

(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
2022年12月8日(08.12.2022)



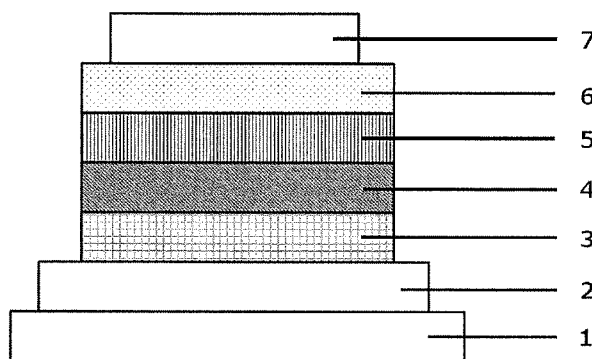
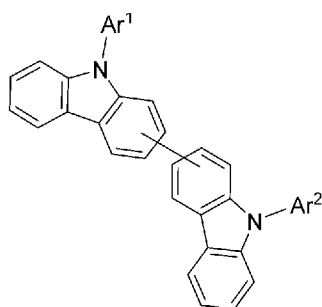
(10) 国際公開番号

WO 2022/255242 A1

- (51) 国際特許分類:
C07D 209/82 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01) *H05B 33/10* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/021714
- (22) 国際出願日: 2022年5月27日(27.05.2022)
- (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 2021-091973 2021年5月31日(31.05.2021) JP
- (71) 出願人: 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社(NIPPON STEEL CHEMICAL & MATERIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 池永 裕士(IKENAGA Yuji); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 甲斐 孝弘(KAI Takahiro); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 林 健太郎(HAYASHI Kentaro); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 坂井 満(SAKAI Mitsuru); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 嶋本 勇也(SHIMAMOTO Yuya); 〒1030027 東京都中央

(54) Title: DEUTERIDE AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: 重水素化物及び有機電界発光素子



(57) Abstract: Provided are: a practically useful organic EL element having high efficiency and long service life while having a low driving voltage; and a deuteride suitable for the same. The deuteride has a hydrogen atom on an aromatic ring in Ar¹ and Ar² of a compound represented by general formula (1) and has a deuteration percentage of at least 40%. (Here, Ar¹ and Ar² each independently represent a substituted or unsubstituted aromatic hydrocarbon group having 6-30 carbon atoms, or a substituted or unsubstituted linked aromatic group in which two to



WO 2022/255242 A1

区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP).

- (74) 代理人:佐々木 一也, 外(SASAKI Kazuya et al.);
〒1030001 東京都中央区日本橋小伝馬町6番
10号丸森ビル7階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP,
KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,
LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW,
MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE,
PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,
SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT,
TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

five among these aromatic rings are linked, and an aromatic hydrocarbon group for linking may be the same as or different from each other.)

(57) 要約: 低駆動電圧でありながら、高効率かつ長寿命を有した実用上有用な有機EL素子及びそれに適する重水素化物を提供する。下記一般式(1)で表される化合物の Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物である。(ここで、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、連結する場合の芳香族炭化水素基は同一であっても異なってもよい。)

明 細 書

発明の名称：重水素化物及び有機電界発光素子

技術分野

[0001] 本発明は重水素化物とそれを使用した有機電界発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機電界発光素子（有機EL素子という。）に電圧を印加することで、陽極から正孔が、陰極からは電子がそれぞれ発光層に注入される。そして発光層において、注入された正孔と電子が再結合し、励起子が生成される。この際、電子スピンの統計則により、一重項励起子及び三重項励起子が1：3の割合で生成する。一重項励起子による発光を用いる蛍光発光型の有機EL素子は、内部量子効率 25% が限界であるといわれている。一方で三重項励起子による発光を用いる燐光発光型の有機EL素子は、一重項励起子から項間交差が効率的に行われた場合には、内部量子効率が 100% まで高められることが知られている。

しかしながら、燐光発光型の有機EL素子に関しては、長寿命化が技術的な課題となっている。

[0003] さらに最近では、遅延蛍光を利用した高効率の有機EL素子の開発がなされている。例えば特許文献1には、遅延蛍光のメカニズムの一つであるTTF（Triplet-Triplet Fusion）機構を利用した有機EL素子が開示されている。TTF機構は2つの三重項励起子の衝突によって一重項励起子が生成する現象を利用するものであり、理論上内部量子効率を 40% まで高められると考えられている。しかしながら、燐光発光型の有機EL素子と比較すると効率が低いため、更なる効率の改良が求められている。

一方で特許文献2では、TADF（Thermally Activated Delayed Fluorescence）機構を利用した有機EL素子が開示されている。TADF機構は一重項準位と三重項準位のエネルギー差が小さい材料において三重項励起子から一重項励起子への逆項間交差が生じる現象を利用するものであり、理論上内部量子効率

を100%まで高められると考えられている。しかしながら燐光発光型素子と同様に寿命特性の更なる改善が求められている。

先行技術文献

特許文献

- [0004] 特許文献1：W02010/134350号
特許文献2：W02011/070963号
特許文献3：W02008/056746号
特許文献4：KR公開2013/132226号公報
特許文献5：特開2003-133075号公報
特許文献6：US公開2014/0374728号
特許文献7：US公開2014/0197386号
特許文献8：US公開2015/0001488号
特許文献9：US公開2008/0286605号
特許文献10：W02016/194604号
特許文献11：W02018/198844号
特許文献12：W02012/153725号
- [0005] 特許文献3、4ではインドロカルバゾール化合物について、宿主材料としての使用を開示している。特許文献5ではビスカルバゾール化合物について、宿主材料としての使用を開示している。
- [0006] 特許文献6ではビスカルバゾール化合物を混合宿主として使用することを開示している。特許文献7、8ではインドロカルバゾール化合物とビスカルバゾール化合物を混合宿主として使用することを開示している。
- [0007] 特許文献9では重水素化したカルバゾール化合物について、宿主材料としての使用を開示している。
- [0008] 特許文献10、11では複数のインドロカルバゾール化合物を予備混合した宿主材料の使用を開示している。
- [0009] 特許文献12では重水素化したカルバゾール化合物について、正孔輸送材料としての使用を開示している。

しかしながら、素子の駆動電圧低減、発光効率の向上、長寿命化を図る上で、いずれも十分なものとは言えず、更なる改良が望まれている。

発明の概要

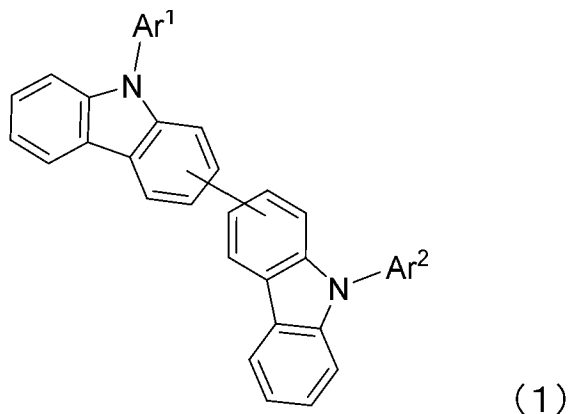
発明が解決しようとする課題

[0010] 有機EL素子をフラットパネルディスプレイ等の表示素子に応用するためには、素子の発光効率を改善すると同時に、素子の長寿命特性を十分に確保する必要がある。本発明は、上記現状に鑑み、低駆動電圧でありながら、高効率かつ長寿命を有した実用上有用な有機EL素子及びそれに適した化合物を提供することを目的とする。

[0011] 本発明者らは、鋭意検討した結果、下記一般式(1)で表される化合物(縮合芳香族複素環化合物)の Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物を有機EL素子に用いることで優れた特性を示すことを見出し、本発明を完成するに至った。

[0012] 本発明は、下記一般式(1)で表される化合物の Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物である。

[化1]



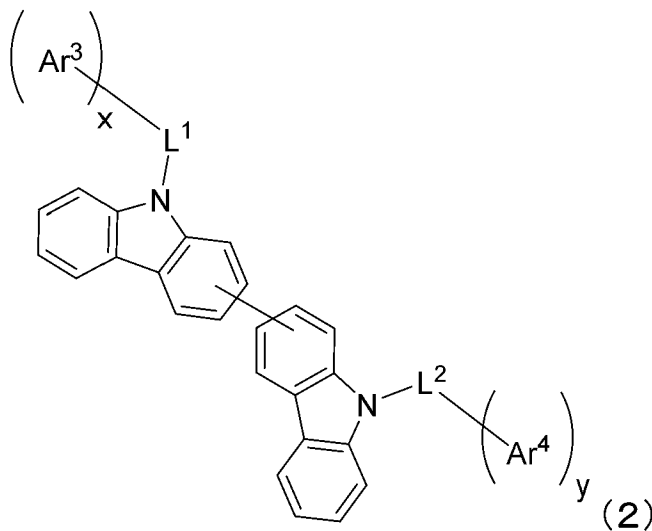
ここで、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、連結する場合の芳香族炭化水

素基は同一であっても異なってもよい。

[0013] 前記重水素化物は、一般式(1)で表される化合物の Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が50%以上であることが好ましく、より好ましくは Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が70%以上であるのがよい。

[0014] 前記一般式(1)で表される化合物は、下記式(2)で表される化合物であることが好ましい。

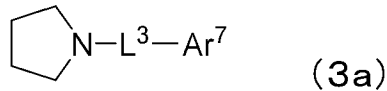
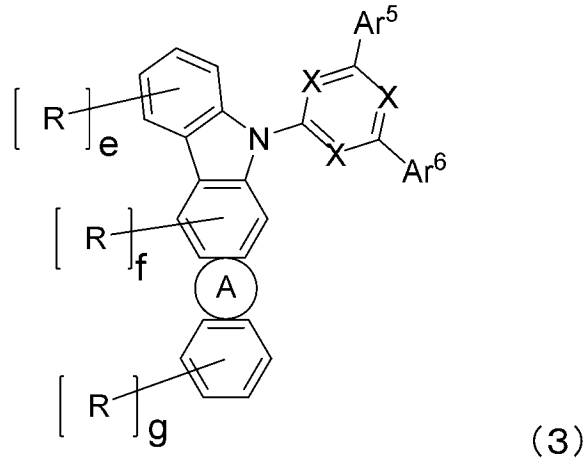
[化2]



ここで、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～14の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、連結する場合の芳香族炭化水素基は同一であっても異なってもよい。 L^1 及び L^2 は置換若しくは未置換のフェニレン基を表す。 x 及び y はそれぞれ独立に0～2の整数を表し、好ましくはそれぞれ独立に0～1である。

[0015] また、本発明は、上記一般式(1)で表される化合物の Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物と、下記一般式(3)で表される化合物とを混合した混合物である。

[化3]



[0016] 一般式 (3) において、環 A は、2 つの隣接環と任意の位置で縮合する式 (3 a) で表される複素環である。Ar⁵ 及び Ar⁶ はそれぞれ独立に、水素、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 17 の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 5 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。Ar⁷ は、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 17 の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 5 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。L³ は直接結合、又は置換もしくは未置換の炭素数 6 ~ 18 の芳香族炭化水素基である。R はそれぞれ独立に、炭素数 1 ~ 10 の脂肪族炭化水素基である。e ~ g は置換数であり、e、g は 0 ~ 4 の整数、f は 0 ~ 2 の整数である。X は N、C-H 又は C-Ar⁸ であり、少なくとも 1 つは N である。Ar⁸ はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 17 の芳香族複素環基、

又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。また、 e 、 g は好ましくは0～2の整数であり、より好ましくは、 $e \sim g$ の全部が0である。

[0017] また、一般式(1)で表される化合物の A_{r^1} 及び A_{r^2} における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物と、一般式(3)で表される化合物との50%重量減少温度の差が20℃以内であるのがよく、より好ましくは15℃以内である。

[0018] また、前記混合物は、前記一般式(3)で示される化合物の割合が20wt%以上70wt%以下である混合物であることが好ましい。

[0019] また、本発明は、陽極と陰極との間に複数の有機層を有する有機電界発光素子であって、該有機層の少なくとも1層に、上記一般式(1)で表される化合物の A_{r^1} 及び A_{r^2} における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物を含むか、又はこのような一般式(1)で表される化合物からなる重水素化物と上記一般式(3)で表される化合物との混合物を含むことを特徴とする有機電界発光素子である。

[0020] 好ましくは、前記一般式(1)で表される化合物からなる重水素化物、又は、前記一般式(1)で表される化合物からなる重水素化物と一般式(3)で表される化合物との混合物を含む有機層が、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層及び電子阻止層からなる群から選ばれる少なくとも一つの層であり、より好ましくは、発光層である。また、上記重水素化物又は混合物を含む有機層が発光層である場合、当該発光層は少なくとも1種の発光性ドーパントを含有するのがより好ましい。

[0021] また、本発明は、陽極と陰極との間に複数の有機層を有する有機電界発光素子を製造する方法であって、有機層の一つが発光層であり、前記一般式(1)で表される化合物の A_{r^1} 及び A_{r^2} における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物と前記一般式(3)で表される化合物との混合物を用意し、これを使用して一つの蒸着源から蒸着することで発

光層を作製することを特徴とする有機電界発光素子の製造方法である。

発明の効果

[0022] 本発明の有機EL素子用材料は、上記一般式(1)で表される構造を有し、カルバゾールに結合する芳香族炭化水素基が重水素を有するので、その重水素化率を適切に設計することにより、励起状態やイオン状態の安定性の向上や、高いレベルでの電荷注入輸送性の制御ができたと想定される。そのため、これを用いた有機EL素子は長寿命かつ低電圧であり、実用レベルの特性を示したと考えられる。

図面の簡単な説明

[0023] [図1]有機EL素子の一構造例を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0024] 本発明は、前記一般式(1)で表される化合物の $A r^1$ 及び $A r^2$ における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物である。一般式(1)において、 $A r^1$ 及び $A r^2$ はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、好ましくは、置換若しくは未置換の炭素数6~24の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族炭化水素基が2~5個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、より好ましくは、置換若しくは未置換の炭素数6~18の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族炭化水素基が2~5個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基である。なお、芳香族環が連結する場合の芳香族炭化水素基は、互いに同じであっても異なってもよい。また、 $A r^1$ や $A r^2$ における芳香族炭化水素基と連結芳香族基の水素は、重水素化されたものを含む意味である。

[0025] $A r^1$ 及び $A r^2$ が未置換の芳香族炭化水素基、又は連結芳香族基である場合の具体例としては、ベンゼン、ナフタレン、アセナフテン、アセナフチレン、アズレン、アントラセン、クリセン、ピレン、フェナントレン、トリフェニレン、フルオレン、ベンゾ[a]アントラセン、テトラセン、ペンタセン、

ヘキサセン、コロネン、ヘプタセン、又はこれらが2～5連結して構成される化合物から1個の水素を取って生じる基が挙げられる。好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アセナフテン、アセナフチレン、アズレン、アントラセン、クリセン、ピレン、フェナントレン、トリフェニレン、フルオレン、ベンゾ[a]アントラセン、テトラセン、又はこれらが2～5連結して構成される化合物から生じる基が挙げられる。より好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、又はターフェニル基である。ターフェニル基は、直鎖状に連結しても、分岐してもよい。

[0026] 上記未置換の芳香族炭化水素基又は連結芳香族基は、それぞれ置換基を有してもよい。置換基を有する場合の置換基は、ハロゲン、シアノ基、トリアリールシリル基、炭素数2～5のアルケニル基、炭素数1～5のアルコキシ基又は炭素数12～44のジアリールアミノ基が好ましい。

[0027] なお、置換基の数は0～5、好ましくは0～2がよい。芳香族炭化水素基又は連結芳香族基が置換基を有する場合の炭素数の計算には、置換基の炭素数を含まない。しかし、置換基の炭素数を含んだ合計の炭素数が上記範囲を満足することが好ましい。

[0028] 上記置換基の具体例としては、ブロモ、フッ素、シアノ、トリフェニルシリル、ビニル、プロペニル、ブテニル、ペンテニル、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペントキシ、ジフェニルアミノ、ナフチルフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、ジアントラニルアミノ、ジフェナンスレニルアミノ、ジピレニルアミノ等が挙げられる。好ましくは、シアノ、ビニル、プロペニル、ブテニル、ペンテニル、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペントキシが挙げられる。

[0029] 本明細書において、連結芳香族基は、2以上の芳香族基の芳香族環の炭素原子同士が単結合で結合して連結した芳香族基をいう。これらの連結芳香族基は直鎖状であっても、分岐してもよい。ベンゼン環同士が連結する際の連結位置はオルト、メタ、パラ、いずれでもよいが、パラ連結、又はメタ連結が好ましい。芳香族基は芳香族炭化水素基であってもよく、後述するように

芳香族複素環基であってもよい。複数の芳香族基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても、異なってもよい。

[0030] 本発明は、前記一般式(1)で示される化合物の $A r^1$ 及び $A r^2$ における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物である。好ましくは、 $A r^1$ 及び $A r^2$ における芳香族環上の水素原子の重水素化率が50%以上であるのがよく、より好ましくは、 $A r^1$ 及び $A r^2$ における芳香族環上の水素原子の重水素化率が70%以上であるのがよい。

[0031] 一般式(1)の好ましい態様としては、一般式(2)である。 $A r^3$ 及び $A r^4$ はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6~14の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、連結する場合の芳香族炭化水素基は同一であっても異なってもよい。 L^1 及び L^2 は置換若しくは未置換のフェニレン基を表す。

[0032] 上記未置換の炭素数6~14の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2個連結した連結芳香族基の具体例としては、ベンゼン、ナフタレン、アセナフテン、アセナフチレン、アズレン、アントラセン又はこれらが2個連結して構成される化合物から1個の水素を取って生じる基が挙げられる。好ましくはフェニル基又はビフェニル基である。

[0033] L^1 及び L^2 は置換若しくは未置換のフェニレン基を表す。フェニレン基はオルト、メタ、及びパラ結合のいずれでもよいが、好ましくはメタ又はパラ結合である。

[0034] $A r^3$ 、 $A r^4$ 、 L^1 、及び L^2 が芳香族炭化水素基、連結芳香族基、及びフェニレン基であった場合の置換基は、 $A r^1$ 及び $A r^2$ の場合と同様である。

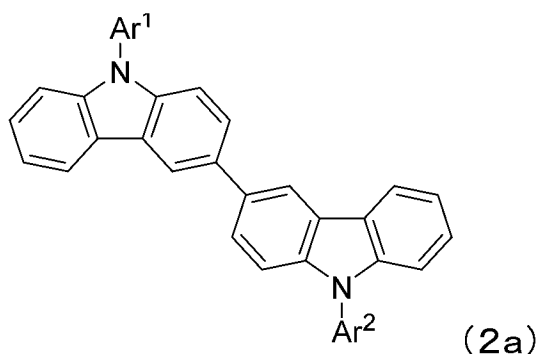
[0035] 本発明において、用いられる化合物中の水素は重水素であってもよい。すなわち、一般式(1)又は(2)で表される化合物の $A r^1$ 、 $A r^2$ 、 $A r^3$ 、 $A r^4$ 、 L^1 および L^2 の芳香族環上の水素のほか、一般式(1)又は(2)の化合物における2つのカルバゾール環上の水素や、それ以外の置換基中の水素、更には、一般式(3)で環Aを介して縮合される芳香族環上の水素や置換基中の水素の一部又は全部が重水素であってもよい。

