

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014年9月12日(12.09.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/136758 A1

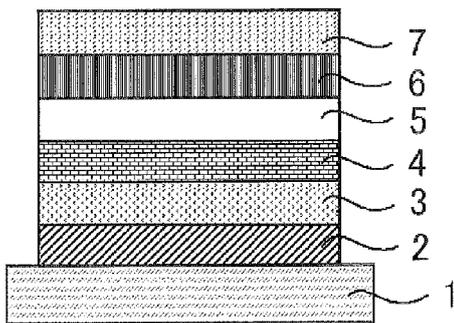
- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/055427
- (22) 国際出願日: 2014年3月4日(04.03.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-043533 2013年3月5日(05.03.2013) JP
- (71) 出願人: 国立大学法人九州大学(KYUSHU UNIVERSITY NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION) [JP/JP]; 〒8128581 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 Fukuoka (JP).
- (72) 発明者: 安達 千波矢(ADACHI Chihaya); 〒8128581 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内 Fukuoka (JP). 安田 琢磨(YASUDA Takuma); 〒8128581 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内 Fukuoka (JP). 西本 琢朗(NISHIMOTO Takuro); 〒8128581 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内 Fukuoka (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人特許事務所サイクス(SIKS & CO.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目8番7号 京橋日殖ビル8階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,

[続葉有]

(54) Title: CHARGE TRANSPORT MATERIAL, HOST MATERIAL, THIN FILM AND ORGANIC LIGHT EMITTING ELEMENT

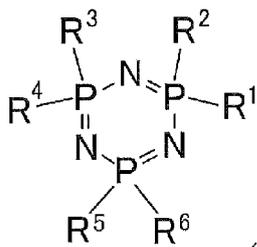
(54) 発明の名称: 電荷輸送材料、ホスト材料、薄膜および有機発光素子

[図1]

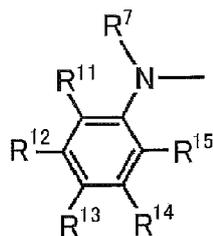


(57) Abstract: A compound represented by general formula (1) is useful as a charge transport material. In general formula (1), each of R¹-R⁶ represents a group represented by general formula (2); R⁷ represents an aryl group or an aralkyl group; and each of R¹¹-R¹⁵ represents a hydrogen atom or a substituent.

(57) 要約: 下記一般式(1)で表される化合物は電荷輸送材料として有用である。R¹~R⁶は、一般式(2)で表される基であり、R⁷はアリール基またはアラルキル基を表し、R¹¹~R¹⁵は水素原子または置換基を表す。



(1)



(2)

WO 2014/136758 A1

GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG). 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

電荷輸送材料、ホスト材料、薄膜および有機発光素子

技術分野

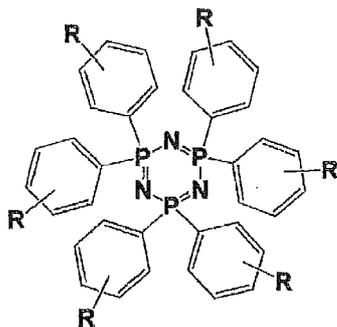
[0001] 本発明は、電荷輸送材料やホスト材料として有用な化合物と、それを用いて形成した薄膜と有機発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）などの有機発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する電子輸送材料、正孔輸送材料、発光材料、ホスト材料などを新たに開発して組み合わせることにより、発光効率を高める工夫が種々なされてきている。その中には、シクロトリホスファゼン環を含む化合物を利用した有機発光素子に関する研究も見受けられる。

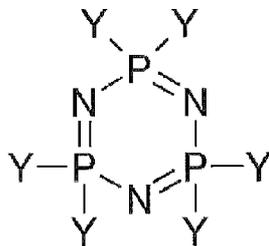
[0003] 例えば非特許文献1には、下記の一般式で表される化合物が青色リン光発光材料のホスト材料として有用であることが記載されている。非特許文献1には、シクロトリホスファゼン環に3, 5-ジメチルフェニル基が結合した化合物、4-メトキシフェニル基が結合した化合物、無置換のフェニル基が結合した化合物が具体的に掲載されている。非特許文献1には、これらの化合物の分解温度が280～330℃であり、T1レベル（最低励起三重項エネルギー準位）が3.0 eV超であることが記載されている。

[化1]



[0004] また特許文献1には、下記の一般式で表される化合物が、リン光発光材料や蛍光発光材料のホスト材料として有用であることが記載されている。下記の一般式において、Yはアリール基、ヘテロアリール基、カルバゾリル基またはアザカルバゾリル基であって、炭素原子を介してシクロトリホスファゼン環のリン原子に結合することが規定されている。特許文献1には、Yが4-(カルバゾール-9-イル)フェニル基、N-メチルカルバゾール-3-イル基である化合物等が具体的に記載されている。しかし、窒素原子を介してシクロトリホスファゼン環のリン原子に結合した化合物は記載されていない。

[化2]



[0005] 窒素原子を介してシクロトリホスファゼン環のリン原子に結合した化合物については、非特許文献2に化合物が1つ記載されている。非特許文献2では、上記一般式のYがカルバゾール-9-イル基である化合物の発光特性について検討がなされている。しかし、非特許文献2には、この化合物の電荷輸送材料としての有用性やホスト材料としての有用性については記載されていない。

先行技術文献

非特許文献

[0006] 非特許文献1: Pamela Schrogel et al., Chem. Mater., 2011, 23 (22), 4947-4953

非特許文献2: Yu.T.Kononenko et al., Journal of Molecular Liquids 127(2006)118-120

特許文献

[0007] 特許文献1：特表2011-525047号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] このように、シクロトリホスファゼン環を有する化合物を発光素子に用いることがこれまでも提案されている。非特許文献1や特許文献1に記載されている化合物は、確かにT1レベルは高いものの、熱安定性や発光効率が十分に高いとは言い難い。熱安定性が十分でないと、有機発光素子を製造する際のプロセスに制約が生じたり、所望の素子を提供したりすることができなくなるなどの支障がある。また、発光効率を十分に高めることができない場合は、電荷輸送材料やホスト材料としての利用価値は大幅に損なわれることになる。このような従来技術の課題を考慮して、本発明者らは、シクロトリホスファゼン環を有する化合物の熱安定性や発光効率を改善することを目的として鋭意検討を進めた。

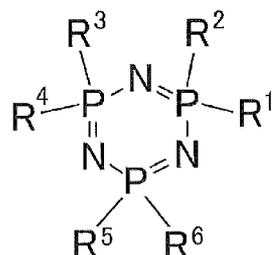
課題を解決するための手段

[0009] 上記の目的を達成するために鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、特定の構造を有する化合物がT1レベルが高く熱安定性に優れるとともに、電荷輸送材料として有用であることを見出した。また、当該化合物はなかでも青色発光材料のホスト材料として有用であり、有機発光素子の発光効率や輝度を大幅に向上させることが可能であることを見出した。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

[0010] [1] 下記一般式(1)で表される化合物からなる電荷輸送材料。

[化3]

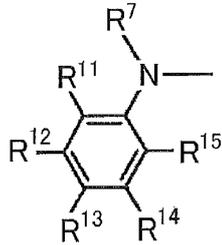
一般式(1)



[一般式 (1) において、 $R^1 \sim R^6$ は各々独立に下記一般式 (2) で表される基である。

[化4]

一般式 (2)



[一般式 (2) において、 R^7 は置換もしくは無置換のアリール基、または置換もしくは無置換のアラルキル基を表す。 $R^{11} \sim R^{15}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^7 と R^{11} 、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

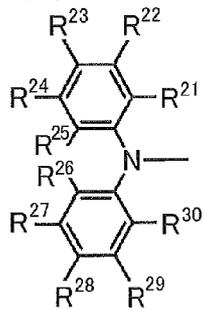
[2] 一般式 (1) の $R^1 \sim R^6$ がすべて同一であることを特徴とする [1] に記載の電荷輸送材料。

[3] 一般式 (1) の $R^1 \sim R^6$ が下記一般式 (3) ~ (7) のいずれかで表される基であることを特徴とする [1] または [2] に記載の電荷輸送材料

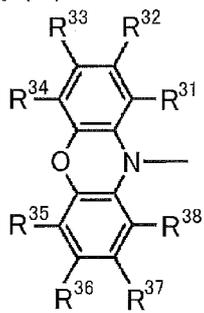
。

[化5-1]

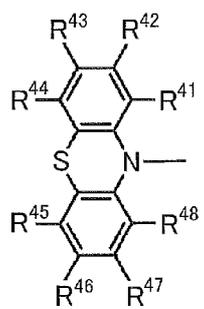
一般式 (3)



一般式 (4)

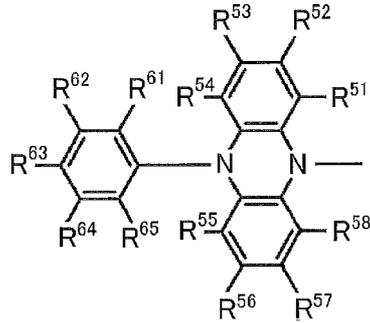


一般式 (5)

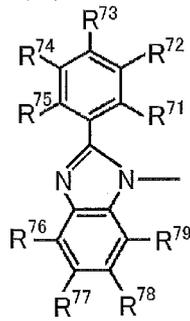


[化5-2]

一般式 (6)



一般式 (7)



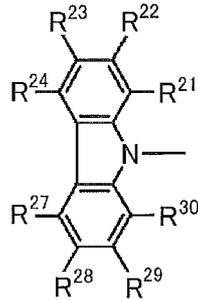
[一般式 (3) ~ (7) において、 $R^{21} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{64} と R^{65} 、 R^{54} と R^{61} 、 R^{55} と R^{65} 、 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

[4] 一般式 (1) の $R^1 \sim R^6$ が前記一般式 (3) で表される基であることを特徴とする [3] に記載の電荷輸送材料。

[5] 一般式 (1) の $R^1 \sim R^6$ が下記一般式 (8) で表される基であることを特徴とする [3] または [4] に記載の電荷輸送材料。

[化6]

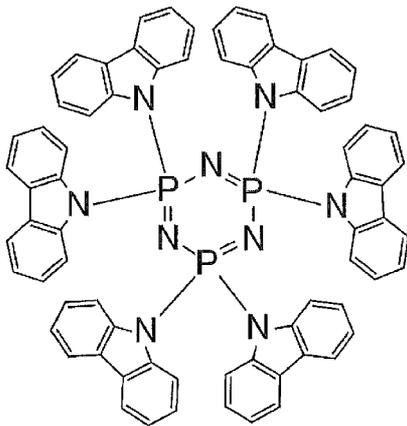
一般式 (8)



[一般式 (8) において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{30}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

[6] 下記の構造を有する化合物からなることを特徴とする [5] に記載の電荷輸送材料。

[化7]



[上の構造において、水素原子は置換基で置換されていてもよい。]

[7] [1] ~ [6] のいずれか 1 項に記載の電荷輸送材料からなることを特徴とするホスト材料。

[8] 青色発光材料用であることを特徴とする [7] に記載のホスト材料。

[9] [7] に記載のホスト材料と発光材料を含むことを特徴とする薄膜。

[10] 前記発光材料が青色発光材料であることを特徴とする [9] に記

載の薄膜。

[11] [1]～[6]のいずれか1項に記載の電荷輸送材料を用いたことを特徴とする有機発光素子。

[12] 前記電荷輸送材料をホスト材料として発光層に用いたことを特徴とする[11]に記載の有機発光素子。

[13] リン光を放射することを特徴とする[11]または[12]に記載の有機発光素子。

[14] 遅延蛍光を放射することを特徴とする[11]または[12]に記載の有機発光素子。

[15] 有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする[11]～[14]のいずれか1項に記載の有機発光素子。

発明の効果

[0011] 一般式(1)で表される化合物は、電荷輸送材料として有用である。また、発光材料をドーパントとして用いる際のホスト材料としても有用である。本発明のホスト材料を用いれば、発光効率が高く最大輝度が大きい有機発光素子を提供することが可能である。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。

[図2]実施例1の有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

[図3]実施例2および比較例1の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

[図4]実施例2および比較例1の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度－電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図5]実施例2および比較例1の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度－外部量子効率特性を示すグラフである。

[図6]実施例2および比較例2の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度－電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図7]実施例2および比較例2の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度－外部量子効率特性を示すグラフである。

[図8]実施例3および比較例3の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

[図9]実施例3および比較例3の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度－電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図10]実施例3および比較例3の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度－外部量子効率特性を示すグラフである。

発明を実施するための形態

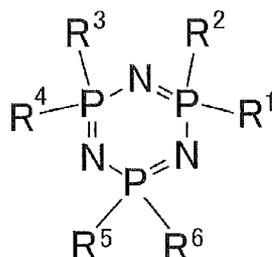
[0013] 以下において、本発明の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施態様や具体例に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、本発明に用いられる化合物の分子内に存在する水素原子の同位体種は特に限定されず、例えば分子内の水素原子がすべて¹Hであってもよいし、一部または全部が²H（デュートリウムD）であってもよい。

[0014] [一般式（1）で表される化合物]

本発明の電荷輸送材料は、下記一般式（1）で表される化合物からなることを特徴とする。

[化8]

一般式（1）

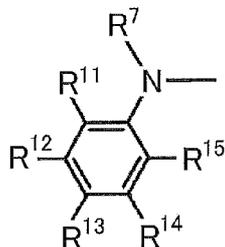


[0015] 一般式（1）において、R¹～R⁶は各々独立に下記一般式（2）で表される

基である。

[化9]

一般式(2)



[0016] 一般式(2)において、R⁷は置換もしくは無置換のアリール基、または置換もしくは無置換のアラルキル基を表す。

ここでいうアリール基を構成する芳香環は、単環であっても縮合環であってもよく、具体例としてベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環を挙げることができる。アリール基の炭素数は6~40であることが好ましく、6~20であることがより好ましく、6~14であることがさらに好ましい。アリール基の具体例として、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基を挙げることができる。

[0017] また、ここでいうアラルキル基は、少なくとも1つのアリール基で置換されたアルキル基を意味し、アルキル部分は直鎖であっても分枝状であってもよい。アルキル部分の炭素数は1~20が好ましく、1~10がより好ましく、1~5がさらに好ましい。また、アリール部分を構成する芳香環は単環であっても縮合環であってもよい。具体例と好ましい炭素数については上記のアリール基の具体例と好ましい範囲を参照することができる。アラルキル基を構成するアリール基は、アルキル基の1位に結合していることが好ましい。また、アラルキル基を構成するアリール基が2つ以上あるときは、それらは同一であっても互いに異なっていてもよい。アラルキル基の具体例として、フェニルメチル基、1-フェニルエチル基、1-フェニルプロピル基、1-フェニルブチル基、1-フェニルペンチル基、1-フェニルヘキシル基、ナフタレン-1-イルメチル基、1-(ナフタレン-1-イル)エチル基

、ナフタレン-2-イルメチル基、1-(ナフタレン-2-イル)エチル基を挙げることができる。

[0018] 一般式(2)において、 R^7 と R^{11} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。形成される環状構造は、5~7員環であることが好ましく、5または6員環であることがより好ましい。形成される環骨格形成原子の中には、 R^7 と R^{11} が結合している窒素原子以外の複素原子を含んでいてもよいし、含んでいなくてもよい。含んでいる場合は、例えば窒素原子、硫黄原子、酸素原子を含むことができる。好ましい環状構造の例として、1,4-オキサジン環、1,4-チアジン環、ピラジン環、ピロール環を挙げることができる。ピラジン環を形成する場合、4位の窒素原子には置換もしくは無置換のアルキル基、または置換もしくは無置換のアリール基が結合していることが好ましく、置換もしくは無置換のアリール基が結合していることがより好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基が結合していることがさらに好ましい。

