

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2009年5月22日 (22.05.2009)

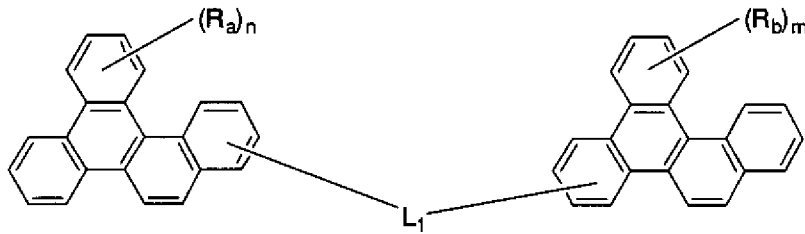
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2009/063833 A1

- (51) 国際特許分類:  
C07C 15/20 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)  
C07D 209/86 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)  
C07D 307/91 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/070430
- (22) 国際出願日: 2008年11月10日 (10.11.2008)
- (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 2007-297151  
2007年11月15日 (15.11.2007) JP
- (74) 代理人: 渡辺 喜平, 外(WATANABE, Kihei et al.); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目2番26号 芝信神田ビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 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; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 河村 昌宏 (KAWA-MURA, Masahiro) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書

(54) Title: BENZOCHRYSENE DERIVATIVE AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE USING THE SAME

(54) 発明の名称: ベンゾクリセン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子



(57) Abstract: Disclosed is a fused aromatic ring derivative represented by the following formula (1). (1) (In the formula (1),  $R_a$  and  $R_b$  each represents a hydrogen atom or a substituent;  $m$  and  $n$  independently represent an integer of 1-13, and when  $m$  and  $n$  are 2 or more,  $R_a$ 's and  $R_b$ 's may respectively be the same as or different from each other; and  $L_1$  represents a single bond or a substituted or unsubstituted divalent linking group. In this connection, a fused aromatic ring of the formula (1) does not have an anthracene ring.)

(57) 要約: 下記式(1)で表される縮合芳香環誘導体。(式(1)において、 $R_a$ 及び $R_b$ は、それぞれ水素原子又は置換基を表し、 $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。 $m$ 、 $n$ が2以上の場合、 $R_a$ 、 $R_b$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。 $L_1$ は単結合、又は置換もしくは無置換の2価の連結基を表す。ただし、式(1)の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を有しない。)



WO 2009/063833 A1

## 明 細 書

ベンゾクリセン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子  
技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として有用な、新規な縮合芳香環誘導体(ベンゾクリセン誘導体)及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

## 背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子(以下エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある)は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより発光材料が発光する原理を利用した自発光素子である。

有機EL素子の進歩は目覚しく、また、有機EL素子は、低印加電圧駆動、高輝度、発光波長の多様性、高速応答性、薄型で軽量の発光デバイスが作製可能等の特徴を有するため、広汎な用途への適用が期待されている。

[0003] 有機EL素子で使用される発光材料は、素子の発する光の色や発光寿命に大きな影響を与えるため、従来から積極的に研究されている。

発光材料としては、例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られている。これらの発光材料により、青色から赤色までの可視領域の発光が得られる。

[0004] また、燐光性化合物を発光材料として用い、三重項状態のエネルギーを発光に用いることが検討されている。例えば、イリジウム錯体を発光材料として用いた有機EL素子が、高い発光効率を示すことが知られている。

また、共役系高分子としてポリフェニレンビニレン(PPV)を用いた有機EL素子が知られている。この素子ではPPVを塗工して単層に成膜して発光を確認している。

また、特許文献1には有機層として9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン誘導体を含む層が使用されている。

特許文献1:米国特許第5935721号

[0005] 本発明は、有機EL素子用材料として好適な有機材料を提供することを目的とする。

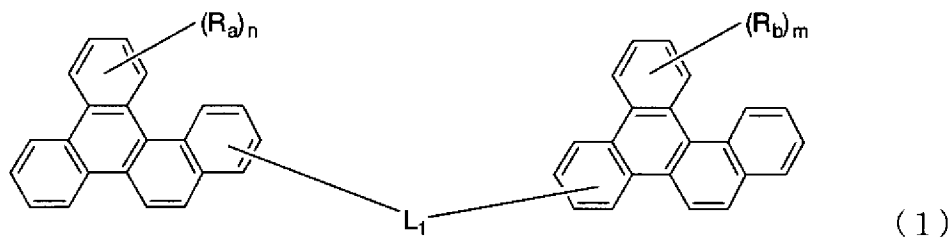
### 発明の開示

[0006] 本発明者は、有機EL素子用材料としてベンゾクリセン誘導体に着目し、鋭意研究を行った。その結果、所定の構造を有するベンゾクリセン誘導体が、有機EL素子の長寿命化、高効率化及び低電圧化に有効であることを見出し、本発明を完成させた。

[0007] 本発明によれば、以下の縮合芳香環誘導体等が提供される。

1. 下記式(1)で表される縮合芳香環誘導体。

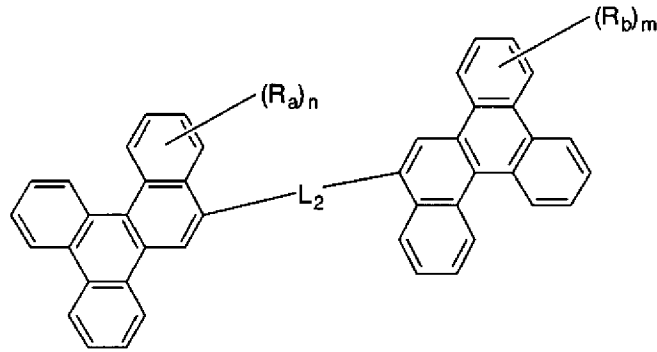
[化1]



(式(1)において、 $R_a$  及び  $R_b$  は、それぞれ水素原子又は置換基を表し、 $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。 $m$ 、 $n$ が2以上の場合、 $R_a$ 、 $R_b$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。 $L_1$ は単結合、又は置換もしくは無置換の2価の連結基を表す。ただし、式(1)の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を有しない。)

2. 下記式(2)で表される1に記載の縮合芳香環誘導体。

[化2]



(式(2)において、 $R_a$ 、 $R_b$ は、それぞれ水素原子又は置換基を表し、 $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。 $m$ 、 $n$ が2以上の場合、 $R_a$ 、 $R_b$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。 $L_2$ は単結合又は、置換もしくは無置換の2価の連結基を表す。ただし、式(2)の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を有しない。)

3.  $L_1$  又は  $L_2$  が、置換もしくは無置換の核炭素数6~50のアリーレン基である1又は2に記載の縮合芳香環誘導体。
4. 上記1~3のいずれかに記載の縮合芳香環誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。
5. 発光材料である4に記載の有機エレクトロルミネッセンス用発光材料。
6. 陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極の間に挟持されている、発光層を含む1以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層の少なくとも一層が、1~3のいずれかに記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。
7. 前記発光層が、前記縮合芳香族環誘導体を含有する6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
8. 前記発光層が、前記縮合芳香環誘導体をホスト材料として含有する7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
9. 前記発光層が、さらに蛍光性ドーパント及び燐光性ドーパントの少なくとも一方を含有する6~8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
10. 前記蛍光性ドーパントが、アリールアミン化合物である9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
11. 前記蛍光性ドーパントが、スチリルアミン化合物である9に記載の有機エレクトロ

ルミネッセンス素子。

12. 前記燐光性ドーパントが金属錯体化合物である9記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- [0008] 本発明によれば、有機EL素子用材料として好適な縮合芳香環誘導体が得られる。本発明の縮合芳香環誘導体を使用した有機EL素子は、長寿命及び高効率であり、低電圧駆動が可能である。

図面の簡単な説明

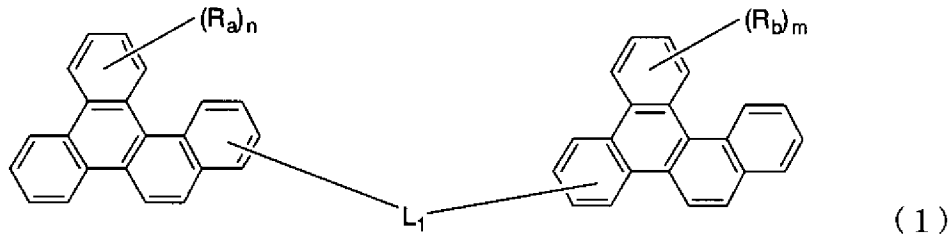
- [0009] [図1]本発明の一実施形態である有機EL素子の概略断面図である。

発明を実施するための最良の形態

- [0010] 以下、本発明の縮合芳香環誘導体を具体的に説明する。

本発明の縮合芳香環誘導体は、下記式(1)で表される化合物である。

[化3]



(式(1)において、 $R_a$  及び  $R_b$  は、それぞれ水素原子又は置換基を表し、 $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。 $m$ 、 $n$ が2以上の場合、 $R_a$ 、 $R_b$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。 $L_1$ は単結合、又は置換もしくは無置換の2価の連結基を表す。ただし、式(1)の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を含有しない。)

- [0011] 尚、式(1)において、 $L_1$ の結合位置はベンゾクリセン環が有する14の結合位置のうち、いずれであってもよい。

同様に、 $R_a$  及び  $R_b$ の結合位置は $L_1$ の結合位置を除いた13の結合位置のいずれであってもよい。

- [0012]  $R_a$  及び  $R_b$ が表す置換基の例としては、アルキル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル

、イソプロピル、*t*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばプロパルニル、3-ペンチニル等が挙げられる。)、置換又は無置換のアリール基(好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは6~14、例えばフェニル、ナフチル、ビフェニル、ナフチルフェニル、フェニルナフチル、ナフチルナフチル、フェナントリル、フルオレニル基が挙げられる。但しアントラセン環は含まない。アリール基の置換基としては、アリール基(好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは6~14、例えばフェニル、ナフチル、フェナントリルが挙げられる。但しアントラセン環は含まない。))や、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、イミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、ベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基等)が挙げられる。)、置換又は無置換のアミノ基(好ましくは炭素数0~20、より好ましくは炭素数0~12、特に好ましくは炭素数0~6であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジフェニルアミノ、ジベンジルアミノ等が挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメキシ、エトキシ、ブトキシ等が挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフチルオキシ等が挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイル等が挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメキシカルボニル、エトキシカルボニル等が挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、特に好ましくは炭素数7~10であり、例えばフェニルオキシカルボニル等が挙

げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシ等が挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノ等が挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノ等が挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノ等が挙げられる。)、置換又は無置換のスルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノ等が挙げられる。)、置換又は無置換のスルファモイル基(好ましくは炭素数0~20、より好ましくは炭素数0~16、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイル等が挙げられる。)、置換又は無置換のカルバモイル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイル等が挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオ等が挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオ等が挙げられる。)、置換又は無置換のスルホニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシル等が挙げられる。)、置換又は無置換のスルフィニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニル等が挙げられる。)、置換又は無置換のウレイド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイド等が挙げられる。)、置換又は無置換のリン酸アミド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~1

6、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミド等が挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子を含むものであり具体的には例えばイミダゾリル、ピリジリル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジリル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、ベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基等が挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリル等が挙げられる。)等が挙げられる。これらの置換基はさらに置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同一でも異なっているもよい。

[0013] 上記のなかで、アルキル基、アルケニル基、アリール基、アリールアミノ基、カルバゾリル基、カルバゾリルアリール基、ジベンゾフラニルアリール基、ジベンゾチオフェニルアリール基が好ましい。

[0014]  $L_1$  が表す、置換又は無置換の2価の連結基としては、例えば、置換又は無置換のアルキレン基、置換又は無置換の核炭素数6~50のアリーレン、置換又は無置換の核原子数5~50のヘテロ環基が挙げられる。

[0015] 置換又は無置換のアルキレン基の例としては、炭素数1~20である下記のアルキル基から水素原子をさらに1つ除いて得られる2価の基が挙げられる。

メチル、エチル、イソプロピル、t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル。

これらの置換基としては、例えば、上記アルキル基や後述するアリール基又はヘテロ環基等が挙げられる。

[0016] 置換又は無置換の核炭素数6~50のアリーレンの例としては、下記のアリール基から水素原子をさらに1つ除いて得られる2価の基が挙げられる。

フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-フェナントリル基、2-フェナント



リル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-テルフェニル-4-イル基、p-テルフェニル-3-イル基、p-テルフェニル-2-イル基、m-テルフェニル-4-イル基、m-テルフェニル-3-イル基、m-テルフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-テルフェニル4-イル基、1-クリセニル基、2-クリセニル基、6-クリセニル基、フェニル-1-ナフチル基、フェニル-2-ナフチル基、ナフチル-1-ナフチル基、ナフチル-2-ナフチル基。

これらの置換基としては、例えば、上記アルキル基やアリール基又後述するはヘテロ環基等が挙げられる。

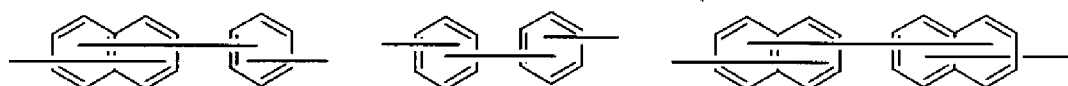
[0017] 置換又は無置換の核原子数5~50のヘテロ環基の例としては、下記の1価の垂ヘテロ環基から水素原子をさらに1つ除いて得られる2価の基が挙げられる。

イミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、ベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基。

これらの置換基としては、例えば、上記アルキル基、アリール基又はヘテロ環基等が挙げられる。

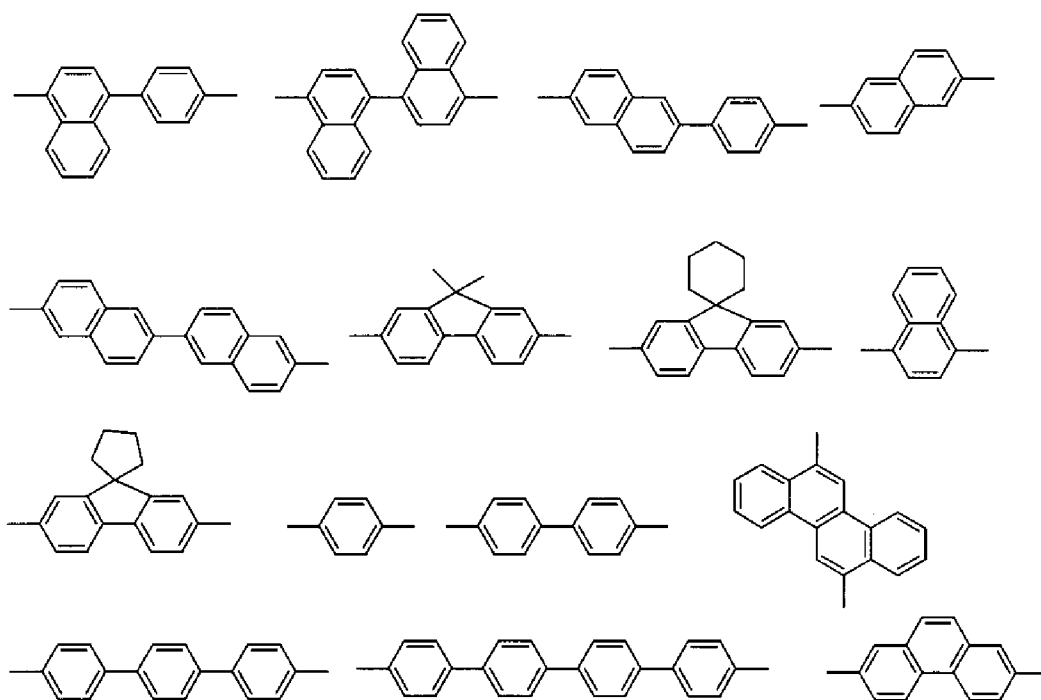
[0018] また、上記のアリーレン基、ヘテロ環基、単結合、及びアルキレン基等の2価の基を、2つ以上組み合わせた基や、フルオレン構造を有する基であってもよい。例えば、以下のような基が挙げられる。

[化4]



[0019] 特に、下記の2価の基が好ましい。

[化5]

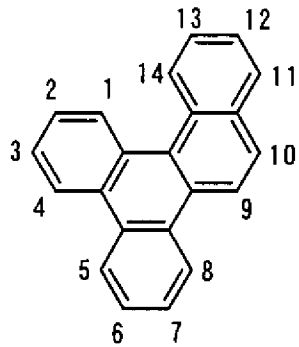


[0020] 尚、本発明の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を有しない。ここでアントラセン環を有しないとは、 $L_1$  又は  $L_2$  がアントラセニル基、アントラセニレン基等を有さないことを意味する。ナフタセンやペンタセン等、縮合環の中にアントラセン骨格を含有するものを意味しない。

[0021]  $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。本発明では、 $R_a$  及び  $R_b$  が全て水素原子である場合が好ましい。

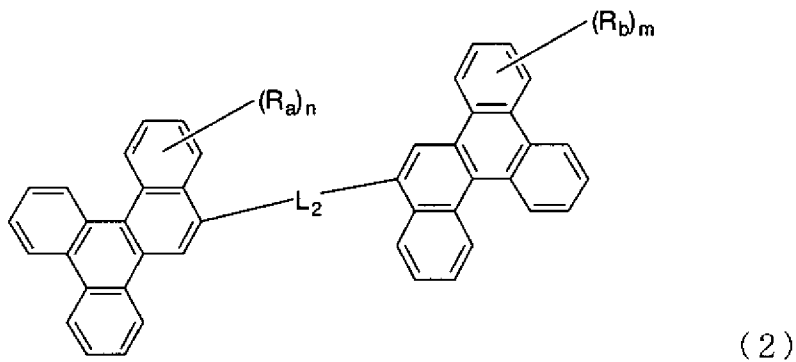
[0022] 本発明の縮合芳香環誘導体では、下記に示すベンゾ[g]クリセンの10位の反応性が高い。

[化6]



