

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7595030号
(P7595030)

(45)発行日 令和6年12月5日(2024.12.5)

(24)登録日 令和6年11月27日(2024.11.27)

(51)国際特許分類

F I

H 1 0 K	50/12	(2023.01)	H 1 0 K	50/12	
H 1 0 K	85/60	(2023.01)	H 1 0 K	85/60	
C 0 9 K	11/06	(2006.01)	C 0 9 K	11/06	6 9 0
H 1 0 K	50/18	(2023.01)	C 0 9 K	11/06	6 6 0
H 1 0 K	71/16	(2023.01)	H 1 0 K	50/18	

請求項の数 19 (全69頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2021-567223(P2021-567223)
 (86)(22)出願日 令和2年12月11日(2020.12.11)
 (86)国際出願番号 PCT/JP2020/046181
 (87)国際公開番号 WO2021/131770
 (87)国際公開日 令和3年7月1日(2021.7.1)
 審査請求日 令和5年11月9日(2023.11.9)
 (31)優先権主張番号 特願2019-238535(P2019-238535)
 (32)優先日 令和1年12月27日(2019.12.27)
 (33)優先権主張国・地域又は機関
 日本国(JP)

(73)特許権者 000006644
 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社
 東京都中央区日本橋一丁目13番1号
 (74)代理人 100132230
 弁理士 佐々木 一也
 (74)代理人 100088203
 弁理士 佐野 英一
 (74)代理人 100100192
 弁理士 原 克己
 (74)代理人 100198269
 弁理士 久本 秀治
 (74)代理人 100226894
 弁理士 佐々木 夏詩子
 (72)発明者 小川 淳也
 東京都中央区日本橋一丁目13番1号
 最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機電界発光素子

(57)【特許請求の範囲】

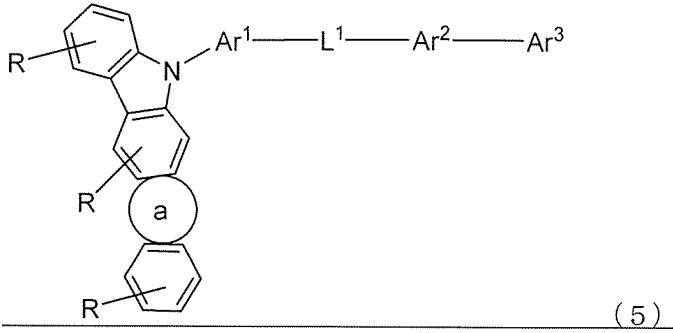
【請求項1】

基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子において、有機層の少なくとも1層が、第1ホストと、第2ホスト及び発光性ドーパント材料を含有する発光層であり、

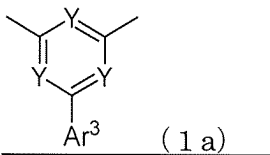
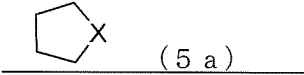
第1ホストは下記式(5)、又は下記式(6)で表される化合物から選ばれ、

第2ホストは下記一般式(2)、一般式(3)、又は一般式(4)で表される化合物から選ばれることを特徴とする有機電界発光素子。

【化1】



10



20

(ここで、Rは独立に、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～3個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

Ar¹及びAr²は独立に、式(1a)で表される芳香族複素環基であり、Yは独立に、N、又はCR^{1.4}で表され、少なくとも一つはNである。

R^{1.4}は、水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

30

Ar³は独立に、水素、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

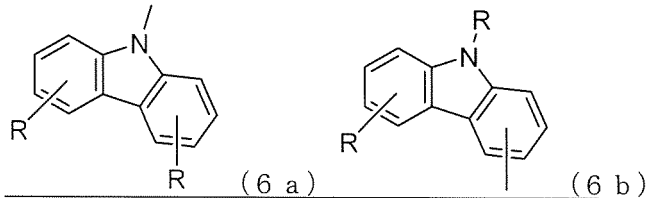
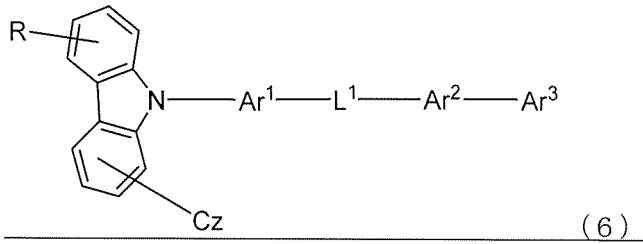
L¹は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基である。

環aは式(5a)で表され、環Aは隣接する環と任意の位置で縮合し、XはNR^{5.1}、S、O、CR^{5.2}R^{5.3}であり、R^{5.1}、R^{5.2}及びR^{5.3}は、それぞれ独立して、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基、又はこれらが2～5個連結した連結芳香族基を表す。)

40

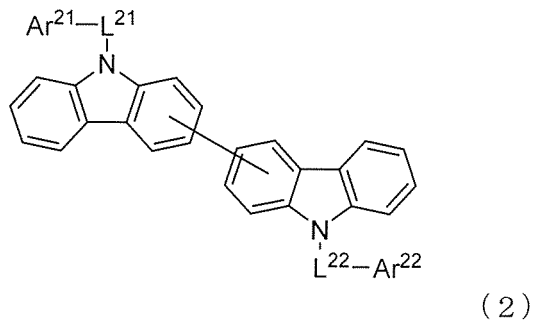
50

【化 2】



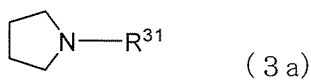
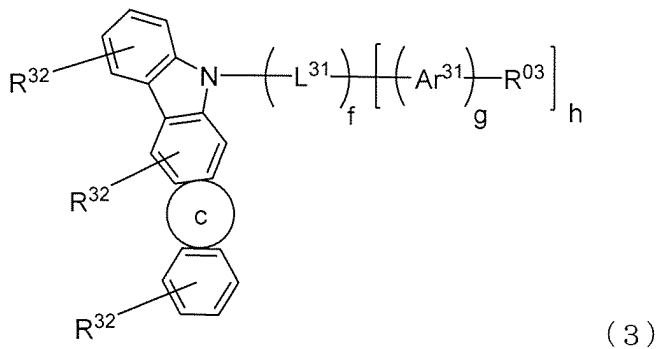
(ここで、R、Ar¹、Ar²、Ar³、及びL¹は式(5)と同意である。Czは、式(6 a)若しくは式(6 b)で表されるカルバゾール基を表す。)

【化 3】



(ここで、Ar²¹及びAr²²は独立に水素、置換若しくは未置換の炭素数6~14の芳香族炭化水素基、又は該芳香族炭化水素基が2個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。L²¹及びL²²は独立にフェニレン基を示す。)

【化 4】



(ここで、環cは式(3 a)で表される複素環であり、環cは隣接する環と任意の位置で縮合し、

10

20

30

40

50

R^{03} 及び R^{32} は独立に水素、重水素、炭素数 1 ~ 10 の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 16 の芳香族複素環基であり、

R^{31} は置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基、カルバゾリル基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 5 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、

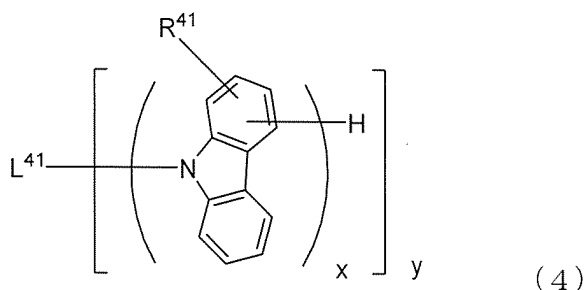
L^{31} は独立に、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 16 の芳香族複素環基であり、

Ar^{31} は独立に置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基である。

f は繰り返し数で、1 ~ 3 の整数を表し、g は繰り返し数で、独立して 0 ~ 3 の整数を表し、h は置換数で、1 ~ 7 の整数を表す。)

10

【化 5】



20

(ここで、 L^{41} は置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 12 の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 5 連結してなる連結芳香族基である。

R^{41} はそれぞれ独立して水素、重水素、炭素数 1 ~ 10 の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 16 の芳香族複素環基であるが、カルバゾール基であることはない。x は繰り返し数で、独立して 1 ~ 4 の整数を示すが、少なくとも 1 つの x は 2 ~ 4 の整数である。y は置換数であり、1 ~ 4 の整数を示す。x 及び y が 2 以上の場合、式中の複数のカルバゾリル基は同一であっても異なってもよい。)

30

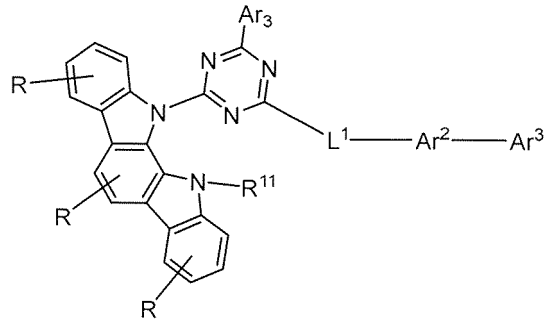
【請求項 2】

式(5)で表される化合物が、式(7) ~ (12)のいずれかで表される化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

40

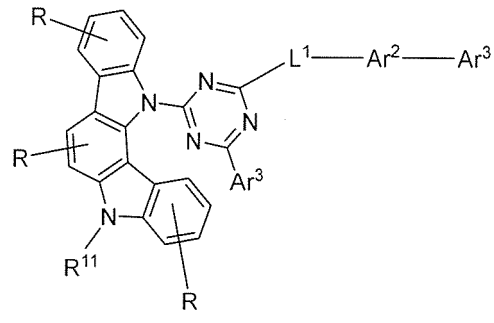
50

【化 6】



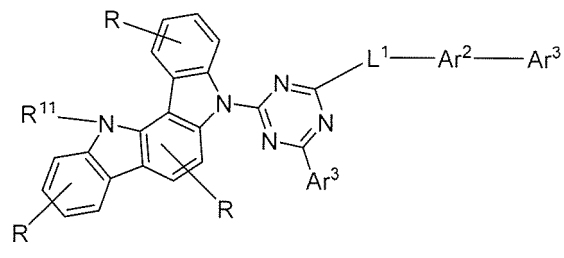
(7)

10



(8)

20



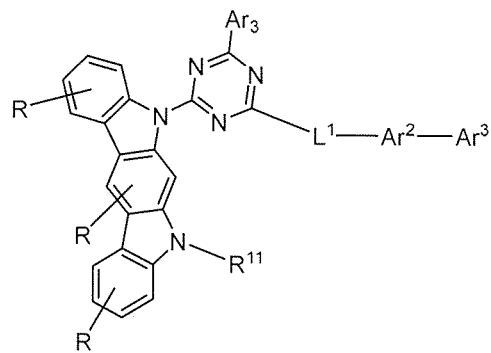
(9)

30

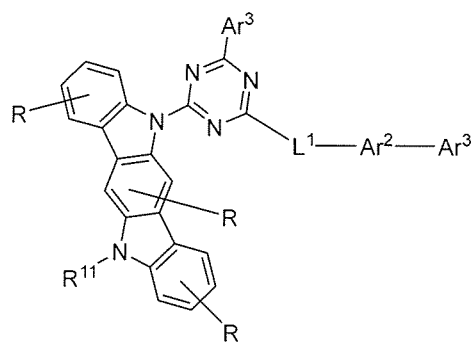
40

50

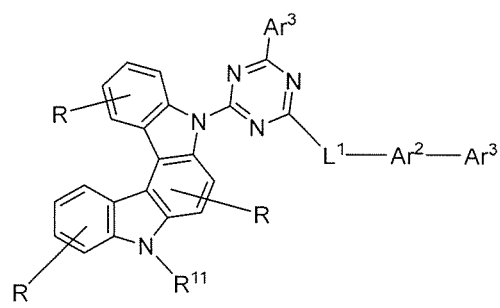
【化 7】



10



20



30

(ここで、 L^1 、 Ar^2 、 Ar^3 、 R 、及び R^{11} は、式(5)と同意である。)

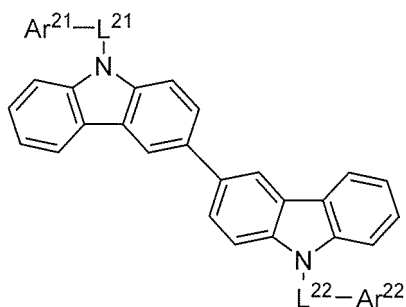
【請求項 3】

一般式(2)で表される化合物を第二ホストとして用いることを特徴とする請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】

一般式(2)で表される化合物が、下記式(13)で表される化合物であることを特徴とする請求項3に記載の有機電界発光素子。

【化 8】



40

50

(ここで、 Ar^{21} 、 Ar^{22} 、 L^{21} 、及び L^{22} は、一般式(2)と同意である。)

【請求項5】

一般式(3)で表される化合物を第二ホストとして用いることを特徴とする請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

【請求項6】

一般式(3)において、 L^{31} が、置換若しくは未置換の炭素数6~15の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換のカルバゾール基、置換若しくは未置換のジベンゾチオフェン基、又は置換若しくは未置換のジベンゾフラン基で表される化合物であることを特徴とする請求項5に記載の有機電界発光素子。

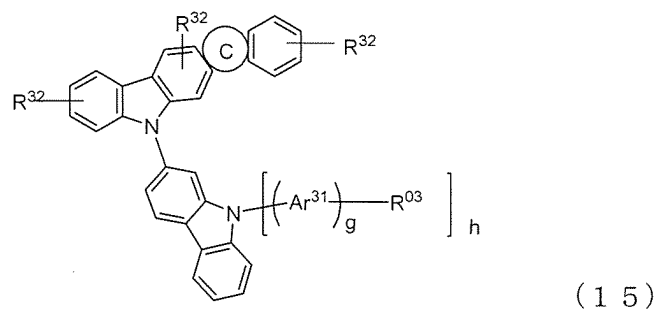
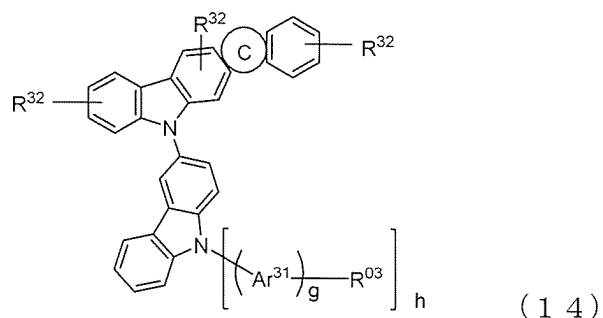
【請求項7】

一般式(3)において、 L^{31} が置換若しくは未置換のフェニル基、置換若しくは未置換のナフチル基、置換若しくは未置換のピフェニル基、置換若しくは未置換の9,9'-ジメチルフルオレン基、置換若しくは未置換のカルバゾール基であることを特徴とする請求項5又は6に記載の有機電界発光素子。

【請求項8】

一般式(3)で表される化合物が、下記式(14)又は式(15)で表される化合物であることを特徴とする請求項5~7のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化9】



(ここで、環c、 R^{03} 、 R^{32} 、 Ar^{31} 、g及びhは一般式(3)と同意である。)

【請求項9】

一般式(4)で表される化合物を第二ホストとして用いることを特徴とする請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

【請求項10】

一般式(4)中に、少なくとも1つの式(4a)で表される結合構造、又は少なくとも1つの式(4b)で表される結合構造を有することを特徴とする請求項9に記載の有機電界発光素子。

10

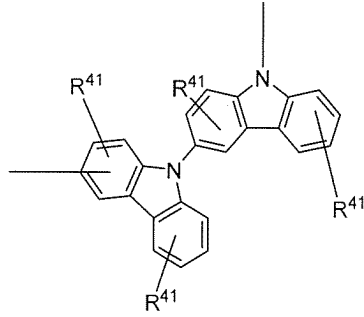
20

30

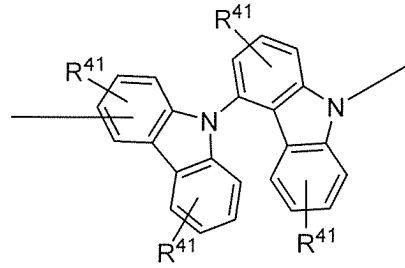
40

50

【化 1 0】



(4a)



(4b)

10

(ここで、 R^{41} は一般式(4)と同意である。)

【請求項 1 1】

第 1 ホストと第 2 ホストの合計に対し、第 1 ホストの割合が 20 wt% を超え、55 wt% 未満であることを特徴とする請求項 1 ~ 1 0 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 1 2】

発光性ドーパント材料が、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金からなる群れから選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体であることを特徴とする請求項 1 ~ 1 0 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 1 3】

発光性ドーパント材料が、熱活性化遅延蛍光発光ドーパントを含む蛍光ドーパント材料であることを特徴とする請求項 1 ~ 1 0 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

20

【請求項 1 4】

第 1 ホストと第 2 ホストの電子親和力 (EA) の差が 0.1 eV を超え、0.6 eV 未満であることを特徴とする請求項 1 ~ 1 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 1 5】

発光層と隣接して正孔阻止層を設け、該正孔阻止層中に一般式(1)で表される化合物を含有させることを特徴とする請求項 1 ~ 1 4 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 1 6】

第 1 ホストと第 2 ホストを含む請求項 1 ~ 1 4 のいずれかに記載の有機電界発光素子用の組成物であり、第 1 ホストとして上記式(5)又は式(6)で表される化合物と、第 2 ホストとして上記一般式(2)、一般式(3)、又は一般式(4)で表される化合物とを含む有機電界発光素子用の組成物。

30

【請求項 1 7】

第 2 ホストとして、上記式(13)で表される化合物を含む請求項 1 6 に記載の有機電界発光素子用の組成物。

【請求項 1 8】

第 1 ホストと第 2 ホストとの 50% 重量減少温度の差が、20 以内であることを特徴とする請求項 1 6 又は 1 7 に記載の有機電界発光素子用の組成物。

【請求項 1 9】

請求項 1 6 ~ 1 8 のいずれかに記載の有機電界発光素子用の組成物と発光性ドーパント材料を使用して発光層を作製することを特徴とする基板の上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子の製造方法。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は有機電界発光素子に関するものである。詳しくは二つ以上のホストを使用した有機EL素子に関する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

50

有機電界発光素子（有機EL素子という）有機EL素子に電圧を印加することで、陽極から正孔が、陰極からは電子がそれぞれ発光層に注入される。そして発光層において、注入された正孔と電子が再結合し、励起子が生成される。この際、電子スピンの統計則により、一重項励起子及び三重項励起子が1：3の割合で生成する。一重項励起子による発光を用いる蛍光発光型の有機EL素子は、内部量子効率 $\geq 25\%$ が限界であるといわれている。一方で三重項励起子による発光を用いる燐光発光型の有機EL素子は、一重項励起子から項間交差が効率的に行われた場合には、内部量子効率が $\geq 100\%$ まで高められることが知られている。

【0003】

最近では、遅延蛍光を利用した高効率の有機EL素子の開発がなされている。例えば遅延蛍光のメカニズムの一つであるTTF（Triplet-Triplet Fusion）機構を利用した有機EL素子が知られている。TTF機構は2つの三重項励起子の衝突によって一重項励起子が生成する現象を利用するものであり、理論上内部量子効率を $\geq 40\%$ まで高められると考えられている。しかしながら、燐光発光型の有機EL素子と比較すると効率が低いため、更なる効率の改良が求められている。

10

特許文献1では、TADF（Thermally Activated Delayed Fluorescence）機構を利用した有機EL素子が開示されている。TADF機構は一重項準位と三重項準位のエネルギー差が小さい材料において三重項励起子から一重項励起子への逆項間交差が生じる現象を利用するものであり、理論上内部量子効率を $\geq 100\%$ まで高められると考えられている。しかしながら、燐光発光型素子の効率特性の更なる向上、及び低電圧特性の向上が求められている。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】WO2011/070963 A

【文献】WO2013/062075 A

【文献】US2014/0374728A号

【文献】WO2011/136755A

【文献】WO2011/070963A

【文献】KR2014094408A

【文献】KR 2017060836A

【文献】CN 103193717A

【文献】WO2011/005060A

【0005】

特許文献2、3ではビスカルバゾール化合物を混合ホストとして使用することを開示している。

特許文献4ではインドロカルバゾール化合物を含む複数のホストを予備混合したホスト材料の使用を開示している。

特許文献5ではインドロカルバゾール化合物を熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料として使用することを開示している。

40

【0006】

特許文献6、7ではトリアジン環を二つ有するカルバゾール化合物に関する開示があり、特許文献8、9ではピリミジン環を二つ有し、かつ該ピリミジン環をフェニル基で連結した化合物に関する開示がある。

しかしながら、いずれも十分なものとは言えず、更なる改良が望まれている。

【発明の概要】

【0007】

有機EL素子をフラットパネルディスプレイ等の表示素子、または光源に応用するためには素子の発光効率を改善すると同時に駆動時の安定性を十分に確保する必要がある。本発明は、低駆動電圧でありながら高効率な有機EL素子とそれに適した有機EL素子用材料を提

50

供することを目的とする。

【0008】

本発明者らは、鋭意検討した結果、特定のアジン化合物を第1ホストとして用いることで優れた特性を示す有機EL素子となることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0009】

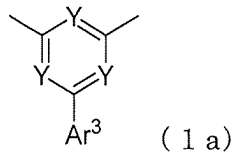
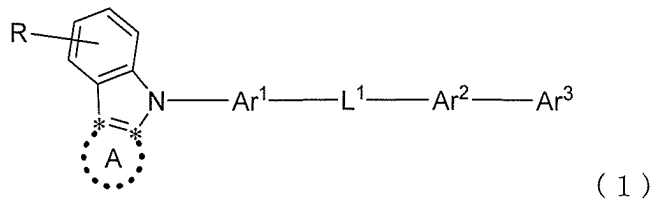
本発明は、基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子において、有機層の少なくとも1層が、第1ホストと、第2ホスト及び発光性ドーパント材料を含有する発光層であり、

第1ホストは下記一般式(1)で表される化合物から選ばれ、

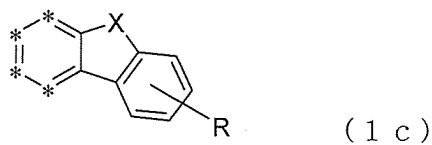
第2ホストは下記一般式(2)、一般式(3)、又は一般式(4)で表される化合物から選ばれることを特徴とする有機電界発光素子である。

10

【化1】



20



30

【0010】

ここで、環Aは式(1b)又は(1c)で表され、隣接環と任意の位置で縮合する。*はC又はCRを表し、式(1b)又は式(1c)中の隣接する二つの*は、隣接環の*と結合する。

XはNR¹¹、S、O、又はCR¹²R¹³を表し、R¹¹、R¹²、及びR¹³はそれぞれ独立して、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

Rは独立に、水素、重水素、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~3個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

40

Yは独立に、N、又はCR¹⁴で表され、少なくとも一つはNである。

R¹⁴は、水素、重水素、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

Ar¹及びAr²は独立に、式(1a)で表される芳香族複素環基であり、

Ar³は独立に、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結

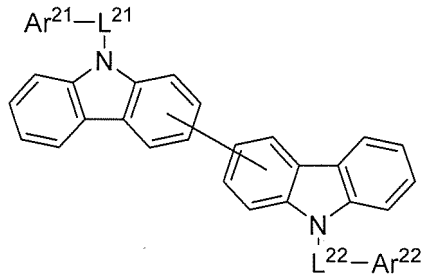
50

した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。

L^1 は独立に、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基である。

【0011】

【化2】



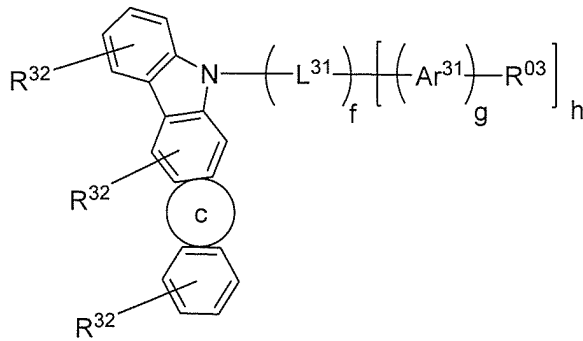
(2)