[0019] 一般式(2)において、 R^{11} ~ R^{15} は各々独立に水素原子または置換基を表す。置換基の数は特に制限されず、 R^{11} ~ R^{15} のすべてが無置換(すなわち水素原子)であってもよい。 R^{11} ~ R^{15} のうち2つ以上が置換基である場合、複数の置換基は互いに同一であっても異なっていてもよい。 R^{11} ~ R^{15} がとりうる置換基と、 R^7 が表すアリール基またはアルキル基がとりうる置換基として、例えばヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、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1~20のアルキルチオ基、炭素数1~20のアルキル置換アミノ基、炭素数2~20のアシル基、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2~10のアルケニル基、炭素数2~10のアルキニル基、炭素数2~10のアルコキシカルボニル基、炭素数1~10のアルキルスルホニル基、炭素数1~10のハロアルキル基、アミド基、炭素数2~10のアルキルアミド基、炭素数3~20のトリアルキルシリル基、炭素数4~20のトリアルキルシリルアルキル基、炭素数5~20のトリアルキルシリルアルケニル基、炭素数5~20のトリアルキルシリルアルキニル基およびニトロ基等が挙げ

られる。これらの具体例のうち、さらに置換基により置換可能なものは置換されていてよい。より好ましい置換基は、ハロゲン原子、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のアルコキシ基、炭素数6～40の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数3～40の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、炭素数1～20のジアルキル置換アミノ基である。さらに好ましい置換基は、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、炭素数1～10の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1～10の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数6～15の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数3～12の置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。

[0020] 一般式(2)において、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は2環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、イミダゾリン環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、シクロヘキサジエン環、シクロヘキセン環、シクロペンタエン環、シクロヘプタリエン環、シクロヘプタジエン環、シクロヘプタエン環などを挙げるができる。

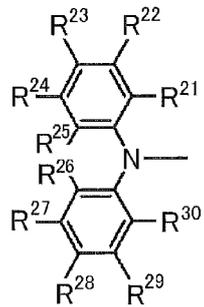
[0021] 一般式(1)の R^1 ～ R^6 はすべてが同一であってもよいし、異なってもよい。また、一部が同一であってもよい。例えば、 R^1 と R^2 が同一であり、 R^3 と R^4 が同一であり、 R^5 と R^6 が同一である場合や、 R^1 と R^3 と R^5 が同一であり、 R^2 と R^4 と R^6 が同一である場合を挙げるができる。 R^1 ～ R^6 のすべてが同一であれば合成が容易であるという利点がある。

[0022] 一般式(1)の R^1 ～ R^6 は、下記一般式(3)～(7)のいずれかで表され

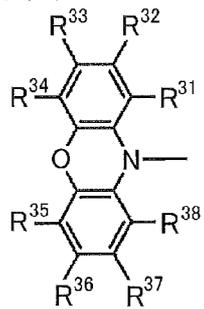
る基であることが好ましい。

[化10-1]

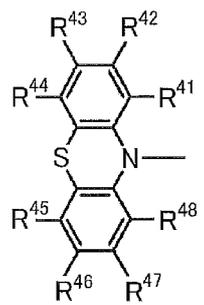
一般式 (3)



一般式 (4)

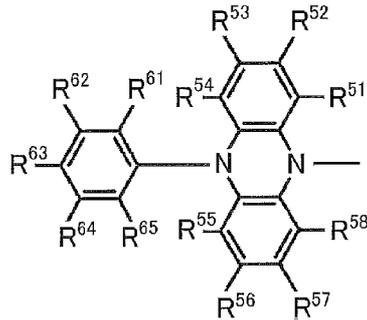


一般式 (5)

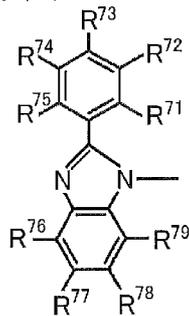


[化10-2]

一般式 (6)



一般式 (7)



[0023] 一般式 (3) ~ (7) において、 $R^{21} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。ここでいう置換基の説明と好ましい範囲については、上記の $R^{11} \sim R^{15}$ がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。一般式 (3) ~ (7) における置換基の数は特に制限されない。すべてが無置換（すなわち水素原子）である場合も好ましい。また、一般式 (3) ~ (7) のそれぞれにおいて置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。一般式 (3) ~ (7) に置換基が存在している場合、その置換基は一般式 (3) であれば $R^{22} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{29}$ のいずれかであることが好ましく、一般式 (4) であれば $R^{32} \sim R^{37}$ のいずれかであることが好ましく、一般式 (5) であれば $R^{42} \sim R^{47}$ のいずれかであることが好ましく、一般式 (6) であれば R^{52} 、 R^{53} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 $R^{62} \sim R^{64}$ のいずれかであることが好ましく、一般式 (7) であれば $R^{72} \sim R^{74}$ 、 R^{77} 、 R^{78} のいずれかであることが好ましい。

[0024] 一般式 (3) ~ (7) において、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{33}

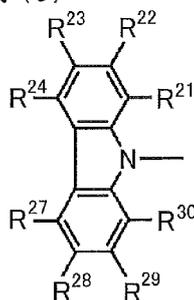
2とR³³、R³³とR³⁴、R³⁵とR³⁶、R³⁶とR³⁷、R³⁷とR³⁸、R⁴¹とR⁴²、R⁴²とR⁴³、R⁴³とR⁴⁴、R⁴⁵とR⁴⁶、R⁴⁶とR⁴⁷、R⁴⁷とR⁴⁸、R⁵¹とR⁵²、R⁵²とR⁵³、R⁵³とR⁵⁴、R⁵⁵とR⁵⁶、R⁵⁶とR⁵⁷、R⁵⁷とR⁵⁸、R⁶¹とR⁶²、R⁶²とR⁶³、R⁶³とR⁶⁴、R⁶⁴とR⁶⁵、R⁵⁴とR⁶¹、R⁵⁵とR⁶⁵、R⁷¹とR⁷²、R⁷²とR⁷³、R⁷³とR⁷⁴、R⁷⁴とR⁷⁵、R⁷⁶とR⁷⁷、R⁷⁷とR⁷⁸、R⁷⁸とR⁷⁹は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造の説明と好ましい例については、上記の一般式(2)において、R¹¹とR¹²等が互いに結合して形成する環状構造の説明と好ましい例を参照することができる。

[0025] 一般式(1)のR¹~R⁶は、すべてが一般式(3)~(7)のいずれか1つの一般式で表される基であることが好ましい。例えば、R¹~R⁶のすべてが一般式(3)で表される基である場合を好ましく例示することができる。このとき、R¹~R⁶のすべてが同一の基であっても、異なる基であってもよい。

[0026] 一般式(1)のR¹~R⁶は、下記一般式(8)で表される基であることが好ましい。一般式(8)は、一般式(3)のR²⁵とR²⁶が互いに単結合で結合した構造である。

[化11]

一般式(8)

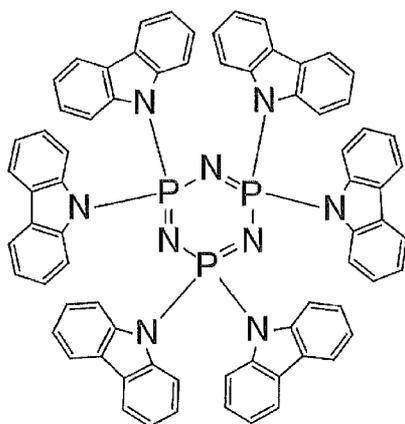


[0027] 一般式(8)において、R²¹~R²⁴、R²⁷~R³⁰は、各々独立に水素原子または置換基を表す。R²¹とR²²、R²²とR²³、R²³とR²⁴、R²⁷とR²⁸、R²⁸とR²⁹、R²⁹とR³⁰は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。置換基の説明と環状構造の説明については、一般式(2)や一般式(3)における対応する記載を参照することができる。

[0028] 一般式(1)で表される化合物の好ましい例として、下記の構造を有する

化合物を挙げることができる。下記の構造に存在する水素原子は置換基で置換されていてもよい。置換基の説明と好ましい範囲については、一般式（2）や一般式（3）における対応する記載を参照することができる。

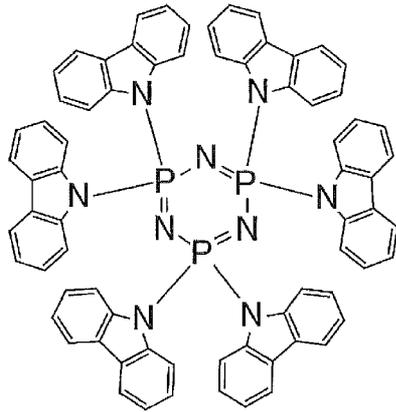
[化12]



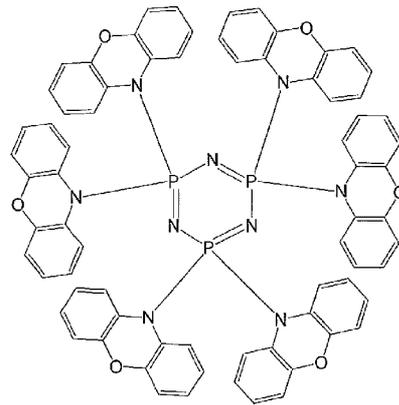
[0029] 以下において、一般式（1）で表される化合物の具体例を例示する。ただし、本発明において用いることができる一般式（1）で表される化合物はこれらの具体例によって限定的に解釈されるべきものではない。

[0030]

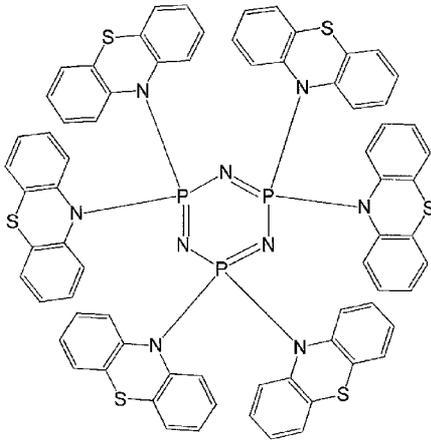
[化13-1]



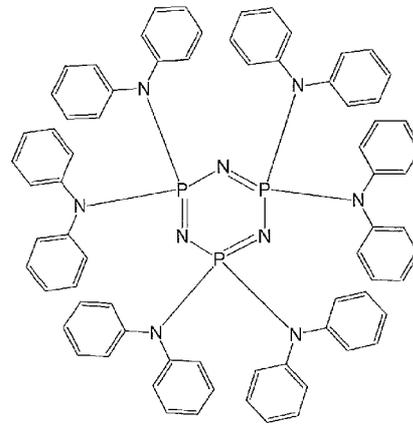
化合物 1



化合物 2

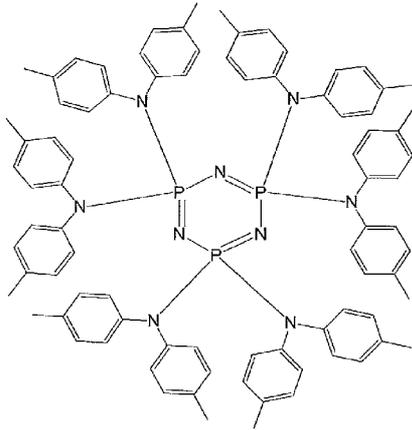


化合物 3

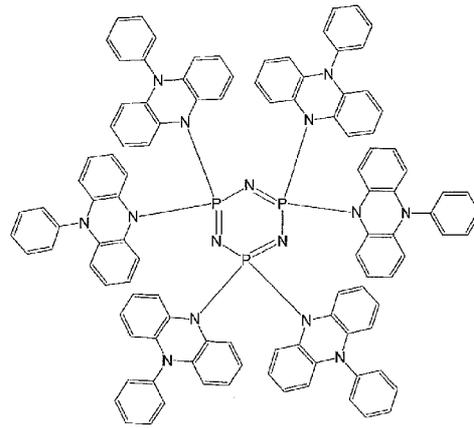


化合物 4

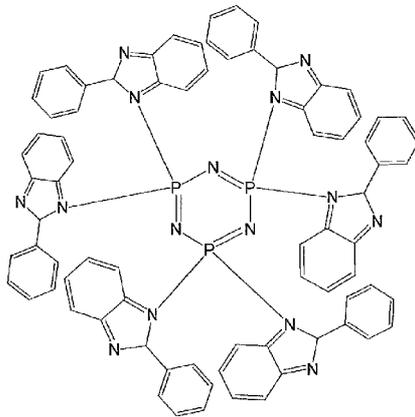
[化13-2]



化合物5



化合物6



化合物7

[0031] 一般式(1)で表される化合物の分子量は、例えば一般式(1)で表される化合物を含む有機層を蒸着法により製膜して利用することを意図する場合には、1500以下であることが好ましく、1200以下であることがより好ましく、1000以下であることがさらに好ましく、800以下であることがさらに好ましい。分子量の下限値は、一般式(1)で表される最小化合物の分子量である。

一般式(1)で表される化合物は、分子量にかかわらず塗布法で成膜してもよい。塗布法を用いれば、分子量が比較的大きな化合物であっても成膜することが可能である。

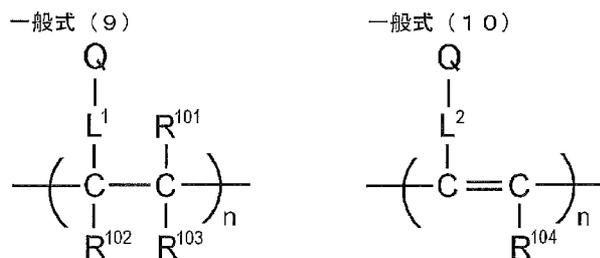
[0032] 本発明を応用して、分子内に一般式(1)で表される構造を複数個含む化

合物を、発光材料として用いることも考えられる。

例えば、一般式（１）で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式（１）の $R^1 \sim R^6$ のいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いることが考えられる。あるいは、一般式（１）で表される構造を有する化合物どうしをカップリングさせることにより、二量体や三量体を得て、それらを発光材料として用いることも考えられる。

[0033] 一般式（１）で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式（９）または（１０）で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

[化14]



[0034] 一般式（９）および（１０）において、 Q は一般式（１）で表される構造を含む基を表し、 L^1 および L^2 は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは $0 \sim 20$ であり、より好ましくは $1 \sim 15$ であり、さらに好ましくは $2 \sim 10$ である。連結基は $-X^{11}-L^{11}-$ で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、 X^{11} は酸素原子または硫黄原子を表し、酸素原子であることが好ましい。 L^{11} は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数 $1 \sim 10$ の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

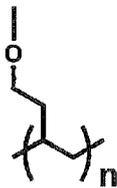
一般式 (9) および (10) において、 R^{101} 、 R^{102} 、 R^{103} および R^{104} は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数 1～6 の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数 1～6 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数 1～3 の無置換のアルキル基、炭素数 1～3 の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数 1～3 の無置換のアルキル基、炭素数 1～3 の無置換のアルコキシ基である。

L^1 および L^2 で表される連結基は、 Q を構成する一般式 (1) の構造の $R^1 \sim R^6$ のいずれか、一般式 (2) の構造の R^7 、 $R^{11} \sim R^{15}$ のいずれか、一般式 (3) の構造の $R^{21} \sim R^{30}$ のいずれか、一般式 (4) の構造の $R^{31} \sim R^{38}$ のいずれか、一般式 (5) の構造の $R^{41} \sim R^{48}$ のいずれか、一般式 (6) の構造の $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ のいずれか、一般式 (7) の構造の $R^{71} \sim R^{78}$ のいずれかに結合することができる。1つの Q に対して連結基が 2 つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