[0023] そのため、本発明の縮合芳香環誘導体は、上記10位で結合した下記式(2)で表されるものが好ましい。

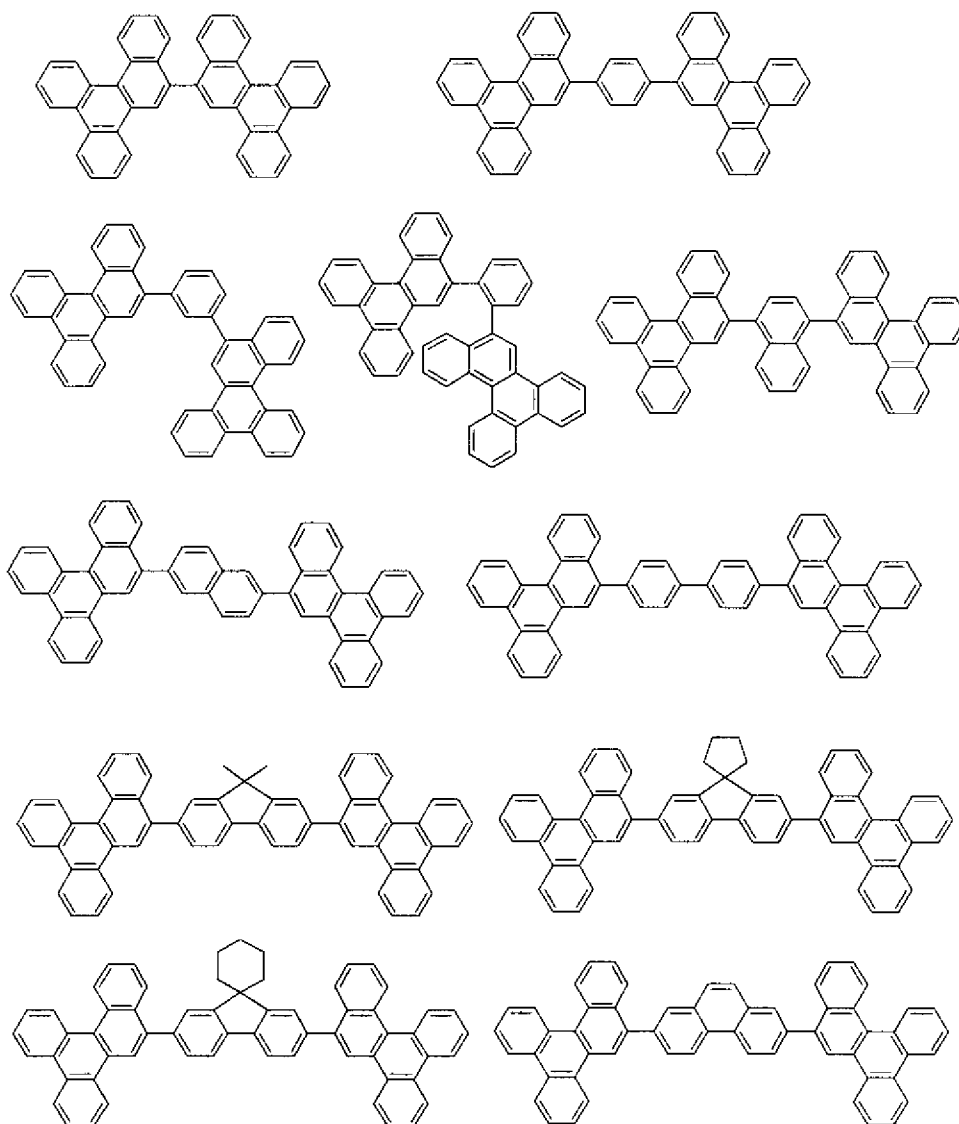
[化7]

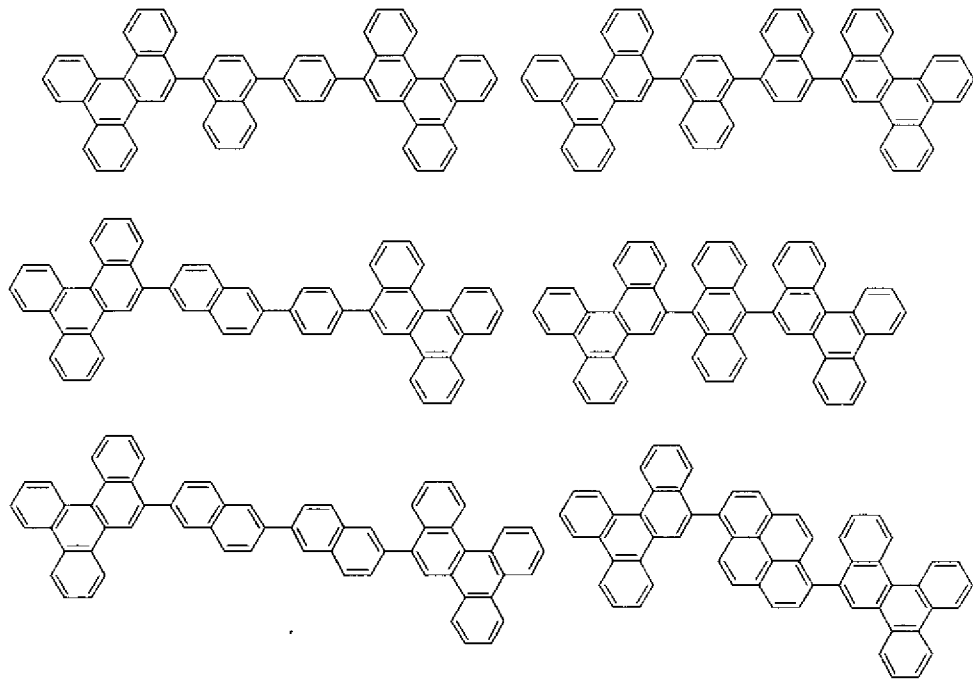


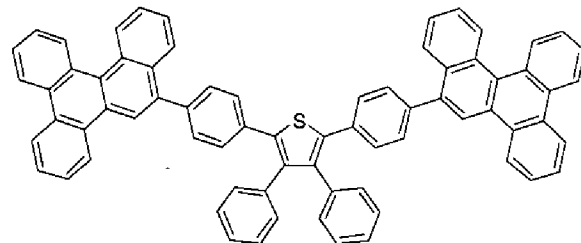
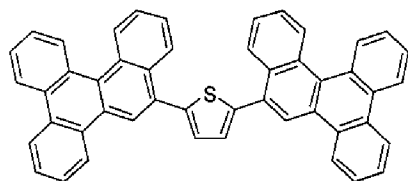
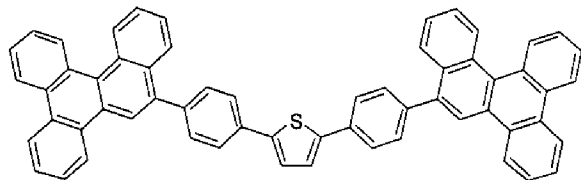
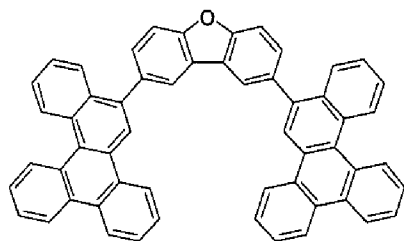
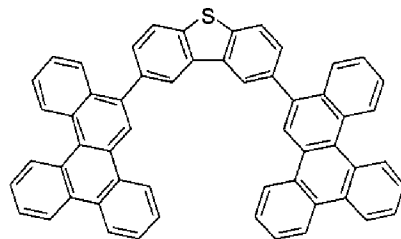
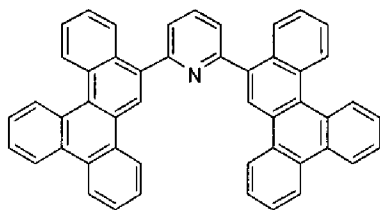
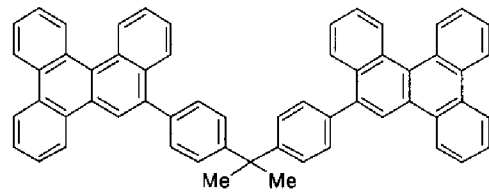
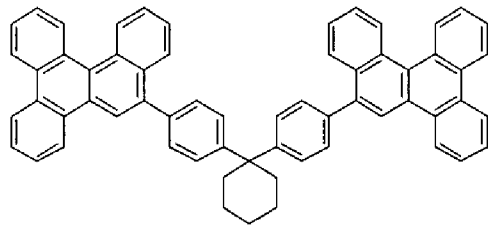
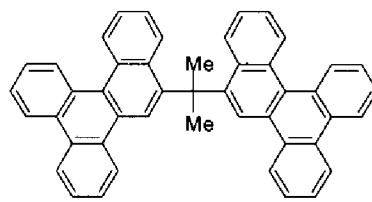
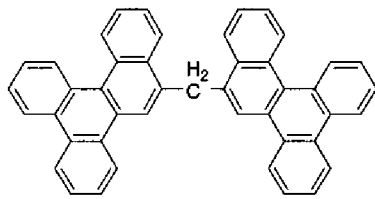
( $R_a$ 、 $R_b$ 、 $m$ 及び $n$ は上記式(1)と同様である。 $L_2$ は式(1)の $L_1$ と同様な基を示す。)

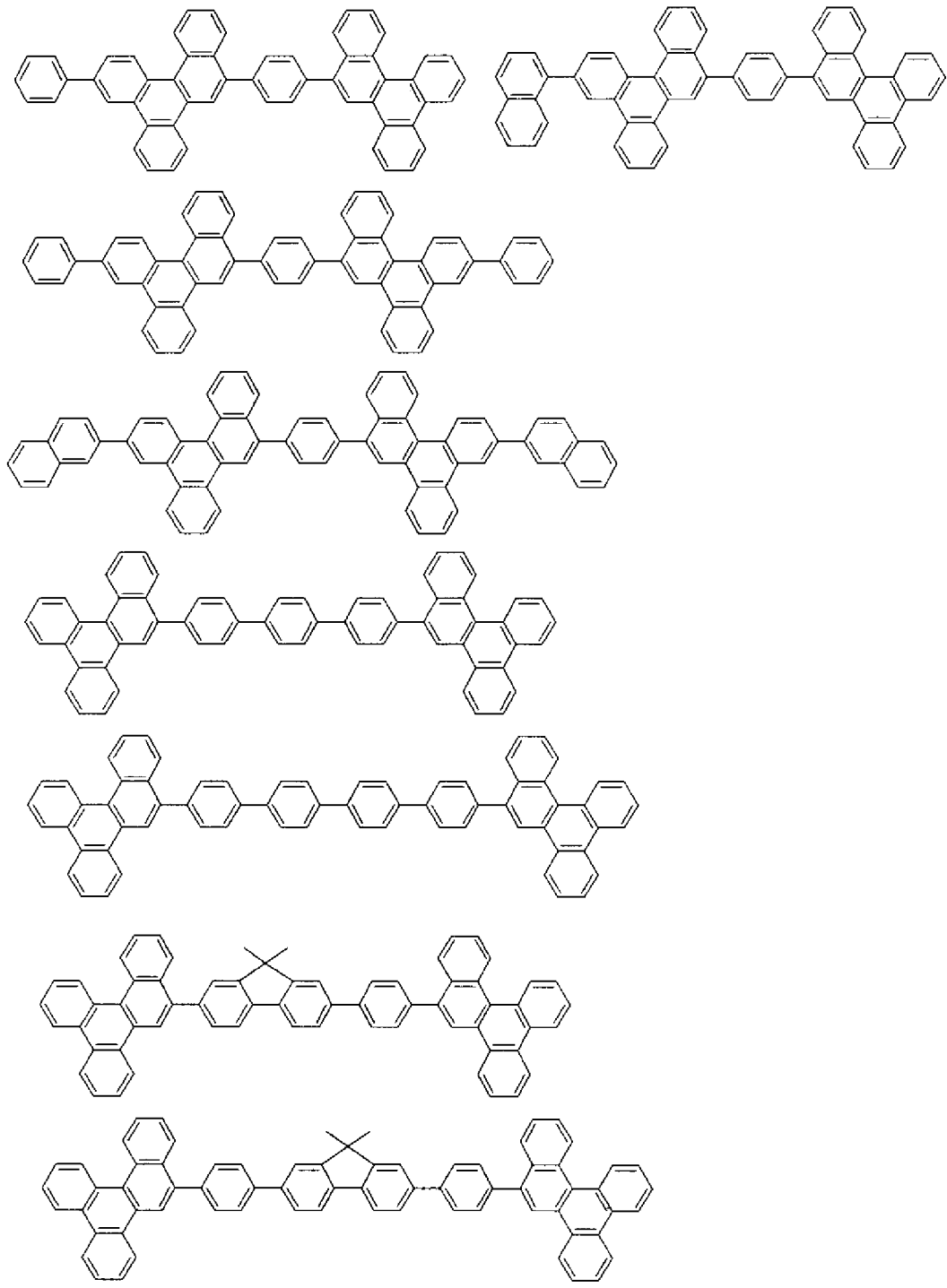
[0024] 本発明の縮合芳香環誘導体の具体例を以下に示す。

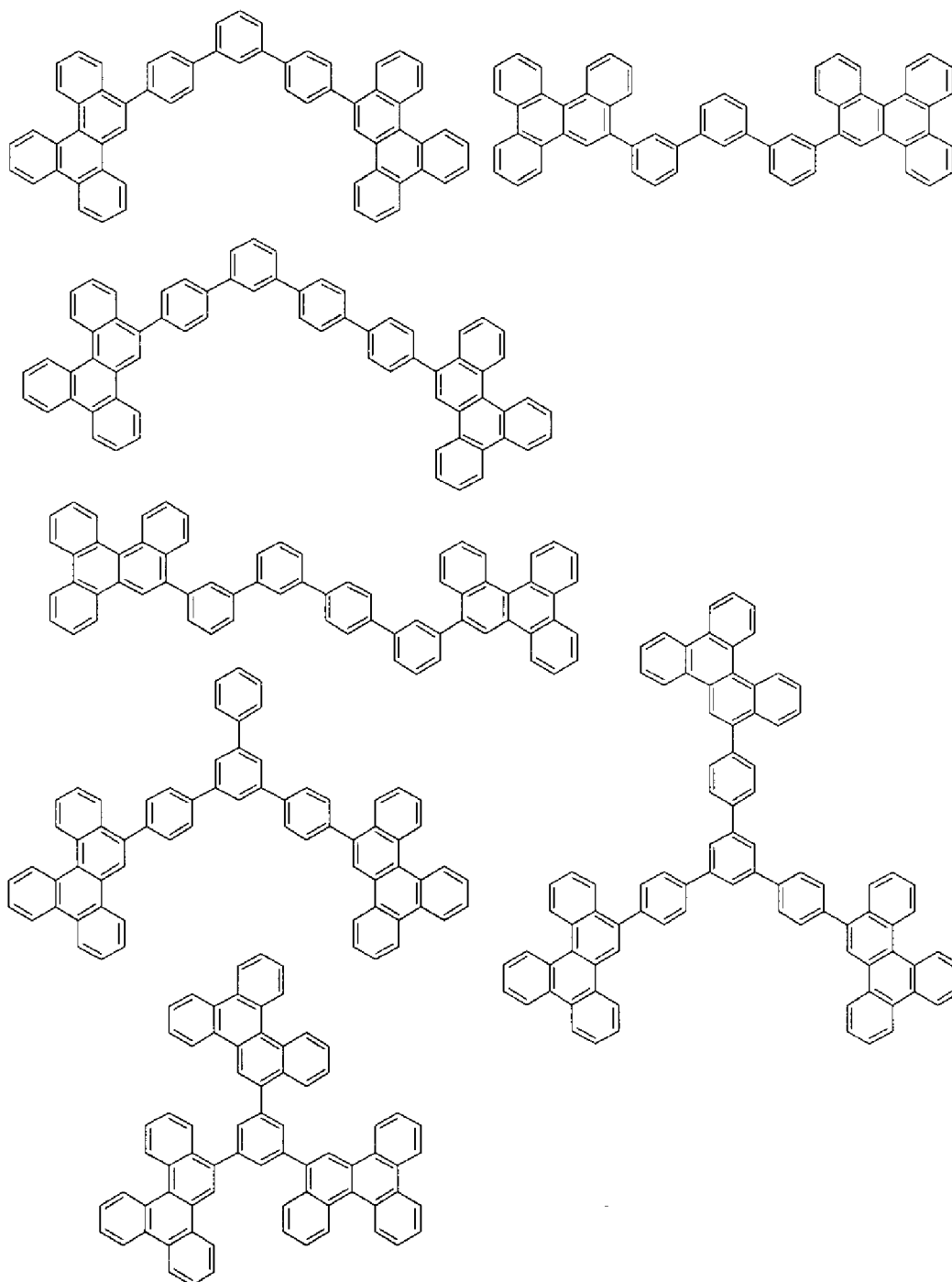
[化8]