10

ここで、 Ar^{21} 及び Ar^{22} は独立に水素、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 14 の芳香族炭化水素基、又は該芳香族炭化水素基が 2 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。 L^{21} 及び L^{22} は独立にフェニレン基を示す。

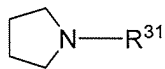
【0012】

【化3】



(3)

30



(3a)

ここで、環 c は式 (3a) で表される複素環であり、環 c は隣接する環と任意の位置で縮合し、

R^{03} 及び R^{32} は独立に水素、重水素、炭素数 1 ~ 10 の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 16 の芳香族複素環基であり、

R^{31} は置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基、カルバゾリル基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 5 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基であり、

L^{31} は独立に、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 16 の芳香族複素環基であり、

Ar^{31} は独立に置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基である。

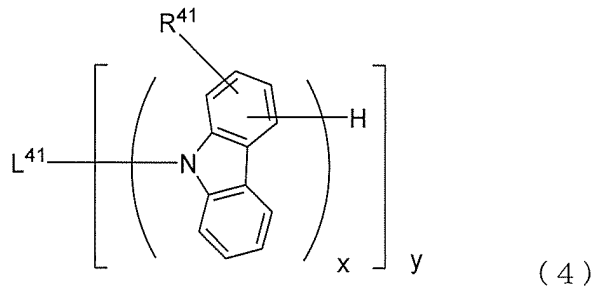
f は繰り返し数で、1 ~ 3 の整数を表し、 g は繰り返し数で、独立して 0 ~ 3 の整数を表し、 h は置換数で、1 ~ 7 の整数を表す。

【0013】

40

50

【化4】



10

ここで、 L^{41} は置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、換若しくは未置換の炭素数3～5の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2～5連結してなる連結芳香族基である。 R^{41} はそれぞれ独立して水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基であるが、カルバゾール基であることはない。 x は繰り返し数で、独立して1～4の整数を示すが、少なくとも1つの x は2～4の整数である。 y は置換数であり、1～4の整数を示す。 x 及び y が2以上の場合、式中の複数のカルバゾリル基は同一であっても異なっても良い。

【0014】

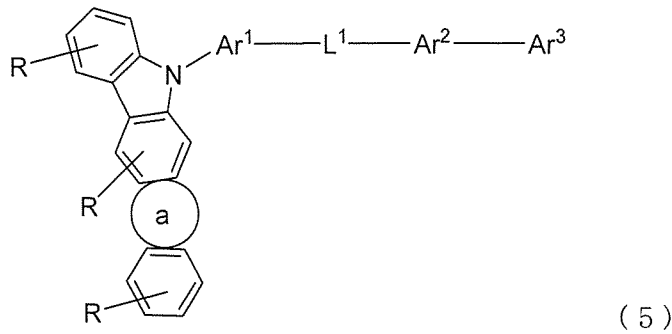
20

一般式(1)で表される化合物としては、下記式(5)で表される化合物、式(6)で表される化合物、又は式(7)～(12)のいずれかで表される化合物がある。

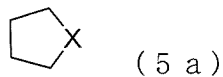
式(5)、式(6)、及び式(7)～(12)において、一般式(1)と同じ記号は、同じ意味を有する。

【0015】

【化5】



30



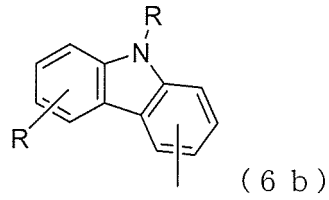
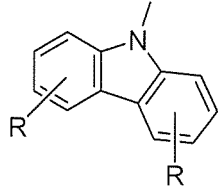
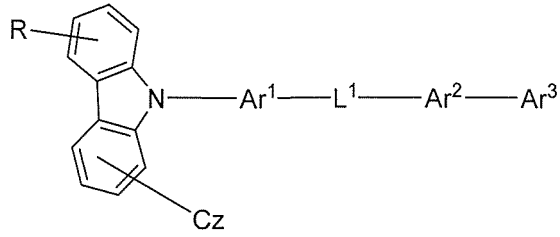
40

ここで、環aは式(5a)で表され、環Aは隣接する環と任意の位置で縮合し、Xは $N R^{51}$ 、S、O、 $C R^{52} R^{53}$ であり、 R^{51} 、 R^{52} 及び R^{53} は、それぞれ独立して、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基、又はこれらが2～5個連結した連結芳香族基を表す。

【0016】

50

【化6】

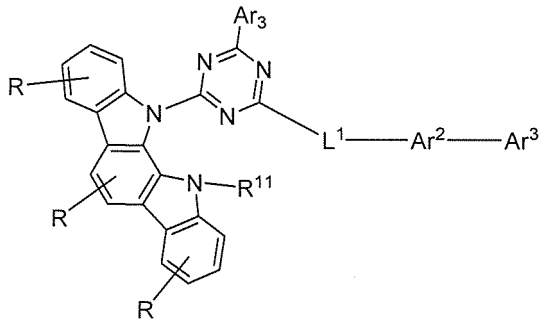


10

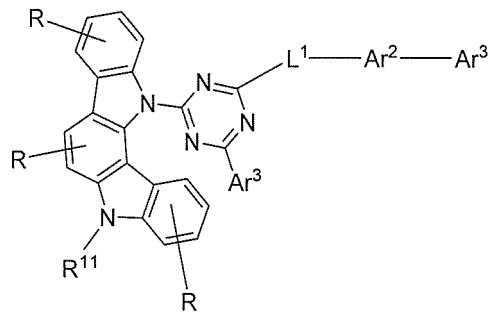
ここで、Czは、式(6a)若しくは式(6b)で表されるカルバゾール基を表す。

【0017】

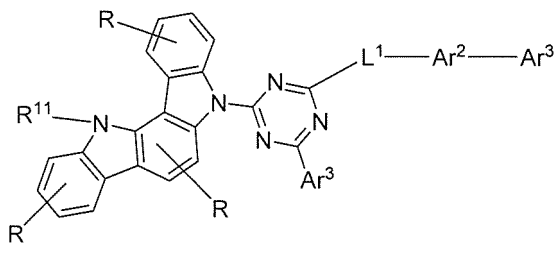
【化7】



20



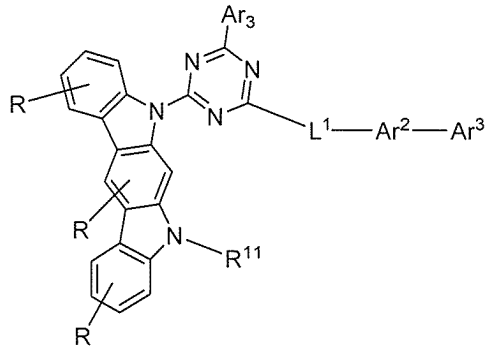
30



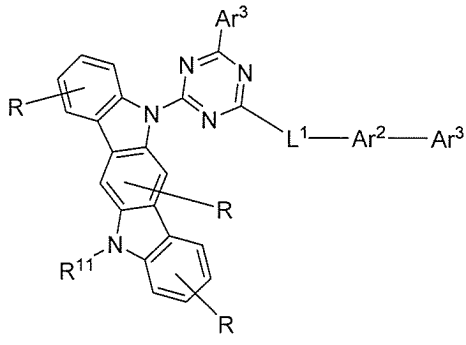
40

50

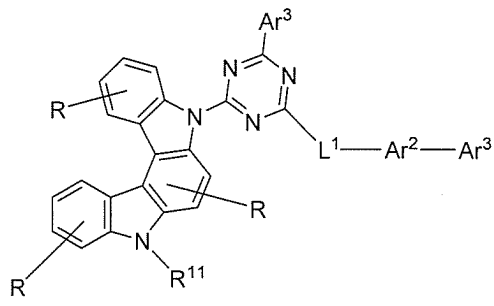
【化 8】



10



20

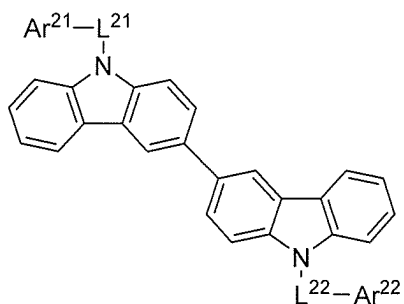


30

【 0 0 1 8 】

第二ホストとして一般式(2)で表される化合物を用いることができ、下記式(13)で表される化合物がある。式(13)において、一般式(2)と共通する記号は同じ意味を有する。

【化 9】



40

【 0 0 1 9 】

一般式(3)において、L³¹は、置換若しくは未置換の炭素数6~15の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換のカルバゾール基、置換若しくは未置換のジベンゾチオフェン基、又は置換若しくは未置換のジベンゾフラン基で表される化合物であることができる

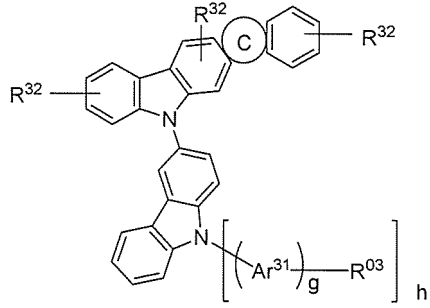
50

。好ましくは、 L^{31} は置換若しくは未置換のフェニル基、置換若しくは未置換のナフチル基、置換若しくは未置換のビフェニル基、置換若しくは未置換の9,9'-ジメチルフルオレン基、置換若しくは未置換のカルバゾール基である。

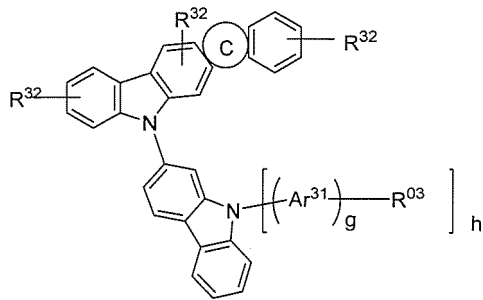
【0020】

一般式(3)で表される化合物としては、下記式(14)又は式(15)で表される化合物がある。式(14)、式(15)において、一般式(3)と共通する記号は同じ意味を有する。

【化10】



(14)



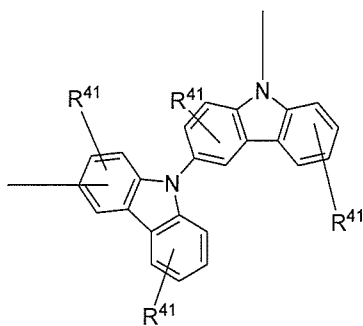
(15)

【0021】

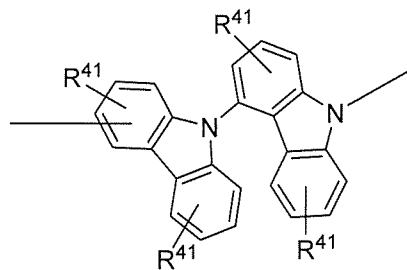
一般式(4)中に、少なくとも1つの式(4a)で表される結合構造、又は少なくとも1つの式(4b)で表される結合構造を有することが望ましい。式(4a)、式(4b)において、一般式(4)と共通する記号は同じ意味を有する。

30

【化11】



(4a)



(4b)

【0022】

本発明の有機電界発光素子の好ましい態様を次に示す。

第1ホストと第2ホストの合計に対し、第1ホストの割合が20wt%を超え、55wt%未満であること。

発光性ドーパント材料が、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金からなる群れから選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体であること。

発光性ドーパント材料が、熱活性化遅延蛍光発光ドーパントを含む蛍光ドーパント材料

50

であること。

第1ホストと第2ホストの電子親和力(EA)の差が0.1eVを超え、0.6eV未満であること。

第一ホストと電子輸送層材料のEAの差が0.3eV以内であること。

発光層と隣接して正孔阻止層を設け、該正孔阻止層中に一般式(1)で表される化合物を含有すること。

【0023】

また、本発明は、第1ホストと第2ホストを含む組成物であり、第1ホストとして上記一般式(1)で表される化合物と、第2ホストとして上記一般式(2)、一般式(3)、又は一般式(4)で表される化合物とを含むことを特徴とする上記の有機電界発光素子用の組成物である。

10

【0024】

本発明の有機電界発光素子用の組成物の好ましい態様を次に示す。

第2ホストとして、上記式(13)で表される化合物とを含むこと。

第1ホストと第2ホストとの50%重量減少温度の差が、20以内であること。

【0025】

また、本発明は、上記の組成物と発光性ドーパント材料を使用して発光層を作製することを特徴とする基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層されてなる有機電界発光素子の製造方法である。

【0026】

20

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

ここで、本発明で用いられる式(1)で表されるアジン化合物は、材料の電子注入輸送性に影響を与える最低空軌道(LUMO)が、芳香族炭化水素基を介した二つ以上の含窒素6員環上に広がって分布することから、含窒素複素環の数や該含窒素複素環同士を繋ぐ芳香族連結基の連結様式、加えて含窒素6員環上の窒素原子の数を変えることで、素子の電子注入輸送性が高いレベルで制御できる。一方で、インドロカルバゾールに代表される縮合芳香族複素環上には、正孔注入輸送性に影響を与える最低被占軌道(HOMO)が広く分布しており、縮合芳香族複素環上の置換基の種類・数を変えることで、素子の正孔注入輸送性が高いレベルで制御できる。

30

一方で、一般式(2)~(4)で表されるカルバゾール化合物又はインドロカルバゾール化合物は、特に正孔注入輸送能が高く、カルバゾール環やインドロカルバゾール環の結合様式や該骨格への置換基の種類・数を変えることで正孔注入輸送性が高いレベルで制御できる。そこで、上記アジン化合物とカルバゾール化合物を混合して用いることで、有機層への両電荷注入量を好ましい範囲に調整でき、より良好な素子特性が期待できる。特に、遅延蛍光発光EL素子や燐光発光EL素子の場合にあっては、発光層で生成する励起エネルギーを閉じ込めるのに十分高い最低励起三重項エネルギーを有していることから、発光層内からのエネルギー流出がなく、低電圧で高効率かつ長寿命を達成できる。

40

【図面の簡単な説明】

【0027】

【図1】有機EL素子の一例を示した模式断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0028】

本発明の有機EL素子は、基板上に、陽極、有機層及び陰極が積層された構造を有し、この有機層の少なくとも1層に、上記の有機電界発光素子用材料を含む。

この有機EL素子は、対向する陽極と陰極の間に複数の層からなる有機層を有するが、複数の層の少なくとも1層は、発光層であり、発光層は複数あってもよい。そして、発光層

50

の少なくとも一つは、第 1 ホストと、第 2 ホスト及び発光性ドーパント材料を含有する。発光層は蒸着層からなることがよい。

【0029】

上記発光層に含まれる第 1 ホストは上記一般式(1)で表される化合物から選ばれ、第 2 ホストは上記一般式(2)、一般式(3)又は一般式(4)で表される化合物から選ばれる。

【0030】

上記一般式(1)において、 p は繰り返し数を表し、1~3の整数であり、好ましくは $p \geq 1$ である。

【0031】

環 A は式(1b)又は(1c)で表され、隣接環と任意の位置で縮合する。式(1b)又は式(1c)中の隣接する二つの*は、隣接環の*と結合する。隣接環と結合する*は、Cを表すが、式(1b)中の残りの二つの*はCRを表す。環 A が式(1b)である場合は、カルバゾール環となり、式(1c)である場合は、インドロカルバゾール環となる。

【0032】

Rは独立に、水素、重水素、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基又はこれらの芳香族環が2~3個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。好ましくは、水素、炭素数1~6の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数3~10の芳香族複素環基である。

【0033】

Xは NR^{11} 、S、O、又は $CR^{12}R^{13}$ であり、好ましくは、 NR^{11} である。

R^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} はそれぞれ独立して、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結した連結芳香族基である。好ましくは、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基であり、より好ましくは置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基である。

【0034】

本明細書において、連結芳香族基は、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基の芳香族環が単結合で連結した基を言い、これらは直鎖状に連結しても、分岐状に連結してもよく、芳香族環は同一であっても、異なってよい。

【0035】

Ar^1 及び Ar^2 は式(1a)で表される芳香族複素環基である。ここで、Yは独立に、N、又は CR^{14} で表され、少なくとも一つはNである。好ましくは、二つ以上がNであり、更に好ましくは、三つがNである。Yの三つがNである場合は、トリアジン環となる。

【0036】

Ar^3 は置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~5個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基である。好ましくは置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数3~12の芳香族複素環基であり、より好ましくは置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基である。または、これらの芳香族環が2~3個連結した連結芳香族基である、

【0037】

L^1 は置換若しくは置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基であり、好ましくは式(1d)若しくは式(1e)のいずれかで表されるフェニレン基である。

10

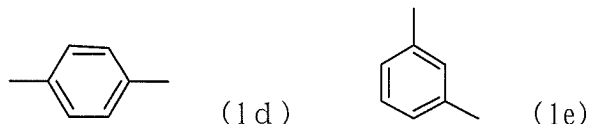
20

30

40

50

【化 1 2】



【0038】

R、R¹⁴及びAr³は1価の基であり、これらの記号が式中に複数出現する場合は、出現毎に同じであっても異なってもよい。

10

【0039】

R、R¹¹、R¹²、R¹³及びR¹⁴が、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基である場合、直鎖状、分岐状、または環状であってもよく、具体例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、t-ブチル、ペンチル、ヘキシル、シクロヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル等が挙げられる。好ましくは、炭素数1～4のアルキル基である。

【0040】

R、R¹¹、R¹²、R¹³、R¹⁴又はAr³が未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基である場合の具体例としては、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フルオランテン、フェナントレン、トリフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、イソチアゾール、チアゾール、ピリダジン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、ピラジン、フラン、イソキサゾール、オキサゾール、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、キナゾリン、ベンゾトリアゾール、フタラジン、インドール、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾイソチアゾール、ベンゾチアジアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、ジベンゾセレノフェン、ベンゾカルバゾール、ベンゾナフトチオフェン、ベンゾナフトフラン、フェナントロリン又はカルバゾールから生じる基が挙げられる。好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、イソチアゾール、チアゾール、ピリダジン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ピラジン、フラン、イソキサゾール、オキサゾール、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、キナゾリン、フタラジン、インドール、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾイソチアゾール、又はベンゾチアジアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、又はカルバゾールから生じる芳香族基が挙げられる。より好ましくは、ベンゼンから生じる基である。

20

30

【0041】

本明細書において、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、連結芳香族環基は、置換基を有することができる。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、連結芳香族環基の場合は、炭素数1～5のアルキル基、炭素数1～5のアルコキシ基、炭素数2～5のアルケニル基、重水素、ハロゲン、アミノ基、シアノ基などを挙げることができる。

40

【0042】

一般式(1)で表される化合物の好ましい態様として、上記式(5)又は式(6)および式(7)～(12)のいずれかで表される化合物があり、好ましくは(7)～(12)のいずれかで表される化合物であり、より好ましくは一般式(7)～(9)のいずれかで表される化合物である。式(5)～(12)において、一般式(1)と共通する記号は同じ意味を有する。

