

(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10月13日(13.10.2022)



(10) 国際公開番号
WO 2022/215580 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
C07D 487/16 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/015058

(22) 国際出願日: 2022年3月28日(28.03.2022)

(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 2021-066013 2021年4月8日(08.04.2021) 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: 井上 棟智 (INOUE Munetomo); 〒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). 木寺 紗友里 (KITERA Sayuri); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番

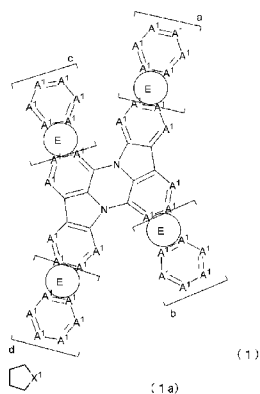
1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 松崎 洋市 (MATSUZAKI Yoichi); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP). 清野 望都 (SEINO Moto); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP). 城野 真帆 (JONO Maho); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP).

(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).

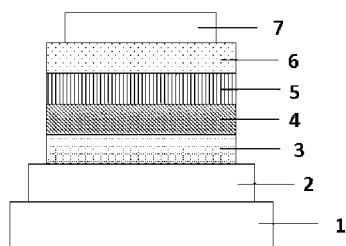
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS,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

(54) Title: LIGHT-EMITTING MATERIAL, AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: 発光材料、及び有機電界発光素子



[図1]



(57) Abstract: The present invention provides a light-emitting material, and an organic electroluminescent element using said light-emitting material and having high light-emission efficiency and a long lifespan. These are a light-emitting material represented by general formula (1), and an organic electroluminescent element containing this light-emitting material in a light-emitting layer. (Here, A¹ is CR¹, C or N, ring E is a heterocyclic ring represented by formula (1a), and X¹ is a group represented by O, S, Se, or N-L¹-(Ar¹)_e, etc. a, b, c, and d represent 0 or 1, but a + b + c + d = 1 will never be established when R¹ or L¹ does not form a condensed ring with an adjacent aromatic ring.)

(57) 要約: 発光材料と、これを用いた高発光効率、長寿命な有機EL素子を提供する。下記一般式(1)等で表される発光材料と、この発光材料を発光層に含む有機EL素子である。(ここで、A¹はCR¹、C又はNであり、環Eは式(1a)で表される複素環であり、X¹はO、S、Se、又はN-L¹-(Ar¹)_e等で表される基である。a、b、c、及びdは、0又は1を表すが、R¹又はL¹が隣接する芳香族環と縮合環を形成しないとき、a + b + c + d = 1であることはない。)



WO 2022/215580 A1

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))

明 細 書

発明の名称：発光材料、及び有機電界発光素子

技術分野

- [0001] 本発明は、発光材料と、それを発光層に用いた有機電界発光素子（有機EL素子という）に関するものである。
- [0002] 有機EL素子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。
- [0003] 近年では、燐光型有機EL素子の長寿命化技術が進展し、携帯電話等のディスプレイへ応用されつつある。しかしながら、青色の有機EL素子に関しては、実用的な燐光発光型の有機EL素子は開発されておらず、高効率であり、且つ長寿命な青色有機EL素子の開発が求められている。
- [0004] さらに最近では、遅延蛍光を利用した高効率の遅延蛍光型の有機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1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。
- [0005] 一方で特許文献2では、熱活性化遅延蛍光（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。具体的に、特許文献2では、インドロカルバゾール化合物からなる熱活性化遅延蛍光材料を開示している。

[0006] また、特許文献3、特許文献4、及び特許文献5では、インドロフェナジン骨格を含む多環芳香族化合物からなる材料とそれを用いた有機EL素子が開示されている。しかしながら、インドロフェナジン骨格を含む多環芳香族化合物からなる材料を発光材料として使用した有機EL素子は開示されていない。

[0007] また、非特許文献1では、インドロフェナジン骨格の部分骨格であるカルバゾール骨格を含む多環芳香族化合物からなる材料とそれを発光材料として用いた青色の有機EL素子が開示されている。しかしながら、実用に耐えうる発光効率を有していない。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：WO2010/134350号公報
特許文献2：WO2011/070963号公報
特許文献3：特開2012-234873号公報
特許文献4：WO2014/008967号公報
特許文献5：CN特許公開111892607号

非特許文献

- [0009] 非特許文献1：Journal of Material Chemistry C, 2017, Volume5, Issue 3, 709

発明の概要

発明が解決しようとする課題

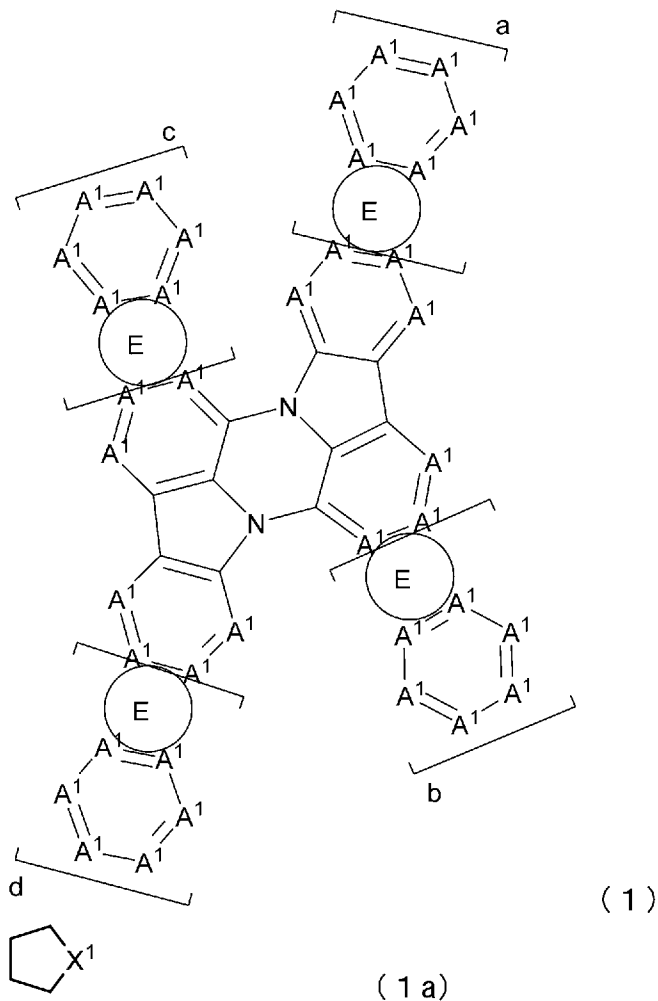
- [0010] 有機EL素子をフラットパネルディスプレイ等の表示素子や光源として応

用するためには、素子の発光効率を改善すると同時に駆動時の安定性を十分に確保する必要がある。本発明は、このような現状を鑑みてなされたものであり、高効率で発光し、且つ高い駆動安定性を有して実用上有用な有機EL素子を得ることができる発光材料、及びこれを用いた有機EL素子を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] すなわち、本発明は、下記一般式(1)又は(1-1)で表される発光材料である。

[化1]



[0012] ここで、A¹はそれぞれ独立にC^{R¹}、C又はNである。但し、一般式(1)でA¹を含んだ一つの六員環中に存在するNの数は2以下である。R¹は、

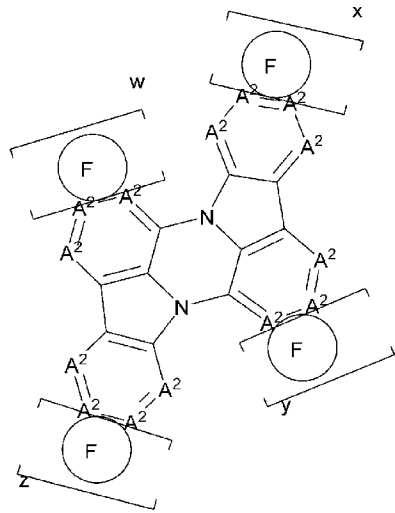
それぞれ独立に、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数 12～44 のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数 12～44 のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数 12～44 のジヘテロアリールアミノ基、炭素数 1～10 の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 6～30 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3～30 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2～9 個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基である。R¹が置換若しくは未置換のジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であるとき、R¹は、式(1)中でR¹が結合するA¹を有する芳香族環と直接、又は—O—、—S—、—Si(R^a)₂—、—C(R^a)₂—、又は—NR^a—を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。R^aは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数 1～10 の脂肪族炭化水素基、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 3～30 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2～9 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。

環Eはそれぞれ独立して、式(1a)で表される複素環であり、環Eは隣接する環と任意の位置で縮合する。X¹はそれぞれ独立して、Si(R^d)₂、C(R^d)₂、O、S、Se、又はN—L¹—(Ar¹)₂で表される基である。R^dは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数 1～10 の脂肪族炭化水素基、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 3～30 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2～9 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。L¹はそれぞれ独立して、置換若しくは未置換の炭素数 6～30 の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数 3～30 の芳香族複素環基であり、Ar¹はそれぞれ独立して、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 3～30 の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が 2～9 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。L¹は、L

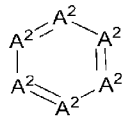
R^1 が結合する複素環と隣接する芳香族環と直接、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-Si(R^c)_2-$ 、 $-C(R^c)_2-$ 、又は $-NR^c-$ を介して1つの結合を形成し、縮合環を形成してもよい。 R^c は、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基である。 a 、 b 、 c 、及び d はそれぞれ独立して、0又は1を表し、 e はそれぞれ独立して、0～5の整数を表す。但し、 R^1 又は L^1 が、 R^1 又は L^1 が結合する芳香族環やその隣接する芳香族環と縮合環を形成しないとき、 $a + b + c + d = 1$ であることはない。

[0013] 少なくとも一つの R^1 又は L^1 が、式(1)中で R^1 が結合する A^1 を有する芳香族若しくは L^1 が隣接する芳香族環と直接、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-Si(R^a)_2-$ 、 $-C(R^a)_2-$ 、又は $-NR^a-$ を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成することがよい。また、少なくとも一つの L^1 が隣接する芳香族環と直接結合し縮合環を形成することもよい。少なくとも一つの R^1 が置換若しくは未置換のカルバゾリル基であり、該カルバゾリル基が結合する芳香族環と直接、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-Si(R^a)_2-$ 、 $-C(R^a)_2-$ 、又は $-NR^a-$ を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。

[化2]



(1-1)



(1-1a)

A²はそれぞれ独立にCR²、C又はNである。但し、一般式(1-1)でA²を含んだ一つの六員環中に存在するNの数は2以下である。R²は、それぞれ独立に、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12~44のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~44のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~44のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、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3~30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~9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。R²が置換若しくは未置換のジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であるとき、R²は、式(1-1)中でR²が結合するA²を有する芳香族環と直接、又は-O-、-S-、-Si(R^b)₂-、-C(R^b)₂-、又は-NR^b-を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。R^bは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、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~

30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。環Fはそれぞれ独立して、式(1-1a)で表される芳香族環であり、環Fは隣接する環と任意の位置で縮合する。

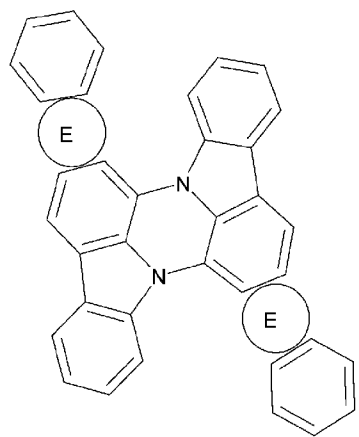
x、y、w、及びzはそれぞれ独立して、0又は1を表す。

[0014] 上記一般式(1)において、 $a + b + c + d \geq 2$ であることがよい。また、b及びcが1であること、又はa及びdが1であることもよい。

[0015] 上記一般式(1-1)において、 $x + y + z + w \geq 2$ であることがよい。また、x及びzが1であること、又はy及びwが1であることもよい。

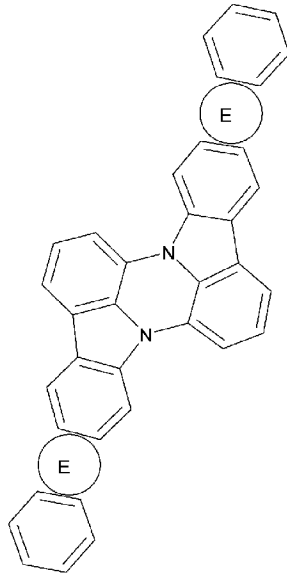
[0016] 上記一般式(1)で表される発光材料は、下記一般式(2)又は一般式(3)で表される発光材料であることができる。ここで、環Eは一般式(1)と同義である。

[化3]



(2)

[化4]

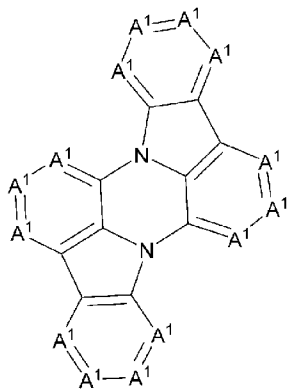


(3)

[0017] 上記環Eのそれぞれが独立して式(1a)中の X^1 が $N-L^1-(Ar^1)$ で表される基であることがよい。

[0018] 上記一般式(1)、又は一般式(1-1)で表される発光材料は、下記一般式(4)で表される発光材料であることができる。

[化5]



(4)

ここで、 A^1 はそれぞれ独立に CR^1 、又はNである。 R^1 は一般式(1)の R^1 と同意である。但し、一般式(4)で A^1 を含んだ一つの六員環中に存在するNの数は2以下である。

[0019] 上記一般式(1)又は一般式(1-1)で表される発光材料は、励起一重項エネルギー(S_1)と励起三重項エネルギー(T_1)の差(ΔE_{ST})が

0.40 eV以下であることが望ましい。

[0020] また本発明は、対向する陽極と陰極の間に1つ以上の発光層を含む有機電界発光素子において、少なくとも1つの発光層が、上記の発光材料を含有することを特徴とする有機電界発光素子である。

発明の効果

[0021] 本発明の発光材料によれば、高効率で発光し、且つ高い駆動安定性を有して実用上有用な有機EL素子を得ることができる。また本発明の発光材料は、青色、水色又は緑色のスペクトル領域に極大波長を示す。この発光材料は、特に410nm～550nm、好ましくは430nm～495nmにおいて極大波長を示す。本発明の発光材料のフォトルミネッセンス量子収率は、40%以上となることができる。本発明の発光材料の使用が、より高効率なデバイスをもたらす。またこれを含む発光層を有する有機EL素子は、高い発光効率と、色とを有する。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]図1は、本発明で用いられる有機EL素子の構造例を示す断面模式図である。

発明を実施するための形態

[0023] 本発明の発光材料は、前記一般式(1)又は一般式(1-1)で表される。好ましくは、前記一般式(2)、一般式(3)、又は一般式(4)で表される発光材料である。本発明の有機EL素子は、対向する陽極と陰極の間に、1つ以上の発光層を有し、発光層の少なくとも1層が、前記一般式(1)又は一般式(1-1)で表される化合物を発光材料として含有する。この有機EL素子は、対向する陽極と陰極の間に複数の層を有するが、複数の層の少なくとも1層は発光層であり、発光層には必要によりホスト材料を含有することができる。一般式(1)について、以下で説明する。一般式(1)で表される化合物は、典型的にはフェナジン環に複数のインドール環が縮合した構造又はそれに類似する構造を有する。

[0024] 一般式(1)において、A¹はCR¹、N、又は炭素原子である。但し、一

般式(1)でA¹を含んだ一つの六員環中に存在するA¹中のNの数は2以下である。このA¹を含む六員環は、隣接する環Eと縮合することがあるが、その場合は、A¹の2つは炭素原子であり、この炭素原子は環Eとで共有される。

[0025] R¹は、それぞれ独立に、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12~44のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~44のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~44のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、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3~30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~9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。好ましくは、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12~24のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~24のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~24のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1~8の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~20の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~20の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~6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。より好ましくは、水素、置換若しくは未置換の炭素数12~18のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12~18のアリールヘテロアリールアミノ基、炭素数1~4の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~12の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~4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。

[0026] R¹が未置換のジアリールアミノ基、未置換のアリールヘテロアリールアミノ基、未置換のジヘテロアリールアミノ基、又は脂肪族炭化水素基を表す場合の具体例としては、ジフェニルアミノ、ジビフェニルアミノ、フェニルビフェニルアミノ、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、ジベンゾフラニルフェニルアミノ

、ジベンゾフラニルビフェニルアミノ、ビスジベンゾフラニルアミノ、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、ノニル、デシルが挙げられる。好ましくは、ジフェニルアミノ、ジビフェニルアミノ、フェニルビフェニルアミノ、ナフチルフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、ジベンゾフラニルフェニルアミノ、ジベンゾフラニルビフェニルアミノ、ビスジベンゾフラニルアミノ、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、が挙げられる。より好ましくは、ジフェニルアミノ、フェニルビフェニルアミノ、ジベンゾフラニルフェニルアミノ、ジベンゾフラニルビフェニルアミノ、ブチルが挙げられる。脂肪族炭化水素基を表す場合は、直鎖状、分岐状、環状であってもよい。

[0027] R¹が未置換の芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、及び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、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、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、インドロカルバゾール、又はこれらが2~9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、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、ベンゾ[a]アントラセン、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

