

(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
2016年8月18日(18.08.2016)



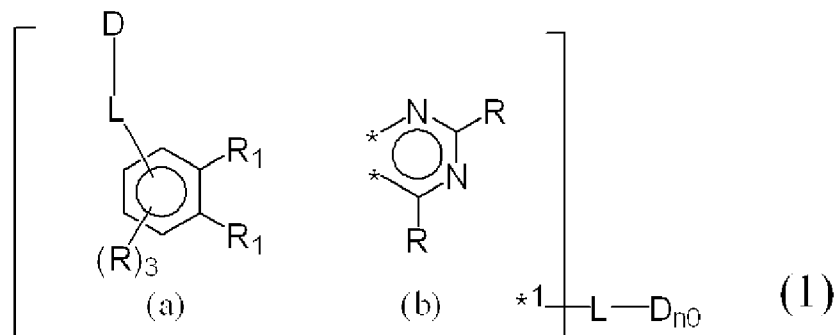
(10) 国際公開番号

WO 2016/129694 A1

- (51) 国際特許分類:
C07D 403/14 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
C09D 11/00 (2014.01) H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/054193
- (22) 国際出願日: 2016年2月12日(12.02.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-026854 2015年2月13日(13.02.2015) JP
- (71) 出願人: 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 池田 潔(IKEDA, Kiyoshi); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 川上 宏典(KAWAKAMI, Hironori); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保(OHTANI, Tamotsu); 〒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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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: COMPOUND, MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, INK COMPOSITION, ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ELECTRONIC DEVICE

(54) 発明の名称: 化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、インク組成物、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び電子機器



(57) Abstract: Provided are an organic electroluminescent element having improved performance, and an electronic device containing said element. Further provided are a compound represented by formula (1) that makes said element and said device possible, a material for an organic electroluminescent element, and an ink composition.

(57) 要約: 性能の向上した有機EL素子及びそれを含む電子機器を提供すること、並びにそれを可能にする下記式(1)で表される化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びインク組成物を提供する。

WO 2016/129694 A1

明 細 書

発明の名称：

化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、インク組成物、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、化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、インク組成物、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び電子機器に関する。

背景技術

[0002] 陽極と陰極との間に発光層を含む有機薄膜層を備え、発光層に注入された正孔と電子との再結合によって生じる励起子（エキシトン）エネルギーから発光を得る有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。

[0003] 有機エレクトロルミネッセンス素子は、自発光型素子としての利点を活かし、発光効率、画質、消費電力さらには薄型のデザイン性に優れた発光素子として期待されている。有機エレクトロルミネッセンス素子は、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

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第2012／086170号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明の一つの目的は、特性の優れた有機EL素子及びそれを含む電子機器を提供することである。また、他の目的は、特性の優れた有機EL素子及びそれを含む電子機器を可能にする化合物、有機エレクトロルミネッセンス

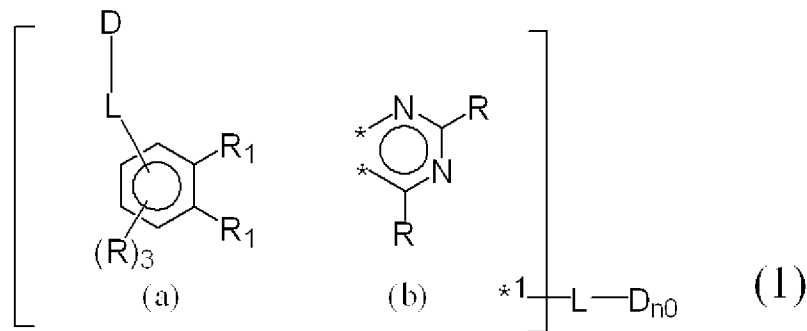
素子用材料及びインク組成物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明の一態様によれば、下記〔１〕～〔５〕が提供される。

〔１〕 下記式（１）で表される化合物。

[化1]



[0007] 〔式（１）において、

２つの R₁ はそれぞれ式（b）の２つの＊に結合する単結合を表すか、又は、互いに結合して５員環、６員環又は縮合環を表し、該５員環、６員環又は縮合環が有する隣接する２つの環形成炭素原子のそれぞれに式（b）の２つの＊がそれぞれ結合する。

前記５員環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は２個の R を有する。

前記６員環が非芳香族環である場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は２個の R を有す。

前記６員環が芳香族環である場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は１個の R を有する。

前記縮合環が非芳香族環を含む場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は２個の R を有す。

前記縮合環が芳香族環を含む場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は１個の R を有する。

複数の R はそれぞれ独立に水素原子、置換基又は $\ast^1 - L - D_{n0}$ に結合する

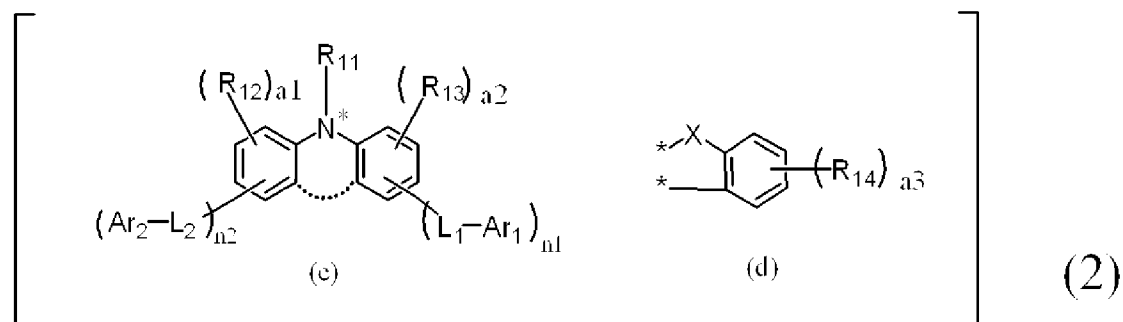
単結合を表し、隣接又は近接する2つのRは互いに結合して環を形成していてもよく、該環は1又は複数のRで置換されていてもよい。ただし、式(1)中の複数のRの少なくとも1つは $*^1-L-D_{n0}$ に結合する単結合を表す。

ここで、Rが表す $*^1-L-D_{n0}$ に結合する単結合とは、例えば、 $A-R$ 中のRが表す $*^1-L-D_{n0}$ と結合する単結合により得られる化合物は $A-L-D_{n0}$ であることを示す。

複数のLはそれぞれ独立に単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基を表し、Lが単結合の場合、 $n0$ は1を表し、Lが置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基の場合、 $n0$ は1～10の整数を表す。

Dは、少なくとも1つのカルバゾール構造を含み、下記式(2)で表される構造の1価の残基を表す。

[0008] [化2]



[0009] (式(2)において、

破線は、その両端の2つの炭素原子が単結合で結合されているか、又は、該2つの炭素原子は結合されていないことを表す。

L_1 及び L_2 は、それぞれ独立に、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基を表す。

$A r_1$ 及び $A r_2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素環の1価の残基を表す。

n_1 及び n_2 は、それぞれ独立に0～4の整数である。

N^* に結合する2つのベンゼン環、 $A r_1$ 及び $A r_2$ が表す芳香族炭化水素環

の少なくとも1つの環の隣接する2つの環形成炭素原子には式(d)が結合し、 A_{r_1} 及び A_{r_2} が表す芳香族炭化水素環に式(d)が結合する場合、 A_{r_1} 及び A_{r_2} は該芳香族炭化水素環と式(d)が結合して得られる構造の1価の残基を表す。

XはO、S、 PR_{15} 、 $SiR_{16}R_{17}$ 、 $CR_{18}R_{19}$ 、又は NR_{20} を表し、複数個の式(d)が結合している場合、複数のXは同一でも異なってもよい。

$R_{11} \sim R_{20}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。

a_1 、 a_2 、及び a_3 は、それぞれ独立に0～4の整数を表す。)]

[0010] [2] 上記[1]に記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[3] 溶媒と、該溶媒中に溶解した上記[1]に記載の化合物とを含むインク組成物。

[4] 陰極と陽極の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む有機エレクトロルミネッセンス素子。

[5] 上記[1]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を含む電子機器。

発明の効果

[0011] 本発明は、性能の向上した有機EL素子及びそれを含む電子機器を提供することができる。また、それを可能にする化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びインク組成物を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の一態様に係る有機EL素子の一例の概略構成を示す図である。

発明を実施するための形態

[0013] 本明細書において、「置換もしくは無置換の炭素数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「炭素数 $XX \sim YY$ 」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 $XX \sim YY$ の Z 基」という表現における「原子数 $XX \sim YY$ 」は、 Z 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。

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

[0015] 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。

[0016] 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」及び「ヘテロアリーレン基」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く、窒素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれる1種以上であることがより好ましい。

[0017] また、本明細書において、「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、下記グループ（A）のものが挙げられる。

（A）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、更に好ましくは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ロキシ基；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ルル基；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基であることが好ましい。

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。

また、「置換もしくは無置換」との記載における「無置換」とは、これらの置換基で置換されておらず、水素原子が結合していることを意味する。

[0018] 上記置換基の中でも、より好ましくは、下記グループ(B)のものが挙げられる。

(B) 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、更に好ましくは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、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、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。

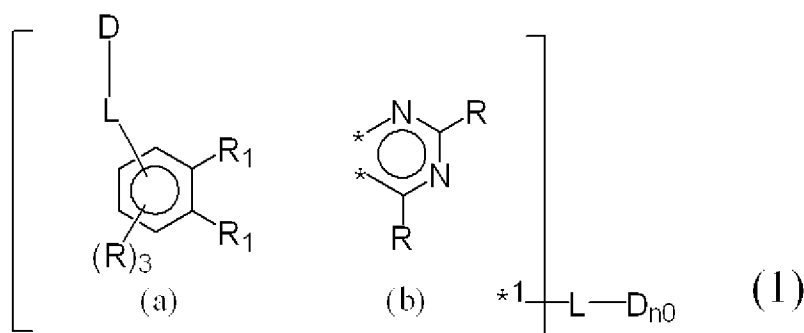
[0019] 本明細書中、好ましいとする規定は任意に選択することができる。

[0020] [化合物]

本発明の一態様の化合物について説明する。

本発明の一態様の化合物は、式（1）で表される化合物（以後、「式（1）で表される化合物」を「化合物（1）」と呼称することがある）である。

[化3]



[0021] 式（1）において、

2つの R_1 はそれぞれ式（b）の2つの*に結合する単結合を表すか、又は、互いに結合して5員環、6員環又は縮合環を表し、該5員環、6員環又は縮合環が有する隣接する2つの環形成炭素原子のそれぞれに式（b）の2つの*がそれぞれ結合する。

前記5員環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有する。

前記6員環が非芳香族環である場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有す。

前記6員環が芳香族環である場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。

前記縮合環が非芳香族環を含む場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有す。

前記縮合環が芳香族環を含む場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。

[0022] ここで、非共有環原子とは、該非共有環原子を含む環が、連結する他の環と共有されていない原子のことを示す。例えば、下記式(6)～(16)におけるYやZが非共有原子である。

また、芳香族環とは、芳香族性を有する環(例えば、ベンゼンやピリミジン)のみからなる環のことを示す。非芳香族環とは、シクロペンタンのような多重結合を有さない環を示し、例えば、フルオレンにおける中心のシクロペンタン環も非芳香族環と称す。

[0023] 複数のRはそれぞれ独立に水素原子、置換基又は $*^1-L-D_{n0}$ に結合する単結合を表し、隣接又は近接する2つのRは互いに結合して環を形成していてもよく、該環は1又は複数のRで置換されていてもよい。ただし、式(1)中の複数のRの少なくとも1つは $*^1-L-D_{n0}$ に結合する単結合を表す。

[0024] Rの示す置換基としては、それぞれ独立に、下記から選択されるものが好ましい。

置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは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(より好ましくは3～10、更に好ましくは3～8)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6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは6～18)のアリール基(「芳香族炭化水素基」と同義、以下同様)、置換もしくは無置換の炭素数7～61(より好ましくは7～25、更に好ましくは7～18)のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは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6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは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炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは1～8)のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50(より好ましくは3～10、更に好

ましくは3～8)のシクロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは6～18)のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは1～8)のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは6～18)のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは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6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60(より好ましくは5～30、更に好ましくは5～26)のヘテロアリール基(「複素環基」と同義、以下同様)、置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは1～8)のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは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6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは6～18)のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50(より好ましくは1～18、更に好ましくは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6～60(より好ましくは6～25、更に好ましくは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ルイル基、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が挙げられる。

[0025] 前記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（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、オクチル基（異性体を含む）、ノニル基（異性体を含む）、デシル基（異性体を含む）、ウンデシル基（異性体を含む）、及びドデシル基（異性体を含む）、トリデシル基、テトラデシル基、オクタデシル基、テトラコサニル基、テトラコンタニル基等が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

より好ましくは、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、ペンチル基（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、オクチル基（異性体を含む）、ノニル基（異性体を含む）、デシル基（異性体を含む）、ウンデシル基（異性体を含む）、ドデシル基（異性体を含む）、トリデシル基、テトラデシル基、及びオクタデシル基が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

更に好ましくは、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、ペンチル基（異性体を含む）、ヘキシル基（異性体を含む）、ヘプチル基（異性体を含む）、及びオクチル基（異性体を含む）が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

[0026] 前記シクロアルキル基としては、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、アダマンチル基等が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

より好ましくは、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

[0027] 前記アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、クアテルフェニリル基、キンクフェニリル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9'-スピロビフルオレニル基、ベンゾ

フルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダニル基、a s-インダニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、ジベンゾアントリル基、9, 9-ジメチルフルオレニル基、9, 9-ジフェニルフルオレニル基等が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

より好ましくは、フェニル基、ナフチル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フルオレニル基、9, 9'-ススピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダニル基、a s-インダニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、アントリル基、9, 9-ジメチルフルオレニル基、9, 9-ジフェニルフルオレニル基が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

更に好ましくは、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、ナフチル基、フェナントリル基、フルオレニル基、9, 9'-ススピロビフルオレニル基、クリセニル基、トリフェニレニル基、9, 9-ジメチルフルオレニル基、9, 9-ジフェニルフルオレニル基が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

[0028] 前記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1~3個、さらに好ましくは1~2個）のヘテロ原子、例えば、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子を含む。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、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、ビカルバゾリル基、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、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ベンゾフラノベンゾチオフェニル基、ベンゾチエノベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフェニル基、ジナフトー<2',3':2,3:2',3':6,7>-カルバゾリル基などが挙げられる。これらは置換されていてもよい。

より好ましくは、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、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、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、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、ビカルバゾリル基、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、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

更に好ましくは、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、キノリル基、イソキノリル基、キナゾリニル基、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、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、ビカルバゾリル基、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基が挙げられる。これらは置換されていてもよい。

[0029] 前記アラルキル基としては、環形成炭素数6～60の上記アリール基を有するアラルキル基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは環形成炭素数6～25の上記アリール基を有するアラルキル基であり、更に好ましくは環形成炭素数6～18の上記アリール基を有するアラルキル基である。これらは更に置換されていてもよい。

前記モノ置換又はジ置換アミノ基としては、炭素数1～50の上記アルキル基及び環形成炭素数6～60の上記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が挙げられ、該ジ置換アミノ基が好ましく、上記アリール基から選ばれる置換基を有するジ置換アミノ基がさらに好ましい。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数1～18の上記アルキル基及び環形成炭素数6～25の上記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が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数1～8の上記アルキル基及び環形成炭素数6～18の上記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が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。

[0030] 前記アルコキシ基としては、炭素数1～50の上記アルキル基を有するアルコキシ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数1～18の上記アルキル基を有するアルコキシ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数1～8の上記アルキル基を有するアルコキシ基が挙げられ、例えば、メトキシ基、エトキシ基が好ましい。これらは更に置換されていてもよい。

前記シクロアルコキシ基としては、炭素数3～50の上記シクロアルキル基を有するシクロアルコキシ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。

前記アリールオキシ基としては、環形成炭素数 6 ～ 60 の上記アリール基を有するアリールオキシ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、環形成炭素数 6 ～ 25 の上記アリール基を有するアリールオキシ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、環形成炭素数 6 ～ 18 の上記アリール基を有するアリールオキシ基が挙げられ、例えば、フェノキシ基等が好ましい。これらは更に置換されていてもよい。

[0031] 前記アルキルチオ基としては、炭素数 1 ～ 50 の上記アルキル基を有するアルキルチオ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数 1 ～ 18 の上記アルキル基を有するアルキルチオ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数 1 ～ 8 の上記アルキル基を有するアルキルチオ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。

前記アリールチオ基としては、環形成炭素数 6 ～ 60 の上記アリール基を有するアリールチオ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、環形成炭素数 6 ～ 25 の上記アリール基を有するアリールチオ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、環形成炭素数 6 ～ 18 の上記アリール基を有するアリールチオ基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。

[0032] 前記モノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基としては、炭素数 1 ～ 50 の上記アルキル基及び環形成炭素数 6 ～ 60 の上記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が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数 1 ～ 18 の上記アルキル基及び環形成炭素数 6 ～ 25 の上記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が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数 1 ～ 8 の上記アルキル基及び環形成炭素数 6 ～ 18 の上記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が挙げられる。これらは更に置換されてい

てもよい。例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、イソプロピルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジメチルシリル基、*t*-ブチルジフェニルシリル基、トリトリルシリル基等が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。

前記ハロアルキル基としては、炭素数 1～50 の上記アルキル基の水素原子の 1 以上が、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）により置換されたものが挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数 1～18 の上記アルキル基の水素原子の 1 以上が、上記ハロゲン原子により置換されたものが挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数 1～8 の上記アルキル基の水素原子の 1 以上が、上記ハロゲン原子により置換されたものが挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。具体的にはトリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基が挙げられる。

[0033] 前記スルフォニル基としては、炭素数 1～50 の上記アルキル基又は環形成炭素数 6～60 の上記アリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数 1～18 の上記アルキル基又は環形成炭素数 6～25 の上記アリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数 1～8 の上記アルキル基又は環形成炭素数 6～18 の上記アリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。

前記ジ置換ホスフォルル基としては、炭素数 1～50 の上記アルキル基及び環形成炭素数 6～60 の上記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ルル基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。より好ましくは、炭素数 1～18 の上記アルキル基及び環形成炭素数 6～25 の上記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ルル基が挙げられる。これらは更に置換されていてもよい。更に好ましくは、炭素数 1～8

の上記アルキル基及び環形成炭素数 6 ～ 18 の上記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ルル基が挙げられる。これらは更に置換されていても良い。

前記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、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基としては、それぞれ、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有する基が挙げられる。

[0034] これらの中でも R 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 ～ 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環形成炭素数 6 ～ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換のアミノ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 60 のアリールオキシ基、置換のシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、又は、ニトロ基であると好ましい。これら各基の具体例としては前記と同じである。

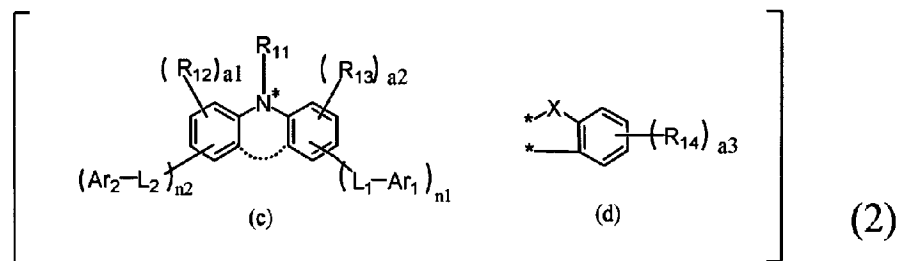
[0035] 複数の L はそれぞれ独立に単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 60 のアリーレン基を表し、L が単結合の場合、n0 は 1 を表し、L が置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 60 のアリーレン基の場合、n0 は 1 ～ 10 の整数を表す。

前記 L の示す環形成炭素数 6 ～ 60 のアリーレン基の具体例としては、上記 R で表される置換基のアリール基の例を 2 価としたアリーレン基が挙げられる。

n0 は、1 ～ 2 であると好ましく、1 であるとさらに好ましい。

[0036] D は、少なくとも 1 つのカルバゾール構造を含み、下記式 (2) で表される構造の 1 価の残基を表す。

[化4]



[0037] 式(2)において、

破線は、その両端の2つの炭素原子が単結合で結合されているか、又は、該2つの炭素原子は結合されていないことを表す。

L_1 及び L_2 は、それぞれ独立に、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基を表す。

Ar_1 及び Ar_2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素環の1価の残基を表す。

n_1 及び n_2 は、それぞれ独立に0～4の整数である。

N^* に結合する2つのベンゼン環、 Ar_1 及び Ar_2 が表す芳香族炭化水素環の少なくとも1つの環の隣接する2つの環形成炭素原子には式(d)が結合し、 Ar_1 及び Ar_2 が表す芳香族炭化水素環に式(d)が結合する場合、 Ar_1 及び Ar_2 は該芳香族炭化水素環と式(d)が結合して得られる構造の1価の残基を表す。

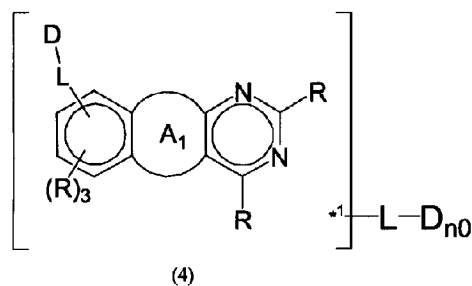
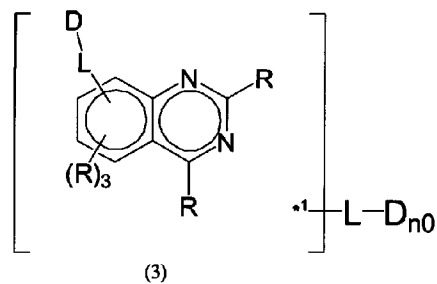
XはO、S、 PR_{15} 、 $SiR_{16}R_{17}$ 、 $CR_{18}R_{19}$ 、又は NR_{20} を表し、複数個の式(d)が結合している場合、複数のXは同一でも異なってもよい。

$R_{11} \sim R_{20}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_{11} \sim R_{20}$ の示す置換基の具体例としては、前記Rと同じである。

a_1 、 a_2 、及び a_3 は、それぞれ独立に0～4の整数を表す。

[0038] 前記式(1)で表される化合物は、下記式(3)又は(4)で表されると好ましい。

[化5]



[0039] 式(3)及び(4)において、R、L、D及び n_0 の定義は式(1)と同じである。

式(4)において、 A_1 は5員環、6員環又は縮合環を表す。

前記5員環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有する。

前記6員環が非芳香族環である場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有す。

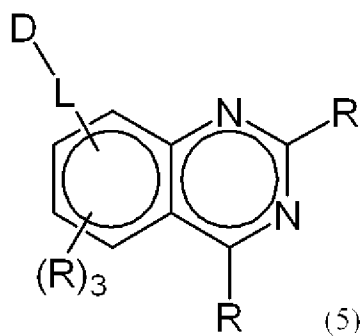
前記6員環が芳香族環である場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。

前記縮合環が非芳香族環を含む場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有す。

前記縮合環が芳香族環を含む場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。

[0040] 式(1)において、式(a)と(b)で構成される構造が、下記式(5)～(16)のいずれかで表されると好ましい。

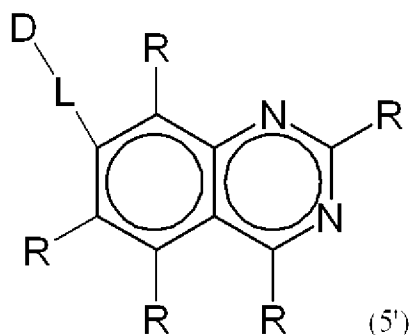
[化6]



(式 (5) において、R、L、及びDの定義は式 (1) と同じである。)

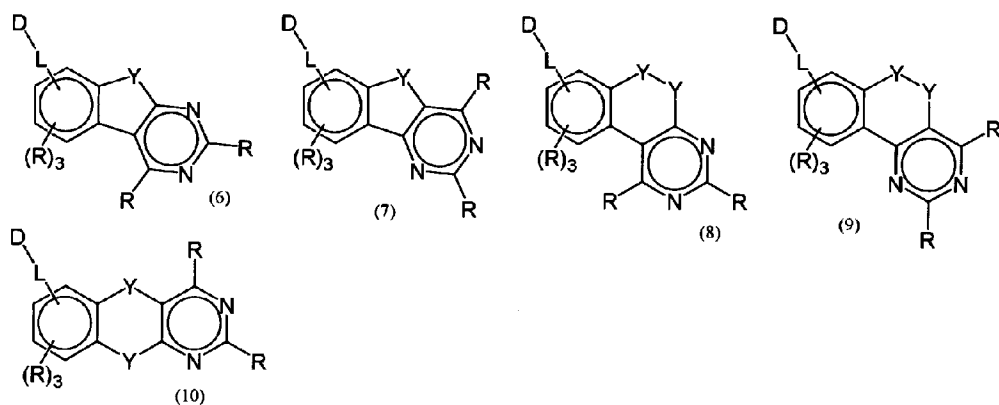
[0041] 上記 (5) で表される構造は、さらに下記式 (5') で表されると好ましい。

[化7]



(式 (5') において、R、L、及びDの定義は式 (1) と同じである。)

[0042] [化8]

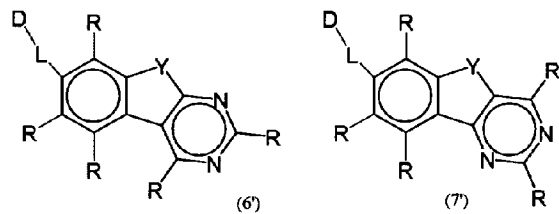


(式 (6) ~ (10) において、Yは、炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子

から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有する。R、L、及びDの定義は式（1）と同じである。）

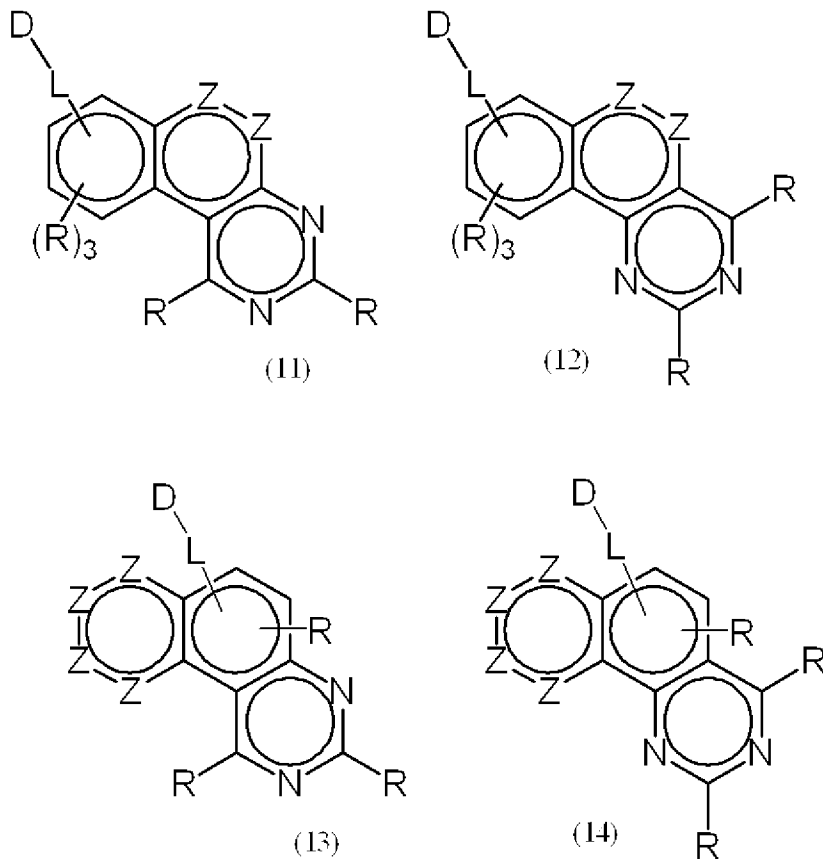
[0043] これらの中でも、式（6）又は（7）で表される構造が好ましく、式（6）又は（7）で表される構造は、さらに下記式（6'）又は（7'）で表されると好ましい。

[化9]



（式（6'）及び（7'）において、Yは、炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有する。R、L、及びDの定義は式（1）と同じである。）

[0044] [化10]

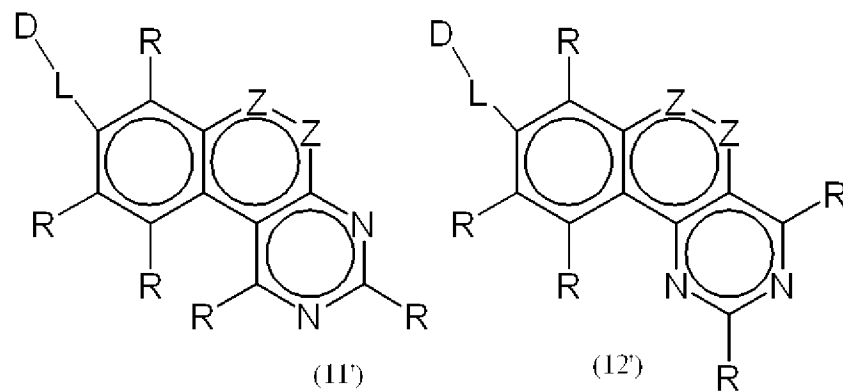


(式(11)～(14)において、Zは、炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。)

これらの中でも、式(11)、(12)で表される化合物が好ましく、式(11)、(12)におけるピリミジン環に結合する一つのRが単結合であって、それが*¹-L-D_nに結合すると好ましい。

[0045] 上記(11)、(12)で表される構造は、さらに下記式(11')又は(12')で表されると好ましい。

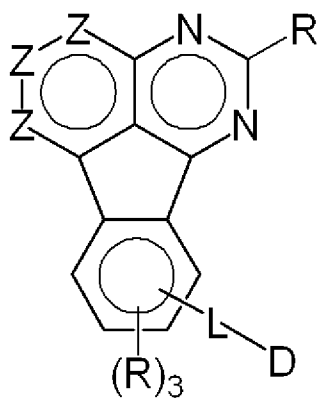
[化11]



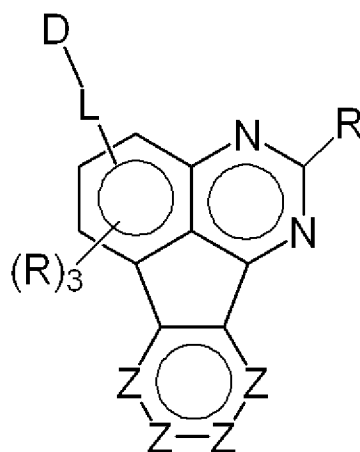
(式(11')～(12')において、Zは、炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。)

[0046]

[化12]



(15)



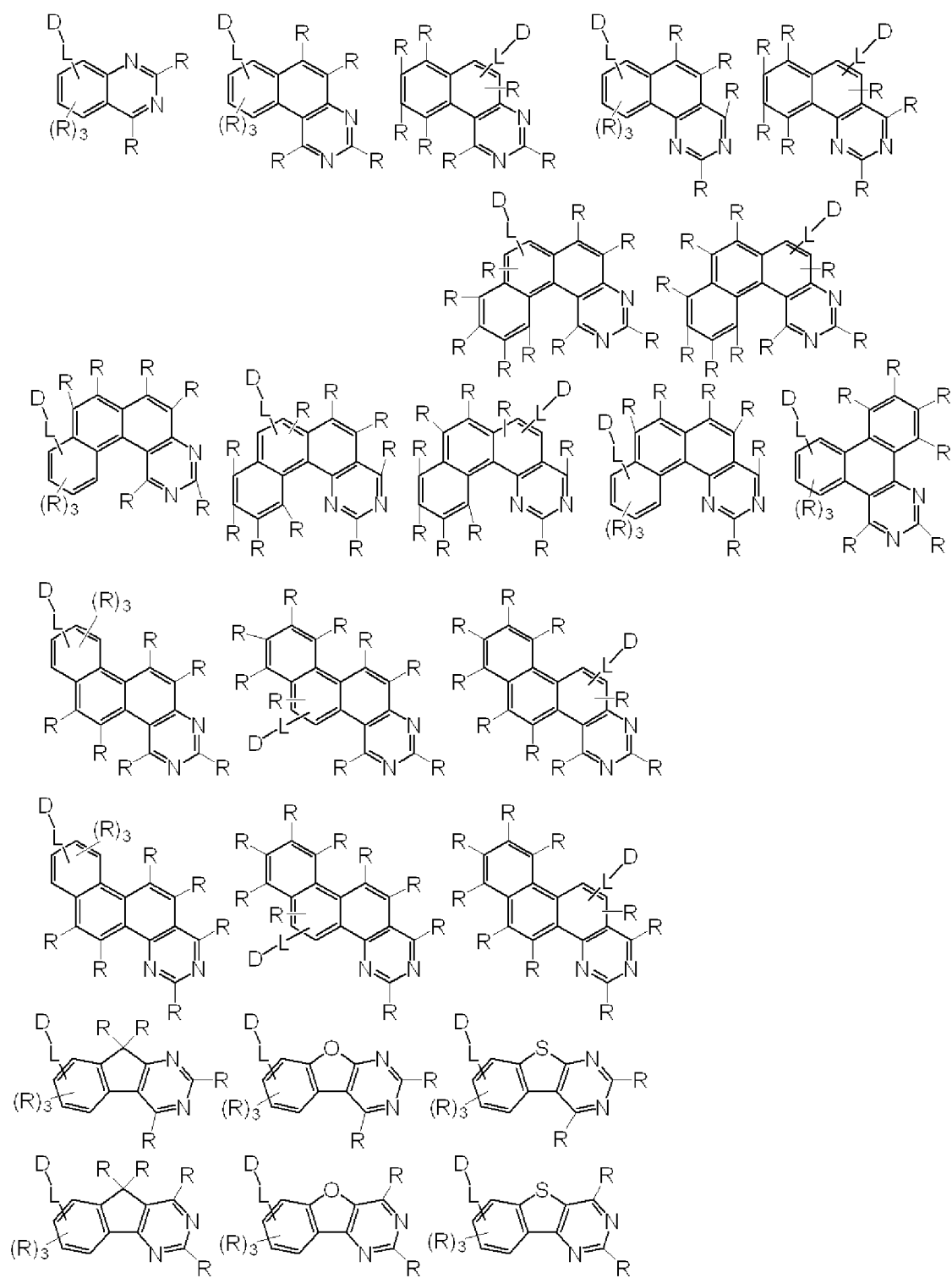
(16)

(式(15)～(16)において、Zは、炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。)

[0047] また、式(1)において、式(a)と(b)で構成される構造が、下記式のいずれかで表されると好ましい。式中、R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。

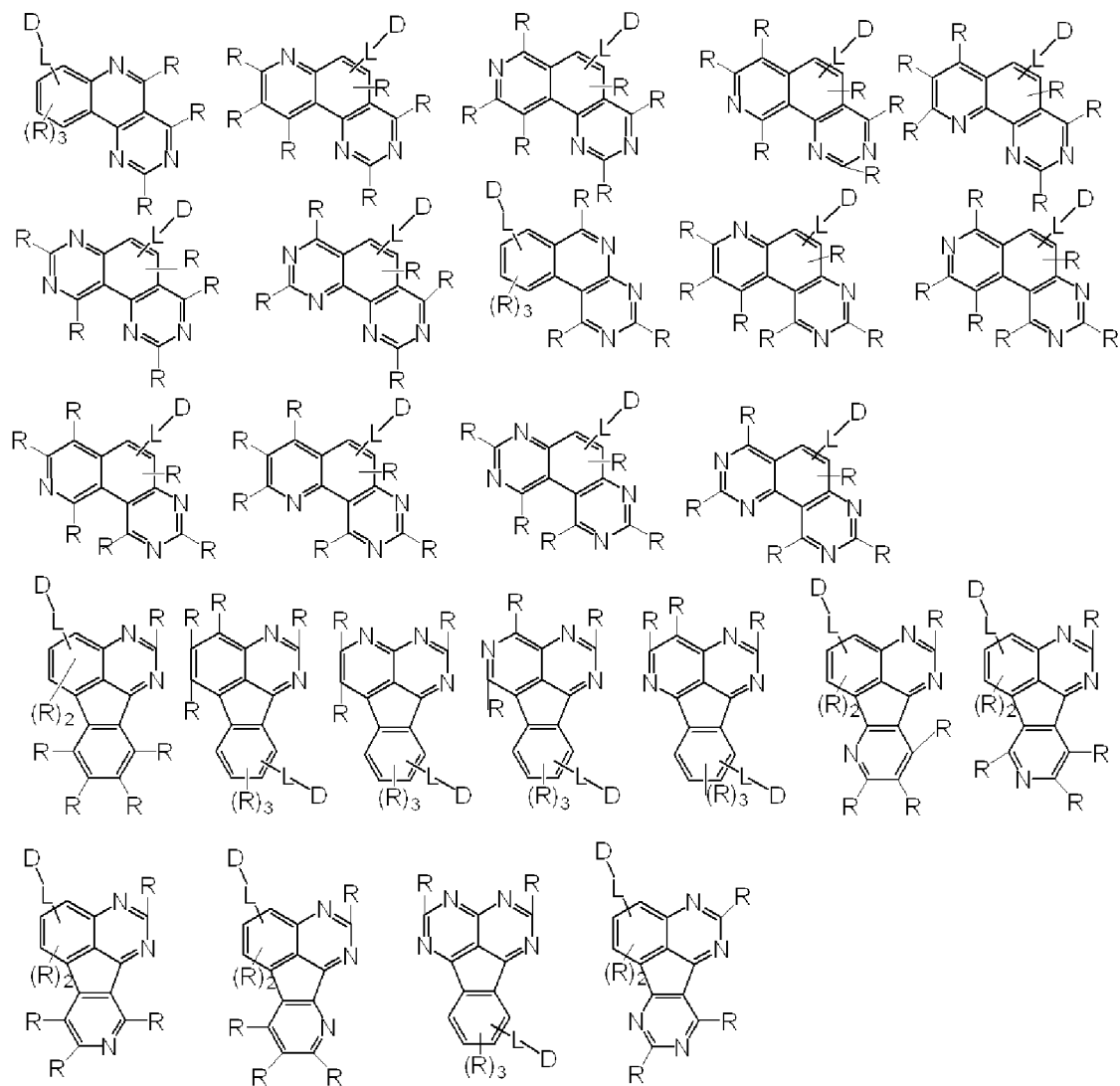
[0048]

