(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
2017 年 4 月 27 日(27.04.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/069210 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01)　*C09K 11/06* (2006.01)
C07D 307/91 (2006.01)　*C07C 211/61* (2006.01)
C07D 403/14 (2006.01)　*C07C 255/35* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/081152

(22) 国際出願日: 2016 年 10 月 20 日(20.10.2016)

(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 2015-206432 2015 年 10 月 20 日(20.10.2015) JP

(71) 出願人: 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 池田　剛(IKEDA, Takeshi); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人平和国際特許事務所(HEIWA INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目２６番地　芝信神田ビル３階 Tokyo (JP).

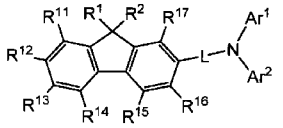
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー

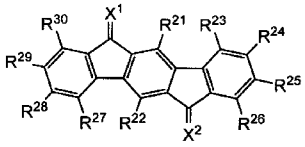
[続葉有]

(54) **Title**: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

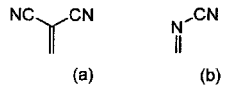
(54) 発明の名称 : 有機エレクトロルミネッセンス素子



(1)

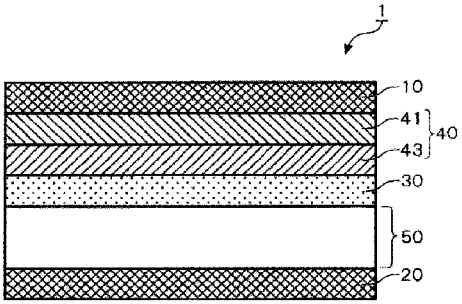


(100)



(a)　(b)

[図1]



(57) **Abstract**: Provided is an organic electroluminescent element that has, in order, an anode, a hole injection layer, a hole transport layer, a light emission layer, and a cathode, wherein the hole transport layer includes a compound represented by formula (1), and the hole injection layer includes a compound represented by formula (100). In formula (100), X^1 and X^2 are formulas (a) and (b), respectively.

(57) 要約: 陽極と、正孔注入層と、正孔輸送層と、発光層と、陰極と、をこの順に有し、前記正孔輸送層は、下記式（１）で表される化合物を含み、前記正孔注入層は、下記式（１００）で表される化合物を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子。但し、式（１００）においてＸ１及びＸ２は、それぞれ下記式（ａ）又は（ｂ）である。

WO 2017/069210 A1

ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた表示装置又は発光装置に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。

[0003] 有機ＥＬ素子は、陽極と陰極の間に、発光層の他、さらに、正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層等の有機層を含む積層構造を有する。このような素子では、注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、各層に用いる材料や素子構造の工夫がなされている。

例えば、正孔輸送材料及び正孔注入材料として、芳香族アミン誘導体が知られている（例えば特許文献１）。また、正孔注入材料としてインデノフルオレンジオン誘導体が知られている（例えば特許文献２）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：ＷＯ２００８／０６２６３６

特許文献2：ＷＯ２００９／０１１３２７

発明の概要

[0005] 本発明の目的は、低電圧駆動が可能で発光効率の高い有機ＥＬ素子を提供することである。

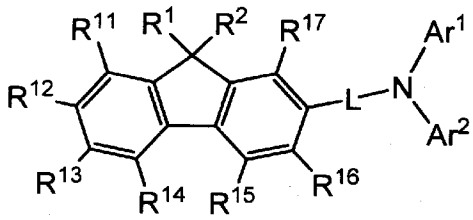
[0006] 本発明の一態様によれば、以下の有機ＥＬ素子が提供される。

陽極と、正孔注入層と、正孔輸送層と、発光層と、陰極と、をこの順に有し、

前記正孔輸送層は、下記式（１）で表される化合物を含み、

前記正孔注入層は、下記式（１００）で表される化合物を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]



(1)

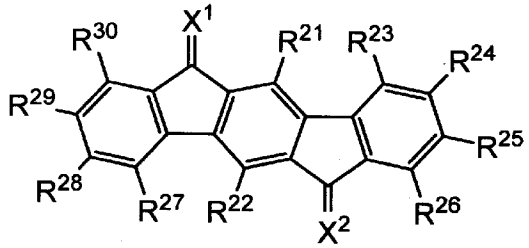
（式（１）中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ、炭素数１～４のアルキル基である。

Ｒ[11]～Ｒ[17]は、それぞれ、水素原子、又は置換基である。Ｒ[11]～Ｒ[14]のうち隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。

Ａｒ[1]及びＡｒ[2]は、それぞれ、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～２５のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数６～２４のヘテロアリール基である。

Ｌは、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、又は置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。）

[化2]



(100)

（式中、Ｘ[1]及びＸ[2]は、それぞれ下記式（ａ）又は（ｂ）である。

Ｒ[21]～Ｒ[30]は、それぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルケニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数３～５０の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２

０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の炭素数７～７０のアラルキルオキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、又は、シアノ基である。）

[化3]



(a) (b)

[0007] 本発明の他の態様によれば、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備する表示装置又は発光装置が提供される。

[0008] 本発明によれば、低電圧駆動が可能で発光効率の高い有機ＥＬ素子が提供できる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の一実施形態に係る有機ＥＬ素子の概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0010] 図１は本発明の一実施形態に係る有機ＥＬ素子の概略断面図である。

図１に示すように本発明の有機ＥＬ素子１は、陽極１０と、正孔注入層４１と、正孔輸送層４３と、発光層３０と、陰極２０とをこの順に有する。正孔注入層４１と正孔輸送層４３は正孔輸送帯域４０を形成しており、当該正孔輸送帯域４０では、他の正孔注入層及び他の正孔輸送層を設けてもよい。陰極２０と発光層３０の間に電子輸送帯域５０を形成することが好ましい。本発明において、電子輸送帯域５０の構成は限定されず、具体的には、層の種類や数等は限定されないが、通常、電子注入層と電子輸送層から構成される。

[0011] 本発明では、正孔輸送帯域４０を構成する正孔注入層４１と正孔輸送層４３に、所定の化合物の組み合わせを使用することにより、具体的には、正孔注入層にインデノフルオレンジオン構造を含む化合物を、正孔輸送層にジア

ルキルフルオレン構造を含むアミン化合物を用いることにより、低電圧駆動が可能で発光効率の高い有機ＥＬ素子とすることができる。

[0012] 正孔輸送層４３と正孔注入層４１の膜厚は適宜設定できるが、通常それぞれ１０ｎｍ～２００ｎｍである。

[0013] 以下、正孔注入層４１と正孔輸送層４３に用いる化合物について説明する。

尚、本明細書において、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）、三重水素（ｔｒｉｔｉｕｍ）、を包含する。

[0014] 本明細書において、環形成炭素数とは、原子が環状に結合した構造の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子のうちの炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素数には含まない。以下で記される「環形成炭素数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が６であり、ナフタレン環は環形成炭素数が１０であり、ピリジニル基は環形成炭素数５であり、フラニル基は環形成炭素数４である。また、ベンゼン環やナフタレン環に置換基として例えばアルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、環形成炭素数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の炭素数は環形成炭素数の数に含めない。

[0015] 本明細書において、環形成原子数とは、原子が環状に結合した構造（例えば単環、縮合環、環集合）の化合物（例えば単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子の数を表す。環を構成しない原子や、当該環が置換基によって置換される場合の置換基に含まれる原子は環形成原子数には含まない。以下で記される「環形成原子数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ピリジン環は環形成原子数が６であり、キナゾリン環は環形成原子数が１０であり、フラ

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

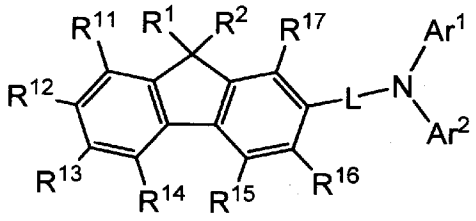
[0016] 本明細書において、「置換もしくは無置換の炭素数ＸＸ～ＹＹのＺＺ基」という表現における「炭素数ＸＸ～ＹＹ」は、ＺＺ基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。

本明細書において、「置換もしくは無置換の原子数ＸＸ～ＹＹのＺＺ基」という表現における「原子数ＸＸ～ＹＹ」は、ＺＺ基が無置換である場合の原子数を表すものであり、置換されている場合の置換基の原子数は含めない。

[0017] 本明細書において、「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。

[0018] 本発明は、正孔輸送層に、下記式（１）で表される化合物を含む。好ましくは本質的にこの化合物からなる。

[化4]



(1)

[0019] 式（１）中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ、炭素数１～４のアルキル基である。

Ｒ[11]～Ｒ[17]は、それぞれ、水素原子、又は置換基である。Ｒ[11]～Ｒ[14]のうち隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。

Ａｒ[1]及びＡｒ[2]は、それぞれ、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～２

５のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数６～２４のヘテロアリール基である。但し、Ａｒ[1]及びＡｒ[2]は、いずれもジフェニルフルオレン構造を含まないとしてもよい。

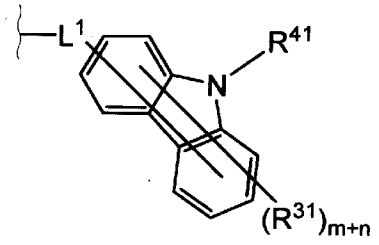
Ｌは、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、又は置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。

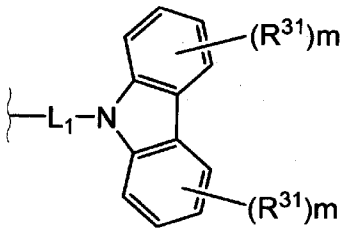
[0020] Ｒ[1]及びＲ[2]は、ともにメチル基であると好ましい。

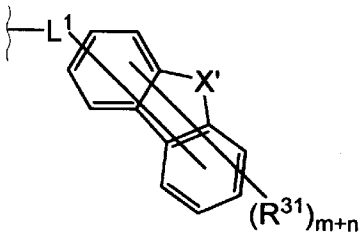
[0021] Ａｒ[1]とＡｒ[2]は、それぞれ、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～２５（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８）のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数６～２４（好ましくは６～１８）のヘテロアリール基である。

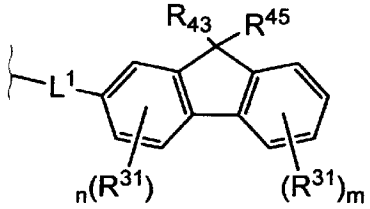
[0022] Ａｒ[1]とＡｒ[2]は、それぞれ、好ましくは、下記式（１１）～（２１）から選択される。

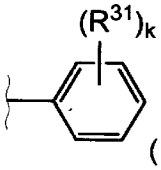
[化5]

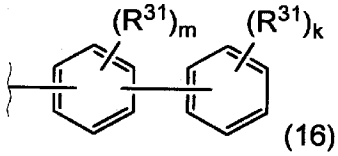

(11)

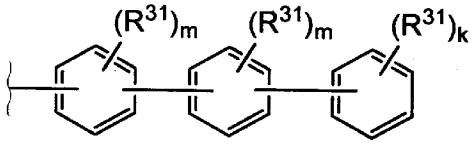

(12)

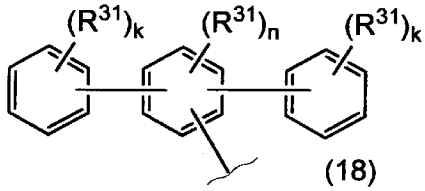

(13)

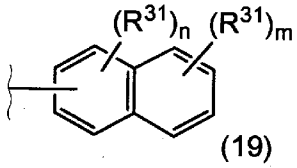

(14)

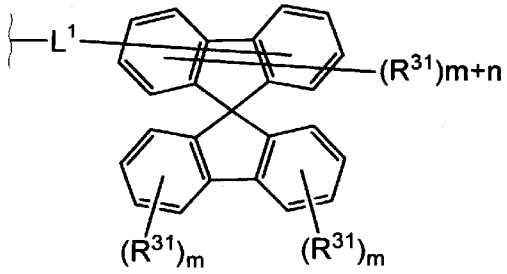

(15)

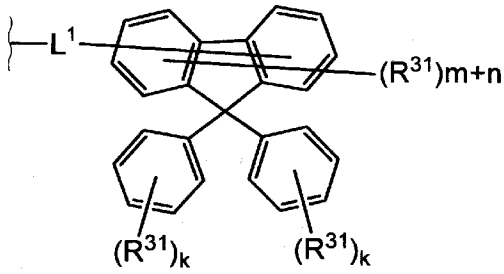

(16)


(17)


(18)


(19)


(20)


(21)

[0023] 式（１１）～（２１）中、Ｒ３１は、置換もしくは無置換の炭素数１～２０

のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、又はシアノ基である。複数のR^{31}が存在する場合、該複数のR^{31}は互いに同一でも異なってもいてもよい。

ｋは０～５の整数である。ｍは０～４の整数である。ｎは、０～３の整数である。

Ｘ’は、酸素原子又は硫黄原子である。

L^1は式（１）のＬと同じである。

R^{41}は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、又はシアノ基である。

式（１１）において、R^{31}はカルバゾール骨格の任意の位置に結合してよく、L^1はカルバゾール骨格の任意の位置に結合してよい。

式（１３）において、R^{31}はジベンゾフラン骨格又はジベンゾチオフェン骨格の任意の位置に結合してよく、L^1はジベンゾフラン骨格又はジベンゾチオフェン骨格の任意の位置に結合してよい。

式（２０）において、R^{31}はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよく、L^1はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよい。

式（２１）において、R^{31}はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよく、L^1はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよい。

式（１２），（１４）～（２１）において、R^{31}はベンゼン環の任意の位置に結合してよく、L^1はベンゼン環の任意の位置に結合してよい。

[0024] R^{43}，R^{45}は、それぞれ、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、置換もし

くは無置換の環形成原子数３～５０の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ基、又はシアノ基である。R^{43}とR^{45}は環を形成してもよい。

好ましくはR^{43}，R^{45}は、それぞれ、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数３～５０の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ基、又はシアノ基である。R^{43}とR^{45}は環を形成してもよい。

[0025] L^1は、好ましくは単結合又はフェニレン基であり、より好ましくは単結合である。

式（１）の化合物が複数のL^1を有する場合、該複数のL^1は同一でも異なっていてもよい。

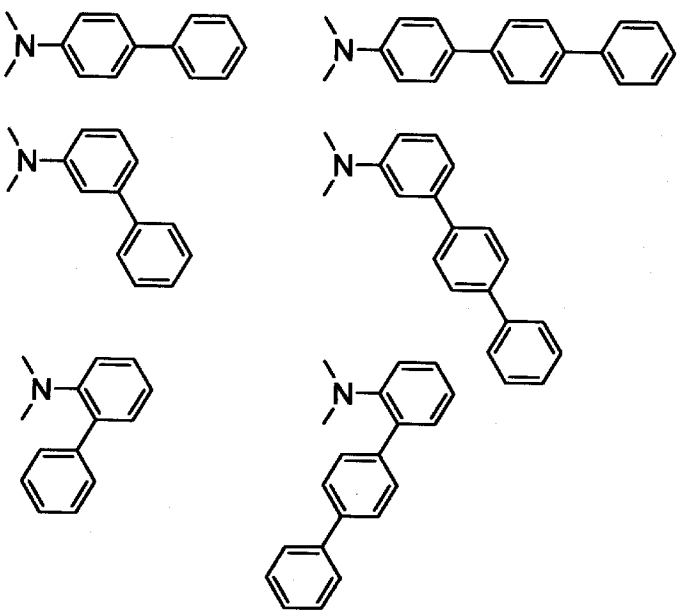
[0026] ｋは０，１，２，３，４，５のいずれかである。好ましくは０～３の整数、より好ましくは１である。

