

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2012年2月9日(09.02.2012)

PCT

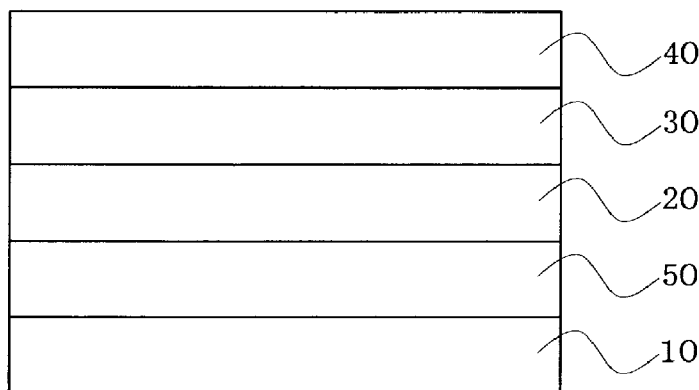
(10) 国際公開番号
WO 2012/017680 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) C07C 255/52 (2006.01)
C07C 255/50 (2006.01) C07D 493/04 (2006.01)
C07C 255/51 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/004458
- (22) 国際出願日: 2011年8月5日(05.08.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-176249 2010年8月5日(05.08.2010) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 伊藤 裕勝(ITO, Hirokatsu) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 齊藤 博之(SAITO, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 水木 由美子(MIZUKI, Yumiko) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 河村 昌宏(KAWAMURA, Masahiro) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 河村 祐一郎(KAWAMURA, Yuichiro) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 渡辺 喜平, 外(WATANABE, Kihei et al.); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目26番 芝信神田ビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子

【図1】



(57) Abstract: Provided is an organic electroluminescent element that is provided in the given order with a positive electrode, a light-emitting layer, an electron transport region, and a negative electrode, and the electron transport region contains an electron transport material having a cyano group and an aromatic ring group.

(57) 要約: 陽極、発光層、電子輸送帯域及び陰極をこの順に備え、前記電子輸送帯域が、シアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

WO 2012/017680 A1

明 細 書

発明の名称：有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

背景技術

[0002] 有機物質を使用した有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。

一般に有機ＥＬ素子は、発光層及びこれを挟持してなる一对の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が及び陽極側から正孔が注入され、電子が発光層において正孔と再結合し、励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際にエネルギーを光として放出する。

[0003] これら正孔注入、電子注入及び発光の全てを１層で機能させる有機ＥＬ素子の高性能化は難しく、電極間の有機層を複数層化し、機能分離させることにより、高性能化を実現している。具体的には、２つの電極間に正孔輸送層、発光層、電子輸送層等の３層以上の層を積層させた構造が一般的である。

[0004] 初期の有機ＥＬ素子は、駆動電圧、発光効率及び耐久性が不十分であり、これらの問題に対して様々な技術的改良がなされてきた。例えば特許文献１及び２では、これらの改善を目的とした有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を開示する。

特許文献１には、素子の寿命と効率を大きく向上させることができる電子注入輸送材料として、アントラセン骨格とイミダゾール骨格を有する材料が開示されている。また、特許文献２には、低電圧においても発光効率を向上させることができる電子輸送材料として、特定のイミダゾール骨格を有する含窒素複素環誘導体が開示されている。

特許文献１及び２が開示するように、従来の電子輸送材料は含窒素複素環

誘導体を用いることで、有機EL素子の性能を向上させていた。

[0005] 特許文献3には、有機発光素子の寿命、輝度及び消費電力の効率特性を向上させるため、有機層にアントラセン誘導体化合物及びイオン金属錯体、又は相異なる2種のアントラセン誘導体化合物を含むことが開示されている。

また、特許文献4は、発光層のドーパント材料としての用途でベンゾフルオランテン骨格を有する化合物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：WO2003/060956

特許文献2：WO2005/097756

特許文献3：特開2008-258603

特許文献4：WO2008/059713

発明の概要

[0007] 本発明の目的は、高効率で長寿命な有機EL素子を提供することである。

[0008] 本発明者らは、鋭意研究した結果、シアノ基を有する芳香族炭化水素材料を有機EL素子の電子輸送材料として用いた場合に、優れた効果（低電圧、高効率、長寿命）が得られることを見出し、本発明を完成させた。

[0009] 電子輸送材料には、電子を輸送する骨格と電子を吸引する骨格の両方が必要であり、特許文献1～3は、イミダゾール骨格で代表される含窒素複素環置換基を必須とする材料、又は芳香族炭化水素化合物と金属錯体等との混合層を電子輸送材料として使用することが開示されている。

イミダゾール骨格に代表される含窒素複素環置換基を有する材料は優れた電子注入・輸送性を示すが、含窒素複素環置換基は正孔耐性が不十分であると考えられている。また、含窒素複素環誘導体を有しない材料は、材料単体では駆動電圧を上げると考えられ、金属錯体等を併用することが必要であり、複数の材料を併用して電子注入・輸送層を形成する場合は、製造工程が複雑になってしまう。そこで、より簡略化できる、1材料単体で電子注入・輸送層を形成することができる材料が望まれていた。

本発明者らは鋭意研究した結果、シアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料を用いることで、低電圧、高効率、長寿命な有機EL素子が得られることを見出した。

[0010] 本発明によれば、以下の有機EL素子が提供される。

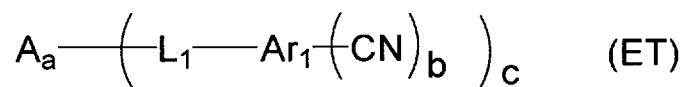
1. 陽極、発光層、電子輸送帯域及び陰極をこの順に備え、

前記電子輸送帯域が、シアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

2. 前記電子輸送材料が、シアノ基と芳香族単環基及び／又は芳香族縮合環基を有する電子輸送材料である1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 前記電子輸送材料が下記式(ET)で表わされる1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]



[式中、

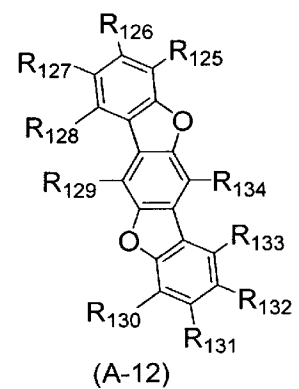
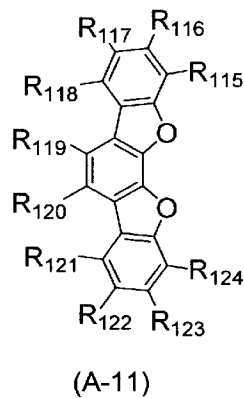
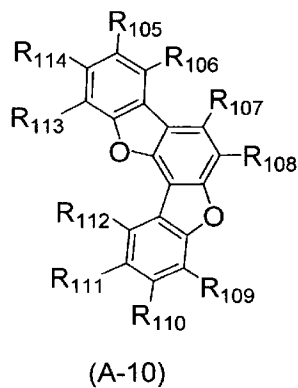
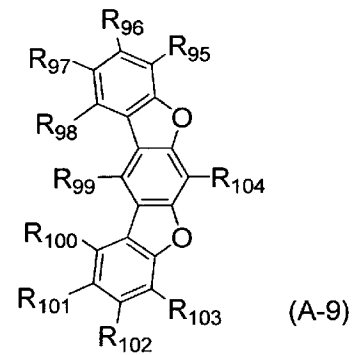
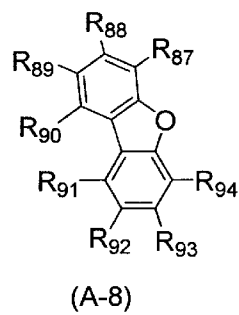
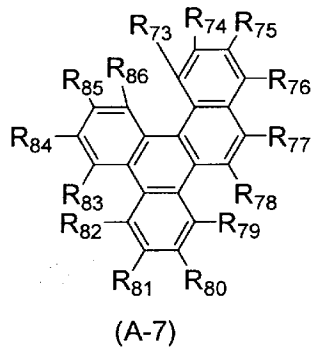
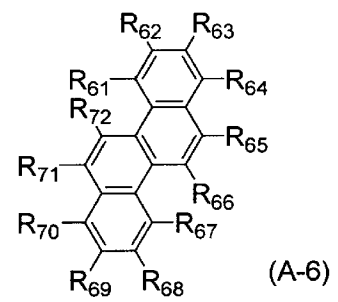
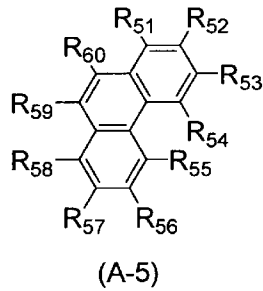
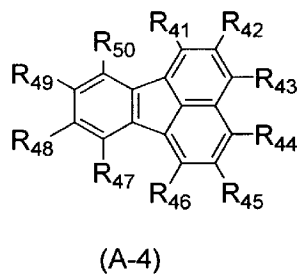
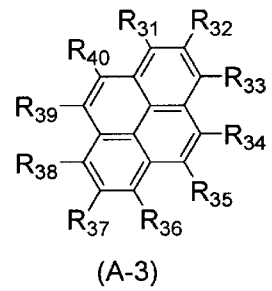
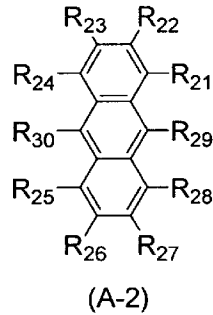
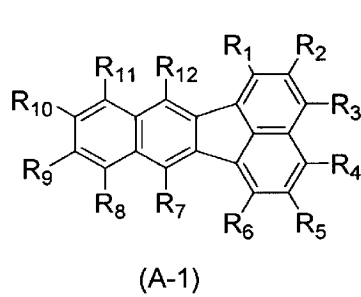
L_1 は、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の $a+1$ 価の芳香族環基である。

Ar_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の $1+b$ 価の芳香族環基である。

a 、 b 及び c は、それぞれ1～3の整数である。

A は、下記式(A-1)～(A-12)

[化2]



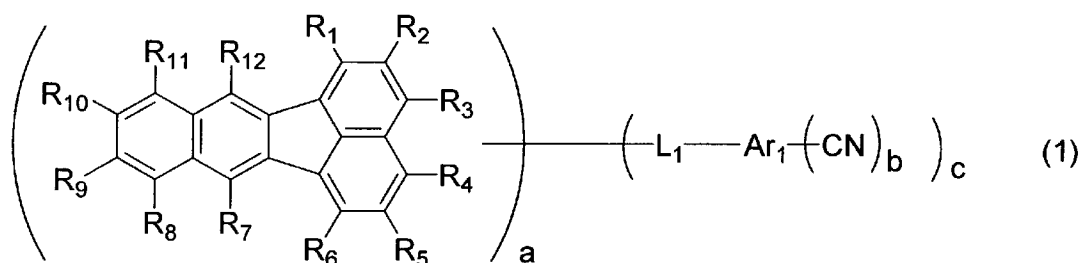
(式 (A-1) ~ (A-12) 中、

$$R_1 \sim R_{12}, R_{21} \sim R_{30}, R_{31} \sim R_{40}, R_{41} \sim R_{50}, R_{51} \sim R_{60}, R_{61} \sim R_{72}, R_{73} \sim R_{86}, R_{87} \sim R_{94}, R_{95} \sim R_{104}, R_{105} \sim R_{114}, R_{115}$$

～ R_{124} 又は $R_{125} \sim R_{134}$ のうちの c 個は単結合で L_1 と結合し、単結合以外の $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、 $R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim R_{114}$ 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 又は $R_{125} \sim R_{134}$ は、それぞれ水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、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3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のシリル基、又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か、隣接する各基が結合して環を形成する。)からなる群から選択される縮合芳香族環基である。]

4. 前記電子輸送材料が、下記式(1)で表わされる3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化3]



(式中、 a 、 b 、 c 、 L_1 、 Ar_1 、及び $R_1 \sim R_{12}$ は、請求項3で定義した通りである。)

5. R_3 又は R_4 が単結合で L_1 と結合している4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. $a = 1$ 及び $c = 1$ である4又は5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

7. R_7 及び R_{12} が、それぞれ無置換のフェニル基である4～6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。

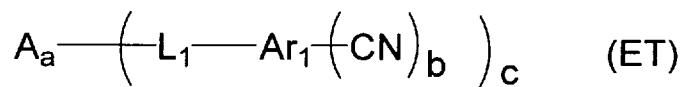
8. 前記電子輸送帯域が、還元性ドーパントをさらに含有する1～7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

9. 前記還元性ドーパントが、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金

属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体及び希土類金属の有機錯体からなる群から選択される１種又は２種以上である８に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

１０．下記式（ＥＴ）で表されるシアノ基と芳香族環基を有する化合物。

[化４]



[式中、

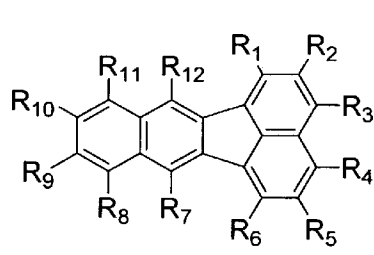
L_1 は、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０の $a+1$ 価の芳香族環基である。

Ar_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０の $1+b$ 価の芳香族環基である。

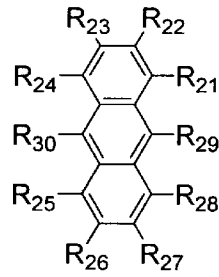
a 、 b 及び c は、それぞれ１～３の整数である。

A は、下記式（Ａ－１）～（Ａ－１２）

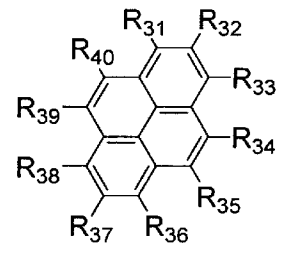
[化5]



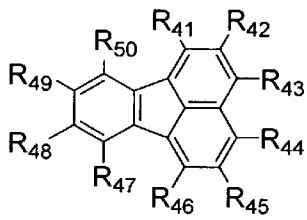
(A-1)



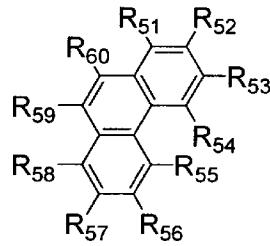
(A-2)



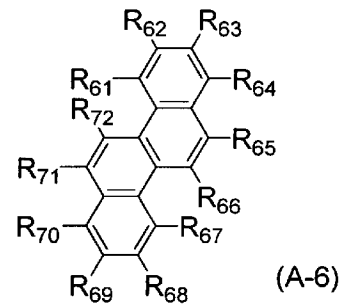
(A-3)



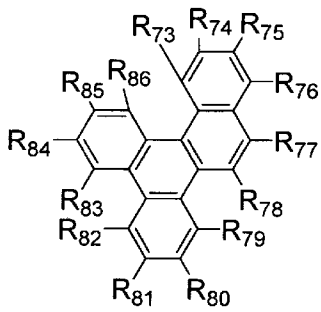
(A-4)



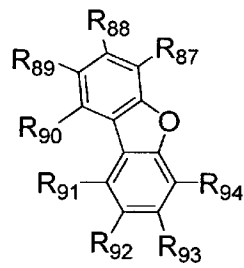
(A-5)



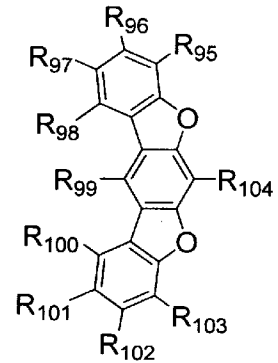
(A-6)



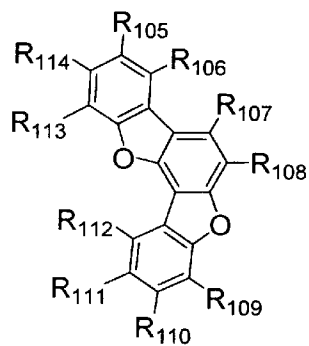
(A-7)



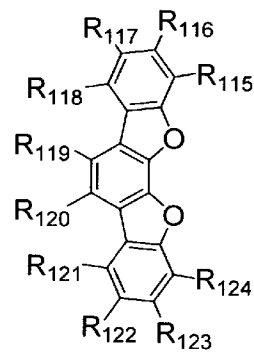
(A-8)



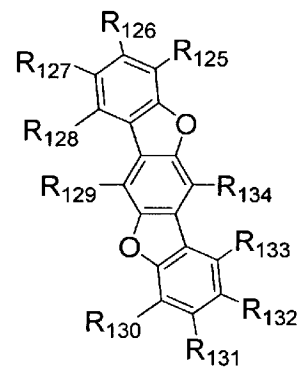
(A-9)



(A-10)



(A-11)



(A-12)

(式 (A-1) ~ (A-12) 中、

$$R_1 \sim R_{12}, R_{21} \sim R_{30}, R_{31} \sim R_{40}, R_{41} \sim R_{50}, R_{51} \sim R_{60}, R_{61} \sim R_{72}, R_{73} \sim R_{86}, R_{87} \sim R_{94}, R_{95} \sim R_{104}, R_{105} \sim R_{114}, R_{115}$$

～ R_{124} 又は $R_{125} \sim R_{134}$ のうちの c 個は単結合で L_1 と結合し、単結合以外の $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、 $R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim R_{114}$ 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 又は $R_{125} \sim R_{134}$ は、それぞれ水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、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3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のシリル基、又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か、隣接する各基が結合して環を形成する。)からなる群から選択される縮合芳香族環基である。]

[0011] 本発明によれば、低電圧、高効率で長寿命な有機EL素子を提供することである。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の一実施形態を示す図である。

発明を実施するための形態

[0013] 本発明の有機EL素子は、少なくとも陽極10、発光層20、電子輸送帯域30及び陰極40をこの順に備え、電子輸送帯域30が、シアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料を含む素子である(図1)。

本発明の有機EL素子は、必要に応じてさらに、陽極10と発光層20の間に正孔輸送帯域50及び他の層を有していてもよい(図1)。

[0014] 本発明の有機EL素子の電子輸送帯域が含む電子輸送材料(以下、単に本発明の電子輸送材料という場合がある)の「芳香族環基」は、酸素原子及び／又は硫黄原子を含んでもよい芳香族性を示す単環又は複数の環(縮合環)から構成される基である。このように「芳香族環基」は、芳香族単環基と芳香族縮合環基の両方を含む。また、本発明の電子輸送材料は、上述の本発明の低電圧、高効率且つ長寿命化の観点から、上記「芳香族環基」の置換基としても含窒素複素環基を含まない。

上記芳香族単環基は、縮合環構造を有さない一つの環構造が、1つ又は複数連結して構成される基である。一方、上記芳香族縮合環基は、2以上の環

構造が縮環した構造を有する基である。

上記芳香族単環基の環形成原子数は、5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～20）であることが好ましく、上記芳香族縮合環基の環形成原子数は8～50（好ましくは8～30、より好ましくは8～20）であることが好ましい。

[0015] 環形成原子数5～50の芳香族単環基（好ましくは環形成原子数5～30、より好ましくは環形成原子数5～20）の具体的としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基等のアリール基と、フリル基、チエニル基等の複素環基が好ましい。

中でも、アリール基が好ましく、特に、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基が好ましい。

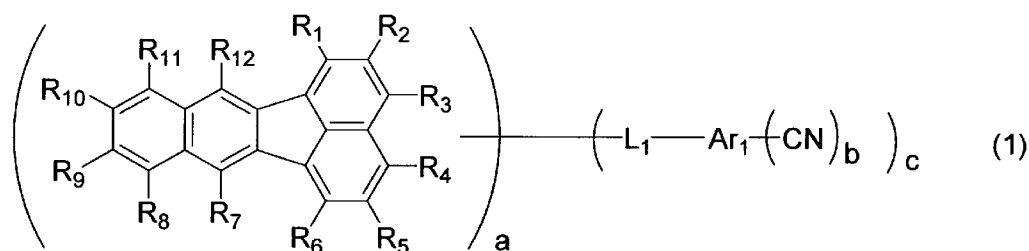
[0016] 前記環形成原子数8～50の芳香族縮合環基（好ましくは環形成原子数8～30、より好ましくは環形成原子数8～20）の具体例としては、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、クリセニル基、ベンゾアントリル基、ベンゾフェナントリル基、トリフェニレニル基、ベンゾクリセニル基、インデニル基、フルオレニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、ピレニル基等の縮合アリール基や、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基等の縮合複素環基が挙げられる。

これら芳香族縮合環基の中でも、特にナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾアントリル基、ピレニル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基が好ましい。

[0017] 本発明における電子輸送材料が有する芳香族環基は、芳香族単環基と芳香族単環基で構成されていてもよく、芳香族単環基と芳香族縮合環基で構成されていてもよく、芳香族縮合環基と芳香族縮合環基で構成されていてもよい。

[0018] 本発明の電子輸送材料は、好ましくは下記式（１）～（１２）で表わされる化合物である。

[化6]



（式中、

a 、 b 及び c は、それぞれ 1～3 の整数であり、好ましくは a 及び c のいずれか一方は 1 である。好ましくは b は 1 である。

$R_1 \sim R_{12}$ のうちの c 個は単結合で L_1 と結合し、好ましくは R_3 又は R_4 が単結合で L_1 と結合する。単結合以外の $R_1 \sim R_{12}$ は、それぞれ水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、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 3～10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のシリル基、又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か、隣接する各基が結合して環を形成する。

L_1 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 $a+1$ 価の芳香族環基である。

Ar_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 の $1+b$ 価の芳香族環基である。）

[0019] 式（１）において、 a が 2 以上の場合、括弧内のベンゾフルオランテン骨格は同一でも異なってもよく、 L_1 と結合する $R_1 \sim R_{12}$ も同一でも異なってもよい。同様に、 c が 2 以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール（ $\text{Ar}_1 - (\text{CN})_b$ ）は同一でも異なってもよい。

[0020] 式（１）で表わされる化合物は、ベンゾフルオランテン骨格とシアノ基を同時に有する化合物である。ベンゾフルオランテン骨格は高い平面性を有し、分子同士がうまく重なるため、高い電荷輸送性を有すると考えられる。ま

た、ベンゾフルオランテン骨格は電荷耐久性が高く、寿命の向上が期待できる。例えば有機EL素子の発光層に電子トラップ性のドーパントを用いると、正孔が電子注入層側まで流れてくる場合があるが、ベンゾフルオランテン骨格を有する式(1)で表わされる化合物は、例えばイミダゾール骨格と比較しても優れた正孔耐性をもつため、素子の劣化を防ぐことができると考えられる。

[0021] 式(1)で表わされる化合物において、好ましくは R_7 及び R_{12} が、それぞれ無置換のフェニル基である。

R_7 及び R_{12} が、それぞれ無置換のフェニル基であることで、ベンゾフルオランテン骨格の平面性を向上させることができると考えられる。平面性が向上した式(1)で表わされる化合物では、分子同士の重なりが大きくなって、分子同士の距離を短くでき、電荷輸送性を高めることができる。

[0022] 以下、式(1)で表わされる化合物の各置換基について説明する。

$R_1 \sim R_{12}$ のハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。

[0023] $R_1 \sim R_{12}$ の炭素数1～20（好ましくは炭素数1～6、より好ましくは炭素数1～4）のアルキル基としては、エチル基、メチル基、i-プロピル基、n-プロピル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等が挙げられる。

[0024] $R_1 \sim R_{12}$ の環形成炭素数3～10（好ましくは環形成炭素数3～6）のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

[0025] $R_1 \sim R_{12}$ の置換シリル基は、炭素数3～30のアルキルシリル基及び炭素数8～30のアリールシリル基を含む。

上記炭素数3～30（好ましくは炭素数3～20、より好ましくは炭素数3～10）のアルキルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基等が挙げられる。

上記炭素数8～30のアリールシリル基としては、トリフェニルシリル基、フェニルジメチルシリル基、*t*-ブチルジフェニルシリル基、トリトリルシリル基、トリキシリルシリル基、トリナフチルシリル基等が挙げられる。

[0026] $R_1 \sim R_{12}$ の環形成炭素数6～50（好ましくは環形成炭素数6～20、より好ましくは環形成炭素数6～12）のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントリル基、クリセニル基、ベンゾフェナントリル基、ベンズアントリル基、ベンゾクリセニル基、フルオレニル基、フルオランテニル基、ナфтаセニル基等が挙げられる。環形成炭素数が6～50である限り、フェニルナフチル基、フェニルナフチルフェニル基等、ここに記載のアリール基の組合せからなる基も好ましい。

[0027] L_1 の環形成炭素数6～50（好ましくは環形成炭素数6～20、より好ましくは環形成炭素数6～12）の $a+1$ 価の芳香族環基としては、フェニレン基、ナフチレン基、フェナントリレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、クォーターフェニレン基、アントリレン基、ペンタセニレン基、ペリレニレン基、ピセニレン基、ピレニレン基、ペンタフェニレン基、フルオレニレン基、クリセニレン基に対応する残基等や、環形成炭素数が6～50である限り、フェニルナフチル基、フェニルナフチルフェニル基に対応する残基等、ここに記載のアリール基の組合せからなる基に対応する残基も好ましい。

[0028] A_{r1} の環形成炭素数6～50の $1+b$ 価の芳香族環基としては、上記 $R_1 \sim R_{12}$ と同様の具体例に対応する残基が挙げられ、好ましくは、フェニル基、ナフチル基に対応する残基である。

[0029] $R_1 \sim R_{12}$ 、 L_1 及び A_{r1} の各置換基がさらに置換基を有する場合、当該置換基としては、アルキル基、アルキルシリル基、ハロゲン化アルキル基、アリール基、シクロアルキル基、アルコキシ基、窒素原子を含まない複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、ニトロ基、シアノ基、カルボキシル

基等が挙げられ、好ましくはアリール基である。

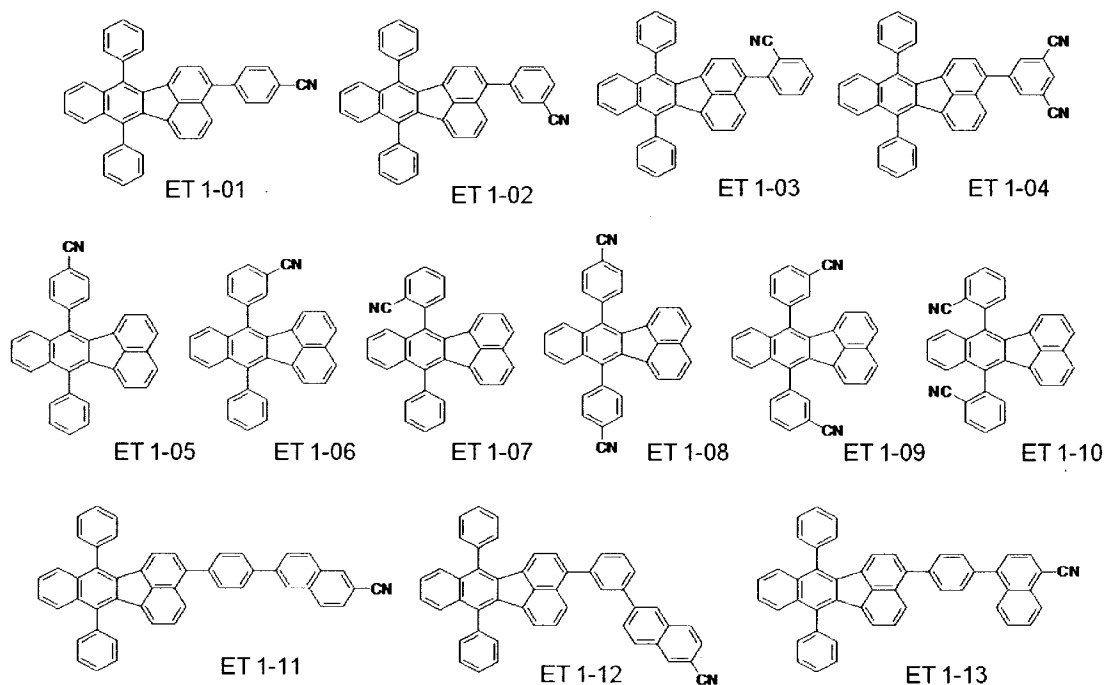
上記置換基の具体例は、上述した具体例と同様である。

[0030] 尚、式（１）の化合物の各置換基について、「無置換」とは、水素原子が置換したことを意味する。また、式（１）の化合物の水素原子には、軽水素、重水素が含まれる。

