

(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
2012年2月2日(02.02.2012)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/014841 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) C07D 405/04 (2006.01)
C07D 209/86 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/066852
- (22) 国際出願日: 2011年7月25日(25.07.2011)
- (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 2010-167319 2010年7月26日(26.07.2010) JP
- (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 (米国についてののみ): 西村 和樹 (NISHIMURA Kazuki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 伊藤 光則 (ITO Mitsunori) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 日比野 茎子

(HIBINO Kumiko) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 吉田 圭 (YOSHIDA Kei) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).

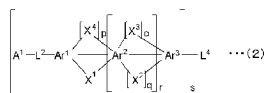
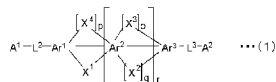
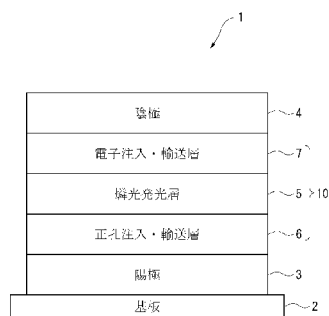
- (74) 代理人: 特許業務法人樹之下知の財産事務所 (KINOSHITA & ASSOCIATES); 〒1670051 東京都杉並区荻窪五丁目26番13号 荻窪T Mビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, 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, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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,

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子

[図1]



(57) Abstract: Provided is an organic electroluminescence element comprising a positive pole, a negative pole, and an organic thin film layer disposed between the positive pole and the negative pole, wherein the organic thin film layer comprises a light-emitting layer that contains at least a first host, a second host, and a dopant that is light-emitting. The first host is a compound in which the same molecule contains at least one carbazolyl group and at least one nitrogen-containing heterocyclic group, and the second host is a compound represented by formula (1) or (2).

(57) 要約: 陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機薄膜層は、少なくとも第1のホストと、第2のホストと、発光を示すドーパントと、を含む発光層を備え、前記第1のホストは、同一分子内に1個以上のカルバゾリル基と1個以上の含窒素複素環基を有する化合物であり、前記第2のホストは、下記式(1)または(2)で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 2 Substrate
3 Positive pole
4 Negative pole
5 Phosphorescent light-emitting layer
6 Hole-injecting/transporting layer
7 Electron-injecting/transporting layer



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
(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, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機ＥＬ素子」と略記する場合がある。）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蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のＣ．Ｗ．Ｔ a n g らによる積層型素子による低電圧駆動有機ＥＬ素子の報告がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機ＥＬ素子に関する研究が盛んに行われている。

また、有機ＥＬ素子の発光層に有機燐光材料を利用する、燐光型有機ＥＬ素子が提案されている。この燐光型有機ＥＬ素子は、有機燐光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用することにより、高い発光効率が達成される。有機ＥＬ素子内で電子と正孔とが再結合する際には、スピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが１：３の割合で生成すると考えられているので、燐光性の発光材料を用いれば、蛍光性材料のみを使用した素子の３～４倍の発光効率の達成が考えられる。

[0003] そして、燐光性の発光材料を用いた有機ＥＬ素子の発光効率や素子寿命を向上させるために様々な検討がなされている。

そのような検討の内の一つとして、発光層内に複数の材料を混合させた構成の有機ＥＬ素子が挙げられる（例えば、特許文献１～１０）。

[0004] 特許文献１には、正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、電子輸送材料からなる電子輸送領域とを含み、かつ、前記正孔輸送領域と前記電子輸送領域との間に、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料の両方と燐光性発光材料を含む混合領域が設けられた有機ＥＬ素子が開示されている。

特許文献 2 及び特許文献 3 には、同一の発光層に 2 種類以上のホスト材料を含有する有機 EL 素子が開示されている。

特許文献 4 には、第一ホスト材料の I_p 値（イオン化ポテンシャル）が第二ホスト材料の I_p 値より大きく、かつ第一ホスト材料のホール移動度が第二ホスト材料のホール移動度より大きい材料を組み合わせ、同一発光層内に使用する有機 EL 素子が開示されている。

[0005] 特許文献 5 には、正孔輸送材料である第一ホスト化合物と燐光性の金属錯体である第二ホスト化合物が同一発光層内に含まれる有機 EL 素子が開示されている。

特許文献 6 には、正孔輸送性を有する化合物と電子輸送性を有する化合物をそれぞれ同一の発光層内に使用する有機 EL 素子が開示されている。

特許文献 7 には、同一の発光層内に少なくとも 2 種の正孔輸送性材料を含有し、さらに電子輸送性ホスト材料を含有する有機 EL 素子が開示されている。特許文献 8 には、同一の発光層内に少なくとも 2 種の電子輸送性材料を含有し、さらに正孔輸送性ホスト材料を含有する有機 EL 素子が開示されている。

特許文献 9 には、電子注入性化合物と正孔注入性化合物をホスト材料としてそれぞれ一つ以上同一の発光層内に使用する有機 EL 素子が開示されている。

特許文献 10 には、同一の発光層内に正孔輸送性化合物とアルミニウム錯体化合物を含有する有機 EL 素子が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献 1：特開 2002-305085 号公報

特許文献 2：特開 2007-110102 号公報

特許文献 3：特開 2007-134677 号公報

特許文献 4：特開 2008-227462 号公報

特許文献 5：特開 2008-288344 号公報

特許文献6：特開2009-152578号公報

特許文献7：特開2009-32987号公報

特許文献8：特開2009-32989号公報

特許文献9：特開2010-34573号公報

特許文献10：特表2008-514002号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、特許文献1に記載の発明は、発光層に用いる材料が正孔輸送領域及び電子輸送領域に用いる材料に限定されるため、最適な性能を示すホスト材料を選択することができず、効率・駆動電圧・寿命の点で限界がある。また、発光材料が赤色に限定されており、緑色発光への適用可否は全く不明である。

また特許文献2および3に記載の発明は、発光層に隣接して発光材料を有さないホスト材料のみの層を有することが必須となっている。このことは、素子作成時の蒸着工程が増えることになり、製造装置の複雑化に繋がる懸念がある。

特許文献4に開示されているホスト材料の組み合わせは、電子注入性及び電子輸送性に優れた骨格を有する化合物の組合せではない。

特許文献5に記載の発明では、正孔輸送材料としてアミン構造を有する化合物を用いており、電子耐久性に問題があると考えられる。また、赤色発光のみしか開示が無く、緑色発光における効果は不明である。

[0008] 特許文献6に記載の発明では、燐光性発光材料として使用する有機金属錯体の配位子がキノキサリン骨格に限定されているため赤色発光のみであり、適用範囲が狭い。

特許文献7および特許文献8に記載の発明では、前記の2種の正孔輸送性材料または電子輸送材料の合計濃度が陽極側から陰極側に向かって減少していることが必須である。このことは、素子製造装置の複雑化に繋がるため、製造した素子の性能が不安定になる懸念がある。

特許文献 9 に開示されているホスト材料の組み合わせは、電子注入性及び電子輸送性に優れた骨格を有する化合物の組合せではない。

特許文献 10 に記載の発明では、電子移動度が小さいアルミニウム錯体化合物を使用しているため、駆動電圧が非常に高い。

[0009] 本発明の目的は、緑色発光が可能であり、高効率かつ長寿命の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。

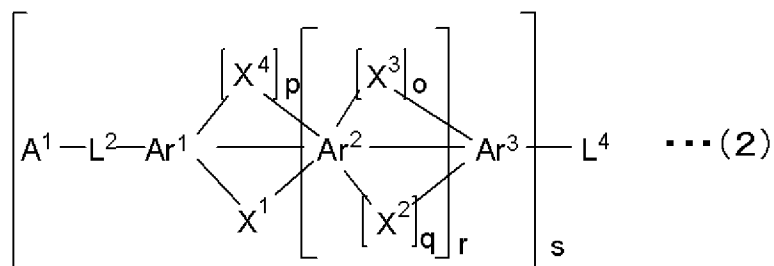
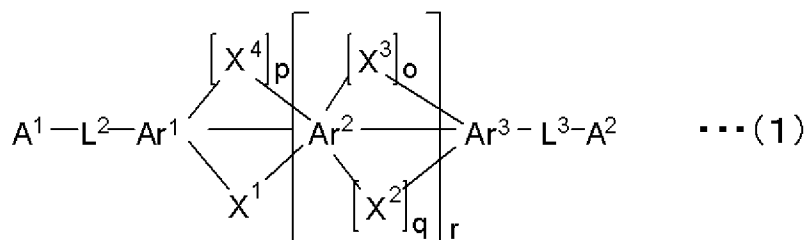
課題を解決するための手段

[0010] 本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子において、有機薄膜層は、少なくとも第 1 のホストと、第 2 のホストと、発光を示すドーパントと、を含む発光層を備え、第 1 のホストと第 2 のホストとが、それぞれ特定の化合物である場合、前記目的を達成できることを見出し、本発明を完成させたものである。

[0011] すなわち、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機薄膜層は、少なくとも第 1 のホストと、第 2 のホストと、発光を示すドーパントと、を含む発光層を備え、前記第 1 のホストは、同一分子内に 1 個以上のカルバゾリル基と 1 個以上の含窒素複素環基を有する化合物であり、前記第 2 のホストは、下記式（1）または（2）で表される化合物であることを特徴とする。ただし、第 1 のホストと第 2 のホストの配合割合は問わない。なお、本明細書中、「水素」という場合、重水素も含むものである。

[0012]

[化1]



[0013] [前記式(1)および(2)において、 Ar^1 、 Ar^2 および Ar^3 は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6の芳香族炭化水素基、

または置換もしくは無置換の環形成原子数6の芳香族複素環基を表す。

但し、 Ar^1 、 Ar^2 および Ar^3 は置換基 Y を一個または複数個有していてもよく、複数個の場合はそれぞれ異なってもよい。

Y は炭素数1～20のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、

炭素数1～20のアルコキシ基、

炭素数7～24のアラルキル基、

シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数3～24の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(1)および(2)において、 X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 は、それぞれ独立に、酸素(O)、硫黄(S)、 $N-R^1$ または CR^2R^3 を表す。

前記 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、

炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、
炭素数 7 ～ 24 のアラルキル基、
シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合
芳香族炭化水素基、

または置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 24 の芳香族複素環基又は
縮合芳香族複素環基を表す。

但し、 X^1 と X^2 が共に $N-R^1$ で o 、 p が0、 q が1の場合、
または、 X^1 と X^3 が共に $N-R^1$ で p 、 q が0、 o が1の場合は、
 R^1 の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8 ～ 24 である
1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 o 、 p および q は0または1を表す。 s
は1、2、3又は4を表し、それぞれ L^4 を連結基とした1量体、2量体、3
量体、4量体である。

r は1、2、3または4を表す。

式 (1) および (2) において、 L^2 は単結合、
炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の2 価の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の2 価の芳香族炭化水素基又
は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の1 価あるいは2 価の
芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) において、 L^3 は単結合、
炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の2 価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (2) において、 L^4 は、 s が 2 の場合、

単結合、

炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基、

2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の 2 価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

s が 3 の場合、

炭素数 1 ～ 20 の 3 価の飽和炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 の 3 価の環状飽和炭化水素基、

3 価のシリル基もしくは炭素数 1 ～ 20 の 3 価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 3 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

s が 4 の場合、

炭素数 1 ～ 20 の 4 価の飽和炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、

ケイ素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基又

は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくはは無置換の 4 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 A^1 は、

水素原子、

置換もしくはは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、

シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、

置換もしくはは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくはは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) において、 A^2 は、

水素原子、

置換もしくはは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、

シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、

置換もしくはは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくはは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。]

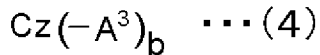
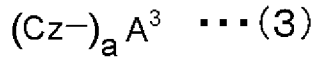
[0014] 本発明では、前記式 (1) および (2) の X^1 と X^4 のうち一方もしくは、 X^2 と X^3 のうち一方が酸素原子であり、前記式 (1) および (2) で表される化合物が分子内にジベンゾフラン構造を有する化合物であることが好ましい。

さらに本発明では、前記式 (1) および (2) の X^1 と X^4 のうち一方と、 X^2 と X^3 のうち一方が共に酸素原子であり、前記式 (1) および (2) で表される化合物がベンゾフラノジベンゾフラン構造を有する化合物であることが好ましい。

[0015] また、本発明では、前記第 1 のホストは、下記式 (3) から (5) のいずれ

れかで表されることが好ましい。

[0016] [化2]

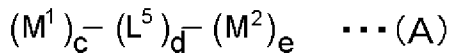


[式(3)および(4)において、Czは、置換もしくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基を表す。

A³は、下記一般式(A)で表される基である。

a、bは、それぞれ1～3の整数である。]

[0017] [化3]

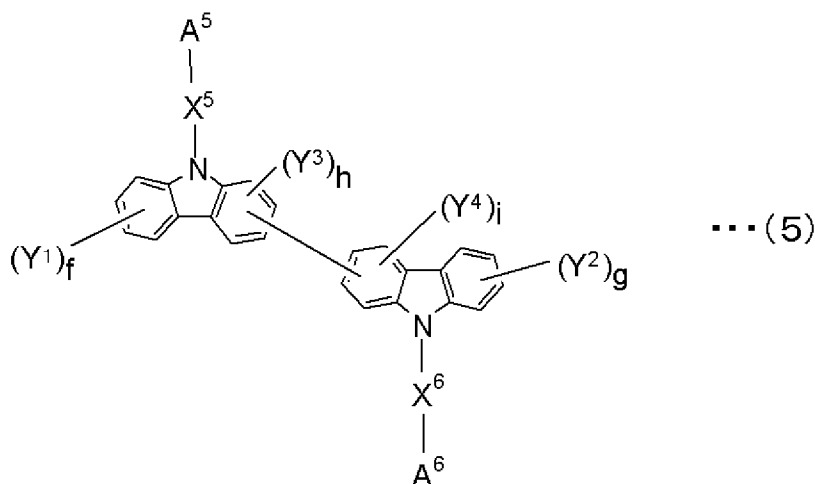


(前記式(A)において、M¹及びM²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数2～40の窒素含有芳香族複素環又は窒素含有縮合芳香族複素環であり、同一でも異なってもよい。

L⁵は、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～30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炭素数5～30のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数2～30の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

cは0～2、dは1～2、eは0～2の整数である。ただし、c+eは1以上である。)

[0018] [化4]



[0019] [前記式 (5) において、 A^5 は、環形成炭素数 1～30 の置換又は無置換の含窒素複素環基(ただし、置換もしくは無置換のカルバゾリル基および置換もしくは無置換のインドリル基を除く)を表す。

A^6 は、環形成炭素数 6～30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は環形成炭素数 1～30 の置換もしくは無置換の含窒素複素環基を表す。 X^5 、 X^6 は、連結基であり、互いに独立して、単結合、

環形成炭素数 6～30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基

環形成炭素数 6～30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素基、

環形成炭素数 2～30 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基、又は、

環形成炭素数 2～30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族複素環基を表す。

$Y^1 \sim Y^4$ は、互いに独立して、

水素原子、フッ素原子、シアノ基、

炭素数 1～20 の置換もしくは無置換のアルキル基、

炭素数 1～20 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、

炭素数 1～20 の置換もしくは無置換のハロアルキル基、

炭素数 1～20 の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、

炭素数 1～10 の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、

炭素数 6～30 の置換もしくは無置換のアリールシリル基、

環形成炭素数 6～30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、

環形成炭素数 6～30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素基、

環形成炭素数 2～30 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基、又は、

環形成炭素数 2～30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族複素環基を表す。

なお、隣接する $Y^1 \sim Y^4$ 同士が互いに結合を形成し、環構造を形成しても良い。

f 、 g は 1～4 の整数を表し、 h 、 i は 1～3 の整数を表す。

なお、 f 、 g が 2～4 の整数、 h 、 i が 2～3 の整数の場合、複数の $Y^1 \sim Y^4$ はそれぞれ同一でも異なっても良い。]

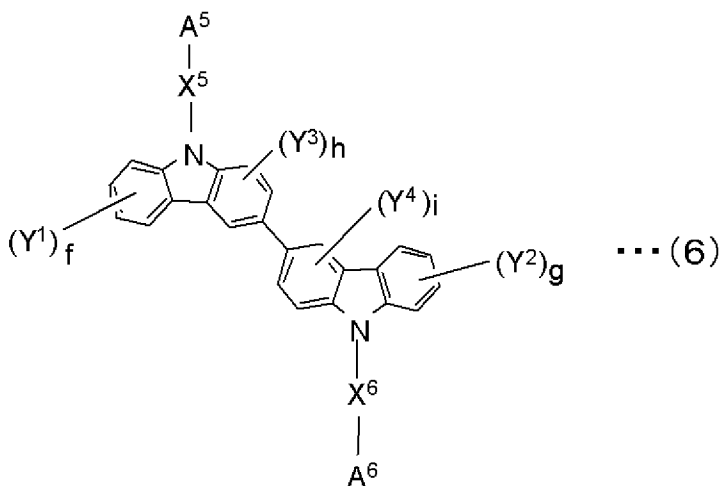
[0020] さらに本発明では、前記式（３）および前記式（４）の C_z が、置換もしくは無置換のアリールカルバゾリル基であることが好ましい。

さらに本発明では、 C_z が置換もしくは無置換のフェニルカルバゾリル基であることが好ましい。

さらに本発明では、アリールカルバゾリル基のアリール部位がカルバゾリル基で置換されていることが好ましい。

また、本発明では、前記式（５）が下記式（６）で表されることが好ましい。

[0021] [化5]



[0022] [式（６）において、 A^5 、 A^6 、 X^5 、 X^6 、 $Y^1 \sim Y^4$ 、 f 、 g 、 h 、 i は前記式（５）と同義である。]

[0023] さらに本発明では、 A^5 が置換または無置換のピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環からなる群から選ばれる基であることが好ましい。

特に好ましくは、 A^5 が置換または無置換のピリミジン環基である。

[0024] また、本発明では、前記発光層が、前記ドーパントとして燐光材料を含有することが好ましい。

さらに本発明では、前記燐光材料がイリジウム（Ir）、オスミウム（Os）、白金（Pt）から選択される金属原子のオルトメタル化錯体であることが好ましい。

さらに本発明では、前記陰極と前記発光層の間に電子注入層を有し、該電

子注入層が含窒素環誘導体を含むことが好ましい。

また本発明では、前記陰極と前記有機薄膜層との界面に還元性ドーパントを添加されてなることが好ましい。

[0025] 本発明によれば、緑色発光が可能であり、高効率かつ長寿命の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1]本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の概略構成を示す図である。

発明を実施するための形態

[0027] 以下、本発明について具体的に説明する。

(有機EL素子の構成)

まず、有機EL素子の素子構成について説明する。

有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (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・輸送層／陰極
- (4) 陽極／正孔注入層／発光層／電子注入・輸送層／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・輸送層／発光層／電子注入・輸送層／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・輸送層／発光層／絶縁層／陰極
- (13) 陽極／絶縁層／正孔注入・輸送層／発光層／電子注入・輸送層／陰極

極

などの構造を挙げることができる。

上記の中で（８）の構成が好ましく用いられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

[0028] 図１に、本発明の実施形態における有機ＥＬ素子の一例の概略構成を示す。

有機ＥＬ素子１は、透明な基板２と、陽極３と、陰極４と、陽極３と陰極４との間に配置された有機薄膜層１０と、を有する。

有機薄膜層１０は、ホスト材料としての燐光ホスト及び燐光材料としての燐光ドーパントを含む燐光発光層５を有するが、燐光発光層５と陽極３との間に正孔注入・輸送層６等、燐光発光層５と陰極４との間に電子注入・輸送層７等を備えていてもよい。

また、燐光発光層５の陽極３側に電子障壁層を、燐光発光層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、電子や正孔を燐光発光層５に閉じ込めて、燐光発光層５における励起子の生成確率を高めることができる。

[0029] なお、本明細書において、蛍光ホスト及び燐光ホストの用語は、蛍光ドーパントと組み合わせられたときには蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたときには燐光ホストと称するものであり、分子構造のみから一義的に蛍光ホストや燐光ホストに限定的に区分されるものではない。

言い換えると、本明細書において、蛍光ホストとは、蛍光ドーパントを含有する蛍光発光層を構成する材料を意味し、蛍光発光材料のホストにしか利用できないものを意味しているわけではない。

同様に燐光ホストとは、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、燐光材料のホストにしか利用できないものを意味しているわけではない。

[0030] また、本明細書中で「正孔注入・輸送層」は「正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくともいずれか一方」を意味し、「電子注入・輸送層」は「電子注入層及び電子輸送層のうちの少なくともいずれか一方」を意味する。

[0031] （透光性基板）

本発明の有機EL素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機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ができる。

[0032] (陽極及び陰極)

有機EL素子の陽極は、正孔を正孔注入層、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(NE SA)、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。

本実施形態のように、発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10nm～1μm、好ましくは10nm～200nmの範囲で選択される。

[0033] 陰極としては、電子注入層、電子輸送層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。

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

ム合金、アルミニウムーリチウム合金、アルミニウムースカンジウムーリチウム合金、マグネシウムー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、陰極側から、発光を取り出す態様を採用することもできる。

[0034] (発光層)

有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。

すなわち、

(1) 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、

(2) 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、

(3) 発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、
がある。

[0035] ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよい。

この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。

[0036] 発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。

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

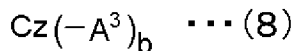
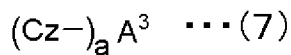
また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

[0037] 本発明の有機EL素子は陰極と陽極との間に、1層または複数層からなる有機薄膜層を備え、該有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、発光層が、燐光材料少なくとも1種と、後述の第1のホストと、第2のホストとを含む。

[0038] (第1のホスト)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、第1のホストとして、下記式(7)から(9)のいずれかで表される化合物を含む。

[0039] [化6]

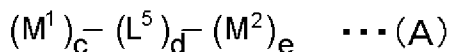


[0040] 前記式(7)および(8)において、Czは、置換もしくは無置換のアリールカルバゾリル基又はカルバゾリルアリール基を表す。

A³は、下記一般式(A)で表される基である。

a、bは、それぞれ1～3の整数である。

[0041] [化7]



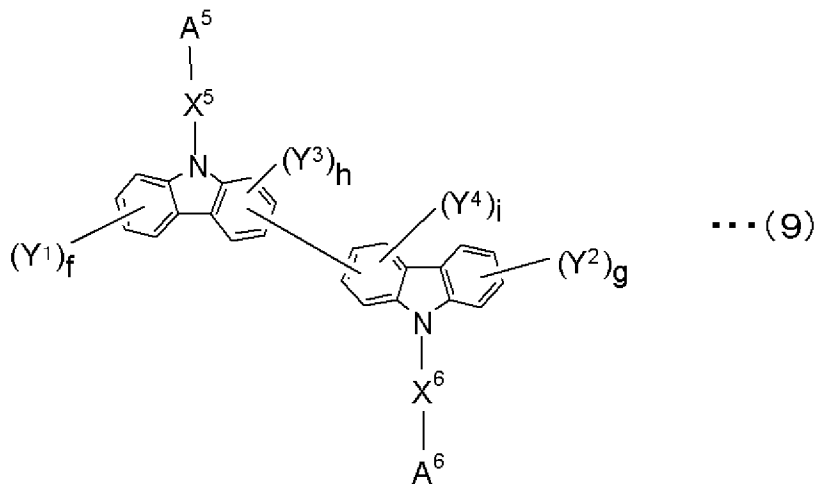
[0042] 前記式(A)において、M¹及びM²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数2～40の窒素含有芳香族複素環又は窒素含有縮合芳香族複素環であり、同一でも異なってもよい。

L⁵は、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～30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炭素数5～30のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数2～30の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

cは0～2、dは1～2、eは0～2の整数である。ただし、c+eは1以上である。

[0043]

[化8]



[0044] 前記式(9)において、 A^5 は、環形成炭素数1～30の置換又は無置換の含窒素複素環基(ただし、置換もしくは無置換のカルバゾリル基および置換もしくは無置換のインドリル基を除く)を表す。

A^6 は、環形成炭素数6～30の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は環形成炭素数1～30の置換もしくは無置換の含窒素複素環基を表す。 X^5 、 X^6 は、連結基であり、互いに独立して、単結合、

環形成炭素数6～30の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基

環形成炭素数6～30の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素基、

環形成炭素数2～30の置換もしくは無置換の芳香族複素環基、又は、

環形成炭素数2～30の置換もしくは無置換の縮合芳香族複素環基を表す。

$Y^1 \sim Y^4$ は、互いに独立して、

水素原子、フッ素原子、シアノ基、

炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルキル基、

炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルコキシ基、

炭素数1～20の置換もしくは無置換のハロアルキル基、

炭素数1～20の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、

炭素数1～10の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、

炭素数6～30の置換もしくは無置換のアリールシリル基、

環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、
 環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素基、
 環形成炭素数 2 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基、又は、
 環形成炭素数 2 ～ 30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族複素環基を表す。
 なお、隣接する $Y^1 \sim Y^4$ 同士が互いに結合を形成し、環構造を形成しても良い。

f , g は 1 ～ 4 の整数を表し、 h , i は 1 ～ 3 の整数を表す。

なお、 f , g が 2 ～ 4 の整数、 h , i が 2 ～ 3 の整数の場合、複数の $Y^1 \sim Y^4$ はそれぞれ同一でも異なっても良い。

[0045] 以下、前記式 (7) ～ (9) で表される化合物について詳細に説明する。

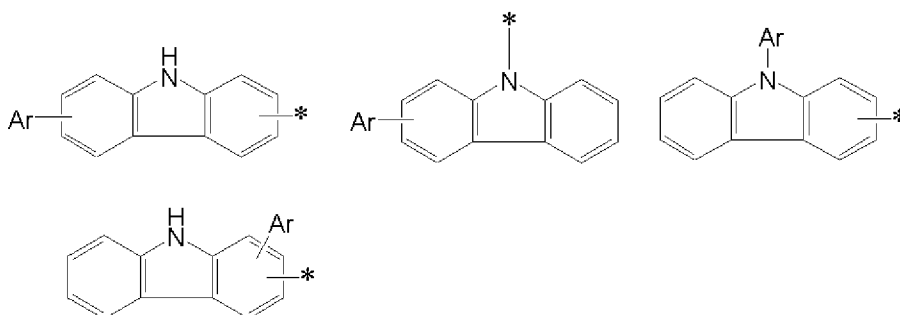
[0046] (式 (7) および (8) で表される化合物について)

C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾリル基又は置換もしくは無置換のカルバゾリルアリール基である。

アリールカルバゾリル基とは、置換基として少なくとも 1 つのアリール基又はヘテロアリール基を有するカルバゾリル基をいい、アリール基又はヘテロアリール基が置換されている位置は問わない。

具体的には、例えば以下のものが挙げられる。以下の化学式中、 Ar はアリール基又はヘテロアリール基を表し、* は他の基が結合する位置を表す。

[0047] [化9]

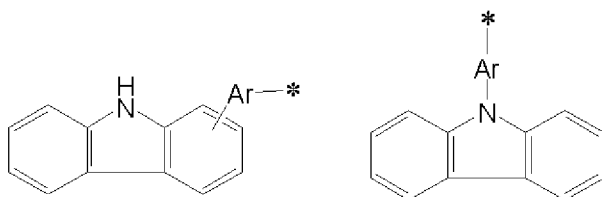


[0048] また、カルバゾリルアリール基とは、置換基として少なくとも 1 つのカルバゾリル基を有するアリール基をいい、アリール基が置換されている位置は問わない。

具体的には、例えば、以下のものが挙げられる。以下の化学式中、 Ar は

アリール基を表し、*は他の基が結合する位置を表す。

[0049] [化10]



[0050] さらに、置換のアリールカルバゾリル基とは、前記アリールカルバゾリル基が少なくとも1つの置換基を置換位置を問わず有するものをいい、置換のカルバゾリルアリール基とは、前記カルバゾリルアリール基が、少なくとも1つの置換基を置換位置を問わず有するものをいう。

[0051] 前記式(7)および(8)において、a及びbは、それぞれ1～3の整数である。

アリールカルバゾリル基又はカルバゾリルアリール基におけるアリール基は、炭素数6～30であると好ましく、例えば、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、ピレニル基、フルオレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基等が挙げられ、これらのうち、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基が好ましい。

また、アリールカルバゾリル基におけるヘテロアリール基は、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、アジリジン、アザインドリジン、インドリジン、イミダゾール、インドール、イソインドール、インダゾール、プリン、プテリジン、 β -カルボリン、ナフチリジン、キノキサリン、ターピリジン、ビピリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、イミダゾピリジン等が挙げられ、特に、ピリジン、ターピリジン、ピリミジン、イミダゾピリジン、トリアジンの環から形成される基が好ましい。

一般式(7)及び(8)における、Aは、前記一般式(A)で表される基である。

[0052] 前記一般式(A)において、 M^1 及び M^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数2～40の含窒素複素環基であり、同一でも異なってもよい。

含窒素複素環としては、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、アジリジン、アザインドリジン、インドリジン、イミダゾール、インドール、イソインドール、インダゾール、プリン、プテリジン、 β -カルボリン、ナフチリジン、キノキサリン、ターピリジン、ビピリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、イミダゾピリジン等が挙げられ、特に、ピリジン、ターピリジン、ピリミジン、イミダゾピリジン、トリアジンの環から形成される基が好ましい。

L⁵は、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～30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炭素数5～30のシクロアルキレン基、置換もしくは無置換の炭素数2～30の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

cは0～2、dは1～2、eは0～2の整数である。ただし、c+eは1以上である。

[0053] 炭素数6～30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、例えば、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ビレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、パーフルオロアリール基等が挙げられ、これらのうちフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、パーフルオロアリール基が好ましい。

炭素数5～30のシクロアルキレン基としては、例えばシクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロヘプチレン基などが挙げられ、これらのうちシクロヘキシレン基が好ましい。

[0054] 炭素数2～30の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基としては、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-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-

ーフリル基、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、2-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-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、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-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェナンスロリン-6-イル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナンスロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3-イル基、1,9-フェナンスロリン-4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フ

エナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、
1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-
3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナ
ンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9
-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基
、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6
-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロ
リン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フ
ェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2
、8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イ
ル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン
-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナン
スロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7
-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基
、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6
-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロ
リン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-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) ピロールー1-イル基、2-メチルー1-インドリル基、4-メチルー1-インドリル基、2-メチルー3-インドリル基、4-メチルー3-インドリル基、2-*t*-ブチルー1-インドリル基、4-*t*-ブチルー1-インドリル基、2-*t*-ブチルー3-インドリル基、4-*t*-ブチルー3-インドリル基等が挙げられ、これらのうち、ピリジニル基、キノリル基が好ましい。

[0055] また、上記一般式(7)、(8)及び(A)におけるC_z、M¹、M²の置換基としては、塩素、臭素、フッ素等のハロゲン原子、カルバゾール基、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、シリル基、トリフルオロメチル基、カルボニル基、カルボキシル基、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ルケニル基、置換もしくは無置換のアリールアルキル基、置換もしくは無置換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芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、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アリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルキルオキシ基等が挙げられる。これらのうち、フッ素原子、メチル基、パーフルオロフェニレン基、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、アダマンチル基、ベンジル基、シアノ基、シリル基が好ましい。

[0056] 前記一般式(7)又は(8)で表される化合物の結合様式としては、a、bの値に応じ、下記表1に示すようになる。

[0057] [表1]

a = b = 1	a = 2	a = 3	b = 2	b = 3
Cz-A ³	Cz-A ³ -Cz	$\begin{array}{c} \text{Cz-A}^3\text{-Cz} \\ \\ \text{Cz} \end{array}$	A ³ -Cz-A ³	$\begin{array}{c} \text{A}^3\text{-Cz-A}^3 \\ \\ \text{A}^3 \end{array}$

[0058] 前記一般式(A)で表される基の結合様式としては、c、d、eの値に応じ、下記表2～3に示すようになる。

[0059]

[表2]

No	c	d	e	結合様式
[1]	0	1	1	$L^5 - M^2$
[2]	0	1	2	$L^5 - M^2 - M^2, M^2 - L^5 - M^2$
[3]	0	2	1	$L^5 - L^5 - M^2, L^5 - M^2 - L^5$
[4]	0	2	2	$L^5 - L^5 - M^2 - M^2, M^2 - L^5 - L^5 - M^2,$ $L^5 - M^2 - M^2 - L^5, M^2 - L^5 - M^2, L^5 - M^2 - L^5$ $\begin{array}{c} L^5 \\ \end{array}, \begin{array}{c} L^5 \\ \end{array}, \begin{array}{c} L^5 \\ \end{array}, \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array}$
[5]	1	1	0	[1] に同じ (M^2 を M^1 と読み替える)
[6]	1	1	1	$M^1 - L^5 - M^2$
[7]	1	1	2	$M^1 - L^5 - M^2$ $M^1 - L^5 - M^2 - M^2, \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array}$
[8]	1	2	0	[3] に同じ (M^2 を M^1 と読み替える)
[9]	1	2	1	$M^1 - L^5 - L^5 - M^2, L^5 - M^1 - L^5 - M^2, L^5 - M^1 - L^5 - M^2$
[10]	1	2	2	$M^1 - L^5 - L^5 - M^2 - M^2, M^2 - L^5 - M^1 - L^5 - M^2,$ $M^1 - L^5 - L^5, M^1 - L^5 - L^5 - M^2$ $M^2 - M^2 - L^5 - M^1 - L^5, \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array} \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array}, \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array}$ $L^5 - L^5 - M^2 - M^2, L^5 - M^1 - L^5 - M^2, \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array}$ $\begin{array}{c} M^1 \\ \end{array}, \begin{array}{c} M^1 \\ \end{array} \begin{array}{c} L^5 \\ \end{array} \begin{array}{c} L^5 \\ \end{array}$
[11]	2	1	0	[2] に同じ (M^2 を M^1 と読み替える)
[12]	2	1	1	[7] に同じ (M^2 を M^1 と読み替える)
[13]	2	1	2	$M^1 - M^1 - L^5 - M^2 - M^2, \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array} \begin{array}{c} M^1 \\ \end{array} \begin{array}{c} L^5 \\ \end{array} \begin{array}{c} M^1 \\ \end{array}, \begin{array}{c} M^1 \\ \end{array} \begin{array}{c} L^5 \\ \end{array} \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array} \begin{array}{c} M^2 \\ \end{array}$

[0060]

[表3]

No	c	d	e	結合様式
[14]	2	2	0	[4] に同じ (M^2 を M^1 と読み替える)
[15]	2	2	1	[10] に同じ (M^2 を M^1 と読み替える)
[16]	2	2	2	$ \begin{array}{c} M^1-M^1-L^5-M^2-M^2 \\ \\ L^5 \\ M^1-M^1-L^5-L^5-M^2-M^2, \\ M^1-L^5-L^5-M^2-M^2 \quad M^1-L^5-L^5 \\ \quad \\ M^1 \quad M^2 \quad M^2, \\ M^1-L^5-L^5-M^2 \quad L^5-L^5-M^2-M^2 \\ \quad \\ M^2 \quad M^1, \\ M^1-L^5-L^5-M^1 \\ \quad \\ M^2 \quad M^2 \end{array} $

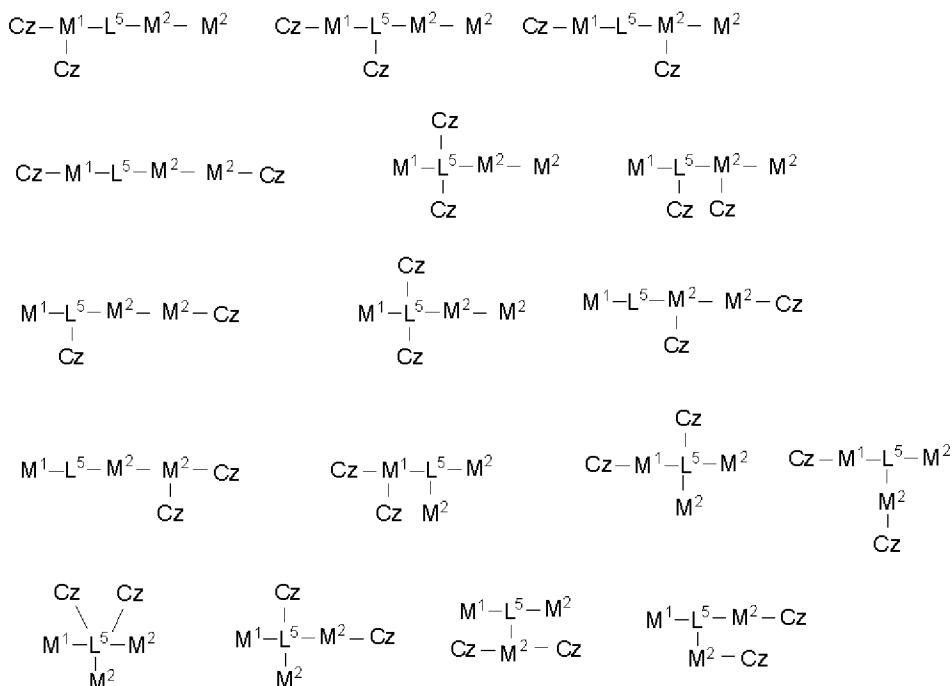
[0061] Aと結合しているC zは、Aを表す一般式(A)のM、L、M'のいずれに結合していてもよい。

例えば、一般式(7)または(8)において、 $a=b=1$ である $Cz-A^3$ で、(A)が表2[6]($c=d=e=1$)の場合には、 $Cz-M^1-L^5-M^2$ 、 $M^1-L^5(Cz)-M^2$ 及び $M^1-L^5-M^2-Cz$ の3つの結合様式が挙げられる。

また、例えば、一般式(7)において、 $a=2$ である $Cz-A^3-Cz$ で、(A)が表2[7]($c=d=1, e=2$)の場合には、以下の結合様式が挙げられる。

[0062]

[化11]



[0063] 以上のような、一般式（７）、（８）及び（Ａ）の結合様式、並びに各基の例示の組み合わせにおいて、下記〔１〕～〔４〕で表される化合物であることが好ましい。

〔１〕前記一般式（７）において $a = 1$ 、かつ前記一般式（Ａ）において $c = 1$ 、 $d = 0$ であり、

一般式（７）式中、 Cz は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾリル基又はカルバゾリルアリール基であり、

一般式（Ａ）式中、 M^1 は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 4 ～ 5 の窒素含有ヘテロ 6 員環又は 7 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2 ～ 4 の窒素含有ヘテロ 5 員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 8 ～ 11 の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾビリジン環であり、 L^5 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 30 のアリール基もしくは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炭素数 2 ～ 30 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

〔２〕前記一般式（７）において $a = 2$ 、かつ前記一般式（Ａ）において $c = 1$ 、 $e = 0$ であり、

一般式（７）式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基であり、

一般式（Ａ）式中、 M^1 は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数４～５の窒素含有ヘテロ６員環又は７員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数２～４の窒素含有ヘテロ５員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数８～１１の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジニル環であり、 L^5 は、置換もしくは無置換の炭素数６～３０のアリール基もしくは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炭素数２～３０の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

[0064] [３] 前記一般式（７）において $a = 1$ 、かつ前記一般式（Ａ）において $c = 2$ 、 $e = 0$ であり、

一般式（７）式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基であり、

一般式（Ａ）式中、 M^1 は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数４～５の窒素含有ヘテロ６員環又は７員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数２～４の窒素含有ヘテロ５員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数８～１１の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジニル環であり、 L^5 は、置換もしくは無置換の炭素数６～３０のアリール基もしくは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炭素数２～３０の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

[４] 前記一般式（８）において $b = 2$ 、かつ前記一般式（Ａ）において $c = d = 1$ であり、

一般式（８）式中、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基であり、

一般式（Ａ）式中、 M^1 は、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数４～５の窒素含有ヘテロ６員環又は７員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数２～４の窒素含有ヘテロ５員環、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数８～１１の窒素含有ヘテロ環、置換もしくは無置換のイミダゾピリジ

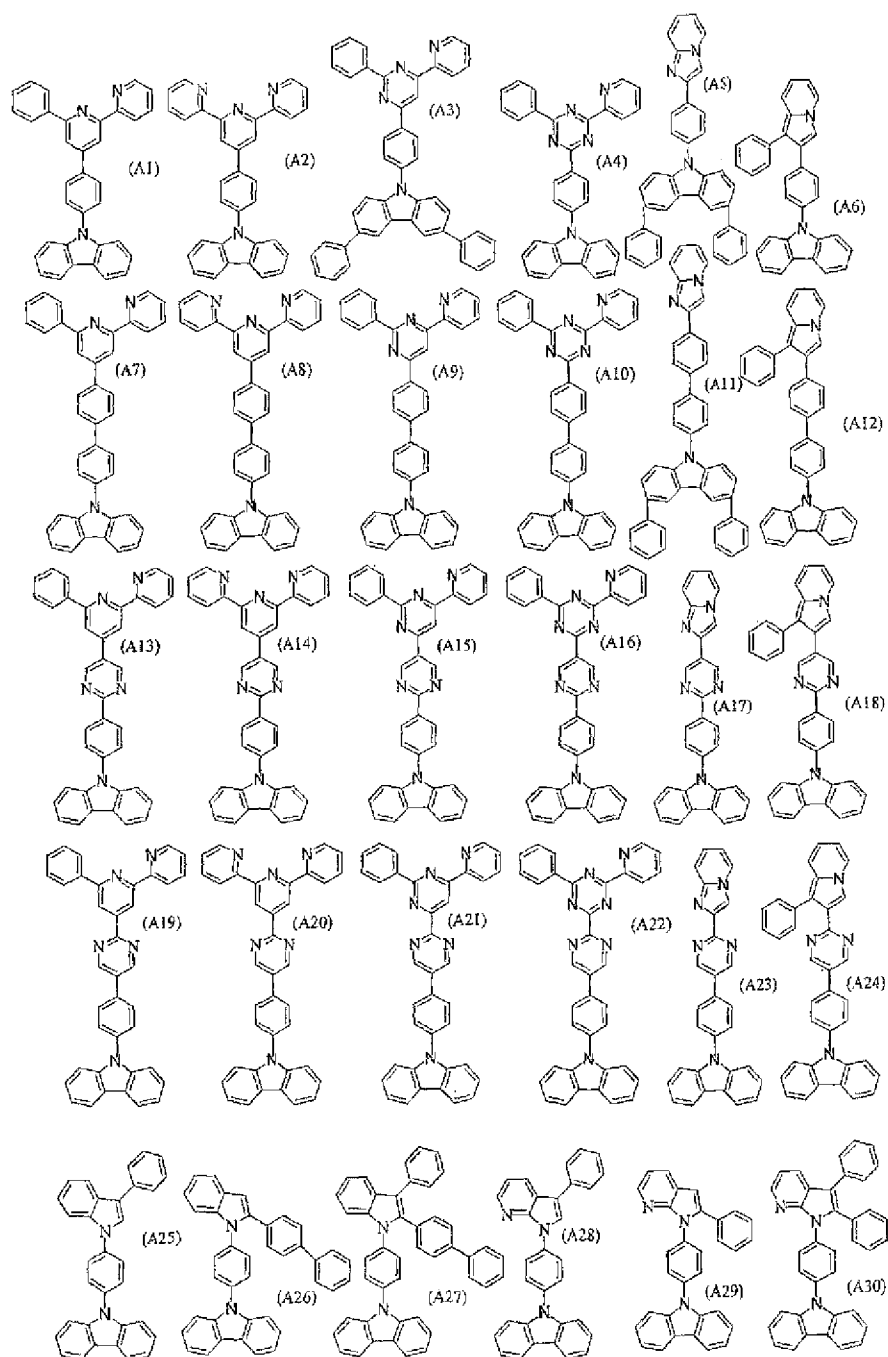
ニル環であり、 L^5 は、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリール基もしくは芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数2～30の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

[0065] さらに、前記一般式(7)及び(8)において、 C_z は、置換もしくは無置換のアリールカルバゾリル基であると好ましく、フェニルカルバゾリル基であるとさらに好ましい。また、アリールカルバゾリル基のアリール部位がカルバゾリル基で置換されていると好ましい。

本発明の一般式(7)で表される化合物の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

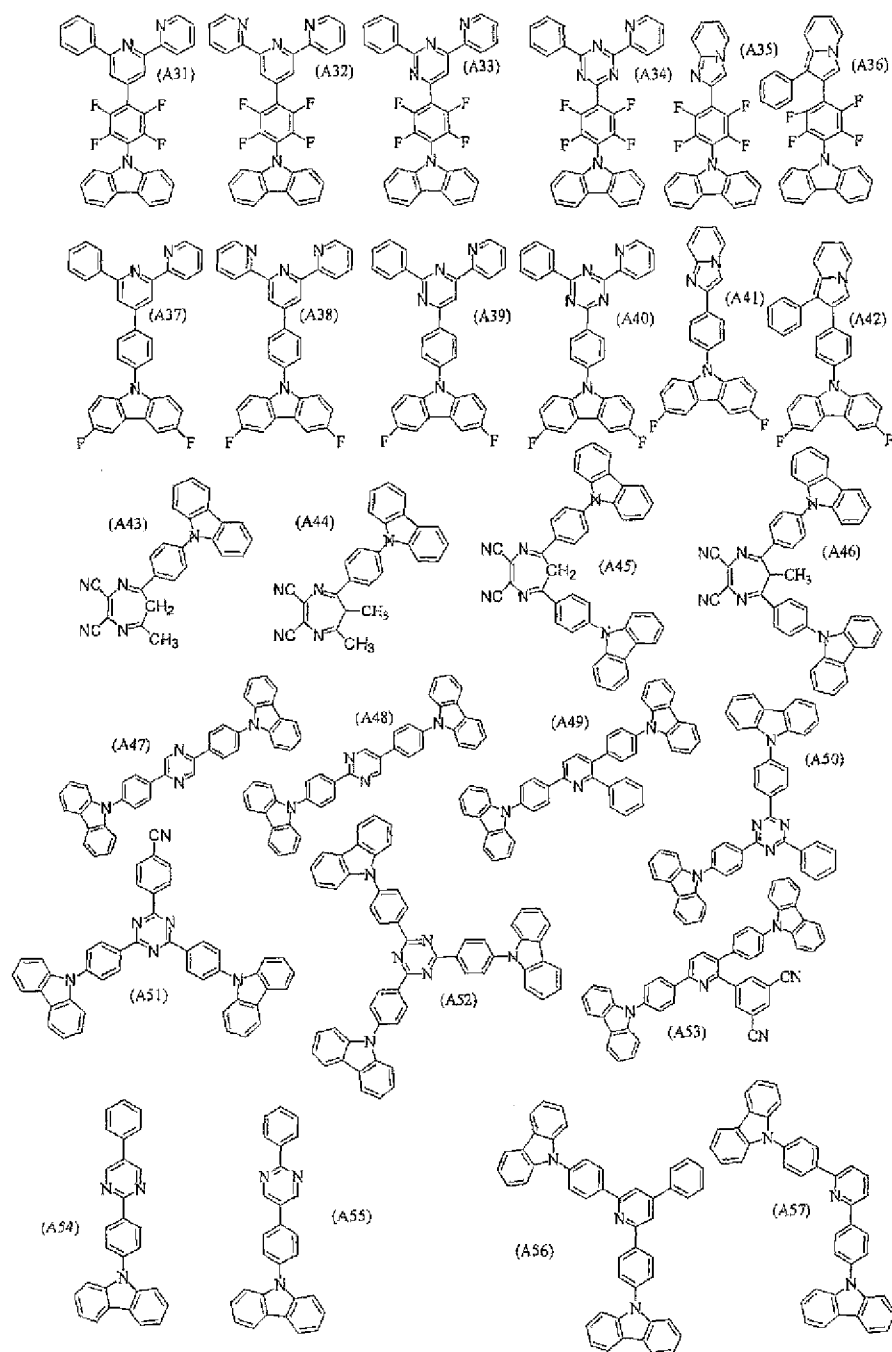
[0066]

[化12]



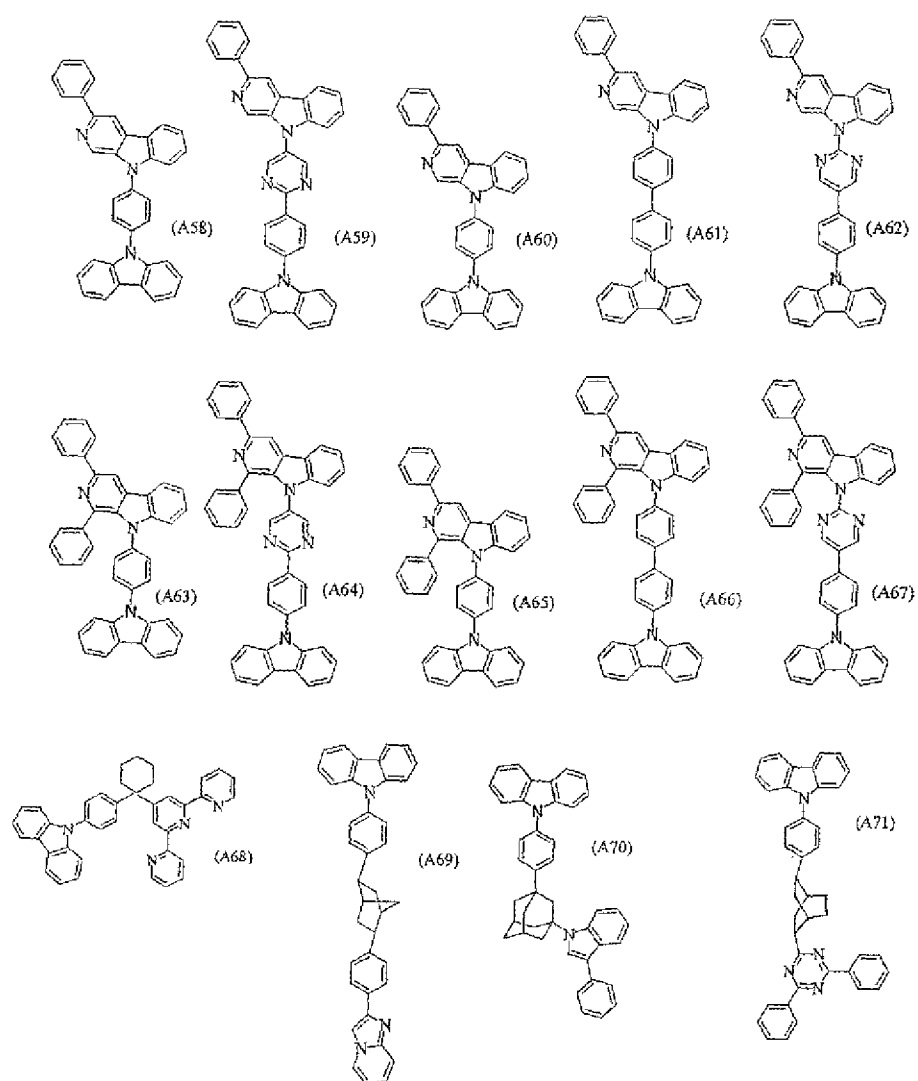
[0067]

[化13]



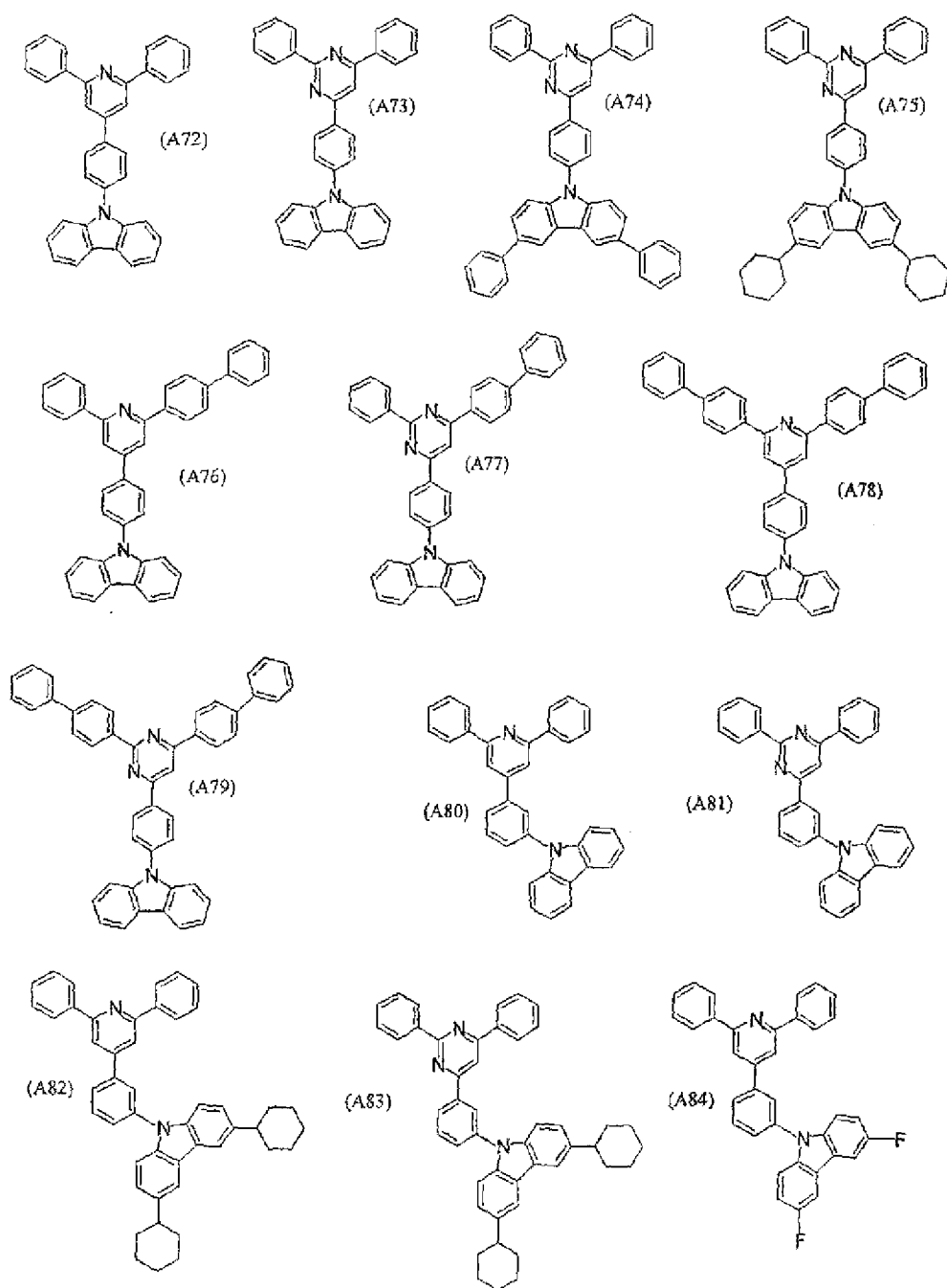
[0068]

[化14]



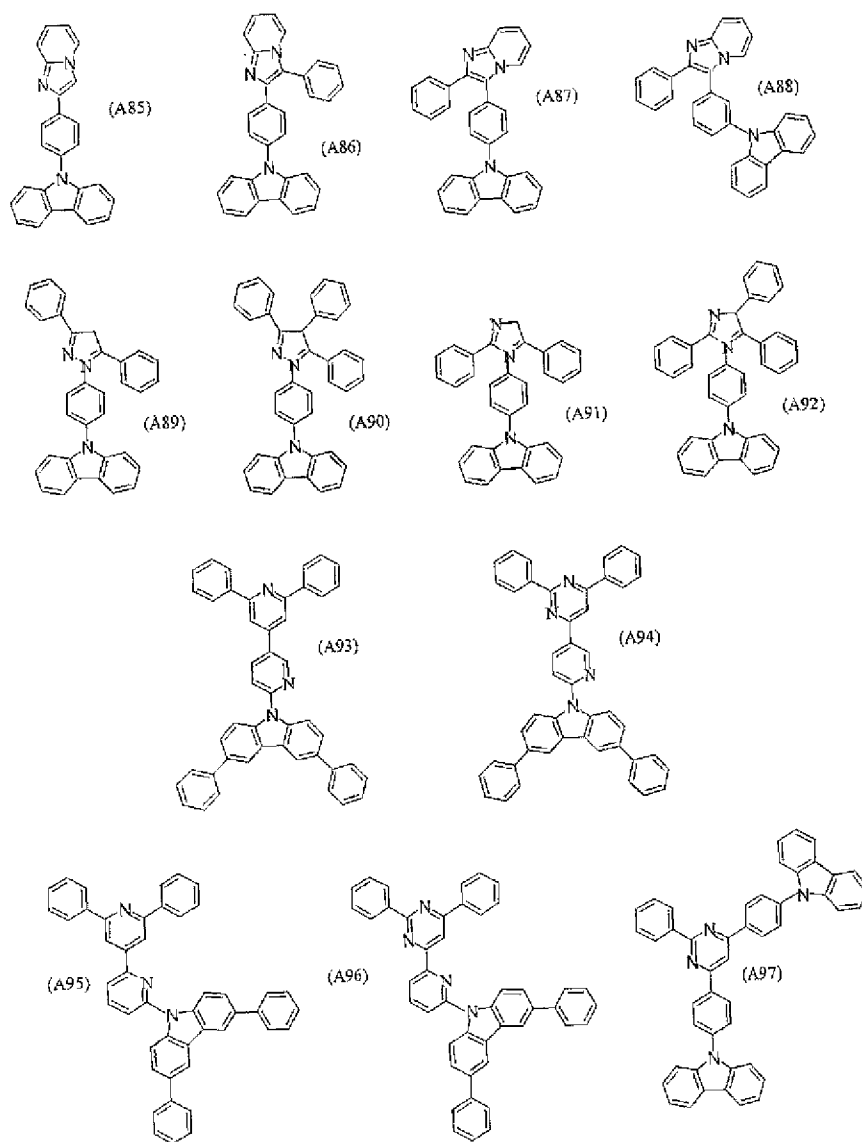
[0069]

[化15]