ｍは０，１，２，３，４のいずれかである。好ましくは０～３の整数、より好ましくは１である。

ｎは０，１，２，３のいずれかである。好ましくは０～２の整数、より好ましくは１である。

[0027] 本発明の一実施形態において、式（１６）、式（１７）の基は、窒素原子と以下のように、パラ位、オルト位、又はメタ位で結合できる。

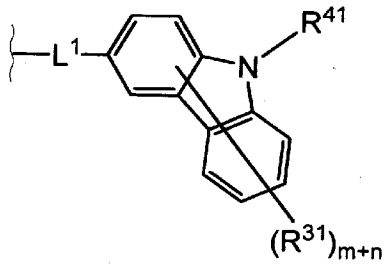
[化6]



[0028] 式（１）において、Ａｒ[1]は、好ましくは式（１４）～（２１）で表される基のいずれかであり、より好ましくは式（１６）で表される基である。

また、Ａｒ[1]が式（１１）で表される基であるとき、式（１１）はカルバゾール骨格の３位で結合する下記式で表される基であると好ましい。

[化7]



[0029] Ａｒ[1]とＡｒ[2]の組み合わせとしては、例えば、Ａｒ[1]とＡｒ[2]は、それぞれ、式（１４）～（１９）のいずれかが挙げられる。

Ａｒ[1]とＡｒ[2]の組み合わせとしては、例えば、Ａｒ[1]とＡｒ[2]は、それぞれ、式（１１）～（１３）のいずれかが挙げられる。

Ａｒ[1]とＡｒ[2]の組み合わせとしては、例えば、Ａｒ[1]とＡｒ[2]は、それぞれ、式（２０）及び（２１）のいずれかが挙げられる。

また、Ａｒ[1]とＡｒ[2]が同じでもよい。

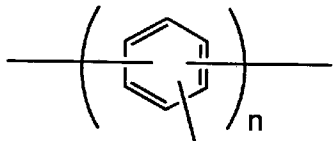
[0030] ＡｒとＡｒの組み合わせとしては、例えば、Ａｒが式（１６）であり、Ａｒが式（１４）～（２１）のいずれかが挙げられる。

ＡｒとＡｒの組み合わせとしては、例えば、Ａｒが式（１４）～（１９）のいずれかであって、Ａｒが式（１１）～（１３）のいずれかが挙げられる。

[0031] Ｌは、好ましくは、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～２４（好ましくは６～１８）のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数６～２４（好ましくは６～１８）のヘテロアリーレン基である。Ｌは、より好ましくは、単結合、又は置換もしくは無置換のアリーレン基である。

[0032] Ｌは、好ましくは、下記式（２２）で表される基である。

[化8]



(22)

[0033] 式（２２）において、Ｒは、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、又はシアノ基である。複数のＲが存在する場合、該複数のＲは互いに同一でも異なってもいてもよい。

ｍは０～４の整数である。ｎは０～３の整数である。

ｎが０のとき、Ｌは単結合である。ｎが複数のとき複数のＲ，ｍは同じでも異なってもよい。

[0034] ｎは、０～２であることが好ましく、より好ましくは０である。

また、ｎ個のベンゼン環が互いにパラ位で結合することが好ましい。

[0035] Ｒ～Ｒの置換基は、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数６

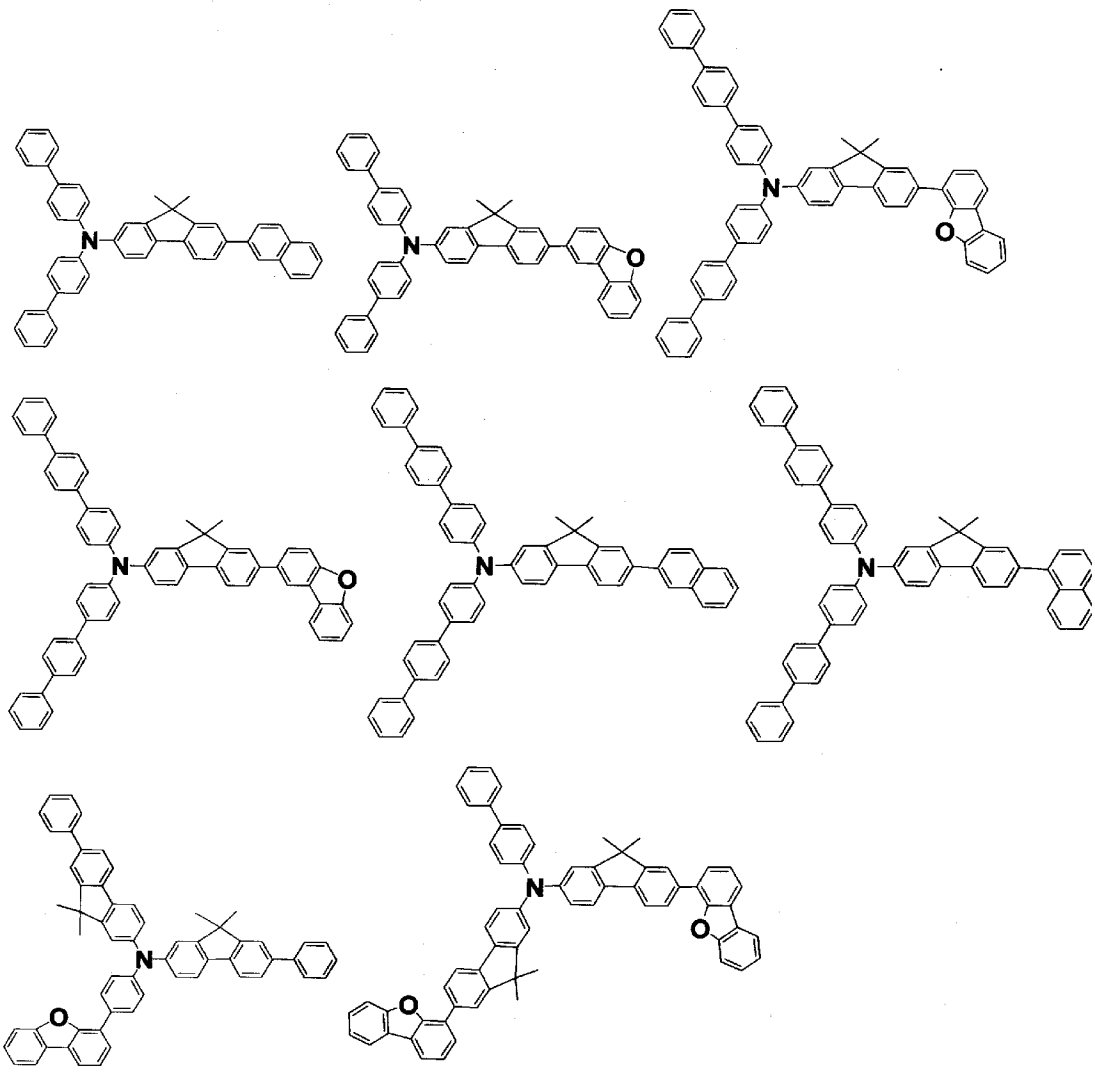
～５０のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数６～５０のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、及びカルボキシル基から選択される１以上である。

[0036] 本発明の好ましい態様において、R^{11}～R^{17}としては、水素原子、ハロゲン原子（特にフッ素原子）、アルキル基（特にメチル基、ｔ－ブチル基）、アリール基（特にフェニル基）が好ましい。

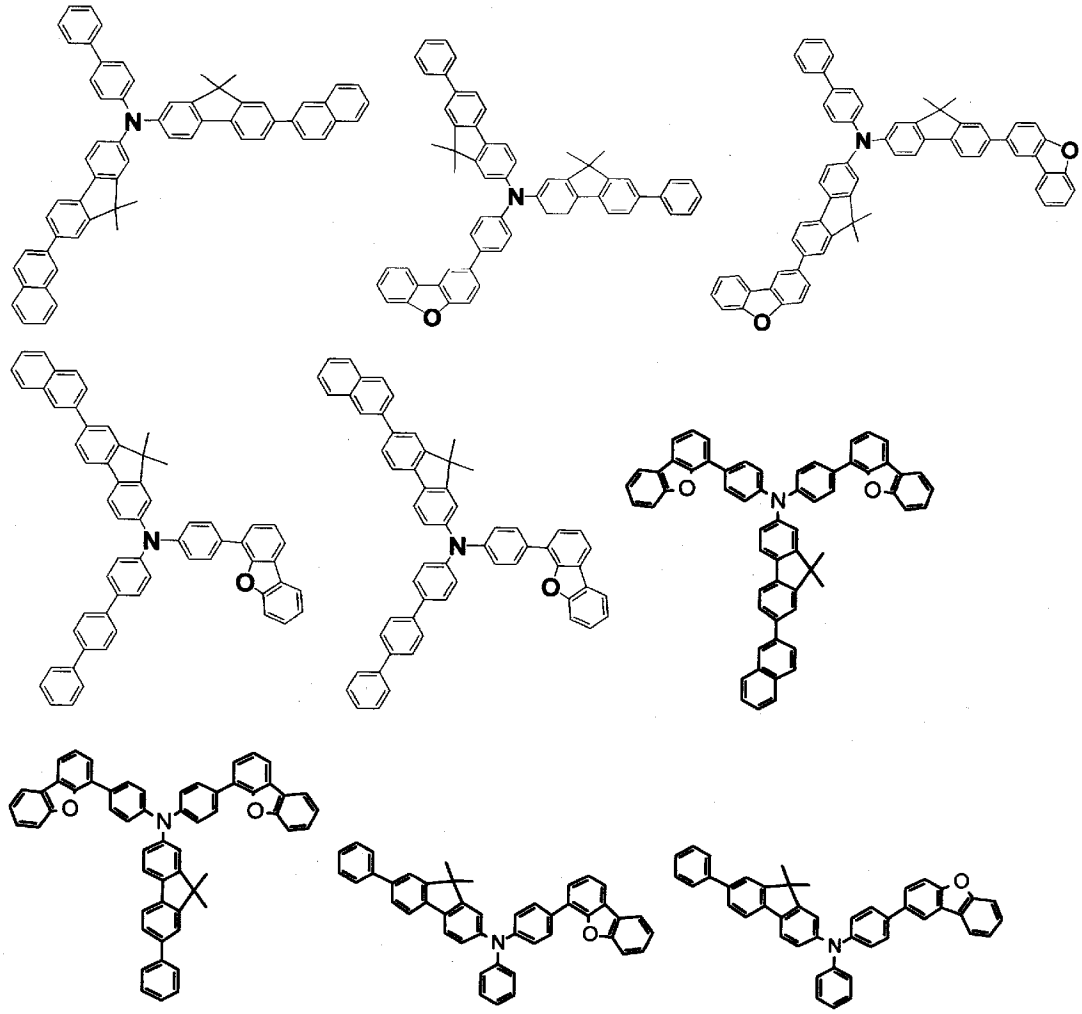
[0037] 式（１）において、Ar^1，Ar^2，Ｌの「置換もしくは無置換」の置換基は、好ましくは、それぞれ、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数６～５０のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、及びカルボキシル基から選択される１以上である。

[0038] 以下に式（１）の化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

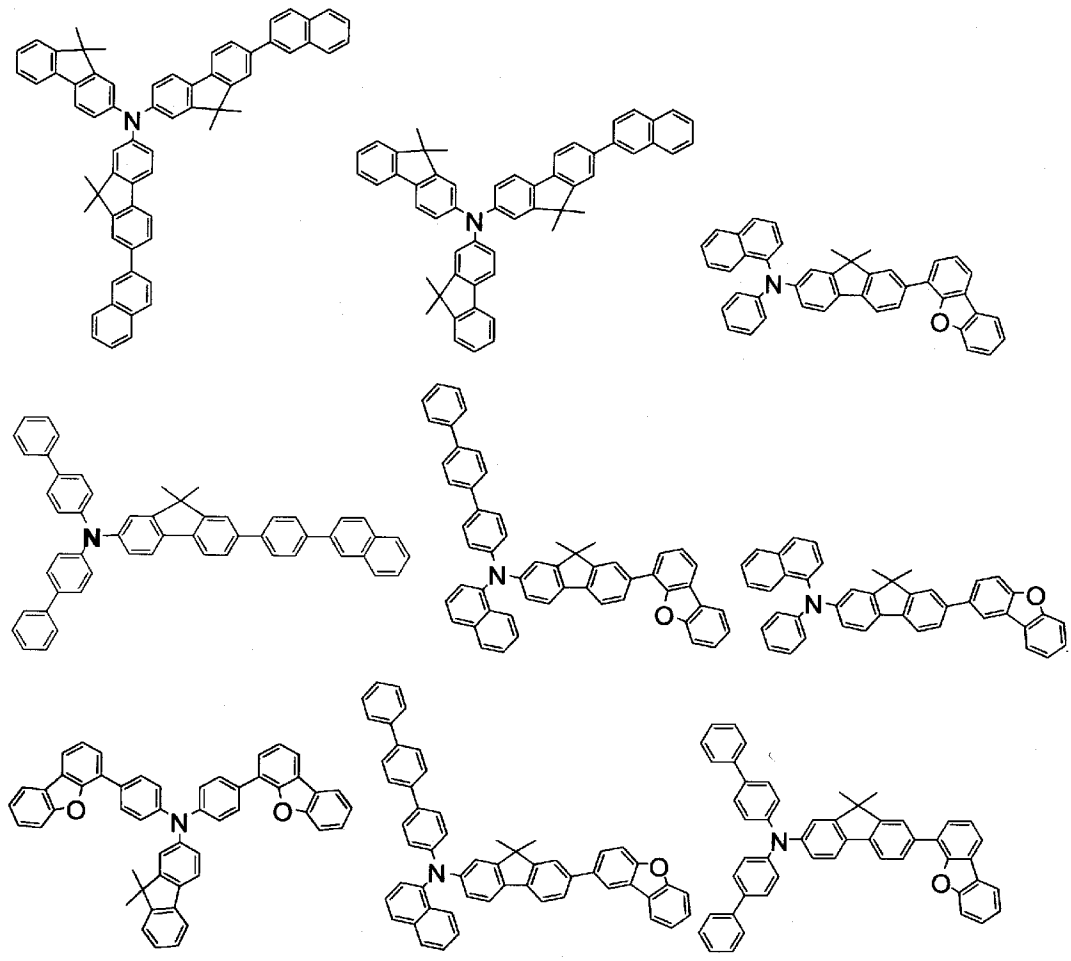
[化9]



