

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6093872号
(P6093872)

(45) 発行日 平成29年3月8日 (2017.3.8)

(24) 登録日 平成29年2月17日 (2017.2.17)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 C 211/61 (2006.01)

C O 7 C 211/61 C S P

C O 9 K 11/06 (2006.01)

C O 9 K 11/06 6 9 O

C O 7 D 307/91 (2006.01)

C O 7 D 307/91

H O 1 L 51/50 (2006.01)

H O 5 B 33/14

B

H O 5 B 33/22

D

請求項の数 31 (全 95 頁)

(21) 出願番号 特願2015-541658 (P2015-541658)
 (86) (22) 出願日 平成26年10月10日 (2014.10.10)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2014/077266
 (87) 国際公開番号 W02015/053403
 (87) 国際公開日 平成27年4月16日 (2015.4.16)
 審査請求日 平成28年7月6日 (2016.7.6)
 (31) 優先権主張番号 特願2013-214094 (P2013-214094)
 (32) 優先日 平成25年10月11日 (2013.10.11)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000183646
 出光興産株式会社
 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
 (74) 代理人 100078732
 弁理士 大谷 保
 (74) 代理人 100131635
 弁理士 有永 俊
 (72) 発明者 加藤 朋希
 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
 (72) 発明者 舟橋 正和
 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
 (72) 発明者 藤山 高広
 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32

審査官 井上 千弥子

最終頁に続く

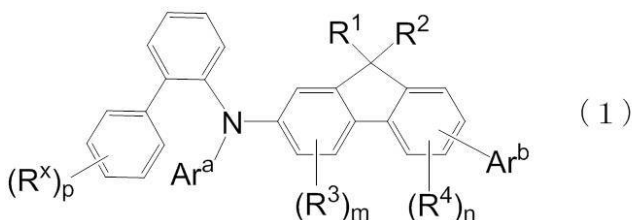
(54) 【発明の名称】 芳香族アミン化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(1)で表される化合物。

【化1】



(一般式(1)中、 $A r^a$ は、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フルオレニル基及び9,9-ジメチルフルオレニル基から選ばれるアリール基もしくは環形成原子数5~50のヘテロアリール基、又は該アリール基及び該ヘテロアリール基が2~4つ結合してなる基である。

R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1~10のアルキル基又はフェニル基である。 R^1 と R^2 は、互いに結合して炭化水素環を形成していない。

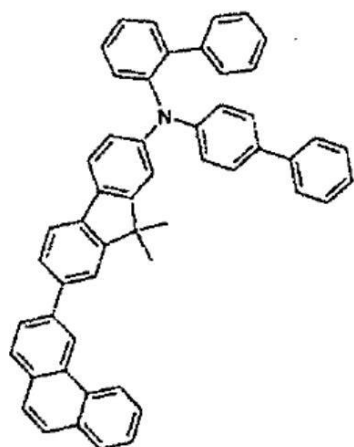
R^x 、 R^3 及び R^4 は、炭素数1~10のアルキル基、環形成炭素数3~10のシクロアルキル基又は環形成炭素数6~30のアリール基である。 p は0~3の整数であり、 m 及び n は、それぞれ独立に、0~2の整数である。 R^3 及び R^4 は、互いに結合して炭化

水素環を形成してもよい。また、 m 又は n が2である場合、隣接する R^3 同士又は R^4 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。

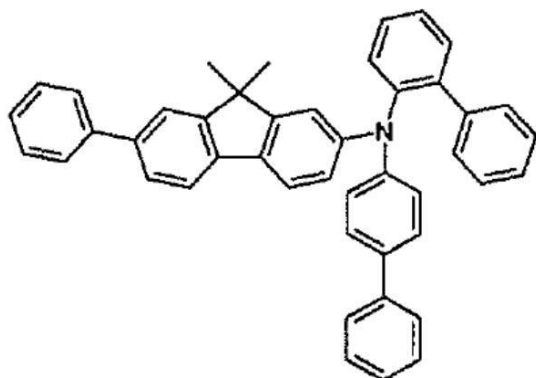
Ar^b は、環形成炭素数6～18のアリール基である。

ただし、一般式(1)は下記化合物となる場合は無い。

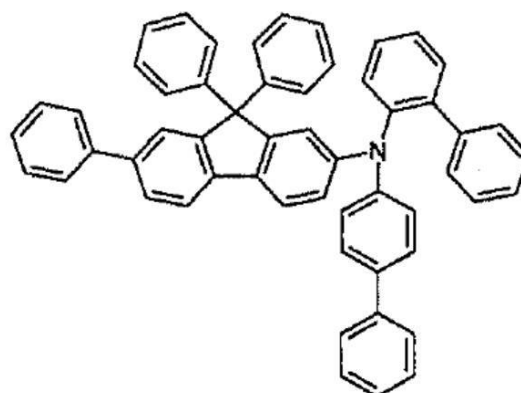
【化2】



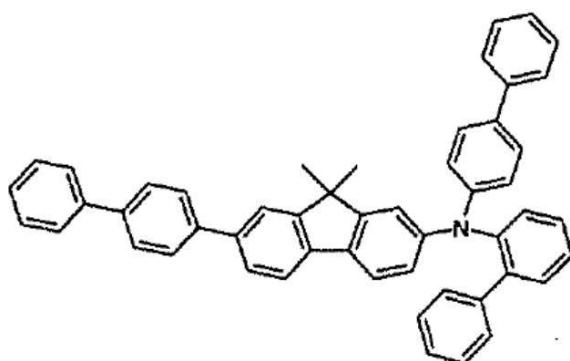
式 (200)



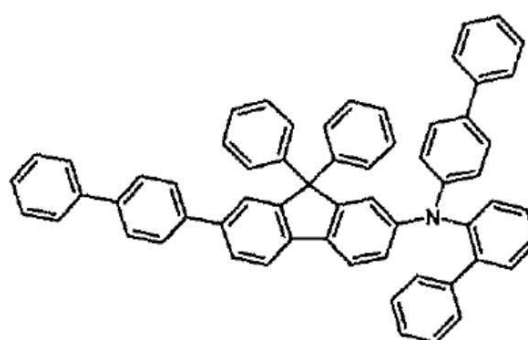
式 (99)



式 (143)



式 (101)



式 (145)

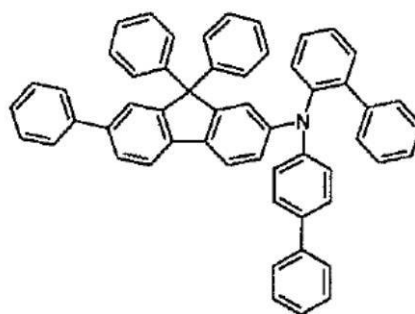
10

20

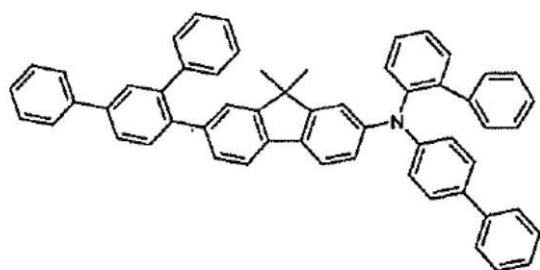
30

40

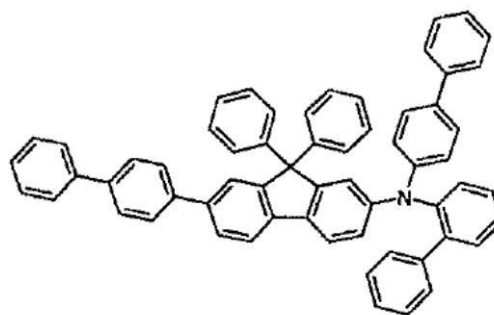
【化 3】



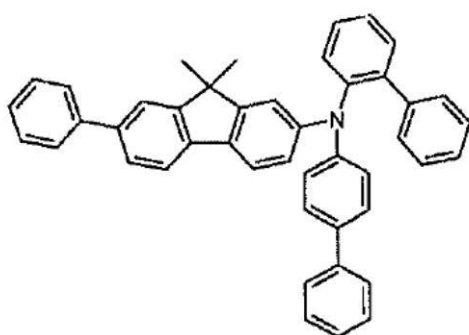
式 (206)



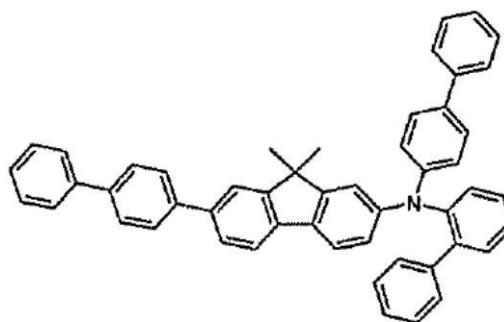
式 (165)



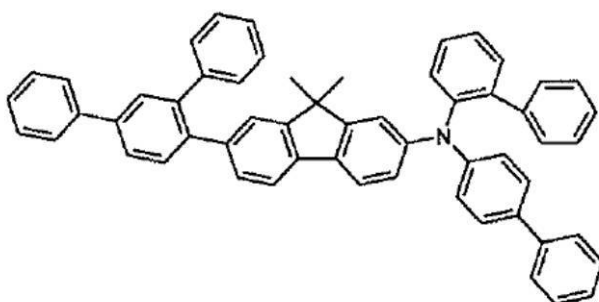
式 (208)



式 (222)

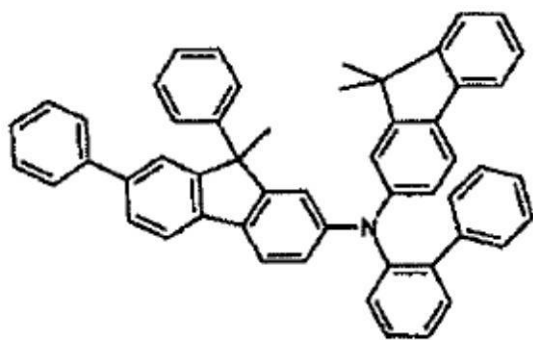


式 (224)

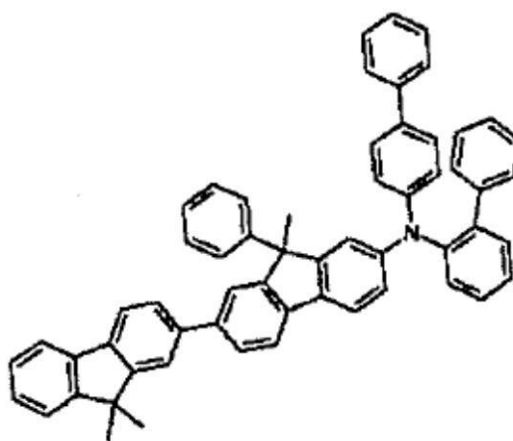


式 (235)

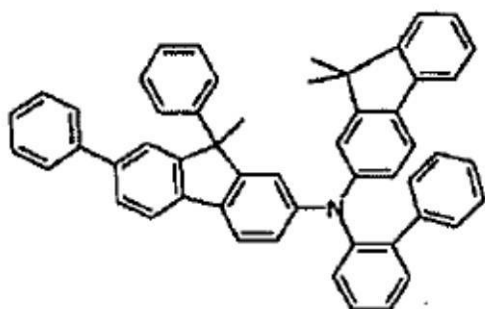
【化 4】



式 (225)



式 (228)



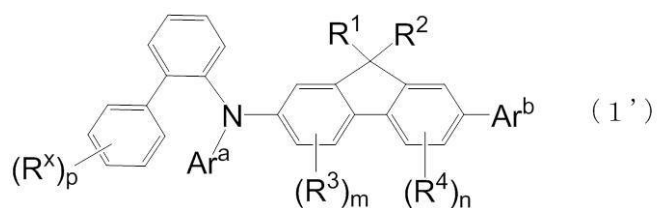
式 (231)

)

【請求項 2】

下記一般式 (1') で表される、請求項 1 に記載の化合物。

【化 5】



(一般式 (1') 中、 Ar^a 、 Ar^b 、 R^x 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 p 、 m 及び n は、前記定義の通りである。ただし、一般式 (1') は、請求項 1 で一般式 (1) は下記化合物となる場合は無いとして挙げた化合物となる場合は無い。)

【請求項 3】

前記 R^1 及び R^2 が、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数 1～10 のアルキル基である、請求項 1 又は 2 に記載の化合物。

【請求項 4】

前記 Ar^b が、環形成炭素数 10～18 の縮合アリール基を含む請求項 1～3 のいずれかに記載の化合物。

【請求項 5】

前記 Ar^b がビフェニリル基である、請求項 1～3 のいずれかに記載の化合物。

【請求項 6】

p が 0 又は 1 である、請求項 1～5 のいずれかに記載の化合物。

10

【請求項 7】

前記 Ar^a が、フェニル基である請求項 1～6 のいずれかに記載の化合物。

【請求項 8】

前記 Ar^a が、ターフェニリル基、ナフチル基、アントリル基、フルオレニル基及び 9, 9-ジメチルフルオレニル基から選ばれるアリール基、もしくは環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基、又は該アリール基及び該ヘテロアリール基が 2～4 つ結合してなる基である請求項 1～6 のいずれかに記載の化合物。

【請求項 9】

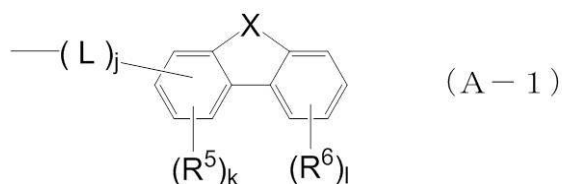
前記 Ar^a が、ナフチル基、アントリル基、フルオレニル基及び 9, 9-ジメチルフルオレニル基から選ばれるアリール基である請求項 1～6 及び 8 のいずれかに記載の化合物。

20

【請求項 10】

前記 Ar^a が、下記一般式 (A-1) で表される、請求項 1～6 及び 8～9 のいずれかに記載の化合物。

【化 6】



30

(一般式 (A-1) 中、 L は、フェニレン基、ビフェニリレン基、ターフェニリレン基、ナフチレン基、アントリレン基、フルオレニレン基及び 9, 9-ジメチルフルオレニレン基から選ばれるアリーレン基又は環形成原子数 5～20 のヘテロアリーレン基である。 j は 0 又は 1 である。

X は、酸素原子、硫黄原子又は $>CR^7R^8$ (R^7 及び R^8 は、それぞれ独立に、水素原子、又はメチル基である。) で表される二価の基である。

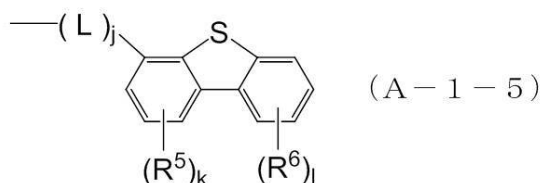
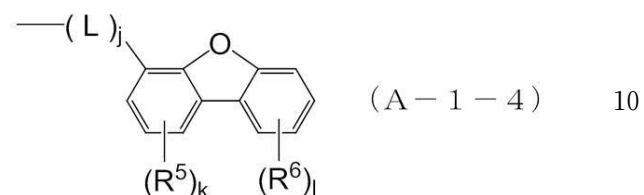
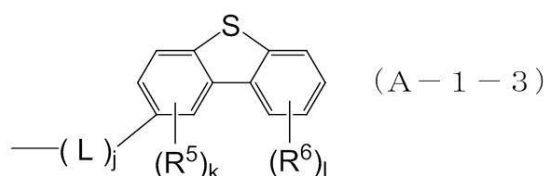
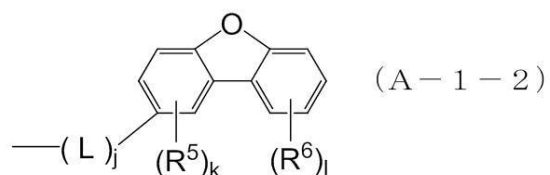
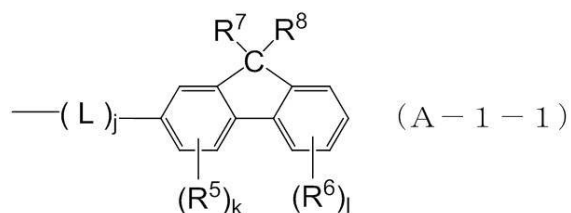
R^5 及び R^6 は、それぞれ独立に、炭素数 1～10 のアルキル基、環形成炭素数 3～10 のシクロアルキル基、環形成炭素数 6～14 のアリール基又は環形成原子数 5～14 のヘテロアリール基である。 k は 0～2 の整数であり、 l は 0～3 の整数である。 k が 2 である場合、隣接する R^5 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。 l が 2 又は 3 である場合、隣接する R^6 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。また、 R^5 及び R^6 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。)

40

【請求項 11】

前記 Ar^a が、下記一般式 (A-1-1)～(A-1-5) のいずれかで表される、請求項 10 に記載の化合物。

【化 7】

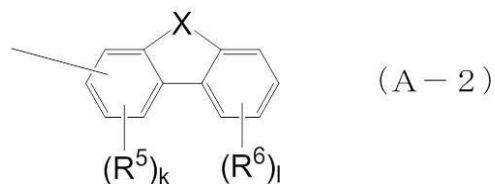


(上記式中、L、 $R^5 \sim R^8$ 、j、k 及び l は、請求項 10 に記載された定義の通りである。)

【請求項 12】

前記 Ar^a が、下記一般式 (A-2) で表される、請求項 10 に記載の化合物。

【化 8】



(上記式中、X、 R^5 、 R^6 、k 及び l は、請求項 10 に記載された定義の通りである。)

【請求項 13】

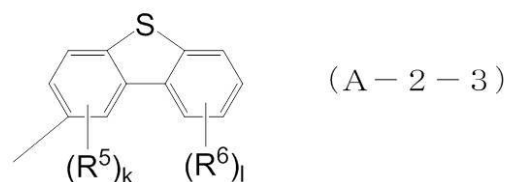
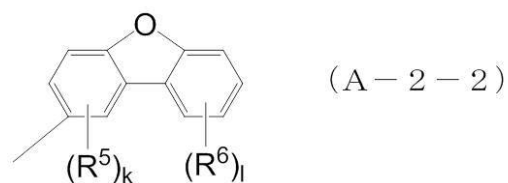
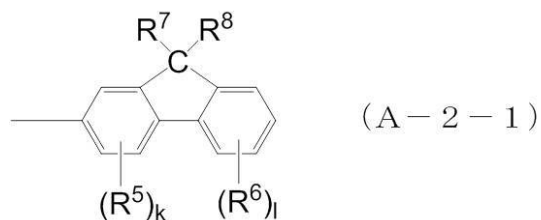
前記 Ar^a が、下記一般式 (A-2-1) ~ (A-2-3) のいずれかで表される、請求項 10 に記載の化合物。

10

20

30

【化 9】

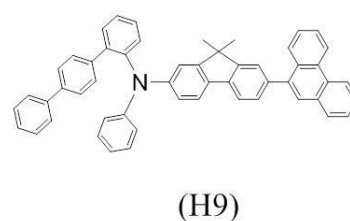
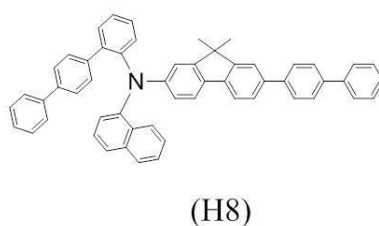
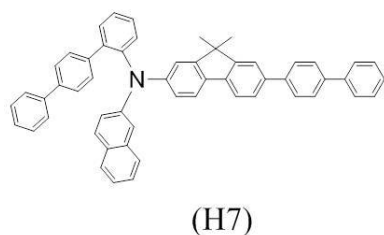
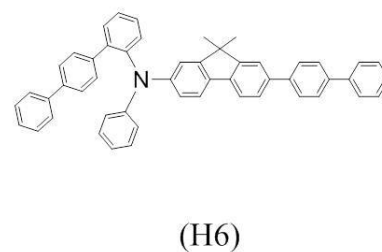
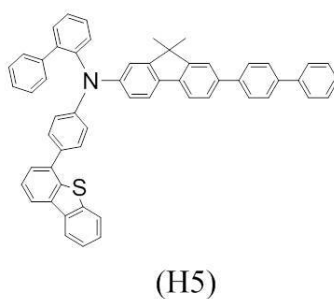
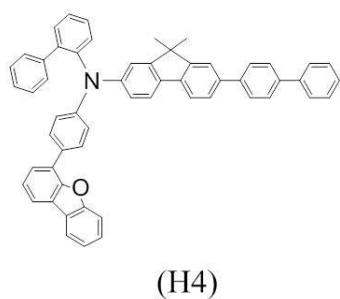
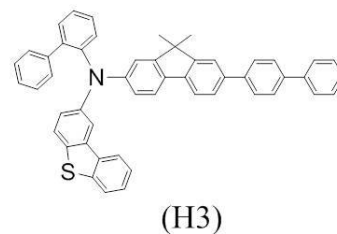
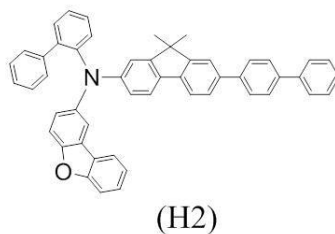
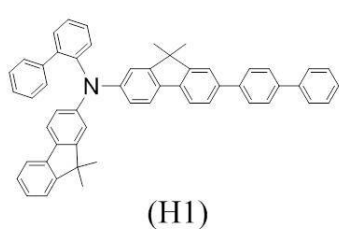


(上記式中、 $R^5 \sim R^8$ 、 k 及び l は、請求項 10 に記載された定義の通りである。)

【請求項 14】

下記の化合物群から選択される、請求項 1 に記載の化合物。

【化 10】



【請求項 15】

請求項 1 ～ 14 のいずれかに記載の化合物からなる、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 16】

請求項 1～14 のいずれかに記載の化合物からなる、有機エレクトロルミネッセンス素子用正孔輸送材料。

【請求項 17】

請求項 1～14 のいずれかに記載の化合物からなる、アクセプター層隣接正孔輸送層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子用正孔輸送材料。

【請求項 18】

対向する陽極と陰極との間に有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、請求項 1～14 のいずれかに記載の化合物を含有する有機薄膜層を 1 層以上有することを特徴とする、有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 19】

対向する陽極と陰極の間に、少なくとも 2 以上の正孔輸送層と、発光層を順次有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該正孔輸送層のうちの 하나가請求項 1～14 のいずれかに記載の化合物を含有し、かつ、発光層とは隣接しないことを特徴とする、有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 20】

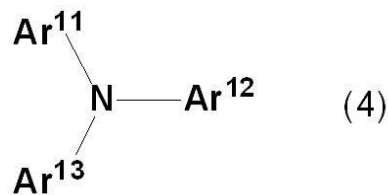
前記少なくとも 2 以上の正孔輸送層が陽極側の第一正孔輸送層と発光層側の第二正孔輸送層とからなり、該第一正孔輸送層が請求項 1～14 のいずれかに記載の化合物を含有するものである、請求項 19 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 21】

20

前記第二正孔輸送層が、下記一般式 (4) で表される化合物を含有するものである、請求項 20 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

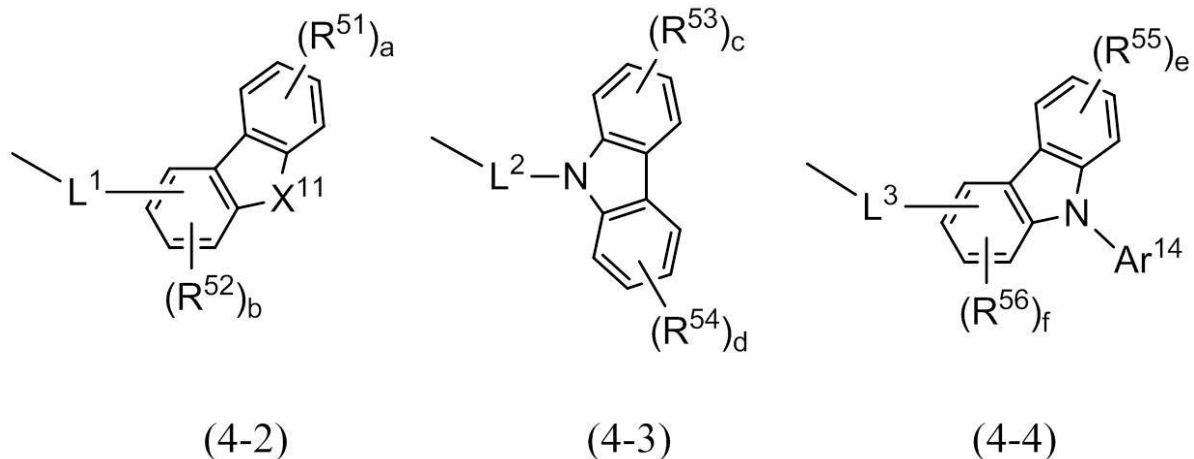
【化 11】



30

(式 (4) 中、 $\text{Ar}^{11} \sim \text{Ar}^{13}$ は、少なくとも 1 つが下記一般式 (4-2) 又は (4-4) で表される基である。また、一般式 (4-2) で表される基ではない基は、下記一般式 (4-3) もしくは (4-4) で表される基又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 のアリール基であり、一般式 (4-4) で表される基ではない基は、下記一般式 (4-2) もしくは (4-3) で表される基又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 のアリール基である。)

【化 12】



40

50

(式中、 X^{11} は、酸素原子又は硫黄原子である。

$L^1 \sim L^3$ は、それぞれ独立に、単結合、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基を表し、 $L^1 \sim L^3$ が有してもよい置換基は、炭素数 1 ～ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ～ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ～ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ～ 15 のアルキルアリールシリル基、環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

Ar^{14} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基を表し、 Ar^{14} が有してもよい置換基は、炭素数 1 ～ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ～ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ～ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ～ 15 のアルキルアリールシリル基、環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$R^{51} \sim R^{56}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ～ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ～ 15 のアルキルアリールシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の $R^{51} \sim R^{56}$ は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の二価の基を形成してもよい。

b、f は、それぞれ独立に、0 ～ 3 の整数を表し、a、c、d、e は、それぞれ独立に、0 ～ 4 の整数を表す。)

【請求項 22】

前記一般式 (4-2) 中の L^1 が、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基である、請求項 21 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

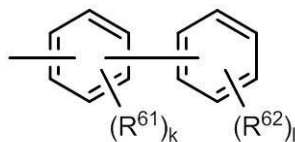
【請求項 23】

前記一般式 (4-4) 中の L^3 が、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基である、請求項 21 又は 22 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

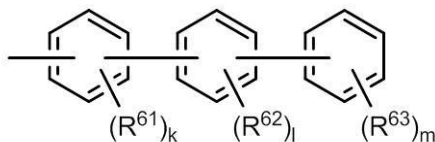
【請求項 24】

前記一般式 (4) 中の $Ar^{11} \sim Ar^{13}$ において、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 40 のアリール基が下記一般式 (4-5) ～ (4-7) のいずれかで表される、請求項 21 ～ 23 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

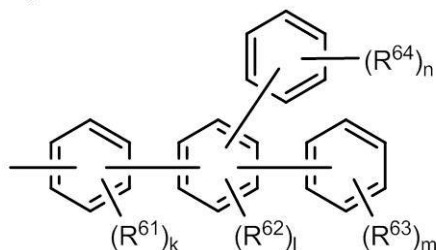
【化 13】



(4-5)



(4-6)



(4-7)

[式中、 $R^{61} \sim R^{64}$ は、それぞれ独立に、炭素数 1 ～ 10 の直鎖状もしくは分岐状の

10

20

30

40

50

アルキル基、環形成炭素数 3～10 のシクロアルキル基、炭素数 3～10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18～30 のトリアリールシリル基、炭素数 8～15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6～14）、環形成炭素数 6～50 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R^{61} \sim R^{64}$ は結合して環を形成してもよい。

k、l、m、及び n は、それぞれ独立に、0～4 の整数である。]

【請求項 25】

前記陽極と前記少なくとも 2 以上の正孔輸送層との間に、アクセプター材料を含有するアクセプター層を有する、請求項 19～24 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

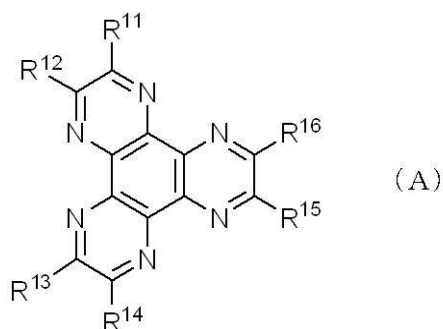
【請求項 26】

前記第一正孔輸送層がアクセプター材料を含有する、請求項 20～25 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 27】

前記アクセプター材料が、下記一般式 (A)～(C) のいずれかで表される請求項 25 又は 26 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 14】

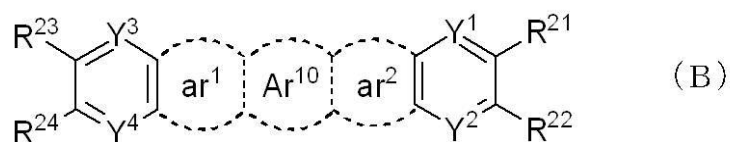


20

〔式 (A) 中、 $R^{11} \sim R^{16}$ は、それぞれ独立に、シアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシ基、もしくは $-\text{COOR}^{17}$ (R^{17} は、炭素数 1～20 のアルキル基である。)を表すか、又は、 R^{11} 及び R^{12} 、 R^{13} 及び R^{14} 、もしくは R^{15} 及び R^{16} が互いに結合して $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を表す。〕

30

【化 15】



〔式 (B) 中、 $R^{21} \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリールオキシ基又はシアノ基である。 R^{21} と R^{22} 、及び R^{23} と R^{24} は、互いに結合して環を形成してもよい。〕

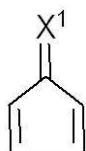
40

$Y^1 \sim Y^4$ は、それぞれ独立に、 $-\text{N}=\text{}$ 、 $-\text{CH}=\text{}$ 、又は $-\text{C}(\text{R}^{25})=\text{}$ である。該 R^{25} は、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリールオキシ基又はシアノ基である。

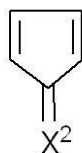
Ar^{10} は、環形成炭素数 6～24 の縮合環又は環形成原子数 6～24 の複素環を表す。 ar^1 及び ar^2 は、それぞれ独立に、下記一般式 (i) 又は (ii) の環を表す。

50

【化 1 6】



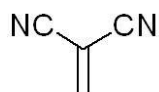
(i)



(ii)

{上記式中、 X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に、下記 (a) ~ (g) のいずれかの二価の 10
基を表す。

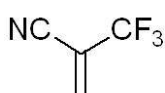
【化 1 7】



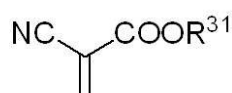
(a)



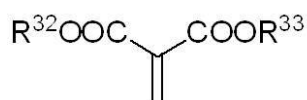
(b)



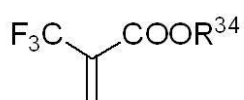
(c)



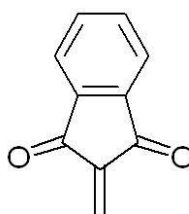
(d)



(e)



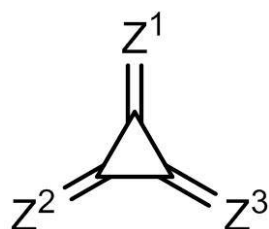
(f)



(g)

(式中、 $R^{31} \sim R^{34}$ は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置 20
換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6
~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の複素環基であり、
 R^{32} と R^{33} は互いに結合して環を形成してもよい。) }] 30

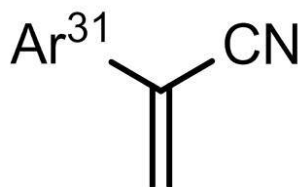
【化 1 8】



(C)

{式中、 $Z^1 \sim Z^3$ は、それぞれ独立に、下記一般式 (h) で示される二価の基である。 40

【化 19】



(h)

(式中、 Ar^{31} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基である。) }

【請求項 28】

前記発光層が、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体及びアリールアミン誘導体から選択される少なくとも 1 種の蛍光発光材料を含有する、請求項 19 ～ 27 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 29】

前記発光層が燐光発光材料を含有する、請求項 19 ～ 28 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 30】

前記燐光発光材料がイリジウム (Ir)、オスmium (Os) 又は白金 (Pt) 金属のオルトメタル化錯体である、請求項 29 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 31】

請求項 18 ～ 30 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を搭載した電子機器。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は芳香族アミン化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。本発明はさらに、前記有機 EL 素子を搭載した電子機器に関する。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子 (有機 EL 素子) は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。従って、電子又は正孔を効率よく発光領域に輸送し、電子と正孔との再結合を容易にする化合物の開発は高効率な有機 EL 素子を得る上で重要である。

【0003】

有機 EL 素子においては、正孔輸送層を、陽極側から順に第一正孔輸送層と第二正孔輸送層の 2 層構成とすることで素子性能を向上させてきた。第一正孔輸送層については、一般的に第二正孔輸送層への正孔注入性に優れることが求められている。

例えば、特許文献 1 は、オルト置換フェニル基を有するモノアミン化合物を発光層に隣接する層の材料として使用した有機 EL 素子を開示する。

特許文献 2 は、フルオレン基を有するモノアミン化合物を第一正孔輸送層の材料として使用した有機 EL 素子を開示する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献 1】 国際公開第 2013/087142 号

【特許文献 2】 国際公開第 2013/118846 号

10

20

30

40

50

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明の課題は、低電圧駆動が可能であり、且つ高効率化された有機EL素子及び該有機EL素子を搭載した電子機器、並びにそのような有機EL素子を提供し得る化合物を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0006】

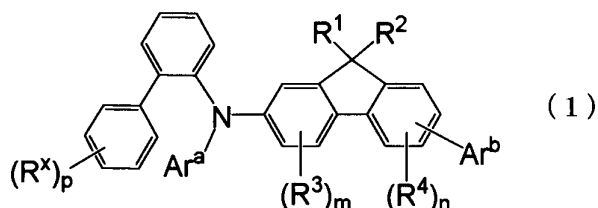
本発明者らは、前記の好ましい性質を有する化合物及びそれを用いた有機EL素子を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、一般式(1)で表される化合物を利用することにより前記課題を解決し得ることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

10

【0007】

すなわち、本発明の一態様は、下記一般式(1)で表される化合物を提供するものである。

【化1】



20

(一般式(1)中、 Ar^a は、環形成炭素数6～50のアリール基もしくは環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は該アリール基及び該ヘテロアリール基が2～4つ結合してなる基である。

R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～10のアルキル基又は環形成炭素数6～12のアリール基である。 R^1 と R^2 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。

R^x 、 R^3 及び R^4 は、炭素数1～10のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基又は環形成炭素数6～30のアリール基である。 p は0～3の整数であり、 m 及び n は、それぞれ独立に、0～2の整数である。 R^3 及び R^4 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。また、 m 又は n が2である場合、隣接する R^3 同士又は R^4 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。