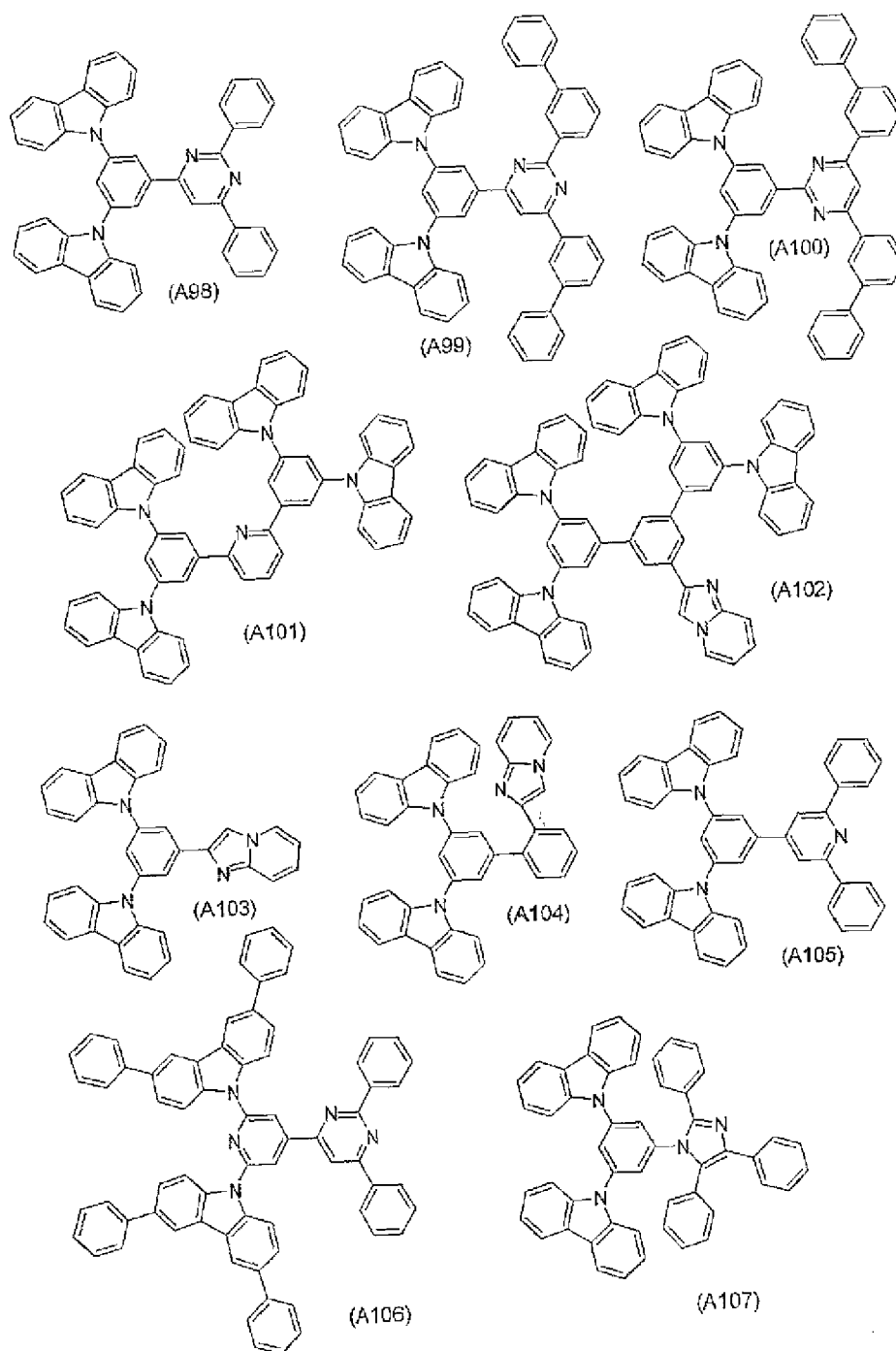
[0070]

[化16]



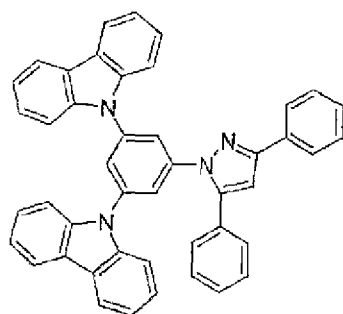
[0071]

[化17]

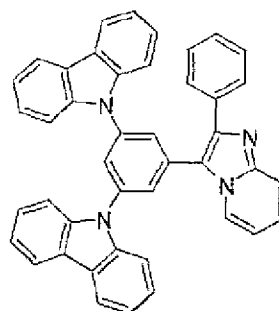


[0072]

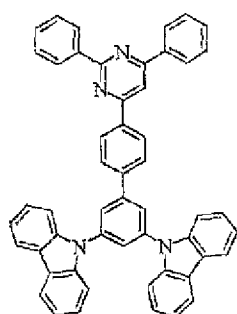
[化18]



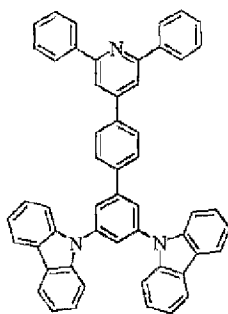
(A108)



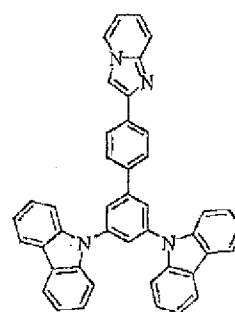
(A109)



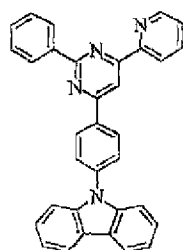
(A110)



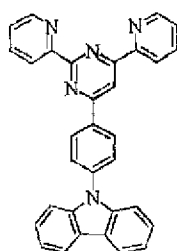
(A111)



(A112)



(A113)

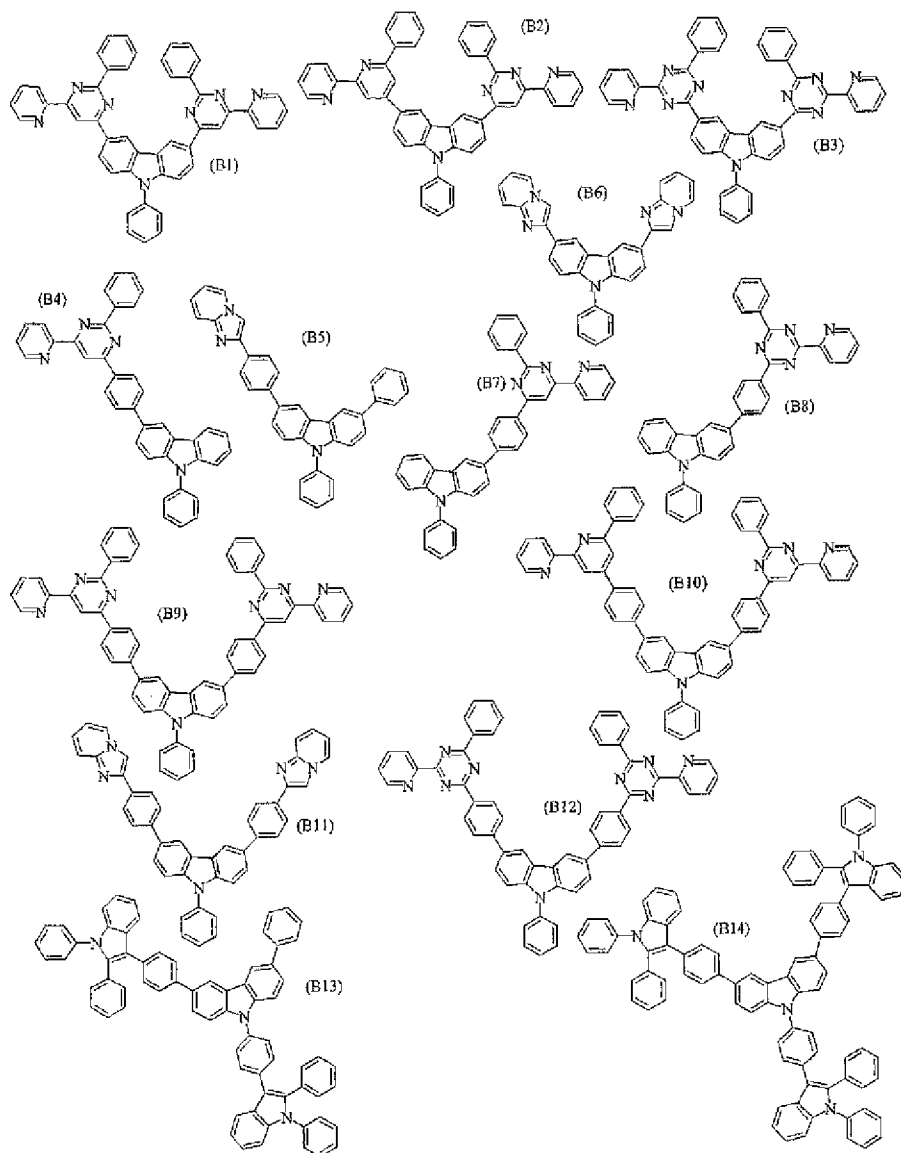


(A114)

[0073] 一般式（８）で表される化合物の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

[0074]

[化19]



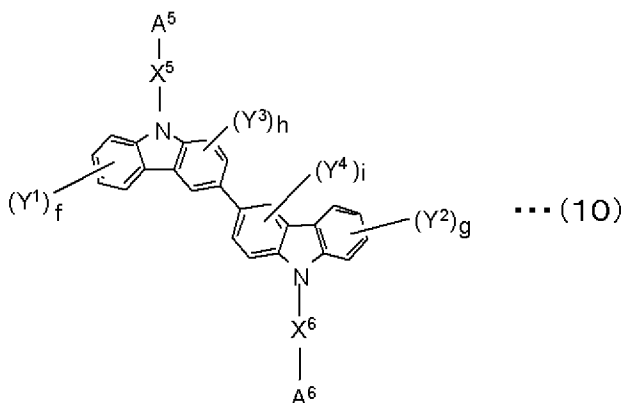
[0075] 本発明における一般式(7)又は(8)で表される化合物は、3重項のエネルギーギャップが2.5～3.3 eVであり、2.5～3.2 eVであると好ましい。

本発明における一般式(7)又は(8)で表される化合物は、1重項のエネルギーギャップが2.8～3.8 eVであり、2.9～3.7 eVであると好ましい。

[0076] (前記式(9)で表される化合物について)

前記式(9)で表されるビスカルバゾール誘導体は、下記式(10)で表されることがより好ましい。

[0077] [化20]



[0078] 前記式(10)において、 A^5 、 A^6 、 X^5 、 X^6 、 $Y^1 \sim Y^4$ 、 f 、 g 、 h 、 i は前記式(9)と同義である。

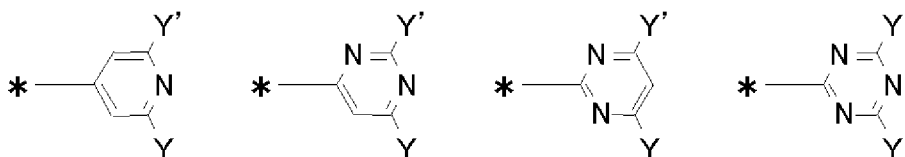
[0079] さらに、前記式(10)において、 A^5 が置換もしくは無置換のピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環からなる群から選ばれることが好ましく、特に、 A^5 が置換または無置換のピリミジン環であることが好ましい。

[0080] 前記式(9)および(10)において、 X^5 としては、単結合または環形成炭素数6～30の置換もしくは無置換の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基が好ましく、特にベンゼン環が好ましい。

前記式(9)および(10)において、 X^5 が、置換もしくは無置換のベンゼン環である場合、 X^5 に結合している A^5 とカルバゾリル基は、互いにメタ位又はパラ位にあるのが好ましい。特に、 X^5 は無置換のパラーフェニレンが好ましい。

[0081] 前記式(9)または(10)において、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環はそれぞれ、以下の式で表されることがより好ましい。ここで Y および Y' は置換基を表し、置換基としては、前述の $Y^1 \sim Y^4$ と同様の基を用いることができ、 Y と Y' は同一でも異なってもよい。中でも好ましくは、環形成炭素数6～30の置換もしくは無置換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炭素数2～30の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。尚、以下の式において、 $*$ は X^5 または X^6 との結合位置を表す。

[0082] [化21]



[0083] 前記式（９）および（１０）において、 $Y^1 \sim Y^4$ で表されるアルキル基、アルコキシ基、ハロアルキル基、ハロアルコキシ基、アルキルシリル基としては、直鎖状、分岐鎖状、環状のいずれのものでもよい。

[0084] 前記式（９）および（１０）において、前記炭素数１～２０のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、１-メチルペンチル基、２-メチルペンチル基、１-ペンチルヘキシル基、１-ブチルペンチル基、１-ヘプチルオクチル基、３-メチルペンチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、３，５-テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

[0085] 前記炭素数１～２０のアルコキシ基としては、炭素数１～６のアルコキシ基が好ましく、具体的には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基等が挙げられる。

[0086] 前記炭素数１～２０のハロアルキル基としては、例えば、前記炭素数１～２０のアルキル基が１以上のハロゲン基で置換されたものが挙げられる。

前記炭素数１～２０のハロアルコキシ基としては、例えば、前記炭素数１～２０のアルコキシ基が１以上のハロゲン基で置換されたものが挙げられる。

[0087] 前記炭素数１～１０のアルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基、ジメチルエチルシリル

基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチルプロピルシリル基、ジメチルブチルシリル基、ジメチルターシャリーブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基等が挙げられる。

[0088] 前記炭素数 6 ～ 30 のアリールシリル基としては、例えば、フェニルジメチルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、ジフェニルターシャリーブチルシリル基、トリフェニルシリル基等が挙げられる。

[0089] 前記環形成炭素数 2 ～ 30 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基としては、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、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、チエニル基、およびピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、インドール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサン環、ピペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環から形成される基が挙げられる。

[0090] 前記環形成炭素数 6 ～ 30 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、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、フェナントレニル基が挙げられる。

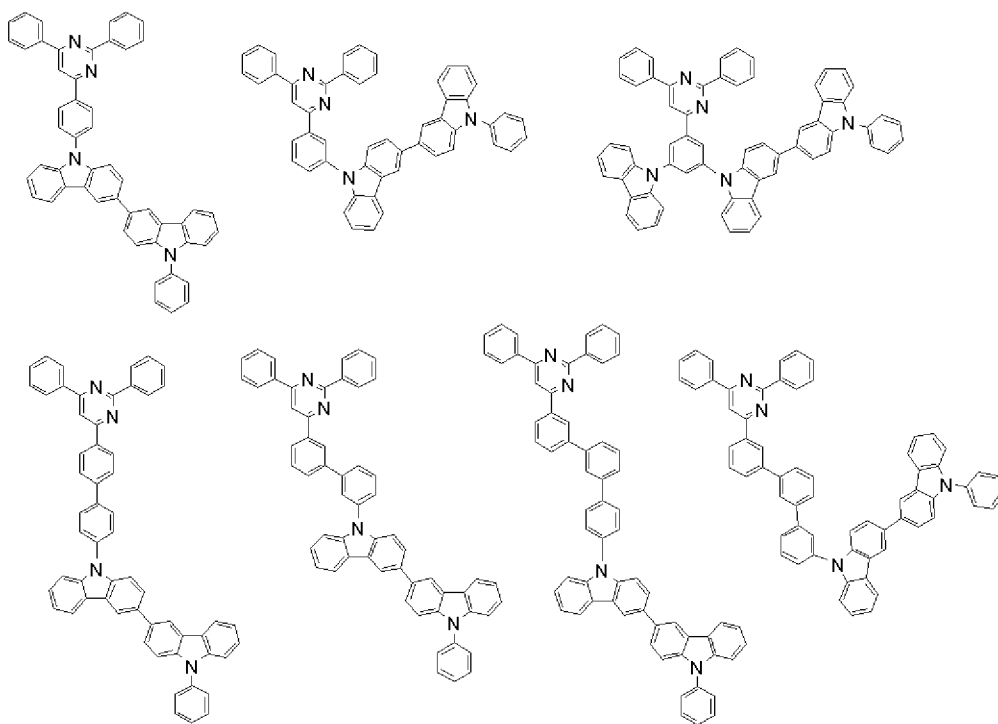
[0091] 前記式 (9) および (10) における A^5 、 A^6 、 X^5 、 X^6 、 $Y^1 \sim Y^4$ が、1 つ又は複数の置換基を有する場合、前記置換基は、直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシ基、直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 20 のハロアルキル基、直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 10 のアルキ

ルシリル基、環形成炭素数 6 ～ 30 のアリールシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、環形成炭素数 6 ～ 30 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数 2 ～ 30 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

[0092] 前記直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、前記直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシ基、前記直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 20 のハロアルキル基、前記直鎖状、分岐鎖状または環状の炭素数 1 ～ 10 のアルキルシリル基、前記環形成炭素数 6 ～ 30 のアリールシリル基、前記環形成炭素数 6 ～ 30 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、前記環形成炭素数 2 ～ 30 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基としては、例えば、前述した基を挙げることができ、ハロゲン原子としては、フッ素原子が挙げられる。

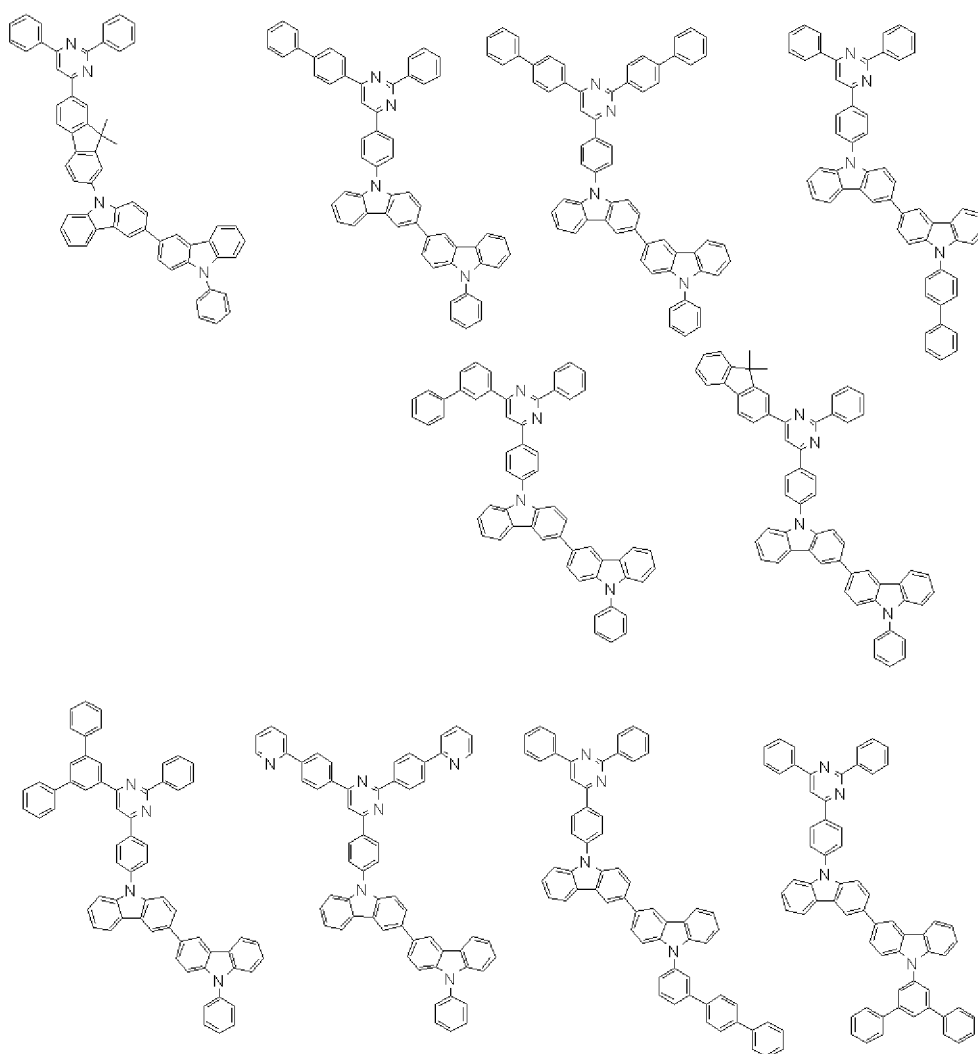
[0093] 前記式 (9) および (10) で表される化合物としては、例えば、次の化合物が具体例として挙げられる。

[0094] [化22]



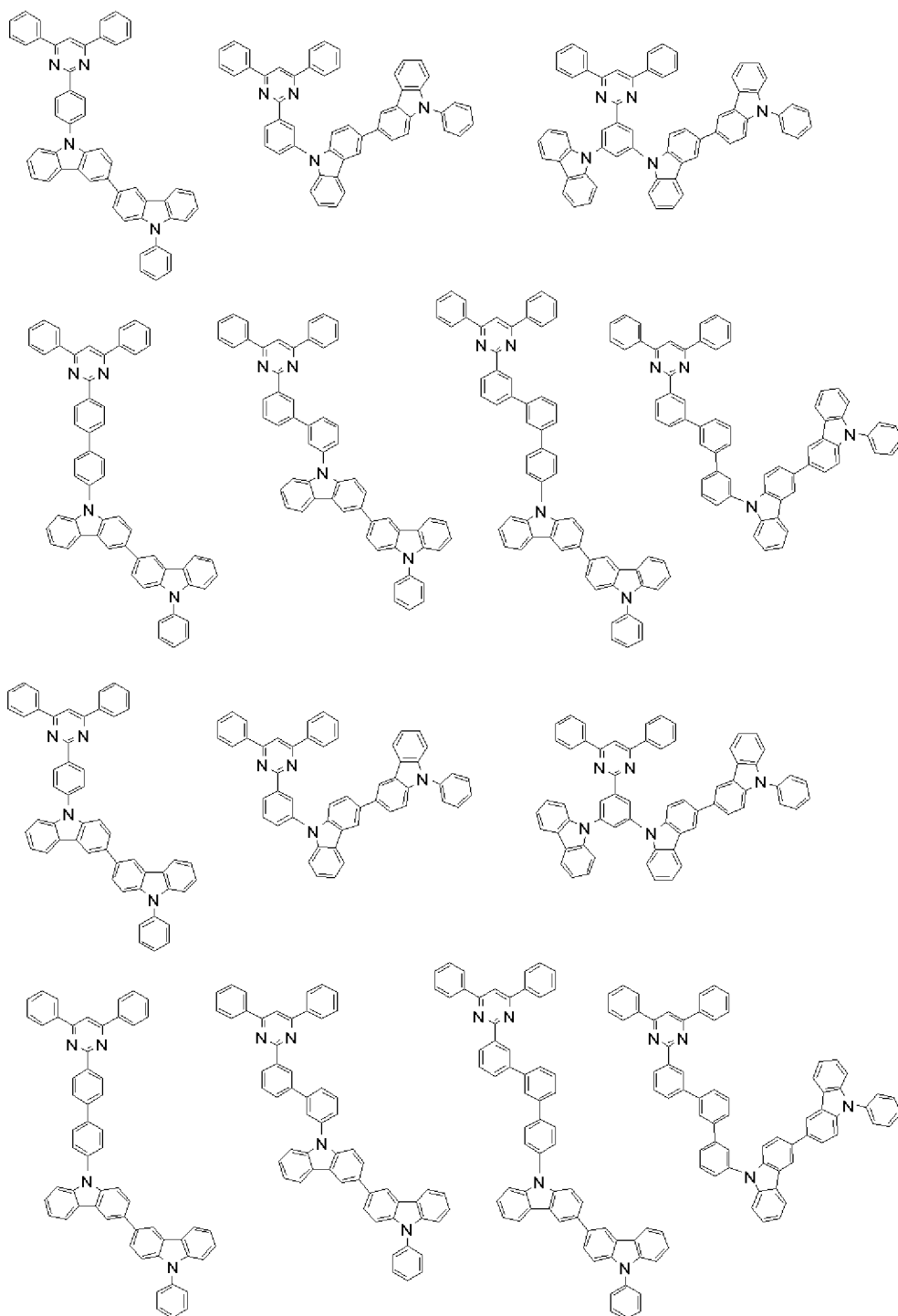
[0095]

[化23]



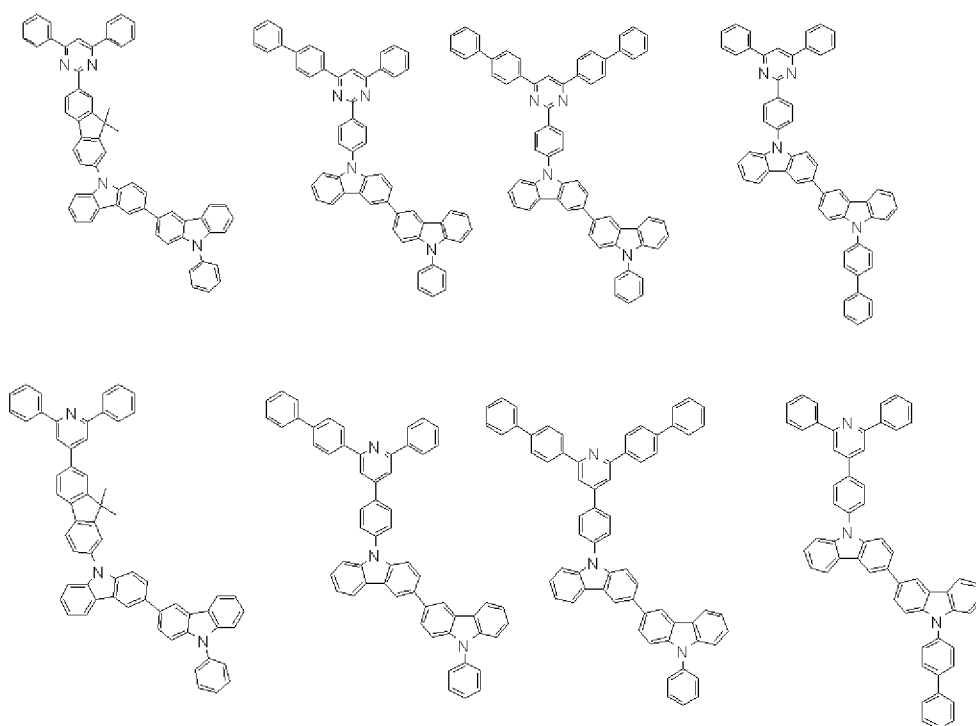
[0096]

[化24]



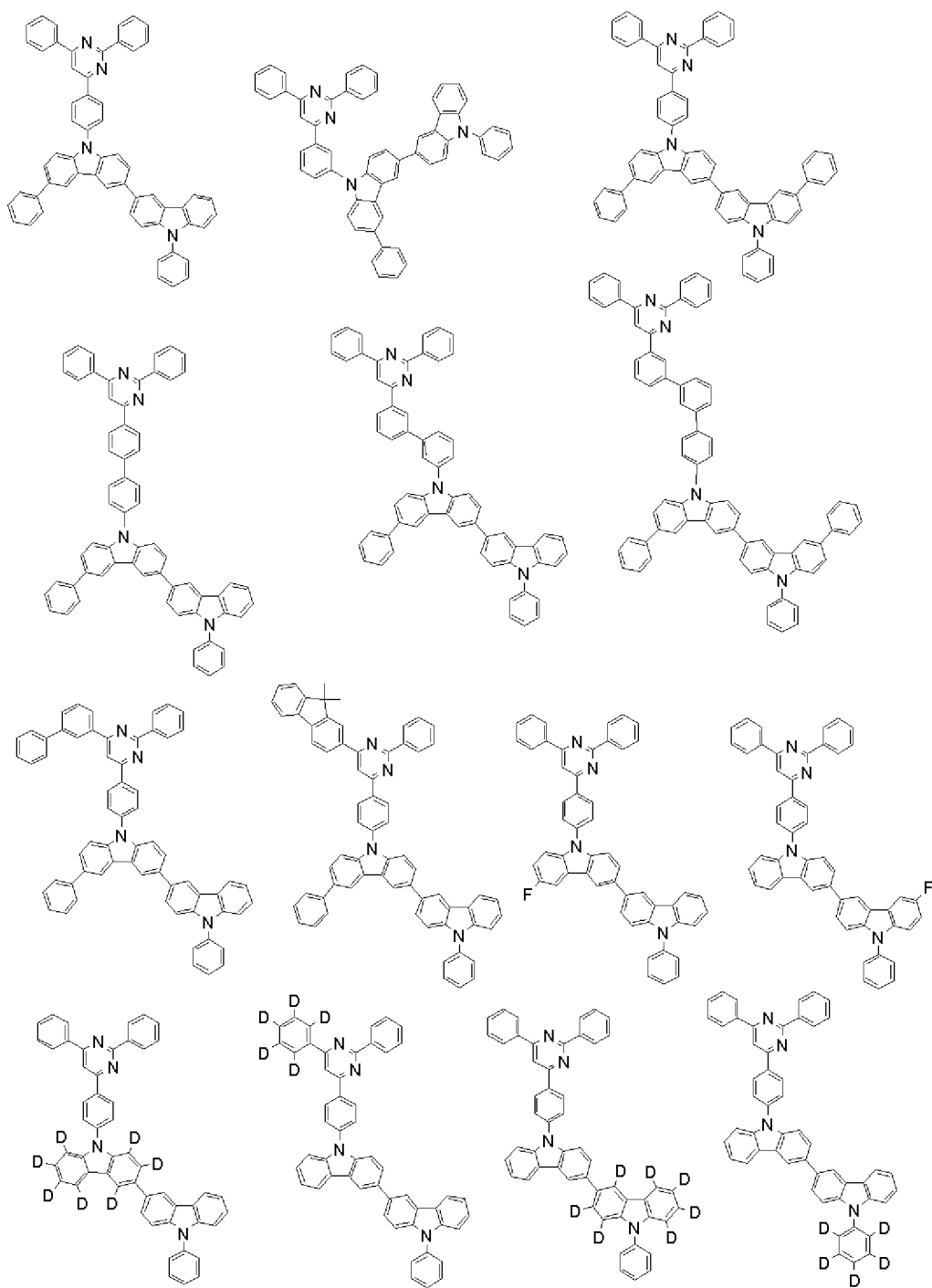
[0097]

[化25]



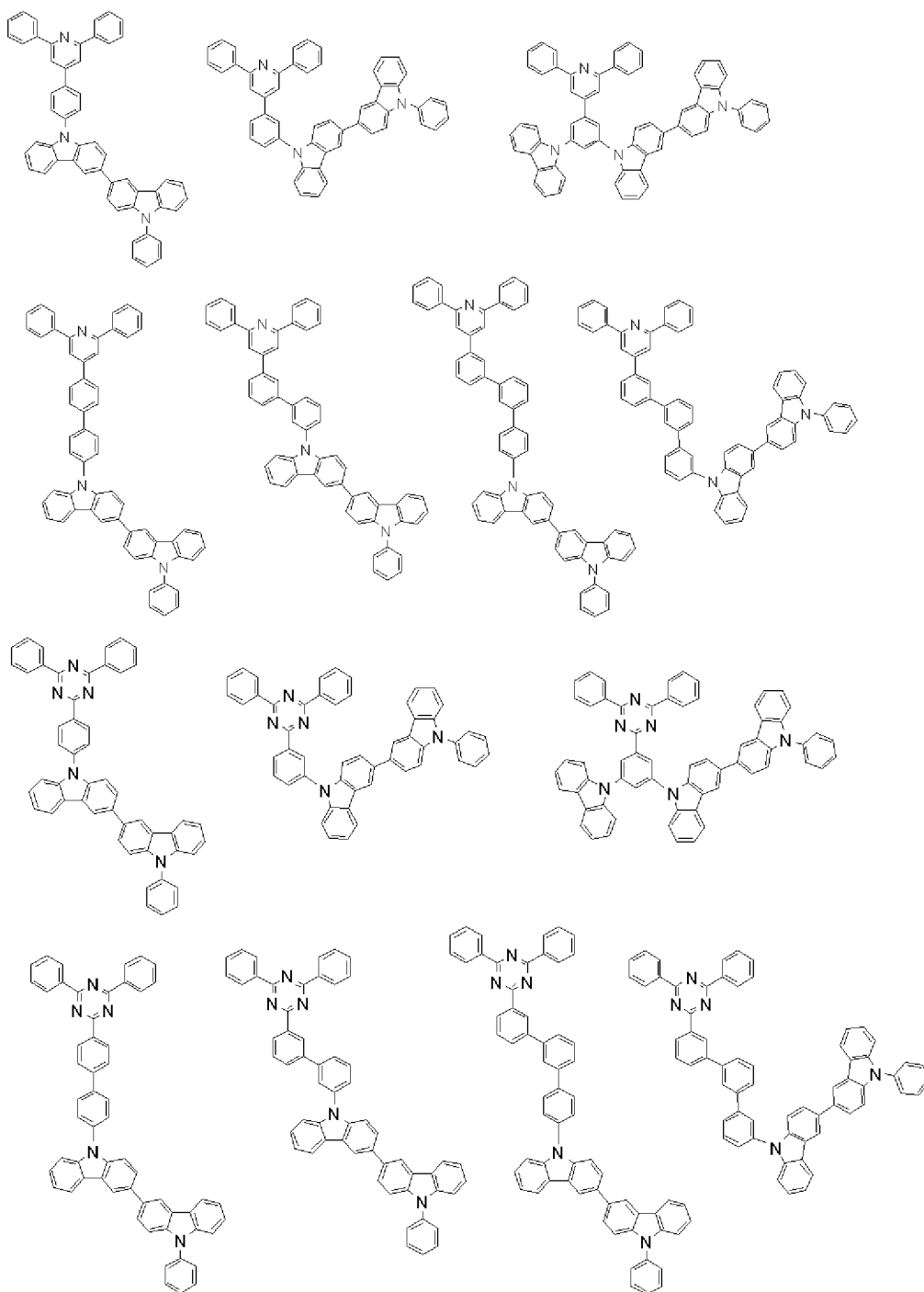
[0098]

[化26]



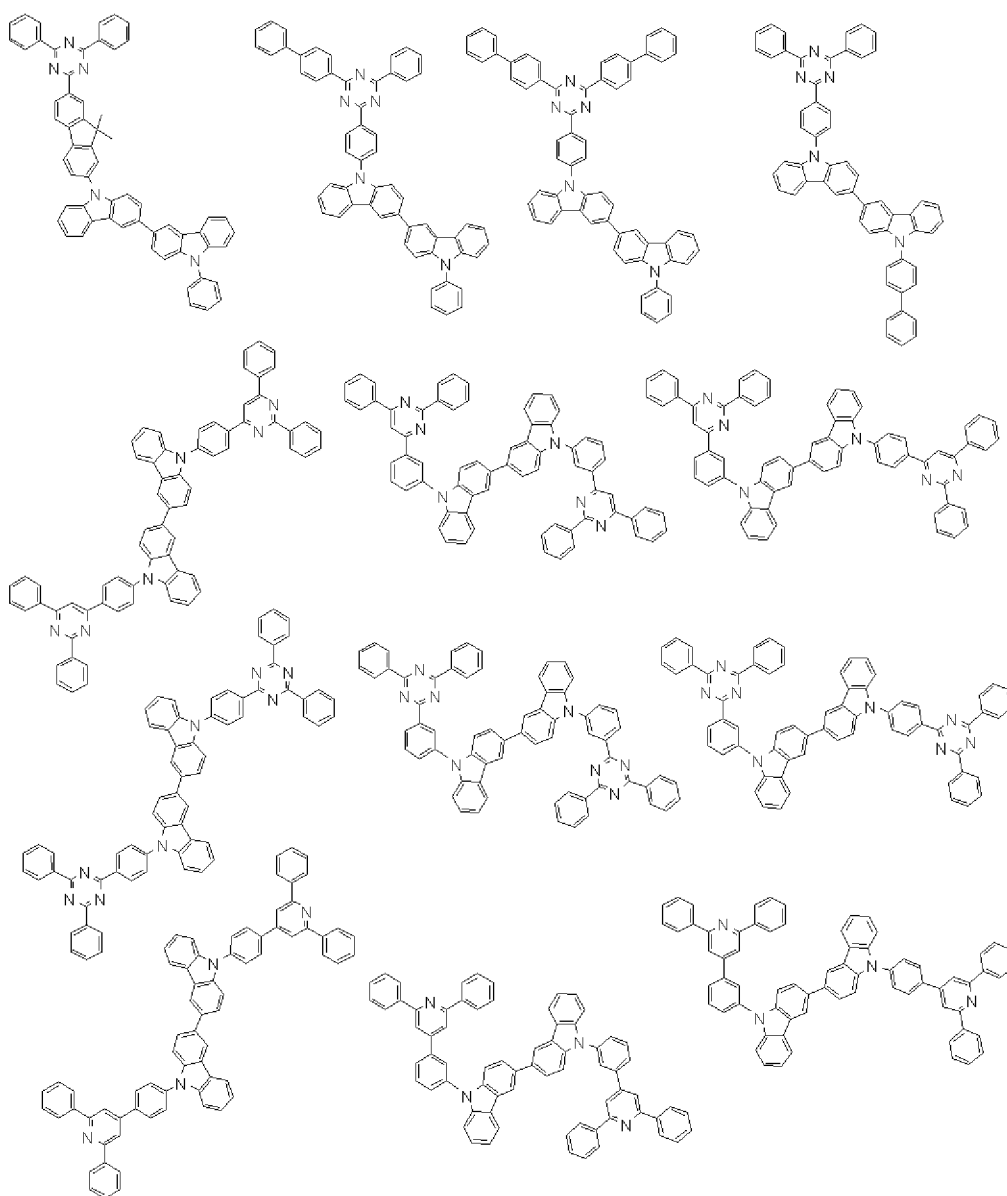
[0099]

[化27]



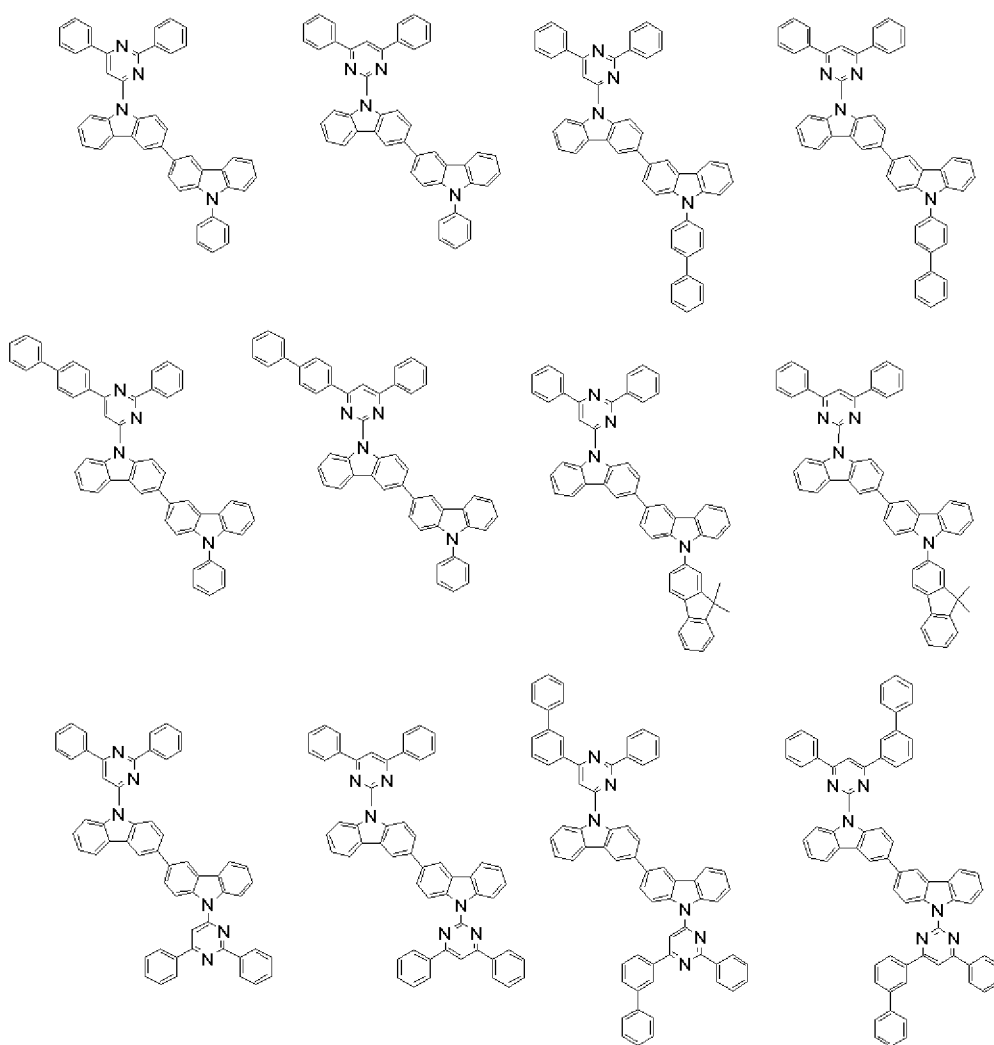
[0100]

[化28]



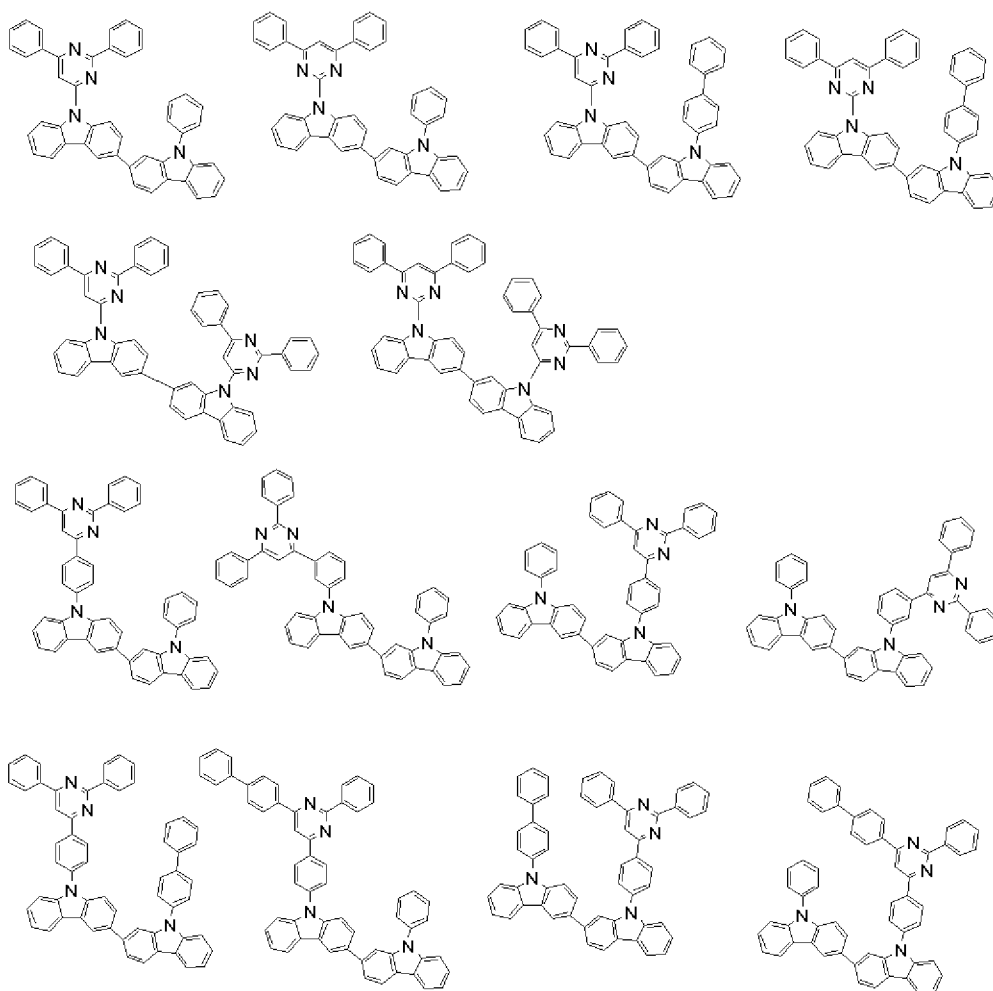
[0101]

[化29]



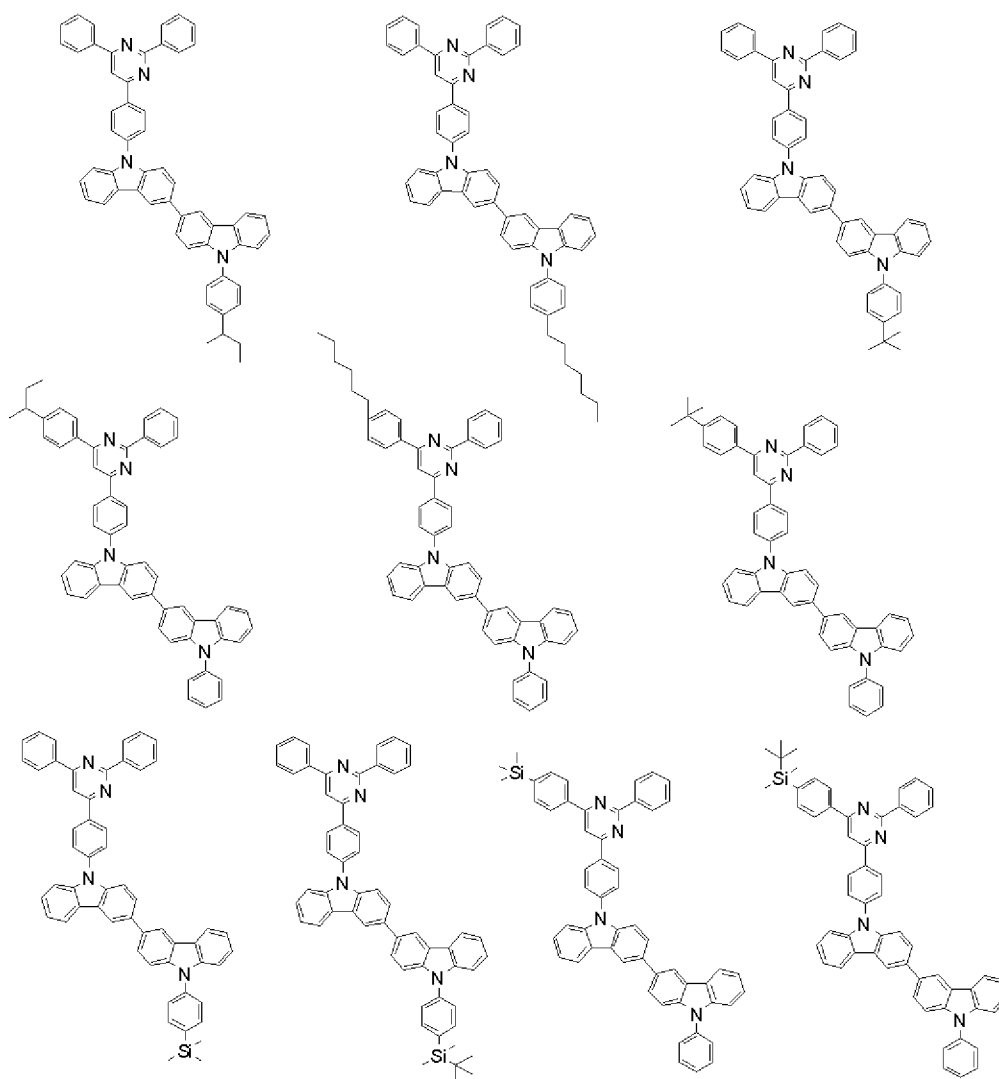
[0102]

[化30]



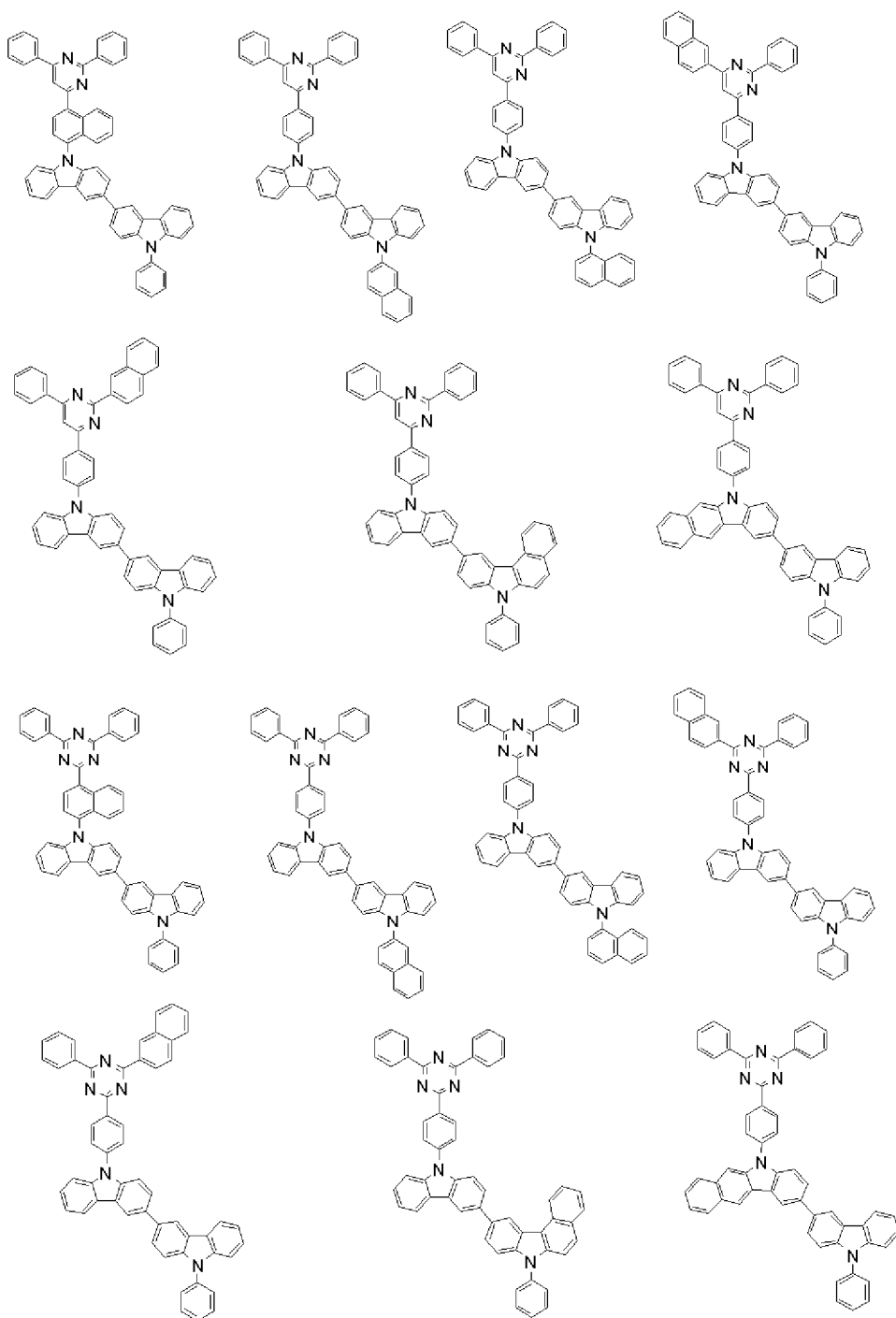
[0103]

[化31]



[0104]

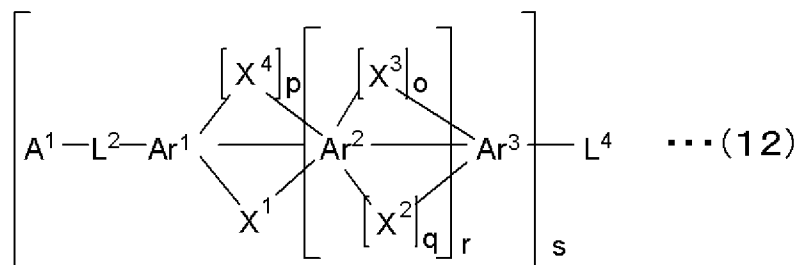
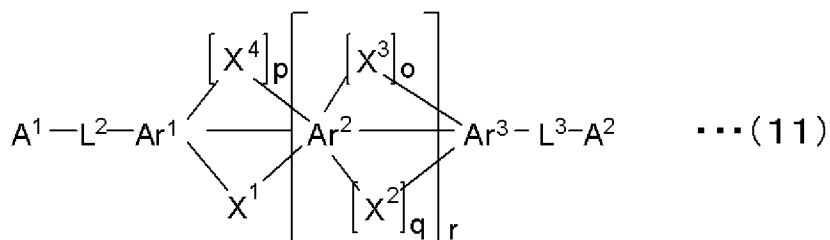
[化32]



[0105] (第2のホスト)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、第2のホストとして、下記式(11)または(12)のいずれかで表される化合物を含む。

[化33]



[前記式(11)および(12)において、 Ar^1 、 Ar^2 および Ar^3 は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6の芳香族炭化水素基、

または置換もしくは無置換の環形成原子数6の芳香族複素環基を表す。

但し、 Ar^1 、 Ar^2 および Ar^3 は置換基 Y を一個または複数個有していてもよく、複数個の場合はそれぞれ異なってもよい。

Y は炭素数1～20のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、

炭素数1～20のアルコキシ基、

炭素数7～24のアラルキル基、

シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数3～24の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(1)および(2)において、 X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 は、それぞれ独立に、酸素(O)、硫黄(S)、 $N-R^1$ または CR^2R^3 を表す。

前記 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、

炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、
炭素数 7 ～ 24 のアラルキル基、
シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 24 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

但し、 X^1 と X^2 が共に $N-R^1$ で o 、 p が0、 q が1の場合、
または、 X^1 と X^3 が共に $N-R^1$ で p 、 q が0、 o が1の場合は、
 R^1 の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8 ～ 24 である
1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 o 、 p および q は0または1を表す。 s は1、2、3又は4を表し、それぞれ L^4 を連結基とした1量体、2量体、3量体、4量体である。

r は1、2、3または4を表す。

式 (1) および (2) において、 L^2 は単結合、
炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の2 価の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の1 価あるいは2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) において、 L^3 は単結合、
炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の2 価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (2) において、 L^4 は、

s が 2 の場合、

単結合、

炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基、

2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の 2 価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

s が 3 の場合、

炭素数 1 ～ 20 の 3 価の飽和炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 の 3 価の環状飽和炭化水素基、

3 価のシリル基もしくはシリル基もしくは炭素数 1 ～ 20 の 3 価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 3 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

s が 4 の場合、

炭素数 1 ～ 20 の 4 価の飽和炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、

ケイ素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 A^1 は、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、

シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) において、 A^2 は、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、

シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、

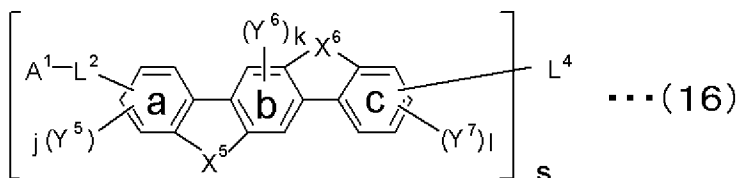
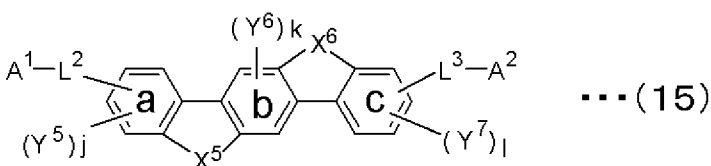
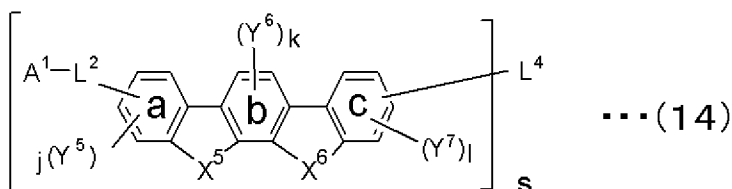
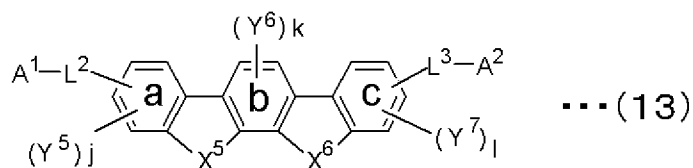
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。]

[0106] 本発明では、前記式 (1) で表される化合物が下記式 (13) または (15) で表されるのが好ましく、前記式 (2) で表される化合物が下記式 (14) または (16) で表されるのが好ましい。

[0107]

[化34]



[0108] 前記式(13)～(16)において、 X^5 および X^6 は、それぞれ独立に、酸素(O)、硫黄(S)、 N-R^1 または $\text{C-R}^2\text{R}^3$ を表す。

前記 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数3～24の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^5 と X^6 が共に N-R^1 の場合は、 R^1 の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8～24である1価の縮合芳香族複素環基を表す。

式(14)および(16)において、 s は2、3または4を表し、それぞれ L^4 を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(13)～(16)において、 L^2 は単結合、炭素数1～20のアルキレ

ン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価のシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数3～24のベンゼン環aと置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(13)及び(15)において、 L^3 は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数3～24のベンゼン環cと連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(14)および(16)において、 L^4 は、sが2の場合、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数3～24でベンゼン環cと置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表し、sが3の場合、炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6～24の3価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または原子数3～24でベンゼン環cと置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表し、sが4の場合、炭素数1～20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の4価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数3～24でベンゼン環cと置換もしくは無置換の4価の芳香族複

素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(13)～(16)において、 A^1 は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数3～24で L^2 と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(13)および(15)において、 A^2 は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数3～24で L^3 と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