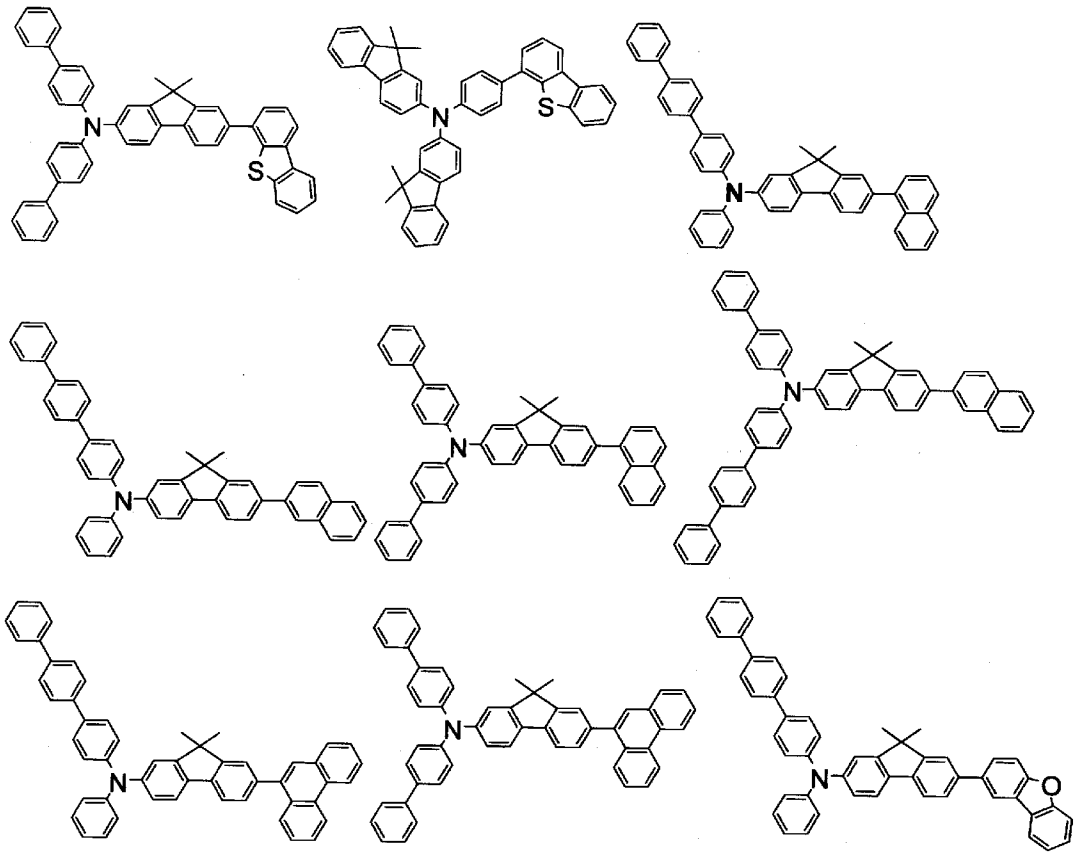
[化10]



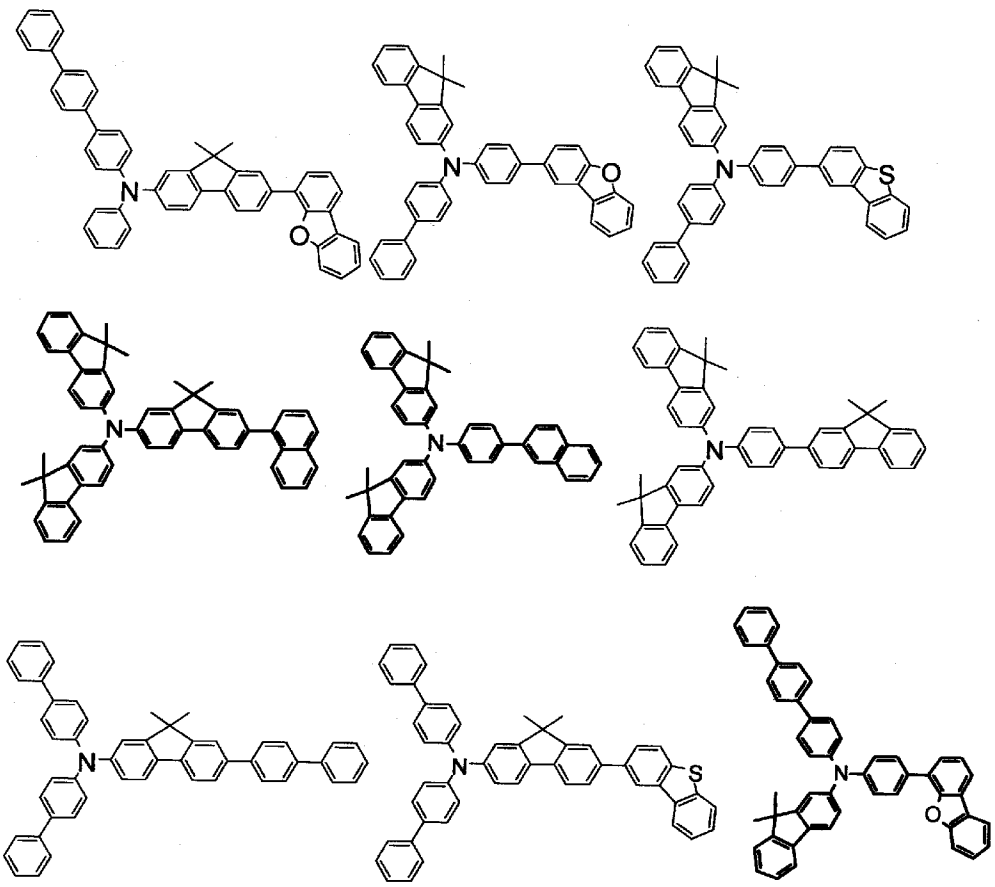
[化11]



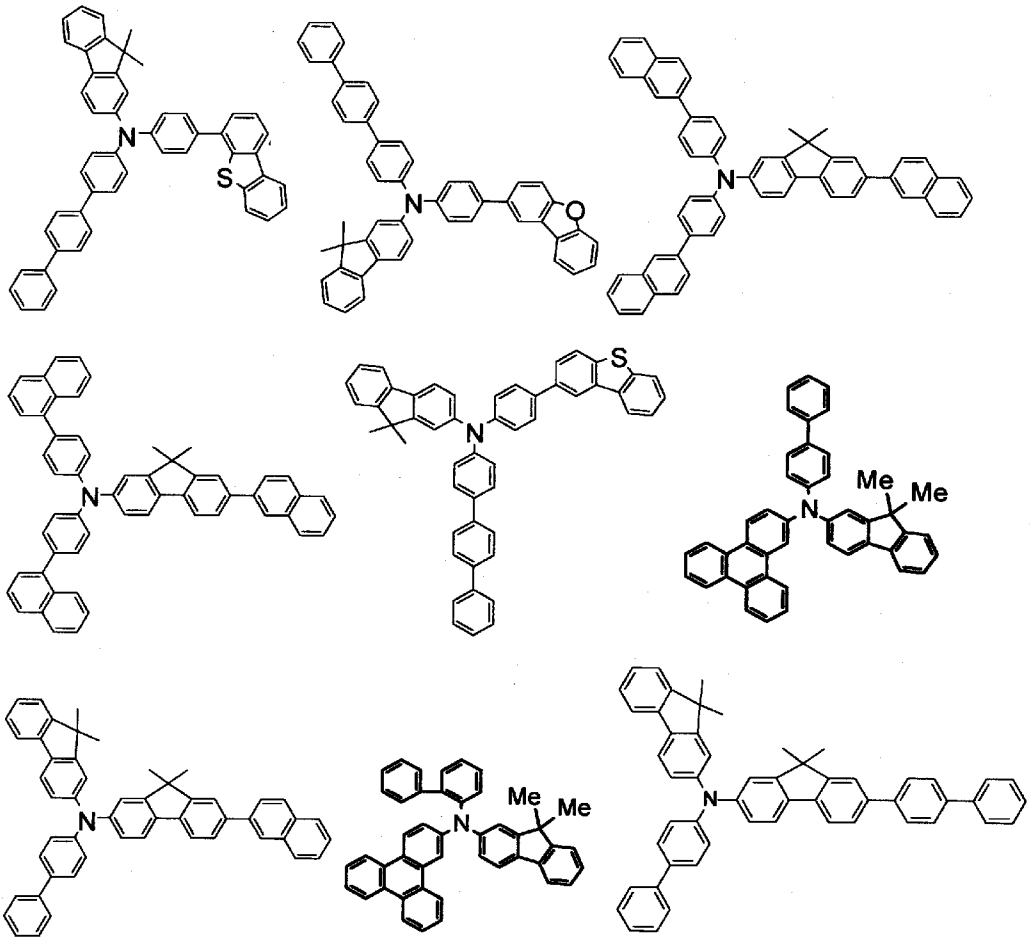
[化12]



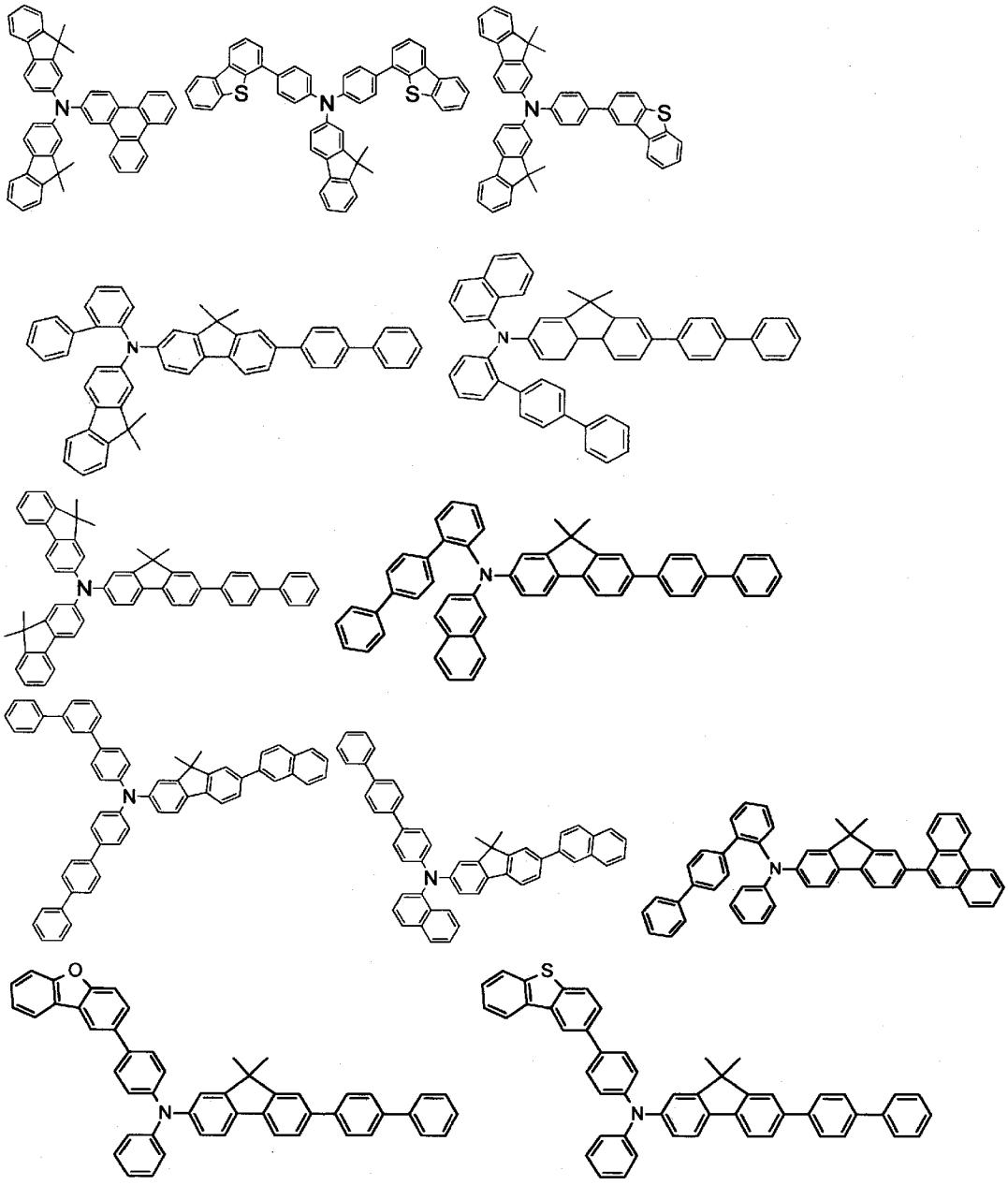
[化13]



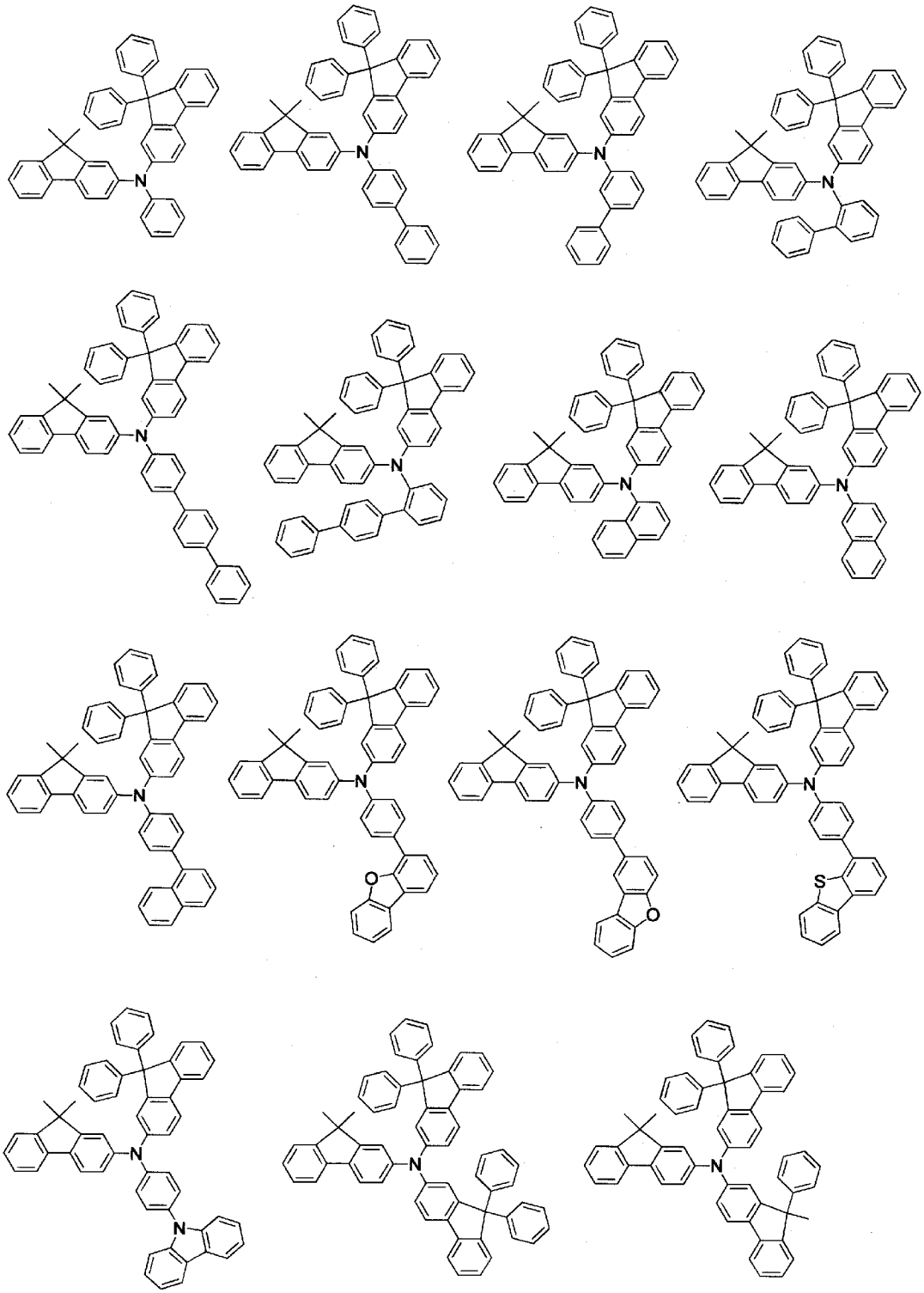
[化14]