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、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、又はこれらが2～6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。より好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アズレン、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、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、又はこれらが2～4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。

[0028] 本明細書において、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。ジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、及びジヘテロアリールアミノ基に含まれるアリール基やヘテロアリール基についても同様である。

[0029] 置換基を有する場合の置換基は、シアノ基、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、炭素数12～30のジアリールアミノ基、炭素数12～30のアリールヘテロアリールアミノ基、炭素数12～30のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～10のアルキルチオ基、炭素数6～18のアリールチオ基である

。ここで、置換基が炭素数1～10の脂肪族炭化水素基である場合、直鎖状、分岐状、環状であってもよい。なお、上記ジアリアルアミノ基、アリアルヘテロアリアルアミノ基、ジヘテロアリアルアミノ基、アリアルオキシ基、及びアリアルチオ基が、前記芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、連結芳香族基の芳香族環、又はジアリアルアミノ基、アリアルヘテロアリアルアミノ基、及びジヘテロアリアルアミノ基に含まれるアリアル基やヘテロアリアル基に置換する場合、窒素と炭素、酸素と炭素、又は硫黄と炭素が単結合で結合する。置換基の数は0～5、好ましくは0～2がよい。芳香族炭化水素基及び芳香族複素環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。

[0030] 上記置換基の具体例としては、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、ノニル、デシル、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、ジベンゾフラニルフェニルアミノ、ジベンゾフラニルビフェニルアミノ、ビスジベンゾフラニルアミノ、メトキシ、エトキシ、フェノール、ジフェニルオキシ、メチルチオ、エチルチオ、チオフェノール、又はジフェニルチオが挙げられる。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、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、ジベンゾフラニルフェニルアミノ、ジベンゾフラニルビフェニルアミノ、ビスジベンゾフラニルアミノ、フェノール、又はチオフェノールが挙げられる。

[0031] 本明細書において、連結芳香族基は、芳香族基の芳香族環の炭素同士が単結合で結合して連結した芳香族基をいう。芳香族基が2以上連結した芳香族基であり、これらは直鎖状であっても、分岐してもよい。芳香族基は芳香族炭化水素基であっても、芳香族複素環基であってもよく、複数の芳香族基は同一であっても、異なってもよい。連結芳香族基に該当する芳香族基は、置換芳香族基とは異なる。

- [0032] 本明細書において、水素は重水素であってもよいと理解される。すなわち、一般式(1)～(4)、(1-1)等において、カルバゾールのような骨格、 R^1 や Ar^1 のような置換基が有するHの一部又は全部は重水素であってもよい。
- [0033] 環Eはそれぞれ独立して、式(1a)で表される複素環であり、環Eは隣接する環と任意の位置で縮合する。
- [0034] X^1 はそれぞれ独立して、 $Si(R^d)_2$ 、 $C(R^d)_2$ 、O、S、Se、又は $N-L^1-(Ar^1)_n$ で表される2価の基であり、O、S、又は $N-L^1-(Ar^1)_n$ であることが好ましく、 $N-L^1-(Ar^1)_n$ であることがより好ましい。
- [0035] R^d は、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。好ましくは、水素、重水素、炭素数1～8の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～20の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～20の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～6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。より好ましくは、水素、炭素数1～4の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～10の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数2～12の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～4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。
- [0036] R^d が炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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場合の具体例は R^1 の場合と同様である。
- [0037] L^1 はそれぞれ独立して、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置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基を表す。好ましくは、置換若しくは未置換の炭素数6～20の芳香族炭化水素基、

又は置換若しくは未置換の炭素数 2 ~ 20 の芳香族複素環基を表す。より好ましくは、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数 2 ~ 12 の芳香族複素環基を表す。

[0038] 未置換の L¹ 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、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、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、又はカルバゾールから 1 + e 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、ベンゾ [a] アントラセン、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、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、又はカルバゾールから 1 + e 個の水素を取って生じる基が挙げられる。より好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アズレン、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、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、又はカルバゾールから $1 + e$ 個の水素を取って生じる基が挙げられる。

[0039] $A r^1$ 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3～30の芳香族複素環基、又は該芳香族炭化水素基及び該芳香族複素環基から選ばれる芳香族基の芳香族環が2～9個連結して構成される置換若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6～20の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～20の芳香族複素環基、又は該芳香族炭化水素基及び該芳香族複素環基から選ばれる芳香族基の芳香族環が2～6個連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。より好ましくは、置換若しくは未置換の炭素数6～10の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～12の芳香族複素環基、又は該芳香族炭化水素基及び該芳香族複素環基から選ばれる芳香族基の芳香族環が2～4個連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。上記芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び連結芳香族基を芳香族基類ともいう。

[0040] 未置換の芳香族基類の具体例としては、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、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、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、又はこれらが2~9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、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、ベンゾ[a]アントラセン、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、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、又はこれらが2~6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。より好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アズレン、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、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

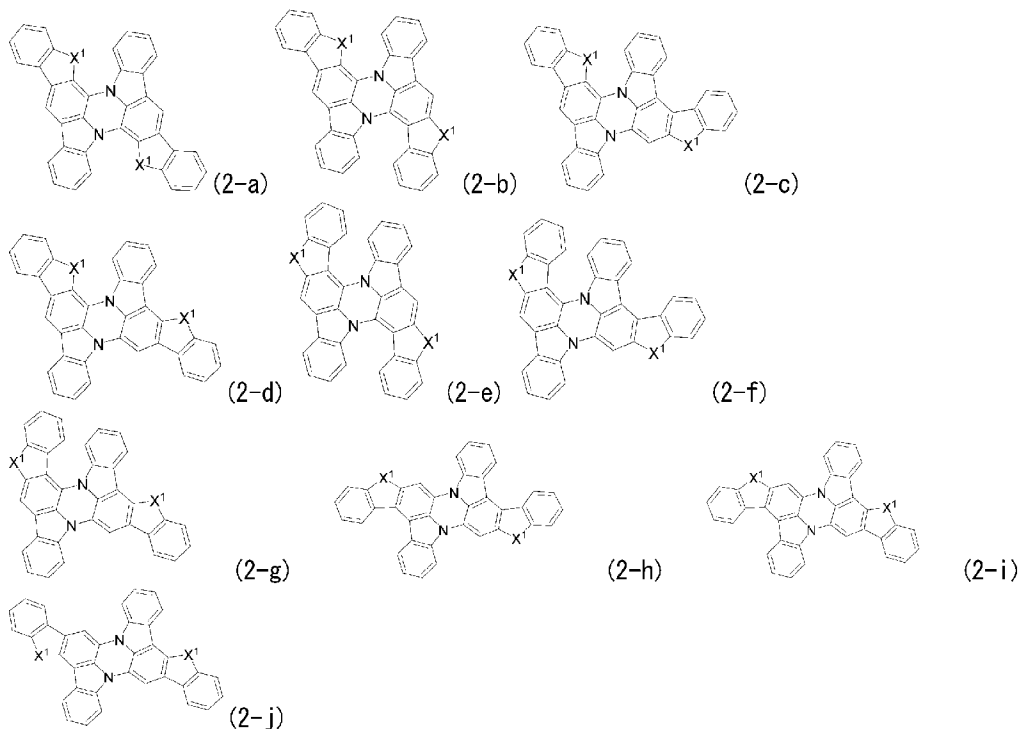
エン、カルバゾール、又はこれらが2～4個連結して構成される化合物から1個の水素を取って生じる基が挙げられる。

[0041] a、b、c、及びdはそれぞれ独立して、0又は1を表し、eはそれぞれ独立して、0～5の整数を表す。但し、R¹又はL¹が隣接する芳香族環と縮合環を形成しないとき、 $a + b + c + d = 1$ であることはない。eが3以下であることが好ましい。また、b及びcが1であること、又はa及びdが1であることが好ましい。

[0042] 前記一般式(1)の好ましい態様として、前記一般式(2)、一般式(3)及び一般式(4)がある。一般式(1)～(4)において、共通する記号は同じ意味を有する。一般式(2)は、一般式(1)において、b及びcが共に1で、aとdが0である構造に対応する。環Eは前記一般式(1)と同義である。

[0043] 前記一般式(2)において、環Eは隣接する環と任意の位置で縮合するが、この場合、縮合位置によって下記式(2-a)～式(2-j)であることができる。

[化6]

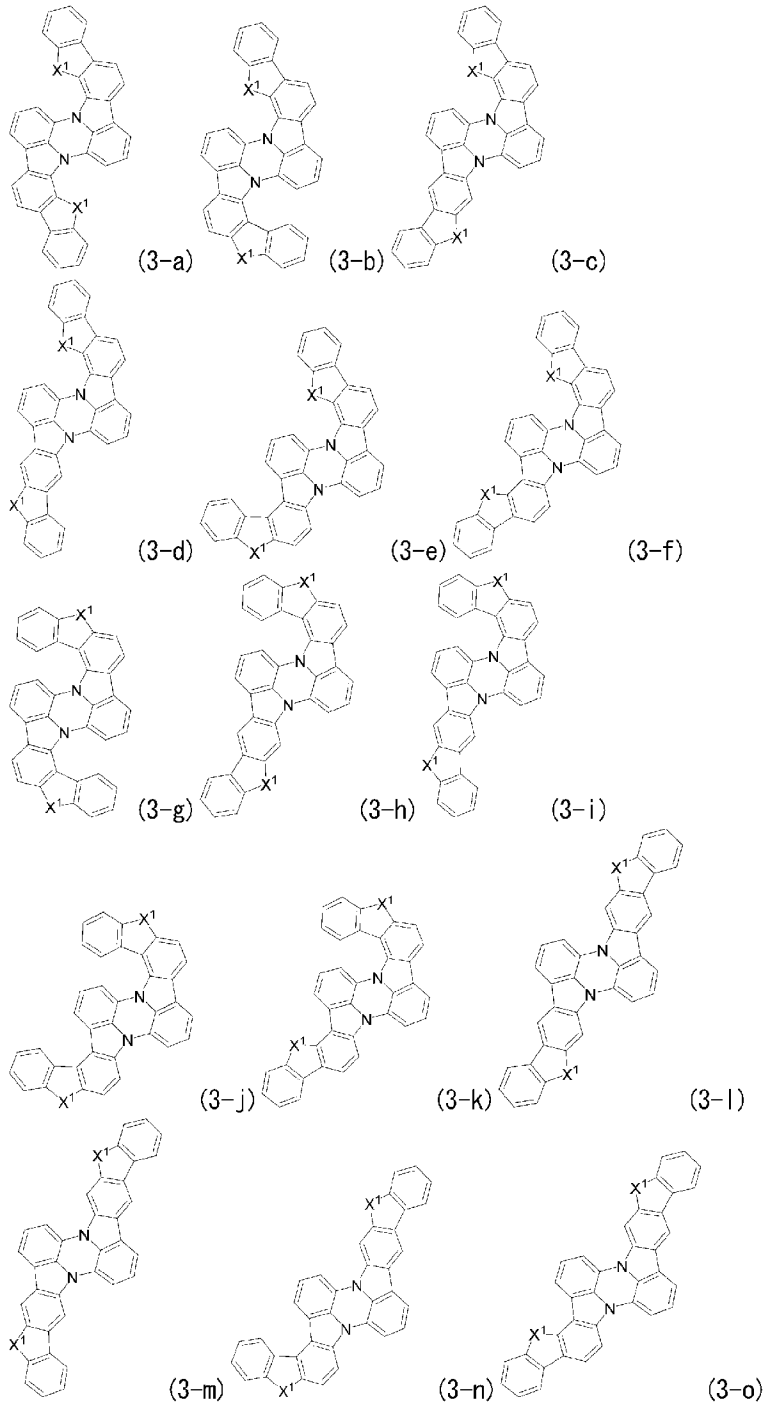


ここで、 X^1 は前記一般式(1)と同義である。好ましくは、式(2-a)、(2-e)、(2-h)、又は(2-j)である。

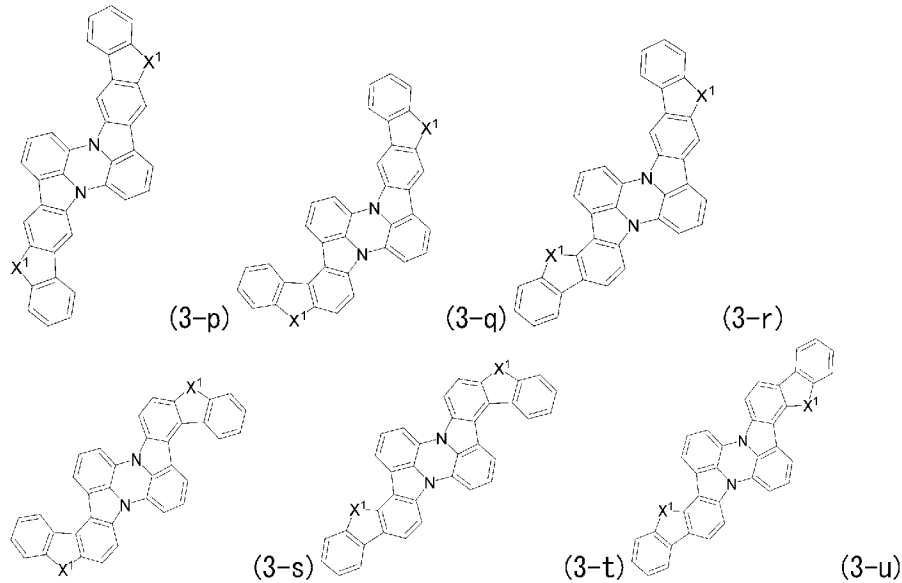
[0044] 前記一般式(3)は、一般式(1)において、 a 及び d が共に1で、 b 及び c が0である構造に対応する。環Eは前記一般式(1)と同義である。

[0045] 前記一般式(3)において、環Eが隣接する環と任意の位置で縮合する場合、下記式(3-a)～式(3-u)のような構造となることができる。

[化7]



[化8]



ここで、X¹は前記一般式(1)と同義である。好ましくは、式(3-a)、(3-g)、(3-l)、(3-p)、(3-s)、及び(3-u)である。

[0046] 前記一般式(4)は、一般式(1)において、a、b、c及びdが共に0である構造に対応する。一般式(4)において、A¹はそれぞれ独立にCR¹、又はNである。R¹は前記一般式(1)と同義である。但し、一般式(4)でA¹を含んだ一つの六員環中に存在するA¹中のNの数は2以下である。

[0047] 前記一般式(1)～(4)において、R¹が置換若しくは未置換のジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であるとき、R¹は、式(1)中でR¹が結合するA¹を有する芳香族環と直接、又は—O—、—S—、—Si(R^a)₂—、—C(R^a)₂—、又は—NR^a—を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。

R^aは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。好ましくは、水

素、重水素、炭素数 1～8 の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 6～20 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3～20 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2～6 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。より好ましくは、水素、炭素数 1～4 の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 6～10 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3～12 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2～4 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。

[0048] R^a が炭素数 1～10 の脂肪族炭化水素基、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 3～30 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2～9 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場合の具体例は R^1 の場合と同様である。

[0049] 前記一般式 (1)～(4) において、 R^1 が置換若しくは未置換のジアリアルアミノ基、アリアルヘテロアリアルアミノ基、ジヘテロアリアルアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であって、 R^1 が結合する芳香族環と直接、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-Si(R^a)_2-$ 、 $-C(R^a)_2-$ 、又は $-NR^a-$ を介して 1 つの結合を形成し、縮合環を形成する場合、下記例示化合物 (D226)～(D236) のような構造となることができる。

[0050] 前記一般式 (1)～(4) において、 R^1 が置換若しくは未置換のジアリアルアミノ基、アリアルヘテロアリアルアミノ基、ジヘテロアリアルアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であって、 R^1 が結合する芳香族環と直接、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-Si(R^a)_2-$ 、 $-C(R^a)_2-$ 、又は $-NR^a-$ を介して 2 つの結合を形成し、縮合環を形成する場合、下記例示化合物 (D237)～(D240) のような構造となることができる。

[0051] 前記一般式 (1)～(3) において、 L^1 が結合する複素環と隣接する芳香族環と直接、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-Si(R^c)_2-$ 、 $-C(R^c)_2-$ 、又は $-NR^c-$ を介して 1 つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。

R^oは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。好ましくは、水素、重水素、炭素数1～8の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～20の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～20の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～6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。より好ましくは、水素、炭素数1～4の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～10の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～12の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～4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。

[0052] R^oが炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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場合の具体例はR¹の場合と同様である。

[0053] 前記一般式(1)～(3)において、L¹が結合する複素環と隣接する芳香族環と直接、又は—O—、—S—、—Si(R^o)₂—、—C(R^o)₂—、又は—NR^o—を介して1つの結合を形成し、縮合環を形成する場合、下記例示化合物(D175)～(D224)及び(D246)～(D254)のような構造となることができる。

[0054] 一般式(1-1)について、以下で説明する。一般式(1-1)で表される化合物は、典型的にはフェナジン環に複数のベンゼン環が縮合した構造又はそれに類似する構造を有する。好ましい態様の1つとして一般式(4)で表される。

[0055] 一般式(1-1)において、A²はCR²、N、又は炭素原子である。但し、一般式(1-1)でA²を含んだ一つの六員環中に存在するA²中のNの数は2以下である。このA²を含む六員環は、隣接する環Fと縮合することがあるが、その場合は、A²の2つは炭素原子であり、この炭素原子は環Fとで共有

