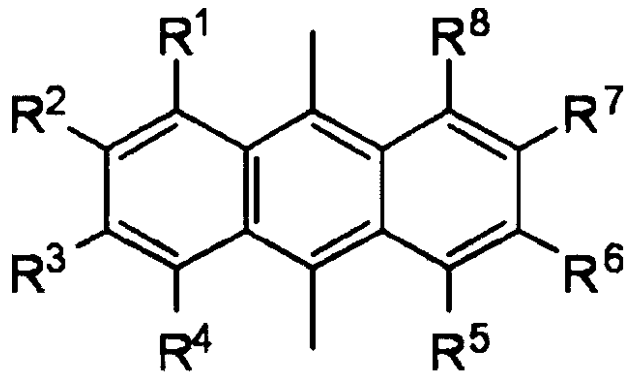
20

30

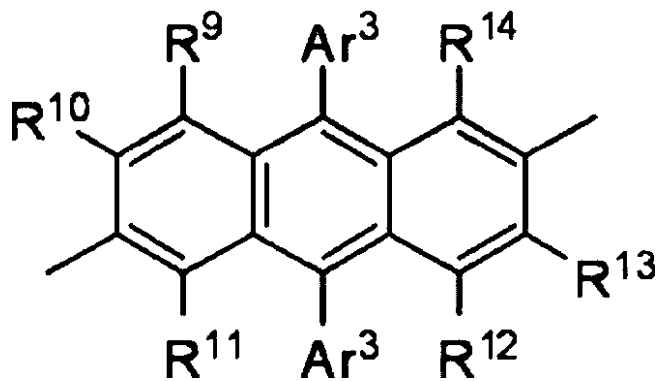
40



【化62】



10



20

【0182】

前記アリールアントラニル基の一般式中、R<sup>1</sup> から R<sup>14</sup> までは、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、炭素数 1 以上 20 以下のアルコキシ基、環形成炭素数 6 以上 40 以下のアリールオキシ基、環形成炭素数 6 以上 40 以下の芳香族炭化水素基、または環形成炭素数 2 以上 40 以下の芳香族複素環基である。

30

【0183】

前記アリールアントラニル基の一般式中、Ar<sup>3</sup> は、環形成炭素数 6 以上 40 以下の芳香族炭化水素基、または環形成炭素数 2 以上 40 以下の芳香族複素環基である。

【0184】

但し、前記アリールアントラニル基の一般式中の R<sup>1</sup> から R<sup>14</sup> まで、および Ar<sup>3</sup> の説明で挙げた芳香族炭化水素基、および芳香族複素環基は、置換基を有してもよい。

また、R<sup>1</sup> から R<sup>8</sup> までは、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体であってもよい。

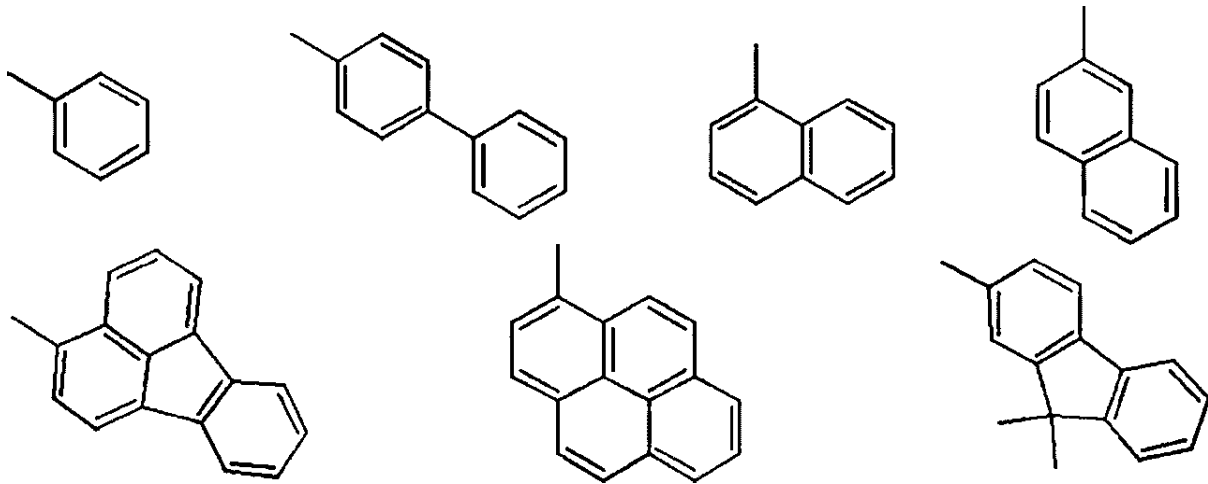
40

【0185】

前記アリールアントラニル基の一般式中、Ar<sup>2</sup> は、例えば、下記の群から選択される。

【0186】

## 【化63】



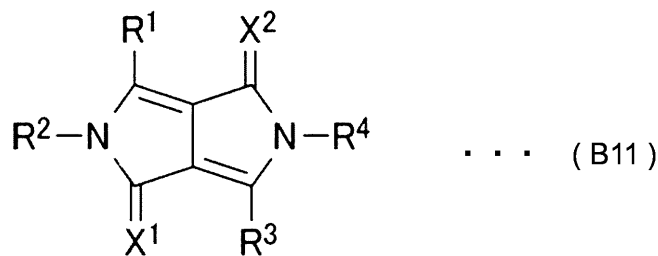
10

## 【0187】

電子伝達性化合物としての含窒素芳香多環有機化合物には、この他、下記一般式(B11)で表される化合物(特開平9-3448号公報参照)も好適に用いられる。

## 【0188】

## 【化64】



20

## 【0189】

この含窒素芳香多環有機化合物の一般式(B11)中、R<sup>1</sup>からR<sup>4</sup>までは、それぞれ独立に、

30

- 水素原子、
- 脂肪族基、
- 脂肪族式環基、
- 炭素環式芳香族環基、または
- 複素環基

を表す。但し、ここで挙げた脂肪族基、脂肪族式環基、炭素環式芳香族環基、および複素環基は、置換基を有してもよい。

この含窒素芳香多環有機化合物の一般式(B11)中、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、またはジシアノメチレン基を表す。

