

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2016-149558

(P2016-149558A)

(43) 公開日 平成28年8月18日 (2016. 8. 18)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
H O 1 L 51/50 (2006.01)	H O 5 B 33/14 B	3 K 1 0 7
H O 5 B 33/10 (2006.01)	H O 5 B 33/22 D	4 C O 6 3
C O 7 F 9/53 (2006.01)	H O 5 B 33/22 B	4 H O 4 9
C O 9 K 11/06 (2006.01)	H O 5 B 33/10	4 H O 5 0
C O 7 D 405/14 (2006.01)	C O 7 F 9/53	
審査請求 有 請求項の数 14 O L (全 103 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2016-40420 (P2016-40420)	(71) 出願人	000001270
(22) 出願日	平成28年3月2日 (2016. 3. 2)		コニカミノルタ株式会社
(62) 分割の表示	特願2011-160367 (P2011-160367) の分割	(74) 代理人	110001807 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 特許業務法人磯野国際特許商標事務所
原出願日	平成23年7月21日 (2011. 7. 21)	(74) 代理人	100064414 弁理士 磯野 道造
(31) 優先権主張番号	特願2010-167915 (P2010-167915)	(72) 発明者	妻目 麻由香 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号コニ カミノルタ株式会社内
(32) 優先日	平成22年7月27日 (2010. 7. 27)	(72) 発明者	関根 昇 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号コニ カミノルタ株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
		最終頁に続く	

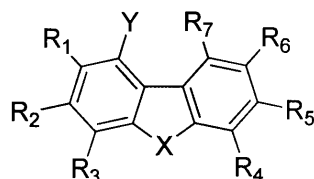
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置、並びに照明装置

(57) 【要約】

【課題】 発光効率が高く、低駆動電圧であり、且つ耐久性が高く、駆動時の電圧上昇が小さい有機エレクトロルミネッセンス素子材料、それを構成する化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置、並びに照明装置を提供する。

【解決手段】 下記一般式(1)で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式(1)



【選択図】 なし

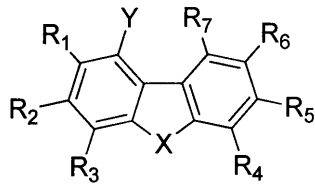
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式（１）で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化 1】

一般式(1)



10

〔式中、XはN-Rを表し、Rはアルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。〕

Yは炭素数3以上のアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、NR'R''（R'およびR''は各々水素原子、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、または、芳香族複素環基を表す。）、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。

20

R₁～R₇は、各々独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、ハロゲン原子、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。但し、R₃およびR₄が同時に水素原子であることはない。〕

30

【請求項 2】

前記一般式（１）のYが、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基またはNR'R''であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

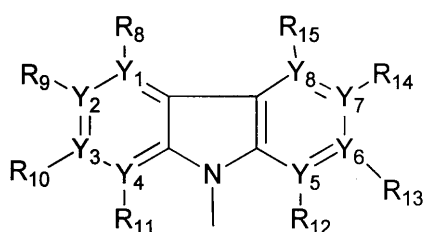
【請求項 3】

前記一般式（１）のYが、下記一般式（２）または一般式（３）で表される基であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

40

【化 2】

一般式(2)

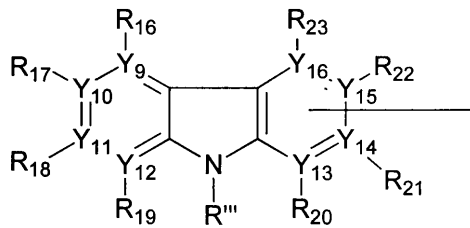


50

[式中、 $Y_1 \sim Y_8$ は各々 C または N を表す。 $R_8 \sim R_{15}$ は各々独立に前記一般式 (1) における $R_1 \sim R_7$ と同義の基を表し、 $Y_1 \sim Y_8$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_8 \sim R_{15}$ は各々非共有電子対を表す。]

【化 3】

一般式(3)



10

[式中、 $Y_9 \sim Y_{16}$ は各々 C または N を表す。 $R_{16} \sim R_{23}$ は各々独立に前記一般式 (1) における $R_1 \sim R_7$ と同義の基または連結基を表し、 $Y_9 \sim Y_{16}$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_{16} \sim R_{23}$ は各々非共有電子対を表す。 R'' は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。]

【請求項 4】

前記一般式 (1) の R_3 および R_4 がそれぞれ水素原子、芳香族炭化水素環基および芳香族複素環基のうちのいずれか一つであることを特徴とする請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

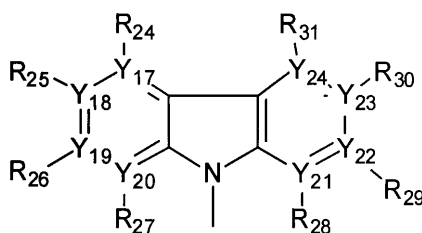
20

【請求項 5】

前記一般式 (1) の $R_1 \sim R_7$ のうち少なくとも 1 つが下記一般式 (4) または一般式 (5) で表される基であることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化 4】

一般式(4)

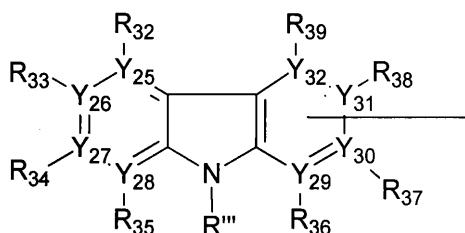


30

[式中、 $Y_{17} \sim Y_{24}$ は各々 C または N を表す。 $R_{24} \sim R_{31}$ は各々独立に前記一般式 (1) における $R_1 \sim R_7$ と同義の基を表し、 $Y_{17} \sim Y_{24}$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_{24} \sim R_{31}$ は各々非共有電子対を表す。]

【化 5】

一般式(5)



40

[式中、 $Y_{25} \sim Y_{32}$ は各々 C または N を表す。 $R_{32} \sim R_{39}$ は各々独立に前記一般式 (1) における $R_1 \sim R_7$ と同義の基または連結基を表し、 $Y_{25} \sim Y_{32}$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_{32} \sim R_{39}$ は各々非共有電子対を表す。]

50

R " ' は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。]

【請求項 6】

少なくとも 1 対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも 1 層からなり、該有機層のうち少なくとも 1 層が請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

前記発光層が請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 8】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層が正孔輸送層であることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】

前記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層が電子輸送層であることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】

前記発光層がリン光ドーパントを含有することを特徴とする請求項 6～9 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項 11】

前記リン光ドーパントが Ir 錯体であることを特徴とする請求項 10 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 12】

請求項 6～11 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子をウェットプロセスで作製することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 13】

請求項 6～11 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【請求項 14】

請求項 6～11 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料と、それを構成する化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置、並びに照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（以下、ELD という）がある。ELD の構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機 EL 素子ともいう）が挙げられる。

40

【0003】

無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。一方、有機 EL 素子は発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用して発光する素子である。有機 EL 素子は数 V～数十 V

50

程度の電圧で発光が可能であり、さらに自己発光型であるために視野角が広く、視認性が高く、また薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

【0004】

しかしながら、有機EL素子においては今後の実用化に向けて、さらに低消費電力で効率よく高輝度に発光し、さらには駆動時の電圧上昇を小さくすることができる有機EL素子の開発が望まれている。

このような素子として具体的には、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体又はトリススチリルアリーレン誘導体に微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を図った素子が知られている。また、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する素子、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーブした有機発光層を有する素子等が知られている。

【0005】

しかしながら、上記のように励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であり、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率(η)の限界は5%とされている。一方、励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率(外部取り出し量子効率)が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られる可能性があることから照明用途としても注目されている。

【0006】

例えば、励起三重項を利用したドーパントとしてイリジウム錯体系等、多くの重金属錯体が検討されており、ドーパントとしてトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム、 $\text{Ir}(\text{acac})_3$ 、 $(\text{ppy})_3\text{Ir}(\text{acac})$ 、トリス(2-(p-トリル)ピリジン)イリジウム($\text{Ir}(\text{ptpy})_3$)、トリス(ベンゾ[h]キノリン)イリジウム($\text{Ir}(\text{bzq})_3$)等を用いた検討が行われている(これらの金属錯体は一般にオルトメタル化イリジウム錯体と呼ばれている)。

【0007】

これらいずれの場合も発光素子とした場合の発光輝度や発光効率は、その発光する光がリン光に由来することから、従来の素子に比べ大幅に改良されるものである。そして、これらリン光発光性ドーパントのホスト化合物として、4,4'-ビス(9-カルバゾリル)ピフェニル(CBP)、1,3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン(m-CBP)に代表されるカルバゾール誘導体がよく知られている。また、青発光のホスト化合物としては、m-CBPやそれらの誘導体が知られている。しかしながら、これらのカルバゾール誘導体を用いた場合であっても、発光効率と寿命を十分満足するに至っていない(例えば、特許文献1、2参照)。

【0008】

また、複数のカルバゾール骨格が連結基に異なる位置で結合していることを特徴とするホスト化合物が開示されている(例えば、特許文献3参照)。

また、ジベンゾフラン骨格に複数のカルバゾール骨格が結合した化合物が知られている(例えば、特許文献4参照)。しかしながら、これら公知の文献において、カルバゾール骨格の4位またはジベンゾフラン骨格の1位に置換基を導入することで、有機EL素子の性能が改良されるという記載はない。一方、フルオレンの4位に置換基を有する化合物が開示されている(例えば、特許文献5、6参照)。これらを用いることにより、効率と寿命のある程度向上するものの、さらなる改良が求められていた。

さらには、低駆動電圧で、駆動時の電圧上昇が小さい有機EL素子とすることが求められていた。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0009】

10

20

30

40

50

【特許文献 1】国際公開第 03/80760 号
 【特許文献 2】国際公開第 04/74399 号
 【特許文献 3】特開 2004-217557 号公報
 【特許文献 4】国際公開第 06/128800 号
 【特許文献 5】特開 2003-261471 号公報
 【特許文献 6】国際公開第 07/072952 号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

このように従来においては、有機 EL 素子材料に関して様々な化合物が開示されており、低駆動電圧で発光効率が高く、耐久性（寿命）に優れ、さらには駆動時の電圧上昇を小さくすることができる有機 EL 素子の開発が試みられている。しかしながら、これらの性能を従来よりも増してさらに向上させた有機 EL 素子の開発が望まれている。

10

【0011】

本発明は、前記事情に鑑みてなされたものであり、発光効率が高く、低駆動電圧であり、且つ耐久性が高く、駆動時の電圧上昇が小さい有機エレクトロルミネッセンス素子材料、それを構成する化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置、並びに照明装置を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

20

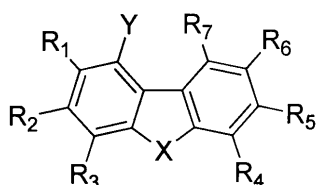
本発明の上記課題は、以下の構成により達成することができる。

1. 下記一般式（1）で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0013】

【化 1】

一般式(1)



30

〔式中、XはO、S、Se、N-R、SO、SO₂のいずれかを表し、Rはアルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。〕

Yは炭素数3以上のアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーロキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、NR'R''（R'およびR''は各々水素原子、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、または、芳香族複素環基を表す。）、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。

40

R₁～R₇は、各々独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、ハロゲン原子、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーロキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基

50

、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。]

【0014】

2. 前記一般式(1)のYが、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基またはNR'R''であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0015】

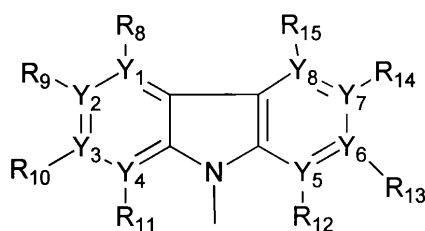
3. 前記一般式(1)のYが、下記一般式(2)または一般式(3)で表される基であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

10

【0016】

【化2】

一般式(2)



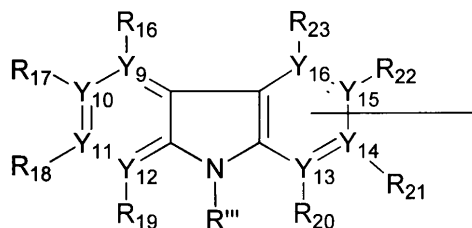
20

[式中、Y₁～Y₈は各々CまたはNを表す。R₈～R₁₅は各々独立に前記一般式(1)におけるR₁～R₇と同義の基を表し、Y₁～Y₈のいずれかがNである場合、該N原子に結合しているR₈～R₁₅は各々非共有電子対を表す。]

【0017】

【化3】

一般式(3)



30

[式中、Y₉～Y₁₆は各々CまたはNを表す。R₁₆～R₂₃は各々独立に前記一般式(1)におけるR₁～R₇と同義の基または連結基を表し、Y₉～Y₁₆のいずれかがNである場合、該N原子に結合しているR₁₆～R₂₃は各々非共有電子対を表す。R''は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。]

40

【0018】

4. 前記一般式(1)のXがOまたはN-Rであることを特徴とする前記1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

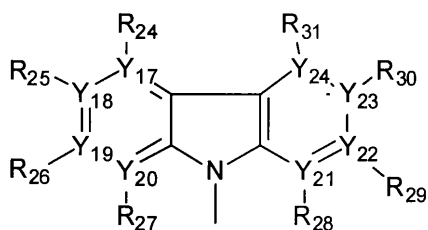
【0019】

5. 前記一般式(1)のR₁～R₇のうち少なくとも1つが下記一般式(4)または一般式(5)で表される基であることを特徴とする前記1～4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0020】

【化 4】

一般式(4)

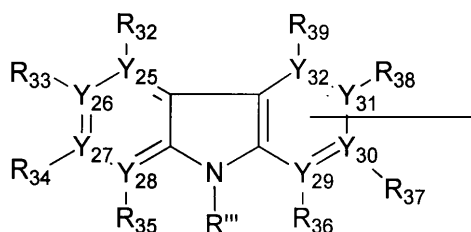


〔式中、 $Y_{17} \sim Y_{24}$ は各々 C または N を表す。 $R_{24} \sim R_{31}$ は各々独立に前記一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ と同義の基を表し、 $Y_{17} \sim Y_{24}$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_{24} \sim R_{31}$ は各々非共有電子対を表す。〕

【0021】

【化 5】

一般式(5)



〔式中、 $Y_{25} \sim Y_{32}$ は各々 C または N を表す。 $R_{32} \sim R_{39}$ は各々独立に前記一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ と同義の基または連結基を表し、 $Y_{25} \sim Y_{32}$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_{32} \sim R_{39}$ は各々非共有電子対を表す。 R''' は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。〕

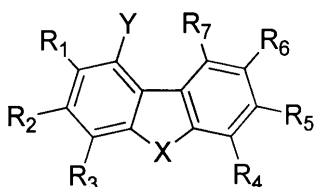
【0022】

6. 下記一般式(1)で表されることを特徴とする化合物。

【0023】

【化 6】

一般式(1)



〔式中、X は O を表す。Y は下記一般式(2)または一般式(3)の基を表す。 $R_1 \sim R_7$ は、各々独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、ハロゲン原子、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーロキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。〕

【0024】

10

20

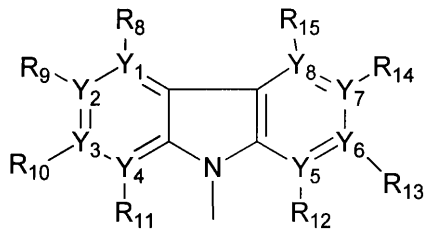
30

40

50

【化 7】

一般式(2)

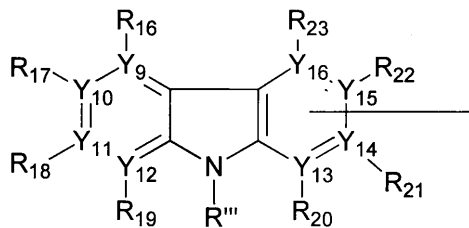


〔式中、 $Y_1 \sim Y_8$ は各々 C または N を表す。 $R_8 \sim R_{15}$ は各々独立に前記一般式 (1) における $R_1 \sim R_7$ と同義の基を表し、 $Y_1 \sim Y_8$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_8 \sim R_{15}$ は各々非共有電子対を表す。〕

【0025】

【化 8】

一般式(3)



〔式中、 $Y_9 \sim Y_{16}$ は各々 C または N を表す。 $R_{16} \sim R_{23}$ は各々独立に前記一般式 (1) における $R_1 \sim R_7$ と同義の基または連結基を表し、 $Y_9 \sim Y_{16}$ のいずれかが N である場合、該 N 原子に結合している $R_{16} \sim R_{23}$ は各々非共有電子対を表す。 R'' は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。〕

【0026】

7. 少なくとも 1 対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも 1 層からなり、該有機層のうち少なくとも 1 層が前記 1～5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0027】

8. 前記発光層が前記 1～5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする前記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0028】

9. 前記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層が正孔輸送層であることを特徴とする前記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0029】

10. 前記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層が電子輸送層であることを特徴とする前記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0030】

11. 前記発光層がリン光ドーパントを含有することを特徴とする前記 7～10 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0031】

12. 前記リン光ドーパントが Ir 錯体であることを特徴とする前記 11 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0032】

13. ウェットプロセスで作製されることを特徴とする前記 7～12 のいずれか 1 項に

10

20

30

40

50

記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【００３３】

１４．前記７～１２のいずれか１項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【００３４】

１５．前記７～１２のいずれか１項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

【発明の効果】

【００３５】

本発明によれば、発光効率が高く、低駆動電圧であり、且つ耐久性が高く、駆動時の電圧上昇が小さい有機エレクトロルミネッセンス素子材料を提供することができる。また、この有機ＥＬ素子材料を構成する化合物を提供することができる。また、この有機ＥＬ素子材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置及び表示装置を提供することができる。

10

【図面の簡単な説明】

【００３６】

【図１】実施例において使用する、有機ＥＬ素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【図２】図１における表示装置の表示部の模式図である。

【発明を実施するための形態】

20

【００３７】

以下本発明を実施するための形態について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【００３８】

《有機ＥＬ素子材料（有機エレクトロルミネッセンス素子材料）》

本発明の有機ＥＬ素子材料について説明する。

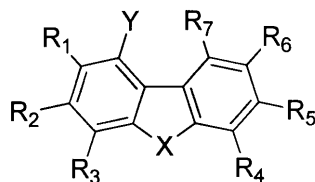
本発明の有機ＥＬ素子材料は、下記一般式（１）で表される化合物である。

【００３９】

【化９】

一般式(1)

30



【００４０】

〔式中、XはO、S、Se、N-R、SO、SO₂のいずれかを表し、Rは所定の置換基を表す。Yは所定の置換基を表す。R₁～R₇は、各々独立に水素原子、または所定の置換基を表す。〕

40

【００４１】

一般式（１）で表される化合物である、本発明の有機ＥＬ素子材料は、本発明の有機ＥＬ素子の発光層に好ましく用いられ、特に好ましくは、発光層中のホスト化合物として用いられることである。尚、本発明の有機ＥＬ素子の構成層、ホスト化合物等については後に詳細に説明する。

【００４２】

まず、当該有機ＥＬ素子材料を発明するに至った経緯及びその特徴について説明した後、一般式（１）で表される化合物について詳述する。

【００４３】

ホスト化合物や電子輸送材料等としてカルバゾール骨格やジベンゾフラン骨格をはじめ

50

とした一般式(1)で表される骨格はこれまでに多くの化合物が提案されているが、そのほとんどが置換基の導入が容易なカルバゾール骨格の1位または3位、もしくはジベンゾフラン骨格の2位または4位に置換基を導入した化合物であった。

本発明により、一般式(1)のように、ジベンゾフラン骨格の1位やカルバゾール骨格の4位に置換基を導入することにより、高い発光効率と長寿命を両立することができ、更には素子の駆動電圧を従来の化合物に比べて大きく低下させることができることが分かった。

このような効果が発現されるのは、本発明の有機EL材料が一般式(1)のような立体障害性の大きい位置に置換基を有しているためである。ジベンゾフラン骨格の1位やカルバゾール骨格の4位に置換基を導入した場合、分子全体の平面性が低下し、より立体障害が大きい化合物となるため、化合物同士の相互作用が抑制されることで、凝集が抑制される。これにより、発光層に含有されるリン光性化合物のような発光材料と相互作用しやすくなり、発光材料へのエネルギー移動がより一層効率化される。これにより、発光効率がより一層向上することが可能となり、有機EL材料の劣化も防げ、更には低電圧化を図ることも可能となった。さらには、駆動時の電圧上昇を小さくすることができた。

【0044】

《一般式(1)で表される化合物》

一般式(1)で表される化合物について説明する。

まず、 $R_1 \sim R_7$ について説明した後、XおよびYについて説明する。

一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ は、各々独立に水素原子または置換基であり、各々表される置換基としては、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、(t)ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素基(アリール基ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等)、非芳香族複素環基(例えば、エポキシ環、アジリジン環、チイラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキソラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ϵ -カプロラクトン環、 ϵ -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1,3-ジオキサン環、1,4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1,1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2,2,2]-オクタン環等)、芳香族複素環基(ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、ハロゲン原子(例えば、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、フッ素原子等)、アルコキシル基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシル基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシル

10

20

30

40

50

チオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基又はアリールスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ジアリールアミノ基(例えば、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基等)、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシル基、アルキルシリル基又はアリールシリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、(t)ブチルジメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、(t)ブチルジフェニルシリル基、トリフェニルシリル基、トリナフチルシリル基、2-ピリジルシリル基等)、アルキルホスフィノ基又はアリールホスフィノ基(ジメチルホスフィノ基、ジエチルホスフィノ基、ジシクロヘキシルホスフィノ基、メチルフェニルホスフィノ基、ジフェニルホスフィノ基、ジナフチルホスフィノ基、ジ(2-ピリジル)ホスホスフィノ基)、アルキルホスホリル基又はアリールホスホリル基(ジメチルホスホリル基、ジエチルホスホリル基、ジシクロヘキシルホスホリル基、メチルフェニルホスホリル基、ジフェニルホスホリル基、ジナフチルホスホリル基、ジ(2-ピリジル)ホスホリル基)、アルキルチオホスホリル基又はアリールチオホスホリル基(ジメチルチオホスホリル基、ジエチルチオホスホリル基、ジシクロヘキシルチオホスホリル基、メチルフェニルチオホスホリル基、ジフェニルチオホスホリル基、ジナフチルチオホスホリル基、ジ(2-ピリジル)チオホスホリル基)等が挙げられる。なおこれらの

10

20

30

40

50

基は、さらに上記の置換基によって置換されていてもよいし、また、それらが互いに縮合してさらに環を形成してもよい。

【0045】

$R_1 \sim R_7$ は、少なくとも1つ以上が置換基であることが好ましく、特に $R_1 \sim R_7$ のいずれか1つまたは2つが置換基であることがより好ましい。 $R_1 \sim R_7$ のうち、 $R_4 \sim R_7$ のいずれかが置換基であることが好ましく、さらには R_4 または R_6 のいずれかが置換基であることがより好ましい。 R_4 が置換基である場合には、ヘテロ原子周辺が遮蔽されることにより電荷に対する安定性が増し、耐久性向上に繋がるため好ましい形態として挙げられる。一方、 R_6 が置換基である場合には、活性部位を塞ぐことにより耐久性が向上するため好ましい形態として挙げられる。

10

【0046】

$R_1 \sim R_7$ が置換基である場合、好ましい置換基としては芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基のいずれかであり、中でも芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基のいずれかであることが好ましく、特に芳香族複素環基であることが好ましい。 $R_1 \sim R_7$ が芳香族炭化水素基である場合には、電荷に対する安定性が高く耐久性が向上するためより好ましい形態として挙げられる。

【0047】

また、アミノ基である場合には、アミノ基の窒素原子の電子ドナー性により高い正孔輸送能を発揮するためより好ましい形態として挙げられ、特にジアリールアミノ基であることがより好ましい。さらに、芳香族複素環基である場合には、高い電荷輸送能を有し電荷に対する耐久性が高いだけでなく、熱的安定性も高いため、最も好ましい形態として挙げられる。特にジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基等がより好ましい形態として挙げられ、さらにはカルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基等が最も好ましい形態として挙げられる。

20

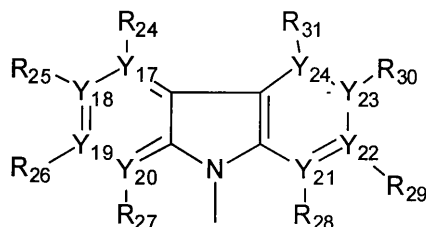
【0048】

一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ の最も好ましい形態は、より具体的には $R_1 \sim R_7$ の少なくとも1つが前記一般式(4)または(5)で表される。

【0049】

【化10】

一般式(4)

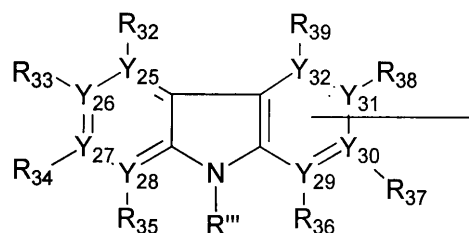


30

【0050】

【化11】

一般式(5)



40

【0051】

一般式(4)において、 $Y_{17} \sim Y_{24}$ は各々CまたはNを表す。 $Y_{17} \sim Y_{24}$ のいずれか1つ以上がNである場合には、電荷輸送性が向上し、低電圧で駆動時の電圧上昇を

50

小さく抑えることができる。Y₁₇～Y₂₄のいずれか1つまたは2つがNであることが好ましく、さらにY₁₇～Y₂₄のいずれか1つがNであることがより好ましい形態として挙げられる。また一方で、Y₁₇～Y₂₄が全てCである場合も、耐久性をより向上させることができるため、好ましい形態として挙げられる。特に一般式(4)においては、Y₁₇～Y₂₄はいずれもCであることが好ましい。

【0052】

R₂₄～R₃₁は各々独立に前記一般式(1)におけるR₁～R₇と同義の基を表す。Y₁₇～Y₂₄のいずれかがNである場合、該N原子に結合しているR₂₄～R₃₁は各々非共有電子対を表す。R₂₄～R₃₁は、いずれか1つ以上が置換基であることが好ましく、さらにR₂₄～R₃₁のうち1つまたは2つが置換基であることが好ましく、特にR₂₄～R₃₁のうち1つのみが置換基であることが最も好ましい形態として挙げられる。さらにR₂₅またはR₂₇が置換基であることが好ましく、特にR₂₅が置換基であることが最も好ましい形態として挙げられる。

10

【0053】

R₂₄～R₃₁で表される好ましい基としては、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基が挙げられ、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基がより好ましい置換基として挙げられる。さらに芳香族炭化水素基または芳香族複素環基が特に好ましい形態として挙げられる。よって、一般式(4)においてR₂₄～R₃₁は、R₂₅が芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることが好ましく、R₂₄及びR₂₆～R₃₁は水素原子であることがさらに好ましい形態である。一般式(1)におけるR₁～R₇のいずれかが一般式(4)で表される基である場合、一般式(1)で表される化合物は高い電荷輸送性を示すことにより効率が向上し、且つ耐久性も向上するため、好ましい形態として挙げられる。

20

【0054】

一般式(5)において、Y₂₅～Y₃₂は各々CまたはNを表す。Y₂₅～Y₃₂のいずれか1つ以上がNである場合には、電荷輸送性が向上し、低電圧で駆動時の電圧上昇を小さく抑えることができる。Y₂₅～Y₃₂のいずれか1つまたは2つがNであることが好ましく、さらにY₂₅～Y₃₂のいずれか1つがNであることが特に好ましい形態として挙げられる。特にY₂₅～Y₂₈のいずれかがNであることが好ましい形態として挙げられる。また一方で、Y₂₅～Y₃₂が全てCである場合も、耐久性をより向上させることができるため、好ましい形態として挙げられる。特に一般式(5)においては、Y₂₅～Y₃₂はいずれもCであることが好ましい。一般式(1)と結合する原子に関しては、Y₂₉～Y₃₂のいずれかの原子で結合し、特にY₃₁またはY₃₂で結合することが好ましく、Y₃₂で結合することが最も好ましい。

30

【0055】

R₃₂～R₃₉は各々独立に前記一般式(1)におけるR₁～R₇と同義の基または連結基を表す。Y₂₅～Y₃₂のいずれかがNである場合、該N原子に結合しているR₃₂～R₃₉は各々非共有電子対を表す。R₃₂～R₃₉は、いずれか1つ以上が置換基であることが好ましく、特にR₃₂～R₃₉のうち1つのみが置換基であることが好ましい。さらに、R₃₂～R₃₅のいずれかが置換基であることが好ましく、R₃₃またはR₃₅が置換基であることがより好ましく、特にR₃₃が置換基であることが最も好ましい形態として挙げられる。

40

【0056】

R₃₂～R₃₉で表される好ましい基としては、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基が挙げられ、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基がより好ましい置換基として挙げられる。さらに芳香族炭化水素基または芳香族複素環基が特に好ましい形態として挙げられる。よって、一般式(5)においてR₃₂～R₃₉は、R₃₉で一般式(1)と結合していることが好ましく、R₃₃が芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることがより好ましく、R₃₂及びR₃₄～R₃₉は水素原子であることがさらに好ましい形態である。

50

【0057】

R' は水素原子または置換基を表し、置換基としてはアルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表し、特に芳香族炭化水素基であることが最も好ましい。一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ のいずれかが一般式(5)で表される基である場合、一般式(1)で表される化合物は電荷に対する耐久性が高く、且つ窒素原子が含まれることで電荷輸送性の向上も見られ、寿命と効率の両方が良好となるため、好ましい形態として挙げられる。

【0058】

一般式(1)におけるXはO、S、Se、N-R、SO、SO₂のいずれかを表し、O、SまたはN-Rであることが好ましく、より好ましくはOまたはN-Rである。Rはアルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表し、好ましくは芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であり、特に芳香族炭化水素基であることが最も好ましい。

【0059】

一般式(1)において、Yは、炭素数3以上のアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシシル基、シクロアルコキシシル基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、NR'R''(R'およびR''は各々水素原子、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、または、芳香族複素環基を表す。)、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシシル基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの置換基である。

【0060】

一般式(1)において、Yで表される炭素数3以上のアルキル基としては、直鎖または分岐のアルキル基、例えば、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等が挙げられる。

【0061】

一般式(1)において、Yで表されるNR'R''としては、R'およびR''は各々水素原子、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、または、芳香族複素環基を示し、R'とR''が結合していてもよい。アルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基は、各々一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基として挙げた化合物例と同様な化合物が挙げられる。R'およびR''としては、特に芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることが好ましい形態として挙げられる。

【0062】

一般式(1)において、Yで表される、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシシル基、シクロアルコキシシル基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシシル基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基としては、各々一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基として挙げた化合物例と同様な化合物が挙げられる。

一般式(1)において、Yで表される基は、一般式(1)において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される基を更に有していても良い。

【0063】

本発明において、一般式(1)におけるYに前述の置換基が置換することで、置換基の立体障害性が強く発揮され、これにより化合物同士の凝集が抑制され、目的を達成するものである。驚くべきことに、一般式(1)においては特にYの位置に置換基が置換する場合に、顕著にこの効果が発揮される。この理由は不明だが、現在鋭意検討中である。

【0064】

一般式(1)において、Yは芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、 $NR'R''$ 、アリールシリル基、アリールホスホリル基であることが好ましく、特に芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、 $NR'R''$ であることがより好ましく、更には芳香族複素環基であることが最も好ましい形態として挙げられる。

【0065】

Yで表される芳香族炭化水素基としては、フェニル基またはビフェニル基が好ましく、さらにこれらの基が置換基を有していることが好ましい。特に一般式(1)で表される骨格と結合している原子に対して、オルト位又はパラ位に置換基を有することが好ましく、パラ位に置換基を有することがより好ましい。オルト位に置換基を有する場合には立体障害性が増すことによりねじれがより大きくなり、膜質の改善につながるため好ましい形態として挙げられる。また、パラ位に置換基を有する場合には電荷の分布が広がることで電荷に対する耐久性向上に繋がるため、好ましい形態として挙げられる。置換基を有する芳香族炭化水素基としては、より好ましくは一般式(1)におけるYが下記一般式(A)で表される基で表される。

*- (Ar)_n-L-Z ・・・一般式(A)

【0066】

一般式(A)において、nは1～10の整数を表し、*は結合位置を表す。Arは芳香族炭化水素基を表し、置換基を有していることが好ましい。Arに置換する置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同義の基が挙げられ、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることが好ましい。Lは単結合または連結基を表し、Lとして表される連結基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシル基、シクロアルコキシル基、アリーロキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基等が挙げられる。

【0067】

Lは連結基であることが好ましく、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることが好ましい。Zは一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される基と同義の基等が挙げられ、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基であることが好ましく、さらには芳香族炭化水素基、芳香族複素環基またはアミノ基であることが好ましく、アミノ基または芳香族複素環基であることがより好ましい。さらにはZが窒素原子、酸素原子、硫黄原子のいずれか1つ以上を含むことが好ましい。窒素原子を含む場合には、電荷輸送性が増すことで効率向上につながるため好ましく、より好ましくは熱的安定性向上のため芳香族複素環であり、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基が好ましい。特にカルバゾリル基である場合には熱的・電子的に安定なため耐久性向上に繋がり、最も好ましい形態の1つである。また、酸素原子または硫黄原子を含む置換基を含有している場合には電荷の状態が安定となり耐久性向上に繋がるため好ましく、より好ましくは熱的安定性向上のため芳香族複素環であり、特にジベンゾ

チエニル基またはジベンゾフリル基が好ましい形態として挙げられる。特にジベンゾフリル基を含有する場合には、電荷輸送性を持つため効率の向上に繋がり、好ましい形態の1つである。

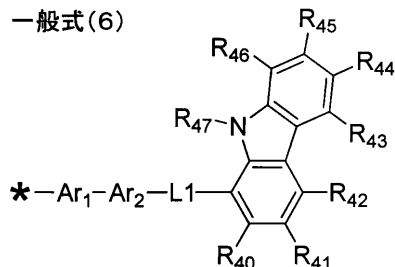
【0068】

具体的には、一般式(1)におけるYが下記一般式(6)～(31)で表される基である。

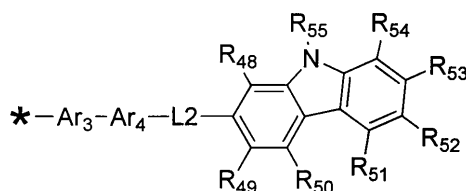
【0069】

【化12】

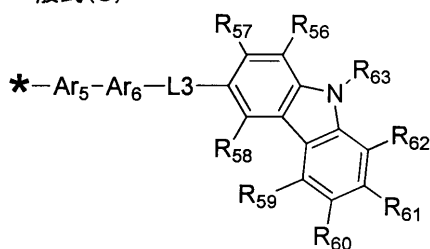
一般式(6)



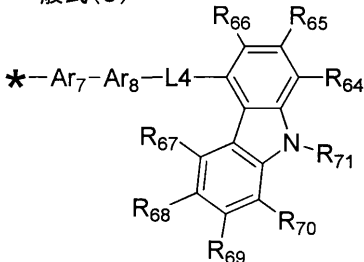
一般式(7)



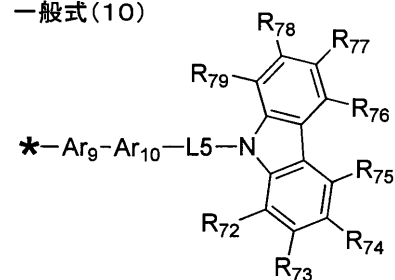
一般式(8)



一般式(9)



一般式(10)



【0070】

一般式(6)～一般式(10)において、 $R_{40} \sim R_{79}$ は各々独立に水素原子または置換基であり、 $R_{40} \sim R_{79}$ で表される置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同様な置換基等が挙げられる。 $Ar_1 \sim Ar_{10}$ は芳香族炭化水素基を表し、 $L_1 \sim L_5$ は単結合または連結基を表す。 $L_1 \sim L_5$ として表される連結基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基等が挙げられる。*は結合位置を表す。