なお、一般式（１）及び一般式（２）での重水素化率は、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 、 L^1 および L^2 における芳香族環上の水素の重水素化率を表し、置換基中の重水素は含めないものとする。また、本発明における重水素化物は、一般式（１）で表される単一化合物からなる場合と、一般式（１）で表される２以上の化合物の混合物からなる場合との両方を含む。すなわち、重水素化率を具体的に説明すると、 Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素の重水素化率が50%の場合、これらの芳香族環上での水素のうち、平均で50%が重水素に置換されたものを意味し、重水素化物は単一の化合物であってもよいし、異なる重水素化率の混合物であってもよい。

[0036] 重水素化率は質量分析やプロトン核磁気共鳴分光法によって求めることができる。例えばプロトン核磁気共鳴分光法によって求める場合は、まず重溶媒に化合物、及び内部標準物質を添加し溶解することで測定試料を調製し、内部標準物質と化合物由来の積分強度比から、測定試料中に含まれる化合物のプロトン濃度 $[mol/g]$ を計算する。次に、重水素化された化合物のプロトン濃度と、それに対応する重水素化されていない化合物のプロトン濃度の比を計算し、1から減じることで重水素化された化合物の重水素化率を算出することができる。また、部分構造の重水素化率は、対象の部分構造に由来する化学シフトの積分強度から、前記同様の手順で算出できる。

[0037] 一般式（１）、（２）の好ましい態様としては、一般式（２a）がある。

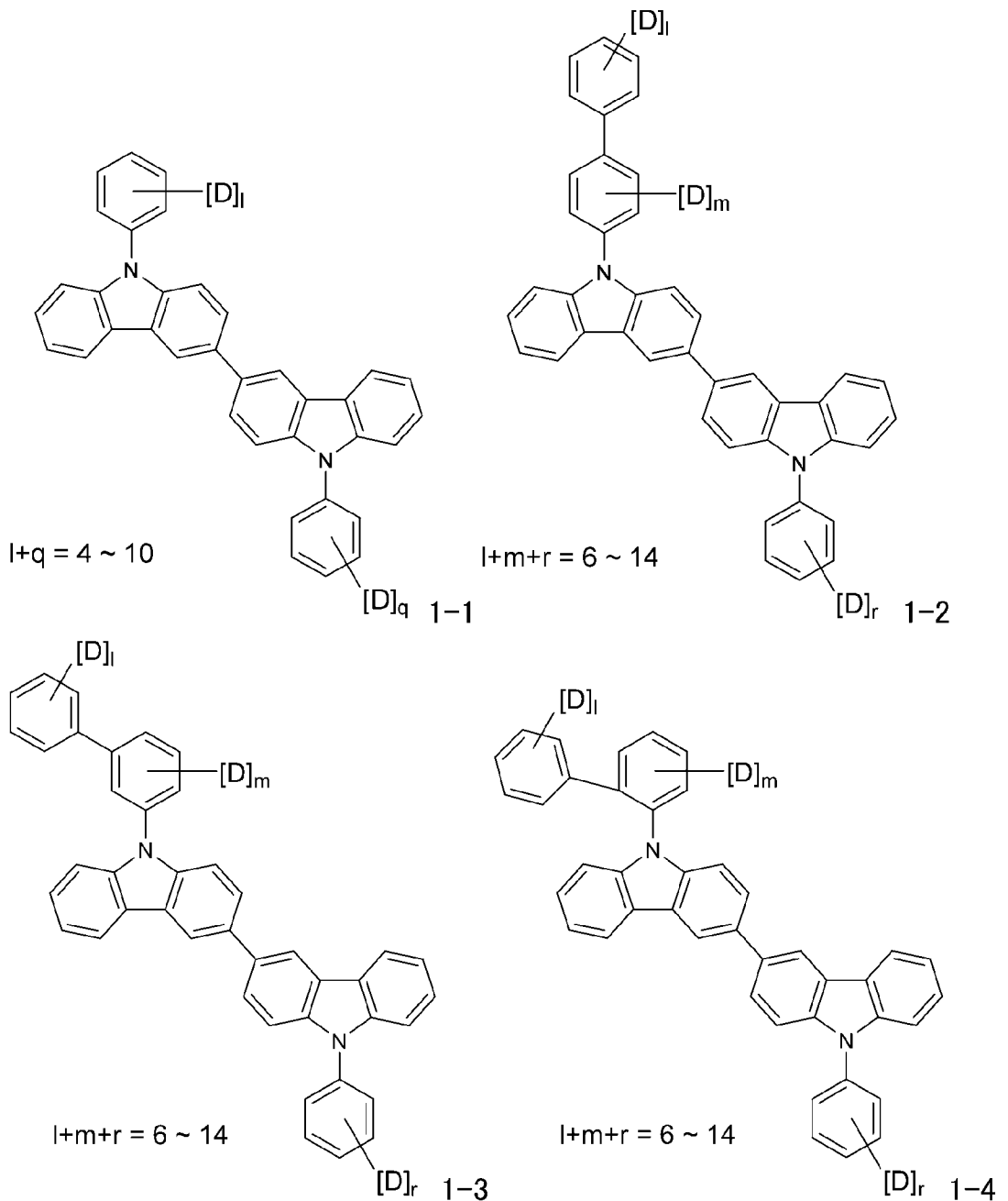
[化4]



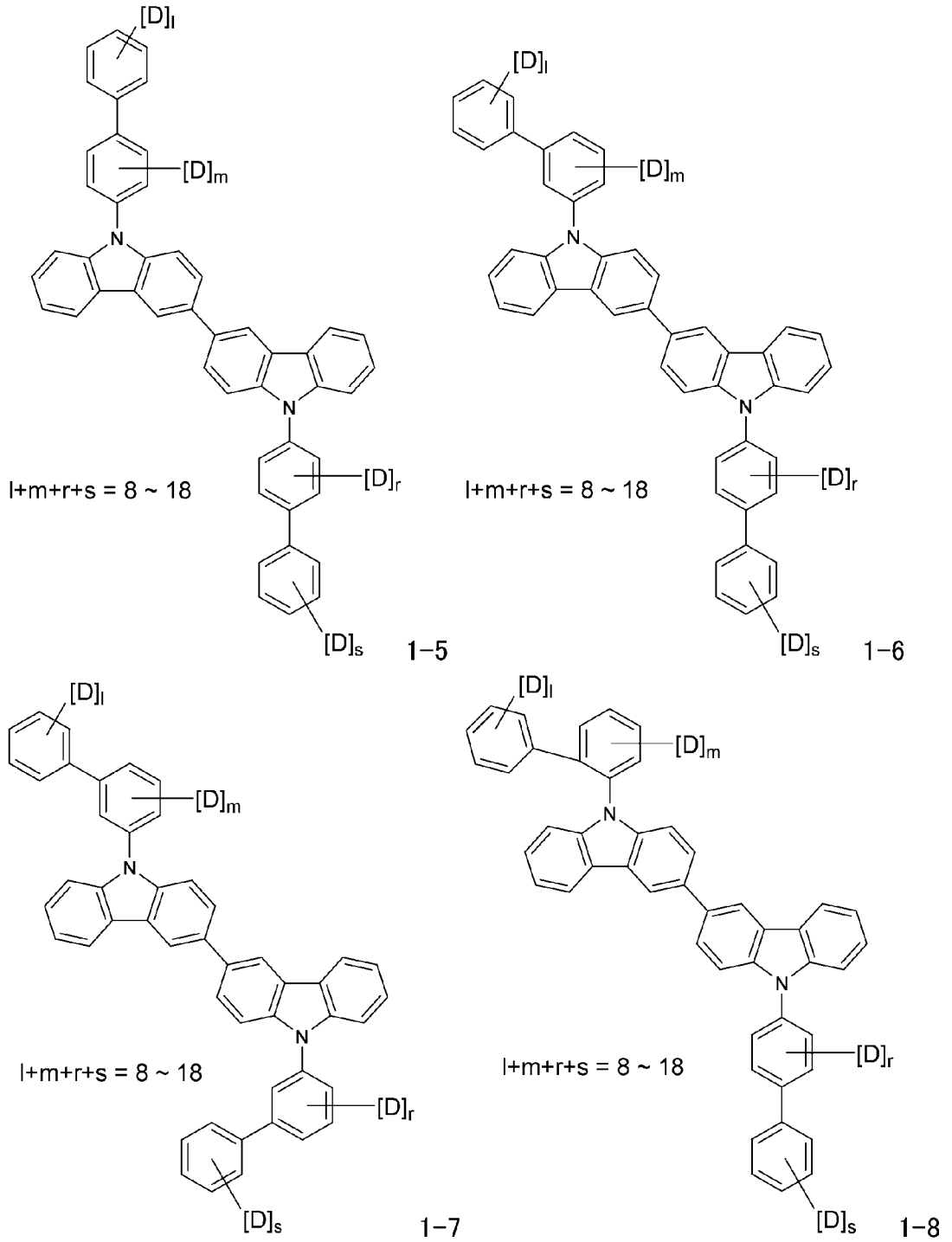
上記式に含まれる $A r^1$ 、及び $A r^2$ は、前記一般式 (1) と同意である。

[0038] 一般式 (1) で表される化合物の $A r^1$ 及び $A r^2$ における芳香族環上の水素原子の 40% 以上が重水素である重水素化物の具体的な例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。なお、下記構造式において、置換された重水素 (D) の l 、 m 、 n 、 q 、 r 、 s 等の置換数は平均の数を意味し、重水素化率 (D 化率) に応じて変化する。

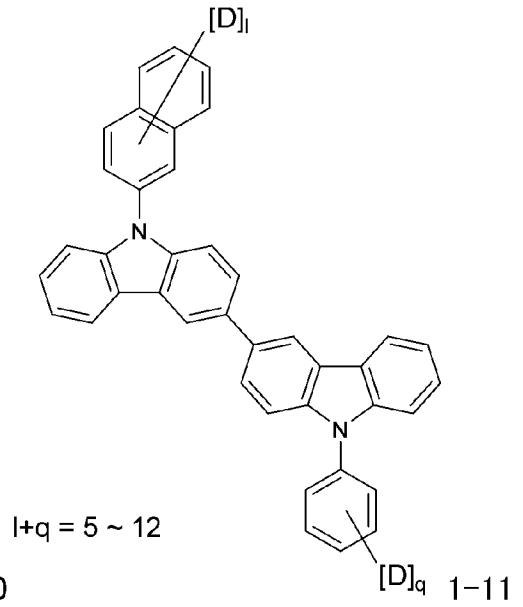
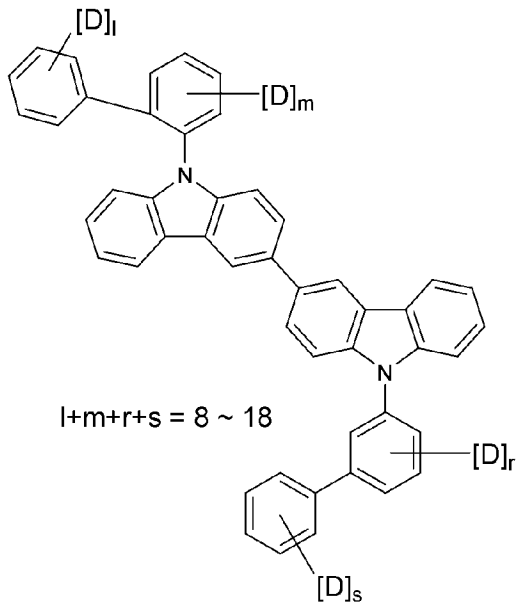
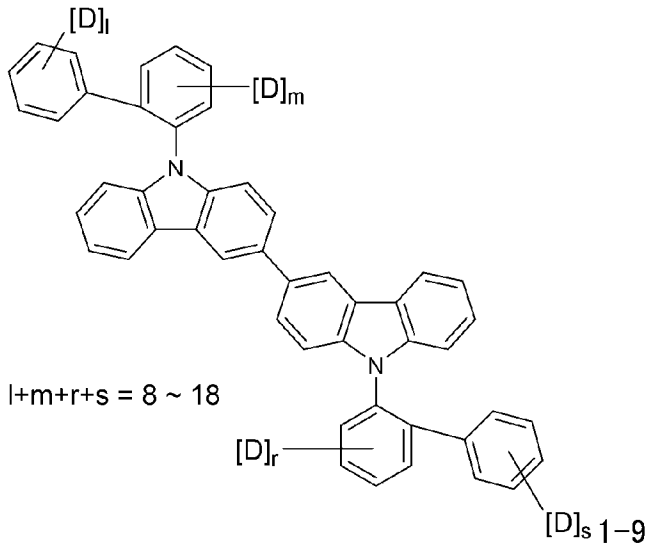
[0039] [化5]



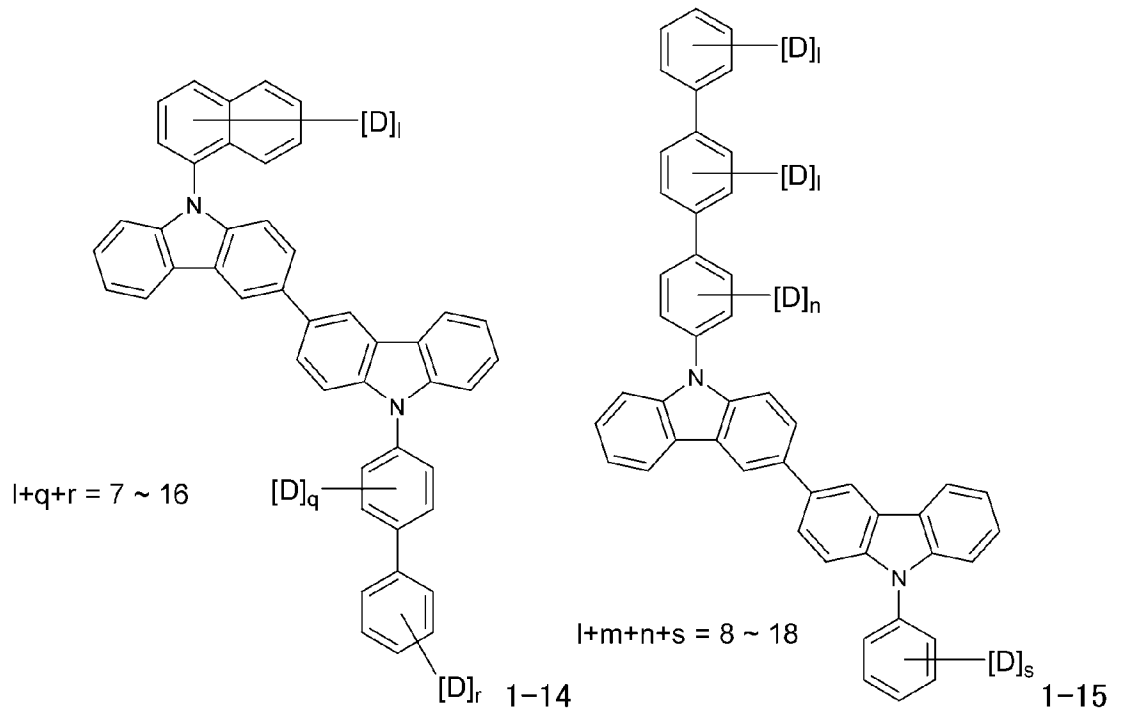
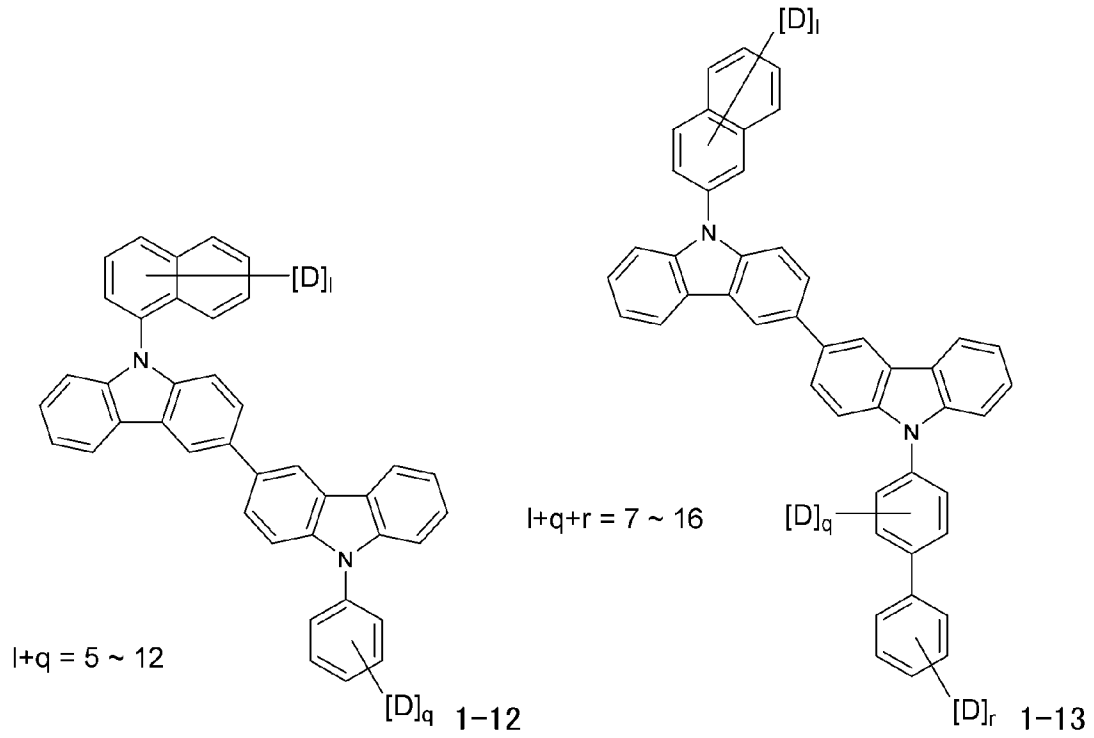
[化6]