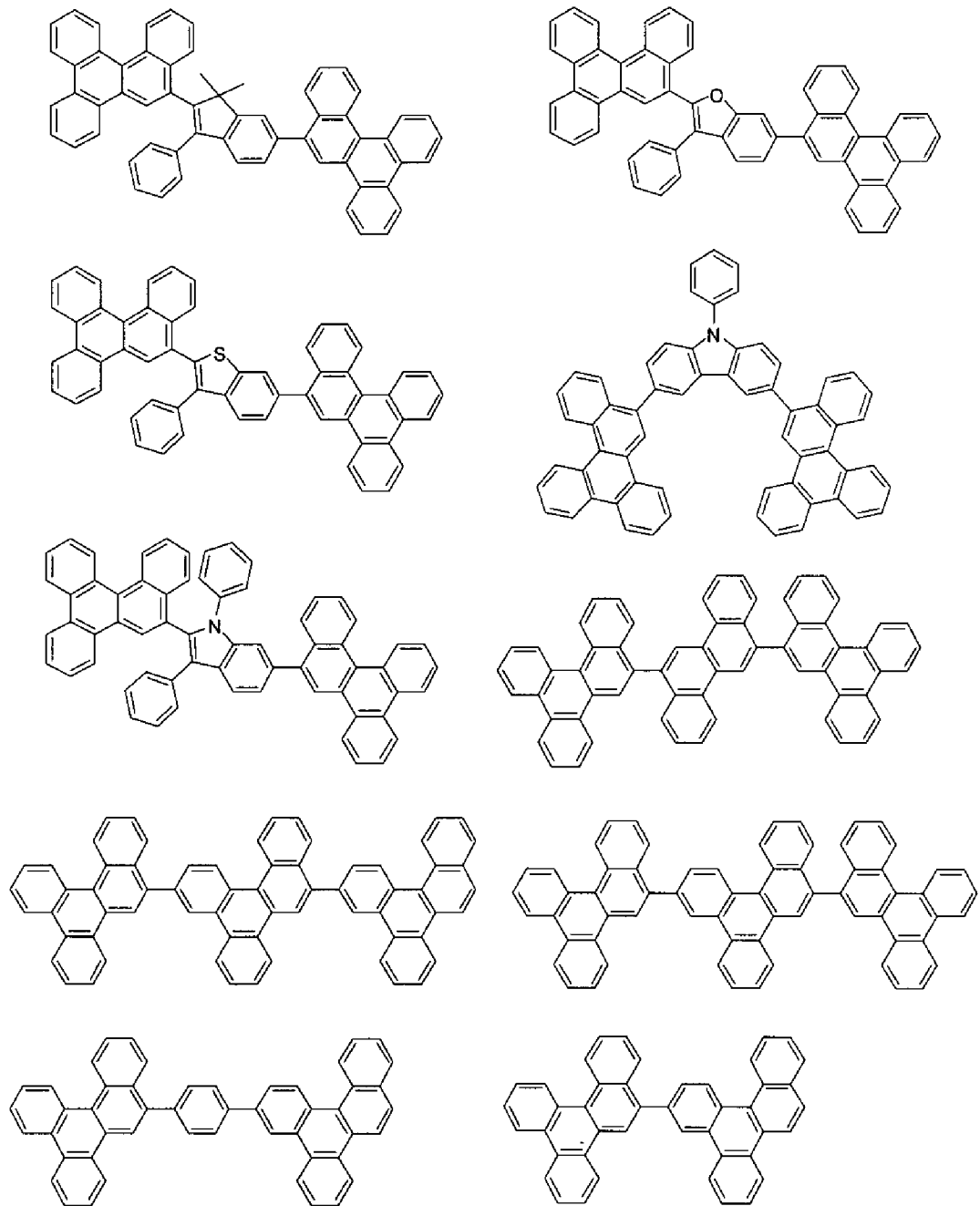


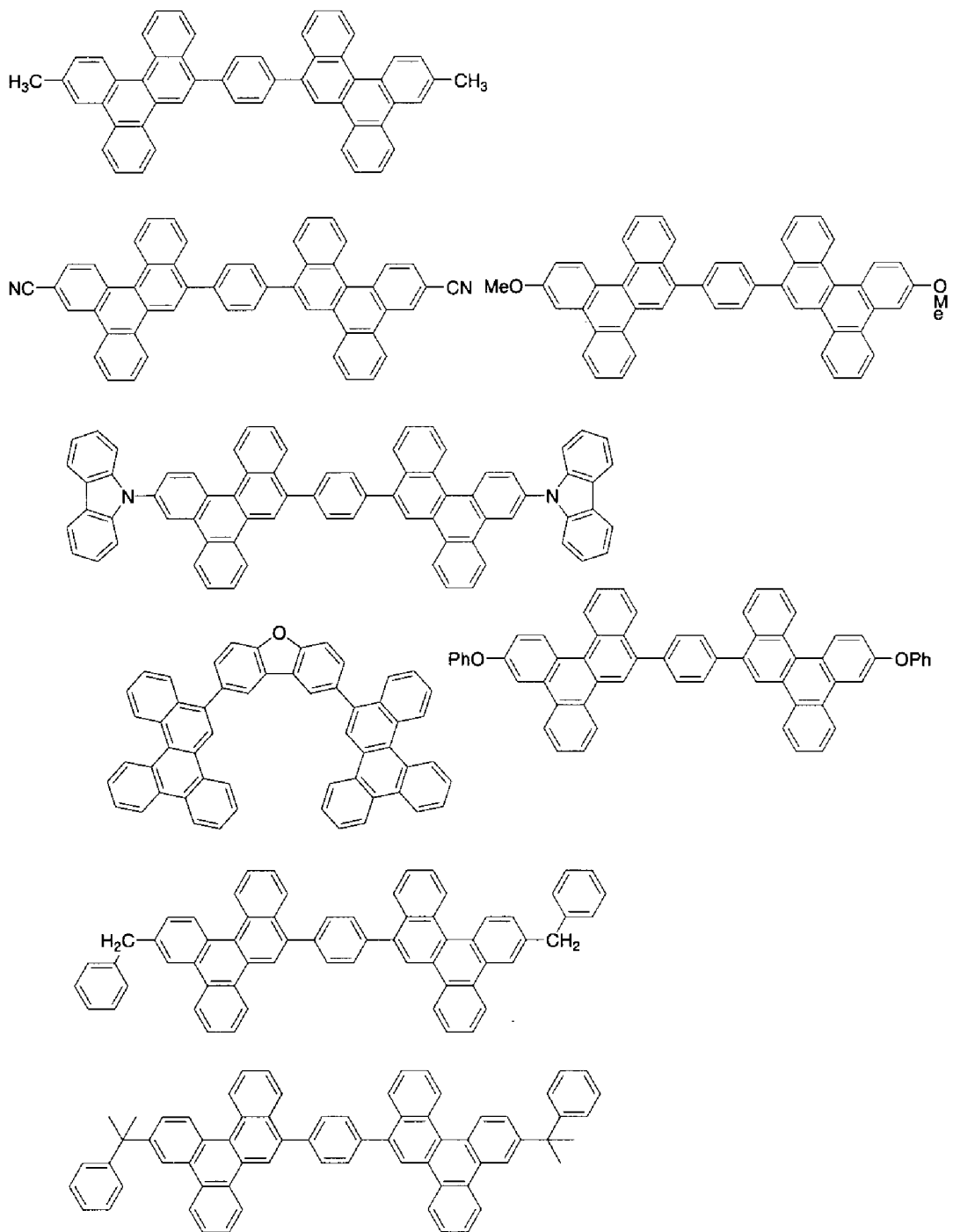












[0025] 本発明の縮合芳香環誘導体は、例えば、下記の文献を参照して合成したベンゾ[g]クリセンを、ヒドロホウ素化して得られる中間体に、上記L<sub>1</sub>の構造を有するジハロゲン化合物を反応させることで合成できる。

「Synthesis 2001, No. 6, 841–844」

「J. Org. Chem. 2005, 70, 3511–3517」

「Journal of the American Chemical Society 96:14 July 10, 1974, 4617-4622」

[0026] 本発明の縮合芳香環誘導体は、有機EL素子用材料、特に、その発光材料として好適に使用できる。

[0027] 本発明の有機EL素子は、陽極及び陰極と、陽極及び陰極の間に挟持されている、発光層を含む1以上の有機薄膜層とを有し、有機薄膜層の少なくとも一層が、上述した本発明の化合物を含有する。

[0028] 本発明の有機EL素子の代表的な構成として、

(1)陽極／発光層／陰極

(2)陽極／正孔注入層／発光層／陰極

(3)陽極／発光層／電子注入層／陰極

(4)陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極

(5)陽極／有機半導体層／発光層／陰極

(6)陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極

(7)陽極／有機半導体層／発光層／付着改善層／陰極

(8)陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極

(9)陽極／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極

(10)陽極／無機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極

(11)陽極／有機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極

(12)陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／絶縁層／陰極

(13)陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極

等を挙げることができるが、これらに限定されない。これらの中で通常(8)の構成が好ましく用いられる。

[0029] 図1に(8)の構成を示す。この有機EL素子は、陽極10及び陰極20と、その間に挟持されている、正孔注入層30、正孔輸送層32、発光層34、電子注入層36からなる。正孔注入層30、正孔輸送層32、発光層34、電子注入層36が、複数の有機薄膜層に相当する。これら有機薄膜層30, 32, 34, 36の少なくとも一層が、本発明の化合物を含有する。

[0030] 本発明の有機EL素子において、本発明の化合物は、上記のどの有機薄膜層に用いられてもよいが、発光層に使用することが好ましい。本発明の化合物は、各有機薄膜層において、単独で使用してもよく、他の化合物と混合して使用してもよい。本発明の素子では、発光層が、ホスト材料として本発明の化合物を含有し、蛍光性ドーパント及び燐光性ドーパントの少なくとも1つを含有することが好ましい。

本発明において、発光層は実質的に本発明の化合物及び上記ドーパントからなることが好ましい。

尚、有機薄膜層に占める本発明の化合物の含有量は、好ましくは30～100モル%である。

[0031] 以下有機EL素子の各部材について説明する。

有機EL素子は、通常基板上に作製し、基板は有機EL素子を支持する。平滑な基板を用いるのが好ましい。この基板を通して光を取り出すときは、基板は透光性であり、波長400～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上であるものが望ましい。

このような透光性基板としては、例えば、ガラス板、合成樹脂板等が好適に用いられる。ガラス板としては、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、石英等の板が挙げられる。また、合成樹脂板としては、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリエーテルスルフィド樹脂、ポリスルホン樹脂等の板が挙げられる。

[0032] 陽極は、正孔を正孔注入層、正孔輸送層又は発光層に注入し、4.5eV以上の仕事関数を有することが効果的である。陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫(ITO)、酸化インジウムと酸化亜鉛の混合物、ITOと酸化セリウムの混合物(ITCO)、酸化インジウムと酸化亜鉛の混合物と酸化セリウムの混合物(IZCO)、酸化インジウムと酸化セリウムの混合物(ICO)、酸化亜鉛と酸化アルミニウムの混合物(AZO)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極はこれらの電極物質から蒸着法やスパッタリング法等で形成できる。

発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率を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 $\Omega$ /□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1 $\mu$ m、好ましくは10~200nmである。

[0033] 発光層は、以下の機能を有する。

(i) 注入機能;電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能

(ii) 輸送機能;注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能

(iii) 発光機能;電子と正孔を再結合させ、これを発光につなげる機能

[0034] 発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物を沈着して形成した膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物を固体化して形成した膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

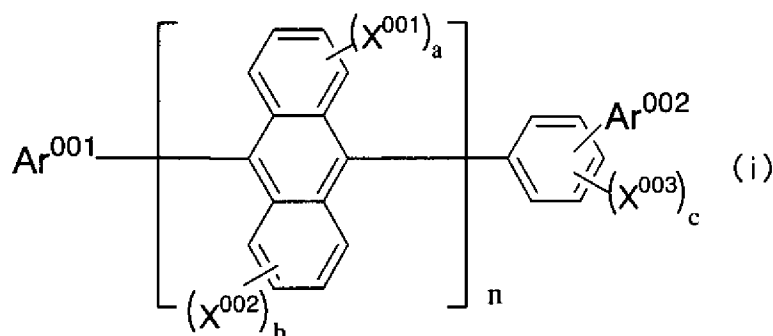
また樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

[0035] 発光層に使用できる発光材料としては、例えば、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン及びこれらの誘導体や蛍光色素等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0036] 発光層に使用できる宿主材料の具体例としては、下記(i)~(ix)で表される化合物が挙げられる。

下記式(i)で表される非対称アントラセン。

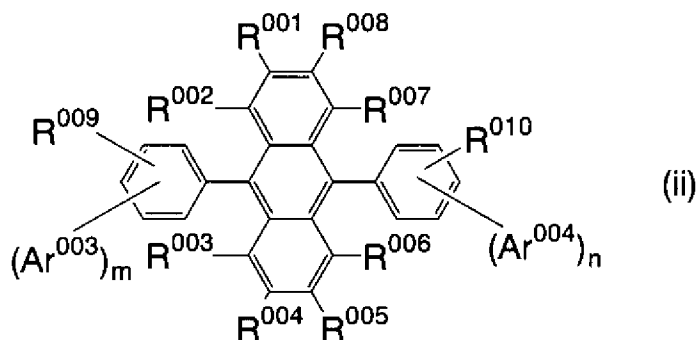
[0037] [化9]



[0038] (式中、 $Ar^{001}$ は置換もしくは無置換の核炭素数10～50の縮合芳香族基である。 $Ar^{002}$ は置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族基である。 $X^{001} \sim X^{003}$ は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族基、置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基である。a、b及びcは、それぞれ0～4の整数である。nは1～3の整数である。また、nが2以上の場合は、[ ]内は、同じでも異なってもよい。)

[0039] 下記式(ii)で表される非対称モノアントラセン誘導体。

[0040] [化10]

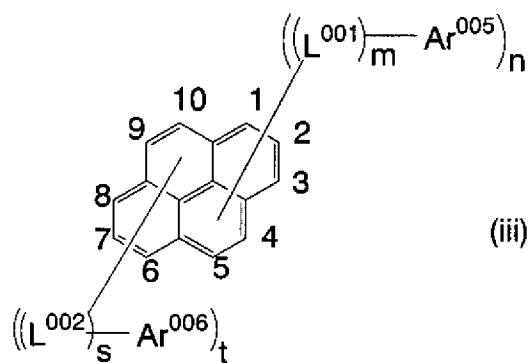


[0041] (式中、 $Ar^{003}$ 及び $Ar^{004}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族環基であり、 $m$ 及び $n$ は、それぞれ1～4の整数である。ただし、 $m=n=1$ でかつ $Ar^{003}$ と $Ar^{004}$ のベンゼン環への結合位置が左右対称型の場合には、 $Ar^{003}$ と $Ar^{004}$ は同一ではなく、 $m$ 又は $n$ が2～4の整数の場合には $m$ と $n$ は異なる整数である。

$R^{001} \sim R^{010}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族環基、置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリアルチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基である。)

[0042] 下記式 (iii) で表される非対称ピレン誘導体。

[0043] [化11]



[0044] [式中、 $Ar^{005}$ 及び $Ar^{006}$ は、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族基である。 $L^{001}$ 及び $L^{002}$ は、それぞれ置換もしくは無置換のフェニレン基、置換もしくは無置換のナフタレニレン基、置換もしくは無置換のフルオレニレン基又は置換もしくは無置換のジベンゾシロリレン基である。

$m$ は0～2の整数、 $n$ は1～4の整数、 $s$ は0～2の整数、 $t$ は0～4の整数である。

また、 $L^{001}$ 又は $Ar^{005}$ は、ピレンの1～5位のいずれかに結合し、 $L^{002}$ 又は $Ar^{006}$ は、ピレンの6～10位のいずれかに結合する。ただし、 $n+t$ が偶数の時、 $Ar^{005}$ 、 $Ar^{006}$ 、

$L^{001}$ ,  $L^{002}$ は下記(1)又は(2)を満たす。

(1)  $Ar^{005} \neq Ar^{006}$ 及び/又は $L^{001} \neq L^{002}$ (ここで $\neq$ は、異なる構造の基であることを示す。)

(2)  $Ar^{005} = Ar^{006}$ かつ $L^{001} = L^{002}$ の時

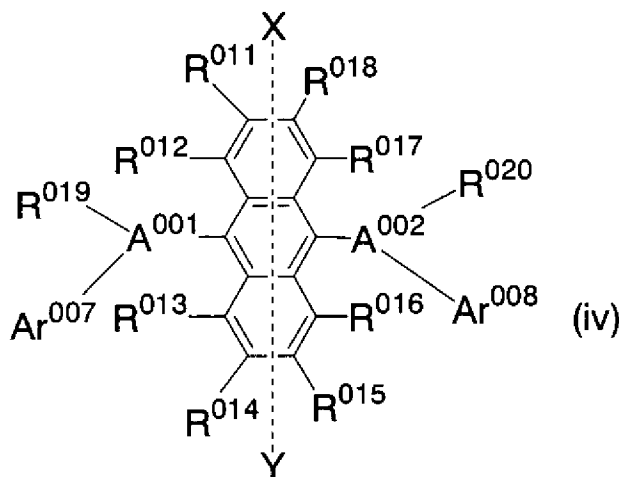
(2-1)  $m \neq s$ 及び/又は $n \neq t$ 、又は

(2-2)  $m = s$ かつ $n = t$ の時、

(2-2-1)  $L^{001}$ 及び $L^{002}$ 、又はピレンが、それぞれ $Ar^{005}$ 及び $Ar^{006}$ 上の異なる結合位置に結合しているか、(2-2-2)  $L^{001}$ 及び $L^{002}$ 、又はピレンが、 $Ar^{005}$ 及び $Ar^{006}$ 上の同じ結合位置で結合している場合、 $L^{001}$ 及び $L^{002}$ 又は $Ar^{005}$ 及び $Ar^{006}$ のピレンにおける置換位置が1位と6位、又は2位と7位である場合はない。]

[0045] 下記式(iv)で表される非対称アントラセン誘導体。

[0046] [化12]



[0047] (式中、 $A^{001}$ 及び $A^{002}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核炭素数10~20の縮合芳香族環基である。

$Ar^{007}$ 及び $Ar^{008}$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換もしくは無置換の核炭素数6~50の芳香族環基である。

$R^{011} \sim R^{020}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6~50の芳香族環基、置換もしくは無置換の核原子数5~50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基



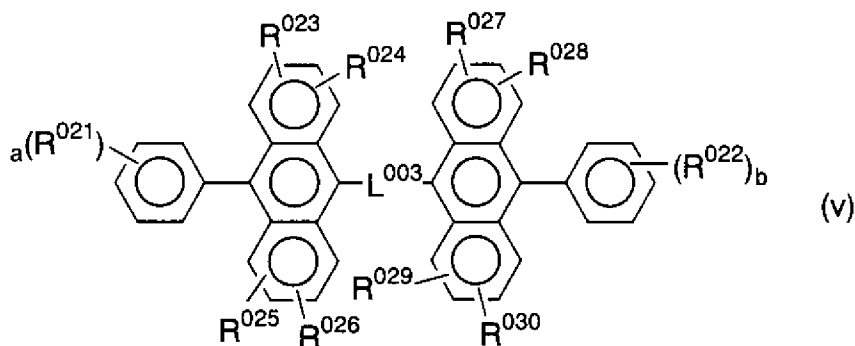
、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシ基である。

$Ar^{007}$ 、 $Ar^{008}$ 、 $R^{019}$ 及び $R^{020}$ は、それぞれ複数であってもよく、隣接するもの同士で飽和もしくは不飽和の環状構造を形成していてもよい。

