(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 8 月 24 日(24.08.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/141876 A1

(51) 国際特許分類:
C07D 251/24 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
C07C 211/61 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/005168

(22) 国際出願日: 2017 年 2 月 13 日(13.02.2017)

(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 2016-029057 2016 年 2 月 18 日(18.02.2016) 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: 高橋　良多(TAKAHASHI, Ryota); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 加藤　朋希(KATO, Tomoki); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 伊藤　裕勝(ITO, Hirokatsu); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 河村　昌宏(KAWAMURA, Masahiro); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 舟橋　正和(FUNAHASHI, Masakazu); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 齊藤　博之(SAITO, Hiroyuki); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 河村　祐一郎(KAWAMURA, Yuichiro); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 高橋　良明(TAKAHASHI, Yoshiaki); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 増田　哲也(MASUDA, Tetsuya); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 熊　均(KUMA, Hitoshi); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 大谷　保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号 虎ノ門ＥＳビル７階　特許業務法人大谷特許事務所 Tokyo (JP).

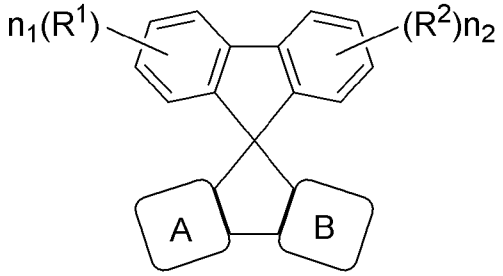
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA,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

(54) **Title**: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ELECTRONIC DEVICE

(54) 発明の名称 : 有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器



(1)

(57) **Abstract**: Provided are: a compound represented by formula (1); an organic electroluminescent (EL) element which has a long service life and higher luminous efficiency at low voltage; an electronic device which is provided with this organic EL element; and a compound which enables the achievement of this organic EL element. (In formula (1), A, B, R_1 and R_2 are as defined in the description.)

(57) 要約: 下記式（１）で表される化合物であり、低電圧で発光効率がより一層高く、寿命が長い有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子及び該有機ＥＬ素子を備えた電子機器、並びに前記有機ＥＬ素子を提供し得る化合物を提供する。（上記式中、Ａ、Ｂ、R_1、及びR_2は、明細書中で定義したとおりである。）

WO 2017/141876 A1

明　細　書

発明の名称 ： 有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

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該有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた電子機器に関する。更には、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として使用し得る化合物に関する。

背景技術

[0002]　一般に有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子は、陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟まれた１層以上の有機薄膜層から構成されている。両電極間に電圧が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が発光領域に注入され、注入された電子と正孔は発光領域において再結合して励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際に光を放出する。

　また、有機ＥＬ素子は、発光層に種々の発光材料を用いることにより、多様な発光色を得ることが可能であることから、ディスプレイなどへの実用化研究が盛んである。特に赤色、緑色、青色の三原色の発光材料の研究が最も活発であり、特性向上を目指して鋭意研究がなされている。

[0003]　有機ＥＬ素子における最大の課題の一つは、高発光効率を得ることである。発光効率の高い発光素子を得る手段としては、ホスト材料にドーパント材料を数％ドーピングすることにより発光層を形成する方法が知られている。

　このような有機ＥＬ素子用の材料として、例えば特許文献１～５に記載の化合物などが知られている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：韓国特許第１０－２０１４－０１１５６３６号公報

特許文献2：中国特許第１０１１０４６７６号公報

特許文献3：米国特許第２０１２／０１８１５２０号公報

特許文献4：国際公開第２０１５／０４１３５８号

特許文献5：米国特許第７８３８１３０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本願発明者らの更なる検討により、特許文献１～４に開示された化合物には、電圧、発光効率及び寿命の点で更なる改善の余地があることが判明した。

そこで、本発明の課題は、低電圧で発光効率が高く寿命が長い有機ＥＬ素子及び該有機ＥＬ素子を備えた電子機器、並びに前記有機ＥＬ素子を提供し得る化合物を提供することにある。

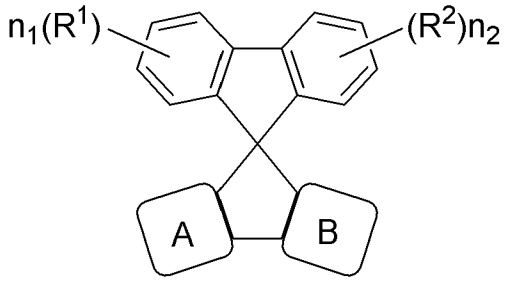
課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、前記課題を解決するために、鋭意研究を重ねた結果、スピロ結合を有するジベンゾフルオレン環を母骨格とする化合物に、特定の置換基を導入した下記式（１）で表される化合物を有機ＥＬ素子の材料として用いることで、上記課題を解決し得ることを見出した。

[0007] 本発明の一態様は、下記［１］～［４］の通りである。

［１］下記式（１）で表される化合物。

[化1]



(1)

［式（１）において、Ａ及びＢは、それぞれ置換もしくは無置換のナフタレン環、または置換もしくは無置換のフェナントレン環を表す。該ナフタレン環、またはフェナントレン環上の置換基は、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル

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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

Ａ及びＢの示すナフタレン環及びフェナントレン環上の置換基が複数ある場合、該置換基は互いに結合して、環構造を形成してもよい。

R^1及びR^2は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数５～３０のヘテロアリール基、又は－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

Ｚは、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基、又はこれらが２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

Ｚが複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

R^aは、－Ｎ（R_{104}）（R_{105}）で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

R^aが複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

R_{101}～R_{105}は、それぞれ独立に、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３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０のヘテロアリール基を示す。

ただし、Ａ及びＢ上の置換基のうち少なくとも１つは、$-Z-R^a$で表される基である。

また、$-Z-R^a$が複数存在するとき、それぞれの$-Z-R^a$は同一であっても異なっていてもよい。

ｎ１及びｎ２は、それぞれ０～４の整数である。］

［２］上記［１］に記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

［３］陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも１層が、上記［１］に記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

［４］上記［３］に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた電子機器。

発明の効果

[0008] 本発明の有機ＥＬ素子は、低電圧で高い発光効率を有し長寿命である。本発明の有機ＥＬ素子の材料として用いる本発明の化合物は、キャリア移動度が高く、発光層のホスト材料のほか、電子輸送材料や正孔輸送材料などとしても有用である。特に、本発明の化合物は、発光層のドーパント材料として用いると、低電圧で高い発光効率が得られ、長寿命である。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の構成を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0010] 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。

また、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。

[0011] 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。

[0012] また、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、ピリジン環の環形成原子数は６であり、キナゾリン環の環形成原子数は１０であり、フラン環の環形成原子数は５である。ピリジン環やキナゾリン環の炭素原

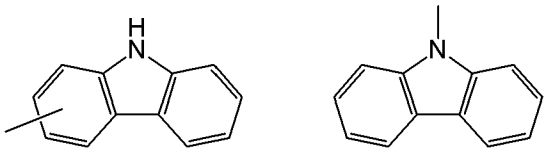
子にそれぞれ結合している水素原子や置換基を構成する原子については、環形成原子数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の原子数は環形成原子数の数に含めない。

[0013] また、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）及び三重水素（ｔｒｉｔｉｕｍ）を包含する。

本明細書中において、「ヘテロアリール基」、「ヘテロアリーレン基」及び「複素環基」は、環形成原子として、少なくとも１つのヘテロ原子を含む基であり、該ヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子から選ばれる１種以上であることが好ましい。

[0014] 本明細書中において、「置換もしくは無置換のカルバゾリル基」は、下記のカルバゾリル基、

[化2]

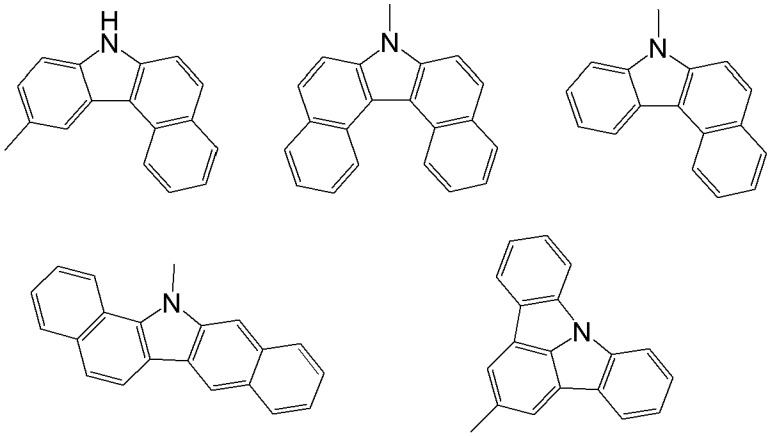


及び上記の基に対して、さらに任意の置換基を有する置換カルバゾリル基を表す。

なお、当該置換カルバゾリル基は、任意の置換基同士が互いに結合して縮環してもよく、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子等のヘテロ原子を含んでもよく、また、結合位置は１位～９位のいずれであってもよい。このような置換カルバゾリル基の具体例として、例えば、下記に示す基が挙げられる。

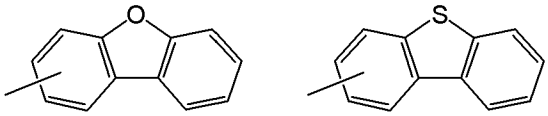
[0015]

[化3]



[0016] 本明細書において、「置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基」及び「置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基」は、下記のジベンゾフラニル基及びジベンゾチオフェニル基、

[化4]



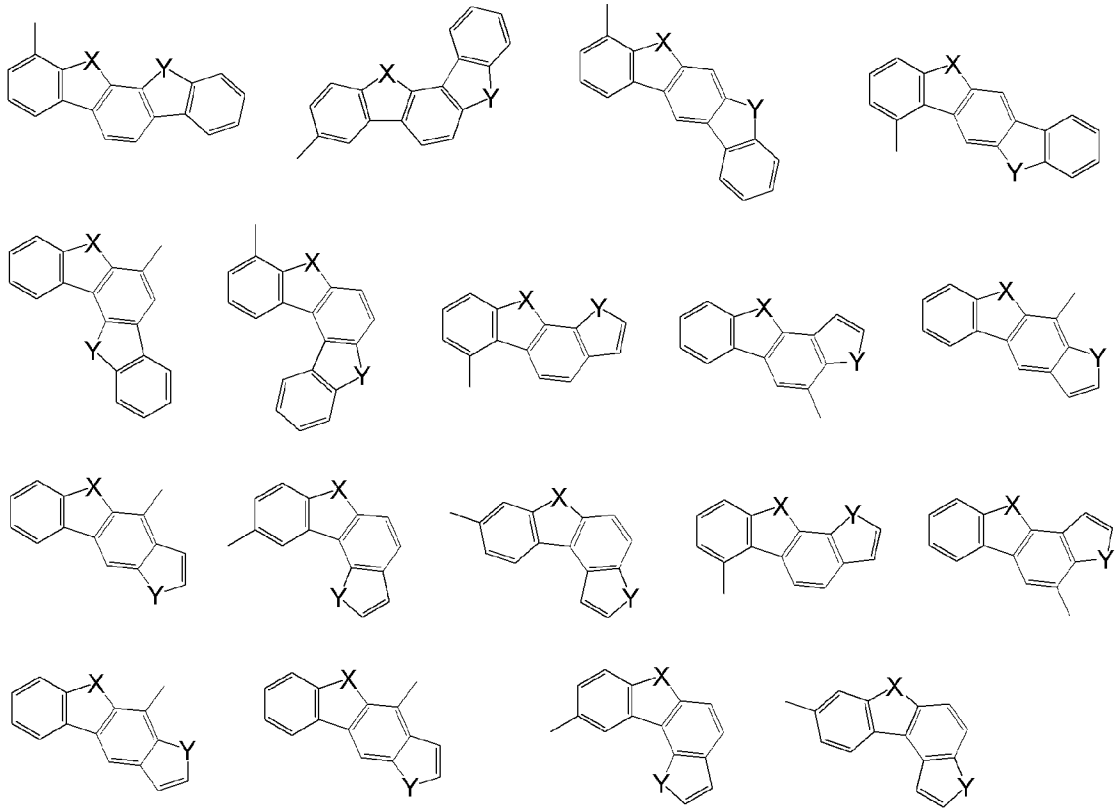
及び上記の基に対して、さらに任意の置換基を有する置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基を表す。

なお、当該置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基は、任意の置換基同士が互いに結合して縮環してもよく、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子等のヘテロ原子を含んでもよく、また、結合位置は１位～８位のいずれであってもよい。

このような置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基の具体例として、例えば、下記に示す基が挙げられる。

[0017]

[化5]



［上記式中、Ｘは酸素原子又は硫黄原子を表し、Ｙは酸素原子、硫黄原子、ＮＨ、ＮＲ^{a}（Ｒ^{a}はアルキル基又はアリール基である。）、ＣＨ$_{2}$、又は、ＣＲ$^{b}{}_{2}$（Ｒ^{b}はアルキル基又はアリール基である。）を表す。］

[0018] また、「置換基」、又は「置換もしくは無置換」との記載における置換基としては、炭素数１～５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基；環形成炭素数３～５０（好ましくは３～１０、より好ましくは３～８、さらに好ましくは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６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基；環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基を有する炭素数７～５１（好ましくは７～３０、より好ましくは７～２０）のアラルキル基；アミノ基；炭素数１～５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基及び環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基；炭素数１～５０（好ましくは１～

１８、より好ましくは１～８）のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）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１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基及び環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換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５～１３）のヘテロアリール基；炭素数１～５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のハロアルキル基；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；炭素数１～５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基及び環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基から選ばれる置換基を有するスルホニル基；炭素数１～５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基及び環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基；アルキルスルホニルオキシ基；アリールスルホニルオキシ基；アルキルカルボニルオキシ基；アリールカルボニルオキシ基；ホウ素含有基；亜鉛含有基；スズ含有基；ケイ素含有基；マグネシウム含有基；リチウム含有基；ヒドロキシ基；アルキル置換又はアリール置換カルボニル基；カルボキシル基；ビニル基；（メタ）アクリロイル基；エポキシ基；並びにオキセタニル基からなる群より選ばれる少なくとも１つが好ましいが、特にこれらに制限されるものではない。

これらの置換基は、さらに上述の任意の置換基により置換されていてもよい。また、これらの置換基は、複数の置換基が互いに結合して環を形成していてもよい。

「置換もしくは無置換の」という場合における「無置換」とは前記置換基で置換されておらず、水素原子が結合していることを意味する。

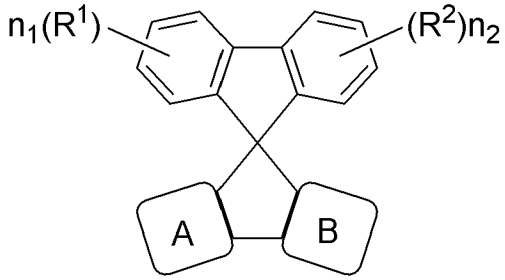
[0019] 上記置換基の中でも、より好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数１～

５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数３～５０（好ましくは３～１０、より好ましくは３～８、さらに好ましくは５又は６）のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０（好ましくは１～１８、より好ましくは１～８）のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２５、より好ましくは６～１８）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～２４、より好ましくは５～１３）のヘテロアリール基、ハロゲン原子、シアノ基である。

[0020] 本明細書中、好ましいとする態様（例えば、化合物、各種基、数値範囲等）は、他のあらゆる態様（例えば、化合物、各種基、数値範囲等）と任意に組み合わせることができ、また、好ましいとする態様（より好ましい態様、更に好ましい態様、特に好ましい態様を含む。）の組み合わせはより好ましいと言える。

[0021] 本発明の化合物は、下記式（１）で表される。

[化6]



(1)

［式（１）において、Ａ及びＢは、それぞれ置換もしくは無置換のナフタレン環、または置換もしくは無置換のフェナントレン環を表す。該ナフタレン環、またはフェナントレン環上の置換基は、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル

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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

Ａ及びＢの示すナフタレン環及びフェナントレン環上の置換基が複数ある場合、該置換基は互いに結合して、環構造を形成してもよい。

R^1及びR^2は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数５～３０のヘテロアリール基、又は－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

Ｚは、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基、又はこれらが２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

Ｚが複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

R^aは、－Ｎ（R_{104}）（R_{105}）で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

R^aが複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

R_{101}～R_{105}は、それぞれ独立に、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３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０のヘテロアリール基を示す。

但し、Ａ及びＢ上の置換基のうち少なくとも１つは、$-Z-R^a$で表される基である。

また、$-Z-R^a$が複数存在するとき、それぞれの$-Z-R^a$は同一であっても異なっていてもよい。

ｎ１及びｎ２は、それぞれ０～４の整数である。]

[0022] 式（１）中、R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基並びにR_{101}～R_{105}が示す炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のアルキル基としては、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（異性体基を含む）、ヘキシル基（異性体基を含む）、ヘプチル基（異性体基を含む）、オクチル基（異性体基を含む）、ノニル基（異性体基を含む）、デシル基（異性体基を含む）、ウンデシル基（異性体基を含む）、及びドデシル基（異性体基を含む）などが挙げられる。これらの中でも、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（いずれも異性体基を含む）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、エチル基、イソプロピル基及びｔ－ブチル基が特に好ましい。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基並びにR_{101}～R_{105}が示す環形成炭素数３～２０（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としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基などが挙げられる。これらの中でも、シクロペンチル基、シクロヘキシル

基が好ましい。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記炭素数１～２０のアルキル基であるアルコキシ基が挙げられる。好ましいアルコキシ基の具体例としては、アルキル基部位が、前記好ましいアルキル基であるものが挙げられる。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のフルオロアルキル基としては、前記アルキル基の水素原子がフッ素で置換された基が挙げられ、その場合の好ましいアルキル基としては前記と同じである。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のフルオロアルコキシ基としては、前記アルコキシ基の水素原子がフッ素で置換された基が挙げられ、その場合の好ましいアルコキシ基としては前記と同じである。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す環形成炭素数６～３０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８、さらに好ましくは６～１０）のアリールオキシ基としては、アリール基部位が、後述するR^1及びR^2、R_{101}～R_{105}の環形成炭素数６～３０のアリール基であるものが挙げられる。好ましいアリールオキシ基の具体例としては、アリール基部位が、後述の好ましいアリール基であるものが挙げられる。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す炭素数１～２０（好ましくは炭素数１～１０、より好ましくは炭素数１～６）のアルキルチオ基としては、アルキル基部位が前記炭素数１～２０のアルキル基であるアルコキシ基が挙げられる。好ましいアルキルチオ基の具体例としては、アルキル基部位が、前記好ましいアルキル基であるものが挙げられる。

R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す環形成炭素数６～３０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８、さらに好ましくは６～１０）のアリールチオ基としては、アリール基部位が、後述するR^1及びR^2、R_{101}～R_{105}

の環形成炭素数６～３０のアリール基であるものが挙げられる。好ましいアリールチオ基の具体例としては、アリール基部位が、後述の好ましいアリール基であるものが挙げられる。

[0023] R^1及びR^2、Ａ及びＢの置換基が示す「－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基」としては、具体的には、モノアルキルシリル基、ジアルキルシリル基、トリアルキルシリル基；モノアリールシリル基、ジアリールシリル基、トリアリールシリル基；モノアルキルジアリールシリル基、ジアルキルモノアリールシリル基が挙げられる。

これら置換シリル基において、アルキル基部位の炭素数は、それぞれ、好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６である。アリール基部位の環形成炭素数は、それぞれ、好ましくは６～３０、より好ましくは６～２４、さらに好ましくは６～１８、特に好ましくは６～１０である。

これらの中でも、トリアルキルシリル基、トリアリールシリル基が好ましく、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、ｔ－ブチルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、トリトリルシリル基がより好ましい。

[0024] 式（１）中、R^aが示す「－Ｎ（R_{104}）（R_{105}）で表される基」としては、具体的には、モノアルキルアミノ基、ジアルキルアミノ基、モノアリールアミノ基、ジアリールアミノ基、モノヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、モノアルキルモノアリールアミノ基、モノアルキルモノヘテロアリールアミノ基、モノアリールモノヘテロアリールアミノ基が挙げられる。これら置換アミノ基中のアリール基部位は、炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のアルキル基などが置換していてもよい。

これら置換アミノ基において、アルキル基部位の炭素数は、それぞれ、好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６である。アリール基部位の環形成炭素数は、それぞれ、好ましくは６～３０、よ

り好ましくは６～２４、さらに好ましくは６～１８、特に好ましくは６～１０である。ヘテロアリール基部位の環形成原子数は、それぞれ、好ましくは５～３０、より好ましくは５～２４、さらに好ましくは５～１２である。

これらの中でも、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、モノアリールモノヘテロアリールアミノ基が好ましく、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ビス（アルキル置換フェニル）アミノ基、ビス（アリール置換フェニル）アミノ基がより好ましい。

なお、式（１）中、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基が複数存在する場合、これらは互いに同一でも異なっていてもよい。また、式（１）中、－Ｎ（R_{104}）（R_{105}）で表される基が複数存在する場合、これらは互いに同一でも異なっていてもよい。

[0025] R^1及びR^2、R_{101}～R_{105}が示す環形成炭素数６～３０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８、さらに好ましくは６～１０）のアリール基は、縮合環であっても非縮合環であってもよい。該アリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、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［ｃ］フェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、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［ｇ］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、ベンゾ［ｋ］フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾ［ｂ］トリフェニレニル基及びペリレニル基などが挙げられる。これらの中でも、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、ナフチル基、アントリル基、ピレニル基、フルオランテニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基がより好ましく、フェニル基がさらに好ましい。

[0026] R^1及びR^2、R_{101}～R_{105}が示す環形成原子数５～３０（好ましくは５～２４、より好ましくは５～１２）のヘテロアリール基は、少なくとも１個、

好ましくは１～５個、より好ましくは１～４個、さらに好ましくは１～３個のヘテロ原子を含む。該ヘテロ原子としては、例えば、窒素原子、硫黄原子及び酸素原子が挙げられ、窒素原子、酸素原子が好ましい。

該ヘテロアリール基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾピリジル基、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、テトラゾリル基、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、イソ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、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、９－フェニルカルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基及びキサンテニル基などが挙げられる。これらの中でも、ピリジル基、イミダゾピリジル基、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、ベンズイミダゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、９－フェニルカルバゾリル基、フェナントロリニル基、キナゾリニル基が好ましい。

[0027] 式（１）中、Ｚが表す環形成炭素数６～３０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８、さらに好ましくは６～１０）のアリーレン基としては、前記アリール基から水素原子を１つ除いてなる２価の基が挙げられる。これらの中でも、フェニレン基、ナフチレン基、アントリレン基、フェナントリレン基、ピレニレン基、９位に置換基を２つ有するフルオレニレン基が好ましく、１，４－フェニレン基、１，３－フェニレン基、１，２－フェニレン基、１，４－ナフチレン基、２，６－ナフチレン基、９，９－ジメチル－

２，７－フルオレニレン基、９，９－ジフェニル－２，７－フルオレニレン基がより好ましい。

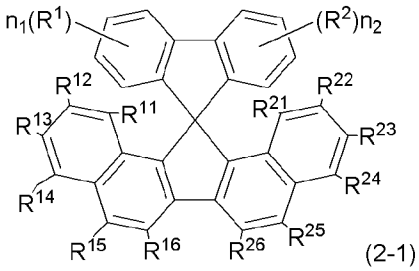
Ｚが表す環形成原子数５～３０（好ましくは５～２４、より好ましくは５～１２）のヘテロアリーレン基としては、前記ヘテロアリール基から水素原子を１つ除いてなる２価の基が挙げられる。これらの中でも、ピリジニレン基、ピリミジニレン基、ピラジニレン基、ピリダジニレン基、トリアジニレン基、フェナントロリニレン基、ジベンゾフラニレン基、ジベンゾチオフェニレン基が好ましく、ピリジニレン基、ピリミジニレン基、トリアジニレン基、ジベンゾフラニレン基、ジベンゾチオフェニレン基がより好ましい。なお、該ヘテロアリーレン基の置換基としては、前記置換基の中でも、環形成炭素数６～３０のアリール基が好ましく、環形成炭素数６～２４のアリール基がより好ましく、環形成炭素数６～１２のアリール基がさらに好ましく、フェニル基が特に好ましい。

Ｚは、該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の基であってもよい。該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の基としては、－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－、－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－、－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－アリーレン基、－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－、－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－、－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－などが挙げられる。

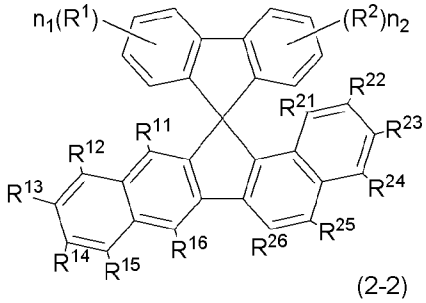
式（１）中、R^aが示す、アリール基、ヘテロアリール基の例としては、いずれも、R^1及びR^2と同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。

[0028] 前記式（１）で表される化合物としては、好ましくは、下記式（２－１）～（２－１０）のいずれかで表される化合物である。

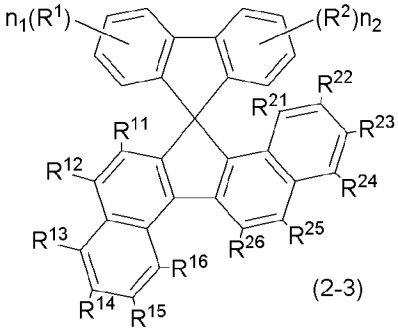
[化7]



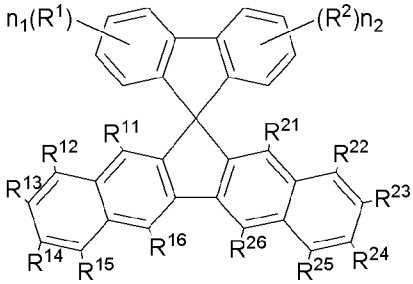
(2-1)



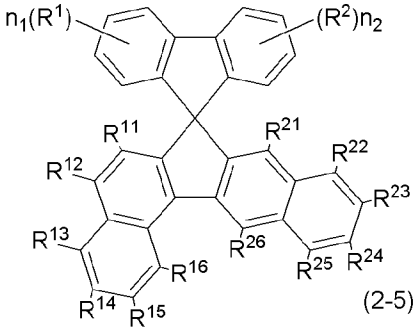
(2-2)



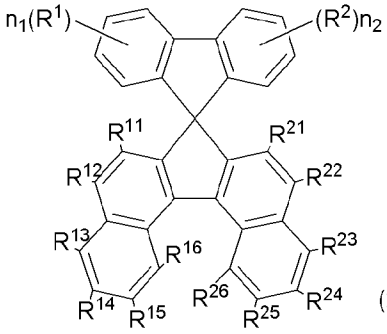
(2-3)



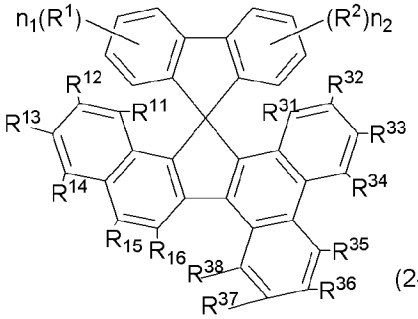
(2-4)



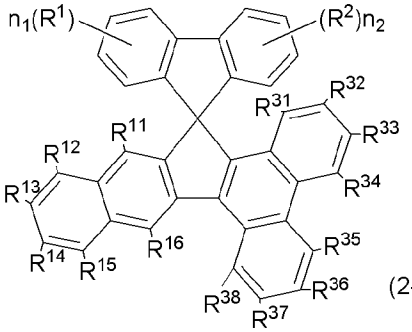
(2-5)



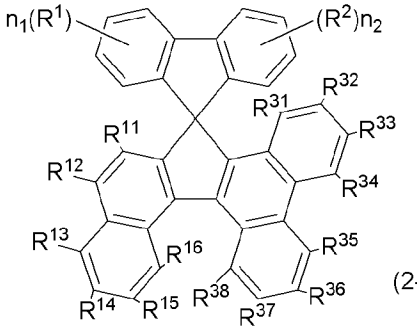
(2-6)



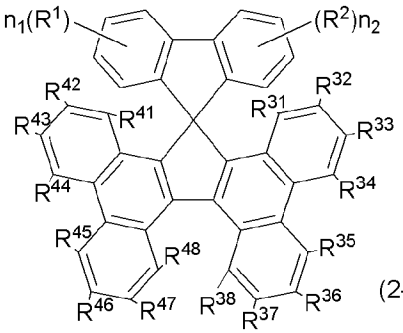
(2-7)



(2-8)



(2-9)



(2-10)

[0029] ［式（２－１）～（２－１０）において、R^1、R^2、ｎ１、ｎ２は前記式（１）と同じである。

R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

R_{101}～R_{103}、Ｚ及びR^aは、前記と同じである。

ただし、前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}及びR^{21}～R^{26}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基であり、式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}及びR^{31}～R^{38}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基であり、式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}及びR^{31}～R^{38}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}の隣接するものは、互いに結合して、環構造を形成してもよい。］

[0030] 前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが－Ｚ－R^aで表される基であるか、又はR^{21}～R^{26}のうちの１つが－Ｚ－R^aで表される基であ

ると好ましい。

式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であるか、又はR^{31}～R^{38}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であると好ましい。

式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であるか、又はR^{31}～R^{38}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であると好ましい。

[0031] 前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であり、かつR^{21}～R^{26}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であると好ましい。

式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であり、かつR^{31}～R^{38}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であると好ましい。

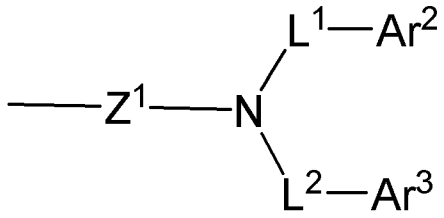
式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であり、かつR^{31}～R^{38}のうちの１つが－Ｚ－R^{a}で表される基であると好ましい。

[0032] 前記式（２－１）～（２－１０）において、R^{1}、R^{2}は、式（１）中のものと同じであり、好ましい基も同じである。

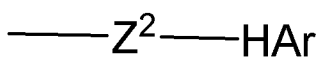
また、R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}の各基の例としては、前述のＡ及びＢの置換基と同じものが挙げられ、好ましい基も同じである。

[0033] また、前記－Ｚ－R^{a}で表される基が、下記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

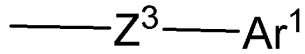
[化8]



(a)



(b)



(c)

[0034] （式（ａ）～（ｃ）において、Ｚ^{1}～Ｚ^{3}は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基又は該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

Ｌ^{1}及びＬ^{2}は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基、又は該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

ＨＡｒは、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

Ａｒ^{1}は、置換もしくは無置換の環形成炭素数１４～３０のアリール基を示す。）

[0035] ここで、式（ａ）～（ｃ）中のＺ^{1}～Ｚ^{3}は、いずれも前記式（１）中のＺの定義と同じであり、好ましいものも同じである。特に、式（ａ）において、Ｚ^{1}は単結合又は環形成炭素数６～３０のアリーレン基が好ましく、単結合がより好ましい。式（ｂ）において、Ｚ^{2}は単結合又は環形成炭素数６～３０

のアリーレン基が好ましい。式（ｃ）において、Ｚ^{3}は単結合又は環形成炭素数６～３０のアリーレン基が好ましく、環形成炭素数６～３０のアリーレン基がより好ましい。

式（ａ）中のＬ^{1}及びＬ^{2}が示す環形成炭素数６～３０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８、さらに好ましくは６～１０）のアリーレン基及び環形成原子数５～３０（好ましくは５～２４、より好ましくは５～１２）のヘテロアリーレン基の具体例としては、式（１）中のＺが示すアリーレン基及びヘテロアリーレン基と同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。Ｌ^{1}及びＬ^{2}が示す、「該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の基」としては、－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－、－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－、－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－アリーレン基、－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－、－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－、－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－ヘテロアリーレン基－アリーレン基－などが挙げられる。

[0036] 式（ａ）中のＡｒ^{2}及びＡｒ^{3}が示す環形成炭素数６～３０（好ましくは６～２０、より好ましくは６～１４）のアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニリル基（２－ビフェニリル基、４－ビフェニリル基）、ターフェニリル基、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［ｃ］フェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、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［ｇ］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、ベンゾ［ｋ］フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾ［ｂ］トリフェニレニル基及びペリレニル基などが挙げられる。これらの中でも、発光効率、素子寿命及び駆動電圧の観点から、フェニル基、ビフェニリル基（２－ビフェニリル基、４－ビフェニリル基）、ターフェニリル基、ナフチル基、アントリル基が好ましく、フェニル基、ビフェニリル基（２－ビフェニリル基、４－ビフェニ

リル基）がより好ましく、ビフェニリル基（２－ビフェニリル基、４－ビフェニリル基）がさらに好ましく、４－ビフェニリル基が特に好ましい。

特に、素子寿命の観点から該アリール基は置換基を有していることが好ましく、特に、該アリール基がフェニル基である場合には、置換基（好ましくは炭素数１～２０のアルキル基、環形成炭素数３～２０のシクロアルキル基、炭素数１～３０のアルコキシ基など）を有することによって、素子寿命が大きく改善される傾向にあり好ましい。

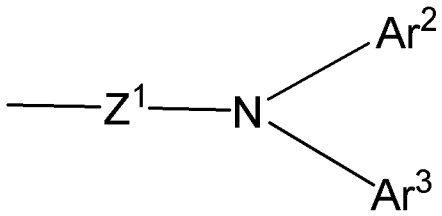
Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}が示す環形成原子数５～３０（好ましくは５～２０、より好ましくは５～１４）のヘテロアリール基としては、前記式（１）中のＲ^{1}が示すヘテロアリール基と同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。

式（ａ）において、Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基が好ましい。

また、Ｌ^{1}及びＬ^{2}がいずれも単結合であって、Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基又は置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基であると好ましい。

[0037] Ｌ^{1}及びＬ^{2}としては、いずれも単結合が好ましく、つまり式（ａ）としては、下記式（ａ’）が好ましい。

[化9]



(a')

［式（ａ’）中、Ｚ^{1}、Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}は、式（ａ）中のものと同じである。］

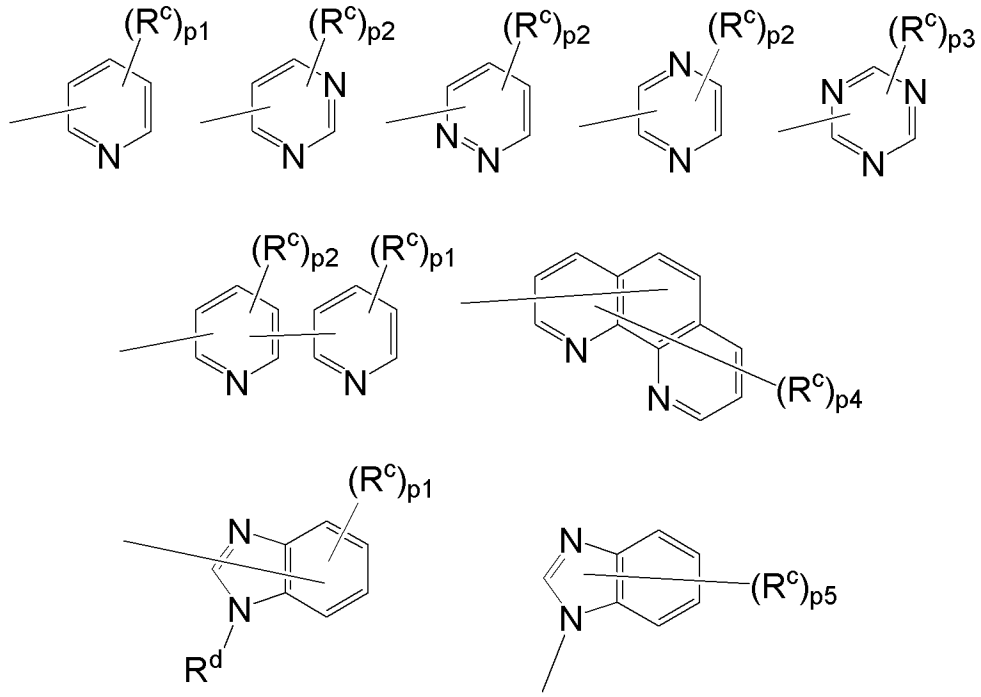
[0038] また、式（ｂ）中のＨＡｒが示す環形成原子数５～３０のヘテロアリール基としては、前記式（１）中のＲ^{1}及びＲ^{2}が示すヘテロアリール基と同じも

のが挙げられ、好ましいものも同じである。ＨＡｒとしては、より好ましくはピリジニル基、ピリミジニル基およびトリアジニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基である。

式（ｃ）中のＡｒ^{1}が示す環形成炭素数１４～３０のアリール基としては、前記式（１）中のＲ^{1}及びＲ^{2}が示すアリール基のうち、環形成炭素数が１４～３０のものと同じものが挙げられる。好ましくは環形成炭素数１４～２５のアリール基、より好ましくは環形成炭素数１４～２０のアリール基である。該アリール基としては、具体的には、好ましくはアントリル基、フェナントリル基、ピレニル基、フルオランテニル基、ベンゾ［ｋ］フルオランテニル基、より好ましくはアントリル基である。なお、特に制限されるものではないが、該Ａｒ^{1}は置換基を有していることが好ましく、特に、前記Ｚ^{3}が単結合である場合には該Ａｒ^{1}は置換基を有していることがより好ましく、その場合、環形成炭素数６～２５のアリール基を置換基として有していることが好ましく、フェニル基、ナフチル基、ビフェニリル基などの環形成炭素数６～１２のアリール基を置換基として有していることがより好ましい。

[0039] 式（ｂ）中の－ＨＡｒとしては、具体的には、下記の群から選択される基のいずれかであることが好ましい。

[化10]



（Ｒ^{c}は、それぞれ独立に、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、環形成炭素数６～３０のアリール基を有する置換もしくは無置換の炭素数７～３０のアラルキル基、アミノ基、炭素数１～２０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６～３０のアリール基を有するモノ又はジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数１～３０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、炭素数１～２０のアルキル基及び環形成炭素数６～３０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、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基、ハロゲン原子、シアノ基又はニトロ基を示す。

各基においてＲ^{c}が複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

Ｒ^{d}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３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

ｐ１は、それぞれ独立に０～４の整数、ｐ２は、それぞれ独立に０～３の整数、ｐ３は０～２の整数、ｐ４は０～７の整数、ｐ５は０～５の整数である。）

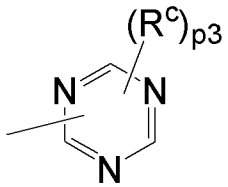
上記のいずれの基における結合手「－」は、Z^2を形成する任意の原子に結合し得る。また、上記R^cは、いずれの基においても、環上の任意の炭素原子に置換し得る。

[0040] 上記R^c及びR^dが示す各基の具体例としては、いずれも、式（１）中のR^1及びR^2が示すものと同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。

ｐ１～ｐ５は、いずれも好ましくは０～２の整数である。

[0041] 式（ｂ）中の－ＨＡｒとしては、上記の中でも、下記の基であることが好ましい。

[化11]



（式中、R^c及びｐ３は前記定義の通りである。）

[0042] 前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であるか、又はR^{21}～R^{26}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であるか、又はR^{31}～R^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ

）のいずれかで表される基であるか、又はＲ^{31}～Ｒ^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

[0043] 前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、Ｒ^{11}～Ｒ^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であり、かつＲ^{21}～Ｒ^{26}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

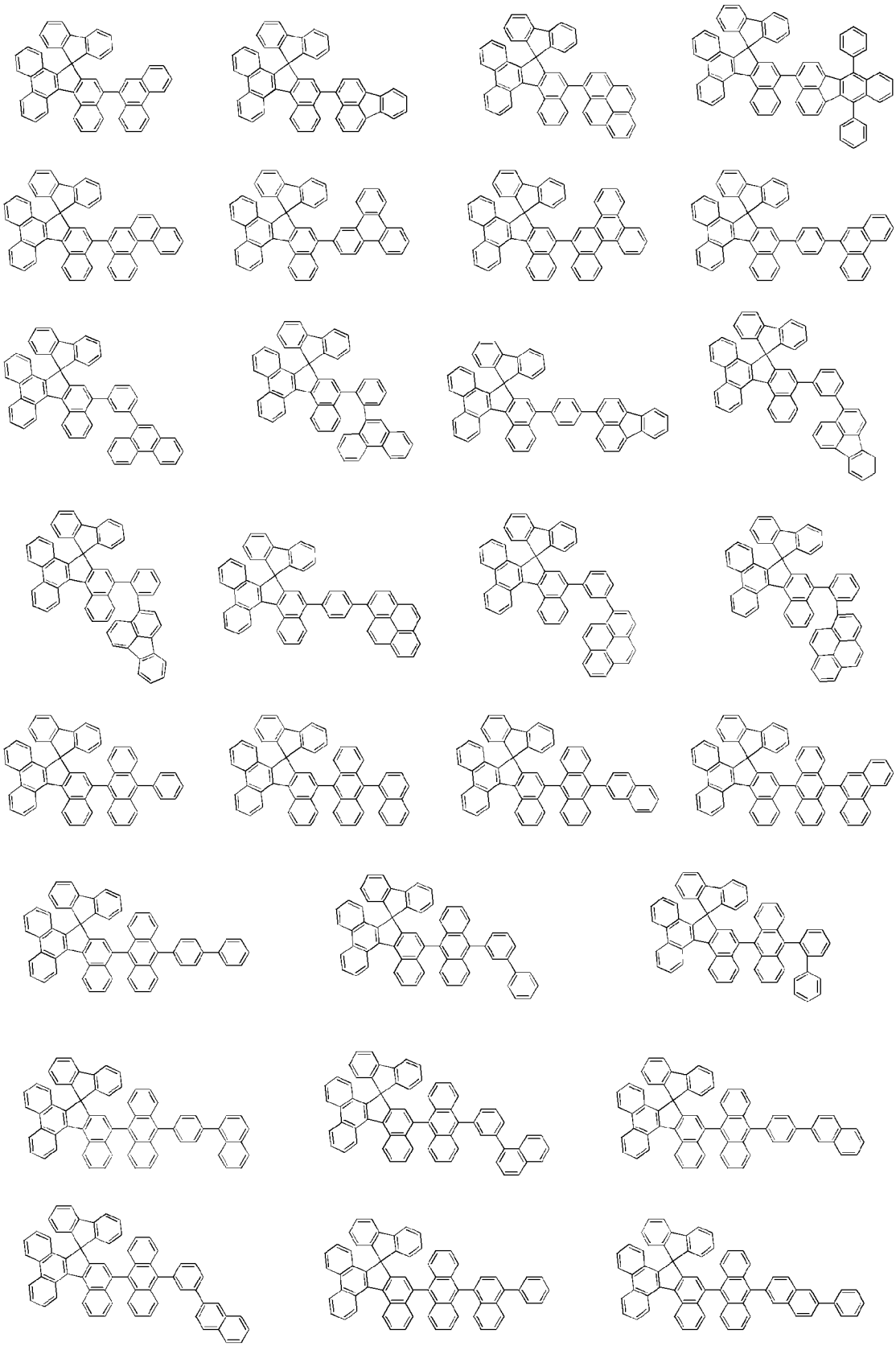
式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、Ｒ^{11}～Ｒ^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であり、かつＲ^{31}～Ｒ^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

式（２－１０）において、Ｒ^{41}～Ｒ^{48}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であり、かつＲ^{31}～Ｒ^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であると好ましい。

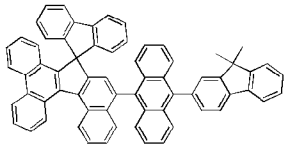
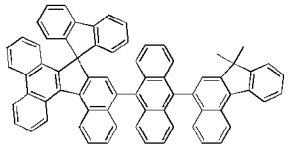
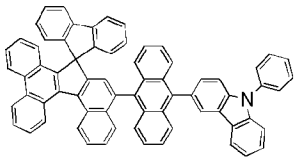
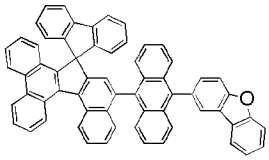
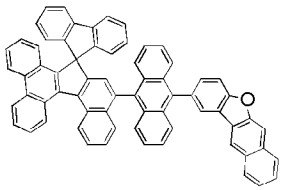
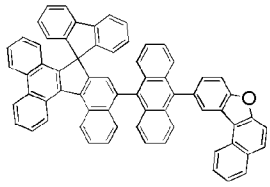
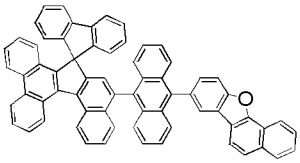
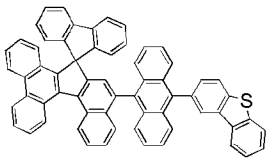
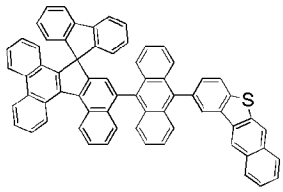
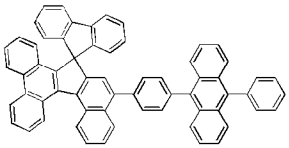
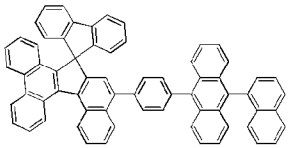
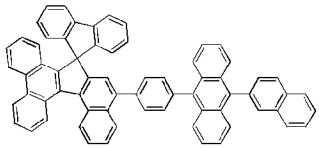
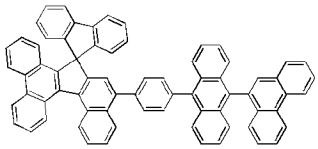
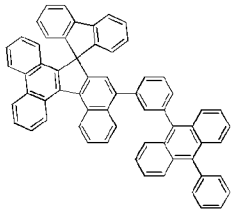
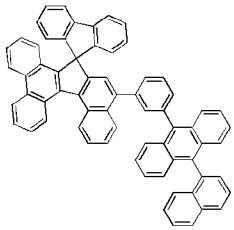
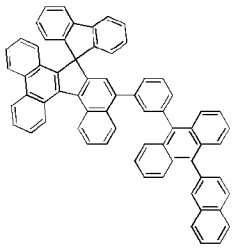
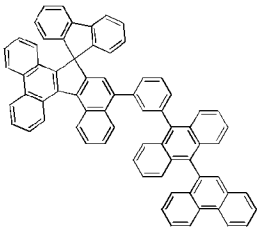
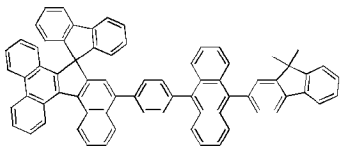
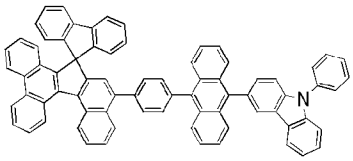
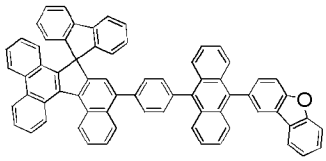
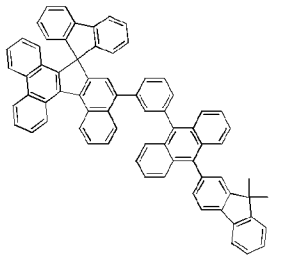
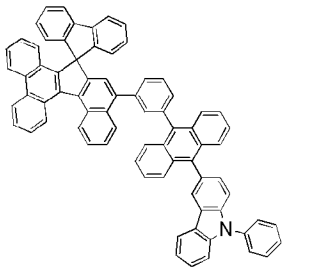
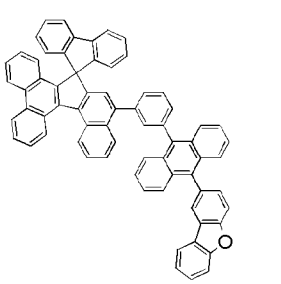
[0044] 本発明の化合物の具体例を以下に挙げるが、特にこれらに制限されるものではない。

[0045]

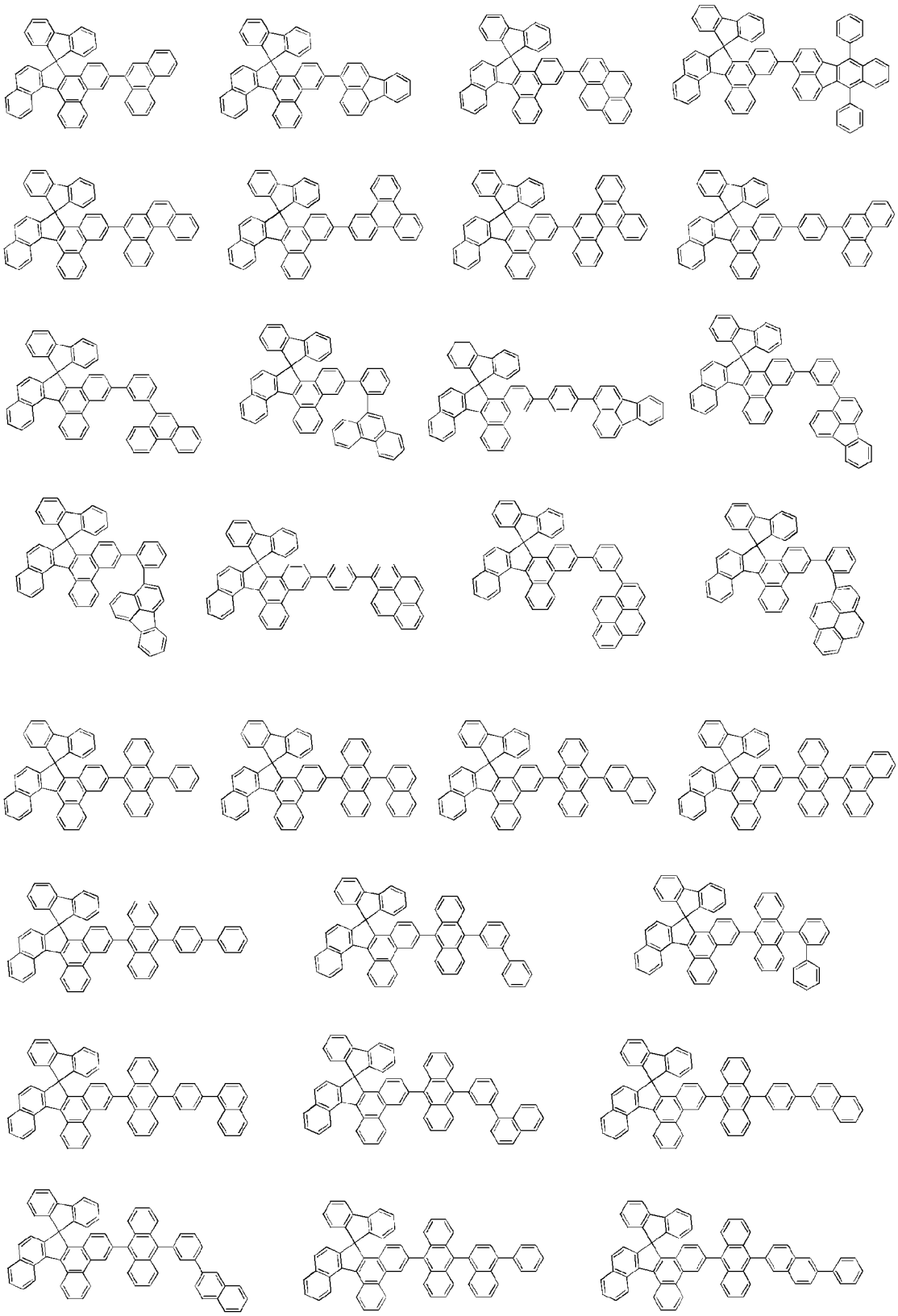
[化12]



[0046] [化13]

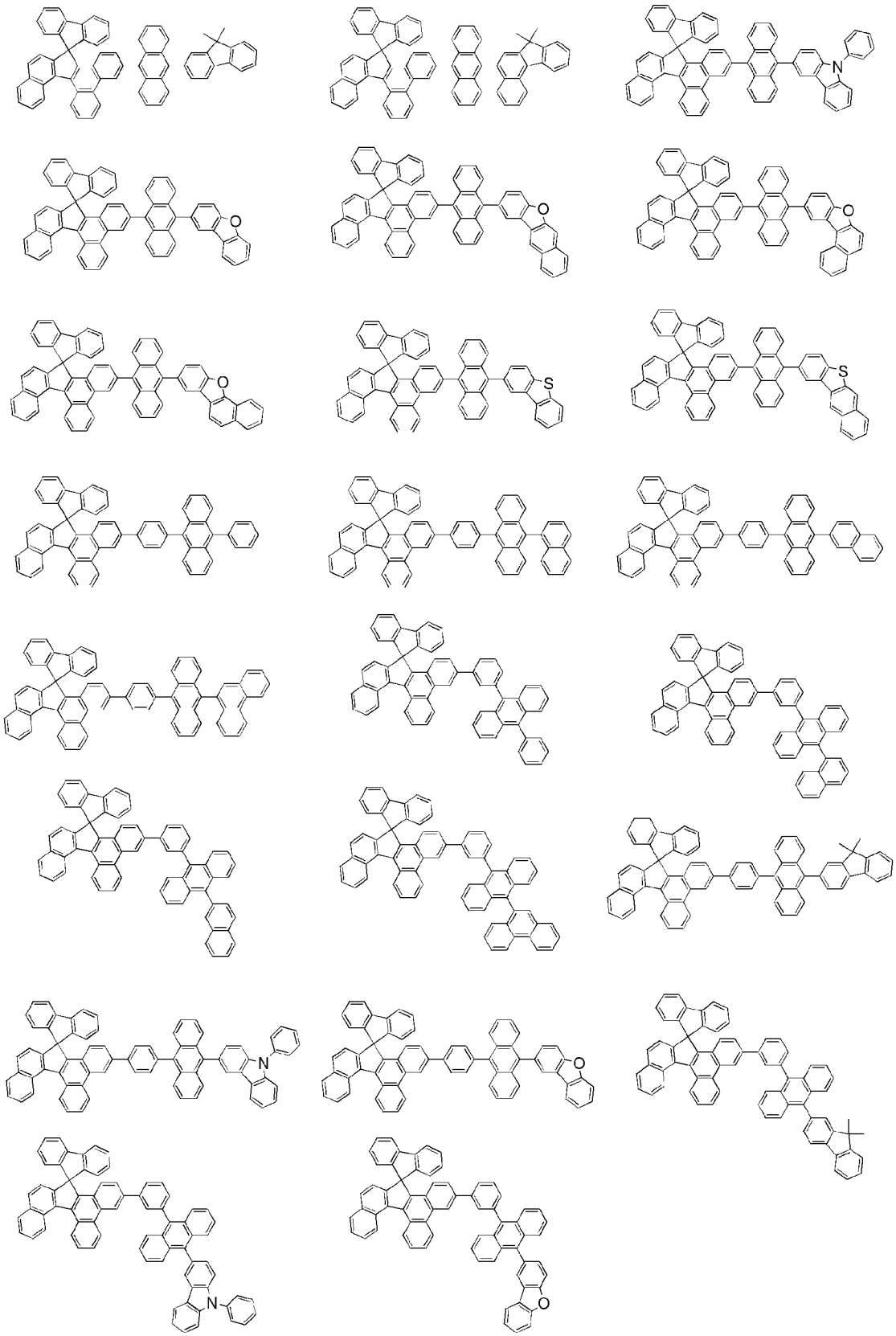
























[0047] [化14]



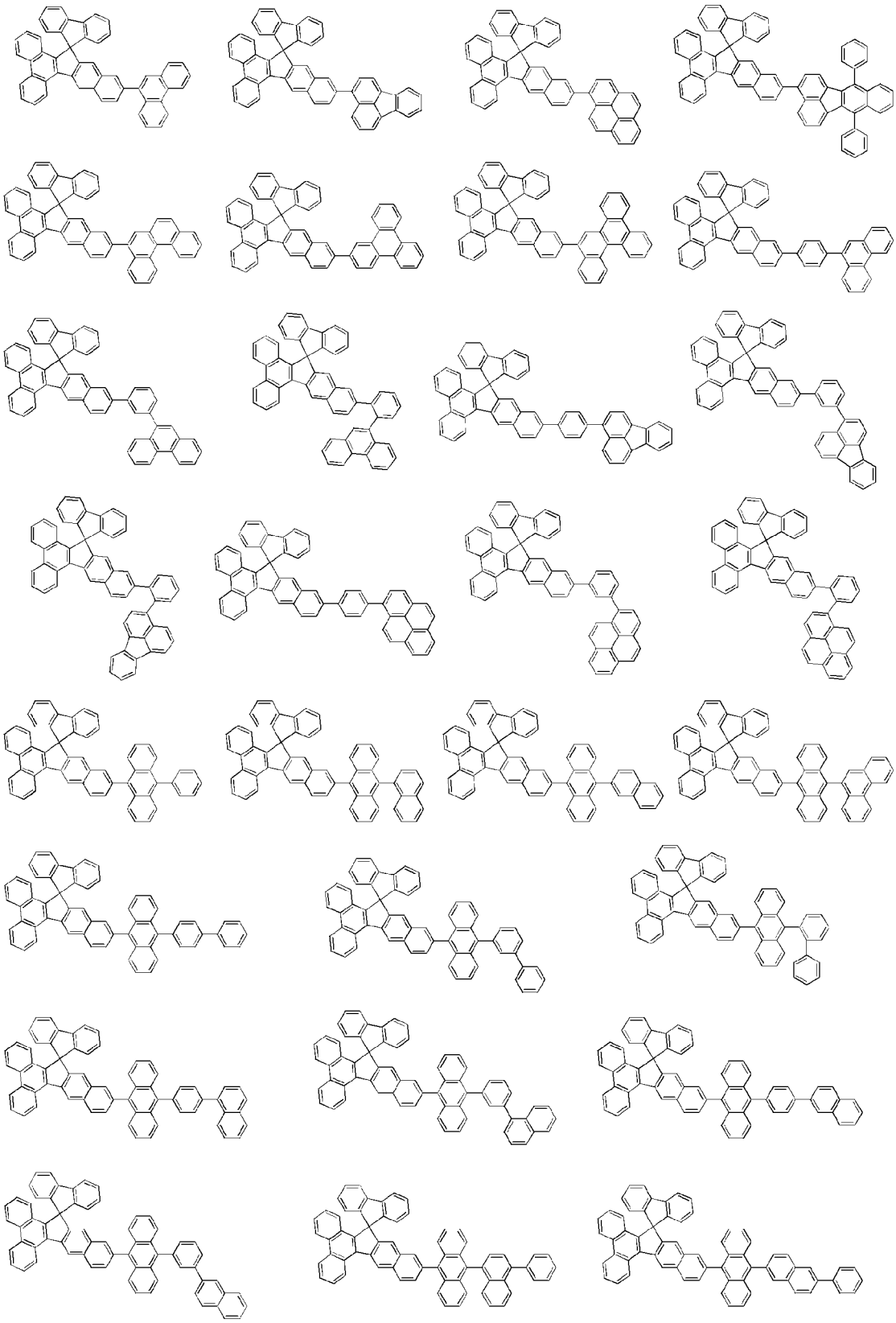
[0048]

[化15]



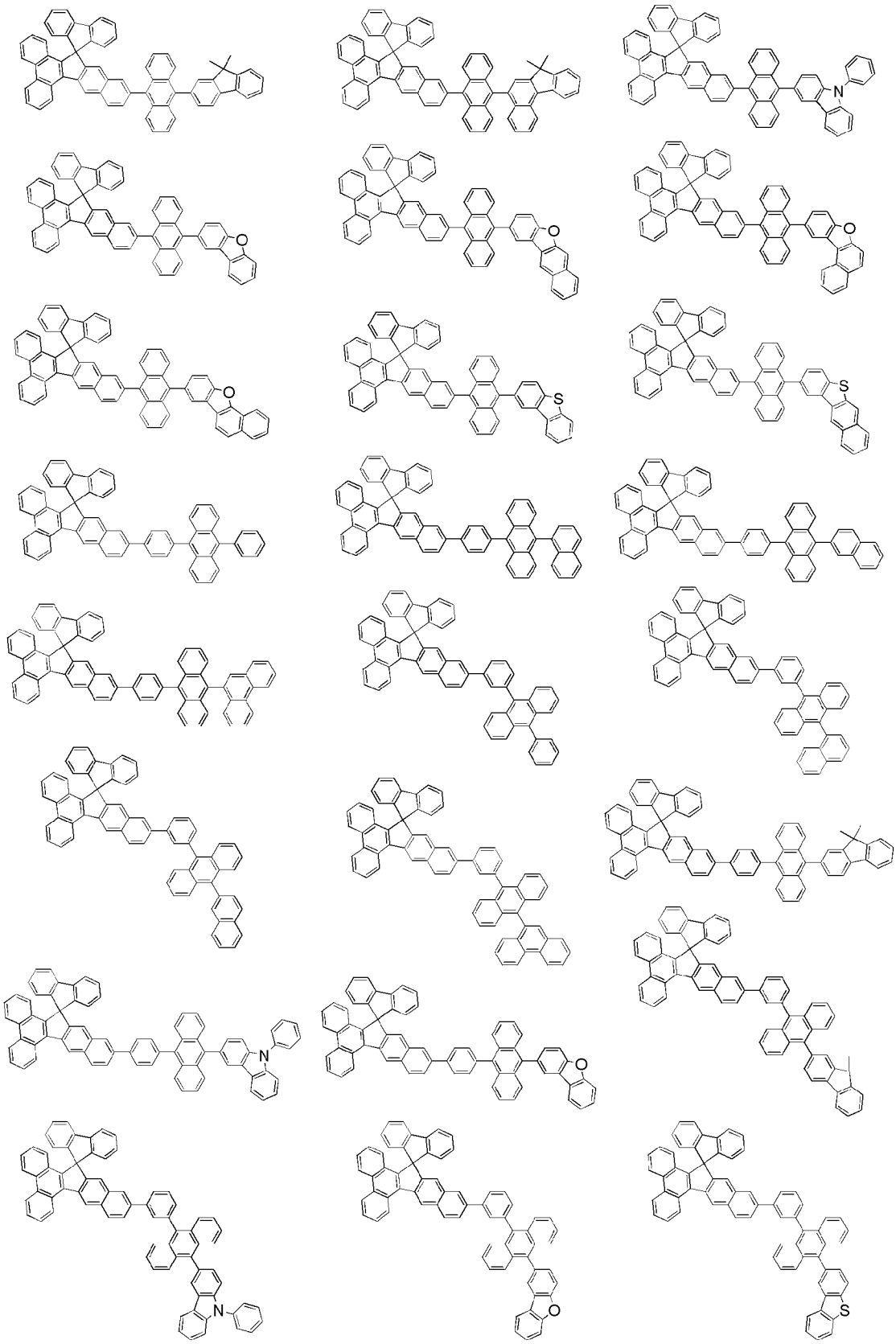
[0049]

[化16]

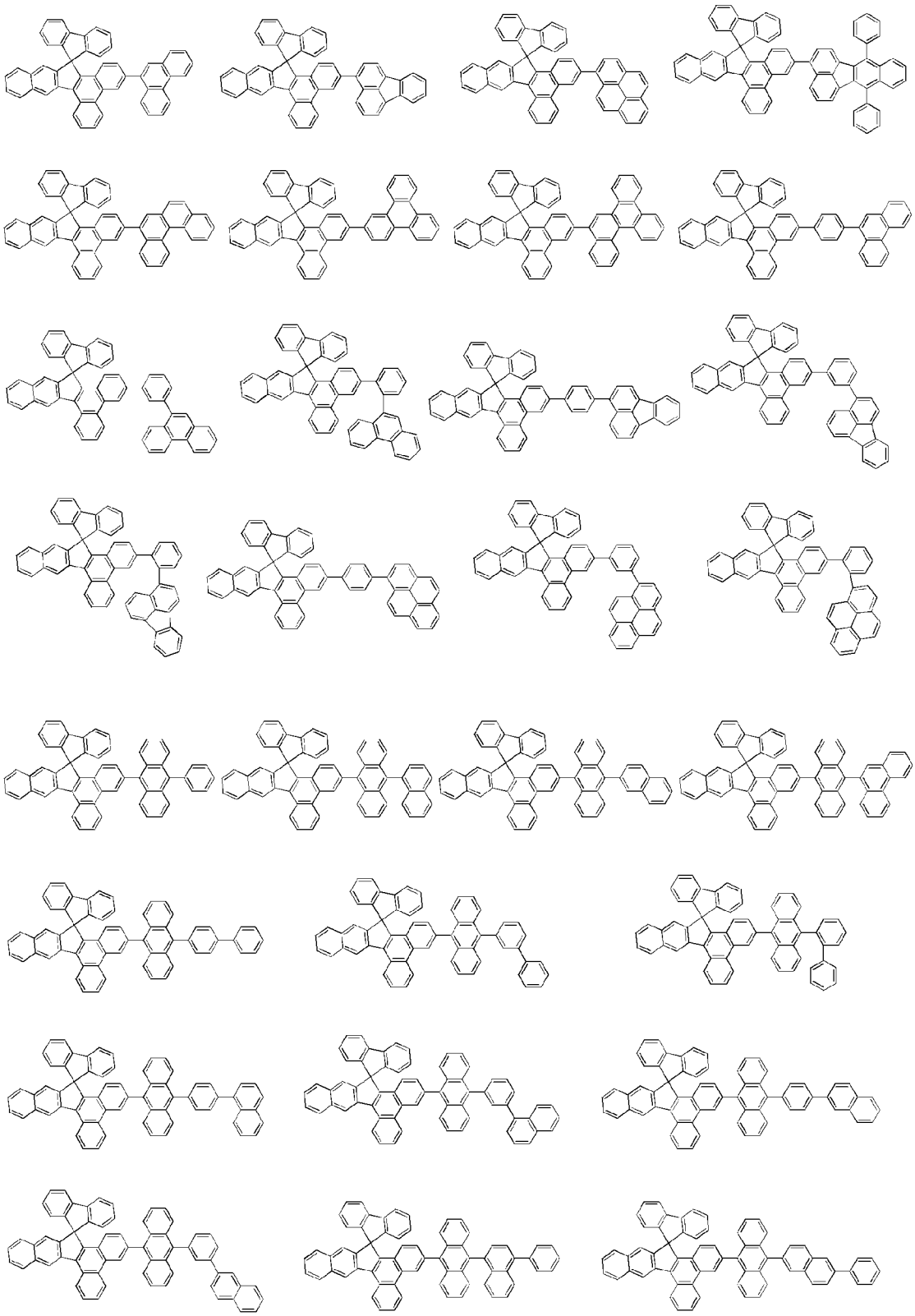


[0050]

[化17]

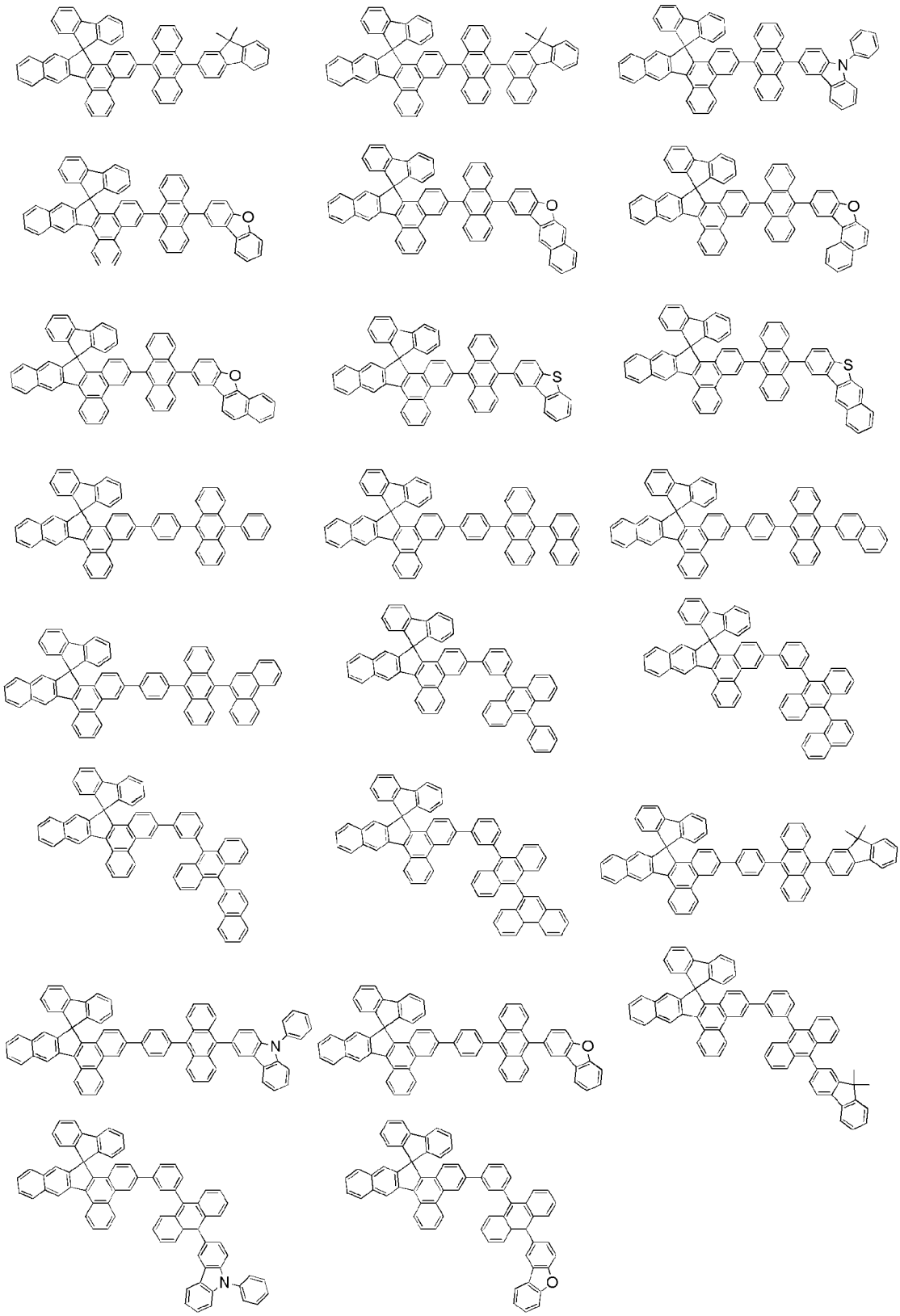


[0051] [化18]



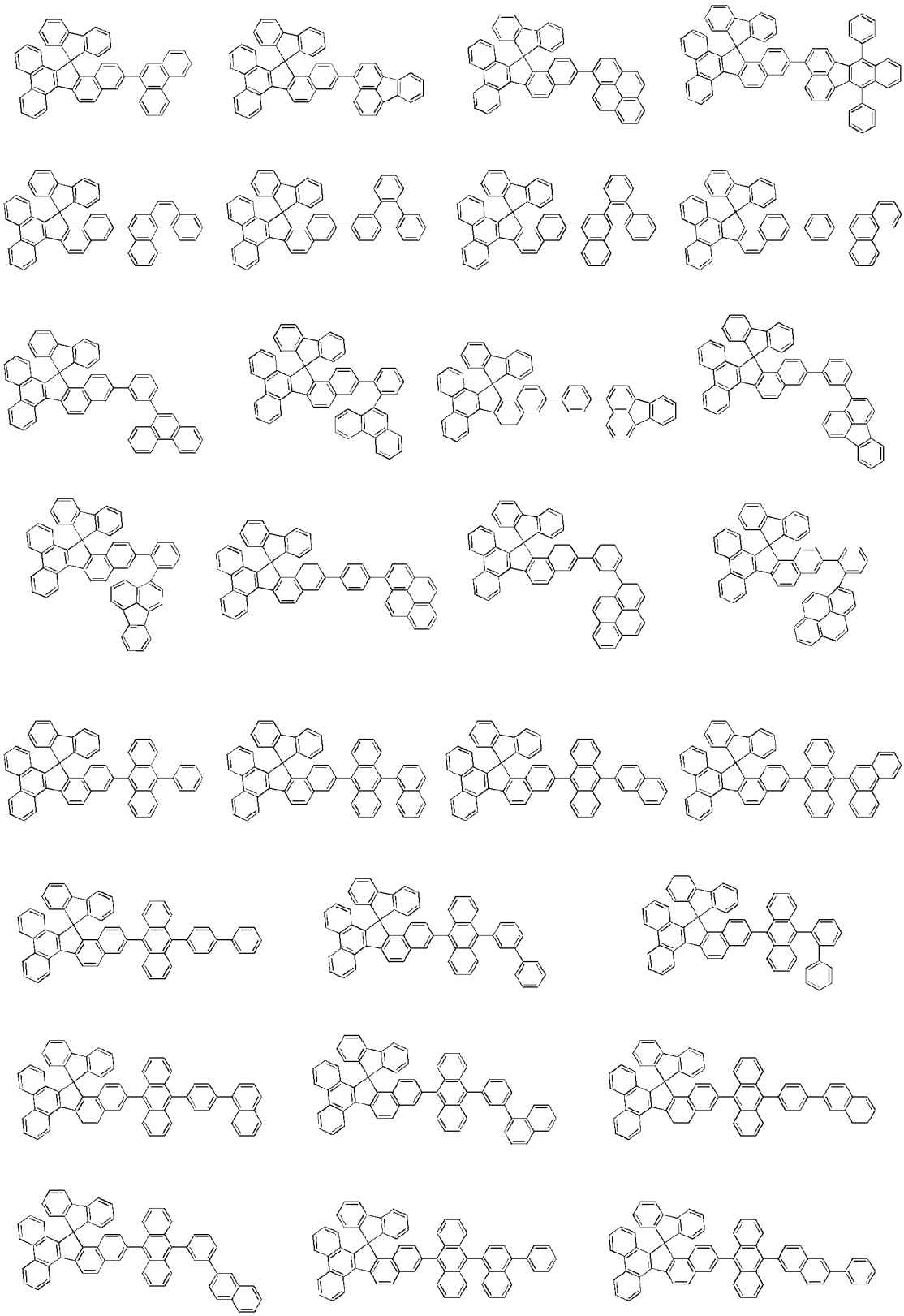
[0052]

[化19]



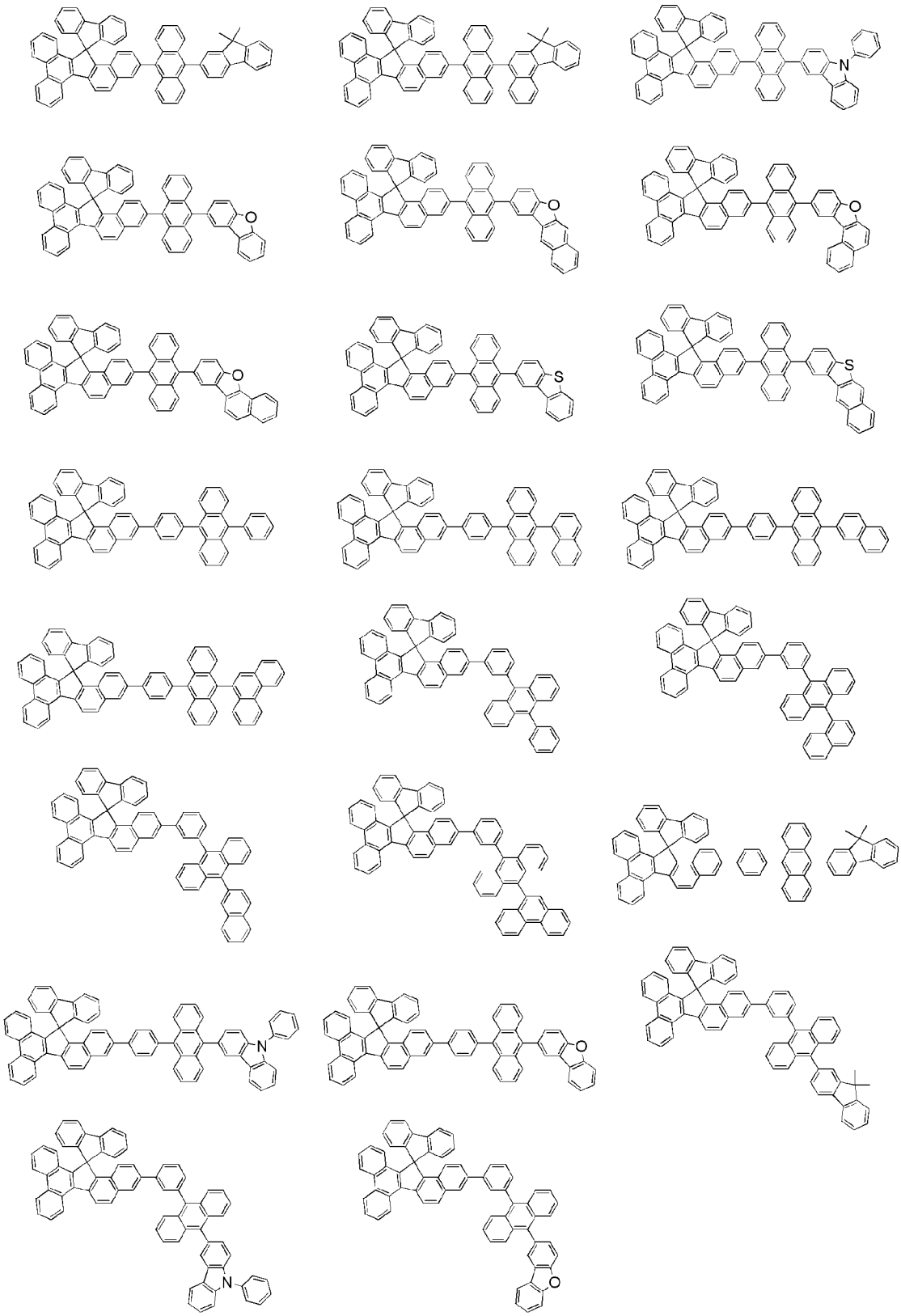
[0053]

[化20]



