

(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  
2017年10月5日(05.10.2017)



(10) 国際公開番号  
WO 2017/169355 A1

- (51) 国際特許分類:  
H01L 51/50 (2006.01) C07D 405/14 (2006.01)  
C07D 209/86 (2006.01) C07D 409/04 (2006.01)  
C07D 405/10 (2006.01) C07D 409/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/006780
- (22) 国際出願日: 2017年2月23日(23.02.2017)
- (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 2016-064230 2016年3月28日(28.03.2016) JP
- (71) 出願人: 新日鉄住金化学株式会社(NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目14番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 上田 季子(UEDA Tokiko); 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目14番1号 新日鉄住金化学株式会社内 Tokyo (JP). 小川 淳也(OGAWA Junya); 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目14番1号 新日鉄住金化学株式会社内 Tokyo (JP). 多田 匡志(TADA Masashi); 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目14番1号 新日鉄住金化学株式会社内 Tokyo (JP). 澤田

雄一(SAWADA Yuichi); 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目14番1号 新日鉄住金化学株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 佐々木 一也, 外(SASAKI Kazuya et al.); 〒1030001 東京都中央区日本橋小伝馬町6番10号 丸森ビル7階 Tokyo (JP).

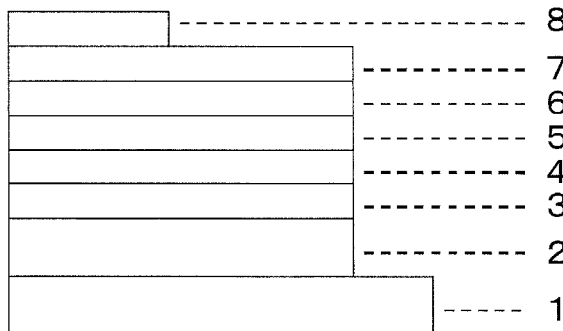
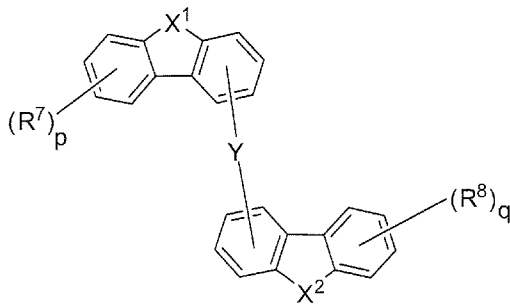
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, 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, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機電界発光素子



i R<sup>5</sup>R<sup>6</sup>を示し、Yは単結合、又は芳香族基である。

(57) Abstract: Provided is an organic EL element which is low voltage while exhibiting high light-emission efficiency and high drive stability. Thus, an organic electroluminescent element obtained by layering a positive electrode, an organic layer and a negative electrode on a substrate, wherein at least one layer in the organic layer contains (i) a compound represented by general formula (1) and (ii) a carborane compound having one or more divalent carborane groups and an aromatic group substituted for a carborane group. Herein, X<sup>1</sup> and X<sup>2</sup> represent NR<sup>1</sup>, PR<sup>2</sup>, O, S, Se, CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>, or SiR<sup>5</sup>R<sup>6</sup>, and Y is a single bond or an aromatic group.

(1)

(57) 要約: 低電圧でありながら高い発光効率を示し、かつ高い駆動安定性を有する有機EL素子を提供する。基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層される有機電界発光素子において、該有機層の少なくとも1層に、(i)下記一般式(1)で表される化合物と、(ii)1個以上の2価のカルボラン基とこのカルボラン基に置換する芳香族基を有するカルボラン化合物を含む有機電界発光素子である。ここで、X<sup>1</sup>及びX<sup>2</sup>はNR<sup>1</sup>、PR<sup>2</sup>、O、S、Se、CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>、又はS

WO 2017/169355 A1

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG). 添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

## 明 細 書

発明の名称：有機電界発光素子

### 技術分野

[0001] 本発明は有機電界発光素子（以下、有機EL素子という）に関するものであり、詳しくは、複数の化合物を含む有機層を有する有機EL素子に関するものである。

### 背景技術

[0002] 一般に、有機EL素子は、その最も簡単な構造としては発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されている。すなわち、有機EL素子では、両電極間に電界が印加されると、陰極から電子が注入され、陽極から正孔が注入され、これらが発光層において再結合される際にエネルギーとして光を放出する現象を利用する。

[0003] この再結合の際に発生する励起子は、電子スピンの統計則により、一重項励起子及び三重項励起子が1：3の割合で生成する。一重項励起子による発光を用いる蛍光発光型の有機EL素子は、内部量子効率 $\leq 25\%$ が限界であるといわれている。一方でイリジウム錯体を使用した三重項励起子による発光を用いる燐光発光型の有機EL素子は、一重項励起子から項間交差が効率的に行われた場合には、理論的には内部量子効率が100%まで高められることが知られている。

[0004] また、近年では、遅延蛍光を利用した高効率の有機EL素子の開発がなされている。例えば特許文献1では、TADF (Thermally Activated Delayed Fluorescence) 機構を利用した有機EL素子が開示されている。これは、内部量子効率を高められる手法であるが、前記燐光発光型素子と同様に寿命特性の更なる改善が求められている。

[0005] これら有機EL素子の特性を改善するために、特許文献2～8に開示されるようなビスカルバゾール類やカルボラン化合物を有機層に含む素子が検討されている。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0006] 特許文献1：W02011/070963 A1

特許文献2：特開2003-133075号公報

特許文献3：特開2007-288035号公報

特許文献4：特開2005-166574号公報

特許文献5：US2012/0319088A1

特許文献6：W02015/137202 A1

特許文献7：W02013/062075 A1

特許文献8：US2014/0374728 A1

[0007] 特許文献2は、ビスカルバゾール化合物をホスト材料として使用することを開示している。特許文献3は、ビスカルバゾール類をホスト材料として使用することを開示している。特許文献4～6は、カルボラン化合物をホスト材料として使用することを開示している。また、特許文献7、8は、ビスカルバゾール化合物を混合ホスト材料として使用することを開示している。特許文献6には、特定のカルボラン化合物を遅延蛍光発光材料として、或いはビスカルバゾール化合物類を遅延蛍光発光材料として使用しカルボラン化合物をホスト材料として発光層に使用することを開示するが、特定のビスカルバゾール化合物類と、カルボラン化合物を混合して発光層以外の有機層や発光層のホスト材料として使用することを教えるものはない。

### 発明の開示

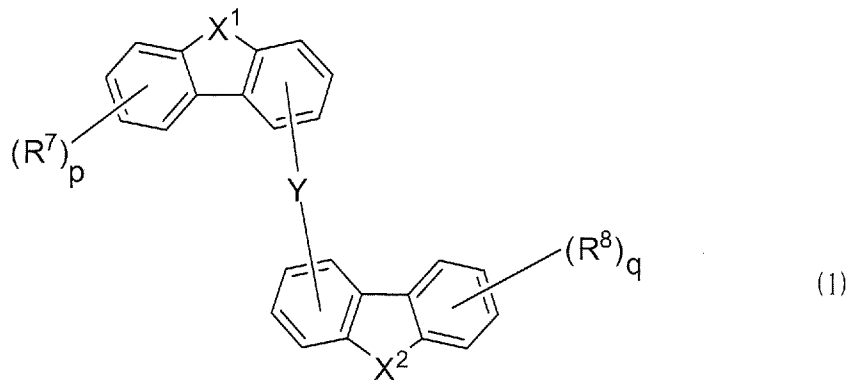
#### 発明が解決しようとする課題

[0008] 有機EL素子をフラットパネルディスプレイ等の表示素子に応用するためには、素子の発光効率を改善すると同時に駆動時の安定性を十分に確保する必要がある。本発明は、上記現状に鑑み、低電圧でありながら高効率かつ高い駆動安定性を有した実用上有用な有機EL素子を提供することを目的とする。

## 課題を解決するための手段

[0009] 本発明は、基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子において、該有機層の少なくとも1層に、(i)下記一般式(1)で表される化合物と、(ii)下記一般式(2)で表される化合物を含むことを特徴とする有機電界発光素子に関する。

[0010] [化1]



[0011] ここで、 $X^1$ 及び $X^2$ は $NR^1$ 、 $PR^2$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $Se$ 、 $CR^3R^4$ 、又は $SiR^5R^6$ を示し、互いに同一であっても異なってもよい。

$Y$ は単結合、又は2価の基を示し、2価の基は、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基（カルバゾール基を除く）、又はこれらの芳香族環（これら置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の芳香族複素環基の芳香族環を意味する。）が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基である。ここで、カルバゾール基を除く場合のカルバゾール基は、カルバゾール環を含有する基であると解される。

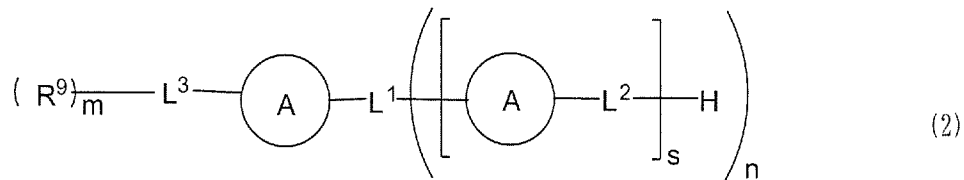
$R^1$ ～ $R^6$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示す。

[0012]  $R^7$ 及び $R^8$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化

水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3～30 の芳香族複素環基、これらの芳香族環が 2～6 連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基、炭素数 1～20 のアルキル基、炭素数 7～38 のアラルキル基、炭素数 2～20 のアルケニル基、炭素数 2～20 のアルキニル基、炭素数 2～40 のジアルキルアミノ基、炭素数 12～44 のジアリールアミノ基、炭素数 14～76 のジアラルキルアミノ基、炭素数 2～20 のアシル基、炭素数 2～20 のアシルオキシ基、炭素数 1～20 のアルコキシ基、炭素数 2～20 のアルコキシカルボニル基、炭素数 2～20 のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数 1～20 のアルキルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、又はトシル基を示す。

p、q は置換数であり、独立に 0～7 の整数である。

[0013] [化2]



[0014] ここで、環 A は式 (a1) 又は式 (b1) で表される  $C_2B_{10}H_{10}$  の 2 価のカルボラン基を示し、分子内に環 A が複数存在する場合は同一であっても異なってもよい。s は繰り返し数であり、0～2 の整数であり、n、m は置換数であり、n は 1 又は 2 の整数、m は 0～4 の整数である。

$L^1$  は、単結合、又は  $n+1$  価の基である。  $n+1$  価の基は、置換若しくは未置換の炭素数 6～30 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3～30 の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が 2～6 つ連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基である。但し、 $n=1$  かつ  $s=$

1 の場合は、単結合、芳香族複素環基、又は少なくとも1つの芳香族複素環基を含む連結芳香族基である。

$L^2$  は独立に、単結合、又は2価の基である。2価の基は置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～6つ連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基である。

$L^3$  は、 $m+1$  価の基であり、未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基を表す。

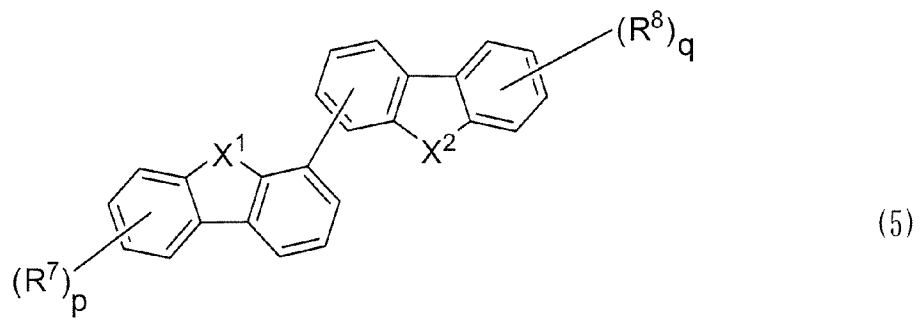
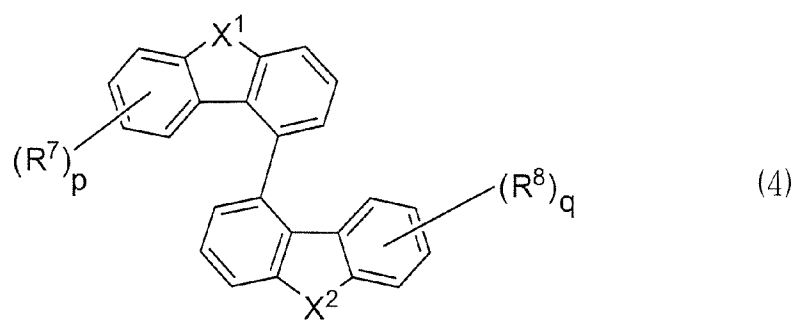
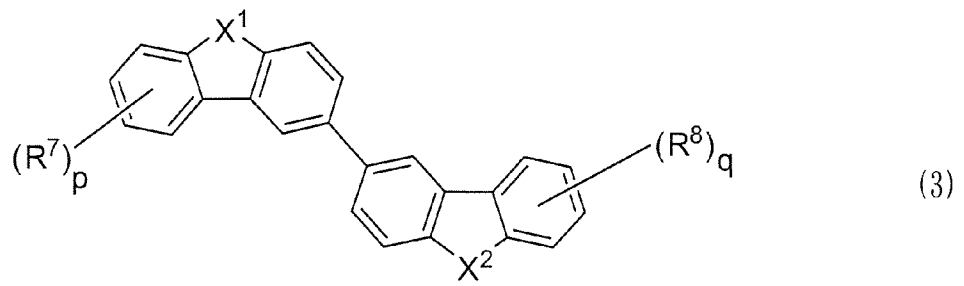
$R^9$  は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、これら置換若しくは未置換の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数7～38のアラルキル基、炭素数2～20のアルケニル基、炭素数2～20のアルキニル基、炭素数2～40のジアルキルアミノ基、炭素数12～44のジアリールアミノ基、炭素数14～76のジアラルキルアミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数2～20のアシルオキシ基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数2～20のアルコキシカルボニル基、炭素数2～20のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数1～20のアルキルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、又はトシル基から選ばれる基であり、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、トシル基以外の基である場合は、更に置換基を有してもよい。

[0015] 一般式(1)において、 $X^1$ 及び $X^2$ が $NR^1$ 、O、Sであること、 $p$ 及び $q$ が0～3の整数であることが好ましい。ここで、 $R^1$ は、一般式(1)と同意である。

[0016] 一般式(1)の好ましい態様をとして、下記式(3)～(7)がある。

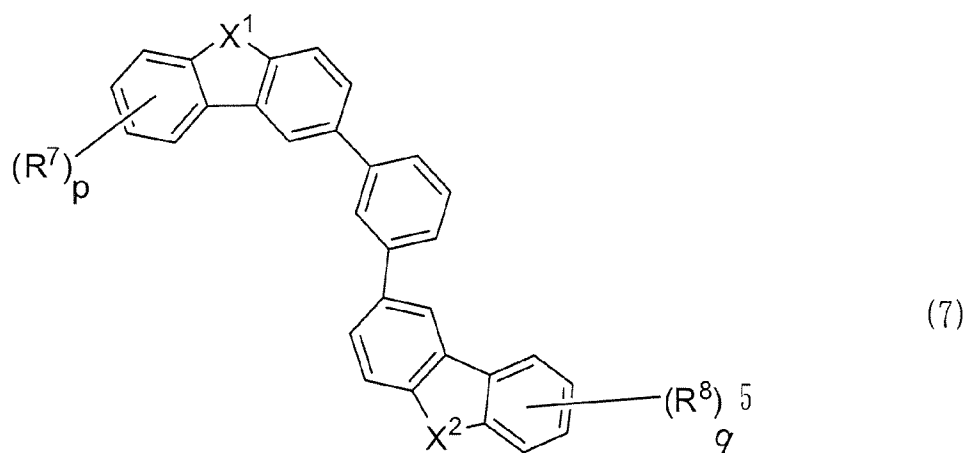
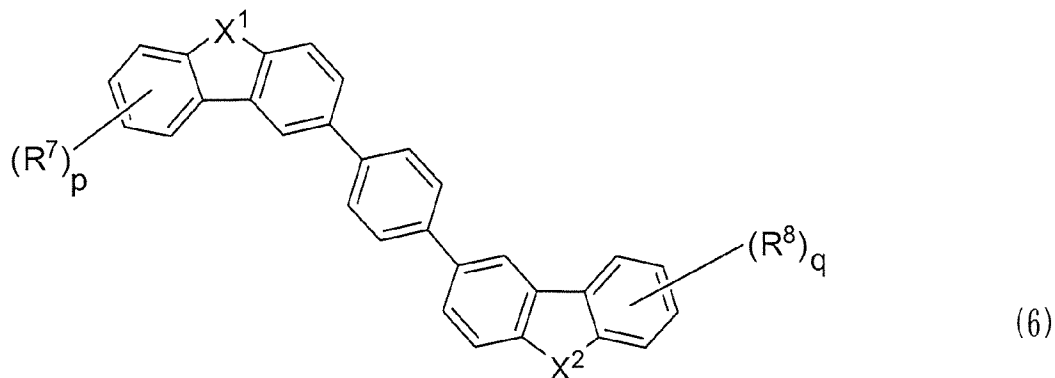
[0017]

[化3]



[0018]

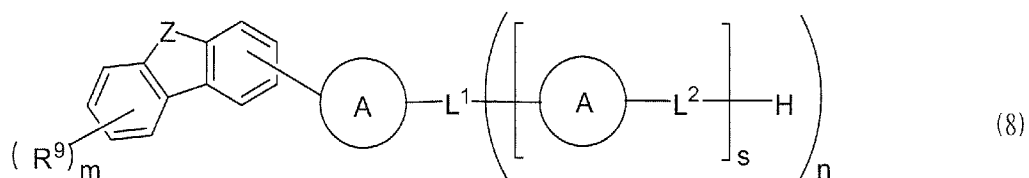
[化4]



[0019] ここで、 $X^1$ 、 $X^2$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $p$ 及び $q$ は、一般式(1)の $X^1$ 、 $X^2$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $p$ 及び $q$ と同意である。

[0020] 一般式(2)の好ましい態様として、下記式(8)がある。

[0021] [化5]



[0022] ここで、 $Z$ は $NR^{10}$ 、 $PR^{11}$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $Se$ 、 $CR^{12}R^{13}$ 、又は $SiR^{14}R^{15}$ を示し、 $R^{10} \sim R^{15}$ は一般式(1)の $R^1 \sim R^6$ と同意である。環A、R

9、 $L^1$ 、 $L^2$ 、 $s$ 、 $m$ 、及び $n$ は一般式(2)と同意である。

[0023] 一般式(2)において、環Aが、式(a1)で表される $C_2B_{10}H_{10}$ の2価のカルボラン基であること、 $L^1$ と $L^3$ の環Aに直接結合する芳香環が同一であることがよい。

また、一般式(1)で表される化合物と、一般式(2)で表される化合物の少なくとも2種の化合物を含む有機層が、発光性ドーパントを含有する発光層、電子阻止層、および正孔阻止層からなる群れから選ばれる少なくとも一つの層であること、又はこの有機層が、発光性ドーパントを含有する発光層であって、上記2種又は2種以上の化合物をホスト材料として含有することが好ましい。

[0024] 更に、発光性ドーパントが遅延蛍光発光性ドーパントであること、又はルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金から選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体であることが好ましい。

[0025] 素子特性向上のためには、有機層に使用する材料の電荷に対する耐久性が高いことが必要であり、特に発光層においては周辺層への励起子および電荷の漏れを抑えることが重要である。この電荷/励起子の漏れ抑制には発光層中における発光領域の偏りの改善が有効で、そのためには両電荷(電子/正孔)注入量を好ましい範囲に制御することが必要である。

ここで、一般式(1)で代表されるビスカルバゾール化合物は、骨格の安定性が高く、異性体や置換基によって電子/正孔注入輸送性をある程度制御することができるが単独では、上述のように両電荷注入量を好ましい範囲に制御するのは難しい。一方で、一般式(2)で表されるカルボラン化合物は、電子注入輸送性に影響を与える最低空軌道(LUMO)が分子全体に広く分布していることから素子の電子注入輸送性が高いレベルで制御でき、加えてビスカルバゾール化合物と同様に骨格安定性が高いため、カルボラン化合物とビスカルバゾール化合物を混合して用いることで、有機層への電荷注入量を精密に調節することができる。特に、発光層に使用した場合は、両電荷注

入量のバランスを調整でき、遅延蛍光発光EL素子や燐光発光EL素子の場合にあっては、発光層で生成する励起エネルギーを閉じ込めるのに十分高い最低励起三重項エネルギーを有していることから、発光層内からのエネルギー流出がなく、低電圧で高効率かつ長寿命を達成できる。

### 図面の簡単な説明

[0026] [図1]有機EL素子の一例を示した模式断面図である。

### 発明を実施するための形態

[0027] 本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子において、該有機層の少なくとも1層に、(i)一般式(1)で表される化合物と、(ii)一般式(2)で表される化合物を含む。なお、一般式(1)及び一般式(2)の化合物は、それぞれ1種であってもよく、2種以上の化合物であってもよい。一般式(1)で表される化合物(ビスカルバゾール化合物ともいう。)の割合が、一般式(1)で表される化合物と一般式(2)で表される化合物(カルボラン化合物ともいう。)の合計に対し、30wt%以上であることが望ましい。より好ましくは35~95wt%であり、更に好ましくは40~90wt%である。

[0028] 前記一般式(1)と式(3)~(7)について説明する。一般式(1)と式(3)~(7)において、共通する記号は同じ意味を有する。

$X^1$ 及び $X^2$ は、 $NR^1$ 、 $PR^2$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $Se$ 、 $CR^3R^4$ 、又は $SiR^5R^6$ を示し、互いに同一であっても異なってもよい。このうち、 $X^1$ 及び $X^2$ が $NR^1$ 、 $O$ 、 $S$ であることが好ましい。

[0029]  $p$ 及び $q$ は置換数であり、独立に0~7の整数を示す。好ましくは0~5であり、より好ましくは0~3である。

[0030] 一般式(1)において、 $Y$ は、単結合、2価の置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~30のカルバゾール基以外の芳香族複素環基、又はこれらの置換若しくは未置換の芳香族環が2~6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示す。好ましくは単結合、置換若しくは未置換の6~18の芳香族炭化水素基、置換

若しくは未置換の炭素数3～17のカルバゾール基以外の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、より好ましくは単結合もしくはフェニル基である。ここで、芳香族複素環基からカルバゾール基を除く場合のカルバゾール基は、カルバゾール基に置換基を有してもよい。

連結芳香族基は上記芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基の芳香族環が2～6つ直接結合で連結した構成される基であり、上記芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基が有すると同様な置換基を有してもよい。

芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び連結芳香族基を総称して芳香族基類という。

[0031] 一般式(1)及び式(3)～(7)において、 $R^1$ ～ $R^6$ は、独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれら置換若しくは未置換の芳香族環が2～6連結してなる連結芳香族基を示す。好ましくは、置換若しくは未置換の6～18の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれら置換若しくは未置換の芳香族環が2～5連結してなる連結芳香族基である。

[0032]  $Y$ 及び $R^1$ ～ $R^6$ が、未置換の芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、又は連結芳香族基の場合の具体例としては、ベンゼン、ペンタレン、インデン、ナフタレン、フルオレン、アズレン、ヘプタレン、オクタレン、インダセン、アセナフチレン、フェナレン、フェナンスレン、アントラセン、トリンデン、フルオランテン、アセフェナントリレン、アセアントリレン、トリフェニレン、ピレン、クリセン、テトラフェン、テトラセン、プレイアデン、ピセン、ペリレン、ペンタフェン、ペンタセン、テトラフェニレン、コラントリレン、ヘリセン、ヘキサフェン、ルピセン、コロネン、トリナフチレン、ヘプタフェン、ピラントレン等の芳香族炭化水素化合物、フラン、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、キサントレン、オキサトレン、ジベンゾフラン、ペリキサントレン、チオフェン、チオキサントレン、チアントレン、フェ

ノキサチン、チオナフテン、イソチアナフテン、チオフテン、チオファン  
トレン、ジベンゾチオフエン、ピロール、ピラゾール、テルラゾール、セレ  
ナゾール、チアゾール、イソチアゾール、オキサゾール、フラザン、ピリジ  
ン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インドリジン、イン  
ドール、イソインドール、インダゾール、プリン、キノリジン、イソキノリ  
ン、カルバゾール、イミダゾール、ナフチリジン、フタラジン、キナゾリン  
、アゼピン、ベンゾジアゼピン、トリベンゾアゼピン、キノキサリン、シン  
ノリン、キノリン、プテリジン、フェナントリジン、アクリジン、ペリミジ  
ン、フェナントロリン、フェナジン、カルボリン、フェノテルラジン、フェ  
ノセレナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、アンチリジン、ベンゾチ  
アゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾイソオキサゾ  
ール、ベンゾイソチアゾール、ジベンゾホスホール、ジベンゾボロール等の  
芳香族複素環化合物、又はこれら芳香族化合物の芳香族環が複数連結された  
芳香族化合物から水素を除いて生じる連結芳香族基が挙げられる。

好ましくはベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フルオレン、フェナン  
トレン、トリフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、ジベンゾフ  
ラン、ジベンゾチオフエン、又はカルバゾールから水素を除いて生じる基、  
又はこれら芳香族化合物の芳香族環が複数連結された芳香族化合物から水素  
を除いて生じる連結芳香族基が挙げられる。但し、Yはカルバゾール基を含  
むことは無い。

[0033] これら芳香族基類が置換基を有する場合の置換基は、炭素数1～20のアル  
キル基、炭素数7～38のアラルキル基、炭素数2～20のアルケニル基  
、炭素数2～20のアルキニル基、炭素数2～40のジアルキルアミノ基、  
炭素数12～44のジアリールアミノ基、炭素数14～76のジアラルキル  
アミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数2～20のアシルオキシ基、  
炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数2～20のアルコキシカルボニル基  
、炭素数2～20のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数1～20のアル  
キルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、又はトシル基であり

、好ましくは炭素数1～12のアルキル基、炭素数7～20のアラルキル基、炭素数12～30のジアリールアミノ基、炭素数1～10のアルコキシ基、シアノ基、フルオロ基、又はトシル基である。なお、アルキル基は、直鎖状、分岐状、環状であってもよい。

[0034] 上記置換基の具体例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、シクロペンチル、ヘキシル、シクロヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ウンデシル、ドデシル、トリデシル、テトラデシル、ペンタデシル、ヘキサデシル、ヘプタデシル、オクタデシル、ノナデシル、イコシル等のアルキル基、フェニルメチル、フェニルエチル、フェニルイコシル、ナフチルメチル、アントラニルメチル、フェナンスレニルメチル、ピレニルメチル等のアラルキル基、ビニル、プロペニル、ブテニル、ペンテニル、デセニル、イコセニル等のアルケニル基、エチニル、プロパルギル、ブチニル、ペンチニル、デシニル、イコシニル等のアルキニル基、ジメチルアミノ、エチルメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジプロピルアミノ、ジブチルアミノ、ジペンチルアミノ、ジデシルアミノ、ジイコシルアミノ等のジアルキルアミノ基、ジフェニルアミノ、ナフチルフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、ジアントラニルアミノ、ジフェナンスレニルアミノ、ジピレニルアミノ等のジアリールアミノ基、ジフェニルメチルアミノ、ジフェニルエチルアミノ、フェニルメチルフェニルエチルアミノ、ジナフチルメチルアミノ、ジアントラニルメチルアミノ、ジフェナンスレニルメチルアミノ等のジアラルキルアミノ基、アセチル、プロピオニル、ブチリル、バレリル、ベンゾイル等のアシル基、アセチルオキシ、プロピオニルオキシ、ブチリルオキシ、バレリルオキシ、ベンゾイルオキシ等のアシルオキシ基、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペントキシ、ヘキソキシ、ヘプトキシ、オクトキシ、ノニロキシ、デカニロキシ等のアルコキシ基、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、ペントキシカルボニル等のアルコキシカルボニル基、メトキシカルボニルオキシ、エトキシカルボニルオキシ、プロポキシカルボニルオキシ、ブトキシカルボニル

オキシ、ペントキシカルボニルオキシ等のアルコキシカルボニルオキシ基、メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、ブチルスルホニル、ペンチルスルホニル等のアルキルスルホキシ基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、トシル基等が挙げられる。好ましくは、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル等の炭素数1～12のアルキル基、フェニルメチル、フェニルエチル、ナフチルメチル、アントラニルメチル、フェナンスレニルメチル、ピレニルメチル等の炭素数7～20のアラルキル基、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペントキシ、ヘキソキシ、ヘプトキシ、オクトキシ、ノニロキシ、デカニロキシ等の炭素数1～10のアルコキシ基、ジフェニルアミノ、ナフチルフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、ジアントラニルアミノ、ジフェナンスレニルアミノ等の炭素数6～15の芳香族炭化水素基を2つ有するジアリールアミノ基、シアノ基、フルオロ基、トシル基が挙げられる。

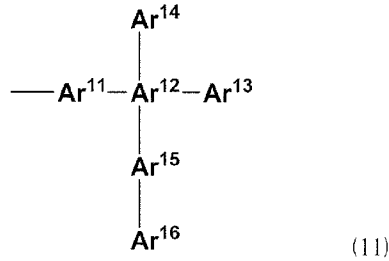
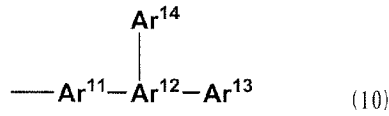
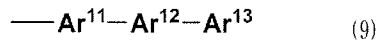
[0035] 本明細書でいう連結芳香族基は、単環又は縮合環構造の芳香族化合物の芳香族環（芳香族炭化水素環、芳香族複素環、又は両者をいう。）が複数連結された基である。芳香族環が連結するとは、芳香族基の芳香環が直接結合で結合して連結することを意味する。芳香族環が置換の芳香族環である場合、置換基が芳香族環であることはない。

連結芳香族基は直鎖状であっても分岐状であってもよく、連結する芳香族環は同一であっても異なってもよく、芳香族炭化水素環と芳香族複素環の一方又は両方を有してもよく、置換基を有してもよい。