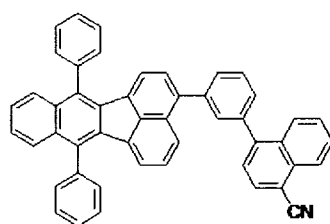
また、本明細書において、「環形成炭素」とは飽和環、不飽和環、又は芳香環を構成する炭素原子を意味する。「環形成原子」とは環（飽和環、不飽和環、及び芳香環を含む）を構成する炭素原子及びヘテロ原子を意味する。

[0031] 以下に、式（１）で表される本発明のシアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料の具体例を示す。

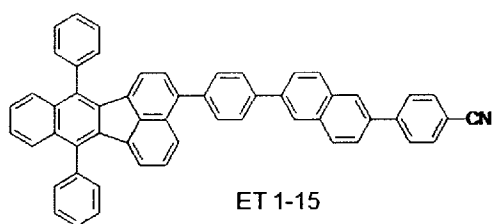
[化7]



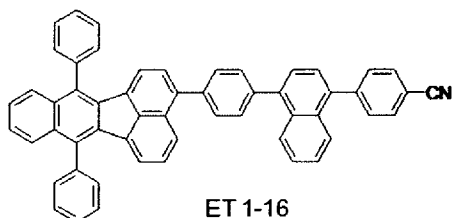
[化8]



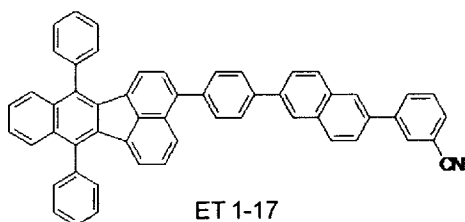
ET 1-14



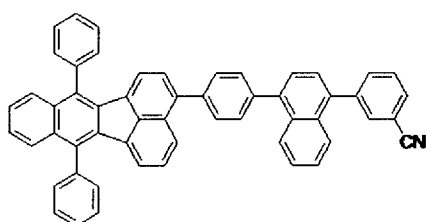
ET 1-15



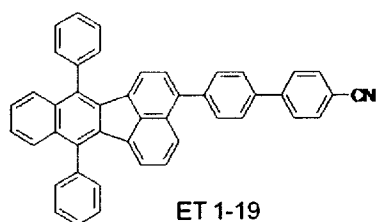
ET 1-16



ET 1-17

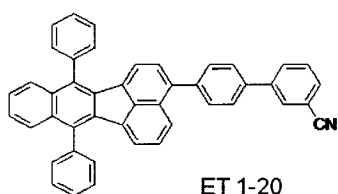


ET 1-18

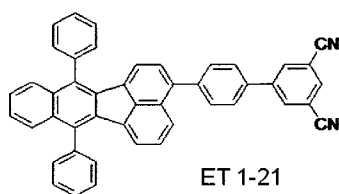


ET 1-19

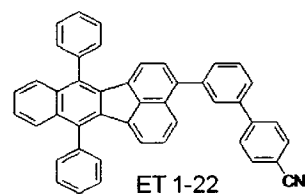
[化9]



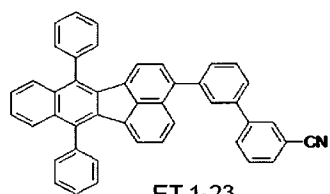
ET 1-20



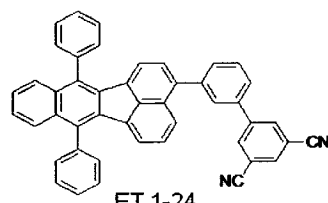
ET 1-21



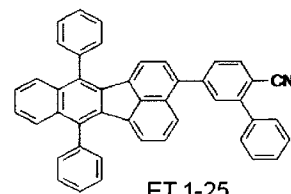
ET 1-22



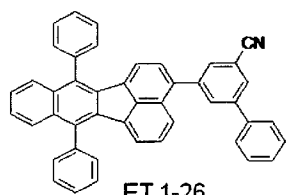
ET 1-23



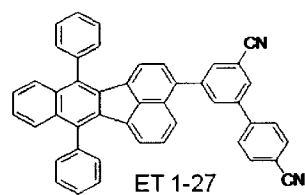
ET 1-24



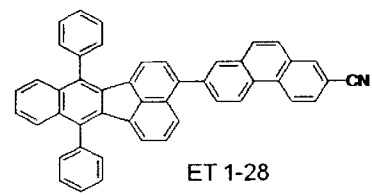
ET 1-25



ET 1-26

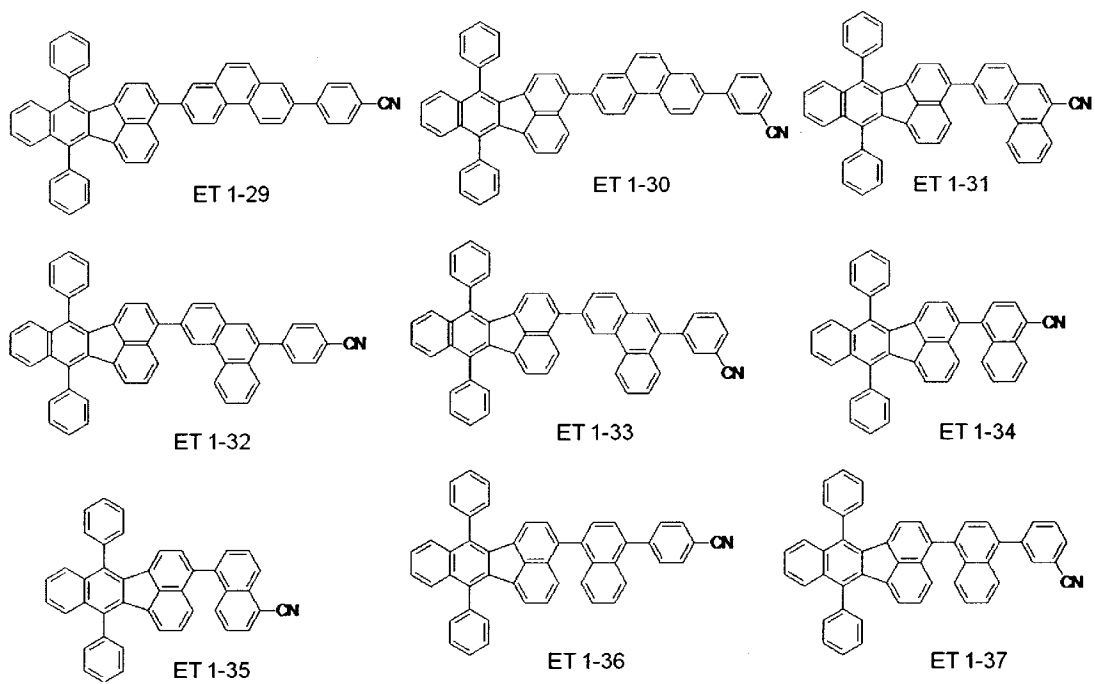


ET 1-27

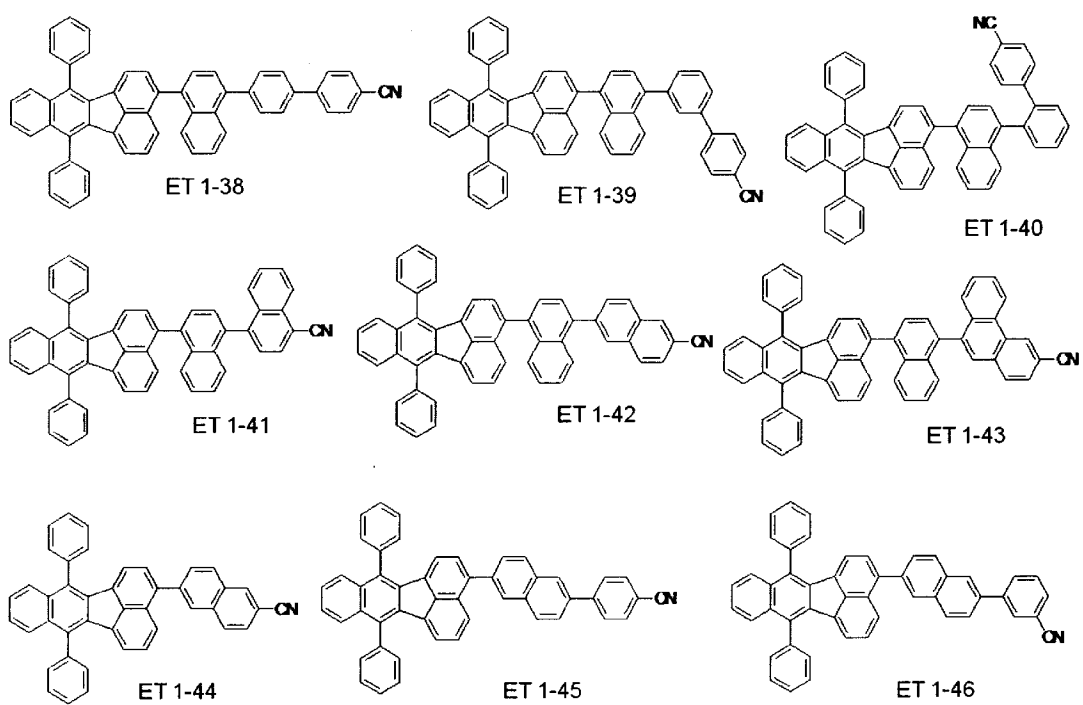


ET 1-28

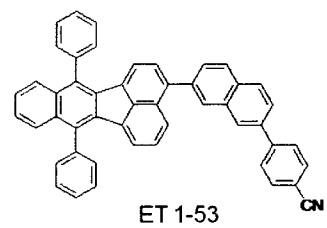
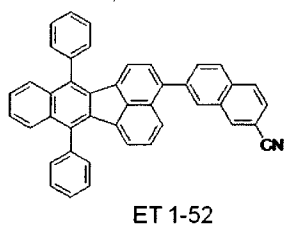
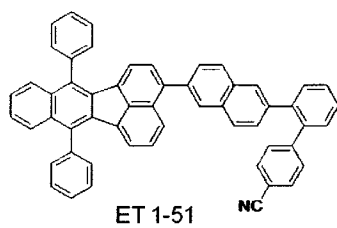
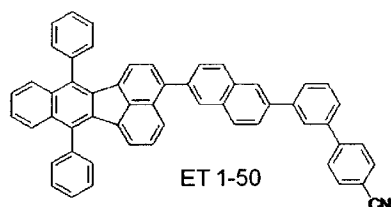
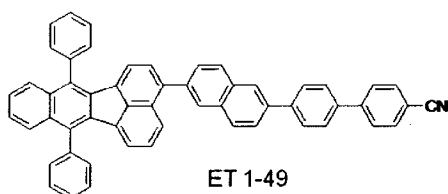
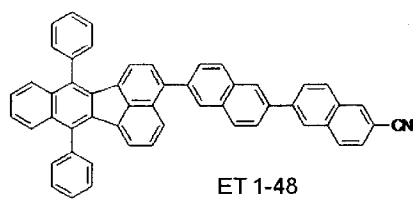
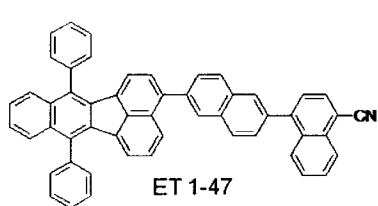
[化10]



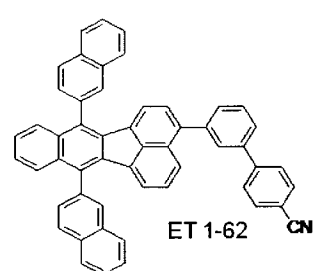
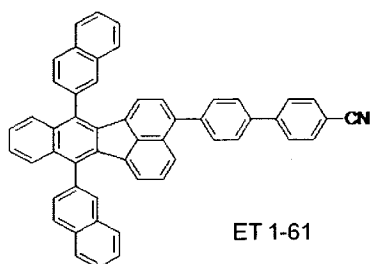
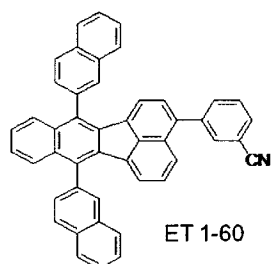
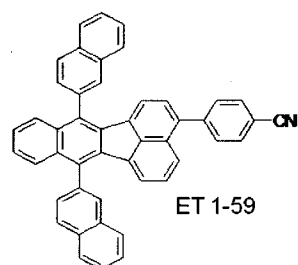
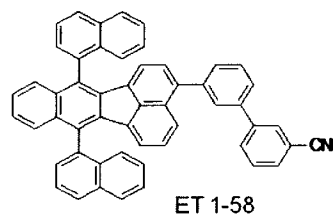
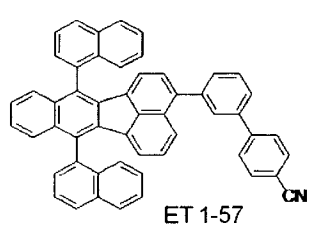
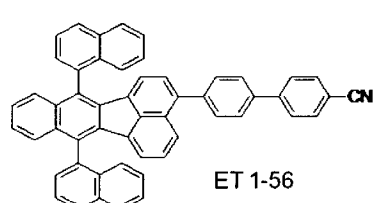
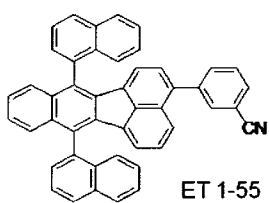
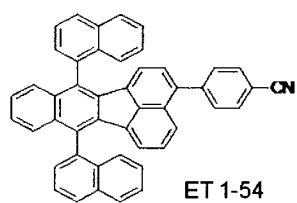
[化11]



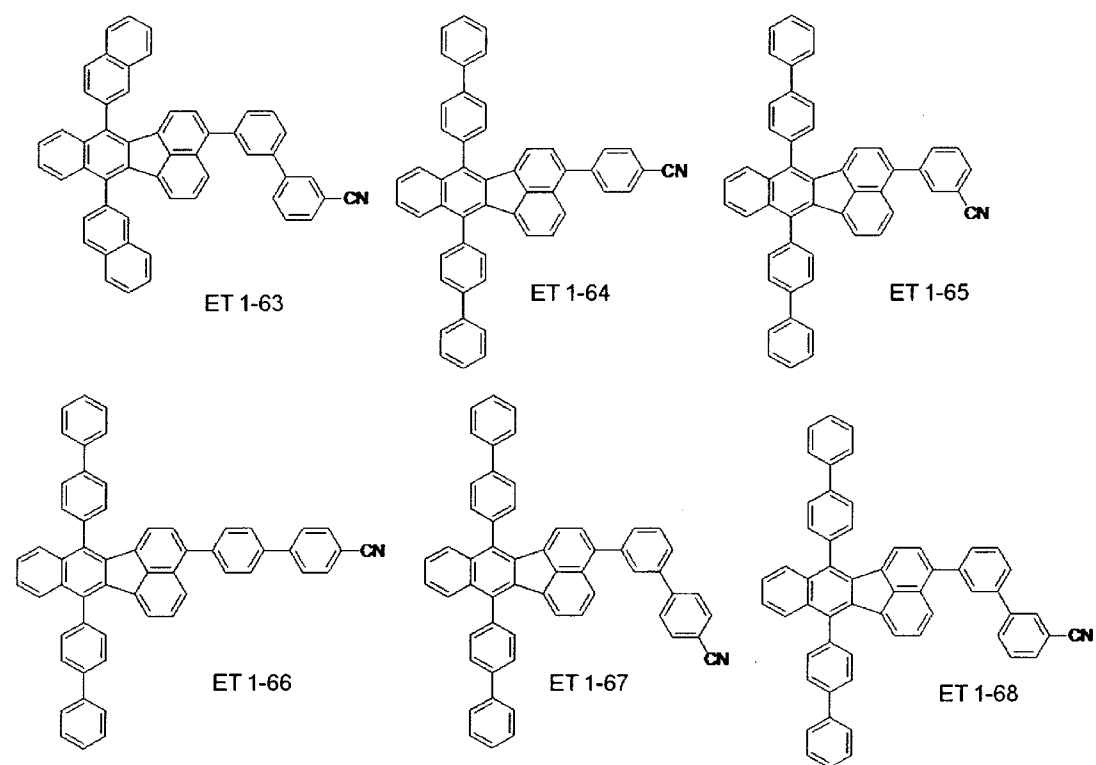
[化12]



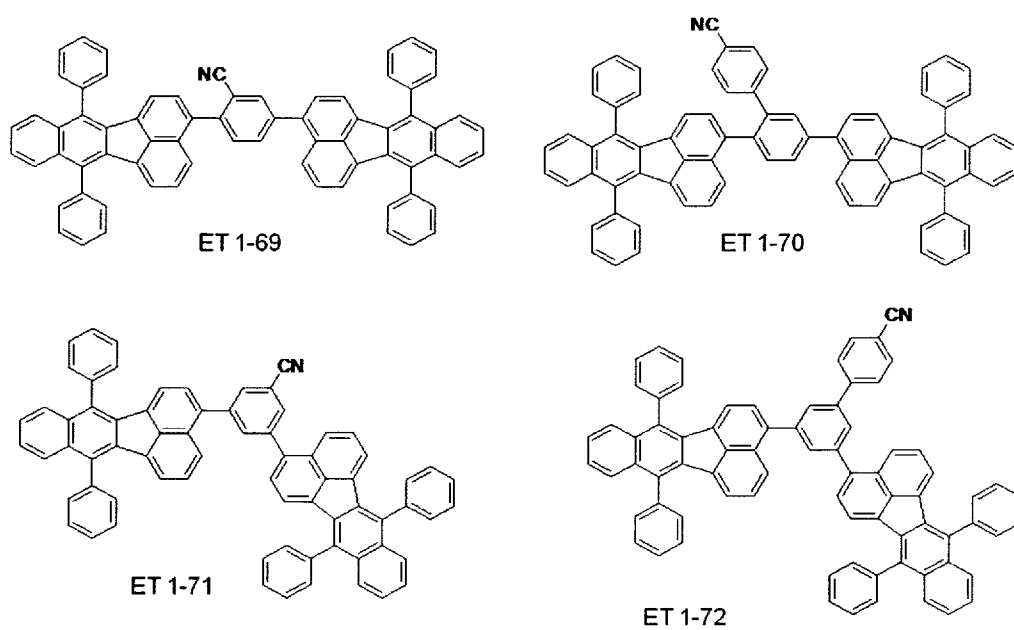
[化13]



[化14]



[化15]



[0032] 本発明で用いるシアノ基と芳香族環基を有する化合物は、電子輸送材料化合物である。また、ベンゾフルオランテン骨格を有する式(1)で表わされる化合物は、後述する理由から、3重項エネルギー障壁材料としても好適に

用いることができると考えられる。

[0033] ベンゾフルオランテン骨格は一般的に蛍光青色材料として用いられるアントラセン骨格よりも3重項エネルギーが高く、3重項励起子の閉じ込め効果が高いため、例えば有機EL素子の発光層に接した障壁層の材料として利用することによって、TTF (Triplet-Triplet Fusion) 現象を促進させることができると考えられる。また、ベンゾフルオランテン骨格は、その平面性の高さによって薄膜中での分子スタッキングが向上し、電子輸送性が大きくなるという特徴を持つため、発光層への電子注入を促進し、発光層での再結合効率を高め、TTF現象を効率的に起こすことができると考えられる。

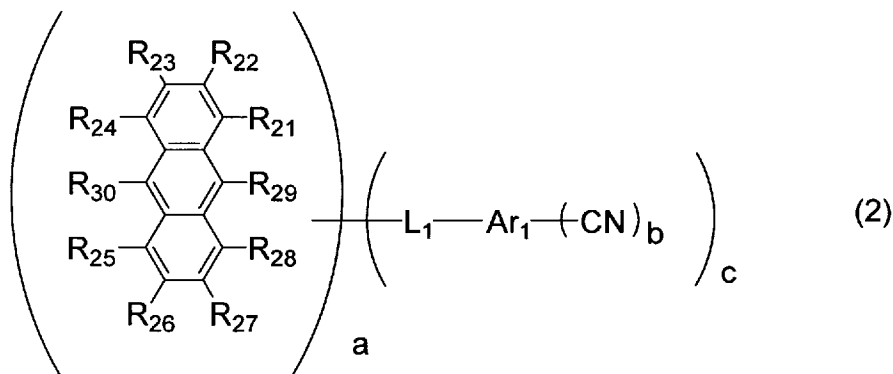
[0034] 本発明で用いるシアノ基と芳香族環基を有する化合物としては、上述したベンゾフルオランテン骨格を有する式(1)で表される化合物の他、下記式(2)～(12)で表される構造を有する化合物も好ましい。

尚、下記式(2)～(12)において、 a 、 b 、 c 、 L_1 及び Ar_1 は、上記式(1)において説明した通りである。

$R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、 $R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim R_{114}$ 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 及び $R_{125} \sim R_{134}$ は、上記式(1)における $R_1 \sim R_{12}$ と同様である。

[0035] アントラセン骨格を有する化合物

[化16]

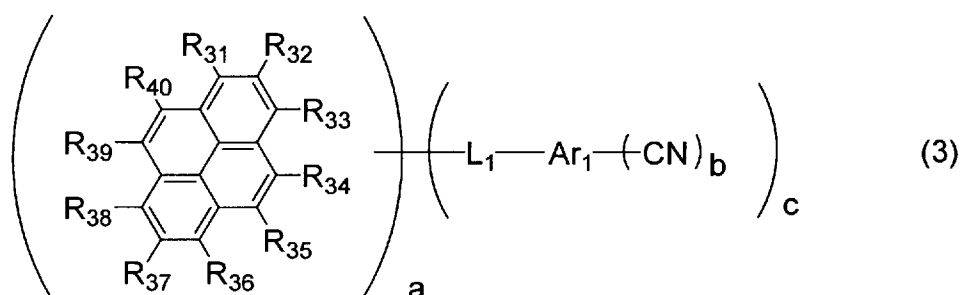


上記式(2)で表される化合物において、好ましくは R_{22} 、 R_{23} 、 R_{26} 、

R_{27} , R_{29} , R_{30} のうち1～3箇所において L_1 と結合し、さらに好ましくは、 R_{29} , R_{30} のいずれか一方又は両方において L_1 と結合する。式(2)において、 a が2以上の場合、括弧内のアントラセン骨格は同一でも異なってもよく、 c が2以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール($Ar_1-(CN)_b$)は同一でも異なってもよい。

[0036] ピレン骨格を有する化合物

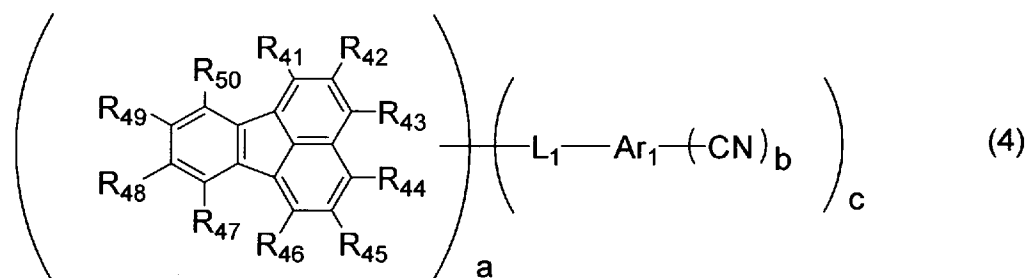
[化17]



上記式(3)で表される化合物において、好ましくは R_{31} , R_{33} , R_{36} , R_{38} のうち1～3箇所において L_1 と結合し、さらに好ましくは、 R_{31} , R_{33} , R_{36} , R_{38} のうち1～2箇所において L_1 と結合する。式(3)において、 a が2以上の場合、括弧内のピレン骨格は同一でも異なってもよく、 c が2以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール($Ar_1-(CN)_b$)は同一でも異なってもよい。

[0037] フルオランテン骨格を有する化合物

[化18]

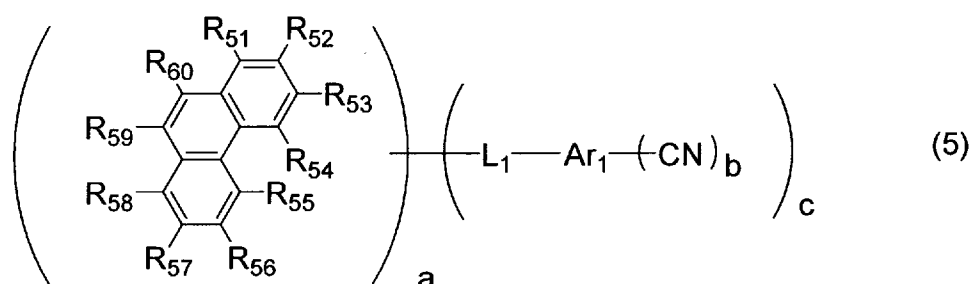


上記式(4)で表される化合物において、好ましくは R_{43} , R_{44} , R_{47} , R_{48} , R_{49} , R_{50} のうち1～2箇所において L_1 と結合し、さらに好ましく

は、 R_{43} , R_{44} のいずれか一方において L_1 と結合する。式(4)において、 a が2以上の場合、括弧内のフルオランテン骨格は同一でも異なってもよく、 c が2以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール($Ar_1-(CN)_b$)は同一でも異なってもよい。

[0038] フェナントレン骨格を有する化合物

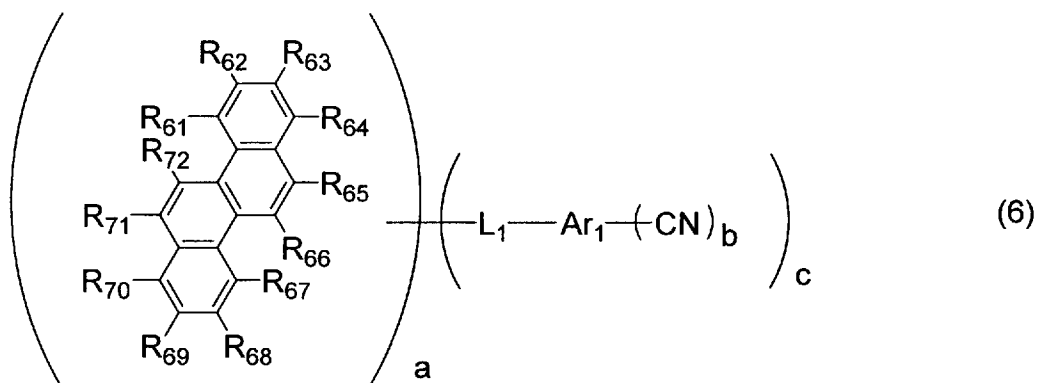
[化19]



上記式(5)で表される化合物において、好ましくは $R_{51} \sim R_{60}$ のうちいずれか1~2箇所において L_1 と結合し、さらに好ましくは、 R_{59} , R_{60} のいずれか一方において L_1 と結合する。式(5)において、 a が2以上の場合、括弧内のフェナントレン骨格は同一でも異なってもよく、 c が2以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール($Ar_1-(CN)_b$)は同一でも異なってもよい。

[0039] クリセン骨格を有する化合物

[化20]