される。

[0056] R^2 は、それぞれ独立に、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12～44のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～44のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～44のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。好ましくは、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12～24のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～24のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～24のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1～8の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～20の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～20の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～6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。より好ましくは、水素、置換若しくは未置換の炭素数12～18のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～18のアリールヘテロアリールアミノ基、炭素数1～4の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～10の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～12の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～4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。

[0057] 未置換の R^2 の具体例としては R^1 の場合と同様である。

[0058] 前記一般式(1-1)において、 R^2 が置換若しくは未置換のジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であって、 R^2 は、式(1-1)中で R^2 が結合する A^2 を有する芳香族環と直接、又は-O-、-S-、-S i (R^b)₂-、-C (R^b)₂-、又は-NR^b-を介して1つの結合を形成し、縮合環を形成する場合、下記例示化合物(D164)、(D165)、(D167)、(D168)、(D170)、(D171)、

(D 1 7 2)、(D 1 7 3)、及び(D 1 7 4)のような構造となることができる。

[0059] 前記一般式(1-1)において、 R^2 が置換若しくは未置換のジアリアルアミノ基、アリアルヘテロアリアルアミノ基、ジヘテロアリアルアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であって、 R^2 は、式(1-1)中で R^2 が結合する A^2 を有する芳香族環と直接、又は-O-、-S-、-Si(R^b)₂-、-C(R^b)₂-、又は-NR^b-を介して2つの結合を形成し、縮合環を形成する場合、下記例示化合物(D 1 6 9)のような構造となることができる。

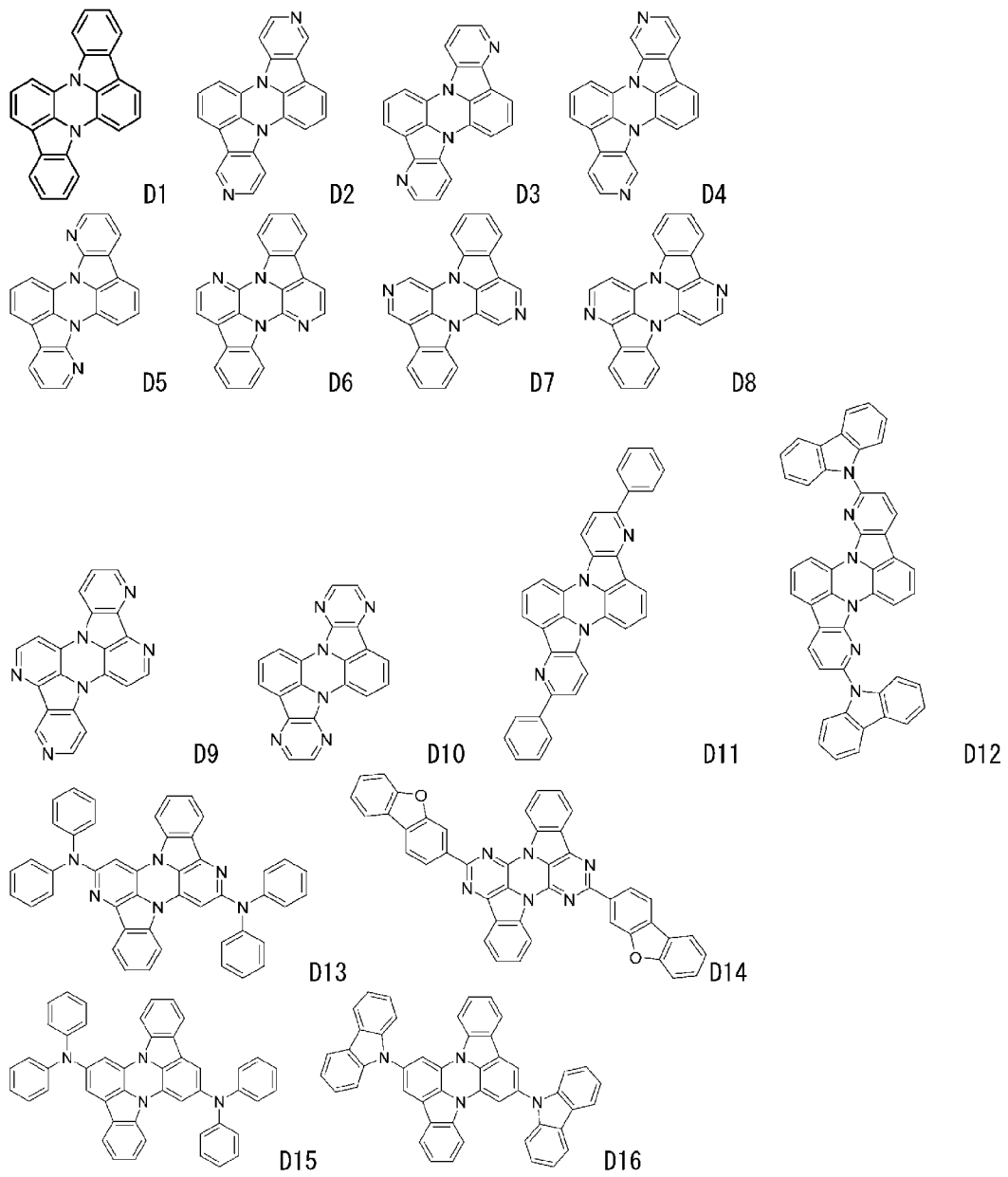
[0060] R^b は、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~9個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基である。好ましくは、水素、重水素、炭素数1~8の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~20の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~20の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~6個連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基である。より好ましくは、水素、炭素数1~4の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数2~12の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~4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。

[0061] R^b が炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、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3~30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2~9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場合の具体例は R^1 の場合と同様である。

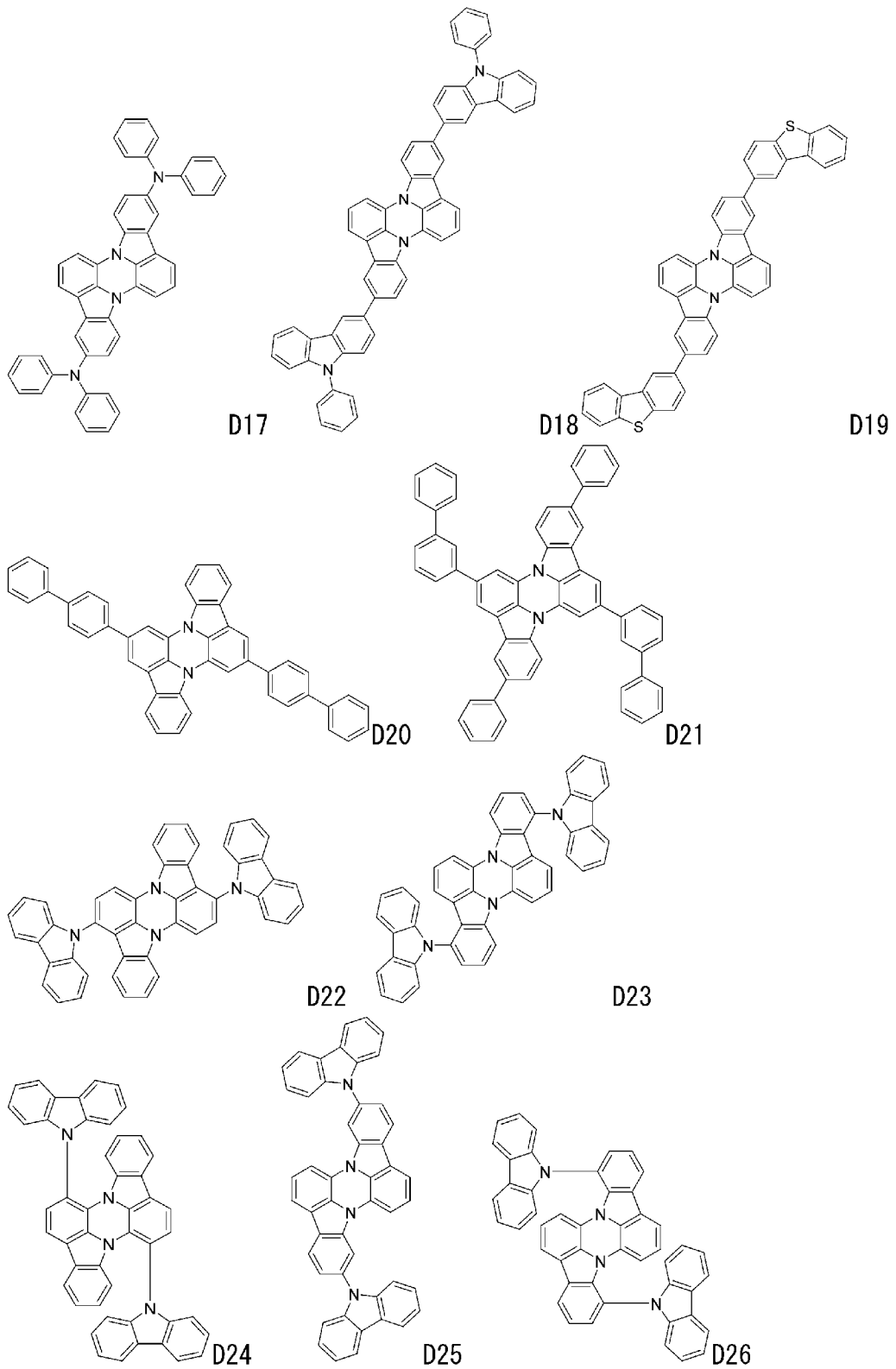
[0062] 一般式(1)~(4)及び(1-1)で表される発光材料の具体的な例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

[0063]

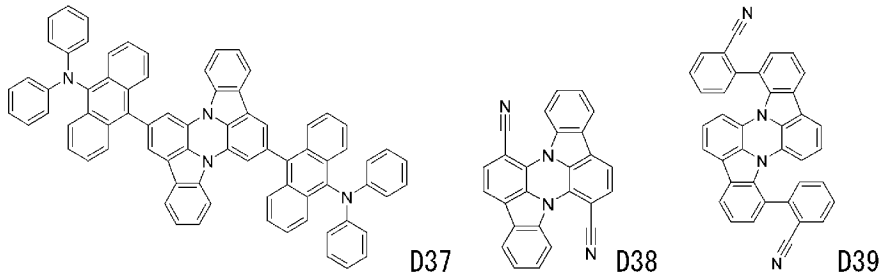
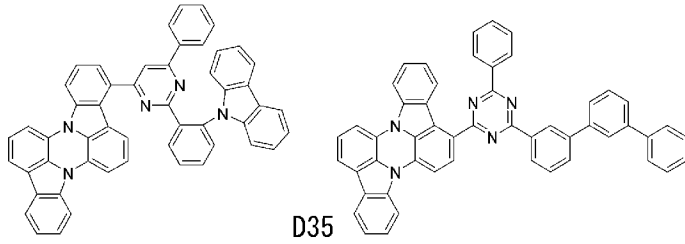
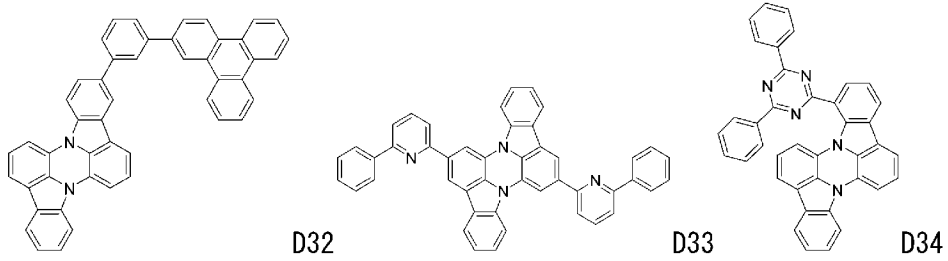
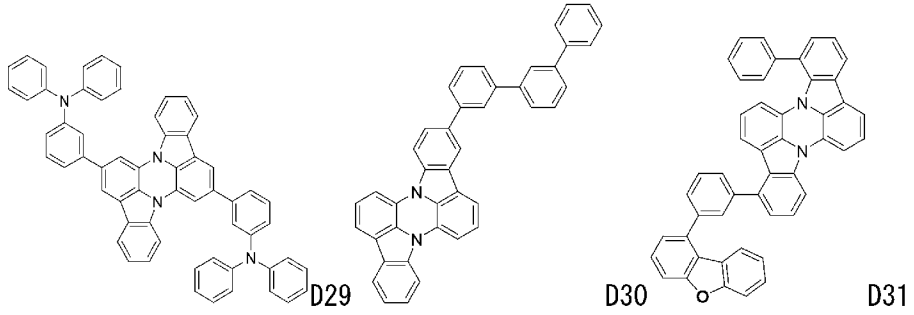
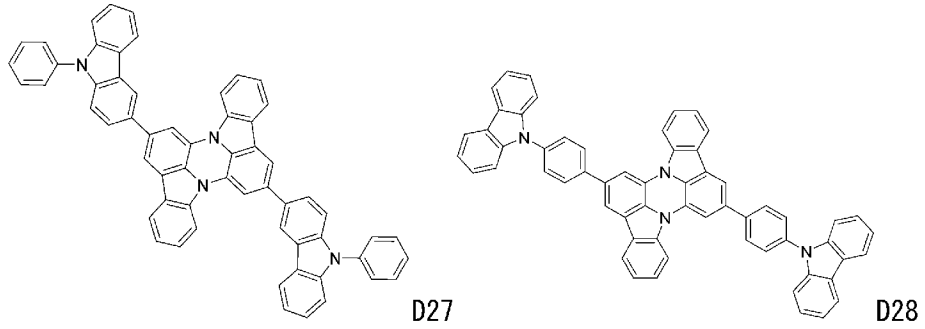
[化9]



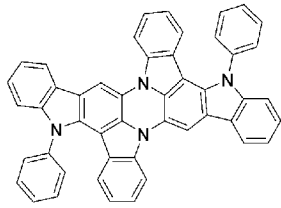
[化10]



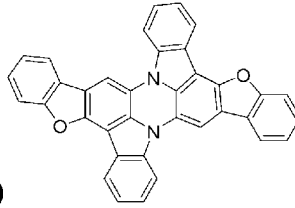
[化11]



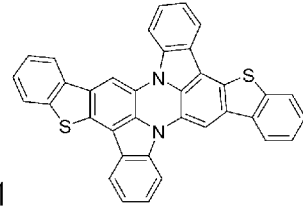
[化12]



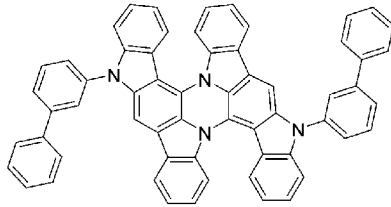
D40



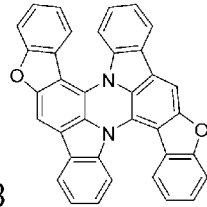
D41



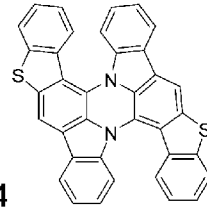
D42



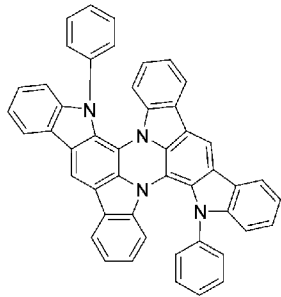
D43



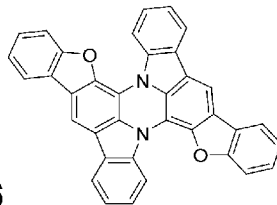
D44



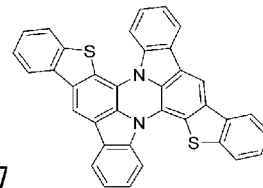
D45



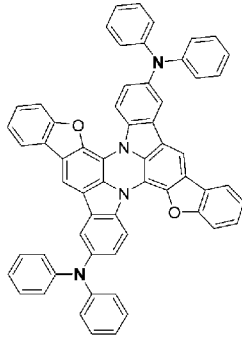
D46



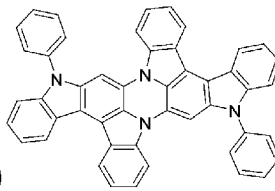
D47



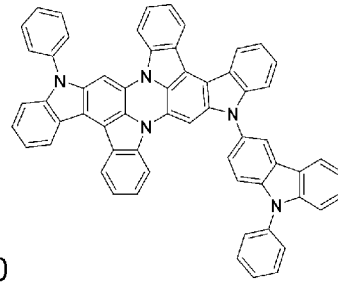
D48



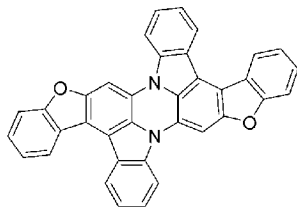
D49



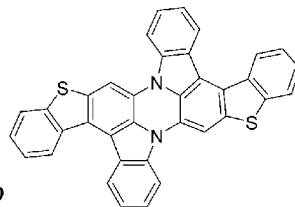
D50



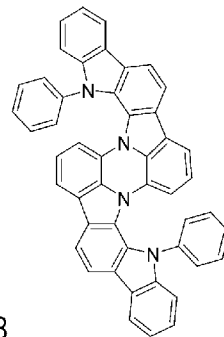
D51



D52

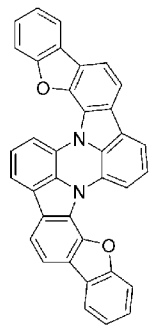


D53

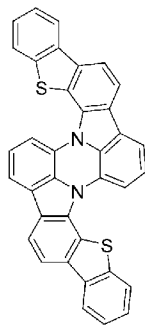


D54

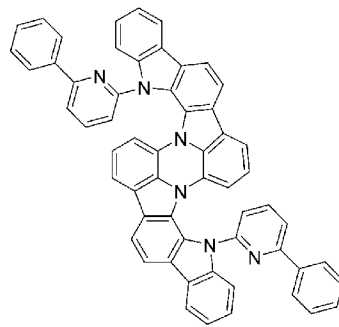
[化13]