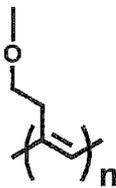
[0035] 繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式 (11) ～ (14) で表される構造を挙げることができる。

[化15]

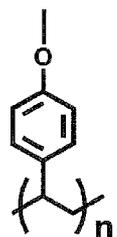
式(11)



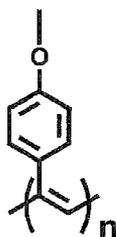
式(12)



式(13)



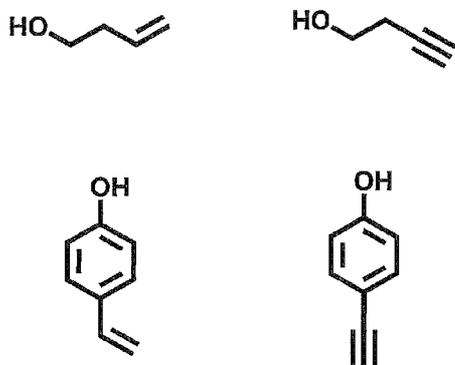
式(14)



[0036] これらの式 (11) ～ (14) を含む繰り返し単位を有する重合体は、一

一般式（１）の構造の $R^1 \sim R^6$ のいずれかにヒドロキシ基を導入しておき、それをリンカーとして下記化合物を反応させて重合性基を導入し、その重合性基を重合させることにより合成することができる。

[化16]

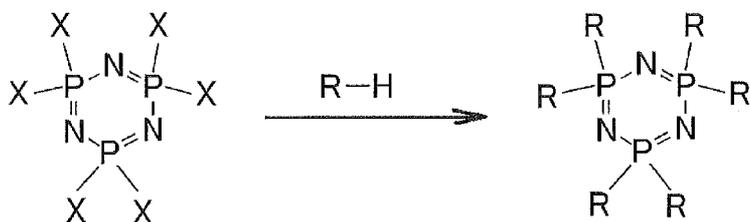


[0037] 分子内に一般式（１）で表される構造を含む重合体は、一般式（１）で表される構造を有する繰り返し単位のみからなる重合体であってもよいし、それ以外の構造を有する繰り返し単位を含む重合体であってもよい。また、重合体の中に含まれる一般式（１）で表される構造を有する繰り返し単位は、単一種であってもよいし、２種以上であってもよい。一般式（１）で表される構造を有さない繰り返し単位としては、通常の共重合に用いられるモノマーから誘導されるものを挙げるることができる。例えば、エチレン、スチレンなどのエチレン性不飽和結合を有するモノマーから誘導される繰り返し単位を挙げるることができる。

[0038] [一般式（１）で表される化合物の合成方法]

一般式（１）で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、以下のスキームにしたがって合成することが可能である。

[化17]



[0039] 上式におけるRは、一般式(1)のR¹~R⁶の定義と同じである。上のスキームでは、R¹~R⁶がすべて同一である化合物の合成法を示している。Xはハロゲン原子を表し、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を挙げることができ、塩素原子、臭素原子が好ましい。

上記のスキームにおける反応は、公知のカップリング反応を応用したものであり、公知の反応条件を適宜選択して用いることができる。例えばDMF中でNaHを用いることにより合成することが可能である。また、一般式(1)で表される化合物は、その他の公知の合成反応を組み合わせることによっても合成することができる。

[0040] [一般式(1)で表される化合物の利用]

一般式(1)で表される化合物は、電荷輸送材料として有用である。特に、ドーパントである発光材料と組み合わせて用いることを念頭においたホスト材料として有用である。一般式(1)で表される化合物と発光材料をともに含有する薄膜は、高い発光効率や輝度を実現することができる。一般式(1)で表される化合物は、特に青色発光材料と組み合わせて用いることにより、高い青色発光効率や輝度を実現しうる点で好ましい。このような青色発光材料と組み合わせて高い発光効率や輝度を実現するためには、T1レベルが高くバンドギャップが大きいことが必要とされる。一般に、T1レベルが高い材料は、熱安定性が悪いという問題がある。上記の非特許文献1 (Chem. Mater., 2011, 23 (22), 4947-4953) に記載されるシクロトリホスファゼン化合物も、T1レベルは高いものの、熱安定性は十分に満足が行く程度に高いとは言えなかった。これに対する解決策は従来示されていなかったが、本発明らが提案する一般式(1)で表される化合物は、T1レベルが高いだけでなく、熱安定性も高いという優れた特徴を兼ね備えている。一般式(1)で表される化合物の熱分解温度は、好ましくは330℃以上であり、より好ましくは350℃以上であり、さらに好ましくは380℃以上である。なお、ここでいう熱分解温度は化合物を加熱していったときに5重量%以上の重量減少が認められる温度である。

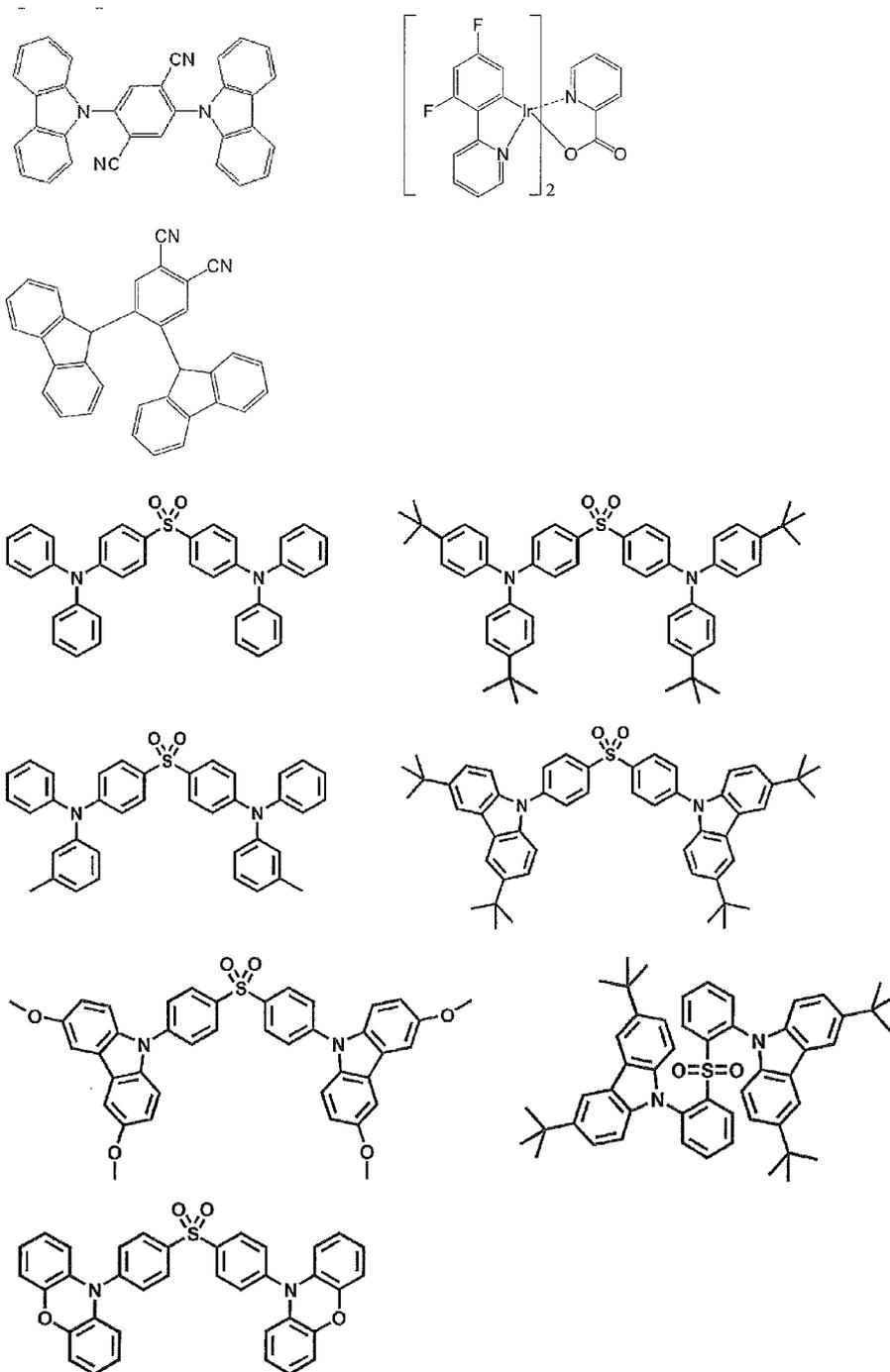
- [0041] 一般式(1)で表される化合物は熱安定性が高いため、薄膜形成や有機発光素子の製造工程に対する適用性が高いという利点がある。また、一般式(1)で表される化合物は、比較的分子量を低めにする事ができるため、昇華しやすい点でも製造適性がある。例えば、特許文献1(特開2011-525047号公報)に記載されるような、6つのカルバゾール-9-イル基で置換されたヘキサフェニルシクロトリホスファゼンは、昇華性が劣るために実際の工業分野での応用範囲が限定され、工業上の利用性が低い。
- [0042] 一般式(1)で表される化合物は上記の特徴を備えているうえに、発光材料とともに薄膜を形成したときに、高い発光効率や輝度を実現するという特徴も有する。一般式(1)で表される化合物は、HOMOのエネルギー準位が十分に深い。例えば、上記の6つのカルバゾール-9-イル基で置換されたヘキサフェニルシクロトリホスファゼンと比べても、HOMOのエネルギー準位は明らかに深い。このため、一般式(1)で表されるバンドギャップは比較的大きくなっており、青色発光材料に対するホスト材料として極めて有効である。一般式(1)で表される化合物のバンドギャップは、好ましくは3.0 eV以上であり、より好ましくは3.5 eV以上であり、さらに好ましくは3.8 eV以上である。
- [0043] 一般式(1)で表される化合物と組み合わせて用いられる発光材料は、リン光発光材料であってもよいし、蛍光発光材料であってもよいし、遅延蛍光を発光するものであってもよい。なかでも遅延蛍光を発する発光材料(遅延蛍光体)と組み合わせれば、発光効率や輝度を飛躍的に高めることが可能である。その原理を、有機エレクトロルミネッセンス素子を例にとって説明すると以下のようなになる。
- [0044] 有機エレクトロルミネッセンス素子においては、正負の両電極より発光材料にキャリアを注入し、励起状態の発光材料を生成し、発光させる。通常、キャリア注入型の有機エレクトロルミネッセンス素子の場合、生成した励起子のうち、励起一重項状態に励起されるのは25%であり、残り75%は励起三重項状態に励起される。従って、励起三重項状態からの発光であるリン

光を利用するほうが、エネルギーの利用効率が高い。しかしながら、励起三重項状態は寿命が長いため、励起状態の飽和や励起三重項状態の励起子との相互作用によるエネルギーの失活が起こり、一般にリン光の量子収率が高くないことが多い。一方、遅延蛍光材料は、項間交差等により励起三重項状態へとエネルギーが遷移した後、三重項-三重項消滅あるいは熱エネルギーの吸収により、励起一重項状態に逆項間交差され蛍光を放射する。有機エレクトロルミネッセンス素子においては、なかでも熱エネルギーの吸収による熱活性化型の遅延蛍光材料が特に有用であると考えられる。有機エレクトロルミネッセンス素子に遅延蛍光材料を利用した場合、励起一重項状態の励起子は通常通り蛍光を放射する。一方、励起三重項状態の励起子は、デバイスが発する熱を吸収して励起一重項へ項間交差され蛍光を放射する。このとき、励起一重項からの発光であるため蛍光と同波長での発光でありながら、励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差により、生じる光の寿命（発光寿命）は通常の蛍光やりん光よりも長くなるため、これらよりも遅延した蛍光として観察される。これを遅延蛍光として定義できる。このような熱活性化型の励起子移動機構を用いれば、キャリア注入後に熱エネルギーの吸収を経ることにより、通常は25%しか生成しなかった励起一重項状態の化合物の比率を25%以上に引き上げることが可能となる。100℃未満の低い温度でも強い蛍光および遅延蛍光を発する化合物を用いれば、デバイスの熱で十分に励起三重項状態から励起一重項状態への項間交差が生じて遅延蛍光を放射するため、発光効率を飛躍的に向上させることができる。

[0045] 一般式(1)で表される化合物と組み合わせて用いることができる発光材料は、青色発光材料であることが好ましいが、それ以外の色を発光する発光材料を組み合わせて用いてもよい。青色発光材料としては、従来から知られているものを用いることができる。例えば、クマリン、ペリレン、ピレン、アントラセン、p-ビス(2-フェニルエテニル)ベンゼンやこれらの誘導体を挙げることができる。一般式(1)で表される化合物と組み合わせて用いることができる具体的な発光材料として、以下の化合物を好ましく例示す

ることができる。

[化18]



[0046] [有機発光素子]

本発明の一般式(1)で表される化合物を電荷輸送材料または発光層のホスト材料として用いることにより、有機フォトルミネッセンス素子(有機PL素子)や有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)などの優れ

た有機発光素子を提供することができる。このとき、本発明の一般式（1）で表される化合物は、いわゆるアシストドーパントとして、発光層に含まれる他の発光材料の発光をアシストする機能を有するものであってもよい。すなわち、発光層に含まれる本発明の一般式（1）で表される化合物は、発光層に含まれるホスト材料の最低励起一重項エネルギー準位と発光層に含まれる他の発光材料の最低励起一重項エネルギー準位との間の最低励起一重項エネルギー準位を有するものであってもよい。

有機フォトルミネッセンス素子は、基板上に少なくとも発光層を形成した構造を有する。また、有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも陽極、陰極、および陽極と陰極の間に有機層を形成した構造を有する。有機層は、少なくとも発光層を含むものであり、発光層のみからなるものであってもよいし、発光層の他に1層以上の有機層を有するものであってもよい。そのような他の有機層として、正孔輸送層、正孔注入層、電子阻止層、正孔阻止層、電子注入層、電子輸送層、励起子阻止層などを挙げることができる。正孔輸送層は正孔注入機能を有した正孔注入輸送層でもよく、電子輸送層は電子注入機能を有した電子注入輸送層でもよい。具体的な有機エレクトロルミネッセンス素子の構造例を図1に示す。図1において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を表わす。

以下において、有機エレクトロルミネッセンス素子の各部材および各層について説明する。なお、基板と発光層の説明は有機フォトルミネッセンス素子の基板と発光層にも該当する。

[0047] （基板）

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、基板に支持されていることが好ましい。この基板については、特に制限はなく、従来から有機エレクトロルミネッセンス素子に慣用されているものであればよく、例えば、ガラス、透明プラスチック、石英、シリコンなどからなるものを用いることができる。

[0048] (陽極)

有機エレクトロルミネッセンス素子における陽極としては、仕事関数の大きい (4 eV 以上) 金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド (ITO)、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ (IDIXO) 等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は ($100\text{ }\mu\text{m}$ 以上程度)、上記電極材料の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な材料を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10~1000nm、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

[0049] (陰極)

一方、陰極としては、仕事関数の小さい (4 eV 以下) 金属 (電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが用いられる。このような電極材料の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性および酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミ

ニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により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、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω /□以下が好ましく、膜厚は通常10nm～5 μ m、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

また、陽極の説明で挙げた導電性透明材料を陰極に用いることで、透明または半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

[0050] (発光層)