【0071】

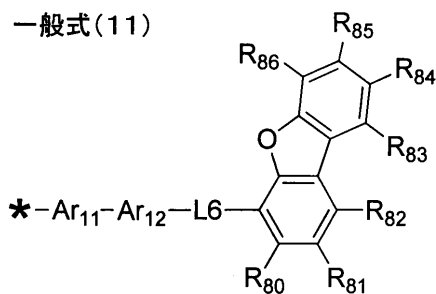
10

20

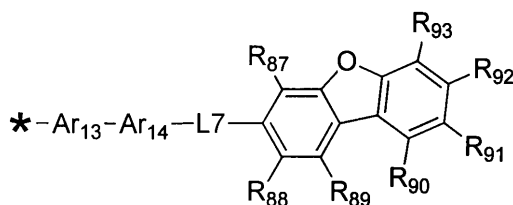
30

【化 1 3】

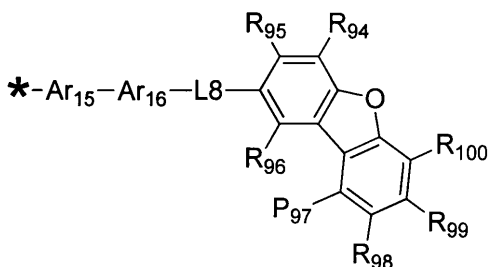
一般式(11)



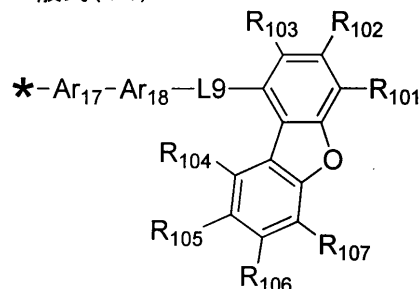
一般式(12)



一般式(13)



一般式(14)



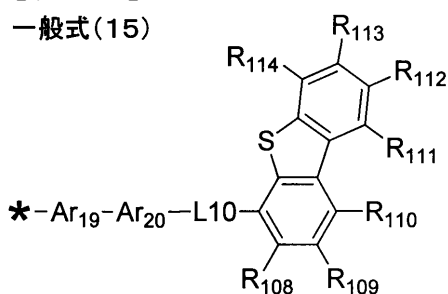
【0072】

一般式(11)～一般式(14)において、 $R_{80} \sim R_{107}$ は各々独立に水素原子または置換基であり、 $R_{80} \sim R_{107}$ で表される置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同様な置換基等が挙げられる。 $Ar_{11} \sim Ar_{18}$ は芳香族炭化水素基を表し、 $L_6 \sim L_9$ は単結合または連結基を表す。 $L_6 \sim L_9$ として表される連結基としては、一般式(6)～一般式(10)における $L_1 \sim L_5$ で表される連結基と同様な連結基等が挙げられる。 $*$ は結合位置を表す。

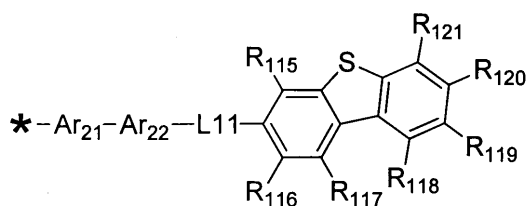
【0073】

【化 1 4】

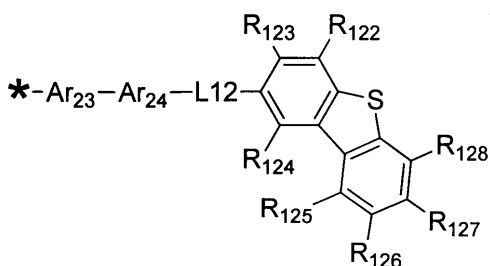
一般式(15)



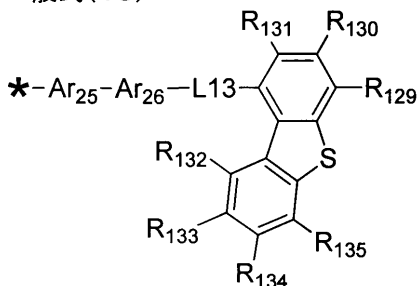
一般式(16)



一般式(17)



一般式(18)



【0074】

一般式(15)～一般式(18)において、 $R_{108} \sim R_{135}$ は各々独立に水素原子または置換基であり、 $R_{108} \sim R_{135}$ で表される置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同様な置換基等が挙げられる。 $Ar_{19} \sim Ar_{26}$ は芳香族炭化水素基を表し、 $L_{10} \sim L_{13}$ は単結合または連結基を表す。 $L_{10} \sim L_{13}$ として表される連結基としては、一般式(6)～一般式(10)における $L_1 \sim L_5$ で表

10

20

30

40

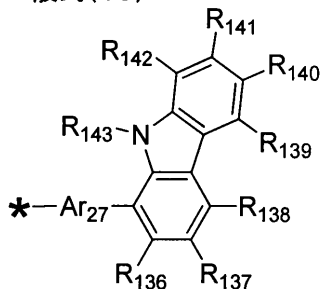
50

される連結基と同様な連結基等が挙げられる。＊は結合位置を表す。

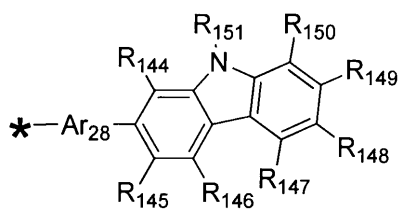
【0075】

【化15】

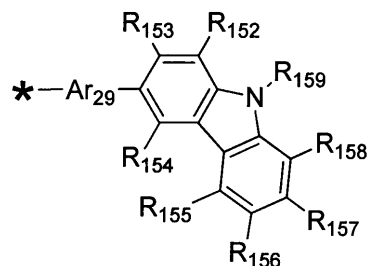
一般式(19)



一般式(20)

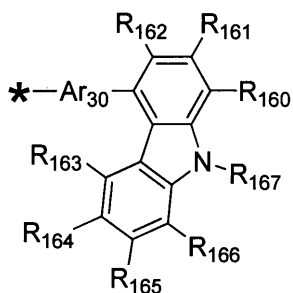


一般式(21)

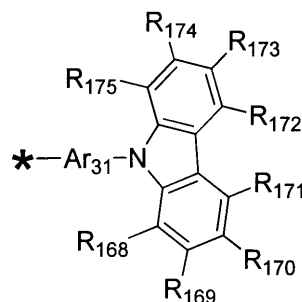


10

一般式(22)



一般式(23)



20

【0076】

一般式(19)～一般式(23)において、 $R_{136} \sim R_{175}$ は各々独立に水素原子または置換基であり、 $R_{136} \sim R_{175}$ で表される置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同様な置換基等が挙げられる。 $Ar_{27} \sim Ar_{31}$ は芳香族炭化水素基を表し、＊は結合位置を表す。 $Ar_{27} \sim Ar_{31}$ は置換基を有していても良く、好ましくは置換基を有する場合である。特に置換基として芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基のいずれかを有することが好ましく、さらには芳香族炭化水素基または芳香族複素環基を置換基として有していることがより好ましい。

30

【0077】

一般式(19)～一般式(23)のうちでは、一般式(19)、一般式(20)、一般式(22)のいずれかであることがより好ましく、特に一般式(22)であることがより好ましい。一般式(19)で表されるようにカルbazリル基の1位で結合する場合には、窒素原子の周辺を遮蔽することにより電荷に対する耐久性が向上するため好ましく、一般式(20)で表されるようにカルbazリル基の2位で結合する場合には、 Ar_{28} へ電荷の分布の広がりが生じるため耐久性が向上し、好ましい形態として挙げられる。また、一般式(22)で表されるようにカルbazリル基の4位で結合する場合には、ねじれが大きくなることで膜質が向上するため好ましい。

40

【0078】

一方、一般式(21)で表されるようにカルbazリル基の3位で結合する場合には、 Ar_{29} がさらに置換基を有していることが好ましい。この場合には、窒素原子の電子ドナー性が発揮されることにより正孔輸送性が向上するとともに、電荷の分布が広がることにより耐久性が向上するため好ましい。さらに、 $R_{152} \sim R_{158}$ のうち、少なくとも1つ以上が置換されていることが好ましく、特に R_{156} が置換されていることがより好ましい。

【0079】

$R_{152} \sim R_{158}$ で表される置換基としては、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基またはジアリールアミノ基であることが好ましく、特に芳香族炭化水素基であることが

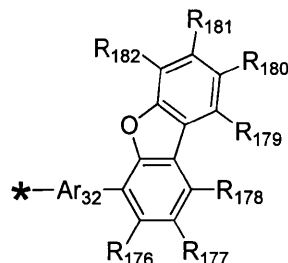
50

より好ましい形態の1つである。また、一般式(23)で表されるようにカルbazリル基の窒素原子で結合する場合には発光効率が向上するため好ましく、特に芳香族炭化水素基のオルト位に結合している場合には、ねじれにより膜質が向上することから好ましく、芳香族炭化水素基のパラ位に結合している場合には、電荷の分布が広がることにより電荷に対する耐久性が向上するため好ましい。特に芳香族炭化水素基のパラ位に結合している場合が最も好ましい形態として挙げられる。

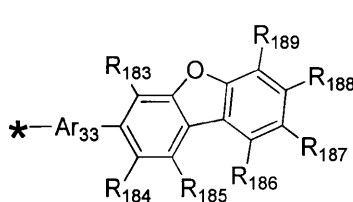
【0080】

【化16】

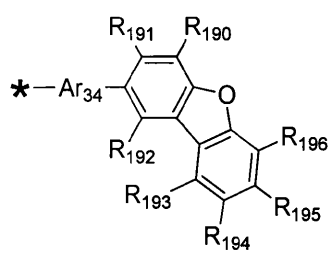
一般式(24)



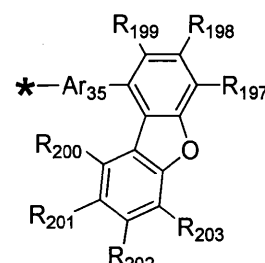
一般式(25)



一般式(26)



一般式(27)



10

【0081】

一般式(24)～一般式(27)において、 $R_{176} \sim R_{203}$ は各々独立に水素原子または置換基であり、 $R_{176} \sim R_{203}$ で表される置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同様な置換基等が挙げられる。一般式(24)において、 $R_{176} \sim R_{182}$ のうちいずれか1つのみが置換基であることが好ましく、また一般式(26)において、 $R_{190} \sim R_{196}$ のうちいずれか1つのみが置換基であることが好ましい。 $Ar_{32} \sim Ar_{35}$ は芳香族炭化水素基を表し、*は結合位置を表す。 $Ar_{32} \sim Ar_{35}$ は置換基を有していても良く、好ましくは置換基を有する場合である。特に置換基として芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基のいずれかを有することが好ましく、さらには芳香族炭化水素基または芳香族複素環基を置換基として有していることがより好ましい。

20

【0082】

一般式(24)～一般式(27)のうちでは、一般式(24)、一般式(25)、一般式(27)のいずれかであることがより好ましく、さらには一般式(25)または一般式(27)であることが好ましい。一般式(27)で表されるようにジベンゾフリル基の1位で結合する場合には、ねじれが大きくなることで膜質が向上するため好ましく、一般式(24)で表されるように4位で結合する場合には、酸素原子周辺がねじれにより遮蔽されることで電荷の安定性が増し、耐久性の向上につながるため好ましく、特に Ar_{32} が置換されている場合には電荷の広がりにより耐久性が向上するためより好ましい。一般式(25)で表されるようにジベンゾフリル基の3位で結合する場合には、 Ar_{33} へ電荷の分布の広がりが生じるため耐久性が向上し、好ましい形態として挙げられる。一方、一般式(26)で表されるようにジベンゾフリル基の2位で結合する場合には、 Ar_{34} がさらに置換されていることが好ましい。この場合には、酸素原子の活性部位を塞ぐことで耐久性の向上が得られるとともに、電荷の分布が広がることにより耐久性が向上するため好ましい。

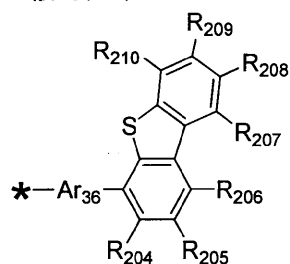
30

40

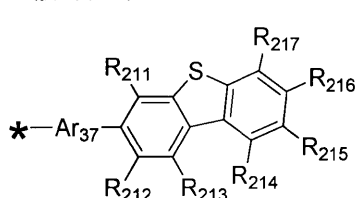
【0083】

【化 17】

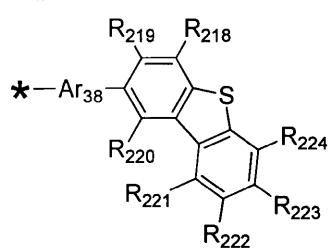
一般式(28)



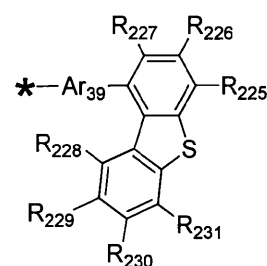
一般式(29)



一般式(30)



一般式(31)



【0084】

10

一般式(28)～一般式(31)において、 $R_{204} \sim R_{231}$ は各々独立に水素原子または置換基であり、 $R_{204} \sim R_{231}$ で表される置換基としては、一般式(1)における $R_1 \sim R_7$ で表される置換基と同様な置換基等が挙げられる。ただし、一般式(28)において、 $R_{204} \sim R_{210}$ のうちいずれか1つのみが置換基であることが好ましく、また一般式(30)において、 $R_{218} \sim R_{224}$ のうちいずれか1つのみが置換基であることが好ましい。 $Ar_{36} \sim Ar_{39}$ は芳香族炭化水素基を表し、*は結合位置を表す。 $Ar_{36} \sim Ar_{39}$ は置換基を有していても良く、好ましくは置換基を有する場合である。特に置換基として芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基のいずれかを有することが好ましく、さらには芳香族炭化水素基または芳香族複素環基を置換基として有していることがより好ましい。

20

【0085】

一般式(28)～一般式(31)のうちでは、一般式(28)、一般式(29)、一般式(31)のいずれかであることがより好ましく、さらには一般式(29)または一般式(31)であることが好ましい。一般式(31)で表されるようにジベンゾチエニル基の1位で結合する場合には、ねじれが大きくなることで膜質が向上するため好ましく、一般式(28)で表されるように4位で結合する場合には、硫黄原子周辺がねじれにより遮蔽されることで電荷の安定性が増し、耐久性の向上につながるため好ましく、特に Ar_{36} が置換されている場合には電荷の広がりにより耐久性が向上するためより好ましい。一般式(29)で表されるようにジベンゾチエニル基の3位で結合する場合には、 Ar_{37} へ電荷の分布の広がりが生じるため耐久性が向上し、好ましい形態として挙げられる。一方、一般式(30)で表されるようにジベンゾフリル基の2位で結合する場合には、 Ar_{38} がさらに置換されていることが好ましい。この場合には、硫黄原子の活性部位を塞ぐことで耐久性の向上が得られるとともに、電荷の分布が広がることにより耐久性が向上するため好ましい。

30

【0086】

Yで表される $NR'R''$ としては、 R' または R'' は芳香族炭化水素基または芳香族複素環基が好ましく、特に芳香族炭化水素基であることがより好ましい形態として挙げられる。

Yで表される芳香族複素環基としては、ピリミジニル基、ジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基等が好ましい置換基として挙げられ、さらに酸素原子または窒素原子を含む置換基であることがより好ましく、特に窒素原子を含む置換基であることが最も好ましい。酸素原子を含む置換基である場合には、電荷の状態が安定となり耐久性向上に繋がるため好ましく、特に電荷に対する安定性が高いことからジベンゾフリル基であることがより好ましい形態として挙げられる。特にジベンゾフリル基の1位で結合した場合には、ねじれがより大きくなるため膜質の向上に繋がり、特に好ましい形態の1つとして挙げられ、さらにジベンゾフリル基の3位で結合した場合には、電荷の分布の広がりが生じるため耐久性が向上し、特に好ましい形態として挙げられる。

40

【0087】

ジベンゾフリル基またはジベンゾチエニル基の2位または4位で結合する場合、一般式

50

(1)におけるYはさらに置換基を1つ有することが好ましい。置換基としては特に芳香族炭化水素基または芳香族複素環基を含有することが好ましく、特に芳香族炭化水素基を置換基として含有することが好ましい形態として挙げられる。一般式(1)のYがジベンゾフリル基またはジベンゾチエニル基であり、さらに2位または4位で一般式(1)と結合した場合には、一般式(1)におけるYがさらに置換基を2つ以上持つことで、耐久性や効率等が大幅に低下する。この原因は不明だが、本発明者はYが立体障害性の大きい位置であることに加え、置換基が2つ以上置換することで、さらに立体障害性が増大することで、酸素原子や硫黄原子のオルト位やパラ位に位置する結合が電荷に対して不安定化し、分解しやすくなるためと考察した。一方、窒素原子を含む置換基である場合には電荷輸送性が増すことで効率向上につながるため好ましく、特にカルbazolリル基またはカルボリニル基である場合には熱的・電子的な安定性が高く、耐久性の向上がみられるため、最も好ましい形態として挙げられる。

10

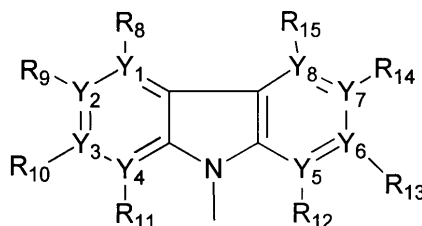
【0088】

一般式(1)におけるYは、より具体的には前記一般式(2)または(3)で表されることが特に好ましい。

【0089】

【化18】

一般式(2)

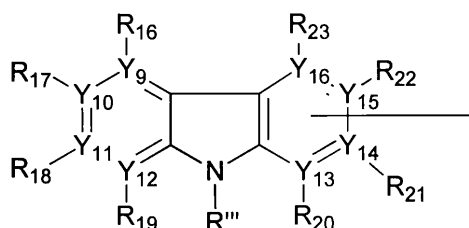


20

【0090】

【化19】

一般式(3)



30

【0091】

一般式(2)において、Y₁～Y₈は各々CまたはNを表す。Y₁～Y₈のいずれか1つ以上がNである場合には、電荷輸送性が向上し、低電圧で駆動時の電圧上昇を小さく抑えることができる。Y₁～Y₈のいずれか1つまたは2つがNであることが好ましく、さらにY₁～Y₈のいずれか1つがNであることが特に好ましい形態として挙げられる。また一方で、Y₁～Y₈が全てCである場合も、耐久性をより向上させることができるため、好ましい形態として挙げられる。特に一般式(2)においては、Y₁～Y₈はいずれもCであることが好ましい。

40

【0092】

R₈～R₁₅は各々独立に一般式(1)におけるR₁～R₇と同義の基である。Y₁～Y₈のいずれかがNである場合、該N原子に結合しているR₈～R₁₅は各々非共有電子対を表す。R₈～R₁₅は、いずれか1つ以上が置換基であることが好ましく、さらにR₈～R₁₅のうち1つまたは2つが置換基であることが好ましく、特にR₈～R₁₅のうち1つのみが置換基であることが最も好ましい形態として挙げられる。さらにR₉またはR₁₁が置換基であることが好ましく、特にR₉が置換基であることが最も好ましい形態

50

として挙げられる。R₈～R₁₅で表される好ましい基としては、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基が挙げられ、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基がより好ましい置換基として挙げられる。さらに芳香族炭化水素基または芳香族複素環基が特に好ましい形態として挙げられる。よって、一般式(2)においてR₈～R₁₅は、R₉が芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることが好ましく、R₈及びR₁₀～R₁₅は水素原子であることが最も好ましい形態である。

【0093】

一般式(3)において、Y₉～Y₁₆は各々CまたはNを表す。Y₉～Y₁₆のいずれか1つ以上がNである場合には、電荷輸送性が向上し、低電圧で駆動時の電圧上昇を小さく抑えることができる。Y₉～Y₁₆のいずれか1つまたは2つがNであることが好ましく、さらにY₉～Y₁₆のいずれか1つがNであることが特に好ましい形態として挙げられる。特にY₉～Y₁₂のいずれかがNであることが好ましい形態として挙げられる。また一方で、Y₉～Y₁₆が全てCである場合も、耐久性をより向上させることができるため、好ましい形態として挙げられる。一般式(1)と結合する原子に関しては、Y₁₃～Y₁₆のいずれかの原子で結合し、特にY₁₅またはY₁₆で結合することが好ましく、Y₁₆で結合することが最も好ましい。特に一般式(3)においては、Y₉～Y₁₆は、いずれもCであることが好ましく、Y₁₆で一般式(1)と結合することがより好ましい。

【0094】

R₁₆～R₂₃は各々独立に一般式(1)におけるR₁～R₇と同義の基または連結基である。Y₉～Y₁₆のいずれかがNである場合、該N原子に結合しているR₁₆～R₂₃は各々非共有電子対を表す。R₁₆～R₂₃は、いずれか1つ以上が置換基であることが好ましく、特にR₁₆～R₂₃のうち1つのみが置換基であることが好ましい。さらに、R₁₆～R₁₉のいずれかが置換基であることが好ましく、R₁₇またはR₁₉が置換基であることがより好ましく、特にR₁₇が置換基であることが最も好ましい形態として挙げられる。R₁₆～R₂₃で表される好ましい基としては、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アリールシリル基、アリールホスホリル基が挙げられ、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基がより好ましい置換基として挙げられる。さらに芳香族炭化水素基または芳香族複素環基が特に好ましい形態として挙げられる。よって、一般式(3)においてR₁₆～R₂₃は、R₂₃で一般式(1)と結合することが好ましく、R₁₇が芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることがより好ましく、さらにR₁₆及びR₁₈～R₂₂は水素原子であることが特に好ましい形態である。

【0095】

R''は水素原子または置換基を表し、置換基としてはアルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表し、特に芳香族炭化水素基であることが最も好ましい。

一般式(1)の化合物をホスト化合物として用いる場合に好ましい形態としては、XがOまたはN-R、且つYが一般式(2)または(3)で表されることが挙げられ、この場合には、高い発光効率及び耐久性を達成することができる。特に高い効率及び耐久性を達成するためには、XがOで表されることが好ましく、さらには一般式(2)または(3)のY₁～Y₁₆がいずれもCである場合が最も好ましい形態として挙げられる。加えて、一般式(1)のR₄～R₇のうちいずれか1つ以上が一般式(4)または一般式(5)で表されることが好ましい。さらには一般式(4)または一般式(5)のY₁₇～Y₃₂がいずれもCであることが最も好ましい。すなわち、ホスト化合物として用いる場合には、XがO、且つYはY₁～Y₁₆がいずれもCである一般式(2)または一般式(3)であり、且つR₆はY₁₇～Y₃₂がいずれもCである一般式(4)または一般式(5)であることが最も好ましい形態である。

【0096】

また、正孔輸送層に用いる場合には、XがN、且つYが一般式(2)または(3)で表

される場合に高い発光効率を達成することができ、さらにはXがN且つYが一般式(3)であることがより好ましい形態として挙げられる。特に一般式(3)の $Y_9 \sim Y_{16}$ がいずれもCである場合が最も好ましい形態として挙げられる。

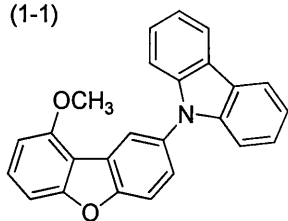
また、電子輸送層に用いる場合には、XがN、且つYが一般式(2)または(3)で表される場合に高い発光効率を達成することができ、さらにはXがN且つYが一般式(3)であることがより好ましい形態として挙げられる。特に一般式(2)の $Y_9 \sim Y_{16}$ がいずれか1つがNである場合が最も好ましい形態として挙げられる。

以下に、本発明に係る化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

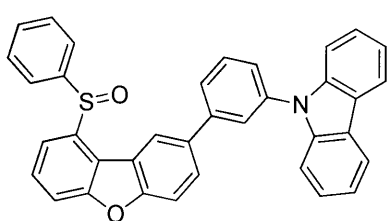
【0097】

【化 20】

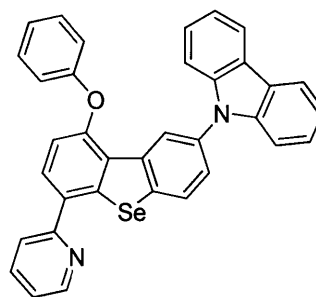
(1-1)



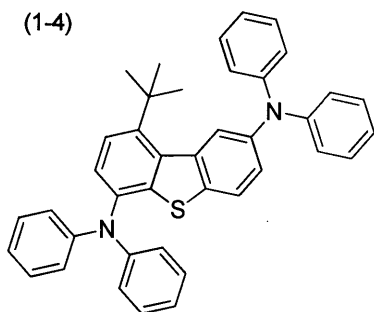
(1-2)



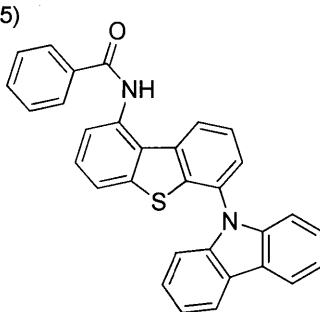
(1-3)



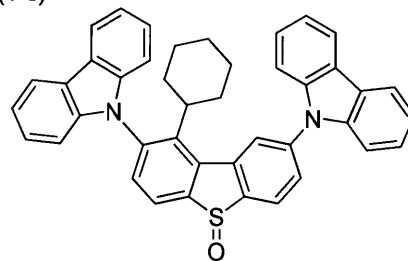
(1-4)



(1-5)

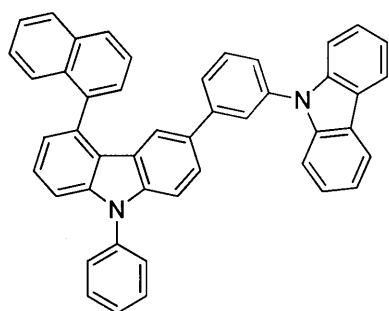


(1-6)

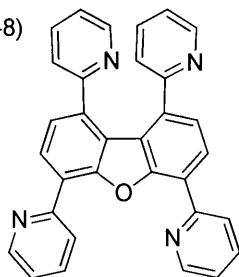


10

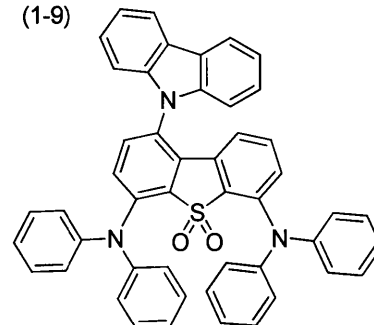
(1-7)



(1-8)

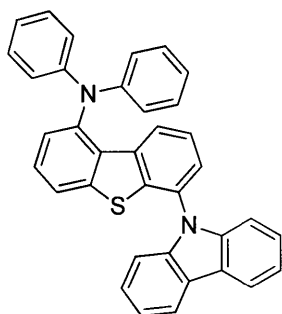


(1-9)

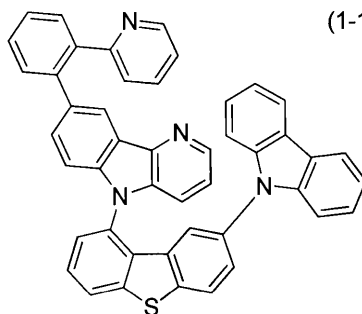


20

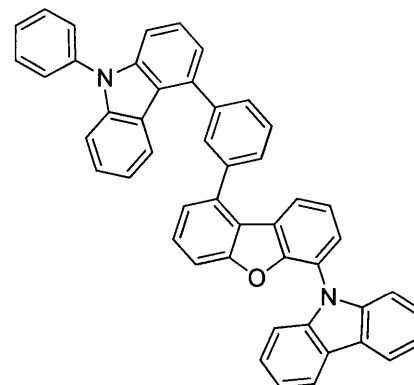
(1-10)



(1-11)

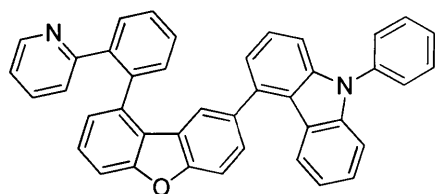


(1-12)

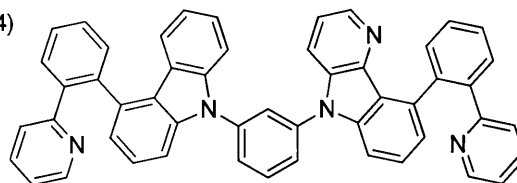


30

(1-13)



(1-14)

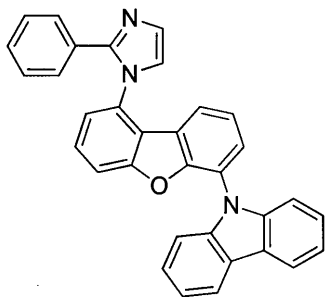


40

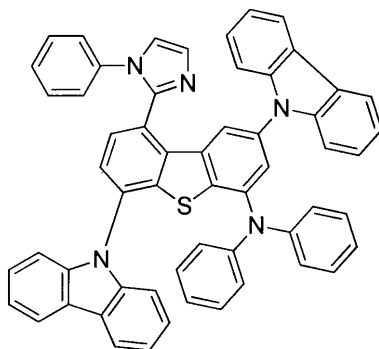
【0098】

【化 2 1】

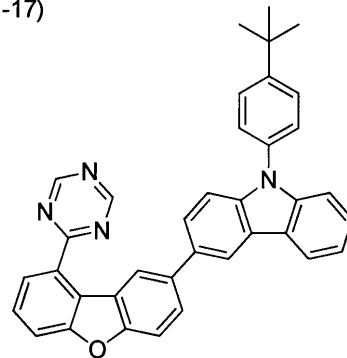
(1-15)



(1-16)

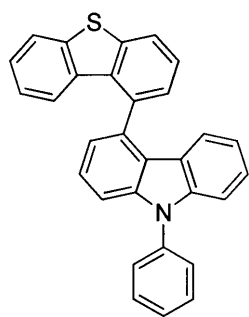


(1-17)

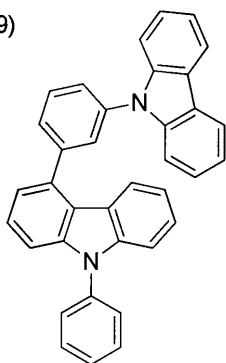


10

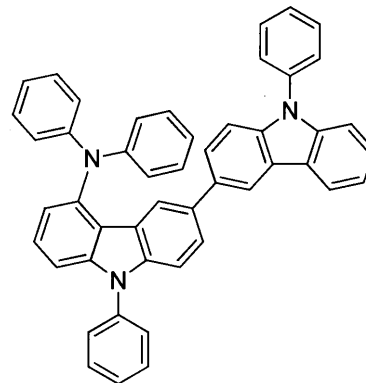
(1-18)



(1-19)

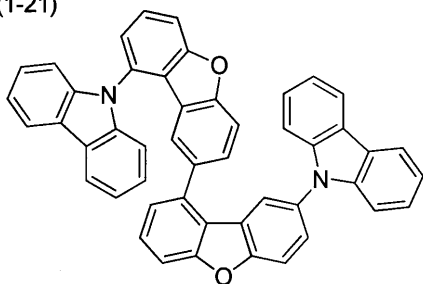


(1-20)

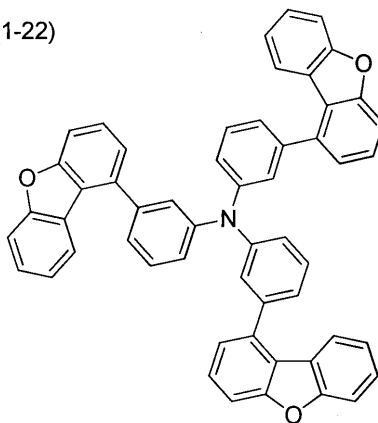


20

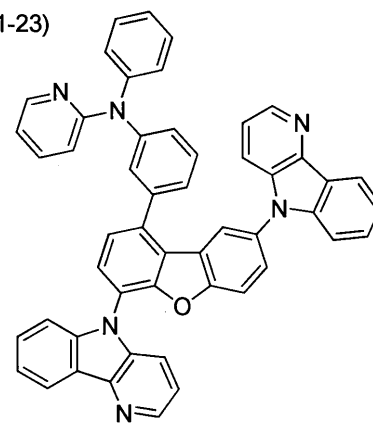
(1-21)



(1-22)

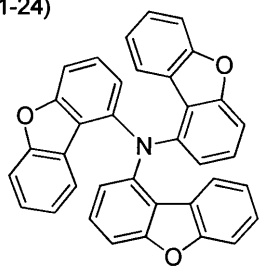


(1-23)

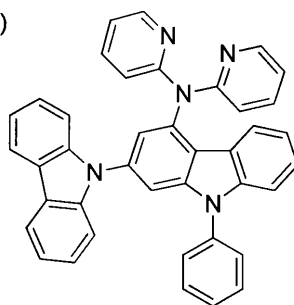


30

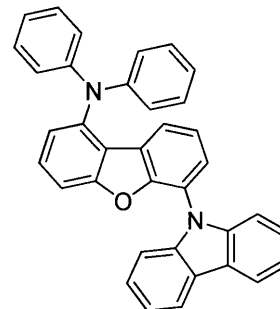
(1-24)



(1-25)



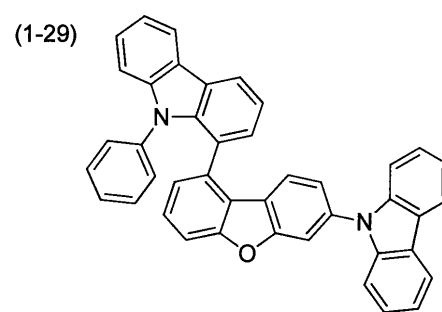
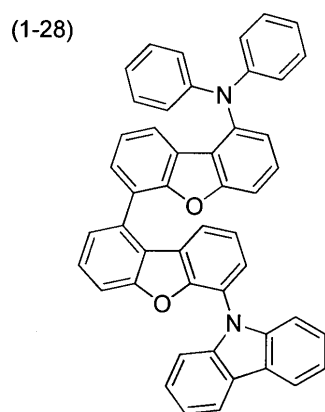
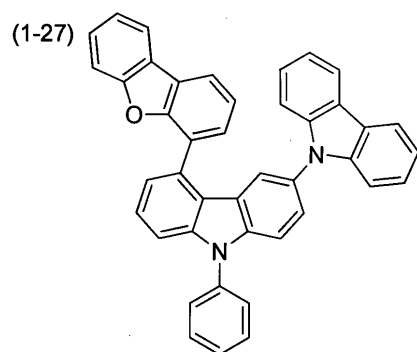
(1-26)



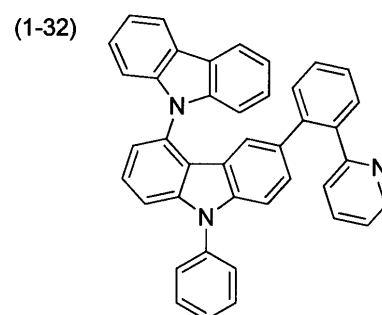
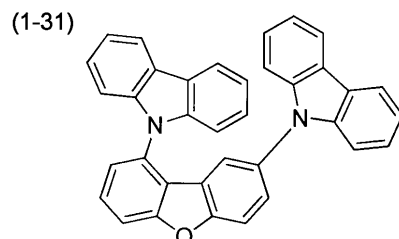
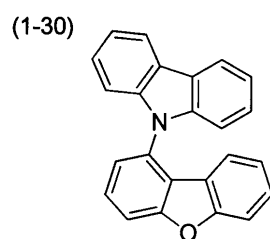
40