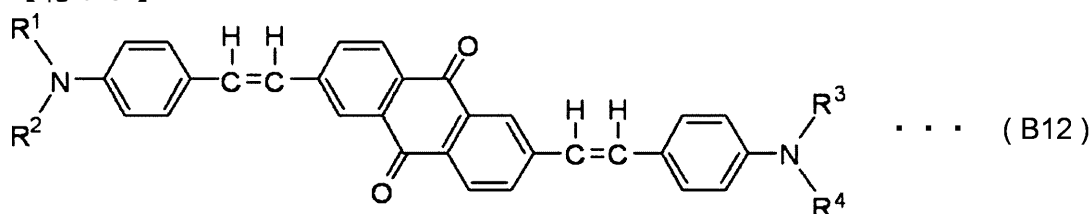
## 【0190】

また、電子伝達性化合物として、下記一般式(B12)で表される化合物(特開2000-173774号公報参照)も好適に用いられる。

40

## 【0191】

## 【化65】



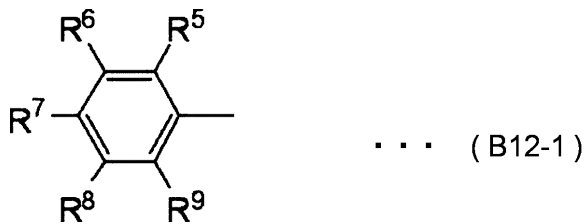
50

## 【0192】

前記一般式(B12)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ および $R^4$ は互いに同一のまたは異なる基であって、下記一般式(B12-1)で表わされる芳香族炭化水素基または縮合芳香族炭化水素基である。

## 【0193】

## 【化66】



10

## 【0194】

前記一般式(B12-1)中、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ および $R^9$ は互いに同一のまたは異なる基であって、水素原子、或いはそれらの少なくとも1つが飽和もしくは不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基、またはアルキルアミノ基である。

## 【0195】

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

## 【0196】

なお、電子注入層または電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは、1nm以上100nm以下である。

また、電子注入層の構成成分としては、含窒素環誘導体の他に、無機化合物として絶縁体また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。

## 【0197】

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およ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など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、酸化リチウム( $Li_2O$ )、酸化カリウム( $K_2O$ )、硫化ナトリウム( $Na_2S$ )、セレン化ナトリウム( $Na_2Se$ )および酸化ナトリウム( $Na_2O$ )が挙げられる。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、酸化カルシウム( $CaO$ )、酸化バリウム( $BaO$ )、酸化ストロンチウム( $SrO$ )、酸化ベリリウム( $BeO$ )、硫化バリウム( $BaS$ )およびセレン化カルシウム( $CaSe$ )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、フッ化リチウム( $LiF$ )、フッ化ナトリウム( $NaF$ )、フッ化カリウム( $KF$ )、塩化リチウム( $LiCl$ )、塩化カリウム( $KCl$ )および塩化ナトリウム( $NaCl$ )などが挙げられる。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、フッ化カルシウム( $CaF_2$ )、フッ化バリウム( $BaF_2$ )、フッ化ストロンチウム( $SrF_2$ )、フッ化マグネシウム( $MgF_2$ )およびフッ化ベリリウム( $BeF_2$ )などのフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

30

40

## 【0198】

また、半導体としては、バリウム( $Ba$ )、カルシウム( $Ca$ )、ストロンチウム( $Sr$ )、イッテルビウム( $Yb$ )、アルミニウム( $Al$ )、ガリウム( $Ga$ )、インジウム( $In$ )、リチウム( $Li$ )、ナトリウム( $Na$ )、カドミウム( $Cd$ )、マグネシウム( $Mg$ )、ケイ素( $Si$ )、タンタル( $Ta$ )、アンチモン( $Sb$ )および亜鉛( $Zn$ )の少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物または酸化窒化物などの一種単独または二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶ま

50

た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、ダークスポットなどの画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物およびアルカリ土類金属のハロゲン化物などが挙げられる。

このような絶縁体または半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、0.1 nm以上15 nm以下程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の還元性ドーパントを含有していても好ましい。

#### 【0199】

(電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体)

本発明の有機EL素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体の少なくともいずれかを有することも好ましい。

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

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

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

#### 【0200】

アルカリ金属としては、リチウム(Li)(仕事関数: 2.93 eV)、ナトリウム(Na)(仕事関数: 2.36 eV)、カリウム(K)(仕事関数: 2.28 eV)、ルビジウム(Rb)(仕事関数: 2.16 eV)、セシウム(Cs)(仕事関数: 1.95 eV)などが挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRbまたはCsであり、最も好ましくはCsである。