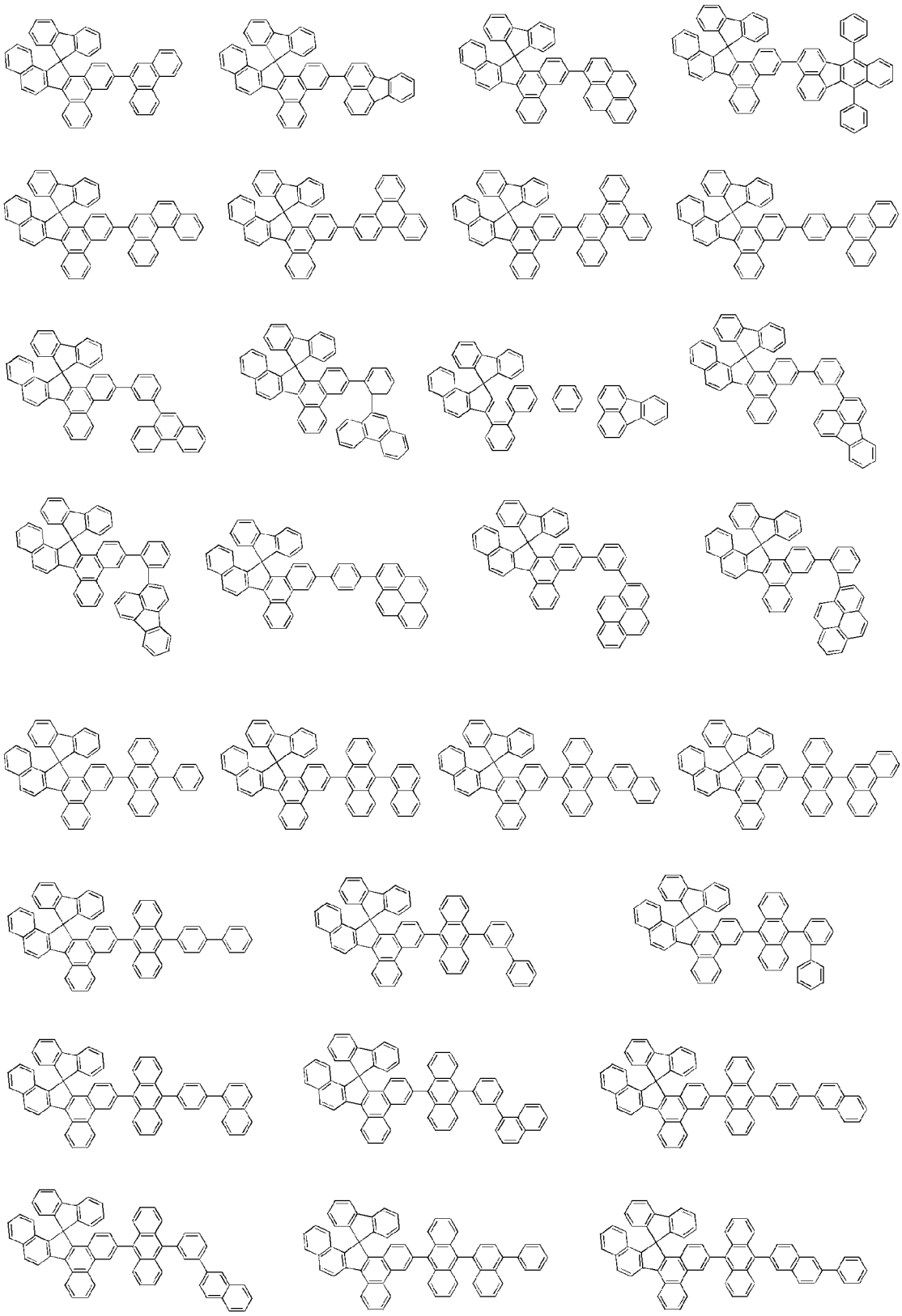
[0054]

[化21]



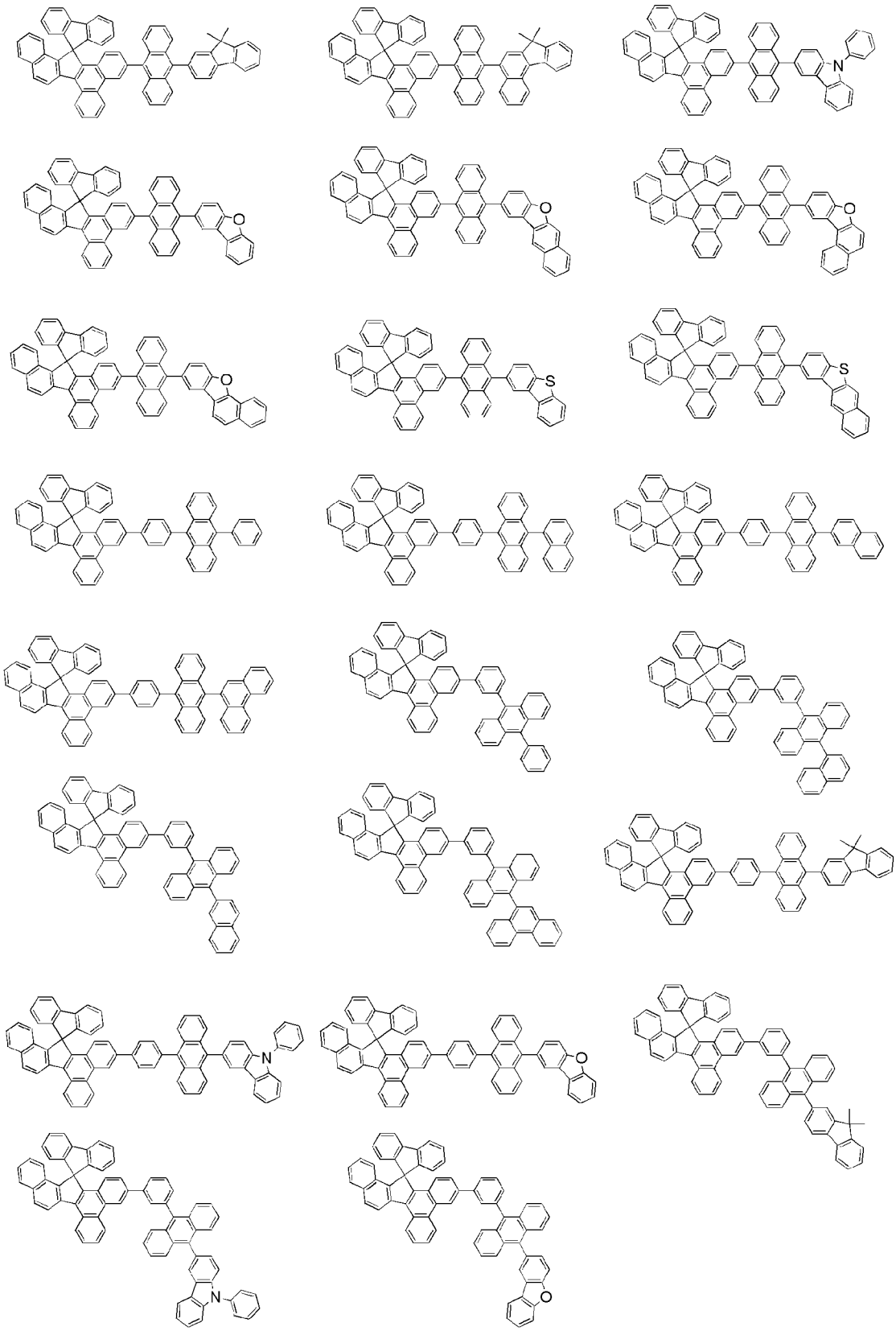
[0055]

[化22]



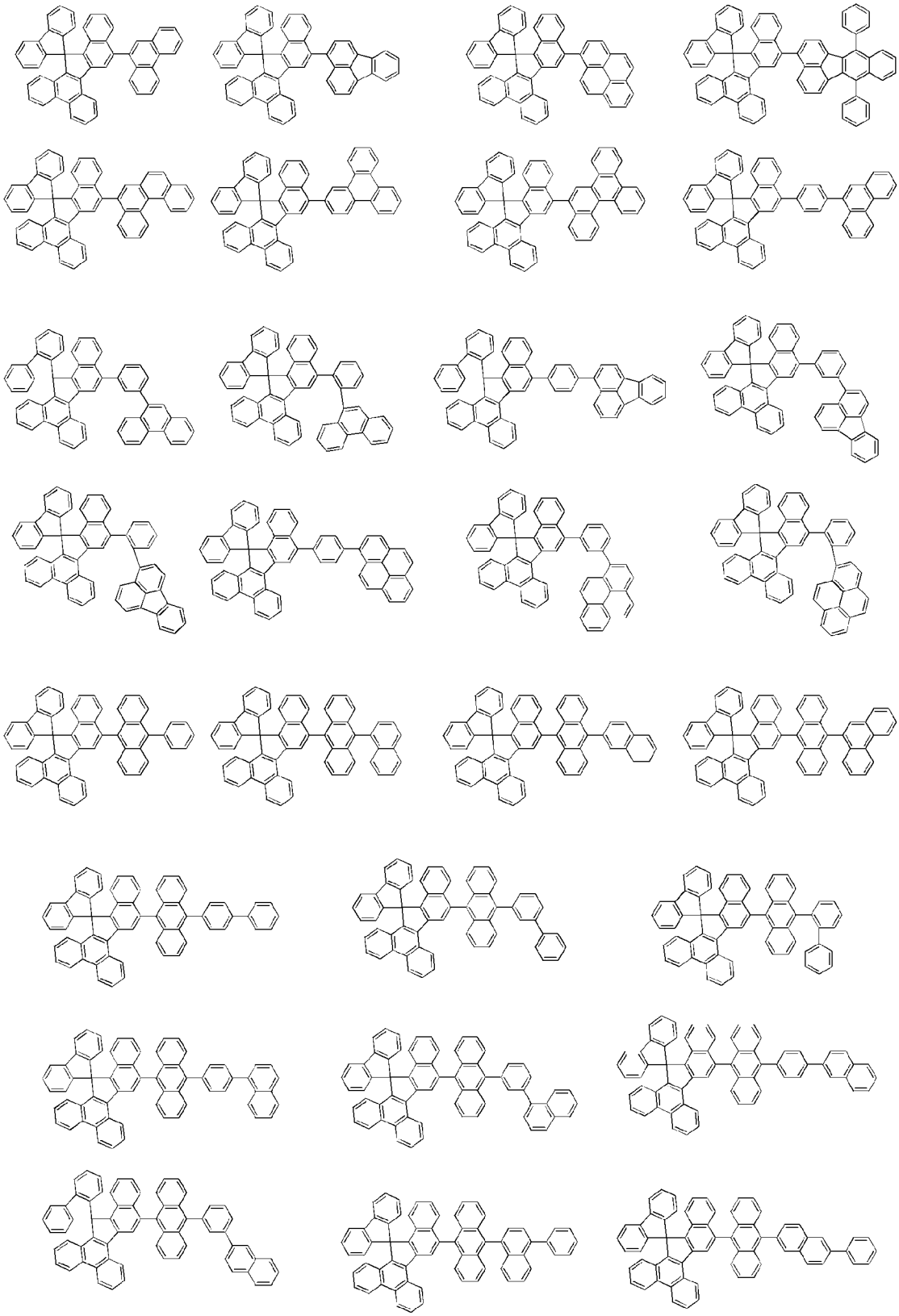
[0056]

[化23]



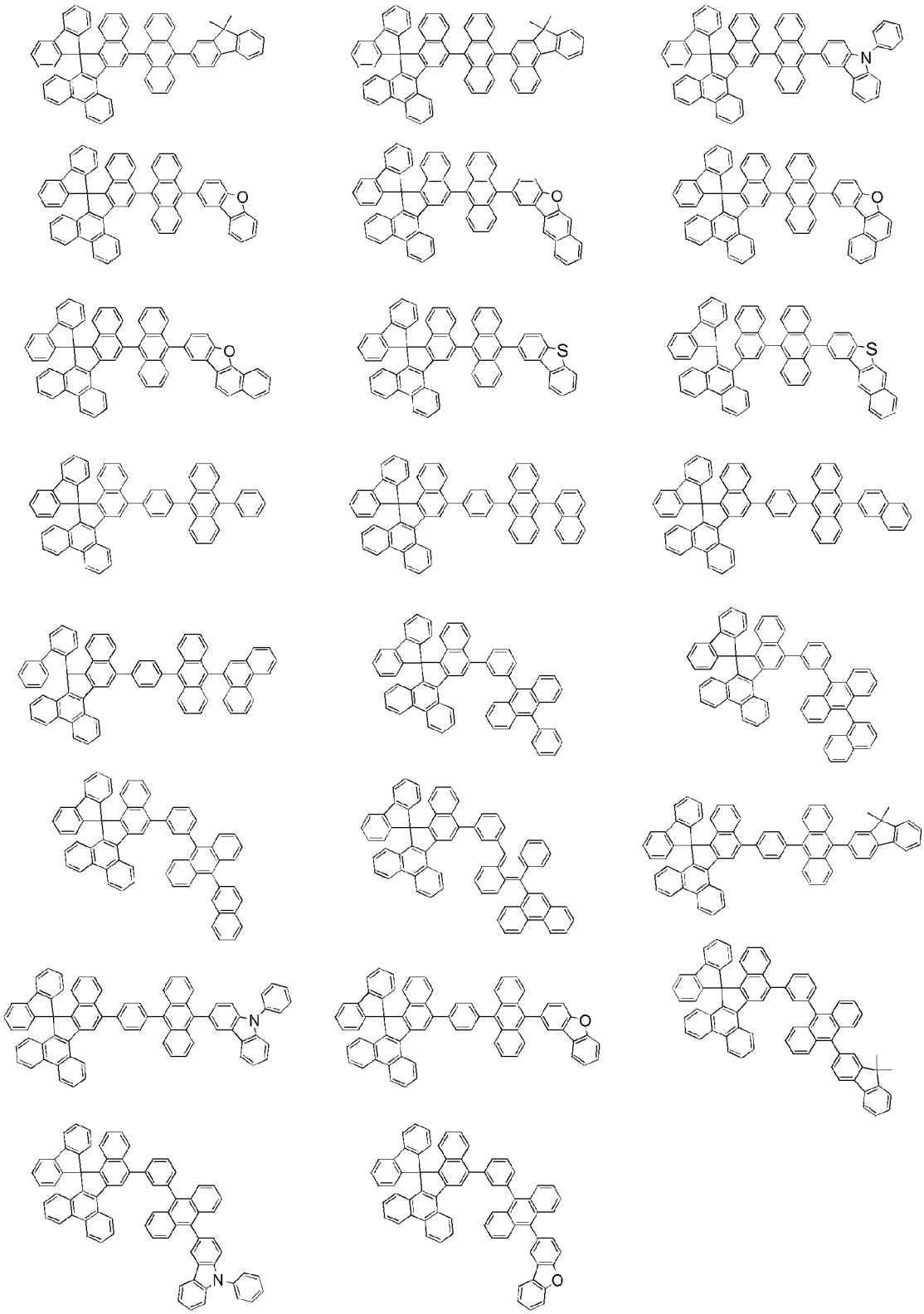
[0057]

[化24]



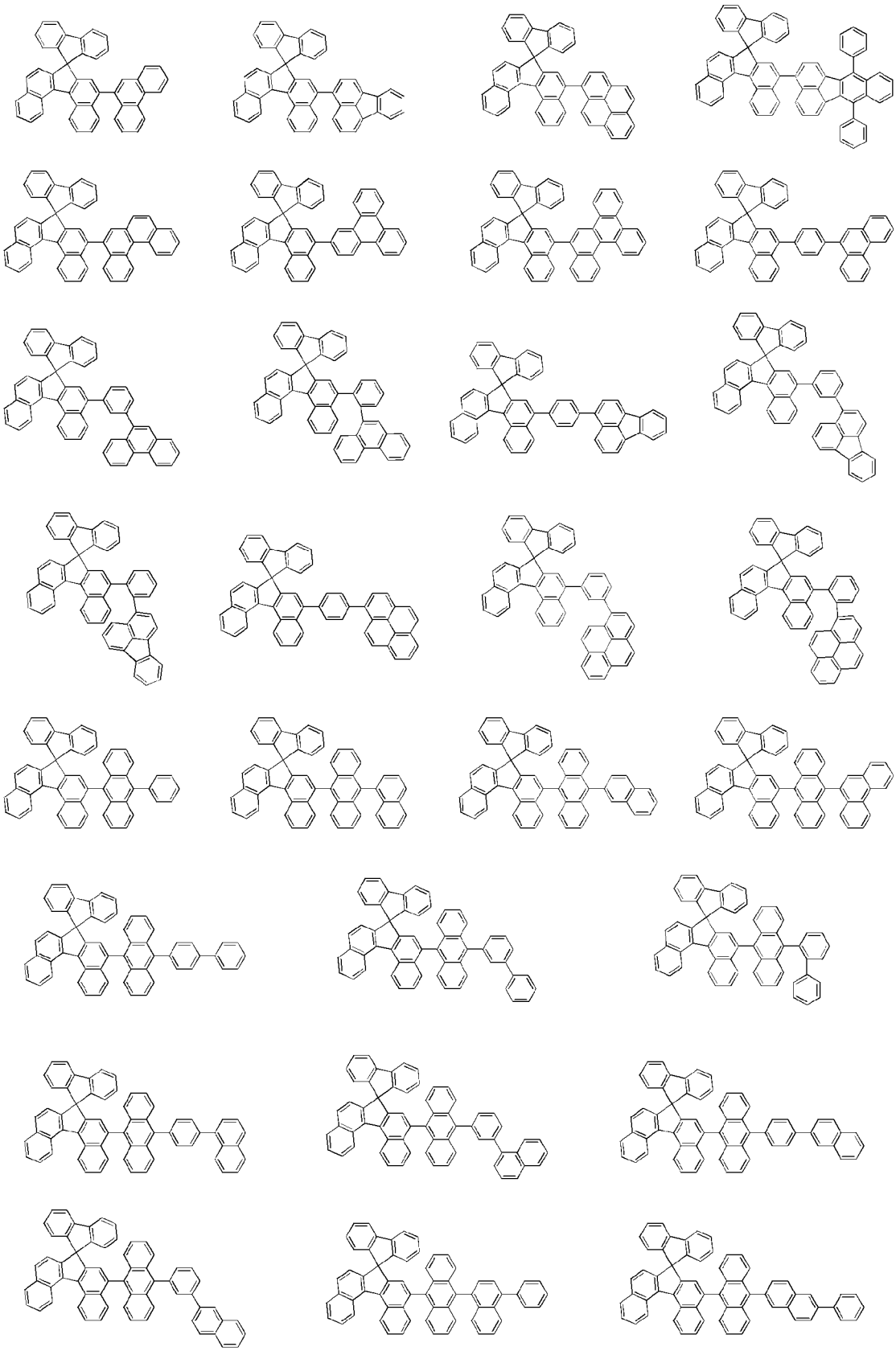
[0058]

[化25]

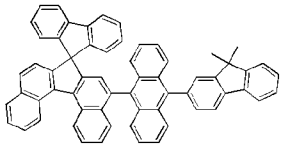
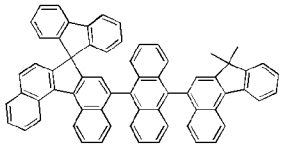
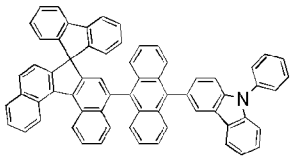
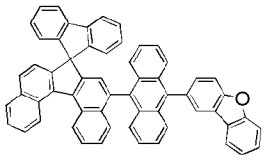
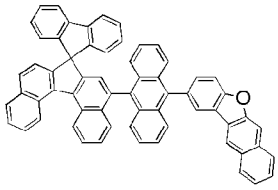
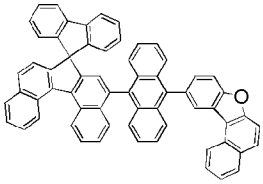
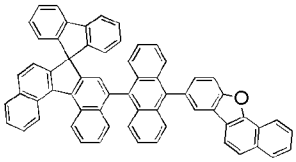
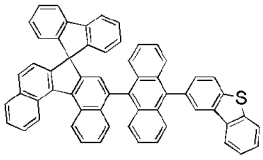
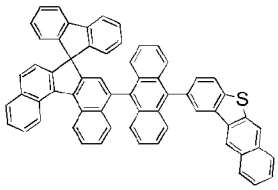
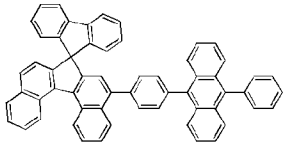
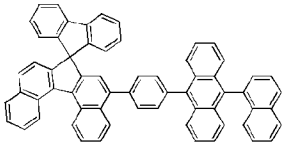
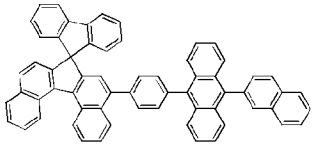
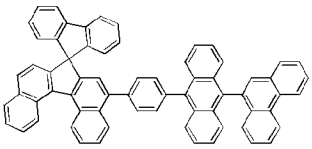
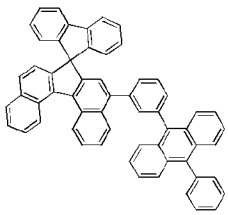
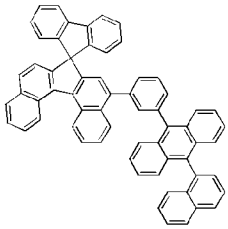
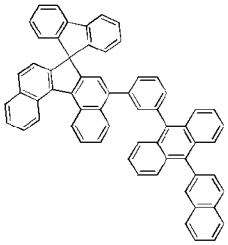
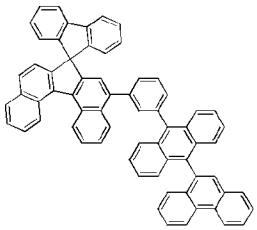
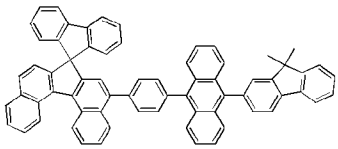
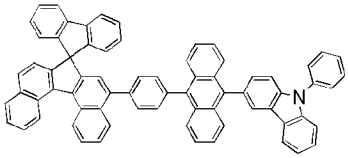
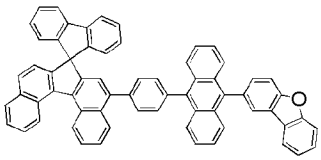
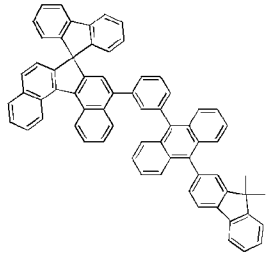
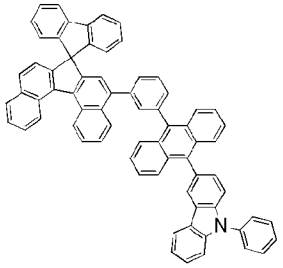
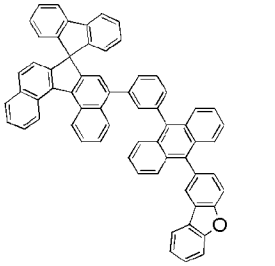
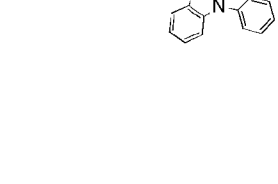
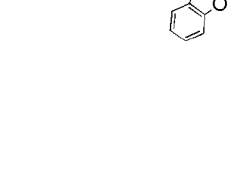


[0059]

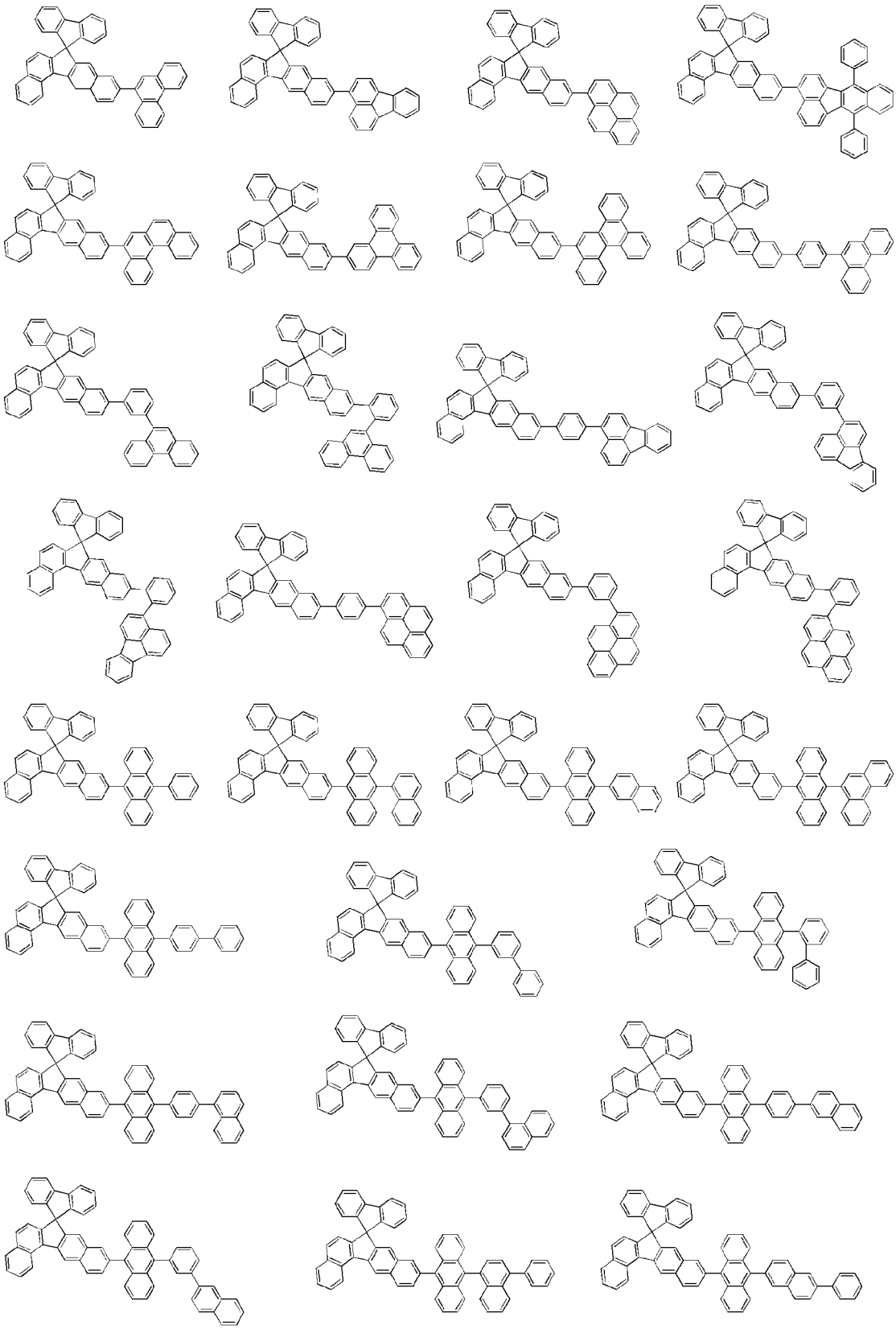
[化26]



[0060] [化27]

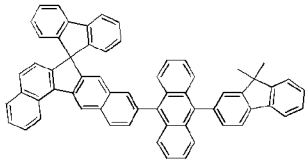
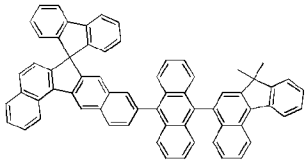
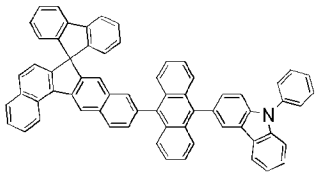
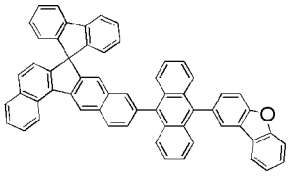
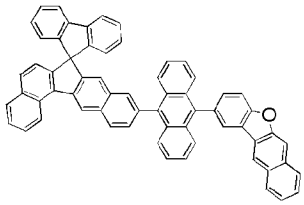
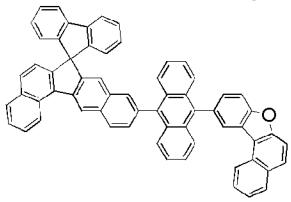
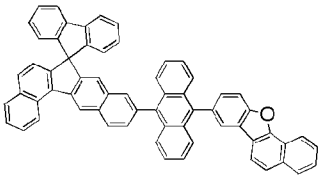
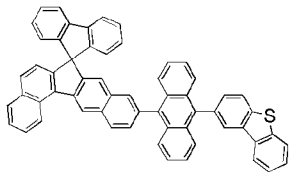
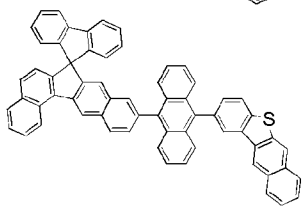
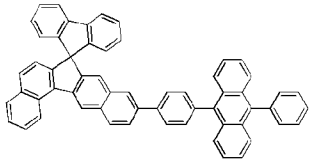
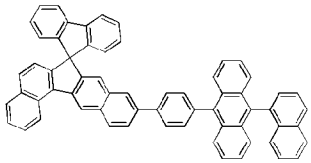
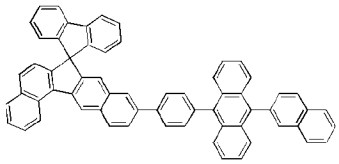
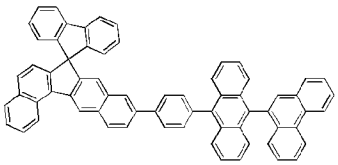
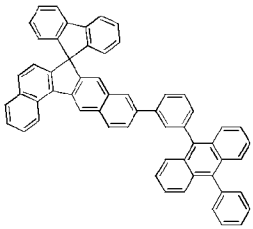
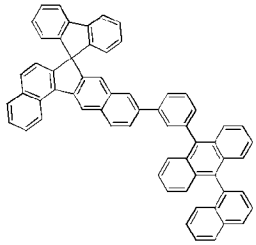
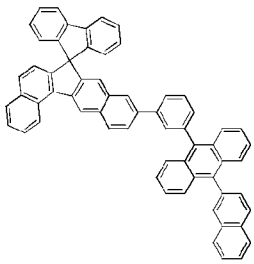
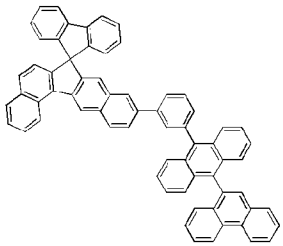
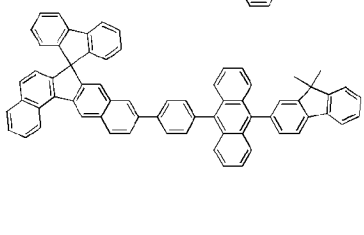
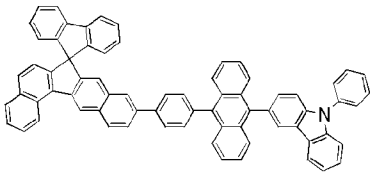


























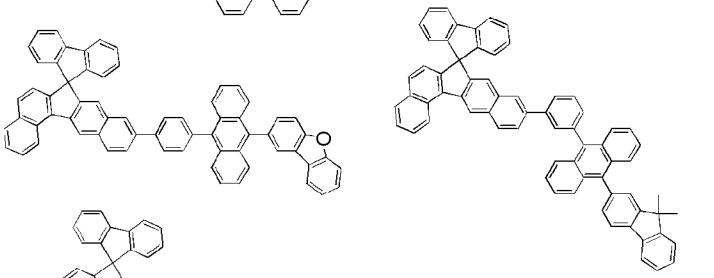
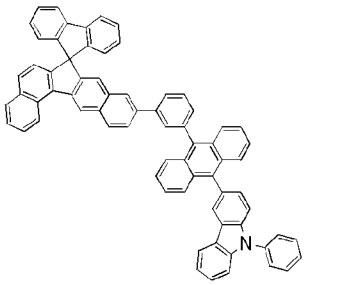
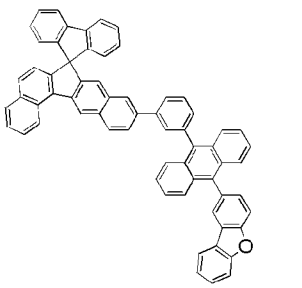
[0061] [化28]



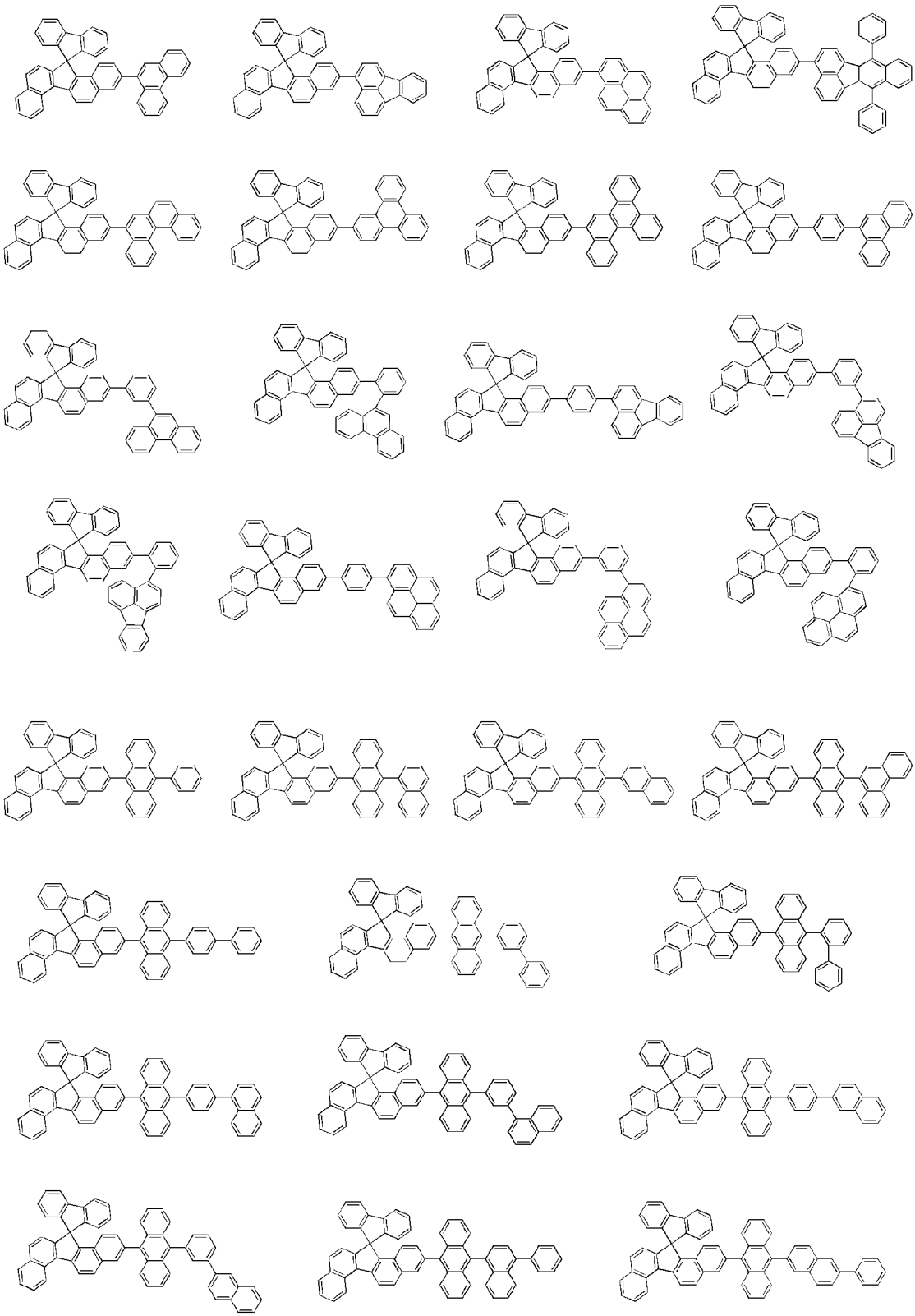
[0062]

[化29]

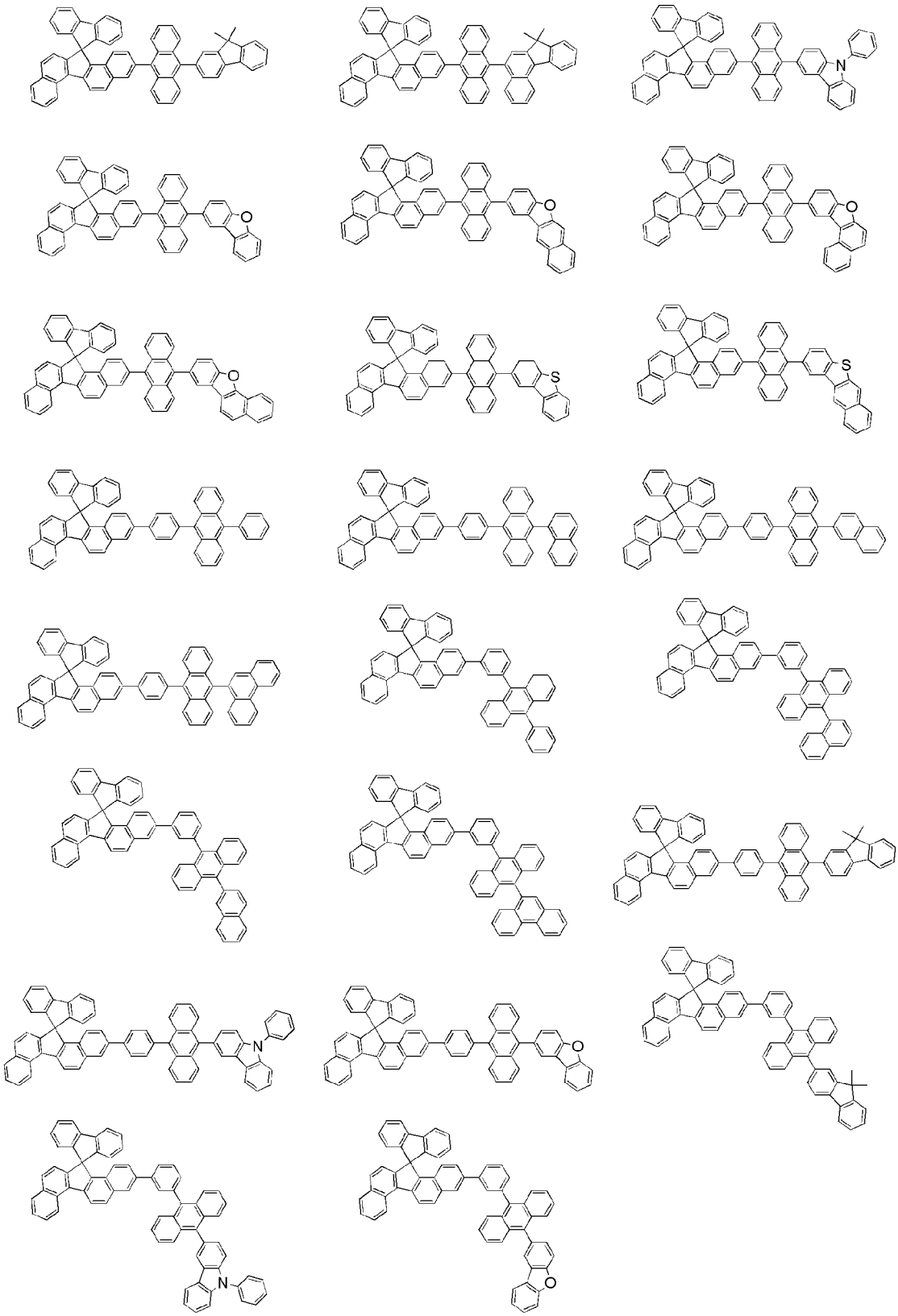




[0063] [化30]



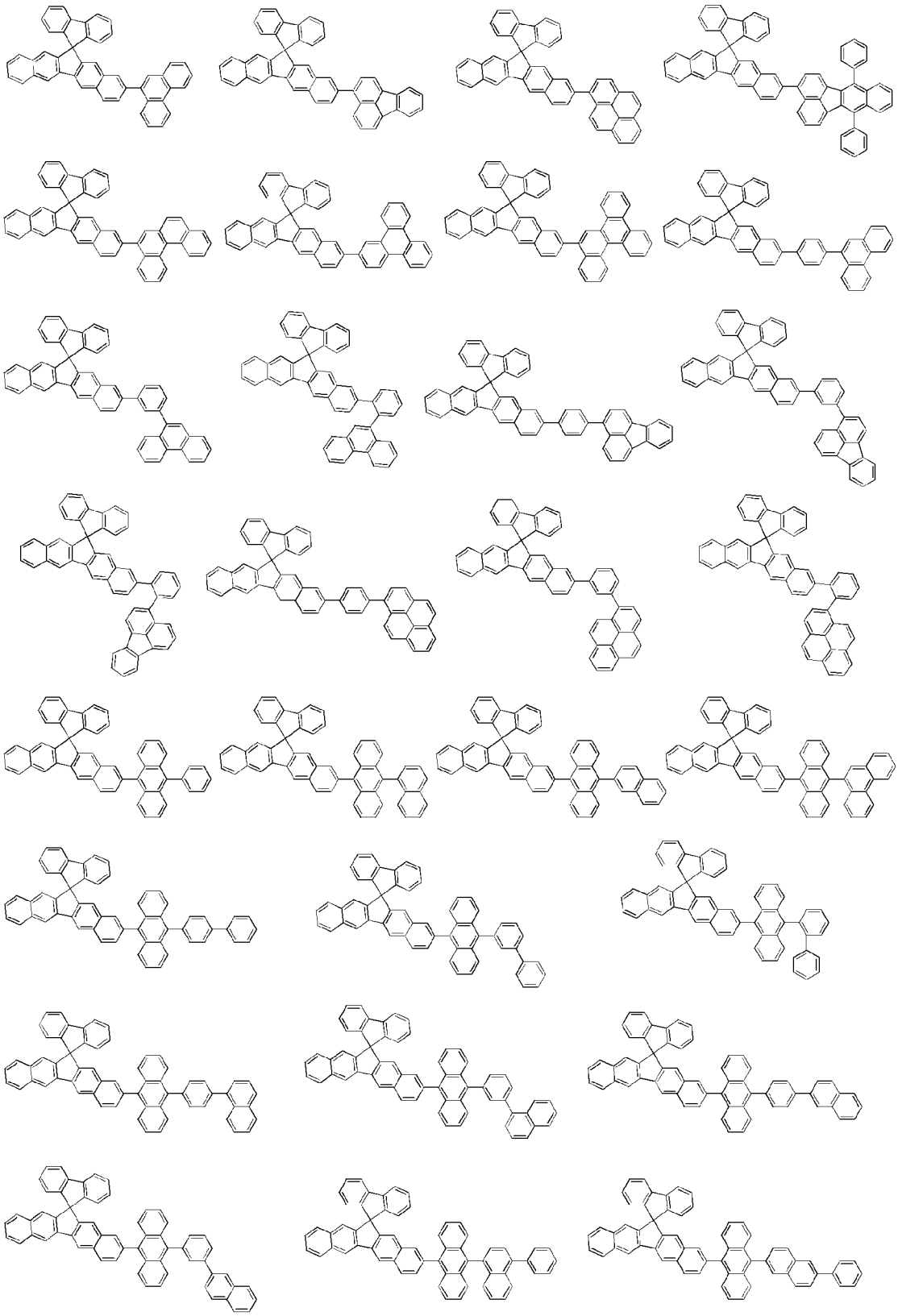
[0064]

[化31]



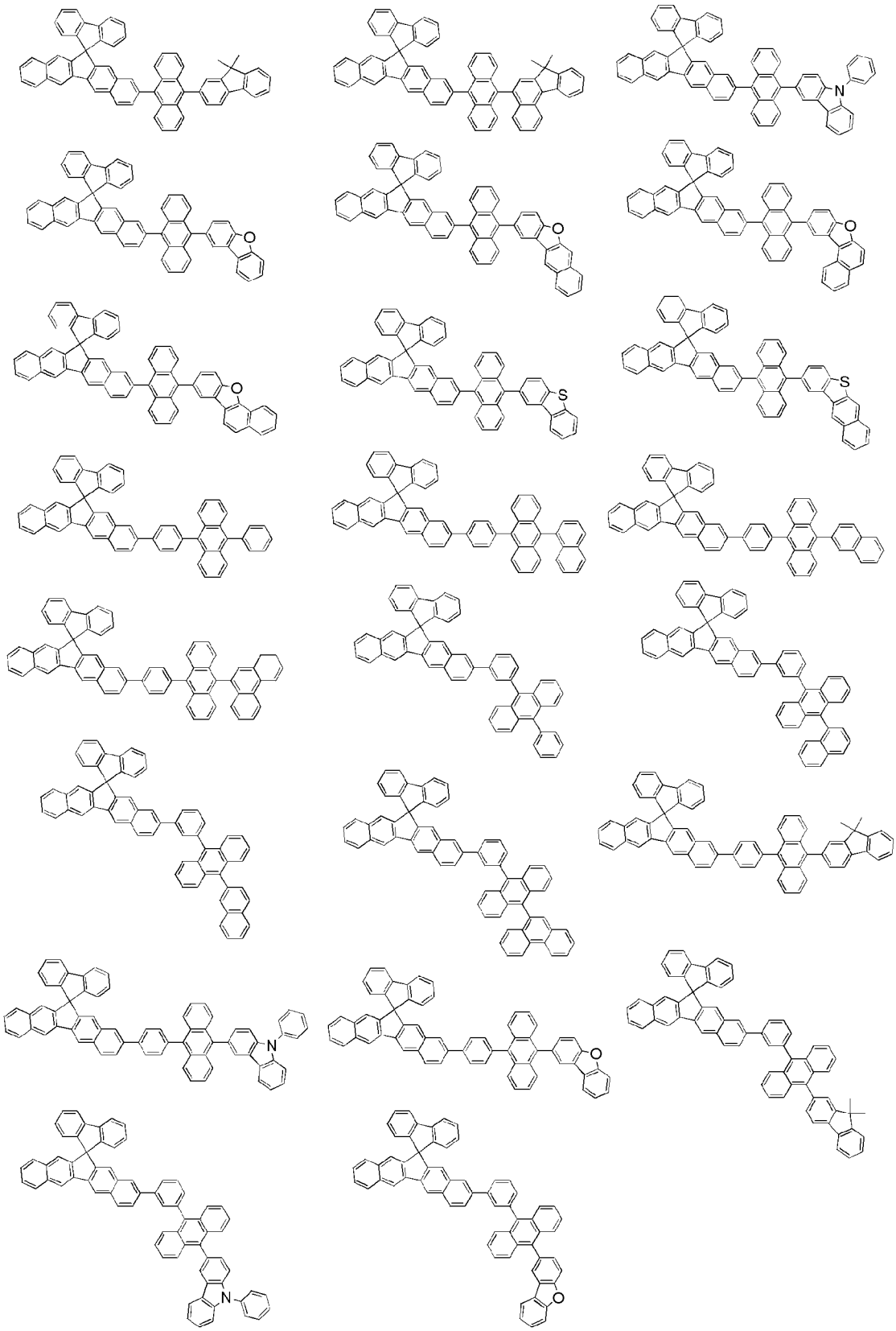
[0065]

[化32]



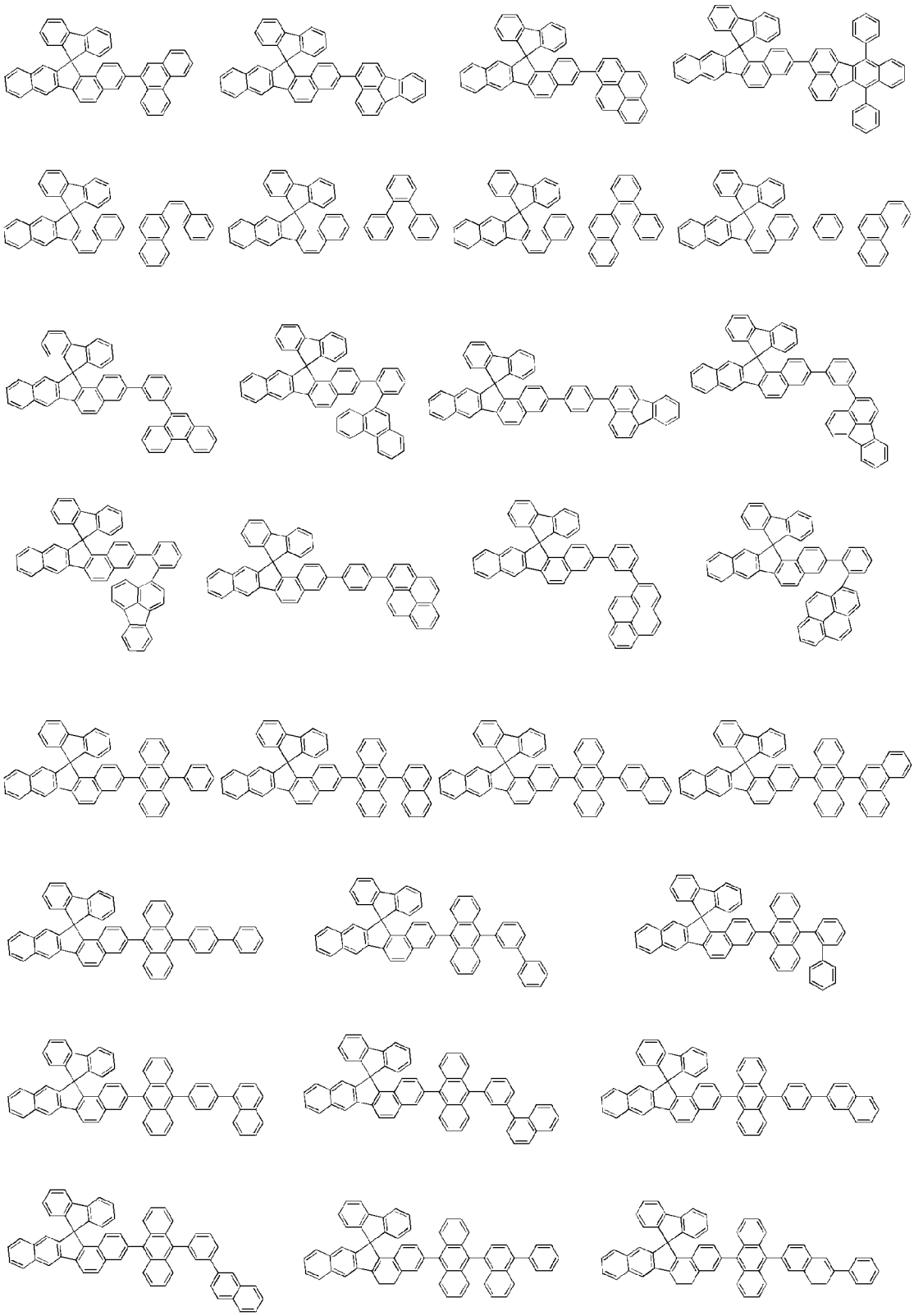
[0066]

[化33]



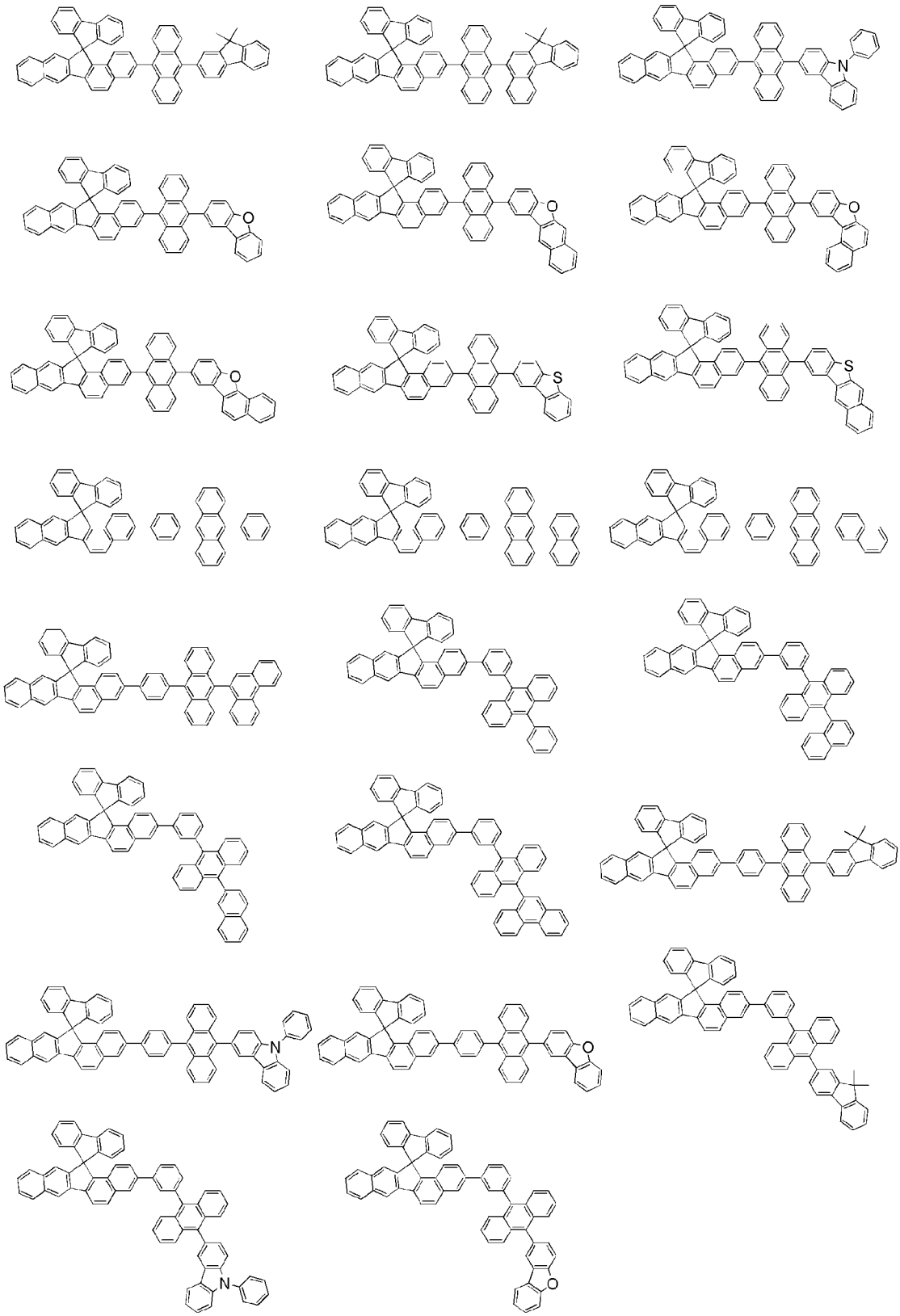
[0067]

[化34]



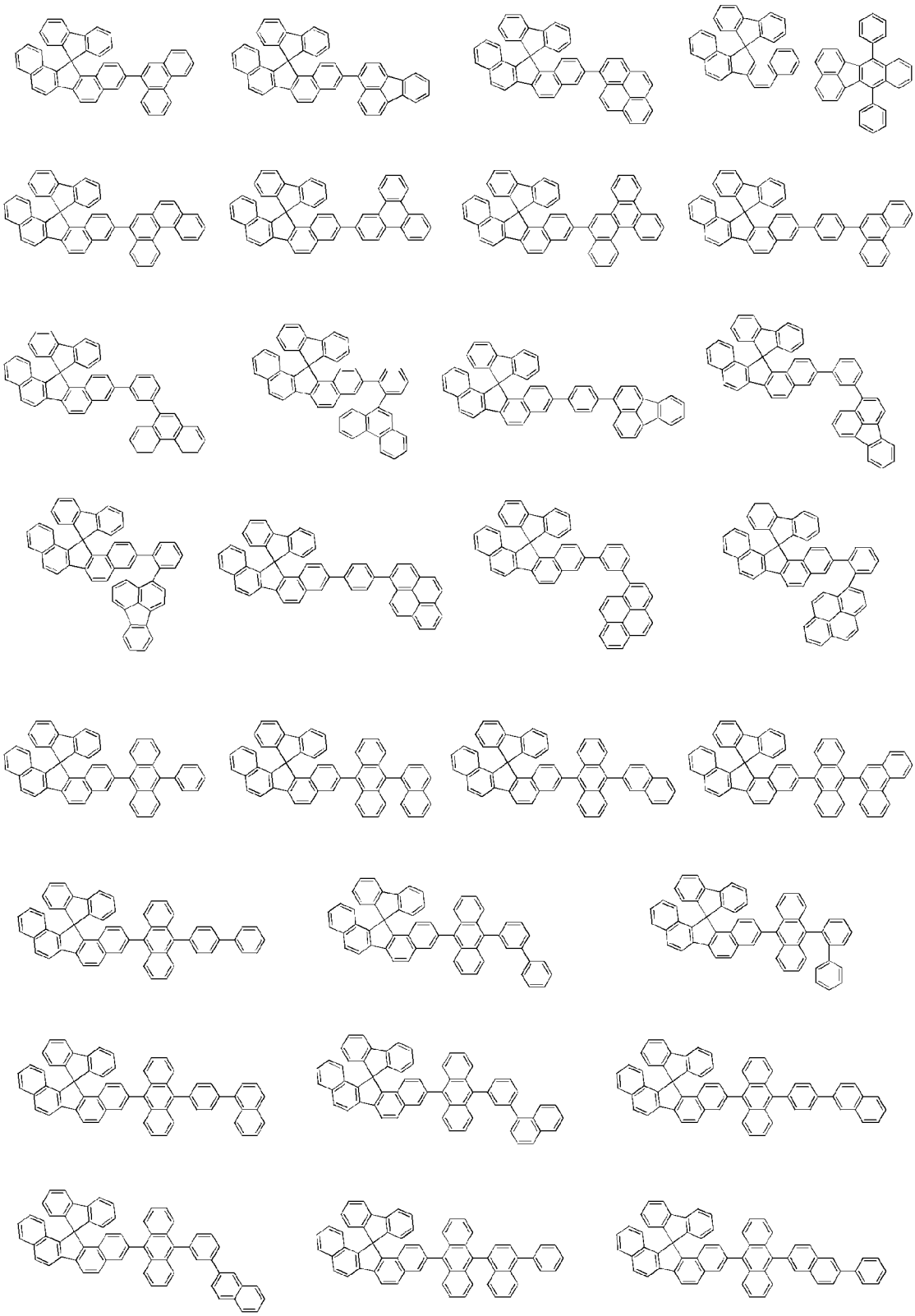
[0068]

[化35]



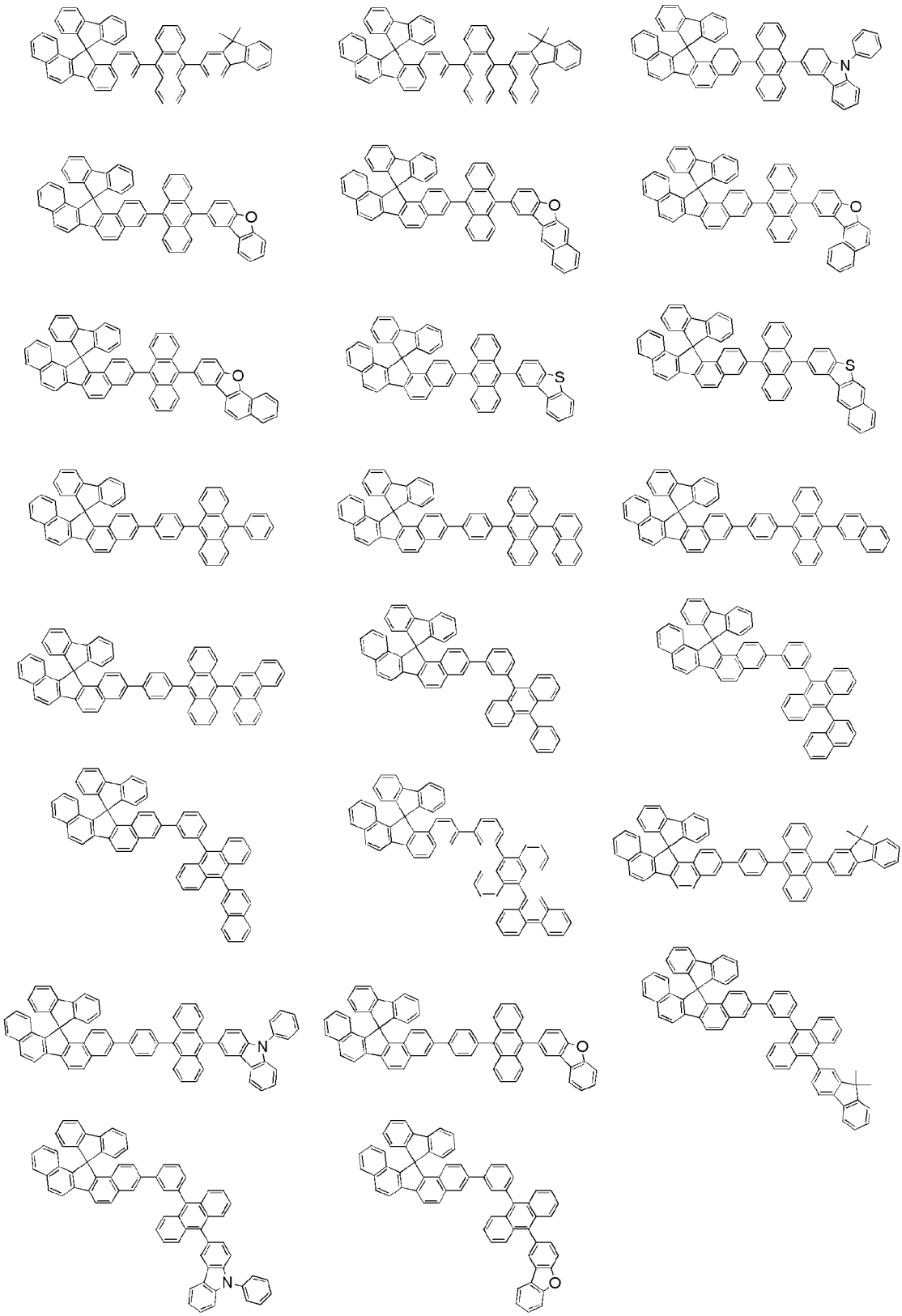
[0069]

[化36]



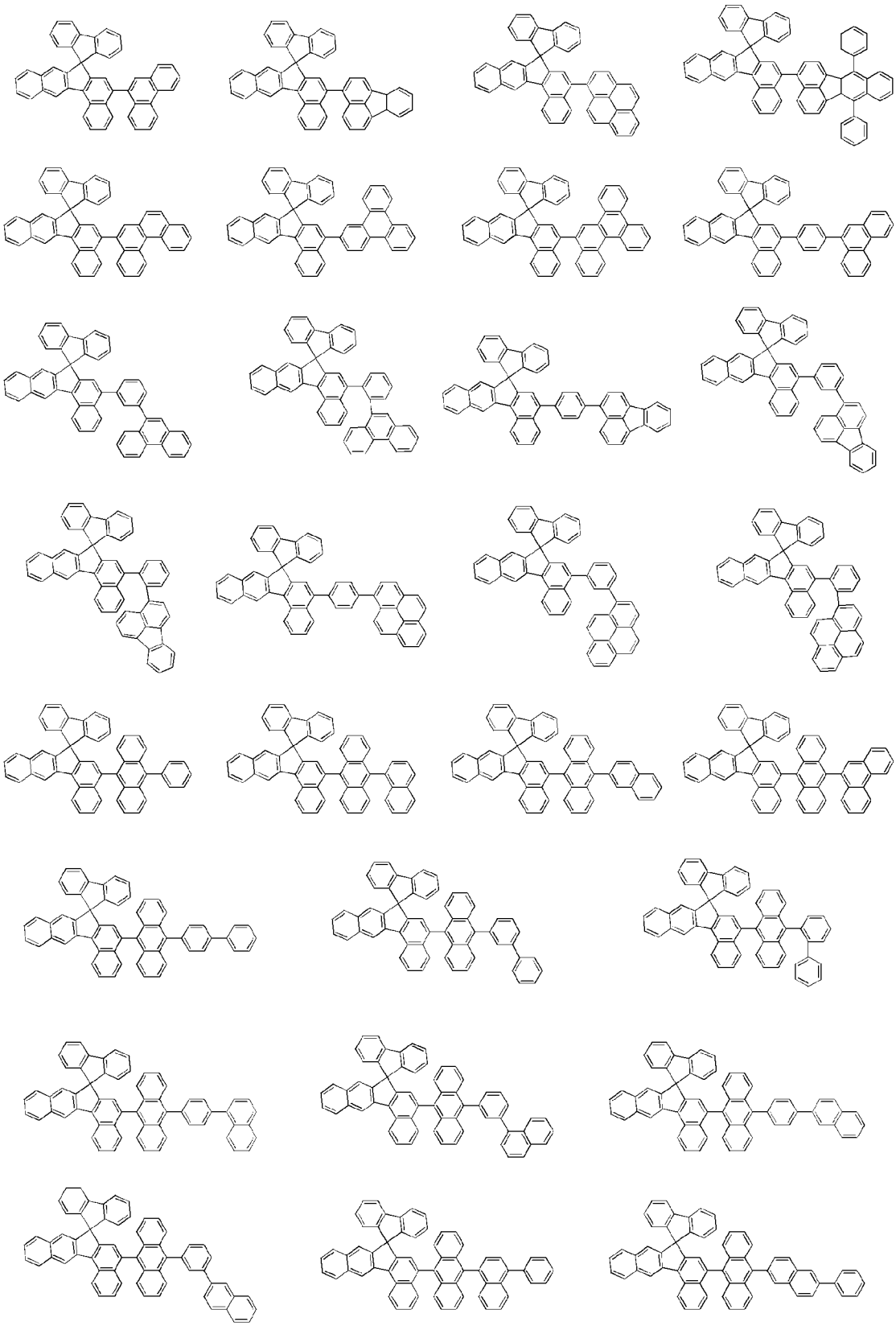
[0070]

[化37]



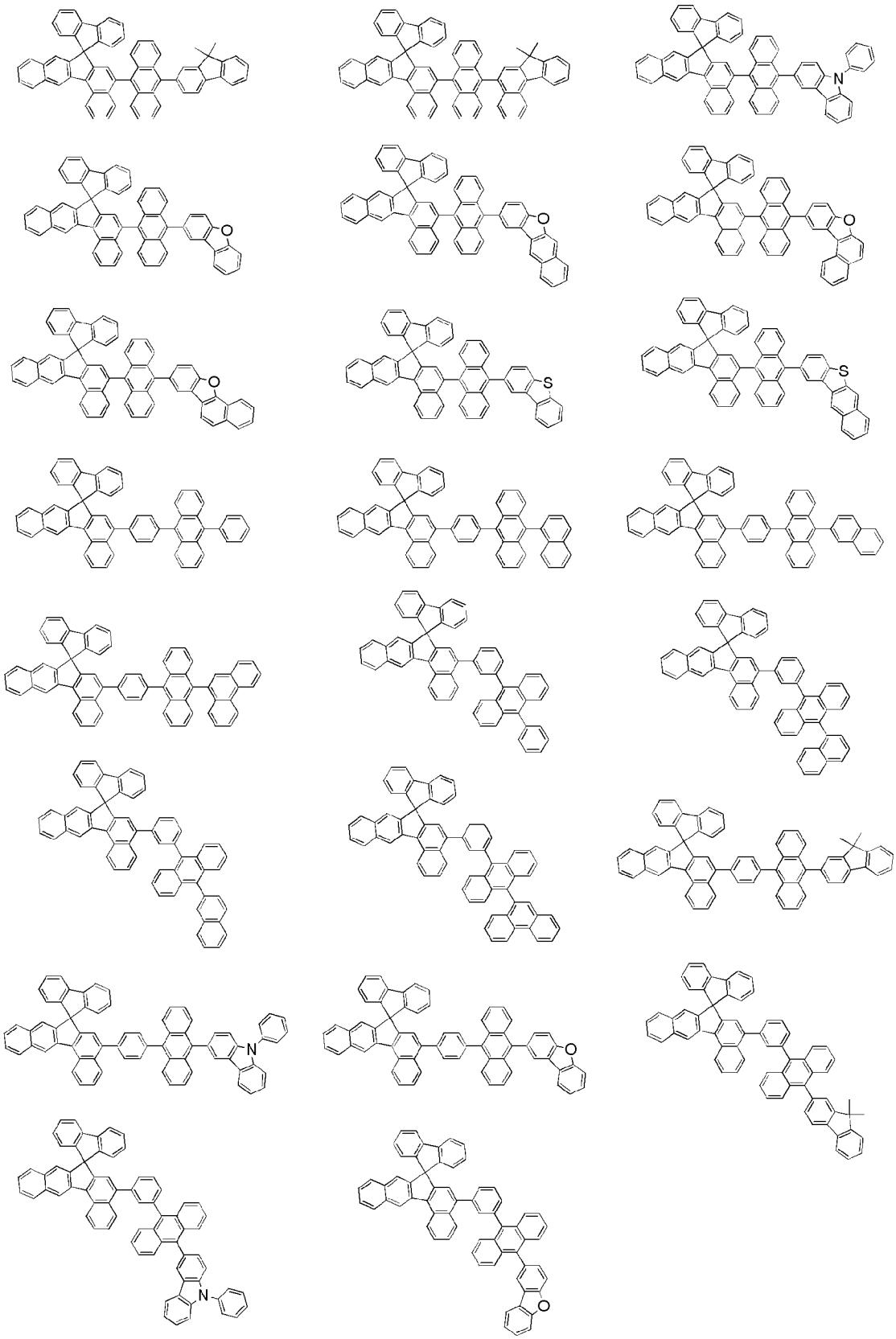
[0071]

[化38]



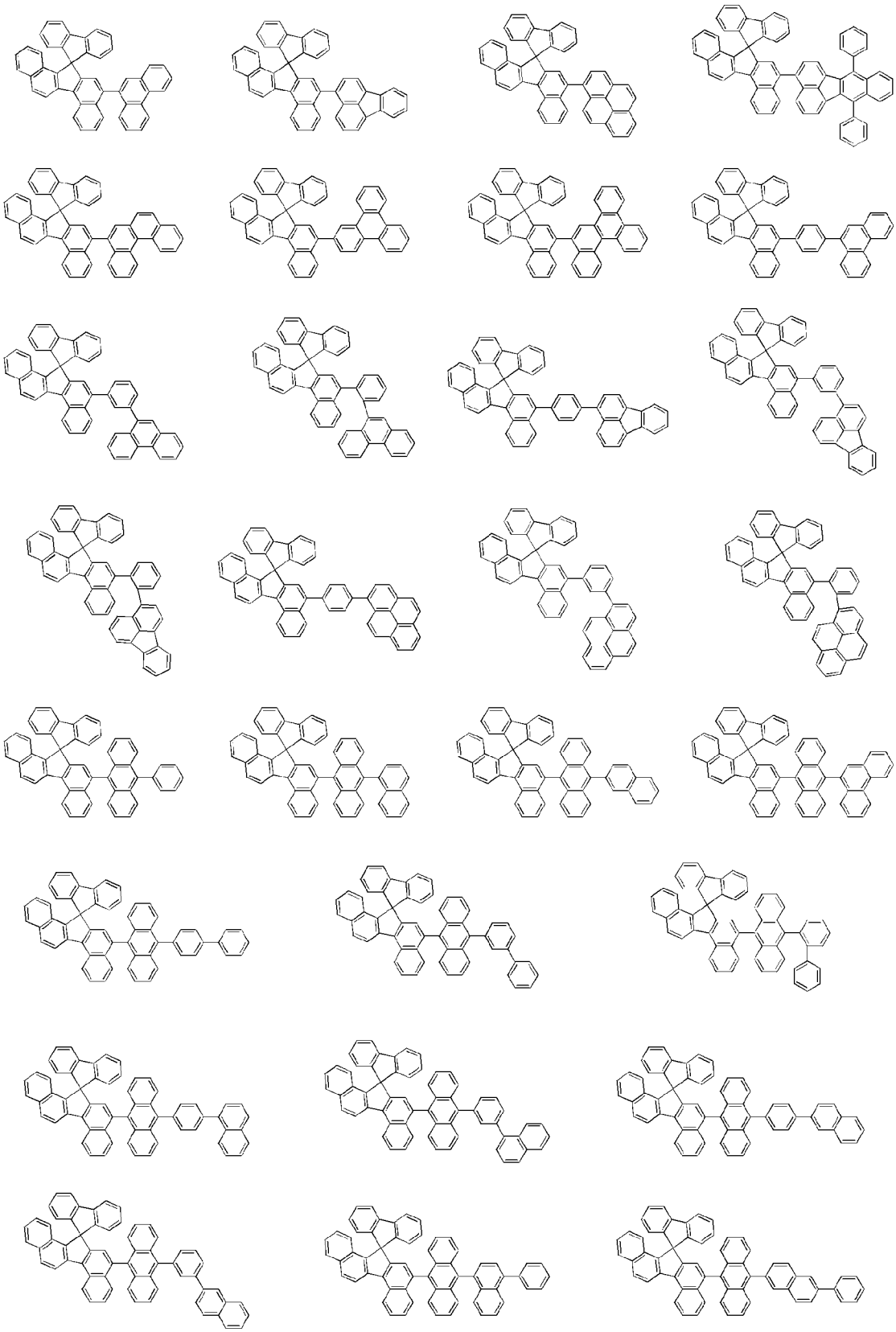
[0072]

[化39]



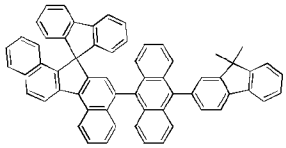
[0073]

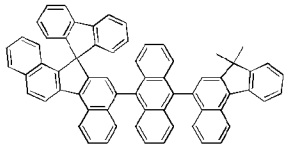
[化40]

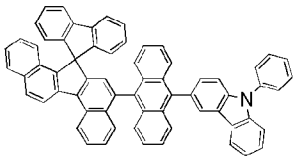


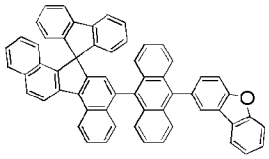
[0074]

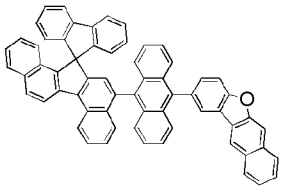
[化41]