発光層は、陽極および陰極のそれぞれから注入された正孔および電子が再結合することにより励起子が生成した後、発光する層であり、発光材料を単独で発光層に使用しても良いが、好ましくは発光材料とホスト材料を含む。ホスト材料としては、一般式(1)で表される化合物群から選ばれる1種または2種以上を用いることができる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子および有機フォトルミネッセンス素子が高い発光効率を発現するためには、発光材料に生成した一重項励起子および三重項励起子を、発光材料中に閉じ込めることが重要である。従って、発光層中に発光材料に加えて一般式(1)で表されるホスト材料を用いることが好ましい。ホスト材料としては、励起一重項エネルギー、励起三重項エネルギーの少なくとも何れか一方が発光材料よりも高い値を有する有機化合物を用いることができる。その結果、発光材料に生成した一重項励起子および三重項励起子を、発光材料の分子中に閉じ込めることが可能となり、その発光効率を十分に引き出すことが可能となる。もっとも、一重項励起子および三重項励起子を十分に閉じ込めることができなくても、高い発光効率を得ることが可能な場合もあるため、高い発光効率を実現しうるホスト材料であれば特に制約なく本発明に用いる

ことができる。本発明の有機発光素子または有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光は発光層に含まれる発光材料から生じる。この発光はリン光、蛍光発光および遅延蛍光発光のいずれであってもよく、これらの複数を含むものであってもよい。但し、発光の一部或いは部分的にホスト材料からの発光があってもかまわない。

ホスト材料を用いる場合、発光材料である化合物が発光層中に含有される量は0.1重量%以上であることが好ましく、1重量%以上であることがより好ましく、また、50重量%以下であることが好ましく、20重量%以下であることがより好ましく、10重量%以下であることがさらに好ましい。

発光層におけるホスト材料としては、正孔輸送能、電子輸送能を有し、かつ発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高いガラス転移温度を有する有機化合物であることが好ましい。

[0051] (注入層)

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、正孔注入層と電子注入層があり、陽極と発光層または正孔輸送層の間、および陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。注入層は必要に応じて設けることができる。

[0052] (阻止層)

阻止層は、発光層中に存在する電荷（電子もしくは正孔）および／または励起子の発光層外への拡散を阻止することができる層である。電子阻止層は、発光層および正孔輸送層の間に配置されることができ、電子が正孔輸送層の方に向かって発光層を通過することを阻止する。同様に、正孔阻止層は発光層および電子輸送層の間に配置されることができ、正孔が電子輸送層の方に向かって発光層を通過することを阻止する。阻止層はまた、励起子が発光層の外側に拡散することを阻止するために用いることができる。すなわち電子阻止層、正孔阻止層はそれぞれ励起子阻止層としての機能も兼ね備えることができる。本明細書でいう電子阻止層または励起子阻止層は、一つの層で電子阻止層および励起子阻止層の機能を有する層を含む意味で使用される。

[0053] (正孔阻止層)

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有する。正孔阻止層は電子を輸送しつつ、正孔が電子輸送層へ到達することを阻止する役割があり、これにより発光層中での電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。正孔阻止層の材料としては、後述する電子輸送層の材料を必要に応じて用いることができる。

[0054] (電子阻止層)

電子阻止層とは、広い意味では正孔を輸送する機能を有する。電子阻止層は正孔を輸送しつつ、電子が正孔輸送層へ到達することを阻止する役割があり、これにより発光層中での電子と正孔が再結合する確率を向上させることができる。

[0055] (励起子阻止層)

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は発光層に隣接して陽極側、陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。すなわち、励起子阻止層を陽極側に有する場合、正孔輸送層と発光層の間に、発光層に隣接して該層を挿入することができ、陰極側に挿入する場合、発光層と陰極との間に、発光層に隣接して該層を挿入することができる。また、陽極と、発光層の陽極側に隣接する励起子阻止層との間には、正孔注入層や電子阻止層などを有することができ、陰極と、発光層の陰極側に隣接する励起子阻止層との間には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層などを有することができる。阻止層を配置する場合、阻止層として用いる材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーの少なくともいずれか一方は、発光材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーよりも高いことが好ましい。

[0056] (正孔輸送層)

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。使用できる公知の正孔輸送材料としては例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物およびスチリルアミン化合物を用いることが好ましく、芳香族第3級アミン化合物を用いることがより好ましい。

[0057] (電子輸送層)

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる場合もある）としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。使用できる電子輸送層としては例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタンおよびアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

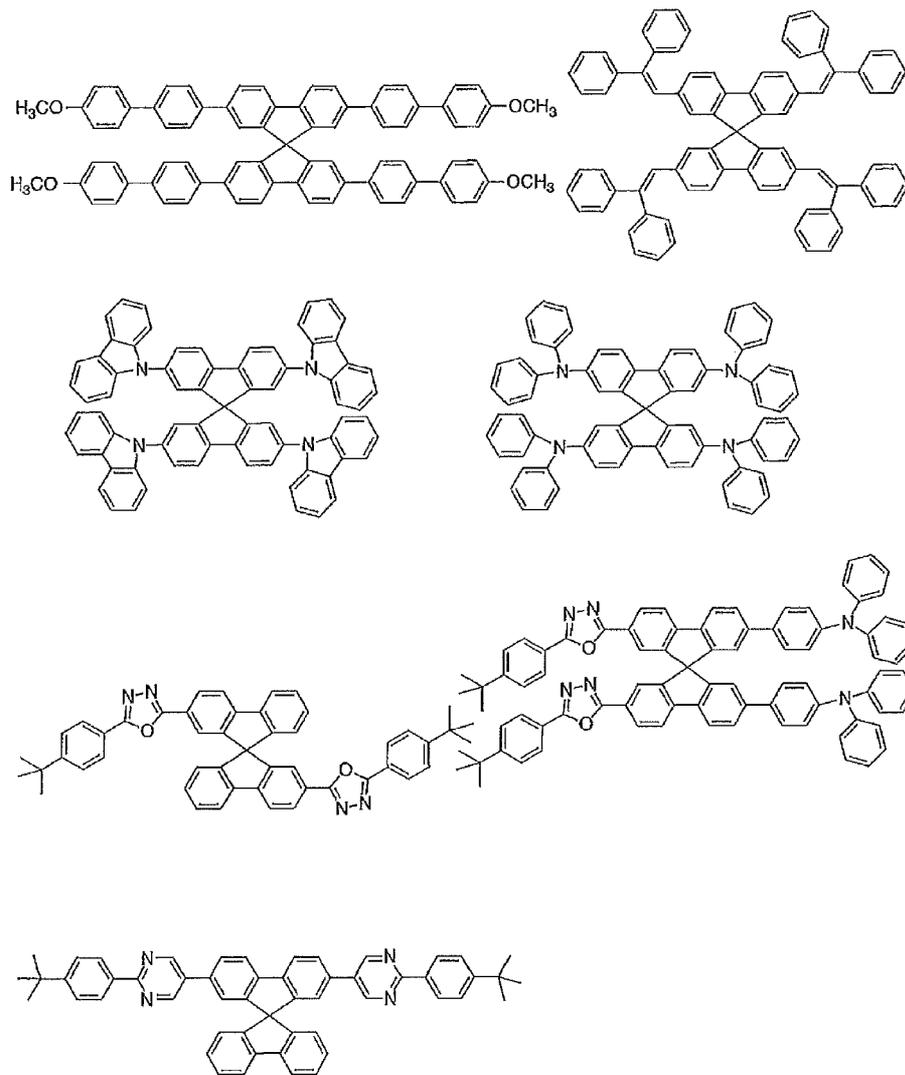
[0058] 有機エレクトロルミネッセンス素子を作製する際には、一般式（1）で表される化合物を発光層のホスト材料として用いてもよいし、他の有機層に電荷輸送材料として用いてもよい。その際、発光層に用いる一般式（1）で表される化合物と、発光層以外の層に用いる一般式（1）で表される化合物は、同一であっても異なってもよい。例えば、上記の注入層、阻止層、正孔阻止層、電子阻止層、励起子阻止層、正孔輸送層、電子輸送層などにも一般式（1）で表される化合物を用いてもよい。これらの層の製膜方法は特に限定されず、ドライプロセス、ウェットプロセスのどちらで作製してもよい。

[0059] 以下に、有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることができる好ましい材料を具体的に例示する。ただし、本発明において用いることができる材料は、以下の例示化合物によって限定的に解釈されることはない。また、特定の機能を有する材料として例示した化合物であっても、その他の機能を有する材料として転用することも可能である。なお、以下の例示化合物の構造式における R 、 $R_2 \sim R_7$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 n は3～5の整数を表す。

[0060] まず、一般式（1）で表される化合物を発光層以外の層に用いた場合に、発光層のホスト材料として用いることができる化合物の具体例を挙げる。

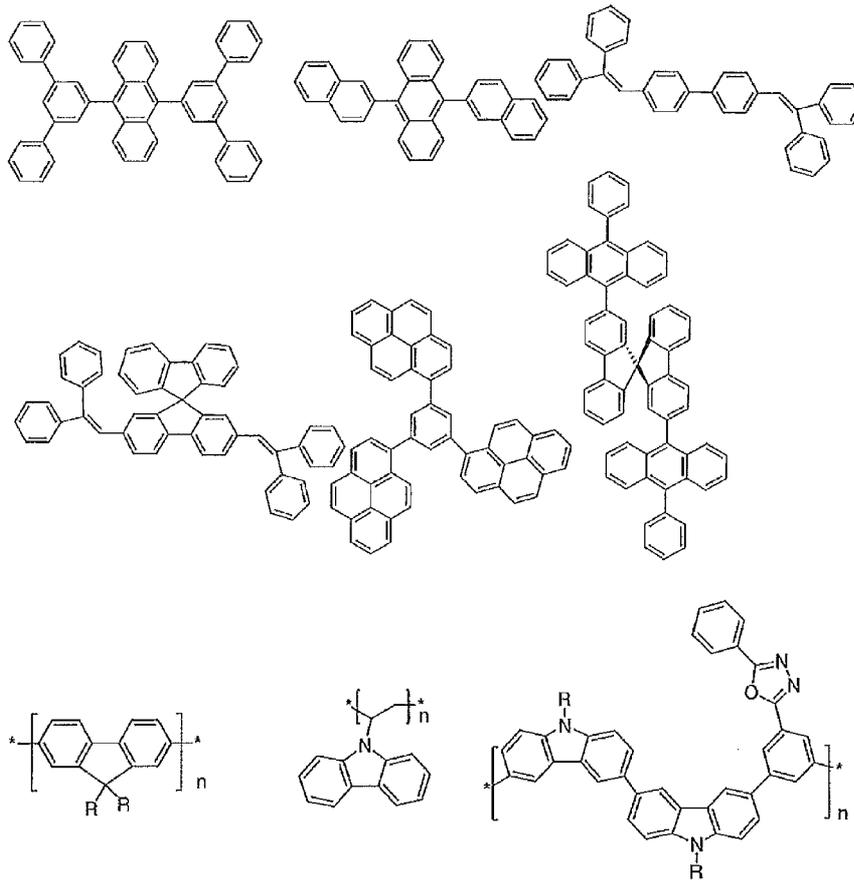
[0061]

[化19]

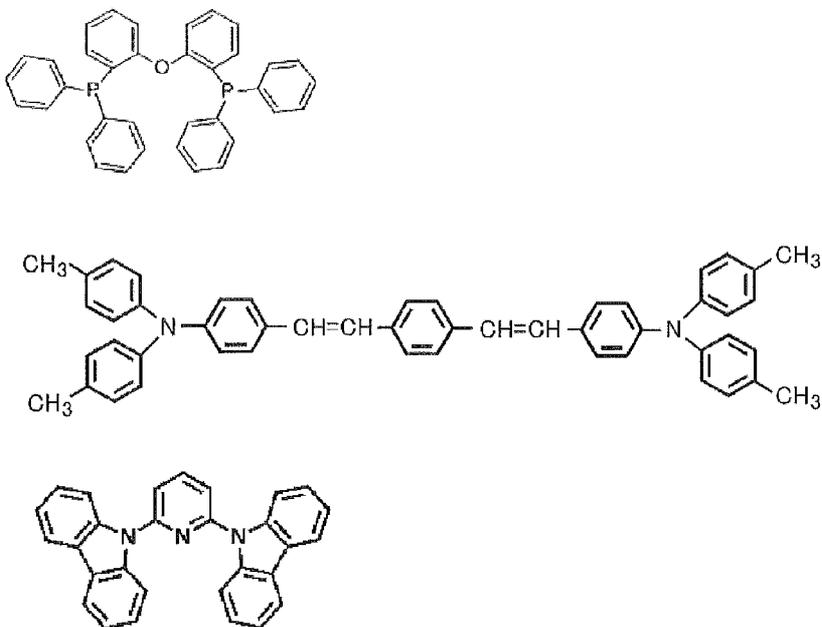


[0062]

[化22]

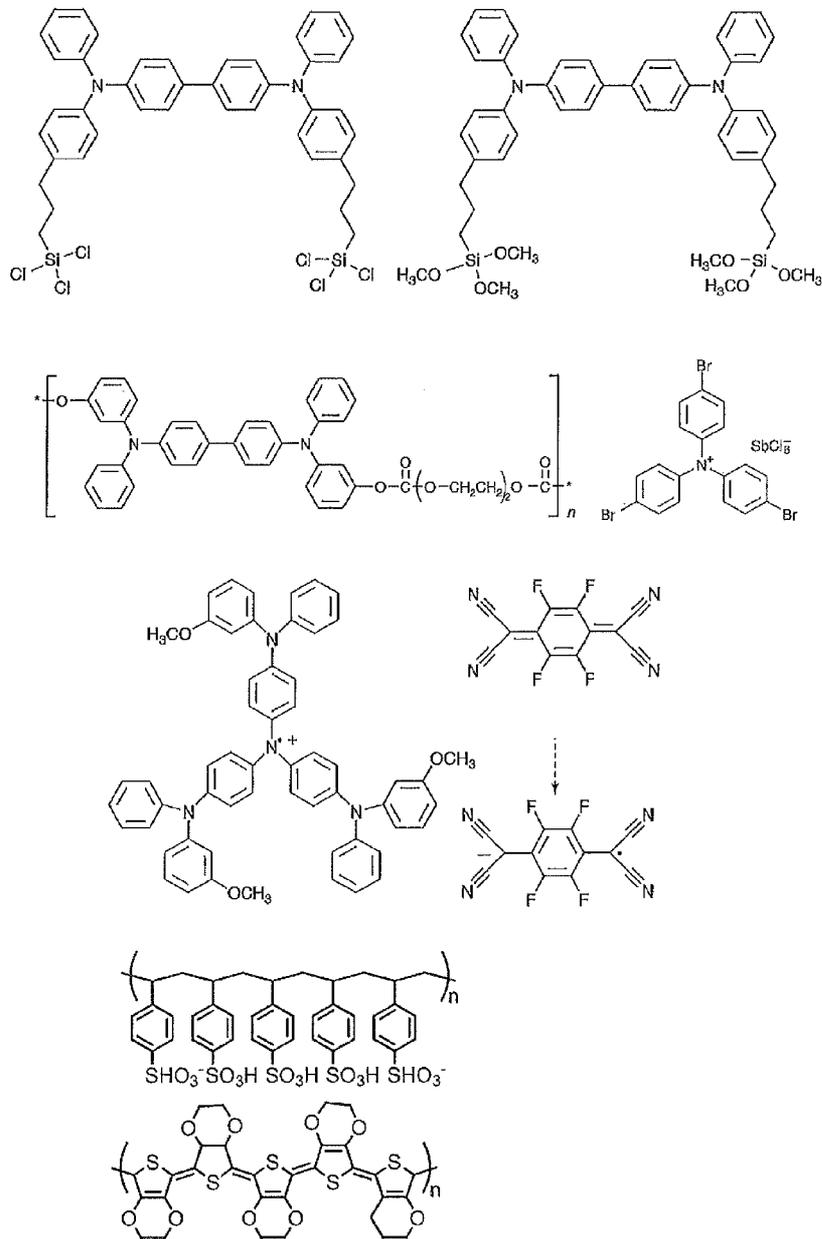


[0065] [化23]