アルカリ土類金属としては、カルシウム(Ca)(仕事関数: 2.9 eV)、ストロンチウム(Sr)(仕事関数: 2.0 eV以上2.5 eV以下)、バリウム(Ba)(仕事関数: 2.52 eV)などが挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

希土類金属としては、スカンジウム(Sc)、イットリウム(Y)、セリウム(Ce)、テルビウム(Tb)、イッテルビウム(Yb)などが挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

#### 【0201】

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

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

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

## 【0202】

有機金属錯体としては、上記の通り、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、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、 $\beta$ -ジケトン類、アゾメチン類、およびそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

10

## 【0203】

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

電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体の少なくともいずれかを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体の少なくともいずれかを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1 nm以上15 nm以下で形成する。

20

電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体の少なくともいずれかを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパントおよび有機金属錯体の少なくともいずれかを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05 nm以上1 nm以下で形成する。

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

30

## 【0204】

(有機EL素子の各層の形成方法)

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

## 【0205】

(有機EL素子の各層の膜厚)

発光層の膜厚は、好ましくは5 nm以上50 nm以下、より好ましくは7 nm以上50 nm以下、最も好ましくは10 nm以上50 nm以下である。発光層の膜厚を5 nm以上とすることで、発光層を形成し易くなり、色度を調整し易くなる。発光層の膜厚を50 nm以下とすることで、駆動電圧の上昇を抑制できる。

40

その他の各有機薄膜層の膜厚は特に制限されないが、通常は数nmから1  $\mu$ mの範囲が好ましい。このような膜厚範囲とすることで、膜厚が薄すぎることによるピンホール等の欠陥を防止するとともに、膜厚が厚すぎることによる駆動電圧の上昇を抑制し、効率の悪化を防止できる。

## 【0206】

[実施形態の変形]

50

なお、本発明は、上述の実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲での変更、改良などは、本発明に含まれるものである。

【0207】

有機EL素子の構成は、図1に示した有機EL素子1の構成例に限定されない。例えば、発光層の陽極側に電子障壁層を、発光層の陰極側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層に閉じ込めて、発光層における励起子の生成確率を高めることができる。

【0208】

また、発光層は、1層に限られず、複数の発光層が積層されていてもよい。有機EL素子が複数の発光層を有する場合、少なくとも1つの発光層が本発明のビスカルバゾール誘導体を含んでいることが好ましい。

10

また、有機EL素子が複数の発光層を有する場合、これらの発光層が互いに隣接して設けられていてもよいし、その他の層（例えば、電荷発生層）を介して積層されていてもよい。

【実施例】

【0209】

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

【0210】

<化合物の合成>

20

・合成例1（化合物H1の合成）

化合物H1の合成方法を、以下、中間体の合成方法を含めて説明する。

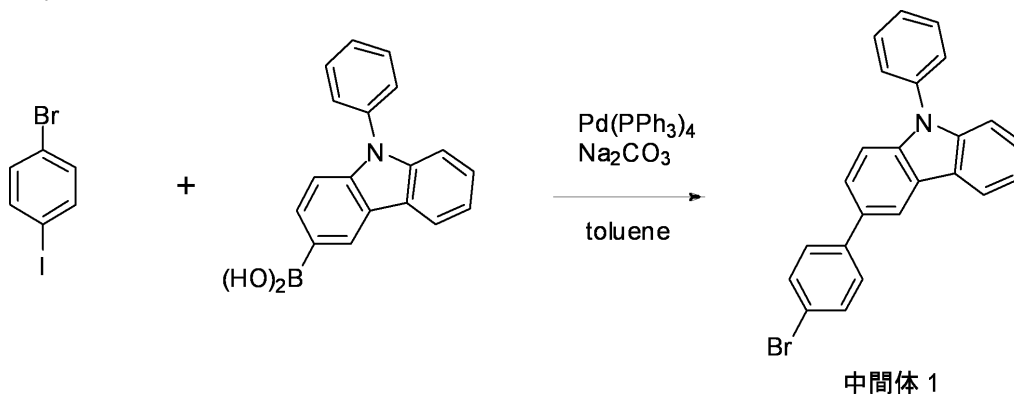
【0211】

・合成例（1-1）：中間体1の合成

まず、中間体1の合成方法を説明する。中間体1の合成スキームを次に示す。

【0212】

【化67】



30

【0213】

アルゴン気流下、4-ブromo-1-ヨードベンゼン（11.3g、40mmol）、9-フェニルカルバゾリル-3-ボロン酸（11.5g、40mmol）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（1.39g、1.2mmol）、トルエン（120mL）、および2M炭酸ナトリウム水溶液（60mL）を順次加えて、8時間加熱還流した。

40

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体1（11.0g、収率69%）を得た。FD-MS（フィールドディソープションマスペクトル。以下、FD-MSと略記する。）の分析により、中間体1と同一した。