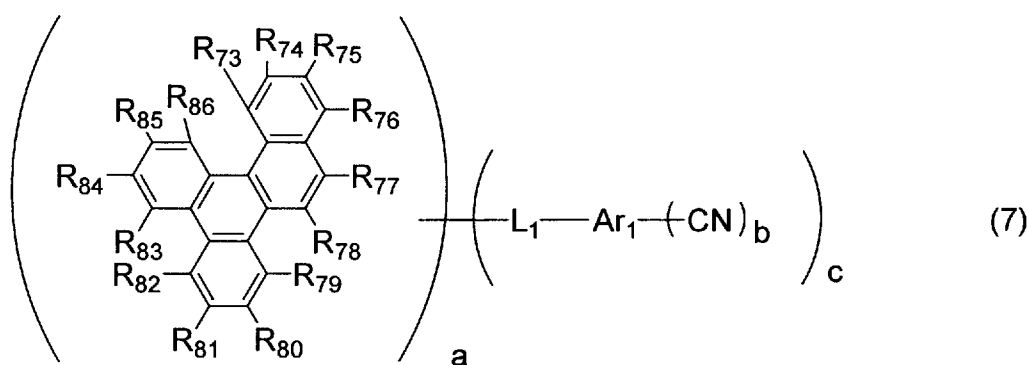
上記式(6)で表される化合物において、好ましくは R_{65} , R_{71} のいずれか一方又は両方において L_1 と結合する。式(6)において、 a が2以上の場

合、括弧内のクリセン骨格は同一でも異なってもよく、 c が2以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール ($Ar_1-(CN)_b$) は同一でも異なってもよい。

[0040] 上記式(6)で表されるクリセン骨格を有する化合物は、 R_{71} と R_{72} が互いに結合してベンゼン環を形成した構造を有する、下記式(7)で示される化合物であることが好ましい。

[0041] ベンゾクリセン骨格を有する化合物

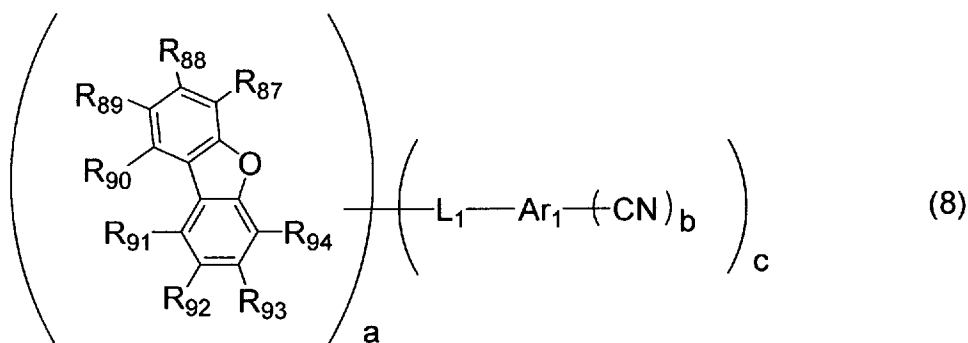
[化21]



上記式(7)で表される化合物において、好ましくは R_{77} において L_1 と結合する。式(7)において、 a が2以上の場合、括弧内のベンゾクリセン骨格は同一でも異なってもよく、 c が2以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール ($Ar_1-(CN)_b$) は同一でも異なってもよい。

[0042] ジベンゾフラン骨格を有する化合物

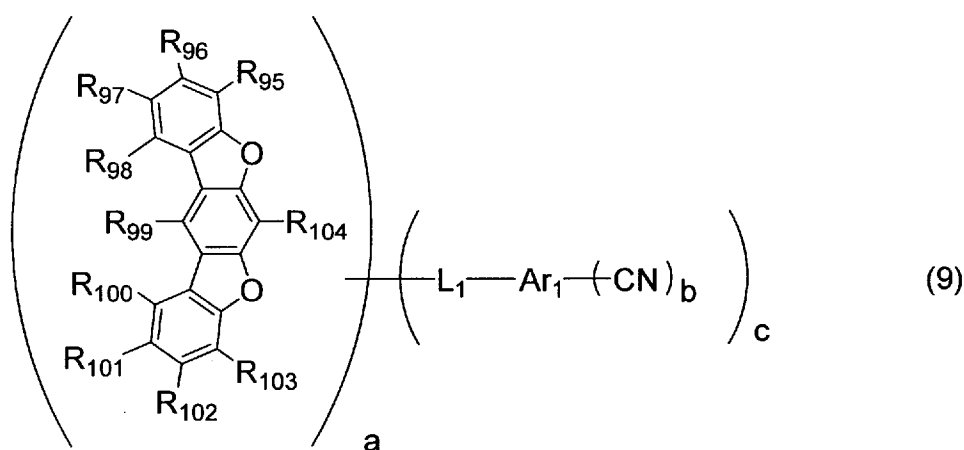
[化22]



上記式（８）で表される化合物において、好ましくは R_{87} 、 R_{89} 、 R_{92} 、 R_{94} のいずれか１～２箇所において L_1 と結合する。式（８）において、 a が２以上の場合、括弧内のジベンゾフラン骨格は同一でも異なってもよく、 c が２以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール（ $Ar_1-(CN)_b$ ）は同一でも異なってもよい。

[0043] 下記式（９）で示される含酸素縮合芳香族環化合物

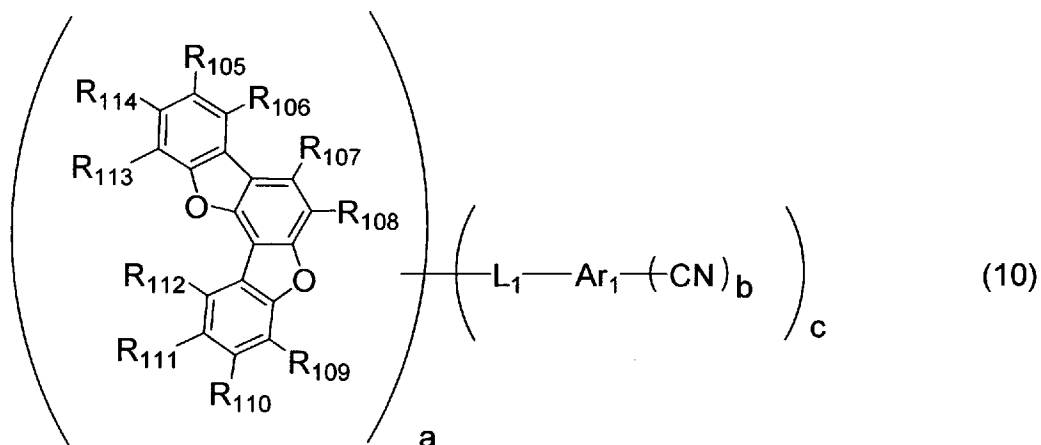
[化23]



上記式（９）で表される化合物において、好ましくは R_{97} 、 R_{101} 、 R_{104} のうち１～３箇所において L_1 と結合し、さらに好ましくは、 R_{104} において L_1 と結合する。式（９）において、 a が２以上の場合、括弧内のラダータイプのジベンゾフラン骨格は同一でも異なってもよく、 c が２以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール（ $Ar_1-(CN)_b$ ）は同一でも異なってもよい。

[0044] 下記式（１０）で示される含酸素縮合芳香族環化合物

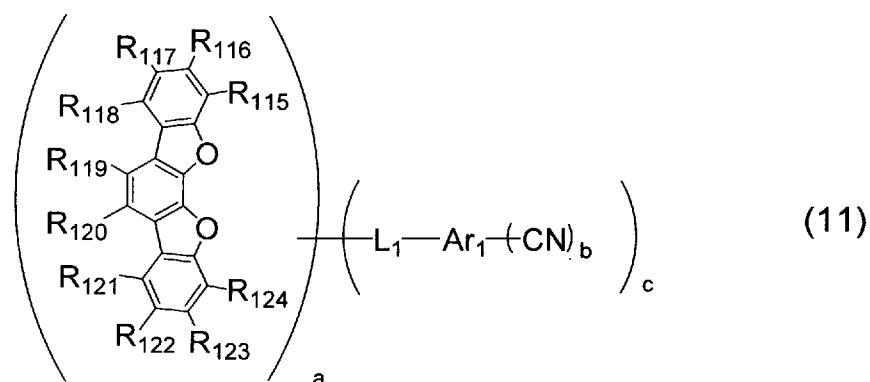
[化24]



上記式（１０）で表される化合物において、好ましくは R_{108} において L_1 と結合する。式（１０）において、 a が２以上の場合、括弧内のラダータイプのジベンゾフラン骨格は同一でも異なってもよく、 c が２以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール（ $Ar_1 - (CN)_b$ ）は同一でも異なってもよい。

[0045] 下記式（１１）で示される含酸素縮合芳香族環化合物

[化25]

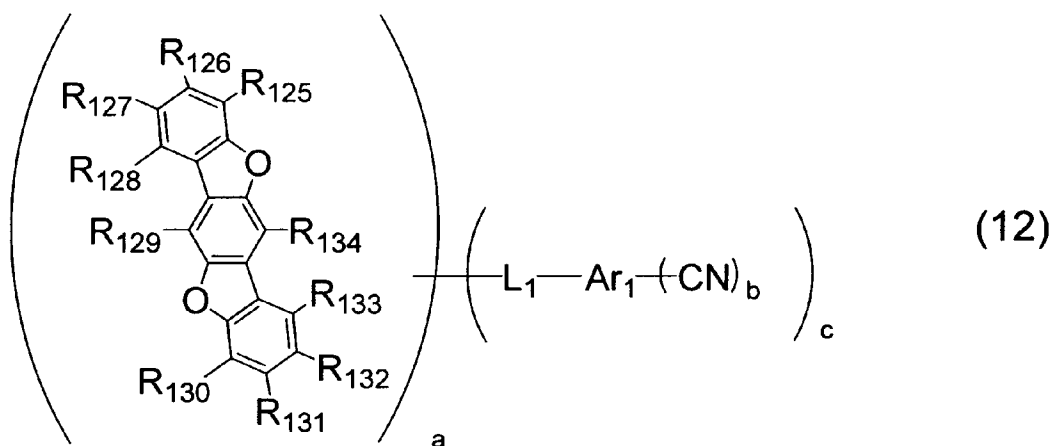


上記式（１１）で表される化合物において、好ましくは R_{115} 、 R_{117} 、 R_{122} 、 R_{124} のうち１～２箇所において L_1 と結合し、さらに好ましくは、 R_{117} 、 R_{122} のいずれか一方又は両方において L_1 と結合する。式（１１）において、 a が２以上の場合、括弧内のラダータイプのジベンゾフラン骨格は同一でも異なってもよく、 c が２以上の場合、括弧内の L_1 及びシアノアリール

(Ar₁-(CN)_b)は同一でも異なってもよい。

[0046] 下記式(12)で示される含酸素縮合芳香族環化合物

[化26]



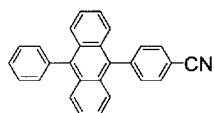
上記式(12)で表される化合物において、好ましくはR₁₂₅、R₁₂₇、R₁₃₂、R₁₃₄のうち1～2箇所においてL₁と結合し、さらに好ましくは、R₁₂₇、R₁₃₂のいずれか一方又は両方においてL₁と結合する。式(12)において、aが2以上の場合、括弧内のラダータイプのジベンゾフラン骨格は同一でも異なってもよく、cが2以上の場合、括弧内のL₁及びシアノアリアル(Ar₁-(CN)_b)は同一でも異なってもよい。

[0047] 上記式(1)で表される化合物は、公知化合物であり、公知の方法によって製造することができる。

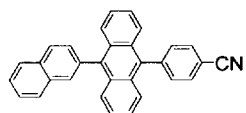
上記式(2)～(12)で表される化合物は、例えば、後述する合成例に準じて製造することができる。

[0048] 以下に、上記式(2)で表されるアントラセン骨格を有する化合物の具体例を示す。

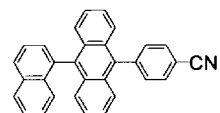
[化27]



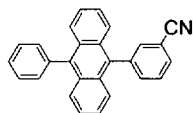
ET 2-01



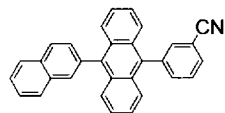
ET 2-02



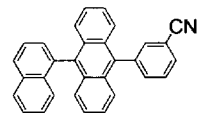
ET 2-03



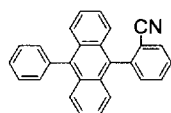
ET 2-04



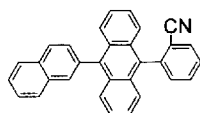
ET 2-05



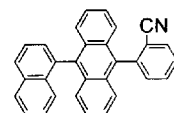
ET 2-06



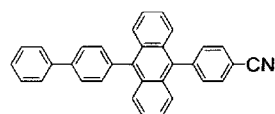
ET 2-07



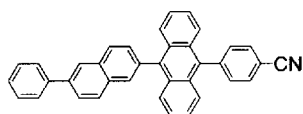
ET 2-08



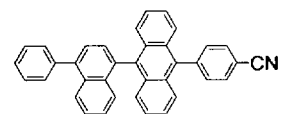
ET 2-09



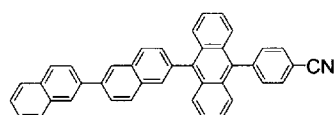
ET 2-10



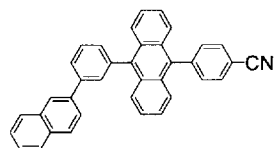
ET 2-11



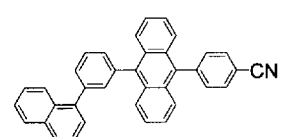
ET 2-12



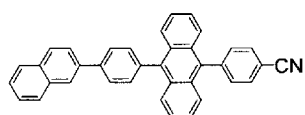
ET 2-13



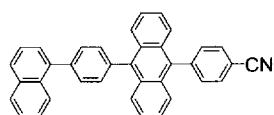
ET 2-14



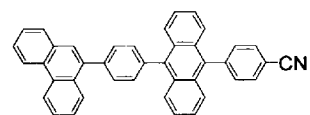
ET 2-15



ET 2-16

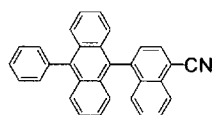


ET 2-17

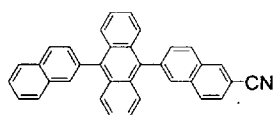


ET 2-18

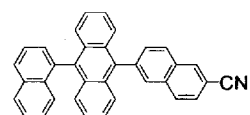
[化28]



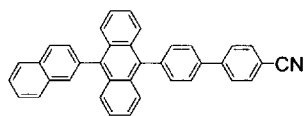
ET 2-19



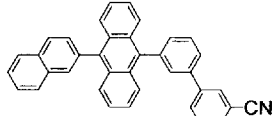
ET 2-20



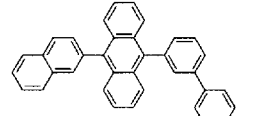
ET 2-21



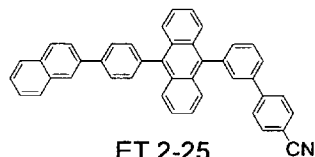
ET 2-22



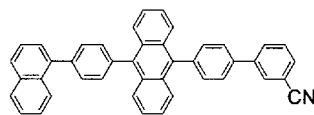
ET 2-23



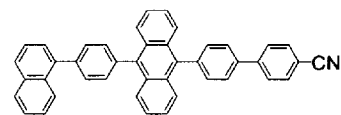
ET 2-24



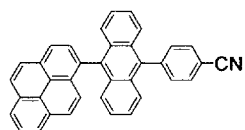
ET 2-25



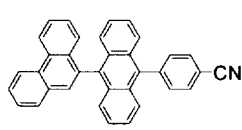
ET 2-26



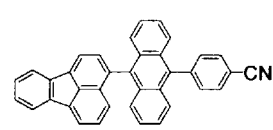
ET 2-27



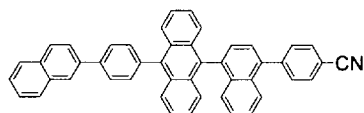
ET 2-28



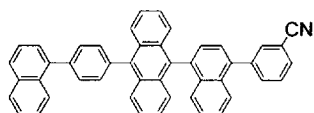
ET 2-29



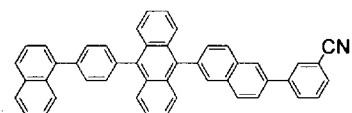
ET 2-30



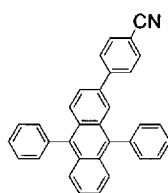
ET 2-31



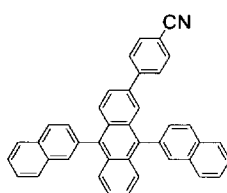
ET 2-32



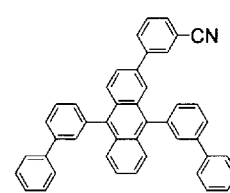
ET 2-33



ET 2-34

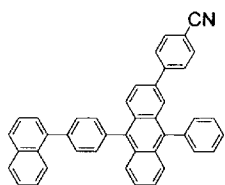


ET 2-35

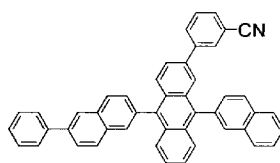


ET 2-36

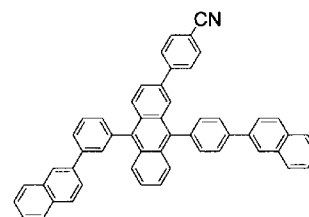
[化29]



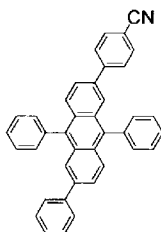
ET 2-37



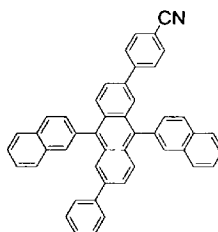
ET 2-38



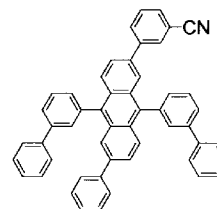
ET 2-39



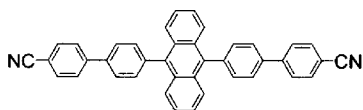
ET 2-40



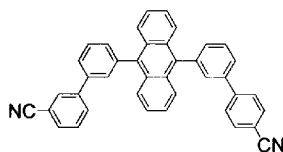
ET 2-41



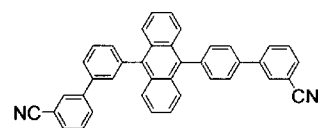
ET 2-42



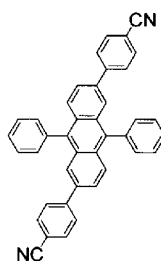
ET 2-43



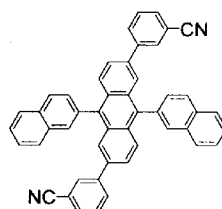
ET 2-44



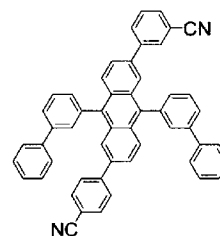
ET 2-45



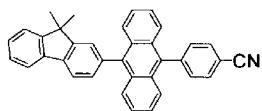
ET 2-46



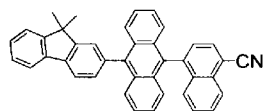
ET 2-47



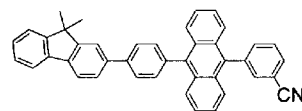
ET 2-48



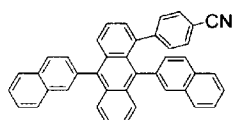
ET 2-49



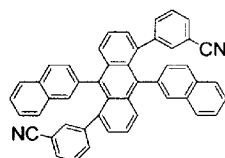
ET 2-50



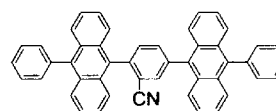
ET 2-51



ET 2-52



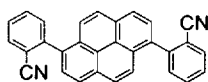
ET 2-53



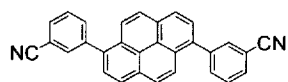
ET 2-54

[0049] 以下に、上記式（3）で表されるピレン骨格を有する化合物の具体例を示す。

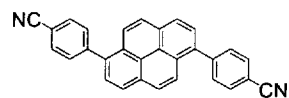
[化30]



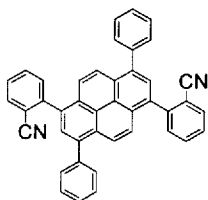
ET 3-01



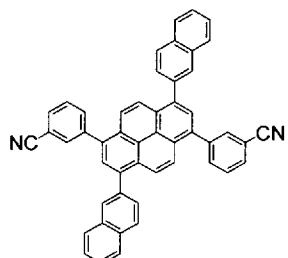
ET 3-02



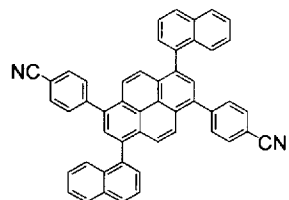
ET 3-03



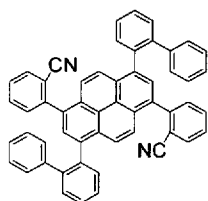
ET 3-04



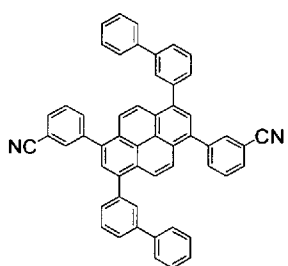
ET 3-05



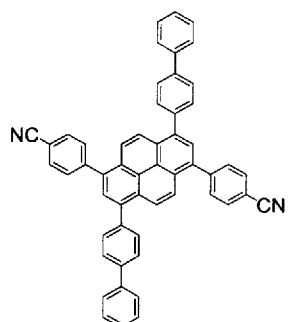
ET 3-06



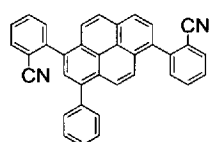
ET 3-07



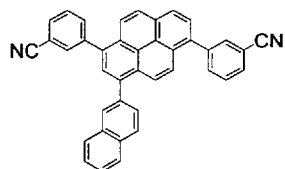
ET 3-08



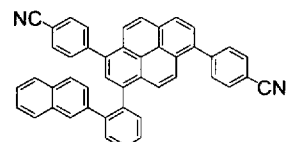
ET 3-09



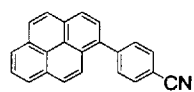
ET 3-10



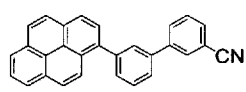
ET 3-11



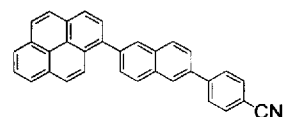
ET 3-12



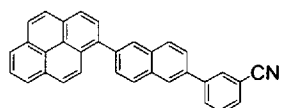
ET 3-13



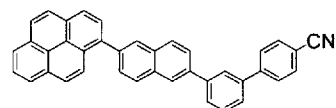
ET 3-14



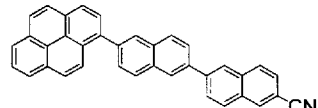
ET 3-15



ET 3-16

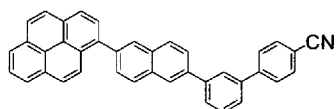


ET 3-17

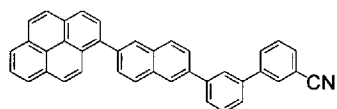


ET 3-18

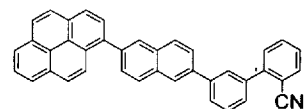
[化31]



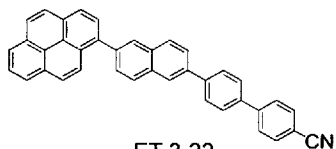
ET 3-19



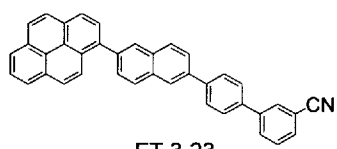
ET 3-20



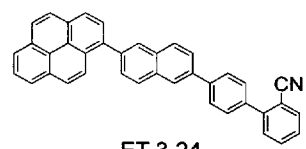
ET 3-21



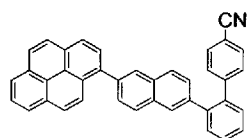
ET 3-22



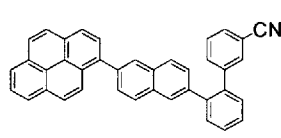
ET 3-23



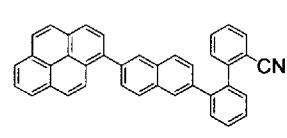
ET 3-24



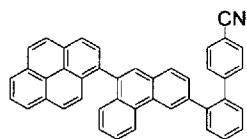
ET 3-25



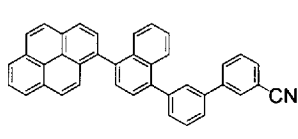
ET 3-26



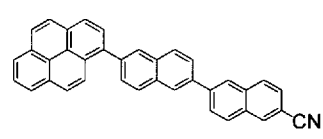
ET 3-27



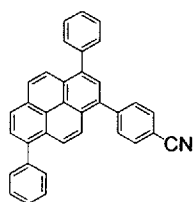
ET 3-28



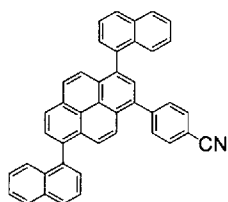
ET 3-29



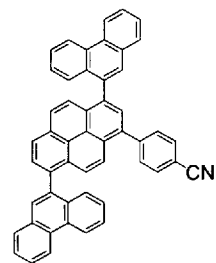
ET 3-30



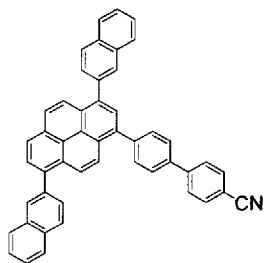
ET 3-31



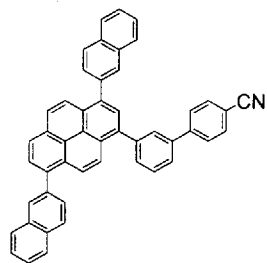
ET 3-32



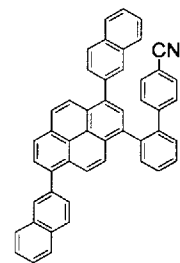
ET 3-33



ET 3-34

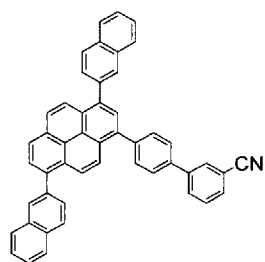


ET 3-35

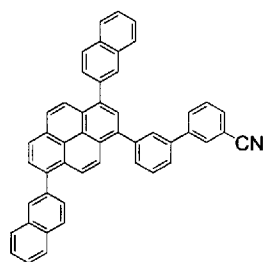


ET 3-36

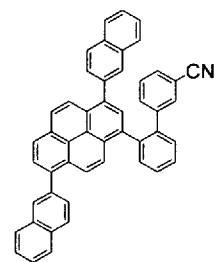
[化32]