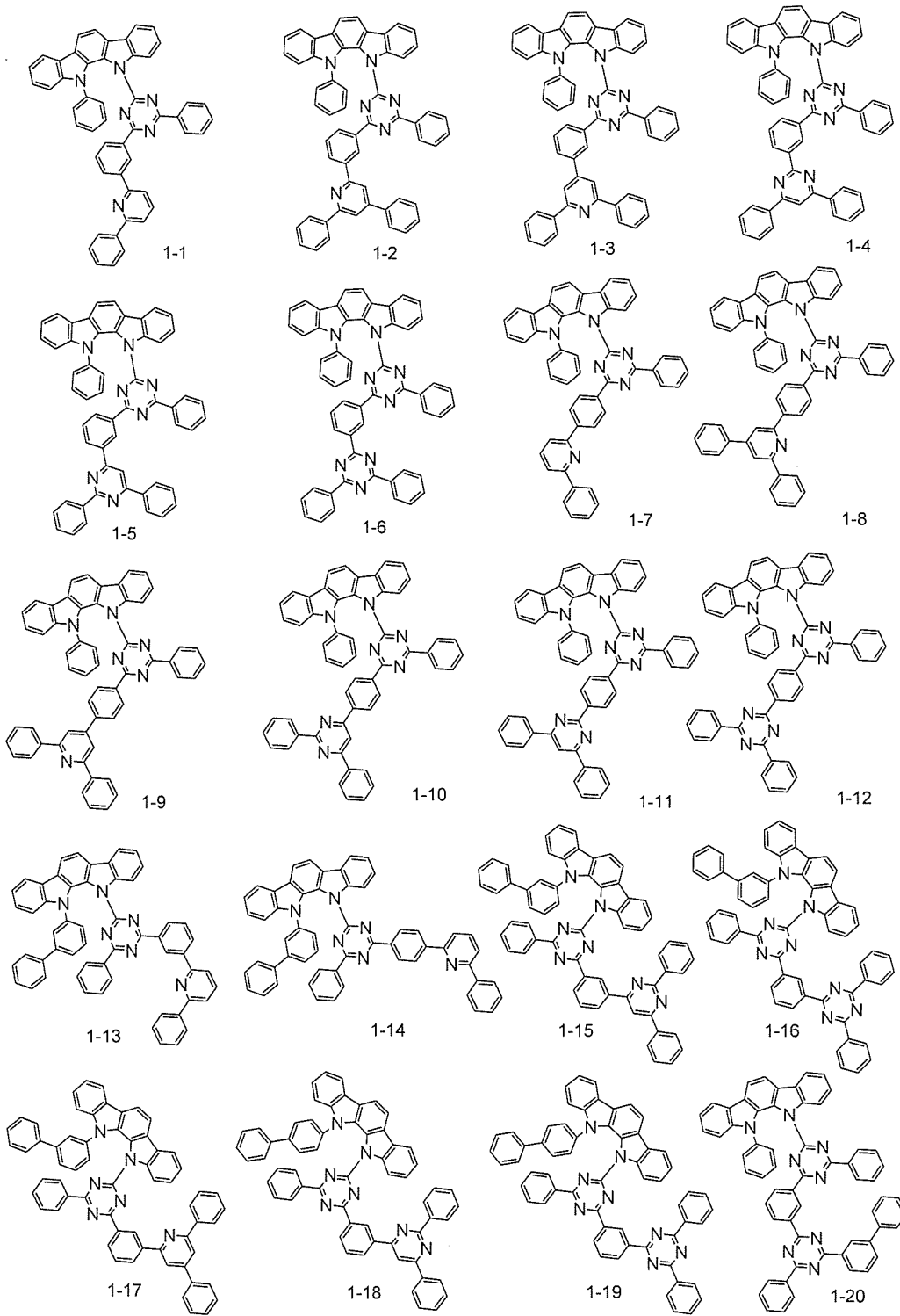
【0043】

一般式(1)で表される化合物の具体的な例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【0044】

50

【化 1 3】



10

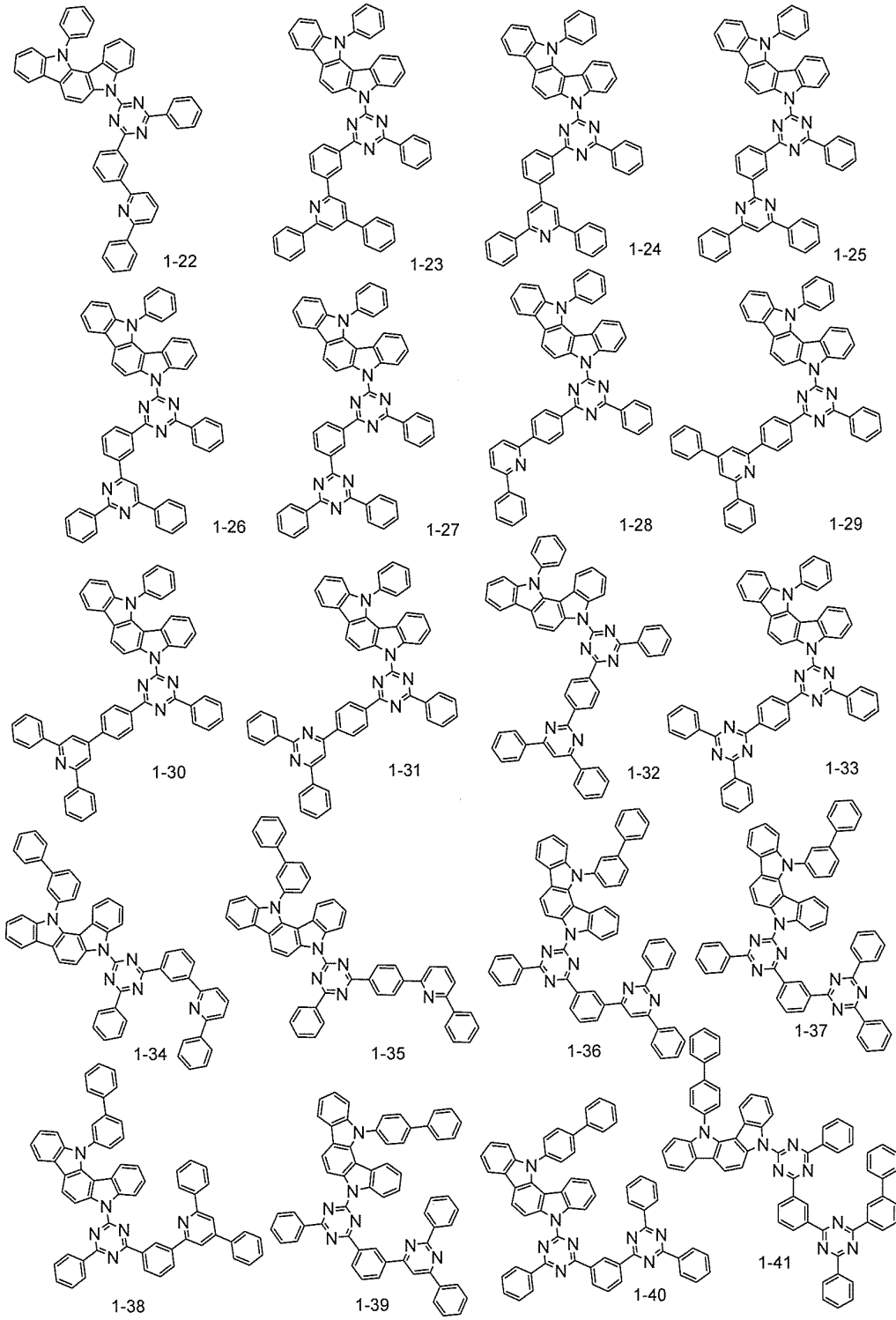
20

30

40

50

【化 1 4】



10

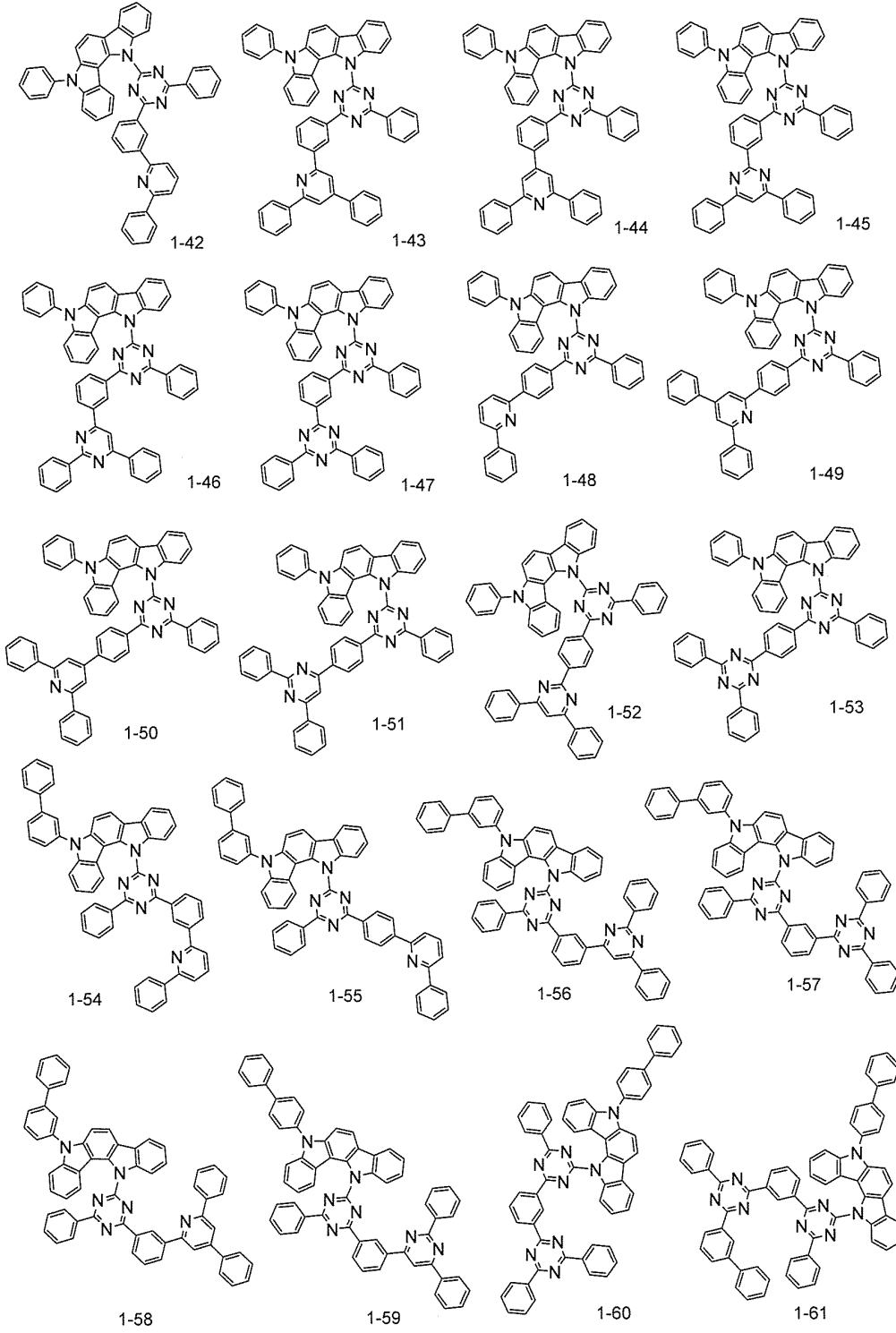
20

30

40

50

【化 1 5】



10

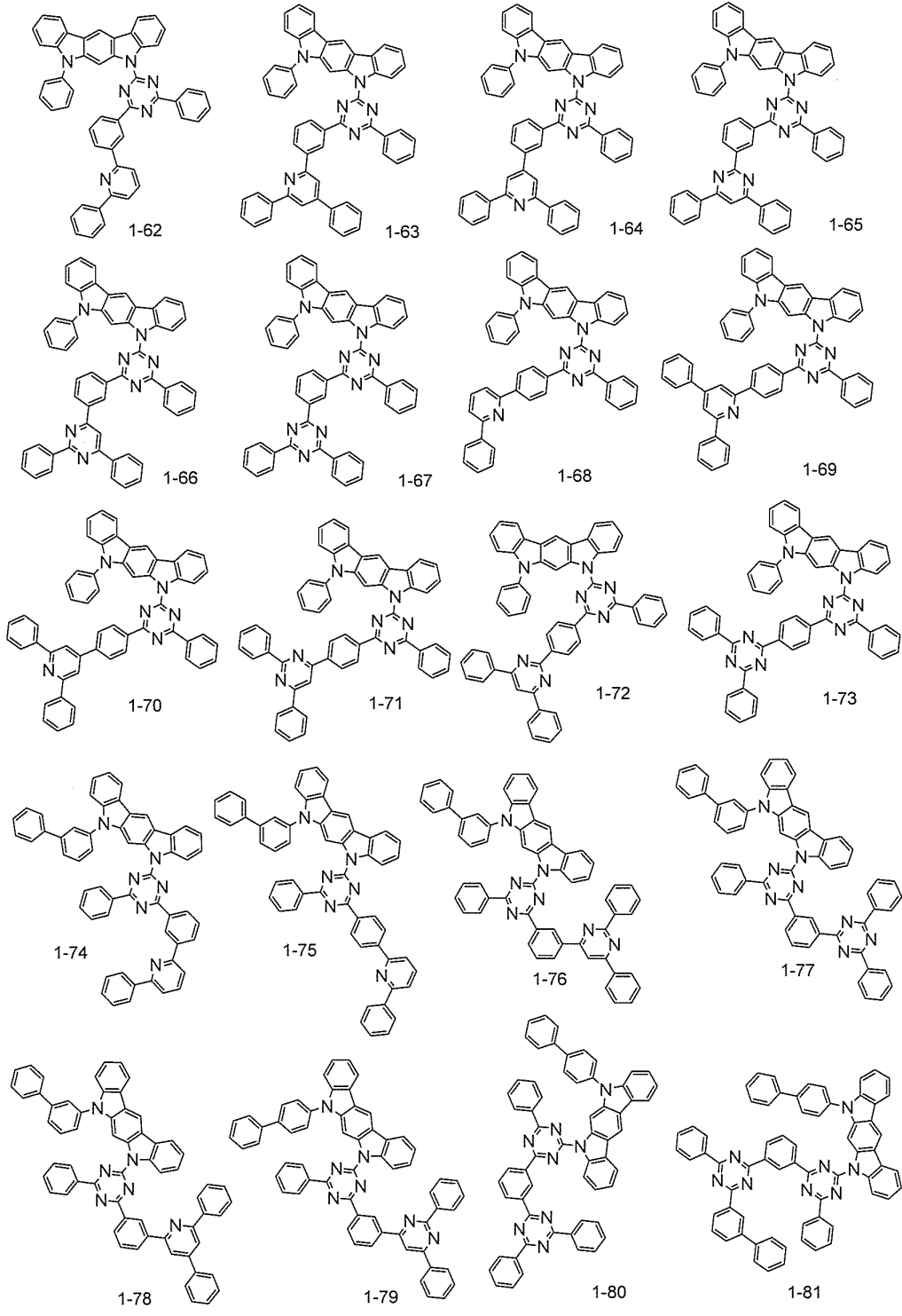
20

30

40

【 0 0 4 5】

【化 1 6】



10

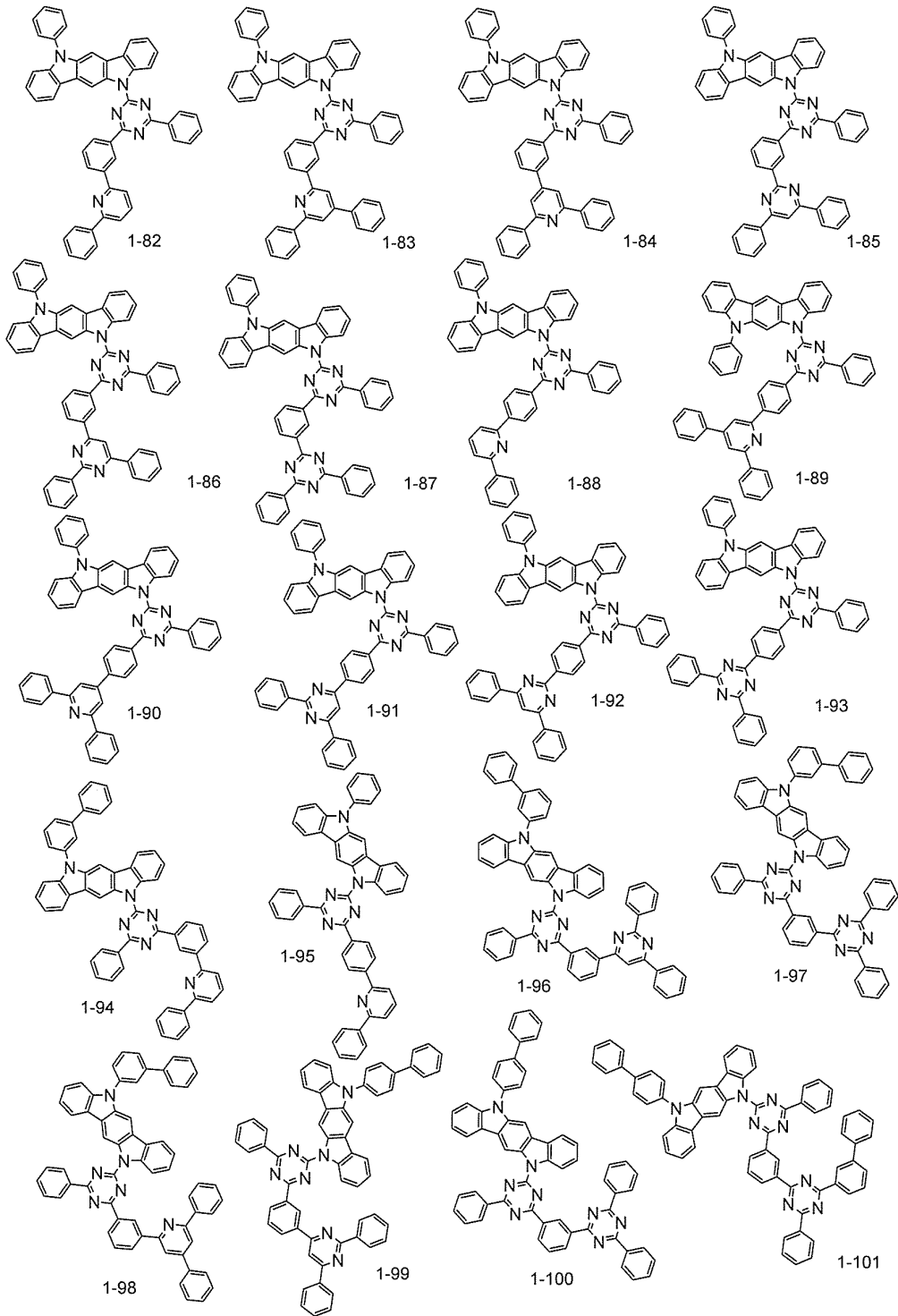
20

30

40

50

【化 1 7】



10

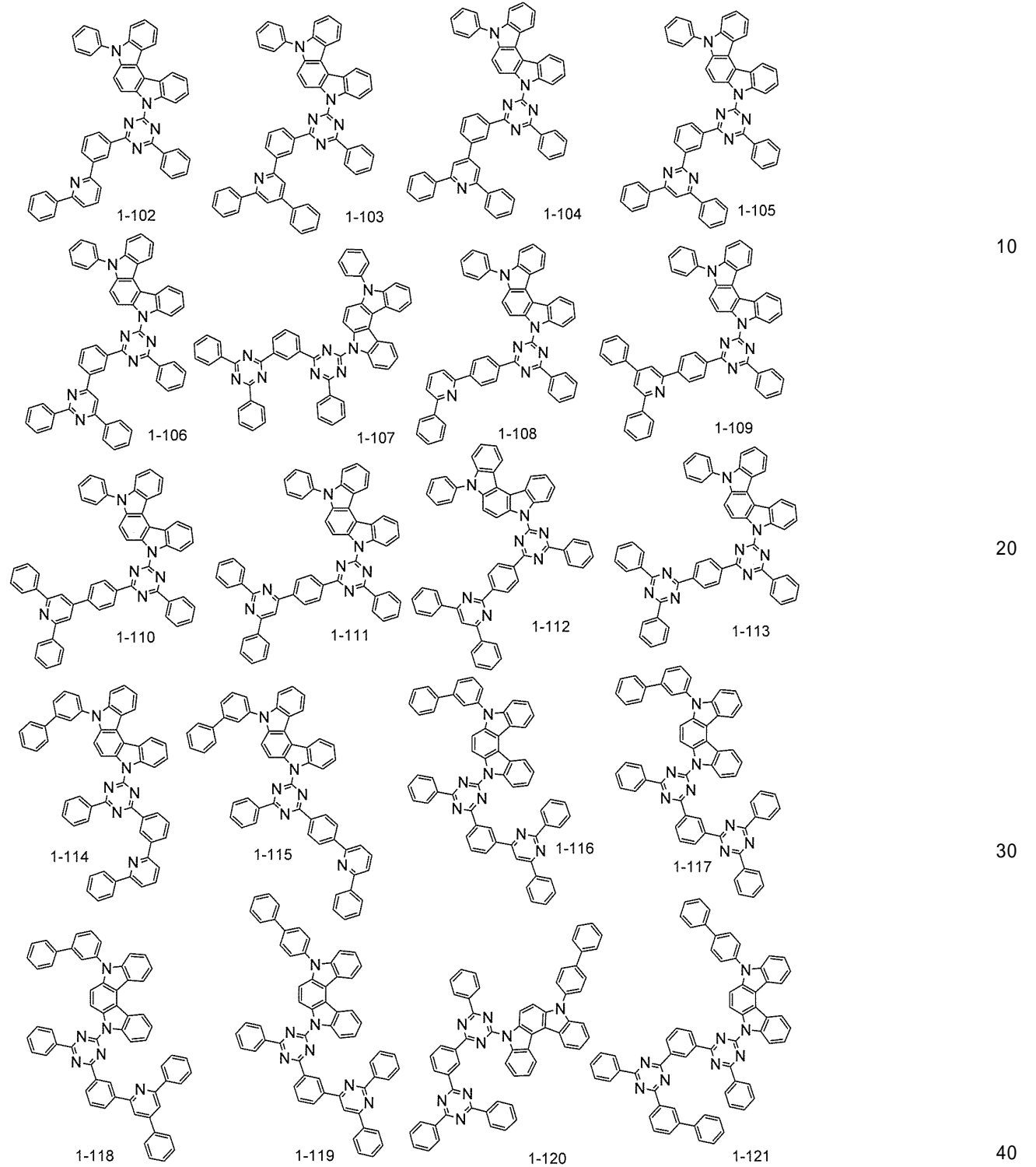
20

30

40

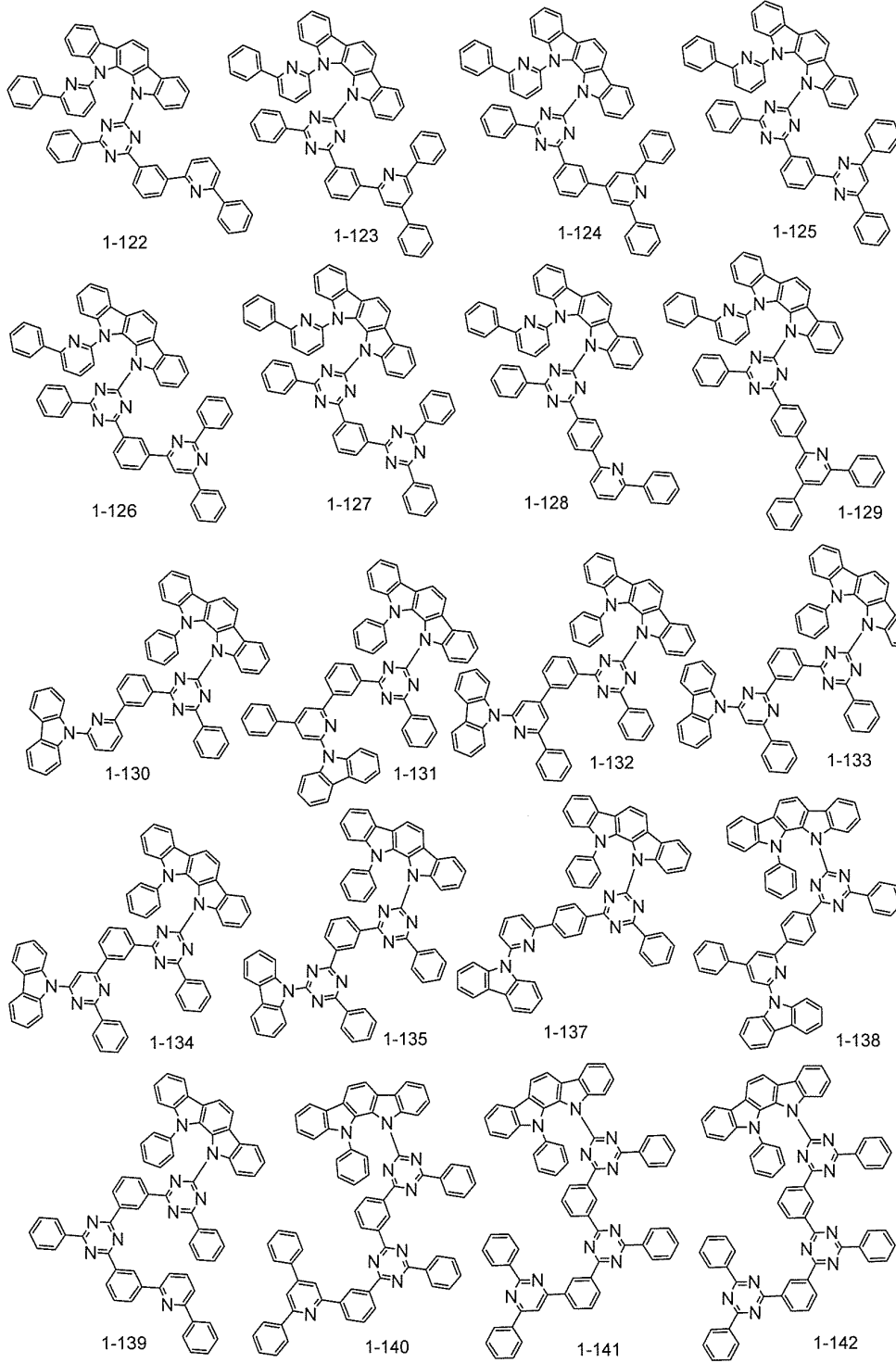
50

【化 1 8】



【 0 0 4 6】

【化 1 9】



10

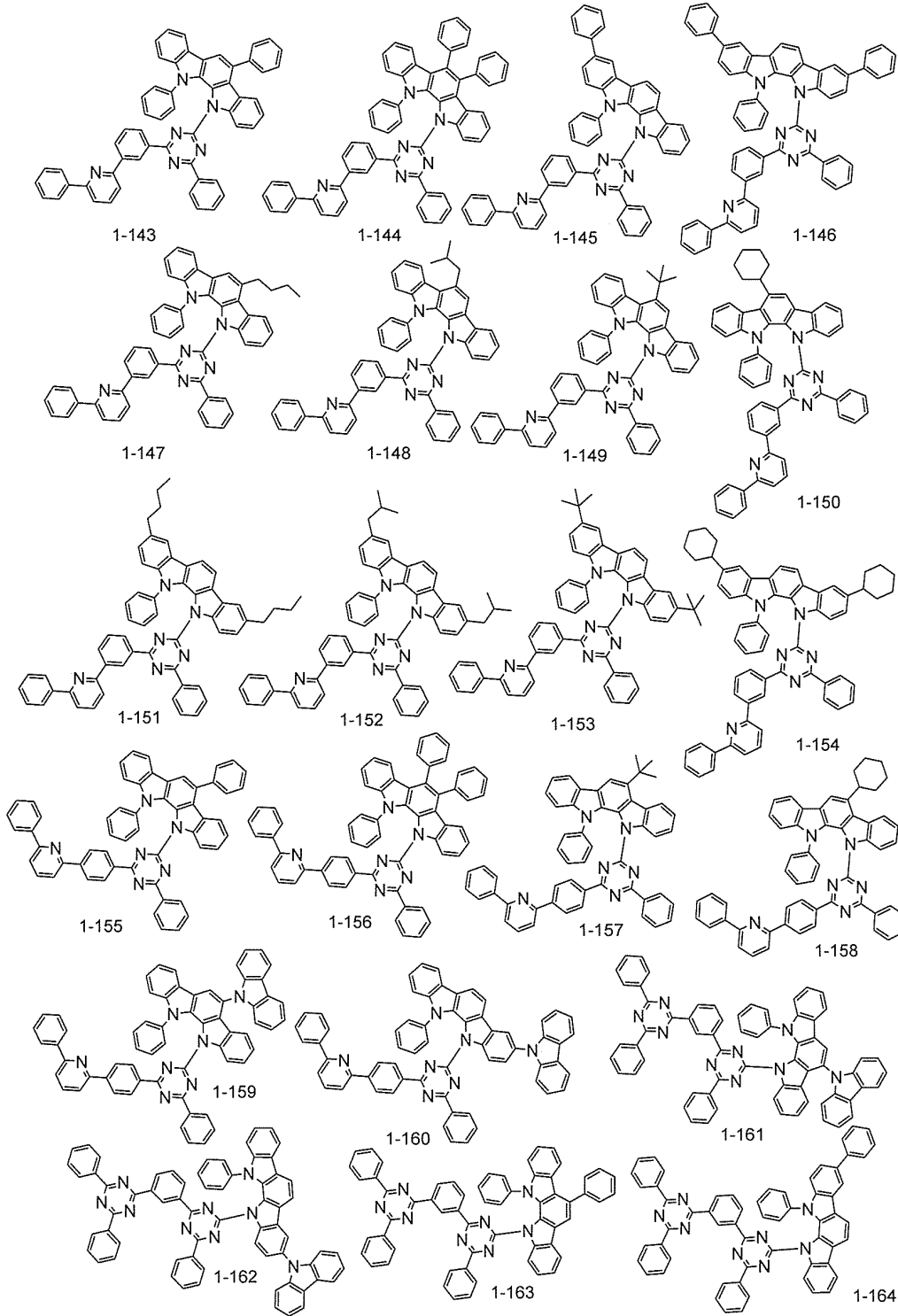
20

30

40

50

【化 2 0】



10

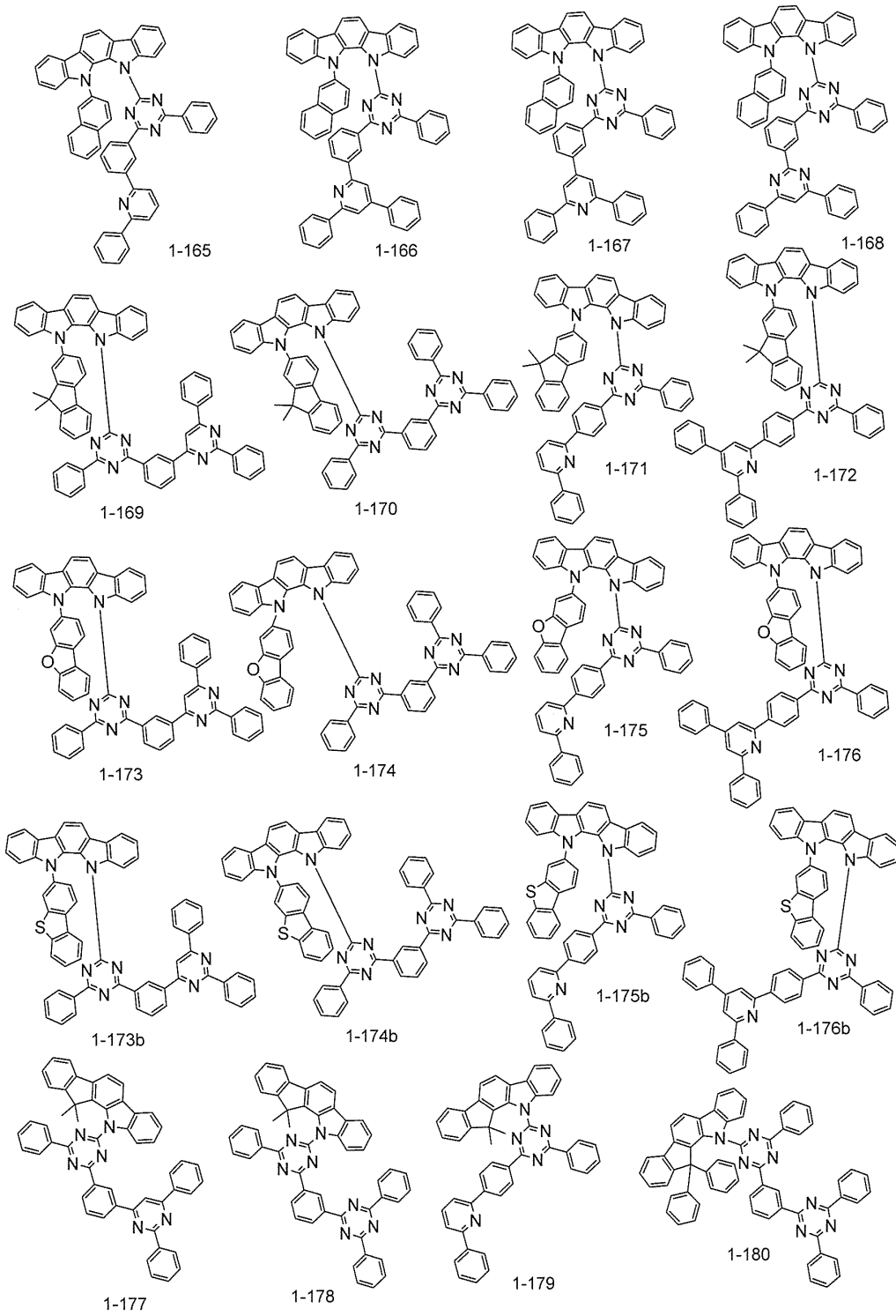
20

30

40

50

【化 2 1】



10

20

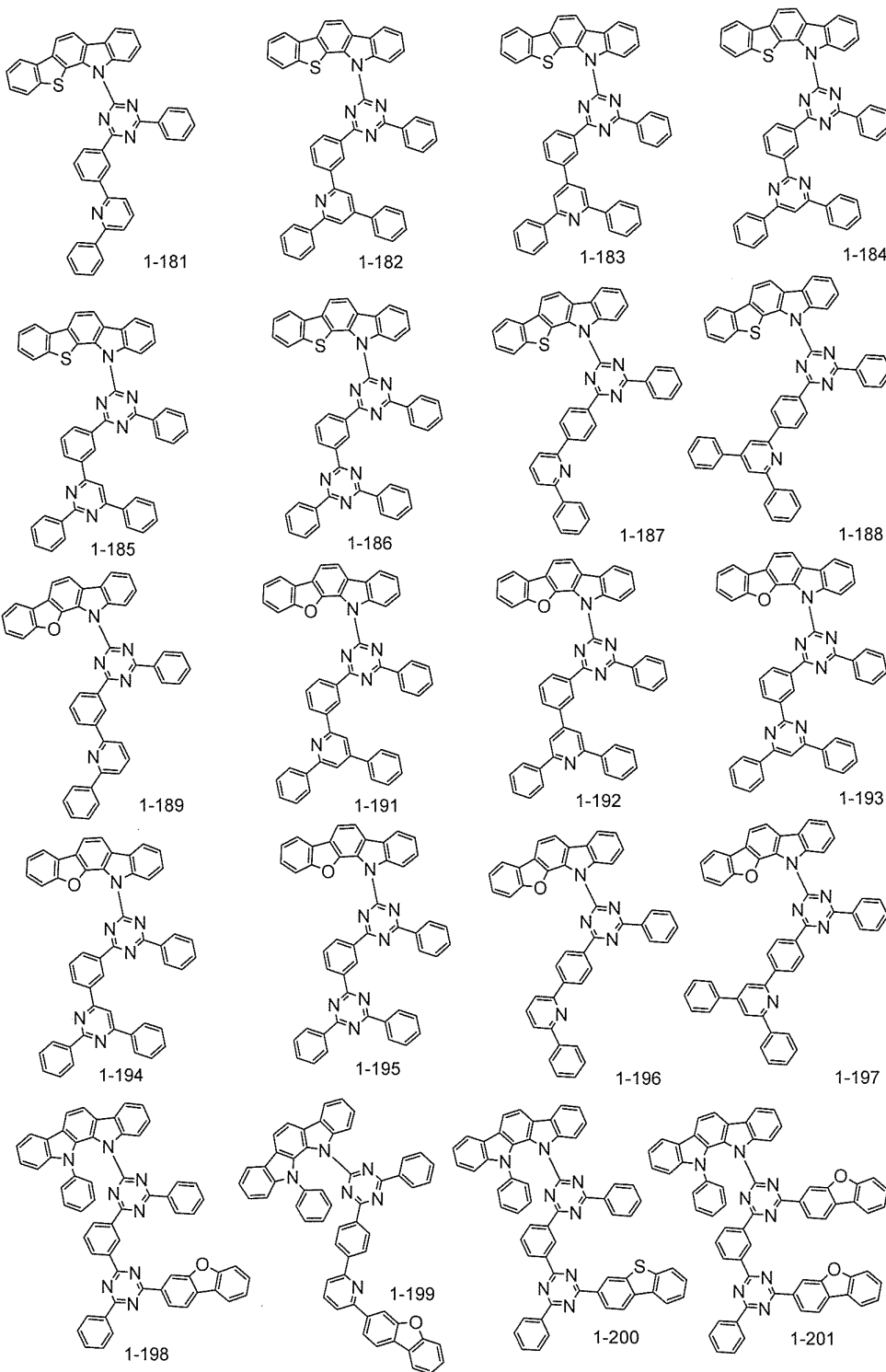
30

40

【 0 0 4 7 】

50

【化 2 2】



10

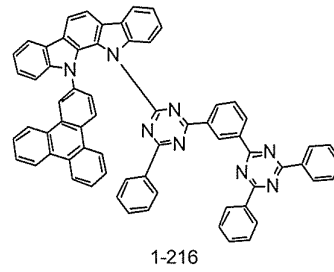
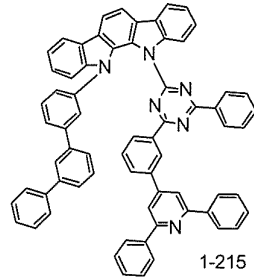
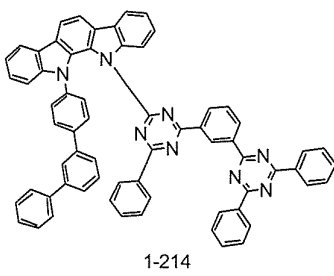
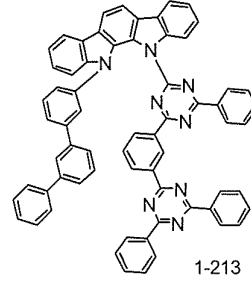
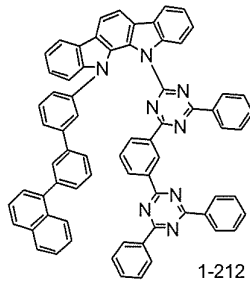
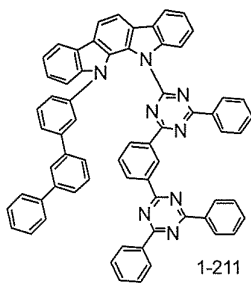
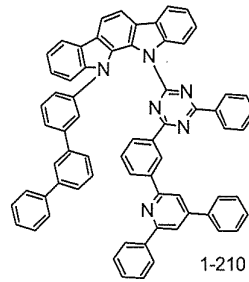
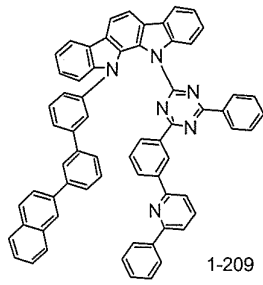
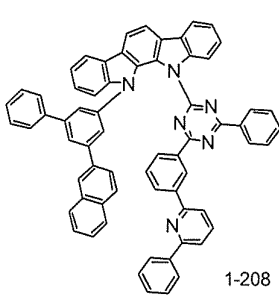
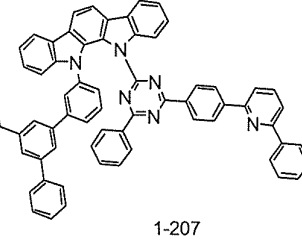
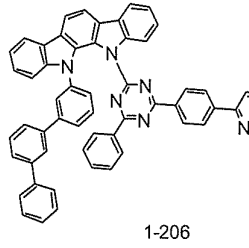
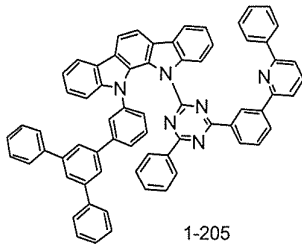
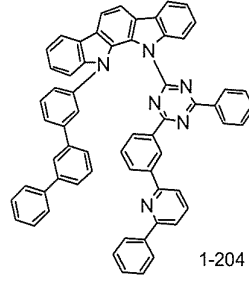
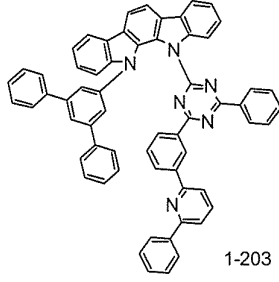
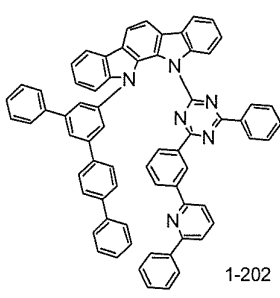
20

30

40

50

【化 2 3】



10

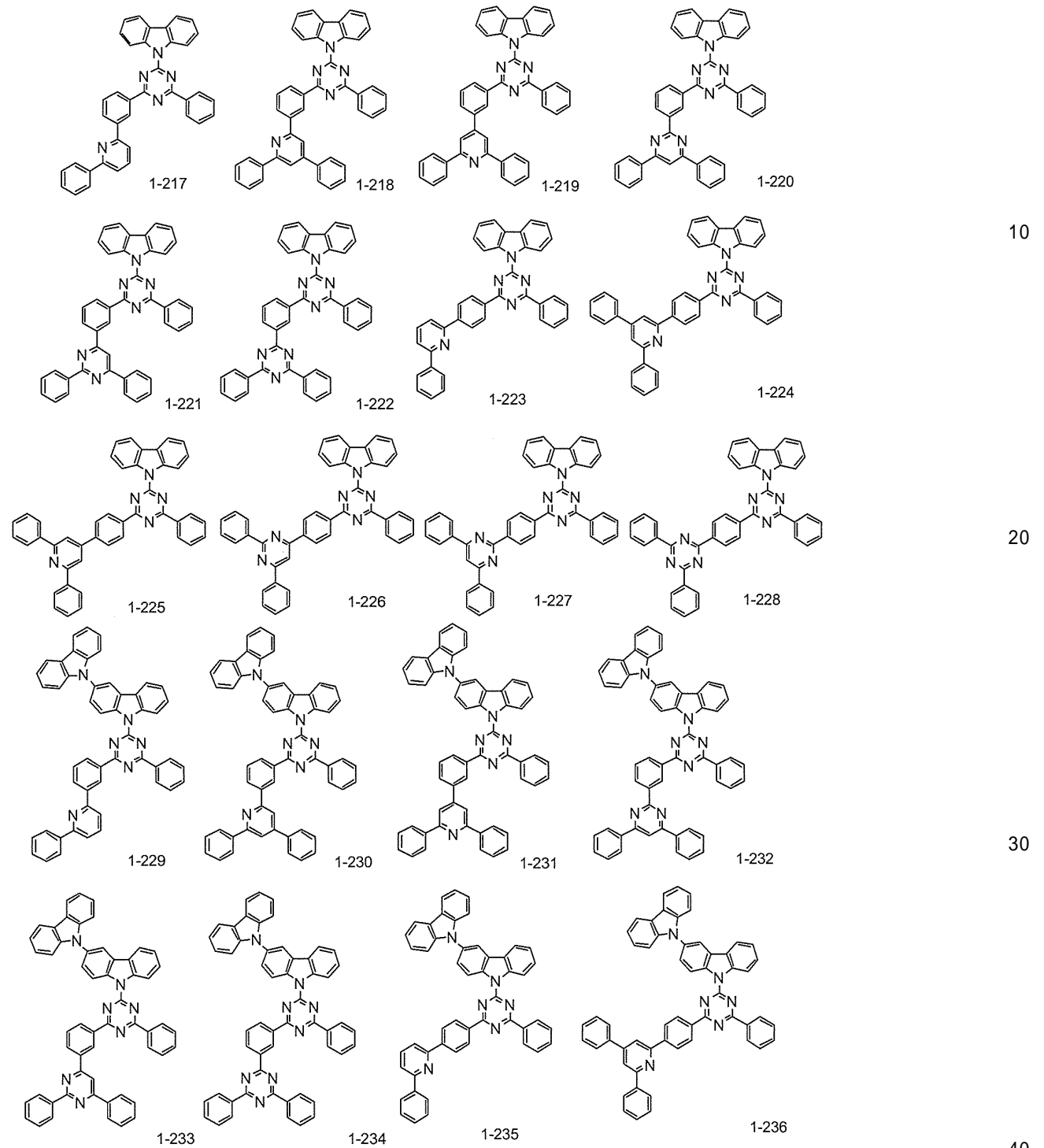
20

30

40

50

【化 2 4】



【0048】