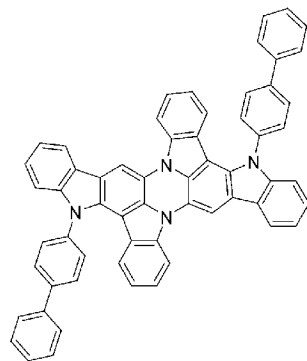
D55



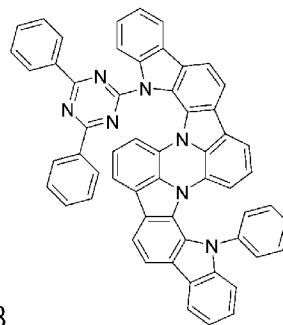
D56



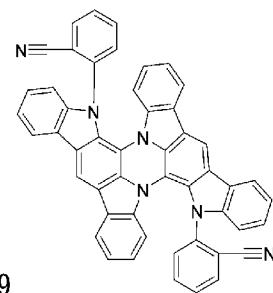
D57



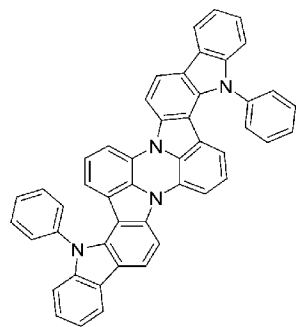
D58



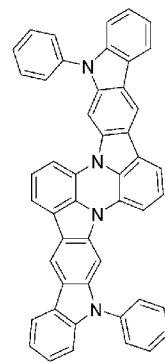
D59



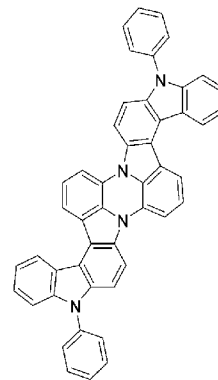
D60



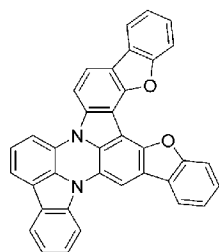
D61



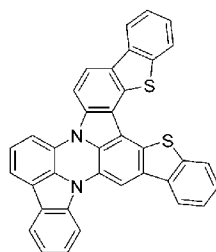
D62



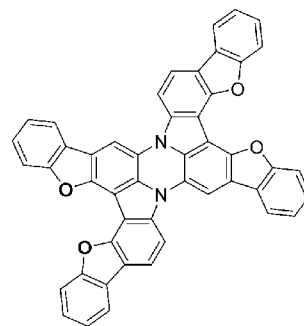
D63



D64

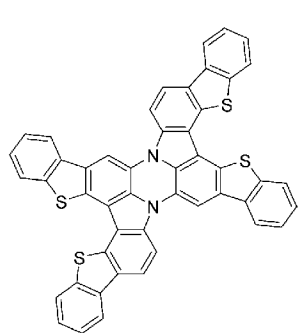


D65

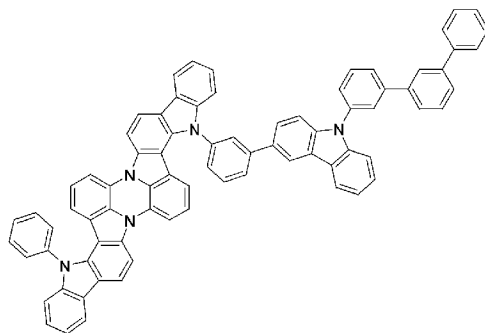


D66

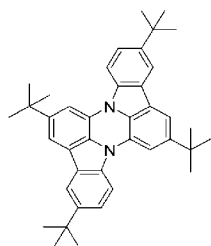
[化14]



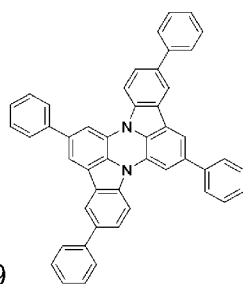
D67



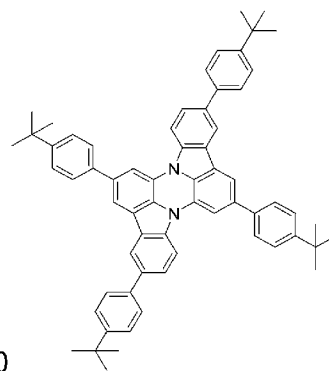
D68



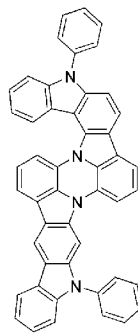
D69



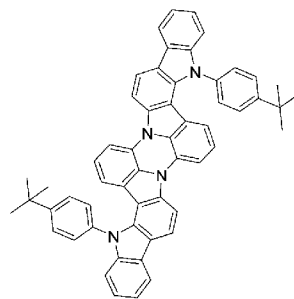
D70



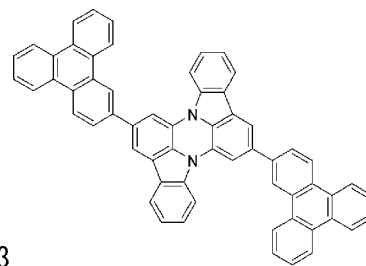
D71



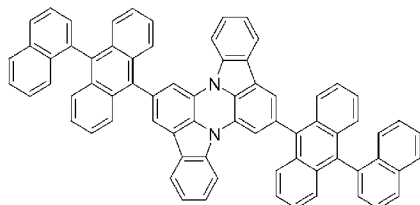
D72



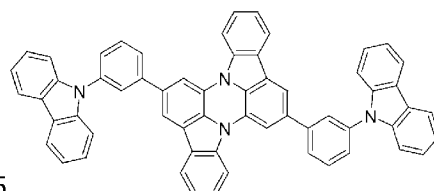
D73



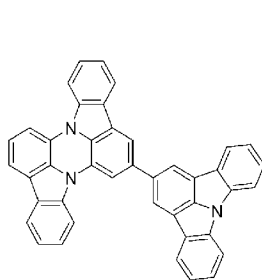
D74



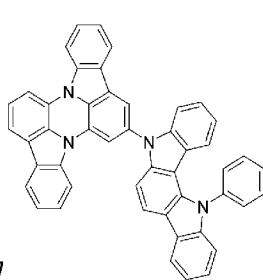
D75



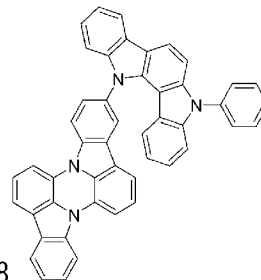
D76



D77

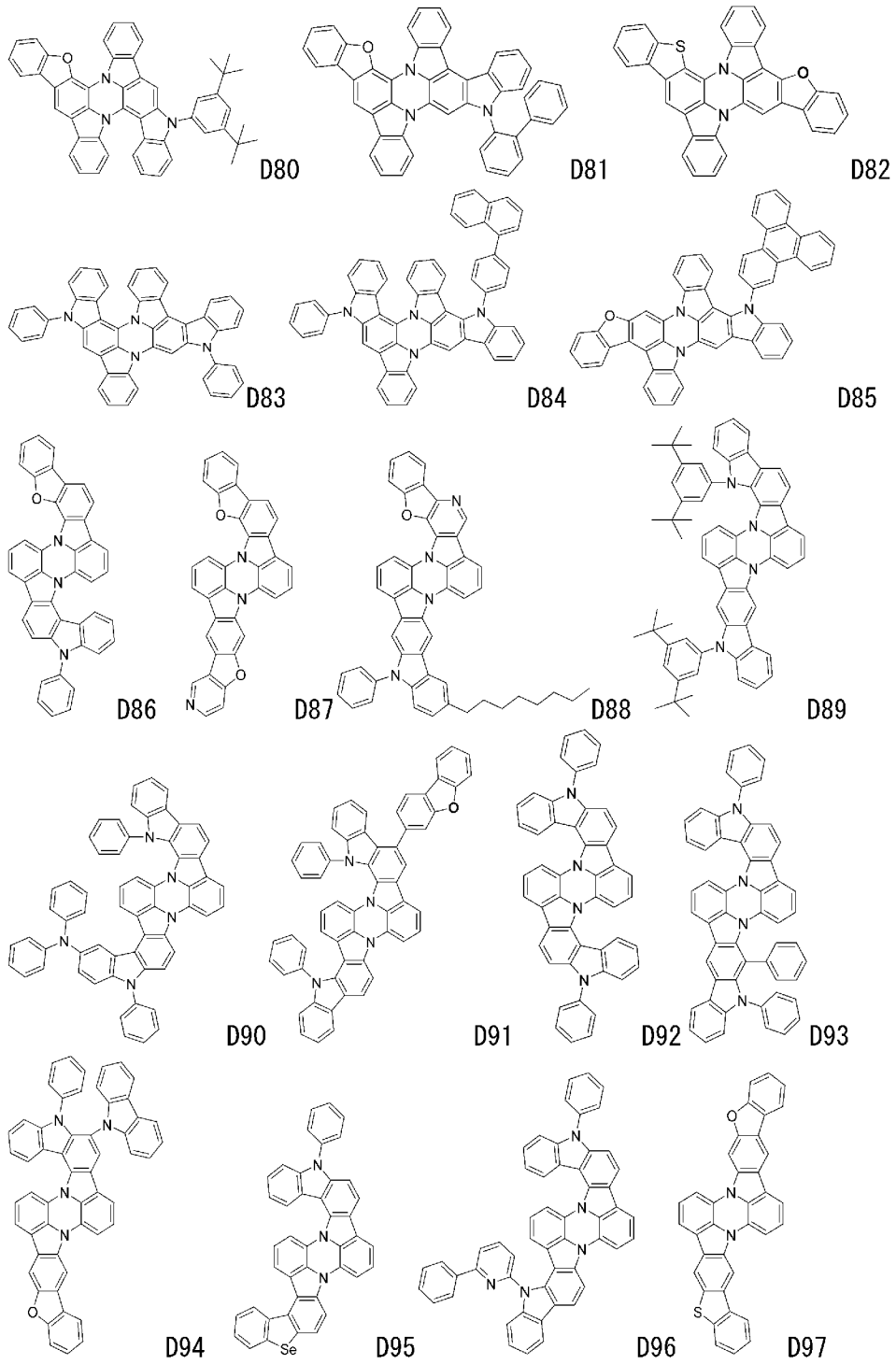


D78

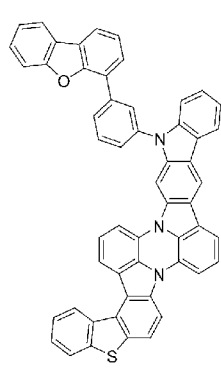


D79

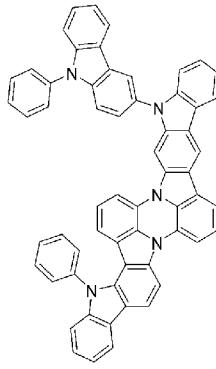
[化15]



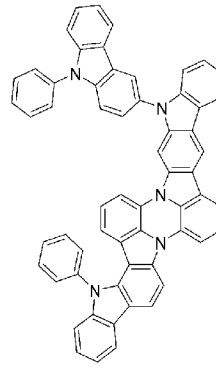
[化16]