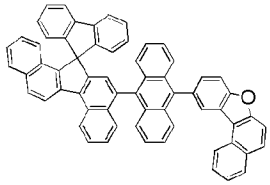


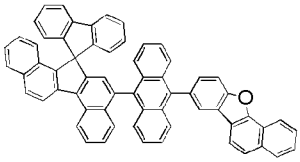


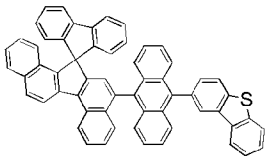


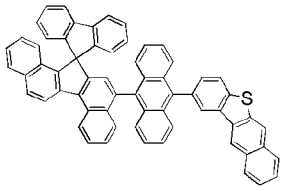


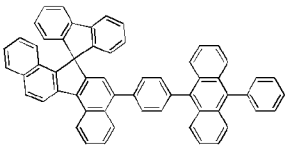


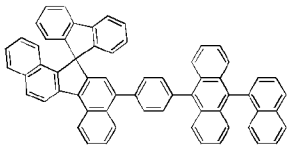


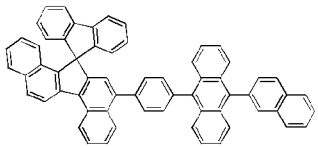


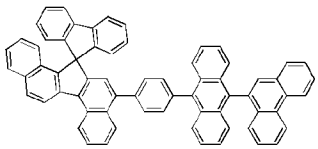


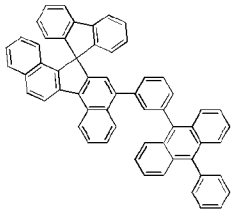


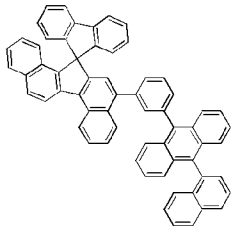


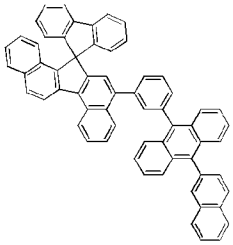


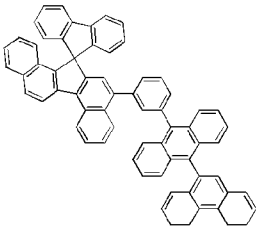


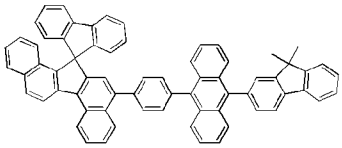


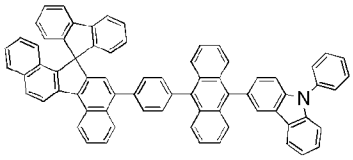


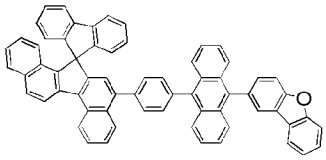


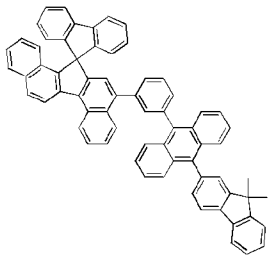


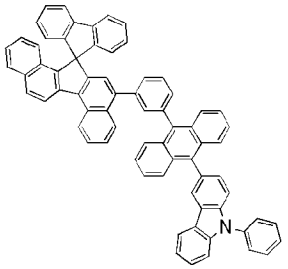


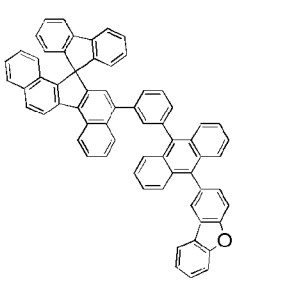




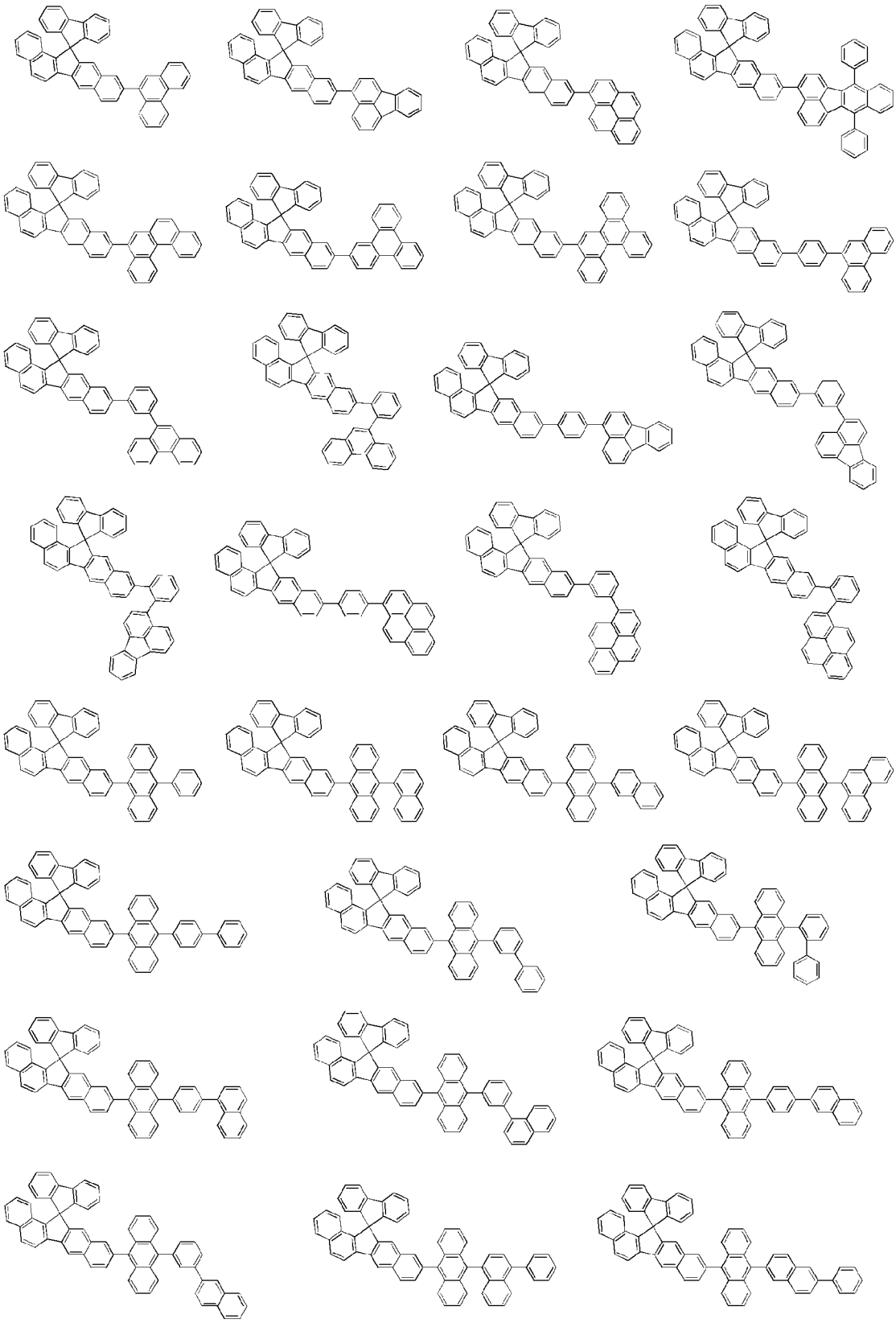






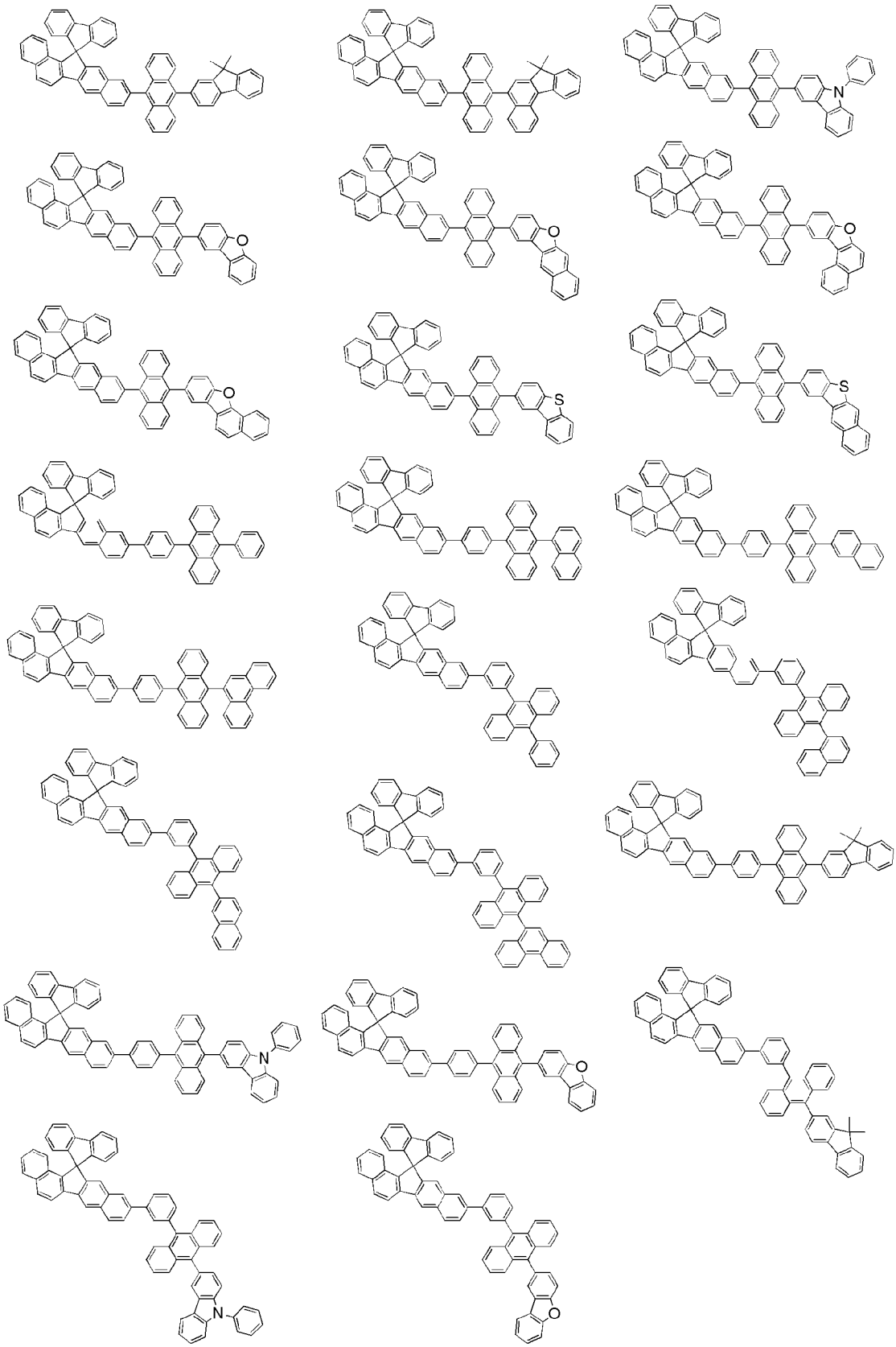


[0075] [化42]

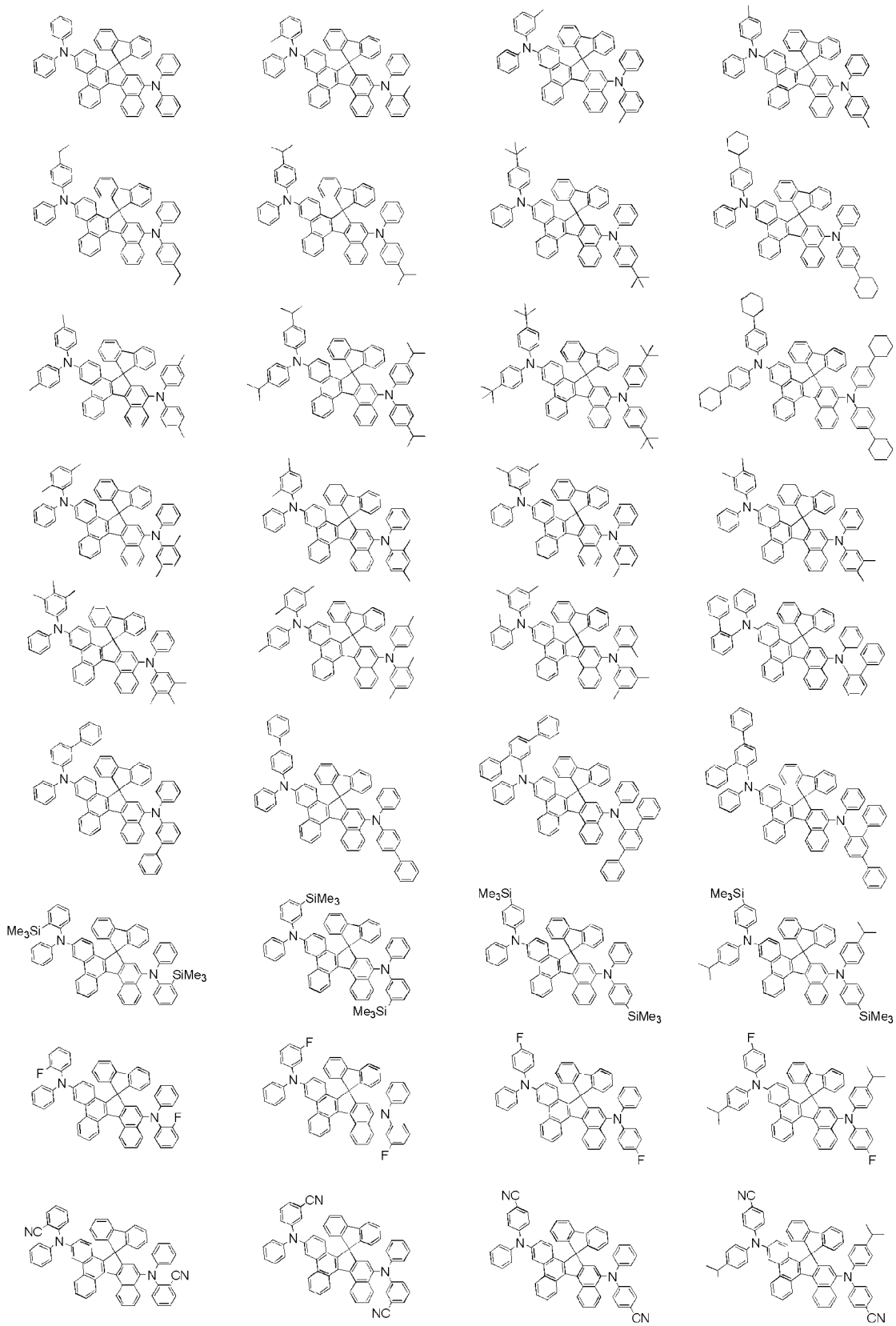


[0076]

[化43]

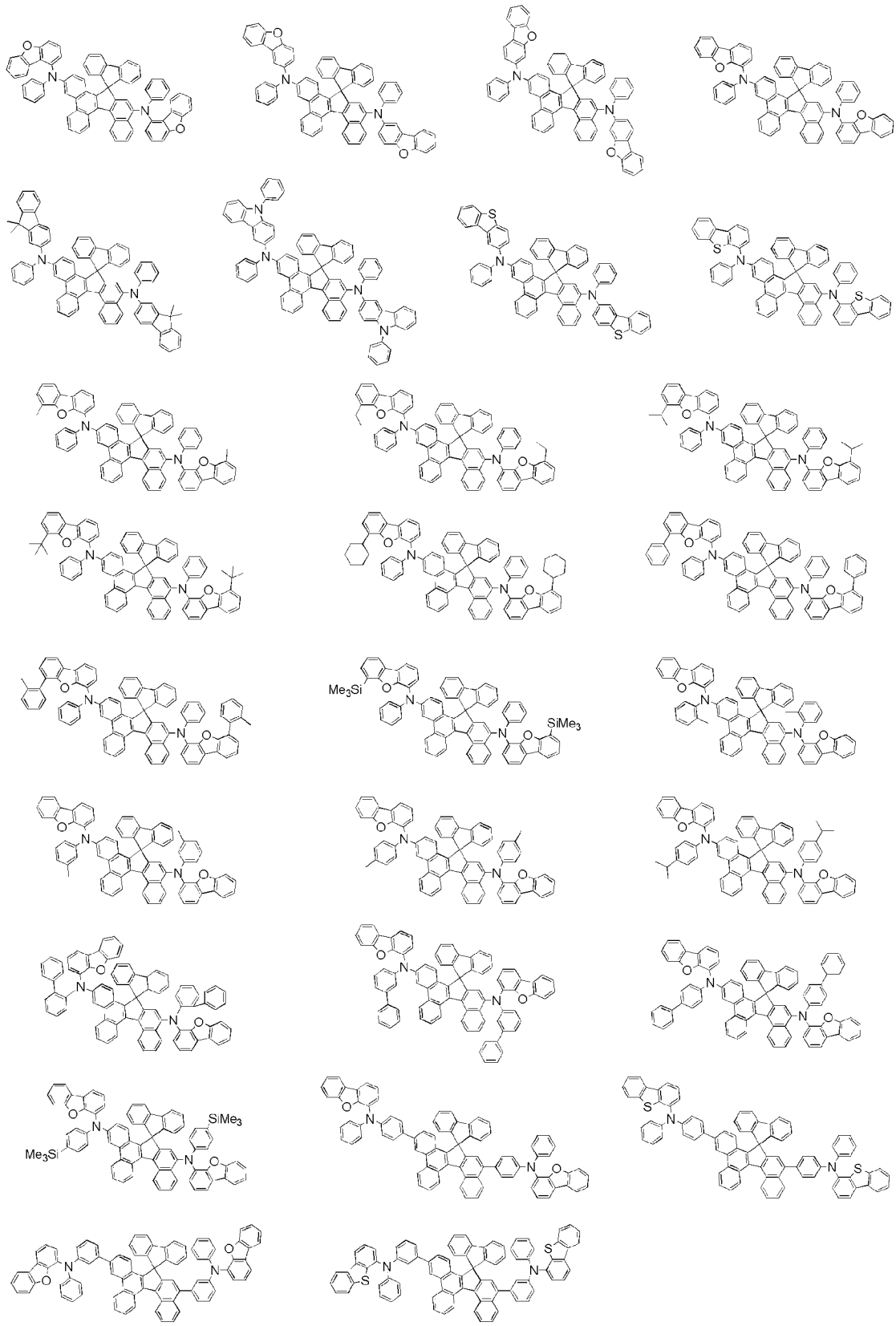


[0077] [化44]



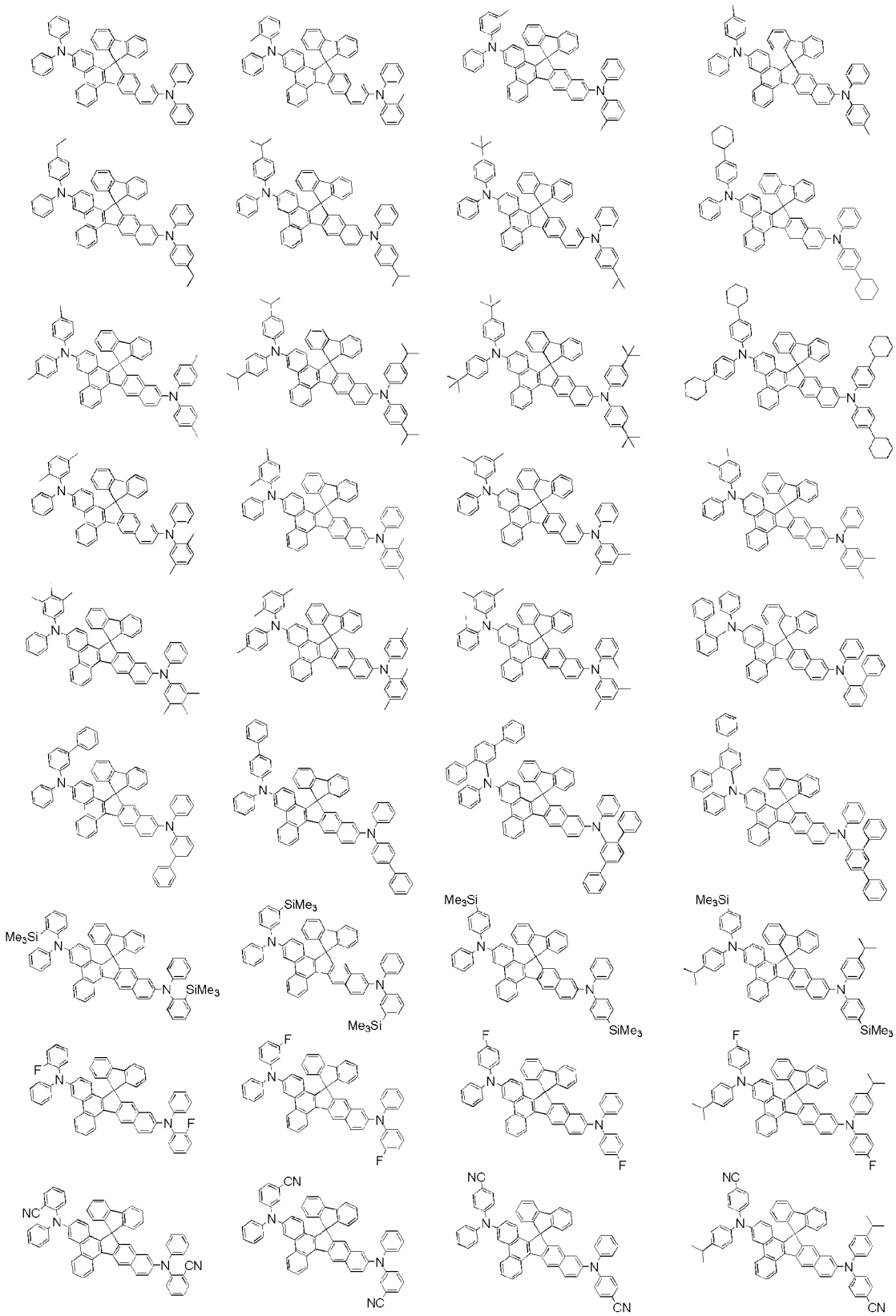
[0078]

[化45]



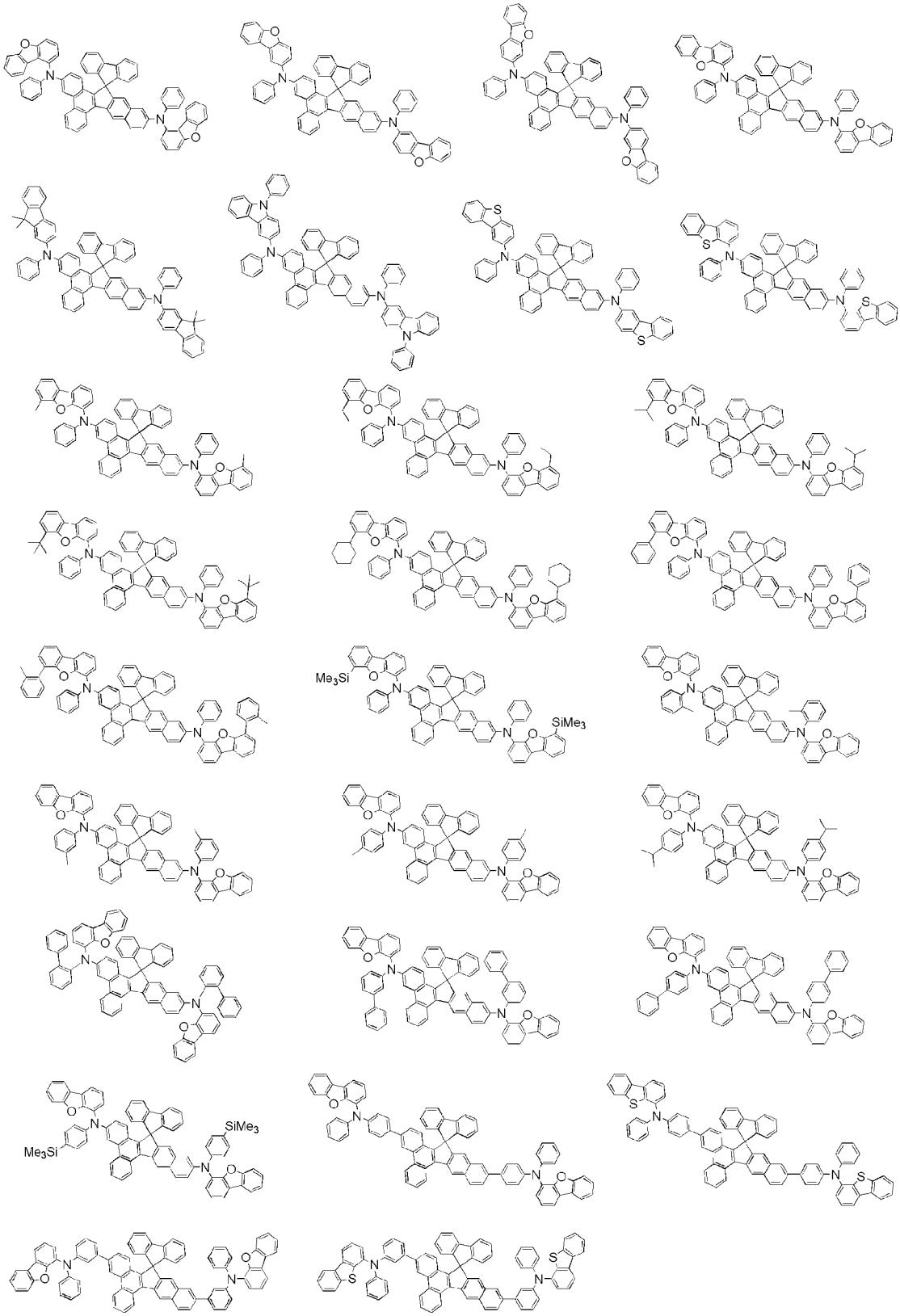
[0079]

[化46]


Me3Si
SiMe3
Me3Si
SiMe3
Me3Si
SiMe3
Me3Si
SiMe3
F
F
F
F
F
F
F
F
NC
CN
CN
NC
NC
CN
NC
CN

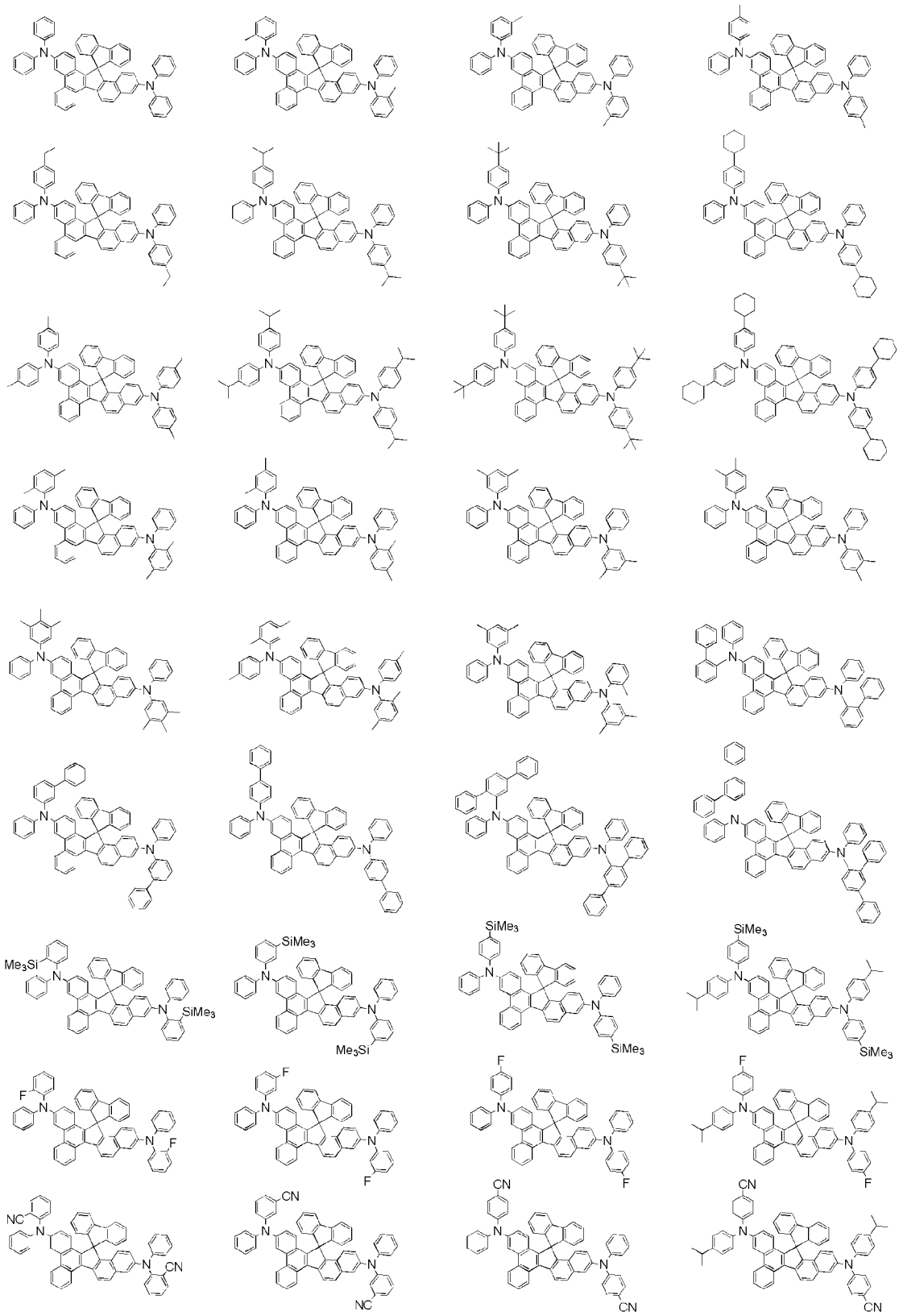
[0080]

[化47]



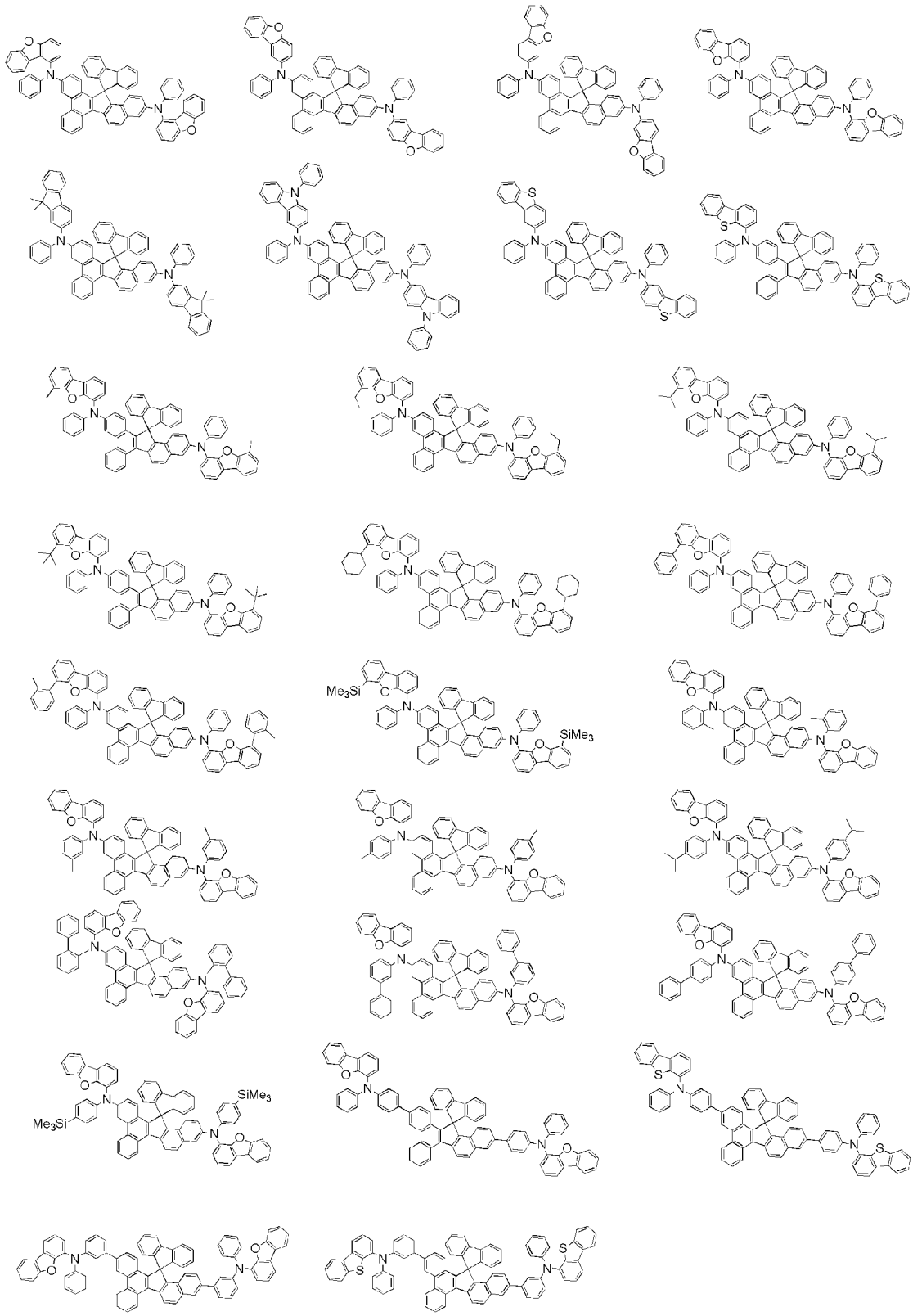
[0081]

[化48]


Me3Si
SiMe3
SiMe3
Me3Si
SiMe3
SiMe3
SiMe3
SiMe3
F
F
F
F
F
F
F
F
NC
CN
CN
NC
CN
CN
CN
CN

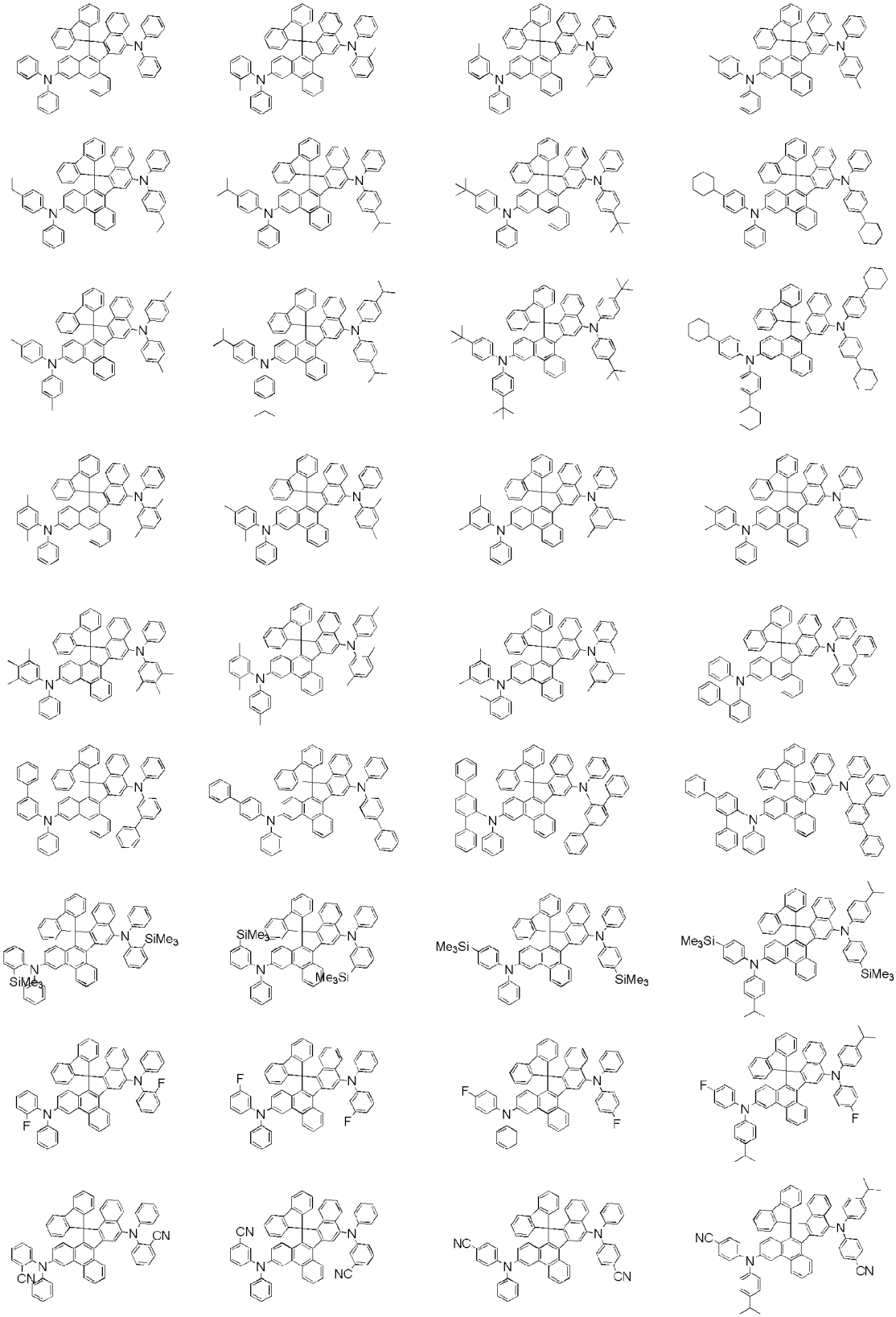
[0082]

[化49]



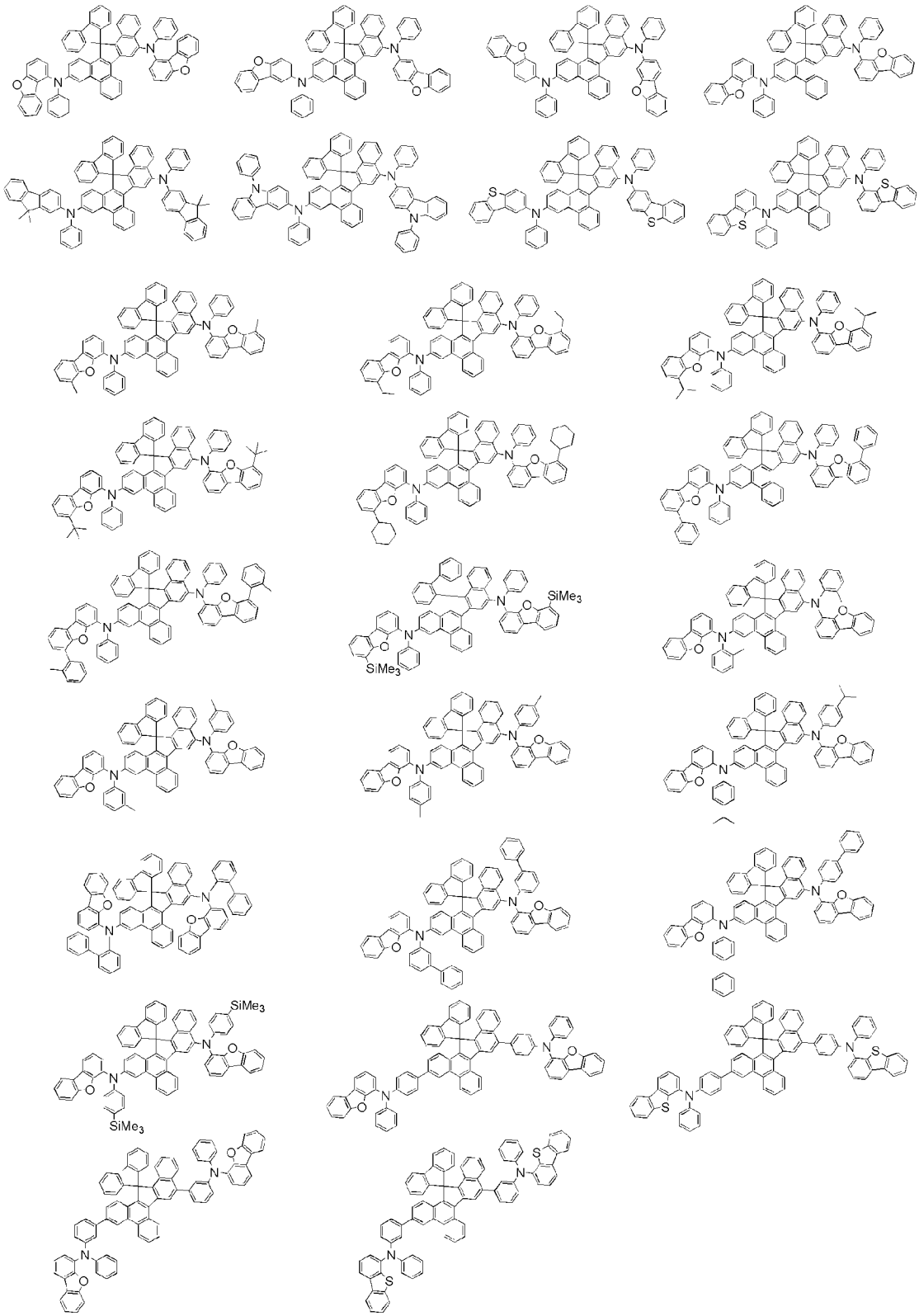
[0083]

[化50]



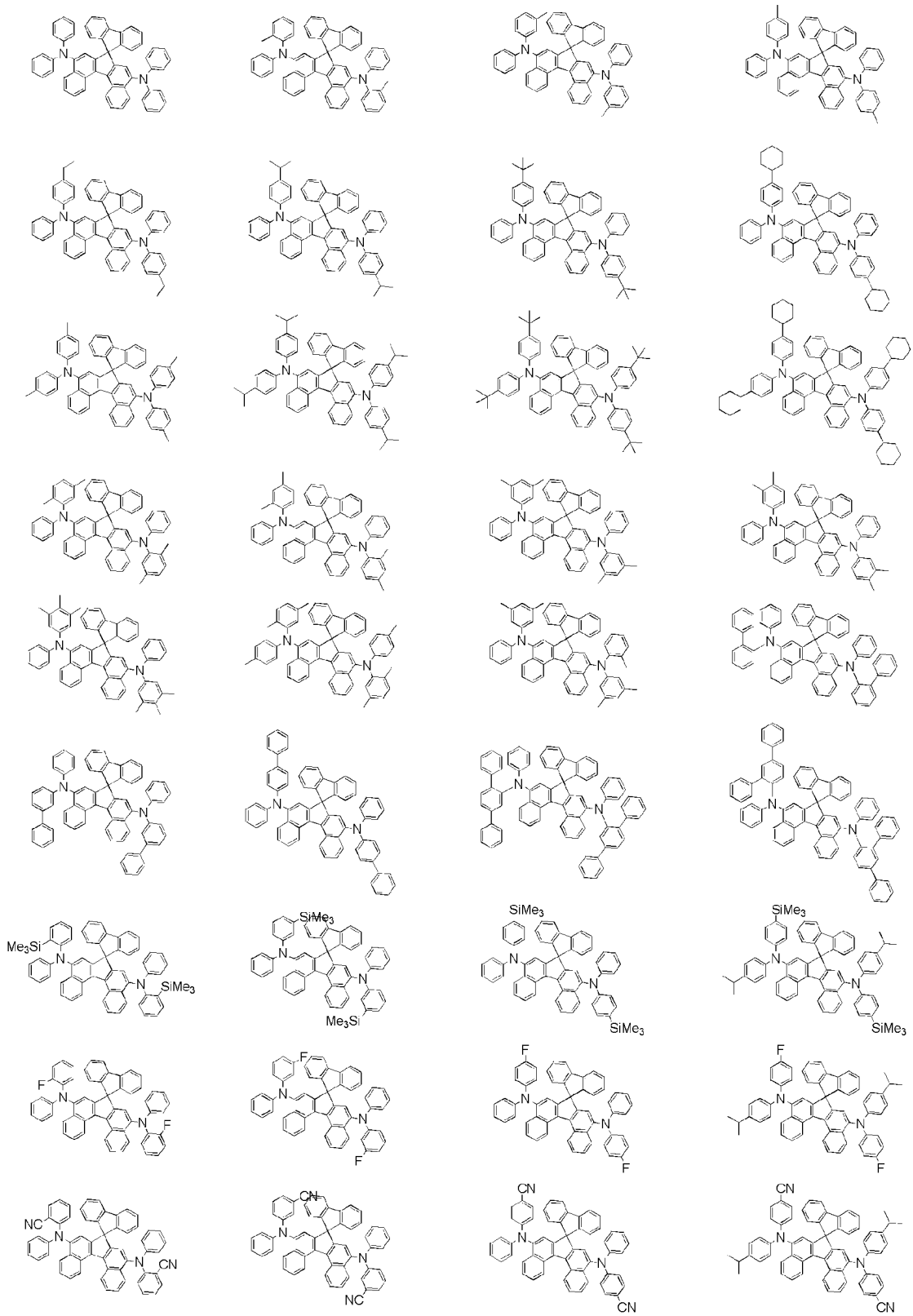
[0084]

[化51]



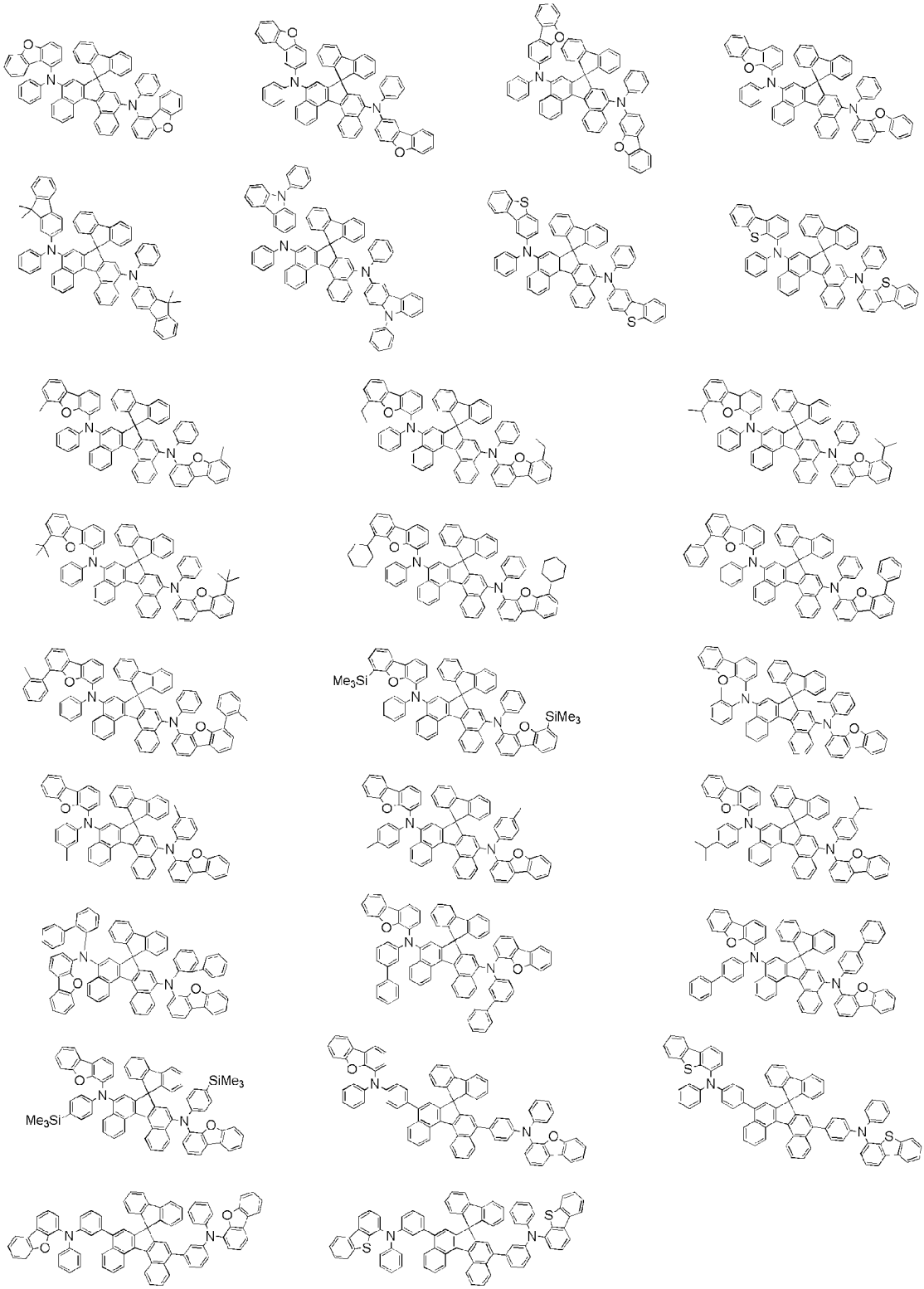
[0085]

[化52]



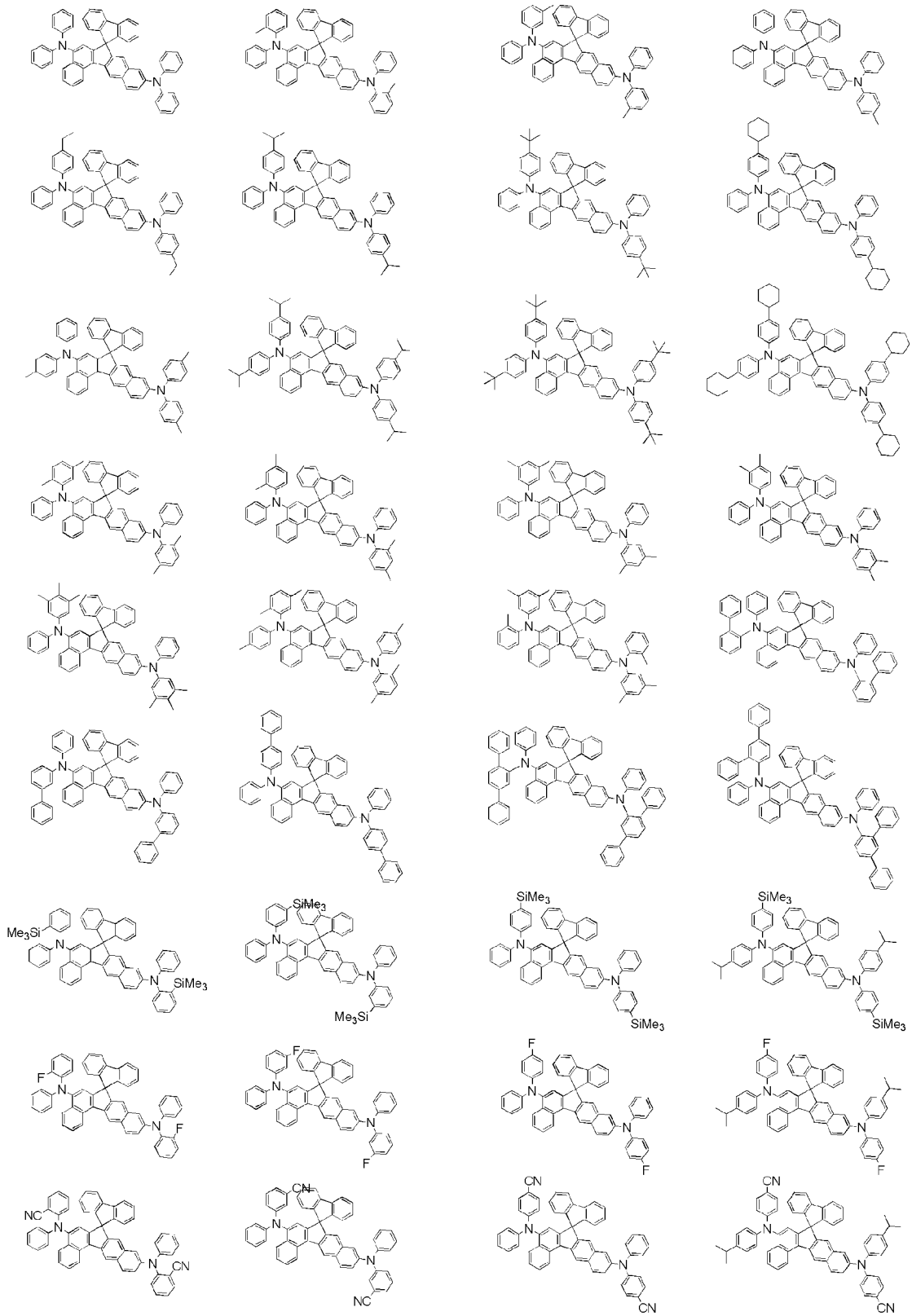
[0086]

[化53]



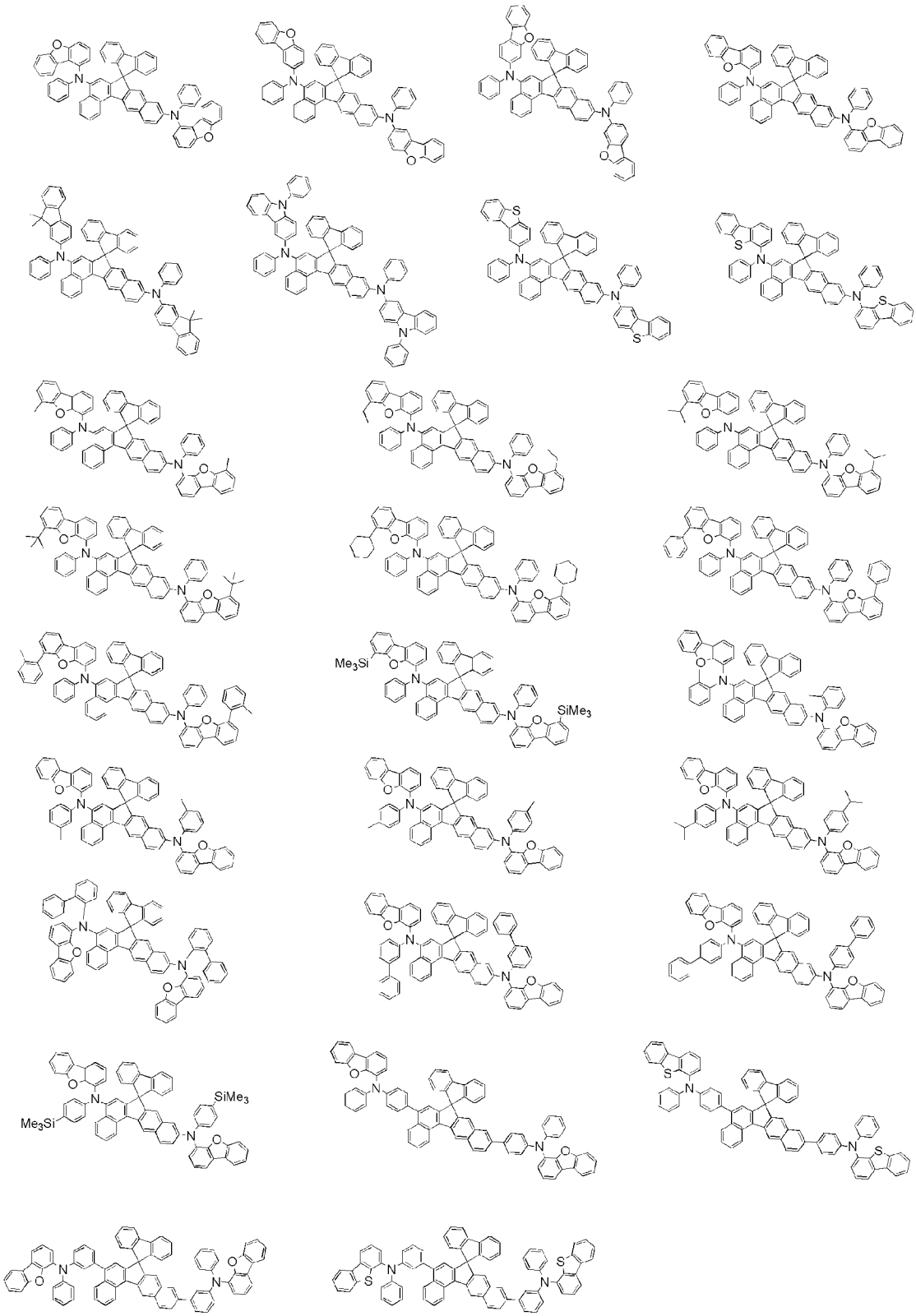
[0087]

[化54]



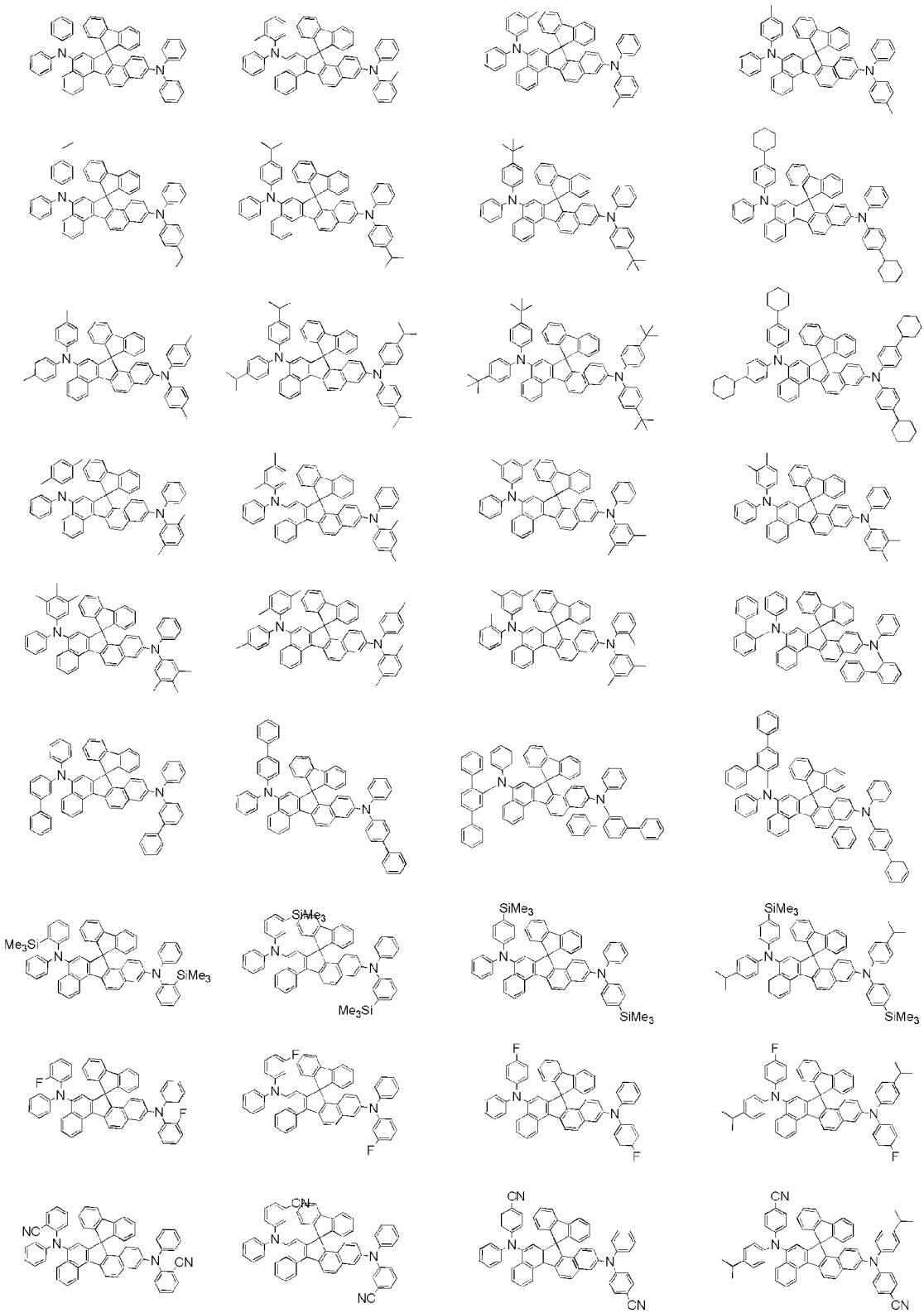
[0088]

[化55]



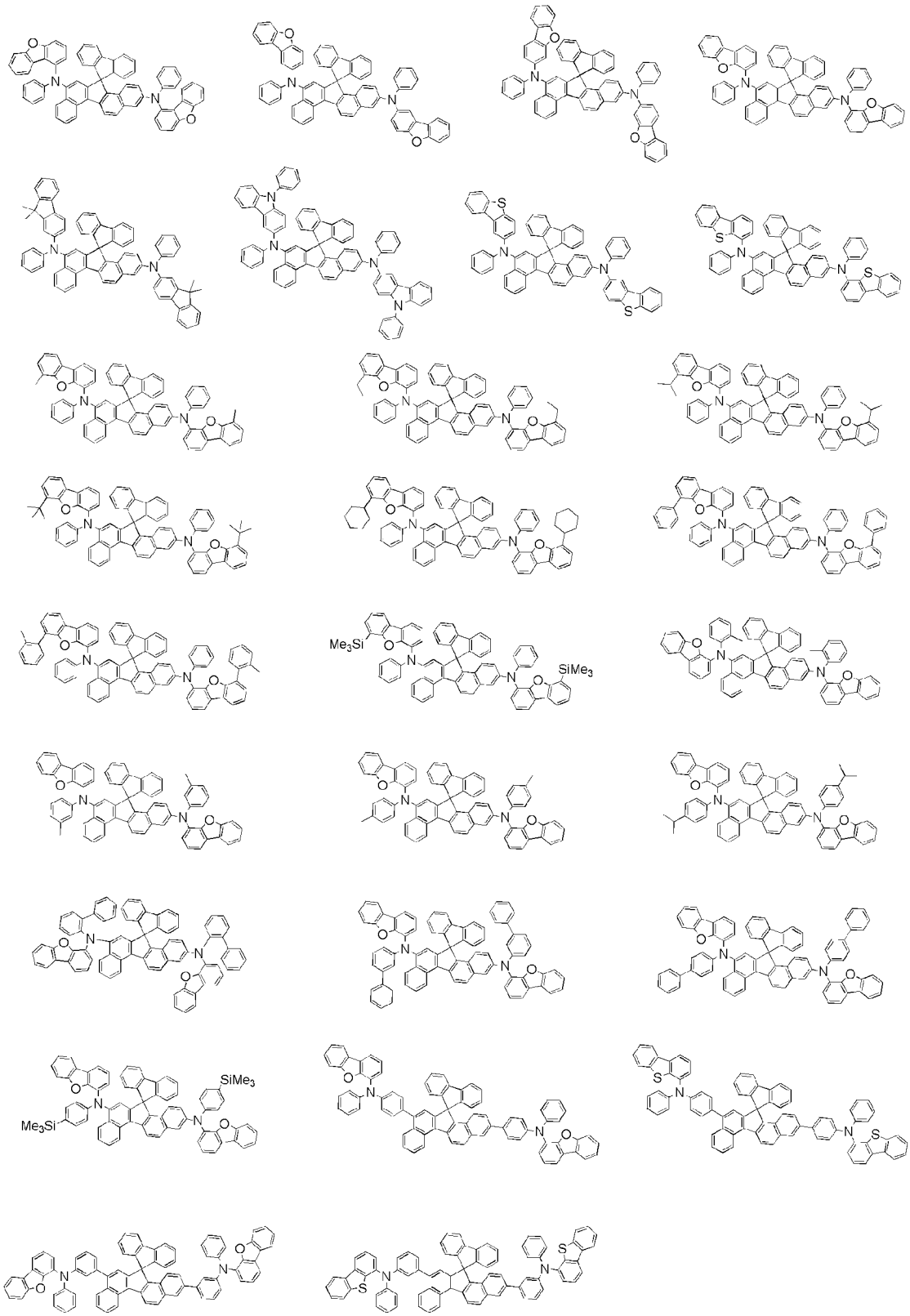
[0089]

[化56]



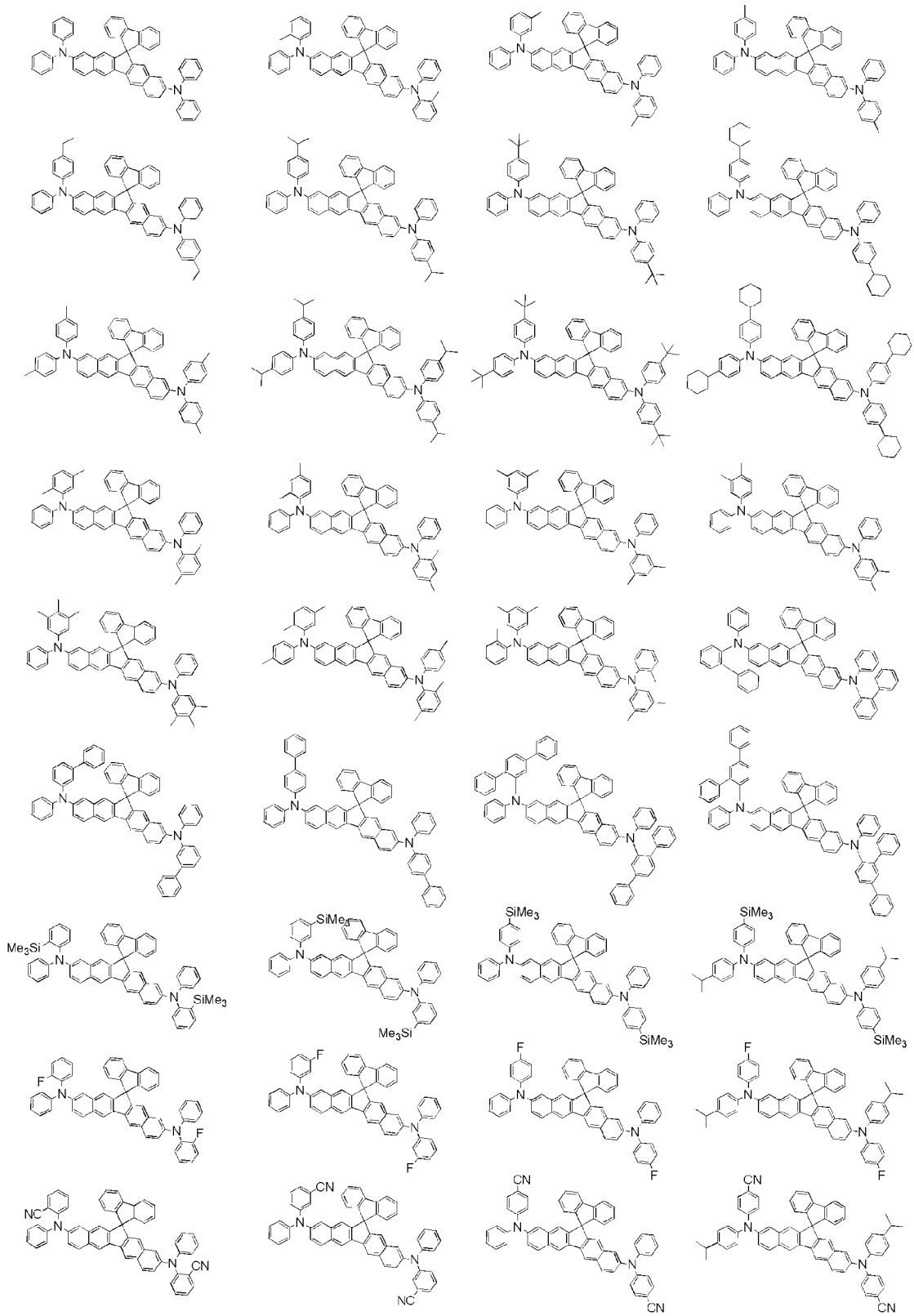
[0090]

[化57]



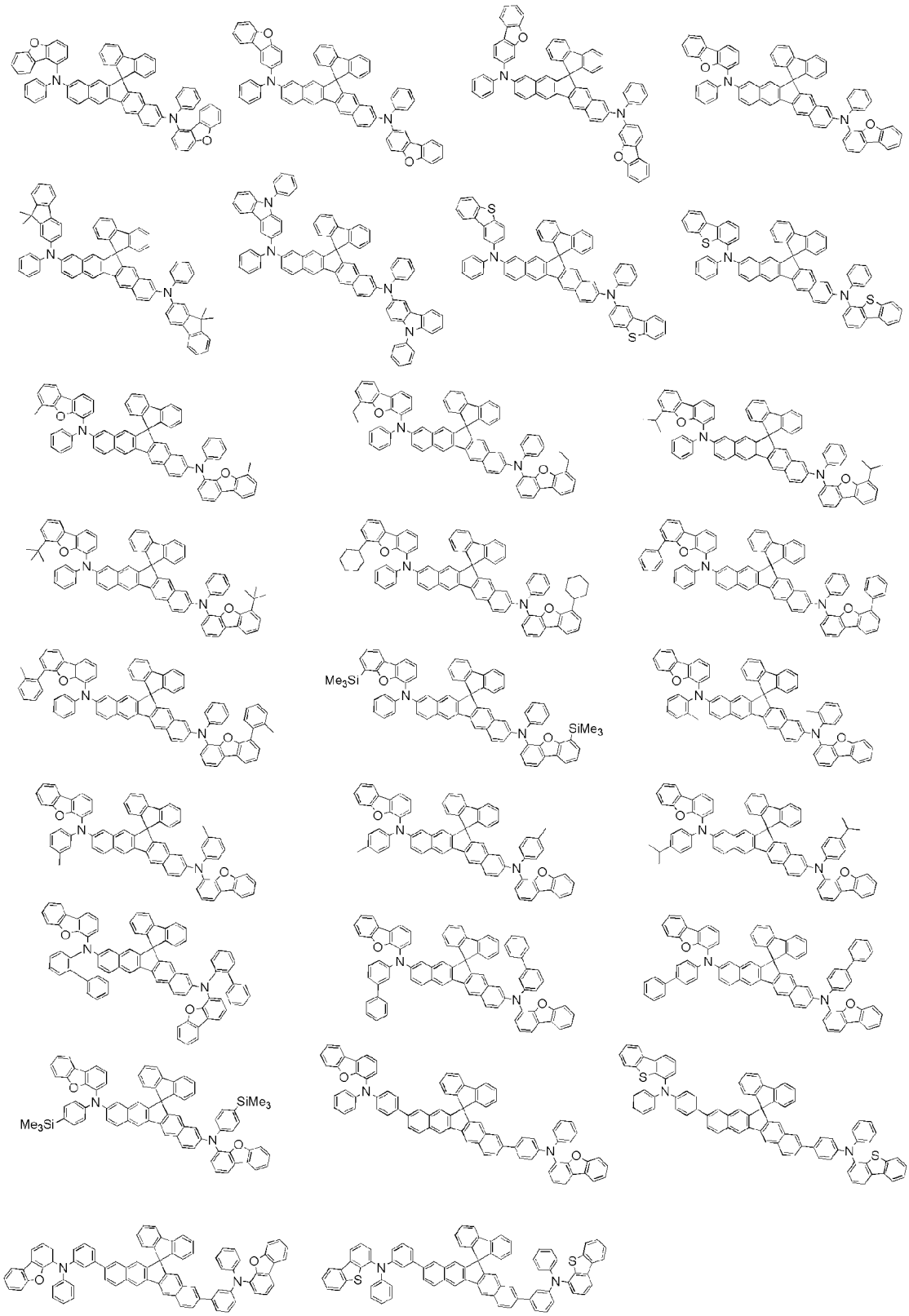
[0091]

[化58]


Me3Si
SiMe3
SiMe3
Me3Si
SiMe3
SiMe3
SiMe3
SiMe3
F
F
F
F
F
F
F
F
NC
CN
CN
NC
CN
CN
CN
CN

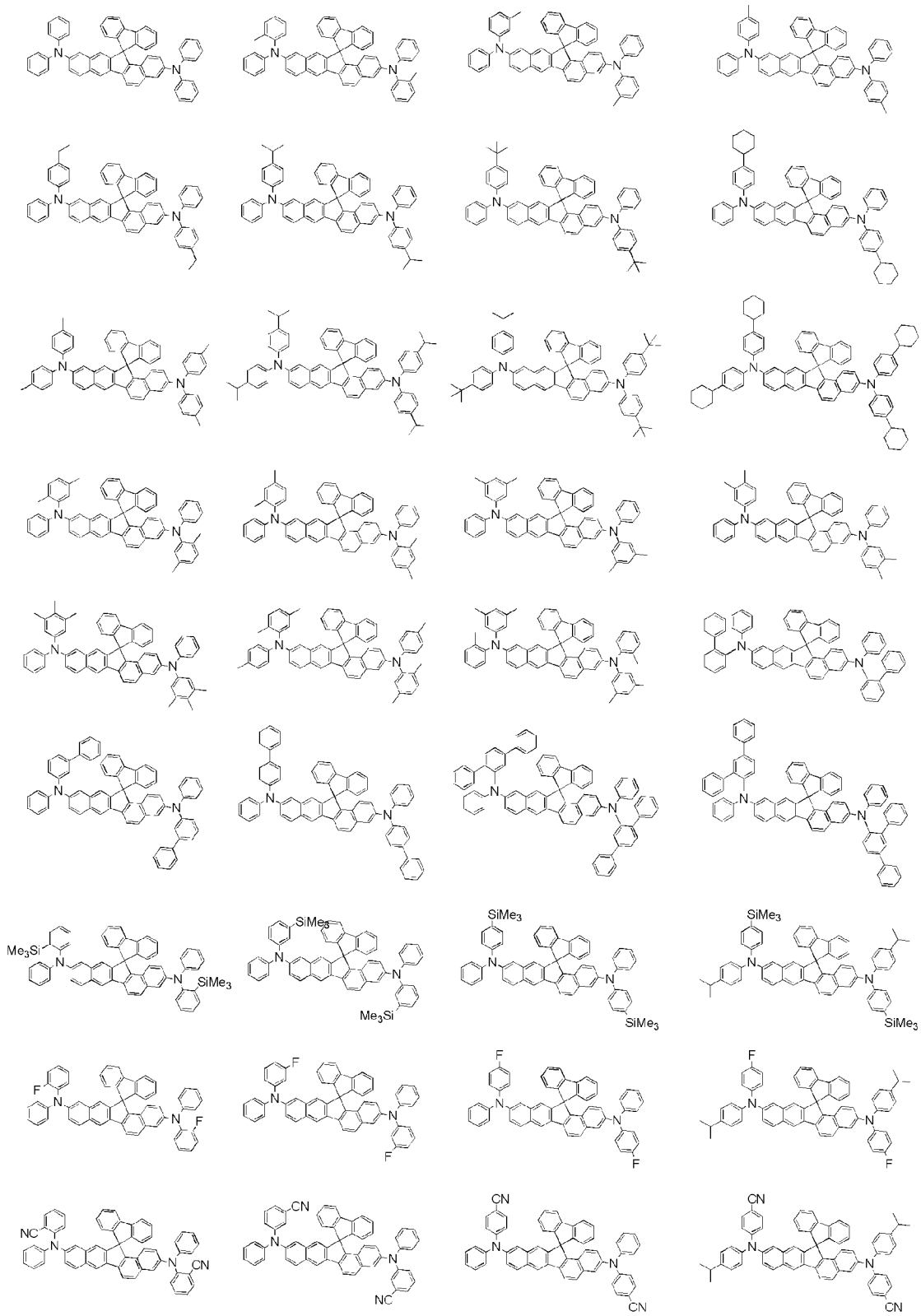
[0092]

[化59]



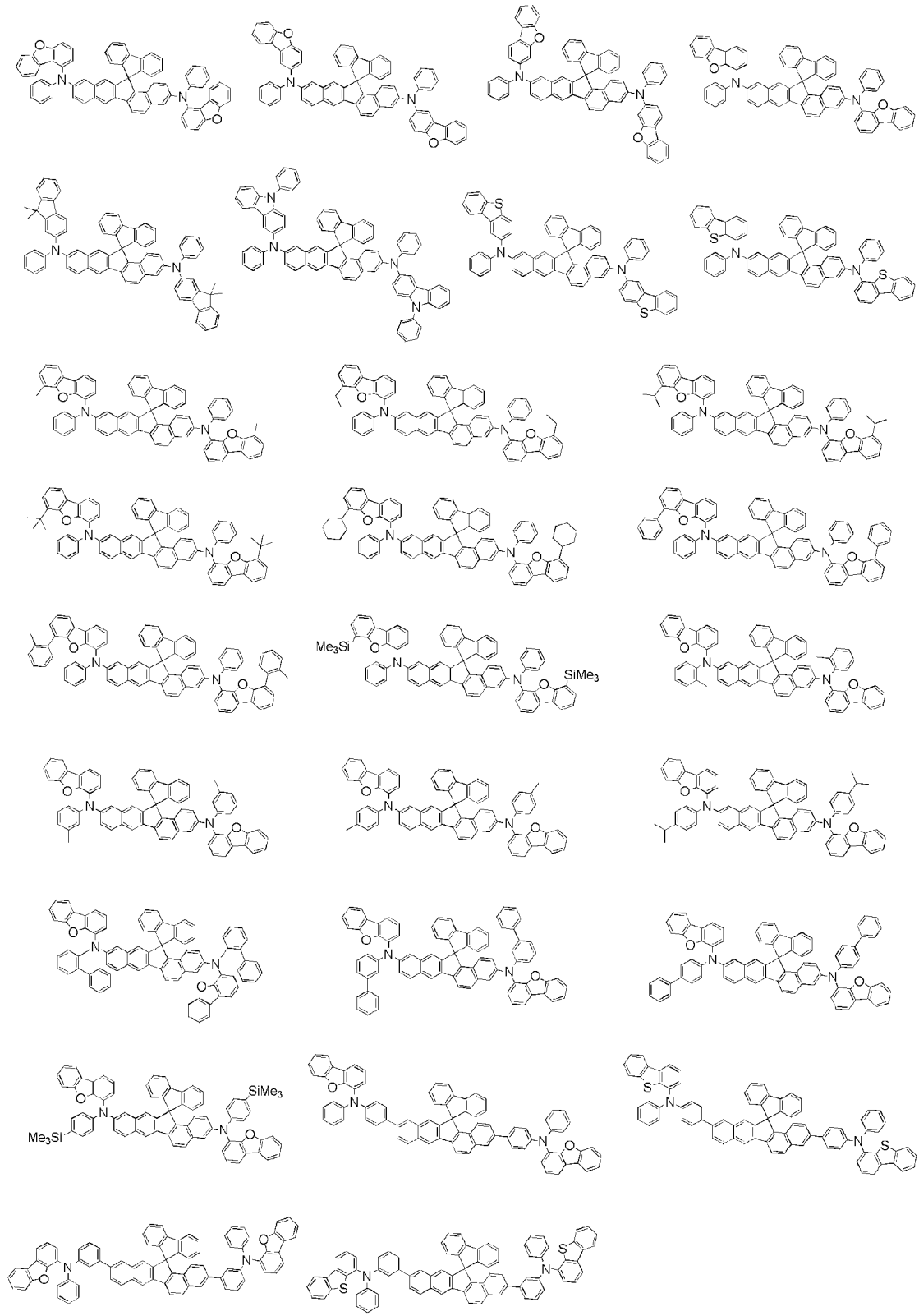
[0093]

[化60]


Me3Si
SiMe3
SiMe3
Me3Si
SiMe3
SiMe3
SiMe3
SiMe3
F
F
F
F
F
F
F
F
NC
CN
CN
NC
CN
CN
CN
CN

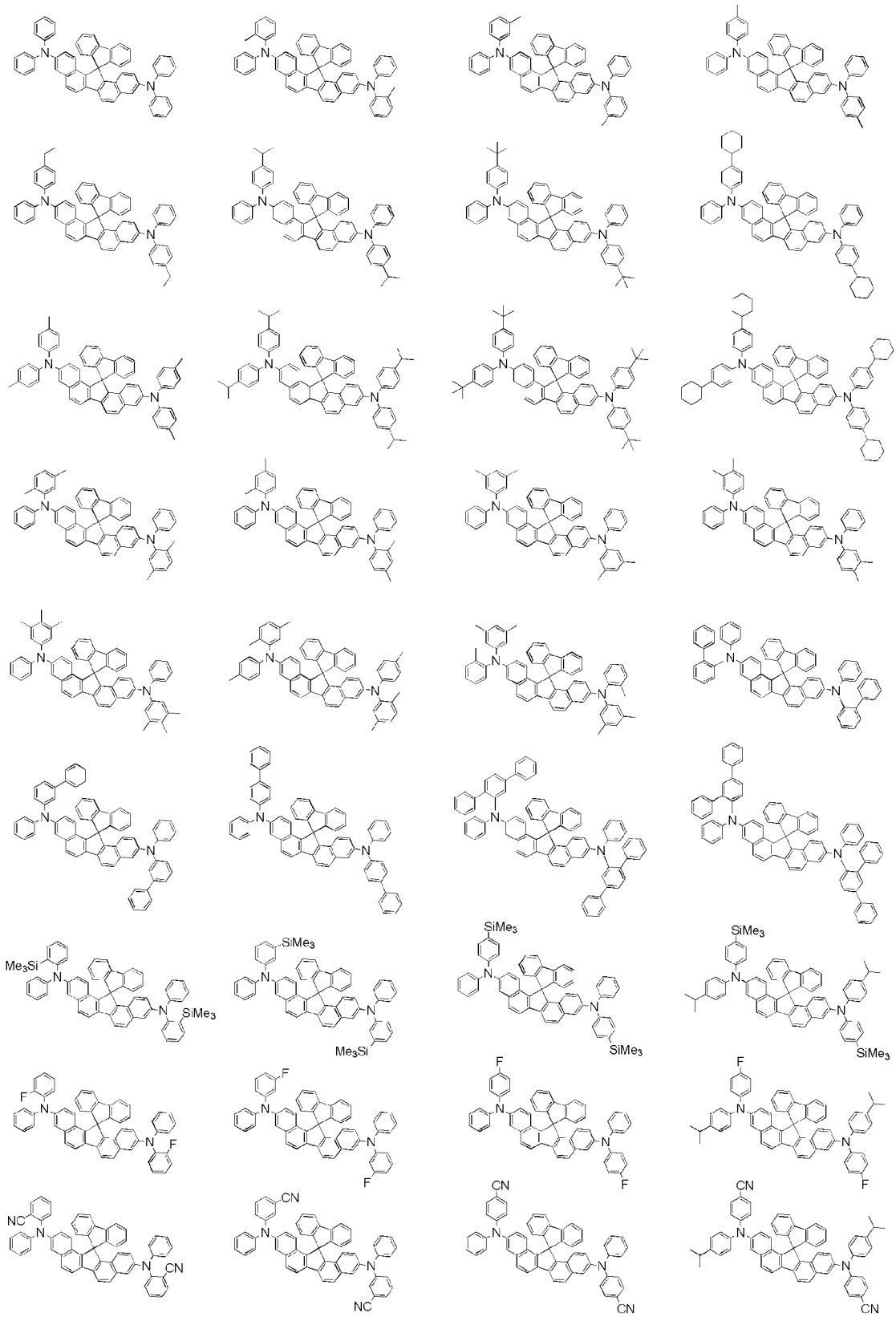
[0094]

[化61]



