(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
2010 年 9 月 2 日(02.09.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/098246 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) *C07D 519/00* (2006.01)
C07D 487/04 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2010/052411

(22) 国際出願日: 2010 年 2 月 18 日(18.02.2010)

(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 2009-046473 2009 年 2 月 27 日(27.02.2009) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 新日鐵化学株式会社(NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目１４番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 浅利 徹(ASARI Tohru) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜４６番地の８０ 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 林田 広幸(HAYASHIDA Hiroyuki) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜４６番地の８０ 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 白石和人(SHIRAISHI Kazuto) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜４６番地の８０ 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 清水隆之(SHIMIZU Takayuki) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜４６番地の８０ 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 小石川 靖(KOISHIKAWA Yasushi) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜４６番地の８０ 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP). 吉村 和明(YOSHIMURA Kazuaki) [JP/JP]; 〒8048503 福岡県北九州市戸畑区大字中原先の浜４６番地の８０ 新日鐵化学株式会社内 Fukuoka (JP).

(74) 代理人: 佐々木 一也, 外(SASAKI Kazuya et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋２丁目１１番５号 ＴＫＫ西新橋ビル５階 Tokyo (JP).

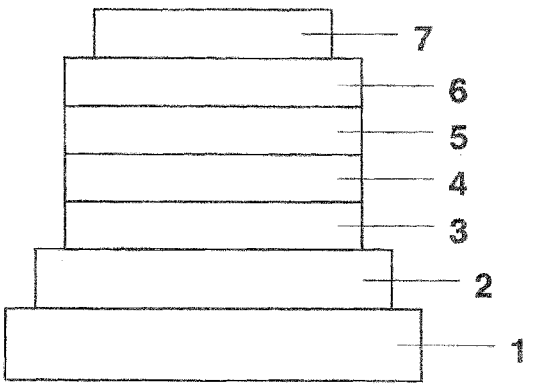
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH,

[続葉有]

(54) **Title**: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称 : 有機電界発光素子

[図1]



(57) **Abstract**: Disclosed is a highly reliable organic electroluminescent element, in particular a phosphorescent organic EL element using a low-molecular-weight host material, wherein the balance between electron and hole injection and an efficient phosphorescent mechanism are maintained. The organic electroluminescent element comprises a light-emitting layer between a positive electrode layer and a negative electrode layer, and the light-emitting layer contains a phosphorescent dopant material and a host material that has a molecular weight of not more than 10,000. The host material is composed of a first host material and a second host material that is different from the first host material. The difference of ionization potential (IP) between the first host material and the second host material is not more than 0.1 eV, the difference of electron affinity (EA) between the first host material and the second host material is not more than 0.1 eV, and the difference of triplet energy (T1) between the first host material and the second host material is not more than 0.1 eV.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2010/098246 A1

PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

低分子ホスト材料を用いる燐光有機ＥＬ素子において、電子・正孔の注入バランスと効率的な燐光発光機構を保ちながら、信頼性の高い有機電界発光素子を提供する。　この有機電界発光素子は、陽極層及び陰極層の両電極層間に発光層を有し、発光層がりん光ドーパント材料と分子量 10,000 以下のホスト材料を含有し、前記ホスト材料は第一のホスト材料と第一のホスト材料とは異なる第二のホスト材料からなり、第一のホスト材料と第二のホスト材料のイオン化ポテンシャル（ＩＰ）値の差が０．１ｅＶ以下、電子親和力（ＥＡ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ三重項エネルギー（Ｔ１）値の差が０．１ｅＶ以下であるホスト材料を用いる。

明　細　書

発明の名称 ： 有機電界発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、燐光ドーパント材料とホスト材料を併用することにより高輝度率を示す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）は、その最も簡単な構造として発光層及び該層を挟んだ一対の対向電極から構成される。この両電極間に電界を印加すると陰極から電子が、陽極から正孔が注入され、これらが発光層において再結合することでエキシトンを生成し、そのエネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーとして光を放出する現象を利用する。

[0003] 有機ＥＬ素子は、その発光メカニズムによって、蛍光有機ＥＬ素子と燐光有機ＥＬ素子とに分類される。燐光有機ＥＬ素子の発光層は、一般的に燐光ドーパント材料とホスト材料により構成される。このような燐光ドーパント材料を発光に利用すれば、７５％の生成確率を有する三重項状態のエキシトンを利用することができるため、２５％の生成確率を有する一重項エキシトンを利用する蛍光有機ＥＬ素子より高い発光効率を有しうる。

[0004] 近年、このような高い発光効率を有しうる燐光有機ＥＬ素子分野において、その発光層に用いられるホスト材料として低分子ホスト材料が盛んに研究・開発されている。その大きな理由の一つとして、ホスト材料として使用される低分子化合物は昇華、カラムクロマトグラフィー、再結晶等の精製手法により高純度化しやすい点が挙げられる。低分子ホスト材料は、高純度化することで不純物由来のエネルギートラップサイトが減少し、電極から注入された電子や正孔、あるいはエキシトンの熱失活が最小限に抑制され、その結果、高性能な素子となるが、一方で低分子ホスト材料は、高純度化するほど結晶性が高くなるという低分子化合物全般にみられる特性をもっている。そのため、高純度な低分子ホスト材料を用いた発光層は、素子作動時に発生す

る微弱な熱により一部が微細結晶化し、発光層のアモルファス性が損なわれることで素子特性が低下する問題点がある。この特性は、発光層をウェットプロセス製膜する場合に、より顕著に影響する。これは、ウェットプロセス製膜では、低分子ホスト化合物の溶液を塗布後、溶媒を蒸発させる乾燥工程の際に一時的に高濃度溶液となり結晶化が起きやすい状態を経るためと考えられている。このことが、蒸着プロセスでは高性能を示す低分子ホスト材料がウェットプロセスには適用できない大きな問題点となっている。

[0005] これらの問題点を解決するために、ベースとなる低分子ホスト材料に、少なくとも１つ以上の他の低分子ホスト材料を混合して発光層のアモルファス安定性を確保する方法が開示されている。例えば、非晶質ポリマー材料を混合する方法（特許文献１）や、電荷注入及び電荷輸送補助材料（特許文献２～６）を混合する方法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開２００２－２０３６７４号公報

特許文献2：特開平１１－３５４２７９号公報

特許文献3：特開２００３－０６８４６６号公報

特許文献4：特開２００４－３３５２０４号公報

特許文献5：特開２００６－１３５２９５号公報

特許文献6：特開２００６－１４８０４５号公報

[0007] しかしながら、これらの方法では、第二のホスト材料の分子パラメーターであるイオン化ポテンシャル（以下、ＩＰという）、電子親和力(以下、ＥＡという)、三重項励起エネルギー準位（以下、Ｔ１という）が、第一のホスト材料のＩＰ、ＥＡ、Ｔ１値と異なるため、第二のホスト材料の混合により電子・正孔の注入量が大きく変化したり、Ｔ１値の低い第二のホスト材料が混合されることにより本来の発光色が維持できないなどの素子特性低下を生じる問題点がある。

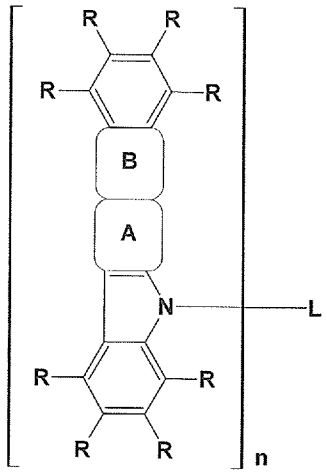
発明の概要

[0008] 本発明の目的は、低分子ホスト材料を用いる燐光有機ＥＬ素子において、電子・正孔の注入バランスと効率的な燐光発光機構を保ちながら、素子の作動時に発生する微弱な熱による材料の結晶化を抑制することにより、ウェットプロセス製膜する場合において、結晶化を抑制することが可能な低分子ホスト材料を提供し、信頼性の高い有機電界発光素子を提供することにある。

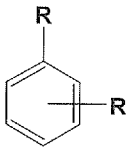
[0009] 本発明は、陽極及び陰極の間にウェットプロセスにより製膜された発光層を有する有機電界発光素子であって、発光層がりん光ドーパント材料と分子量10,000以下のホスト材料を含有し、前記ホスト材料は第一のホスト材料と第一のホスト材料とは異なる第二のホスト材料からなり、第一のホスト材料と第二のホスト材料の重量比が９０：１０～１０：９０であり、第一のホスト材料と第二のホスト材料のイオン化ポテンシャル（ＩＰ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ電子親和力（ＥＡ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ三重項エネルギー（Ｔ１）値の差が０．１ｅＶ以下であることを特徴とする有機電界発光素子に関する。

[0010] 上記第一のホスト材料又は第二のホスト材料としては、インドロカルバゾール誘導体及びトリアジン誘導体からなる群れから選ばれる複素環化合物が好ましく挙げられる。

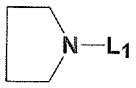
[0011] 上記複素環化合物としては、下記式（１）で表わされる化合物が挙げられる。



（１）



（１ａ）

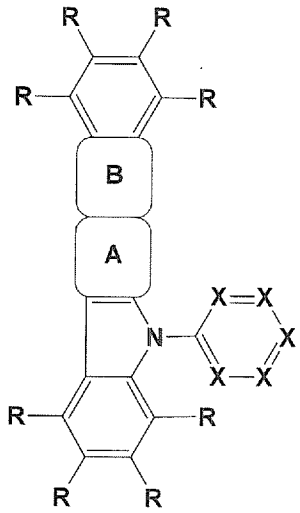


（１ｂ）

式（１）中、環Ａは隣接環と任意の位置で縮合する式（１ａ）で表される芳香環を表し、環Ｂは隣接環と任意の位置で縮合する式（１ｂ）で表される複素環を表す。式（１）、（１ａ）中のＲは、独立に水素又は１価の置換基であり、隣接する置換基が一体となって環を形成してもよい。式（１ｂ）中のL_1は、独立に芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示す。Ｌは、ｎ価の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示し、ｎは１～４である。ｎが２以上の場合は、環Ａ、Ｂを含む縮合複素環は同一であっても異なっていても良い。