第2ホストとなる一般式(2)、及びその好ましい態様である式(13)について、説明する。一般式(2)と式(13)において、共通する記号は同じ意味を有する。

Ar^{21} 、及び Ar^{22} は独立に、水素、置換若しくは未置換の炭素数6~14の芳香族炭化水素基、又は該芳香族炭化水素基の芳香族環が2個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基を表す。好ましくは、水素、炭素数6~12の芳香族炭化水素基であり、より好ましくは炭素数6~10の芳香族炭化水素基である。

【0049】

未置換の Ar^{21} 、及び Ar^{22} が芳香族炭化水素基、又は連結芳香族基である場合の具

体例は、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、フルオレン、ビフェニル等の芳香族炭化水素、又はこれら芳香族炭化水素の芳香族環が2個連結した化合物からHを1個とって生じる芳香族基又は連結芳香族基が挙げられる。好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレンから生じる芳香族基又はこれらの芳香族環が2個連結した連結芳香族基が挙げられ、より好ましくはベンゼン、ナフタレン、フェナントレン又はビフェニルから生じる芳香族基である。Ar^{2 1}、及びAr^{2 2}がフェニル基であることが更に好ましい。

Ar^{2 1}、及びAr^{2 2}は水素であってもよいが、その場合は、一方は上記芳香族基又は連結芳香族基であることがよい。Ar³が水素であって、Ar⁴がフェニル基であることが更に好ましい。また、上記芳香族基又は連結芳香族基は置換基を有してもよく、好ましい置換基は炭素数1~12アルキル基又は炭素数1~12アルコキシ基である。

10

【0050】

L^{2 1}及びL^{2 2}は、フェニレン基であるが、フェニレン基はo-フェニレン基、m-フェニレン基及びp-フェニレン基のいずれでもよい。好ましくは、p-フェニレン基又はm-フェニレン基である。

【0051】

一般式(2)、及び式(13)で表される化合物の具体的な例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【0052】

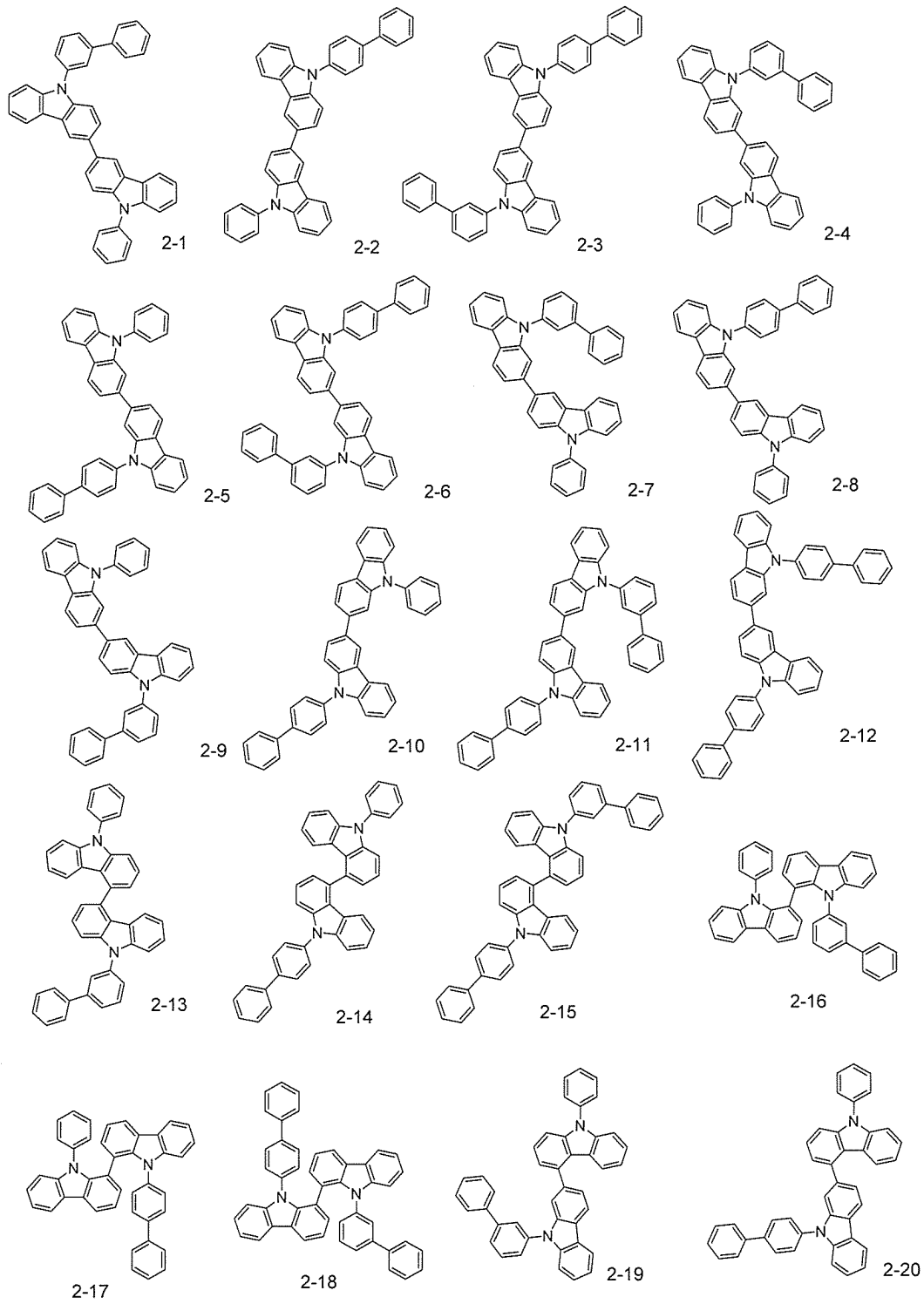
20

30

40

50

【化 2 5】



10

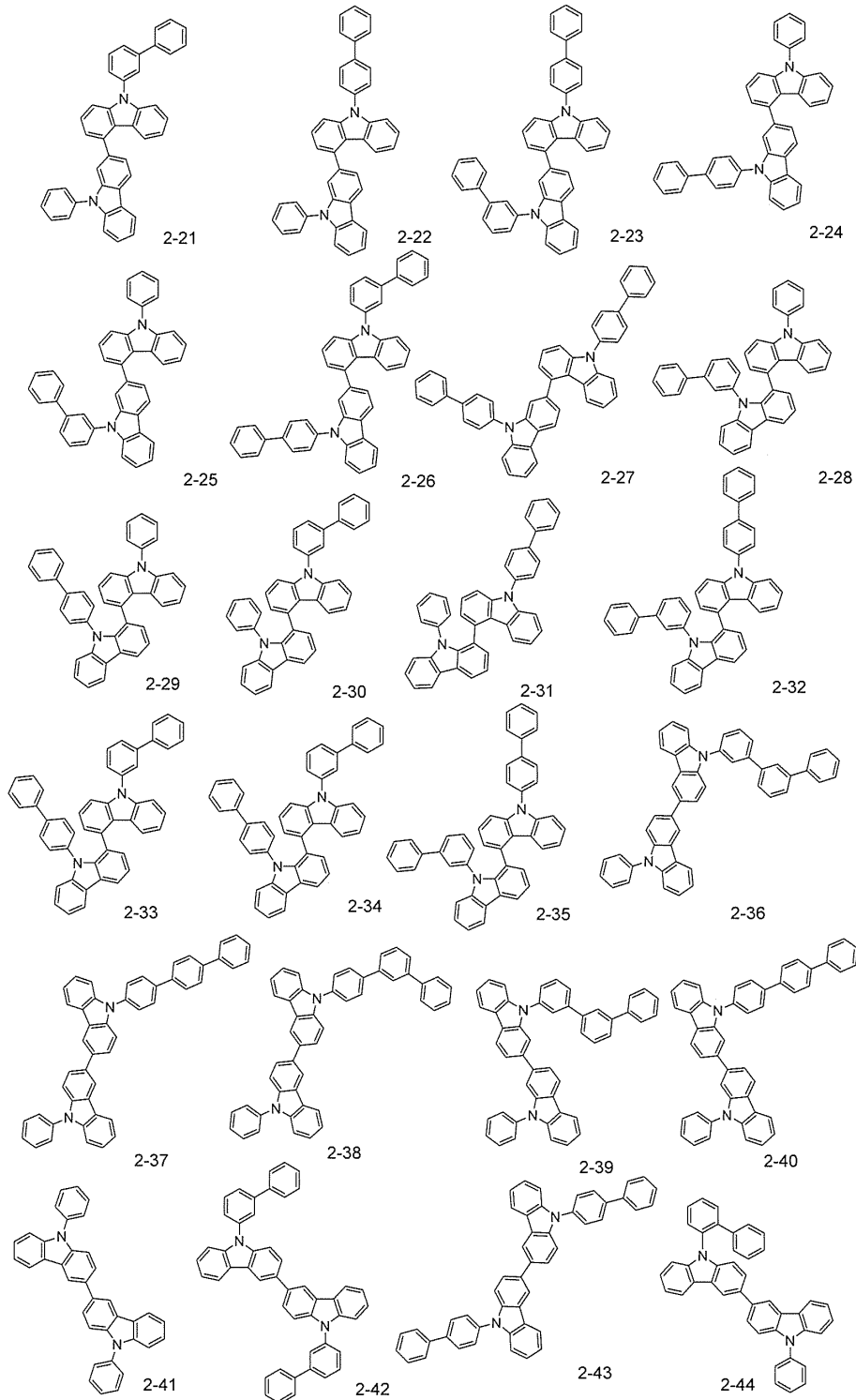
20

30

40

50

【化 2 6】



10

20

30

40

【0053】

次に、上記一般式(3)について説明する。

一般式(3)において、環cは式(3a)で表される複素環であり、環cは隣接する環と任意の位置で縮合する。

R^{03} 及び R^{32} は独立に水素、重水素、炭素数1~10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数3~16の芳香族複素環基である。好ましくは、水素、炭素数1~8の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6~10の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数3~12の芳香族複素環基である。より好ましくは、水素、炭素数1~6の脂肪族炭化水