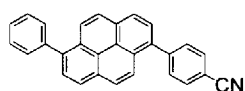
ET 3-37



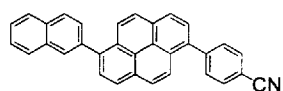
ET 3-38



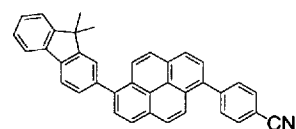
ET 3-39



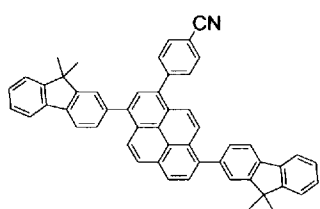
ET 3-40



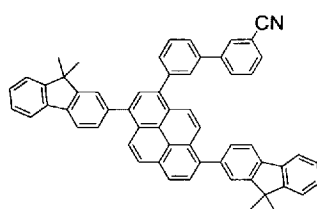
ET 3-41



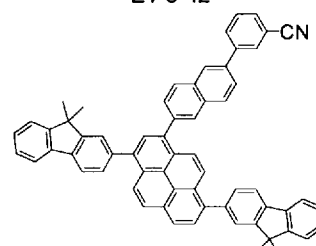
ET 3-42



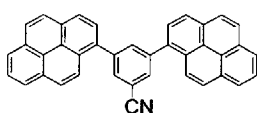
ET 3-43



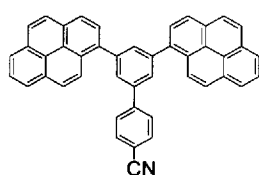
ET 3-44



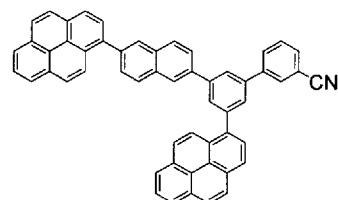
ET 3-45



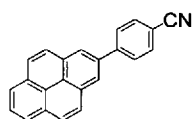
ET 3-46



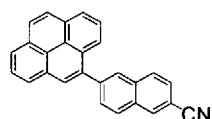
ET 3-47



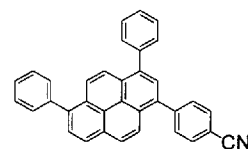
ET 3-48



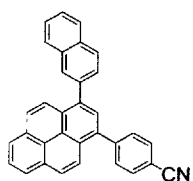
ET 3-49



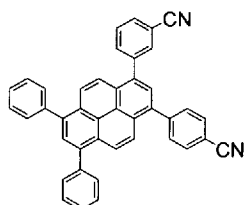
ET 3-50



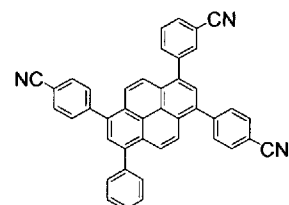
ET 3-51



ET 3-52



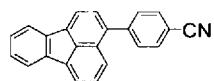
ET 3-53



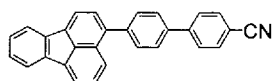
ET 3-54

[0050] 以下に、上記式（４）で表されるフルオランテン骨格を有する化合物の具体例を示す。

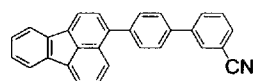
[化33]



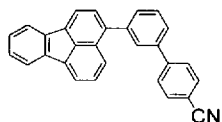
ET 4-01



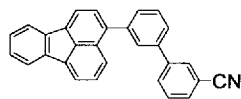
ET 4-02



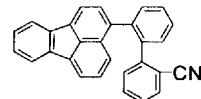
ET 4-03



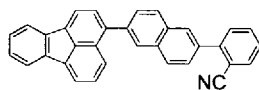
ET 4-04



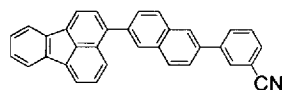
ET 4-05



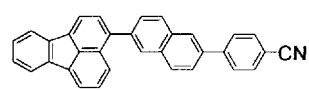
ET 4-06



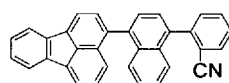
ET 4-07



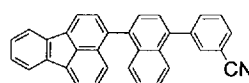
ET 4-08



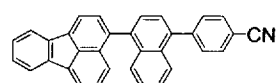
ET 4-09



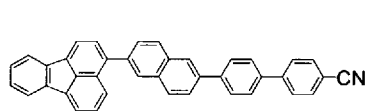
ET 4-10



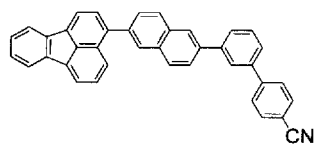
ET 4-11



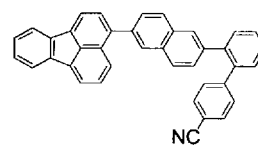
ET 4-12



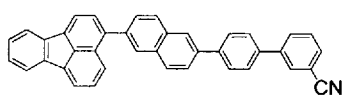
ET 4-13



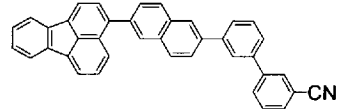
ET 4-14



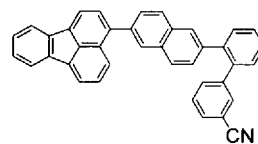
ET 4-15



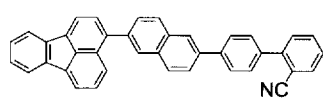
ET 4-16



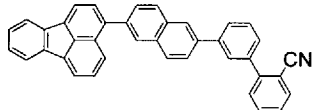
ET 4-17



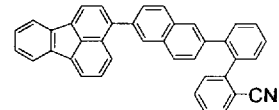
ET 4-18



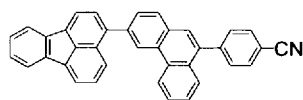
ET 4-19



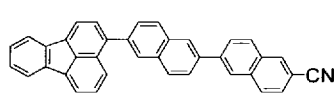
ET 4-20



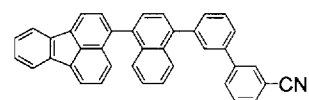
ET 4-21



ET 4-22

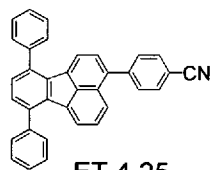


ET 4-23

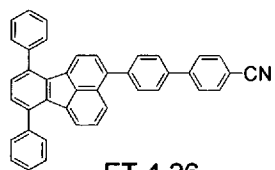


ET 4-24

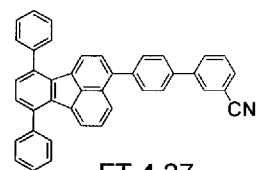
[化34]



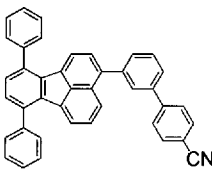
ET 4-25



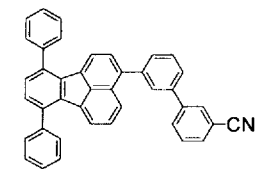
ET 4-26



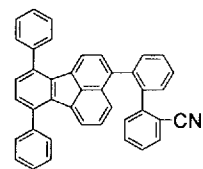
ET 4-27



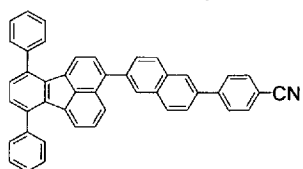
ET 4-28



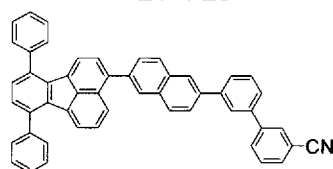
ET 4-29



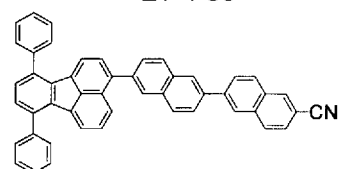
ET 4-30



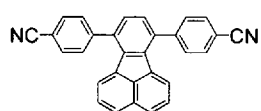
ET 4-31



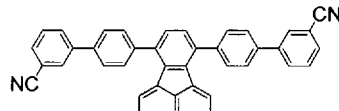
ET 4-32



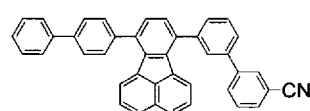
ET 4-33



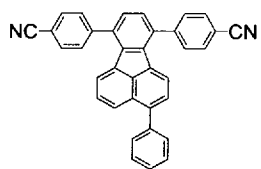
ET 4-34



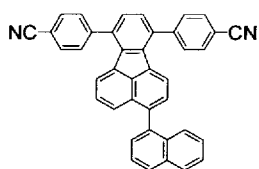
ET 4-35



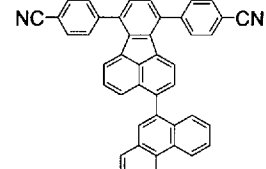
ET 4-36



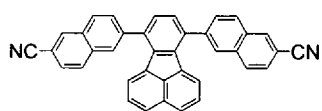
ET 4-37



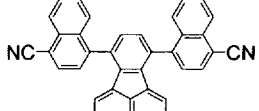
ET 4-38



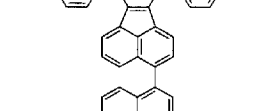
ET 4-39



ET 4-40

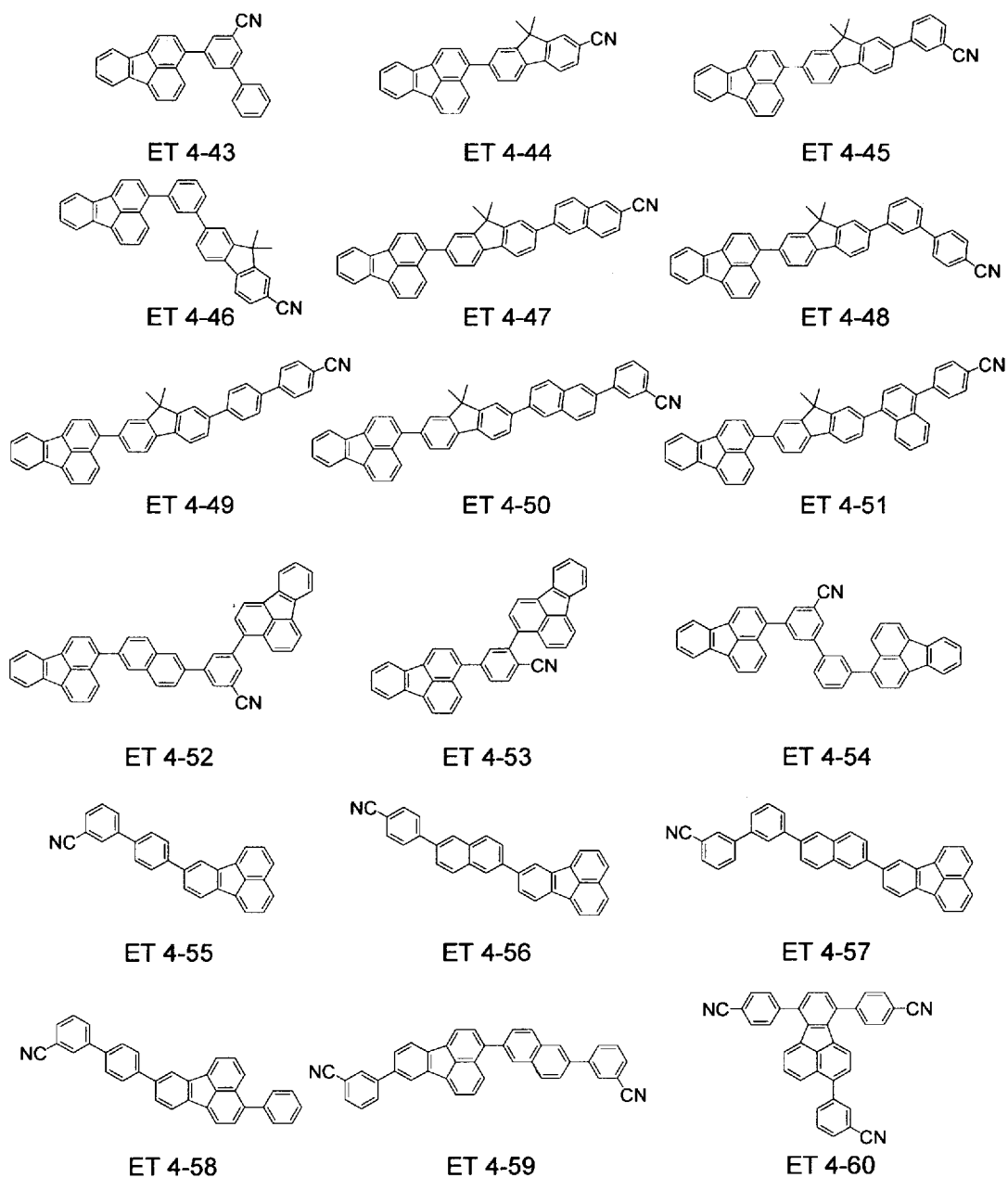


ET 4-41



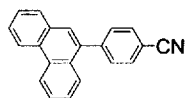
ET 4-42

[化35]

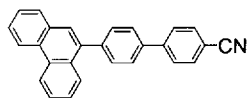


[0051] 以下に、上記式（5）で表されるフェナントレン骨格を有する化合物の具体例を示す。

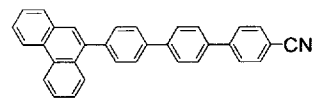
[化36]



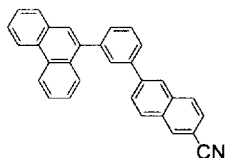
ET 5-01



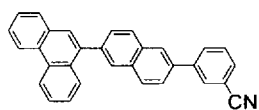
ET 5-02



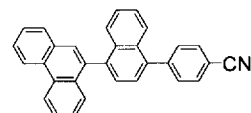
ET 5-03



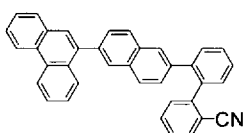
ET 5-04



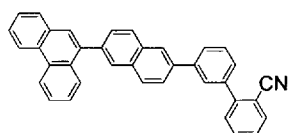
ET 5-05



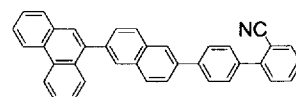
ET 5-06



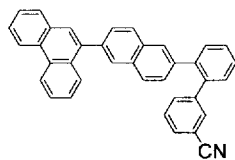
ET 5-07



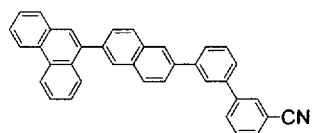
ET 5-08



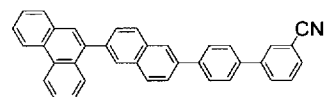
ET 5-09



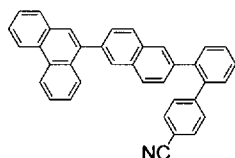
ET 5-10



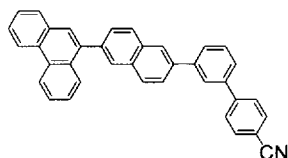
ET 5-11



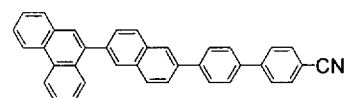
ET 5-12



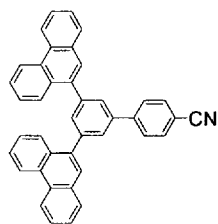
ET 5-13



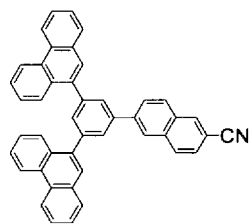
ET 5-14



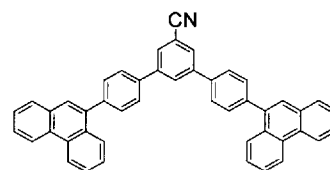
ET 5-15



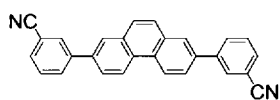
ET 5-16



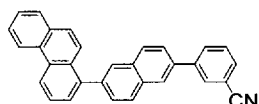
ET 5-17



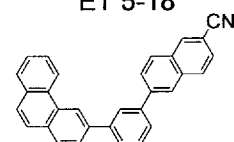
ET 5-18



ET 5-19

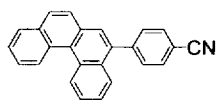


ET 5-20

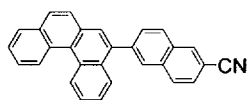


ET 5-21

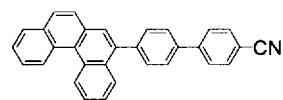
[化37]



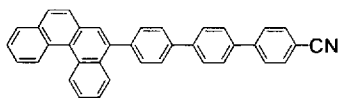
ET 5-22



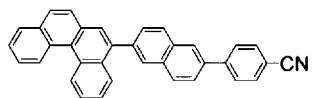
ET 5-23



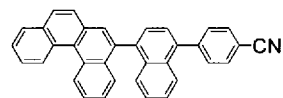
ET 5-24



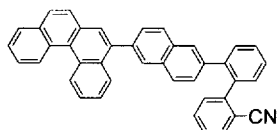
ET 5-25



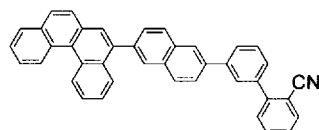
ET 5-26



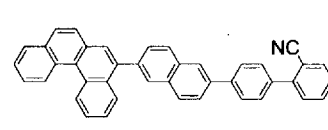
ET 5-27



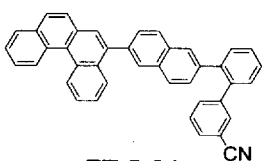
ET 5-28



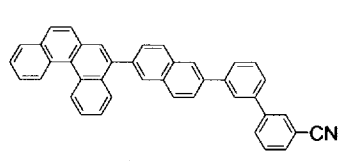
ET 5-29



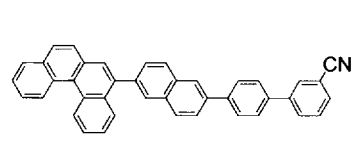
ET 5-30



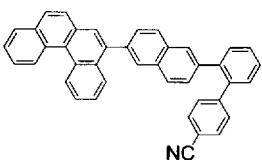
ET 5-31



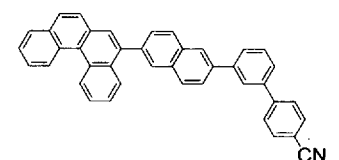
ET 5-32



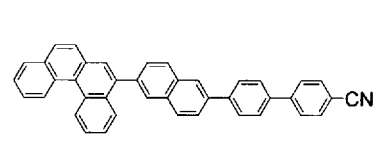
ET 5-33



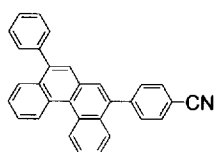
ET 5-34



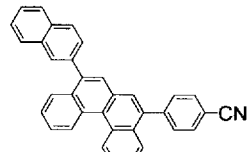
ET 5-35



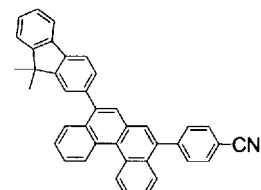
ET 5-36



ET 5-37

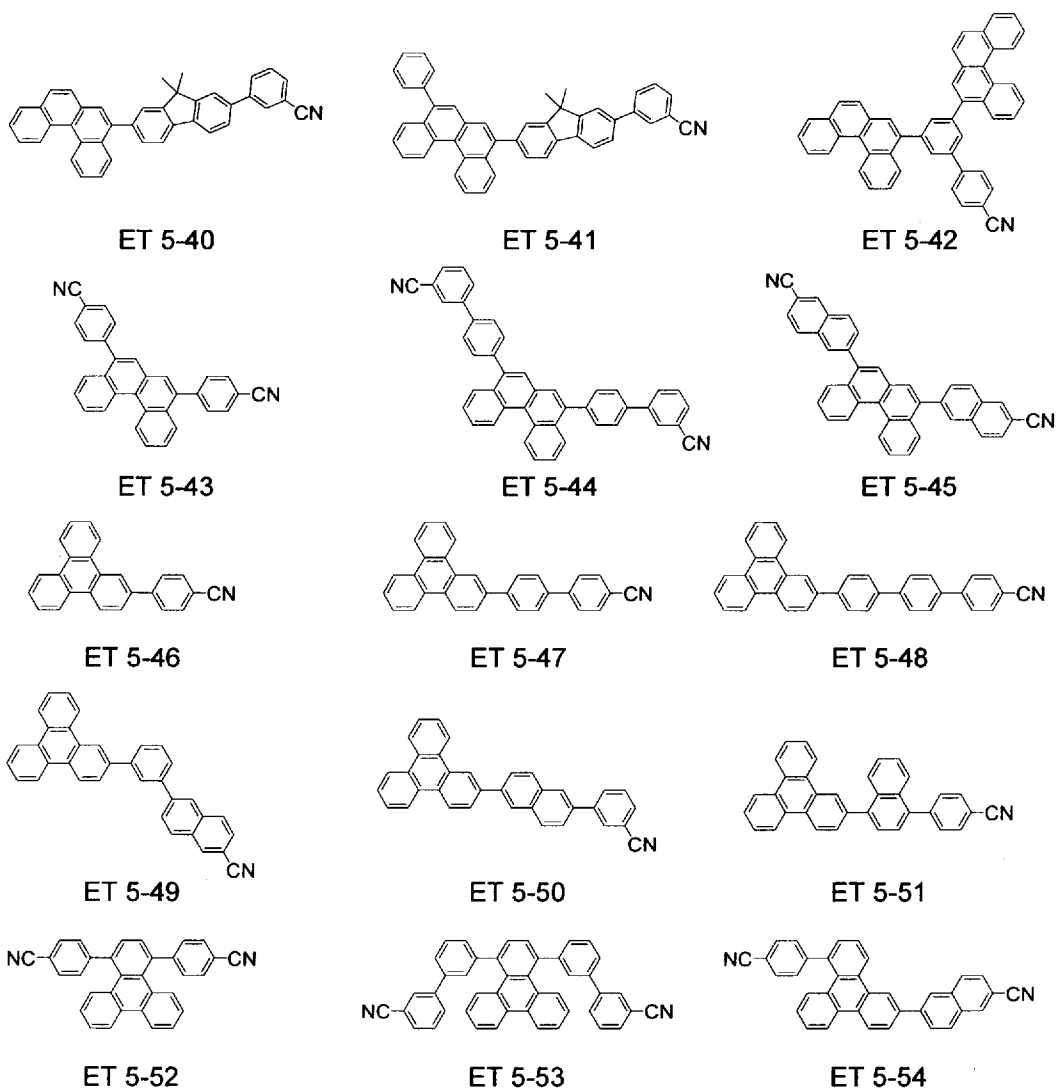


ET 5-38



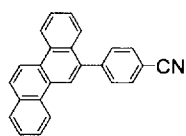
ET 5-39

[化38]

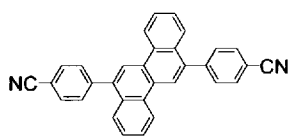


[0052] 以下に、上記式（6）で表されるクリセン骨格を有する化合物の具体例を示す。

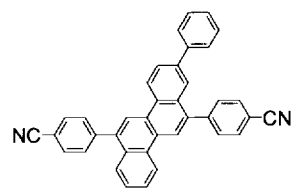
[化39]



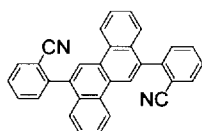
ET 6-01



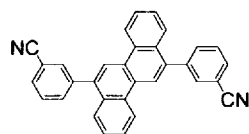
ET 6-02



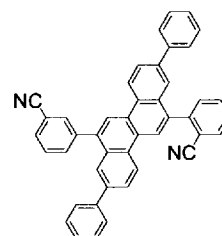
ET 6-03



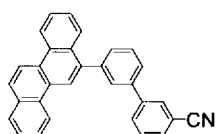
ET 6-04



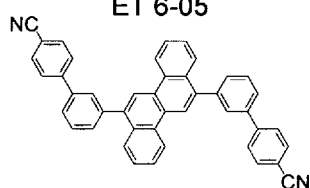
ET 6-05



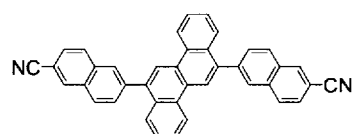
ET 6-06



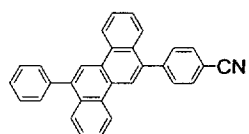
ET 6-07



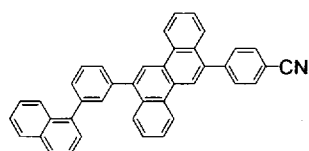
ET 6-08



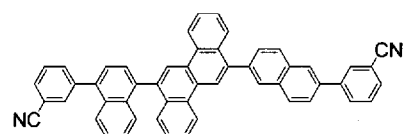
ET 6-09



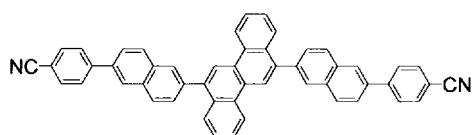
ET 6-10



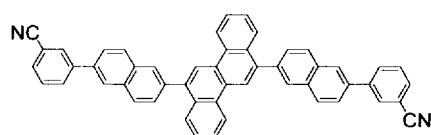
ET 6-11



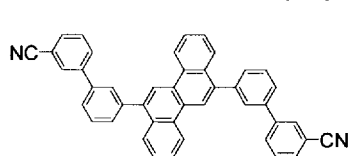
ET 6-12



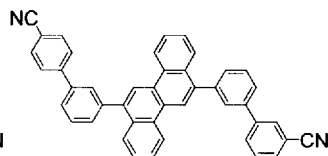
ET 6-13



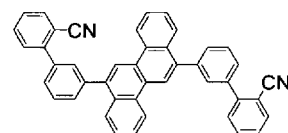
ET 6-14



ET 6-15

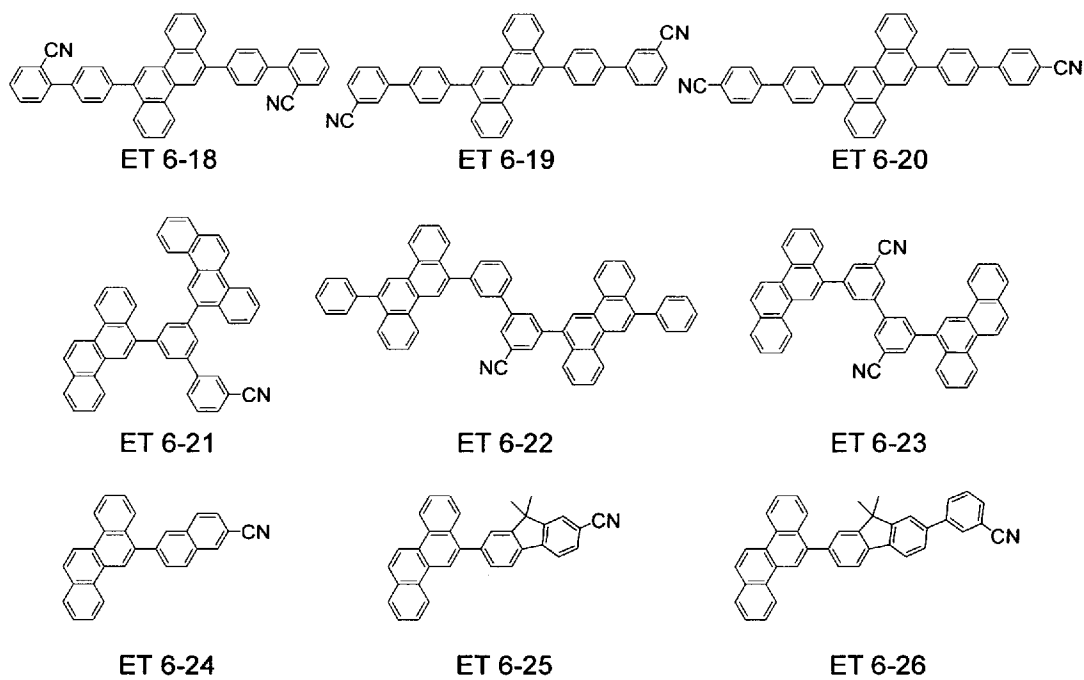


ET 6-16



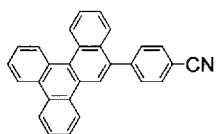
ET 6-17

[化40]

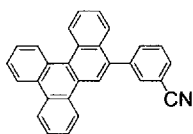


[0053] 以下に、上記式（7）で表されるベンゾクリセン骨格を有する化合物の具体例を示す。

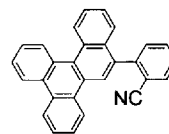
[化41]