ただし、式(iv)において、中心のアントラセンの9位及び10位に、該アントラセン上に示すX-Y軸に対して対称型となる基が結合する場合はない。）

[0048] 下記式(v)で表されるアントラセン誘導体。

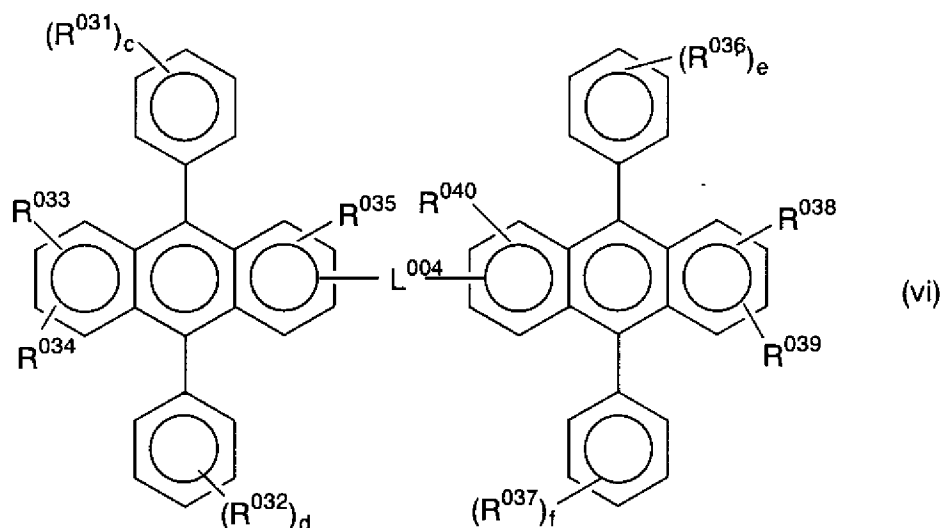
[0049] [化13]



[0050] (式中、 $R^{021} \sim R^{030}$ は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、置換してもよいアリール基、アルコキシル基、アリーロキシ基、アルキルアミノ基、アルケニル基、アリールアミノ基又は置換してもよい複素環式基を示し、a及びbは、それぞれ1～5の整数を示し、それらが2以上の場合、 $R^{021}$ 同士又は $R^{022}$ 同士は、それぞれにおいて、同一でも異なってもよく、また、 $R^{021}$ 同士又は $R^{022}$ 同士が結合して環を形成していてもよいし、 $R^{023}$ と $R^{024}$ 、 $R^{025}$ と $R^{026}$ 、 $R^{027}$ と $R^{028}$ 、 $R^{029}$ と $R^{030}$ がたがいに結合して環を形成していてもよい。 $L^{003}$ は単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R)-$ (Rはアルキル基又は置換してもよいアリール基である)、アルキレン基又はアリーレン基を示す。)

[0051] 下記式(vi)で表されるアントラセン誘導体。

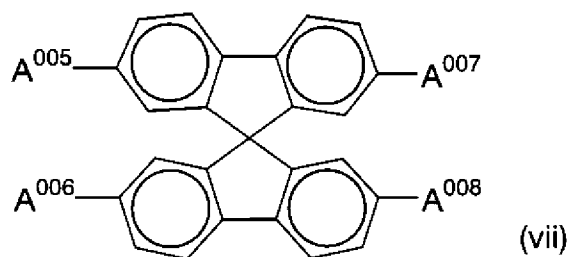
[0052] [化14]



[0053] (式中、 $R^{031} \sim R^{040}$ は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルコキシル基、アリーロキシ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基又は置換してもよい複数環式基を示し、c, d, e及びfは、それぞれ1~5の整数を示し、それらが2以上の場合、 $R^{031}$ 同士、 $R^{032}$ 同士、 $R^{036}$ 同士又は $R^{037}$ 同士は、それぞれにおいて、同一でも異なってもよく、また $R^{031}$ 同士、 $R^{032}$ 同士、 $R^{033}$ 同士又は $R^{037}$ 同士が結合して環を形成していてもよいし、 $R^{033}$ と $R^{034}$ 、 $R^{039}$ と $R^{040}$ がたがいに結合して環を形成していてもよい。 $L^{004}$ は単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R)-$  (Rはアルキル基又は置換してもよいアリール基である)、アルキレン基又はアリーレン基を示す。)

[0054] 下記式(vii)で表されるスピロフルオレン誘導体。

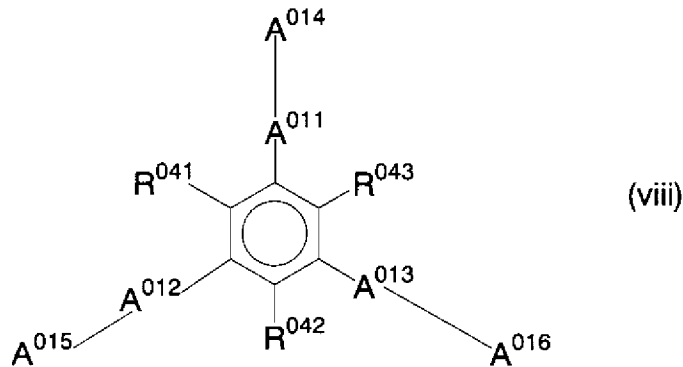
[0055] [化15]



[0056] (式中、 $A^{005} \sim A^{008}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のビフェニル基又は置換もしくは無置換のナフチル基である。)

[0057] 下記式(viii)で表される縮合環含有化合物。

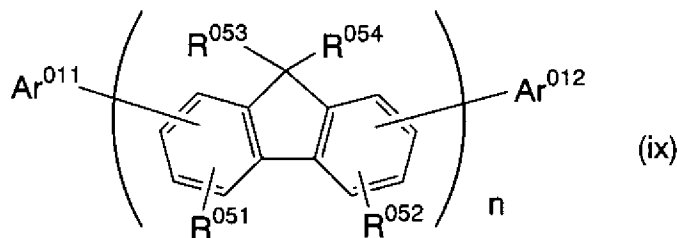
[0058] [化16]



[0059] (式中、 $A^{011} \sim A^{013}$ は前記式(1)の $L_1$ と同様な2価の基を示し、 $A^{014} \sim A^{016}$ は式(1)の $R_a$ と同様な置換基を示す。 $R^{041} \sim R^{043}$ は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数3～6のシクロアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数5～18のアリールオキシ基、炭素数7～18のアラルキルオキシ基、炭素数5～16のアリールアミノ基、ニトロ基、シアノ基、炭素数1～6のエステル基又はハロゲン原子を示し、 $A^{011} \sim A^{016}$ のうち少なくとも1つは3環以上の縮合芳香族環を有する基である。)

[0060] 下記式(ix)で表されるフルオレン化合物。

[0061] [化17]



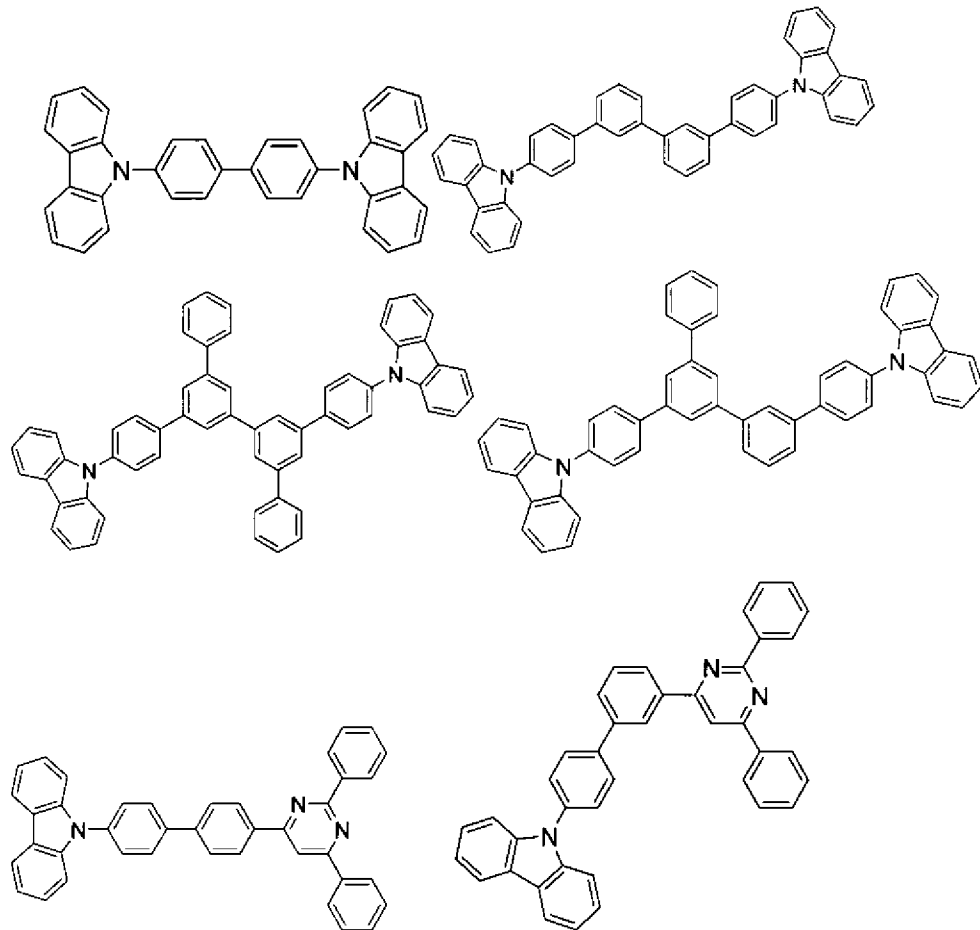
[0062] (式中、 $R^{051}$ 及び $R^{052}$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。異なるフルオレン

基に結合する $R^{051}$ 同士、 $R^{052}$ 同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する $R^{051}$ 及び $R^{052}$ は、同じであっても異なってもよい。 $R^{053}$ 及び $R^{054}$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合する $R^{053}$ 同士、 $R^{054}$ 同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する $R^{053}$ 及び $R^{054}$ は、同じであっても異なってもよい。 $Ar^{011}$ 及び $Ar^{012}$ は、ベンゼン環の合計が3個以上の置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基またはベンゼン環と複素環の合計が3個以上の置換あるいは無置換の炭素でフルオレン基に結合する縮合多環複素環基を表わし、 $Ar^{011}$ 及び $Ar^{012}$ は、同じであっても異なってもよい。 $n$ は、1乃至10の整数を表す。)

[0063] 燐光性ドーパントを使用する際のホスト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、ポリアリールアルカン誘導体、ピラズリン誘導体、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、チオピランジオキソド誘導体、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。ホスト化合物は単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

具体例としては、以下のような化合物が挙げられる。

[0064] [化18]



[0065] 本発明の有機EL素子においては、発光層に、本発明の発光材料をホストとし、燐光性ドーパント及び蛍光性ドーパントの少なくとも一方を含有していることが好ましい。また、本発明の化合物を含む発光層に、これらのドーパントを含む発光層を積層してもよい。

[0066] 燐光性ドーパントは三重項励起子から発光することのできる化合物である。三重項励起子から発光する限り特に限定されないが、Ir、Ru、Pd、Pt、Os及びReからなる群から選択される少なくとも一つの金属を含む金属錯体であることが好ましく、ポルフィリン金属錯体又はオルトメタル化金属錯体が好ましい。燐光性化合物は単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

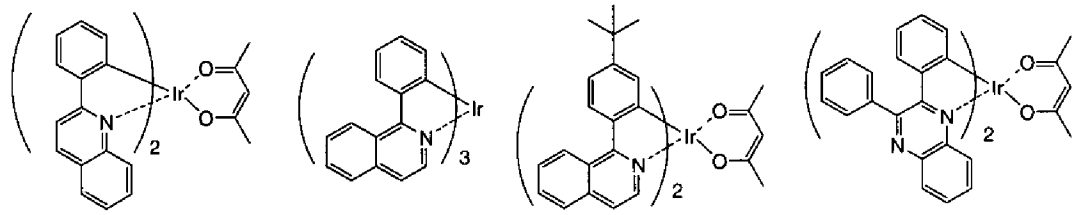
[0067] ポルフィリン金属錯体としては、ポルフィリン白金錯体が好ましい。

オルトメタル化金属錯体を形成する配位子としては種々のものがあるが、好ましい配位子としては、フェニルピリジン骨格、ビピリジル骨格又はフェナントロリン骨格を有

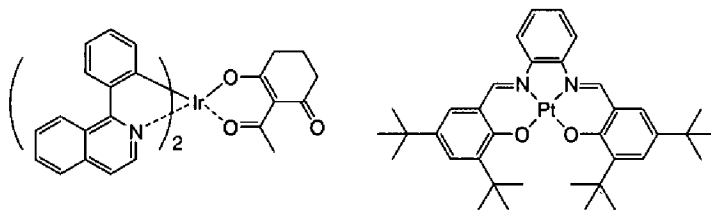
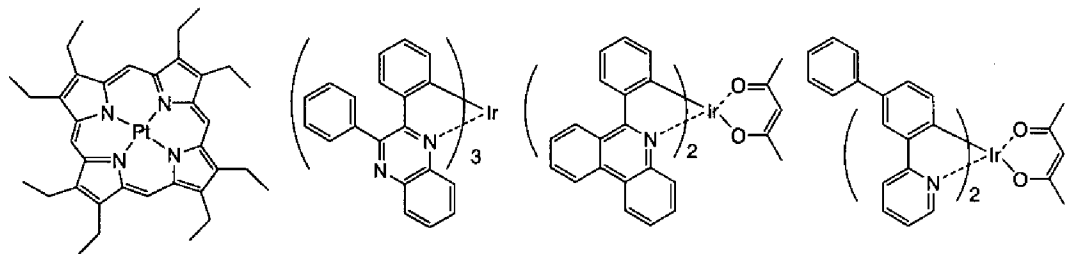
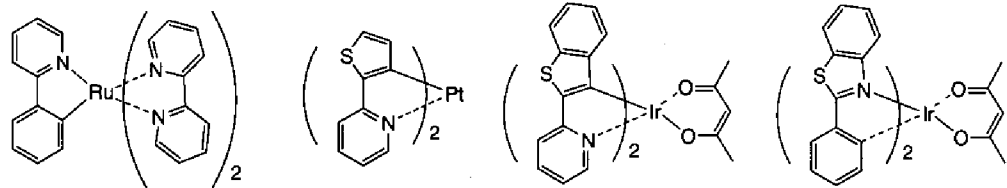
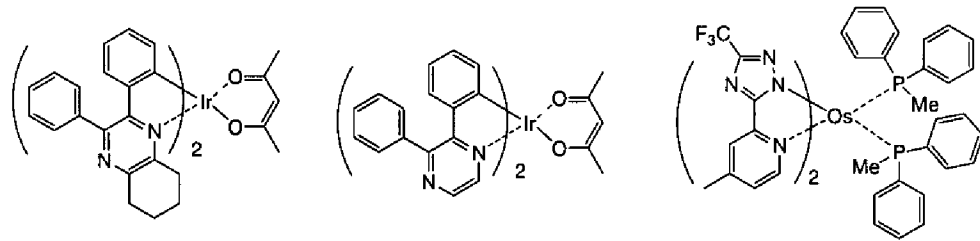
する化合物、又は2-フェニルピリジン誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体、2-フェニルキノリン誘導体等が挙げられる。これらの配位子は必要に応じて置換基を有してもよい。特に、フッ素化物、トリフルオロメチル基を導入したものが、青色系ドーパントとしては好ましい。さらに補助配位子としてアセチルアセトナート、ピクリン酸等の上記配位子以外の配位子を有していてもよい。

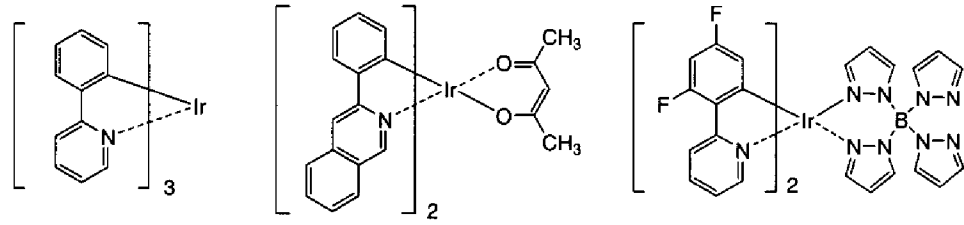
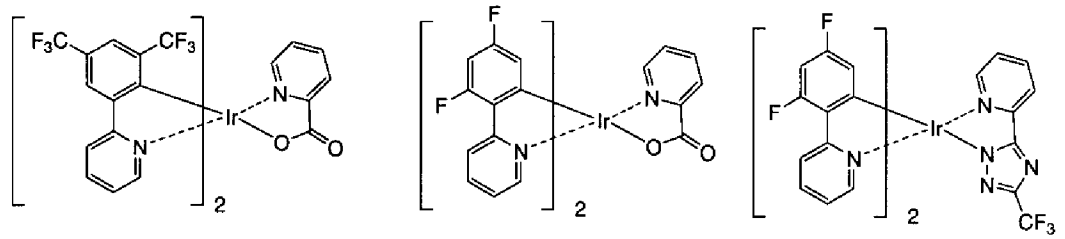
[0068] このような金属錯体の具体例としては、以下に示される化合物が挙げられる。尚、本発明では、特に赤色領域で発光する燐光性ドーパントと組合せることが好ましい。これらに限定されず、要求される発光色、素子性能、使用するホスト化合物により適切な錯体が選ばれる。

[化19]