【0214】

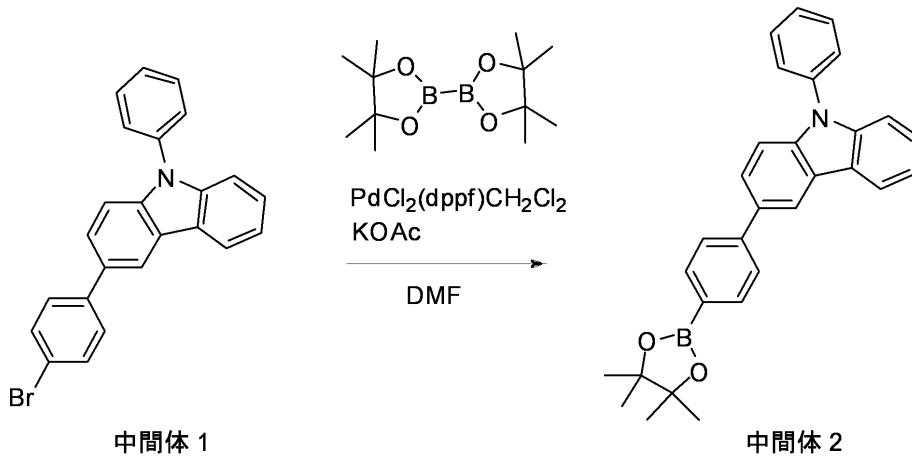
・合成例（1-2）：中間体2の合成

50

次いで、中間体 2 の合成方法を説明する。中間体 2 の合成スキームを次に示す。

【0215】

【化68】



10

【0216】

アルゴン気流下、中間体 1 (10 g、25 mmol)、ビス(ピナコラト)ジボロン(8.3 g、33 mmol)、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]パラジウム(II)ジクロリドジクロロメタン付加物(0.62 g、0.75 mmol)、酢酸カリウム(7.4 g、75 mmol)、および N,N-ジメチルホルムアミド(170 mL)を順次加えて、8時間加熱還流した。

20

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体 2 (10 g、収率 91%)を得た。FD-MS の分析により、中間体 2 と同定した。

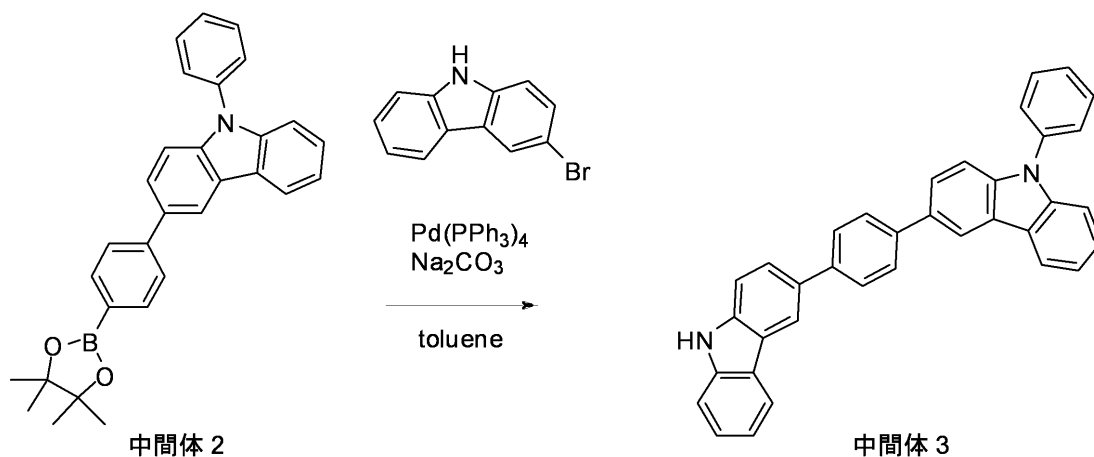
【0217】

・合成例(1-3)：中間体 3 の合成

次いで、中間体 3 の合成方法を説明する。中間体 3 の合成スキームを次に示す。

【0218】

【化69】



30

40

【0219】

上記合成例(1-1)の中間体 1 の合成において、4-ブロモ-1-ヨードベンゼンの代わりに 3-ブロモカルバゾールを用い、9-フェニルカルバゾリル-3-ボロン酸の代わりに中間体 2 を用いて、同様の方法で合成した。FD-MS の分析により、中間体 3 と同定した。

【0220】

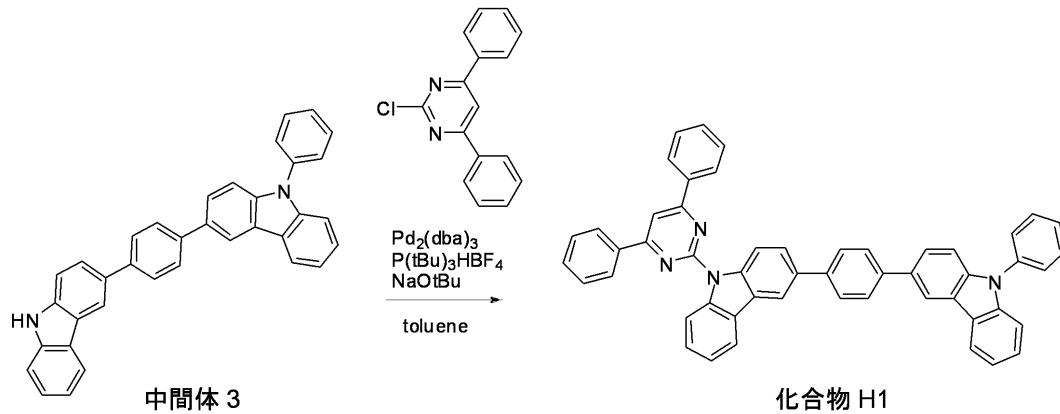
・合成例(1-4)：化合物 H 1 の合成

化合物 H 1 の合成スキームを次に示す。

【0221】

50

## 【化70】



10

## 【0222】

アルゴン気流下、中間体3 (1.6 g、3.9 mmol)、2,6-ジフェニルピリミジン-4-クロリド (1.0 g、3.9 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.071 g、0.078 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.091 g、0.31 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.53 g、5.5 mmol)、および無水トルエン (20 mL) を順次加えて、8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、0.88 gの白色固体を得た。得られた化合物について、FD-MSを行った結果、化合物H1と同定した。