[0066] 次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

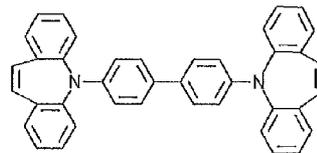
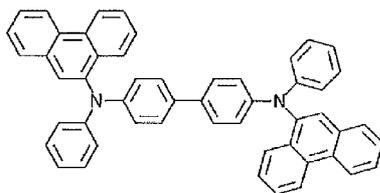
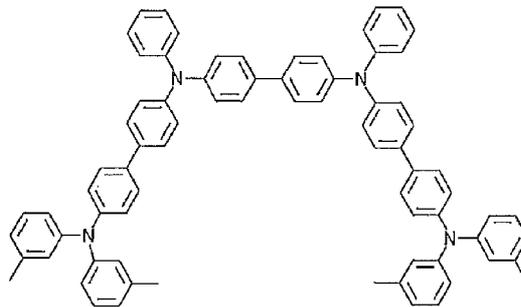
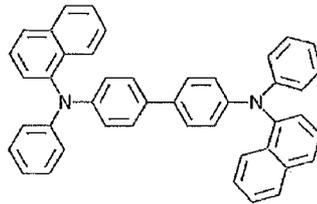
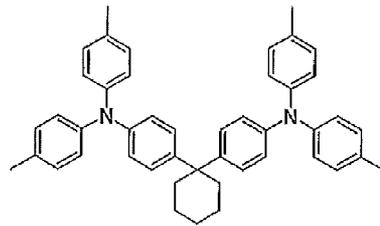
[0067] [化24]



[0068] 次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

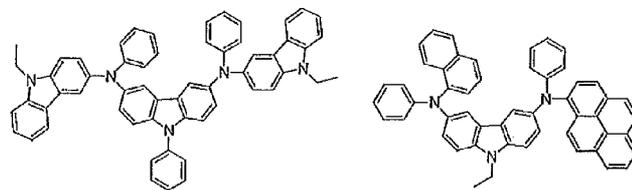
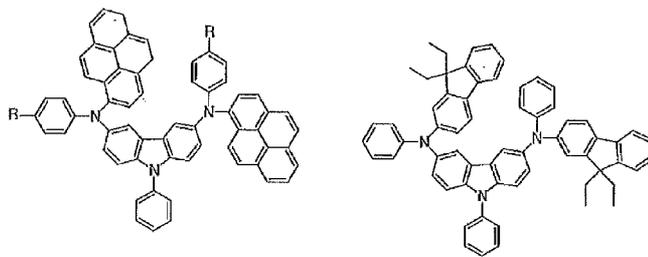
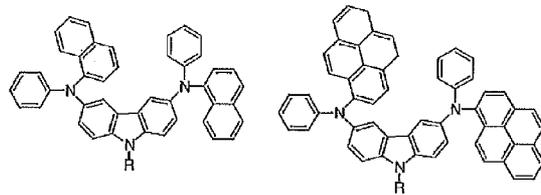
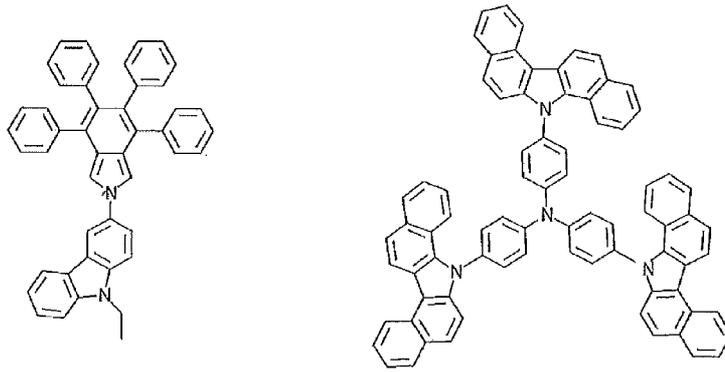
[0069]

[化25]



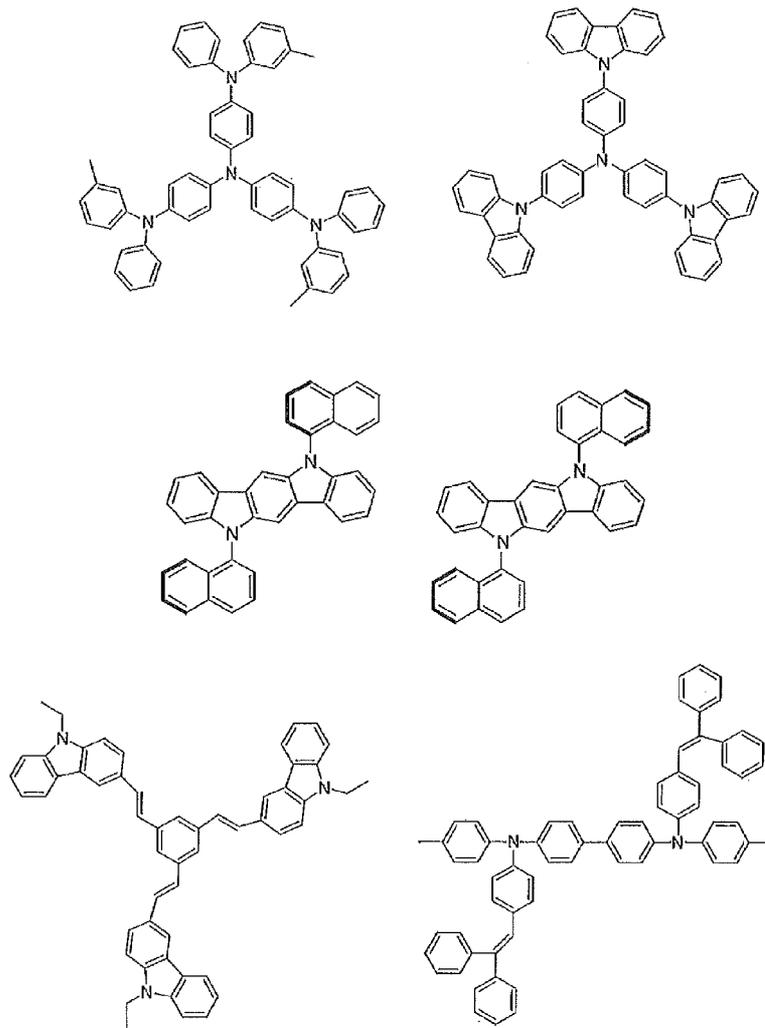
[0070]

[化26]



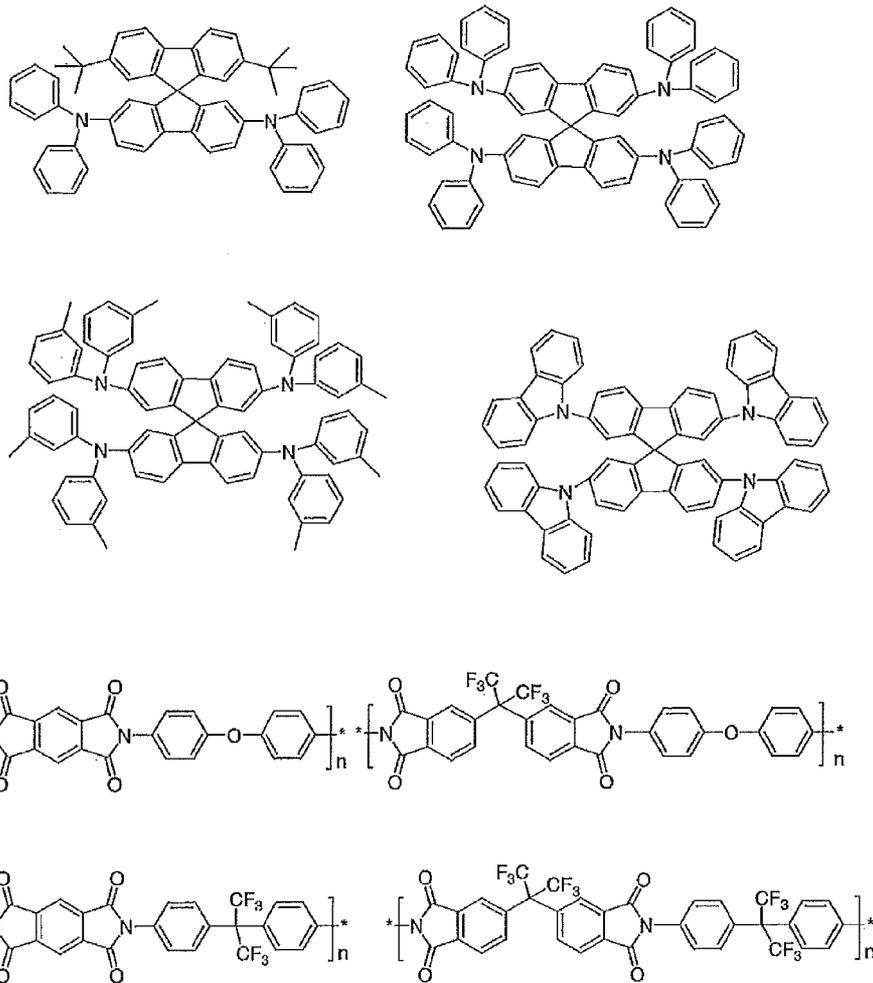
[0071]

[化27]



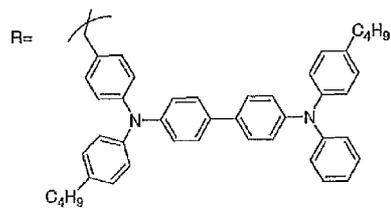
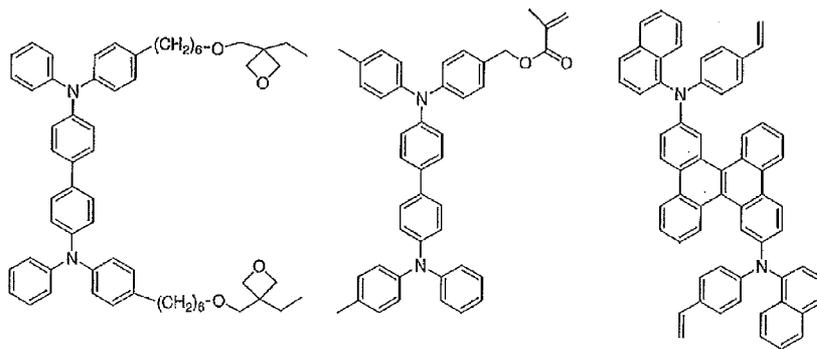
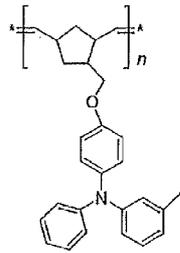
[0072]

[化28]



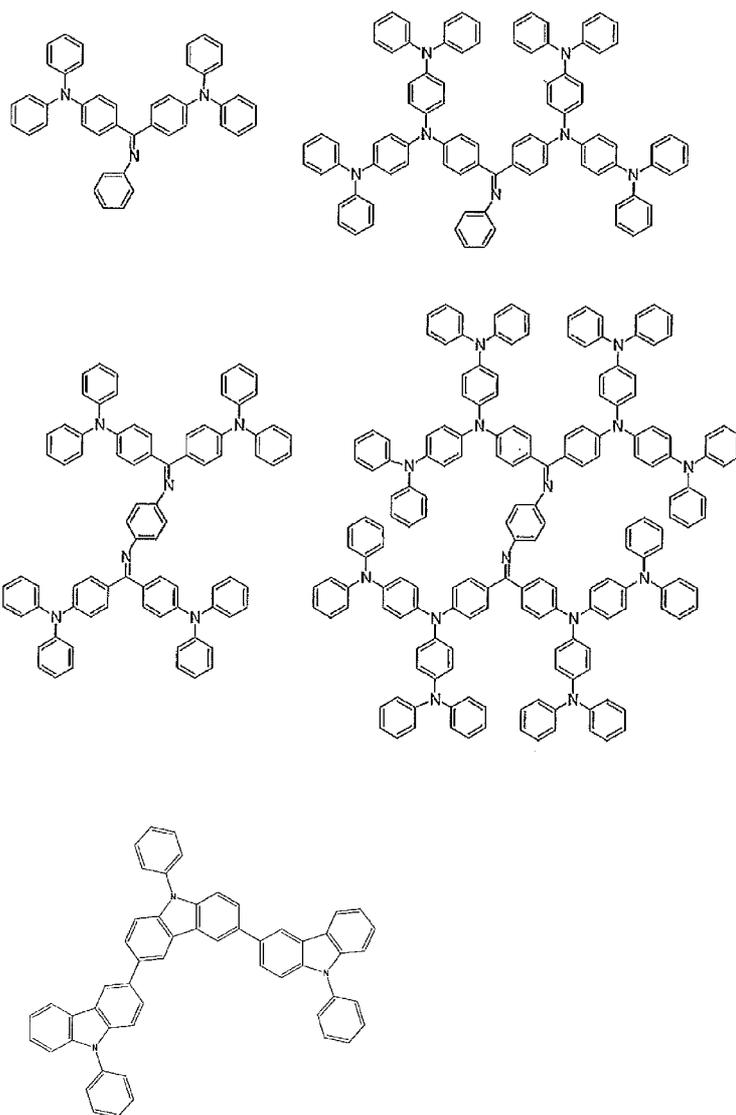
[0073]

[化29]



[0074]

[化30]

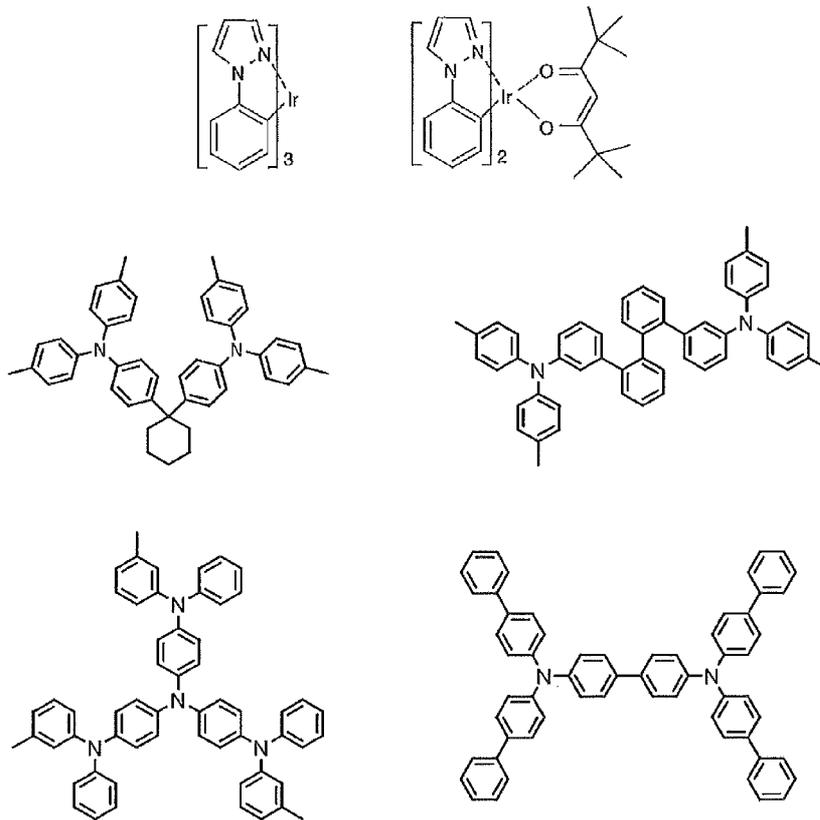


[0075] 次に、電子阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

。

[0076]