[0012] また、第一のホスト材料又は第二のホスト材料としては、下記式（２）又は（３）で表わされる複素環化合物が好ましく挙げられる。

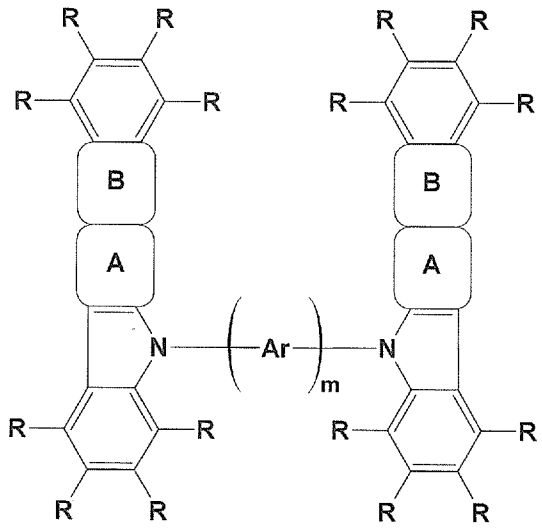
[0013]



（２）

式（２）中、環Ａ、環Ｂ、及びＲは式（１）と同意であり、Ｘは各々独立にＣ-Ｈ、Ｎ、Ｃ－Ｌ$_2$の何れかである。ここで、Ｌ$_2$は、独立に芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。

[0014]



（３）

式（３）中、環Ａ、環Ｂ、及びＲは式（１）と同意であり、環Ａ、Ｂを含む縮合複素環は同一であっても異なっていても良い。Ａｒは、独立にフェニレン基又は２価の芳香族複素環基を表す。ｍは１～５である。

[0015] また、本発明は、第一のホスト材料と第二のホスト材料が、式（２）又は

（３）で表される複素環化合物から選ばれる２種の複素環化合物である有機電界発光素子に関する。

[0016] 第一のホスト材料と第二のホスト材料の重量比は、７５：２５～２５：７５であることが好ましい。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本発明の有機ＥＬ素子の一例を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明の有機ＥＬ素子は、陽極（陽極層ともいう）及び陰極（陰極層ともいう）と、陽極及び陰極間に挟まれた有機層を有する。そして、有機層の少なくとも１層は発光層である。素子の層構成としては特に限定されず、代表的な素子構成として図１に示すような構成が挙げられる。本発明の有機ＥＬ素子では、基板1、陽極2、発光層5及び陰極7を必須の層として有するが、その他の層を必要に応じて設けることにより素子性能を向上させることができる。図１に示す有機ＥＬ素子は、基板1、陽極2、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6及び陰極7の順に積層されているが、必要により必須の層以外は省略されてもよく、また必要により上記以外の層が追加又は置換されてもよい。

[0019] 本発明の有機ＥＬ素子の発光層は、燐光ドーパント材料と分子量10,000以下のホスト材料を含有し、ホスト材料は第一のホスト材料と第二のホスト材料からなる。第二のホスト材料は第一のホスト材料とは異なる少なくとも１種のホスト材料である。そして、説明の都合上、最初に選択されるホスト材料を第一のホスト材料とし、他のホスト材料を第二のホスト材料という。第二のホスト材料は２種以上の化合物を含んでもよいが、１種であることが好ましい。２種以上の化合物を含む場合は、いずれの化合物も第一のホスト材料に対してＩＰ、ＥＡ、Ｔ１値が下記要件を満足する。

[0020] 第二のホスト材料は、第一のホスト材料の結晶化を抑制するために有効である。高輝度率の素子は、ホスト材料のＩＰ、ＥＡ、Ｔ１値が適正な値に既に調整されているため、第二のホスト材料の混合の際には、高輝度率を維持

する観点から、第二のホスト材料のＩＰ、ＥＡ及びＴ１値は、第一のホスト材料のＩＰ、ＥＡ及びＴ１値と同じ値であることが望ましいが、これらの値は分子構造から算出される固有の値であり、この３つの値が全て同じ化合物は実際には存在しない。しかし、第一のホスト材料と第二のホスト材料のＩＰ、ＥＡ及びＴ１値の差が各々０．１０ｅＶ以下であれば、高輝度率な素子特性を維持しながら、発光層の結晶化を抑制し、良好な発光特性を長期間保持することができることが見出された。

[0021] 第一ホスト材料及び第二のホスト材料のＩＰ及びＥＡ値は、ホスト材料となる化合物の分子構造を基に、化合物固有の値として、順にＨＯＭＯエネルギー、ＬＵＭＯエネルギーの符号をかえた値として算出することができる。この関係は、ハートリーフォック近似下ではクープマンズの定理(Koopmans' theorem)、密度汎関数理論においてはヤナックの定理(Janak theorem)として定義されている。例えば、ＨＯＭＯエネルギー、ＬＵＭＯエネルギーの値（ｅＶ単位換算値）は、分子軌道法プログラムGaussian03rev.C02を使用して密度汎関数理論（ＤＦＴ）法を用いた構造最適化計算により算出することができる。また、Ｔ１値は、ホスト材料となる化合物の分子構造を基に、化合物固有の値として算出される励起３重項の励起エネルギーの最も低い値として算出することができる。励起３重項の励起エネルギーの値は、例えば、分子軌道法プログラムGaussian03rev.C02を使用し、密度汎関数理論（ＤＦＴ）計算を用いて構造最適化を行った後、最適化された構造を基に時間依存密度汎関数理論（ＴＤ－ＤＦＴ）計算を行うことで算出することができる。本発明において、ＩＰ、ＥＡ、Ｔ１値の算出方法については特に制限されないが、計算手法による誤差を避けるため、第一のホスト材料と第二のホスト材料は同一の計算方法を用いる。

[0022] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料となる化合物は、有機ＥＬ素子のホスト材料に適用可能であれば特に制限されない。分子量10,000以下の低分子化合物であり、好ましくは500～5,000である。ホスト材料として有用な化合物は多くの特許文献等により知られており、これらから選択されて使用さ

れる。

[0023] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料として適した化合物は、カルバゾール基、インドロカルバゾール基、オキサジアゾール基、トリアジン基等を有する電荷輸送性の複素環化合物である。好ましくは、インドロカルバゾール誘導体及びトリアジン誘導体からなる群から選ばれる複素環化合物が挙げられる。ここで、インドロカルバゾール誘導体はインドロカルバゾール骨格を有する化合物であり１以上の置換基を有することができる。好ましい置換基としてトリアジン環を有する置換基がある。また、トリアジン誘導体は、トリアジン環を有する化合物であり１以上の置換基を有することができる。なお、置換基としてトリアジン環を有するインドロカルバゾール誘導体は、トリアジン誘導体でもある。

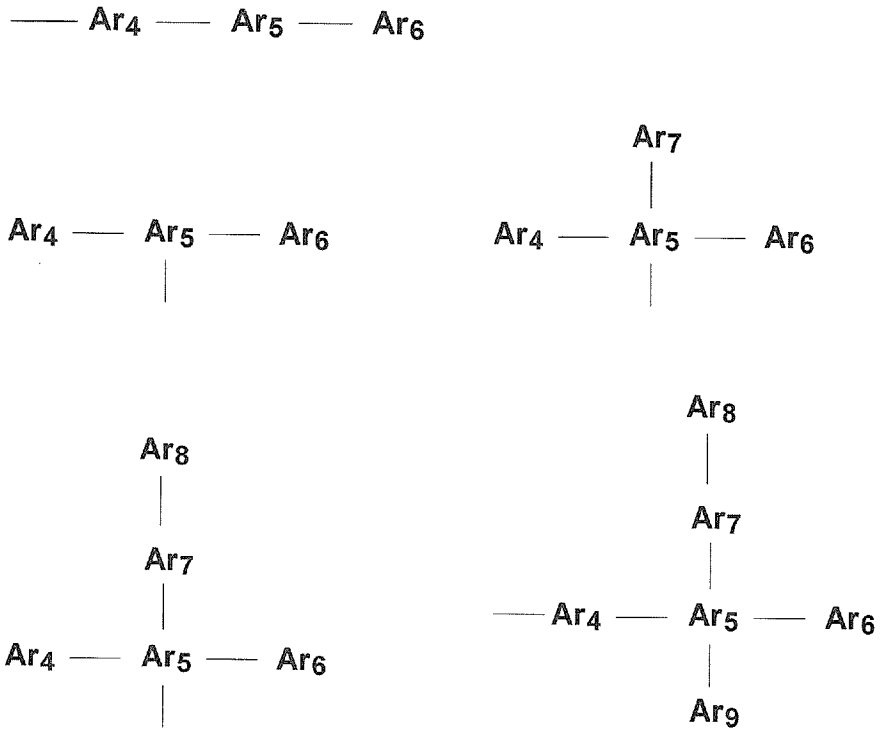
[0024] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料として適した複素環化合物としては、上記式（１）で表わされる化合物が好適に使用でき、より好ましくは式（２）又は（３）で表わされる化合物である。式（１）、（２）又は（３）において、環Ａは式（１ａ）で表される芳香環であり、環Ｂは式（１ｂ）で表される複素環である。そして、環Ａと環Ａより下側のインドール環とで構成される3環の縮合環をカルバゾール環とすれば、環Ｂで表される複素環は、Ｎを1位とすると2,3-位、4,5-位、及びその逆の位置と、隣接するカルバゾール環の1,2-位、2,3-位、及び3,4-位の位置で縮合することができるので、式（１）、（２）又は（３）の環Ａ、環Ｂを含む縮合複素環には５種類の異性体がある。この縮合複素環はインドロカルバゾール環である。

[0025] 式（１）において、Ｌはｎ価の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示し、好ましくはｎ価の炭素数６～１００の芳香族炭化水素基又はｎ価の炭素数３～１００の芳香族複素環基であり、ｎ価の炭素数６～３６の芳香族炭化水素基又はｎ価の炭素数３～３５の芳香族複素環基がより好ましい。これら芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基は置換基を有していてもよく、２つ以上の置換基を有する場合は、同一であっても異なっていても良い。炭素数の計算にはそれら置換基の炭素数を含む。