30

Ar^b は、環形成炭素数6～18のアリール基である。)

【0008】

本発明の別の態様は、上記化合物からなる有機EL素子用材料及び有機EL素子用正孔輸送材料であり、さらに、有機EL素子用正孔輸送材料としては、アクセプター層隣接正孔輸送層を有する有機EL素子用の正孔輸送材料として特に有用である。

また、本発明の別の態様は、陰極と陽極との間に少なくとも発光層を含有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、前記一般式(1)で表される化合物を単独又は混合物の成分として含有する有機EL素子である。

40

さらに、本発明の別の態様は、前記有機EL素子を搭載した電子機器を提供するものである。

【発明の効果】

【0009】

本発明の化合物を有機EL素子用材料として用いると、有機EL素子のより一層の低電圧駆動が可能となり、且つ高い発光効率を達成できる。

特に、本発明の化合物によれば、有機EL素子の正孔輸送層を厚膜化しても駆動電圧が

50

高くない高い移動度の正孔輸送材料であって、有機EL素子の光路長を調整可能であり、素子の高効率化が図れる有機EL素子を提供できる。

特に、陽極にアクセプター層が接合された有機EL素子の正孔輸送材料として用いた場合、アクセプター材料との相性が優れるため、アクセプター層から正孔輸送層への正孔注入量が増大し、前記効果をより一層高めることができる。

【発明を実施するための形態】

【0010】

本発明において、「置換もしくは無置換の炭素数a～bのX基」という表現における「炭素数a～b」は、X基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、X基が置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。

10

また、「環形成炭素」とは、飽和環、不飽和環、又は芳香環を構成する炭素原子を意味し、前記環に結合している置換基の炭素数は含まない。

「環形成原子」とは、飽和環、不飽和環、芳香環又は複素環を構成する原子を意味し、前記環に結合している水素原子及び置換基の原子数は含まない。

また、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわち、軽水素（protium）、重水素（deuterium）及び三重水素（tritium）を包含する。

【0011】

更に、“置換もしくは無置換”というときの任意の置換基は、別途定義していない限り、炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基；環形成炭素数3～20（好ましくは3～6、より好ましくは5又は6）のシクロアルキル基；環形成炭素数6～30（好ましくは6～24、より好ましくは6～12）のアリール基；環形成炭素数6～30（好ましくは6～24、より好ましくは6～12）のアリール基を有する炭素数7～30（好ましくは7～10、より好ましくは7～12）のアラルキル基；アミノ基；炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基を有するモノー又はジアルキルアミノ基；環形成炭素数6～30（好ましくは6～24、より好ましくは6～12）のアリール基を有するモノー又はジアリールアミノ基；炭素数1～30（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭素数6～30（好ましくは6～24、より好ましくは6～12）のアリール基を有するアリールオキシ基；炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基及び環形成炭素数6～30（好ましくは6～24、より好ましくは6～12）のアリール基から選ばれる基を有するモノー、ジー又はトリ置換シリル基；環形成原子数5～30（好ましくは5～24、より好ましくは5～12）でありヘテロ原子（窒素原子、酸素原子、硫黄原子）を1～5個（好ましくは1～3個、より好ましくは1～2個）含むヘテロアリール基；炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のハロアルキル基；ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）；シアノ基；ニトロ基からなる群より選ばれるものが好ましい。

20

30

上記置換基の中でも、とりわけ、炭素数1～6のアルキル基、炭素数5又は6のシクロアルキル基、及び環形成炭素数6～12のアリール基からなる群より選ばれるものが好ましい。

これらの任意の置換基は、上記置換基によりさらに置換されていてもよい。

40

“置換もしくは無置換”というときの任意の置換基の数は、1つであってもよいし、2つ以上であってもよい。置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。

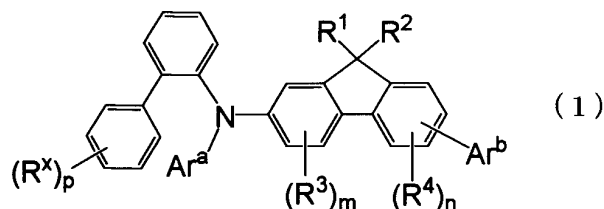
【0012】

本明細書中、好ましいとする規定は任意に選択することができ、また、好ましいとする規定の組み合わせはより好ましいと言える。

【0013】

本発明の化合物は、下記一般式（1）で表される。

【化 2】



【0014】

(一般式(1)中、 Ar^a は、環形成炭素数6～50のアリール基もしくは環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は該アリール基及び該ヘテロアリール基が2～4つ結合してなる基である。

R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～10のアルキル基又は環形成炭素数6～12のアリール基である。 R^1 と R^2 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。

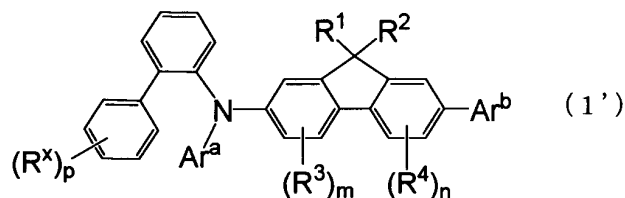
R^x 、 R^3 及び R^4 は、炭素数1～10のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基又は環形成炭素数6～30のアリール基である。 p は0～3の整数であり、 m 及び n は、それぞれ独立に、0～2の整数である。 R^3 及び R^4 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。また、 m 又は n が2である場合、隣接する R^3 同士又は R^4 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。

Ar^b は、環形成炭素数6～18のアリール基である。)

【0015】

なお、上記一般式(1)で表される化合物の中でも、下記一般式(1')で表される化合物であることが好ましい。

【化 3】



(一般式(1')中、 Ar^a 、 Ar^b 、 R^x 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 p 、 m 及び n は、前記定義の通りである。)

【0016】

以下、一般式(1)及び(1')中の各基の定義について詳細に説明する。

Ar^a が表すアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フルオレニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基等が挙げられる。該アリール基の環形成炭素数は、好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～14である。該アリール基としては、ビフェニル基、フルオレニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基が好ましく、9,9-ジメチルフルオレニル基がより好ましい。

【0017】

Ar^a が表すヘテロアリール基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル-フェニル基、イソベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾ

リニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基及びキサントニル基などが挙げられる。これらの中でも、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフエニル基が好ましい。

【0018】

前述の通り、 $A r^a$ は、前記アリール基及び前記ヘテロアリール基が2～4つ結合してなる基であってもよい。具体的には、ヘテロアリール基ーアリール基、アリール基ーヘテロアリール基、アリール基ーヘテロアリール基ーアリール基、ヘテロアリール基ーアリール基ーヘテロアリール基、アリール基ーヘテロアリール基ーアリール基ーヘテロアリール基、ヘテロアリール基ーアリール基ーヘテロアリール基ーアリール基等が挙げられる。好ましくは、前記アリール基と前記ヘテロアリール基が1つずつ結合してなる基、つまりヘテロアリール基ーアリール基、及びアリール基ーヘテロアリール基である。該アリール基及びヘテロアリール基の具体例は、前記アリール基及び前記ヘテロアリール基の具体例から任意に選択することができる。

10

【0019】

有機EL素子の低駆動電圧及び高効率を達成する観点から、前記 $A r^a$ が、フェニル基であると好ましい。

また、前記 $A r^a$ が、環形成炭素数10～50の縮合アリール基、環形成炭素数13～50の非縮合アリール基、もしくは環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は該アリール基及び該ヘテロアリール基が2～4つ結合してなる基を含むと好ましく、環形成炭素数10～50の縮合アリール基を含むとさらに好ましい。

20

さらに、前記 $A r^a$ が、環形成炭素数10～50の縮合アリール基、環形成炭素数13～50の非縮合アリール基、もしくは環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は該アリール基及び該ヘテロアリール基が2～4つ結合してなる基であると好ましく、環形成炭素数10～50の縮合アリール基であるとさらに好ましい。

【0020】

$A r^a$ が表す環形成炭素数10～50の縮合アリール基としては、例えば、ナフチル基、アントリル基、フルオレニル基、フェナントリル基、9,9-ジメチルフルオレニル基等が挙げられる。該縮合アリール基の環形成炭素数は、好ましくは10～30、より好ましくは10～20、さらに好ましくは10～14である。該アリール基としては、ナフチル基、フルオレニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基が好ましく、9,9-ジメチルフルオレニル基がより好ましい。

30

$A r^a$ が表す環形成炭素数13～50の非縮合アリール基としては、例えば、ターフェニル基、クアテルフェニル基等が挙げられる。該アリール基の環形成炭素数は、好ましくは18～30、より好ましくは18～20である。該非縮合アリール基としては、ターフェニル基が好ましい。

$A r^a$ が表すヘテロアリール基は、前述したとおりである。

【0021】

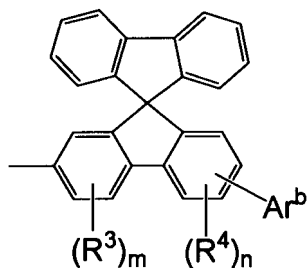
R^x 及び $R^1 \sim R^4$ が表す炭素数1～10のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、各種プロピル基（「各種」は、直鎖状及び分岐鎖状のあらゆる基を含み、以下同様である。）、各種ブチル基、各種オクチル基、各種デシル基等が挙げられる。アルキル基の炭素数は、好ましくは1～6である。

40

R^1 及び R^2 が表す環形成炭素数6～12のアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。該アリール基としては、フェニル基が好ましい。

なお、前述の通り、 R^1 と R^2 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよく、その場合、窒素原子に置換する基全体としては例えば以下のようになるが、互いに結合して炭化水素環を形成してはいないことがより好ましい。

【化 4】



【0022】

10

R^x 、 R^3 及び R^4 が表す環形成炭素数3～10のシクロアルキル基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基等が挙げられる。シクロアルキル基の環形成炭素数は、好ましくは5～8である。

R^x 、 R^3 及び R^4 が表す環形成炭素数6～30のアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、ナフチル基、アントリル基等が挙げられる。該アリール基の環形成炭素数は、好ましくは6～20、より好ましくは6～14、さらに好ましくは6～12である。

p は0～3の整数であり、好ましくは0～2の整数、より好ましくは0又は1、さらに好ましくは0である。 m 及び n は、それぞれ独立に、0～2の整数であり、好ましくは0又は1、より好ましくは0である。

20

【0023】

Ar^b が表す環形成炭素数6～18のアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、フェナントリル基等が挙げられ、好ましくは環形成炭素数6～14のアリール基、より好ましくは環形成炭素数6～12のアリール基であり、ビフェニリル基がさらに好ましい。

有機EL素子の低駆動電圧及び高効率を達成する観点から、前記 Ar^b が、環形成炭素数10～18の縮合アリール基を含むと好ましく、前記 Ar^b が、環形成炭素数10～18の縮合アリール基であるとさらに好ましい。

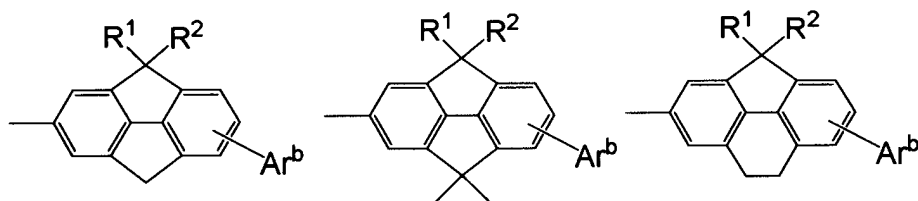
Ar^b が表す環形成炭素数10～18の縮合アリール基としては、例えば、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基等が挙げられ、好ましくは環形成炭素数10～14の縮合アリール基である。

30

【0024】

なお、前述の通り、 R^3 及び R^4 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよく、その場合、窒素原子に置換する基全体としては、例えば以下になる。

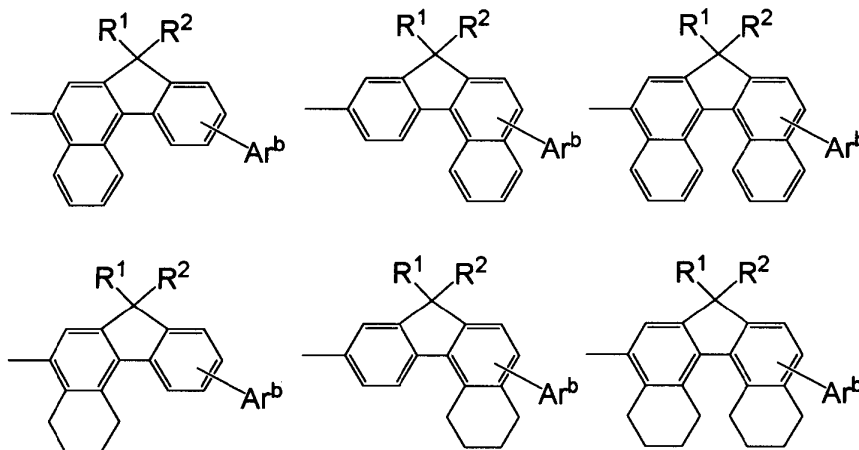
【化 5】



40

また、 m 又は n が2である場合、隣接する R^3 同士、隣接する R^4 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよく、その場合、窒素原子に置換する基全体としては、例えば以下になる。

【化 6】



10

【0025】

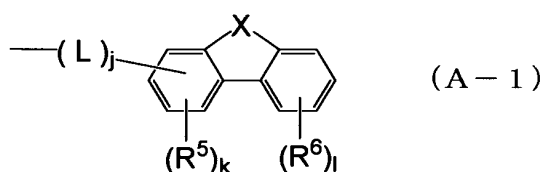
R^1 及び R^2 としては、有機EL素子の低駆動電圧及び高効率を達成する観点から、水素原子又は炭素数1～10のアルキル基が好ましい。

有機EL素子の低駆動電圧及び高効率を達成する観点から、特に、 Ar^a が、下記一般式(A-1)で表される化合物が好ましい。

【0026】

20

【化 7】



【0027】

(一般式(A-1)中、Lは、環形成炭素数6～20のアリーレン基又は環形成原子数5～20のヘテロアリーレン基である。 j は0又は1である。

30

Xは、酸素原子、硫黄原子又は $>CR^7R^8$ (R^7 及び R^8 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～10のアルキル基又は環形成炭素数6～12のアリール基である。)で表される二価の基である。

R^5 及び R^6 は、それぞれ独立に、炭素数1～10のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、環形成炭素数6～14のアリール基又は環形成原子数5～14のヘテロアリール基である。 k は0～2の整数であり、 l は0～3の整数である。 k が2である場合、隣接する R^5 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。 l が2又は3である場合、隣接する R^6 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。また、 R^5 及び R^6 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよい。)

【0028】

40

Lが表す環形成炭素数6～20のアリーレン基としては、例えば、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニリレン基、アントリレン基、アセナフチリレン基、アントラニレン基、フェナントリレン基、フェナレニレン基、キノリレン基、イソキノリレン基、s-インダセニレン基、a-s-インダセニレン基、クリセニレン基等が挙げられる。これらの中でも、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニリレン基が好ましい。該アリーレン基の環形成炭素数は、好ましくは6～14、より好ましくは6～12、さらに好ましくは6～10である。

Lが表す環形成原子数5～20のヘテロアリーレン基としては、例えば、ピロリレン基、フリレン基、チエニレン基、ピリジレン基、イミダゾピリジレン基、ピリダジニレン基、ピリミジニレン基、ピラジニレン基、トリアジニレン基、イミダゾリレン基、オキサゾ

50

リレン基、チアゾリレン基、ピラゾリレン基、イソオキサゾリレン基、イソチアゾリレン基、オキサジアゾリレン基、チアジアゾリレン基、トリアゾリレン基、テトラゾリレン基、インドリレン基、イソインドリレン基、ベンゾフラニレン基、イソベンゾフラニレン基、ベンゾチオフェニレン基、イソベンゾチオフェニレン基、インドリジニレン基、キノリジニレン基、キノリレン基、イソキノリレン基、シンノリレン基、フタラジニレン基、キナゾリニレン基、キノキサリニレン基、ベンズイミダゾリレン基、ベンズオキサゾリレン基、ベンズチアゾリレン基、インダゾリレン基、ベンズイソキサゾリレン基、ベンズイソチアゾリレン基、ジベンゾフラニレン基、ジベンゾチオフェニレン基、フェナントリジニレン基、アクリジニレン基、フェナントロリニレン基、フェナジニレン基、フェノチアジニレン基、フェノキサジニレン基及びキサンテニレン基が好ましく挙げられる。これらの中でも、フリレン基、チエニレン基、ピリジレン基、イミダゾピリジレン基、ピリダジニレン基、ピリミジニレン基、ピラジニレン基、ベンズイミダゾリレン基、ジベンゾフラニレン基、ジベンゾチオフェニレン基、フェナントロリニレン基が好ましい。該ヘテロアリーレン基の環形成炭素数は、好ましくは5～14、より好ましくは5～12、さらに好ましくは5～10である。

10

jは0又は1であり、有機EL素子の低駆動電圧及び高効率を達成する観点から、好ましくは0である。なお、j=0のときは、Lが単結合を表す状態に相当する。

【0029】

Xが表す、 $>CR^7R^8$ (R^7 及び R^8 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～10のアルキル基又は環形成炭素数6～12のアリール基である。)で表される二価の基において、 R^7 及び R^8 が表す炭素数1～10のアルキル基としては、前記 $R^1\sim R^4$ の場合と同じものが挙げられる。該アルキル基の炭素数は、好ましくは1～6、より好ましくは1～3、さらに好ましくは1である。また、 R^7 及び R^8 が表す環形成炭素数6～12のアリール基としては、前記 $R^1\sim R^4$ の場合と同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。

20

$>CR^7R^8$ で表される二価の基としては、 $>C(CH_3)_2$ が好ましい。

Xとしては、酸素原子、 $>CR^7R^8$ で表される二価の基が好ましい。

【0030】

R^5 及び R^6 が表す炭素数1～10のアルキル基及び環形成炭素数3～10のシクロアルキル基としては、 R^3 及び R^4 の場合と同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。

R^5 及び R^6 が表す環形成炭素数6～14のアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基等が挙げられる。該アリール基の環形成炭素数は、好ましくは6～12、より好ましくは6～10である。

30

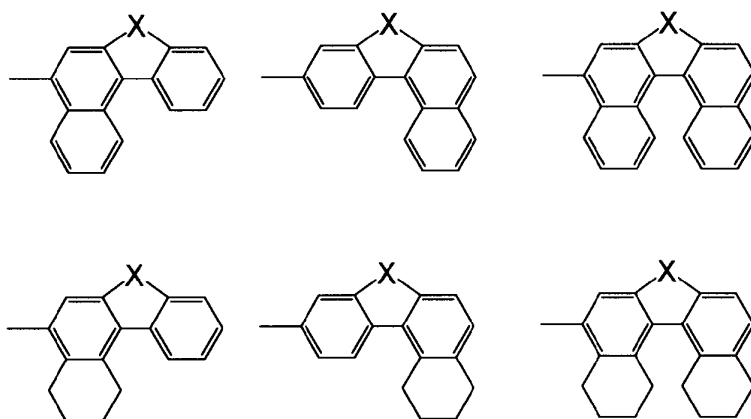
R^5 及び R^6 が表す環形成原子数5～14のヘテロアリーール基としては、Lが表す前記のヘテロアリーール基の例示のうち、環形成原子数が5～14であるものが挙げられる。該ヘテロアリーール基の環形成原子数は、好ましくは5～12、より好ましくは5～10である。

kは0～2の整数であり、0又は1が好ましく、0がより好ましい。lは0～3の整数であり、0又は1が好ましく、0がより好ましい。

なお、kが2である場合、隣接する R^5 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよく、また、lが2又は3である場合、隣接する R^6 同士は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよく、その場合、窒素原子に置換する基全体としては、例えば以下のようになる。

40

【化 8】

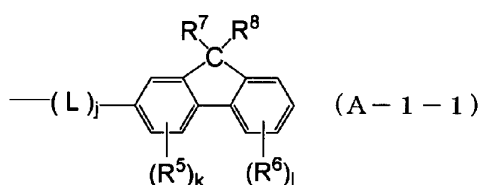


10

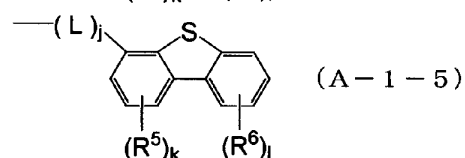
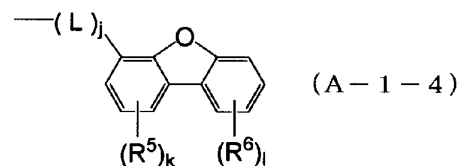
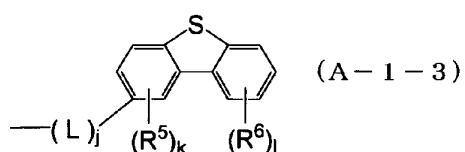
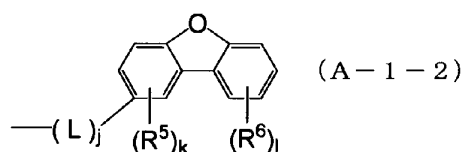
【0031】

中でも、 Ar^a が、下記一般式（A-1-1）～（A-1-5）のいずれかで表される化合物がより好ましい。

【化 9】



20



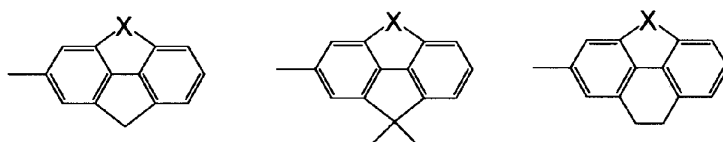
30

（上記式中、 L 、 $R^5 \sim R^8$ 、 j 、 k 及び l は、前記定義の通りであり、好ましいものも同じである。）

【0032】

また、 R^5 及び R^6 は、互いに結合して炭化水素環を形成してもよく、その場合、窒素原子に置換する基全体としては、例えば以下のようなになる。

【化 10】

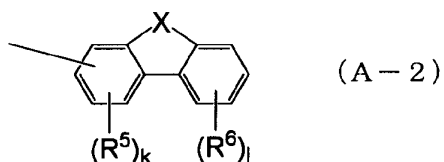


40

【0033】

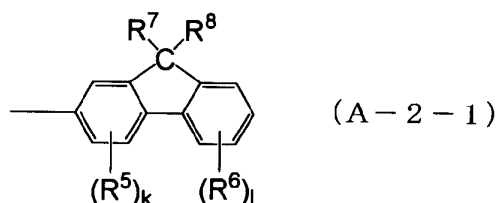
また、有機 EL 素子の低駆動電圧及び高効率を達成する観点から、特に、 Ar^a が、下記一般式（A-2）で表される化合物がより好ましく、（A-2-1）～（A-2-3）のいずれかで表される化合物がさらに好ましい。

【化 1 1】

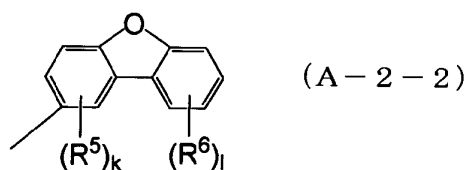


(上記式中、X、 R^5 、 R^6 、k 及び l は、前記定義の通りであり、好ましいものも同じである。)

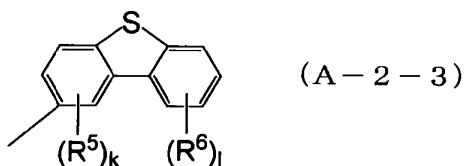
【化 1 2】



10



20



(上記式中、 $R^5 \sim R^8$ 、k 及び l は、前記定義の通りであり、好ましいものも同じである。)

【0034】

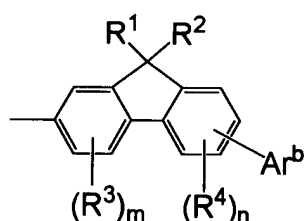
本発明の一般式(1)で表される化合物の製造方法に特に制限は無く、実施例及び公知の方法を参照して製造することができる。

30

本発明の化合物は、後述するように、有機EL素子用材料、特に有機EL素子用正孔輸送材料として有用である。さらには、アクセプター層が隣接(接合)した正孔輸送層を有する有機EL素子の、当該正孔輸送層の材料として有用である。

本発明の化合物は、2-ビフェニル基(o-ビフェニル基)と下記のフルオレン骨格

【化 1 3】



40

を有する基とが「直接」、窒素原子に結合している。このような構造をしているため、有機EL素子用材料として用いた場合に、低駆動電圧及び高効率という効果が得られた。特に、下記のフルオレン骨格を有する基が、窒素原子と直接結合していることにより、正孔輸送性が高まる傾向にあることがわかった。また、2-ビフェニル基(o-ビフェニル基)が窒素原子と直接結合していることにより、有機EL素子の低電圧化につながり、且つ発光効率も向上することがわかった。