[化13]



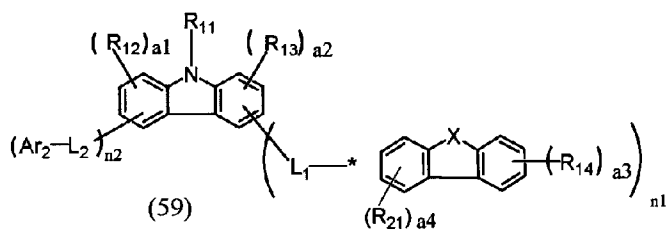
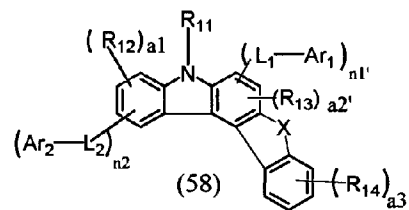
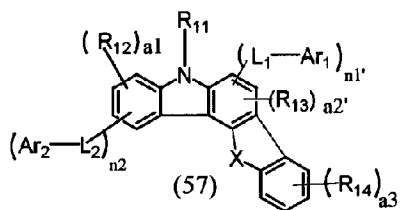
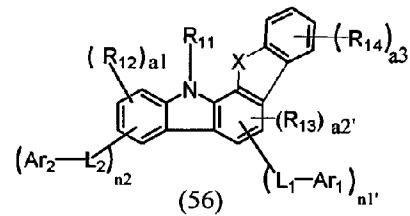
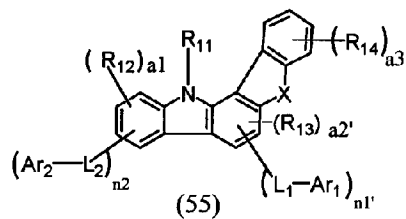
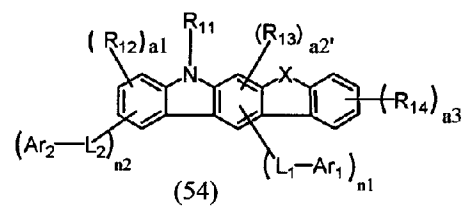
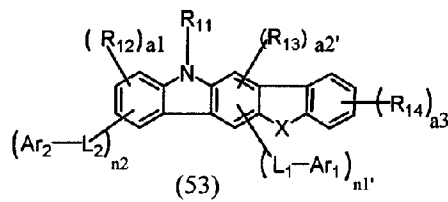
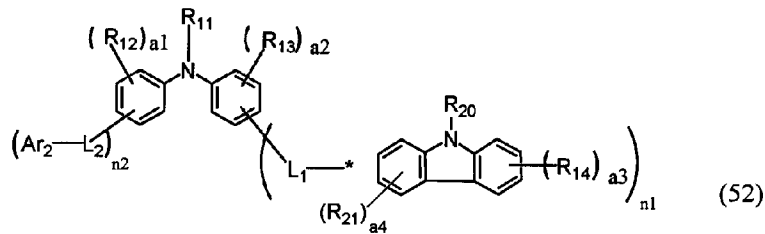
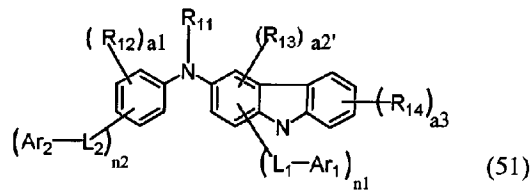
[0049]

[化14]



[0050] 前記Dの式(2)で表される構造が、下記式(51)～(59)のいずれかで表されると好ましい。

[化15]

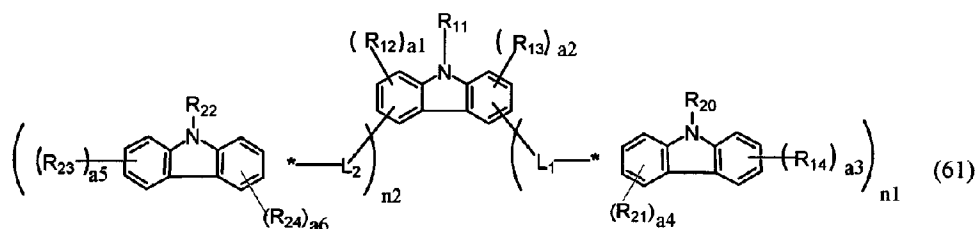
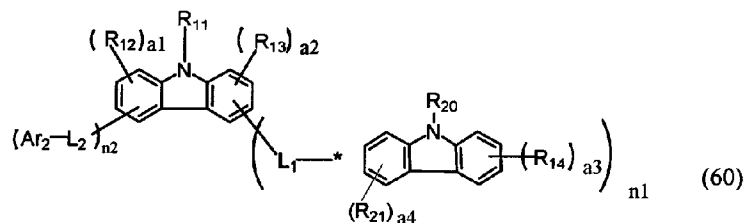


[0051] 式(51)～(59)において、X、 R_{11} ～ R_{14} 、 R_{20} 、 a_1 ～ a_3 、 n_1 ～ n_2 、 L_1 、 L_2 、 Ar_1 、 Ar_2 は、前記と同じである。 R_{21} は、水素原子又は置換基、 a_4 は、0～4の整数を表す。 a_2' 、 n_1' は、0～2の

整数を表す。R₂₁の示す置換基の具体例としては、前記Rと同じである。

[0052] また、前記Dの式(2)で表される構造が、下記式(60)又は(61)のいずれかで表されると好ましい。

[化16]

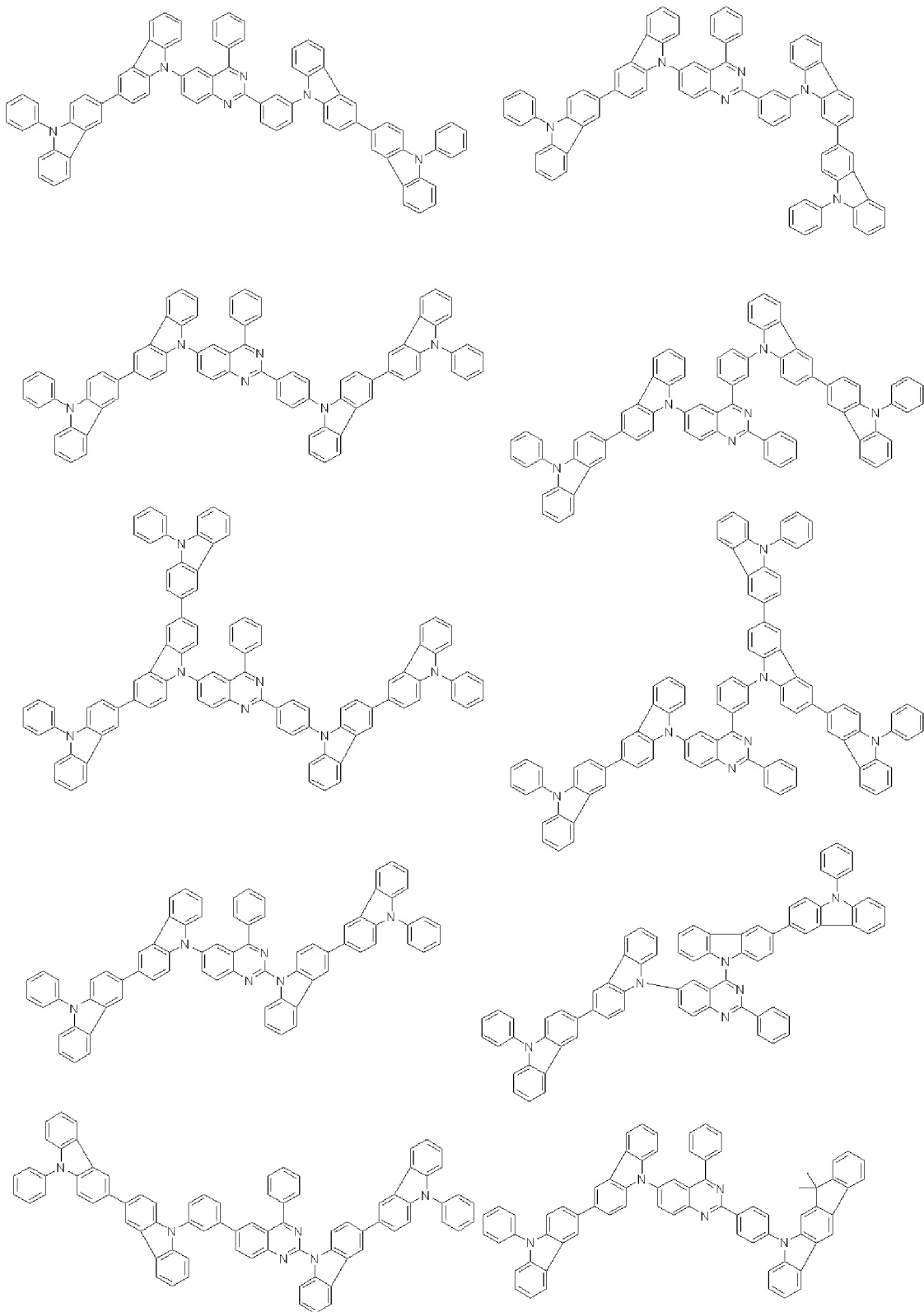


[0053] 式(60)～(61)において、R₁₁～R₁₄、R₂₀、a₁～a₃、n₁、n₂、L₁、L₂、Ar₂は、前記と同じである。R₂₁～R₂₄は、水素原子又は置換基、a₄～a₆は、0～4の整数を表す。R₂₁～R₂₄の示す置換基の具体例としては、前記Rと同じである。

[0054] これらの中でも、上記式(60)で表される構造が好ましく、L₁が単結合であるとさらに好ましい。

[0055] 以下に、化合物(1)の具体例を記載する。ただし、化合物(1)はそれら具体例に限定されるわけではない。

[化17]



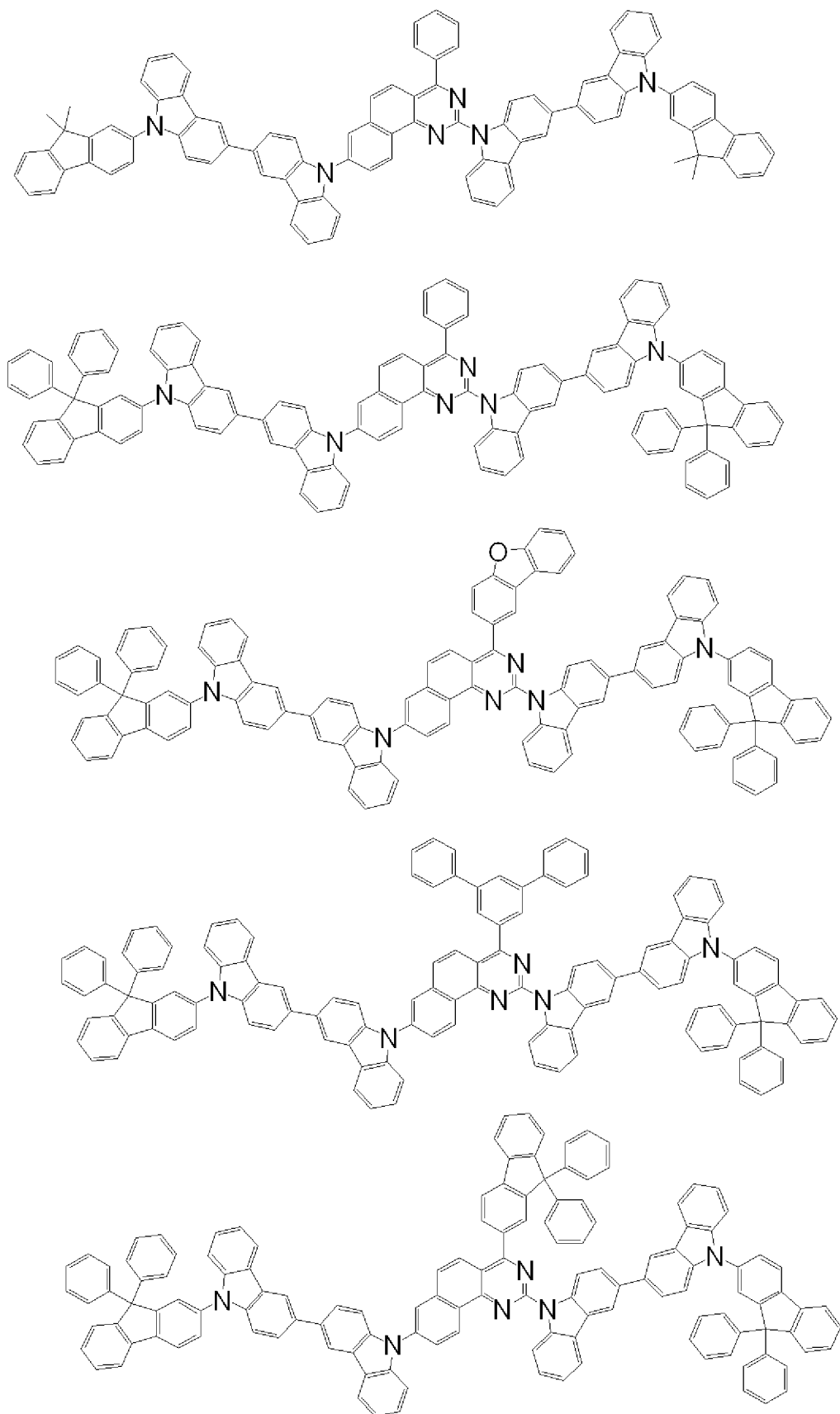
[0056]

[化18]

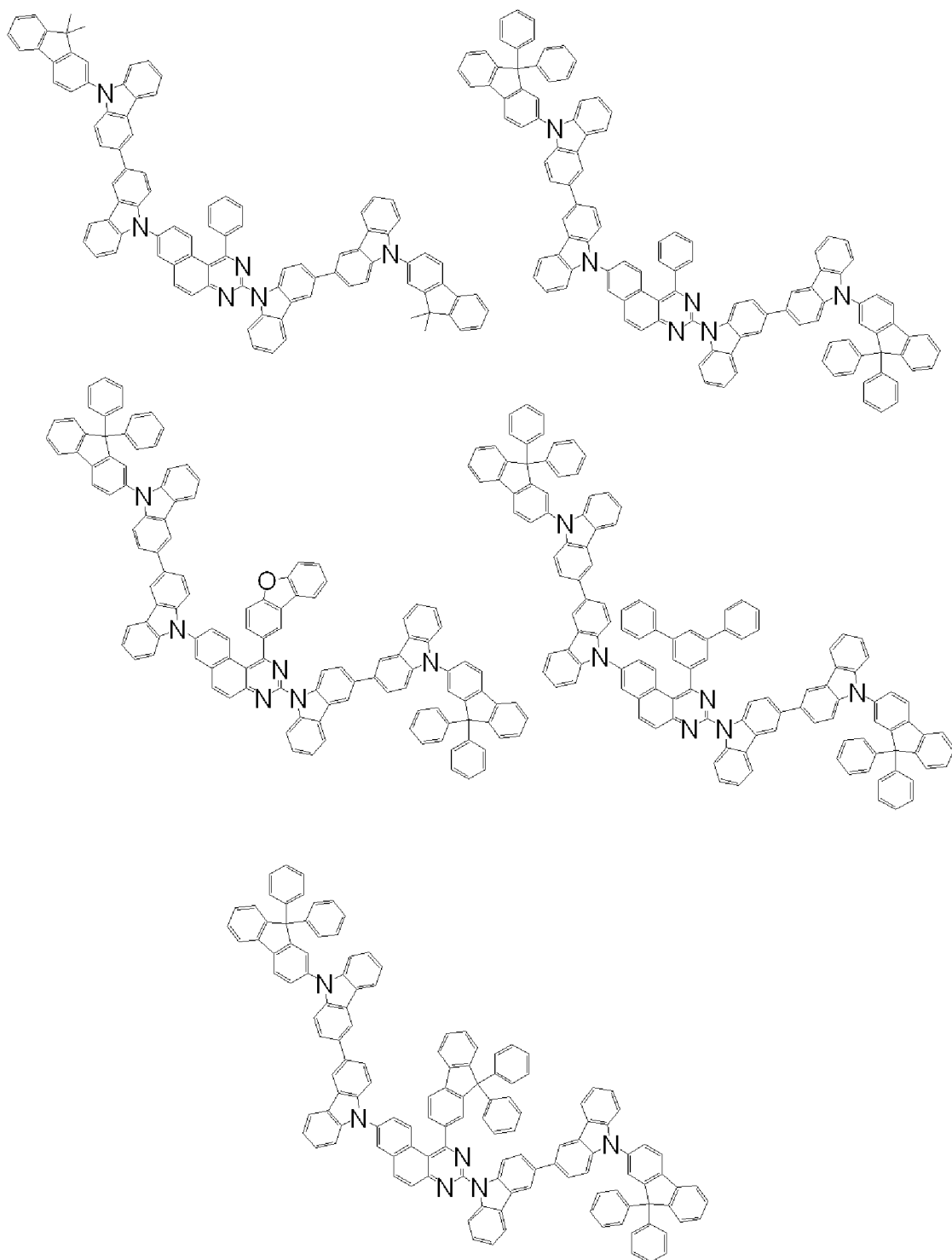


[0057]

[化19]

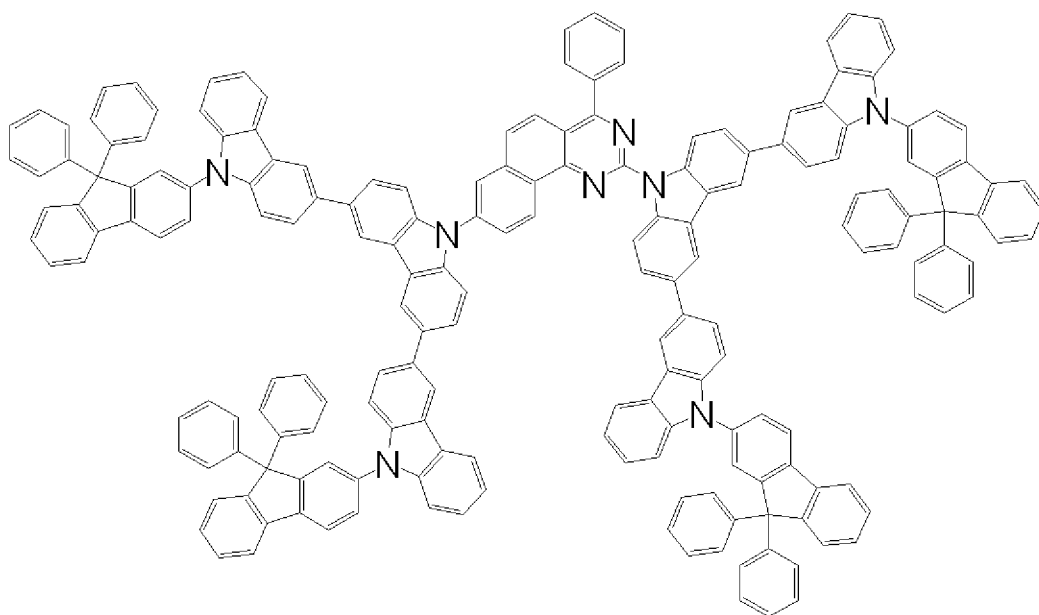
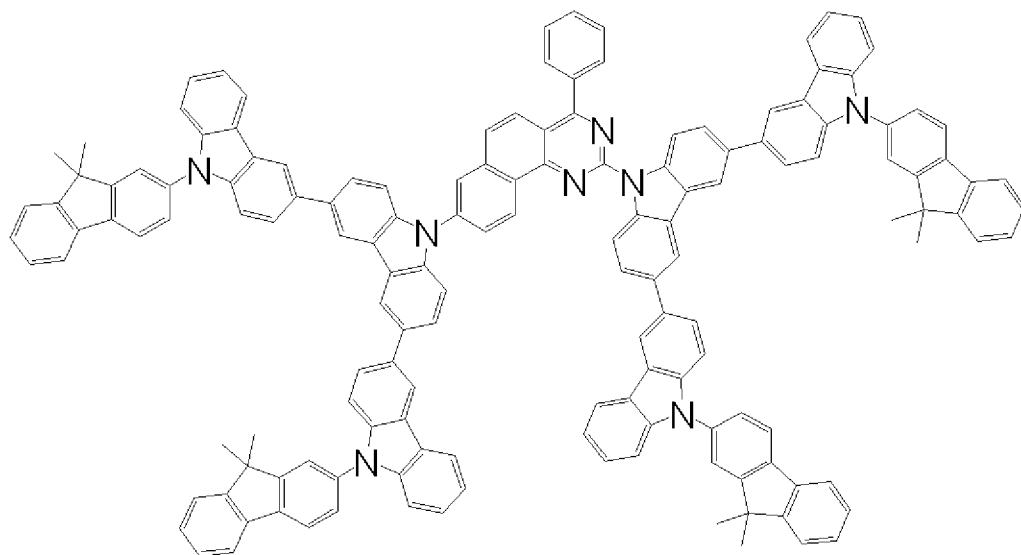


[0058] [化20]



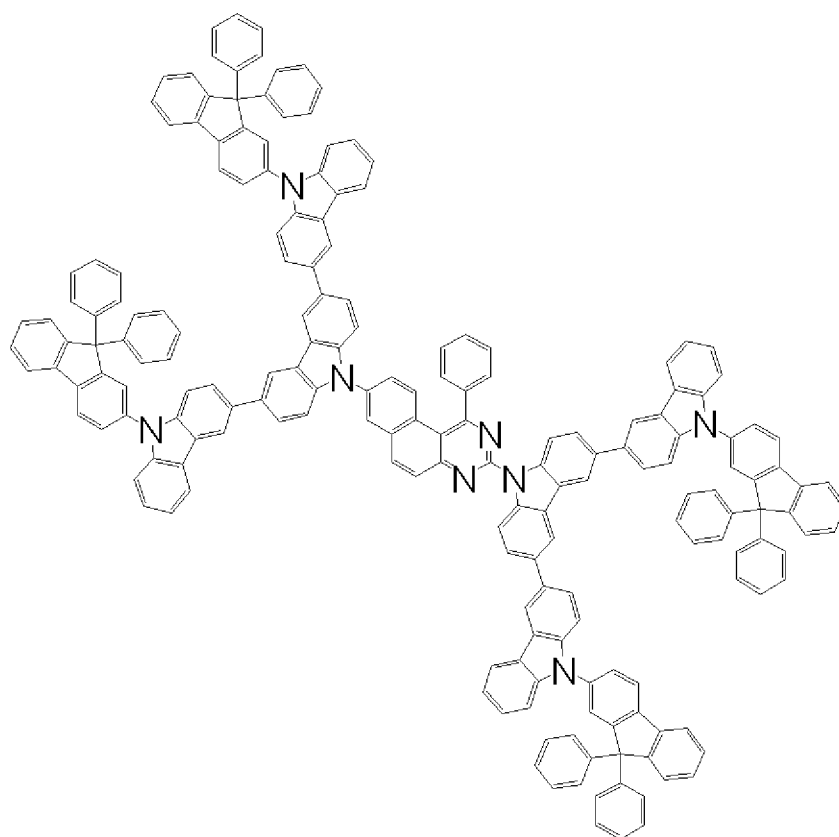
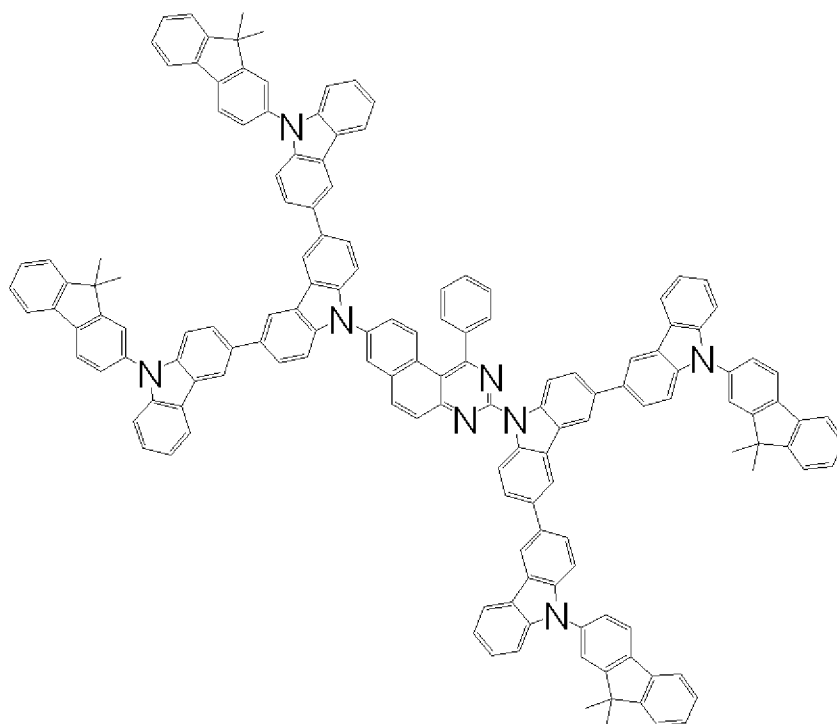
[0059]

[化21]



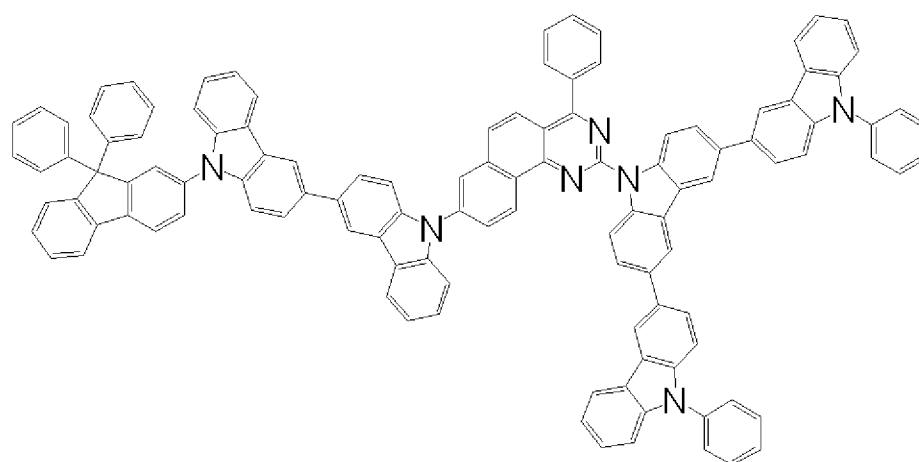
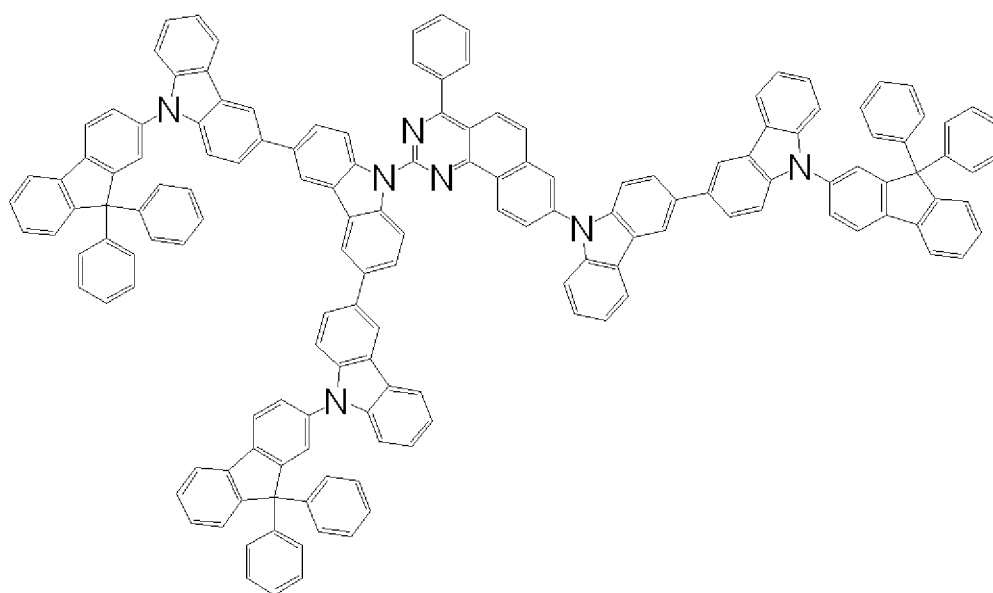
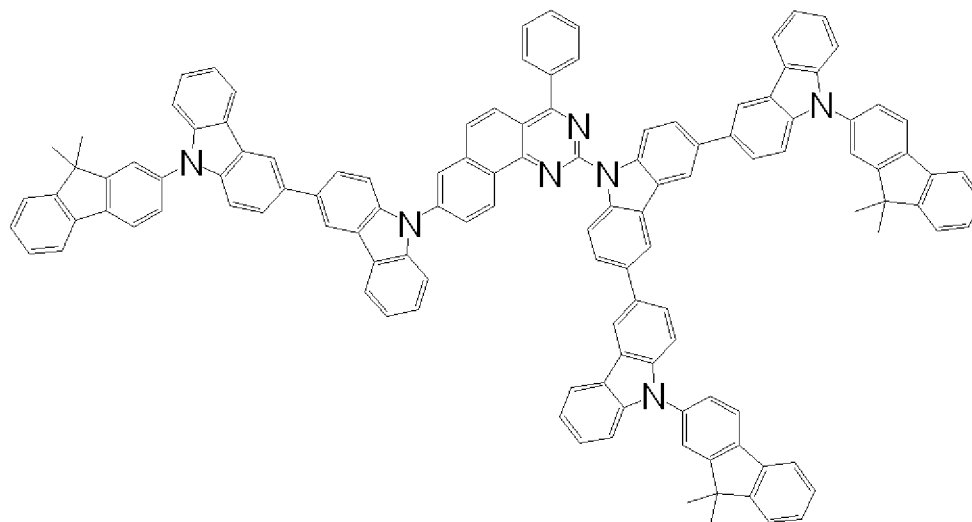
[0060]

[化22]

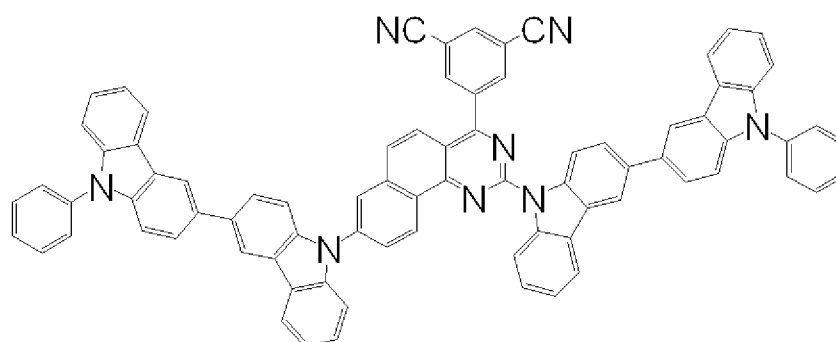
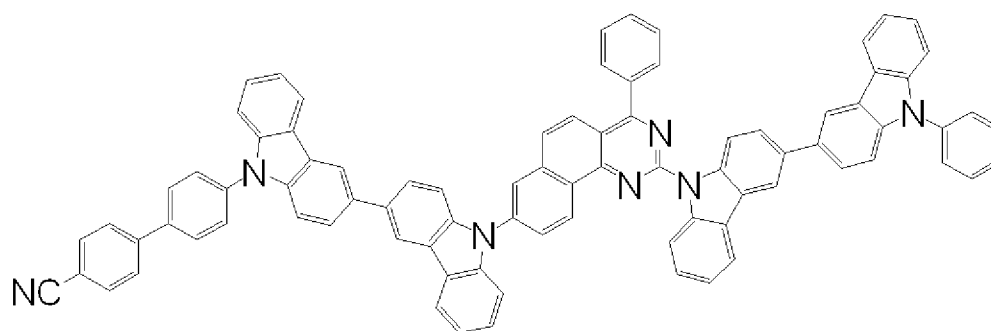
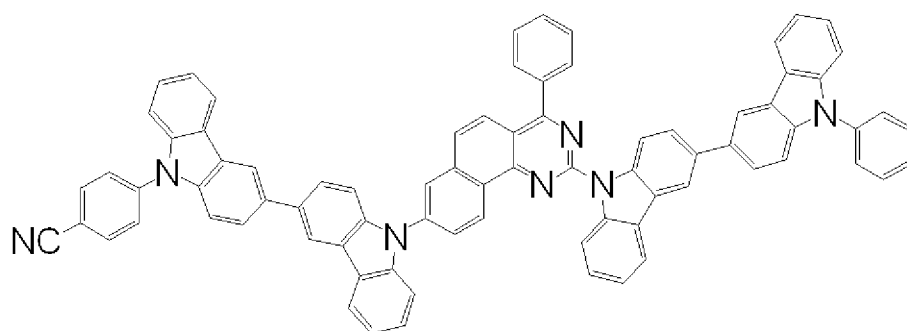
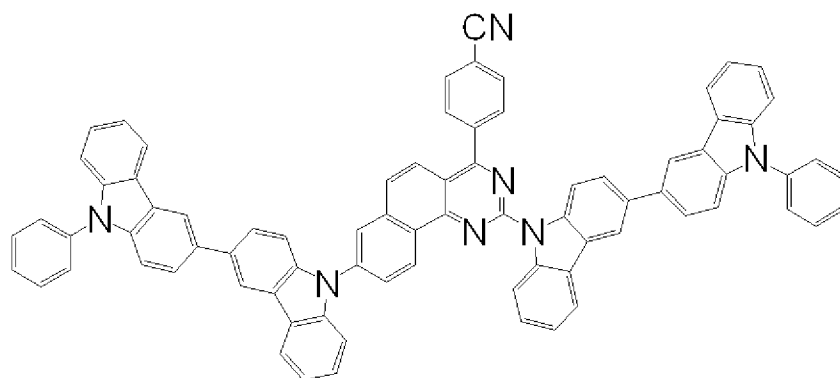


[0061]

[化23]



[0062] [化24]



[0063] [有機エレクトロルミネッセンス素子用材料]

本発明の一態様の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料（以後、「有機エレクトロルミネッセンス素子用材料」を「有機ＥＬ素子用材料」と略記することがある）について説明する。

本発明の一態様の有機ＥＬ素子用材料は、化合物（１）を含む。化合物（１）は有機ＥＬ素子における材料として有用である。

有機ＥＬ素子用材料中の化合物（１）の含有量は、１質量％以上であればよく、１０質量％以上であることが好ましく、５０質量％以上であることがより好ましく、８０質量％以上であることがさらに好ましく、９０質量％以上であることが特に好ましい。

本発明の一態様の有機ＥＬ素子用材料は、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料若しくはドーパント材料、又は燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料として用いることができる。この場合、発光層は本発明の一態様の有機ＥＬ素子用材料と蛍光発光材料又は燐光発光材料とを含有する。また、蛍光発光ユニット及び燐光発光ユニットのいずれにおいても、有機ＥＬ素子の陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層や、有機ＥＬ素子の陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層の材料、すなわち、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層、電子阻止層等の材料としても、本発明の一態様の有機ＥＬ素子用材料は有用である。

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１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。

[0064] [インク組成物]

本発明の一態様のインク組成物について説明する。

本発明の一態様のインク組成物は、溶媒と該溶媒中に溶解した化合物（１）とを含む。本発明の一態様のインク組成物は、有機ＥＬ素子を構成する有機薄膜層を形成するために使用することができる。

本発明の一態様のインク組成物は、化合物（１）以外に、正孔輸送材料、電子輸送材料、発光材料、アクセプター材料、安定剤等の添加剤を含んでもよい。

本発明の一態様のインク組成物は、粘度及び／又は表面張力を調節するための添加剤、例えば、増粘剤（高分子量化合物等）、粘度降下剤（低分子量化合物等）、界面活性剤等を含有していてもよい。また、保存安定性を改善するために、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等、有機ＥＬ素子の性能に影響しない酸化防止剤を含有していてもよい。

インク組成物中の化合物（１）の含有量は、０．１～１５質量％が好ましく、０．５～１０質量％がより好ましい。

[0065] 増粘剤として使用可能な高分子量化合物としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂及びそれらの共重合体、ポリ－Ｎ－ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂が挙げられる。

[0066] 前記溶媒としては、好ましくは有機溶媒であり、当該有機溶媒としては、例えばクロロホルム、クロロベンゼン、クロロトルエン、クロロキシレン、クロロアニソール、ジクロロメタン、ジクロロベンゼン、ジクロロトルエン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、トリクロロベンゼン、トリクロロメチルベンゼン、ブロモベンゼン、ジブロモベンゼン、ブromoアニソール等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジオキソラン、オキサゾール、メチルベンゾオキサゾール、ベンゾイソオキサゾール、フラン、フラザン、ベンゾフラン、ジヒドロベンゾフラン等のエーテル系溶媒、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、トリエチルベンゼン、トリメチルベンゼン、トリメトキシベンゼン、プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン、ジイソプロピルベンゼン、ジブチルベンゼン、アミルベンゼン、ジヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン、テトラメチルベンゼン、ドデシルベンゼン、ベン