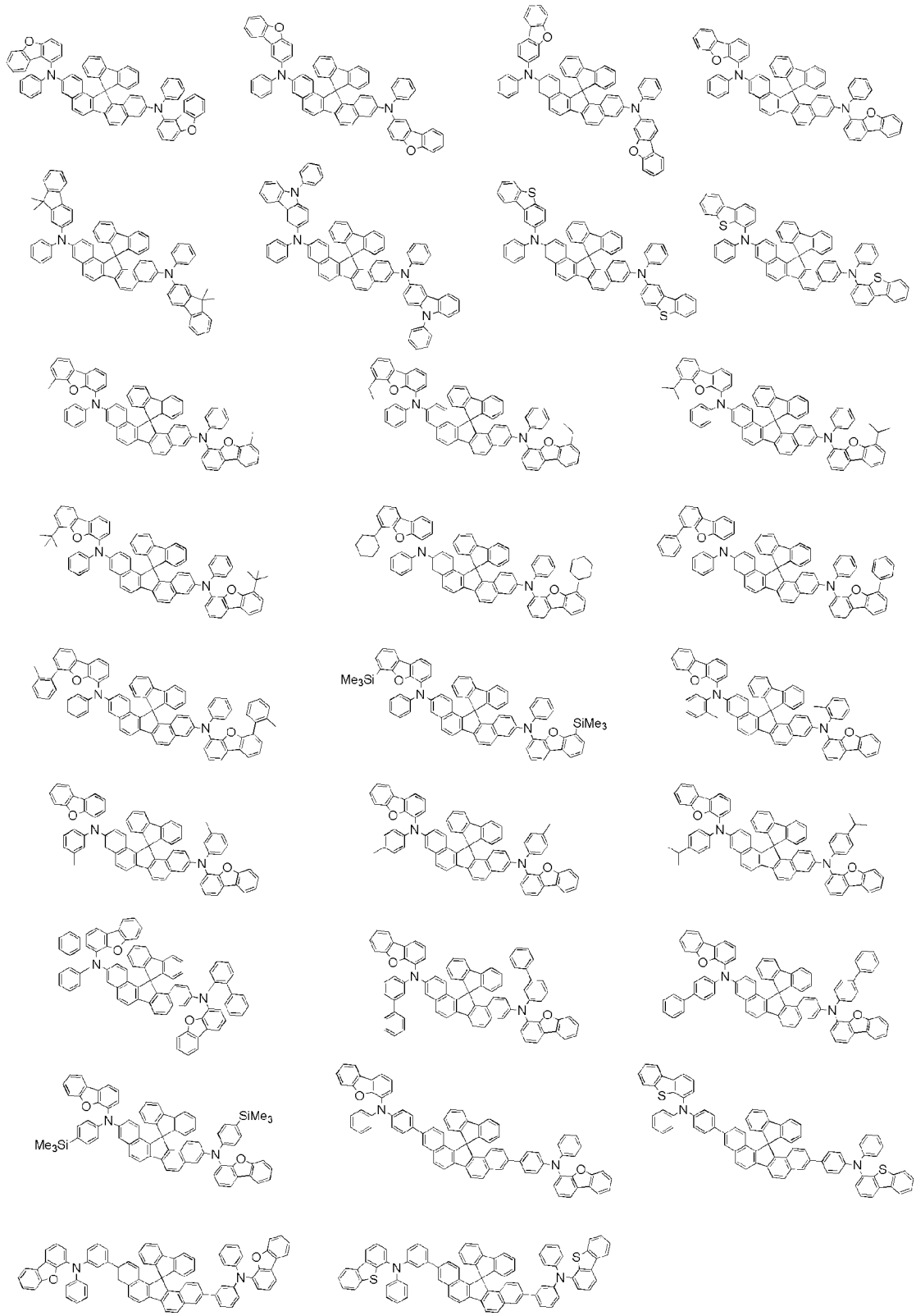
[0095]

[化62]


Me3Si
SiMe3
SiMe3
SiMe3
Me3Si
SiMe3
SiMe3
SiMe3
F
F
F
F
F
F
F
F
NC
CN
CN
NC
CN
CN
CN
CN

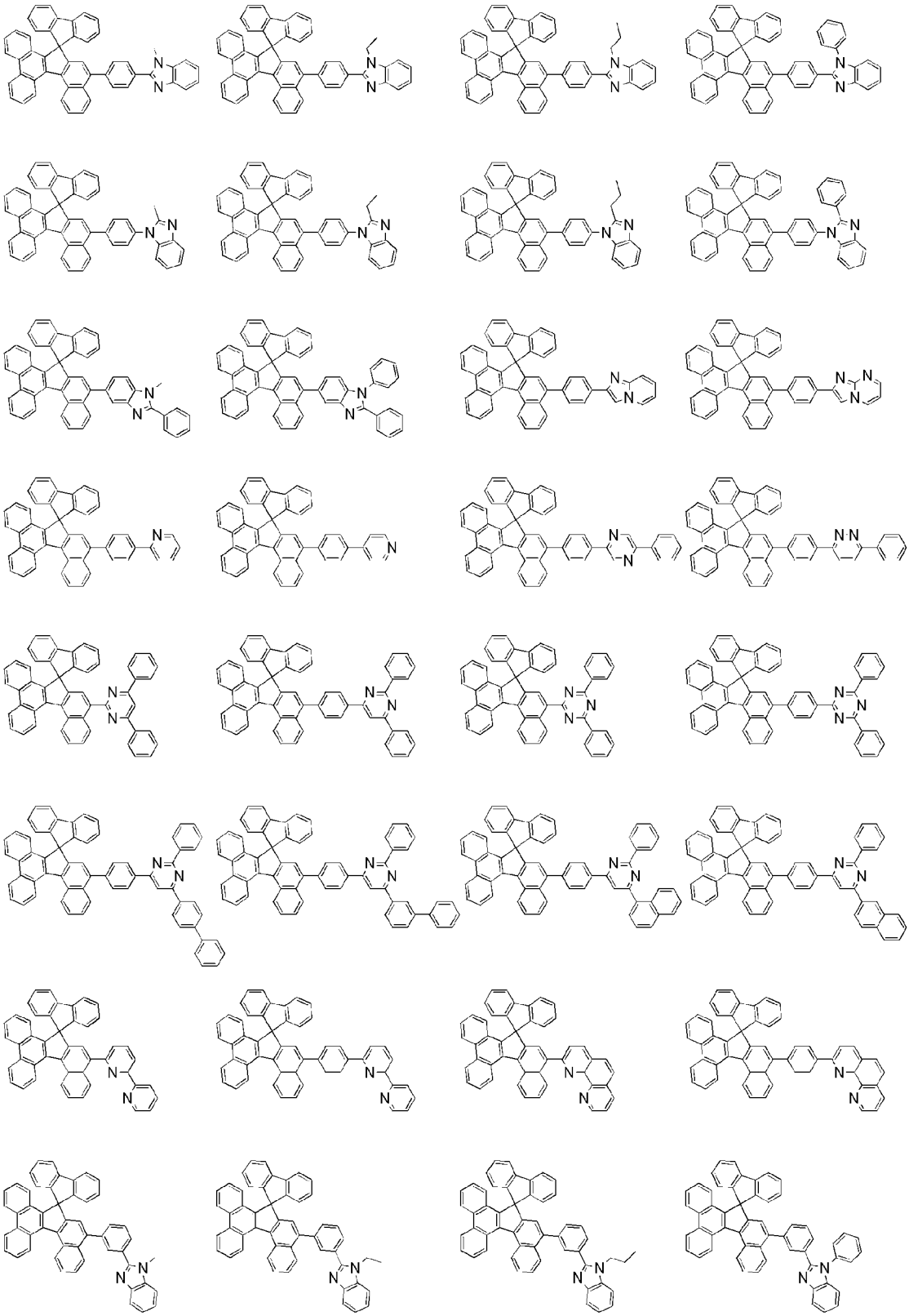
[0096]

[化63]



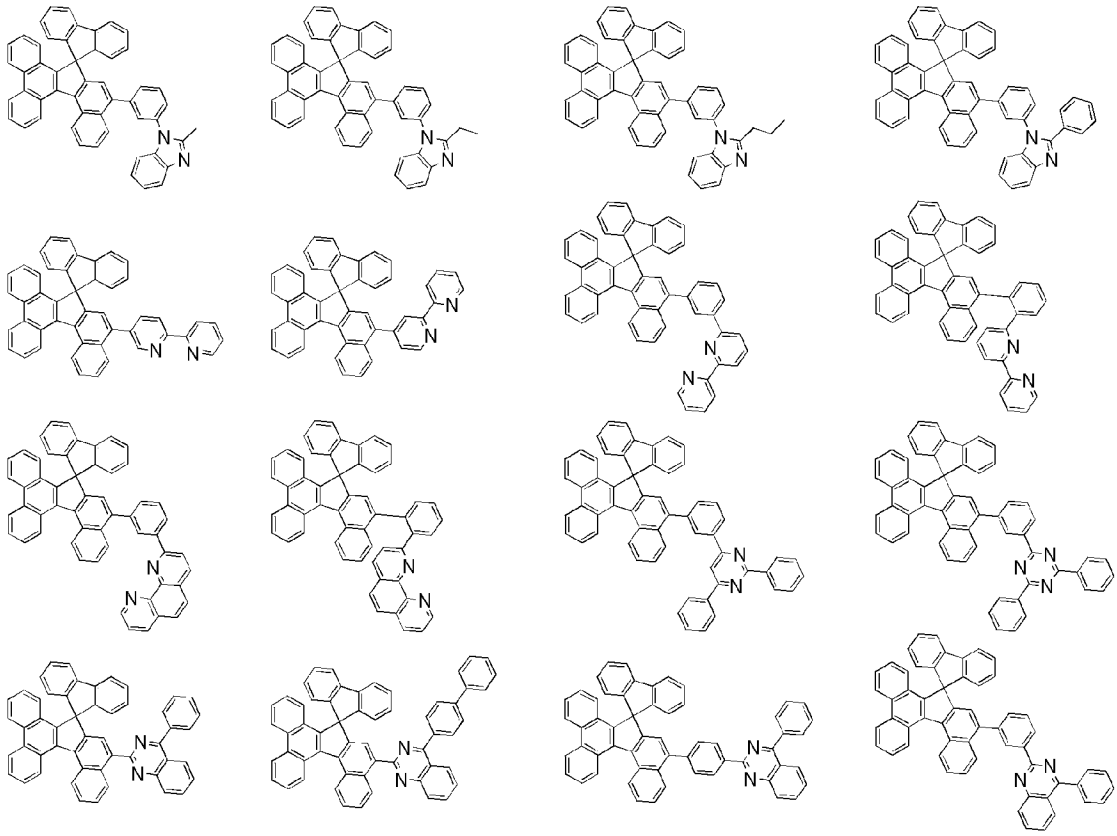
[0097]

[化64]

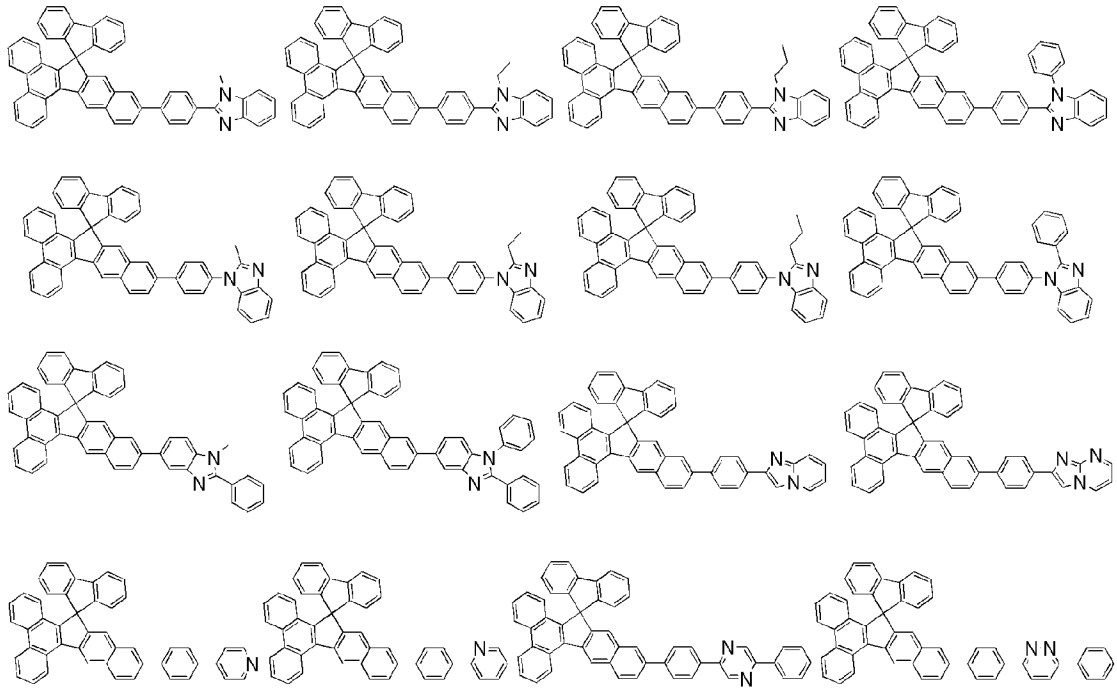


[0098]

[化65]

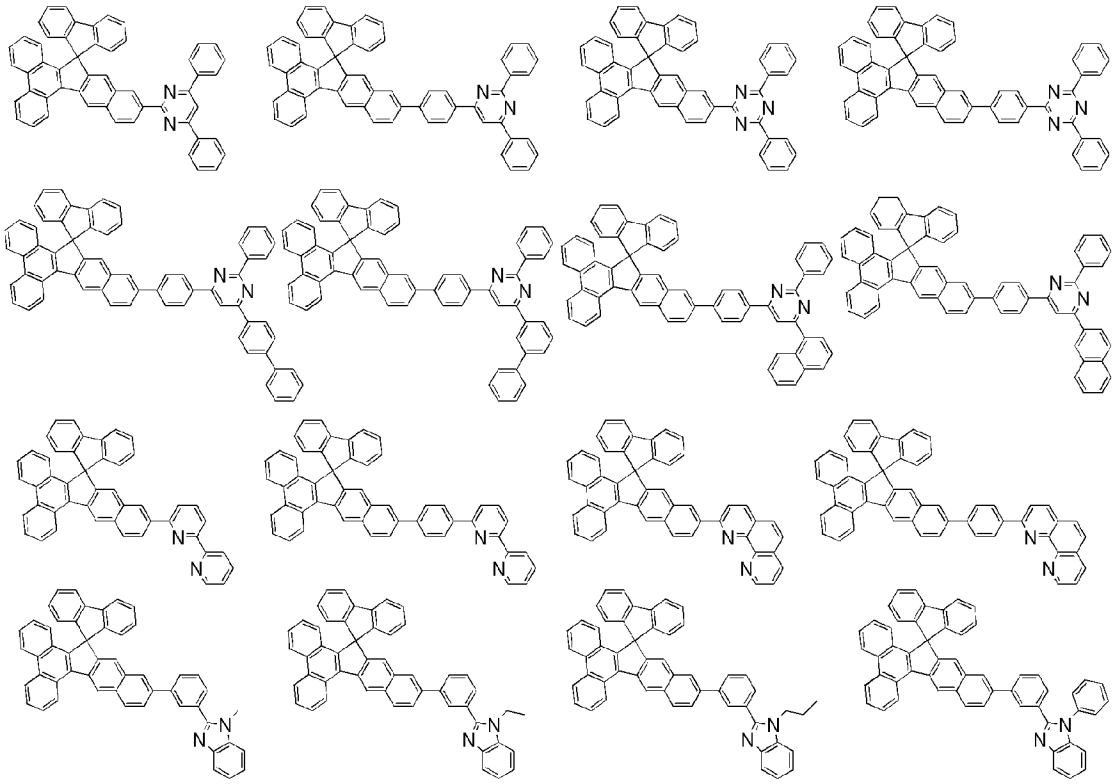


[0099] [化66]

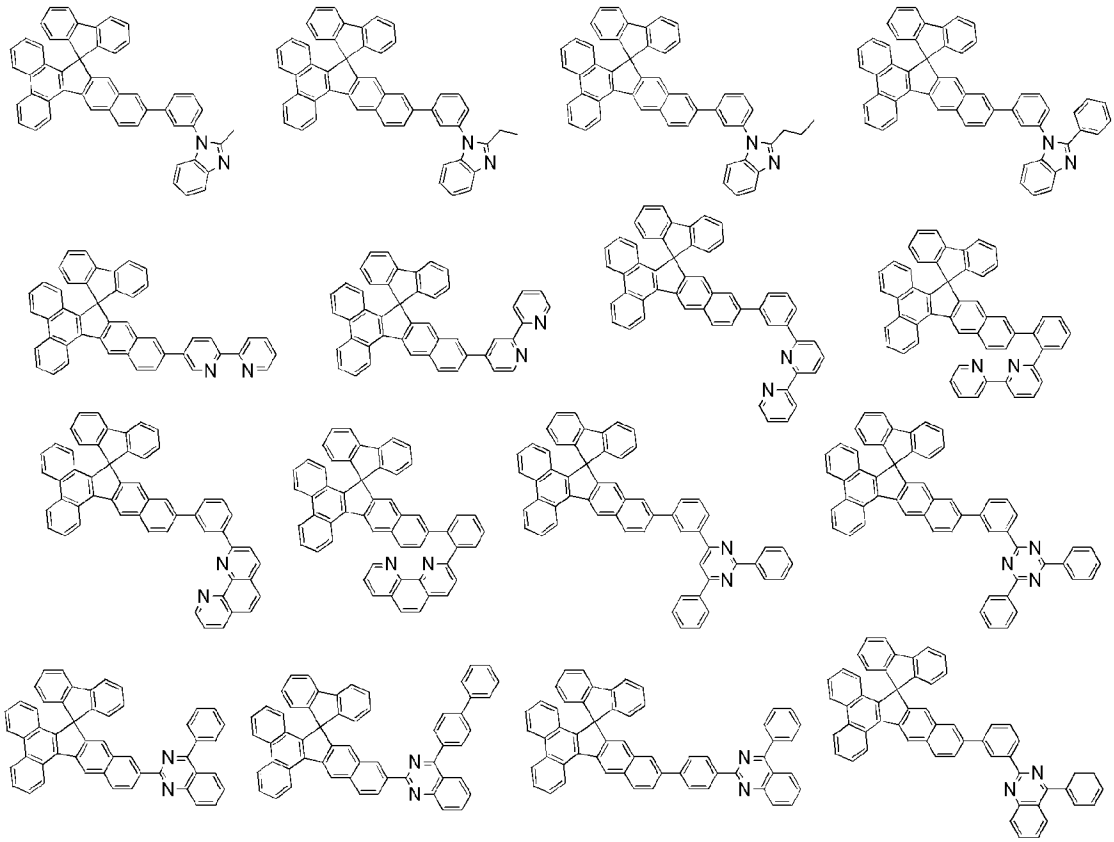


[0100]

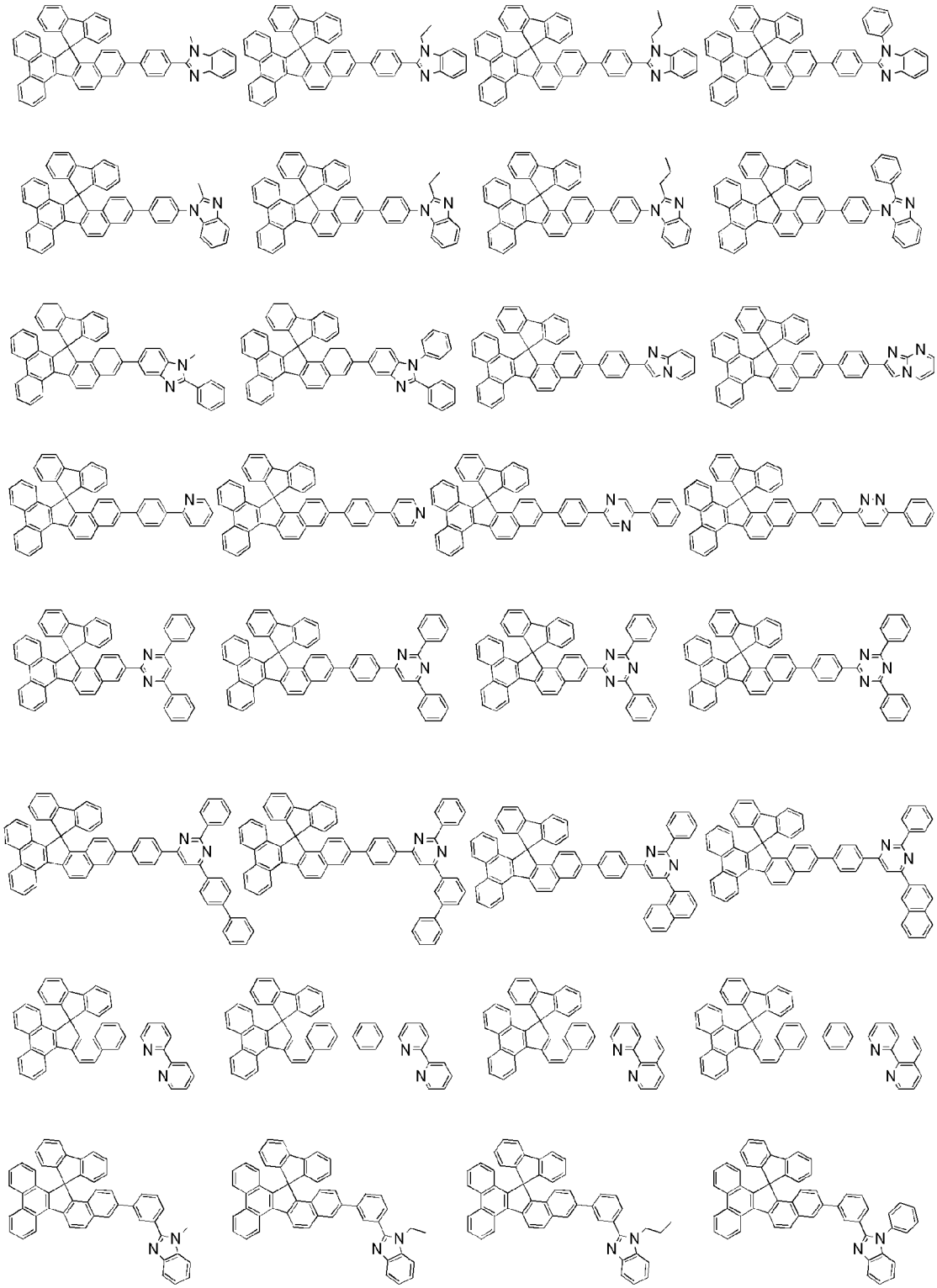
[化67]



[0101] [化68]

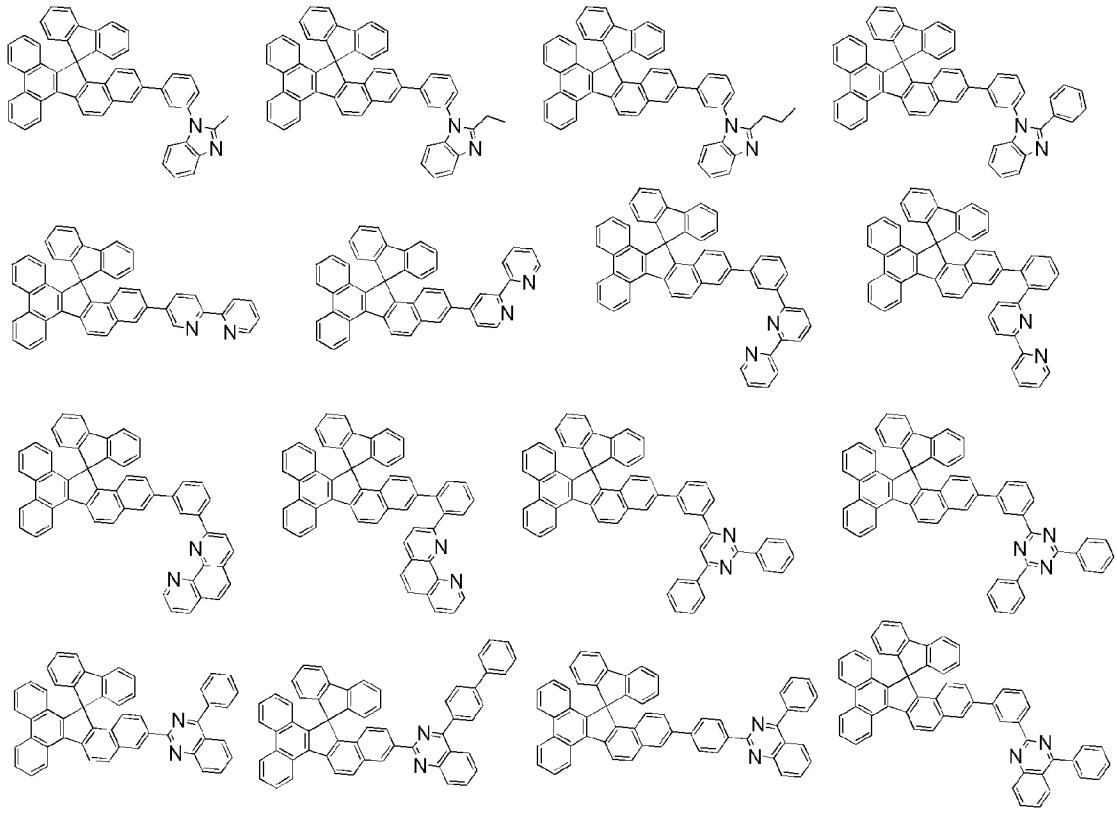


[0102] [化69]

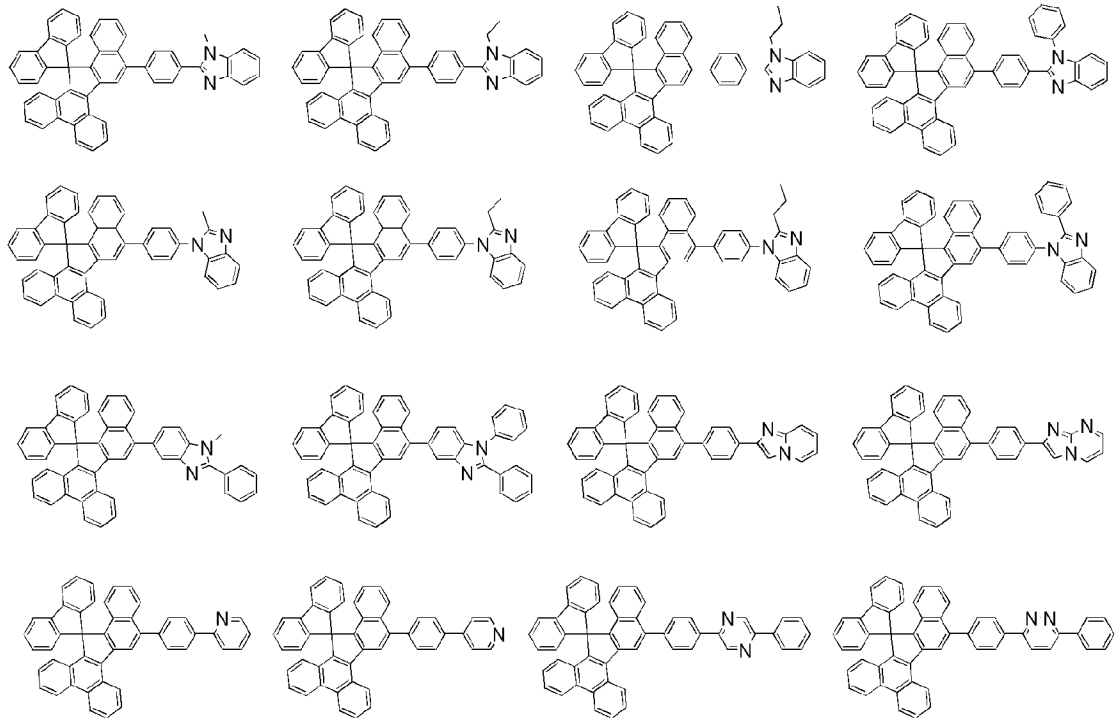


[0103]

[化70]

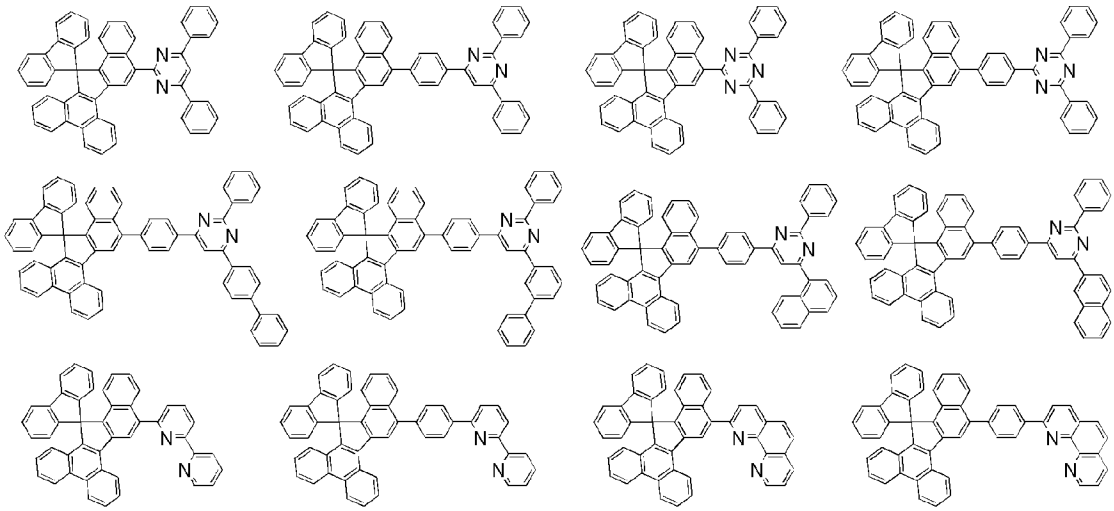


[0104] [化71]

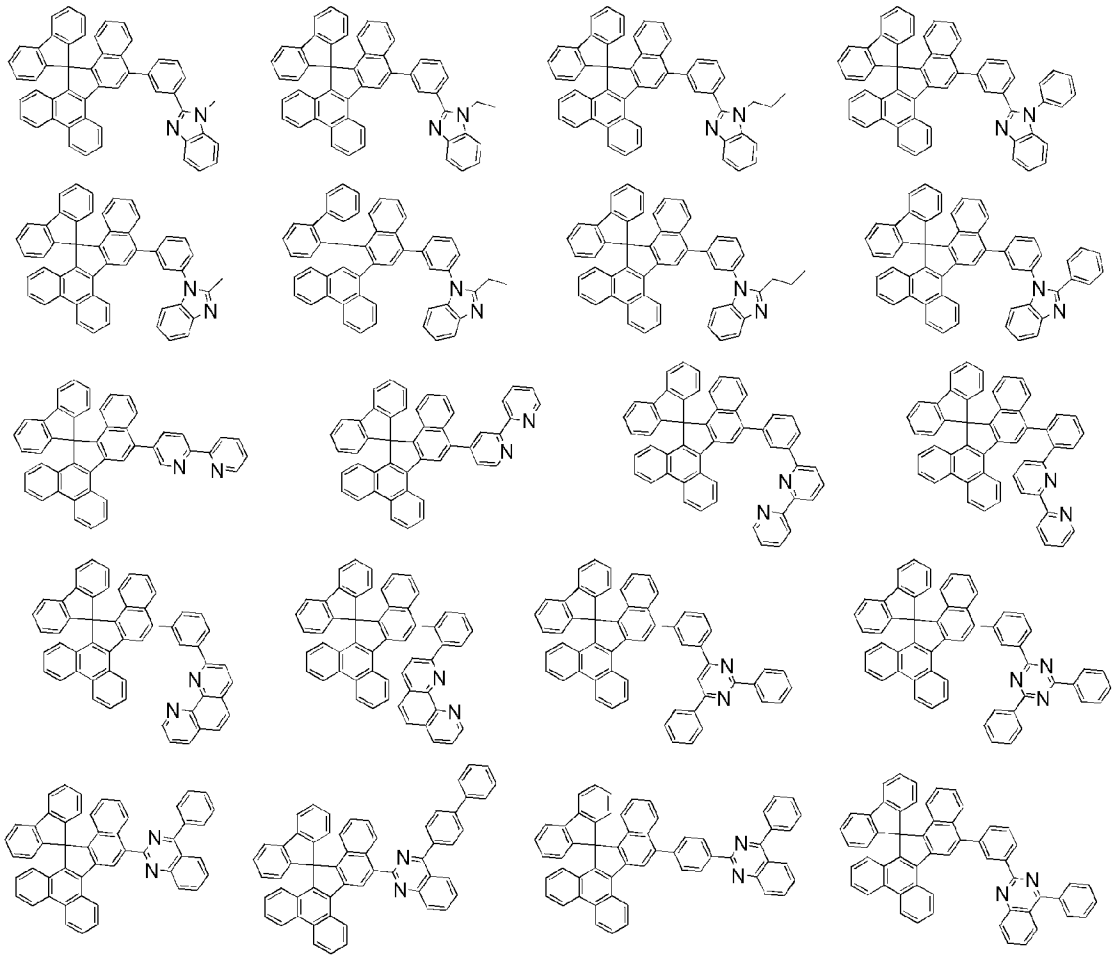


[0105]

[化72]

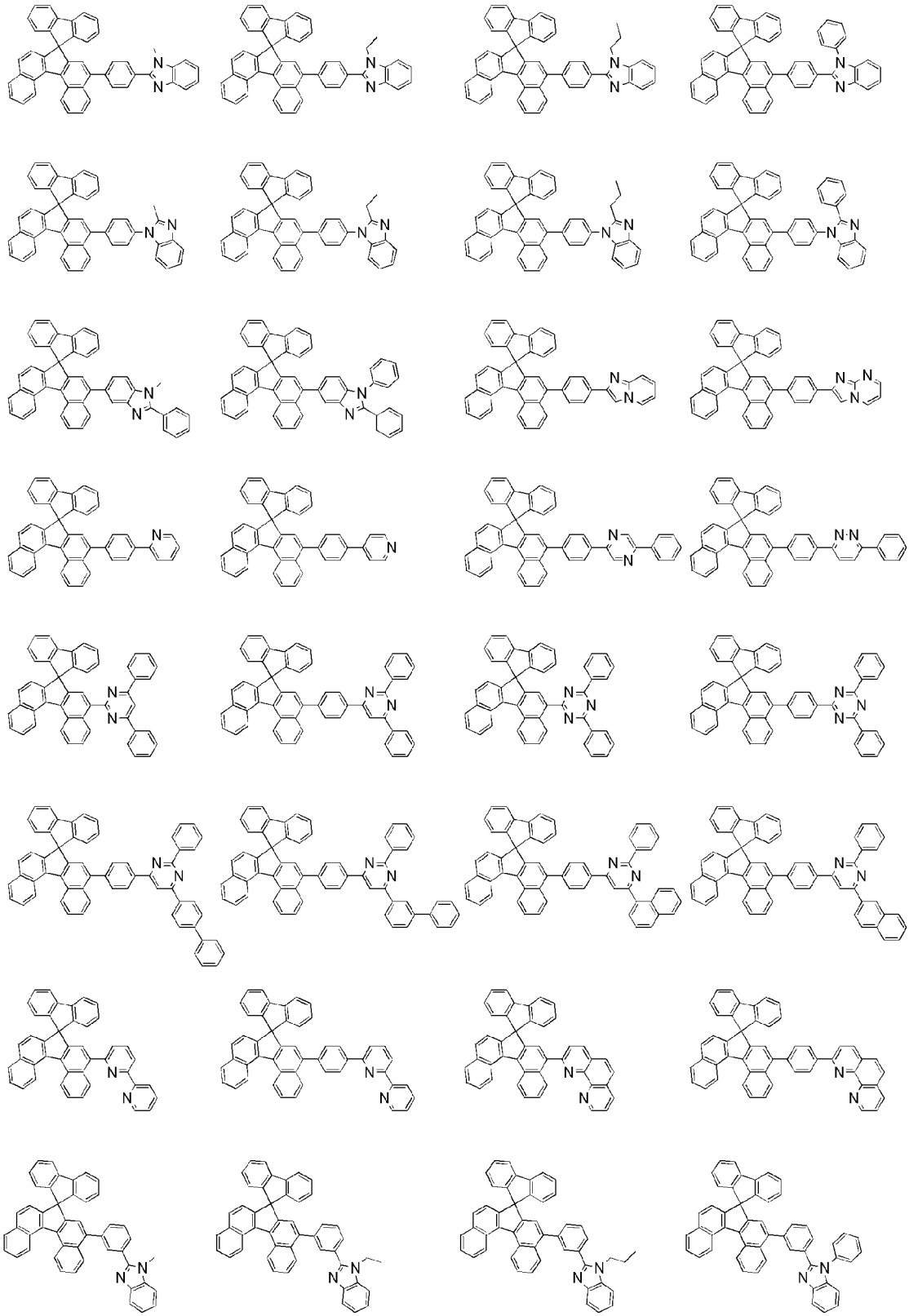


[0106] [化73]



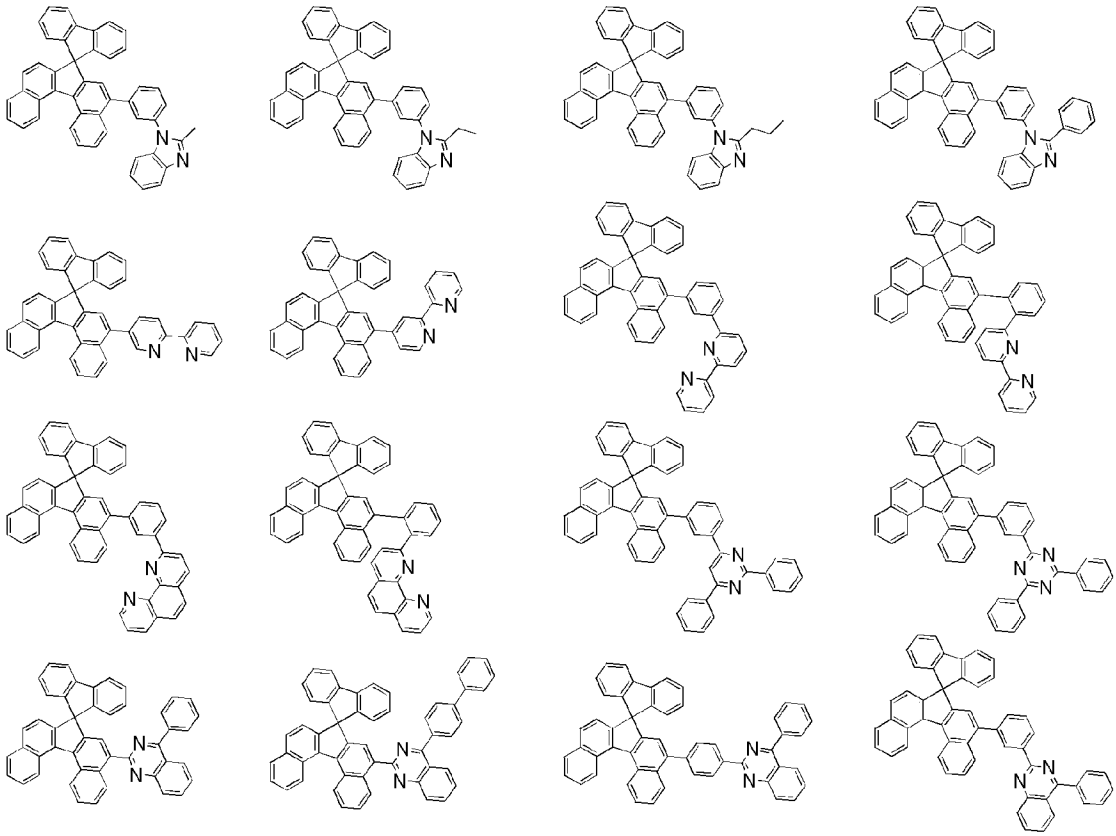
[0107]

[化74]

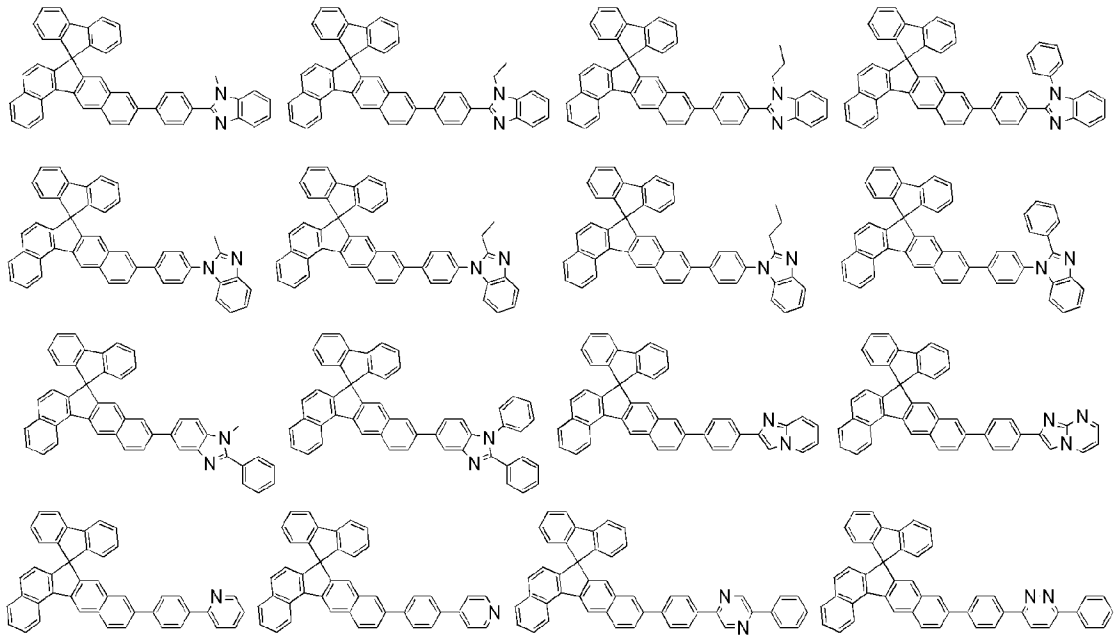


[0108]

[化75]

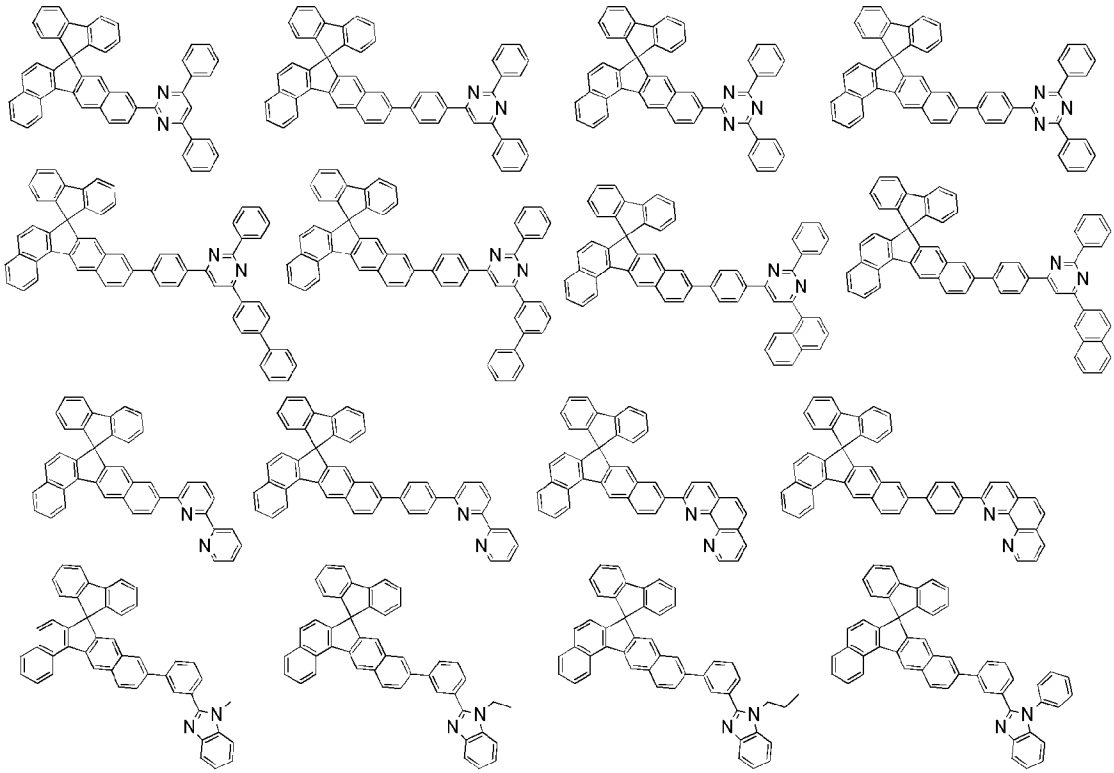


[0109] [化76]



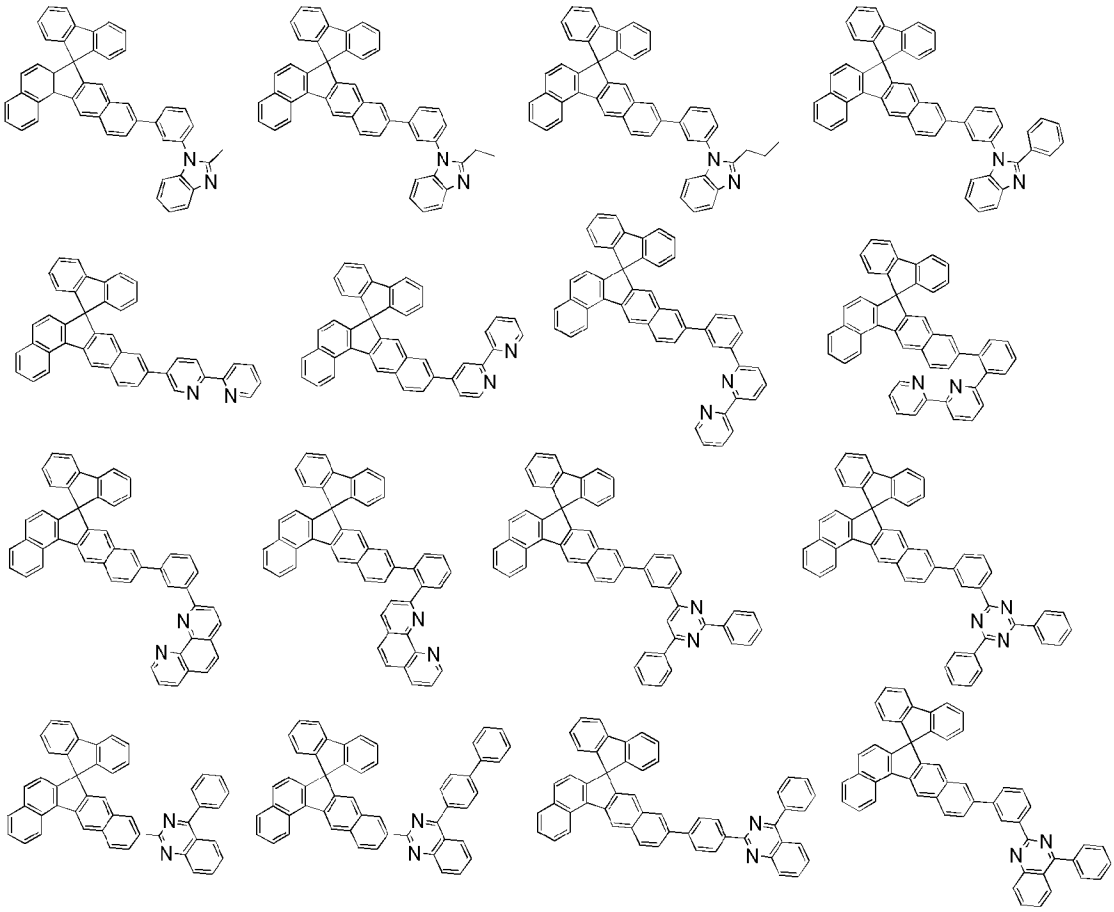
[0110]

[化77]



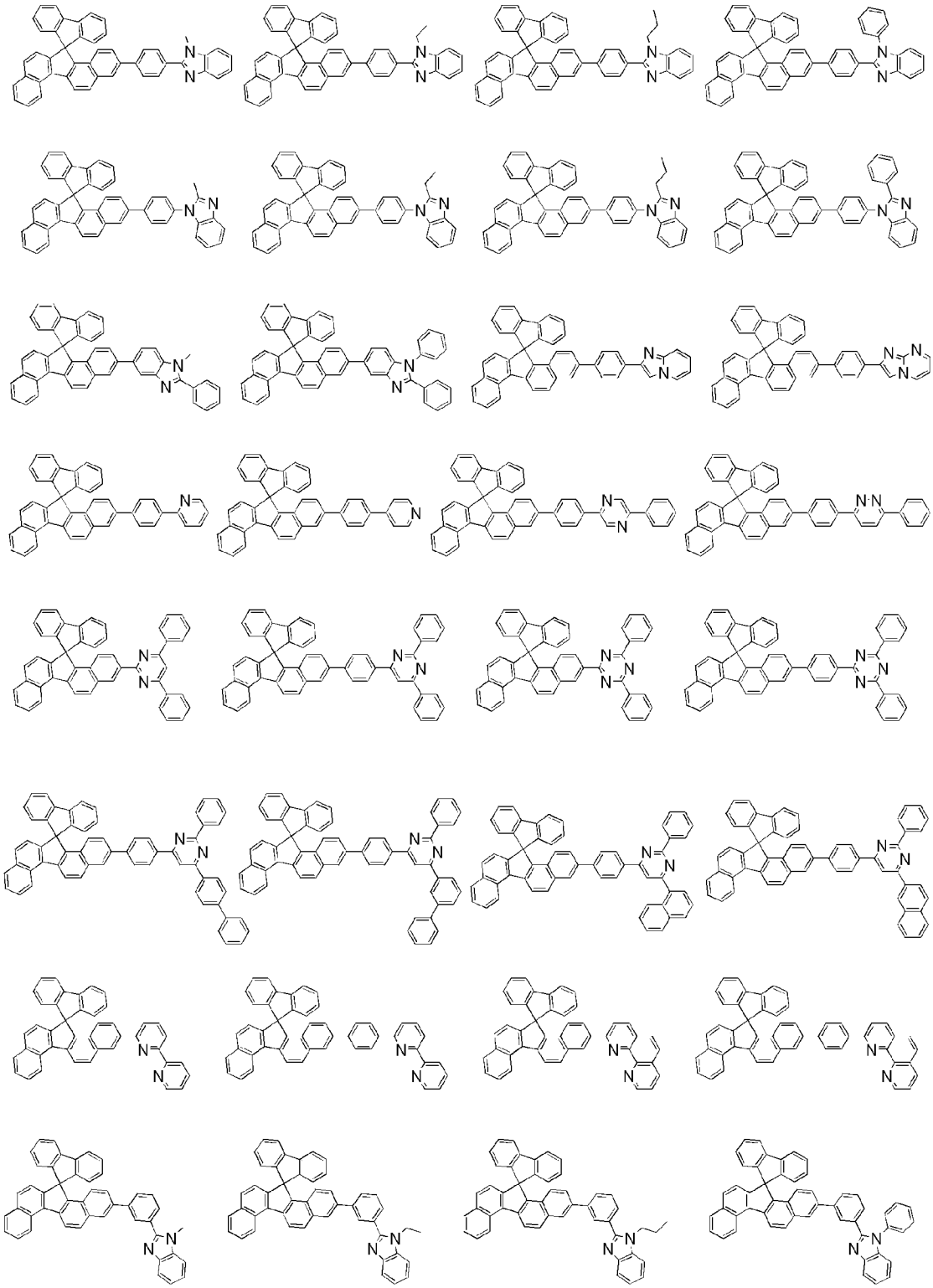
[0111]

[化78]



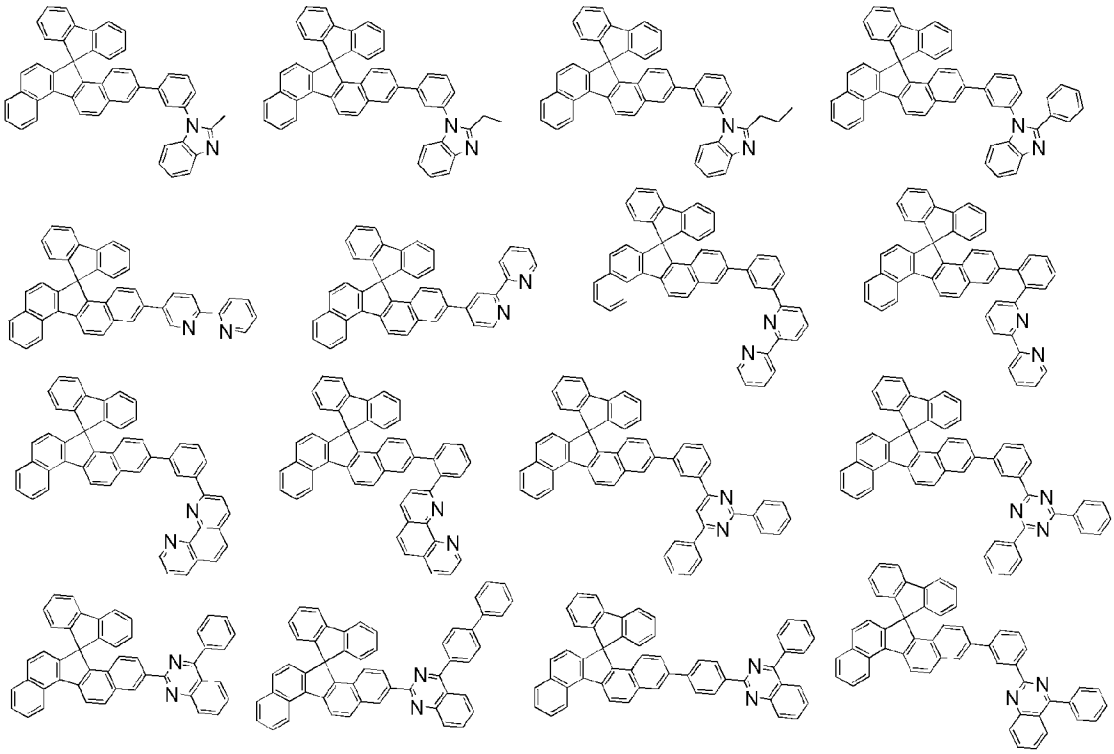
[0112]

[化79]

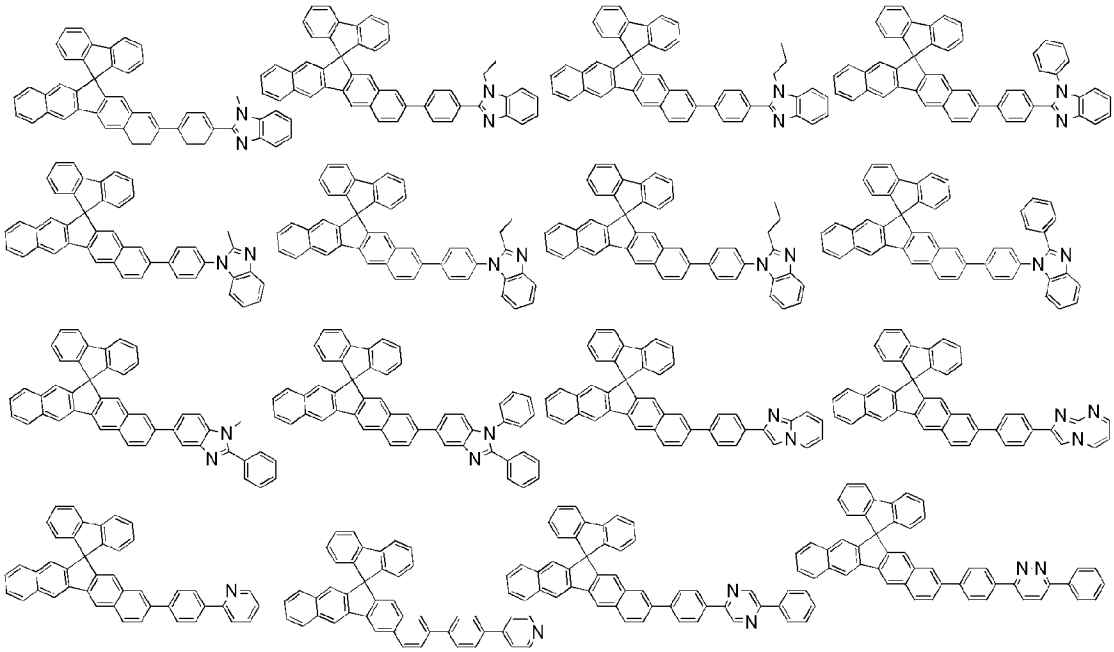


[0113]

[化80]

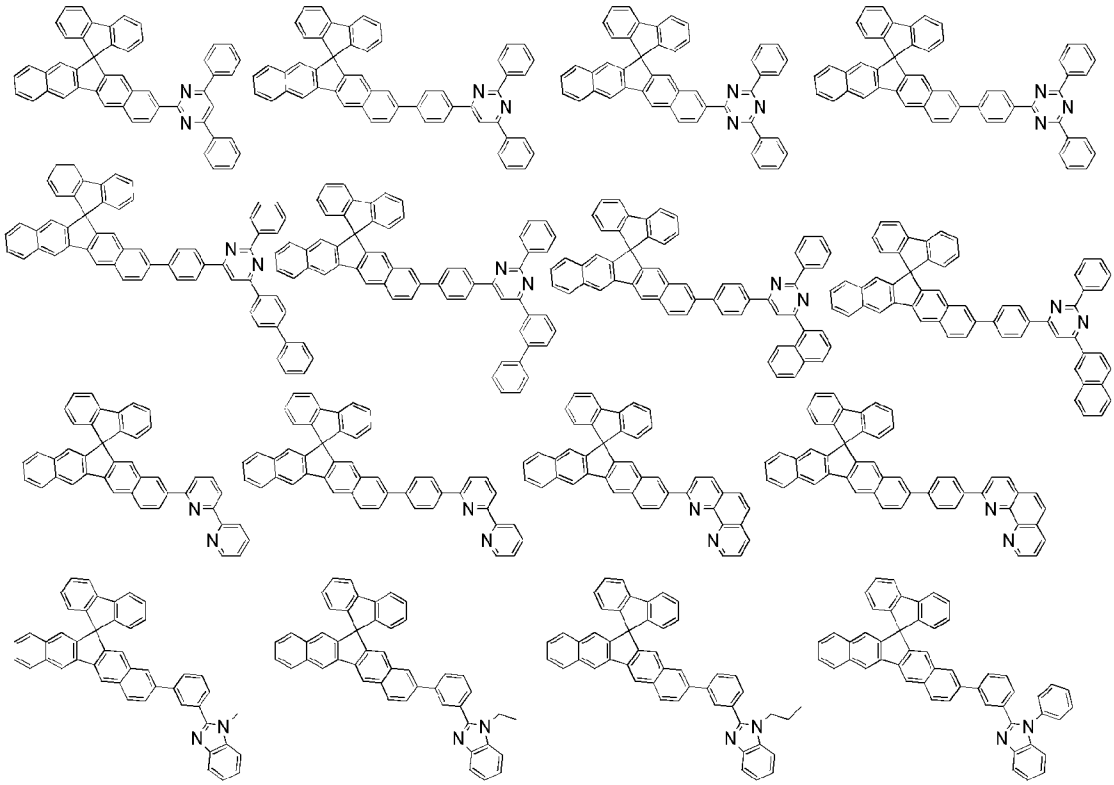


[0114] [化81]



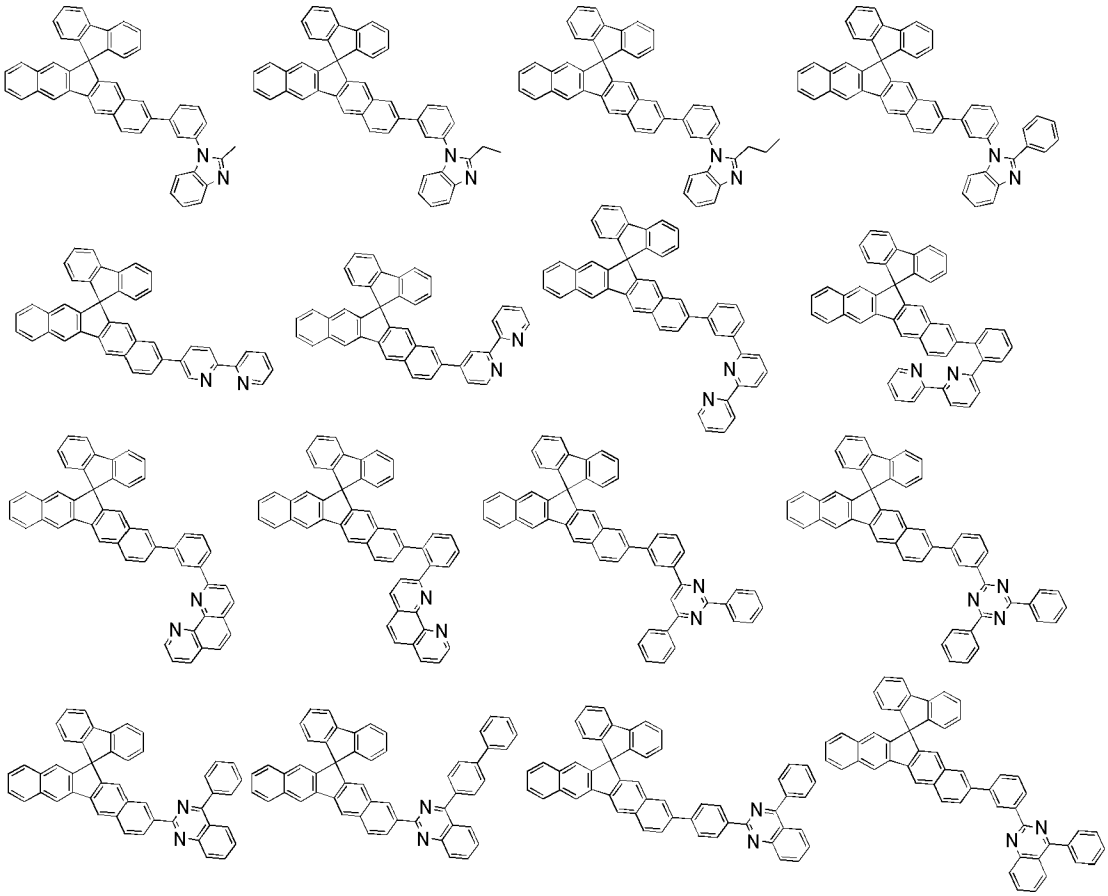
[0115]

[化82]

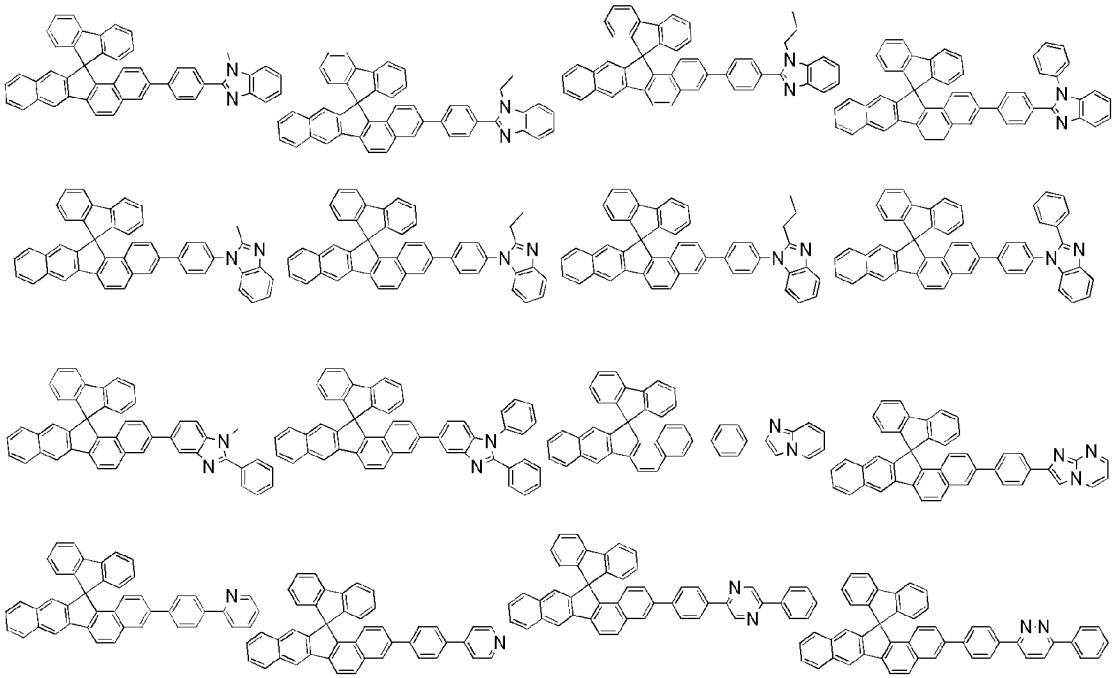


[0116]

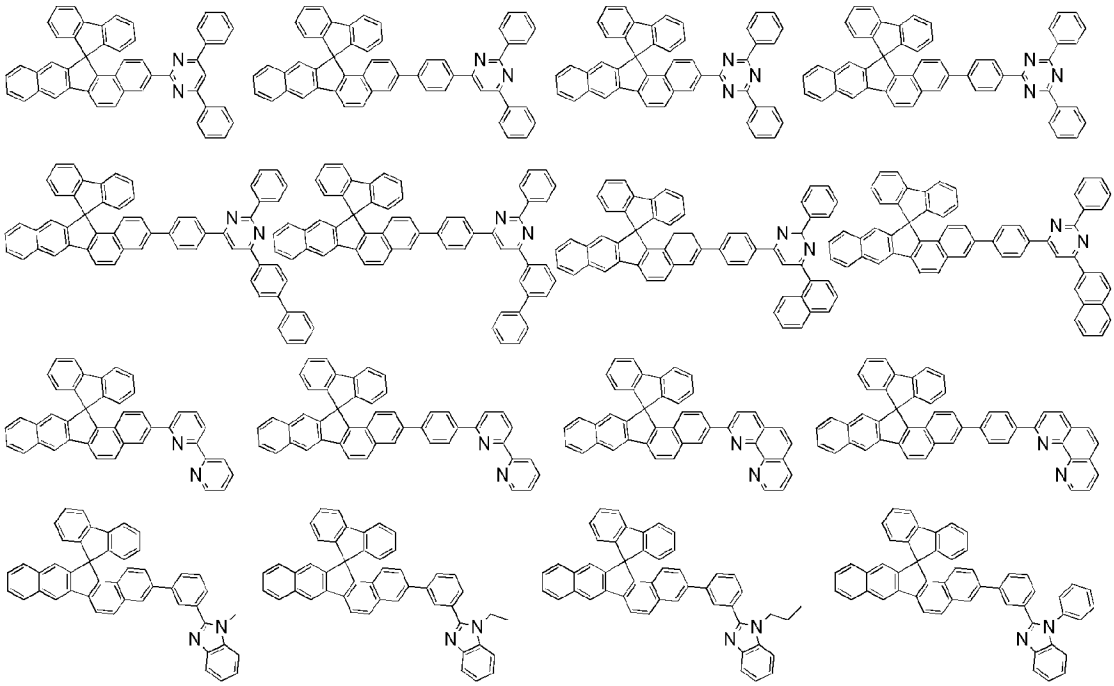
[化83]



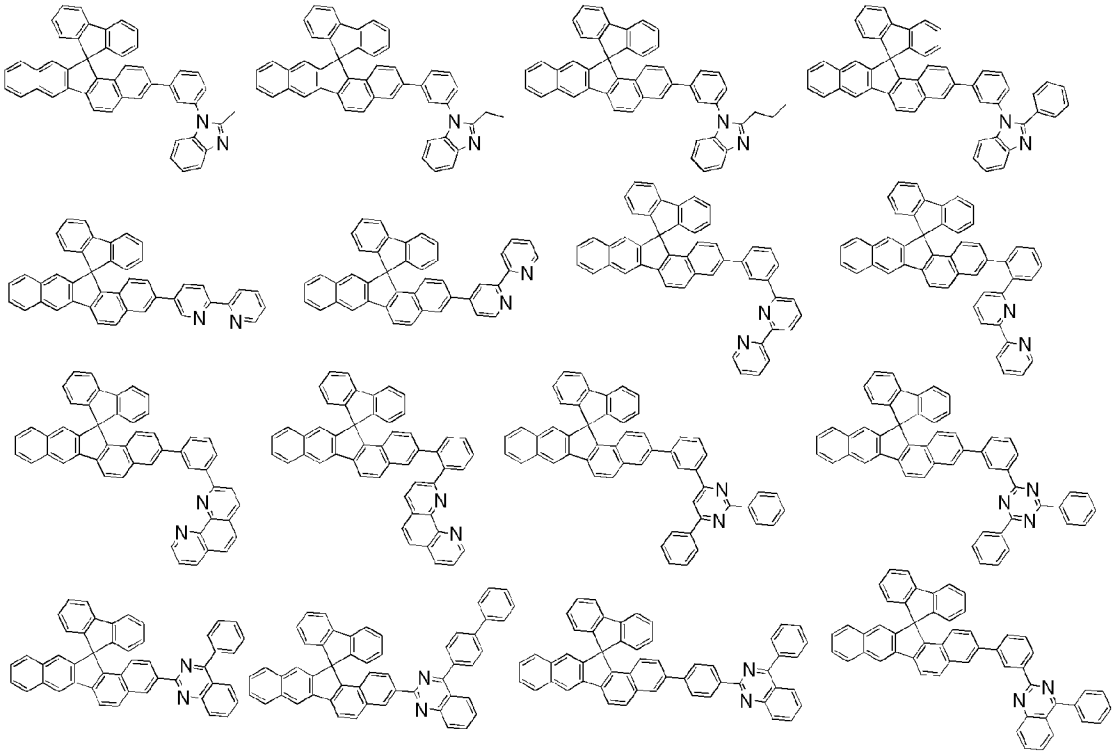
[0117] [化84]



[0118] [化85]

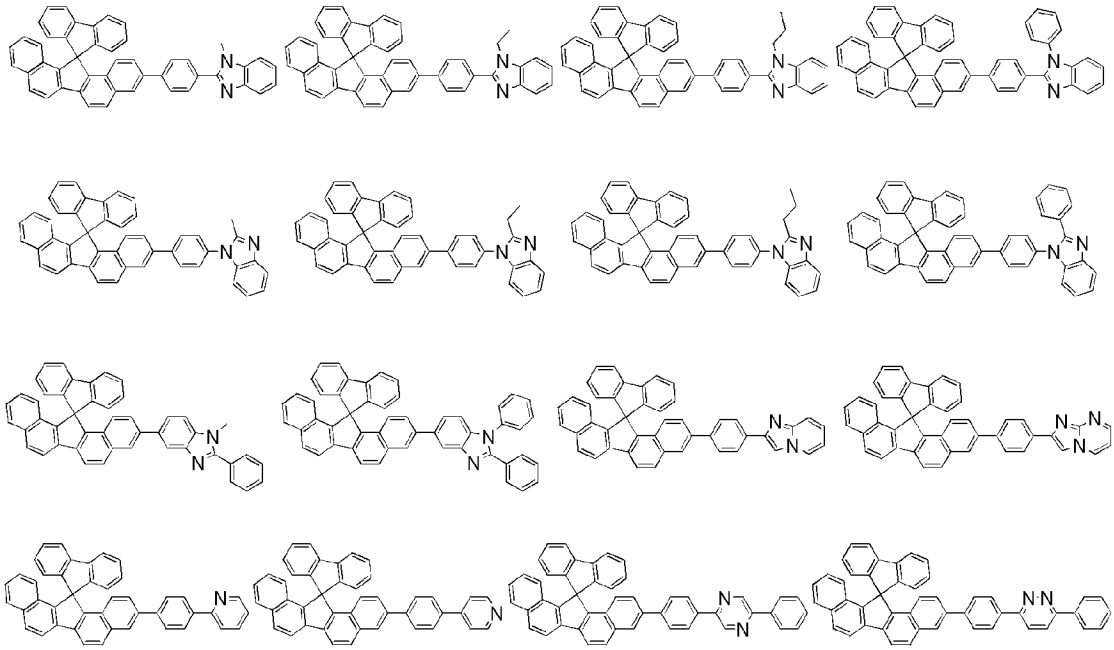


[0119] [化86]

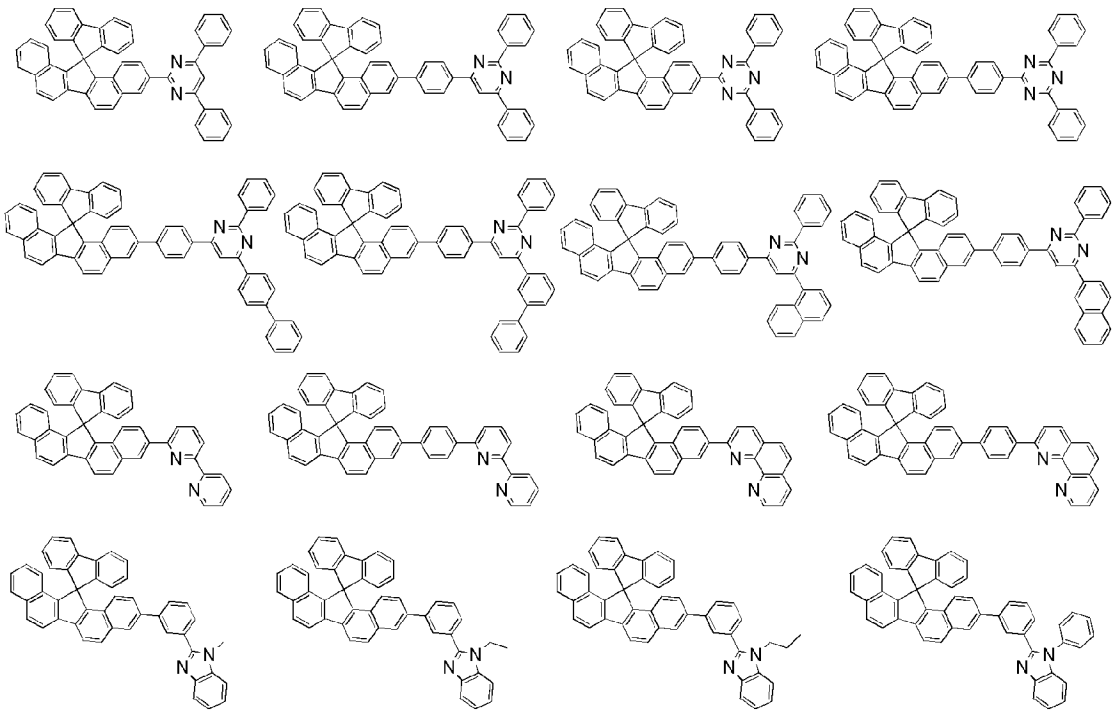


[0120]

[化87]

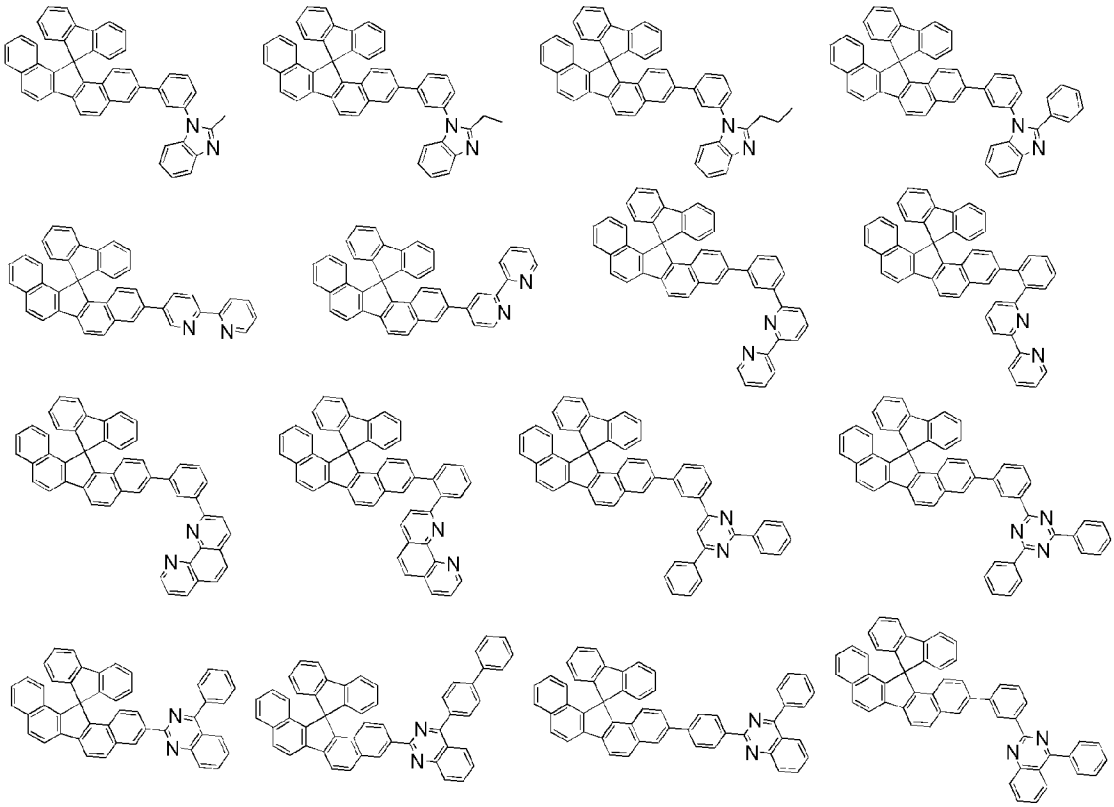


[0121] [化88]

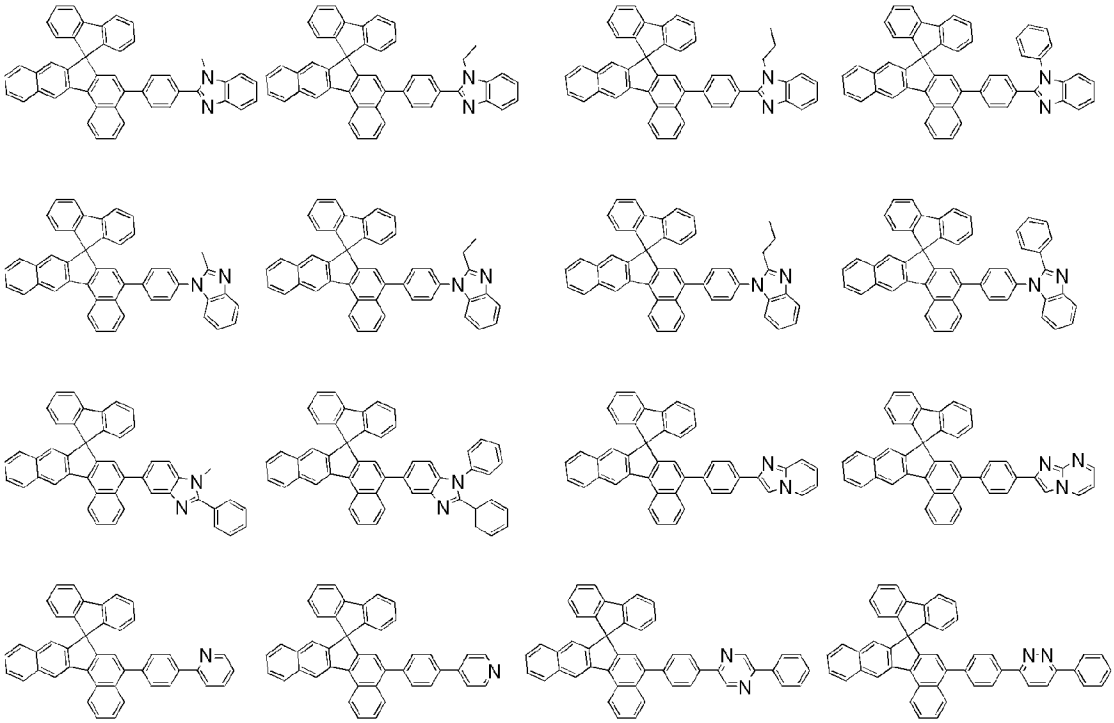


[0122]