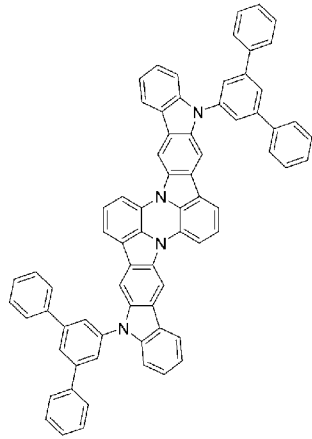
D98



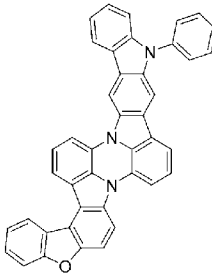
D99



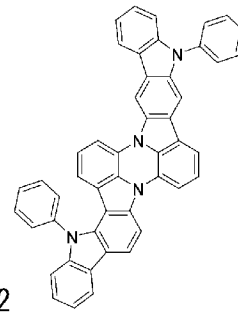
D100



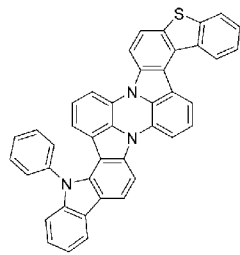
D101



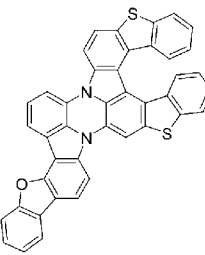
D102



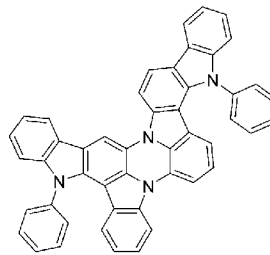
D103



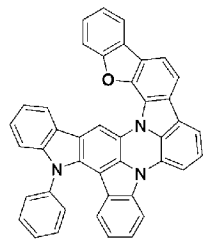
D104



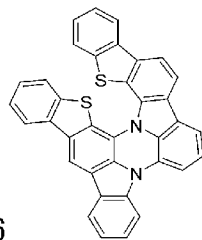
D104a



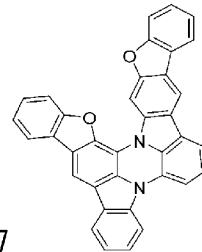
D105



D106

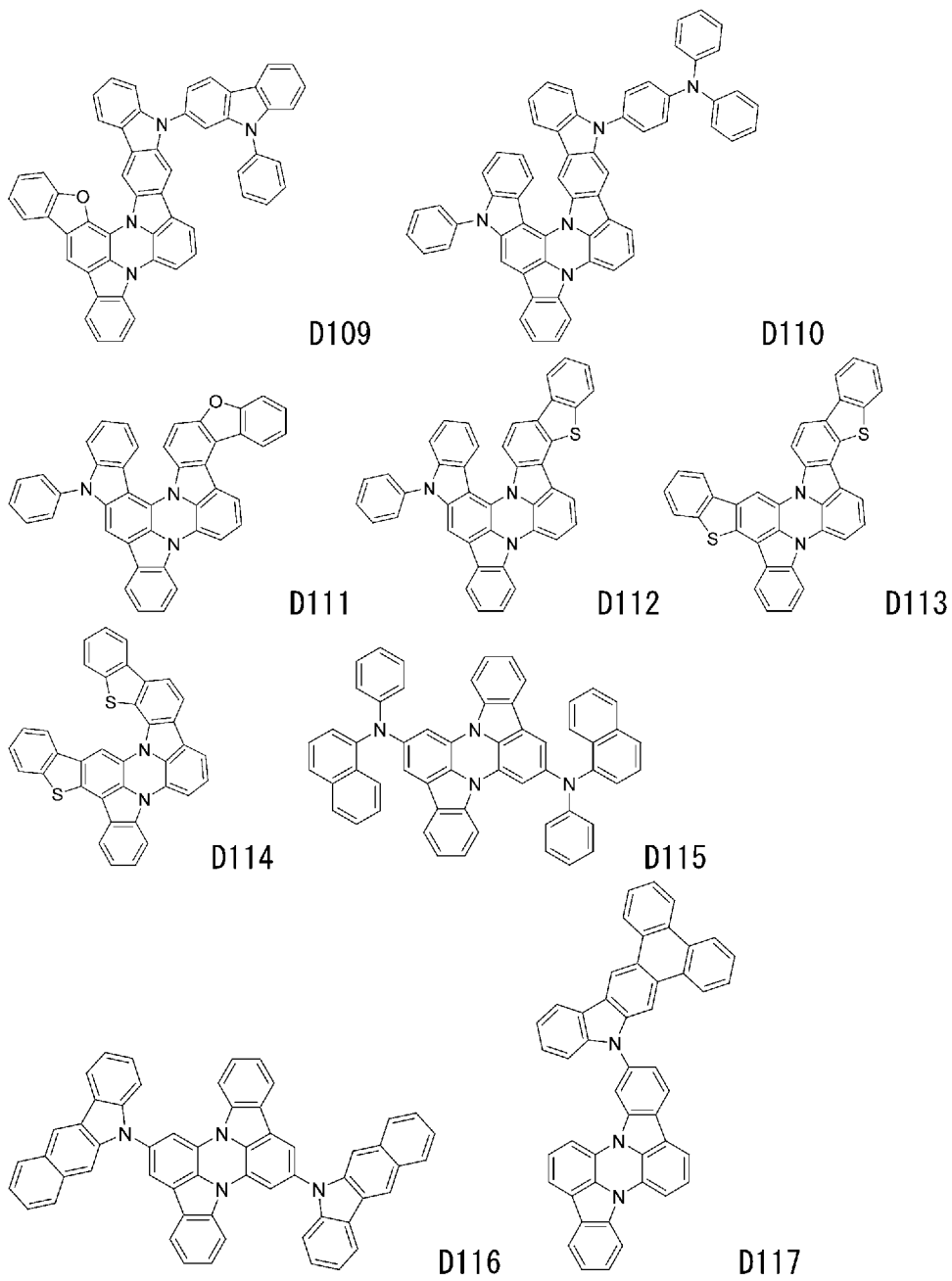


D107

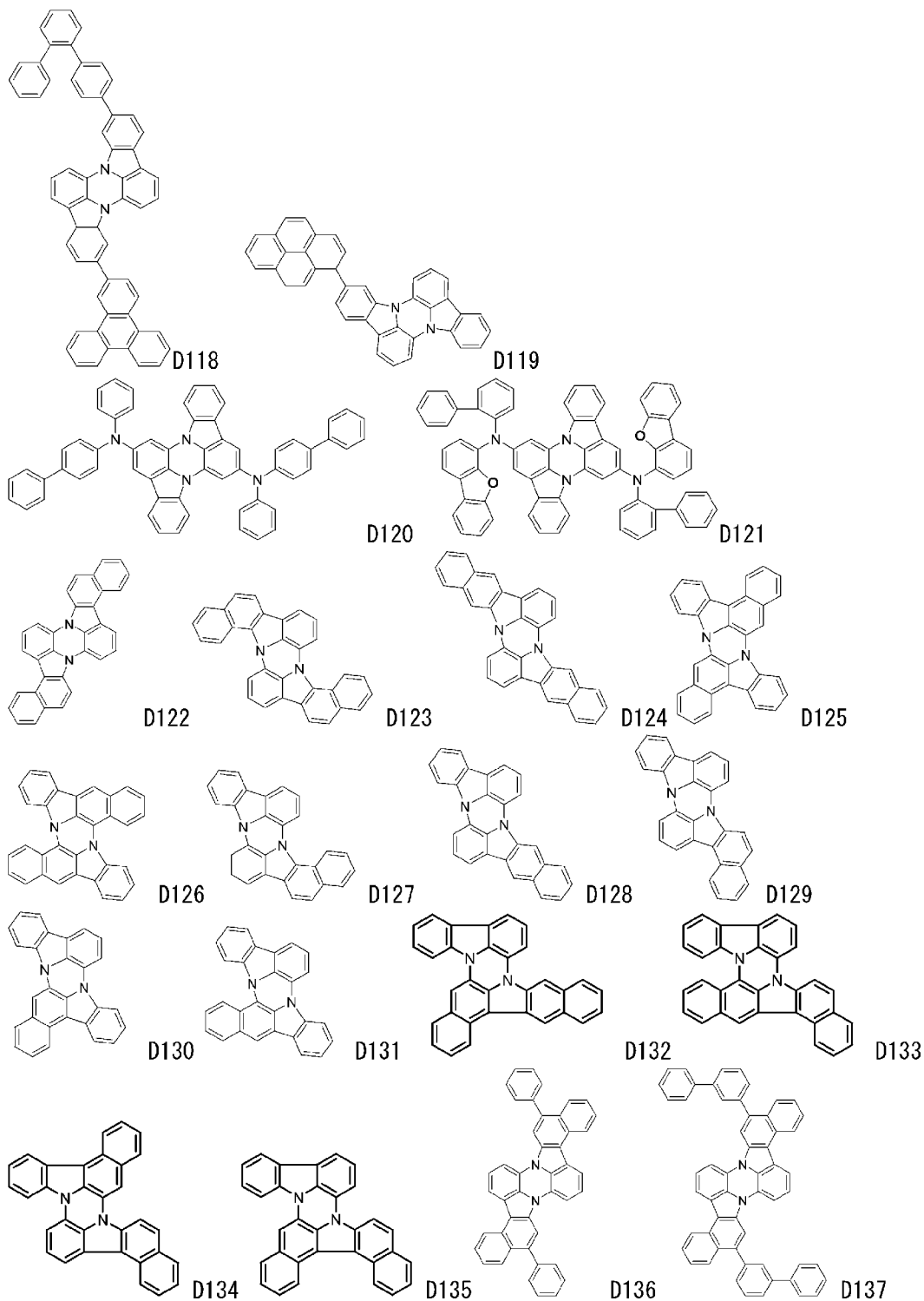


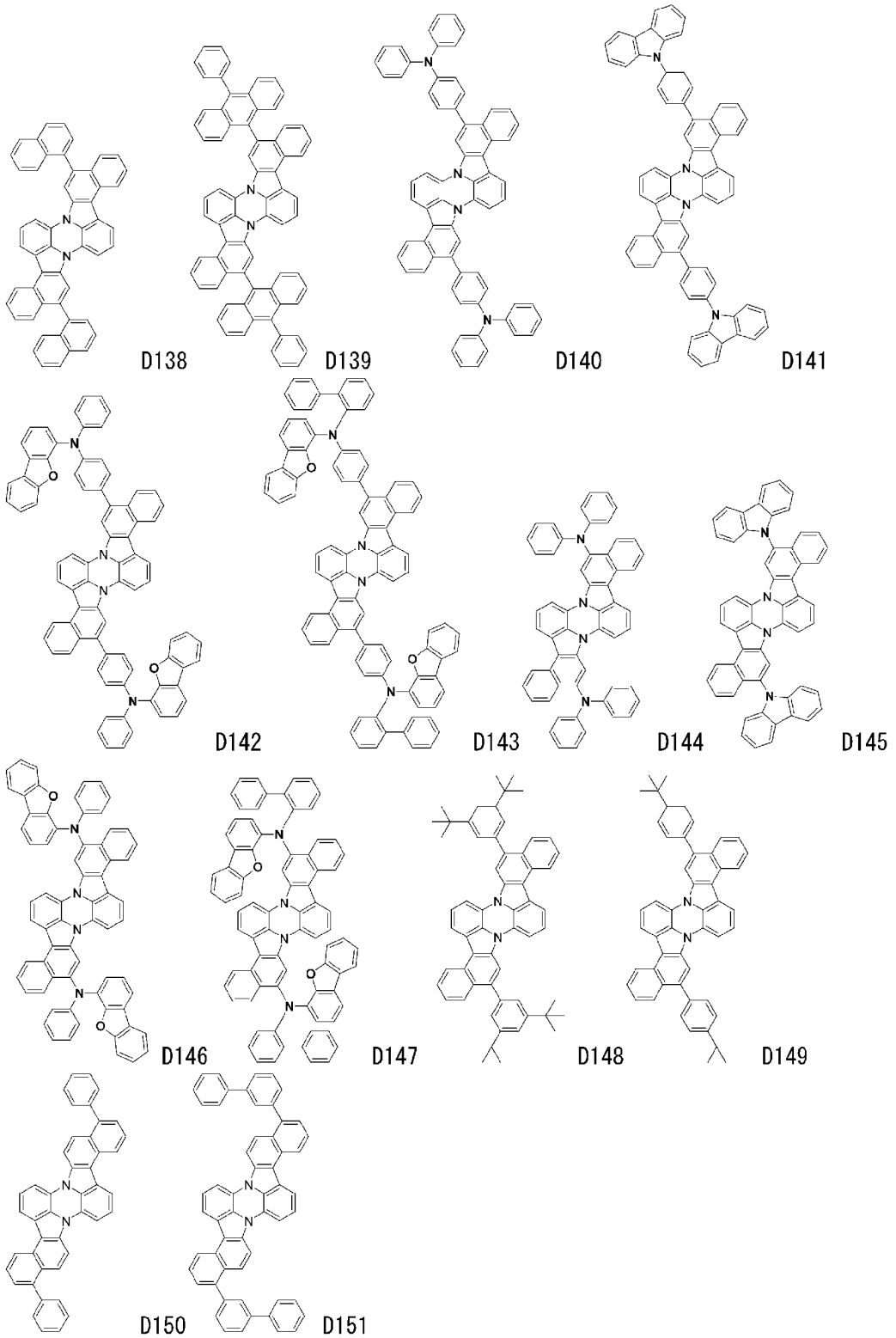
D108

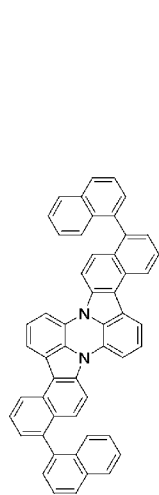
[化17]



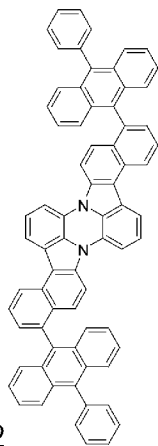
[化18]