[0026] 好ましい芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基としては、ベンゼン、ペンタレン、インデン、ナフタレン、アズレン、ヘプタレン、オクタレン、インダセン、アセナフチレン、フェナレン、フェナンスレン、アントラセン、トリンデン、フルオランテン、アセフェナントリレン、アセアントリレン、トリフェニレン、ピレン、クリセン、テトラフェン、テトラセン、プレイアデン、ピセン、ペリレン、ペンタフェン、ペンタセン、テトラフェニレン、コラントリレン、ヘリセン、ヘキサフェン、ルビセン、コロネン、トリナフチレン、ヘプタフェン、ピラントレン、オバレン、コラヌレン、フルミネン、アンタントレン、ゼトレン、テリレン、ナフタセノナフタセン、トルキセン、フラン、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、キサンテン、オキサトレン、ジベンゾフラン、ペリキサンテノキサンテン、チオフェン、チオキサンテン、チアントレン、フェノキサチイン、チオナフテン、イソチアナフテン、チオフテン、チオファントレン、ジベンゾチオフェン、ピロール、ピラゾール、テルラゾール、セレナゾール、チアゾール、イソチアゾール、オキサゾール、フラザン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インドリジン、インドール、イソインドール、インダゾール、プリン、キノリジン、イソキノリン、カルバゾール、インドロカルバゾール、イミダゾール、ナフチリジン、フタラジン、キナゾリン、ベンゾジアゼピン、キノキサリン、シンノリン、キノリン、プテリジン、フェナントリジン、アクリジン、ペリミジン、フェナントロリン、フェナジン、カルボリン、フェノテルラジン、フェノセレナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、アンチリジン、テベニジン、キンドリン、キニンドリン、アクリンドリン、フタロペリン、トリフェノジチアジン、トリフェノジオキサジン、フェナントラジン、アントラジン、ベンゾチアゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾイソオキサゾール、ベンゾイソチアゾール又はこれら芳香環が複数連結された芳香族化合物からｎ個の水素を除いて生じる基等が挙げられる。より好ましくはベンゼン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インドール、カルバゾール又はこれら芳香環が複数連結され

た芳香族化合物からｎ個の水素を除いて生じる基が挙げられる。なお、芳香環が複数連結された芳香族化合物から生じる基である場合、連結される数は２～１０が好ましく、より好ましくは２～５であり、連結される芳香環は同一であっても異なっていても良い。その場合、環Ａ、Ｂを含むインドロカルバゾール環のＮと芳香環が複数連結された芳香族化合物の結合位置は限定されず、連結された芳香環の末端部の環であっても中央部の環であってもよい。また、連結された芳香環に芳香族複素環が含まれる場合、芳香族複素環基に含める。ここで、芳香環は芳香族炭化水素環及び芳香族複素環を総称する意味である。

[0027] ここで、芳香環が複数連結されて生じる基は、ｎ＝１の場合、例えば、下記式で表わされる。



（Ａｒ$_4$～Ａｒ$_9$は、置換又は無置換の芳香環を示す）

[0028] 上記芳香環が複数連結されて生じる基の具体例としては、例えばビフェニル、ターフェニル、ビピリジン、ビピリミジン、ビトリアジン、ターピリジ

ン、ビストリアジルベンゼン、ジカルバゾリルベンゼン、カルバゾリルビフェニル、ジカルバゾリルビフェニル、インドロカルバゾリルトリアジン、フェニルターフェニル、カルバゾリルターフェニル、ビナフタレン、フェニルピリジン、フェニルカルバゾール、ジフェニルカルバゾール、ジフェニルピリジン、フェニルピリミジン、ジフェニルピリミジン、フェニルトリアジン、ジフェニルトリアジン、フェニルナフタレン、ジフェニルナフタレン、インドロカルバゾリルベンゼン、インドロカルバゾリルピリジン、インドロカルバゾリルトリアジン等からｎ個の水素を除いて生じる基が挙げられ、より好ましくはベンゼン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インドール、カルバゾールから選ばれる芳香環が連結された芳香族化合物からｎ個の水素を除いて生じる基が挙げられる。

[0029] 前記芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基が置換基を有する場合、置換基の総数は１～１０、好ましくは１～６であり、より好ましくは１～４である。なお、芳香環が複数連結された芳香族化合物から生じる基も同様に置換基を有することができる。好ましい置換基としては炭素数１～２０のアルキル基、炭素数１～２０のアルコキシ基、炭素数１～２０のアルキルチオ基、炭素数１～２０のアルキル置換アミノ基、炭素数２～２０のアシル基、炭素数１２～２４のジアリールアミノ基、炭素数２～１０のアルケニル基、炭素数２～１０のアルキニル基、炭素数２～１０のアルコキシカルボニル基、炭素数１～１０のアルキルスルホニル基、炭素数１～１０のハロアルキル基、アミド基、炭素数２～１０のアルキルアミド基、炭素数３～２０のトリアルキルシリル基、炭素数４～２０のトリアルキルシリルアルキル基、炭素数５～２０のトリアルキルシリルアルケニル基、炭素数５～２０のトリアルキルシリルアルキニル基、シアノ基、ニトロ基、水酸基等が挙げられる。より好ましくはメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、t-ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、i-プロポキシ基、ジフェニルアミノ基があげられる。

[0030] 式（１）中、ｎは１～４を示すが、好ましくは１又は２である。

[0031] 式（１ｂ）中、L_1は独立に芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示すが、これらは前記式（１）中のＬ（ｎ＝１の場合）で説明したと同様である。L_1が置換基を有する場合の置換基も前記式（１）中のＬで説明した置換基と同様である。

[0032] 式（１）、（１ａ）中、Ｒは、独立に水素又は１価の置換基であるが、１価の置換基の場合は、炭素数６～２６の芳香族炭化水素基、炭素数３～２５の芳香族複素環基、炭素数１～２０のアルキル基、炭素数１～２０のアルコキシ基、炭素数１～２０のアルキルチオ基、炭素数１～２０のアルキル置換アミノ基、炭素数２～２０のアシル基、炭素数１２～２４のジアリールアミノ基、炭素数２～１０のアルケニル基、炭素数２～１０のアルキニル基、炭素数２～１０のアルコキシカルボニル基、炭素数１～１０のアルキルスルホニル基、炭素数１～１０のハロアルキル基、アミド基、炭素数２～１０のアルキルアミド基、炭素数３～２０のトリアルキルシリル基、炭素数４～２０のトリアルキルシリルアルキル基、炭素数５～２０のトリアルキルシリルアルケニル基、炭素数５～２０のトリアルキルシリルアルキニル基、シアノ基、ニトロ基、水酸基等が挙げられる。より好ましくは炭素数６～２６の芳香族炭化水素基、炭素数３～２５の芳香族複素環基、炭素数１～２０のアルキル基、炭素数１～２０のアルコキシ基、炭素数１２～２４のジアリールアミノ基であり、具体例としてはフェニル基、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジル基、インドリル基、カルバゾリル基、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、t-ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、i-プロポキシ基、ジフェニルアミノ基等があげられる。Ｒが複数存在する場合は、同一であっても異なっていても良い。

[0033] 式（２）、（３）において、環Ａ、環Ｂ、Ｒは式（１）と同意である。式（２）において、Ｘは独立にＮ、Ｃ-Ｈ又はＣ-L_2を示すが、好ましくはＮが１～３であり、より好ましくはＮが２～３であり、更に好ましくはＮが３である。

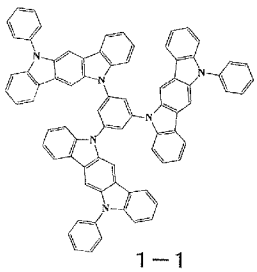
[0034] ここで、式（２）中のＸがＣ-L_2である場合、L_2は独立に芳香族炭化水素

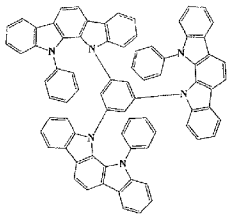
基又は芳香族複素環基を示す。好ましいL_2の具体例は、前記式（１）中のＬで説明したｎ＝１の場合の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基が同様に例示できる。また、L_2が置換基を有する芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基の場合、式（１）中のＬの置換基で説明した置換基と同様である。

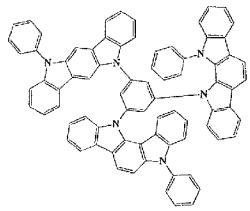
[0035] 式（３）において、Ａｒは、独立にフェニレン基又は２価の芳香族複素環基を示し、好ましくは、ベンゼン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、インドール、カルバゾールから２個の水素を除いた基である。Ａｒが置換基を有する場合は、前記式（１）、（１ａ）中のＲで説明したＲが１価の置換基である場合と同様である。ｍはArの繰り返し数を示し、ｍは１～５であり、好ましくは１～３である。ｍが２以上の場合、Ａｒは同一であっても異なっていても良い。

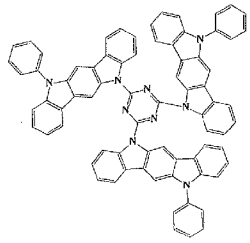
[0036] 以下に、式（１）～（３）で表わされる化合物の具体例を挙げるが、これらに限定されるものではない。化学式に付された番号は化合物番号である。