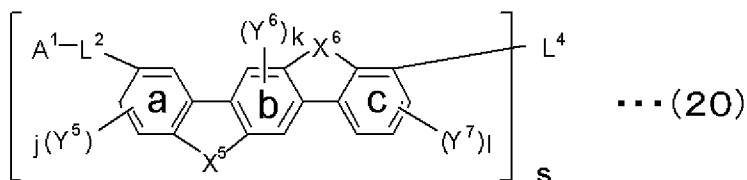
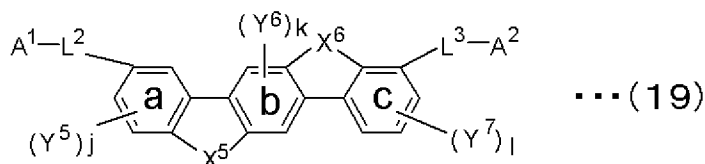
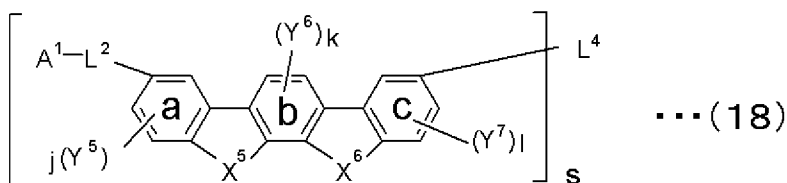
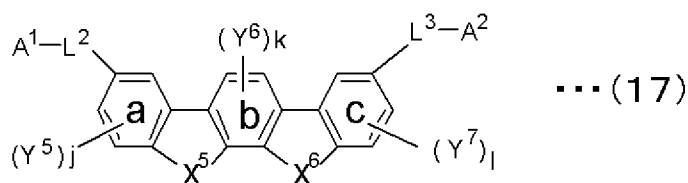
式(13)～(16)において、 Y^5 、 Y^6 および Y^7 は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数3～24でベンゼン環a、b、cと芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。j、lは0、1、2または3、kは0、1または2である。

式(13)～(16)において、 A^1 、 A^2 、 L^2 、 L^3 および L^4 は、カルボニル基を含まない。

[0109] さらに、前記式(13)から(16)で表される化合物が、下記式(17)から(20)のいずれかで表されることが好ましい。

[0110]

[化35]



[0111] 式(17)から(20)において、 A^1 、 A^2 、 $L^2 \sim L^4$ 、 X^5 、 X^6 、 Y^5
 $\sim Y^7$ 、 s 、 $j \sim l$ は前記式(13)～(16)と同義である。

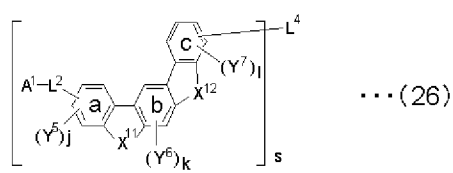
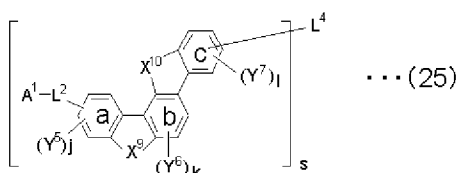
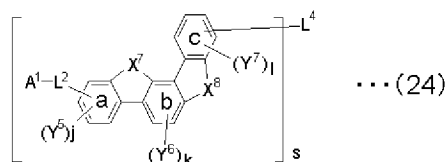
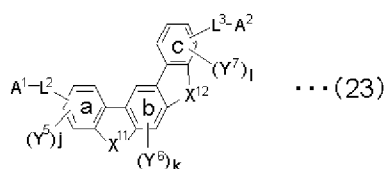
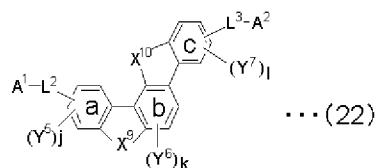
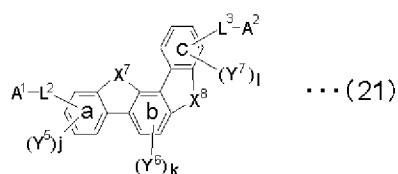
[0112] さらに、本発明では、前記式(17)から(20)のX⁵とX⁶のうち少なくとも一方が酸素原子であり、前記式(17)から(20)のいずれかで表される化合物がベンゾフラン構造を有することが好ましい。

さらに、前記式(17)から(20)の X^5 と X^6 が共に酸素原子であり、前記式(17)から(20)のいずれかで表される化合物がベンゾフラノジベンゾフラン構造を有することがより好ましい。

特に好ましくは、前記式（１７）および（１９）で表されるベンゾフランジベンゾフラン構造を有する化合物である。

[0113] また、本発明では、前記（１）または前記式（２）で表される化合物が下記式（２１）から（２８）で表されても好ましい。

[0114] [化36]



[0115] [式 (21) ~ (26) において、 X^7 、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 、 X^{11} および X^{12} は、それぞれ独立に、酸素 (O)、硫黄 (S)、 $N-R^1$ または CR^2R^3 を表す。

前記 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^7 と X^8 、 X^9 と X^{10} 、または X^{11} と X^{12} が共に $N-R^1$ の場合は、 R^1 の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8~24である1価の縮合芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (24) ~ (26) において、 s は2、3または4を表し、それぞれ L^4 を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式 (21) ~ (26) において、 L^2 は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価のシリル基、置換もしくは無

置換の環形成炭素数 6～24 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 のベンゼン環 a と炭素－炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 1 価あるいは 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (21)～(23) において、 L^3 は単結合、炭素数 1～20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2～20 の 2 価のシリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数 6～24 の 1 価あるいは 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 のベンゼン環 c と炭素－炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^7 と X^8 、 X^9 と X^{10} 、または X^{11} と X^{12} が共に CR^2R^3 であり、かつ L^2 、 L^3 が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数 6～24 の 1 価あるいは 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である場合、 L^2 、 L^3 は同時にベンゼン環 b に対してパラ位置に連結する場合は無い。

式 (24)～(26) において、 L^4 は、s が 2 の場合、単結合、炭素数 1～20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2～20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の 2 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 でベンゼン環 c と炭素－炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表し、s が 3 の場合、炭素数 1～20 の 3 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 の 3 価の環状飽和炭化水素基、3 価のシリル基もしくは炭素数 1～20 の 3 価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数 6～24 の 3 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または原子数 3～24 でベンゼン環 c と炭素－炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表し、s が 4 の場合、炭素数 1～20 の 4 価の飽和炭化水素基

、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の 4 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 でベンゼン環 c と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^7 と X^8 、 X^9 と X^{10} 、または X^{11} と X^{12} が共に CR_2R_3 であり、かつ L^2 、 L^4 が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数 6～24 の 2 価、3 価あるいは 4 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である場合、 L^2 、 L^4 は同時にベンゼン環 b に対してパラ位置に連結する場合は無い。

式 (21)～(26) において、 A^1 は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3～20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 で L^2 と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 L^2 が炭素数 1～20 のアルキレン基である場合、 A^1 は水素原子である場合はない。

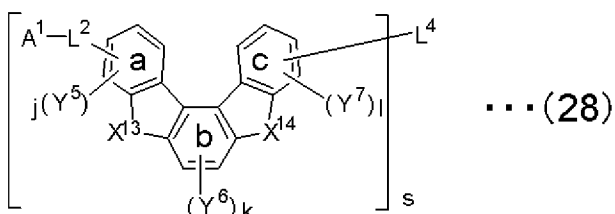
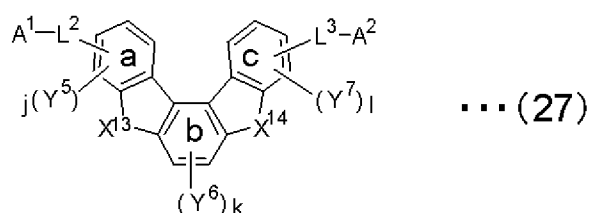
式 (21)～(23) において、 A^2 は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3～20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 で L^3 と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 L^3 が炭素数 1～20 のアルキレン基である場合、 A^2 は水素原子である場合はない。

式 (21)～(26) において、 Y^5 、 Y^6 および Y^7 は、炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、炭素数 1～20 のアルコキシ基、炭素数 7～24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3～20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換

もしくは無置換の環形成原子数 3～24 でベンゼン環 a、b、c と炭素－炭素結合で連結する芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。j、l は 0、1、2 または 3、k は 0、1 または 2 である。但し、 X^7 と X^8 、 X^9 と X^{10} 、または X^{11} と X^{12} が、酸素 (O)、硫黄 (S)、もしくは CR^2R^3 であり、 L^2 、 L^3 が共に単結合であり、かつ A^1 と A^2 が共に水素原子である場合、ベンゼン環 b は Y^6 を一個または二個有し、 Y^6 がメチル基または無置換のフェニル基である場合は無い。

式 (21) ～ (26) において、 A^1 、 A^2 、 L^2 、 L^3 および L^4 は、カルボニル基を含まない。]

[0116] [化37]



[0117] [式 (27) および (28) において、 X^{13} 、 X^{14} は、それぞれ独立に、酸素 (O)、硫黄 (S)、 $N-R_1$ または CR_2R_3 を表す。

前記 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、炭素数 7～24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3～20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3～24 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^{13} と X^{14} が共に $N-R^1$ の場合は、 R^1 の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8～24 である 1 価の縮合芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(28)において、 s は2、3または4を表し、それぞれ L^4 を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(27)および(28)において、 L^2 は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価のシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(27)において、 L^3 は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^{13} と X^{14} が共に CR^2R^3 であり、かつ L^2 、 L^3 が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である場合、 L^2 、 L^3 は同時にベンゼン環bに対してパラ位置に連結する場合は無い。

式(28)において、 L^4 は、 s が2の場合、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表し、 s が3の場合、炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、置換もし

くは無置換で環形成炭素数 6～24 の 3 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または原子数 3～24 でベンゼン環 c と炭素－炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表し、s が 4 の場合、炭素数 1～20 の 4 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の 4 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 でベンゼン環 c と炭素－炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 X^{13} と X^{14} が共に CR_2R_3 であり、かつ L^2 、 L^4 が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数 6～24 の 2 価、3 価あるいは 4 価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である場合、 L^2 、 L^4 は同時にベンゼン環 b に対してパラ位置に連結する場合は無い。

式 (27) および (28) において、 A^1 は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3～20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 で L^2 と炭素－炭素結合で連結する芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 L^2 が炭素数 1～20 のアルキレン基である場合、 A^1 は水素原子である場合はない。

式 (27) において、 A^2 は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3～20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3～24 で L^3 と炭素－炭素結合で連結する芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。但し、 L^3 が炭素数 1～20 のアルキレン基である場合、 A^2 は水素原子である場合はない。

式 (27) および (28) において、 Y^5 、 Y^6 および Y^7 は、炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、炭素数 1～20 のアルコキシ基、炭素数 7～24 のアラルキル基、

シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。j、lは0、1、2または3、kは0、1または2である。但し、 X^{13} と X^{14} が、酸素(O)、硫黄(S)、もしくは CR^2R^3 であり、 L^2 、 L^3 が共に単結合であり、かつ A^1 と A^2 が共に水素原子である場合、ベンゼン環bは Y^6 を一個または二個有し、 Y^6 がメチル基または無置換のフェニル基である場合は無い。

式(27)および(28)において、 A^1 、 A^2 、 L^2 、 L^3 および L^4 は、カルボニル基を含まない。]

[0118] 前記式(11)から(28)において、各基の示す具体例を以下に説明する。

$A^{r1} \sim A^{r3}$ の示す置換もしくは無置換の環形成炭素数6の芳香族炭化水素基としては、例えば、置換もしくは無置換のベンゼン等が挙げられ、 Y 、 $Y^5 \sim Y^7$ 、 $R^1 \sim R^3$ 、 $L^2 \sim L^4$ および $A^1 \sim A^2$ の示す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24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、例えば、置換もしくは無置換のベンゼン、ナフタレン、ビフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレン、トリフェニレン、ペリレン、クリセン、フルオランテン、ベンゾフルオレン、ベンゾトリフェニレン、ベンゾクリセン、アントラセン等の対応する価数の残基が挙げられ、ベンゼン、ナフタレン、ビフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレンが好ましい。

$A^{r1} \sim A^{r3}$ の示す置換もしくは無置換の環形成原子数6の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基としては、例えば、置換もしくは無置換のピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1,3,5-トリアジン等が挙げられ、 Y 、 $Y^5 \sim Y^7$ 、 $R^1 \sim R^3$ 、 $L^2 \sim L^4$ および $A^1 \sim A^2$ の示す置換もしくは無置換の環形成炭素数3～24の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基

としては、例えば、置換もしくは無置換のピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1, 3, 5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンの対応する価数の残基が挙げられ、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、ジヒドロアクリジンが好ましい。また、 R^1 の示す少なくとも1つの置換もしくは無置換の環形成原子数8~24である1価の縮合芳香族複素環基としては、芳香族複素環基の例の中から縮合構造を有する例が挙げられる。

Y 、 $Y^5 \sim Y^7$ 、 $R^1 \sim R^3$ および $L^2 \sim L^4$ の示す炭素数1~20のアルキル基、アルキレン基、3価あるいは4価の飽和炭化水素基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 s -ブチル基、 t -ブチル基、イソブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 n -ノニル基、 n -デシル基、 n -ウンデシル基、 n -ドデシル基、 n -トリデシル基、 n -テトラデシル基、 n -ペンタデシル基、 n -ヘキサデシル基、 n -ヘプタデシル基、 n -オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基等またはこれらを2~4価とした基が挙げられ、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 s -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 n -ノニル基、 n -デシル基、 n -ウンデシル基、 n -ドデシル基、 n -トリデシル基、 n -テトラデシル基、 n -ペンタデシル基、 n -ヘキサデシル基、 n -ヘプタデシル基、 n -オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基が好ましい。

Y 、 $Y^5 \sim Y^7$ 、 $R^1 \sim R^3$ 、 $L^2 \sim L^4$ および $A^1 \sim A^2$ の示す置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シクロアルキレン基、3

価あるいは4価の環状飽和炭化水素基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等またはこれらを2～4価とした基が挙げられ、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

Y、Y⁵～Y⁷の示す炭素数1～20のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、メトキシ基、i-プロポキシ基、n-プロポキシ基、n-ブトキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基等が挙げられ、メトキシ基、エトキシ基、メトキシ基、i-プロポキシ基、n-プロポキシ基が好ましい。

Y、Y⁵～Y⁷、R¹～R³、L²～L⁴およびA¹～A²の示す炭素数1～20の置換シリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基、トリオクチルシリル基、トリスブチルシリル基、ジメチルエチルシリル基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチルプロピルシリル基、ジメチルブチルシリル基、ジメチルターシャリーブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基、フェニルジメチルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、ジフェニルターシャリーブチル基、トリフェニルシリル基等またはこれらを2～3価とした基が挙げられ、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基が好ましい。

Y、Y⁵～Y⁷およびR¹～R³の示す炭素数7～24のアラルキル基としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基等が挙げられる。

[0119] 式(11)～(28)の前記各基に置換してもよい置換基としては、例えば、炭素数1～10のアルキル基(メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1,2,3

ートリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等)、環形成炭素数3~40のシクロアルキル基(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、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等)、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、ヘキシルオキシ基等)、環形成炭素数3~10のシクロアルコキシ基(シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、環形成炭素数6~40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、環形成炭素数3~40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、環形成炭素数6~40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化

水素基で置換されたアミノ基、環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基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。

これらの中でも、炭素数1～6のアルキル基、フェニル基、ピリジル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基が好ましく、置換基の数は1～2が好ましい。

[0120] 式(12)、(14)、(16)、(18)、(20)、(24)～(26)、(28)の化合物において、sが2であると好ましい。

式(13)、(15)、(17)(19)、(21)、(22)、(23)または(27)において、 Y^5 、 Y^6 および Y^7 で表される置換基の合計数が3以下、式(14)、(16)、(18)、(20)、(24)、(25)、(26)、(28)における[]内構造1つに対する Y^5 、 Y^6 および Y^7 で表される置換基の合計数が3以下であると好ましい。

[0121] 式(11)および(12)において、 $Ar^1 \sim Ar^3$ の全てが置換もしくは無置換の環形成炭素数6の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数6の芳香族複素環基である。環形成炭素数6の芳香族炭化水素基、または環形成原子数6の芳香族複素環基は、縮合環の存在により共役系の拡大する場合と比較して、三重項エネルギーを広げることができる。

[0122] 式(11)～(26)において、 X^1 と X^2 、 X^3 と X^4 、 X^5 と X^6 、 X^7 と X^8 、 X^9 と X^{10} 、 X^{11} と X^{12} が、共にN-R¹で表される化合物であると好ましい。Nにより架橋することで、化合物の正孔輸送性が向上し、素子の低電圧化を促すことができる。特に、ホスト材料、正孔輸送材料として好適に用いることができる。

また、R¹の少なくとも1つがジベンゾフラン残基またはカルバゾール残基であると好ましく、R¹の全てがジベンゾフラン残基またはカルバゾール残基であるとさらに好ましい。ジベンゾフランおよびカルバゾールのような電子輸送性の縮合芳香族複素環を結合させることで、ピリミジンのような縮環ではない含窒素複素環に比べて、正孔に対する安定性(耐酸化性)が増加し、

長寿命化につながる。また、ジベンゾフランおよびカルバゾールのような、エネルギーギャップが大きく、電子輸送性の縮合芳香族複素環をNに結合させることで、燐光発光素子として用いた場合の効率低下を防ぎ、正孔に対する安定性（耐酸化性）が増加する。

式（11）または（12）において、 X^1 と X^2 または X^3 と X^4 が、それぞれN-R¹で表され、 X^1 のN-R¹と X^2 のN-R¹、または X^3 のN-R¹と X^4 のN-R¹が異なっていると好ましい。

式（13）から（16）において、 X^5 と X^6 が、それぞれN-R¹で表され、 X^5 のN-R¹と X^6 のN-R¹が異なっていると好ましい。

このように、式（11）～（28）が非対称構造である場合、対称構造とした場合に比べて結晶化を抑制し、薄膜の安定性が増し素子の寿命が向上する。

[0123] 式（13）から（20）における X^5 と X^6 が、共にC R² R³であると好ましい。

また、式（13）、（14）、（17）、（18）のように X^5 と X^6 が、ベンゼン環a、b、cに対して、同じ側にある化合物は、逆側である場合に比べて、三重項エネルギーを若干広げることができるため、発光効率を向上させることができる。 X^5 と X^6 がC R² R³の場合も同様である。

また、式（13）から（20）のように、ベンゼン環a、cがベンゼン環bに対してパラ位に結合することで、電子輸送性を向上させることができ、素子の低電圧化を図ることができる。

なお、ベンゼン環a、cがベンゼン環bに対してメタ位に結合する場合には、パラの位置で結合する場合に比べて、さらに三重項エネルギーを広げることができるため、発光効率を向上させることができる。

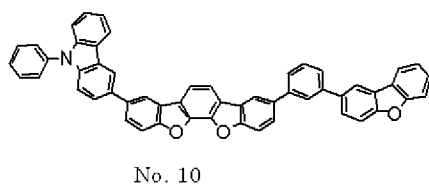
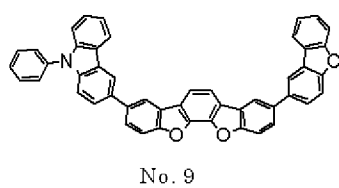
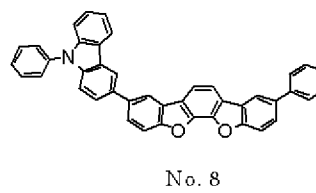
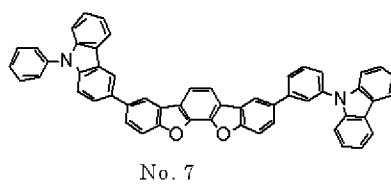
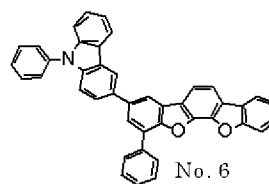
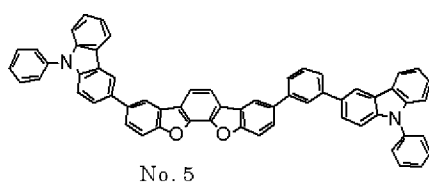
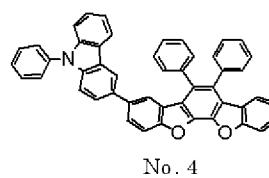
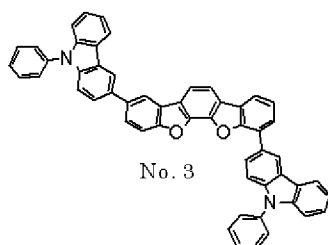
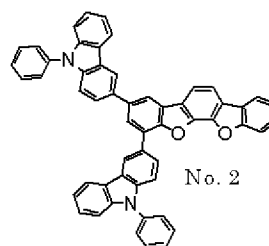
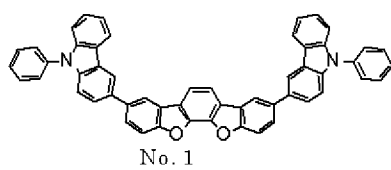
[0124] 式（11）～（28）において、 X^1 と X^2 、 X^3 と X^4 、 X^5 と X^6 、 X^7 と X^8 、 X^9 と X^{10} 、 X^{11} と X^{12} の少なくとも1つが酸素原子であると好ましく、式（13）～（20）においては、 X^5 と X^6 のうち少なくとも一方が酸素原子であって、化合物がベンゾフラン構造を有すると好ましい。さらに、 X^5

とX⁶が共に酸素原子であって、化合物がベンゾフラノジベンゾフラン構造を有すると特に好ましい。酸素原子は、電気陰制度が高く、電子輸送性を向上させることができ、これにより素子の低電圧化を図ることができ、特に、ホスト材料又は電子輸送材料として好適に用いることができる。また、共に酸素原子である場合には、三重項エネルギーを広げることができるので、発光効率を向上させることができる。また、式(11)～(28)において、A¹、A²、L²、L³およびL⁴がカルボニル基を含まない、すなわち末端構造がカルボニル基を含まないことにより、寿命が短くなるのを抑制される。

[0125] 式(11)～(28)で表される化合物の具体例を以下に示すが、本発明は、これら例示化合物に限定されるものではない。

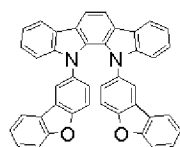
[0126]

[化38]

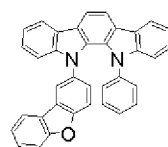


[0127]

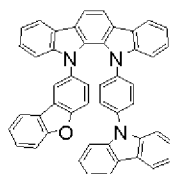
[化39]



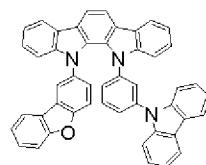
No. 11



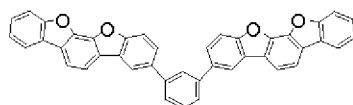
No. 12



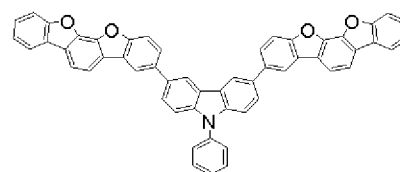
No. 13



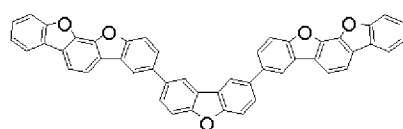
No. 14



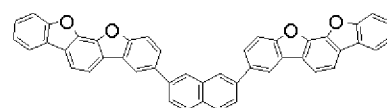
No. 15



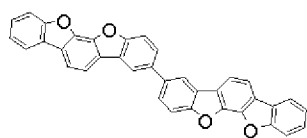
No. 16



No. 17



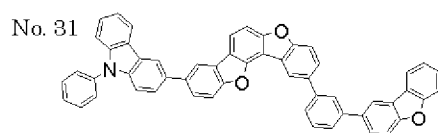
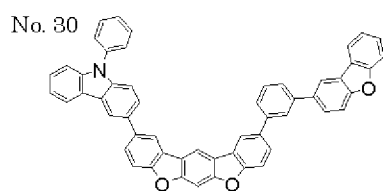
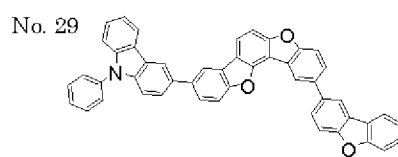
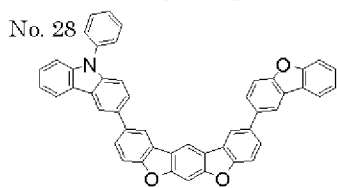
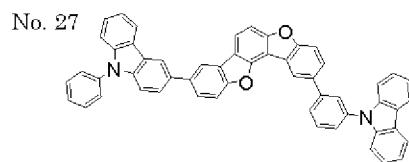
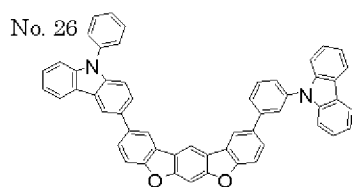
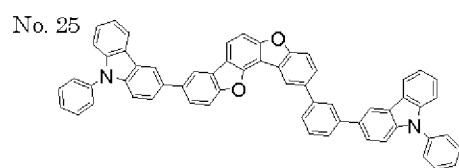
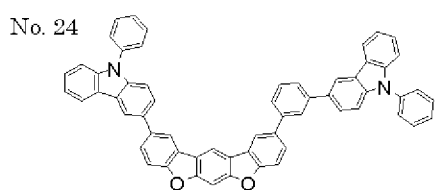
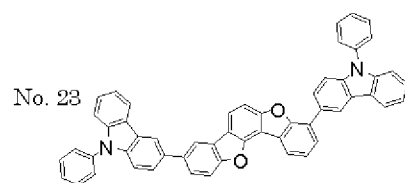
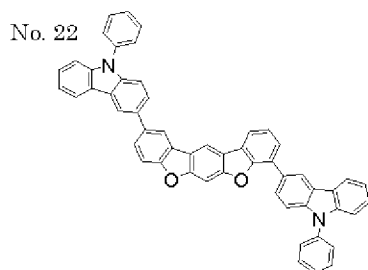
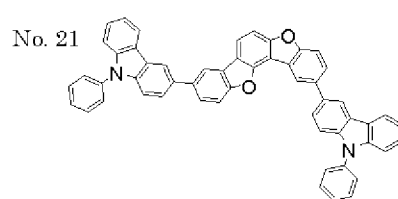
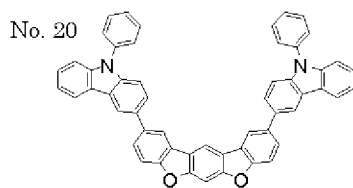
No. 18



No. 19

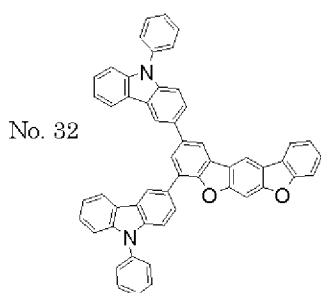
[0128]

[化40]

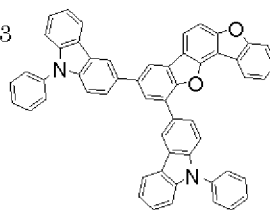


[0129]

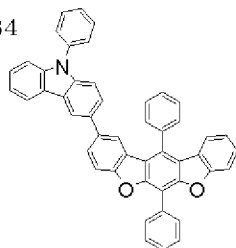
[化41]



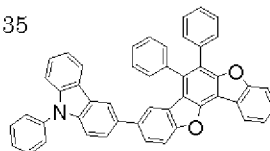
No. 33



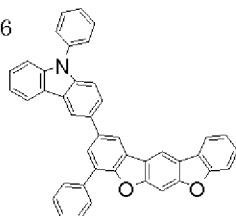
No. 34



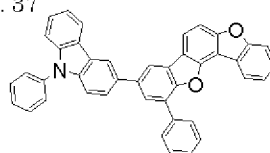
No. 35



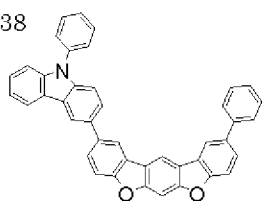
No. 36



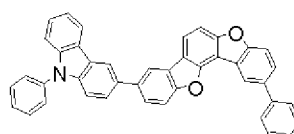
No. 37



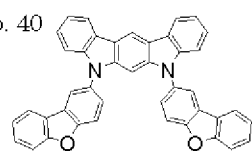
No. 38



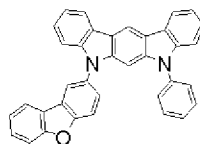
No. 39



No. 40

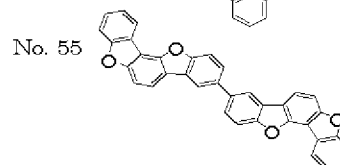
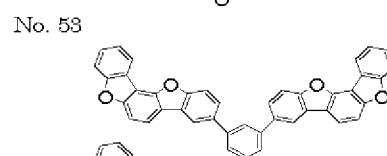
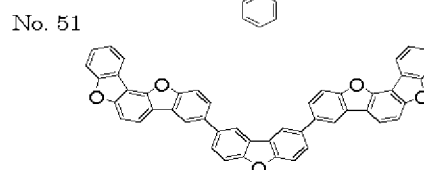
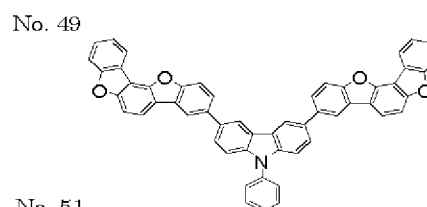
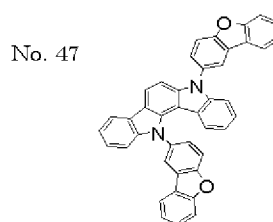
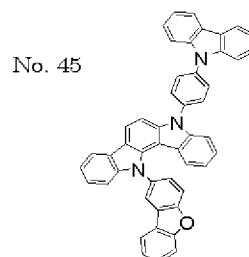
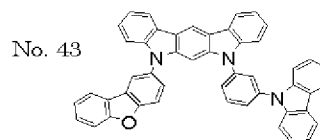
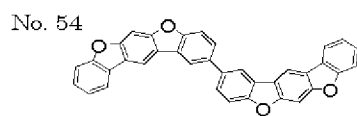
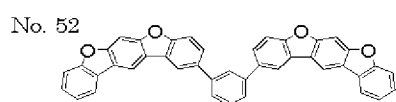
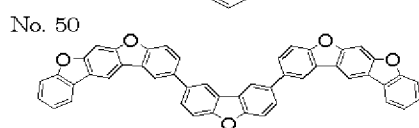
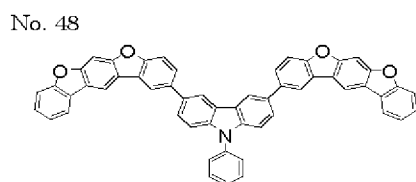
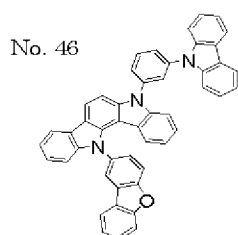
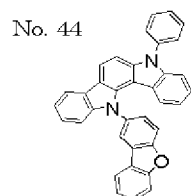
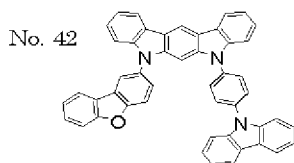


No. 41



[0130]

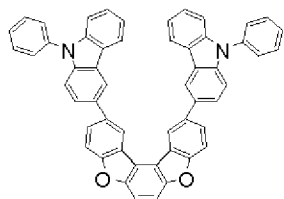
[化42]



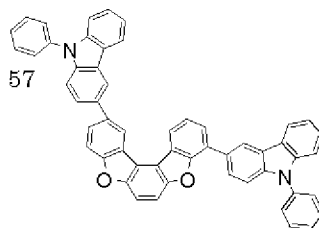
[0131]

[化43]

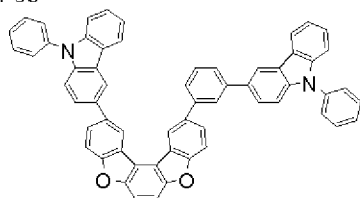
No. 56



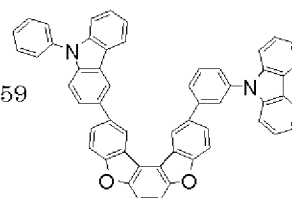
No. 57



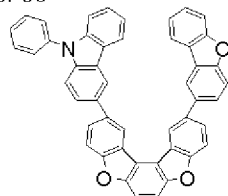
No. 58



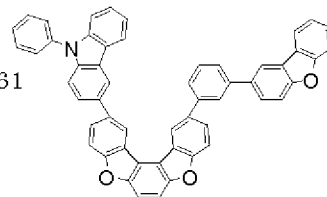
No. 59



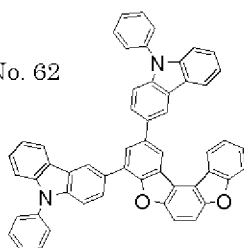
No. 60



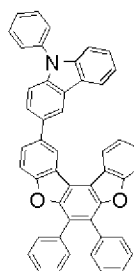
No. 61



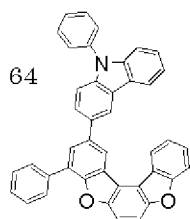
No. 62



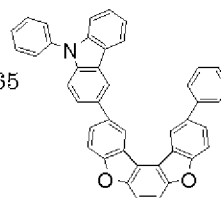
No. 63



No. 64



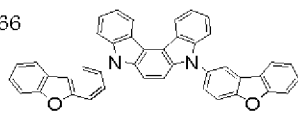
No. 65



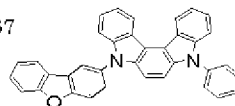
[0132]

[化44]

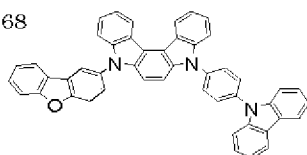
No. 66



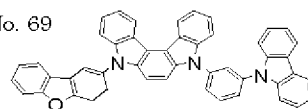
No. 67



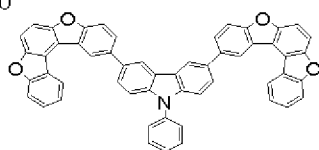
No. 68



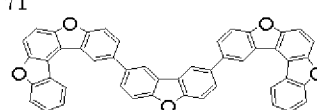
No. 69



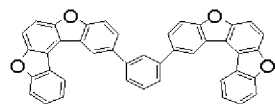
No. 70



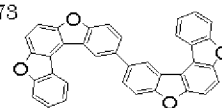
No. 71



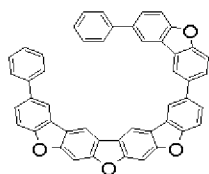
No. 72



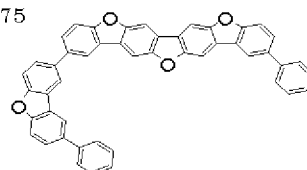
No. 73



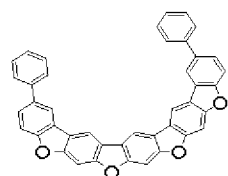
No. 74



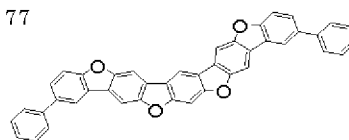
No. 75



No. 76



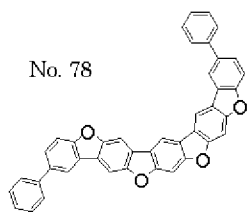
No. 77



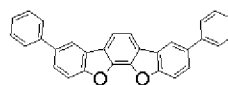
[0133]

[化45]

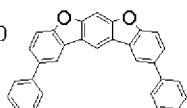
No. 78



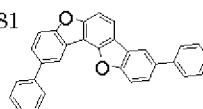
No. 79



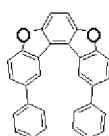
No. 80



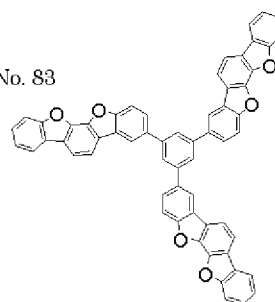
No. 81



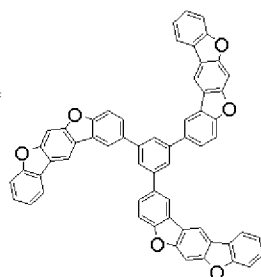
No. 82



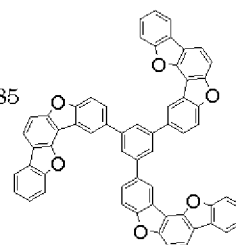
No. 83



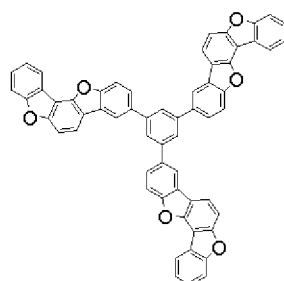
No. 84



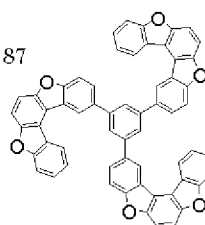
No. 85



No. 86

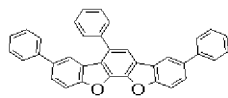


No. 87

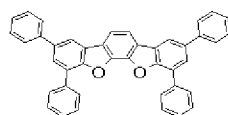


[0134]

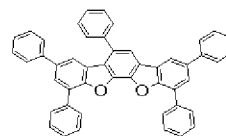
[化46]



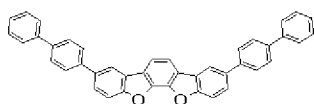
No. 88



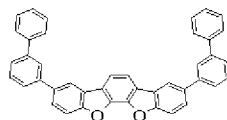
No. 89



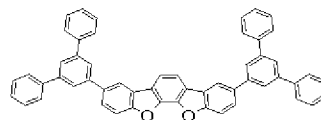
No. 90



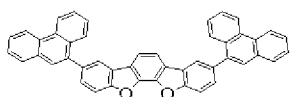
No. 91



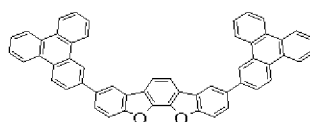
No. 92



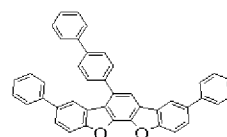
No. 93



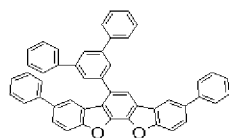
No. 94



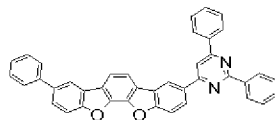
No. 95



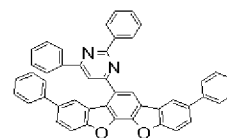
No. 96



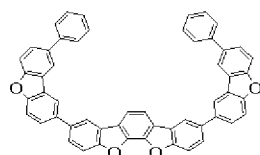
No. 97



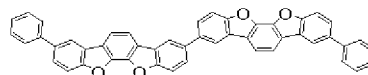
No. 98



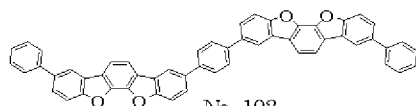
No. 99



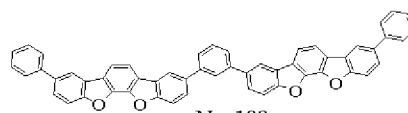
No. 100



No. 101



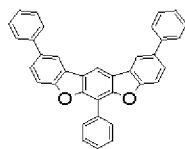
No. 102



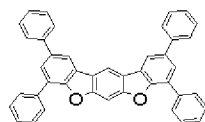
No. 103

[0135]

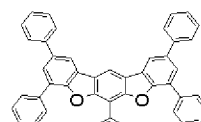
[化47]



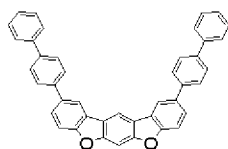
No. 104



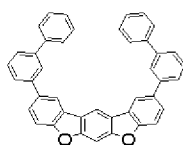
No. 105



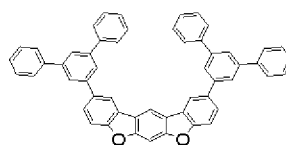
No. 106



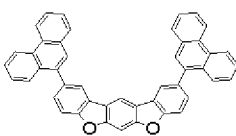
No. 107



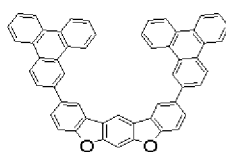
No. 108



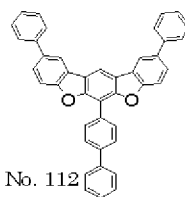
No. 109



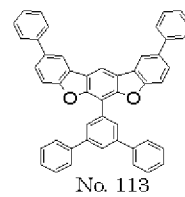
No. 110



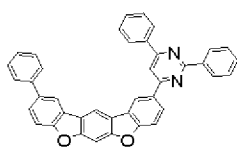
No. 111



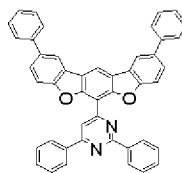
No. 112



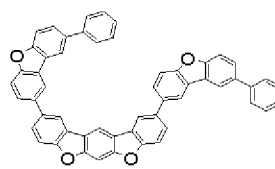
No. 113



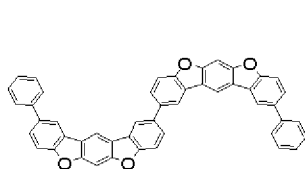
No. 114



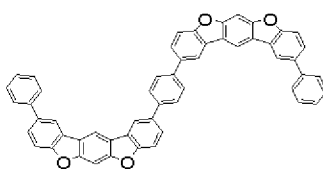
No. 115



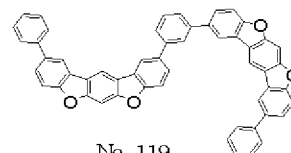
No. 116



No. 117



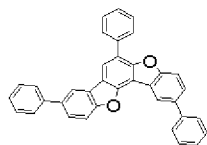
No. 118



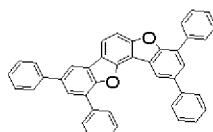
No. 119

[0136]

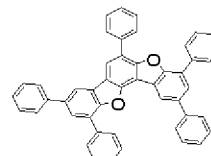
[化48]



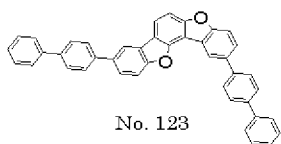
No. 120



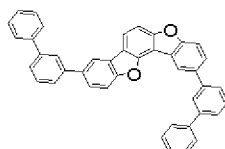
No. 121



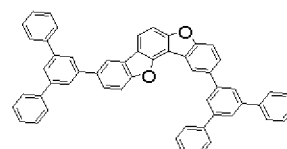
No. 122



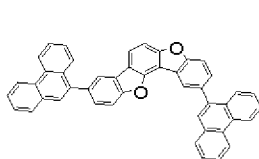
No. 123



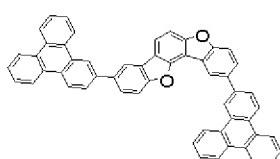
No. 124



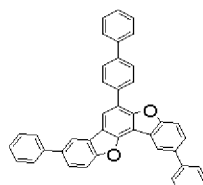
No. 125



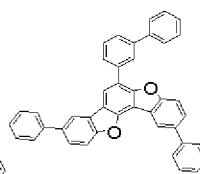
No. 126



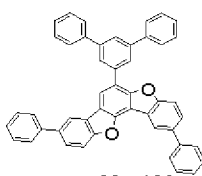
No. 127



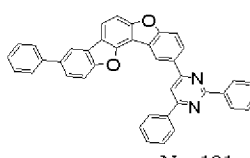
No. 128



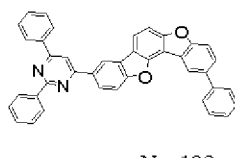
No. 129



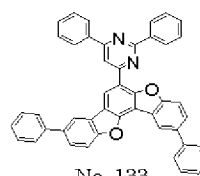
No. 130



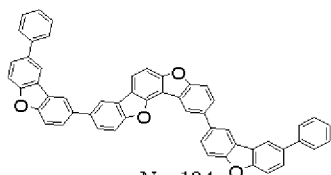
No. 131



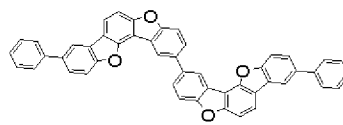
No. 132



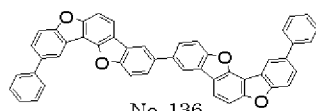
No. 133



No. 134



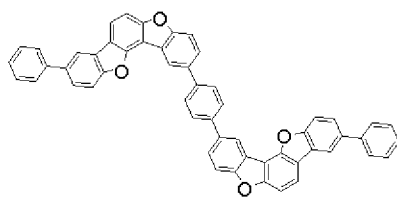
No. 135



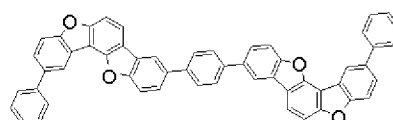
No. 136

[0137]

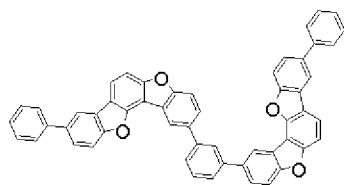
[化49]



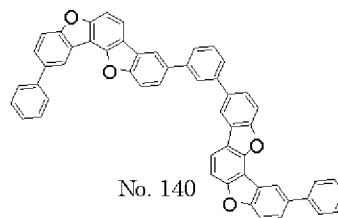
No. 137



No. 138



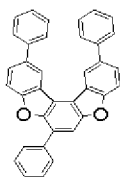
No. 139



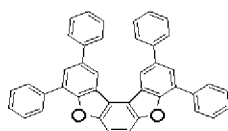
No. 140

[0138]

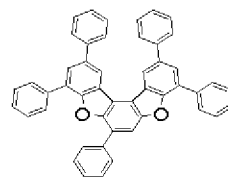
[化50]



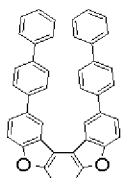
No. 141



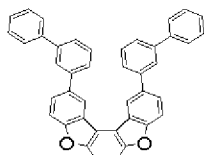
No. 142



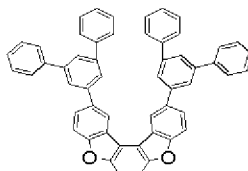
No. 143



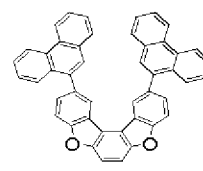
No. 144



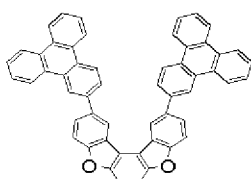
No. 145



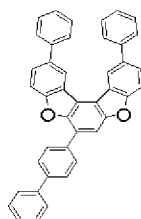
No. 146



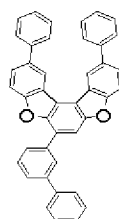
No. 147



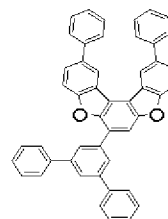
No. 148



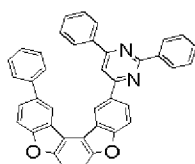
No. 149



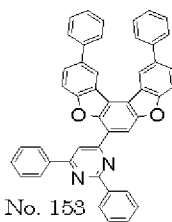
No. 150



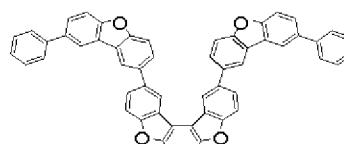
No. 151



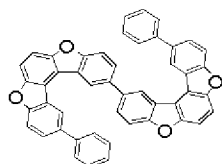
No. 152



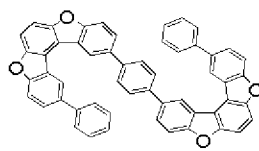
No. 153



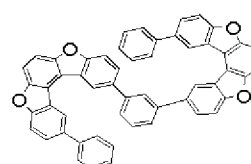
No. 154



No. 155



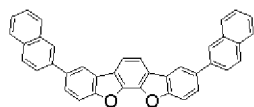
No. 156



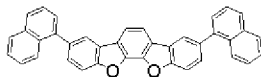
No. 157

[0139]

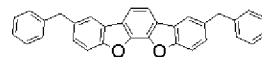
[化51]



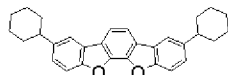
No. 158



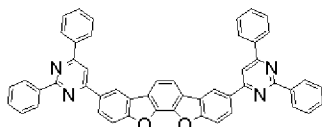
No. 159



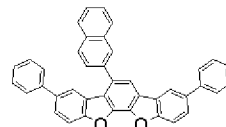
No. 160



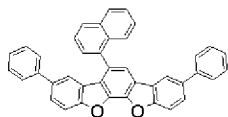
No. 161



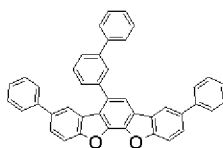
No. 162



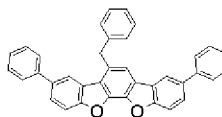
No. 163



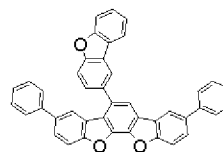
No. 164



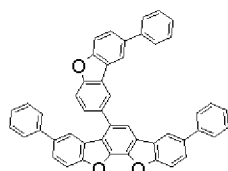
No. 165



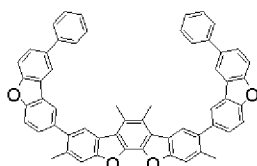
No. 166



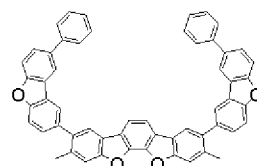
No. 167



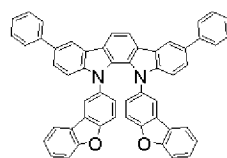
No. 168



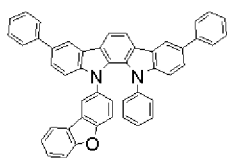
No. 169



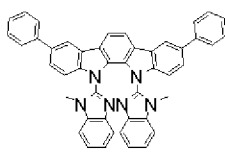
No. 170



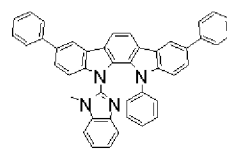
No. 171



No. 172



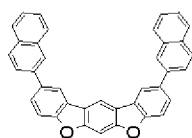
No. 173



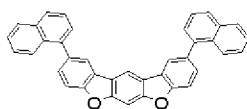
No. 174

[0140]

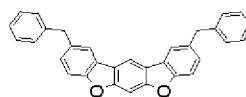
[化52]



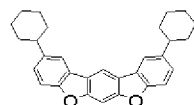
No. 175



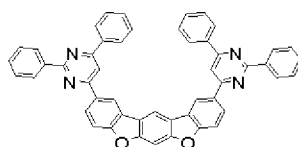
No. 176



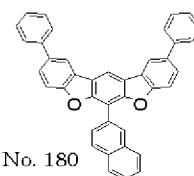
No. 177



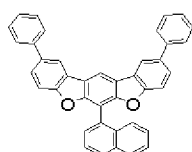
No. 178



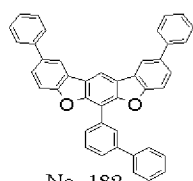
No. 179



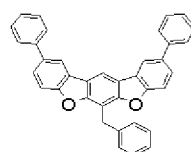
No. 180



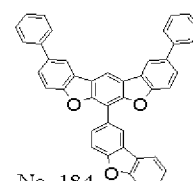
No. 181



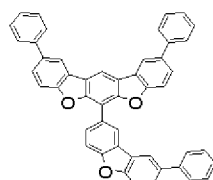
No. 182



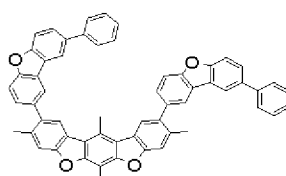
No. 183



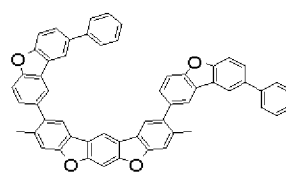
No. 184



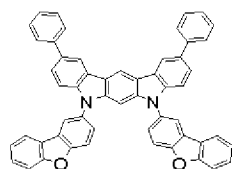
No. 185



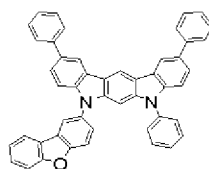
No. 186



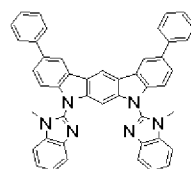
No. 187



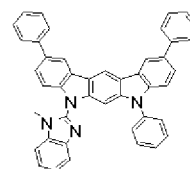
No. 188



No. 189



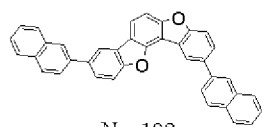
No. 190



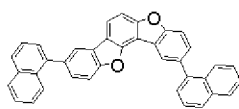
No. 191

[0141]

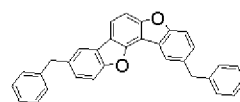
[化53]



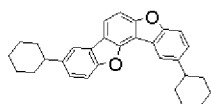
No. 192



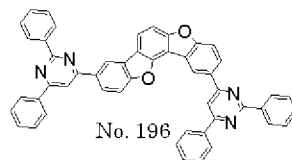
No. 193



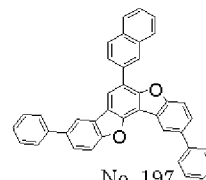
No. 194



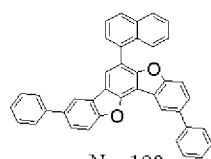
No. 195



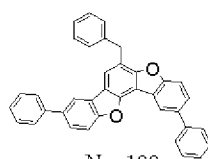
No. 196



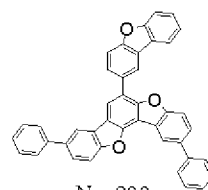
No. 197



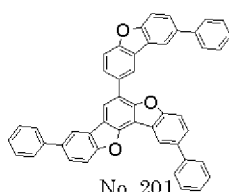
No. 198



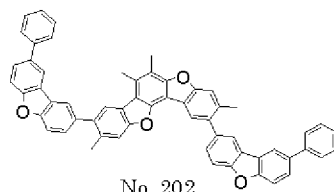
No. 199



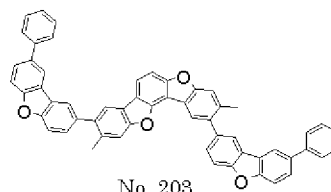
No. 200



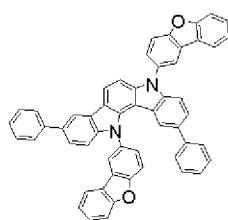
No. 201



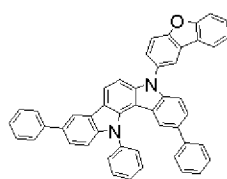
No. 202



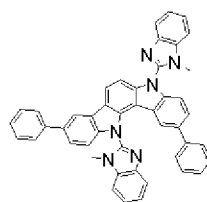
No. 203



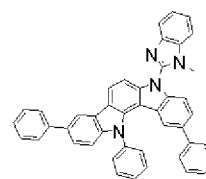
No. 204



No. 205



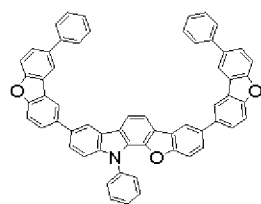
No. 206



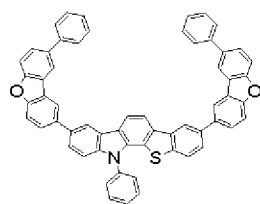
No. 207

[0142]

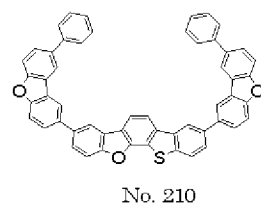
[化54]