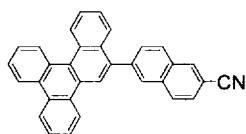
ET 7-01



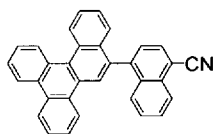
ET 7-02



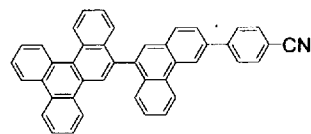
ET 7-03



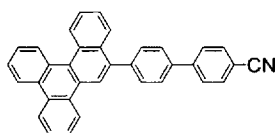
ET 7-04



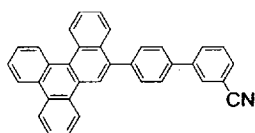
ET 7-05



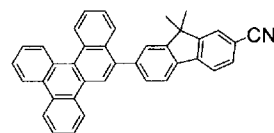
ET 7-06



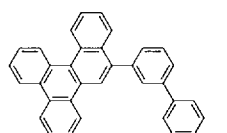
ET 7-07



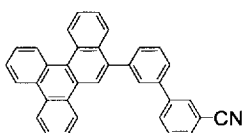
ET 7-08



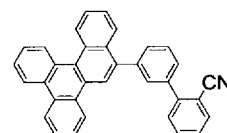
ET 7-09



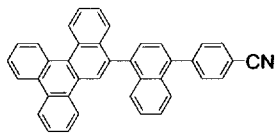
ET 7-10



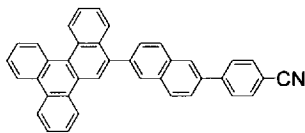
ET 7-11



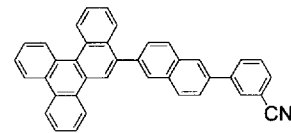
ET 7-12



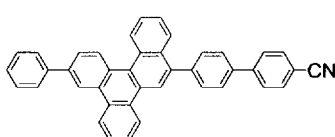
ET 7-13



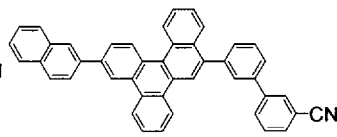
ET 7-14



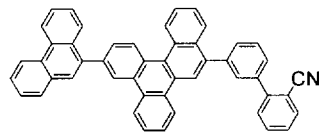
ET 7-15



ET 7-16

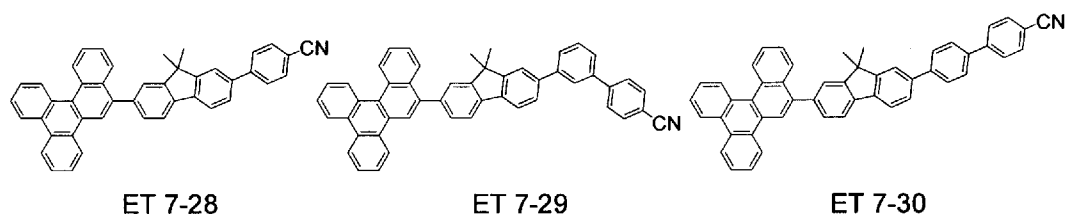
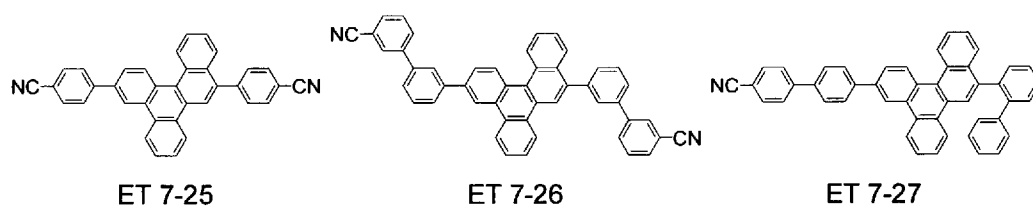
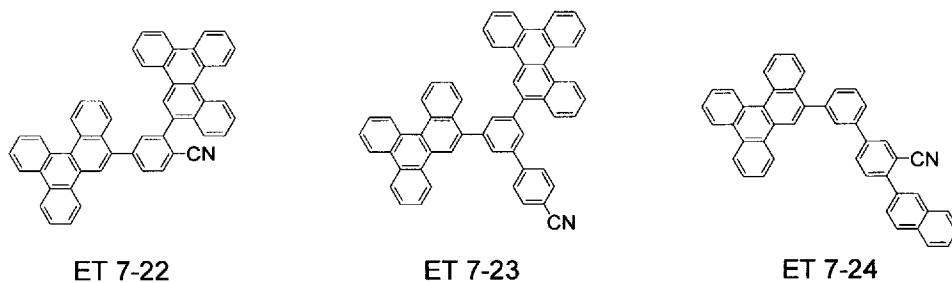
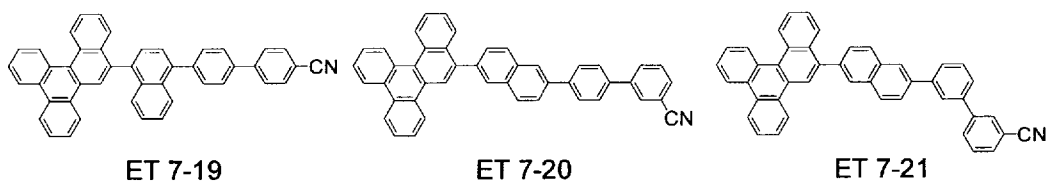


ET 7-17



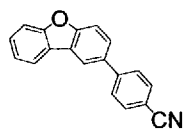
ET 7-18

[化42]

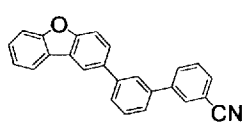


[0054] 以下に、上記式（8）で表されるベンゾフラン骨格を有する化合物の具体例を示す。

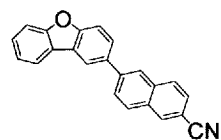
[化43]



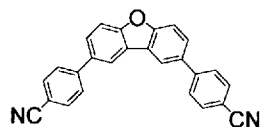
ET 8-01



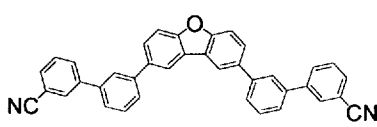
ET 8-02



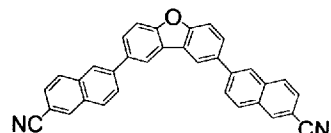
ET 8-03



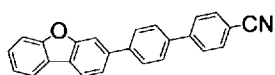
ET 8-04



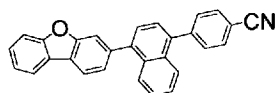
ET 8-05



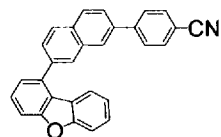
ET 8-06



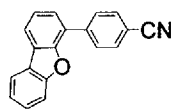
ET 8-07



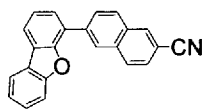
ET 8-08



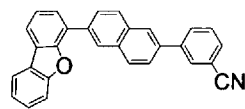
ET 8-09



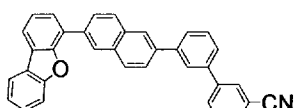
ET 8-10



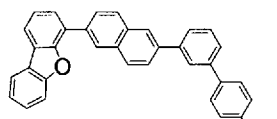
ET 8-11



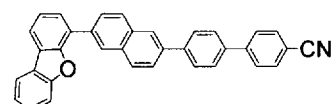
ET 8-12



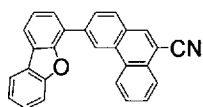
ET 8-13



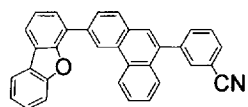
ET 8-14



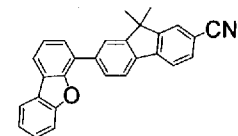
ET 8-15



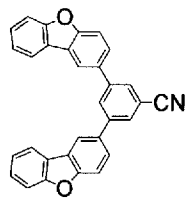
ET 8-16



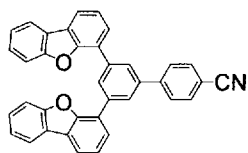
ET 8-17



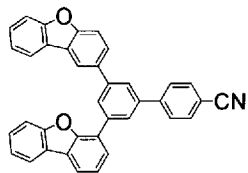
ET 8-18



ET 8-19

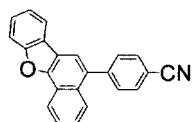


ET 8-20

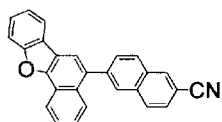


ET 8-21

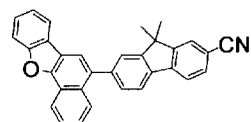
[化44]



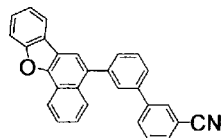
ET 8-22



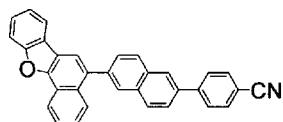
ET 8-23



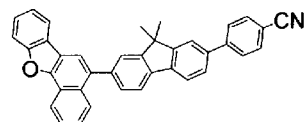
ET 8-24



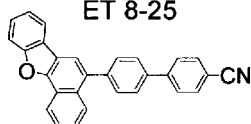
ET 8-25



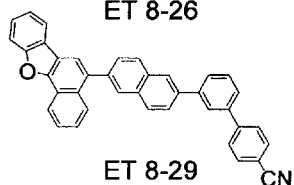
ET 8-26



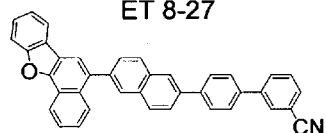
ET 8-27



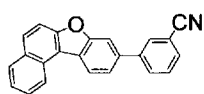
ET 8-28



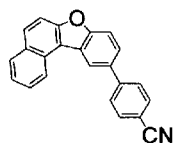
ET 8-29



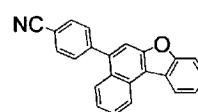
ET 8-30



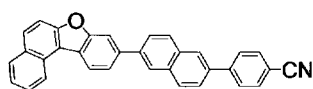
ET 8-31



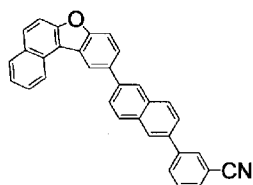
ET 8-32



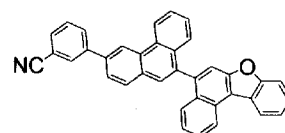
ET 8-33



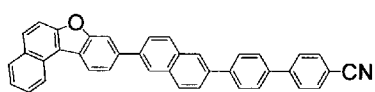
ET 8-34



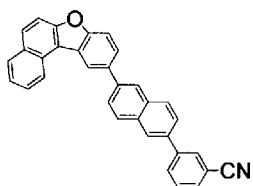
ET 8-35



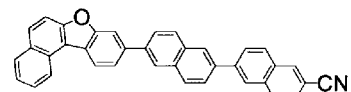
ET 8-36



ET 8-37



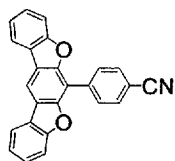
ET 8-38



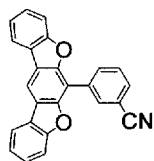
ET 8-39

[0055] 以下に、上記式（9）で表される含酸素縮合芳香族環化合物の具体例を示す。

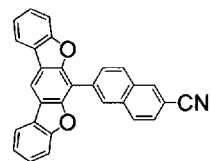
[化45]



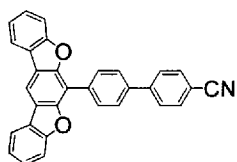
ET 9-01



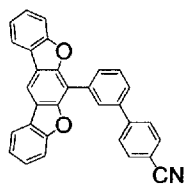
ET 9-02



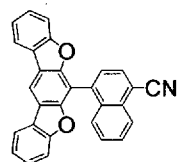
ET 9-03



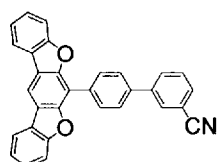
ET 9-04



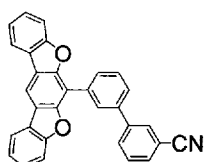
ET 9-05



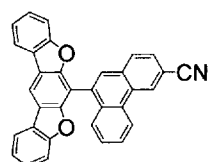
ET 9-06



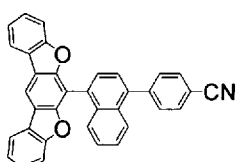
ET 9-07



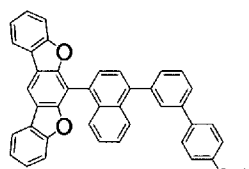
ET 9-08



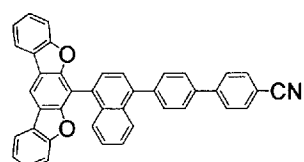
ET 9-09



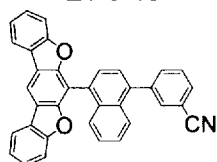
ET 9-10



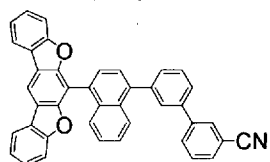
ET 9-11



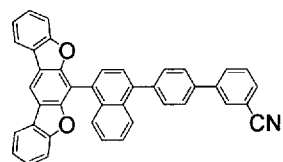
ET 9-12



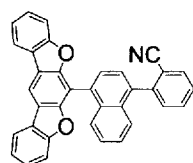
ET 9-13



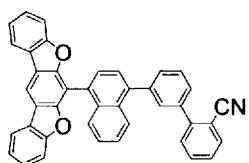
ET 9-14



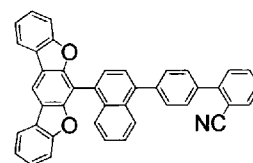
ET 9-15



ET 9-16

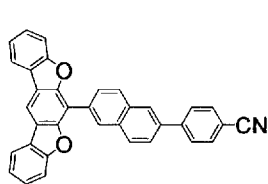


ET 9-17

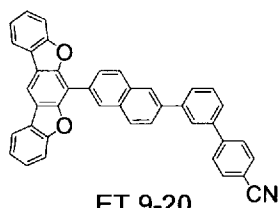


ET 9-18

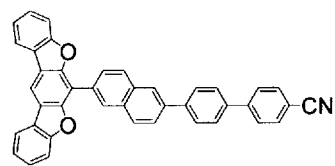
[化46]



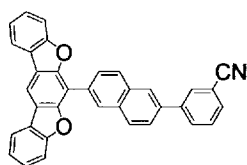
ET 9-19



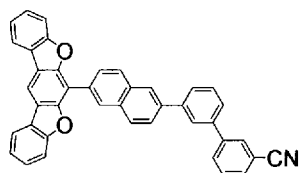
ET 9-20



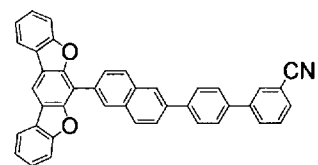
ET 9-21



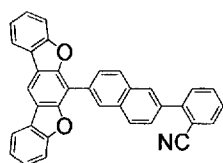
ET 9-22



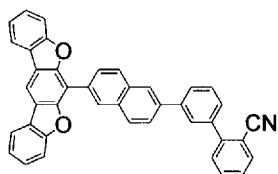
ET 9-23



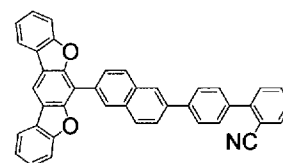
ET 9-24



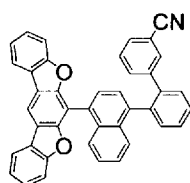
ET 9-25



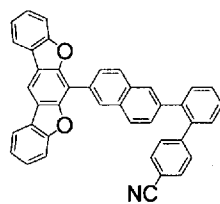
ET 9-26



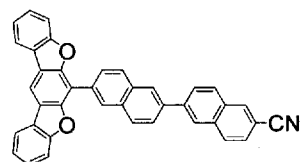
ET 9-27



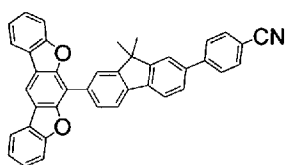
ET 9-28



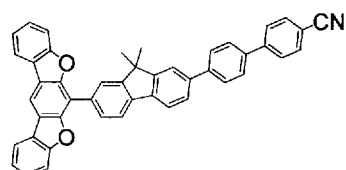
ET 9-29



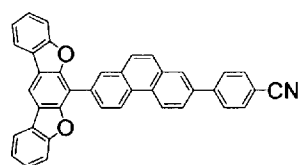
ET 9-30



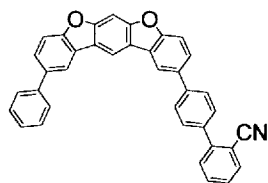
ET 9-31



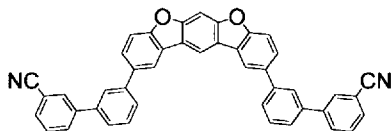
ET 9-32



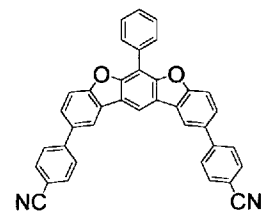
ET 9-33



ET 9-34

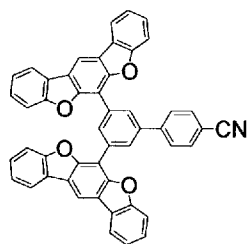


ET 9-35

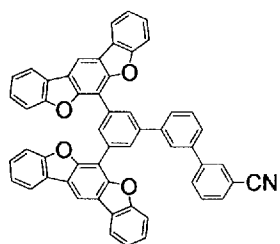


ET 9-36

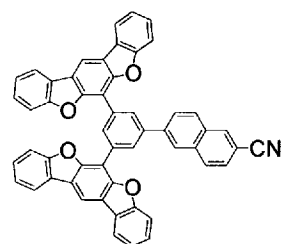
[化47]



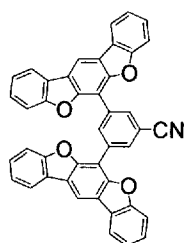
ET 9-37



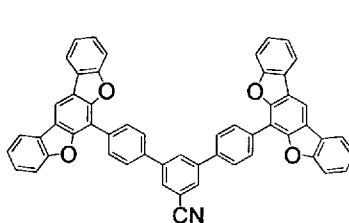
ET 9-38



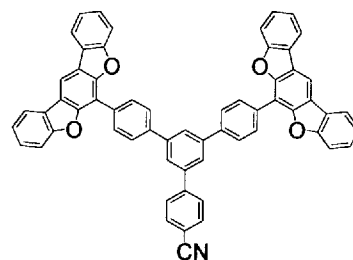
ET 9-39



ET 9-40



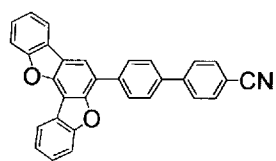
ET 9-41



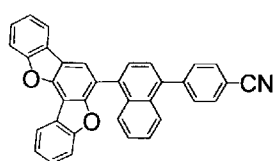
ET 9-42

[0056] 以下に、上記式(10)～(12)で表される含酸素縮合芳香族環化合物の具体例を示す。

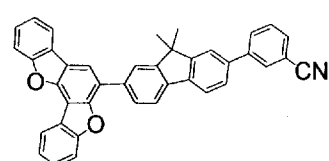
[化48]



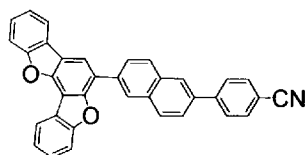
ET 10-01



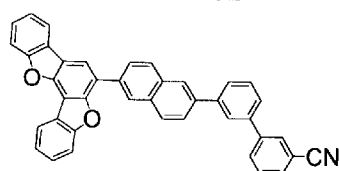
ET 10-02



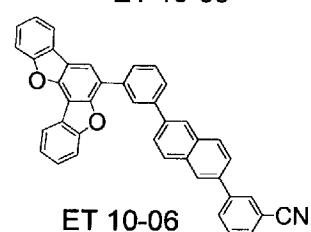
ET 10-03



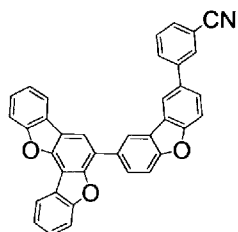
ET 10-04



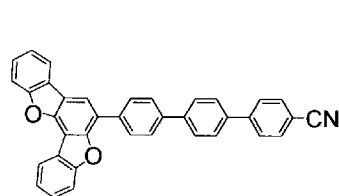
ET 10-05



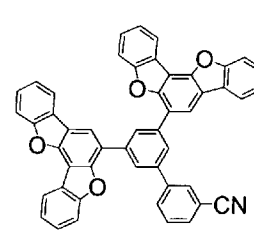
ET 10-06



ET 10-07

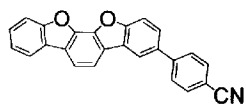


ET 10-08

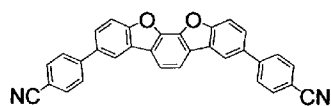


ET 10-09

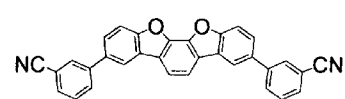
[化49]



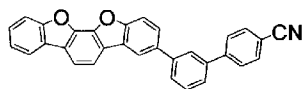
ET 11-01



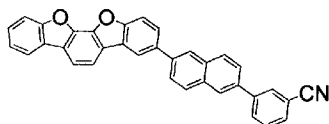
ET 11-02



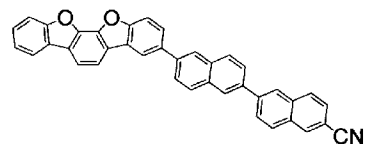
ET 11-03



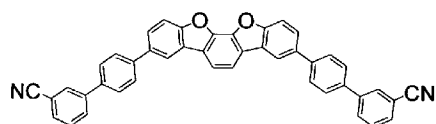
ET 11-04



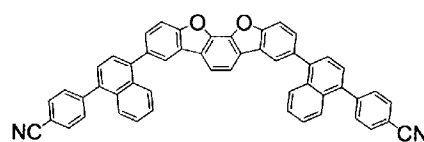
ET 11-05



ET 11-06

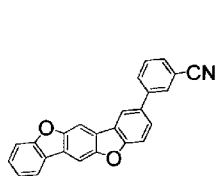


ET 11-07

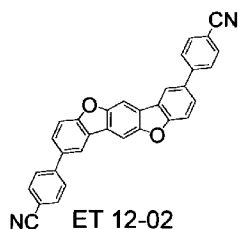


ET 11-08

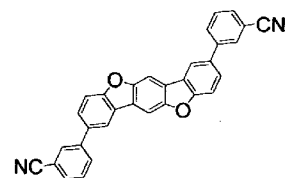
[化50]



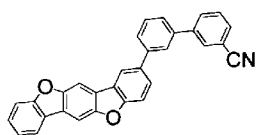
ET 12-01



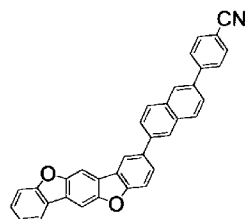
ET 12-02



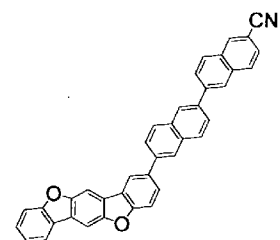
ET 12-03



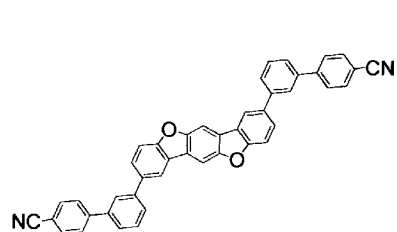
ET 12-04



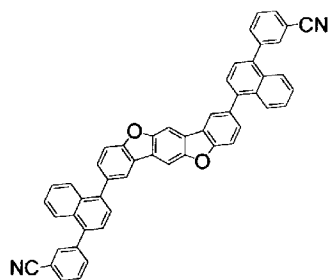
ET 12-05



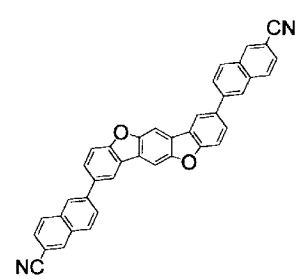
ET 12-06



ET 12-07

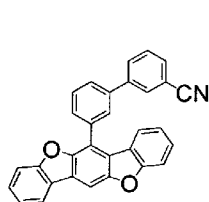


ET 12-08

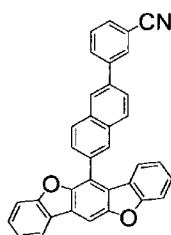


ET 12-09

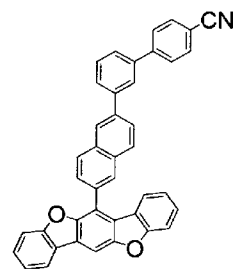
[化51]



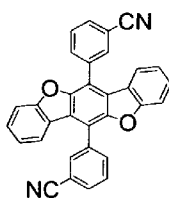
ET 12-10



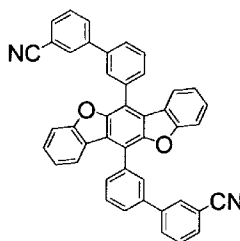
ET 12-11



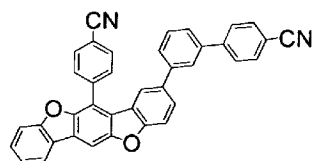
ET 12-12



ET 12-13



ET 12-14



ET 12-15

[0057] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、上記式（E T）で表される化合物を電子輸送材料として使用しているが、上記式（E T）で表される化合物は、広く有機エレクトロルミネッセンス素子における電子輸送材料を含む各種の材料としても使用できる。

[0058] 本発明で用いるシアノ基と芳香族環基を有する化合物を含有する障壁層、電子注入層又は電子輸送層（いずれも電子輸送帯域）は、好ましくはさらに還元性ドーパントを含有する。

還元性ドーパントとしては、ドナー性金属、ドナー性金属化合物及びドナー性金属錯体が挙げられ、これら還元性ドーパントは1種単独で使用してもよいし、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

ここで、還元性ドーパントとは、電子を供与する材料（電子供与性材料という）である。この電子供与性材料は、当該電子供与性材料と共に障壁層、電子注入層又は電子輸送層に含まれる他の有機材料、もしくは障壁層、電子注入層又は電子輸送層に隣接する層を構成する有機材料と相互作用し、ラジカルアニオンを生じさせる材料、又は電子供与性ラジカルを有する材料である。

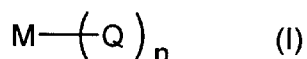
[0059] ドナー性金属とは、仕事関数3.8 e V以下の金属をいい、好ましくはア

ルカリ金属、アルカリ土類金属及び希土類金属であり、より好ましくはCs, Li, Na, Sr, K, Mg, Ca, Ba, Yb, Eu及びCeである。

ドナー性金属化合物とは、上記のドナー性金属を含む化合物であり、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属又は希土類金属を含む化合物であり、より好ましくはこれらの金属のハロゲン化物、酸化物、炭酸塩、ホウ酸塩である。例えば、 MO_x (Mはドナー性金属、 x は0.5～1.5)、 MF_x (x は1～3)、 $M(CO_3)_x$ (x は0.5～1.5)で表される化合物である。

[0060] ドナー性金属錯体とは、上記のドナー性金属の錯体であり、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属又は希土類金属の有機金属錯体である。好ましくは下記式(I)で表される有機金属錯体である。

[化52]



(式中、Mはドナー性金属であり、Qは配位子であり、好ましくはカルボン酸誘導体、ジケトン誘導体又はキノリン誘導体であり、 n は1～4の整数である。)

[0061] ドナー性金属錯体の具体例としては、特開2005-72012号公報に記載のタングステン水車等が挙げられる。さらに、特開平11-345687号公報に記載された中心金属がアルカリ金属、アルカリ土類金属であるフタロシアニン化合物等もドナー性金属錯体として使用できる。

[0062] 上記還元性ドーパントは、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体及び希土類金属の有機錯体からなる群から選択される1種又は2種以上であり、より好ましくはアルカリ金属の8-キノリノール錯体である。