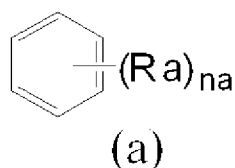
ゾニトリル、アセトフェノン、メチルアセトフェノン、メトキシアセトフェノン、トルイル酸エチルエステル、トルエン、エチルトルエン、メトキシトルエン、ジメトキシトルエン、トリメトキシトルエン、イソプロピルトルエン、キシレン、ブチルキシレン、イソプロピルキシレン、アニソール、エチルアニソール、ジメチルアニソール、トリメチルアニソール、プロピルアニソール、イソプロピルアニソール、ブチルアニソール、メチルエチルアニソール、アネトールアニシラルコール、安息香酸メチル、安息香酸エチル、安息香酸プロピル、安息香酸ブチル、ジフェニルエーテル、ブチルフェニルエーテル、ベンジルメチルエーテル、ベンジルエチルエーテル、メチレンジオキシベンゼン、メチルナフタレン、テトラヒドロナフタレン、アニリン、メチルアニリン、エチルアニリン、ブチルアニリン、ビフェニル、メチルビフェニル、イソプロピルビフェニル等の芳香族炭化水素系溶媒、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン、テトラデカン、デカリン、イソプロピルシクロヘキサン等の脂肪族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、アセトフェノン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセロソルブアセテート、安息香酸メチル、酢酸フェニル等のエステル系溶媒、エチレングリコール、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジメトキシエタン、プロピレングリコール、ジエトキシメタン、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、グリセリン、1, 2-ヘキサンジオール等の多価アルコール及びその誘導体、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、シクロヘキサノール等のアルコール系溶媒、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶媒、*N*-メチル-2-ピロリドン、*N*, *N*-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒が例示される。また、これらの有機溶媒は、単独で、又は複数組み合わせることができる。

[0067] 上記の溶媒のうち、溶解性、成膜の均一性、粘度特性等の観点から、少な

くともトルエン、キシレン、エチルベンゼン、アミルベンゼン、アニソール、4-メトキシトルエン、2-メトキシトルエン、1,2-ジメトキシベンゼン、メシチレン、テトラヒドロナフタレン、シクロヘキシルベンゼン、2,3-ジヒドロベンゾフラン、シクロヘキサノン、メチルシクロヘキサノンのいずれか1種以上を含むことが好ましい。

上記の溶媒の中でも、前記化合物と、沸点が110℃以上、且つ20℃での水への溶解度が1質量%以下である下記式(a)に記載の溶媒を用いることが、より好ましい。

[0068] [化25]



(式(a)中、それぞれ独立に、Raは炭素数1～20の置換基であり、naは0～6の整数を表す。)

[0069] 前記化合物と、沸点が110℃以上、且つ20℃での水への溶解度が1質量%以下である上記式(a)に記載の溶媒を含む成膜用の塗布液(インク組成物)であることが好ましい。また、成膜用の塗布液(インク組成物)には、必要に応じて粘度の調整剤、表面張力の調整材、架橋反応の開始剤、架橋反応の触媒を添加することもできる。尚、粘度の調整剤、表面張力の調整剤、架橋反応の開始剤、架橋反応の触媒は、膜中に残留しても素子特性に影響を与えないものを選択するか、成膜工程で膜中から除去できるものが望ましい。

[0070] [有機エレクトロルミネッセンス素子]

本発明の一態様の有機エレクトロルミネッセンス素子(以後、「有機エレクトロルミネッセンス素子」を「有機EL素子」と略記することがある)について説明する。

本発明の一態様の有機EL素子は、陰極と陽極の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層が化合物（１）を含む。

化合物（１）が含まれる有機薄膜層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層（正孔輸送層、正孔注入層等）、発光層、陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層（電子輸送層、電子注入層等）、スペース層、障壁層等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。化合物（１）は、上記いずれの層に含まれていてもよく、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料やドーパント材料、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料、発光ユニットの正孔輸送層、電子輸送層等として用いることができる。

[0071] 本発明の一態様の有機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く、中でも、燐光発光型であることが好ましい。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。

[0072] 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／第一燐光発光層／第二燐光発光層（／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）

（g）正孔輸送層／電子障壁層／発光層（／電子輸送層）

（h）正孔輸送層／発光層／正孔障壁層（／電子輸送層）

（i）正孔輸送層／蛍光発光層／トリプレット障壁層（／電子輸送層）

[0073] 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等が挙げられる。

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

[0074] 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。

[0075] 図1に、本発明の一態様の有機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10とを有する。発光ユニット10は、例えば、燐光ホ

スト材料と燐光ドーパント（燐光発光材料）を含む少なくとも1つの燐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・輸送層（陽極側有機薄膜層）6等、発光層5と陰極4との間に電子注入・輸送層（陰極側有機薄膜層）7等を形成してもよい。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。

[0076] なお、本明細書において、蛍光ドーパント（蛍光発光材料）と組み合わせられたホストを蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたホストを燐光ホストと称する。蛍光ホストと燐光ホスト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、燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を構成する材料を意味し、蛍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。蛍光ホストについても同様である。

[0077] （基板）

本発明の一態様の有機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、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を原料として用いてなるものを挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を原料として用いてなるものを挙げることができる。

[0078] （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、銅等が挙げられる。陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。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 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10nm~1 μ m、好ましくは10nm~200nmの範囲で選択される。

[0079] （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-銀合金等が使用できる。陰極も、陽極と同様に、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、必要に応じて、陰極側から発光を取り出してもよい。

[0080] （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（発光性の高い物質）を含んでいる。ドーパント材料としては、例えば、蛍光発光材料や燐光発光材料を用いることができる。蛍光発光材料は一重項励起状態から発光可能な化合物であり、燐光性化合物は三重項励起状態から発光可能な化合物である。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。

[0081] 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）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。

[0082] 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。

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もよい。

[0083] 発光層を形成する燐光ドーパント材料（燐光発光材料）は三重項励起状態から発光することのできる化合物であり、三重項励起状態から発光する限り特に限定されないが、Ir, Pt, Os, Au, Cu, Re及びRuから選択される少なくとも一つの金属と配位子とを含む有機金属錯体であることが好ましい。例えば、青色系の燐光ドーパント材料として、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体が使用される。具体的には、ビス[2-(4', 6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C2']イリジウム(III)テトラキス(1-ピラゾリル)ボラート（略称：FIr6）、ビス[2-(4', 6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C2']イリジウム(III)ピコリナート（略称：FIrpic）、ビス[2-(3', 5'-ビストリフルオロメチルフェニル)ピリジナト-N, C2']イリジウム(III)ピコリナート（略称：Ir(CF₃ppy)₂(pic)）、ビス[2-(4', 6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C2']イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：FIracac）などが挙げられる。

緑色系の燐光ドーパント材料としてイリジウム錯体等が使用される。具体

的には、トリス（２－フェニルピリジナト－N，C 2'）イリジウム（III）（略称：Ir（ppy）₃）、ビス（２－フェニルピリジナト－N，C 2'）イリジウム（III）アセチルアセトナート（略称：Ir（ppy）₂（acac））、ビス（１，２－ジフェニル－１－H－ベンゾイミダゾラト）イリジウム（III）アセチルアセトナート（略称：Ir（pbz）₂（acac））、ビス（ベンゾ[h]キノリナト）イリジウム（III）アセチルアセトナート（略称：Ir（bzq）₂（acac））などが挙げられる。

赤色系の燐光ドーパント材料として、イリジウム錯体、白金錯体、テルビウム錯体、ユーロピウム錯体等の金属錯体が使用される。具体的には、ビス[２－（２'－ベンゾ[４，５－α]チエニル）ピリジナト－N，C 3']イリジウム（III）アセチルアセトナート（略称：Ir（btp）₂（acac））、ビス（１－フェニルイソキノリナト－N，C 2'）イリジウム（III）アセチルアセトナート（略称：Ir（piq）₂（acac））、（アセチルアセトナト）ビス[２，３－ビス（４－フルオロフェニル）キノキサリナト]イリジウム（III）（略称：Ir（Fdpq）₂（acac））、２，３，７，８，１２，１３，１７，１８－オクタエチル－２１H，２３H－ポルフィリン白金（II）（略称：PtOEP）等の有機金属錯体が挙げられる。

また、トリス（アセチルアセトナト）（モノフェナントロリン）テルビウム（III）（略称：Tb（acac）₃（Phen））、トリス（１，３－ジフェニル－１，３－プロパンジオナト）（モノフェナントロリン）ユーロピウム（III）（略称：Eu（DBM）₃（Phen））、トリス[１－（２－テノイル）－３，３，３－トリフルオロアセトナト]（モノフェナントロリン）ユーロピウム（III）（略称：Eu（TTA）₃（Phen））等の希土類金属錯体は、希土類金属イオンからの発光（異なる多重度間の電子遷移）であるため、燐光性化合物として用いることができる。

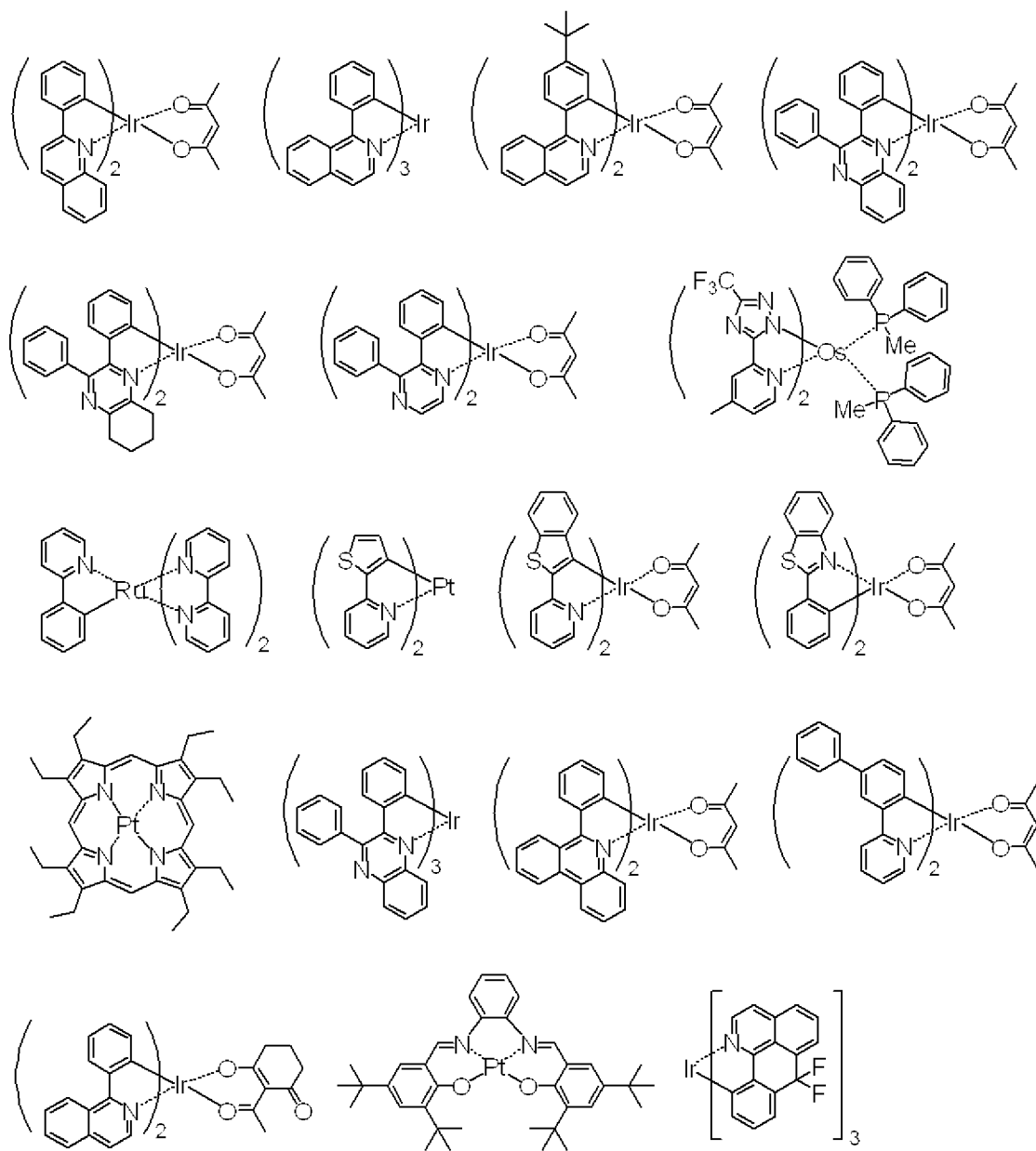
前記配位子は、オルトメタル結合を有することが好ましい。燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、Ir，Os及びPtから選ばれる金属原子を含有する金属錯体が好ましく

、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体、特にオルトメタル化錯体がより好ましく、イリジウム錯体及び白金錯体がさらに好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が特に好ましい。

[0084] 燐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%がより好ましい。燐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。

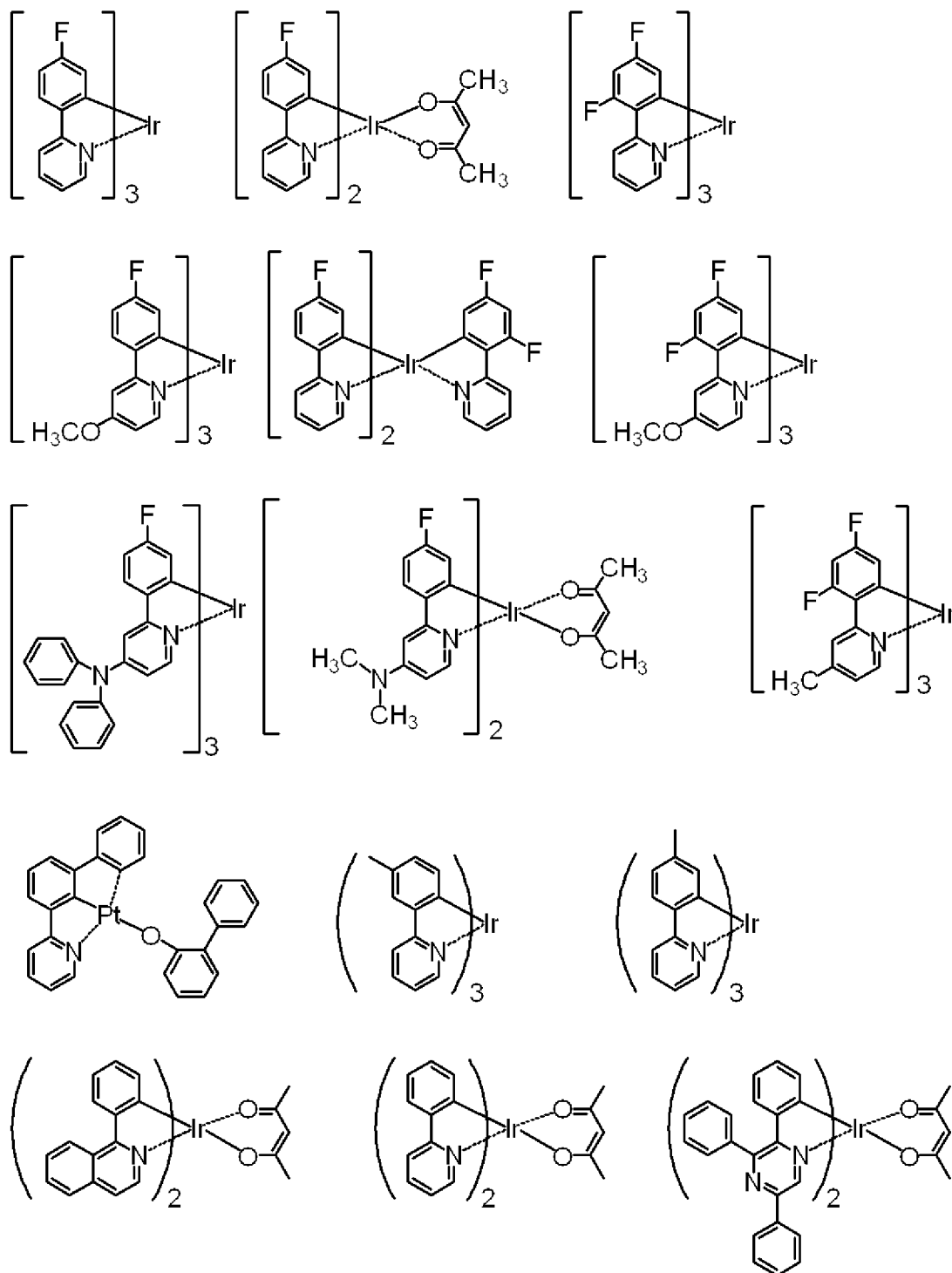
[0085] 燐光ドーパント材料として好ましい有機金属錯体の具体例を、以下に示す。

[化26]



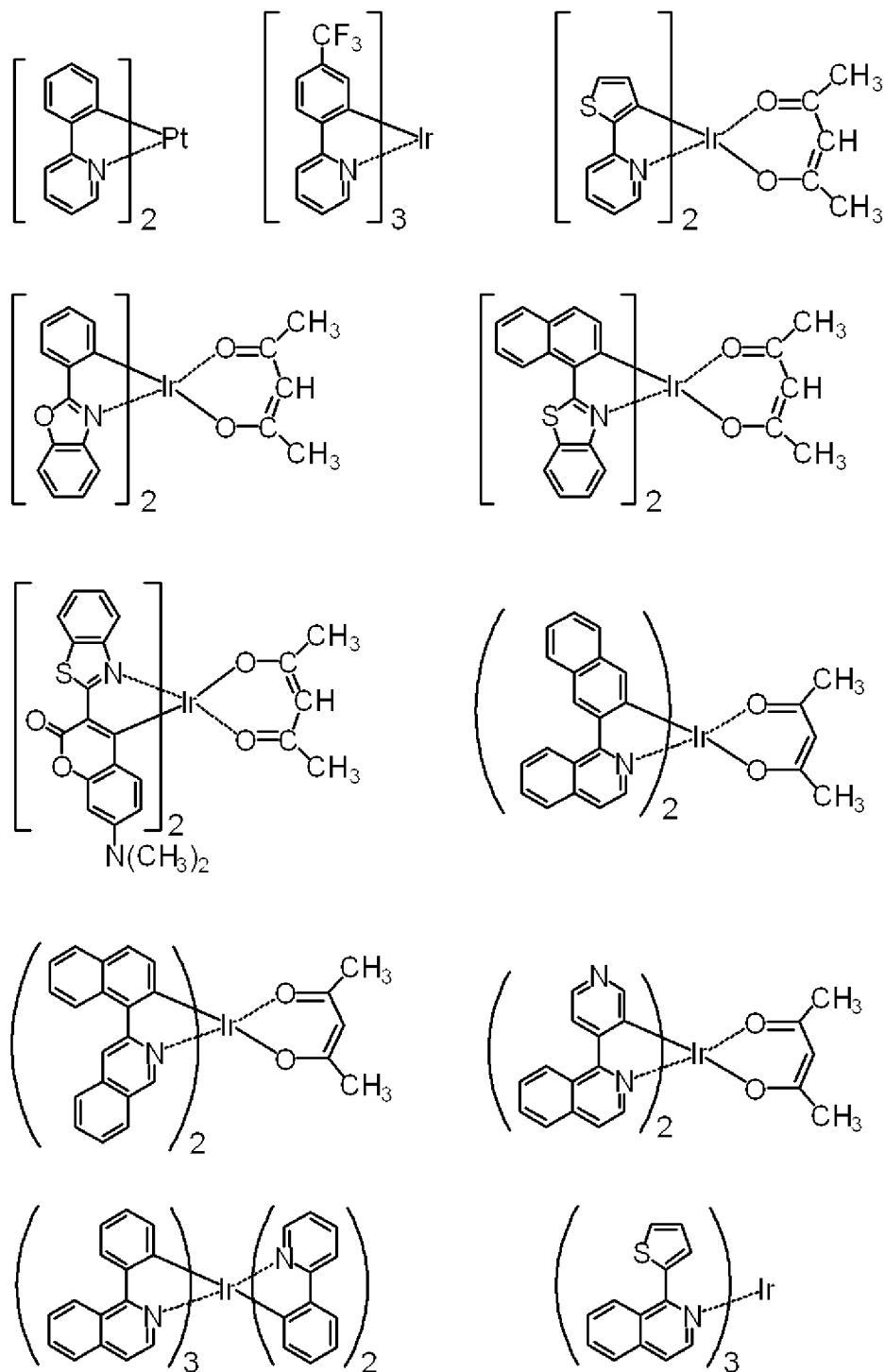
[0086]

[化27]



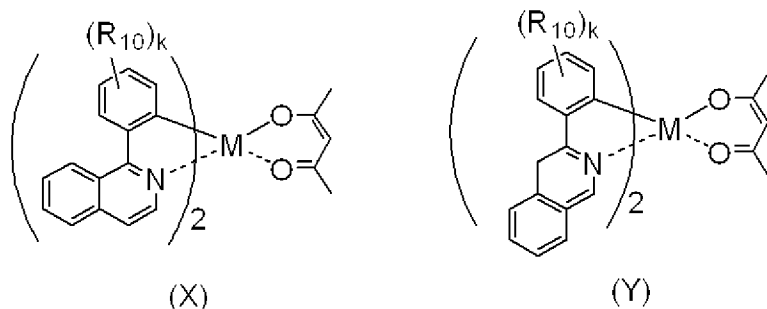
[0087]

[化28]



[0088] さらに、燐光ドーパント材料として、下記式 (X) 又は (Y) で表される錯体が好ましい。

[化29]



式 (X)、(Y) において、 R_{10} は、水素原子又は置換基であり、 k は、1～4 の整数である。M は、I r、O s、又は P t である。

R_{10} の示す置換基としては、上記式 (1) の $R_0 \sim R_8$ 等で例示した置換基と同様のものが挙げられる。

[0089] 本発明の一態様において、有機 E L 素子は蛍光発光材料を含有する発光層、つまり蛍光発光層を有していてもよい。蛍光発光層としては、公知の蛍光発光材料を使用できる。

本発明の一態様においては、青色系の蛍光発光材料として、ピレン誘導体、スチリルアミン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、フルオレン誘導体、ジアミン誘導体、トリアリールアミン誘導体等が使用できる。具体的には、N, N'-ビス [4 - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] - N, N'-ジフェニルスチルベン - 4, 4'-ジアミン (略称: Y G A 2 S)、4 - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) - 4' - (10 - フェニル - 9 - アントリル) トリフェニルアミン (略称: Y G A P A)、4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) - 4' - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) トリフェニルアミン (略称: P C B A P A) などが挙げられる。

緑色系の蛍光発光材料として、芳香族アミン誘導体等が使用でき、具体的には、N - (9, 10 - ジフェニル - 2 - アントリル) - N, 9 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン (略称: 2 P C A P A)、N - [9, 10 - ビス (1, 1' - ビフェニル - 2 - イル) - 2 - アントリル] - N, 9 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン (略称: 2 P C A B P h A

）、N－（9，10－ジフェニル－2－アントリル）－N，N’，N’－トリフェニル－1，4－フェニレンジアミン（略称：2DPAPA）、N－〔9，10－ビス（1，1’－ビフェニル－2－イル）－2－アントリル〕－N，N’，N’－トリフェニル－1，4－フェニレンジアミン（略称：2DPABPhA）、N－〔9，10－ビス（1，1’－ビフェニル－2－イル）〕－N－〔4－（9H－カルバゾール－9－イル）フェニル〕－N－フェニルアントラセン－2－アミン（略称：2YGABPhA）、N，N，9－トリフェニルアントラセン－9－アミン（略称：DPhAPhA）などが挙げられる。

赤色系の蛍光発光材料として、テトラセン誘導体、ジアミン誘導体等が使用でき、具体的には、N，N，N’，N’－テトラキス（4－メチルフェニル）テトラセン－5，11－ジアミン（略称：p－mPhTD）、7，14－ジフェニル－N，N，N’，N’－テトラキス（4－メチルフェニル）アセナフト〔1，2－a〕フルオランテン－3，10－ジアミン（略称：p－mPhAFD）などが挙げられる。

本発明の他の態様においては、該蛍光発光材料としては、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及びアリールアミン誘導体から選択される少なくとも1種が好ましく、アントラセン誘導体、アリールアミン誘導体がより好ましい。特に、ホスト材料としてはアントラセン誘導体が好ましく、ドーパント材料としてはアリールアミン誘導体が好ましい。具体的には、国際公開第2010／134350号や国際公開第2010／134352号に記載する好適な材料が選択される。前記化合物（1）及び前記有機EL素子用材料は、蛍光発光層の蛍光発光材料として用いてもよく、蛍光発光層のホスト材料として用いてもよい。

[0090] 上述した発光性の高い物質（ドーパント材料）を他の物質（ホスト材料）に分散させてもよい。ホスト材料としては、各種のものをを用いることができ、ドーパント材料よりも最低空軌道準位（LUMO準位）が高く、最高被占有軌道準位（HOMO準位）が低い物質を用いることが好ましい。

本発明の一態様において、ホスト材料としては、（１）アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、亜鉛錯体等の金属錯体、（２）オキサジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体等の複素環化合物、（３）カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、クリセン誘導体等の縮合芳香族化合物、（４）トリアリールアミン誘導体、縮合多環芳香族アミン誘導体等の芳香族アミン化合物が使用される。より具体的には、トリス（８－キノリノラト）アルミニウム（III）（略称：A l q）、トリス（４－メチル－８－キノリノラト）アルミニウム（III）（略称：A l m q 3）、ビス（１０－ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（II）（略称：B e B q 2）、ビス（２－メチル－８－キノリノラト）（４－フェニルフェノラト）アルミニウム（III）（略称：B A l q）、ビス（８－キノリノラト）亜鉛（II）（略称：Z n q）、ビス[２－（２－ベンゾオキサゾリル）フェノラト]亜鉛（II）（略称：Z n P B O）、ビス[２－（２－ベンゾチアゾリル）フェノラト]亜鉛（II）（略称：Z n B T Z）などの金属錯体、２－（４－ビフェニル）－５－（４－tert－ブチルフェニル）－１，３，４－オキサジアゾール（略称：P B D）、１，３－ビス[５－（p－tert－ブチルフェニル）－１，３，４－オキサジアゾール－２－イル]ベンゼン（略称：O X D－７）、３－（４－ビフェニル）－４－フェニル－５－（４－tert－ブチルフェニル）－１，２，４－トリアゾール（略称：T A Z）、２，２′，２″－（１，３，５－ベンゼントリイル）トリス（１－フェニル－１ H－ベンゾイミダゾール）（略称：T P B I）、バソフェナントロリン（略称：B P h e n）、バソキュプロイン（略称：B C P）などの複素環化合物や、９－[４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル]－９ H－カルバゾール（略称：C z P A）、３，６－ジフェニル－９－[４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル]－９ H－カルバゾール（略称：D P C z P A）、９，１０－ビス（３，５－ジフェニルフェニル）アントラセン（略称：D P P A）、９，１０－ジ（２－ナフチル）アントラセン（略称：D N A）、２－tert

ーブチル-9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称: t-BuDNA)、9, 9'-ビアントリル(略称: BANT)、9, 9'-(スチルベン-3, 3'-ジイル)ジフェナントレン(略称: DPNS)、9, 9'-(スチルベン-4, 4'-ジイル)ジフェナントレン(略称: DPNS2)、3, 3', 3''-(ベンゼン-1, 3, 5-トリイル)トリピレン(略称: TPB3)、9, 10-ジフェニルアントラセン(略称: DPAnth)、6, 12-ジメトキシ-5, 11-ジフェニルクリセンなどの縮合芳香族化合物、N, N-ジフェニル-9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン(略称: CzA1PA)、4-(10-フェニル-9-アントリル)トリフェニルアミン(略称: DP h PA)、N, 9-ジフェニル-N-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン(略称: PCAPA)、N, 9-ジフェニル-N-{4-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]フェニル}-9H-カルバゾール-3-アミン(略称: PCAPBA)、N-(9, 10-ジフェニル-2-アントリル)-N, 9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン(略称: 2PCAPA)、NPB(または α -NPD)、TPD、DFLDPBi、BSPBなどの芳香族アミン化合物などを用いることができる。

[0091] 燐光ホストは、燐光ドーパントの三重項エネルギーを効率的に発光層内に閉じ込めることにより、燐光ドーパントを効率的に発光させる機能を有する化合物である。前記化合物(1)及び該化合物(1)を含む有機EL素子用材料は燐光ホストとして有用であるが、前記化合物(1)以外の化合物も、燐光ホストとして、目的に応じて適宜選択することができる。また、前記化合物(1)及び有機EL素子用材料は、燐光ホストへの適用に限定されない。

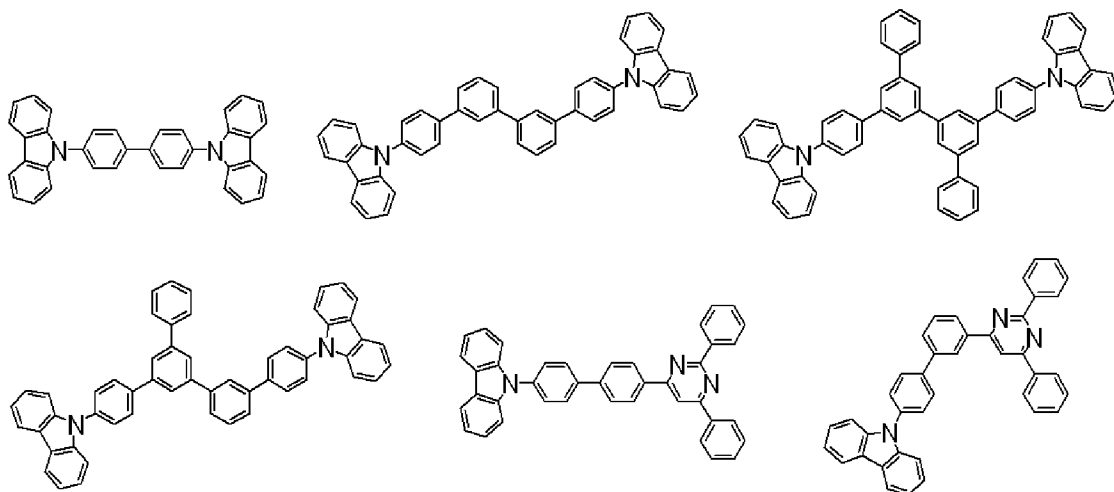
前記化合物(1)とそれ以外の化合物を同一の発光層内の燐光ホスト材料として併用してもよいし、複数の発光層がある場合には、そのうちの一つの発光層の燐光ホスト材料として前記化合物(1)を用い、別の一つの発光層

の燐光ホスト材料として前記化合物（１）以外の化合物を用いてもよい。また、前記化合物（１）は発光層以外の有機層にも使用しうるものであり、その場合には発光層の燐光ホストとして、前記化合物（１）以外の化合物を用いてもよい。

[0092] 前記化合物（１）以外の化合物で、燐光ホストとして好適な化合物の具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、８－キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体ポリシラン系化合物、ポリ（Ｎ－ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。燐光ホストは単独で使用しても良いし、２種以上を併用しても良い。具体例としては、以下のような化合物が挙げられる。

[0093]

[化30]



[0094] (電子供与性ドーパント)

本発明の一態様において、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とは、仕事関数3.8 eV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等から選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

[0095] アルカリ金属としては、Na (仕事関数: 2.36 eV)、K (仕事関数: 2.28 eV)、Rb (仕事関数: 2.16 eV)、Cs (仕事関数: 1.95 eV) 等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。アルカリ土類金属としては、Ca (仕事関数: 2.9 eV)、Sr (仕事関数: 2.0 eV~2.5 eV)、Ba (仕事関数: 2.52 eV) 等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

[0096] アルカリ金属化合物としては、Li₂O、Cs₂O、K₂O等のアルカリ酸化

物、 LiF 、 NaF 、 CsF 、 KF 等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、 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 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$)、 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$)等が挙げられ、 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 等が挙げられ、 YbF_3 、 ScF_3 、 TbF_3 が好ましい。

[0097] アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 β -ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

[0098] 電子供与性ドーパントは界面領域に層状又は島状に形成するのが好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパントを蒸着しながら、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を分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で前記有機化合物：電子供与性ドーパント＝100：1～1：100、好ましくは5：1～1：5である。

[0099] 電子供与性ドーパントを層状に形成する場合は、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）を層状に形成した後に、電子供与性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1 nm～15 nmで形成する。電子供与性ドーパントを島状に形成する場合は、

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）を島状に形成した後に、電子供与性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05nm～1nmで形成する。

前記有機化合物と電子供与性ドーパントの割合は、モル比で5：1～1：5であると好ましく、2：1～1：2であるとさらに好ましい。

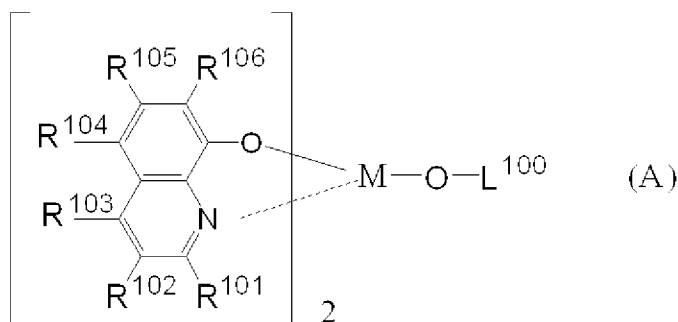
[0100]（電子輸送層）

電子輸送層は、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。本発明の一態様の化合物（1）は、電子輸送層（第2の電荷輸送材料）に含有される電子輸送材料として用いることもできる。

[0101] 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。

[0102] [化31]



[0103] 式（A）におけるR¹⁰¹～R¹⁰⁶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1～5)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1～5)のアルコキシ基、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、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5～50(好ましくは5～30、より好ましくは5～20)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。

[0104] ハロゲン原子としては、例えば、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

置換されていてもよいアミノ基の例としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基が挙げられる。

アルキルアミノ基及びアラルキルアミノ基は $-NQ^1Q^2$ と表される。 Q^1 及び Q^2 は、それぞれ独立に、炭素数1～20のアルキル基又は炭素数1～20のアラルキル基を表す。 Q^1 及び Q^2 の一方は水素原子であってもよい。

アリールアミノ基は $-NAr^1Ar^2$ と表され、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ独立に、炭素数6～50の非縮合芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を表す。 Ar^1 及び Ar^2 の一方は水素原子であってもよい。

[0105] 炭素数1～40の炭化水素基はアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、及びアラルキル基を含む。

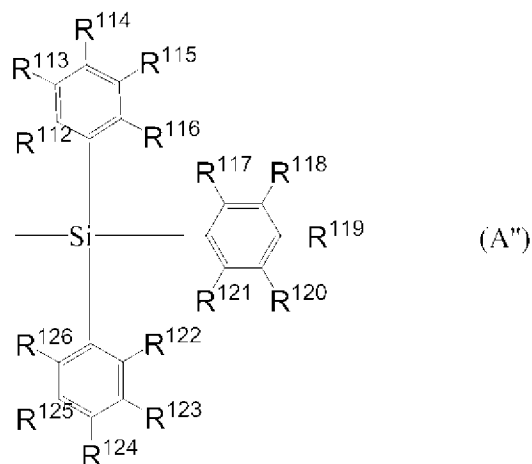
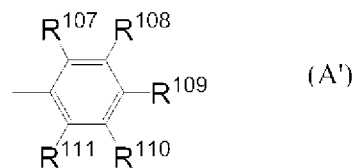
アルコキシカルボニル基は $-COOY'$ と表され、 Y' は炭素数1～20のアルキル基を表す。

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。

L^{100} は、下記式(A')又は(A'')で表される基である。

[0106]

[化32]



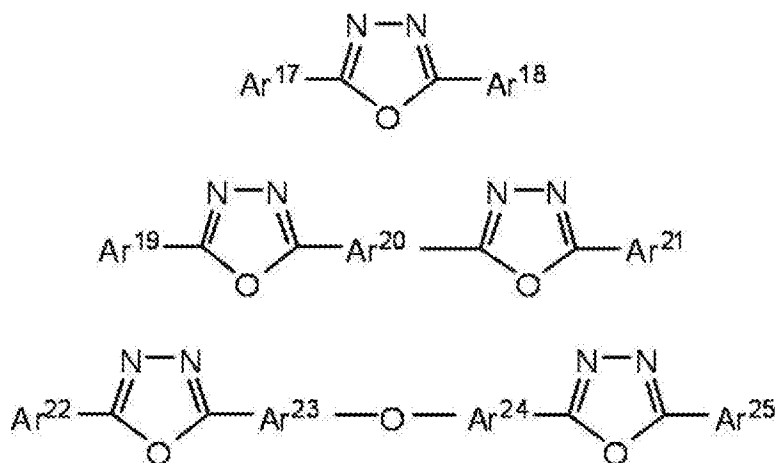
[0107] 式 (A') 中、R¹⁰⁷～R¹¹¹は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換もしくは無置換の炭素数 1～40 (好ましくは 1～20、より好ましくは 1～10、さらに好ましくは 1～5) の炭化水素基であり、R¹⁰⁷～R¹¹¹のうちの 2 つ以上が結合して環状構造を形成していてもよい。また、前記式 (A'') 中、R¹¹²～R¹²⁶は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数 1～40 (好ましくは 1～20、より好ましくは 1～10、さらに好ましくは 1～5) の炭化水素基であり、R¹¹²～R¹²⁶のうちの 2 つ以上が結合して環状構造を形成していてもよい。

[0108] 式 (A') 及び式 (A'') の R¹⁰⁷～R¹²⁶が示す炭素数 1～40 の炭化水素基は、前記式 (A) 中の R¹⁰¹～R¹⁰⁶が示す炭化水素基と同様である。また、R¹⁰⁷～R¹¹¹のうちの 2 つ以上が結合して環状構造を形成した場合及び R¹¹²～R¹²⁶のうちの 2 つ以上が結合して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。

[0109] 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。上記 8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシン（一般に 8-キノリノール又は 8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウムを用いることができる。そして、オキサジアゾール誘導体としては、下記のを挙げるができる。

[0110] [化33]