【 0 0 9 9 】

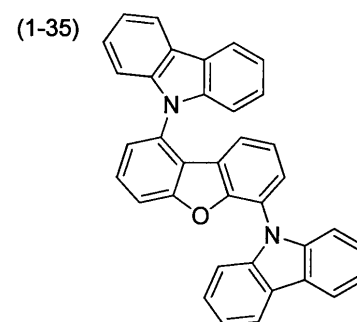
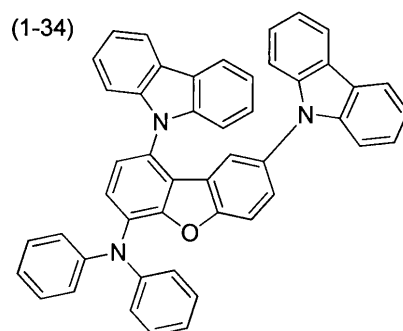
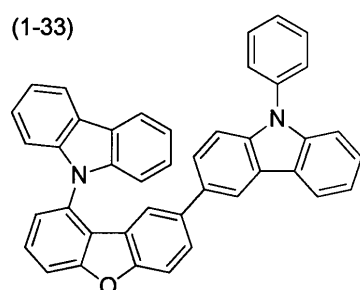
【化 2 2】



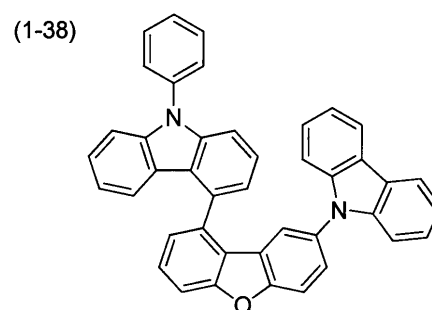
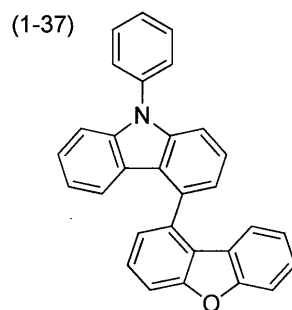
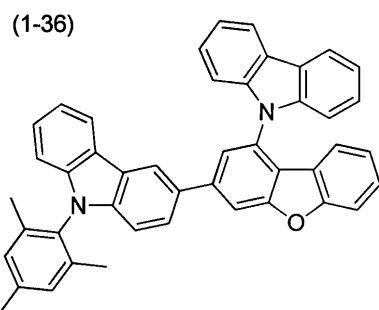
10



20



30

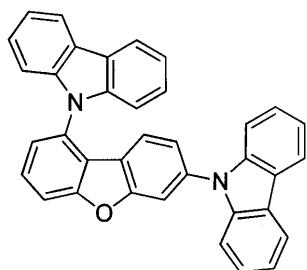


40

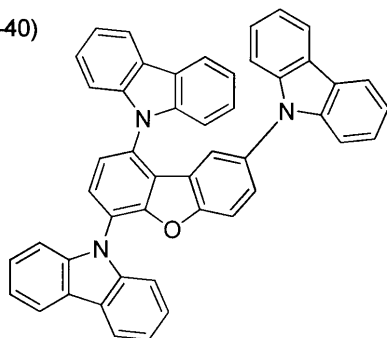
【 0 1 0 0 】

【化 2 3】

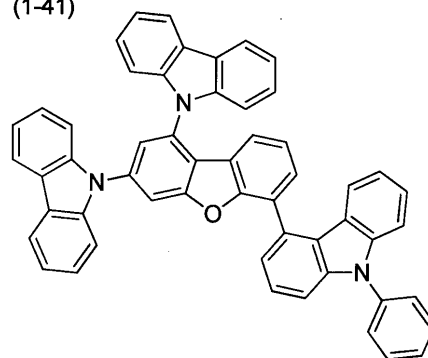
(1-39)



(1-40)

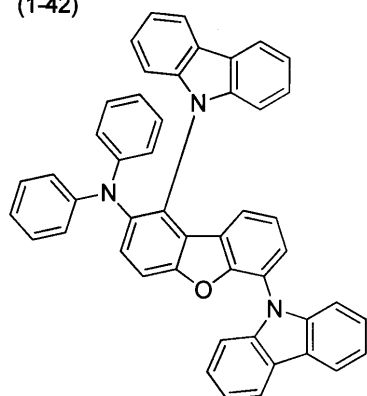


(1-41)

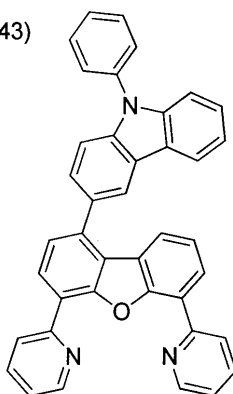


10

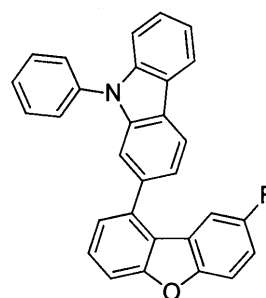
(1-42)



(1-43)

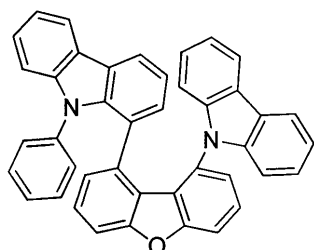


(1-44)

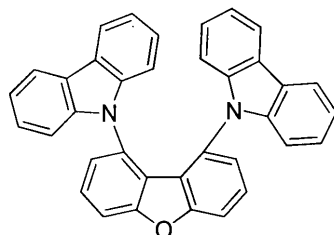


20

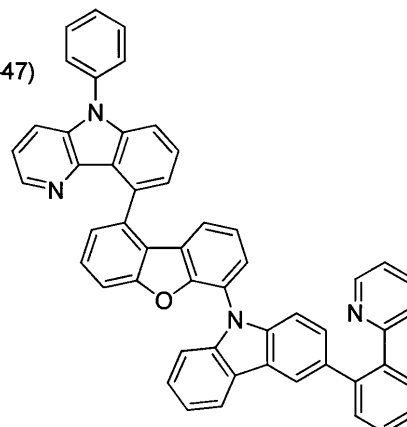
(1-45)



(1-46)

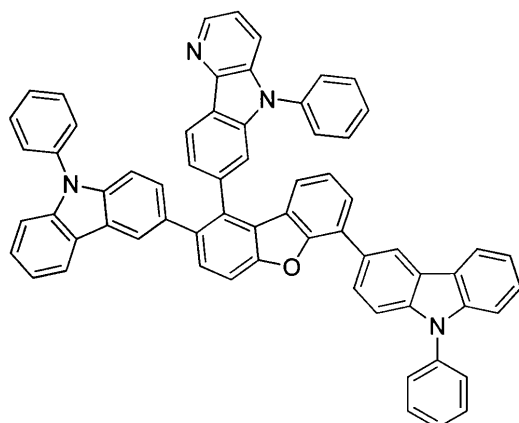


(1-47)

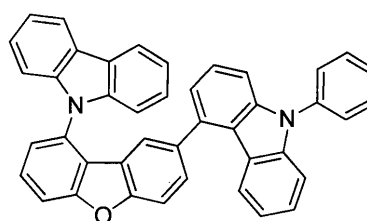


30

(1-48)



(1-49)

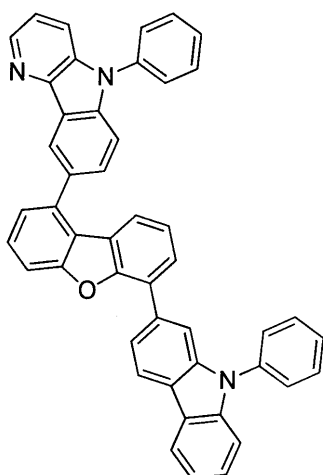


40

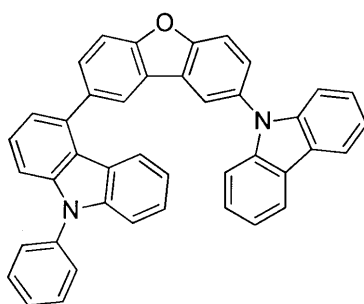
【 0 1 0 1 】

【化 2 4】

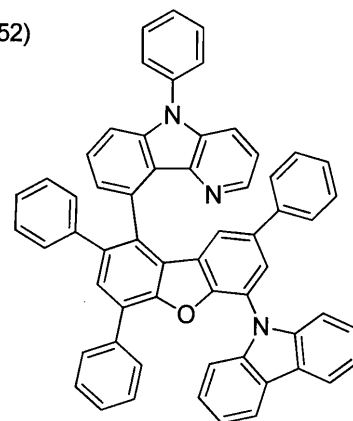
(1-50)



(1-51)

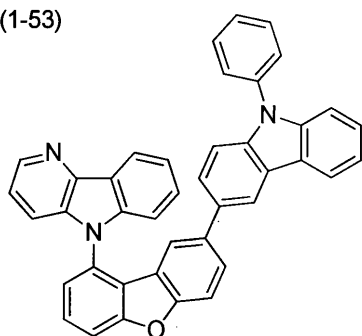


(1-52)

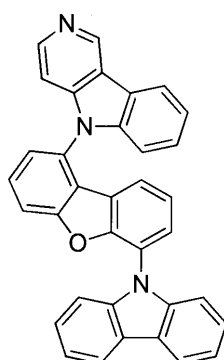


10

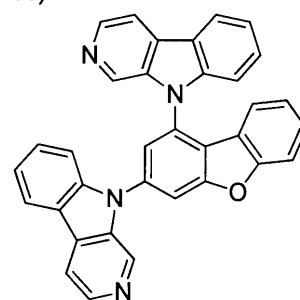
(1-53)



(1-54)

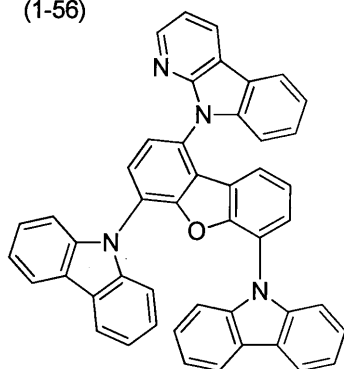


(1-55)

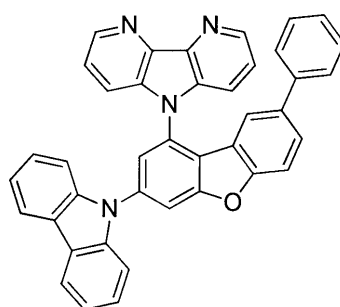


20

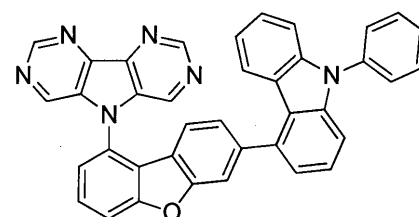
(1-56)



(1-57)

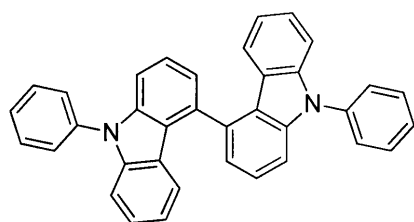


(1-58)

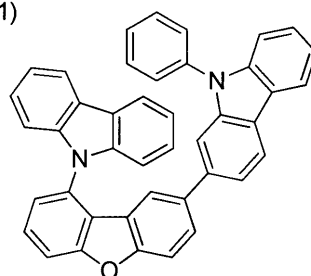


30

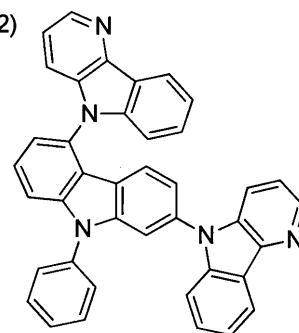
(1-60)



(1-61)



(1-62)

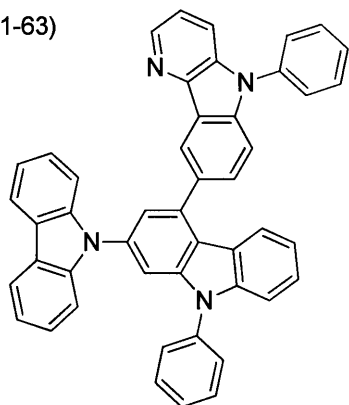


40

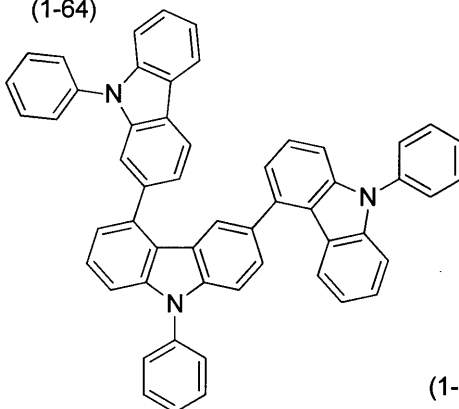
【 0 1 0 2 】

【化 2 5】

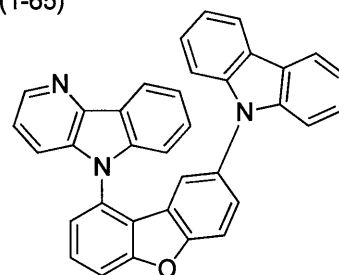
(1-63)



(1-64)

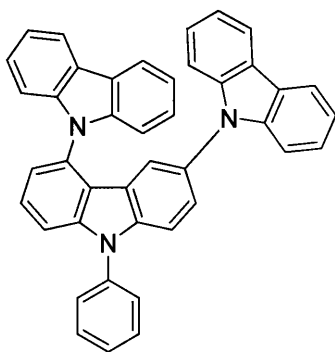


(1-65)

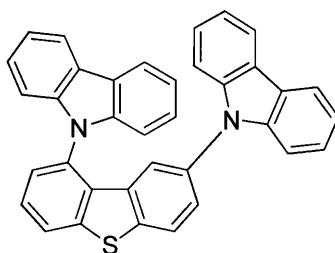


10

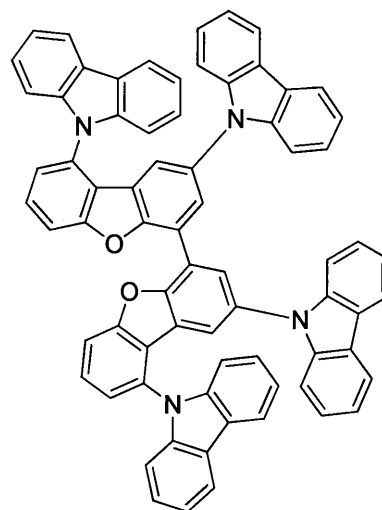
(1-66)



(1-67)

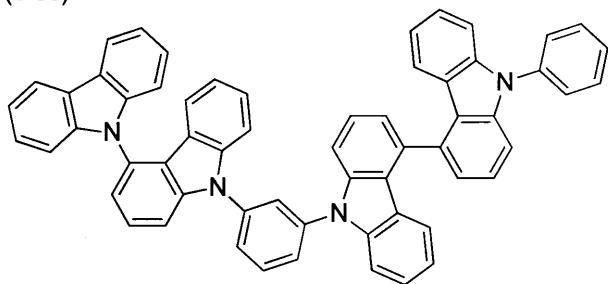


(1-68)

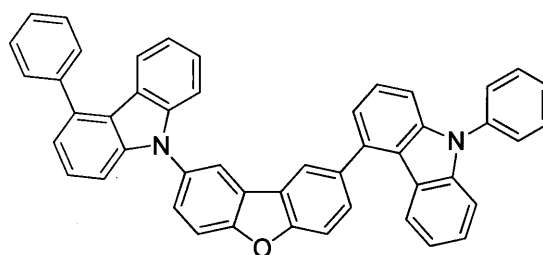


20

(1-69)

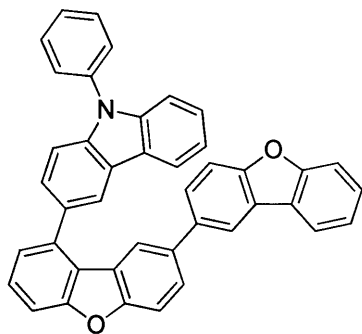


(1-70)

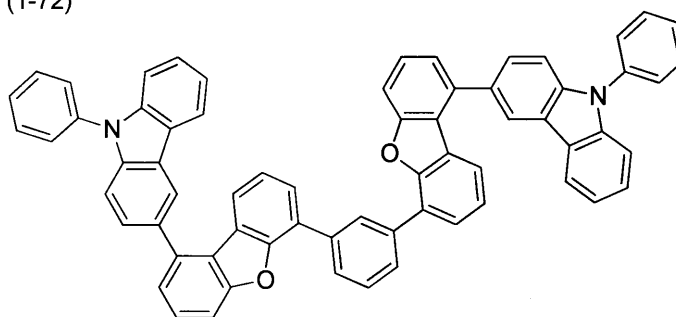


30

(1-71)



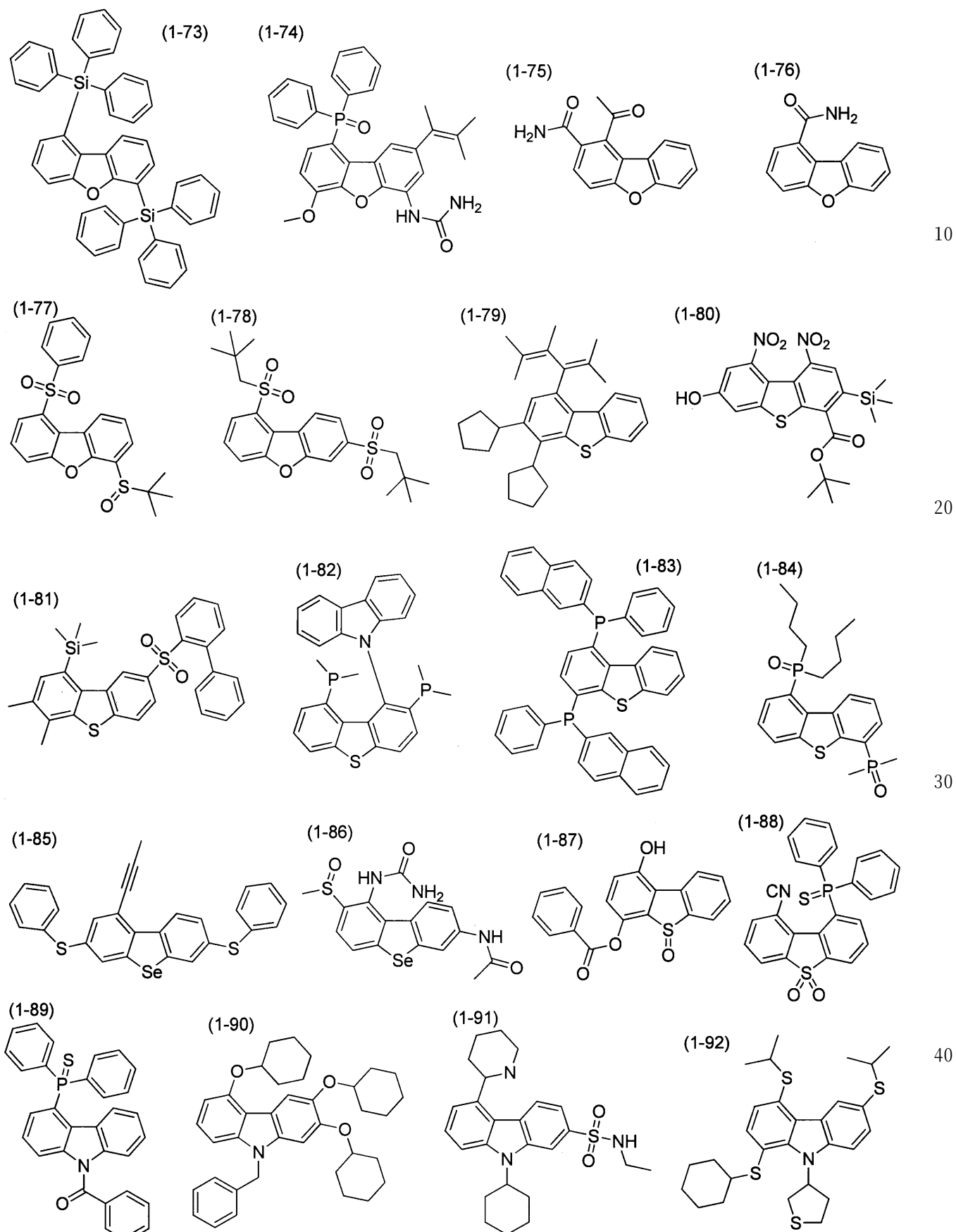
(1-72)



40

【 0 1 0 3】

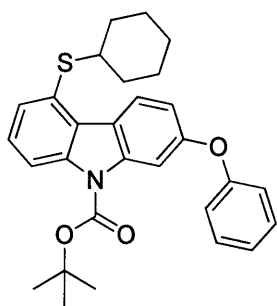
【化 2 6】



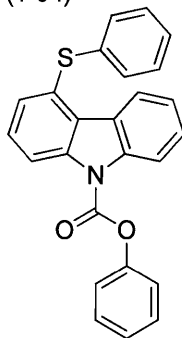
【0104】

【化 27】

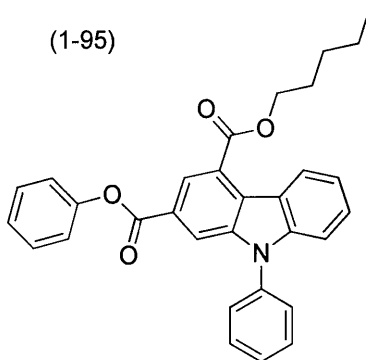
(1-93)



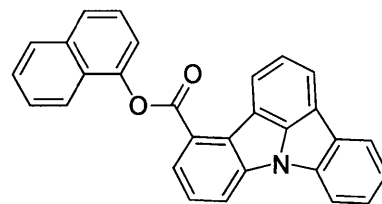
(1-94)



(1-95)

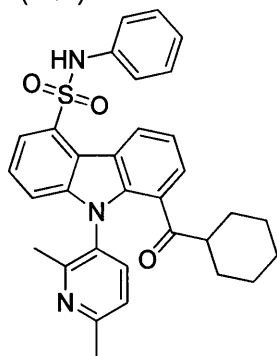


(1-96)

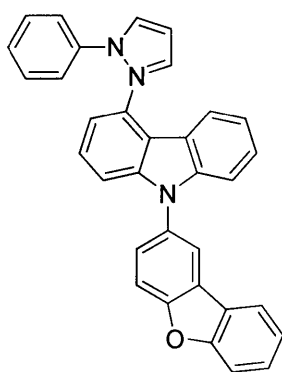


10

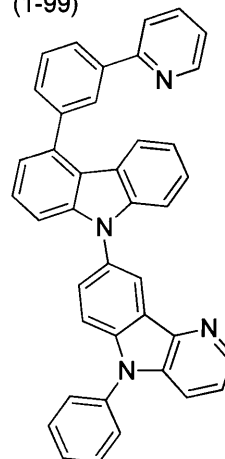
(1-97)



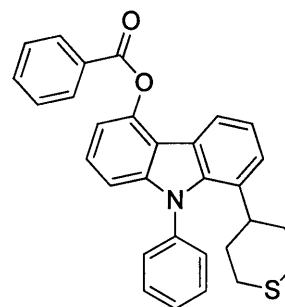
(1-98)



(1-99)

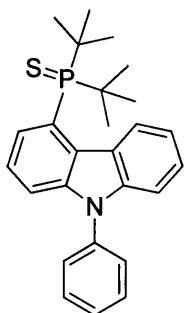


(1-100)

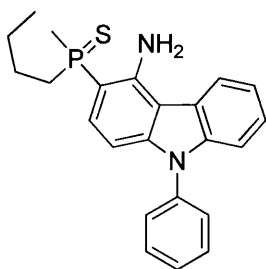


20

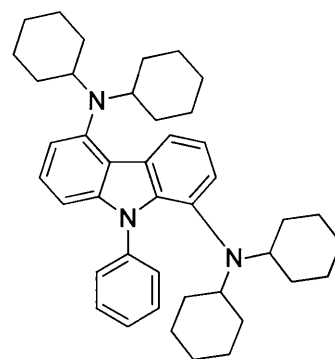
(1-101)



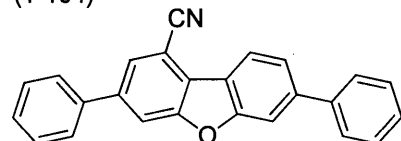
(1-102)



(1-103)

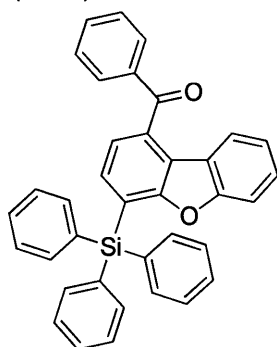


(1-104)

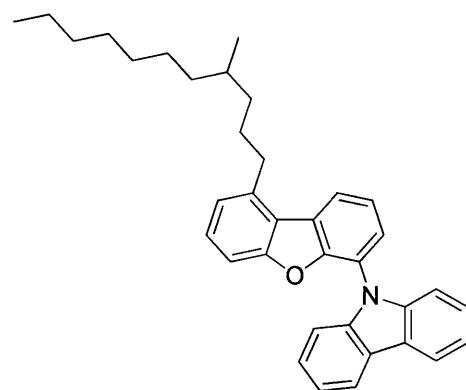


30

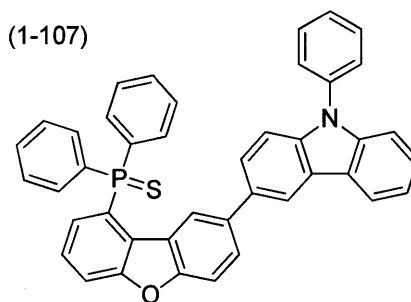
(1-105)



(1-106)



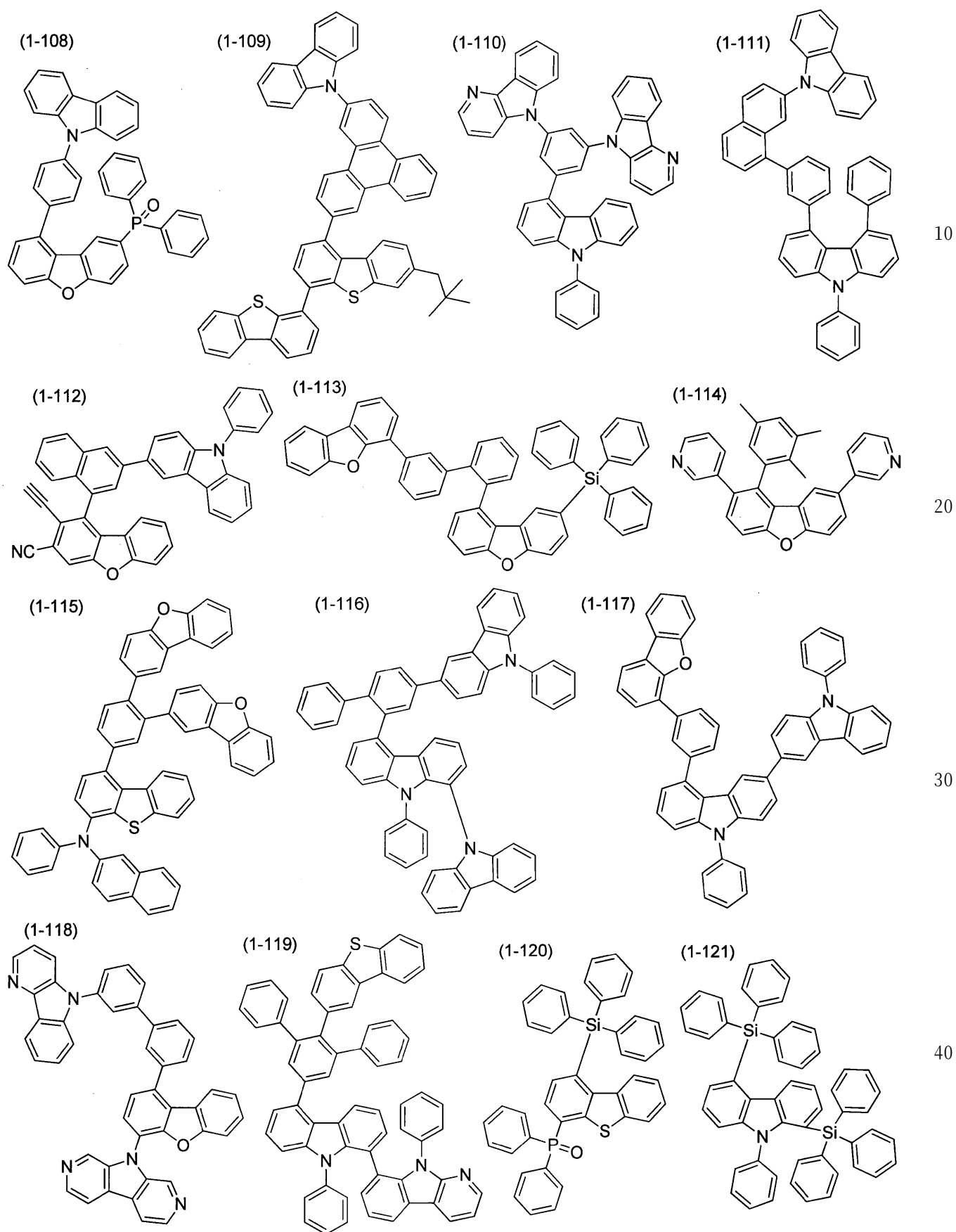
(1-107)



40

【0105】

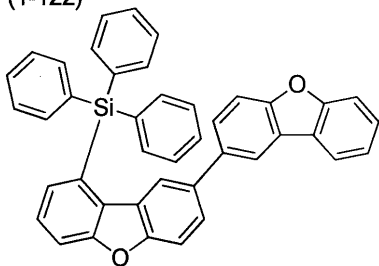
【化 2 8】



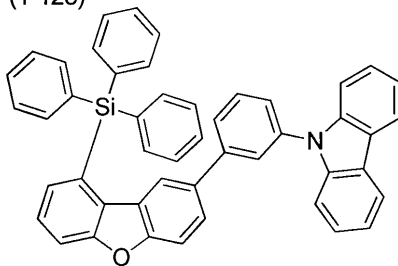
【0106】

【化 29】

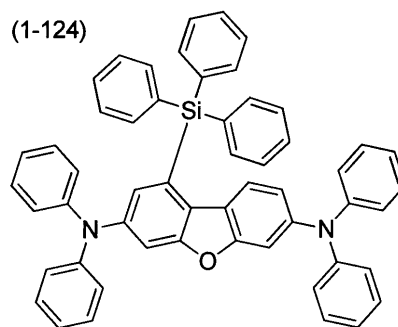
(1-122)



(1-123)

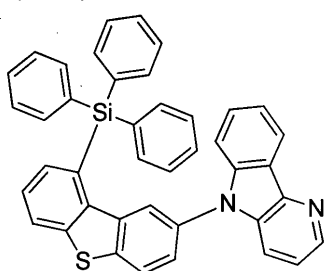


(1-124)

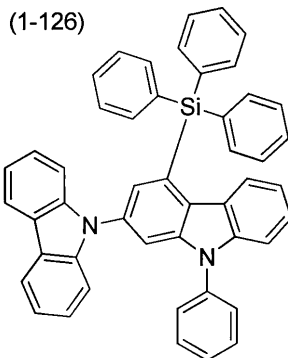


10

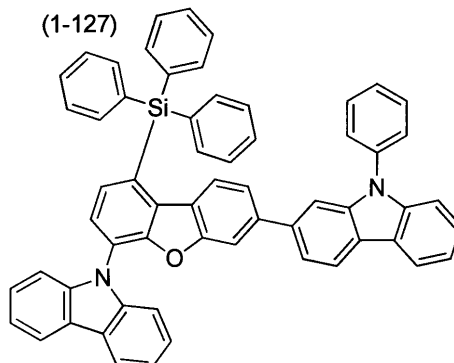
(1-125)



(1-126)

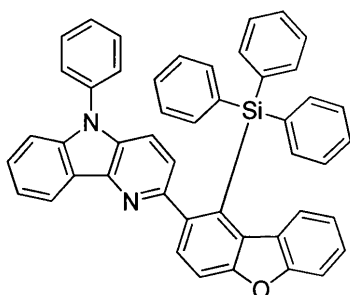


(1-127)

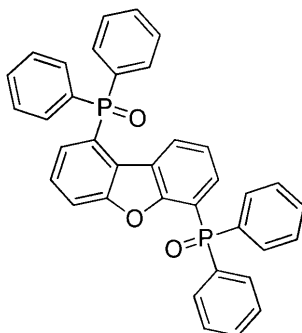


20

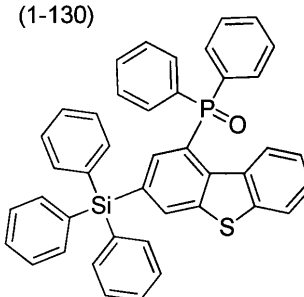
(1-128)



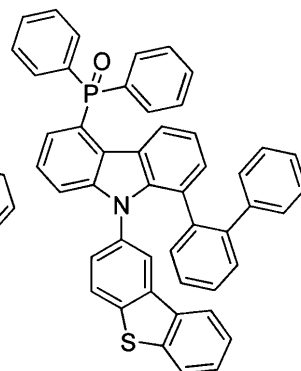
(1-129)



(1-130)

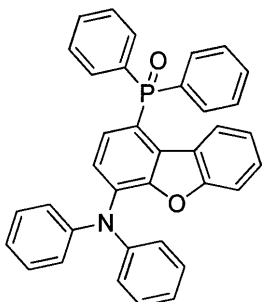


(1-131)

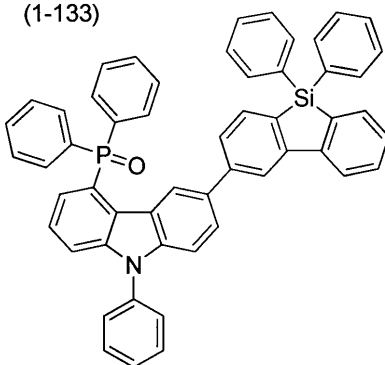


30

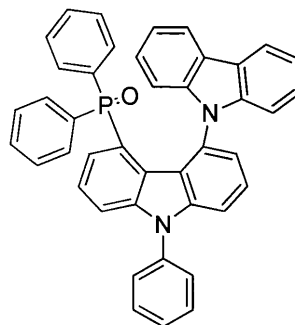
(1-132)



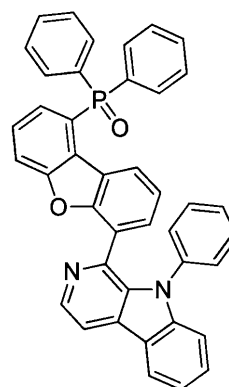
(1-133)



(1-134)



(1-135)

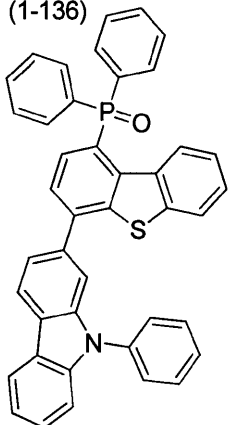


40

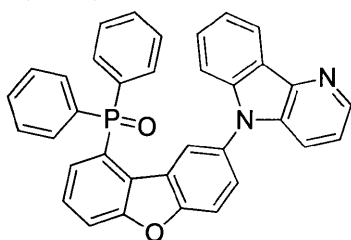
【 0 1 0 7 】

【化 3 0】

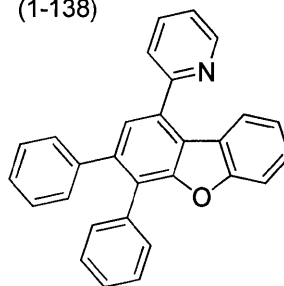
(1-136)