[0063] 上記電子輸送帯域と陰極の間には、低仕事関数金属含有層を有してもよい。低仕事関数金属含有層とは、低仕事関数金属や、低仕事関数金属化合物を含有する層である。低仕事関数金属や低仕事関数金属化合物のみで形成されても、電子輸送層として用いられる材料に、低仕事関数金属、低仕事関数金属化合物、又は低仕事関数金属錯体をドナーとして添加して形成してもよい。低仕事関数金属とは、仕事関数が 3.8 eV 以下の金属をいう。低仕事関数が 3.8 eV 以下の金属は、アルカリ金属、アルカリ土類金属等が挙げられる。アルカリ金属としては、 Li 、 Na 、 K 、 Cs 等が挙げられる。アルカリ土類金属としては、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba 等が挙げられる。その他としては、 Yb 、 Eu 及び Ce 等が挙げられる。また低仕事関数金属化合物としては、低仕事関数金属の酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩、ホウ酸塩が好ましい。ハロゲン化物としては、フッ化物、塩化物、臭化物が挙げられるが、フッ化物が好ましい。例えば LiF が好ましいものとして用いられる。また、低仕事関数金属錯体としては、低仕事関数金属の錯体であり、アルカリ金属、アルカリ土類金属又は希土類金属の有機金属錯体が好ましい。

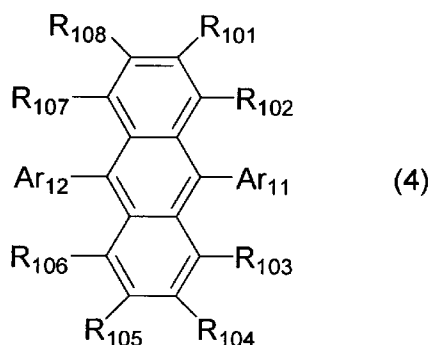
[0064] 尚、 TTF 現象を利用して効率を高めることは青色蛍光層において顕著であるが、緑色蛍光層、赤色蛍光層においても、3重項エネルギーを発光層内に閉じ込め発光効率を向上させることができる。

[0065] 本発明の有機EL素子の発光層は、好ましくは下記式(4)で表わされるアントラセン誘導体又は下記式(5)で表されるピレン誘導体を少なくとも1種をホストとして含有する。

[0066] (アントラセン誘導体)

式(4)で表されるアントラセン誘導体は、下記化合物である。

[化53]



(Ar₁₁及びAr₁₂は、それぞれ独立に、置換若しくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族単環基、置換若しくは無置換の環形成原子数8～50の芳香族縮合環基、又は芳香族単環基と芳香族縮合環基との組合せから構成される基である。

R₁₀₁～R₁₀₈は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族単環基、置換若しくは無置換の環形成原子数8～50の芳香族縮合環基、芳香族単環基と芳香族縮合環基との組合せから構成される基、置換若しくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換若しくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換若しくは無置換の炭素数7～50のアラルキル基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のシリル基、ハロゲン原子、シアノ基から選ばれる基である。)

[0067] 式(4)における、芳香族単環基とは、縮合構造を持たない環構造のみで構成される基である。

環形成原子数5～50の芳香族単環基(好ましくは環形成原子数5～30、より好ましくは環形成原子数5～20)として具体的には、上記「芳香族環基」と同様のアリール基と、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、フリル基、チエニル基等の複素環基が好ましい。

中でも、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基が好ましい。

[0068] 式(4)における、芳香族縮合環基とは、2環以上の環構造が縮環した基

である。

前記環形成原子数 8 ～ 50 の芳香族縮合環基（好ましくは環形成原子数 8 ～ 30、より好ましくは環形成原子数 8 ～ 20）として具体的には、上記「芳香族環基」と同様の縮合アリール基や、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、キノリル基、フェナントロリニル基等の縮合複素環基が好ましい。

中でも、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、9, 9-ジメチルフルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾアントリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、カルバゾリル基が好ましい。

[0069] 炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基及び置換若しくは無置換のシリル基の具体例については、式（1）と同様である。

炭素数 1 ～ 50 のアルコキシ基は $-OY$ で表される基であり、 Y の例としては、式（1）のアルキル基と同様の例が挙げられる。

環形成炭素数 6 ～ 50 のアリールオキシ基は $-OAr$ で表される基であり、 Ar の例としては、式（1）のアリール基と同様である。

炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基としては、アラルキル基は、 $-Y-Z$ と表され、 Y の例として上記のアルキルの例に対応するアルキレンの例が挙げられ、 Z の例として上記のアリールの例が挙げられる。アラルキル基は、炭素数 7 ～ 50 アラルキル基（アリール部分は炭素数 6 ～ 49（好ましくは 6 ～ 30、より好ましくは 6 ～ 20、特に好ましくは 6 ～ 12）、アルキル部分は炭素数 1 ～ 44（好ましくは 1 ～ 30、より好ましくは 1 ～ 20、さらに好ましくは 1 ～ 10、特に好ましくは 1 ～ 6））であることが好ましく、例えばベンジル基、フェニルエチル基、2-フェニルプロパン-2-イル基である。

[0070] Ar_{11} 、 Ar_{12} 、 $R_{101} \sim R_{108}$ 、の「置換若しくは無置換」の好ましい置換基として、芳香族単環基、芳香族縮合環基、アルキル基、シクロアルキル

基、シリル基、アルコキシ基、シアノ基、ハロゲン原子（特にフッ素）が好ましく、特に好ましくは、芳香族単環基、芳香族縮合環基であり、好ましい具体的な置換基は上述の式（４）の各基及び上述の式（１）における各基と同様である。

[0071] 式（４）で表されるアントラセン誘導体は、下記アントラセン誘導体（Ａ）、（Ｂ）、及び（Ｃ）のいずれかであることが好ましく、適用する有機ＥＬ素子の構成や求める特性により選択される。

[0072] （アントラセン誘導体（Ａ））

当該アントラセン誘導体は、式（４）における A_{r11} 及び A_{r12} が、それぞれ独立に、置換若しくは無置換の環形成原子数８～５０の芳香族縮合環基となっている。当該アントラセン誘導体としては、 A_{r11} 及び A_{r12} が同一の置換若しくは無置換の芳香族縮合環基である場合、及び異なる置換若しくは無置換の芳香族縮合環基である場合に分けることができる。

[0073] 式（４）における A_{r11} 及び A_{r12} が異なる（置換位置の違いを含む）置換若しくは無置換の芳香族縮合環基であるアントラセン誘導体が特に好ましく、縮合環の好ましい具体例は上述した通りである。中でもナフチル基、フェナントリル基、ベンズアントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基が好ましい。

[0074] （アントラセン誘導体（Ｂ））

当該アントラセン誘導体は、式（４）における A_{r11} 及び A_{r12} の一方が置換若しくは無置換の環形成原子数５～５０の芳香族単環基であり、他方が置換若しくは無置換の環形成原子数８～５０の芳香族縮合環基となっている。

好ましい形態として、 A_{r12} がナフチル基、フェナントリル基、ベンズアントリル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基であり、 A_{r11} が芳香族単環基又は芳香族縮合環基が置換されたフェニル基である。

好ましい芳香族単環基、芳香族縮合環基の具体的な基は上述した通りであ

る。

別の好ましい形態として、 Ar_{12} が芳香族縮合環基であり、 Ar_{11} が無置換のフェニル基である。この場合、芳香族縮合環基として、フェナントリル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾアントリル基が特に好ましい。

[0075] (アントラセン誘導体 (C))

当該アントラセン誘導体は、式(4)における Ar_{11} 及び Ar_{12} が、それぞれ独立に、置換若しくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族単環基となっている。

好ましい形態として、 Ar_{11} 、 Ar_{12} ともに置換若しくは無置換のフェニル基である。

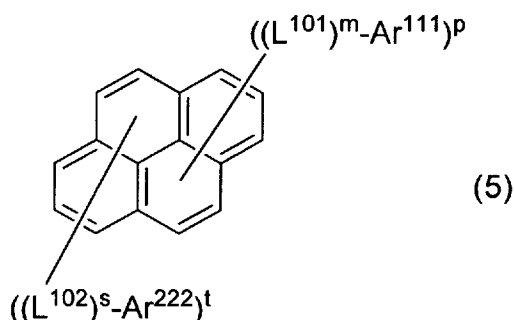
さらに好ましい形態として、 Ar_{11} が無置換のフェニル基であり、 Ar_{12} が芳香族単環基、芳香族縮合環基を置換基として持つフェニル基である場合と、 Ar_{11} 、 Ar_{12} がそれぞれ独立に芳香族単環基、芳香族縮合環基を置換基として持つフェニル基である場合がある。

前記置換基としての好ましい芳香族単環基、芳香族縮合環基の具体例は上述した通りである。さらに好ましくは、置換基としての芳香族単環基としてフェニル基、ビフェニル基、芳香族縮合環基として、ナフチル基、フェナントリル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾアントリル基である。

[0076] (ピレン誘導体)

式(5)で表されるピレン誘導体は、下記化合物である。

[化54]



(式中、 $A r^{111}$ 及び $A r^{222}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基である。

L^{101} 及び L^{102} は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の2価のアリール基又は複素環基を示す。

m は0～1の整数、 p は1～4の整数、 s は0～1の整数、 t は0～3の整数である。

また、 L^{101} 又は $A r^{111}$ はピレンの1～5位のいずれかに結合し、 L^{102} 又は $A r^{222}$ はピレンの6～10位のいずれかに結合する。)

[0077] 式(5)における L^{101} 及び L^{102} は、好ましくは置換もしくは無置換のフェニレン基、置換もしくは無置換のビフェニレン基、置換もしくは無置換のナフチレン基、置換もしくは無置換のターフェニレン基及び置換もしくは無置換のフルオレニレン基及びこれら置換基の組合せからなる2価のアリール基である。

また、この置換基としては、式(1)における「置換もしくは無置換の・・」における置換基と同様である。 L^{101} 及び L^{102} の置換基は、好ましくは、炭素数1～20のアルキル基である。

[0078] 一般式(5)における m は、好ましくは0～1の整数である。一般式(5)における n は、好ましくは1～2の整数である。一般式(5)における s は、好ましくは0～1の整数である。

一般式(5)における t は、好ましくは0～2の整数である。

$A r^{111}$ 及び $A r^{222}$ のアリール基は、式(1)における各基と同様である。

好ましくは、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～20のアリール基、より好ましくは、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～16のアリール基、アリール基の好ましい具体例としては、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、フルオレニル基、ビフェニル基、アントリル基、ピレニル基である。

[0079] 式(4)で表されるアントラセン誘導体、又は式(5)で表わされるピレ

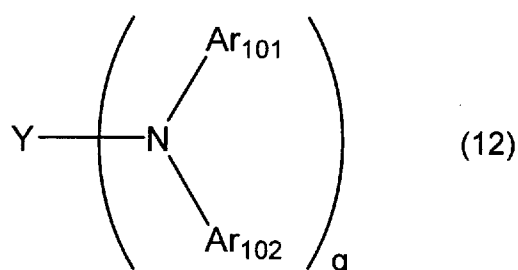
ン誘導体を含む発光層は、好ましくは式（１）で表わされる化合物を含む障壁層、電子注入層又は電子輸送層と接している。発光層と式（１）で表わされる化合物を含む障壁層、電子注入層又は電子輸送層が接しているとき、ＴＴＦ現象を利用して発光効率を高めることができると考えられる。

[0080] 本発明の有機ＥＬ素子においては、発光層が、発光性ドーパント（りん光性ドーパント及び／又は蛍光性ドーパント）を含むてもよい。

上記蛍光性ドーパントは一重項励起子から発光することのできる化合物である。蛍光性ドーパントとしては、アミン系化合物、芳香族化合物、トリス（８－キノリノラト）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等から、要求される発光色に合わせて選ばれる化合物であることが好ましく、スチリルアミン化合物、スチリルジアミン化合物、アリールアミン化合物、アリールジアミン化合物、芳香族化合物がより好ましく、縮合多環アミン誘導体、芳香族化合物がさらに好ましい。これらの蛍光性ドーパントは単独でもまた複数組み合わせ使用してもよい。

[0081] 上記縮合多環アミン誘導体としては、下記式（１２）で表されるものが好ましい。

[化55]



（式中、Ｙは環形成炭素数１０～５０の置換もしくは無置換の縮合アリール基を示す。

Ar_{101} 、 Ar_{102} は、それぞれ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の複素環基を示す。

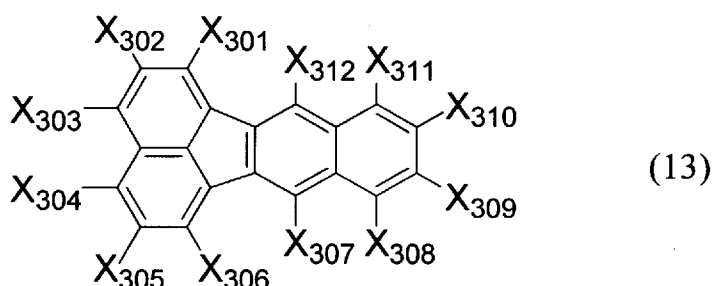
Yの具体例としては、前述する縮合アリール基が挙げられ、好ましくは置換もしくは無置換のアントリル基、置換もしくは無置換のピレニル基、置換もしくは無置換のクリセニル基である。

qは1～4の整数である。qは1～2の整数であることが好ましい。）

[0082] 式(12)において、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、複素環基の例として上記で例示したものが挙げられる。

[0083] 上記芳香族化合物としては、下記式(13)で表されるフルオランテン化合物が好ましい。

[化56]



(式中、 $X_{301} \sim X_{306}$ 及び $X_{308} \sim X_{311}$ 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6～30のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～10のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～8のシクロアルキル基、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原子数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基及びカルボキシル基から選ばれる。

X_{307} 及び X_{312} は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、及び置換もしくは

は無置換の環形成炭素数3～8のシクロアルキル基から選ばれる。

但し、 X_{303} と X_{304} は、互いに異なる置換基である。

また、 $X_{301} \sim X_{312}$ において、隣接する置換基同士は互いに結合して飽和もしくは不飽和の環状構造を形成してもよく、これら環状構造は置換されてもよい。）

[0084] 式(13)の X_{303} 又は X_{304} は、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基である。また、式(13)の「置換もしくは無置換」の好ましい置換基は、シアノ基又はハロゲン原子である。

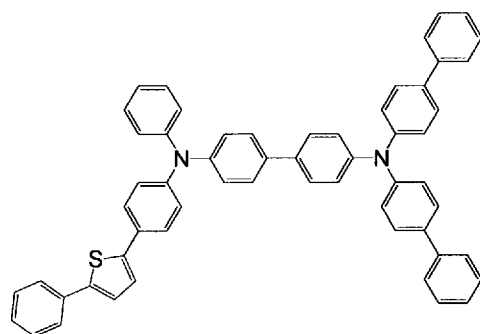
[0085] 式(13)において、アリール基、複素環基、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アラルキル基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、ハロゲン原子の例として上記で例示したものが挙げられる。

[0086] 本発明の有機EL素子の基板、陽極、陰極、正孔注入層、正孔輸送層等のその他の部材は、WO2008/023759A1、WO2008/023759A1、WO2009/107596A1、WO2009/081857A1、US2009/0243473A1、US2008/0014464A1、US2009/0021160A1等に記載の公知のものを適宜選択して用いることができる。

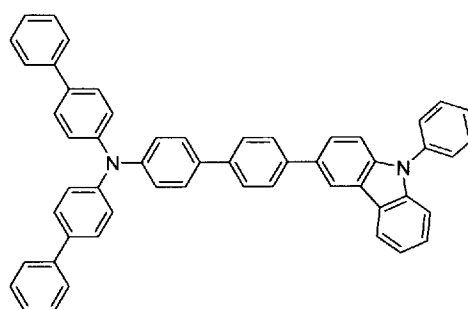
実施例

[0087] 実施例及び比較例で使用了化合物を以下に示す。

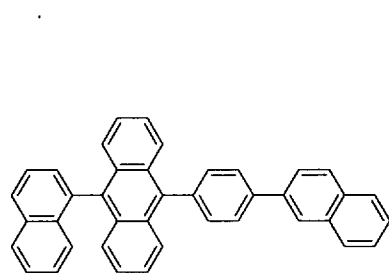
[化57]



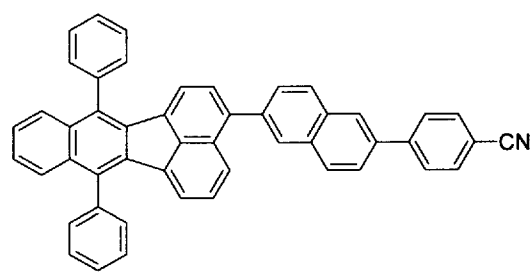
A-1



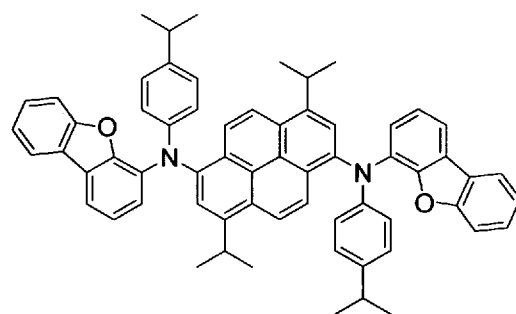
A-2



BH-1

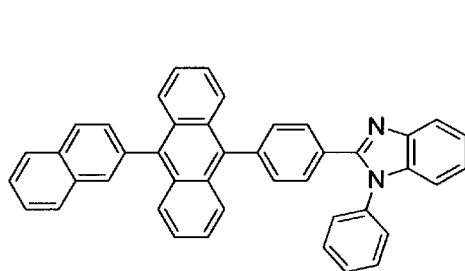


BD-1

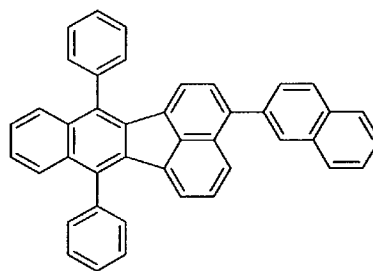


BD-2

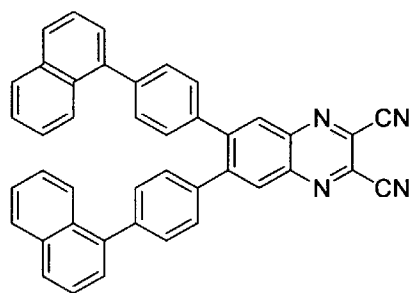
[化58]



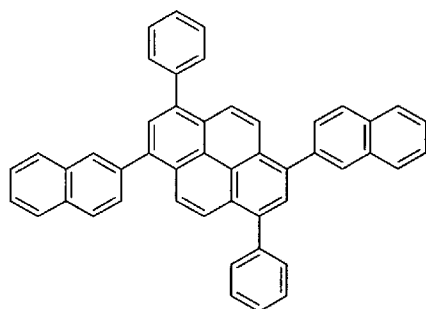
C-1



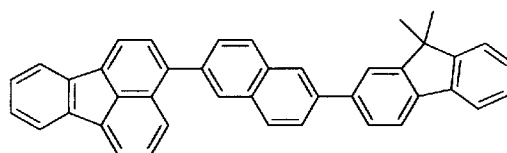
C-2



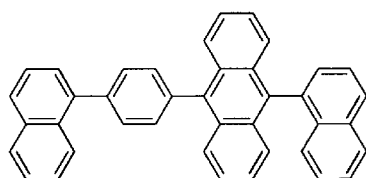
C-3



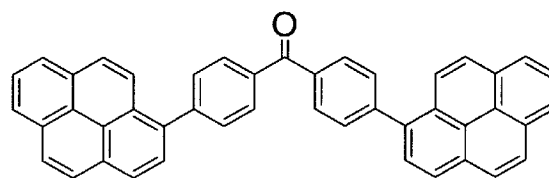
C-4



C-5



C-6



C-7

[0088] 実施例 1

25 mm×75 mm×1.1 mm厚のITO透明電極（陽極）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超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。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側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 50 nm の化合物 A-1 膜を成膜した。A-1 膜の成膜に続けて、この A-1 膜上に膜厚 45 nm の化合物 A-2 膜を成膜した。この A-2 膜上に膜厚 25 nm で化合物 BH-1 と化合物 BD-1 を 20 : 1 の膜厚比で成膜し青色系発光層とした。この発光層上に電子輸送層として膜厚 25 nm で ET-1-O1 を蒸着により成膜した。この後、LiF を膜厚 1 nm で成膜した。この LiF 膜上に金属 Al を 150 nm 蒸着させ金属陰極を形成し有機 EL 素子を製造した。

製造した有機 EL 素子の駆動電圧、電流効率及び半減寿命を下記方法によって測定し評価した。結果を表 1 に示す。

[0089] (1) 駆動電圧 (V)、電流効率 (L/J)

有機 EL 素子に 10 mA/cm^2 の直流電流を流して発光させた際の駆動電圧 (V)、輝度 (L) を測定した。これを基に、電流効率 (L/J) を求めた。

[0090] (2) 半減寿命

各有機 EL 素子を電流密度 8 mA/cm^2 で駆動させ、輝度の経時変化を計測し、輝度が 50% に達するまでの時間を求めた。

[0091] 実施例 2～9 及び比較例 1～3

電子輸送層の材料として、ET-1-O1 の代わりに表 1 に示す化合物を用いた他は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を製造し、評価した。結果を表 1 に示す。

[0092]

[表1]

	電子輸送材料	駆動電圧 [V]	電流効率 [cd/A]	半減寿命 [h]
実施例 1	ET 1-01	4.2	4.4	6000
実施例 2	ET 1-02	3.7	6.9	5000
実施例 3	ET 1-19	3.8	7.4	7000
実施例 4	ET 1-22	3.3	7.6	5000
実施例 5	ET 1-23	3.3	7.8	5000
実施例 6	ET 1-32	3.8	7.4	6000
実施例 7	ET 1-36	3.7	8.5	5000
実施例 8	ET 1-45	3.9	6.7	7000
実施例 9	ET 1-48	4.1	6.1	7500
比較例 1	C-1	5.0	4.2	2500
比較例 2	C-2	6.1	4.5	3000
比較例 3	C-3	7.1	3.2	1000

[0093] 表 1 から、シアノ基と芳香族環基を有する化合物を電子輸送材料として用いると、低電圧化、高効率化、長寿命化することが分かる。

本願実施例 1 ～ 9 並びに比較例 1 及び 2 との比較により、シアノ置換基を有する本発明の電子輸送材料は、含窒素複素環誘導体よりも低電圧化、高効率化、長寿命化することが分かる。

また、本願実施例 1 ～ 9 と比較例 3 との比較により、シアノ基と含窒素複素環を有する電子輸送材料は電圧が上がってしまうのに対し、シアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料であれば、1 材料単体であっても、低電圧化、高効率化、長寿命化することが分かる。

[0094] シアノ基は、特に含窒素複素環に導入すると、電子トラップ性が強いいため、電子の輸送を妨げるため、駆動電圧が大きく上昇する置換基として知られていたが、特定の芳香族環基にシアノ基を導入すると、シアノ基が電子注入

部位として働き、また電子の輸送を妨げず、低い駆動電圧を実現し、長寿命であることを見出した。また、正孔耐性に乏しい含窒素複素環誘導体を使用していないため、正孔に対する耐久性が著しく向上し、長寿命化したと考えられる。

[0095] 実施例 10

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極（陽極）付きガラス基板（ジオマテック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。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側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 50 nm の化合物 A-1 膜を成膜した。この A-1 膜上に膜厚 45 nm の化合物 A-2 膜を成膜した。この A-2 膜上に膜厚 25 nm で化合物 BH-1 と化合物 BD-1 を 20 : 1 の膜厚比で成膜し青色系発光層とした。この発光層上に膜厚 25 nm で ET-1-O1 とリチウムキノリノラート (Li q) を 1 : 1 の膜厚比で蒸着して、発光層上に膜厚 25 nm の電子輸送層を形成した。この後、金属 Al を 150 nm 蒸着させ金属陰極を形成し有機 EL 素子を形成した。

製造した有機 EL 素子の駆動電圧、電流効率及び半減寿命を評価した。結果を表 2 に示す。

[0096] 実施例 11 ~ 18

電子輸送層の材料として、ET-1 の代わりに表 2 に示す化合物を用いた他は実施例 10 と同様にして有機 EL 素子を製造し、評価した。結果を表 2 に示す。

[0097]

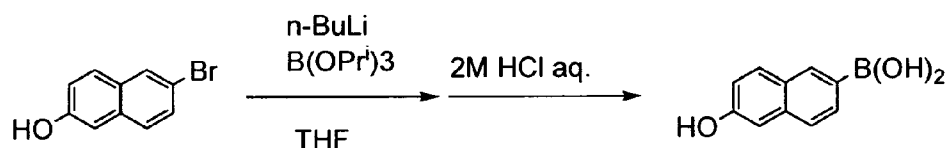
[表2]

	電子輸送材料	駆動電圧 [V]	電流効率 [cd/A]	半減寿命 [h]
実施例 10	ET 1-1	4.0	5.8	8000
実施例 11	ET 1-2	3.5	8.7	7000
実施例 12	ET 1-19	3.7	7.6	9000
実施例 13	ET 1-22	3.3	8.3	7000
実施例 14	ET 1-23	3.3	8.3	7000
実施例 15	ET 1-32	3.5	8.7	8000
実施例 16	ET 1-36	3.4	9.5	7000
実施例 17	ET 1-45	3.7	7.9	9000
実施例 18	ET 1-48	3.6	7.8	9500

[0098] 表2から、本発明の有機EL素子の電子輸送帯域に用いる電子輸送材料は、アルカリ金属の有機錯体との混合層としても低電圧、高効率でかつ長寿命の有機EL素子を製造できることがわかる。

[0099] 合成例1 6-ヒドロキシナフタレン-2-イルボロン酸の合成

[化59]

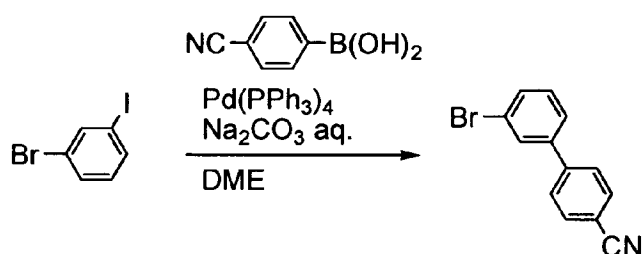


[0100] アルゴン雰囲気下、6-ブロモ-2-ナフトール（5.58 g l）を脱水テトラヒドロフラン（125 mL）に溶解し、 -70°C に冷却し、ノルマルブチルリチウムのヘキサン溶液（33 mL、55 mmol）を30分間かけて徐々に滴下した。 -70°C で1.5時間攪拌した後、ホウ酸トリイソプロピル（11.5 mL）を加えて30分間 -70°C で攪拌し、その後、徐々に室温に戻しながら3時間攪拌を行った。反応混合物に2 M塩酸（100 mL）を加えて室温で2時間攪拌を行った。得られた反応溶液を分液し、水層を

酢酸エチルで抽出した。有機層を一つにあわせ飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧濃縮した。得られた残渣をジクロロメタンで懸濁洗浄して目的の6-ヒドロキシナフタレン-2-イルボロン酸4.02 g (収率85%)を得た。

[0101] 合成例2 3'-ブロモ-4-シアノビフェニルの合成

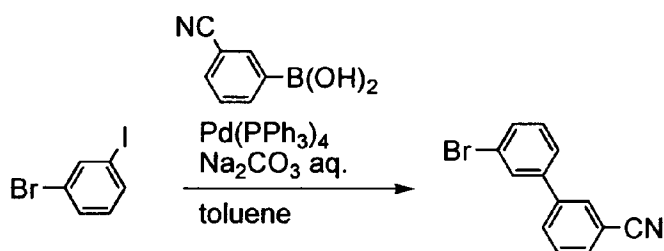
[化60]