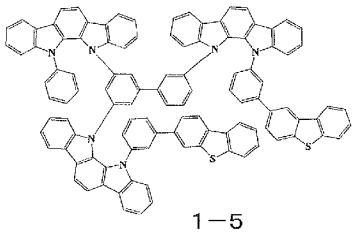
[0037] 式（１）で表わされる化合物を次に示す。

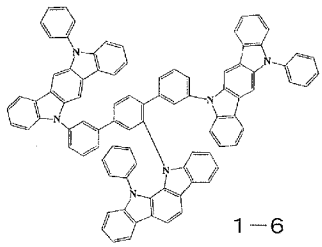

1－1

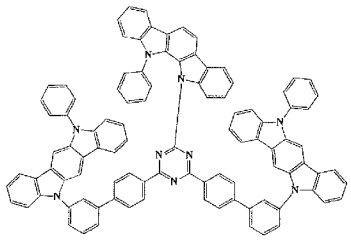

1－2

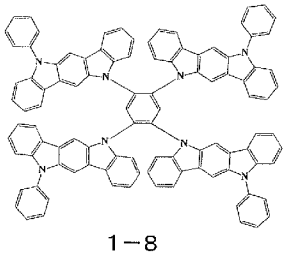

1－3

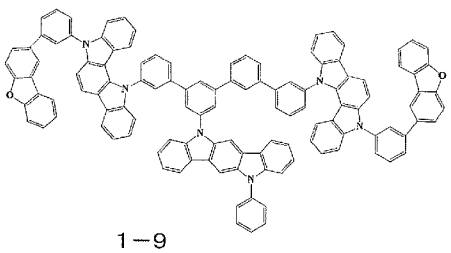

1－4

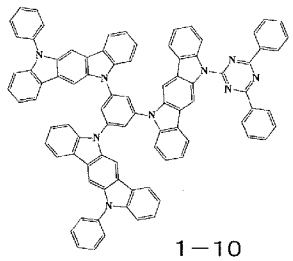

1－5


1－6

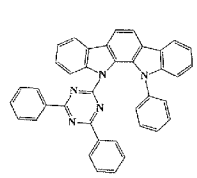

1－7

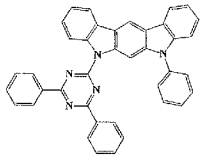

1－8

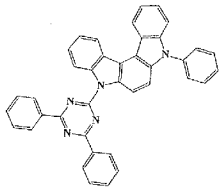

1－9

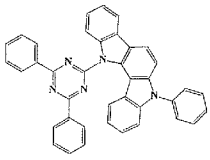

1－10

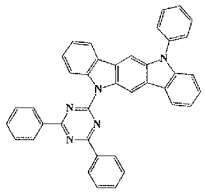
[0038] 式（２）で表わされる化合物を次に示す。

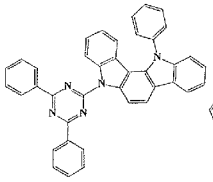

２－１

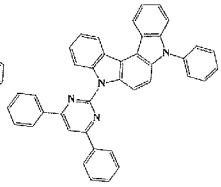

２－２

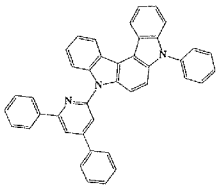

２－３

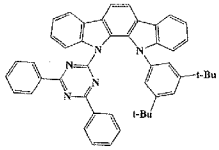

２－４

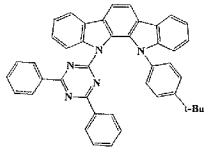

２－５

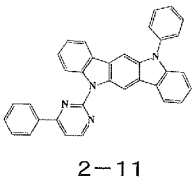

２－６

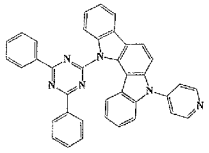

２－７

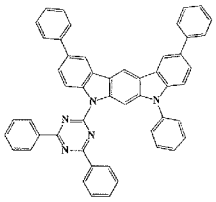

２－８

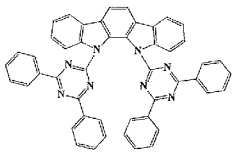

２－９

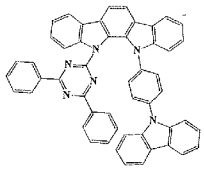

２－１０


２－１１

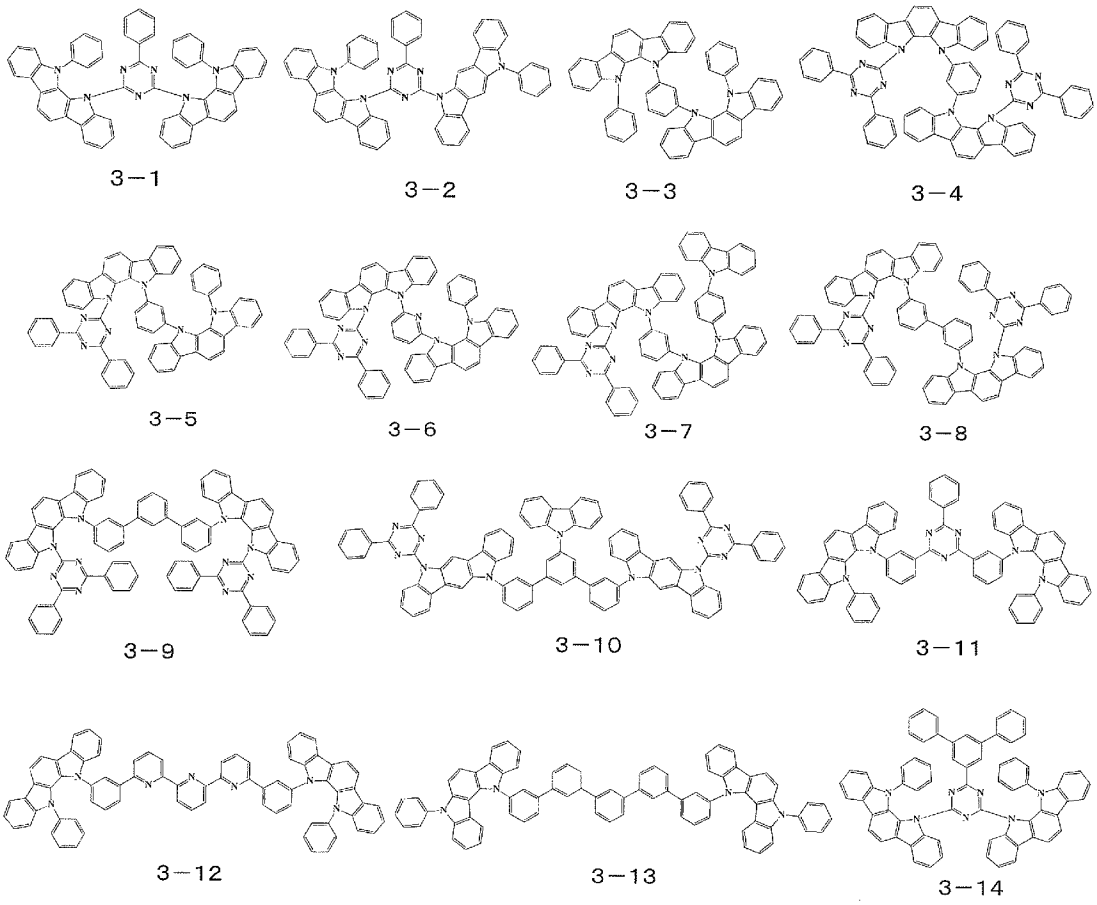

２－１２


２－１３


２－１４


２－１５

[0039] 式（３）で表わされる化合物を次に示す。



[0040] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料として適した化合物は、式（１）、（２）又は（３）以外には、例えば、４，４’－Ｎ，Ｎ’－ジカルバゾールビフェニル（ＣＢＰ）、３－（４’－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４－フェニル－５－（４’－ビフェニル）－１，２，４－トリアゾール（ＴＡＺ）が例示される。

[0041] 第一のホスト材料が上記のようなホスト材料として使用可能な化合物から最初に選択され、次に第二のホスト材料となる化合物が選択される。第一のホスト材料のＩＰ値をIP（1）、ＥＡ値をEA（1）、Ｔ１値をT1（1）とし、第二のホスト材料のＩＰ値をIP（2）、ＥＡ値をEA（2）、Ｔ１値をT1（2）とすれば、IP（1）-IP（2）、EA（1）-EA（2）及びT1（1）-T1（2）は、いずれも±０．１０ｅＶの範囲内となるように選択される。このような関係を全て同時に満たすためには、第一のホスト材料となる化合物と、第二のホスト材料

となる化合物は基本骨格が類似する化合物であることが好ましい。そして、これらのＩＰ値、ＥＡ値、Ｔ１値は、上記のように化合物の構造式から算出可能である。

[0042] 第一のホスト材料及び第二のホスト材料が、式（１）で表される化合物から２種を使用することが好ましく、式（２）又は（３）で表される化合物から２種を使用することがより好ましい。

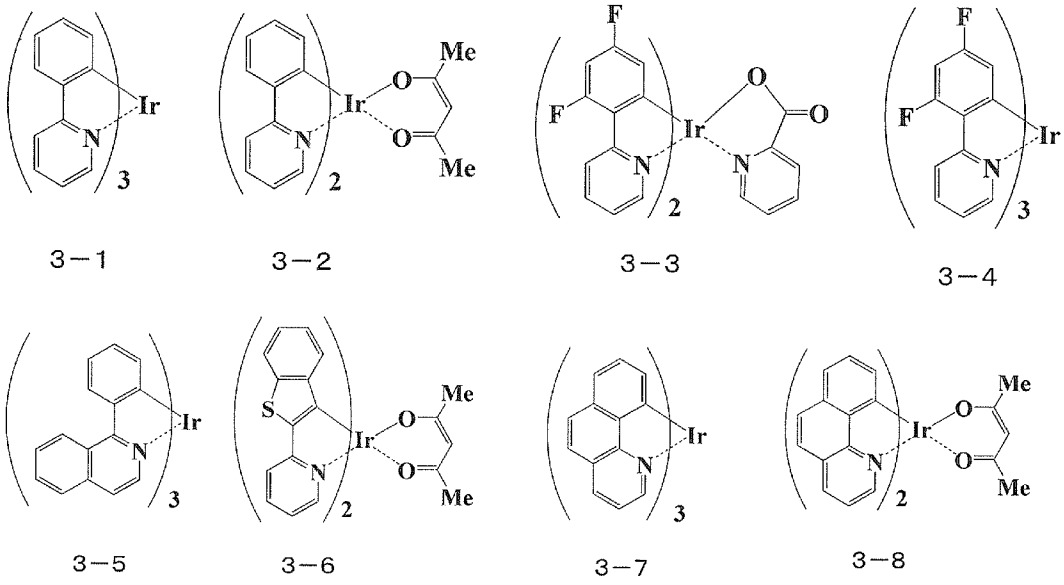
[0043] 本発明の有機ＥＬ素子の発光層は、ホスト材料と燐光ドーパント材料を含み、ホスト材料は第一のホスト材料と第二のホスト材料を含む。