[化89]

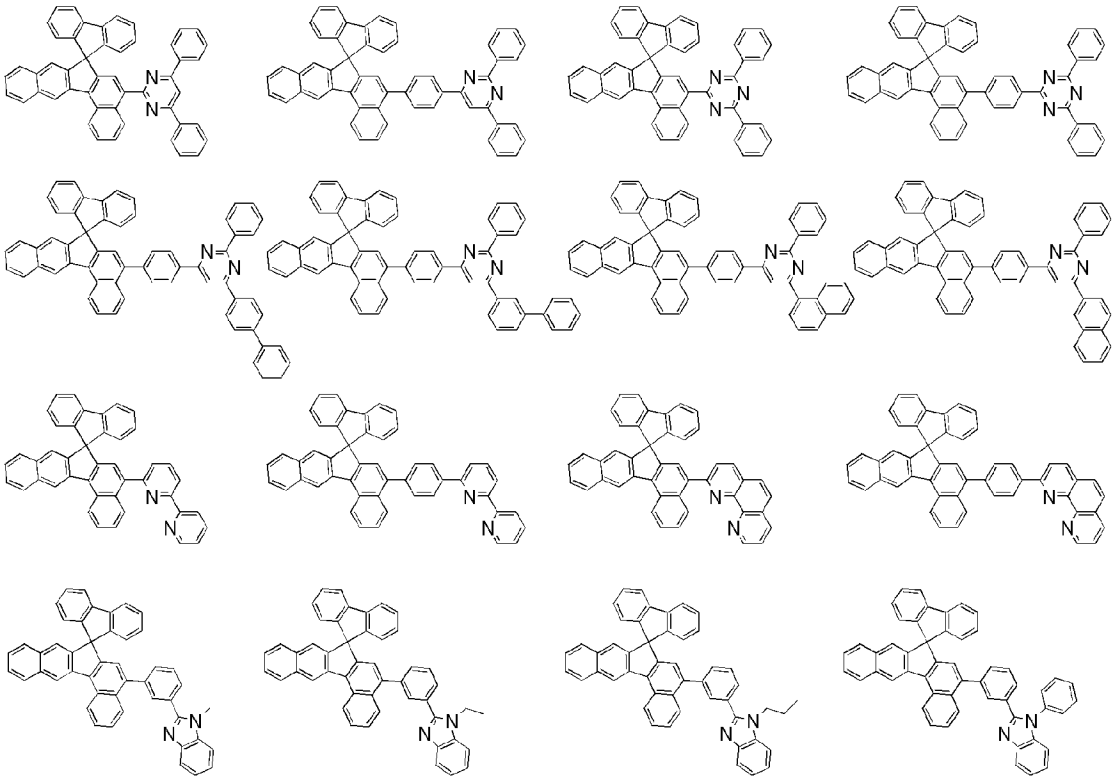


[0123] [化90]

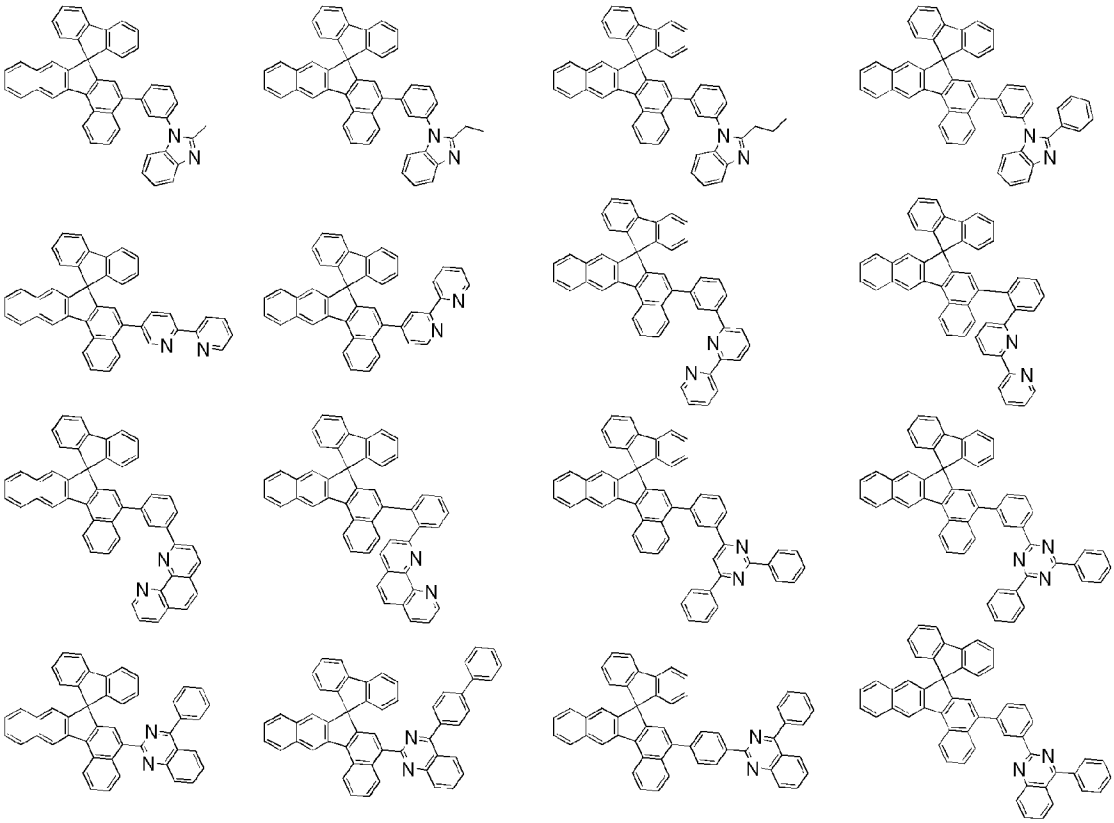


[0124]

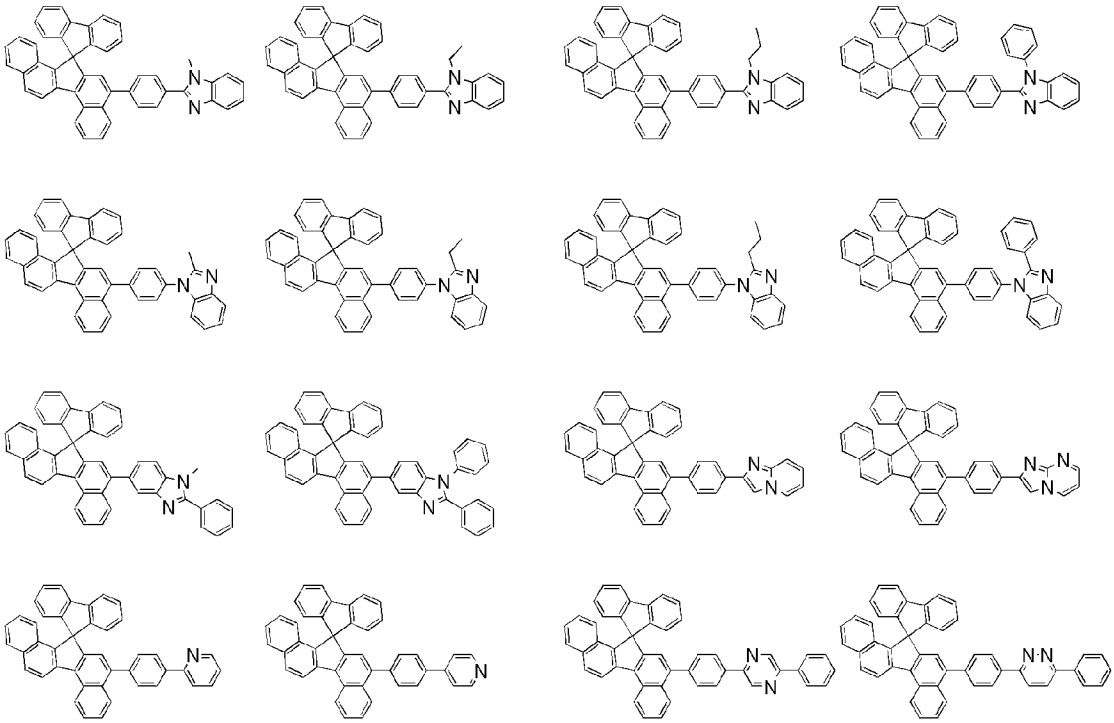
[化91]



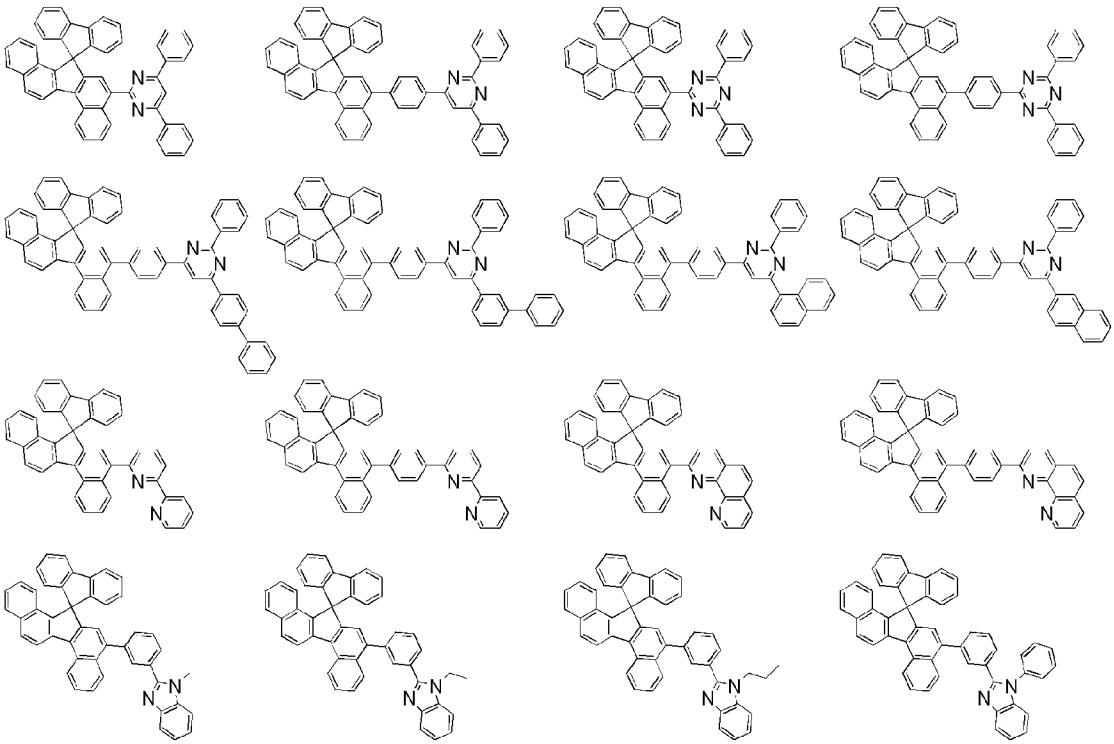
[0125] [化92]



[0126] [化93]

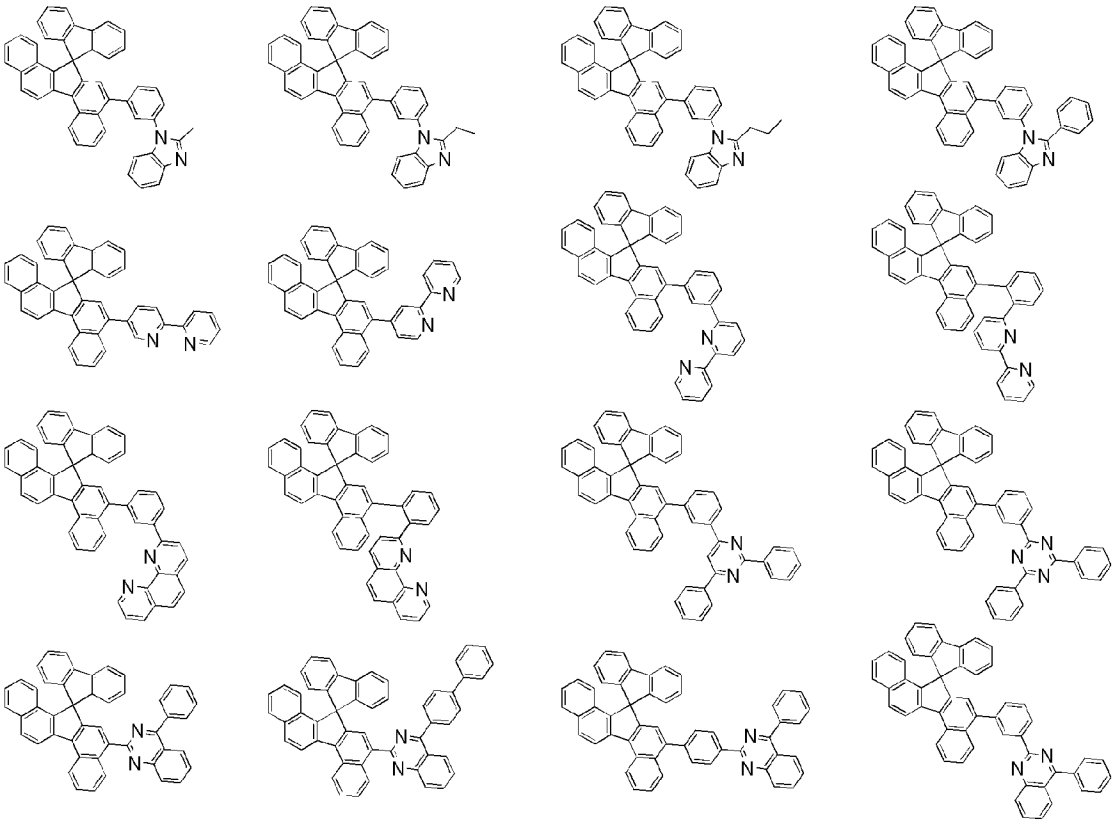


[0127] [化94]

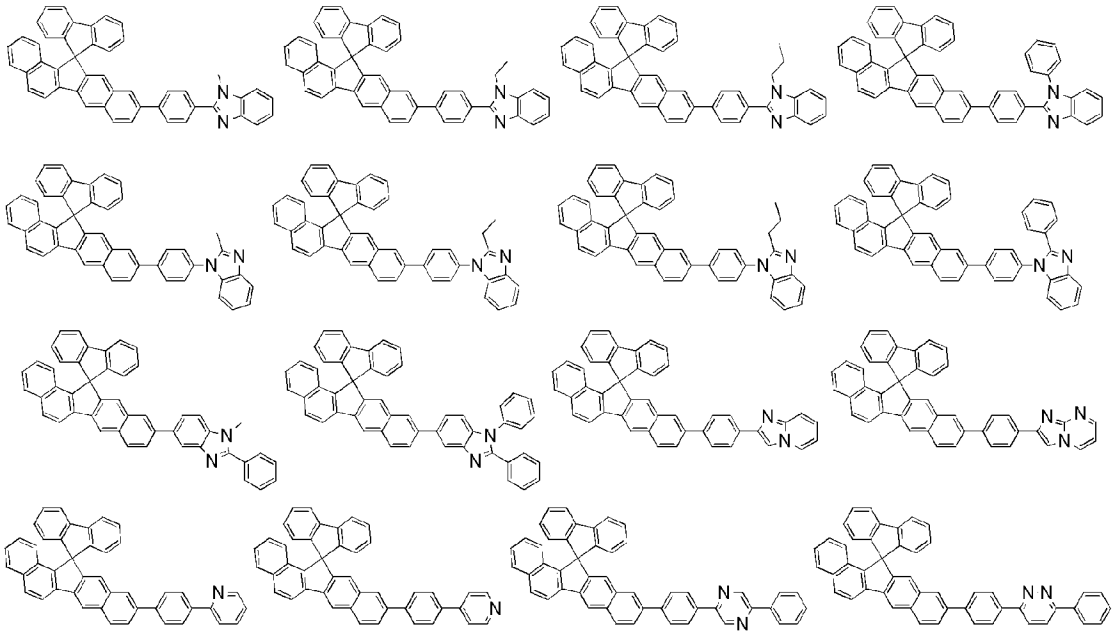


[0128]

[化95]

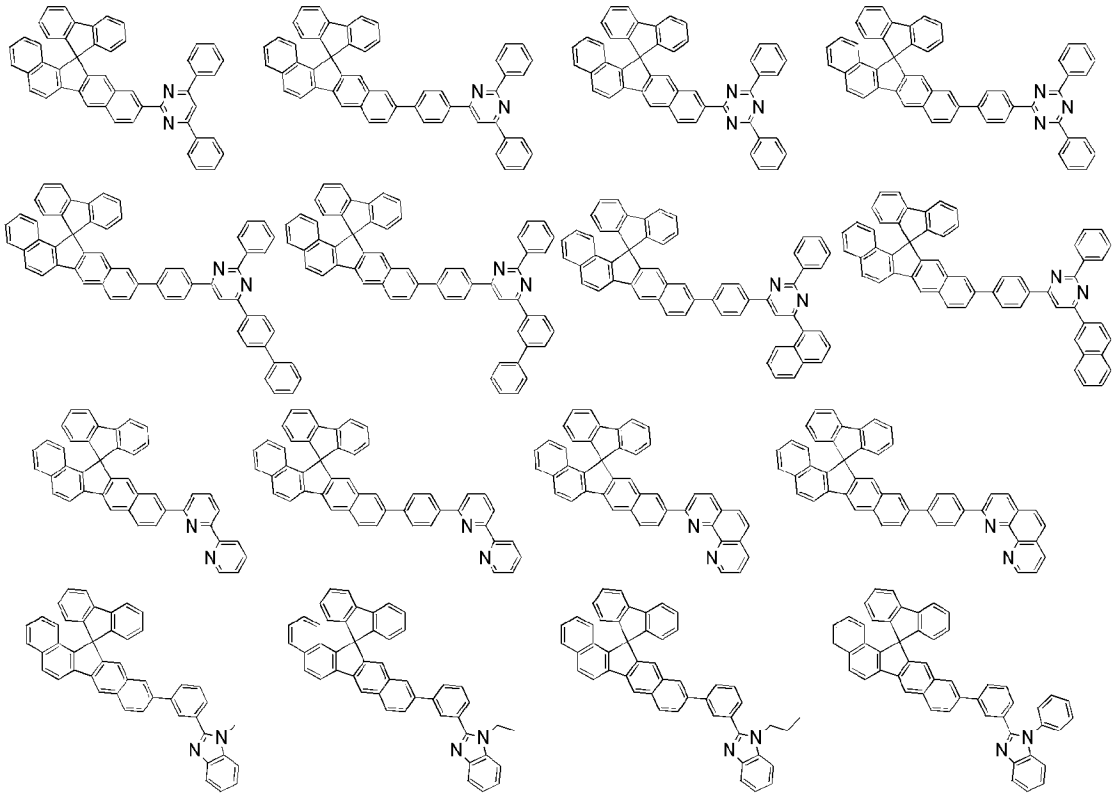


[0129] [化96]



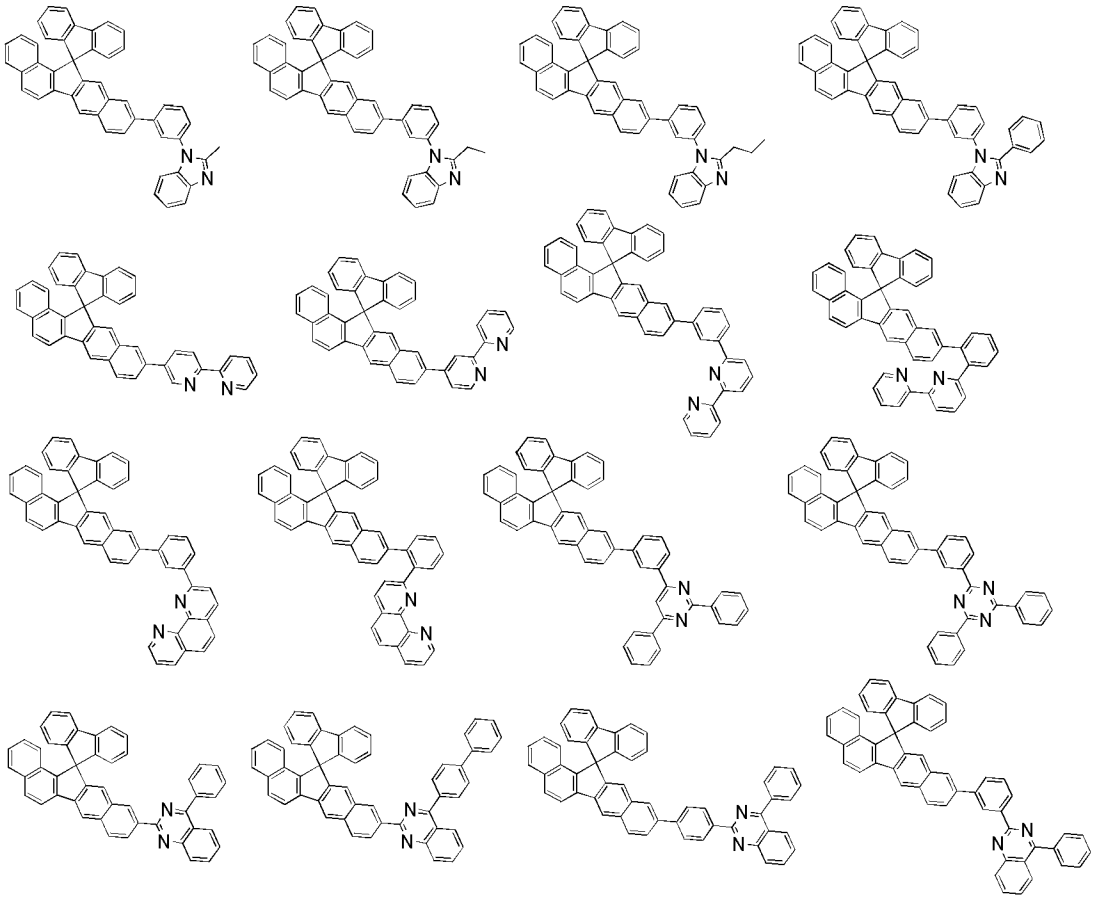
[0130]

[化97]



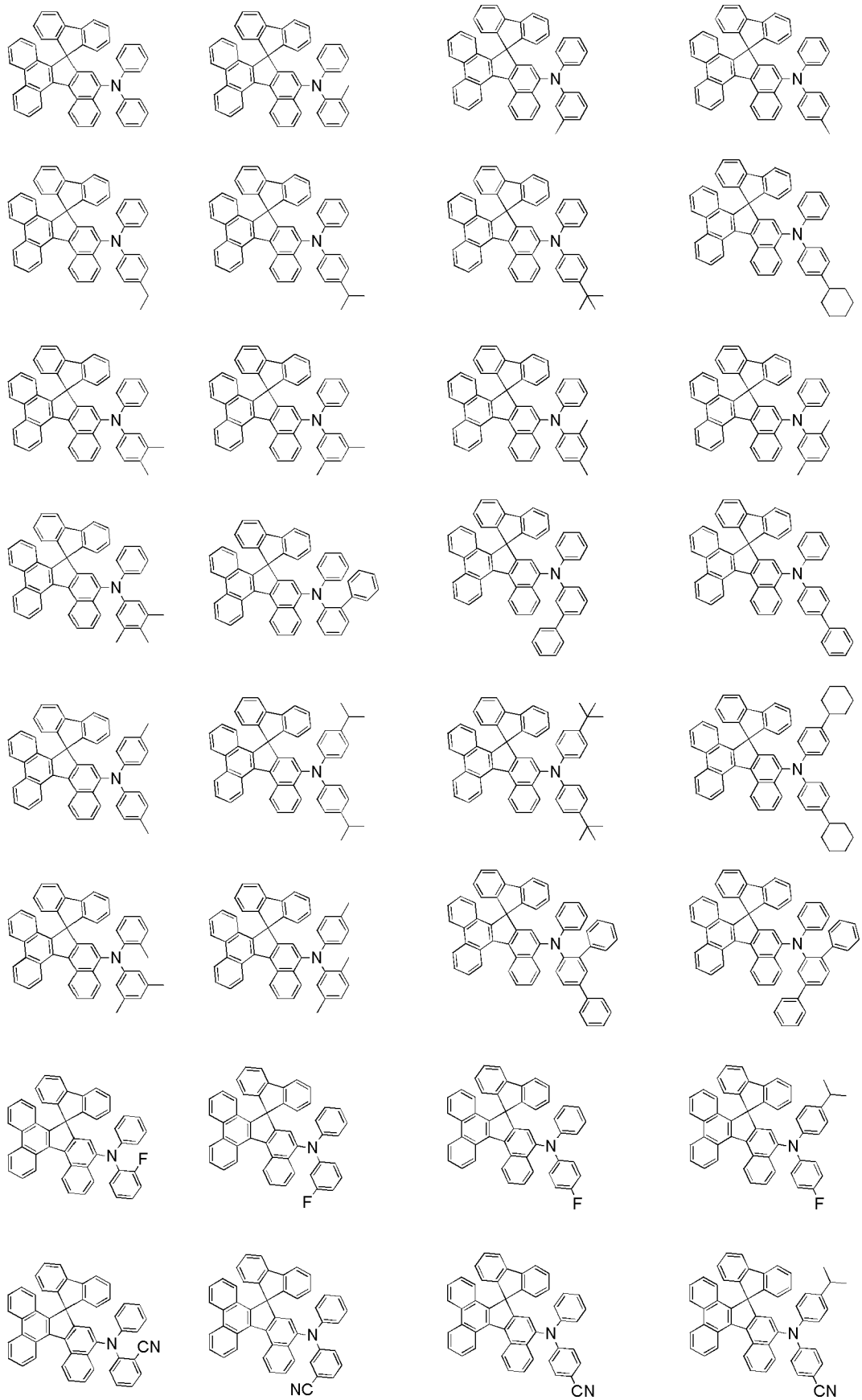
[0131]

[化98]

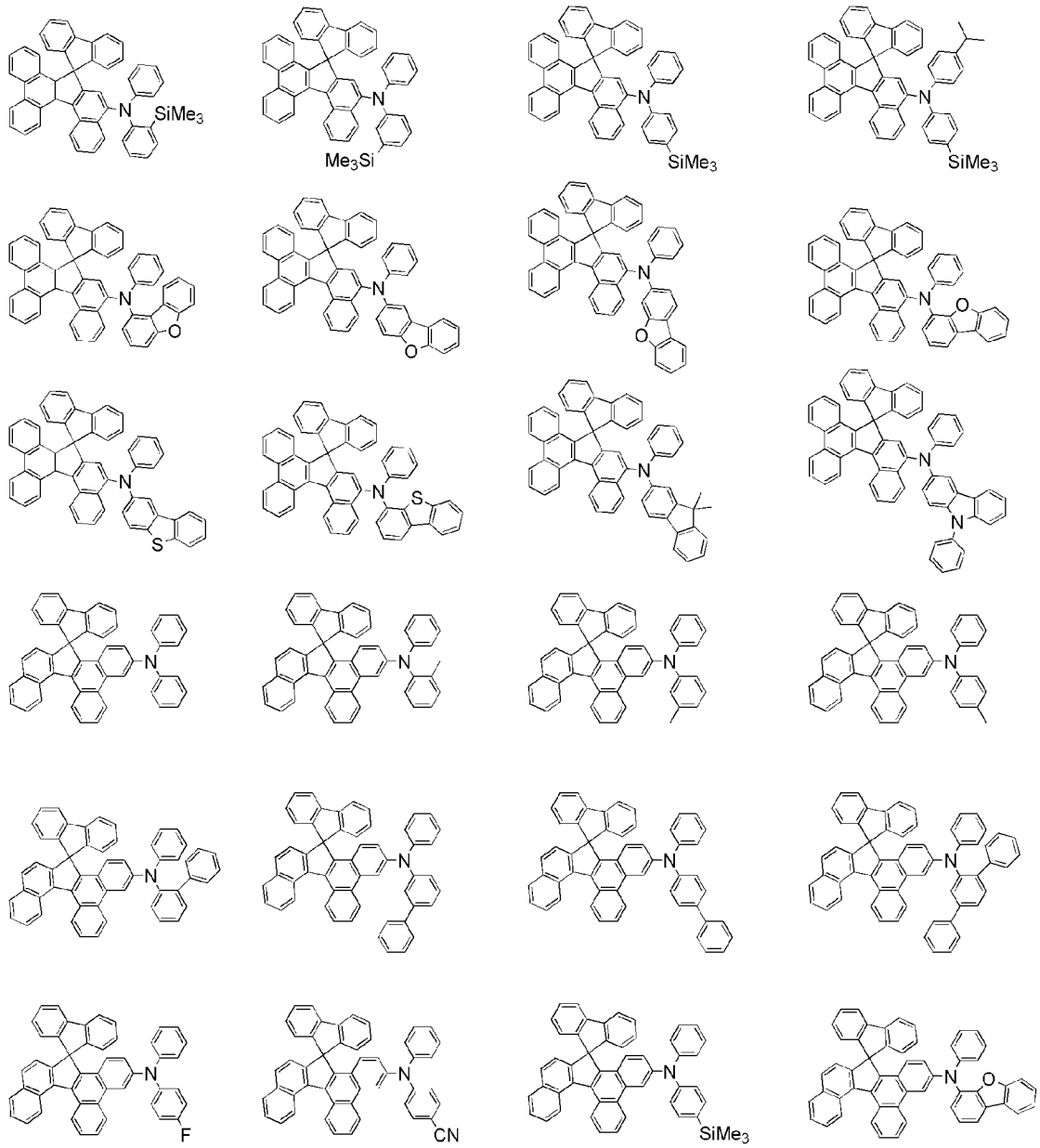


[0132]

[化99]

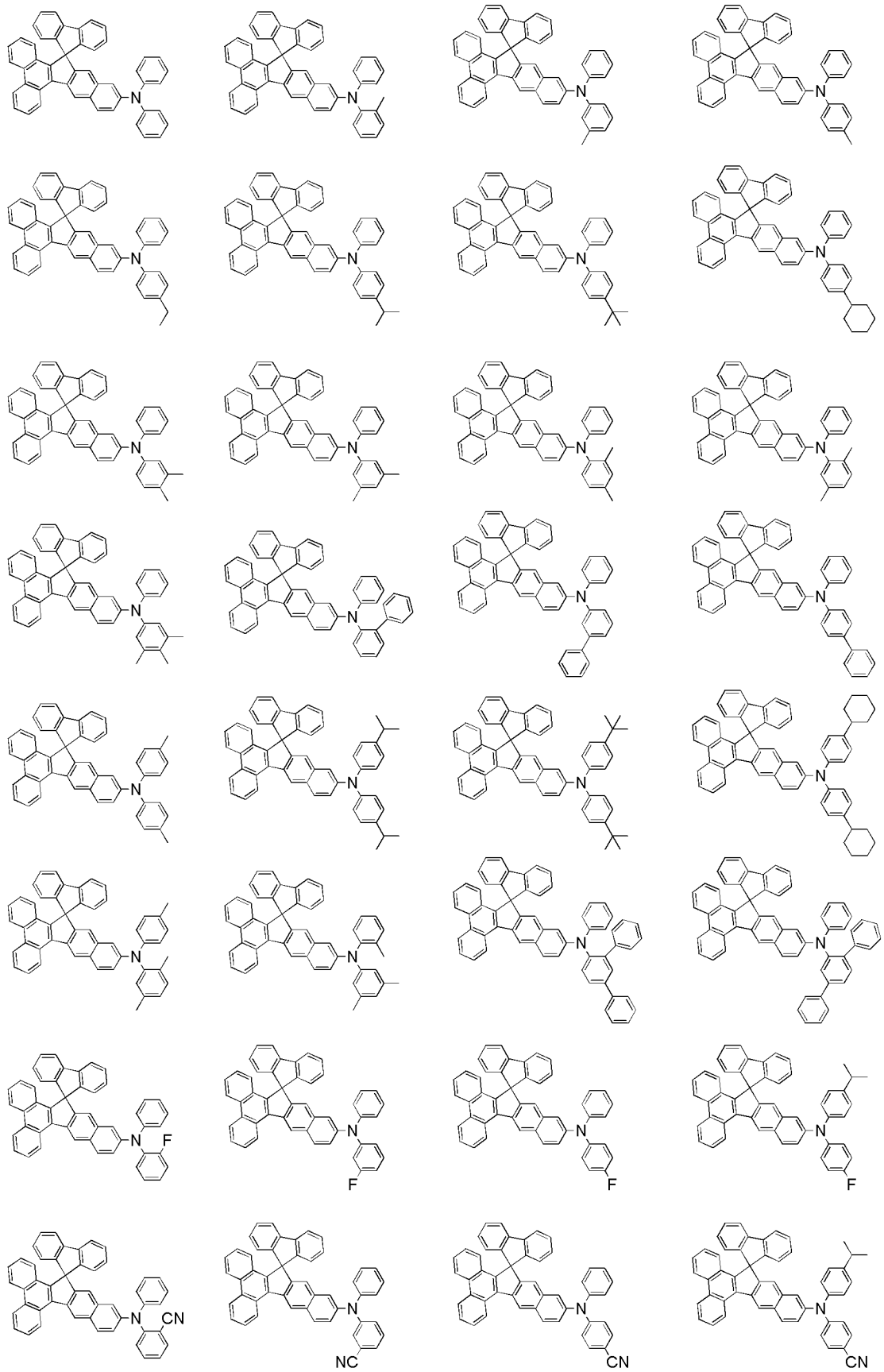


[0133] [化100]

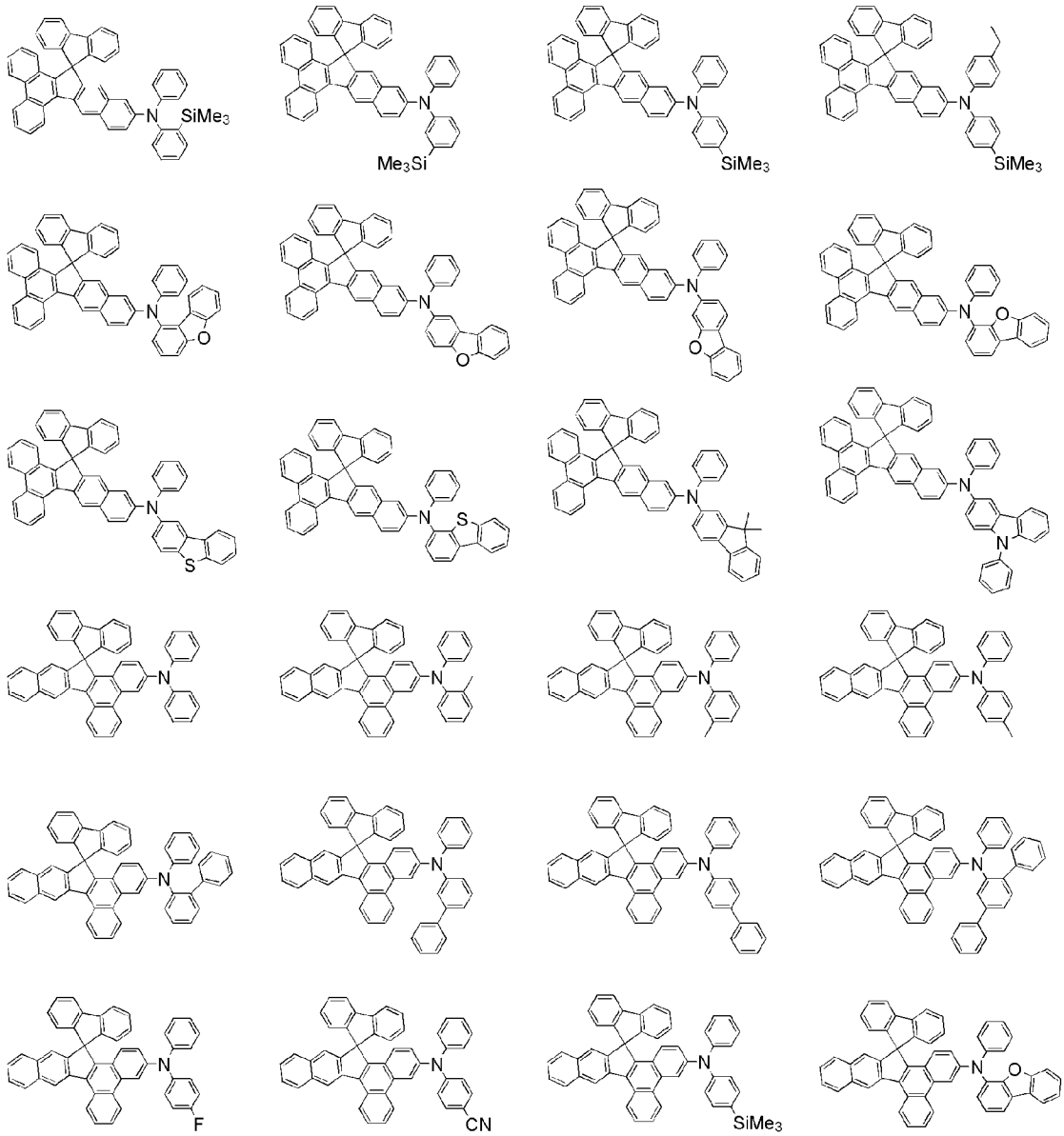


[0134]

[化101]

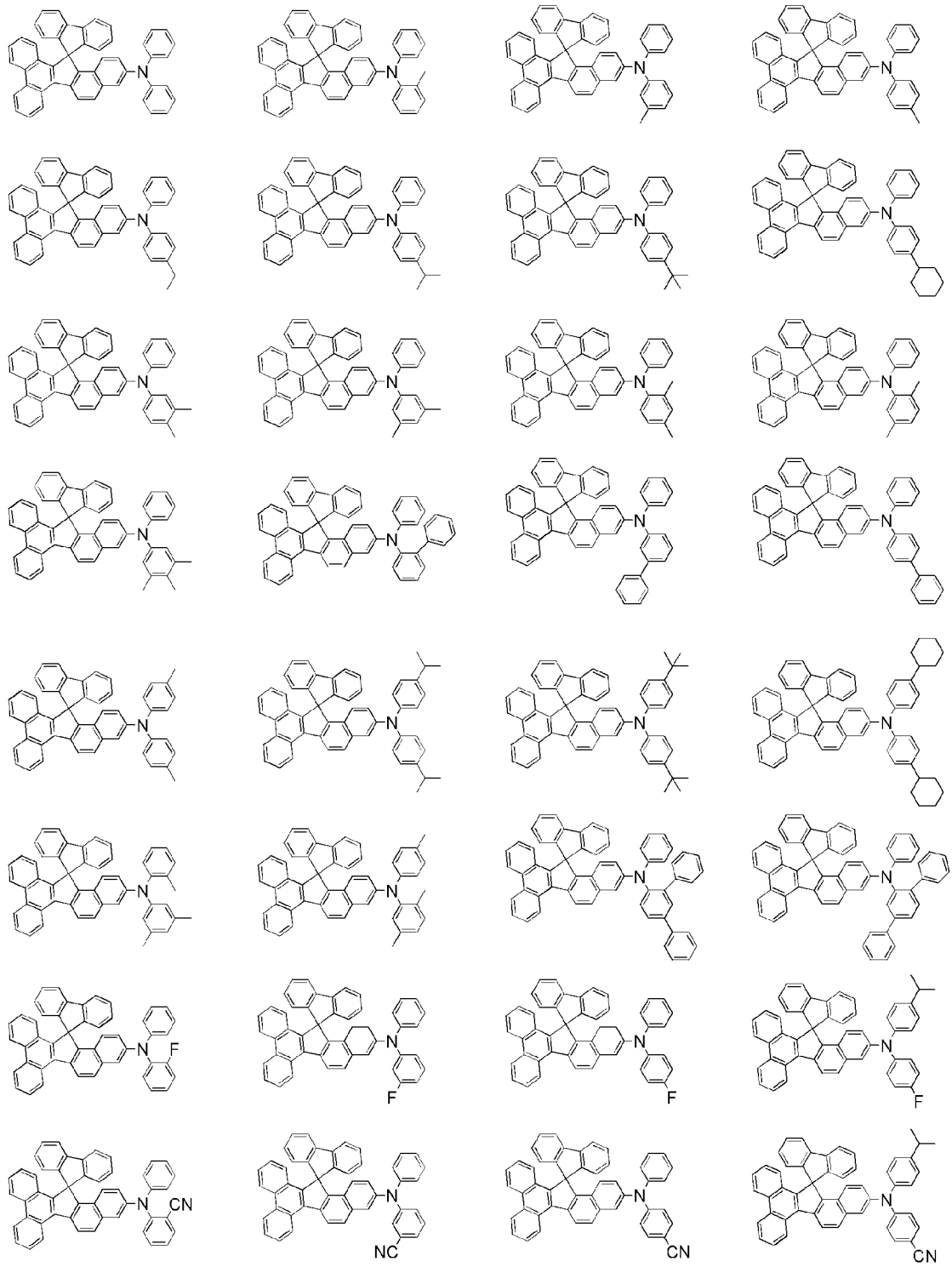


[0135] [化102]



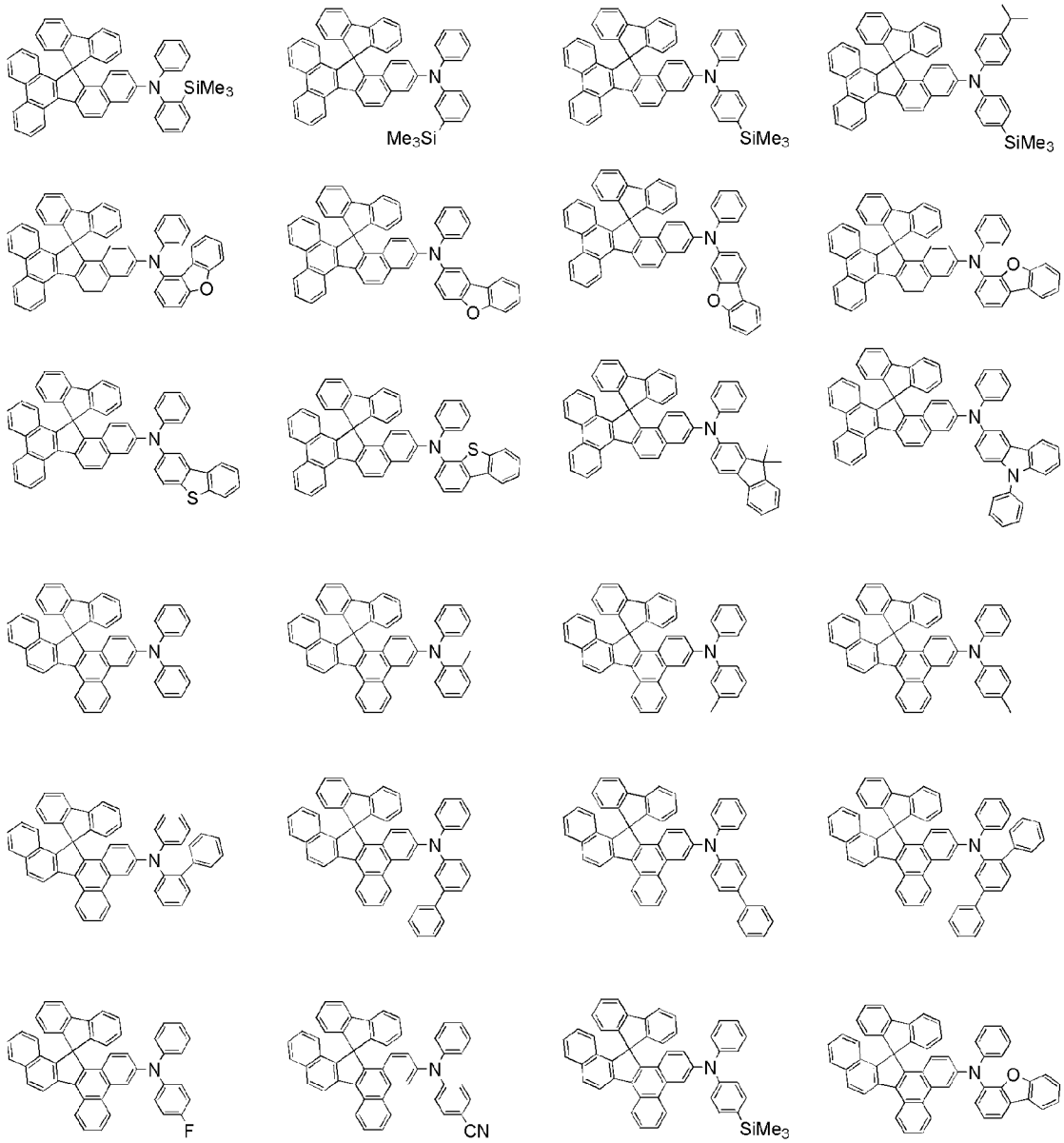
[0136]

[化103]



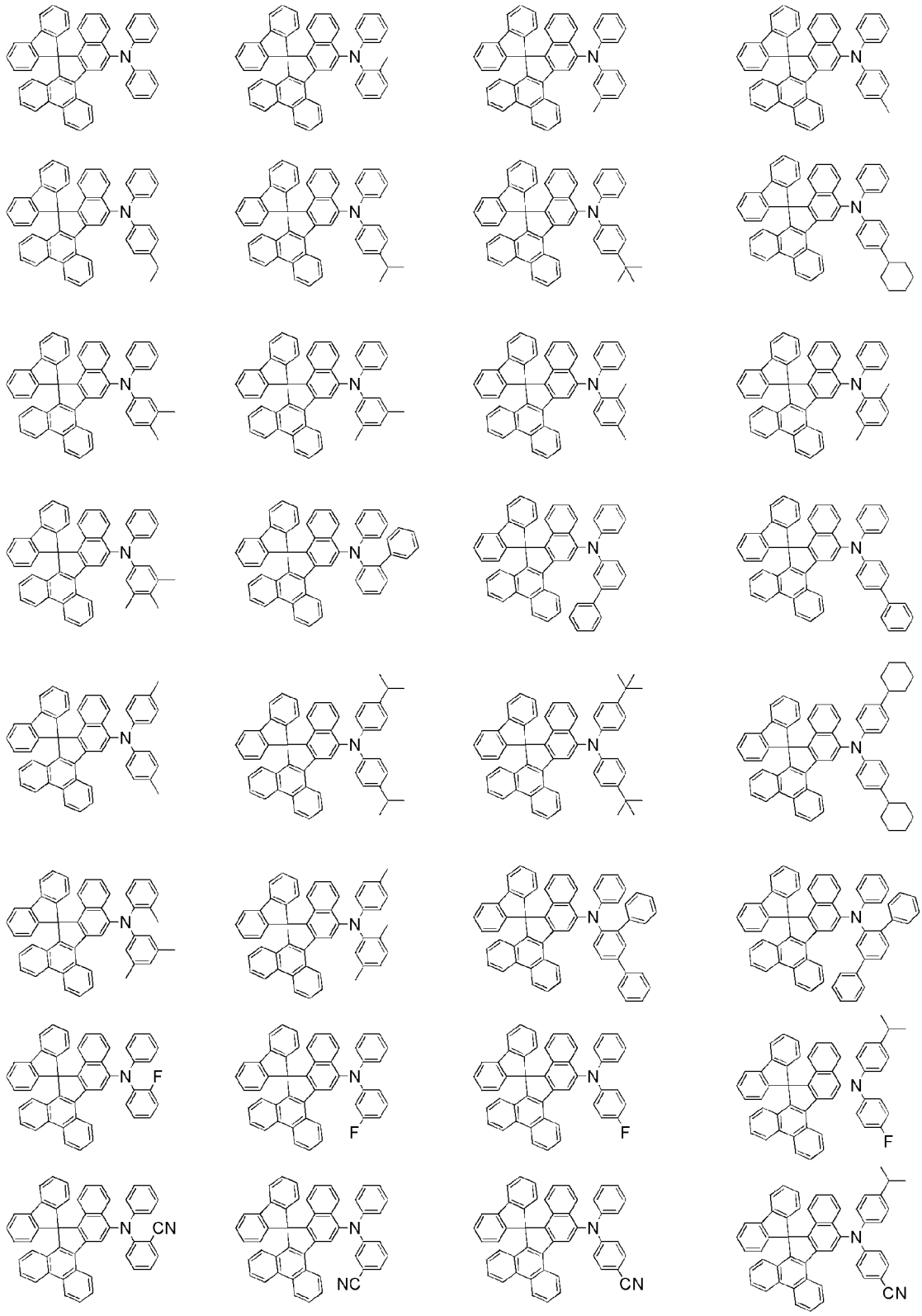
[0137]

[化104]



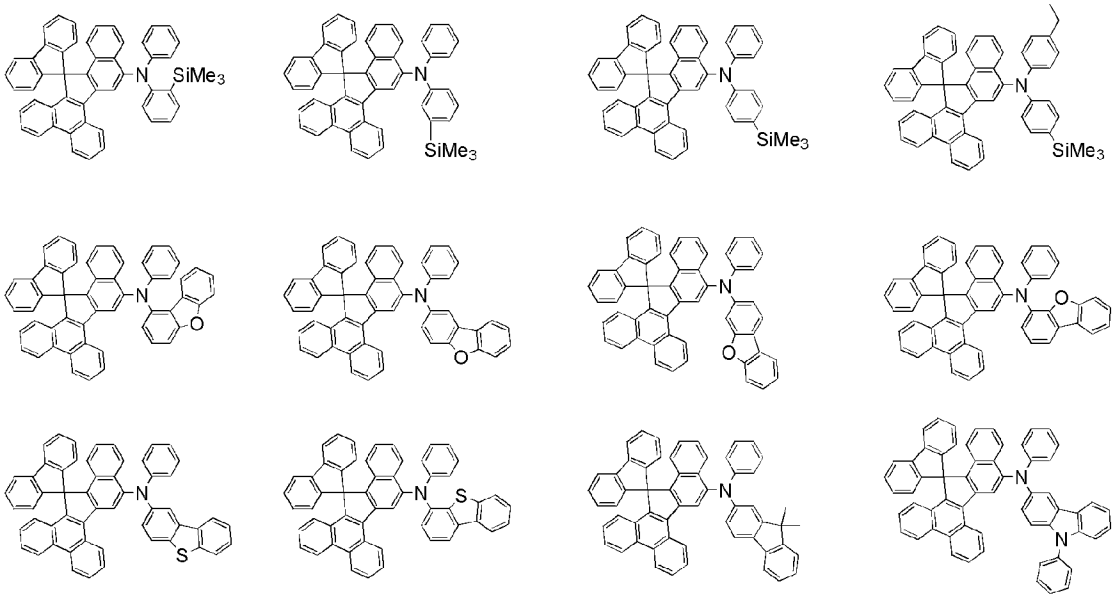
[0138]

[化105]

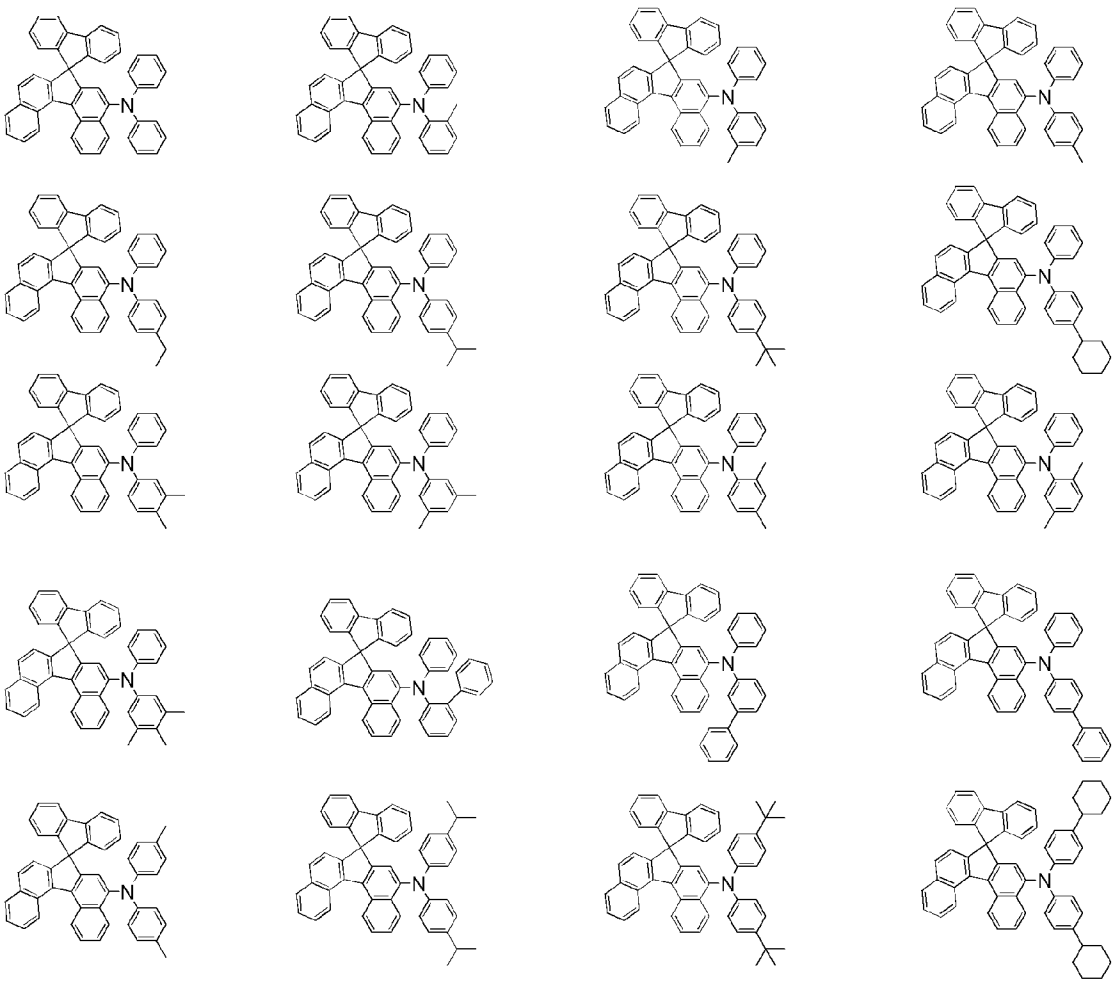


[0139]

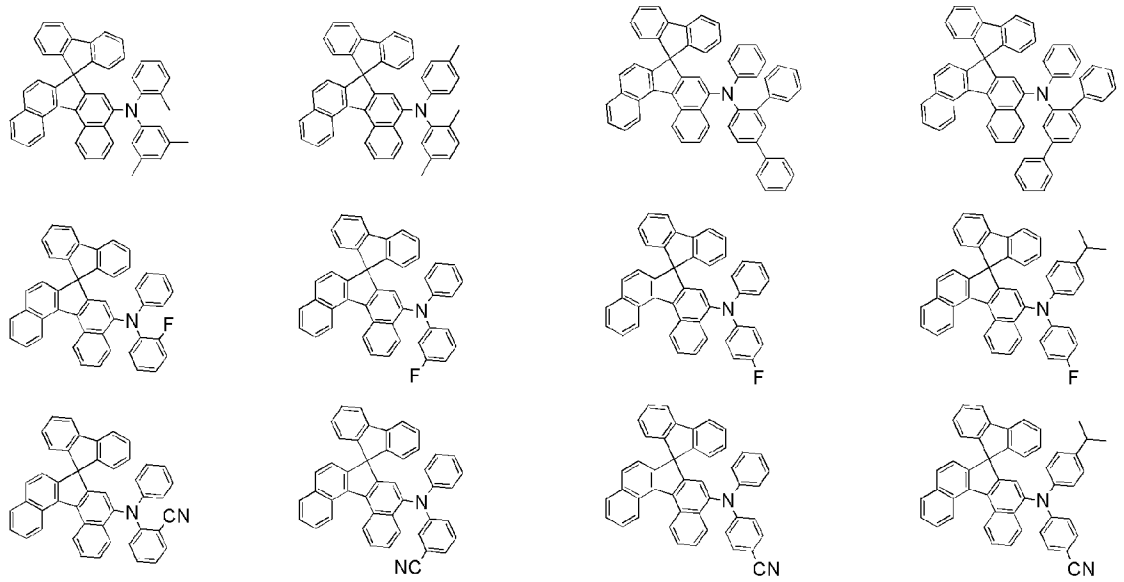
[化106]



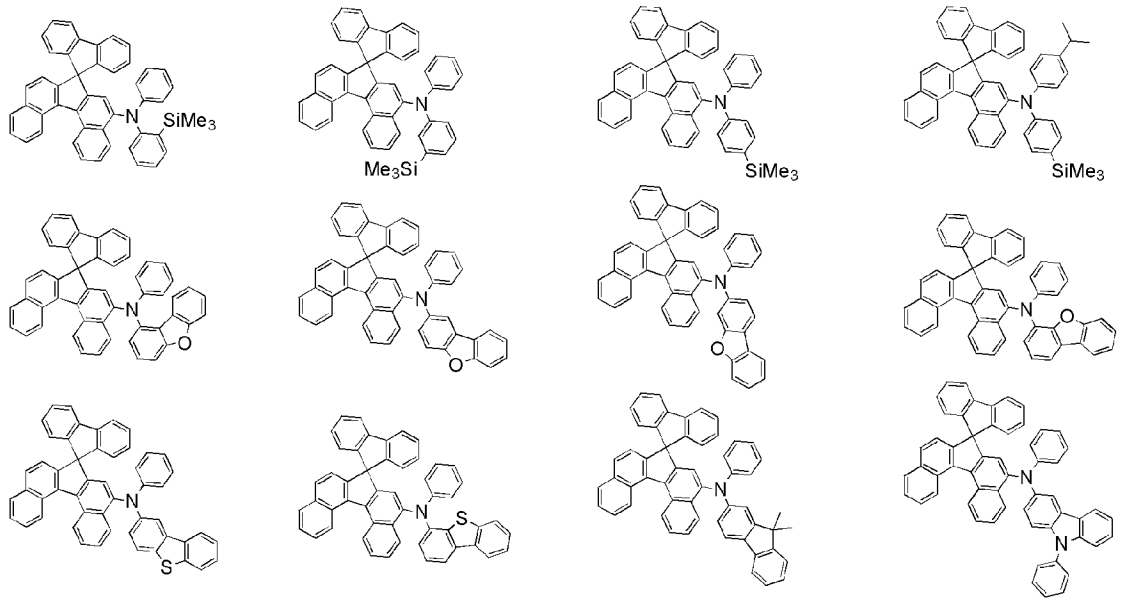
[0140] [化107]



[0141] [化108]

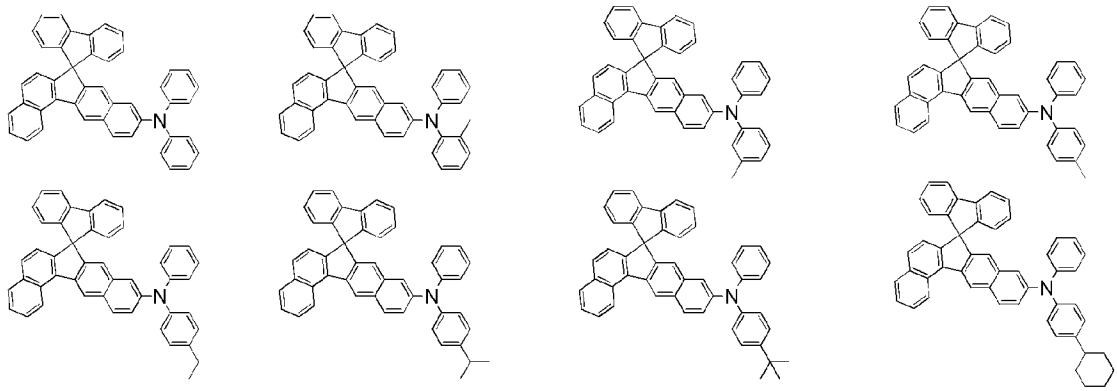


[0142] [化109]

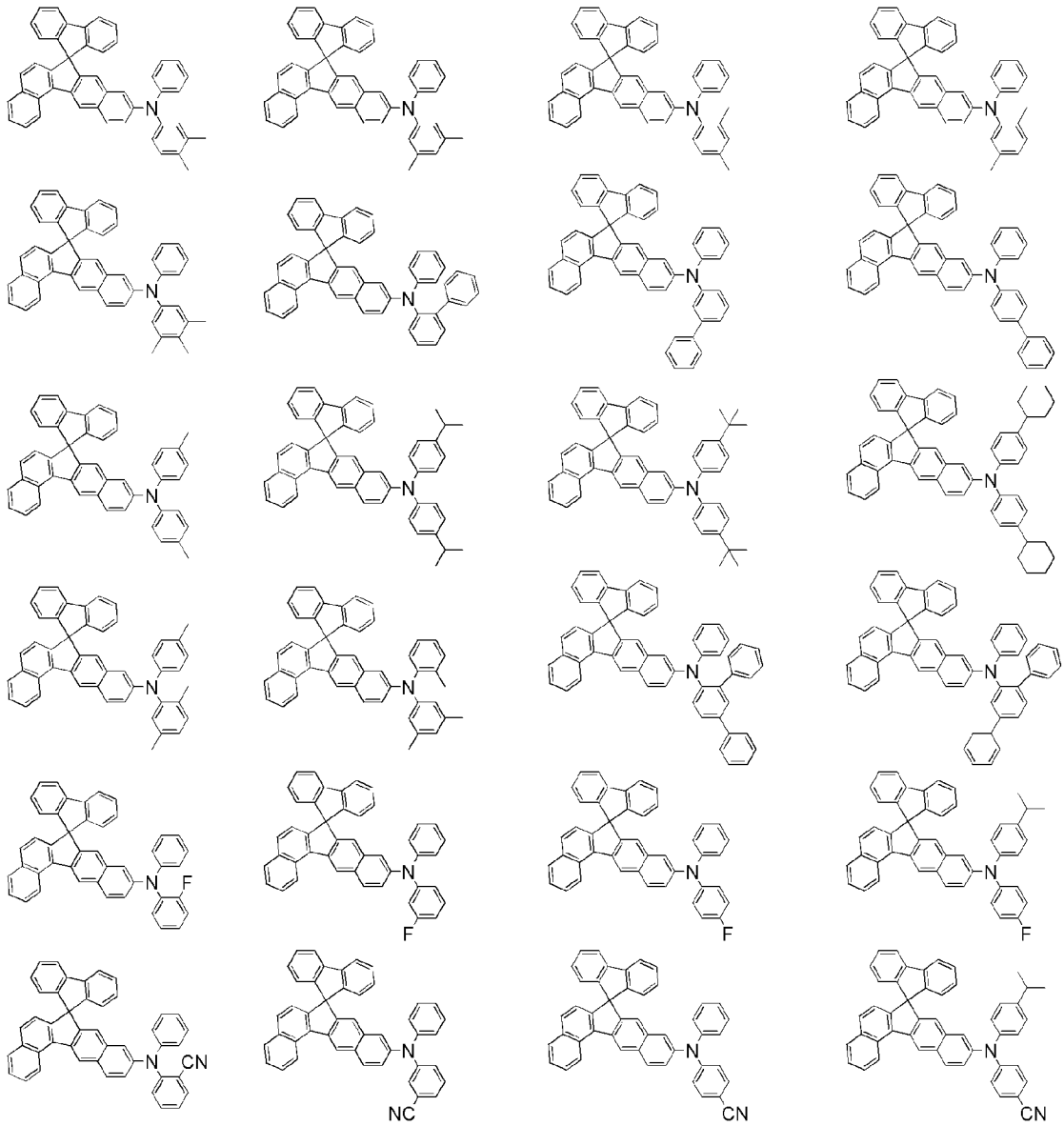


[0143]

[化110]

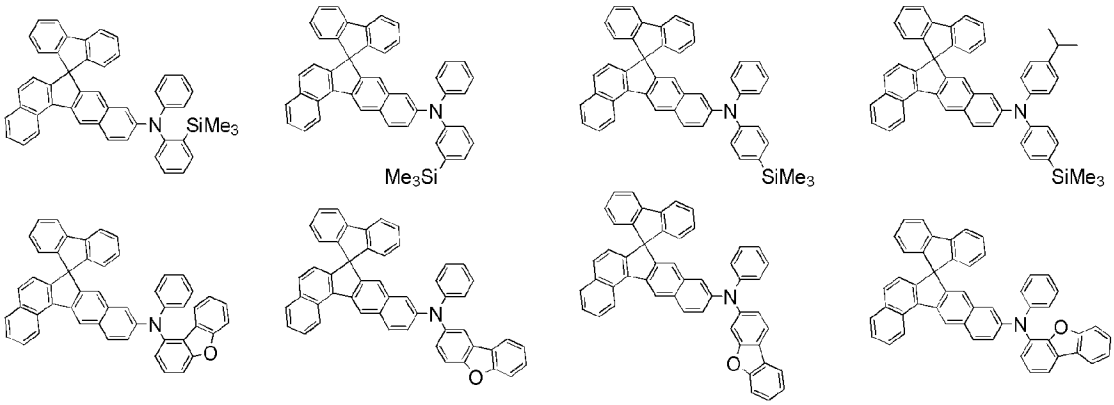


[0144] [化111]

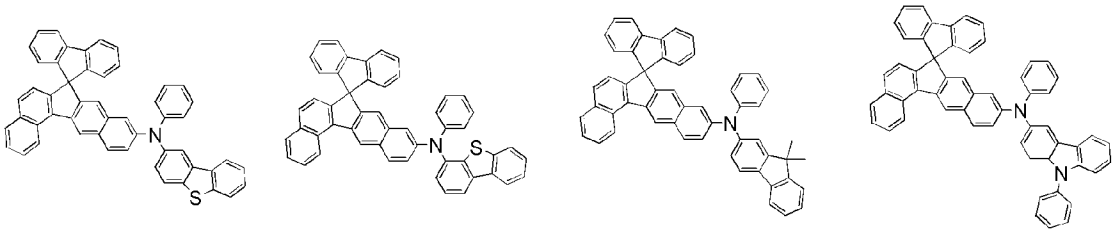


[0145]

[化112]

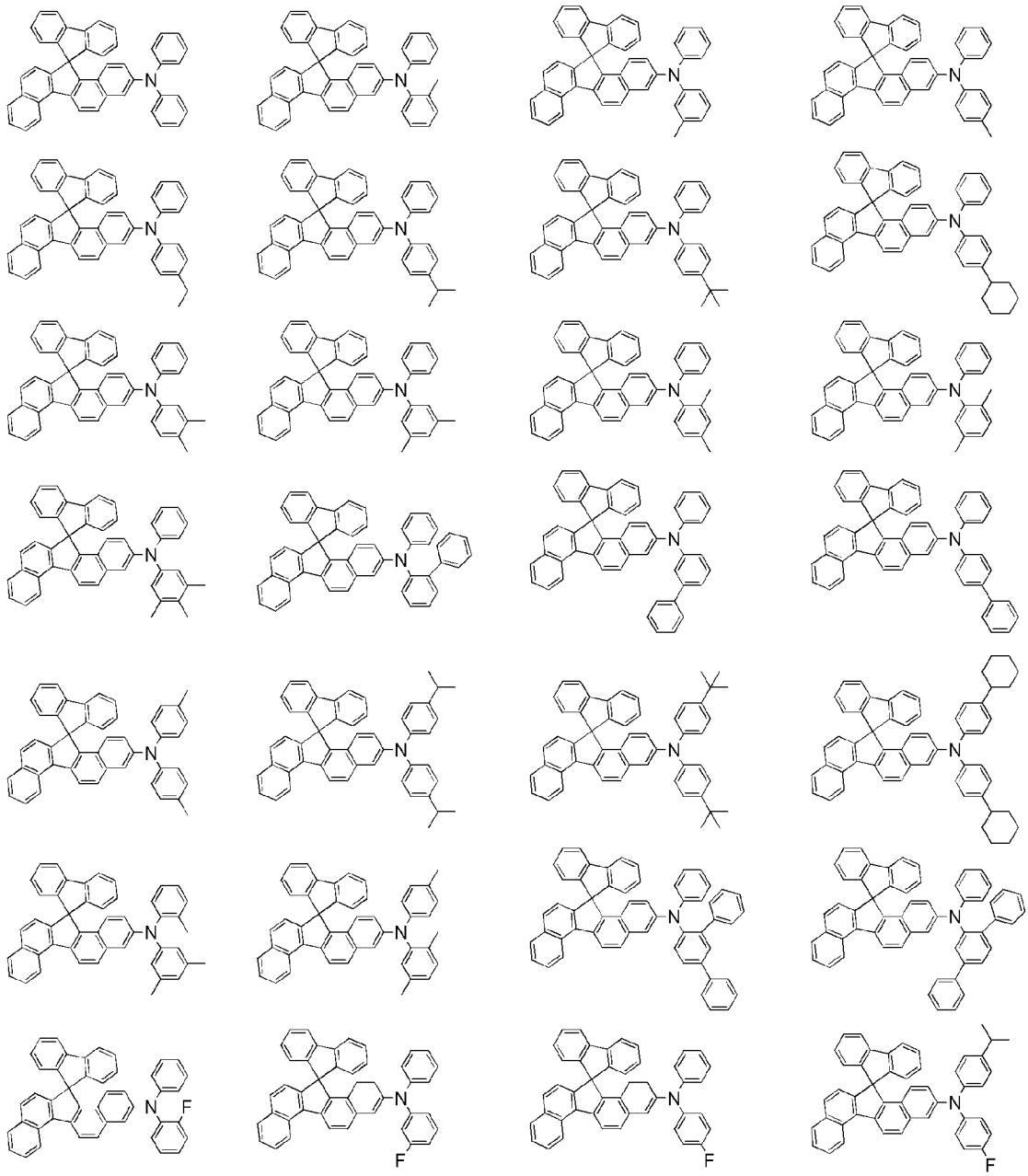


[0146] [化113]

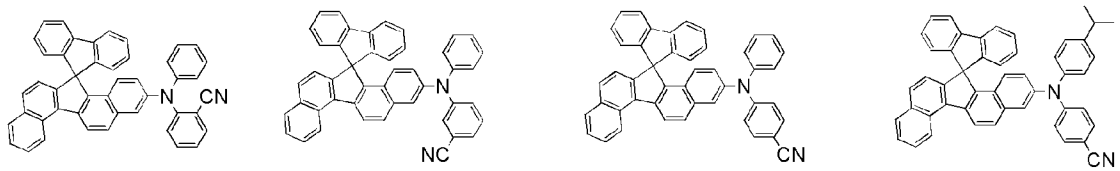


[0147]

[化114]

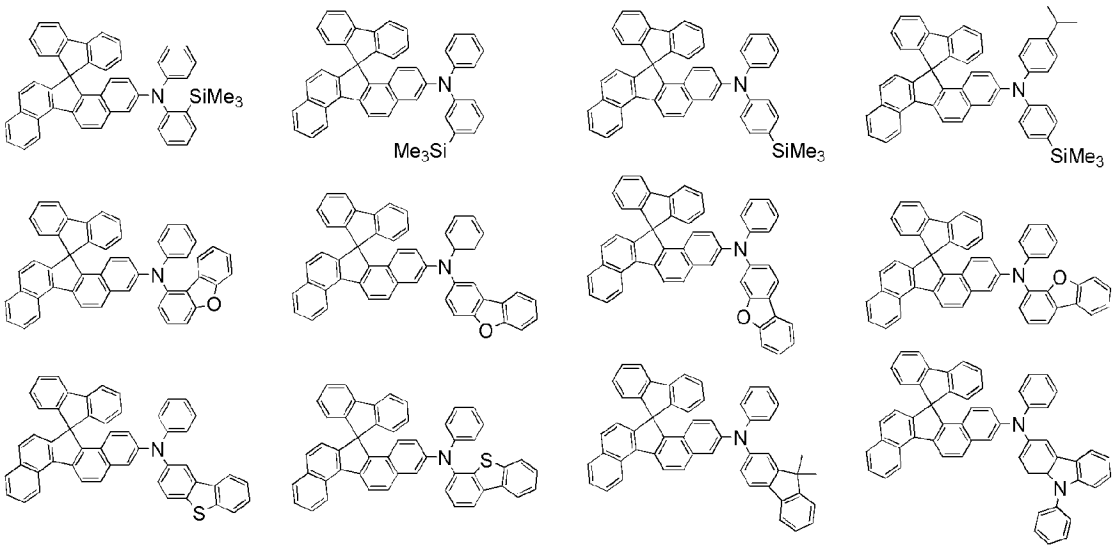


[0148] [化115]

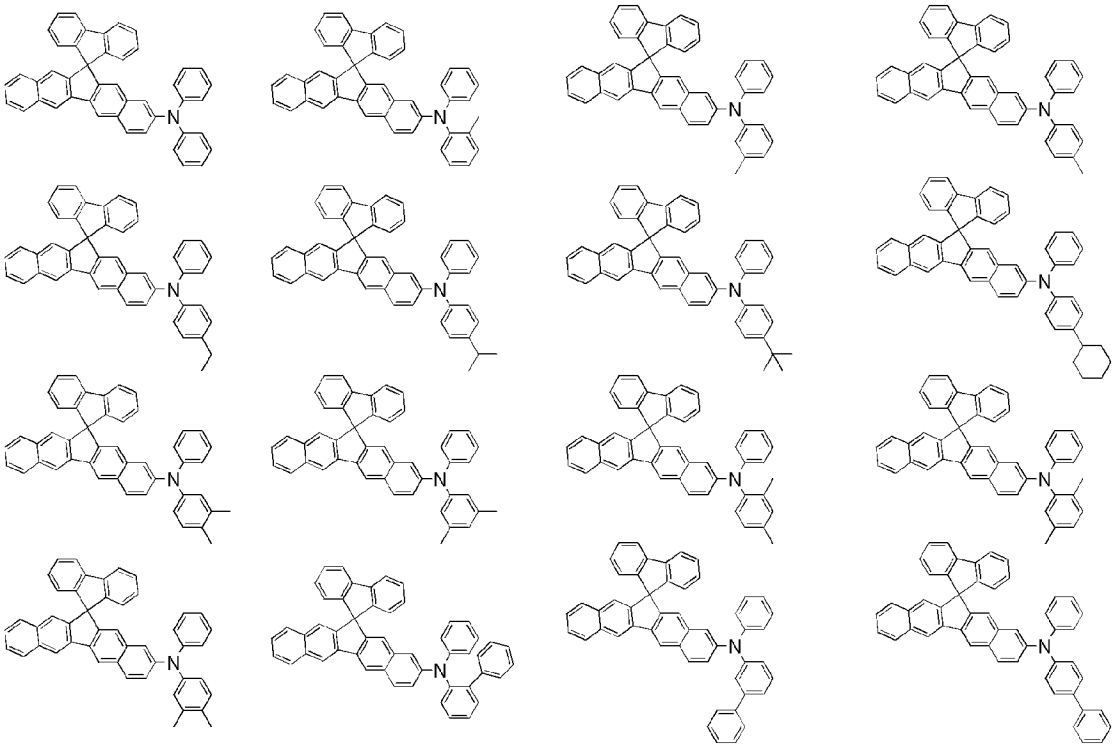


[0149]

[化116]

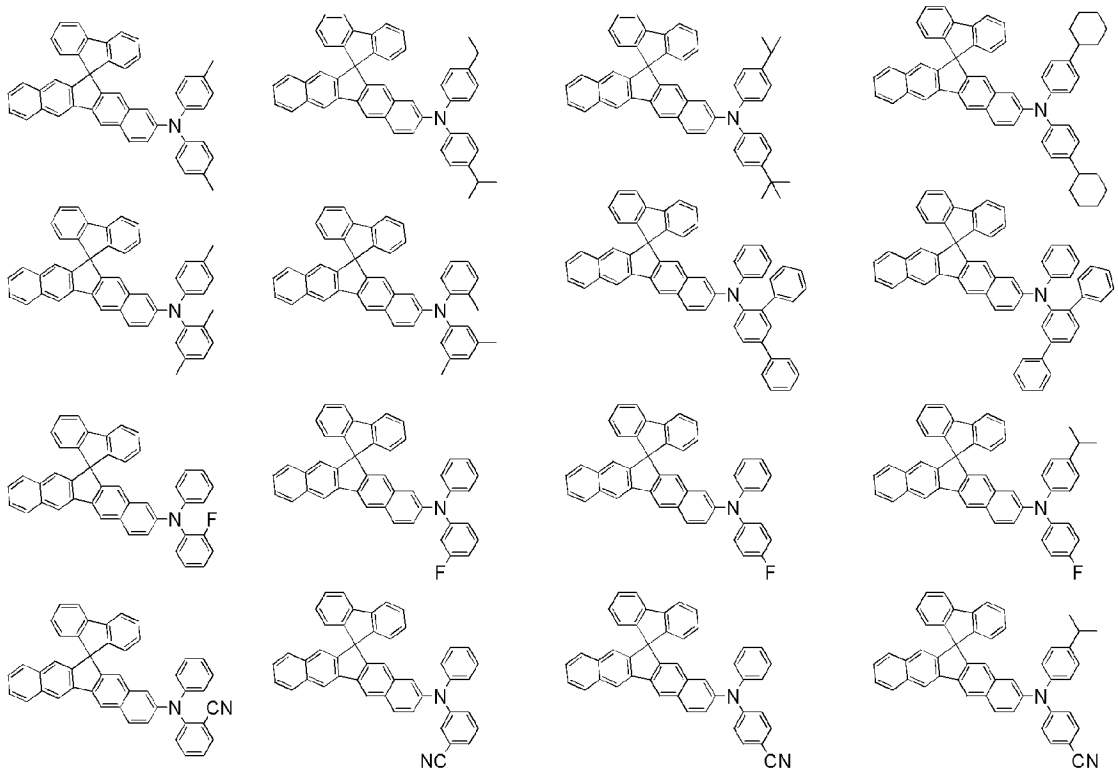


[0150] [化117]