[0036] 連結芳香族基が1価の基である場合、例えば下記で示すような連結様式が挙げられる。

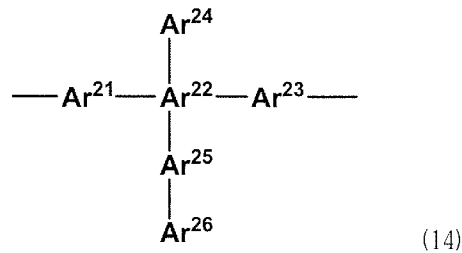
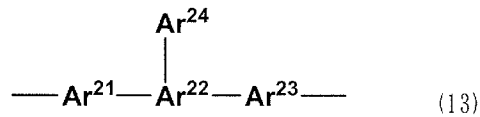
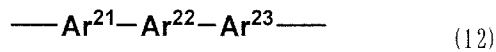
[0037]

[化6]



[0038] 連結芳香族基が2個の基である場合、例えば下記で示すような連結様式が挙げられる。3個以上の基である場合は、上記から理解される。

[0039] [化7]



[0040] 式(9)～(14)中、 $\text{Ar}^{11}\sim\text{Ar}^{16}$ 、 $\text{Ar}^{21}\sim\text{Ar}^{26}$ は置換または未置換の芳香族環(芳香族基)を示し、芳香族環の環構成原子が直接結合で結合する。また、結合手は芳香族環の環構成原子から出る。芳香族環(芳香族基)は芳香族炭化水素基、または芳香族複素環基を意味し、1個以上の基であることができる。

式(9)～(14)では、結合手は $\text{Ar}^{11}$ 、 $\text{Ar}^{21}$ 、又は $\text{Ar}^{23}$ から出ているが、それ以外の芳香族環から出ることにも可能である。また、2個以上の基である場合、1つの芳香族環から2以上の結合手が出てよい。

[0041] 連結芳香族基の具体例としては、例えばビフェニル、ターフェニル、ビピリジン、ビピリミジン、ビトリアジン、ターピリジン、フェニルターフェニル、ビナフタレン、フェニルピリジン、ジフェニルピリジン、フェニルピリミジン、ジフェニルピリミジン、フェニルトリアジン、ジフェニルトリアジン、フェニルナフタレン、ジフェニルナフタレン、カルバゾリルベンゼン、ビスカルバゾリルベンゼン、ビスカルバゾリルトリアジン、ジベンゾフラニルベンゼン、ビスジベンゾフラニルベンゼン、ジベンゾチオフェニルベンゼン、ビスジベンゾチオフェニルベンゼン等の芳香族化合物から1又は1以上の水素を除いて生じる基が挙げられる。

[0042] 上記の連結芳香族基に関する説明は、一般式(1)～(2)及び式(3)～(8)における説明で現れる連結芳香族基に共通する。

[0043]  $R^7$ 及び $R^8$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、これらの芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数7～38のアラルキル基、炭素数2～20のアルケニル基、炭素数2～20のアルキニル基、炭素数2～40のジアルキルアミノ基、炭素数12～44のジアリールアミノ基、炭素数14～76のジアラルキルアミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数2～20のアシルオキシ基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数2～20のアルコキシカルボニル基、炭素数2～20のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数1～20のアルキルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、又はトシル基を示す。好ましくは置換又は未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基、置換又は未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、これら芳香族環が2～5連結してなる置換又は未置換の連結芳香族基、炭素数1～12のアルキル基、炭素数7～20のアラルキル基、炭素数12～30のジアリールアミノ基、炭素数1～10のアルコキシ基、シアノ基、フルオロ基、又はトシル基である。

[0044]  $R^7$ 及び $R^8$ が上記芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、又は連結芳香族基

である場合は、前記R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>で説明した芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び連結芳香族基における説明と同様である。但し、芳香族複素環基はカルバゾール基を含む。

[0045] R<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>が炭素数1～20のアルキル基、炭素数7～38のアラルキル基、炭素数2～20のアルケニル基、炭素数2～20のアルキニル基、炭素数2～40のジアルキルアミノ基、炭素数12～44のジアリールアミノ基、炭素数14～76のジアラルキルアミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数2～20のアシルオキシ基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数2～20のアルコキシカルボニル基、炭素数2～20のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数1～20のアルキルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、トシル基である場合は、前記R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>で説明した芳香族基類の置換基における説明と同様である。

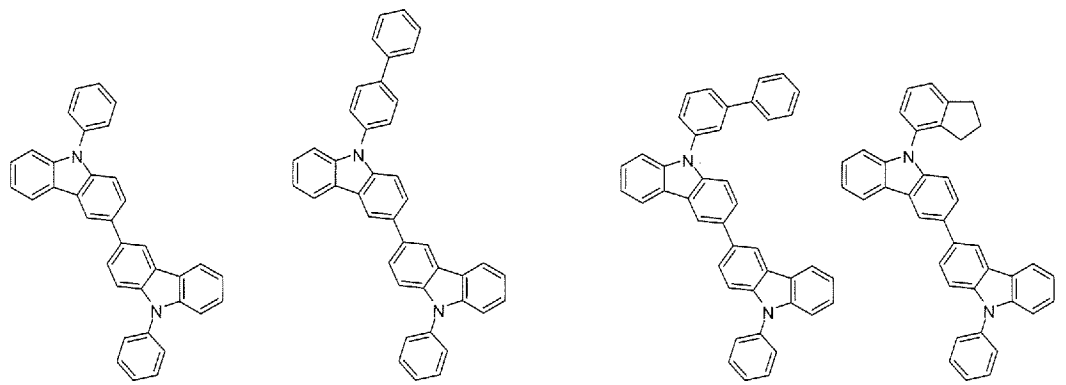
R<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>がシアノ基、ニトロ基、フルオロ基、トシル基以外の基である場合は、更に置換基を有しても良く、その置換基は、前記R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>で説明した芳香族基類の置換基における説明と同様である。なお、置換基の数は0～5、好ましくは0～2である。

[0046] 本明細書において、炭素数の計算は置換基の炭素数を含まないと理解される。しかし、置換基の炭素数を含む総炭素数が、上記炭素数の範囲にあることが好ましいと言える。連結芳香族基の炭素数は、連結する芳香族炭化水素基、芳香族複素環基が有する炭素数の合計と理解される。

[0047] 一般式(1)表される化合物の好ましい具体例を以下に示すが、これらに限定するものではない。

[0048]

[化8]

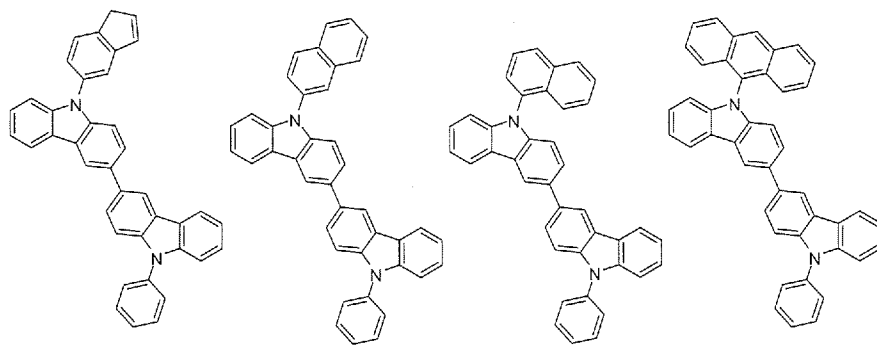


1-1

1-2

1-3

1-4

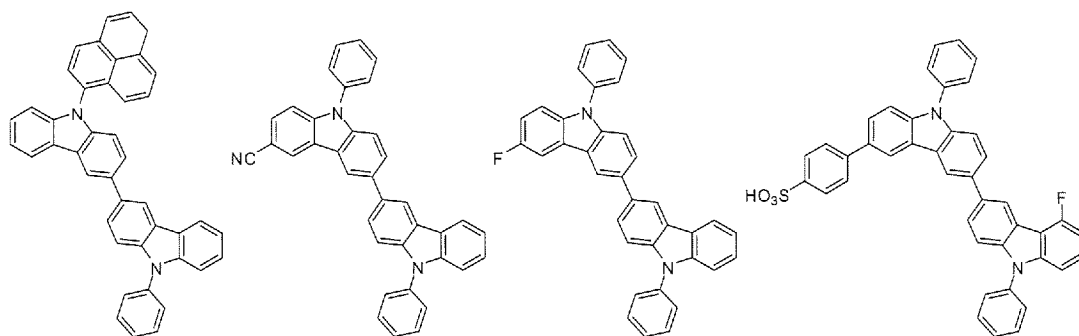


1-5

1-6

1-7

1-8

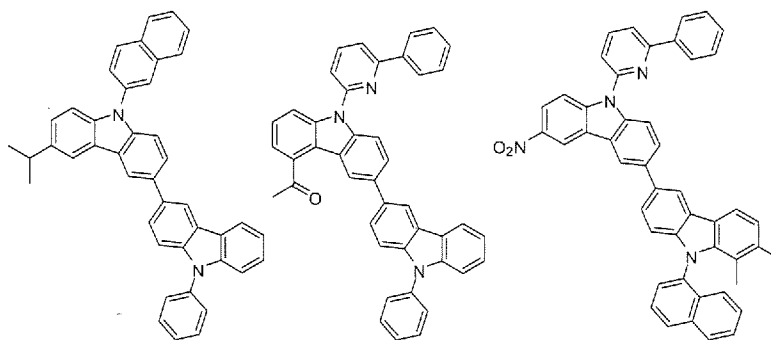


1-9

1-10

1-11

1-12

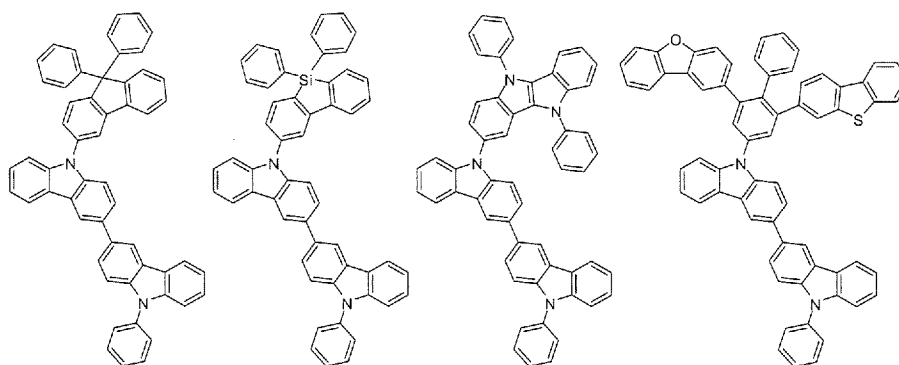
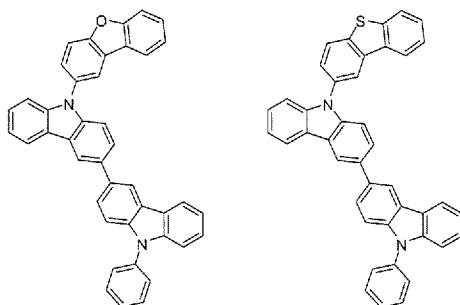
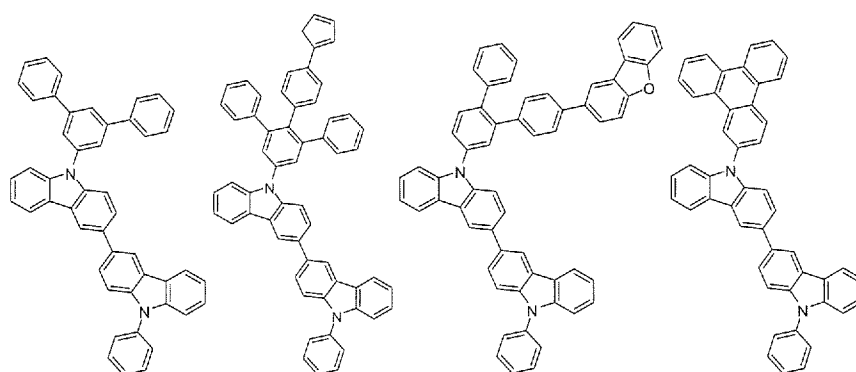
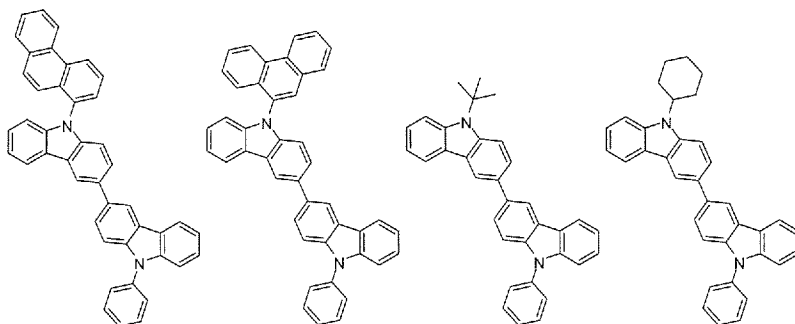


1-13

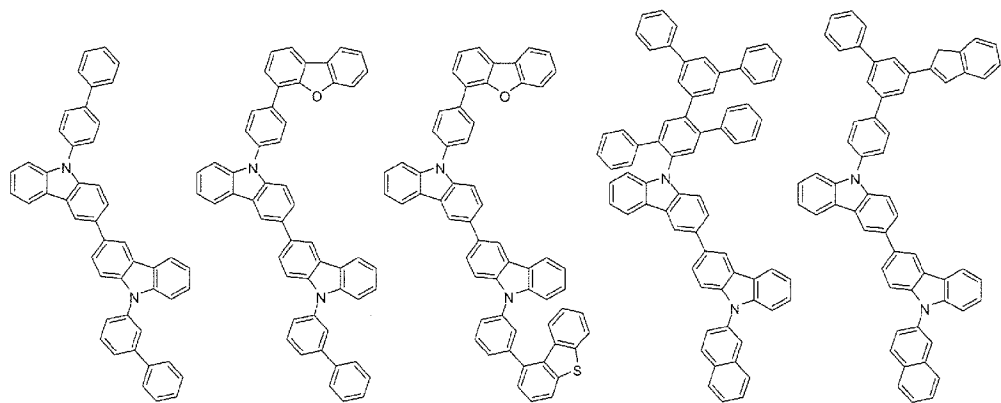
1-14

1-15

[化9]



[化10]



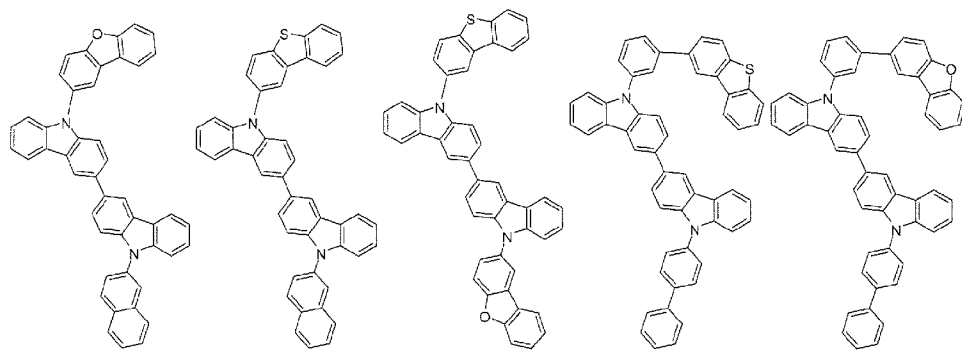
1-31

1-32

1-33

1-34

1-35



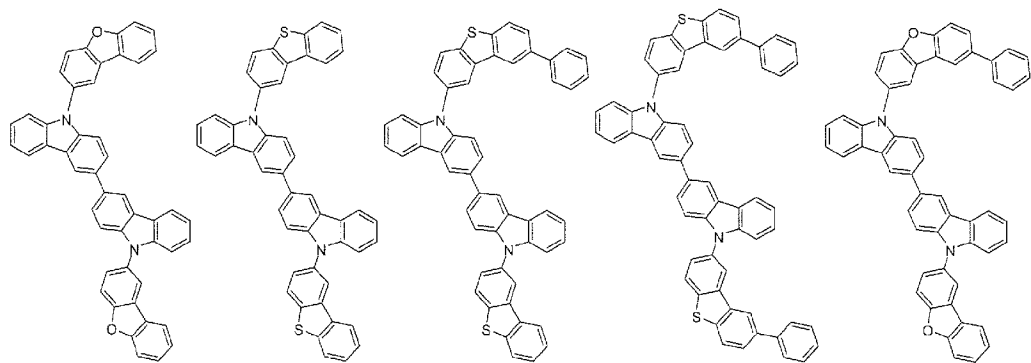
1-36

1-37

1-38

1-39

1-40



1-41

1-42

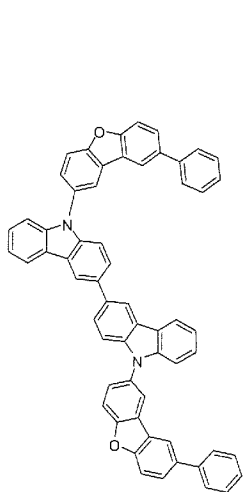
1-43

1-44

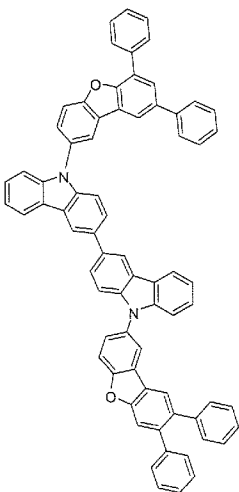
1-45

[0049]

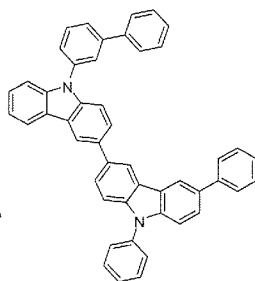
[化11]



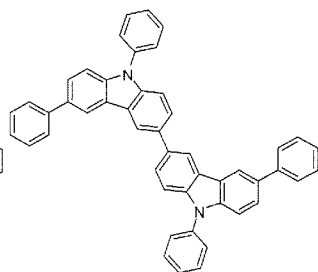
1-46



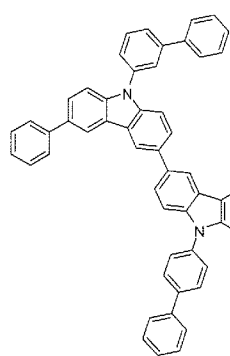
1-47



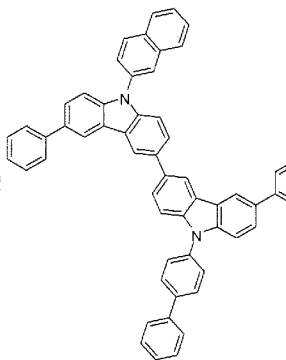
1-48



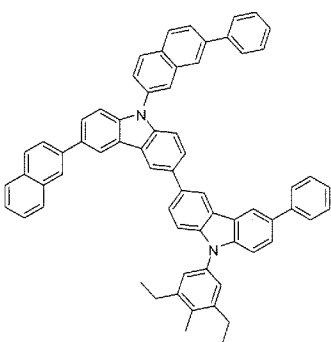
1-49



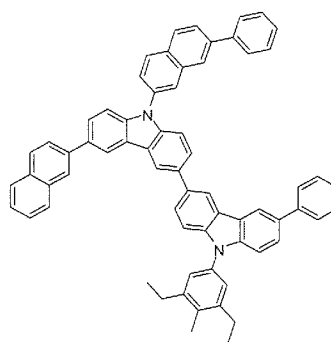
1-50



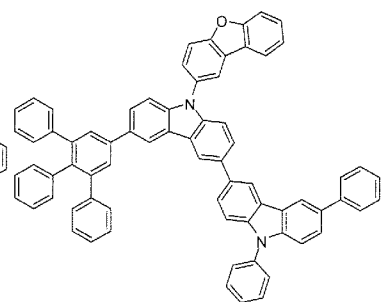
1-51



1-52

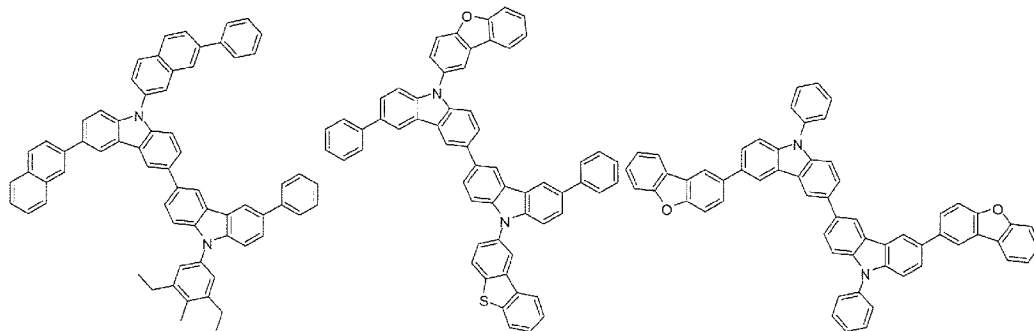


1-53



1-54

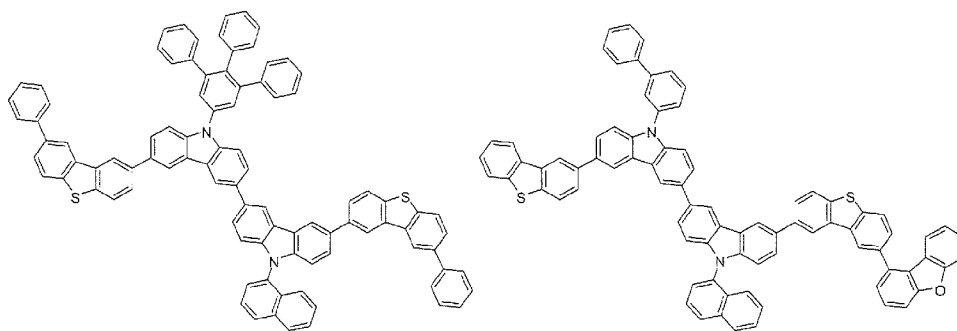
[化12]



1-55

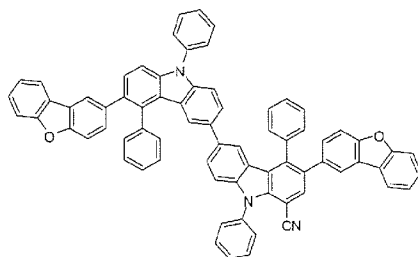
1-56

1-57

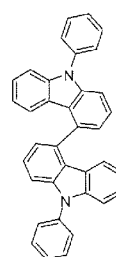


1-58

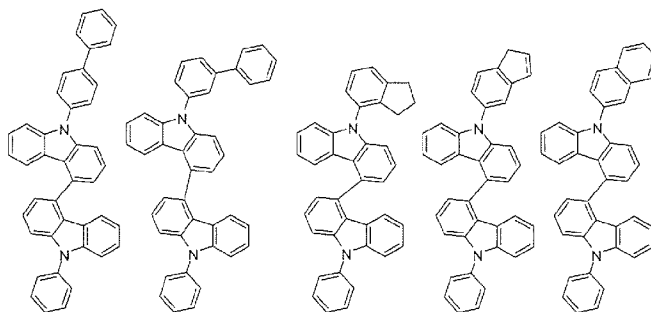
1-59



1-60



1-61



1-62

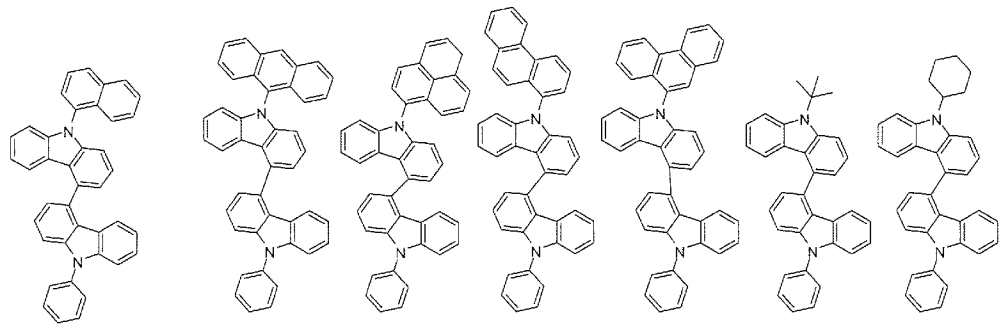
1-63

1-64

1-65

1-66

[化13]



1-67

1-68

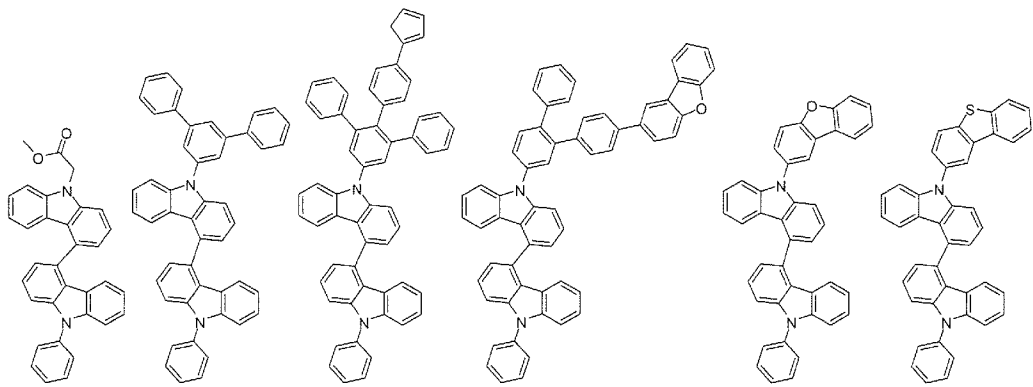
1-69

1-70

1-71

1-72

1-73



1-74

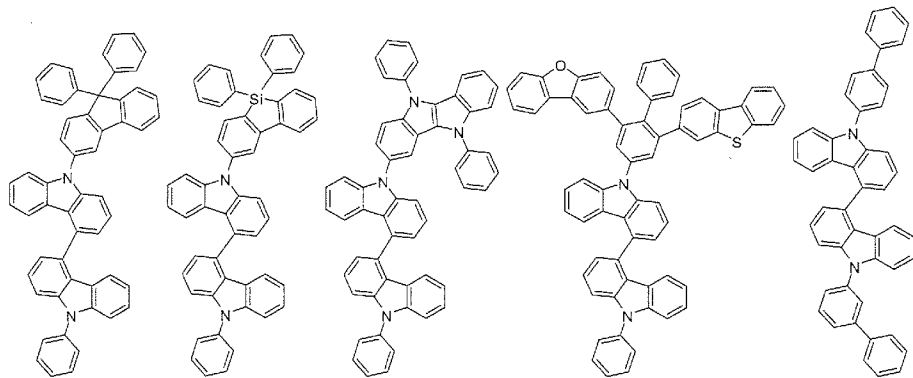
1-75

1-76

1-77

1-78

1-79



1-80

1-81

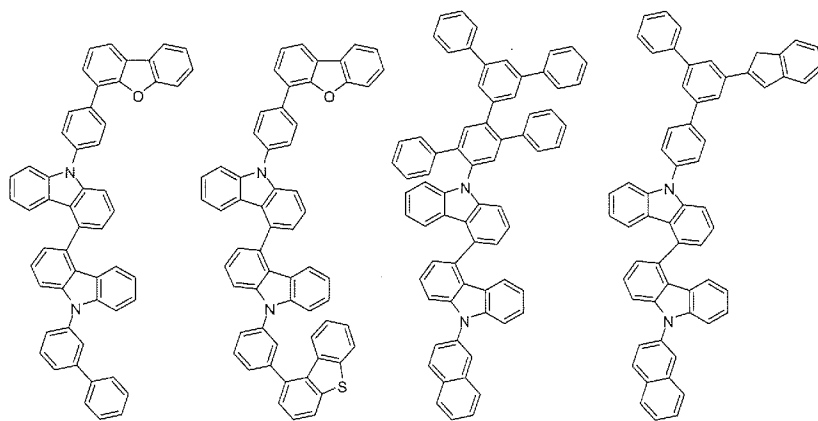
1-82

1-83

1-84

[0050]

[化14]

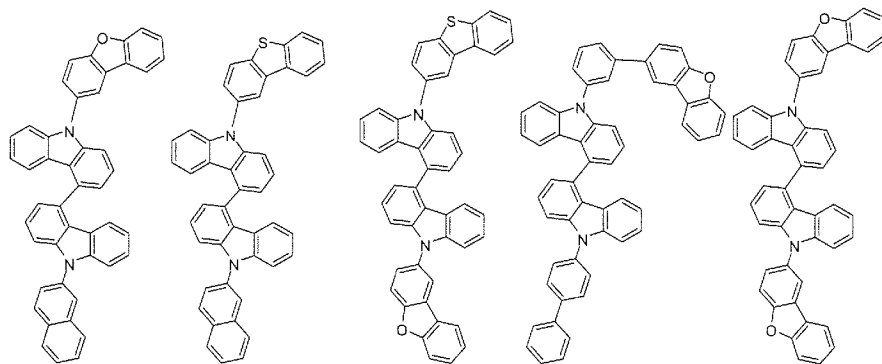


1-85

1-86

1-87

1-88



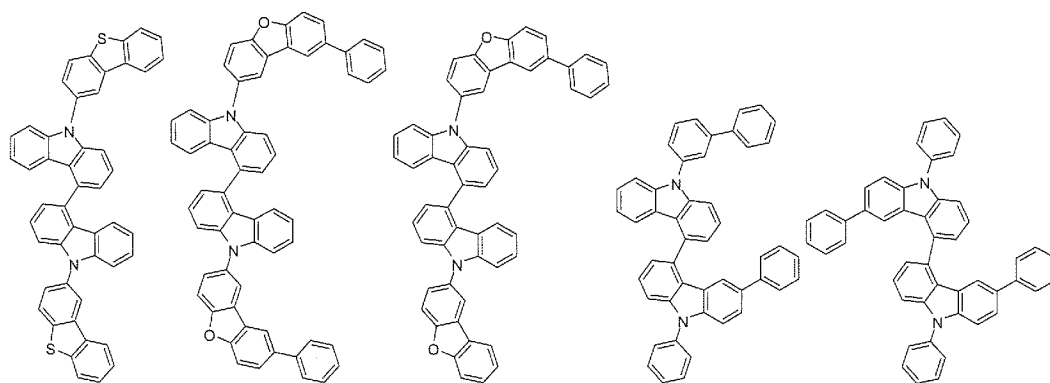
1-89

1-89b

1-90

1-91

1-92



1-93

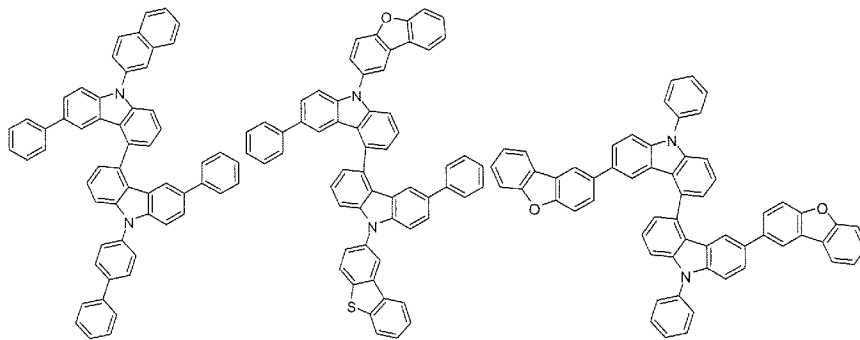
1-94

1-95

1-96

1-97

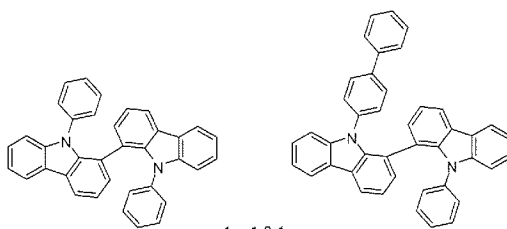
[化15]