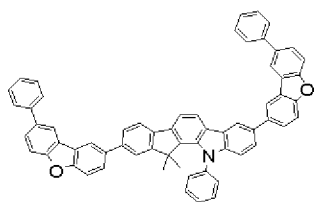
No. 208



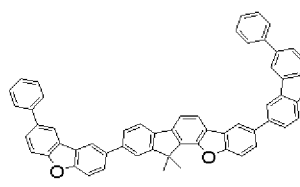
No. 209



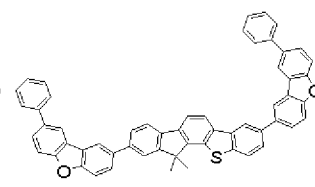
No. 210



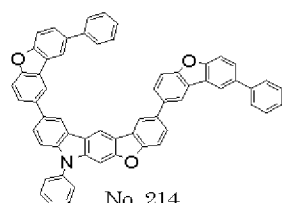
No. 211



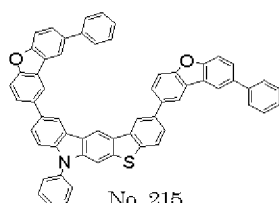
No. 212



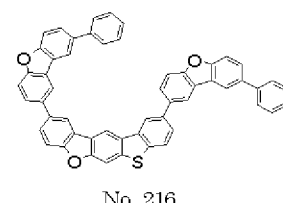
No. 213



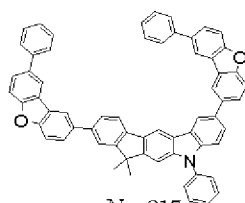
No. 214



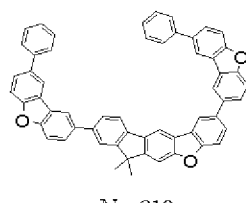
No. 215



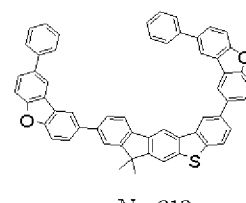
No. 216



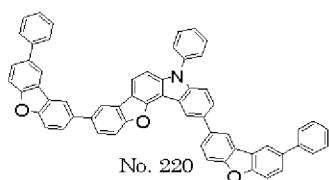
No. 217



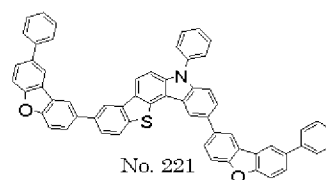
No. 218



No. 219



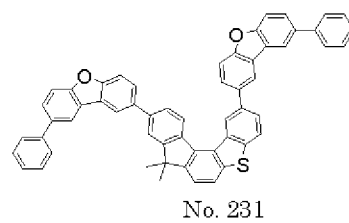
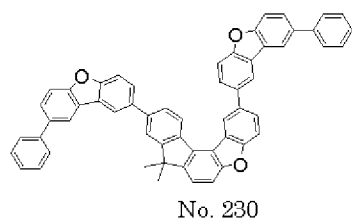
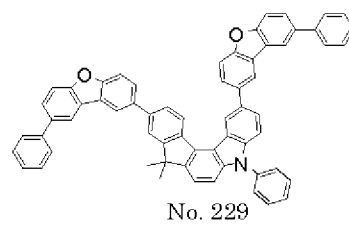
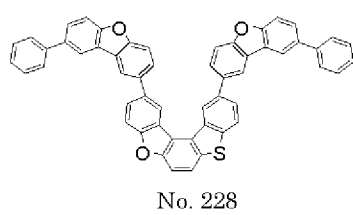
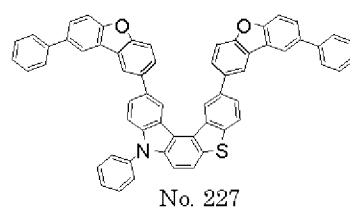
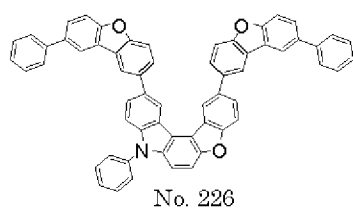
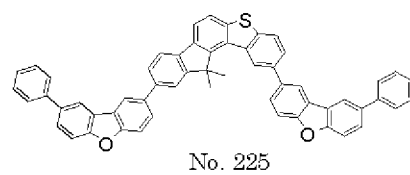
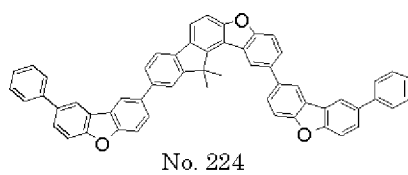
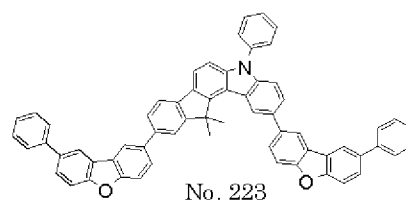
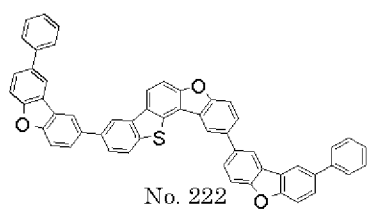
No. 220



No. 221

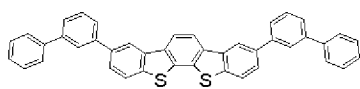
[0143]

[化55]

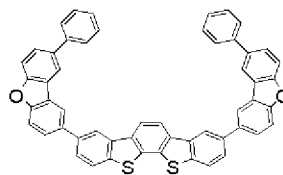


[0144]

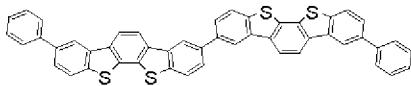
[化56]



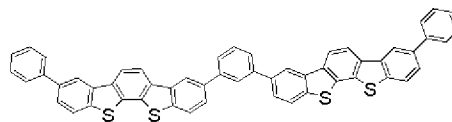
No. 232



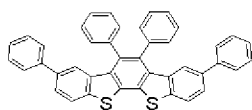
No. 233



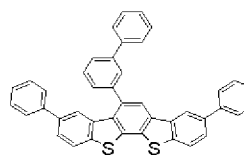
No. 234



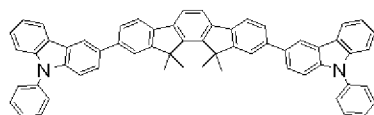
No. 235



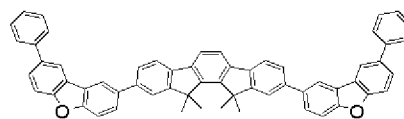
No. 236



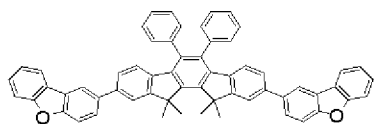
No. 237



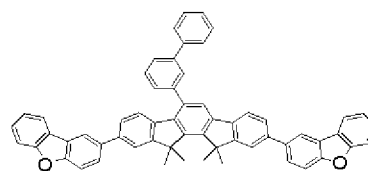
No. 238



No. 239



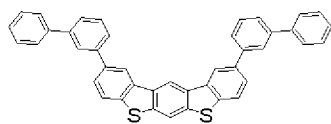
No. 240



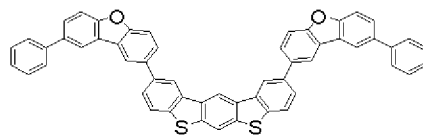
No. 241

[0145]

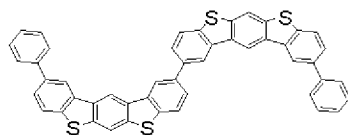
[化57]



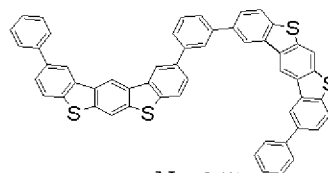
No. 242



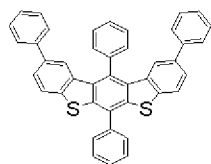
No. 243



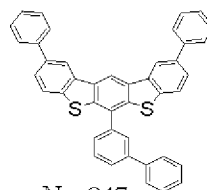
No. 244



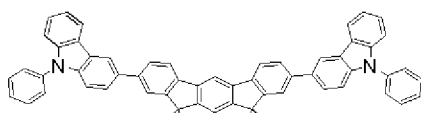
No. 245



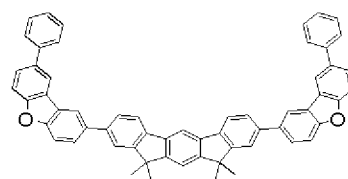
No. 246



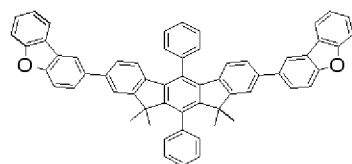
No. 247



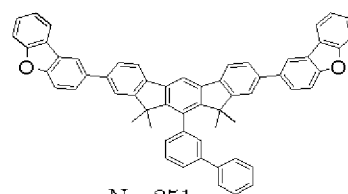
No. 248



No. 249



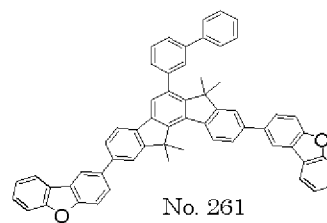
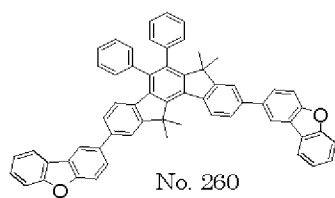
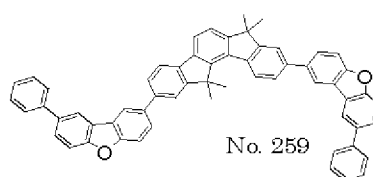
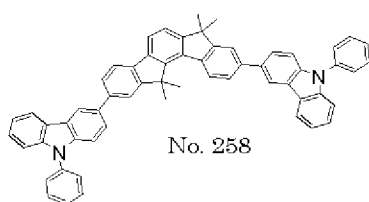
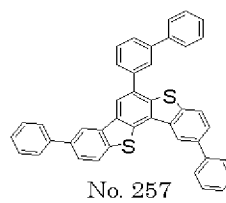
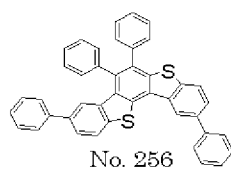
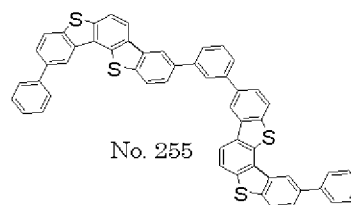
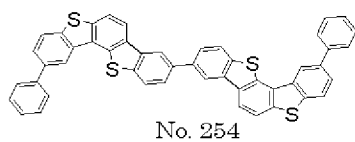
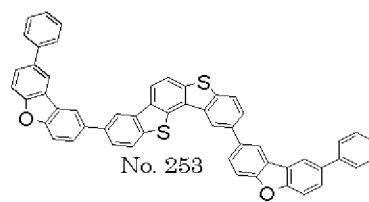
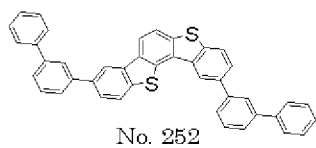
No. 250



No. 251

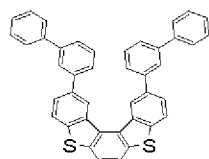
[0146]

[化58]

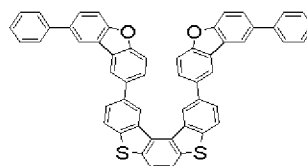


[0147]

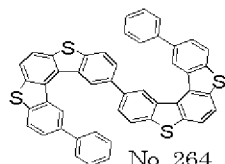
[化59]



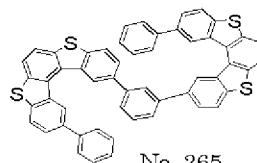
No. 262



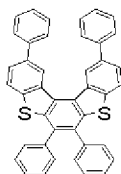
No. 263



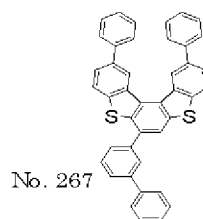
No. 264



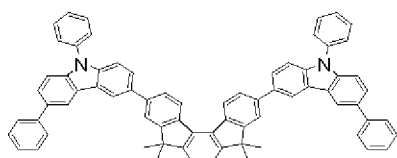
No. 265



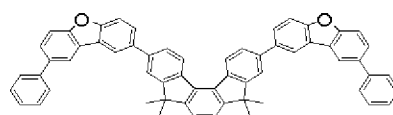
No. 266



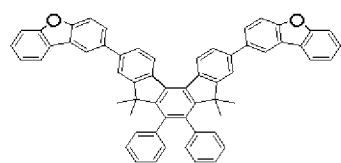
No. 267



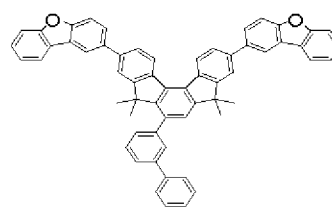
No. 268



No. 269



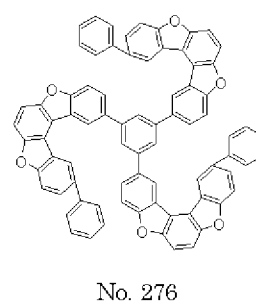
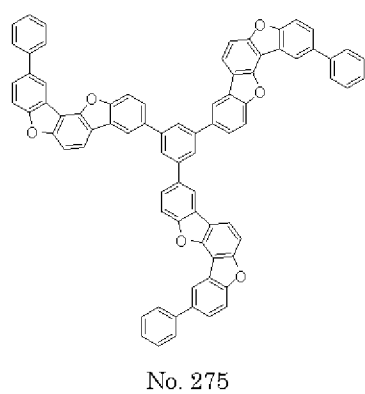
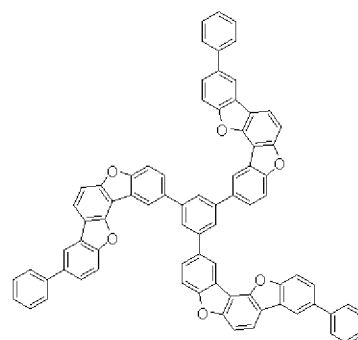
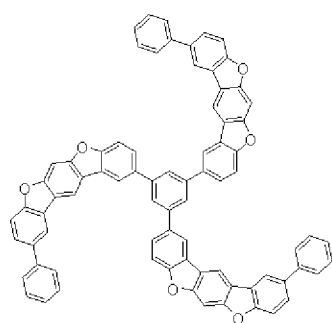
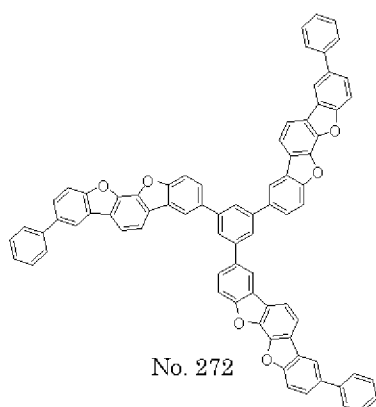
No. 270



No. 271

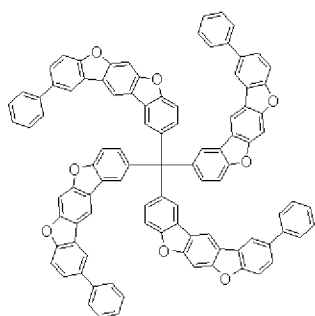
[0148]

[化60]

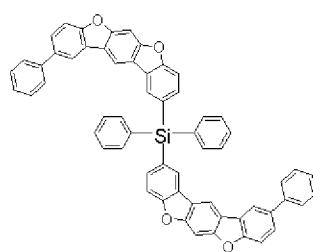


[0149]

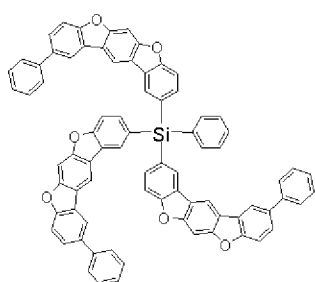
[化61]



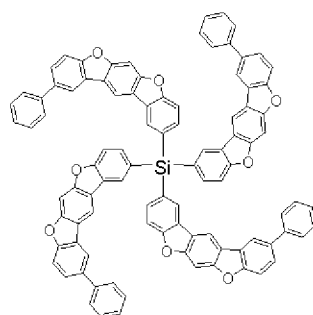
No. 277



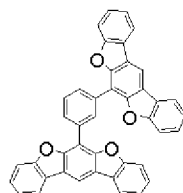
No. 278



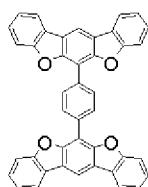
No. 279



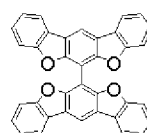
No. 280



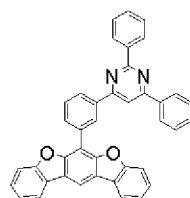
No. 281



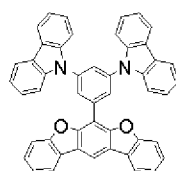
No. 282



No. 283



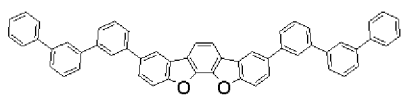
No. 284



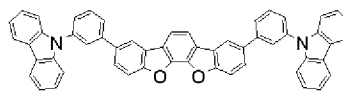
No. 285

[0150]

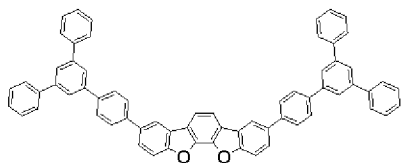
[化62]



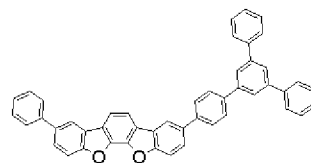
No. 286



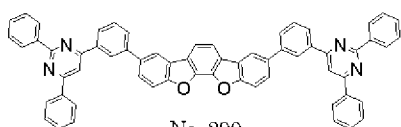
No. 287



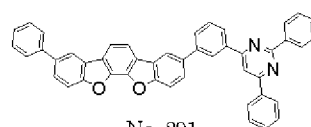
No. 288



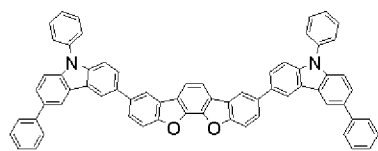
No. 289



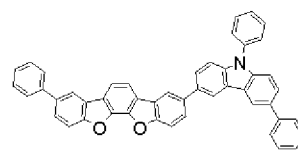
No. 290



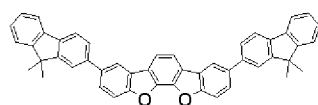
No. 291



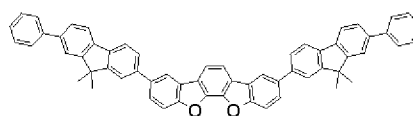
No. 292



No. 293



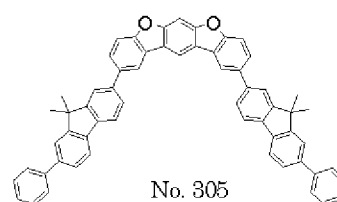
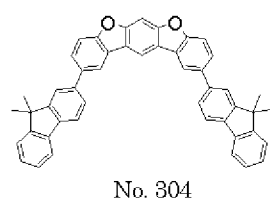
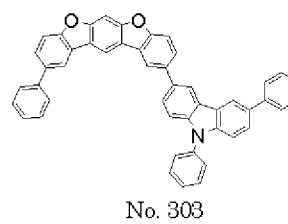
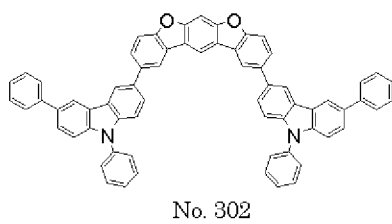
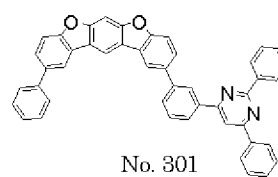
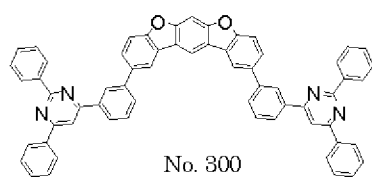
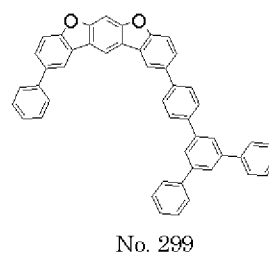
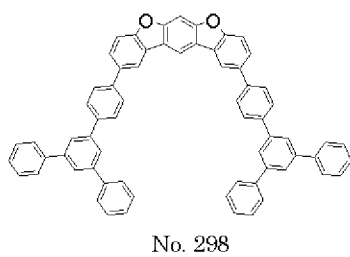
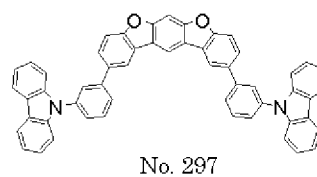
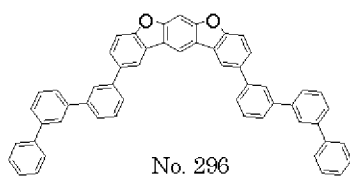
No. 294



No. 295

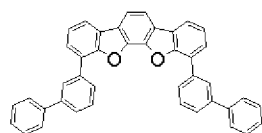
[0151]

[化63]

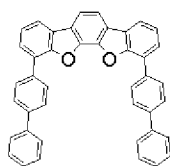


[0152]

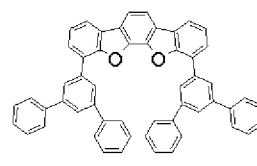
[化64]



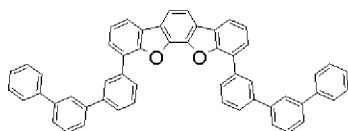
No. 306



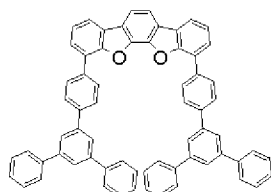
No. 307



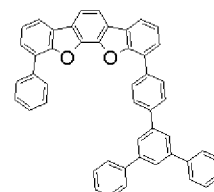
No. 308



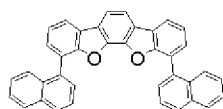
No. 309



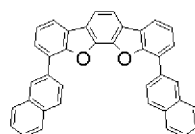
No. 310



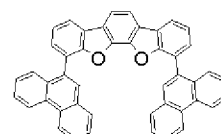
No. 311



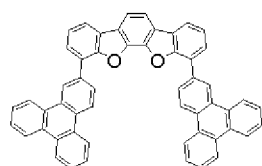
No. 312



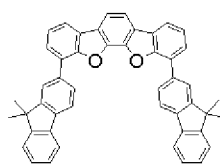
No. 313



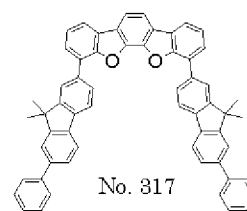
No. 314



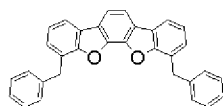
No. 315



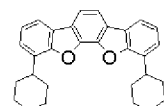
No. 316



No. 317



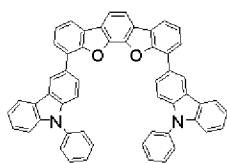
No. 318



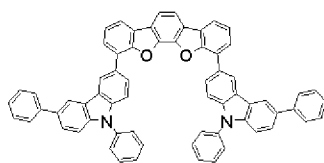
No. 319

[0153]

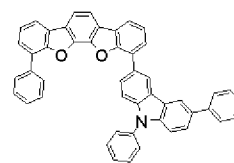
[化65]



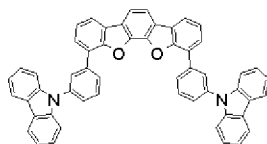
No. 320



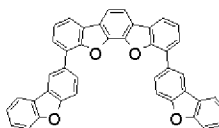
No. 321



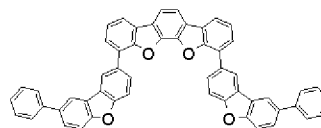
No. 322



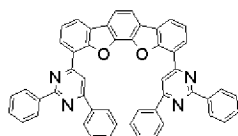
No. 323



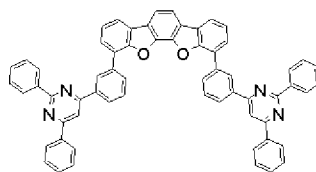
No. 324



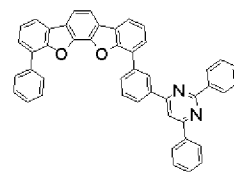
No. 325



No. 326



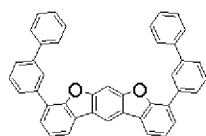
No. 327



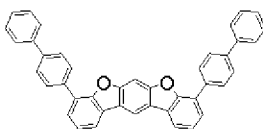
No. 328

[0154]

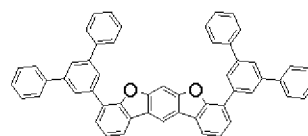
[化66]



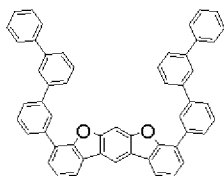
No. 329



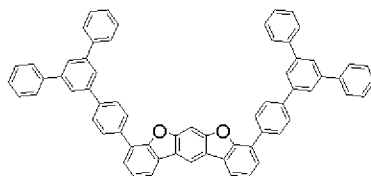
No. 330



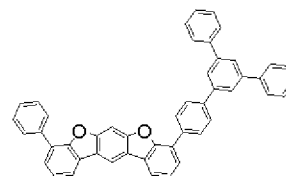
No. 331



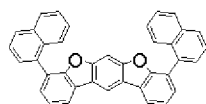
No. 332



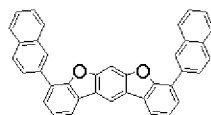
No. 333



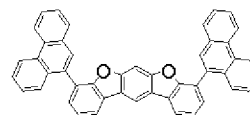
No. 334



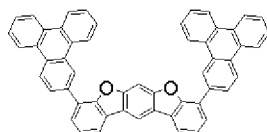
No. 335



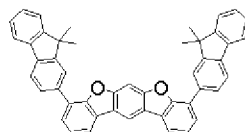
No. 336



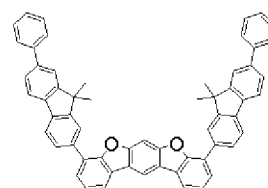
No. 337



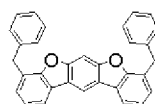
No. 338



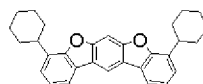
No. 339



No. 340



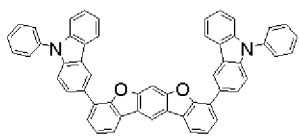
No. 341



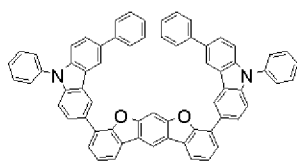
No. 342

[0155]

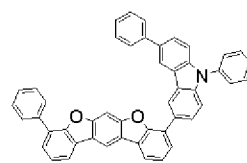
[化67]



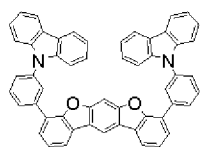
No. 343



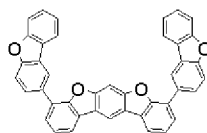
No. 344



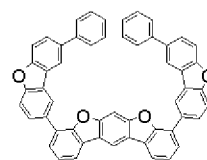
No. 345



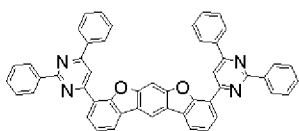
No. 346



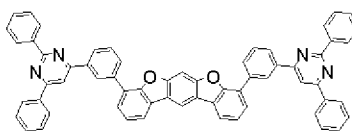
No. 347



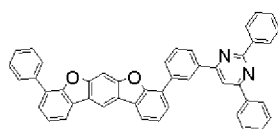
No. 348



No. 349



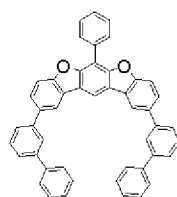
No. 350



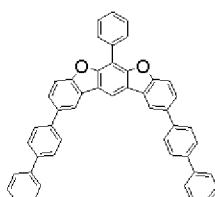
No. 351

[0156]

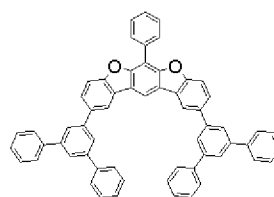
[化68]



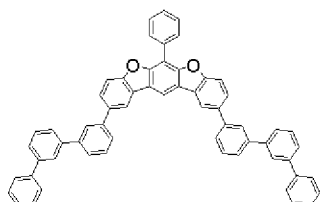
No. 352



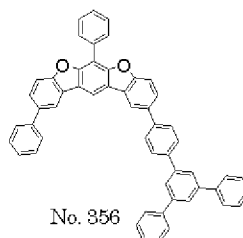
No. 353



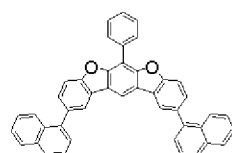
No. 354



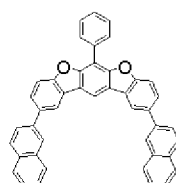
No. 355



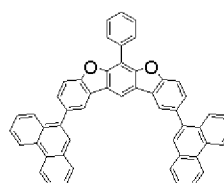
No. 356



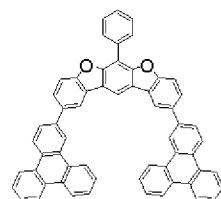
No. 357



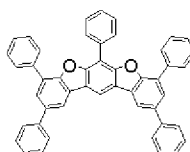
No. 358



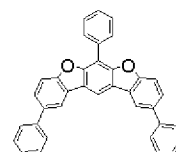
No. 359



No. 360



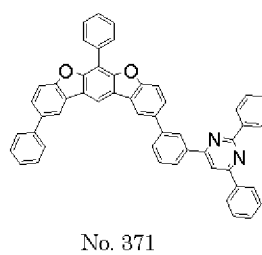
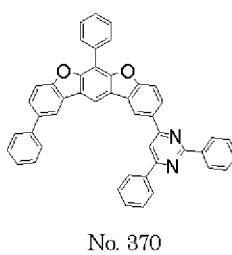
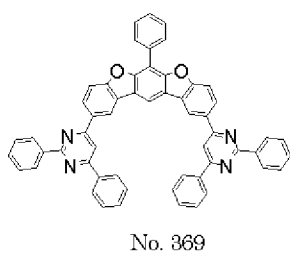
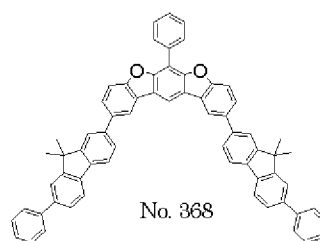
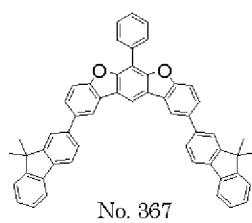
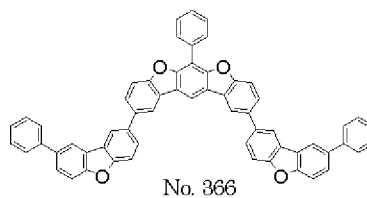
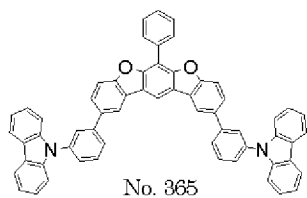
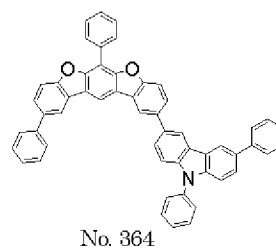
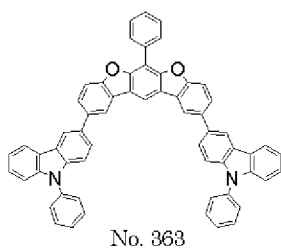
No. 361



No. 362

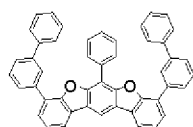
[0157]

[化69]

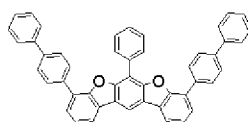


[0158]

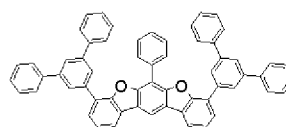
[化70]



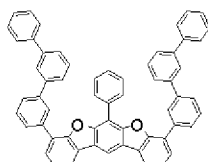
No. 372



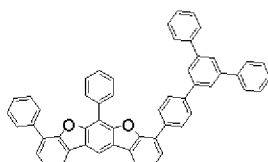
No. 373



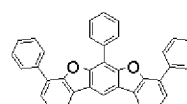
No. 374



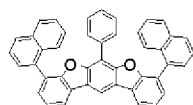
No. 375



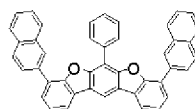
No. 376



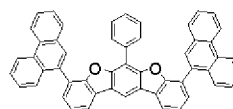
No. 377



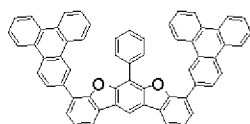
No. 378



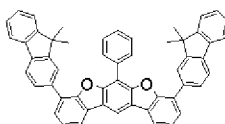
No. 379



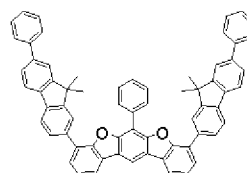
No. 380



No. 381



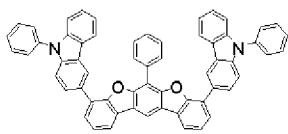
No. 382



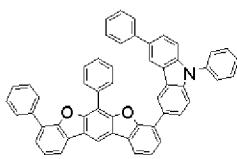
No. 383

[0159]

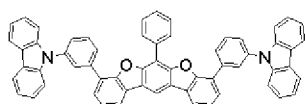
[化71]



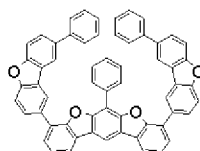
No. 384



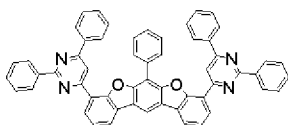
No. 385



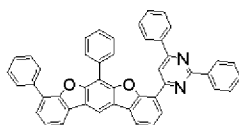
No. 386



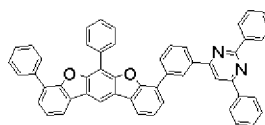
No. 387



No. 388



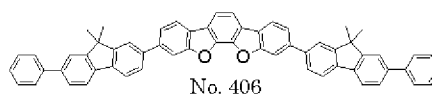
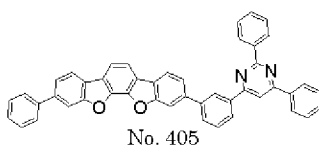
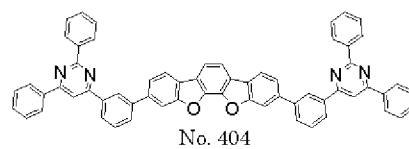
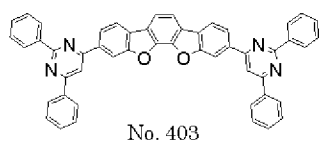
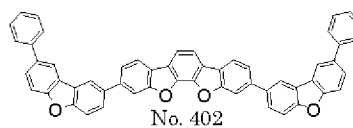
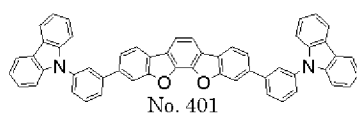
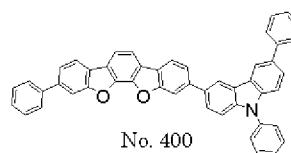
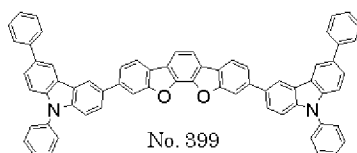
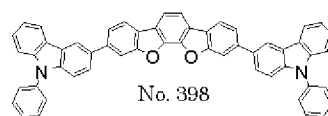
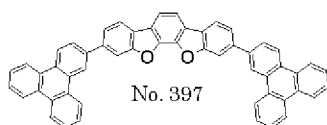
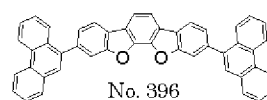
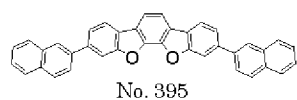
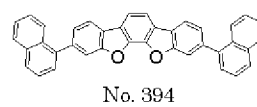
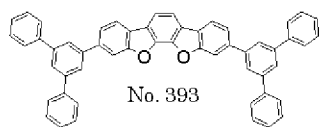
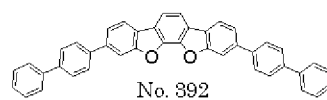
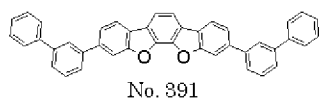
No. 389



No. 390

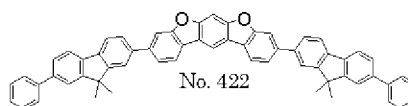
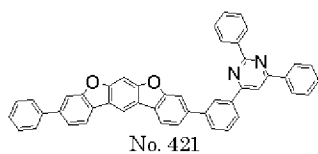
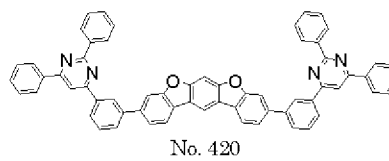
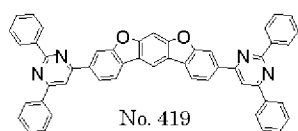
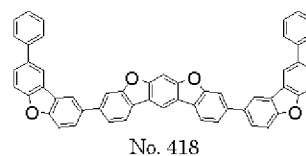
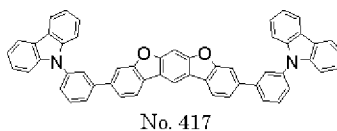
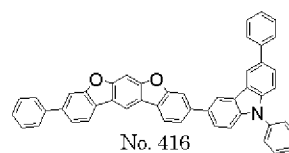
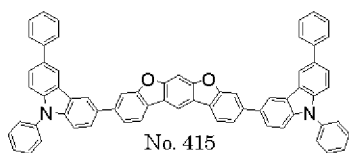
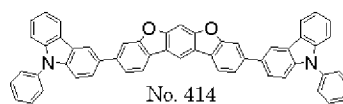
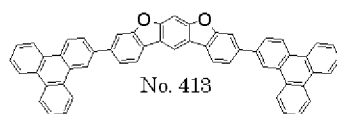
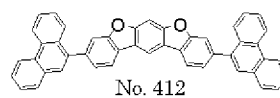
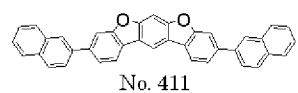
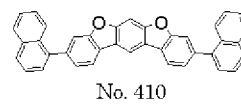
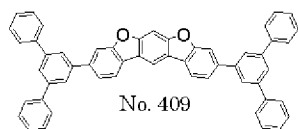
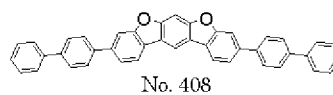
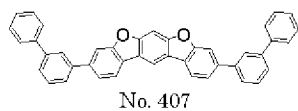
[0160]

[化72]



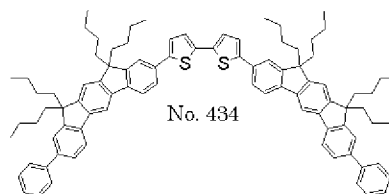
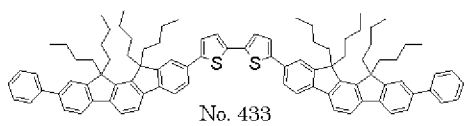
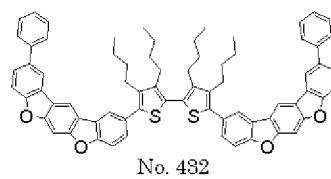
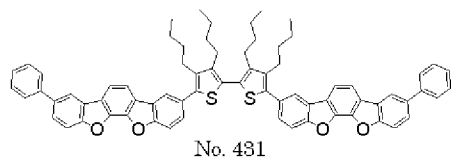
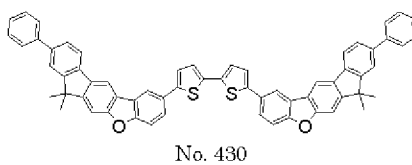
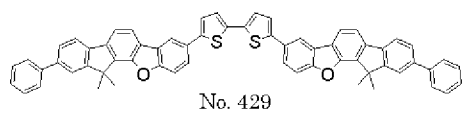
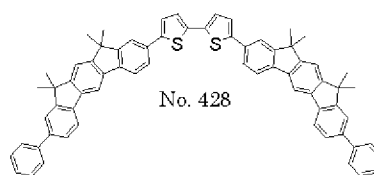
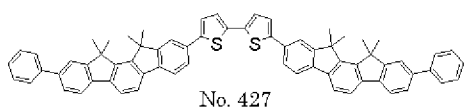
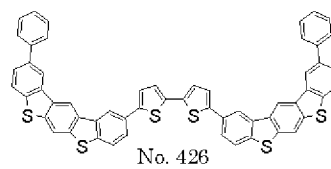
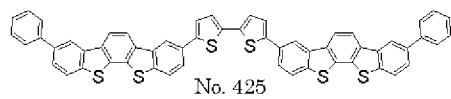
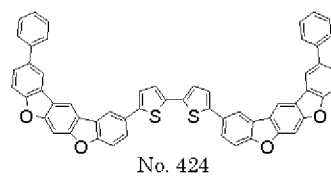
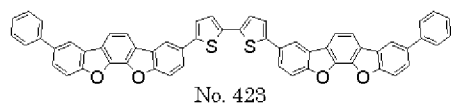
[0161]

[化73]



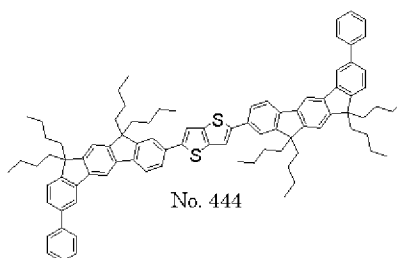
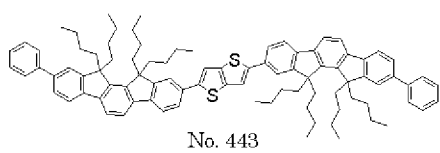
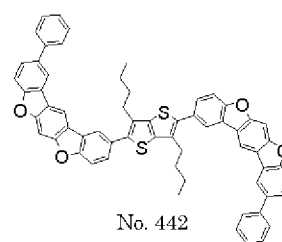
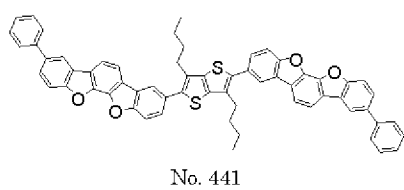
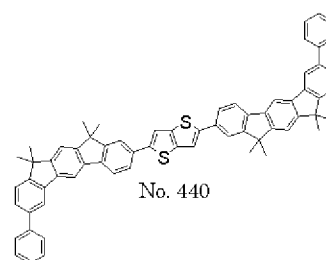
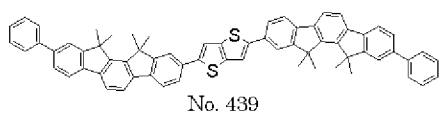
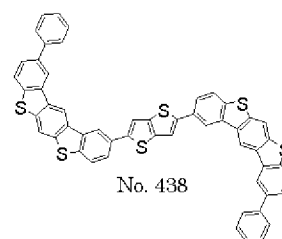
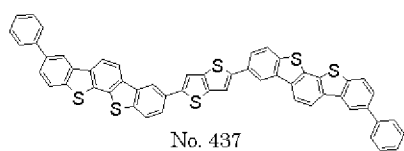
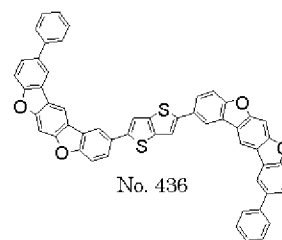
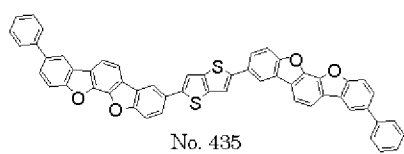
[0162]

[化74]



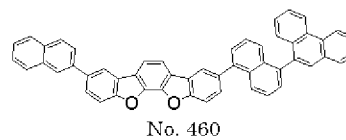
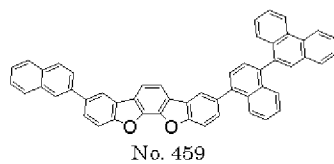
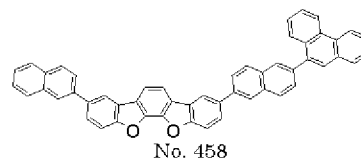
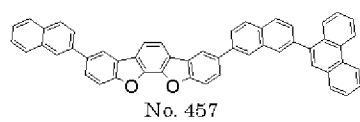
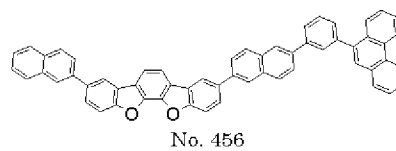
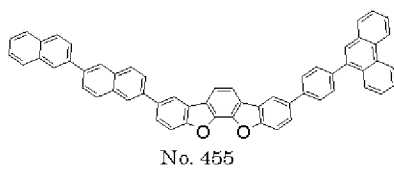
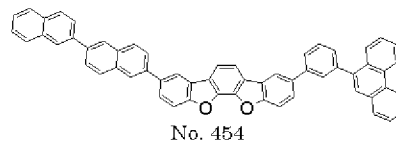
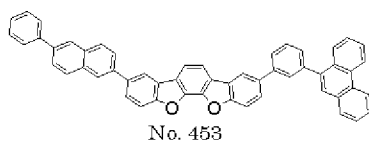
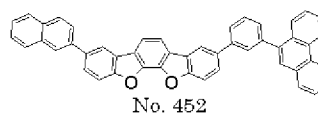
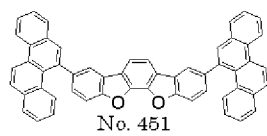
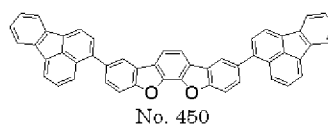
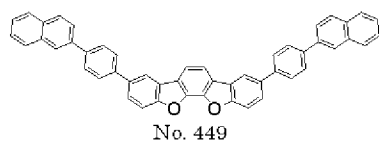
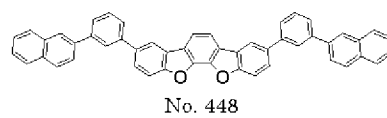
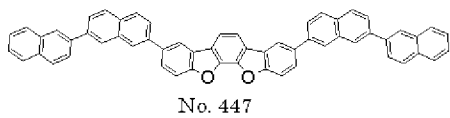
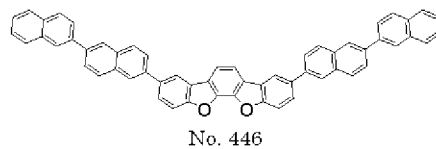
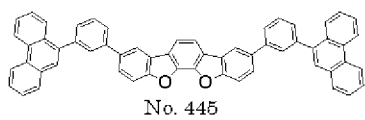
[0163]

[化75]



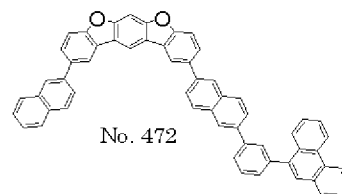
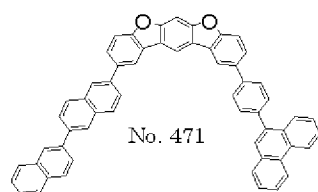
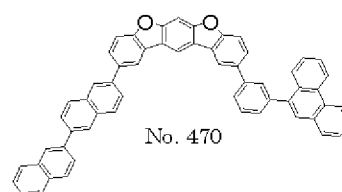
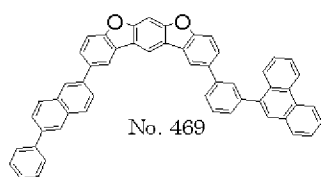
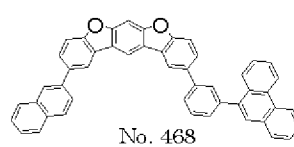
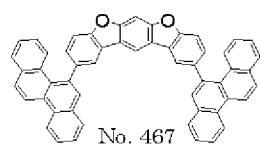
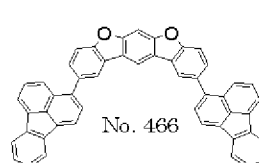
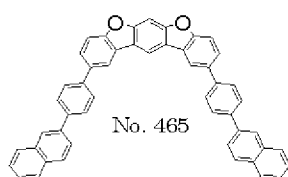
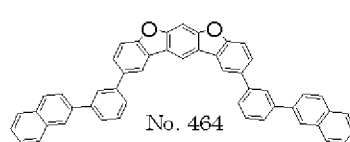
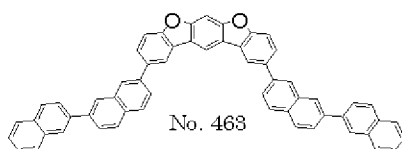
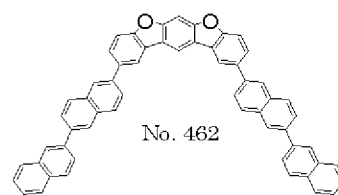
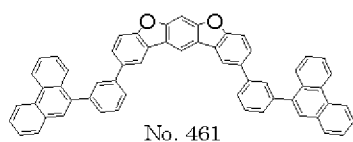
[0164]

[化76]



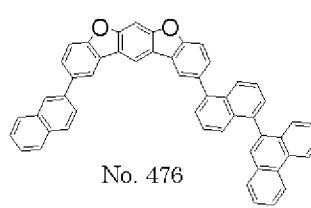
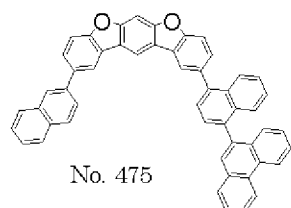
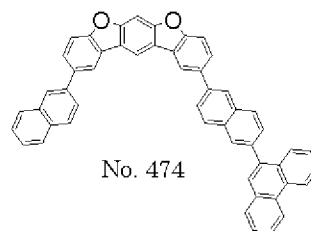
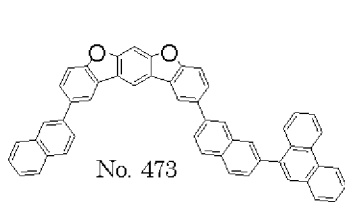
[0165]

[化77]

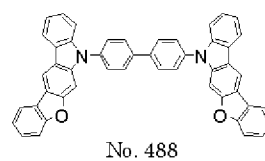
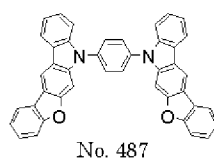
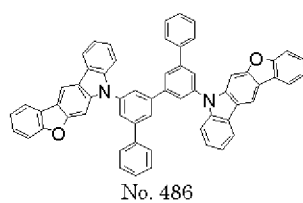
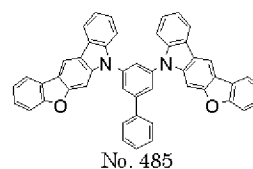
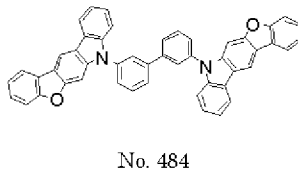
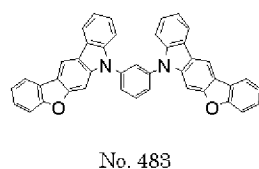
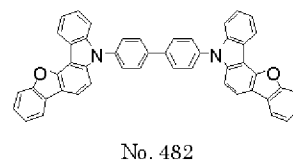
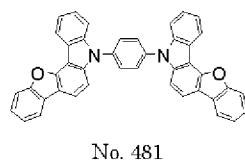
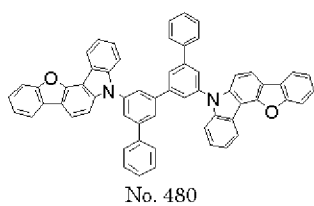
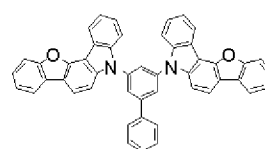
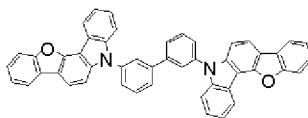
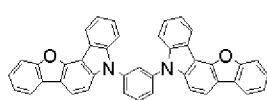


[0166]

[化78]

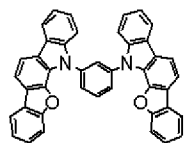


[0167] [化79]

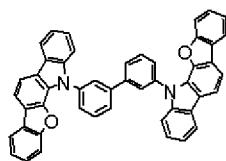


[0168]

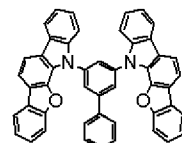
[化80]



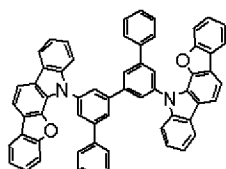
No. 489



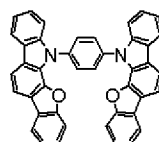
No. 490



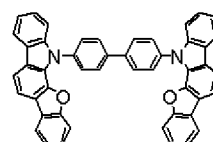
No. 491



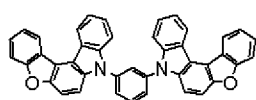
No. 492



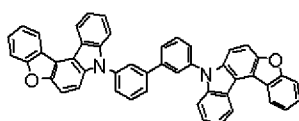
No. 493



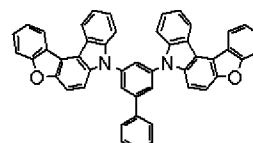
No. 494



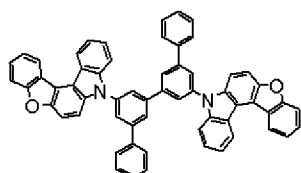
No. 495



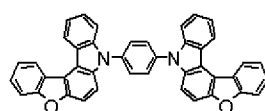
No. 496



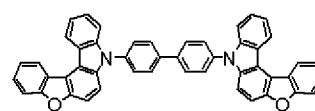
No. 497



No. 498



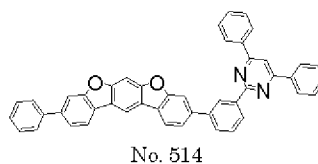
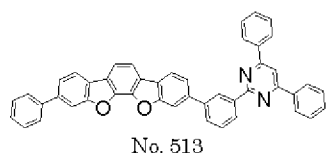
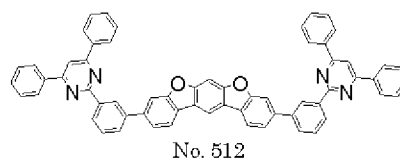
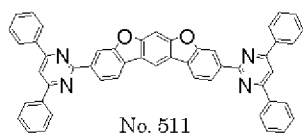
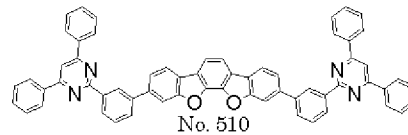
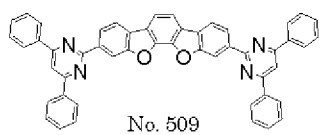
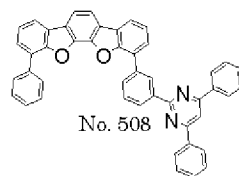
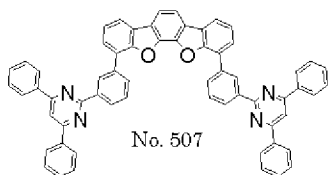
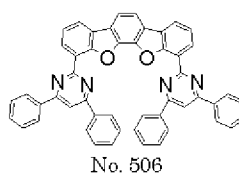
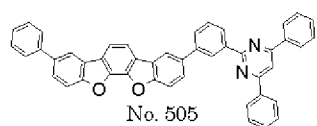
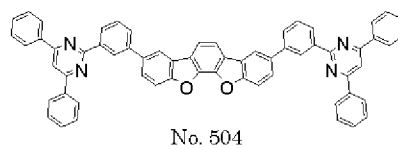
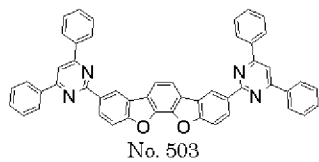
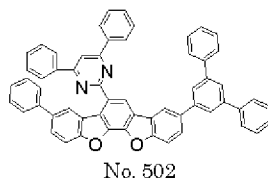
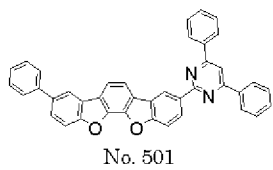
No. 499



No. 500

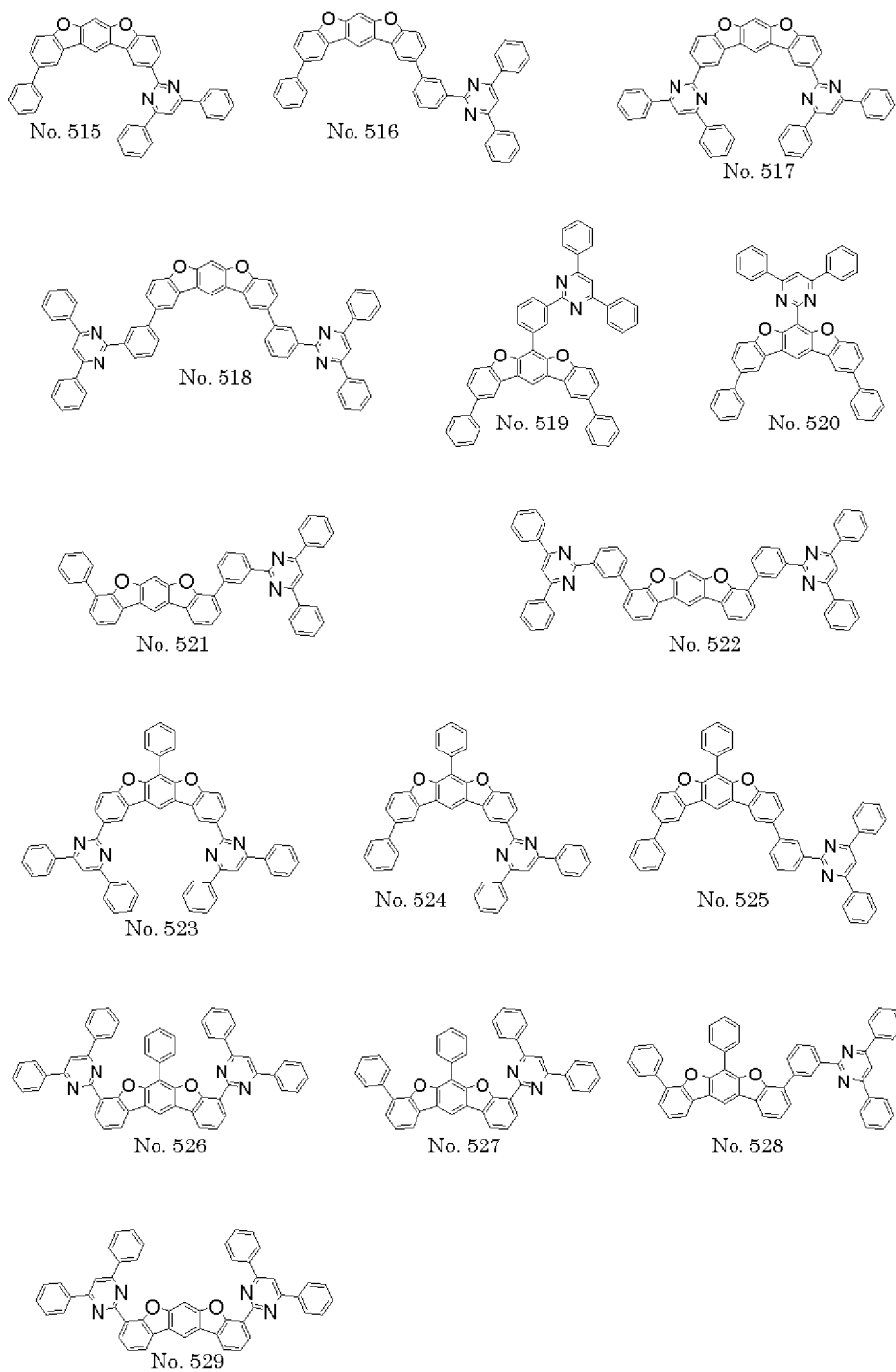
[0169]