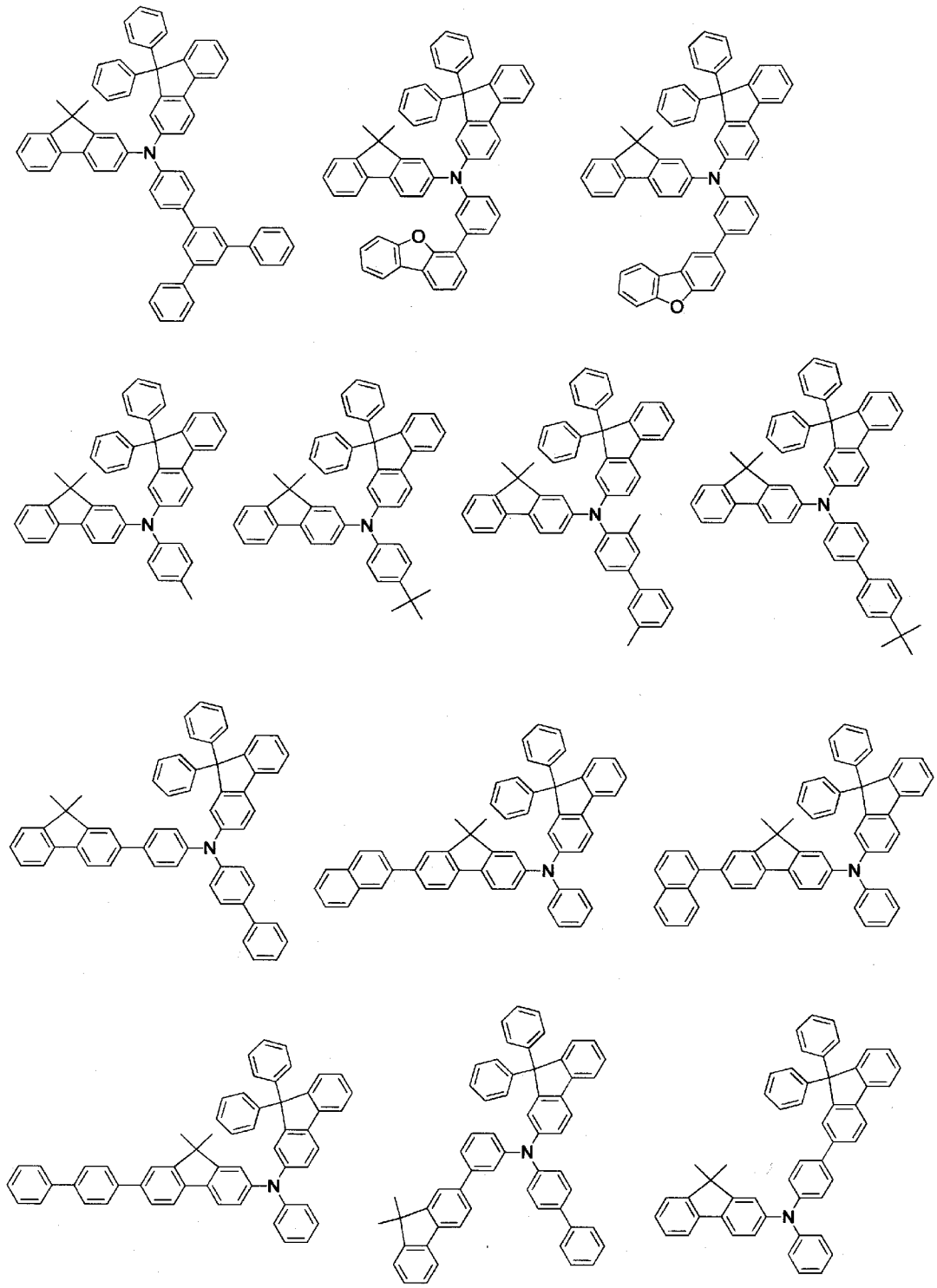
[化15]



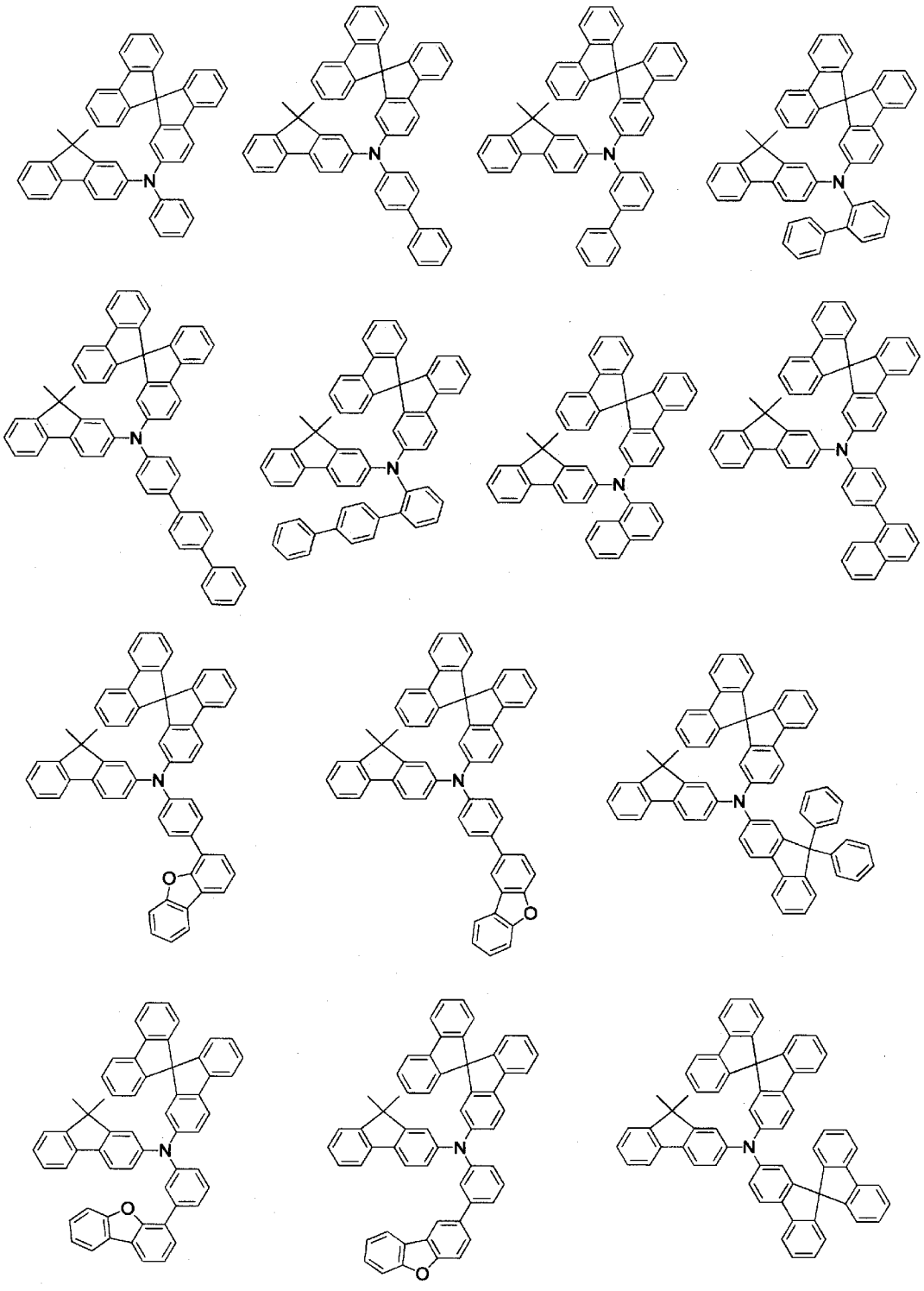
[化16]



[化17]

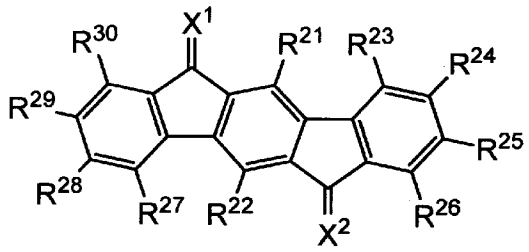


[化18]



[0039] 本発明は正孔注入層に下記式（１００）で表される化合物を含む。好ましくは本質的にこの化合物からなる。

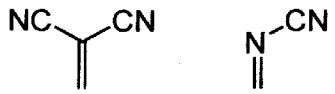
[化19]



(100)

[0040] 式（１００）中、Ｘ[1]及びＸ[2]は、それぞれ下記式（ａ）又は（ｂ）である。Ｘ[1]及びＸ[2]は、好ましくは式（ａ）である。

[化20]



(a) (b)

[0041] 式（１００）中、Ｒ[21]～Ｒ[30]は、それぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルケニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数３～５０の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の炭素数７～７０のアラルキルオキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、又は、シアノ基である。

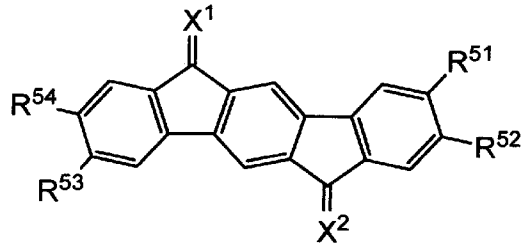
[0042] Ｒ[21]～Ｒ[30]は、それぞれ水素原子、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基、シアノ基、又は、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基であると好ましい。

さらに、Ｒ[21]～Ｒ[30]の少なくとも１つは、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基、シアノ基、又は、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換され

てもよいアリール基であると好ましい。これらを置換基にすることで電子受容性を高めたり、適度な昇華温度を得られたり、あるいは結晶化を抑制したりすることができる。

[0043] 式（１００）のインデノフルオレンジオン構造を含む化合物は、下記式（１０１）で表されることが好ましい。

[化21]



(101)

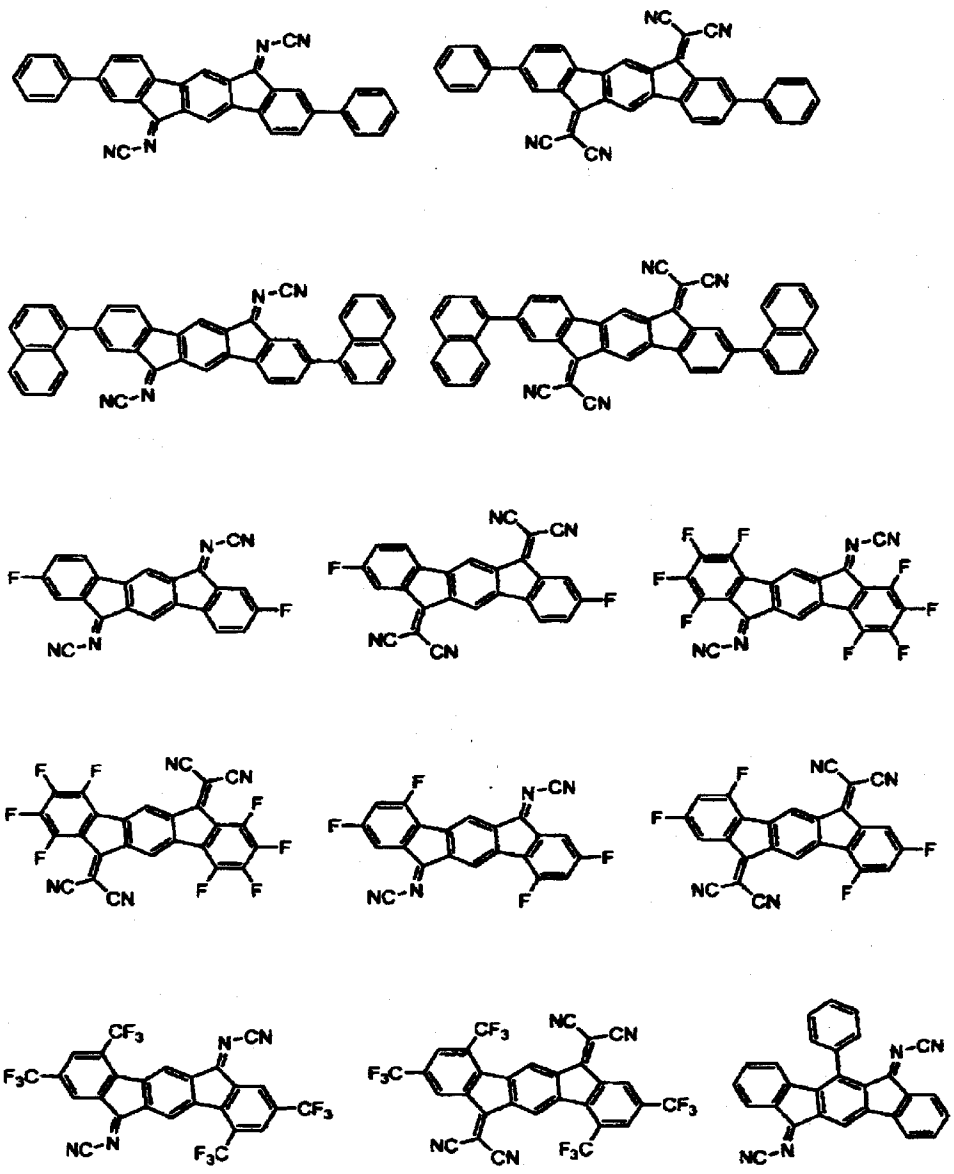
[0044] 式（１０１）において、R^{51}～R^{54}は、それぞれ水素原子、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基、シアノ基、又は、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基である。