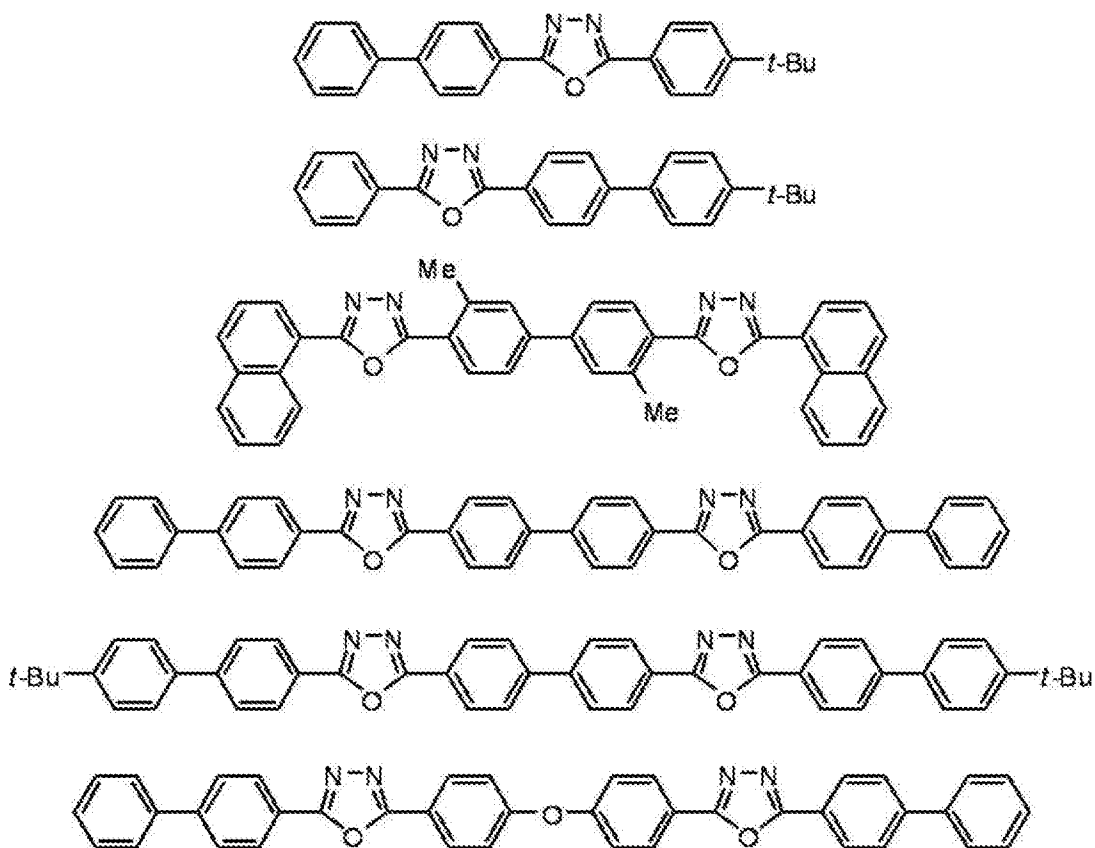
[0111] 前記式中、 Ar^{17} 、 Ar^{18} 、 Ar^{19} 、 Ar^{21} 、 Ar^{22} 及び Ar^{25} は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数 6～50 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{17} と Ar^{18} 、 Ar^{19} と Ar^{21} 、 Ar^{22} と Ar^{25} は、たがいに同一でも異なってもよい。芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 1～10 のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

[0112] Ar^{20} 、 Ar^{23} 及び Ar^{24} は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数 6～60 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{23} と Ar^{24} は、たがいに同一でも異なってもよい。2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 1～1

Oのアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

[0113] 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、下記のを挙げる事ができる。

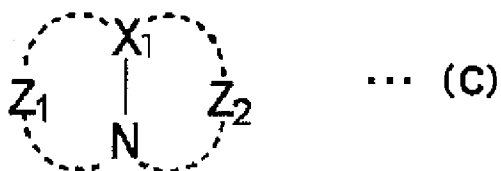
[0114] [化34]



[0115] 電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、下記式（B）に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記式（C）に示す構造のものが挙げられる。

[0116]

[化35]



[0117] 前記式 (C) 中、 X_1 は炭素原子もしくは窒素原子を表す。 Z_1 ならびに Z_2 は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

[0118] 含窒素複素環誘導体は、さらに好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物である。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記式 (B) と (C) もしくは上記式 (B) と下記式 (D) を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物が好ましい。

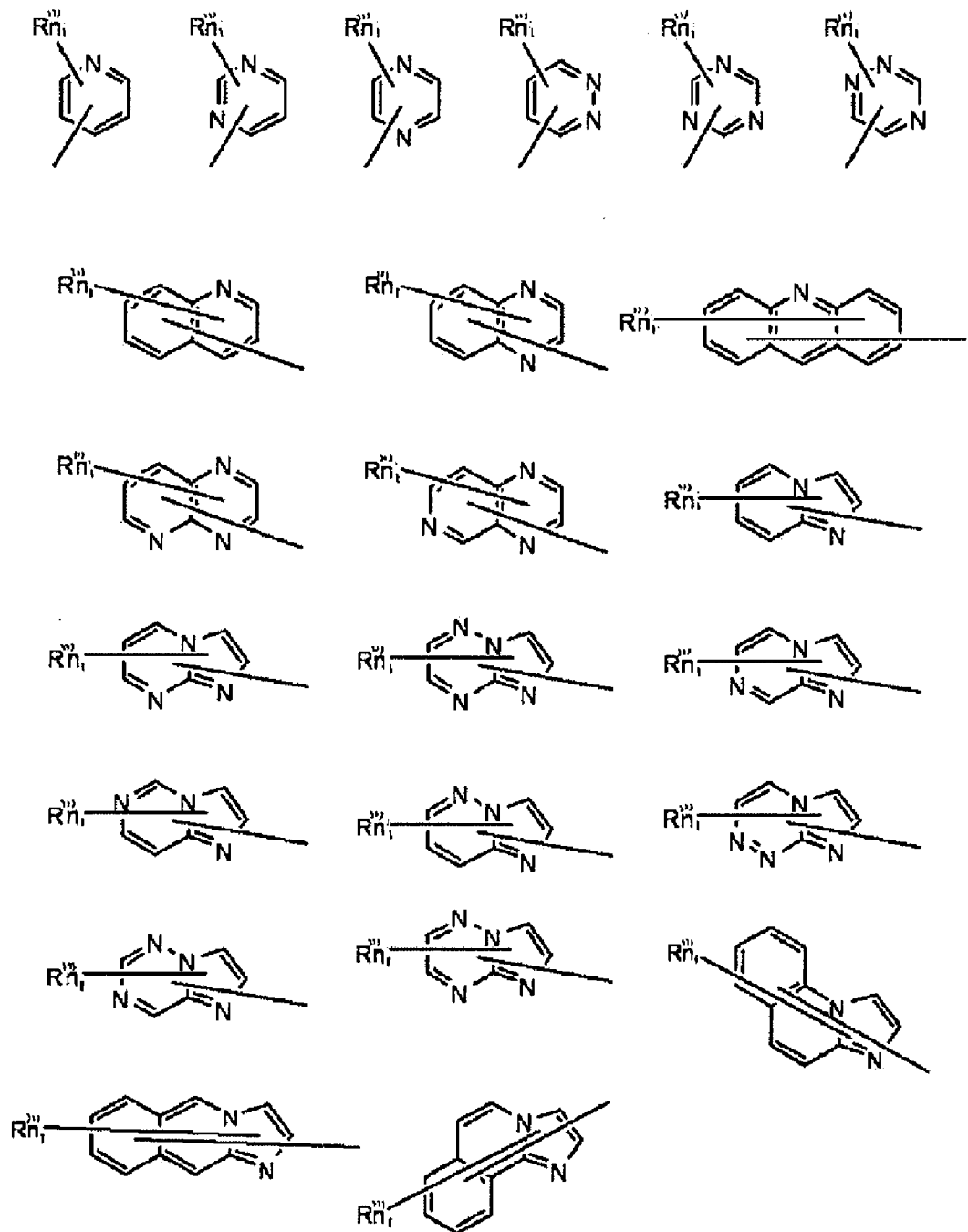
[0119] [化36]



[0120] 前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の式で表される含窒素複素環基から選択される。

[0121]

[化37]

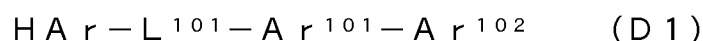


[0122] 前記各式中、 R'' は、環形成炭素数 6～40（好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～12）の芳香族炭化水素基又は環形成炭素数 6～40（好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～12）の縮合芳香族炭化水素基、環形成原子数 5～40（好ましくは 5～30、より好ましくは 5～20、さらに好ましくは 5

～12)の芳香族複素環基又は環形成原子数5～40(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)縮合芳香族複素環基、炭素数1～20(好ましくは1～10、より好ましくは1～5)のアルキル基、又は炭素数1～20(好ましくは1～10、より好ましくは1～5)のアルコキシ基である。

n_1 は0～5の整数であり、 n_1 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もよい。

[0123] さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式(D1)で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。



前記式(D1)中、HArは、置換もしくは無置換の環形成原子数5～40(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)の含窒素複素環基であり、

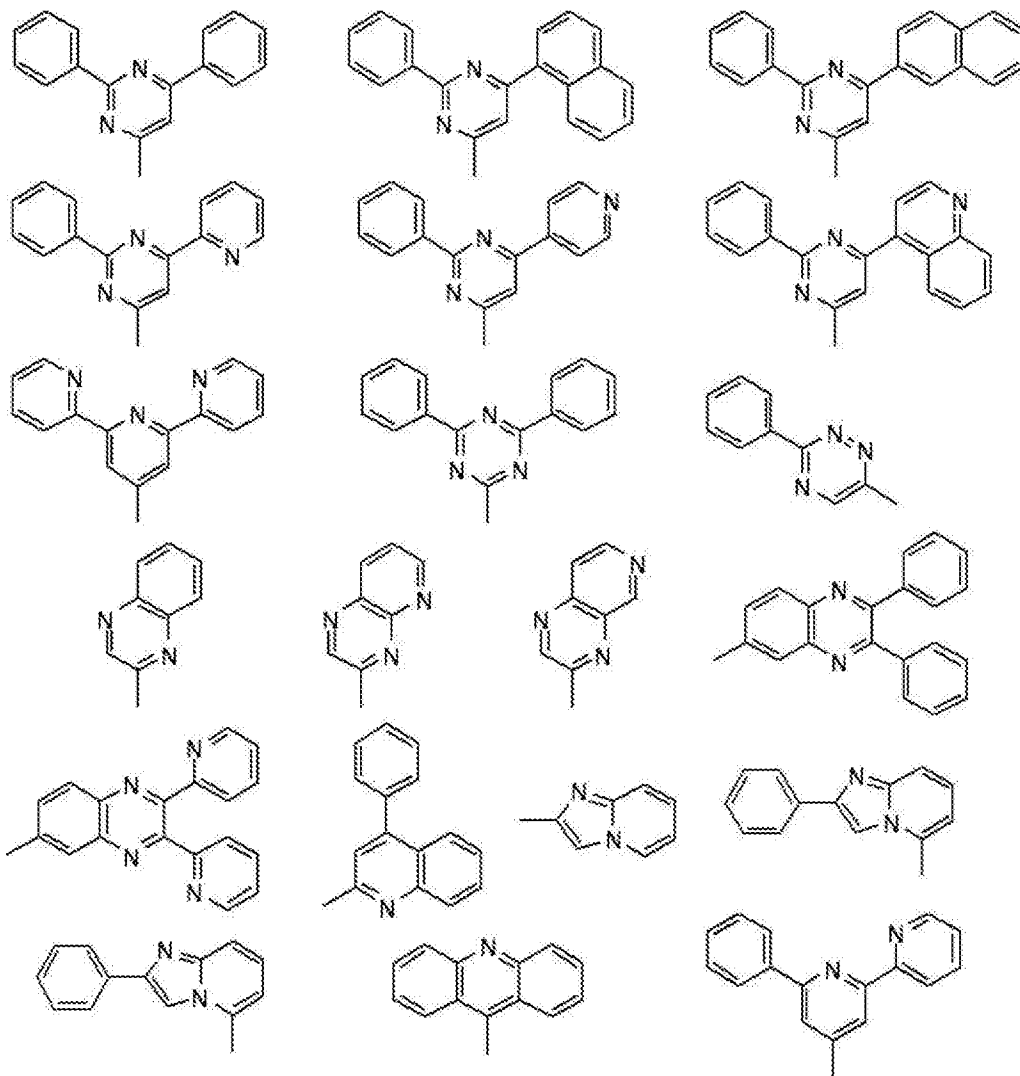
L^{101} は単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40(好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12)の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～40(好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12)の芳香族複素環基又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40(好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12)の縮合芳香族複素環基である。

Ar^{101} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40(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2価の芳香族炭化水素基であり、 Ar^{102} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40(好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～14)の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40(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5～40(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

芳香族複素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～40（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である。

[0124] H A rは、例えば、下記の群から選択される。

[化38]



[0125] L¹⁰¹は、例えば、下記の群から選択される。

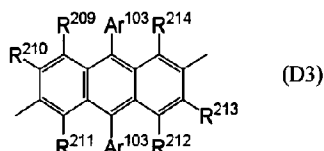
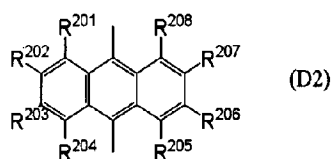
[化39]



[0126] A r¹⁰¹は、例えば、下記式（D2）、式（D3）ので表される基から選択

される。

[化40]



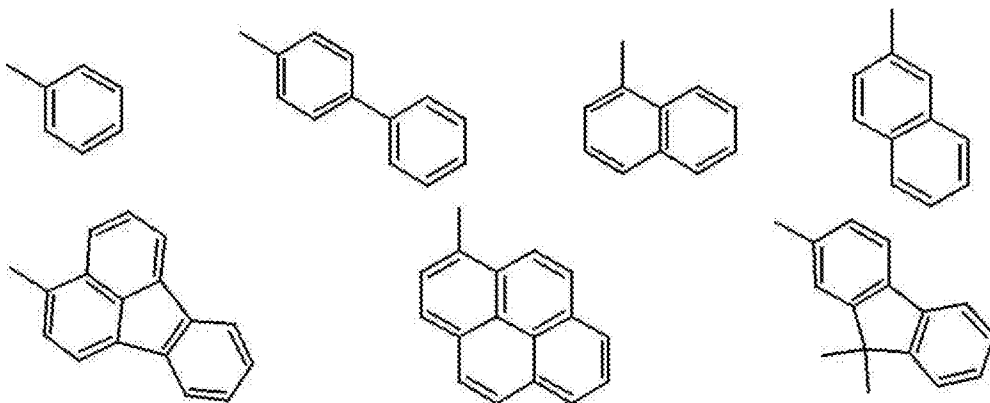
[0127] 前記式 (D2)、式 (D3) 中、 $R^{201} \sim R^{214}$ は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 (好ましくは 1～10、より好ましくは 1～5) のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 (好ましくは 1～10、より好ましくは 1～5) のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 (好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～12) のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 (好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～12) の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 (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 5～40 (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) の芳香族複素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～40 (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である。

Ar^{103} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 (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、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 (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 5～40 (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

又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～40（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である。

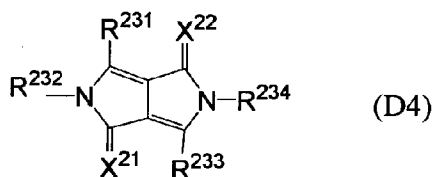
[0128] Ar^{102} は、例えば、下記の群から選択される。

[化41]



[0129] 電子伝達性化合物としての含窒素芳香多環有機化合物には、この他、下記の化合物も好適に用いられる。

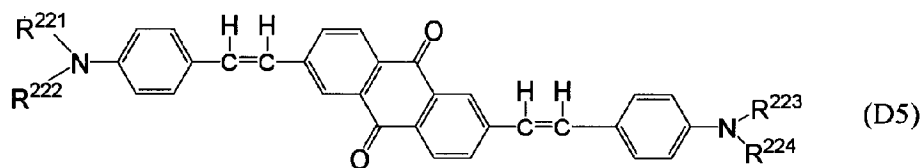
[0130] [化42]



[0131] 前記式 (D4) 中、 $R^{231} \sim R^{234}$ 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 の脂肪族基、置換もしくは無置換の炭素数 3～20 の脂肪族式環基、置換もしくは無置換の炭素数 6～50 の芳香族環基、置換もしくは無置換の炭素数 3～50 の複素環基を表し、 X^{21} 、 X^{22} は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、又はジシアノメチレン基を表す。

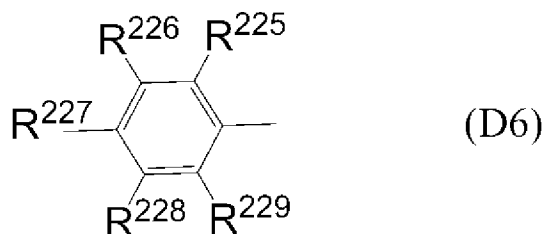
[0132] また、電子伝達性化合物として、下記の化合物も好適に用いられる。

[化43]



[0133] 前記式 (D5) 中、 R^{221} 、 R^{222} 、 R^{223} 及び R^{224} は互いに同一の又は異なる基であって、下記式 (D6) で表される芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である。

[化44]

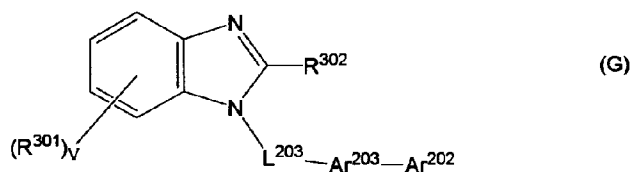
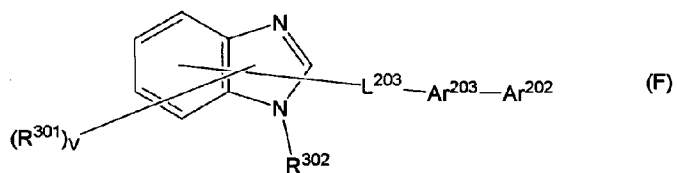
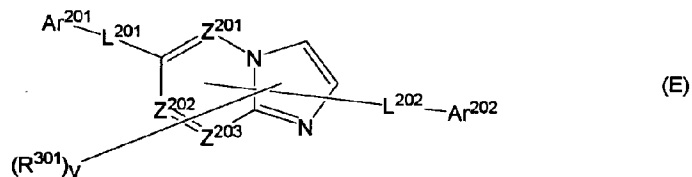


[0134] 前記式 (D6) 中、 R^{225} 、 R^{226} 、 R^{227} 、 R^{228} 及び R^{229} は互いに同一又は異なる基であって、水素原子、飽和もしくは不飽和の炭素数 1～20 のアルコキシル基、飽和もしくは不飽和の炭素数 1～20 のアルキル基、アミノ基、又は炭素数 1～20 のアルキルアミノ基である。 R^{225} 、 R^{226} 、 R^{227} 、 R^{228} 及び R^{229} の少なくとも 1 つは水素原子以外の基である。

[0135] さらに、電子伝達性化合物は、該含窒素複素環基又は含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

[0136] 本発明の一態様の有機 EL 素子の電子輸送層は、下記式 (E)～(G) 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45]



[0137] (式(E)～式(G)中、 Z^{201} 、 Z^{202} 及び Z^{203} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

R^{301} 及び R^{302} 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）のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基である。

v は、0～5の整数であり、 v が2以上の整数であるとき、複数の R^{301} は互いに同一でも異なってもよい。また、2つの R^{301} 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^{201} 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）のヘテロアリール基である。

Ar^{202} 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1～5）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1～5）のハロアルキル基、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）のヘテロアリール基である。

但し、 Ar^{201} 、 Ar^{202} 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）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）の縮合芳香族複素環基である。

Ar^{203} 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^{201} 、 L^{202} 及び L^{203} 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）の2価の縮合芳香族複素環基である。）

[0138] 環形成炭素数6～50のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、クリセニル基、ピレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、トリル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

環形成原子数5～50のヘテロアリール基としては、ピローリル基、フリ

ル基、チエニル基、シローリル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、イミダゾリル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、セレノフェニル基、オキサジアゾリル基、トリアゾーリル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キノキサリニル基、アクリジニル基、イミダゾ〔1，2－a〕ピリジニル基、イミダゾ〔1，2－a〕ピリミジニル基などが挙げられる。

炭素数1～20のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられる。

炭素数1～20のハロアルキル基としては、前記アルキル基の1又は2以上の水素原子をフッ素、塩素、ヨウ素及び臭素から選ばれる少なくとも1のハロゲン原子で置換して得られる基が挙げられる。

炭素数1～20のアルコキシ基としては、前記アルキル基をアルキル部位としては有する基が挙げられる。

環形成炭素数6～50のアリーレン基としては、前記アリール基から水素原子1個を除去して得られる基が挙げられる。

環形成原子数9～50の2価の縮合芳香族複素環基としては、前記ヘテロアリール基として記載した縮合芳香族複素環基から水素原子1個を除去して得られる基が挙げられる。

[0139] 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。

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。

[0140] このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成さ

れていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

[0141] 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等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、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

[0142] 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、 $0.1\text{ nm} \sim 15\text{ nm}$ 程度である。また、本発明の一態様の有機EL素子における電子注入層は、前述の電子供与性ドーパントを含有していても好ましい。

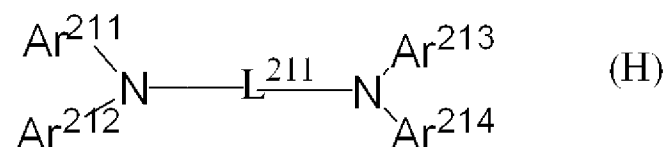
[0143] (正孔輸送層)

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。本発明の一態様の化合

物（１）は、正孔輸送層（第１の電荷輸送層）に含有される正孔輸送材料として用いることもできる。

[0144] 正孔輸送層を形成する他の材料としては、芳香族アミン化合物、例えば、下記式（H）で表される芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

[化46]



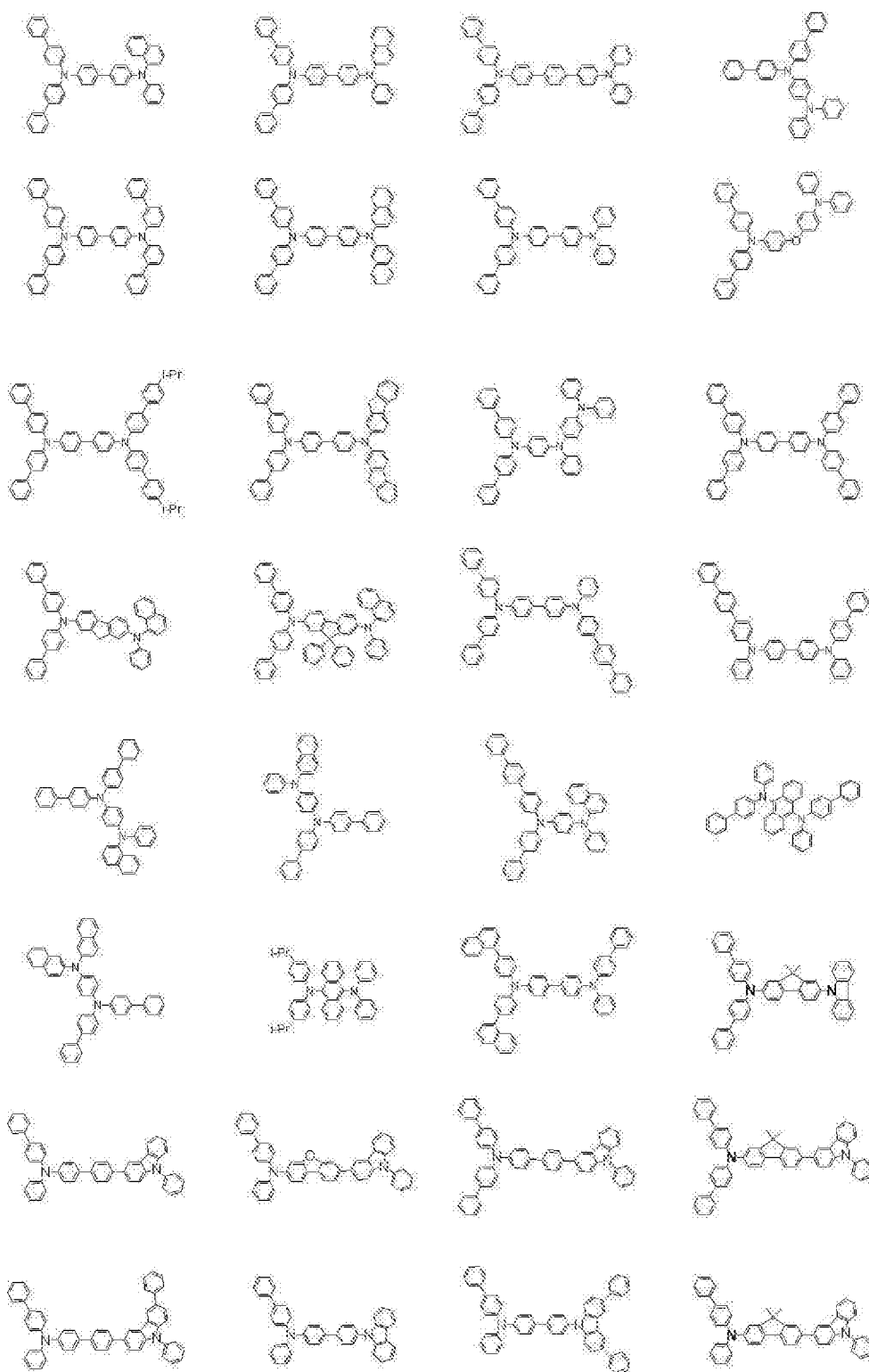
[0145] 前記式（H）において、 $\text{Ar}^{211} \sim \text{Ar}^{214}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12）の芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12）の縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12）の芳香族複素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～30、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^{211} と Ar^{212} 、 Ar^{213} と Ar^{214} は互いに結合して飽和もしくは不飽和の環構造を形成してもよい。

また、前記式（H）において、 L^{211} 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又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

は 5 ～ 1 2) の縮合芳香族複素環基を表す。

[0146] 式 (H) の化合物の具体例を以下に記す。

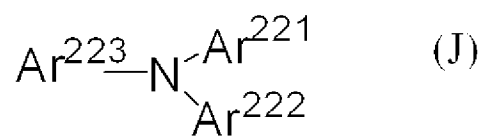
[0147] [化47]



[0148] また、下記式 (J) 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。

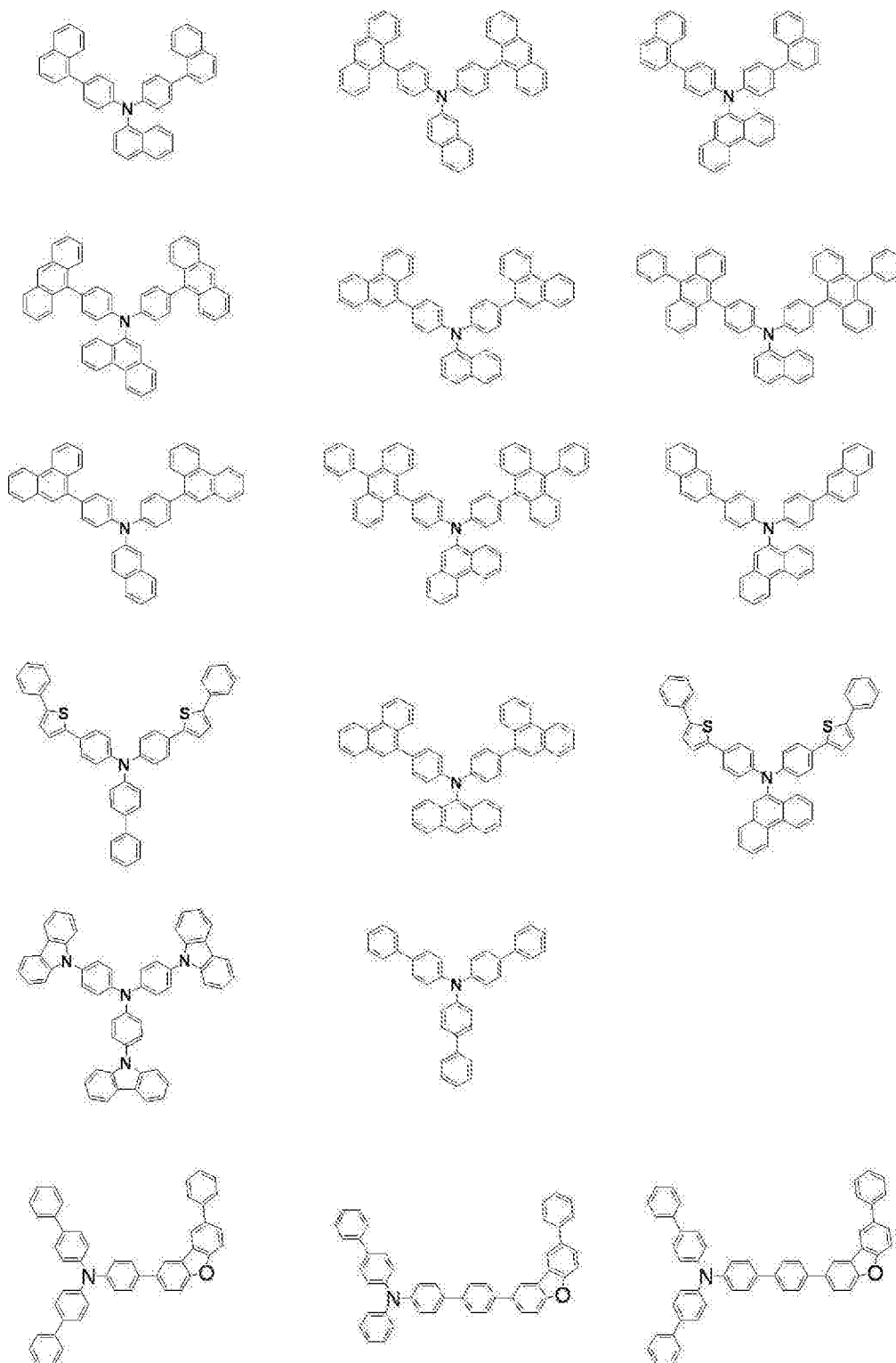
[化48]



[0149] 前記式（J）において、 $\text{Ar}^{221} \sim \text{Ar}^{223}$ の定義は前記式（H）の $\text{Ar}^{211} \sim \text{Ar}^{214}$ の定義と同様である。以下に式（J）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。

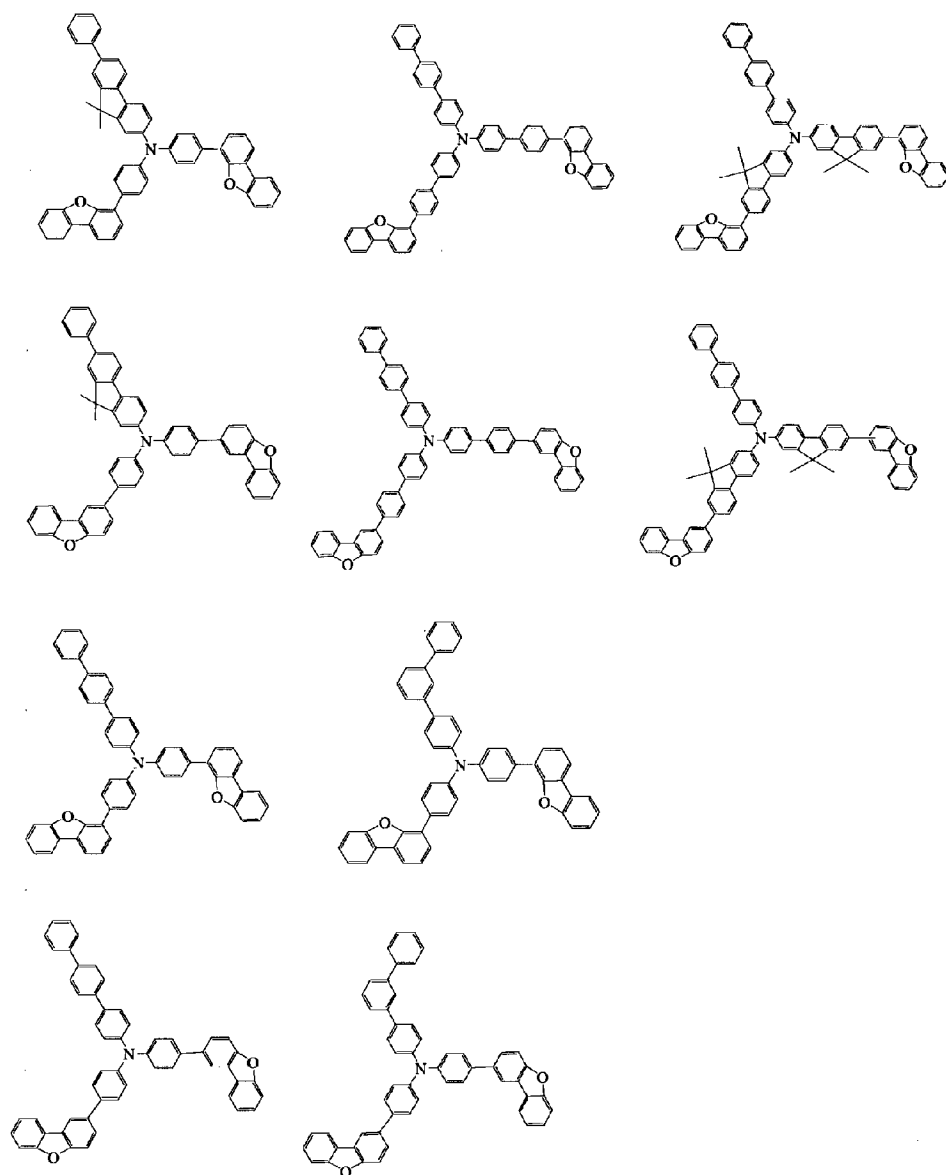
[0150]

[化49]



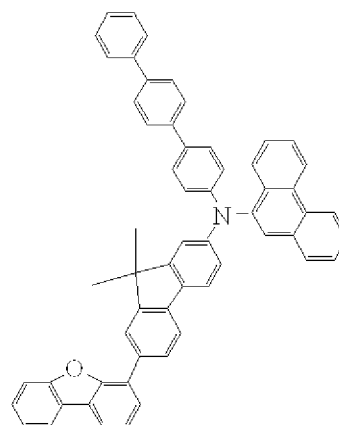
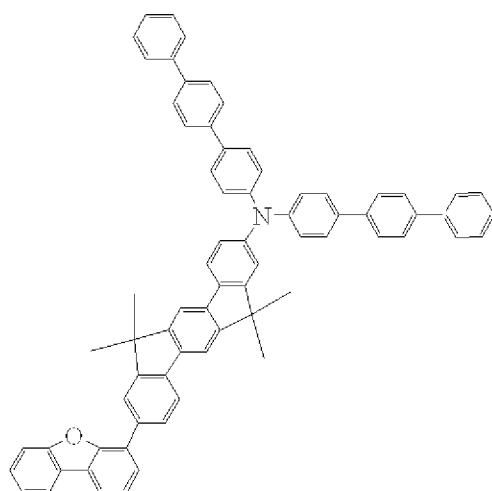
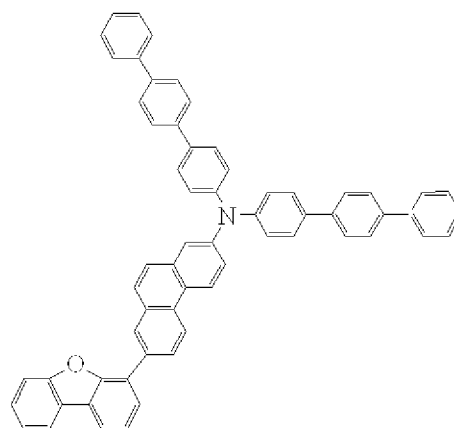
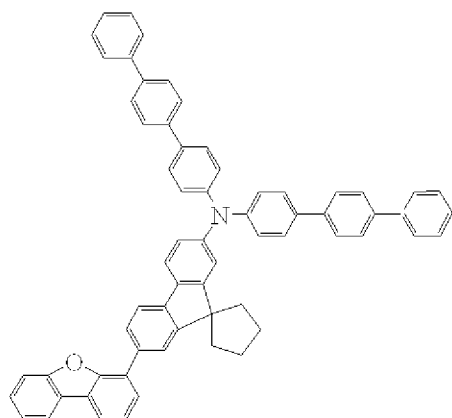
[0151]

[化50]



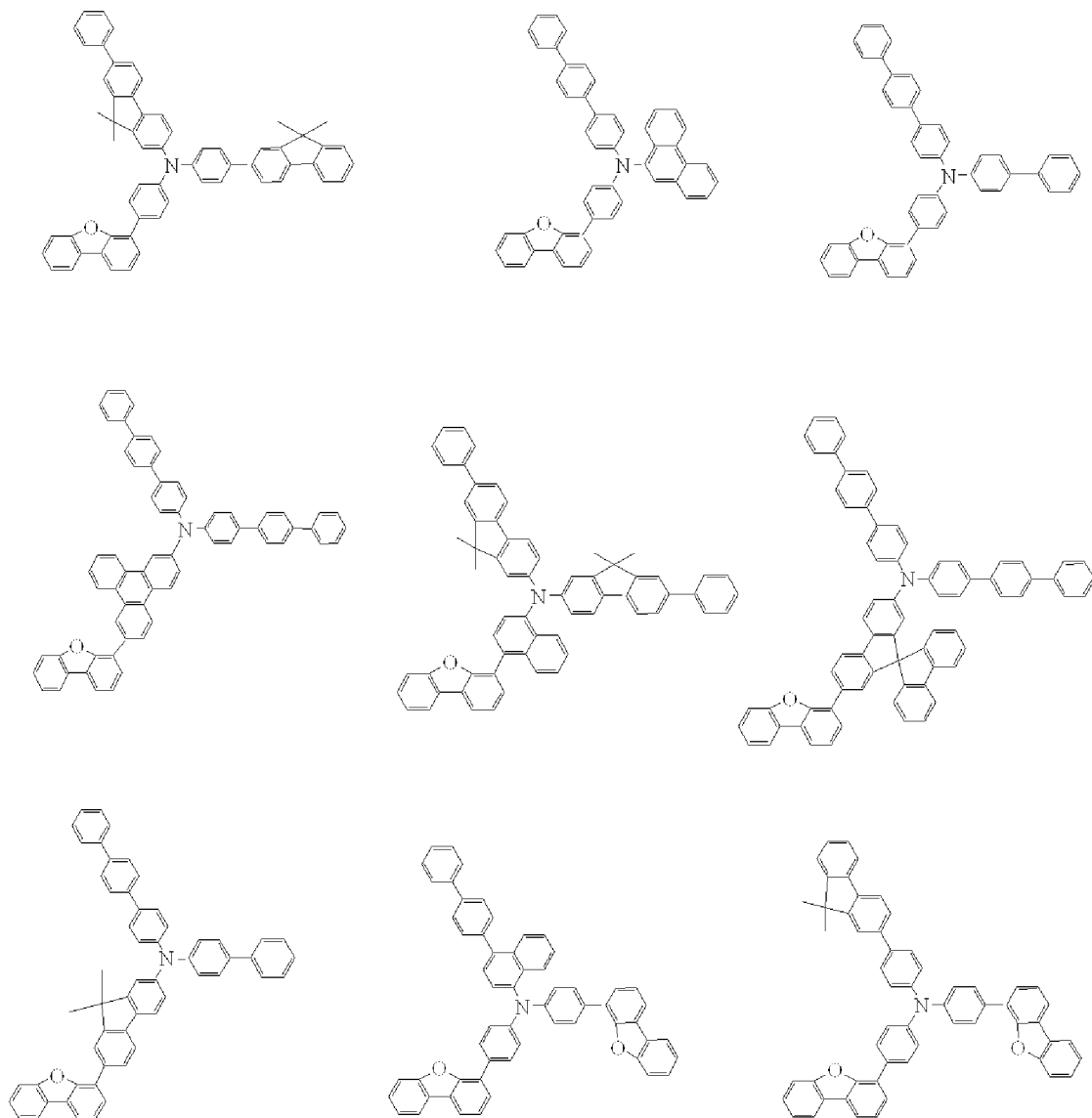
[0152]