[化31]

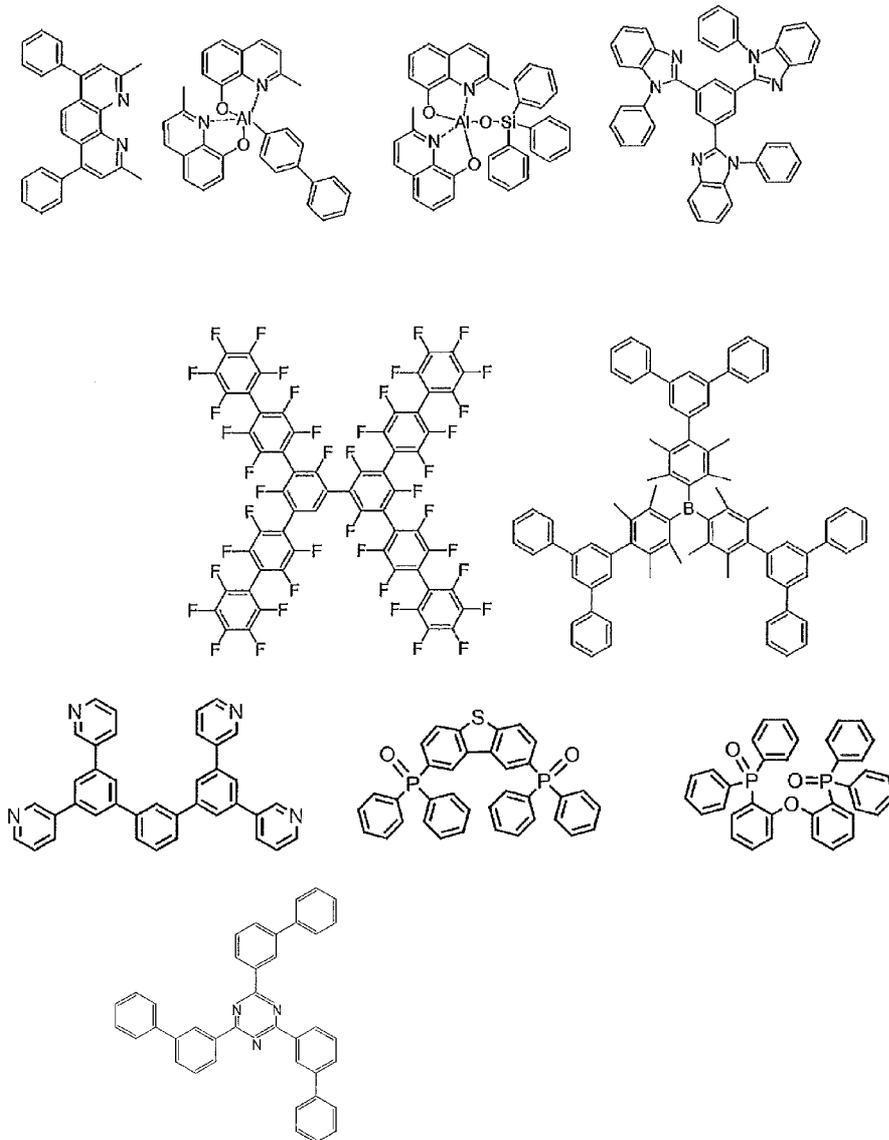


[0077] 次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

。

[0078]

[化32]

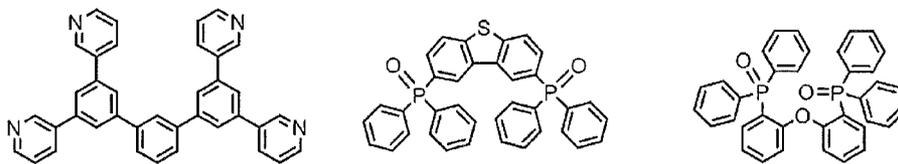
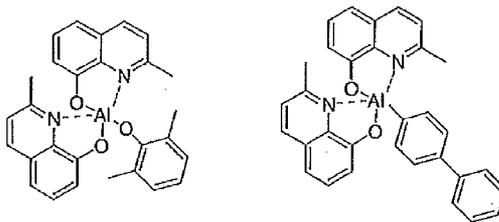
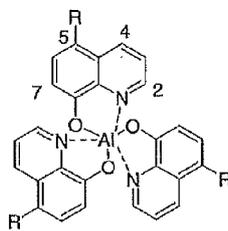
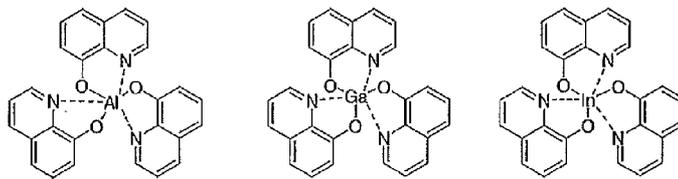
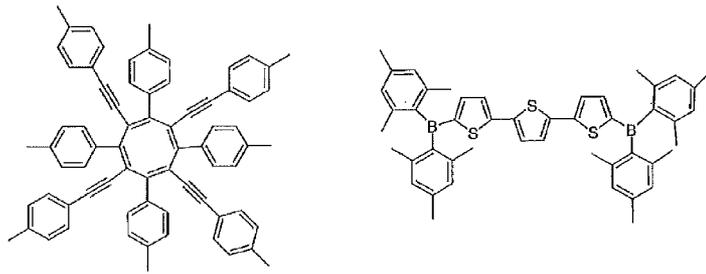


[0079] 次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

。

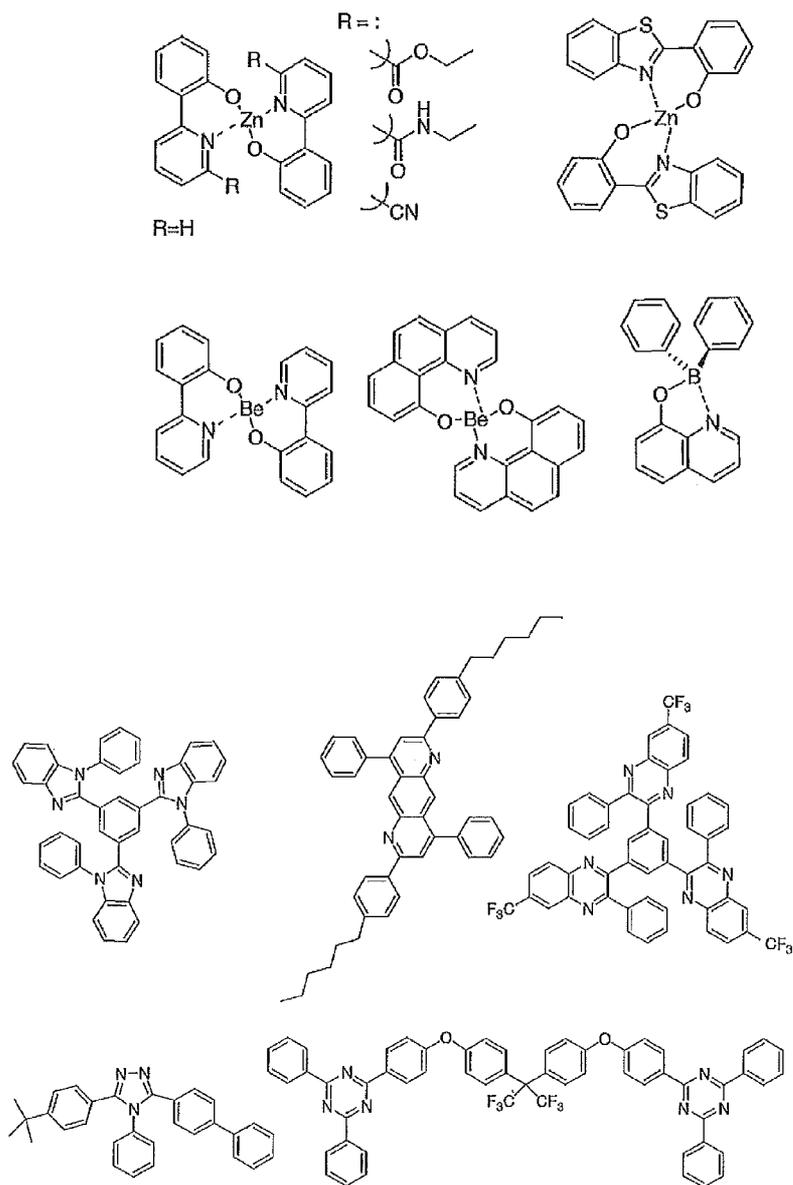
[0080]

[化33]



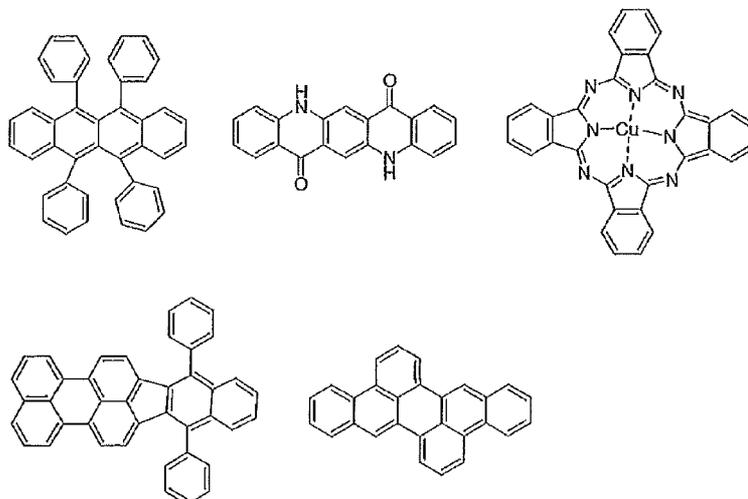
[0081]

[化34]



[0082]

[化37]



[0087] 上述の方法により作製された有機エレクトロルミネッセンス素子は、得られた素子の陽極と陰極の間に電界を印加することにより発光する。このとき、励起一重項エネルギーによる発光であれば、そのエネルギーレベルに応じた波長の光が、蛍光発光および遅延蛍光発光として確認される。また、励起三重項エネルギーによる発光であれば、そのエネルギーレベルに応じた波長が、りん光として確認される。通常の蛍光は、遅延蛍光発光よりも蛍光寿命が短いため、発光寿命は蛍光と遅延蛍光で区別できる。

一方、りん光については、本発明の化合物のような通常の有機化合物では、励起三重項エネルギーは不安定で熱等に変換され、寿命が短く直ちに失活するため、室温では殆ど観測できない。通常の有機化合物の励起三重項エネルギーを測定するためには、極低温の条件での発光を観測することにより測定可能である。

[0088] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。本発明によれば、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有させることにより、発光効率が大きく改善された有機発光素子が得られる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子などの有機発光素子は、さらに様々な用途へ応用することが可能である。例えば、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いて、有

機エレクトロルミネッセンス表示装置を製造することが可能であり、詳細については、時任静土、安達千波矢、村田英幸共著「有機ELディスプレイ」（オーム社）を参照することができる。また、特に本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、需要が大きい有機エレクトロルミネッセンス照明やバックライトに応用することもできる。

実施例

[0089] 以下に試験例および実施例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。なお、発光特性の評価は、半導体パラメータ・アナライザ（アジレント・テクノロジー社製：E5273A）、光パワーメータ測定装置（ニューポート社製：1930C）、光学分光器（オーシャン옵ティクス社製：USB2000）およびストリークカメラ（浜松ホトニクス（株）製C4334型）を適宜用いて行った。

[0090] （試験例1） 熱安定性の評価

化合物1、mCP、および非特許文献1に具体的な構造が記載されている3つのシクロトリホスファゼン化合物（後掲の化合物CP1、CP2、CP3）の各々について、徐々に温度を上昇させて5重量%の重量減少が認められる温度を確認することにより分解温度を測定した。その結果、化合物1の分解温度は474℃で極めて高かったのに対して、mCPは55℃であった。また、非特許文献1のシクロトリホスファゼン化合物の分解温度は280～330℃であることが報告されている。以上より、本発明の化合物1の熱安定性が極めて高いことが確認された。

[0091] （試験例2） T1レベルの測定

化合物1の塩化メチレン溶液（濃度 10^{-4} mol/L）を77°Kに冷却してPLスペクトルを測定した。PLスペクトルの最も短波側のピーク値のエネルギーを算出し、それを化合物のT1レベル（最低励起三重項エネルギー準位）とした。化合物1のT1レベルは3.00eVであった（HOMO：

6. 48 eV、LUMO : 2. 52 eV)。一方、Appl. Phys. Lett., 2003, 82, 2422にてmCPのT1レベルは2. 9 eVであることが報告されている(HOMO : 5. 9 eV、LUMO : 2. 4 eV)。

[0092] 1. 有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価 (薄膜)
(実施例1)

シリコン基板上に真空蒸着法にて、真空度 $5. 0 \times 10^{-4}$ Paの条件にて化合物1と2 Cz CNとを異なる蒸着源から蒸着し、2 Cz CNの濃度が3. 0重量%である薄膜を0. 3 nm/秒にて100 nmの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。作製した有機フォトルミネッセンス素子について、紫外励起光による発光スペクトルを測定した結果を図2に示す。フォトルミネッセンス量子効率は大気下で66. 0%、窒素雰囲気下で84. 8%であった。

[0093] 2. 有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価
(実施例2)

膜厚100 nmのインジウム・スズ酸化物(ITO)からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 $5. 0 \times 10^{-4}$ Paで積層した。まず、ITO上に α -NPDを35 nmの厚さに形成し、その上にmCPを10 nmの厚さに形成した。次に、化合物1と2 Cz CNを異なる蒸着源から共蒸着し、20 nmの厚さの層を形成して発光層とした。この時、2 Cz CNの濃度は3. 0重量%とした。次に、PPTを40 nmの厚さに形成し、さらにLiFを0. 8 nm真空蒸着し、次いでアルミニウム(Al)を80 nmの厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

作製した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図3に示し、電流密度-電圧-輝度特性を図4に示し、電流密度-外部量子効率特性を図5に示す。最大輝度は 18805 cd/m^2 、外部量子効率は14. 9%で極めて高かった。仮に発光量子効率が100%の蛍光材料を用いてバランスの取れた理想的な有機エレクトロルミネッセンス素子を試作したとすると

、光取り出し効率が20～30%であれば、蛍光発光の外部量子効率 η_{ext} は5～7.5%となる。この値が一般に、蛍光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。化合物1を用いた本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、理論限界値を超える高い外部量子効率を実現している点で極めて優れている。

[0094] (比較例1)

化合物1のかわりにmCPを用いて実施例2と同様の方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を作製し、同様に特性を評価した。発光スペクトルを図3に示し、電流密度-電圧-輝度特性を図4に示し、電流密度-外部量子効率特性を図5に示す。最大輝度は16524 cd/m²、外部量子効率は11.8%であった。

mCPよりも化合物1を用いた方が優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できることが確認された。

[0095] (比較例2)

化合物1のかわりにtBuzPOを用いて実施例2と同様の方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を作製し、同様に特性を評価した。電流密度-電圧-輝度特性を図6に示し、電流密度-外部量子効率特性を図7に示す。最大輝度は6436 cd/m²、外部量子効率は12.8%であった。

tBuzPOよりも化合物1を用いた方が優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できることが確認された。