1-98

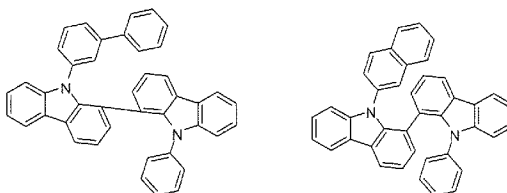
1-99

1-100



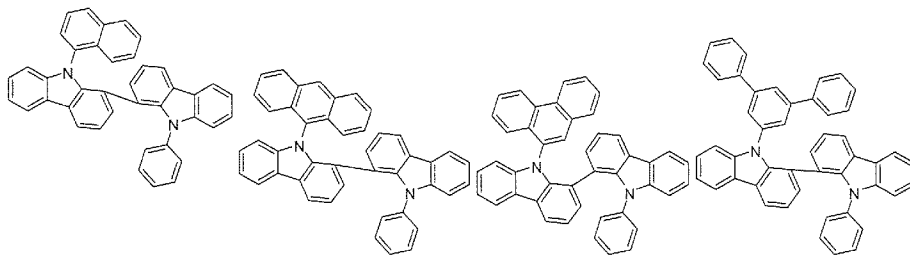
1-101

1-102



1-103

1-104

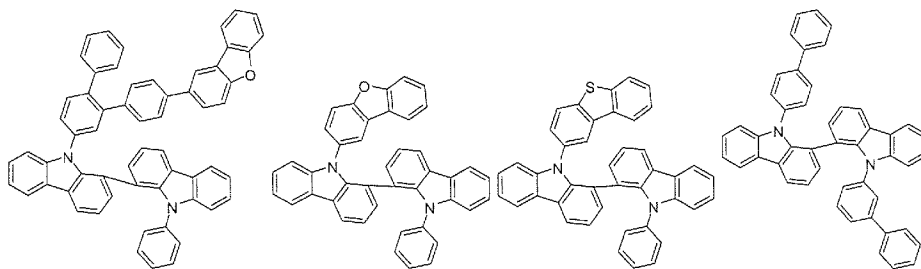


1-105

1-106

1-107

1-108



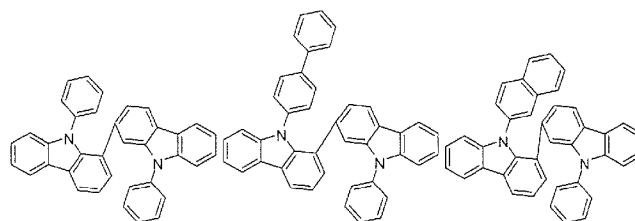
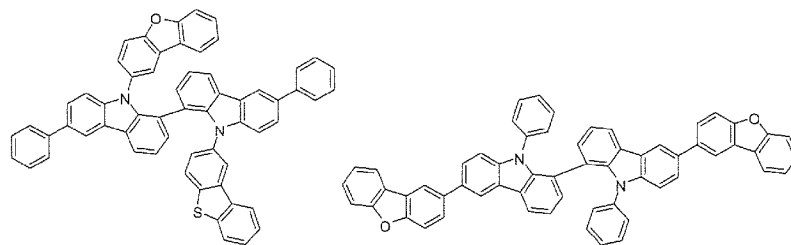
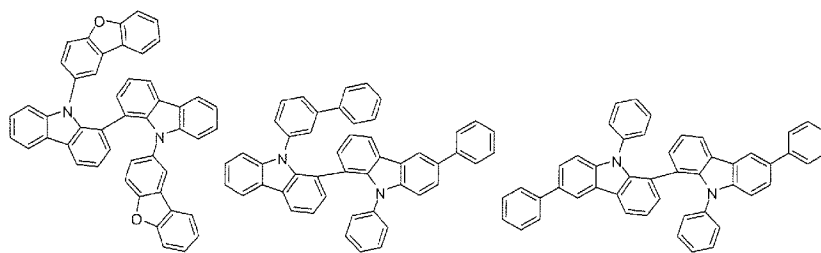
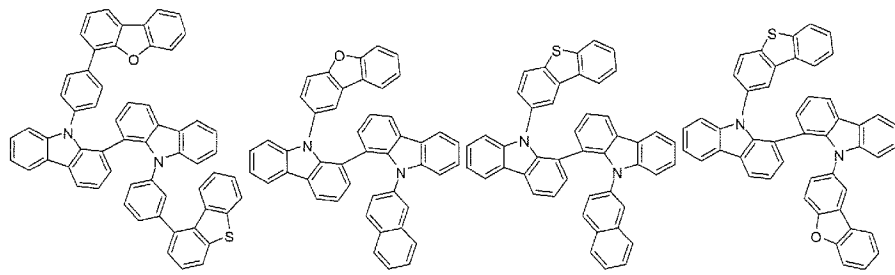
1-109

1-110

1-111

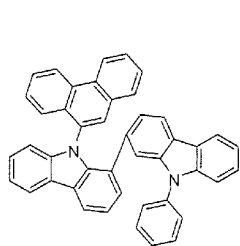
1-112

[化16]

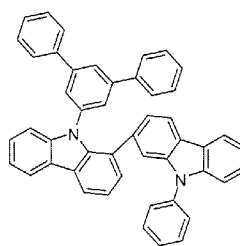


[0051]

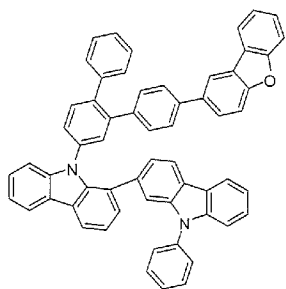
[化17]



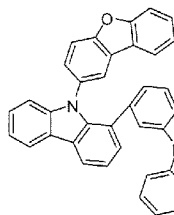
1-125



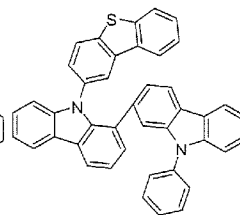
1-126



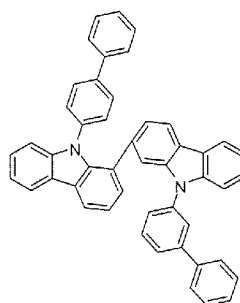
1-127



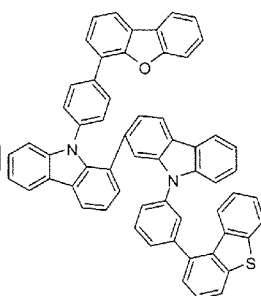
1-128



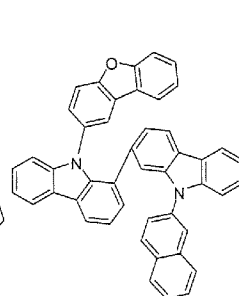
1-129



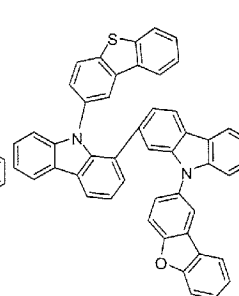
1-130



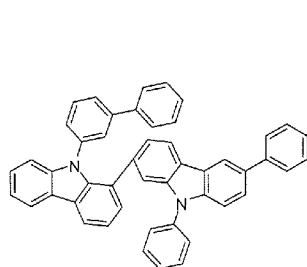
1-131



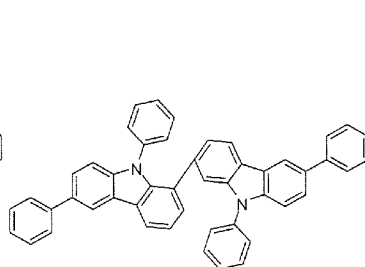
1-132



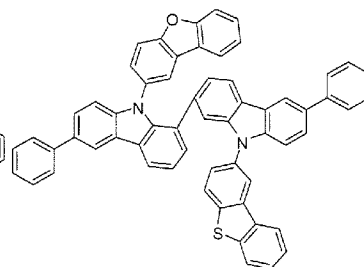
1-133



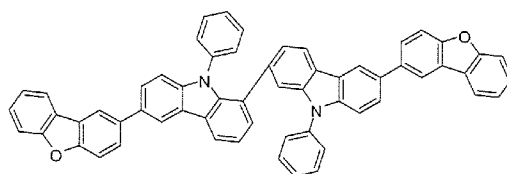
1-134



1-135

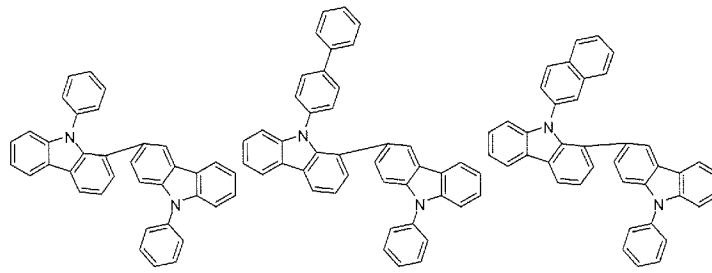


1-136



1-137

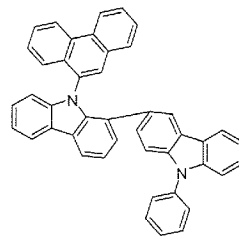
[化18]



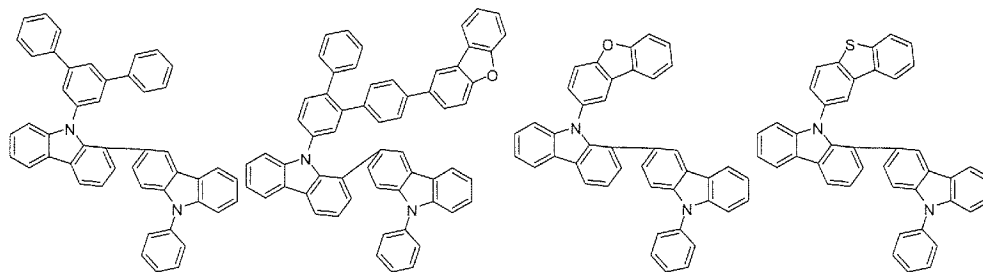
1-138

1-139

1-140



1-141

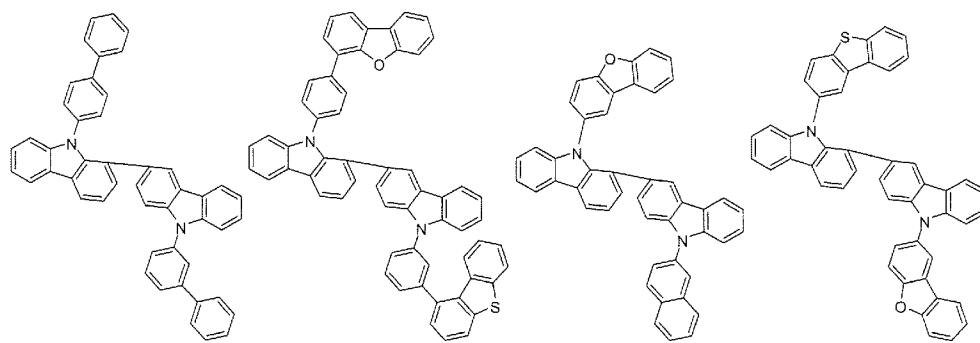


1-142

1-143

1-144

1-145



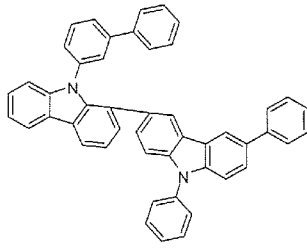
1-146

1-147

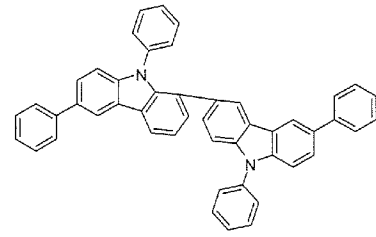
1-148

1-149

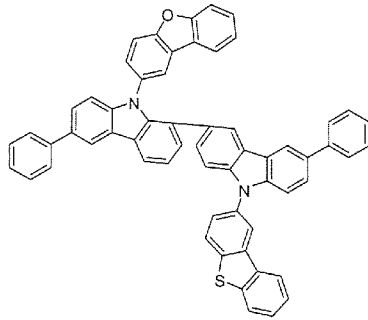
[化19]



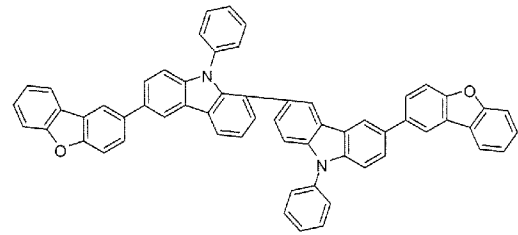
1-150



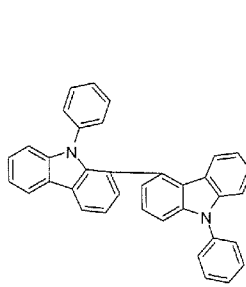
1-151



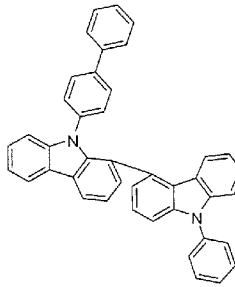
1-152



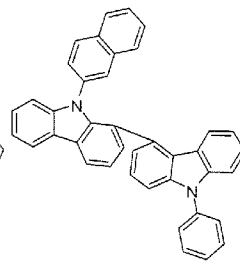
1-153



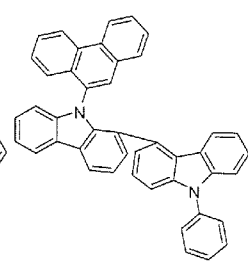
1-154



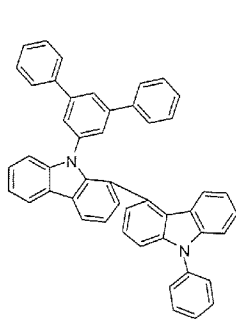
1-155



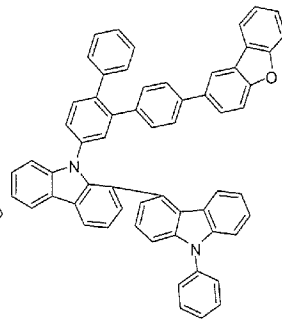
1-156



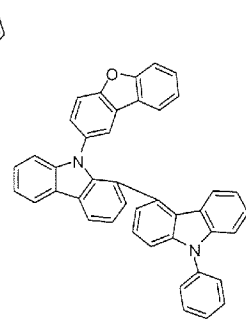
1-157



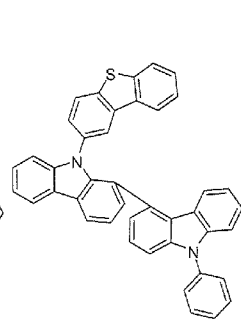
1-158



1-159



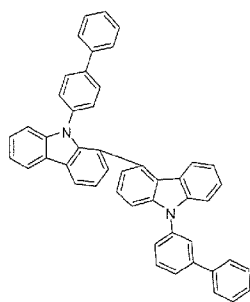
1-160



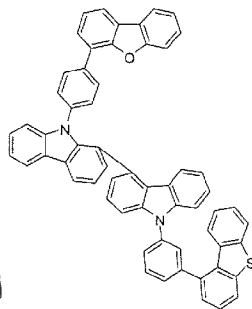
1-161

[0052]

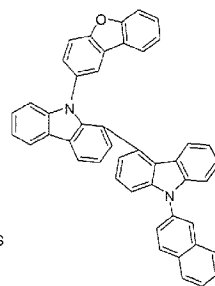
[化20]



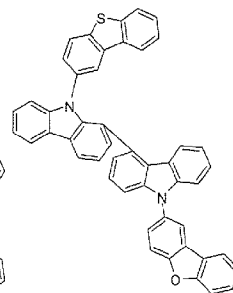
1-162



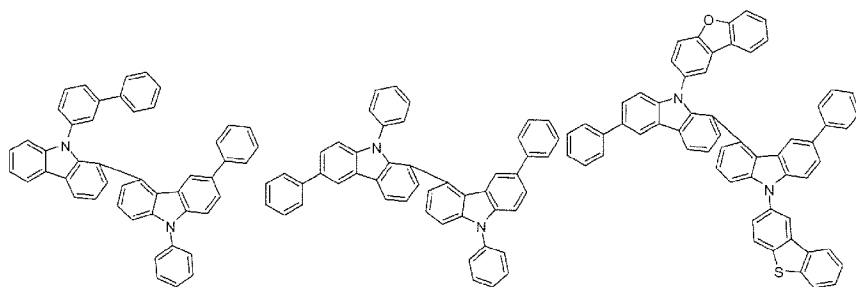
1-163



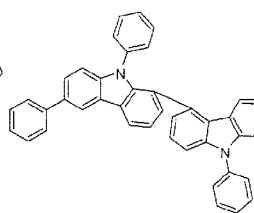
1-164



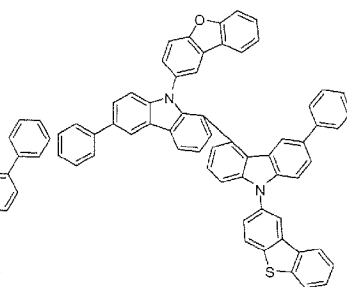
1-165



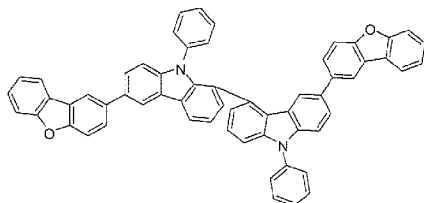
1-166



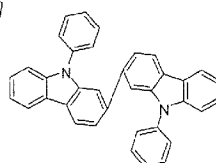
1-167



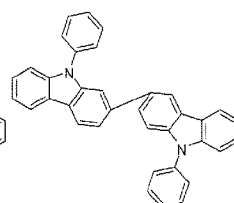
1-168



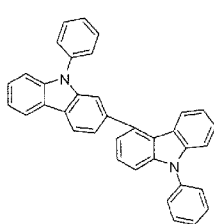
1-169



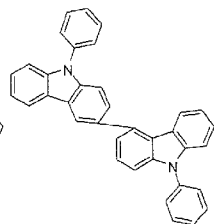
1-170



1-171

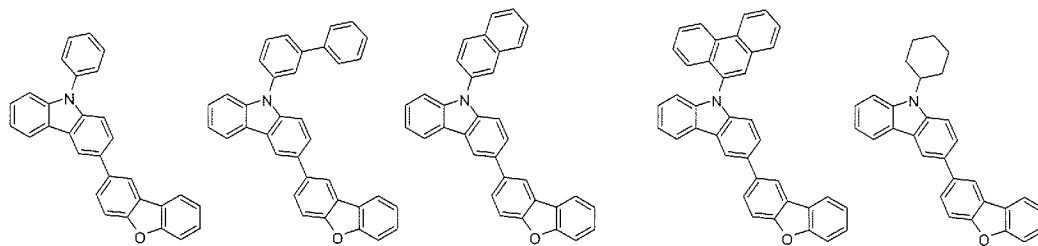


1-172



1-173

[化21]



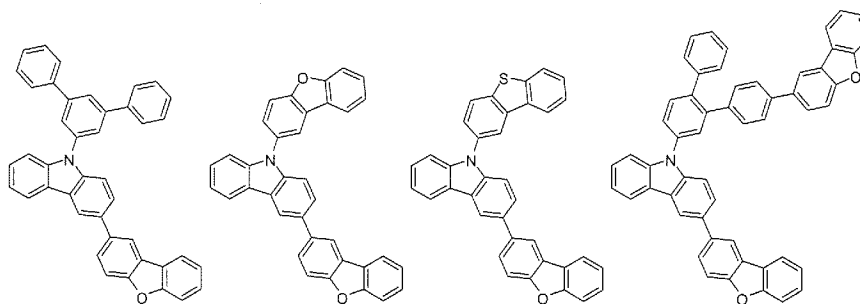
1-174

1-175

1-176

1-177

1-178

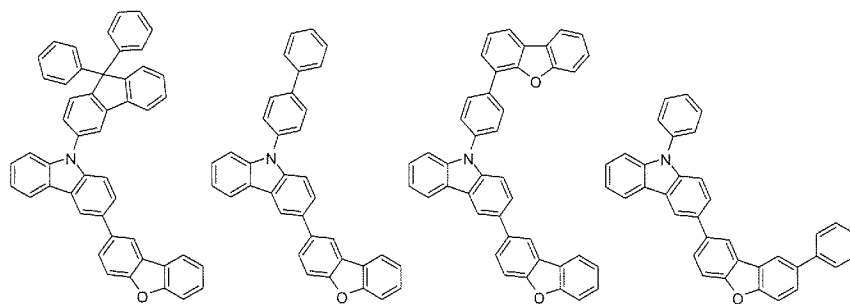


1-179

1-180

1-181

1-182

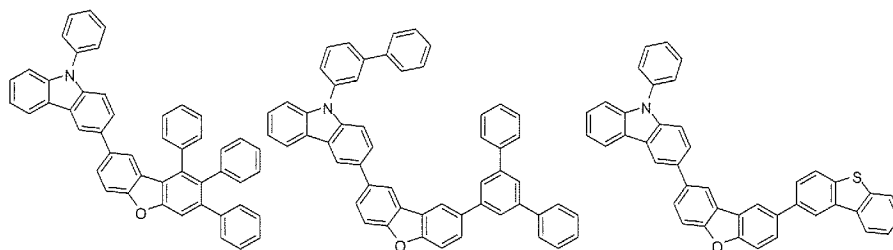


1-183

1-184

1-185

1-186

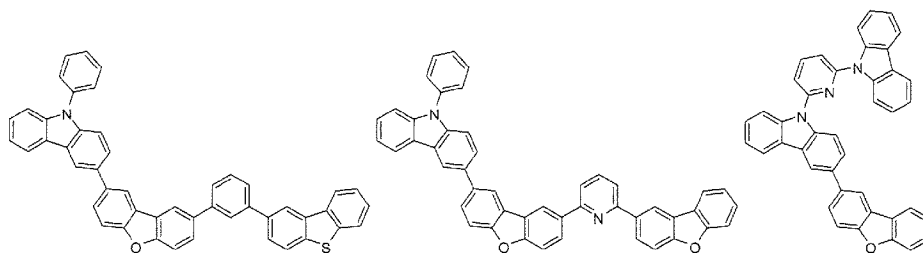


1-187

1-188

1-189

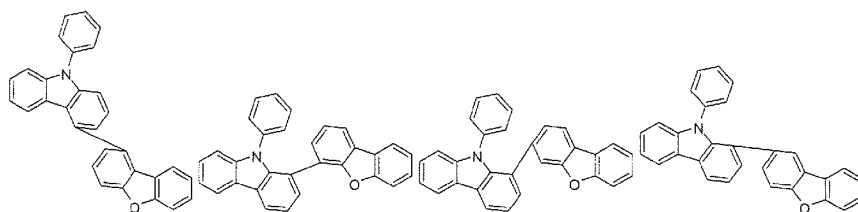
[化22]



1-190

1-191

1-192

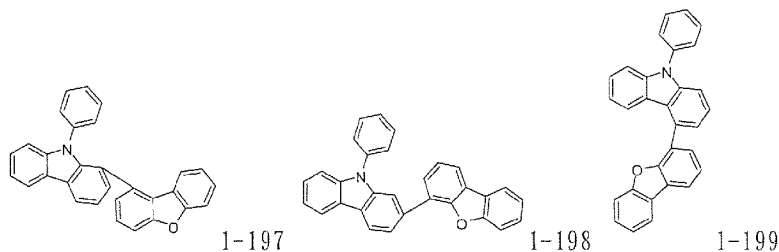


1-193

1-194

1-195

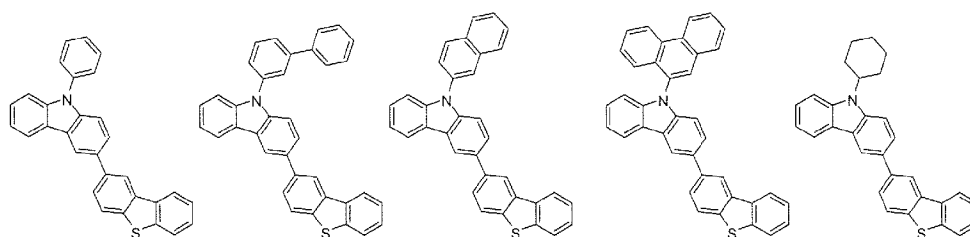
1-196



1-197

1-198

1-199



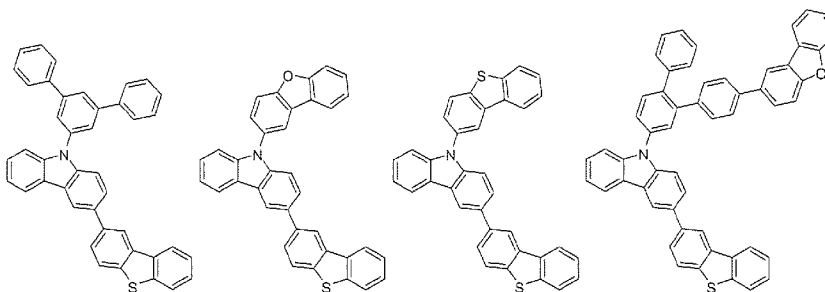
1-200

1-201

1-202

1-203

1-204



1-205

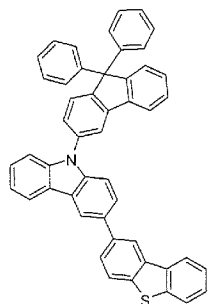
1-206

1-207

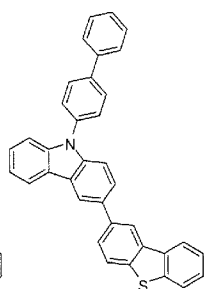
1-208

[0053]

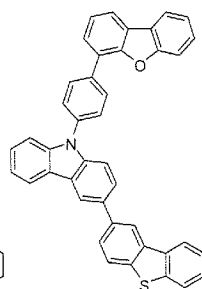
[化23]



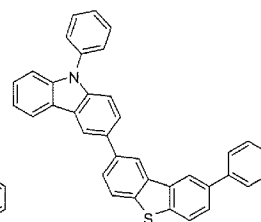
1-209



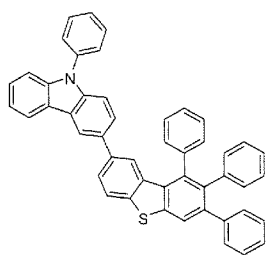
1-21



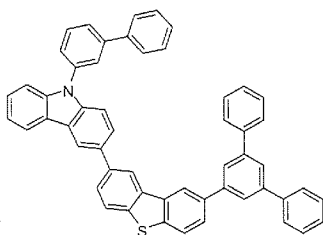
0 1-211



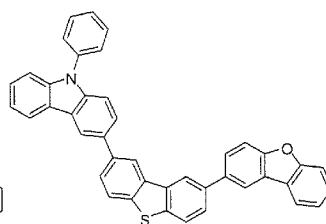
1-212



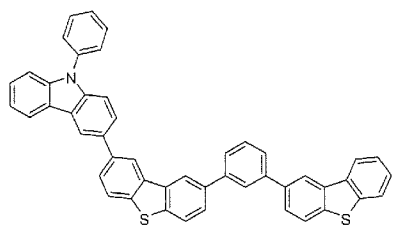
1-213



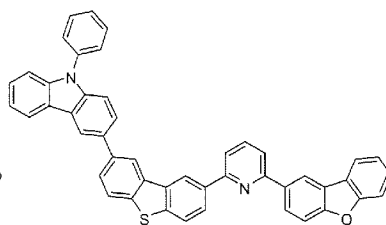
1-214



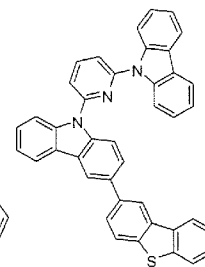
1-215



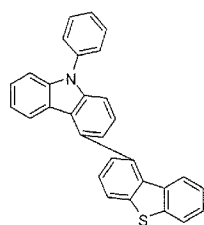
1-216



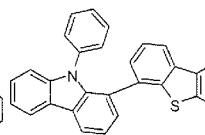
1-217



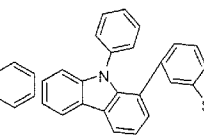
1-218



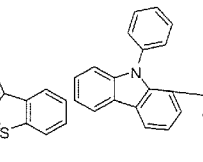
1-219



1-220

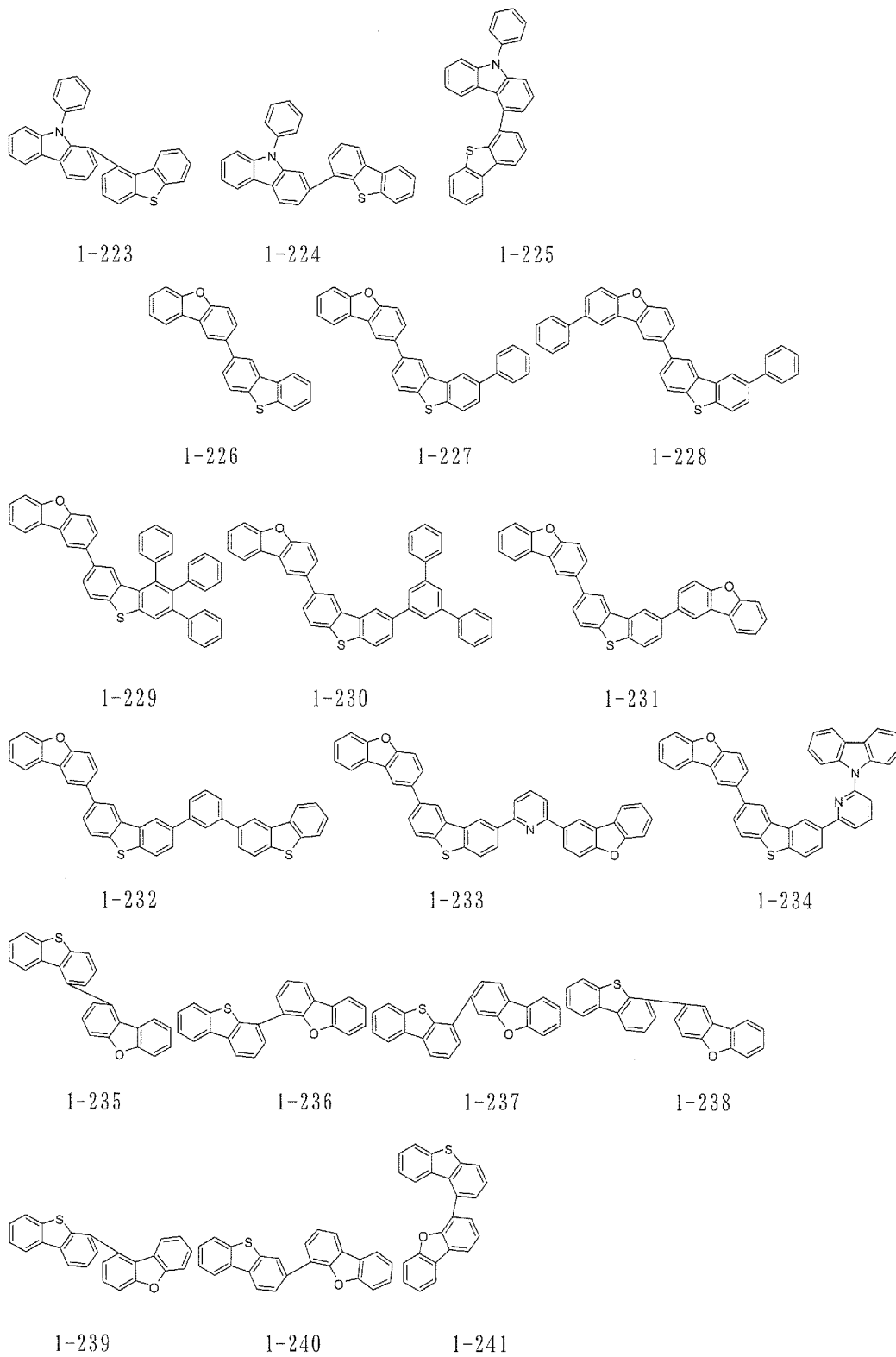


1-221

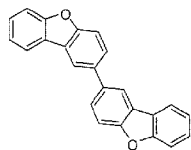


1-222

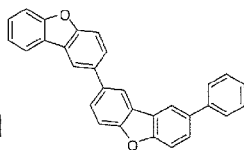
[化24]