式（１０１）において、R^{51}又はR^{52}の一方がフッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基であり、他方が水素原子であり、R^{53}又はR^{54}の一方がフッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基であり、他方が水素原子であることが好ましい。

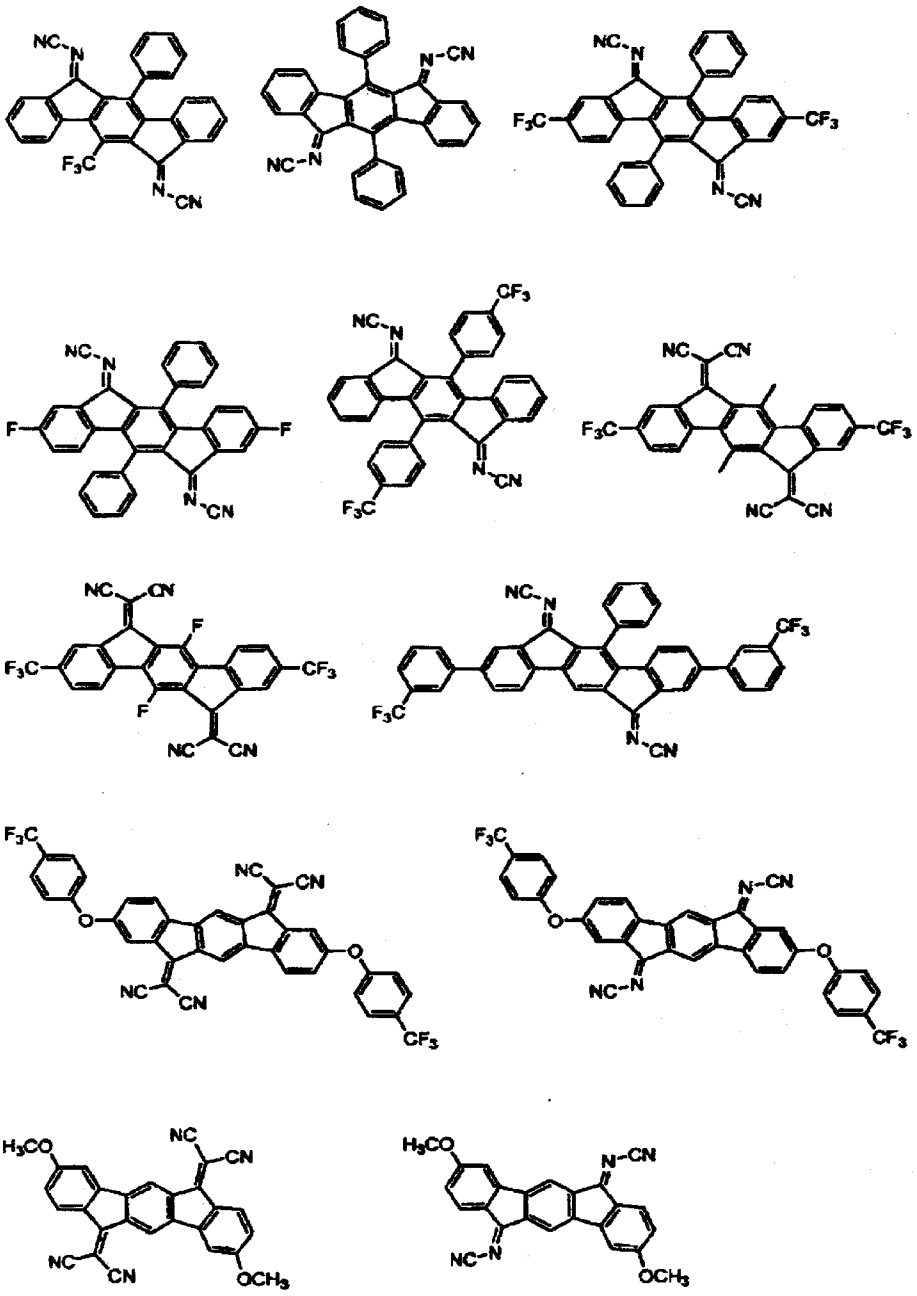
[0045] X^1及びX^2は、式（１００）におけるX^1及びX^2と同義である。X^1及びX^2は、好ましくは式（ａ）である。

[0046] 以下に式（１００）で表される化合物の具体例を示すが、これらに限られるものではない。

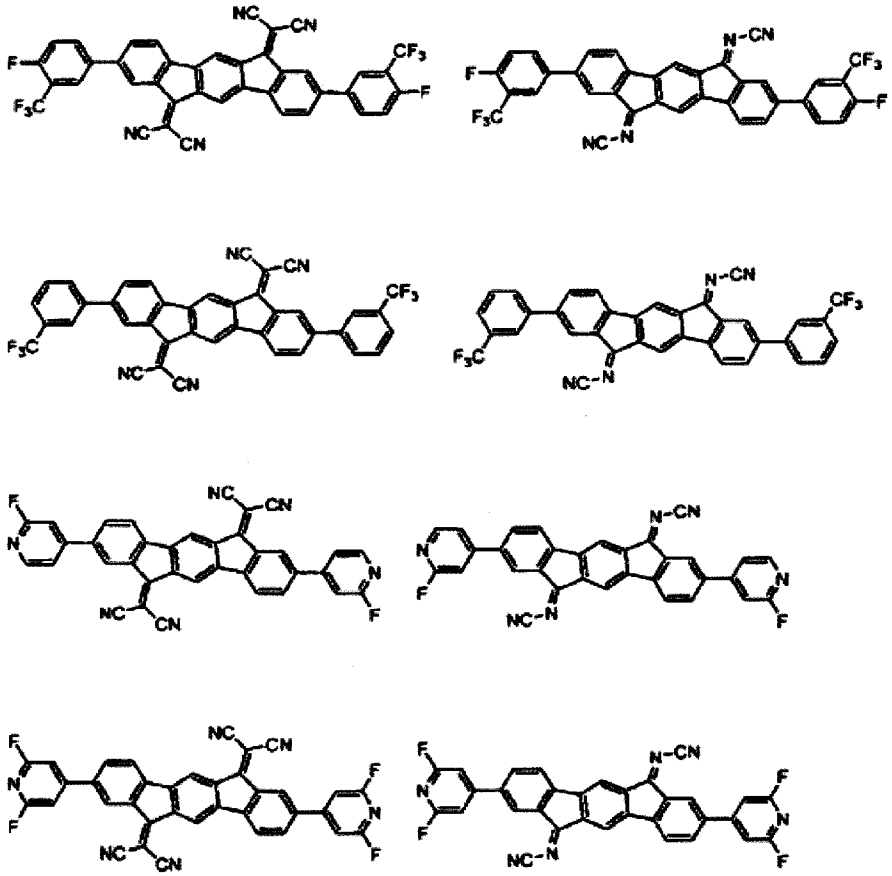
[化22]



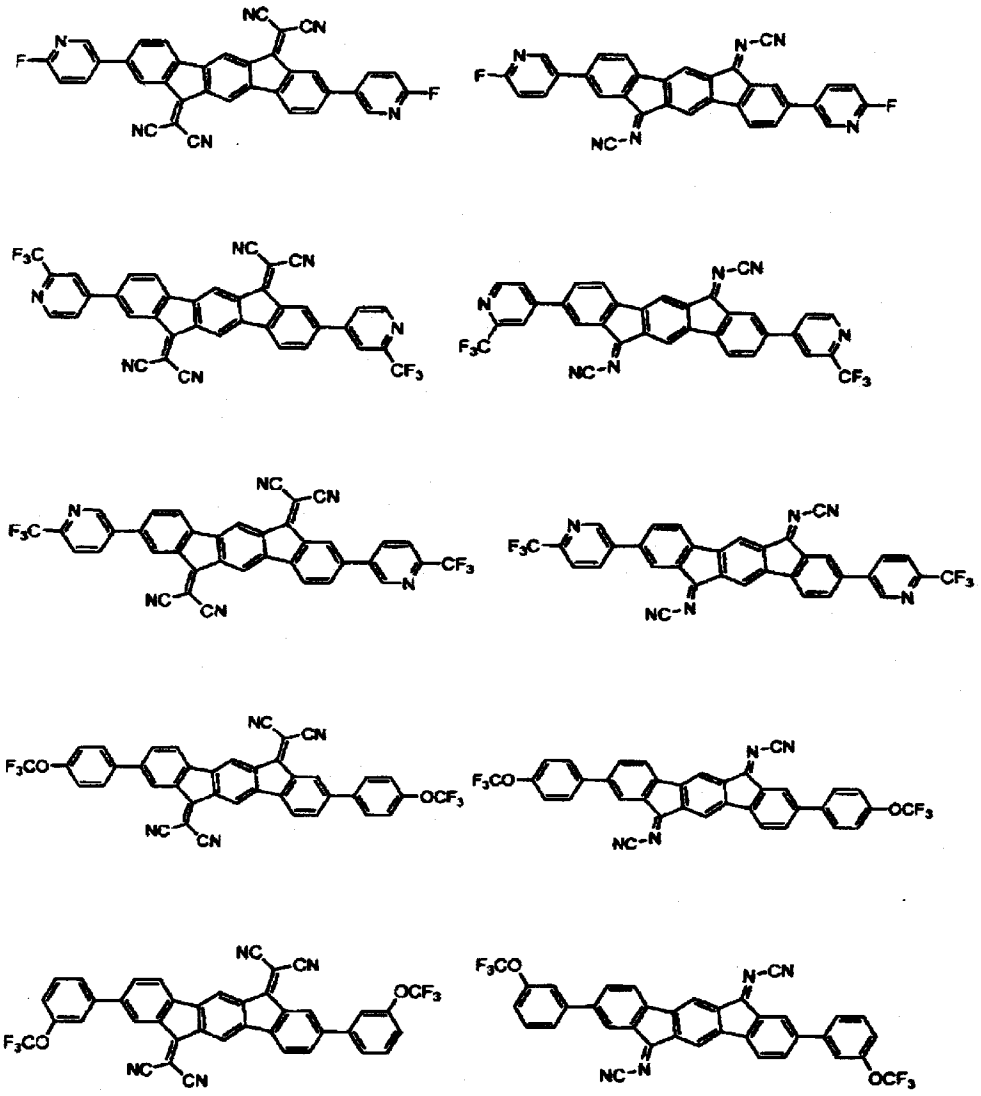
[化23]



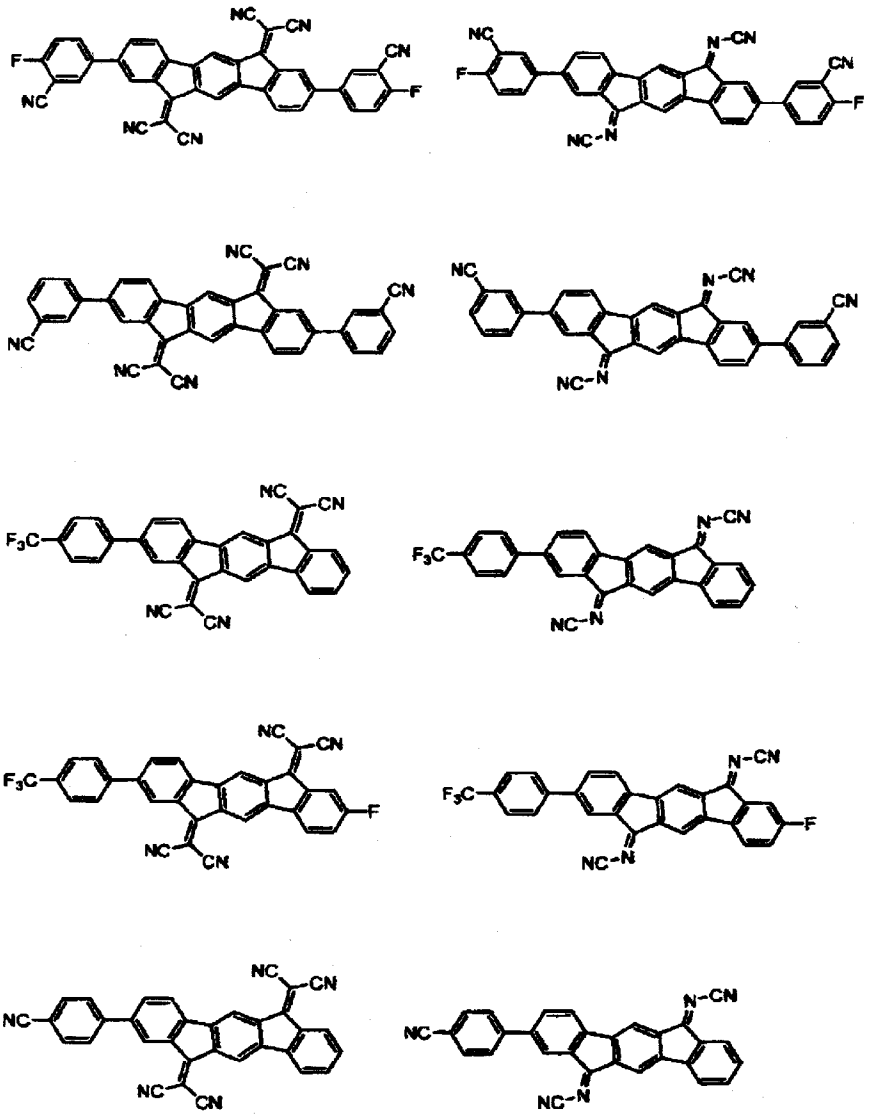
[化24]