20

FD-MS:

calcd for  $C_{52}H_{34}N_4 = 714$ , found  $m/z = 714 (M^+, 100)$

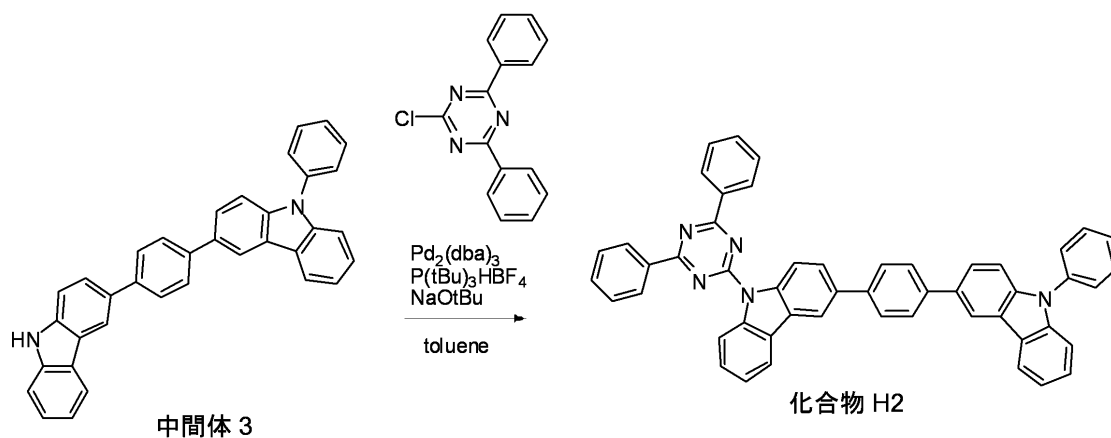
## 【0223】

・合成例2 (化合物H2の合成)

化合物H2の合成方法を説明する。化合物H2の合成スキームを次に示す。

## 【0224】

## 【化71】



30

40

## 【0225】

アルゴン気流下、中間体3 (1.6 g、3.9 mmol)、2,6-ジフェニルトリアジン-4-クロリド (1.0 g、3.9 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.071 g、0.078 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.091 g、0.31 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.53 g、5.5 mmol)、および無水トルエン (20 mL) を順次加えて、8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、0.78 gの白色固体を得た。

50



得られた化合物について、FD-MSを行った結果、化合物H2と同定した。

FD-MS :

calcd for  $C_{51}H_{33}N_5 = 715$ , found  $m/z = 715 (M^+, 100)$

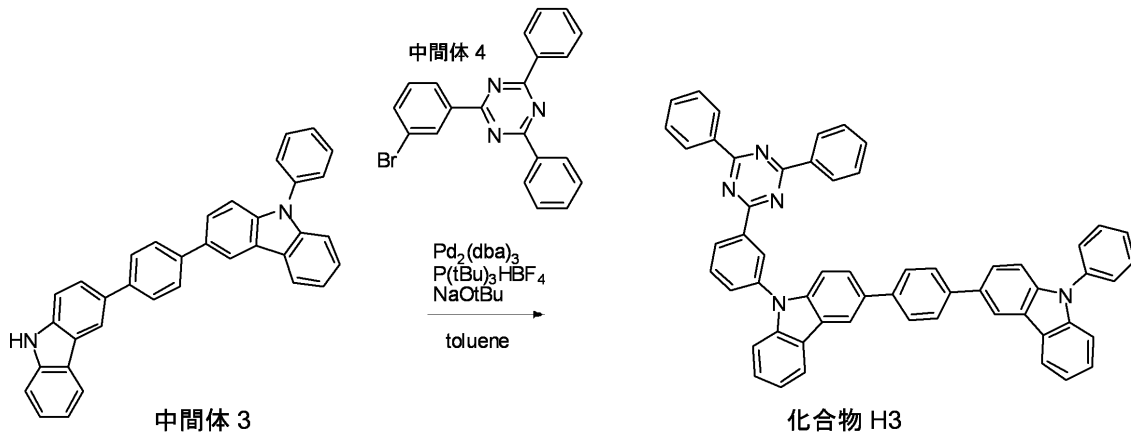
【0226】

・合成例3(化合物H3の合成)

化合物H3の合成方法を説明する。化合物H3の合成スキームを次に示す。

【0227】

【化72】



10

20

【0228】

アルゴン気流下、中間体3(1.6g、3.9mmol)、中間体4(1.5g、3.9mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0.071g、0.078mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩(0.091g、0.31mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.53g、5.5mmol)、および無水トルエン(20mL)を順次加えて、8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、1.1gの固体を得た。得られた化合物について、FD-MSを行った結果、化合物H3と同定した。

FD-MS :

calcd for  $C_{57}H_{37}N_5 = 791$ , found  $m/z = 791 (M^+, 100)$

【0229】

・合成例4(化合物H4の合成)