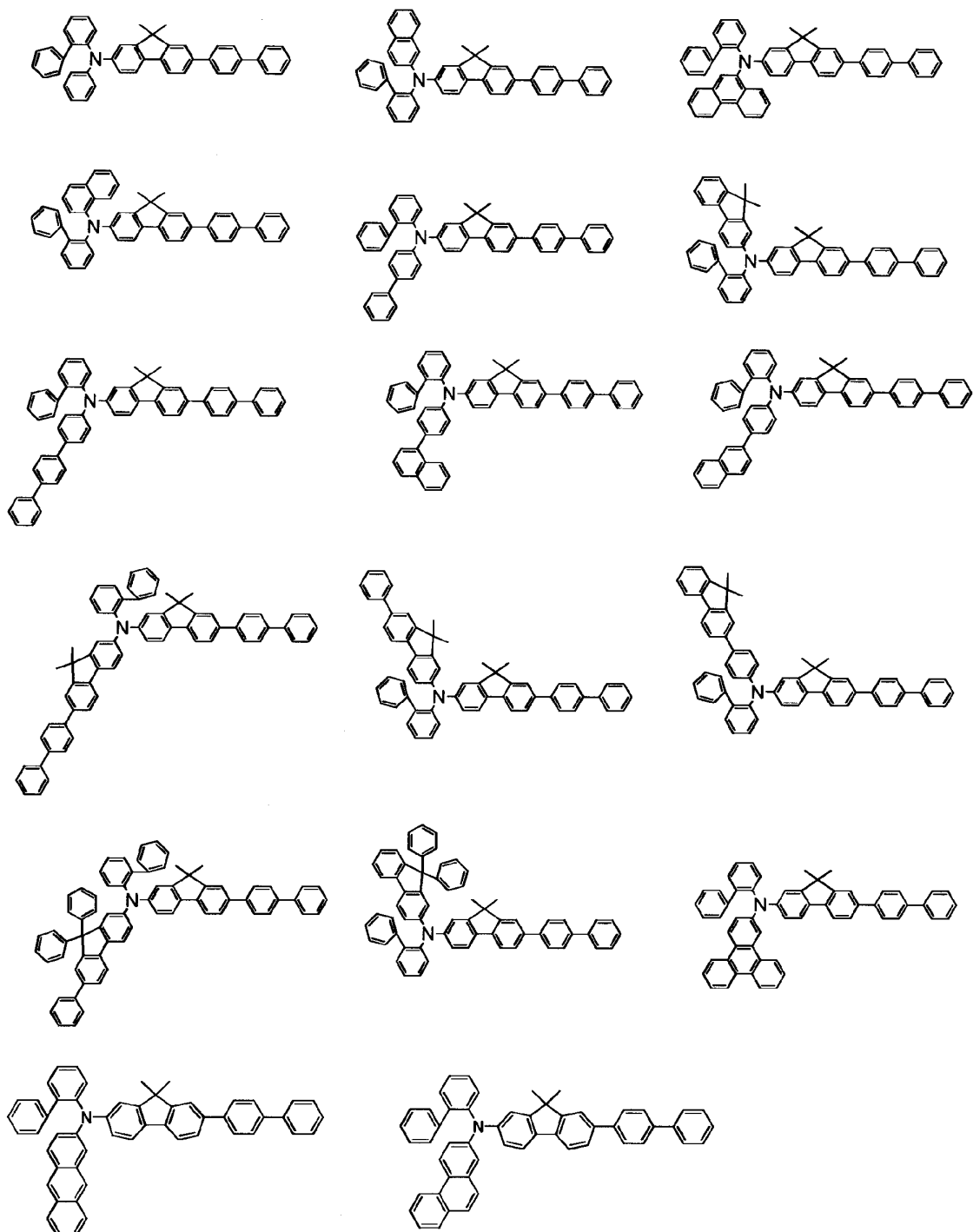
【0035】

50

本発明の化合物の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

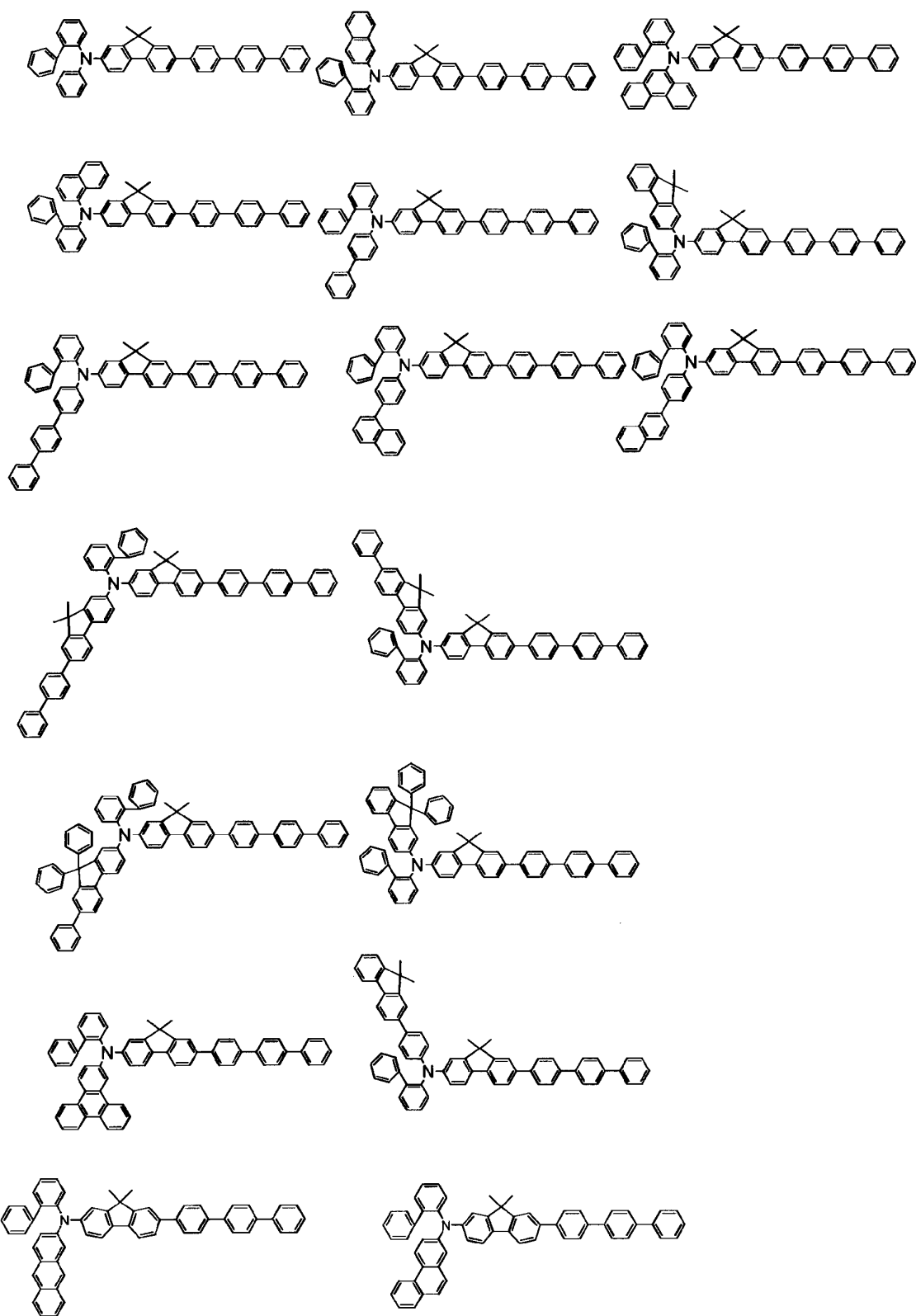
【0036】

【化14】



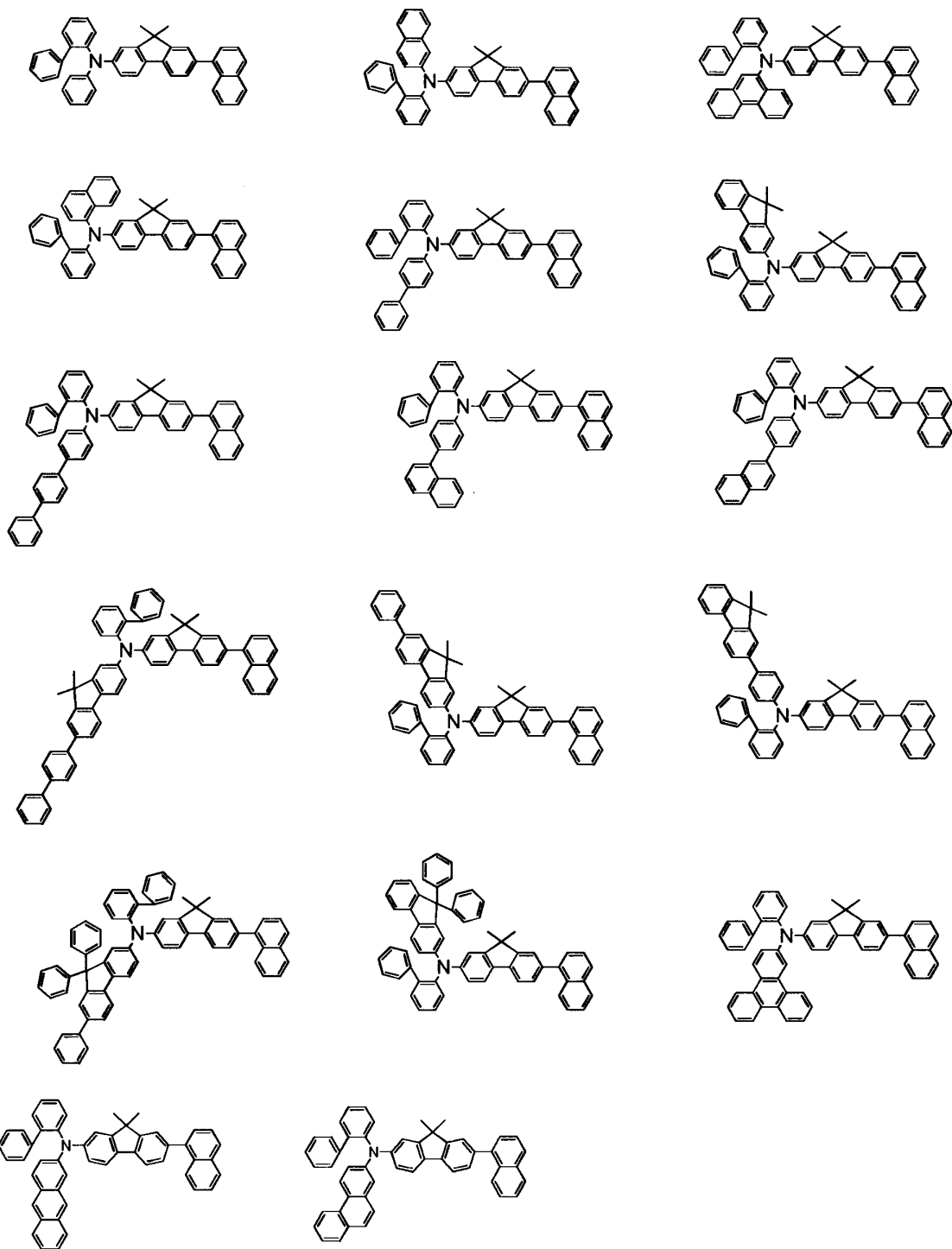
【0037】

【化 1 5】



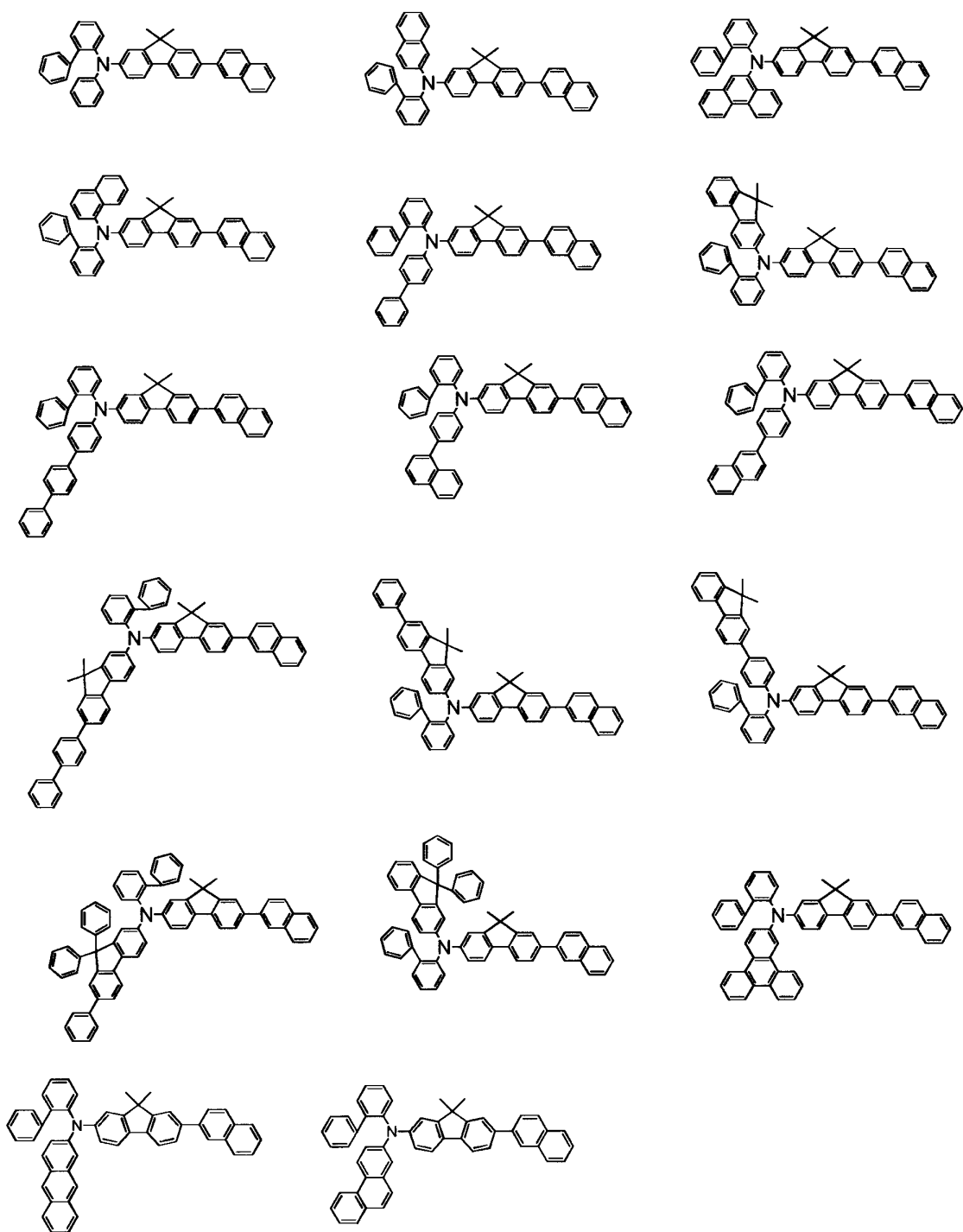
【0038】

【化 1 6】



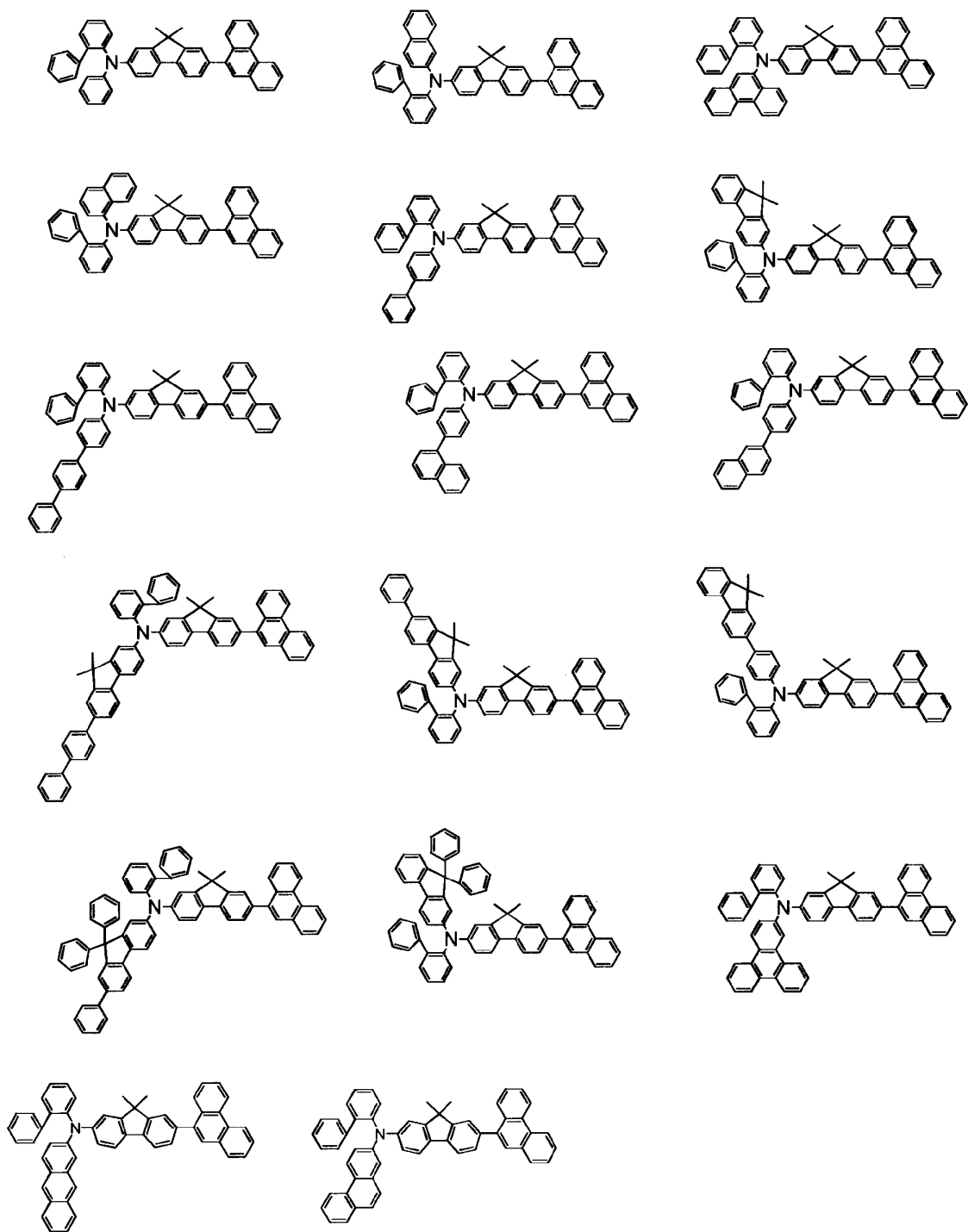
【0 0 3 9】

【化 1 7】



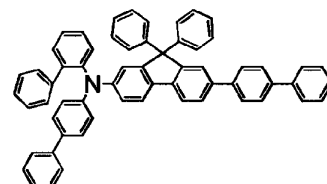
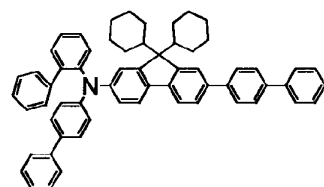
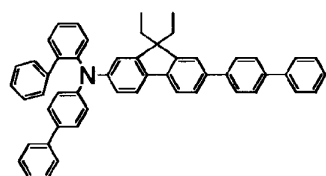
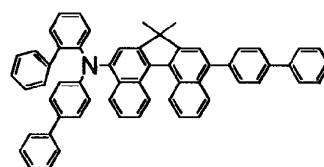
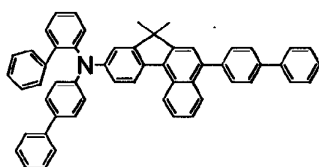
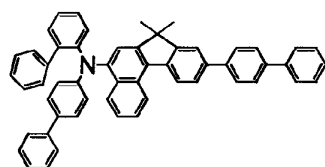
【0 0 4 0】

【化 1 8】

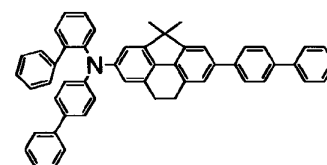
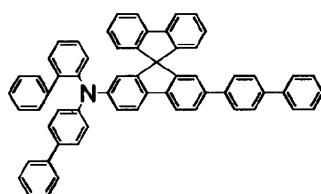
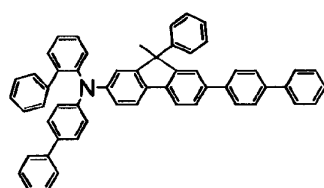


【 0 0 4 1 】

【化 1 9】



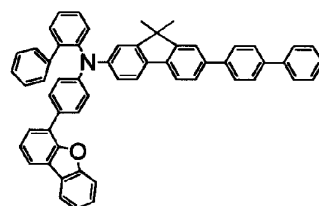
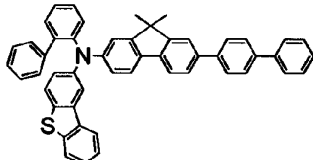
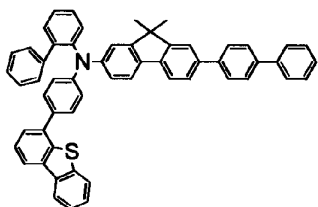
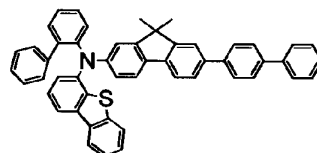
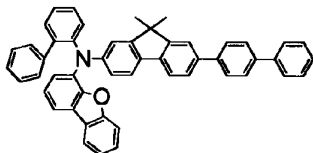
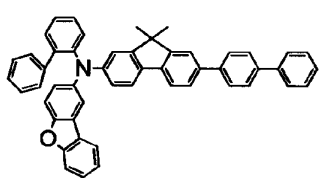
10



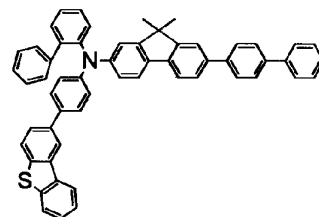
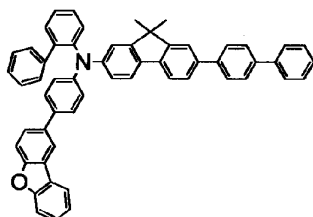
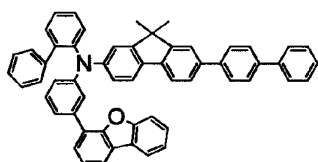
20

【 0 0 4 2 】

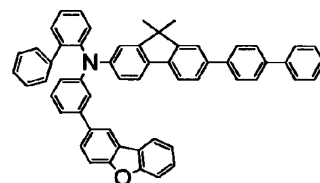
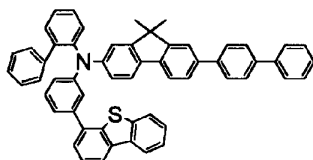
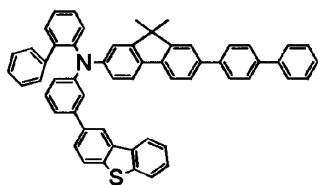
【化 2 0】



10



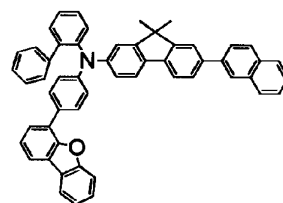
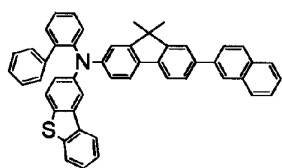
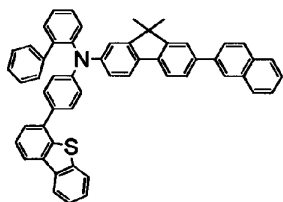
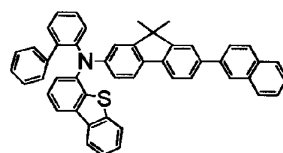
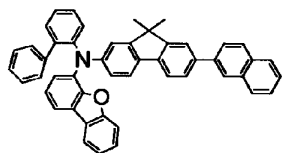
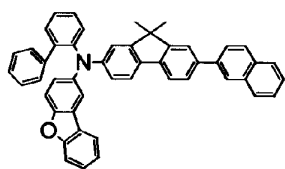
20



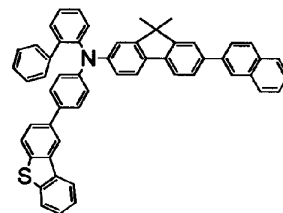
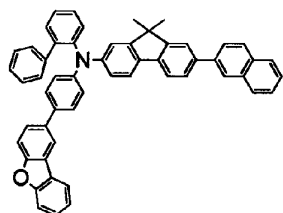
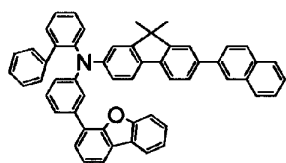
【 0 0 4 3】

30

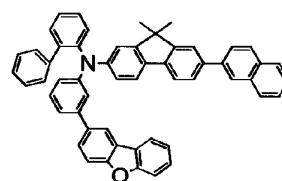
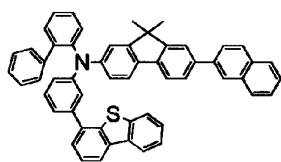
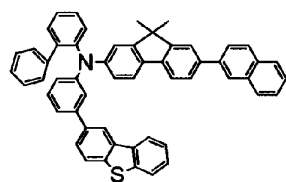
【化 2 1】



10

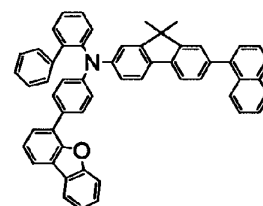
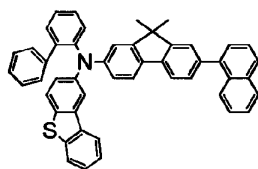
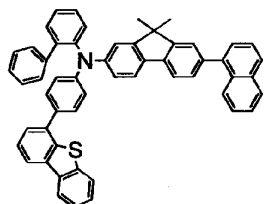
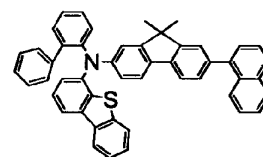
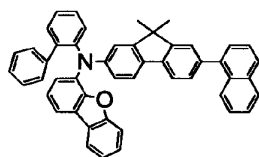
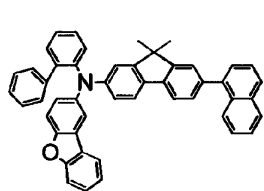


20

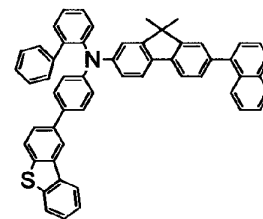
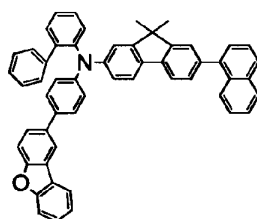
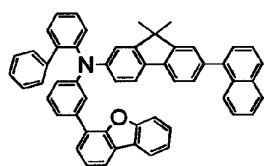


【 0 0 4 4】

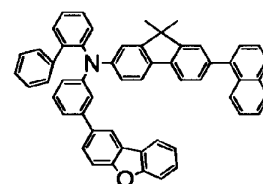
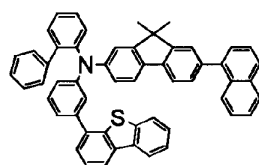
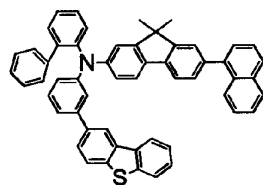
【化 2 2】



10



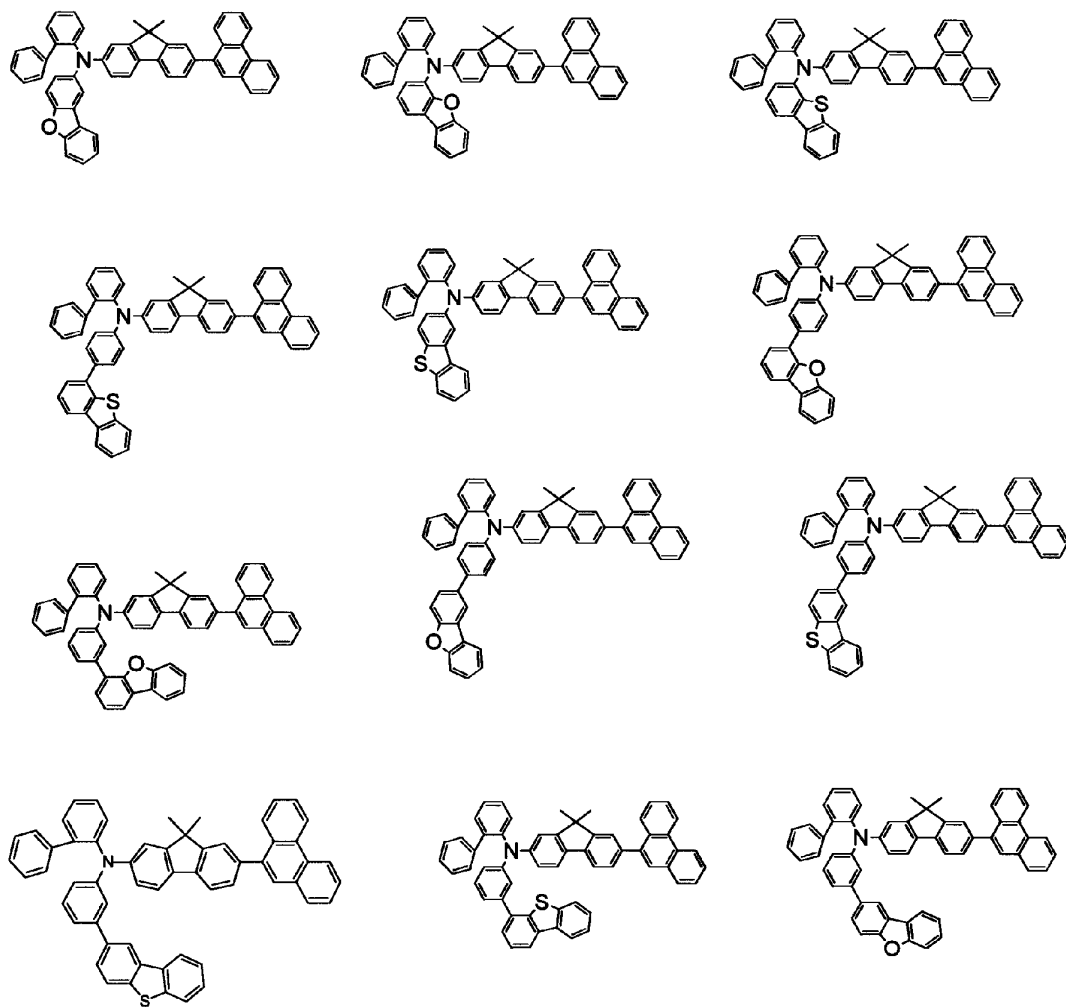
20



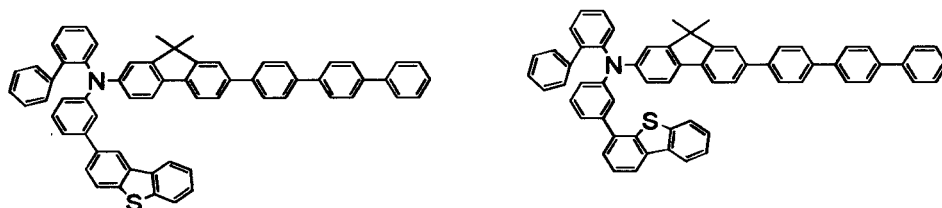
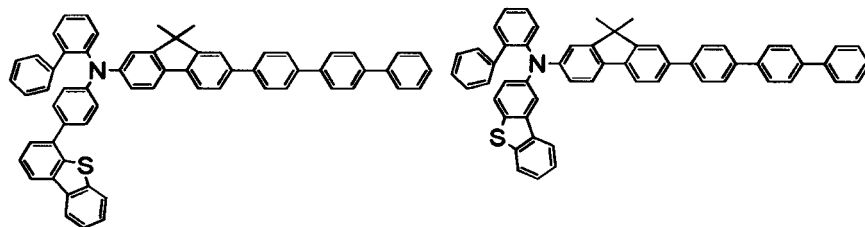
【 0 0 4 5】

30

【化 2 3】

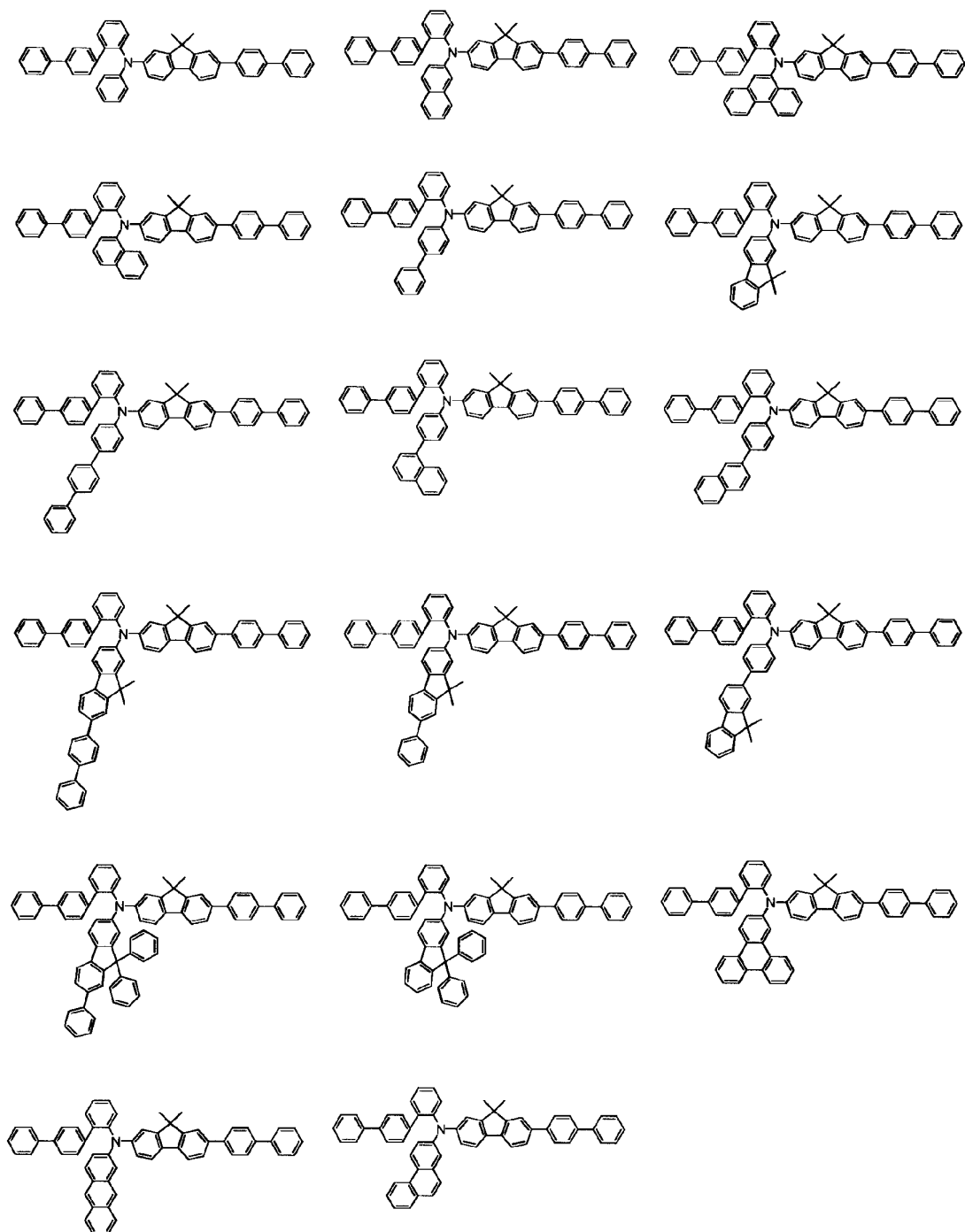


【 0 0 4 6 】



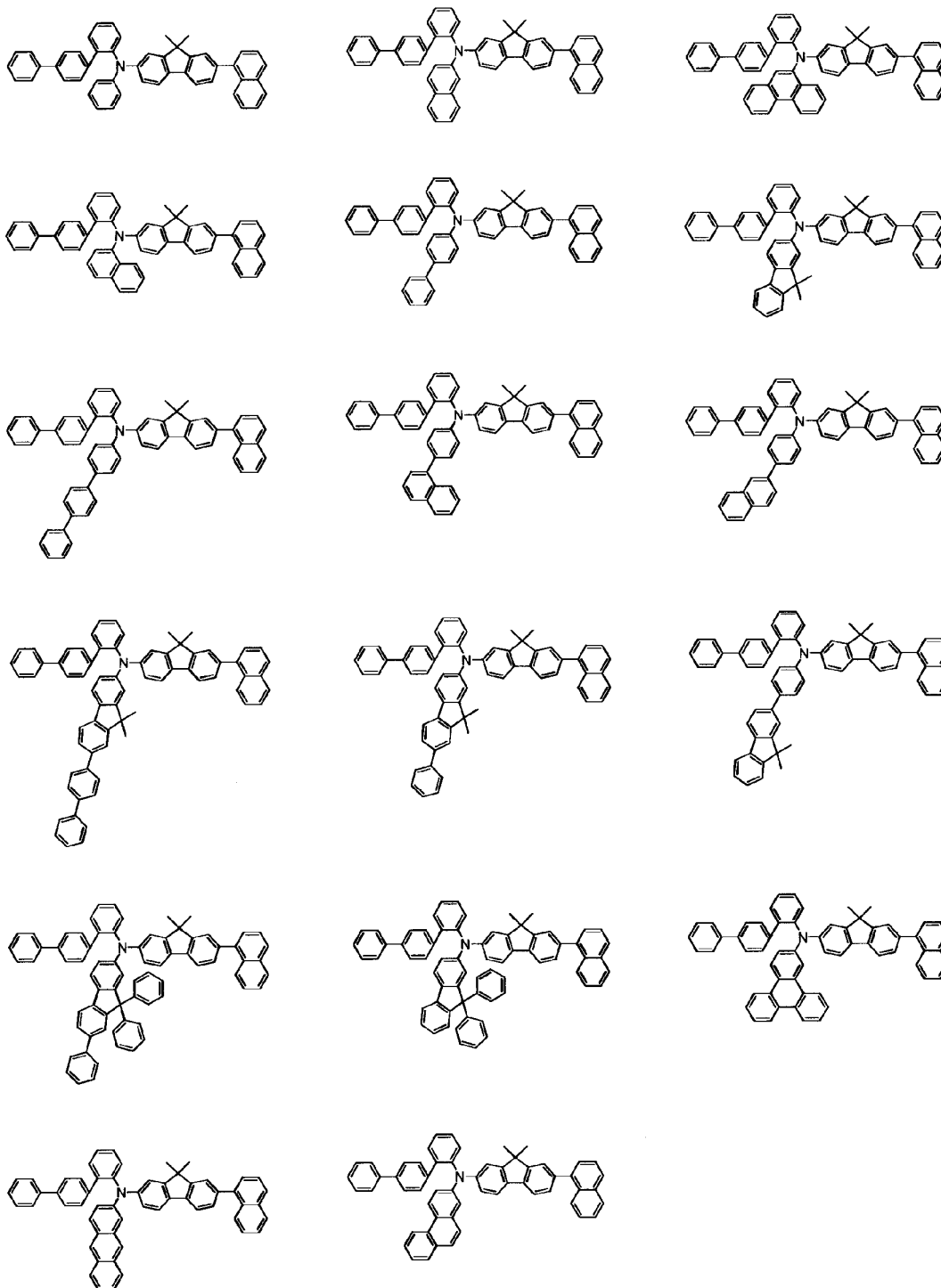
【 0 0 4 7 】

【化 2 5】

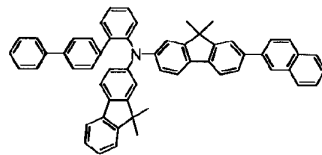
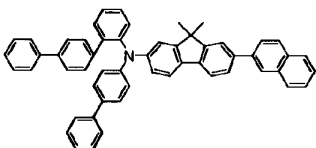
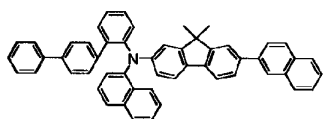
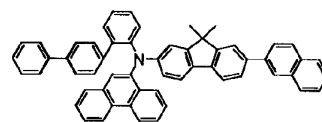
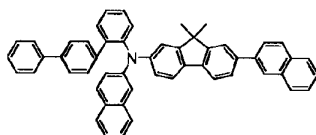


【 0 0 4 8 】

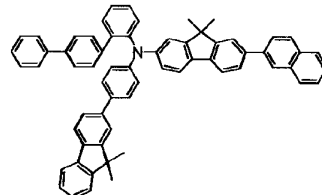
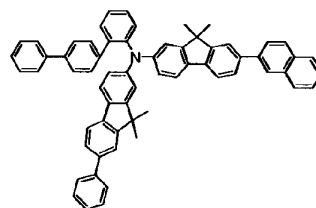
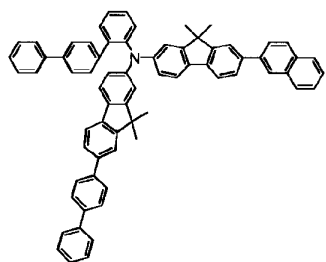
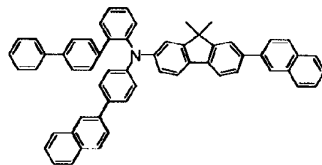
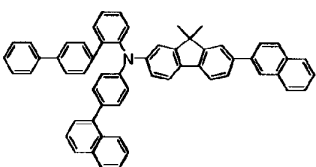
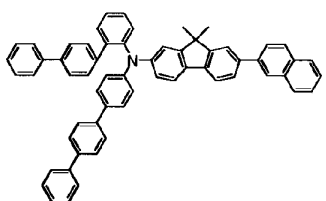
【化 2 6】



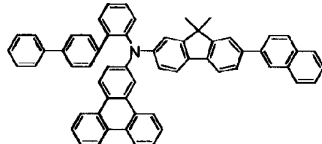
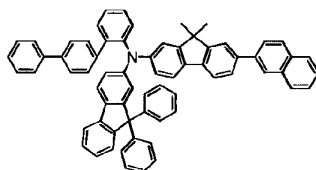
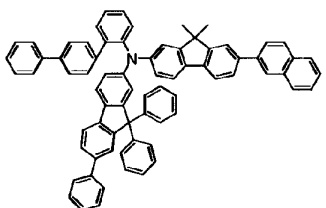
【0 0 4 9】



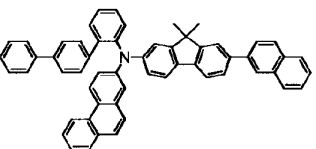
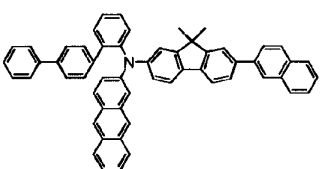
10