[化51]



[0153]

[化52]



[0154] また、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル ; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス (3-メチルフェニル) - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン (TPD) ; 2, 2-ビス (4-ジ-p-トリルアミノフェニル) プロパン ; 1, 1-ビス (4-ジ-p-トリルアミノフェニル) シクロヘキサン ; N, N, N', N' -テトラ-p-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル ; 1, 1-ビス (4-ジ-p-トリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロヘキサン ; ビス (4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル) フェニルメタン ; ビス (4-ジ-p-トリルアミノフェニル) フェニルメタン ; N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ (

4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル; N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(p-トリル)アミン; 4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルバゾール; 2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD); トリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)から選ばれる芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物を正孔輸送層に用いてもよい。

[0155] 本発明の一態様において、正孔輸送層は正孔輸送材料と溶剤を含有する正孔輸送層用組成物を用いて形成してもよい。

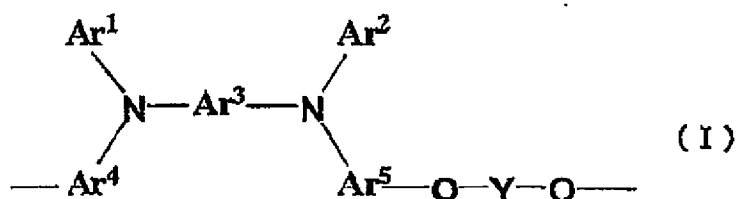
正孔輸送材料は、重合体などの高分子化合物であっても、単量体などの低分子化合物であってもよい。また、電荷注入障壁の観点から4.5 eV~6.0 eVのイオン化ポテンシャルを有する化合物が好ましい。正孔輸送材料の例としては、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ベンジルフェニル誘導体、フルオレン基で3級アミンを連結した化合物、ヒドラゾン誘導体、シラザン誘導体、シラナミン誘導体、ホスファミン誘導体、キナクリドン誘導体、ポリアニリン誘導体、ポリピロール誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリチエニレンビニレン誘導体、ポリキノリン誘導体、ポリキノキサリン誘導体、カーボン等が挙げられる。

[0156] ここで誘導体とは、例えば、芳香族アミン誘導体を例にするならば、芳香族アミンそのもの及び芳香族アミンを主骨格とする化合物を含むものであり、重合体であっても、単量体であってもよい。

上記例示した中でも非晶質性、可視光の透過率の点から、芳香族アミン化合物が好ましく、特に芳香族三級アミン化合物が好ましい。ここで、芳香族三級アミン化合物とは、芳香族三級アミン構造を有する化合物であって、芳香族三級アミン由来の基を有する化合物も含む。

芳香族三級アミン化合物の種類は特に制限されないが、表面平滑化効果による均一な発光の点から、重量平均分子量が1000以上、1000000以下の高分子化合物（繰り返し単位が連なる重合型化合物）がさらに好ましい。芳香族三級アミン高分子化合物の好ましい例として、下記式（I）で表される繰り返し単位を有する高分子化合物が挙げられる。

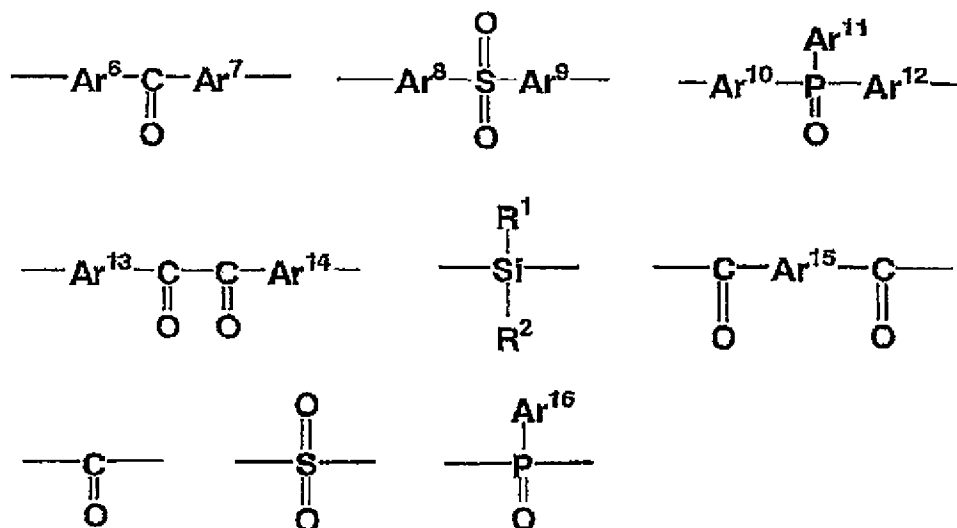
[0157] [化,53]



[0158] 式(1)中、 $A r^1$ および $A r^2$ は、それぞれ独立して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基または置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表す。 $A r^3 \sim A r^5$ は、それぞれ独立して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基または置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表す。また、 $A r^1 \sim A r^5$ のうち、同一のN原子に結合する二つの基は互いに結合して環を形成してもよい。Yは、下記から選ばれる連結基を表す。

[0159]

[化54]



[0160] 上記各式中、 $\text{Ar}^6 \sim \text{Ar}^{16}$ は、それぞれ独立して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基または置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表す。 R^1 および R^2 は、それぞれ独立して、水素原子または置換基を表す。

$\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^{16}$ の芳香族炭化水素基および芳香族複素環基としては、高分子化合物の溶解性、耐熱性、正孔注入・輸送性の点から、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナントレン環、チオフェン環、及びピリジン環から選ばれる環を有する基が好ましく、ベンゼン環及びナフタレン環から選ばれる環を有する基がさらに好ましい。

[0161] $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^{16}$ の芳香族炭化水素基および芳香族複素環基の任意の置換基の分子量は、通常400以下、中でも250以下程度が好ましい。置換基としては、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基などが好ましい。

R^1 および R^2 が表す置換基としては、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、シリル基、シロキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基などが挙げられる。

[0162] 正孔輸送材料としては、ポリチオフェンの誘導体である3,4-エチレンジオキシチオフェンを高分子量ポリスチレンスルホン酸中で重合してなる導電性ポリマー(PEDOT/PSS)もまた好ましい。また、このポリマー

の末端をメタクリレート等でキャップしたものであってもよい。

[0163] 正孔輸送層用組成物中の正孔輸送材料の濃度は任意であるが、膜厚の均一性の点で通常0.01質量%以上、好ましくは0.1質量%以上、さらに好ましくは0.5質量%以上、また、通常70質量%以下、好ましくは60質量%以下、さらに好ましくは50質量%以下である。この範囲であれば、膜厚ムラが生じたり、正孔輸送層に欠陥が生じることが無い。

[0164] 上記正孔輸送層用組成物は、電子受容性化合物を含有しても良い。

電子受容性化合物とは、酸化力を有し、上述の正孔輸送材料から一電子受容する能力を有する化合物が好ましく、具体的には、電子親和力が4 eV以上である化合物が好ましく、5 eV以上の化合物である化合物がさらに好ましい。

[0165] このような電子受容性化合物としては、例えば、トリアリールホウ素化合物、ハロゲン化金属、ルイス酸、有機酸、オニウム塩、アリールアミンとハロゲン化金属との塩、アリールアミンとルイス酸との塩よりなる群から選ばれる1種または2種以上の化合物等が挙げられる。さらに具体的には、4-イソプロピル-4'-メチルジフェニルヨードニウムテトラキス（ペンダフルオロフェニル）ボラート、トリフェニルスルホニウムテトラフルオロボラート等の有機基を有するオニウム塩；塩化鉄（III）、ペルオキシ二硫酸アンモニウム等の高原子価の無機化合物；テトラシアノエチレン等のシアノ化合物、トリス（ペンダフルオロフェニル）ボラン等の芳香族ホウ素化合物；フラーレン誘導体；ヨウ素；ポリスチレンスルホン酸イオン、アルキルベンゼンスルホン酸イオン、ショウノウスルホン酸イオン等のスルホン酸イオン等が挙げられる。

[0166] これらの電子受容性化合物は、正孔輸送材料を酸化することにより正孔輸送層の導電率を向上させることができる。

正孔輸送層用組成物中の電子受容性化合物の正孔輸送材料に対する含有量は、通常0.1モル%以上、好ましくは1モル%以上である。但し、通常100モル%以下、好ましくは40モル%以下である。

[0167] 上述の正孔輸送材料や電子受容性化合物に加えて、さらに、その他の成分を正孔輸送層用組成物に含有させてもよい。その他の成分の例としては、各種の発光材料、電子輸送性化合物、バインダー樹脂、塗布性改良剤などが挙げられる。なお、その他の成分は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせおよび比率で併用してもよい。

[0168] 本発明の一態様において、塗布法に適した正孔輸送材料が好ましく用いられる。このような正孔輸送材料としては、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミン残基を有するポリシロキサン誘導体、ピラゾリン誘導体、アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体、ポリアニリン若しくはその誘導体、ポリチオフェン若しくはその誘導体、ポリピロール若しくはその誘導体、ポリアリールアミン若しくはその誘導体、ポリ（p-フェニレンビニレン）若しくはその誘導体、ポリフルオレン誘導体、芳香族アミン残基を有する高分子化合物、およびポリ（2，5-チエニレンビニレン）若しくはその誘導体が挙げられる。

[0169] 前記正孔輸送材料は高分子化合物、例えば重合体であることが好ましい。高分子化合物であると成膜性が向上し、有機EL素子の発光性を均一にすることができるからである。例えば、このような正孔輸送材料の標準ポリスチレンで検量した数平均分子量は、10000以上であり、好ましくは $3.0 \times 10^4 \sim 5.0 \times 10^5$ であり、より好ましくは $6.0 \times 10^4 \sim 1.2 \times 10^5$ である。また、正孔輸送材料の重量平均分子量は、 1.0×10^4 以上であり、好ましくは $5.0 \times 10^4 \sim 1.0 \times 10^6$ であり、より好ましくは $1.0 \times 10^5 \sim 6.0 \times 10^5$ である。

[0170] 前記正孔輸送材料としては、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミン残基を有するポリシロキサン誘導体、ポリアニリン若しくはその誘導体、ポリチオフェン若しくはその誘導体、ポリフルオレン誘導体、芳香族アミン残基を有する高分子化合物、ポリ（p-フェニレンビニレン）若しくはその誘導体、

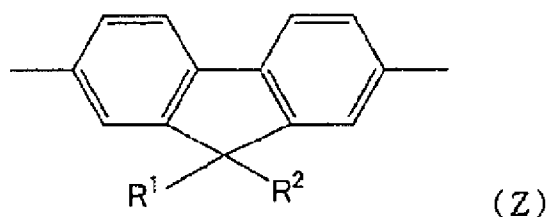
およびポリ（２，５－チエニレンビニレン）若しくはその誘導体等の高分子化合物が好ましく、さらに好ましくはポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミン残基を有するポリシロキサン誘導体、ポリフルオレン誘導体、芳香族アミン残基を有する高分子化合物である。正孔輸送材料が低分子である場合には、高分子バインダーに分散させて用いることが好ましい。

[0171] 前記ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体は、例えばビニルモノマーをカチオン重合するか、またはラジカル重合することによって得られる。

[0172] ポリシロキサン若しくはその誘導体としては、シロキサン骨格構造には正孔輸送性がほとんどないので、側鎖または主鎖に上記低分子正孔輸送材料の残基を有する化合物が好適に用いられる。特に正孔輸送性の芳香族アミン残基を側鎖または主鎖に有する化合物が挙げられる。

[0173] 正孔輸送材料としては、下記式（Ｚ）で表されるフルオレンジイルユニットを有する重合体が好ましい。縮合環または複数の芳香環を有する有機化合物と接触させて有機ＥＬ素子の正孔輸送層とした場合に、正孔注入効率が向上し、駆動時の電流密度が大きくなるからである。

[0174] [化55]



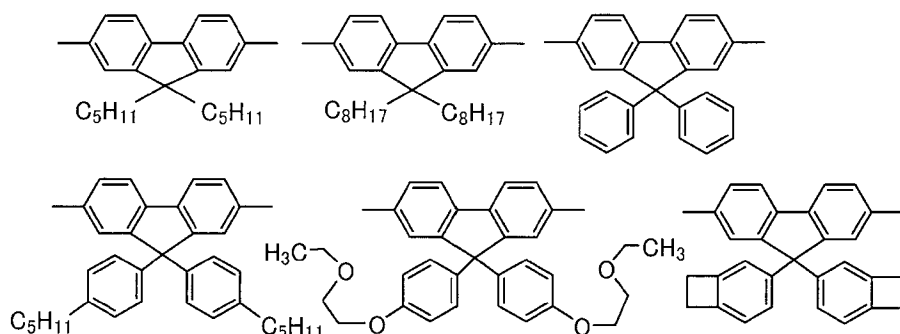
[0175] 式（Ｚ）中、Ｒ^１、Ｒ^２は同一であっても異なってもよく、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、１価の複素環基を表す。アルキル基としては、炭素原子数が１～１０の基が挙げられる。アルコキシ基としては炭素原子数が１～１０の基が挙げられる。アリール基の例としてはフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。１価の複素環基の例としてはピリジル基等が挙げられる。アリール基、１価の複素環基は置換基を有していてもよく、置換基の例としては、高分子化合物の溶解性向上の観点か

ら、炭素原子数が1～10のアルキル基、炭素原子数が1～10のアルコキシ基等が挙げられる。

[0176] 式(Z)において、アリール基、1価の複素環基は架橋性基を有していてもよい。架橋基の例としては、ビニル基、エチニル基、ブテニル基、アクリル構造を有する基、アクリレート構造を有する基、アクリルアミド構造を有する基、メタクリル構造を有する基、メタクリレート構造を有する基、メタクリルアミド構造を有する基、ビニルエーテル構造を有する基、ビニルアミノ基、シラノール構造を有する基、小員環（例えばシクロプロパン、シクロブタン、エポキシド、オキサタン、ジケテン、エピスルフィド等）を有する基等が挙げられる。

[0177] 好ましいフルオレンジイルユニットの具体例を以下に示す。

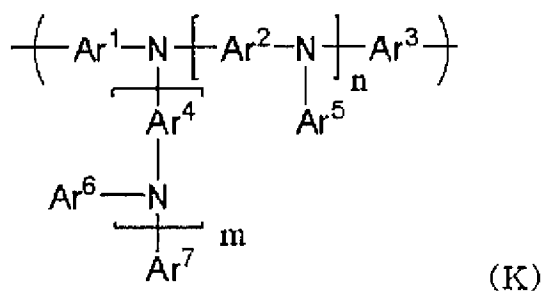
[化56]



[0178] 特に好ましい正孔輸送材料は、繰り返し単位として上記フルオレンジイルユニットと芳香族3級アミン化合物ユニットとを含む重合体、例えばポリアリールアミン重合体である。

[0179] 芳香族3級アミン化合物ユニットとしては、下記式(K)で表される繰り返し単位が挙げられる。

[化57]



[0180] 式 (K) 中、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 および Ar^4 は、それぞれ独立に、アリーレン基または 2 価の複素環基を表す。 Ar^5 、 Ar^6 および Ar^7 は、それぞれ独立に、アリール基または 1 価の複素環基を表す。あるいは、 Ar^6 と Ar^7 は、 Ar^6 と Ar^7 が結合する窒素原子とともに環を形成していてもよい。 m および n は、それぞれ独立に、0 または 1 を表す。

アリーレン基の例としては、フェニレン基等が挙げられる。2 価の複素環基の例としては、ピリジンジイル基等が挙げられる。これらの基は置換基を有していてもよい。

アリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられる。1 価の複素環基の例としては、ピリジル基等が挙げられる。これらの基は置換基を有していてもよい。

1 価の複素環基の例としては、チエニル基、フリル基、ピリジル基等が挙げられる。

[0181] アリーレン基、アリール基、2 価の複素環基、1 価の複素環基の任意の置換基としては、高分子化合物の溶解性の観点からは、アルキル基、アルコキシ基、アリール基が好ましく、アルキル基がより好ましい。アルキル基としては、炭素原子数が 1 ~ 10 の基が挙げられる。アルコキシ基としては、炭素原子数が 1 ~ 10 の基が挙げられる。アリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

[0182] また、置換基は、架橋性基を有していてもよい。架橋性基の例としては、ビニル基、エチニル基、ブテニル基、アクリル構造を有する基、アクリレート構造を有する基、アクリルアミド構造を有する基、メタクリル構造を有する基、メタクリレート構造を有する基、メタクリルアミド構造を有する基、ビニルエーテル構造を有する基、ビニルアミノ基、シラノール構造を有する基、小員環（例えばシクロプロパン、シクロブタン、エポキシド、オキセタン、ジケテン、エピスルフィド等）を有する基等が挙げられる。

[0183] 式 (K) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 および Ar^4 は、アリーレン基であることが好ましく、フェニレン基であることがより好ましい。 Ar^5 、 Ar

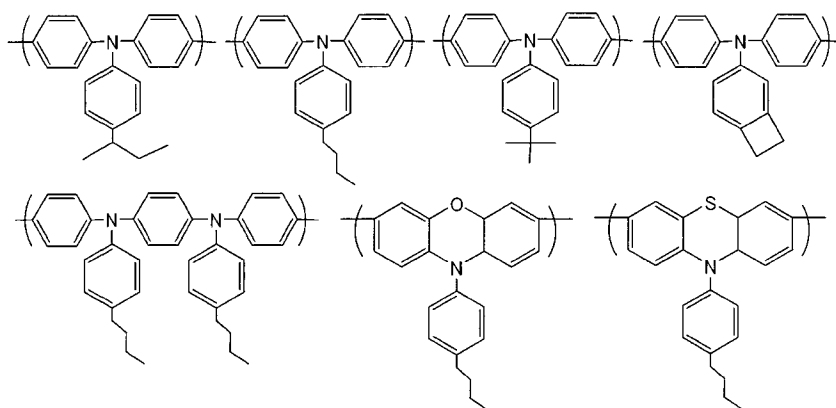
⁶およびA r ⁷はアリール基であることが好ましく、フェニル基であることがより好ましい。

さらにA r ²中の炭素原子とA r ³中の炭素原子とが直接結合するか、または—O—、—S—等の2価の基を介して結合していてもよい。

モノマーの合成し易さの観点からは、mおよびnが0であることが好ましい。

[0184] 式(K)で表される繰り返し単位の具体例としては、下記式で表される繰り返し単位等が挙げられる。

[化58]



[0185] 正孔輸送材料が架橋性基を有しない場合には、架橋性基を有する架橋剤を用いることが好ましい。架橋剤の例としては、ビニル基、アセチル基、ブテン基、アクリル基、アクリルアミド基、メタクリル基、メタクリルアミド基、ビニルエーテル基、ビニルアミノ基、シラノール基、シクロプロピル基、シクロブチル基、エポキシ基、オキセタン基、ジケテン基、エピスルフィド基、ラクトン基、及びラクタム基からなる群から選ばれる重合可能な置換基を有する化合物を挙げることができる。架橋剤としては、例えば多官能アクリレートが好ましく、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート（DPHA）、トリスペンタエリスリトールオクタアクリレート（TPEA）などが挙げられる。

このように架橋性基を有する材料を用いるか、または架橋剤を用いることにより、下層（正孔輸送層）上にさらに別の機能層（上層）を塗布法により

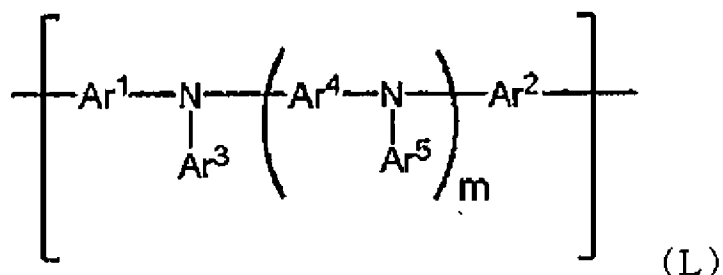
形成したとしても、上層形成用の溶媒等による下層の溶解を効果的に抑制することができる。

[0186] 本発明の一態様において、正孔輸送部位を有し、架橋性基を有する正孔輸送材料が好ましく用いられる。正孔輸送部位としては、例えばトリアリールアミン構造、フルオレン環、アントラセン環、ピレン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、フェノキサジン環、フェナントロリン環などの3環以上の芳香族環構造、チオフェン環、シロール環などの芳香族複素環構造、及び金属錯体構造が挙げられる。

[0187] 中でも、電気化学的安定性及び正孔輸送能を向上させる点で、正孔輸送部位としてトリアリールアミン構造を有することが好ましい。

また、架橋反応によって有機溶剤に不溶になりやすい点で、重合体であることが好ましい。特に、電気化学的安定性及び正孔輸送能を向上させる点で、下記式(L)で表される繰り返し単位を含む重合体であることが好ましい。

[0188] [化59]



[0189] 式(L)中、 m は0～3の整数を表し、 Ar^1 及び Ar^2 は、各々独立して、単結合、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表し、 $\text{Ar}^3 \sim \text{Ar}^5$ は、各々独立に、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表す。但し、 Ar^1 及び Ar^2 が同時に、単結合であることはない。

[0190] 前記芳香族炭化水素基としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ペリレン環、テトラセン環、ピレン環、ベンズピレン環、クリセン環、トリフェニレン環、アセナフテン環、フルオ

ランテン環、フルオレン環などの、6員環の単環又は2～5個の6員環を含む縮合環の一価の基が挙げられる。

前記芳香族複素環基としては、例えばフラン環、ベンゾフラン環、チオフェン環、ベンゾチオフェン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、インドール環、カルバゾール環、ピロロイミダゾール環、ピロロピラゾール環、ピロロピロール環、チエノピロール環、チエノチオフェン環、フロピロール環、フロフラン環、チエノフラン環、ベンゾイソキサゾール環、ベンゾイソチアゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピリジン環、ピラジン環、プリダジン環、プリミジン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、シノリン環、キノキサリン環、フェナントリジン環、ベンゾイミダゾール環、ペリミジン環、キナゾリン環、キナゾリノン環、アズレン環などの、5又は6員環の単環又は2～4個の5又は6員環を含む縮合環の一価の基が挙げられる。

[0191] 溶剤に対する溶解性及び耐熱性の点から、 $A r^1 \sim A r^5$ は、各々独立に、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、トリフェニレン環、ピレン環、チオフェン環、ピリジン環、フルオレン環からなる群より選ばれる環の一価の基が好ましい。

また、 $A r^1 \sim A r^5$ としては、前記群から選ばれる1種又は2種以上の環を単結合により連結した基も好ましく、ビフェニル基、ビフェニレン基及びターフェニル基、ターフェニレン基がさらに好ましい。

[0192] 前記芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基の任意の置換基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*i*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ヘキシル基、シクロヘキシル基、ドデシル基などの炭素数が1～24、好ましくは1～12である、直鎖、分岐、又は環状のアルキル基；ビニル基等の炭素数が2～24、好ましくは2～12であるアルケニル基；エチニル基等の炭素数が2～24、好ましくは2～12であるアルキニル基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数が1～24、好ましくは1～12であるアルコキシ基；フェノキシ基、

ナフトキシ基、ピリジルオキシ基等の炭素数が4以上、好ましくは5以上であり、36以下、好ましくは24であるアリーロキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数が2～24、好ましくは2～12であるアルコキシカルボニル基；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等の炭素数が2～24、好ましくは2～12であるジアルキルアミノ基；ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、N-カルバゾリル基等の炭素数が10以上、好ましくは12以上であり、36以下、好ましくは24以下のジアリールアミノ基；フェニルメチルアミノ基等の炭素数が7～36、好ましくは7～24であるアリールアルキルアミノ基；アセチル基、ベンゾイル基等の炭素数が2～24、好ましくは2～12であるアシル基；フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子；トリフルオロメチル基等の炭素数が1～12、好ましくは1～6のハロアルキル基；メチルチオ基、エチルチオ基等の炭素数が1～24、好ましくは1～12のアルキルチオ基；フェニルチオ基、ナフチルチオ基、ピリジルチオ基等の炭素数が4以上、好ましくは5以上であり、36以下、好ましくは24以下であるアリールチオ基；トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基等の炭素数が2以上、好ましくは3以上であり、36以下、好ましくは24以下であるシリル基；トリメチルシロキシ基、トリフェニルシロキシ基等の炭素数が2以上、好ましくは3以上であり、36以下、好ましくは24以下であるシロキシ基；シアノ基；フェニル基、ナフチル基等の炭素数が6～36以下、好ましくは6～24である芳香族炭化水素環基；及びチエニル基、ピリジル基等の炭素数が3以上、好ましくは4以上であり、36以下、好ましくは24以下である芳香族複素環基が挙げられる。

[0193] 上記任意の置換基の中でも、溶解性の点から、炭素数1～12のアルキル基及び炭素数1～12のアルコキシ基が好ましい。

また、上記各任意の置換基がさらに置換基を有していてもよく、その例としては任意の置換基として上記した基から選択される。

正孔輸送性に優れる点から、 $Ar^1 \sim Ar^5$ は、置換基を含めて、その炭素数は3以上、好ましくは5以上、さらに好ましくは6以上であり、72以下

互いに結合して環を形成してもよい。

$R^{21} \sim R^{23}$ のアルキル基としては、例えばメチル基、エチル基等の炭素数が1～24、好ましくは1～12であるアルキル基等が挙げられる。

[0198] $A_{r^{21}}$ の芳香族基としては、前記 $A_{r^1} \sim A_{r^5}$ が表す芳香族基と同じ基等が挙げられる。

なお、 $R^{21} \sim R^{23}$ 、及び $A_{r^{21}}$ の任意の置換基としては、特に制限はないが、例えば、前記した任意の置換基から選ばれる基が挙げられる。

さらに、架橋性基として、エポキシ基、オキセタン基等の環状エーテル基、ビニルエーテル基などのカチオン重合によって不溶化反応する基が、反応性が高く不溶化が容易な点で好ましい。中でも、カチオン重合の速度を制御しやすい点でオキセタン基が特に好ましく、カチオン重合の際に素子の劣化をまねくおそれのあるヒドロキシル基が生成しにくい点でビニルエーテル基が好ましい。

[0199] シンナモイル基などアリールビニルカルボニル基、ベンゾシクロブテン環を有する基などの環化付加反応する基が、電気化学的安定性をさらに向上させる点で好ましい。

また、架橋性基の中でも、不溶化後の構造が特に安定な点で、ベンゾシクロブテン環を有する基が特に好ましい。

具体的には、下記式(M)で表される基であることが好ましい。

[0200] [化61]

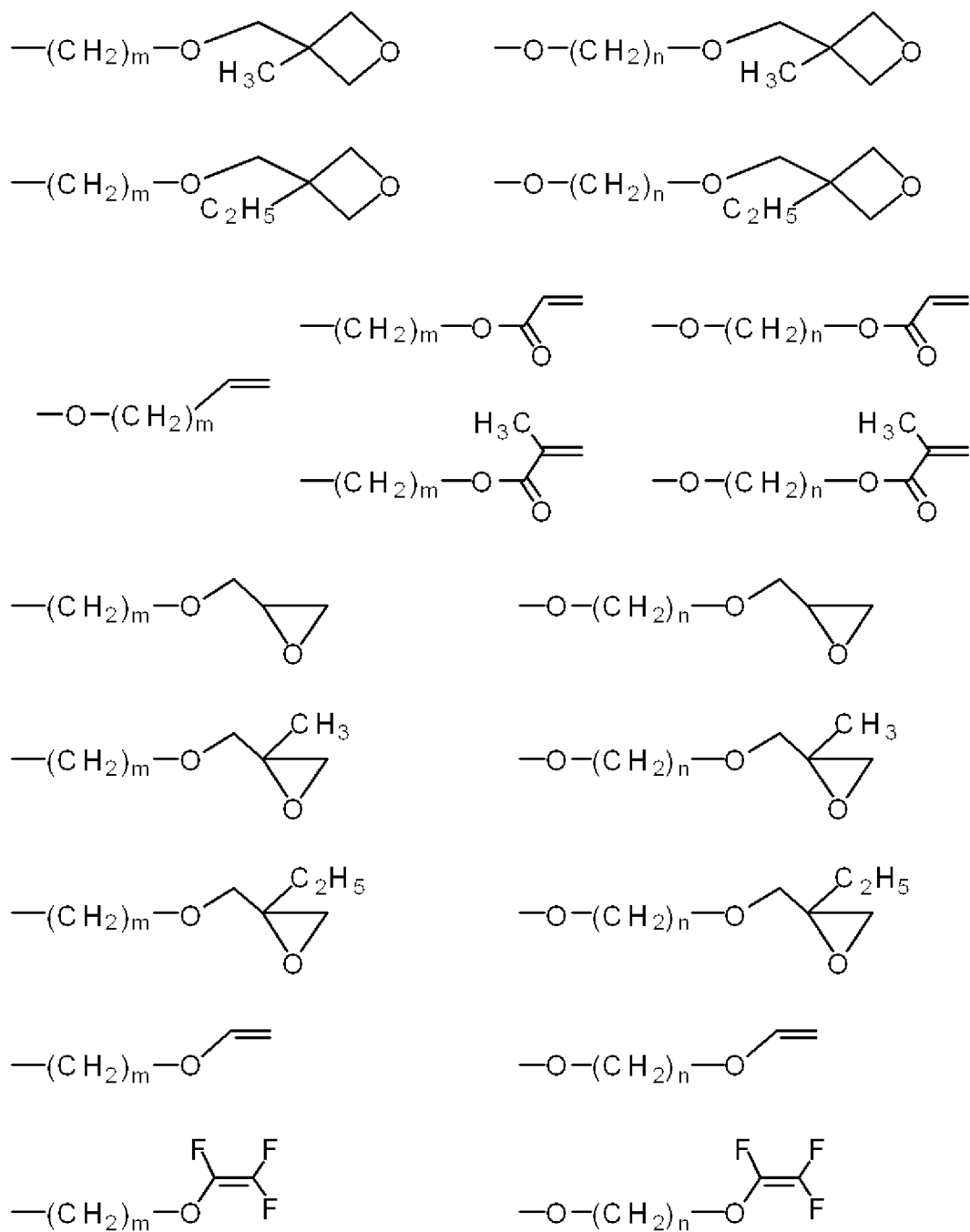


[0201] 式(M)中のベンゾシクロブテン環は置換基を有していてもよい。又、該置換基同士が互いに結合して環を形成してもよい。

[0202] 架橋性基は分子内の1価又は2価の芳香族基に直接結合してもよいが、2価の基を介して結合してもよい。この2価の基としては、 $-O-$ 、 $-C(=O)-$ 、及び置換基を有していてもよい $-CH_2-$ から選ばれる基を任意の順

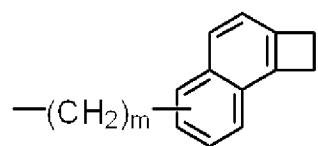
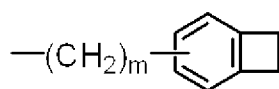
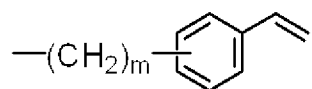
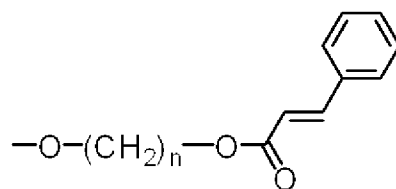
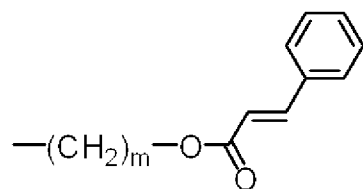
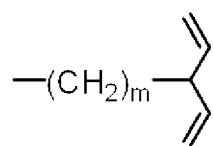
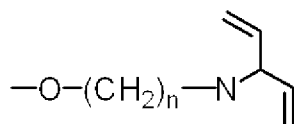
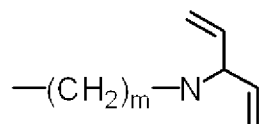
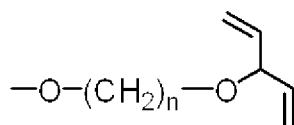
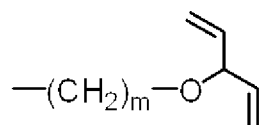
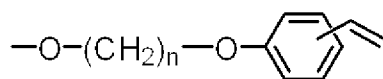
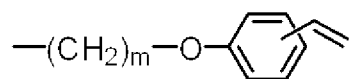
番で 1 ～ 30 個連結してなる 2 価の基が好ましい。これら 2 価の基を介して結合する架橋性基の具体例を以下に示すが、これらに限定されるものではない。

[0203] [化62]



[0204]

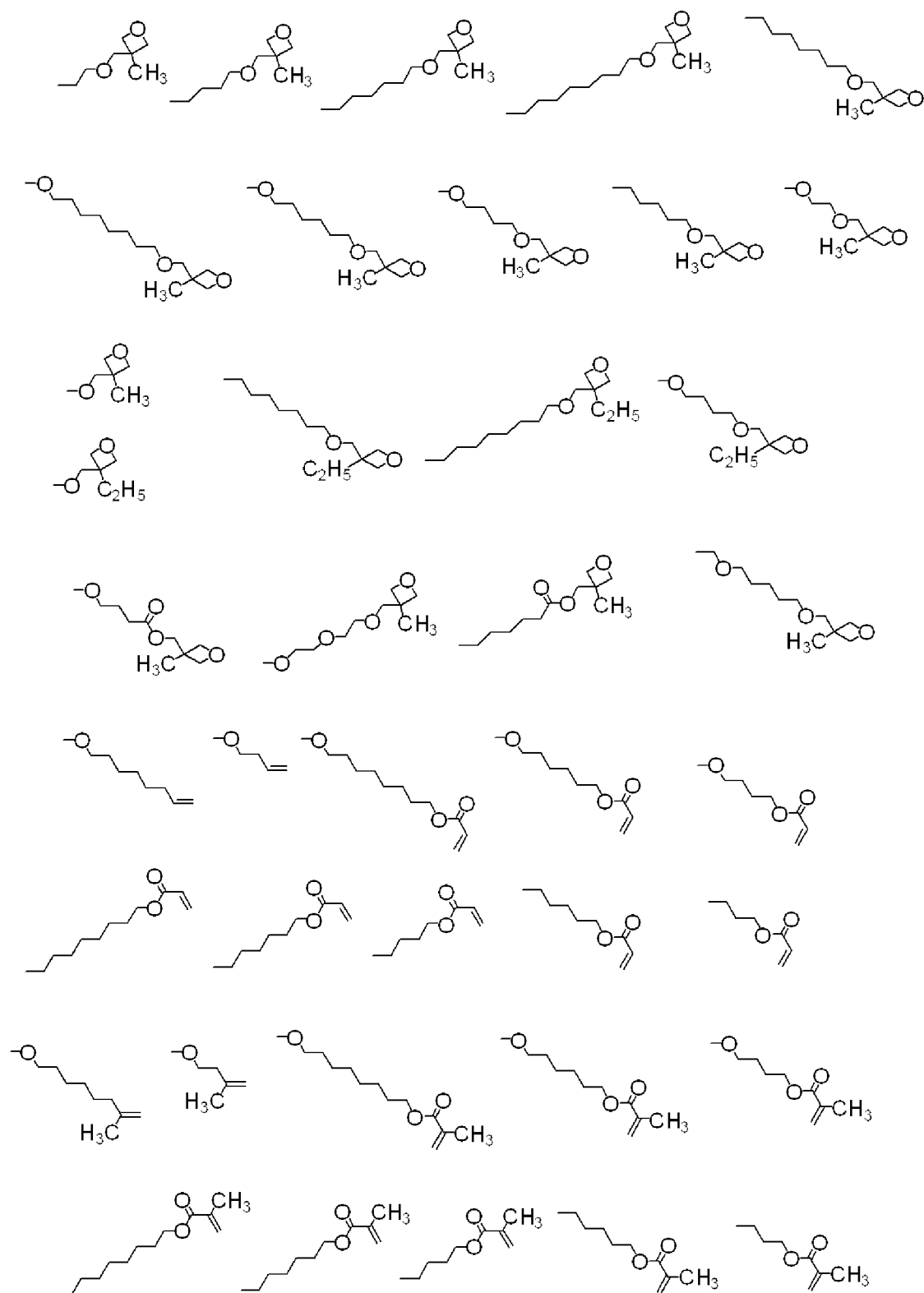
[化63]