化合物H4の合成方法を、以下、中間体の合成方法を含めて説明する。

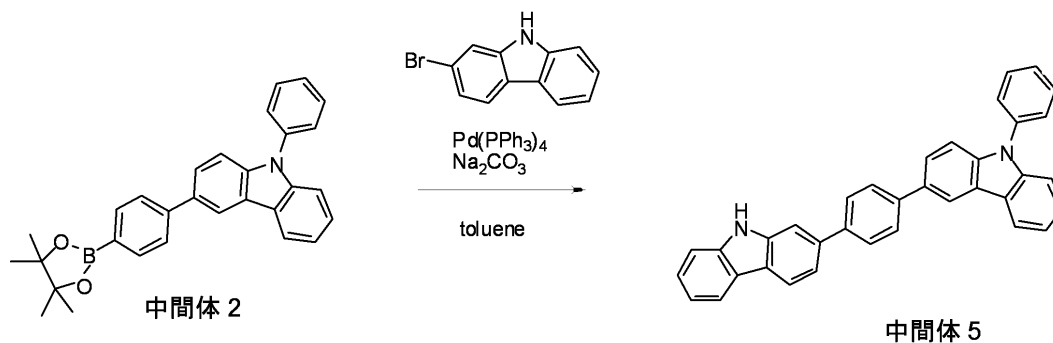
【0230】

・合成例(4-1): 中間体5の合成

まず、中間体5の合成方法を説明する。中間体5の合成スキームを次に示す。

【0231】

【化73】



40

【0232】

中間体1の合成において、4-プロモ-1-ヨードベンゼンの代わりに2-プロモカル

50

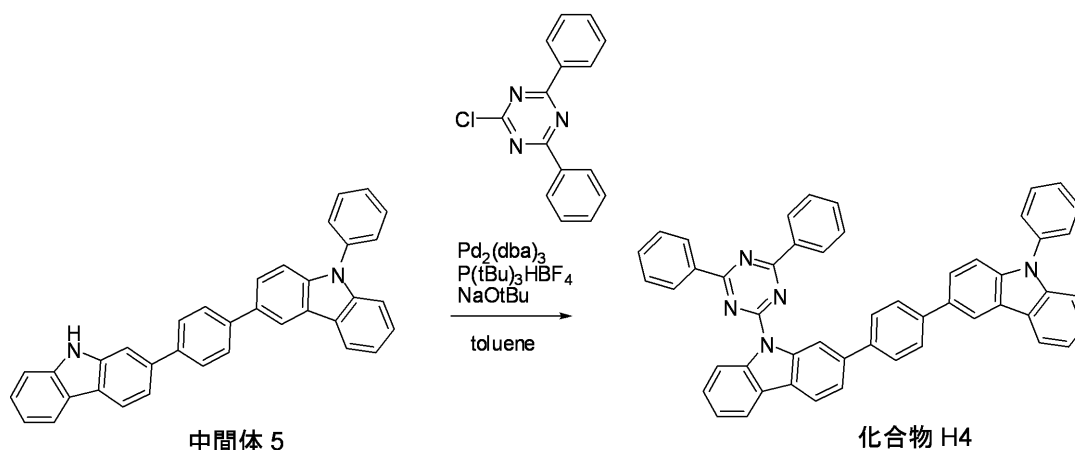
バゾールを用い、9-フェニルカルバゾリル-3-ボロン酸の代わりに中間体2を用いて同様の方法で合成した。FD-MSの分析により、中間体5と同一した。

【0233】

・合成例(4-2)：化合物H4の合成  
化合物H4の合成スキームを次に示す。

【0234】

【化74】



10

20

【0235】

アルゴン気流下、中間体5(1.6g、3.9mmol)、2,6-ジフェニルトリアジン-4-クロリド(1.0g、3.9mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0.071g、0.078mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩(0.091g、0.31mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.53g、5.5mmol)、および無水トルエン(20mL)を順次加えて、8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、0.80gの白色固体を得た。得られた化合物について、FD-MSを行った結果、化合物H4と同一した。

30

FD-MS :