50

素基、置換若しくは未置換のフェニル基、又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 6 の芳香族複素環基である。

【0054】

R^{03} 及び R^{32} が脂肪族炭化水素基である場合、直鎖状、分岐状、または環状であってもよく、具体例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、*t*-ブチル、ペンチル、ヘキシル、シクロヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル等が挙げられる。好ましくは、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基である。

【0055】

R^{31} は置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基、カルバゾリル基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 5 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基である。ここで、上記芳香族環は、芳香族炭化水素環とカルバゾール環から選ばれる。

10

好ましくは置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 10 の芳香族炭化水素基、カルバゾリル基、又はこれらの芳香族環が 2 ~ 3 個連結した置換若しくは未置換の連結芳香族基である。

【0056】

R^{03} 及び R^{32} が未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基である場合の具体例としては、ベンゼン、ナフタレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、イソチアゾール、チアゾール、ピリダジン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ピラジン、フラン、イソキサゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、キナゾリン、オキサジアゾール、チアジアゾール、ベンゾトリアジン、フタラジン、テトラゾール、インドール、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾトリアゾール、ベンゾイソチアゾール、ベンゾチアジアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、ジベンゾセレノフェン、又はカルバゾールから 1 個の H をとって生じる芳香族基が挙げられる。好ましくは、ベンゼン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、イソチアゾール、チアゾール、ピリダジン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ピラジン、フラン、イソキサゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、キナゾリン、オキサジアゾール、チアジアゾール、ベンゾトリアジン、フタラジン、テトラゾール、インドール、ベンゾフラン、ベンゾチオフェン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾトリアゾール、ベンゾイソチアゾール、又はベンゾチアジアゾールから生じる芳香族基が挙げられる。より好ましくは、ベンゼン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、チオフェン、イソチアゾール、チアゾール、ピリダジン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ピラジン、フラン、イソキサゾール、オキサゾール、又はオキサジアゾールから生じる芳香族基が挙げられる。

20

30

【0057】

L^{31} は独立に、置換若しくは未置換の炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基又は置換若しくは未置換の炭素数 3 ~ 16 の芳香族複素環基である。芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基の好ましい例は、これらの基が 2 個の基であることを除き R^{03} がこれらの基である場合と同様である。

40

f は繰り返し数で、1 ~ 3 の整数を表し、 g は繰り返し数で 0 ~ 3 の整数を表し、 h は置換数を表し、各々独立して 1 ~ 7 の整数を表す。好ましくは、 f は 1 であり、 g は 0 ~ 1 であり、 h は 1 ~ 2 である。

【0058】

一般式 (3) で表される化合物が、上記式 (14) 又は式 (15) で表される化合物であることが好ましい。

式 (14) 又は式 (15) において、環 c 、 R^{03} 、 R^{32} 、 $A r^{31}$ 、 g 及び h は一般式 (3) と同意である。

【0059】

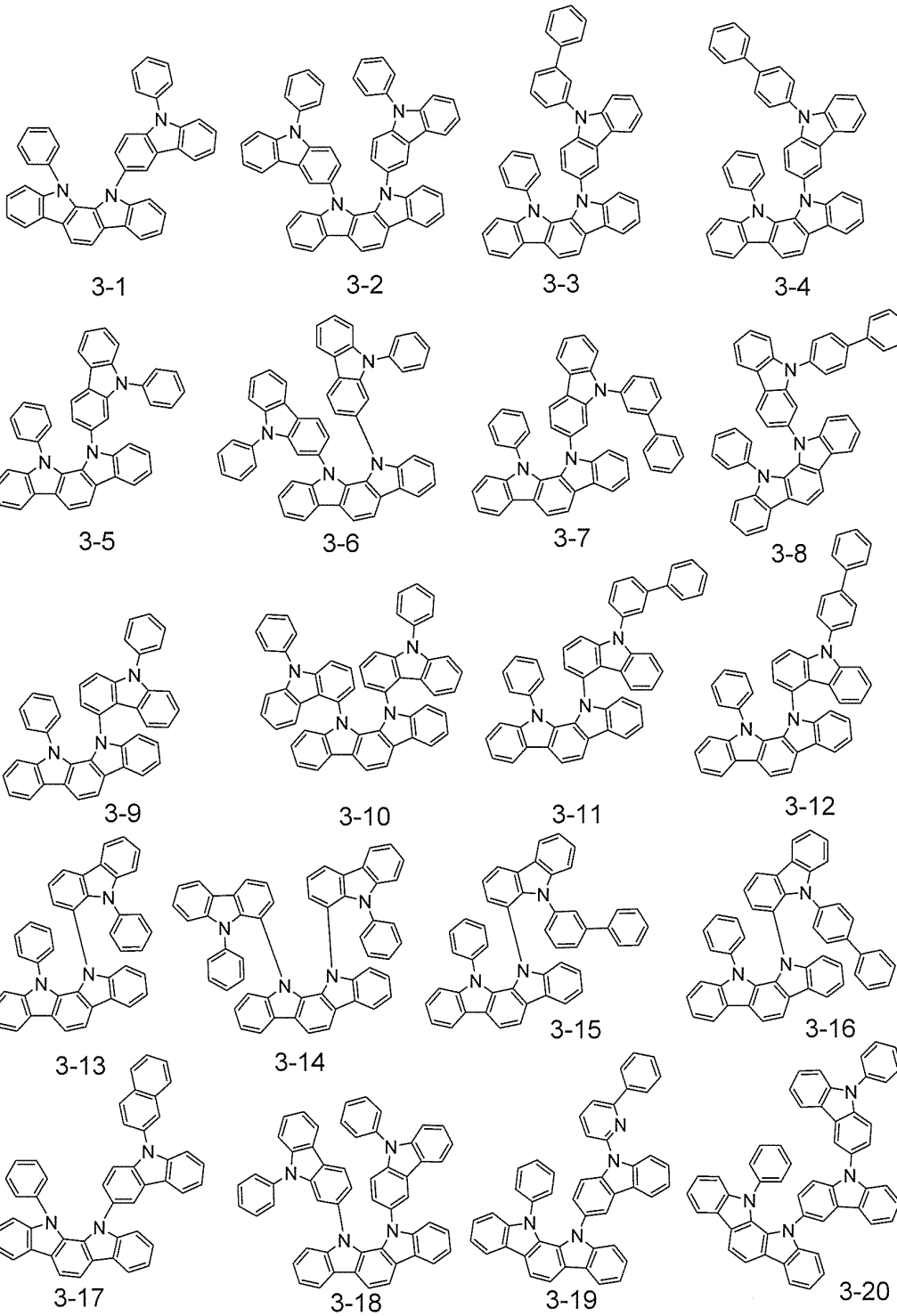
一般式 (3) で表されるインドロカルバゾール化合物の具体例を以下に示すが、これら

50

に限定されるものではない

【 0 0 6 0 】

【 化 2 7 】



10

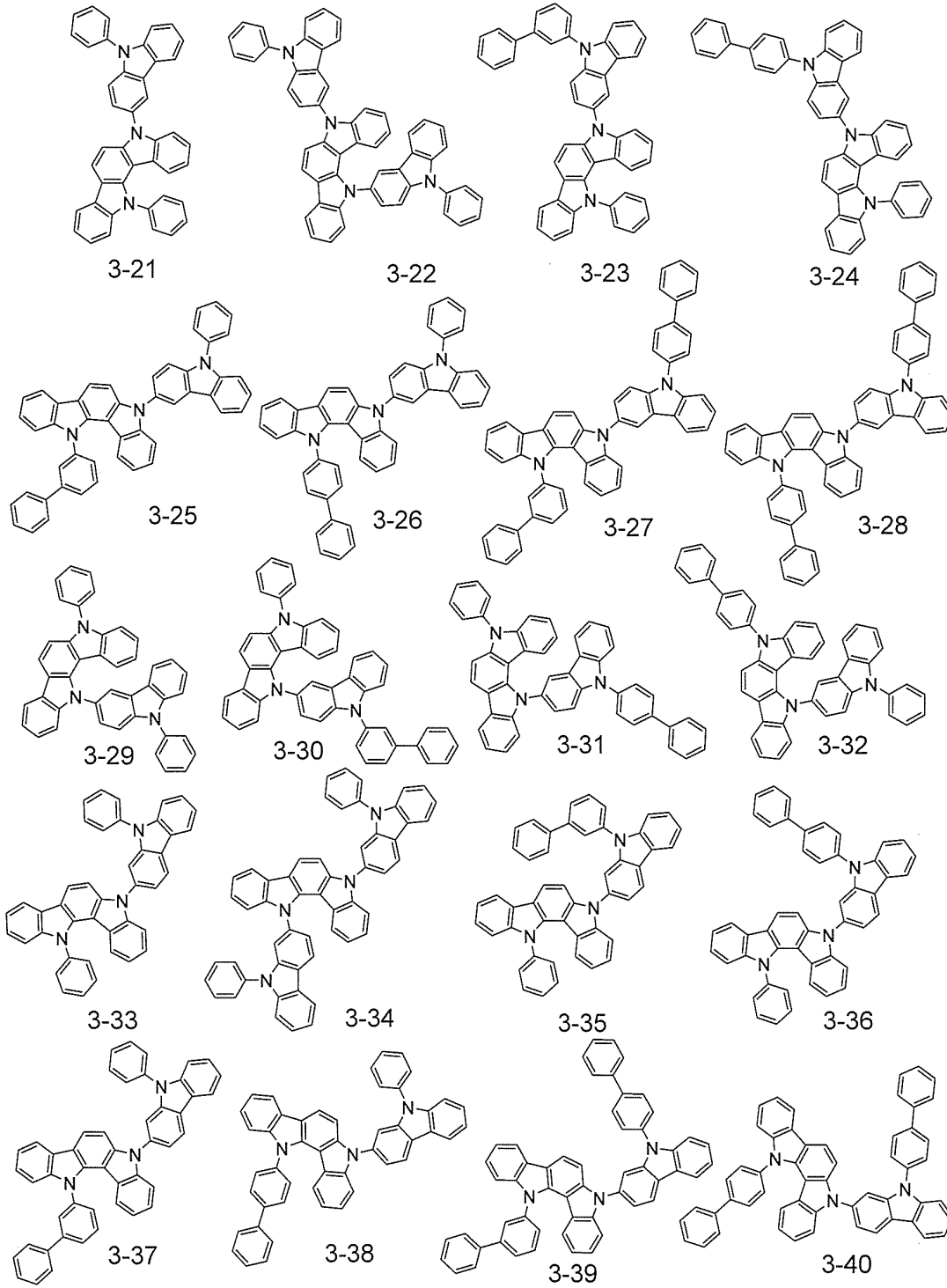
20

30

40

50

【化 2 8】



10

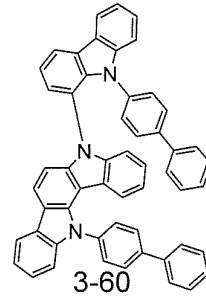
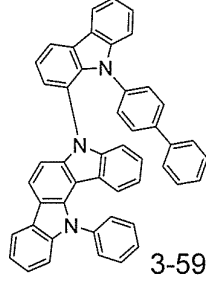
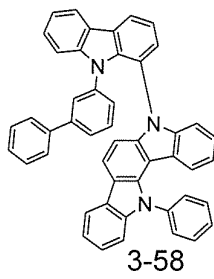
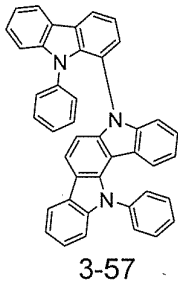
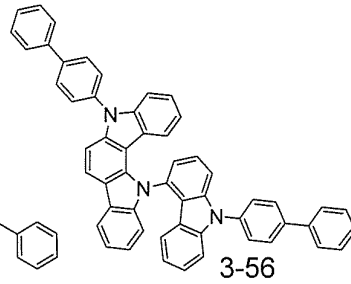
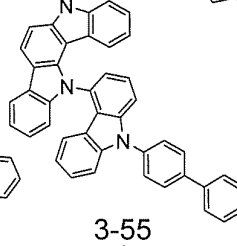
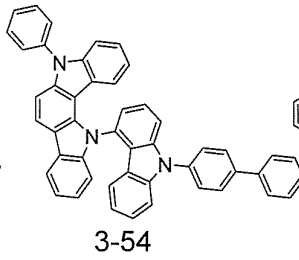
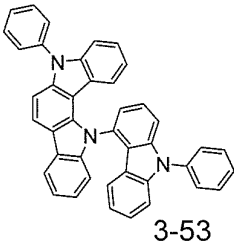
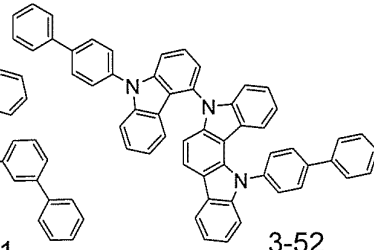
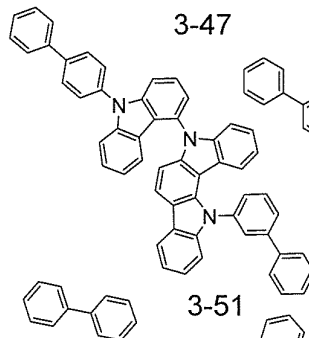
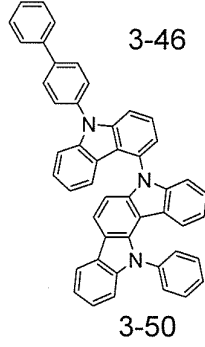
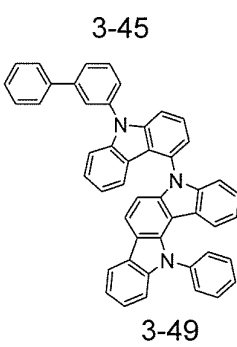
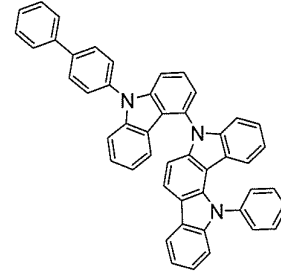
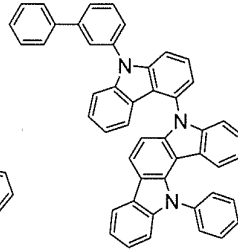
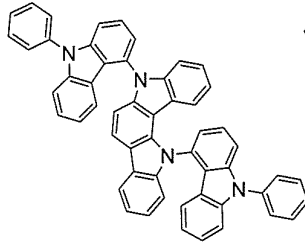
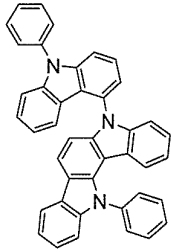
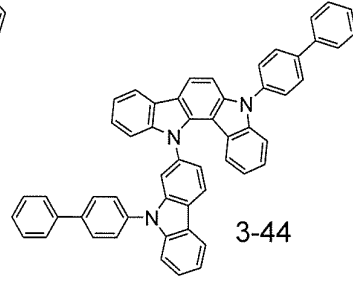
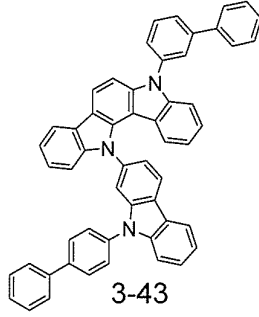
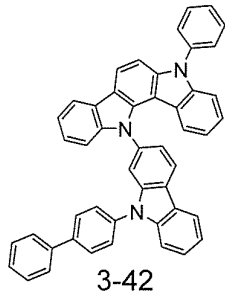
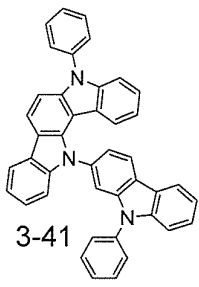
20

30

40

50

【化 2 9】



10

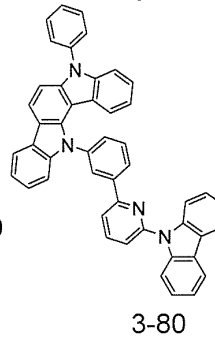
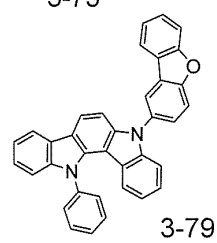
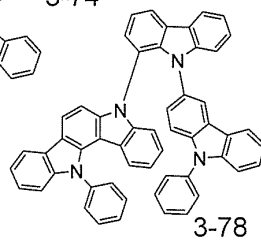
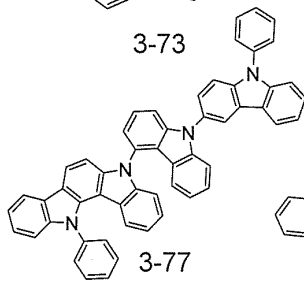
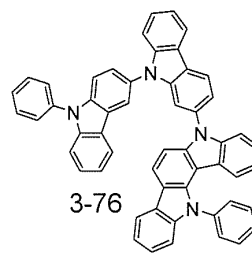
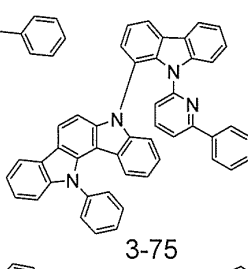
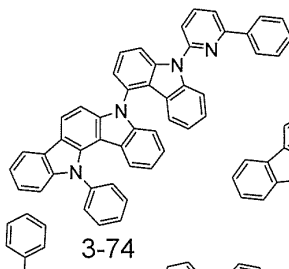
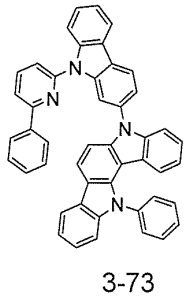
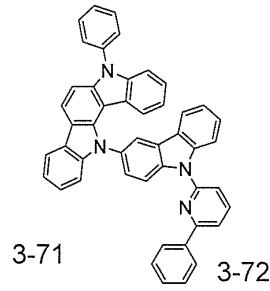
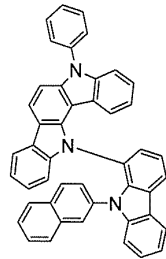
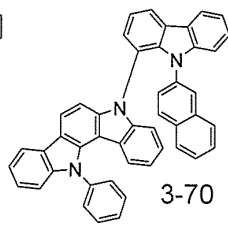
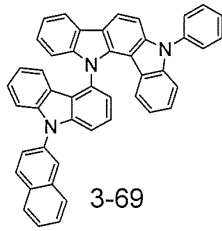
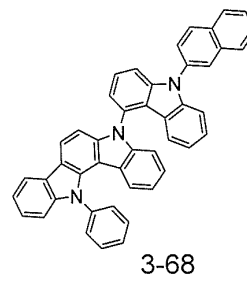
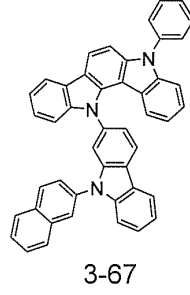
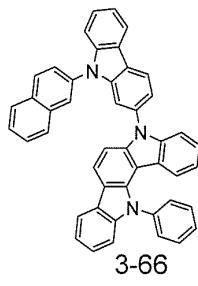
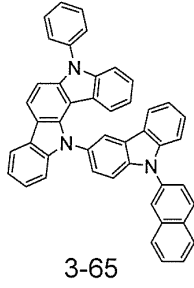
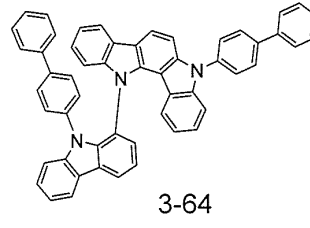
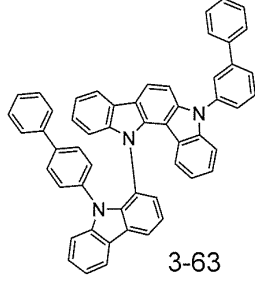
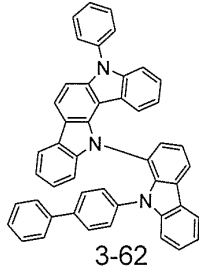
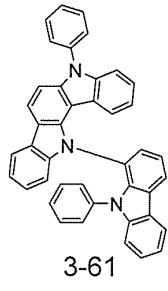
20