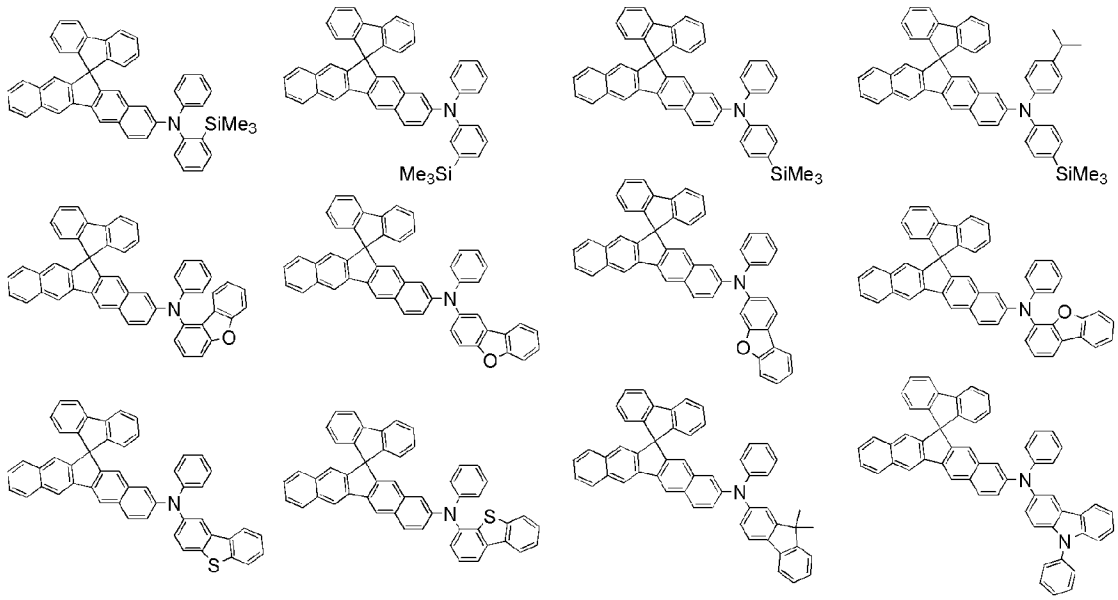


[0151]

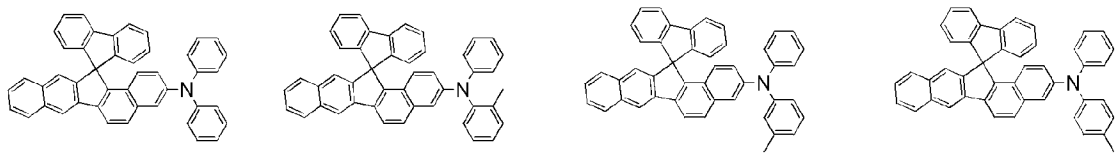
[化118]



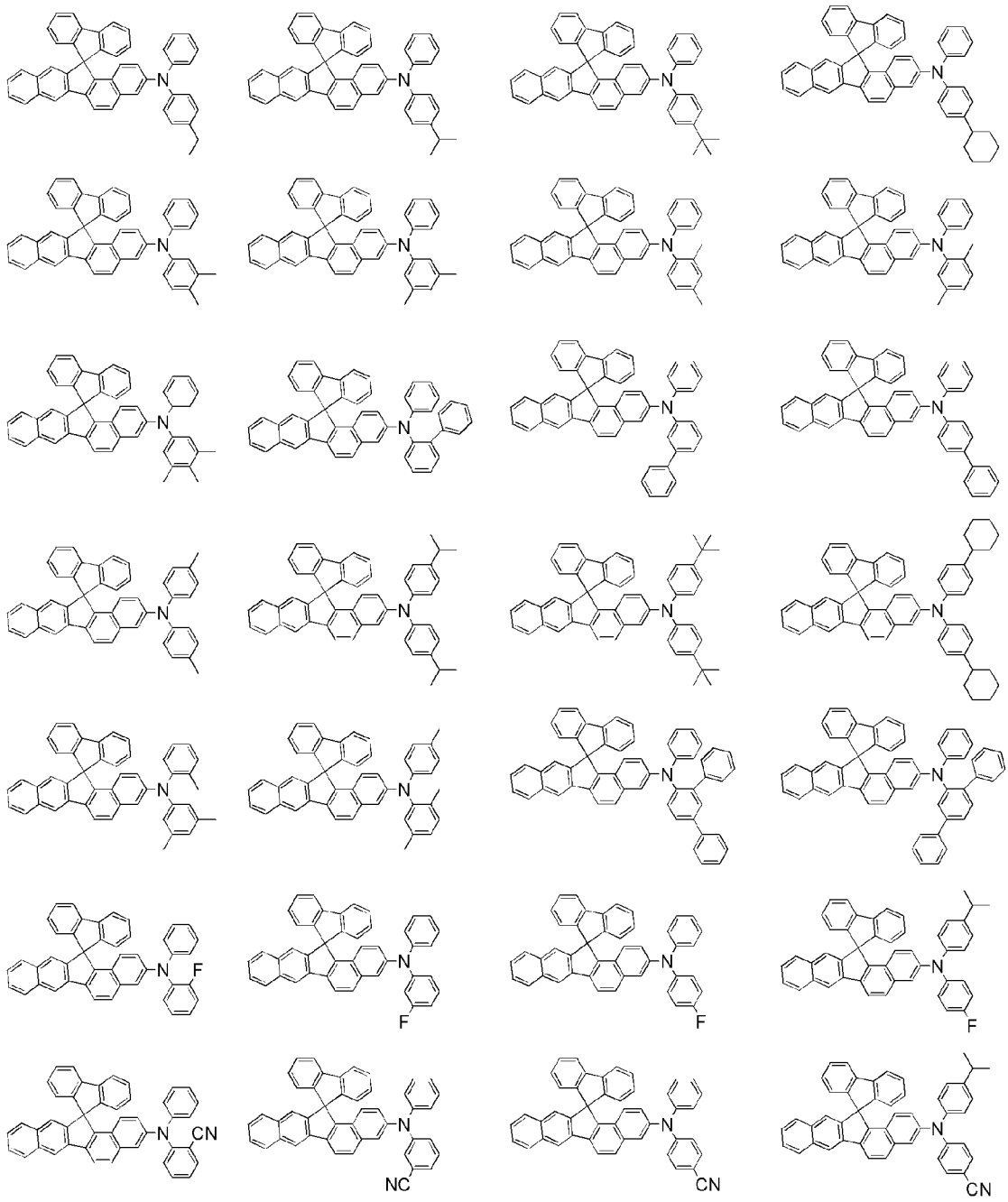
[0152] [化119]



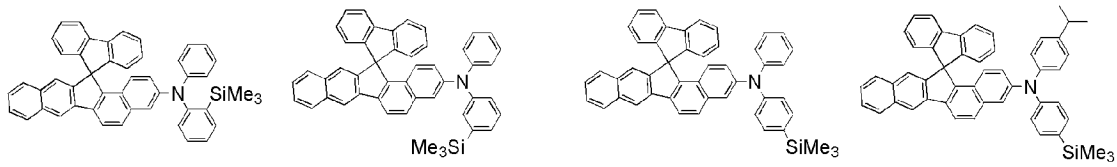
[0153] [化120]



[0154] [化121]

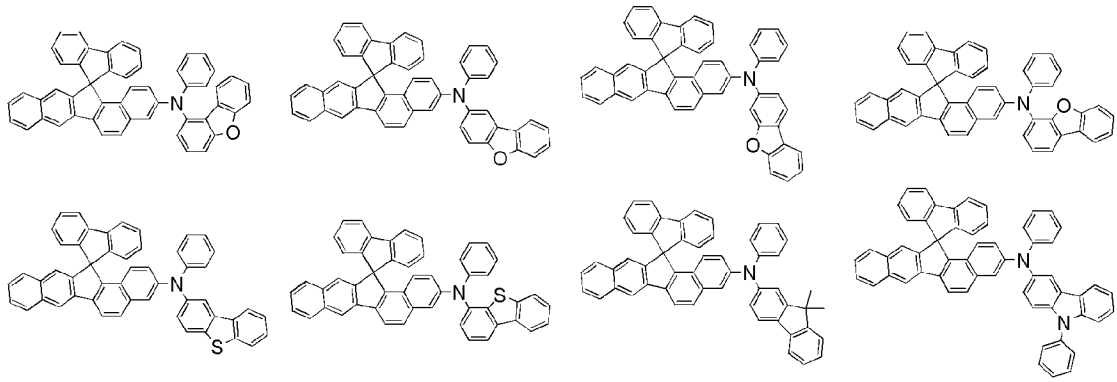


[0155] [化122]

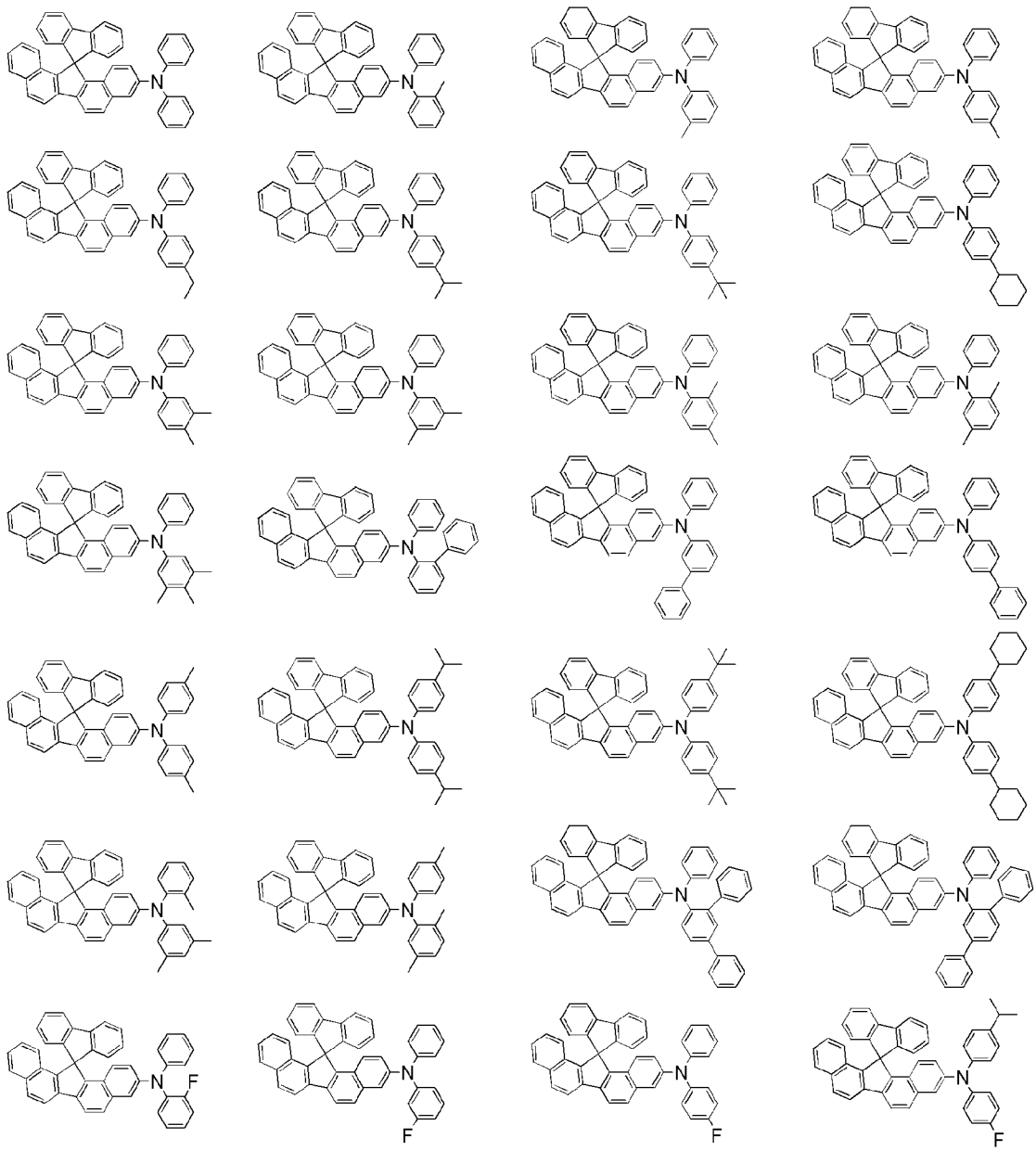


[0156]

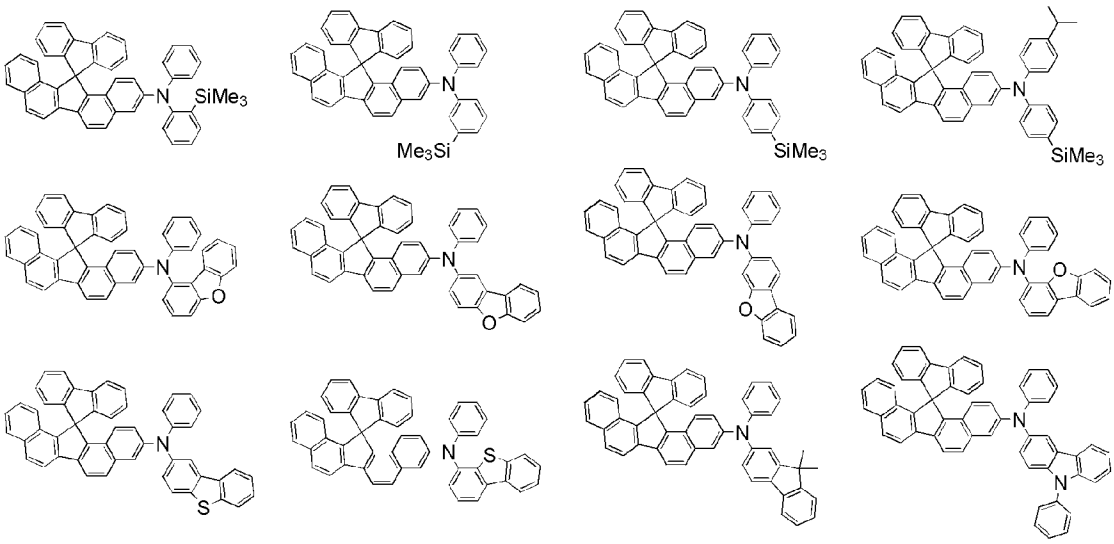
[化123]



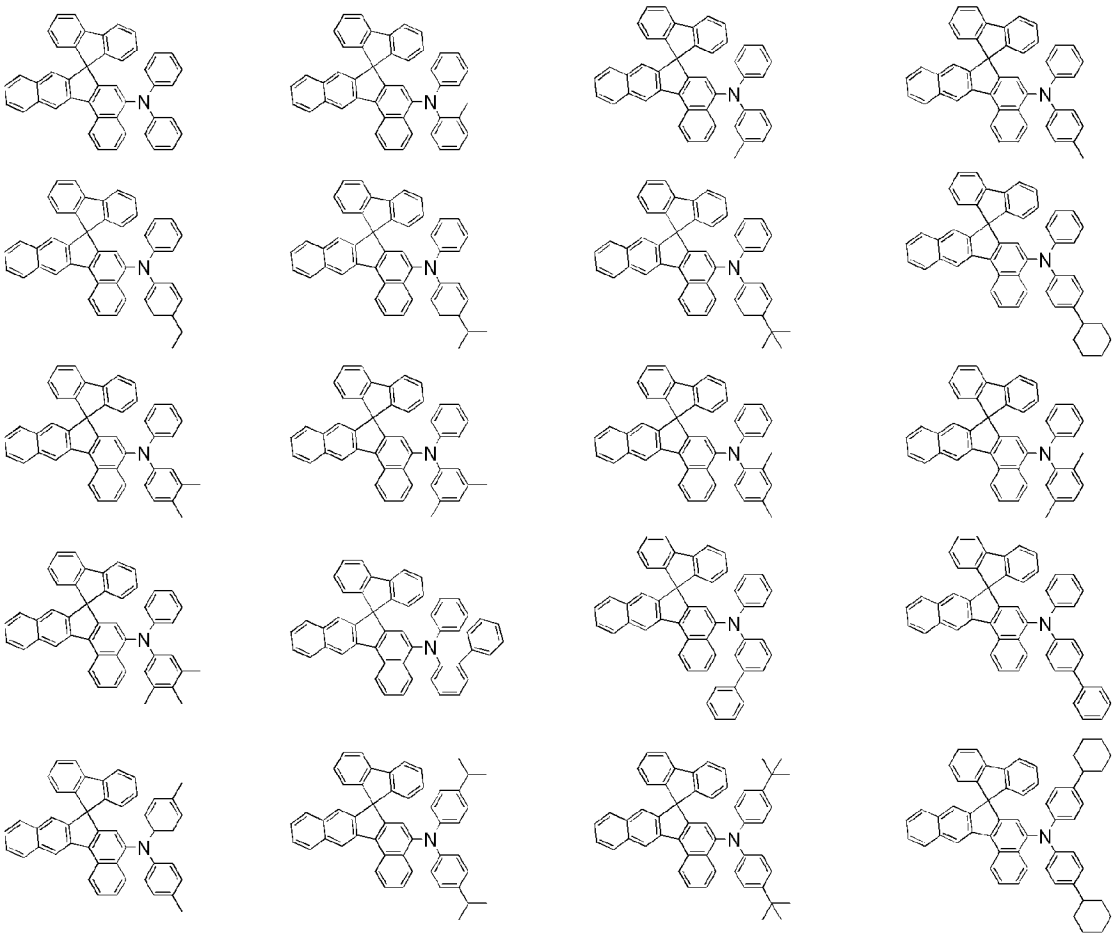
[0157] [化124]



[0158] [化125]

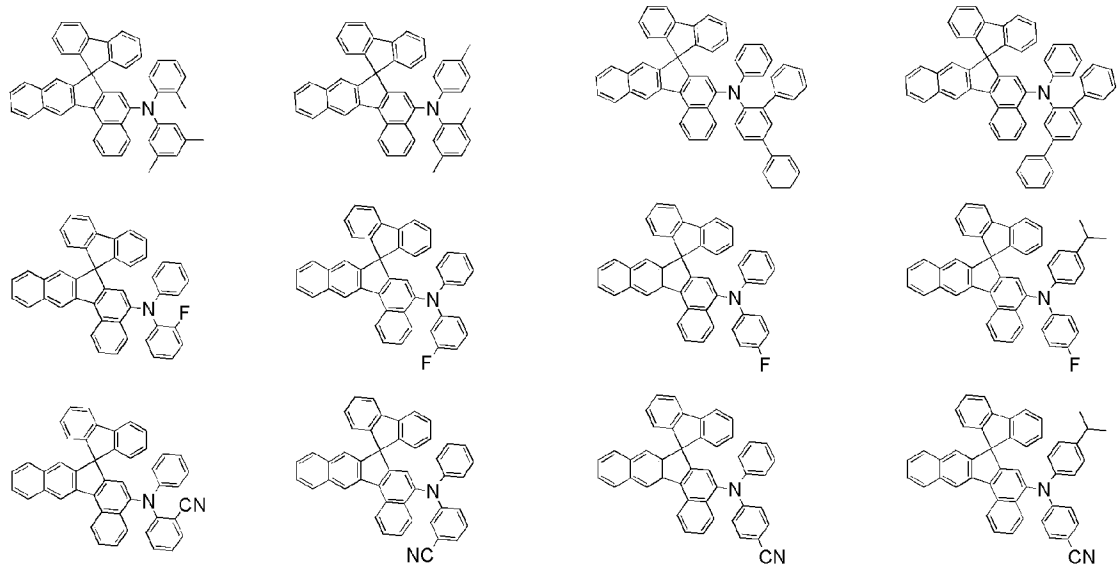


[0159] [化126]

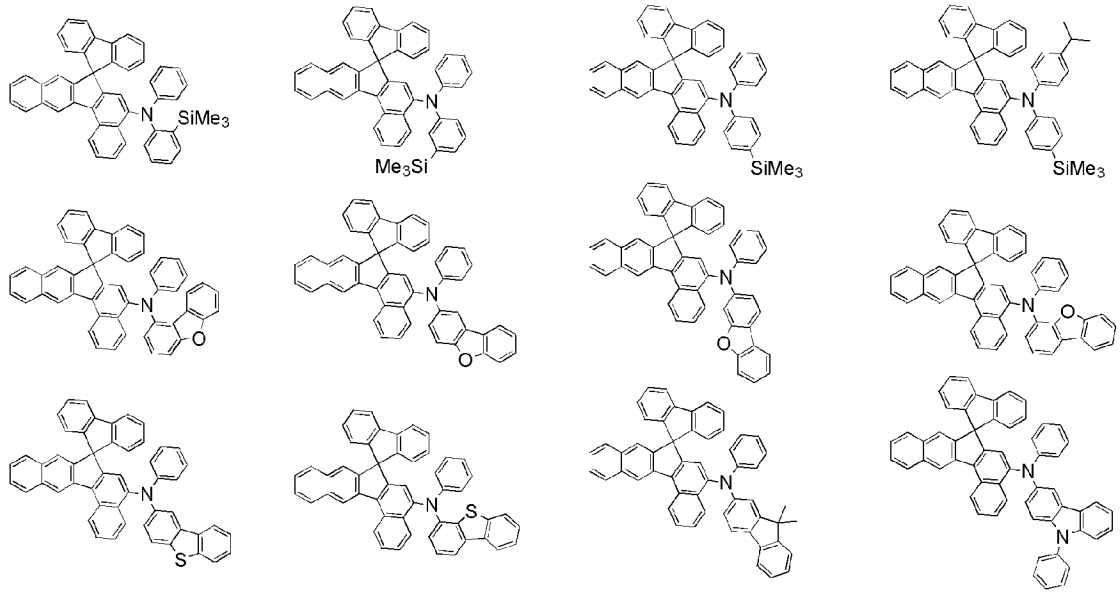


[0160]

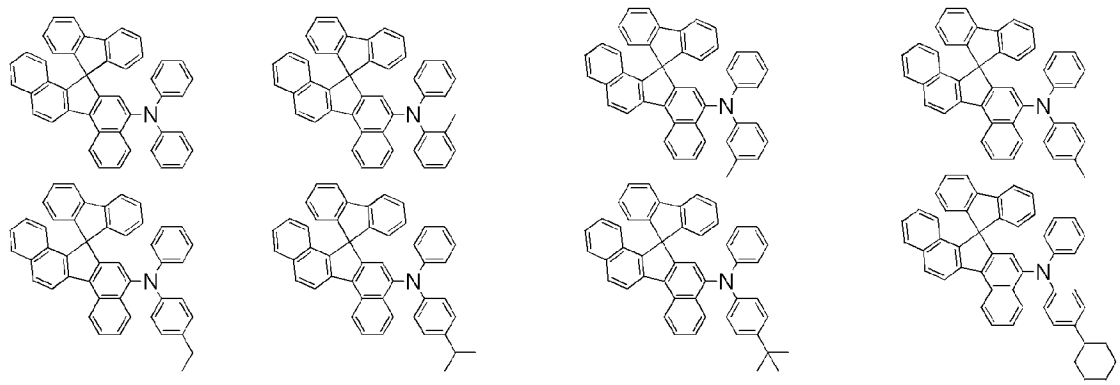
[化127]



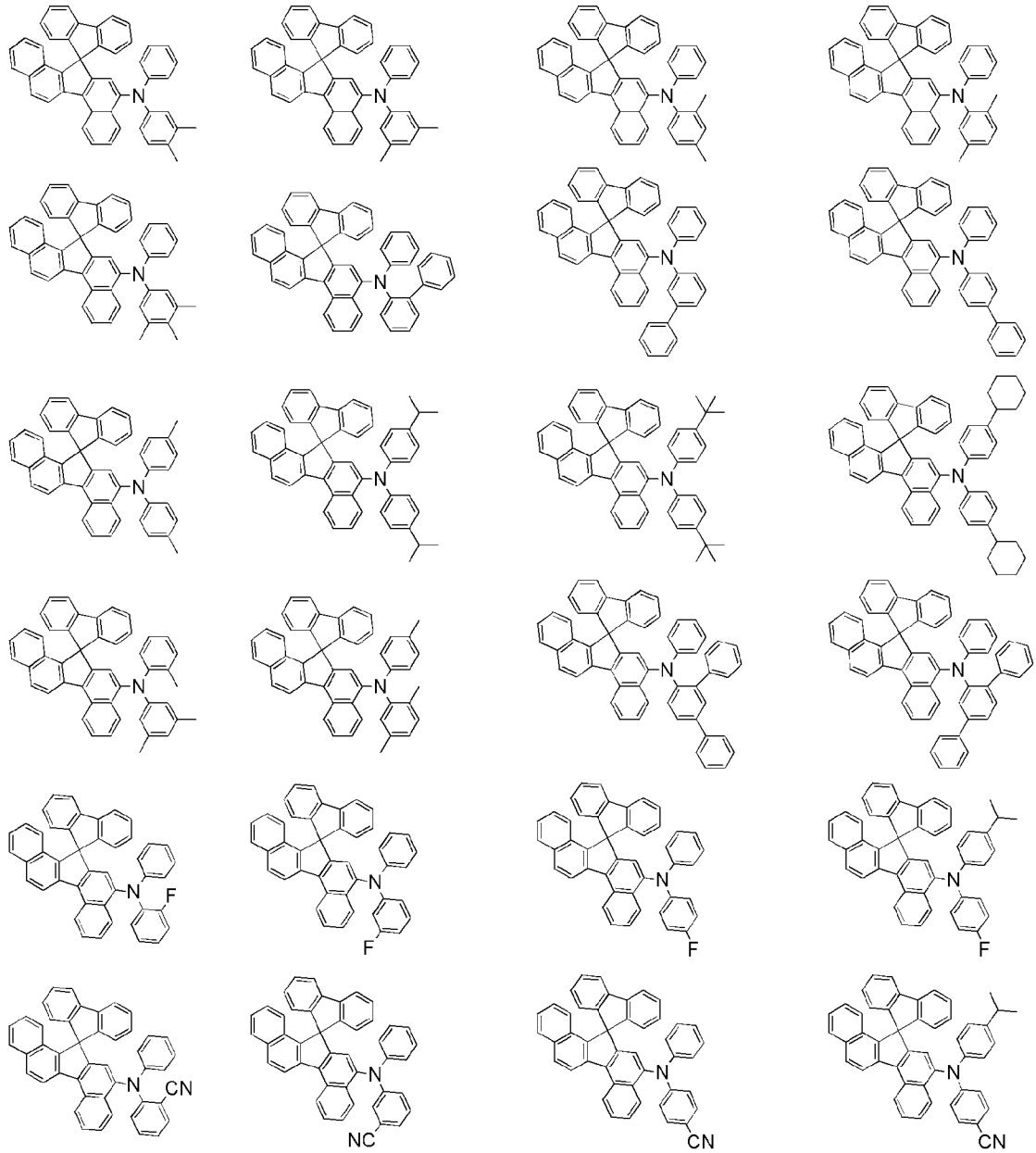
[0161] [化128]



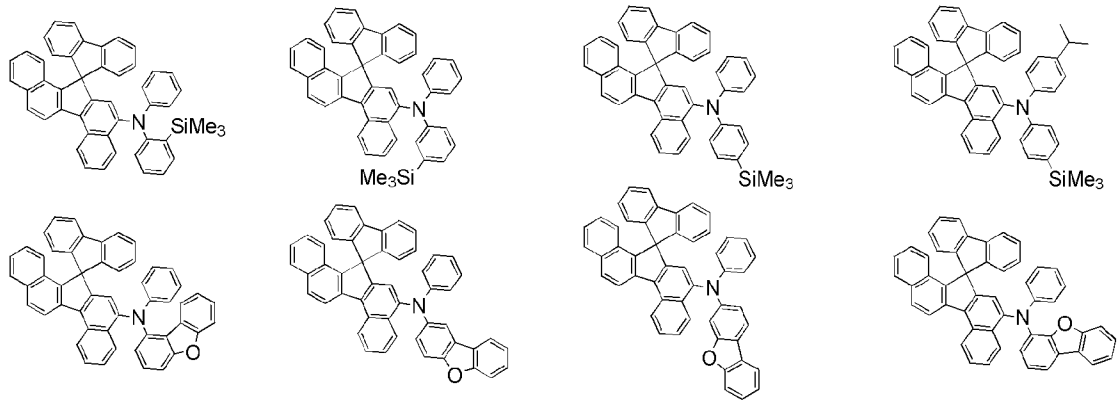
[0162] [化129]



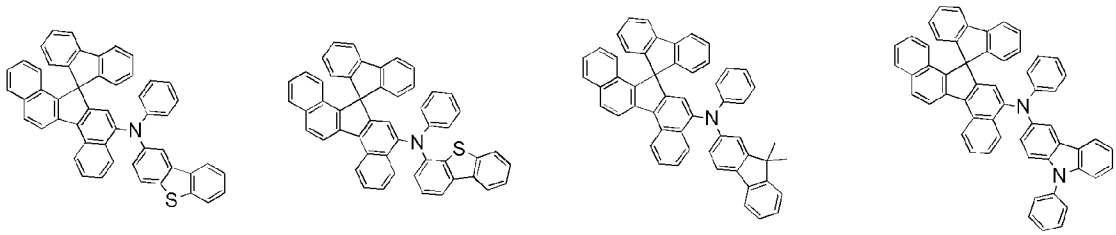
[0163] [化130]



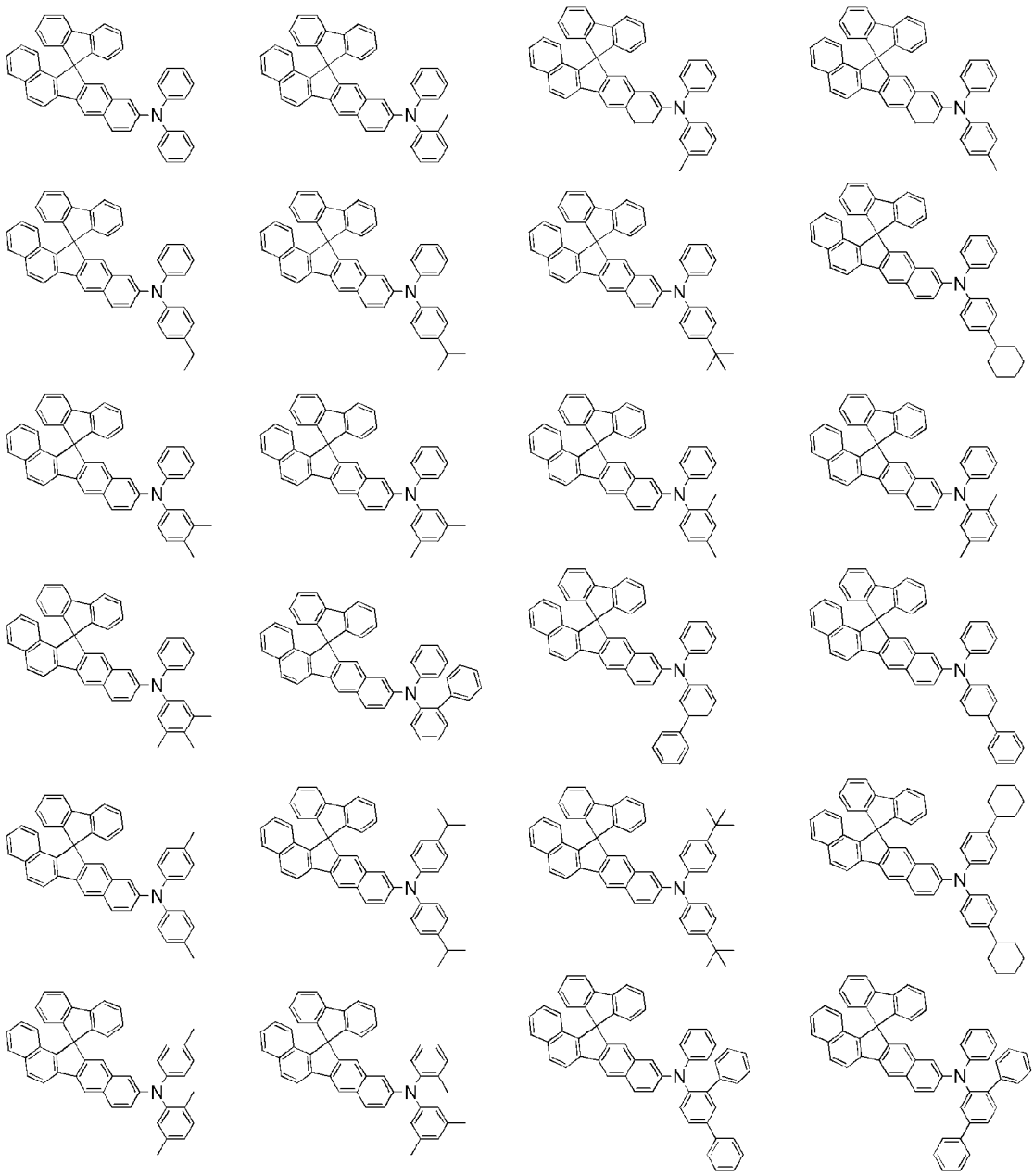
[0164] [化131]



[0165] [化132]

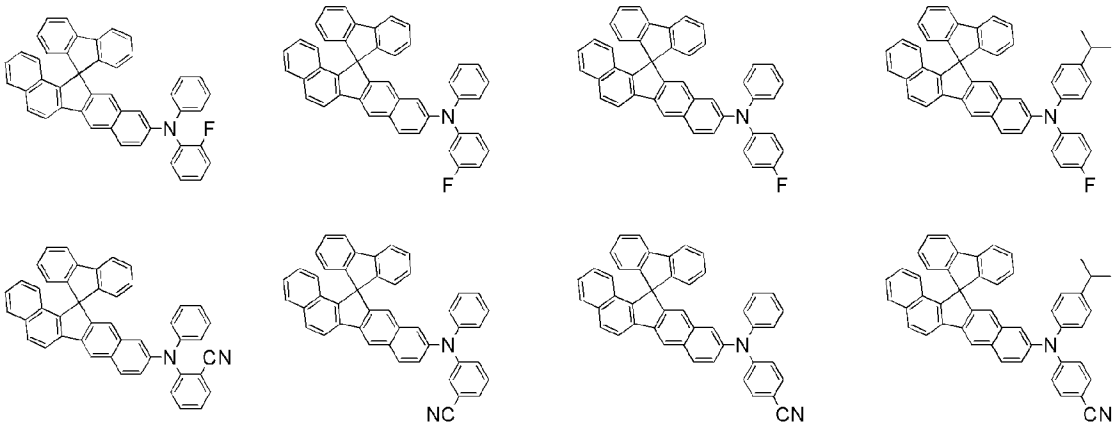


[0166] [化133]

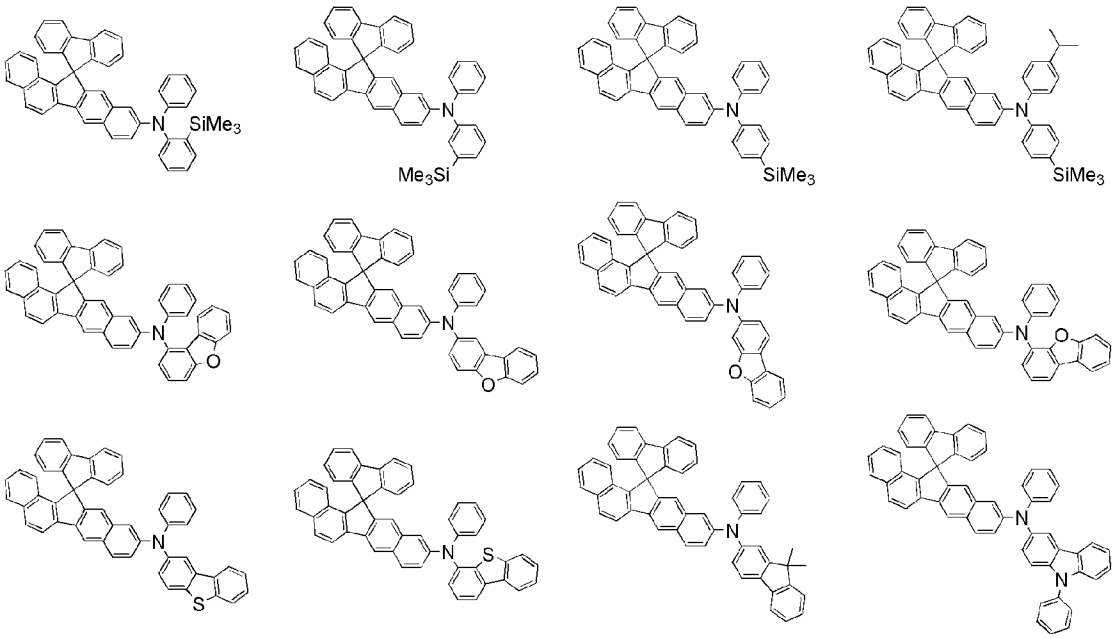


[0167]

[化134]

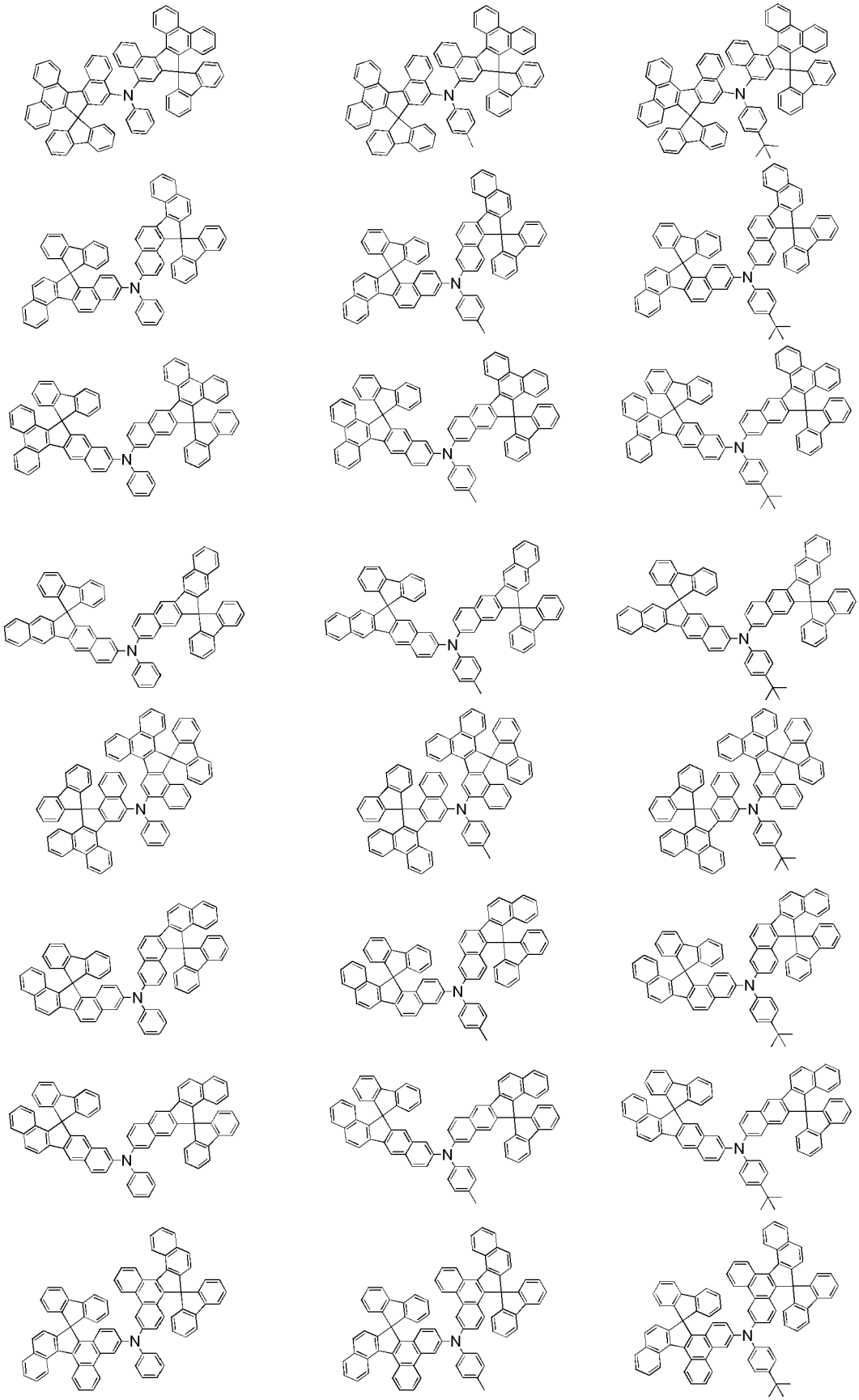


[0168] [化135]

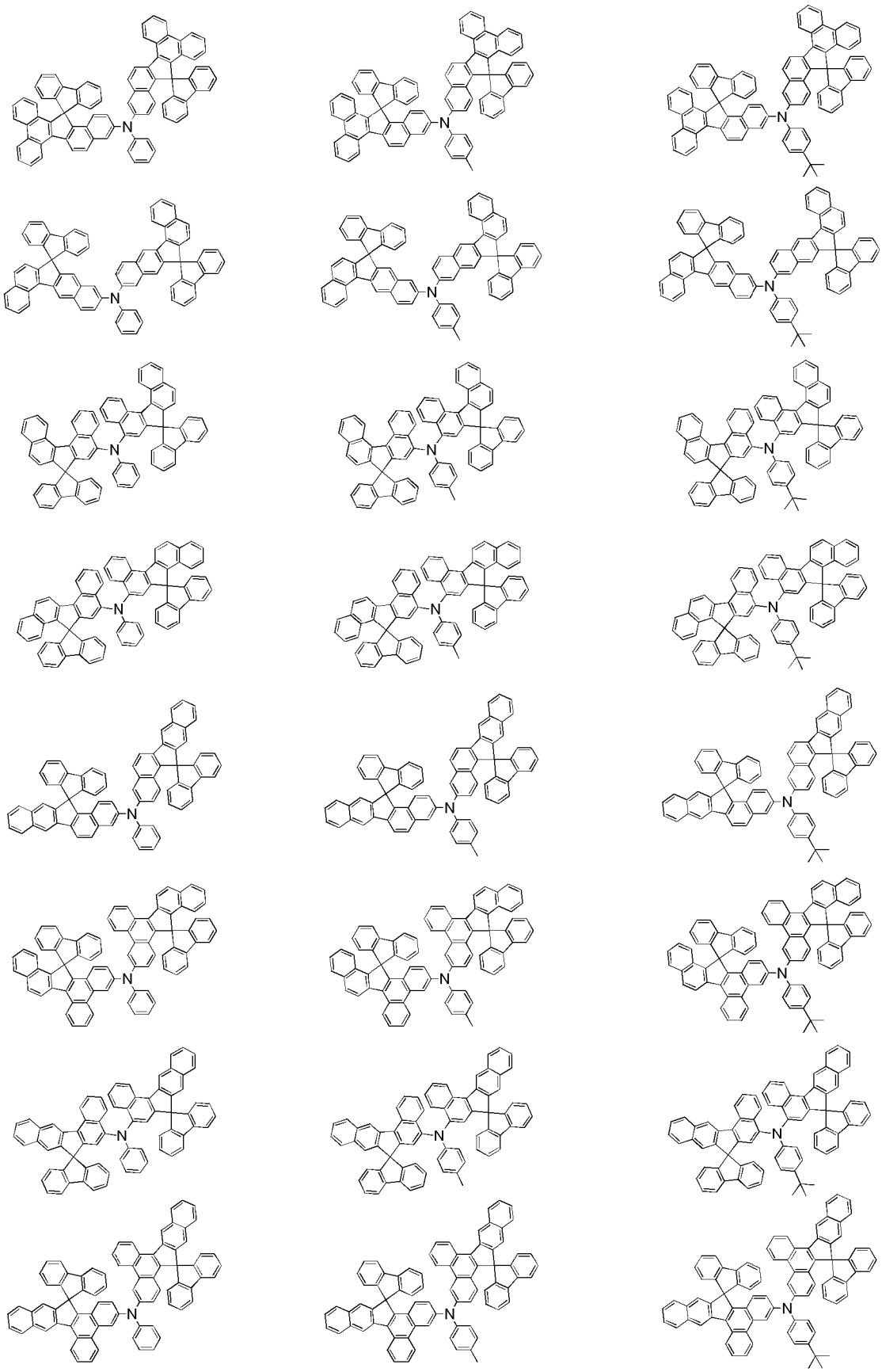


[0169]

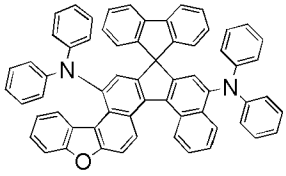
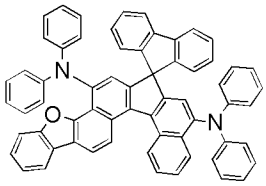
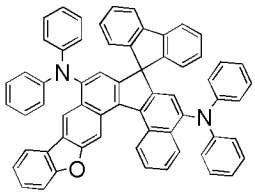
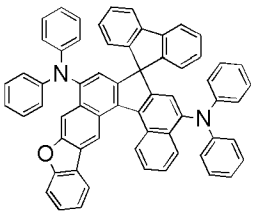
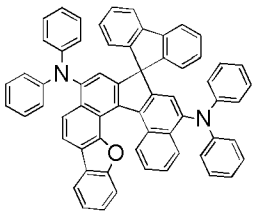
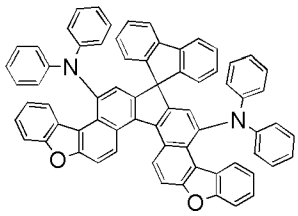
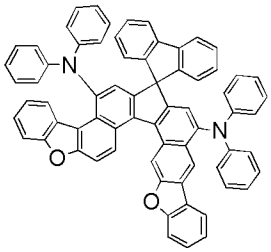
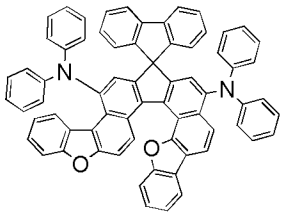
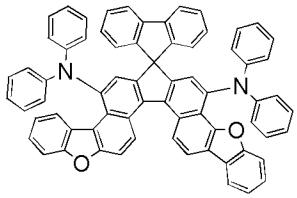
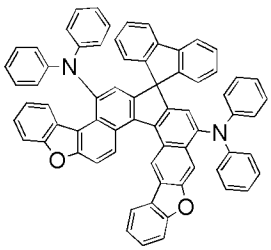
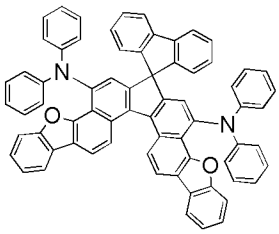
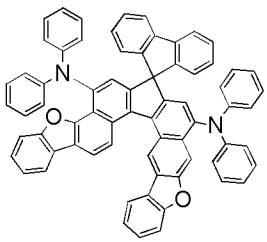
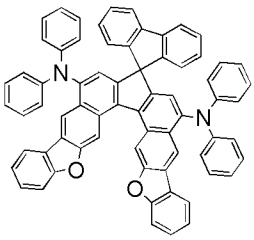
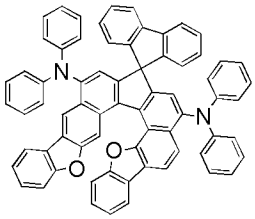
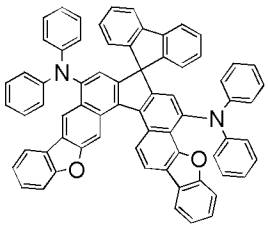
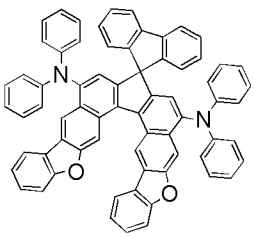
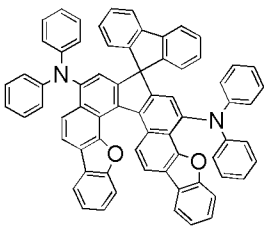
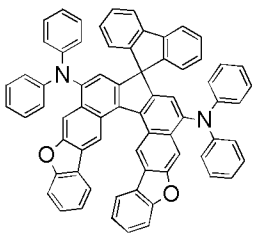
[化136]



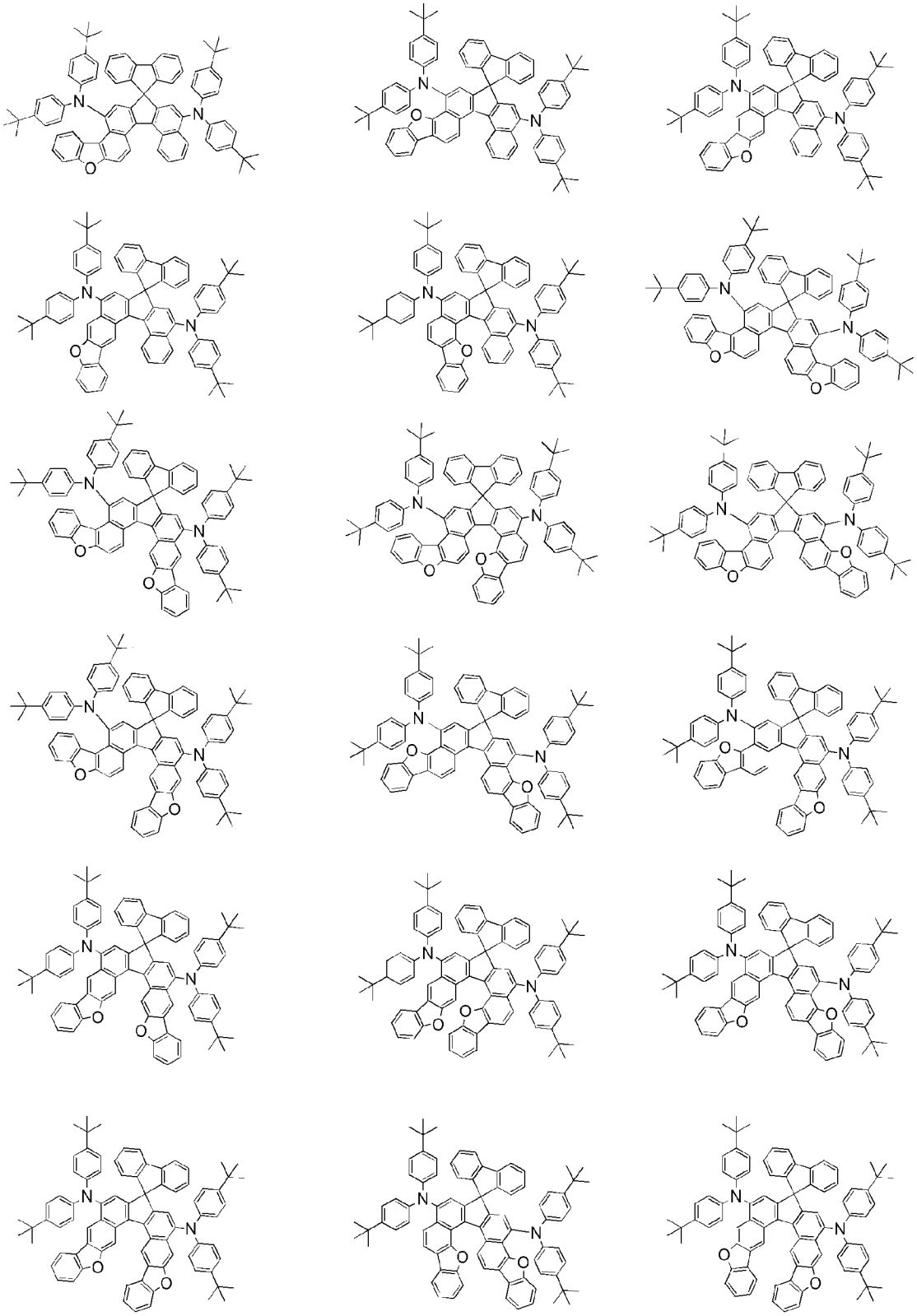
[0170] [化137]



[0171] [化138]

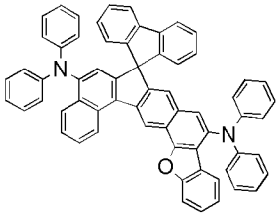



















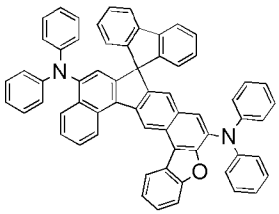
[0172] [化139]

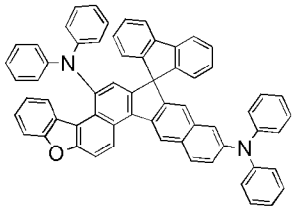


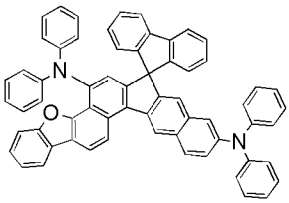
[0173]

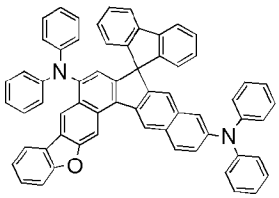
[化140]

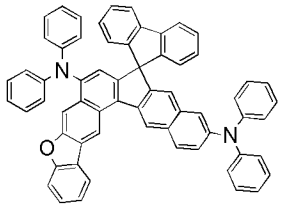


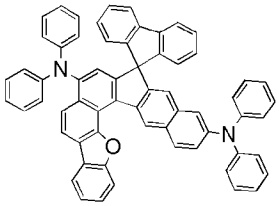


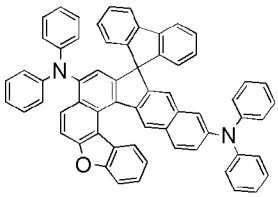


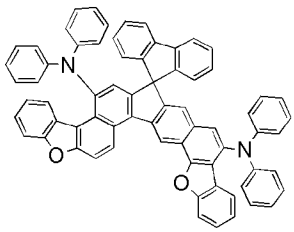


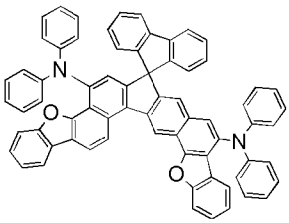


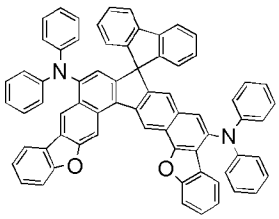


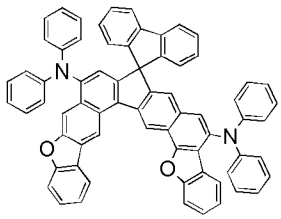


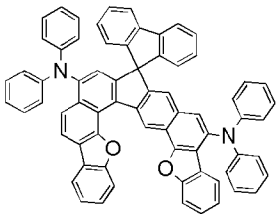


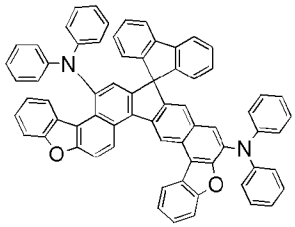


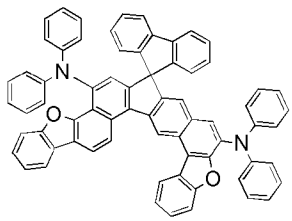


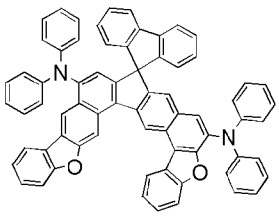


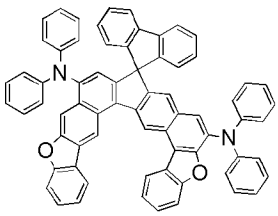


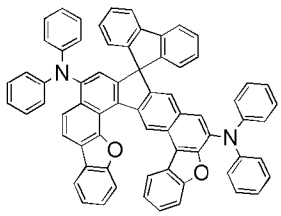




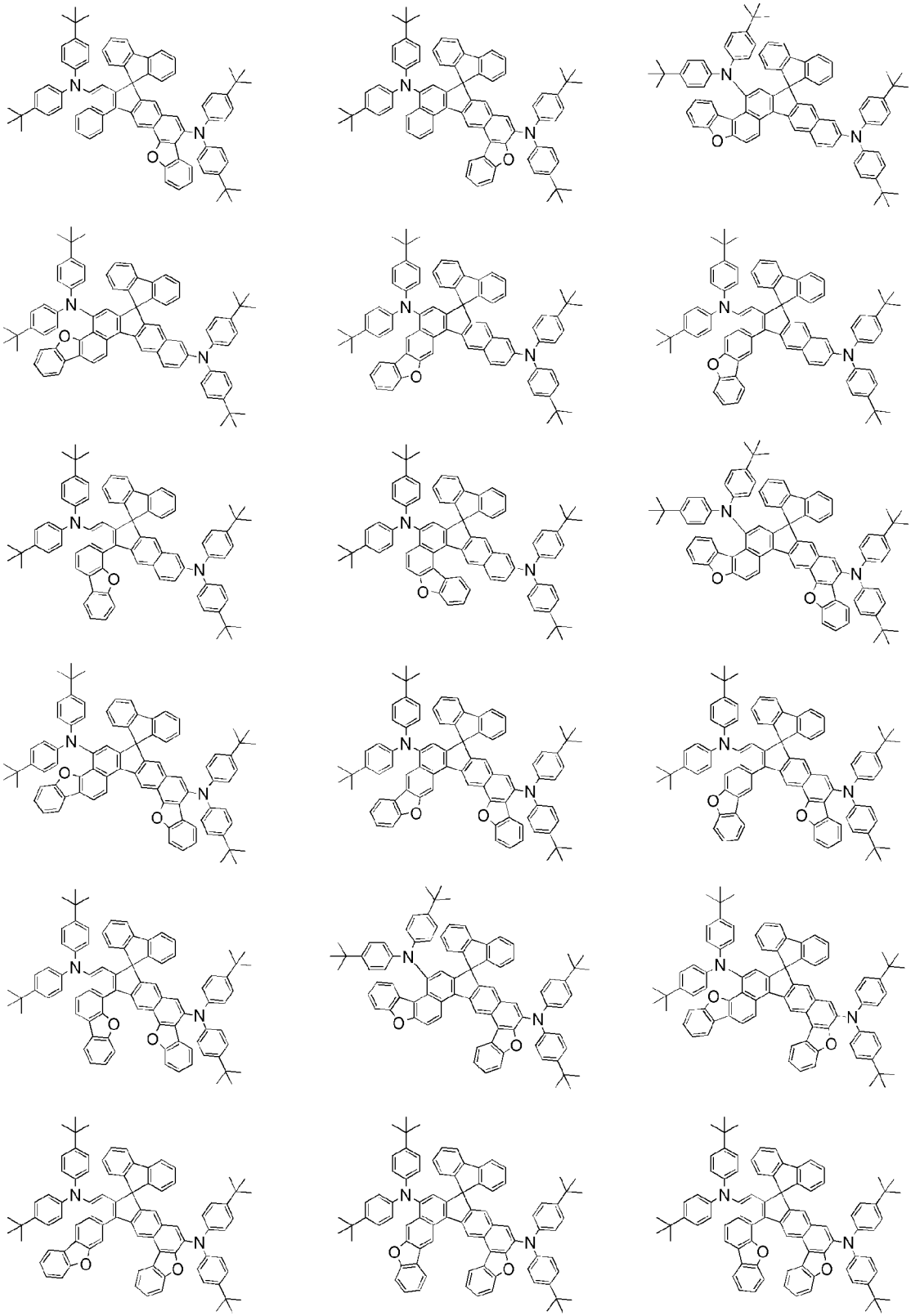






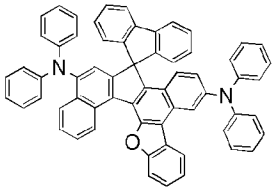


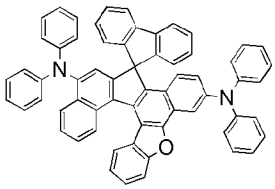
[0174] [化141]

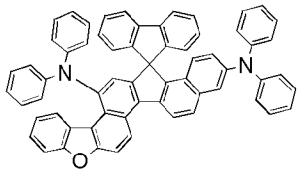


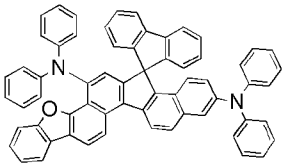
[0175]

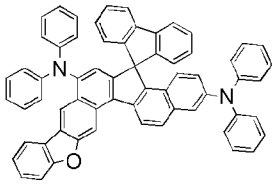
[化142]

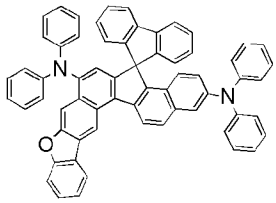


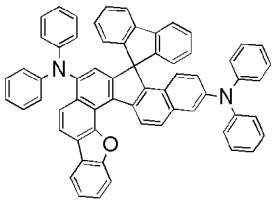


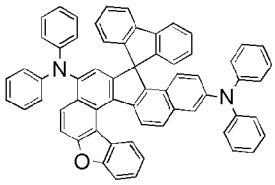


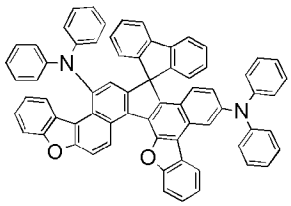


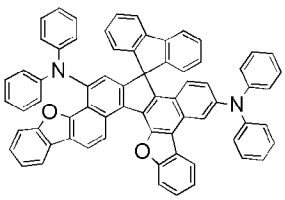


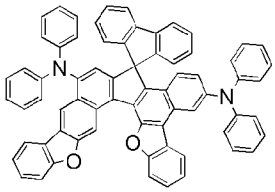


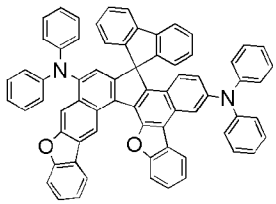


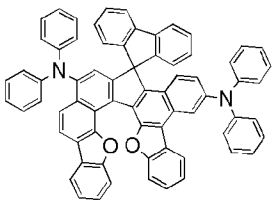


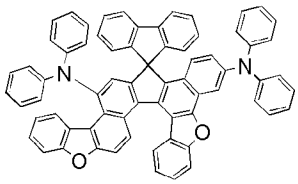


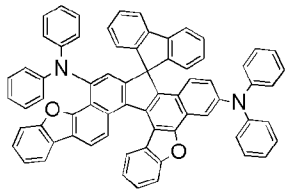


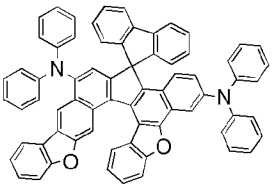


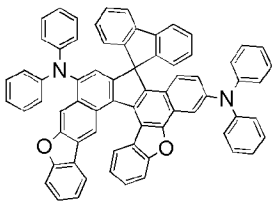




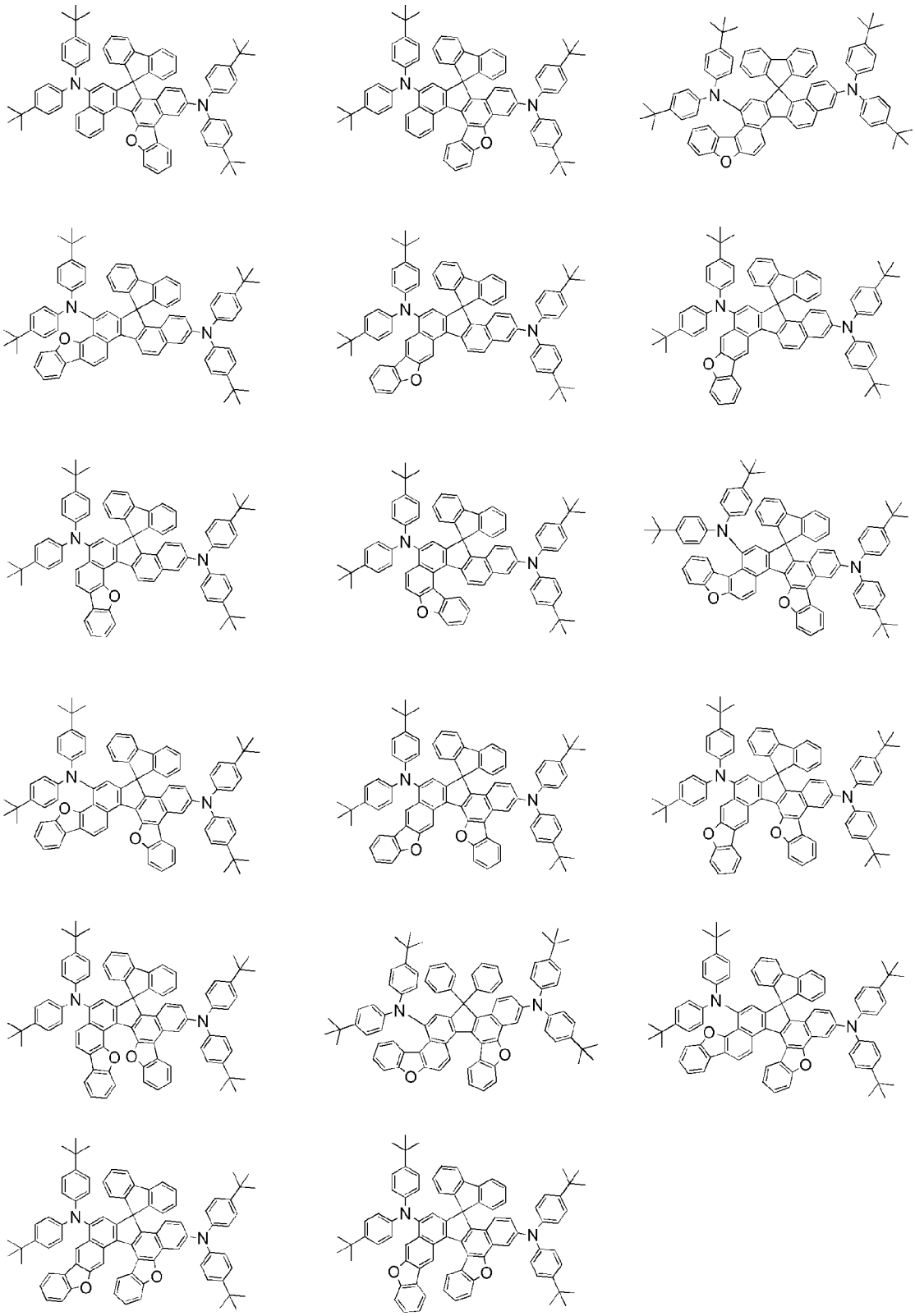






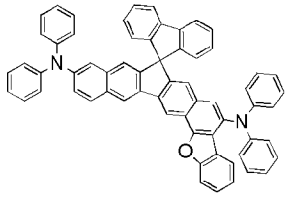
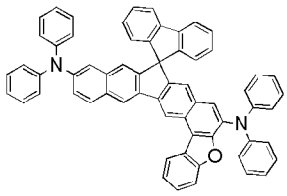
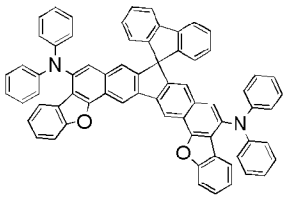
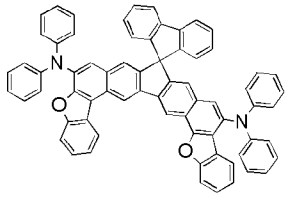
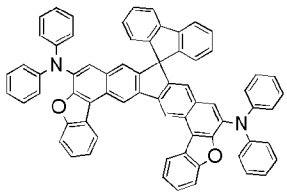
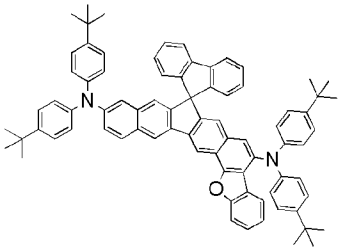
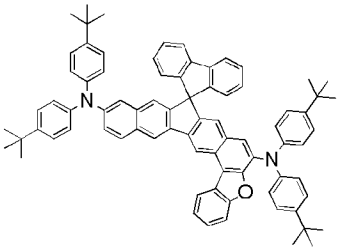
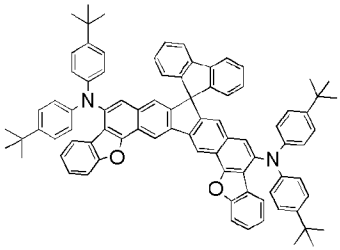
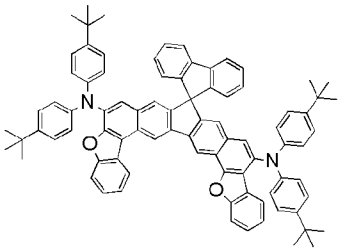
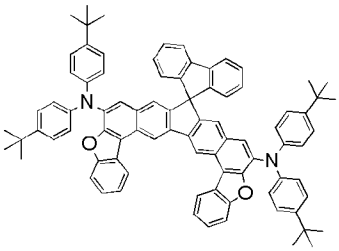
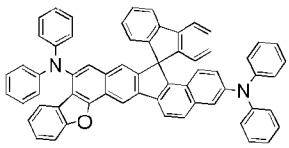
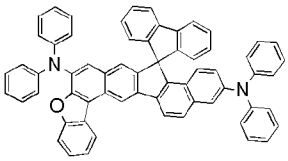
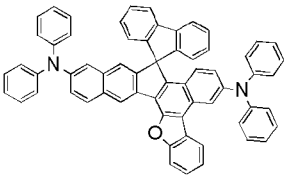
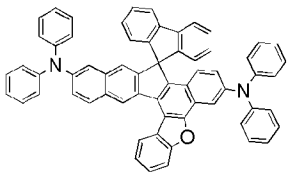
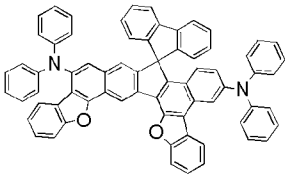
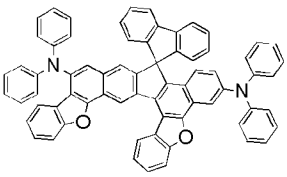
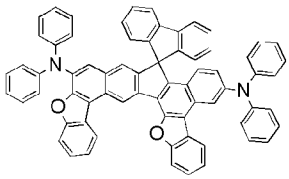
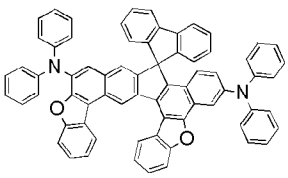


[0176] [化143]



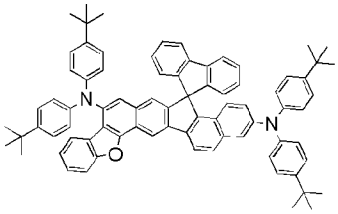
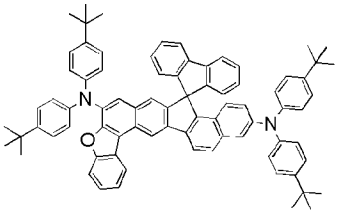
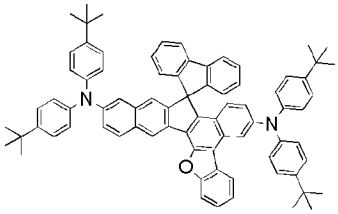
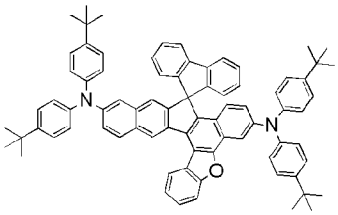
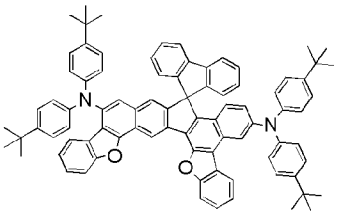
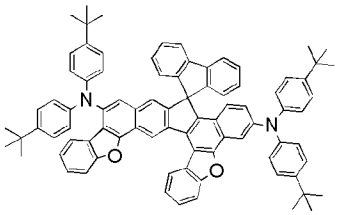
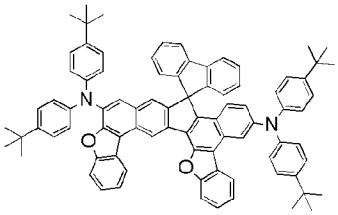
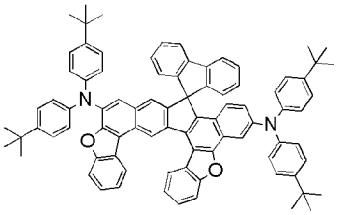
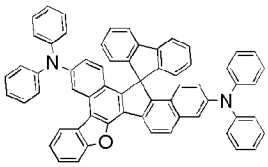
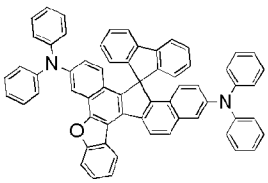
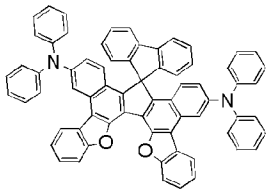
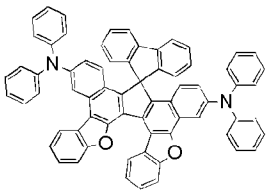
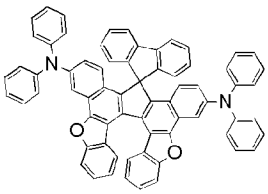
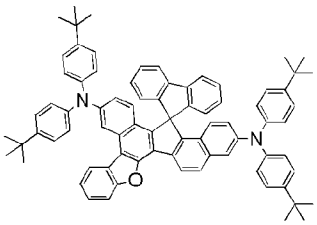
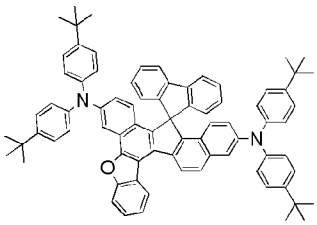
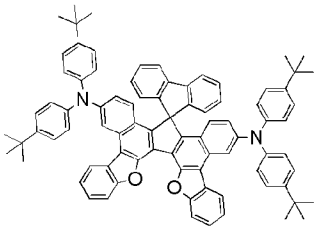
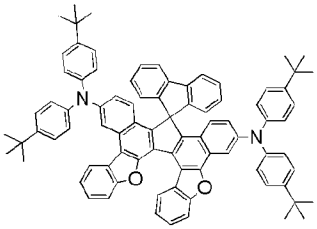
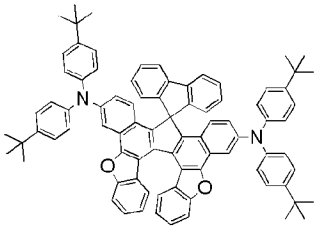
[0177]

[化144]

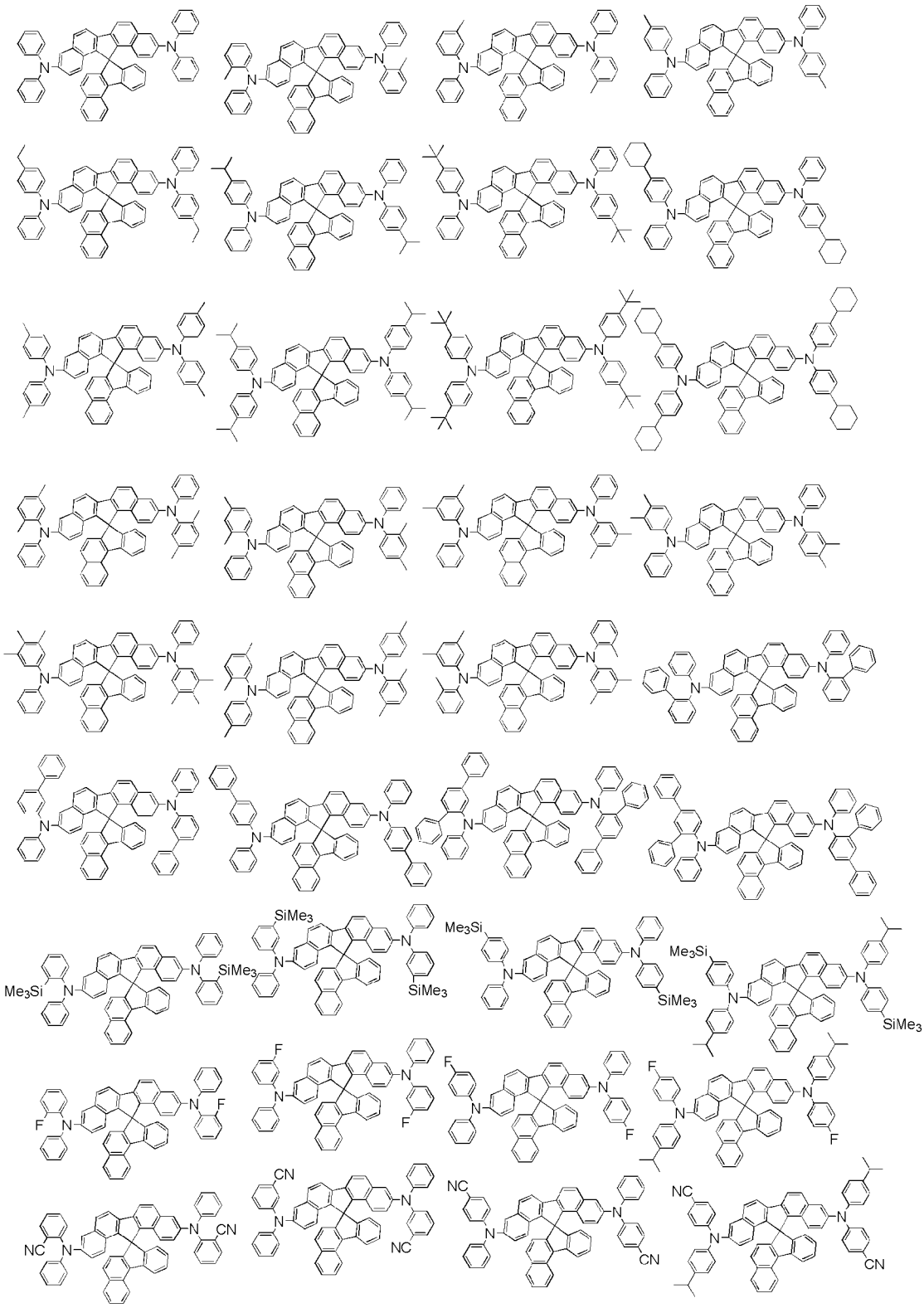
[0178]

[化145]