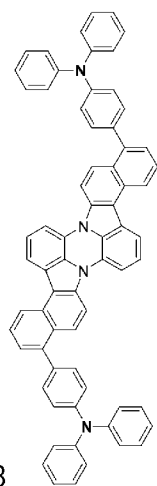




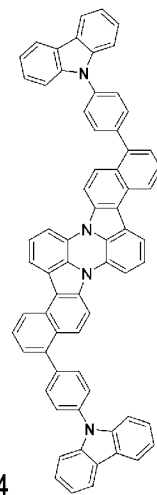
D152



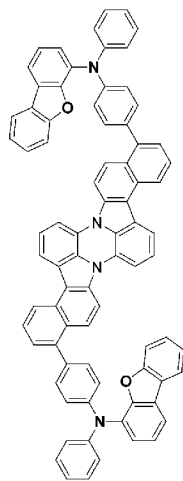
D153



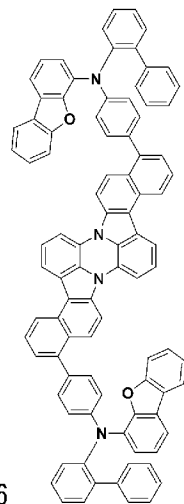
D154



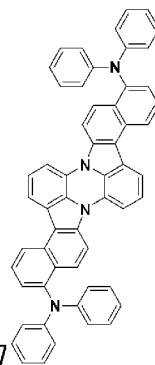
D155



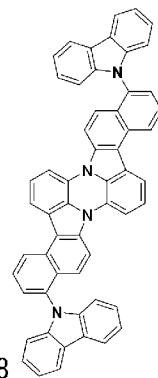
D156



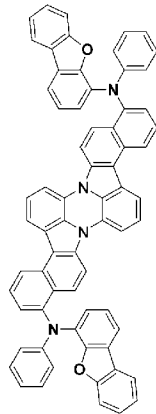
D157



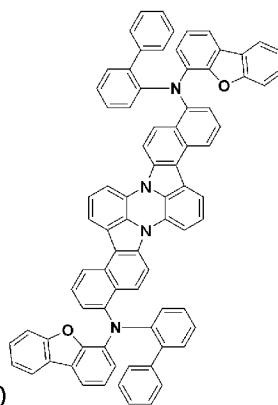
D158



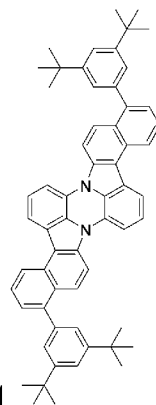
D159



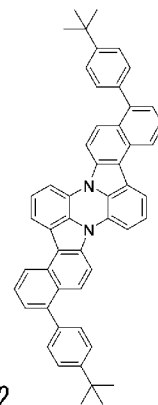
D160



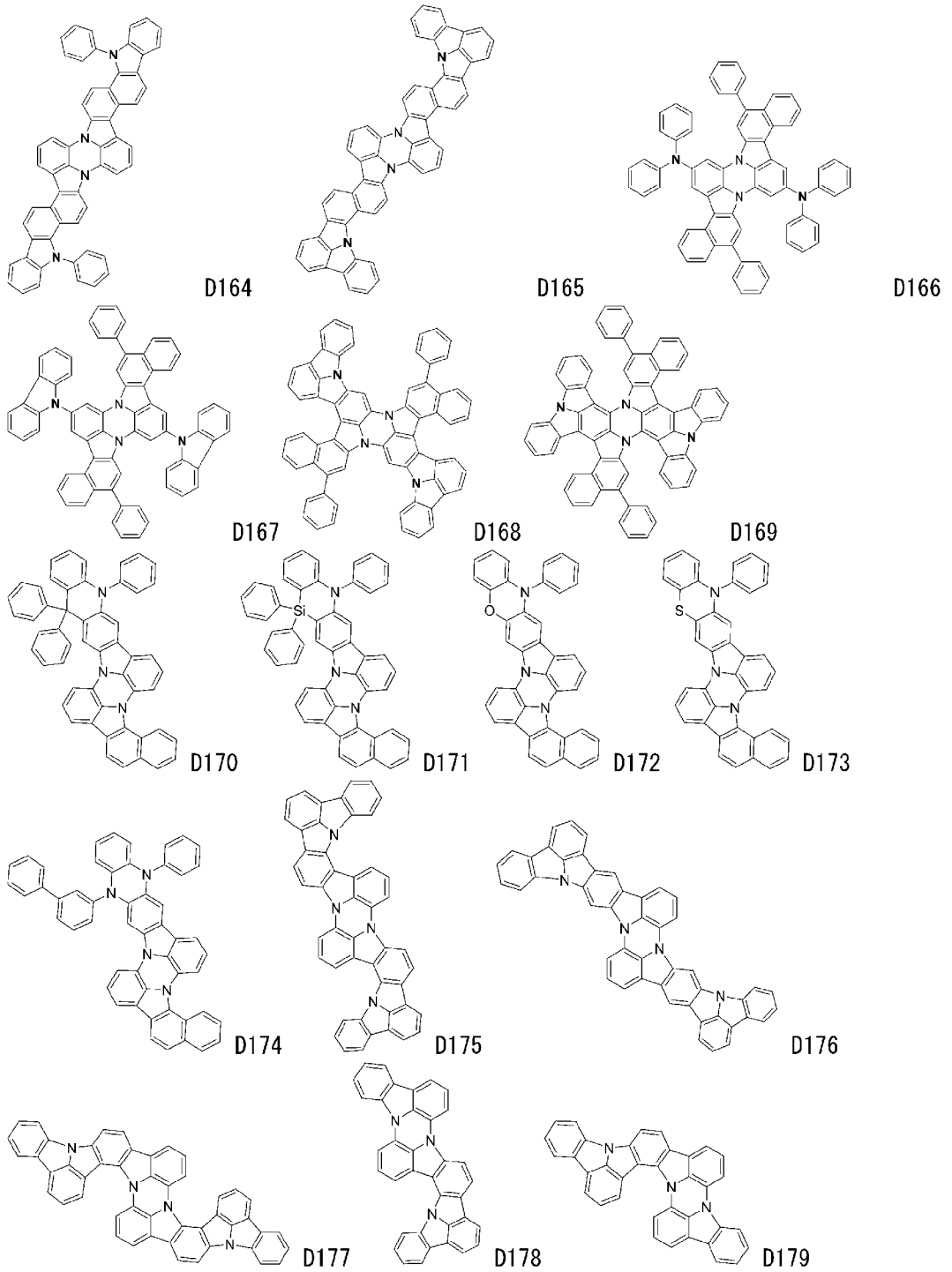
D161

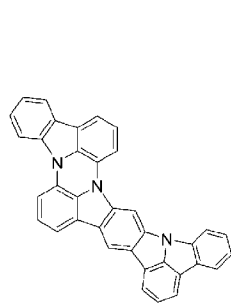


D162

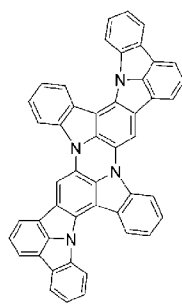


D163

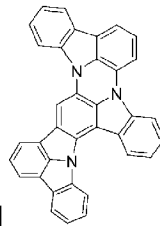




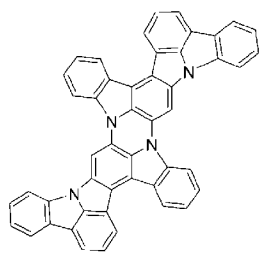
D180



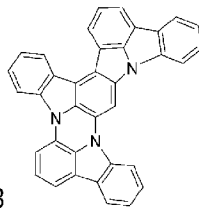
D181



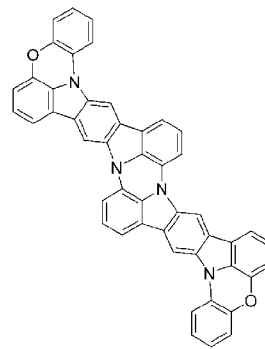
D182



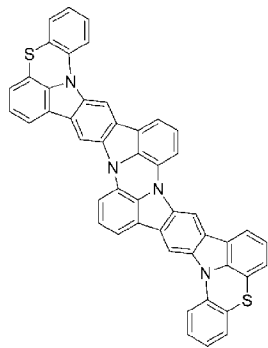
D183



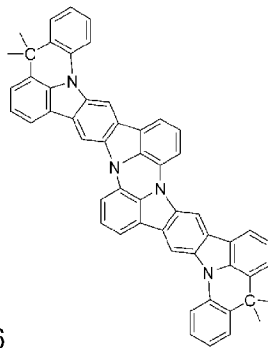
D184



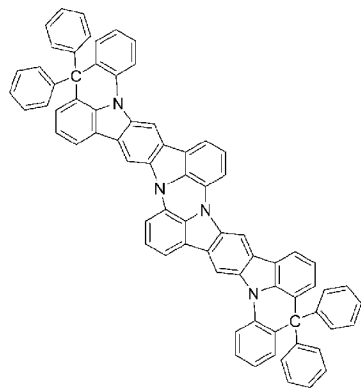
D185



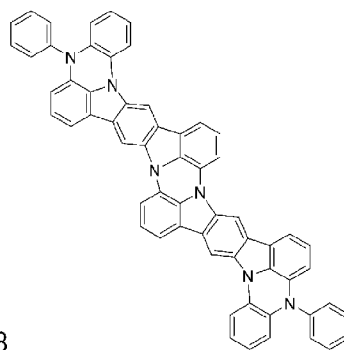
D186



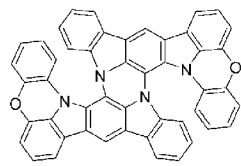
D187



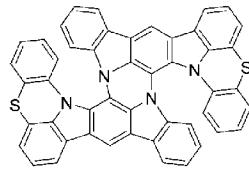
D188



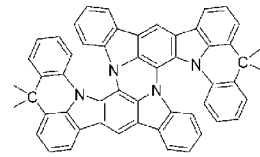
D189



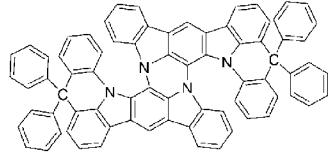
D190



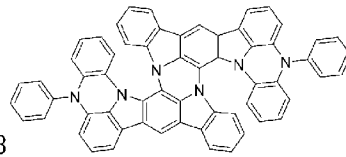
D191



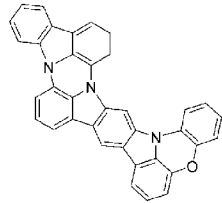
D192



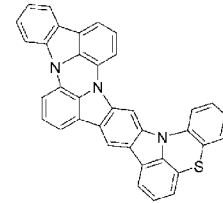
D193



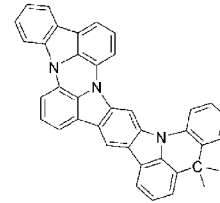
D194



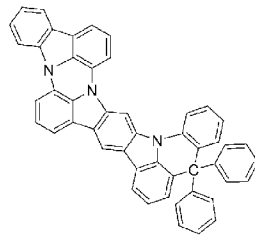
D195



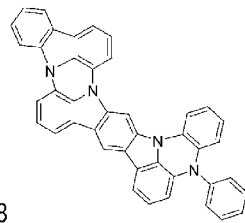
D196



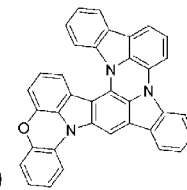
D197



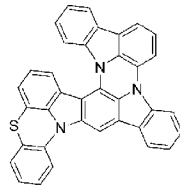
D198



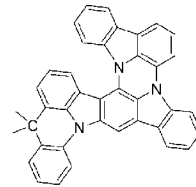
D199



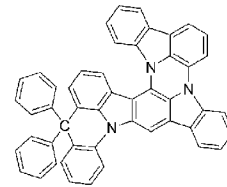
D200



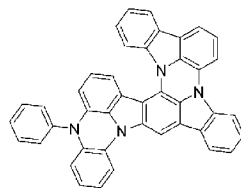
D201



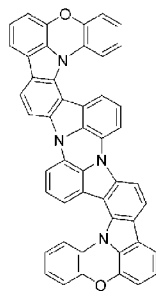
D202



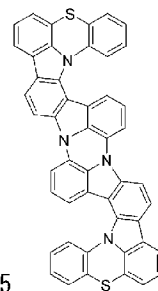
D203



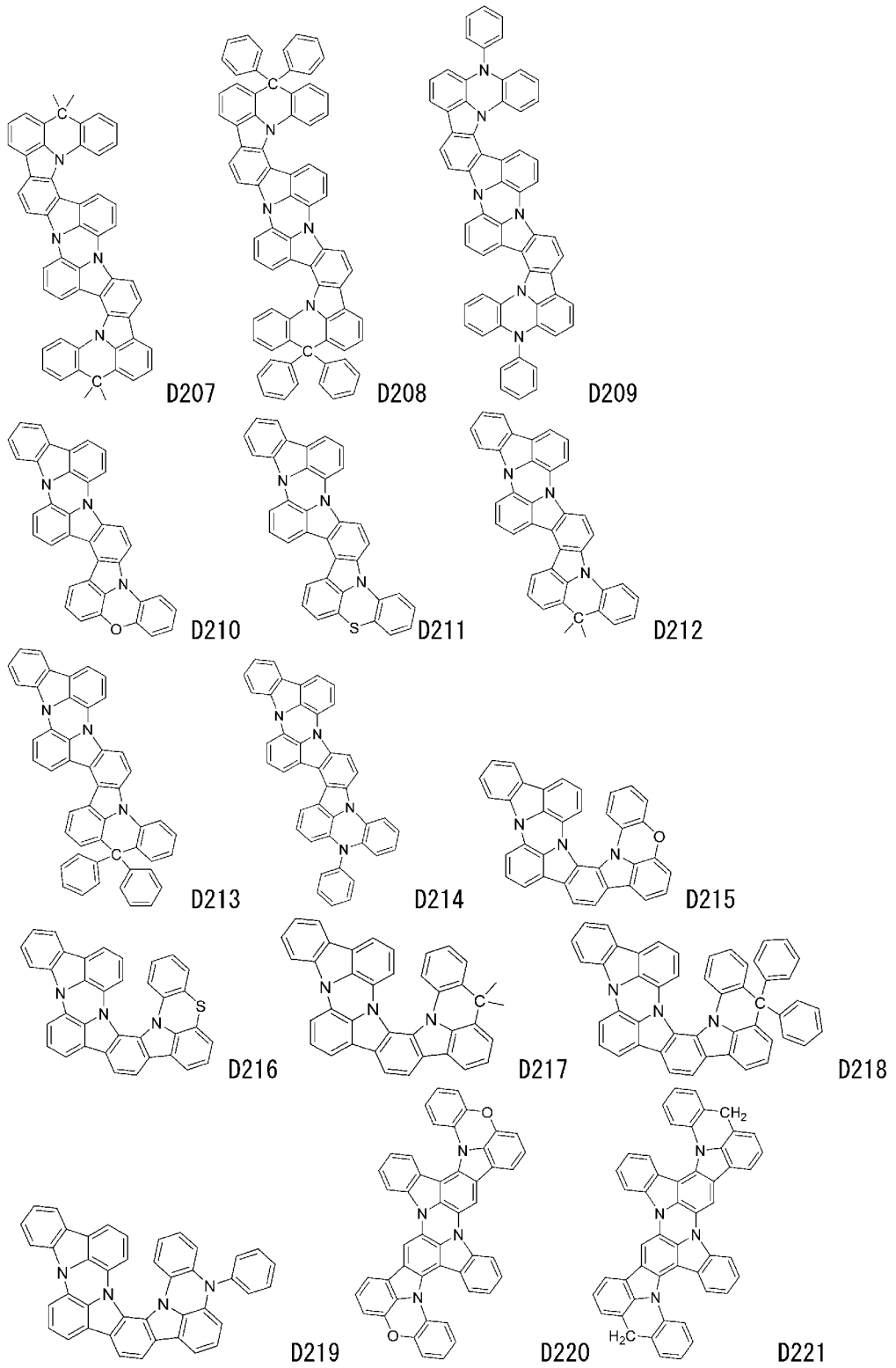
D204

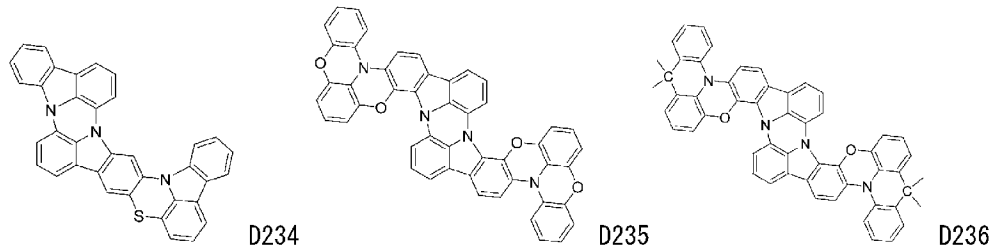
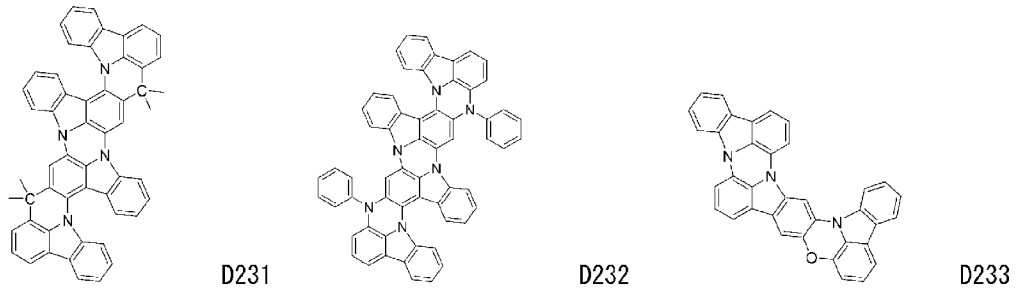
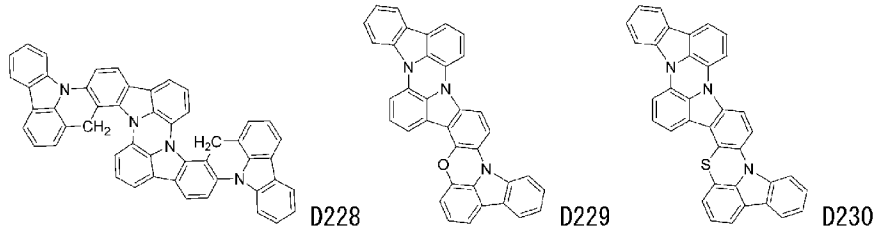
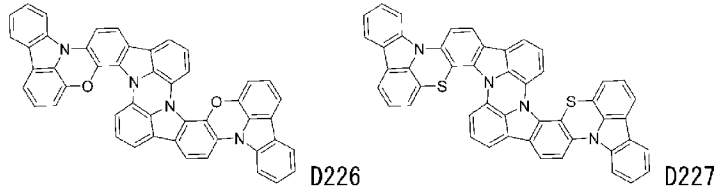
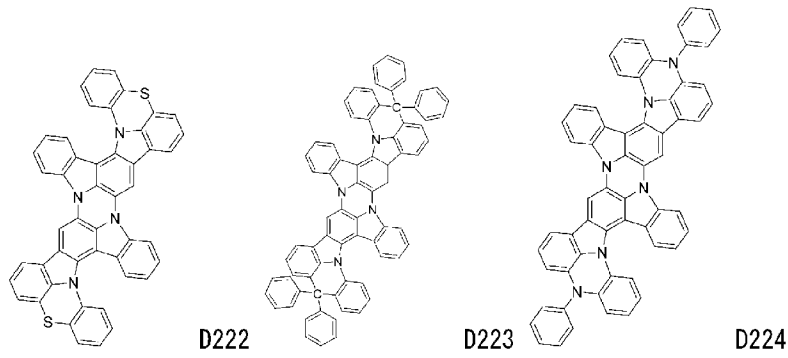


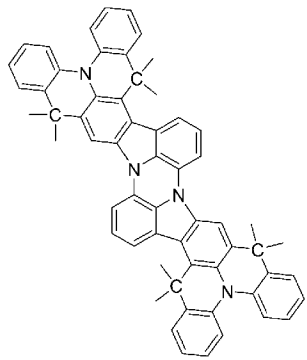
D205



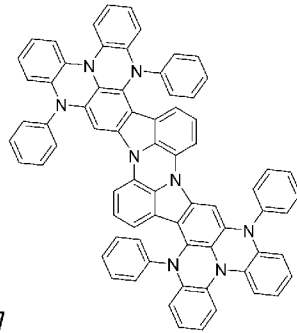
D206



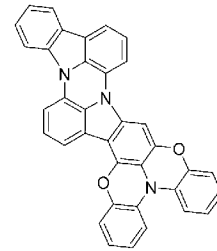




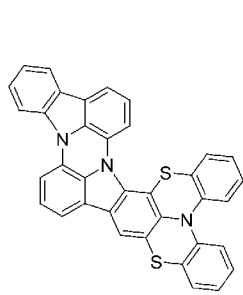
D237



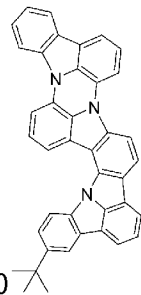
D238



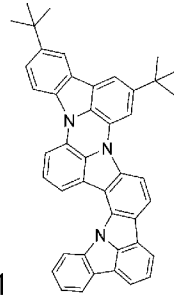
D239



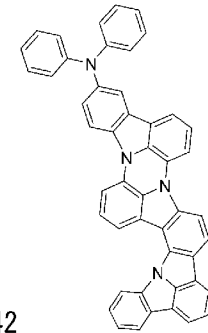
D240



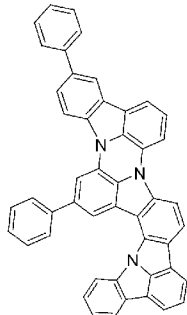
D241



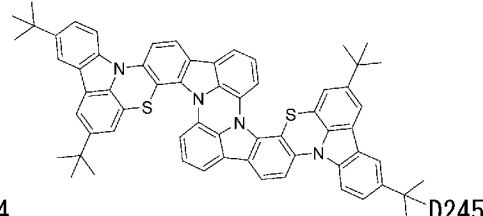
D242



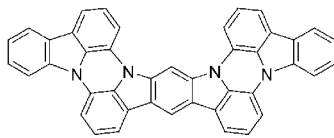
D243



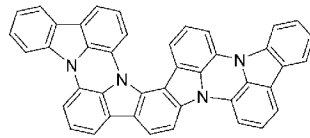
D244



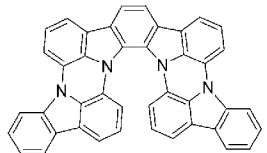
D245



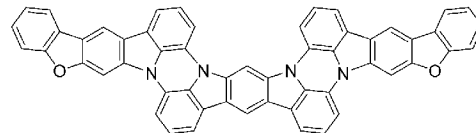
D246



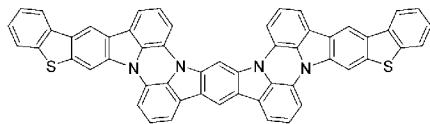
D247



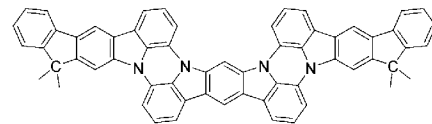
D248



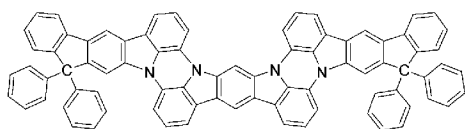
D249



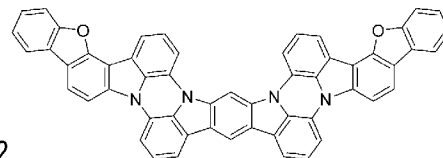
D250



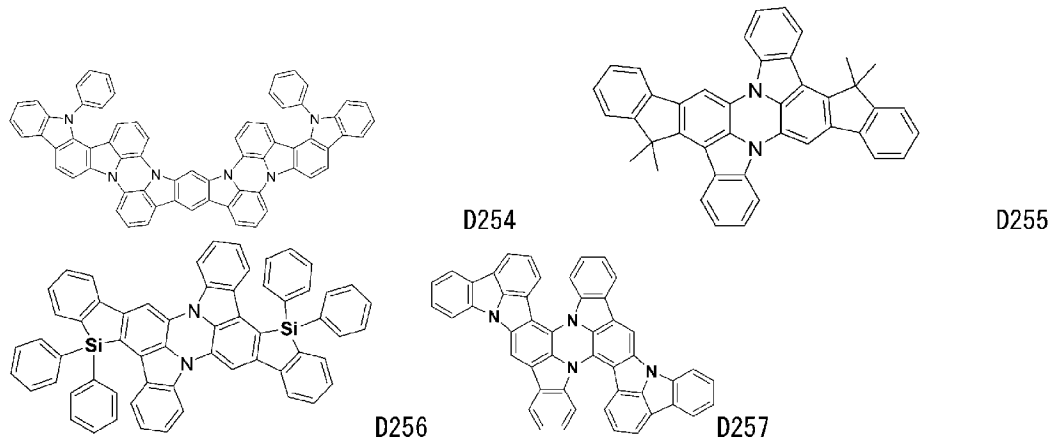
D251



D252



D253



[0064] 前記一般式（１）又は一般式（１－１）で表される発光材料を発光層に含有させることで、高効率で発光し、且つ高い駆動安定性を有して実用上優れた有機ＥＬ素子とすることができる。