[化81]



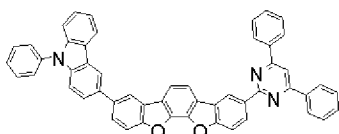
[0170]

[化82]

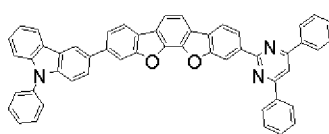


[0171]

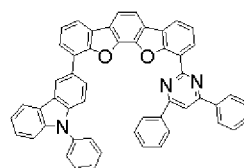
[化83]



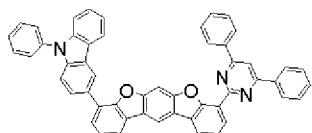
No. 530



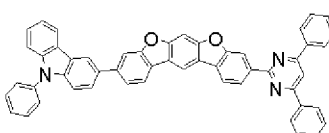
No. 531



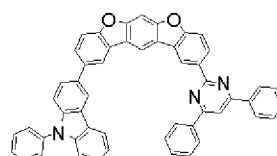
No. 532



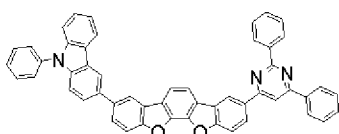
No. 533



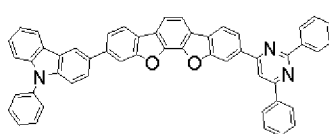
No. 534



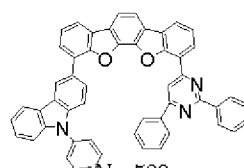
No. 535



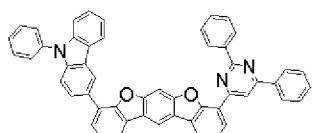
No. 536



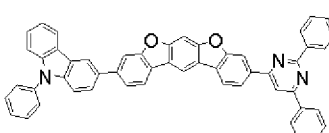
No. 537



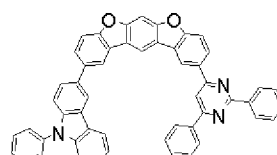
No. 538



No. 539



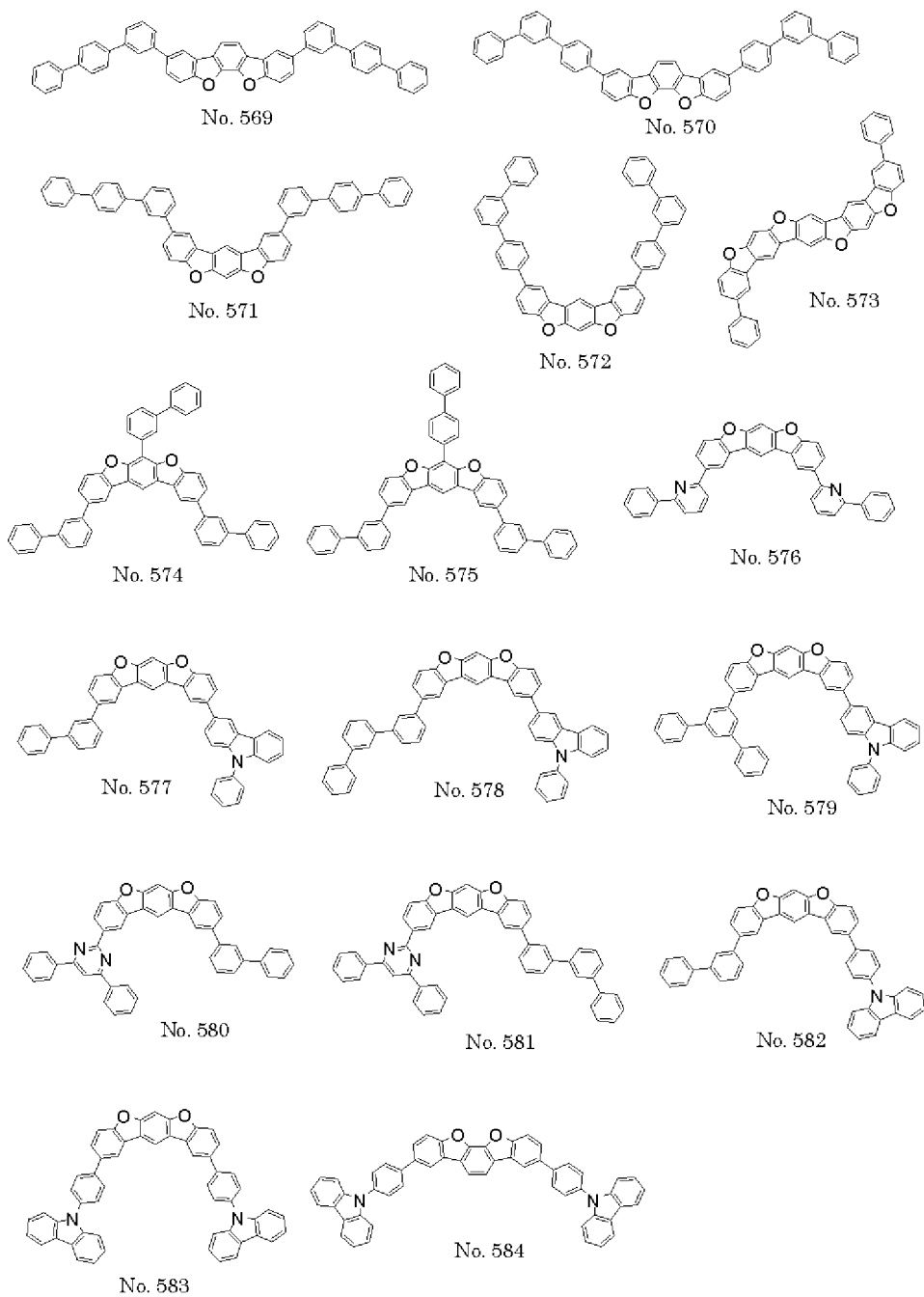
No. 540



No. 541

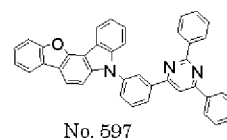
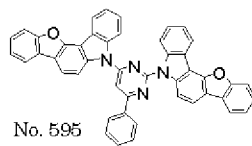
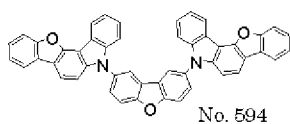
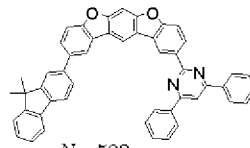
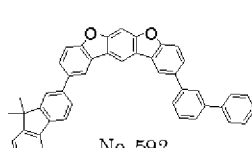
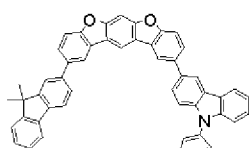
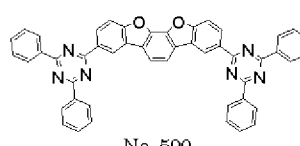
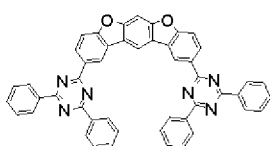
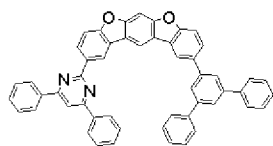
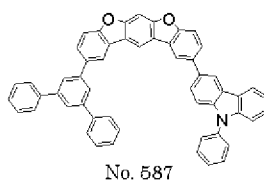
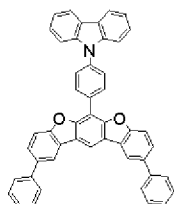
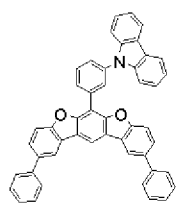
[0172]

[化84]



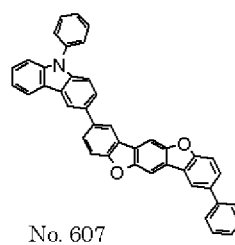
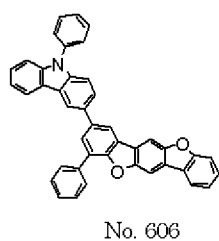
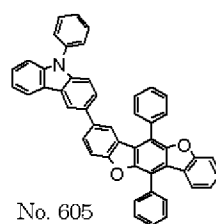
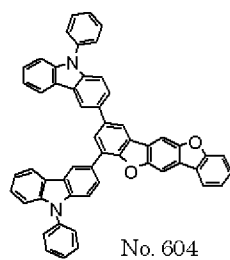
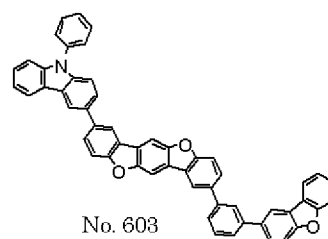
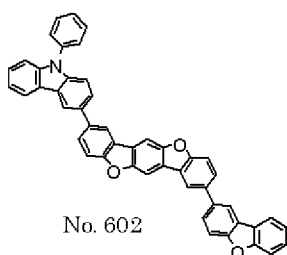
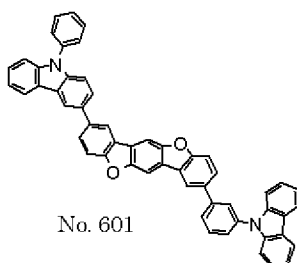
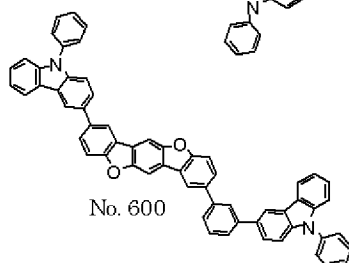
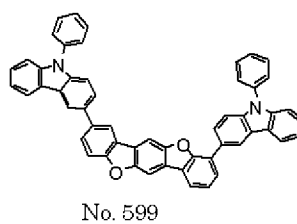
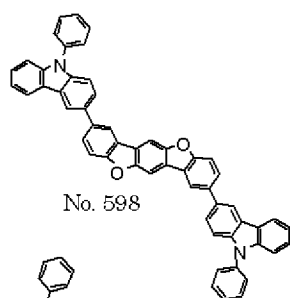
[0173]

[化85]



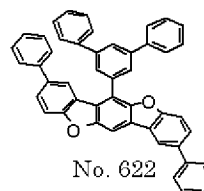
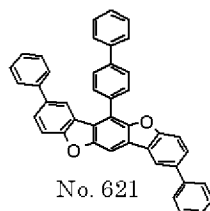
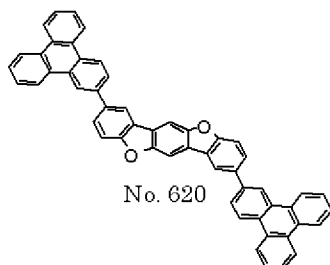
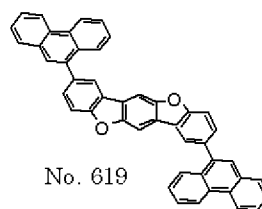
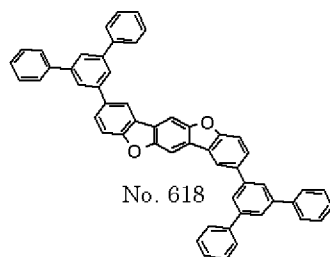
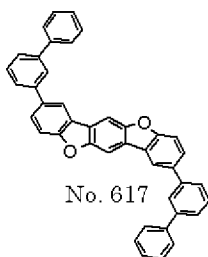
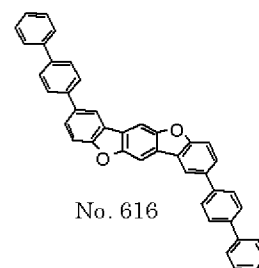
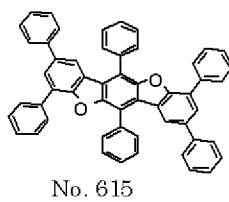
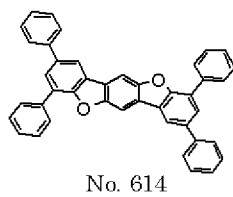
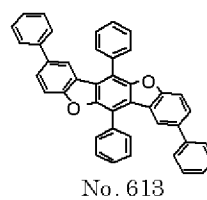
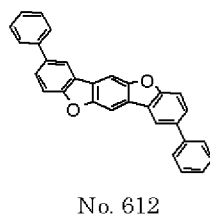
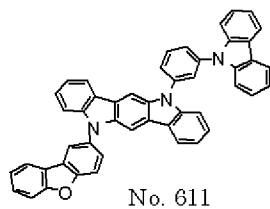
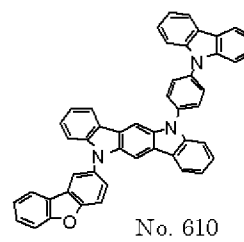
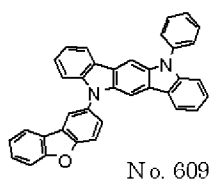
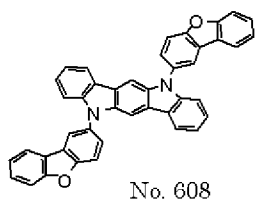
[0174]

[化86]



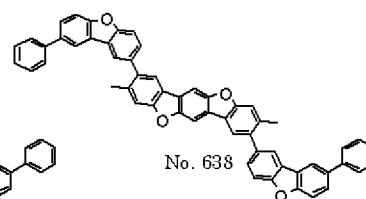
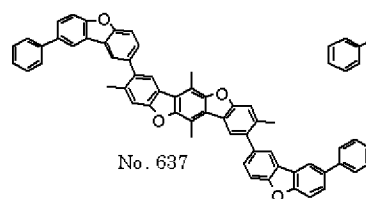
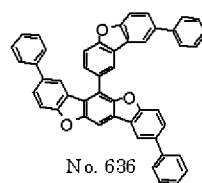
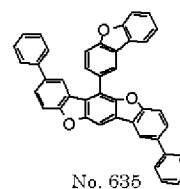
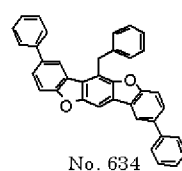
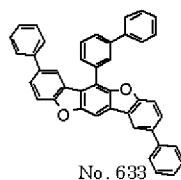
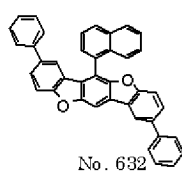
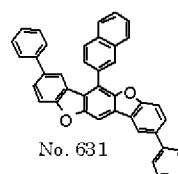
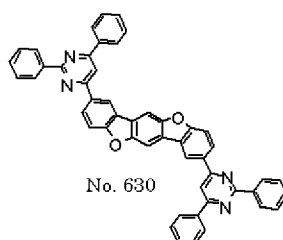
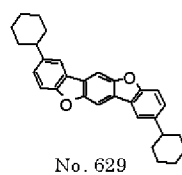
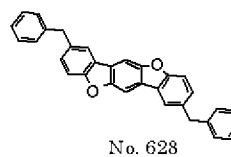
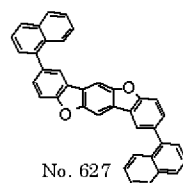
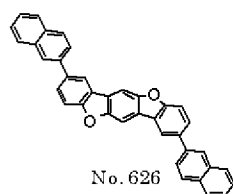
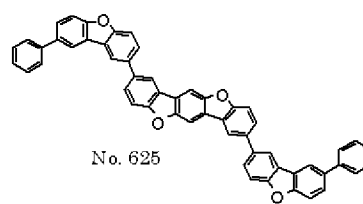
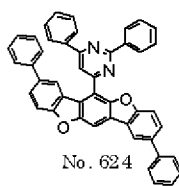
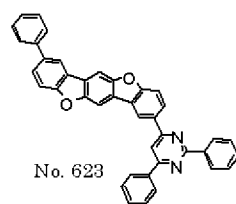
[0175]

[化87]



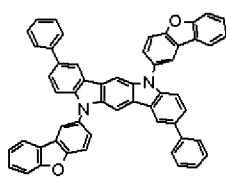
[0176]

[化88]

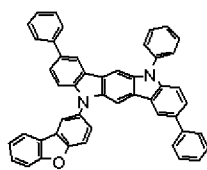


[0177]

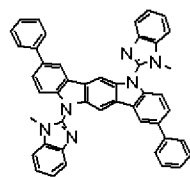
[化89]



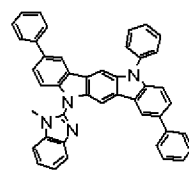
No. 639



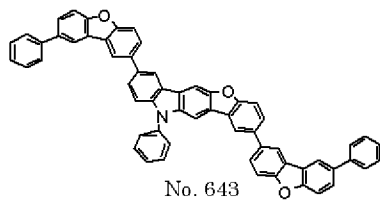
No. 640



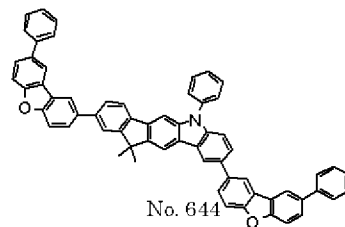
No. 641



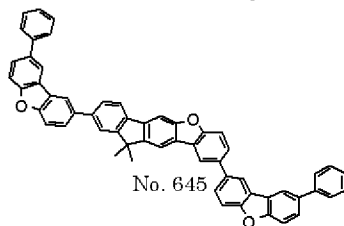
No. 642



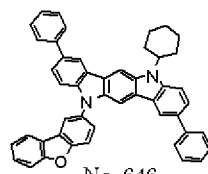
No. 643



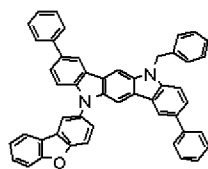
No. 644



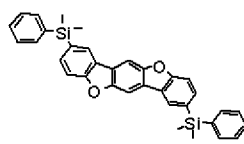
No. 645



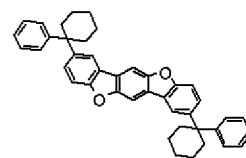
No. 646



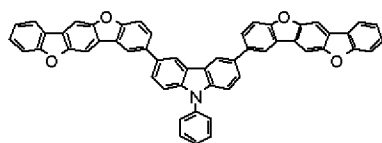
No. 647



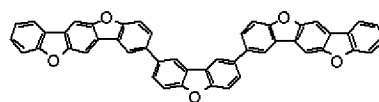
No. 648



No. 649



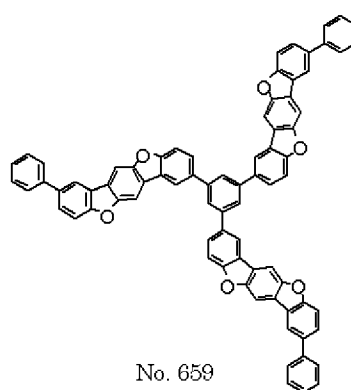
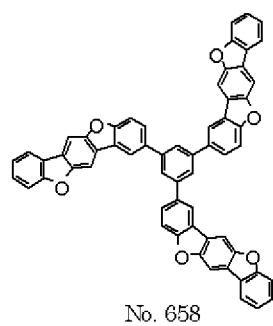
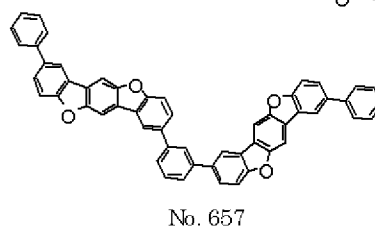
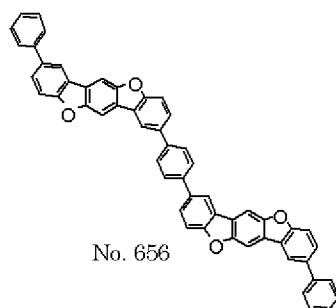
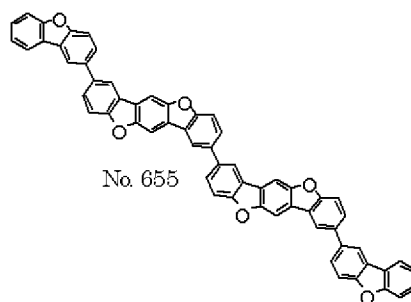
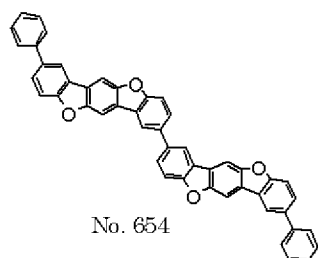
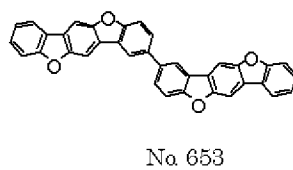
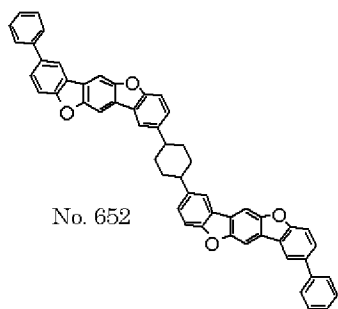
No. 650



No. 651

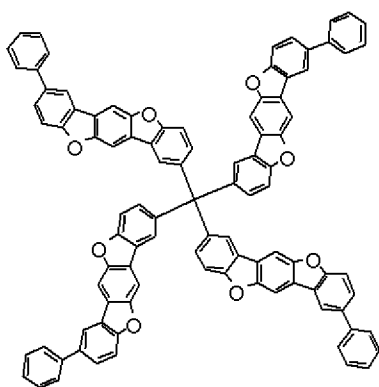
[0178]

[化90]

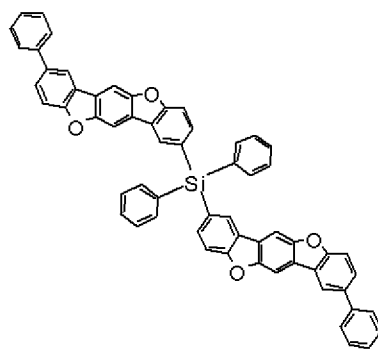


[0179]

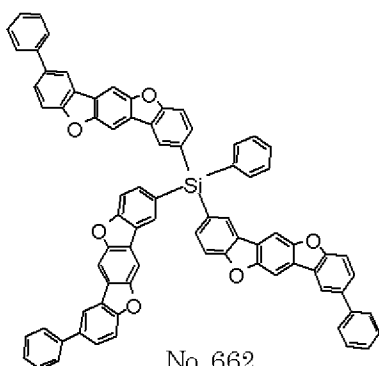
[化91]



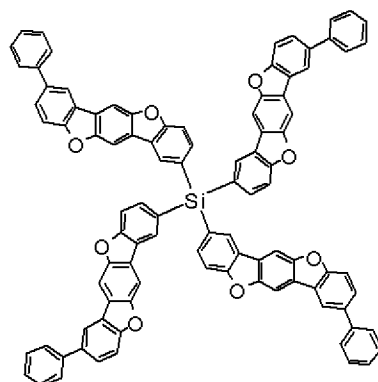
No. 660



No. 661



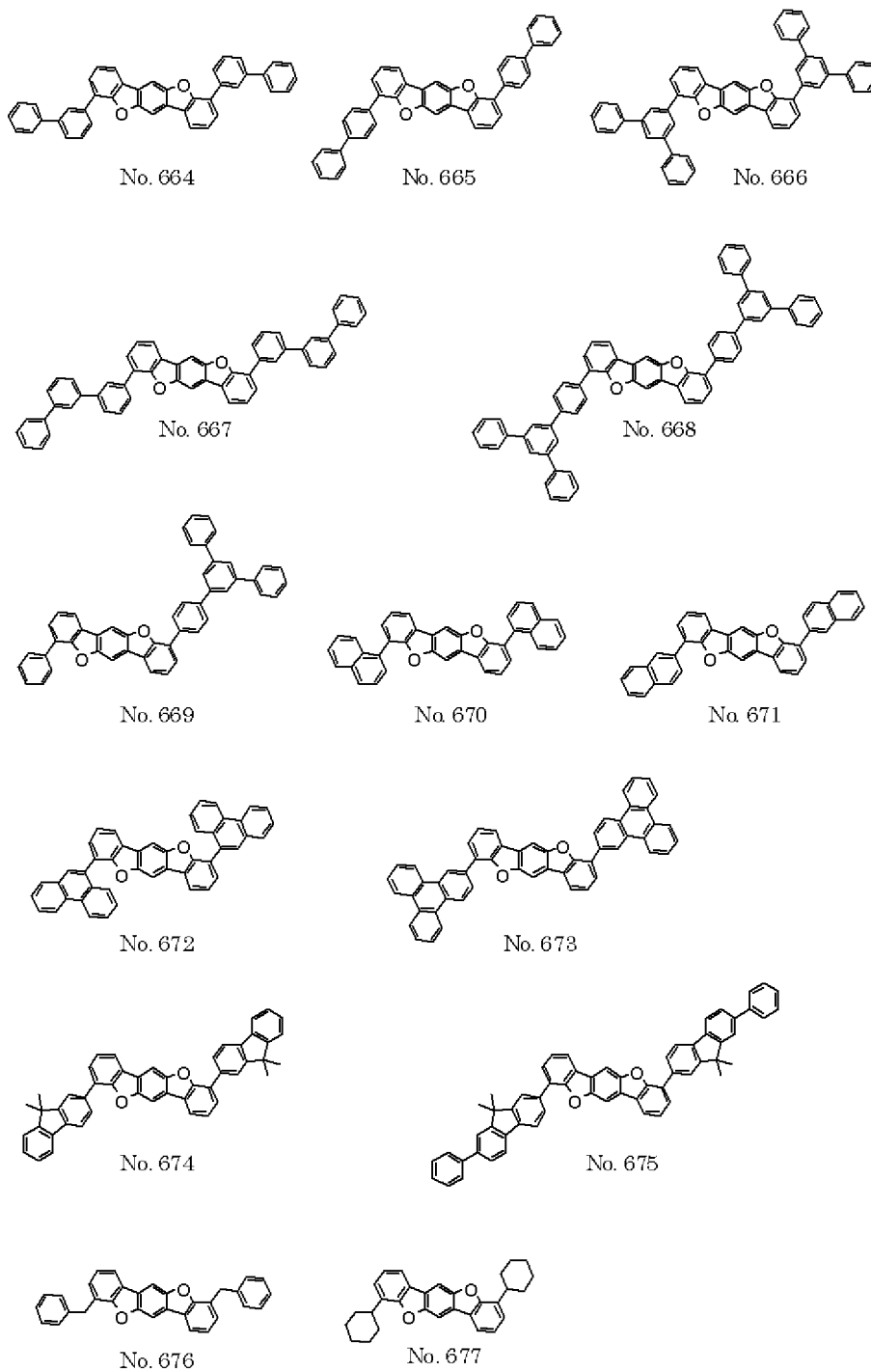
No. 662



No. 663

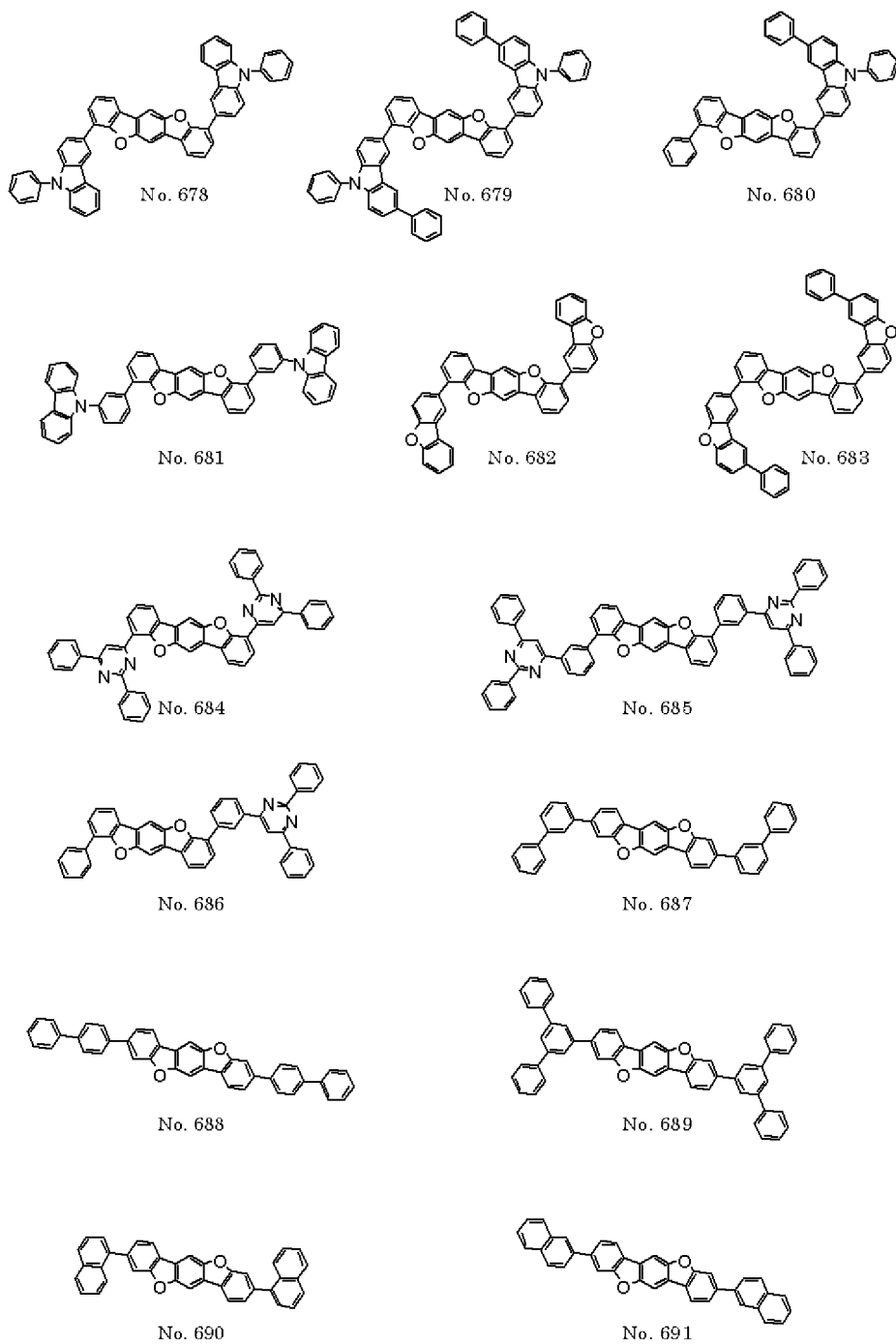
[0180]

[化92]



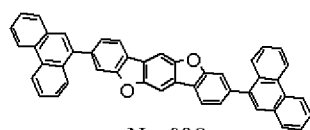
[0181]

[化93]

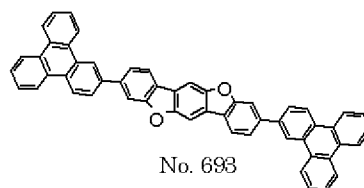


[0182]

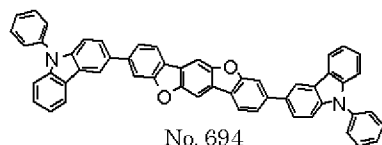
[化94]



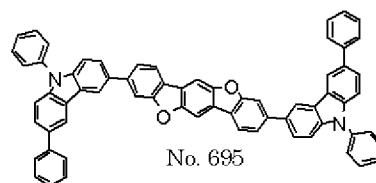
No. 692



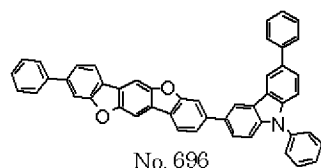
No. 693



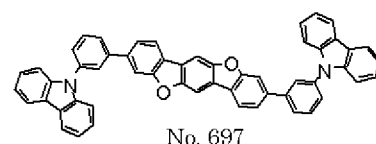
No. 694



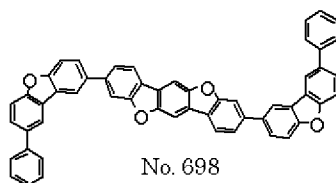
No. 695



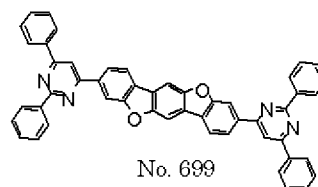
No. 696



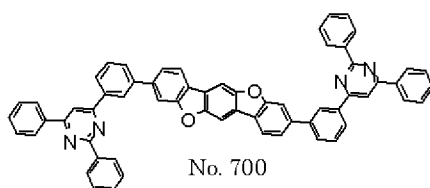
No. 697



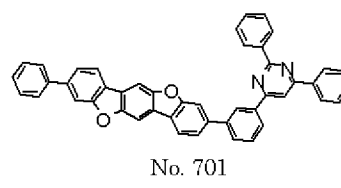
No. 698



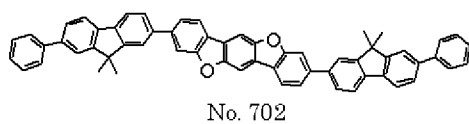
No. 699



No. 700



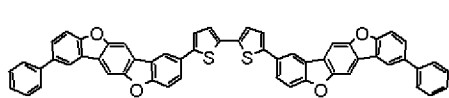
No. 701



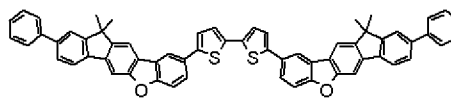
No. 702

[0183]

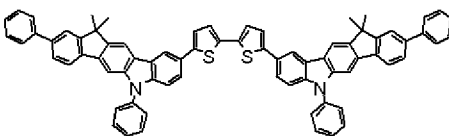
[化95]



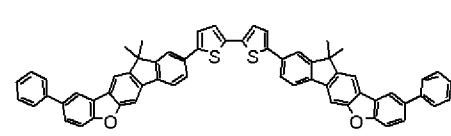
No. 703



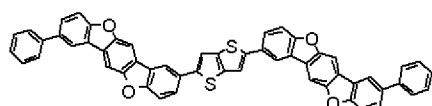
No. 704



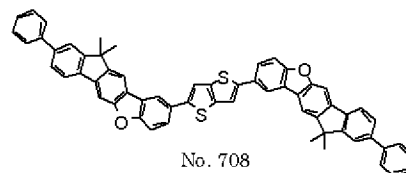
No. 705



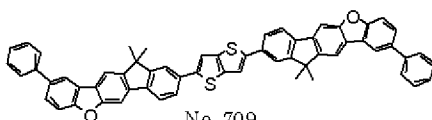
No. 706



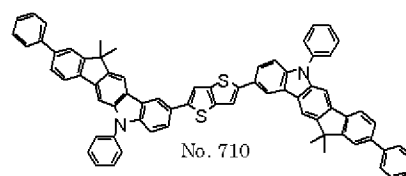
No. 707



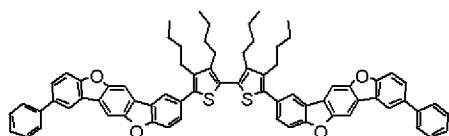
No. 708



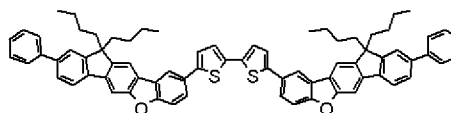
No. 709



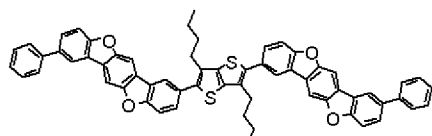
No. 710



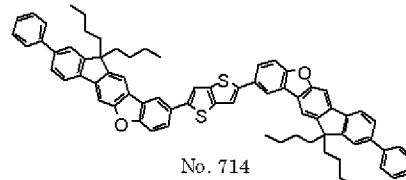
No. 711



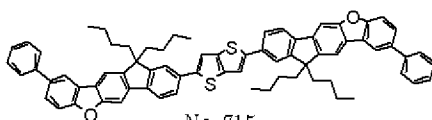
No. 712



No. 713



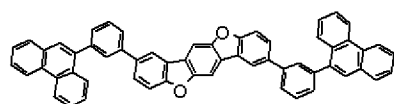
No. 714



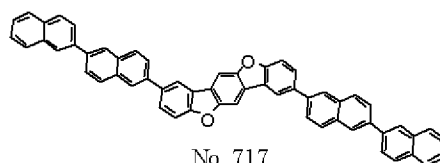
No. 715

[0184]

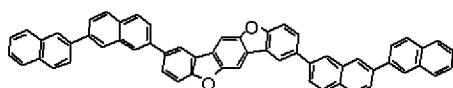
[化96]



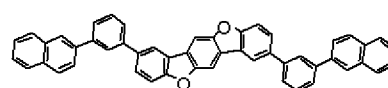
No. 716



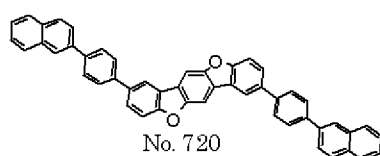
No. 717



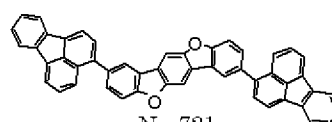
No. 718



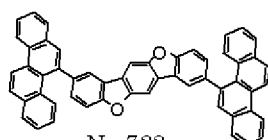
No. 719



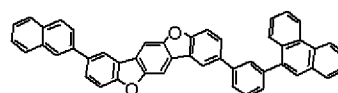
No. 720



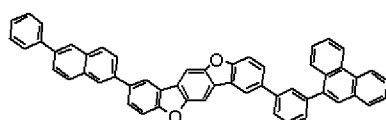
No. 721



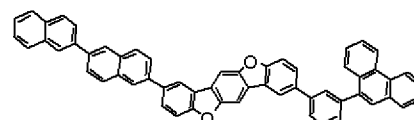
No. 722



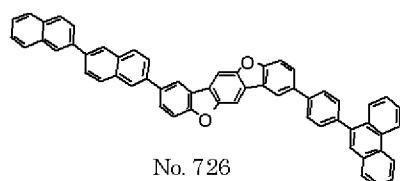
No. 723



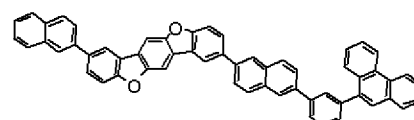
No. 724



No. 725



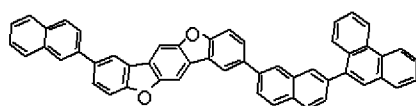
No. 726



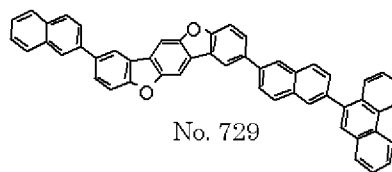
No. 727

[0185]

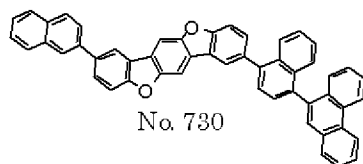
[化97]



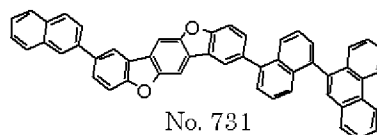
No. 728



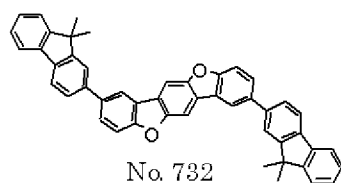
No. 729



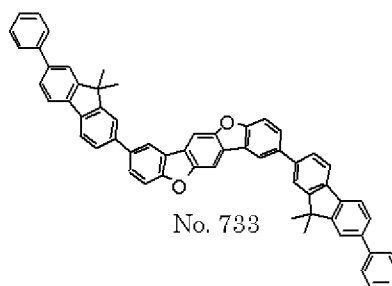
No. 730



No. 731



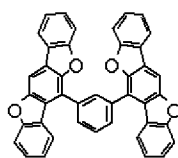
No. 732



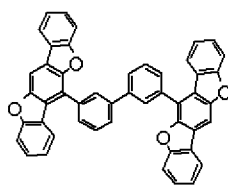
No. 733

[0186]

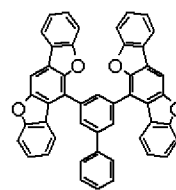
[化98]



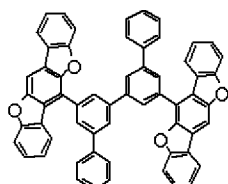
No. 734



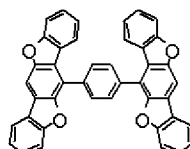
No. 735



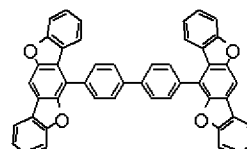
No. 736



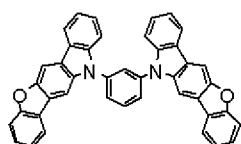
No. 737



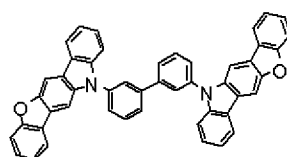
No. 738



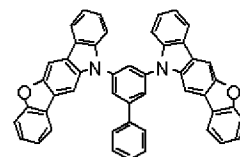
No. 739



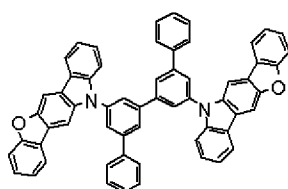
No. 740



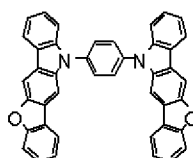
No. 741



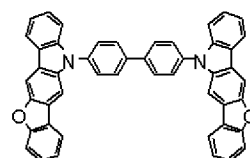
No. 742



No. 743



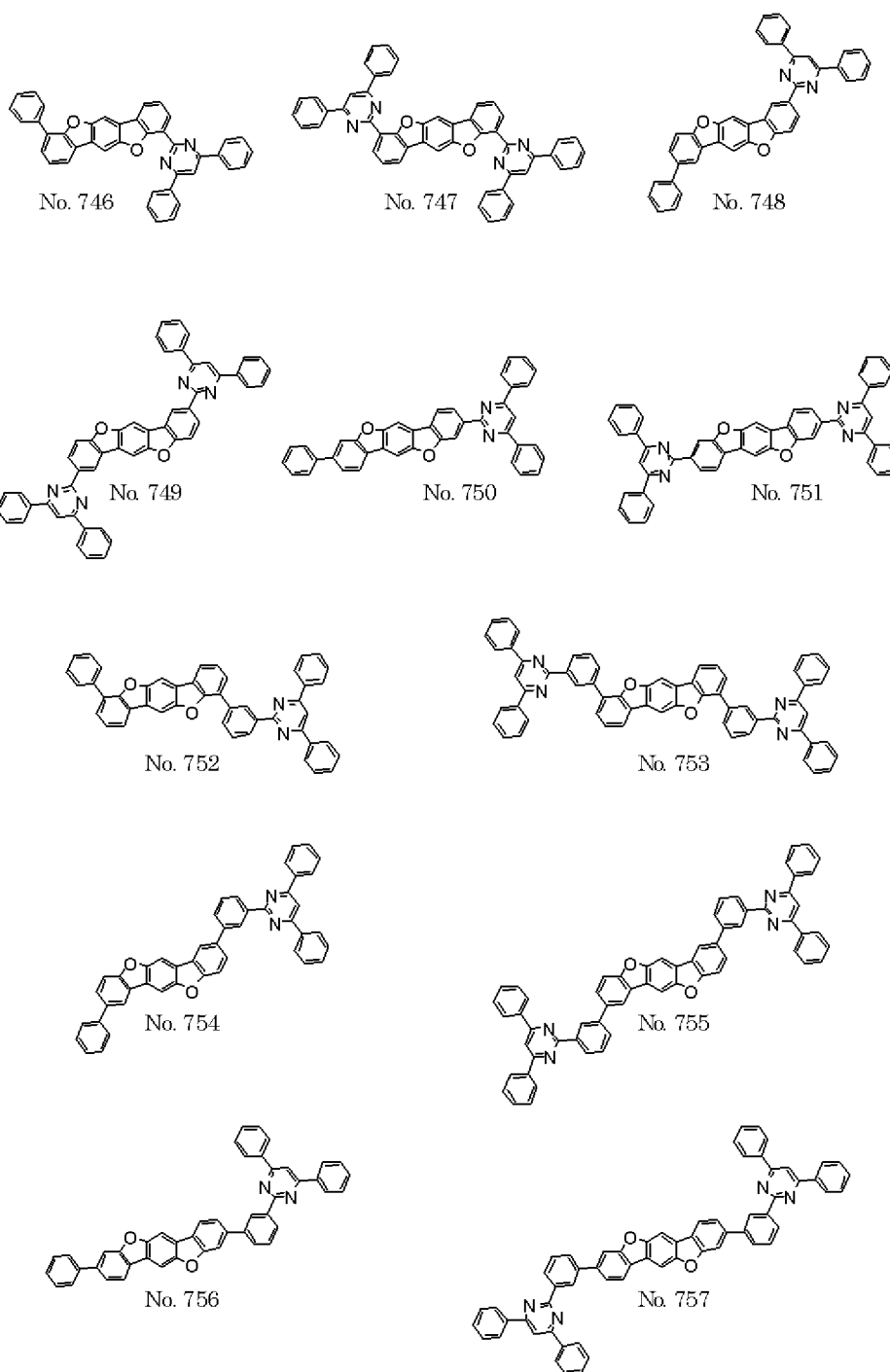
No. 744



No. 745

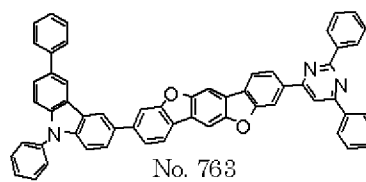
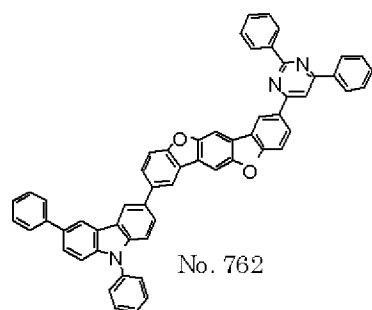
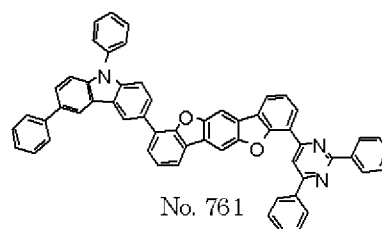
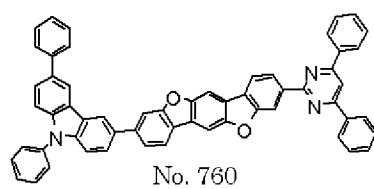
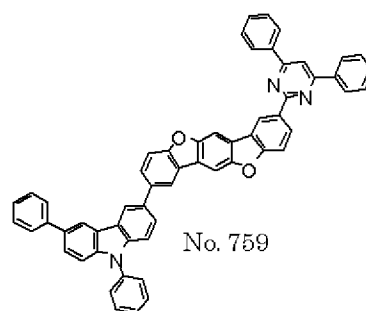
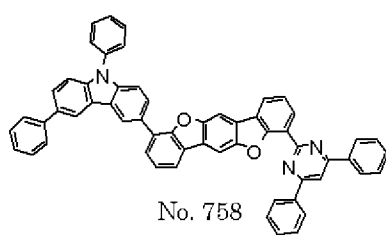
[0187]

[化99]



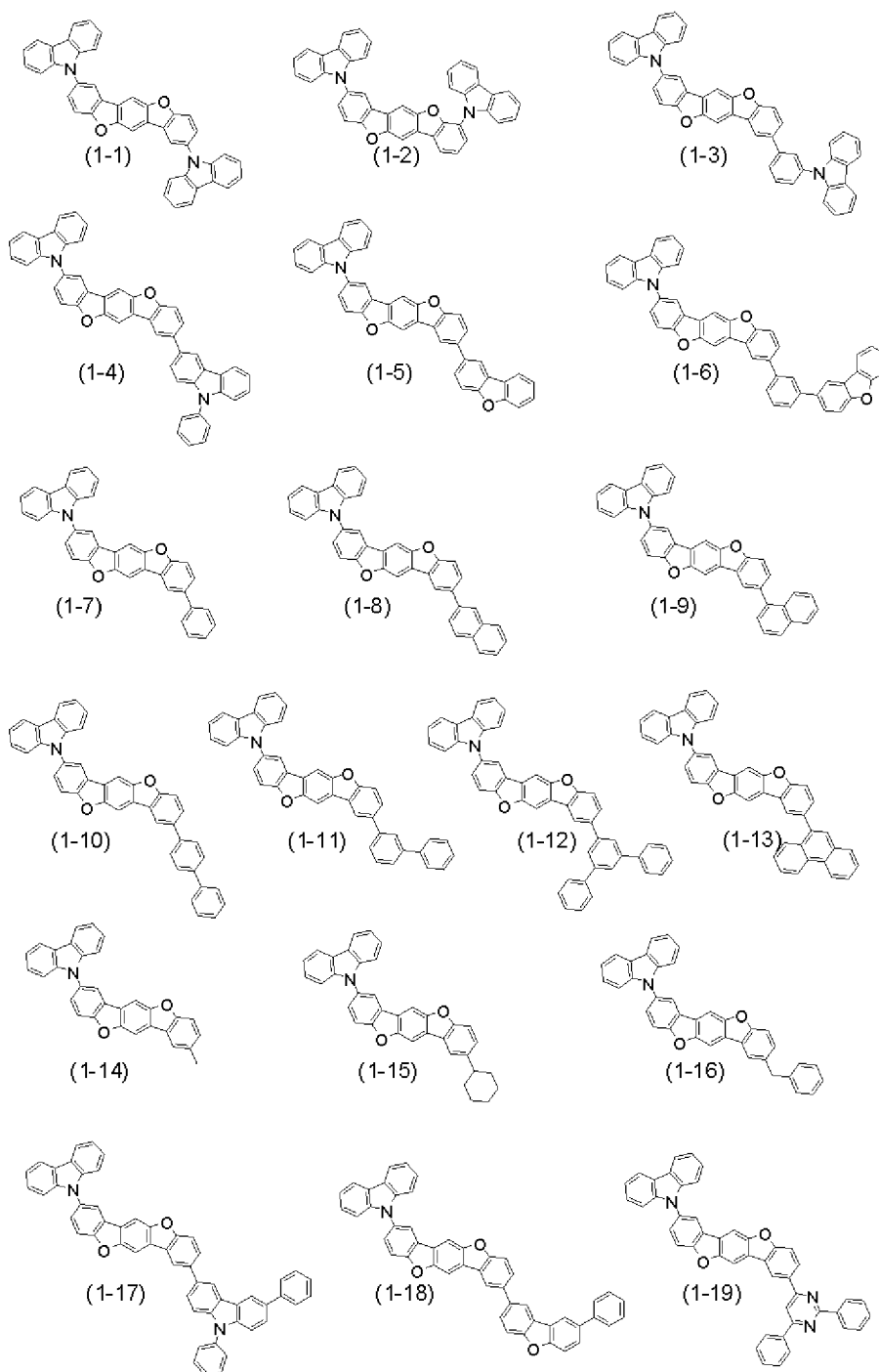
[0188]

[化100]



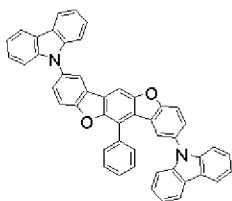
[0189]

[化101]

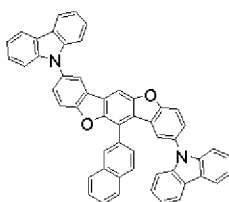


[0190]

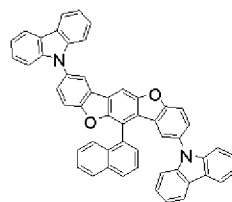
[化102]



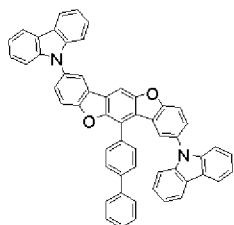
(1-20)



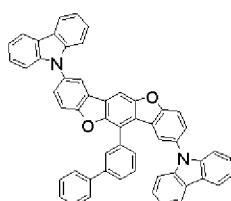
(1-21)



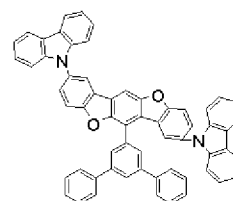
(1-22)



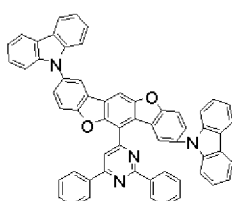
(1-23)



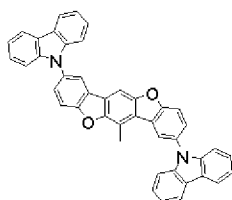
(1-24)



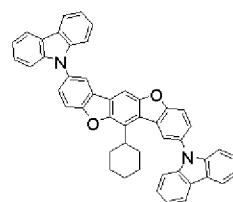
(1-25)



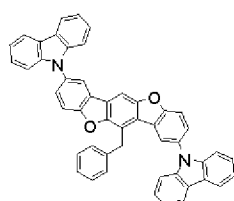
(1-26)



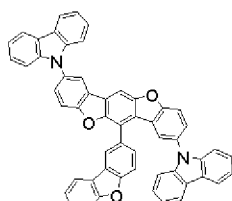
(1-27)



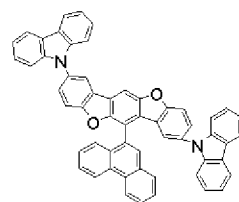
(1-28)



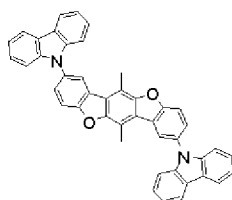
(1-29)



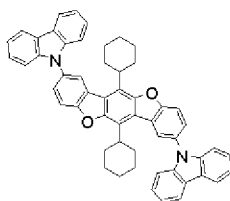
(1-30)



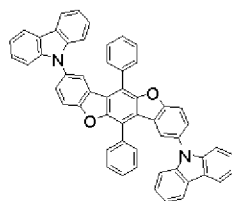
(1-31)



(1-32)



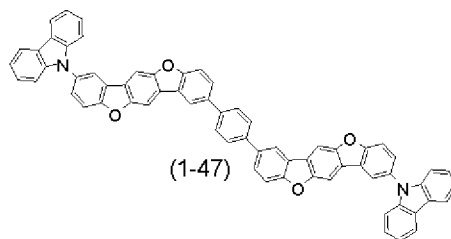
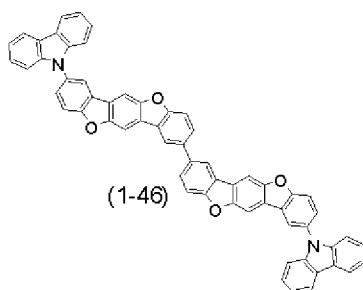
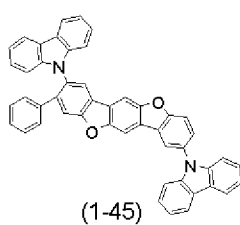
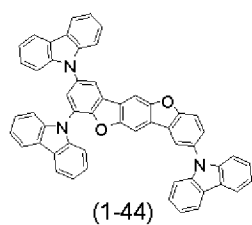
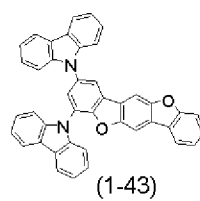
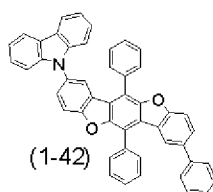
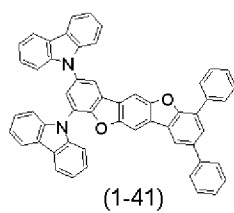
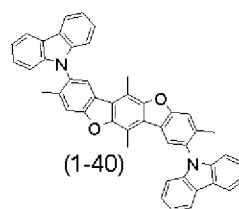
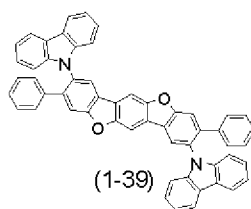
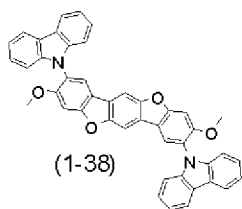
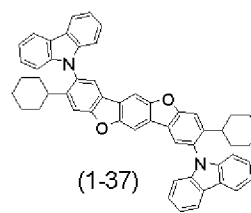
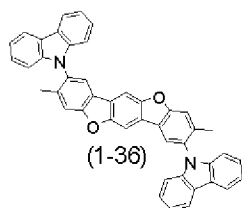
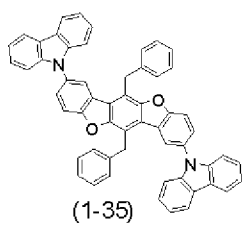
(1-33)



(1-34)