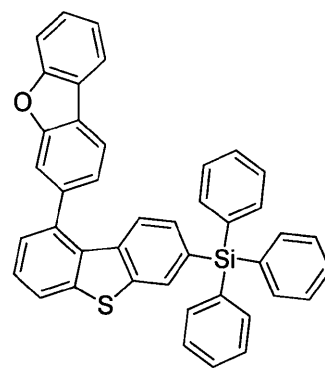
(1-137)



(1-138)

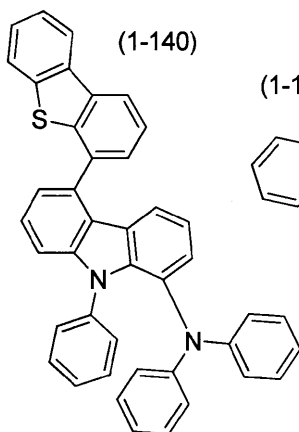


(1-139)

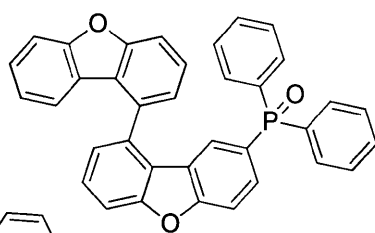


10

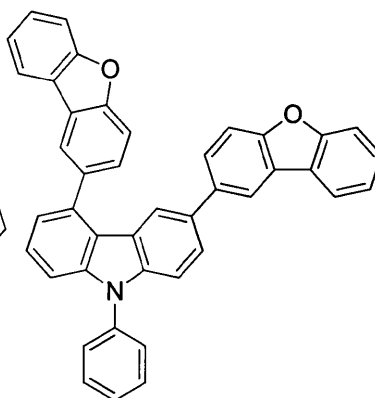
(1-140)



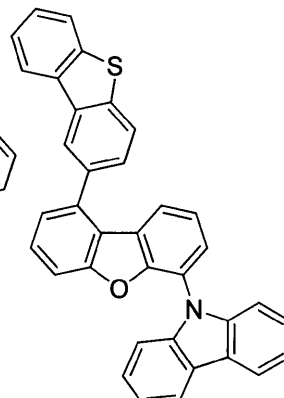
(1-141)



(1-142)

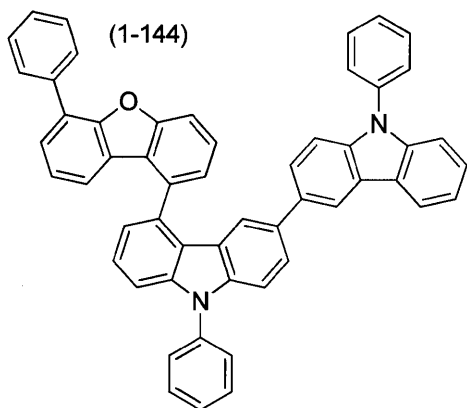


(1-143)

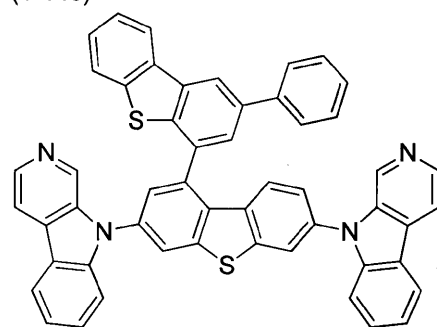


20

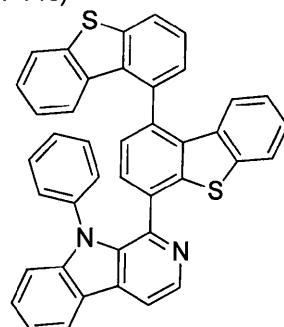
(1-144)



(1-145)

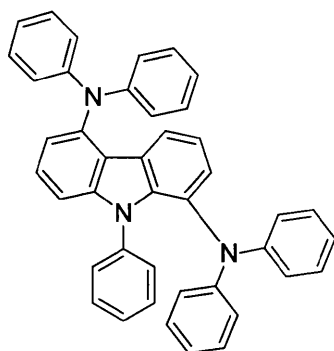


(1-146)

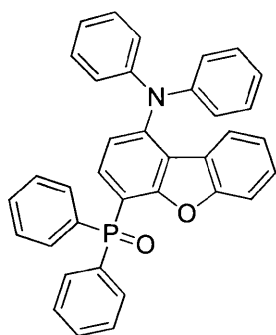


30

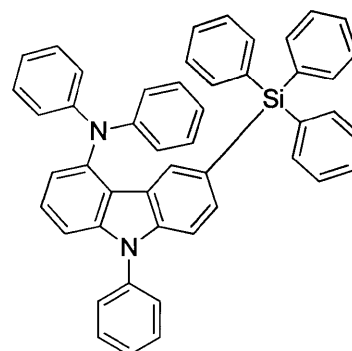
(1-147)



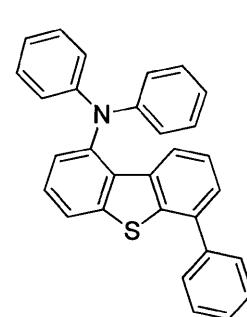
(1-148)



(1-149)



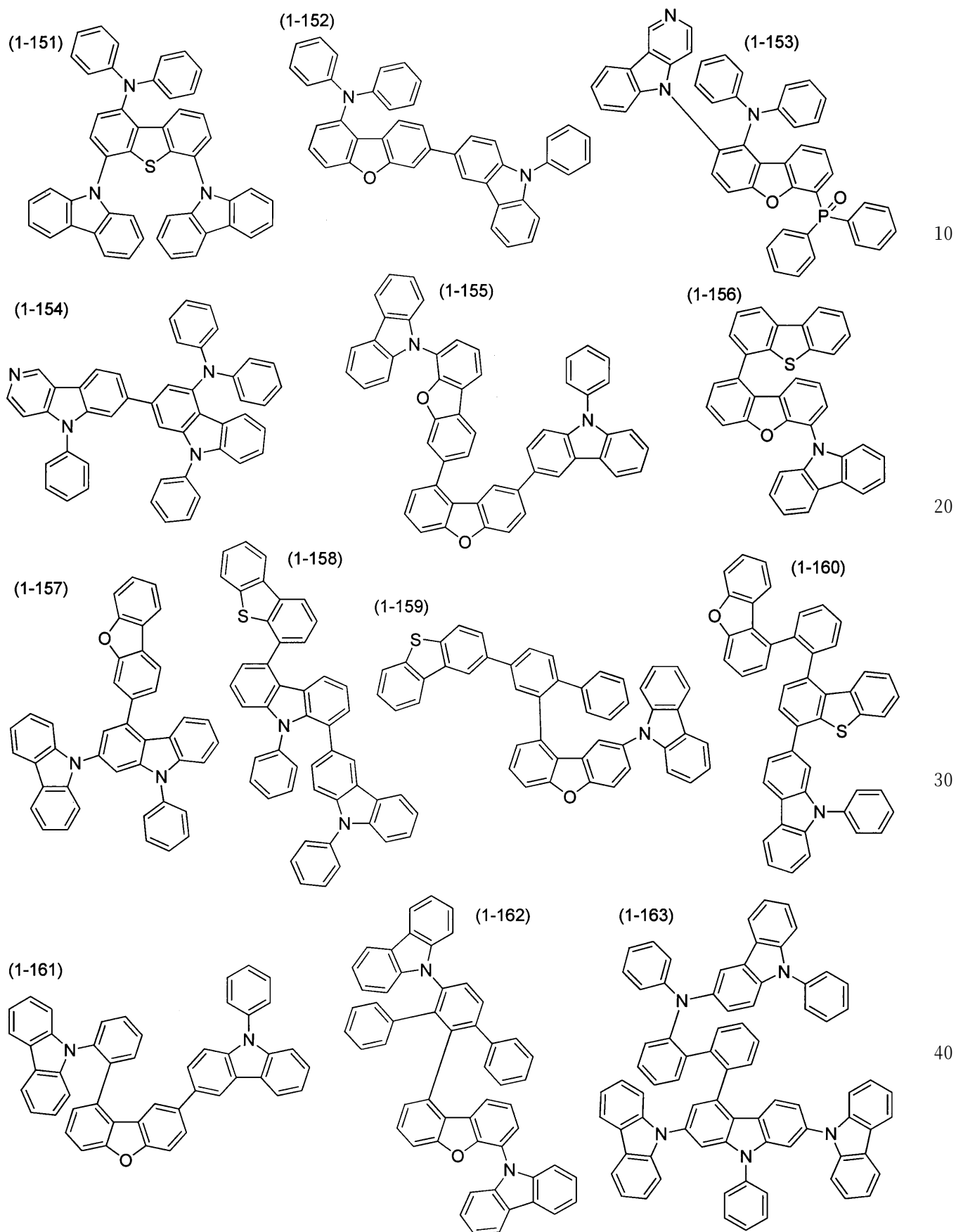
(1-150)



40

【 0 1 0 8 】

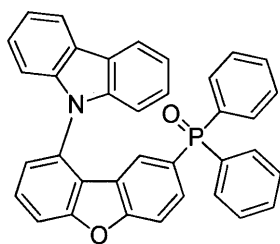
【化 3 1】



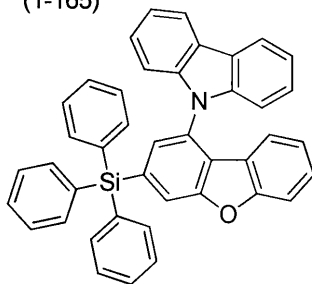
【0109】

【化 3 2】

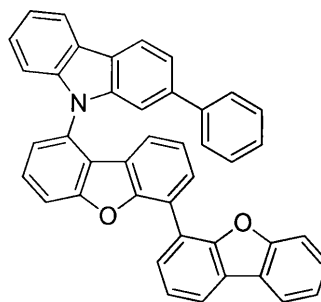
(1-164)



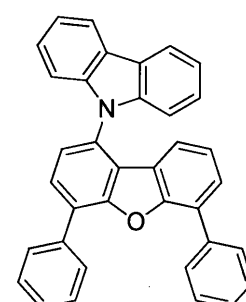
(1-165)



(1-166)

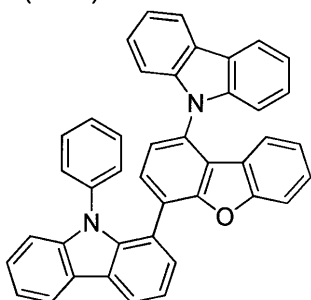


(1-167)

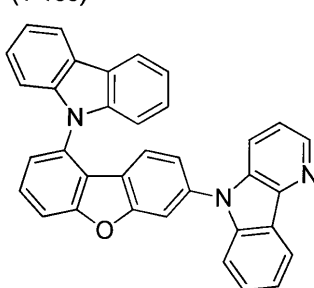


10

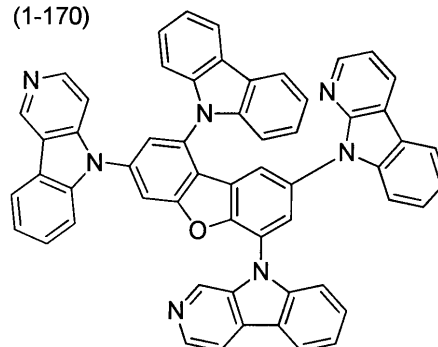
(1-168)



(1-169)

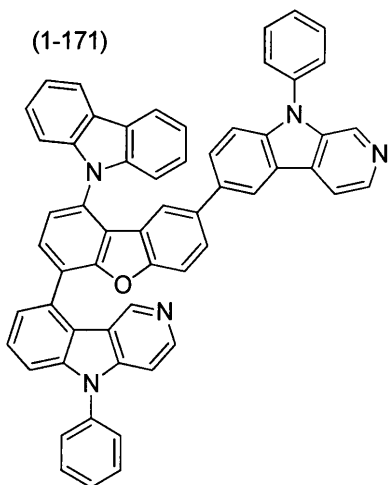


(1-170)

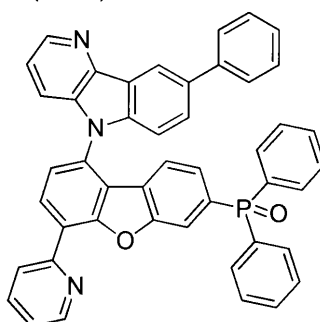


20

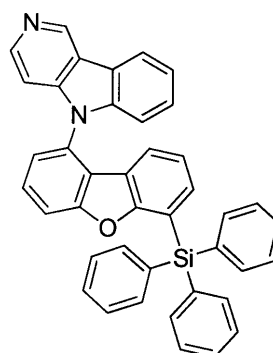
(1-171)



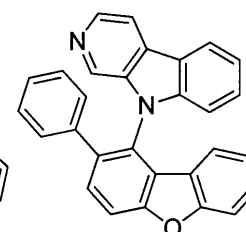
(1-172)



(1-173)

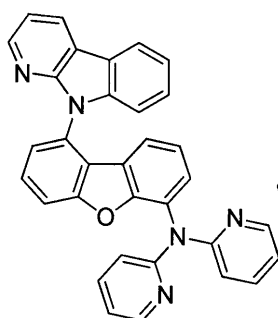


(1-174)

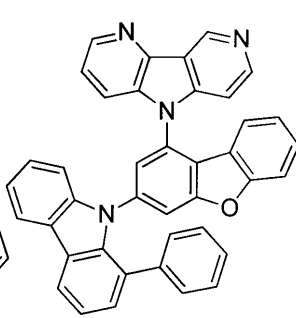


30

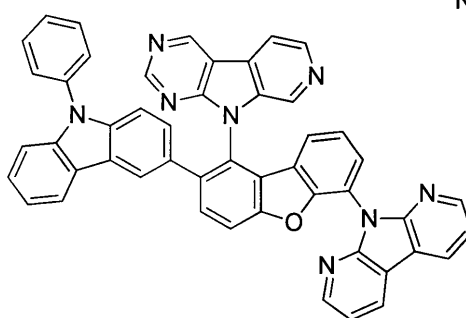
(1-175)



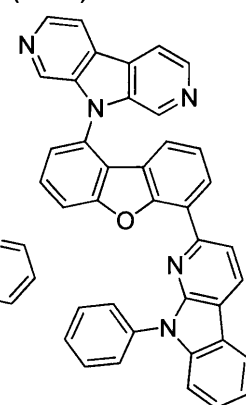
(1-176)



(1-177)



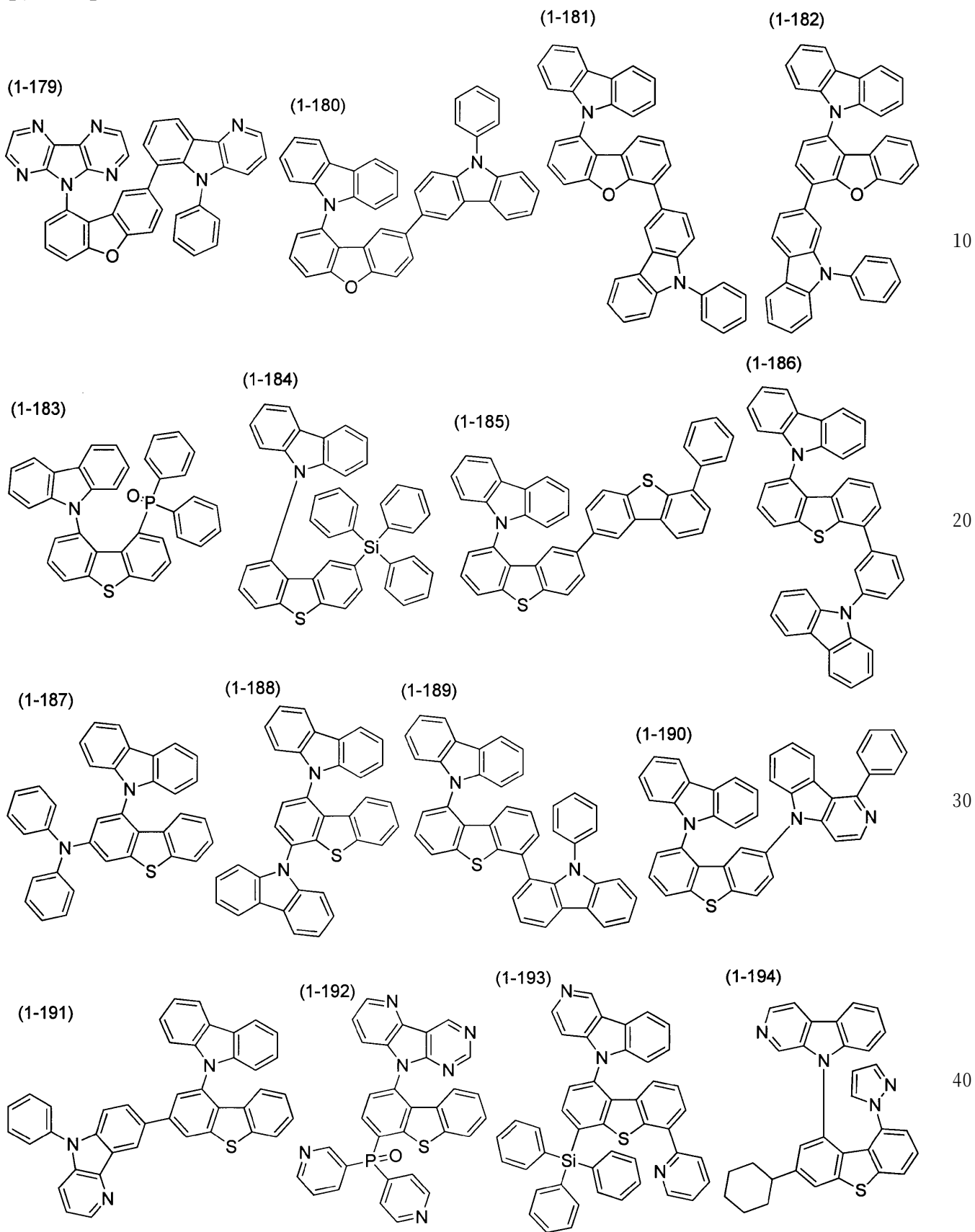
(1-178)



40

【 0 1 1 0 】

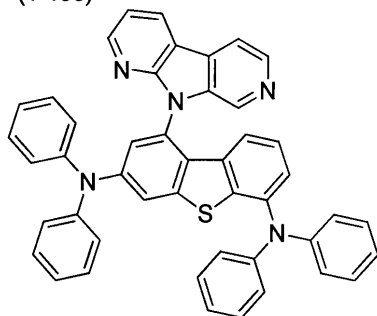
【化 3 3】



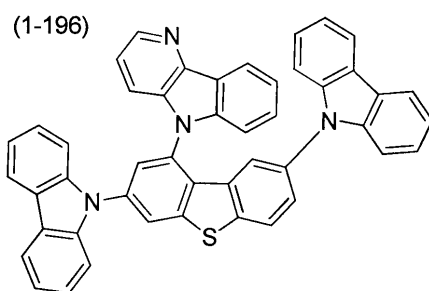
【0 1 1 1】

【化 3 4】

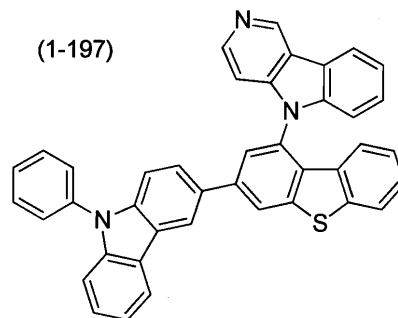
(1-195)



(1-196)

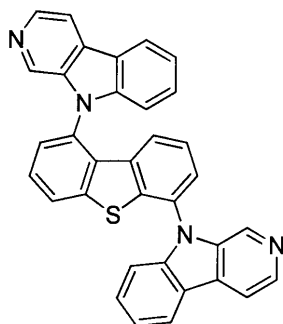


(1-197)

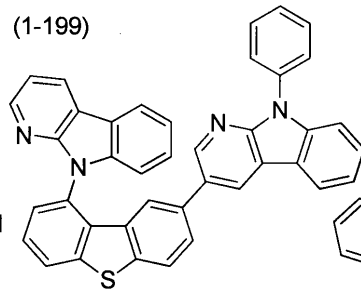


10

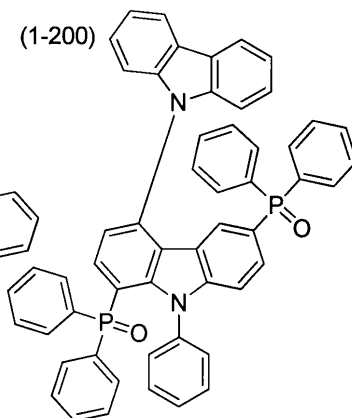
(1-198)



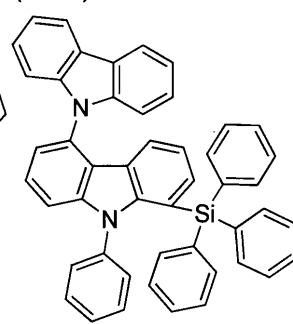
(1-199)



(1-200)

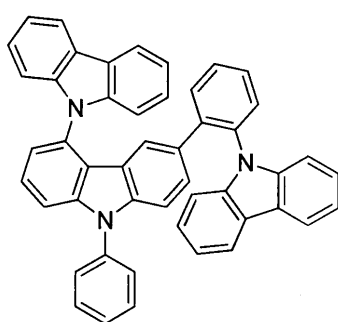


(1-201)

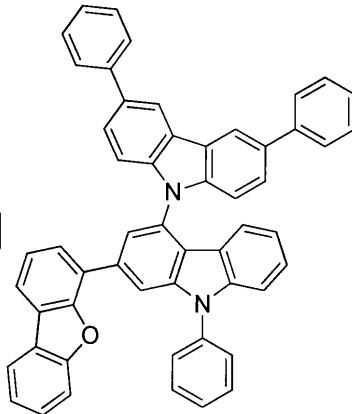


20

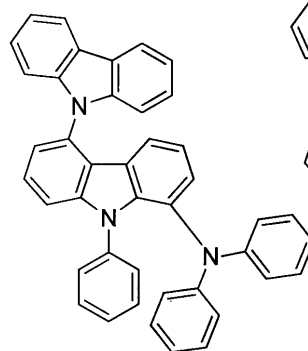
(1-202)



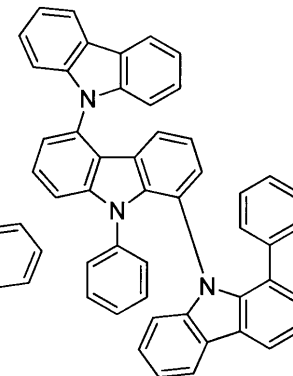
(1-203)



(1-204)

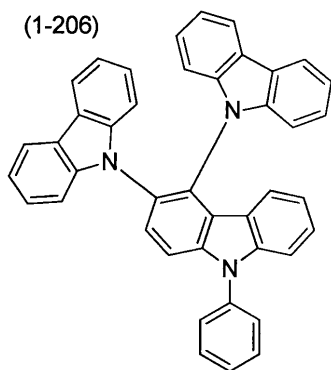


(1-205)

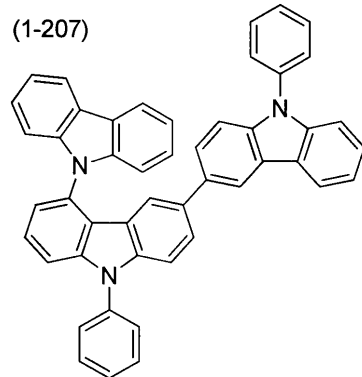


30

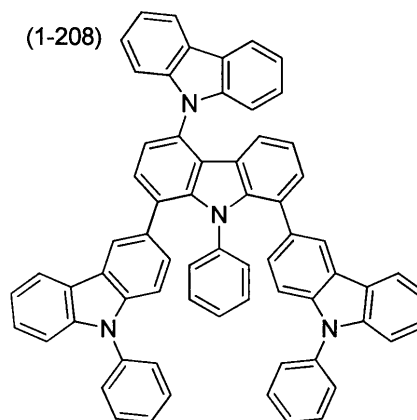
(1-206)



(1-207)



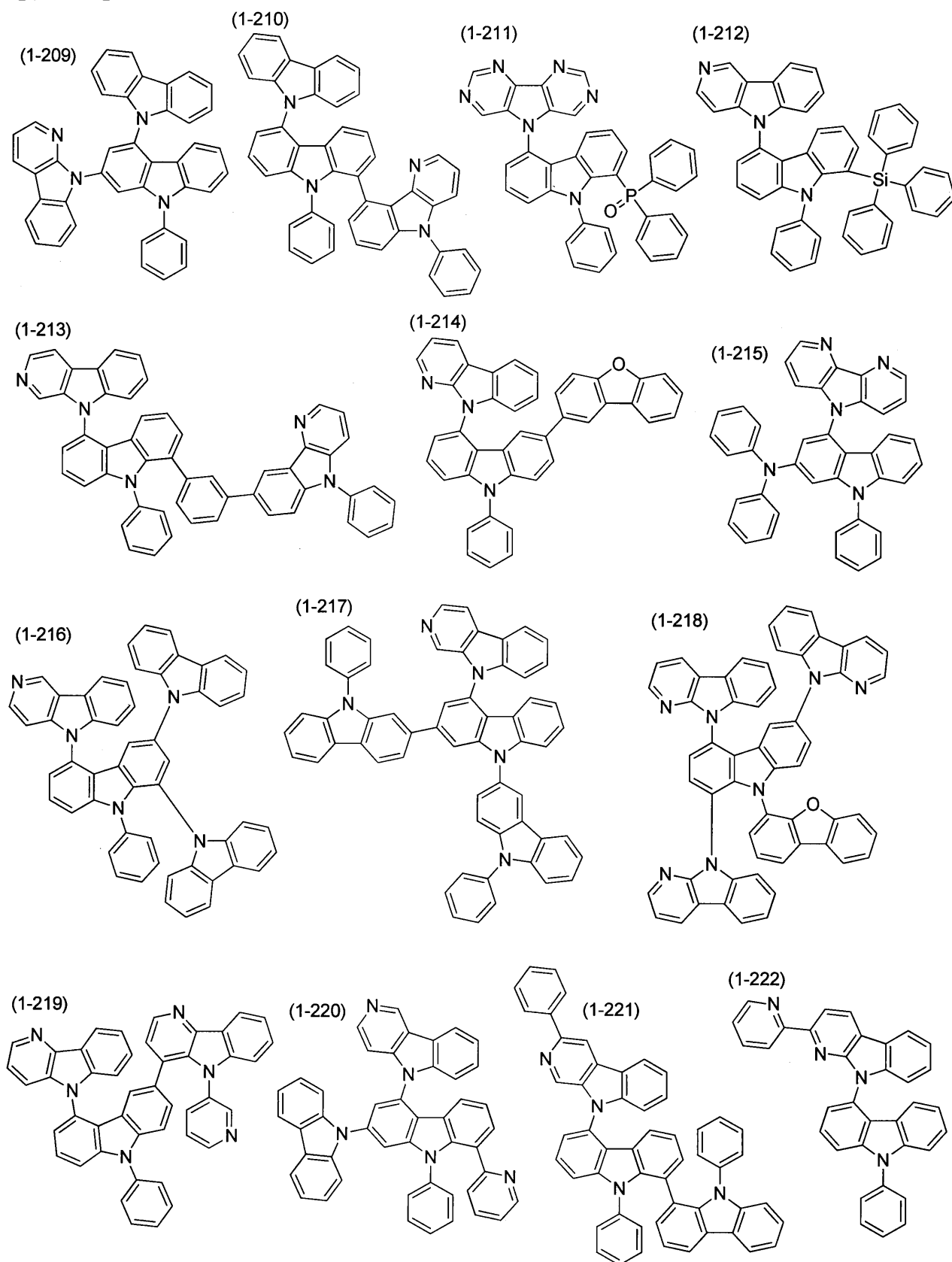
(1-208)



40

【 0 1 1 2 】

【化 3 5】



10

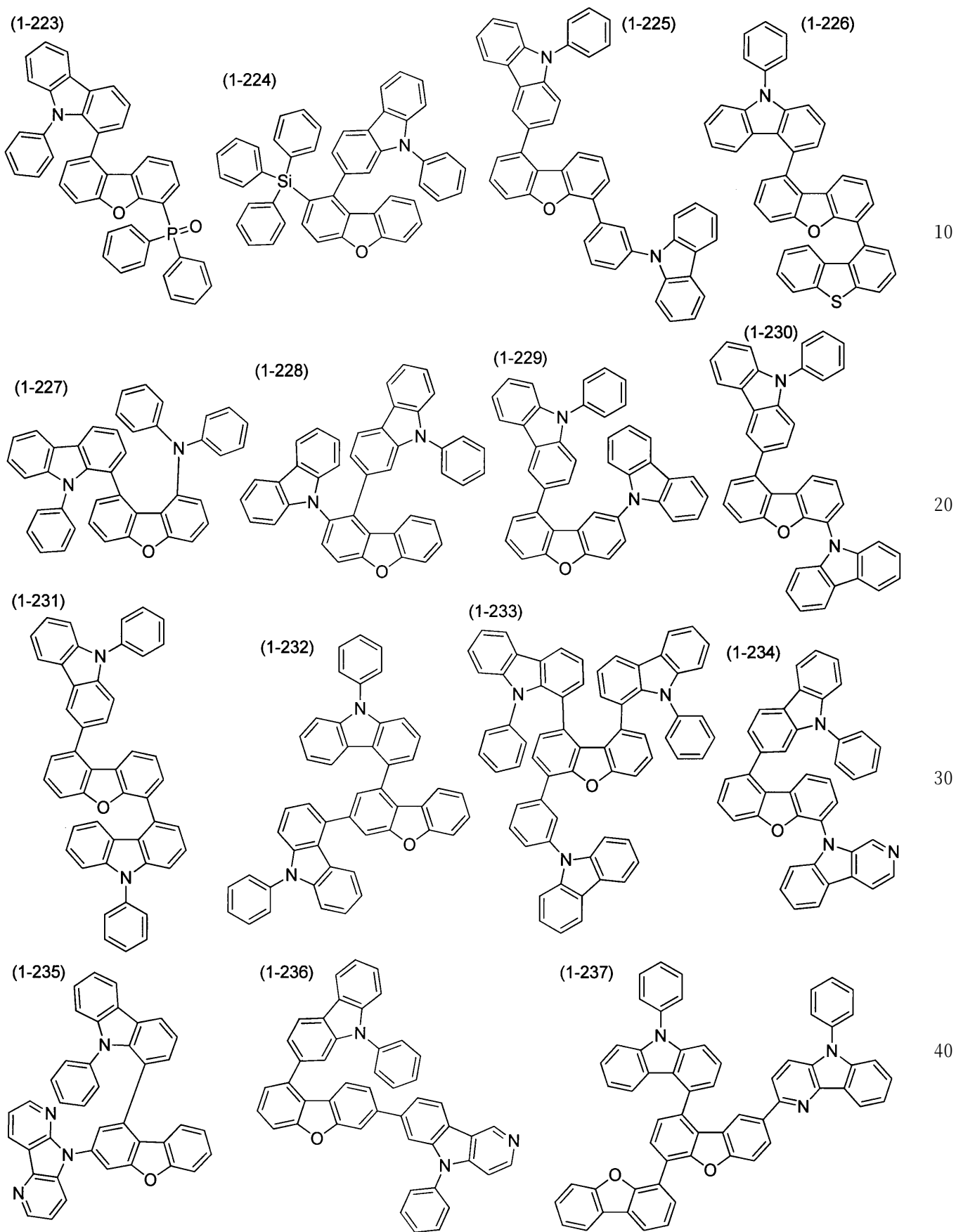
20

30

40

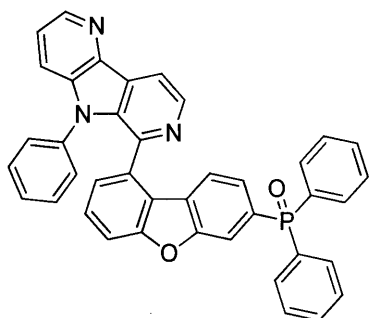
【 0 1 1 3 】

【化 3 6】

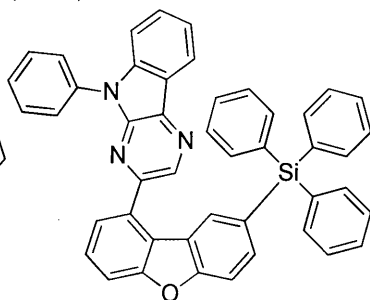


【化 3 7】

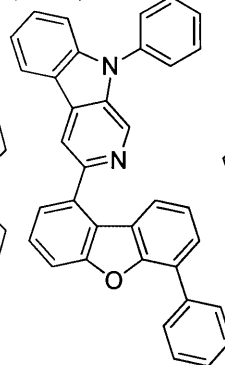
(1-238)



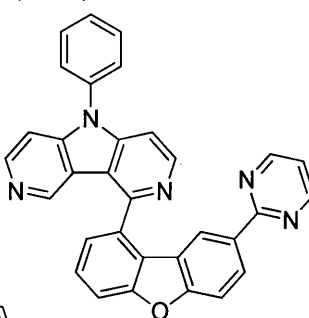
(1-239)



(1-240)

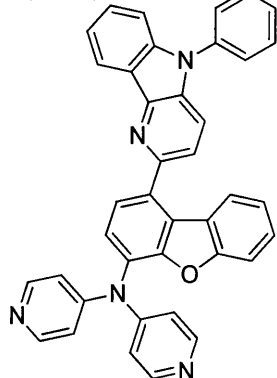


(1-241)

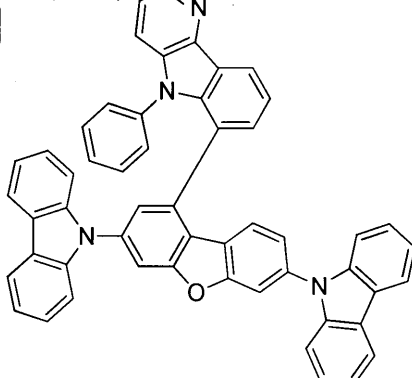


10

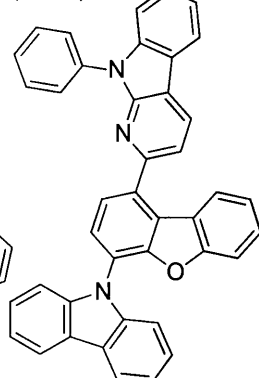
(1-242)



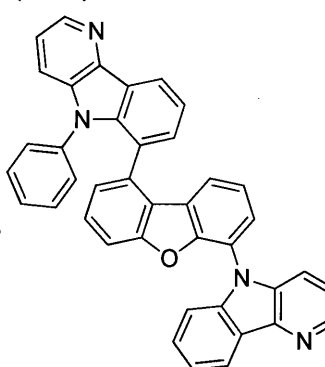
(1-243)



(1-244)

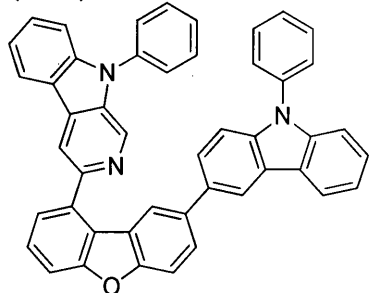


(1-245)