[0096] (実施例3)

膜厚100nmのインジウム・スズ酸化物(ITO)からなる陽極が形成されたガラス基板に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 5.0×10^{-4} Paで積層した。まず、ITO上に α -NPDを35nmの厚さに形成し、その上にmCPを10nmの厚さに形成した。次に、化合物1と4CzIPNを異なる蒸着源から共蒸着し、20nmの厚さの層を形成して発光層とした。この時、4CzIPNの濃度は3.0重量%とした。次に、PPTを40nmの厚さに形成し、さらにLiFを0.8nm真空蒸着し、次いでアルミニ

ウム (A1) を 80 nm の厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

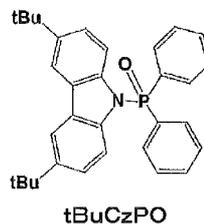
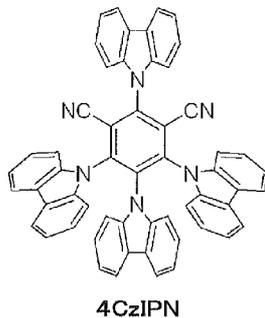
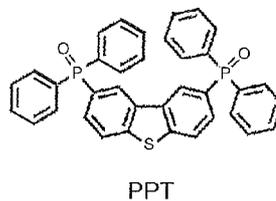
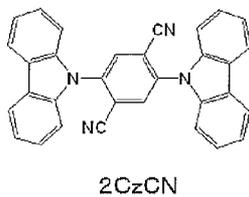
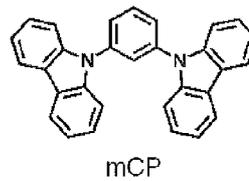
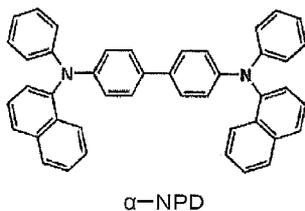
作製した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 8 に示し、電流密度－電圧－輝度特性を図 9 に示し、電流密度－外部量子効率特性を図 10 に示す。最大輝度は 54141 cd/m^2 、外部量子効率は 17.8% で極めて高かった。

[0097] (比較例 3)

化合物 1 のかわりに mCP を用いて実施例 3 と同様の方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を作製し、同様に特性を評価した。発光スペクトルを図 8 に示し、電流密度－電圧－輝度特性を図 9 に示し、電流密度－外部量子効率特性を図 10 に示す。最大輝度は 49176 cd/m^2 、外部量子効率は 17.7% であった。

mCP よりも化合物 1 を用いた方が優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できることが確認された。

[0098] [化38]



産業上の利用可能性

[0099] 一般式（1）で表される化合物は、電荷輸送材料として有用である。また、発光材料をドーパントとして用いる際のホスト材料としても有用である。このため、一般式（1）で表される化合物を用いた有機発光素子は、高い発光効率や輝度を実現しうる。したがって、本発明は産業上の利用可能性が高い。

符号の説明

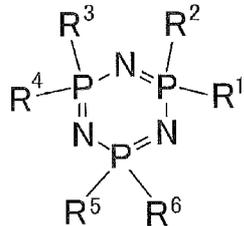
- [0100]
- 1 基板
 - 2 陽極
 - 3 正孔注入層
 - 4 正孔輸送層
 - 5 発光層
 - 6 電子輸送層
 - 7 陰極

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（1）で表される化合物からなる電荷輸送材料。

[化1]

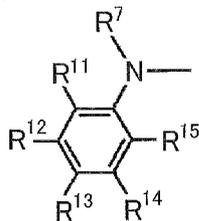
一般式（1）



[一般式（1）において、 $R^1 \sim R^6$ は各々独立に下記一般式（2）で表される基である。

[化2]

一般式（2）



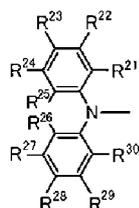
[一般式（2）において、 R^7 は置換もしくは無置換のアリール基、または置換もしくは無置換のアラルキル基を表す。 $R^{11} \sim R^{15}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^7 と R^{11} 、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

[請求項2] 一般式（1）の $R^1 \sim R^6$ がすべて同一であることを特徴とする請求項1に記載の電荷輸送材料。

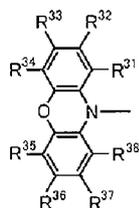
[請求項3] 一般式（1）の $R^1 \sim R^6$ が下記一般式（3）～（7）のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項1または2に記載の電荷輸送材料。

[化3]

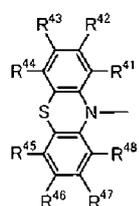
一般式 (3)



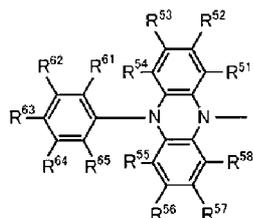
一般式 (4)



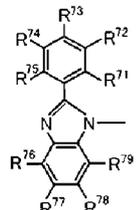
一般式 (5)



一般式 (6)



一般式 (7)



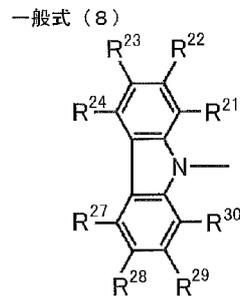
[一般式 (3) ~ (7) において、 $R^{21} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。
 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、
 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、
 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44}

、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{64} と R^{65} 、 R^{54} と R^{61} 、 R^{55} と R^{65} 、 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

[請求項4] 一般式(1)の R^1 ~ R^6 が前記一般式(3)で表される基であることを特徴とする請求項3に記載の電荷輸送材料。

[請求項5] 一般式(1)の R^1 ~ R^6 が下記一般式(8)で表される基であることを特徴とする請求項3または4に記載の電荷輸送材料。

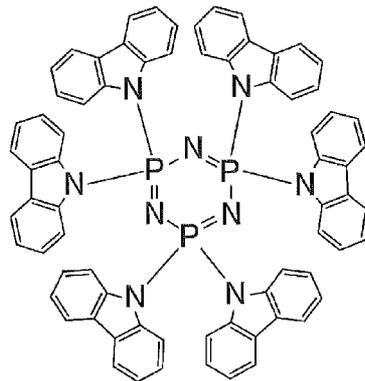
[化4]



[一般式(8)において、 R^{21} ~ R^{24} 、 R^{27} ~ R^{30} は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

[請求項6] 下記の構造を有する化合物からなることを特徴とする請求項5に記載の電荷輸送材料。

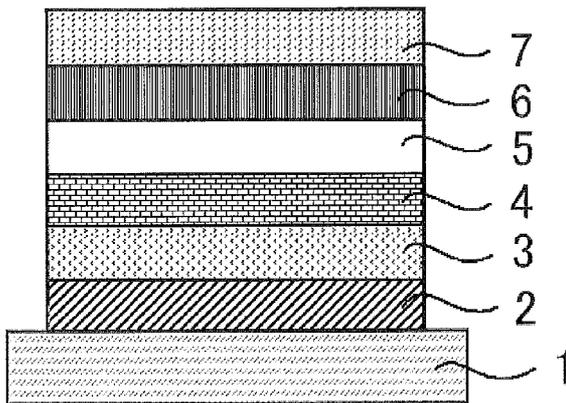
[化5]



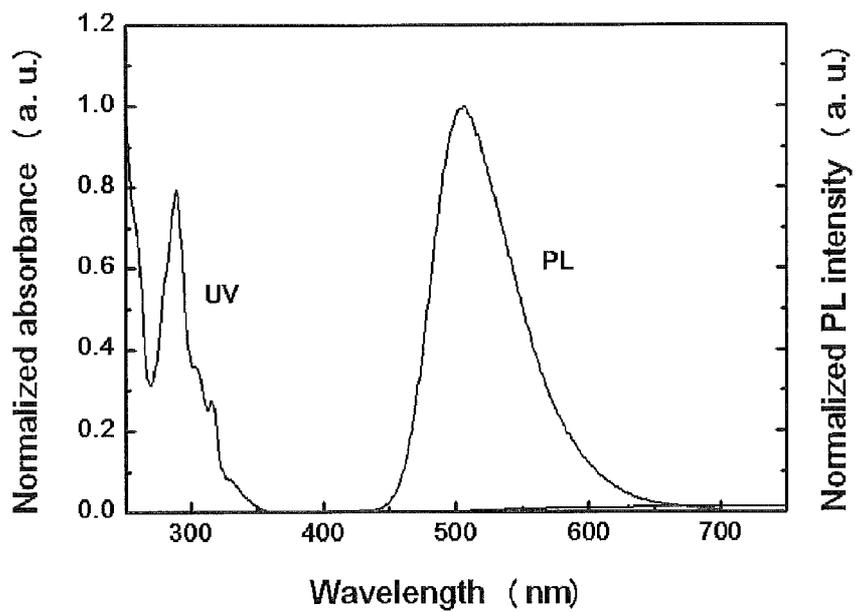
[上の構造において、水素原子は置換基で置換されていてもよい。]

- [請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の電荷輸送材料からなることを特徴とするホスト材料。
- [請求項8] 青色発光材料用であることを特徴とする請求項7に記載のホスト材料。
- [請求項9] 請求項7に記載のホスト材料と発光材料を含むことを特徴とする薄膜。
- [請求項10] 前記発光材料が青色発光材料であることを特徴とする請求項9に記載の薄膜。
- [請求項11] 請求項1～6のいずれか1項に記載の電荷輸送材料を用いたことを特徴とする有機発光素子。
- [請求項12] 前記電荷輸送材料をホスト材料として発光層に用いたことを特徴とする請求項11に記載の有機発光素子。
- [請求項13] リン光を放射することを特徴とする請求項11または12に記載の有機発光素子。
- [請求項14] 遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項11または12に記載の有機発光素子。
- [請求項15] 有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする請求項11～14のいずれか1項に記載の有機発光素子。

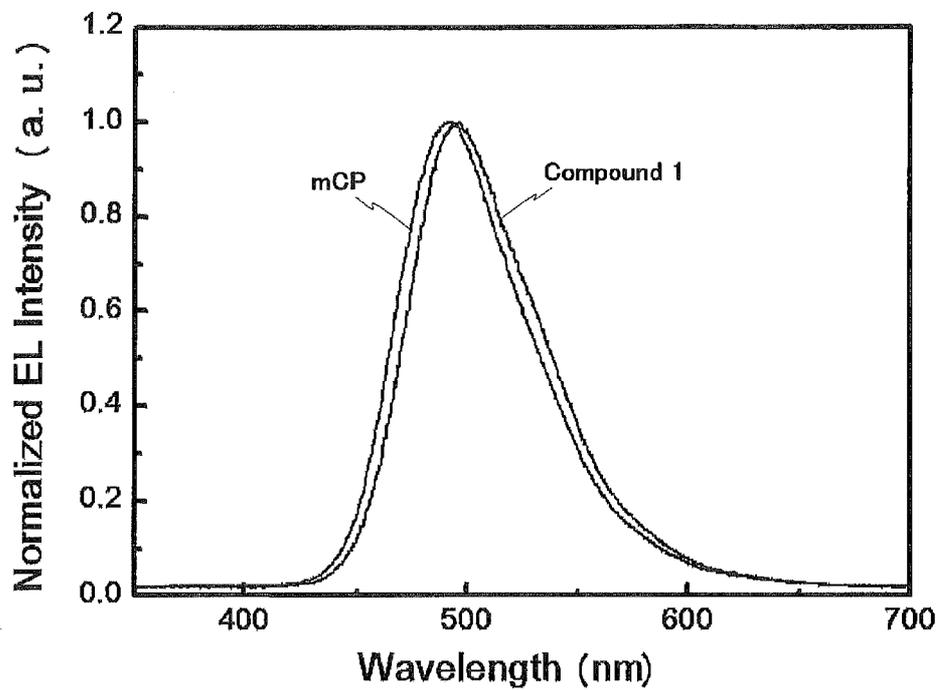
[Fig. 1]



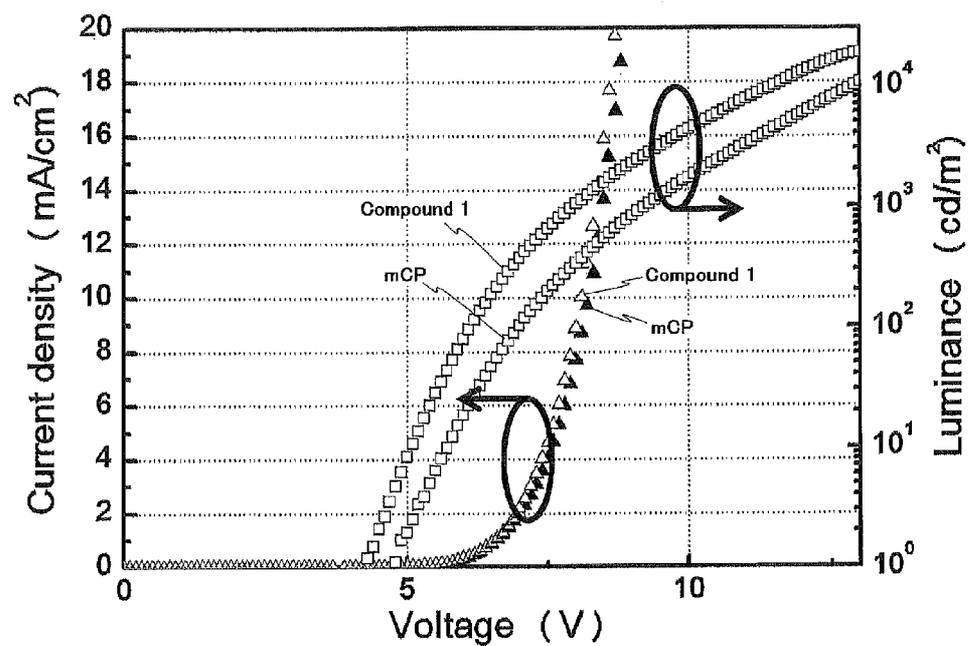
[Fig. 2]



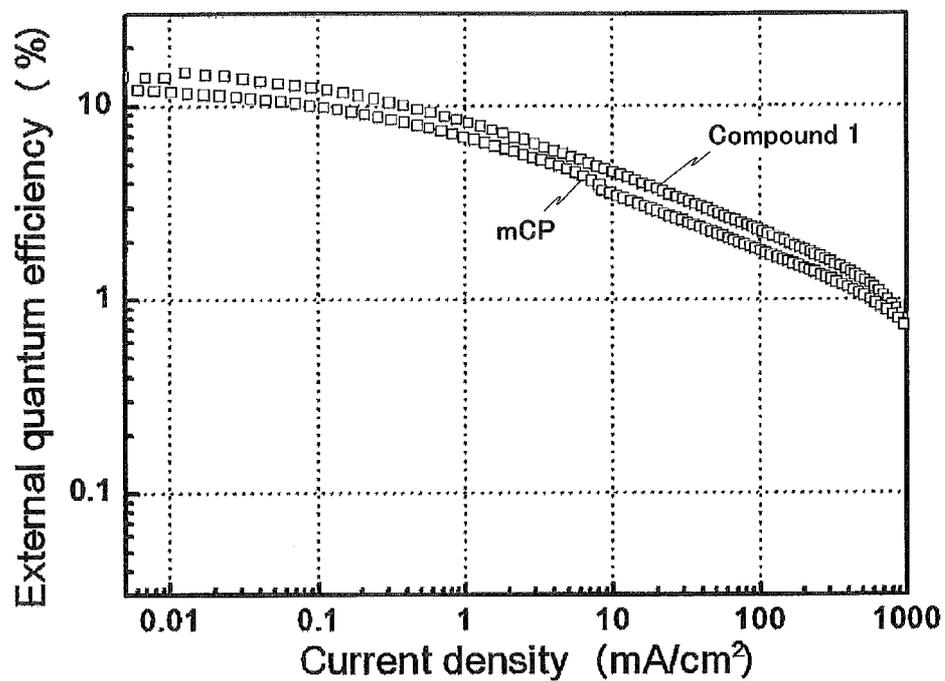
[Fig. 3]