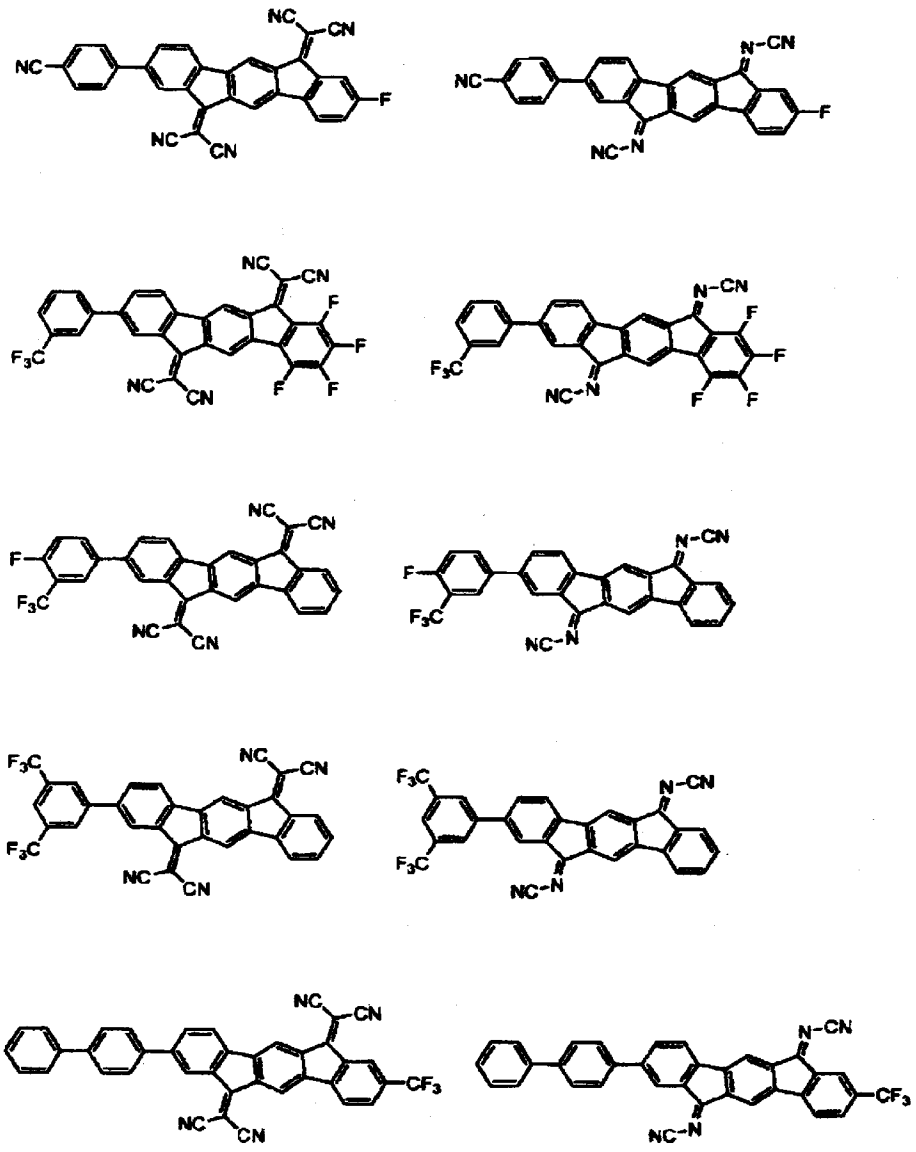
[化25]



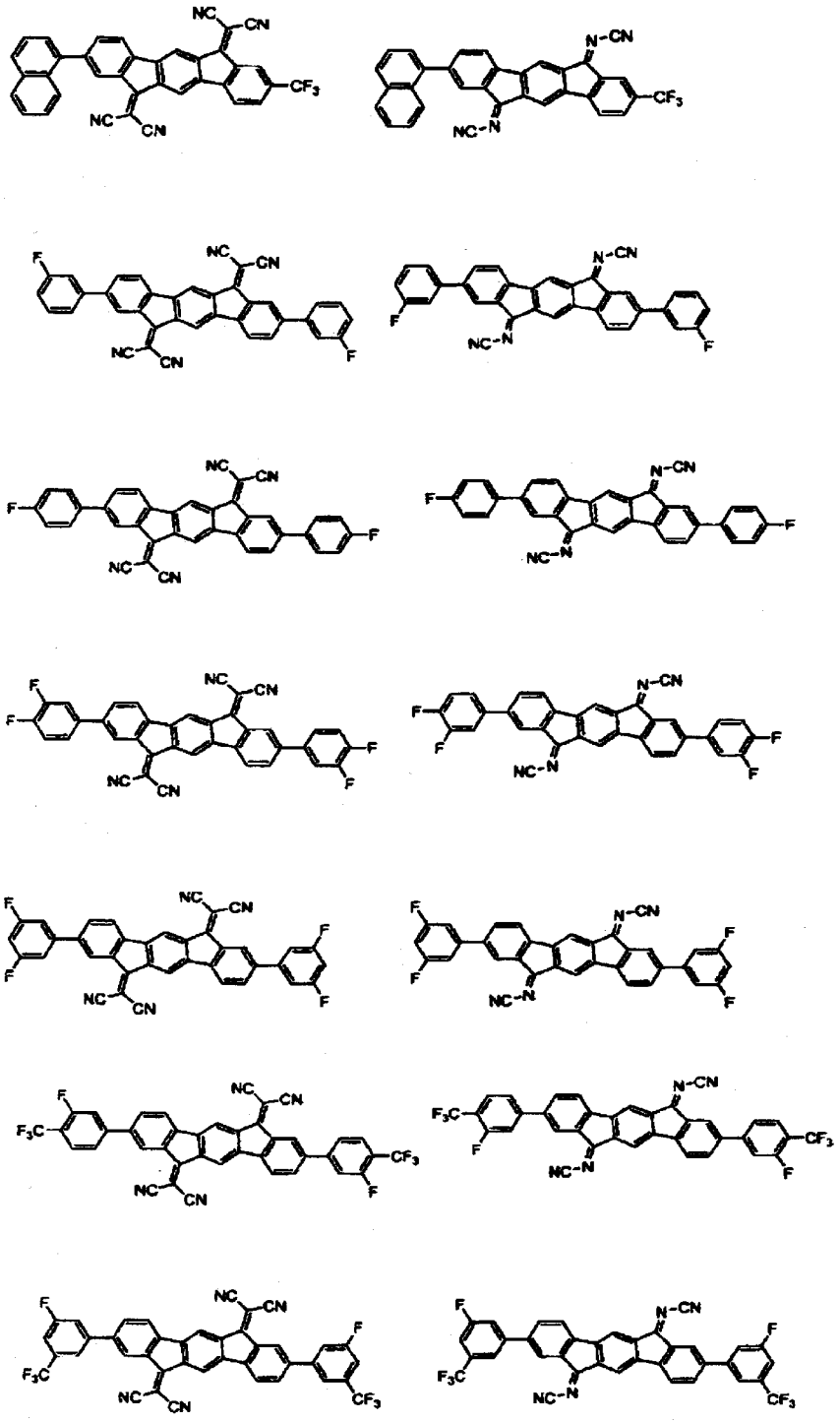
[化26]



[化27]



[化28]



[0047] 式（１）のＡｒ[1]，Ａｒ[2]及びＬを除く上記の各基の好適例又は具体例を以下に示す。

アルキル基、フルオロアルキル基のアルキル部分、アルコキシ基のアルキル部分、フルオロアルコキシ基のアルキル部分、アルコキシカルボニル基の

アルキル部分は、例えば炭素数１～２０、好ましくは１～８、より好ましくは１～４である。

シクロアルキル基は、例えば炭素数３～２０、好ましくは５～１０、より好ましくは５～６である。

アルケニル基は、例えば炭素数２～２０、好ましくは２～８、より好ましくは２～４である。

アリール基又はアリーレン基は、例えば環形成炭素数６～５０、好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２である。

アラルキルオキシ基は、アルキル部分は、例えば炭素数１～２０、好ましくは１～８、より好ましくは１～４であり、アリール部分は、例えば環形成炭素数６～５０、好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２である。

複素環基、ヘテロアリール基又はヘテロアリーレン基は、例えば環形成原子数３～５０、好ましくは３～２４、より好ましくは３～１２である。複素環基、ヘテロアリール基又はヘテロアリーレン基は、例えば環形成原子数５～５０でもよく、この場合の環形成原子数は、好ましくは５～２４、より好ましくは５～１２である。

アリールオキシ基は、例えば炭素数６～５０、好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２である。

[0048] 前記アルキル基（アルキル部分）としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、オクチル基（異性体を含む）、ノニル基（異性体を含む）、デシル基（異性体を含む）、ウンデシル基（異性体を含む）、及びドデシル基（異性体を含む）等が挙げられ、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓ－ブチル基、ｔ－ブチル基、及びペンチル基（異性体を含む）が好ましく、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓ－ブチル基、及びｔ－ブチル基がより好ましく、メチル基

及びｔ－ブチル基が特に好ましい。

[0049] （置換）アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチルフェニル基、ビフェニルイル基、ターフェニルイル基、ビフェニレニル基、ナフチル基、フェニルナフチル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、７－フェニル－９，９－ジメチルフルオレニル基、ペンタセニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、ｓ－インダセニル基、ａｓ－インダセニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基、フルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、（トリフルオロメチル）フルオロフェニル基、トリフルオロフェニル基、ビス（トリフルオロメチル）フェニル基、（トリフルオロメチル）ジフルオロフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基及びトリフルオロメトキシフルオロフェニル基等が挙げられ、フェニル基、ナフチルフェニル基、ビフェニルイル基、ターフェニルイル基、ナフチル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、が好ましく、フェニル基、ビフェニルイル基、ナフチル基、９，９－ジメチルフルオレニル基がより好ましく、フェニル基が特に好ましい。（置換）アリーレン基も同様である。

[0050] ハロゲン原子はフッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子であり、フッ素原子が特に好ましい。

[0051] フルオロアルキル基としては、例えば、上記の炭素数１～２０のアルキル基の少なくとも１個の水素原子、好ましくは１～７個の水素原子をフッ素原子で置換して得られる基が挙げられ、ヘプタフルオロプロピル基、ペンタフルオロエチル基、２，２，２－トリフルオロエチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロシクロヘキシル基、パーフルオロアダマンチル基が好ましく、ペンタフルオロエチル基、２，２，２－トリフルオロエチル基、トリフルオロメチル基がより好ましく、トリフルオロメチル基が特に好ましい。

[0052] アルコキシ基としては、ｔ－ブトキシ基、プロポキシ基、エトキシ基、メ

トキシ基が好ましく、エトキシ基、メトキシ基がより好ましく、メトキシ基が特に好ましい。

[0053] フルオロアルコキシ基としては、ヘプタフルオロプロポキシ基、ペンタフルオロエトキシ基、２，２，２－トリフルオロエトキシ基、トリフルオロメトキシ基、２，２，３，３，３－ペンタフルオロプロポキシ基、２，２，３，３－テトラフルオロプロポキシ基、１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イルオキシ基が好ましく、ペンタフルオロエトキシ基、２，２，２－トリフルオロエトキシ基、トリフルオロメトキシ基がより好ましく、トリフルオロメトキシ基が特に好ましい。

[0054] 複素環基は少なくとも１個、好ましくは１～３個のヘテロ原子、例えば、窒素原子、硫黄原子及び酸素原子、を含む。該複素環基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、チオフェニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、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、及びキサンテニル基等が挙げられ、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基が好ましく、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基がより好ましい。（置換）ヘテロアリーレン基も同様であ

る。

[0055] アリールオキシ基としては、ターフェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、フェノキシ基が好ましく、ビフェニルオキシ基、フェノキシ基がより好ましく、フェノキシ基が特に好ましい。

[0056] シクロアルキル基としてはシクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

アルケニル基としてはビニル基、プロペニル基（二重結合の位置異性体を含む）、ブテニル基（二重結合の位置異性体を含む）、ペンテニル基（二重結合の位置異性体を含む）等があげられる。

（置換）アラルキルオキシ基の例としては、ベンジルオキシ基、ペンタフルオロベンジルオキシ基、４－トリフルオロメチルベンジルオキシ基等が挙げられる。

（置換）アミノ基の例としては、アミノ基、モノもしくはジメチルアミノ基、モノもしくはジエチルアミノ基、モノもしくはジフェニルアミノ基等が挙げられる。

[0057] 上記において、“置換もしくは無置換”というときの任意の置換基は、炭素数１～５０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のアルキル基；炭素数１～５０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のフルオロアルキル基；環形成炭素数３～５０（好ましくは３～６、より好ましくは５又は６）のシクロアルキル基；環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２）のアリール基；環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２）のアリール基を有する炭素数１～５０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のアラルキル基；アミノ基；炭素数１～５０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のアルキル基を有するモノ－又はジアルキルアミノ基；環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２）のアリール基を有するモノ－又はジアリールアミノ基；炭素数１～５０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のアルキル基を有するアルコキシ基；炭素数１～５０（

好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のアルキル基を有するフルオロアルコキシ基；環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２）のアリール基を有するアリールオキシ基；炭素数１～５０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～５）のアルキル基及び環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１２）のアリール基から選ばれる基を有するモノ－、ジ－又はトリ置換シリル基；環形成原子数５～５０（好ましくは５～２４、より好ましくは５～１２）でありヘテロ原子（窒素原子、酸素原子、硫黄原子）を１～５個（好ましくは１～３個、より好ましくは１～２個）含むヘテロアリール基；ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）；シアノ基；ニトロ基からなる群より選ばれる。

これらの置換基は、上記の置換基によって更に置換されてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成してもよい。

[0058] 正孔輸送帯域において、式（１）で表される化合物を含む正孔輸送層と式（１００）で表される化合物を含む正孔注入層は、互いに接していると好ましい。

以下、有機ＥＬ素子を構成する正孔輸送帯域以外の層について説明する。尚、有機ＥＬ素子を構成する層及び材料は下記に限定されない。

[0059] （基板）

基板は、発光素子の支持体として用いられる。基板としては、例えば、ガラス、石英、プラスチック等を用いることができる。また、可撓性基板を用いてもよい。可撓性基板とは、折り曲げることができる（フレキシブル）基板のことであり、例えば、ポリカーボネート、ポリ塩化ビニルからなるプラスチック基板等が挙げられる。

[0060] （陽極）

基板上に形成される陽極には、仕事関数の大きい（具体的には４．０ｅＶ以上）金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物等を用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム－酸化スズ（ＩＴＯ：Ｉ

ｎｄｉｕｍ　Ｔｉｎ　Ｏｘｉｄｅ）、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ、酸化インジウム－酸化亜鉛、酸化タングステン、及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、グラフェン等が挙げられる。この他、金（Ａｕ）、白金（Ｐｔ）、又は金属材料の窒化物（例えば、窒化チタン）等が挙げられる。

[0061]（発光ユニット）

本発明の一態様に係る有機ＥＬ素子では、蛍光又は燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光／燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよい。

ここで、「発光ユニット」とは、１以上の層を含む有機薄膜層を含み、そのうちの少なくとも一層が発光層であり、注入された正孔と電子が再結合することにより発光する最小単位をいう。

[0062] 例えば、シンプル型有機ＥＬ素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

（１）陽極／発光ユニット／陰極

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

（ａ）（正孔注入層／）正孔輸送層／蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｂ）（正孔注入層／）正孔輸送層／第一燐光蛍光発光層／第二燐蛍光光発光層（／電子輸送層）

（ｃ）（正孔注入層／）正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｄ）（正孔注入層／）正孔輸送層／第一燐光発光層／第二燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｅ）（正孔注入層／）正孔輸送層／第一燐光発光層／スペース層／第二燐

光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｆ）（正孔注入層／）正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／第一蛍光発光層／第二蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｇ）（正孔注入層／）正孔輸送層／電子障壁層／蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｈ）（正孔注入層／）正孔輸送層／蛍光発光層／正孔障壁層（／電子輸送層）

（ｉ）（正孔注入層／）正孔輸送層／蛍光発光層／トリプレット障壁層（／電子輸送層）

[0063] 上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光ユニット（ｄ）において、（正孔注入層／）正孔輸送層／第一燐光発光層（赤色発光）／第二燐光発光層（緑色発光）／スペース層／蛍光発光層（青色発光）／電子輸送層といった層構成等が挙げられる。