[0205] 上記式中、mは0～12の整数を示し、nは1～12の整数を示す。

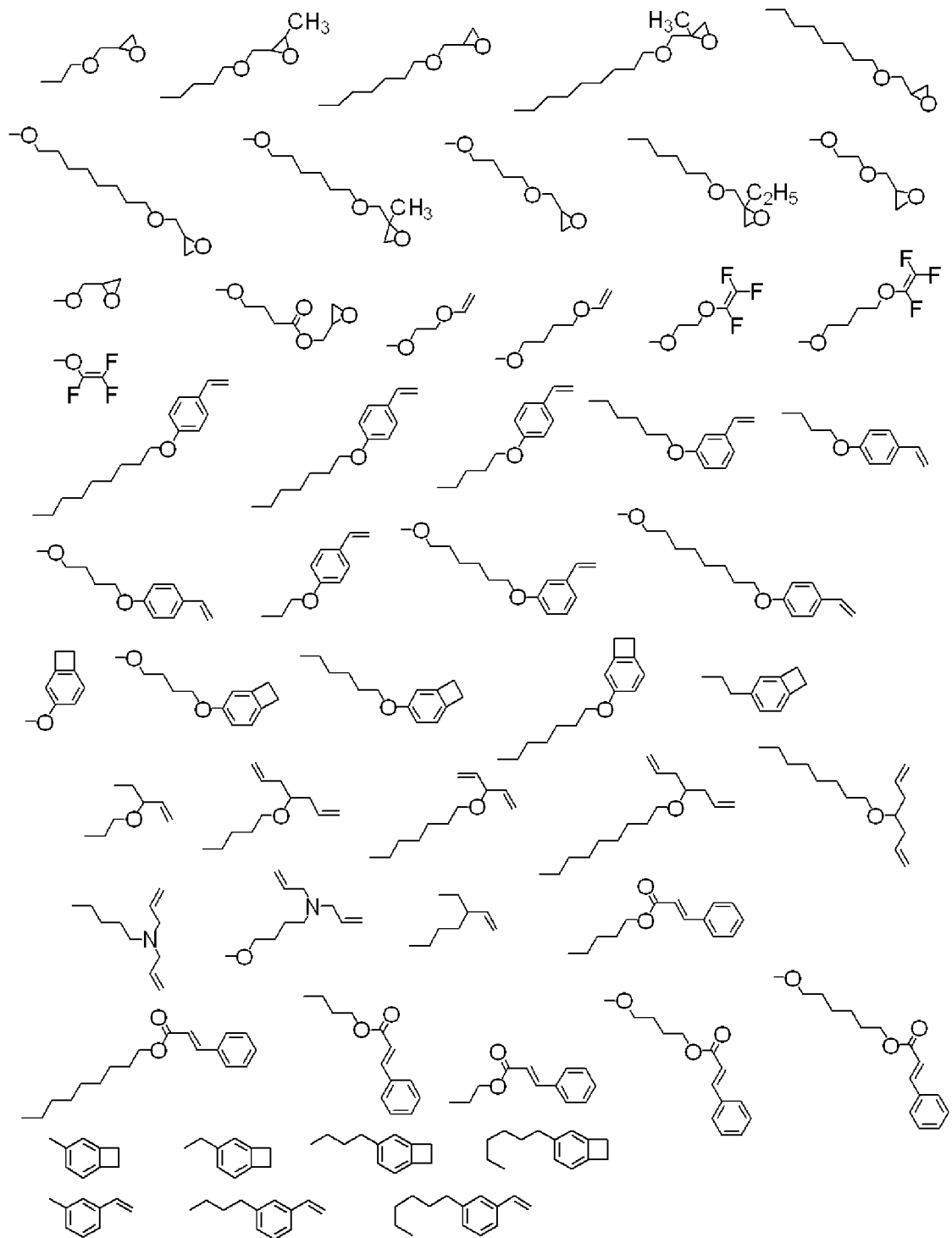
[0206] 他の架橋性基を含む基の具体例としては、次のものが挙げられる。

[化64]



[0207]

[化65]



[0208] さらに、本発明の一態様において、正孔輸送材料は、導電性ポリマーやオリゴマーを含むことが好ましい。この導電性ポリマーやオリゴマーは、通常、電子供与性化合物、電子受容性化合物、又は酸性化合物との混合物である。混合物は固体状でも液体状でもいいが、塗布法により成膜し、固体膜を得

る方法に好適に用いられる溶液、分散液、コロイド、インク、ワニス等が好ましい。また、正孔輸送性の向上のためや、成膜性を向上させることを目的に、該混合物に添加剤を加えてもよい。

以下に本発明の一態様に用いることのできる導電性ポリマーやオリゴマーの例を示す。

前記電子供与性化合物の代表的な例としては、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、チオフェン誘導体、ベンジルフェニル誘導体、フルオレン基で3級アミンを連結した化合物、ヒドラゾン誘導体、シラザン誘導体、シラナミン誘導体、ホスファミン誘導体、キナクリドン誘導体、アニリン誘導体、ピロール誘導体、フェニレンビニレン誘導体、チエニレンビニレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、カーボン等が挙げられる。これらの誘導体は分子量が1000未満の低分子、分子量が1000～10000のオリゴマー及びデンドリマー、及び分子量が10000以上の高分子のいずれであってもよい。中でも芳香族アミン誘導体やポリチオフェン誘導体、ポリアニリン誘導体、オリゴアニリン誘導体が好適に用いられる。

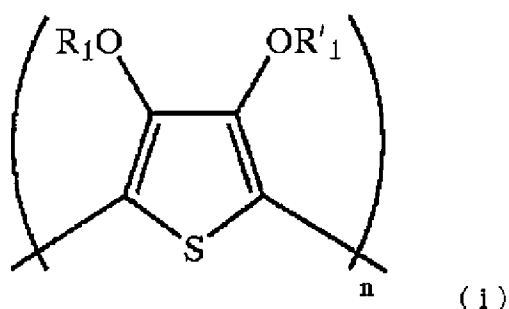
[0209] 前記電子受容性化合物及び酸性化合物の代表的な例としては、トリアリールホウ素化合物、ハロゲン化金属、ルイス酸、有機酸、オニウム塩、アリールアミンとハロゲン化金属との塩、アリールアミンとルイス酸との塩よりなる群から選ばれる1種又は2種以上の化合物が挙げられる。さらに具体的には、4-イソプロピル-4'-メチルジフェニルヨードニウムテトラキス（ペンダフルオロフェニル）ボラート、トリフェニルスルホニウムテトラフルオロボラート等の有機基を有するオニウム塩；塩化鉄（III）、ペルオキソニ硫酸アンモニウム等の高原子価の無機化合物；テトラシアノエチレン等のシアノ化合物；トリス（ペンタフルオロフェニル）ボラン等の芳香族ホウ素化合物；フラーレン誘導体；ヨウ素；ポリスチレンスルホン酸イオン、アルキルベンゼンスルホン酸イオン、ショウノウスルホン酸イオン等のスルホン酸イオン等が挙げられる。

電子供与性化合物の場合と同様に、これらの誘導体は分子量が1000未満の低分子、分子量が1000～10000のオリゴマー及びデンドリマー、及び分子量が10000以上のポリマーのいずれであってもよい。

[0210] これらの電子受容性化合物は、正孔輸送材料を酸化することにより正孔輸送層の導電率を向上させることができる。正孔輸送層或いは正孔輸送層用組成物中の電子受容性化合物の正孔輸送材料に対する含有量は、通常0.1モル％以上、好ましくは1モル％以上、通常100モル％以下、好ましくは40モル％以下である。

以下、本発明の一態様に用いることができる正孔輸送材料の代表例(i)～(x)を示す。なお、これらは単独、あるいは、混合して用いることもできるが、相対的に電子供与性のものと、相対的に電子受容性のものを混合することが望ましい。さらに、電子供与性化合物と電子受容性化合物との間での電荷移動を促進させたり、塗布成膜性を向上させるための添加剤などを第三の成分として添加することもできる。第三の成分は複数用いることもできる。

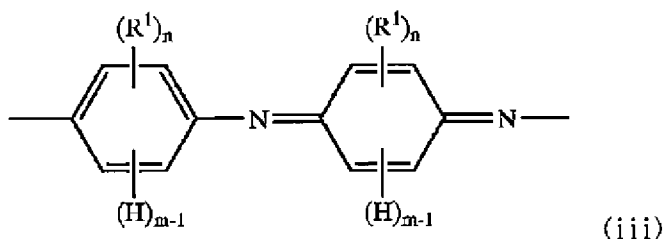
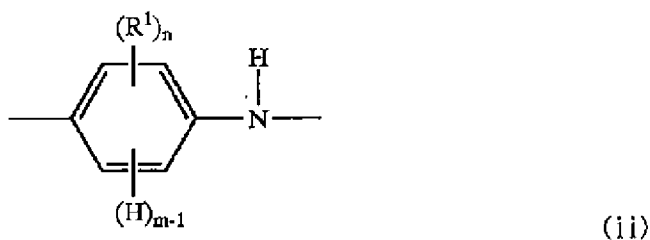
[0211] [化66]



[0212] 式中、 R_1 および R'_1 は、それぞれ独立に、水素原子及び炭素数1～4のアルキルから選択される。 R_1 および R'_1 は互いに結合して、炭素数1～4のアルキレン鎖を表してもよい。該アルキレン鎖は任意に炭素数1～12のアルキル基、炭素数6～12の芳香族基、または1,2-シクロヘキシレン基で置換されてもよい。 n は約6よりも大きい数を表す。

[0213] (ii) 及び／又は (iii) のモノマー単位を有するポリアニリン

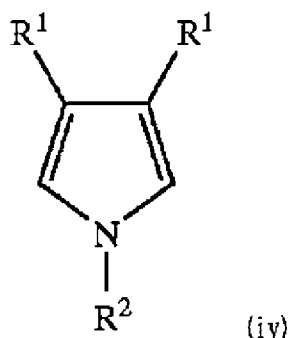
[化67]

[0214] 上記式中、 n は、0～4の整数であり、 $m-1$ は、1～5の整数で、 $n + (m-1) = 5$ であり、

R^1 は、同一又は異なり、それぞれ独立して、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、シクロアルキル基、シクロアルケニル基、アルカノイル基、アルキルチオ基、アリールオキシ基、アルキルチオアルキル基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、アミノ基、アルキルアミノ基、ジアルキルアミノ基、アリール基、アルキルスルフィニル基、アルコキシアルキル基、アルキルスルホニル基、アリールチオ基、アリールスルフィニル基、アルコキシカルボニル基、アリールスルホニル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、または1つまたは複数のスルホン酸基、カルボキシル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基もしくはエポキシ基によって置換されたアルキル基から選択される。隣接する2つの R^1 基が互いに結合して、1つまたは複数の二価の窒素原子、イオウ原子または酸素原子を含んでもよい3、4、5、6または7員の芳香族環もしくは脂環式環を完成するアルキレン鎖またはアルケニレン鎖を形成してもよい。

[0215]

[化68]

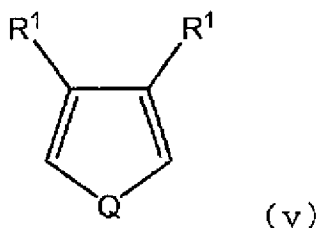


[0216] 上記式中、 R^1 は、独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アルカノイル基、アルキルチオ基、アリールオキシ基、アルキルチオアルキル基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、アミノ基、アルキルアミノ基、ジアルキルアミノ基、アリール基、アルキルスルフィニル基、アルコキシアルキル基、アルキルスルホニル基、アリールチオ基、アリールスルフィニル基、アルコキシカルボニル基、アリールスルホニル基、アクリル酸基、リン酸基、ホスホン酸基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、エポキシ基、シリル基、シロキサン基、アルコール基、ベンジル基、カルボキシレート基、エーテル基、エーテルカルボキシレート基、アミドスルホネート基、エーテルスルホネート基、およびウレタン基から選択される。2つの R^1 基は互いに結合して、3員環、4員環、5員環、6員環または7員環の芳香族環または脂環式環を完成するアルキレン鎖またはアルケニレン鎖を形成してもよく、この環は、1個または複数の二価の窒素、硫黄または酸素原子を含んでもよい。

R^2 は、独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アリール基、アルカノイル基、アルキルチオアルキル基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、アミノ基、エポキシ基、シリル基、シロキサン基、アミドスルホネート基、アルコール基、ベンジル基、カルボキシレート基、エーテル基、エーテルカルボキシレート基、アミドスルホネート基、エーテルスルホネート基、およびウレタン基から選択される基である。

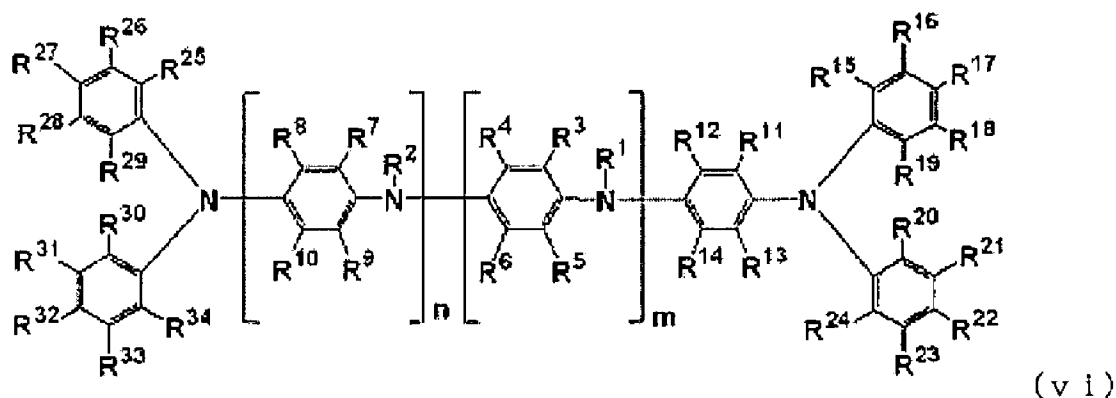
[0217]

[化69]



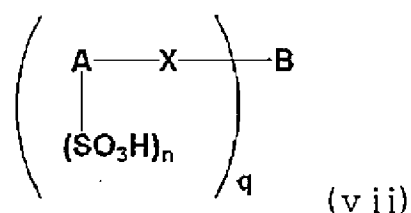
[0218] 上記式中、Qは、S、Se、およびTeからなる群から選択され、R¹は、独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アルカノイル基、アルキチオ基、アリーールオキシ基、アルキルチオアルキル基、アルキルアリーール基、アリーールアルキル基、アミノ基、アルキルアミノ基、ジアルキルアミノ基、アリーール基、アルキルスルフィニル基、アルコキシアルキル基、アルキルスルホニル基、アリーールチオ基、アリーールスルフィニル基、アルコキシカルボニル基、アリーールスルホニル基、アクリル酸基、リン酸基、ホスホン酸基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシル基、エポキシ基、シリル基、シロキサン基、アルコール基、ベンジル基、カルボキシレート基、エーテル基、エーテルカルボキシレート基、アミドスルホネート基、エーテルスルホネート基、エステルスルホネート基、およびウレタン基から選択される。2つのR¹基は互いに結合して、3、4、5、6、または7員の芳香環または脂環式環を完成するアルキレン鎖またはアルケニレン鎖を形成してもよく、該環は、1つまたは複数の二価の窒素原子、セレン原子、テルル原子、硫黄原子、または酸素原子を含んでもよい。

[0219] [化70]



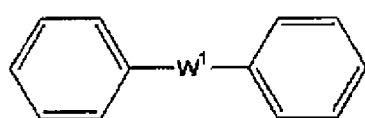
[0220] 上記式中、 R^1 および R^2 は、それぞれ独立して、水素原子、置換もしくは無置換の一価炭化水素基、 t -ブトキシカルボニル基、またはベンジルオキシカルボニル基を示し、 $R^3 \sim R^{34}$ は、それぞれ独立して水素原子、水酸基、シラノール基、チオール基、カルボキシ基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、置換もしくは無置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基、スルホン基またはハロゲン原子を示し、 m および n は、それぞれ独立して1以上の整数で、 $m+n \leq 20$ を満足する。

[0221] [化71]

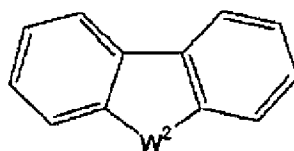


[0222] 上記式中、 X は、 O 、 S または NH を表し、 A は、 X および n 個の SO_3H 基以外の置換基を有していてもよいナフタレン環またはアントラセン環を表し、 B は、置換もしくは無置換の炭化水素基、1, 3, 5-トリアジン基、または、置換もしくは無置換の下記式(vii-1)もしくは(vii-2)で示される基(式中、 W^1 および W^2 は、それぞれ独立して、 O 、 S 、 $S(O)$ 、 $S(O_2)$ 、または、置換もしくは無置換の N 、 Si 、 P 、 $P(O)$ を示す)を表し、 n は $1 \leq n \leq 4$ を満たす整数であり、 q は $1 \leq q$ を満たす整数である。

[化72]



(vii-1)



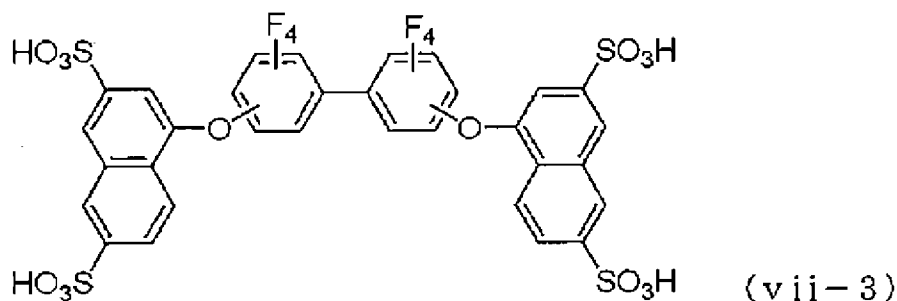
(vii-2)

[0223] B としては、耐久性向上および電荷輸送性向上を図ることを考慮すると、一つ以上の芳香環を含んでいる2価以上の置換もしくは無置換の炭化水素基

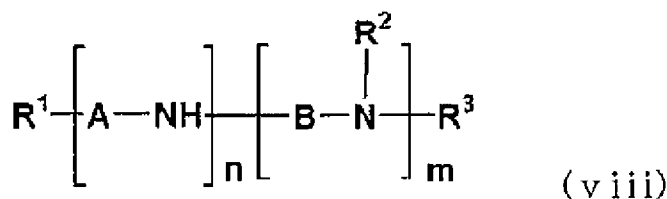
、2価もしくは3価の1, 3, 5-トリアジン基、置換もしくは無置換の2価のジフェニルスルホン基が好ましく、特に、2価もしくは3価の置換もしくは無置換のベンジル基、2価の置換もしくは無置換のp-キシリレン基、2価もしくは3価の置換もしくは無置換のナフチル基、2価もしくは3価の1, 3, 5-トリアジン基、2価の置換もしくは無置換のジフェニルスルホン基、2～4価のパーフルオロビフェニル基、2価の置換もしくは無置換の2, 2-ビス((ヒドロキシプロポキシ)フェニル)プロピル基、置換もしくは無置換のポリビニルベンジル基が好ましい。

[0224] 式(vii)で表される化合物は式(vii-3)表されることが特に好ましい。

[化73]

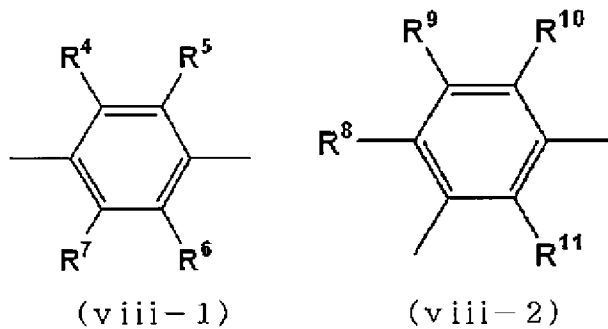


[0225] [化74]



[0226] 式中、 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、アミノ基、シラノール基、チオール基、カルボキシル基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基またはスルホン酸基を示し、AおよびBは、それぞれ独立して、式(viii-1)または(viii-2)で表される二価の基を示す。

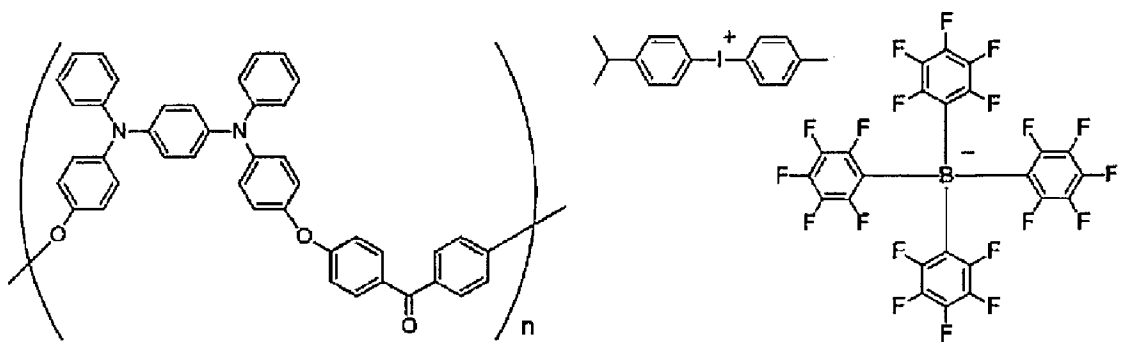
[化75]



[0227] 式中、 $R^4 \sim R^{11}$ は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、アミノ基、シラノール基、チオール基、カルボキシル基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基またはスルホン酸基を示す。 m および n は、それぞれ独立して、1以上の整数で、 $m+n \leq 20$ を満足する。

[0228] 下記化合物の混合物 (ix)

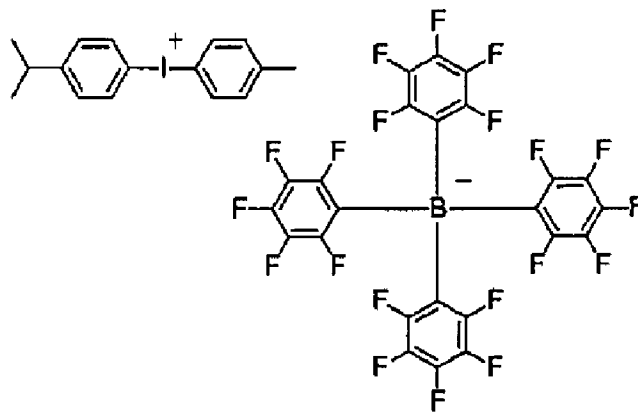
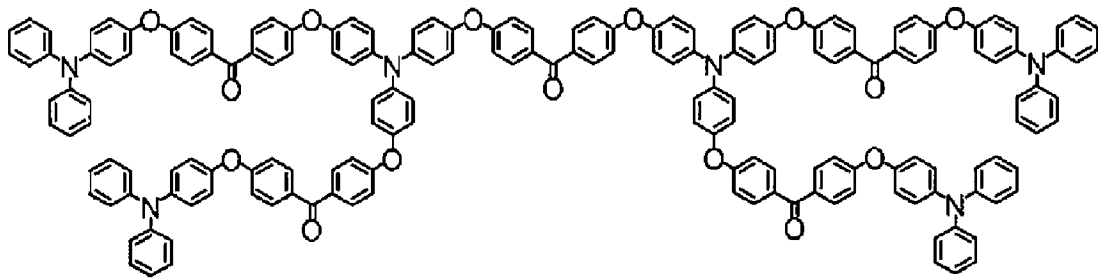
[化76]



n は、3以上の整数を表す。

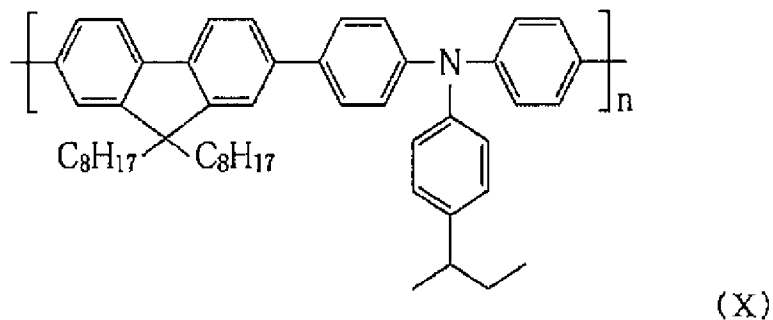
[0229] 下記化合物の混合物 (x)

[化77]



[0230] 本発明の一態様において、下記式 (X) のフェニルアミン系ポリマーを正孔輸送材料として用いることもできる。

[化78]



n は、3 以上の整数を表す。

[0231] 本発明の一態様の有機 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。

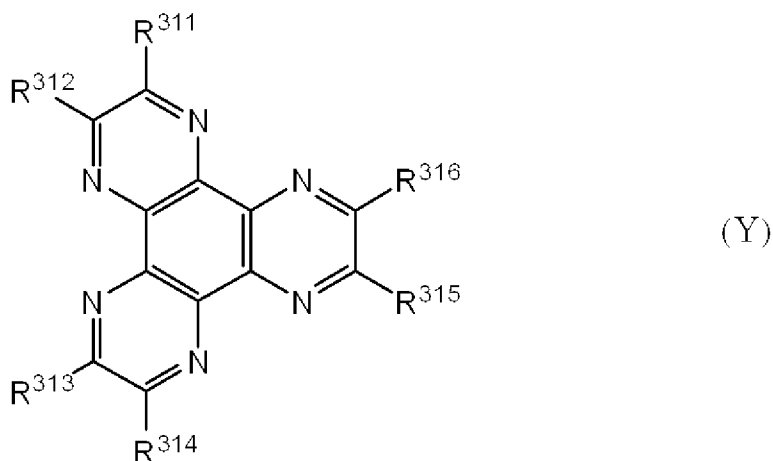
正孔輸送層の膜厚は特に限定されないが、10～200 nm であるのが好ましい。

[0232] 本発明の一態様の有機 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。

前記アクセプター材料としては下記式（Y）で表される化合物が好ましい。

[0233] [化79]



[0234] （上記式（Y）中、R³¹¹～R³¹⁶は互いに同一でも異なってもよく、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシ基、又は $-\text{COOR}^{317}$ （R³¹⁷は炭素数1～20のアルキル基又は炭素数3～20のシクロアルキル基を表す）を表す。ただし、R³¹¹及びR³¹²、R³¹³及びR³¹⁴、並びにR³¹⁵及びR³¹⁶の1又は2以上の対が一緒になって $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を形成してもよい。）

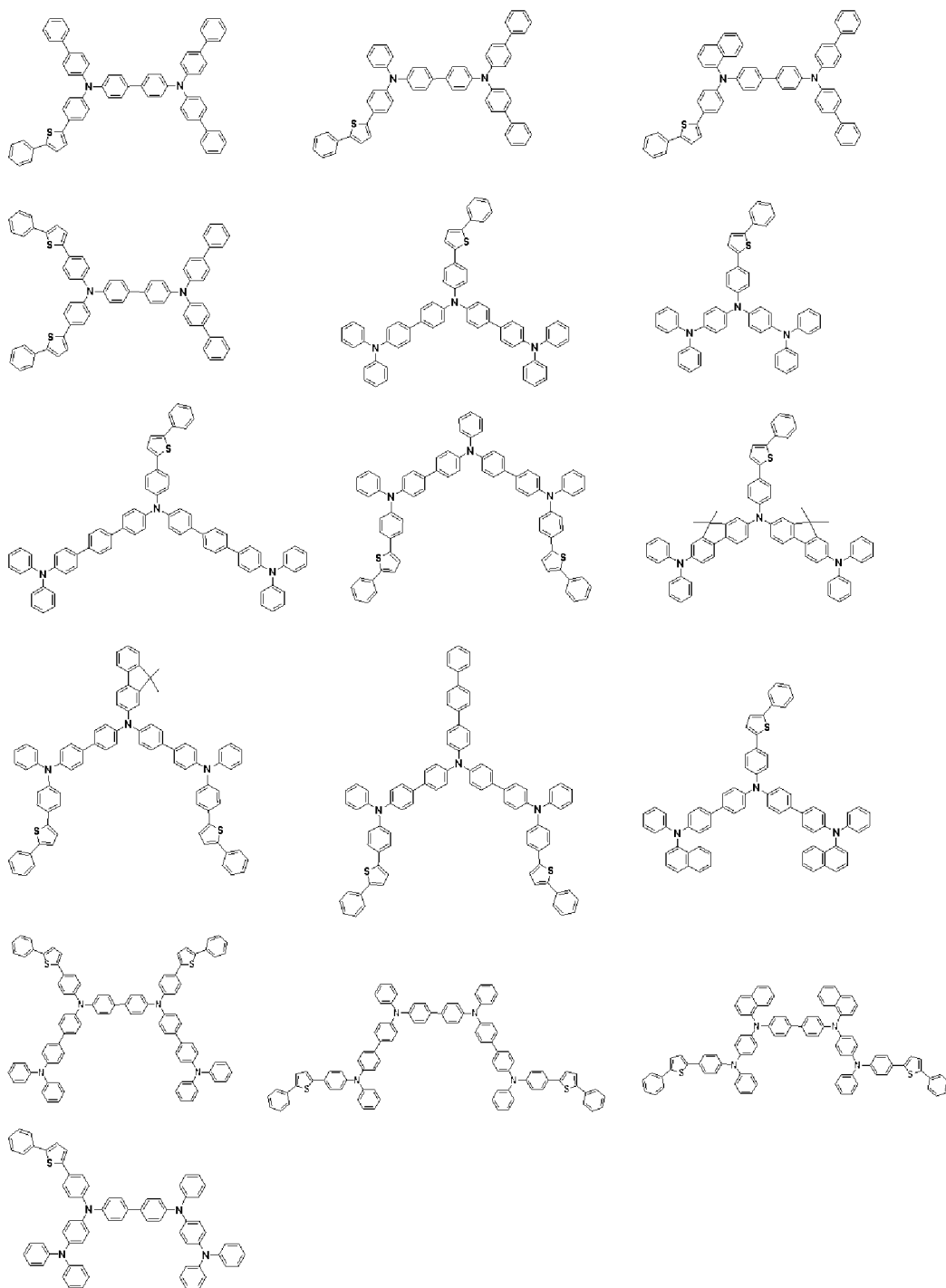
R³¹⁷としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

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、5～20 nmであるのが好ましい。

前記アクセプター材料として下記の材料を用いてもよい。

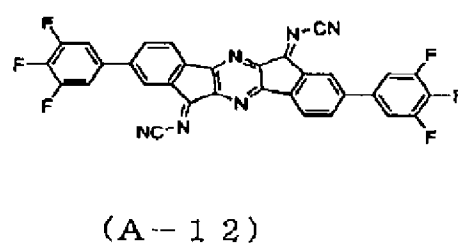
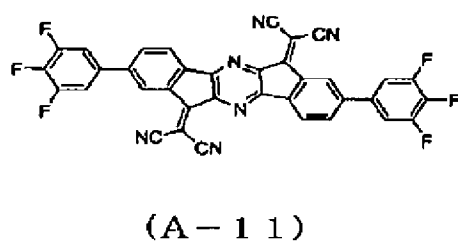
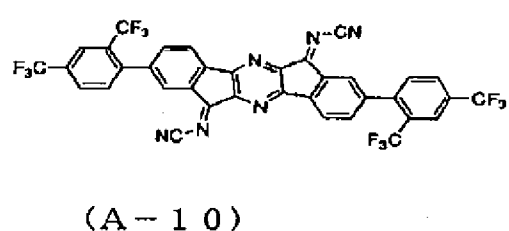
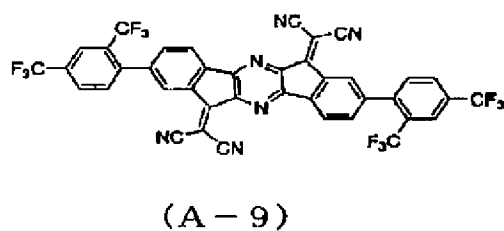
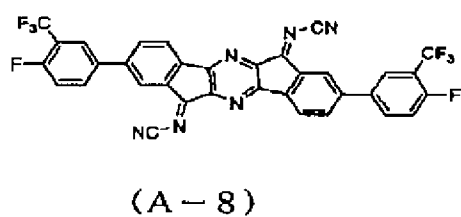
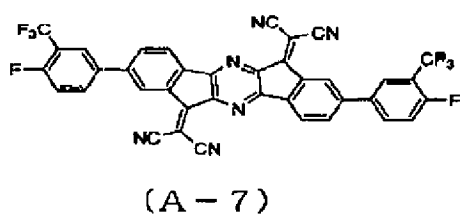
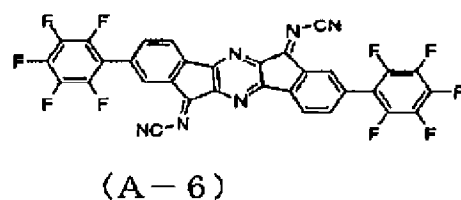
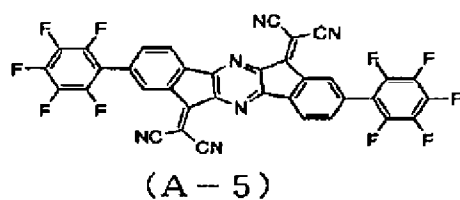
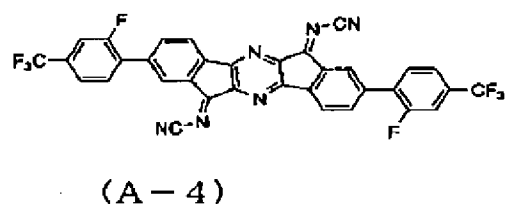
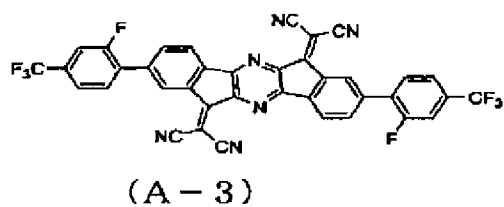
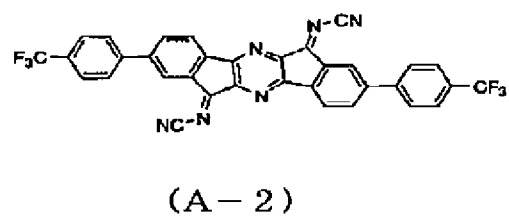
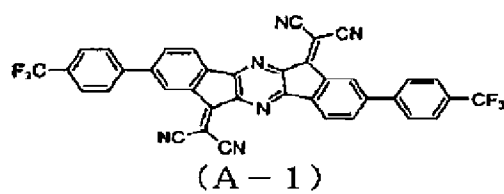
[0235]

[化80]

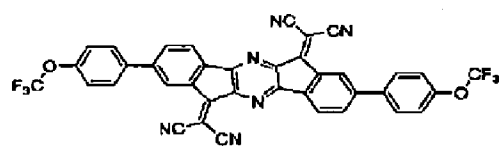


[0236]

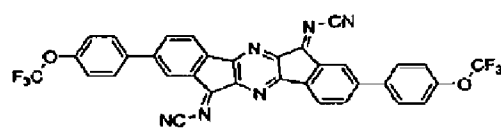
[化81]



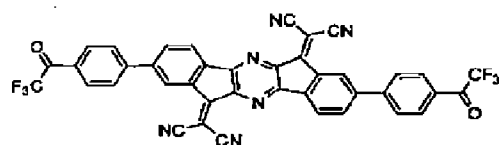
[0237] [化82]



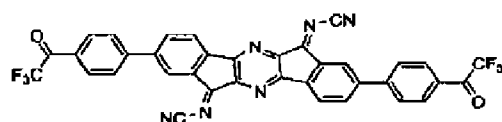
(A-13)



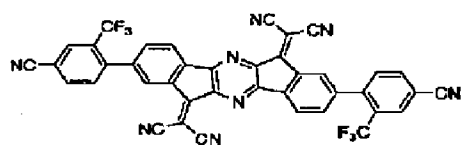
(A-14)



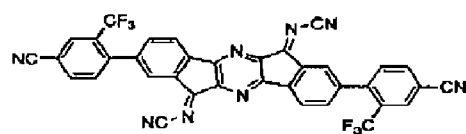
(A-15)



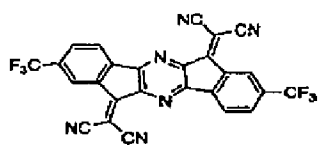
(A-16)



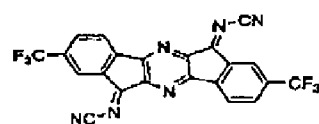
(A-17)



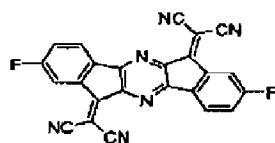
(A-18)



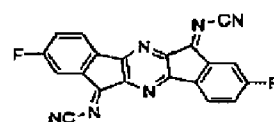
(A-19)



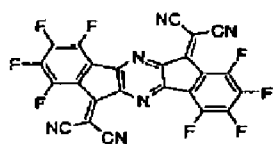
(A-20)



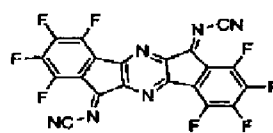
(A-21)



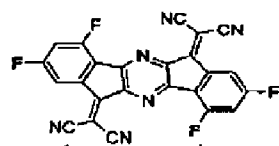
(A-22)



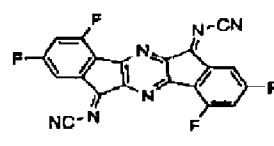
(A-23)



(A-24)