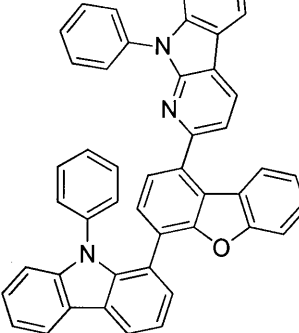


20

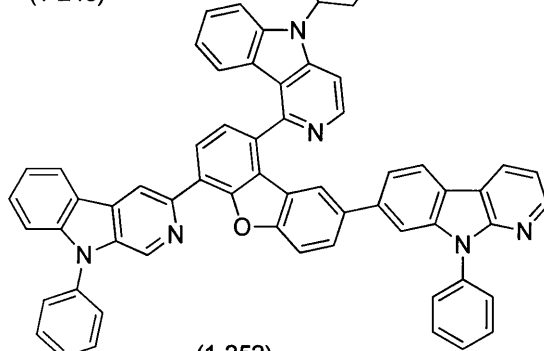
(1-246)



(1-247)

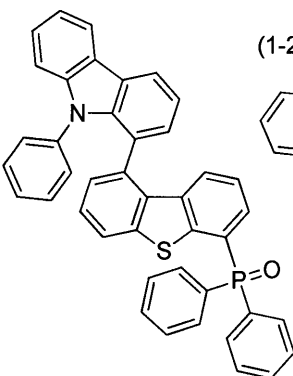


(1-248)

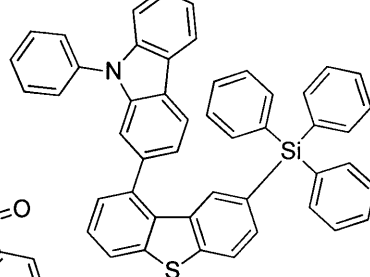


30

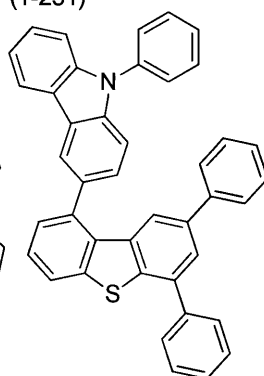
(1-249)



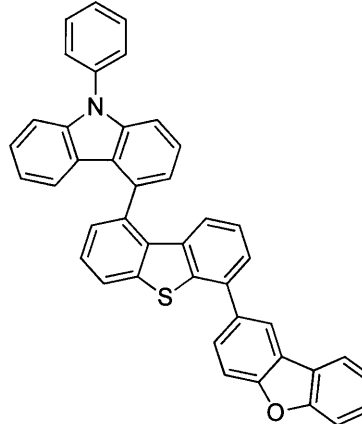
(1-250)



(1-251)



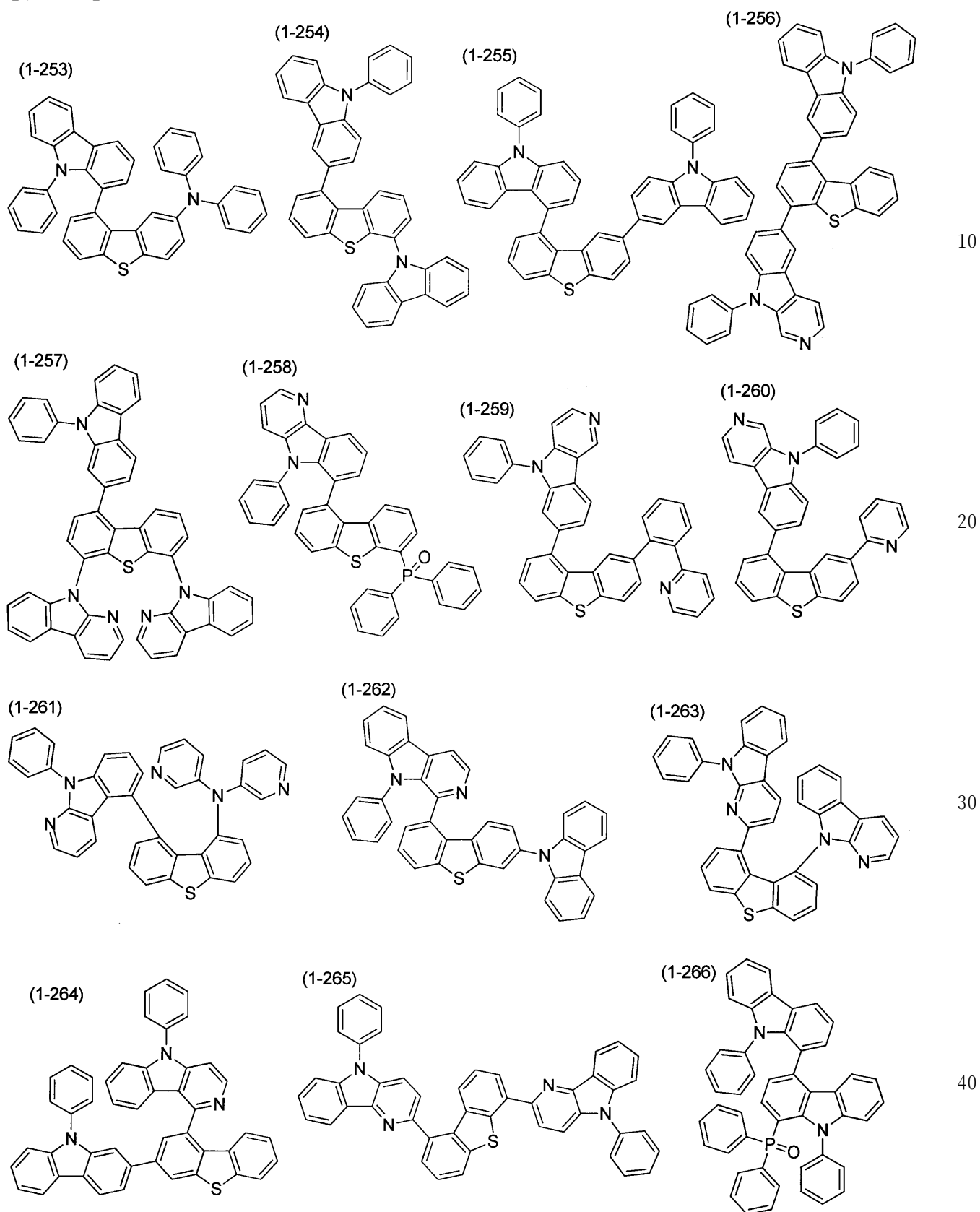
(1-252)



40

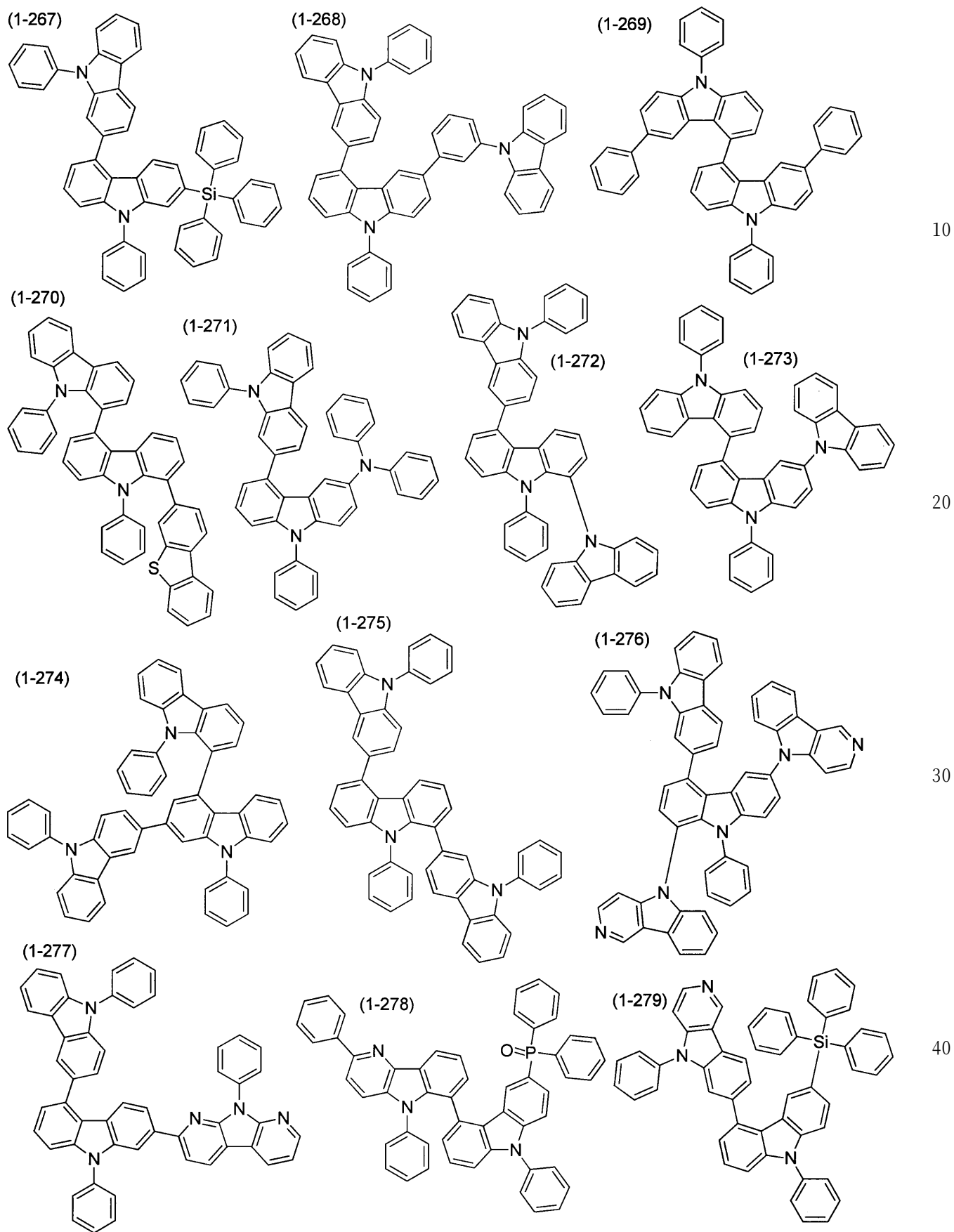
【 0 1 1 5】

【化 3 8】



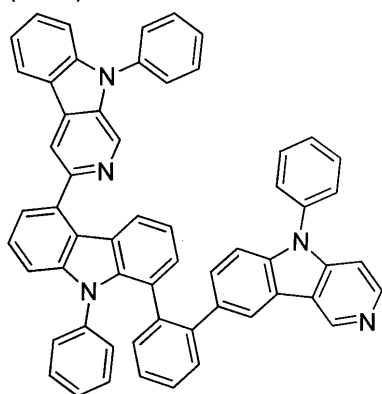
【0116】

【化 3 9】

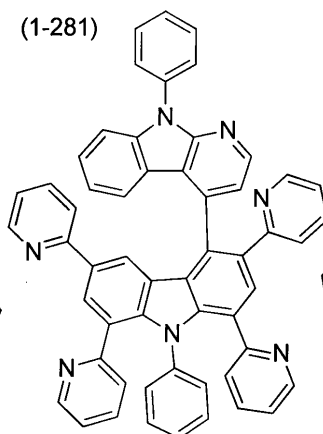


【化 4 0】

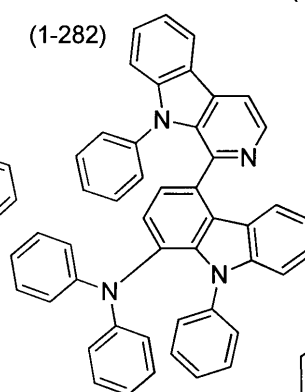
(1-280)



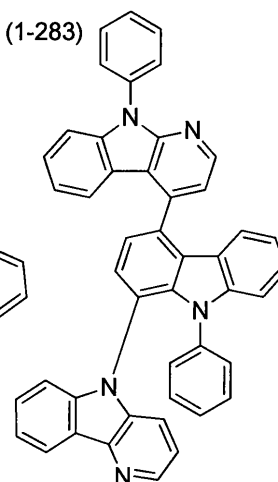
(1-281)



(1-282)

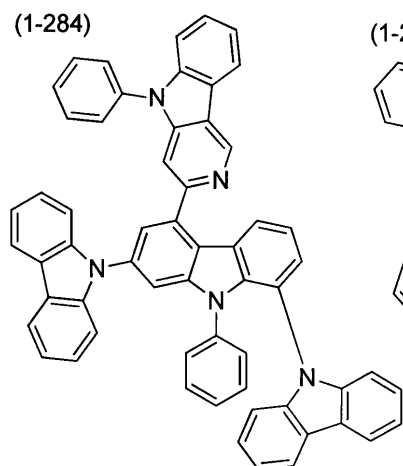


(1-283)

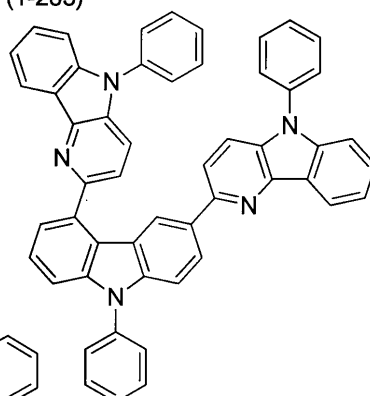


10

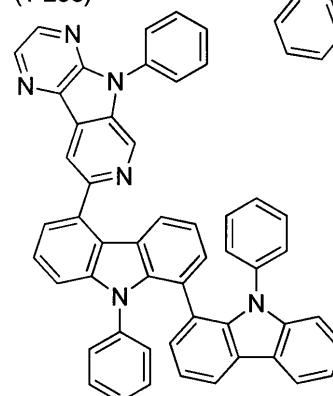
(1-284)



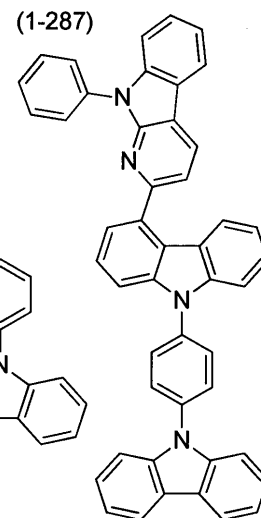
(1-285)



(1-286)

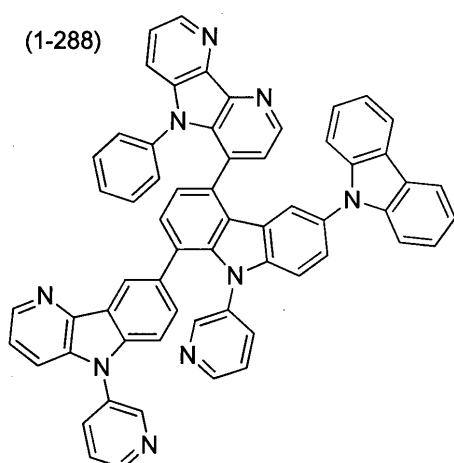


(1-287)

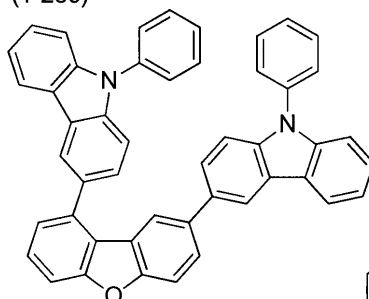


20

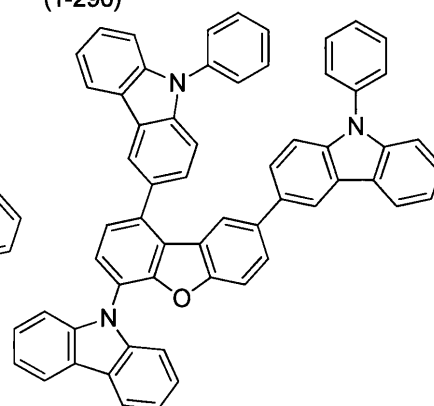
(1-288)



(1-289)



(1-290)



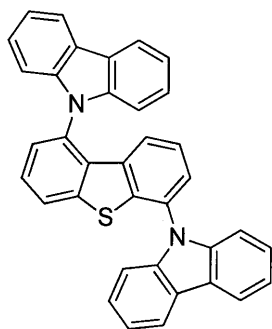
30

40

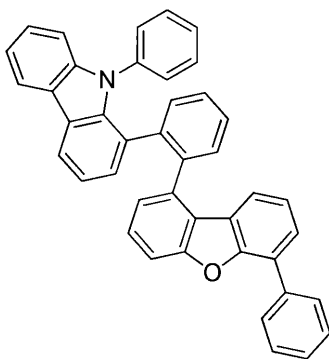
【 0 1 1 8】

【化 4 1】

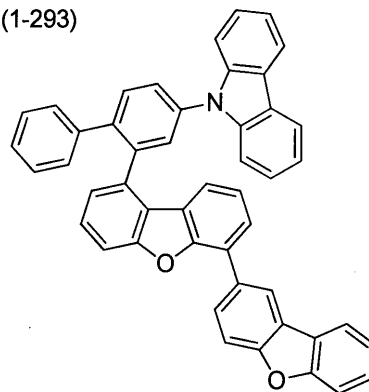
(1-291)



(1-292)

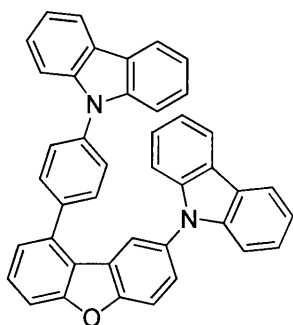


(1-293)

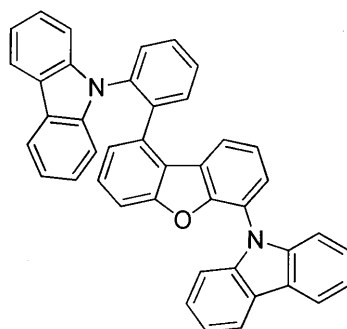


10

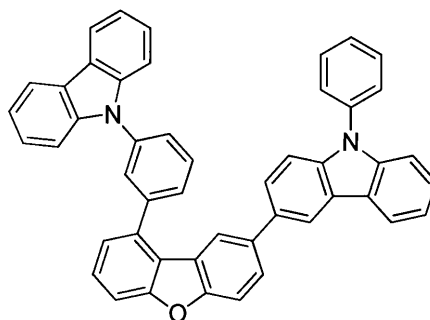
(1-294)



(1-295)

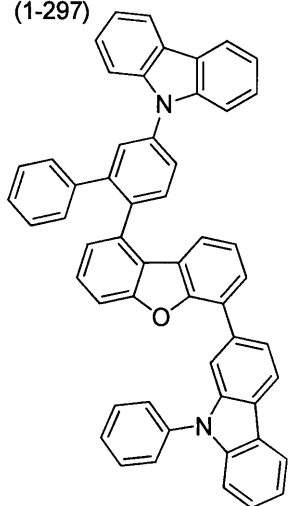


(1-296)

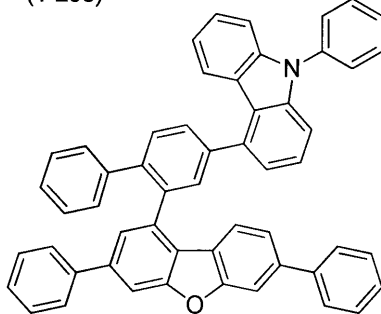


20

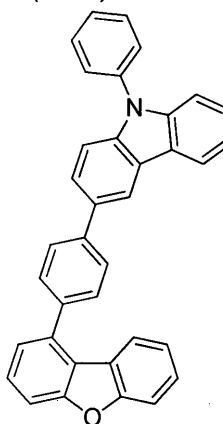
(1-297)



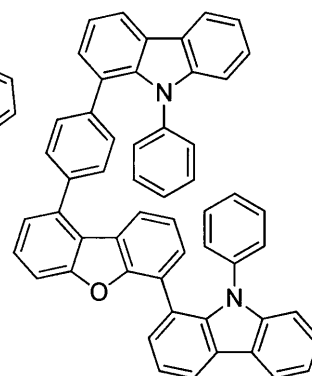
(1-298)



(1-299)

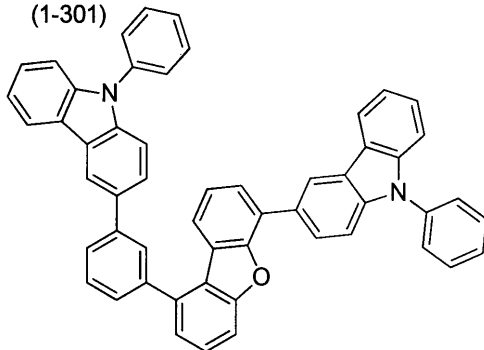


(1-300)

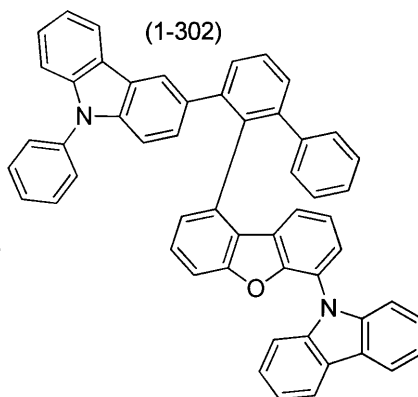


30

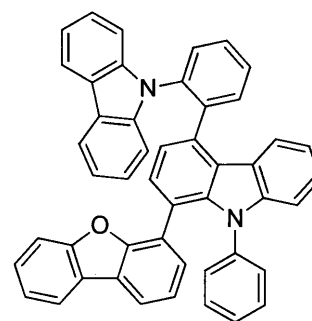
(1-301)



(1-302)



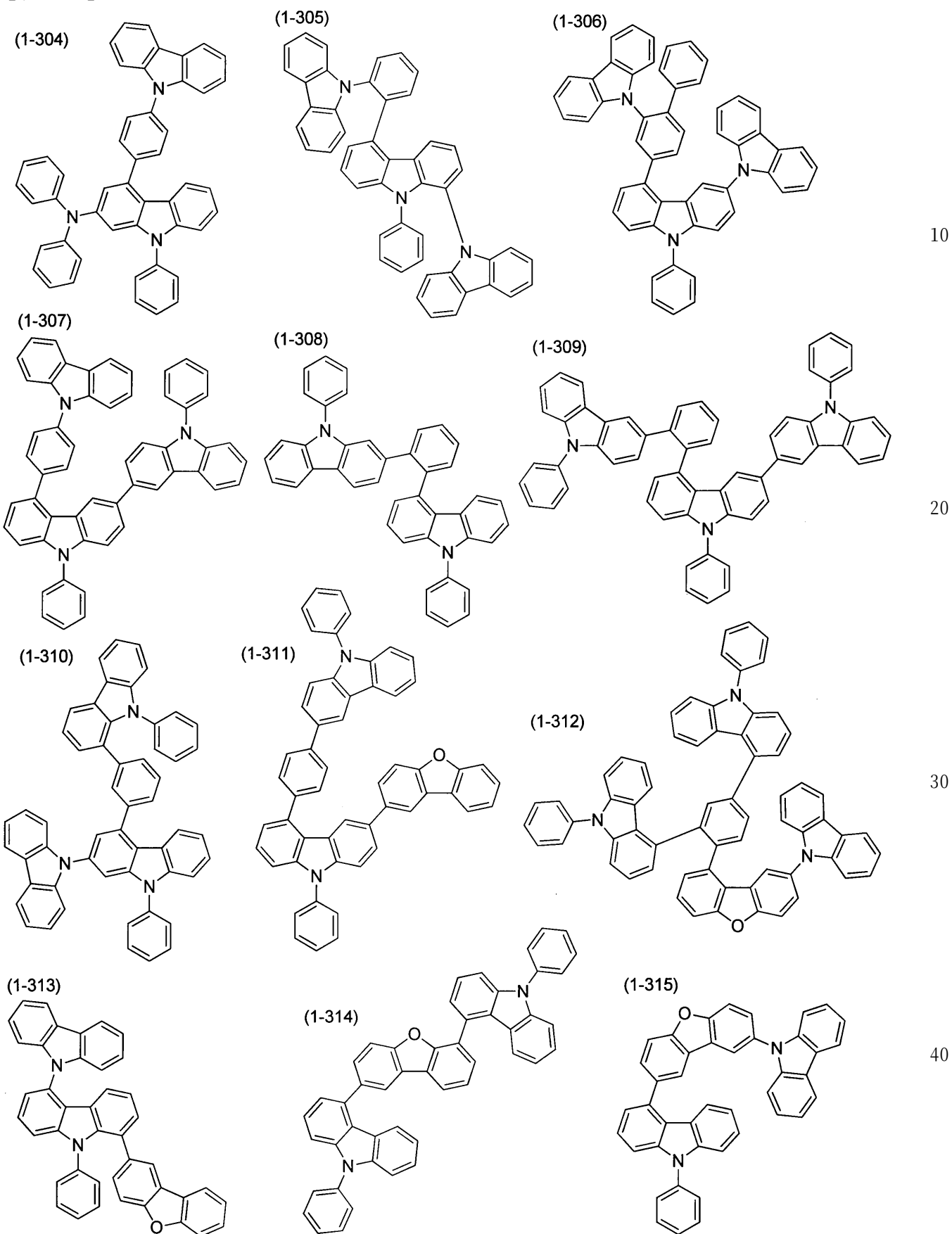
(1-303)



40

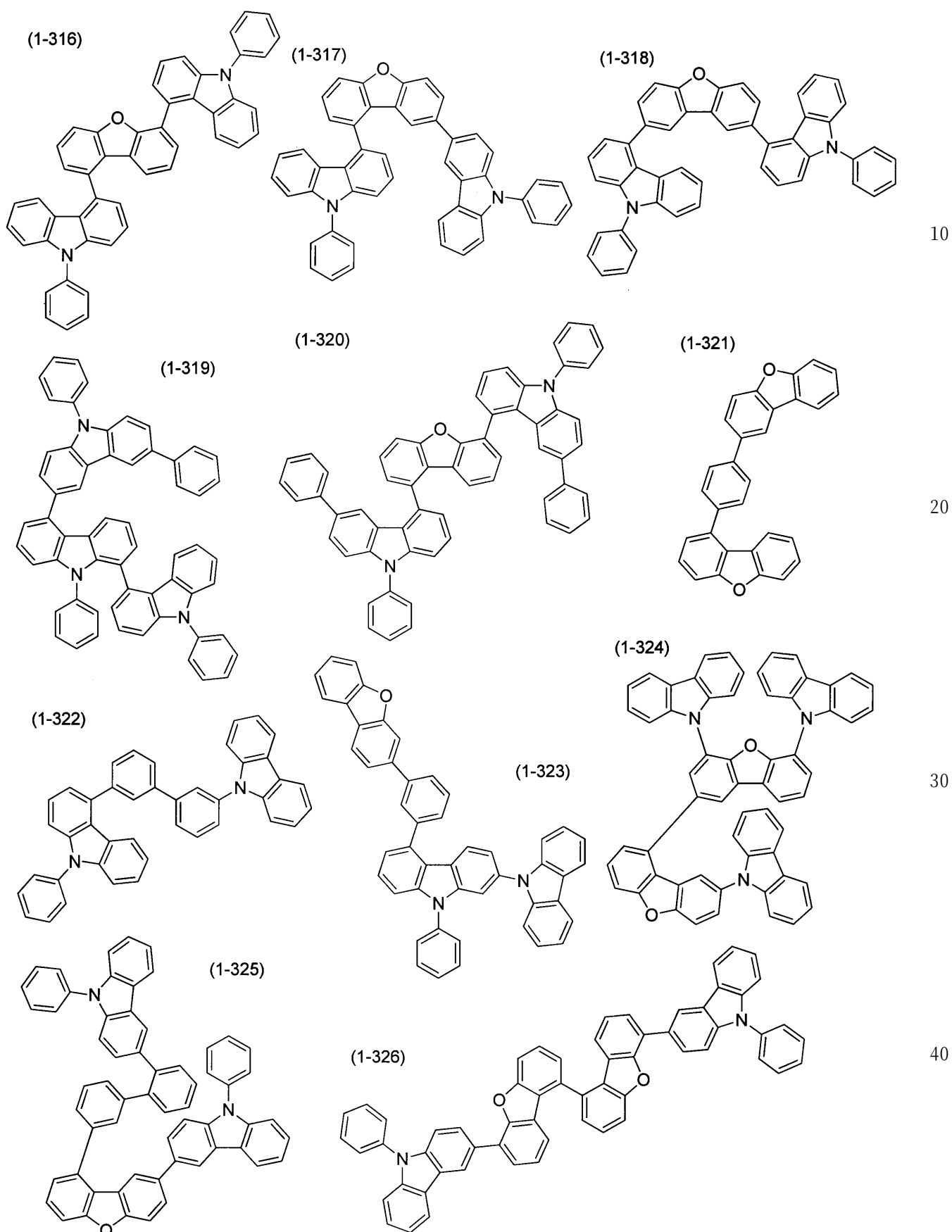
【 0 1 1 9 】

【化 4 2】



【 0 1 2 0】

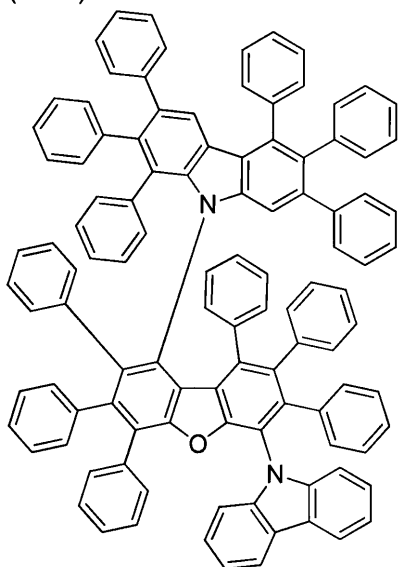
【化 4 3】



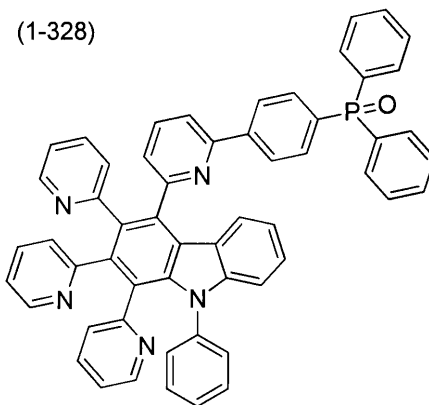
【 0 1 2 1】

【化 4 4】

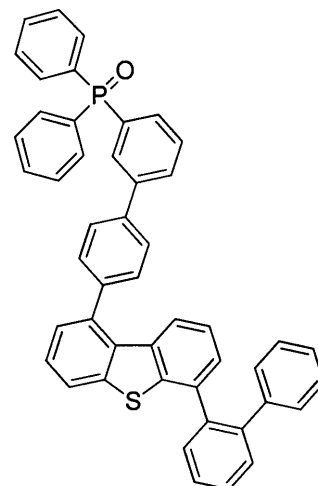
(1-327)



(1-328)

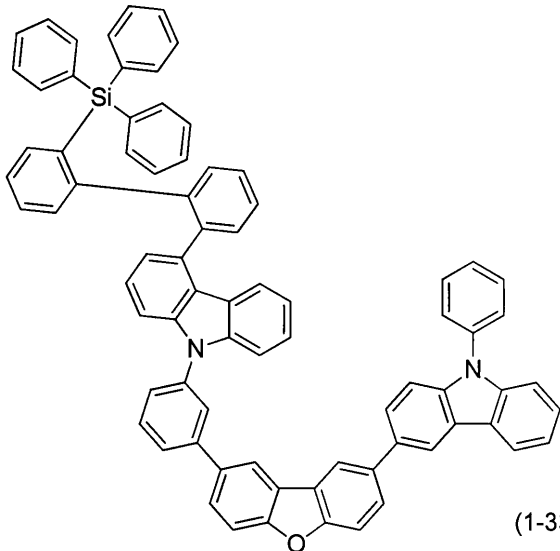


(1-329)

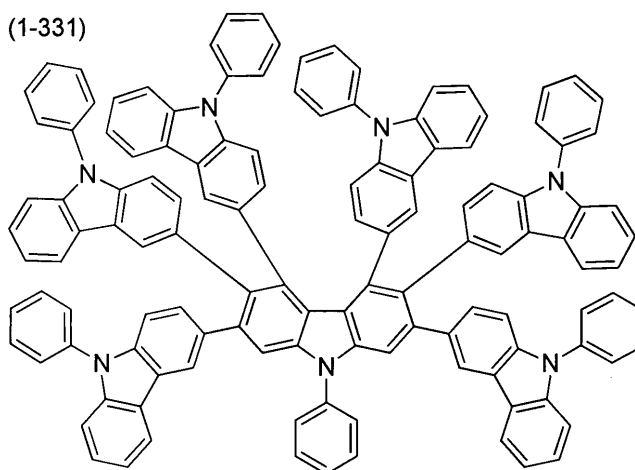


10

(1-330)



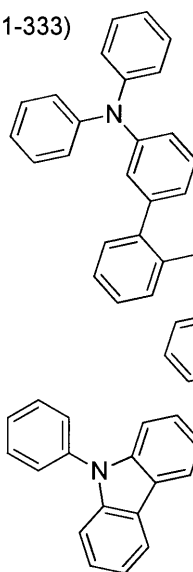
(1-331)



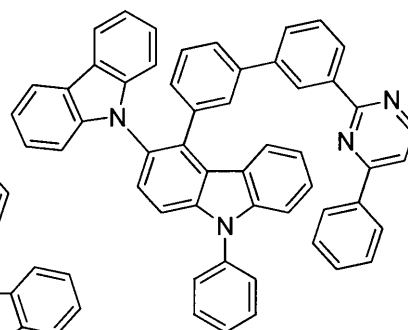
20

30

(1-333)



(1-334)

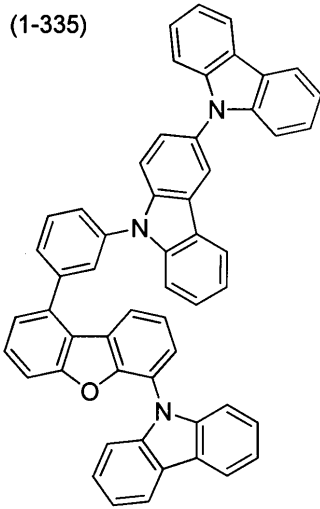


40

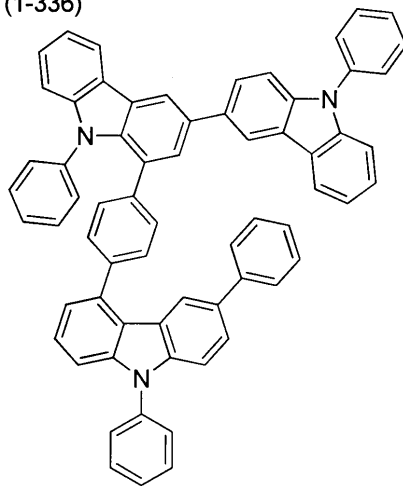
【 0 1 2 2 】

【化 4 5】

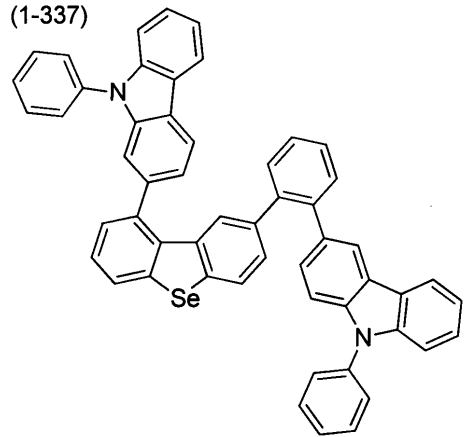
(1-335)



(1-336)

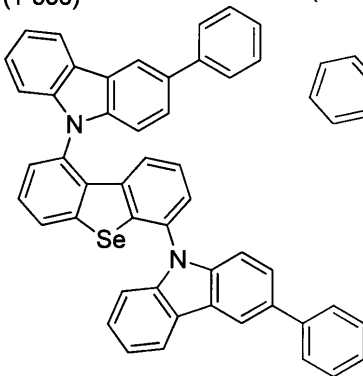


(1-337)