[0102] アルゴン雰囲気下、3-ブromoヨードベンゼン (10.2 g)、4-シアノフェニルボロン酸 (4.4 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0) (1.04 g)、1,2-ジメトキシエタン (90 mL) 及び2 M炭酸ナトリウム水溶液 (45 mL) の混合物を3時間加熱還流した。反応混合物を室温まで冷却し、水を加え1時間攪拌を行った。反応混合物を室温に冷却し、酢酸エチルで抽出し、飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムにて乾燥を行った後、減圧濃縮した。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、目的の3'-ブロモ-4-シアノビフェニル4.1 g (収率53%)を得た。

[0103] 合成例3 3'-ブロモ-3-シアノビフェニルの合成

[化61]



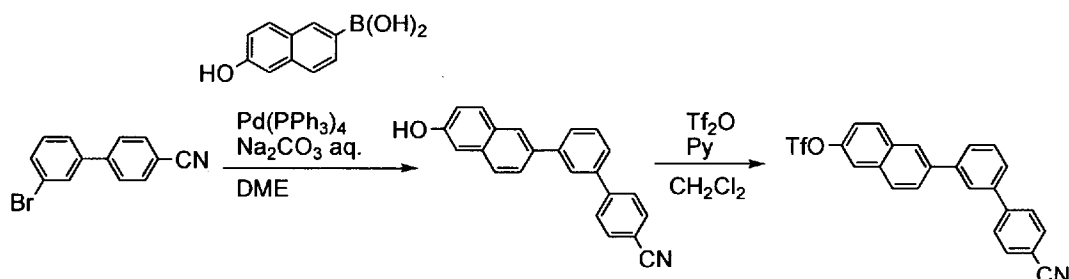
[0104] 合成例2において用いた4-シアノフェニルボロン酸のかわりに3-シアノフェニルボロン酸を用いる以外は合成例2と同様に合成を行い、収率44

%にて目的の3'-ブロモ-3-シアノビフェニルを得た。

[0105] 合成例4 6-(4'-シアノビフェニル-3-イル)ナフタレン-2-イル
トリフルオロメタンスルホネートの合成

下記合成スキームに従って、6-(4'-シアノビフェニル-3-イル)
ナフタレン-2-イル トリフルオロメタンスルホネートを合成した。

[化62]



[0106] (4-1) 6-(4'-シアノビフェニル-3-イル)-2-ナフトールの
の合成

アルゴン雰囲気下、合成例2で得た3'-ブロモ-4-シアノビフェニル
(4.07 g)、合成例1で得た6-ヒドロキシナフタレン-2-イルボロン
酸(3.26 g)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)
(0.55 g)、1,2-ジメトキシエタン(48 mL)及び2 M炭酸
ナトリウム水溶液(24 mL)の混合物を4時間加熱還流した。反応混合物
を室温に冷却し、2 M塩酸を用いて中和した。この混合物にトルエンを加え
、生成した沈殿物をろ別し、固体側を酢酸エチル及びトルエンで洗浄した。
ろ液側はトルエン及び酢酸エチルで抽出し、飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸
マグネシウムで乾燥し、減圧濃縮した後、得られた残渣をヘキサン-酢酸エ
チル混合溶液及びメタノールで洗浄した。得られた残渣を、最初に得られた
固体と合わせてトルエンで洗浄し、目的の6-(4'-シアノビフェニル-
3-イル)-2-ナフトール4.5 g(収率89%)を得た。

[0107] (4-2) 6-(4'-シアノビフェニル-3-イル)ナフタレン-2-
イル トリフルオロメタンスルホネートの合成

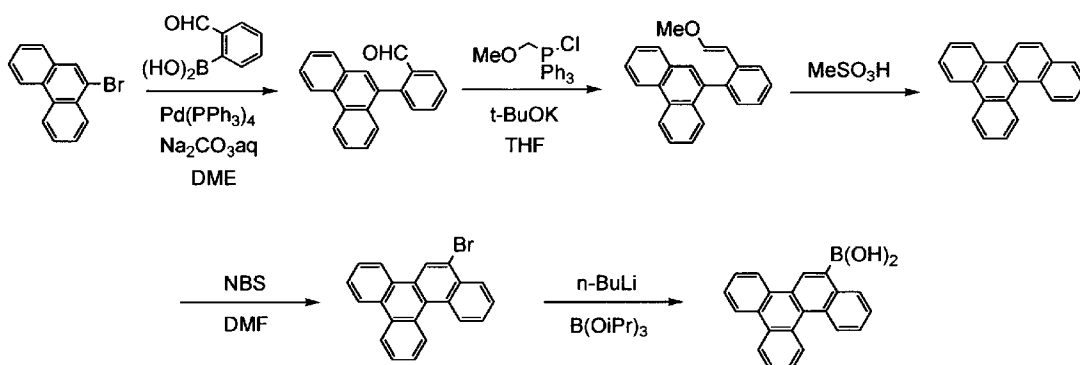
アルゴン雰囲気下、0℃において、6-(4'-シアノビフェニル-3-

イル) - 2 - ナフトール (4.5 g)、ピリジン (4.6 mL) 及びジクロロメタン (100 mL) の混合液にトリフルオロメタンスルホン酸無水物 (4.6 mL) を加え 1 時間攪拌した。反応液を室温に昇温し、さらに 30 分間攪拌した。2 M 塩酸を用いて反応混合物を酸性にし、ジクロロメタンで抽出を行い、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧濃縮した。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、目的の 6 - (4' - ジアノビフェニル - 3 - イル) ナフタレン - 2 - イル トリフルオロメタンスルホネート 5.7 g (収率 90%) を得た。

[0108] 合成例5 ベンゾ [g] クリセン-10-ボロン酸の合成

下記合成スキームに従って、ベンゾ [g] クリセナー 10-ボロン酸を合成した。

[化63]



[0109] (5-1) 9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレンの合成

アルゴン雰囲気下、9-ブロモフェナントレン (25.7 g)、2-ホルミルフェニルボロン酸 (16.5 g)、及びテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (2.31 g)をフラスコに仕込み、1,2-ジメトキシエタン (340 mL)、2M炭酸ナトリウム水溶液 (170 mL)を加え、8時間加熱還流撹拌した。室温まで冷却後、水層を除去した。有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的の9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレン 25.0 g (収率89%)を得た。

[0110] (5-2) 9-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]フェナントレンの合成

アルゴン雰囲気下、9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレン(25.0 g)、メトキシメチルトリフェニルホスフォニウムクロリド(33.4 g)、及びテトラヒドロフラン(300 mL)を仕込み、室温にて攪拌中に、t-ブトキシカリウム(11.9 g)を加えた。室温にて2時間攪拌した後、水(200 mL)を加えた。反応溶液をジエチルエーテルで抽出し、水層を除去した。有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的の9-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]フェナントレン9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレン24.0 g(収率87%)を得た。

[0111] (5-3) ベンゾ[g]クリセンの合成

9-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]フェナントレン9-(2-ホルミルフェニル)フェナントレン(24.0 g)、及びジクロロメタン(100 mL)を仕込み、室温下攪拌中にメタンスルホン酸をパスツールピペットで6滴加えた。室温で8時間攪拌を続けた。反応終了後10%炭酸カリウム水溶液(100 mL)を加えた。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的のベンゾ[g]クリセン5.21 g(収率25%)を得た。

[0112] (5-4) 10-ブロモベンゾ[g]クリセンの合成

ベンゾ[g]クリセン(5.21 g)、及びN,N-ジメチルホルムアミド(50 mL)をフラスコに仕込み、N-ブロモスクシンイミド(4.00 g)のN,N-ジメチルホルムアミド(10 mL)溶液を加えた。80℃で8時間加熱攪拌した。室温まで冷却後、反応溶液を水(200 mL)中に注いだ。析出した固体を濾取し、水、メタノールで洗浄した。得られた個体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、10-ブロモベンゾ[g]

クリセン 5.87 g (収率 88%) を得た。

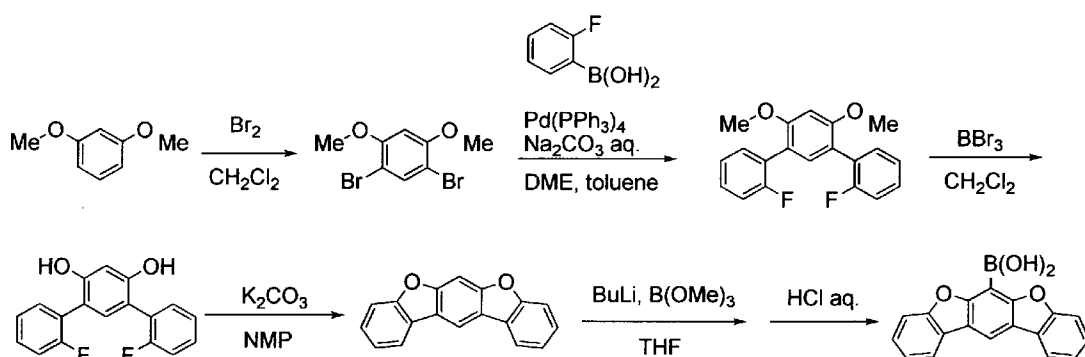
[0113] (5-5) ベンゾ [g] クリセン-10-ボロン酸の合成

アルゴン雰囲気下、10-ブロモベンゾ [g] クリセン (5.87 g) をフラスコに仕込み、脱水ジエチルエーテル (100 mL) を加えた。反応溶液を -40°C まで冷却し、1.6 M ノルマルブチルリチウムのヘキサン溶液 (11 mL) を加え、 0°C まで昇温し、1 時間攪拌した。反応溶液を -60°C まで冷却し、ホウ酸トリイソプロピル (7.72 g) の脱水ジエチルエーテル (10 mL) 溶液を滴下した。反応溶液を室温まで昇温しながら 5 時間攪拌を続けた。10% 塩酸水溶液 (50 mL) を加え、1 時間攪拌した。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。得られた固体をヘキサンで洗浄し、目的のベンゾ [g] クリセン-10-ボロン酸 3.18 g (収率 60%) を得た。

[0114] 合成例 6 ベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフラン-6-ボロン酸の合成

下記合成スキームに従って、ベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフラン-6-ボロン酸を合成した。

[化64]



[0115] (6-1) 2,4-ジブロモ-1,5-ジメトキシベンゼンの合成

1,3-ジメトキシベンゼン (53.9 g) をジクロロメタン (860 mL) に溶解させアルゴン置換し、氷冷下、臭素 (129.3 g) のジクロロメタン (150 mL) 溶液を 2 時間半かけて滴下し、3 時間かけて徐々に室

温まで昇温させ、さらに一日攪拌を行った。反応液を氷冷し、10%水酸化ナトリウム水溶液で中和した。ジクロロメタン層を回収し、水層をジクロロメタンで抽出し、有機層をまとめて無水硫酸ナトリウムで乾燥し、濾過した後、濾液の濃縮を行った。得られた残渣をヘキサンで分散洗浄し、生成した結晶を濾取して乾燥し、目的の2,4-ジブロモ-1,5-ジメトキシベンゼンの白色結晶110.5g(収率97%)を得た。

[0116] (6-2) 2,4-ビス(2-フルオロフェニル)-1,5-ジメトキシベンゼンの合成

2,4-ジブロモ-1,5-ジメトキシベンゼン(88.8g)、2-フルオロフェニルボロン酸(100.74g)、2M炭酸ナトリウム水溶液(600mL)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(6.73g)、1,2-ジメトキシエタン(150mL)、トルエン(150mL)をフラスコに入れ、36時間還流した。反応終了後、水(500mL)とトルエン(1000mL)を加えて分液ロートに移し、トルエン相を回収した。無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルショートカラムを通し原点不純物の除去を行い、溶液を濃縮した。これをトルエン/ヘキサン混合溶媒から再結晶し、目的の2,4-ビス(2-フルオロフェニル)-1,5-ジメトキシベンゼンの白色固体86.5g(収率88%)を得た。

[0117] (6-3) 2,4-ビス(2-フルオロフェニル)-1,5-ジヒドロキシベンゼンの合成

1,5-ジメトキシ-2,4-ビス(2-フルオロフェニル)ベンゼン(48.3g)、ジクロロメタン(脱水)(740mL)をフラスコに入れ、0℃に冷却した。三臭化ホウ素(89.0g)を加え、その後室温で24時間攪拌した。反応終了後、溶液を-78℃に冷却し、メタノールで慎重に失活し、さらに十分量の水で失活した。溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルショートカラムを通し原点不純物の除去を行い、溶液を濃縮し、得られた試料を60℃で5時間真空乾燥し、目的の2,4-ビス(2-フルオロフェニル)-1,

5-ジヒドロキシベンゼンの白色固体44.1 g (収率100%)を得た。

[0118] (6-4) ベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフランの合成

2, 4-ビス (2-フルオロフェニル) -1, 5-ジヒドロキシベンゼン (44.14 g)、N-メチル-2-ピロリジノン (脱水) (888 mL)、をフラスコに入れ、固体を完全に溶解させた。炭酸カリウム (81.8 g) を加え、その後200℃で2時間攪拌した。反応終了後、溶液を室温まで冷却し、トルエン2 Lを加え、分液ロートに移し、水で洗浄した。この溶液を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルショートカラムを通し原点不純物の除去を行い、溶液を濃縮し、トルエン/メタノール混合溶媒から再結晶し、目的のベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフランの白色固体27.9 g (収率73%)を得た。

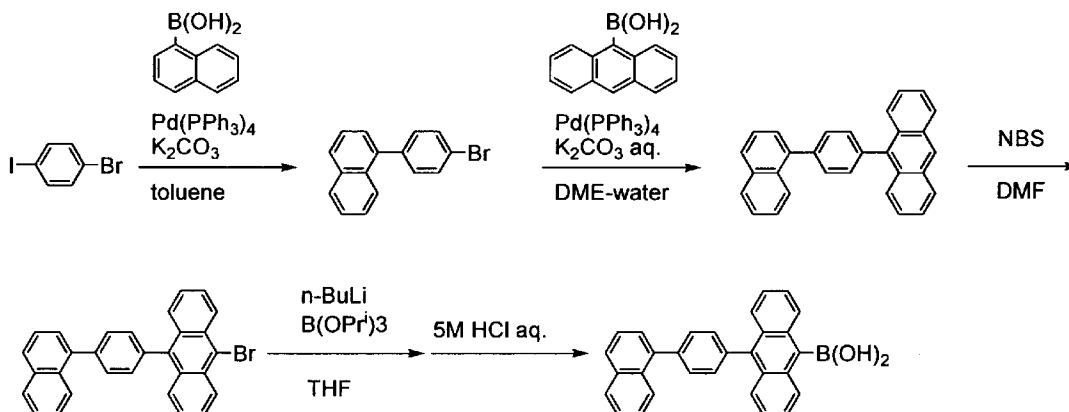
[0119] (6-5) ベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフラン-6-ボロン酸の合成

ベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフラン (12.9 g)、テトラヒドロフラン (脱水) (300 mL) をフラスコに加え、-78℃に冷却した。そこへノルマルブチルリチウム ((2.63 M in hexane) 20.0 mL) を加え、その後、室温で1時間放置した。次に再度-78℃に冷却し、ホウ酸トリメチル (10.4 g) を加え、-78℃で10分間攪拌した後、室温で1時間放置した。反応終了後、エバポレータで半分程度の容量に濃縮した後、1 M塩酸 (200 mL) を加え、室温で1時間攪拌した。その後分液ロートに移し、酢酸エチルで抽出した。この溶液を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、濃縮し、トルエン/ヘキサン混合溶媒で分散洗浄し、目的のベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフラン-6-ボロン酸の白色固体13.7 g (収率91%)を得た。

[0120] 合成例7 10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン-9-イルボロン酸の合成

下記合成スキームに従って、10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン-9-イルボロン酸を合成した。

[化65]



[0121] (7-1) 4-(1-ナフチル)ブロモベンゼンの合成

窒素雰囲気下、4-ブロモヨードベンゼン（70 g）、1-ナフチルボロン酸（47 g）、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム（0）（5.7 g）、炭酸カリウム（78.5 g）及びトルエン（700 mL）の混合物を74℃にて44時間攪拌した。反応混合物を室温まで冷却後、水を加えて分液を行い、有機層を5%重曹水及び5%食塩水にて洗浄し、減圧濃縮を行った。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製を行い、目的の4-(1-ナフチル)ブロモベンゼン53 g（収率76%）を得た。

[0122] (7-2) 9-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセンの合成

窒素雰囲気下、4-(1-ナフチル)ブロモベンゼン（53 g）、9-アントリルボロン酸（45 g）、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム（0）（4.3 g）、炭酸カリウム（59 g）、1,2-ジメトキシエタン（526 mL）及び水（526 mL）の混合物を74℃にて19時間攪拌した。反応を室温まで冷却し、生成した固体をろ取し、水、メタノール及びヘプタンで洗浄した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的の9-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン58 g（収率82%）を得た。

[0123] (7-3) 9-ブロモ-10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセンの合成

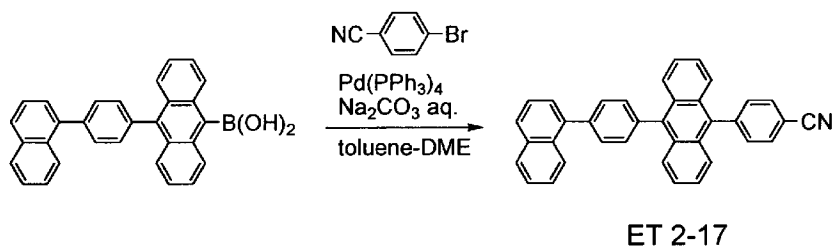
窒素雰囲気下、9-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン(56 g)にジメチルホルムアミド(448 mL)を加え、35℃に昇温し攪拌した。反応液にN-ブロモスクシンイミド(29 g)をジメチルホルムアミド(86 mL)に溶解した物を滴下し、2時間攪拌を行った。反応溶液を室温に戻し、水を加え、得られた固体をろ取り水で洗浄した。得られた固体をクロロホルムに溶解し、水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後に減圧濃縮した。得られた残渣をトルエンにて洗浄し、目的の9-ブromo-10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン55 g(81%)を得た。

[0124] (7-4) 10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン-9-イルボロン酸の合成

窒素雰囲気下、9-ブromo-10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン(54 g)をテトラヒドロフラン(540 mL)に溶解し、-65℃に冷却した。反応溶液に2.44 Mノルマルブチリチウム、ヘキサン溶液(58 mL)を滴下し、2時間攪拌した。反応溶液にホウ酸トリメチル(24.4 g)を滴下して1時間攪拌し、室温に戻してさらに1時間攪拌した。反応溶液に5 M塩酸(270 mL)を滴下して酸性とし、トルエンにて抽出を行い、5%重曹水及び5%食塩水にて洗浄を行い、減圧濃縮を行った。得られた残渣をトルエンにて洗浄し、目的の10-[4-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン-9-イルボロン酸31 g(収率62%)を得た。

[0125] 合成例8 ET 2-17の合成

[化66]

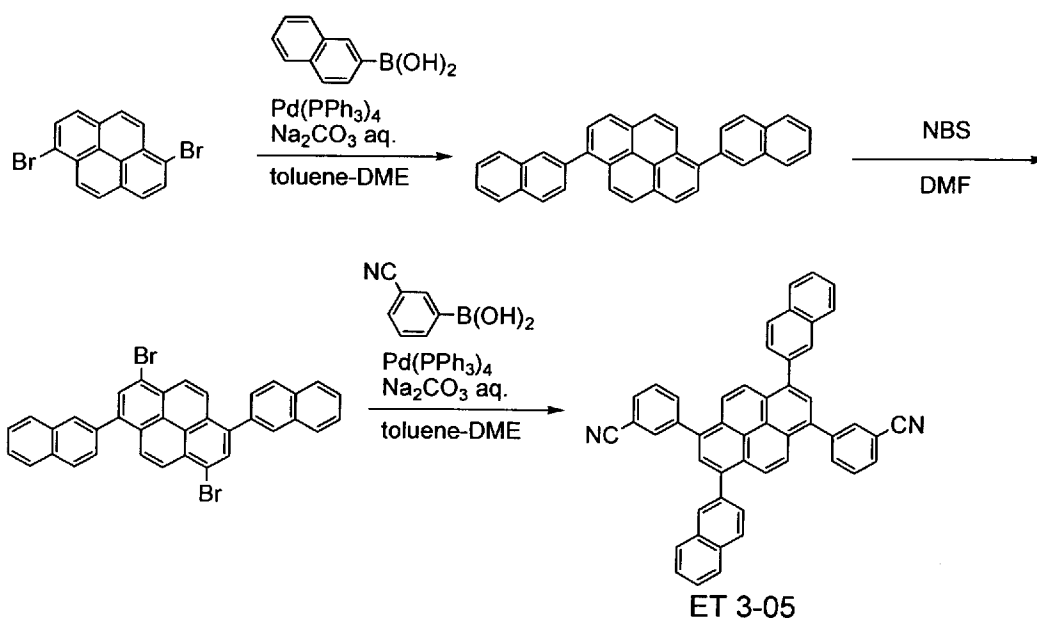


[0126] アルゴン雰囲気下、合成例7で得た10-[4-(1-ナフチル)フェニル]

ル] アントラセン-9-イルボロン酸 (8.5 g)、4-ブロモベンゾニトリル (3.8 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0) (0.4 g)、トルエン (49 mL)、1,2-ジメトキシエタン (21 mL) 及び 2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (30 mL) の混合物を 7 時間加熱還流した。反応溶液を分液し、トルエン抽出を行った。有機層を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥したのち減圧濃縮を行った。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、目的の ET 2-17 を 5.0 g (収率 52%) 得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量 481.18 に対し $m/e = 481$ であった。

[0127] 合成例 9 ET 3-05 の合成

[化67]



[0128] (9-1) 1,6-ジ(2-ナフチル)ピレンの合成

アルゴン雰囲気下、1,6-ジブロモピレン (10.0 g)、2-ナフチルボロン酸 (11.9 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0) (1.28 g)、トルエン (70 mL)、テトラヒドロフラン (70 mL) 及び 2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (83 mL) の混合物を 90℃ にて 8 時間加熱還流した。反応混合物を室温に冷却し、得られた沈殿をろ取し、水及びメタノールで洗浄した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグ

ラフィーで精製後、再結晶を行い、目的の 1, 6-ジ(2-ナフチル)ピレン 11.85 g (収率 94%) を得た。

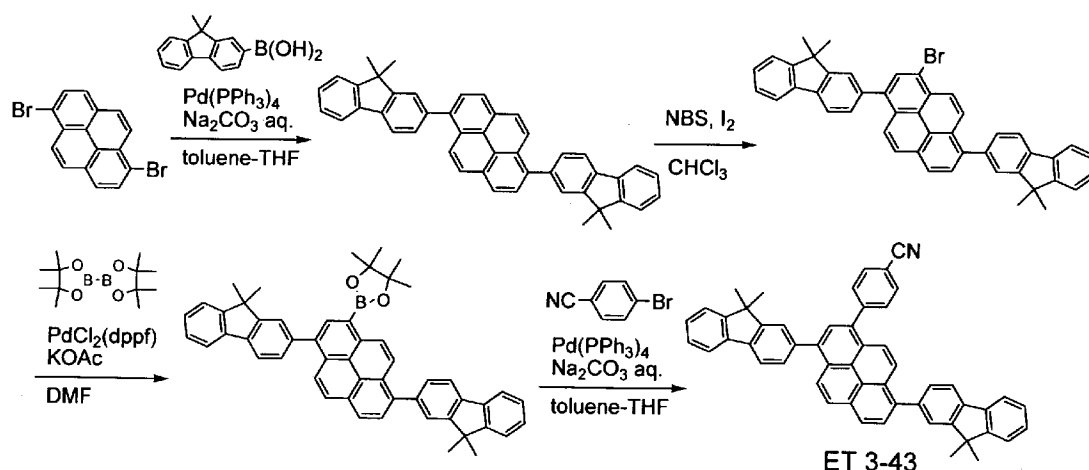
- [0129] (9-2) 1, 6-ジブロモ-3, 8-ジ(2-ナフチル)ピレンの合成
アルゴン雰囲気下、1, 6-ジ(2-ナフチル)ピレン(11.8 g) 及びクロロホルム(370 mL)の混合物に、室温にて臭素(3.3 mL)を滴下し、6時間攪拌を行った。反応混合物を室温に冷却し、沈殿した生成物をろ取り、水及びメタノールで洗浄した。得られた固体を、トルエンにて繰り返し再結晶を行い、目的の 1, 6-ジブロモ-3, 8-ジ(2-ナフチル)ピレン 8.1 g (収率 51%) を得た。

- [0130] (9-3) ET 3-05 の合成

アルゴン雰囲気下、1, 6-ジブロモ-3, 8-ジ(2-ナフチル)ピレン(6.0 g)、3-シアノフェニルボロン酸(3.9 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム(0)(0.45 g)、トルエン(49 mL)、ジメトキシエタン(49 mL)及び2 M炭酸ナトリウム水溶液(29 mL)の混合物を8時間加熱還流した。反応混合物を室温に冷却し、生成した固体をろ取り、水及びメタノールで洗浄した。得られた残渣のシリカゲルカラムクロマトグラフィー精製を行った後、熱トルエン及び熱ジオキサンで洗浄し、目的の ET 3-05 を 5.0 g (収率 74%) 得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量 656.23 に対し $m/e = 656$ であった。

- [0131] 合成例 10 ET 3-43 の合成

[化68]



[0132] (10-1) 1,6-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ピレンの合成

アルゴン雰囲気下、1,6-ジブロモピレン(13.6g)、9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イルボロン酸(22.5g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム(0)(1.7g)、トルエン(95mL)、テトラヒドロフラン(95mL)及び2M炭酸ナトリウム水溶液(113mL)の混合物を85℃にて8時間攪拌した。反応混合物を室温に冷却し、生成した固体をろ取し、水及びメタノールで洗浄した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー精製、再結晶を行い、目的の1,6-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ピレンを主成分とする固体23.8gを得た。

[0133] (10-2) 3-ブロモ-1,6-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ピレンの合成

アルゴン雰囲気下、(10-1)で得た1,6-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ピレン(10g)及びクロロホルム(1700mL)の混合物を50℃にて加熱攪拌し、完全溶解した後、N-ブロモスクシンイミド(3.0g)及びひとかけらのヨウ素を加えて50℃にて3時間攪拌した。反応液を室温に冷却し、水を加え分液した。クロロホルム層を飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリ

ウムで乾燥した後、減圧濃縮した。得られた残渣をトルエンにて再結晶を行い、得られた結晶をメタノール洗浄して、目的の3-ブromo-1,6-bis(9,9-dimethyl-9H-fluorenyl)pyreneを主成分(純度85.6%)とする固体4.9gを得た。

[0134] (10-3) 3,8-bis(9,9-dimethyl-9H-fluorenyl)pyrene-1-ylboronic acid pinacol esterの合成

アルゴン雰囲気下、(10-2)で得られた3-bromo-1,6-bis(9,9-dimethyl-9H-fluorenyl)pyrene(4.8g)、bis(pinacolat)diboron(2.8g)、[1,1'-bis(diphenylphosphino)ferrocene]dichloropalladium(II)dichloromethane adduct(0.18g)、酢酸カリウム(1.4g)及びジメチルホルムアミド(724mL)の混合物を80℃にて8時間攪拌を行った。反応混合物を室温に冷却し、水を加えた後、酢酸エチルで抽出した。酢酸エチル層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウム水溶液で乾燥した後、減圧濃縮した。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、目的の3,8-bis(9,9-dimethyl-9H-fluorenyl)pyrene-1-ylboronic acid pinacol ester 0.89gを得た。