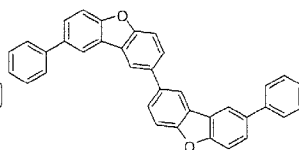
[化25]



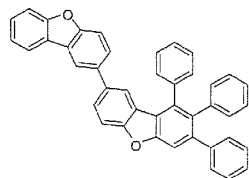
1-242



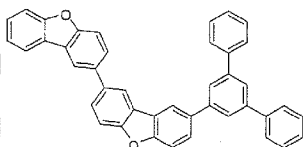
1-243



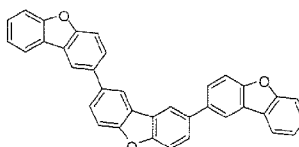
1-244



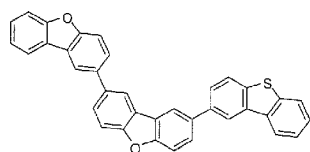
1-245



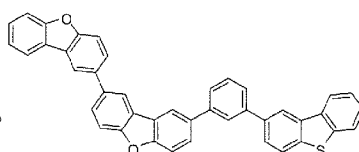
1-246



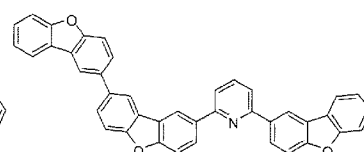
1-247



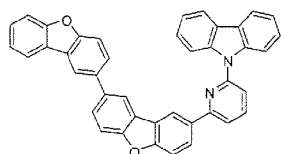
1-248



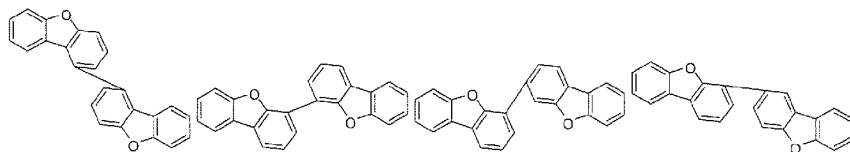
1-249



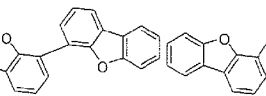
1-250



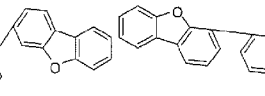
1-251



1-252



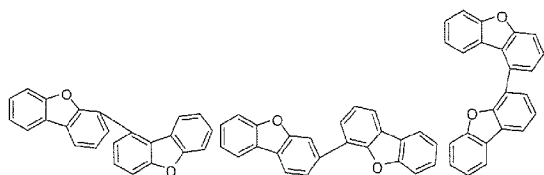
1-253



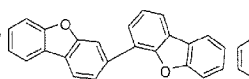
1-254



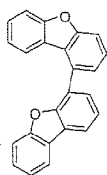
1-255



1-256



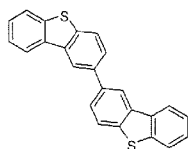
1-257



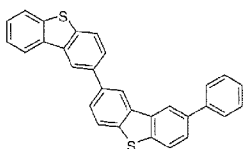
1-258

[0054]

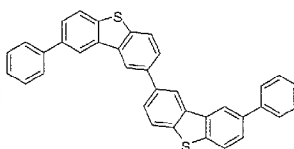
[化26]



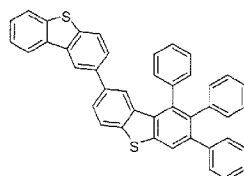
1-259



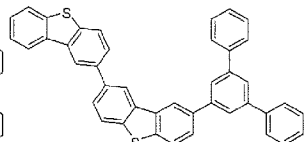
1-260



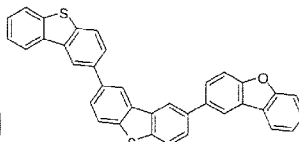
1-261



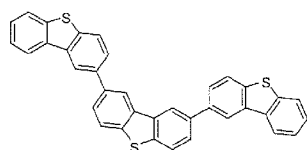
1-262



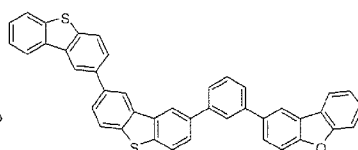
1-263



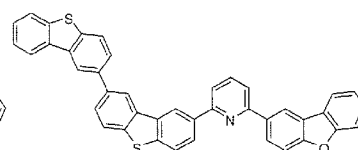
1-264



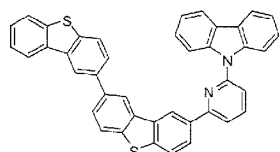
1-265



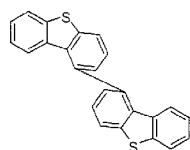
1-266



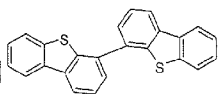
1-267



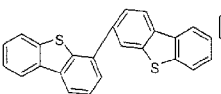
1-268



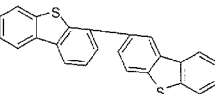
1-269



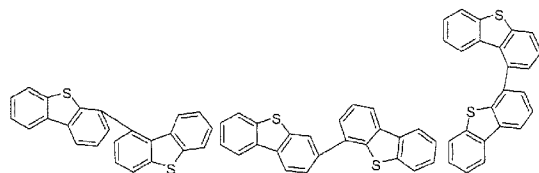
1-270



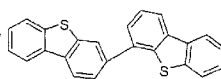
1-271



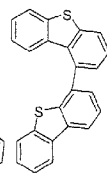
1-272



1-273

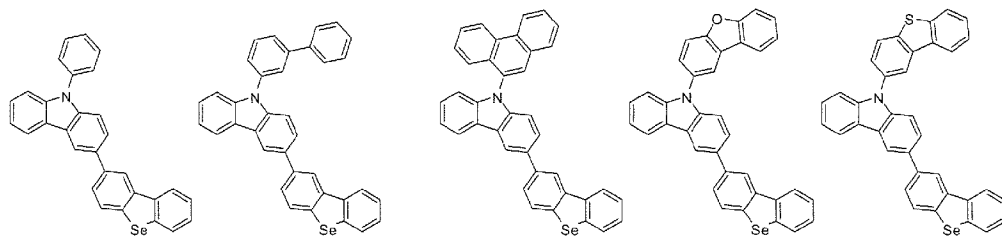


1-274



1-275

[化27]



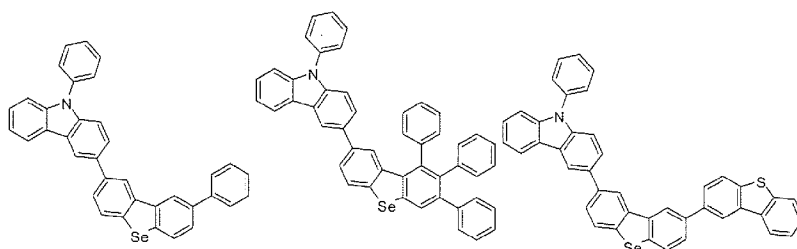
1-276

1-277

1-278

1-279

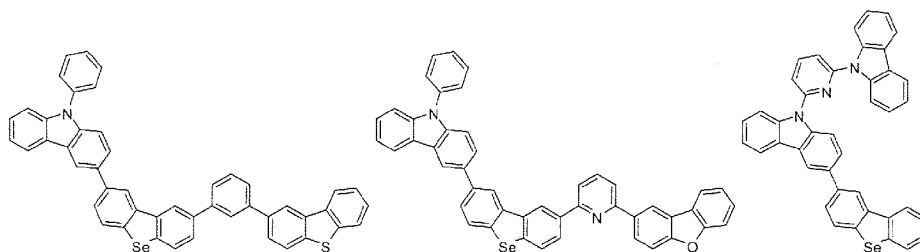
1-280



1-281

1-282

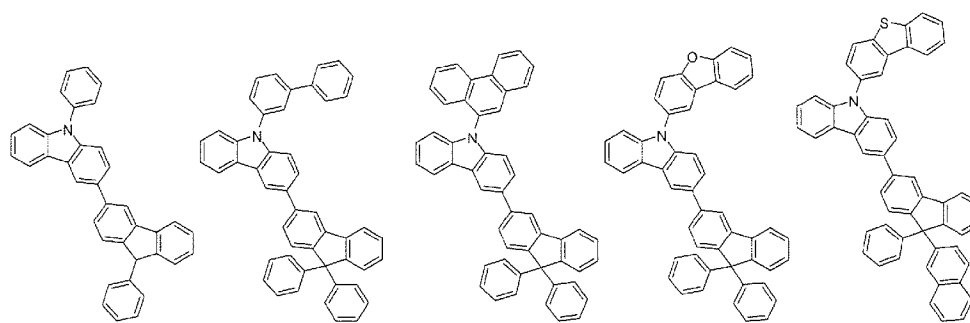
1-283



1-284

1-285

1-286



1-287

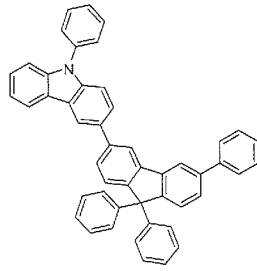
1-288

1-289

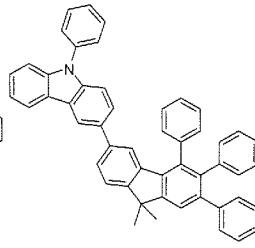
1-290

1-291

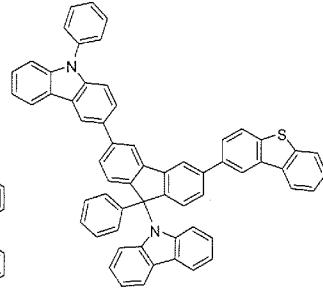
[化28]



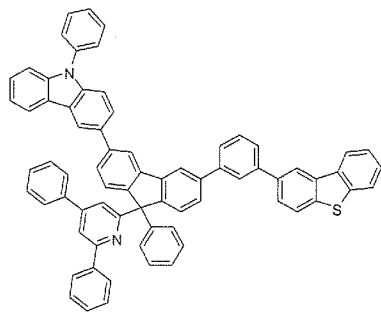
1-292



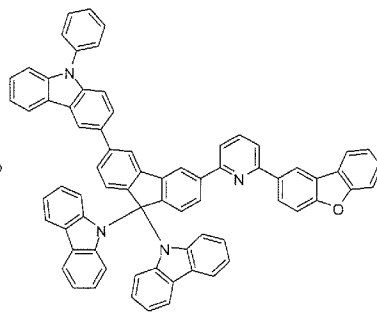
1-293



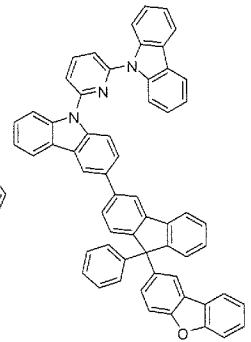
1-294



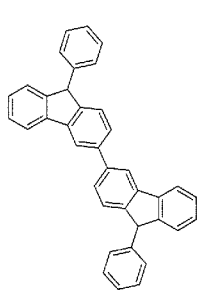
1-295



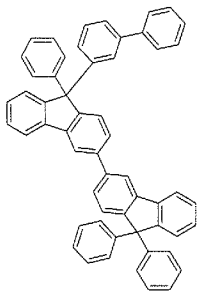
1-296



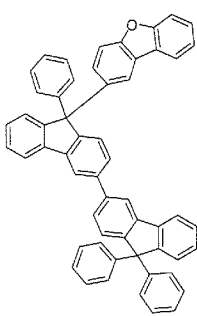
1-297



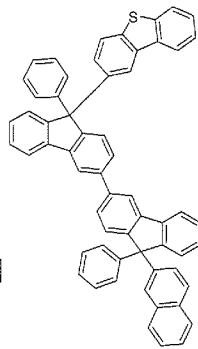
1-298



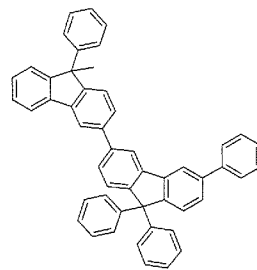
1-299



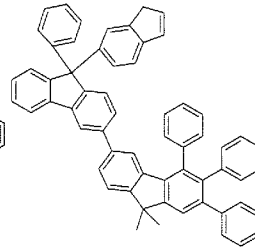
1-300



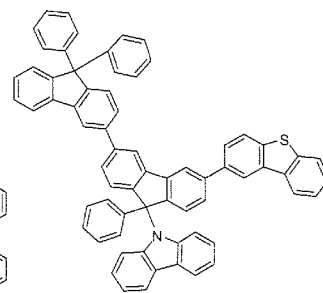
1-301



1-302



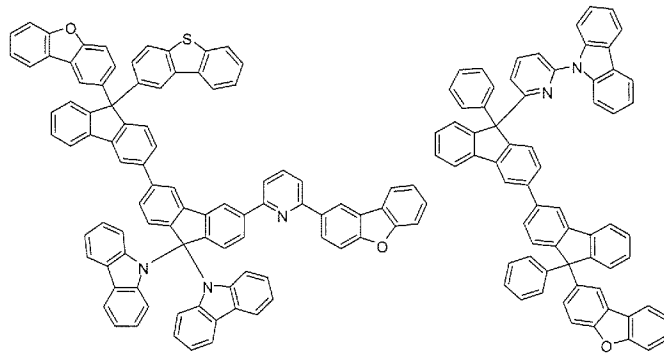
1-303



1-304

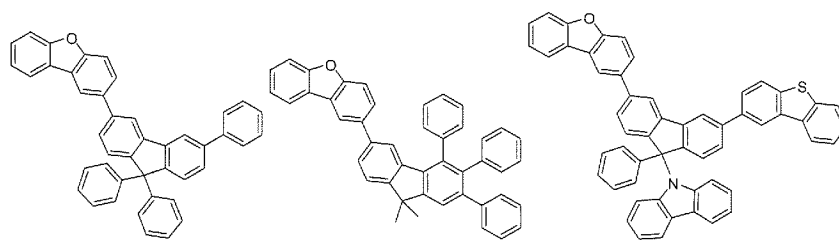
[0055]

[化29]



1-305

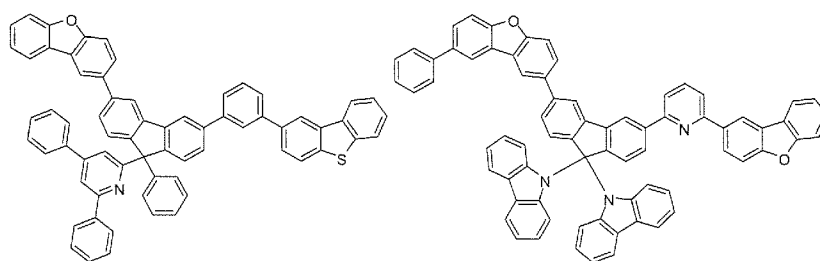
1-306



1-307

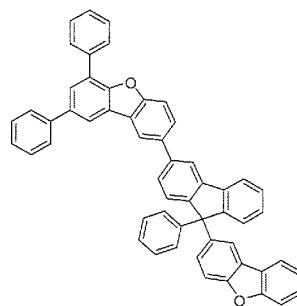
1-308

1-309



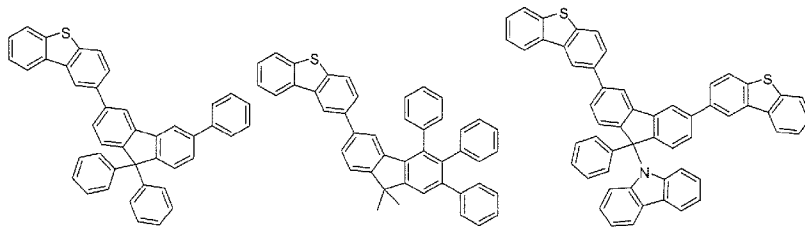
1-310

1-311



1-312

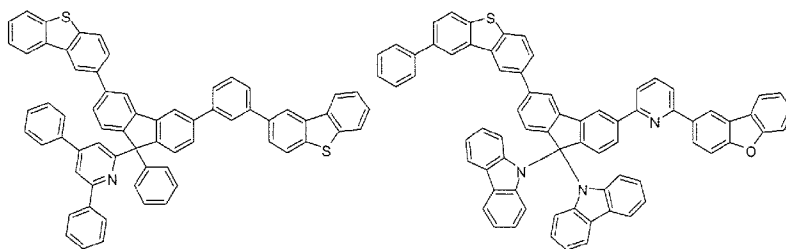
[化30]



1-313

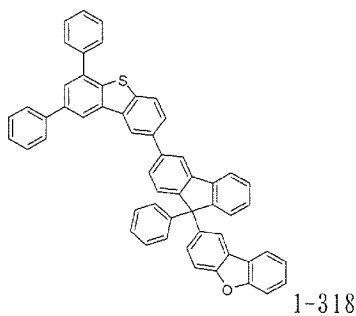
1-314

1-315

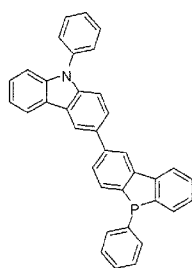


1-316

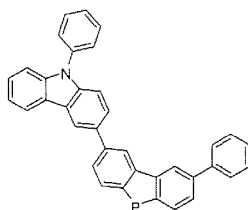
1-317



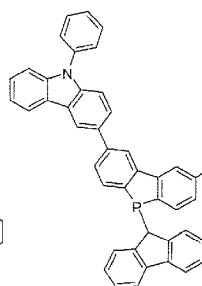
1-318



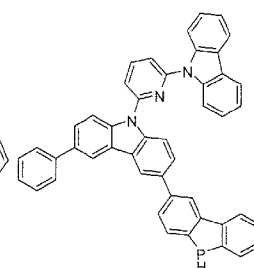
1-319



1-320

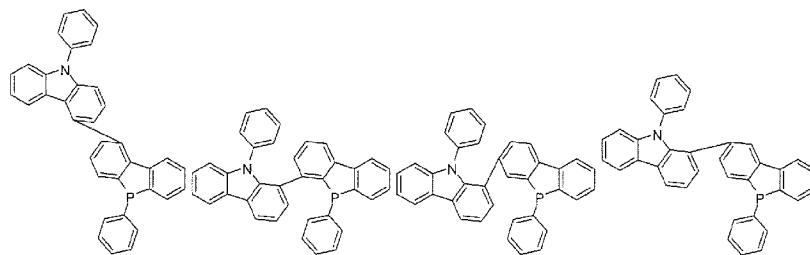


1-321



1-322

[化31]

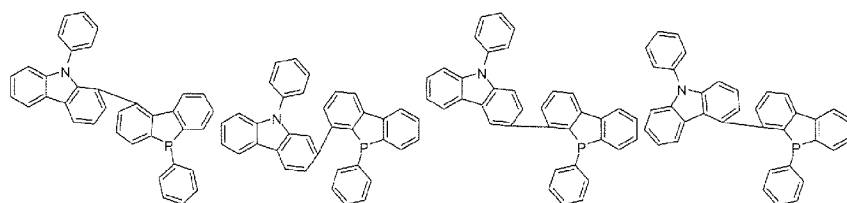


1-323

1-324

1-325

1-326

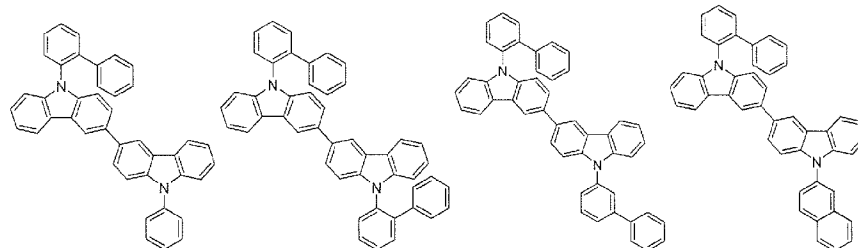


1-327

1-328

1-329

1-330

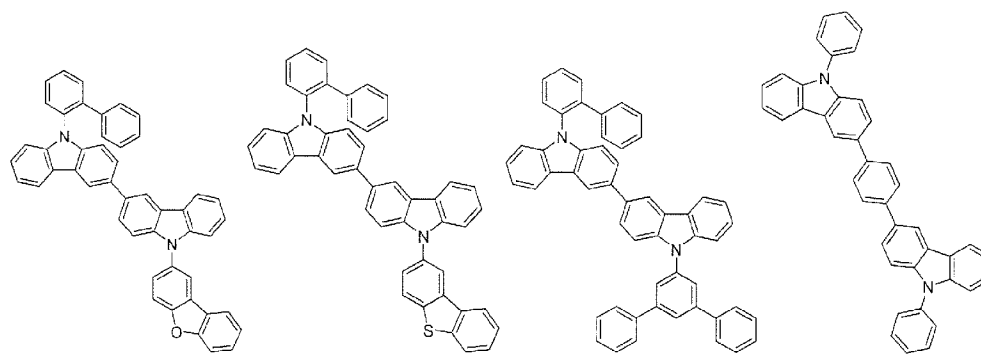


1-331

1-332

1-333

1-334



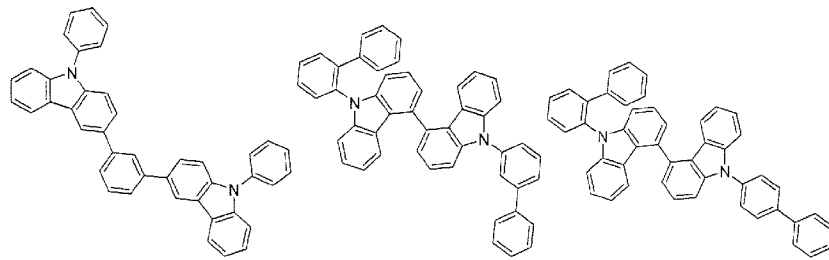
1-335

1-336

1-337

1-338

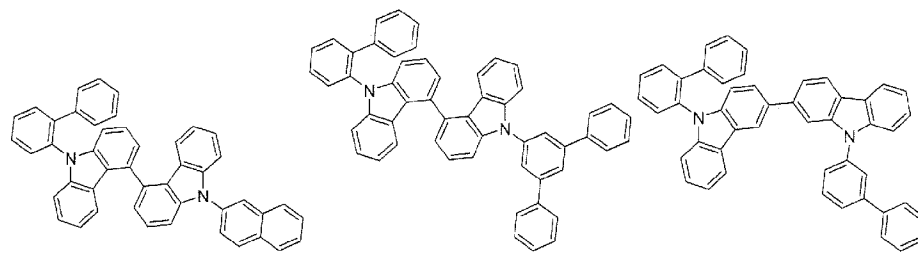
[化32]



1-339

1-340

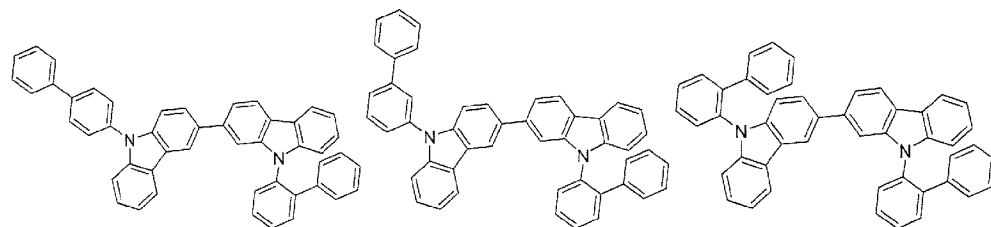
1-341



1-342

1-343

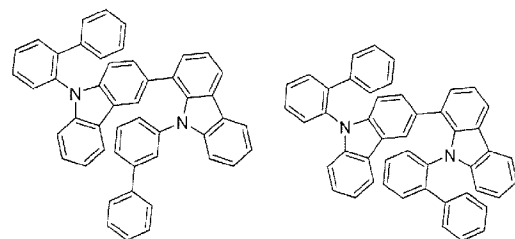
1-344



1-345

1-346

1-347

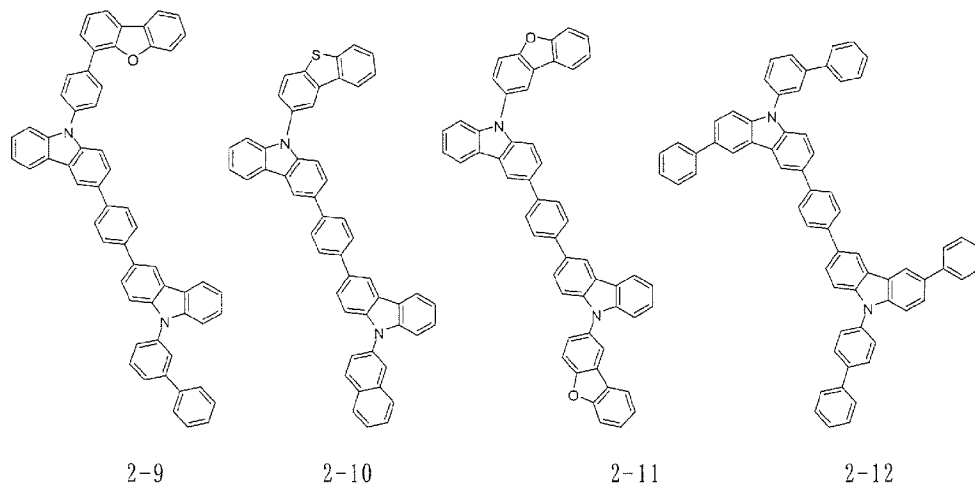
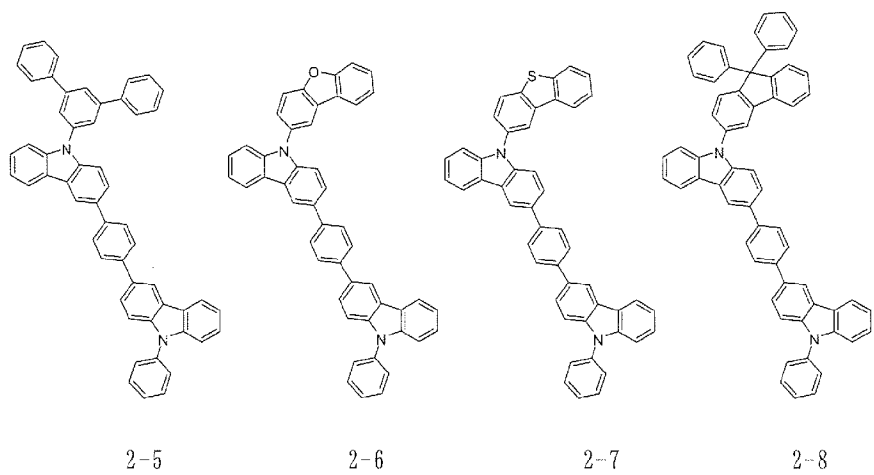
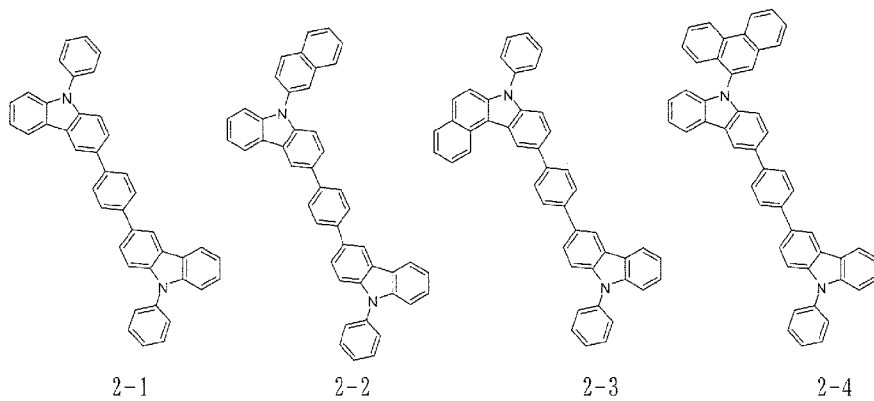