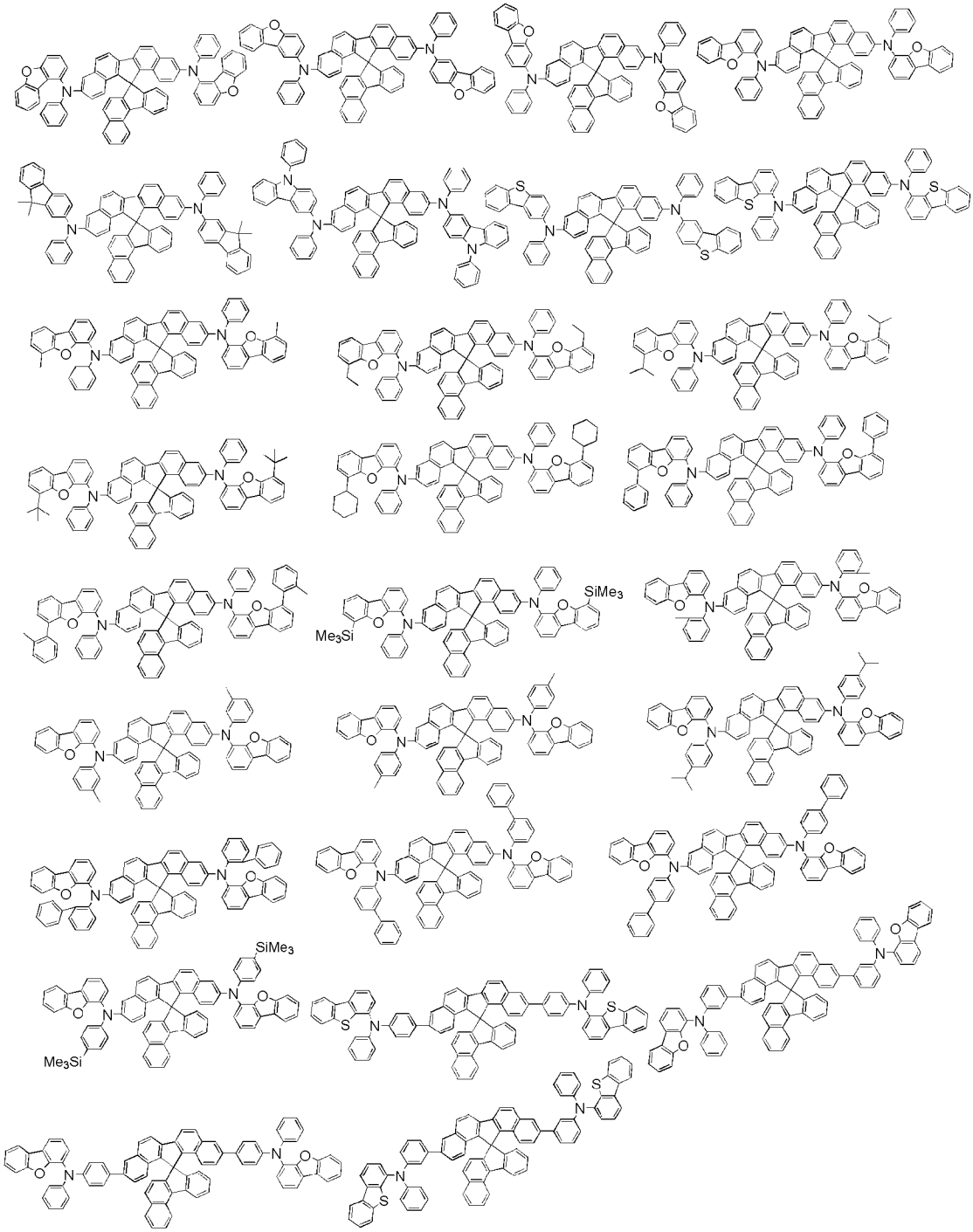
[0179]

[化146]



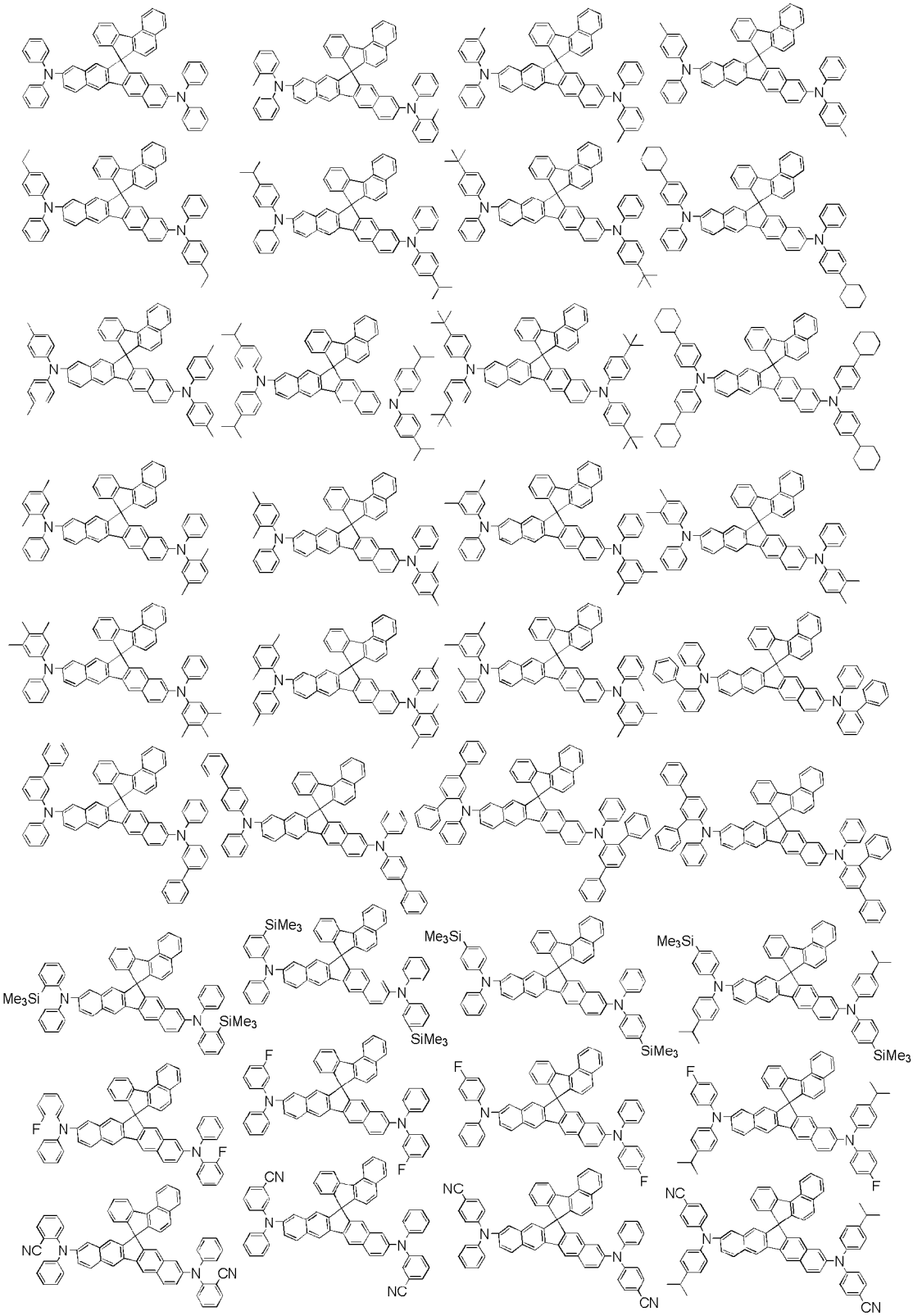
[0180]

[化147]



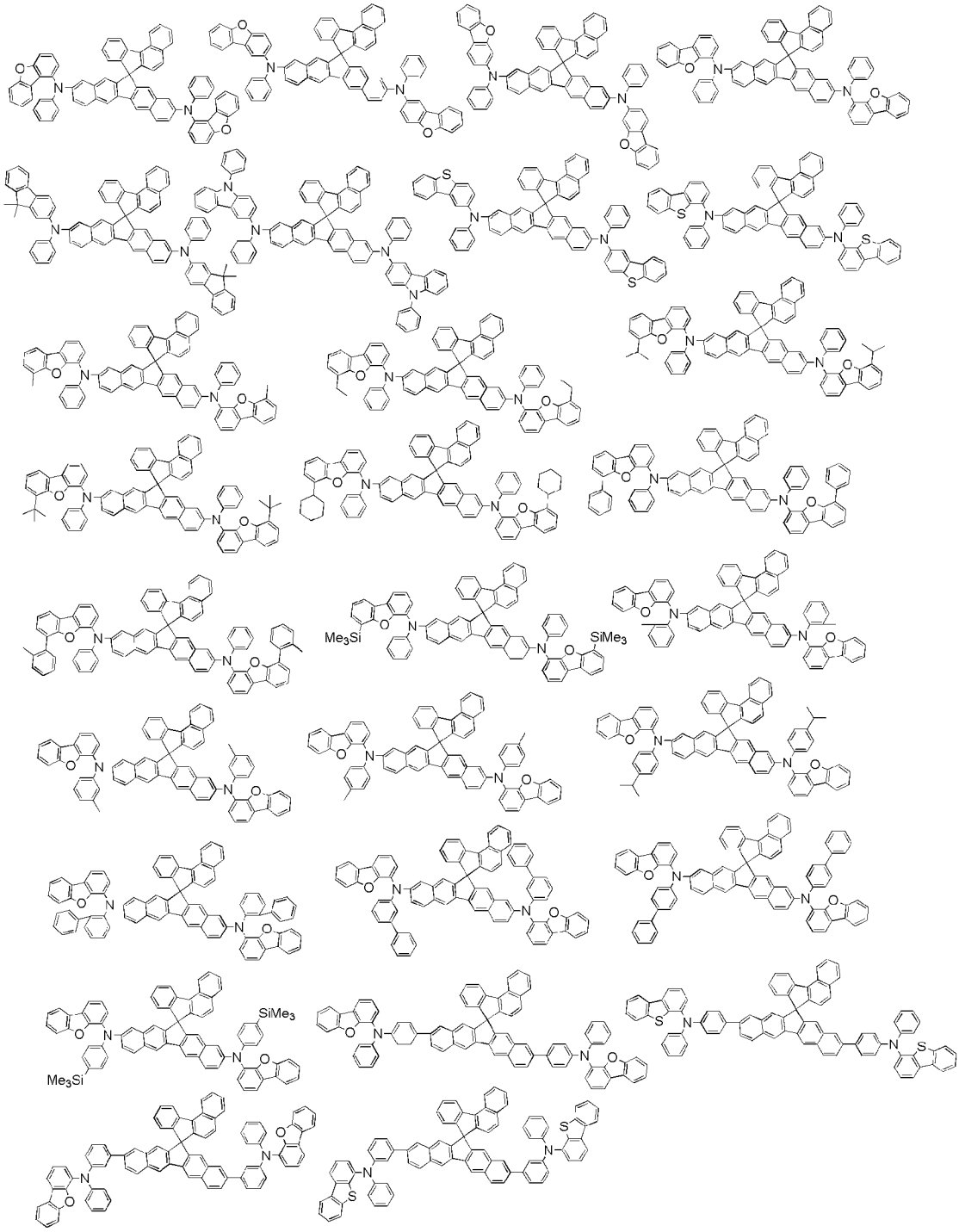
[0181]

[化148]



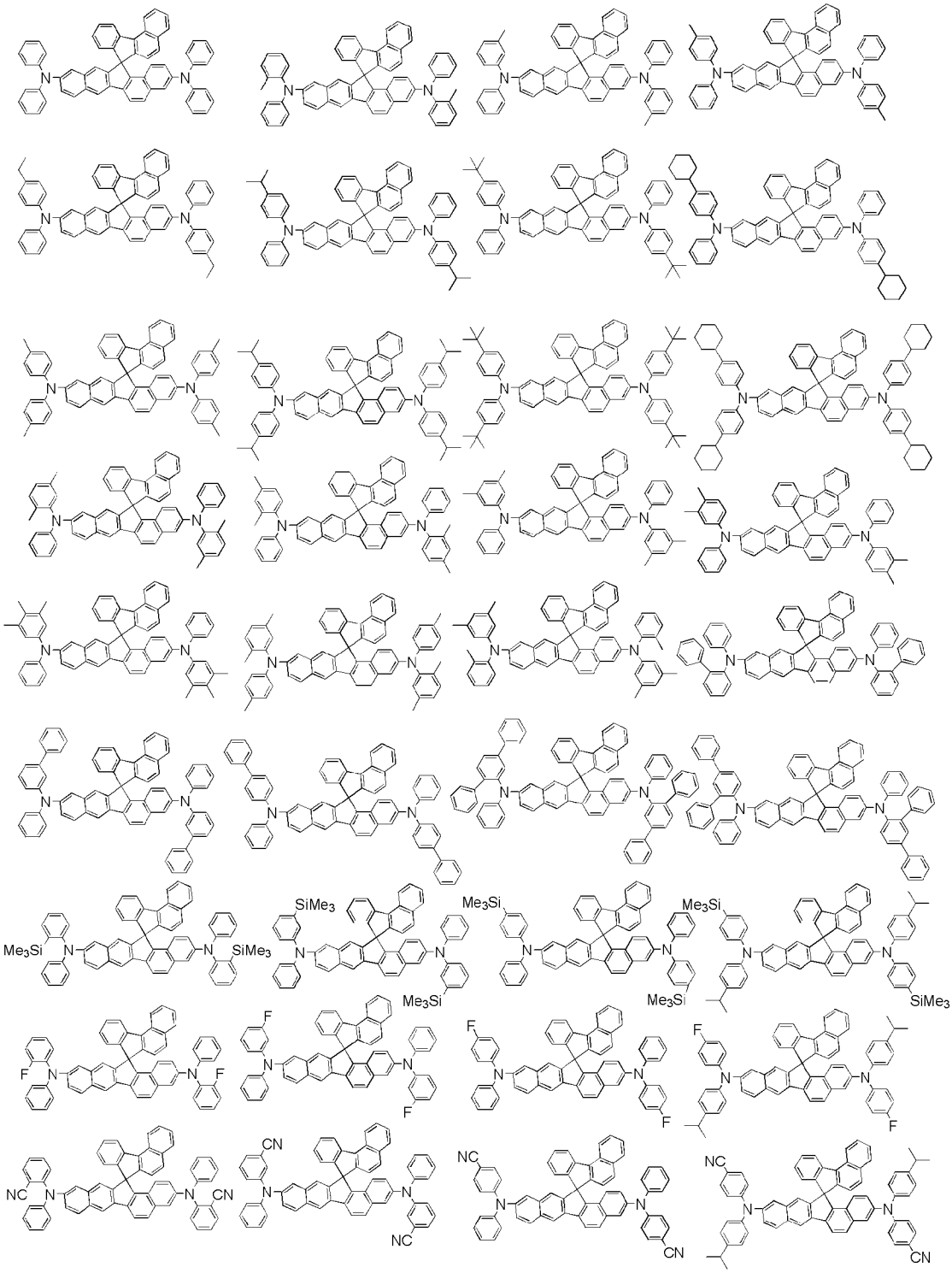
[0182]

[化149]



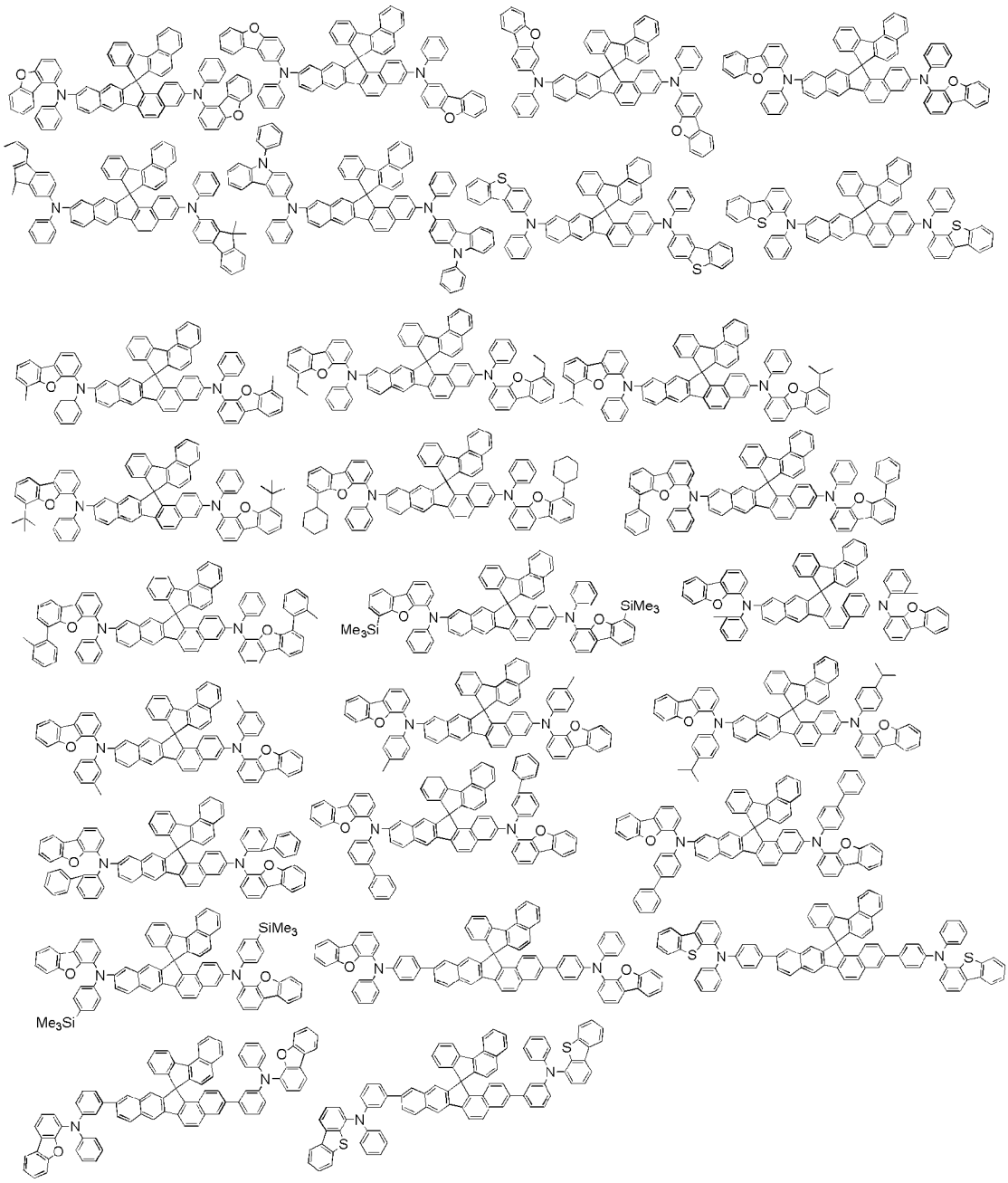
[0183]

[化150]



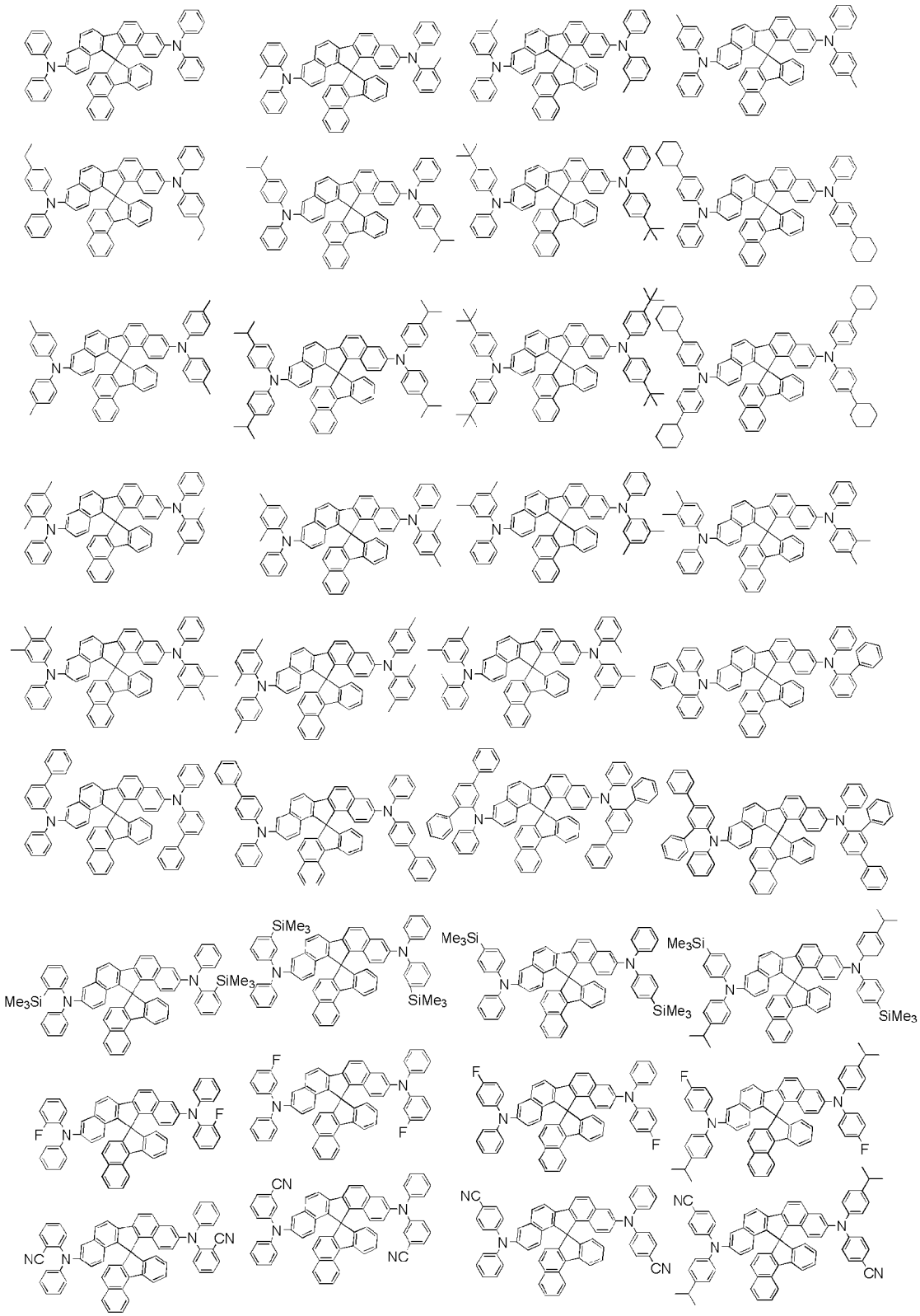
[0184]

[化151]



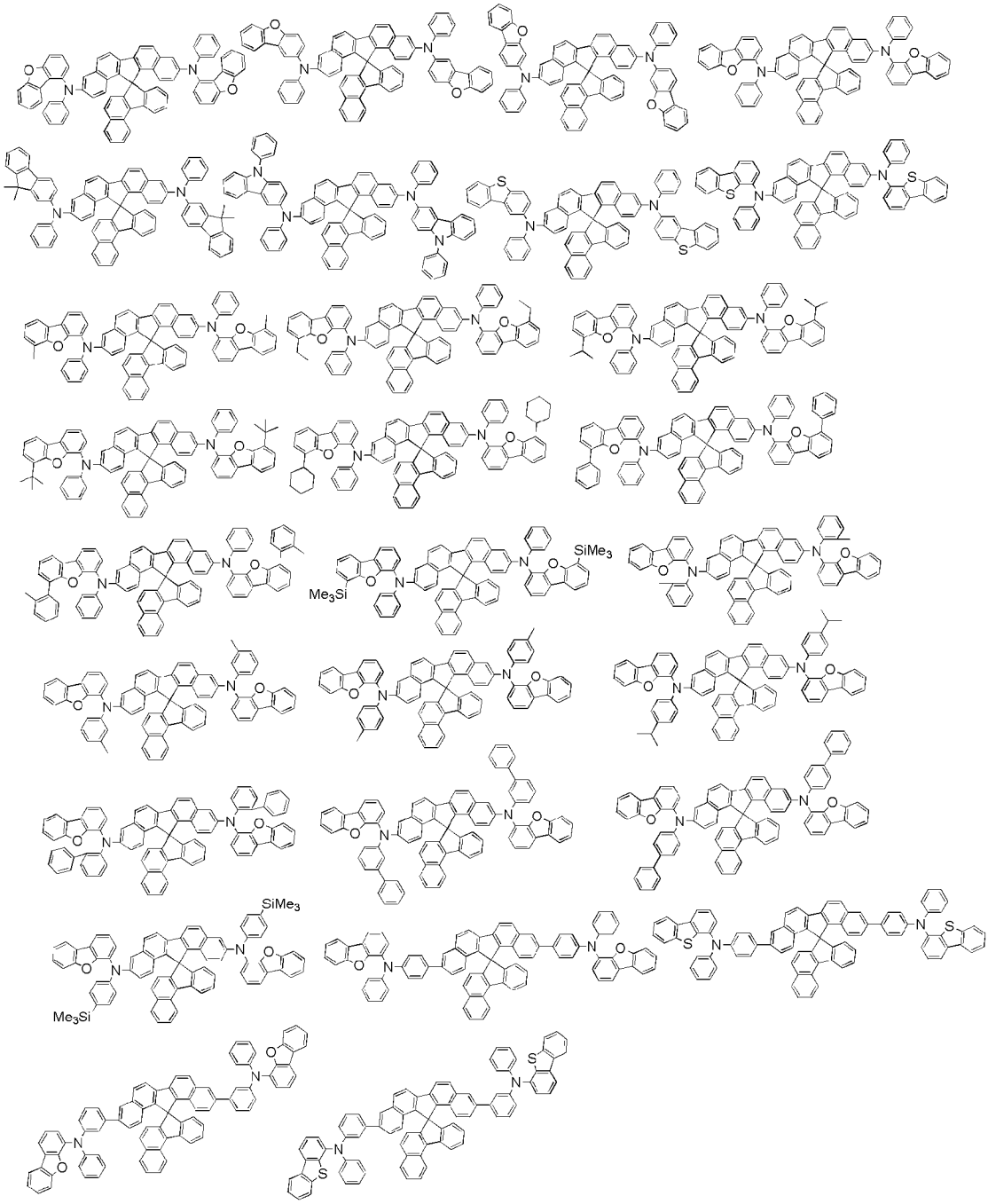
[0185]

[化152]



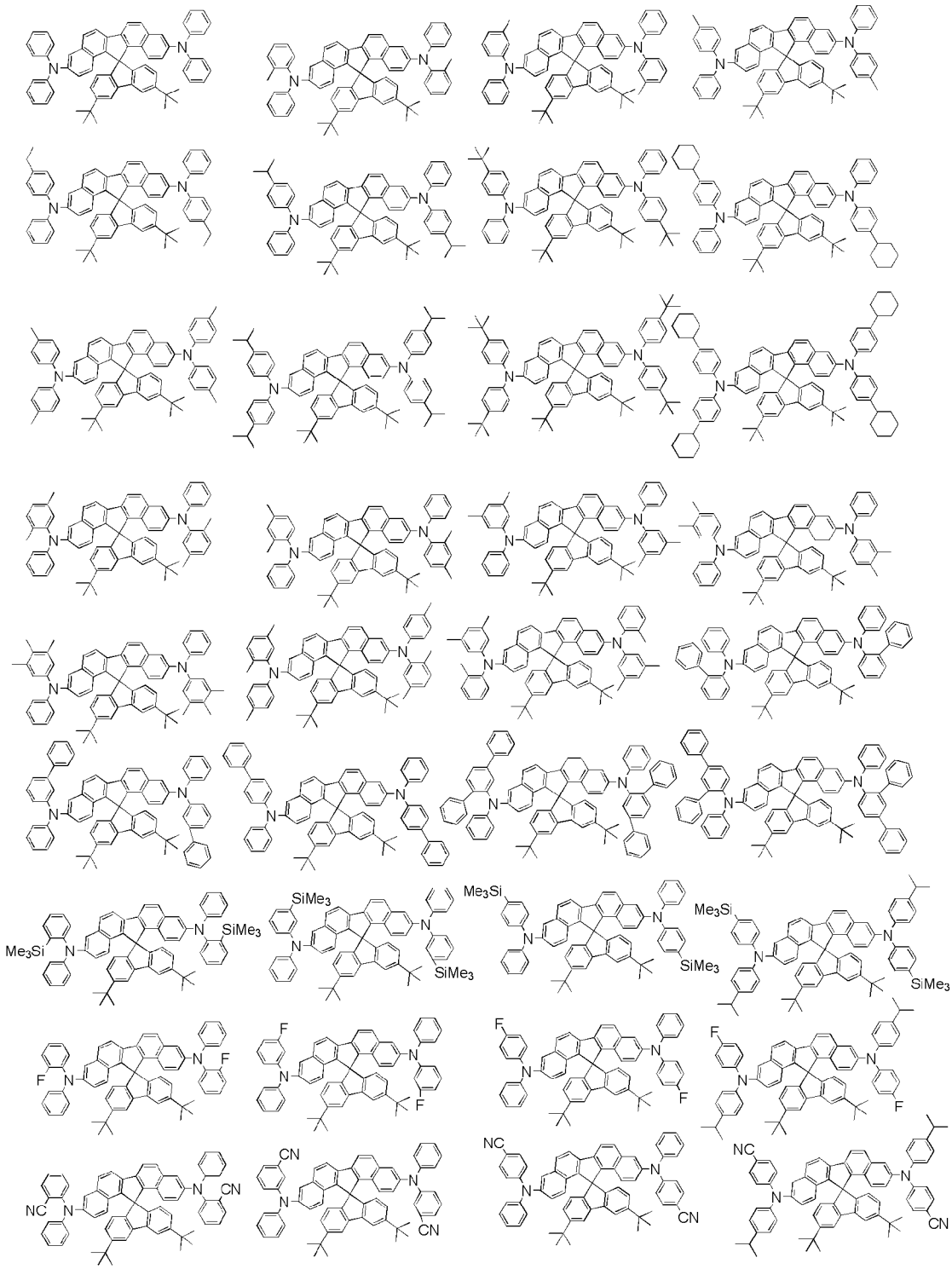
[0186]

[化153]



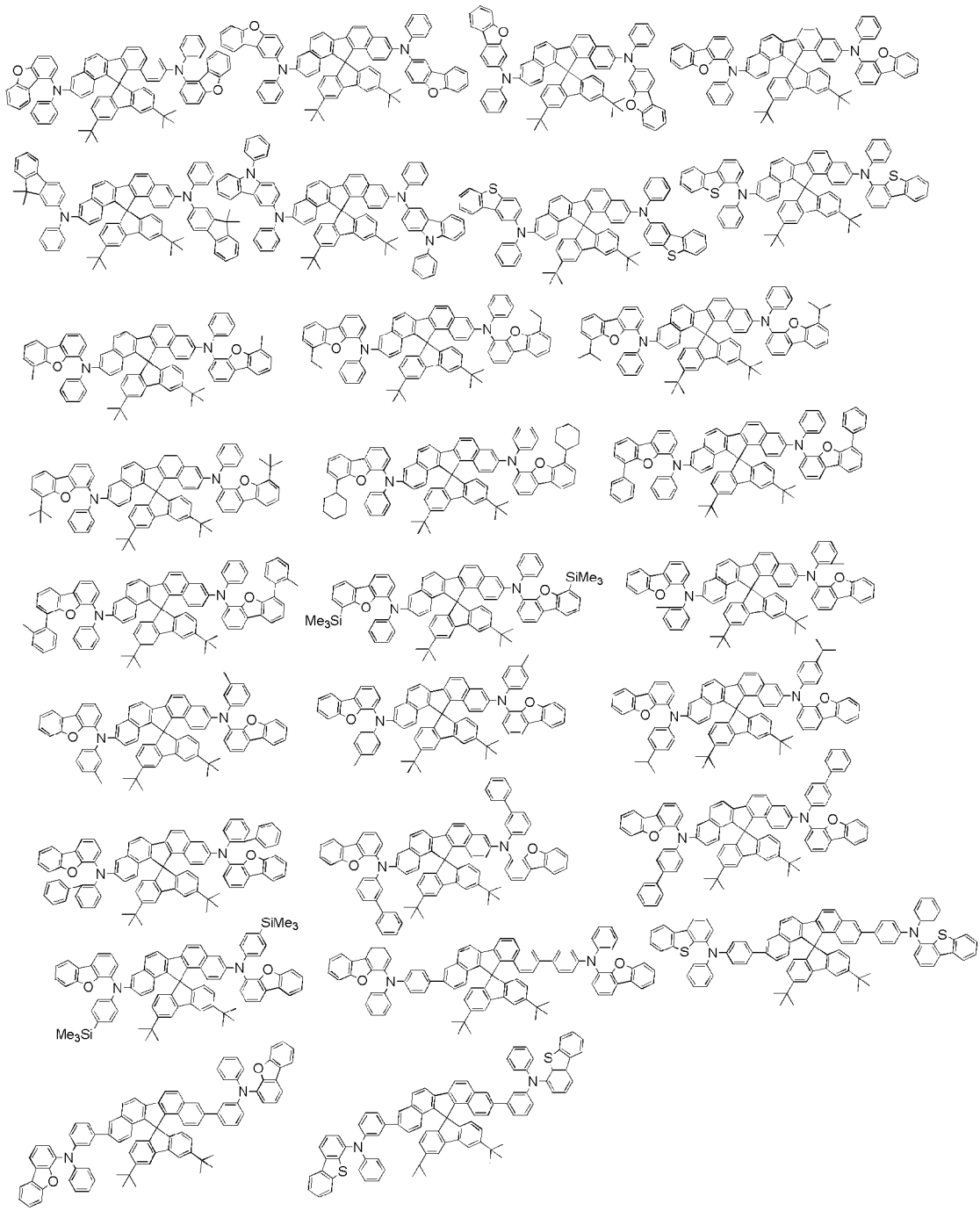
[0187]

[化154]



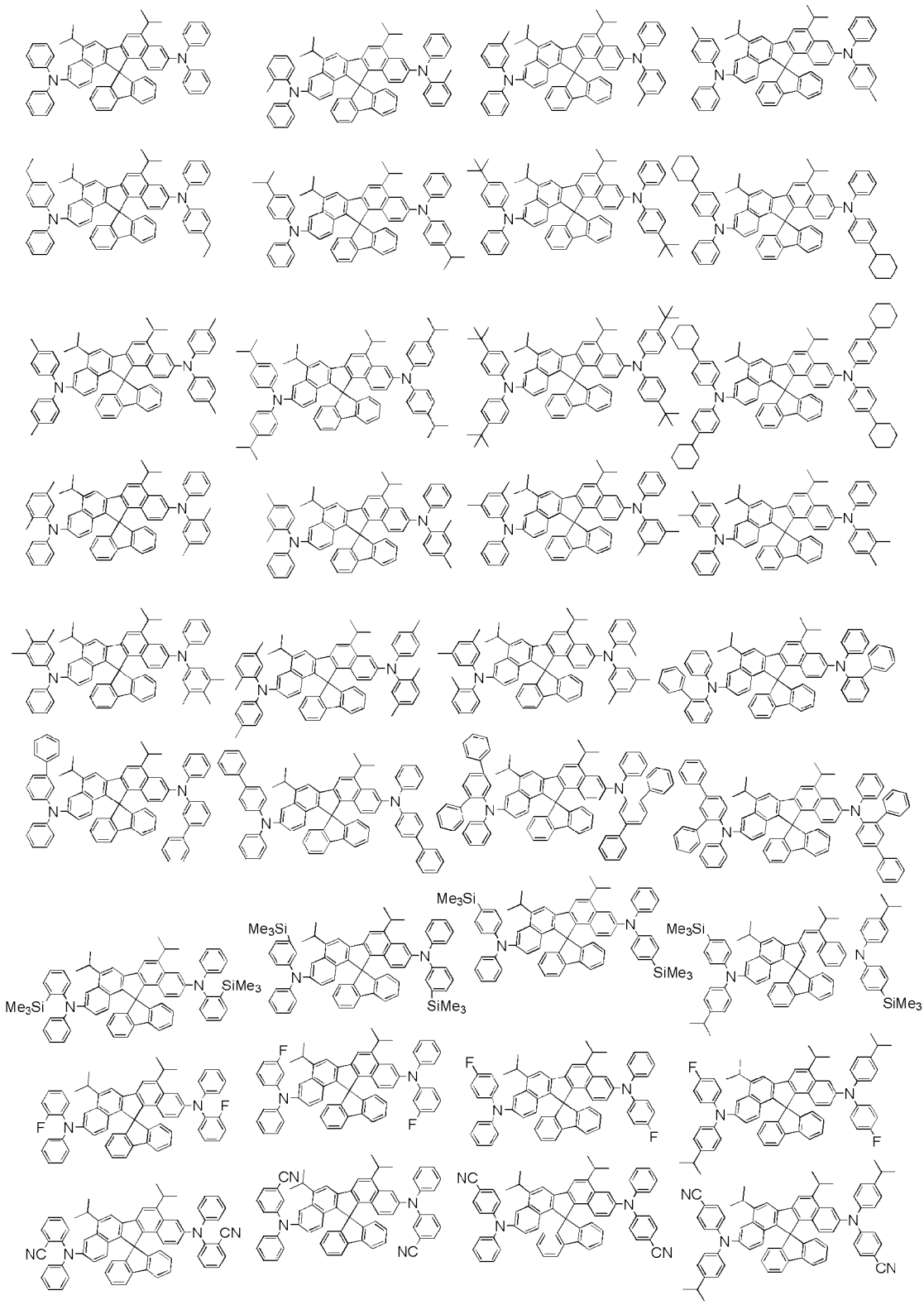
[0188]

[化155]



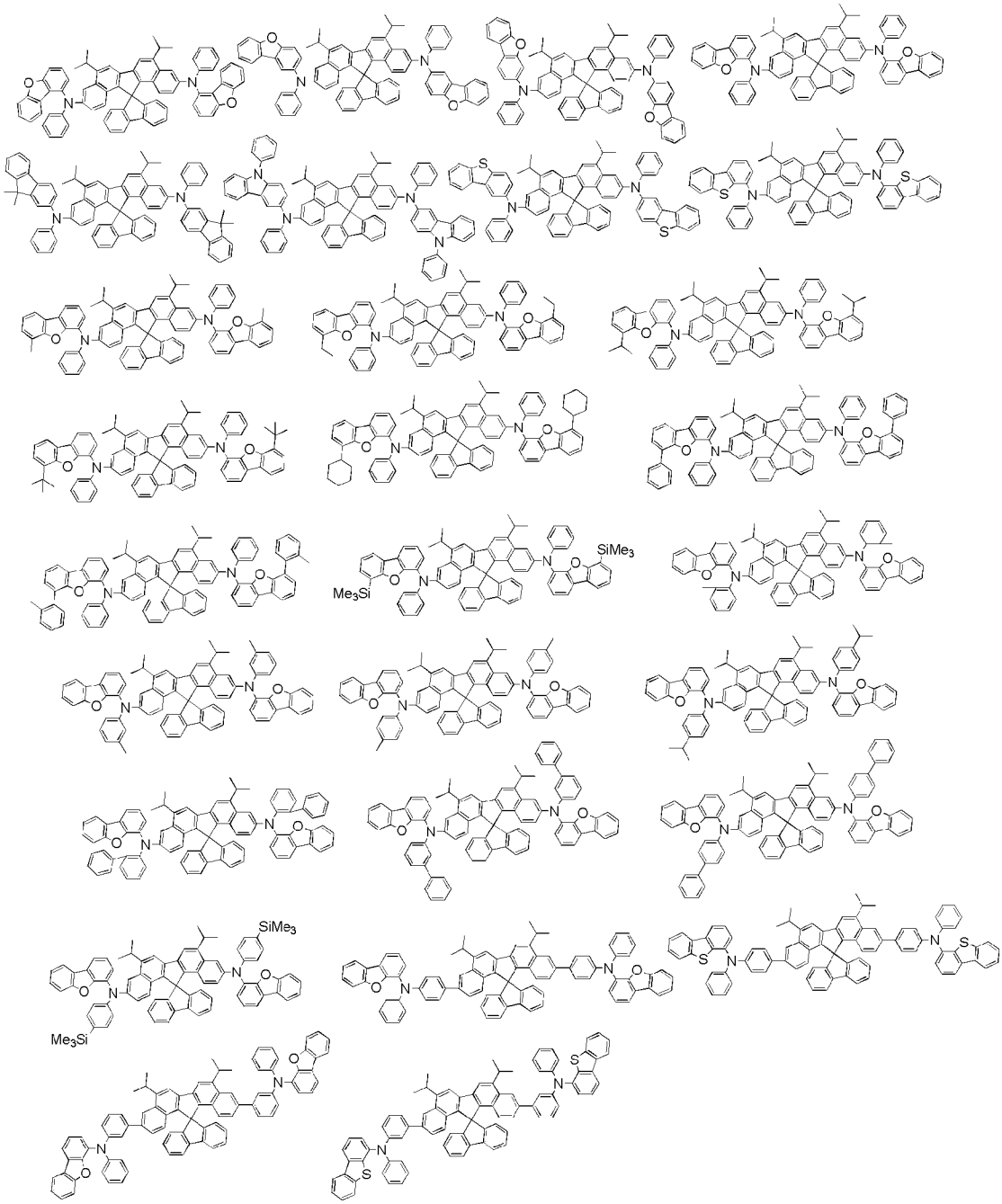
[0189]

[化156]



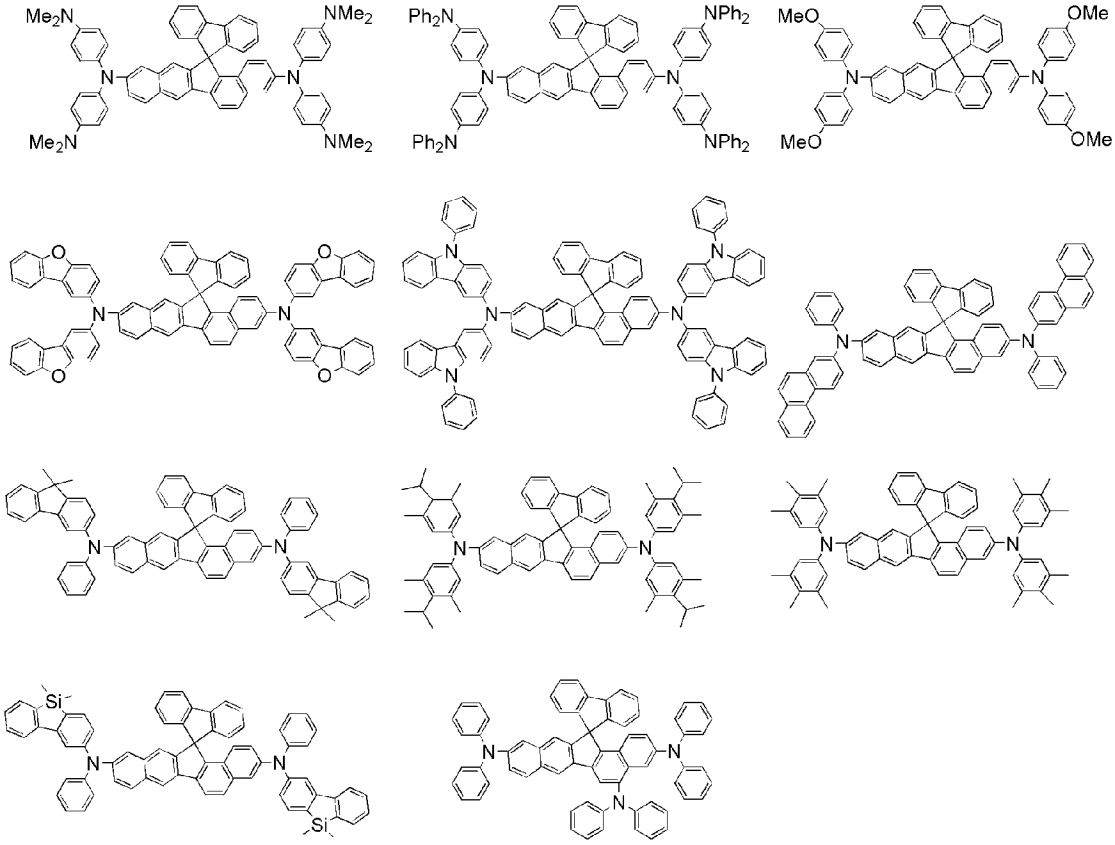
[0190]

[化157]

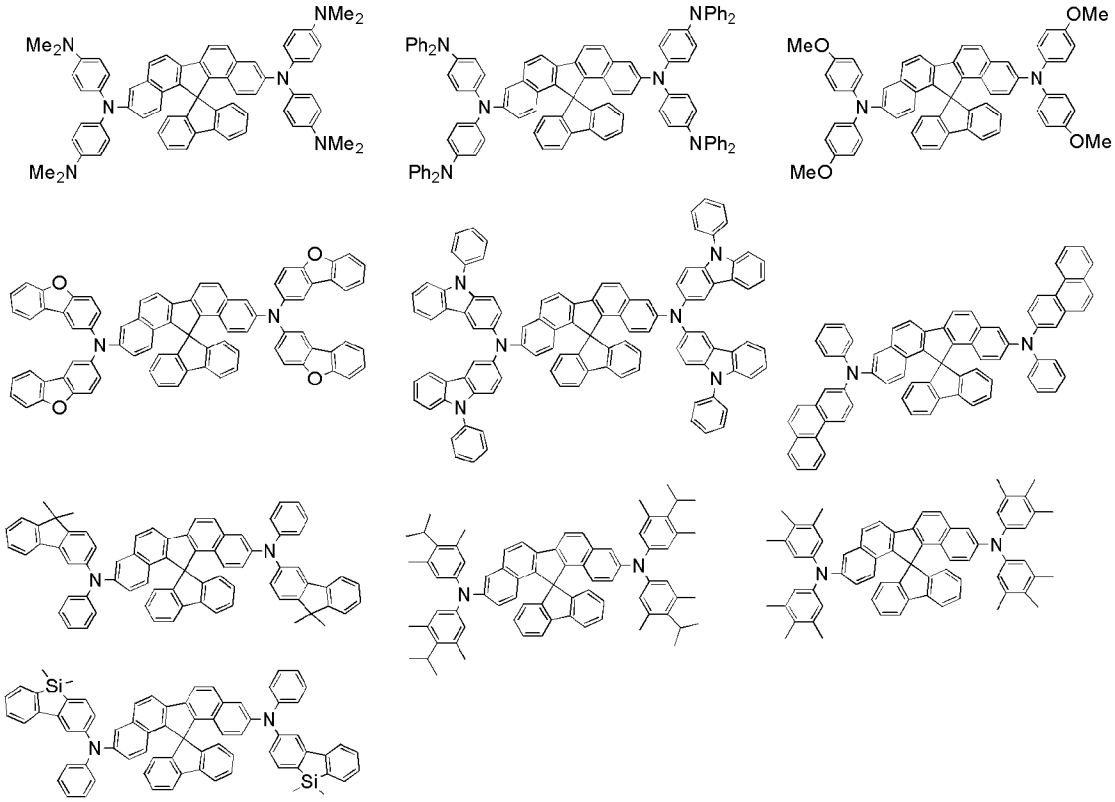


[0191]

[化158]



[0192] [化159]



[0193] 上記本発明の化合物は、有機ＥＬ素子用材料として有用である。

なお、本発明の化合物の製造方法に特に制限はなく、本明細書の実施例等を参照しながら、公知の合成反応を適宜利用及び変更して容易に製造することができる。

[0194] ［有機ＥＬ素子］

次に、本発明の有機ＥＬ素子について説明する。

本発明の有機ＥＬ素子は、陰極と陽極の間に発光層を含有する有機薄膜層を有し、この有機薄膜層のうちの少なくとも１層が前述した本発明の化合物を含む。本発明の有機ＥＬ素子には、低電圧駆動が可能なものが含まれ、且つ素子寿命が長いものも含まれる。また、該有機ＥＬ素子には、青色純度の高い発光が可能なものも含まれる。

前述の本発明の化合物が含まれる有機薄膜層の例としては、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、スペース層及び障壁層などが挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。

本発明の化合物の中でも、特に発光効率及び素子寿命の観点から、アミノ基を含有する化合物は、発光層に含まれることが好ましく、特にドーパント材料として発光層に含まれることが好ましい。また、ヘテロアリール基、特に含窒素ヘテロアリール基を含有する化合物は、特に、電子輸送層や、発光層と電子輸送層との間の障壁層に含まれることが好ましい。さらに、特に駆動電圧及び発光効率の観点から、アントラセン骨格を有する化合物は、発光層に含まれることが好ましく、ホスト材料、特に蛍光ホスト材料として発光層に含まれることが好ましい。

[0195] 本発明の有機ＥＬ素子は、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、一層以上の有機層を含み、そのうちの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ことができる最小単位をいう。

[0196] 従って、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。発光ユニットの代表的な層構成を以下に示す。

（ａ）正孔輸送層／発光層（／電子輸送層）

（ｂ）正孔輸送層／第一蛍光発光層／第二蛍光発光層（／電子輸送層）

（ｃ）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）

[0197] 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、上記積層発光層（ｄ）において、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。

[0198] 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

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と同様のものを選択することができる。

上記中間層は、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、第一発光ユニットに電子を、第二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。

[0199] 図１に、本発明の有機ＥＬ素子の一例の概略構成を示す。有機ＥＬ素子１は、基板２、陽極３、陰極４、及び該陽極３と陰極４との間に配置された発光ユニット（有機薄膜層）１０とを有する。発光ユニット１０は、蛍光ホスト材料と蛍光ドーパント材料を含む少なくとも１つの蛍光発光層を含む発光層５を有する。発光層５と陽極３との間に正孔注入層／正孔輸送層６など、発光層５と陰極４との間に電子注入層／電子輸送層７などを形成してもよい。また、発光層５の陽極３側に電子障壁層を、発光層５の陰極４側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層５に閉じ込めて、発光層５における励起子の生成確率を高めることができる。

[0200] なお、本明細書において、蛍光ドーパント材料と組み合わされたホスト材料を蛍光ホスト材料と称し、燐光ドーパント材料と組み合わされたホスト材料を燐光ホスト材料と称する。蛍光ホスト材料と燐光ホスト材料は、分子構造のみにより区分されるものではない。すなわち、蛍光ホスト材料とは、蛍光ドーパント材料を含有する蛍光発光層を構成する材料を意味し、燐光発光層を構成する材料として利用できないことを意味しているわけではない。燐光ホスト材料についても同様である。

[0201] （基板）

本発明の有機ＥＬ素子は、透光性基板上に作製する。透光性基板は有機ＥＬ素子を支持する基板であり、４００ｎｍ～７００ｎｍの可視領域の光の透過率が５０％以上で平滑な基板が好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板などが挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英などを原料として用いてなる

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

[0202] （陽極）

有機ＥＬ素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、４．５ｅＶ以上の仕事関数を有するものを用いることが効果的である。陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ＩＴＯ）、酸化錫（ＮＥＳＡ）、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅などが挙げられる。陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法などの方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を１０％より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω／□以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常１０ｎｍ～１μｍ、好ましくは１０ｎｍ～２００ｎｍの範囲で選択される。

[0203] （陰極）

陰極は電子注入層、電子輸送層又は発光層に電子を注入する役割を担うものであり、仕事関数の小さい材料により形成するのが好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、アルミニウム－リチウム合金、アルミニウム－スカンジウム－リチウム合金、マグネシウム－銀合金などが使用できる。陰極も、陽極と同様に、蒸着法やスパッタリング法などの方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、必要に応じて、陰極側から発光を取り出してもよい。

[0204] 以下、各層について、本発明の化合物以外に使用し得る材料について説明する。

（発光層）

発光機能を有する有機層であって、ドーピングシステムを採用する場合、ホスト材料とドーパント材料を含んでいる。このとき、ホスト材料は、主に

電子と正孔の再結合を促し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有し、ドーパント材料は、再結合で得られた励起子を効率的に発光させる機能を有する。

燐光素子の場合、ホスト材料は主にドーパント材料で生成された励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。

[0205] ここで、上記発光層は、例えば、電子輸送性のホスト材料と正孔輸送性のホスト材料を組み合わせるなどして、発光層内のキャリアバランスを調整するダブルホスト（ホスト・コホストともいう）材料を採用してもよい。

また、量子収率の高いドーパント材料を二種類以上入れることによって、それぞれのドーパント材料が発光するダブルドーパント材料を採用してもよい。具体的には、ホスト材料、赤色ドーパント材料及び緑色ドーパント材料を共蒸着することによって、発光層を共通化して黄色発光を実現する態様が挙げられる。

[0206] 上記発光層は、複数の発光層を積層した積層体とすることで、発光層界面に電子と正孔を蓄積させて、再結合領域を発光層界面に集中させて、量子効率を向上させることができる。

[0207] 発光層への正孔の注入し易さと電子の注入し易さは異なっていてもよく、また、発光層中での正孔と電子の移動度で表される正孔輸送能と電子輸送能が異なっていてもよい。

[0208] 発光層は、例えば蒸着法、スピンコート法、ＬＢ法などの公知の方法により形成することができる。また、樹脂などの結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かした溶液をスピンコート法などにより薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

[0209] 発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、ＬＢ法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

発光層の膜厚は、好ましくは５～５０ｎｍ、より好ましくは７～５０ｎｍ、さらに好ましくは１０～５０ｎｍである。５ｎｍ以上であると発光層の形成が容易であり、５０ｎｍ以下であると駆動電圧の上昇が避けられる。

[0210] （ドーパント材料）

発光層を形成する蛍光ドーパント材料（蛍光発光材料）は一重項励状態から発光することのできる化合物であり、一重項励状態から発光する限り特に限定されないが、フルオランテン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、ピレン誘導体、アリールアセチレン誘導体、フルオレン誘導体、ホウ素錯体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アントラセン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリールアミン誘導体などが挙げられ、好ましくは、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリールアミン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、ピレン誘導体、ホウ素錯体、より好ましくはアントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリールアミン誘導体、ホウ素錯体化合物である。

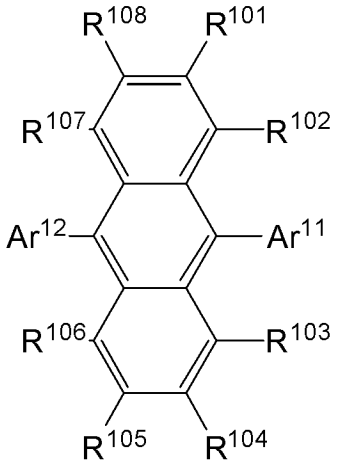
[0211] 蛍光ドーパント材料の発光層における含有量は特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、０．１～７０質量％が好ましく、１～３０質量％がより好ましく、１～２０質量％がさらに好ましく、１～１０質量％がさらにより好ましい。蛍光ドーパント材料の含有量が０．１質量％以上であると十分な発光が得られ、７０質量％以下であると濃度消光を避けることができる。

[0212] （ホスト材料）

発光層のホスト材料としては、アントラセン誘導体や多環芳香族骨格含有化合物などが挙げられ、好ましくはアントラセン誘導体である。

青色発光層のホスト材料として、例えば、下記式（５）で表されるアントラセン誘導体を使用できる。

[化160]



(5)

[0213] 式（５）において、Ａｒ^{11}及びＡｒ^{12}は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０の単環基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数８～５０の縮合環基である。Ｒ^{101}～Ｒ^{108}は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の単環基、置換もしくは無置換の環形成原子数８～５０（好ましくは８～３０、より好ましくは８～２０、さらに好ましくは８～１４）の縮合環基、前記単環基と前記縮合環基との組合せから構成される基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０（好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６）のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数３～５０（好ましくは３～２０、より好ましくは３～１０、さらに好ましくは５～８）のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０（好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６）のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数７～５０（好ましくは７～２０、より好ましくは７～１４）のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～２０、より好ましくは６～１２）のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のシリル基、ハロゲン原子、シアノ基から選ばれる基であり、Ｒ^{101}～Ｒ^{108}のすべてが水素原子であるか、Ｒ^{101}とＲ^{108}の一方、Ｒ^{104}とＲ^{105}の一方、Ｒ^{101}とＲ^{105}の双方、Ｒ^{108}とＲ^{104}の双方が、環形成原子数５～

５０の単環基（好ましくは、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基）、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基（好ましくは、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）、及び置換シリル基（好ましくは、トリメチルシリル基）から選ばれる基であるのが好ましく、R^{101}～R^{108}のすべてが水素原子であるのがより好ましい。

[0214] 式（５）における単環基とは、縮合環構造を持たない環構造のみで構成される基である。

環形成原子数５～５０の単環基の具体例としては、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、クォーターフェニリル基などの芳香族基と、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、フリル基、チエニル基などの複素環基が好ましい。

上記単環基としては、中でも、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基が好ましい。

[0215] 式（５）における、縮合環基とは、２環以上の環構造が縮環した基である。

前記環形成原子数８～５０の縮合環基として具体的には、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、クリセニル基、ベンゾアントリル基、ベンゾフェナントリル基、トリフェニレニル基、ベンゾクリセニル基、インデニル基、フルオレニル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基などの縮合芳香族環基や、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、キノリル基、フェナントロリニル基などの縮合複素環基が好ましい。

上記縮合環基としては、中でも、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾアントリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、カルバゾリル

基が好ましい。

尚、Ａｒ^{11}及びＡｒ^{12}の置換基は、上述の単環基又は縮合環基が好ましい。

[0216] 式（５）における、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アラルキル基のアルキル部位とアリール部位、アリールオキシ基、置換シリル基（アルキルシリル基、アリールシリル基）の具体例は、上述の式（１）におけるＲ^{1}及びＲ^{2}に関して挙げたものと同様であり、ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

[0217] 式（５）において、Ｒ^{101}～Ｒ^{108}のすべてが水素原子であるか、Ｒ^{101}とＲ^{108}の一方、Ｒ^{104}とＲ^{105}の一方、Ｒ^{101}とＲ^{105}の双方、又は、Ｒ^{108}とＲ^{104}の双方は、環形成原子数５～５０の単環基（好ましくは、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基）、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基（好ましくは、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）、及び置換シリル基（好ましくは、トリメチルシリル基）から選ばれる基であるのが好ましく、Ｒ^{101}～Ｒ^{108}のすべてが水素原子であるのがより好ましい。

[0218] 式（５）で表されるアントラセン誘導体は、下記アントラセン誘導体（Ａ）、（Ｂ）、及び（Ｃ）のいずれかであることが好ましく、適用する有機ＥＬ素子の構成や求める特性により選択される。

[0219] アントラセン誘導体（Ａ）

当該アントラセン誘導体は、式（５）におけるＡｒ^{11}及びＡｒ^{12}が、それぞれ独立に、置換若しくは無置換の環形成原子数８～５０の縮合環基となっている。当該アントラセン誘導体としては、Ａｒ^{11}及びＡｒ^{12}は同一でも異なっていてもよい。

[0220] 式（５）におけるＡｒ^{11}及びＡｒ^{12}が異なる（アントラセン環が結合する位置の違いを含む）置換若しくは無置換の縮合環基であるアントラセン誘導体が特に好ましく、縮合環の好ましい具体例は上述した通りである。中でも

ナフチル基、フェナントリル基、ベンズアントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基が好ましい。

[0221] アントラセン誘導体（Ｂ）

当該アントラセン誘導体は、式（５）におけるＡｒ^{11}及びＡｒ^{12}の一方が置換若しくは無置換の環形成原子数５～５０の単環基であり、他方が置換若しくは無置換の環形成原子数８～５０の縮合環基となっている。

好ましい形態として、Ａｒ^{12}がナフチル基、フェナントリル基、ベンゾアントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基であり、Ａｒ^{11}が無置換フェニル基、又は、単環基又は縮合環基（例えば、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基）で置換されたフェニル基である。

好ましい単環基、縮合環基の具体的な基は上述した通りである。

別の好ましい形態として、Ａｒ^{12}が置換若しくは無置換の環形成原子数８～５０の縮合環基であり、Ａｒ^{11}が無置換のフェニル基である。この場合、縮合環基として、フェナントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾアントリル基が特に好ましい。

[0222] アントラセン誘導体（Ｃ）

当該アントラセン誘導体は、式（５）におけるＡｒ^{11}及びＡｒ^{12}が、それぞれ独立に、置換若しくは無置換の環形成原子数５～５０の単環基となっている。

好ましい形態として、Ａｒ^{11}、Ａｒ^{12}ともに置換若しくは無置換のフェニル基である。

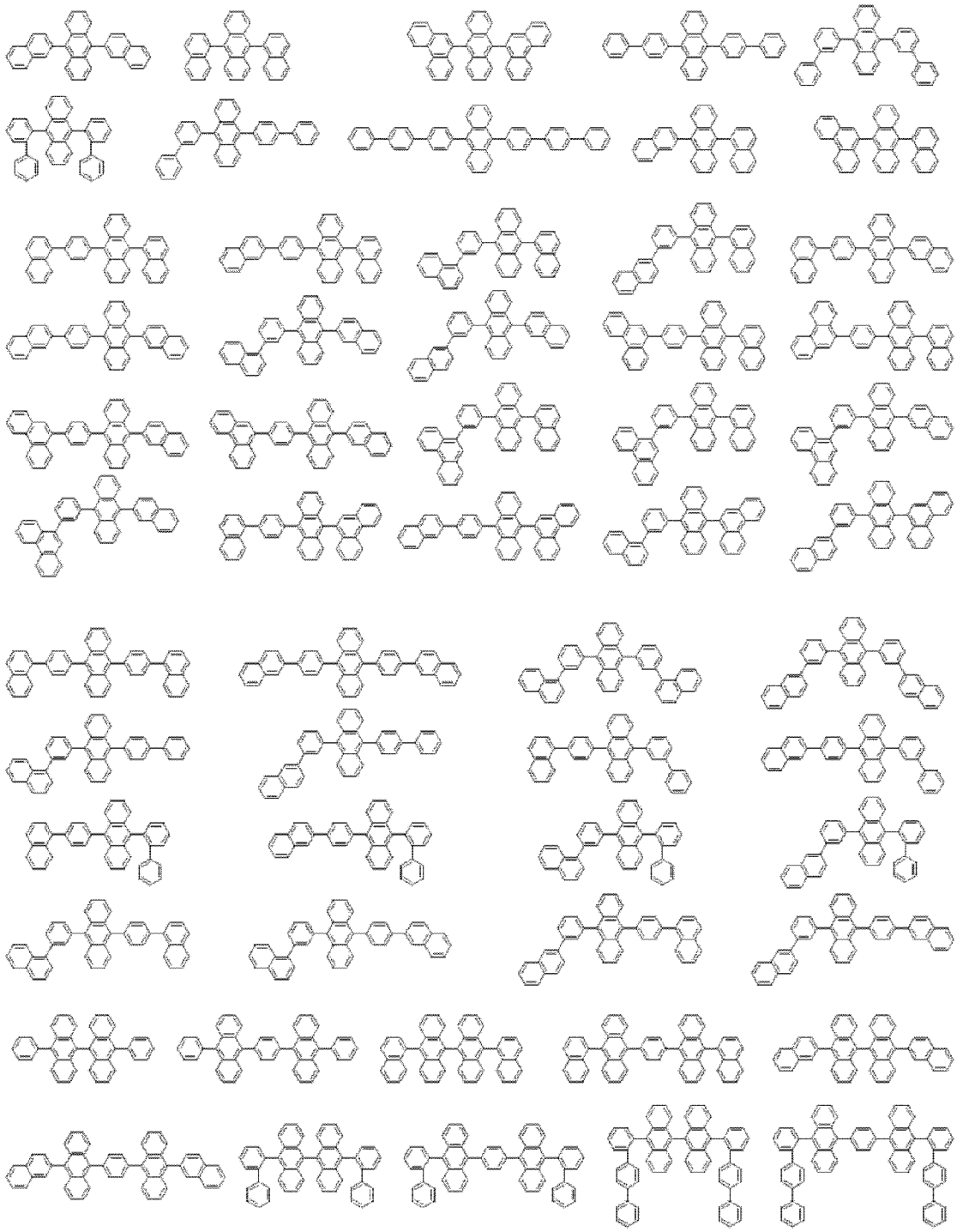
さらに好ましい形態として、Ａｒ^{11}が無置換のフェニル基であり、Ａｒ^{12}が単環基又は縮合環基で置換されたフェニル基である場合と、Ａｒ^{11}、Ａｒ^{12}がそれぞれ独立に単環基又は縮合環基で置換されたフェニル基である場合がある。

前記置換基としての好ましい単環基、縮合環基の具体例は上述した通りである。さらに好ましくは、置換基としての単環基としてフェニル基、ビフェ

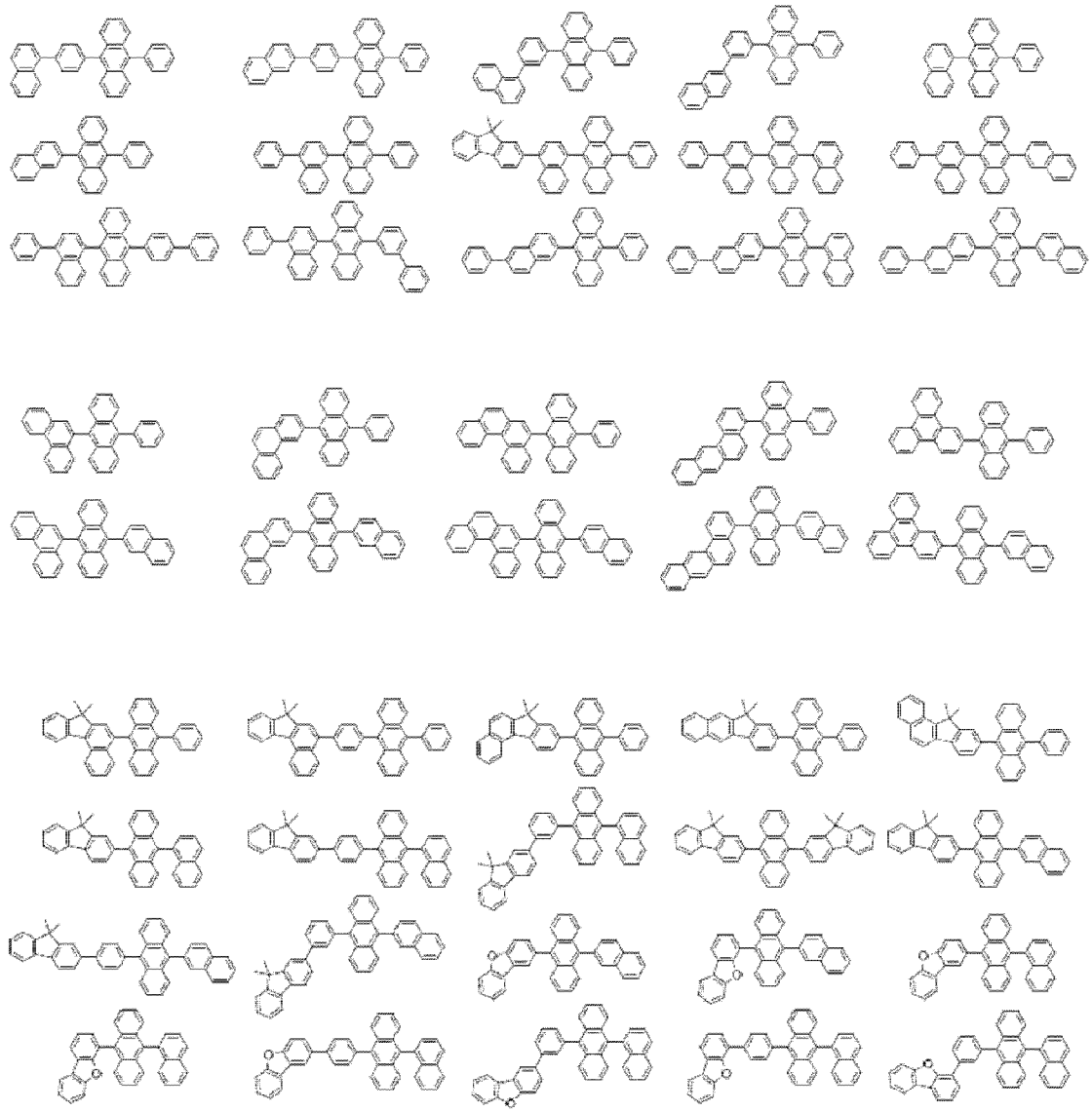
ニル基、縮合環基として、ナフチル基、フェナントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾアントリル基である。

[0223] 式（５）で表されるアントラセン誘導体の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

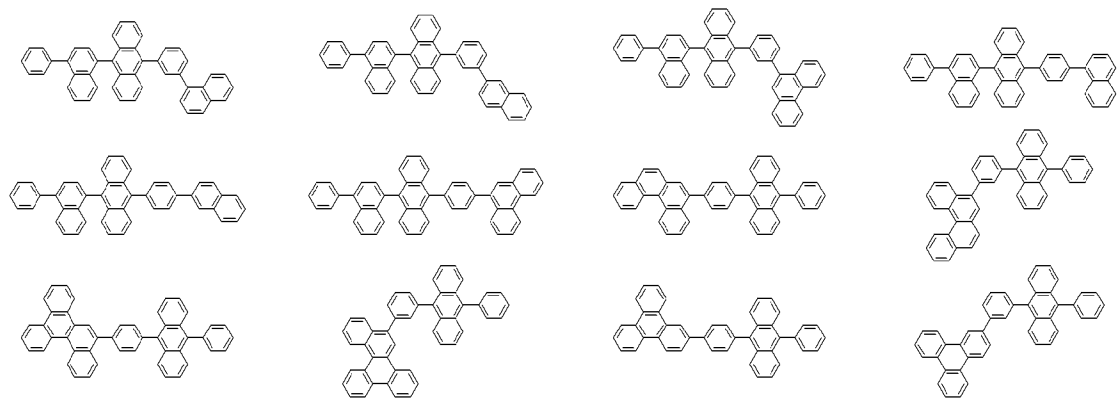
[化161]

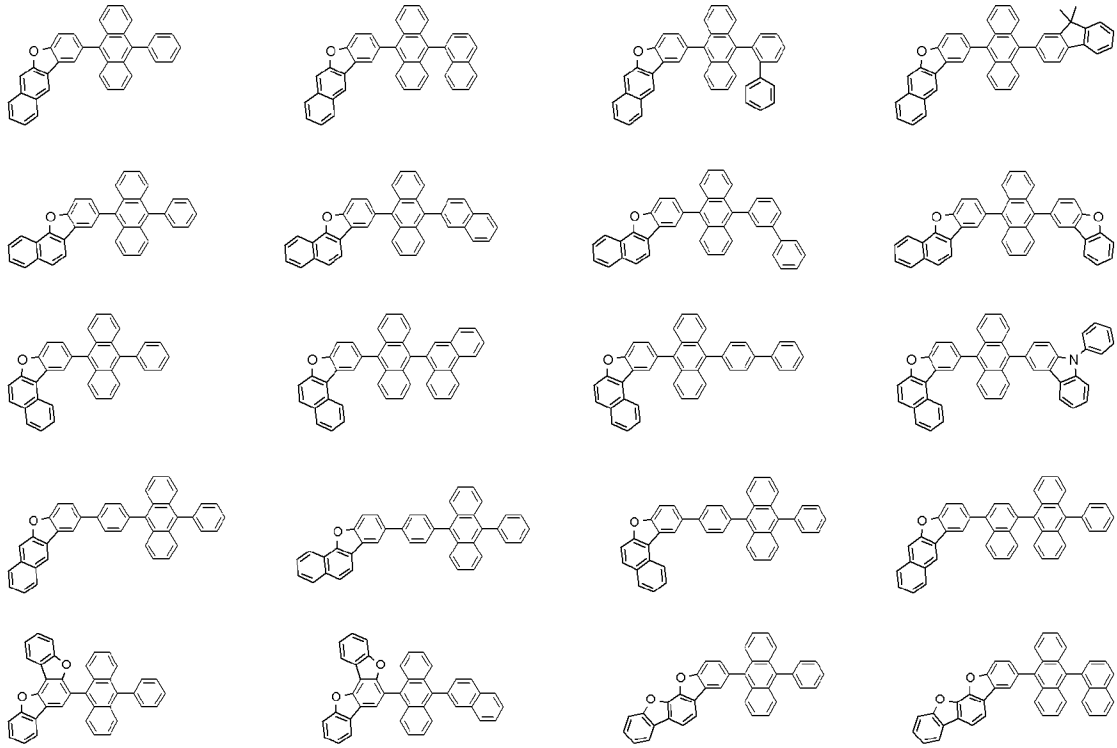


[0224] [化162]



[0225] [化163]





[0226]（電子供与性ドーパント材料）

本発明の有機ＥＬ素子は、陰極と発光ユニットとの界面領域に電子供与性ドーパント材料を有することも好ましい。このような構成によれば、有機ＥＬ素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。ここで、電子供与性ドーパント材料とは、仕事関数３．８ｅＶ以下の金属を含有するものをいい、その具体例としては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物などから選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

[0227] アルカリ金属としては、Ｎａ（仕事関数：２．３６ｅＶ）、Ｋ（仕事関数：２．２８ｅＶ）、Ｒｂ（仕事関数：２．１６ｅＶ）、Ｃｓ（仕事関数：１．９５ｅＶ）などが挙げられ、仕事関数が２．９ｅＶ以下のものが特に好ましい。アルカリ土類金属としては、Ｃａ（仕事関数：２．９ｅＶ）、Ｓｒ（仕事関数：２．０ｅＶ～２．５ｅＶ）、Ｂａ（仕事関数：２．５２ｅＶ）などが挙げられ、仕事関数が２．９ｅＶ以下のものが特に好ましい。希土類金属としては、Ｓｃ、Ｙ、Ｃｅ、Ｔｂ、Ｙｂなどが挙げられ、仕事関数が２．

９ｅＶ以下のものが特に好ましい。

[0228] アルカリ金属化合物としては、Li_2O、Cs_2O、K_2Oなどのアルカリ酸化物、ＬｉＦ、ＮａＦ、ＣｓＦ、ＫＦなどのアルカリハロゲン化物などが挙げられ、ＬｉＦ、Li_2O、ＮａＦが好ましい。アルカリ土類金属化合物としては、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＣａＯ及びこれらを混合した$Ba_xSr_{1-x}O$（０＜ｘ＜１）、$Ba_xCa_{1-x}O$（０＜ｘ＜１）などが挙げられ、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＣａＯが好ましい。希土類金属化合物としては、YbF_3、ScF_3、ScO_3、Y_2O_3、Ce_2O_3、GdF_3、TbF_3などが挙げられ、YbF_3、ScF_3、TbF_3が好ましい。

[0229] アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、β－ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが挙げられる。

[0230] 電子供与性ドーパント材料の添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパント材料を蒸着しながら、界面領域を形成する有機化合物（発光材料や電子注入材料）を同時に蒸着させ、有機化合物に電子供与性ドーパント材料を分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で有機化合物：電子供与性ドーパント材料＝１００：１～１：１００である。

[0231] 電子供与性ドーパント材料を層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパント材料を単独

で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み０．１ｎｍ～１５ｎｍで形成する。電子供与性ドーパント材料を島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパント材料を単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、島の厚み０．０５ｎｍ～１ｎｍで形成する。

本発明の有機ＥＬ素子における、主成分と電子供与性ドーパント材料の割合は、モル比で主成分：電子供与性ドーパント材料＝５：１～１：５であると好ましい。

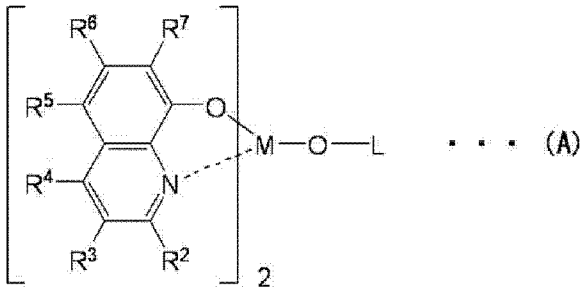
[0232] （電子輸送層）

発光層と陰極との間に形成される有機層であって、電子を陰極から発光層へ輸送する機能を有する。電子輸送層が複数層で構成される場合、陰極に近い有機層を電子注入層と定義することがある。電子注入層は、陰極から電子を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

[0233] 電子輸送層に用いる電子輸送性材料としては、分子内にヘテロ原子を１個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。また、含窒素環誘導体としては、含窒素６員環もしくは５員環骨格を有する芳香族環、又は含窒素６員環もしくは５員環骨格を有する縮合芳香族環化合物が好ましい。

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

[0234] [化164]



・・・（A）

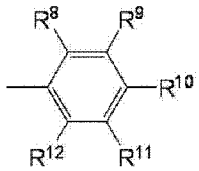
[0235] 式（Ａ）におけるＲ^{2}～Ｒ^{7}は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、炭素数１～４０（好ましくは１～２０、より好まし

くは１～１０、さらに好ましくは１～６）の炭化水素基、炭素数１～４０（好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６）のアルコキシ基、環形成炭素数６～４０（好ましくは６～２０、より好ましくは６～１２）のアリールオキシ基、炭素数２～４０（好ましくは２～２０、より好ましくは２～１０、さらに好ましくは２～５）のアルコキシカルボニル基又は環形成原子数９～４０（好ましくは９～３０、より好ましくは９～２０）の芳香族複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

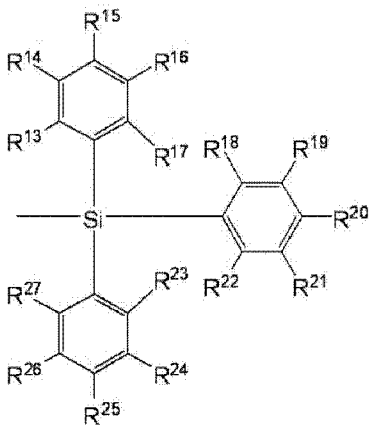
[0236] Ｍは、アルミニウム（Ａｌ）、ガリウム（Ｇａ）又はインジウム（Ｉｎ）であり、Ｉｎであると好ましい。

[0237] Ｌは、下記式（Ａ’）又は（Ａ”）で表される基である。

[0238] [化165]



・・・ (A')



・・・ (A'')

[0239] 前記式（Ａ’）中、R^{8}～R^{12}は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数１～４０（好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６）の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、前記式（Ａ”）中、R^{13}～R^{27}は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数１～４０（好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０、さらに好ましくは１～６）の炭化

水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

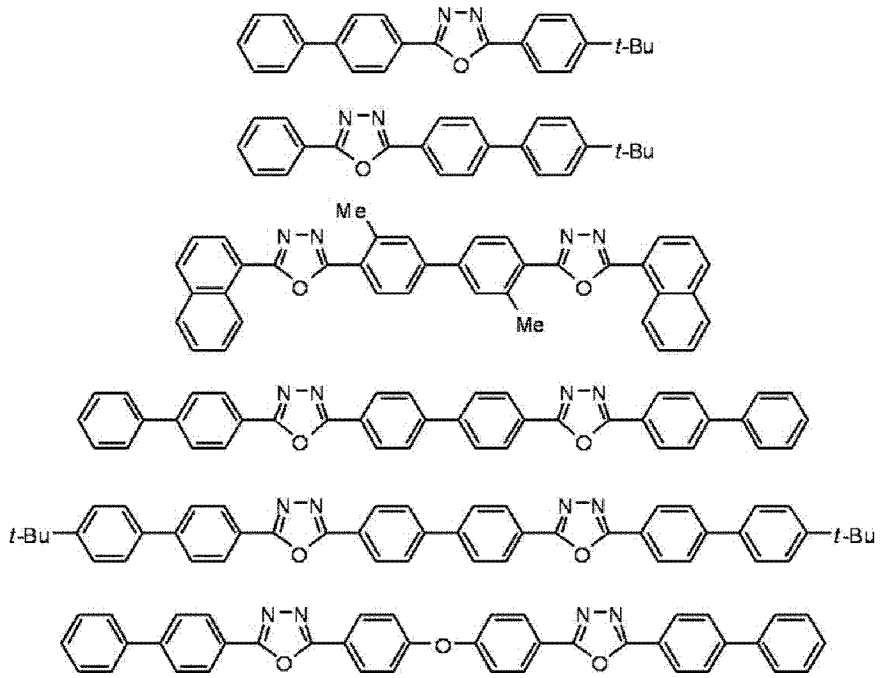
前記式（A’）及び式（A”）のR[8]～R[12]及びR[13]～R[27]が示す炭素数１～４０の炭化水素基としては、前記式（A）中のR[2]～R[7]の具体例と同様のものが挙げられる。