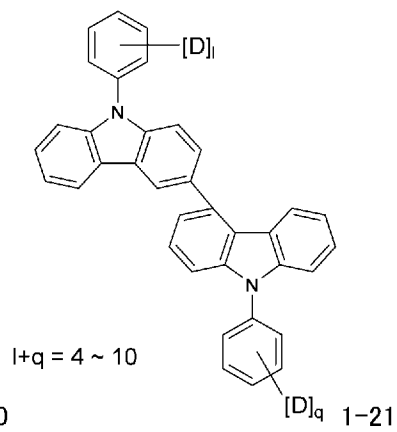
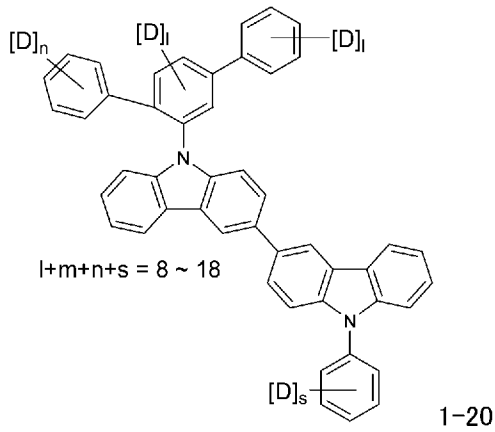
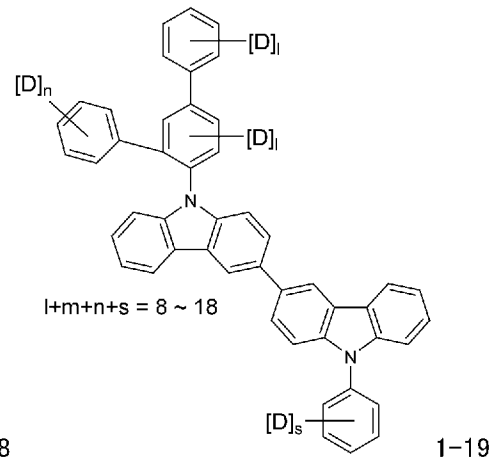
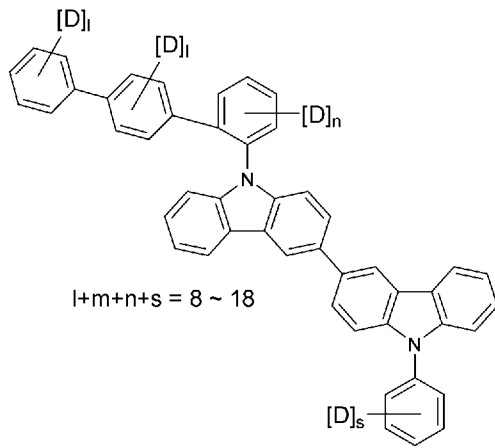
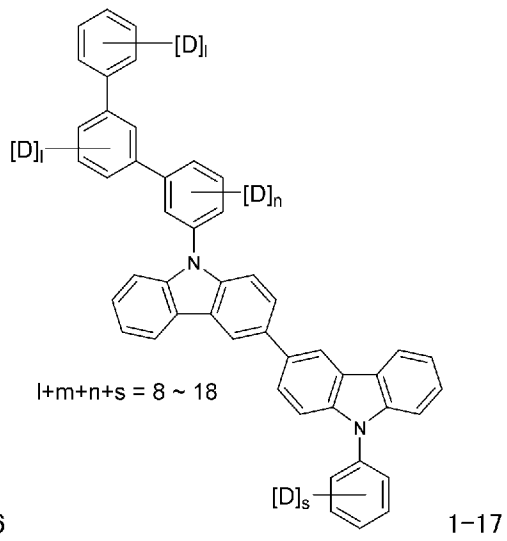
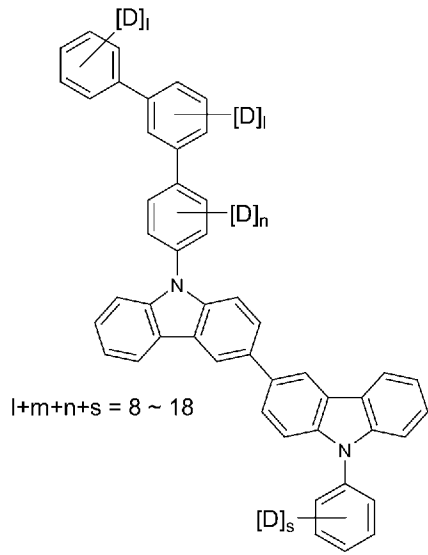
[化7]



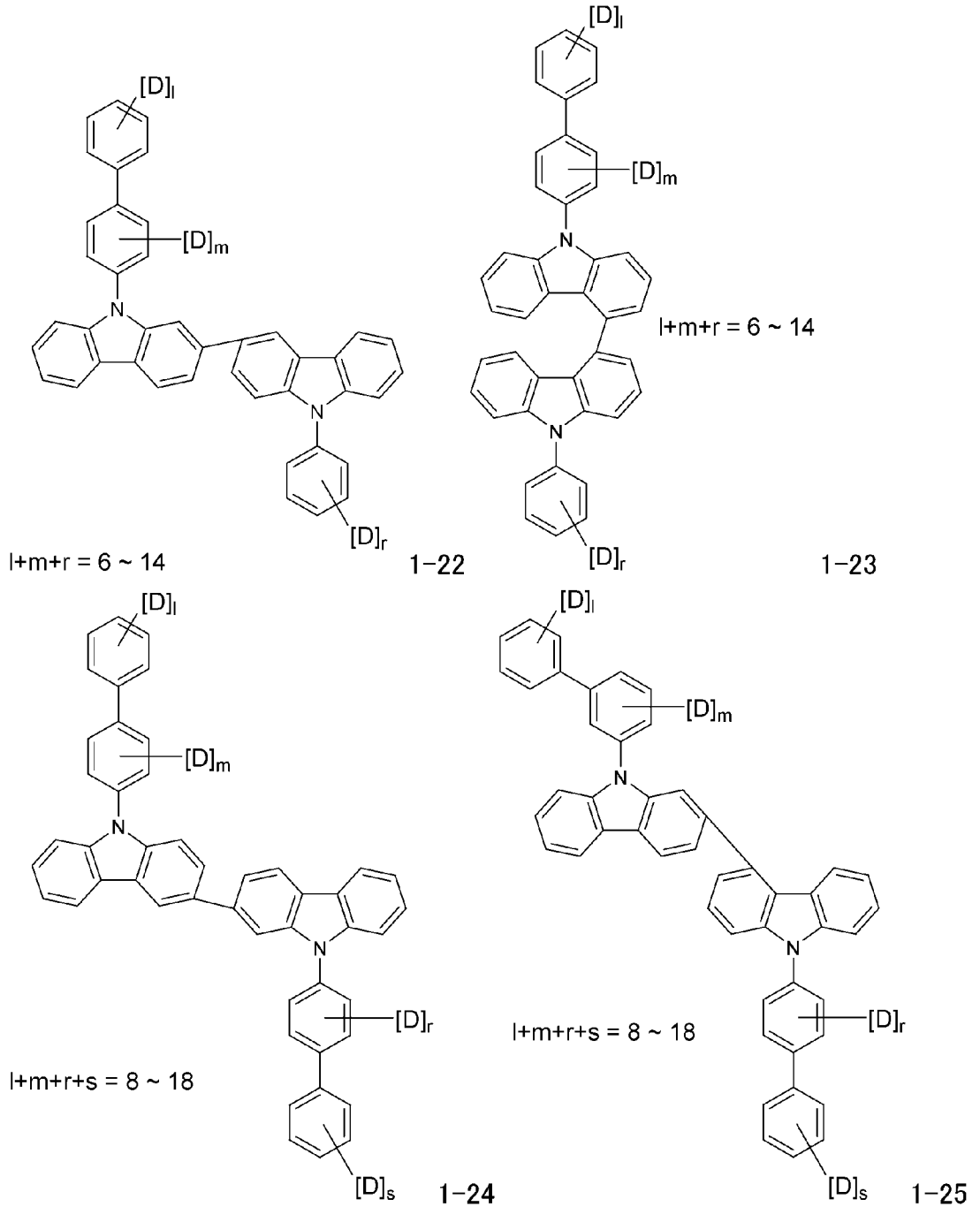
[化8]



[化9]



[化10]



[0040] 前記一般式(3)において、環Aは、一般式(3a)で表される五員環の複素環であり、2つの隣接環と任意の位置で縮合するが、Nを含む辺で縮合することはない。したがって、インドロカルバゾール環はいくつかの異性体構造を有するが、その数は限られる。

[0041] Xは、それぞれ独立にN、C-H又はC-Ar⁸であり、少なくとも一つは

Nである。好ましくは、Xの内、2つ以上がNである。より好ましくは、Xが全てNである。

[0042] Rはそれぞれ独立に、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基である。また、 $e \sim g$ は置換数であり、 e 、 g は0～4の整数、 f は0～2の整数である。好ましくは e 、 g は0～2の整数であり、より好ましくは、 $e \sim g$ の全部が0である。

[0043] $A r^5$ 及び $A r^6$ はそれぞれ独立に、水素、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換もしくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換もしくは未置換の連結芳香族基を表す。好ましくは置換若しくは未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換もしくは未置換の連結芳香族基である。より好ましくは、置換若しくは未置換のフェニル基又はフェニル基が2～3個連結した置換もしくは未置換の連結芳香族基である。なお、芳香族環が連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。

[0044] $A r^7$ 及び $A r^8$ について、水素を含まない点を除いて $A r^5$ 及び $A r^6$ で述べた場合と同様である。好ましくは置換若しくは未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換もしくは未置換の連結芳香族基である。より好ましくは、置換若しくは未置換のフェニル基又はフェニル基が2～3個連結した置換もしくは未置換の連結芳香族基である。なお、芳香族環が連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。

[0045] 上記未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した連結芳香族基の具体例としては、ベンゼン、ナフタレン、アセナフテン、アセナフチレン、アズレン、アントラセン、クリセン、ピレン、フェナントレン、フルオレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、イソチアゾール、チアゾール、ピリダジン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、トリアゾ

ール、チアジアゾール、ピラジン、フラン、イソキサゾール、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、キナゾリン、ベンゾキナゾリン、チアジアゾール、フタラジン、テトラゾール、インドール、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾトリアゾール、ベンゾイソチアゾール、ベンゾチアジアゾール、プリン、ピラノン、クマリン、イソクマリン、クロモン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、ジベンゾセレノフェン、カルバゾール、9,9'-スピロビフルオレン、又はこれらが2~5連結して構成される化合物から1個の水素を取って生じる基が挙げられる。好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アセナフテン、アセナフチレン、アズレン、アントラセン、クリセン、ピレン、フェナントレン、フルオレン、又はこれらが2~5連結して構成される化合物から生じる基が挙げられる。より好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、又はターフェニル基である。ターフェニル基は、直鎖状に連結しても、分岐してもよい。

[0046] 前記一般式(3)において、未置換の芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、又は連結芳香族基は、それぞれ置換基を有してもよい。置換基を有する場合の置換基は、ハロゲン、シアノ基、炭素数1~10のアルキル基、炭素数9~30のトリアリールシリル基、炭素数2~5のアルケニル基、炭素数1~5のアルコキシ基又は炭素数12~44のジアリールアミノ基が好ましい。

[0047] なお、置換基の数は0~5、好ましくは0~2がよい。芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、又は連結芳香族基が置換基を有する場合の炭素数の計算には、置換基の炭素数を含まない。しかし、置換基の炭素数を含んだ合計の炭素数が上記範囲を満足することが好ましい。

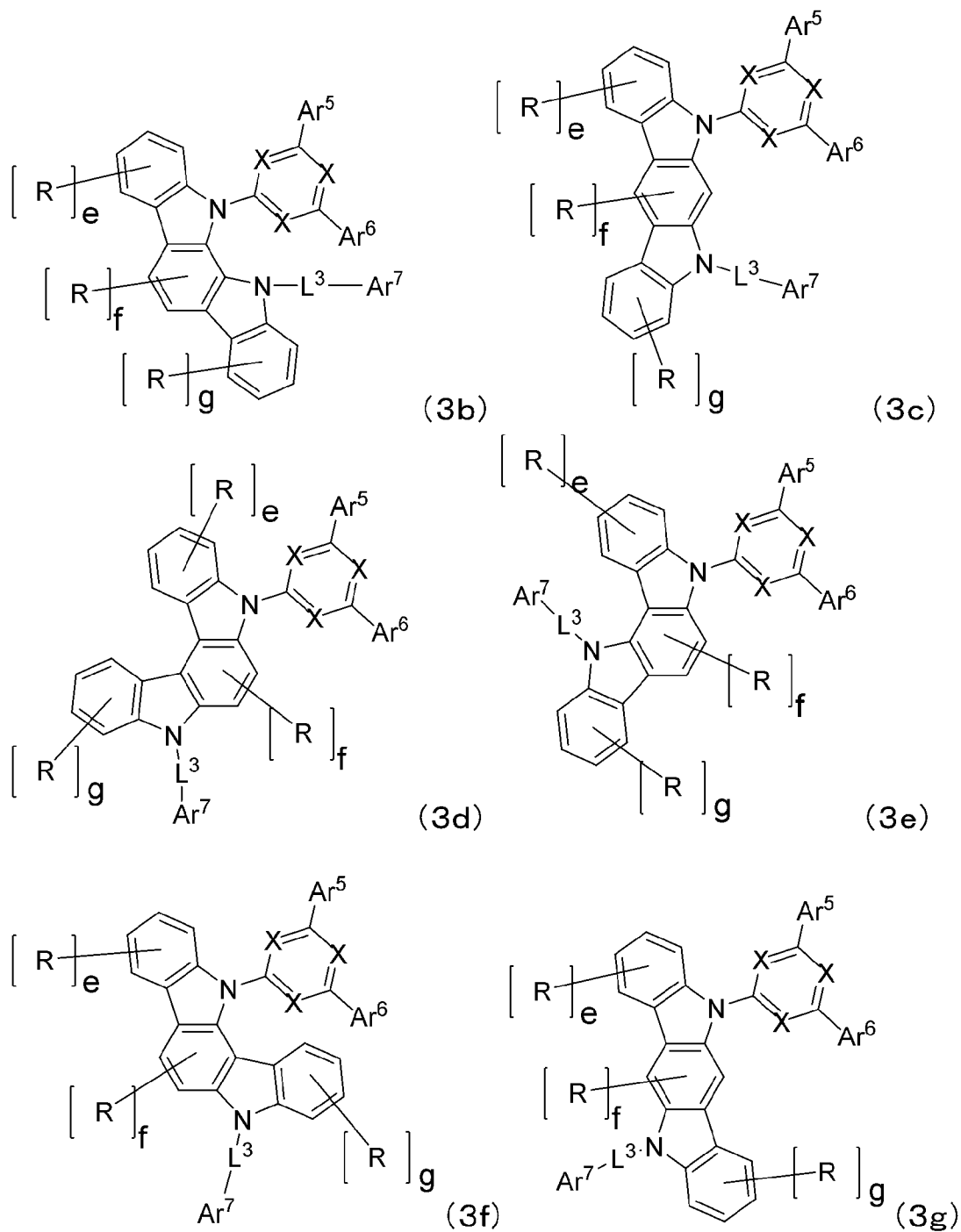
[0048] 上記置換基の具体例としては、シアノ、ブロモ、フッ素、メチル、エチル、プロピル、i-プロピル、ブチル、t-ブチル、ペンチル、シクロペンチル、ヘキシル、シクロヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、トリフェニルシリル、ビニル、プロペニル、ブテニル、ペンテニル、メトキシ、エ

トキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペントキシ、ジフェニルアミノ、ナフチルフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、ジアントラニルアミノ、ジフェナンスレニルアミノ、ジピレニルアミノ等が挙げられる。好ましくは、シアノ、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ビニル、プロペニル、ブテニル、ペンテニル、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペントキシが挙げられる。

[0049] L^3 は、直接結合、又は置換もしくは未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基を表す。未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基の具体例としては、ベンゼン、ナフタレン、アセナフテン、アセナフチレン、アズレン、アントラセン、クリセン、ピレン、フェナントレン、フルオレン等が挙げられる。好ましくは直接結合、置換もしくは未置換のフェニレン基である。

[0050] 一般式(3)の好ましい態様としては、一般式(3b)～(3g)があり、より好ましくは、一般式(3b)～(3d)である。

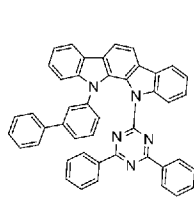
[化11]



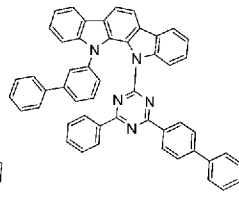
上記式中の Ar^5 、 Ar^6 、 Ar^7 、 L^3 、 X 、 R 、 e 、 f 、及び g は、前記一般式 (3) と同意である。

[0051] 前記一般式 (3) で表される化合物の具体的な例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

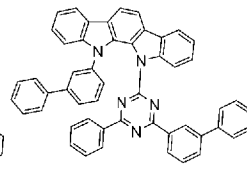
[化12]