[0044] 第一のホスト材料と第二のホスト材料の使用割合（重量比）は、９０：１０～１０：９０であり、好ましくは７５：２５～２５：７５、更に好ましくは２：１～１：２である。ホスト材料が発光層中に含有される割合は特に制限はないが、５０～９９重量%の範囲にあることが好ましい。

[0045] 燐光ドーパント材料は、発光色、分子構造に何ら制限はないが、好ましくはイリジウム、白金、ルテニウム等の貴金属元素を中心金属として有する錯体類が挙げられる。また、燐光ドーパント材料が発光層中に含有される割合は特に制限はないが、１～５０重量%、好ましくは５～３０重量%の範囲にあることがよい。

[0046] 以下に、燐光ドーパント材料の具体例を挙げるが、これらに限定されるものではないが、使用される燐光発光ドーパントは５８０ｎｍ以下に最大発光波長を有するものが好ましい。

[0047]



[0048] 発光層のウェットプロセスによる製膜方法について特に制限はないが、スピンコート法、スプレー法、ディップ法、ドクターブレード法などのウェットプロセスによる製膜を選択してもよい。第一のホスト材料と第二のホスト材料を使用することにより、特にウェットプロセスによる製膜の際のホスト材料の結晶化を抑制することができ、素子性能を高めることができる。

[0049] ここで、ウェットプロセスは、ホスト材料等の有機ＥＬ素子材料を溶媒に溶解させた塗液を作り、これを基板又は基板上の有機層の上に塗布、乾燥する方法である。

[0050] 塗液の作製方法は、例えば、ホスト材料等の有機ＥＬ素子材料と溶媒を混合・攪拌することで作製することができる。ここで、加熱、超音波照射など材料の溶解を促す処理を行ってもよい。塗液の濃度は特に制限はないが、０．０１～５０ｗｔ％が好ましく、より好ましくは０．１～１０ｗｔ％である。また、必要に応じて、増粘剤、消泡剤、界面活性剤などを添加してもよい。

[0051] 上記塗液を用いた製膜方法としては特に制限はないが、スピンコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレー法、インクジェット法、ディップ法、ドクターブレード法などが挙げられる。乾燥方法としては特

に制限はなく、例えば、ホットプレート上で基板を加熱する方法が挙げられる。乾燥温度は、使用する溶媒により異なるが、好ましくは０～２００℃であり、より好ましくは５０～１５０℃である。

[0052] 塗液に使用する溶媒としては、発光層の構成材料である第一のホスト材料、第二のホスト材料およびドーパント材料の混合物を、固形物が残らないように溶解させることができれば特に制限はなく、２種以上の溶媒を混合して使用してもよい。融点が０℃以下かつ沸点が３０℃以上であることが好ましい。

[0053] 以下に、溶媒の具体例を挙げるが、何らこれらに限定されるものではない。シクロヘキサン、四塩化炭素、テトラクロロエタン、オクチルベンゼン、ドデシルベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン、インダン、メチルナフタレン、デカリン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、Ｎ－メチル－２－ピロリジノン（ＮＭＰ）、ジメチルホルムアミド（ＤＭＦ）、ジメチルアセトアミド、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、エチレングリコール、プロピレングリコール、トリエチレングリコール、ジエチレングリコール、グリセロール、アニソール、フェネトール、テトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン、１，３－ジオキソラン、ジブチルエーテル、メチルアルコール、エチルアルコール、ｎ－プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ｎ－ブチルアルコール、ｓｅｃ－ブチルアルコール、ｔｅｒｔ－ブチルアルコール、イソホロン、アセトン、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン（ＭＩＢＫ）、２－ヘプタノン、テトラロン、クロロホルム、ジクロロメタン、ジクロロエタン、ガンマブチロラクトン、酢酸エチル、炭酸ジエチル、炭酸プロピレン、キノリン、ピリジン、４－エチルモルホリン、アセトニトリル、ブチロニトリル、ニトロエタン、ニトロベンゼン、フルオロベンゼン、ヘキサメチルジシロキサン、ブチルセロソルブ、二硫化炭素、テルピネオール、及びイオン交換水（純水）。

[0054] 次に、本発明の有機ＥＬ素子における発光層以外の各層について説明する

。

基板１としては、一般的な有機電界発光素子で使われる基板であれば特に制限はないが、透明性、表面の平滑性、取扱の容易性及び防水性に優れた有機基板又は透明プラスチック基板、ガラス基板を用いることが好ましい。

[0055] 陽極２は、一般的な有機電界発光素子で使われる材料であれば特に制限はなく、透明かつ電気伝導性に優れた金属又は金属酸化物が好ましい。例えば、酸化インジウムスズ（ＩＴＯ）、酸化インジウム亜鉛（ＩＺＯ）、酸化スズ（SnO_2）、酸化亜鉛（ＺｎＯ）などを使用することができる。

[0056] 正孔注入層３は、陽極の上部にＨＩＬ物質を膜厚５～５００ｎｍの薄膜状に形成される。ＨＩＬ物質は、一般的な有機電界発光素子で使われる材料であれば特に制限はなく、例えば、銅フタロシアニン（ＣｕＰｃ）又はポリ（３，４－エチレンジオキシ）チオフェン・ポリスチレンスルホン酸（ＰＥＤＯＴ・ＰＳＳ）等を使用することができる。薄膜形成方法について特に制限はなく、真空蒸着法に代表される蒸着プロセスはもとより、スピンコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレー法、インクジェット法、ディップ法、ドクターブレード法などのウェットプロセスによる製膜方法を使用することができる。

[0057] 正孔輸送層４は、正孔注入層の上部にＨＴＬ物質を膜厚５～５００ｎｍの薄膜状に形成される。ＨＴＬ材料としては、一般的な有機電界発光素子で使われる材料であれば特に制限はなく、例えば、Ｎ，Ｎ’－ビス（３－メチルフェニル）－Ｎ，Ｎ’－ジフェニル－［１，１’－ビフェニル］－４，４’－ジアミン（ＴＰＤ）、Ｎ，Ｎ’－ジ（ナフタレン－１－イル）－Ｎ，Ｎ’－ジフェニル（１，１’－ビフェニル）－４，４’－ジアミン（α－ＮＰＤ）を使用することができる。また、ポリビニルカルバゾール（ＰＶＫ）等の高分子材料を使用することもできる。薄膜形成方法について特に制限はなく、真空蒸着法に代表される蒸着プロセスはもとより、スピンコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレー法、インクジェット法、ディップ法、ドクターブレード法などのウェットプロセスによる製膜方法を使

用することができる。

[0058] 電子輸送層６は、発光層の上部にＥＴＬ物質を膜厚５～５００ｎｍの薄膜状に形成する。ＥＴＬ物質としては、一般的な有機電界発光素子で使われる材料であれば特に制限はなく、例えば、２－（４－ビフェニル）－５－（ｐ－ｔブチルフェニル）－１，３，４－オキサジアゾール（ｔＢｕ－ＰＢＤ）、２，９―ジメチル－４，７－ジフェニル－１，１０－フェナントロリン（ＢＣＰ）、バソフェナントロリン（Ｂｐｈｅｎ）、トリス（８－ヒドロキシキノレート）アルミニウム（Ａｌｑ３）、ビス（２－メチル－８－ヒドロキシキノレート）－（４－フェニルフェノレート）アルミニウム（Ｂａｌｑ）を使用することができる。薄膜形成方法について特に制限はなく、真空蒸着法に代表される蒸着プロセスはもとより、スピンコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレー法、インクジェット法、ディップ法、ドクターブレード法などのウェットプロセスによる製膜方法を使用することができる。

[0059] 陰極７は、一般的な有機電界発光素子で使われる材料であれば特に制限はなく、電気伝導性に優れた金属材料が好ましい。例えば、Ａｌ、Ｃｓ、Ｅｒなどの金属や、ＭｇＡｇ、ＡｌＬｉ、ＡｌＬｉ、ＡｌＭｇ、ＣｓＴｅなどの合金、あるいはＣａ／Ａｌ、ＭｇＡｌ、Ｌｉ／Ａｌ、Ｃｓ／Ａｌ、Ｃｓ２Ｏ／Ａｌ、ＬｉＦ／Ａｌ、ＥｒＦ３／Ａｌなどの積層構造体を使用することができる。

実施例

[0060] 以下に、本発明を実施例によって更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例の記載に何ら限定されるものではない。

なお、以下の合成例１～５で使用するインドロ［２，３－ａ］カルバゾール、２－クロロ－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン、及び実施例１の化合物２－１については、ＷＯ０８―０５６７４６号公報に記載の方法に従い合成した。また、化合物３－１については、ＷＯ０７―０６３７５４号公報に記載の方法に従い合成した。

[0061] 合成例１

化合物２－９の合成

脱気窒素置換した１Ｌ四ッ口フラスコに、インドロ［２，３－ａ］カルバゾール２８．５３ｇ（１１１．４ｍｍｏｌ）、炭酸カリウム２１．５６ｇ（１５６．０２ｍｍｏｌ）、銅粉末３５．４１ｇ（５５７．２１ｍｍｏｌ）、１－ブロモ－３，５－ジ－ｔ－ブチルベンゼン３０．００ｇ（１１１．４ｍｍｏｌ）、テトラエチレングリコールジメチルエーテル４５０ｇを入れ、内温２０５℃で２４時間攪拌した。室温まで冷却後、ろ過助剤を用いて固形分をろ別し、ろ液を減圧下濃縮した。次いで、シリカゲルカラムにて分画・精製し、白色固体７．４２ｇを得た。この白色固体のＦＤ－ＭＳスペクトルは、４４５（ＭＨ+、ｂａｓｅ）であった。

[0062] 次に、脱気窒素置換した３００ｍｌナスフラスコに、得られた白色固体７．４２ｇ（１６．７１ｍｍｏｌ）、脱水ジメチルホルムアミド１５０ｇを入れ、水素化ナトリウム１．３６ｇ（５８．８％ｉｎオイル、３３．４ｍｍｏｌ）を数回に分けて投入した。水素発生がおさまった後、２－クロロ－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン４．６９ｇ（１７．５５ｍｍｏｌ）の５０ｇジメチルホルムアミド溶液を滴下した。滴下終了後、室温下で４８時間攪拌した。蒸留水で過剰の水素化ナトリウムをクエンチした。この反応混液を、激しく攪拌している蒸留水１０００ｇ中に滴下し、析出した固形物をろ取した。この固形分をメタノールで洗浄した後、減圧下８０℃で一昼夜乾燥し、粗生成物６．２９ｇを得た。この粗生成物を再結晶精製し、白色結晶３．３６ｇを得た。この白色結晶のＦＤ－ＭＳスペクトルを測定したところ、６７５（Ｍ+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、この白色結晶が化合物２－９であることを確認した。