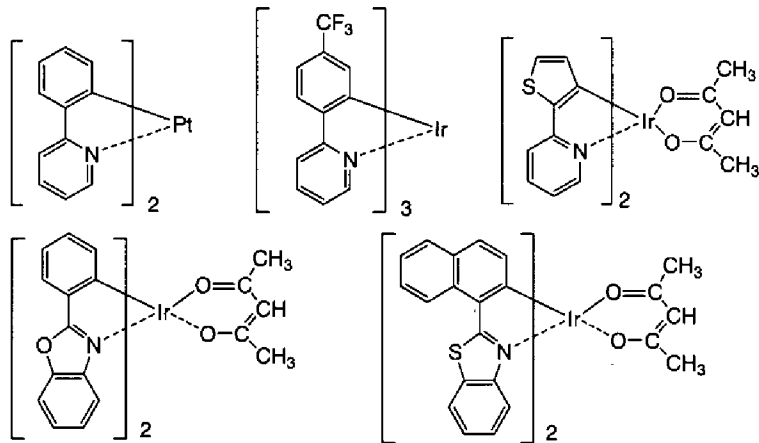
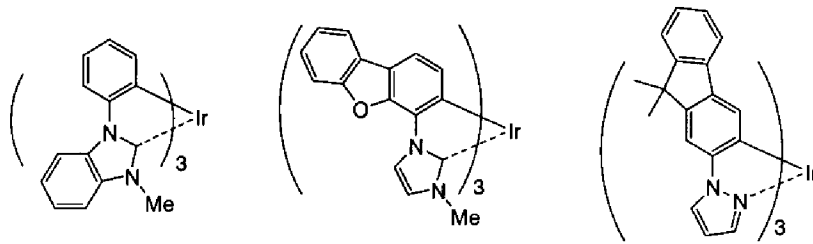


PQIr

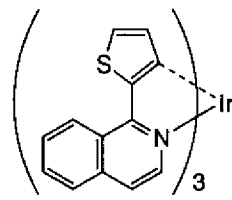
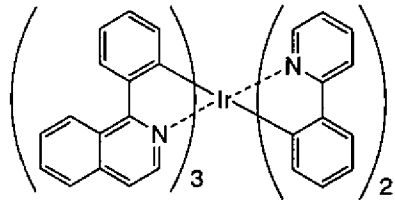
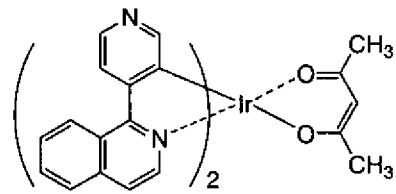
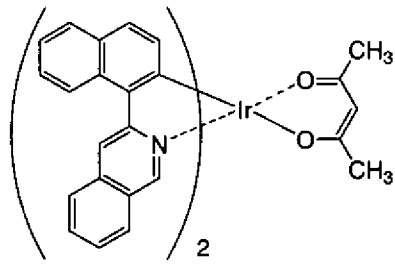
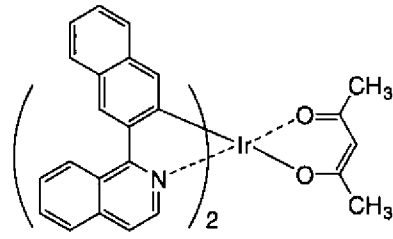
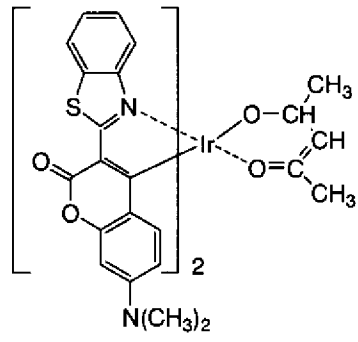


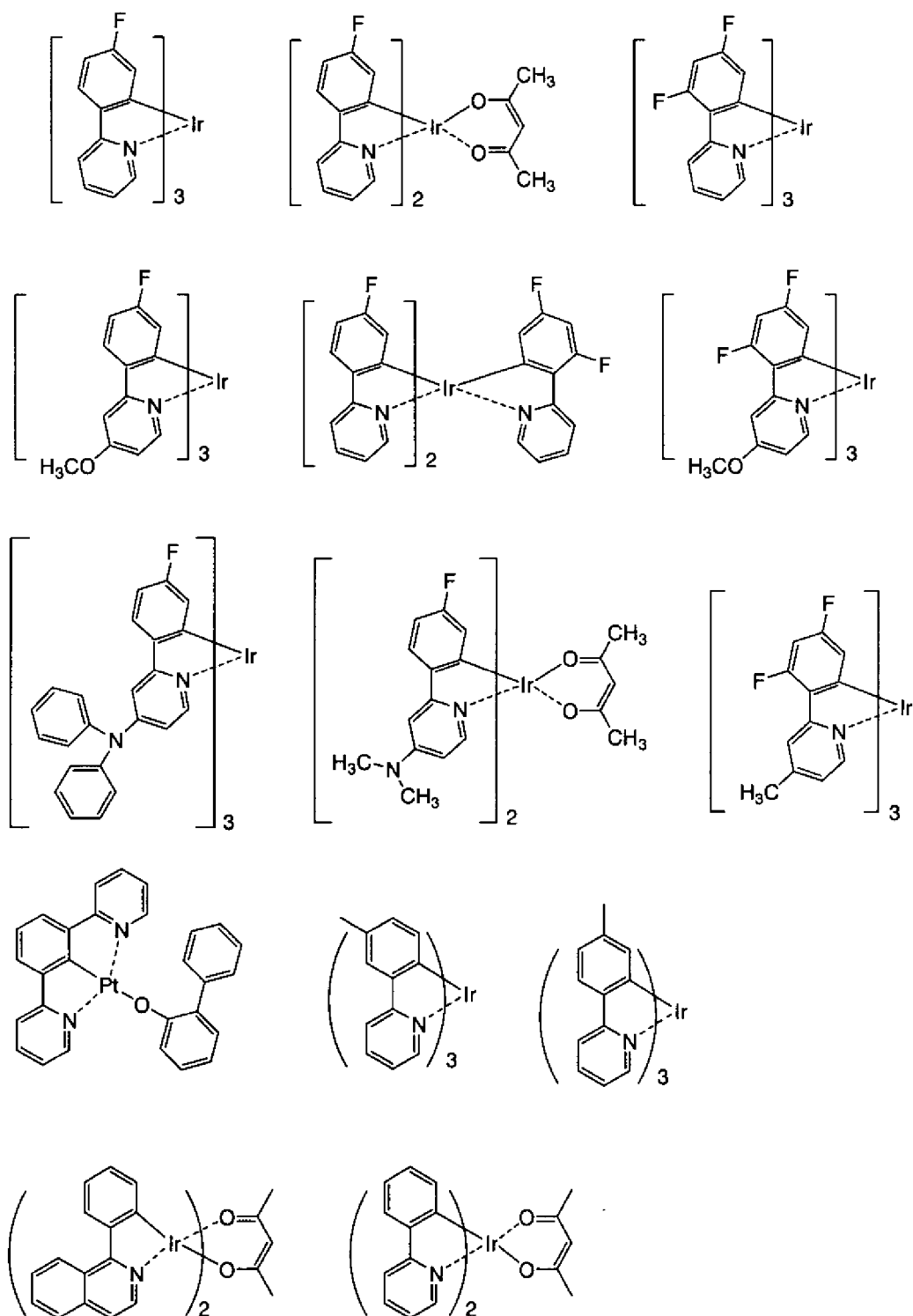


Ir(ppy)<sub>3</sub>









[0069] 燐光性ドーパントの発光層における含有量としては、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%であり、1～30質量%が好ましい。燐光性化合物の含有量が0.1質量%未満では発光が微弱でありその含有効果が十分に発揮されない恐れがあり、70質量%を超える場合は、濃度消光と言わ

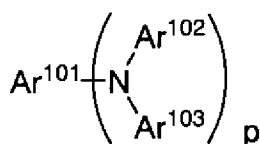
れる現象が顕著になり素子性能が低下する恐れがある。

[0070] 蛍光性ドーパントとしては、アミン系化合物、芳香族化合物、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルプタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等から、要求される発光色に合わせて化合物を選択することが好ましく、スチリルアミン化合物、スチリルジアミン化合物、アリールアミン化合物、アリールジアミン化合物がさらに好ましい。また、アミン化合物ではない縮合多環芳香族化合物も好ましい。これらの蛍光性ドーパントは単独でもまた複数組み合わせて使用してもよい。

蛍光性ドーパントの発光層における含有量としては、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%であり、1～30質量%が好ましい。

[0071] スチリルアミン化合物及びスチリルジアミン化合物としては、下記式(A)で表されるものが好ましい。

[化20]



(A)

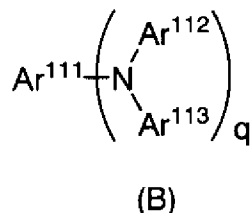
[0072] (式中、 $\text{Ar}^{101}$ はp価の基であり、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチルベニル基、ジスチリルアリール基の対応するp価の基であり、 $\text{Ar}^{102}$ 及び $\text{Ar}^{103}$ はそれぞれ炭素数が6～20の芳香族炭化水素基であり、 $\text{Ar}^{101}$ 、 $\text{Ar}^{102}$ 及び $\text{Ar}^{103}$ は置換されていてもよい。 $\text{Ar}^{101} \sim \text{Ar}^{103}$ のいずれか一つはスチリル基で置換されている。さらに好ましくは $\text{Ar}^{102}$ 又は $\text{Ar}^{103}$ の少なくとも一方はスチリル基で置換されている。pは1～4の整数であり、好ましくは1～2の整数である。)

ここで、炭素数が6～20の芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ターフェニル基等が挙げられる。

[0073] アリールアミン化合物及びアリールジアミン化合物としては、下記式(B)で表される

ものが好ましい。

[化21]

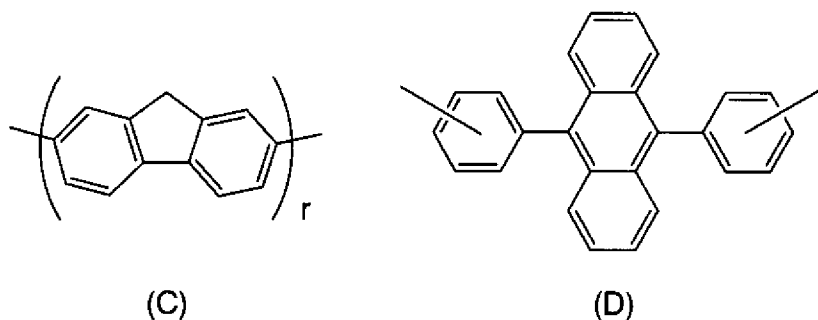


[0074] (式中、 $\text{Ar}^{111}$ は $q$ 価の置換もしくは無置換の核炭素数5~40の芳香族基であり、 $\text{Ar}^{112}$ 、 $\text{Ar}^{113}$ はそれぞれ置換もしくは無置換の核炭素数5~40のアリール基である。 $q$ は1~4の整数であり、好ましくは1~2の整数である。)

ここで、核炭素数が5~40のアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ピレニル基、コロニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ピローリル基、フラニル基、チオフェニル基、ベンゾチオフェニル基、オキサジアゾリル基、ジフェニルアントラニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ピリジル基、ベンゾキノリル基、フルオランテニル基、アセナフトフルオランテニル基、スチルベン基、ペリレニル基、クリセニル基、ピセニル基、トリフェニレニル基、ルビセニル基、ベンゾアントラセニル基、フェニルアントラニル基、ビスアントラセニル基が挙げられ、ナフチル基、アントラニル基、クリセニル基、ピレニル基が好ましい。

$\text{Ar}^{111}$ は上記の $q$ 価の基が好ましく、さらに $\text{Ar}^{111}$ が2価のときは下記式(C)、(D)で示される基が好ましく、式(D)で示される基がより好ましい。

[0075] [化22]



(式(C)において、 $r$ は1~3の整数である。)

[0076] 尚、前記アリアル基に置換する好ましい置換基としては、炭素数1～6のアルキル基(エチル基、メチル基、i-プロピル基、n-プロピル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、炭素数1～6のアルコキシ基(エトキシ基、メトキシ基、i-プロポキシ基、n-プロポキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、核炭素数5～40のアリアル基、核炭素数5～40のアリアル基で置換されたアミノ基、核炭素数5～40のアリアル基を有するエステル基、炭素数1～6のアルキル基を有するエステル基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

[0077] 発光層は、必要に応じて正孔輸送材、電子輸送材、ポリマーバインダーを含有してもよい。

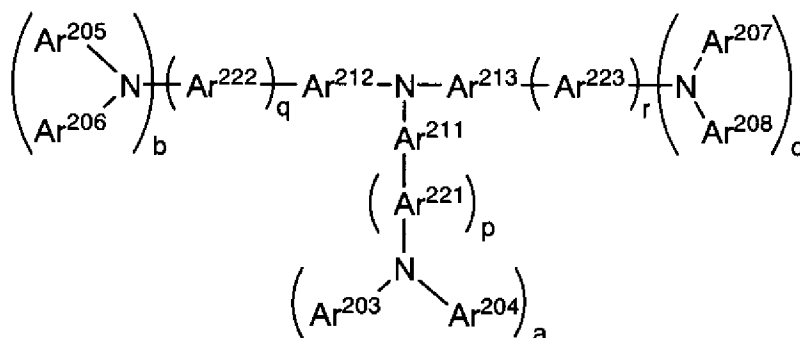
発光層の膜厚は、好ましくは5～50nm、より好ましくは7～50nm、最も好ましくは10～50nmである。5nm未満では発光層形成が困難となり、色度の調整が困難となる恐れがあり、50nmを超えると駆動電圧が上昇する恐れがある。

[0078] 正孔注入層及び正孔輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層及び正孔輸送層の材料としてはより低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6 \text{V/cm}$ の電界印加時に、 $10^{-4} \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{秒}$ 以上であれば好ましい。

正孔注入層及び正孔輸送層の材料としては、特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入層及び正孔輸送層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0079] 正孔注入層及び正孔輸送層に、例えば、下記式で表される芳香族アミン誘導体を使用できる。

[化23]



$Ar^{211} \sim Ar^{213}$ 、 $Ar^{221} \sim Ar^{223}$  及び  $Ar^{203} \sim Ar^{208}$  はそれぞれ置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基である。a～c及びp～rはそれぞれ0～3の整数である。 $Ar^{203}$ と $Ar^{204}$ 、 $Ar^{205}$ と $Ar^{206}$ 、 $Ar^{207}$ と $Ar^{208}$ はそれぞれ互いに連結して飽和もしくは不飽和の環を形成してもよい。

[0080] 置換又は無置換の核炭素数6～50の芳香族環基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-テルフェニル-4-イル基、p-テルフェニル-3-イル基、p-テルフェニル-2-イル基、m-テルフェニル-4-イル基、m-テルフェニル-3-イル基、m-テルフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-テルフェニル4-イル基が挙げられる。

[0081] 置換又は無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基の例としては、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-

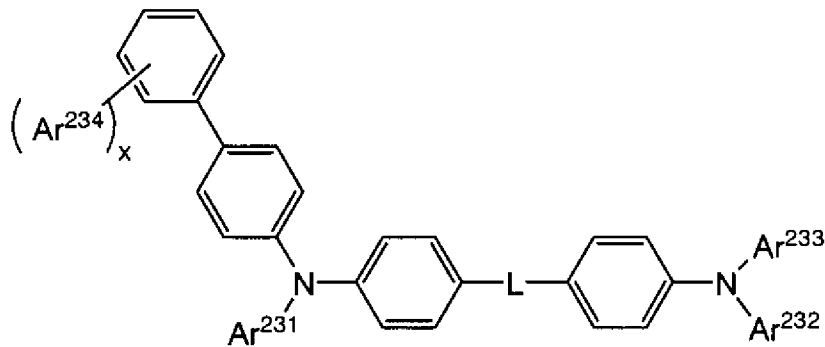
ーイソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナントリジニル基、2-フェナントリジニル基、3-フェナントリジニル基、4-フェナントリジニル基、6-フェナントリジニル基、7-フェナントリジニル基、8-フェナントリジニル基、9-フェナントリジニル基、10-フェナントリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナントロリン-2-イル基、1, 7-フェナントロリン-3-イル基、1, 7-フェナントロリン-4-イル基、1, 7-フェナントロリン-5-イル基、1, 7-フェナントロリン-6-イル基、1, 7-フェナントロリン-8-イル基、1, 7-フェナントロリン-9-イル基、1, 7-フェナントロリン-10-イル基、1, 8-フェナントロリン-2-イル基、1, 8-フェナントロリン-3-イル基、1, 8-フェナントロリン-4-イル基、1, 8-フェナントロリン-5-イル基、1, 8-フェナントロリン-6-イル基、1, 8-フェナントロリン-7-イル基、1, 8-フェナントロリン-9-イル基、1, 8-フェナントロリン-10-イル基、1, 9-フェナントロリン-2-イル基、1, 9-フェナントロリン-3-イル基、1, 9-フェナントロリン-4-イル基、1, 9-フェナントロリン-5-イル基、1, 9-フェナントロリン-6-イル基、1, 9-フェナントロリン-7-イル基、1, 9-フェナントロリン-8-イル基、1, 9-フェナントロリン-10-イル基、1, 10-フェナントロリン-2-イル基、1, 10-フェナントロリン-3-イル基、1, 10-フェナントロリン-4-イル基、1, 10-フェナントロリン-5-イル基、2, 9-フェナントロリン-1-イル基、2, 9-フェナントロリン-3-イル基、2, 9-フェナントロリン

−4−イル基、2, 9−フェナントロリン−5−イル基、2, 9−フェナントロリン−6−イル基、2, 9−フェナントロリン−7−イル基、2, 9−フェナントロリン−8−イル基、2, 9−フェナントロリン−10−イル基、2, 8−フェナントロリン−1−イル基、2, 8−フェナントロリン−3−イル基、2, 8−フェナントロリン−4−イル基、2, 8−フェナントロリン−5−イル基、2, 8−フェナントロリン−6−イル基、2, 8−フェナントロリン−7−イル基、2, 8−フェナントロリン−9−イル基、2, 8−フェナントロリン−10−イル基、2, 7−フェナントロリン−1−イル基、2, 7−フェナントロリン−3−イル基、2, 7−フェナントロリン−4−イル基、2, 7−フェナントロリン−5−イル基、2, 7−フェナントロリン−6−イル基、2, 7−フェナントロリン−8−イル基、2, 7−フェナントロリン−9−イル基、2, 7−フェナントロリン−10−イル基、1−フェナジニル基、2−フェナジニル基、1−フェノチアジニル基、2−フェノチアジニル基、3−フェノチアジニル基、4−フェノチアジニル基、10−フェノチアジニル基、1−フェノキサジニル基、2−フェノキサジニル基、3−フェノキサジニル基、4−フェノキサジニル基、10−フェノキサジニル基、2−オキサゾリル基、4−オキサゾリル基、5−オキサゾリル基、2−オキサジアゾリル基、5−オキサジアゾリル基、3−フラザニル基、2−チエニル基、3−チエニル基、2−メチルピロール−1−イル基、2−メチルピロール−3−イル基、2−メチルピロール−4−イル基、2−メチルピロール−5−イル基、3−メチルピロール−1−イル基、3−メチルピロール−2−イル基、3−メチルピロール−4−イル基、3−メチルピロール−5−イル基、2−*t*−ブチルピロール−4−イル基、3−(2−フェニルプロピル)ピロール−1−イル基、2−メチル−1−インドリル基、4−メチル−1−インドリル基、2−メチル−3−インドリル基、4−メチル−3−インドリル基、2−*t*−ブチル1−インドリル基、4−*t*−ブチル1−インドリル基、2−*t*−ブチル3−インドリル基、4−*t*−ブチル3−インドリル基が挙げられる。