1-348

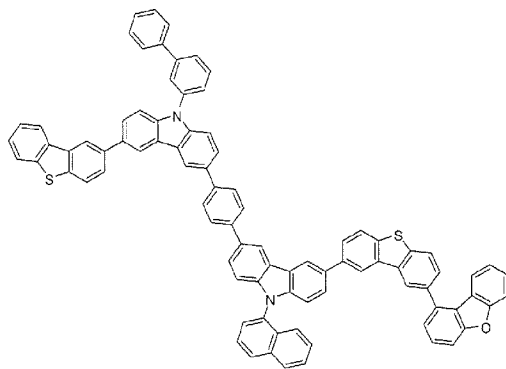
1-349

[0056]

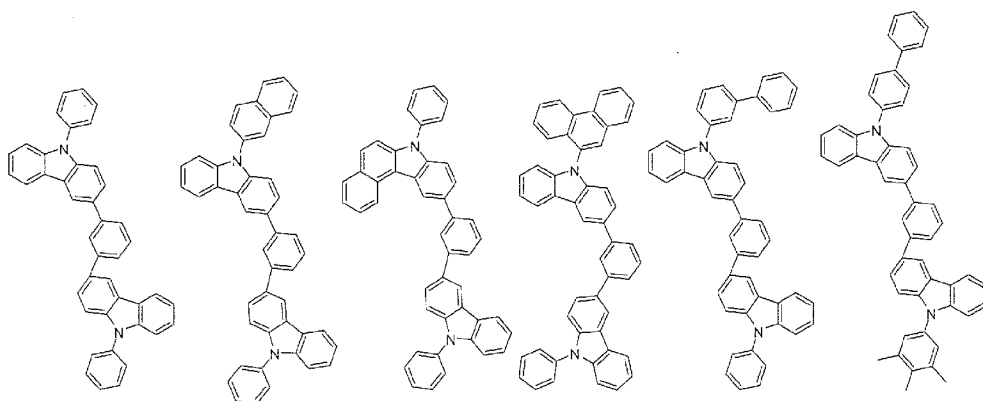
[化33]



[化34]



2-13



2-14

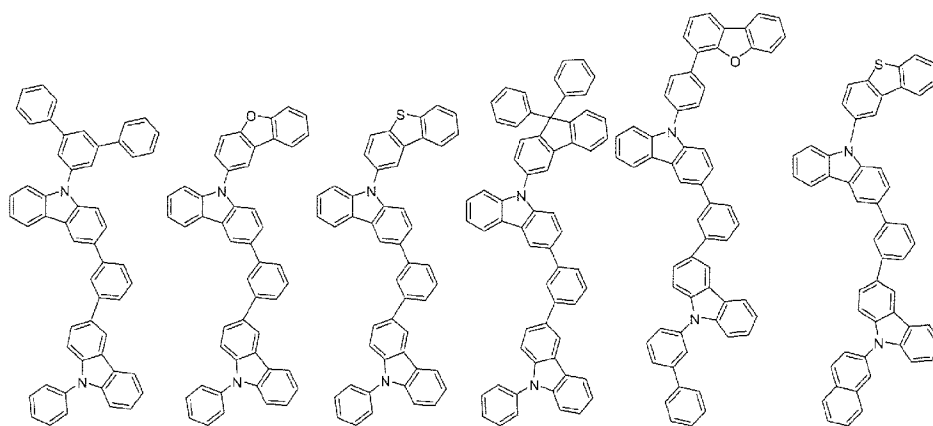
2-15

2-16

2-17

2-18

2-19



2-20

2-21

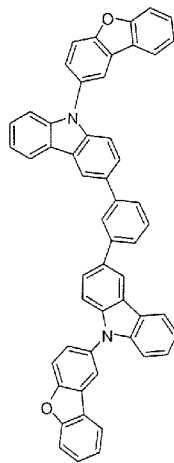
2-22

2-23

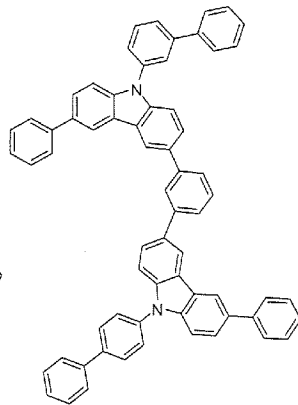
2-24

2-25

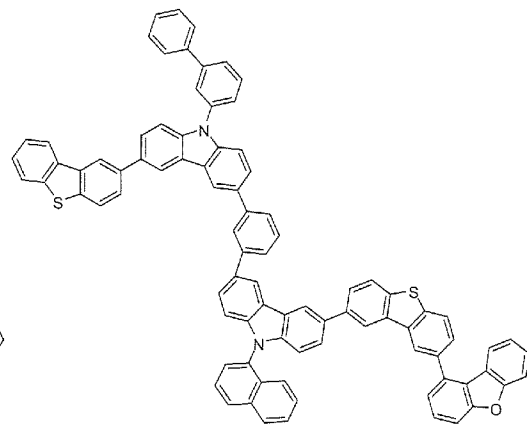
[化35]



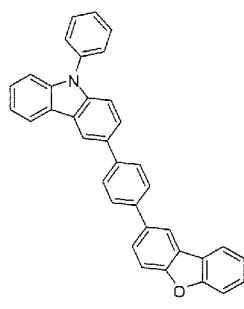
2-26



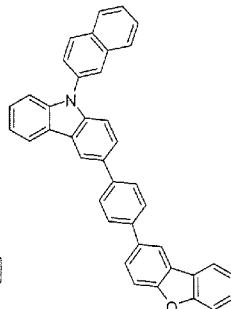
2-27



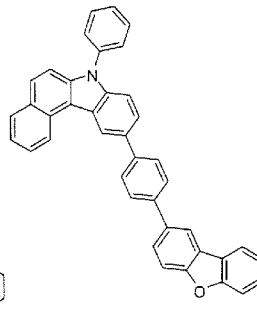
2-28



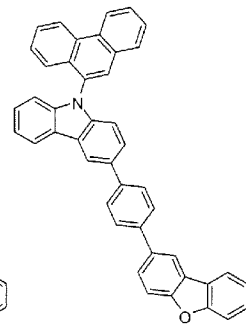
2-29



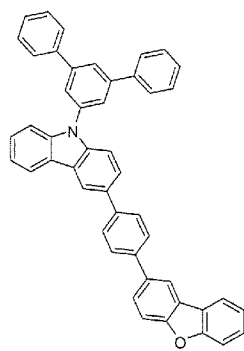
2-30



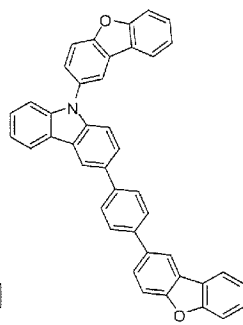
2-31



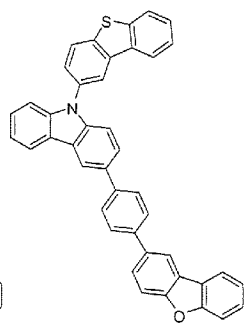
2-32



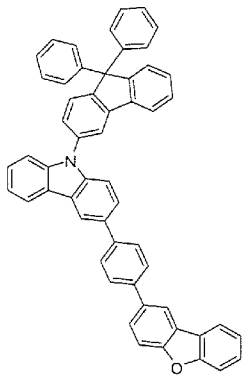
2-33



2-34



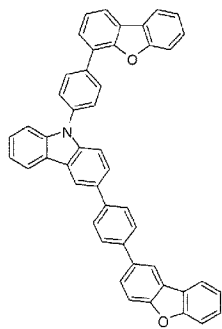
2-35



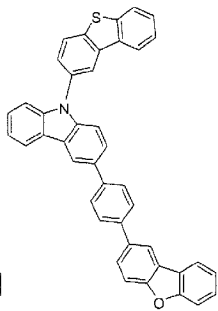
2-36

[0057]

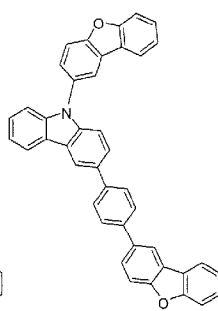
[化36]



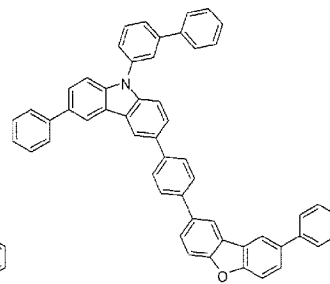
2-37



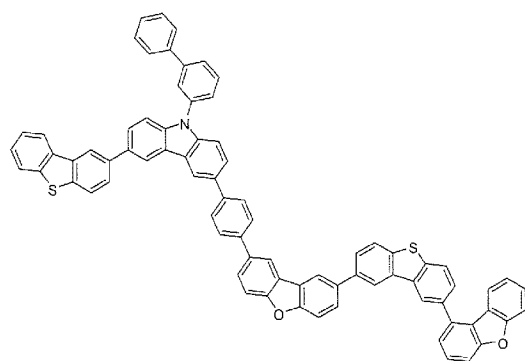
2-38



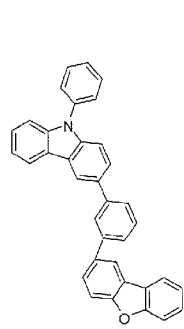
2-39



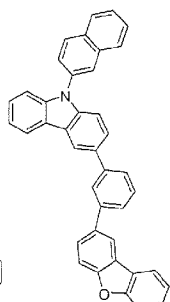
2-40



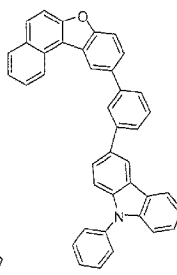
2-41



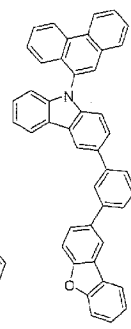
2-42



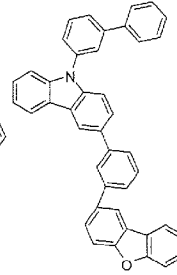
2-43



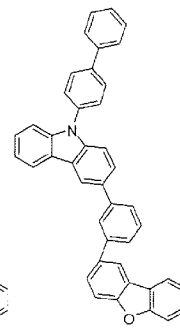
2-44



2-45

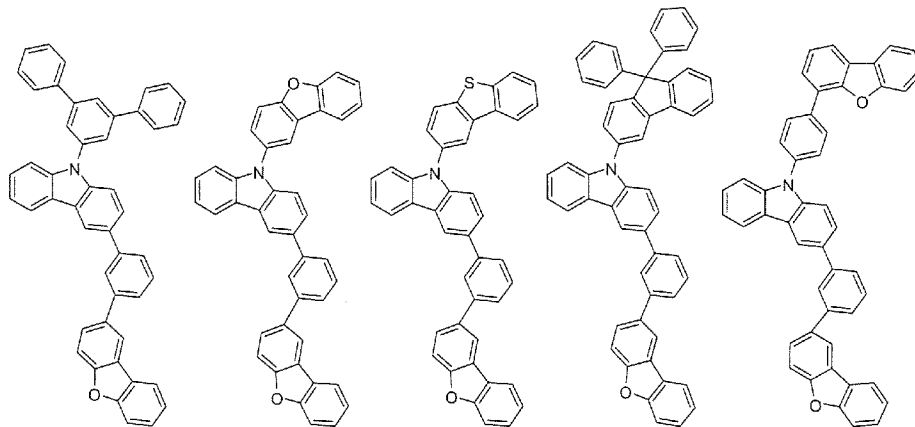


2-46



2-47

[化37]



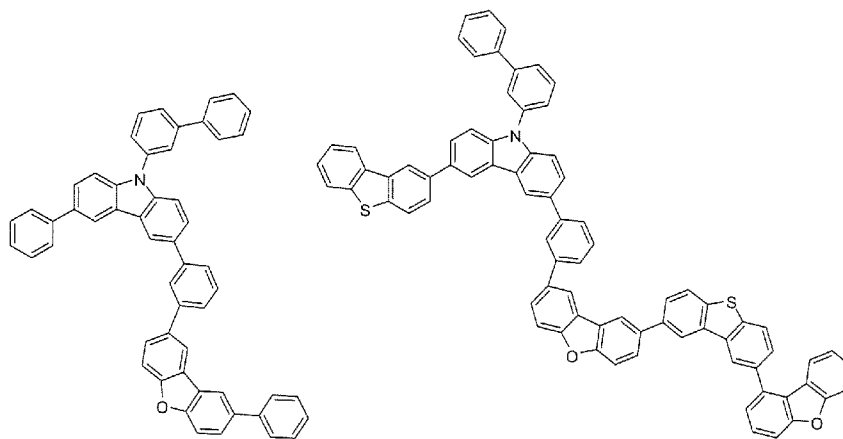
2-48

2-49

2-50

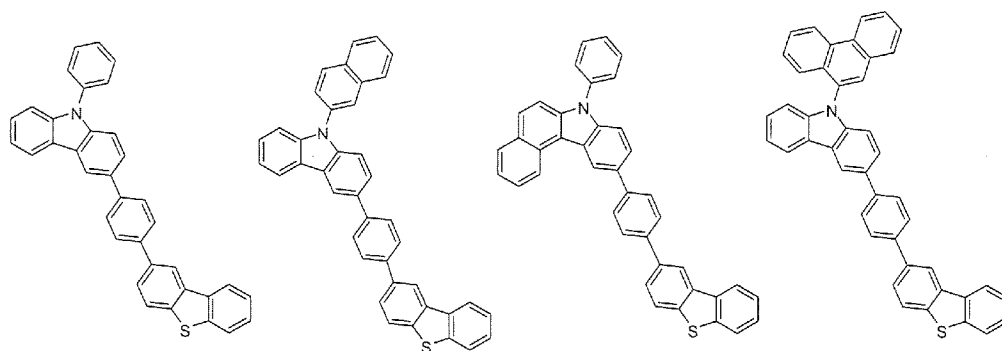
2-51

2-52



2-53

2-54



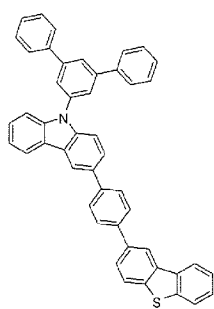
2-55

2-56

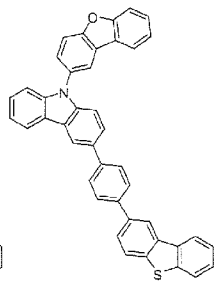
2-57

2-58

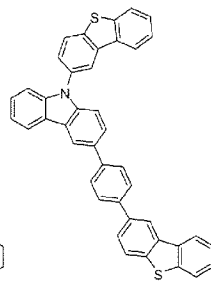
[化38]



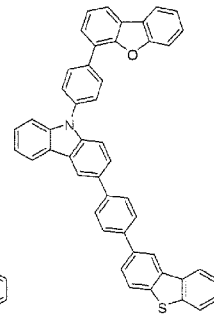
2-59



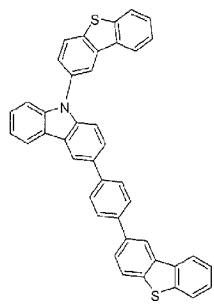
2-60



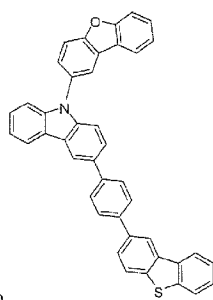
2-61



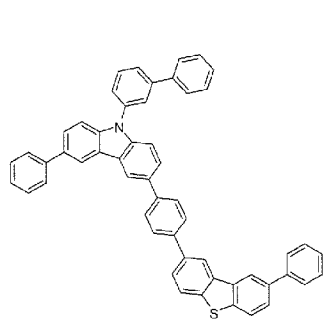
2-62



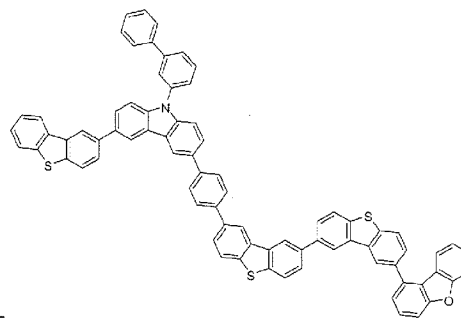
2-63



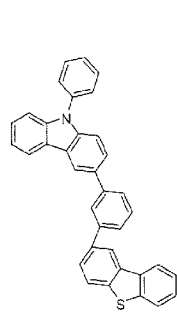
2-64



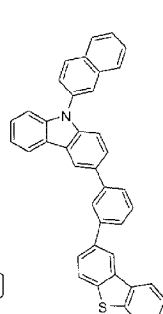
2-65



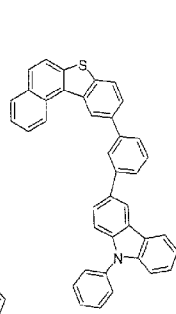
2-66



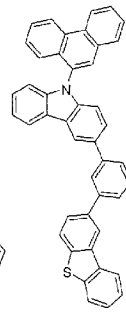
2-67



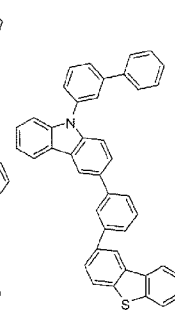
2-68



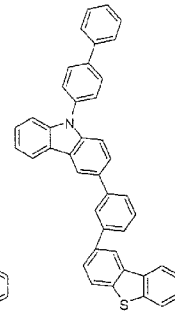
2-69



2-70



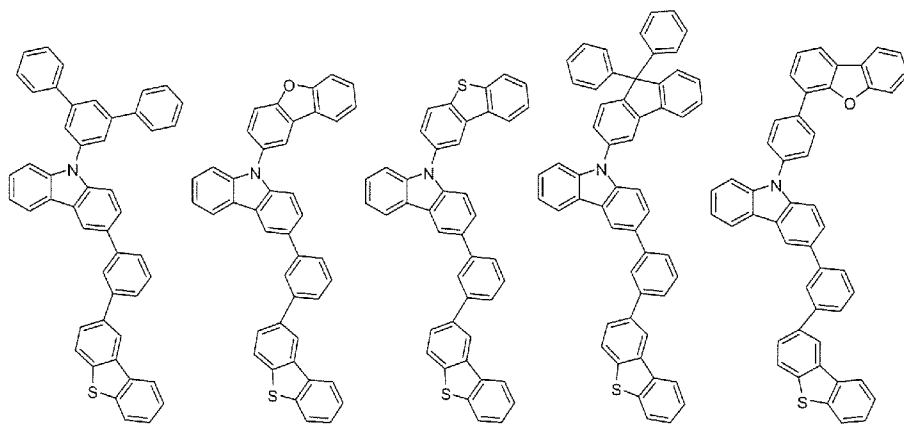
2-71



2-72

[0058]

[化39]



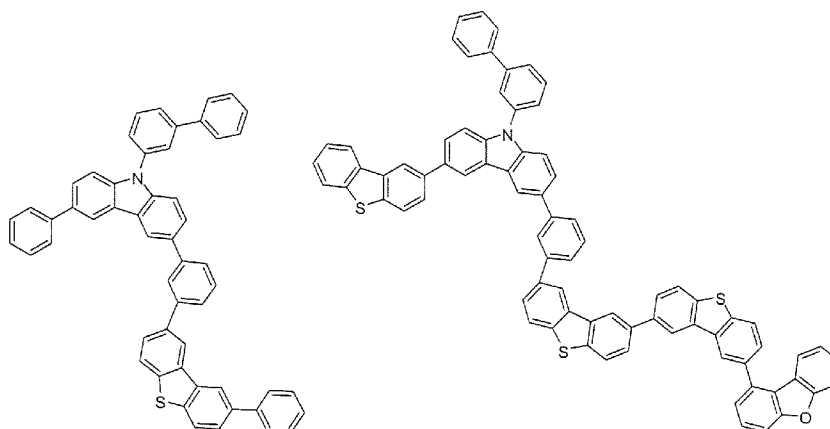
2-73

2-74

2-75

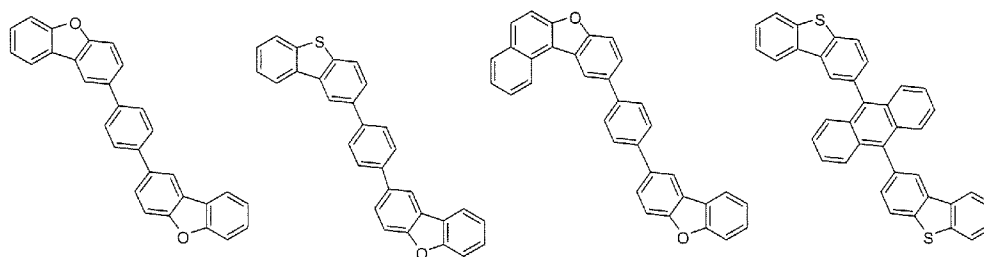
2-76

2-77



2-78

2-79



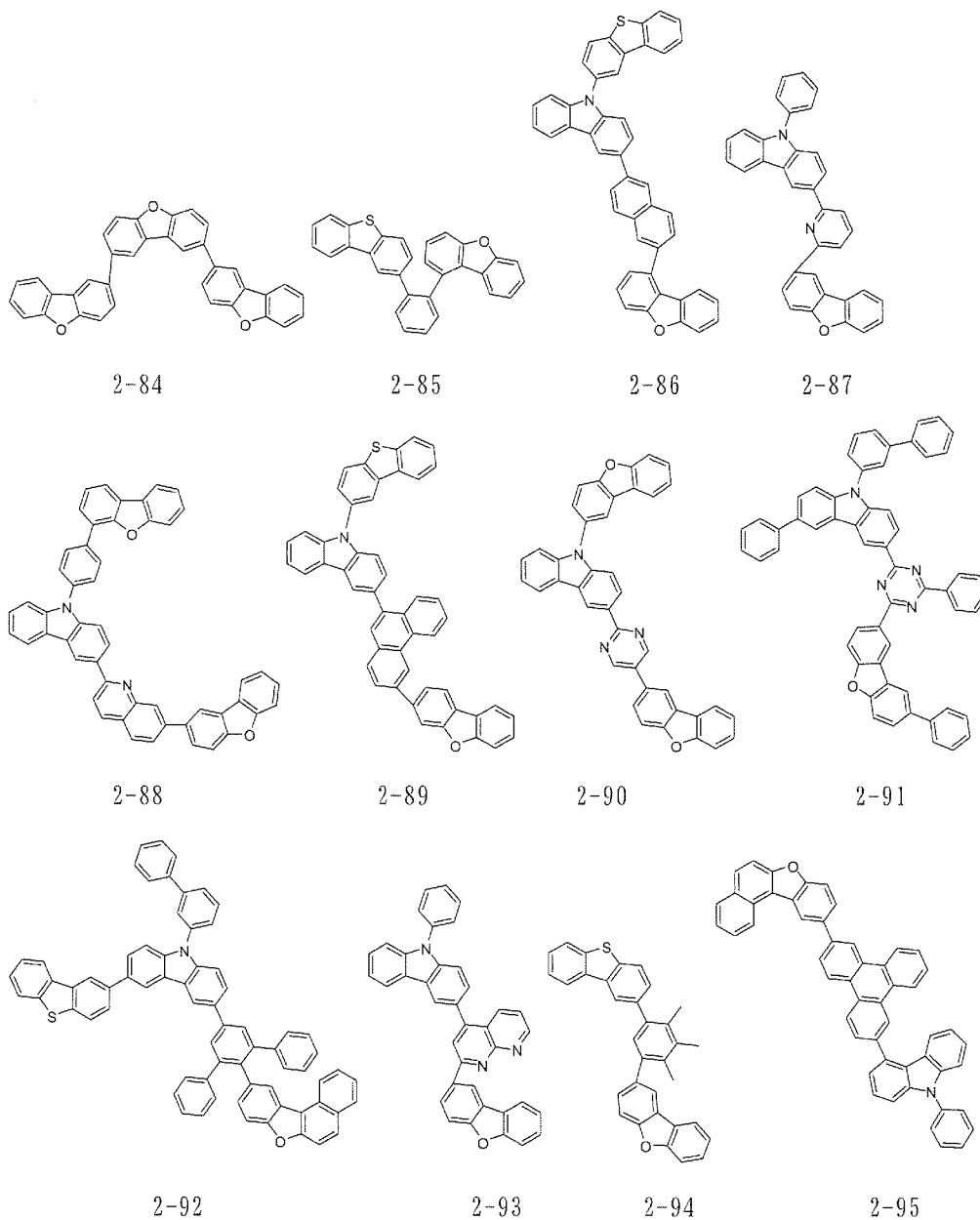
2-80

2-81

2-82

2-83

## [化40]



[0059] 次に、一般式（2）及び式（8）で表される化合物（カルボラン化合物）について、説明する。一般式（2）及び式（8）において、共通する記号は同じ意味を有する。

[0060] 環Aは式（a1）又は式（b1）で表される $C_2B_{10}H_{10}$ の2価のカルボラン基を示し、分子内の複数の環Aは同一であっても異なってもよいが、好ましくは全部の環Aが式（a1）で表されるカルボラン基である。 2価のカ

ルポラン基が有する2つの結合手はCから生じて、Bから生じてよいが、 $L^1$ 、 $L^2$ 及び $L^3$ と結合する結合手はCから生じることが好ましい。

[0061]  $s$ は繰り返し数であり、0～2の整数を表し、好ましくは0又は1であり、より好ましくは0である。

$n$ 、 $m$ は置換数であり、 $n$ は1又は2の整数、 $m$ は0～4の整数を表し、好ましくは $n$ は1の整数、 $m$ は0～2の整数である。

[0062]  $L^1$ は、単結合、又は $n+1$ 個の芳香族基類である。芳香族基類は、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～6つ連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基である。好ましくは単結合、置換若しくは未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5つ連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基である。但し、 $n=1$ で、かつ $s=1$ の場合は、単結合、芳香族複素環基、又は少なくとも1つの芳香族複素環基を含む連結芳香族基である。

[0063]  $L^2$ は独立に、単結合、又は2個の芳香族基類である。2個の芳香族基類は、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～6つ連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基である。好ましくは単結合、置換若しくは未置換の炭素数6～18の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5つ連結して構成される置換若しくは未置換の連結芳香族基である。

[0064]  $L^3$ は、 $m+1$ 個の未置換の芳香族炭化水素基又は未置換の芳香族複素環基である。芳香族炭化水素基は、炭素数6～30、好ましくは6～18であり、芳香族複素環基は、炭素数3～30、好ましくは3～17である。

[0065] 式(8)において、 $Z$ は $NR^{10}$ 、 $PR^{11}$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $Se$ 、 $CR^{12}R^{13}$ 、又は $SiR^{14}R^{15}$ を示し、好ましくは $NR^{10}$ 、 $O$ 、 $S$ である。ここで、 $R^{10}～R^{15}$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30、好ましくは6～18

の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30、好ましくは3～17の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

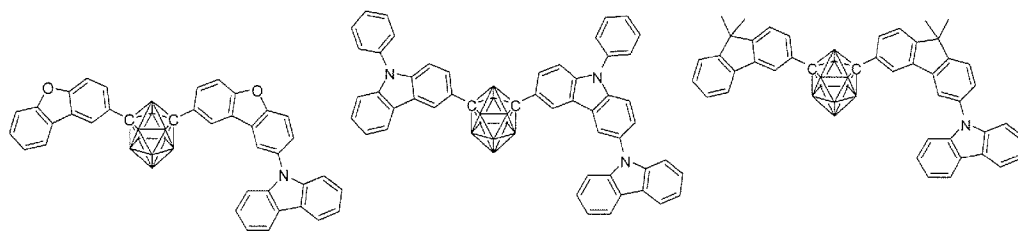
[0066] 一般式(2)及び式(8)において、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び連結芳香族基は、 $L^1$ が $n+1$ 価、 $L^2$ が2価、 $L^3$ が $m+1$ 価であることを除き、前記一般式(1)及び式(3)～(7)の $R^1$ ～ $R^6$ で説明した芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び連結芳香族基における説明と同様である。但し、 $L^3$ は連結芳香族基であることはなく、 $n=1$ かつ $s=1$ の場合は、 $L^1$ は単結合、芳香族複素環基、又は少なくとも1つの芳香族複素環基を含む連結芳香族基である。また、 $n=0$ の場合、環Aに直接結合する芳香族基は同一であることが好ましく、 $L^1-(H)_n = L^3-(R^9)_m$ であることがより好ましい。

[0067] 一般式(2)及び式(8)において、 $R^9$ は前記一般式(1)の $R^7$ 及び $R^8$ と同様な意味を有する。

[0068] 前記一般式(2)で表される化合物の好ましい具体例を以下に示すが、これらに限定されるものではない。

[0069]

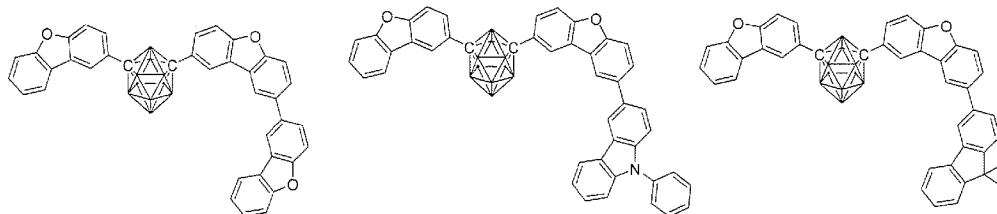
[化41]