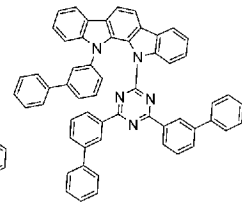
2-21



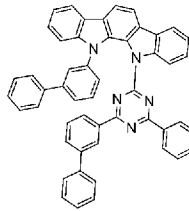
2-22



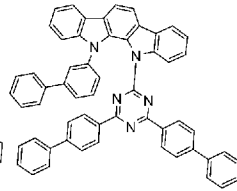
2-23



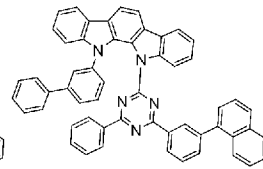
2-24



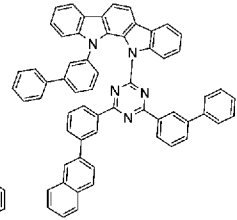
2-25



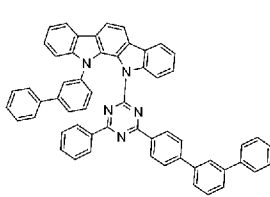
2-26



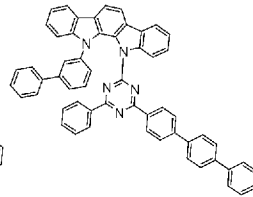
2-27



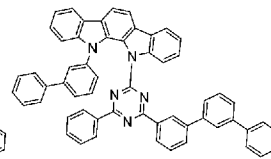
2-28



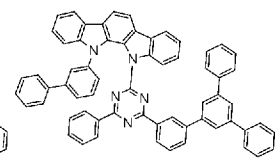
2-29



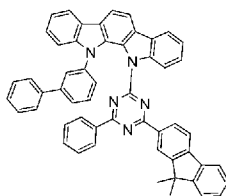
2-30



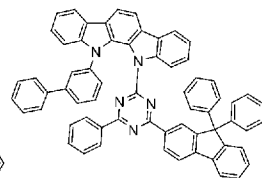
2-31



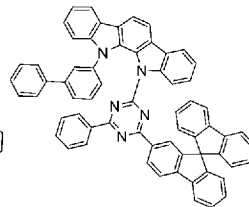
2-32



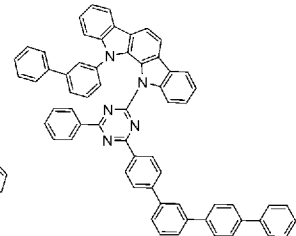
2-33



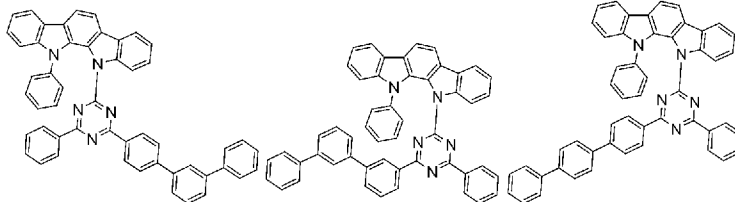
2-34



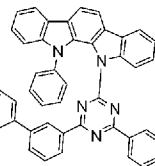
2-35



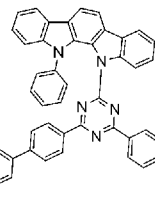
2-36



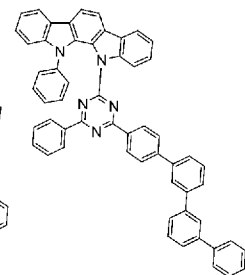
2-37



2-38

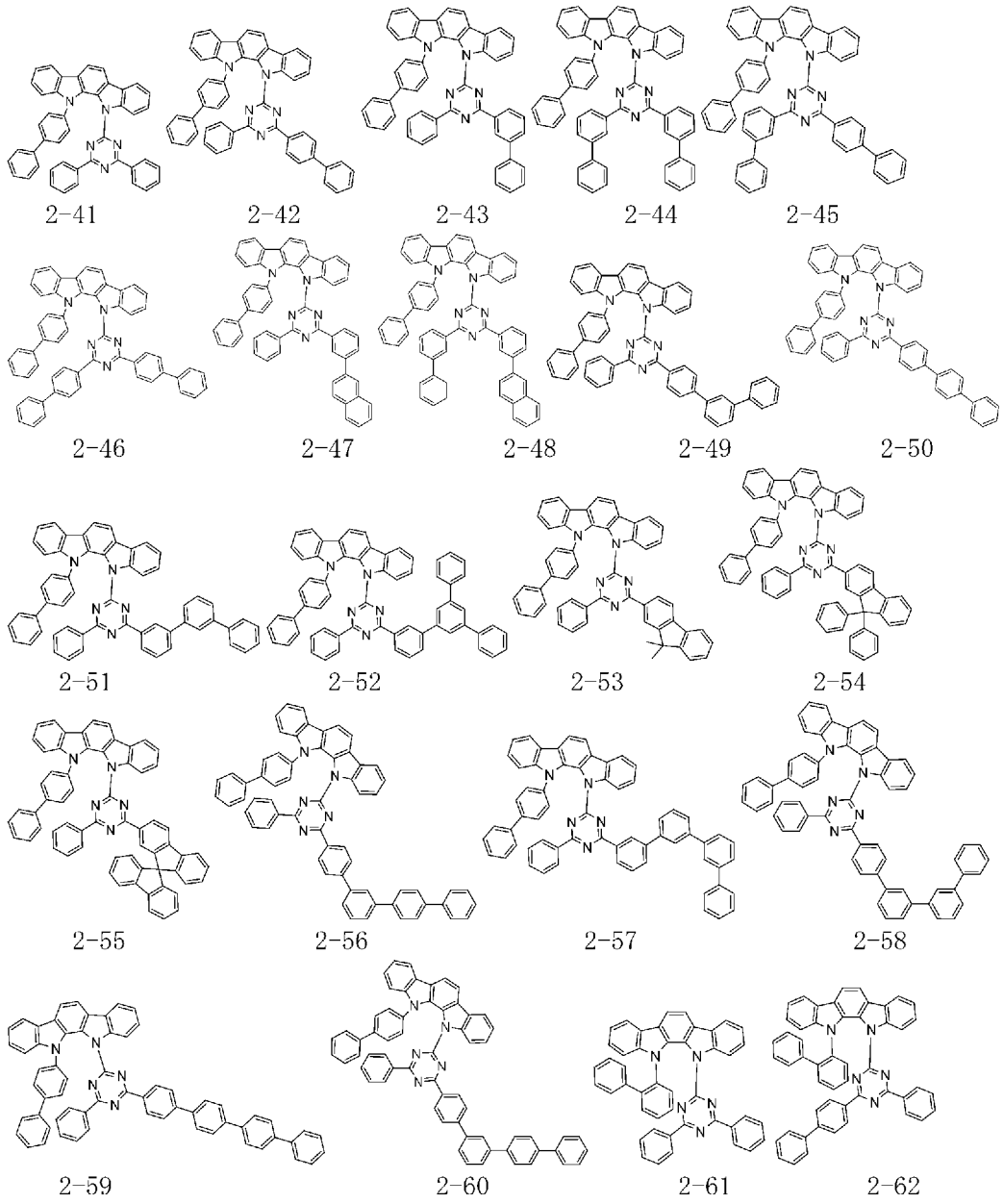


2-39

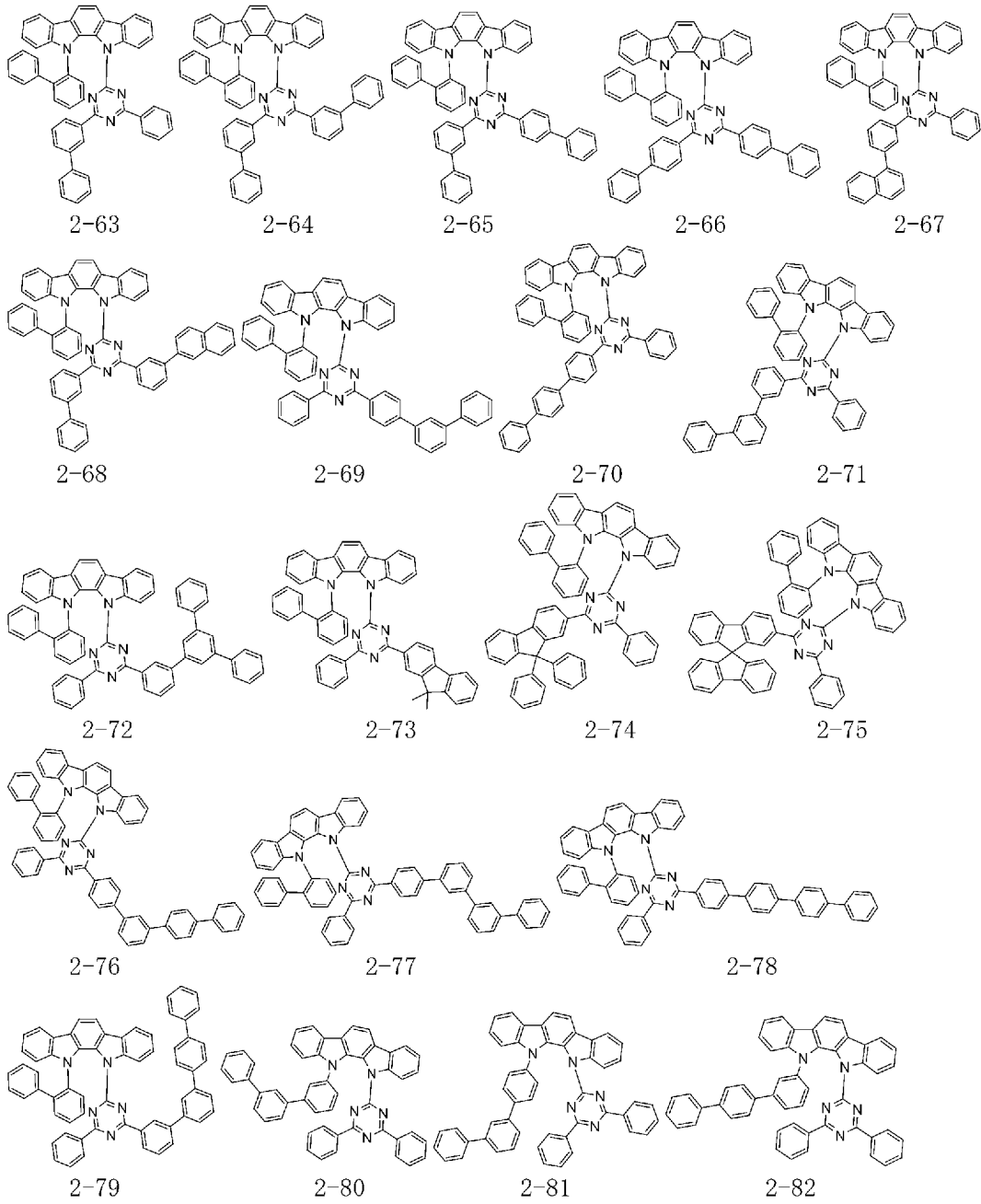


2-40

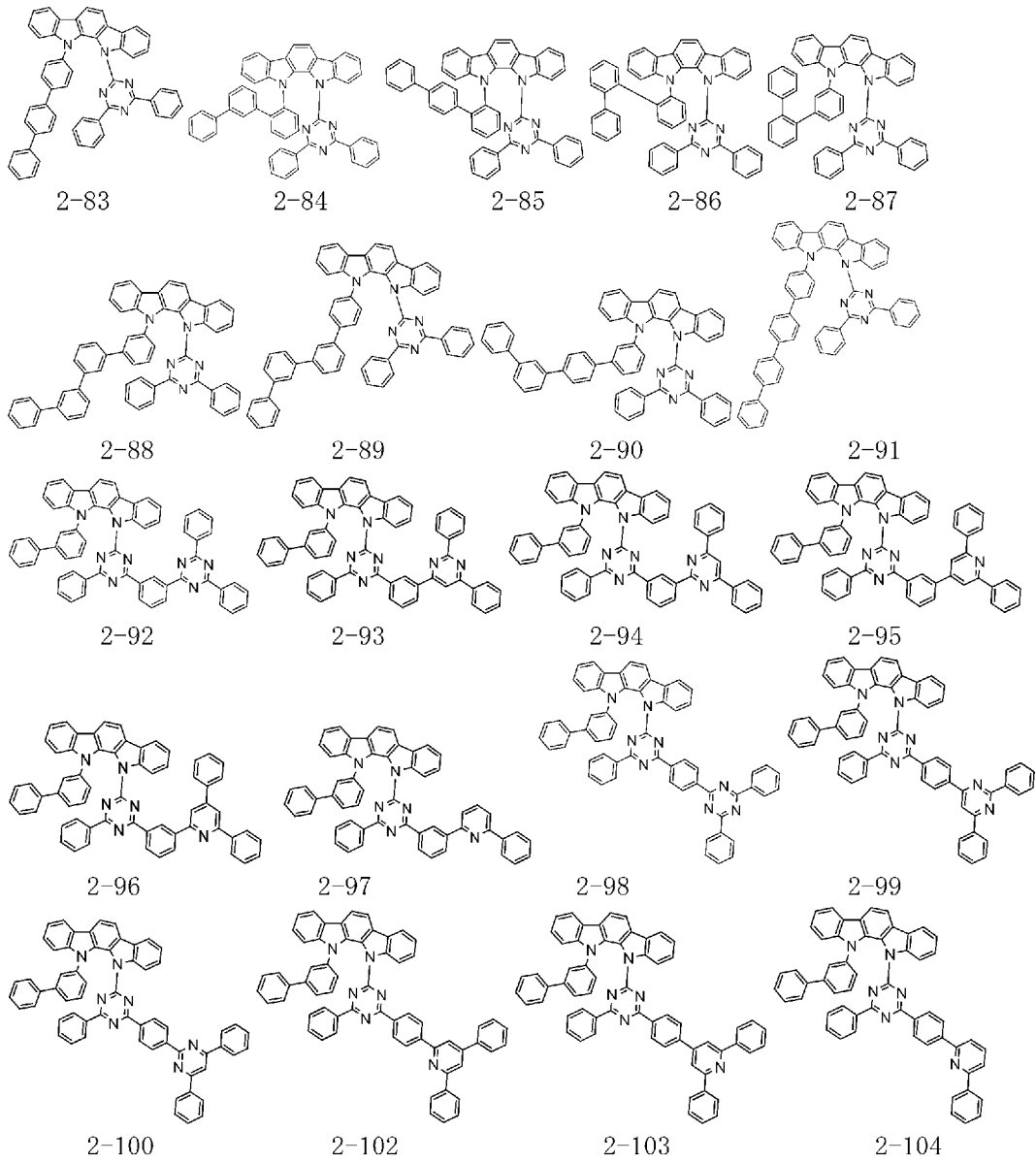
[化13]



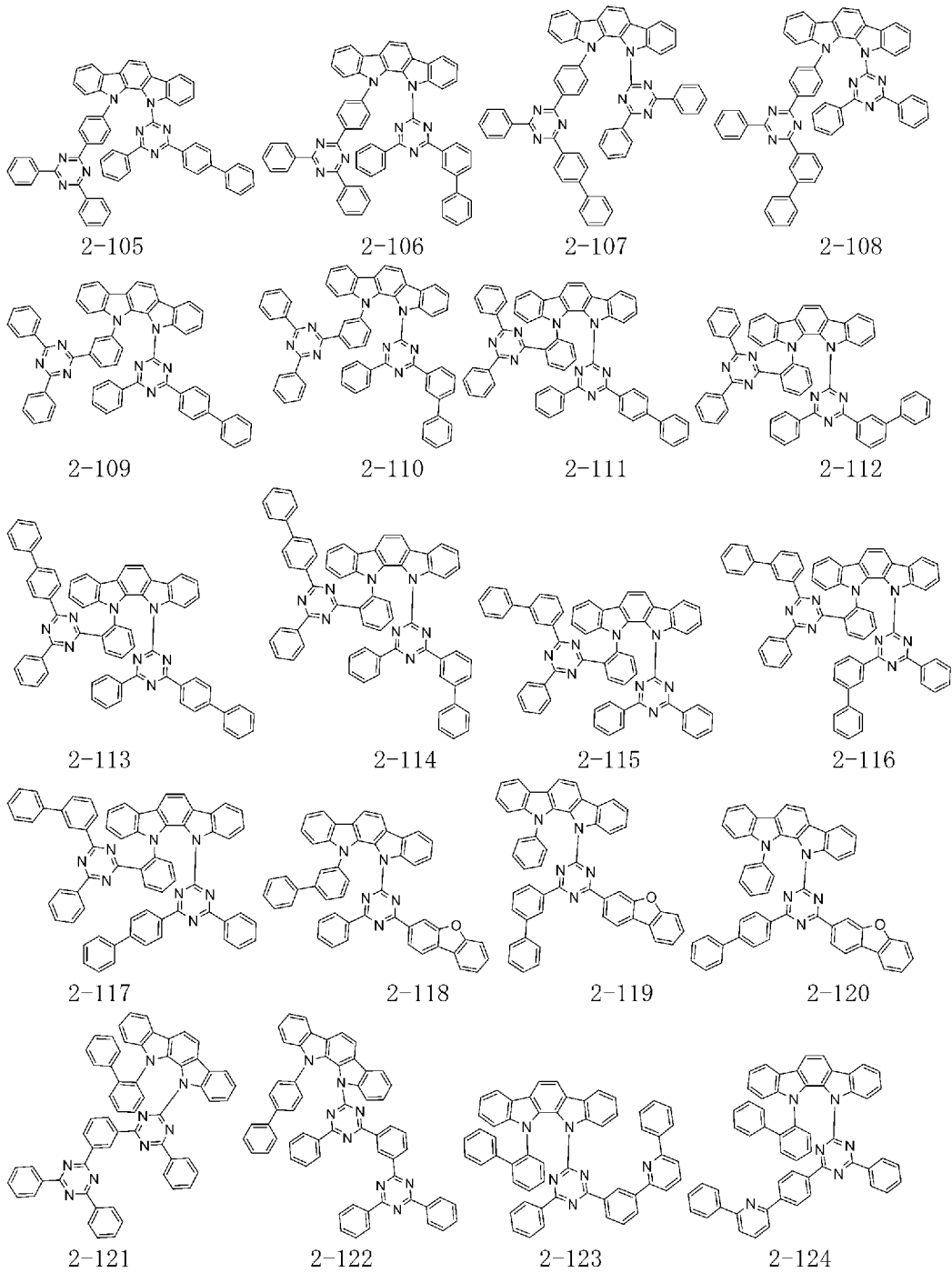
[化14]



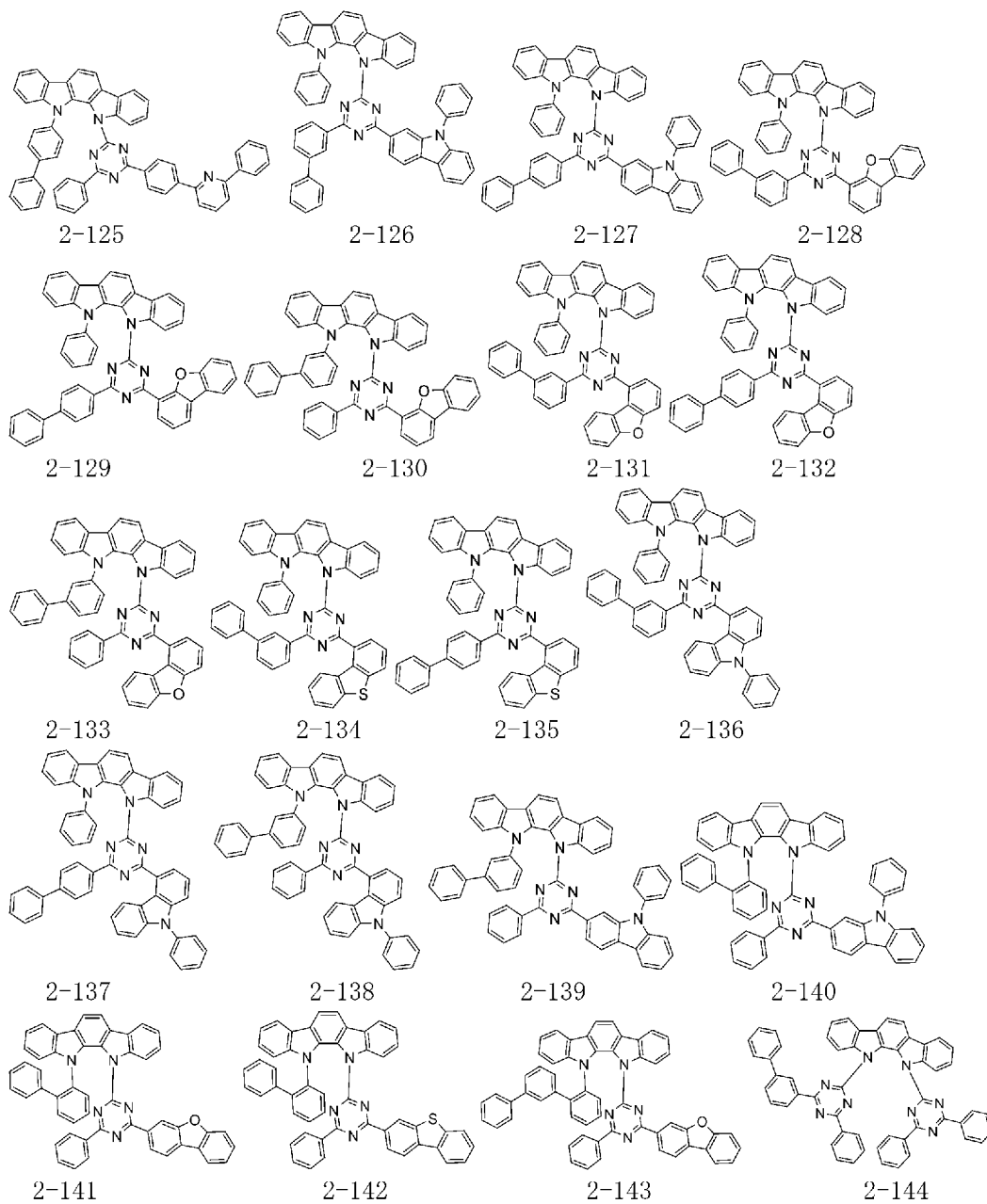
[化15]