20



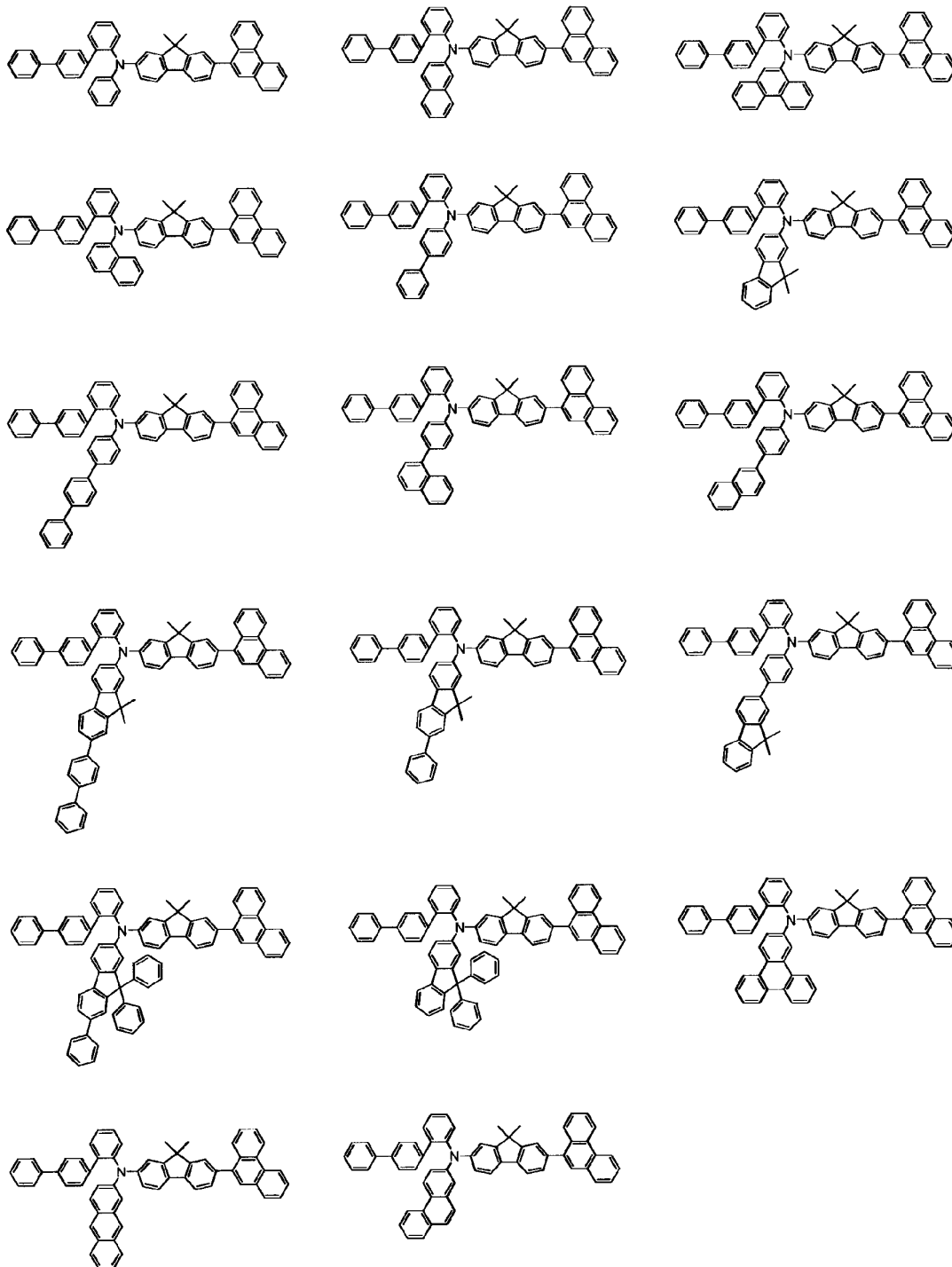
30



【 0 0 5 0 】

40

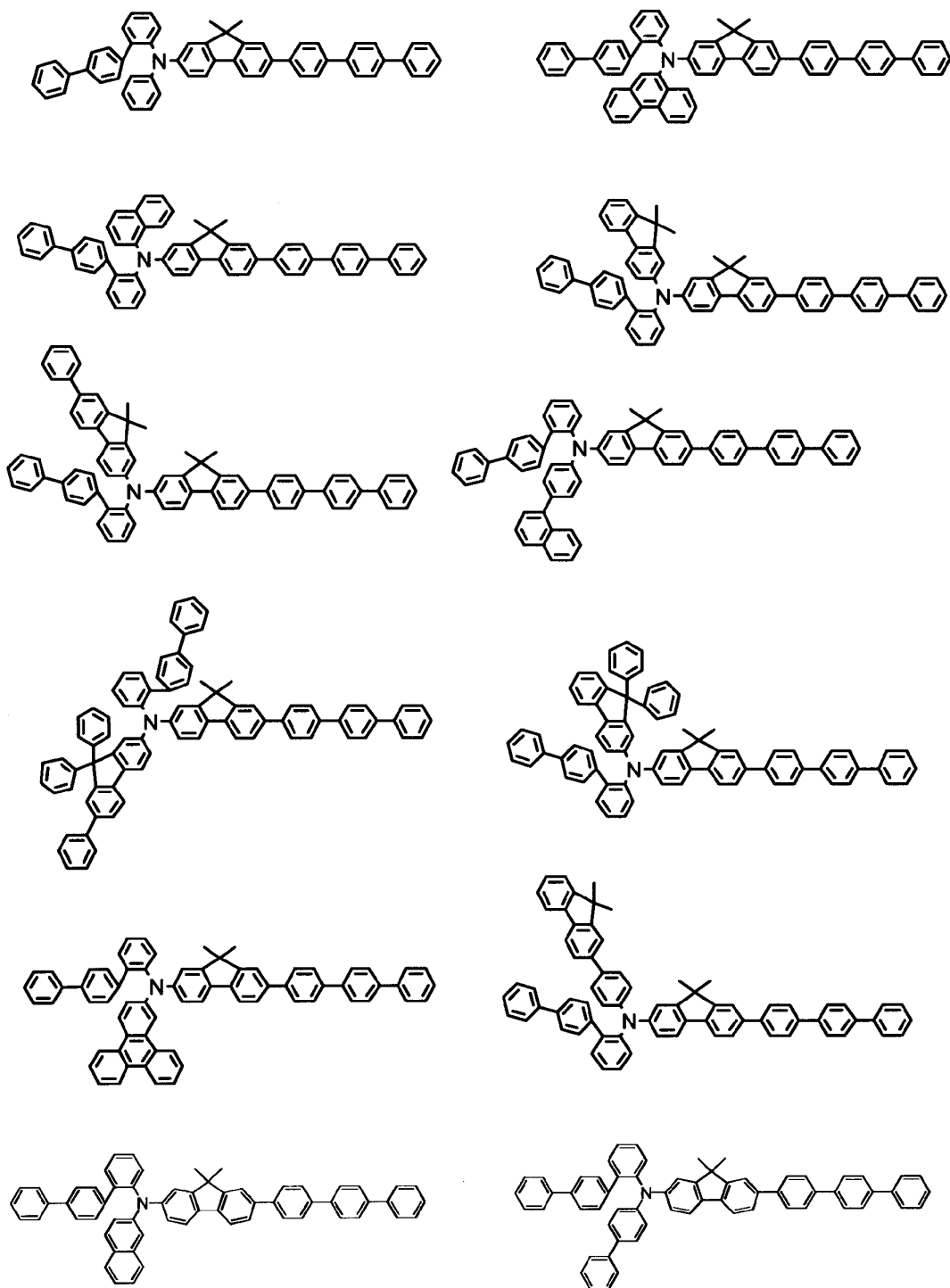
【化 2 8】



【0 0 5 1】

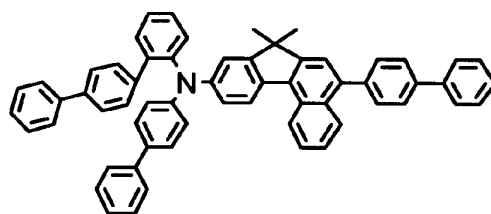
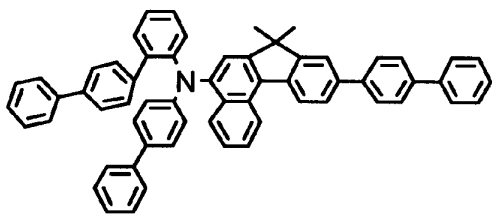
40

【化 2 9】

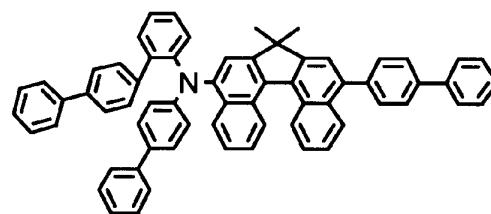
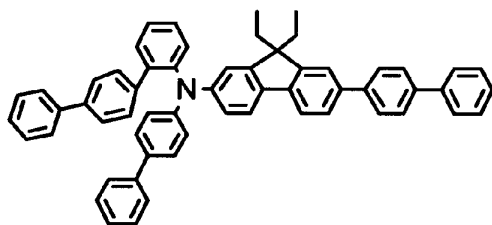


【0 0 5 2】

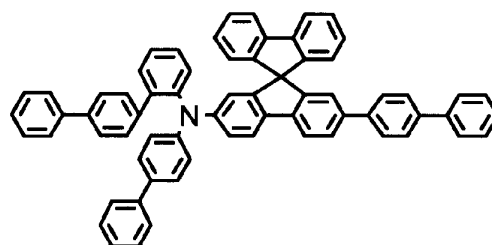
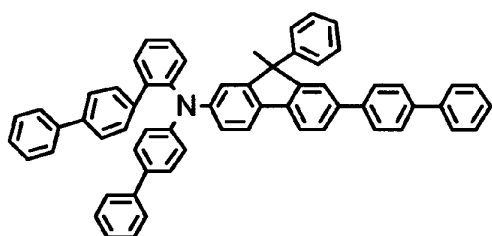
【化 3 0】



10

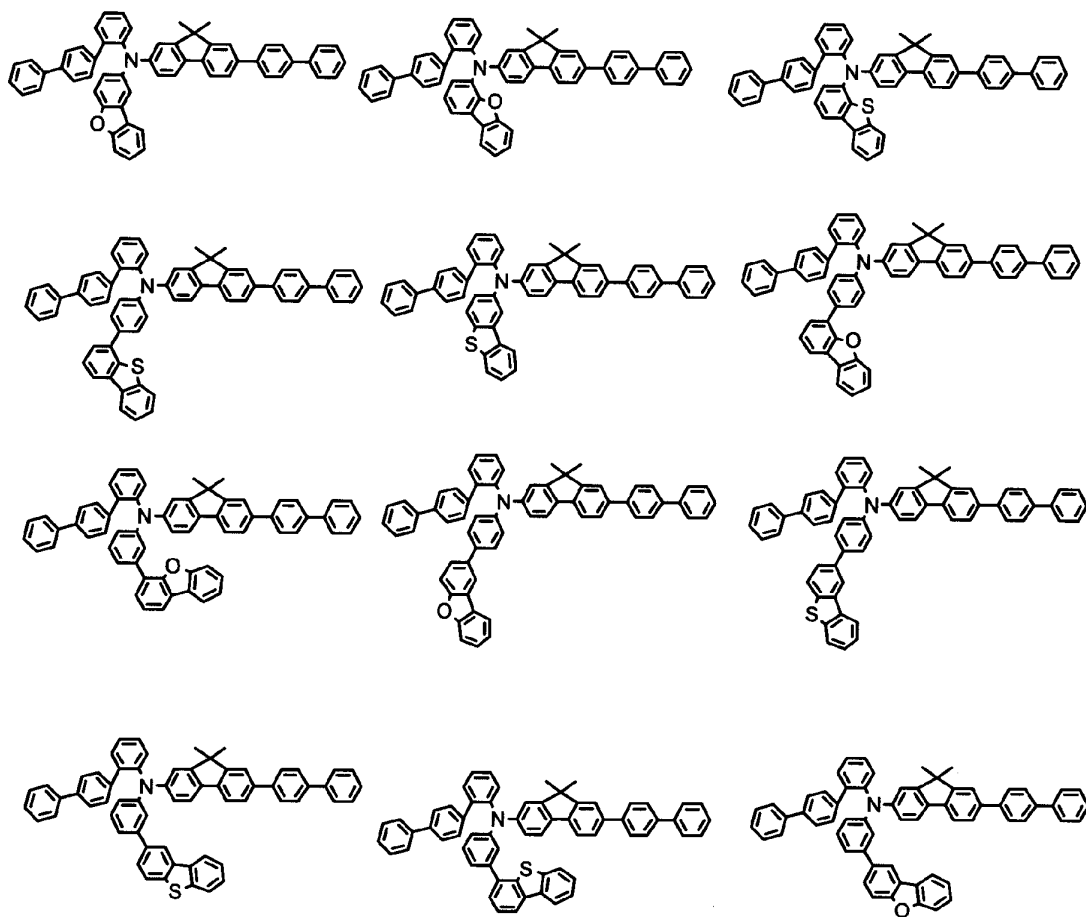


20



【 0 0 5 3】

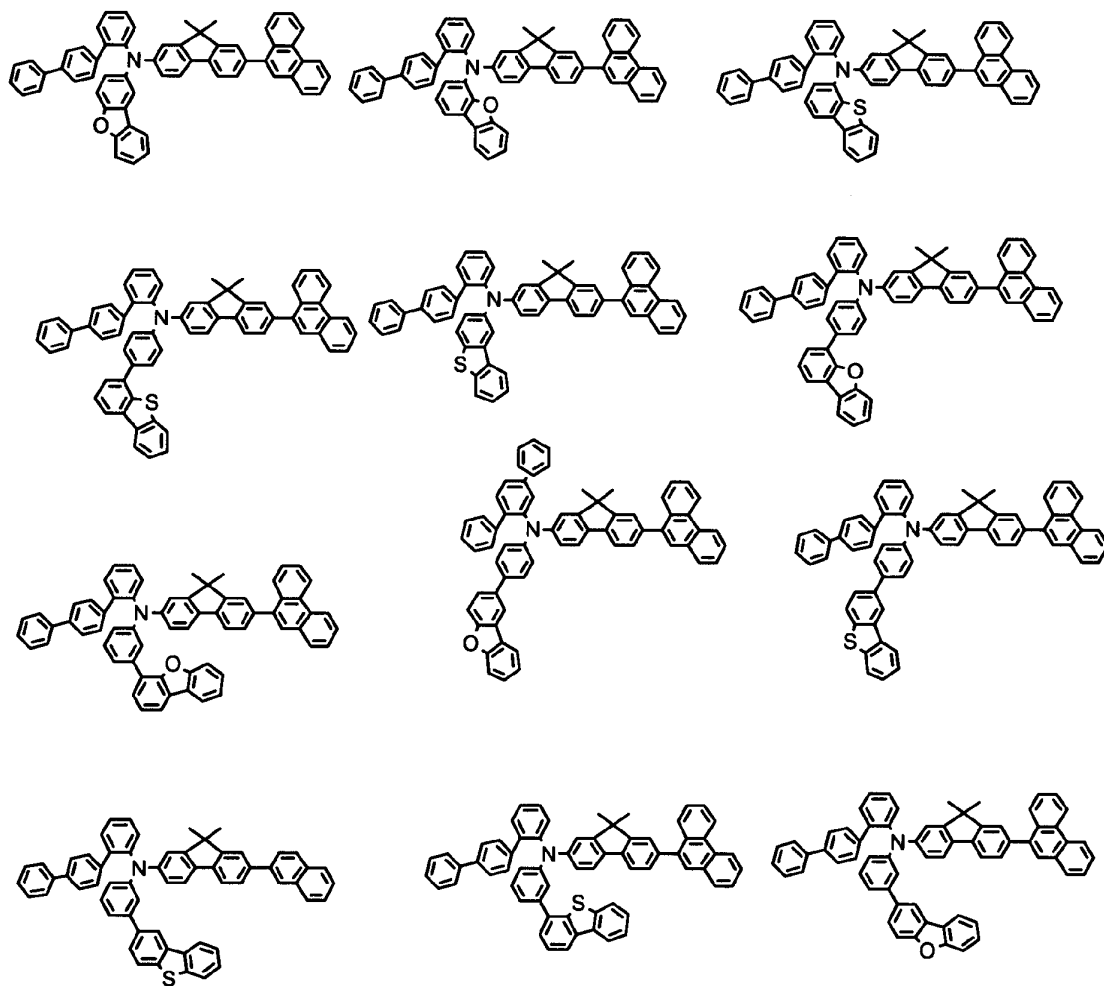
【化 3 1】



【 0 0 5 4】

【 0 0 5 5 】

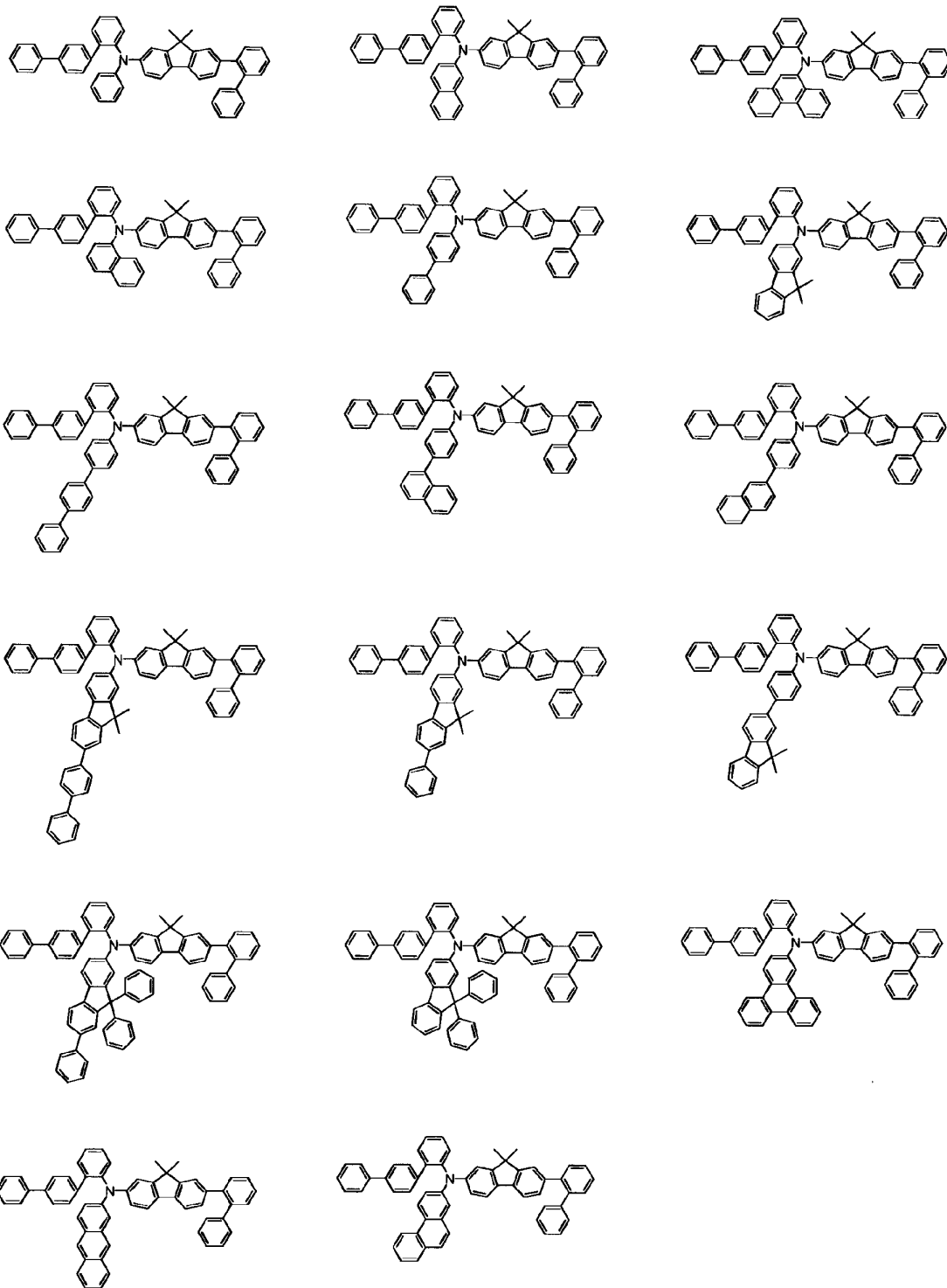
【化 3 4】



【 0 0 5 7 】

30

【化 3 5】



10

20

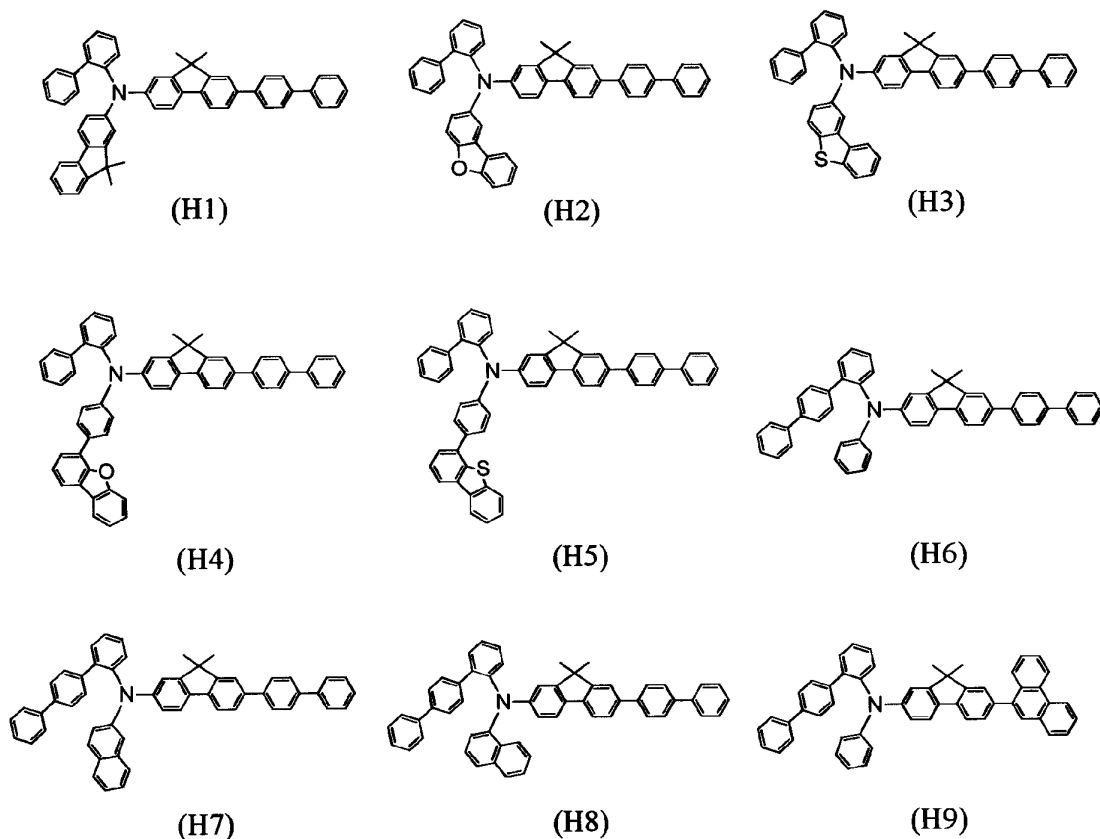
30

40

【0058】

上記の具体例の中でも、下記の化合物群から選択される化合物が好ましい。

【化 3 6】



【0059】

[有機エレクトロルミネッセンス素子]

次に、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）の実施の形態について説明する。

本発明の有機EL素子は、対向する陽極と陰極との間に有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記一般式（1）で表される化合物を含有する有機薄膜層を1層以上有するものである。

その中でも、特に本発明の好ましい形態の有機EL素子は、対向する陽極と陰極の間に、少なくとも2以上の正孔輸送層と、発光層を順次有する有機EL素子であって、該正孔輸送層のうちの一つが前記一般式（1）で表される化合物を含有し、かつ、発光層とは隣接しないことを特徴とする。

例えば、前記少なくとも2以上の正孔輸送層が陽極側の第一正孔輸送層と発光層側の第二正孔輸送層とからなり、該第一正孔輸送層が前記一般式（1）で表される化合物を含有することがより好ましい。

このように、本発明は、正孔輸送層を複数層として、そのうちの発光層とは隣接しない正孔輸送層が前記一般式（1）で表される移動度の高い化合物を正孔輸送材料として含むことにより、その正孔輸送層を厚膜化しても駆動電圧が高くならず、有機EL素子の光路長を調整可能であり、素子の高効率化が図れる。また、前記一般式（1）で表される化合物は、正孔注入性に優れるアクセプター材料との相性が良く、キャリア生成量が増えることでより多くの正孔を発光層へ輸送し注入することができ、素子の高効率化に繋がると考えられる。

【0060】

本発明の有機EL素子は、蛍光又は燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光／燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシングル型であってもよいし、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよい。ここで、「発光ユニット」とは、一層以上の有機層を含み、そのうちの一層が発光層であり、注入

された正孔と電子が再結合することにより発光することができる最小単位をいう。

以下、本発明の有機EL素子の素子構成について説明する。

(1) 有機EL素子の構成

本発明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極／アクセプター材料含有層（アクセプター層）／第一正孔輸送層／第二正孔輸送層／発光層／陰極
 - (2) 陽極／アクセプター材料含有層（アクセプター層）／第一正孔輸送層／第二正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
 - (3) 陽極／アクセプター材料含有層（アクセプター層）／第一正孔輸送層／第二正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
 - (4) 陽極／第一正孔輸送層／第二正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
 - (5) 陽極／第一正孔輸送層／第二正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- などの構造を挙げることができる。

前記第二正孔輸送層と発光層の間に、さらに、第三、第四・・・の正孔輸送層があってもよい。また、発光層と正孔輸送層との間に電子障壁層や励起子障壁層があってもよく、発光層と接する正孔輸送層が、電子障壁層や励起子障壁層であってもよい。また、一对の電極間に、絶縁層を有していてもよい。

なお、前記アクセプター層に隣接する正孔輸送層、例えば上記(1)～(3)に記載される素子構成において、アクセプター層に隣接する第一正孔輸送層をアクセプター層隣接正孔輸送層と称することがある。

【0061】

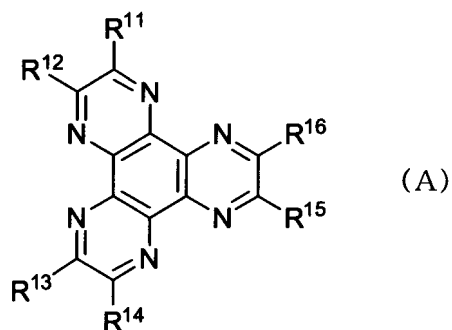
本発明の有機EL素子は、前記陽極と前記少なくとも2以上の正孔輸送層（特に最も陽極に近い正孔輸送層）との間に、アクセプター材料を含有するアクセプター層を有すると好ましい。

また、前記一般式(1)で表される化合物を含有する正孔輸送層がアクセプター材料を含有していてもよい。

前記アクセプター材料としては、一般式(1)で表される化合物を含有する正孔輸送層との接合性が良好になり、より素子性能の向上が期待できることから、下記一般式(A)、(B)又は(C)で表される化合物等の平面性の高い骨格を有するものが好ましい。

【0062】

【化37】



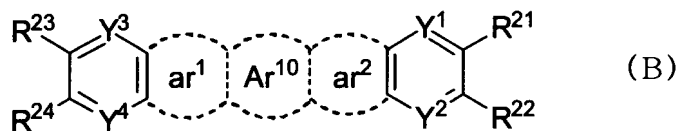
【0063】

(式(A)中、R¹¹～R¹⁶は、それぞれ独立に、シアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシ基、もしくは $-\text{COOR}^{17}$ (R¹⁷は、炭素数1～20のアルキル基である。)を表すか、又は、R¹¹及びR¹²、R¹³及びR¹⁴、もしくはR¹⁵及びR¹⁶が互いに結合して $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を表す。)

R¹⁷のアルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

【0064】

【化 3 8】



【0065】

上記一般式 (B) 中、 $R^{21} \sim R^{24}$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 (好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～14) のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 (好ましくは 5～30、より好ましくは 5～20、さらに好ましくは 5～14) の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 しくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 (好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～14) のアリールオキシ基、又はシアノ基である。 $R^{21} \sim R^{24}$ のうち互いに隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。

$Y^1 \sim Y^4$ は互いに同一でも異なってもよく、 $-N=$ 、 $-CH=$ 、又は $C(R^{25})=$ であり、 R^{25} は、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 (好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～14) のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 (好ましくは 5～30、より好ましくは 5～20、さらに好ましくは 5～14) の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 しくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 (好ましくは 6～30、より好ましくは 6～20、さらに好ましくは 6～14) のアリールオキシ基、又はシアノ基である。

Ar^{10} は、環形成炭素数 6～24 の縮合環又は環形成原子数 6～24 の複素環である。 ar^1 及び ar^2 は、それぞれ独立に、下記一般式 (i) 又は (ii) の環を表す。

【化 3 9】



(i)

(ii)

{式中、 X^1 及び X^2 は互いに同一でも異なってもよく、下記 (a)～(g) に示す二価の基のいずれかである。

【0066】

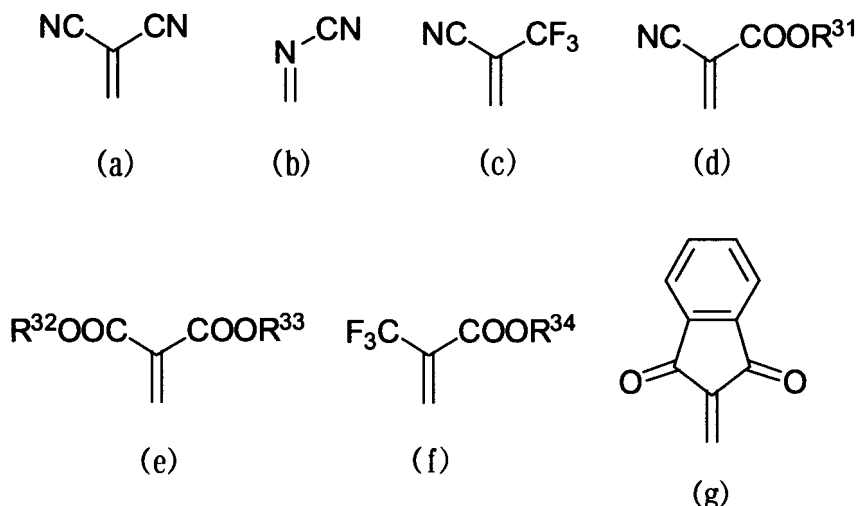
10

20

30

40

【化 4 0】



(式中、 $\text{R}^{31} \sim \text{R}^{34}$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、 R^{32} と R^{33} は互いに結合して環を形成してもよい。)}
 10

【0067】

$\text{R}^{21} \sim \text{R}^{24}$ 及び $\text{R}^{31} \sim \text{R}^{34}$ の各基の例としては以下の通りである。
 20

アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

複素環基としては、ピリジン、ピラジン、フラン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、チオフェン等の残基が挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。

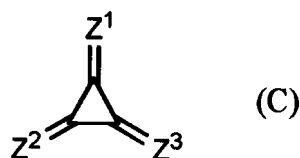
アリールオキシ基の例としては、フェニルオキシ基等が挙げられる。
 30

これらは置換基を有していてもよく、置換されたアリール基としては、モノフルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基などのハロゲン原子が置換したアリール基；トリル基、4-*tert*-ブチルフェニル基等の、炭素数1～10（好ましくは1～5）のアルキル基が置換したアリール基等が挙げられる。置換されたアルキル基としては、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロシクロヘキシル基、パーフルオロアダマンチル基等の、ハロゲン原子が置換したアルキル基が挙げられる。置換されたアリールオキシ基としては、4-トリフルオロメチルフェニルオキシ基、ペンタフルオロフェニルオキシ等の、ハロゲン原子が置換したもしくはハロゲン原子含有アルキル基（炭素数1～5）が置換したアリールオキシ基；4-*tert*-ブチルフェノキシ基等の、炭素数1～10（好ましくは1～5）のアルキル基が置換したアリールオキシ基等が挙げられる。
 40

$\text{R}^{21} \sim \text{R}^{24}$ のうち互いに隣接するものは、互いに結合して環を形成していてもよい。該環の例としては、ベンゼン環、ナフタレン環、ピラジン環、ピリジン環、フラン環等が挙げられる。

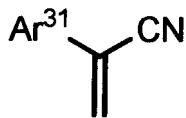
【0068】

【化 4 1】



式 (C) 中、 $Z^1 \sim Z^3$ は、それぞれ独立に、下記一般式 (h) で示される二価の基である。

【化 4 2】



(h)

式 (h) 中、 Ar^{31} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基である。

該アリール基としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

該ヘテロアリール基としては、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、キノリン、イソキノリン等が挙げられる。

また、これらの置換基の例としては、シアノ基、フルオロ基、トリフルオロメチル基、クロロ基及びブロモ基等の電子吸引性の基が挙げられる。

【0069】

(2) 透光性基板

本発明の有機 EL 素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機 EL 素子を支持する基板であり、400 ～ 700 nm の可視領域の光の透過率が 50 % 以上で平滑な基板が好ましい。

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げるができる。

【0070】

(3) 陽極

本発明の有機 EL 素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する機能を有するものであり、4.5 eV 以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (ITO)、酸化錫 (NE SA)、インジウム-亜鉛酸化物 (IZO)、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。

このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が 10 % より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常 10 nm ～ 1 μm 、好ましくは 10 nm ～ 200 nm の範囲で選択される。

【0071】

(4) 正孔輸送層

上記した通り、本発明の有機 EL 素子のより好ましい実施態様における有機 EL 素子には、少なくとも 2 層以上の正孔輸送層が用いられる。

発光層に隣接しない正孔輸送層は、有機 EL 素子の光学調整のために厚膜で用いられる場合が多く、低電圧化の観点から正孔移動度が高いことが求められる。更に、効率よくキャリアを生成するためアクセプター層と積層される場合が多く、アクセプター層との相互作用が高いことが必要とされている。

本発明の一般式 (1) で表わされる化合物は、フルオレン構造を有することからビフェニル構造と比べて分子の平面性が高いため、正孔移動度が高い。さらに、一般的に平面性の高いアクセプター材料との相互作用に優れることからキャリアの発生量も大きいため、発光層へより多くの正孔を輸送し注入することができる。つまり、本発明の一般式 (1)

10

20

30

40

50

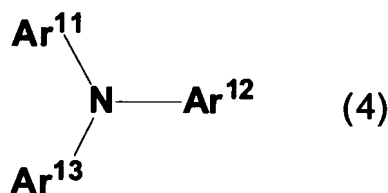
で表わされる化合物は、発光層に隣接しない正孔輸送層（正孔輸送層が2層である場合には、第一正孔輸送層に相当する。）に求められる特性を満たすため、発光層に隣接しない正孔輸送層の材料として用いることが好ましい。

一方、発光層に隣接する正孔輸送層（正孔輸送層が2層である場合には、第二正孔輸送層に相当する。）に求められる特性としては、発光層の励起エネルギーの拡散を防ぐため、高い三重項エネルギー（2.6 eV以上が好ましい）、発光層と隣接するため電子耐性、発光層から電子が漏れることを防ぐためにアフィニティの小さい（2.4 eV以下が好ましい）有機層であること、発光層への正孔注入を促進させるためにイオン化ポテンシャルの大きい（5.5 eV以上が好ましい）有機層であることが必要とされている。このような特性を満たす材料としては、優れた燐光発光性有機EL素子のみならず優れた蛍光発光性有機EL素子を得る観点から、ヘテロアリーール置換アミン誘導体が好ましく、より好ましくは下記一般式（4）～（8）で表される化合物が挙げられる。