calcd for  $C_{51}H_{33}N_5 = 715$ , found  $m/z = 715 (M^+, 100)$

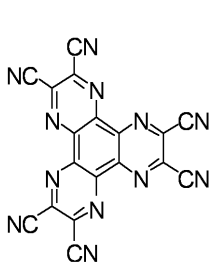
【0236】

<有機EL素子の作製及び発光性能評価>

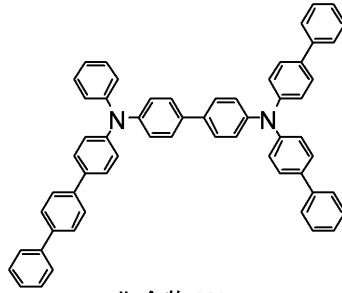
実施例および比較例で用いた化合物を次に示す。

【0237】

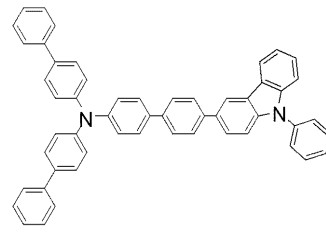
【化 7 5】



化合物 C-1

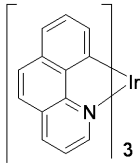


化合物 X1

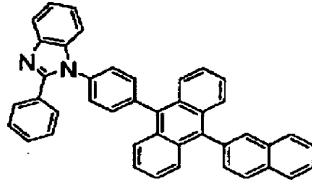


化合物 X2

10



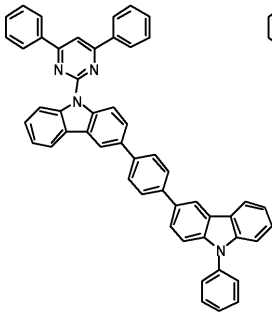
Ir(bzq)<sub>3</sub>



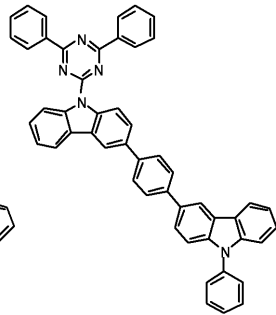
化合物 ET

【 0 2 3 8 】

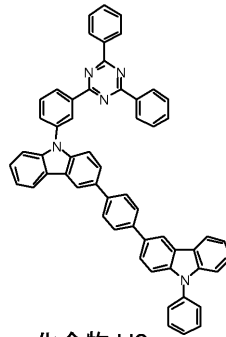
【化 7 6】



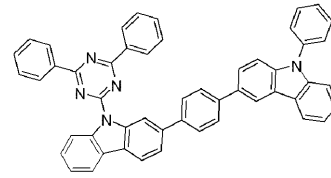
化合物 H1



化合物 H2



化合物 H3



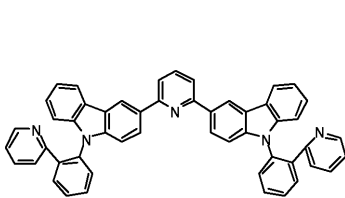
化合物 H4

20

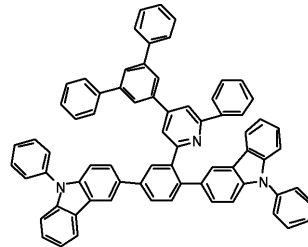
30

【 0 2 3 9 】

【化 7 7】

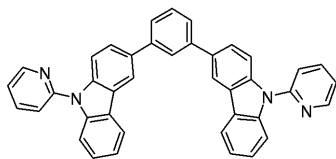


化合物 PH1

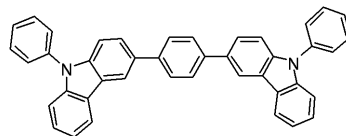


化合物 PH2

40



化合物 PH3



化合物 PH4

【 0 2 4 0 】

(有機 EL 素子の製造)

50

## ・実施例 1

25 mm × 75 mm × 厚さ 1.1 mm の ITO 透明電極付きガラス基板（ジオマテック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして上記電子受容性（アクセプター）化合物 C-1 を蒸着し、膜厚 5 nm の化合物 C-1 膜を成膜した。

この化合物 C-1 膜上に、第 1 正孔輸送材料として上記芳香族アミン誘導体（化合物 X1）を蒸着し、膜厚 65 nm の第 1 正孔輸送層を成膜した。

この第 1 正孔輸送層上に、第 2 正孔輸送材料として上記芳香族アミン誘導体（化合物 X2）を蒸着し、膜厚 10 nm の第 2 正孔輸送層を成膜した。

さらに、この第 2 正孔輸送層上に、ホスト材料として前記合成実施例 1 で得た化合物 H1 と、燐光ドーパント材料として上記化合物 Ir(bzq)<sub>3</sub> とを共蒸着し、膜厚 25 nm の発光層を成膜した。この発光層内における化合物 Ir(bzq)<sub>3</sub> の濃度は 10.0 質量%であった。化合物 Ir(bzq)<sub>3</sub> は、黄色発光を示す燐光発光性材料である。

そして、この発光層上に、上記化合物 ET を蒸着し、膜厚 35 nm の化合物 ET 膜を成膜した。この化合物 ET 膜は、電子輸送層として機能する。

次に、化合物 ET 膜上に、LiF を成膜速度 0.1 オングストローム / min で蒸着し、電子注入性電極（陰極）としての膜厚 1 nm の LiF 膜を形成した。

この LiF 膜上に、金属 Al を蒸着し、膜厚 80 nm の金属陰極を形成した。

このようにして、実施例 1 の有機 EL 素子を作製した。

## 【0241】

## ・実施例 2 ~ 実施例 4 および比較例 1 ~ 比較例 4

実施例 2 ~ 実施例 4 および比較例 1 ~ 比較例 4 の有機 EL 素子は、実施例 1 において、発光層のホスト材料として、化合物 H1 の代わりに表 1 に記載の化合物を用いて発光層を形成した以外は実施例 1 と同様にして作製した。

## 【0242】

## （有機 EL 素子の発光特性評価）

作製した有機 EL 素子に対し電流密度が 1 mA / cm<sup>2</sup> となるように室温下で電圧を印加し、そのときの EL 発光スペクトルを分光放射輝度計（CS-1000：コニカミノルタ社製）にて計測した。得られた分光放射輝度スペクトルから、電流効率（cd / A）を測定した。

## 【0243】

10

20

30

【表 1】

	発光層	発光効率
	ホスト材料	(cd/A)
実施例1	化合物 H1	60
実施例2	化合物 H2	57
実施例3	化合物 H3	62
実施例4	化合物 H4	64
比較例1	化合物 PH1	22
比較例2	化合物 PH2	20
比較例3	化合物 PH3	25
比較例4	化合物 PH4	15

10

## 【 0 2 4 4 】

20

表 1 のように、実施例 1 ~ 実施例 4 の有機 E L 素子は、比較例 1 ~ 比較例 4 の有機 E L 素子に比べて高い発光効率で発光した。比較例 1 ~ 比較例 3 の有機 E L 素子の発光効率が低くなったのは、ホスト材料として用いた化合物 P H 1 ~ P H 3 の正孔輸送特性が、実施例 1 ~ 実施例 4 で化合物 H 1 ~ H 4 に比べて低かったためと考えられる。また、比較例 4 の有機 E L 素子の発光効率が低くなったのは、化合物 P H 4 は、含窒素六員環を有しておらず、正孔輸送特性が高くなりすぎたために、発光層内の正孔と電子とのバランスが崩れたためと考えられる。