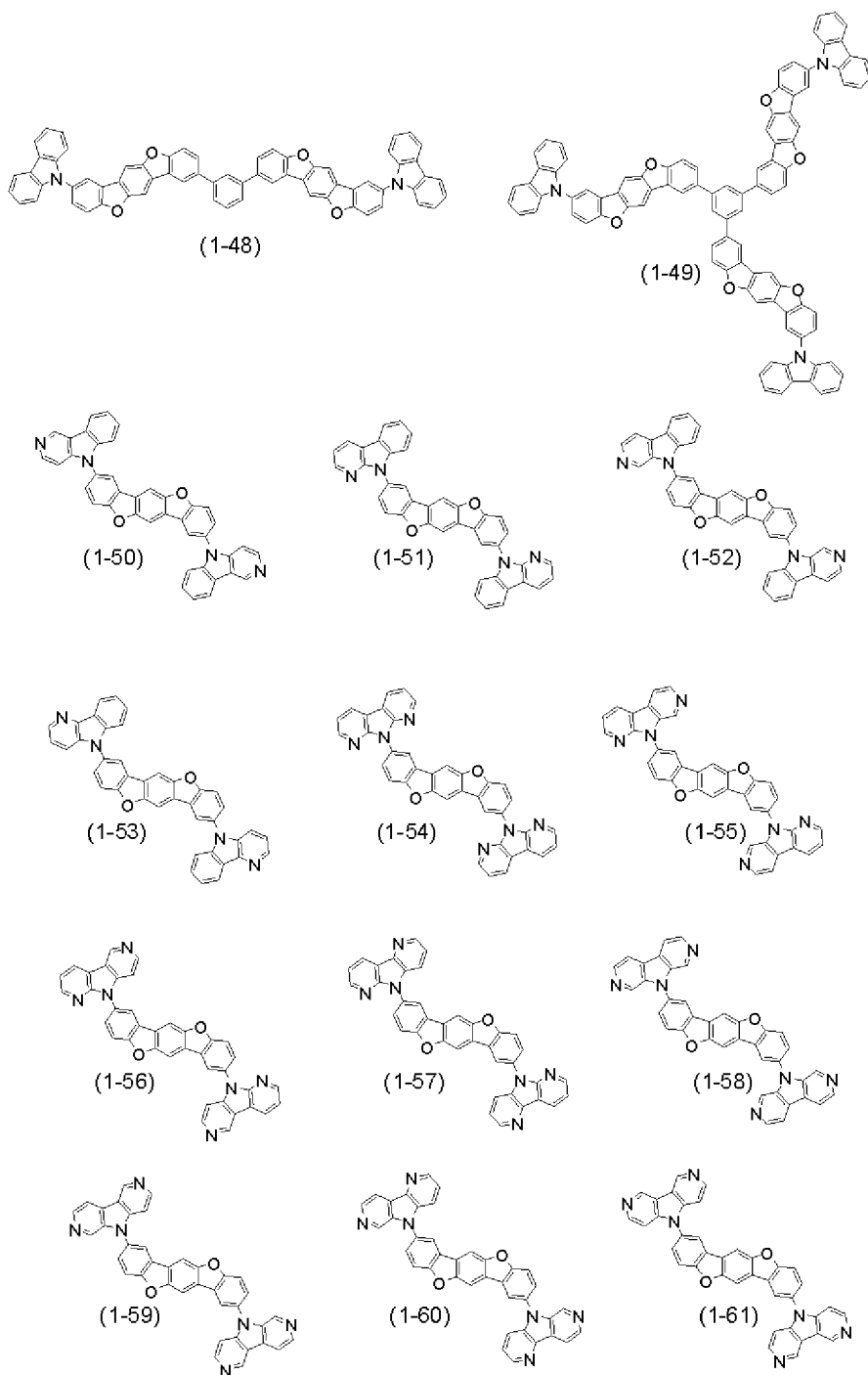
[0191]

[化103]



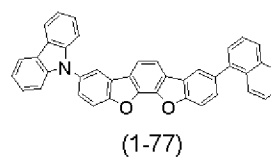
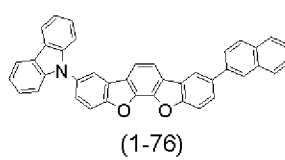
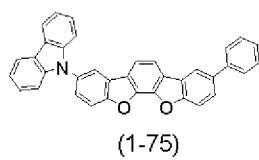
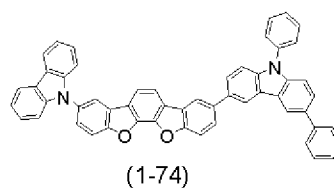
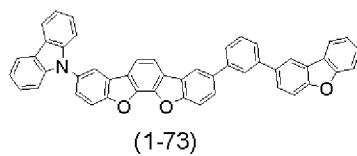
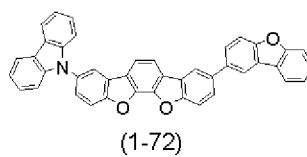
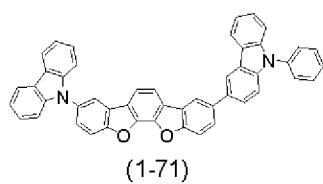
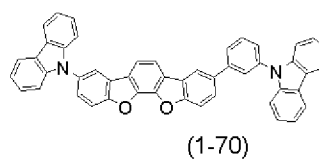
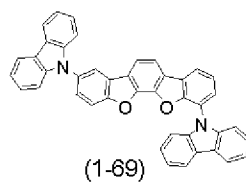
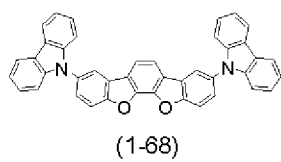
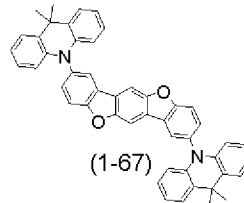
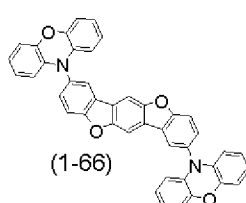
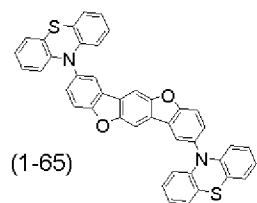
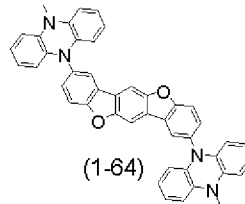
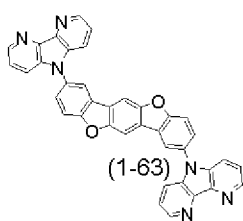
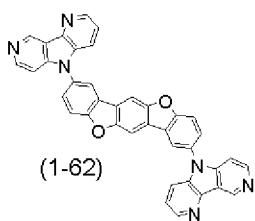
[0192]

[化104]



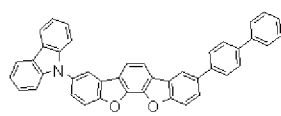
[0193]

[化105]

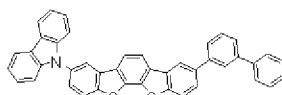


[0194]

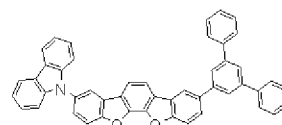
[化106]



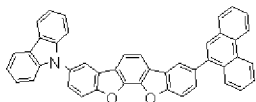
(1-78)



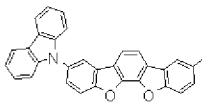
(1-79)



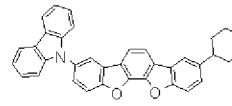
(1-80)



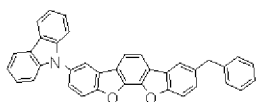
(1-81)



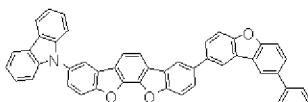
(1-82)



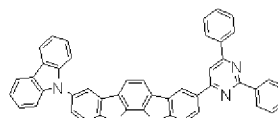
(1-83)



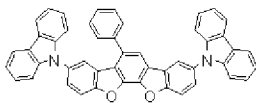
(1-84)



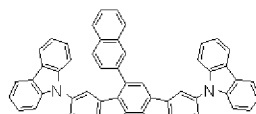
(1-85)



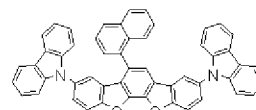
(1-86)



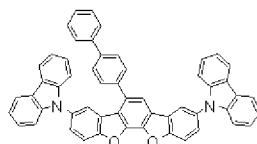
(1-87)



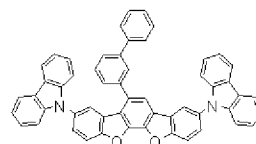
(1-88)



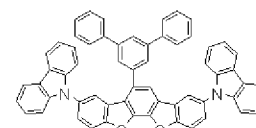
(1-89)



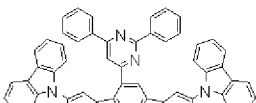
(1-90)



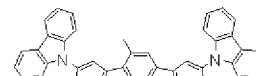
(1-91)



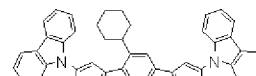
(1-92)



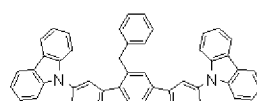
(1-93)



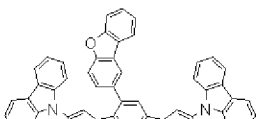
(1-94)



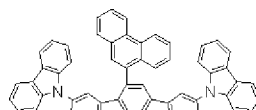
(1-95)



(1-96)



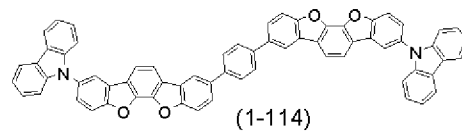
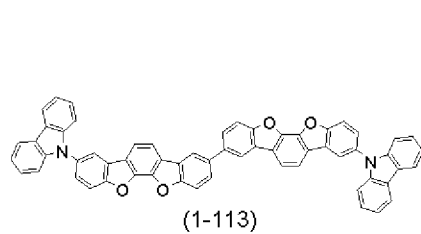
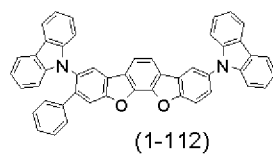
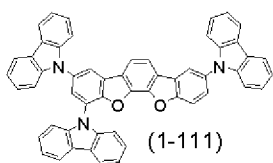
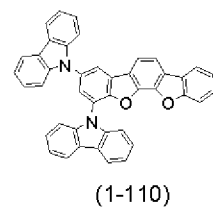
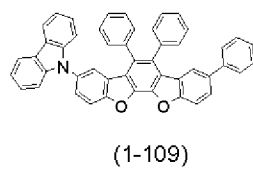
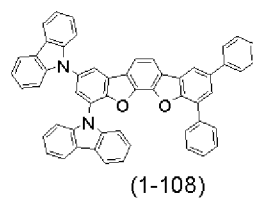
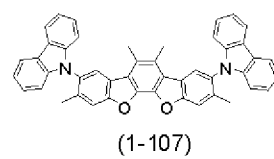
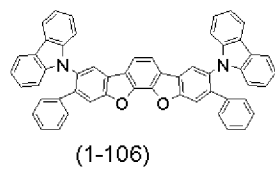
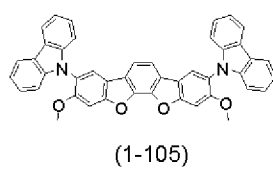
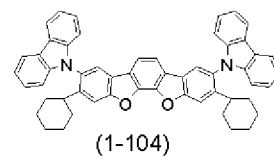
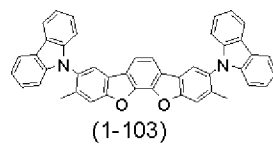
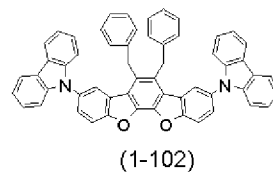
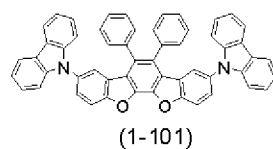
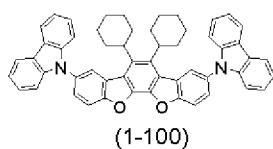
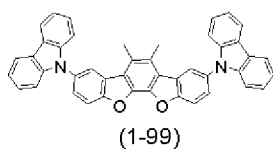
(1-97)



(1-98)

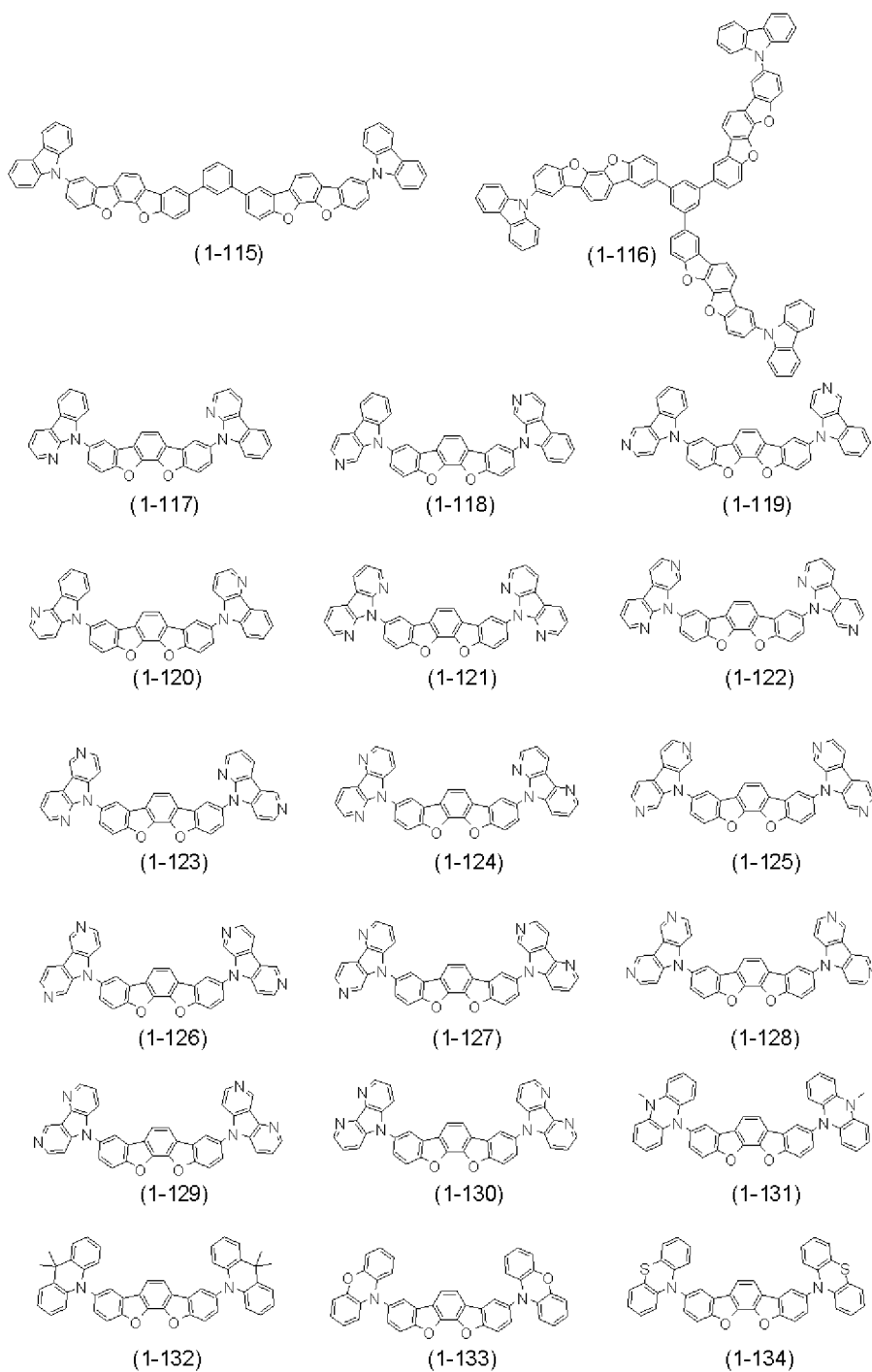
[0195]

[化107]



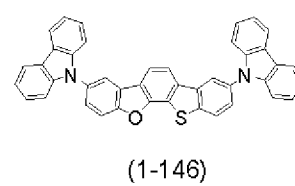
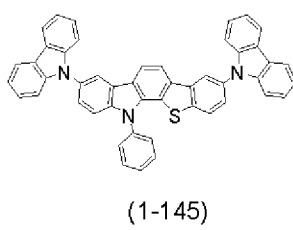
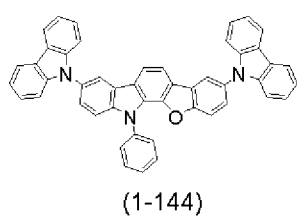
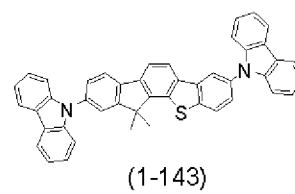
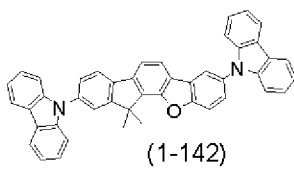
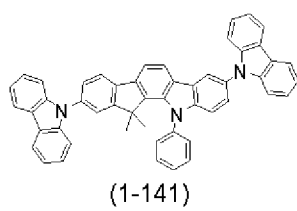
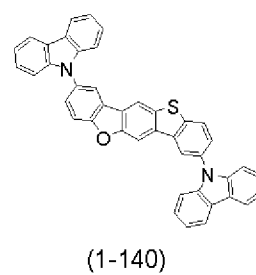
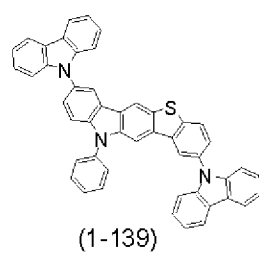
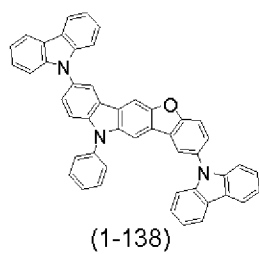
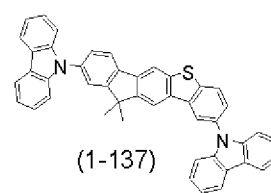
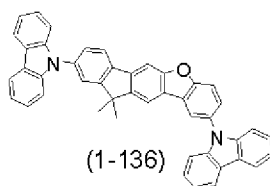
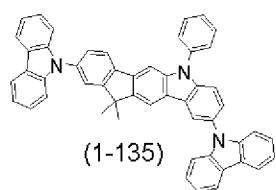
[0196]

[化108]



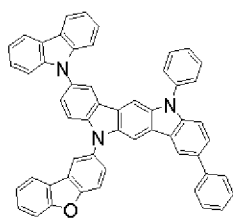
[0197]

[化109]

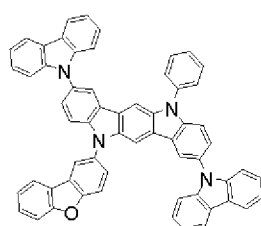


[0198]

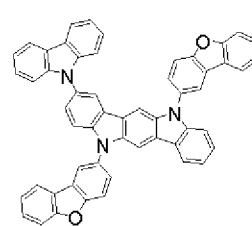
[化110]



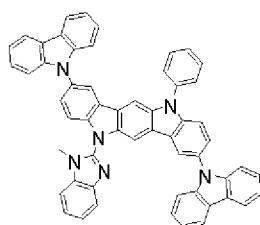
(1-147)



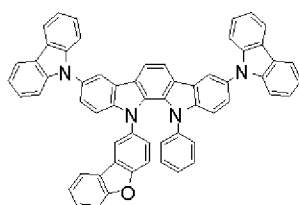
(1-148)



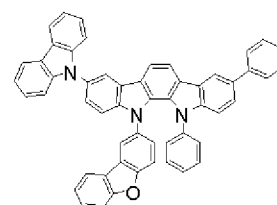
(1-149)



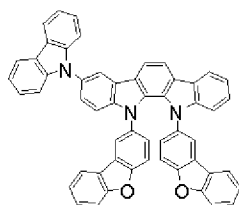
(1-150)



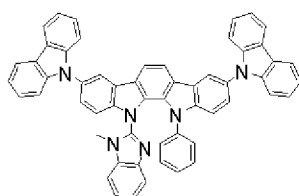
(1-151)



(1-152)



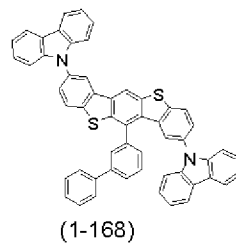
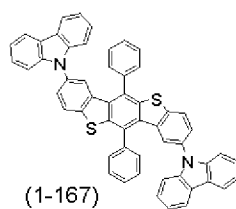
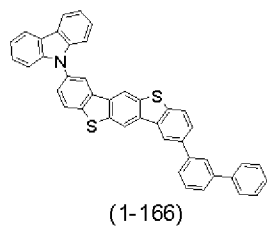
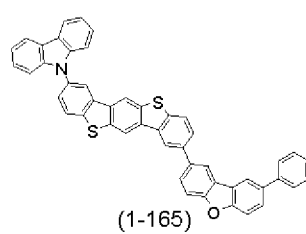
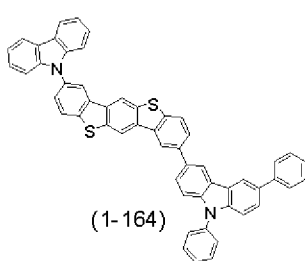
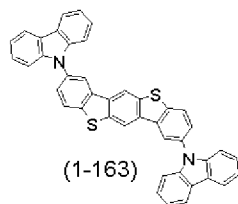
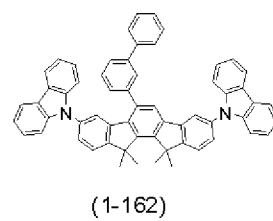
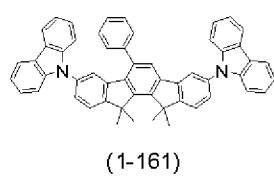
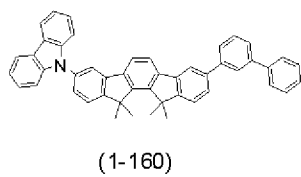
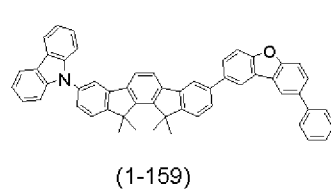
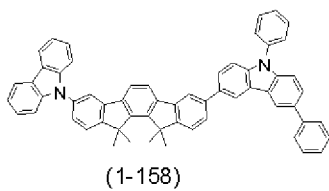
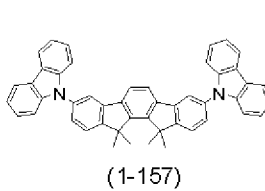
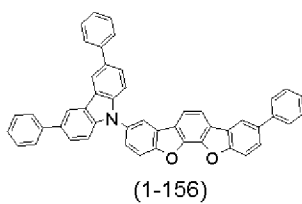
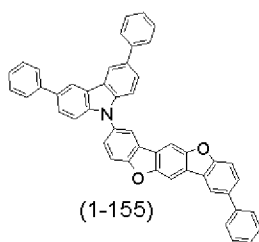
(1-153)



(1-154)

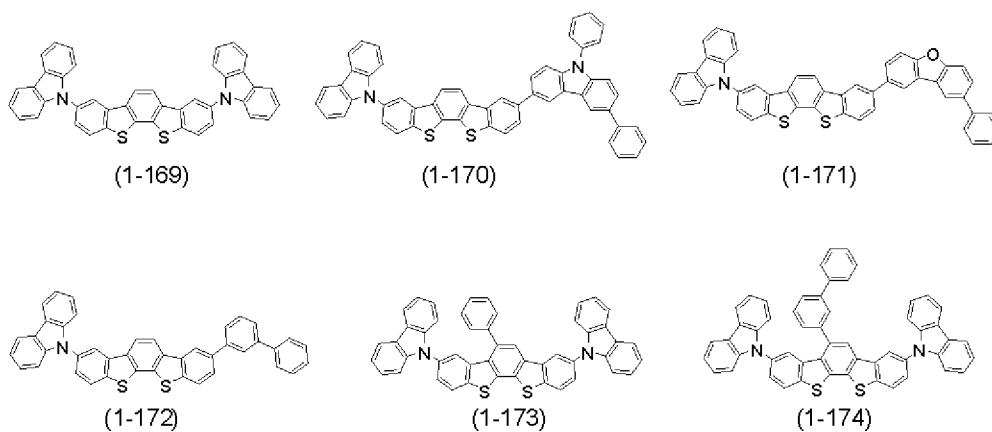
[0199]

[化111]

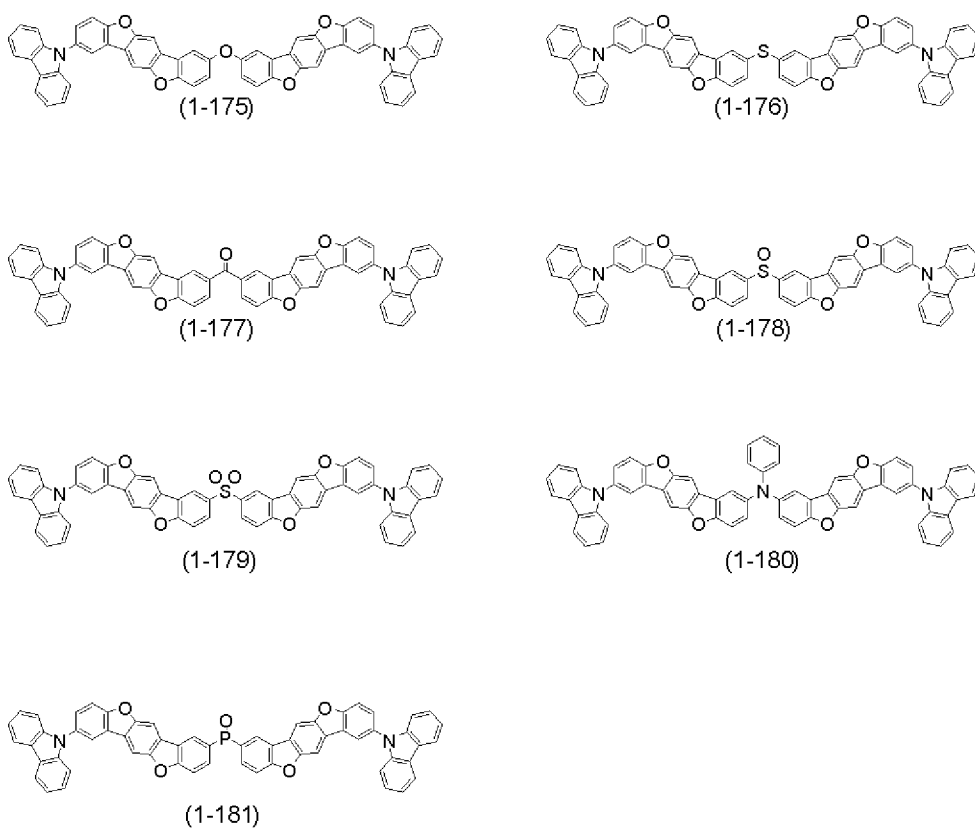


[0200]

[化112]

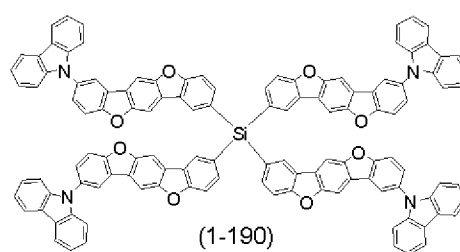
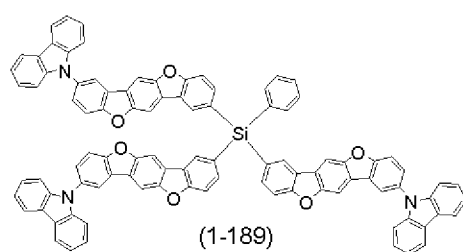
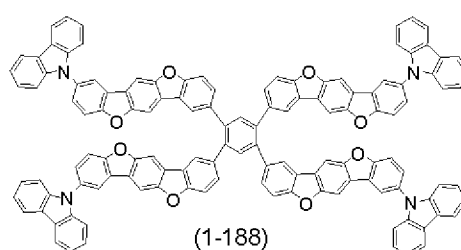
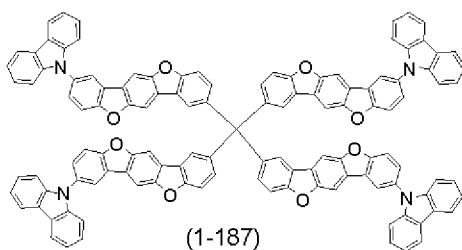
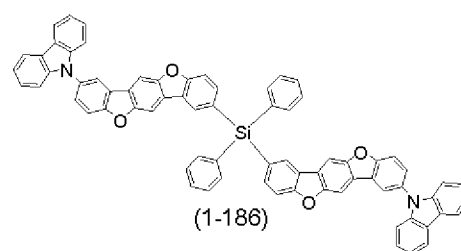
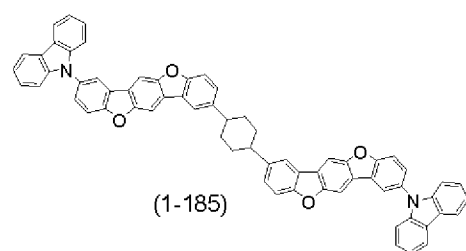
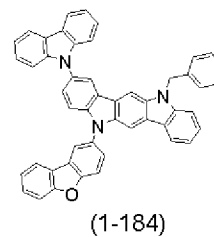
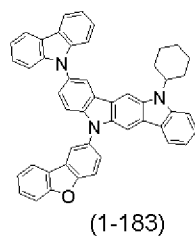
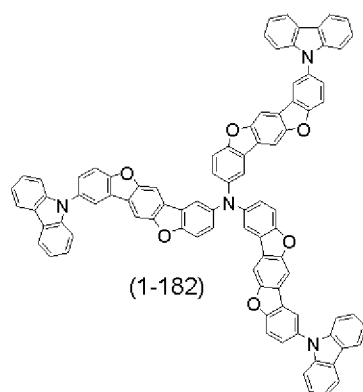


[0201] [化113]



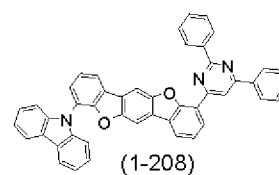
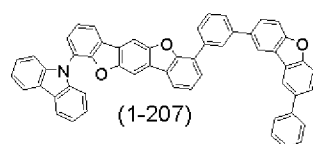
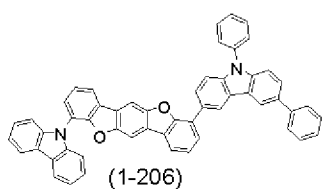
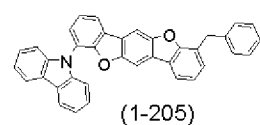
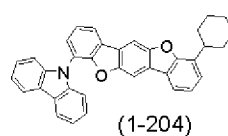
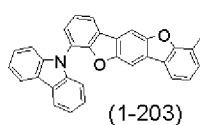
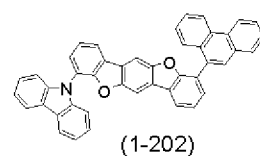
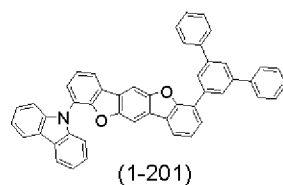
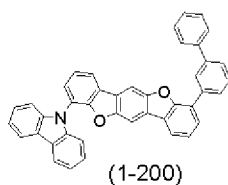
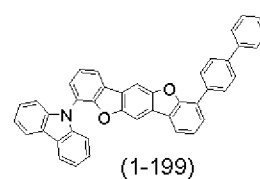
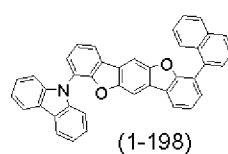
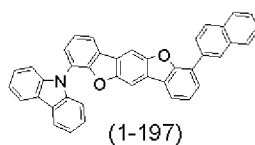
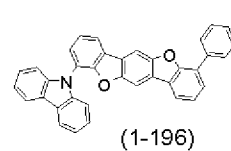
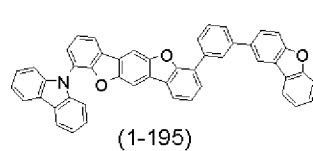
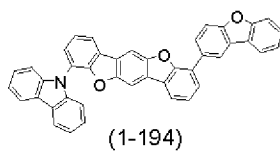
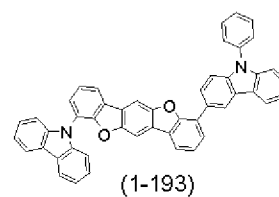
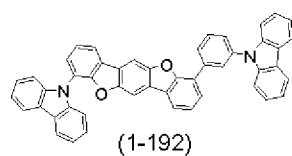
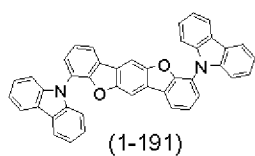
[0202]

[化114]



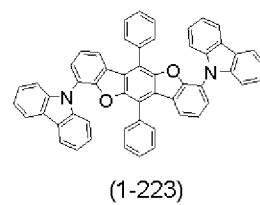
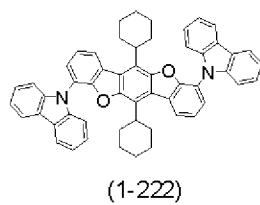
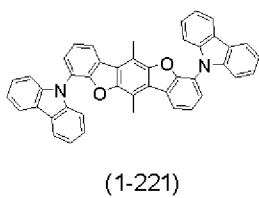
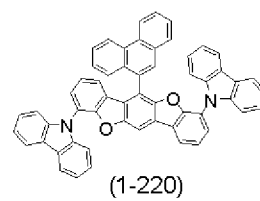
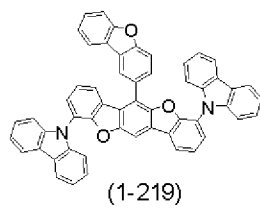
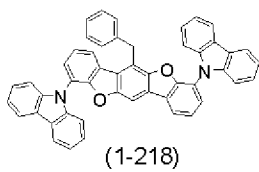
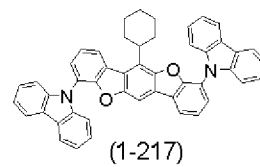
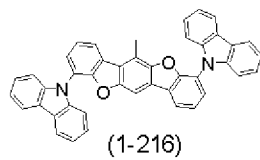
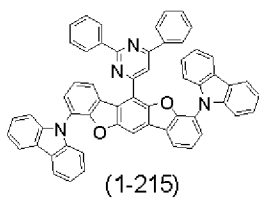
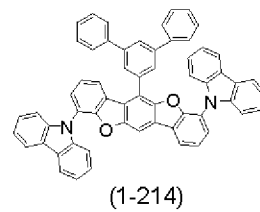
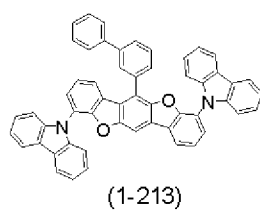
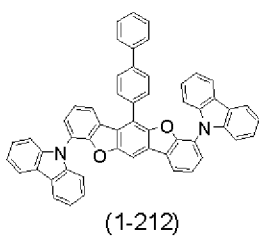
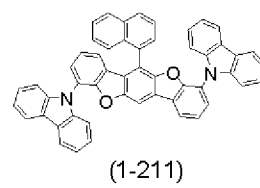
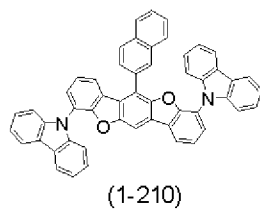
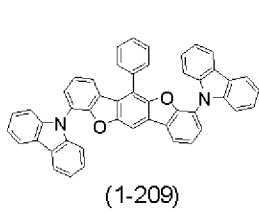
[0203]

[化115]



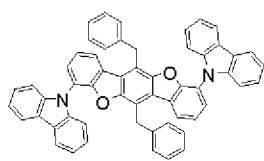
[0204]

[化116]

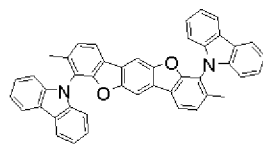


[0205]

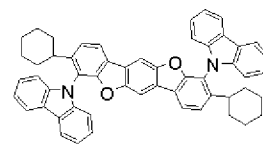
[化117]



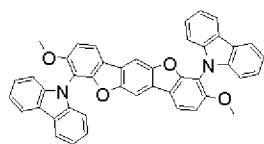
(1-224)



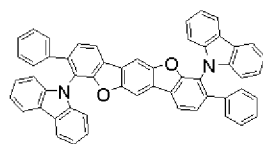
(1-225)



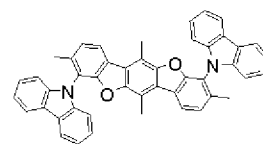
(1-226)



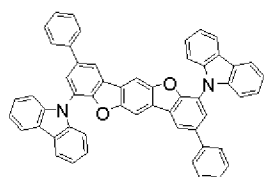
(1-227)



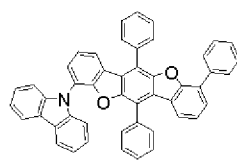
(1-228)



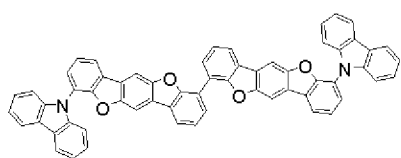
(1-229)



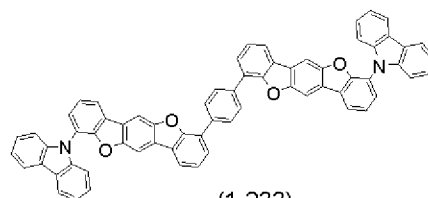
(1-230)



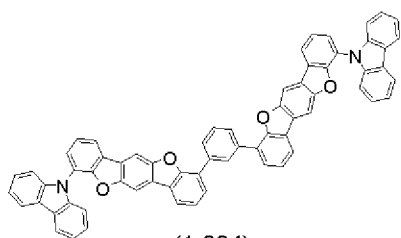
(1-231)



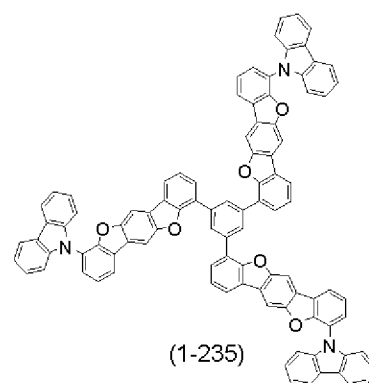
(1-232)



(1-233)



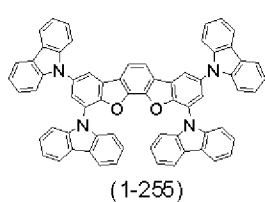
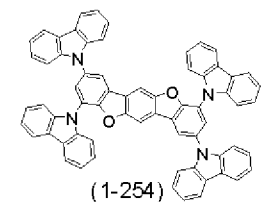
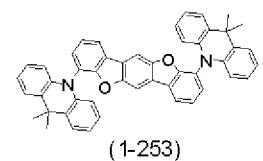
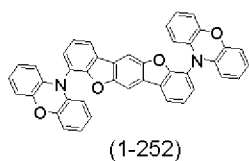
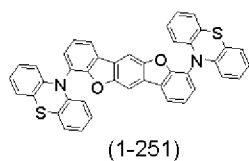
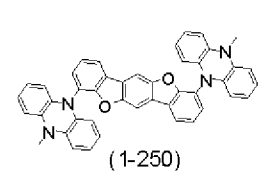
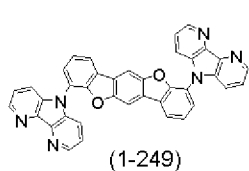
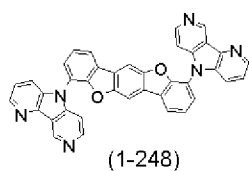
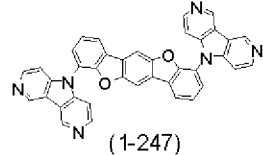
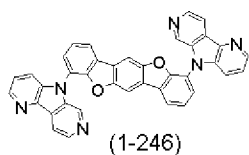
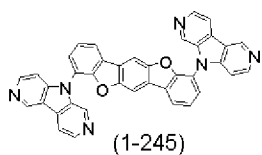
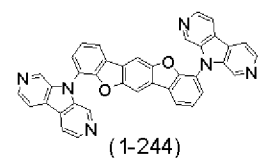
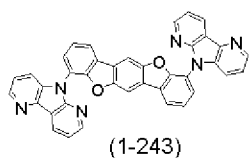
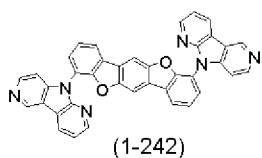
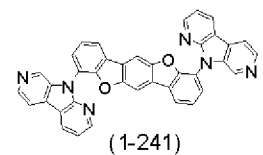
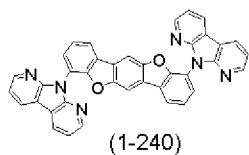
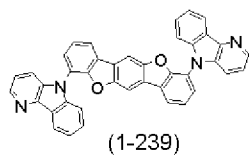
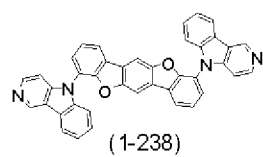
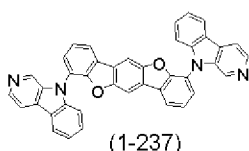
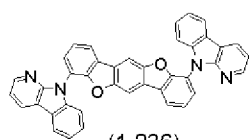
(1-234)



(1-235)

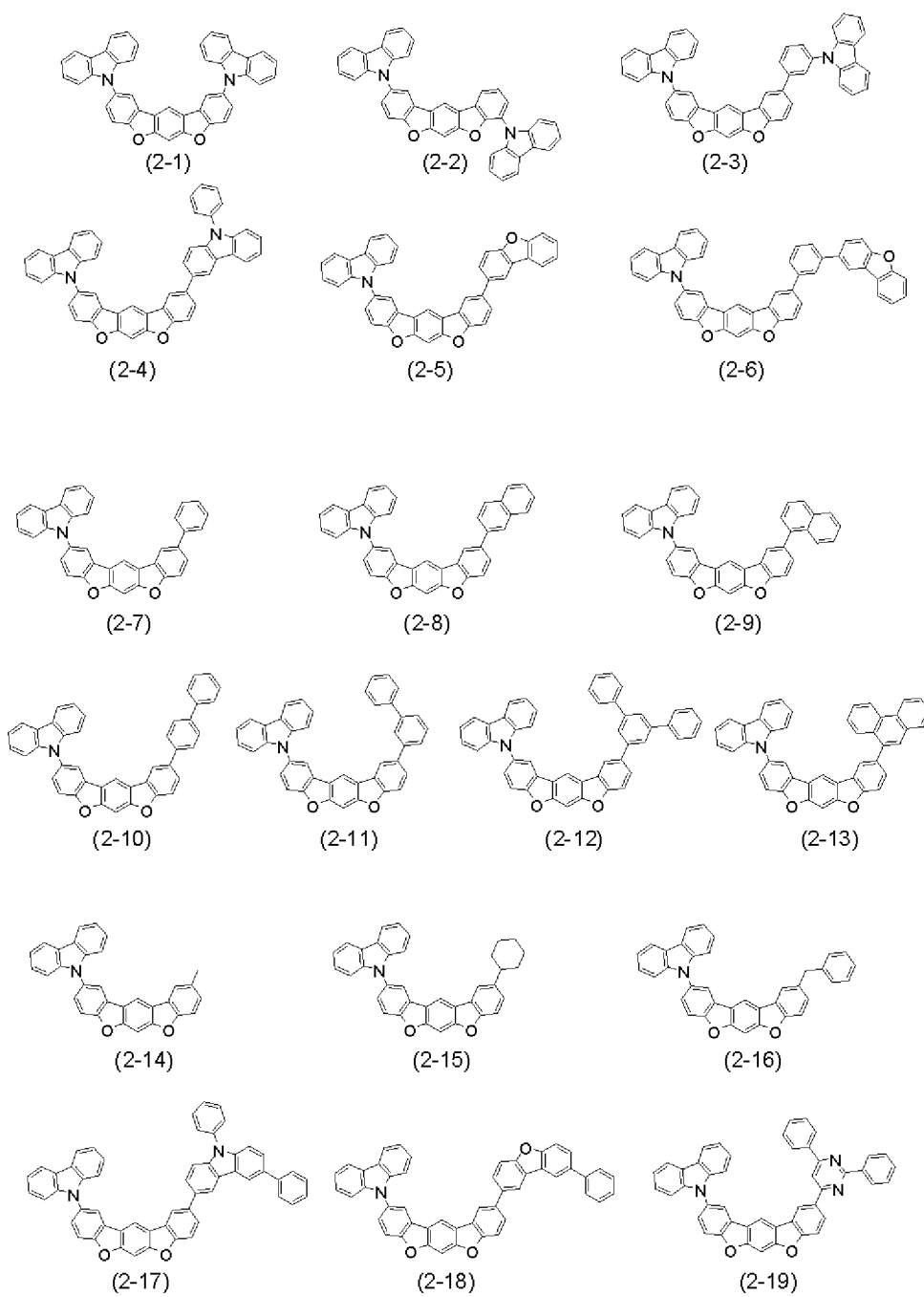
[0206]

[化118]



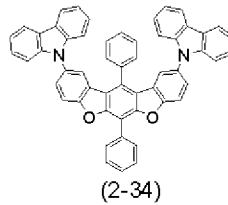
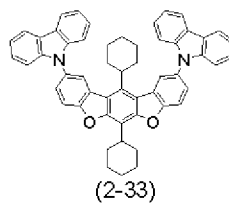
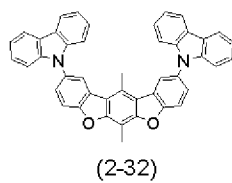
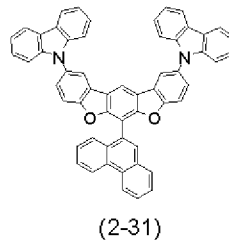
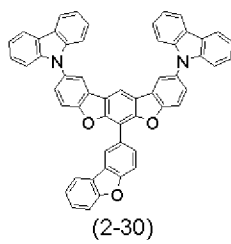
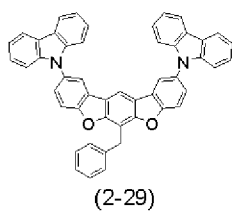
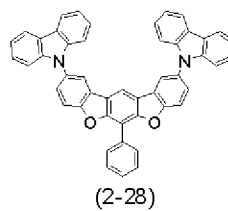
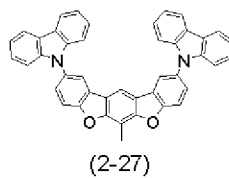
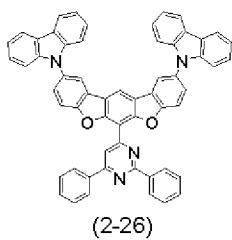
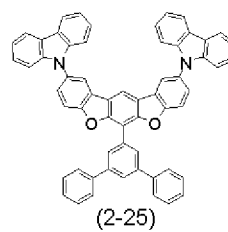
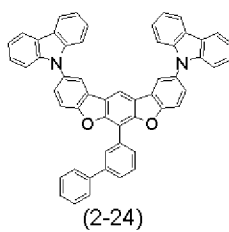
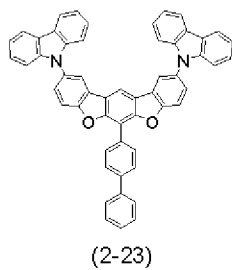
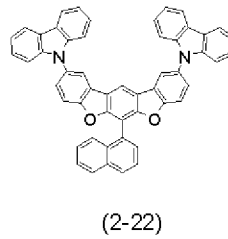
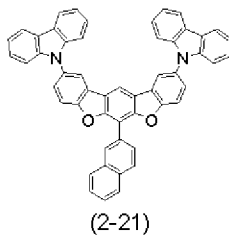
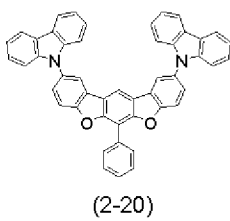
[0207]

[化119]



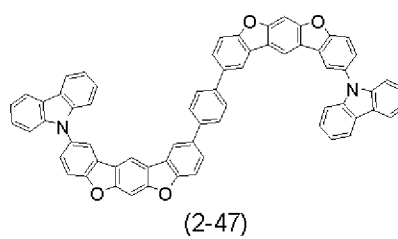
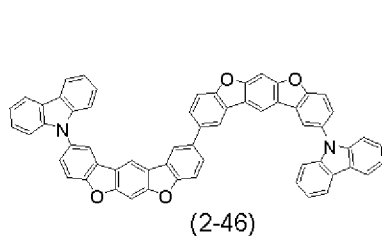
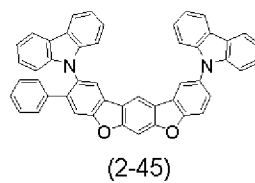
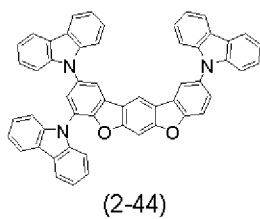
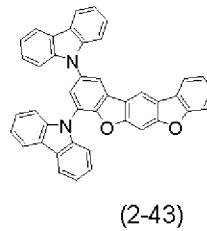
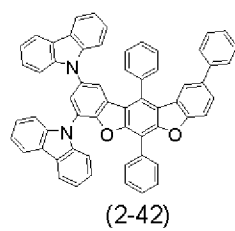
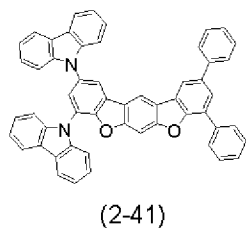
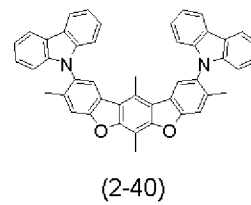
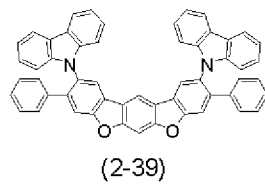
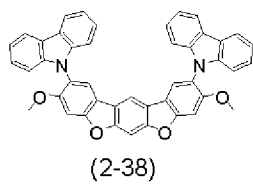
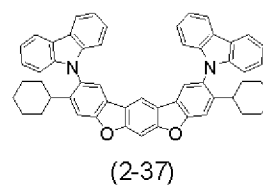
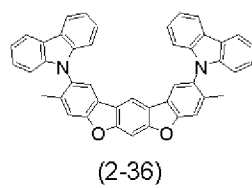
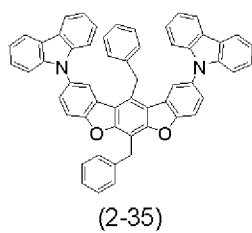
[0208]

[化120]



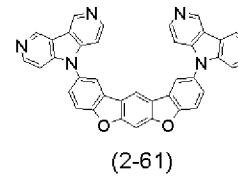
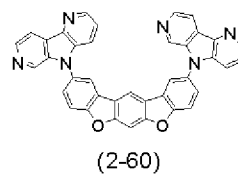
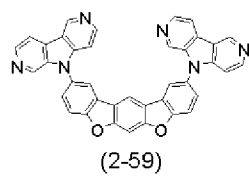
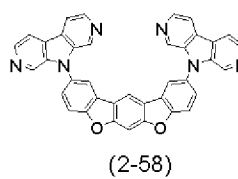
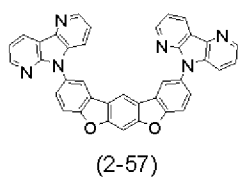
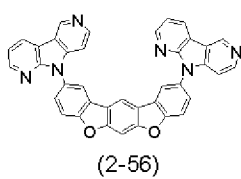
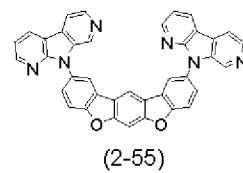
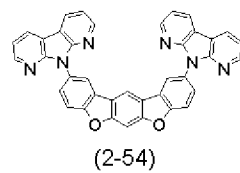
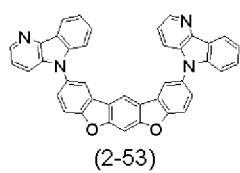
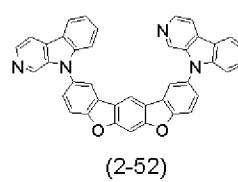
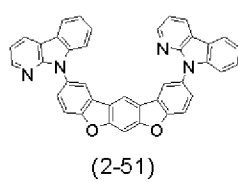
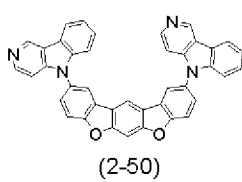
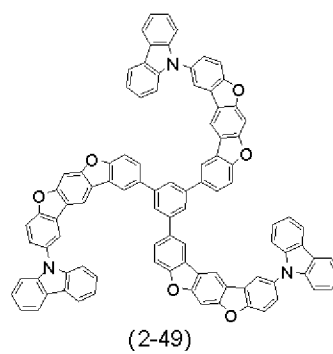
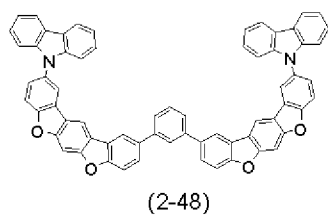
[0209]

[化121]



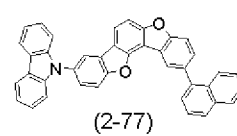
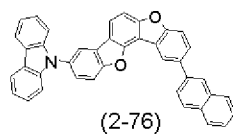
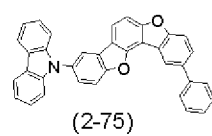
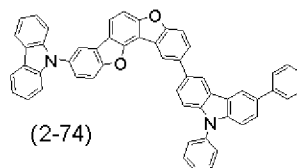
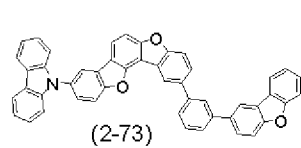
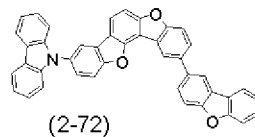
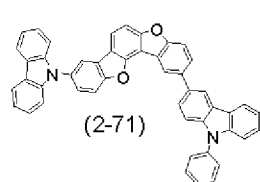
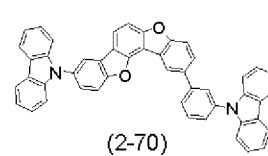
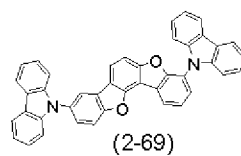
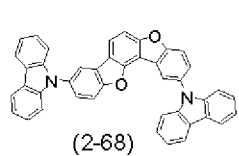
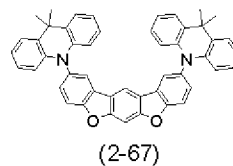
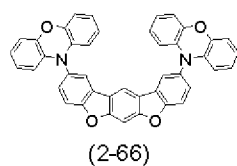
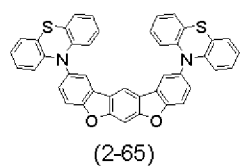
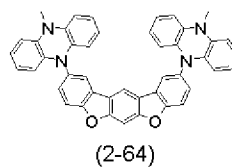
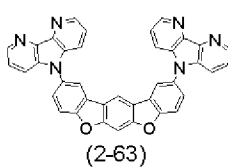
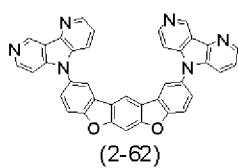
[0210]

[化122]



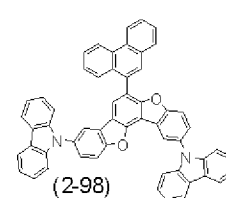
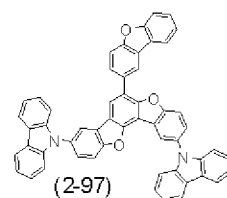
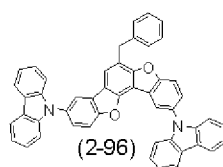
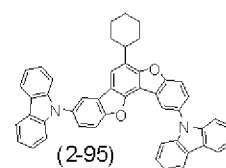
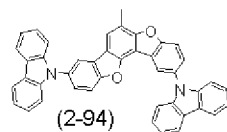
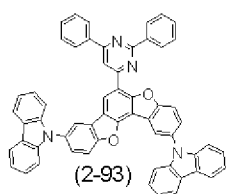
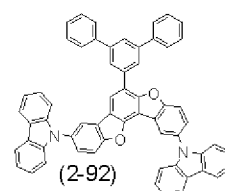
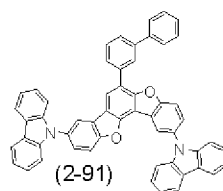
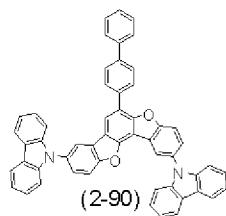
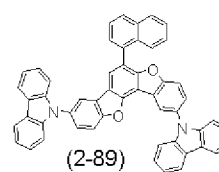
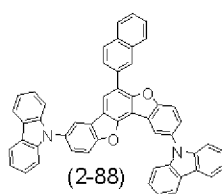
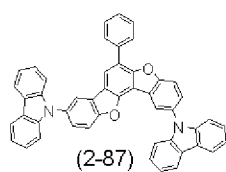
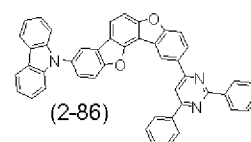
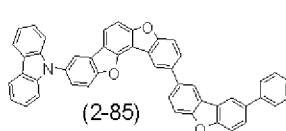
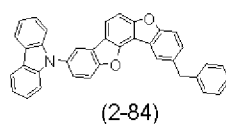
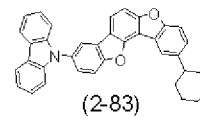
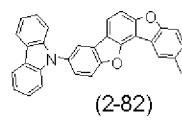
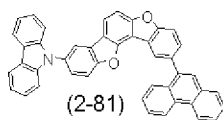
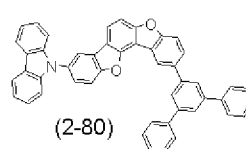
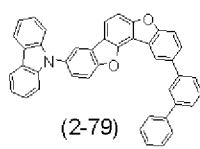
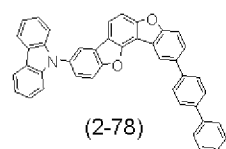
[0211]