【0072】

〔発光層に隣接する正孔輸送層用の材料例（第二正孔輸送材料）；一般式（4）〕

【化43】

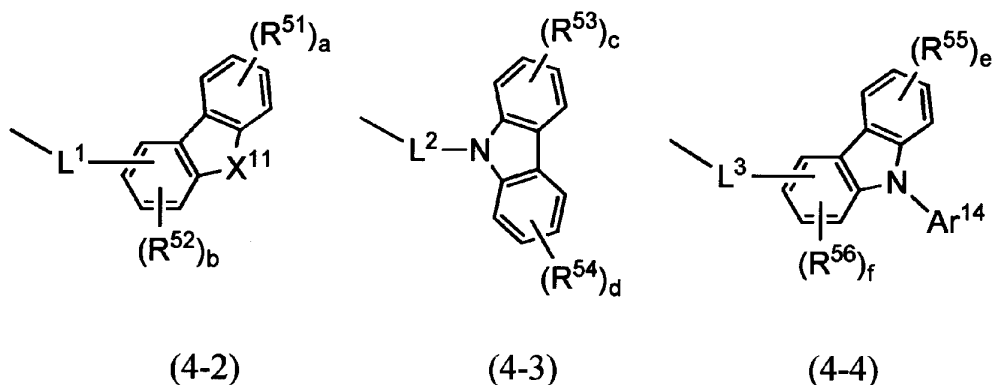


【0073】

（式（4）中、 $\text{Ar}^{11} \sim \text{Ar}^{13}$ は、少なくとも1つが下記一般式（4-2）又は（4-4）で表される基である。また、一般式（4-2）で表される基ではない基は、下記一般式（4-3）もしくは（4-4）で表される基又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40のアリール基であり、一般式（4-4）で表される基ではない基は、下記一般式（4-2）もしくは（4-3）で表される基又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40のアリール基である。）

【0074】

【化44】



【0075】

（式中、 X^{11} は、酸素原子又は硫黄原子である。

$\text{L}^1 \sim \text{L}^3$ は、それぞれ独立に、単結合、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 $\text{L}^1 \sim \text{L}^3$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリーールシリル基（アルキル基の炭素数は1～5であり、アリーール基の環形成炭素数は6～14である。）、環形成炭素数6～50のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

Ar^{14} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基を表し、 Ar^{14} が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アルキル基の炭素数は1～5であり、アリール基の環形成炭素数は6～14である。）、環形成炭素数6～50のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$R^{51} \sim R^{56}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アルキル基の炭素数は1～5であり、アリール基の環形成炭素数は6～14である。）、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の $R^{51} \sim R^{56}$ は、互いに結合して環を形成してもよい。

10

b、fは、それぞれ独立に、0～3の整数を表し、a、c、d、eは、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。）

【0076】

$L^1 \sim L^3$ が表すアリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントリレン基、アセナフチレニル基、アントラニレン基、フェナントレニレン基、フェナレニル基、キノリレン基、イソキノリレン基、s-インダセニレン基、a s-インダセニレン基、クリセニレン基等が挙げられる。これらの中でも、環形成炭素数6～30のアリーレン基が好ましく、環形成炭素数6～20のアリーレン基がより好ましく、環形成炭素数6～12のアリーレン基がさらに好ましく、フェニレン基が特に好ましい。

20

以下、残りの各基について説明するが、同じ基については同じように説明される。

アルキル基としては、炭素数1～5のアルキル基が好ましく、炭素数1～3のアルキル基がより好ましい。アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ヘキシル基等が挙げられる。

トリアルキルシリル基のアルキル基としては、上記の通りであり、好ましいものも同じである。トリアリールシリル基のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基が挙げられる。

30

アルキルアリールシリル基としては、ジアルキルモノアリールシリル基等が挙げられる。該アルキル基の炭素数は1～5であり、好ましくは1～3である。また、該アリール基の環形成炭素数は6～14であり、好ましくは6～10である。

前記環形成炭素数6～50のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、フェナントリル基、ターフェニル基等が挙げられる。これらの中でも、環形成炭素数6～30のアリール基が好ましく、環形成炭素数6～20のアリール基がより好ましく、環形成炭素数6～12のアリール基がさらに好ましい。

ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

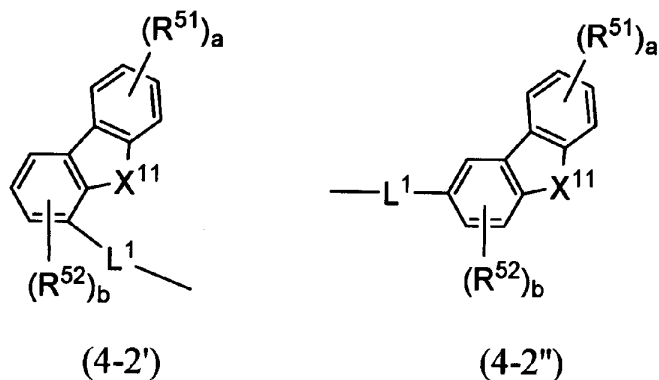
a～fは、いずれも0又は1が好ましく、0がより好ましい。

40

【0077】

前記一般式(4-2)としては、下記一般式(4-2')や(4-2'')が好ましく挙げられる（各基の定義は前記の通りである）。

【化 4 5】

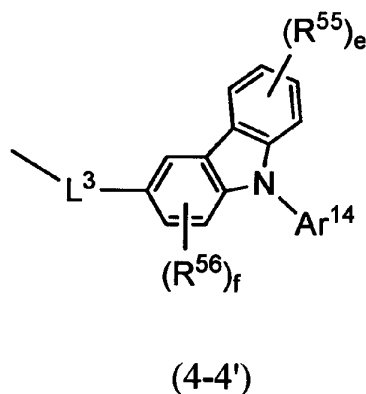


10

【0078】

前記一般式(4-4)としては、下記一般式(4-4')が好ましく挙げられる(各基の定義は前記の通りである)。

【化 4 6】



20

【0079】

なお、式(4)中、 $Ar^{11} \sim Ar^{13}$ は、少なくとも1つが前記一般式(4-2)で表される基であることが好ましい。また、一般式(4-2)中の X^{11} としては、酸素原子であることが好ましい。

30

$Ar^{11} \sim Ar^{13}$ 中、2つが前記一般式(4-2)で表される基であるものも好ましく、1つが前記一般式(4-2)で表される基であり、1つが前記一般式(4-3)で表される基であるものも好ましく、3つが前記一般式(4-2)で表される基であるものも好ましい。

【0080】

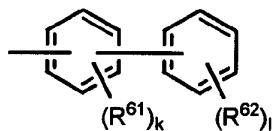
前記一般式(4-2)における L^1 がアリーレン基である場合や前記一般式(4-4)における L^3 がアリーレン基である場合、前記一般式(4)で表される化合物の電子密度の上昇を抑制し、 I_p が大きくなり、発光層への正孔注入が促進されるため、素子の駆動電圧が低くなり易く好ましい。さらに、ジベンゾフラン構造やカルバゾール構造がアリーレン基を介して窒素原子と結合すると、アミンが酸化されにくくなり、化合物が安定となる場合が多く、素子の寿命が長くなりやすい。また、前記一般式(4-4)における L^3 がアリーレン基である場合、化合物が安定となるため合成が容易である。該アリーレン基としては、特にフェニレン基が好ましい。

40

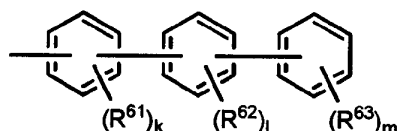
また、前記一般式(4)において、 $Ar^{11} \sim Ar^{13}$ において、一般式(4-2)～(4-4)のいずれで表される基でもない場合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40のアリール基を表す。該アリール基は、下記一般式(4-5)～(4-7)で表されることが好ましい。

【0081】

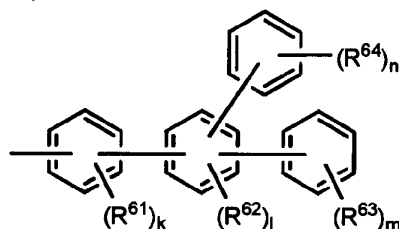
【化 4 7】



(4-5)



(4-6)



(4-7)

10

【 0 0 8 2】

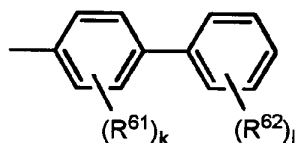
[式中、 $R^{61} \sim R^{64}$ は、それぞれ独立に、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は6～14）、環形成炭素数6～50のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R^{61} \sim R^{64}$ は結合して環を形成してもよい。

20

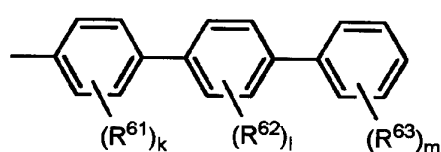
k 、 l 、 m 、及び n は、それぞれ独立に、0～4の整数である。]

さらに、上記一般式（4-5）～（4-7）としては、以下の一般式（4-5'）～（4-7'）が好ましい（各基の定義は前記の通りである。）。

【化 4 8】

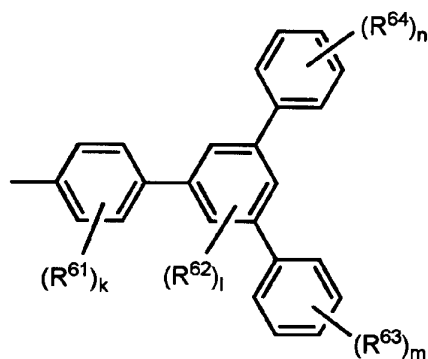


(4-5')



(4-6')

30



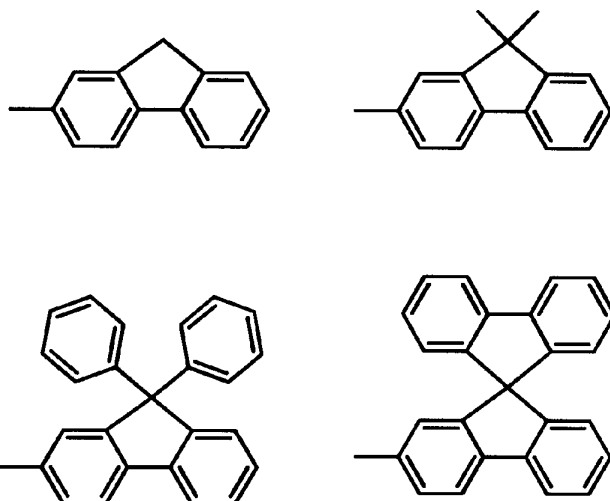
(4-7')

40

【 0 0 8 3】

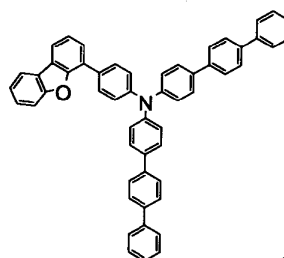
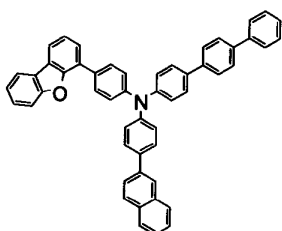
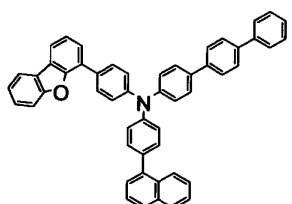
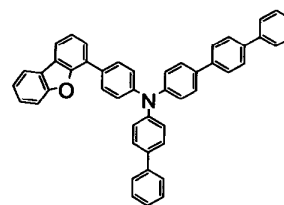
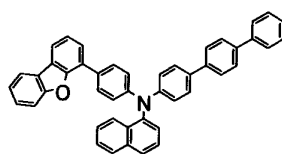
なお、上記一般式（4-5'）としては、以下の基も含まれる。

【化 4 9】

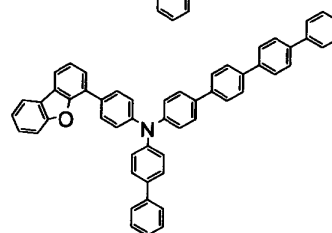
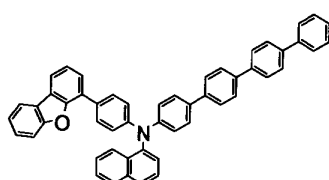
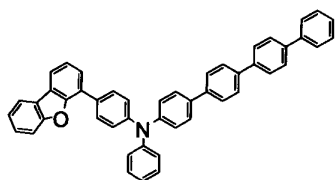


【0084】

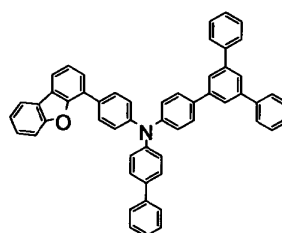
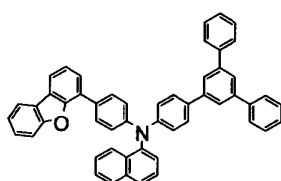
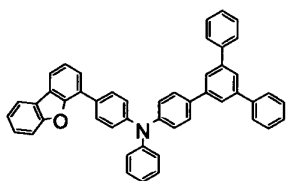
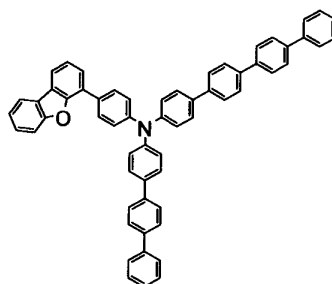
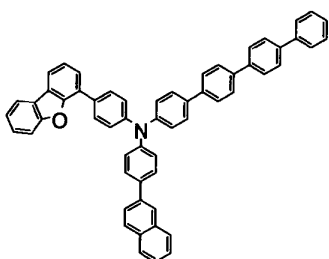
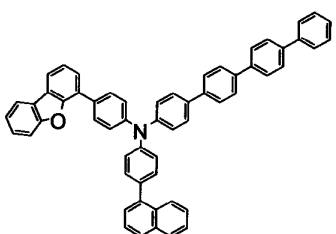
前記一般式（４）で表される化合物の具体例を以下に示すが、特にこれらに制限されるものではない。



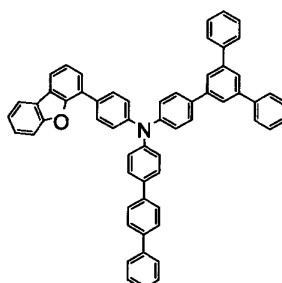
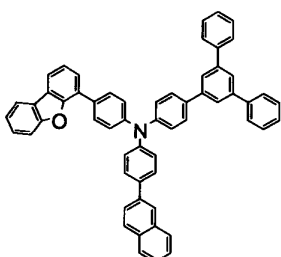
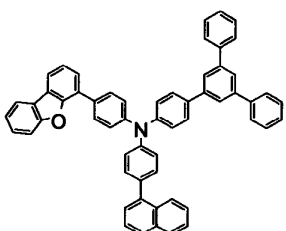
10



20



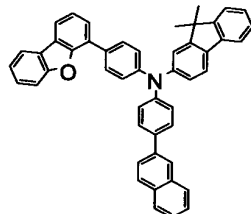
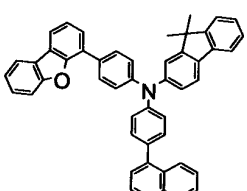
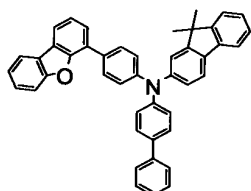
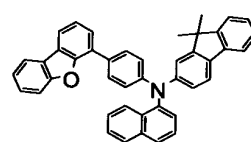
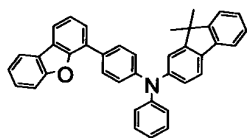
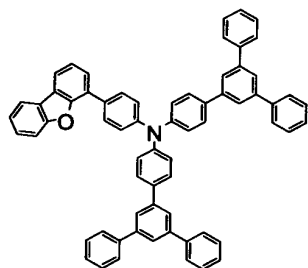
30



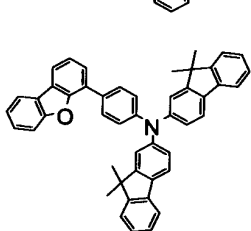
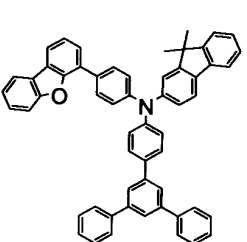
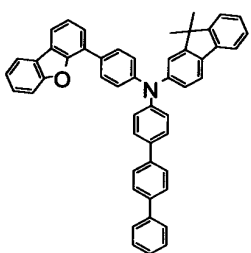
40

【 0 0 8 5 】

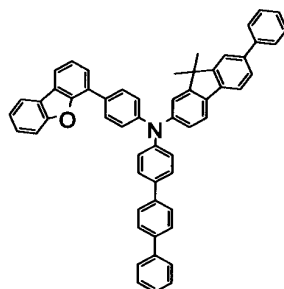
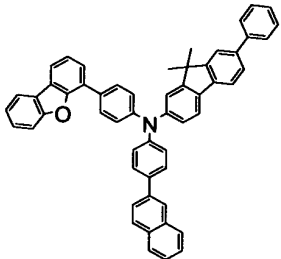
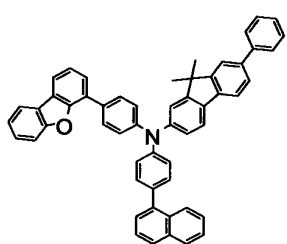
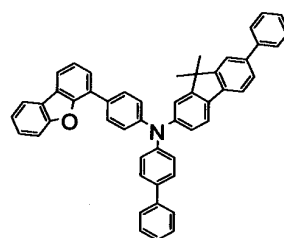
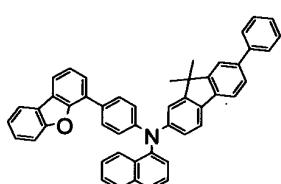
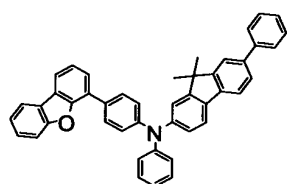
【化 5 1】



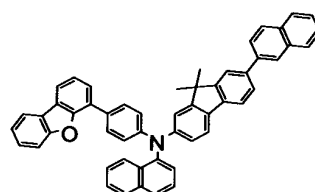
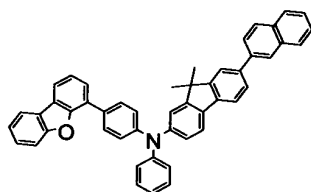
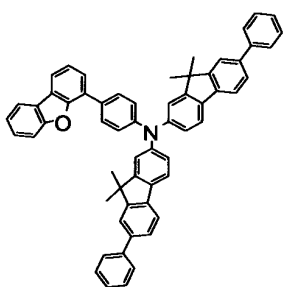
10



20



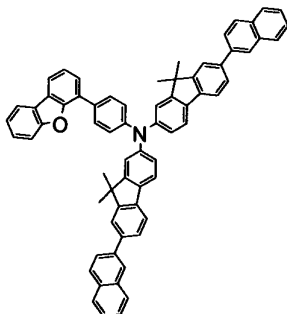
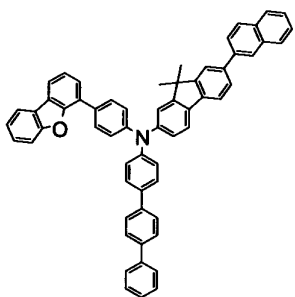
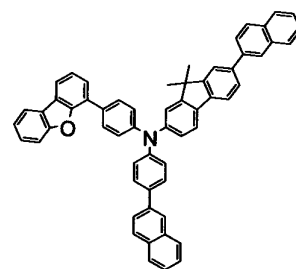
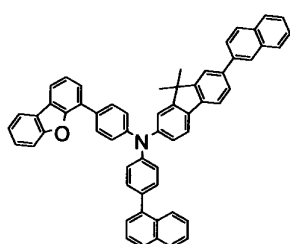
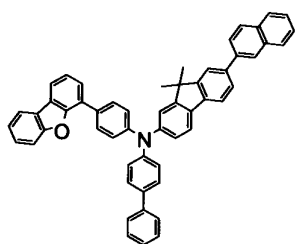
30



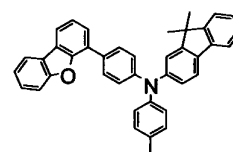
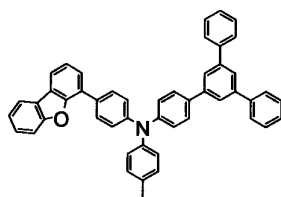
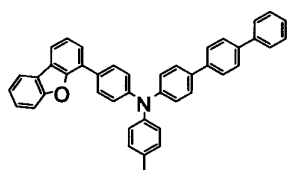
40

【0086】

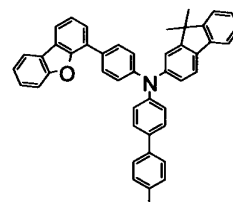
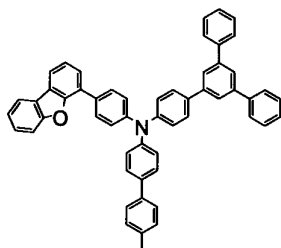
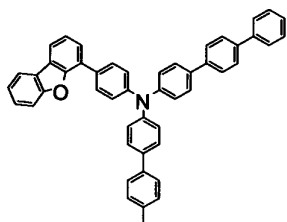
【化 5 2】



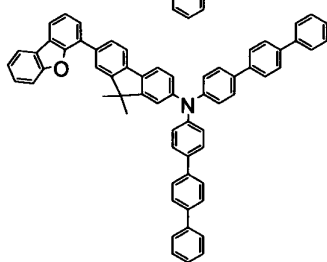
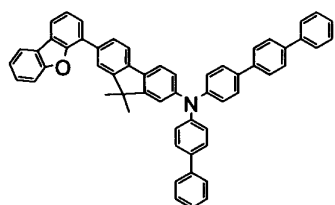
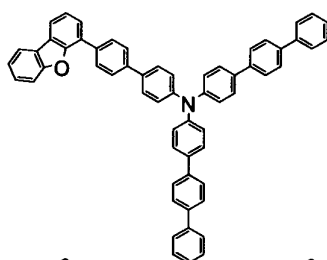
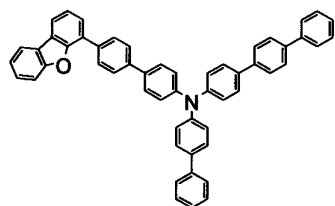
10



20



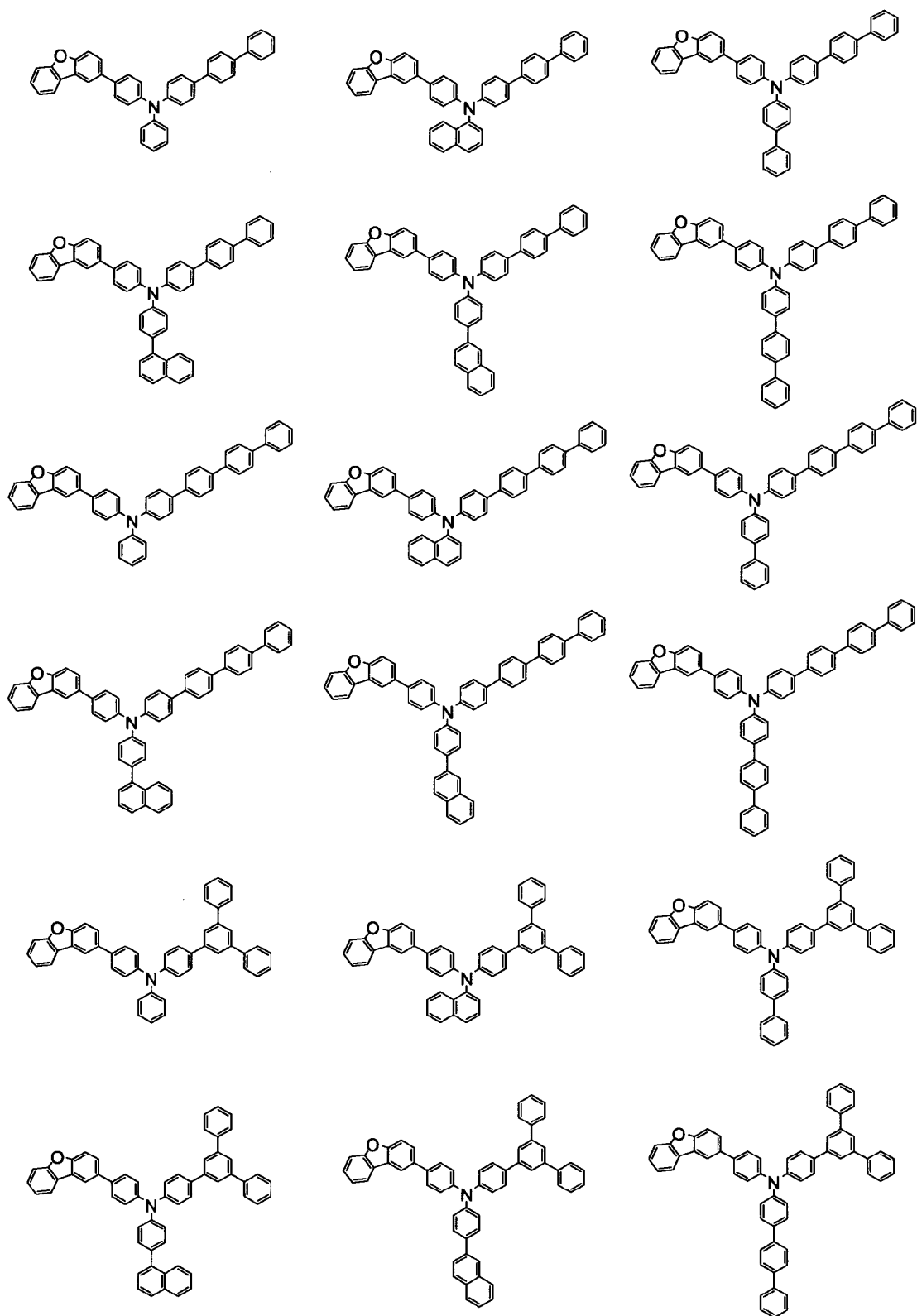
30



40

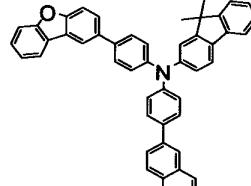
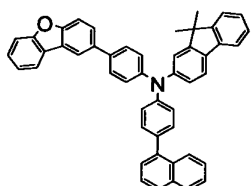
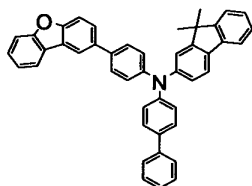
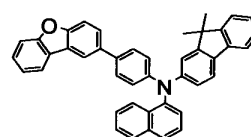
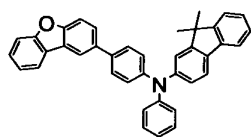
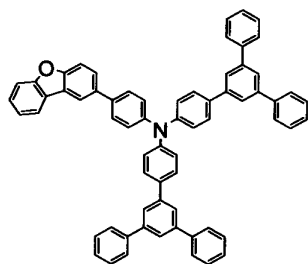
【0087】

【化 5 3】

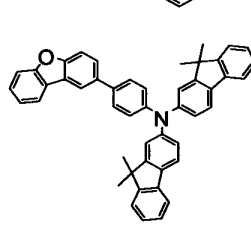
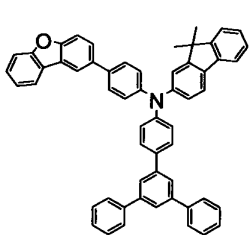
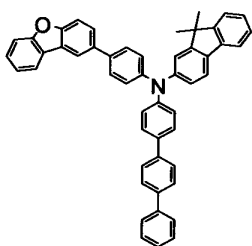


【0088】

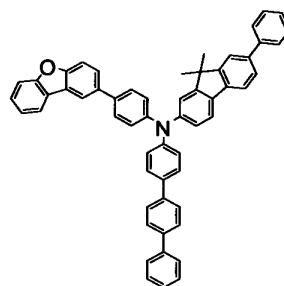
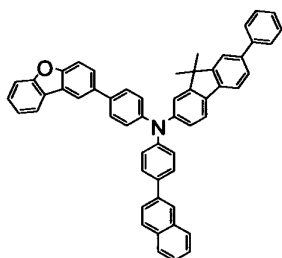
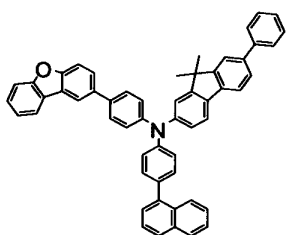
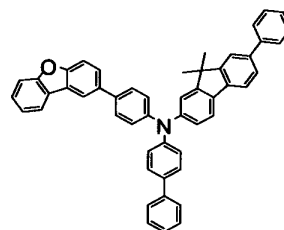
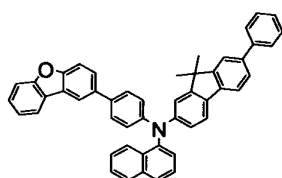
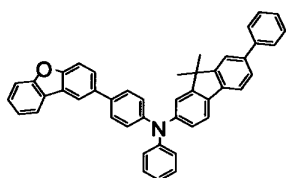
【化 5 4】



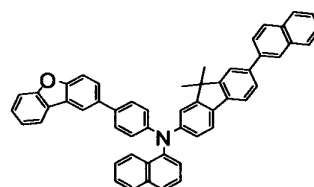
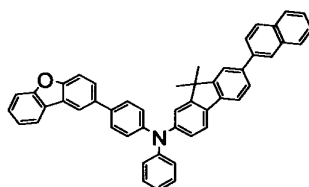
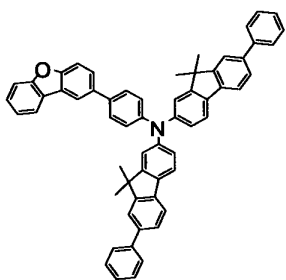
10



20



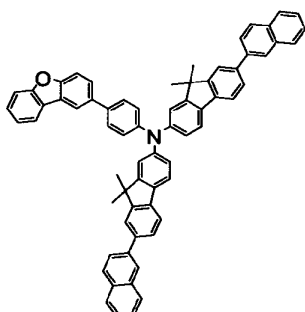
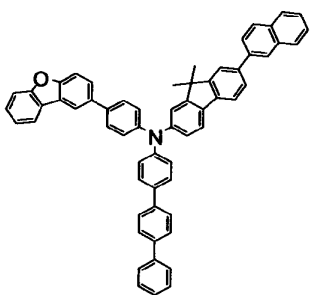
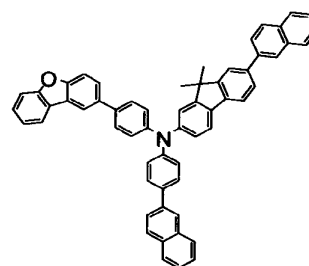
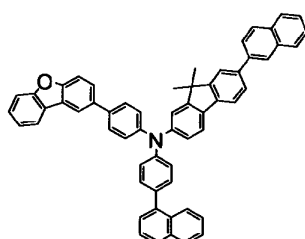
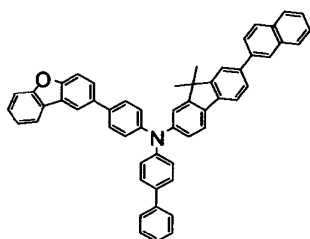
30



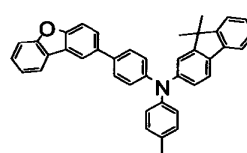
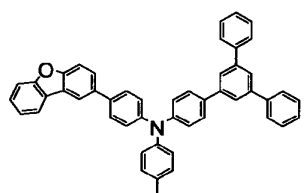
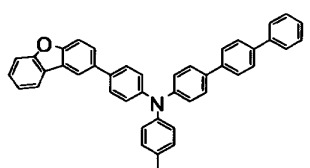
40

【 0 0 8 9 】

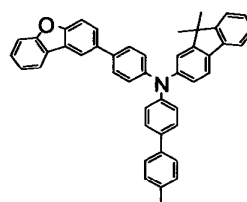
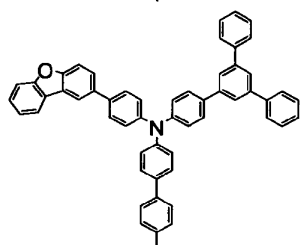
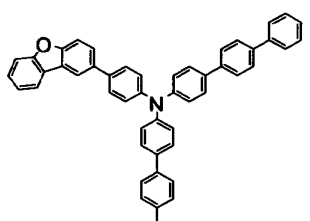
【化 5 5】



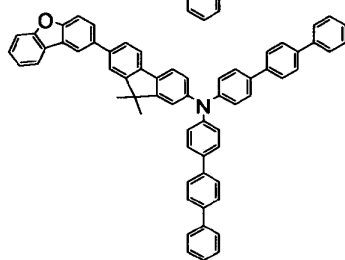
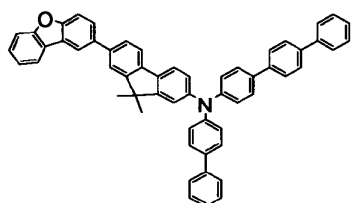
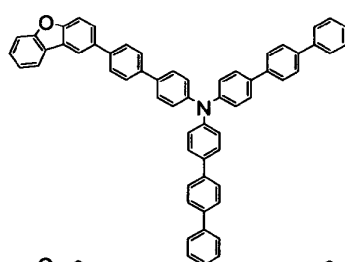
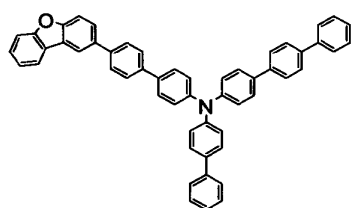
10



20



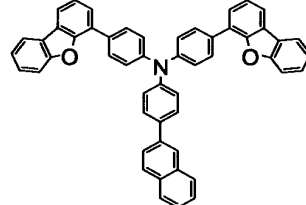
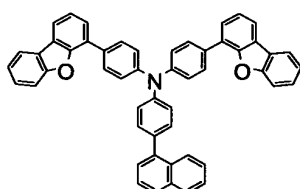
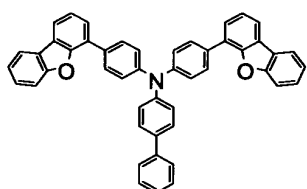
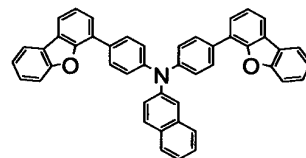
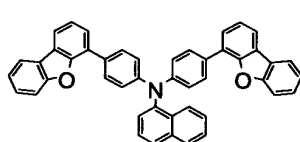
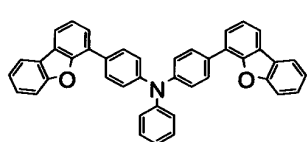
30



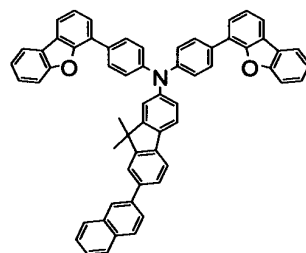
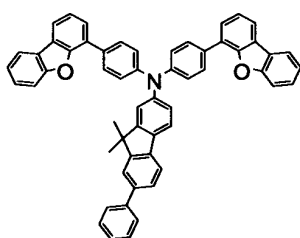
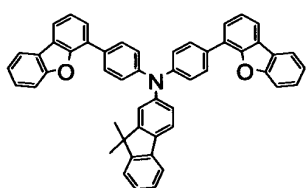
40