化合物 P H 1 ~ P H 4 の正孔輸送特性については、具体的には次のように考えられる。

比較例 1 の有機 E L 素子で用いた化合物 P H 1 は、2 つのカルバゾールをピリジン環によって連結した構造を有する。このピリジン環は、一方の C z が結合する部位に対して、他方の C z がピリジン環の m 位で結合する。そのため、化合物 P H 1 では、2 つのカルバゾール同士の共役が切断されて共役系が広がらず、H O M O が広がらない。それゆえ、化合物 P H 1 は、十分な正孔輸送特性を示さなかったと考えられる。

30

比較例 2 の有機 E L 素子で用いた化合物 P H 2 の場合は、2 つのカルバゾールをフェニレン基で連結した構造を有する。このフェニレン基は、一方の C z が結合する部位に対して、他方の C z がフェニレンの p 位で結合する。しかし、化合物 P H 2 のカルバゾール同士を連結するフェニレン基は、置換基を有しており、この置換基がカルバゾール同士の平面性を失わせ、共役を切断する。それゆえ、化合物 P H 2 も、上記化合物 P H 1 と同様に、十分な正孔輸送特性を示さなかったと考えられる。

比較例 3 の有機 E L 素子で用いた化合物 P H 3 は、カルバゾール同士を m - フェニレンで結合したものである。この化合物も上記の説明と同様に、2 つのカルバゾール同士の共役が切断されて共役系が広がらず、H O M O が広がらない。それゆえ、化合物 P H 3 は、十分な正孔輸送特性を示さなかったと考えられる。

40

比較例 4 の有機 E L 素子で用いた化合物 P H 4 は、2 つのカルバゾールを p - フェニレン基で連結したものであるが、比較例 4 の有機 E L 素子は、低い発光効率を示した。これは、化合物 P H 4 が C z の N 位に含窒素芳香族複素環基を有さず、正孔輸送特性が高くなってしまったために、比較例 4 の有機 E L 素子の発光層内が正孔過剰になっていると推察される。

## 【産業上の利用可能性】

## 【 0 2 4 5 】

50

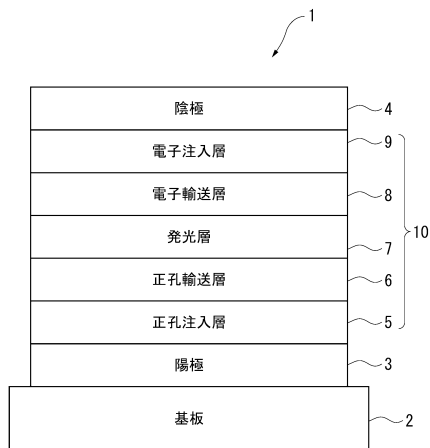
本発明の化合物は、有機EL素子用材料として利用できる。また、本発明の化合物を用いた有機EL素子は、表示装置や照明装置における発光素子として利用できる。

【符号の説明】

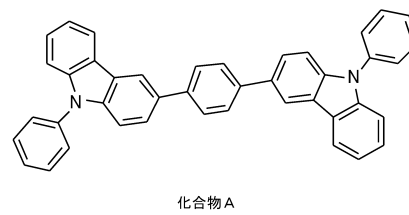
【0246】

1 ... 有機EL素子、2 ... 基板、3 ... 陽極、4 ... 陰極、5 ... 正孔注入層、6 ... 正孔輸送層、7 ... 発光層、8 ... 電子輸送層、9 ... 電子注入層、10 ... 有機薄膜層。

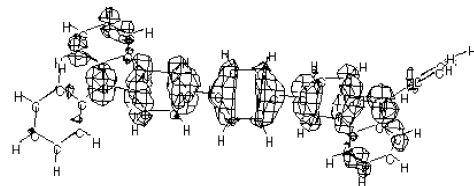
【図1】



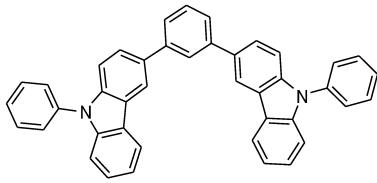
【図2A】



【図2B】

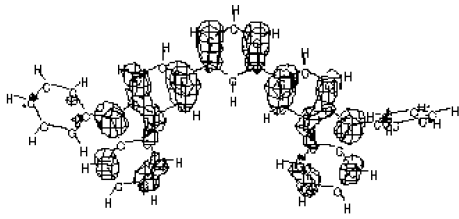


【 3 A 】



化合物B

【 3 B 】



---

フロントページの続き

審査官 伊佐地 公美

- (56)参考文献 特開2009-057307(JP,A)  
韓国公開特許第10-2011-0011578(KR,A)  
特開2004-342391(JP,A)  
国際公開第2006/013739(WO,A1)  
特開2005-093159(JP,A)  
特開2009-221442(JP,A)  
国際公開第2011/162162(WO,A1)  
国際公開第2006/067976(WO,A1)  
国際公開第2011/105161(WO,A1)  
国際公開第2009/060757(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D  
C09K  
H05B  
CAplus/REGISTRY(STN)