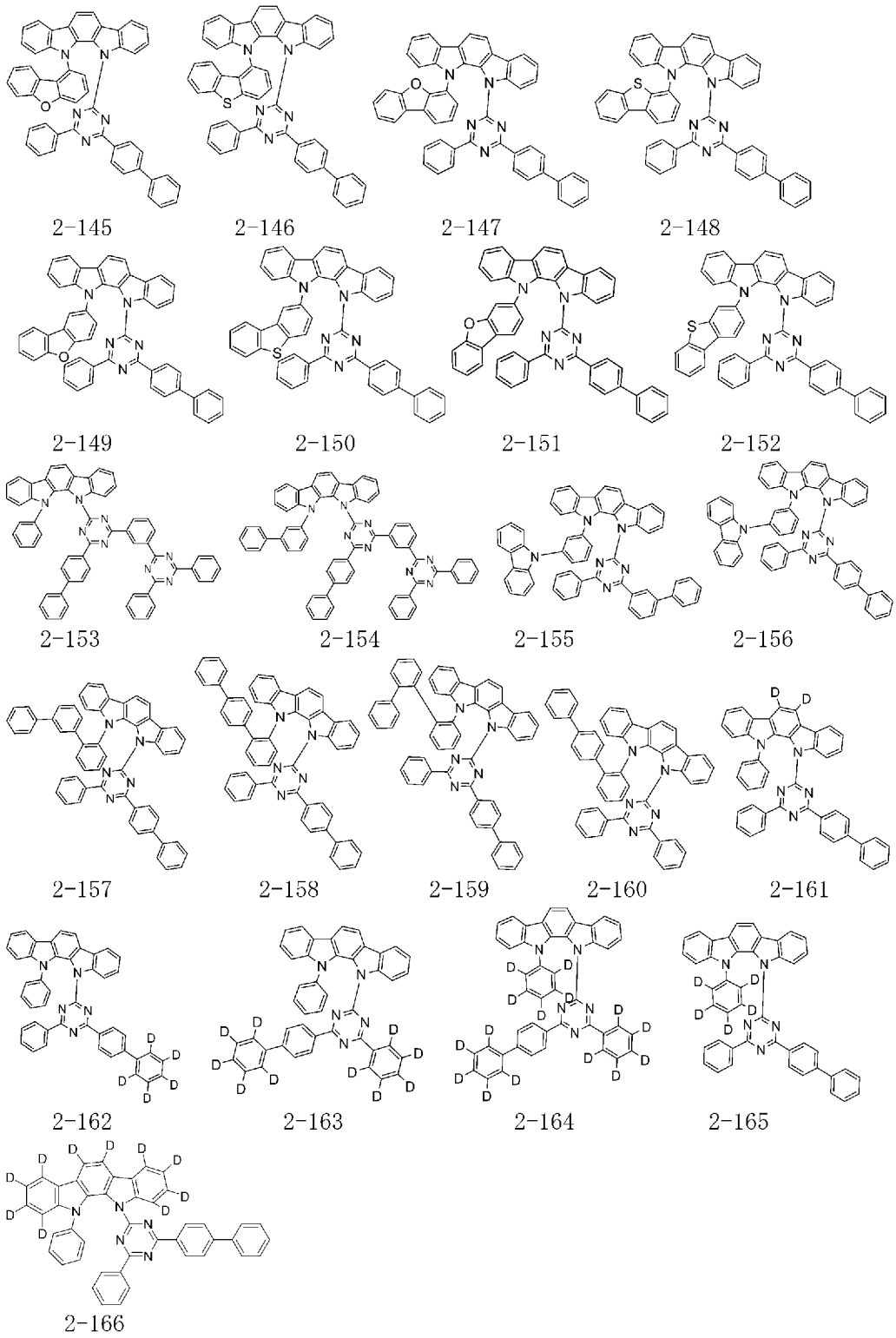
[化16]



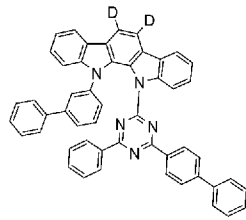
[化17]



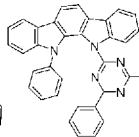
[化18]



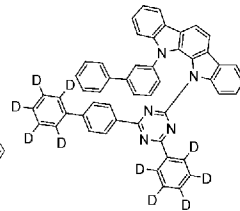
[化19]



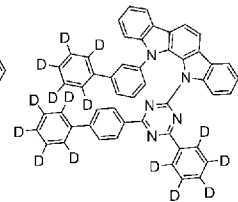
2-167



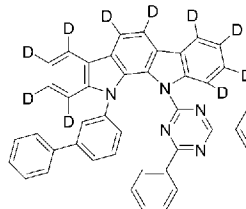
2-168



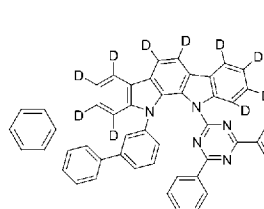
2-169



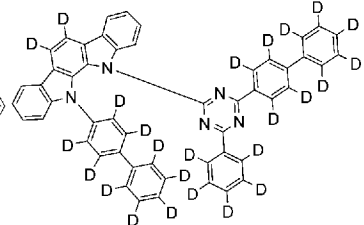
2-170



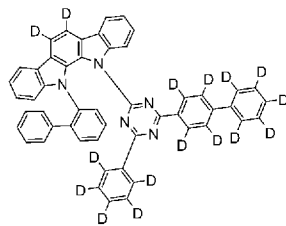
2-171



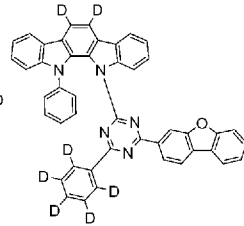
2-172



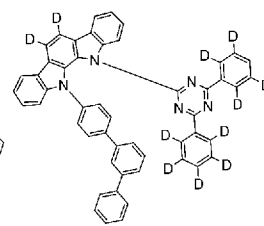
2-173



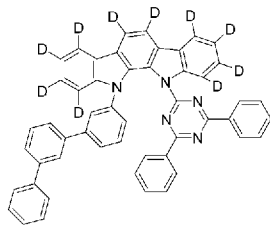
2-174



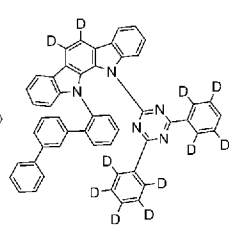
2-175



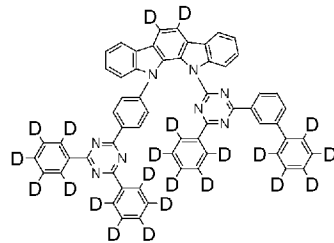
2-176



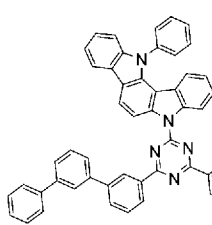
2-177



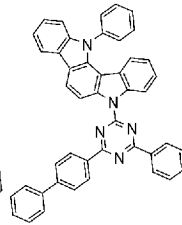
2-178



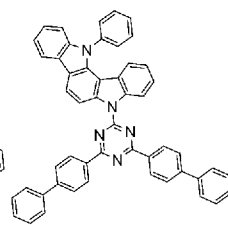
2-179



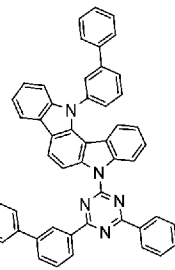
2-180



2-181

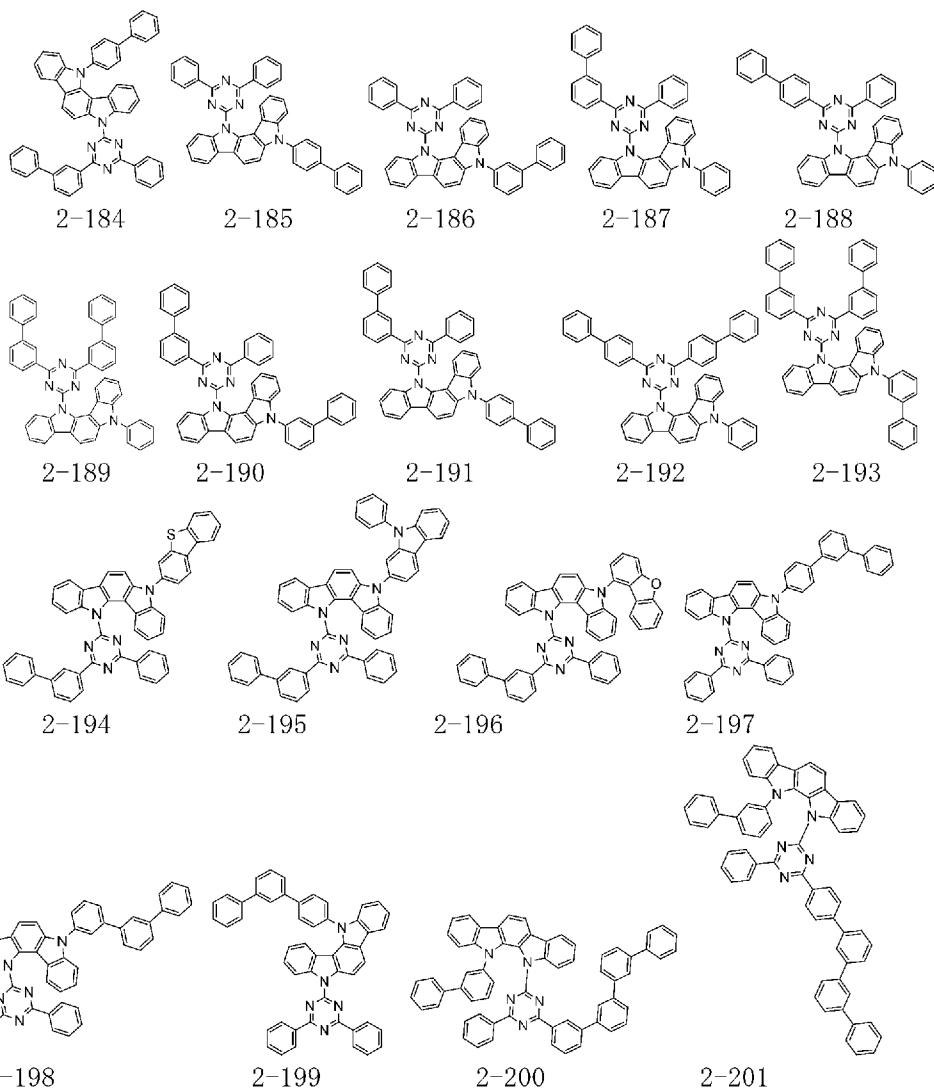


2-182

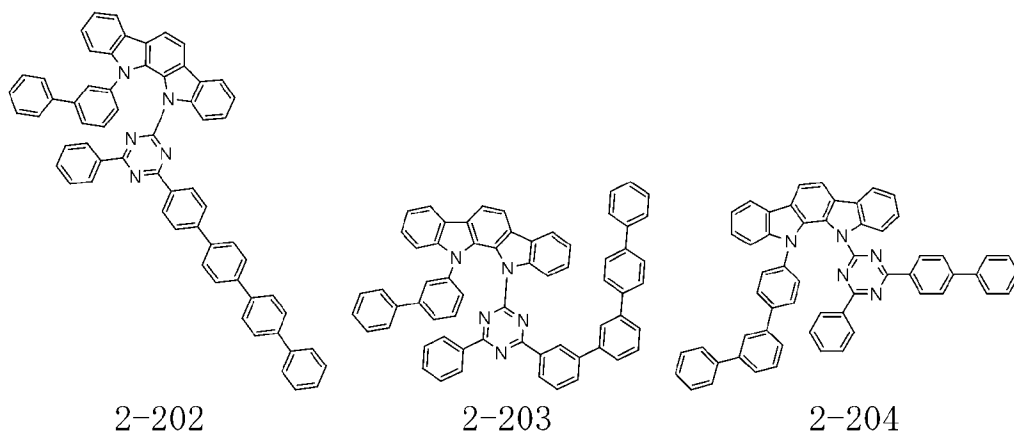


2-183

[化20]



[化21]



[0052] 本発明の混合物は、上記一般式（1）で表される化合物の A_{r^1} 及び A_{r^2}

における芳香族環上の水素原子の40%以上が重水素である重水素化物と、一般式(3)で表される化合物を含む。好ましくは、前記重水素化物と一般式(3)で表される化合物とは、50%重量減少温度が20℃以内であることが望ましい。

[0053] また、本発明の混合物における前記重水素化物と一般式(3)で表される化合物の混合比(重量比)は、一般式(3)で表される化合物の割合が20~70wt%がよく、好ましくは20~60wt%である。

[0054] 本発明の一般式(1)で表される化合物のAr¹及びAr²における芳香族環上の水素原子の40%以上が重水素である重水素化物、又は、前記重水素化物と前記一般式(3)との混合物は、は、有機層に含まれるが、この有機層としては、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層及び電子阻止層からなる群から選ばれることがよい。

好ましくは、発光層であり、発光層は少なくとも1種の発光性ドーパントを含有することがよい。

[0055] 発光層に本発明の有機電界発光素子用材料を含む場合は、ホストとして含まれることが望ましい。有利には、本発明の前記一般式(1)で表される化合物のAr¹及びAr²における芳香族環上の水素原子の40%以上が重水素である重水素化物を第1ホストとして、前記一般式(3)で表される化合物を第2ホストとして含むことがよい。より好ましくは、本発明の前記一般式(1)で表される化合物のAr¹及びAr²における芳香族環上の水素原子の40%以上が重水素である重水素化物と、前記一般式(3)で表される化合物の混合物をホストとして含むことがよい。

[0056] 前記重水素化物と前記一般式(3)で表される化合物をホストとして使用する場合は、これらの化合物を個々に異なる蒸着源から蒸着するなどして使用することもできるが、蒸着前に予備混合して有機EL素子用の混合物(予備混合物ともいう。)とし、その予備混合物を1つの蒸着源から同時に蒸着して発光層を形成することが好ましい。この場合、予備混合物には、発光層を形成するために必要な発光性ドーパント材料又は必要により使用される他

のホストを混合させてもよいが、所望の蒸気圧となる温度に大きな差がある場合は、別の蒸着源から蒸着させることがよい。

[0057] 本発明の有機EL素子は、対向する電極間に複数の有機層を有し、有機層の少なくとも一つは発光層である。少なくとも一つの発光層は前記第1ホストと第2ホスト及び少なくとも1種の発光性ドーパントを含有する。

[0058] 次に、本発明の有機EL素子の構造について、図面を参照しながら説明するが、本発明の有機EL素子の構造はこれに限定されない。

[0059] 図1は本発明に用いられる一般的な有機EL素子の構造例を示す断面図であり、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を表す。本発明の有機EL素子は発光層と隣接して励起子阻止層を有してもよく、また発光層と正孔注入層との間に電子阻止層を有してもよい。励起子阻止層は発光層の陽極側及び陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。本発明の有機EL素子では、陽極、発光層、そして陰極を必須の層として有するが、必須の層以外に正孔注入輸送層、電子注入輸送層を有することがよく、更に発光層と電子注入輸送層の間に正孔阻止層を有することがよい。なお、正孔注入輸送層は、正孔注入層と正孔輸送層のいずれか、又は両者を意味し、電子注入輸送層は、電子注入層と電子輸送層のいずれか又は両者を意味する。

[0060] 図1とは逆の構造、すなわち基板1上に陰極7、電子輸送層6、発光層5、正孔輸送層4、陽極2の順に積層することも可能であり、この場合も必要により層を追加、省略することが可能である。

[0061] ー基板ー

本発明の有機EL素子は、基板に支持されていることが好ましい。この基板については特に制限はなく、従来から有機EL素子に用いられているものであればよく、例えばガラス、透明プラスチック、石英等からなるものを用いることができる。

[0062] ー陽極ー

有機EL素子における陽極材料としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）

金属、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物からなる材料が好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド (ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In₂O₃-ZnO)等の非晶質で、透明導電膜を作成可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合(100 μm以上程度)は、上記電極材料の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは有機導電性化合物のような塗布可能な物質を用いる場合には印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。膜厚は材料にもよるが、通常10~1000nm、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

[0063] ー陰極ー

一方、陰極材料としては仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属)、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物からなる材料が用いられる。このような電極材料の具体例としては、ナトリウム、ナトリウムーカリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(AI₂O₃)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極はこれらの陰極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により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、陰極としてシート抵抗は数百 Ω /□以下が好ましく、膜厚は通常10nm～5 μ m、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であれば発光輝度は向上し、好都合である。

[0064] また、陰極に上記金属を1～20nmの膜厚で形成した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に形成することで、透明又は半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

[0065] ー発光層ー

発光層は陽極及び陰極のそれぞれから注入された正孔及び電子が再結合することにより励起子が生成した後、発光する層であり発光層には発光性ドーパント材料とホストを含む。

[0066] ホストには、上記第1ホストと第2ホストを使用するのが好ましい。前記一般式(1)で表される第1ホストは、1種を使用してもよく、2種以上の異なる化合物を使用してもよい。同様に、前記一般式(3)で表される第2ホストは1種を使用してもよく、2種以上の異なる化合物を使用してもよい。

必要により、他の公知のホスト材料を1種又は複数種類併用してもよいが、その使用量はホスト材料の合計に対し、50wt%以下、好ましくは25wt%以下とすることがよい。

[0067] 本発明の有機EL素子の製造方法としては、前記第1ホストと第2ホストを含む予備混合物を用意し、これを使用して発光層を作製する方法が好ましい。加えて予備混合物を単一の蒸着源から気化させて蒸着させる方法がより好ましい。ここで、予備混合物は均一な組成物であることが適する。

[0068] 第1ホストと第2ホストを予備混合して使用する場合は、良好な特性を有する有機EL素子を再現性良く作製するために、50%重量減少温度(T_{50})の差が小さいことが望ましい。50%重量減少温度は、窒素気流減圧(1Pa)下でのTG-

DTA測定において、室温から毎分10℃の速度で550℃まで昇温したとき、重量が50%減少した際の温度をいう。この温度付近では、蒸発又は昇華による気化が最も盛んに起こると考えられる。

[0069] 予備混合物における第1ホストと第2ホストとの50%重量減少温度の差が20℃以内であることが好ましい。この予備混合物を単一の蒸着源から気化させて蒸着することで、均一な蒸着膜を得ることが可能となる。この際、予備混合物には、発光層を形成するために必要な発光性ドーパント材料又は必要により使用される他のホストを混合させてもよいが、所望の蒸気圧となる温度に大きな差がある場合は、別の蒸着源から蒸着させることがよい。

[0070] また、第1ホストと第2ホストの混合比（重量比）は、第1ホストと第2ホストの合計に対し、第2ホストの割合が20～70wt%がよく、好ましくは20～60wt%である。

[0071] 予備混合の方法としては可及的に均一に混合できる方法が望ましく、粉碎混合や、減圧下又は窒素のような不活性ガス雰囲気下で加熱溶融させる方法や、昇華等が挙げられるが、これらの方法に限定されるものではない。