[0063] 合成例２

化合物２－１０の合成

脱気窒素置換した５００ｍＬ三ッ口フラスコに、インドロ［２，３－ａ］カルバゾール９．８４ｇ（３８．４ｍｍｏｌ）、炭酸カリウム１５．９４ｇ

（１１５．３３ｍｍｏｌ）、銅粉末１２．２２ｇ（１９２．２２ｍｍｏｌ）、４－ｔ－ブチルヨードベンゼン１０．００ｇ（３８．４ｍｍｏｌ）、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン１５０ｇを入れ、内温２０５℃で２０時間攪拌した。室温まで冷却後、ろ過助剤を用いて固形分をろ別し、ろ液を減圧下濃縮した。ろ液を分液ロートに移し、酢酸エチル７００ｍｌ、１０％塩酸を加えて、０．５時間静置し、下層を廃棄した。上層を蒸留水、飽和食塩水で洗浄、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒を減圧留去し、褐色固体を得た。シリカゲルカラムにて精製後、ジクロロメタン－エタノールで再結晶を行い、白色結晶６．３０ｇを得た。この白色固体のＦＤ－ＭＳスペクトルは、３８９（ＭＨ+、ｂａｓｅ）であった。

[0064] 次に、脱気窒素置換した１Ｌナスフラスコに、得られた白色固体６．３０ｇ（１６．２４ｍｍｏｌ）、脱水ジメチルホルムアミド２００ｇを入れ、水素化ナトリウム０．７２ｇ（６０．２％ｉｎオイル、１７．８６ｍｍｏｌ）を数回に分けて投入した。水素発生がおさまった後、２－クロロ－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン４．７８ｇ（１７．８６ｍｍｏｌ）の５０ｇジメチルホルムアミド溶液を滴下した。滴下終了後、室温下で７２時間攪拌した。蒸留水で過剰の水素化ナトリウムをクエンチした。この反応混液を、激しく攪拌している蒸留水２６０ｇ中に滴下し、析出した固形物をろ取した。この固形分をメタノールで５０℃で３時間リスラリー洗浄した後、減圧下８０℃で一昼夜乾燥し、粗生成物８．３９ｇを得た。この粗生成物をジクロロメタンで再結晶精製し、微黄色結晶３．３１ｇを得た。この微黄色結晶のＦＤ－ＭＳスペクトルにて、６２０（ＭＨ+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、この微黄色結晶が化合物２－１０であることを確認した。

[0065] 合成例３

化合物３－４の合成

脱気窒素置換した１Ｌ四ツ口フラスコに、インドロ［２，３－ａ］カルバゾール４５．０ｇ（０．１７６ｍｏｌ）、炭酸カリウム７２．９ｇ（０．５２７ｍｏｌ）、銅粉末５５．９ｇ（０．８７９ｍｏｌ）、１，３－ジヨード

ベンゼン２９．０ｇ（０．０８８ｍｏｌ）、テトラエチレングリコールジメチルエーテル６３８ｇを入れ、内温２０５℃で１８時間攪拌した。室温まで冷却後、ろ過助剤を用いて固形分をろ別した。得られたろ液を分液ロートに移し、１０重量%塩酸１４００ｇを加えた後、酢酸エチル２１００ｇで抽出した。酢酸エチル層を蒸留水、飽和食塩水で順に洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥、吸水した硫酸マグネシウムを吸引ろ過で除去後、溶媒を減圧留去した。残渣をジクロロメタンリスラリー、トルエンリスラリーを順に行い、減圧下８０℃で乾燥し、白色固体２９．０８ｇを得た。この白色固体のＦＤ－ＭＳスペクトルは、５８７（ＭＨ+、ｂａｓｅ）であった。

[0066] 次に、脱気窒素置換した１Ｌ四ッ口フラスコに、得られた白色固体２７．０９ｇ（４６．２３ｍｍｏｌ）、脱水ジメチルホルムアミド６００ｇを入れ、水素化ナトリウム７．４０ｇ（６０．０%ｉｎオイル、０．１８５ｍｏｌ）を数回に分けて投入した。水素発生がおさまった後、２－クロロ－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン２５．９７ｇ（０．０９７ｍｏｌ）の２００ｇジメチルホルムアミド溶液を滴下した。滴下終了後、室温下で２０時間攪拌した。蒸留水で過剰の水素化ナトリウムをクエンチした。次いで蒸留水４００ｇを装入し、析出した固形物をろ取した。この固形物をトルエンで再結晶し、微黄色結晶１２．６９ｇを得た。この微黄色結晶のＦＤ－ＭＳスペクトルを測定したところ、１０４９（ＭＨ+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、この白色結晶が化合物３－４であることを確認した。

[0067] 合成例５

化合物３－９の合成

脱気窒素置換した２Ｌ四ッ口フラスコに、１，３－ジヨードベンゼン３６．９６ｇ（０．１１２ｍｏｌ）、３－ブロモフェニルボロン酸４５．００ｇ（０．２２４ｍｏｌ）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）４．２７ｇ（３．７ｍｍｏｌ）、エタノール２２５ｍｌ、トルエン６０３ｍｌを入れ、室温で攪拌した。この溶液に、炭酸ナトリウム１４２．２ｇ（１．３４２ｍｏｌ）、蒸留水２９７ｇを装入し、内温７５℃にて１９時

間攪拌した。室温まで冷却し、水層を抜き出した後、有機層を飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥、吸水した硫酸マグネシウムを吸引ろ過で除去後、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムにて精製し、茶色油状物４２．１３ｇを得た。これを０．２ｋＰａの減圧下にて蒸留精製し、留出温度２２０～２３４℃を分画し、無色油状物２１．５５ｇを得た。ＦＤ－ＭＳスペクトルにて、３８６、３８８、３９０（M+、ｂａｓｅ、１：２：１強度比）のピークが観測され、１，３－ビス（３－ブロモフェニル）ベンゼンであることを確認した。

[0068] 脱気窒素置換した５００ｍＬ三ツ口フラスコに、インドロ［２，３－ａ］カルバゾール２０．０ｇ（７８．１ｍｍｏｌ）、炭酸カリウム３１．１１ｇ（２２５．１ｍｍｏｌ）、銅粉末２４．８５ｇ（３９１．０ｍｍｏｌ）、１，３－ビス（３－ブロモフェニル）ベンゼン１５．２１ｇ（３９．２ｍｍｏｌ）、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン３００ｇを入れ、内温２１０℃で２３時間攪拌した。室温まで冷却後、ろ過助剤を用いて固形分をろ別した。得られたろ液を分液ロートに移し、１０重量%塩酸１０００ｍｌを加えた後、酢酸エチル７００ｇで抽出した。酢酸エチル層を飽和食塩水で順に洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥、吸水した硫酸マグネシウムを吸引ろ過で除去後、溶媒を減圧留去した。残渣をジクロロメタンリスラリー洗浄を行い、減圧下８０℃で乾燥し、白色固体１３．２４ｇを得た。この白色固体のＦＤ－ＭＳスペクトルは、７３８（M+、ｂａｓｅ）であった。

[0069] 次に、脱気窒素置換した１Ｌ四ツ口フラスコに、上記白色固体１３．１５ｇ（１７．８２ｍｍｏｌ）、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン２８０ｇを入れ、水素化ナトリウム２．８４ｇ（６０．２%ｉｎオイル、７１．２８ｍｍｏｌ）を数回に分けて投入した。水素発生がおさまった後、２－クロロ－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン１１．９２ｇ（４４．５６ｍｍｏｌ）の６０ｇの１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン溶液を滴下した。滴下終了後、室温下で２０時間攪拌した。蒸留水で過剰の水素化ナトリウムをクエンチした。反応混液を分液ロートに移し、蒸留水７００ｇ

を入れた後、酢酸エチル７００ｇで抽出した。酢酸エチル層を蒸留水７００ｇで２回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥、吸水した硫酸マグネシウムを吸引ろ過で除去後、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムにて精製後、減圧下８０℃で一夜乾燥し、アモルファス状白色固体１０．７２ｇを得た。この固体をテトラヒドロフラン－アセトニトリルにて再結晶精製を行い、微黄色結晶３．１６ｇを得た。この微黄色結晶のＦＤ－ＭＳスペクトルを測定したところ、１２０１（ＭＨ+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、この結晶が化合物３－９であることを確認した。

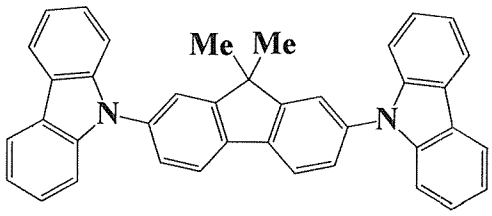
[0070] 合成例６

化合物３－１４の合成

ＷＯ０７—０６３７５４号公報記載の化合物３－１の合成方法において、フェニルボロン酸を（３，５－ジフェニル）フェニルボロン酸に変更した以外は同様にして、化合物３－１４を合成した。ＦＤ－ＭＳスペクトルを測定したところ、９７０（Ｍ+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、化合物３－１４であることを確認した。

[0071] 合成例７

化合物Ａの合成

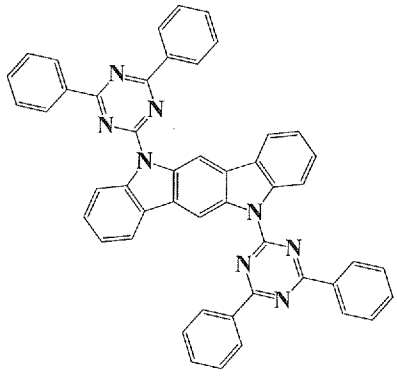


（Ａ）

特開２００５－２３９７０３号公報に記載の方法と同様にして、化合物Ａを合成した。ＦＤ－ＭＳスペクトルを測定したところ、５２４（Ｍ+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、化合物Ａであることを確認した。