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

[0064] タンデム型有機ＥＬ素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

（２）陽極／第一発光ユニット／中間層／第二発光ユニット／陰極

（３）陽極／第一発光ユニット／第一中間層／第二発光ユニット／第二中間層／第３発光ユニット／陰極

[0065] ここで、上記第一発光ユニット及び第二発光ユニットとしては、例えば、それぞれ独立に上述の発光ユニットから選択することができる。

上記中間層、第一中間層および第二中間層は、一般的に、中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、第一中

間層は第一発光ユニットに電子を、第二発光ユニットに正孔を供給し、第二中間層は第二発光ユニットに電子を、第三発光ユニットに正孔を供給する、公知の材料構成を用いることができる。

[0066] 上記タンデム型有機ＥＬ素子において、式（１）で表される化合物を含む正孔輸送層及び式（１００）で表される化合物を含む正孔注入層は、２以上の発光ユニットのうち少なくとも１つの同一発光ユニットに含まれればよい。

[0067] （発光層のゲスト材料）

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

[0068] 発光層に用いることができる青色系の蛍光発光材料として、ピレン誘導体、スチリルアミン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、フルオレン誘導体、ジアミン誘導体、トリアリールアミン誘導体等が使用できる。発光層に用いることができる緑色系の蛍光発光材料として、芳香族アミン誘導体等を使用できる。発光層に用いることができる赤色系の蛍光発光材料として、テトラセン誘導体、ジアミン誘導体等が使用できる。

[0069] 発光層に用いることができる青色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体が使用される。発光層に用いることができる緑色系の燐光発光材料としてイリジウム錯体等が使用される。発光層に用いることができる赤色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、白金錯体、テルビウム錯体、ユーロピウム錯体等の金属錯体が使用される。

[0070] （発光層のホスト材料）

発光層としては、上述した発光性の高い物質（ゲスト材料）を他の物質（ホスト材料）に分散させた構成としてもよい。発光性の高い物質を分散させ

るための物質としては、各種のものを用いることができ、発光性の高い物質よりも最低空軌道準位（ＬＵＭＯ準位）が高く、最高被占有軌道準位（ＨＯＭＯ準位）が低い物質を用いることが好ましい。

[0071] 発光性の高い物質を分散させるための物質（ホスト材料）としては、１）アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、若しくは亜鉛錯体等の金属錯体、２）オキサジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、若しくはフェナントロリン誘導体等の複素環化合物、３）カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、若しくはクリセン誘導体等の縮合芳香族化合物、３）トリアリールアミン誘導体、若しくは縮合多環芳香族アミン誘導体等の芳香族アミン化合物が使用される。

[0072]（電子輸送層）

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

[0073]（電子注入層）

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

[0074]（陰極）

陰極には、仕事関数の小さい（具体的には３．８ｅＶ以下）金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物等を用いることが好ましい。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の第１族又は第２族に属する元素、すなわちリチウム（Ｌｉ）やセシウム（Ｃｓ）等のアルカリ金属、及びマグネシウム（Ｍｇ）等のアルカリ土類金属、及びこれらを含む合金（例え

ば、ＭｇＡｇ、ＡｌＬｉ）等の希土類金属及びこれらを含む合金等が挙げられる。

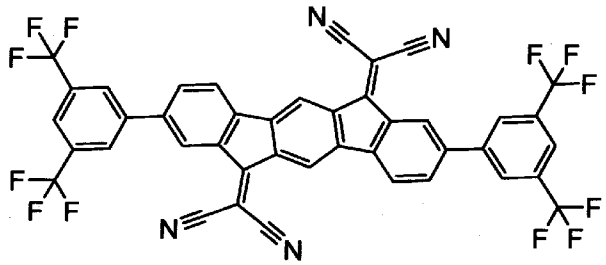
[0075] 本発明の有機ＥＬ素子は、様々な表示装置又は発光装置に用いられる。例えば、平面発光体やディスプレイのバックライト等の光源、携帯電話、ＰＤＡ、カーナビゲーション、車のインパネ等の表示部、照明等に好適に使用できる。

実施例

[0076] 実施例及び比較例で使用した化合物は以下の通りである。

［正孔注入化合物］

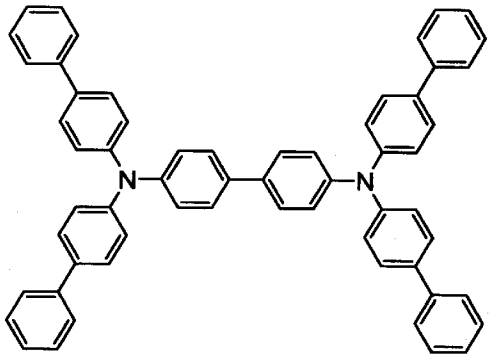
[化29]



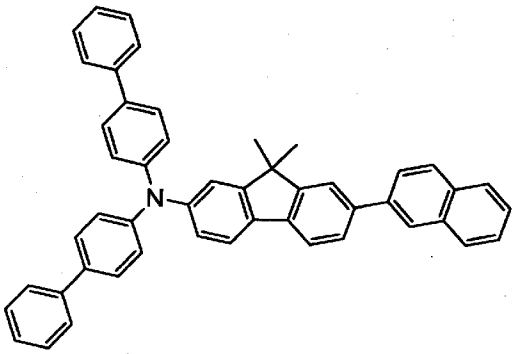
HI-1

[0077] ［正孔輸送化合物］

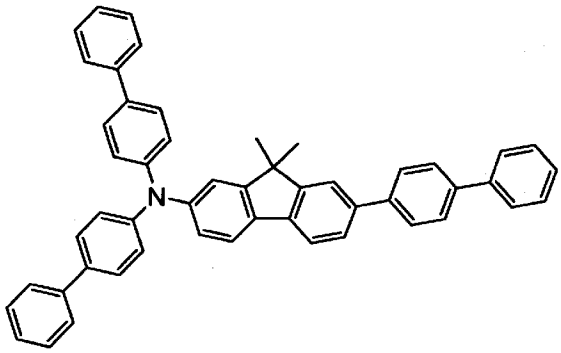
[化30]



HT-1

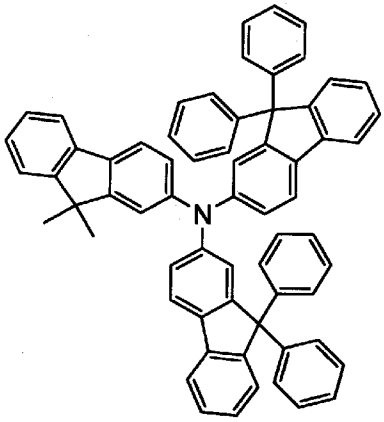


HT-2

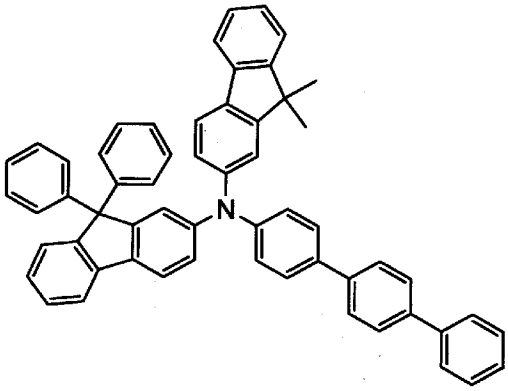


HT-3

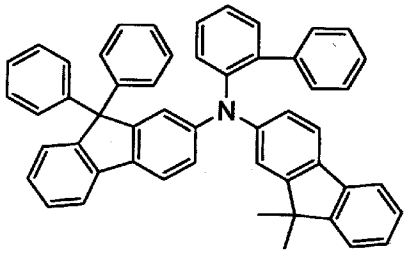
[化31]



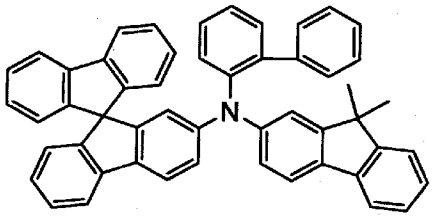
HT-4



HT-5



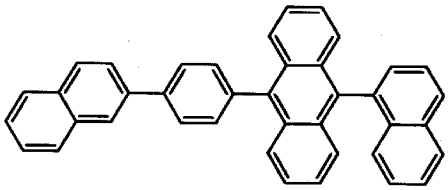
HT-6



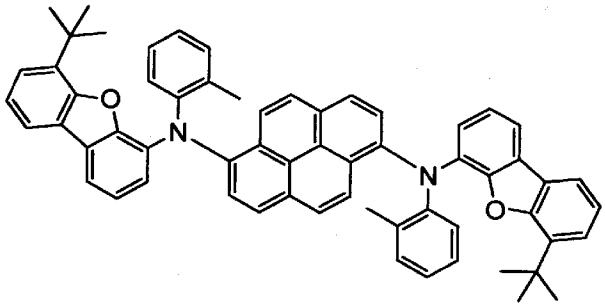
HT-7

[0078] [ホスト化合物及びドーパント化合物]

[化32]



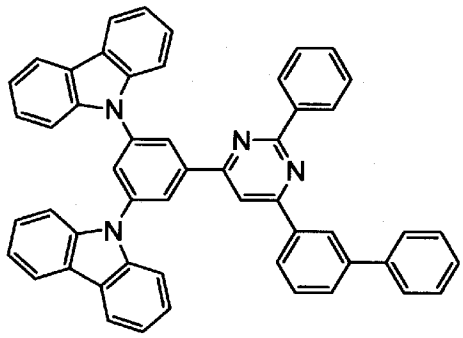
BH



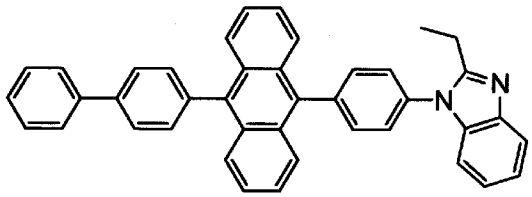
BD

[0079] [電子輸送化合物]

[化33]



ET1



ET2

[0080] 比較例１

ＩＴＯ（陽極）が成膜されたＩＴＯ基板上に、正孔注入化合物ＨＩ－１、正孔輸送化合物ＨＴ－１、ホスト材料ＢＨとドーパント材料ＢＤ（ドーパント材料は４重量％）、電子輸送化合物ＥＴ－１、電子輸送化合物ＥＴ－２、電子注入化合物ＬｉＦ、陰極材料アルミニウムを順次蒸着し、積層し、下記の構成からなる素子を得た。括弧内は膜厚（単位：ｎｍ）を示す。

ＩＴＯ／ＨＩ－１（５）／ＨＴ－１（１００）／ＢＨ：ＢＤ（２５）（４％）／ＥＴ－１（１０）／ＥＴ－２（１５）／ＬｉＦ（１）／Ａｌ（５０）

[0081] 実施例１－６

比較例１において、正孔輸送化合物を表１に示す化合物に変えた他は比較例１と同様にして素子を製造した。

[0082] 得られた素子について以下の評価をした。結果を表１に示す。

電流密度が１０ｍＡ／ｃｍ^{2}となるように素子に電圧を印加し、そのときの電圧値を測定した。またそのときのＥＬ発光スペクトルを分光放射輝度計（ＣＳ－１０００：コミカミノルタ社製）を用いて計測した。得られた分光放射輝度スペクトルから、外部量子効率（ＥＱＥ）（％）を算出した。

比較例１の素子の電圧及び外部量子効率をそれぞれ１．００としたときの実施例１－２の素子の電圧及び外部量子効率を表１に示す。

[0083]

[表1]

	正孔輸送化合物	電圧	EQE
比較例1	HT-1	1.00	1.00
実施例1	HT-2	0.96	1.15
実施例2	HT-3	0.98	1.20
実施例3	HT-4	0.98	1.30
実施例4	HT-5	0.99	1.20
実施例5	HT-6	0.99	1.20
実施例6	HT-7	0.99	1.20

[0084] 上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

本願のパリ優先の基礎となる日本出願明細書の内容を全てここに援用する。

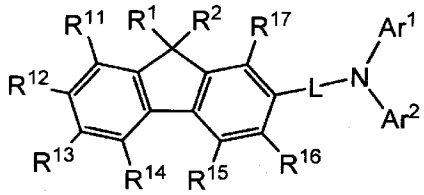
請求の範囲

[請求項1] 陽極と、正孔注入層と、正孔輸送層と、発光層と、陰極と、をこの順に有し、

前記正孔輸送層は、下記式（１）で表される化合物を含み、

前記正孔注入層は、下記式（１００）で表される化合物を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化34]



(1)

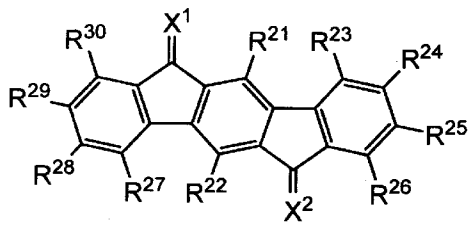
（式（１）中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ、炭素数１～４のアルキル基である。

Ｒ[11]～Ｒ[17]は、それぞれ、水素原子、又は置換基である。Ｒ[11]～Ｒ[14]のうち隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。

Ａｒ[1]及びＡｒ[2]は、それぞれ、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～２５のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数６～２４のヘテロアリール基である。

Ｌは、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、又は置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。）

[化35]



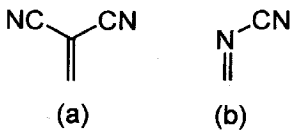
(100)

（式中、Ｘ[1]及びＸ[2]は、それぞれ下記式（ａ）又は（ｂ）である。

Ｒ[21]～Ｒ[30]は、それぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３～２０のシ

クロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルケニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数３～５０の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の炭素数７～７０のアラルキルオキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、又は、シアノ基である。）

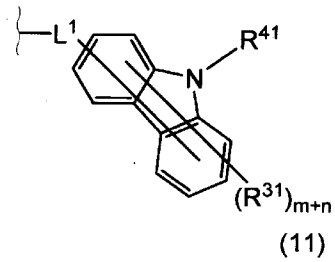
[化36]

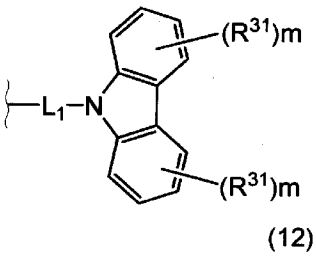


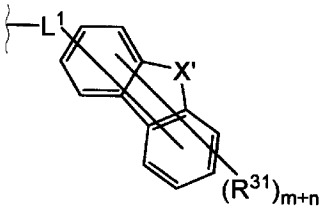
(a) (b)

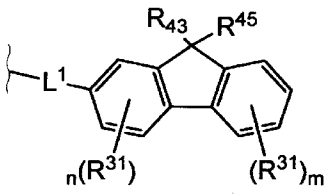
[請求項2] 前記式（１）において、Ａｒ[1]とＡｒ[2]が、それぞれ、下記式（１１）～（２１）から選択される基である請求項１記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