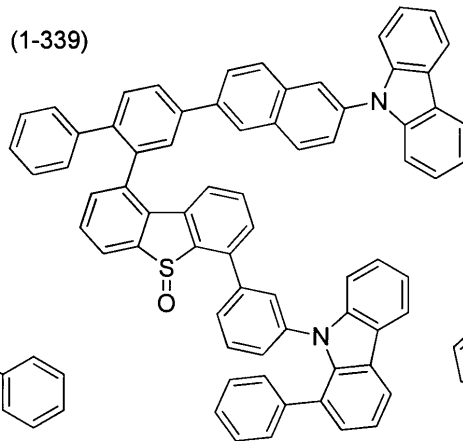


10

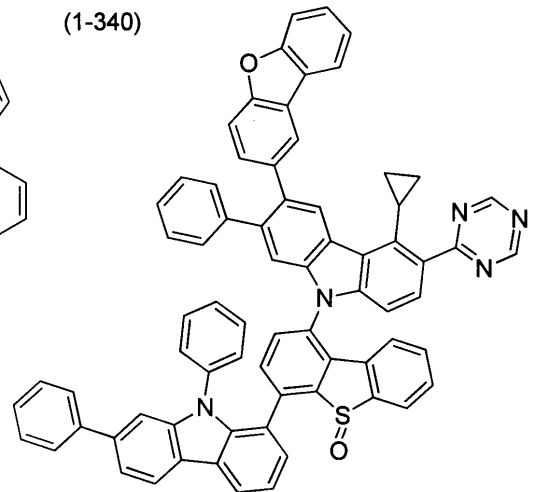
(1-338)



(1-339)

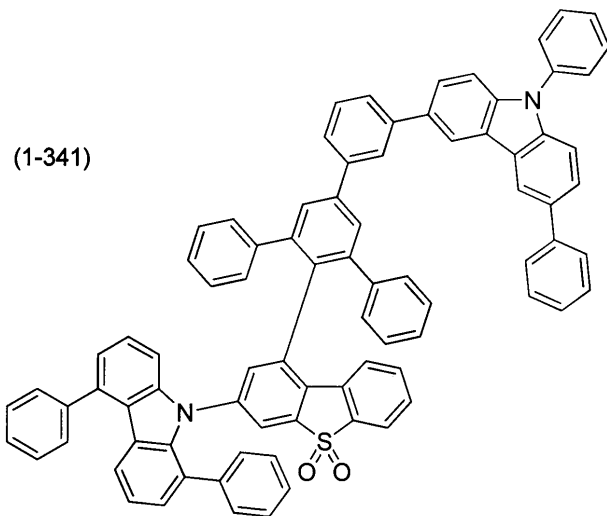


(1-340)



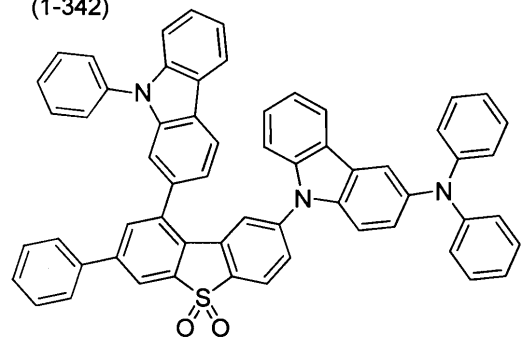
20

(1-341)



30

(1-342)



40

【 0 1 2 3 】

以下、本発明に係る一般式（１）で表される化合物の合成の一例を示すが、本発明はこれらに限定されない。ここでは特に、 $X=O$ である化合物の合成を詳細に説明するが、その他の場合においても同様に合成することができる。

【 0 1 2 4 】

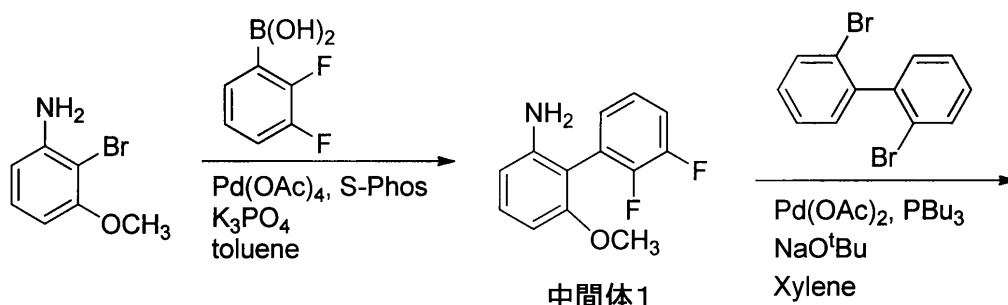
《合成例；例示化合物 1－35 の合成》

下記の方法により例示化合物 1－35 を合成した。

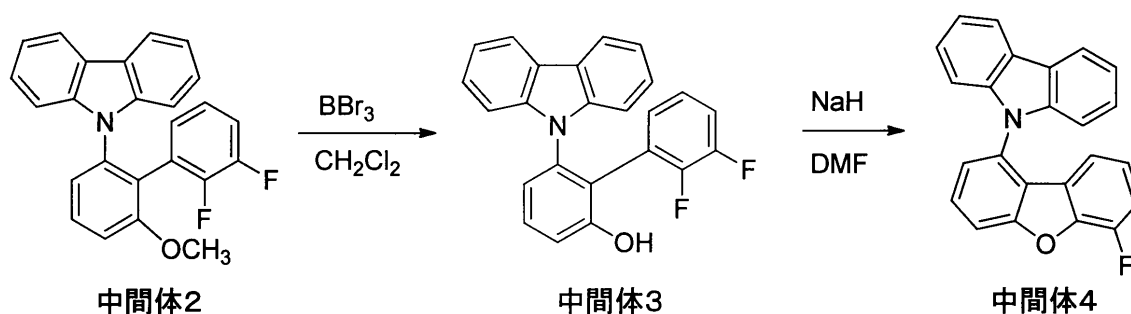
50

【0125】

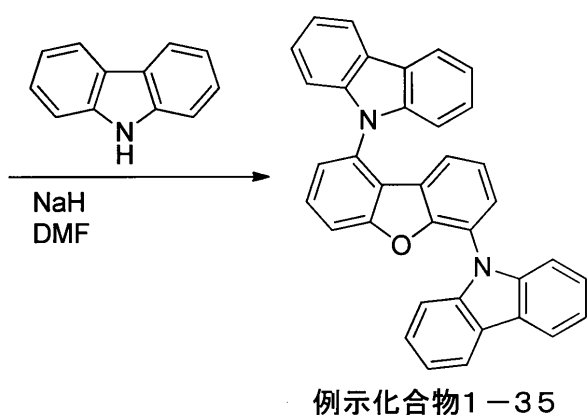
【化46】



10



20



30

【0126】

(中間体1の合成)

8.0 g の 2-ブロモ-3-メトキシアニリン (39.6 mmol)、9.38 g の 2,6-ジフルオロフェニルボロン酸 (59.4 mmol)、酢酸パラジウム 0.89 g、2-(ジシクロヘキシルホスフィノ)-2',6'-ジメトキシビフェニル (S-Phos) 6.50 g、リン酸三カリウム 25.2 g (119 mmol) にトルエン 130 mL を加え、窒素気流下で 11 時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (酢酸エチル：ヘプタン = 1：9) し、中間体 1 を 3.26 g (収率 35%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

40

【0127】

(中間体2の合成)

窒素気流下、酢酸パラジウム 0.707 g、トリブチルホスフィンの 50% キシレン溶液 5 mL を加え、室温で 30 分間攪拌した。続いて、脱水キシレン 40 mL、3.2 g の中間体 1 (12.6 mmol)、2,2'-ジブロモ-1,1'-ビフェニル 4.14 g (13.3 mmol)、ナトリウム *t*-ブチレート 3.63 g (37.8 mmol) を加え、8 時間加熱還流を行った。反応液を室温まで冷却した後、水を加え、酢酸エチルで抽出

50

した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（トルエン：ヘプタン＝１：１０）し、中間体２を３．２ｇ（収率６６％）得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

【０１２８】

（中間体３の合成）

３．２ｇの中間体２（８．３ｍｍｏｌ）の塩化メチレン溶液８３ｍＬを－７８℃に冷却した後、三臭化ホウ素の塩化メチレン溶液（１．０ｍｏｌ／Ｌ）２５ｍＬをゆっくりと滴下した。反応液を室温に戻し、攪拌を３時間行った。反応液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（酢酸エチル：ヘプタン＝１：４）し、中間体３を１．９ｇ（収率６２％）得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

10

【０１２９】

（中間体４の合成）

N，N－ジメチルホルムアミド５０ｍＬに１．９ｇの中間体３（５．１ｍｍｏｌ）、水素化ナトリウム５５８ｍｇ（７．７ｍｍｏｌ）を加え、窒素気流下、１００℃で１時間攪拌を行った。反応液を水にあげ、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（トルエン：ヘプタン＝１：２）し、中間体４を１．６ｇ（収率８９％）得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

20

【０１３０】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ （４００MHz， CDCl_3 ）

測定装置：JEOL JNM-AL400（４００MHz）：日本電子社製

スペクトルの帰属（ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数）

６．１９（d， $J=7.8\text{Hz}$ ，１H），６．７８－６．８４（m，１H），７．０７－７．１２（m，３H），７．２８－７．３５（m，４H），７．５２（d， $J=7.8\text{Hz}$ ，１H），７．７０（t， $J=8.1\text{Hz}$ ，１H），７．８０（d， $J=8.3\text{Hz}$ ，１H），８．２２（dd， $J=6.1$ ， 2.7Hz ，２H）。

30

MS（ ES^+ ）： $m/z=352$ （ $M+1$ ） $^+$

【０１３１】

（例示化合物１－３５の合成）

N，N－ジメチルホルムアミド１４ｍＬにカルバゾール０．５ｇ（４．７ｍｍｏｌ）、１．５ｇの中間体４（４．３ｍｍｏｌ）、水素化ナトリウム４６５ｍｇ（６．４ｍｍｏｌ）を加え、窒素気流下で８時間加熱還流を行った。反応液を水にあげ、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（トルエン：ヘプタン＝１：４）し、例示化合物１－３５を１．６ｇ（収率７８％）得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。なお、後述する有機EL素子の作製にはこの化合物をさらに昇華精製したものをを用いた。

40

【０１３２】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ （４００MHz， CDCl_3 ）

測定装置：JEOL JNM-AL400（４００MHz）：日本電子社製

スペクトルの帰属（ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数）

６．５７（d， $J=7.8\text{Hz}$ ，１H），７．１０（t， $J=8.1\text{Hz}$ ，１H），７．２１（d， $J=7.8\text{Hz}$ ，２H），７．２５（d， $J=6.3\text{Hz}$ ，２H），７．３１－７．４３（m，８H），７．５３－７．５６（m，２H），７．５９－７．６７（m

50

, 2 H), 8.20 (d, $J = 7.8$ Hz, 2 H), 8.28 (d, $J = 6.3$ Hz, 2 H)。

MS (ES⁺) : $m/z = 499$ ($M + 1$)⁺

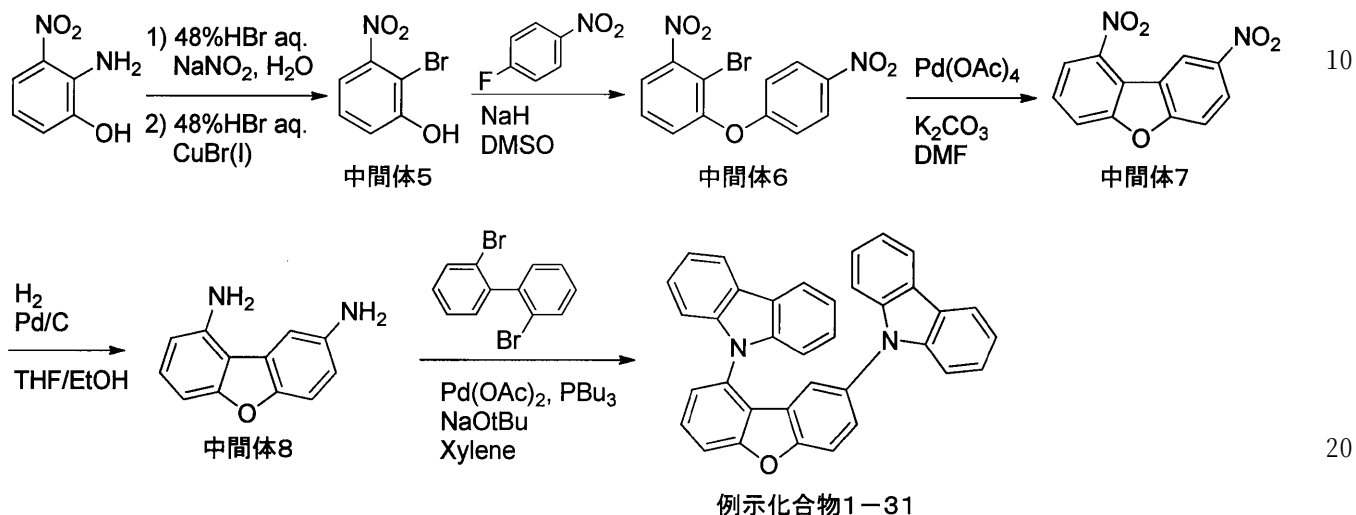
【0133】

《合成例；例示化合物1-31の合成》

下記の方法により例示化合物1-31を合成した。

【0134】

【化47】



【0135】

(中間体5の合成)

2-アミノ-3-ニトロフェノール 24.0 g (155.7 mmol) の水溶液 12 mL に 48% 臭化水素酸 40 mL (237.3 mmol) を加え、さらに氷冷下で亜硝酸ナトリウム 11.2 g (162.3 mmol) の水溶液 40 mL をゆっくりと滴下した。氷冷下で 15 分攪拌後、臭化銅 (I) 24.6 g (171.5 mmol) を 48% 臭化水素酸 80 mL に溶解させた溶液をゆっくりと滴下した。氷冷下でさらに 15 分攪拌後室温に戻し、さらに 1 時間加熱還流を行った。反応溶液を放冷後ろ過し、得られた茶色の固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (トルエン) し、中間体 5 を 29.3 g (収率 86%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

30

【0136】

(中間体6の合成)

窒素気流下、4-フルオロニトロベンゼン 19.4 g (138 mmol) のジメチルスルホキシド溶液 460 mL に 30.0 g (138 mmol) の中間体 5、水素化ナトリウム 9.9 g (207 mmol) を加えた。反応液を 130 °C 3 時間加熱後放冷し、水にあげ、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (酢酸エチル：ヘプタン = 1 : 4) し、中間体 6 を 18.9 g (収率 41%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトルで確認した。

40

【0137】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃)

測定装置：JEOL JNM-AL400 (400 MHz)：日本電子社製

スペクトルの帰属 (ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数)

7.03 (d, $J = 9.3$ Hz, 2 H), 7.33 (dd, $J = 8.1, 1.2$ Hz, 1 H), 7.54 (t, $J = 8.1$ Hz, 1 H), 7.71 (dd, $J = 8.1, 1.2$ Hz, 1 H), 8.27 (d, $J = 9.3$ Hz, 2 H)。

【0138】

(中間体 7 の合成)

窒素気流下、18.9 g (55.7 mmol) の中間体 6 のジメチルホルムアミド溶液 560 mL に炭酸カリウム 12.9 g (93.3 mmol)、酢酸パラジウム 1.25 g (5.55 mmol) を加えた。反応液を 150 °C で 4 時間加熱後放冷し、不溶物をセライトろ過後、ろ液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（酢酸エチル：ヘプタン＝1：4）し、中間体 6 を 2.35 g（収率 16 %）得た。構造は核磁気共鳴スペクトルで確認した。

【0139】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3)

測定装置：JEOL JNM-AL400 (400 MHz)：日本電子社製
 スペクトルの帰属（ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数）

7.74–7.79 (m, 2H), 8.02 (d, $J=8.3\text{ Hz}$, 1H), 8.36 (d, $J=8.8\text{ Hz}$, 1H), 8.56 (dd, $J=8.8, 2.4\text{ Hz}$, 1H), 9.67 (d, $J=2.4\text{ Hz}$, 1H)。

【0140】

(中間体 8 の合成)

2.35g の中間体 7 をテトラヒドロフラン 70 mL に溶解し、さらにエタノール 20 mL、10 % パラジウム／炭素 0.24 g を加え、水素気流下 10 時間攪拌した。パラジウムをセライトろ過で除去した後、ろ液を減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（酢酸エチル：ヘプタン＝1：1）し、中間体 8 を 0.8 g（収率 44 %）得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

【0141】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3)

測定装置：JEOL JNM-AL400 (400 MHz)：日本電子社製
 スペクトルの帰属（ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数）

3.69 (s, 2H), 4.19 (s, 2H), 6.57 (d, $J=7.8\text{ Hz}$, 1H), 6.78 (dd, $J=8.5, 2.2\text{ Hz}$, 1H), 6.96 (d, $J=8.3\text{ Hz}$, 1H), 7.14 (d, $J=2.0\text{ Hz}$, 1H), 7.21 (t, $J=8.1\text{ Hz}$, 1H), 7.34 (d, $J=8.2\text{ Hz}$, 1H)。

MS (ES^+) : $m/z = 199 (M+1)^+$

【0142】

(例示化合物 1–31 の合成)

窒素気流下、トリブチルホスフィンの 50 % キシレン溶液 1.3 mL に酢酸パラジウム 181 mg を加え、室温で 30 分間攪拌した。続いて、脱水キシレン 14 mL、0.8 g (4.04 mmol) の中間体 8、2, 2'-ジプロモ-1, 1'-ビフェニル 2.58 g (8.28 mmol)、ナトリウム *t*-ブチラート 1.16 g (12.1 mmol) を加え、6 時間加熱還流を行った。反応液を放冷後、セライトろ過し、ろ液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製（トルエン：ヘプタン＝1：9）し、例示化合物 1–31 を 0.55 g（収率 28 %）得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。なお、後述する有機 EL 素子の作製にはこの化合物をさらに昇華精製したものをを用いた。

【0143】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に

示す。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3)

測定装置: JEOL JNM-AL400 (400 MHz): 日本電子社製

スペクトルの帰属 (ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数)

6.68 (d, $J=2.4\text{ Hz}$, 1H), 6.89 (d, $J=7.3\text{ Hz}$, 2H), 7.15–7.24 (m, 6H), 7.29 (t, $J=7.7\text{ Hz}$, 2H), 7.41 (td, $J=7.7, 1.1\text{ Hz}$, 2H), 7.53–7.56 (m, 2H), 7.71–7.77 (m, 2H), 7.82 (dd, $J=8.3, 1.1\text{ Hz}$, 1H), 8.00 (dd, $J=7.8, 1.5\text{ Hz}$, 2H), 8.04 (d, $J=7.8\text{ Hz}$, 2H)。

MS (ES^+): $m/z = 499$ ($\text{M}+1$)⁺

10

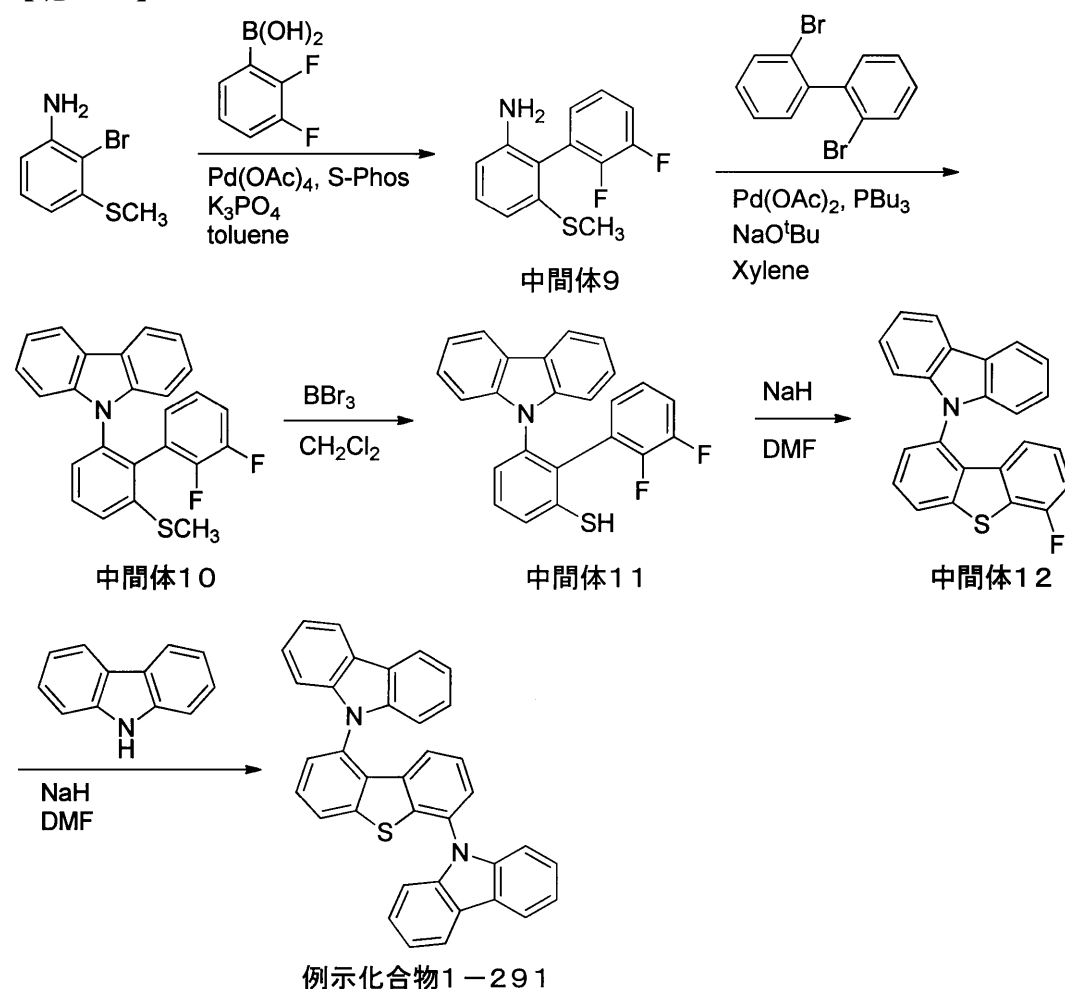
【0144】

《合成例; 例示化合物1-291の合成》

下記の方法により例示化合物1-291を合成した。

【0145】

【化48】



20

30

40

【0146】

例示化合物1-291は、以下に簡単に説明するように、例示化合物1-35と同様の方法で合成することができる。

2-ブロモ-3-メチルチオアニリンと3-ジフルオロフェニルボロン酸を酢酸パラジウムとS-Phos存在下で鈴木カップリングを行い、中間体9を合成した。中間体9のアミノ基と2,2'-ジブロモ-1,1'-ビフェニルとを酢酸パラジウムとトリブチルホスフィン存在下で反応させ、中間体10を得た。得られた中間体10を三臭化ホウ素で処理し、中間体11へと変換した。中間体11を水素化ナトリウムで処理し、環化させることで中間体12を得た。得られた中間体12とカルバゾールを水素化ナトリウム存在下で

50

反応させることで例示化合物 1-291 を合成した。

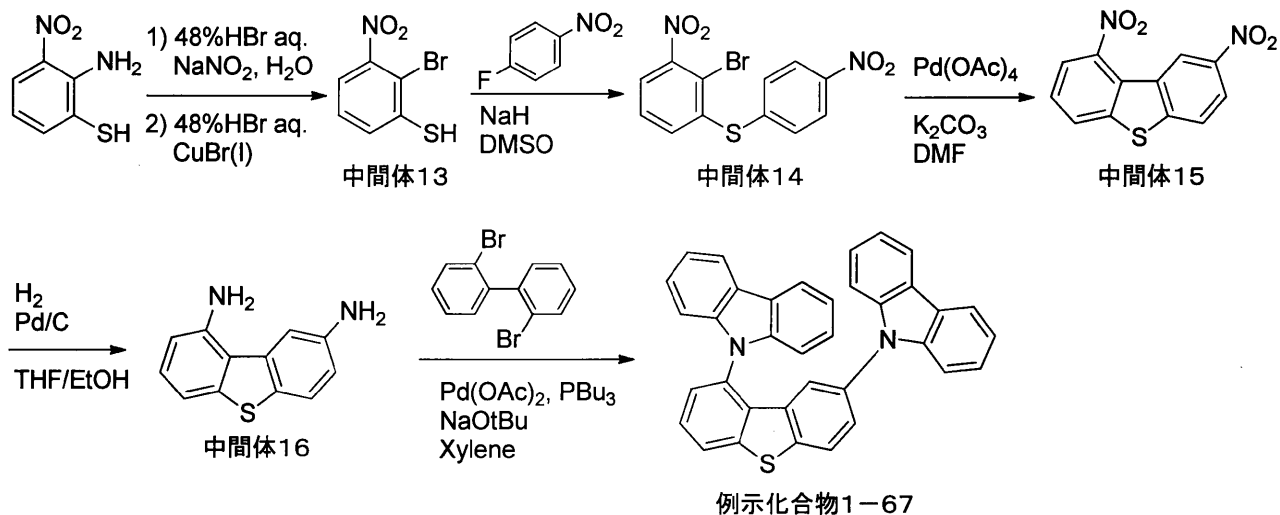
【0147】

《合成例；例示化合物 1-67 の合成》

下記の方法により例示化合物 1-67 を合成した。

【0148】

【化 49】



【0149】

例示化合物 1-67 は、以下に簡単に説明するように、例示化合物 1-31 と同様の方法で合成することができる。

2-アミノ-3-ニトロベンゼンチオールのアミノ基をザンドマイヤー反応により Br へと変換し、中間体 13 を得た。中間体 13 と 3-フルオロニトロベンゼンとを水素化ナトリウム存在下反応させ、中間体 14 を合成した。中間体 14 を酢酸パラジウムで処理することで、中間体 15 へと変換し、得られた中間体 15 のニトロ基を水素添加によりアミノ基へと変換し、中間体 16 を得た。中間体 16 と 2, 2'-ジブromo-1, 1'-ビフェニルとを酢酸パラジウムとトリブチルホスフィン存在下で反応させ、例示化合物 1-67 を合成した。

【0150】

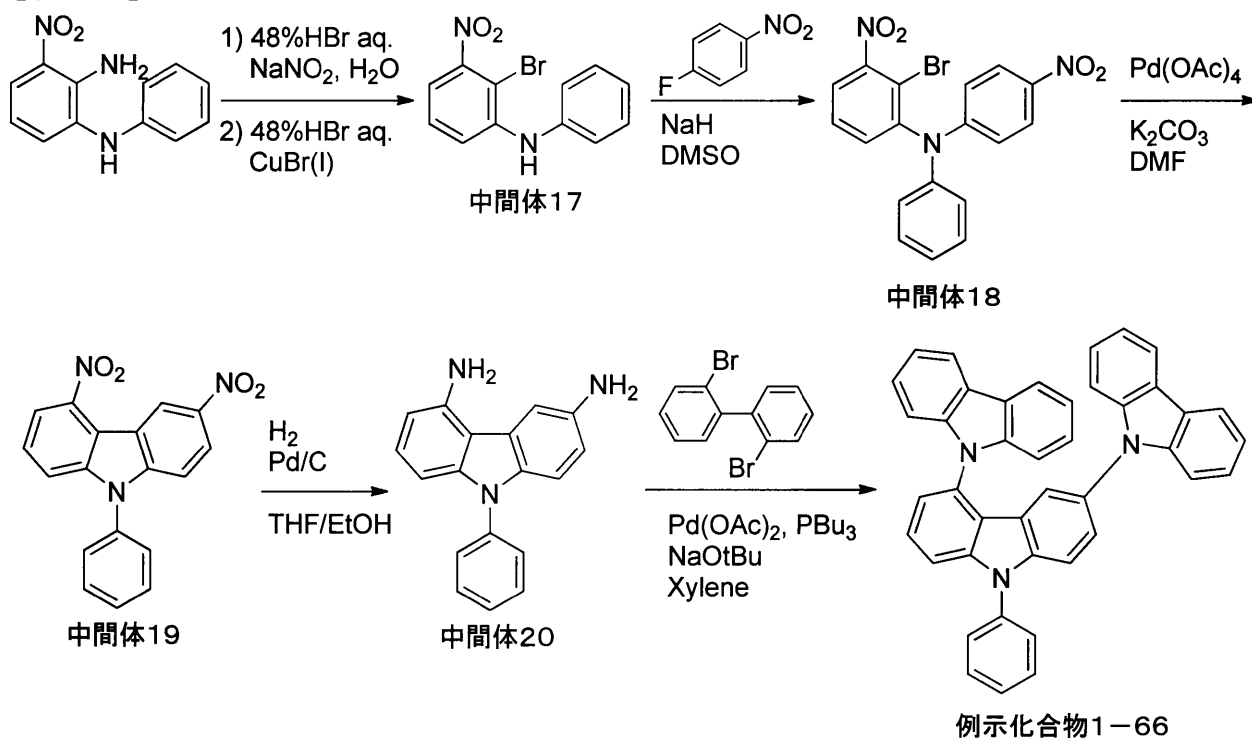
《合成例；例示化合物 1-66 の合成》

下記の方法により例示化合物 1-66 を合成した。

【0151】

30

【化 5 0】



10

20

【0152】

例示化合物 1-66 は、以下に簡単に説明するように、例示化合物 1-31 と同様の方法で合成することができる。

2-ニトロ-N-フェニルベンゼン-1,2-ジアミンの第 1 級アミノ基をザンドマイヤー反応により Br へと変換し、中間体 17 を得た。中間体 17 と 3-フルオロニトロベンゼンとを水素化ナトリウム存在下反応させ、中間体 18 を合成した。中間体 18 を酢酸パラジウムで処理することで、中間体 19 へと変換し、得られた中間体 19 のニトロ基を水素添加によりアミノ基へと変換し、中間体 20 を得た。中間体 20 と 2,2'-ジブromo-1,1'-ビフェニルとを酢酸パラジウムとトリブチルホスフィン存在下で反応させ、例示化合物 1-66 を合成した。

30

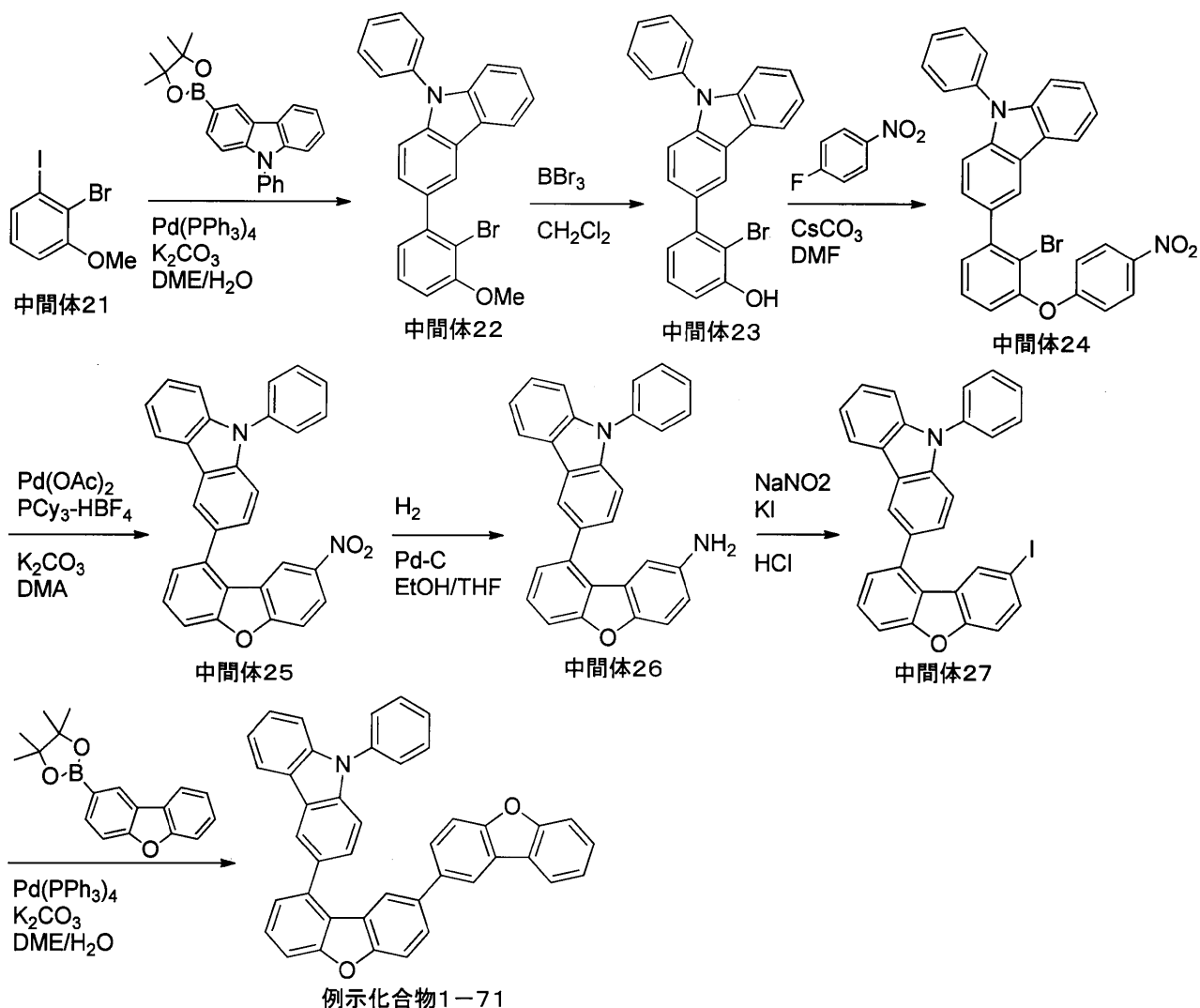
【0153】

《合成例；例示化合物 1-71 の合成》

下記の方法により例示化合物 1-71 を合成した。

【0154】

【化 5 1】



10

20

【0155】

(中間体22の合成)

5.0 g の中間体21 (16.0 mmol) をエチレングリコールジメチルエーテル 80 mL に溶解させた後水 20 mL を加え、そこへ 5.9 g の 3-(4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル)-9-フェニルカルバゾール (16.0 mmol)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム 0.56 g、炭酸カリウム 5.45 g (40.0 mmol) を加え、窒素気流下で 5 時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (トルエン：ヘプタン=1：4) し、中間体22を 5.0 g (収率 73%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

40

【0156】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃)

測定装置：JEOL JNM-AL400 (400 MHz)：日本電子社製

スペクトルの帰属 (ケミカルシフト δ、ピーク形状、プロトン数)

3.97 (s, 3H), 6.93 (dd, J=8.3, 1.5 Hz, 1H) 7.08 (dd, J=7.6, 1.2 Hz, 1H), 7.27-7.31 (m, 1H), 7.34 (t, J=7.8 Hz, 1H), 7.40-7.42 (m, 2H), 7.45-7.50 (m, 3H), 7.61 (t, J=2.9 Hz, 4H), 8.12-8.16 (m, 2H)

50

。

【0157】

(中間体23の合成)

3.3 gの中間体22 (7.7 mmol) の塩化メチレン溶液77 mLを-78℃に冷却した後、三臭化ホウ素の塩化メチレン溶液 (1.0 mol/L) 23 mLをゆっくりと滴下した。反応液を室温に戻し、攪拌を1時間行った。反応液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (酢酸エチル：ヘプタン=1：5) し、中間体23を2.9 g (収率91%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

10

【0158】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

 $^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3)

測定装置：JEOL JNM-AL400 (400 MHz)：日本電子社製

スペクトルの帰属 (ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数)

5.80 (s, 1H), 7.02–7.07 (m, 2H), 7.27–7.32 (m, 2H), 7.51–7.42 (m, 5H), 7.56–7.65 (m, 4H), 8.13–8.16 (m, 2H)。

20

【0159】

(中間体24の合成)

窒素気流下、4-フルオロニトロベンゼン0.27 g (1.93 mmol) のジメチルホルムアミド溶液4 mLに0.8 g (1.93 mmol) の中間体23、炭酸セシウム1.26 g (3.86 mmol) を加え、2時間加熱環流した。放冷後、反応液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (酢酸エチル：ヘプタン=1：9) し、中間体24を0.9 g (収率87%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトルで確認した。