[0072] ホスト及びその予備混合物の形態は粉体、スティック状、又は顆粒状であってもよい。

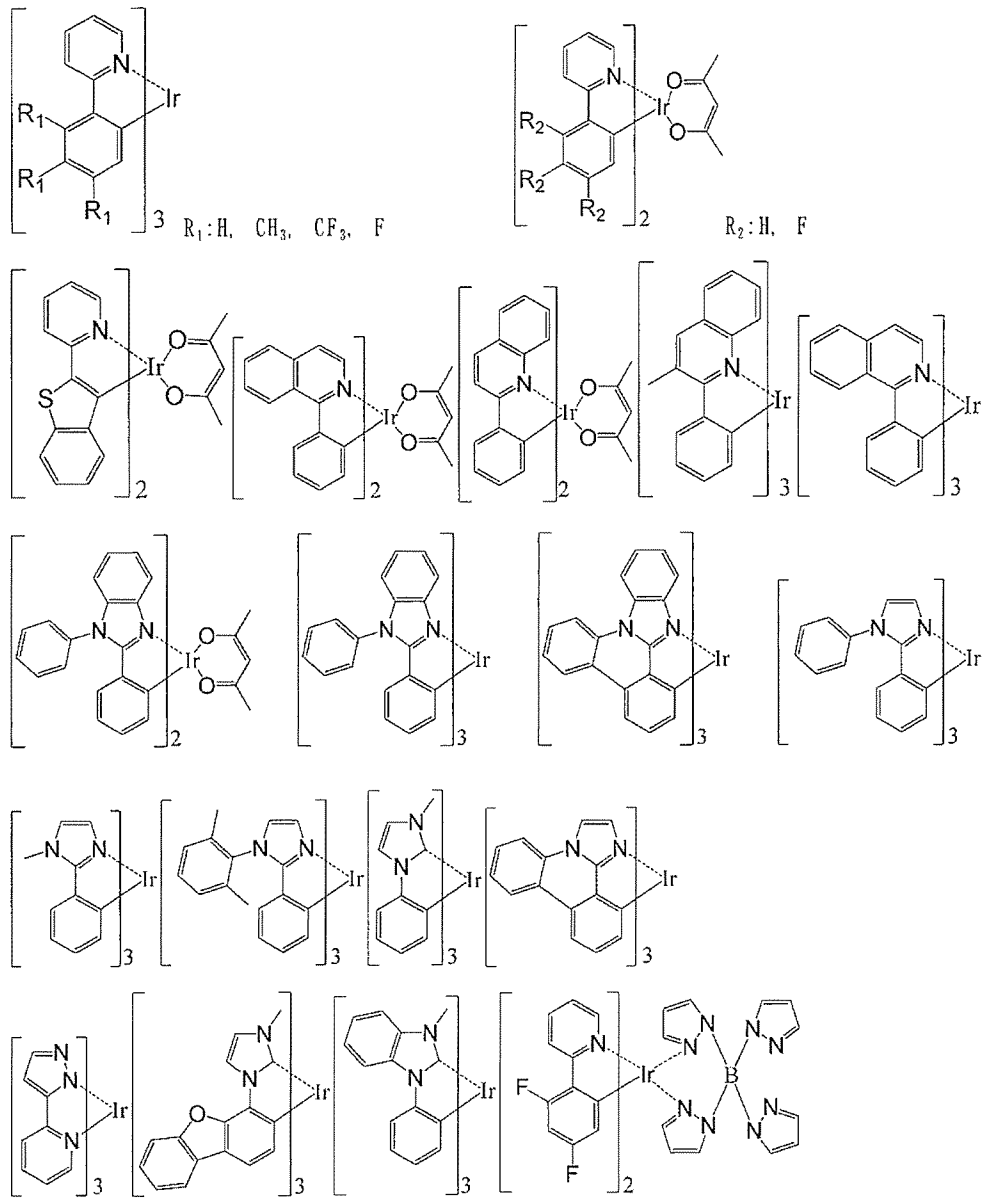
[0073] ホストを複数種使用する場合は、それぞれのホストを異なる蒸着源から蒸着するか、蒸着前に予備混合して予備混合物とすることで1つの蒸着源から複数種のホストを同時に蒸着することもできる。

[0074] 一般式(1)で表される化合物のAr¹及びAr²における芳香族環上の水素原子の40%以上が重水素である重水素化化合物は、全部または一部が重水素化された出発原料を用いて製造する方法と、水素/重水素交換反応により製造する方法が知られている。全部または一部が重水素化された原料は、市販品供給元から購入するか、既知の水素/重水素交換反応により製造することができる。既知の水素/重水素交換反応としては、遷移金属触媒存在下、非重水素化体に重水素ガス又はその等価体を作用させる方法や、酸触媒存在下、非重水素化体を重水素化溶媒（重ベンゼンなど）で処理する方法など

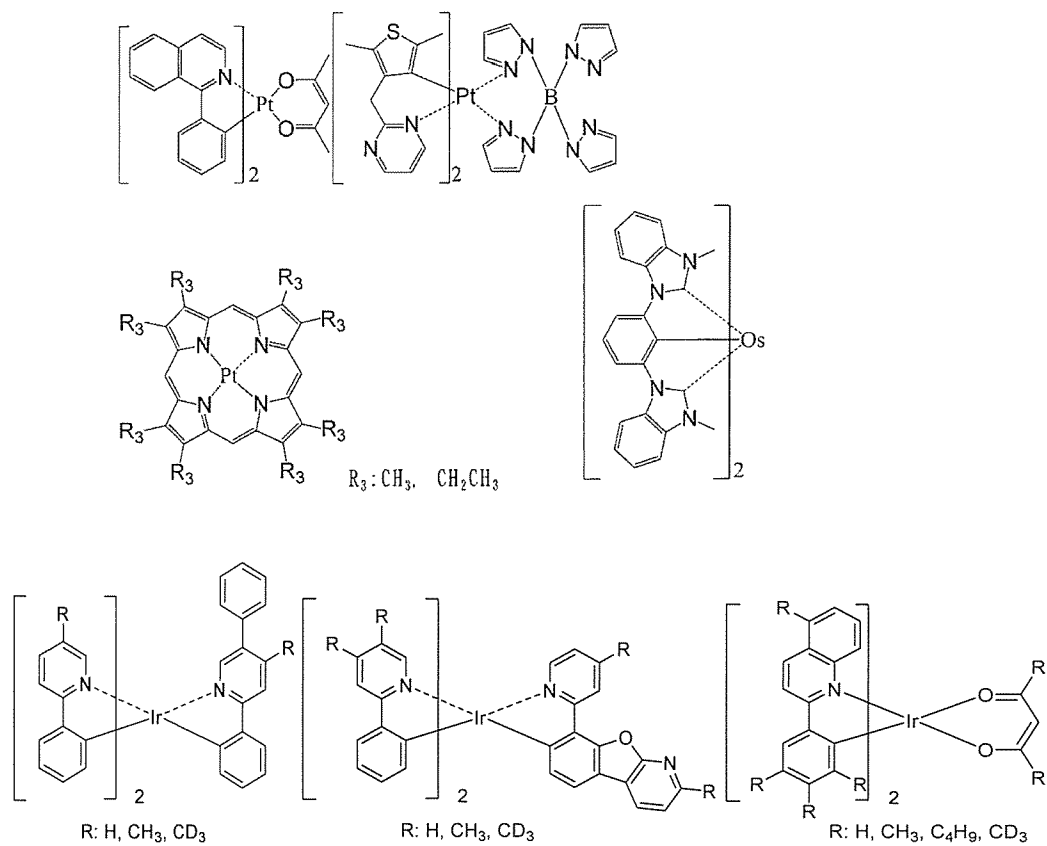
がある。

- [0075] 発光性ドーパント材料として燐光発光ドーパントを使用する場合、燐光発光ドーパントとしては、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金から選ばれる少なくとも1つの金属を含む有機金属錯体を含有するものがよい。具体的には、J. Am. Chem. Soc. 2001, 123, 4304、JP2013-530515A、US2016/0049599A、US2017/0069848A、US2018/0282356A、又はUS2019/0036043A等に記載されているイリジウム錯体や、US2018/0013078A、又はKR2018-094482A等に記載されている白金錯体が好適に用いられるが、これらに限定されない。
- [0076] 燐光発光ドーパント材料は、発光層中に1種類のみが含有されてもよいし、2種類以上を含有しても良い。燐光発光ドーパント材料の含有量は宿主材料に対して0.1～30wt%であることが好ましく、1～20wt%であることがより好ましい。
- [0077] 燐光発光ドーパント材料は、特に限定されるものではないが、具体的には以下のような例が挙げられる。
- [0078]

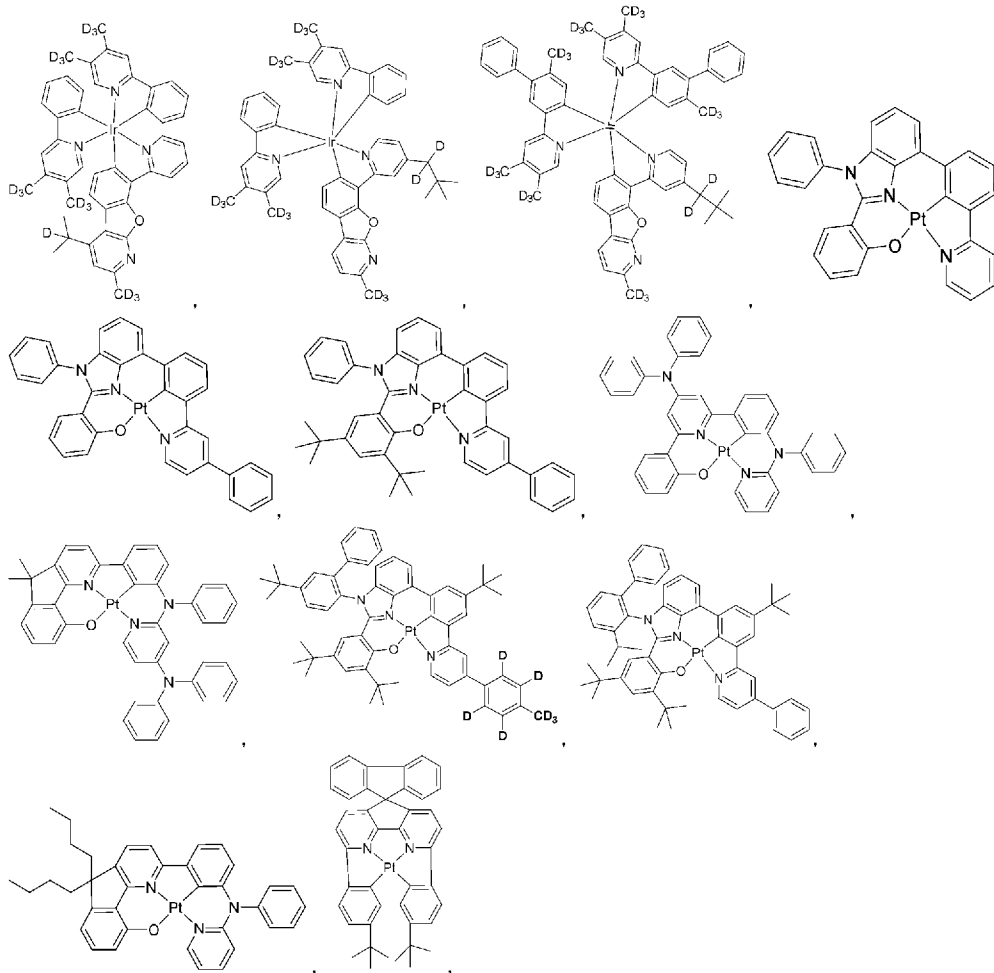
[化22]



[化23]



[化24]



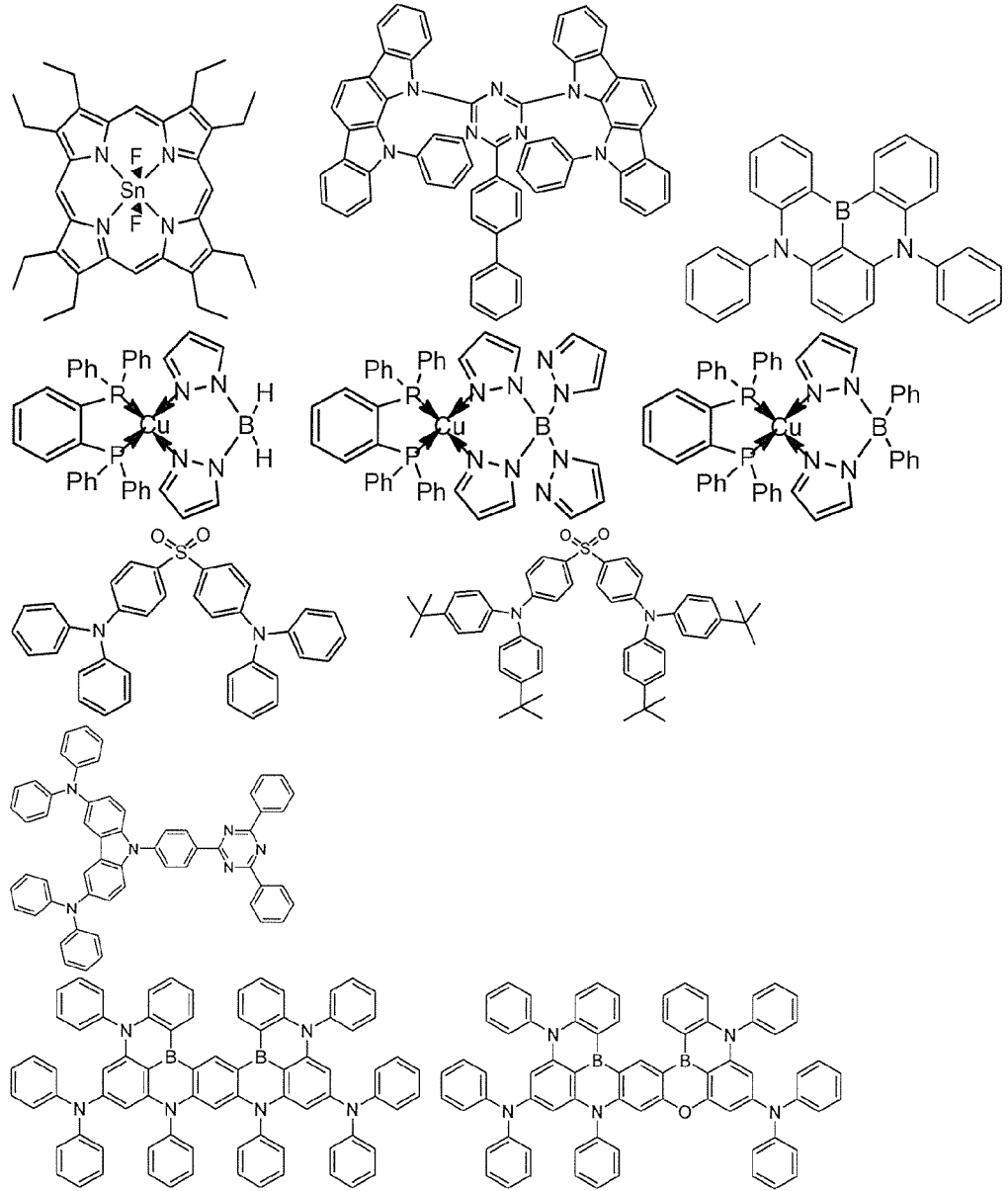
[0079] 発光性ドーパント材料として蛍光発光ドーパントを使用する場合、蛍光発光ドーパントとしては、特に限定されないが例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、縮合芳香族化合物、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサジン誘導体、アルダジン誘導体、ピロリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体やピロメテン誘導体の金属錯体、希土類錯体、遷移金属錯体に代表される各

種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体等が挙げられる。好ましくは縮合芳香族誘導体、スチリル誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、オキサジン誘導体、ピロメテン金属錯体、遷移金属錯体、又はランタノイド錯体が挙げられ、より好ましくはナフタレン、ピレン、クリセン、トリフェニレン、ベンゾ[c]フェナントレン、ベンゾ[a]アントラセン、ペントセン、ペリレン、フルオランテン、アセナフソフルオランテン、ジベンゾ[a, j]アントラセン、ジベンゾ[a, h]アントラセン、ベンゾ[a]ナフタレン、ヘキサセン、ナフト[2, 1-f]イソキノリン、 α -ナフタフェナントリジン、フェナントロオキサゾール、キノリノ[6, 5-f]キノリン、ベンゾチオファントレン等が挙げられる。これらは置換基としてアルキル基、アリール基、芳香族複素環基、又はジアリールアミノ基を有してもよい。

[0080] 発光性ドーパント材料として熱活性化遅延蛍光発光ドーパントを使用する場合、熱活性化遅延蛍光発光ドーパントとしては、特に限定されないがスズ錯体や銅錯体等の金属錯体や、W02011/070963Aに記載のインドロカルバゾール誘導体、Nature 2012, 492, 234に記載のシアノベンゼン誘導体、カルバゾール誘導体、Nature Photonics 2014, 8, 326に記載のフェナジン誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、スルホン誘導体、フェノキサジン誘導体、アクリジン誘導体等が挙げられる。

[0081] 熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料は、特に限定されるものではないが、具体的には以下のような例が挙げられる。

[化25]



[0082] 熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料は、発光層中に1種類のみが含有されてもよいし、2種類以上を含有してもよい。また、熱活性化遅延蛍光発光ドーパントは燐光発光ドーパントや蛍光発光ドーパントと混合して用いてもよい。熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料の含有量は、ホスト材料に対して0.1～50wt%であることが好ましく、1～30wt%であることがより好ましい。

[0083] -注入層-

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、正孔注入層と電子注入層があり、陽極と発光層又は正孔輸送層の間、及び陰極と発光層又は電子輸送層との間に存在させてもよい。注入層は必要に応じて設けることができる。

[0084] ー正孔阻止層ー

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで発光層中での電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

[0085] ー電子阻止層ー

電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで発光層中での電子と正孔が再結合する確率を向上させることができる。

[0086] 電子阻止層の材料としては、公知の電子阻止層材料を用いることができ、また後述する正孔輸送層の材料を必要に応じて用いることができる。電子阻止層の膜厚は好ましくは3～100nmであり、より好ましくは5～30nmである。

[0087] ー励起子阻止層ー

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は2つ以上の発光層が隣接する素子において、隣接する2つの発光層の間に挿入することができる。

[0088] 励起子阻止層の材料としては、公知の励起子阻止層材料を用いることができる。例えば、1,3-ジカルバゾリルベンゼン(mCP)や、ビス(8-ヒドロキシ-2-メチルキノリン)-(4-フェニルフェノキシ)アルミニウム(III)(BAIq)等が挙げられる。

[0089] ー正孔輸送層ー

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、正孔輸送層は単層又は複数層設けることができる。

[0090] 正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。正孔輸送層には従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。かかる正孔輸送材料としては例えば、ポルフィリン誘導体、アリアルアミン誘導体、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリアルアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられるが、ポルフィリン誘導体、アリアルアミン誘導体及びスチリルアミン誘導体を用いることが好ましく、アリアルアミン誘導体を用いることがより好ましい。

[0091] ー電子輸送層ー

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、電子輸送層は単層又は複数層設けることができる。

[0092] 電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる場合もある）としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。電子輸送層には、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができ、例えば、ナフタレン、アントラセン、フェナントロリン等の多環芳香族誘導体、トリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム（III）誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、ピピリジン誘導体、キノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体等が挙げられ、更にこ

これらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

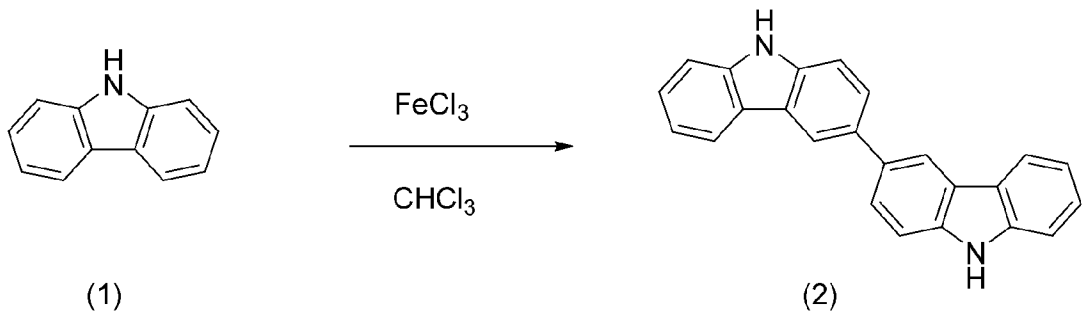
実施例

[0093] 以下、本発明を実施例によって更に詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではなく、その要旨を超えない限りにおいて、種々の形態で実施することが可能である。

[0094] 合成例 1

次の反応に従い、化合物（2）を合成した。

[化26]

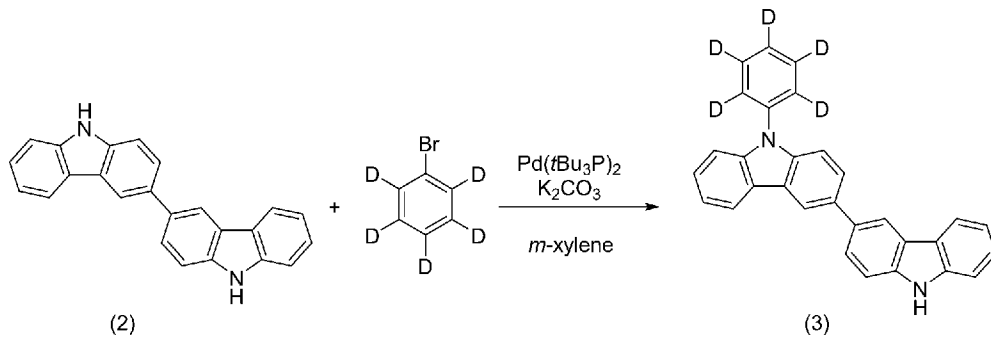


化合物（1）（15.0g）に、クロロホルムを250ml、塩化鉄(III)を48.0g加え、窒素雰囲気下、室温で12時間攪拌した。反応液にメタノールを500g加えて希釈し、分離、精製して白色固体の化合物（2）を4.5g得た。

[0095] 合成例 2

次の反応に従い、化合物（3）を合成した。なお、化合物（3）はビスカルバゾールのN上のフェニル基の重水素化率が100%の場合の構造式の例を示す。

[化27]

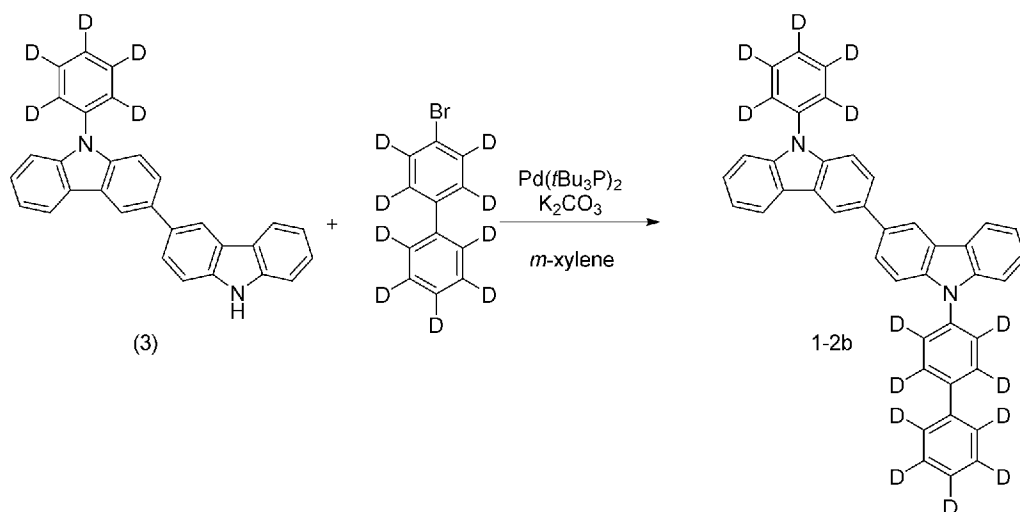


化合物（２）（４．０ｇ）に、重ブロモベンゼンを２．１ｇ、*m*-キシレンを３００ｍｌ、ビス（トリ-*tert*-ブチルホスフィン）パラジウムを０．３ｇ、炭酸カリウムを８．３ｇ加え、窒素雰囲気下、加熱還流下で５時間撈拌した。反応液を冷却後、分離、精製して重水素化物である白色固体の化合物（３）を２．２ｇ得た。

[0096] 合成例 3

次の反応に従い、化合物1-2bを合成した。なお、化合物1-2bは、ビスカルバゾールのN上のビフェニル基及びフェニル基の重水素化率が100%の場合の構造式の例を示す。

[化28]



化合物（３）（５．０ｇ）に、重*p*-ブロモビフェニルを３．５ｇ、*m*-キシレンを２００

ml、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウムを0.3g、炭酸カリウムを8.4g加え、窒素雰囲気下、加熱還流下で5時間攪拌した。反応液を冷却後、分離、精製して重水素化物である白色固体の化合物1-2bを2.5g得た。

[0097] 1-2bについて、プロトン核磁気共鳴分光法によって重水素化率を求めた。重水素化テトラヒドロフラン(1.0ml)に1-2b(5.0mg)及び内部標準物質としてジメチルスルホン(2.0mg)を溶解することで、測定試料を調製した。内部標準物質と1-2b由来の積分強度比から、測定試料中に含まれる1-2bの平均のプロトン濃度[mol/g]を計算した。また、1-2bの非重水素化体(比較例化合物Aに該当)についても同様に平均のプロトン濃度[mol/g]を計算した。次に、1-2bのプロトン濃度と1-2bの非重水素化体のプロトン濃度の比を計算し、1から減じることで1-2bの平均的な重水素化率を算出した。なお、部分構造の重水素化率は、対象の部分構造に由来する化学シフトの積分強度から、前記同様に算出した。

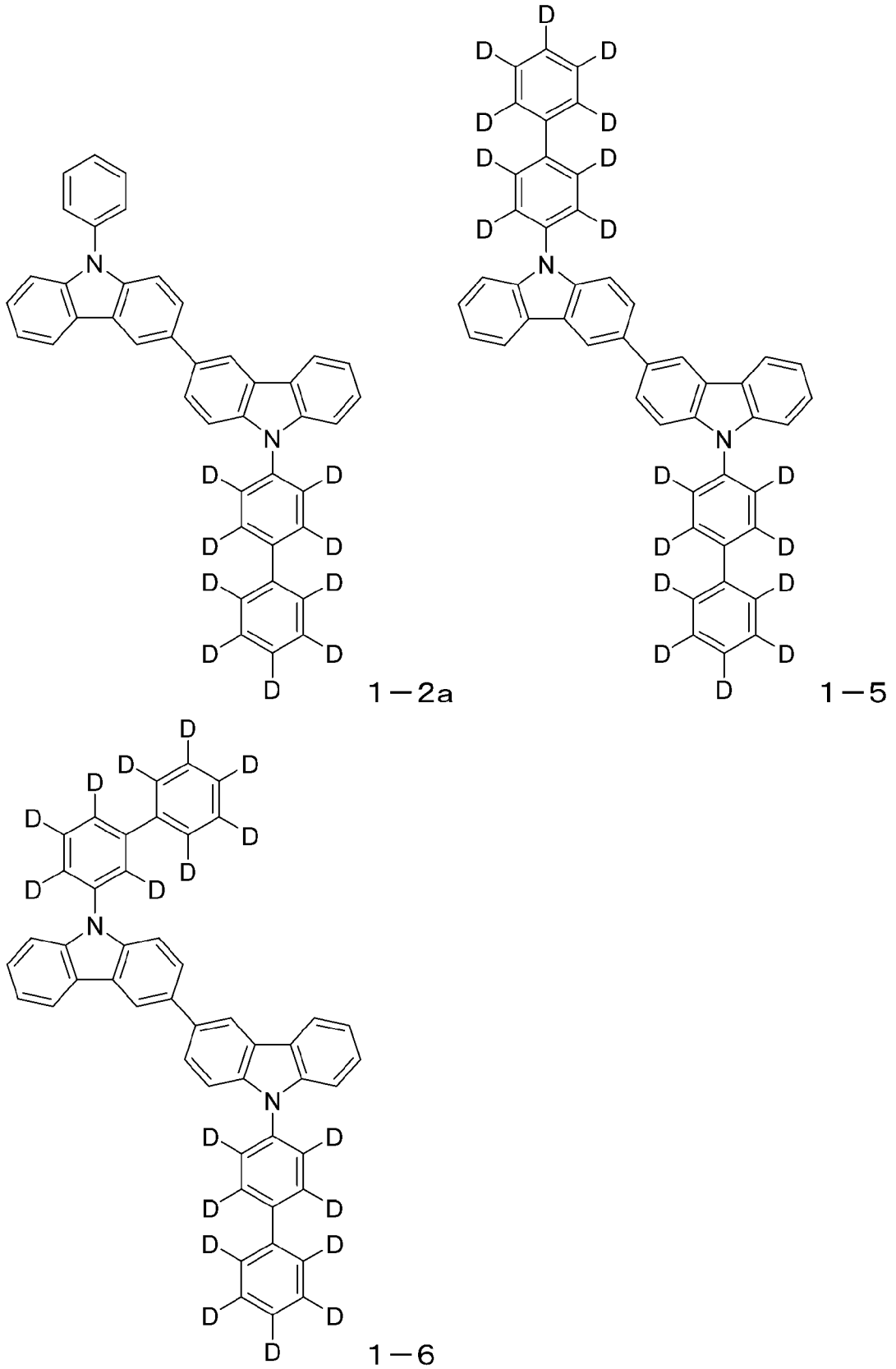
[0098] 上記計算の結果、得られた化合物1-2bの重水素化率は44%であり、その内式(1)のAr¹及びAr²における芳香族環上に相当する水素の重水素化率は89%であった。

[0099] 合成例4~6

合成例1~3と同様にして反応を行い、化合物1-2a、1-5、1-6を合成した。なお、以下の化合物1-2a、1-5、1-6は、ビスカルバゾールのN上のビフェニル基の重水素化率が100%の場合の構造式の例を示す。1-2bと同様に化合物1-2a、1-5、1-6の重水素化率を計算した結果、1-2aについては、全体の重水素化率は31%であり、その内式(1)のAr¹及びAr²における芳香族環上に相当する水素の重水素化率は62%であった。また、1-5については、全体の重水素化率は48%であり、その内式(1)のAr¹及びAr²における芳香族環上に相当する水素の重水素化率は85%であった。更に、1-6については、全体の重水素化率は46%であり、その内式(1)のAr¹及びAr²における芳香族環上に相当する水素の重水素化率は81%であ

った。

[化29]



[0100] また比較のため、比較例化合物A、B、C、Eを合成した（比較合成例1～4）。1-2bと同様に比較化合物Bについても重水素化率を求めた。なお、重水素化前の水素数に重水素化率を乗じることで、平均的な重水素の置換数として算出した。これら、比較例化合物A、B、C、Eについては、本実施例における説明の最後に化合物を示している。

[0101]

[表1]

化合物		全体		Ar ¹ 、Ar ²	
		重水素化前の水素数	重水素化率	重水素化前の水素数	重水素化率
合成例4	1-2a	28	31%	14	62%
合成例3	1-2b	28	44%	14	89%
合成例5	1-5	32	48%	18	85%
合成例6	1-6	32	46%	18	81%
比較合成例1	比較例化合物A	28	0%	14	0%
比較合成例2	比較例化合物B	28	17%	14	34%
比較合成例3	比較例化合物C	32	0%	18	0%
比較合成例4	比較例化合物E	32	0%	18	0%

[0102] 実施例1

膜厚110nmのITOからなる陽極が形成されたガラス基板の上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 4.0×10^{-5} Paで積層した。まず、ITO上に正孔注入層としてHAT-CNを25nmの厚さに形成し、次に正孔輸送層としてSpiro-TPDを30nmの厚さに形成した。次に電子阻止層としてHT-1を10nmの厚さに形成した。次に、第1ホストとして化合物1-2aを、第2ホストとして化合物2-22を、発光ドーパントとしてIr(ppy)₃をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、40nmの厚さに発光層を形成した。この時、Ir(ppy)₃の濃度が10wt%、第1ホスト及び第2ホストの合計濃度が90wt%とし、尚且つ、第1ホストと第2ホストの重量比が70:30となる蒸着条件で共蒸着した。次に電子輸送層としてET-1を20nmの厚さに形成した。更に電子輸送層上に電子注入層としてLiFを1nmの厚さに形成した。最後に、電子注入層上に、陰極としてAlを70nmの厚さに形成し、有機EL素子を作製した。

[0103] 実施例 2 ~ 1 2

第 1 ホスト及び第 2 ホストとして、表 2 に示す化合物を使用した以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

[0104] 比較例 1 ~ 1 2

第 1 ホスト及び第 2 ホストとして、表 2 に示す化合物を使用した以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

[0105] 作製した有機 EL 素子の評価結果を表 2 に示す。表中で輝度、駆動電圧、発光効率₀は駆動電流 20mA/cm²時の値であり、初期特性である。LT70 は、初期輝度が 70% まで減衰するまでにかかる時間であり、寿命特性を表す。第 1 ホスト、第 2 ホストの番号は、上記例示化合物および合成例で付した番号である。

[0106] [表 2]

	第 1 ホスト 化合物	第 2 ホスト 化合物	電圧 (V)	輝度 (cd/m ²)	電力効率 (lm/W)	LT70 (h)
実施例 1	1-2a	2-22	5.40	12200	35.5	2390
実施例 2	1-2b	2-22	5.30	12200	36.1	2390
実施例 3	1-5	2-22	5.20	11800	35.6	2160
実施例 4	1-6	2-22	5.10	12100	37.2	2450
実施例 5	1-2a	2-37	5.60	11900	33.4	2500
実施例 6	1-2b	2-37	5.40	11700	34.0	2520
実施例 7	1-5	2-37	5.10	12000	36.9	2520
実施例 8	1-6	2-37	5.30	12100	35.8	2500
実施例 9	1-2a	2-168	5.40	12100	35.2	2340
実施例 10	1-2b	2-168	5.00	11900	37.4	2220
実施例 11	1-5	2-168	4.80	12000	39.3	2360
実施例 12	1-6	2-168	5.00	12300	38.6	2280
比較例 1	A	2-22	5.70	11800	32.5	2400
比較例 2	B	2-22	5.70	11700	32.2	2380
比較例 3	C	2-22	5.30	11600	34.4	1750
比較例 4	E	2-22	5.40	11700	34.0	1840
比較例 5	A	2-37	5.80	11700	31.7	2510
比較例 6	B	2-37	5.80	11800	31.9	2490
比較例 7	C	2-37	5.40	11700	34.0	1880
比較例 8	E	2-37	5.50	11600	33.1	1260
比較例 9	A	2-168	5.50	11700	33.4	2300
比較例 10	B	2-168	5.50	11900	34.0	2270
比較例 11	C	2-168	5.10	11800	36.3	1750
比較例 12	E	2-168	5.20	11800	35.6	1450

[0107] 表 2 の結果から実施例 1 ~ 1 2 は、比較例に対して、低電圧かつ高い電力効率を示すことが分かる。

[0108] 実施例 1 3 ~ 1 6

第 1 ホストと第 2 ホストを表 3 に示す化合物を使用し、表 3 に示す重量比

となるように量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより予備混合物を得た。この予備混合物を一つの蒸着源から蒸着した以外は実施例1と同様にして有機EL素子を作成した。

[0109] 比較例13～16

第1ホストと第2ホストを表3に示す化合物を使用し、表3に示す重量比となるように量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより予備混合物を得た。この予備混合物を一つの蒸着源から蒸着した以外は実施例1と同様にして有機EL素子を作成した。

[0110] 作製した有機EL素子の評価結果を表3に示す。表中で輝度、駆動電圧、発光効率₀は駆動電流20mA/cm²時の値であり、初期特性である。LT70は、初期輝度が70%まで減衰するまでにかかる時間であり、寿命特性を表す。第1ホスト、第2ホストの番号は、上記例示化合物および合成例で付した番号である。

[0111] [表3]

	第1ホスト 化合物	第2ホスト 化合物	重量比	電圧 (V)	輝度 (cd/m ²)	電力効率 (lm/W)	LT70 (h)
実施例13	1-2b	2-22	70 : 30	5.30	12200	36.1	2440
実施例14	1-2b	2-22	60 : 40	4.80	12500	40.9	1650
実施例15	1-2b	2-22	80 : 20	5.80	11600	31.4	1430
実施例16	1-2a	2-22	70 : 30	5.30	12200	36.1	2440
比較例13	A	2-22	70 : 30	5.70	11700	32.2	2390
比較例14	A	2-22	60 : 40	5.10	11900	36.6	1690
比較例15	A	2-22	80 : 20	6.10	10700	27.5	1540
比較例16	B	2-22	70 : 30	5.70	11800	32.5	2380