[0072] 合成例８

化合物Ｂの合成

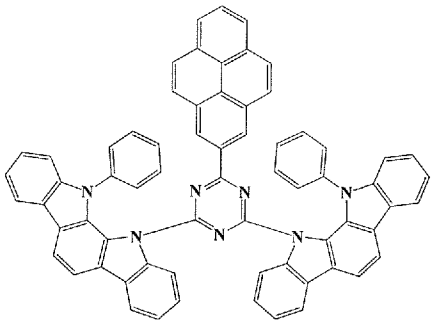


（Ｂ）

ＷＯ０８—０５６７４６号公報の実施例４記載の方法に従い、化合物Ｂを合成した。

[0073] 合成例９

化合物Ｃの合成



（Ｃ）

ＷＯ０７—０６３７５４号公報記載の化合物３－１の合成方法において、フェニルボロン酸をピレン－２-イルボロン酸に変更した以外は同様にして、化合物Ｃを合成した。ＦＤ－ＭＳスペクトルを測定したところ、９４１（M+、ｂａｓｅ）のピークが観測され、化合物Ｃであることを確認した。

[0074] 参考例１

前述の合成例で得た化合物２－９、２－１０、３－４、３－９、３－１４、化合物２－１、３－１、及び化合物Ａ、Ｂ、Ｃについて、ＩＰ、ＥＡ及びＴ１値を算出した。

ＩＰ、ＥＡ、Ｔ１値は、分子軌道法プログラムGaussian03rev.C02を使用し

て、密度汎関数理論（ＤＦＴ）法を用いた構造最適化計算により計算した。ＩＰ値、ＥＡ値は、B3LYP/6-31G＊レベルの構造最適化計算を行うことにより計算されたＨＯＭＯエネルギー、ＬＵＭＯエネルギーの符号をかえた値（ｅＶ単位換算値）とした。Ｔ１値は、B3LYP/6-31G*レベルの構造最適化計算を行った後、最適化された構造を基にTD-B3LYP/6-31G*レベルで励起３重項の最も低い励起エネルギーを算出した。各化合物の計算値は、表１に示した。

[0075] [表1]

化合物	T1 値	IP 値	EA 値
2-1	2.78	5.26	1.87
2-9	2.74	5.22	1.88
2-10	2.74	5.21	1.87
3-1	2.81	5.28	1.80
3-4	2.79	5.35	1.87
3-9	2.79	5.25	1.92
3-14	2.79	5.29	1.82
A	2.78	5.24	1.29
B	2.75	5.46	1.90
C	2.12	5.28	1.85

[0076] 実施例１（比較）

図１において正孔輸送層を省略し、電子注入層を追加した構成の有機ＥＬ素子を作製した。ＵＶオゾン洗浄及び乾燥工程を経た膜厚１５０ｎｍのＩＴＯからなる陽極が形成されたガラス基板上に、正孔注入層として、ＰＥＤＯＴ・ＰＳＳ（Ｂａｙｔｒｏｎ　Ｐ　ＣＨ８０００）の２０重量%エタノール溶液を、回転数３０００ｒｐｍで６０秒間スピンコート製膜し、２００℃で６０分間乾燥した。このときの膜厚は２５ｎｍであった。次に、発光層とし

て、ホスト材料が化合物２－１（３８．０重量部）、燐光ドーパント材料がトリス（２－フェニルピリジン）イリジウム（Ｉｒ（ｐｐｙ）３）（２．０重量部）、ジクロロメタン（２８４０重量部）の混合溶液を、回転数４０００ｒｐｍで３０秒間スピンコート製膜し、１２０℃にて３０分間乾燥した。このときの発光層の膜厚は７０ｎｍであった。次に、電子輸送層として、トリス（８－ヒドロキシキノリン）アルミニウム（Ａｌｑ３）を真空蒸着法にて、蒸着レート０．１ｎｍ／ｓｅｃにて３５ｎｍの厚さで製膜した。更に電子注入層として、真空蒸着法にてフッ化リチウム（ＬｉＦ）を０．５ｎｍの厚さに形成した。最後に電子注入層上に電極として、真空蒸着法にてアルミニウム（Ａｌ）を１７０ｎｍの厚さに形成し、有機ＥＬ素子を作製した。

[0077] 得られた有機ＥＬ素子の初期特性として、素子に外部電源を接続して１００ｍＡ／ｃｍ^{2}の電流が流れるように直流電圧を印加し、そのときの電流効率（ｃｄ／Ａ）を測定した。また、素子の寿命特性として、定電流量２０ｍＡ／ｃｍ^{2}となるように直流電圧を印加し、初期輝度が半減するまでの時間（輝度半減期）を測定した。それを初期輝度１０００ｃｄ／ｍ^{2}の場合に換算した。電流効率は５．７ｃｄ／Ａ、輝度半減期は３２ｈｒであった。

[0078] 実施例２

ホスト材料として、第一のホスト材料と第二のホスト材料を使用し、第一のホスト材料として化合物２－１（１７．３重量部）と第二のホスト材料として化合物２－９（２０．７重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、実施例１と同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0079] 実施例３

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（１８．０重量部）と第二のホスト材料が化合物２－１０（２０．０重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0080] 実施例４

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（１３．３重量部）と第二のホスト材料として化合物３－４（２４．７重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0081] 実施例５

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（１２．１重量部）と第二のホスト材料として化合物３－９（２５．９重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0082] 実施例６

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（２３．６重量部）と第二のホスト材料として化合物３－４（１４．４重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0083] 実施例７（比較）

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（１９．７重量部）と第二のホスト材料として化合物Ａ（１８．３重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0084] 実施例８（比較）

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（１６．７重量部）と第二のホスト材料として化合物Ｂ（２１．３重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0085] 実施例９（比較）

実施例２において、第一のホスト材料として化合物２－１（１４．２重量部）と第二のホスト材料として化合物Ｃ（２３．８重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作

製し、素子評価を行った。

[0086] 実施例１０（比較）

実施例1において、ホスト材料として化合物３－１を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。電流効率は１０．８ｃｄ／Ａ、輝度半減期は４８ｈｒであった。

[0087] 実施例１１

実施例２において、第一のホスト材料として化合物３－１（１６．６重量部）と第二のホスト材料として化合物３－４（２１．４重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0088] 実施例１２

実施例２において、第一のホスト材料として化合物３－１（２０．８重量部）と第二のホスト材料として化合物２－９（１７．２重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0089] 実施例１３

実施例２において、第一のホスト材料として化合物３－１（１７．４重量部）と第二のホスト材料として化合物３－１４（２０．６重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0090] 実施例１４（比較）

実施例２において、第一のホスト材料として化合物３－１（１４．８重量部）と第二のホスト材料として化合物Ａ（２３．２重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0091] 実施例１５（比較）

実施例２において、第一のホスト材料として化合物３－１（２０．２重量

部）と第二のホスト材料として化合物Ｂ（１７．８重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0092] 実施例１６（比較）

実施例２において、第一のホスト材料として化合物３－１（１７．７重量部）と第二のホスト材料として化合物Ｃ（２０．３重量部）を使用し、７０ｎｍ膜厚の発光層を得た以外は、全て同様の操作を行って有機ＥＬ素子を作製し、素子評価を行った。

[0093] 表２に、実施例１～実施例６の結果を示す。各実施例の電流効率及び輝度半減期は、実施例１を１００としたときの相対値で表している。表中、H1は第一のホスト材料を示し、H2は第二のホスト材料を示す。

[0094] [表2]

実施例	H1	H2	差			H1/H2 重量比	電流効率	輝度半減期
	化合物	化合物	T1 値	IP 値	EA 値			
1	2-1	-	-	-	-	100/0	100	100
2	2-1	2-9	-0.04	-0.04	+0.01	46/54	107	420
3	2-1	2-10	-0.04	-0.05	0	47/53	104	184
4	2-1	3-4	+0.01	+0.09	0	35/65	108	540
5	2-1	3-9	+0.01	-0.01	+0.05	32/68	104	622
6	2-1	3-4	+0.01	+0.09	0	62/38	181	1284
7	2-1	A	0	-0.02	0.58	52/48	102	96
8	2-1	B	-0.03	+0.20	-0.03	44/56	95	50
9	2-1	C	-0.66	+0.02	+0.02	37/63	35	77

[0095] 表３に、実施例１０～実施例１６の結果を示す。各実施例の電流効率及び輝度半減期は、実施例１０の値を１００としたときの相対値で表している。表中、H1は第一のホスト材料を示し、H2は第二のホスト材料を示す。

[0096]

[表3]

実施例	H1	H2	差			H1/H2 重量比	電流効率	輝度半減期
	化合物	化合物	T1 値	IP 値	EA 値			
10	3-1	-	-	-	-	100/0	100	100
11	3-1	3-4	-0.02	+0.07	+0.07	44/56	151	455
12	3-1	2-9	-0.07	+0.06	+0.08	55/45	120	216
13	3-1	3-14	-0.02	+0.01	+0.02	46/54	106	177
14	3-1	A	-0.03	+0.04	-0.51	39/61	86	85
15	3-1	B	-0.06	+0.18	+0.10	53/47	89	61
16	3-1	C	-0.69	0	+0.05	47/53	33	78

産業上の利用の可能性

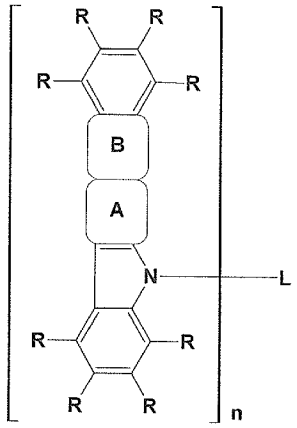
[0097] 本発明によれば、電子・正孔の注入バランスと効率的な燐光発光機構を保ちつつ、素子の作動時に発生する微弱な熱による材料の結晶化を抑制することにより、信頼性の高い有機電界発光素子を提供することができる。特に、ウェットプロセス製膜により発光層を形成する場合、その乾燥工程における結晶化を抑制することにより、高輝度率かつ信頼性の高い有機電界発光素子を提供することができる。本発明の有機ＥＬ素子は、良好な発光特性を長期間保持することができる。