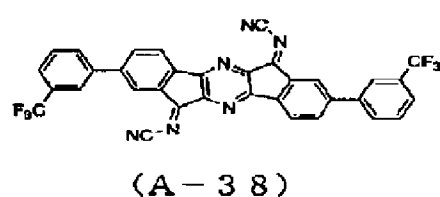
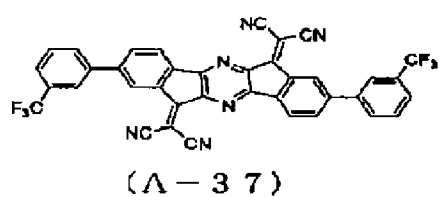
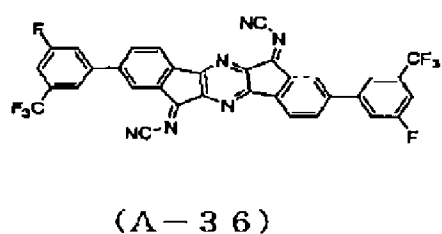
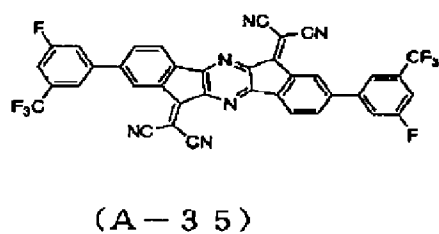
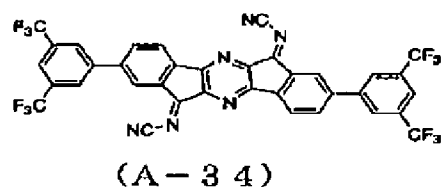
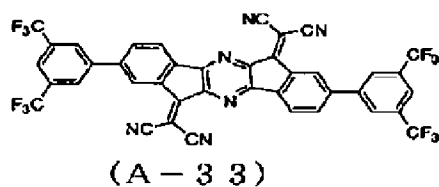
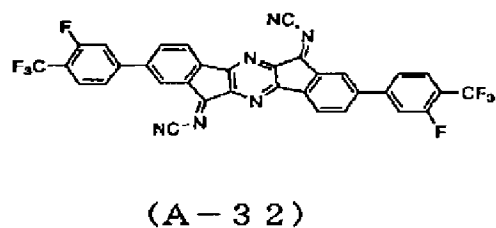
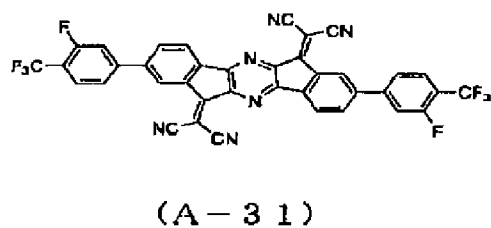
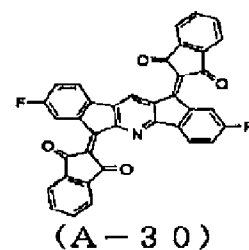
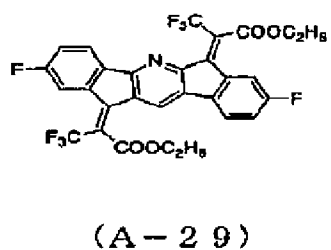
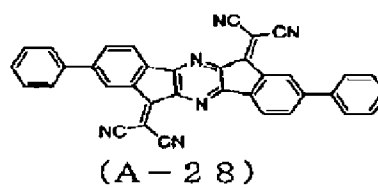
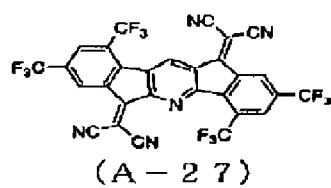
(A-25)



(A-26)

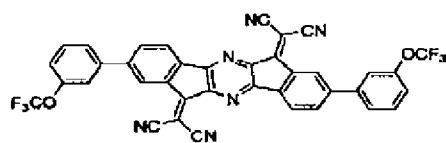
[0238]

[化83]

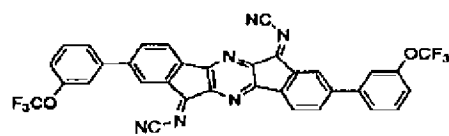


[0239]

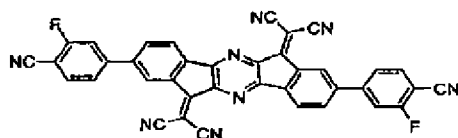
[化84]



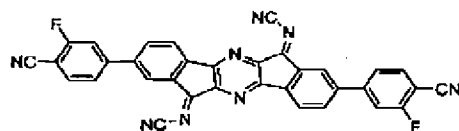
(A-39)



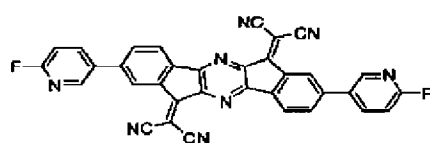
(A-40)



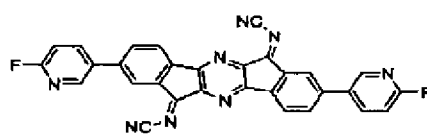
(A-41)



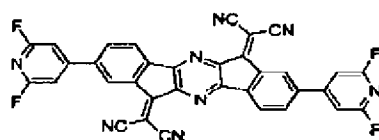
(A-42)



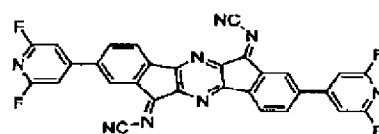
(A-43)



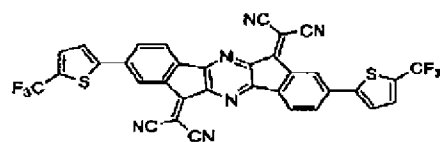
(A-44)



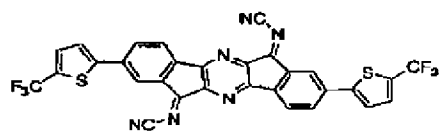
(A-45)



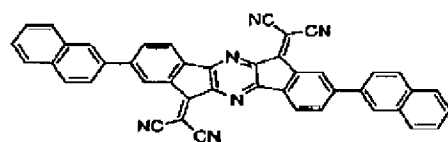
(A-46)



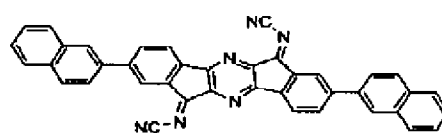
(A-47)



(A-48)



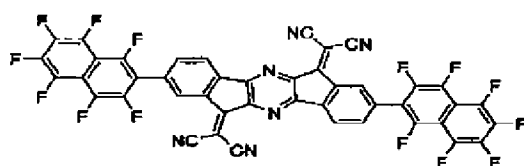
(A-49)



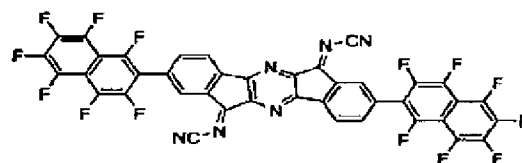
(A-50)

[0240]

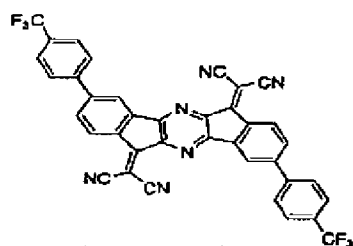
[化85]



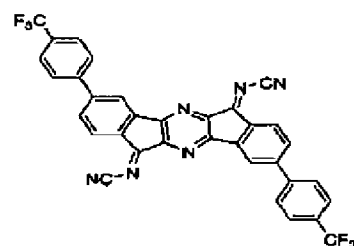
(A-51)



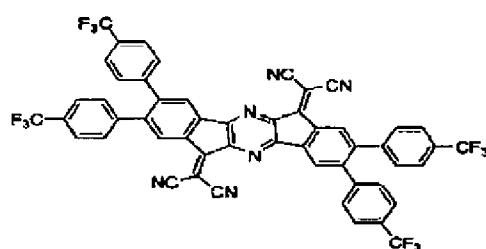
(A-52)



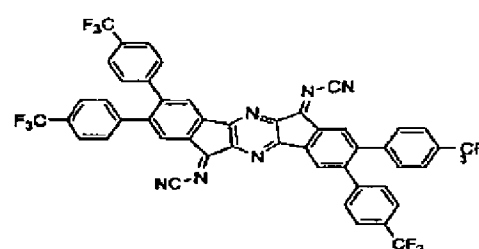
(A-53)



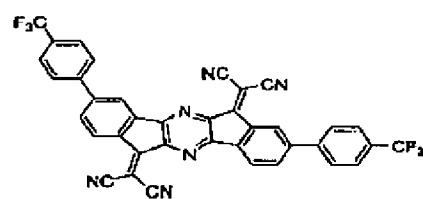
(A-54)



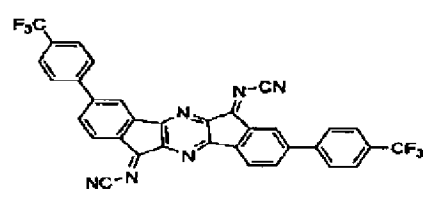
(A-55)



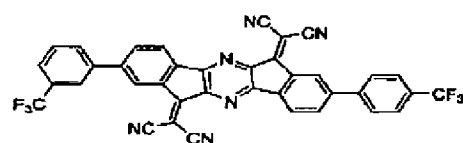
(A-56)



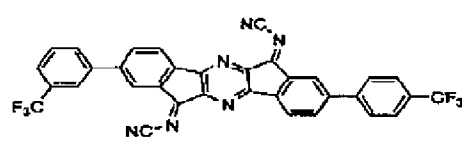
(A-57)



(A-58)



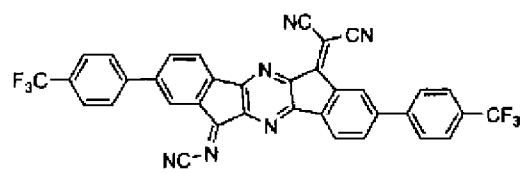
(A-59)



(A-60)

[0241]

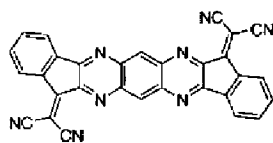
[化86]



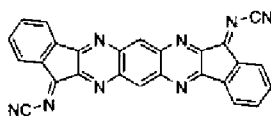
(A-61)

[0242]

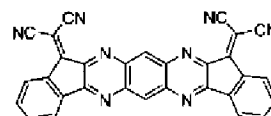
[化87]



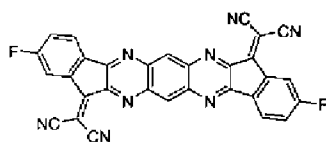
(B-1)



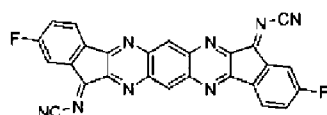
(B-2)



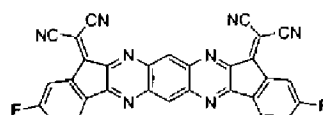
(B-3)



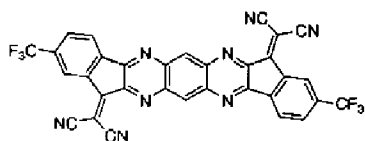
(B-4)



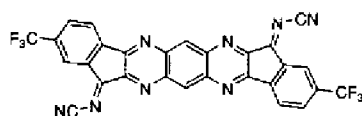
(B-5)



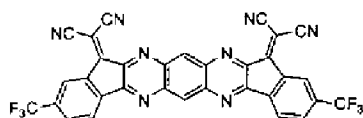
(B-6)



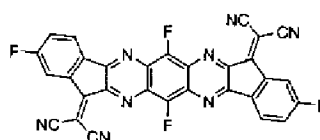
(B-7)



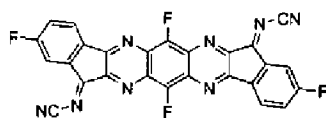
(B-8)



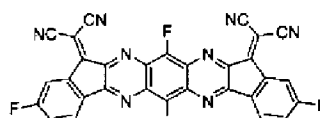
(B-9)



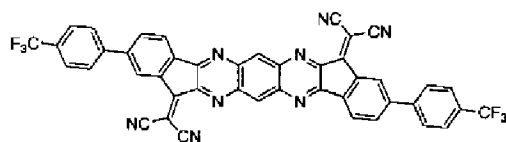
(B-10)



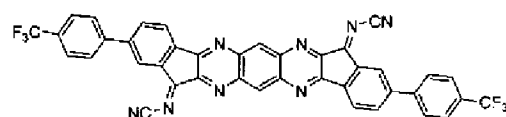
(B-11)



(B-12)



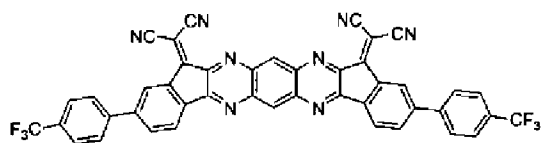
(B-13)



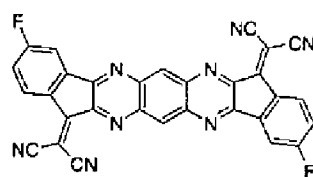
(B-14)

[0243]

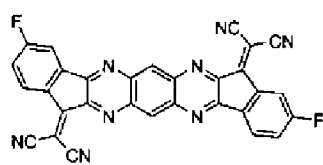
[化88]



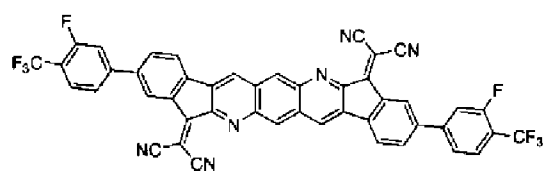
(B-15)



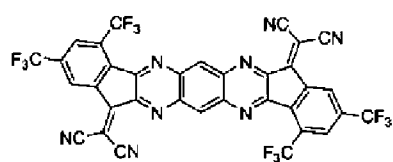
(B-16)



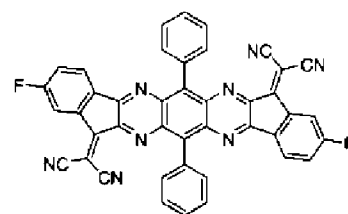
(B-17)



(B-18)



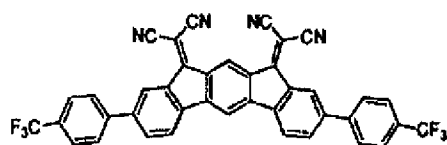
(B-19)



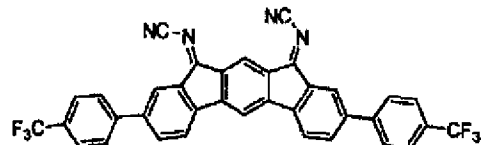
(B-20)

[0244]

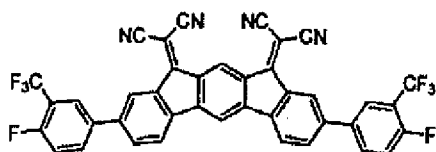
[化89]



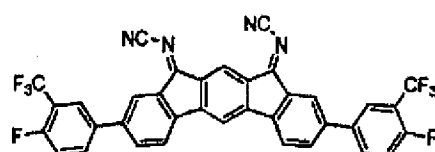
(A'-1)



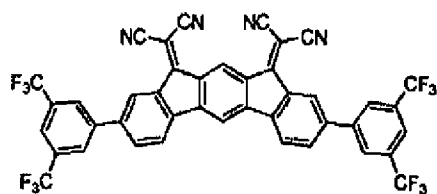
(A'-2)



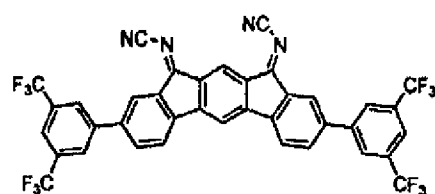
(A'-3)



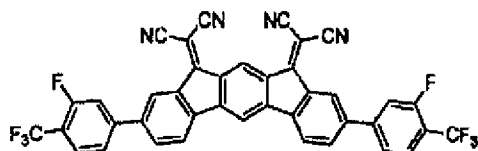
(A'-4)



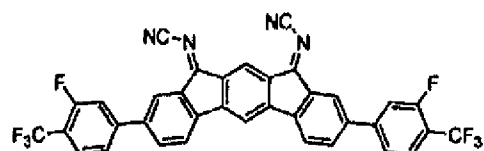
(A'-5)



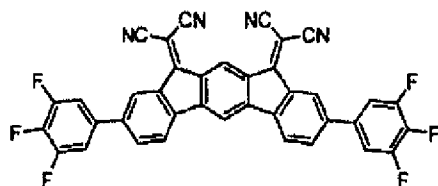
(A'-6)



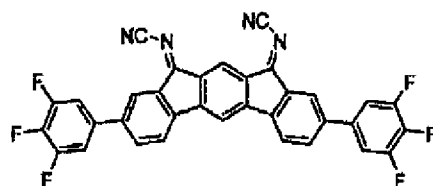
(A'-7)



(A'-8)

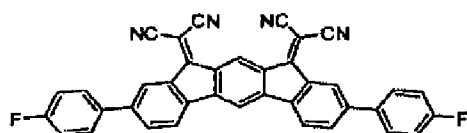


(A'-9)

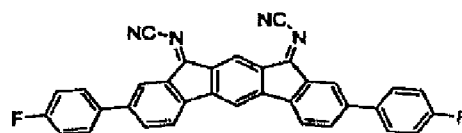


(A'-10)

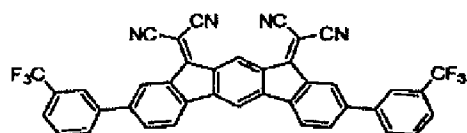
[0245] [化90]



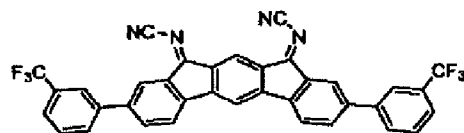
(A'-11)



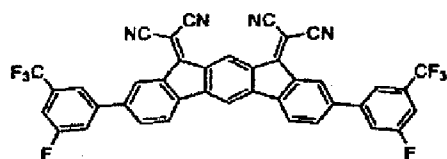
(A'-12)



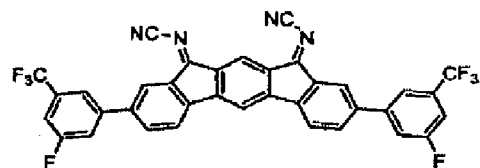
(A'-13)



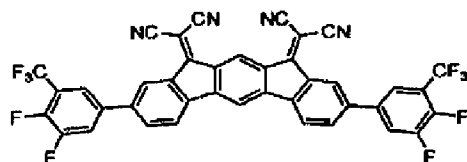
(A'-14)



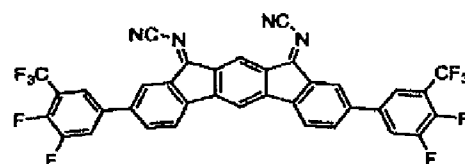
(A'-15)



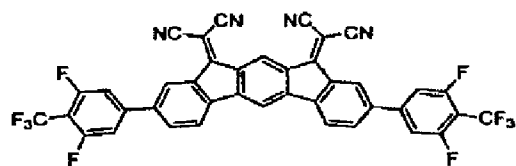
(A'-16)



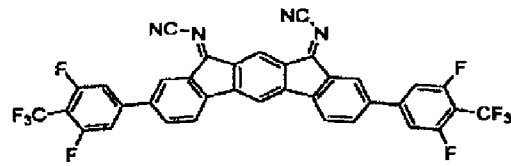
(A'-17)



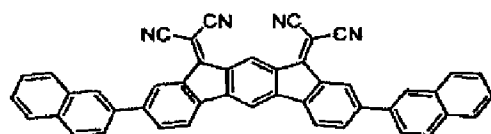
(A'-18)



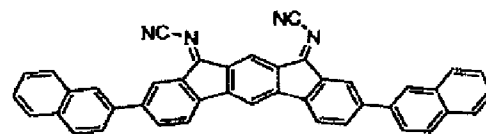
(A'-19)



(A'-20)



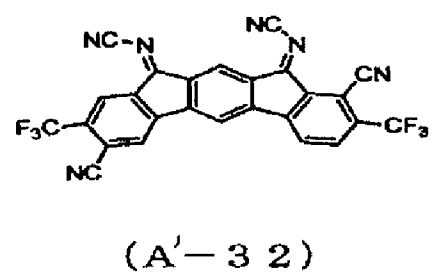
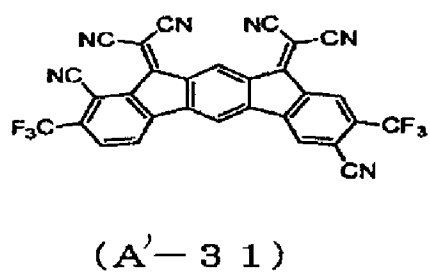
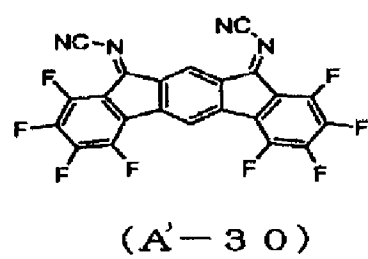
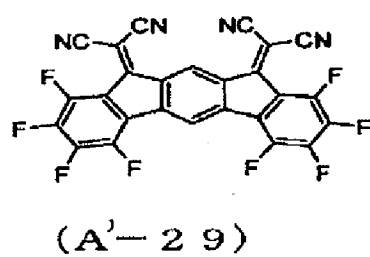
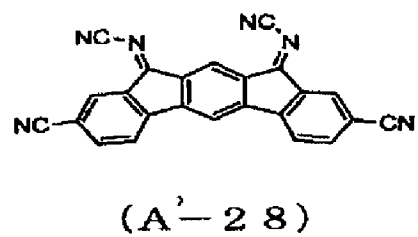
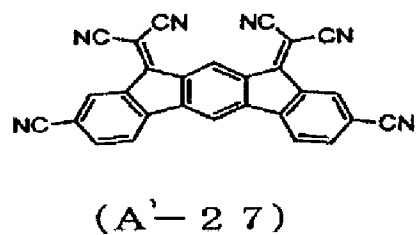
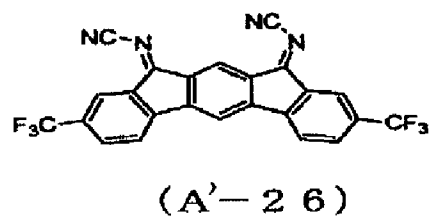
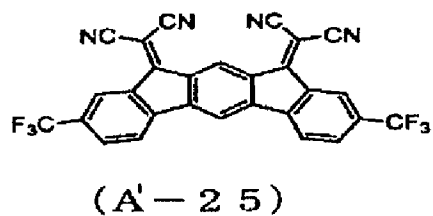
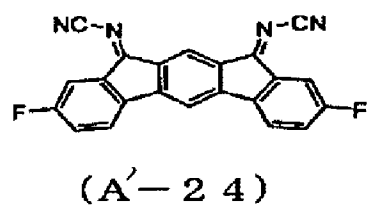
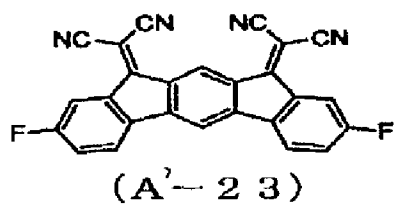
(A'-21)



(A'-22)

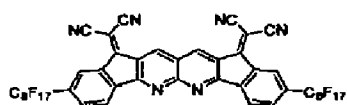
[0246]

[化91]

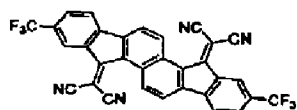


[0247]

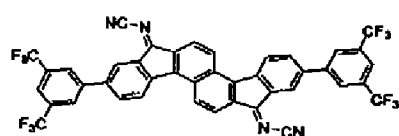
[化92]



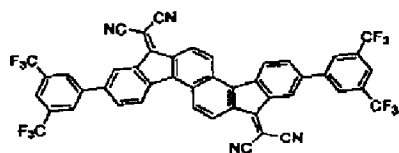
(A'-43)



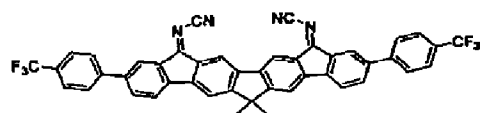
(A'-45)



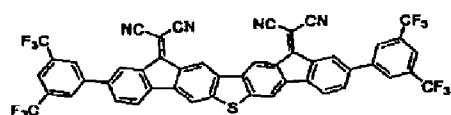
(A'-47)



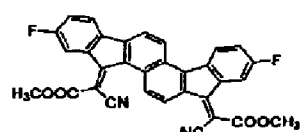
(A'-49)



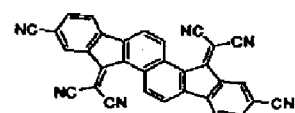
(A'-51)



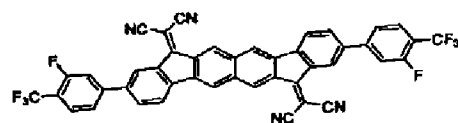
(A'-53)



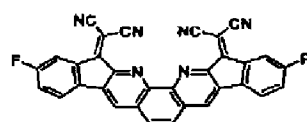
(A'-44)



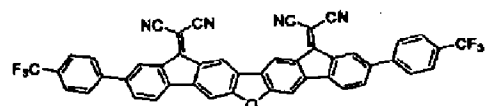
(A'-46)



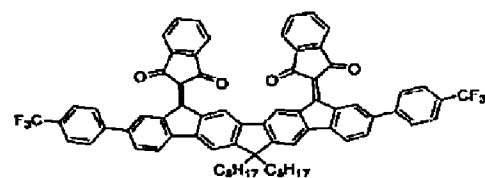
(A'-48)



(A'-50)



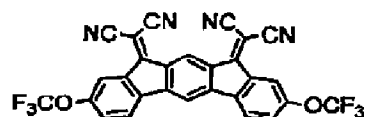
(A'-52)



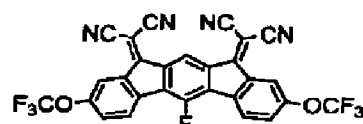
(A'-54)

[0248]

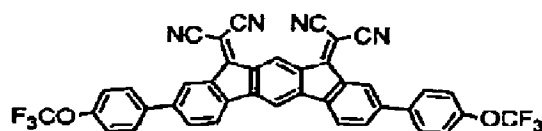
[化93]



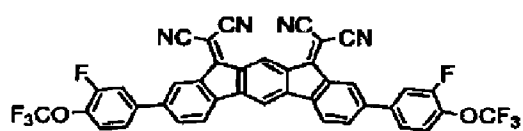
(A'-55)



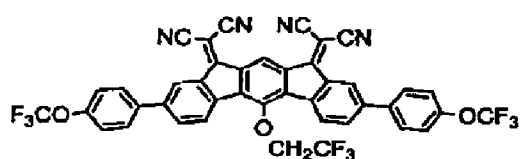
(A'-56)



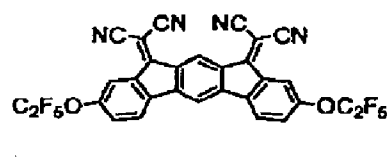
(A'-57)



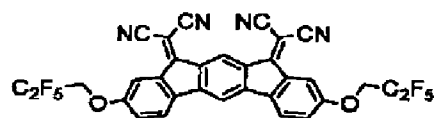
(A'-58)



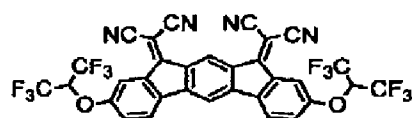
(A'-59)



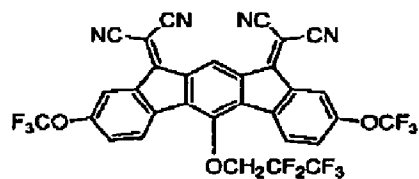
(A'-60)



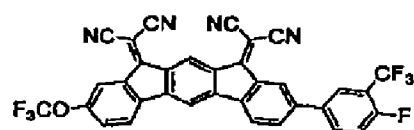
(A'-61)



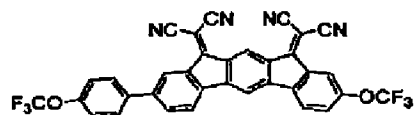
(A'-62)



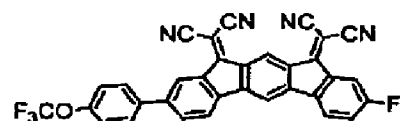
(A'-63)



(A'-64)



(A'-65)



(A'-66)

[0249] (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、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等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F₄TCNQ (2,3,5,6-Tetrafluoro-7,7,8,8-tetracyanoquinodimethane) 等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。

[0250] (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2.6 eV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。スペース層用の材料として、本発明の一態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

[0251] (障壁層)

本発明の一態様の有機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、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る。正孔障壁層用の材料として、本発明の一態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

トリプレット障壁層は、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。

トリプレット障壁層を設ける場合、燐光素子においては、発光層中の燐光

発光性ドーパントの三重項エネルギーを E^T_d 、トリプレット障壁層として用いる化合物の三重項エネルギーを E^T_{TB} とすると、 $E^T_d < E^T_{TB}$ のエネルギー大小関係であれば、エネルギー関係上、燐光発光性ドーパントの三重項励起子が閉じ込められ（他分子へ移動できなくなり）、該ドーパント上で発光する以外のエネルギー失活経路が断たれ、高効率に発光することができると推測される。ただし、 $E^T_d < E^T_{TB}$ の関係が成り立つ場合であってもこのエネルギー差 $\Delta E^T = E^T_{TB} - E^T_d$ が小さい場合には、実際の素子駆動環境である室温程度の環境下では、周辺の熱エネルギーにより吸熱的にこのエネルギー差 ΔE^T を乗り越えて三重項励起子が他分子へ移動することが可能であると考えられる。特に燐光発光の場合は蛍光発光に比べて励起子寿命が長いため、相対的に吸熱的励起子移動過程の影響が現れやすくなる。室温の熱エネルギーに対してこのエネルギー差 ΔE^T は大きい程好ましく、0.1 eV以上であるとさらに好ましく、0.2 eV以上であると特に好ましい。一方、蛍光素子においては、トリプレット障壁層用の材料として、本発明の一態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

[0252] また、トリプレット障壁層を構成する材料の電子移動度は、電界強度0.04～0.5 MV/cmの範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。有機材料の電子移動度の測定方法としては、Time of Flight法等幾つかの方法が知られているが、ここではインピーダンス分光法で決定される電子移動度をいう。

電子注入層は、電界強度0.04～0.5 MV/cmの範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 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。

[0253] 本発明の一態様の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の一態様の有機EL素子における化合物(1)を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)、あるいは当該化合

物を溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

[0254] 本発明の一態様の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1 μ mの範囲が好ましい。本発明の一態様の化合物(1)を含有する層(特に発光層)を形成する方法としては、例えば、上述した本発明の一態様のインク組成物を成膜する方法が好ましい。

[0255] 本発明の一態様である化合物(1)を含有する層(発光層、正孔輸送層、電子輸送層等)は、溶媒及び前記化合物を含む溶液(インク組成物)を用いて上記塗布法により成膜することが好ましい。該インク組成物には、必要に応じて、ドーパント等の他の材料を含有させてもよい。

塗布法としては、湿式成膜法が好適に用いられ、凸版印刷法、凹版印刷法、平版印刷法、孔版印刷法、及び、それらとオフセット印刷法を組み合わせた印刷法、インクジェット印刷法、ディスペンサー塗布スピンコート法、バーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スリットコート法、ロールコート法、キャップコート法、グラビアロールコート法、メニスカスコート法等が適用できる。特に微細なパターンニングを要する場合、凸版印刷法、凹版印刷法、平版印刷法、孔版印刷法、及び、それらとオフセット印刷法を組み合わせた印刷法、インクジェット印刷法、ディスペンサー塗布等が好ましい。また、転写前駆基板へ本重合体を前記の湿式成膜法により成膜した後、レーザー光や熱プレスなどで対象とする電極を有する配線基板上へ転写する方法を用いることもできる。これらの方法による成膜は当業者に周知の条件により行うことができる。

成膜後は、真空下に加熱(上限250℃)乾燥して、溶媒を除去すればよく、光や250℃を超える高温加熱による重合反応は不要である。従って、光や250℃を超える高温加熱による素子の性能劣化の抑制が可能である。

[0256] [電子機器]

本発明の一態様の電子機器について説明する。

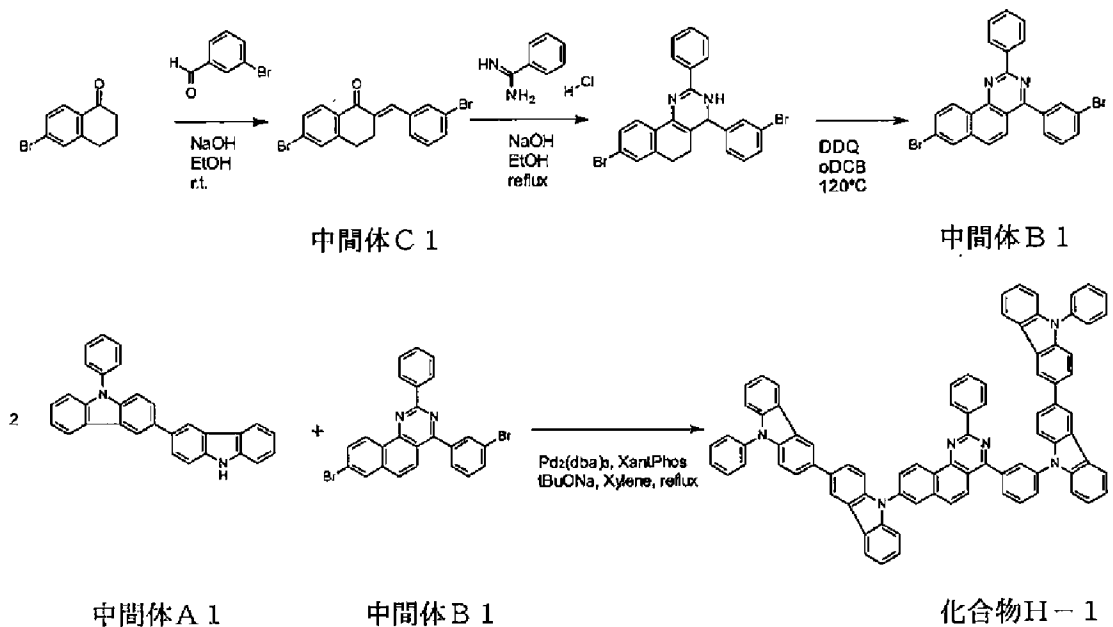
本発明の一態様の電子機器は、本発明の一態様の有機エレクトロルミネッセンス素子を含む。本発明の一態様の有機エレクトロルミネッセンス素子は、有機ELパネルモジュール等の表示部品、テレビ、携帯電話及びパーソナルコンピュータ等の表示装置、並びに、照明及び車両用灯具の発光装置等の電子機器に使用できる。

実施例

[0257] 以下、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はそれら実施例に限定されるものではない。

[0258] 合成例 1 (化合物 H-1 の合成)

[化94]



[0259] 6-ブロモ-1-テトラロン (11.25 g、50 mmol)、3-ブロモベンズアルデヒド (9.25 g、50 mmol) をエタノール (100 mL) に溶解し、水酸化ナトリウム (0.20 g、5 mmol) を加え、室温で 8 時間攪拌した。生成した粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでメタノールで洗浄し、真空乾燥してカルコン中間体 C 1 (12.84 g、収率 82%) を得た。

カルコン中間体C1 (6.26 g、20 mmol)、ベンズアミジン塩酸塩 (3.13 g、20 mmol)、水酸化ナトリウム (0.88 g、22 mmol) をエタノール (100 mL) 中、加熱還流下8時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン (100 mL) 中、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノ (DDQ) (9.08 g、40 mmol) を加え室温で1時間、さらに120℃で5時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキナゾリン中間体B1 (7.01 g、収率71%) を得た。

アルゴン雰囲気下、ピカルバゾリル中間体A1 (2.57 g、6.3 mmol)、ベンゾキナゾリン中間体B1 (2.94 g、6.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム ($\text{Pd}_2(\text{dba})_3$) (55 mg、0.06 mmol)、4,5'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9'-ジメチルキサンテン (XantPhos) (69 mg、0.12 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.86 g、9.0 mmol)、無水キシレン (60 mL) を順次加えて12時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物H-1 (2.85 g、収率83%) を得た。

化合物H-1について、HPLC (High Performance Liquid Chromatography) 及びFD-MSの分析結果を以下に示す。

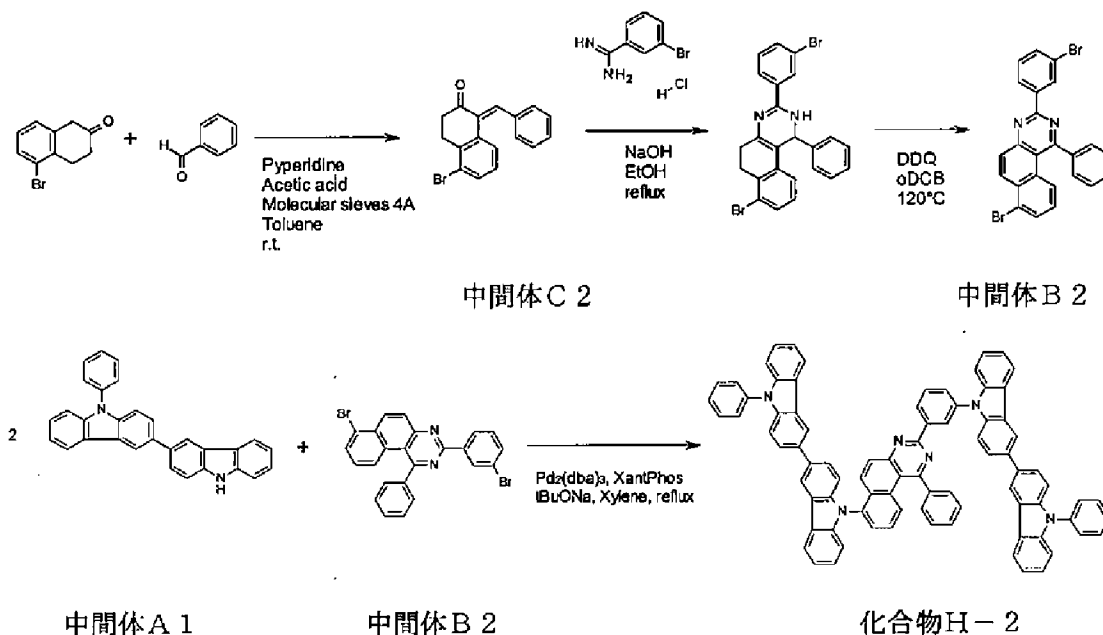
HPLC : 純度99.77%

FD-MS : calcd for $\text{C}_{84}\text{H}_{52}\text{N}_6 = 1144$

found $m/z = 1144$ (M^+ , 100)