[化123]



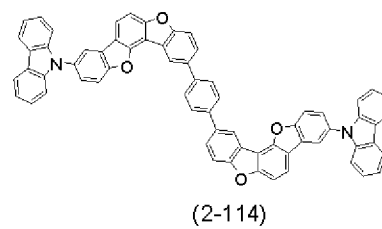
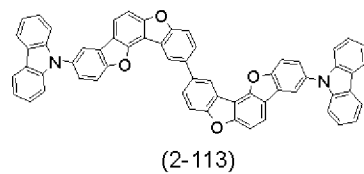
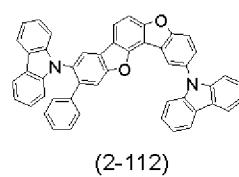
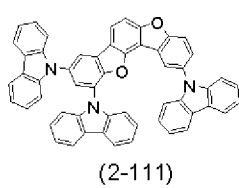
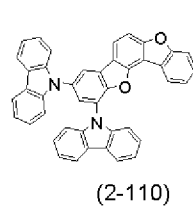
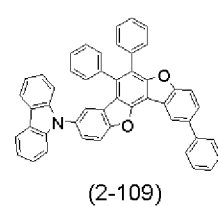
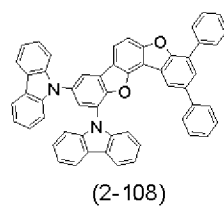
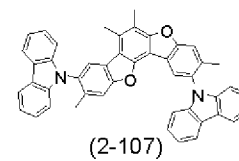
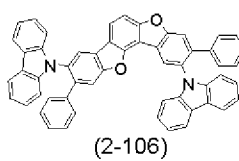
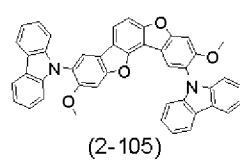
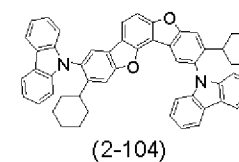
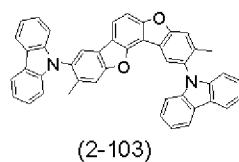
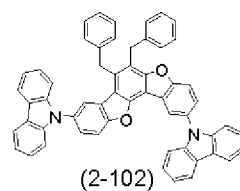
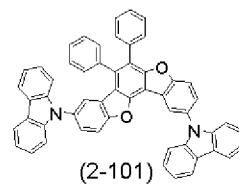
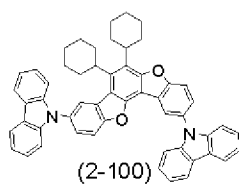
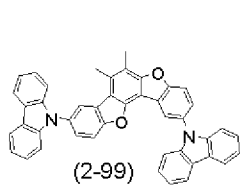
[0212]

[化124]



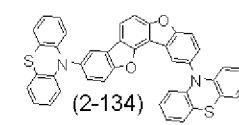
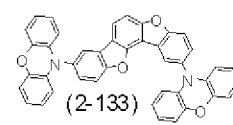
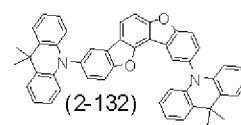
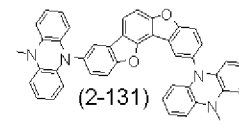
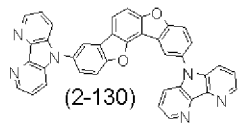
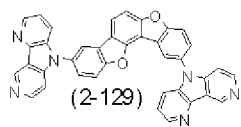
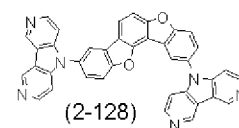
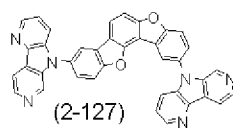
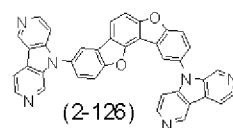
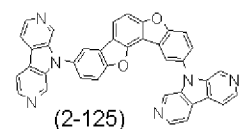
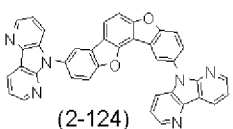
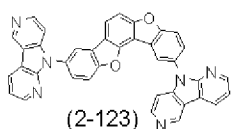
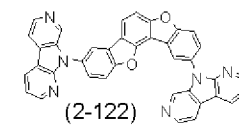
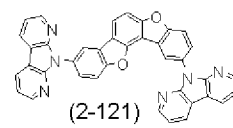
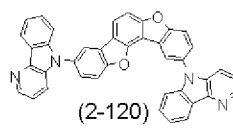
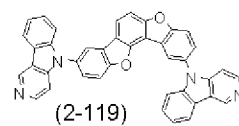
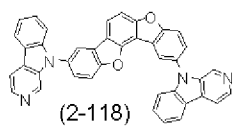
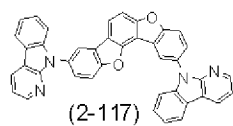
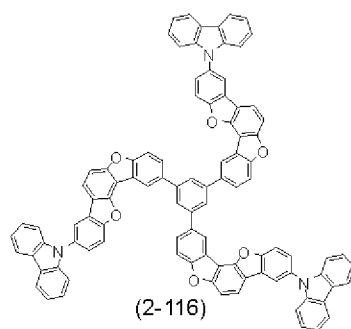
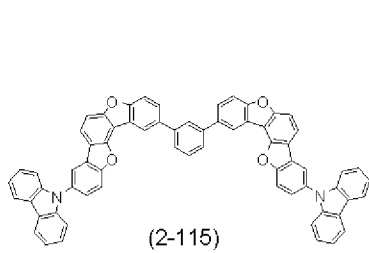
[0213]

[化125]



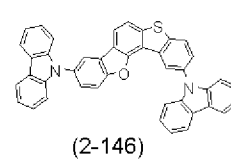
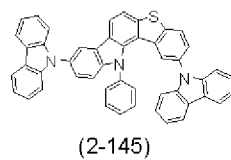
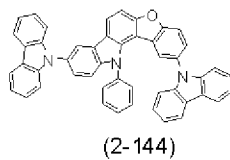
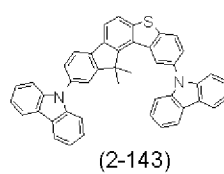
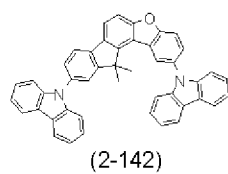
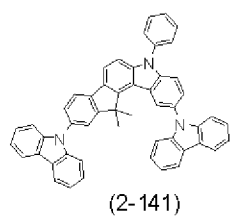
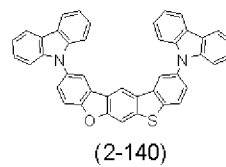
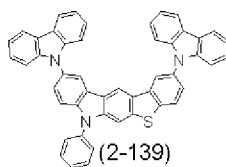
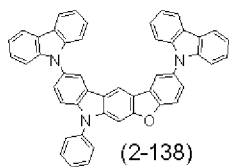
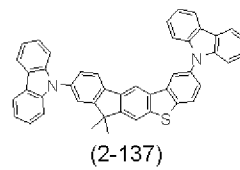
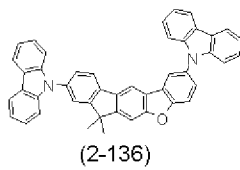
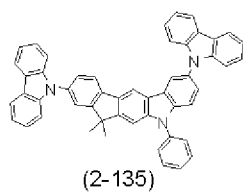
[0214]

[化126]



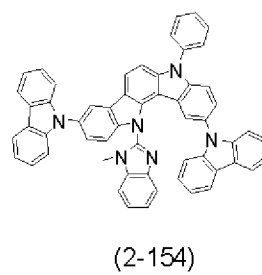
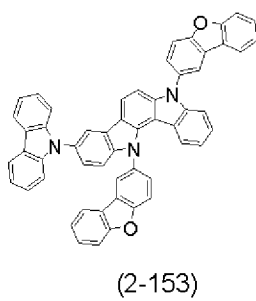
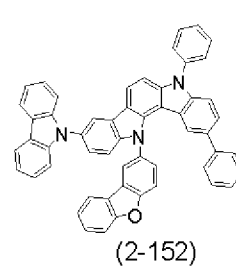
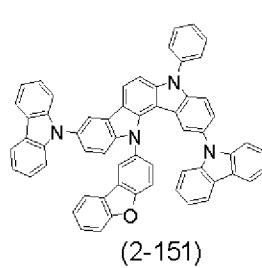
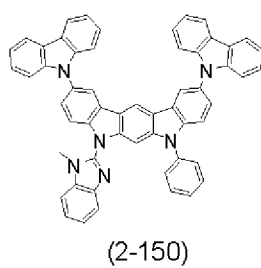
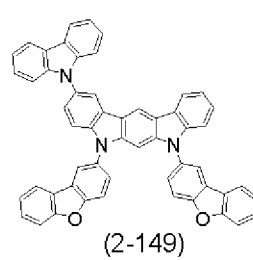
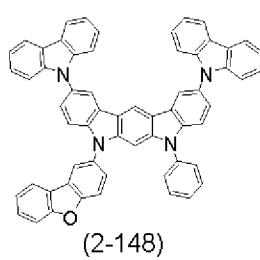
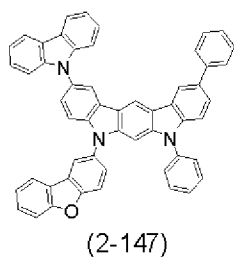
[0215]

[化127]



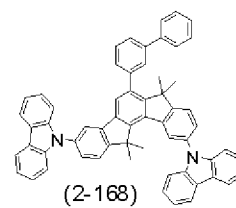
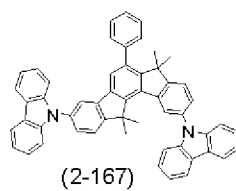
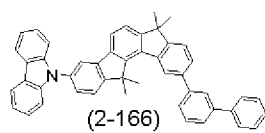
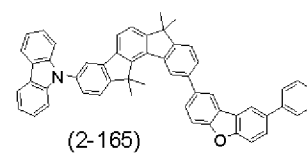
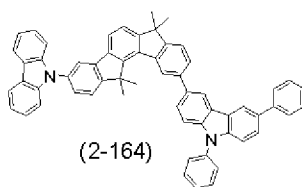
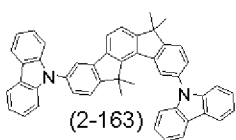
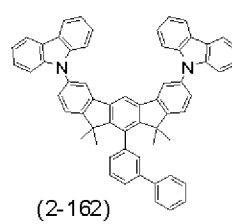
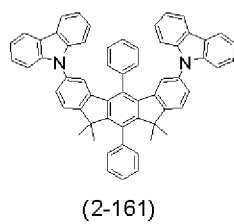
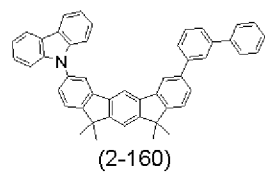
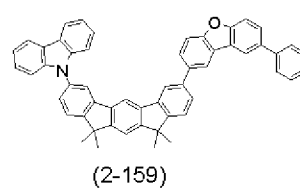
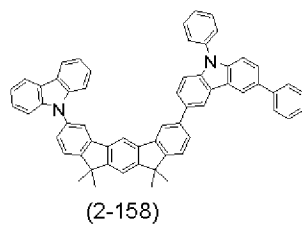
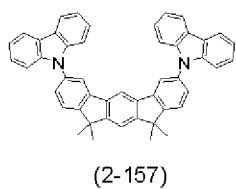
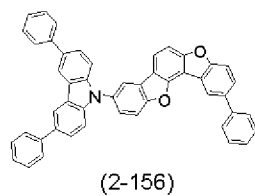
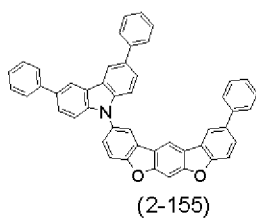
[0216]

[化128]



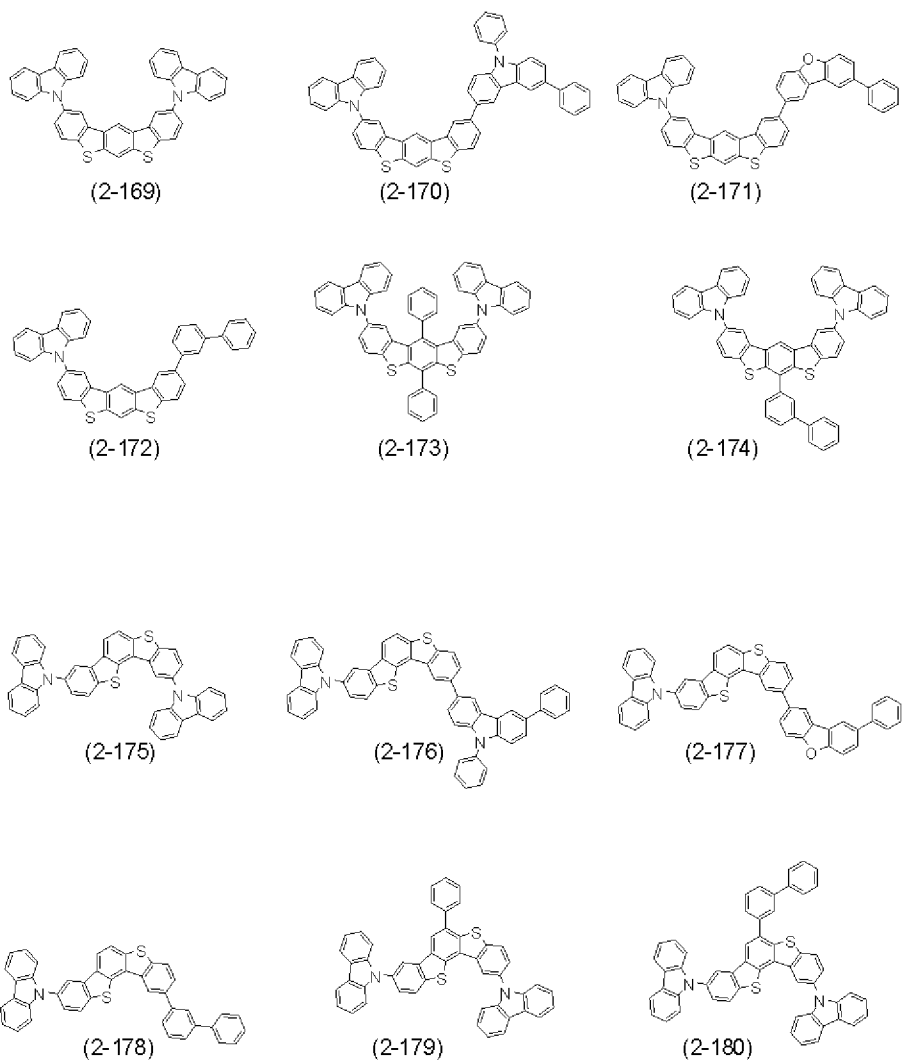
[0217]

[化129]



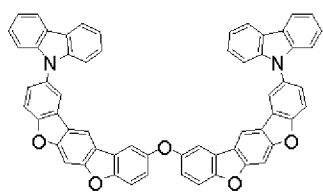
[0218]

[化130]

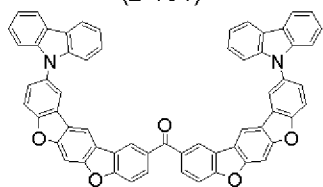


[0219]

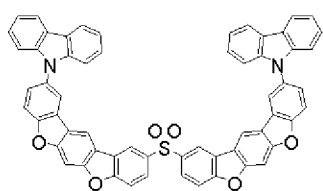
[化131]



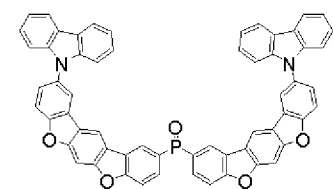
(2-181)



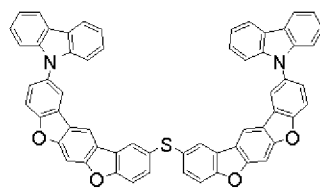
(2-183)



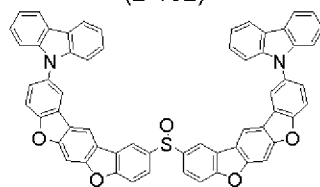
(2-185)



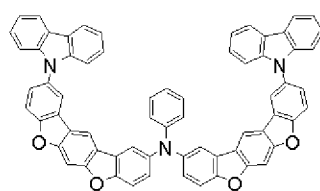
(2-187)



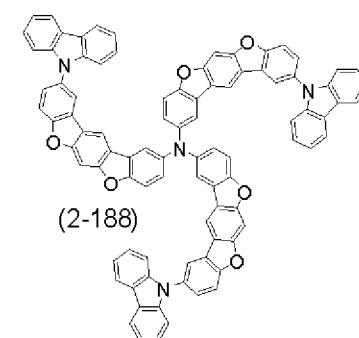
(2-182)



(2-184)



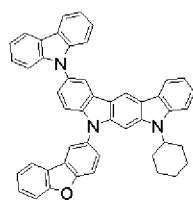
(2-186)



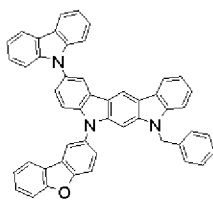
(2-188)

[0220]

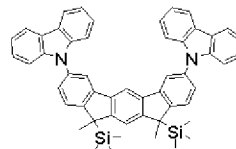
[化132]



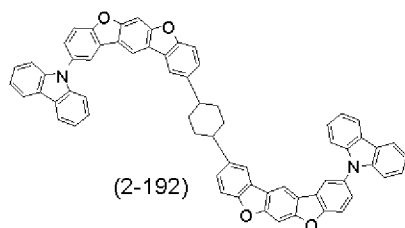
(2-189)



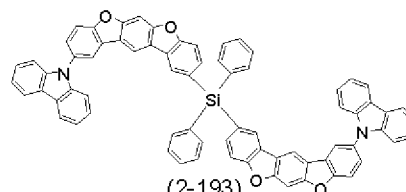
(2-190)



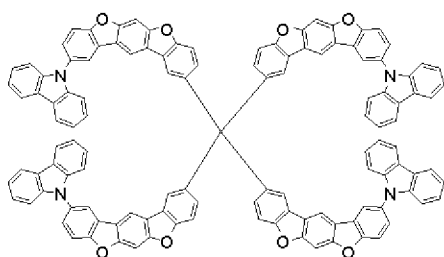
(2-191)



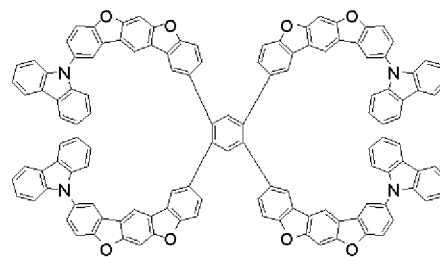
(2-192)



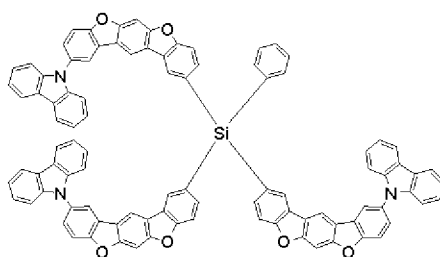
(2-193)



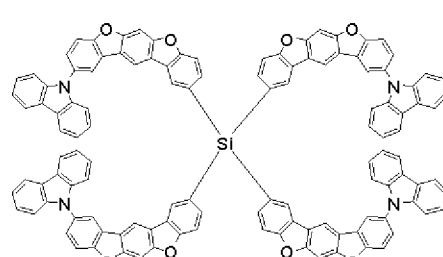
(2-194)



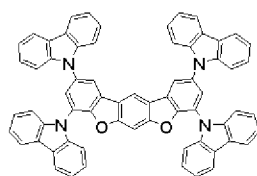
(2-195)



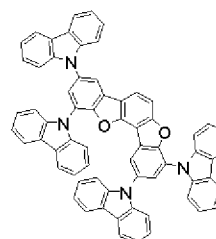
(2-196)



(2-197)



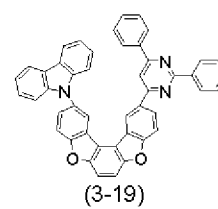
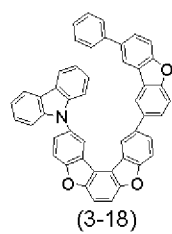
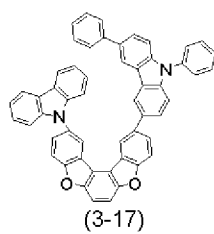
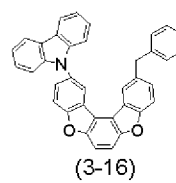
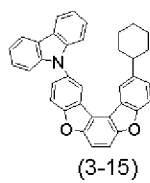
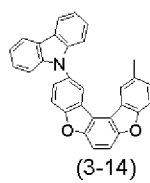
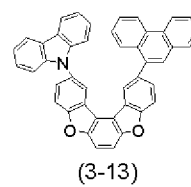
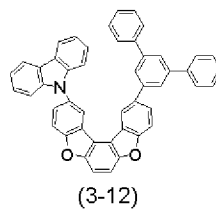
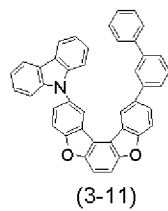
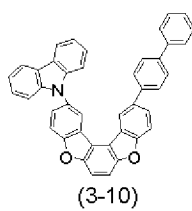
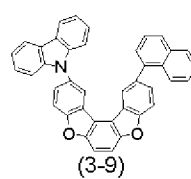
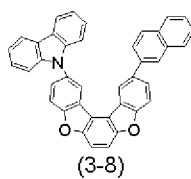
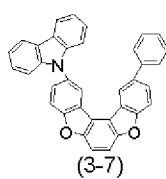
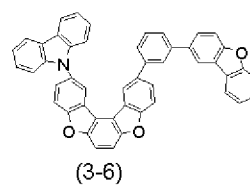
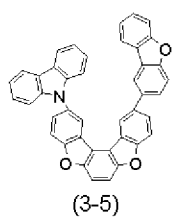
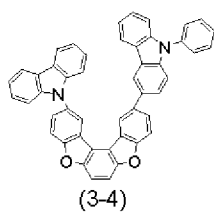
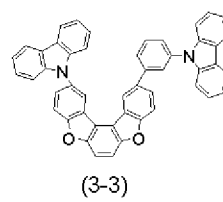
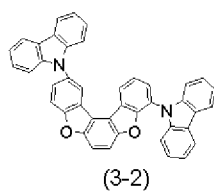
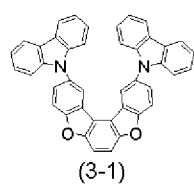
(2-198)



(2-199)

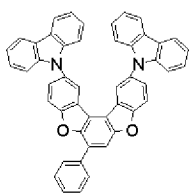
[0221]

[化133]

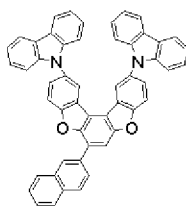


[0222]

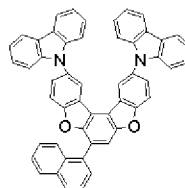
[化134]



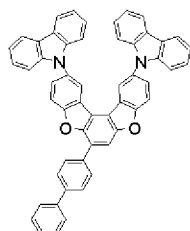
(3-20)



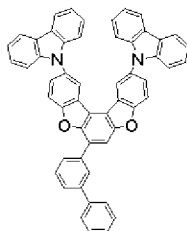
(3-21)



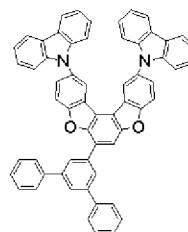
(3-22)



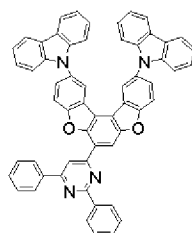
(3-23)



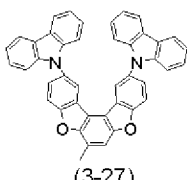
(3-24)



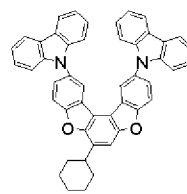
(3-25)



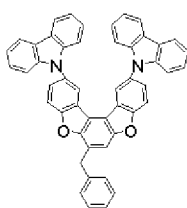
(3-26)



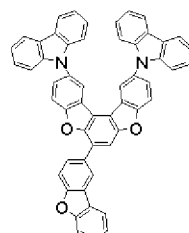
(3-27)



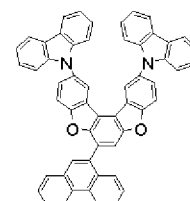
(3-28)



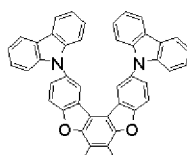
(3-29)



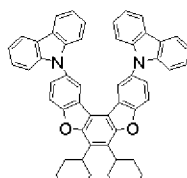
(3-30)



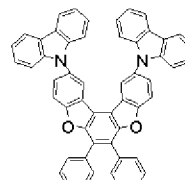
(3-31)



(3-32)



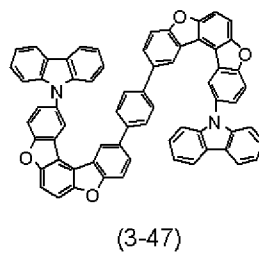
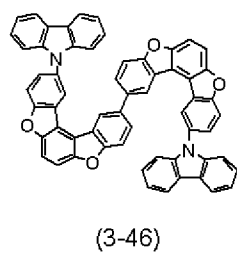
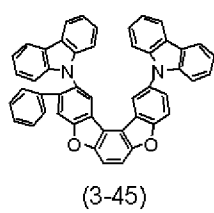
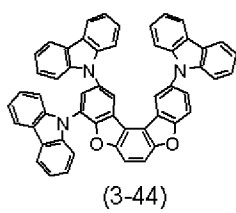
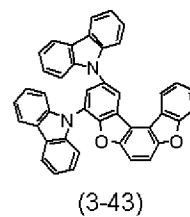
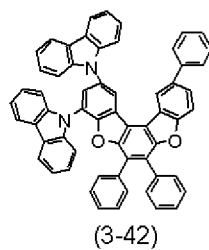
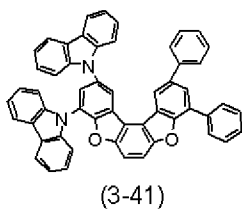
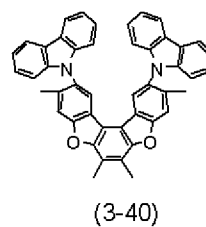
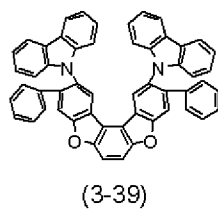
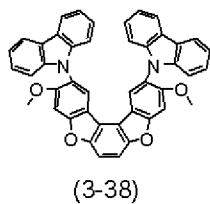
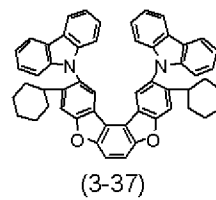
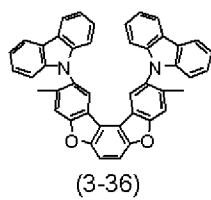
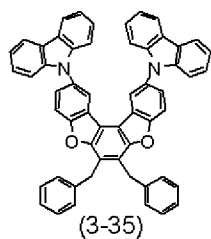
(3-33)



(3-34)

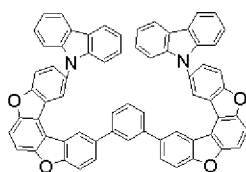
[0223]

[化135]

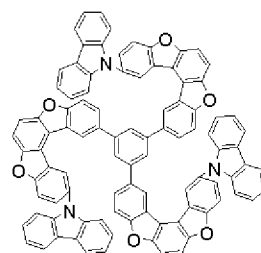


[0224]

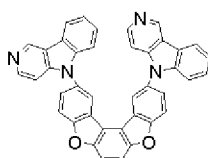
[化136]



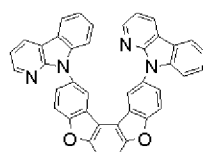
(3-48)



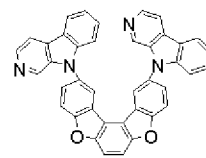
(3-49)



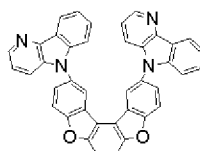
(3-50)



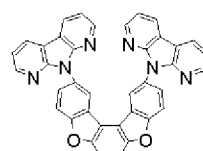
(3-51)



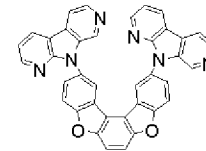
(3-52)



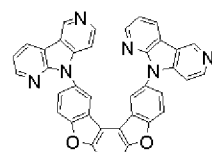
(3-53)



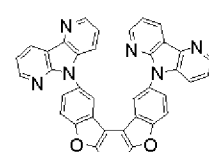
(3-54)



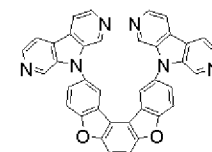
(3-55)



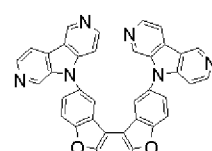
(3-56)



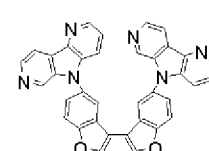
(3-57)



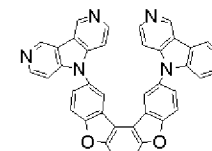
(3-58)



(3-59)



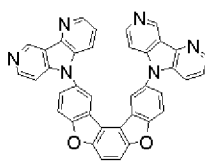
(3-60)



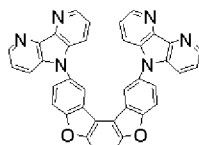
(3-61)

[0225]

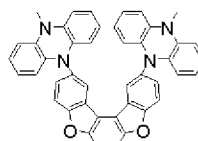
[化137]



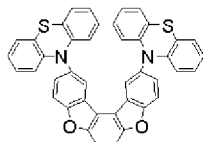
(3-62)



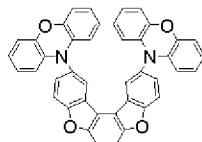
(3-63)



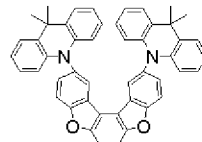
(3-64)



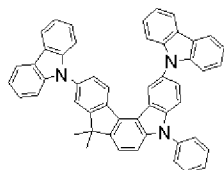
(3-65)



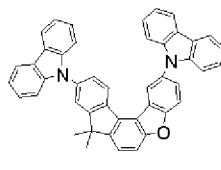
(3-66)



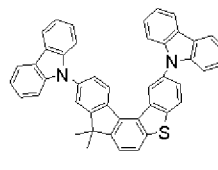
(3-67)



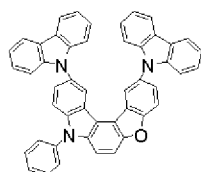
(3-68)



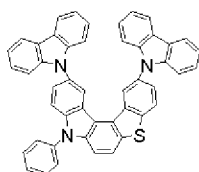
(3-69)



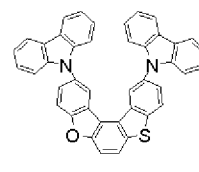
(3-70)



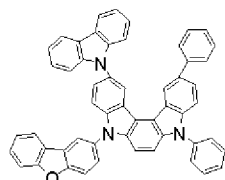
(3-71)



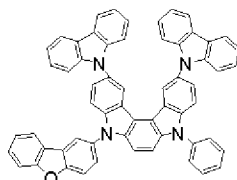
(3-72)



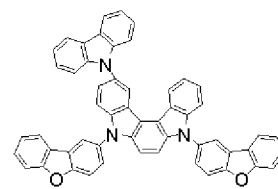
(3-73)



(3-74)



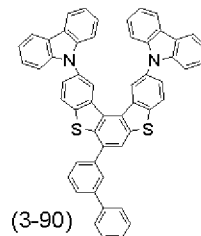
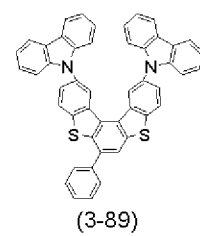
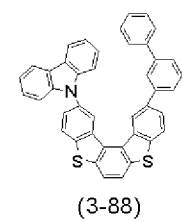
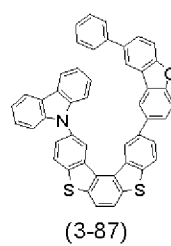
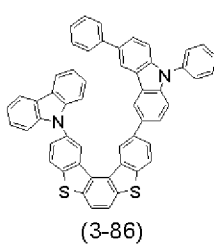
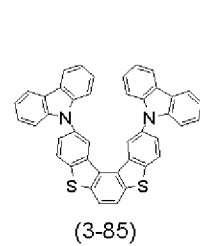
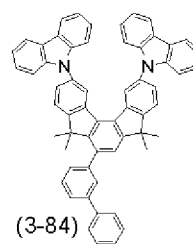
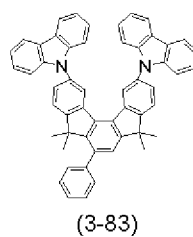
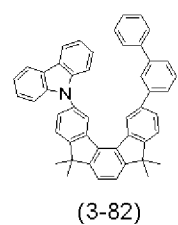
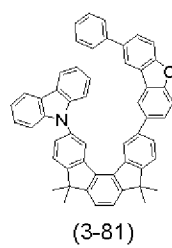
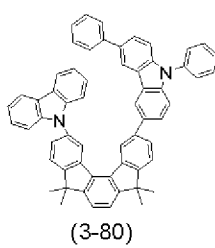
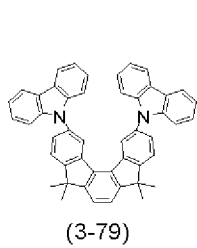
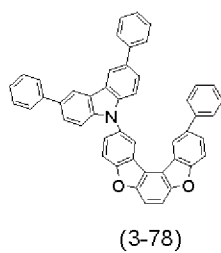
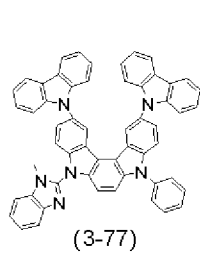
(3-75)



(3-76)

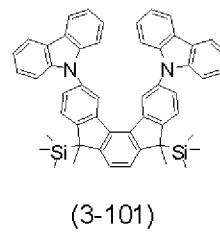
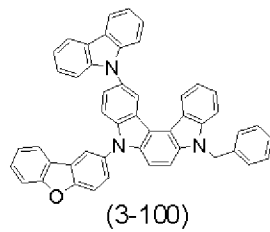
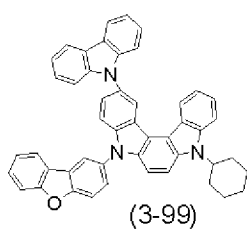
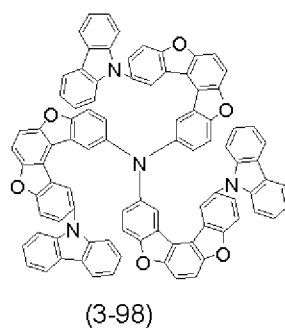
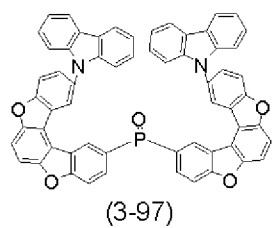
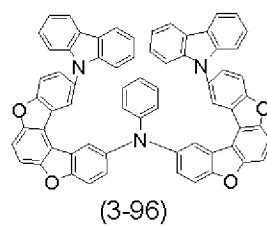
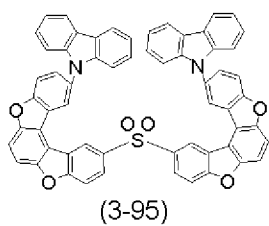
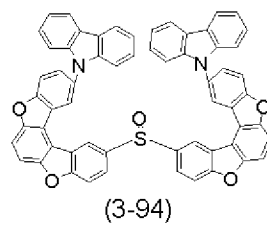
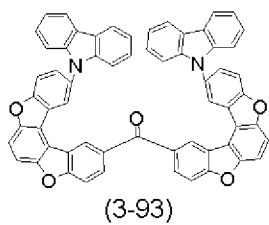
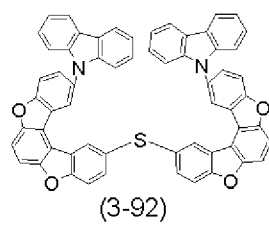
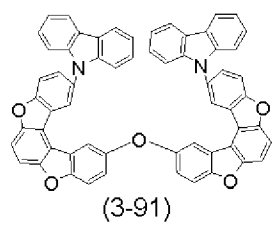
[0226]

[化138]



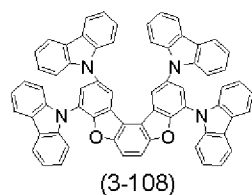
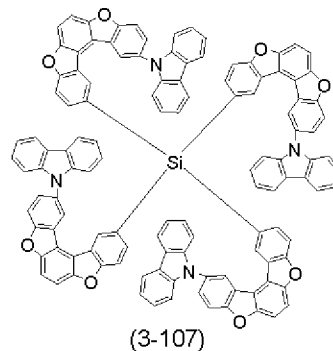
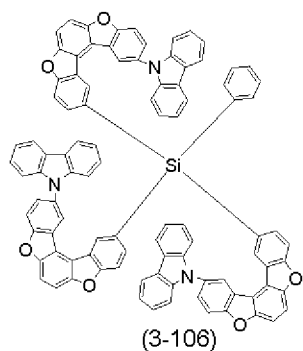
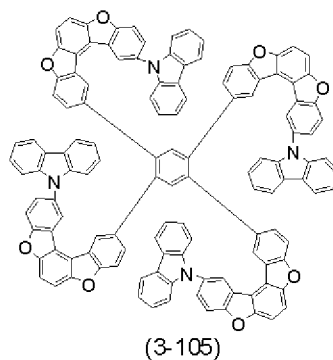
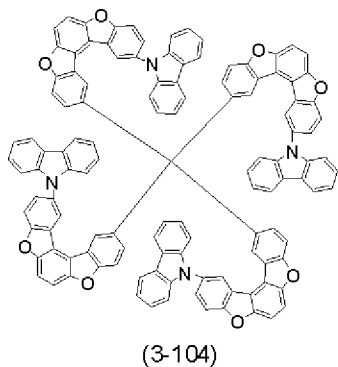
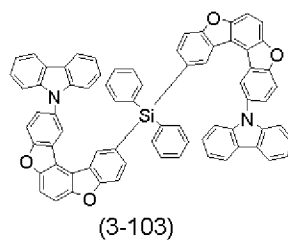
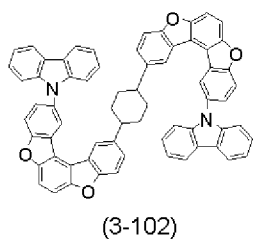
[0227]

[化139]



[0228]

[化140]



[0229] (燐光材料)

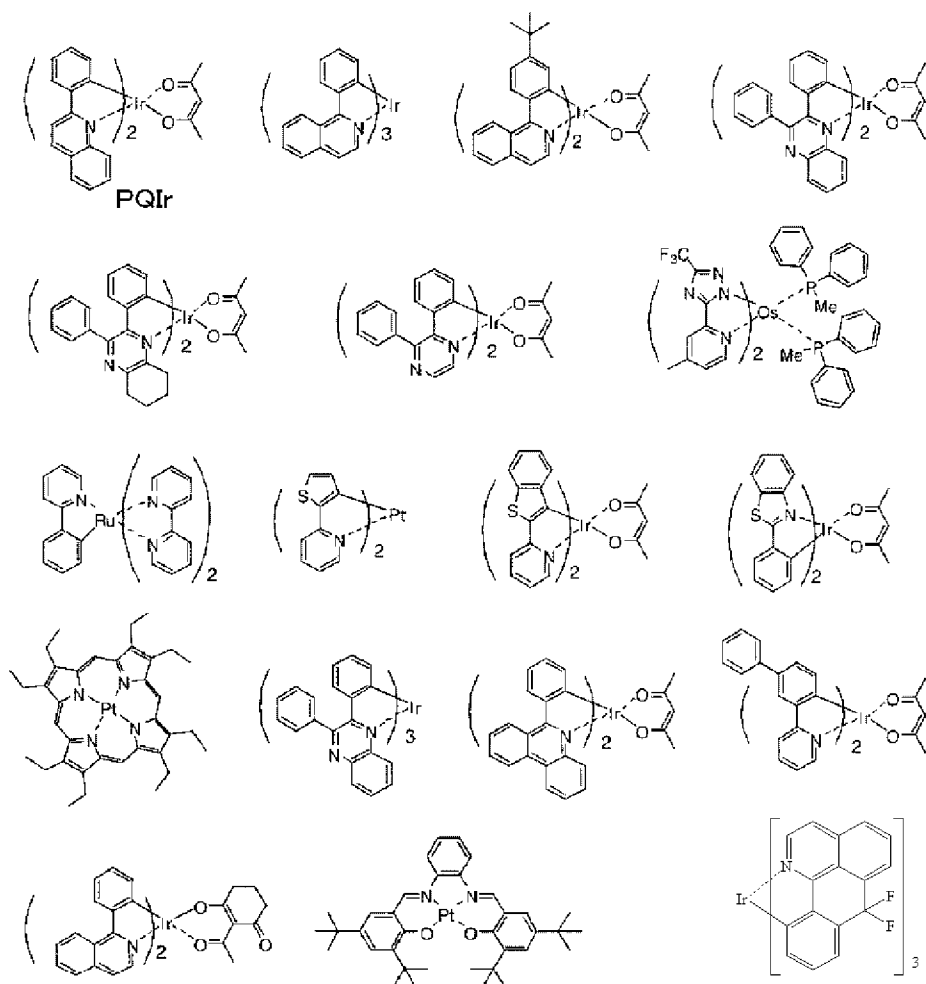
本発明において、発光層はドーパントとして、燐光材料を含む。

燐光材料は、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化合物であるとより好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、

白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。

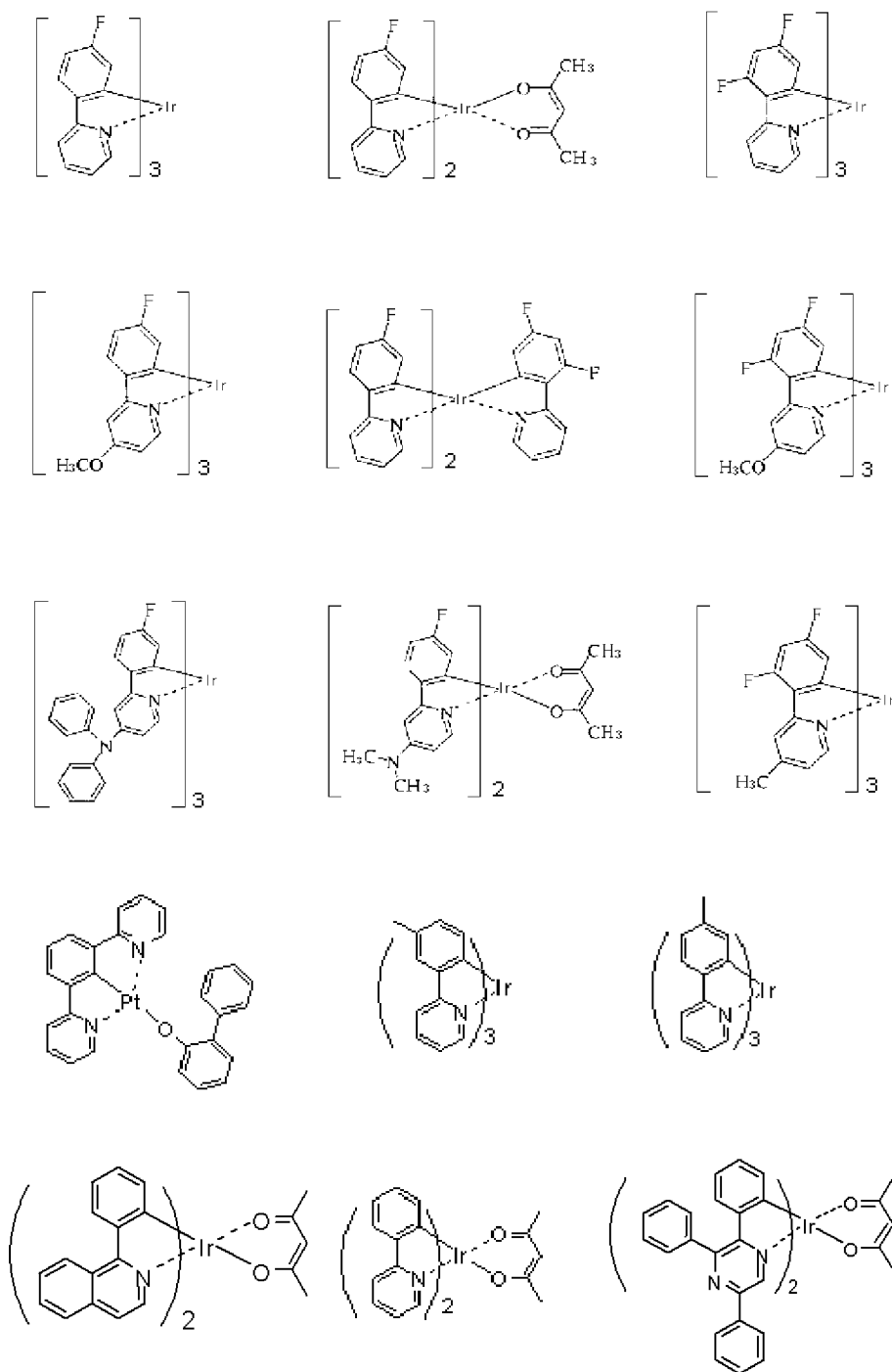
好ましい金属錯体の具体例を、以下に示す。

[0230] [化141]



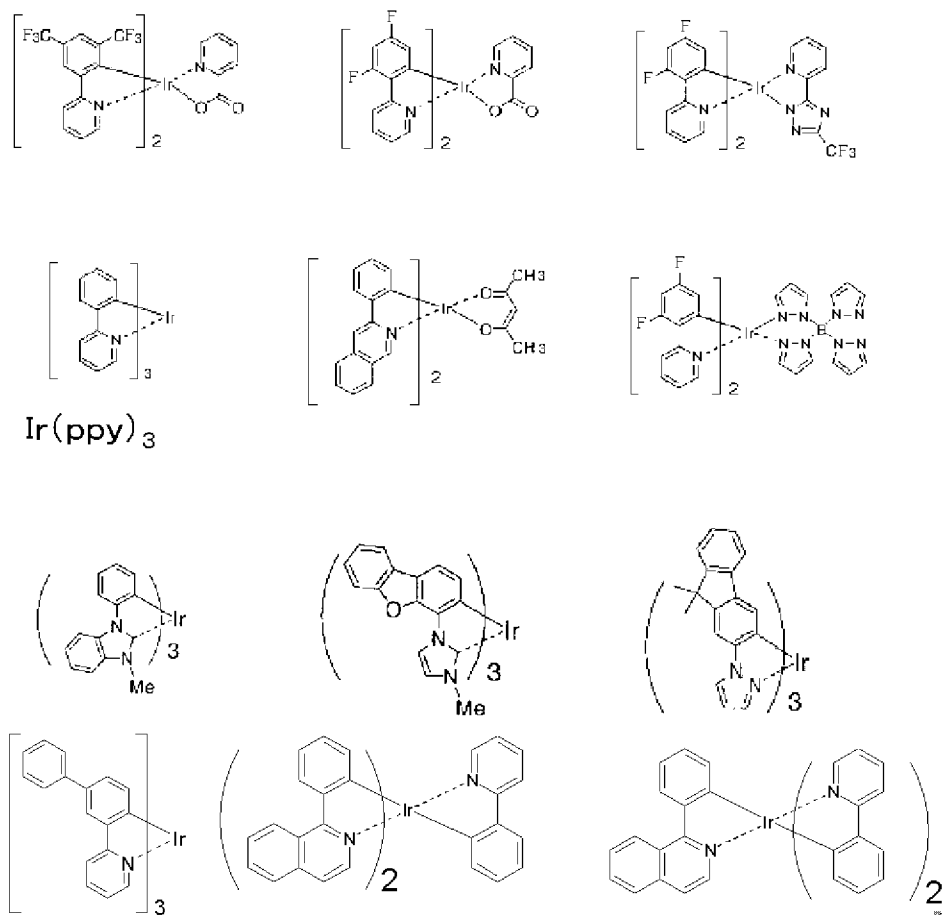
[0231]

[化142]



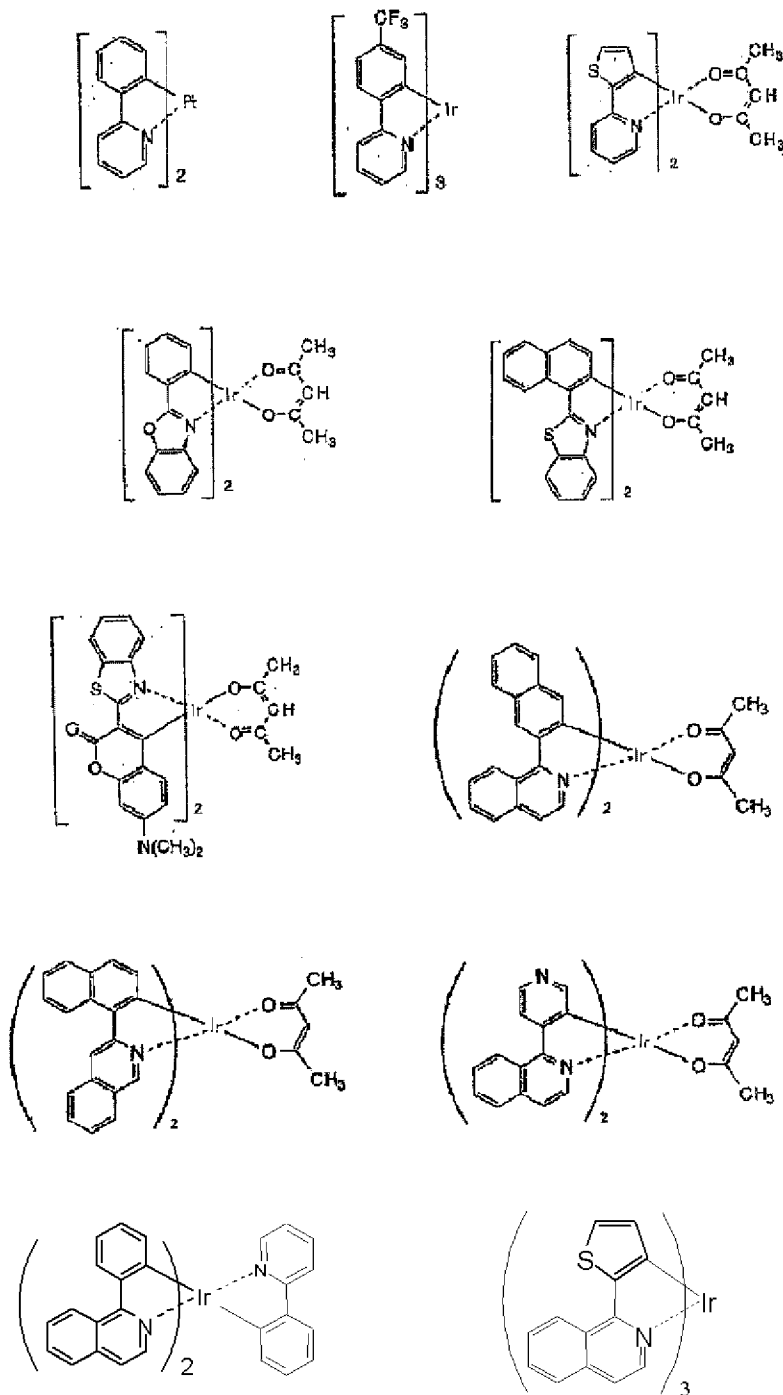
[0232]

[化143]



[0233]

[化144]



[0234] 本発明では、前記発光層に含まれる前記燐光材料のうち少なくとも1種は、発光波長の極大値が450nm以上720nm以下であることが好ましい。

このような発光波長の燐光材料（燐光ドーパント）を、本発明で用いる特定のホスト材料にドープして発光層を構成することにより、高効率な有機EL

素子とできる。

[0235] (還元性ドーパント)

本発明の有機EL素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に還元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。

還元性ドーパントとしては、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。

[0236] 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。

以上の金属のうち好ましい金属は、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可能である。

[0237] 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、Li₂O、NaFが好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa_xSr_{1-x}O (0<x<1)、Ba_xCa_{1-x}O (0<x<1) 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、YbF₃、ScF₃、ScO₃、Y₂O₃、Ce₂O₃、GdF₃、TbF₃等が挙げられ、YbF₃、ScF₃、TbF₃が好ましい。

[0238] 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。

[0239] 還元性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元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有機物：還元性ドーパント＝100：1～1：100、好ましくは5：1～1：5である。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1nm～15nmで形成する。

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元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。

また、本発明の有機EL素子における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント＝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。

[0240] (電子注入層および電子輸送層)

電子注入層又は電子輸送層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きい。電子注入層はエネルギーレベルの急な変化を緩和する等、エネルギーレベルを調整するために設ける。

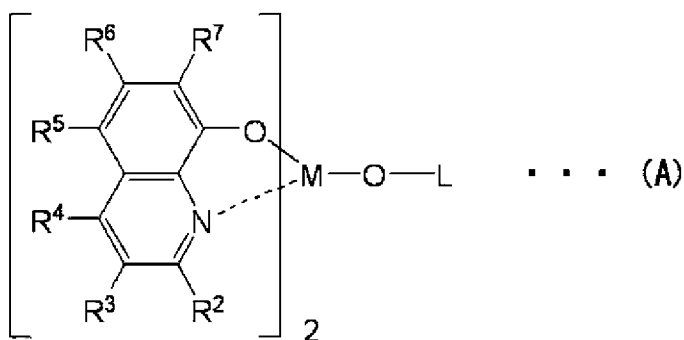
本発明の有機EL素子は、発光層と陰極との間に電子注入層を有し、前記電子注入層は、含窒素環誘導体を主成分として含有することが好ましい。ここで、電子注入層は電子輸送層として機能する層であってもよい。

なお、「主成分として」とは、電子注入層が50質量%以上の含窒素環誘導体を含有していることを意味する。

[0241] 電子注入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。

[0242] [化145]



[0243] 一般式(A)における $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、炭素数1~40の炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルコシカルボニル基、または、芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

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。また、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。

[0244] アルコキシカルボニル基は $-\text{C}(\text{O})\text{OY}'$ と表され、 Y' の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。アルキルアミノ基及びアラルキルアミノ基は $-\text{NQ}^1\text{Q}^2$ と表される。 Q^1 及び Q^2 の具体例としては、それぞれ独立に、前記アルキル基、前記アラルキル基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。 Q^1 及び Q^2 の一方は水素原子であってもよい。

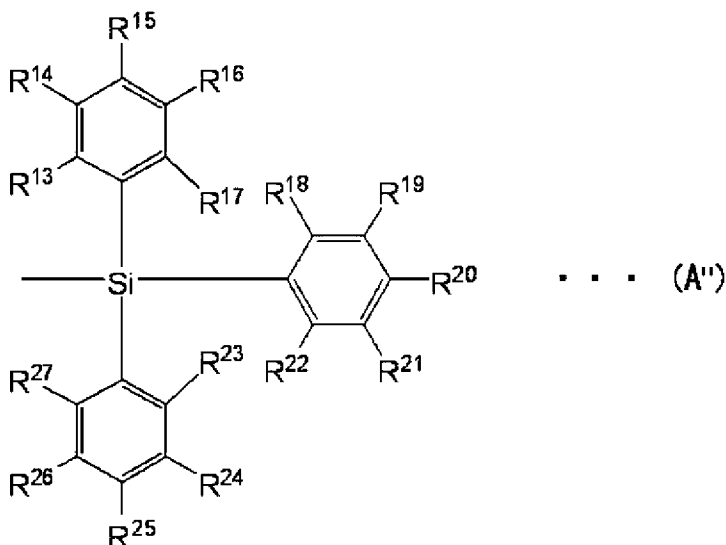
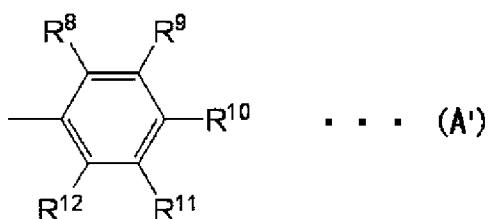
アリールアミノ基は $-\text{NAr}^1\text{Ar}^2$ と表され、 Ar^1 及び Ar^2 の具体例としては、それぞれ独立に前記非縮合芳香族炭化水素基及び縮合芳香族炭化水素基で説明した基と同様である。 Ar^1 及び Ar^2 の一方は水素原子であってもよい。

[0245] 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。

上記式 (A) の L は、下記式 (A') 又は (A'') で表される基である。

[0246]

[化146]



[0247] 前記式 (A') 中、R⁸～R¹²は、それぞれ独立に、水素原子、または置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、前記式 (A'') 中、R¹³～R²⁷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の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

前記式 (A') 及び式 (A'') の R⁸～R¹² 及び R¹³～R²⁷ が示す炭素数1～40の炭化水素基としては、前記式 (A) 中の R²～R⁷ の具体例と同様のものが挙げられる。