また、R[8]～R[12]及びR[13]～R[27]の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の２価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン－２，２’－ジイル基、ジフェニルエタン－３，３’－ジイル基、ジフェニルプロパン－４，４’－ジイル基等が挙げられる。

[0240] 電子輸送層に用いられる電子伝達性化合物としては、８－ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環誘導体が好適である。

[0241] これらの電子伝達性化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

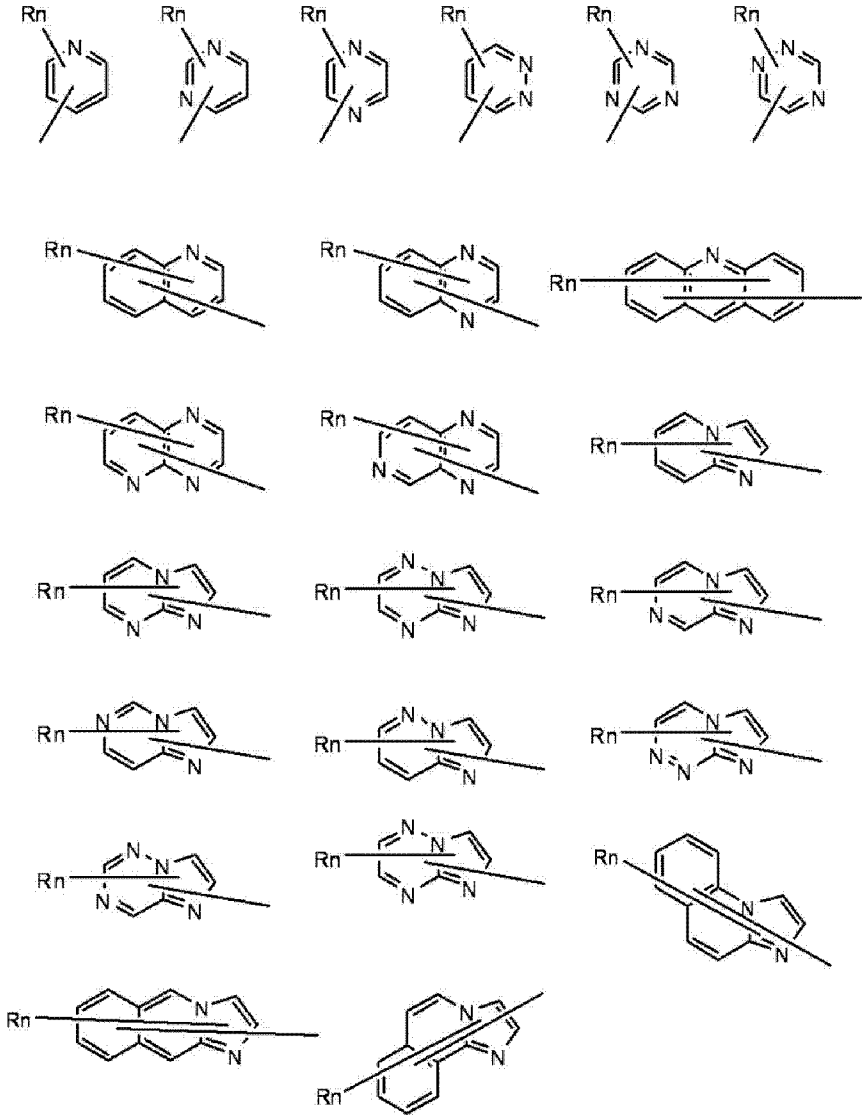
[0242] [化166]



[0243] 電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体としては、金属錯体でない

含窒素化合物が挙げられる。例えば、以下の式で表される含窒素複素環基を有する化合物が好ましく挙げられる。

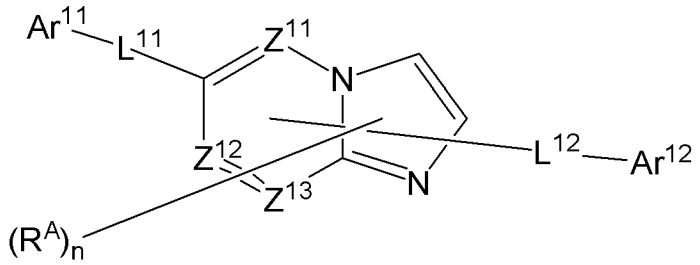
[0244] [化167]



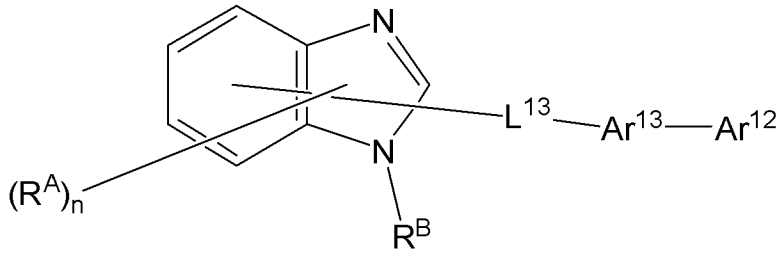
（上記式中、前記各式中、Ｒは、炭素数６～４０の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、炭素数３～４０の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、炭素数１～２０のアルキル基、または炭素数１～２０のアルコキシ基であり、ｎは０～５の整数であり、ｎが２以上の整数であるとき、複数のＲは互いに同一又は異なっていてもよい）

[0245] 本発明の有機ＥＬ素子の電子輸送層は、下記式（６０）～（６２）で表される含窒素複素環誘導体を少なくとも１種含むことが特に好ましい。

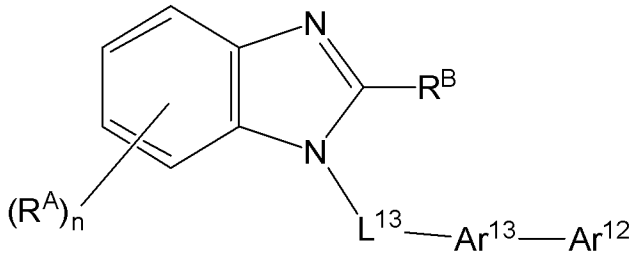
[化168]



(60)



(61)



(62)

[0246] （式中、Ｚ^{11}、Ｚ^{12}及びＺ^{13}は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

Ｒ^{A}及びＲ^{B}は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のハロアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のアルコキシ基である。

ｎは、０～５の整数であり、ｎが２以上の整数であるとき、複数のＲ^{A}は互いに同一でも異なっていてもよい。また、隣接する２つのＲ^{A}同士が互いに結

合して、置換もしくは無置換の炭化水素環を形成していてもよい。

Ａｒ^{11}は、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の複素環基である。

Ａｒ^{12}は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０（好ましくは１～１０、より好ましくは１～６）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（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の複素環基である。

但し、Ａｒ^{11}、Ａｒ^{12}のいずれか一方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数１０～５０（好ましくは１０～３０、より好ましくは１０～２０、さらに好ましくは１０～１４）の縮合芳香族炭化水素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数９～５０（好ましくは９～３０、より好ましくは９～２０、さらに好ましくは９～１４）の縮合芳香族複素環基である。

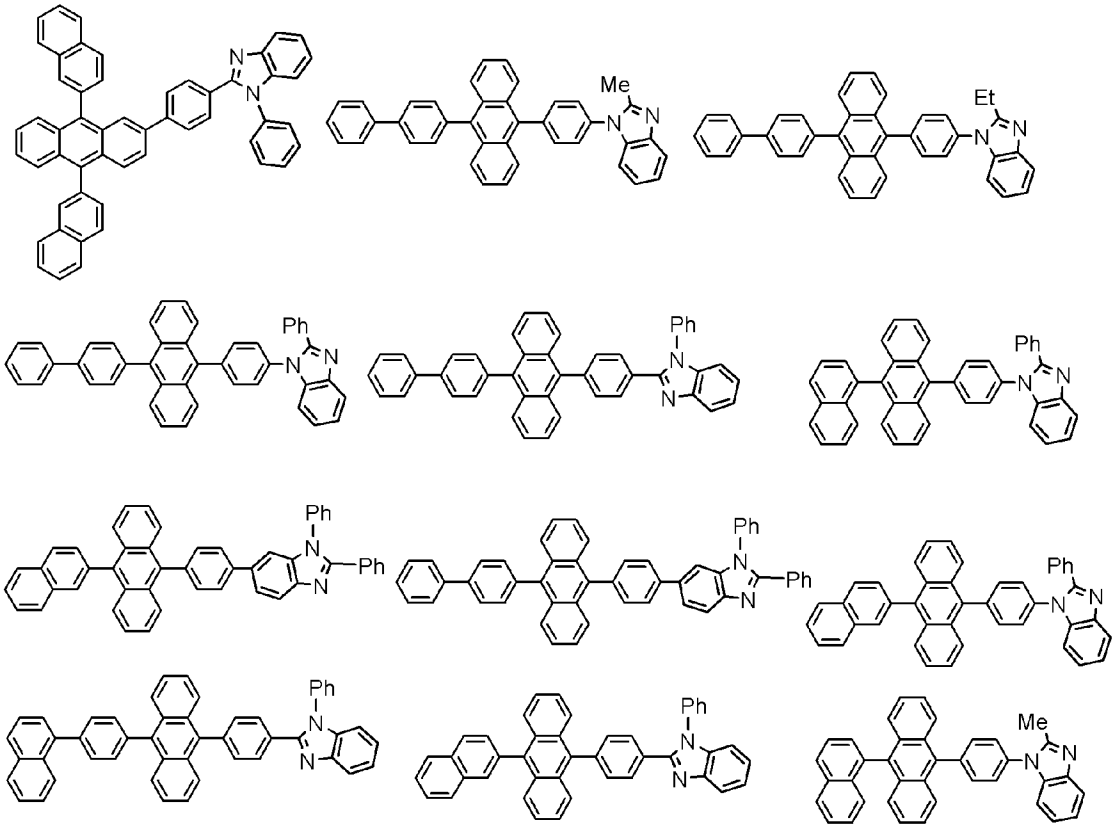
Ａｒ^{13}は、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）のヘテロアリーレン基である。

Ｌ^{11}、Ｌ^{12}及びＬ^{13}は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）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９～５０（好ましくは９～３０、より好ましくは９～２０、さらに

好ましくは９～１４）の２価の縮合芳香族複素環基である。）

[0247] 上記式（６０）～（６２）で表される含窒素複素環誘導体の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

[化169]



[0248] 本発明の有機ＥＬ素子の電子輸送層は第１電子輸送層（陽極側）と第２電子輸送層（陰極側）の２層構造にしてもよい。

電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは１ｎｍ～１００ｎｍである。有機ＥＬ素子の電子輸送層は第１電子輸送層（陽極側）と第２電子輸送層（陰極側）の２層構造である場合、第１電子輸送層の膜厚は、好ましくは５～６０ｎｍ、より好ましくは１０～４０ｎｍであり、第２電子輸送層の膜厚は、好ましくは１～２０ｎｍ、より好ましくは１～１０ｎｍである。

[0249] また、電子輸送層に隣接して設けることができる電子注入層の構成成分として、含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流

のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

[0250] このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニドなどで構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、Li_2O、K_2O、Na_2S、Na_2Se及びNa_2Oが挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、ＣａＯ、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＢｅＯ、ＢａＳ及びＣａＳｅが挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、ＬｉＦ、ＮａＦ、ＫＦ、ＬｉＣｌ、ＫＣｌ及びＮａＣｌなどが挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF_2、BaF_2、SrF_2、MgF_2及びBeF_2などのフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

[0251] また、半導体としては、Ｂａ、Ｃａ、Ｓｒ、Ｙｂ、Ａｌ、Ｇａ、Ｉｎ、Ｌｉ、Ｎａ、Ｃｄ、Ｍｇ、Ｓｉ、Ｔａ、Ｓｂ及びＺｎの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物などの一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポットなどの画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物などが挙げられる。

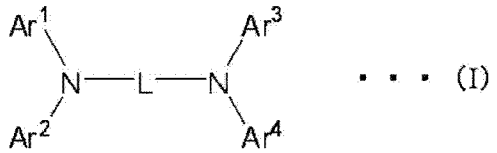
[0252] このような絶縁体又は半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、０．１ｎｍ～１５ｎｍ程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の電子供与性ドーパント材料を含有していても好ましい。

[0253] （正孔輸送層）

発光層と陽極との間に形成される有機層であって、正孔を陽極から発光層へ輸送する機能を有する。正孔輸送層が複数層で構成される場合、陽極に近い有機層を正孔注入層と定義することがある。正孔注入層は、陽極から正孔を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

[0254] 正孔輸送層を形成し得る材料としては、芳香族アミン化合物、例えば、下記式（Ｉ）で表される芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

[化170]



[0255] 前記式（Ｉ）において、Ar^1～Ar^4は置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）の芳香族炭化水素基もしくは置換基を有していてもよい環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）の縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の芳香族複素環基もしくは置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の縮合芳香族複素環基、又は、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基が結合した基を表す。

Ar^1とAr^2、Ar^3とAr^4で環を形成してもよい。

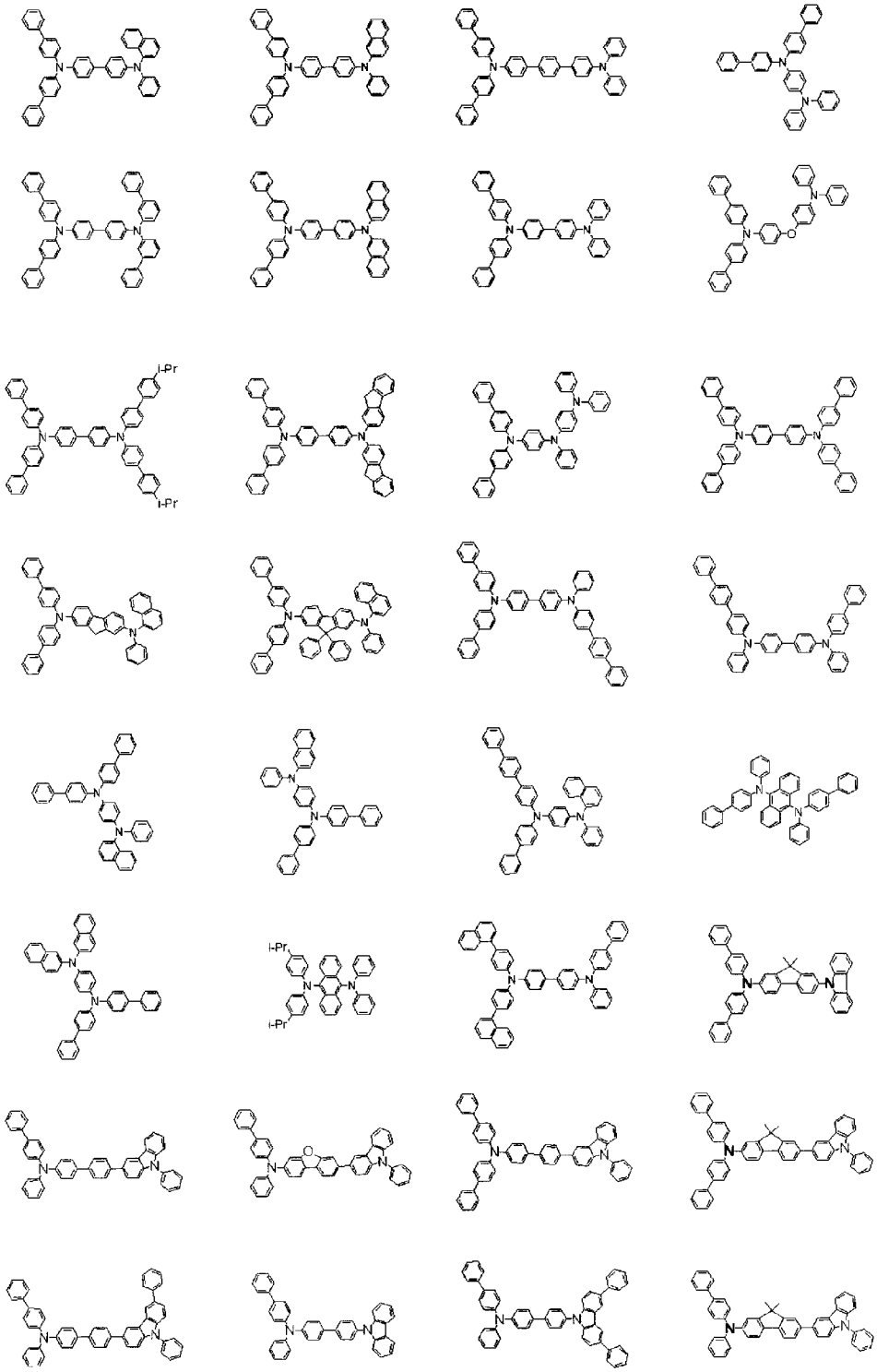
また、前記式（Ｉ）において、Ｌは置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）の芳香族炭化水素基もしくは置換基を有していてもよい環形成炭素数６～５０（好ましくは６～３０、より好ましくは６～２０、さらに好ましくは６～１２）の縮合芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに

好ましくは５～１２）の芳香族複素環基もしくは置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０（好ましくは５～３０、より好ましくは５～２０、さらに好ましくは５～１２）の縮合芳香族複素環基を表す。

[0256] 式（Ｉ）の化合物の具体例を以下に記す。

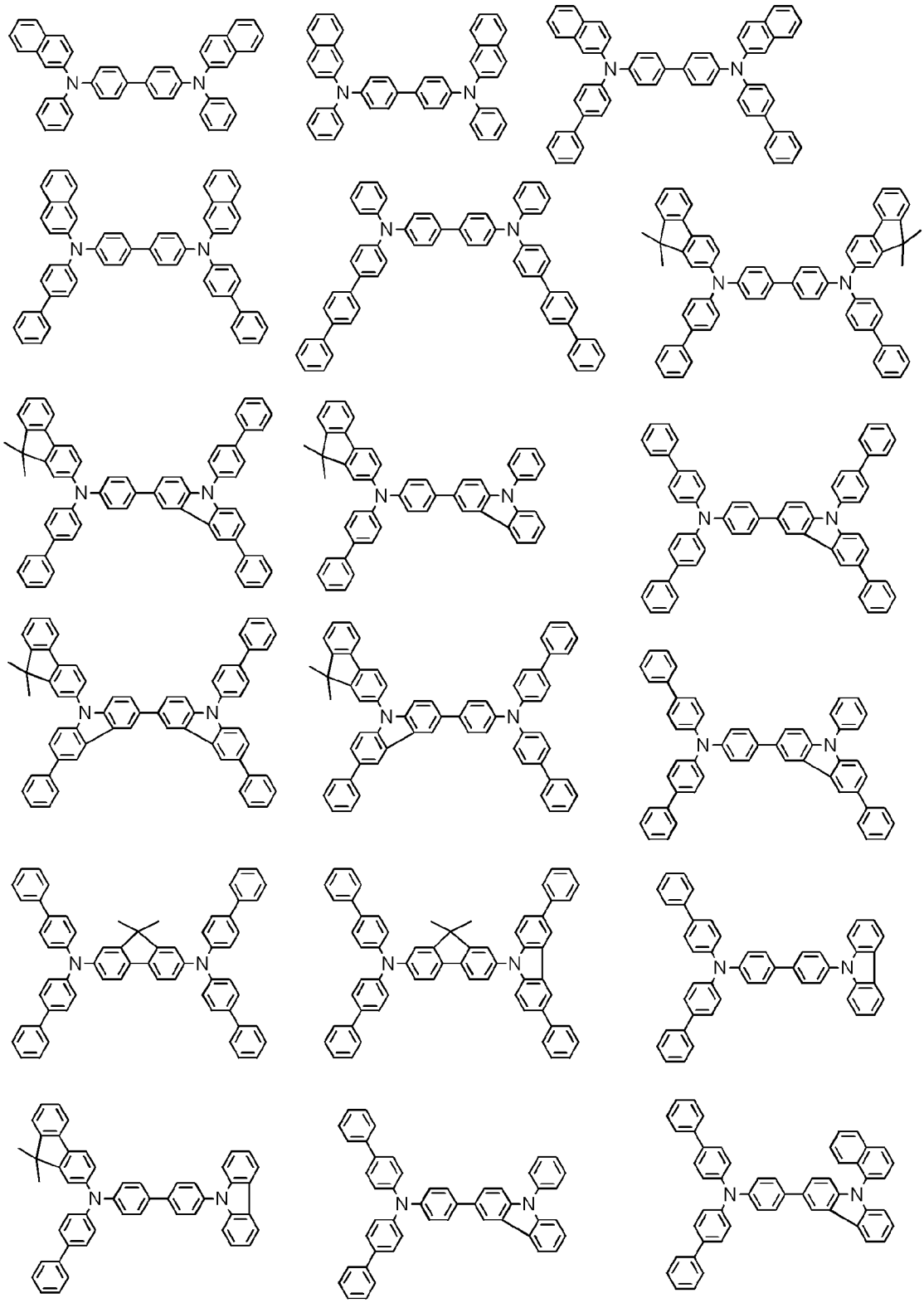
[0257]

[化171]



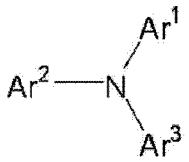
[0258]

[化172]



[0259] また、下記式（ＩＩ）の芳香族アミンも正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

[0260] [化173]

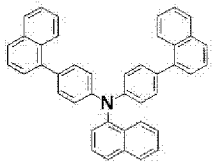
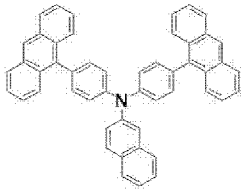
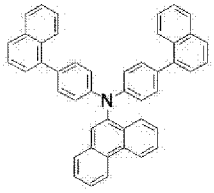
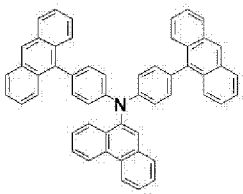
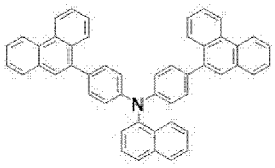
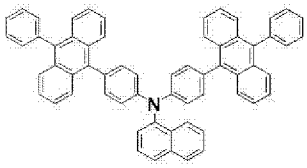
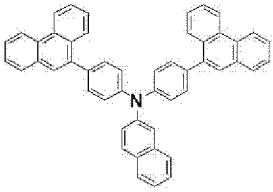
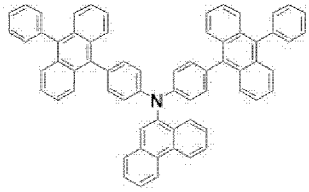
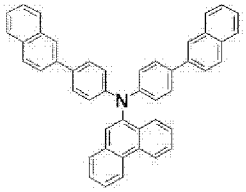
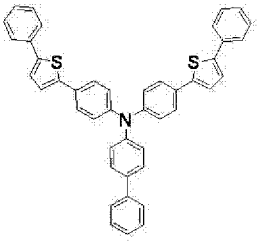
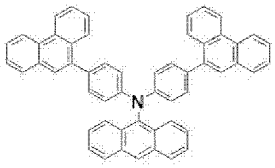
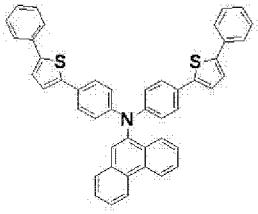
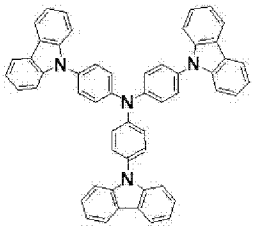
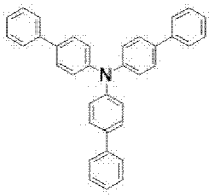
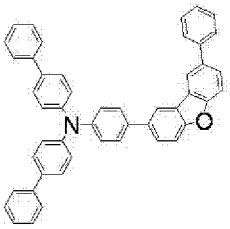
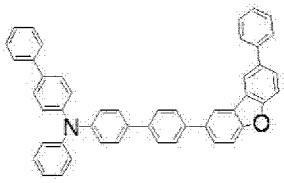
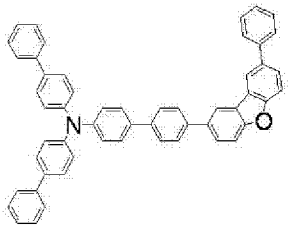


・・・ (II)

[0261] 前記式（ＩＩ）において、Ａｒ^{1}～Ａｒ^{3}の定義は前記式（Ｉ）のＡｒ^{1}～Ａｒ^{4}の定義と同様である。以下に式（ＩＩ）の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

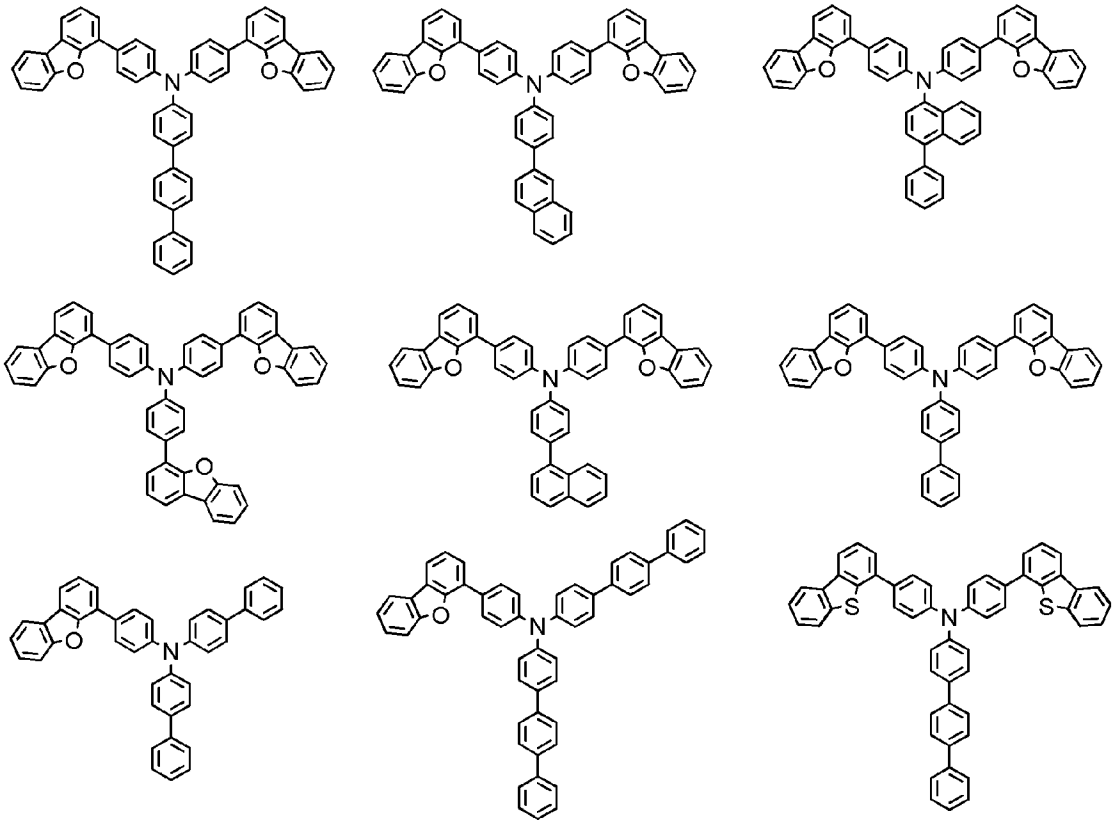
[0262]

[化174]

[0263]

[化175]



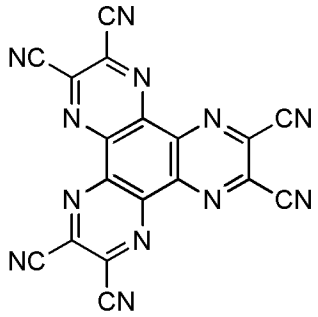
[0264] 本発明の有機ＥＬ素子の正孔輸送層は第１正孔輸送層（陽極側）と第２正孔輸送層（陰極側）の２層構造にしてもよい。

[0265] 正孔輸送層の膜厚は特に限定されないが、１０～２００ｎｍであるのが好ましい。正孔輸送層が、第１正孔輸送層（陽極側）と第２正孔輸送層（陰極側）の２層構造である場合、第１正孔輸送層の膜厚は、好ましくは５０～１５０ｎｍ、より好ましくは５０～１１０ｎｍであり、第２正孔輸送層の膜厚は、好ましくは５～５０ｎｍ、より好ましくは５～３０ｎｍである。

[0266] 本発明の有機ＥＬ素子では、正孔輸送層又は第１正孔輸送層の陽極側にアクセプター材料を含有する層を接合してもよい。これにより駆動電圧の低下及び製造コストの低減が期待される。

[0267] 前記アクセプター材料としては下記式で表される化合物が好ましい。

[化176]



[0268]　アクセプター材料を含有する層の膜厚は特に限定されないが、５～２０ｎｍであるのが好ましい。

[0269] －ｎ／ｐドーピング－

上述の正孔輸送層や電子輸送層においては、特許第３６９５７１４号明細書に記載されているように、ドナー性材料のドーピング（ｎ）やアクセプター性材料のドーピング（ｐ）により、キャリア注入能を調整することができる。

ｎドーピングの代表例としては、電子輸送材料にＬｉやＣｓなどの金属をドーピングする方法が挙げられ、ｐドーピングの代表例としては、正孔輸送材料にF_4ＴＣＮＱなどのアクセプター材料をドーピングする方法が挙げられる。

[0270] （スペース層）

上記スペース層とは、例えば、蛍光発光層と燐光発光層とを積層する場合に、燐光発光層で生成する励起子を蛍光発光層に拡散させない、あるいは、キャリアバランスを調整する目的で、蛍光発光層と燐光発光層との間に設けられる層である。また、スペース層は、複数の燐光発光層の間に設けることもできる。

スペース層は発光層間に設けられるため、電子輸送性と正孔輸送性を兼ね備える材料であることが好ましい。また、隣接する燐光発光層内の三重項エネルギーの拡散を防ぐため、三重項エネルギーが２．６ｅＶ以上であることが好ましい。スペース層に用いられる材料としては、上述の正孔輸送層に用いられるものと同様のものが挙げられる。

[0271] （障壁層）

本発明の有機ＥＬ素子は、発光層に隣接する部分に、電子障壁層、正孔障壁層、トリプレット障壁層といった障壁層を有することが好ましい。ここで、電子障壁層とは、発光層から正孔輸送層へ電子が漏れることを防ぐ層であり、発光層と正孔輸送層との間に設けられる層である。また、正孔障壁層とは、発光層から電子輸送層へ正孔が漏れることを防ぐ層であり、発光層と電子輸送層との間に設けられる層である。

トリプレット障壁層は、後述するように、発光層で生成する三重項励起子が、周辺の層へ拡散することを防止し、三重項励起子を発光層内に閉じ込めることによって三重項励起子の発光ドーパント材料以外の電子輸送層の分子上でのエネルギー失活を抑制する機能を有する。

電子注入層は、電界強度０．０４～０．５ＭＶ／ｃｍの範囲において、１０$^{-6}$ｃｍ^{2}／Ｖｓ以上であることが望ましい。これにより陰極からの電子輸送層への電子注入が促進され、ひいては隣接する障壁層、発光層への電子注入も促進し、より低電圧での駆動を可能にするためである。

[0272] ［電子機器］

本発明の化合物を用いて得られる有機ＥＬ素子は、発光効率がさらに改善されている。このため、有機ＥＬパネルモジュールなどの表示部品；テレビ、携帯電話、パーソナルコンピュータなどの表示装置；照明、車両用灯具の発光装置、などの電子機器に使用できる。

実施例

[0273] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらにより何ら限定されるものではない。

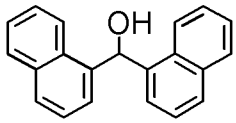
合成実施例１（芳香族ヘテロ環誘導体（Ｅ１）の製造）

（１）中間体１の合成

アルゴン雰囲気下、１-ブロモナフタレン１１０．５ｇ（５３３．６ｍｍｏｌ）をテトラヒドロフラン溶液１Ｌに溶かし、マグネシウム１４．０ｇ（５７６．０ｍｍｏｌ）に滴下した。その溶液を２５℃で１時間攪拌した後、１-

ナフトアルデヒド１１３．１ｇ（７２４．２ｍｍｏｌ）のテトラヒドロフラン溶液１００ｍＬを室温で滴下して加え、２０℃で１．５時間攪拌した。反応終了後、２Ｎ塩酸３００ｍＬを加え３０分攪拌し、トルエン８００ｍＬで抽出した。有機層を集め、濃縮し得られた固体をエタノールで洗浄し、白色固体９１．３ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析（電界脱離質量分析）により、下記中間体１と同定した。分子量２８４．３５に対し、ｍ／ｅ＝２８４であった。（収率６０％）

[化177]

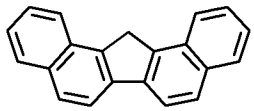


中間体１

[0274] （２）中間体２の合成

１５０℃に加熱したリン酸１．６５Ｌに対し、中間体１　８７．８ｇ（３０８．８ｍｍｏｌ）を少しずつ加え、４０時間加熱攪拌した。反応終了後室温まで放冷し、反応液を氷水１Ｌに注ぎ、トルエンで抽出した。有機層を濃縮し得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色固体３６．９ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析により、下記中間体２と同定した。分子量２６６．３４に対し、ｍ／ｅ＝２６６であった。（収率４５％）

[化178]



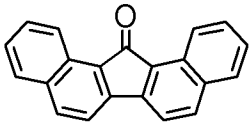
中間体２

[0275] （３）中間体３の合成

中間体２　１５．０ｇ（５６．３ｍｍｏｌ）をピリジン１Ｌに溶かし、ベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシド（Ｔｒｉｔｏｎ－Ｂ）（４０％メタノール溶液）６０ｍＬを室温で滴下した。３０時間攪拌した後、氷冷下、濃塩酸にゆっくりと注ぎ、ジクロロメタンで抽出した。有機層を濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、茶色固体９．

３ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析により、下記中間体３と同定した。分子量２８０．３２に対し、ｍ／ｅ＝２８０であった。（収率５９％）

[化179]

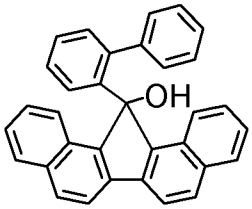


中間体3

[0276] （４）中間体４の合成

アルゴン雰囲気下、２－ビフェニルマグネシウムブロミド ０．５Ｍジエチルエーテル溶液６０．８ｍＬ（３０．４ｍｍｏｌ）を－２０℃に冷却した。中間体３　６．０ｇ（２１．４ｍｍｏｌ）を少しずつ加え、反応溶液を徐々に室温まで昇温させ、室温で５時間攪拌した。さらに、５時間加熱還流攪拌した。反応終了後、室温に冷却し、飽和塩化アンモニウム水溶液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色固体６．５ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析により、下記中間体４と同定した。分子量４３４．５３に対し、ｍ／ｅ＝４３４であった。（収率５８％）

[化180]



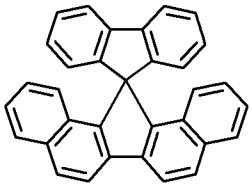
中間体4

[0277] （５）中間体５の合成

中間体４　５．０ｇ（１１．５ｍｍｏｌ）に酢酸５００ｍＬを加え、１４０℃で加熱攪拌しながら、濃塩酸１０ｍＬを滴下して加え、１４０℃で８時間反応させた。反応終了後、室温まで放冷し、析出した固体をろ取した。得られた固体をエタノールで洗浄し、白色固体２．８ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析により、下記中間体５と同定した。分子量４１６．５１に対し、ｍ／ｅ＝

４１６であった。（収率５８％）

[化181]

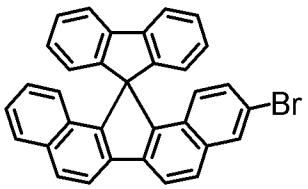


中間体5

[0278] （６）中間体６の合成

アルゴン雰囲気下、中間体５　２．８ｇ（６．７ｍｍｏｌ）をジクロロメタン（２２ｍＬ）に溶解し、氷冷下、臭素０．９０ｇ（５．６ｍｍｏｌ）のジクロロメタン（１８ｍＬ）溶液を滴下し、終夜反応を行った。得られた反応混合物に重曹水を加え、ジクロロメタンで抽出を行い減圧下で溶媒を留去した。得られた残渣を再結晶にて精製し、白色固体１．３３ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析により、下記中間体６と同定した。分子量４９５．４１に対し、ｍ／ｅ＝４９５であった。（収率４０％）

[化182]



中間体6

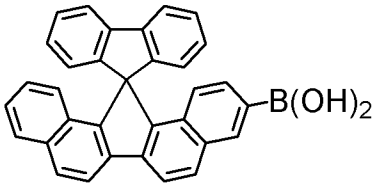
[0279] （７）中間体７の合成

アルゴン雰囲気下、中間体６　０．９９ｇ(２．０ｍｍｏｌ)に無水ＴＨＦ２０ミリリットルを加え、－４０℃で撹拌中に、１．６Ｍ濃度のｎ-ブチルリチウムのヘキサン溶液３．２ｍＬ(２．０ｍｍｏｌ)を加えた。反応溶液を０℃まで加温しながら１時間攪拌した。反応溶液を再び－７８℃まで冷却し、ホウ酸トリメチル０．５２ｇ（５．０ｍｍｏｌ）の乾燥ＴＨＦの５ｍＬ溶液を滴下した。反応溶液を室温で５時間攪拌した。１Ｎ塩酸２０ミリリットルを加え、1時間攪拌後、水層を除去した。

有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させ、溶媒を減圧留去した。得られた固

体をトルエンで洗浄し、白色固体０．６６ｇを得た。（収率７２％）

[化183]



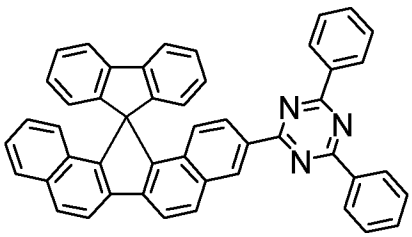
中間体7

[0280] （８）芳香族ヘテロ環誘導体（Ｅ１）の製造

アルゴン雰囲気下、中間体７　０．６６ｇ（１．４ｍｍｏｌ）、２－クロロ－４，６－ジフェニルトリアジン０．４０ｇ（１．５ｍｍｏｌ）、Ｐｄ[ＰＰｈ$_3$]$_4$（テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム）０．０３３ｇ（０．０２９ｍｍｏｌ）にトルエン５ｍＬ、ジメトキシエタン５ｍＬ、２ＭＮａ$_2$ＣＯ$_3$水溶液５ｍＬ（１０．０ｍｍｏｌ）を加え、１０時間加熱還流攪拌した。

反応終了後、室温に冷却し、試料を分液ロートに移しジクロロメタンにて抽出した。有機層をＭｇＳＯ$_4$で乾燥後、ろ過、濃縮した。濃縮残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、０．６６ｇの白色固体を得た。ＦＤ－ＭＳ分析（電界脱離質量分析）により、下記芳香族ヘテロ環誘導体（Ｅ１）と同定した。分子量６４７．７６に対し、ｍ／ｅ＝６４７であった。（収率７１％）

[化184]



E1

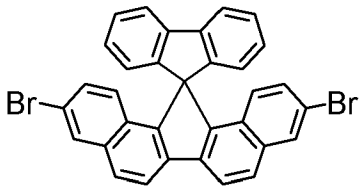
[0281] 合成実施例２（芳香族アミン誘導体（Ｂ１）の製造）

（１）中間体８の合成

アルゴン雰囲気下、中間体５　２．８ｇ（６．７ｍｍｏｌ）をジクロロメ

タン（２２ｍＬ）に溶解し、氷冷下、臭素１．８ｇ（１１．２ｍｍｏｌ）のジクロロメタン（３６ｍＬ）溶液を滴下し、終夜反応を行った。得られた反応混合物に重曹水を加え、ジクロロメタンで抽出を行い減圧下で溶媒を留去した。得られた残渣を再結晶にて精製し、白色固体１．１ｇを得た。ＦＤ－ＭＳ分析により、下記中間体８と同定した。分子量５７４．３０に対し、ｍ／ｅ＝５７４であった。（収率２９％）

[化185]



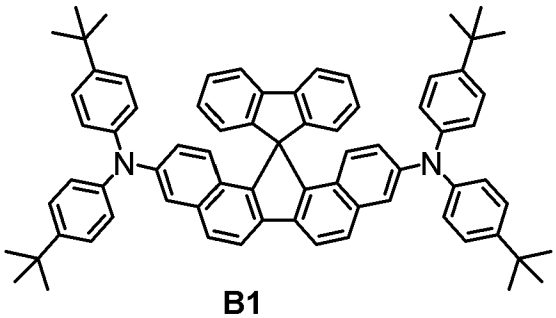
中間体8

[0282] （２）芳香族アミン誘導体（Ｂ１）の製造

アルゴン雰囲気下、ビス(4-ｔｅｒｔ-ブチルフェニル)アミン１．１ｇ（４．０ｍｍｏｌ）、中間体８　１．１ｇ（２．０ｍｍｏｌ）、$Pd_2(dba)_3$　０．０２８ｇ（０．０３ｍｍｏｌ）、$P(tBu)_3HBF_4$　０．０１７ｇ（０．０６ｍｍｏｌ）、ｔ－ブトキシナトリウム０．３８ｇ（４．０ｍｍｏｌ）に、無水キシレン１０ｍｌを加えて８時間加熱還流した。

反応終了後、反応液を５０℃に冷却し、セライト／シリカゲルを通して濾過を行い、濾液を濃縮した。得られた濃縮残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し白色固体を得た。粗生成物をトルエンにて再結晶し、１．３ｇの白色結晶を得た。ＦＤ－ＭＳの分析により、下記芳香族アミン誘導体（Ｂ１）と同定した。分子量９７５．３５に対し、ｍ／ｅ＝９７５であった。（収率６５％）

[化186]



B1

[0283] 実施例１

２５ｍｍ×７５ｍｍ×厚さ１．１ｍｍのＩＴＯ透明電極付きガラス基板（ジオマティック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を５分間行なった後、ＵＶオゾン洗浄を３０分間行った。ＩＴＯ透明電極の膜厚は、１３０ｎｍとした。

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

この化合物ＨＩ膜上に、第１正孔輸送材料として下記芳香族アミン誘導体（化合物ＨＴ－１）を蒸着し、膜厚１００ｎｍの第１正孔輸送層を成膜した。

第１正孔輸送層の成膜に続けて、第２正孔輸送材料として下記芳香族アミン誘導体（化合物ＨＴ－２）を蒸着し、膜厚５ｎｍの第２正孔輸送層を成膜した。

さらに、この第２正孔輸送層上に、ホスト材料として下記化合物ＢＨと、蛍光発光ドーパント材料としての下記化合物ＢＤとを共蒸着し、膜厚１５ｎｍの発光層を成膜した。発光層内における化合物ＢＤの濃度は３．０質量％であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

そして、この発光層成膜に続けて上記化合物Ｅ１を膜厚５ｎｍで成膜した。この化合物Ｅ１膜は第１電子輸送層として機能する。

この第１電子輸送層上に、下記化合物ＥＴ－２と、下記化合物Ｌｉｑとを

共蒸着し、膜厚２５ｎｍの第２電子輸送層を成膜した。第２電子輸送層内における化合物Ｌｉｑの濃度は５０質量％であった。

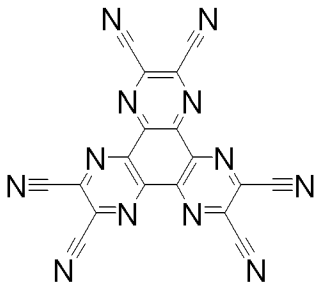
次に、化合物Ｌｉｑを電子注入性電極（陰極）として成膜速度０．１オングストローム／ｍｉｎで膜厚を１ｎｍとした。このＬｉｑ膜上に金属ＡｌをＡｌを蒸着させ、金属陰極を膜厚８０ｎｍで形成した。

実施例１の有機ＥＬ素子は、下記層構成を有している。

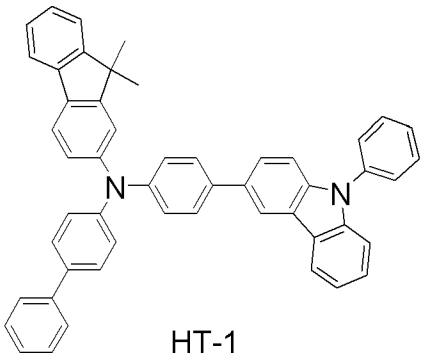
ＩＴＯ（１３０ｎｍ）／ＨＩ（５ｎｍ）／ＨＴ－１（１００ｎｍ）／ＨＴ－２（５ｎｍ）／ＢＨ：ＢＤ（１５ｎｍ：３質量％）／Ｅ１（５ｎｍ）／ＥＴ－２：Ｌｉｑ（２５ｎｍ：５０質量％）／Ｌｉｑ（１ｎｍ）／Ａｌ（８０ｎｍ）

[0284]

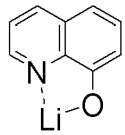
[化187]



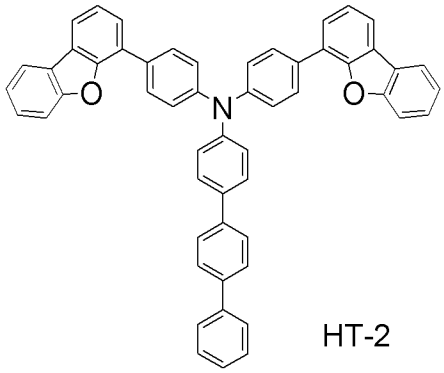
HI



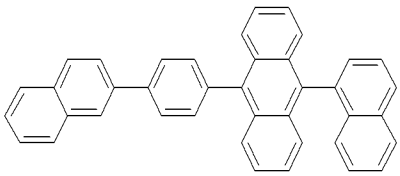
HT-1



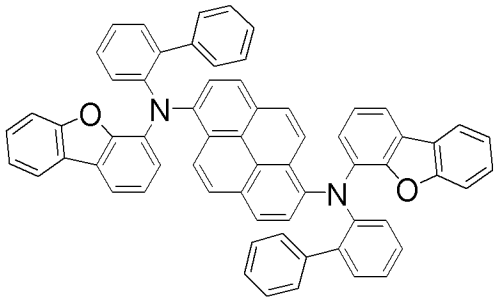
Liq



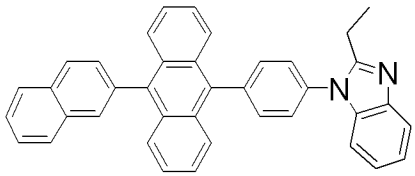
HT-2



BH



BD



ET-2

[0285] ＜素子性能の評価＞

得られた有機ＥＬ素子について、下記評価を行った。結果を表１に示す。

（１）駆動電圧（Ｖ）

電流密度が１０ｍＡ／ｃｍ^{2}となるようにＩＴＯ透明電極と金属ＡＩ陰極との間に通電したときの電圧（単位：Ｖ）を計測した。

[0286] （２）外部量子効率（ＥＱＥ；％）

電流密度が１０ｍＡ／ｃｍ^{2}となるように素子に電圧を印加したときの分光放射輝度スペクトルを、分光放射輝度計「ＣＳ－１０００」（製品名、コニ

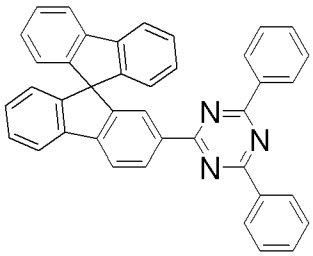
カミノルタ社製）で計測した。

得られた上記分光放射輝度スペクトルから、ランバシアン放射を行ったと仮定し、外部量子効率（ＥＱＥ）（単位：％）を算出した。

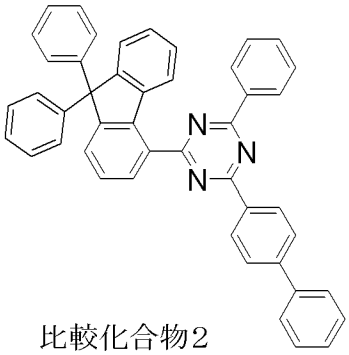
[0287] 比較例１～２

化合物１の代わりに、表１に記載の比較化合物１、２を用いて第１電子輸送層を形成した以外は実施例１と同様にして有機ＥＬ素子を作製し、評価した。結果を表１に示す。

[化188]



比較化合物1



比較化合物2

[0288] [表1]

表 1

	第１電子輸送層の材料	電流密度:10mA/cm^2	
		電圧 (V)	EQE (%)
実施例1	Ｅ１	3.50	9.7
比較例1	比較化合物１	3.56	9.2
比較例2	比較化合物２	3.70	8.7

[0289] 比較化合物1又は２を電子輸送層に用いた有機ＥＬ素子は、従来技術のうちでも低電圧かつ高効率であるが、Ｅ１を電子輸送層に用いた有機ＥＬ素子はさらに低電圧かつ高効率である。

[0290] 実施例２

２５ｍｍ×７５ｍｍ×厚さ１．１ｍｍのＩＴＯ透明電極付きガラス基板（ジオマティック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を５分間行なった後、ＵＶオゾン洗浄を３０分間行った。ＩＴＯ透明電極の膜厚

は、１３０ｎｍとした。

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

この化合物ＨＩ膜上に、第１正孔輸送材料として下記芳香族アミン誘導体（化合物ＨＴ－３）を蒸着し、膜厚１００ｎｍの第１正孔輸送層を成膜した。

第１正孔輸送層の成膜に続けて、第２正孔輸送材料として上記芳香族アミン誘導体（化合物ＨＴ－２）を蒸着し、膜厚５ｎｍの第２正孔輸送層を成膜した。

さらに、この第２正孔輸送層上に、ホスト材料として上記化合物ＢＨと、蛍光発光ドーパント材料としての上記化合物Ｂ１とを共蒸着し、膜厚２５ｎｍの発光層を成膜した。発光層内における化合物Ｂ１の濃度は４．０質量％であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

そして、この発光層成膜に続けて下記化合物ＥＴ－３を膜厚１０ｎｍで成膜した。この化合物ＥＴ－３膜は第１電子輸送層として機能する。

この第１電子輸送層上に、下記化合物ＥＴ－４を蒸着し、膜厚１５ｎｍの第２電子輸送層を成膜した。

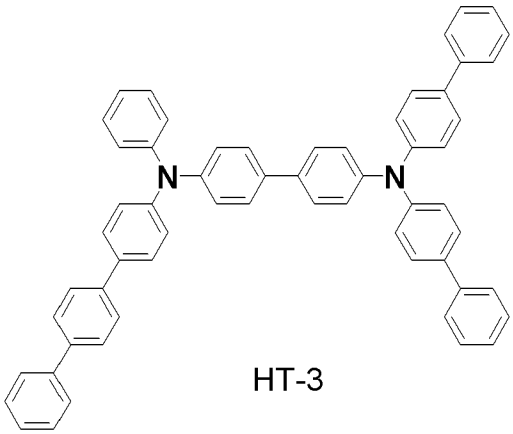
次に、化合物ＬｉＦを電子注入性電極（陰極）として成膜速度０．１オングストローム／ｍｉｎで膜厚を１ｎｍとした。このＬｉＦ膜上に金属ＡＩを蒸着させ、金属陰極を膜厚８０ｎｍで形成した。

実施例２の有機ＥＬ素子は、下記層構成を有している。

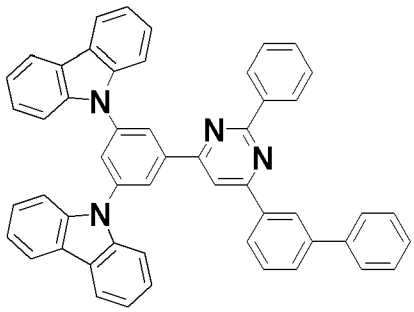
ＩＴＯ（１３０ｎｍ）／ＨＩ（５ｎｍ）／ＨＴ－３（１００ｎｍ）／ＨＴ－２（５ｎｍ）／ＢＨ：Ｂ１（２５ｎｍ：４質量％）／ＥＴ－３（１０ｎｍ）／ＥＴ－４（１５ｎｍ）／ＬｉＦ（１ｎｍ）／ＡＩ（８０ｎｍ）

[0291]

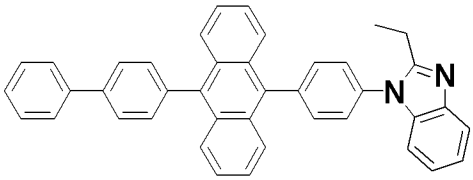
[化189]



HT-3



ET-3



ET-4

[0292] ＜素子性能の評価＞

得られた有機ＥＬ素子について、下記評価を行った。結果を表２に示す。

（１）外部量子効率（ＥＱＥ；％）

電流密度が１０ｍＡ／ｃｍ^{2}となるように素子に電圧を印加したときの分光放射輝度スペクトルを、分光放射輝度計「ＣＳ－１０００」（製品名、コニカミノルタ社製）で計測した。

得られた上記分光放射輝度スペクトルから、ランバシアン放射を行ったと仮定し、外部量子効率（ＥＱＥ）（単位：％）を算出した。

（２）寿命（ＬＴ９５）

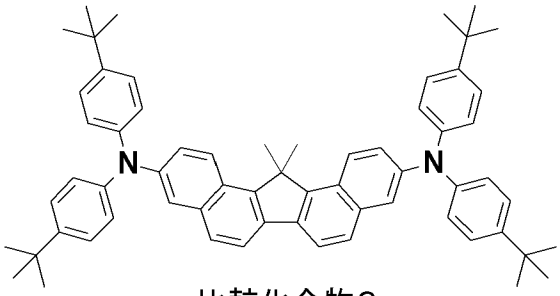
初期電流密度を５０ｍＡ／ｃｍ^{2}に設定して直流の連続通電試験を行い、試験開始時の輝度に対して、輝度が９５％まで減少する時間を測定し、その測定時間を寿命（ＬＴ９５）とした。

[0293] 比較例３

ドーパント材料を化合物Ｂ１の代わりに比較化合物３を用いて発光層を形成した以外は実施例２と同様にして有機ＥＬ素子を作製し、評価した。結果

を表２に示す。

[化190]



比較化合物3

[0294] [表2]

表 2

	ドーパント材料	電流密度:10mA/cm^2	電流密度:50mA/cm^2
		EQE	寿命LT95
		(%)	(h)
実施例2	Ｂ１	7.5	192
比較例3	比較化合物３	4.7	159

[0295] ドーパントとして化合物Ｂ１を用いた有機ＥＬ素子は比較化合物３を用いた素子より高効率かつ長寿命である。

符号の説明

[0296] １ 有機エレクトロルミネッセンス素子

２ 基板

３ 陽極

４ 陰極

５ 発光層

６ 正孔注入層／正孔輸送層

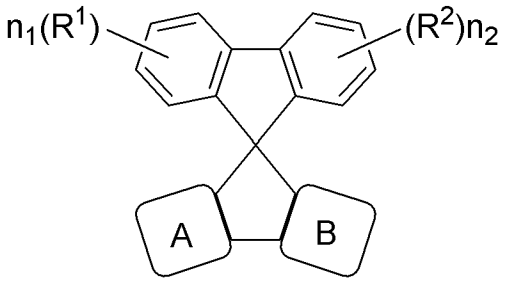
７ 電子注入層／電子輸送層

１０ 発光ユニット

請求の範囲

［請求項1］　下記式（１）で表される化合物。

［化1］



(1)

［式（１）において、Ａ及びＢは、それぞれ置換もしくは無置換のナフタレン環、または置換もしくは無置換のフェナントレン環を表す。該ナフタレン環、またはフェナントレン環上の置換基は、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

Ａ及びＢの示すナフタレン環及びフェナントレン環上の置換基が複数ある場合、該置換基は互いに結合して、環構造を形成してもよい。

R^1及びR^2は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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

～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数５～３０のヘテロアリール基、又は－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

Ｚは、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基、又はこれらが２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

Ｚが複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

R^aは、－Ｎ（R_{104}）（R_{105}）で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

R^aが複数存在する場合は、それぞれが同一でも異なっていてもよい。

R_{101}～R_{105}は、それぞれ独立に、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３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０のヘテロアリール基を示す。

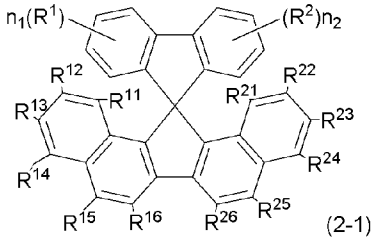
ただし、Ａ及びＢ上の置換基のうち少なくとも１つは、－Ｚ－R^aで表される基である。

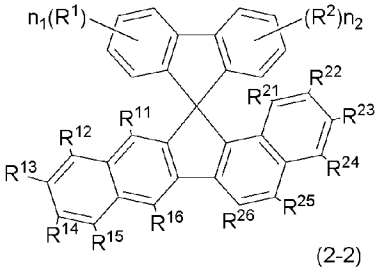
また、－Ｚ－R^aが複数存在するとき、それぞれの－Ｚ－R^aは同一であっても異なっていてもよい。

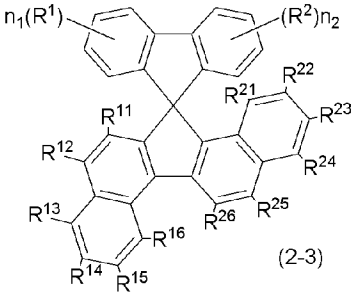
ｎ１及びｎ２は、それぞれ０～４の整数である。]

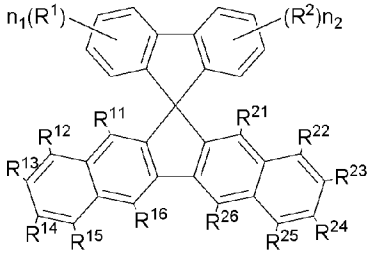
[請求項2] 下記式（２－１）～（２－１０）のいずれかで表される、請求項１に記載の化合物。

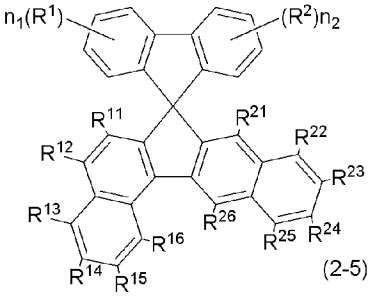
[化2]

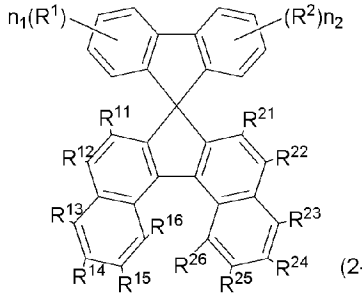

(2-1)

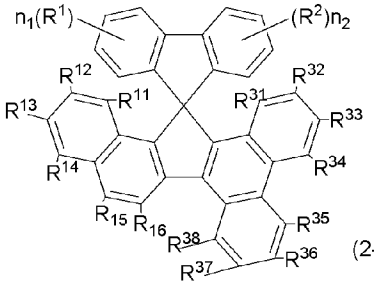

(2-2)

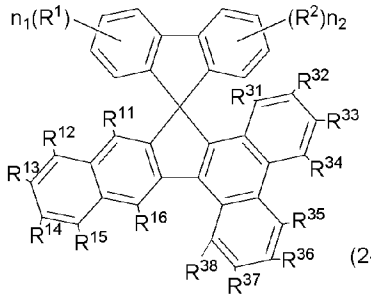

(2-3)

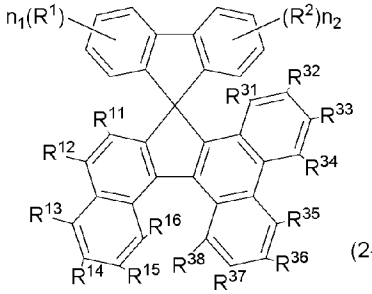

(2-4)

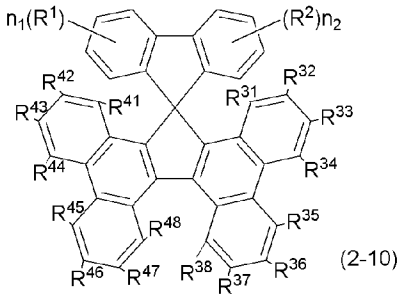

(2-5)


(2-6)


(2-7)


(2-8)


(2-9)


(2-10)

［式（２－１）～（２－１０）において、R^1、R^2、ｎ１、ｎ２は前記式（１）と同じである。

R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

R_{101}～R_{103}、Ｚ及びR^aは、前記と同じである。

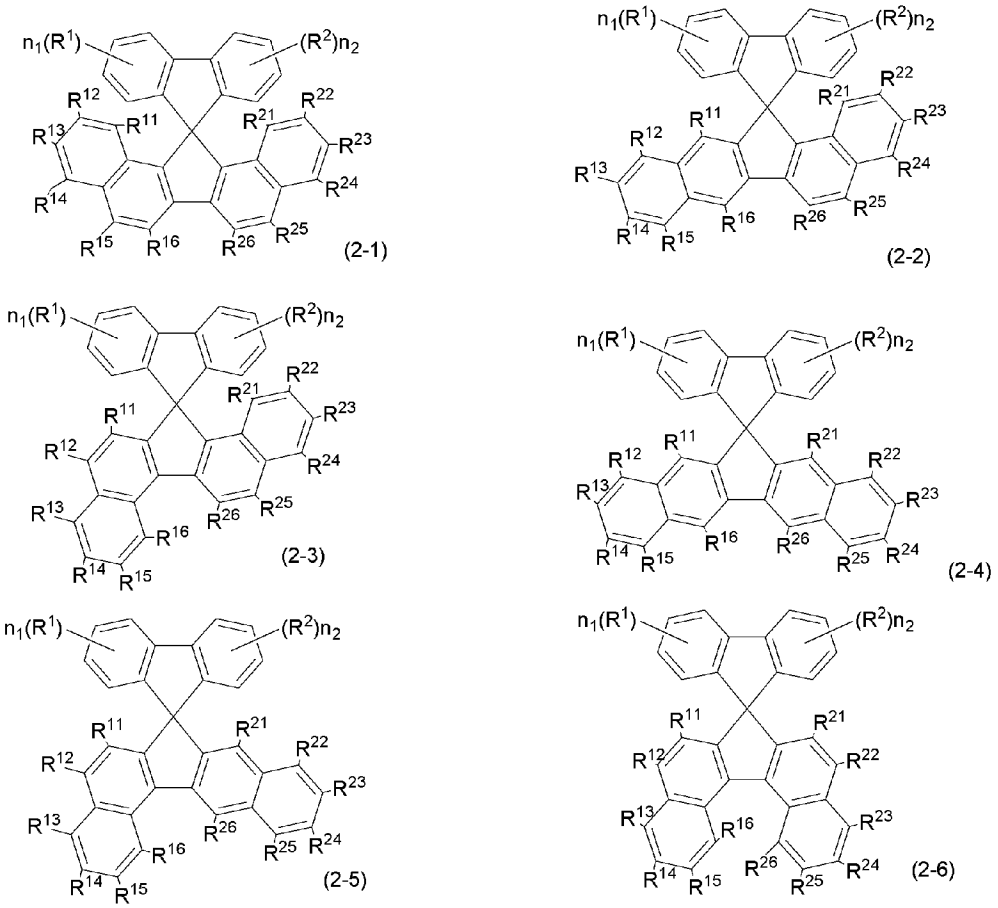
ただし、前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}及びR^{21}～R^{26}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基であり、式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}及びR^{31}～R^{38}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基であり、式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}及びR^{31}～R^{38}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}の隣接するものは、互いに結合して、環構造を形成してもよい。］

［請求項3］　下記式（２－１）～（２－６）のいずれかで表される、請求項１又は２に記載の化合物。

[化3]



［式（２－１）～（２－６）において、R^1、R^2、ｎ１、ｎ２は前記式（１）と同じである。

R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

R_{101}～R_{103}、Ｚ及びR^aは、前記と同じである。

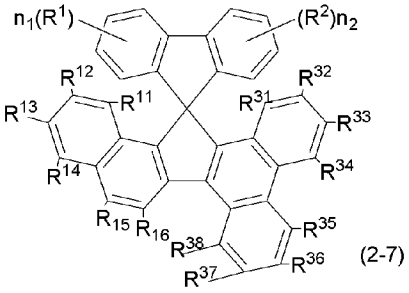
ただし、前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}及びR^{21}～R^{26}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

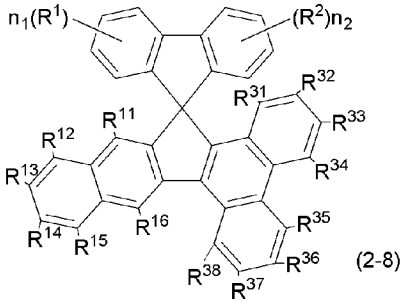
R^{11}～R^{16}、R^{21}～R^{26}の隣接するものは、互いに結合して、環構造を形成してもよい。］

［請求項4］　下記式（２－７）～（２－１０）のいずれかで表される、請求項１又は２に記載の化合物。

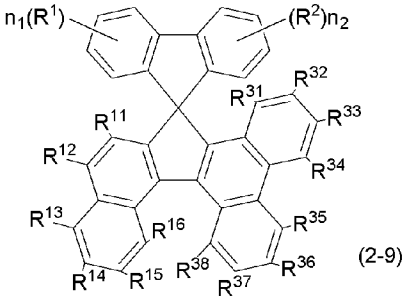
［化4］



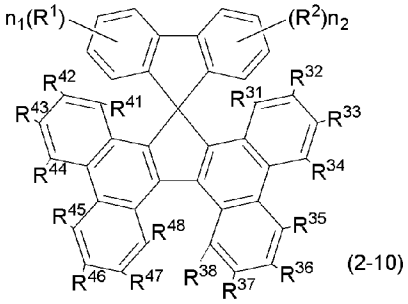
(2-7)



(2-8)



(2-9)



(2-10)

［式（２－７）～（２－１０）において、R^1、R^2、ｎ１、ｎ２は前記式（１）と同じである。

R^{11}～R^{16}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数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のフルオロアルキル基、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６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、－Ｓｉ（R_{101}）（R_{102}）（R_{103}）で表される基、又は－Ｚ－R^aで表される基である。

R_{101}～R_{103}、Ｚ及びR^aは、前記と同じである。

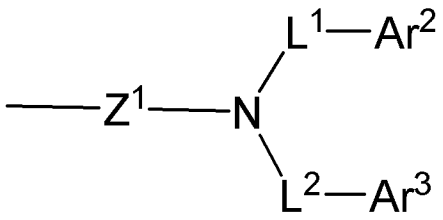
ただし、前記式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}及びR^{31}～R^{38}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基であり、式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}及びR^{31}～R^{38}のうちの少なくとも１つが－Ｚ－R^aで表される基である。

R^1、R^2を複数有する場合、該複数のR^1、R^2は、互いに同一でも異なっていてもよい。また、R^1、R^2同士が、それぞれ互いに結合して、環構造を形成してもよい。

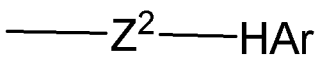
R^{11}～R^{16}、R^{31}～R^{38}、R^{41}～R^{48}の隣接するものは、互いに結合して、環構造を形成してもよい。]

[請求項5] 前記－Ｚ－R^aで表される基が、下記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項２～４のいずれかに記載の化合物。

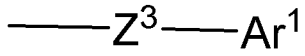
[化5]



(a)



(b)



(c)

（式（ａ）～（ｃ）において、Z^1～Z^3は、それぞれ独立に、単結

合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基又は該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

Ｌ^{1}及びＬ^{2}は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリーレン基、又は該アリーレン基及び該ヘテロアリーレン基が２～４個連結して構成される２価の連結基を示す。

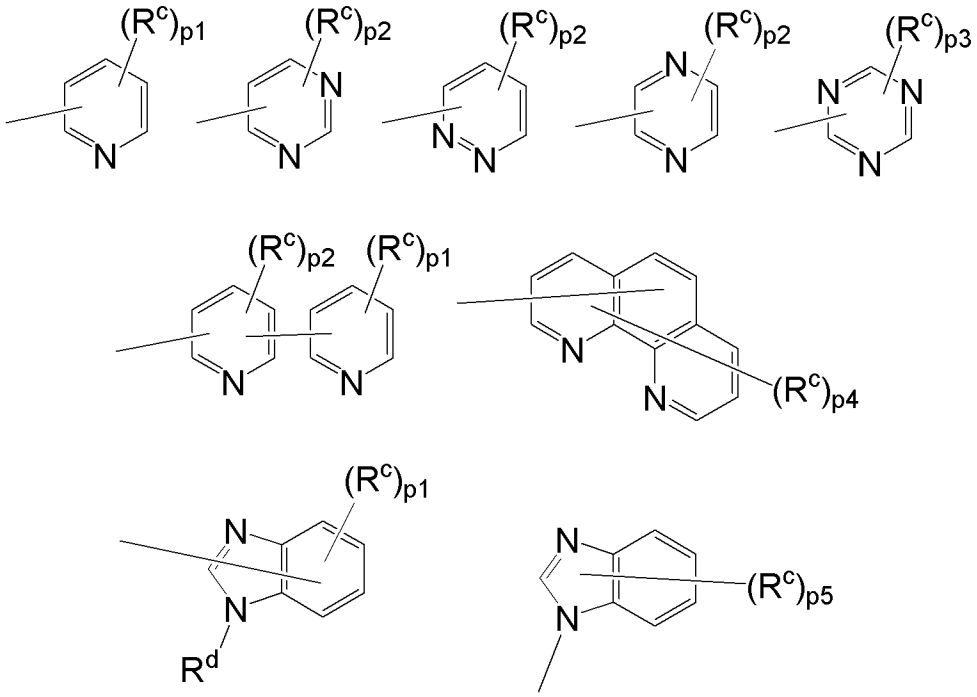
Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

ＨＡｒは、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

Ａｒ^{1}は、置換もしくは無置換の環形成炭素数１４～３０のアリール基を示す。）

[請求項6] 前記式（ｂ）中の －ＨＡｒが、下記の群から選択される基のいずれかである、請求項５に記載の化合物。

[化6]



（Ｒ^{c}は、それぞれ独立に、フッ素原子、シアノ基、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環形成炭素数３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、環形成炭素数６～３０のアリール基を有する置換もしくは無置換の炭素数７～３０のアラルキル基、アミノ基、炭素数１～２０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６～３０のアリール基を有するモノ又はジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数１～３０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～２０のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリールチオ基、炭素数１～２０のアルキル基及び環形成炭素数６～３０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、置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基、ハロゲン原子、シアノ基又はニトロ基を示す。

各基においてＲ^{c}が複数存在する場合は、それぞれが同一でも異な

っていてもよい。

R^d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３～２０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０のヘテロアリール基を示す。

ｐ１は、それぞれ独立に０～４の整数、ｐ２は、それぞれ独立に０～３の整数、ｐ３は０～２の整数、ｐ４は０～７の整数、ｐ５は０～５の整数である。）

[請求項7] 前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であるか、又はR^{21}～R^{26}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項５又は６に記載の化合物。

[請求項8] 式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であるか、又はR^{31}～R^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項５又は６に記載の化合物。

[請求項9] 式（２－１０）において、R^{41}～R^{48}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であるか、又はR^{31}～R^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項５又は６に記載の化合物。

[請求項10] 前記式（２－１）、式（２－２）、式（２－３）、式（２－４）、式（２－５）、式（２－６）において、R^{11}～R^{16}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であり、かつR^{21}～R^{26}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項５又は６に記載の化合物。

[請求項11] 式（２－７）、式（２－８）、式（２－９）において、R^{11}～R^{1}

^{6}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であり、かつＲ^{31}～Ｒ^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項５又は６に記載の化合物。

[請求項12] 式（２－１０）において、Ｒ^{41}～Ｒ^{48}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基であり、かつＲ^{31}～Ｒ^{38}のうちの１つが前記式（ａ）～（ｃ）のいずれかで表される基である、請求項５又は６に記載の化合物。

[請求項13] Ｚ^{1}が単結合である、請求項５及び７～１２のいずれかに記載の化合物。

[請求項14] Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}が、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基である、請求項５及び７～１３のいずれかに記載の化合物。

[請求項15] Ｌ^{1}及びＬ^{2}がいずれも単結合であって、Ａｒ^{2}及びＡｒ^{3}が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基又は置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基である、請求項５及び７～１４のいずれかに記載の化合物。

[請求項16] 請求項１～１５のいずれかに記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

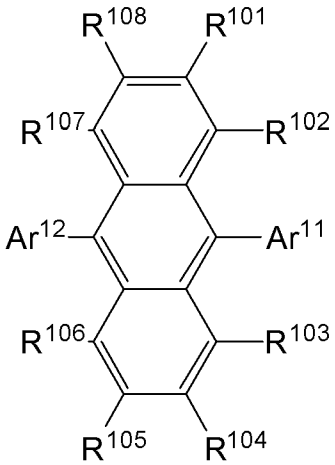
[請求項17] 陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも１層が、請求項１～１５のいずれかに記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項18] 前記発光層が請求項１～１５のいずれかに記載の化合物を含有する、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] 前記少なくとも一層が、請求項１～１５のいずれかに記載の化合物と、下記式（５）で表されるアントラセン誘導体とを含有する、請求

項１７又は１８に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化7]



(5)

（式（５）において、Ａｒ^{11}及びＡｒ^{12}は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０の単環基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数８～５０の縮合環基であり、Ｒ^{101}～Ｒ^{108}は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成原子数５～５０の単環基、置換もしくは無置換の環形成原子数８～５０の縮合環基、前記単環基と前記縮合環基との組合せから構成される基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数３～５０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数７～５０のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリールオキシ、置換もしくは無置換のシリル基、ハロゲン原子、シアノ基から選ばれる基である。）

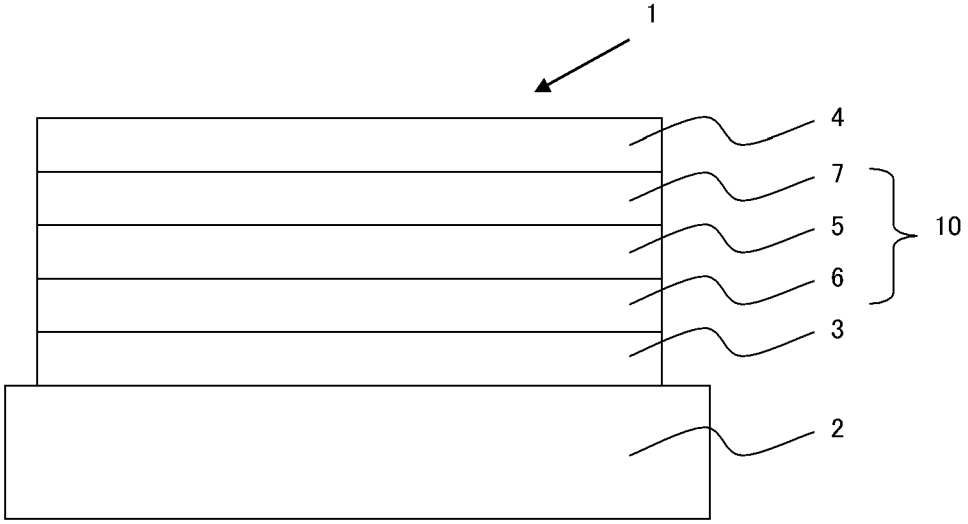
[請求項20] 前記該有機薄膜層が電子輸送層を含有し、該電子輸送層が請求項１～１５のいずれかに記載の化合物を含有する、請求項１７に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項21] 前記該有機薄膜層が正孔輸送層を含有し、該正孔輸送層が請求項１～１５のいずれかに記載の化合物を含有する、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22]　前記該有機薄膜層が電子輸送層を含有し、更に該電子輸送層と発光層との間に障壁層を有し、該障壁層が請求項１～１５のいずれかに記載の化合物を含有する、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23]　請求項１７～２２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備えた電子機器。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/005168

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C07D251/24(2006.01)i, *C07C211/61*(2006.01)i, *C09K11/06*(2006.01)i, *H01L51/50*(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C07D251/24, C07C211/61, C09K11/06, H01L51/50

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
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.
X	KR 10-2014-0115636 A (DUKSAN HIGH METAL CO., LTD.), 01 October 2014 (01.10.2014), claims 1 to 8 (particularly, claim 3, compounds 2-10, 2-14, 3-10, 3-14, 4-10, 4-14); paragraphs [0029] to [0033]; synthesis examples; test examples; fig. 1 (Family: none)	1-23
P,X	US 2016/0351817 A1 (SAMSUNG DISPLAY CO., LTD.), 01 December 2016 (01.12.2016), claims 1 to 20 (particularly, claim 14, compounds D1-71, D1-79, D1-95); examples; fig. 1 to 4 & KR 10-2016-0141361 A & CN 106206964 A	1-5,7-23

☒ 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
23 March 2017 (23.03.17)

Date of mailing of the international search report
04 April 2017 (04.04.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915,Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/005168

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	KR 10-2016-0111559 A (DUK SAN NEOLUX CO., LTD.), 27 September 2016 (27.09.2016), claims 1 to 11 (particularly, claim 4, compounds 2-1 to 2-40, 3-35, 4-17); paragraphs [0137] to [0142]; synthesis examples; examples; fig. 1 (Family: none)	1-3,5-7,10, 13-23
P,A	CN 105440004 A (VALIANT CO., LTD.), 30 March 2016 (30.03.2016), claims 1 to 6; examples; fig. 1 (Family: none)	1-23

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／００５１６８

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07D251/24(2006.01)i, C07C211/61(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07D251/24, C07C211/61, C09K11/06, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１７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
Ｘ	KR 10-2014-0115636 A (DUKSAN HIGH METAL CO LTD) 2014.10.01, 請求項１－８（特に請求項３の化合物２－１０、２－１４、３－１０、３－１４、４－１０、４－１４）、段落［００２９］－［００３３］、合成例、試験例、図１（ファミリーなし）	1-23
Ｐ，Ｘ	US 2016/0351817 A1 (SAMSUNG DISPLAY CO LTD) 2016.12.01, 請求項１－２０（特に請求項１４の化合物Ｄ１－７１、Ｄ１－７９、Ｄ１－９５）、実施例、図１－４ & KR 10-2016-0141361 A & CN 106206964 A	1-5, 7-23

☑　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 ２３．０３．２０１７	国際調査報告の発送日 ０４．０４．２０１７
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）　４Ｈ　４５０９ 斉藤　貴子 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４４３

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
Ｐ，Ｘ	KR 10-2016-0111559 A (DUK SAN NEOLUX CO LTD) 2016.09.27, 請求項１－１１（特に請求項４の化合物２－１～２－４０、３－３５、４－１７）、段落［０１３７］－［０１４２］、合成例、実施例、図１（ファミリーなし）	1-3, 5-7, 10, 13-23
Ｐ，Ａ	CN 105440004 A (VALIANT CO LTD) 2016.03.30, 請求項１－６、実施例、図１（ファミリーなし）	1-23