[0065] 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。

[0066] 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陰極側、陽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、または両者を意味し、電子注入輸送層は、電子注入層と電子輸送層のいずれかまたは両者を意味する。

[0067] 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、正孔注入層３、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。なお、上述したような有機ＥＬ素子において、陽極や陰極のような電極以外に基板上で積

層構造を構成する層をまとめて有機層という場合がある。

[0068] 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。

[0069] 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、ITO（In₂O₃-ZnO）等の非晶質で、透明導電膜を作製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10～1000 nm、好ましくは10～200 nmの範囲で選ばれる。

[0070] 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（電子注入性金属と称する）、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-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 (Al_2O_3) 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 (Al_2O_3) 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。

[0071] 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。

[0072] 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、発光する層である。発光層には、一般式(1)又は一般式(1-1)で表される発光材料を単独で使用してもよいし、この発光材料をホスト材料と共に使用してもよい。発光材料をホスト材料と共に使用する場合、発光材料が素子中で発光を担う。

[0073] 発光材料の含有量は、ホスト材料に対して0.1～50wt%であることが好ましく、0.1～40wt%であることがより好ましい。

[0074] 発光層におけるホスト材料としては、燐光発光素子や蛍光発光素子で 사용되는公知のホスト材料を使用することができる。使用できる公知のホスト

材料としては、正孔輸送能、電子輸送能を有し、かつ高いガラス転移温度を有する化合物であり、一般式(1)で表される発光材料の三重項励起エネルギー(T1)よりも大きい三重項励起エネルギー(T1)を有していることが好ましい。また、ホスト材料にTADF活性な化合物を用いてもよく、その場合、一重項励起エネルギー(S1)と三重項励起エネルギー(T1)の差($\Delta EST=S1-T1$)が0.20 eV以下の化合物が好ましい。

[0075] このようなホスト材料は、多数の特許文献等により知られているので、それらから選択することができる。ホスト材料の具体例としては、特に限定されるものではないが、インドール化合物、カルバゾール化合物、インドロカルバゾール化合物、ピリジン化合物、ピリミジン化合物、トリアジン化合物、トリアゾール化合物、オキサゾール化合物、オキサジアゾール化合物、イミダゾール化合物、フェニレンジアミン化合物、アリアルアミン化合物、アントラセン化合物、フルオレノン化合物、スチルベン化合物、トリフェニレン化合物、カルボラン化合物、ポルフィリン化合物、フタロシアニン化合物、8-キノリノール化合物の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール化合物の金属錯体に代表される各種金属錯体、ポリ(N-ビニルカルバゾール)化合物、アニリン系共重合化合物、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン化合物、ポリフェニレン化合物、ポリフェニレンビニレン化合物、ポリフルオレン化合物等の高分子化合物等が挙げられる。好ましくは、カルバゾール化合物、インドロカルバゾール化合物、ピリジン化合物、ピリミジン化合物、トリアジン化合物、アントラセン化合物、トリフェニレン化合物、カルボラン化合物、ポルフィリン化合物が挙げられる。

[0076] 1つの発光層中のホストは1種類のみでよいし、2種類以上のホストを使用してもよい。2種類以上のホストを使用する場合は、少なくとも1種は上記に記載したトリアジン化合物若しくはアントラセン化合物のような電子輸送性の化合物であることが好ましく、その他のホストはカルバゾール化合物若しくはインドロカルバゾール化合物のような正孔輸送性の化合物であるこ

とが好ましい。ホストを複数種を使用する場合は、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。

[0077] 発光材料とホスト材料は、それぞれ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つの蒸着源から発光材料とホスト材料を同時に蒸着することもできる。

[0078] 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解させる方法や、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。

[0079] ホスト、及びその予備混合物の形態は、粉体、スティック状、または顆粒状であってもよい。

[0080] ー注入層ー

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。

[0081] 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。正孔阻止層には、公知の正孔阻止材料をすることができる。また正孔阻止材料を複数種類併用して用いてもよい。

[0082] 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。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る。

[0083] 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。このような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。

[0084] 発光層に隣接する層としては、正孔阻止層、電子阻止層、励起子阻止層などがあるが、これらの層が設けられない場合は、正孔輸送層、電子輸送層などが隣接層となる。

[0085] 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。

[0086] 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、アリールアミン誘導体、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、ポリアリールアルカン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、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、アリー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、アリールアミン化合物を用いることがより好ましい。

[0087] 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。

[0088] 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-キノリノラート）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、チオピランジオキソド誘導体、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、ビピリジン誘導体、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る。更に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。

[0089] 本発明の有機EL素子を作製する際の、各層の製膜方法は特に限定されず、ドライプロセス、ウェットプロセスのどちらで作製してもよい。

[0090] S1、T1は次のようにして測定される。石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 10^{-4} Pa以下の条件にて試料化合物（熱活性化遅延蛍光材料）を蒸着し、蒸着膜を100 nmの厚さで形成する。S1は、この蒸着膜の発光スペクトルを測定し、発光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸の交点の波長値 λ_{edge} [nm]を次に示す式(i)に代入してS1を算出する。

$$S1[\text{eV}] = 1239.85/\lambda_{edge} \quad (i)$$

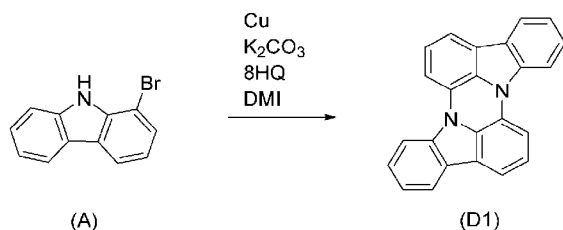
[0091] 一方のT1は、前記蒸着膜の燐光スペクトルを測定し、この燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸の交点の波長値 λ_{edge} [nm]を式(ii)に代入してT1を算出する。

$$T1[\text{eV}] = 1239.85/\lambda_{edge} \quad (ii)$$

実施例

[0092] 合成例 1

[化19]

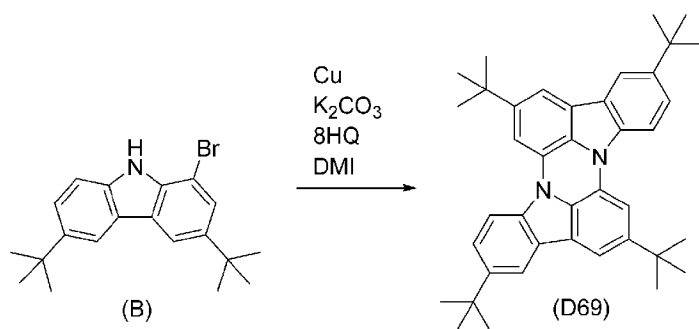


窒素雰囲気下、原料 (A) 3.0 g、銅 0.78 g、炭酸カリウム 3.5 g、8-キノリノール (8HQ) 0.36 g、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン (DMI) 6.0 ml を三口フラスコに入れ、190℃で72時間攪拌した。反応溶液を室温に戻し、メタノールを少しずつ添加して得られた沈降物を濾取した。濾取物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。その後メタノールで洗浄し、得られた固体を減圧乾燥することで化合物 (D1) 0.15 g (収率: 7.2%) を得た。

APCI-TOFMS m/z 331 [M+1]

合成例 2

[化20]

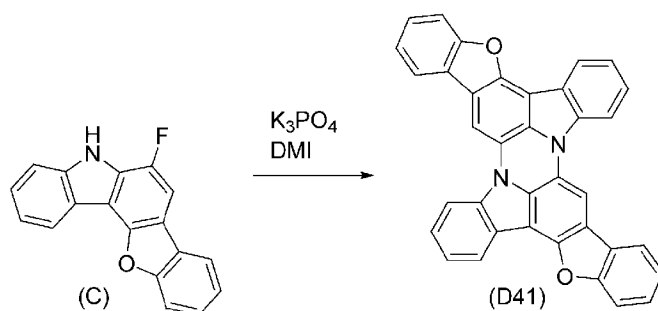


窒素雰囲気下、原料 (B) 3.0 g、銅 0.53 g、炭酸カリウム 2.4 g、8-キノリノール (8HQ) 0.25 g、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン (DMI) 4.0 ml を三口フラスコに入れ、190℃で72時間攪拌した。反応溶液を室温に戻し、メタノールを少しずつ添加して得られた沈降物を濾取した。濾取物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。その後メタノールで洗浄し、得られた固体を減圧乾燥することで化合物 (D69) 0.4 g (収率: 9.2%) を得た。

APCI-TOFMS m/z 554 [M+1]

合成例 3

[化21]

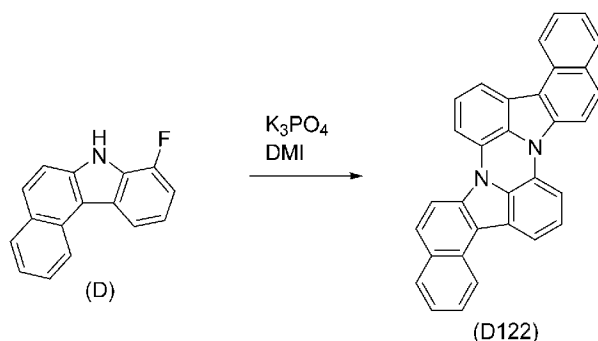


窒素雰囲気下、原料 (C) 5.6 g、リン酸三カリウム 12.9 g、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン (DMI) 48.0 ml を三口フラスコに入れ、230°C で14日間攪拌した。反応溶液を室温に戻し、メタノールを少しずつ添加して得られた沈降物を濾取した。濾取物をテトラヒドロフラン、キシレンで再沈殿することで精製した。その後メタノールで洗浄し、得られた固体を減圧乾燥することで化合物 (D41) 0.4 g (収率: 4.0%) を得た。

APCI-TOFMS m/z 510 [M+1]

合成例 4

[化22]



窒素雰囲気下、原料 (D) 7.8 g、リン酸三カリウム 21.1 g、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン (DMI) 83.0 ml を三口フラスコに入れ、230°C で10日間攪拌した。反応溶液を室温に戻し、メタノール

を少しずつ添加して得られた沈降物を濾取した。濾取物をテトラヒドロフラン、キシレンで再沈殿することで精製した。その後メタノールで洗浄し、得られた固体を減圧乾燥することで化合物 (D 1 2 2) 0.5 g (収率: 3.5%) を得た。

APCI-TOFMS m/z 430 [M+1]

[0093] 実施例 1

石英基板上に、以下に示す薄膜を真空蒸着法にて、真空度 4.0×10^{-5} Pa で製膜した。ホストとして BH-1 を、ドーパントとして化合物 (D 1) をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、100 nm の厚さを有する発光層を形成した。この時、化合物 (D 1) の濃度が 2 質量% となる蒸着条件で共蒸着した。実施例 1 に係る有機薄膜を作製した。

[0094] 上記有機薄膜について、Absolute PL Quantum Yield Measurement C9920-03 G システム (浜松ホトニクス株式会社) を使用して、フォトルミネッセンス量子収率 (PLQY) 測定を行った。C9920-03 G システムを用いることで有機薄膜の光励起及び発光スペクトルの測定を連続して行うことができ、この時のエネルギー収支を算出することで有機薄膜の PLQY を算出できる。極大発光波長、半値幅、PLQY 及び CIE 座標は、ソフトウェア U6039-05 バージョン 3.6.0 を用いて決定する。極大発光波長、及び半値幅は nm で、PLQY は % で、CIE 座標は x、y の値として与えられる。PLQY 測定における励起波長は 340 nm とした。

[0095] 実施例 2

ドーパントとして化合物 (D 6 9) を使用した以外は実施例 1 と同様にして、実施例 2 に係る有機薄膜を作製した。

[0096] 実施例 3

化合物 (D 4 1) をトルエンに 5×10^{-6} M の濃度で調整した溶液を作製した。この溶液について実施例 1 と同様にして極大発光波長、半値幅、PLQY 及び CIE 座標を決定した。

[0097] 実施例 4

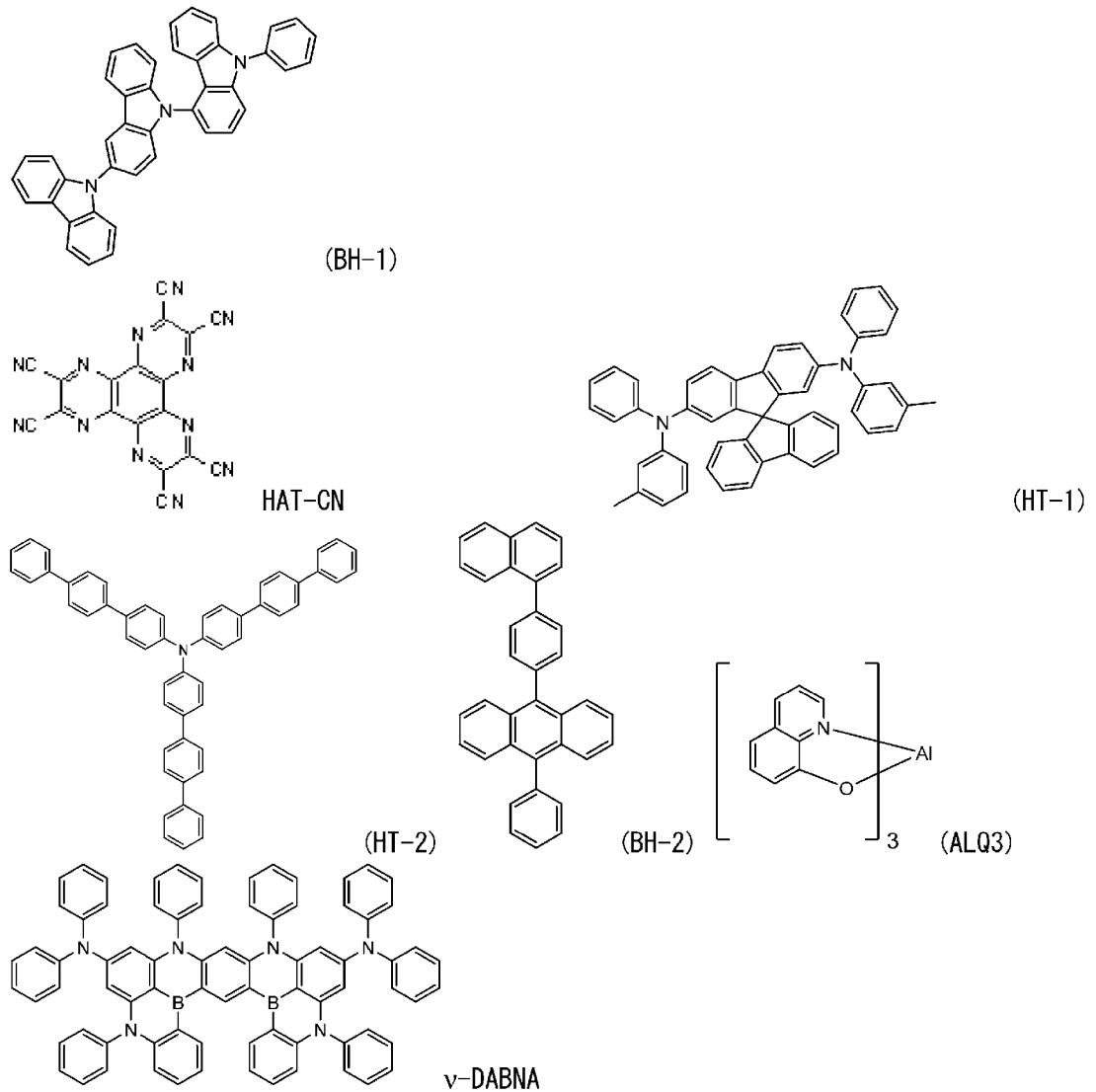
化合物 (D 1 2 2) をトルエンに $5 \times 10^{-6} \text{M}$ の濃度で調整した溶液を作製した。この溶液について実施例 1 と同様にして極大発光波長、半値幅、P L Q Y 及び C I E 座標を決定した。

[0098] 比較例 1

ドーパントを B H - 1 とした以外は実施例 1 と同様にして、有機薄膜を作製した。

[0099] 実施例及び比較例で使用した化合物を次に示す。

[化23]



[0100] 作製した有機薄膜及び溶液の発光スペクトルの極大発光波長、半値幅、色度 (C I E x、C I E y)、P L Q Y を測定した結果を表 1 に示す。

[0101] [表1]

	極大発光波長 (nm)	半値幅 (nm)	CIE _x	CIE _y	PLQY (%)
実施例 1	431	42	0.16	0.07	70
実施例 2	443	46	0.16	0.08	74
実施例 3	452	16	0.17	0.12	71
実施例 4	456	19	0.14	0.15	79
比較例 1	418	48	0.17	0.05	37