3-1

3-2

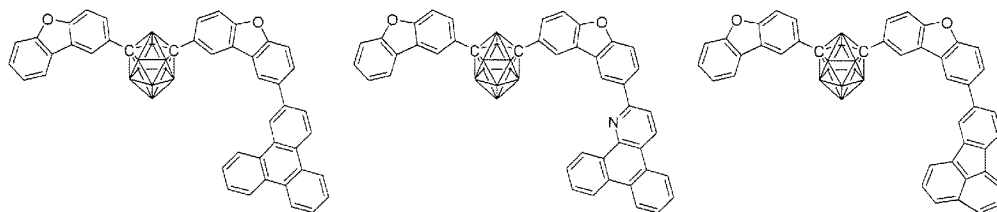
3-3



3-4

3-5

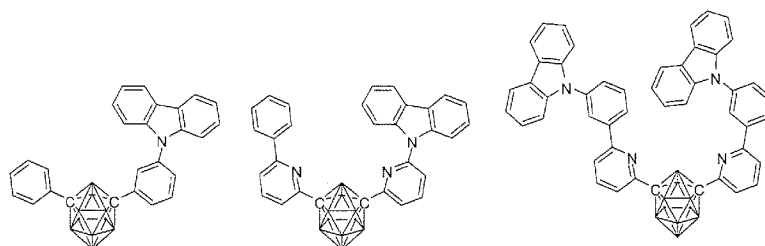
3-6



3-7

3-8

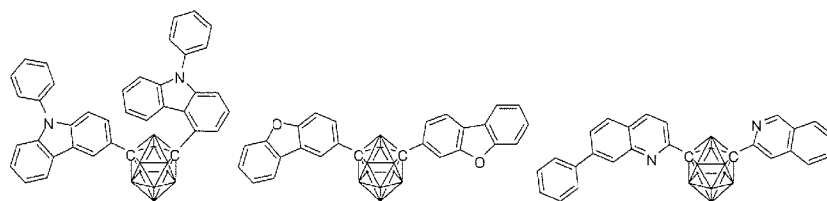
3-9



3-10

3-11

3-12

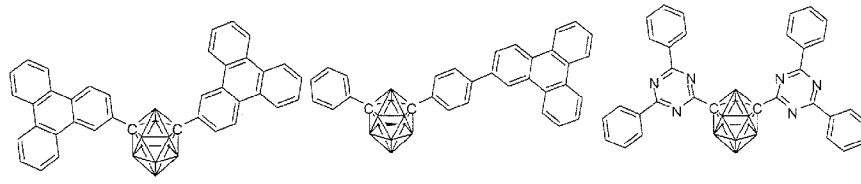


3-13

3-14

3-15

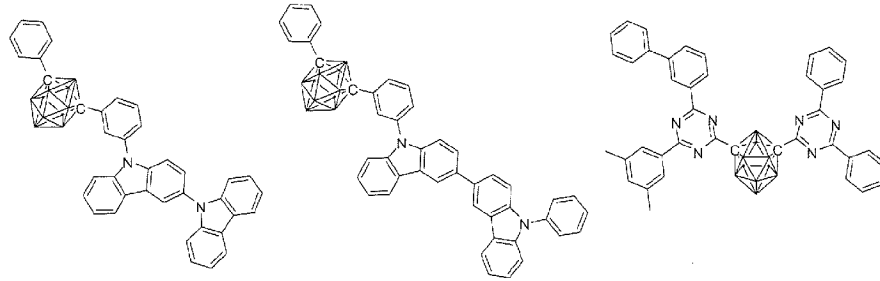
[化42]



3-16

3-17

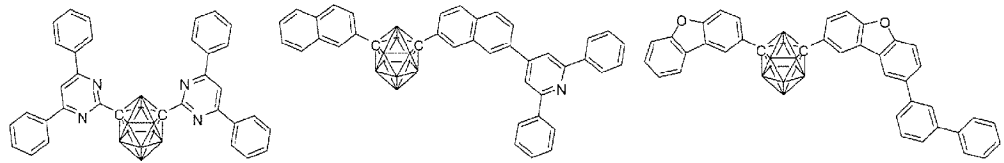
3-18



3-19

3-20

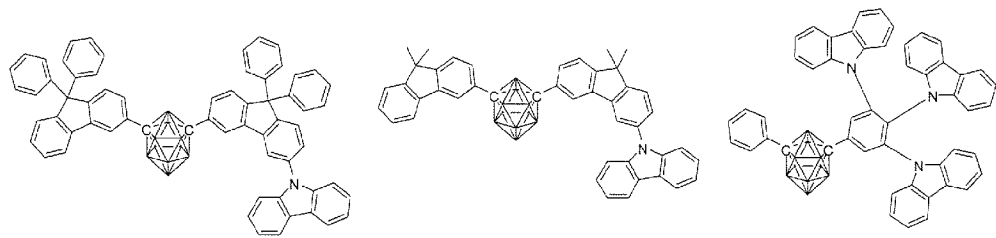
3-21



3-22

3-23

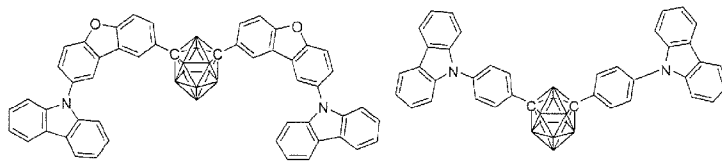
3-24



3-25

3-26

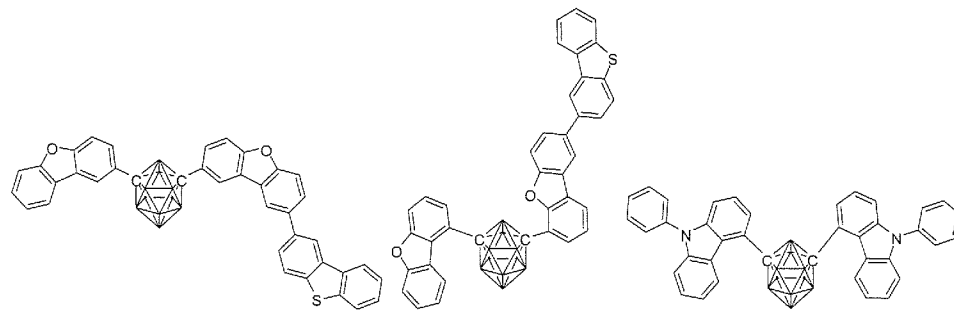
3-27



3-28

3-29

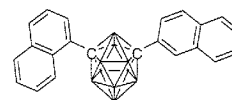
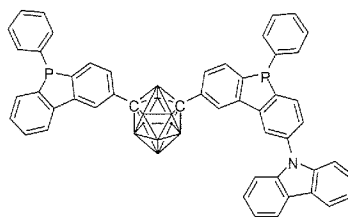
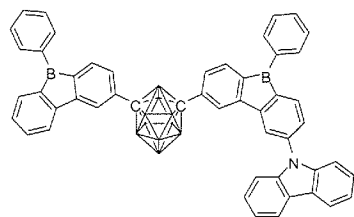
[化43]



3-30

3-31

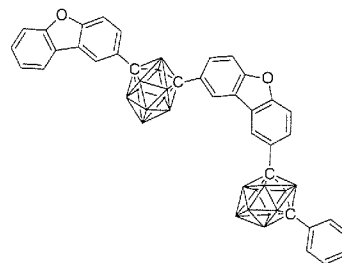
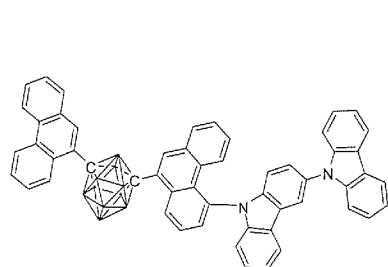
3-32



3-33

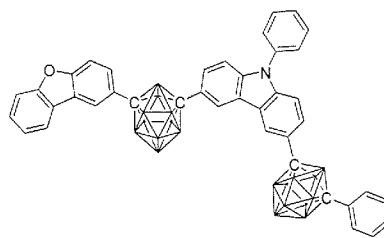
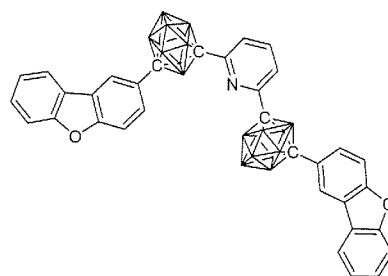
3-34

3-35



3-36

3-37

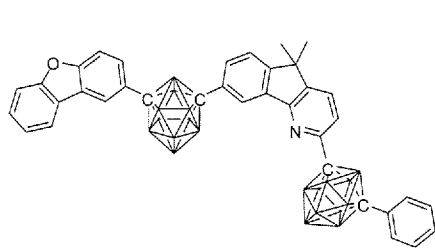


3-38

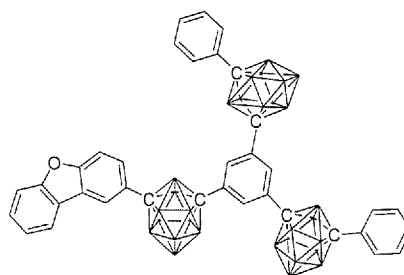
3-39

[0070]

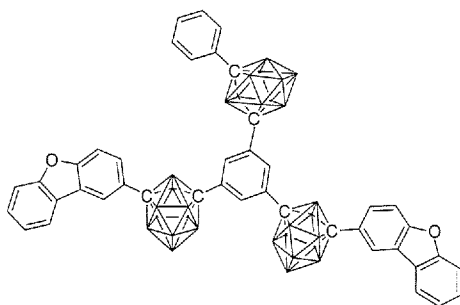
[化44]



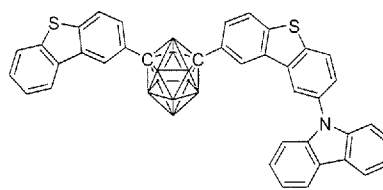
3-40



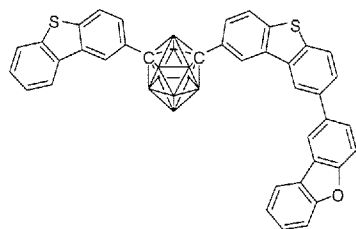
3-41



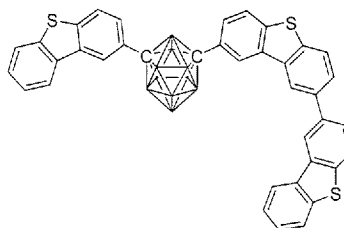
3-42



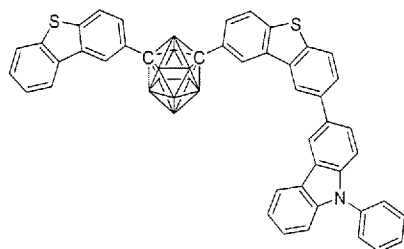
3-43



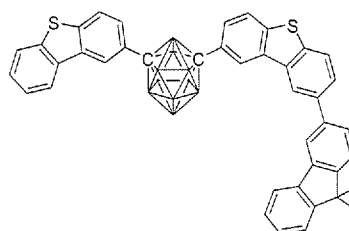
3-44



3-45

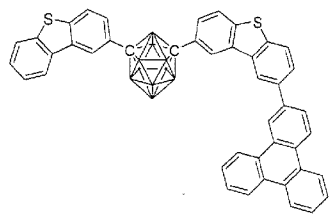


3-46

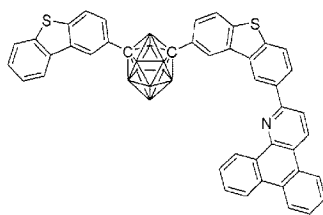


3-47

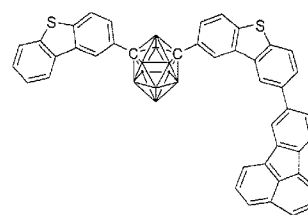
[化45]



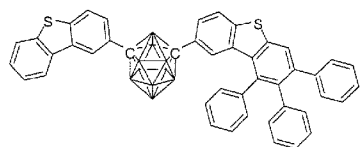
3-48



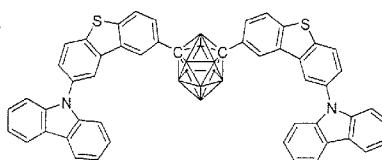
3-49



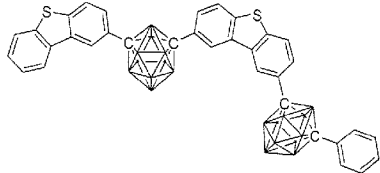
3-50



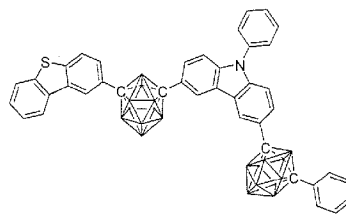
3-51



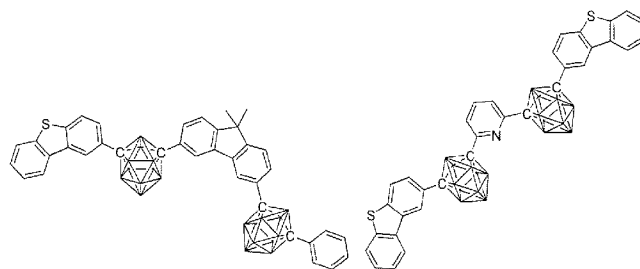
3-52



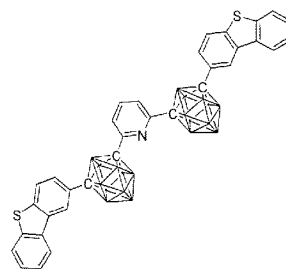
3-53



3-54

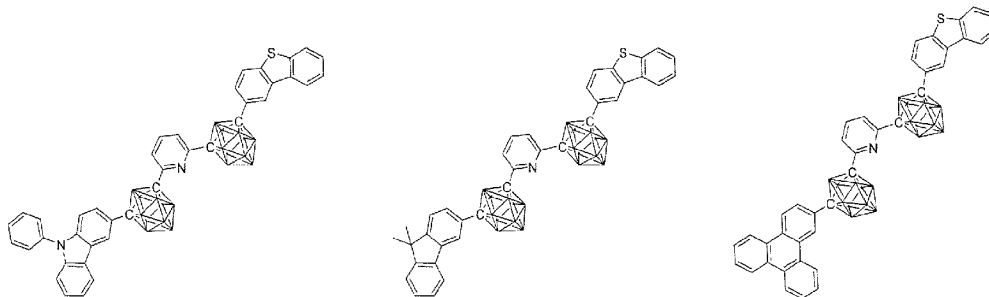


3-55



3-56

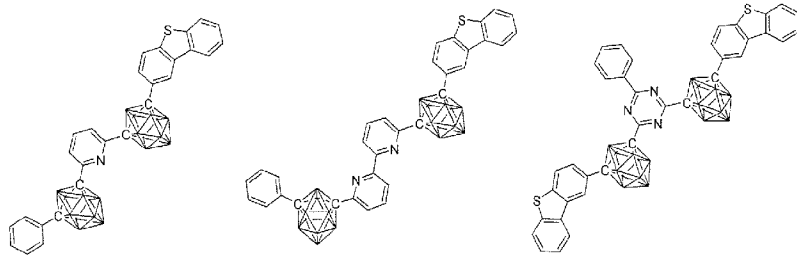
[化46]



3-57

3-58

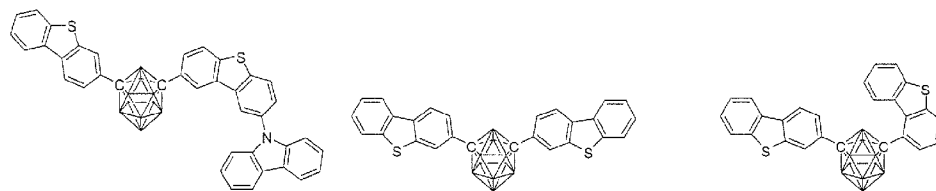
3-59



3-60

3-61

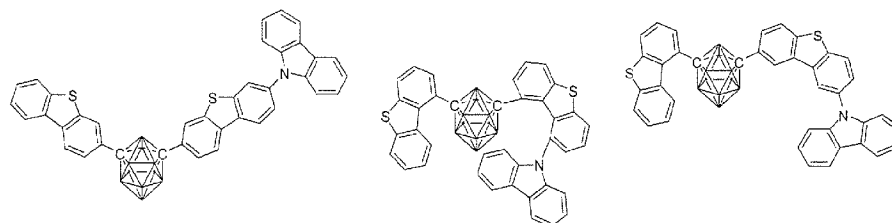
3-62



3-63

3-64

3-65



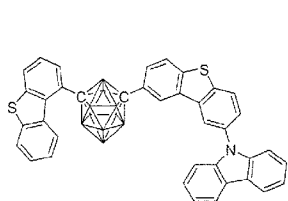
3-66

3-67

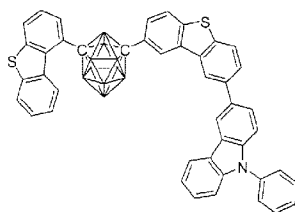
3-68

[0071]

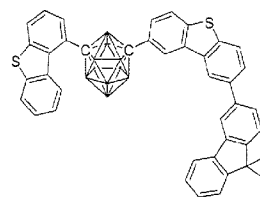
[化47]



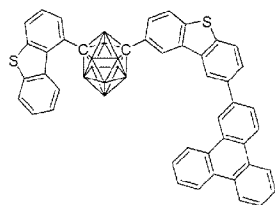
3-69



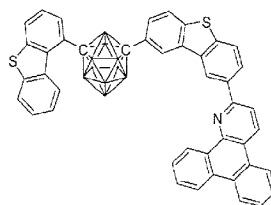
3-70



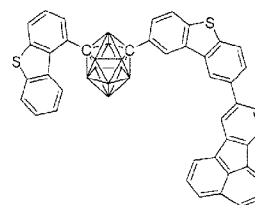
3-71



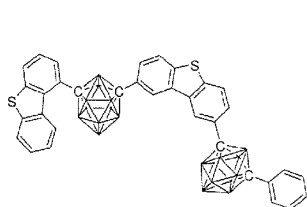
3-72



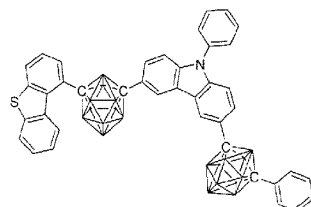
3-73



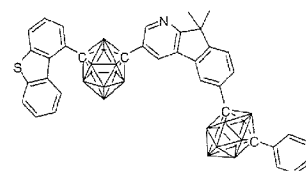
3-74



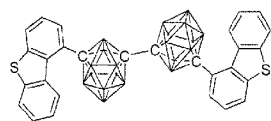
3-75



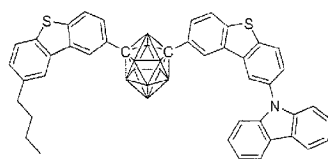
3-76



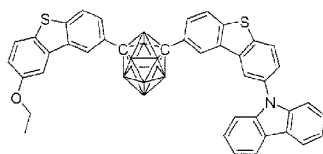
3-77



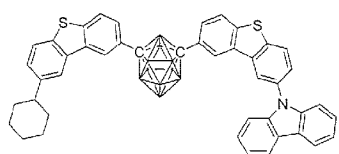
3-78



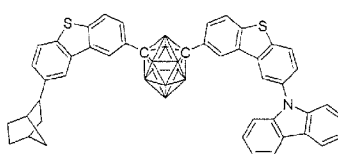
3-79



3-80

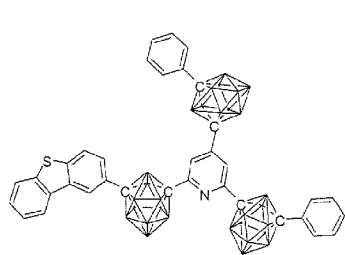


3-81

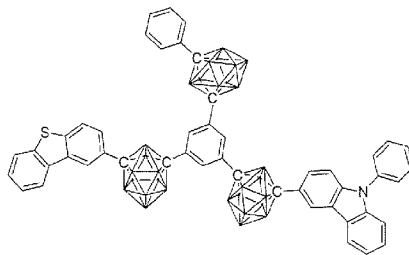


3-82

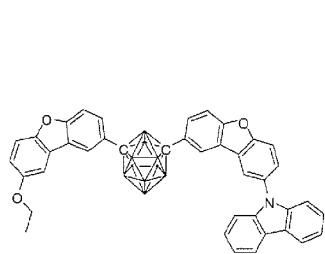
[化48]



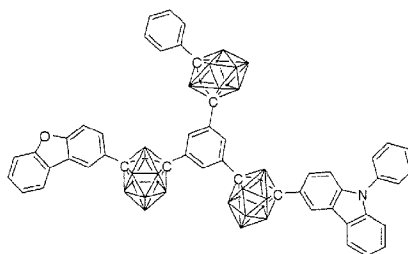
3-83



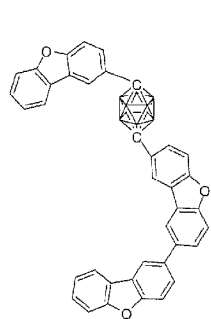
3-84



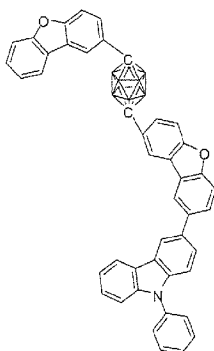
3-85



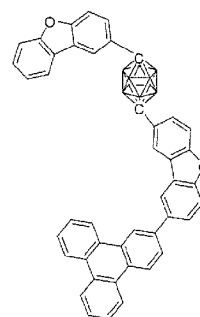
3-86



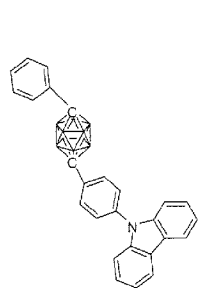
3-87



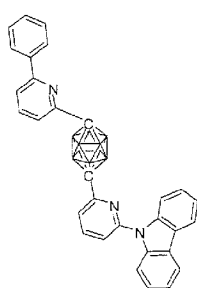
3-88



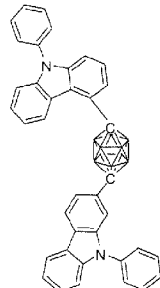
3-89



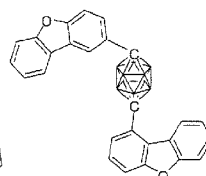
3-90



3-91

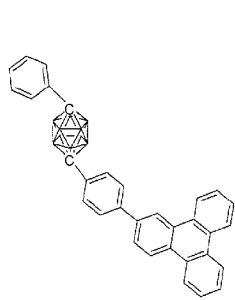


3-92

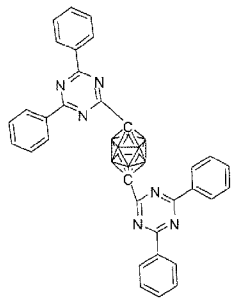


3-93

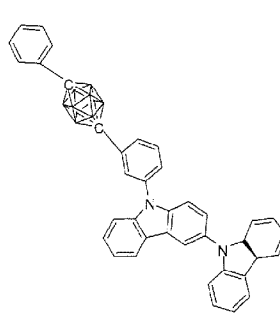
[化49]



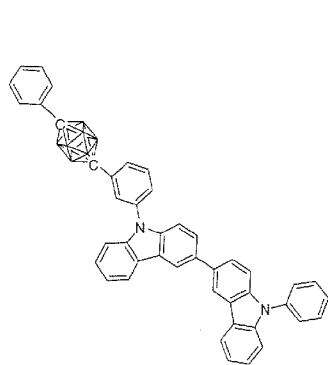
3-94



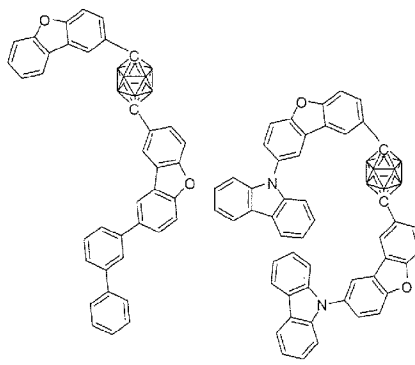
3-95



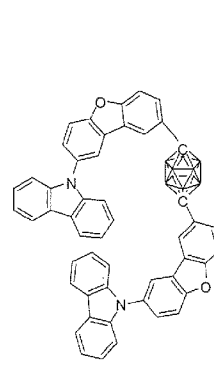
3-96



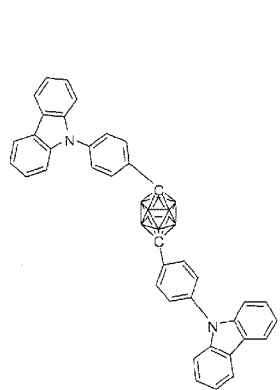
3-97



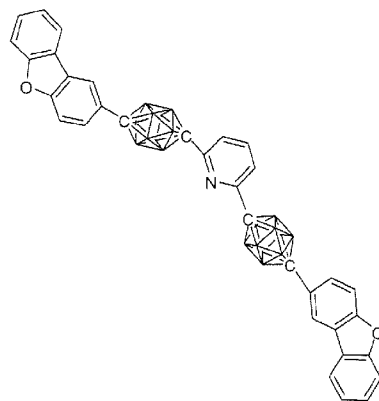
3-98



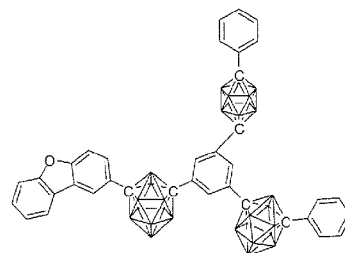
3-99



3-100



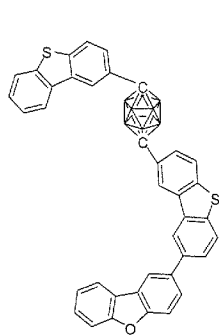
3-101



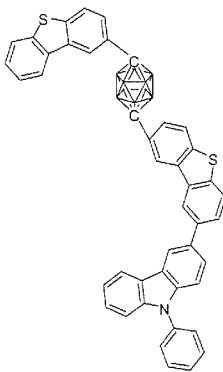
3-102

[0072]

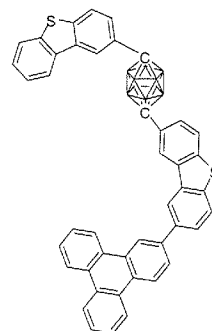
[化50]



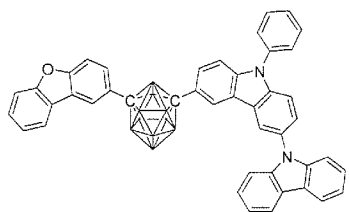
3-103



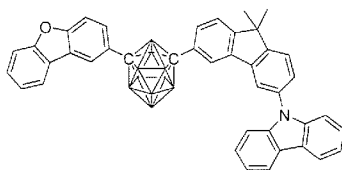
3-104



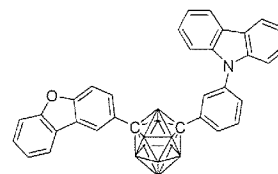
3-105



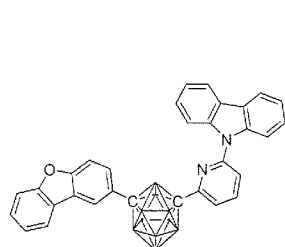
3-106



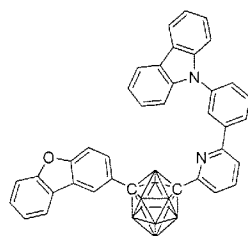
3-107



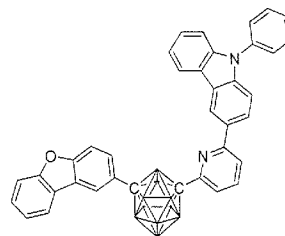
3-108



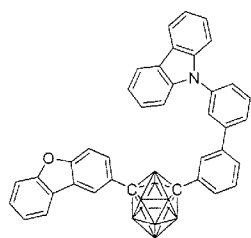
3-109



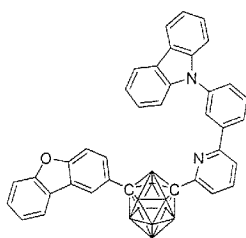
3-110



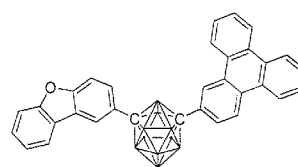
3-111



3-112

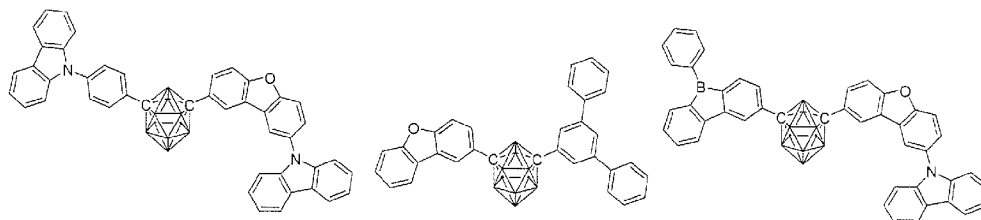
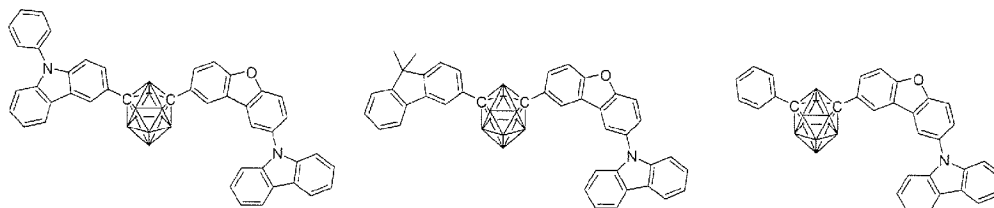
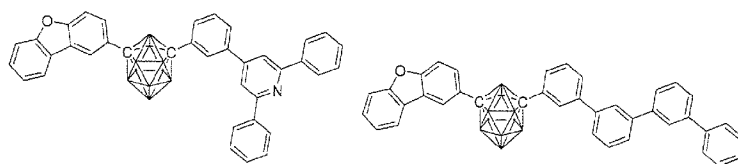
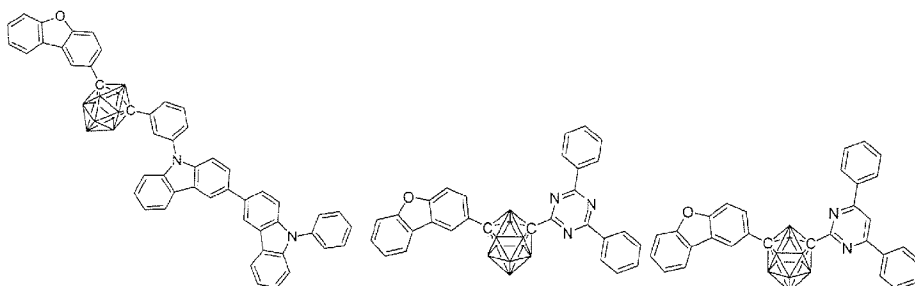
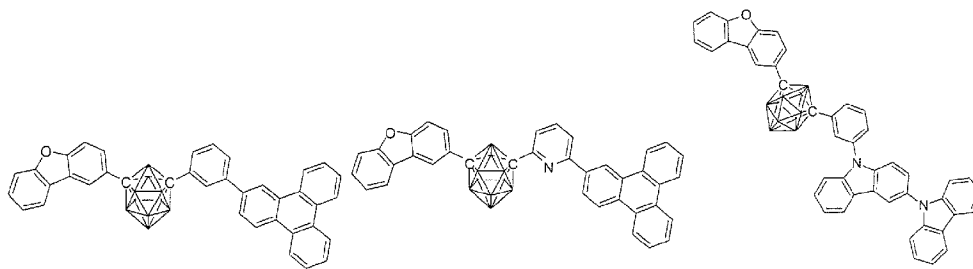