[0112] 表3の結果から実施例13～16は、比較例に対して、低電圧かつ高い電力効率を示すことが分かる。

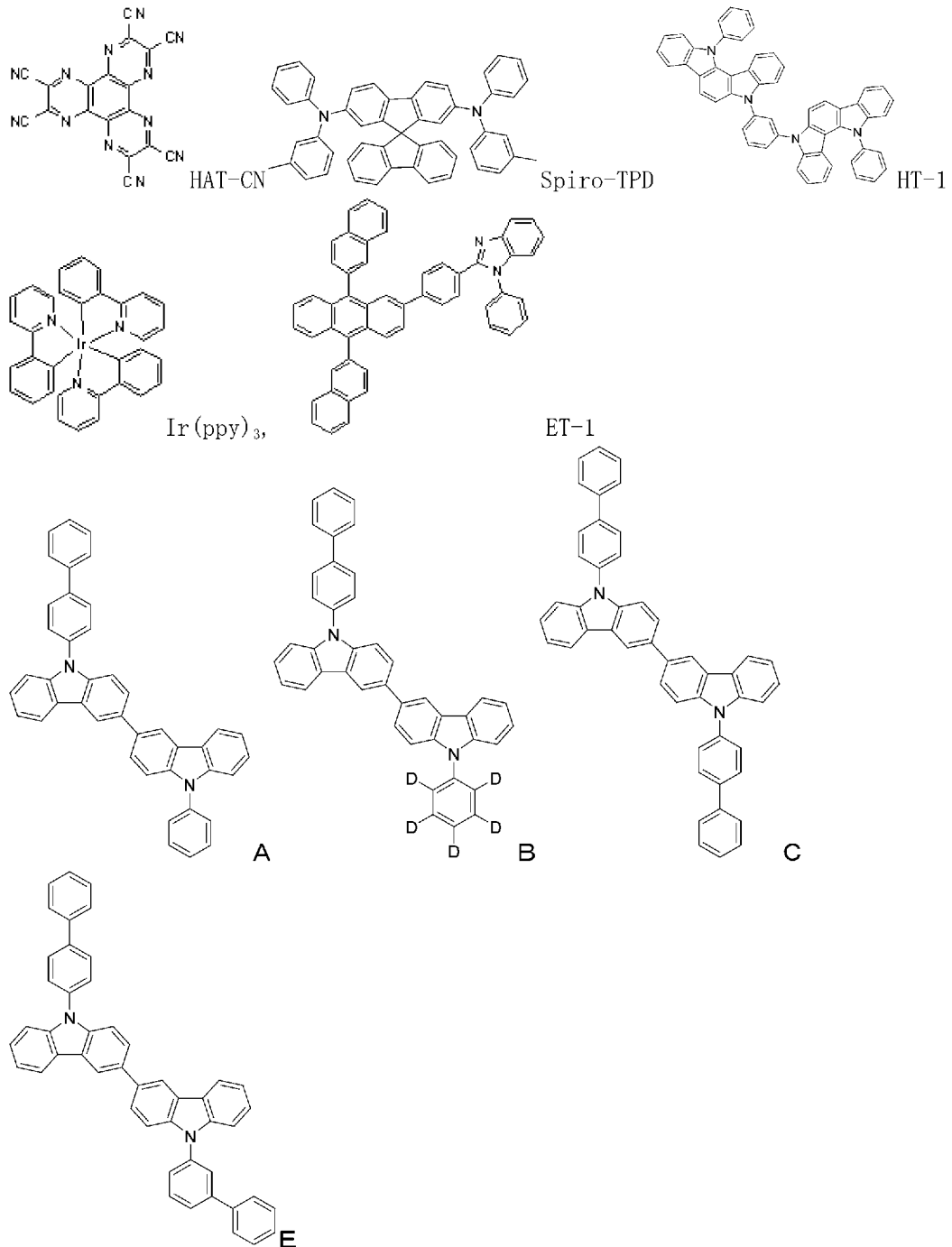
[0113] 表4に、化合物1-2a、1-2bおよび2-22の50%重量減少温度 (T₅₀) を記す。

[0114] [表4]

化合物	T ₅₀ [°C]
1-2a	281
1-2b	280
2-22	278
A	279
B	280

[0115] 実施例および比較例で使用了化合物を次に示す。

[化30]



産業上の利用可能性

[0116] 本発明の有機EL素子用材料は、上記一般式(1)で表される構造を有し、カルバゾールに結合する芳香族炭化水素基が重水素を有するので、その重水

素化率を適切に設計することにより、励起状態やイオン状態の安定性の向上や、高いレベルでの電荷注入輸送性の制御ができたと想定される。そのため、これを用いた有機EL素子は長寿命かつ低電圧であり、実用レベルの特性を示したと考えられる。

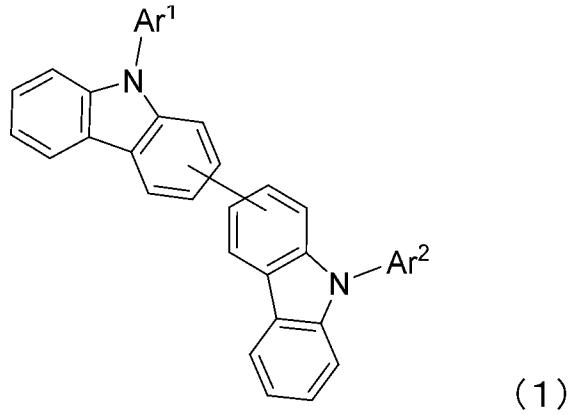
符号の説明

[0117] 1 基板、2 陽極、3 正孔注入層、4 正孔輸送層、5 発光層、6 電子輸送層、7 陰極。

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（1）で表される化合物の Ar^1 及び Ar^2 における芳香族環上の水素原子の重水素化率が40%以上である重水素化物。

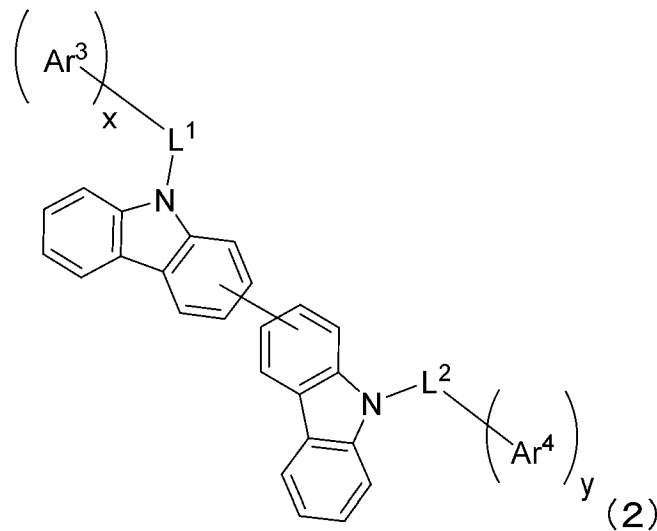
[化1]



（ここで、 Ar^1 及び Ar^2 はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、連結する場合の芳香族炭化水素基は同一であっても異なってもよい。）

[請求項2] 前記一般式（1）で表される化合物が、下記式（2）で表される化合物である請求項1に記載の重水素化物。

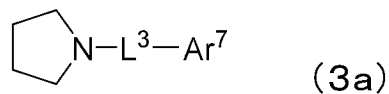
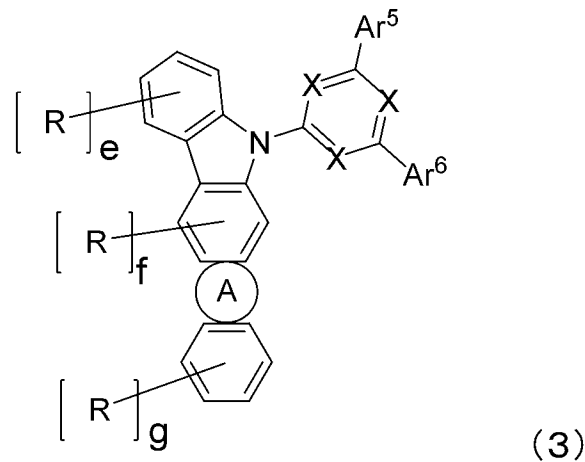
[化2]



(ここで、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～14の芳香族炭化水素基、又はこれらの芳香族環が2個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示し、連結する場合の芳香族炭化水素基は同一であっても異なってもよい。 L^1 及び L^2 は置換若しくは未置換のフェニレン基を表す。 x 及び y はそれぞれ独立に0～2の整数を表す。)

[請求項3] 請求項1記載の重水素化物と下記一般式(3)で表される化合物とを混合した混合物。

[化3]



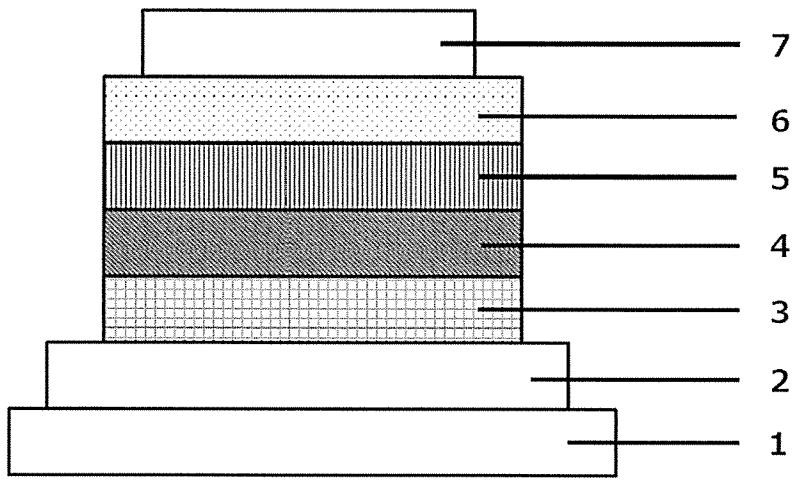
(一般式(3)において、環Aは、2つの隣接環と任意の位置で縮合する式(3a)で表される複素環である。 Ar^5 及び Ar^6 はそれぞれ独立に、水素、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。 Ar^7 は、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5

個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。L³は直接結合、又は置換もしくは未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基である。Rはそれぞれ独立に、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基である。e～gは置換数であり、e、gは0～4の整数、fは0～2の整数である。XはN、C-H又はC-Ar⁸であり、少なくとも1つはNである。Ar⁸はそれぞれ独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、連結する場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は互いに同じであっても異なってもよい。)

- [請求項4] 請求項1記載の重水素化物と、前記一般式(3)で表される化合物との50%重量減少温度の差が20℃以内であることを特徴とする請求項3に記載の混合物。
- [請求項5] 前記一般式(3)で示される化合物の割合が20wt%以上70wt%以下であることを特徴とする、請求項4に記載の混合物。
- [請求項6] 陽極と陰極との間に複数の有機層を有する有機電界発光素子であって、該有機層の少なくとも1層に、請求項1に記載の重水素化物を含むか、又は、請求項3に記載の混合物を含むことを特徴とする有機電界発光素子。
- [請求項7] 前記重水素化物又は混合物を含む有機層が、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層及び電子阻止層からなる群から選ばれる少なくとも一つの層である請求項6に記載の有機電界発光素子。
- [請求項8] 前記重水素化物又は混合物を含む有機層が発光層であり、該発光層が少なくとも1種の発光性ドーパントを含有する請求項7に記載の有機電界発光素子。

[請求項9] 陽極と陰極との間に複数の有機層を有する有機電界発光素子を製造する方法であって、有機層の一つが発光層であり、請求項3に記載の混合物を用意し、これを使用して一つの蒸着源から蒸着することで発光層を作製することを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/021714

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C07D 209/82</i> (2006.01)i; <i>C09K 11/06</i> (2006.01)i; <i>H01L 51/50</i> (2006.01)i; <i>H05B 33/10</i> (2006.01)i FI: C07D209/82 CSP; H05B33/14 B; H05B33/22 B; H05B33/22 D; H05B33/10; C09K11/06 690		
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) C07D209/82; C09K11/06; H01L51/50; H05B33/10		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2012/153725 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 15 November 2012 (2012-11-15) claims, compounds 176, 187, 188, 195, examples	1-2, 6-8
Y	claims, compounds 176, 187, 188, 195, examples	3-9
X	CN 108948008 A (AAC TECHNOLOGIES (NANJING) INC.) 07 December 2018 (2018-12-07) claims, p. 5, line 6, second compound from the right, p. 6, line 1, first compound from the left, examples	1-2, 6-8
Y	claims, p. 5, line 6, second compound from the right, p. 6, line 1, first compound from the left, examples	3-9
X	US 2020/0203631 A1 (BEIJING SUMMER SPROUT TECHNOLOGY CO., LTD.) 25 June 2020 (2020-06-25) claims, compounds H-61 to H-65, examples	1-2, 6-8
Y	claims, compounds H-61 to H-65, examples	3-9
Y	WO 2018/198844 A1 (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEM CO) 01 November 2018 (2018-11-01) claims, paragraphs [0009]-[0019], [0029]-[0032], [0039]-[0041], examples	3-9
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 02 August 2022		Date of mailing of the international search report 16 August 2022
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/021714

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2016/194604 A1 (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEM CO) 08 December 2016 (2016-12-08) claims, paragraphs [0009]-[0017], [0026]-[0028], [0034]-[0036], [0045]-[0049], examples	3-9
P, X	CN 114075204 A (SHAANXI LTMS OPTOELECTRONICS MATERIAL CO., LTD.) 22 February 2022 (2022-02-22) claims, compound 267, examples	1-9
P, X	KR 10-2022-0009351 A (LG CHEM, LTD.) 24 January 2022 (2022-01-24) claims, pp. 314-315, examples, compounds 2-9, 2-10, table 1	1-9
P, X	KR 10-2022-0013910 A (LT MATERIALS CO., LTD.) 04 February 2022 (2022-02-04) claims, compounds 1-1 to 1-19, 1-22 to 1-24, 1-49 to 1-1-67, 1-70 to 1-72, examples, table 10	1-2, 6-8
P, X	WO 2022/092625 A1 (LT MATERIALS CO., LTD.) 05 May 2022 (2022-05-05) claims, compounds 2-97 to 2-118, examples	1-2, 6-8
P, X	KR 10-2022-0010455 A (LG CHEM, LTD.) 25 January 2022 (2022-01-25) claims, p. 22, line 1, second compound from the left, examples, compound 2-8, tables 1, 2	1-9
E, X	US 2022/0177492 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 09 June 2022 (2022-06-09) claims, p. 32, lower compound, p. 33, line 1 and line 2, left compounds, p. 36, lines 2-3, paragraph [0232]	1-2, 6-8
E, X	US 2022/0181561 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 09 June 2022 (2022-06-09) claims, p. 36, upper left compound, examples	1, 6-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/021714

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2012/153725	A1	15 November 2012	US 2014/0070204 A1 claims, compounds 176, 187, 188, 195, examples EP 2709181 A1 CN 103518271 A KR 10-2014-0040133 A RU 2013155190 A BR 112013027966 A TW 201245410 A	
CN	108948008	A	07 December 2018	(Family: none)	
US	2020/0203631	A1	25 June 2020	CN 111354853 A	
WO	2018/198844	A1	01 November 2018	US 2021/0143340 A1 claims, paragraphs [0022]-[0030], [0041], [0049]-[0051], examples EP 3618132 A1 CN 110574180 A KR 10-2020-0002885 A TW 201843156 A	
WO	2016/194604	A1	08 December 2016	US 2018/0138420 A1 claims, paragraphs [0022]-[0033], [0043], [0062]-[0067], examples EP 3306693 A1 CN 107615508 A KR 10-2018-0014723 A TW 201700478 A	
CN	114075204	A	22 February 2022	(Family: none)	
KR	10-2022-0009351	A	24 January 2022	(Family: none)	
KR	10-2022-0013910	A	04 February 2022	(Family: none)	
WO	2022/092625	A1	05 May 2022	(Family: none)	
KR	10-2022-0010455	A	25 January 2022	(Family: none)	
US	2022/0177492	A1	09 June 2022	(Family: none)	
US	2022/0181561	A1	09 June 2022	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C07D 209/82(2006.01)i; C09K 11/06(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i; H05B 33/10(2006.01)i FI: C07D209/82 CSP; H05B33/14 B; H05B33/22 B; H05B33/22 D; H05B33/10; C09K11/06 690		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C07D209/82; C09K11/06; H01L51/50; H05B33/10 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922 - 1996年 日本国公開実用新案公報 1971 - 2022年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2022年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2022年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2012/153725 A1 (東レ株式会社) 15.11.2012 (2012 - 11 - 15) 請求の範囲、化合物[176], [187], [188], [195]、実施例	1-2, 6-8
Y	請求の範囲、化合物[176], [187], [188], [195]、実施例	3-9
X	CN 108948008 A (AAC TECHNOLOGIES (NANJING) INC.) 07.12.2018 (2018 - 12 - 07) 請求の範囲、第5頁第6行右から2番目の化合物、第6頁第1行左から1番目の化合物、実施例	1-2, 6-8
Y	請求の範囲、第5頁第6行右から2番目の化合物、第6頁第1行左から1番目の化合物、実施例	3-9
X	US 2020/0203631 A1 (BEIJING SUMMER SPROUT TECHNOLOGY CO., LTD.) 25.06.2020 (2020 - 06 - 25) 請求の範囲、化合物H-61からH-65、実施例	1-2, 6-8
Y	請求の範囲、化合物H-61からH-65、実施例	3-9
Y	WO 2018/198844 A1 (新日鉄住金化学株式会社) 01.11.2018 (2018 - 11 - 01) 請求の範囲、段落[0009]-[0019], [0029]-[0032], [0039]-[0041]、実施例	3-9
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、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	02.08.2022	国際調査報告の発送日 16.08.2022
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 早乙女 智美 4P 3759 電話番号 03-3581-1101 内線 3492	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2016/194604 A1 (新日鉄住金化学株式会社) 08.12.2016 (2016 - 12 - 08) 請求の範囲、段落[0009]-[0017], [0026]-[0028], [0034]-[0036], [0045]- [0049]、実施例	3-9
P, X	CN 114075204 A (SHAANXI LTMS OPTOELECTRONICS MATERIAL CO., LTD.) 22.02.2022 (2022 - 02 - 22) 請求の範囲、化合物267、実施例	1-9
P, X	KR 10-2022-0009351 A (LG CHEM, LTD.) 24.01.2022 (2022 - 01 - 24) 請求の範囲、第 3 1 4 - 3 1 5 頁、実施例、化合物2-9, 2-10、表 1	1-9
P, X	KR 10-2022-0013910 A (LT MATERIALS CO., LTD.) 04.02.2022 (2022 - 02 - 04) 請求の範囲、化合物1-1から1-19, 1-22から1-24, 1-49から1-1-67, 1-70から1- 72、実施例、表 1 0	1-2, 6-8
P, X	WO 2022/092625 A1 (LT MATERIALS CO., LTD.) 05.05.2022 (2022 - 05 - 05) 請求の範囲、化合物2-97から 2-118、実施例	1-2, 6-8
P, X	KR 10-2022-0010455 A (LG CHEM, LTD.) 25.01.2022 (2022 - 01 - 25) 請求の範囲、第 2 2 頁第 1 行左から 2 番目の化合物、実施例、化合物2-8、表 1, 2	1-9
E, X	US 2022/0177492 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 09.06.2022 (2022 - 06 - 09) 請求の範囲、第 3 2 頁下の化合物、第 3 3 頁第 1 行、第 2 行左の化合物、第 3 6 頁第 2 - 3 行、段落[0232]	1-2, 6-8
E, X	US 2022/0181561 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 09.06.2022 (2022 - 06 - 09) 請求の範囲、第 3 6 頁左上化合物、実施例	1, 6-8

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/021714

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2012/153725 A1	15.11.2012	US 2014/0070204 A1 請求の範囲、化合物[176], [187], [188], [195]、実施 例 EP 2709181 A1 CN 103518271 A KR 10-2014-0040133 A RU 2013155190 A BR 112013027966 A TW 201245410 A	
CN 108948008 A	07.12.2018	(ファミリーなし)	
US 2020/0203631 A1	25.06.2020	CN 111354853 A	
WO 2018/198844 A1	01.11.2018	US 2021/0143340 A1 請求の範囲、段落[0022]- [0030], [0041], [0049]- [0051]、実施例 EP 3618132 A1 CN 110574180 A KR 10-2020-0002885 A TW 201843156 A	
WO 2016/194604 A1	08.12.2016	US 2018/0138420 A1 請求の範囲、段落[0022]- [0033], [0043], [0062]- [0067]、実施例 EP 3306693 A1 CN 107615508 A KR 10-2018-0014723 A TW 201700478 A	
CN 114075204 A	22.02.2022	(ファミリーなし)	
KR 10-2022-0009351 A	24.01.2022	(ファミリーなし)	
KR 10-2022-0013910 A	04.02.2022	(ファミリーなし)	
WO 2022/092625 A1	05.05.2022	(ファミリーなし)	
KR 10-2022-0010455 A	25.01.2022	(ファミリーなし)	
US 2022/0177492 A1	09.06.2022	(ファミリーなし)	
US 2022/0181561 A1	09.06.2022	(ファミリーなし)	