[0260] 合成例2 (化合物H-2の合成)

[化95]



[0261] 5-ブロモ-2-テトラロン (11.25 g、50 mmol)、ベンズアルデヒド (5.31 g、50 mmol) をトルエン (150 mL) に溶解し、ピペリジン (250 mg)、酢酸 (250 mg)、モレキュラーシーブス 4A (12.5 g) を加え、室温で12時間攪拌した。反応液をセライトを用いて濾過し、酢酸エチルで希釈した後、飽和亜硫酸ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を分離し、硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を溜去した後シリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、中間体 C 2 (10.96 g、収率 70%) を得た。この中間体 C 2 (6.26 g、20 mmol)、3-ブロモベンズアミジン塩酸塩 (4.71 g、20 mmol)、水酸化ナトリウム (0.88 g、22 mmol) をエタノール (200 mL) 中、加熱還流下8時間反応させた。生成した粉末を濾取し、メタノールで洗浄し、真空乾燥した。この粉末をオルトジクロロベンゼン (80 mL) 中、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノー-p-ベンゾキノン (DDQ) (9.08 g、40 mmol) を加えて室温で1時間、さらに120℃で5時間反応させ、室温まで冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、ベンゾキノゾリン中間体 B 2 (6.37 g、収率 65%) を得た。

アルゴン雰囲気下、ピカルバゾリル中間体 A 1 (2.57 g、6.3 mmol)

o l)、ベンゾキナゾリン中間体B 2 (2.94 g、6.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム($\text{Pd}_2(\text{dba})_3$) (55 mg、0.06 mmol)、4,5'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9'-ジメチルキサンテン(XantPhos) (69 mg、0.12 mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.86 g、9.0 mmol)、無水キシレン(60 mL)を順次加えて12時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、化合物H-2 (2.75 g、収率80%)を得た。

化合物H-2について、HPLC及びFD-MSの分析結果を以下に示す。

HPLC : 純度99.67%

FD-MS : calcd for $\text{C}_{84}\text{H}_{52}\text{N}_6 = 1144$

found $m/z = 1144$ (M^+ , 100)

[0262] 実施例1

(基板の洗浄)

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

(下地層の形成)

正孔輸送材料としてHERAEUS社製CLEVIOUS A14083(商品名)を30 nmの厚さで前記のITO基板上にスピンコート法により成膜した。成膜後、アセトンにより不要部分を除去し、次いで大気中200℃のホットプレートで10分間焼成し、下地基板を作製した。

(発光層の形成)

ホスト材料として合成実施例1で得た化合物H-1、ドーパント材料として下記化合物D-1を用い、化合物H-1 : 化合物D-1が質量比で90 : 10となるような混合比で、1.6質量%のトルエン溶液を作製した。この

トルエン溶液を用い、前記下地基板上にスピンコート法により、50 nmの膜厚になるように塗布積層した。塗布成膜後、不要部分をトルエンにて除去し、150℃のホットプレート上で加熱乾燥し、発光層を成膜した塗布積層基板を作製した。なお、発光層の成膜にかかる全ての操作は窒素雰囲気グローブボックス中で実施した。

(蒸着、封止)

塗布積層基板を蒸着チャンバー中に搬送し、電子輸送層として下記化合物ET-1を50 nm蒸着した。さらに、フッ化リチウムを1 nm、アルミニウムを80 nm蒸着積層した。全ての蒸着工程を完了させた後、窒素雰囲気グローブボックス中でザグリガラスによる封止を行い、有機EL素子を製造した。

得られた有機EL素子を、直流電流駆動により発光させ、電流密度10 mA/cm²における外部量子収率(EQE)を測定した。測定結果を表1に示す。

[0263] 実施例2

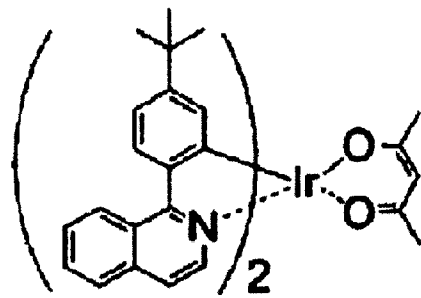
ホスト材料として、合成実施例2で得た化合物H-2を用いたこと以外は、実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製し、評価した。測定結果を表1に示す。

[0264] 比較例1

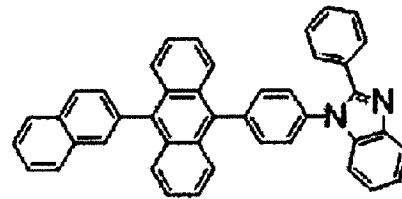
ホスト材料として、下記比較化合物H-aを用いたこと以外は、実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製し、評価した。測定結果を表1に示す。

[0265]

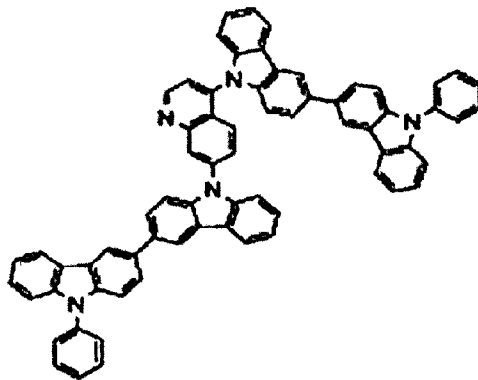
[化96]



D-1



ET-1



比較化合物H-a

[0266] [表1]

表 1

	ホスト材料	ドーパント材料	外部量子効率 (%)
実施例 1	H-1	D-1	5.4
実施例 2	H-2	D-1	4.2
比較例 1	H-a	D-1	1.8

[0267] 以上の実施例より、本願の分子構造を有する化合物は、有機EL素子用材料として有用な特性を有することが確認できた。

符号の説明

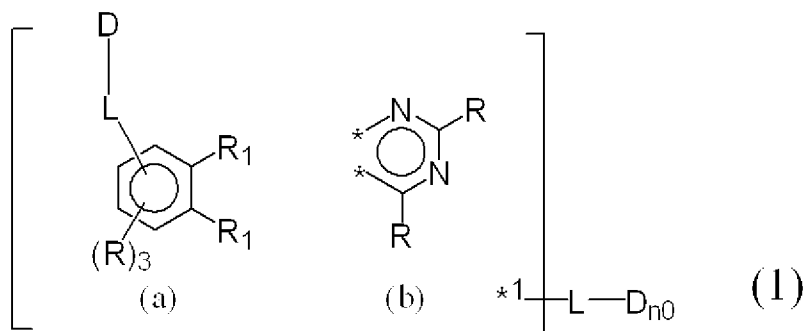
- [0268]
- 1 有機EL素子
 - 2 基板
 - 3 陽極
 - 4 陰極

- 5 発光層
- 6 陽極側有機薄膜層
- 7 陰極側有機薄膜層
- 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]



[式（１）において、

２つの R_1 はそれぞれ式（ｂ）の２つの＊に結合する単結合を表すか、又は、互いに結合して５員環、６員環又は縮合環を表し、該５員環、６員環又は縮合環が有する隣接する２つの環形成炭素原子のそれぞれに式（ｂ）の２つの＊がそれぞれ結合する。

前記５員環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は２個の R を有する。

前記６員環が非芳香族環である場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は２個の R を有す。

前記６員環が芳香族環である場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は１個の R を有する。

前記縮合環が非芳香族環を含む場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は２個の R を有す。

前記縮合環が芳香族環を含む場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は１個の R を有する。

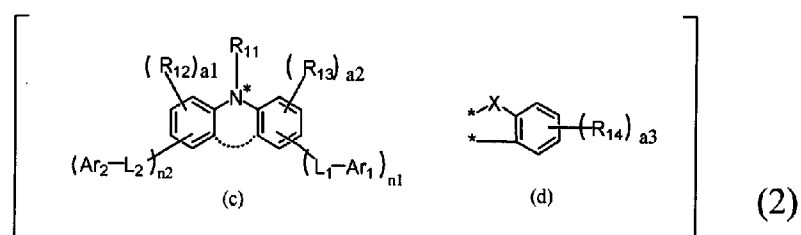
複数の R はそれぞれ独立に水素原子、置換基又は＊¹— L — D_{n0} に結合する単結合を表し、隣接又は近接する２つの R は互いに結合して

環を形成していてもよく、該環は1又は複数のRで置換されていてもよい。ただし、式(1)中の複数のRの少なくとも1つは $*^1-L-D_{n0}$ に結合する単結合を表す。

複数のLはそれぞれ独立に単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基を表し、Lが単結合の場合、 $n0$ は1を表し、Lが置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基の場合、 $n0$ は1～10の整数を表す。

Dは、少なくとも1つのカルバゾール構造を含み、下記式(2)で表される構造の1価の残基を表す。

[化2]



(式(2)において、

破線は、その両端の2つの炭素原子が単結合で結合されているか、又は、該2つの炭素原子は結合されていないことを表す。

L_1 及び L_2 は、それぞれ独立に、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基を表す。

Ar_1 及び Ar_2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素環の1価の残基を表す。

n_1 及び n_2 は、それぞれ独立に0～4の整数である。

N^* に結合する2つのベンゼン環、 Ar_1 及び Ar_2 が表す芳香族炭化水素環の少なくとも1つの環の隣接する2つの環形成炭素原子には式(d)が結合し、 Ar_1 及び Ar_2 が表す芳香族炭化水素環に式(d)が結合する場合、 Ar_1 及び Ar_2 は該芳香族炭化水素環と式(d)が結合して得られる構造の1価の残基を表す。

XはO、S、 PR_{15} 、 $SiR_{16}R_{17}$ 、 $CR_{18}R_{19}$ 、又は NR_{20} を表し、複数個の式(d)が結合している場合、複数のXは同一でも異なってもよい。

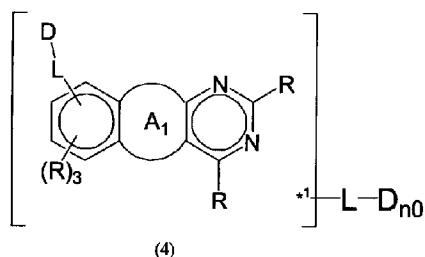
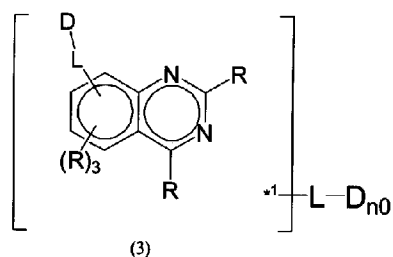
$R_{11} \sim R_{20}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。

a_1 、 a_2 、及び a_3 は、それぞれ独立に0～4の整数を表す。)

]

[請求項2] 下記式(3)又は(4)で表される請求項1に記載の化合物。

[化3]



[式(3)及び(4)において、R、L、D及び n_0 の定義は式(1)と同じである。

式(4)において、 A_1 は5員環、6員環又は縮合環を表す。

前記5員環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有する。

前記6員環が非芳香族環である場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有す。

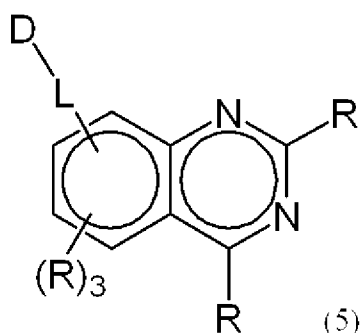
前記6員環が芳香族環である場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。

前記縮合環が非芳香族環を含む場合、該非芳香族環の非共有環原子は炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有す。

前記縮合環が芳香族環を含む場合、該芳香族環の非共有環原子は炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。]

[請求項3] 式(1)において、式(a)と(b)で構成される構造が、下記式(5)で表される請求項1又は2に記載の化合物。

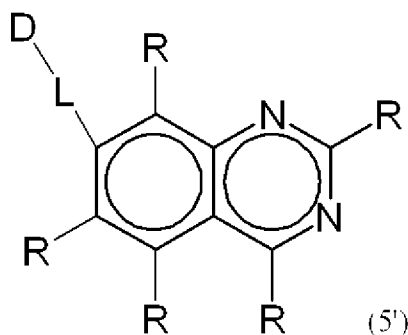
[化4]



(式(5)において、R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。)

[請求項4] 式(1)において、式(a)と(b)で構成される構造が、下記式(5')で表される請求項1～3のいずれかに記載の化合物。

[化5]

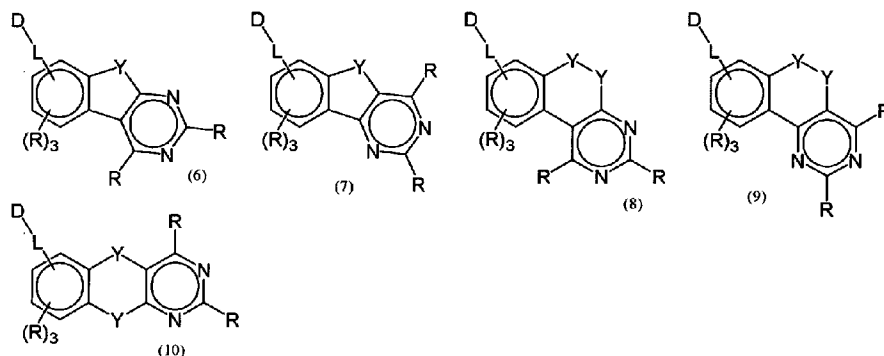


(式(5')において、R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。)

[請求項5] 式(1)において、式(a)と(b)で構成される構造が、下記式

(6) ~ (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6]

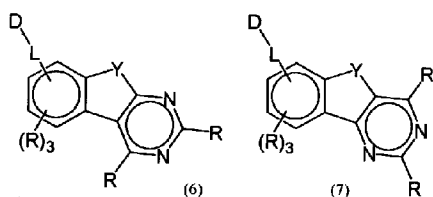


(式 (6) ~ (10) において、Y は、炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は 2 個の R を有する。R、L、及び D の定義は式 (1) と同じである。)

[請求項6]

式 (1) において、式 (a) と (b) で構成される構造が、下記式 (6) 又は (7) で表される請求項 1、2 及び 5 のいずれかに記載の化合物。

[化7]

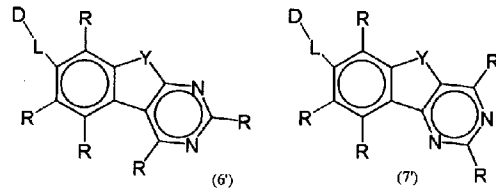


(式 (6) ~ (7) において、Y は、炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は 2 個の R を有する。R、L、及び D の定義は式 (1) と同じである。)

[請求項7]

式 (1) において、式 (a) と (b) で構成される構造が、下記式 (6') 又は (7') で表される請求項 1、2、5 及び 6 のいずれかに記載の化合物。

[化8]

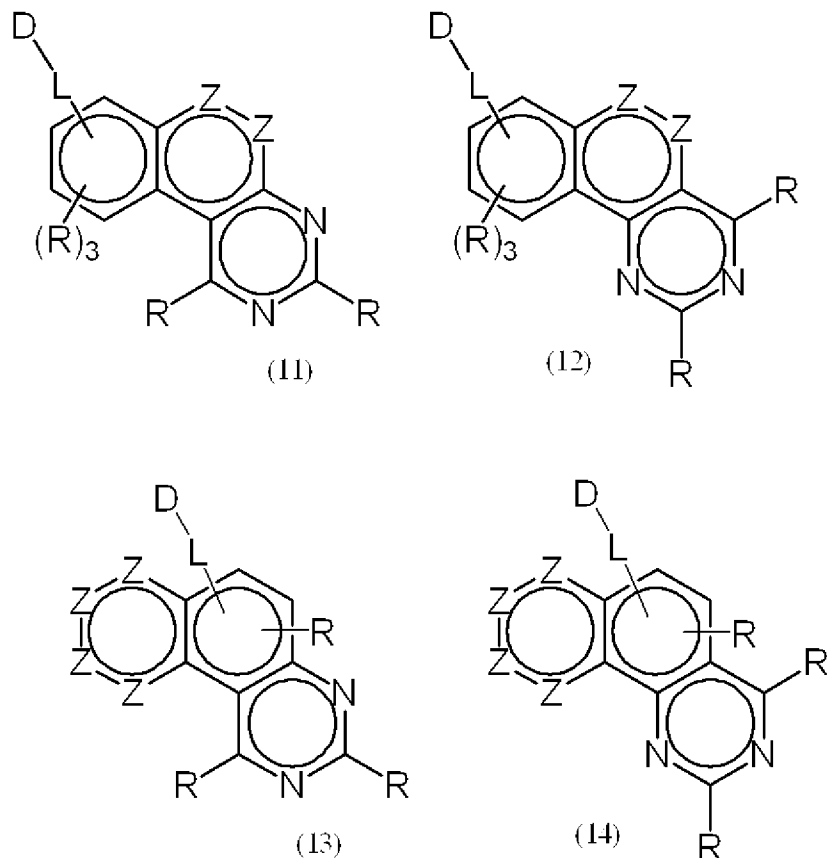


(式 (6') 及び (7') において、Yは、炭素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれ、該炭素原子は2個のRを有する。R、L、及びDの定義は式 (1) と同じである。)

[請求項8]

式 (1) において、式 (a) と (b) で構成される構造が、下記式 (11) ~ (14) のいずれかで表される請求項1又は2に記載の化合物。

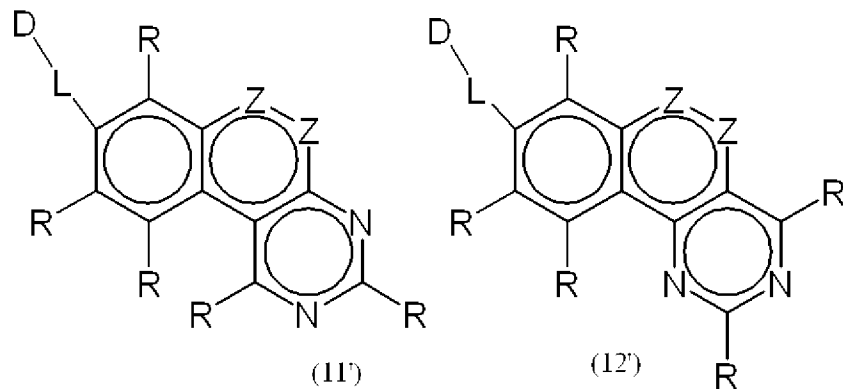
[化9]



(式 (11) ~ (14) において、Zは、炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は1個のRを有する。R、L、及びDの定義は式 (1) と同じである。)

(11') 又は (12') で表される請求項 1、2、8 及び 9 のいずれかに記載の化合物。

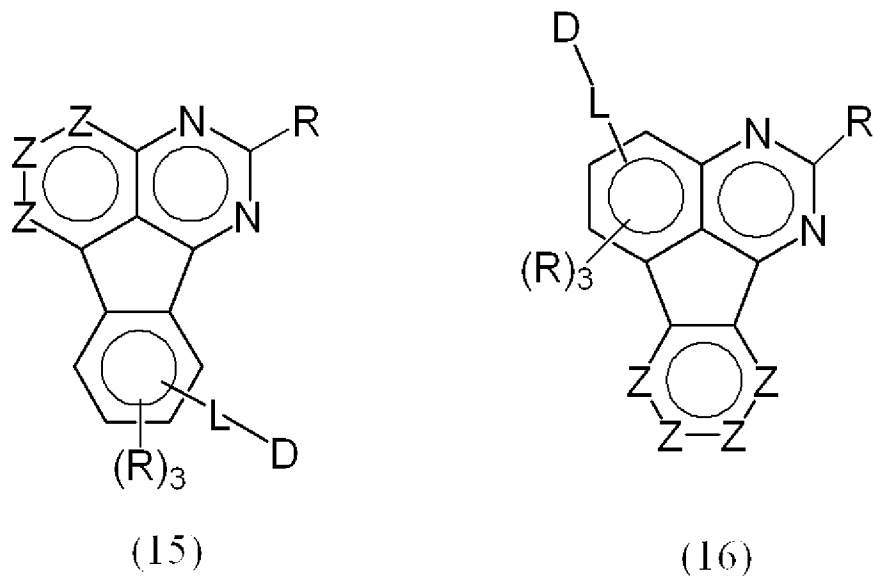
[化12]



(式 (11') ~ (12') において、Z は、炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は 1 個の R を有する。R、L、及び D の定義は式 (1) と同じである。)

[請求項12] 式 (1) において、式 (a) と (b) で構成される構造が、下記式 (15) 又は (16) で表される請求項 1 又は 2 に記載の化合物。

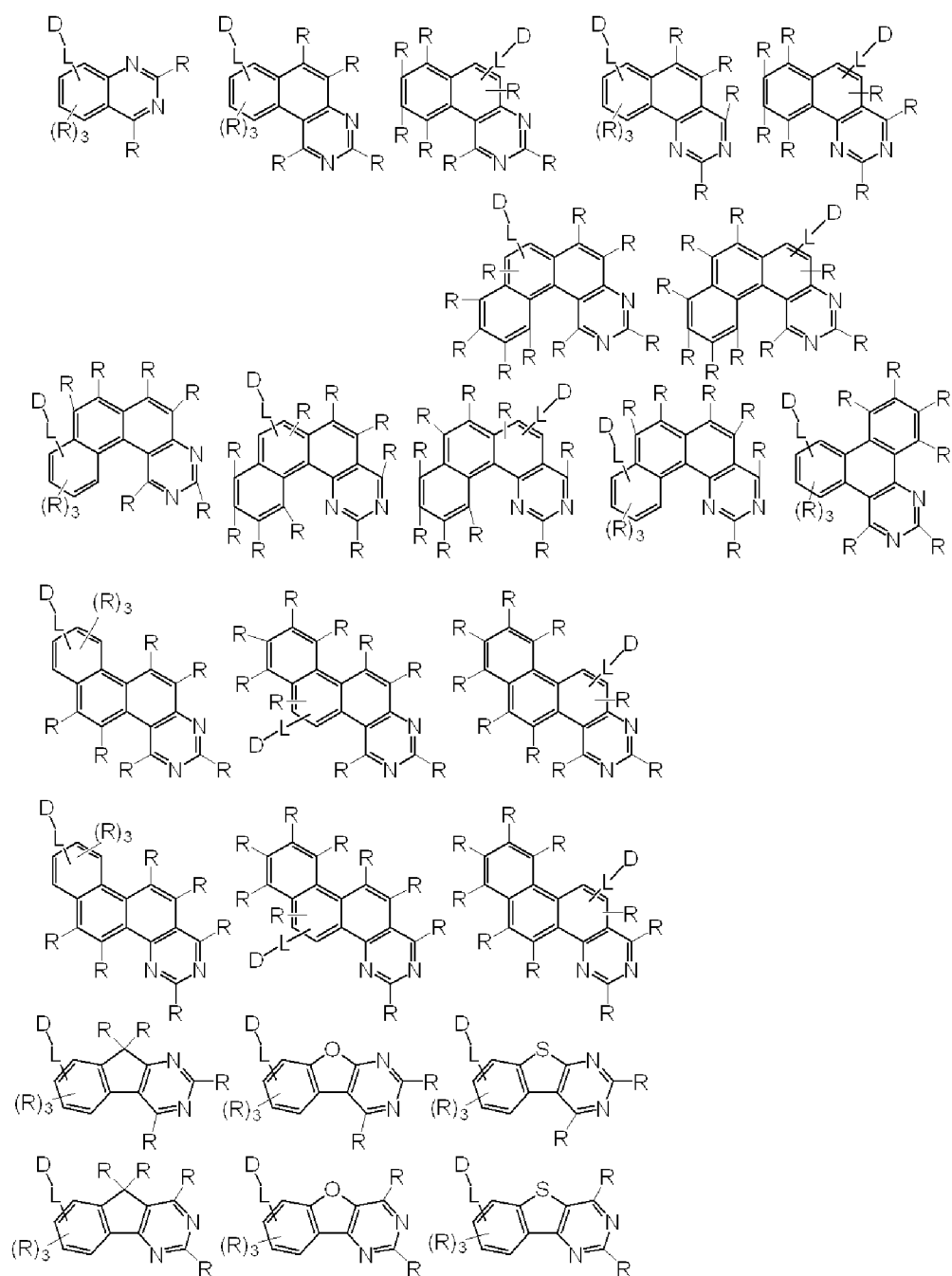
[化13]



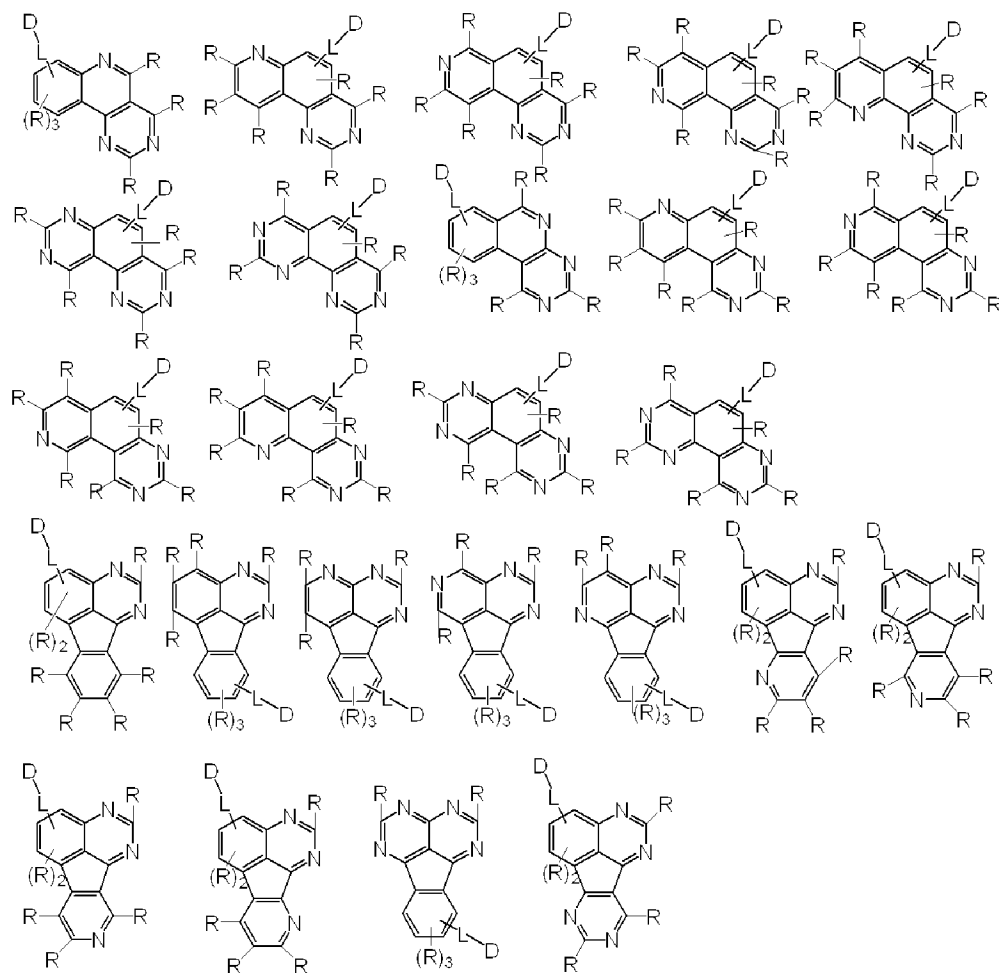
(式 (15) ~ (16) において、Z は、炭素原子及び窒素原子から選ばれ、該炭素原子は 1 個の R を有する。R、L、及び D の定義は式 (1) と同じである。)

[請求項13] 式(1)において、式(a)と(b)で構成される構造が、下記式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14]



[化15]

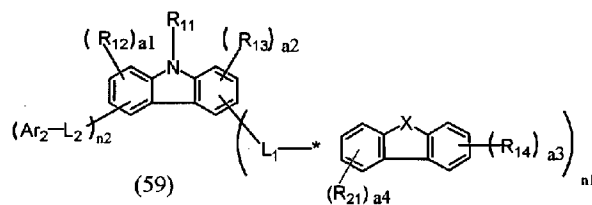
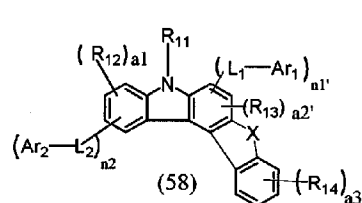
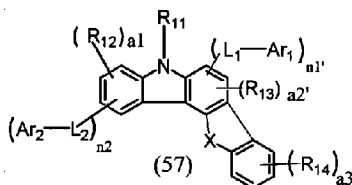
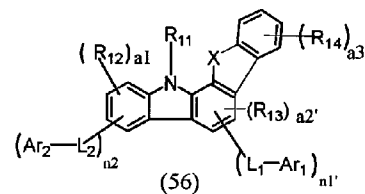
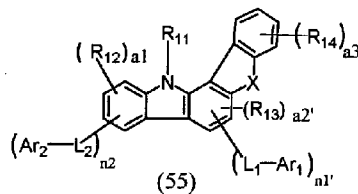
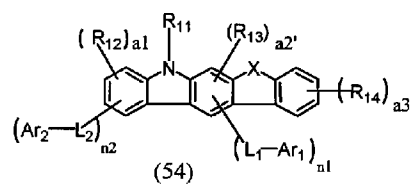
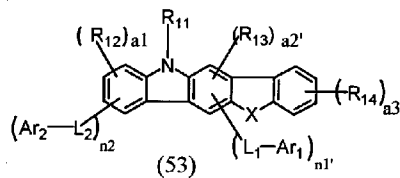
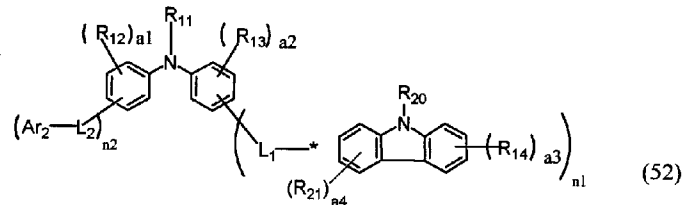
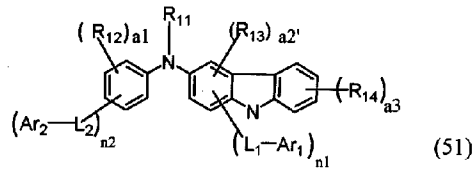


(式中、R、L、及びDの定義は式(1)と同じである。)

[請求項14]

式(2)で表される構造が、下記式(51)～(59)のいずれかで表される請求項1～13のいずれかに記載の化合物。

[化16]

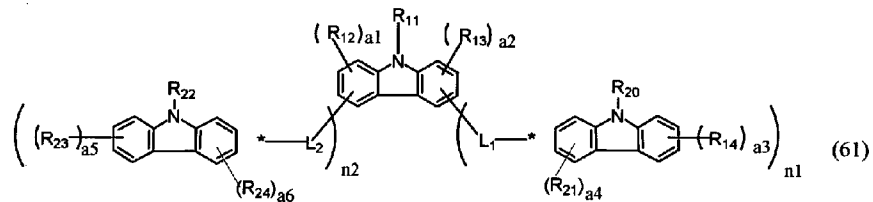
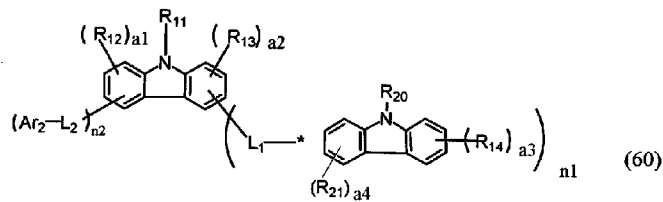


(式(51)～(59)において、X、 R_{11} ～ R_{14} 、 R_{20} 、 a_1 ～ a_3 、 n_1 ～ n_2 、 L_1 、 L_2 、 Ar_1 、 Ar_2 は、前記と同じである。 R_{21} は、水素原子又は置換基、 a_4 は、0～4の整数を表す。 a_2' 、 n_1' は、0～2の整数を表す。)

[請求項15]

式(2)で表される構造が、下記式(60)又は(61)で表される請求項1～13のいずれかに記載の化合物。

[化17]



(式(60)～(61)において、 $R_{11} \sim R_{14}$ 、 R_{20} 、 $a1 \sim a3$ 、 $n1$ 、 $n2$ 、 L_1 、 L_2 、 Ar_2 は、前記と同じである。 $R_{21} \sim R_{24}$ は、水素原子又は置換基、 $a4 \sim a6$ は、0～4の整数を表す。)

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

[請求項17] 溶媒と、該溶媒中に溶解した請求項1～15のいずれかに記載の化合物とを含むインク組成物。

[請求項18] 陰極と陽極の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む有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項19] 前記発光層が、前記式(1)で表される化合物をホスト材料として含む、請求項18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項20] 前記発光層が、燐光発光材料を含有する、請求項18又は19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

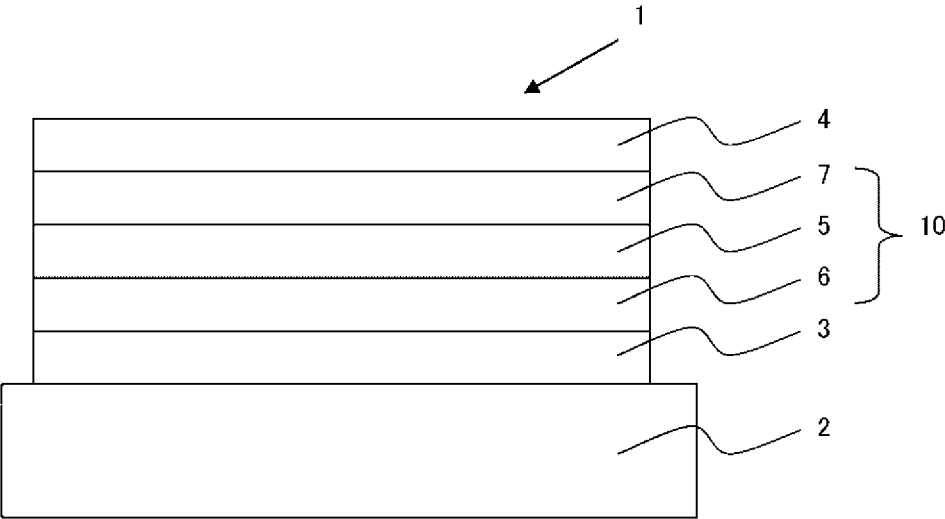
[請求項21] 前記陰極と前記発光層の間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記式(1)で表される化合物を含む請求項18～20のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項22] 前記陽極と前記発光層の間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が前記式(1)で表される化合物を含む請求項18～20のいずれかに記

載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項23] 請求項 1 8 ～ 2 2 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含む電子機器。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/054193

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D403/14(2006.01)i, C09D11/00(2014.01)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)

C07D403/14, C09D11/00, 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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII), 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 A	WO 2015/020217 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 February 2015 (12.02.2015), claims; paragraphs [0074], [0090] to [0106], [0227], [0234], [0246] to [0247]; examples (Family: none)	1-4, 8-23 5-7
A	WO 2006/112265 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 26 October 2006 (26.10.2006), paragraph [0117] & US 2009/0236974 A1 page 51	1-23

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
20 April 2016 (20.04.16)

Date of mailing of the international search report
10 May 2016 (10.05.16)

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/JP2016/054193

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-234182 A (Universal Display Corp.), 21 November 2013 (21.11.2013), claims; paragraph [0060] & US 2013/0293094 A1 claims; paragraph [0064] & DE 102013208026 A1 & KR 10-2013-0124217 A	1-23
P,X P,A	WO 2015/050140 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 09 April 2015 (09.04.2015), claims; paragraphs [0047] to [0076] (Family: none)	1,13-23 2-12
P,X P,A	WO 2015/093496 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 25 June 2015 (25.06.2015), claims; paragraphs [0072] to [0084]; synthesis example 5 (Family: none)	1-4,8-23 5-7
P,X P,A	WO 2015/093551 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 25 June 2015 (25.06.2015), claims; paragraphs [0128] to [0138]; synthesis example 11 (Family: none)	1-4,8-11, 13-23 5-7,12
P,X P,A	WO 2015/137471 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 17 September 2015 (17.09.2015), claims; paragraphs [0092] to [0293] (Family: none)	1-4,8-23 5-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C07D403/14(2006.01)i, C09D11/00(2014.01)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. C07D403/14, C09D11/00, 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	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016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)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), CPlus/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 A	WO 2015/020217 A1 (出光興産株式会社) 2015.02.12, 請求の範囲, 段落[0074], [0090]-[0106], [0227], [0234], [0246]-[0247], 実施例 (ファミリーなし)	1-4, 8-23 5-7
A	WO 2006/112265 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2006.10.26, 段落[0117] & US 2009/0236974 A1, 第51頁	1-23

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

20.04.2016

国際調査報告の発送日

10.05.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山本 昌広

4 P

6287

電話番号 03-3581-1101 内線 3492

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2013-234182 A (ユニバーサル ディスプレイ コーポレイション) 2013. 11. 21, 特許請求の範囲, 段落[0060] & US 2013/0293094 A1, 請求の範囲, 段落[0064] & DE 102013208026 A1 & KR 10-2013-0124217 A	1-23
P, X P, A	WO 2015/050140 A1 (出光興産株式会社) 2015. 04. 09, 請求の範囲, 段落[0047]-[0076] (ファミリーなし)	1, 13-23 2-12
P, X P, A	WO 2015/093496 A1 (出光興産株式会社) 2015. 06. 25, 請求の範囲, 段落[0072]-[0084], 合成例 5 (ファミリーなし)	1-4, 8-23 5-7
P, X P, A	WO 2015/093551 A1 (出光興産株式会社) 2015. 06. 25, 請求の範囲, 段落[0128]-[0138], 合成実施例 11 (ファミリーなし)	1-4, 8-11, 13-23 5-7, 12
P, X P, A	WO 2015/137471 A1 (出光興産株式会社) 2015. 09. 17, 請求の範囲, 段落[0092]-[0293] (ファミリーなし)	1-4, 8-23 5-7