30

40

50

【化 3 0】



10

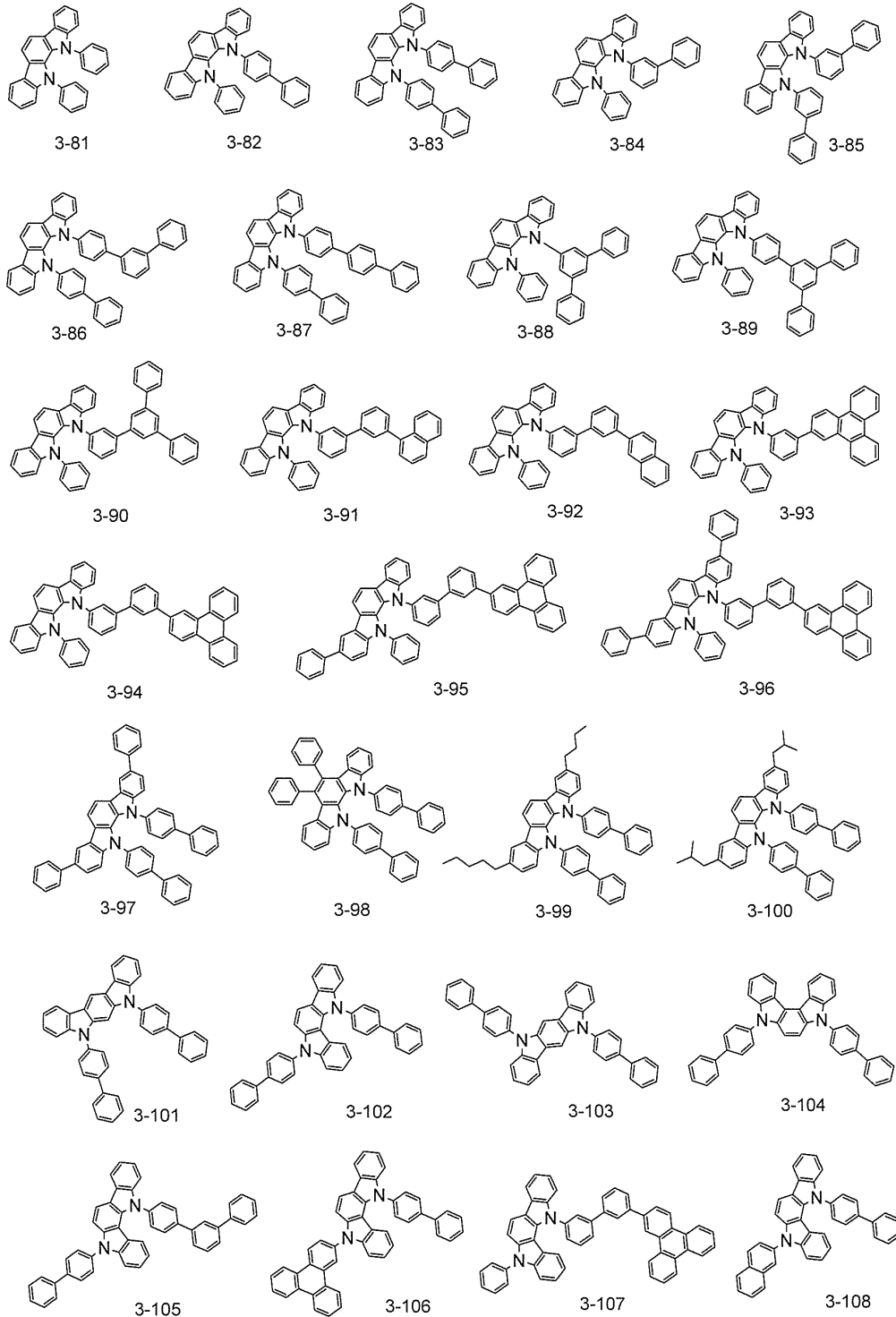
20

30

40

50

【化 3 1】



10

20

30

40

【0061】

次に、上記一般式(4)について説明する。

一般式(4)において、 L^{41} は置換若しくは未置換の炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数3~5の芳香族複素環基、又はこれらの芳香族環が2~5連結してなる連結芳香族基である。

芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基である場合の具体例としては、ベンゼン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、ペンタレン、インデン、ナフタレン、アズレン、ヘプタレン、オクタレン、インダセン、アセナフチレン、フェナレン、フェナンスレン、アントラセン、トリンデン、フルオランテン、アセフェナントリレン、アセアントリレン、トリフ

50

エニレン、ピレン、クリセン、テトラフェン、テトラセン、プレイアデン、ピセン、ペリレン、ペンタフェン、ペンタセン、テトラフェニレン、コラントリレン、ヘリセン、ヘキサフェン、ルビセン、コロネン、トリナフチレン、ヘプタフェン、ピラントレン、アントラセン、ピフェニル、又はターフェニルから生じる基が挙げられる。より好ましくは、ベンゼン、ピフェニル、又はターフェニルから生じる基である。

【0062】

R⁴¹は、それぞれ独立して水素、重水素、炭素数1～10の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の炭素数6～30の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の炭素数3～16の芳香族複素環基であるが、カルバゾール基であることはない。有利にはカルバゾール環を含む基であることはない。

10

R⁴¹が脂肪族炭化水素基である場合、直鎖状、分岐状、または環状であってもよく、具体例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、t-ブチル、ペンチル、ヘキシル、シクロヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル等が挙げられる。好ましくは、炭素数1～4のアルキル基である。

【0063】

R⁴¹が未置換の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基である場合の具体例としては、ベンゼン、ペンタレン、インデン、ナフタレン、アズレン、ヘプタレン、オクタレン、インダセン、アセナフチレン、フェナレン、フェナンスレン、アントラセン、トリンデン、フルオランテン、アセフェナントリレン、アセアントリレン、トリフェニレン、ピレン、クリセン、テトラフェン、テトラセン、プレイアデン、ピセン、ペリレン、ペンタフェン、ペンタセン、テトラフェニレン、コラントリレン、ヘリセン、ヘキサフェン、ルビセン、コロネン、トリナフチレン、ヘプタフェン、ピラントレン、フラン、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、キサントレン、オキサトレン、ジベンゾフラン、ペリキサントレン、チオフエン、チオキサントレン、チアントレン、フェノキサチイン、チオナフテン、イソチアナフテン、チオフテン、チオファントレン、ジベンゾチオフエン、ピロール、ピラゾール、テルラゾール、セレナゾール、チアゾール、イソチアゾール、オキサゾール、フラザン、インドリジン、インドール、イソインドール、インダゾール、プリン、キノリジン、イソキノリン、イミダゾール、ナフチリジン、フタラジン、ベンゾジアゼピン、キノキサリン、シンノリン、キノリン、プテリジン、フェナントリジン、アクリジン、ペリミジン、フェナントロリン、フェナジン、カルボリン、フェノテルラジン、フェノセレナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、アンチリジン、ベンゾチアゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾイソオキサゾール、又はベンゾイソチアゾール等から1個のHを取って生じる基が挙げられる。

20

30

【0064】

yは置換数で、1～4の整数を表す。好ましくは1又は2であり、より好ましくは1である。xは繰り返し数であり、それぞれ独立して1～4の整数を表す。好ましくは、1～3である。しかし、少なくとも1つのxは2～4の整数である。

【0065】

一般式(4)において、式中に少なくとも1つの式(4a)又は式(4b)で表される結合構造を有することが好ましい。カルバゾリル基間の全ての結合構造が式(4a)、又は式(4b)で表される結合構造であることがより好ましい。