【0090】

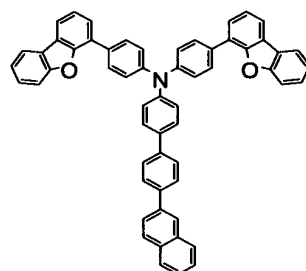
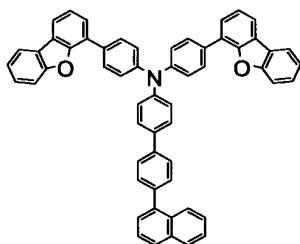
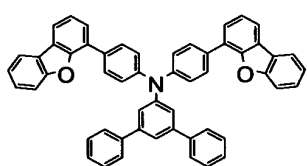
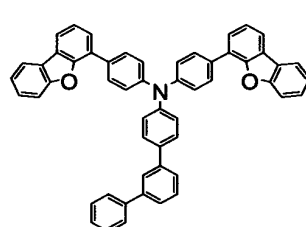
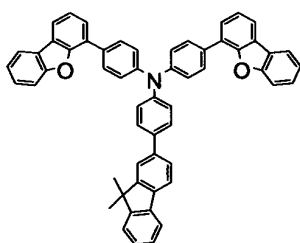
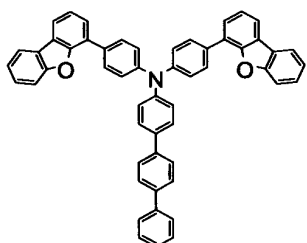
【化 5 6】



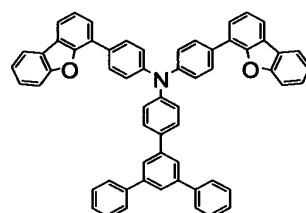
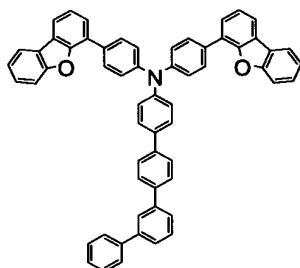
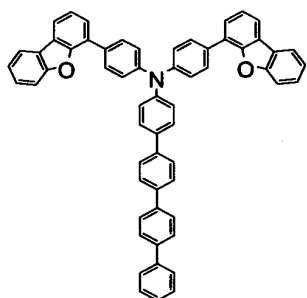
10



20



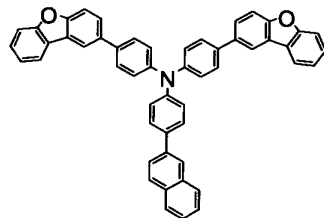
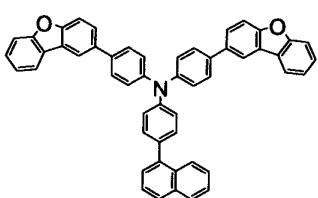
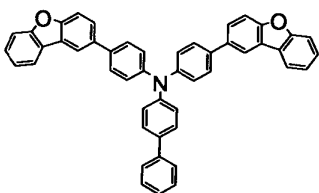
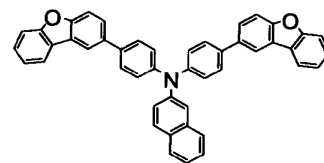
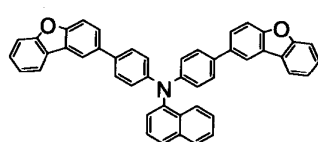
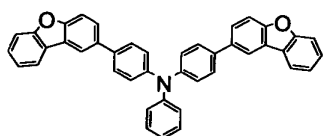
30



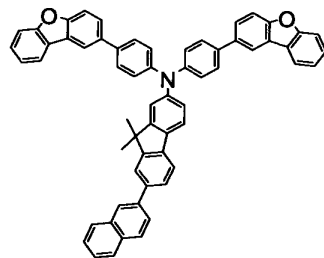
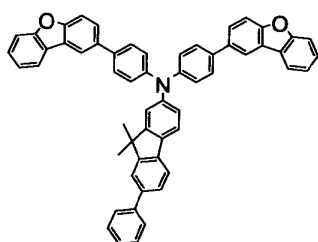
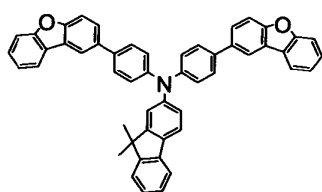
40

【0091】

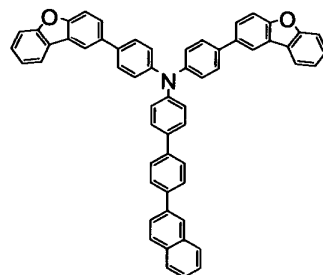
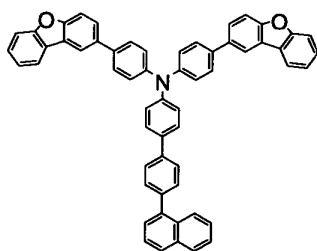
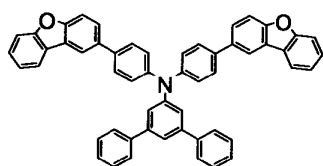
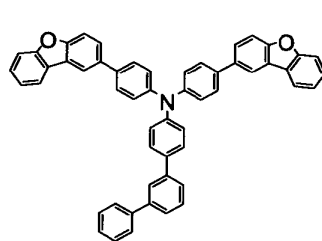
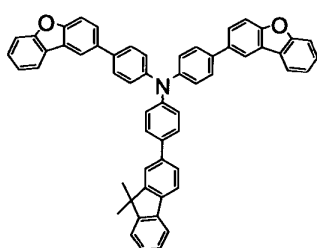
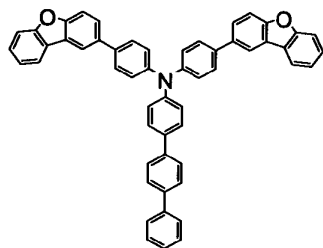
【化 5 7】



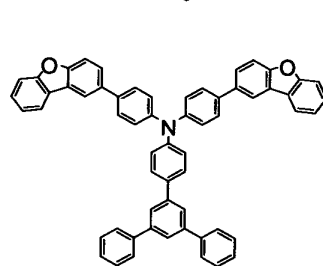
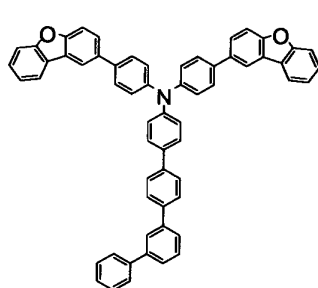
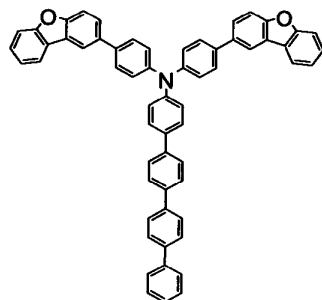
10



20



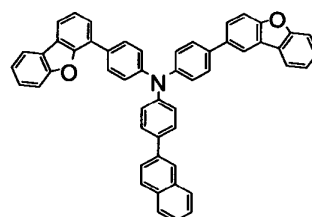
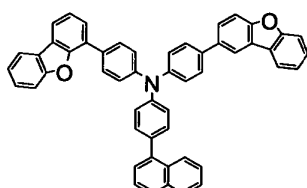
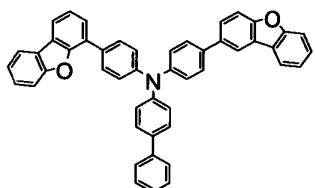
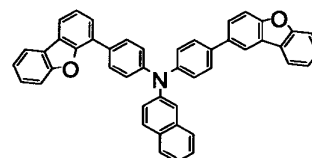
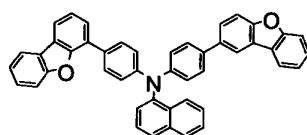
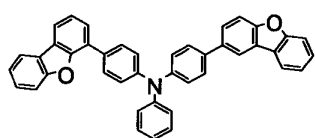
30



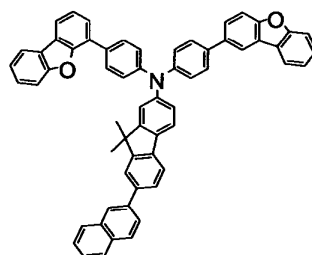
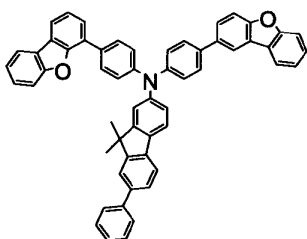
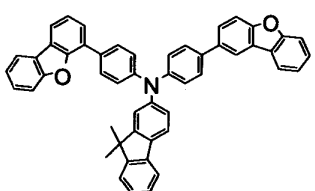
40

【0092】

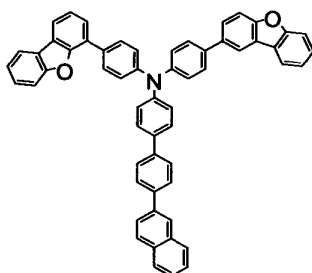
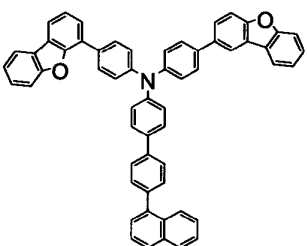
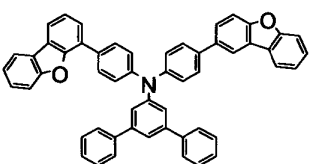
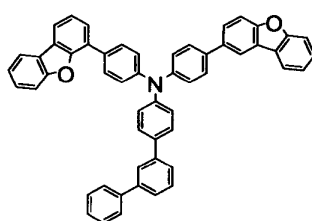
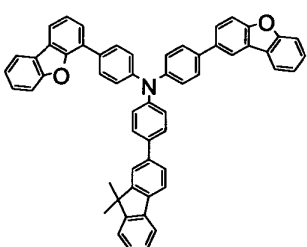
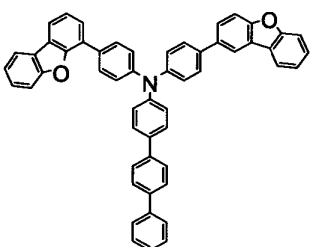
【化 5 8】



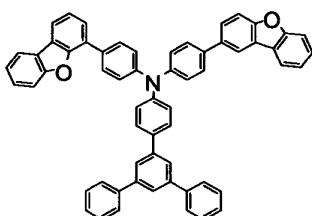
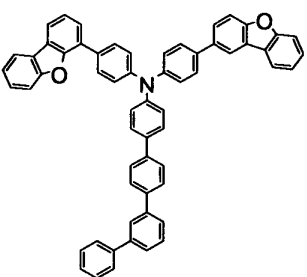
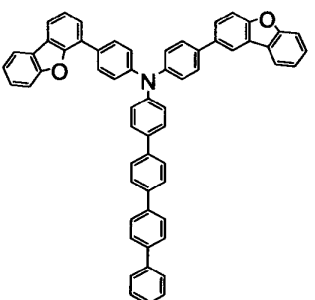
10



20



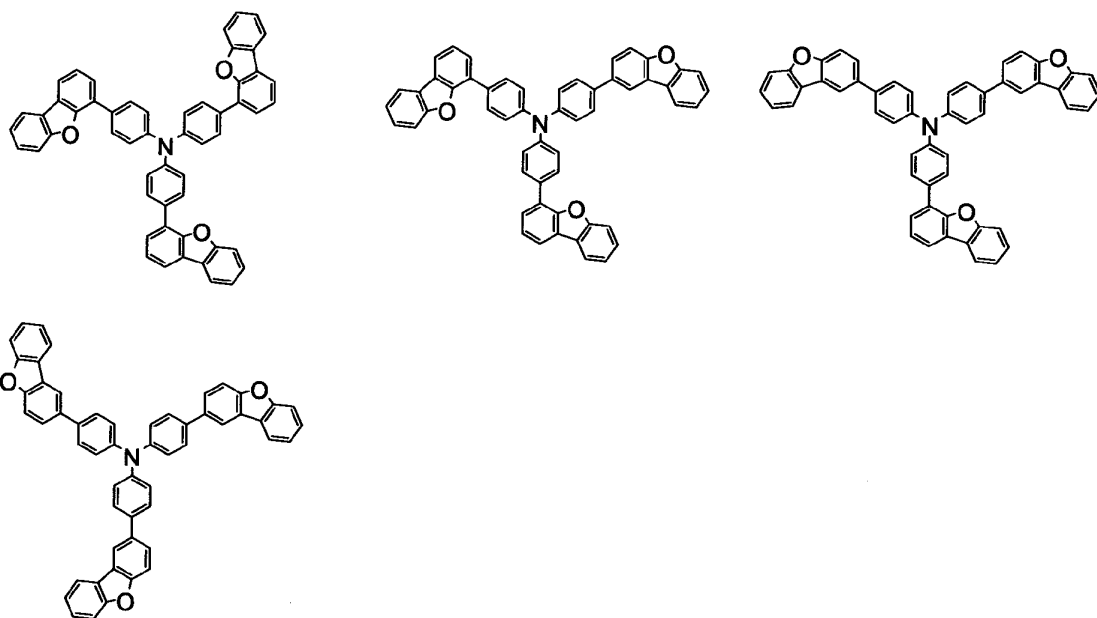
30



40

【0093】

【化 5 9】

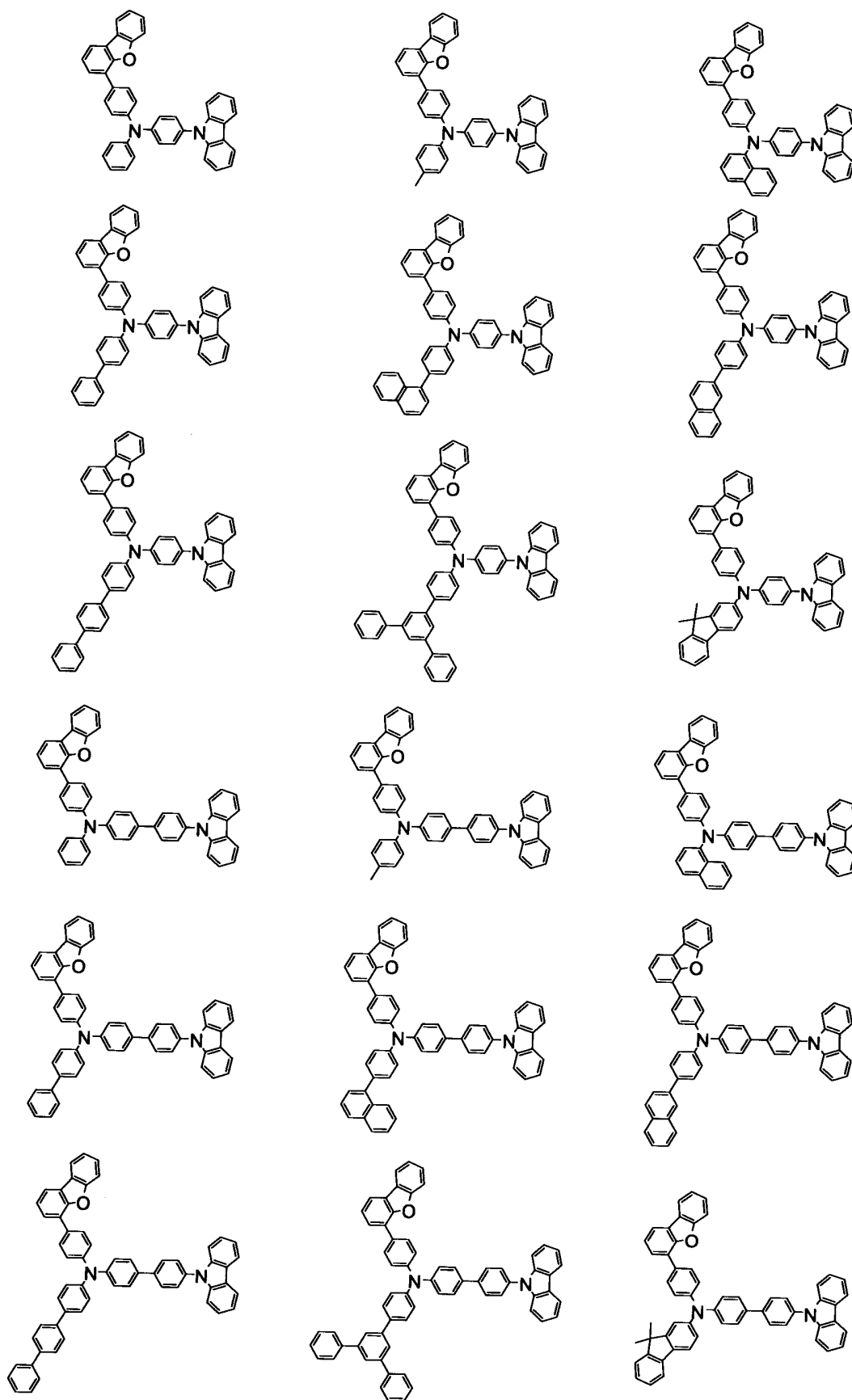


10

【 0 0 9 4】

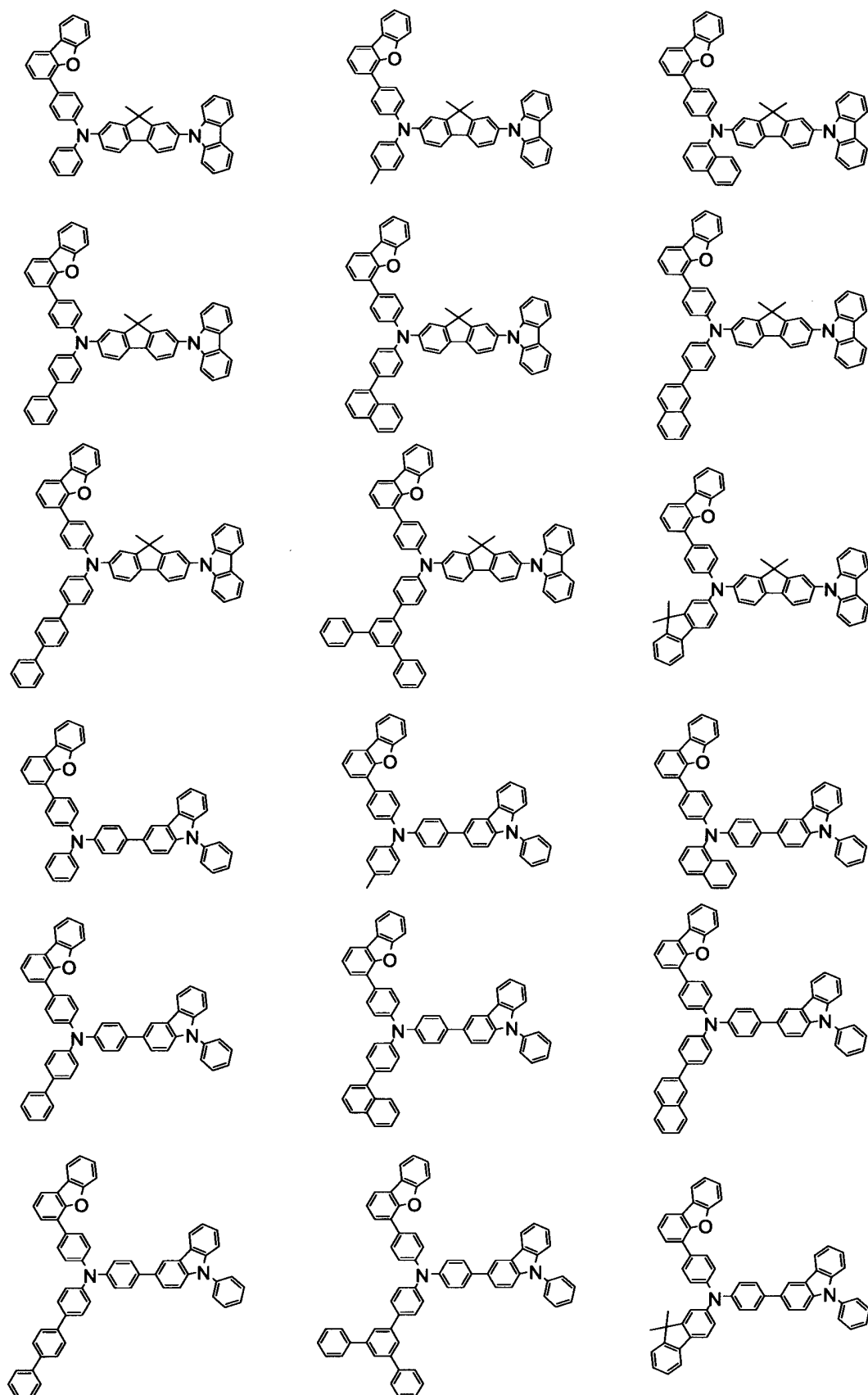
20

【化 6 0】



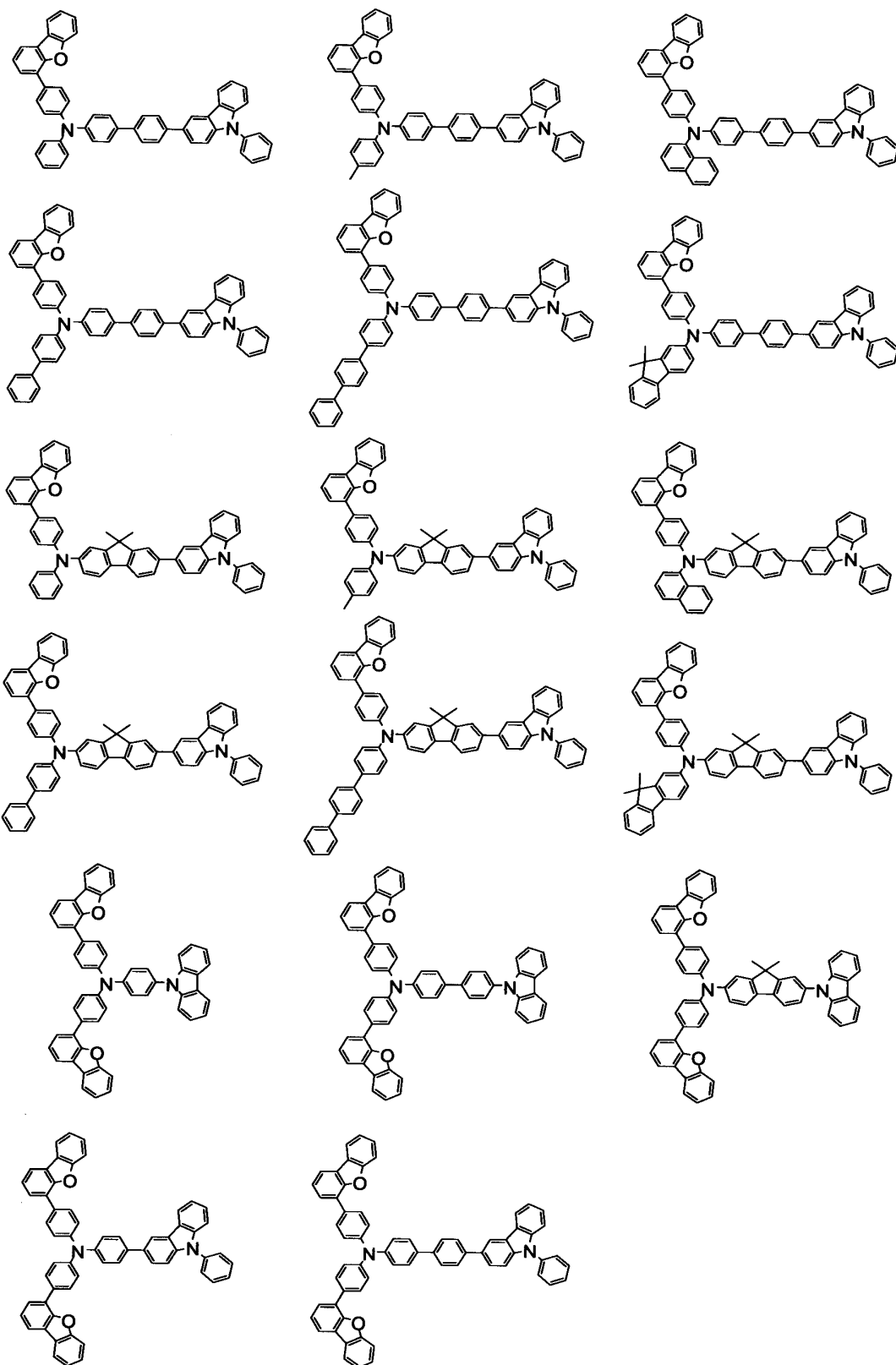
【0095】

【化 6 1】



【0096】

【化 6 2】



10

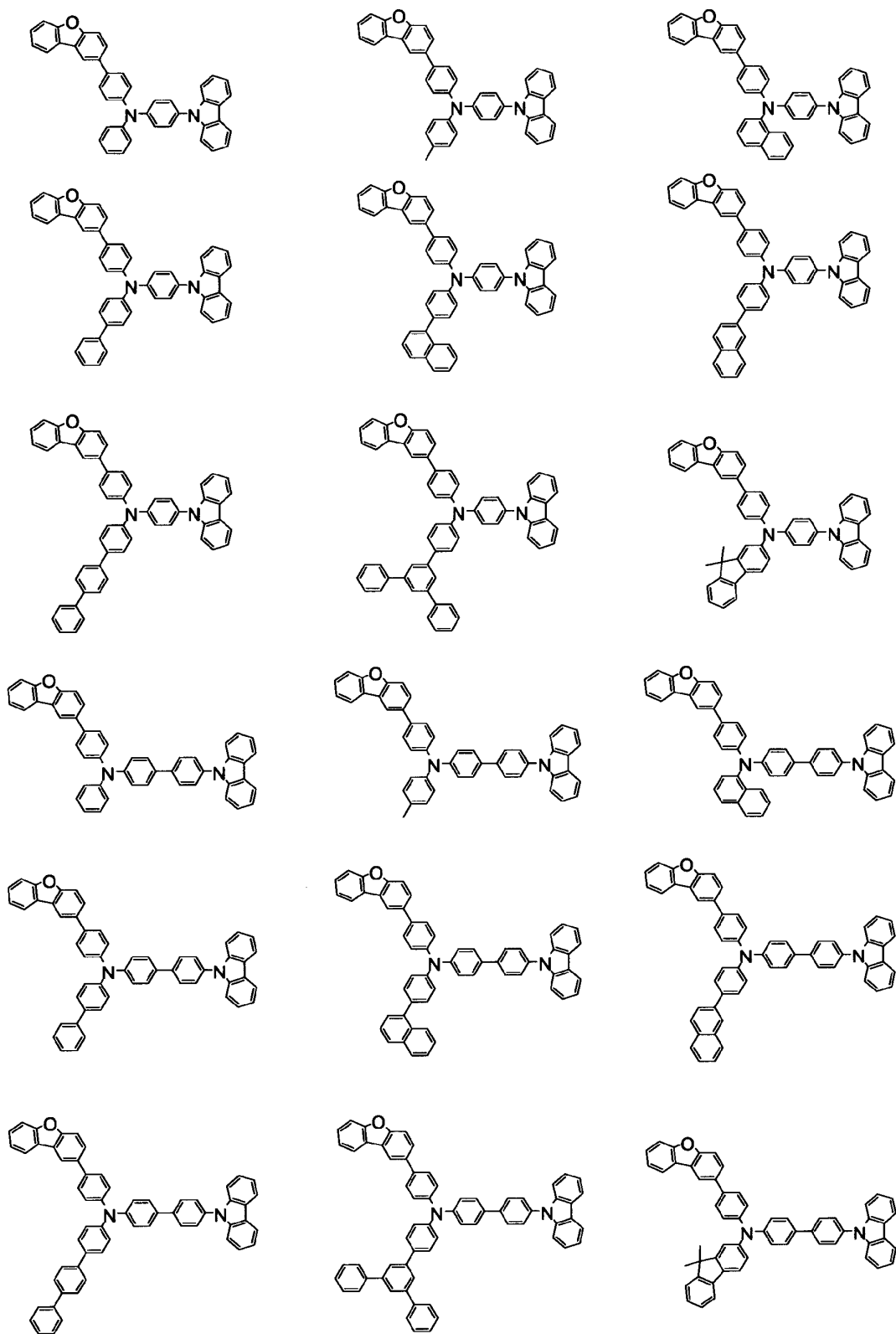
20

30

40

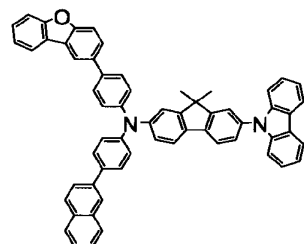
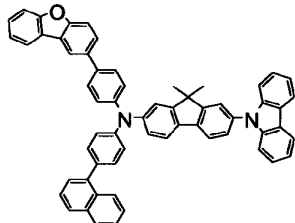
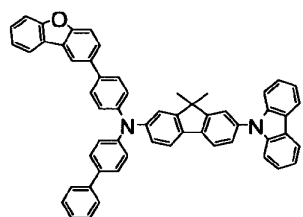
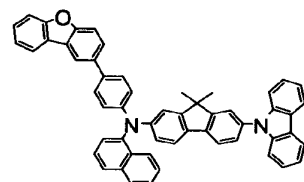
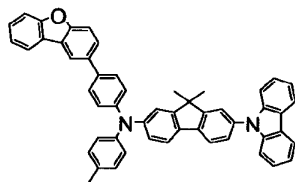
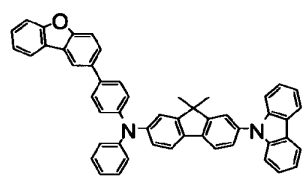
【0097】

【化 6 3】

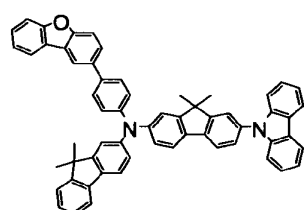
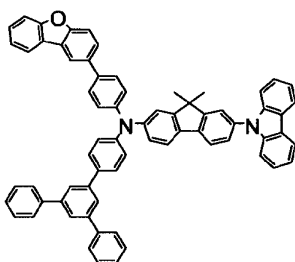
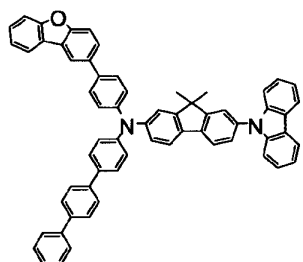


【0098】

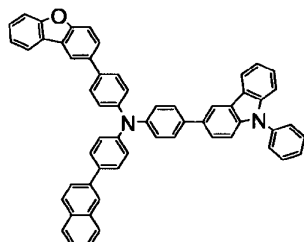
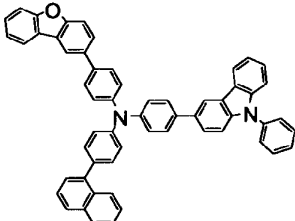
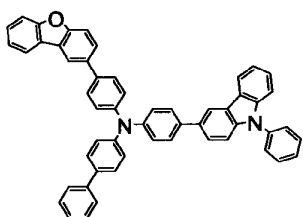
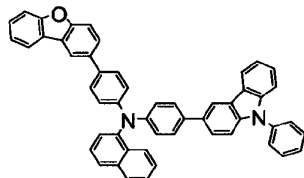
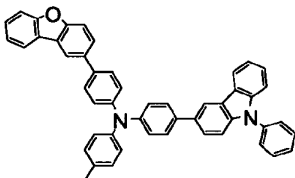
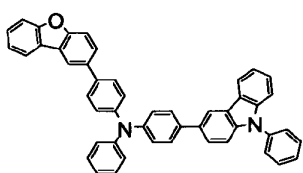
【化 6 4】



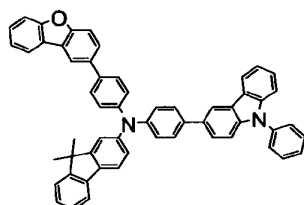
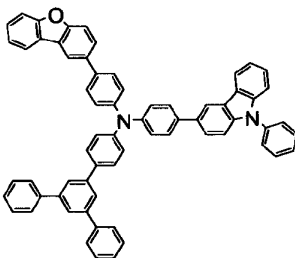
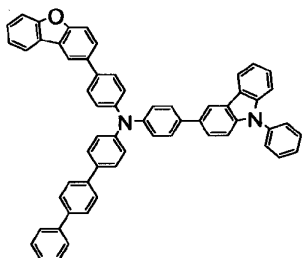
10