[0082] さらに、正孔注入層及び正孔輸送層に、下記式で表される化合物が使用できる。

[化24]





$\text{Ar}^{231} \sim \text{Ar}^{234}$ はそれぞれ置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基である。Lは連結基であり、単結合、もしくは置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基である。xは0～5の整数である。 $\text{Ar}^{232}$ と $\text{Ar}^{233}$ は互いに連結して飽和もしくは不飽和の環を形成してもよい。

ここで置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族炭化水素基、及び置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基の具体例としては、前記芳香族アミン誘導体と同様のものがあげられる。

[0083] さらに、正孔注入層及び正孔輸送層の材料の具体例としては、例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）等を挙げることができる。

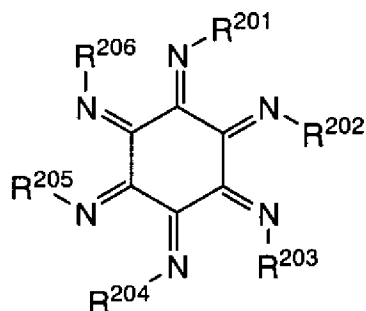
[0084] 正孔注入層及び正孔輸送層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0085] また2個の縮合芳香族環を分子内に有する化合物、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(以下NPDと略記する)や、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(以下MTDATAと略記する)等を用いることが好ましい。

[0086] この他に下記式で表される含窒素複素環誘導体も用いることができる。

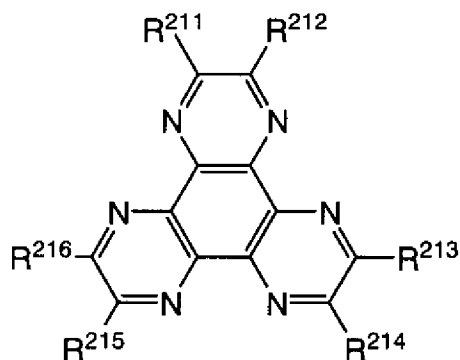
[化25]



式中、 $R^{201} \sim R^{206}$ はそれぞれ置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換の複素環基のいずれかを示す。 $R^{201}$ と $R^{202}$ 、 $R^{203}$ と $R^{204}$ 、 $R^{205}$ と $R^{206}$ 、 $R^{201}$ と $R^{206}$ 、 $R^{202}$ と $R^{203}$ 、又は $R^{204}$ と $R^{205}$ は縮合環を形成してもよい。

[0087] さらに、下記式の化合物も用いることができる。

[化26]



$R^{211} \sim R^{216}$ は置換基であり、好ましくはそれぞれシアノ基、ニトロ基、スルホニル基、カルボニル基、トリフルオロメチル基、ハロゲン等の電子吸引基である。

[0088] また、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入層及び正孔輸送層の材料として使用することができる。

正孔注入層及び正孔輸送層は上述した化合物を、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層及び正孔輸送層の膜厚は特に制限はないが、通常は5nm～5 $\mu$ mである。正孔注入層及び正孔輸送層は上述した材料の一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、異なる化合物からなる複数の正孔注入層及び正孔輸送層を積層したものであってもよい。

[0089] 有機半導体層は発光層への正孔注入又は電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$ S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマー等の導電性オリゴマー、含アリールアミン dendrimer 等の導電性 dendrimer 等を用いることができる。

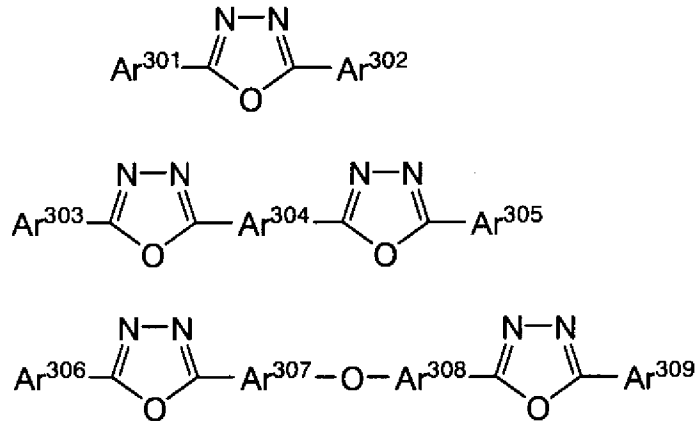
[0090] 電子注入層及び電子輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きい。また付着改善層は、特に陰極との付着が良い材料からなる電子注入層の一種である。

電子輸送層は5nm～5 $\mu$ mの膜厚で適宜選ばれるが、特に膜厚が厚いとき、電圧上昇を避けるために、 $10^4 \sim 10^6$  V/cmの電界印加時に電子移動度が $10^{-5}$  cm<sup>2</sup>/Vs以上であることが好ましい。

[0091] 電子注入層及び電子輸送層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体やオキサジアゾール誘導体が好適である。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(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-キノリノラト)アルミニウムを挙げることができる。

[0092] オキサジアゾール誘導体としては、以下の式で表される電子伝達化合物が挙げられる。

[0093] [化27]

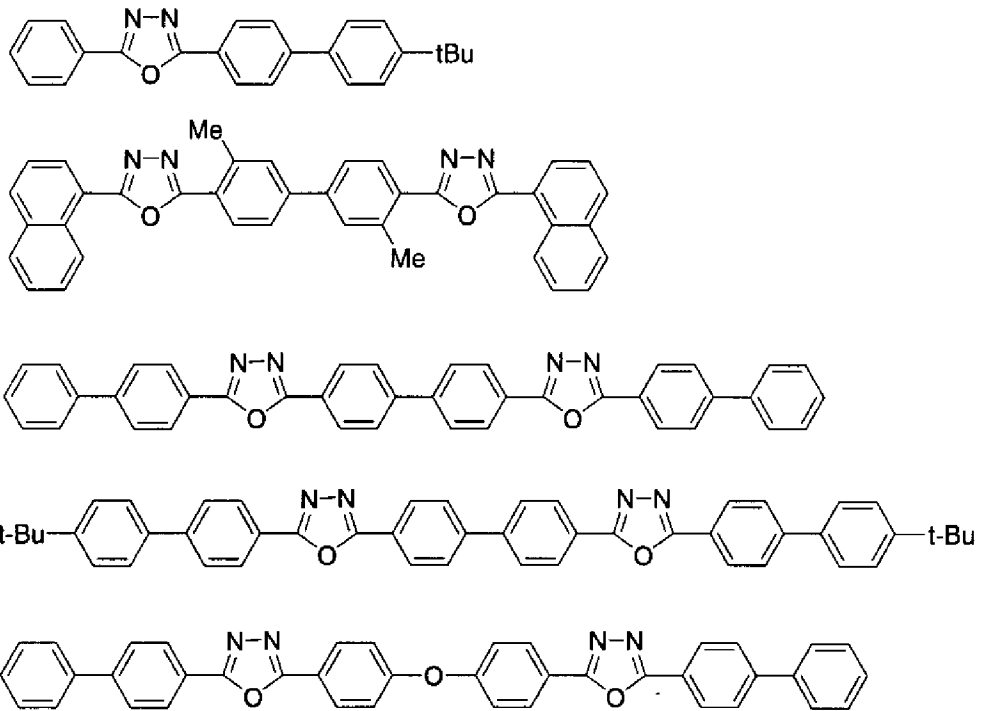


(式中、Ar<sup>301</sup>、Ar<sup>302</sup>、Ar<sup>303</sup>、Ar<sup>305</sup>、Ar<sup>306</sup>、及びAr<sup>309</sup>はそれぞれ置換又は無置換のアリール基を示す。またAr<sup>304</sup>、Ar<sup>307</sup>、Ar<sup>308</sup>はそれぞれ置換又は無置換のアリーレン基を示す。)

[0094] ここでアリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基等が挙げられる。また、アリーレン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、ピレニレン基等が挙げられる。また、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。この電子伝達化合物は薄膜形成性のものが好ましい。

[0095] 上記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。

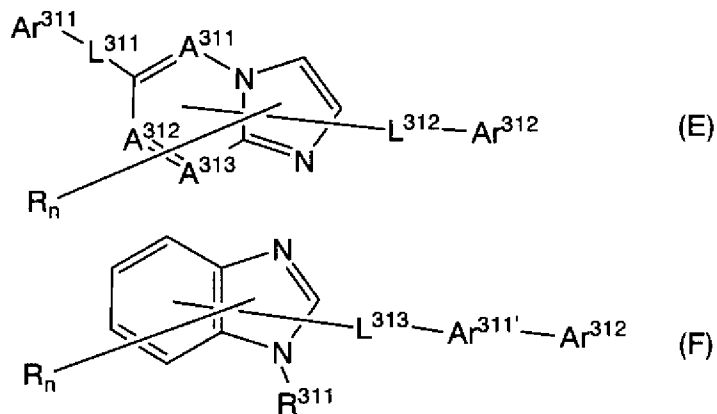
[化28]



(Meはメチル基、tBuはtブチル基を示す。)

[0096] さらに、電子注入層及び電子輸送層に用いられる材料として、下記式(E)～(J)で表されるものも用いることができる。

[化29]



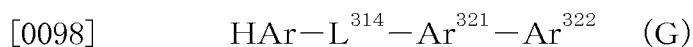
[0097] (式(E)及び(F)中、 $A^{311} \sim A^{313}$ は、それぞれ窒素原子又は炭素原子である。

$Ar^{311}$ は、置換もしくは無置換の核炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無

置換の核原子数3～60のヘテロアリール基であり、Ar<sup>311</sup>は、置換もしくは無置換の核炭素数6～60のアリーレン基又は置換もしくは無置換の核原子数3～60のヘテロアリーレン基であり、Ar<sup>312</sup>は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6～60のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数3～60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、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。ただし、Ar<sup>311</sup>及びAr<sup>312</sup>のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数10～60の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核原子数3～60のモノヘテロ縮合環基である。

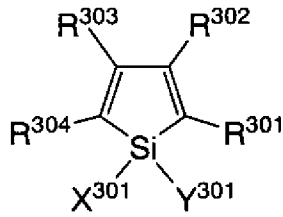
L<sup>311</sup>、L<sup>312</sup>及びL<sup>313</sup>は、それぞれ、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換の核原子数3～60のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。

R及びR<sup>311</sup>は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6～60のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数3～60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、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り、nは0～5の整数であり、nが2以上の場合、複数のRは同一でも異なってもよく、また、隣接するR基同士で結合して、炭素環式脂肪族環又は炭素環式芳香族環を形成していてもよい。)で表される含窒素複素環誘導体。



(式中、HArは、置換基を有していてもよい炭素数3～40の含窒素複素環であり、L<sup>314</sup>は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよい原子数3～60のヘテロアリーレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、Ar<sup>321</sup>は、置換基を有していてもよい炭素数6～60の2価の芳香族炭化水素基であり、Ar<sup>322</sup>は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基又は置換基を有していてもよい原子数3～60のヘテロアリール基である。)で表される含窒素複素環誘導体。

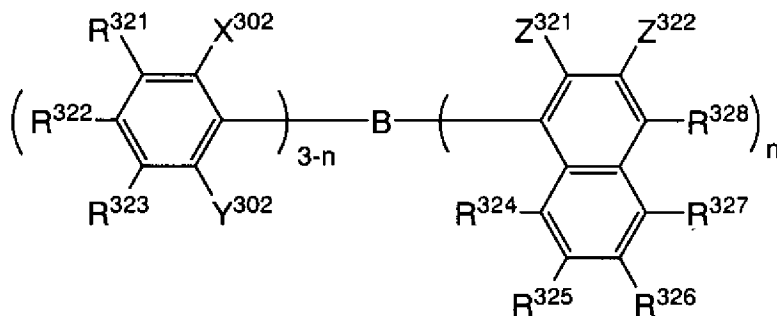
[0099] [化30]



(H)

[0100] (式中、X<sup>301</sup>及びY<sup>301</sup>は、それぞれ炭素数1～6の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アルキニルオキシ基、ヒドロキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環又はXとYが結合して飽和又は不飽和の環を形成した構造であり、R<sup>301</sup>～R<sup>304</sup>は、それぞれ、水素、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、パーフルオロアルキル基、パーフルオロアルコキシ基、アミノ基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アゾ基、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、アルコキシカルボニルオキシ基、アリールオキシカルボニルオキシ基、スルフィニル基、スルフォニル基、スルファニル基、シリル基、カルバモイル基、アリール基、ヘテロ環基、アルケニル基、アルキニル基、ニトロ基、ホルミル基、ニトロソ基、ホルミルオキシ基、イソシアノ基、シアネート基、イソシアネート基、チオシアネート基、イソチオシアネート基又はシアノ基である。これらの基は置換されていてもよい。また、隣接した基が置換若しくは無置換の縮合環を形成してもよい。)で表されるシラシクロペンタジエン誘導体。

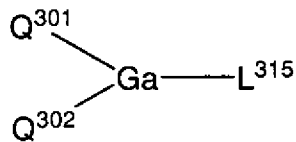
[0101] [化31]



(I)

[0102] (式中、 $R^{321} \sim R^{328}$  及び  $Z^{322}$  は、それぞれ、水素原子、飽和もしくは不飽和の炭化水素基、芳香族炭化水素基、ヘテロ環基、置換アミノ基、置換ボリル基、アルコキシ基又はアリアルコキシ基を示し、 $X^{302}$ 、 $Y^{302}$  及び  $Z^{321}$  は、それぞれ、飽和もしくは不飽和の炭化水素基、芳香族炭化水素基、ヘテロ環基、置換アミノ基、アルコキシ基又はアリアルコキシ基を示し、 $Z^{321}$  と  $Z^{322}$  は相互に結合して縮合環を形成してもよく、 $n$  は 1 ～ 3 の整数を示し、 $n$  又は  $(3-n)$  が 2 以上の場合、 $R^{321} \sim R^{328}$ 、 $X^{302}$ 、 $Y^{302}$ 、 $Z^{322}$  及び  $Z^{321}$  は同一でも異なってもよい。但し、 $n$  が 1、 $X$ 、 $Y$  及び  $R^{322}$  がメチル基で  $R^{328}$  が水素原子又は置換ボリル基の化合物、及び  $n$  が 3 で  $Z^{321}$  がメチル基の化合物を含まない。) で表されるボラン誘導体。

[0103] [化32]

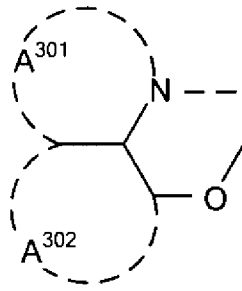


(J)

[0104] [式中、 $Q^{301}$  及び  $Q^{302}$  は、それぞれ、下記式(K)で示される配位子を表し、 $L^{315}$  は、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換の複素環基、 $-OR$  ( $R$  は、水素原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換の複素環基である。) 又は  $-O-Ga-Q^{303}$  ( $Q^{304}$ ) ( $Q^{303}$  及び  $Q^{304}$  は、 $Q^{301}$  及び  $Q^{302}$  と同じ) で示される配位子を表す。] で表されるガリウム錯体。

[0105] [化33]





(K)

[式中、環A<sup>301</sup>及びA<sup>302</sup>は、それぞれ置換基を有してよい互いに縮合した6員アリアル環構造である。]

[0106] この金属錯体は、n型半導体としての性質が強く、電子注入能力が大きい。さらには、錯体形成時の生成エネルギーも低いために、形成した金属錯体の金属と配位子との結合性も強固になり、発光材料としての蛍光量子効率も大きい。

式(K)の配位子を形成する環A<sup>301</sup>及びA<sup>302</sup>の置換基の具体的な例を挙げると、塩素、臭素、ヨウ素、フッ素のハロゲン原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ステアシル基、トリクロロメチル基等の置換もしくは無置換のアルキル基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、フェナントリル基、フルオレニル基、ピレニル基、3-メチルフェニル基、3-メトキシフェニル基、3-フルオロフェニル基、3-トリクロロメチルフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、3-ニトロフェニル基等の置換もしくは無置換のアリアル基、メトキシ基、n-ブトキシ基、t-ブトキシ基、トリクロロメトキシ基、トリフルオロエトキシ基、ペンタフルオロプロポキシ基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロポキシ基、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-プロポキシ基、6-(パーフルオロエチル)ヘキシルオキシ基等の置換もしくは無置換のアルコキシ基、フェノキシ基、p-ニトロフェノキシ基、p-t-ブチルフェノキシ基、3-フルオロフェノキシ基、ペンタフルオロフェニル基、3-トリフルオロメチルフェノキシ基等の置換もしくは無置換のアリアルオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、t-ブチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、トリフルオロメチルチオ基等の置換もしくは無置換のアルキルチオ基、フェニルチオ基、p-ニトロフェニルチオ基、p-t-ブチル