請求の範囲

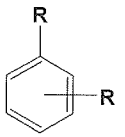
[請求項1] 陽極及び陰極の間にウェットプロセスにより製膜された発光層を有する有機電界発光素子であって、発光層がりん光ドーパント材料と分子量10,000以下のホスト材料を含有し、前記ホスト材料は第一のホスト材料と第一のホスト材料とは異なる第二のホスト材料からなり、第一のホスト材料と第二のホスト材料の重量比が９０：１０～１０：９０であり、第一のホスト材料と第二のホスト材料のイオン化ポテンシャル（ＩＰ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ電子親和力（ＥＡ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ三重項エネルギー（Ｔ１）値の差が０．１ｅＶ以下であることを特徴とする有機電界発光素子。

[請求項2] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料が、インドロカルバゾール誘導体及びトリアジン誘導体からなる群から選ばれる複素環化合物である請求項１に記載の有機電界発光素子。

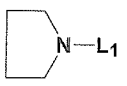
[請求項3] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料が、下記式（１）で表わされる複素環化合物である請求項１記載の有機電界発光素子。



（１）



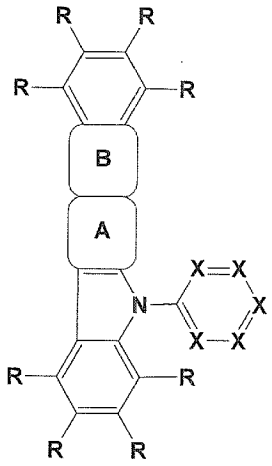
（１ａ）



（１ｂ）

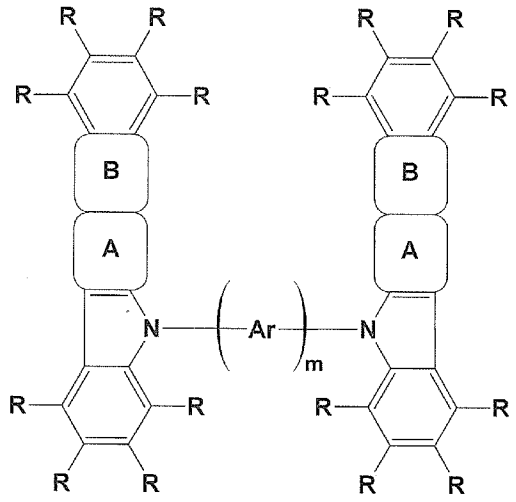
式（１）中、環Ａは隣接環と任意の位置で縮合する式（１ａ）で表される芳香環を表し、環Ｂは隣接環と任意の位置で縮合する式（１ｂ）で表される複素環を表す。式（１）、（１ａ）中のＲは、独立に水素又は１価の置換基であり、隣接する置換基が一体となって環を形成してもよい。式（１ｂ）中のL_1は、独立に芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示す。Ｌは、ｎ価の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を示し、ｎは１～４である。ｎが２以上の場合は、環Ａ及びＢを含む縮合複素環は同一であっても異なっていても良い。

[請求項4] 第一のホスト材料又は第二のホスト材料が、下記式（２）又は（３）で表わされる複素環化合物である請求項１記載の有機電界発光素子。



（２）

式（２）中、環Ａ、環Ｂ、及びＲは式（１）と同意であり、Ｘは各々独立にＣ-Ｈ、Ｎ又はＣ－L_2の何れかである。ここで、L_2は独立に芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。



（３）

式（３）中、環Ａ、環Ｂ、及びＲは式（１）と同意であり、Ａｒは独立にフェニレン基又は２価の芳香族複素環基を表す。ｍは１～５である。

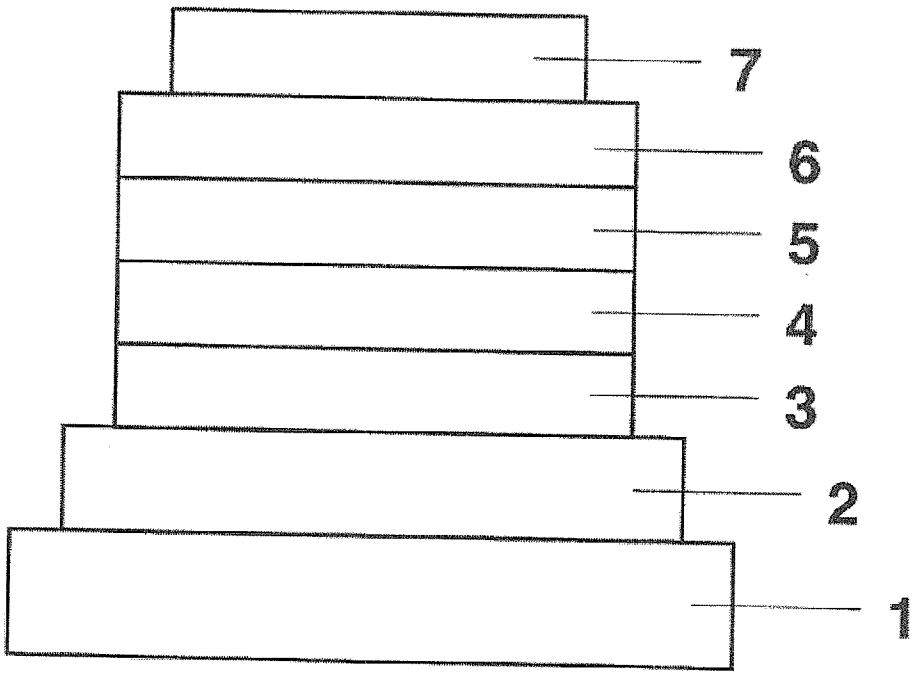
[請求項5] 第一のホスト材料と第二のホスト材料が、式（２）又は（３）で表される複素環化合物から選ばれる２種の複素環化合物である請求項４記載の有機電界発光素子。

[請求項6] 第一のホスト材料と第二のホスト材料の重量比が７５：２５～２５：７５である請求項１に記載の有機電界発光素子。

[請求項7] 陽極及び陰極の間に発光層を含む有機層を有し、発光層がりん光ドーパント材料と分子量10,000以下のホスト材料を含有する有機電界発光素子の製造方法であって、ホスト材料とりん光ドーパント材料を用意すること、ここで、ホスト材料が、第一のホスト材料と第一のホスト材料とは異なる第二のホスト材料からなり、第一のホスト材料と第二のホスト材料の重量比が９０：１０～１０：９０であり、第一のホスト材料と第二のホスト材料のイオン化ポテンシャル（ＩＰ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ電子親和力（ＥＡ）値の差が０．１ｅＶ以下、かつ三重項エネルギー（Ｔ１）値の差が０．１ｅＶ以下であること、ホスト材料とりん光ドーパント材料を溶媒に溶解して塗液を形成す

ること、この塗液を発光層に隣接する有機層上に塗布、乾燥して製膜する工程を含む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/JP2010/052411

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01L51/50(2006.01)i, *C07D487/04*(2006.01)i, *C07D519/00*(2006.01)i, *C09K11/06*(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
H01L51/50, C07D487/04, C07D519/00, C09K11/06

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2008-288344 A (Nippon Hoso Kyokai), 27 November 2008 (27.11.2008), claims 1, 3; paragraphs [0078], [0082] (Family: none)	1,6-7 2-5
Y A	WO 2006/112265 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 26 October 2006 (26.10.2006), paragraph [0065] & US 2009/0236974 A	1,6-7 2-5
Y A	WO 2008/149691 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 11 December 2008 (11.12.2008), claims 1 to 3; paragraphs [0004] to [0008], [0033] to [0035] (Family: none)	1,6-7 2-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
13 May, 2010 (13.05.10)	25 May, 2010 (25.05.10)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2010/052411

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2008/146839 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 04 December 2008 (04.12.2008), paragraphs [0038] to [0044] (Family: none)	2-5
A	WO 2008/056746 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 15 May 2008 (15.05.2008), claims 1 to 10 & EP 2080762 A1 & KR 10-2009-0086057 A & CN 101511834 A	2-5
A	WO 2007/063754 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 07 June 2007 (07.06.2007), claims 1 to 9 & US 2009/0302742 A & EP 1956022 A1 & KR 10-2008-0085001 A & CN 101321755 A	2-5
A	WO 2007/063796 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 07 June 2007 (07.06.2007), paragraphs [0026] to [0031] & US 2009/0295276 A & EP 1956666 A1 & KR 10-2008-0085000 A & CN 101371377 A	2-5

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１０／０５２４１１

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01L51/50(2006.01)i, C07D487/04(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01L51/50, C07D487/04, C07D519/00, 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	１９７１－２０１０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１０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）

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 A	JP 2008-288344 A (日本放送協会) 2008.11.27, [請求項１],[請求項３], [0078], [0082]　（ファミリーなし）	1,6-7 2-5
Y A	WO 2006/112265 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2006.10.26, [0065] & US 2009/0236974 A	1,6-7 2-5

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 １３．０５．２０１０	国際調査報告の発送日 ２５．０５．２０１０
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　２Ｏ　３２０８ 東松　修太郎 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３２７１

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y A	WO 2008/149691 A1（新日鐵化学株式会社）2008.12.11, 特許請求の範囲第１項－第３項、[0004]-[0008], [0033]-[0035] （ファミリーなし）	1,6-7 2-5
A	WO 2008/146839 A1（新日鐵化学株式会社）2008.12.04, [0038]-[0044]（ファミリーなし）	2-5
A	WO 2008/056746 A1（新日鐵化学株式会社）2008.05.15, 特許請求の範囲第１項－第１０項 & EP 2080762 A1 & KR 10-2009-0086057 A & CN 101511834 A	2-5
A	WO 2007/063754 A1（新日鐵化学株式会社）2007.06.07, 特許請求の範囲第１項－第９項 & US 2009/0302742 A & EP 1956022 A1 & KR 10-2008-0085001 A & CN 101321755 A	2-5
A	WO 2007/063796 A1（新日鐵化学株式会社）2007.06.07, [0026]-[0031] & US 2009/0295276 A & EP 1956666 A1 & KR 10-2008-0085000 A & CN 101371377 A	2-5