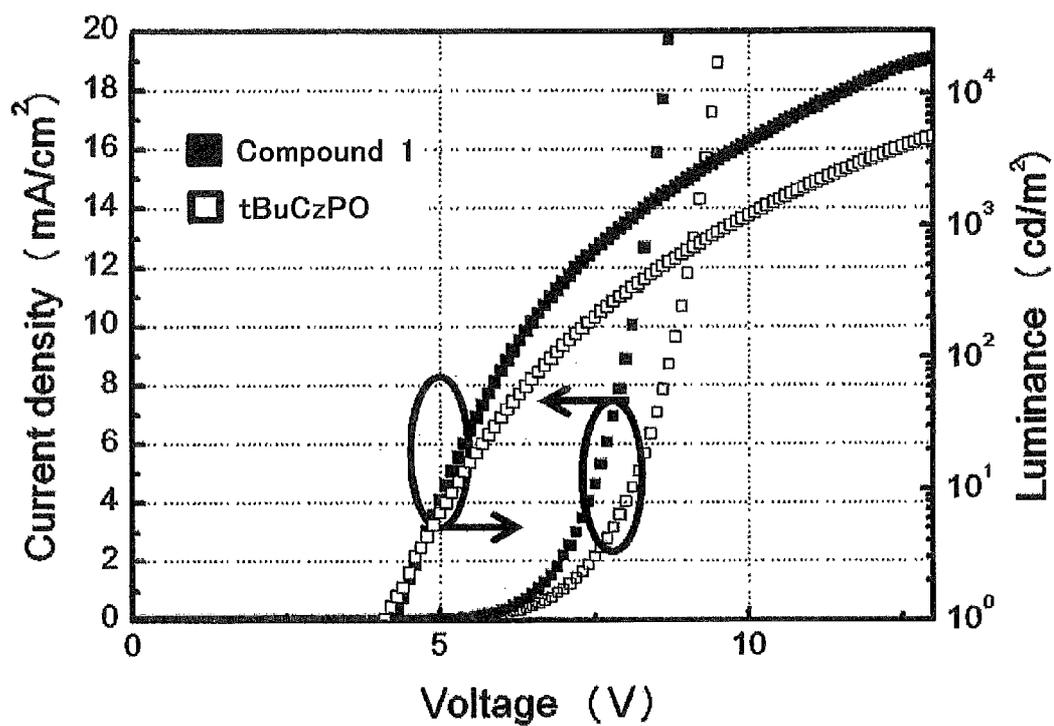
[Fig. 4]



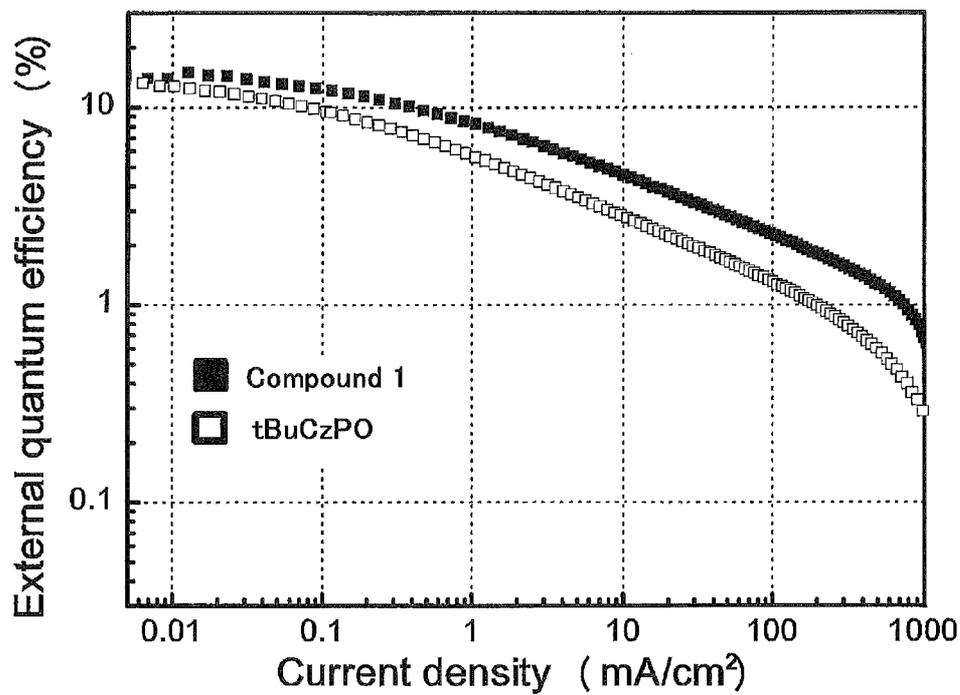
[Fig. 5]



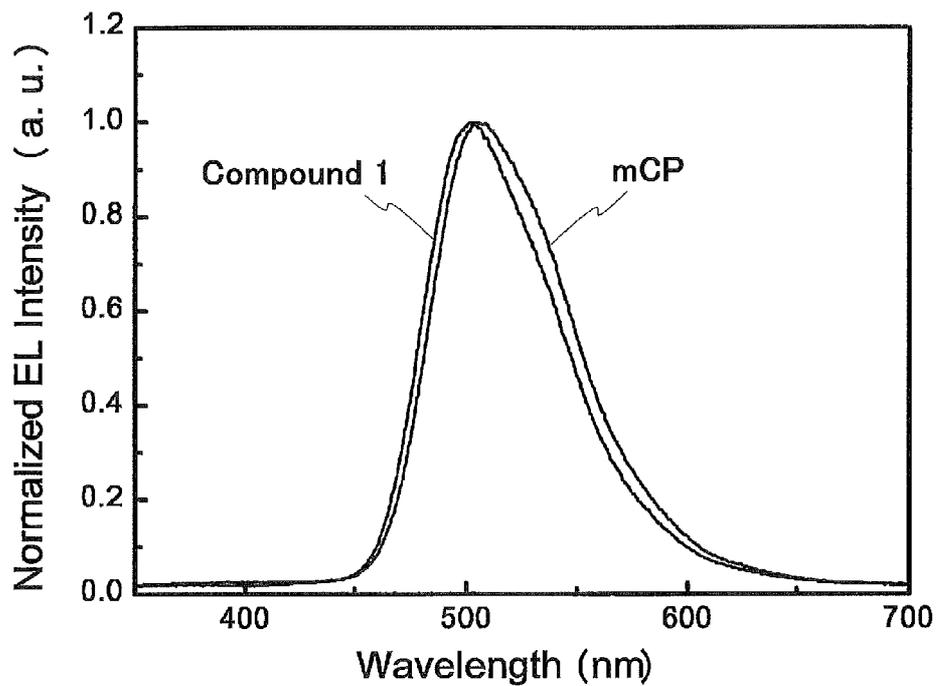
[圖6]



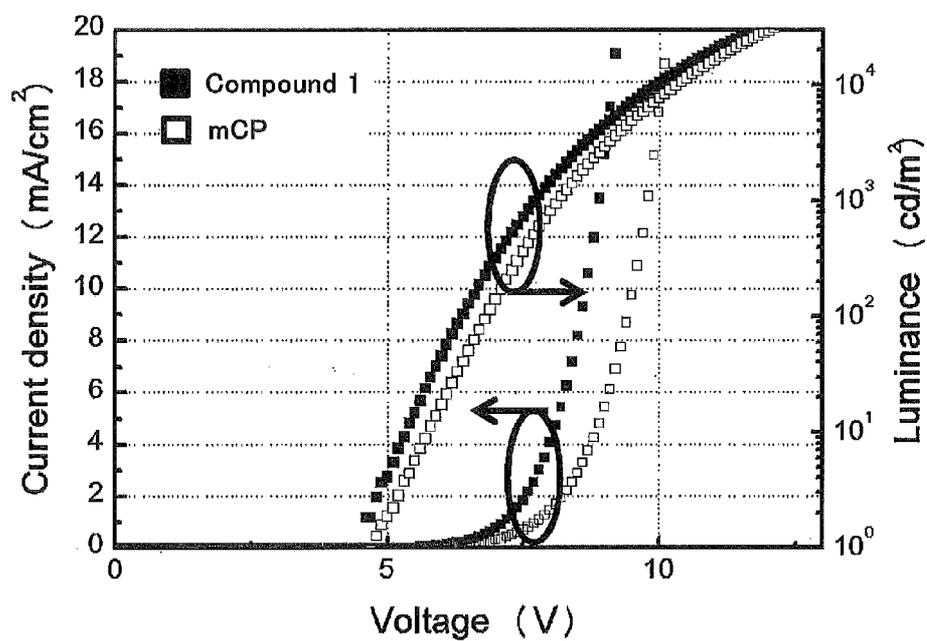
[圖7]



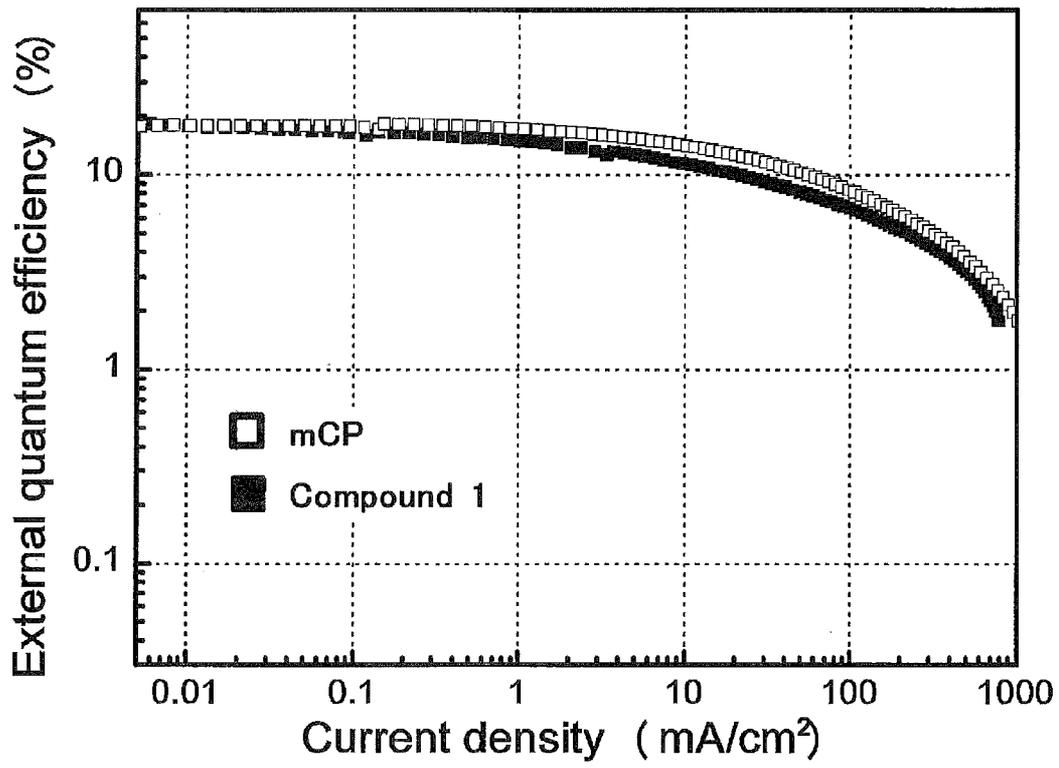
[8]



[9]



[圖10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/055427

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

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

B. FIELDS SEARCHED

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

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-278549 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 12 October 2006 (12.10.2006), claims 1 to 5 (Family: none)	1-15
A	JP 8-283416 A (Kiyotaka SHIGEHARA), 29 October 1996 (29.10.1996), claims 1 to 4 (Family: none)	1-15
A	JP 6-200244 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 19 July 1994 (19.07.1994), claims 1 to 7; paragraphs [0022] to [0026] & JP 2000-30867 A & US 5652067 A	1-15

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

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

Date of the actual completion of the international search 19 May, 2014 (19.05.14)	Date of mailing of the international search report 27 May, 2014 (27.05.14)
--	---

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/055427

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 5-310949 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 22 November 1993 (22.11.1993), claims 1 to 4 (Family: none)	1-15
A	H. J. BOLINK et al., "EFFICIENT BLUE EMITTING ORGANIC LIGHT EMITTING DIODES BASED ON FLUORESCENT SOLUTION PROCESSABLE CYCLIC PHOSPHAZENES", ORGANIC ELECTRONICS, 2007.10.25, V9 N2, P155-163	1-15
A	H. J. BOLINK et al., "SOLUTION PROCESSABLE PHOSPHORESCENT DENDRIMERS BASED ON CYCLIC PHOSPHAZENES FOR USE IN ORGANIC LIGHT EMITTING DIODES (OLEDs)", CHEMICAL COMMUNICATIONS, 2007. 12.04, P618-620	1-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i										
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06										
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table style="width:100%; border: none;"> <tr> <td style="border: none;">日本国実用新案公報</td> <td style="border: none;">1922-1996年</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">日本国公開実用新案公報</td> <td style="border: none;">1971-2014年</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">日本国実用新案登録公報</td> <td style="border: none;">1996-2014年</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">日本国登録実用新案公報</td> <td style="border: none;">1994-2014年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2014年	日本国実用新案登録公報	1996-2014年	日本国登録実用新案公報	1994-2014年
日本国実用新案公報	1922-1996年									
日本国公開実用新案公報	1971-2014年									
日本国実用新案登録公報	1996-2014年									
日本国登録実用新案公報	1994-2014年									
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAplus/REGISTRY (STN)										
C. 関連すると認められる文献										
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号								
A	JP 2006-278549 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 10. 12, 【請求項 1】 - 【請求項 5】 (ファミリーなし)	1-15								
A	JP 8-283416 A (重原淳孝) 1996. 10. 29, 【請求項 1】 - 【請求項 4】 (ファミリーなし)	1-15								
A	JP 6-200244 A (凸版印刷株式会社) 1994. 07. 19, 【請求項 1】 - 【請求項 7】 , 段落 【0022】 - 【0026】 & JP 2000-30867 A & US 5652067 A	1-15								
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。										
<table style="width:100%; border: none;"> <tr> <td style="width:50%; border: none;"> * 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 </td> <td style="width:50%; border: none;"> の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献 </td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献						
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献									
国際調査を完了した日 19. 05. 2014	国際調査報告の発送日 27. 05. 2014									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 濱野 隆 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 9108								

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 5-310949 A (凸版印刷株式会社) 1993. 11. 22, 【請求項 1】 - 【請求項 4】 (ファミリーなし)	1-15
A	H. J. BOLINK et al., “EFFICIENT BLUE EMITTING ORGANIC LIGHT EMITTING DIODES BASED ON FLUORESCENT SOLUTION PROCESSABLE CYCLIC PHOSPHAZENES” , ORGANIC ELECTRONICS, 2007. 10. 25, V9 N2, P155-163	1-15
A	H. J. BOLINK et al., “SOLUTION PROCESSABLE PHOSPHORESCENT DENDRIMERS BASED ON CYCLIC PHOSPHAZENES FOR USE IN ORGANIC LIGHT EMITTING DIODES (OLEDs)” , CHEMICAL COMMUNICATIONS, 2007. 12. 04, P618-620	1-15