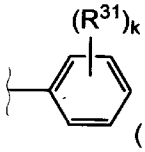
[化37]

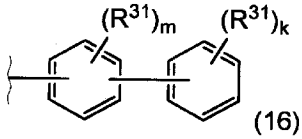

(11)

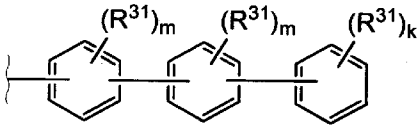

(12)

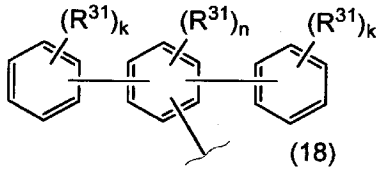

(13)

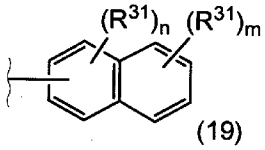

(14)

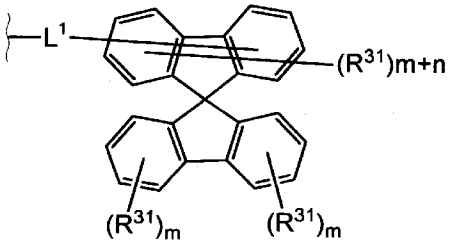

(15)

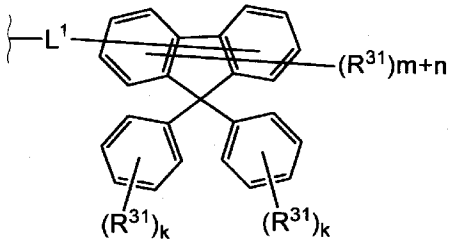

(16)


(17)


(18)


(19)


(20)


(21)

（式（１１）～（２１）中、

Ｒ^{31}は、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置

換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、又はシアノ基である。複数のＲ^{31}が存在する場合、該複数のＲ^{31}は互いに同一でも異なってもいてもよい。

ｋは０～５の整数である。ｍは０～４の整数である。ｎは０～３の整数である。

Ｘ’は、酸素原子又は硫黄原子である。

Ｌ^{1}は前記式（１）のＬと同じである。

Ｒ^{41}は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、又はシアノ基である。

Ｒ^{43}，Ｒ^{45}は、それぞれ、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数３～５０の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ基、又はシアノ基である。Ｒ^{43}とＲ^{45}は環を形成してもよい。

式（１１）において、Ｒ^{31}はカルバゾール骨格の任意の位置に結合してよく、Ｌ^{1}はカルバゾール骨格の任意の位置に結合してよい。

式（１３）において、Ｒ^{31}はジベンゾフラン骨格又はジベンゾチオフェン骨格の任意の位置に結合してよく、Ｌ^{1}はジベンゾフラン骨格又はジベンゾチオフェン骨格の任意の位置に結合してよい。

式（２０）において、Ｒ^{31}はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよく、Ｌ^{1}はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよい。

式（２１）において、Ｒ^{31}はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよく、Ｌ^{1}はフルオレン骨格の任意の位置に結合してよい。

式（１２），（１４）～（２１）において、Ｒ^{31}はベンゼン環の任意の位置に結合してよく、Ｌ^{1}はベンゼン環の任意の位置に結合してよい。）

[請求項3] Ａｒ^{1}が、前記式（１６）である請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項4] Ａｒ^{1}が前記式（１４）～（１９）のいずれかである請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

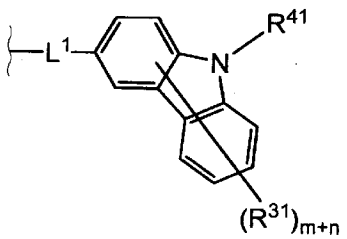
[請求項5] Ａｒ^{1}とＡｒ^{2}が、それぞれ、前記式（１４）～（１９）のいずれかである請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項6] Ａｒ^{1}とＡｒ^{2}が、それぞれ、前記式（１１）～（１３）のいずれかである請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項7] Ａｒ^{1}とＡｒ^{2}が、それぞれ、前記式（２０）及び（２１）のいずれかである請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項8] Ａｒ^{1}が前記式（１１）で表される基であり、前記式（１１）で表される基が、Ｌ^{1}がカルバゾール骨格の３位で結合する下記式である請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化38]



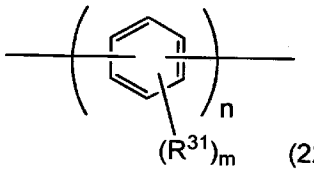
[請求項9] Ａｒ^{1}とＡｒ^{2}が、同じである請求項３～８のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項10] Ａｒ^{1}が前記式（１６）であり、Ａｒ^{2}が前記式（１４）～（２１）のいずれかである請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項11] Ａｒ[1]が前記式（１４）～（１９）のいずれかであり、Ａｒ[2]が前記式（１１）～（１３）のいずれかである請求項２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項12] 前記式（１）において、Ｌが、下記式（２２）で表される基である請求項１～１１のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化39]



(22)

（式中、Ｒ[31]は、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のフルオロアルコキシ基、又はシアノ基である。複数のＲ[31]が存在する場合、該複数のＲ[31]は互いに同一でも異なってもいてもよい。

ｍは０～４の整数である。ｎは０～３の整数である。

ｎが０のとき、Ｌは単結合である。ｎが複数のとき複数のＲ[31]，ｍは同じでも異なってもよい。）

[請求項13] 前記式（２２）において、ｎが複数のとき、ｎ個のベンゼン環が互いにパラ位で結合する請求項１２に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項14] 前記式（１）において、Ｌが、単結合である請求項１～１３のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項15] 前記式（１）において、Ａｒ[1]，Ａｒ[2]及びＬの「置換もしくは無置換」の置換基、並びにＲ[11]～Ｒ[17]の置換基が、それぞれ、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、置換もしくは無

置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数６～５０のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、及びカルボキシル基から選択される１以上である請求項１～１４のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

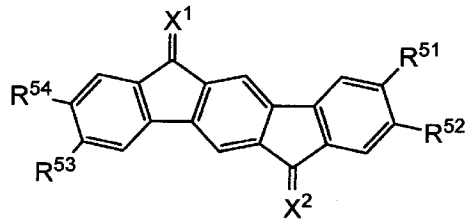
[請求項16] 前記式（１００）において、R^{21}～R^{30}は、それぞれ、

水素原子、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基、シアノ基、又は、

フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基である請求項１～１５のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項17] 前記式（１００）で表される化合物が、下記式（１０１）で表される化合物である請求項１～１５のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化40]



(101)

（式中、R^{51}～R^{54}は、それぞれ、

水素原子、フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基、シアノ基、又は、

フッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基である。

X^1及びX^2は、前記式（１００）のX^1及びX^2と同じである。）

[請求項18] 前記式（１０１）において、R^{51}又はR^{52}の一方がフッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基であり、他方が水素であり、

R^{53}又はR^{54}の一方がフッ素原子、フルオロアルキル基、フルオロアルコキシ基及びシアノ基から選ばれる基で１以上置換されてもよいアリール基であり、他方が水素である請求項１７に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項19] 前記式（１００）又は式（１０１）のX^1及びX^2が、前記式（ａ）である請求項１～１８のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項20] 前記発光層がピレン誘導体、スチリルアミン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、フルオレン誘導体、ジアミン誘導体及びトリアリールアミン誘導体から選択される１以上の化合物を含む請求項１～１９のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

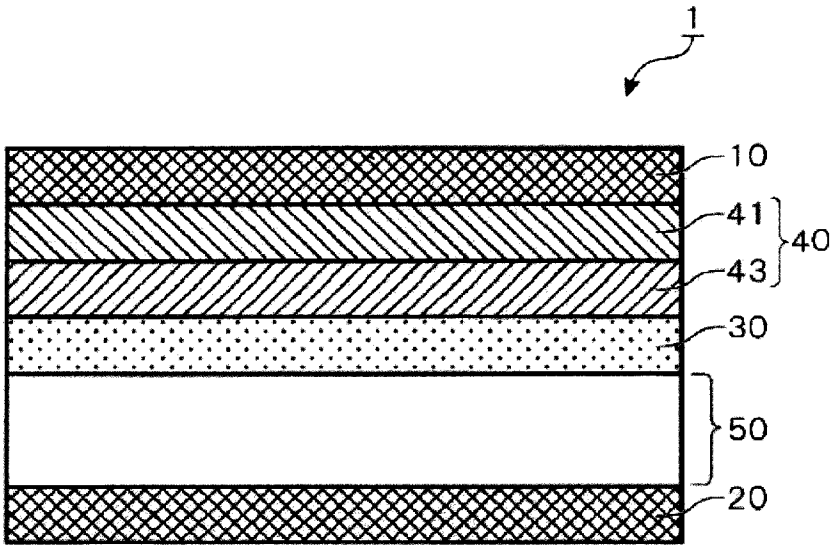
[請求項21] 前記発光層がイリジウム錯体、オスミウム錯体及び白金錯体から選択される１以上の化合物を含む請求項１～２０のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項22] 前記正孔輸送層を２以上有し、

前記２以上の正孔輸送層のうちいずれか１つの層が前記式（１）で表される化合物を含む請求項１～２１のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項23] 請求項１～２２のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備する表示装置又は発光装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/081152

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01L51/50(2006.01)i, *C07D307/91*(2006.01)i, *C07D403/14*(2006.01)i, *C09K11/06*(2006.01)i, *C07C211/61*(2006.01)n, *C07C255/35*(2006.01)n

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, C07D307/91, C07D403/14, C09K11/06, C07C211/61, C07C255/35

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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.
Y	WO 2013/118846 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 15 August 2013 (15.08.2013), paragraphs [0010], [0022] to [0040], [0043] to [0046], [0050], [0064] to [0065], [0067] to [0071], [0073] to [0080], [0085], [0131] to [0132] & US 2015/0287921 A1 paragraphs [0010] to [0011], [0055] to [0086], [0095] to [0098], [0121], [0132] to [0133], [0224] to [0227] & JP 2013-234169 A & EP 2816025 A1 & CN 104093696 A & KR 10-2014-0119731 A & TW 201341348 A	1-23

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
04 January 2017 (04.01.17)	17 January 2017 (17.01.17)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/081152

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2009/011327 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 22 January 2009 (22.01.2009), paragraphs [0012] to [0021], [0098] & US 2010/0019659 A1 paragraphs [0021] to [0052], [0198] & US 2011/0275814 A1 & US 2012/0306362 A1 & JP 2013-100288 A & JP 5289979 B & EP 2045848 A1 & CN 101548408 A & KR 10-2010-0031653 A & TW 200925241 A	1-23
Y	JP 2013-544757 A (Merck Patent GmbH), 19 December 2013 (19.12.2013), paragraphs [0004], [0107] to [0109] & US 2013/0207046 A1 paragraphs [0004], [0131] to [0135] & WO 2012/034627 A1 & EP 2616428 A & DE 102010045405 A1 & TW 201229007 A & CN 103108859 A & KR 10-2013-0099098 A & KR 10-2016-0114729 A	7
Y	WO 2014/034791 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 06 March 2014 (06.03.2014), paragraphs [0038] to [0039], [0042] to [0044], [0046] to [0049], [0052] to [0054], [0056] to [0058], [0061] to [0063], [0065] to [0068], [0071] to [0073], [0075] & US 2015/0228899 A1 paragraphs [0079] to [0080]	7
A	JP 2013-258269 A (UDC Ireland Ltd.), 26 December 2013 (26.12.2013), entire text; all drawings & US 2013/0328027 A1 entire text; all drawings	1-23
A	JP 2015-128113 A (Samsung Display Co., Ltd.), 09 July 2015 (09.07.2015), entire text; all drawings & US 2015/0188057 A1 entire text; all drawings & KR 10-2015-0077269 A	1-23
A	WO 2010/064655 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 10 June 2010 (10.06.2010), entire text & US 2011/0284827 A1 entire text & US 2014/0001461 A1 & JP 5343089 B & EP 2371812 A1 & CN 102239140 A & KR 10-2011-0099239 A	1-23

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０８１１５２

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, C07D307/91(2006.01)i, C07D403/14(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, C07C211/61(2006.01)n, C07C255/35(2006.01)n

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, C07D307/91, C07D403/14, C09K11/06, C07C211/61, C07C255/35

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１７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
Y	WO 2013/118846 A1（出光興産株式会社）2013.08.15, 段落[0010], [0022]－[0040], [0043]－[0046], [0050], [0064]－[0065], [0067]－[0071], [0073]－[0080], [0085], [0131]－[0132] & US 2015/0287921 A1（段落[0010]－[0011], [0055]－[0086], [0095]－[0098], [0121], [0132]－[0133], [0224]－[0227]）& JP 2013-234169 A & EP 2816025 A1 & CN 104093696 A & KR 10-2014-0119731 A & TW 201341348 A	1-23

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
０４．０１．２０１７	１７．０１．２０１７

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　２Ｏ　４０７４
大竹　秀紀
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３２７１

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
Y	WO 2009/011327 A1 (出光興産株式会社) 2009.01.22, 段落[0012]－[0021], [0098] & US 2010/0019659 A1 (段落[0021]－[0052], [0198]) & US 2011/0275814 A1 & US 2012/0306362 A1 & JP 2013-100288 A & JP 5289979 B & EP 2045848 A1 & CN 101548408 A & KR 10-2010-0031653 A & TW 200925241 A	1-23
Y	JP 2013-544757 A (メルク　パテント　ゲーエムベーハー) 2013.12.19, 段落［０００４］, ［０１０７］－［０１０９］ & US 2013/0207046 A1 (段落[0004], [0131]－[0135]) & WO 2012/034627 A1 & EP 2616428 A & DE 102010045405 A1 & TW 201229007 A & CN 103108859 A & KR 10-2013-0099098 A & KR 10-2016-0114729 A	7
Y	WO 2014/034791 A1 (出光興産株式会社) 2014.03.06, 段落[0038]－[0039], [0042]－[0044], [0046]－[0049], [0052]－[0054], [0056]－[0058], [0061]－[0063], [0065]－[0068], [0071]－[0073], [0075] & US 2015/0228899 A1 (段落[0079]－[0080])	7
A	JP 2013-258269 A (ユー・ディー・シー　アイルランド　リミテッド) 2013.12.26, 全文全図 & US 2013/0328027 A1 (全文全図)	1-23
A	JP 2015-128113 A (三星ディスプレイ株式會社) 2015.07.09, 全文全図 & US 2015/0188057 A1 (全文全図) & KR 10-2015-0077269 A	1-23
A	WO 2010/064655 A1 (出光興産株式会社) 2010.06.10, 全文 & US 2011/0284827 A1 (全文) & US 2014/0001461 A1 & JP 5343089 B & EP 2371812 A1 & CN 102239140 A & KR 10-2011-0099239 A	1-23