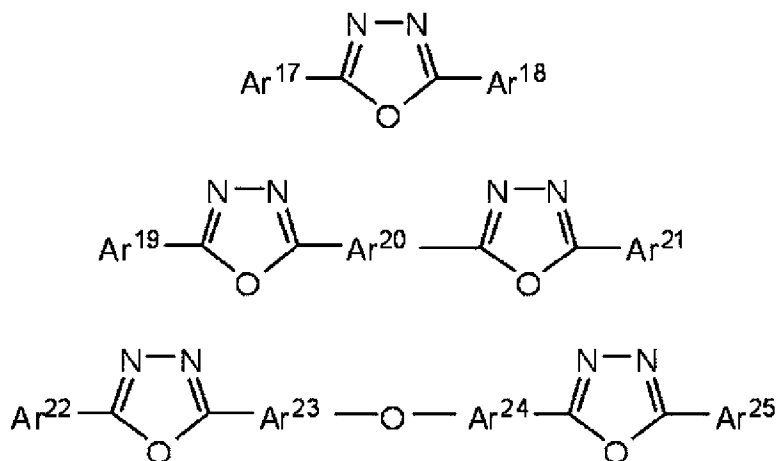
また、R⁸～R¹² 及び R¹³～R²⁷ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の2価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

[0248] 一方、本発明では、電子輸送層として、前記式 (1) から (3) (または

(4) から (6)) に示されたビスカルバゾール誘導体を含有してもよい。

[0249] 電子注入層又は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、下記のことを挙げるができる。

[0250] [化147]



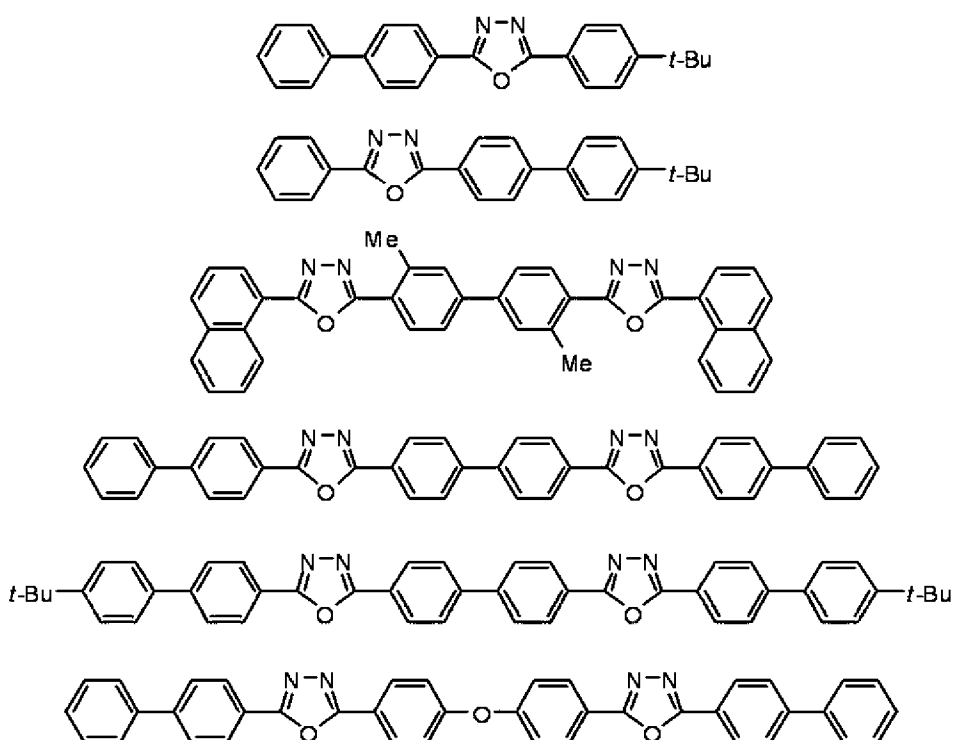
[0251] 前記式中、 Ar^{17} 、 Ar^{18} 、 Ar^{19} 、 Ar^{21} 、 Ar^{22} 及び Ar^{25} は、それぞれ置換基を有するもしくは有さない環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{17} と Ar^{18} 、 Ar^{19} と Ar^{21} 、 Ar^{22} と Ar^{25} は、たがいに同一でも異なってもよい。環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数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。

Ar^{20} 、 Ar^{23} 及び Ar^{24} は、それぞれ置換基を有するもしくは有さない環形成炭素数6～40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。

この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。そして、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。

[0252] 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。

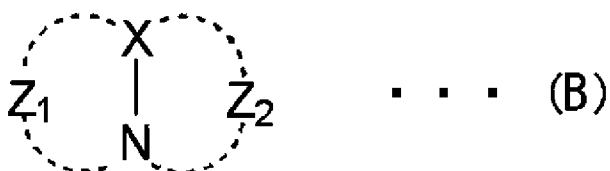
[0253] [化148]



[0254] 電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の一般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（A）に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記式（B）に示す構造のものが挙げられる。

[0255]

[化149]



[0256] 前記式 (B) 中、X は炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z₁ ならびに Z₂ 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。

[0257] 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 (A) と (B) もしくは上記式 (A) と下記式 (C) 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。

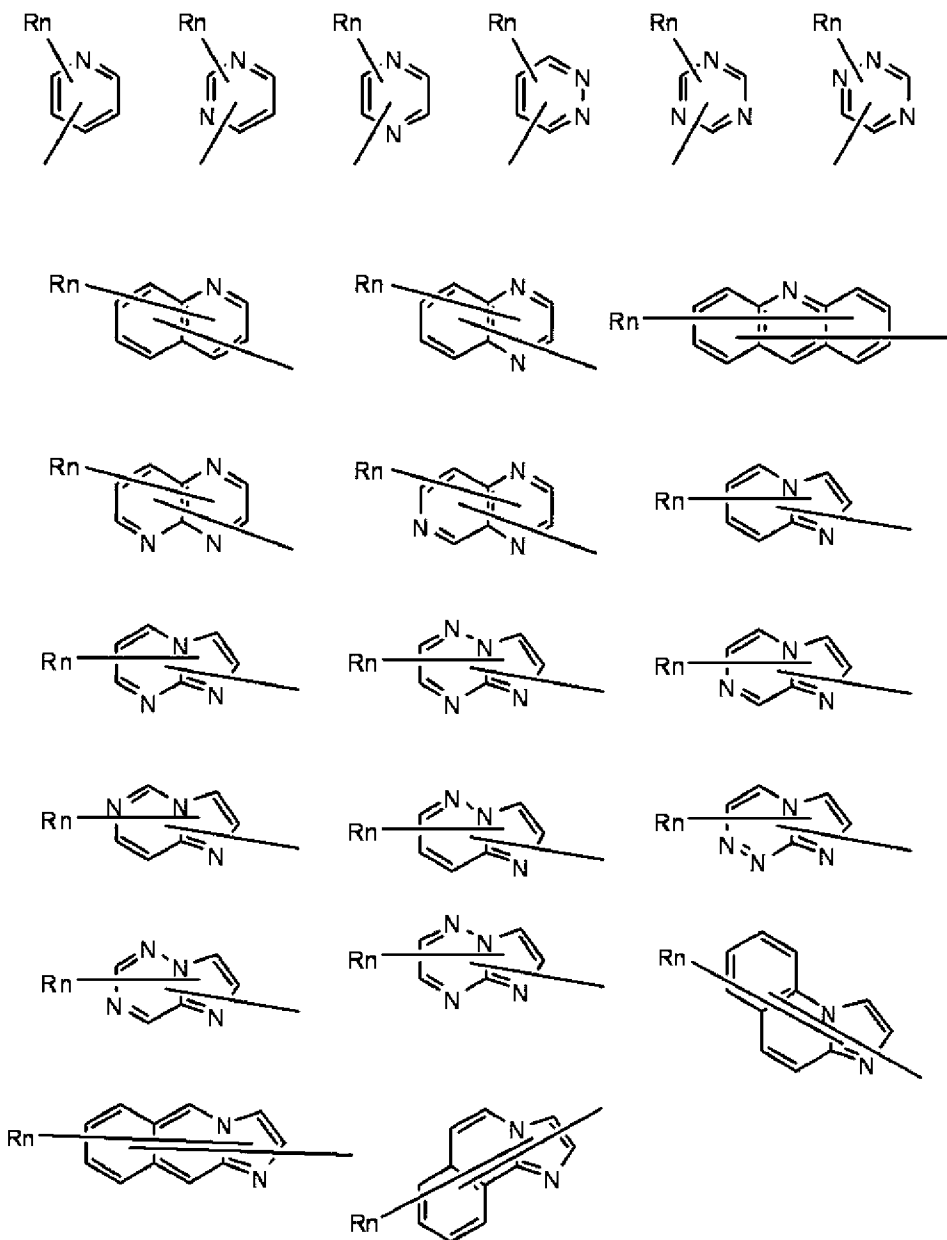
[0258] [化150]



[0259] 前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の一般式で表される含窒素複素環基から選択される。

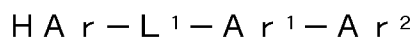
[0260]

[化151]



[0261] 前記各式中、Rは、環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、環形成炭素数2～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、炭素数1～20のアルキル基、または炭素数1～20のアルコキシ基であり、nは0～5の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数のRは互いに同一又は異なってもよい。

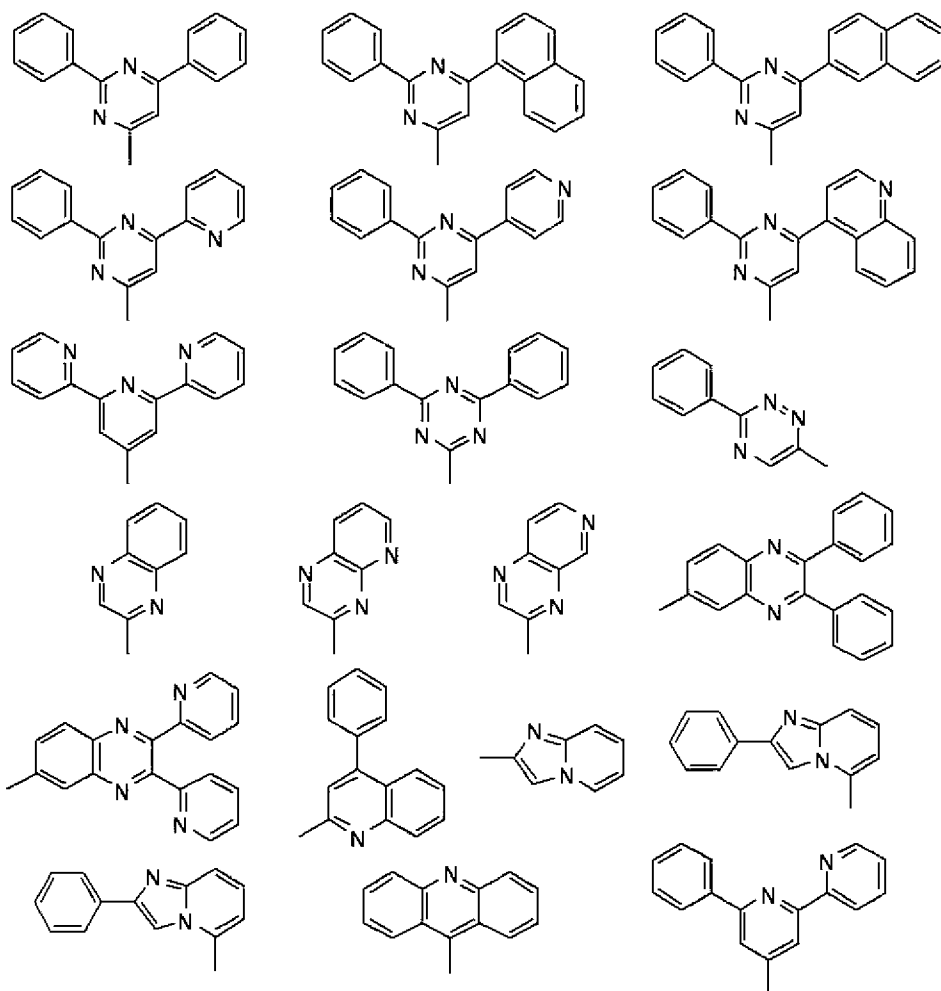
[0262] さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。



前記式中、H A rは、置換基を有していてもよい環形成炭素数1～40の含窒素複素環基であり、L¹は単結合、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい環形成炭素数2～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、A r¹は置換基を有していてもよい環形成炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、A r²は置換基を有していてもよい環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい環形成炭素数2～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

H A r は、例えば、下記の群から選択される。

[0263] [化152]



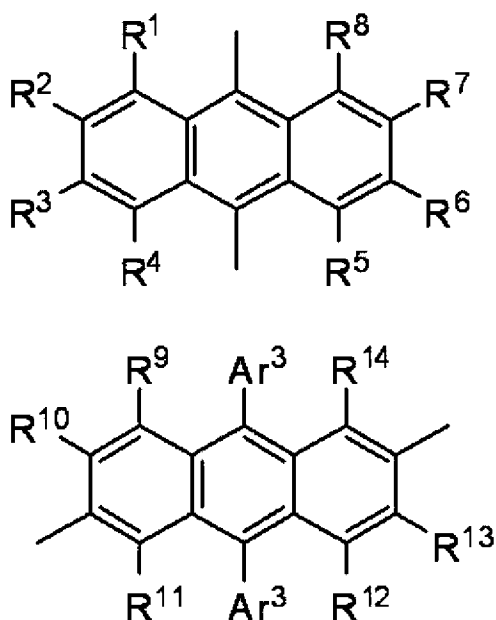
[0264] L^1 は、例えば、下記の群から選択される。

[0265] [化153]



[0266] Ar^1 は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。

[0267] [化154]

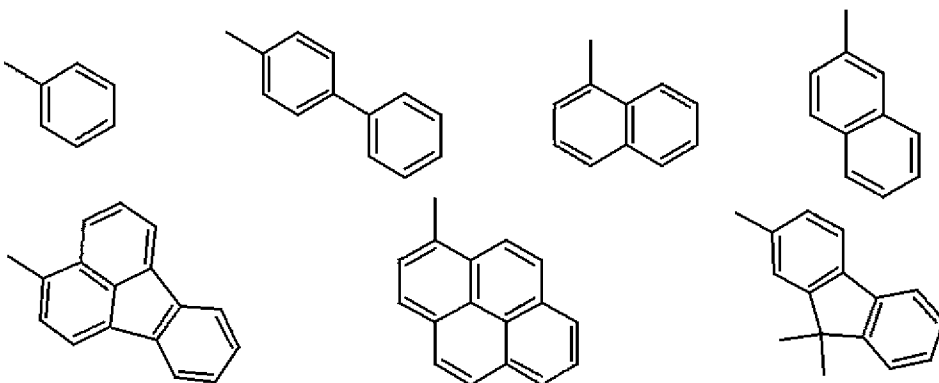


[0268] 前記式中、 $R^1 \sim R^{14}$ は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、環形成炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または環形成炭素数2～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、 Ar^3 は、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基または環形成炭素数2～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

また、 $R^1 \sim R^8$ は、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体であってもよい。

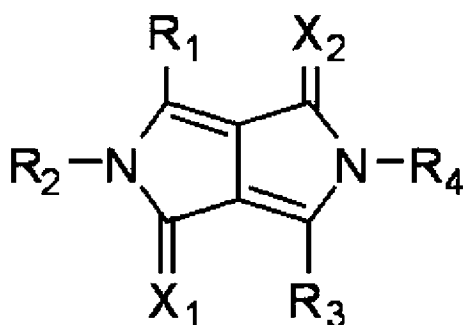
[0269] Ar^2 は、例えば、下記の群から選択される。

[0270] [化155]



[0271] 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（特開平9-3448号公報参照）も好適に用いられる。

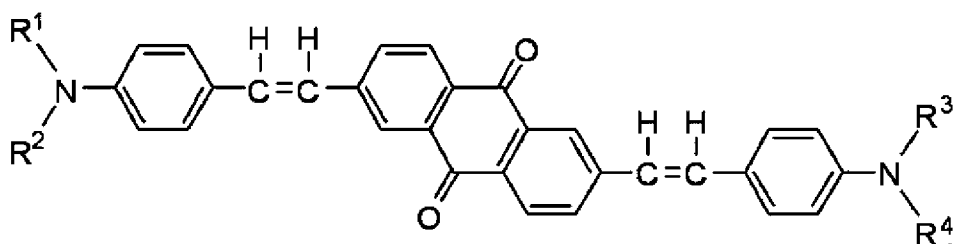
[0272] [化156]



[0273] 前記式中、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の脂肪族基、置換もしくは無置換の脂肪族式環基、置換もしくは無置換の炭素環式芳香族環基、置換もしくは無置換の複素環基を表し、 X_1 、 X_2 は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、またはジシアノメチレン基を表す。

[0274] また、電子伝達性化合物として、下記の化合物（特開2000-173774号公報参照）も好適に用いられる。

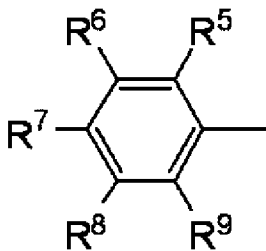
[0275] [化157]



[0276] 前記式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は互いに同一のまたは異なる基であって

、下記式で表わ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。

[0277] [化158]

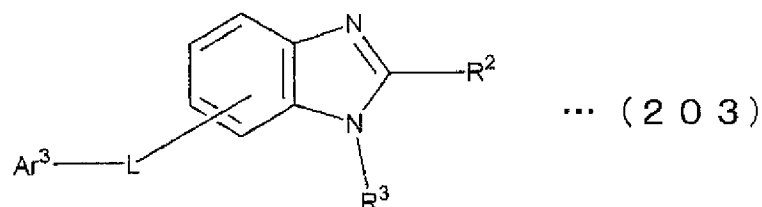
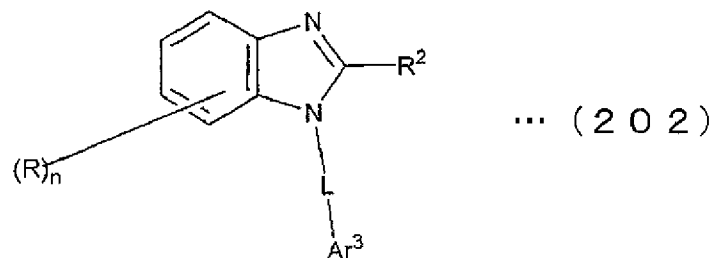
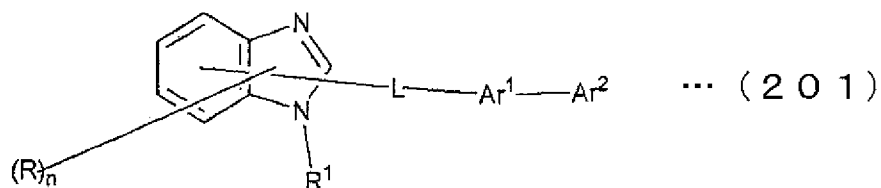


前記式中、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸及びR⁹は互いに同一のまたは異なる基であって、水素原子、或いはそれらの少なくとも1つが飽和もしくは不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基、またはアルキルアミノ基である。

[0278] さらに、電子伝達性化合物は、該含窒素複素環基また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。

[0279] また、電子輸送層は、下記式(201)～(203)で表される含窒素複素環誘導体の少なくともいずれか1つを含有することが好ましい。

[0280] [化159]



[0281] 前記式(201)～(203)中、Rは、水素原子、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、または置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基で、

nは0～4の整数であり、

R¹は、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基。または炭素数1～20のアルコキシ基であり、

R²及びR³は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、または置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基であり、

Lは、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基、または置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、

A_r¹は、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基であり、A_r²は、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、または置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基である。

[0282] A_r³は、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、置

換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、または $-Ar^1-Ar^2$ で表される基（ Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ前記と同じ）である。

なお、前記式（201）～（203）において、Rは、水素原子、置換基を有していてもよい環形成炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、または置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基である。

[0283] なお、電子注入層又は電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは、1 nm～100 nmである。

また、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。

[0284] 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。

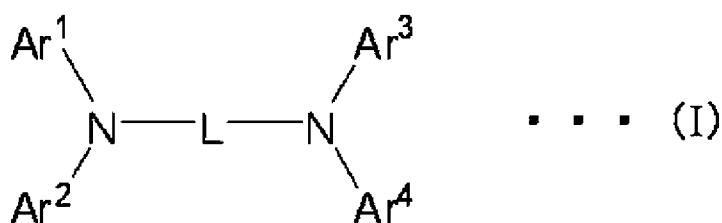
[0285] また、半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

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 nm～15 nm程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の還元性ドーパントを含有していても好ましい。

[0286] (正孔注入層および正孔輸送層)

正孔注入層又は正孔輸送層(正孔注入輸送層も含む)には、芳香族アミン化合物、例えば、下記一般式(I)で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

[0287] [化160]

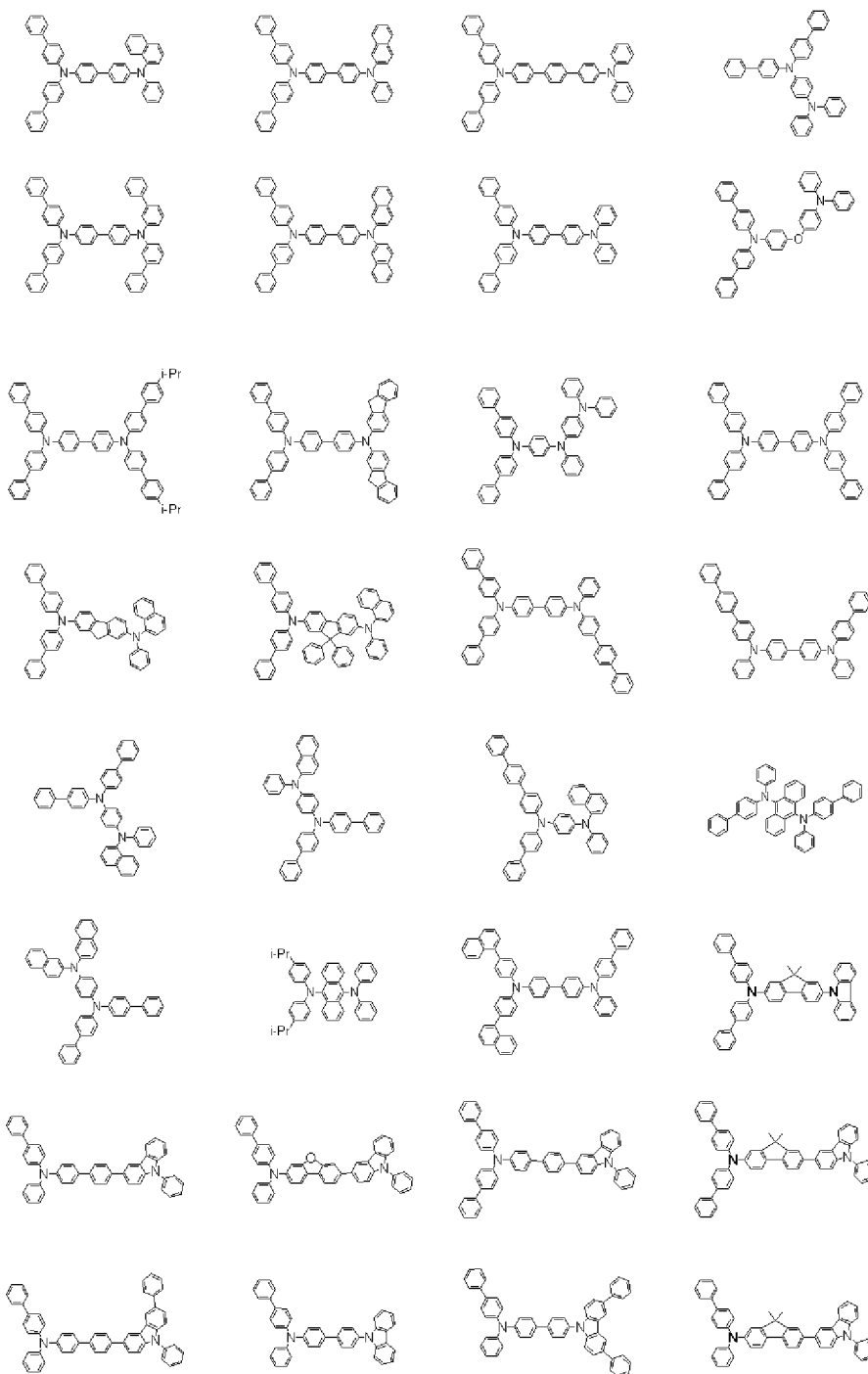


[0288] 前記一般式(I)において、Ar¹～Ar⁴は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数2～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、または、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を結合させた基を表す。

[0289] 前記一般式(I)の化合物の具体例を以下に記すが、これらに限定される

ものではない。

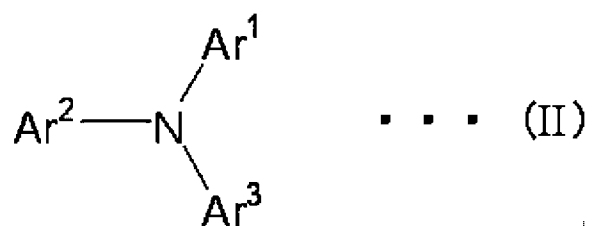
[0290] [化161]



[0291] また、下記一般式（ⅠⅠ）の芳香族アミンも正孔注入層又は正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

[0292]

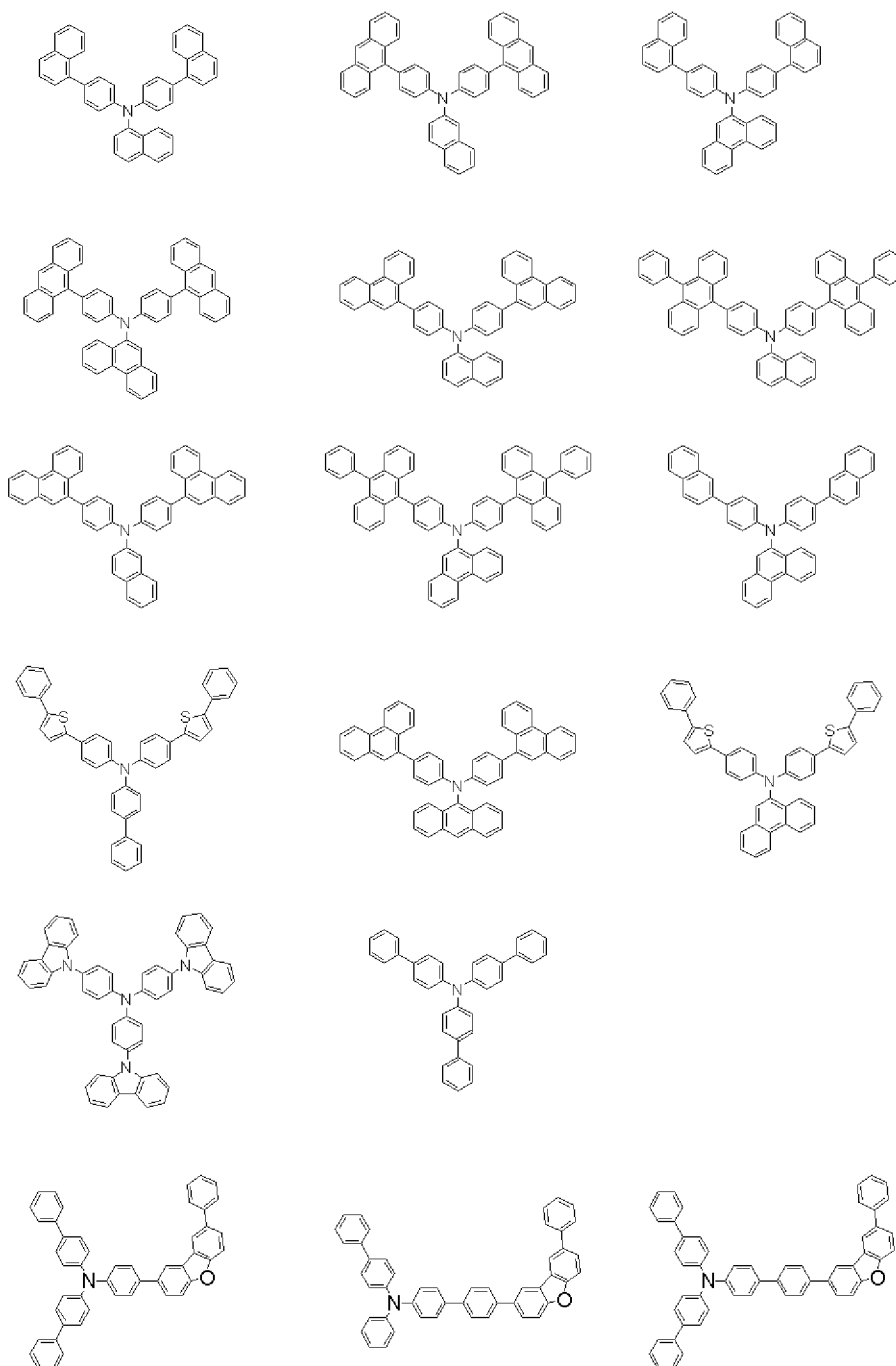
[化162]



[0293] 前記一般式（ⅠⅠ）において、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ の定義は前記一般式（Ⅰ）の $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ の定義と同様である。以下に一般式（ⅠⅠ）の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

[0294]

[化163]



[0295] なお、本発明は、上記の説明に限られるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲での変更は本発明に含まれる。

例えば次のような変更も本発明の好適な変形例である。

[0296] 本発明では、前記発光層が電荷注入補助材を含有していることも好ましい

。

エネルギーギャップが広いホスト材料を用いて発光層を形成した場合、ホスト材料のイオン化ポテンシャル（ I_p ）と正孔注入・輸送層等の I_p との差が大きくなり、発光層への正孔の注入が困難となり、十分な輝度を得るための駆動電圧が上昇するおそれがある。

このような場合、発光層に、正孔注入・輸送性の電荷注入補助剤を含有させることで、発光層への正孔注入を容易にし、駆動電圧を低下させることができる。

[0297] 電荷注入補助剤としては、例えば、一般的な正孔注入・輸送材料等が利用できる。

具体例としては、トリアゾール誘導体（米国特許 3, 112, 197 号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許 3, 189, 447 号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭 37-16096 号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許 3, 615, 402 号明細書、同第 3, 820, 989 号明細書、同第 3, 542, 544 号明細書、特公昭 45-555 号公報、同 51-10983 号公報、特開昭 51-93224 号公報、同 55-17105 号公報、同 56-4148 号公報、同 55-108667 号公報、同 55-156953 号公報、同 56-36656 号公報等参照）、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体（米国特許第 3, 180, 729 号明細書、同第 4, 278, 746 号明細書、特開昭 55-88064 号公報、同 55-88065 号公報、同 49-105537 号公報、同 55-51086 号公報、同 56-80051 号公報、同 56-88141 号公報、同 57-45545 号公報、同 54-112637 号公報、同 55-74546 号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第 3, 615, 404 号明細書、特公昭 51-10105 号公報、同 46-3712 号公報、同 47-25336 号公報、特開昭 54-53435 号公報、同 54-110536 号公報、同 54-119925 号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第 3, 567, 450 号明細書、同第 3, 180, 703 号明細書、同第 3, 240, 597 号明細書、同第 3, 658

、520号明細書、同第4、232、103号明細書、同第4、175、961号明細書、同第4、012、376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1、110、518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3、526、501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3、257、203号明細書等に掲載のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3、717、462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4、950、950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている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。

[0298] 正孔注入性の材料としては上記のものを挙げることができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-295695号公報等に掲載のもの)、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4、127、412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、

同 6 1 - 2 9 5 5 5 8 号公報、同 6 1 - 9 8 3 5 3 号公報、同 6 3 - 2 9 5 6 9 5 号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物が好ましい。

[0299] また、米国特許第 5, 0 6 1, 5 6 9 号に記載されている 2 個の縮合芳香族環を分子内に有する、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 N P D と略記する)、また特開平 4 - 3 0 8 6 8 8 号公報に記載されている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 M T D A T A と略記する) 等を挙げることができる。

また、特許公報第 3 6 1 4 4 0 5 号、3 5 7 1 9 7 7 号又は米国特許 4, 7 8 0, 5 3 6 に記載されているヘキサアザトリフェニレン誘導体等も正孔注入性の材料として好適に用いることができる。

また、p 型 S i、p 型 S i C 等の無機化合物も正孔注入材料として使用することができる。

[0300] 本発明の有機 E L 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。本発明の有機 E L 素子に用いる、前記式 (1) で表される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 (M B E 法) あるいは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。

[0301] 本発明の有機 E L 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 n m から 1 μ m の範囲が好ましい。

実施例

[0302] 次に、実施例および比較例を挙げて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容になんら制限されるものではない。

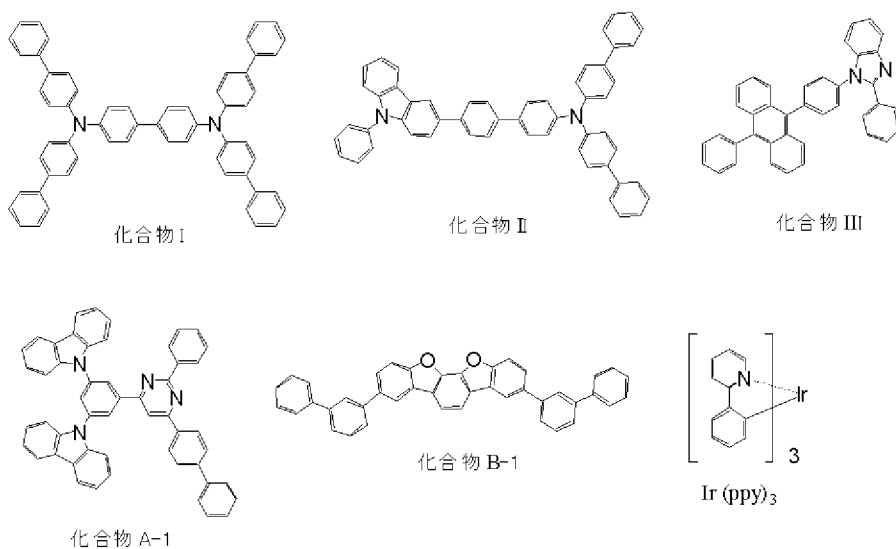
[0303] 実施例 1 (有機 EL 素子 1 の作成)

25 mm × 75 mm × 1.1 mm の ITO 透明電極付きガラス基板 (ジオマテック社製) に、イソプロピルアルコール中での 5 分間の超音波洗浄を施し、さらに、30 分間の UV (Ultraviolet) オゾン洗浄を施した。

このようにして洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の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、化合物 I を厚さ 40 nm で蒸着し、正孔注入層を得た。次いで、この膜上に、化合物 II を厚さ 20 nm で蒸着し、正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、燐光用ホストである化合物 No. A-1 と燐光用ホストである化合物 No. B-1 と燐光用ドーパントである Ir(ppy)₃ とを厚さ 50 nm で共蒸着し、燐光発光層を得た。燐光発光層内における化合物 A-1 の濃度は 42.5 質量%、化合物 B-1 の濃度は 42.5 質量%、Ir(ppy)₃ の濃度は、15 質量%であった。続いて、この燐光発光層上に、厚さ 30 nm の化合物 III、厚さ 1 nm の LiF、厚さ 80 nm の金属 Al を順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極である LiF については、1 Å/min の速度で形成した。

[0304] [化164]



[0305] (有機EL素子の発光性能評価)

以上のように作製した有機EL素子を直流電流駆動により発光させ、輝度、電流密度を測定し、電流密度 1 mA/cm^2 における電圧及び発光効率を求めた。さらに初期輝度 $20,000 \text{ cd/m}^2$ における輝度半減寿命を求めた。本実施例1および後述する実施例2～7および比較例1～2の発光性能評価結果を表4に示す。

[0306] 実施例2

実施例1においてホスト化合物B-1を用いる代わりにホスト化合物B-2を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製、評価した。

[0307] 実施例3

実施例1においてホスト化合物B-1を用いる代わりにホスト化合物B-3を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作成、評価した。

[0308] 実施例4

実施例1においてホスト化合物A-1を用いる代わりにホスト化合物A-2を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作成、評価した。

[0309] 実施例5

実施例1においてホスト化合物A-1を用いる代わりにホスト化合物A-3を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作成、評価した。

[0310] 実施例6

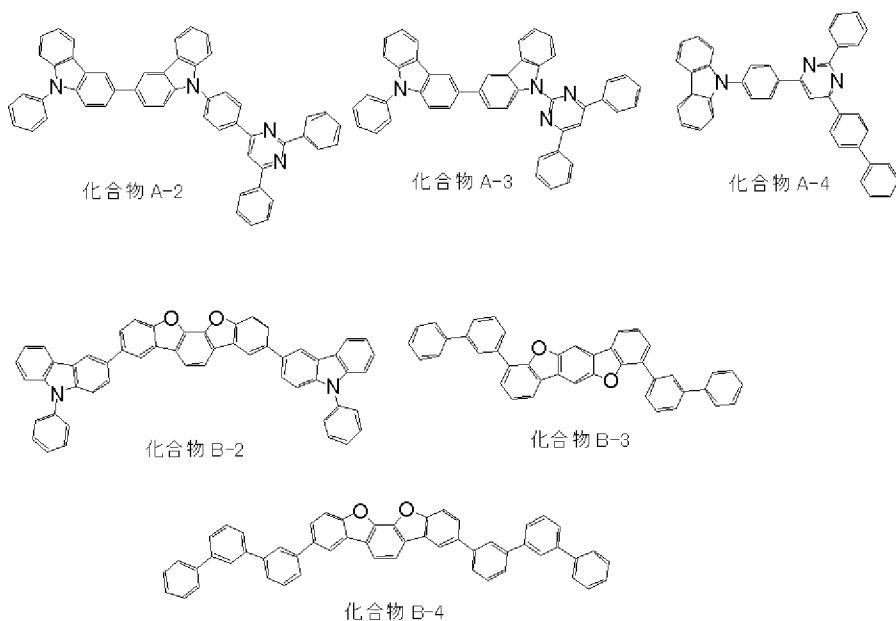
実施例1においてホスト化合物A-1を用いる代わりにホスト化合物A-4を、ホスト化合物B-1を用いる代わりにホスト化合物B-2をそれぞれ用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作成、評価した。発光性能評価結果を表4に示す。

[0311] 実施例7

実施例1においてホスト化合物A-1を用いる代わりにホスト化合物A-4を、ホスト化合物B-1を用いる代わりにホスト化合物B-4をそれぞれ用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作成、評価した。

[0312]

[化165]



[0313] 比較例 1

25 mm×75 mm×1.1 mmのITO透明電極付きガラス基板（ジオマテック社製）に、イソプロピルアルコール中での5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV（Ultraviolet）オゾン洗浄を施した。

このようにして洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の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、化合物Iを厚さ40 nmで蒸着し、正孔注入層を得た。次いで、この膜上に、化合物IIを厚さ20 nmで蒸着し、正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、燐光用ホストである化合物A-1と燐光用ドーパントであるIr(ppy)₃とを厚さ50 nmで共蒸着し、燐光発光層を得た。燐光発光層内における化合物A-1の濃度は85質量%、Ir(ppy)₃の濃度は、15質量%であった。

続いて、この燐光発光層上に、厚さ30 nmの化合物III、厚さ1 nmのLiF、厚さ80 nmの金属Alを順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極であるLiFについては、1 Å/minの速度で形成した。

[0314] 比較例 2

比較例 1 においてホスト化合物 A-1 を用いる代わりにホスト化合物 B-1 を用いた以外は、比較例 1 と同様にして有機 EL 素子を作成、評価した。

[0315] [表4]

	ホスト化合物	電圧(V) @1mA/cm ²	発光効率(cd/A) @1mA/cm ²	輝度半減寿命(hrs) @初期輝度 20000cd/m ²
実施例1	A-1 B-1	3.1	56	500
実施例2	A-1 B-2	3.2	54	400
実施例3	A-1 B-3	3.0	54	400
実施例4	A-2 B-1	3.5	55	500
実施例5	A-3 B-1	3.8	55	500
実施例6	A-4 B-2	2.9	52	300
実施例7	A-4 B-4	3.1	57	200
比較例1	A-1	2.8	58	50
比較例2	B-1	5.2	31	300

[0316] 表4に示したように、実施例の有機EL素子は比較例の有機EL素子に比べ、輝度半減寿命が非常に長かった。化合物B-1のようなベンゾフラノジベンゾフラン構造を分子内に有する本出願に記載された化合物のみを発光層に用いた有機EL素子は、本発明の実施例に記載した有機EL素子に比べて、駆動電圧が高い。

[0317] 以上、詳細に説明したように、本発明に記載した化合物の組み合わせを用いると、非常に輝度半減寿命が長い有機EL素子を得ることができる。また、発光効率が高くかつ低電圧での発光が可能な有機EL素子が得られる。このため、本発明の有機EL素子は、各種電子機器の光源等として極めて有用である。また、本発明の化合物は有機電子素子用材料としても有効に活用でき、有機太陽電池、有機半導体レーザー、有機物を用いるセンサー、有機TFTにおいても極めて有用である。

産業上の利用可能性

[0318] 本発明は、長寿命であり、発光効率が高く、省消費電力化に必要な低電圧での駆動が可能な有機EL素子として利用できる。

符号の説明

- [0319]
- 1 有機エレクトロルミネッセンス素子
 - 2 基板
 - 3 陽極
 - 4 陰極
 - 5 燐光発光層
 - 6 正孔注入・輸送層
 - 7 電子注入・輸送層
 - 10 有機薄膜層

請求の範囲

[請求項1] 陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜

層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

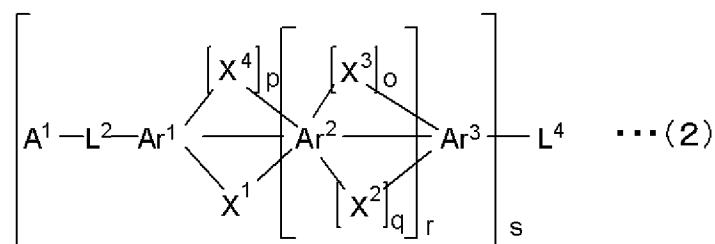
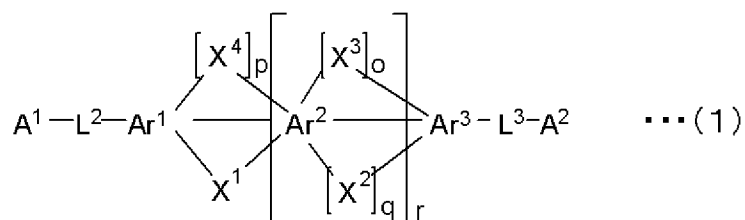
前記有機薄膜層は、少なくとも第1のホストと、第2のホストと、
発光を示すドーパントと、を含む発光層を備え、

前記第1のホストは、同一分子内に1個以上のカルバゾリル基と1
個以上の含窒素複素環基を有する化合物であり、

前記第2のホストは、下記式(1)または(2)で表される化合物
である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]



[式(1)および(2)において、 Ar^1 、 Ar^2 および Ar^3 は、そ
れぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6の芳香族炭化水素基、

または置換もしくは無置換の環形成原子数6の芳香族複素環基を表
す。

但し、 Ar^1 、 Ar^2 および Ar^3 は置換基Yを一個または複数個有
していてもよく、複数個の場合はそれぞれ異なってもよい。

Yは炭素数1～20のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、

炭素数 1 ～ 20 のアルコキシ基、
炭素数 7 ～ 24 のアラルキル基、
シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 は、それぞれ独立に、酸素 (O)、硫黄 (S)、 $N-R^1$ または CR^2R^3 を表す。

前記 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、
炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、
炭素数 7 ～ 24 のアラルキル基、
シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 24 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

但し、 X^1 と X^2 が共に $N-R^1$ で o 、 p が 0、 q が 1 の場合、
または、 X^1 と X^3 が共に $N-R^1$ で p 、 q が 0、 o が 1 の場合は、
 R^1 の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8 ～ 24 である 1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 o 、 p および q は 0 または 1 を表す。 s は 1、2、3 又は 4 を表し、それぞれ L^4 を連結基とした 1 量体、2 量体、3 量体、4 量体である。

r は 1、2、3 または 4 を表す。

式 (1) および (2) において、 L^2 は単結合、

炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基
、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の 2 価の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水
素基又は縮合芳香族炭化水素基、
または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 1 価あるいは
2 価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (1) において、 L^3 は単結合、
炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基
、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の 2 価の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水
素基又は縮合芳香族炭化水素基、
または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 2 価の芳香族
複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式 (2) において、 L^4 は、
 s が 2 の場合、
単結合、
炭素数 1 ～ 20 のアルキレン基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキレン基
、
2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ～ 20 の 2 価の置換シリル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の 2 価の芳香族炭化水
素基又は縮合芳香族炭化水素、
または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の 2 価の芳香族
複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

sが3の場合、

炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、

3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の3価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数3～24の置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

sが4の場合、

炭素数1～20の4価の飽和炭化水素基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の4価の環状飽和炭化水素基、

ケイ素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の4価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数3～24の置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(1)および(2)において、 A^1 は、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、

シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、

または環形成炭素数3～24の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

式(1)において、 A^2 は、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基、
 シリル基もしくは炭素数 3 ～ 20 の置換シリル基、
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、
 または環形成炭素数 3 ～ 24 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。]

[請求項2] 前記式 (1) および (2) の X^1 と X^4 のうち一方もしくは X^2 と X^3 のうち一方が酸素原子であり、

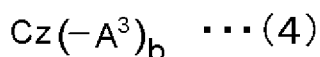
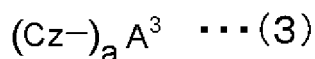
前記式 (1) および (2) で表される化合物が分子内にジベンゾフラン構造を有する化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項3] 前記式 (1) および (2) の X^1 と X^4 のうち一方と、 X^2 と X^3 のうち一方が共に酸素原子であり、

前記式 (1) および (2) で表される化合物がベンゾフラノジベンゾフラン構造を有する化合物であることを特徴とする請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項4] 前記第 1 のホストは、下記式 (3) から (5) のいずれかで表されることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

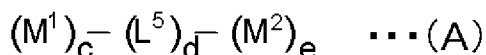
[化2]



[式 (3) および (4) において、 Cz は、置換もしくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基を表す。

A^3 は、下記一般式 (A) で表される基である。 a 、 b は、それぞれ 1 ～ 3 の整数である。]

[化3]

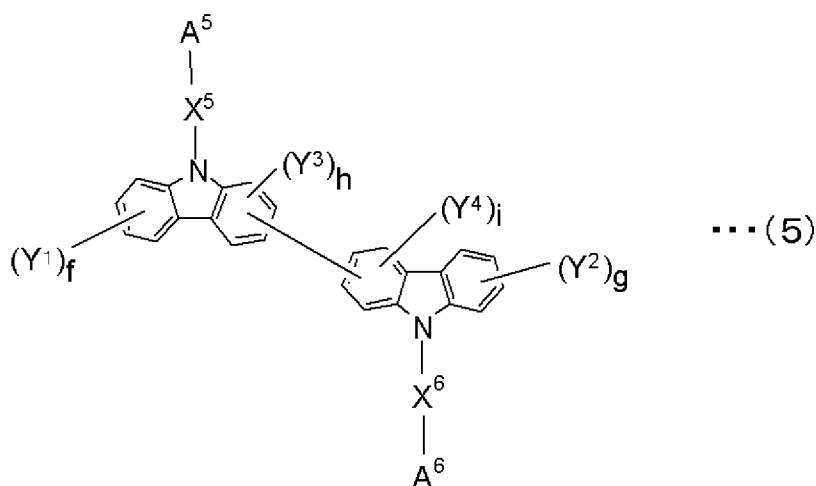


(式 (A) において、 M^1 及び M^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環を形成する炭素数 2 ～ 40 の窒素含有芳香族複素環又は窒素含有縮合芳香族複素環であり、同一でも異なってもよい。

L^5 は、単結合、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 30 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炭素数 5 ～ 30 のシクロアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 30 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

c は 0 ～ 2、 d は 1 ～ 2、 e は 0 ～ 2 の整数である。ただし、 $c + e$ は 1 以上である。)

[化4]



[式 (5) において、 A^5 は、環形成炭素数 1 ～ 30 の置換又は無置換の含窒素複素環基(ただし、置換もしくは無置換のカルバゾリル基および置換もしくは無置換のインドリル基を除く)を表す。

A^6 は、環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は環形成炭素数 1 ～ 30 の置換もしくは無置換の含窒素複素環基を表す。 X^5 、 X^6 は、連結基であり、互いに独立して、単結合、

環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基
 環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素基
 、
 環形成炭素数 2 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基、又は
 、
 環形成炭素数 2 ～ 30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族複素環基を
 表す。

$Y^1 \sim Y^4$ は、互いに独立して、
 水素原子、フッ素原子、シアノ基、
 炭素数 1 ～ 20 の置換もしくは無置換のアルキル基、
 炭素数 1 ～ 20 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、
 炭素数 1 ～ 20 の置換もしくは無置換のハロアルキル基、
 炭素数 1 ～ 20 の置換もしくは無置換のハロアルコキシ基、
 炭素数 1 ～ 10 の置換もしくは無置換のアルキルシリル基、
 炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換のアリールシリル基、
 環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、
 環形成炭素数 6 ～ 30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素基
 、
 環形成炭素数 2 ～ 30 の置換もしくは無置換の芳香族複素環基、又は
 、
 環形成炭素数 2 ～ 30 の置換もしくは無置換の縮合芳香族複素環基を
 表す。

なお、隣接する $Y^1 \sim Y^4$ 同士が互いに結合を形成し、環構造を形成
 しても良い。

f , g は 1 ～ 4 の整数を表し、 h , i は 1 ～ 3 の整数を表す。

なお、 f , g が 2 ～ 4 の整数、 h , i が 2 ～ 3 の整数の場合、複数の
 $Y^1 \sim Y^4$ はそれぞれ同一でも異なっても良い。]

[請求項5] 前記式 (3) および (4) の C_z が、置換もしくは無置換のアリー

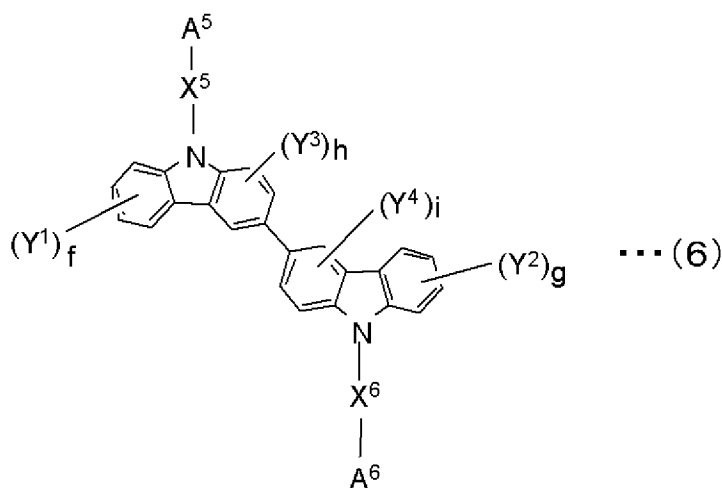
ルカルバゾリル基であることを特徴とする請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項6] 前記C_zが、置換もしくは無置換のフェニルカルバゾリル基であることを特徴とする請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項7] 前記アリールカルバゾリル基のアリール部位がカルバゾリル基で置換されていることを特徴とする請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項8] 前記式(5)が下記式(6)で表されることを特徴とする請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化5]



[式(6)において、A⁵、A⁶、X⁵、X⁶、Y¹～Y⁴、f、g、h、iは前記式(5)と同義である。]

[請求項9] 前記A⁵が置換または無置換のピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環からなる群から選ばれる基であることを特徴とする請求項4または請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項10] 前記A⁵が置換または無置換のピリミジン環基であることを特徴とする請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項11] 前記発光層が、前記ドーパントとして燐光材料を含有することを特徴とする請求項1から請求項10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

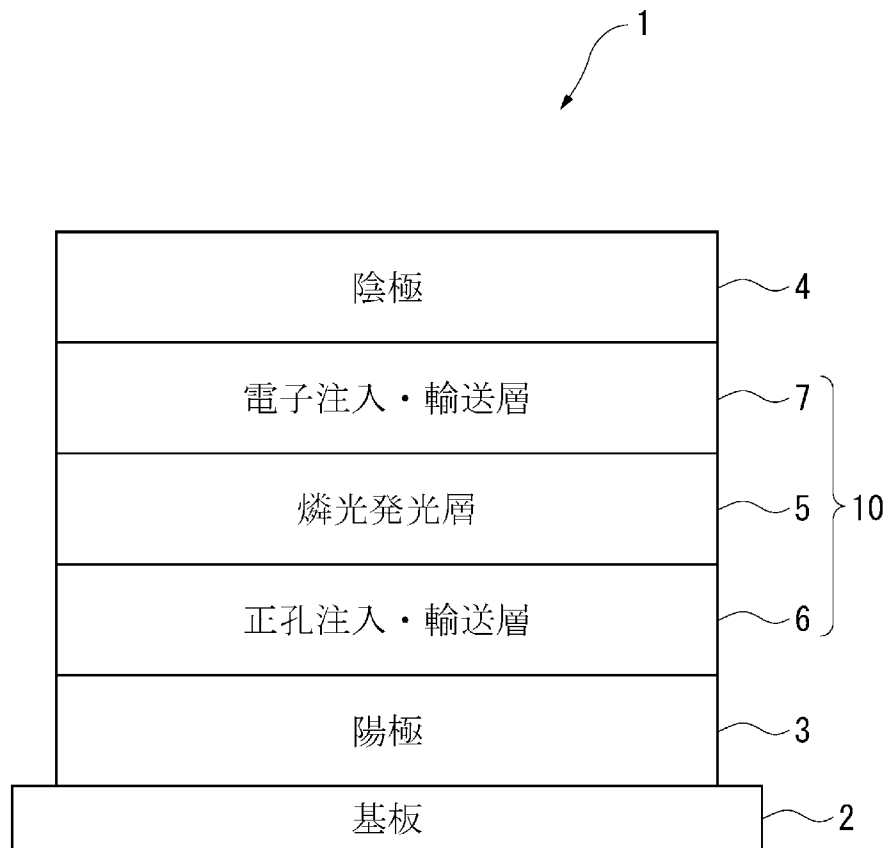
トルミネセンス素子。

[請求項12] 前記燐光材料がイリジウム（I r），オスミウム（O s）、白金（P t）から選択される金属原子のオルトメタル化錯体であることを特徴とする請求項11に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

[請求項13] 前記陰極と前記発光層の間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含むことを特徴とする請求項1から請求項12のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

[請求項14] 前記陰極と前記有機薄膜層との界面に還元性ドーパントを添加されてなることを特徴とする請求項1から請求項13のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/066852

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)i, C07D405/04(2006.01)i,
C09K11/06(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50, C07D209/86, C07D405/04, C09K11/06

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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

CAPLUS (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 2010-45281 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 25 February 2010 (25.02.2010), paragraphs [0038] to [0047], [0068], use of plural kinds in combination (Family: none)	1-14
A	WO 2009/136596 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 12 November 2009 (12.11.2009), paragraphs [0051] to [0053], [0081], plural hosts & US 2011/0062862 A1 & CN 102017218 A & KR 10-2011-0010099 A	1-14



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
14 September, 2011 (14.09.11)

Date of mailing of the international search report
27 September, 2011 (27.09.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/066852

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2009/148015 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 10 December 2009 (10.12.2009), paragraphs [0080] to [0130] & US 2009/0309488 A1 & EP 2301926 A1 & CN 102056911 A & KR 10-2011-0018340 A	1-14
A	WO 2008/056746 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 15 May 2008 (15.05.2008), paragraphs [0031] to [0041] & US 2010/0187977 A1 & EP 2080762 A1 & KR 10-2009-0086057 A & CN 101511834 A	1-14
A	WO 2007/069740 A1 (Pioneer Corp.), 21 June 2007 (21.06.2007), paragraphs [0025] to [0030] & US 2009/0184625 A1	1-14
A	WO 2005/112519 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 24 November 2005 (24.11.2005), paragraphs [0031] to [0035] & US 2007/0224448 A1 & EP 1750487 A1 & KR 10-2007-0015574 A & CN 1951155 A	1-14

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)i, C07D405/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01L51/50, C07D209/86, C07D405/04, C09K11/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	J P 2 0 1 0 - 4 5 2 8 1 A （コニカミノルタホールディングス株式会社） 2 0 1 0 . 0 2 . 2 5、【0 0 3 8】乃至【0 0 4 7】、【0 0 6 8】複数種併用 （ファミリーなし）	1 - 1 4

☒ 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

1 4 . 0 9 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

2 7 . 0 9 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

中山 佳美

2 0

3 9 1 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

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	WO 2009/136596 A1 (新日鐵化学株式会社) 2009. 11、12、[0051]乃至[0053]、[0081]複数のホスト & US 2011/0062862 A1 & CN 102017218 A & KR 10-2011-0010099 A	1-14
A	WO 2009/148015 A1 (出光興産株式会社) 2009. 12. 10、[0080]乃至[0130] & US 2009/0309488 A1 & EP 2301926 A1 & CN 102056911 A & KR 10-2011-0018340 A	1-14
A	WO 2008/056746 A1 (新日鐵化学株式会社) 2008. 05. 15、[0031]乃至[0041] & US 2010/0187977 A1 & EP 2080762 A1 & KR 10-2009-0086057 A & CN 101511834 A	1-14
A	WO 2007/069740 A1 (パイオニア株式会社) 2007. 06. 21、[0025]乃至[0030] & US 2009/0184625 A1	1-14
A	WO 2005/112519 A1 (出光興産株式会社) 2005. 11. 24、[0031]乃至[0035] & US 2007/0224448 A1 & EP 1750487 A1 & KR 10-2007-0015574 A & CN 1951155 A	1-14