3-113



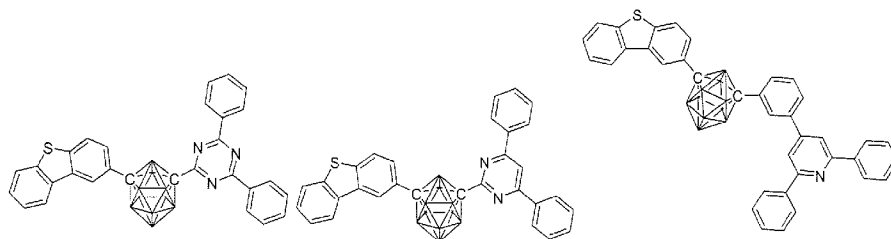
3-114

[化51]





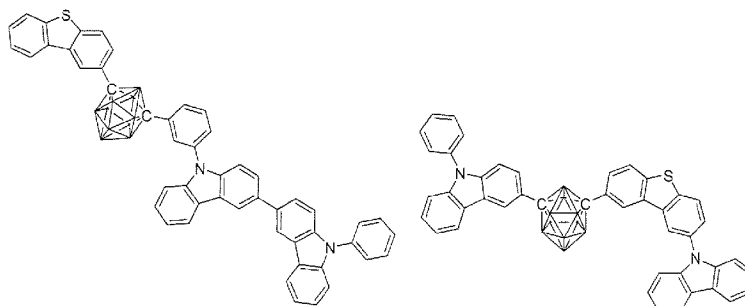
[化53]



3-144

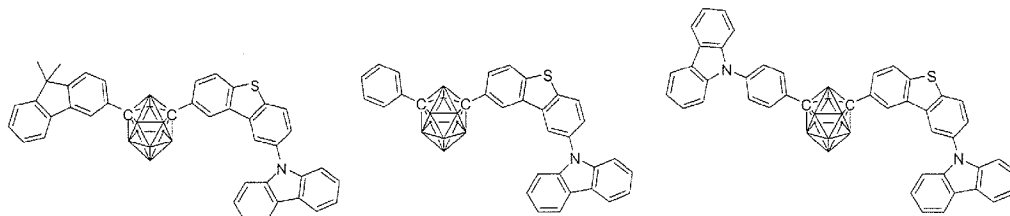
3-145

3-146



3-147

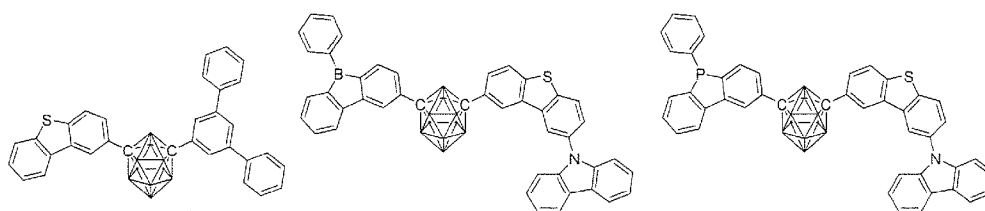
3-148



3-149

3-150

3-151

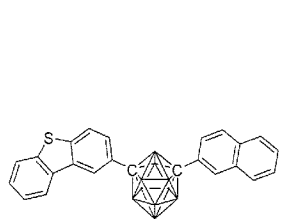


3-151

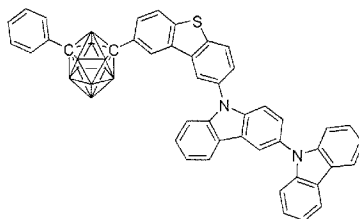
3-152

3-153

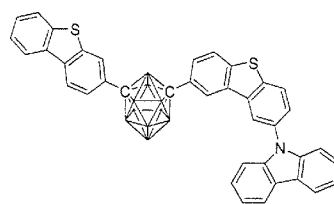
[化54]



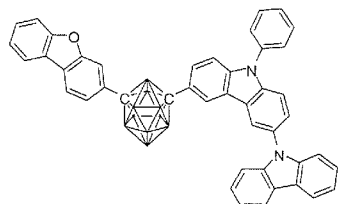
3-154



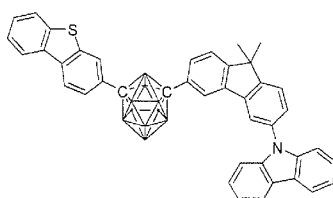
3-155



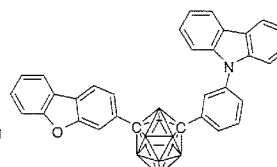
3-156



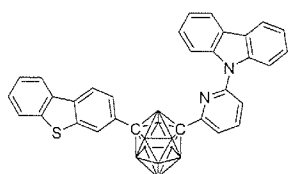
3-157



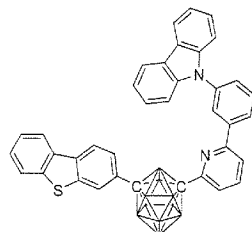
3-158



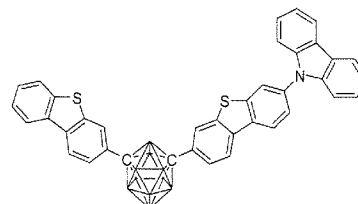
3-159



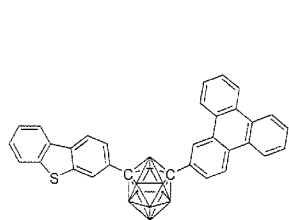
3-160



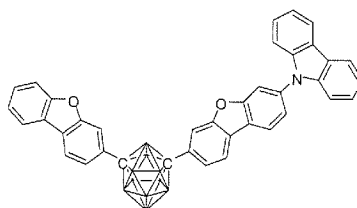
3-161



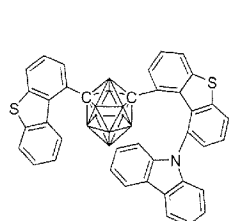
3-162



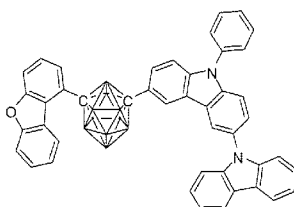
3-163



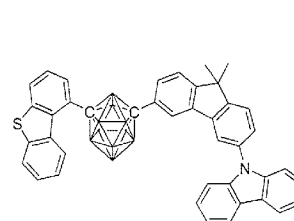
3-164



3-165

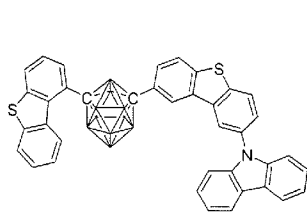


3-166

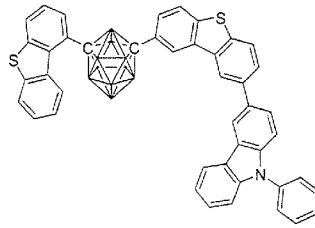


3-167

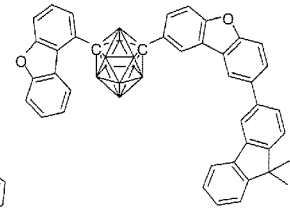
[化55]



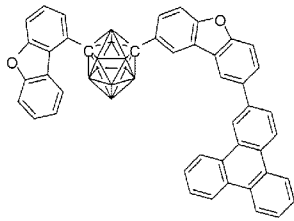
3-168



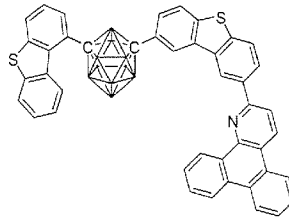
3-169



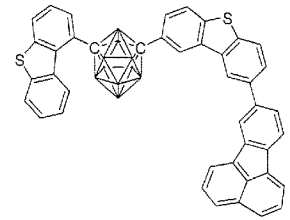
3-170



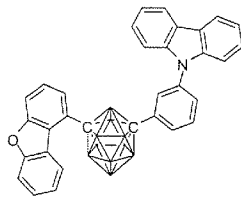
3-171



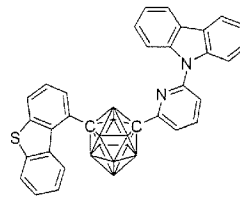
3-172



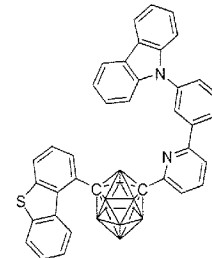
3-173



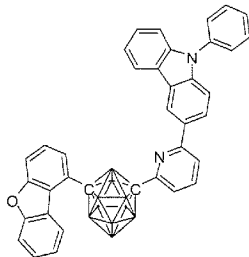
3-174



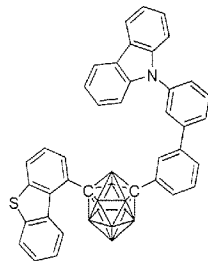
3-175



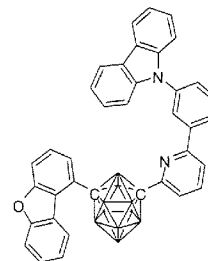
3-176



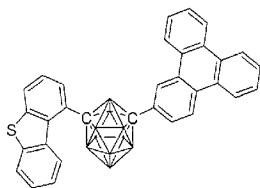
3-177



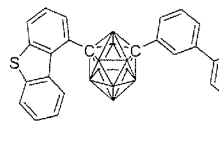
3-178



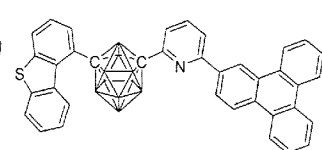
3-179



3-180

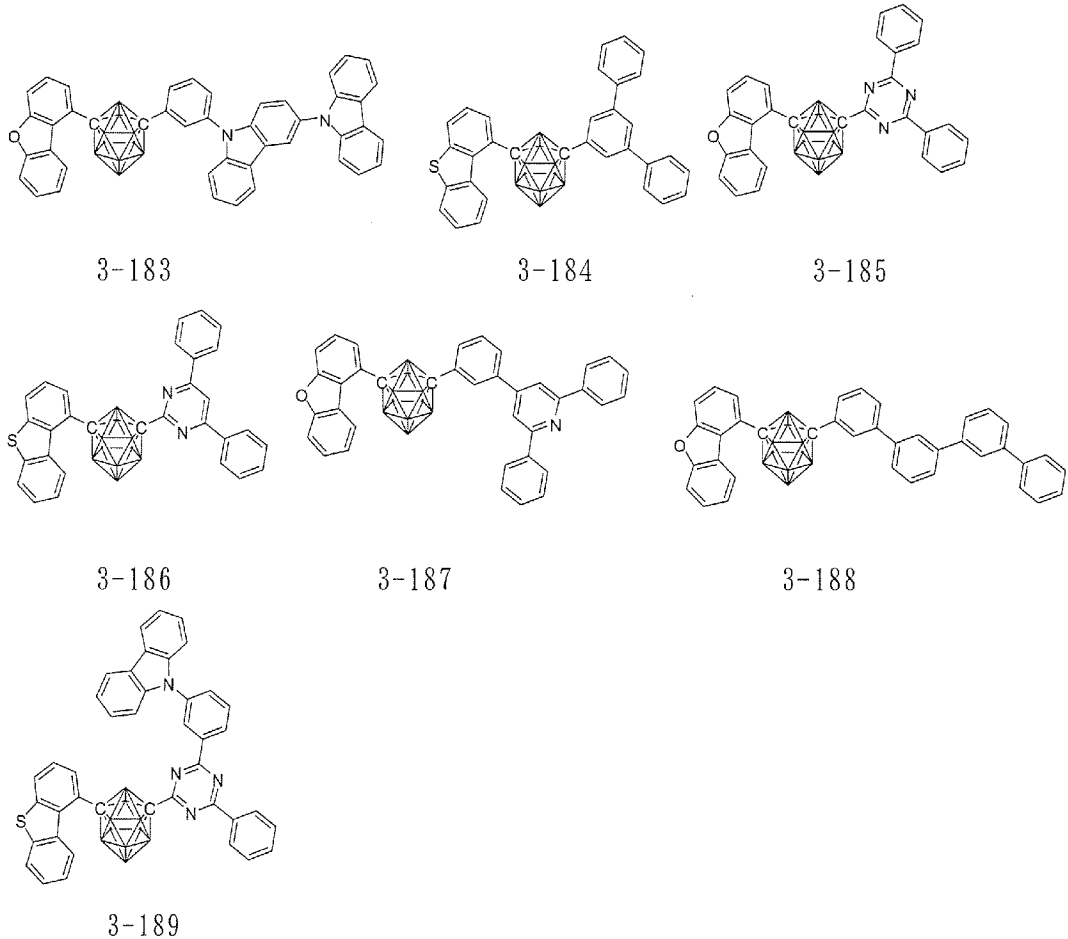


3-181



3-182

[化56]



[0074] 本発明の有機EL素子は、一般式（1）で表される化合物及び一般式（2）で表される化合物の混合物を、有機EL素子の少なくとも1つの有機層に含有する。この混合物は、電荷に対する耐久性に優れることから、何れの有機層に使用しても構わないが、発光層、電子輸送層、及び正孔阻止層のいずれかの層に含むことが好ましく、特に発光層に含むことが好ましい。

[0075] 発光層に使用する場合、上記混合物を発光性ドーパント材料として使用しても良いが、発光性ドーパント材料として他の燐光発光ドーパント材料、蛍光発光ドーパント材料又は熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料を使用し、この混合物をホスト材料として使用することが好ましい。特に燐光発光ドーパント材料として、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金から選ばれる少なくとも一つの金属を

む有機金属錯体であることが好ましい態様である。

[0076] 上記少なくとも2つの化合物を含む混合物は、素子を作成する前に混合して1つの蒸着源を用いて蒸着しても構わないし、複数の蒸着源を用いた共蒸着等の操作により素子を作成する時点で混合しても構わない。

[0077] また、上記混合物は、蒸着源を使用したドライプロセスを用いずに、スピコートやインクジェット等のウエットプロセスを用いて基板等に製膜して使用しても構わない。

[0078] 次に、本発明の有機EL素子の構造について、図面を参照しながら説明するが、本発明の有機EL素子の構造は何ら図示のものに限定されるものではない。

[0079] (1) 有機EL素子の構成

図1は一般的な有機EL素子の構造例を模式的に示す断面図であり、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は電子注入層、8は陰極を各々示す。本発明の有機EL素子では、陽極、発光層、電子輸送層及び陰極を必須の層として有するが、必要により他の層を設けてもよい。他の層とは、例えば正孔注入輸送層や電子阻止層及び正孔阻止層が挙げられるが、これらに限定されるものではない。なお、正孔注入輸送層は、正孔注入層と正孔輸送層のいずれか又は両者を意味する。

[0080] (2) 基板

基板1は有機電界発光素子の支持体となるものであり、石英やガラスの板、金属板や金属箔、プラスチックフィルムやシートなどが用いられる。特にガラス板や、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの平滑で透明な合成樹脂の板が好ましい。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留意する必要がある。基板のガスバリア性が小さすぎると、基板を通過した外気により有機電界発光素子が劣化することがあるので好ましくない。このため、合成樹脂基板の少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を確保する方法も好ましい方法の一

つである。

[0081] (3) 陽極

基板 1 上には陽極 2 が設けられるが、陽極は正孔輸送層への正孔注入の役割を果たすものである。この陽極は、通常、アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、白金等の金属、インジウム及び／又はスズの酸化物、インジウム及び／又は亜鉛の酸化物などの金属酸化物、ヨウ化銅などのハロゲン化金属、カーボンブラック、あるいは、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子などにより構成される。陽極の形成は通常、スパッタリング法、真空蒸着法などにより行われることが多い。また、銀などの金属微粒子、ヨウ化銅などの微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒子、導電性高分子微粉末などの場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板上に塗布することにより陽極を形成することもできる。更に、導電性高分子の場合は電解重合により直接基板上に薄膜を形成したり、基板 1 上に導電性高分子を塗布して陽極を形成することもできる。陽極は異なる物質で積層して形成することも可能である。陽極の厚みは、必要とする透明性により異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過率を、通常、60%以上、好ましくは80%以上とすることが望ましく、この場合、厚みは、通常、5~1000nm、好ましくは10~500nm程度である。不透明でよい場合には、陽極は基板と同一でもよい。また、更には上記の陽極の上に異なる導電材料を積層することも可能である。

[0082] (4) 正孔輸送層

陽極 2 の上に正孔輸送層 4 が設けられる。両者の間には、正孔注入層 3 を設けることもできる。正孔輸送層の材料に要求される条件としては、陽極からの正孔注入効率が高く、かつ、注入された正孔を効率よく輸送することができる材料であることが必要である。そのためには、イオン化ポテンシャルが小さく、可視光の光に対して透明性が高く、しかも正孔移動度が大きく、更に安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくいことが要求される。また、発光層 5 に接するために発光層からの発光を消光

したり、発光層との間でエキサイプレックスを形成して効率を低下させないことが求められる。上記の一般的要求以外に、車載表示用の応用を考えた場合、素子には更に耐熱性が要求される。従って、T<sub>g</sub>として85°C以上の値を有する材料が望ましい。

[0083] 正孔輸送材料としては、一般式(1)及び一般式(2)の混合物を使用しても良いし、従来この層に用いられている公知の化合物を用いることができる。公知の化合物としては、例えば、2個以上の3級アミンを含み2個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族ジアミン、4,4',4''-トリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン等のスターバースト構造を有する芳香族アミン化合物、トリフェニルアミンの四量体からなる芳香族アミン化合物、2,2',7,7'-テトラキス-(ジフェニルアミノ)-9,9'-スピロビフルオレン等のスピロ化合物等が挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。

また、上記の化合物以外に、正孔輸送層の材料として、ポリビニルカルバゾール、ポリビニルトリフェニルアミン、テトラフェニルベンジジンを含むポリアリーレンエーテルサルホン等の高分子材料が挙げられる。

[0084] 正孔輸送層を塗布法で形成する場合は、正孔輸送材料を1種又は2種以上と、必要により正孔のトラップにならないバインダー樹脂や塗布性改良剤などの添加剤とを添加し、溶解して塗布溶液を調製し、スピンコート法などの方法により陽極上に塗布し、乾燥して正孔輸送層を形成する。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は添加量が多いと正孔移動度を低下させるので、少ない方が望ましく、通常、50重量%以下が好ましい。

[0085] 真空蒸着法で形成する場合は、正孔輸送材料を真空容器内に設置されたルツボに入れ、真空容器内を適当な真空ポンプで10<sup>-4</sup>Pa程度にまで排気した後、ルツボを加熱して、正孔輸送材料を蒸発させ、ルツボと向き合って置かれた、陽極が形成された基板上に正孔輸送層を形成させる。正孔輸送層の膜厚は、通常、1~300nm、好ましくは5~100nmである。この様に薄い膜を一様に形

成するためには、一般に真空蒸着法がよく用いられる。

[0086] (5) 正孔注入層

正孔注入の効率を更に向上させ、かつ、有機層全体の陽極への付着力を改善させる目的で、正孔輸送層4と陽極2との間に正孔注入層3を挿入することも行われている。正孔注入層を挿入することで、初期の素子の駆動電圧が下がると同時に、素子を定電流で連続駆動した時の電圧上昇も抑制される効果がある。正孔注入層に用いられる材料に要求される条件としては、陽極とのコンタクトがよく均一な薄膜が形成でき、熱的に安定、すなわち、ガラス転移温度が高く、ガラス転移温度としては100℃以上が要求される。更に、イオン化ポテンシャルが低く陽極からの正孔注入が容易なこと、正孔移動度が大きいことが挙げられる。

[0087] この目的のために、一般式(1)及び一般式(2)の混合物を使用しても良いし、これまでに公知の銅フタロシアニン等のフタロシアニン化合物、ポリアニリン、ポリチオフェン等の有機化合物や、スパッタ・カーボン膜や、バナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、モリブデン酸化物等の金属酸化物、1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物(NTCDA)やヘキサニトリルヘキサアザトリフェニレン(HAT)などのP型有機物を単独で用いてもよいし、必要に応じて、混合して用いてもよい。正孔注入層の場合も、正孔輸送層と同様にして薄膜形成可能であるが、無機物の場合には、更に、スパッタ法や電子ビーム蒸着法、プラズマCVD法が用いられる。以上の様にして形成される正孔注入層の膜厚は、通常、1~300nm、好ましくは5~100nmである。

[0088] (6) 発光層

正孔輸送層4の上に発光層5が設けられる。発光層は、単一の発光層から形成されていてもよいし、複数の発光層を直接接するように積層して構成されていてもよい。発光層は、ホスト材料と発光性ドーパントとして構成され、発光性ドーパントとしては、蛍光発光材料、遅延蛍光発光材料及び燐光発光材料の場合がある。一般式(1)及び一般式(2)の混合物をホスト材料

として使用しても良いし、発光性ドーパントとして使用しても良いが、ホスト材料として使用することが好ましい。

[0089] 蛍光発光有機EL素子の場合、ホスト材料に添加する蛍光性発光材料としては、ペリレン、ルブレンなどの縮合環誘導体、キナクリドン誘導体、フェノキサゾン660、DCM1、ペリノン、クマリン誘導体、ピロメテン（ジアザインダセン）誘導体、シアニン色素などが使用できる。

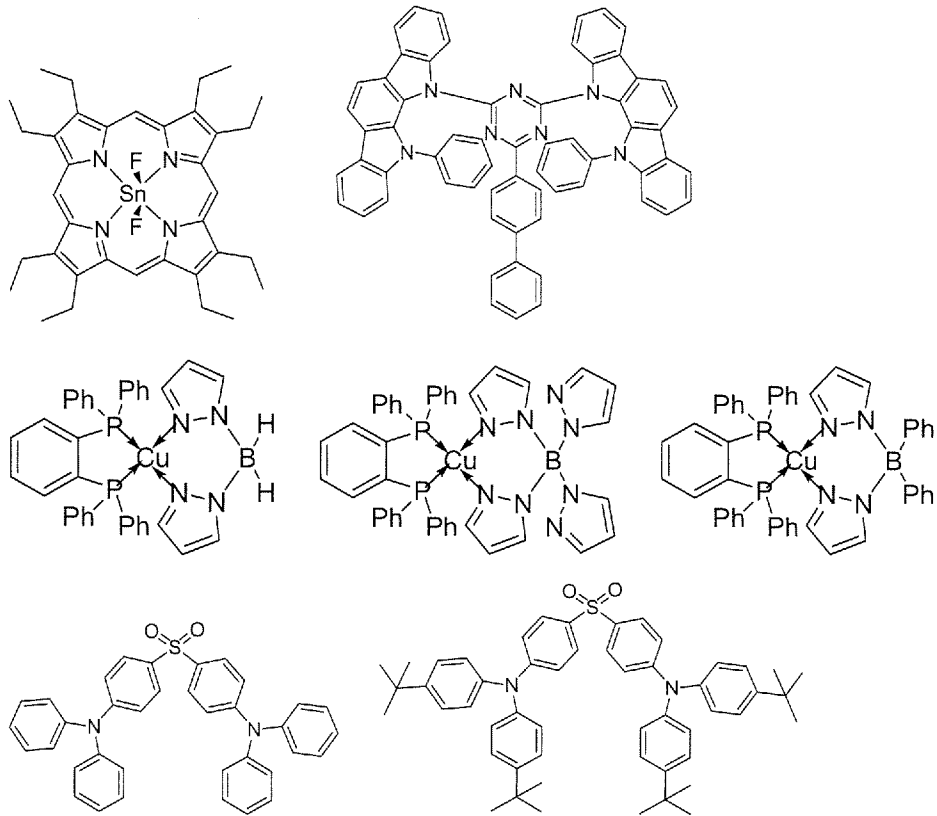
[0090] 遅延蛍光発光有機EL素子の場合、発光層における遅延蛍光発光材料としては、例えば、カルボラン誘導体、スズ錯体、インドロカルバゾール誘導体、銅錯体、カルバゾール誘導体等が挙げられる。具体的には、以下の非特許文献、特許文献に記載されている化合物が挙げられるが、これらの化合物に限定されるものではない。

[0091] 1) Adv. Mater. 2009, 21, 4802-4806、2) Appl. Phys. Lett. 98, 083302 (2011)、3) 特開2011-213643号公報、4) J. Am. Chem. Soc. 2012, 134, 14706-14709。

[0092] 遅延発光材料の具体的な例を示すが、下記の化合物に限定されるものではない。

[0093]

[化57]



[0094] 前記遅延蛍光発光材料を遅延蛍光発光ドーパントとして使用し、ホスト材料を含む場合、遅延蛍光発光ドーパントが発光層中に含有される量は、0.01～50重量%、好ましくは0.1～20重量%、より好ましくは0.01～10%の範囲にあることがよい。

[0095] 燐光発光有機EL素子の場合、燐光性発光性ドーパントとしては、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金などから選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体を含有するものがよい。具体的には以下の特許公報に記載されている化合物が挙げられるが、これらの化合物に限定されない。

[0096] W02009-073245号公報、W02009-046266号公報、W02007-095118号公報、W02008-156879号公報、W02008-140657号公報、US2008-261076号公報、特表2008-542203号公報、W02008-054584号公報、特表2008-505925号公報、特表2007-522

126号公報、特表2004-506305号公報、特表2006-513278号公報、特表2006-50596号公報、W02006-046980号公報、W02005-113704号公報、US2005-260449号公報、US2005-2260448号公報、US2005-214576号公報、W02005-076380号公報等。

[0097] 好ましい燐光発光ドーパントとしては、Ir等の貴金属元素を中心金属として有するIr(ppy)<sub>3</sub>等の錯体類、Ir(bt)<sub>2</sub>·acac<sub>3</sub>等の錯体類、PtOEt<sub>3</sub>等の錯体類が挙げられる。これらの錯体類の具体例を以下に示すが、下記の化合物に限定されない。

[0098]



子の発光層外への拡散を阻止することができる。電子阻止層は、発光層及び正孔輸送層の間に配置されることができ、電子が正孔輸送層の方に向かって発光層を通過することを阻止する。同様に、正孔阻止層は発光層及び電子輸送層の間に配置されることができ、正孔が電子輸送層の方に向かって発光層を通過することを阻止する。阻止層はまた、励起子が発光層の外側に拡散することを阻止するために用いることができる。すなわち電子阻止層、正孔阻止層はそれぞれ励起子阻止層としての機能も兼ね備えることができる。本明細書でいう電子阻止層又は正孔阻止層は、一つの層で電荷（電子若しくは正孔）阻止層及び励起子阻止層の機能を有する層を含む意味で使用される。

[0102] ー正孔阻止層ー

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有する。正孔阻止層は電子を輸送しつつ、正孔が電子輸送層へ到達することを阻止する役割があり、これにより発光層中での電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

[0103] 正孔阻止層の材料としては、一般式（１）及び一般式（２）の混合物を用いることが好ましく、後述する電子輸送層の材料も使用できる。本発明に関わる正孔阻止層の膜厚は好ましくは３～１００nmであり、より好ましくは５～３０nmである。

[0104] ー電子阻止層ー

電子阻止層とは、広い意味では正孔を輸送する機能を有する。電子阻止層は正孔を輸送しつつ、電子が正孔輸送層へ到達することを阻止する役割があり、これにより発光層中での電子と正孔が再結合する確率を向上させることができる。

[0105] 電子阻止層の材料としては、一般式（１）及び一般式（２）の混合物を用いることが好ましく、後述する正孔輸送層の材料も使用できる。本発明に係る電子阻止層の膜厚は好ましくは３～１００nmであり、より好ましくは５～３０nmである。

[0106] ー励起子阻止層ー

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は発光層に隣接して陽極側、陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。すなわち、励起子阻止層を陽極側に有する場合、正孔輸送層と発光層の間に、発光層に隣接してこの層を挿入することができ、陰極側に挿入する場合、発光層と陰極との間に、発光層に隣接してこの層を挿入することができる。また、陽極と、発光層の陽極側に隣接する励起子阻止層との間には、正孔注入層や電子阻止層などを有することができ、陰極と、発光層の陰極側に隣接する励起子阻止層との間には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層などを有することができる。

[0107] 励起子阻止層の材料としては、一般式（１）及び一般式（２）の混合物を用いることが好ましく、一般的に使用される任意の材料を用いることもできる。

[0108] 使用できる公知の励起子阻止層用材料としては例えば、１，３－ジカルバゾリルベンゼン（mCP）や、ビス（２－メチル－８－キノリノラト）－４－フェニルフェノラトアルミニウム（III）（BAIq）が挙げられる。

[0109] （７）電子輸送層

素子の発光効率を更に向上させることを目的として、発光層５と陰極８の間に、電子輸送層６が設けられる。電子輸送層としては、陰極からスムーズに電子を注入できる電子輸送性材料が好ましく、一般式（１）及び一般式（２）の混合物を使用しても良いし、一般的に使用される任意の材料を用いることができる。このような条件を満たす電子輸送材料としては、Alq<sub>3</sub>などの金属錯体、１０－ヒドロキシベンゾ[h]キノリンの金属錯体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルピフェニル誘導体、シロール誘導体、３－又は５－ヒドロキシフラボン金属錯体、ベンズオキサゾール金属錯体、ベンゾチアゾール金属錯体、トリスベンズイミダゾリルベンゼン、キノキサリン化

合物、フェナントロリン誘導体、2-*t*-ブチル-9,10-N,N'-ジシアノアントラキノンジイミン、*n*型水素化非晶質炭化シリコン、*n*型硫化亜鉛、*n*型セレン化亜鉛などが挙げられる。