40

xの総和(カルバゾリル基の総数)は2～12の整数であるが、好ましくは2～9であり、より好ましくは2～6である。

式(4a)又は式(4b)において、一般式(4)と共通する記号は同じ意味を有する。

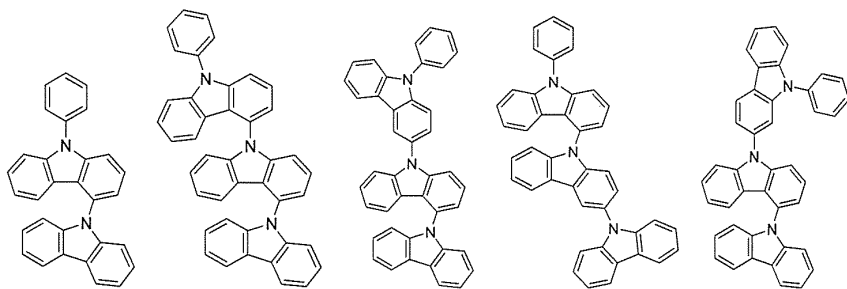
【0066】

一般式(4)で表されるカルバゾール化合物の具体例を以下に示すが、これらに限定されるものではない

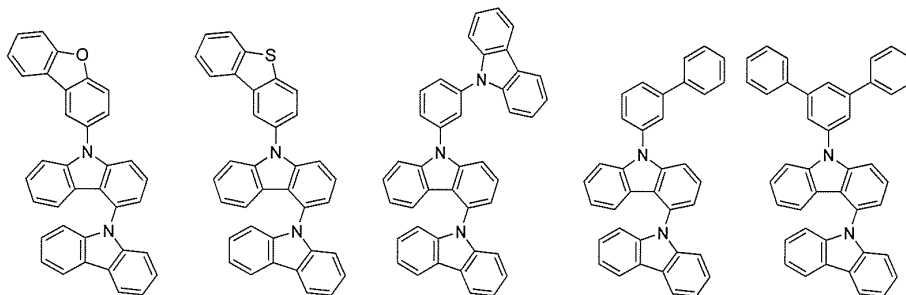
【0067】

50

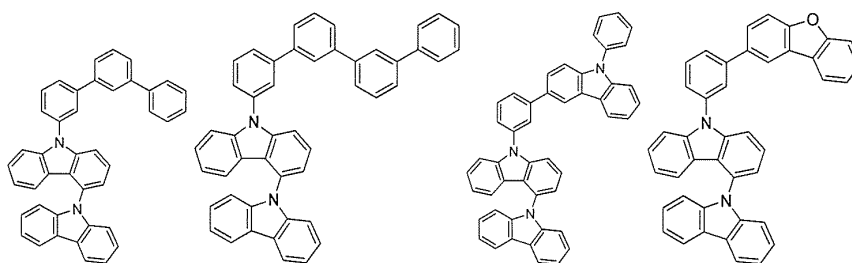
【化 3 2】



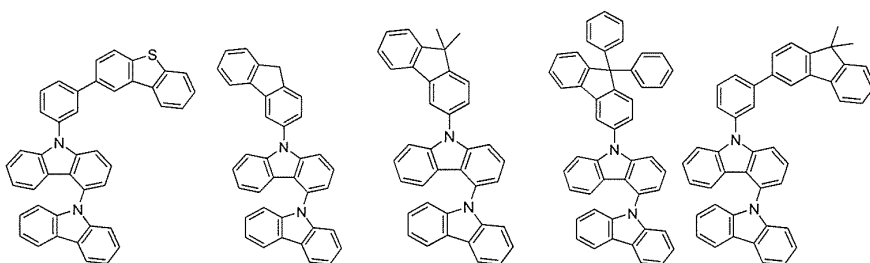
10



20

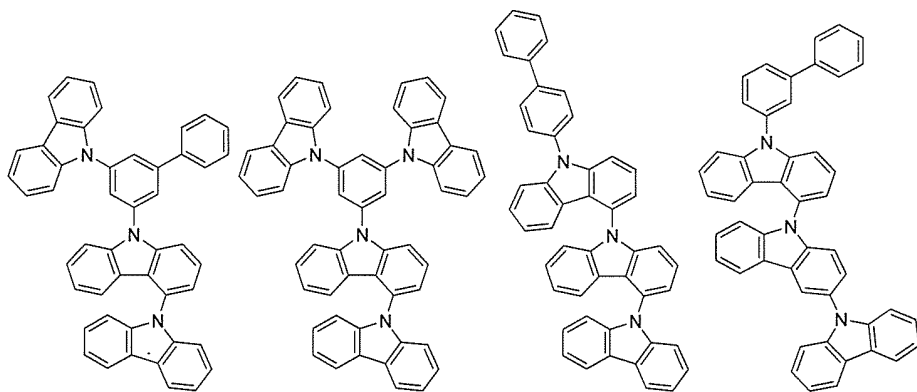


30



40

【化 3 3】



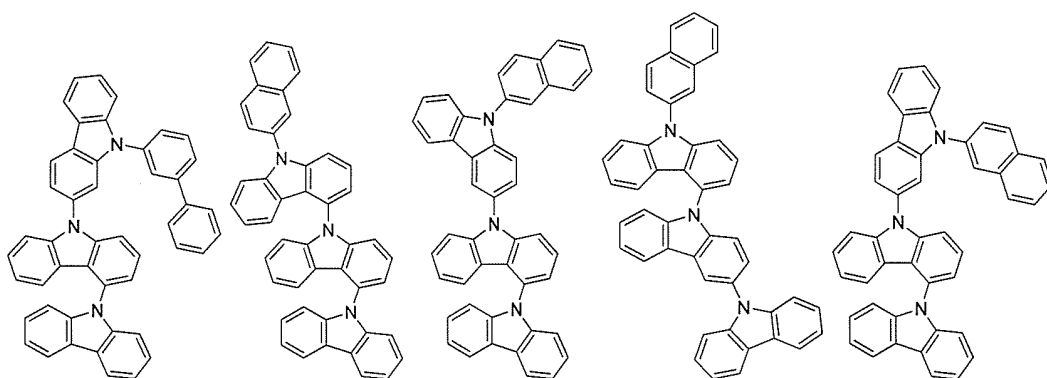
4-19b

4-20

4-21

4-22

10



4-23

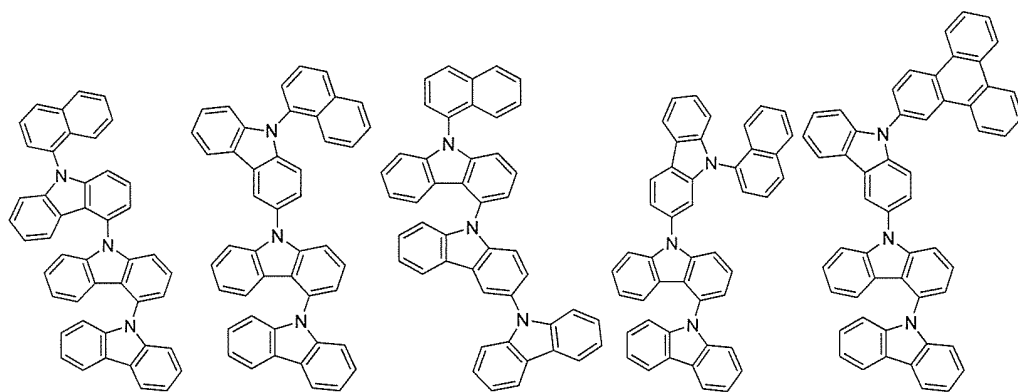
4-24

4-25

4-26

4-27

20



4-28

4-29

4-30

4-31

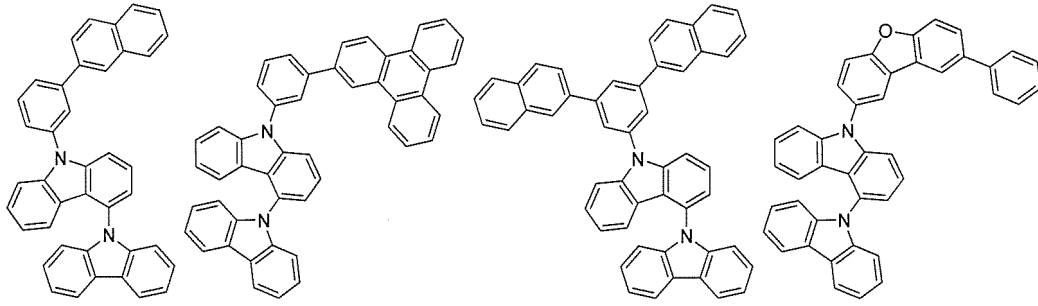
4-32

30

40

50

【化 3 4】



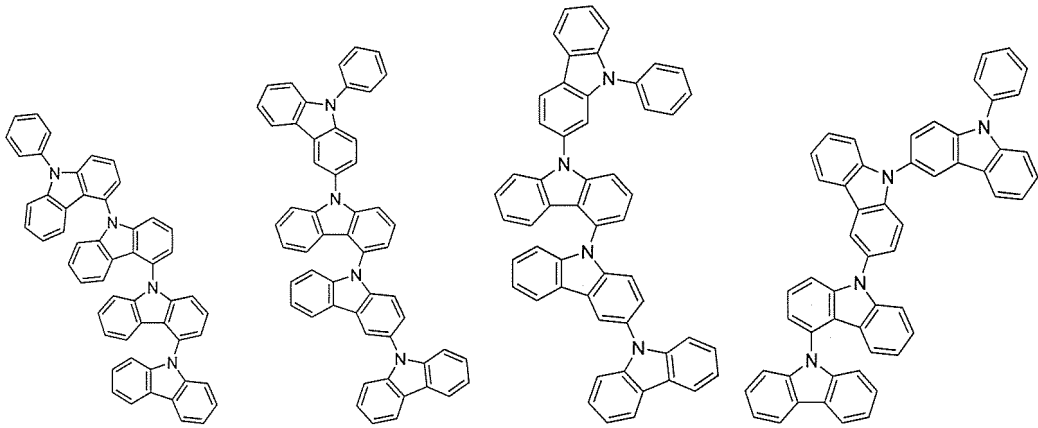
4-33

4-34

4-35

4-36

10



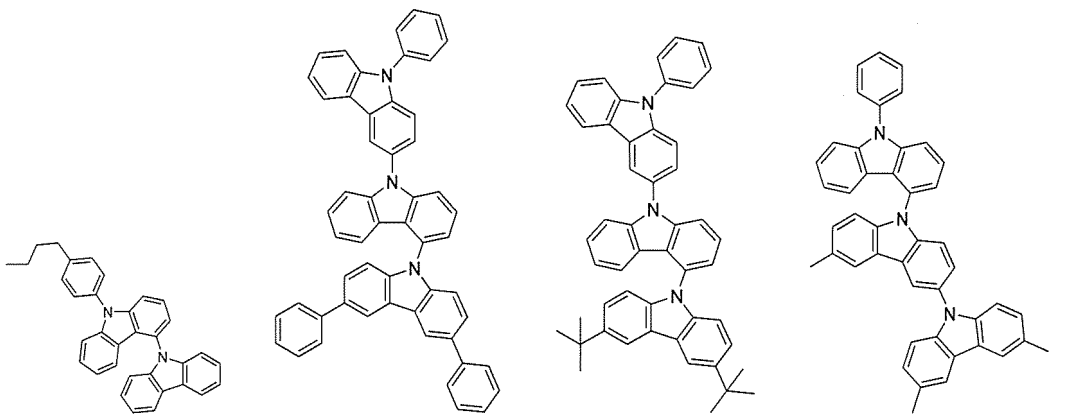
4-37

4-38

4-39

4-40

20



4-41

4-42

4-43

4-44

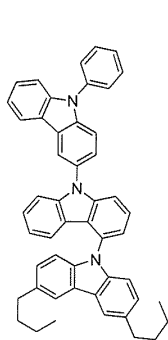
30

【 0 0 6 8】

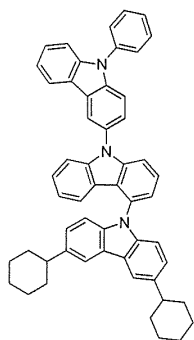
40

50

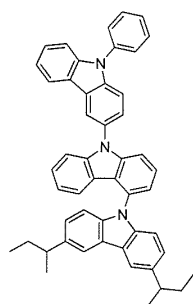
【化 3 5】



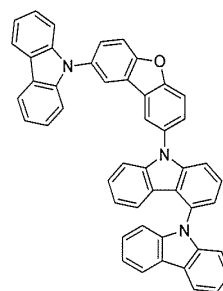
4-45



4-46

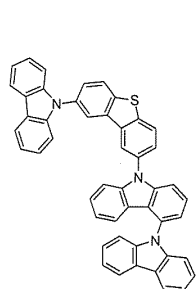


4-47

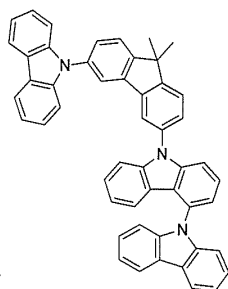


4-48

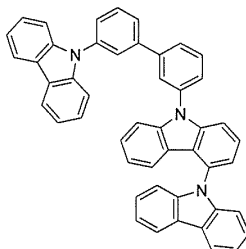
10



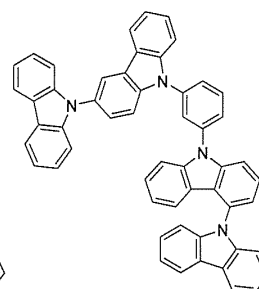
4-49



4-50

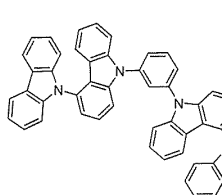


4-51

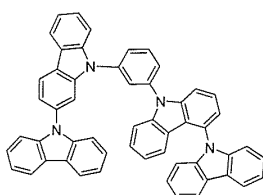


4-52

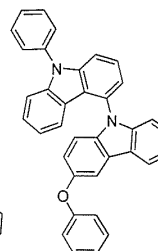
20



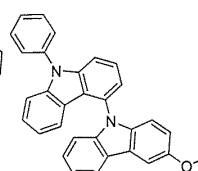
4-53



4-54

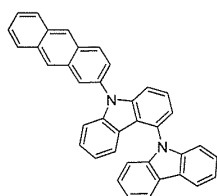


4-55

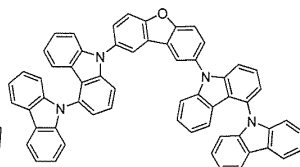


4-56

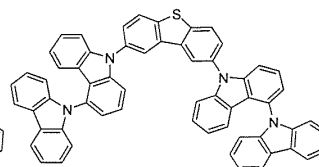
30



4-57



4-58

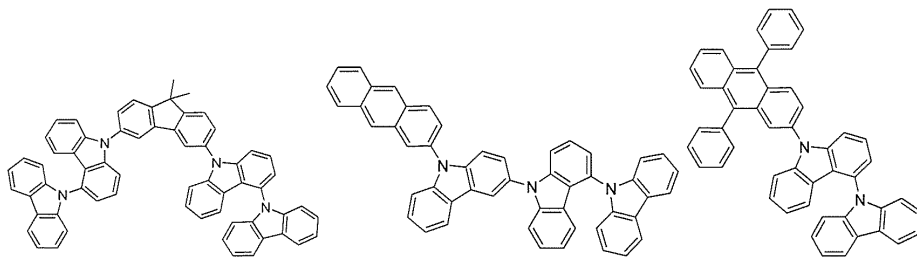


4-59

40

50

【化 3 6】

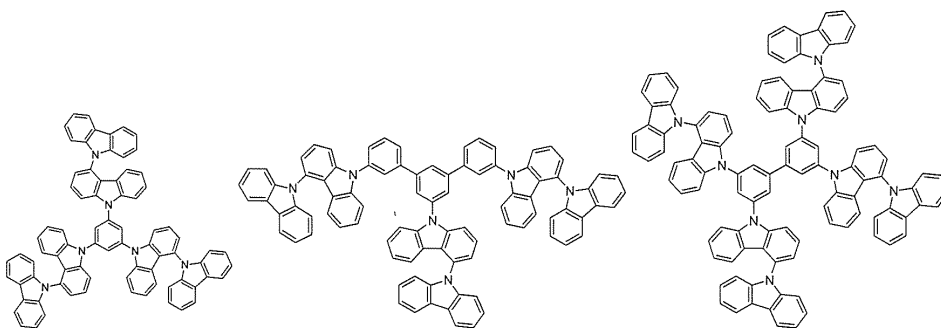


4-60

4-61

4-62

10

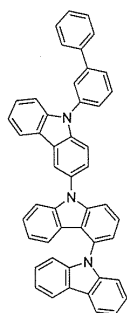


4-63

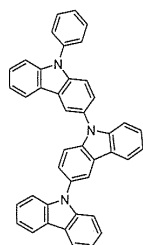
4-64

4-65

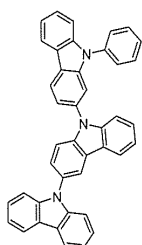
20



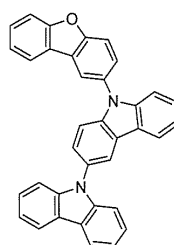
4-66



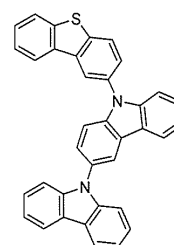
4-67



4-68

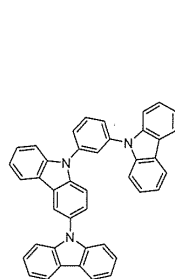


4-69

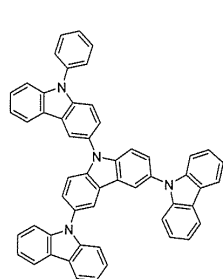


4-70

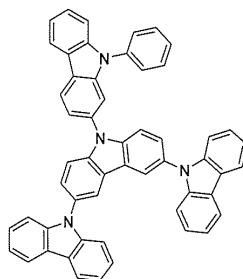
30



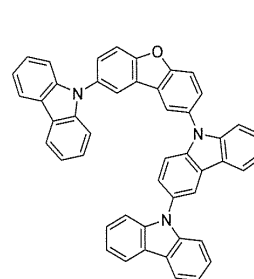
4-71



4-72



4-73

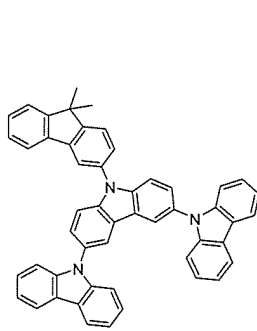


4-74

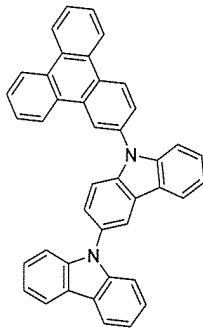
40

50

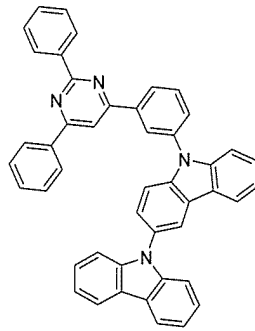
【化 3 7】



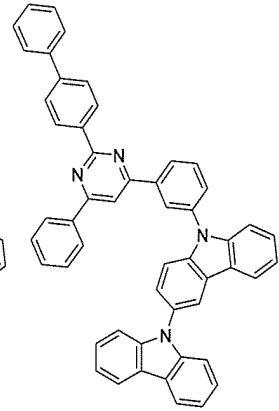
4-75



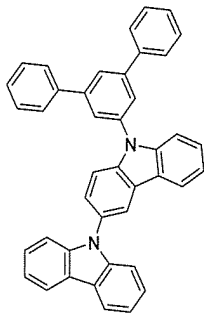
4-76



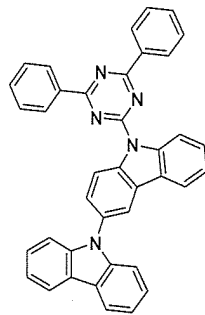
4-77



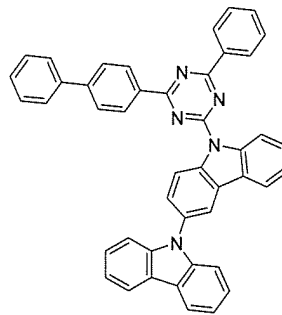
4-78



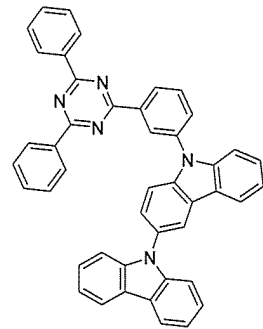
4-79



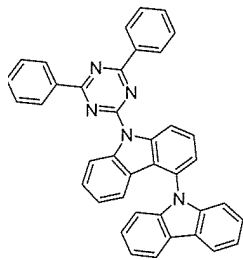
4-80



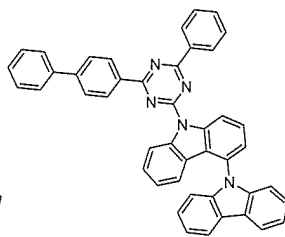
4-81



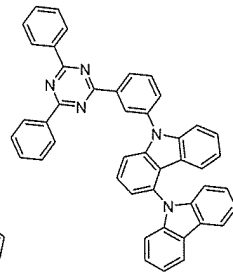
4-82



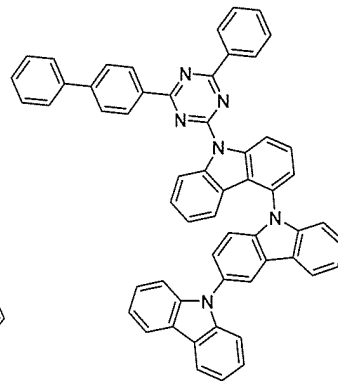
4-83



4-84



4-85



4-86

【0069】

前記一般式(1)で表される化合物から選ばれる第1ホストと前記一般式(2)、(3)、又は(4)で表される化合物から選ばれる第2ホストを発光層のホスト材料として使用することで優れた有機EL素子を提供することができる。

【0070】

第1ホストと第2ホストは、個々に異なる蒸着源から蒸着するなどして使用することもできるが、蒸着前に予備混合して有機EL素子用の組成物(予備混合物ともいう。)とし、その予備混合物を1つの蒸着源から同時に蒸着して発光層を形成することが好ましい。この場合、予備混合物には、発光層を形成するために必要な発光性ドーパント材料又は必要により使用される他のホストを混合させてもよいが、所望の蒸気圧となる温度に大きな差がある場合は、別の蒸着源から蒸着させることがよい。

10

20

30

40

50

【0071】

予備混合の方法としては可及的に均一に混合できる方法が望ましく、粉碎混合や、減圧下又は窒素のような不活性ガス雰囲気下で加熱溶解させる方法や、昇華等が挙げられるが、これらの方法に限定されるものではない。

【0072】

また、第1ホストと第2ホストの混合比(重量比)は、第1ホストと第2ホストの合計に対し、第1ホストの割合が20~60%がよく、好ましくは20%よりも多く、55%よりも少ないことであり、より好ましくは40~50%である。

【0073】

また、第一ホストと第二ホストの電子親和力(EA)絶対値の差が0.1eVよりも大きく、0.6eVよりも小さいことが好ましい。EAの値は、ホスト材料薄膜での、光電子分光法により得られたイオン化ポテンシャル(IP)の値と、吸収スペクトルを測定し、その吸収端から求めたエネルギーギャップの値を用いて算出することができる。

10

【0074】

次に、本発明の有機EL素子の構造について、図面を参照しながら説明するが、本発明の有機EL素子の構造はこれに限定されない。

【0075】

図1は本発明に用いられる一般的な有機EL素子の構造例を示す断面図であり、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を表す。本発明の有機EL素子は発光層と隣接して励起子阻止層を有してもよく、また発光層と正孔注入層との間に電子阻止層を有してもよい。励起子阻止層は発光層の陰極側、陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。本発明の有機EL素子では、陽極、発光層、そして陰極を必須の層として有するが、必須の層以外に正孔注入輸送層、電子注入輸送層を有することがよく、更に発光層と電子注入輸送層の間に正孔阻止層を有することがよい。なお、正孔注入輸送層は、正孔注入層と正孔輸送層のいずれか、または両者を意味し、電子注入輸送層は、電子注入層と電子輸送層のいずれか又は両者を意味する。

20

【0076】

図1とは逆の構造、すなわち基板1上に陰極7、電子輸送層6、発光層5、正孔輸送層4、陽極2の順に積層することも可能であり、この場合も必要により層を追加、省略することが可能である。

30

【0077】

基板

本発明の有機EL素子は、基板に支持されていることが好ましい。この基板については特に制限はなく、従来から有機EL素子に用いられているものであれば良く、例えばガラス、透明プラスチック、石英等からなるものを用いることができる。

【0078】

陽極

有機EL素子における陽極材料としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物からなる材料が好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキサイド(ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In₂O₃-ZnO)等の非晶質で、透明導電膜を作成可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極材料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良く、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合(100μm以上程度)は、上記電極材料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な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 / 以下が好ましい。膜厚は材料にもよるが、通常10~1000nm、好まし

40

50

くは10～200nmの範囲で選ばれる。

【0079】

陰極

一方、陰極材料としては仕事関数の小さい(4eV以下)金属(電子注入性金属)、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物からなる材料が用いられる。このような電極材料の具体例としては、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。陰極はこれらの陰極材料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、陰極としてシート抵抗は数百Ω以下が好ましく、膜厚は通常10nm～5μm、好ましくは50～200nm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は向上し、好都合である。

10

【0080】

また、陰極に上記金属を1～20nmの膜厚で形成した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に形成することで、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。

20

【0081】

発光層

発光層は陽極及び陰極のそれぞれから注入された正孔及び電子が再結合することにより励起子が生成した後、発光する層であり発光層には有機発光性ドーパント材料とホストを含む。

【0082】

ホストには、上記第1ホストと第2ホストを使用する。

第1ホストしての一般式(1)で表される化合物は、1種を使用してもよく、2種以上を使用してもよい。同様に、第2ホストしての一般式(2)～(4)で表されるカルバゾール化合物又はインドロカルバゾール化合物は1種を使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

30

必要により、公知のホスト材料を1種又は複数種類併用しても良いが、その使用量はホスト材料の合計に対し、50wt%以下、好ましくは25wt%以下とすることがよい。

他の材料をホストとして使用してもよい。

【0083】

第1ホストと第2ホストは、それぞれ異なる蒸着源から蒸着するか、蒸着前に予備混合して予備混合物とすることで1つの蒸着源から第1ホストと第2ホストを同時に蒸着することもできる。

40

【0084】

ホストを複数種使用する場合は、それぞれのホストを異なる蒸着源から蒸着するか、蒸着前に予備混合して予備混合物とすることで1つの蒸着源から複数種のホストを同時に蒸着することもできる。

【0085】

第1ホストと第2ホストを予備混合して使用する場合は、良好な特性を有する有機EL素子を再現性良く作製するために、50%重量減少温度(T_{50})の差が小さいことが望ましい。50%重量減少温度は、窒素気流減圧(1Pa)下でのTG-DTA測定において、室温から毎分10℃の速度で550℃まで昇温したとき、重量が50%減少した際の温度をいう。この温度付近では、蒸発又は昇華による気化が最も盛んに起こると考えられる。

50

【 0 0 8 6 】

第1ホストと第2ホストは、上記50%重量減少温度の差が20 以内であることが好ましく、15 以内であることがより好ましい。予備混合方法としては、粉碎混合等の公知の方法が採用できるが、可及的に均一に混合することが望ましい。

【 0 0 8 7 】

発光性ドーパント材料として燐光発光ドーパントを使用する場合、燐光発光ドーパントとしては、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金及び金から選ばれる少なくとも1つの金属を含む有機金属錯体を含有するものがよい。具体的には、J.Am.Chem.Soc.2001,123,4304や特表2013-53051号公報に記載されているイリジウム錯体が好適に用いられるが、これらに限定されない。

10

【 0 0 8 8 】

燐光発光ドーパント材料は、発光層中に1種類のみが含有されても良いし、2種類以上を含有しても良い。燐光発光ドーパント材料の含有量はホスト材料に対して0.1~30 wt%であることが好ましく、1~20 wt%であることがより好ましい。

【 0 0 8 9 】

燐光発光ドーパント材料は、特に限定されるものではないが、具体的には以下のような例が挙げられる

【 0 0 9 0 】

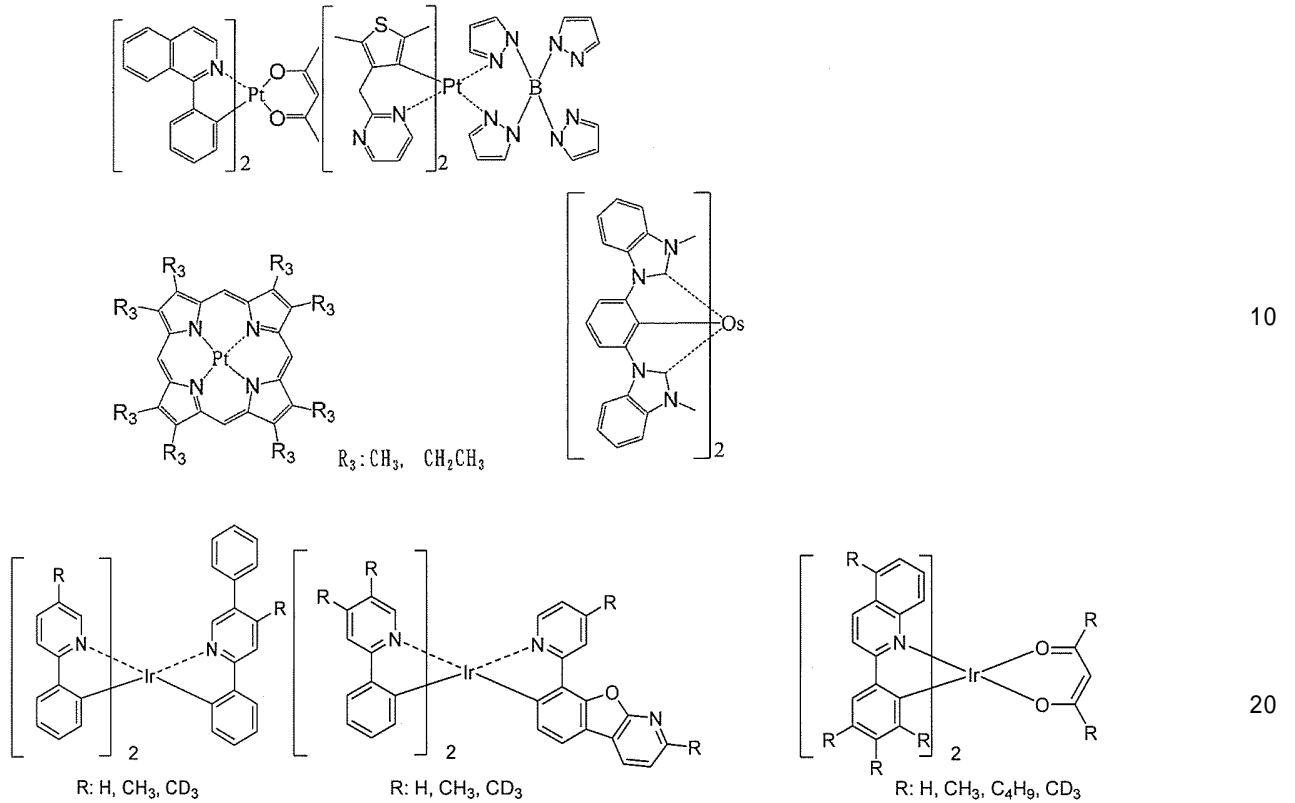
20

30

40

50

【化 3 9】



【0091】

発光性ドーパント材料として蛍光発光ドーパントを使用する場合、蛍光発光ドーパントとしては、特に限定されないが例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフトアルイミド誘導体、クマリン誘導体、縮合芳香族化合物、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサジン誘導体、アルダジン誘導体、ピロリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体やピロメテン誘導体の金属錯体、希土類錯体、遷移金属錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体等が挙げられる。好ましくは縮合芳香族誘導体、スチリル誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、オキサジン誘導体、ピロメテン金属錯体、遷移金属錯体、又はランタノイド錯体が挙げられ、より好ましくはナフタレン、ピレン、クリセン、トリフェニレン、ベンゾ[c]フェナントレン、ベンゾ[a]アントラセン、ペンタセン、ペリレン、フルオランテン、アセナフソフルオランテン、ジベンゾ[a,j]アントラセン、ジベンゾ[a,h]アントラセン、ベンゾ[a]ナフタレン、ヘキサセン、ナフト[2,1-f]イソキノリン、ナフトフェナントリジン、フェナントロオキサゾール、キノリノ[6,5-f]キノリン、ベンゾチオファントレン等が挙げられる。これらは置換基としてアルキル基、アリール基、芳香族複素環基、又はジアリールアミノ基を有しても良い。

【0092】

蛍光発光ドーパント材料は、発光層中に1種類のみが含有されても良いし、2種類以上を含有しても良い。蛍光発光ドーパント材料の含有量は、ホスト材料に対して0.1~20 wt%であることが好ましく、1~10 wt%であることがより好ましい。

【0093】

発光性ドーパント材料として熱活性化遅延蛍光発光ドーパントを使用する場合、熱活性

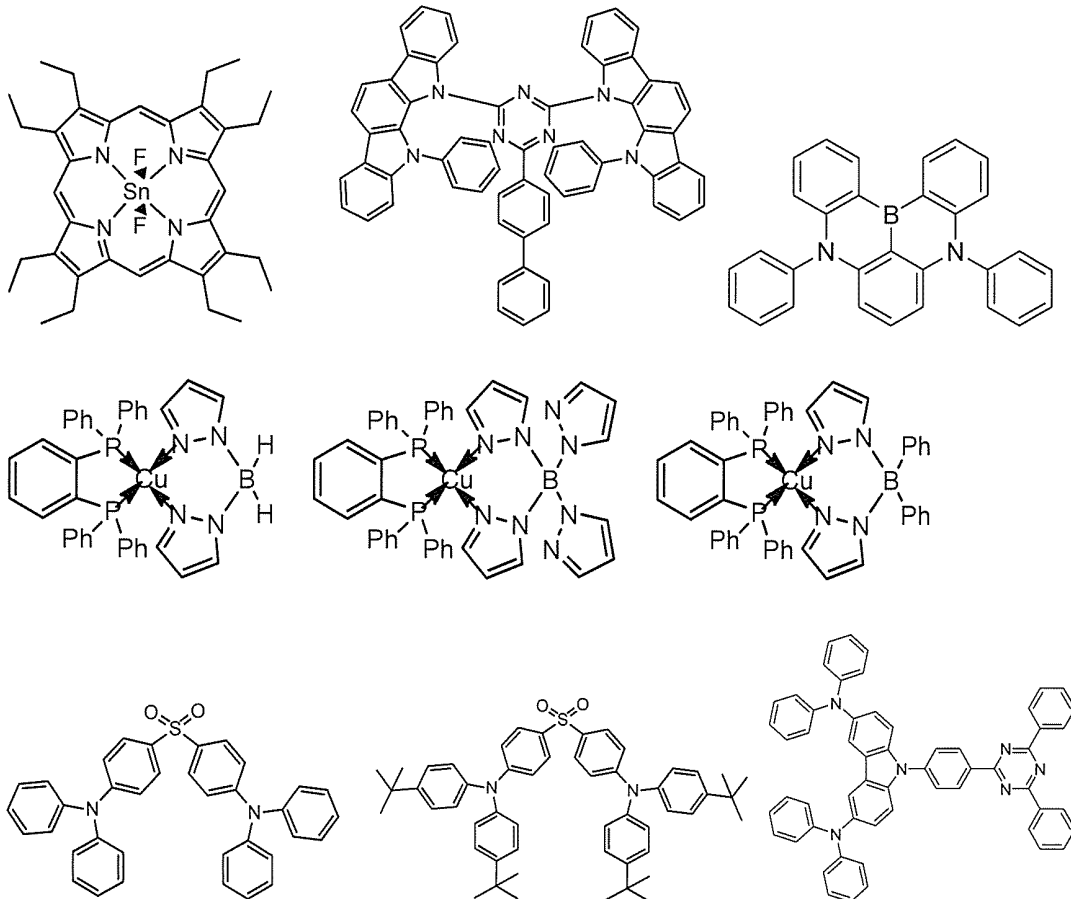
化遅延蛍光発光ドーパントとしては、特に限定されないがスズ錯体や銅錯体等の金属錯体や、WO2011/070963Aに記載のインドロカルバゾール誘導体、Nature 2012,492,234に記載のシアノベンゼン誘導体、カルバゾール誘導体、Nature Photonics 2014,8,326に記載のフェナジン誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、スルホン誘導体、フェノキサジン誘導体、アクリジン誘導体等が挙げられる。

【0094】

熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料は、特に限定されるものではないが、具体的には以下のような例が挙げられる。

【0095】

【化40】



【0096】

熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料は、発光層中に1種類のみが含有されてもよいし、2種類以上を含有してもよい。また、熱活性化遅延蛍光発光ドーパントは燐光発光ドーパントや蛍光発光ドーパントと混合して用いてもよい。熱活性化遅延蛍光発光ドーパント材料の含有量は、ホスト材料に対して0.1~50%であることが好ましく、1~30%であることがより好ましい。

【0097】

- 注入層 -

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、正孔注入層と電子注入層があり、陽極と発光層又は正孔輸送層の間、及び陰極と発光層又は電子輸送層との間に存在させてもよい。注入層は必要に応じて設けることができる。

【0098】

- 正孔阻止層 -

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り、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで発光層中での電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0099】

正孔阻止層には、公知の正孔阻止層材料を用いることができるが、一般式(1)で表される化合物を含有させることが好ましい。

【0100】

- 電子阻止層 -

電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで発光層中での電子と正孔が再結合する確率を向上させることができる。

10

【0101】

電子阻止層の材料としては、公知の電子阻止層材料を用いることができ、また後述する正孔輸送層の材料を必要に応じて用いることができる。電子阻止層の膜厚は好ましくは3~100nmであり、より好ましくは5~30nmである。

【0102】

- 励起子阻止層 -

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は2つ以上の発光層が隣接する素子において、隣接する2つの発光層の間に挿入することができる。

20

【0103】

励起子阻止層の材料としては、公知の励起子阻止層材料を用いることができる。例えば、1,3-ジカルバゾリルベンゼン(mCP)や、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラトアルミニウム(III)(BALq)が挙げられる。

【0104】

- 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、正孔輸送層は単層又は複数層設けることができる。

【0105】

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。正孔輸送層には従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。かかる正孔輸送材料としては例えば、ポルフィリン誘導体、アリアルアミン誘導体、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、ポリアリアルアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、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が、ポルフィリン誘導体、アリアルアミン誘導体及びスチリルアミン誘導体を用いることが好ましく、アリアルアミン化合物を用いることがより好ましい。

30

40

【0106】

- 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り、電子輸送層は単層又は複数層設けることができる。

【0107】

電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる場合もある)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していればよい。電子輸送層には、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができ、例えば、ナフタレン、アントラセン、フェナントロリン等の多環芳香族誘導体、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)誘

50

導体、ホスフィンオキサイド誘導体、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sid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、ピピリジン誘導体、キノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体等が挙げられる。更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。なお、電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる場合も含む）と有機発光性ドーパント材料もしくはホストの電子親和力（ $E A$ ）の差が $0.3 e V$ であることが好ましい。

【実施例】

【0108】

以下、本発明を実施例によって更に詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではなく、その要旨を超えない限りにおいて、種々の形態で実施することが可能である。

【0109】

実施例 1

膜厚 110 nm の ITO からなる陽極が形成されたガラス基板の上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 $4.0 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ で積層した。まず、ITO 上に正孔注入層として HAT-CN を 25 nm の厚さに形成し、次に正孔輸送層として NPD を 30 nm の厚さに形成した。次に電子阻止層として HT-1 を 10 nm の厚さに形成した。次に、第 1 ホストとして化合物 1-6 を、第 2 ホストとして化合物 2-2 を、発光ドーパントとして $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、 40 nm の厚さに発光層を形成した。この時、 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の濃度が $10 \text{ wt}\%$ 、第 1 ホストと第 2 ホストの重量比が $30:70$ となる蒸着条件で共蒸着した。次に電子輸送層として ET-1 を 20 nm の厚さに形成した。更に電子輸送層上に電子注入層として LiF を 1 nm の厚さに形成した。最後に、電子注入層上に、陰極として Al を 70 nm の厚さに形成し、有機 EL 素子を作製した。

【0110】

実施例 1 ~ 8 2

実施例 1 において、第 1 ホスト及び第 2 ホストを、表 1、2 に示す化合物を使用した以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【0111】

実施例 8 3 ~ 8 7

第 1 ホスト及び第 2 ホストを事前に混合して予備混合物とした後、これを一つの蒸着源から共蒸着した。

実施例 1 において、第 1 ホスト (0.30 g) と第 2 ホスト (0.70 g) を量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより得た予備混合物を使用した以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作成した。

【0112】

実施例 8 8 ~ 9 2

第 1 ホスト及び第 2 ホストを事前に混合して予備混合物とした後、これを一つの蒸着源から共蒸着した。

実施例 1 において、第 1 ホスト (0.40 g) と第 2 ホスト (0.60 g) を量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより得た予備混合物を使用した以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作成した。

【0113】

作製した有機 EL 素子の評価結果を表 1 ~ 3 に示す。

表中で輝度、駆動電圧、発光効率 は駆動電流 20 mA/cm^2 時の値であり、初期特性である。LT70 は、初期輝度が 70% まで減衰するまでにかかる時間であり、寿命特性を表す。