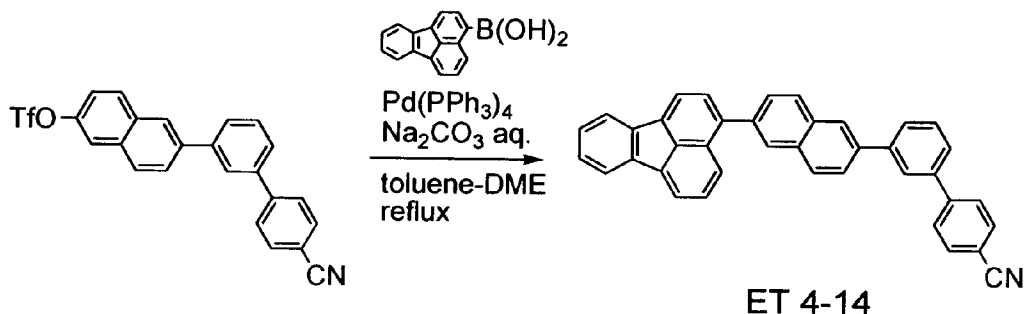
[0135] (10-4) ET 3-43の合成

アルゴン雰囲気下、3,8-bis(9,9-dimethyl-9H-fluorenyl)pyrene-1-ylboronic acid pinacol ester(0.89g)、4-bromobenzonitrile(0.34g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム(0)(0.065g)、トルエン(6mL)、テトラヒドロフラン(6mL)及び2M炭酸ナトリウム水溶液(2.8mL)の混合物を90℃にて7時間攪拌した。反応液を室温に冷却し、トルエンにて抽出を行い、飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウム水溶液で乾燥させた後、減圧濃縮した。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、目的のET 3-43を0.59g(収率68%)得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量687.29に対し $m/e = 687$ で

あった。

[0136] 合成例 1 1 E T 4-14 の合成

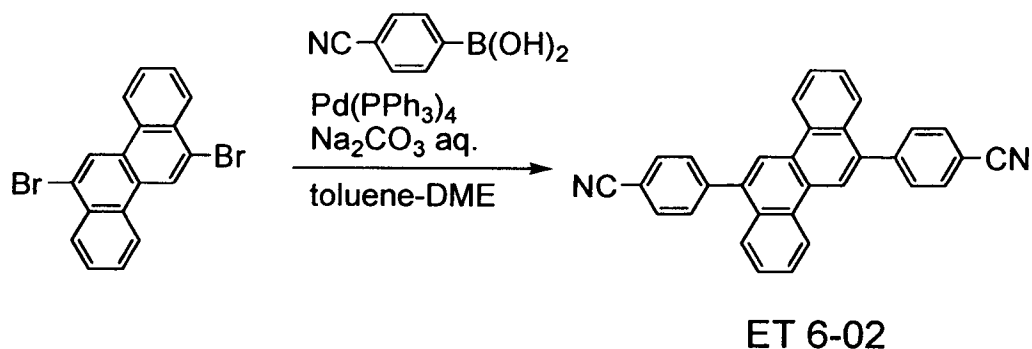
[化69]



[0137] アルゴン雰囲気下、合成例 4 で得た 6-（4'-シアノビフェニル-3-イル）ナフタレン-2-イル トリフルオロメタンスルホネート（3.63 g）、3-フルオランテニルボロン酸（2.17 g）、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム（0）（0.28 g）、トルエン（12 mL）、1,2-ジメトキシエタン（12 mL）及び 2 M 炭酸ナトリウム水溶液（12 mL）の混合物を、5 時間加熱還流した。反応液を室温に冷却し、水を加え、ジクロロメタンにて抽出を行った。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、減圧濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、目的の E T 4-14 を 3.45 g（収率 85%）得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量 505.18 に対し $m/e = 505$ であった。

[0138] 合成例 1 2 E T 6-02 の合成

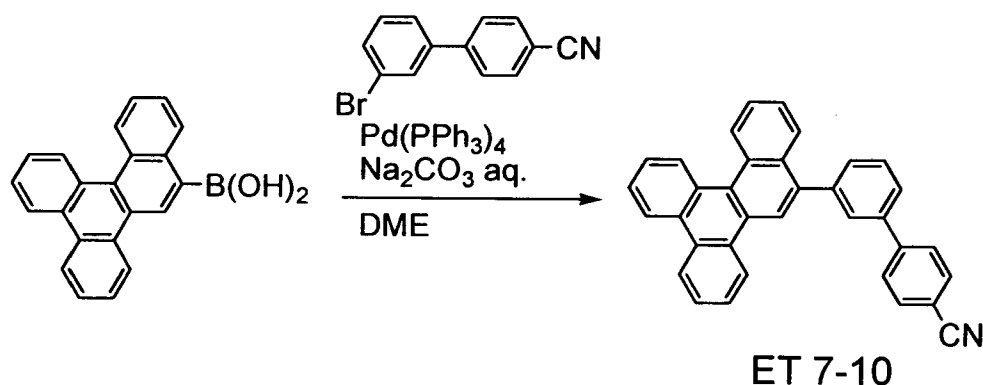
[化70]



[0139] アルゴン雰囲気下、6, 12-ジブロモクリセン (5.79 g)、4-シアノフェニルボロン酸 (5.29 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0) (1.04 g)、トルエン (45 mL)、1, 2-ジメトキシエタン (45 mL) 及び 2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (45 mL) の混合物を 6 時間加熱還流した。反応混合物を室温まで冷却し、水を加え 1 時間撹拌を行った。生成した固体をろ取し、水、メタノールで洗浄後、減圧下にて乾燥を行った。得られた固体を熱クロロベンゼンで繰り返し洗浄した後、昇華精製を行い、目的の ET 6-02 を 2.57 g (収率 40%) 得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量 430.15 に対し $m/e = 430$ であった。

[0140] 合成例 13 ET 7-10 の合成

[化71]

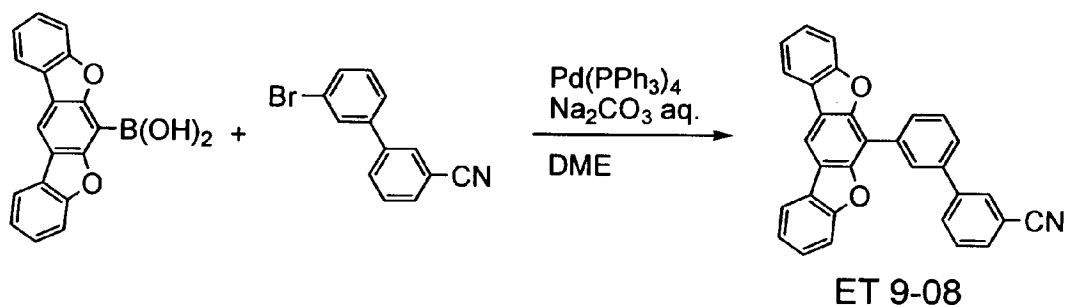


[0141] アルゴン雰囲気下、合成例 2 で得た 3'-ブromo-4-シアノビフェニル (1.49 g)、合成例 5 で得たベンゾ [g] クリセン-10-ボロン酸 (2.05 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0) (0.20 g)、1, 2-ジメトキシエタン (18 mL) 及び 2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (9 mL) の混合物を、5.5 時間加熱還流した。反応を室温に冷却し、水を加え、トルエンにて抽出を行った。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、減圧濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的の ET 7-10 を 1.54 g (収率 59%) 得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量 45

5. 17 に対し $m/e = 455$ であった。

[0142] 合成例 14 ET 9-08 の合成

[化72]



[0143] アルゴン雰囲気下、合成例 3 で得た 3'-ブロモ-3-シアノビフェニル (3.0 g)、合成例 6 で得たベンゾフラノ [3, 2-b] ジベンゾフラン-6-ボロン酸 (3.9 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0) (0.67 g)、トルエン (29 mL)、1, 2-ジメトキシエタン (29 mL) 及び 2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (23 mL) の混合物を、8 時間加熱還流した。反応液を室温に冷却し、生成した固体をろ取し、水及びメタノールで洗浄した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、目的の ET 9-08 を 2.89 g (収率 57%) 得た。このものはマスペクトル分析の結果、分子量 435.13 に対し $m/e = 435$ であった。

[0144] 実施例 19～30 及び比較例 4～7

電子輸送材料として ET 1-01 の代わりに表 3 に示す化合物を用い、ドーパントとして表 3 に示す化合物を用いた他は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を製造し、駆動電圧、発光効率 (L/J) 及び半減寿命を評価した。結果を表 3 に示す。

[0145]

[表3]

	電子輸送材料	ドーパント	駆動電圧 [V]	電流効率 (L/J) [cd/A]	半減寿命 [h]
実施例19	ET 2-17	BD-1	3.4	7.3	6500
実施例20	ET 3-05	BD-1	4.3	5.2	5000
実施例21	ET 4-14	BD-1	3.7	8.6	9000
実施例22	ET 6-02	BD-1	4.9	6.1	5000
実施例23	ET 7-10	BD-1	3.7	8.6	5500
実施例24	ET 9-08	BD-1	4.3	9.3	4500
実施例25	ET 1-19	BD-2	3.9	7.8	9000
実施例26	ET 1-22	BD-2	3.4	8.3	6000
実施例27	ET 1-23	BD-2	3.4	8.1	6000
実施例28	ET 1-36	BD-2	3.7	8.9	4500
実施例29	ET 2-17	BD-2	3.5	8.2	7000
実施例30	ET 3-43	BD-2	4.8	6.0	9000
比較例4	C-4	BD-1	5.5	4.4	3000
比較例5	C-5	BD-1	6.0	3.9	2500
比較例6	C-6	BD-1	6.3	3.5	3000
比較例7	C-7	BD-2	6.6	2.0	500

[0146] 表3から、シアノ基と芳香族環基を有する化合物を電子輸送材料として用いると、低電圧化、高効率化、長寿命化することが分かる。

これらの実施例から、本願のシアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料において、その芳香族環基は、一部の構造に限定されることなく、一般によく知られる芳香族環基を広く用いることが出来ることが分かる。また、発光層に種々のドーパントを用いることができることもわかる。

産業上の利用可能性

[0147] 本発明の電子輸送材料を含んでなる有機EL素子は、低消費電力化が望まれる大型テレビ向け表示パネルや照明パネル等に用いることができる。

[0148] 上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら

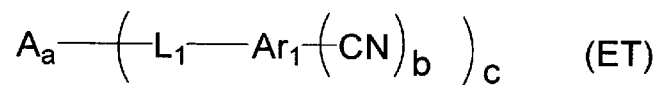
例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

この明細書に記載の文献の内容を全てここに援用する。

請求の範囲

- [請求項1] 陽極、発光層、電子輸送帯域及び陰極をこの順に備え、
前記電子輸送帯域が、シアノ基と芳香族環基を有する電子輸送材料を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項2] 前記電子輸送材料が、シアノ基と芳香族単環基及び／又は芳香族縮合環基を有する電子輸送材料である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項3] 前記電子輸送材料が下記式（E T）で表わされる請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化73]



[式中、

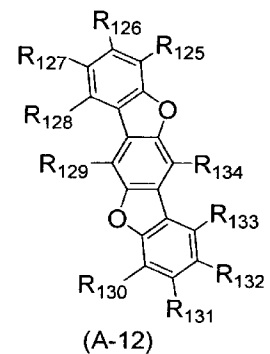
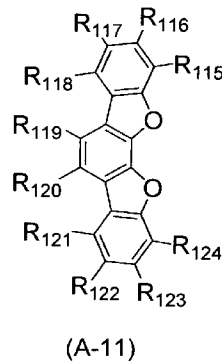
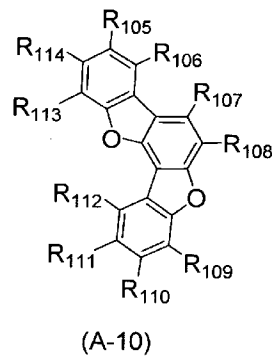
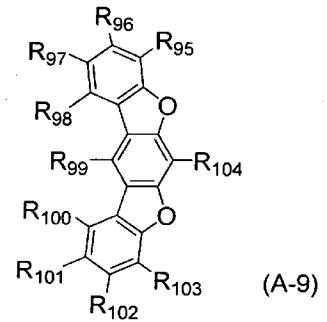
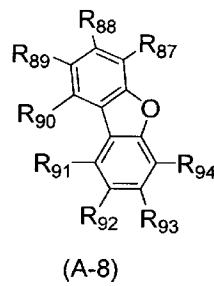
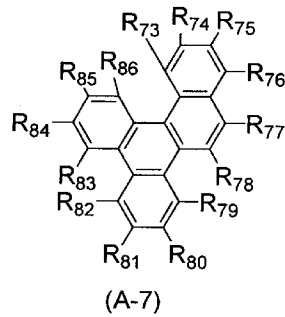
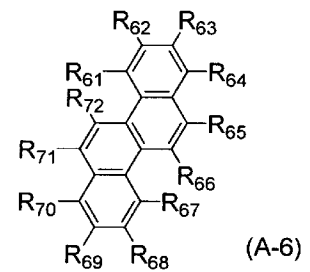
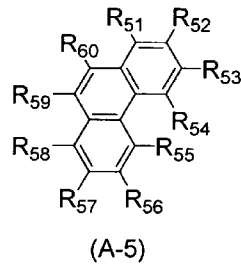
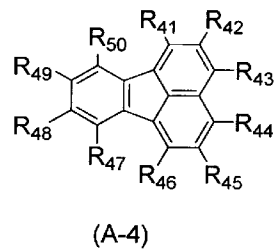
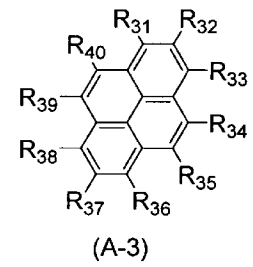
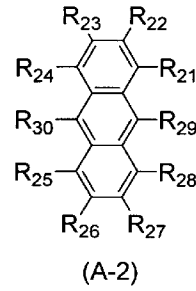
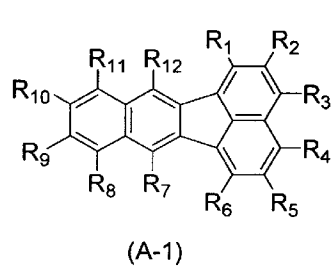
L_1 は、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の $a+1$ 価の芳香族環基である。

Ar_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の $1+b$ 価の芳香族環基である。

a 、 b 及び c は、それぞれ1～3の整数である。

A は、下記式（A-1）～（A-12）

[化74]



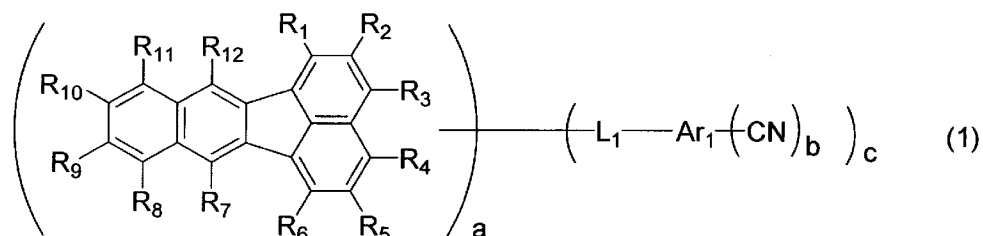
(式 (A-1) ~ (A-12) 中、

$R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、 $R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim R_{114}$ 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 又は $R_{125} \sim R_{134}$ のうちのc個は単結合でL₁と結合し、単結合以外の $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、R

$R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim R_{114}$ 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 又は $R_{125} \sim R_{134}$ は、それぞれ水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、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 3 ～ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のシリル基、又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か、隣接する各基が結合して環を形成する。) からなる群から選択される縮合芳香族環基である。]

[請求項4] 前記電子輸送材料が、下記式 (1) で表わされる請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化75]



(式中、 a 、 b 、 c 、 L_1 、 Ar_1 、及び $R_1 \sim R_{12}$ は、請求項3で定義した通りである。)

[請求項5] R_3 又は R_4 が単結合で L_1 と結合している請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項6] $a = 1$ 及び $c = 1$ である請求項4又は5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項7] R_7 及び R_{12} が、それぞれ無置換のフェニル基である請求項4～6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。

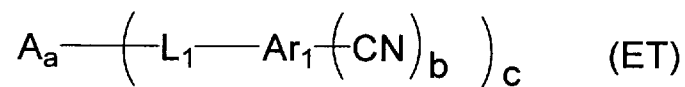
[請求項8] 前記電子輸送帯域が、還元性ドーパントをさらに含有する請求項1～7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項9] 前記還元性ドーパントが、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金

属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体及び希土類金属の有機錯体からなる群から選択される１種又は２種以上である請求項８に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項10] 下記式（E T）で表されるシアノ基と芳香族環基を有する化合物。

[化76]



[式中、

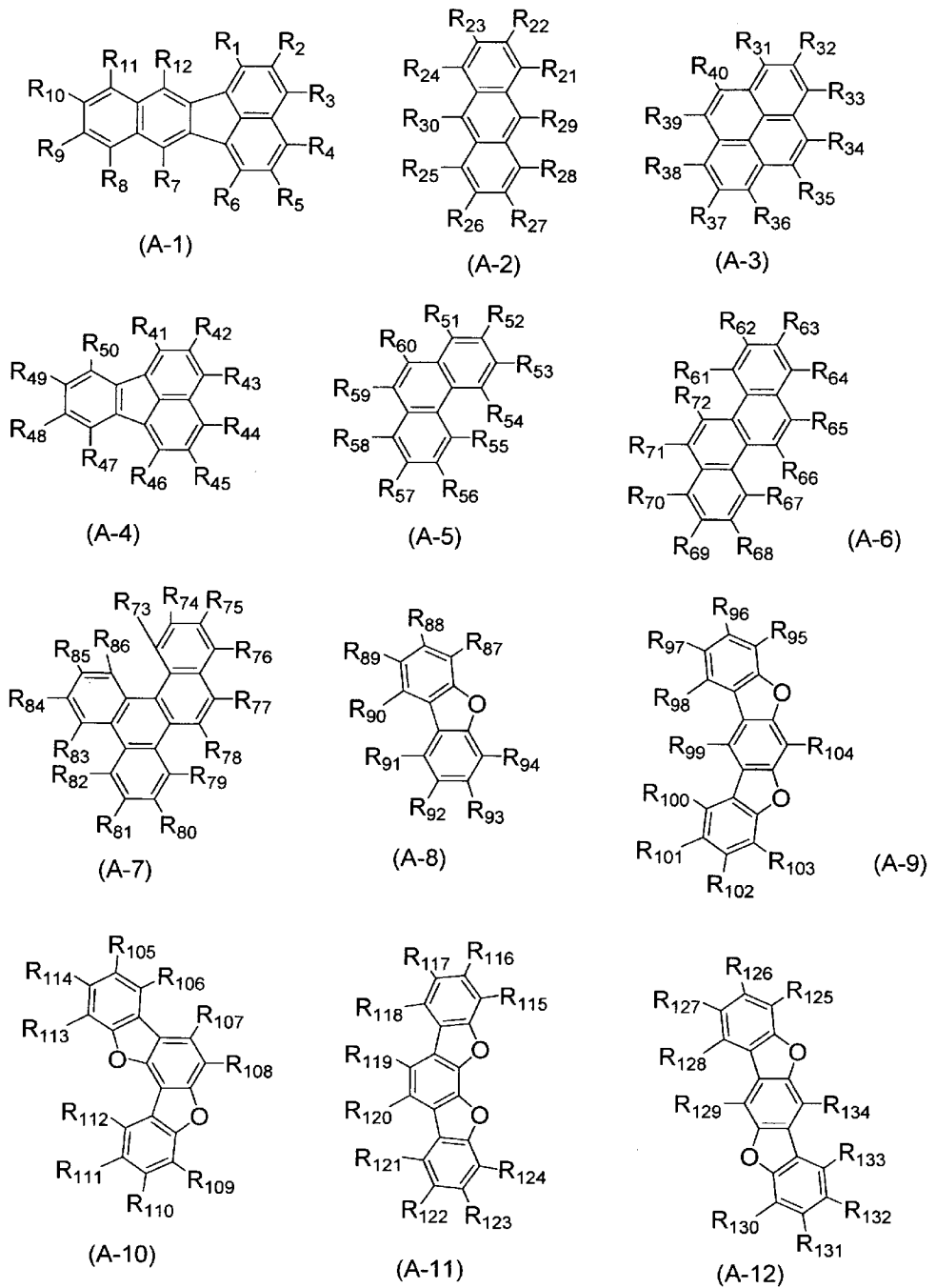
L_1 は、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０の $a + 1$ 価の芳香族環基である。

Ar_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０の $1 + b$ 価の芳香族環基である。

a 、 b 及び c は、それぞれ１～３の整数である。

A は、下記式（A－１）～（A－１２）

[化77]

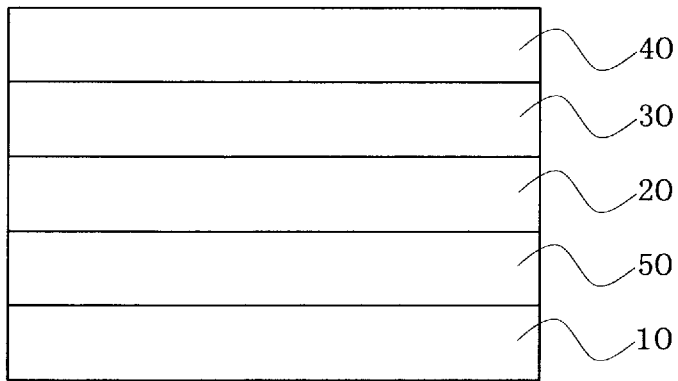


(式 (A-1) ~ (A-12) 中、

$R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、 $R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、
 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim$
 R_{114} 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 又は $R_{125} \sim R_{134}$ のうちの c 個は単結合で L_1 と結合し、単結合以外の $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_{21} \sim R_{30}$ 、 $R_{31} \sim R_{40}$ 、 R

$R_{41} \sim R_{50}$ 、 $R_{51} \sim R_{60}$ 、 $R_{61} \sim R_{72}$ 、 $R_{73} \sim R_{86}$ 、 $R_{87} \sim R_{94}$ 、
 $R_{95} \sim R_{104}$ 、 $R_{105} \sim R_{114}$ 、 $R_{115} \sim R_{124}$ 又は $R_{125} \sim R_{134}$ は、
それぞれ水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、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3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のシリル基、又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か、隣接する各基が結合して環を形成する。) からなる群から選択される縮合芳香族環基である。]

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/004458

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01)i, C07C255/50(2006.01)i, C07C255/51(2006.01)i,
C07C255/52(2006.01)i, C07D493/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50, C07C255/50, C07C255/51, C07C255/52, C07D493/04, C09K11/06

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

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

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

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2008-546185 A (Eastman Kodak Co.), 18 December 2008 (18.12.2008), claims; paragraphs [0067], [0128] & US 2006/0269782 A1 & EP 1883982 A & WO 2006/127315 A2	1-3, 8-10
X	JP 2006-518545 A (LG Electronics Inc.), 10 August 2006 (10.08.2006), claims & US 2004/0161633 A1 & EP 1595292 A & WO 2004/075603 A2 & KR 10-2005-0095653 A & CN 1751398 A	1-3, 8-10

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
21 September, 2011 (21.09.11)

Date of mailing of the international search report
18 October, 2011 (18.10.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/004458

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2010/035723 A1 (Hodogaya Chemical Co., Ltd.), 01 April 2010 (01.04.2010), paragraphs [0058], [0064], [0083], [0175]; claims & EP 2336130 A1	1, 2, 8, 9
X	WO 2008/059713 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 22 May 2008 (22.05.2008), paragraphs [0027], [0030] to [0033], [0035] & US 2009/0015144 A1 & EP 2085371 A1 & KR 10-2009-0081390 A & CN 101595080 A	10
X	JP 2010-111621 A (Sony Corp.), 20 May 2010 (20.05.2010), paragraph [0069] & US 2010/0109555 A1 & CN 101735107 A	10
X	JP 2001-297883 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 26 October 2001 (26.10.2001), paragraph [0022] (Family: none)	10
X	JP 2007-511067 A (Eastman Kodak Co.), 26 April 2007 (26.04.2007), claim 26 & US 2005/0089717 A1 & EP 1675931 A & WO 2005/042668 A1 & KR 10-2006-0120040 A & CN 1871323 A	10
X	WO 2010/074087 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 01 July 2010 (01.07.2010), paragraph [0058] (Family: none)	10
X	JP 2005-516061 A (Applied Research Systems ARS Holding N.V.), 02 June 2005 (02.06.2005), paragraph [0860] & US 2005/0124656 A1 & EP 1470102 A & WO 2003/064376 A1 & CA 2472021 A & BR 307394 A & HR 20040612 A & NO 20043520 A & PL 371198 A & CN 1633410 A & HK 1073649 A & ZA 200405179 A & EA 12260 B & RSA 000P65304 & AT 510817 T & UA 82661 C	10
X	JP 2008-60379 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 13 March 2008 (13.03.2008), paragraph [0060] (Family: none)	10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/004458

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 4617393 B1 (Fujifilm Corp.), 26 January 2011 (26.01.2011), paragraph [0046] (Family: none)	10

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07C255/50(2006.01)i, C07C255/51(2006.01)i, C07C255/52(2006.01)i,
C07D493/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L51/50, C07C255/50, C07C255/51, C07C255/52, C07D493/04, C09K11/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

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

CAplus (STN), REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2008-546185 A (イーストマン コダック カンパニー) 2008.12.18, 【特許請求の範囲】, 段落【0067】, 【0128】 & US 2006/0269782 A1 & EP 1883982 A & WO 2006/127315 A2	1-3, 8-10
X	JP 2006-518545 A (エルジー エレクトロニクス インコーポレー テッド) 2006.08.10, 【特許請求の範囲】 & US 2004/0161633 A1 & EP 1595292 A & WO 2004/075603 A2 & KR 10-2005-0095653 A & CN 1751398 A	1-3, 8-10

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 1 . 0 9 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

1 8 . 1 0 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

川村 大輔

2 0

3 1 5 5

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2010/035723 A1 (保土谷化学工業株式会社) 2010.04.01, 段落[0058], [0064], [0083], [0175], 請求の範囲 & EP 2336130 A1	1, 2, 8, 9
X	WO 2008/059713 A1 (出光興産株式会社) 2008.05.22, 段落[0027], [0030]-[0033], [0035] & US 2009/0015144 A1 & EP 2085371 A1 & KR 10-2009-0081390 A & CN 101595080 A	10
X	JP 2010-111621 A (ソニー株式会社) 2010.05.20, 段落【0069】 & US 2010/0109555 A1 & CN 101735107 A	10
X	JP 2001-297883 A (三菱化学株式会社) 2001.10.26, 段落【0022】 (ファミリーなし)	10
X	JP 2007-511067 A (イーストマン コダック カンパニー) 2007.04.26, 【請求項 26】 & US 2005/0089717 A1 & EP 1675931 A & WO 2005/042668 A1 & KR 10-2006-0120040 A & CN 1871323 A	10
X	WO 2010/074087 A1 (出光興産株式会社) 2010.07.01, 段落[0058] (ファミリーなし)	10
X	JP 2005-516061 A (アプライド リサーチ システムズ エーアー ルエス ホールディング ナームロゼ フェンノートシャップ) 2005.06.02, 段落【0860】 & US 2005/0124656 A1 & EP 1470102 A & WO 2003/064376 A1 & CA 2472021 A & BR 307394 A & HR 20040612 A & NO 20043520 A & PL 371198 A & CN 1633410 A & HK 1073649 A & ZA 200405179 A & EA 12260 B & RSA 000P65304 & AT 510817 T & UA 82661 C	10
X	JP 2008-60379 A (三井化学株式会社) 2008.03.13, 段落【0060】 (ファミリーなし)	10
P, X	JP 4617393 B1 (富士フイルム株式会社) 2011.01.26, 段落【0046】 (ファミリーなし)	10