フェニルチオ基、3-フルオロフェニルチオ基、ペンタフルオロフェニルチオ基、3-トリフルオロメチルフェニルチオ基等の置換もしくは無置換のアリールチオ基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、メチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等のモノ又はジ置換アミノ基、ビス(アセトキシメチル)アミノ基、ビス(アセトキシエチル)アミノ基、ビス(アセトキシプロピル)アミノ基、ビス(アセトキシブチル)アミノ基等のアシルアミノ基、水酸基、シロキシ基、アシル基、カルバモイル基、メチルカルバモイル基、ジメチルカルバモイル基、エチルカルバモイル基、ジエチルカルバモイル基、プロイピルカルバモイル基、ブチルカルバモイル基、フェニルカルバモイル基等の置換もしくは無置換のカルバモイル基、カルボン酸基、スルホン酸基、イミド基、シクロペンタン基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ピリジニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、インドリニル基、キノリニル基、アクリジニル基、ピロリジニル基、ジオキサニル基、ピペリジニル基、モルフォリジニル基、ピペラジニル基、カルバゾリル基、フラニル基、チオフェニル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、トリアゾリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基等の複素環基等がある。また、以上の置換基同士が結合してさらなる6員アリール環もしくは複素環を形成してもよい。

[0107] 有機EL素子の好ましい形態では、電子を輸送する領域又は陰極と有機層の界面領域に、還元性ドーパントを含有する。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元ができる物質と定義される。従って、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物又は希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の炭酸塩、アルカリ土類金属の炭酸塩、希土類金属の炭酸塩、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

[0108] また、具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、Na(仕事関数:2.36eV)、K(仕事関数:2.28eV)、Rb(仕事関数:2.16eV)及びCs(仕事関数:1.95eV)から

なる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、Ca(仕事関数:2.9eV)、Sr(仕事関数:2.0~2.5eV)、及びBa(仕事関数:2.52eV)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる。仕事関数が2.9eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCsからなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、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。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が2.9eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRbあるいはCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組み合わせることで、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0109] 陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けてもよい。このような層により、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。電子注入層が絶縁性薄膜であれば、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。

[0110] 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、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{Na}_2\text{Se}$ 及び $\text{Na}_2\text{O}$ 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、CsF、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、 $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{SrF}_2$ 、 $\text{MgF}_2$ 及び $\text{BeF}_2$ といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

- [0111] また、電子注入層を構成する半導体としては、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は、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。
- [0112] 陰極としては、仕事関数の小さい(例えば、4eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、セシウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、Al/Li<sub>2</sub>O、Al/LiO、Al/LiF、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属等が挙げられる。
- [0113] 陰極はこれらの電極物質から蒸着やスパッタリング等により作製できる。  
発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。また、陰極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、さらに、膜厚は通常10nm~1μm、好ましくは50~200nmである。
- [0114] 一般に、有機EL素子は、超薄膜に電界を印加するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一对の電極間に絶縁性の薄膜層を挿入してもよい。  
絶縁層に用いる材料としては、例えば、酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸化リチウム、弗化セシウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシウム、酸化カルシウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム等が挙げられる。これらの混合物や積層物を用いてもよい。
- [0115] 有機EL素子を作製する方法については、例えば上記の材料及び方法により、陽極から、必要な層を順次形成し、最後に陰極を形成すればよい。また、陰極から陽極へ、逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。
- [0116] 以下、透光性基板上に、陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例について説明する。  
まず、透光性基板上に、陽極材料からなる薄膜を蒸着法あるいはスパッタリング法

により形成し、陽極とする。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450°C、真空度 $10^{-7}$ ~ $10^{-3}$ Torr、蒸着速度0.01~50nm/秒、基板温度-50~300°Cで適宜選択することが好ましい。

[0117] 次に、正孔注入層上に発光層を設ける。発光層の形成も、真空蒸着法、スパッタリング、スピコート法、キャスト法等の方法により、発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層の形成と同様な条件範囲の中から選択することができる。

[0118] 次に、発光層上に電子注入層を設ける。この場合にも正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は正孔注入層、発光層と同様の条件範囲から選択することができる。

そして、最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は蒸着法、スパッタリングにより形成できる。下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

以上の有機EL素子の作製は、一回の真空引きで、一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

[0119] 有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。本発明の化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは本発明の化合物を溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

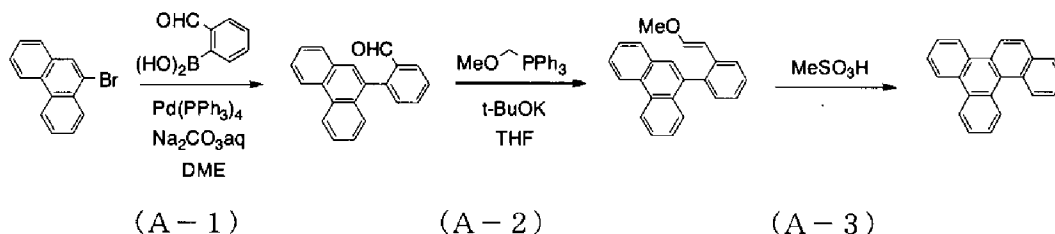
#### [実施例]

[0120] 以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

## 合成例1

下記の反応により、ベンゾ[g]クリセンを合成した。

[化34]



## [0121] (A-1) 9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレンの合成

アルゴン雰囲気下、9-ブロモフェナントレン25.7g、2-ホルミルフェニルボロン酸16.5g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)2.31gをフラスコに仕込み、ジメトキシエタン(DME)340mL、2M炭酸ナトリウム水溶液170mLを加え、8時間加熱還流撹拌した。室温まで冷却後、水層を除去した。有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、目的の9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレン25.0g(収率89%)を得た。

## [0122] (A-2) 9-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]フェナントレンの合成

アルゴン雰囲気下、9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレン25.0g、メトキシメチルトリフェニルホスホニウムクロリド33.4g、テトラヒドロフラン(THF)300mLを仕込み、室温にて撹拌中に、t-ブトキシカリウム11.9gを加えた。室温にて2時間撹拌した後、水200mLを加えた。反応溶液をジエチルエーテルで抽出し、水層を除去した。有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、目的の9-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]フェナントレン24.0g(収率87%)を得た。

## [0123] (A-3) ベンゾ[g]クリセンの合成

9-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]フェナントレン24.0g、ジクロロメタン100m

Lを仕込み、室温下攪拌中にメタンスルホン酸をパスツールピペットで6滴加えた。室温で8時間攪拌を続けた。反応終了後10%炭酸カリウム水溶液100mLを加えた。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、目的のベンゾ[g]クリセン5. 21g(収率25%)を得た。

[0124] 合成例2

ベンゾ[g]クリセンから、本発明の化合物の中間体となるベンゾ[g]クリセン-10-ボロン酸を合成した。

[0125] (B-1) 10-ブロモベンゾ[g]クリセンの合成

ベンゾ[g]クリセン5. 21g、N, N-ジメチルホルムアミド50mLをフラスコに仕込み、N-ブロモスクシンイミド4. 00gのN, N-ジメチルホルムアミド10mL溶液を加えた。80°Cで8時間加熱攪拌した。室温まで冷却後、反応溶液を水200mL中に注いだ。析出した固体を濾取し、水、メタノールで洗浄した。得られた個体をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、10-ブロモベンゾ[g]クリセン5. 87g(収率88%)を得た。

[0126] (B-2) ベンゾ[g]クリセン-10-ボロン酸の合成

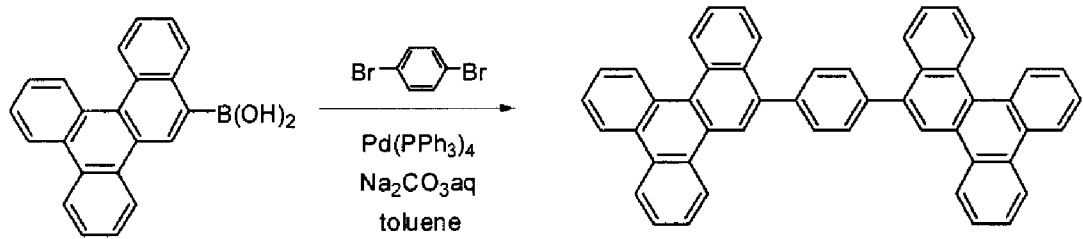
アルゴン雰囲気下、10-ブロモベンゾ[g]クリセン5. 87gをフラスコに仕込み、脱水エーテル200mL、脱水トルエン200mLを加えた。反応溶液を-40°Cまで冷却し、1. 6Mのn-ブチルリチウムのヘキサン溶液11mLを加え、0°Cまで昇温し、1時間攪拌した。反応溶液を-60°Cまで冷却し、ホウ酸トリイソプロピル7. 72gの脱水エーテル10mL溶液を滴下した。反応溶液を室温まで昇温しながら5時間攪拌を続けた。10%塩酸水溶液100mLを加え、1時間攪拌した。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。得られた固体をヘキサンで洗浄し、目的のベンゾ[g]クリセン-10-ボロン酸3. 18g(収率60%)を得た。

[0127] [縮合芳香環誘導体の合成]

実施例1

下記の反応により、下記化合物1を合成した。

[化35]



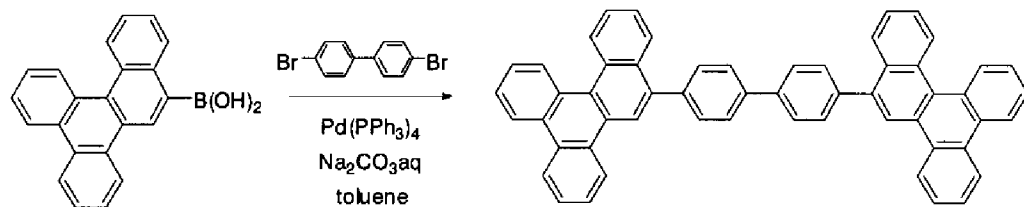
化合物 1

[0128] アルゴン雰囲気下、ベンゾ[g]クリセネン-10-ボロン酸7.72g、1,4-ジブロモベンゼン2.36g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)0.462g、トルエン80mL、2M炭酸ナトリウム水溶液40mLを仕込み、8時間還流撹拌をした。室温まで冷却後、反応溶液をトルエンで抽出した。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、白色結晶5.04gを得た。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量630.23に対し、 $m/z=630$ であった。

[0129] 実施例2

下記の反応により、下記化合物2を合成した。

[化36]



化合物 2

[0130] 実施例1において、1,4-ジブロモベンゼンの代わりに4,4'-ジブロモビフェニルを用いて、同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物

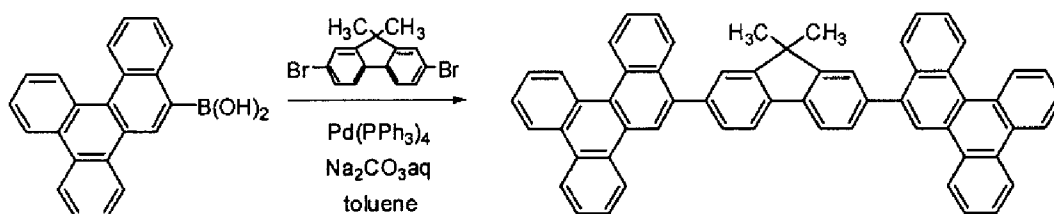


であり、分子量706.27に対し、 $m/z=706$ であった。

[0131] 実施例3

下記の反応により、下記化合物3を合成した。

[化37]



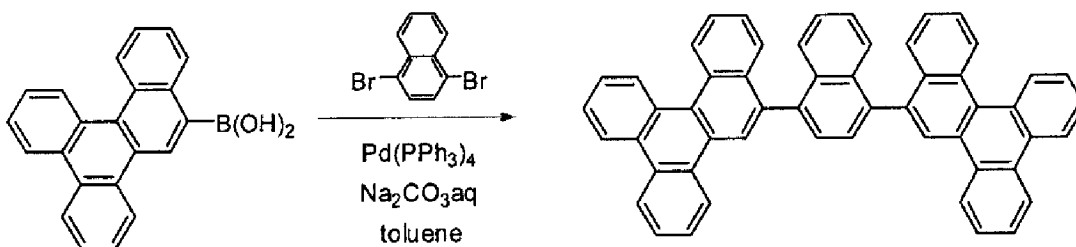
化合物3

[0132] 化合物1の合成において、1,4-ジブロモベンゼンの代わりに既知の方法で合成した2,7-ジブロモ-9,9-ジメチルフルオレンを用いて、同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量746.30に対し、 $m/z=746$ であった。

[0133] 実施例4

下記の反応により、下記化合物4を合成した。

[化38]



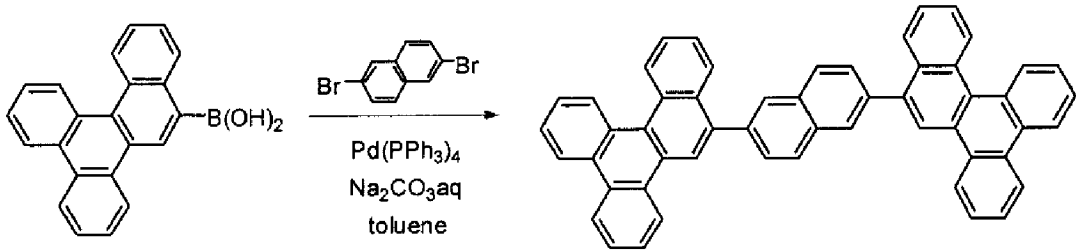
化合物4

[0134] 化合物1の合成において、1,4-ジブロモベンゼンの代わりに1,4-ジブロモナフタレンを用いて、同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量680.25に対し、 $m/z=680$ であった。

## [0135] 実施例5

下記の反応により、下記化合物5を合成した。

[化39]



化合物5

[0136] 実施例1の合成において、1,4-ジブロモベンゼンの代わりに、2,6-ジブロモナフタレンを用いて、同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量680.25に対し、 $m/z=680$ であった。

## [0137] ・有機EL素子の作製

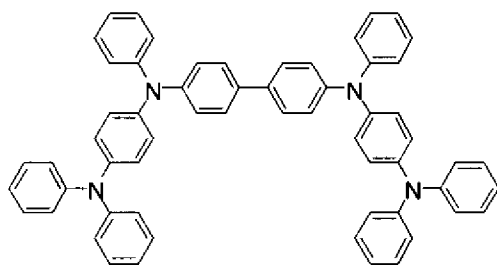
## 実施例6

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極(陽極)付きガラス基板(ジオマティック社製)をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚60nmの下記の化合物A-1を成膜した。A-1膜の成膜に続けて、このA-1膜上に膜厚20nmの下記の化合物A-2を成膜した。

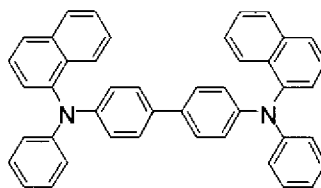
さらに、このA-2膜上に膜厚40nmで本発明の化合物1とスチリルアミン誘導体D-1を40:2の膜厚比で成膜し青色系発光層とした。

この膜上に電子輸送層として膜厚20nmで下記化合物Alqを蒸着により成膜した。この後、LiFを膜厚1nmで成膜した。このLiF膜上に金属Alを150nm蒸着させ金属陰極を形成し有機EL発光素子を形成した。

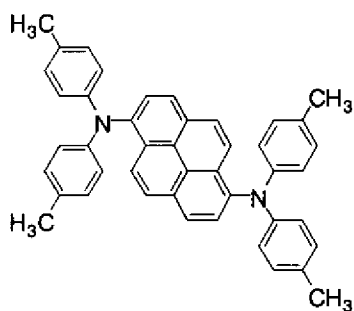
## [0138] [化40]



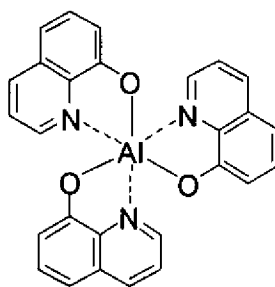
A-1



A-2



D-1



A1q

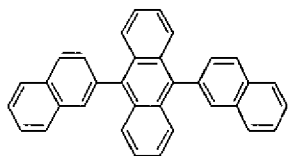
## [0139] 実施例7-10

化合物1の代わりに表1に示す化合物2-5を用いた他は、実施例6と同様にして有機EL素子を作製した。

## [0140] 比較例1

化合物1の代わりに下記化合物Bを用いた他は、実施例6と同様にして有機EL素子を作製した。

[化41]



(B)

[0141] 上記の各例で作製した有機EL素子の、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 駆動時の素子性能及び初期 $1000\text{cd}/\text{m}^2$ に対する半減寿命を測定した。結果を表1に示す。

尚、発光効率、素子に所定の電圧を印可し、その時の電流値を測定すると同時

に、輝度計(ミノルタ社製分光輝度放射計CS-1000)で発光輝度値を測定し算出した。

[0142] [表1]

	ホスト	ドーパント	電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	発光色	寿命 (時間)
実施例6	化合物1	D-1	6.5	6.5	青色	6000
実施例7	化合物2	D-1	6.6	6.5	青色	7000
実施例8	化合物3	D-1	6.5	6.3	青色	5500
実施例9	化合物4	D-1	6.7	6.7	青色	8000
実施例10	化合物5	D-1	6.7	6.7	青色	8000
比較例1	化合物B	D-1	7.0	6.0	青色	4000

[0143] 実施例11

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)を、イソプロピルアルコール中で5分間、超音波洗浄した後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして厚さ50nmの4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル膜(以下「NPD膜」と略記する。)を抵抗加熱蒸着により成膜した。このNPD膜は正孔注入・輸送層として機能する。

次に、NPD膜上に、化合物1を抵抗加熱蒸着により厚さ40nmで成膜した。同時に燐光性ドーパントとして、下記に示すPQIr(acac)を、発光層全体の5質量%となるように蒸着した。この膜は、燐光発光層として機能する。