【0160】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

30

 $^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3)

測定装置：JEOL JNM-AL400 (400 MHz)：日本電子社製

スペクトルの帰属 (ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数)

7.06 (d, $J=8.8\text{ Hz}$, 2H), 7.16 (dd, $J=7.8, 2.2\text{ Hz}$, 1H), 7.33–7.29 (m, 1H), 7.40–7.44 (m, 3H), 7.47–7.51 (m, 4H), 7.60–7.65 (m, 4H), 8.16 (d, $J=7.8\text{ Hz}$, 1H), 8.20 (s, 1H), 8.25 (d, $J=9.3\text{ Hz}$, 2H)。

【0161】

(中間体25の合成)

窒素気流下、0.9 g (1.68 mmol) の中間体24のジメチルアセトアミド溶液8 mLに炭酸カリウム460 mg (3.36 mmol)、酢酸パラジウム38 mg (0.168 mmol)、トリシクロヘキシルホスホニウムテトラフルオロボラート125 mg (0.336 mmol) を加えた。反応液を140℃で3時間加熱後放冷し、不溶物をセライトろ過後、ろ液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (酢酸エチル：ヘプタン=1：2) し、中間体25を0.6 g (収率79%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトルで確認した。

40

【0162】

測定条件及び得られたスペクトルの各ピークのケミカルシフト、プロトン数等を以下に示す。

50

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3)

測定装置: JEOL JNM-AL400 (400 MHz): 日本電子社製

スペクトルの帰属 (ケミカルシフト δ 、ピーク形状、プロトン数)

7.32 (td, $J=7.1, 2.4\text{ Hz}$, 1H), 7.45–7.54 (m, 4H), 7.60–7.66 (m, 4H), 7.67–7.70 (m, 5H), 8.16 (d, $J=7.8\text{ Hz}$, 1H), 8.34 (dd, $J=9.0, 2.2\text{ Hz}$, 1H), 8.38 (d, $J=1.5\text{ Hz}$, 1H), 8.56 (d, $J=2.4\text{ Hz}$, 1H)。

【0163】

(中間体26の合成)

2.35 g の中間体25をテトラヒドロフラン40 mLに溶解し、さらにエタノール40 mLと、5%パラジウム/炭素0.6 gを加え、水素気流下2時間攪拌した。パラジウムをセライトろ過で除去した後、ろ液を減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製 (酢酸エチル:ヘプタン=1:4) し、中間体26を0.45 g (収率80%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

10

【0164】

(中間体27の合成)

0.45 g (1.06 mmol) の中間体26の塩酸溶液5 mLに氷冷下で亜硝酸ナトリウム88 mg (1.27 mmol) の水溶液1 mLを滴下した。氷冷下で15分攪拌後、ヨウ化カリウム(I) 530 mg (3.18 mmol) を塩酸3 mLに溶解させた溶液をゆっくりと滴下した。氷冷下でさらに15分攪拌後室温に戻し、さらに2時間加熱還流を行った。反応溶液を放冷後30%水酸化ナトリウム水溶液mLにあげ、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、中間体27を426 mg (収率75%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。

20

【0165】

(例示化合物1-71の合成)

426 mg の中間体27 (0.80 mmol) をエチレングリコールジメチルエーテル4 mLに溶解させた後水1 mLを加え、そこへ235 mg の2-(ジベンゾフラン-2-イル)-4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン (0.8 mmol)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム56 mg (0.08 mmol)、炭酸カリウム272 mg (2.0 mmol) を加え、窒素気流下で4時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた油状の粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、例示化合物1-71を408 mg (収率89%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトル、マスペクトルで確認した。なお、後述する有機EL素子の作製にはこの化合物をさらに昇華精製したものを用いた。

30

【0166】

《有機EL素子 (有機エレクトロルミネッセンス素子)》

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

40

本発明の有機EL素子は、少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する素子である。そして、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が、前記説明した本発明の有機EL素子材料を含有する。

【0167】

なお、「発光層を含む少なくとも1層」とは、発光層を必須で有し、この発光層1層でもよく、あるいは、この発光層と共に、例えば以下に説明する正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層等の有機層を含んでもよいことを意味する。すなわち、発光層1層、あるいは、発光層と他の1層以上の有機層と、からなる有機層を意味する。

【0168】

50

〈有機EL素子の構成層〉

本発明の有機EL素子の構成層について説明する。本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

- (i) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極
- (ii) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (iii) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
- (iv) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (v) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (vi) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (vii) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／陰極

10

なお、阻止層としては正孔阻止層の他に、電子阻止層を用いることもできる。

【0169】

本発明においては、有機EL素子の各層いずれに一般式(1)で表される化合物を含有していても良いが、中でも正孔輸送層、発光層、電子輸送層のいずれか1つ以上の層に含有することが好ましく、発光層又は電子輸送層に含有することがより好ましい。さらには、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有することがより好ましく、特にホスト化合物として含有することが特に好ましい形態として挙げられる。

【0170】

本発明の有機EL素子においては、青色発光層の発光極大波長は430～480nmにあるものが好ましく、緑色発光層は発光極大波長が510～550nm、赤色発光層は発光極大波長が600～640nmの範囲にある単色発光層であることが好ましく、これらを用いた表示装置であることが好ましい。また、これらの少なくとも3層の発光層を積層して白色発光層としたものであってもよい。さらに、発光層間には非発光性の中間層を有していてもよい。本発明の有機EL素子としては白色発光であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

20

【0171】

次に、本発明の有機EL素子を構成する各層について説明する。

〔発光層〕

発光層は、電極又は電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層である。発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

30

発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、且つ駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2nm～5μmの範囲に調整することが好ましく、さらに好ましくは2～200nmの範囲、特に好ましくは、10～20nmの範囲である。

発光層の作製には、後述する発光ドーパントやホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。

【0172】

40

本発明の有機EL素子の発光層には、発光ホスト化合物と、発光ドーパント（リン光ドーパント（リン光発光性ドーパントともいう）や蛍光ドーパント等）の少なくとも1種類とを含有することが好ましい。

【0173】

（ホスト化合物（発光ホスト等ともいう））

本発明に用いられるホスト化合物としては、構造的には特に制限はないが、代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族ボラン誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有するもの、又は、カルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体（ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の少なくとも1つ

50

の炭素原子が窒素原子で置換されているものを表す。)等が挙げられる。

【0174】

ホスト化合物としては、上記のホスト化合物を単独で用いてもよく、又は複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、前記の一般式(1)で表される部分構造を含む化合物、また後述する発光ドーパントを複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

また、本発明に用いられるホスト化合物としては、従来公知の低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物(蒸着重合性発光ホスト)でも良い。

10

【0175】

併用してもよい公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、且つ発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が挙げられる。

特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等。

20

【0176】

(発光ドーパント)

30

発光ドーパントとしては、蛍光ドーパント(蛍光性化合物ともいう)、リン光ドーパント(リン光発光体、リン光性化合物、リン光発光性化合物等ともいう)を用いることができる。ここで、本発明の有機EL素子を構成する発光層がリン光ドーパントを含有することが好ましい。しかしながら、より発光効率の高い有機EL素子を得る観点から、本発明の有機EL素子の発光層や発光ユニットに使用される発光ドーパント(単に、発光材料ということもある)としては、前記の一般式(1)で表される部分構造を含む化合物をリン光ドーパントとして含有することが好ましい。

【0177】

(リン光ドーパント)

40

リン光ドーパントは、励起三重項からの発光が観測される化合物である。具体的には、室温(25℃)にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物であると定義されるが、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光I Iの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、リン光ドーパントは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率(0.01以上)が達成されればよい。

【0178】

リン光ドーパントの発光は原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネ

50

ルギーをリン光ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型である。もう一つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こりリン光ドーパントからの発光が得られるというキャリアトラップ型である。いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

【0179】

リン光ドーパントとしては、好ましくは元素周期表で8族～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスmium化合物、又は白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物（すなわち、Ir錯体）である。

10

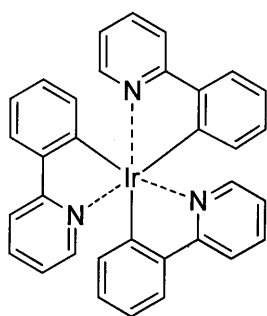
本発明においては、有機EL素子の発光層に使用されるリン光ドーパントとして、公知のリン光ドーパントを用いることができる。

以下に、リン光ドーパントとして用いられる公知の化合物の具体例を示すが、リン光ドーパントとしてはこれらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704～1711に記載の方法等により合成できる。

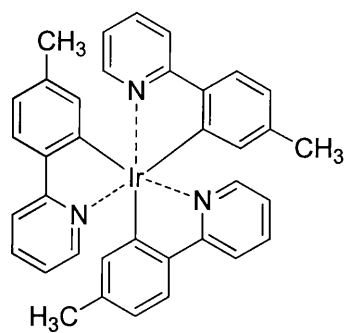
【0180】

【化 5 2】

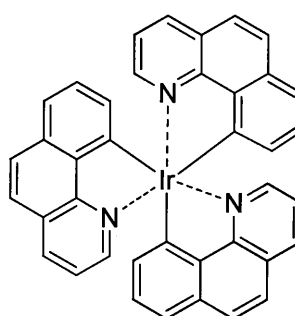
Ir-1



Ir-2

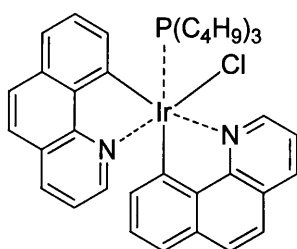


Ir-3

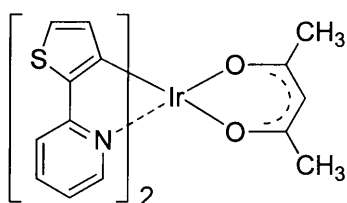


10

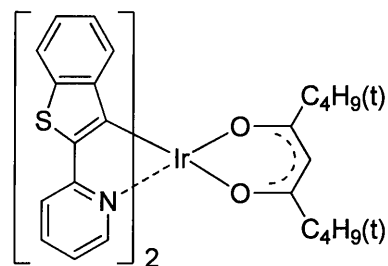
Ir-4



Ir-5

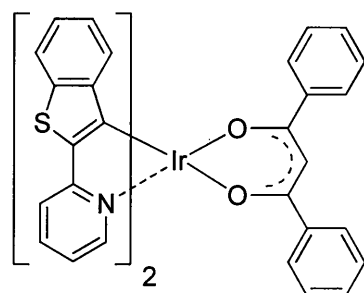


Ir-6

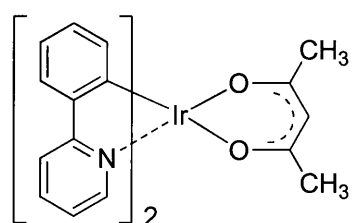


20

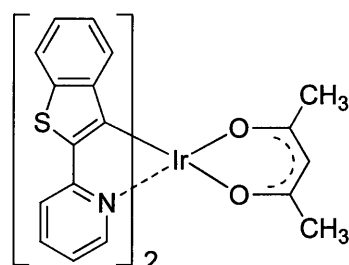
Ir-7



Ir-8

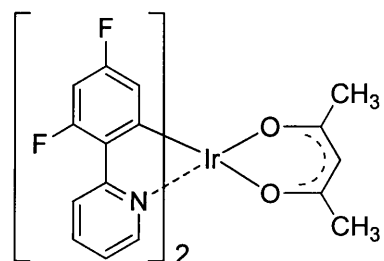


Ir-9

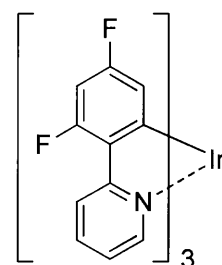


30

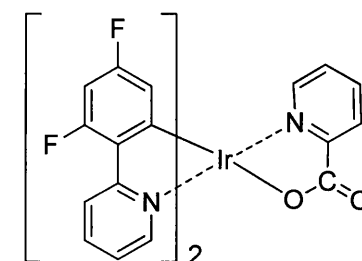
Ir-10



Ir-11



Ir-12

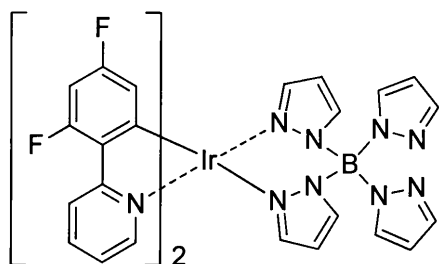


40

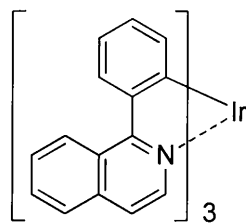
【 0 1 8 1】

【化 5 3】

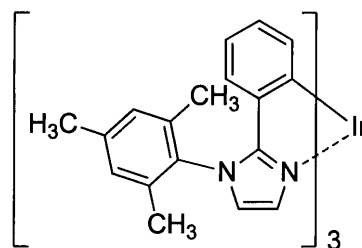
Ir-13



Ir-14

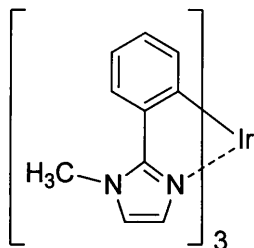


Ir-15

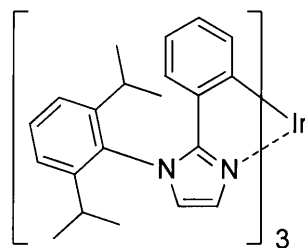


10

Ir-16



Ir-17



20

【0182】

(蛍光ドーパント (蛍光性化合物ともいう))

蛍光ドーパント (蛍光性化合物) としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフエン系色素、又は希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

【0183】

〔電子輸送層〕

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなる層である。電子輸送層は単層又は複数層設けることができる。

単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は、発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有するものを用いる。その材料としては本発明に係る有機EL素子材料を電子輸送材料として用いることにより本発明の効果を奏することができる。しかしながら、その他に、本発明に係る有機EL素子材料 (すなわち電子輸送材料) の効果を損なわない範囲において、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して併用することもできる。例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も挙げることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を挙げることができる。

30

40

【0184】

また8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス (8-キノリノール) アルミニウム (Alq)、トリス (5,7-ジクロロ-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (5,7-ジブromo-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (2-メチル-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (5-メチル-8-キノリノール) アルミニウム、ビス (8-キノリノール) 亜鉛 (Znq) 等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も挙げることができる。そ

50

の他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも挙げることができる。また、ジスチリルピラジン誘導体や、 n 型-Si、 n 型-SiC等の無機半導体も挙げることができる。

電子輸送層は上記電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は $5\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$ 程度、好ましくは $5 \sim 200\text{ nm}$ である。電子輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0185】

また、不純物をドーブした n 性の高い電子輸送層として用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。

このような n 性の高い電子輸送層を用いることがより低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

【0186】

[注入層：電子注入層、正孔注入層]

注入層は必要に応じて設ける層であり、電子注入層と正孔注入層がある。注入層は、上記の層構成に示すように陽極と正孔輸送層との間や、陰極と電子輸送層との間に存在させてもよい。あるいは、陽極と発光層との間や、陰極と発光層との間に存在させてもよい。

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層（陽極バッファ層）と電子注入層（陰極バッファ層）とがある。

【0187】

陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフエン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は $0.1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$ の範囲が好ましい。

【0188】

[阻止層：正孔阻止層、電子阻止層]

阻止層は、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなる。電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する電子輸送層の構成を必要に応じて、正孔阻止層として用いることができる。

なお、本発明の有機EL素子の正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

【0189】

正孔阻止層には、前述のホスト化合物として挙げたカルバゾール誘導体、またカルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体を含有することが好ましい。

また、本発明においては、複数の発光色の異なる複数の発光層を有する場合、その発光極大波長が最も短波にある発光層（最短波層）が、全発光層中、最も陽極に近いことが好ましい。そしてこのような場合、最短波層と、この最短波層の次に陽極に近い発光層との間に正孔阻止層を追加して設けることが好ましい。さらには、この位置に設けられる正孔阻止層に含有される化合物の50質量%以上が、前記最短波層のホスト化合物に対しそのイオン化ポテンシャルが0.3 eV以上大きいことが好ましい。

【0190】

イオン化ポテンシャルは化合物のHOMO（最高被占分子軌道）レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、例えば下記に示すような方法により求めることができる。

（1）米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian 98（Gaussian 98、Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.）を用い、キーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値（eV単位換算値）の小数点第2位を四捨五入した値としてイオン化ポテンシャルを求めることができる。この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

（2）イオン化ポテンシャルは光電子分光法で直接測定する方法により求めることもできる。例えば、理研計器社製の低エネルギー電子分光装置「Model AC-1」を用いて、あるいは紫外光電子分光として知られている方法を好適に用いることができる。

【0191】

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の膜厚としては、好ましくは3～100 nmであり、さらに好ましくは5～30 nmである。

【0192】

〔正孔輸送層〕

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層又は複数層設けることができる。

正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0193】

芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル；N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-〔1, 1'-ビフェニル〕-4, 4'-ジアミン（TPD）；2, 2-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）プロパン；1, 1-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）シクロヘキサン；N, N, N', N'-テトラ-*p*

ートリル-4, 4'-ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル; N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(*p*-トリル)アミン; 4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルバゾール、さらには米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4"-トリリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDA TA)等が挙げられる。

10

【0194】

さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、*p*型-Si、*p*型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

また、特開平11-251067号公報、J. Huang et al. 著文献(Applied Physics Letters 80(2002), p. 139)に記載されているような、所謂*p*型正孔輸送材料を用いることもできる。本発明においては、より高効率の発光素子が得られることからこれらの材料を用いることが好ましい。

20

正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmである。この正孔輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0195】

また、不純物をドーブした*p*性の高い正孔輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

30

本発明においては、このような*p*性の高い正孔輸送層を用いることが、より低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

【0196】

[陽極]

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In₂O₃-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常は、10~1000nmの範囲であり、好ましくは10~200nmの範囲

40

50

で選ばれる。

【0197】

〔陰極〕

一方、陰極としては仕事関数の小さい（4 e V以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム－カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm～5 μm 、好ましくは50～200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

また、陰極に上記金属を1～20 nmの膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明又は半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

【0198】

次に、有機EL素子に関する構成層以外の事項について説明する。

〔支持基板〕

本発明の有機EL素子に用いることのできる支持基板（以下、基体、基板、基材、支持体等ともいう）としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また透明であっても不透明であってもよい。支持基板側から光を取り出す場合には、支持基板は透明であることが好ましい。好ましく用いられる透明な支持基板としては、ガラス、石英、透明樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい支持基板は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

【0199】

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類又はそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アートン（商品名JSR社製）あるいはアベル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

【0200】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜又はその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%RH）が $0.01 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、さらには、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ cm}^3/(\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、（1 atmは、 $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$ である）水蒸気透過度が1

$0 - 3 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましく、前記の水蒸気透過度が $10 - 5 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下であることがさらに好ましい。

バリア膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。さらに該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。

【0201】

バリア膜の形成方法については特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができるが、特開2004-68143号公報に記載されているような大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

10

【0202】

不透明な支持基板としては、例えば、アルミニウム、ステンレス等の金属板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等が挙げられる。

本発明の有機EL素子の発光の室温における外部取り出し効率は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数 $\times 100$ である。

20

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光の λ_{max} は 480 nm 以下が好ましい。

【0203】

〔封止〕

本発明に用いられる封止手段としては、例えば、封止部材と電極、支持基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。

封止部材は、有機EL素子の表示領域を覆うように配置されていればよく、凹板状でも平板状でもよい。また透明性、電気絶縁性は特に問わない。

30

具体的には、ガラス板、ポリマー板（フィルム）、金属板（フィルム）等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブテン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属又は合金からなるものが挙げられる。

【0204】

本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。さらには、ポリマーフィルムは、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された水蒸気透過度 ($25 \pm 0.5^\circ \text{C}$ 、相対湿度 (90 ± 2) %RH) が $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

40

封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッチング加工等が使われる。

【0205】

接着剤として具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステル等の湿気

50

硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱及び化学硬化型（二液混合）を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を挙げることができる。

なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から80℃までに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

【0206】

また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。さらに該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

【0207】

封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また真空とすることも可能である。また、内部に吸湿性化合物を封入することもできる。

吸湿性化合物としては、例えば、金属酸化物（例えば、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等）、硫酸塩（例えば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等）、金属ハロゲン化物（例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、沃化バリウム、沃化マグネシウム等）、過塩素酸類（例えば、過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物及び過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

【0208】

〔保護膜、保護板〕

有機層を挟み支持基板と対向する側の前記封止膜、あるいは前記封止用フィルムの外側に、素子の機械的強度を高めるために保護膜、あるいは保護板を設けてもよい。特に封止が前記封止膜により行われている場合には、その機械的強度は必ずしも高くないため、このような保護膜、保護板を設けることが好ましい。これに使用することができる材料としては、前記封止に用いたのと同様なガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等を用いることができるが、軽量かつ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

【0209】

〔光取り出し〕

有機EL素子は空気よりも屈折率の高い（屈折率が1.7～2.1程度）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度θで界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として光が素子側面方向に逃げるためである。

この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、例えば、透明基板表面に凹凸を形成し、透明基板と空気界面での全反射を防ぐ方法（米国特許第4,774,435号明細

10

20

30

40

50

書)、基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法(特開昭63-314795号公報)、素子の側面等に反射面を形成する方法(特開平1-220394号公報)、基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法(特開昭62-172691号公報)、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法(特開2001-202827号公報)、基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間(含む、基板と外界間)に回折格子を形成する方法(特開平11-283751号公報)等がある。

【0210】

本発明においては、これらの方法を本発明の有機EL素子と組み合わせて用いることができるが、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法、あるいは基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間(含む、基板と外界間)に回折格子を形成する方法を好適に用いることができる。

本発明はこれらの手段を組み合わせることにより、さらに高輝度あるいは耐久性に優れた素子を得ることができる。

透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚みで形成すると、透明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど外部への取り出し効率が高くなる。

低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマー等が挙げられる。透明基板の屈折率は一般に1.5~1.7程度であるので、低屈折率層は屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。また、さらに1.35以下であることが好ましい。

【0211】

また、低屈折率媒質の厚みは媒質中の波長の2倍以上となるのが望ましい。これは低屈折率媒質の厚みが、光の波長程度になってエバネッセントで染み出した電磁波が基板内に入り込む膜厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。

全反射を起こす界面もしくはいずれかの媒質中に回折格子を導入する方法は、光取り出し効率の向上効果が高いという特徴がある。この方法は回折格子が一次の回折や二次の回折といった所謂ブラッグ回折により、光の向きを屈折とは異なる特定の向きに変えることができる性質を利用して、発光層から発生した光のうち層間での全反射等により外に出ることができない光を、いずれかの層間もしくは、媒質中(透明基板内や透明電極内)に回折格子を導入することで光を回折させ、光を外に取り出そうとするものである。

【0212】

導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な一次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。

回折格子を導入する位置としては前述の通り、いずれかの層間もしくは媒質中(透明基板内や透明電極内)でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度が好ましい。回折格子の配列は正方形のラチス状、三角形のラチス状、ハニカムラチス状等、二次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

【0213】

[集光シート]

本発明の有機EL素子は基板の光取り出し側に、例えば、マイクロレンズアレイ状の構造を設けるように加工したり、あるいは所謂集光シートと組み合わせることにより、特定方向、例えば、素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることができる。

マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が $30 \mu\text{m}$ でその頂角が 90° となるような四角錐を二次元に配列する。一辺は $10 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大きすぎると厚みが厚くなり好

ましくない。

【0214】

集光シートとしては、例えば、液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして、例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角90度、ピッチ50 μm の△状（三角形）のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

また、発光素子からの光放射角を制御するために、光拡散板・フィルムを集光シートと併用してもよい。例えば、きもと社製拡散フィルム（ライトアップ）等を用いることができる。

10

【0215】

《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機EL素子の作製法を説明する。

まず適当な基体上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1 μm 以下、好ましくは10～200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ陽極を作製する。

次に、この上に有機EL素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層の有機化合物薄膜を形成させる。

20

これら各層の形成方法としては、蒸着法、ウェットプロセス（スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法）等がある。しかしながら、本発明においてはウェットプロセスで有機EL素子を作製することが好ましい。ウェットプロセスで作製することで、均質な膜が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の効果を奏することができる。中でも、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等の塗布法による成膜が好ましい。これらの塗布法は、高効率、簡便で大面積化が容易であるという利点を有し、またインクジェット法によればピクセル単位での塗り分けが可能といった利点を有する。

【0216】

本発明に係る有機EL素子材料を溶解又は分散する液媒体としては、例えば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類、DMF、DMSO等の有機溶媒を用いることができる。また分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

30

これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を1 μm 以下、好ましくは、50～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより所望の有機EL素子が得られる。

また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には陽極を＋、陰極を－の極性として電圧2～40V程度を印加すると発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

40

【0217】

《表示装置、照明装置》

本発明の表示装置あるいは照明装置は、前記した本発明の有機EL素子を具備するものである（表示装置及び照明装置の具体的な例については後記する「用途」において説明する）。すなわち、一般式（1）で表される化合物である有機EL素子材料が用いられたものである。

本発明の表示装置あるいは照明装置は、本発明の有機EL素子を用いたものであるため、低い電圧で駆動することができ、駆動時の電圧上昇も小さい。また、発光効率が高く、且

50

つ耐久性に優れるため、長寿命な装置とすることができる。

【0218】

《用途》

本発明の有機EL素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。発光光源として、例えば、照明装置（家庭用照明、車内照明）、時計や液晶用バックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれらに限定するものではない。しかしながら、特に液晶表示装置のバックライト、照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

【0219】

本発明の有機EL素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターニングを施してもよい。パターニングする場合は、電極のみをパターニングしてもよいし、電極と発光層をパターニングしてもよいし、素子全層をパターニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。

【0220】

本発明の有機EL素子や本発明に係る化合物の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング社製）で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

また、本発明の有機EL素子が白色素子の場合には、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、 1000 cd/m^2 でのCIE1931表色系における色度が $X=0.33\pm0.07$ 、 $Y=0.33\pm0.1$ の領域内にあることをいう。

【実施例】

【0221】

以下、実施例1～10を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明の範囲はこれらにより限定されるものではない。

【0222】

〔実施例1〕

《有機EL素子1-1の作製》

有機EL素子を以下のように作製した。

陽極として $100\text{ mm}\times100\text{ mm}\times1.1\text{ mm}$ のガラス基板上にITO（インジウムチンオキシド）を 100 nm 製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに α -NPDを 200 mg 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにCBPを 200 mg 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにバソキュプロイン（BCP）を 200 mg 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに燐光性化合物トリス（2-フェニルビリジナート）イリジウム（III）（ $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ ）を 100 mg 入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートにトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（ Alq_3 ）を 200 mg 入れ、真空蒸着装置に取付けた。

【0223】

次いで、真空槽を $4\times10^{-4}\text{ Pa}$ まで減圧した後、 α -NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で透明支持基板に蒸着し、膜厚 25 nm の正孔輸送層を設けた。さらに、CBPと燐光性化合物 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.2 nm/sec 、 0.012 nm/sec で前記正孔輸送層上に共蒸着して膜厚 35 nm の発光層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。さらに、BCPの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で前記発光層の上に蒸着して膜厚 10 nm の正孔阻止の役割も兼ねた電子輸送層を設けた。その上に、さらに、 Alq_3 の入った前記加熱ポートに通電

して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で前記電子輸送層の上に蒸着してさらに膜厚 40 nm の電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続きフッ化リチウム 0.5 nm 及びアルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

【0224】

《有機EL素子1-2～1-22の作製》

有機EL素子1-1の作製において、表1に記載のような発光層のCBPを表1に示す化合物に置き換えた以外は同様にして、有機EL素子1-2～1-22を作製した。

【0225】

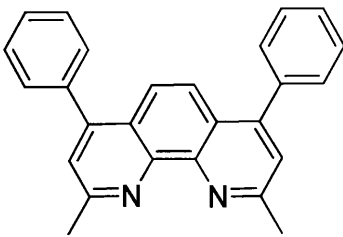
なお、本実施例で用いたBCP, Alq_3 , Ir(ppy)_3 , $\alpha\text{-NPD}$, CBPの構造式を下記に示す。

10

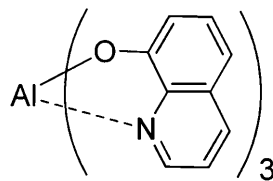
【0226】

【化54】

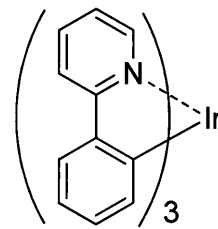
BCP



Alq_3

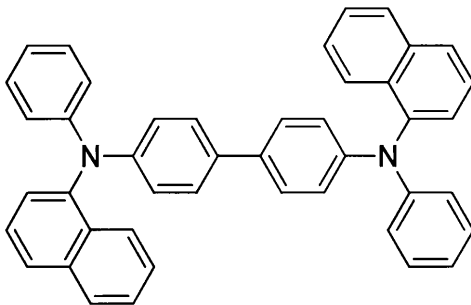


Ir(ppy)_3

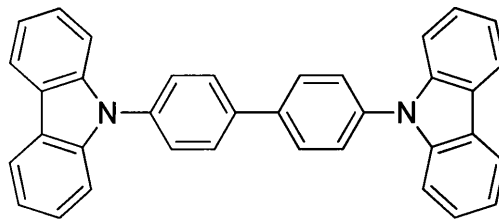


20

$\alpha\text{-NPD}$



CBP



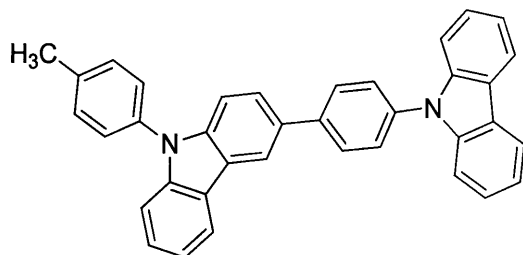
30

また、比較化合物としては下記のものを用いた。

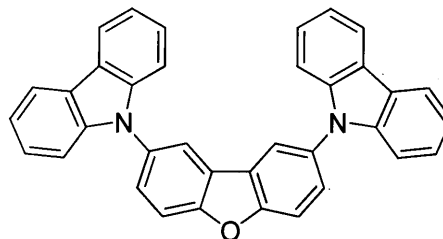
【0227】

【化 5 5】

比較化合物1
(特開2004-217557にて開示の化合物)

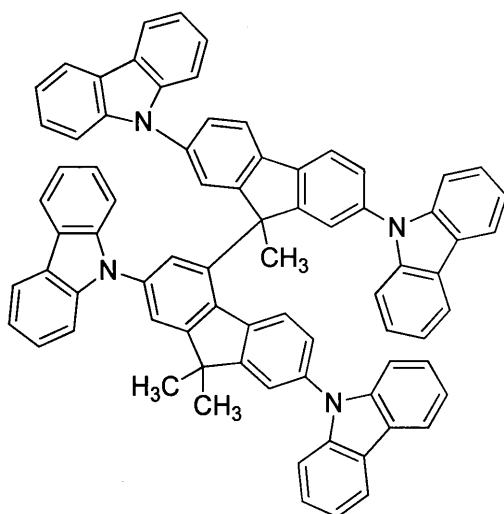


比較化合物2
(国際公開第06/128800にて開示の化合物)



10

比較化合物3
(特開2003-261471にて開示の化合物)



20

【0228】

《有機EL素子の評価》

作製した有機EL素子の評価を以下のようにして行い、その結果を表1に示す。

(発光効率)

有機EL素子1-1は、初期駆動電圧3Vで電流が流れ始め、発光層のドーパントである燐光性化合物からの緑色の発光を示した。作製した有機EL素子について、室温(約23~25℃)下、乾燥窒素ガス雰囲気下で10V直流電圧を印加した時の発光効率(1m/W)を測定した。発光効率は有機EL素子1-1を100とした時の相対値で表した。

【0229】

(耐久性)

室温下、2.5mA/cm²の一定電流で駆動したときに初期輝度が元の半分に低下するのに要した時間である半減寿命時間を指標として表した。半減寿命時間は有機EL素子1-1を100とした時の相対値で表した。

40

【0230】

(駆動電圧)

有機EL素子を室温、2.5mA/cm²の定電流条件下により駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示すように有機EL素子1-1(比較)を100として各々相対値で示した。

駆動電圧 = (各素子の初期駆動電圧 / 有機EL素子1-1の初期駆動電圧) × 100

なお、値が小さいほど比較に対して駆動電圧が小さいことを示す。

【0231】

50

（駆動電圧の経時変化）

有機EL素子を室温、 2.5 mA/cm^2 の定電流条件下により連続点灯を行い、初期輝度の70%の輝度となった時の駆動電圧を各々測定した。測定結果は下記に示すように、有機EL素子1-1（比較）が100となるように各々相対値で示した。

駆動電圧変化1 = （有機EL素子1-1の輝度70%時の駆動電圧）／（有機EL素子1-1の初期駆動電圧）

各素子の駆動電圧変化 = （各素子の輝度70%時の駆動電圧）／（各素子の初期駆動電圧）

駆動電圧変化（ $\tau^{1/7}$ ） = （各素子の駆動電圧変化）／（駆動電圧変化1）× 100
【0232】

【表1】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
1-1	CBP	100	100	100	100	比較例
1-2	比較化合物1	103	91	96	102	比較例
1-3	比較化合物2	120	110	95	99	比較例
1-4	比較化合物3	111	120	104	103	比較例
1-5	例示化合物1-1	139	132	92	98	本発明
1-6	例示化合物1-8	142	151	94	96	本発明
1-7	例示化合物1-10	150	158	90	95	本発明
1-8	例示化合物1-14	159	161	82	89	本発明
1-9	例示化合物1-19	154	159	86	92	本発明
1-10	例示化合物1-26	159	164	80	88	本発明
1-11	例示化合物1-30	163	164	79	85	本発明
1-12	例示化合物1-31	176	180	75	75	本発明
1-13	例示化合物1-32	162	169	80	83	本発明
1-14	例示化合物1-35	170	172	76	80	本発明
1-15	例示化合物1-38	172	174	76	76	本発明
1-16	例示化合物1-40	178	182	74	76	本発明
1-17	例示化合物1-47	165	170	79	81	本発明
1-18	例示化合物1-65	168	170	77	81	本発明
1-19	例示化合物1-180	169	171	76	81	本発明
1-20	例示化合物1-189	166	170	78	81	本発明
1-21	例示化合物1-277	160	169	80	84	本発明
1-22	例示化合物1-289	167	170	78	81	本発明

【0233】

表1から、本発明の有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0234】

[実施例2]

《有機EL素子2-1～2-22の作製》

実施例1の有機EL素子1-1の燐光性化合物Ir(ppy)₃を前記した化合物Ir-15に、CBPを表2に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子1-1の作製と全

く同じ方法で有機EL素子2-1～2-22を作製した。青色の発光を示すこれらの素子について、実施例1と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表2に示す。

【0235】

【表2】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
2-1	CBP	100	100	100	100	比較例
2-2	比較化合物1	130	147	101	103	比較例
2-3	比較化合物2	154	154	95	97	比較例
2-4	比較化合物3	148	149	98	93	比較例
2-5	例示化合物1-1	172	171	94	93	本発明
2-6	例示化合物1-8	175	181	91	89	本発明
2-7	例示化合物1-10	187	221	86	81	本発明
2-8	例示化合物1-14	204	287	81	79	本発明
2-9	例示化合物1-19	195	255	81	80	本発明
2-10	例示化合物1-26	207	301	79	79	本発明
2-11	例示化合物1-30	209	321	80	80	本発明
2-12	例示化合物1-31	277	421	70	73	本発明
2-13	例示化合物1-32	221	357	79	77	本発明
2-14	例示化合物1-35	258	379	71	75	本発明
2-15	例示化合物1-38	269	419	71	71	本発明
2-16	例示化合物1-40	299	438	70	72	本発明
2-17	例示化合物1-47	234	361	76	75	本発明
2-18	例示化合物1-65	251	374	73	76	本発明
2-19	例示化合物1-180	255	375	72	76	本発明
2-20	例示化合物1-189	240	365	75	75	本発明
2-21	例示化合物1-277	214	359	77	76	本発明
2-22	例示化合物1-289	246	370	75	75	本発明