20



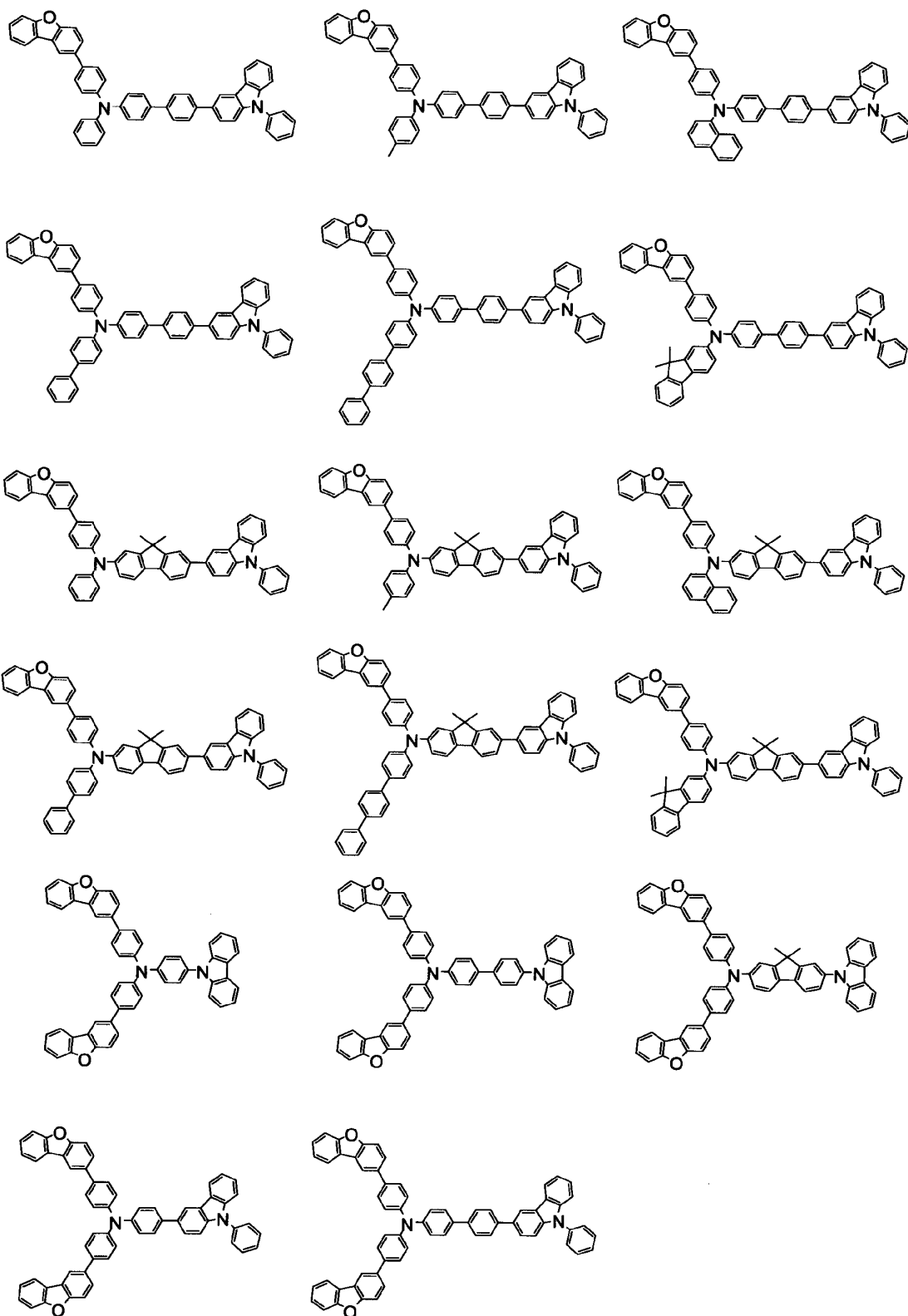
30



40

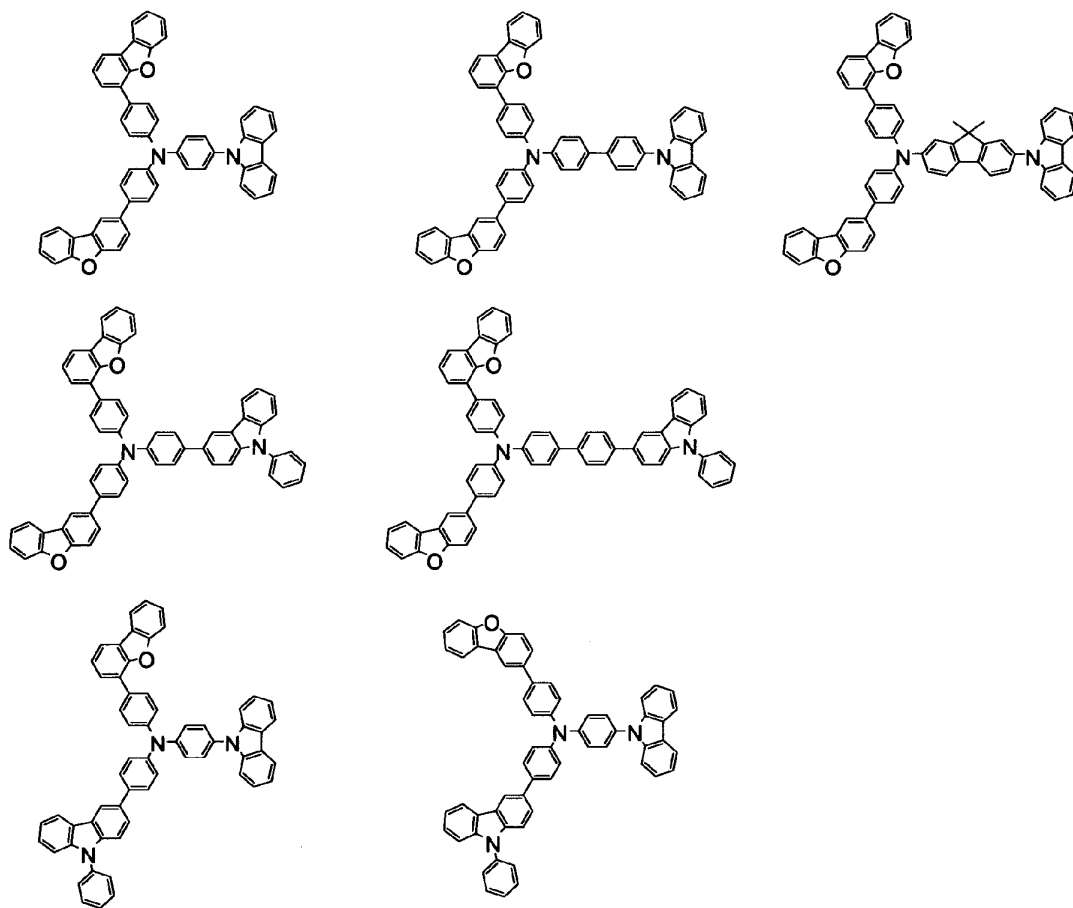
【0099】

【化 6 5】



【0 1 0 0】

【化 6 6】

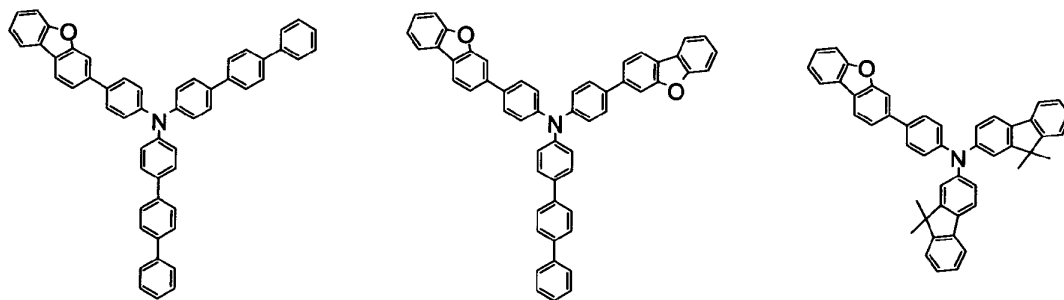


10

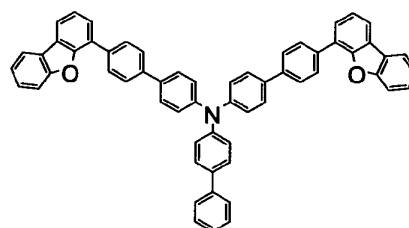
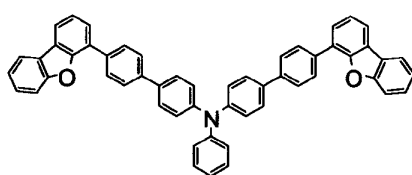
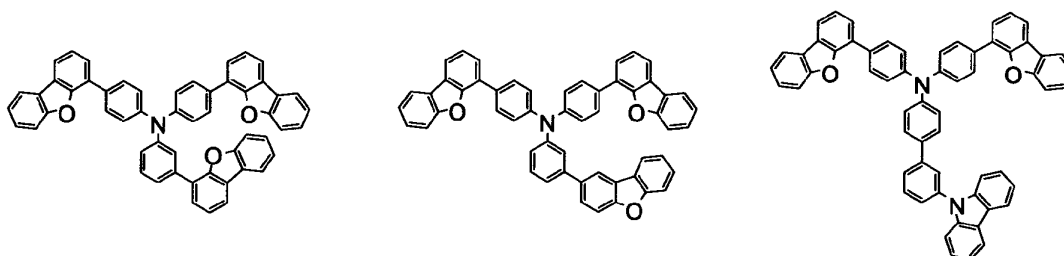
20

【0 1 0 1】

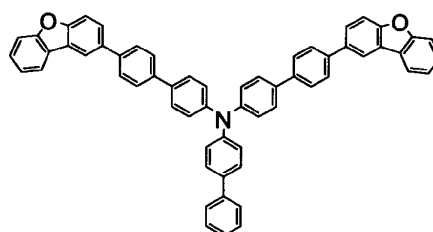
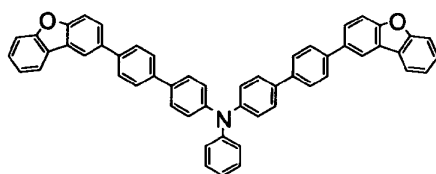
【化 6 7】



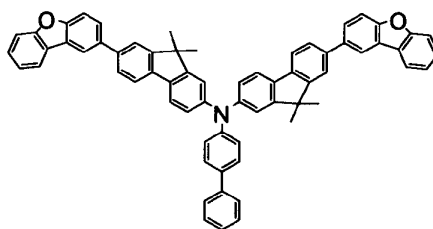
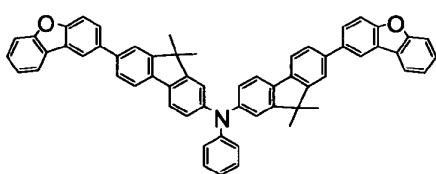
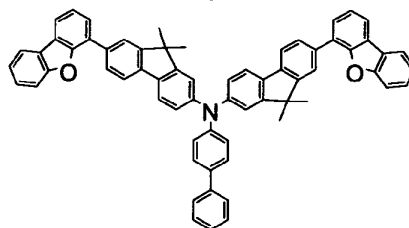
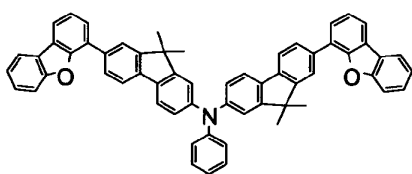
10



20



30

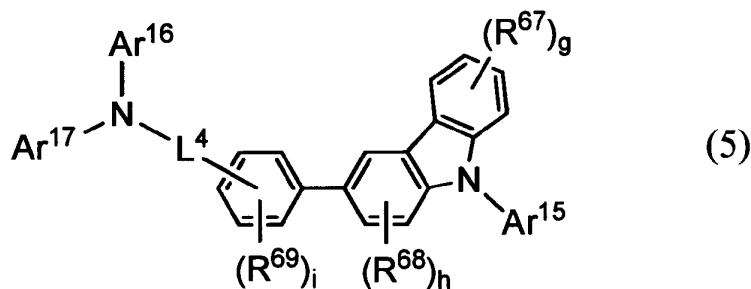


40

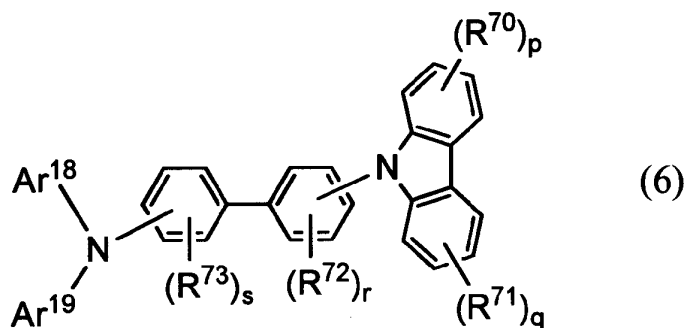
【0102】

〔発光層に隣接する正孔輸送層用の材料例（第二正孔輸送材料）；一般式（5）～（7）〕

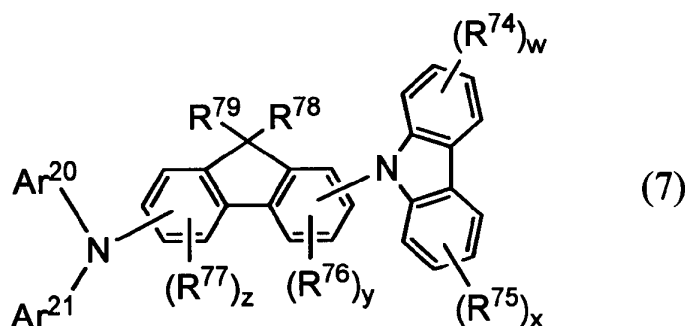
【化 6 8】



10



20



【0103】

30

〔式(5)～(7)中、 $Ar^{15} \sim Ar^{21}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数5～50の芳香族複素環基、芳香族アミノ基が結合した置換もしくは無置換の環形成炭素数8～50のアリール基、又は芳香族複素環基が結合した置換もしくは無置換の環形成炭素数8～50のアリール基である。

Ar^{16} と Ar^{17} 、 Ar^{18} と Ar^{19} 、 Ar^{20} と Ar^{21} は互いに結合して環を形成してもよい。

L^4 は、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 L^4 が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は6～14）、環形成炭素数6～50のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

40

$R^{67} \sim R^{77}$ は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～20のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～40の非縮合アリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～12の縮合アリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～20のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数7～60のアラルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数3～20のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形

50

成炭素数 6～40 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8～40 アラルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～40 のハロゲン化アルキル基を表す。

R^{78} 、 R^{79} は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1～40 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～20 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～40 の非縮合アリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～12 の縮合アリール基、置換もしくは無置換の炭素数 7～20 のアラルキル基を表す。

g 、 i 、 p 、 q 、 r 、 s 、 w 及び x は、それぞれ独立に、0～4 の整数である。

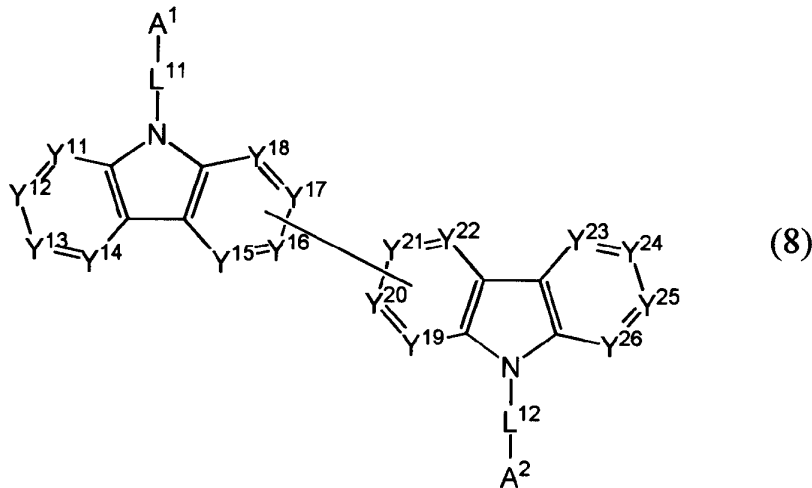
h 、 y 及び z は、それぞれ独立に、0～3 の整数である。]

【0104】

[発光層に隣接する正孔輸送層用の材料例（第二正孔輸送材料）；一般式（8）]

10

【化69】



20

【0105】

[式（8）において、 A^1 及び A^2 は互いに独立して環形成炭素数 6～30 の置換もしくは無置換のアリール基、又は環形成炭素数 2～30 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基を表す。

$Y^{11} \sim Y^{26}$ は互いに独立して C (R) 又は窒素原子を表し、R はそれぞれ独立に水素原子、置換基又はカルバゾール骨格に結合する結合手を表す。

30

L^{11} 及び L^{12} は互いに独立して単結合、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリーレン基を表し、該アリーレン基が有してもよい置換基は、炭素数 1～10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3～10 のシクロアルキル基、炭素数 3～10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18～30 のトリアリールシリル基、炭素数 8～15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6～14）、環形成炭素数 6～50 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。]

【0106】

（5）発光層

本発明の有機 EL 素子は、蛍光発光材料を含有する発光層、つまり蛍光発光層を有していてもよい。蛍光発光層としては、公知の蛍光発光材料を使用できる。該蛍光発光材料としては、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体及びアリールアミン誘導体から選択される少なくとも 1 種が好ましく、アントラセン誘導体、アリールアミン誘導体がより好ましい。特に、ホスト材料としてはアントラセン誘導体が好ましく、ドーパントとしてはアリールアミン誘導体が好ましい。具体的には、国際公開第 2010/134350 号や国際公開第 2010/134352 号に記載する好適な材料が選択される。

40

また、本発明の有機 EL 素子は、燐光発光材料を含有する発光層、つまり燐光発光層を有していてもよい。燐光発光層の材料としては、公知の燐光発光材料を使用できる。具体的には、国際公開第 2005/079118 号等を参照すればよい。燐光発光材料の内、

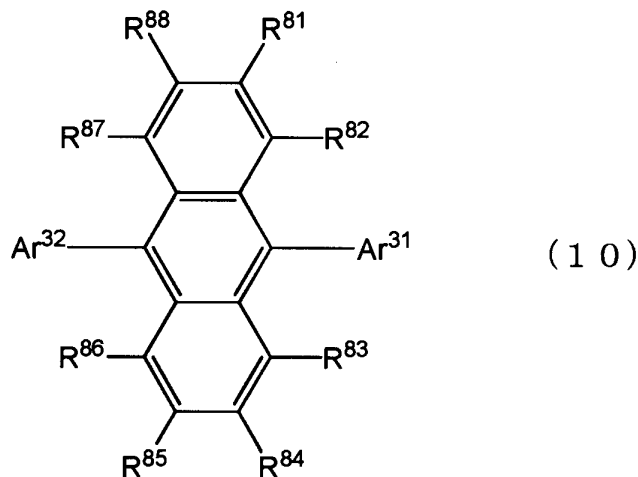
50

ドーパントとしては、イリジウム（I r）、オスミウム（O s）又は白金（P t）金属のオルトメタル化錯体等が好ましく挙げられ、イリジウム（I r）のオルトメタル化錯体がより好ましい。燐光発光材料の内、ホスト材料としては、カルバゾリル基を含有する化合物が好ましく、カルバゾリル基及びトリアジン骨格を含有する化合物がより好ましく、カルバゾリル基を2つとトリアジン骨格を1つ含有する化合物がさらに好ましい。

【0107】

蛍光発光材料としての前記アントラセン誘導体の環形成炭素数は、好ましくは26～100、より好ましくは26～80、さらに好ましくは26～60である。該アントラセン誘導体としては、より具体的には下記一般式（10）で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

【化70】



【0108】

（上記式（10）中、A r³¹及びA r³²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基又は環形成原子数5～50の複素環基である。

R⁸¹～R⁸⁸は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシル基である。）

上記環形成炭素数6～50のアリール基としては、いずれも、環形成炭素数6～40のアリール基が好ましく、環形成炭素数6～30のアリール基がより好ましい。

上記環形成原子数5～50の複素環基としては、いずれも、環形成原子数5～40の複素環基が好ましく、環形成原子数5～30の複素環基がより好ましい。

上記炭素数1～50のアルキル基としては、炭素数1～30のアルキル基が好ましく、炭素数1～10のアルキル基がより好ましく、炭素数1～5のアルキル基がさらに好ましい。

上記炭素数1～50のアルコキシ基としては、炭素数1～30のアルコキシ基が好ましく、炭素数1～10のアルコキシ基がより好ましく、炭素数1～5のアルコキシ基がさらに好ましい。

上記炭素数7～50のアラルキル基としては、炭素数7～30のアラルキル基が好ましく、炭素数7～20のアラルキル基がより好ましい。

上記環形成炭素数6～50のアリールオキシ基としては、環形成炭素数6～40のアリールオキシ基が好ましく、環形成炭素数6～30のアリールオキシ基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6～50 のアリールチオ基としては、環形成炭素数 6～40 のアリールチオ基が好ましく、環形成炭素数 6～30 のアリールチオ基がより好ましい。

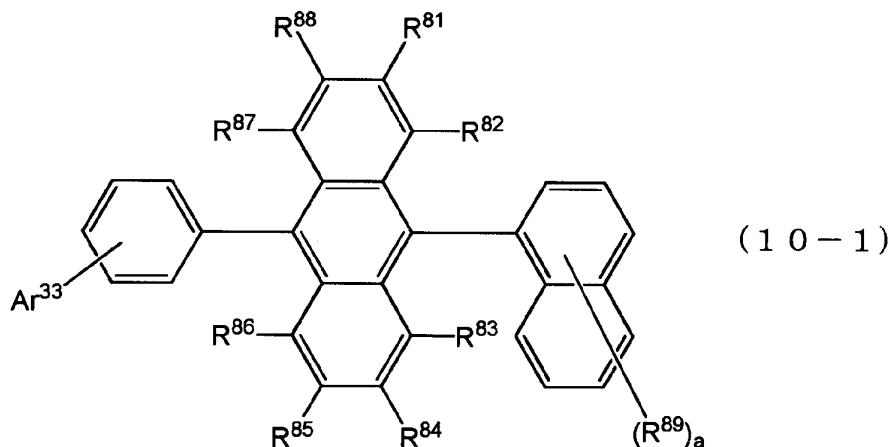
上記炭素数 2～50 のアルコキシカルボニル基としては、炭素数 2～30 のアルコキシカルボニル基が好ましく、炭素数 2～10 のアルコキシカルボニル基がより好ましく、炭素数 2～5 のアルコキシカルボニル基がさらに好ましい。

上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

特に、 Ar^{31} 及び Ar^{32} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基であることが好ましい。

また、一般式 (10) で表されるアントラセン誘導体としては、下記一般式 (10-1) で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

【化 7 1】



【0109】

(上記式 (10-1) 中、 Ar^{33} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基又は環形成原子数 5～50 の複素環基である。 $R^{81} \sim R^{88}$ は、前記定義の通りである。 R^{89} は、 $R^{81} \sim R^{88}$ の定義と同じである。 a は、1～7 の整数である。)

$R^{81} \sim R^{88}$ は、好ましいものも前記同様である。また、 R^{89} の好ましいものも、 $R^{81} \sim R^{88}$ と同様である。 a は 1～3 の整数が好ましく、1 又は 2 がより好ましい。なお、 R^{89} は、ナフタレン環が有する 2 つのベンゼン環のいずれに置換していてもよい。

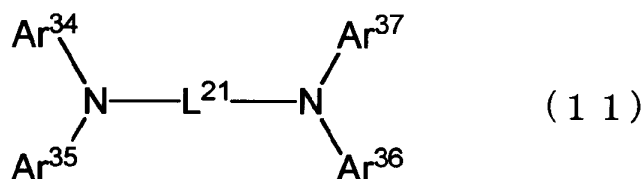
Ar^{33} が表す環形成炭素数 6～50 のアリール基としては、環形成炭素数 6～40 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6～30 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6～20 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6～12 のアリール基がさらに好ましく、ナフチル基が特に好ましい。

【0110】

蛍光発光材料としての前記アリールアミン誘導体としては、アリールジアミン誘導体が好ましく、ピレン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がより好ましく、ピレン骨格及びジベンゾフラン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がさらに好ましい。

アリールジアミン誘導体としては、より具体的には、下記一般式 (11) で表されるアリールジアミン誘導体が好ましい。

【化 7 2】



【0111】

(式 (11) 中、 $Ar^{34} \sim Ar^{37}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素

10

20

30

40

50

数 6 ～ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基を表す。

L²¹は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリーレン基を表す。)

上記環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基としては、環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ～ 20 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6 ～ 12 のアリール基がさらに好ましく、フェニル基、ナフチル基が特に好ましい。

上記環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基としては、環形成原子数 5 ～ 40 のヘテロアリール基が好ましく、環形成原子数 5 ～ 30 のヘテロアリール基がより好ましく、環形成原子数 5 ～ 20 のヘテロアリール基がさらに好ましい。ヘテロアリール基としては、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基などが挙げられ、ジベンゾフラニル基が好ましい。該ヘテロアリール基の好ましい置換基としては、環形成炭素数 6 ～ 30 (好ましくは 6 ～ 20、より好ましくは 6 ～ 12) のアリール基が挙げられ、フェニル基、ナフチル基がより好ましい。

10

上記環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基としては、環形成炭素数 6 ～ 40 のアリーレン基が好ましく、環形成炭素数 6 ～ 30 のアリーレン基がより好ましく、環形成炭素数 6 ～ 20 のアリーレン基がさらに好ましく、ピレニル基が特に好ましい。

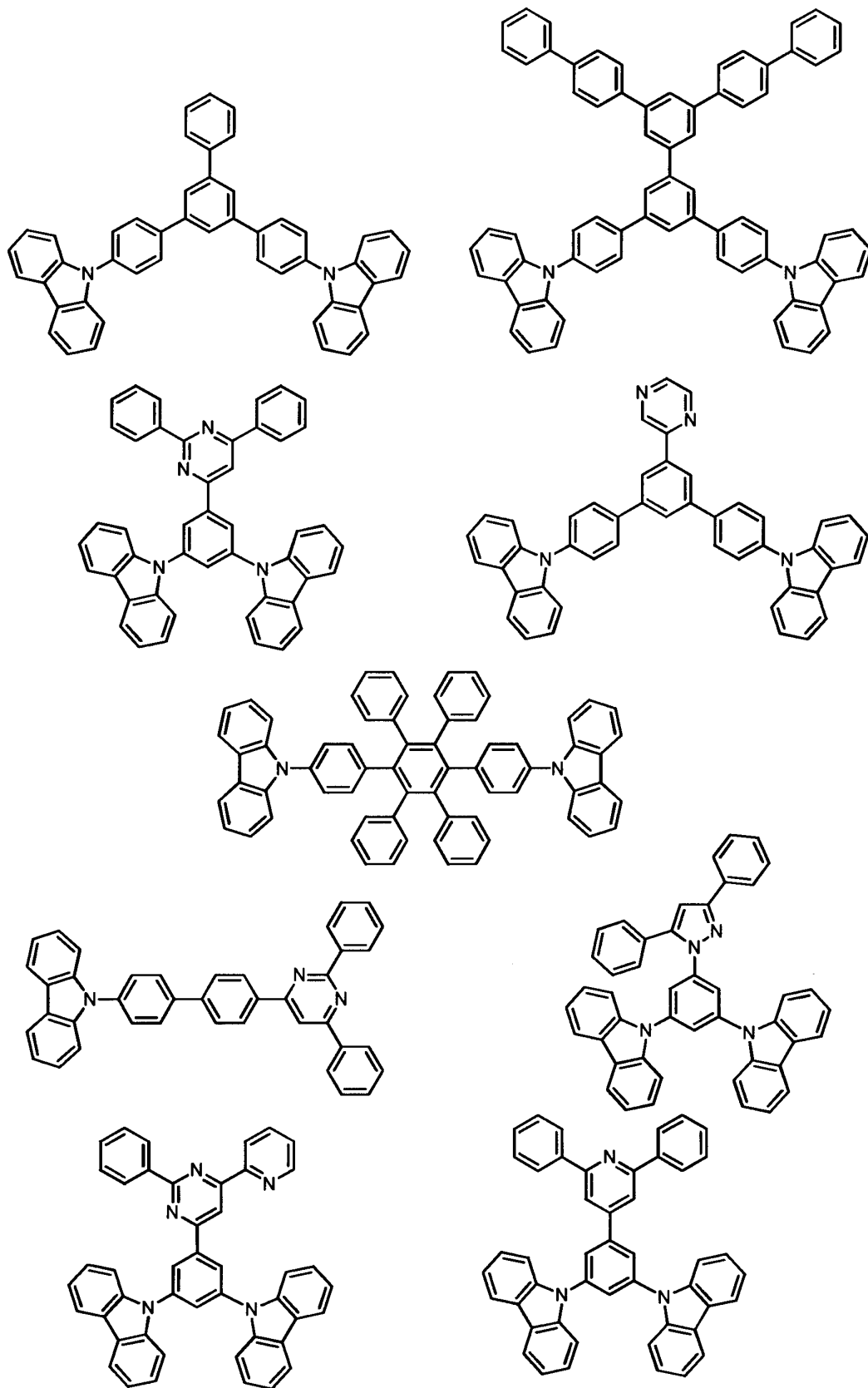
【0112】

燐光発光材料の内、ホスト材料として好ましいカルバゾリル基を含有する化合物としては、具体的には、以下の化合物が挙げられる。

20

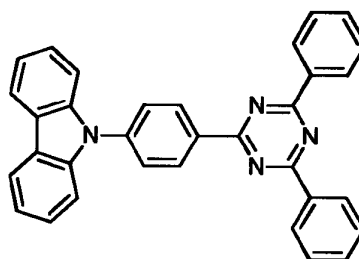
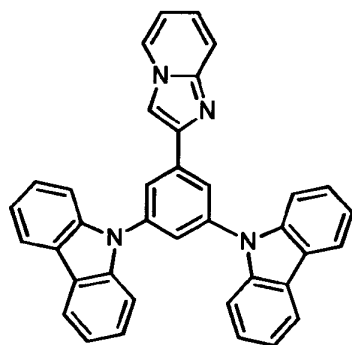
【0113】

【化 7 3】

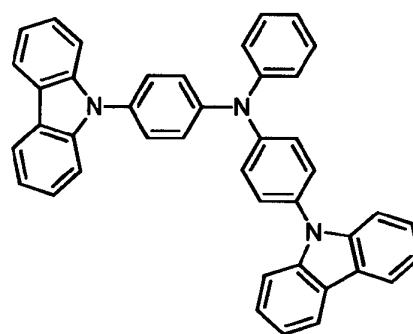
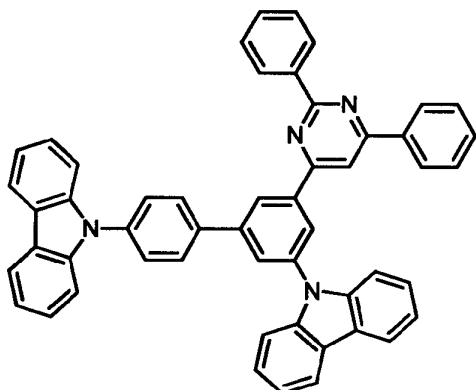


【 0 1 1 4】

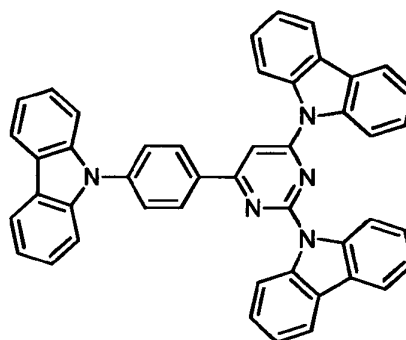
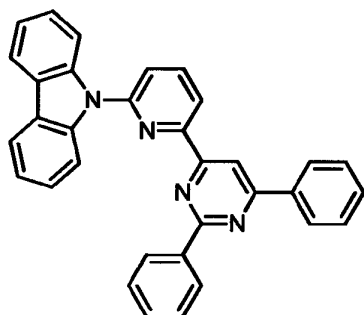
【化 7 4】



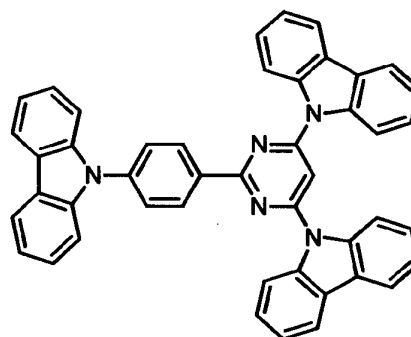
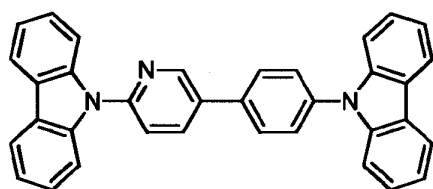
10



20



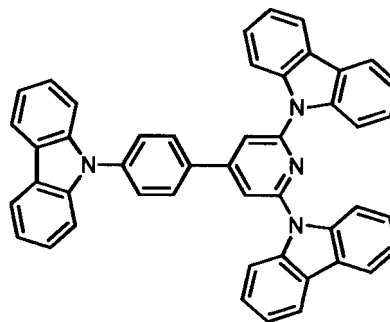
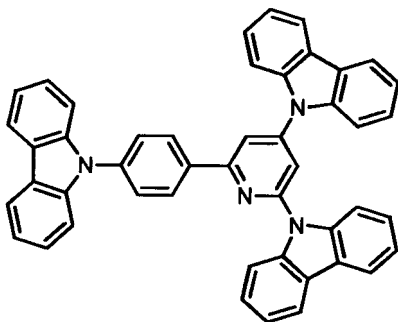
30



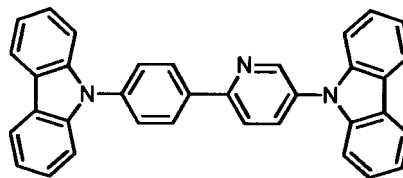
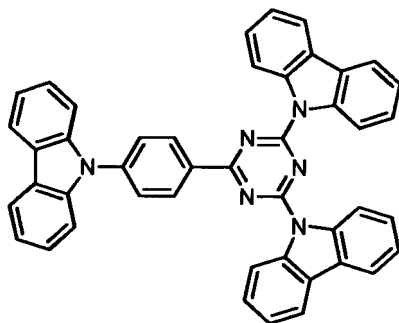
40

【 0 1 1 5】

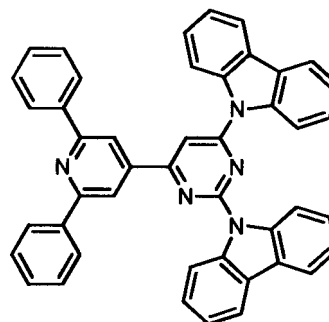
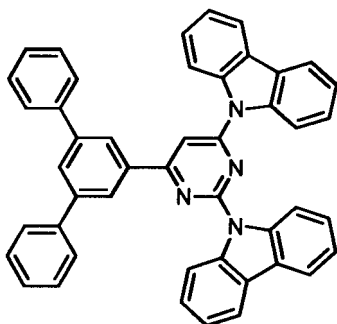
【化 7 5】



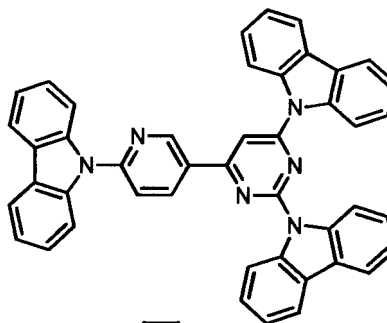
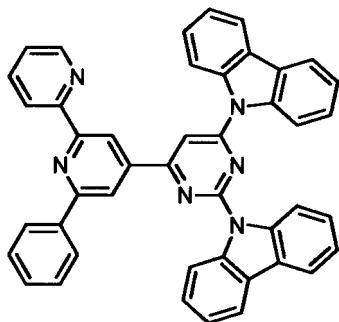
10



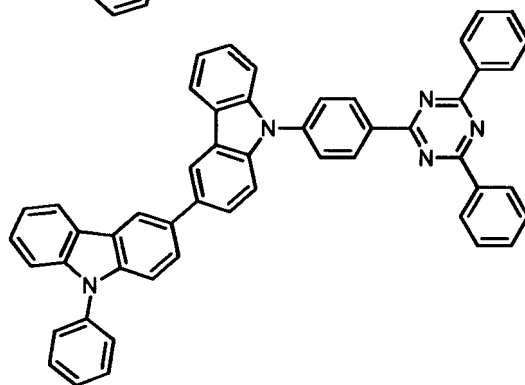
20



30



40



【0116】

発光層は、ダブルホスト（ホスト・コホストともいう）としてもよい。具体的に、発光層において電子輸送性のホスト材料と正孔輸送性のホスト材料とを組み合わせることで、

50

発光層内のキャリアバランスを調整してもよい。

また、ダブルドーパントとしてもよい。発光層において、量子収率の高いドーパント材料を2種類以上入れることによって、それぞれのドーパントが発光する。例えば、ホスト材料と赤色ドーパント、緑色のドーパントを共蒸着することによって、黄色の発光層を実現することがある。