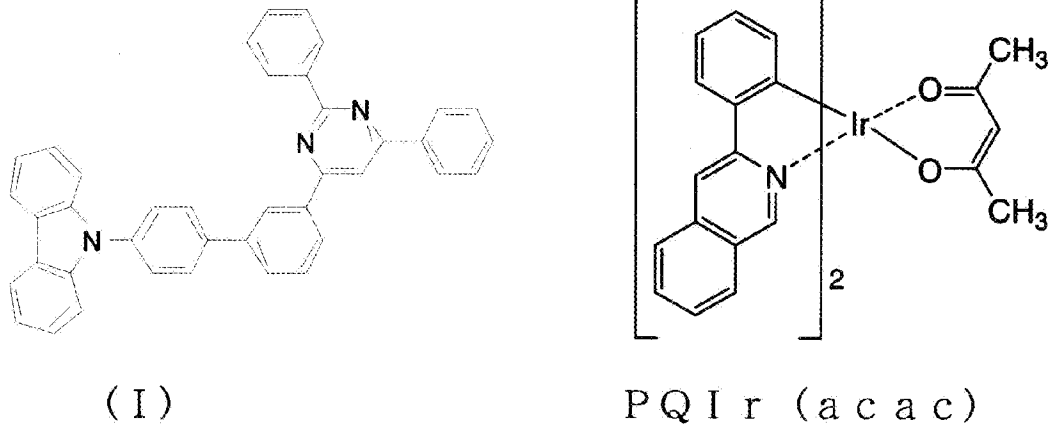
次に、この燐光発光層上に、下記化合物Iを、抵抗加熱蒸着により厚さ10nmになるように成膜した。この化合物Iの膜は正孔障壁層として機能する。

この膜上に膜厚30nmのトリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq3)錯体を成膜した。これは、電子輸送層として機能する。

この後、還元性ドーパントであるLi(Li源:サエスゲッター社製)とAlqを二元蒸着させ、電子注入層としてAlq:Li膜(膜厚0.5nm)を形成した。

このAlq:Li膜上に金属Alを蒸着させて金属陰極(膜厚150nm)を形成し、有機EL素子を形成した。

[化42]



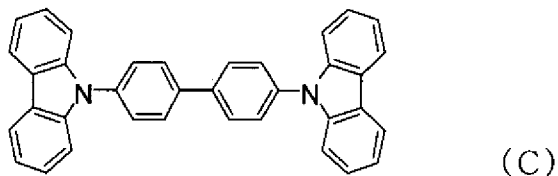
[0144] 実施例12-15

化合物1の代わりに表2に示す化合物2-5を用いた他は、実施例11と同様にして有機EL素子を作製した。

[0145] 比較例2

化合物1の代わりに下記化合物Cを用いた他は、実施例11と同様にして有機EL素子を作製した。

[化43]



[0146] 実施例11-15及び比較例2で作製した有機EL素子の、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 駆動時の素子性能及び初期 $1000\text{cd}/\text{m}^2$ に対する半減寿命を測定した。結果を表2に示す。

尚、EQE(外部量子効率)は発光スペクトルから算出される光子数と駆動時の電流

密度から求めることができる。

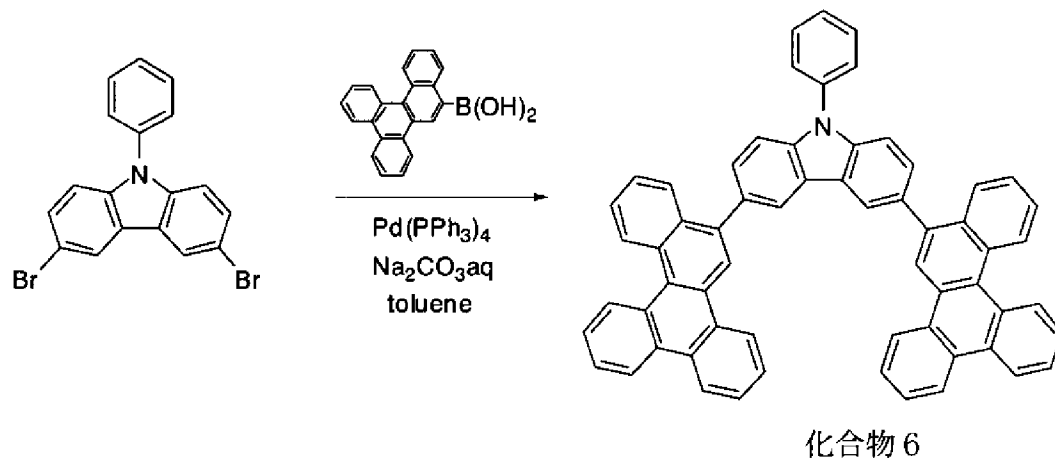
[0147] [表2]

	ホスト	ドーパント	素子性能 EQE (%)	寿命 (時間)
実施例 1 1	化合物 1	PQIr(acac)	18.3	30000
実施例 1 2	化合物 2	PQIr(acac)	18.4	30000
実施例 1 3	化合物 3	PQIr(acac)	18.4	25000
実施例 1 4	化合物 4	PQIr(acac)	18.3	30000
実施例 1 5	化合物 5	PQIr(acac)	18.3	30000
比較例 2	化合物 C	PQIr(acac)	18.2	3000

[0148] 実施例16

下記の反応により、下記化合物16を合成した。

[化44]



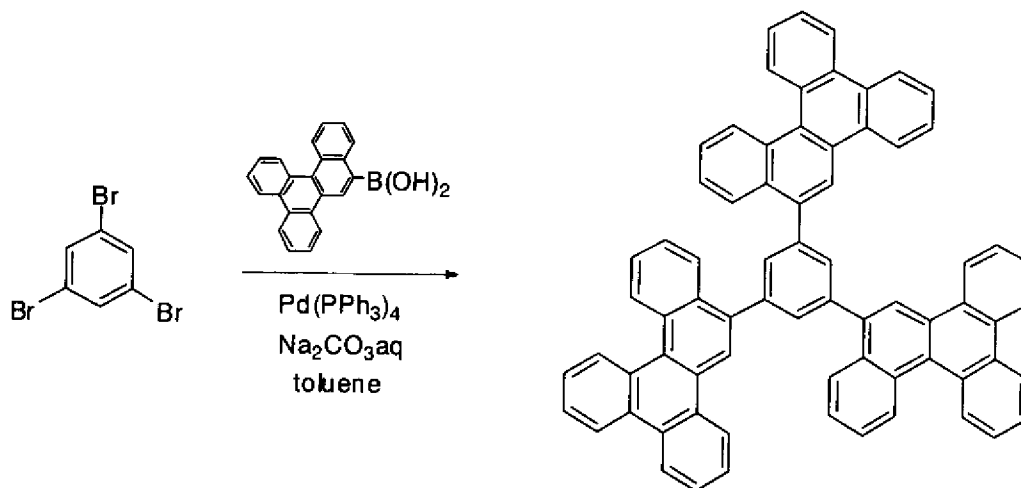
[0149] 化合物1の合成(実施例1)において、1,4-ジブロモベンゼンの代わりにN-フェニル-3,6-ジブロモカルバゾールを用いて、同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量795.29に対し、 $m/z=795$ であ

った。

[0150] 実施例17

下記の反応により、下記化合物7を合成した。

[化45]



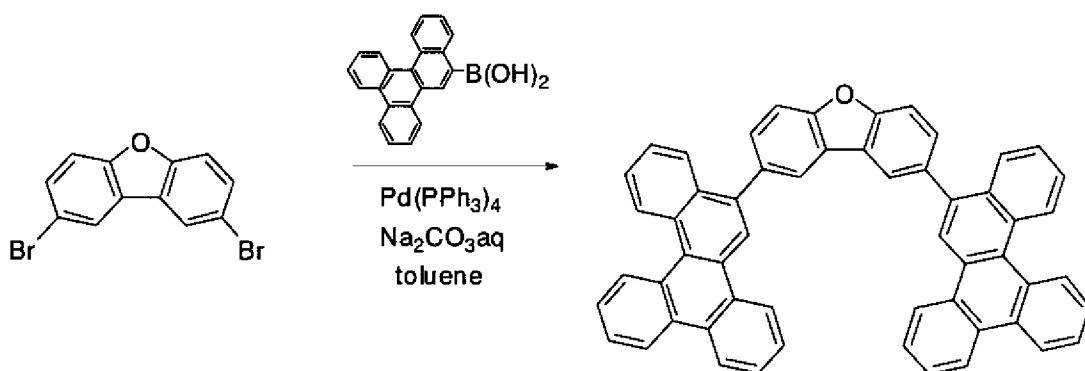
化合物7

[0151] アルゴン雰囲気下、ベンゾ[g]クリセー10-ボロン酸11.6g、1,4-ジブロモベンゼン2.36g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)0.693g、トルエン120mL、2M炭酸ナトリウム水溶液60mLを仕込み、8時間還流撹拌をした。室温まで冷却後、反応溶液をトルエンで抽出した。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、白色結晶5.54gを得た。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量906.33に対し、 $m/z=906$ であった。

[0152] 実施例18

下記の反応により、下記化合物8を合成した。

[化46]



化合物 8

[0153] 化合物1の合成(実施例1)において、1,4-ジブロモベンゼンの代わりに1,8-ジブロモジベンゾフランを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量720.25に対し、 $m/z=720$ であった。

[0154] 実施例19-21

化合物1の代わりに表3に示す実施例16-18で調製した化合物6-8を用いた他は、実施例11と同様にして有機EL素子を作製した。実施例19-21で作製した有機EL素子の、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 駆動時の素子性能及び初期 $1000\text{cd}/\text{m}^2$ に対する半減寿命を測定した。結果を表3に示す。

尚、EQE(外部量子効率)は発光スペクトルから算出される光子数と駆動時の電流密度から求めることができる。

[0155] [表3]

	ホスト	ドーパント	素子性能 EQE (%)	寿命 (時間)
実施例19	化合物6	PQIr(acac)	18.0	20000
実施例20	化合物7	PQIr(acac)	18.2	25000
実施例21	化合物8	PQIr(acac)	18.4	26000

### 産業上の利用可能性

[0156] 本発明の縮合芳香環誘導体は有機EL素子用材料、特に、発光材料として好適で



ある。

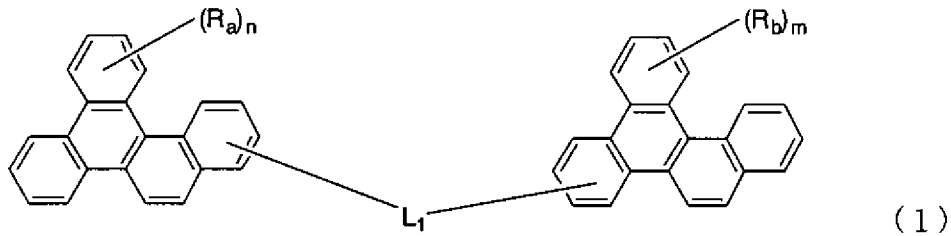
本発明の有機EL素子は、平面発光体やディスプレイのバックライト等の光源、携帯電話、PDA、カーナビゲーション、車のインパネ等の表示部、照明等に好適に使用できる。

この明細書に記載の文献内容をここに援用する。

## 請求の範囲

[1] 下記式(1)で表される縮合芳香環誘導体。

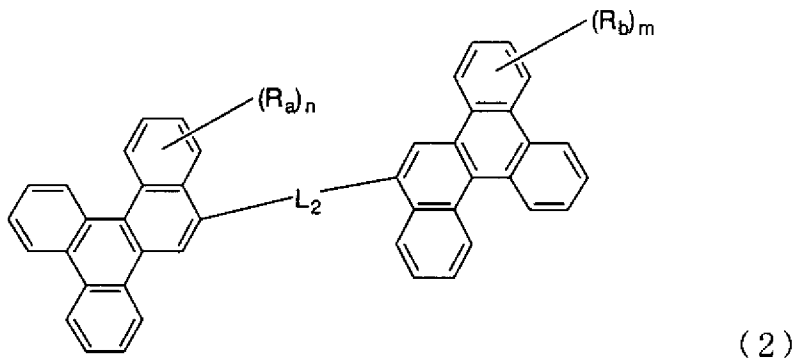
[化47]



(式(1)において、 $R_a$  及び  $R_b$  は、それぞれ水素原子又は置換基を表し、 $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。 $m$ 、 $n$ が2以上の場合、 $R_a$ 、 $R_b$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。 $L_1$ は単結合、又は置換もしくは無置換の2価の連結基を表す。ただし、式(1)の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を有しない。)

[2] 下記式(2)で表される請求項1に記載の縮合芳香環誘導体。

[化48]



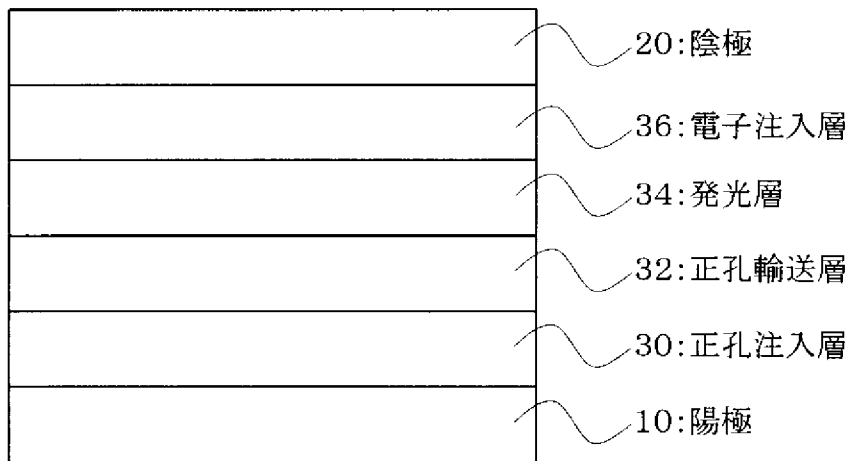
(式(2)において、 $R_a$ 、 $R_b$ は、それぞれ水素原子又は置換基を表し、 $m$ 、 $n$ はそれぞれ独立に1~13の整数を表す。 $m$ 、 $n$ が2以上の場合、 $R_a$ 、 $R_b$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。 $L_2$ は単結合又は、置換もしくは無置換の2価の連結基を表す。ただし、式(2)の縮合芳香環誘導体はアントラセン環を有しない。)

[3]  $L_1$  又は  $L_2$  が、置換もしくは無置換の核炭素数6~50のアリーレン基である請求項1

又は2に記載の縮合芳香環誘導体。

- [4] 請求項1～3のいずれか一項に記載の縮合芳香環誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。
- [5] 発光材料である請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス用発光材料。
- [6] 陽極及び陰極と、  
前記陽極及び陰極の間に挟持されている、発光層を含む1以上の有機薄膜層を有し、  
前記有機薄膜層の少なくとも一層が、請求項1～3のいずれか記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [7] 前記発光層が、前記縮合芳香族環誘導体を含有する請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [8] 前記発光層が、前記縮合芳香環誘導体をホスト材料として含有する請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [9] 前記発光層が、さらに蛍光性ドーパント及び燐光性ドーパントの少なくとも一方を含有する請求項6～8のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [10] 前記蛍光性ドーパントが、アリアルアミン化合物である請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [11] 前記蛍光性ドーパントが、スチリルアミン化合物である請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [12] 前記燐光性ドーパントが金属錯体化合物である請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/070430

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07C15/20(2006.01) i, C07D209/86(2006.01) i, C07D307/91(2006.01) i,  
C09K11/06(2006.01) i, H01L51/50(2006.01) i

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

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07C15/20, C07D209/86, C07D307/91, 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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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

WPI, CAplus (STN), REGISTRY (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-52323 A (Sony Corp.), 23 February, 2006 (23.02.06), Claims 1 to 7 (Family: none)	1-12
A	JP 2006-52324 A (Sony Corp.), 23 February, 2006 (23.02.06), Claims 1 to 9 (Family: none)	1-12
A	WO 2007/126112 A1 (CANON KABUSHIKI KAISHA), 08 November, 2007 (08.11.07), Claims 1 to 8; pages 19 to 24 & JP 2007-314510 A	1-12

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  
21 November, 2008 (21.11.08)

Date of mailing of the international search report  
02 December, 2008 (02.12.08)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/070430

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 2003-347058 A (Eastman Kodak Co.), 05 December, 2003 (05.12.03), Claims; Par. Nos. [0024], [0030], [0032] & US 2004/0076853 A1 & EP 1359790 A2 & CN 1453886 A	1-12
A	JP 2002-231450 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 August, 2002 (16.08.02), Claims; Par. No. [0068] (Family: none)	1-12
A	SELIGER, H.H. et al, Chemical production of excited states. Chemiluminescence of carcinogenic hydrocarbons accompanying their metabolic hydroxylation and a proposal for common active site geometries for hydroxylation, Journal of Physical Chemistry, 1976, Vol.80, No.20, p.2296-306	1-12
P,A	JP 2008-255099 A (Canon Inc.), 23 October, 2008 (23.10.08), Claims 1 to 8 & US 2008/0224603 A1	1-12

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C07C15/20(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)i, C07D307/91(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C07C15/20, C07D209/86, C07D307/91, 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	1971-2008年
日本国実用新案登録公報	1996-2008年
日本国登録実用新案公報	1994-2008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)

WPI, CAplus(STN), 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 請求の範囲の番号
A	JP 2006-52323 A (ソニー株式会社) 2006.02.23, 請求項1~7 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 2006-52324 A (ソニー株式会社) 2006.02.23, 請求項1~9 (ファミリーなし)	1-12
A	WO 2007/126112 A1 (CANON KABUSHIKI KAISHA) 2007.11.08, claim1-8, p.19-24 & JP 2007-314510 A	1-12
A	JP 2003-347058 A (イーストマン コダック カンパニー) 2003.12.05, 特許請求の範囲、[0024],[0030],[0032] & US 2004/0076853 A1 & EP 1359790 A2 & CN 1453886 A	1-12

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

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

国際調査を完了した日

21.11.2008

国際調査報告の発送日

02.12.2008

国際調査機関の名称及びあて先  
 日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)	4V	3971
宮田 和彦		
電話番号 03-3581-1101 内線 3483		

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 請求の範囲の番号
A	JP 2002-231450 A (出光興産株式会社) 2002. 08. 16, 特許請求の範囲、[0068] (ファミリーなし)	1 - 1 2
A	SELIGER, H.H. et al, Chemical production of excited states. Chemiluminescence of carcinogenic hydrocarbons accompanying their metabolic hydroxylation and a proposal for common active site geometries for hydroxylation, Journal of Physical Chemistry, 1976, Vol. 80, No. 20, p. 2296-306	1 - 1 2
P A	JP 2008-255099 A (キャノン株式会社) 2008. 10. 23, 請求項 1 ~ 8 & US 2008/0224603 A1	1 - 1 2