【0114】

10

20

30

40

50

【表 1】

実施例	第 1 ホト化合物	第 2 ホト化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT70 (h)
1	1-6	2-2	11800	3.6	51.5	3900
2	1-6	2-3	11800	3.5	53.0	3500
3	1-6	2-5	11200	3.4	51.7	3000
4	1-6	2-43	11300	3.4	52.2	4000
5	1-6	2-44	12000	3.6	52.4	2900
6	1-6	3-21	11100	3.4	51.3	2900
7	1-6	3-33	11200	3.4	51.7	2900
8	1-6	3-45	12100	3.7	51.4	2800
9	1-6	3-79	12100	3.7	51.4	3000
10	1-6	3-80	12200	3.7	51.8	3000
11	1-6	3-83	12000	3.7	50.9	2900
12	1-6	3-101	12000	3.7	50.9	2900
15	1-6	3-102	12000	3.6	52.4	3000
16	1-6	3-103	12000	3.7	50.9	2900
17	1-6	3-104	12000	3.6	52.4	3000
18	1-6	4-3	12000	3.7	50.9	2900
19	1-6	4-4	12000	3.7	50.9	2900
20	1-6	4-67	12000	3.6	52.4	3000
21	1-6	4-69	12000	3.6	52.4	3000
22	1-7	2-2	11200	3.7	48.2	4000
23	1-7	2-3	11200	3.6	49.6	3600
24	1-7	2-5	11000	3.5	50.1	3100
25	1-7	2-43	11000	3.5	50.1	4100
26	1-7	2-44	11400	3.7	49.1	3000
27	1-7	3-21	10600	3.5	48.3	3000
28	1-7	3-33	10600	3.5	48.3	3000
29	1-7	3-45	11500	3.8	48.2	2900
30	1-7	3-79	11500	3.8	48.2	3100
31	1-7	3-80	11600	3.8	48.6	3100

10

20

30

40

【 0 1 1 5 】

50

【表 2】

実施例	第 1 ホト 化合物	第 2 ホト 化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT70 (h)
32	1-7	3-83	11500	3.8	48.2	3000
33	1-7	3-101	11500	3.8	48.2	3000
34	1-7	3-102	11400	3.7	49.1	3100
35	1-7	3-103	12000	3.8	50.3	3000
36	1-7	3-104	11400	3.7	49.1	3100
37	1-7	4-3	11400	3.8	47.8	3000
38	1-7	4-4	11400	3.8	47.8	3000
39	1-7	4-67	11400	3.7	49.1	3100
40	1-7	4-69	11400	3.7	49.1	3100
41	1-16	2-2	11800	3.7	50.1	4000
42	1-16	2-3	11800	3.6	51.5	3600
43	1-16	2-5	11200	3.5	50.3	3100
44	1-16	2-43	11300	3.5	50.7	4000
45	1-16	3-21	11100	3.5	49.8	3000
46	1-16	3-102	12000	3.7	50.9	3100
47	1-16	4-4	12000	3.8	49.6	3000
48	1-137	2-2	11200	3.6	48.9	4000
49	1-137	2-3	11200	3.5	50.3	3600
50	1-137	2-5	11000	3.4	50.8	3100
51	1-137	2-43	11000	3.4	50.8	4000
52	1-137	3-21	10600	3.4	49.0	3000
53	1-137	3-102	11000	3.5	49.4	3100
54	1-137	4-4	11400	3.6	49.7	3000
55	1-198	2-2	11800	3.6	51.5	3900
56	1-198	2-3	11500	3.5	51.6	3500
57	1-198	2-5	11200	3.4	51.7	3100
58	1-198	2-43	11100	3.4	51.3	3900
59	1-198	3-21	11100	3.4	51.3	3000
60	1-198	3-102	11500	3.6	50.2	3100
61	1-198	4-4	12000	3.7	50.9	3000

10

20

30

40

【 0 1 1 6 】

50

【表 3】

実施例	第 1 ホスト化合物	第 2 ホスト化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT70 (h)
62	1-222	2-2	12000	3.8	49.6	3700
63	1-222	2-3	11700	3.7	49.7	3600
64	1-222	2-5	11400	3.6	49.7	3100
65	1-222	2-43	11300	3.6	49.3	3700
66	1-222	3-21	11400	3.6	49.7	3000
67	1-222	3-102	11900	3.8	49.2	3100
68	1-222	4-4	12500	4.0	49.1	3000
69	1-223	2-2	13000	4.1	49.8	3600
70	1-223	2-3	12600	4.0	49.5	3600
71	1-223	2-5	12400	3.9	49.9	3100
72	1-223	2-43	12300	3.9	49.5	3600
73	1-223	3-21	12200	3.9	49.1	3000
74	1-223	3-102	13000	4.1	49.8	3100
75	1-223	4-4	13500	4.3	49.3	3000
76	1-254	2-2	13500	4.3	49.3	3600
77	1-254	2-3	13100	4.2	49.0	3600
78	1-254	2-5	13000	4.1	49.8	3100
79	1-254	2-43	13100	4.1	50.2	3600
80	1-254	3-21	13000	4.1	49.8	3000
81	1-254	3-102	13500	4.2	50.5	3100
82	1-254	4-4	13400	4.2	50.1	3000
83	1-6	2-3	11800	3.5	53.0	4200
84	1-6	2-43	11300	3.4	52.2	4300
85	1-7	2-3	11500	3.6	50.2	4200
86	1-7	2-43	12500	3.9	50.3	4300
87	1-16	2-43	11300	3.5	50.7	4200
88	1-6	2-3	12000	3.4	55.4	3800
89	1-6	2-43	11500	3.3	54.7	4000
90	1-7	2-3	12000	3.5	53.9	3900
91	1-7	2-43	12300	3.8	50.8	4100
92	1-16	2-43	11500	3.4	53.1	3900

10

20

30

40

【0117】

比較例 1

実施例 1 において、ホストとして化合物 2 - 2 を単独で用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。発光層の厚み、発光ドーパント濃度は実施例 1 と同様である。

【0118】

比較例 2 ~ 4

ホストとして表 2 に示す化合物を単独で用いた以外は比較例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

50

【0119】

比較例5～11

実施例1において、第1ホストとして化合物Aを使用し、第2ホストとして化合物2-2、化合物2-3、化合物2-5、化合物2-43、化合物3-21、化合物3-102、又は化合物4-4を使用した以外は実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0120】

比較例12～18

比較例5～11において、第1ホストとして化合物Bを使用した以外は比較例5～11と同様にして有機EL素子を作製した。

【0121】

比較例19

第1ホスト及び第2ホストを事前に混合して予備混合物とした後、これを一つの蒸着源から共蒸着した。

比較例1において、化合物C(0.30g)と化合物2-2(0.70g)を量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより得た予備混合物を使用した以外は比較例1と同様にして有機EL素子を作成した。

【0122】

作製した有機EL素子の評価結果を表4に示す。

【0123】

10

20

30

40

50

【表 4】

比較例	第 1 ホスト 化合物	第 2 ホスト 化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT70 (h)
1	—	2-2	9000	5.1	27.7	500
2	—	3-21	9000	5.0	28.3	550
3	—	3-102	8000	5.2	24.2	500
4	—	4-3	7000	5.0	22.0	500
5	A	2-2	12100	4.7	40.4	2000
6	A	2-3	12200	4.7	40.8	2000
7	A	2-5	12000	4.7	40.1	2000
8	A	2-43	12000	4.7	40.1	2000
9	A	3-21	12500	4.7	41.8	2000
10	A	3-102	12500	4.6	42.7	2000
11	A	4-4	12500	4.7	41.8	2000
12	B	2-2	12200	4.5	42.6	2000
13	B	2-3	12200	4.5	42.6	2000
14	B	2-5	12000	4.4	42.8	1000
15	B	2-43	12000	4.4	42.8	1000
16	B	3-21	11500	4.3	42.0	1000
17	B	3-102	11500	4.4	41.1	1000
18	B	4-4	10000	4.3	36.5	1000
19	C	2-2	11400	4.2	42.6	4300

10

20

30

【 0 1 2 4 】

表 1 ~ 3 から実施例 1 ~ 9 2 は、電力効率が向上し、良好な特性を示すことが分かる。

【 0 1 2 5 】

実施例 9 3

膜厚 110nm の ITO からなる陽極が形成されたガラス基板の上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 4.0×10^{-5} Pa で積層した。まず、ITO 上に正孔注入層として HAT-CN を 25nm の厚さに形成し、次に正孔輸送層として NPD を 45nm の厚さに形成した。次に、電子阻止層として HT-1 を 10nm の厚さに形成した。次に、第 1 ホストとして化合物 1 - 6 を、第 2 ホストとして化合物 2 - 4 を、発光ドープメントとして Ir(piq)₂acac をそれぞれ異なる蒸着源から共蒸着し、40nm の厚さに発光層を形成した。この時 Ir(piq)₂acac の濃度が 7.0wt% となる蒸着条件で共蒸着した。次に電子輸送層として ET-1 を 37.5nm の厚さに形成した。そして電子輸送層上に電子注入層として LiF を 1nm の厚さに形成した。最後に、電子注入層上に、陰極として Al を 70nm の厚さに形成し、有機 EL 素子を作製した。

40

【 0 1 2 6 】

実施例 9 4 ~ 1 7 2

実施例 9 3 において、第 1 ホスト及び第 2 ホストを、表 5 ~ 7 に示す化合物を使用した以外は実施例 9 3 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

50

【 0 1 2 7 】

実施例 1 7 3 ~ 1 7 7

第 1 ホスト及び第 2 ホストを事前に混合して予備混合物とした後、これを一つの蒸着源から共蒸着した。

実施例 9 3 において、第 1 ホスト (0.30g) と第 2 ホスト (0.70g) を量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより得た予備混合物を使用した以外は実施例 9 3 と同様にして有機EL素子を作成した。

【 0 1 2 8 】

実施例 1 7 8 ~ 1 8 2

第 1 ホスト及び第 2 ホストを事前に混合して予備混合物とした後、これを一つの蒸着源から共蒸着した。

実施例 9 3 において、第 1 ホスト (0.40g) と第 2 ホスト (0.60g) を量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより得た予備混合物を使用した以外は実施例 9 3 と同様にして有機EL素子を作成した。

【 0 1 2 9 】

作製した有機EL素子の評価結果を表 5 ~ 7 に示す。ここで、LT95は、初期輝度が95%まで減衰するまでにかかる時間であり、寿命特性を表す。

【 0 1 3 0 】

10

20

30

40

50

【表 5】

実施例	第 1 基板 化合物	第 2 基板 化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT95 (h)
93	1-6	2-2	3100	3.4	14.3	550
94	1-6	2-3	3100	3.3	14.8	500
95	1-6	2-5	3000	3.3	14.3	500
96	1-6	2-43	3000	3.3	14.3	550
97	1-6	2-44	3300	3.6	14.4	450
98	1-6	3-21	3000	3.4	13.9	500
99	1-6	3-33	3000	3.4	13.9	500
100	1-6	3-45	3000	3.4	13.9	450
101	1-6	3-79	2900	3.3	13.8	500
102	1-6	3-80	3000	3.3	14.3	500
103	1-6	3-83	3300	3.7	14.0	440
104	1-6	3-101	3300	3.7	14.0	440
105	1-6	3-102	3300	3.6	14.4	500
106	1-6	3-103	3300	3.7	14.0	500
107	1-6	3-104	3300	3.6	14.4	500
108	1-6	4-3	3300	3.7	14.0	500
109	1-6	4-4	3300	3.7	14.0	500
110	1-6	4-67	3300	3.6	14.4	550
111	1-6	4-69	3300	3.6	14.4	500
112	1-7	2-2	3100	3.5	14.1	560
113	1-7	2-3	3100	3.4	14.5	500
114	1-7	2-5	3000	3.4	14.1	560
115	1-7	2-43	3000	3.4	14.1	560
116	1-7	2-44	3300	3.7	14.2	450
117	1-7	3-21	3000	3.5	13.7	500
118	1-7	3-33	3000	3.5	13.7	500
119	1-7	3-45	3000	3.5	13.7	440
120	1-7	3-79	3000	3.4	14.1	500
121	1-7	3-80	3000	3.4	14.1	500
122	1-7	3-83	3300	3.8	13.8	440

10

20

30

40

【 0 1 3 1 】

50

【表 6】

実施例	第 1 ホト化合物	第 2 ホト化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT95 (h)
123	1-7	3-101	3300	3.8	13.8	440
124	1-7	3-102	3300	3.7	14.2	500
125	1-7	3-103	3300	3.8	13.8	510
126	1-7	3-104	3300	3.7	14.2	500
127	1-7	4-3	3300	3.8	13.8	510
128	1-7	4-4	3300	3.8	13.8	510
129	1-7	4-67	3300	3.7	14.2	540
130	1-7	4-69	3300	3.7	14.2	510
131	1-16	2-2	3100	3.5	13.9	560
132	1-16	2-3	3100	3.4	14.3	510
133	1-16	2-5	3000	3.4	13.9	510
134	1-16	2-43	3000	3.4	13.9	560
135	1-16	3-21	3000	3.5	13.5	510
136	1-16	3-102	3300	3.7	14.0	510
137	1-16	4-4	3300	3.7	14.0	510
138	1-137	2-2	3100	3.5	13.9	540
139	1-137	2-3	3100	3.4	14.3	500
140	1-137	2-5	3000	3.4	13.9	540
141	1-137	2-43	3000	3.8	12.4	540
142	1-137	3-21	3000	3.8	12.4	480
143	1-137	3-102	3300	3.7	14.0	480
144	1-137	4-4	3300	3.8	13.6	500
145	1-198	2-2	3100	3.4	14.3	550
146	1-198	2-3	3100	3.4	14.3	510
147	1-198	2-5	3000	3.4	13.9	510
148	1-198	2-43	3000	3.4	13.9	550
149	1-198	3-21	3000	3.4	13.9	510
150	1-198	3-102	3100	3.5	13.9	510
151	1-198	4-4	3200	3.6	14.0	510
152	1-222	2-2	3300	3.6	14.4	530

10

20

30

40

【 0 1 3 2 】

50

【表 7】

実施例	第 1 ホスト 化合物	第 2 ホスト 化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT95 (h)
153	1-222	2-3	3300	3.6	14.4	500
154	1-222	2-5	3200	3.6	14.0	530
155	1-222	2-43	3200	3.6	14.0	530
156	1-222	3-21	3300	3.6	14.4	480
157	1-222	3-102	3300	3.7	14.0	480
158	1-222	4-4	3500	3.7	14.9	500
159	1-223	2-2	3300	3.7	14.0	520
160	1-223	2-3	3300	3.7	14.0	500
161	1-223	2-5	3300	3.7	14.0	520
162	1-223	2-43	3300	3.7	14.0	520
163	1-223	3-21	3300	3.7	14.0	480
164	1-223	3-102	3400	3.8	14.1	480
165	1-223	4-4	3500	3.8	14.5	500
166	1-254	2-2	3300	3.5	14.8	520
167	1-254	2-3	3300	3.5	14.8	510
168	1-254	2-5	3200	3.5	14.4	520
169	1-254	2-43	3200	3.5	14.4	520
170	1-254	3-21	3300	3.5	14.8	480
171	1-254	3-102	3300	3.6	14.4	480
172	1-254	4-4	3500	3.7	14.9	500
173	1-6	2-3	3100	3.3	14.8	550
174	1-6	2-43	3000	3.3	14.3	550
175	1-7	2-3	3100	3.4	14.3	550
176	1-7	2-43	3000	3.3	14.3	570
177	1-16	2-43	3000	3.4	13.9	570
178	1-6	2-3	3200	3.4	14.8	530
179	1-6	2-43	3100	3.3	14.8	530
180	1-7	2-3	3200	3.3	15.2	530
181	1-7	2-43	3100	3.3	14.8	540
182	1-16	2-43	3100	3.3	14.8	540

10

20

30

40

【 0 1 3 3 】

比較例 2 0

実施例 9 3 において、ホストとして化合物 2-2 を単独で用いた以外は実施例 9 7 と同様にして有機 EL 素子を作製した。発光層の厚み、発光ドーパント濃度は実施例 9 7 と同様である。

【 0 1 3 4 】

比較例 2 1 ~ 2 3

ホストとして表 8 に示す化合物を単独で用いた以外は比較例 2 0 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

50

【 0 1 3 5 】

比較例 2 4 ~ 3 0

実施例 9 3 において、第 1 ホストとして化合物 A を使用し、第 2 ホストとして化合物 2 - 2、化合物 2 - 3、化合物 2 - 5、化合物 2 - 4 3、化合物 3 - 2 1、化合物 3 - 1 0 2、又は化合物 4 - 4 を使用した以外は実施例 9 3 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【 0 1 3 6 】

比較例 3 1 ~ 3 7

比較例 2 4 ~ 3 0 において、第 1 ホストとして化合物 B を使用した以外は比較例 2 4 ~ 3 0 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【 0 1 3 7 】

比較例 3 8

第 1 ホスト及び第 2 ホストを事前に混合して予備混合物とした後、これを一つの蒸着源から共蒸着した。

比較例 1 において、化合物 C (0.30g) と化合物 2 - 2 (0.70g) を量りとり、乳鉢ですり潰しながら混合することにより得た予備混合物を使用した以外は比較例 1 と同様にして有機 EL 素子を作成した。

【 0 1 3 8 】

作製した有機 EL 素子の評価結果を表 8 に示す。

【 0 1 3 9 】

10

20

30

40

50

【表 8】

比較例	第 1 ホト化合物	第 2 ホト化合物	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	LT95 (h)
20	—	2-2	2000	4.8	6.5	110
21	—	3-21	2000	4.8	6.5	110
22	—	3-102	2000	4.9	6.4	100
23	—	4-3	2000	5.0	6.3	100
24	A	2-2	2500	4.7	8.4	220
25	A	2-3	2500	4.7	8.4	170
26	A	2-5	2500	4.7	8.4	170
27	A	2-43	2500	4.7	8.4	110
28	A	3-21	2500	4.7	8.4	110
29	A	3-102	2500	4.6	8.5	110
30	A	4-4	2500	4.7	8.4	110
31	B	2-2	2500	4.5	8.7	200
32	B	2-3	2500	4.5	8.7	170
33	B	2-5	2500	4.4	8.9	150
34	B	2-43	2500	4.4	8.9	100
35	B	3-21	2500	4.3	9.1	100
36	B	3-102	2500	4.4	8.9	100
37	B	4-4	2500	4.3	9.1	100
38	C	2-2	2600	4.2	9.7	300

【0140】

表 5 ~ 8 から実施例 93 ~ 182 は、電力効率が向上し、良好な特性を示すことが分かる。

【0141】

実施例で使用した化合物を次に示す。

10

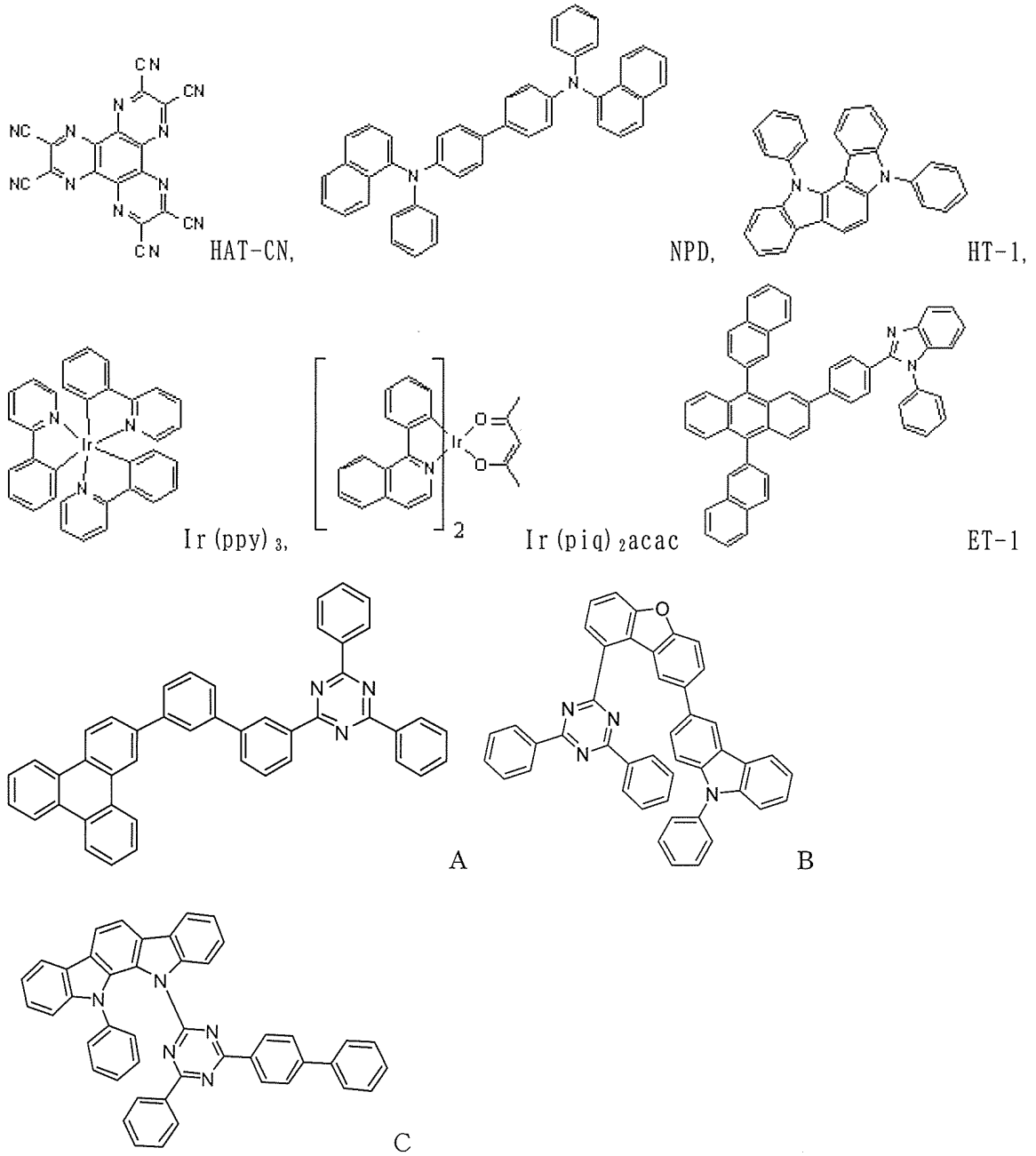
20

30

40

50

【化 3 4】



10

20

30

【0142】

化合物 1 - 6、1 - 7、1 - 16、1 - 137、2 - 3、および 2 - 43 の 50% 重量減少温度 (T₅₀) を表 9 に記す。

【0143】

40

50

【表 9】

化合物	T ₅₀ [°C]
1 - 6	3 0 6
1 - 7	3 1 2
1 - 1 6	3 2 8
1 - 1 3 7	3 4 5
2 - 3	3 1 9
2 - 4 3	3 1 7
化合物 C	2 7 0

10

20

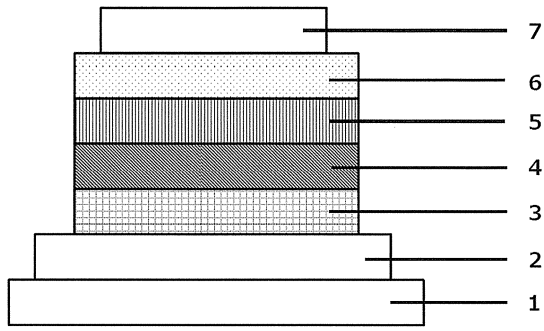
30

40

50

【図面】

【図 1】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

H 1 0 K 101/10 (2023.01)	H 1 0 K 71/16
H 1 0 K 101/20 (2023.01)	H 1 0 K 101:10
H 1 0 K 101/30 (2023.01)	H 1 0 K 101:20
	H 1 0 K 101:30

日鉄ケミカル&マテリアル株式会社内

(72)発明者 多田 匡志

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社内

(72)発明者 甲斐 孝弘

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社内

(72)発明者 吉田 和成

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社内

(72)発明者 北原 いくみ

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社内

審査官 酒井 康博

(56)参考文献 韓国公開特許第10-2019-0089763(KR,A)

国際公開第2018/061446(WO,A1)

国際公開第2016/194604(WO,A1)

米国特許出願公開第2016/0329502(US,A1)

国際公開第2015/020217(WO,A1)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

H 1 0 K 50/00 - 50/88

H 1 0 K 85/60

H 1 0 K 71/16

C 0 9 K 11/06

H 1 0 K 101/10

H 1 0 K 101/20

H 1 0 K 101/30

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)