【0117】

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

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

10

【0118】

(6) 電子注入・輸送層

次に、電子注入・輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入・輸送層の中で特に陰極との付着が良い材料からなる層である。

また、有機EL素子は発光した光が電極（この場合は陰極）により反射するため、直接陽極から取り出される発光と、電極による反射を経由して取り出される発光とが干渉することが知られている。この干渉効果を効率的に利用するため、電子注入・輸送層は数nm～数μmの膜厚で適宜選ばれるが、特に膜厚が厚いとき、電圧上昇を避けるために、 $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に電子移動度が少なくとも $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが好ましい。

20

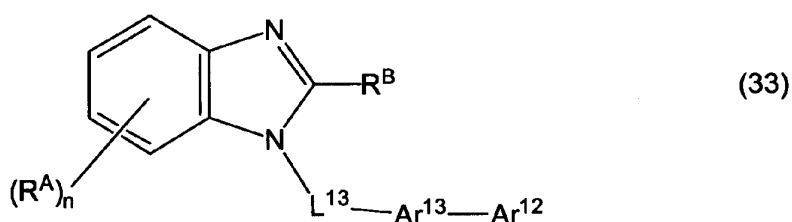
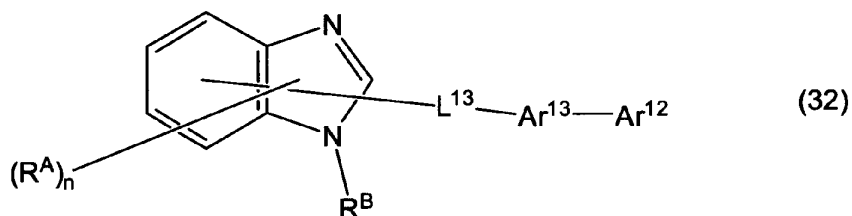
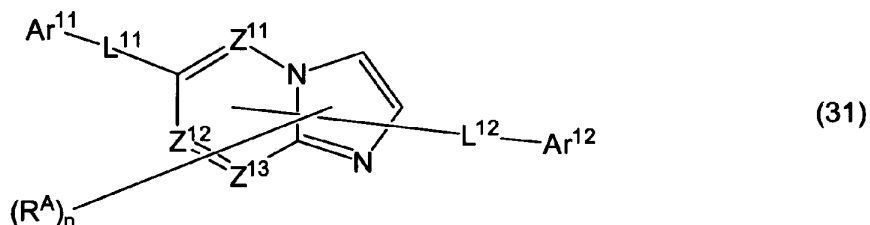
電子注入・輸送層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体やオキサジアゾール誘導体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシン（一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウムを電子注入材料として用いることができる。

電子注入材料としては、下記一般式(31)～(36)のいずれかで表される化合物が挙げられる。

【0119】

30

【化 7 6】



【0120】

式(31)～(33)中、Z¹¹、Z¹²及びZ¹³は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

R^A及びR^Bは、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12）のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12）のヘテロアリール基、炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基、又は炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルコキシ基である。なお、式(31)～(32)中のR^Aは、5員環と6員環のいずれに置換していてもよいが、6員環に置換していることが好ましい。一方、式(33)中のR^Aは、6員環に置換している。

nは、0～5の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数のR^Aは互いに同一でも異なってもよい。また、隣接する複数のR^A同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環を形成していてもよい。

Ar¹¹は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12）のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12）のヘテロアリール基である。

Ar¹²は、水素原子、炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基、炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12）のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12）のヘテロアリール基である。

但し、Ar¹¹、Ar¹²のいずれか一方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数10～50（好ましくは10～30、より好ましくは10～20、さらに好ましくは10～14）の縮合環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数9～50（好ましくは9～30、より

好ましくは9～20、さらに好ましくは9～14)のヘテロ縮合環基である。

$A r^{13}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50(好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12)のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50(好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12)のヘテロアリーレン基である。

L^{11} 、 L^{12} 及び L^{13} は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50(好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12)のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数9～50(好ましくは9～30、より好ましくは9～20、さらに好ましくは9～14)のヘテロ縮合環基又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。なお、式(31)中の L^{12} 、式(32)中の L^{13} は、それぞれ5員環と6員環のいずれに置換していてもよいが、5員環に置換していることが好ましい。

10

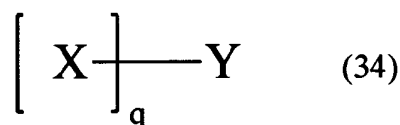
【0121】

R^A 、 R^B 、 $A r^{11}$ 、 $A r^{12}$ の示すアリアル基、アルキル基の具体例としては、前記一般式(B)中の $R^{21} \sim R^{24}$ と同様の例が挙げられ、アルコキシ基としては、そのアルキル基に酸素原子が結合した例が挙げられる。 R^A 、 R^B 、 $A r^{11}$ 、 $A r^{12}$ の示すヘテロアリアル基としては、例えばピロリル基、ピリジニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、インドリル基、イソインドリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基などが挙げられる。 $A r^{13}$ 、 L^{11} 、 L^{12} 及び L^{13} の示すアリーレン基としては、そのアリアル基の二価の例、ヘテロ縮合環基としてはヘテロアリアル基のうち炭素数が適合する縮合環基が挙げられる。

20

【0122】

【化77】



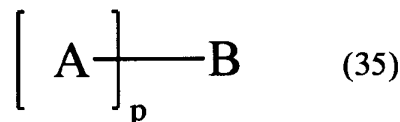
(式中、Xは窒素原子あるいは硫黄原子を含んだ縮合環であり、Yは単結合、アルキル鎖、アルキレン鎖、シクロアルキル鎖、アリアル鎖、複素環鎖、シリル鎖、エーテル鎖、あるいはチオエーテル鎖のいずれかより単独又は組み合わせたものより選ばれる。qは2以上の自然数である。)

30

また、一般式(34)で表される化合物の分子量は480以上である。)

【0123】

【化78】

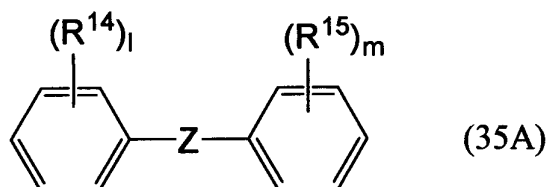


(式中、Aはフェナントロリン骨格又はベンゾキノリン骨格を有する置換基である。Bは下記式(35A)で表される構造を有するp価の有機基である。pは2以上の自然数である。)

40

【0124】

【化79】

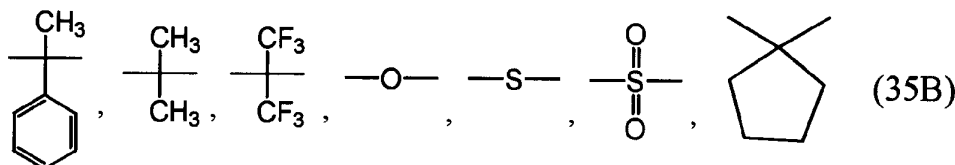


50

(式中、 R^{14} と R^{15} は、それぞれ独立に、アルキル基又はアリール基（フェニル基に縮合したアリール基を含む）である。l及びmは、それぞれ独立に、0～5の自然数である。Zは、下記式（35B）から選ばれる少なくとも1種である。）

【0125】

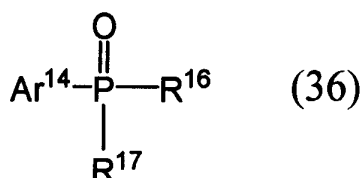
【化80】



10

【0126】

【化81】



(式中、 R^{16} 及び R^{17} は同じでも異なってもよく、それぞれ、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、シアノ基、カルボニル基、エステル基、カルバモイル基、アミノ基、シリル基、並びに隣接置換基との間に形成される縮合環の中から選ばれる。 Ar^{14} はアリール基又はヘテロアリール基を表す。)

20

【0127】

本発明の有機EL素子の好ましい形態に、陰極と有機薄膜層との界面領域に電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを有することも好ましい。

このような構成によれば、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

電子供与性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも1種類が挙げられる。

30

有機金属錯体としては、アルカリ金属を含む有機金属錯体、アルカリ土類金属を含む有機金属錯体、及び希土類金属を含む有機金属錯体等から選ばれた少なくとも1種類が挙げられる。

【0128】

アルカリ金属としては、リチウム(Li)（仕事関数：2.93 eV）、ナトリウム(Na)（仕事関数：2.36 eV）、カリウム(K)（仕事関数：2.28 eV）、ルビジウム(Rb)（仕事関数：2.16 eV）、セシウム(Cs)（仕事関数：1.95 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

40

アルカリ土類金属としては、カルシウム(Ca)（仕事関数：2.9 eV）、ストロンチウム(Sr)（仕事関数：2.0 eV以上2.5 eV以下）、バリウム(Ba)（仕事関数：2.52 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

希土類金属としては、スカンジウム(Sc)、イットリウム(Y)、セリウム(Ce)、テルビウム(Tb)、イッテルビウム(Yb)等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

【0129】

50

アルカリ金属化合物としては、酸化リチウム (Li_2O)、酸化セシウム (Cs_2O)、酸化カリウム (K_2O) 等のアルカリ酸化物、フッ化リチウム (LiF)、フッ化ナトリウム (NaF)、フッ化セシウム (CsF)、フッ化カリウム (KF) 等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、フッ化リチウム (LiF)、酸化リチウム (Li_2O)、フッ化ナトリウム (NaF) が好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、酸化バリウム (BaO)、酸化ストロンチウム (SrO)、酸化カルシウム (CaO) 及びこれらを混合したストロンチウム酸バリウム ($\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$) ($0 < x < 1$)、カルシウム酸バリウム ($\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$) ($0 < x < 1$) 等が挙げられ、 BaO 、 SrO 、 CaO が好ましい。

希土類金属化合物としては、フッ化イットルビウム (YbF_3)、フッ化スカンジウム (ScF_3)、酸化スカンジウム (Sc_2O_3)、酸化イットリウム (Y_2O_3)、酸化セリウム (Ce_2O_3)、フッ化ガドリニウム (GdF_3)、フッ化テルビウム (TbF_3) 等が挙げられ、 YbF_3 、 ScF_3 、 TbF_3 が好ましい。

【0130】

有機金属錯体としては、上記の通り、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも1つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 β -ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体等が好ましいが、これらに限定されるものではない。

【0131】

電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成することが好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを分散する方法が好ましい。分散濃度は通常、モル比で有機物：電子供与性ドーパント及び／又は有機金属錯体 = 100 : 1 ~ 1 : 100 であり、好ましくは 5 : 1 ~ 1 : 5 である。

【0132】

電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み 0.1 nm 以上 15 nm 以下で形成する。

電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み 0.05 nm 以上 1 nm 以下で形成する。

また、本発明の有機 EL 素子における、主成分と、電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかの割合としては、モル比で、主成分：電子供与性ドーパント及び／又は有機金属錯体 = 5 : 1 ~ 1 : 5 であると好ましく、2 : 1 ~ 1 : 2 であるとさらに好ましい。

【0133】

(7) 陰極

陰極としては、電子注入・輸送層又は発光層に電子を注入するため、仕事関数の小さい (4 eV 以下) 金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム・カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム／酸化アルミニ

ウム、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。

この陰極はこれらの電極物質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。

ここで発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。

また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10nm~1 μm 、好ましくは50~200nmである。

【0134】

(8) 絶縁層

有機EL素子は超薄膜に電界を印可するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一对の電極間に絶縁性の薄膜層を挿入することが好ましい。

10

絶縁層に用いられる材料としては例えば酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸化リチウム、弗化セシウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシウム、酸化カルシウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム等が挙げられ、これらの混合物や積層物を用いてもよい。

【0135】

(9) 有機EL素子の製造方法

以上例示した材料及び形成方法により陽極、発光層、正孔輸送層、及び必要に応じて電子注入・輸送層を形成し、さらに陰極を形成することにより有機EL素子を作製することができる。また陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

20

以下、透光性基板上に陽極／正孔輸送層／発光層／電子注入・輸送層／陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。

まず、適当な透光性基板上に陽極材料からなる薄膜を1 μm 以下、好ましくは10~200nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して陽極を作製する。次に、この陽極上に少なくとも2以上の正孔輸送層を順次設ける。正孔輸送層の形成は、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔輸送層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物（正孔輸送層の材料）、目的とする正孔輸送層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450 $^{\circ}\text{C}$ 、真空度 10^{-7} ~ 10^{-3} Torr、蒸着速度0.01~50nm/秒、基板温度-50~300 $^{\circ}\text{C}$ 、膜厚5nm~5 μm の範囲で適宜選択することが好ましい。

30

【0136】

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

40

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

最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。

陰極は金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

この有機EL素子の作製は一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

50

なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を＋、陰極を－の極性にして、5～40Vの電圧を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には陽極が＋、陰極が－の極性になった時のみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。

本発明の化合物を用いて得られる有機EL素子は、正孔輸送層を厚膜化でき、有機EL素子の光学膜厚調整を可能にし、素子の発光効率・寿命を向上できる。このため、有機ELパネルモジュール等の表示部品；テレビ、携帯電話、パーソナルコンピュータ等の表示装置；照明、車両用灯具の発光装置、などの電子機器に使用できる。特に、平面発光体やディスプレイのバックライトとして有用である。

【実施例】

10

【0137】

次に、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されるものではない。

【0138】

<合成例1>中間体1-2の合成

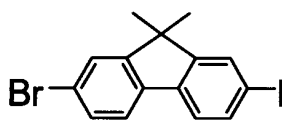
1. 中間体1-1の合成

アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-9,9-ジメチルフルオレン55g(201.3mmol)にヨウ素23g(90.6mmol)、過ヨウ素酸2水和物9.4g(41.2mmol)、水42ml、酢酸360ml、及び硫酸11mlを加え、65℃で30分撹拌した後、90℃で6時間撹拌した。

20

反応終了後に反応物を氷水に注入し、析出した結晶を濾取した。水で洗浄後、メタノールで洗浄することにより、61gの白色固体(収率76%)を得た。FD-MSの分析により、下記中間体1-1と同定した。

【化82】



中間体1-1

【0139】

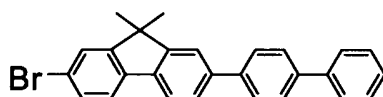
30

2. 中間体1-2の合成

アルゴン雰囲気下、中間体1を39.9g、4-ビフェニルボロン酸20.8g、テトラキス(トリフェニルフォスフィン)パラジウム(0)2.31gにトルエン300mL、2M炭酸ナトリウム水溶液150mLを加え、10時間加熱還流した。

反応終了後、直ちにろ過した後、水層を除去した。有機層を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色結晶34.3g(収率81%)を得た。FD-MSの分析により、下記中間体1-2と同定した。

【化83】



中間体1-2

40

【0140】

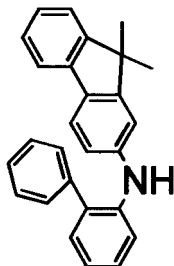
<合成例2>中間体2-1の合成

アルゴン雰囲気下、2-ブロモビフェニル23.3g(100.0mmol)、9,9-ジメチルアミノフルオレン20.9g(100.0mmol)、t-ブトキシナトリウム13.0g(135.3mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)460mg(0.5mmol)、トリ-t-ブチルホスフィン210mg(1.04mmol)に、脱水トルエン500mlを加え、80℃にて8時間反応した。

50

冷却後、水 2.5 l を加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥し、14.4 g の淡黄色固体（収率 40 %）を得た。FD-MS の分析により、下記中間体 2-1 と同定した。

【化 8 4】



中間体 2-1

10

【0141】

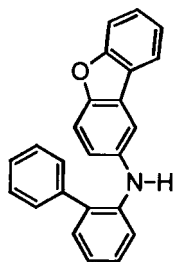
<合成例 3> 中間体 2-2 の合成

アルゴン雰囲気下、2-ブロモビフェニル 23.3 g (100.0 mmol)、2-アミノジベンゾフラン 18.3 g (100.0 mmol)、t-ブトキシナトリウム 13.0 g (135.3 mmol)、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム (0) 460 mg (0.5 mmol)、トリ-tert-ブチルホスフィン 210 mg (1.04 mmol) に、脱水トルエン 500 ml を加え、80 °C にて 8 時間反応した。

20

冷却後、水 2.5 l を加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥し、11.7 g の淡黄色固体（収率 35 %）を得た。FD-MS の分析により、下記中間体 2-2 と同定した。

【化 8 5】



中間体 2-2

30

【0142】

<合成例 4> 中間体 2-4 の合成

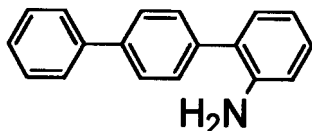
1. 中間体 2-3 の合成

40

アルゴン雰囲気下、2-ヨードアニリン 21.9 g (100.0 mmol)、4-ビフェニルボロン酸 19.81 g (100.0 mmol)、酢酸パラジウム 0.225 g (1.00 mmol)、トリ-（o-トリル）ホスフィン 0.61 g (2.00 mmol) にトルエン 300 mL、1 M 炭酸ナトリウム水溶液 100 ml、エタノール 100 ml を加え、65 °C にて 2 時間反応した。

反応終了後に湯を加えて抽出した後、濃縮した。残渣をメタノールで粉末化させ、濾取した後、乾燥し、19.15 g の肌色固体（収率 78 %）を得た。FD-MS の分析により、下記中間体 2-3 と同定した。

【化 8 6】



中間体 2 - 3

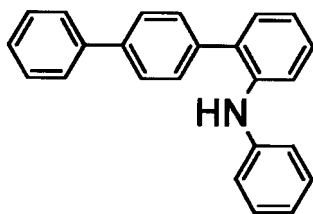
【0 1 4 3】

2. 中間体 2 - 4 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 2 - 3 を 15.00 g (61.14 mmol)、ブロモベンゼン 9.41 g (59.93 mmol)、*t*-ブトキシナトリウム 8.23 g (85.59 mmol)、1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン-パラジウム(II)ジクロリド-ジクロロメタン錯体 0.75 g (0.92 mmol)、1, 1'-ビス(フェニルホスフィノ)フェロセンホスフィン 1.02 g (1.84 mmol) に脱水トルエン 150 mL を加え、85℃にて2時間反応した。

反応終了後に湯を加えて抽出した後、活性炭処理を行い、濃縮した。残渣をメタノールで粉末化させ、濾取した後、乾燥し、17.53 g の灰色固体(収率 91%)を得た。FD-MS の分析により、下記中間体 2 - 4 と同定した。

【化 8 7】



中間体 2 - 4

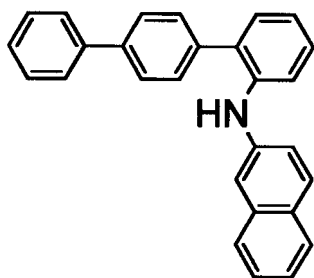
【0 1 4 4】

<合成例 5> 中間体 2 - 5 の合成

アルゴン雰囲気下、前記中間体 2 - 3 を 9.8 g、2-ブロモナフタレン 8.3 g、*t*-ブトキシナトリウム 5.5 g、[1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]パラジウム(II)ジクロリド-ジクロロメタン付加物 288 mg、1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン 391 mg に脱水トルエン 150 mL を加え、85℃にて4時間反応した。

冷却後、水 750 mL を加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥し、14.4 g の淡黄色固体(収率 98%)を得た。FD-MS の分析により、下記中間体 2 - 5 と同定した。

【化 8 8】



中間体 2 - 5

10

20

30

40

50

【0145】

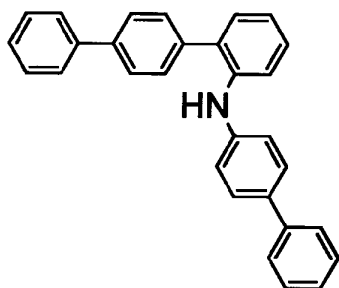
<合成例6>中間体2-6の合成

アルゴン雰囲気下、中間体2-3 23.3g(95.0mmol)、4-ブロモビフェニル21.5g(92.2mmol)、t-ブトキシナトリウム12.7g(132mmol)、酢酸パラジウム(II)211mg(0.94mmol)、ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン1.04g(1.88mmol)に、脱水トルエン215mlを加え、80℃にて3時間反応した。

冷却後、メタノール215mlを加え、析出した結晶を濾取した。得られた結晶をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥し、30.2gの淡黄色固体(収率82.3%)を得た。FD-MSの分析により、下記中間体2-6と同定した。

10

【化89】



中間体2-6

20

【0146】

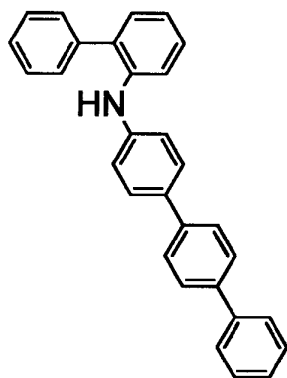
<合成例7>中間体2-7の合成

アルゴン雰囲気下、ターフェニル-4-アミン25.0g(102mmol)、2-ブロモビフェニル23.3g(100mmol)、t-ブトキシナトリウム13.5g(140mmol)、酢酸パラジウム(II)225mg(1.00mmol)、ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン1.19g(2.00mmol)に、脱水トルエン230mlを加え、80℃にて3時間反応した。

冷却後、メタノール230mlを加え、析出した結晶を濾取した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥し、36.4gの淡黄色固体(収率91.6%)を得た。FD-MSの分析により、下記中間体2-7と同定した。

30

【化90】



中間体2-7

40

【0147】

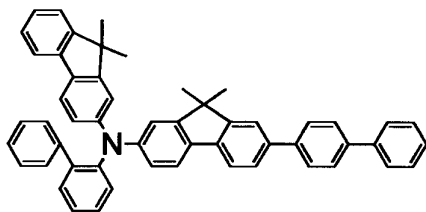
<合成実施例1>(化合物1の合成)

アルゴン気流下、前記中間体1-2 8.5g、前記中間体2-1 7.2g、t-ブトキシナトリウム2.6g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)92mg、トリ-tert-ブチルホスフィン42mg及び脱水トルエン100mLを入れ、80℃

50

にて8時間反応した。冷却後、水500mLを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、5.6gの淡黄色粉末(収率40%)を得た。FD-MSの分析により、下記化合物1と同定した。

【化91】



化合物1

10

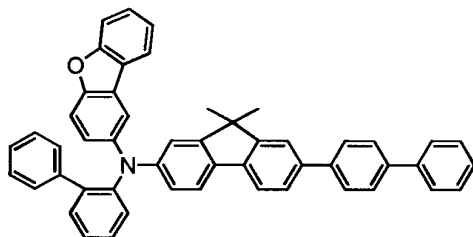
【0148】

<合成実施例2>(化合物2の合成)

アルゴン気流下、前記中間体1-2 8.5g、前記中間体2-2 6.7g、t-ブトキシナトリウム2.6g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)92mg、トリ-tert-ブチルホスフィン42mg及び脱水トルエン100mLを入れ、80℃にて8時間反応した。冷却後、水500mLを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、4.7gの淡黄色粉末(収率35%)を得た。FD-MSの分析により、下記化合物2と同定した。

20

【化92】



化合物2

30

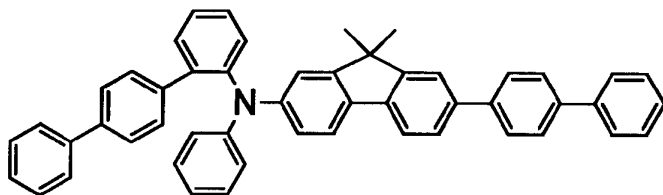
【0149】

<合成実施例3>(化合物3の合成)

アルゴン気流下、前記中間体1-2 10.0g、前記中間体2-4 8.0g、t-ブトキシナトリウム3.2g、酢酸パラジウム106mg、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルビフェニル(Xphos)448mg及び脱水トルエン150mLを入れ、95℃にて3.5時間反応した。冷却後、水750mLを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、6.7gの淡黄色粉末(収率40%)を得た。FD-MSの分析により、下記化合物3と同定した。

40

【化 9 3】



化合物 3

【0150】

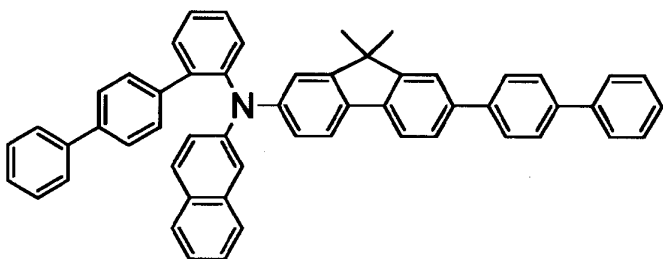
10

<合成実施例 4> (化合物 4 の合成)

アルゴン気流下、前記中間体 1-2 10.0 g、前記中間体 2-5 8.7 g、*t*-ブトキシナトリウム 3.2 g、酢酸パラジウム 106 mg、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルビフェニル (Xphos) 448 mg 及び脱水トルエン 150 mL を入れ、95℃にて 3.5 時間反応した。冷却後、水 750 mL を加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、7.4 g の淡黄色粉末 (収率 39%) を得た。FD-MS の分析により、下記化合物 4 と同定した。

【化 9 4】

20



化合物 4

【0151】

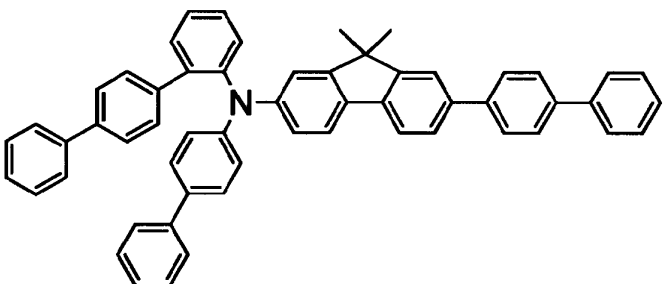
30

<合成実施例 5> (化合物 5 の合成)

アルゴン気流下、前記中間体 1-2 8.93 g、前記中間体 2-6 8.35 g、*t*-ブトキシナトリウム 2.83 g、酢酸パラジウム (II) 48 mg、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルビフェニル (Xphos) 201 mg 及び脱水トルエン 80 mL を入れ、90℃にて 5 時間反応した。冷却後、メタノール 160 mL を加え、析出した結晶を濾取した。得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、10.5 g の白色粉末 (収率 67.2%) を得た。FD-MS の分析により、下記化合物 5 と同定した。

【化 9 5】

40



化合物 5

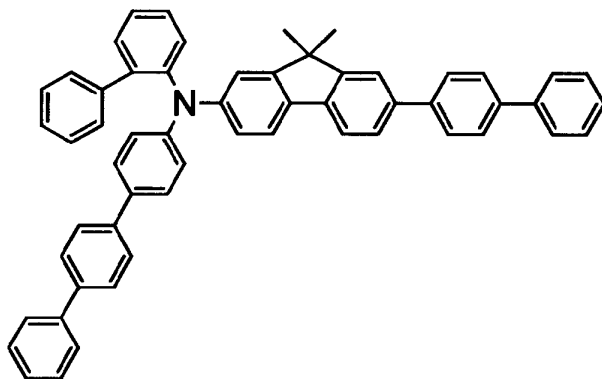
【0152】

<合成実施例 6> (化合物 6 の合成)

50

アルゴン気流下、前記中間体 1-2 8.93 g、前記中間体 2-7 8.35 g、*t*-ブトキシナトリウム 2.83 g、酢酸パラジウム (II) 48 mg、2-ジシクロヘキシルホスフィノー-2', 4', 6'-トリイソプロピルビフェニル (Xphos) 201 mg 及び脱水トルエン 80 mL を入れ、90℃にて5時間反応した。冷却後、メタノール 160 mL を加え、析出した結晶を濾取した。得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.48 g の淡黄色粉末 (収率 60.8%) を得た。FD-MS の分析により、下記化合物 6 と同定した。

【化 9 6】



化合物 6

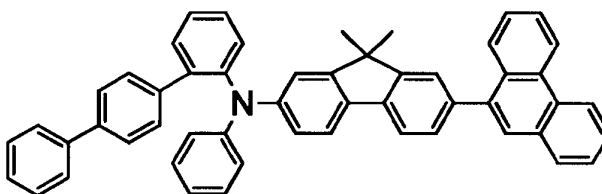
【0153】

<合成実施例 7> (化合物 7 の合成)

アルゴン雰囲気下、前記中間体 2-4 8.09 g (25 mmol)、9-(7-クロロ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル) フェナントレン 10.12 g (25 mmol)、*t*-ブトキシナトリウム 3.36 g (35 mmol)、酢酸パラジウム 56 mg (0.25 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノー-2', 4', 6'-トリイソプロピルビフェニル (Xphos) 238 mg (0.5 mmol) にトルエン 166 mL を加え、85℃にて1時間半、90℃にて1時間半、95-100℃にて8時間攪拌した。

反応終了後に湯を加えて抽出した後、活性炭処理を行い、濃縮した。残渣をメタノールで粉末化させ、濾取した後、乾燥し、粗生成物を得た。これをトルエンで加熱条件の下分散攪拌し、濾取した後、乾燥したところ、4.33 g の白色粉末 (収率 25%) を得た。FD-MS の分析により、化合物 7 と同定した。

【化 9 7】



化合物 7

【0154】

実施例 1 (有機 EL 素子の作製)

25 mm × 75 mm × 1.1 mm の ITO 透明電極ライン付きガラス基板 (ジオマティック社製) をイソプロピルアルコール中で5分間超音波洗浄し、さらに、30分間 UV (Ultraviolet) オゾン洗浄した。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている面上に前記透明電極を覆うようにして下記アクセプター材料 (A) を蒸着し、膜厚 5 nm のアクセプター層を成膜した。このアクセプター層上に、第一正孔輸送材料として前記合成実施例 1 で得た化合物 1 を蒸着し、膜厚 75 nm の第

一正孔輸送層を成膜した。第一正孔輸送層の成膜に続けて、第二正孔輸送材料として下記化合物 H T 2 を蒸着し、膜厚 15 nm の第二正孔輸送層を成膜した。

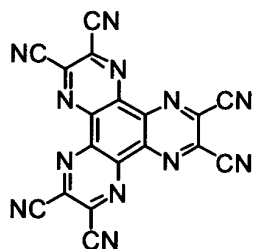
この第二正孔輸送層上に、蛍光発光材料として、下記ホスト材料と下記ドーパントとを共蒸着し、厚さ 25 nm の蛍光発光層を得た。なお、蛍光発光層中のドーパントの濃度は 5 質量%であった。

続いて、この蛍光発光層上に、厚さ 20 nm で下記化合物 E T 2、厚さ 5 nm で下記化合物 E T 1、厚さ 1 nm で L i F、及び厚さ 80 nm で金属 A l を順次積層し、陰極を形成した。なお、電子注入性電極である L i F は、 $1 \text{ \AA} / \text{min}$ の成膜速度で形成した。

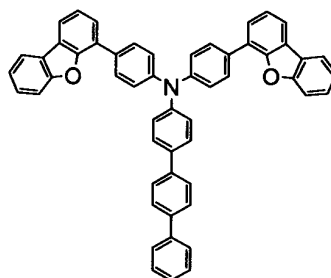
【0155】

【化98】

10

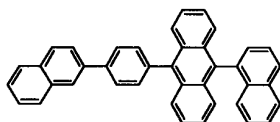


アクセプター材料 (A)

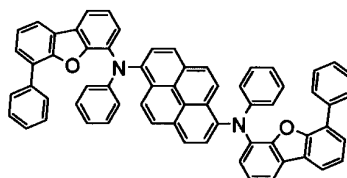


第二正孔輸送材料 (H T 2)

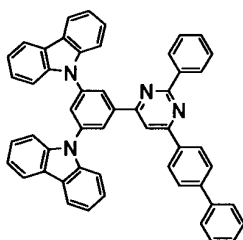
20



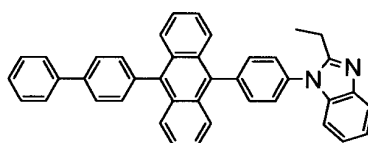
ホスト材料



ドーパント



電子輸送材料 (E T 2)



電子輸送材料 (E T 1)

30

【0156】

(有機 E L 素子の発光性能評価)

以上のように作製した有機 E L 素子を直流電流駆動により発光させ、輝度 (cd / m^2)、電流密度を測定し、電流密度 $10 \text{ mA} / \text{cm}^2$ における発光効率 (cd / A)、駆動電圧 (V) を求めた。結果を表 1 に示す。

40

【0157】

実施例 2 ~ 3 (有機 E L 素子の作製)

実施例 1 において、第一正孔輸送材料として、化合物 1 の代わりに上記化合物 2、化合物 3 を用いた以外は同様にして有機 E L 素子を作製し、発光性能評価を行った。結果を表 1 に示す。

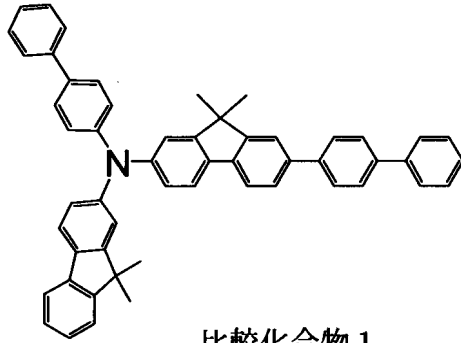
【0158】

比較例 1

実施例 1 において、第一正孔輸送材料として、化合物 1 の代わりに下記比較化合物 1 を用いた以外は同様にして有機 E L 素子を作製し、発光性能評価を行った。結果を表 1 に示す。

50

【化 9 9】



比較化合物 1

10

【0 1 5 9】

【表 1】

表 1

	第一正孔輸送材料	評価結果	
		駆動電圧 (V)	発光効率 (cd/A)
実施例 1	化合物 1	4.40	9.09
実施例 2	化合物 2	4.62	9.00
実施例 3	化合物 3	4.79	9.94
比較例 1	比較化合物 1	5.64	8.66

20

【0 1 6 0】

表 1 において、実施例 1～3 と比較例 1 との対比から、化合物 1～3 を第一正孔輸送層に用いた有機 EL 素子は、公知の芳香族アミン誘導体を正孔輸送層に用いた有機 EL 素子に比べ、低電圧駆動させることができ、さらに発光効率が高いことがわかる。

フロントページの続き

(56)参考文献 国際公開第2013/182263 (WO, A1)
国際公開第2014/015938 (WO, A1)
国際公開第2014/015937 (WO, A1)
国際公開第2012/034627 (WO, A1)
国際公開第2013/118846 (WO, A1)
国際公開第2014/072017 (WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07C

C07D

C09K

CAplus/REGISTRY (STN)