【0236】

表2から、本発明の青色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた青色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0237】

[実施例3]

《有機EL素子3-1～3-22の作製》

実施例1の有機EL素子1-1の燐光性化合物Ir(pppy)₃を前記した化合物Ir-9に、CBPを表2に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子1-1の作製と全く同じ方法で有機EL素子3-1～3-22を作製した。赤色の発光を示すこれらの素子について、実施例1と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表3に示す。

【0238】

【表 3】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
3-1	CBP	100	100	100	100	比較例
3-2	比較化合物1	102	102	101	100	比較例
3-3	比較化合物2	107	110	98	99	比較例
3-4	比較化合物3	102	104	105	101	比較例
3-5	例示化合物1-1	131	135	94	96	本発明
3-6	例示化合物1-8	135	137	93	94	本発明
3-7	例示化合物1-10	137	141	91	93	本発明
3-8	例示化合物1-14	143	148	92	90	本発明
3-9	例示化合物1-19	140	145	91	90	本発明
3-10	例示化合物1-26	149	150	90	90	本発明
3-11	例示化合物1-30	152	152	90	89	本発明
3-12	例示化合物1-31	169	161	81	81	本発明
3-13	例示化合物1-32	155	152	89	88	本発明
3-14	例示化合物1-35	161	159	85	84	本発明
3-15	例示化合物1-38	165	160	83	81	本発明
3-16	例示化合物1-40	171	169	80	79	本発明
3-17	例示化合物1-47	158	155	88	85	本発明
3-18	例示化合物1-65	159	155	86	85	本発明
3-19	例示化合物1-180	160	157	85	85	本発明
3-20	例示化合物1-189	158	155	87	85	本発明
3-21	例示化合物1-277	157	154	88	86	本発明
3-22	例示化合物1-289	158	155	87	85	本発明

【0239】

表3から、本発明の赤色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた赤色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0240】

〔実施例4〕

《有機EL素子4-1～4-40の作製》

実施例1の有機EL素子1-1の燐光性化合物Ir(ppy)₃を前記した化合物Ir-17に、CBPを表4に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子1-1の作製と全く同じ方法で有機EL素子4-1～4-40を作製した。青色の発光を示すこれらの素子について、実施例1と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表4に示す。

【0241】

【表 4】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
4-1	CBP	100	100	100	100	比較例
4-2	比較化合物1	129	140	101	103	比較例
4-3	比較化合物2	145	152	95	97	比較例
4-4	比較化合物3	138	148	98	93	比較例
4-5	例示化合物1-1	176	193	91	92	本発明
4-6	例示化合物1-19	188	275	87	88	本発明
4-7	例示化合物1-14	186	258	88	89	本発明
4-8	例示化合物1-8	189	291	86	87	本発明
4-9	例示化合物1-127	183	235	89	90	本発明
4-10	例示化合物1-134	179	222	90	91	本発明
4-11	例示化合物1-117	193	302	83	86	本発明
4-12	例示化合物1-145	203	332	82	85	本発明
4-13	例示化合物1-26	197	311	83	86	本発明
4-14	例示化合物1-10	208	345	81	84	本発明
4-15	例示化合物1-30	213	352	80	83	本発明
4-16	例示化合物1-313	230	431	74	77	本発明
4-17	例示化合物1-184	216	373	79	82	本発明
4-18	例示化合物1-213	223	409	77	79	本発明
4-19	例示化合物1-35	251	491	72	70	本発明
4-20	例示化合物1-31	247	484	73	72	本発明
4-21	例示化合物1-40	243	477	74	73	本発明
4-22	例示化合物1-65	239	464	75	74	本発明
4-23	例示化合物1-180	264	512	68	66	本発明
4-24	例示化合物1-207	261	506	69	67	本発明
4-25	例示化合物1-189	253	499	70	68	本発明
4-26	例示化合物1-191	233	446	76	76	本発明
4-27	例示化合物1-199	236	453	76	75	本発明
4-28	例示化合物1-280	226	420	75	78	本発明
4-29	例示化合物1-249	219	395	78	80	本発明
4-30	例示化合物1-38	294	562	60	59	本発明
4-31	例示化合物1-230	276	534	65	63	本発明
4-32	例示化合物1-273	289	553	61	60	本発明
4-33	例示化合物1-47	268	521	67	65	本発明
4-34	例示化合物1-257	258	503	70	67	本発明
4-35	例示化合物1-289	280	541	64	62	本発明
4-36	例示化合物1-275	284	549	63	61	本発明
4-37	例示化合物1-277	273	529	66	64	本発明
4-38	例示化合物1-231	302	573	59	58	本発明
4-39	例示化合物1-316	317	584	57	58	本発明
4-40	例示化合物1-320	326	593	56	56	本発明

【0242】

表4から、本発明の青色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化

10

20

30

40

50

が達成されており、優れた青色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0243】

[実施例5]

《有機EL素子5-1～5-18の作製》

実施例1の有機EL素子1-1の正孔輸送層を表5に示す化合物に置き換えた以外は全く同じ方法で有機EL素子5-1～5-18を作製した。緑色の発光を示すこれらの素子について、実施例1と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表5に示す。

【0244】

【表5】

有機EL素子	正孔輸送層	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
5-1	α -NPD	100	100	100	100	比較例
5-2	比較化合物1	110	113	110	114	比較例
5-3	比較化合物2	107	109	117	121	比較例
5-4	比較化合物3	118	116	106	109	比較例
5-5	例示化合物1-10	149	152	82	82	本発明
5-6	例示化合物1-19	142	142	86	87	本発明
5-7	例示化合物1-22	144	146	85	85	本発明
5-8	例示化合物1-65	163	164	73	73	本発明
5-9	例示化合物1-66	166	167	72	71	本発明
5-10	例示化合物1-124	139	140	89	90	本発明
5-11	例示化合物1-145	146	149	83	84	本発明
5-12	例示化合物1-180	168	169	70	70	本発明
5-13	例示化合物1-191	157	159	76	76	本発明
5-14	例示化合物1-230	169	171	68	69	本発明
5-15	例示化合物1-250	152	155	80	79	本発明
5-16	例示化合物1-271	159	162	75	74	本発明
5-17	例示化合物1-275	170	174	65	67	本発明
5-18	例示化合物1-280	154	157	77	76	本発明

【0245】

表5から、本発明の緑色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた緑色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0246】

[実施例6]

《有機EL素子6-1～6-18の作製》

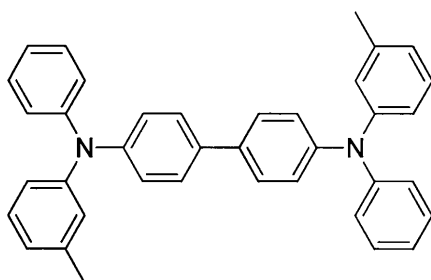
実施例1の有機EL素子1-1の α -NPDをTPDに、電子輸送層を表6に示す化合物に置き換えた以外は全く同じ方法で有機EL素子6-1～6-18を作製した。

なお、本実施例で用いたTPDの構造式を下記に示す。

【0247】

【化56】

TPD



10

【0248】

緑色の発光を示すこれらの素子について、実施例1と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表6に示す。

【0249】

【表6】

有機EL素子	電子輸送層	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
6-1	BCP	100	100	100	100	比較例
6-2	比較化合物1	109	110	101	99	比較例
6-3	比較化合物2	110	113	103	102	比較例
6-4	比較化合物3	113	118	111	109	比較例
6-5	例示化合物1-8	138	149	88	86	本発明
6-6	例示化合物1-14	136	147	90	88	本発明
6-7	例示化合物1-26	142	153	83	82	本発明
6-8	例示化合物1-32	149	156	78	80	本発明
6-9	例示化合物1-47	158	168	70	69	本発明
6-10	例示化合物1-65	154	163	74	74	本発明
6-11	例示化合物1-136	140	151	85	84	本発明
6-12	例示化合物1-164	146	155	80	83	本発明
6-13	例示化合物1-191	152	161	75	76	本発明
6-14	例示化合物1-218	160	169	68	67	本発明
6-15	例示化合物1-230	155	164	73	72	本発明
6-16	例示化合物1-257	157	166	71	71	本発明
6-17	例示化合物1-277	161	172	66	65	本発明
6-18	例示化合物1-280	151	158	77	78	本発明

20

30

【0250】

表6から、本発明の緑色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた緑色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

40

【0251】

〔実施例7〕

《有機EL素子7-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウム

50

チンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA-45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

【0252】

この透明支持基板上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフエン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PA14083)を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により製膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、3mgの正孔輸送材料1と40mgの正孔輸送材料2とを10mlのトルエンに溶解した溶液を1500rpm、30秒の条件で正孔輸送層上にスピコーティングし、薄膜を形成した。

10

【0253】

更に180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約20nmの第2正孔輸送層とした。

この第2正孔輸送層上に、100mgのCBPと10mgのIr-15とを10mlのトルエンに溶解した溶液を用いて600rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。60℃で1時間真空乾燥し、膜厚約70nmの発光層とした。

次に、この発光層上に、50mgのET-40を10mlのヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)に溶解した溶液を用いて、1000rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。

20

【0254】

更に、60℃で1時間真空乾燥し、膜厚約30nmの電子輸送層とした。

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、陰極バッファ層としてフッ化リチウムを0.4nm、更に、アルミニウムを110nm蒸着して陰極を形成し、有機EL素子7-1を作製した。

【0255】

《有機EL素子7-2～7-40の作製》

有機EL素子7-1の作製において、発光層のCBPを表7に示す化合物に置き換えた以外は同様にして、有機EL素子7-2～7-40を作製した。

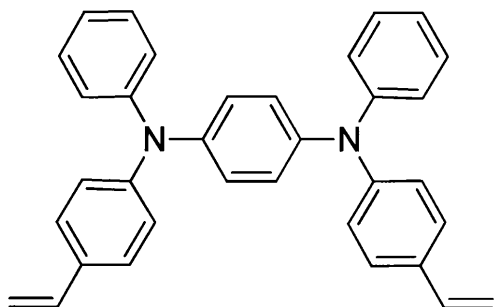
なお、本実施例で用いた正孔輸送材料1、正孔輸送材料2、ET-40の構造式を下記に示す。

30

【0256】

【化 5 7】

正孔輸送材料1



【表 7】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
7-1	CBP	100	100	100	100	比較例
7-2	比較化合物1	126	125	121	120	比較例
7-3	比較化合物2	146	132	109	111	比較例
7-4	比較化合物3	139	130	116	117	比較例
7-5	例示化合物1-1	199	221	81	73	本発明
7-6	例示化合物1-19	211	259	77	66	本発明
7-7	例示化合物1-14	209	247	78	69	本発明
7-8	例示化合物1-8	215	271	76	65	本発明
7-9	例示化合物1-127	204	236	79	71	本発明
7-10	例示化合物1-134	202	233	80	72	本発明
7-11	例示化合物1-117	219	283	75	64	本発明
7-12	例示化合物1-145	228	293	73	62	本発明
7-13	例示化合物1-26	223	285	74	64	本発明
7-14	例示化合物1-10	231	310	72	62	本発明
7-15	例示化合物1-30	235	321	71	60	本発明
7-16	例示化合物1-313	249	377	66	55	本発明
7-17	例示化合物1-184	239	332	70	59	本発明
7-18	例示化合物1-213	244	356	68	58	本発明
7-19	例示化合物1-35	269	441	60	49	本発明
7-20	例示化合物1-31	266	426	61	50	本発明
7-21	例示化合物1-40	262	418	62	52	本発明
7-22	例示化合物1-65	259	406	63	53	本発明
7-23	例示化合物1-180	280	472	56	45	本発明
7-24	例示化合物1-207	277	459	57	47	本発明
7-25	例示化合物1-189	273	452	58	48	本発明
7-26	例示化合物1-191	253	389	65	54	本発明
7-27	例示化合物1-199	256	398	64	53	本発明
7-28	例示化合物1-280	247	362	67	56	本発明
7-29	例示化合物1-249	242	346	69	58	本発明
7-30	例示化合物1-38	301	533	50	40	本発明
7-31	例示化合物1-230	287	493	54	43	本発明
7-32	例示化合物1-273	298	521	51	41	本発明
7-33	例示化合物1-47	282	484	55	44	本発明
7-34	例示化合物1-257	276	456	58	47	本発明
7-35	例示化合物1-289	290	502	53	42	本発明
7-36	例示化合物1-275	294	512	52	41	本発明
7-37	例示化合物1-277	285	489	54	43	本発明
7-38	例示化合物1-231	309	545	49	38	本発明
7-39	例示化合物1-316	313	552	48	37	本発明
7-40	例示化合物1-320	318	559	47	37	本発明

【0259】

表7から、本発明の青色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化

10

20

30

40

50

が達成されており、優れた青色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0260】

〔実施例8〕

《有機EL素子8-1～8-18の作製》

実施例7の有機EL素子7-1のIr-15をIr(ppy)₃に、CBPを表8に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子7-1の作製と全く同じ方法で有機EL素子8-1～8-18を作製した。緑色の発光を示すこれらの素子について、実施例1と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表8に示す。

【0261】

【表8】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
8-1	CBP	100	100	100	100	比較例
8-2	比較化合物1	114	115	102	125	比較例
8-3	比較化合物2	124	121	103	119	比較例
8-4	比較化合物3	119	119	108	123	比較例
8-5	例示化合物1-19	157	172	81	76	本発明
8-6	例示化合物1-292	162	185	84	73	本発明
8-7	例示化合物1-293	169	201	76	70	本発明
8-8	例示化合物1-301	180	223	67	62	本発明
8-9	例示化合物1-302	183	230	64	61	本発明
8-10	例示化合物1-311	166	192	80	72	本発明
8-11	例示化合物1-312	186	237	62	59	本発明
8-12	例示化合物1-321	151	163	83	78	本発明
8-13	例示化合物1-322	172	203	73	68	本発明
8-14	例示化合物1-323	178	216	69	65	本発明
8-15	例示化合物1-324	174	209	71	66	本発明
8-16	例示化合物1-325	198	251	59	53	本発明
8-17	例示化合物1-326	201	258	58	50	本発明
8-18	例示化合物1-335	192	241	61	56	本発明

【0262】

表8から、本発明の緑色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた緑色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【0263】

〔実施例9〕

前記実施例1～3で作製した有機EL素子1-5（緑色発光有機EL素子）と、有機EL素子2-5（青色発光有機EL素子）と、有機EL素子3-5（赤色発光有機EL素子）とを同一基板上に並置し、図1に示すアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置（ディスプレイ）1を作製した。図2には作製したフルカラー表示装置1の表示部Aの模式図のみを示した（符号Bは制御部である）。即ち同一基板上に、複数の走査線5及びデー

タ線6を含む配線部と、並置した複数の画素3（発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等）とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示せず）。

【0264】

前記複数の画素3は、それぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。このように各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

フルカラー表示装置1を駆動することにより、低電圧で輝度が高く耐久性が良好で、鮮明なフルカラー動画表示が得られた。

【0265】

なお、緑色発光有機EL素子として有機EL素子1-6～1-22と、青色発光有機EL素子として2-6～2-22と、赤色発光有機EL素子として有機EL素子3-6～3-22とをランダムに組み合わせても、フルカラー表示が可能であった。

【0266】

[実施例10]

《白色の有機EL素子の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

【0267】

この透明支持基板上に、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron P A1 4083）を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により製膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、例示化合物1-320（60mg）、化合物Ir-9（3.0mg）、Ir-12（3.0mg）をトルエン6mlに溶解した溶液を用い、1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。真空中150℃で1時間加熱を行い発光層とした。

【0268】

さらに、BCP（20mg）をシクロヘキサン6mlに溶解した溶液を用い、1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。真空中80℃で1時間加熱を行い第1電子輸送層とした。

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、モリブデン製抵抗加熱ボートにAlq₃を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。真空槽を4×10⁻⁴Paまで減圧した後、Alq₃の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で前記第1電子輸送層の上に蒸着して、さらに膜厚40nmの第2電子輸送層を設けた。

なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

【0269】

引き続き、フッ化リチウム0.5nm及びアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、白色発光有機EL素子を作製した。

この素子に通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることが分かった。なお、例示の他の化合物に置き換えても同様に白色の発光が得られることが分かった。

【符号の説明】

【0270】

10

20

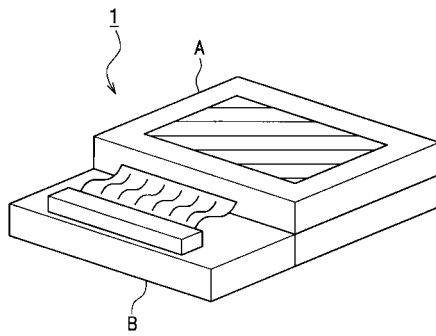
30

40

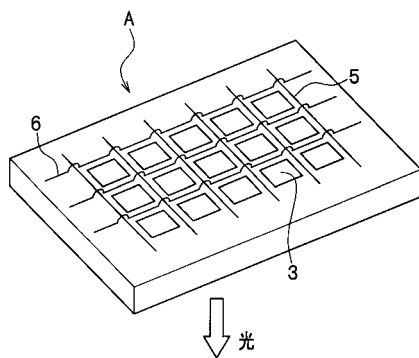
50

- 1 表示装置（ディスプレイ）
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- A 表示部
- B 制御部

【図 1】



【図 2】



【手続補正書】

【提出日】平成28年3月23日(2016.3.23)

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料と、それを構成する化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置、並びに照明装置に関する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

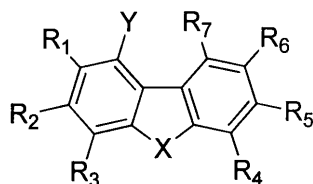
【補正方法】変更

【補正の内容】

【0013】

【化1】

一般式(1)



〔式中、XはN-Rを表し、Rはアルキル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基から選ばれる何れかの基を表す。〕

Yは炭素数3以上のアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、NR'R''（R'およびR''は各々水素原子、シクロアルキル基、芳香族炭化水素基、または、芳香族複素環基を表す。）、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。

R₁～R₇は、各々独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、ハロゲン原子、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基、アリールチオホスホリル基から選ばれる何れかの基を表す。但し、R₃およびR₄が同時に水素原子であることはない。〕

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 1 8

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 1 8 】

4. 前記一般式(1)の R_3 および R_4 がそれぞれ水素原子、芳香族炭化水素環基および芳香族複素環基のうちのいずれか一つであることを特徴とする前記1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【手続補正5】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 2

【補正方法】 削除

【補正の内容】

【手続補正6】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 3

【補正方法】 削除

【補正の内容】

【手続補正7】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 4

【補正方法】 削除

【補正の内容】

【手続補正8】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 5

【補正方法】 削除

【補正の内容】

【手続補正9】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 6

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 2 6 】

6. 少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が前記1～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正10】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 7

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 2 7 】

7. 前記発光層が前記1～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする前記6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正11】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 8

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 2 8 】

8. 前記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層が正孔輸送層であることを特徴とする前記 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 手 続 補 正 1 2 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 9

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 9 】

9. 前記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層が電子輸送層であることを特徴とする前記 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 手 続 補 正 1 3 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 0

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 3 0 】

1 0. 前記発光層がリン光ドーパントを含有することを特徴とする前記 6 ～ 9 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 手 続 補 正 1 4 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 1

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 3 1 】

1 1. 前記リン光ドーパントが I r 錯体であることを特徴とする前記 1 0 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 手 続 補 正 1 5 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 2

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 3 2 】

1 2. 前記 6 ～ 1 1 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子をウェットプロセスで作製することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【 手 続 補 正 1 6 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 3

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 3 3 】

1 3. 前記 6 ～ 1 1 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【 手 続 補 正 1 7 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 4

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 3 4 】

14. 前記6～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

【手続補正18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0232

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0232】

【表1】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
1-1	CBP	100	100	100	100	比較例
1-2	比較化合物1	103	91	96	102	比較例
1-3	比較化合物2	120	110	95	99	比較例
1-4	比較化合物3	111	120	104	103	比較例
1-5	例示化合物1-1	139	132	92	98	参考例
1-6	例示化合物1-8	142	151	94	96	参考例
1-7	例示化合物1-10	150	158	90	95	参考例
1-8	例示化合物1-14	159	161	82	89	参考例
1-9	例示化合物1-19	154	159	86	92	参考例
1-10	例示化合物1-26	159	164	80	88	参考例
1-11	例示化合物1-30	163	164	79	85	参考例
1-12	例示化合物1-31	176	180	75	75	参考例
1-13	例示化合物1-32	162	169	80	83	参考例
1-14	例示化合物1-35	170	172	76	80	参考例
1-15	例示化合物1-38	172	174	76	76	参考例
1-16	例示化合物1-40	178	182	74	76	参考例
1-17	例示化合物1-47	165	170	79	81	参考例
1-18	例示化合物1-65	168	170	77	81	参考例
1-19	例示化合物1-180	169	171	76	81	参考例
1-20	例示化合物1-189	166	170	78	81	参考例
1-21	例示化合物1-277	160	169	80	84	参考例
1-22	例示化合物1-289	167	170	78	81	参考例

【手続補正19】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0233

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0233】

表1から、参考例（原出願の出願当初の本発明）の有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、参考例に係る有機EL素子材料をより好ましい状態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正20】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 2 3 5

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 3 5 】

【表 2】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
2-1	CBP	100	100	100	100	比較例
2-2	比較化合物1	130	147	101	103	比較例
2-3	比較化合物2	154	154	95	97	比較例
2-4	比較化合物3	148	149	98	93	比較例
2-5	例示化合物1-1	172	171	94	93	参考例
2-6	例示化合物1-8	175	181	91	89	参考例
2-7	例示化合物1-10	187	221	86	81	参考例
2-8	例示化合物1-14	204	287	81	79	参考例
2-9	例示化合物1-19	195	255	81	80	参考例
2-10	例示化合物1-26	207	301	79	79	参考例
2-11	例示化合物1-30	209	321	80	80	参考例
2-12	例示化合物1-31	277	421	70	73	参考例
2-13	例示化合物1-32	221	357	79	77	参考例
2-14	例示化合物1-35	258	379	71	75	参考例
2-15	例示化合物1-38	269	419	71	71	参考例
2-16	例示化合物1-40	299	438	70	72	参考例
2-17	例示化合物1-47	234	361	76	75	参考例
2-18	例示化合物1-65	251	374	73	76	参考例
2-19	例示化合物1-180	255	375	72	76	参考例
2-20	例示化合物1-189	240	365	75	75	参考例
2-21	例示化合物1-277	214	359	77	76	参考例
2-22	例示化合物1-289	246	370	75	75	参考例

【手続補正 2 1】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 3 6

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 3 6 】

表 2 から、参考例（原出願の出願当初の本発明）の青色発光有機 EL 素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた青色発光有機 EL 素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、参考例に係る有機 EL 素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正 2 2】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 3 7

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 3 7 】

〔実施例 3〕

《有機 EL 素子 3-1～3-22 の作製》

実施例 1 の有機 EL 素子 1-1 の発光性化合物 Ir (ppy)₃ を前記した化合物 Ir-9 に、CBP を表 3 に示す化合物に置き換えた以外は有機 EL 素子 1-1 の作製と全く同じ方法で有機 EL 素子 3-1～3-22 を作製した。赤色の発光を示すこれらの素子について、実施例 1 と同様の方法で発光効率、耐久性、駆動電圧を測定した。得られた結果を表 3 に示す。

【手続補正 2 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 2 3 8

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 2 3 8 】

【表 3】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
3-1	CBP	100	100	100	100	比較例
3-2	比較化合物1	102	102	101	100	比較例
3-3	比較化合物2	107	110	98	99	比較例
3-4	比較化合物3	102	104	105	101	比較例
3-5	例示化合物1-1	131	135	94	96	参考例
3-6	例示化合物1-8	135	137	93	94	参考例
3-7	例示化合物1-10	137	141	91	93	参考例
3-8	例示化合物1-14	143	148	92	90	参考例
3-9	例示化合物1-19	140	145	91	90	参考例
3-10	例示化合物1-26	149	150	90	90	参考例
3-11	例示化合物1-30	152	152	90	89	参考例
3-12	例示化合物1-31	169	161	81	81	参考例
3-13	例示化合物1-32	155	152	89	88	参考例
3-14	例示化合物1-35	161	159	85	84	参考例
3-15	例示化合物1-38	165	160	83	81	参考例
3-16	例示化合物1-40	171	169	80	79	参考例
3-17	例示化合物1-47	158	155	88	85	参考例
3-18	例示化合物1-65	159	155	86	85	参考例
3-19	例示化合物1-180	160	157	85	85	参考例
3-20	例示化合物1-189	158	155	87	85	参考例
3-21	例示化合物1-277	157	154	88	86	参考例
3-22	例示化合物1-289	158	155	87	85	参考例

【手続補正 2 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 2 3 9

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 2 3 9 】

表 3 から、参考例（原出願の出願当初の本発明）の赤色発光有機 EL 素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた赤色発光有機 EL 素子であるこ

とがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、参考例に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正 25】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0241

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0241】

【表 4】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
4-1	CBP	100	100	100	100	比較例
4-2	比較化合物1	129	140	101	103	比較例
4-3	比較化合物2	145	152	95	97	比較例
4-4	比較化合物3	138	148	98	93	比較例
4-5	例示化合物1-1	176	193	91	92	参考例
4-6	例示化合物1-19	188	275	87	88	参考例
4-7	例示化合物1-14	186	258	88	89	参考例
4-8	例示化合物1-8	189	291	86	87	参考例
4-9	例示化合物1-127	183	235	89	90	参考例
4-10	例示化合物1-134	179	222	90	91	参考例
4-11	例示化合物1-117	193	302	83	86	参考例
4-12	例示化合物1-145	203	332	82	85	参考例
4-13	例示化合物1-26	197	311	83	86	参考例
4-14	例示化合物1-10	208	345	81	84	参考例
4-15	例示化合物1-30	213	352	80	83	参考例
4-16	例示化合物1-313	230	431	74	77	本発明
4-17	例示化合物1-184	216	373	79	82	参考例
4-18	例示化合物1-213	223	409	77	79	本発明
4-19	例示化合物1-35	251	491	72	70	参考例
4-20	例示化合物1-31	247	484	73	72	参考例
4-21	例示化合物1-40	243	477	74	73	参考例
4-22	例示化合物1-65	239	464	75	74	参考例
4-23	例示化合物1-180	264	512	68	66	参考例
4-24	例示化合物1-207	261	506	69	67	参考例
4-25	例示化合物1-189	253	499	70	68	参考例
4-26	例示化合物1-191	233	446	76	76	参考例
4-27	例示化合物1-199	236	453	76	75	参考例
4-28	例示化合物1-280	226	420	75	78	本発明
4-29	例示化合物1-249	219	395	78	80	参考例
4-30	例示化合物1-38	294	562	60	59	参考例
4-31	例示化合物1-230	276	534	65	63	参考例
4-32	例示化合物1-273	289	553	61	60	参考例
4-33	例示化合物1-47	268	521	67	65	参考例
4-34	例示化合物1-257	258	503	70	67	参考例
4-35	例示化合物1-289	280	541	64	62	参考例
4-36	例示化合物1-275	284	549	63	61	本発明
4-37	例示化合物1-277	273	529	66	64	参考例
4-38	例示化合物1-231	302	573	59	58	参考例
4-39	例示化合物1-316	317	584	57	58	参考例
4-40	例示化合物1-320	326	593	56	56	参考例

【手続補正 2 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 2 4 2

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 4 2 】

表 4 から、本発明及び参考例（原出願の出願当初の本発明）の青色発光有機 EL 素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた青色発光有機 EL 素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明及び参考例に係る有機 EL 素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正 2 7】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 4 4

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 4 4 】

【表 5】

有機EL素子	正孔輸送層	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
5-1	α -NPD	100	100	100	100	比較例
5-2	比較化合物1	110	113	110	114	比較例
5-3	比較化合物2	107	109	117	121	比較例
5-4	比較化合物3	118	116	106	109	比較例
5-5	例示化合物1-10	149	152	82	82	参考例
5-6	例示化合物1-19	142	142	86	87	参考例
5-7	例示化合物1-22	144	146	85	85	参考例
5-8	例示化合物1-65	163	164	73	73	参考例
5-9	例示化合物1-66	166	167	72	71	参考例
5-10	例示化合物1-124	139	140	89	90	参考例
5-11	例示化合物1-145	146	149	83	84	参考例
5-12	例示化合物1-180	168	169	70	70	参考例
5-13	例示化合物1-191	157	159	76	76	参考例
5-14	例示化合物1-230	169	171	68	69	参考例
5-15	例示化合物1-250	152	155	80	79	参考例
5-16	例示化合物1-271	159	162	75	74	参考例
5-17	例示化合物1-275	170	174	65	67	本発明
5-18	例示化合物1-280	154	157	77	76	本発明

【手続補正 2 8】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 4 5

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 4 5 】

表 5 から、本発明及び参考例（原出願の出願当初の本発明）の緑色発光有機 EL 素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた緑色発光有機 EL 素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられている

ことがわかる。また、本発明及び参考例に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正 29】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0249

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0249】

【表6】

有機EL素子	電子輸送層	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
6-1	BCP	100	100	100	100	比較例
6-2	比較化合物1	109	110	101	99	比較例
6-3	比較化合物2	110	113	103	102	比較例
6-4	比較化合物3	113	118	111	109	比較例
6-5	例示化合物1-8	138	149	88	86	参考例
6-6	例示化合物1-14	136	147	90	88	参考例
6-7	例示化合物1-26	142	153	83	82	参考例
6-8	例示化合物1-32	149	156	78	80	参考例
6-9	例示化合物1-47	158	168	70	69	参考例
6-10	例示化合物1-65	154	163	74	74	参考例
6-11	例示化合物1-136	140	151	85	84	参考例
6-12	例示化合物1-164	146	155	80	83	参考例
6-13	例示化合物1-191	152	161	75	76	参考例
6-14	例示化合物1-218	160	169	68	67	本発明
6-15	例示化合物1-230	155	164	73	72	参考例
6-16	例示化合物1-257	157	166	71	71	参考例
6-17	例示化合物1-277	161	172	66	65	参考例
6-18	例示化合物1-280	151	158	77	78	本発明

【手続補正 30】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0250

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0250】

表6から、本発明及び参考例（原出願の出願当初の本発明）の緑色発光有機EL素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた緑色発光有機EL素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明及び参考例に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正 31】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0258

【補正方法】変更
【補正の内容】
【0258】

【表 7】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
7-1	CBP	100	100	100	100	比較例
7-2	比較化合物1	126	125	121	120	比較例
7-3	比較化合物2	146	132	109	111	比較例
7-4	比較化合物3	139	130	116	117	比較例
7-5	例示化合物1-1	199	221	81	73	参考例
7-6	例示化合物1-19	211	259	77	66	参考例
7-7	例示化合物1-14	209	247	78	69	参考例
7-8	例示化合物1-8	215	271	76	65	参考例
7-9	例示化合物1-127	204	236	79	71	参考例
7-10	例示化合物1-134	202	233	80	72	参考例
7-11	例示化合物1-117	219	283	75	64	参考例
7-12	例示化合物1-145	228	293	73	62	参考例
7-13	例示化合物1-26	223	285	74	64	参考例
7-14	例示化合物1-10	231	310	72	62	参考例
7-15	例示化合物1-30	235	321	71	60	参考例
7-16	例示化合物1-313	249	377	66	55	本発明
7-17	例示化合物1-184	239	332	70	59	参考例
7-18	例示化合物1-213	244	356	68	58	本発明
7-19	例示化合物1-35	269	441	60	49	参考例
7-20	例示化合物1-31	266	426	61	50	参考例
7-21	例示化合物1-40	262	418	62	52	参考例
7-22	例示化合物1-65	259	406	63	53	参考例
7-23	例示化合物1-180	280	472	56	45	参考例
7-24	例示化合物1-207	277	459	57	47	参考例
7-25	例示化合物1-189	273	452	58	48	参考例
7-26	例示化合物1-191	253	389	65	54	参考例
7-27	例示化合物1-199	256	398	64	53	参考例
7-28	例示化合物1-280	247	362	67	56	本発明
7-29	例示化合物1-249	242	346	69	58	参考例
7-30	例示化合物1-38	301	533	50	40	参考例
7-31	例示化合物1-230	287	493	54	43	参考例
7-32	例示化合物1-273	298	521	51	41	参考例
7-33	例示化合物1-47	282	484	55	44	参考例
7-34	例示化合物1-257	276	456	58	47	参考例
7-35	例示化合物1-289	290	502	53	42	参考例
7-36	例示化合物1-275	294	512	52	41	本発明
7-37	例示化合物1-277	285	489	54	43	参考例
7-38	例示化合物1-231	309	545	49	38	参考例
7-39	例示化合物1-316	313	552	48	37	参考例
7-40	例示化合物1-320	318	559	47	37	参考例

【手続補正 3 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 2 5 9

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 5 9 】

表 7 から、本発明及び参考例（原出願の出願当初の本発明）の青色発光有機 EL 素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた青色発光有機 EL 素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかる。また、本発明及び参考例に係る有機 EL 素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

【手続補正 3 3】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 6 1

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 6 1 】

【表 8】

有機EL素子	ホスト化合物	発光効率	耐久性	駆動電圧	駆動電圧($\tau^{1/7}$)	備考
8-1	CBP	100	100	100	100	比較例
8-2	比較化合物1	114	115	102	125	比較例
8-3	比較化合物2	124	121	103	119	比較例
8-4	比較化合物3	119	119	108	123	比較例
8-5	例示化合物1-19	157	172	81	76	参考例
8-6	例示化合物1-292	162	185	84	73	参考例
8-7	例示化合物1-293	169	201	76	70	参考例
8-8	例示化合物1-301	180	223	67	62	参考例
8-9	例示化合物1-302	183	230	64	61	参考例
8-10	例示化合物1-311	166	192	80	72	参考例
8-11	例示化合物1-312	186	237	62	59	参考例
8-12	例示化合物1-321	151	163	83	78	参考例
8-13	例示化合物1-322	172	203	73	68	参考例
8-14	例示化合物1-323	178	216	69	65	参考例
8-15	例示化合物1-324	174	209	71	66	参考例
8-16	例示化合物1-325	198	251	59	53	参考例
8-17	例示化合物1-326	201	258	58	50	参考例
8-18	例示化合物1-335	192	241	61	56	参考例

【手続補正 3 4】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 6 2

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 2 6 2 】

表 8 から、参考例（原出願の出願当初の本発明）の緑色発光有機 EL 素子は、発光効率に優れ、耐久性が高く長寿命化が達成されており、優れた緑色発光有機 EL 素子であることがわかる。さらには駆動電圧が低下し、駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわか

る。また、参考例に係る有機EL素子材料をより好ましい様態（例えば、好ましい置換基、該置換基の数等）とすることにより、より高い発光効率と寿命を両立させられることが分かる。また、より駆動電圧を低く、かつ駆動時の電圧上昇を小さくできることがわかる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード (参考)
C 0 7 D	409/14	(2006.01)	C 0 9 K	11/06	6 9 0
C 0 7 F	7/10	(2006.01)	C 0 9 K	11/06	6 6 0
			C 0 7 D	405/14	
			C 0 7 D	409/14	
			C 0 7 F	7/10	V

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC02 CC12 CC14 CC21 DD53 DD59 DD64
DD67 DD68 DD69 DD70 DD71 DD74 DD78 DD87 GG06
4C063 AA03 BB01 BB02 CC76 CC94 DD08 EE10
4H049 VN01 VP01 VQ60 VR24 VU29
4H050 AA01 AA03 AB92