[0102] 表 1 から本発明の発光材料は、高効率な特性を有することが分かり、極大発光波長から青色発光であることが分かる。

[0103] 実施例 5

膜厚 70 nm の ITO からなる陽極が形成されたガラス基板上に、以下に示す各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 4.0×10^{-5} Pa で積層した。先ず、ITO 上に正孔注入層として先に示した HAT-CN を 10 nm の厚さに形成し、次に、正孔輸送層として HT-1 を 25 nm の厚さに形成した。次に、電子阻止層として HT-2 を 5 nm の厚さに形成した。そして、ホストとして BH-2 を、ドーパントとして化合物 (D122) をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、30 nm の厚さを有する発光層を形成した。この時、化合物 (D122) の濃度 1 質量% となる蒸着条件で共蒸着した。次に、正孔阻止層として BH-2 を 5 nm の厚さに形成した。次に電子輸送層として ALQ3 を 40 nm 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フッ化リチウム (LiF) を 1 nm の厚さに形成した。最後に、電子注入層上に陰極としてアルミニウム (Al) を 70 nm の厚さに形成し、実施例 5 に係る有機 EL 素子を作製した。

比較例 2

ドーパントを v -DABNA とした以外は実施例 5 と同様にして、有機 EL 素子を作製した。

[0104] 作製した有機 EL 素子の発光スペクトルの極大発光波長、外部量子効率、寿命を表 2 に示す。極大発光波長、外部量子効率は駆動電流密度が 2.5 mA/cm^2 時の値であり、初期特性である。寿命は、駆動電流密度が 40 mA/cm^2 時の値であり、初期特性である。

／ cm^2 時に輝度が初期輝度の90%まで減衰するまでの時間を測定した。

[表2]

	極大発光波長 (nm)	外部量子効率 (%)	寿命 (h)
実施例5	465	4.0	150
比較例2	470	5.3	103

[0105] 表2から本発明の発光材料を用いた有機EL素子は、高特性を有することが分かり、極大発光波長から青色発光であることが分かる。また、寿命特性に関して特に優れた結果を示した。

産業上の利用可能性

[0106] 本発明の発光材料によれば、高効率で発光し、且つ高い駆動安定性を有して実用上有用な有機EL素子を得ることができる。また本発明の発光材料は、青色、水色又は緑色のスペクトル領域に極大波長を示す。この発光材料は、特に410nm～550nm、好ましくは430nm～495nmにおいて極大波長を示す。本発明の発光材料のフォトルミネッセンス量子収率は、40%以上となることができる。本発明の発光材料の使用が、より高効率なデバイスをもたらす。またこれを含む発光層を有する有機EL素子は、高い発光効率と、色とを有する。

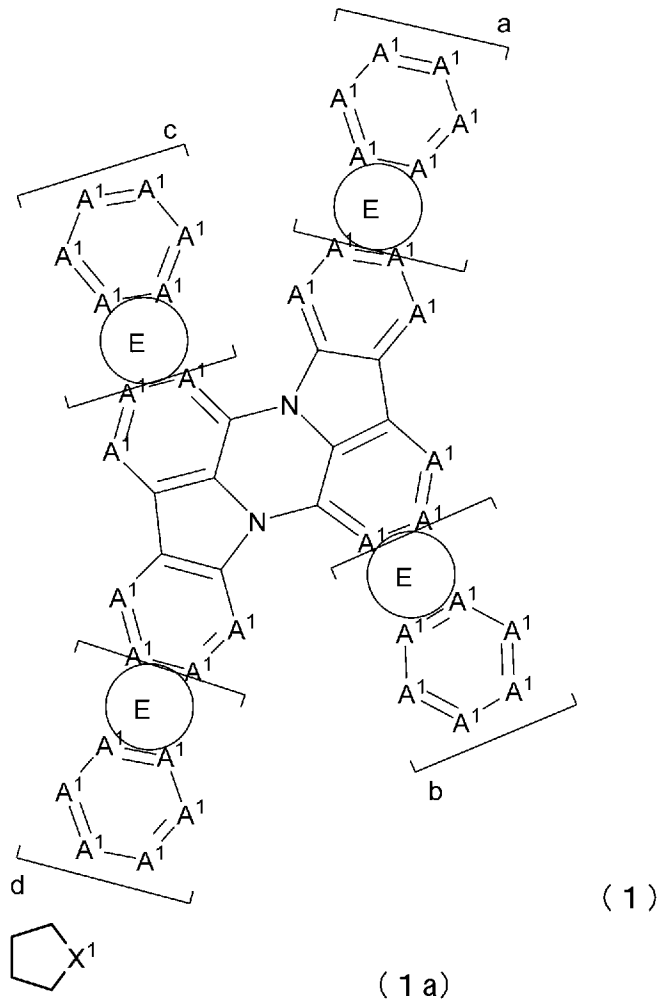
符号の説明

[0107] 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）又は下記一般式（1-1）で表される発光材料。

[化1]

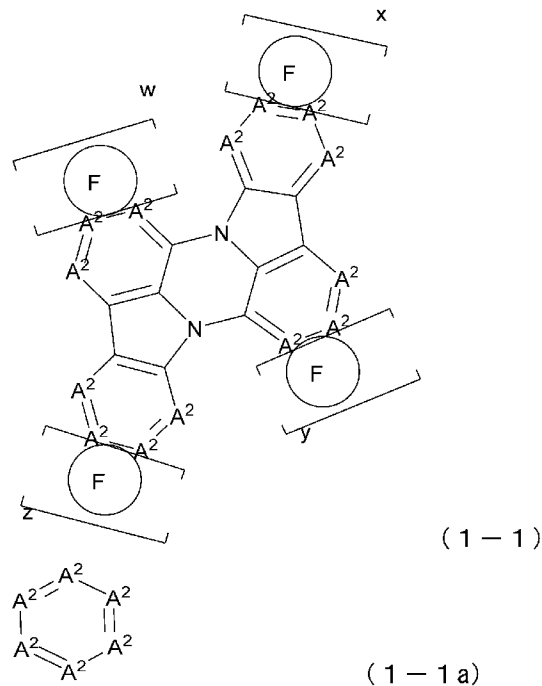


（ここで、 A^1 はそれぞれ独立に CR^1 、 C 又は N である。但し、一般式（1）で A^1 を含んだ一つの六員環中に存在する N の数は2以下である。 R^1 は、それぞれ独立に、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12～44のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～44のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～44のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6

～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。R¹が置換若しくは未置換のジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であるとき、R¹は、式(1)中でR¹が結合するA¹を有する芳香族環と直接、又は—O—、—S—、—Si(R^a)₂—、—C(R^a)₂—、又は—NR^a—を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。R^aは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。環Eはそれぞれ独立して、式(1a)で表される複素環であり、環Eは隣接する環と任意の位置で縮合する。X¹はそれぞれ独立して、Si(R^d)₂、C(R^d)₂、O、S、Se、又はN—L¹—(Ar¹)₂で表される基である。R^dは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。L¹はそれぞれ独立して、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置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基であり、Ar¹はそれぞれ独立して、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3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～9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。L¹は、L¹が結合する複素環と隣接する芳香族環と直接、又は—O—、—S—、—Si(R^c)₂—、—C(R^c)₂—、又は—NR^c—を介して1つの結合を形成

し、縮合環を形成してもよい。R⁰は、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、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3～30の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が2～9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。a、b、c、及びdはそれぞれ独立して、0又は1を表し、eはそれぞれ独立して、0～5の整数を表す。但し、R¹又はL¹が隣接する芳香族環と縮合環を形成しないとき、 $a + b + c + d = 1$ であることはない。)

[化2]

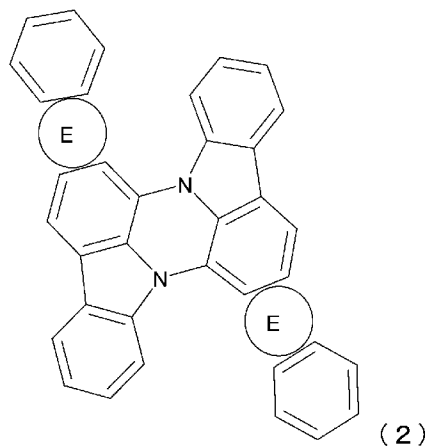


(ここで、A²はそれぞれ独立にCR²、C又はNである。但し、一般式(1-1)でA²を含んだ一つの六員環中に存在するNの数は2以下である。R²は、それぞれ独立に、水素、シアノ基、重水素、置換若しくは未置換の炭素数12～44のジアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～44のアリールヘテロアリールアミノ基、置換若しくは未置換の炭素数12～44のジヘテロアリールアミノ基、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素

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 ~ 30 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2 ~ 9 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。R²が置換若しくは未置換のジアリールアミノ基、アリールヘテロアリールアミノ基、ジヘテロアリールアミノ基、芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基であるとき、R²は、式 (1-1) 中で R²が結合する A²を有する芳香族環と直接、又は -O-、-S-、-Si(R^b)₂-、-C(R^b)₂-、又は -NR^b- を介して 1 つ以上の結合を形成し、縮合環を形成してもよい。R^bは、それぞれ独立に、水素、重水素、炭素数 1 ~ 10 の脂肪族炭化水素基、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 ~ 30 の芳香族複素環基、又はこれら芳香族基が 2 ~ 9 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。環 F はそれぞれ独立して、式 (1-1a) で表される芳香族環であり、環 F は隣接する環と任意の位置で縮合する。x、y、w、及び z はそれぞれ独立して、0 又は 1 を表す。)

- [請求項2] a + b + c + d ≥ 2 であることを特徴とする請求項 1 に記載の発光材料。
- [請求項3] b 及び c、又は a 及び d が、1 であることを特徴とする請求項 2 に記載の発光材料。
- [請求項4] 前記一般式 (1) が、下記一般式 (2) で表される請求項 1 に記載の発光材料。

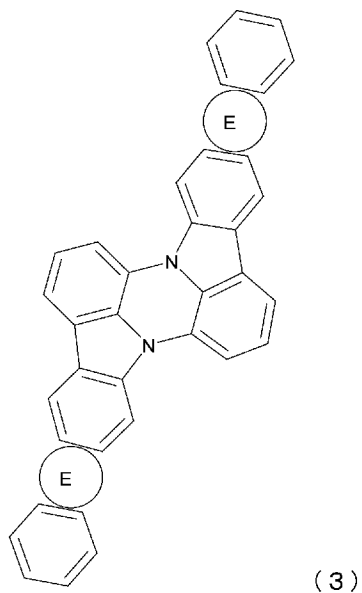
[化3]



(ここで、環Eは一般式(1)と同義である。)

[請求項5] 前記一般式(1)が、下記一般式(3)で表される請求項1に記載の発光材料。

[化4]

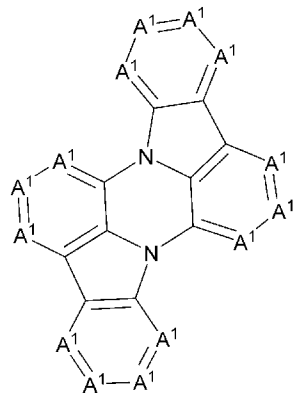


(ここで、環Eは一般式(1)と同義である。)

[請求項6] 前記一般式(1)において、環Eのそれぞれが独立して式(1a)中の X^1 が $N-L^1-(Ar^1)$ で表される基であることを特徴とする請求項1に記載の発光材料。

[請求項7] 前記一般式(1)又は前記一般式(1-1)が、下記一般式(4)で表される請求項1に記載の発光材料。

[化5]



(4)

(ここで、 A^1 はそれぞれ独立に CR^1 、又はNである。 R^1 は一般式(1)の R^1 と同意である。但し、一般式(4)で A^1 を含んだ一つの六員環中に存在するNの数は2以下である。)

[請求項8] 励起一重項エネルギー(S1)と励起三重項エネルギー(T1)の差(ΔEST)が0.40eV以下であることを特徴とする請求項1に記載の発光材料。

[請求項9] 少なくとも一つの R^1 又は L^1 が、式(1)中で R^1 が結合する A^1 を有する芳香族環若しくは L^1 が結合する複素環と隣接する芳香族環と直接、又は-O-、-S-、-Si(R^a)₂-、-C(R^a)₂-、又は-NR^a-を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成することを特徴とする一般式(1)で表される請求項1に記載の発光材料。

[請求項10] 少なくとも一つの L^1 が、 L^1 が結合する複素環と隣接する芳香族環と直接結合し縮合環を形成することを特徴とする一般式(1)で表される請求項9に記載の発光材料。

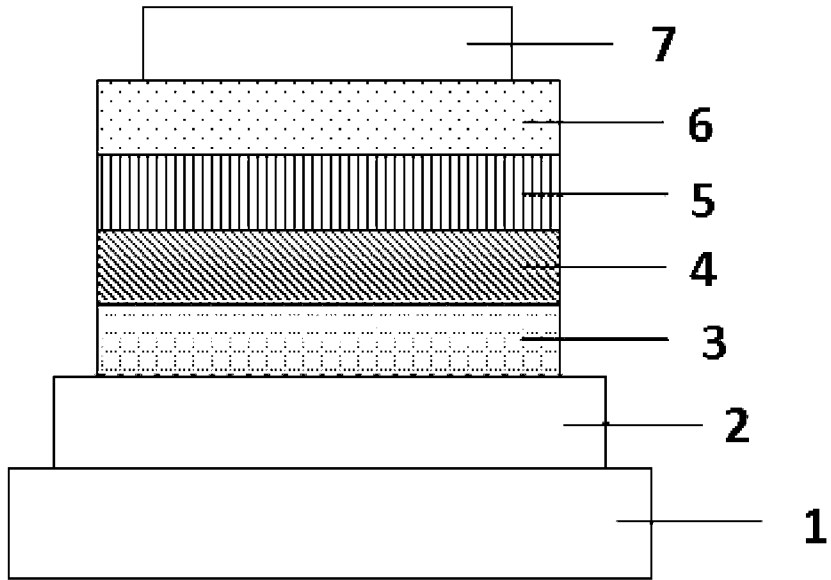
[請求項11] 少なくとも一つの R^1 が置換若しくは未置換のカルバゾリル基であり、該カルバゾリル基が式(1)中で R^1 が結合する A^1 を有する芳香族環と直接、又は-O-、-S-、-Si(R^a)₂-、-C(R^a)₂-、又は-NR^a-を介して1つ以上の結合を形成し、縮合環を形成することを特徴とする一般式(1)で表される請求項9に記載の

発光材料。

[請求項12] $x + y + w + z \geq 2$ であることを特徴とする一般式(1-1)で表される請求項1に記載の発光材料。

[請求項13] 対向する陽極と陰極の間に1つ以上の発光層を含む有機電界発光素子において、少なくとも1つの発光層が、請求項1～12のいずれかに記載の発光材料を含有することを特徴とする有機電界発光素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/015058

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>H01L 51/50</i> (2006.01)i; <i>C07D 487/16</i> (2006.01)i; <i>C09K 11/06</i> (2006.01)i FI: H05B33/14 B; C09K11/06 650; C07D487/16		
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; C07D487/16; C09K11/06		
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.
A	US 2021/0098715 A1 (SAMSUNG DISPLAY CO., LTD.) 01 April 2021 (2021-04-01) entire text, all drawings	1-13
A	CN 110759925 A (GUANGZHOU CHINA-RAY OPTOELECTRONIC MATERIALS CO., LTD.) 07 February 2020 (2020-02-07) entire text	1-13
A	KR 10-2018-0008283 A (LG CHEM, LTD.) 24 January 2018 (2018-01-24) entire text, all drawings	1-13
P, A	KR 10-2021-0096958 A (DUK SAN NEOLUX CO., LTD.) 06 August 2021 (2021-08-06) entire text	1-13
<input 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 10 May 2022		Date of mailing of the international search report 17 May 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
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/015058

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
US	2021/0098715	A1	01 April 2021	JP	2021-57582	A	
				entire text, all drawings			
				KR	10-2021-0038789	A	
				CN	112582558	A	

CN	110759925	A	07 February 2020	(Family: none)			

KR	10-2018-0008283	A	24 January 2018	CN	107619410	A	

KR	10-2021-0096958	A	06 August 2021	WO	2021/153931	A1	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01L 51/50(2006.01)i; C07D 487/16(2006.01)i; C09K 11/06(2006.01)i FI: H05B33/14 B; C09K11/06 650; C07D487/16		
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）） H01L51/50; C07D487/16; 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 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
A	US 2021/0098715 A1 (SAMSUNG DISPLAY CO., LTD.) 01.04.2021 (2021 - 04 - 01) 全文全図	1-13
A	CN 110759925 A (GUANGZHOU CHINA-RAY OPTOELECTRONIC MATERIALS CO., LTD.) 07.02.2020 (2020 - 02 - 07) 全文	1-13
A	KR 10-2018-0008283 A (LG CHEM, LTD.) 24.01.2018 (2018 - 01 - 24) 全文全図	1-13
P, A	KR 10-2021-0096958 A (DUK SAN NEOLUX CO., LTD.) 06.08.2021 (2021 - 08 - 06) 全文	1-13
<input 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 10.05.2022	国際調査報告の発送日 17.05.2022	
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） 辻本 寛司 20 3908 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	

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/JP2022/015058

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
US 2021/0098715 A1	01.04.2021	JP 2021-57582 A 全文全図	
		KR 10-2021-0038789 A	
		CN 112582558 A	
CN 110759925 A	07.02.2020	(ファミリーなし)	
KR 10-2018-0008283 A	24.01.2018	CN 107619410 A	
KR 10-2021-0096958 A	06.08.2021	WO 2021/153931 A1	