[0110] 電子輸送層の膜厚は、通常、1~300nm、好ましくは5~100 nmである。電子輸送層は、正孔輸送層と同様にして塗布法あるいは真空蒸着法により発光層上に積層することにより形成される。通常は、真空蒸着法が用いられる。

[0111] (8) 陰極

陰極8は、電子輸送層6に電子を注入する役割を果たす。陰極として用いられる材料は、前記陽極2に使用される材料を用いることが可能であるが、効率よく電子注入を行なうには、仕事関数の低い金属が好ましく、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属又はそれらの合金が用いられる。具体例としては、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、アルミニウム-リチウム合金等の低仕事関数合金電極が挙げられる。

陰極の膜厚は通常、陽極と同様である。低仕事関数金属からなる陰極を保護する目的で、この上に更に、仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層することは素子の安定性を増す。この目的のために、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、クロム、金、白金等の金属が使われる。

更に、電子注入層7として、陰極8と電子輸送層6の間にLiF、MgF<sub>2</sub>、Li<sub>2</sub>O等の極薄絶縁膜(0.1~5nm)を挿入することも素子の効率を向上させる有効な方法である。

[0112] なお、図1とは逆の構造、すなわち、基板1上に陰極8、電子注入層7、電子輸送層6、発光層5、正孔輸送層4、正孔注入層3、陽極2の順に積層することも可能であり、既述したように少なくとも一方が透明性の高い2枚の基板の間に本発明の有機EL素子を設けることも可能である。この場合も、必要により層を追加したり、省略したりすることが可能である。

[0113] 本発明の有機EL素子は、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造のいずれでも

あることができる。本発明の有機EL素子によれば、少なくとも1つの有機層に本発明の2つの化合物を使用すること、特に発光層の混合ホスト材料として使用することで、低い電圧であっても発光効率が高くかつ駆動安定性においても大きく改善された素子が得られ、フルカラーあるいはマルチカラーのパネルへの応用において優れた性能を発揮できる。

[0114] 以下、本発明を実施例によって更に詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではなく、その要旨を越えない限りにおいて、種々の形態で実施することが可能である。なお、第一ホスト及び第一成分は一般式(1)で表される化合物を意味し、第二ホスト及び第二成分は一般式(2)で表される化合物を意味する。

## 実施例

### [0115] 実施例 1

膜厚 70nm の 酸化インジウムスズ (ITO) からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 $2.0 \times 10^{-5}$  Pa で積層させた。まず、ITO 上に正孔注入層として、銅フタロシアニン (CuPC) を 30 nm の厚さに形成した。次に、正孔輸送層として4,4-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル (NPB) を 15 nm の厚さに形成した。次に発光層として、第一ホストとして化合物1-25を、第二ホストとして化合物3-1を、発光層ゲストとして青色燐光材料であるイリジウム錯体[イリジウム(III)ビス(4,6-ジ-フルオロフェニル)-ピリジネート-N,C2']ピコリネート] (FIrpic) とを異なる蒸着源から、共蒸着し、30 nm の厚さに発光層を形成した。この時、第一ホストと第二ホストとFIrpicの蒸着速度比 (wt比) は、47 : 47 : 6であった。次に、電子輸送層として Alq<sub>3</sub> を 25 nm厚さに形成した。更に、電子輸送層上に、電子注入層としてフッ化リチウム (LiF) を 1.0 nm厚さに形成した。最後に、電子注入層上に、電極としてアルミニウム (Al) を70 nm厚さに形成した。得られた有機EL素子は、図1に示す有機EL素子において、陰極と電子輸送層の間に、電子注入層が追加された層構成を有する。

## [0116] 実施例 2 ~ 18

実施例 1 において、発光層の第一ホストとして表 1 に記載した化合物を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した（実施例 2 ~ 9）。

また、発光層の第二ホストとして化合物 3-43 を、第一ホストとして表 1 に記載した化合物を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した（実施例 10 ~ 18）。

得られた有機 EL 素子に外部電源を接続し直流電圧を印加したところ、いずれの有機 EL 素子からも極大波長 475 nm の発光スペクトルが観測され、FIRpic からの発光が得られていることがわかった。表 1 に作製した有機 EL 素子の特性を示す。

## [0117] 比較例 1 ~ 11

実施例 1 において、発光層ホストとして表 2 に記載した化合物を単独で用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。なお、ホスト量は、実施例 1 における第一ホストと第二ホストの合計と同じ量とし、ゲスト量は同様とした。得られた有機 EL 素子に電源を接続し直流電圧を印加したところ、いずれの有機 EL 素子からも極大波長 475 nm の発光スペクトルが観測され、FIRpic からの発光が得られていることがわかった。表 2 に作製した有機 EL 素子の特性を示す。

[0118] 表 1、2 において、輝度、電圧、及び発光効率、駆動電流 2.5 mA/cm<sup>2</sup> 時の値であり、輝度半減時間は、初期輝度 1000 cd/m<sup>2</sup> のときの値である。化合物 No. は上記化学式に付した番号である。

[0119]

[表1]

実施例	第一ホスト 化合物 No.	第二ホスト 化合物 No.	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	視感発光 効率 (lm/W)	輝度半減 時間 (h)
1	1-25	3-1	510	5.4	11.9	2100
2	1-56		520	5.5	11.9	1900
3	1-61		500	4.5	13.7	1700
4	1-101		500	4.5	13.9	1500
5	1-222		510	5.0	12.8	1600
6	1-226		510	5.1	12.5	2000
7	1-268		540	5.8	11.7	2000
8	2-29		530	4.9	13.5	2100
9	2-42		510	4.9	13.0	1900
10	1-25	3-43	490	5.5	11.3	2100
11	1-56		500	4.5	13.9	1900
12	1-61		480	4.5	13.3	1700
13	1-101		480	4.5	13.4	1500
14	1-222		490	5.0	12.3	1600
15	1-226		490	5.1	12.1	2000
16	1-268		520	5.8	11.3	2000
17	2-29		510	4.9	13.0	2100
18	2-42		490	4.9	12.6	1900

[0120]

[表2]

比較例	第一ホスト 化合物 No.	第二ホスト 化合物 No.	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	視感発光 効率 (lm/W)	輝度半減 時間 (h)
1	—	3-1	410	5.9	8.7	700
2	—	3-43	400	5.9	8.6	620
3	1-25	—	400	6.5	7.7	710
4	1-56	—	390	6.4	7.7	620
5	1-61	—	410	7.7	6.7	570
6	1-101	—	400	7.7	6.6	500
7	1-222	—	400	7.0	7.2	550
8	1-226	—	400	6.9	7.3	660
9	1-268	—	380	6.1	7.8	670
10	2-29	—	380	7.1	6.8	680
11	2-42	—	400	7.1	7.0	630

## [0121] 実施例 19

膜厚 150 nm の ITO からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度  $4.0 \times 10^{-4}$  Pa で積層させた。まず、ITO 上に正孔注入層として CuPc を 20 nm の厚さに形成し、次に正孔輸送層として NPB を 20 nm の厚さに形成した。次に発光層として、第一ホストとして化合物 1-25 を、第二ホストとして化合物 3-1 を、発光層ゲストとしてトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(III) ( $\text{Ir}(\text{PPy})_3$ ) をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、30 nm の厚さに形成した。この時、第一ホストと第二ホストと  $\text{Ir}(\text{PPy})_3$  の蒸着速度比は、47 : 47 : 6 であった。次に、正孔阻止層としてアルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリナト)4-フェニルフェノラート ( $\text{BAIq}$ ) を 10 nm の厚さに形成した。次に、電子輸送層として  $\text{Alq}_3$  を 40 nm の厚さに形成した。更に、電子輸送層上に、電子注入層として LiF を 0.5 nm の厚さに形成した。最後に、電子注入層上に、陰極として Al を 100 nm の厚さに形成し、有機 EL 素子を作製した。

得られた有機EL素子に外部電源を接続し直流電圧を印加したところ、極大波長517nmの発光スペクトルが観測され、Ir(PPy)<sub>3</sub>からの発光が得られていることがわかった。表3に作製した有機EL素子の特性（輝度、電圧、外部量子効率及び輝度半減時間）を示す。

[0122] 実施例20～36

実施例19において、発光層の第一ホストとして表3に記載した化合物を用いた以外は実施例19と同様にして有機EL素子を作製した（実施例20～27）。

また、発光層の第二ホストとして化合物3-43を、第一ホストとして表3に記載した化合物を用いた以外は実施例19と同様にして有機EL素子を作製した（実施例28～36）。

得られた有機EL素子に外部電源を接続し直流電圧を印加したところ、いずれの有機EL素子からも極大波長517nmの発光スペクトルが観測され、Ir(PPy)<sub>3</sub>からの発光が得られていることがわかった。表3に作製した有機EL素子の特性を示す。

[0123] 比較例12～22

実施例19において、発光層ホストとして表4に記載した化合物を単独で用いた以外は実施例19と同様にして有機EL素子を作製した。なお、ホスト量は、実施例19における第一ホストと第二ホストの合計と同じ量とし、ゲスト量は同様とした。得られた有機EL素子に電源を接続し直流電圧を印加したところ、いずれの有機EL素子からも極大波長517nmの発光スペクトルが観測され、Ir(PPy)<sub>3</sub>からの発光が得られていることがわかった。表4に作製した有機EL素子の特性を示す。

[0124] 表3、4において、輝度、電圧、及び発光効率は、駆動電流20mA/cm<sup>2</sup>時での値であり、輝度半減時間は、初期輝度1000cd/m<sup>2</sup>のときの値である。

[0125]

[表3]

実施例	第一ホスト 化合物 No.	第二ホスト 化合物 No.	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	視感発光 効率 (lm/W)	輝度半減 時間 (h)
19	1-25	3-1	8400	4.4	30.1	20000
20	1-56		8300	4.5	29.3	16000
21	1-61		8700	3.8	36.3	16000
22	1-101		8600	3.7	36.0	14000
23	1-222		8500	4.1	32.7	16000
24	1-226		8500	4.2	32.1	19000
25	1-268		8000	4.4	28.6	19000
26	2-29		8200	4.0	31.8	20000
27	2-42		8300	4.0	32.3	18000
28	1-25		3-43	8200	4.5	28.8
29	1-56	8000		3.8	33.6	15000
30	1-61	8400		3.8	35.1	14000
31	1-101	8300		3.8	34.8	12000
32	1-222	8200		4.1	31.6	13000
33	1-226	8200		4.2	31.1	16000
34	1-268	7800		4.4	28.0	16000
35	2-29	8000		4.0	31.1	16000
36	2-42	8200		4.0	32.0	15000

[0126]

[表4]

比較例	第一ホスト 化合物 No.	第二ホスト 化合物 No.	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	視感発光 効率 (lm/W)	輝度半減 時間 (h)
12	—	3-1	8100	4.5	28.3	3000
13	—	3-43	7900	4.5	27.7	2600
14	1-25	—	7800	4.9	24.9	4000
15	1-56	—	7700	4.9	24.8	3500
16	1-61	—	8000	5.9	21.6	3200
17	1-101	—	8000	5.9	21.3	2800
18	1-222	—	7900	5.3	23.2	3100
19	1-226	—	7900	5.2	23.6	3700
20	1-268	—	7400	4.6	25.2	3800
21	2-29	—	7600	5.4	21.9	3800
22	2-42	—	7900	5.4	22.8	3500

[0127] 表3と表4を比較すると、実施例19～36は、輝度及び寿命特性が向上し、良好な特性を示すことが分かる。

[0128] 実施例37

膜厚70nmの酸化インジウムスズ(ITO)からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 $2.0 \times 10^{-5}$  Paで積層させた。まず、ITO上に正孔注入層として、銅フタロシアニン(CuPC)を30nmの厚さに形成した。次に、正孔輸送層としてジフェニルナフチルジアミン(NPD)を15nmの厚さに形成した。次に、正孔輸送層上に、発光層のホスト材料としてのmCBPとドーパントとしてのFIrpicとを異なる蒸着源から、共蒸着し、30nmの厚さに発光層を形成した。この時、mCBPとFIrpicの蒸着速度比は、94:6であった。次に、発光層上に正孔阻止層の第一成分として化合物1-61を、第二成分として化合物3-1を用い、5nmの厚さに形成した。この時、化合物3-1と化合物1-61の蒸着速度比は、50:50であった。次に電子輸送層としてAlq<sub>3</sub>を20nm厚さに形成した。更に、電子輸送層上に、電子注入層としてフッ化リチウム(LiF)を1.0nm厚さに形成した。最後

に、電子注入層上に、電極としてアルミニウム (Al) を70 nm厚さに形成した。得られた有機EL素子は、図1に示す有機EL素子において、陰極と電子輸送層の間に電子注入層、及び発光層と電子輸送層の間に、正孔阻止層が追加された層構成を有する。

[0129] 得られた有機EL素子に外部電源を接続し直流電圧を印加したところ、表5に示すような発光特性を有することが確認された。表5において、輝度、電圧及び発光効率は、2.5 mA/cm<sup>2</sup>での駆動時の値（初期特性）を示す。素子発光スペクトルの極大波長は475 nmであり、FIRpicからの発光が得られていることがわかった。

[0130] 実施例38～46

実施例37において、正孔阻止層の第一成分として表5に記載した化合物を用いた以外は実施例37と同様にして有機EL素子を作製した（実施例38～41）。

また、正孔阻止層の第二成分として化合物3-43を、第一成分として表5に記載した化合物を用いた以外は実施例37と同様にして有機EL素子を作製した（実施例42～46）。

得られた有機EL素子に外部電源を接続し直流電圧を印加したところ、いずれの有機EL素子からも極大波長475 nmの発光スペクトルが観測され、FIRpicからの発光が得られていることがわかった。表5に作製した有機EL素子の特性を示す。

[0131] 比較例23

実施例37における電子輸送層としてのAlq<sub>3</sub>の膜厚を25 nmとし、正孔阻止層を設けないこと以外は、実施例37と同様にして有機EL素子を作成した。

[0132] 実施例38～46及び比較例23で得られた有機EL素子について、実施例37と同様にして評価したところ、表5に示すような発光特性を有することが確認された。なお、実施例37～46及び比較例23で得られた有機EL素子の発光スペクトルの極大波長は475 nmであり、FIRpicからの発光が得

られていると同定された。

[0133] [表5]

実施例	第一成分 化合物 No.	第二成分 化合物 No.	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	視感発光 効率 (lm/W)	輝度半減 時間 (h)
37	1-61	3-1	790	9.2	10.7	1600
38	1-101		790	9.2	10.8	1500
39	1-222		640	9.9	8.1	1600
40	1-226		640	10.1	8.0	1500
41	2-42		640	9.8	8.2	1500
42	1-61	3-43	780	9.2	10.6	1200
43	1-101		780	9.2	10.7	1200
44	1-222		630	9.9	8.0	1200
45	1-226		630	10.1	7.9	1300
46	2-42		630	9.8	8.1	1300
比較例 23	—	—	520	9.4	7.0	300

[0134] 表5より、正孔阻止材料を用いない比較例23に比べ、実施例37～45は、良好な特性を示す。

### 産業上の利用の可能性

[0135] 本発明の有機EL素子は、低電圧で高効率かつ長寿命を達成できる。

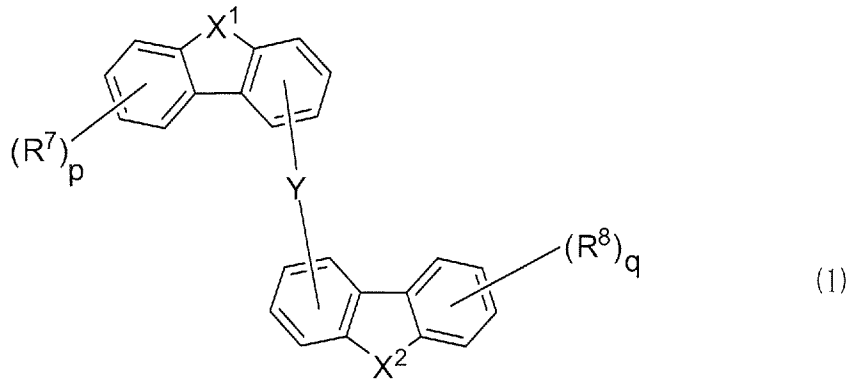
### 符号の説明

[0136] 1 基板、 2 陽極、 3 正孔注入層、 4 正孔  
輸送層、 5 発光層、 6 電子輸送層、 7 電子注入層  
、 8 陰極

## 請求の範囲

[請求項1] 基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子において、該有機層の少なくとも1層に、(i)下記一般式(1)で表される化合物と、(ii)下記一般式(2)で表される化合物を含むことを特徴とする有機電界発光素子。

[化1]



ここで、 $X^1$ 及び $X^2$ は $NR^1$ 、 $PR^2$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $Se$ 、 $CR^3R^4$ 、又は $SiR^5R^6$ を示し、互いに同一であっても異なってもよい。  
 $Y$ は単結合、2価の置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30のカルバゾール基以外の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示す。

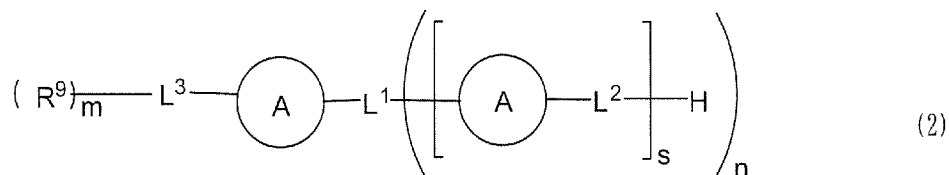
$R^1$ ～ $R^6$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示す。

$R^7$ 及び $R^8$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、これらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が

2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数7～38のアラルキル基、炭素数2～20のアルケニル基、炭素数2～20のアルキニル基、炭素数2～40のジアルキルアミノ基、炭素数12～44のジアリールアミノ基、炭素数14～76のジアラルキルアミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数2～20のアシルオキシ基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数2～20のアルコキシカルボニル基、炭素数2～20のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数1～20のアルキルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、又はトシル基を示す。

p、qは置換数であり、独立に0～7の整数である。

[化2]



ここで、環Aは式(a1)又は式(b1)で表される $C_2B_{10}H_{10}$ の2価のカルボラン基を示し、分子内に環Aが複数存在する場合は同一であっても異なってもよい。sは繰り返し数であり、0～2の整数であり、n、mは置換数であり、nは1又は2の整数、mは0～4の整数である。

$L^1$ は、単結合、 $n+1$ 価の置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、 $n+1$ 価の置換若しくは未置換の炭素数3～30

の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の $n+1$ 価の連結芳香族基を表す。但し、 $n=1$ で、かつ $s=1$ の場合は、単結合、芳香族複素環基、又は少なくとも1つの芳香族複素環基を含む連結芳香族基である。

$L^2$ は独立に、単結合、2価の置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、2価の置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の2価の連結芳香族基を表す。

$L^3$ は、 $m+1$ 価の未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、又は $m+1$ 価の未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基を表す。

$R^9$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～30の芳香族複素環基、これらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数7～38のアラルキル基、炭素数2～20のアルケニル基、炭素数2～20のアルキニル基、炭素数2～40のジアルキルアミノ基、炭素数12～44のジアリールアミノ基、炭素数14～76のジアラルキルアミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数2～20のアシルオキシ基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数2～20のアルコキシカルボニル基、炭素数2～20のアルコキシカルボニルオキシ基、炭素数1～20のアルキルスルホニル基、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、又はトシル基から選ばれる基であり、シアノ基、ニトロ基、フルオロ基、トシル基以外の基である場合は、更に置換基を有してもよい。

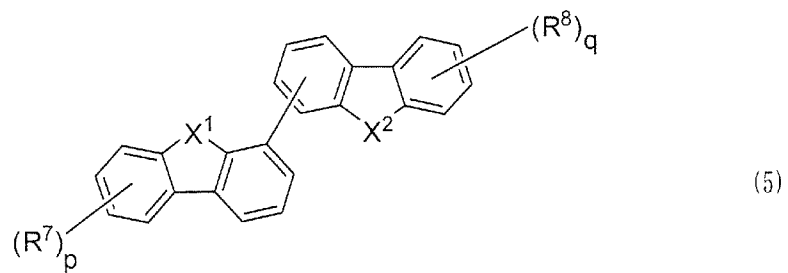
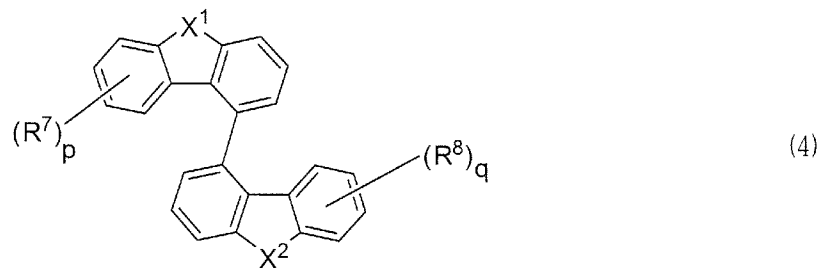
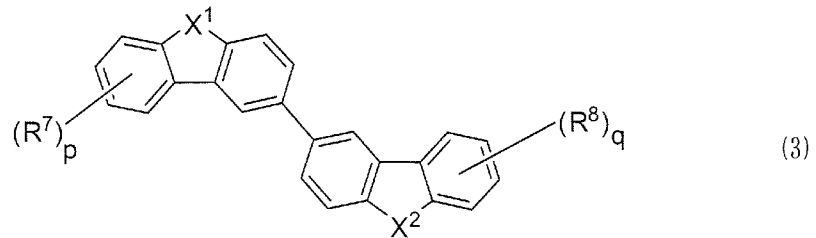
[請求項2]

一般式(1)の $X^1$ 及び $X^2$ が独立に、 $NR^1$ 、O、又はSのいずれかである請求項1に記載の有機電界発光素子。

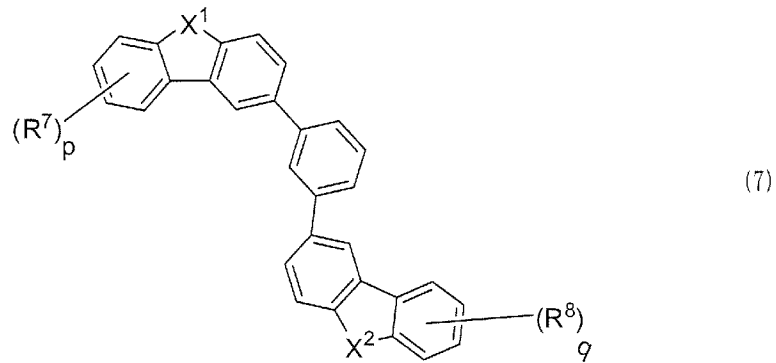
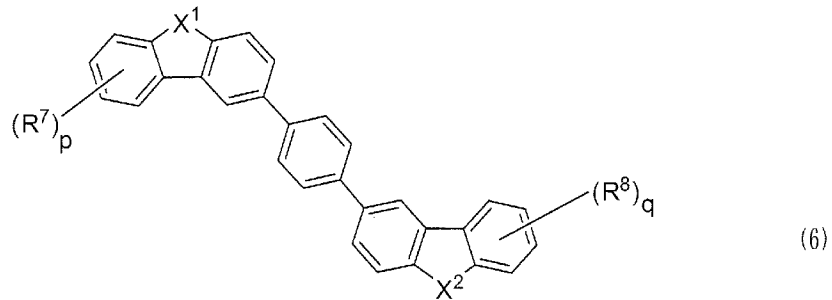
[請求項3] 一般式(1)のp及びqが独立に、0～3の整数である請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

[請求項4] 一般式(1)が下記式(3)～(7)のいずれかで表される請求項1に記載の有機電界発光素子。

[化3]



[化4]

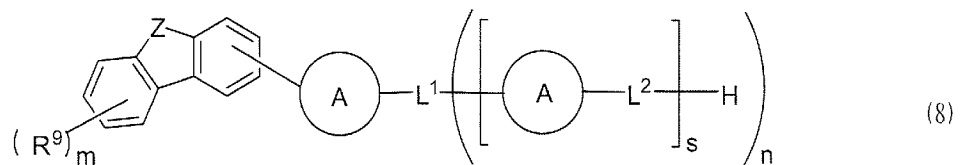


ここで、 $X^1$ 、 $X^2$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $p$ 及び $q$ は、一般式(1)の $X^1$ 、 $X^2$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $p$ 及び $q$ と同意である。

[請求項5] 一般式(2)において、 $L^1$ と $L^3$ の環Aに直接結合する芳香環が同一である請求項1に記載の有機電界発光素子。

[請求項6] 一般式(2)が下記式(8)で表される請求項1に記載の有機電界発光素子。

[化5]



ここで、 $Z$ は $NR^{10}$ 、 $PR^{11}$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $Se$ 、 $CR^{12}R^{13}$ 、又は $S$ 、 $iR^{14}R^{15}$ を示し、 $R^{10} \sim R^{15}$ は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～

30の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基の芳香族環が2～6連結してなる置換若しくは未置換の連結芳香族基を示す。環A、R<sup>9</sup>、L<sup>1</sup>、L<sup>2</sup>、s、m、及びnは一般式(2)と同意である。

[請求項7] 一般式(2)の環Aが、式(a1)で表されるC<sub>2</sub>B<sub>10</sub>H<sub>10</sub>の2価のカルボラン基である請求項1に記載の有機電界発光素子。

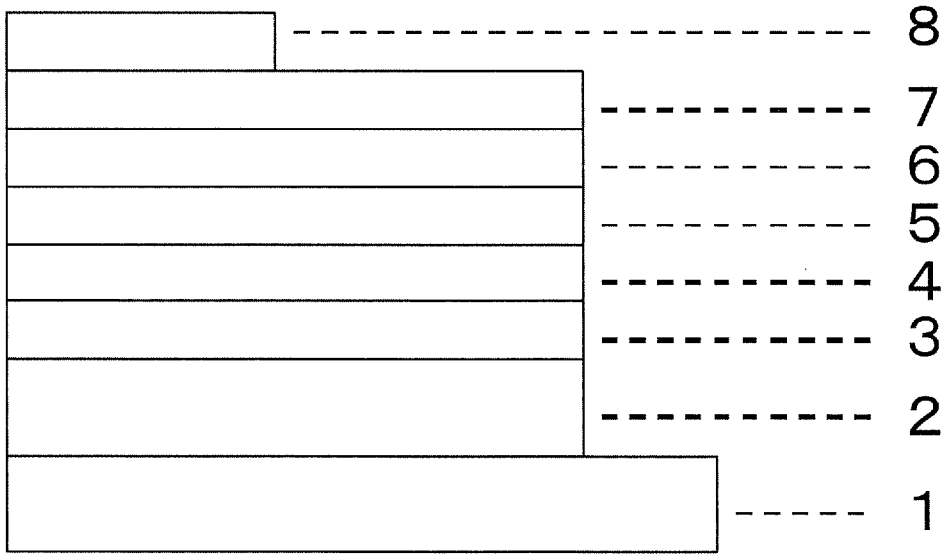
[請求項8] 一般式(1)で表される化合物と、一般式(2)で表される化合物を含む有機層が、発光性ドーパントを含有する発光層、電子阻止層、および正孔阻止層からなる群れから選ばれる少なくとも一つの層である請求項1～7のいずれかに記載の有機電界発光素子。

[請求項9] 上記有機層が、発光性ドーパントを含有する発光層であって、一般式(1)で表される化合物と、一般式(2)で表される化合物をホスト材料として含有することを特徴とする請求項8に記載の有機電界発光素子。

[請求項10] 発光性ドーパントが遅延蛍光発光性ドーパントであることを特徴とする請求項9に記載の有機電界発光素子。

[請求項11] 発光性ドーパントが、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金から選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体であることを特徴とする請求項9に記載の有機電界発光素子。

[図1]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.  
PCT/JP2017/006780

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
H01L51/50(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)n, C07D405/10(2006.01)n,  
C07D405/14(2006.01)n, C07D409/04(2006.01)n, C07D409/14(2006.01)n

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, C07D209/86, C07D405/10, C07D405/14, C07D409/04, C07D409/14

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2015-207657 A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 19 November 2015 (19.11.2015), claims; entire text (Family: none)	1-11
X	JP 2016-9824 A (Nippon Steel & Sumikin Chemical Co., Ltd.), 18 January 2016 (18.01.2016), claims; entire text (Family: none)	1-5, 7-11

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

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 02 May 2017 (02.05.17)	Date of mailing of the international search report 16 May 2017 (16.05.17)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer  Telephone No.
--	---

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/006780

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/098297 A1 (Nippon Steel & Sumikin Chemical Co., Ltd.), 02 July 2015 (02.07.2015), claims; entire text & US 2016/0315262 A1 & EP 3089230 A1 & CN 105874626 A & KR 10-2016-0095175 A	1-11
A	WO 2015/045705 A1 (Nippon Steel & Sumikin Chemical Co., Ltd.), 02 April 2015 (02.04.2015), claims; entire text & US 2016/0190451 A1 & EP 3054496 A1 & CN 105556695 A & KR 10-2016-0061406 A	1-11
A	WO 2015/137202 A1 (Kyushu University), 17 September 2015 (17.09.2015), claims; entire text & CN 106165138 A	1-11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)n, C07D405/10(2006.01)n, C07D405/14(2006.01)n, C07D409/04(2006.01)n, C07D409/14(2006.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50, C07D209/86, C07D405/10, C07D405/14, C07D409/04, C07D409/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2015-207657 A (新日鉄化学株式会社) 2015.11.19, 特許請求の範囲, 全文 (ファミリーなし)	1-11
X	JP 2016-9824 A (新日鉄住金化学株式会社) 2016.01.18, 特許請求の範囲, 全文 (ファミリーなし)	1-5, 7-11
A	WO 2015/098297 A1 (新日鉄住金化学株式会社) 2015.07.02, 請求の範囲, 全文 & US 2016/0315262 A1 & EP 3089230 A1 & CN 105874626 A & KR 10-2016-0095175 A	1-11

☑ 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

02.05.2017

国際調査報告の発送日

16.05.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号 100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

岩井 好子

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

20

4160

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
A	WO 2015/045705 A1 (新日鉄住金化学株式会社) 2015.04.02, 請求の 範囲, 全文 & US 2016/0190451 A1 & EP 3054496 A1 & CN 105556695 A & KR 10-2016-0061406 A	1-11
A	WO 2015/137202 A1 (国立大学法人九州大学) 2015.09.17, 請求の範 囲, 全文 & CN 106165138 A	1-11