

WO 2011/090149 A1

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2011年7月28日(28.07.2011)



PCT



(10) 国際公開番号

WO 2011/090149 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 307/91 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
C07D 405/12 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2011/051045

(22) 国際出願日:

2011年1月21日(21.01.2011)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願 2010-011415 2010年1月21日(21.01.2010) JP
特願 2010-011414 2010年1月21日(21.01.2010) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)
[JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目
1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 加藤 朋希
(KATO, Tomoki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦
市上泉1280番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒
1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号
ブリヂストン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務
所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO,
CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,
GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS,
JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR,
LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW,
MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH,
PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST,
SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア
(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ
(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,
GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,
NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: AROMATIC AMINE DERIVATIVE, AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT COMPRISING SAME

(54) 発明の名称: 芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) Abstract: An aromatic amine derivative having a terminal substituent selected from a dibenzofuran, a dibenzothiophene, a substituted carbazole and a substituted fluorene bound to the central skeleton having a specific structure through a nitrogen atom; and an organic electroluminescent element which comprises a cathode, an anode, and an organic thin film layer intercalated between the cathode and the anode and having at least one layer including at least a light-emitting layer, wherein at least one layer in the organic thin film layer contains the aromatic amine derivative as a sole component or contains a mixture containing the aromatic amine derivative, and which has a long service life and high light-emitting efficiency, and an aromatic amine derivative which enables the production of the organic electroluminescent element.

(57) 要約: ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、置換カルバゾール、置換フルオレンからなる末端置換基が窒素原子を介して特定構造の中心骨格に結合した芳香族アミン誘導体、並びに陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、前記芳香族アミン誘導体を単独又は混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であり、寿命が長く、高発光効率な有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する芳香族アミン誘導体を提供する。

明 細 書

発明の名称：

芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子 技術分野

[0001] 本発明は、芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、寿命が長く、高発光効率の有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する芳香族アミン誘導体に関するものである。

背景技術

[0002] 有機EL素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告 (C. W. Tang, S. A. Van Slyke, *Applied Physics Letters*, 51巻、913頁、1987年等) がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めることが挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

[0003] 通常、高温環境下で有機EL素子を駆動させたり、保管すると、発光色の変化、発光効率の低下、駆動電圧の上昇、発光寿命の短時間化等の悪影響が生じる。

この様な悪影響を防ぐために、ジベンゾフラン骨格を有する芳香族アミン誘導体が提案されている。ジアミン化合物の中心骨格にジベンゾフランを有する化合物としては、特許文献1～3が報告されており、一方、モノアミンにアリール基を介してジベンゾフランを有する化合物としては、特許文献4～7が報告されている。しかしながら、これらの有機EL素子としての性能は十分ではない。

また、N-カルバゾールがアリール基を介してアミンに結合したアミン化合物の報告は多数有り、その一例としては特許文献8～10があるが、有機EL素子としての性能は十分ではない。

さらに、3-カルバゾールが直接アミンに結合したアミン化合物の報告としては、特許文献11～12があるが、有機EL素子としての性能は十分ではない。また3-カルバゾールがアリール基を介してアミンに結合したアミン化合物の報告としては、特許文献13～14があるが、有機EL素子としての性能は十分ではない。

以上のように、高効率、長寿命の有機EL素子の報告はあるものの、十分な性能ではなく、より優れた性能を有する有機EL素子の開発が強く望まれていた。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2005-112765号公報

特許文献2：特開平11-111460号公報

特許文献3：WO2006/122630号公報

特許文献4：WO2006/128800号公報

特許文献5：特開2006-151844号公報

特許文献6：特開2008-021687号公報

特許文献7：WO2007/125714号公報

特許文献8：米国特許第6, 242, 115号明細書

特許文献9：特開2007-284431号公報

特許文献10：特開2003-031371号公報

特許文献11：特開2007-318101号公報

特許文献12：特開2006-151979号公報

特許文献13：特開2005-290000号公報

特許文献14：WO 2008/062636号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、寿命が長く、高発光効率な有機EL素子及びそれを実現する芳香族アミン誘導体を提供することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

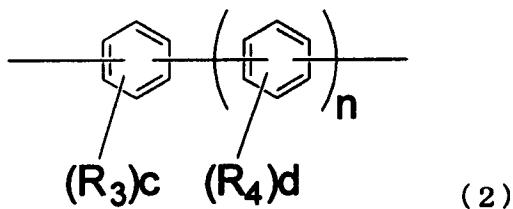
[0006] 本発明者等は、前記目的を達成するために、鋭意研究を重ねた結果、下記式（1）で表される芳香族アミン誘導体を有機EL素子用材料として用いることにより、前記の目的を達成することを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は、下記式（1）で表される芳香族アミン誘導体を提供するものである。



[式（1）において、Lは、下記式（2）で表される。]

[0007] [化1]



[0008] (式（2）において、nは0～3の整数を表す。)

R_3 及び R_4 は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状の

アルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。

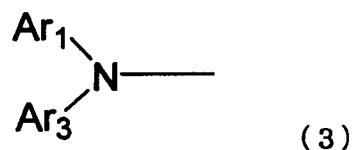
隣接、又は近接する複数のR₃同士、R₄同士は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

隣接するR₃とR₄は互いに結合して、Lが置換もしくは無置換のフルオレン基を形成してもよい。

c、dはそれぞれ独立に0～4の整数を表す。)

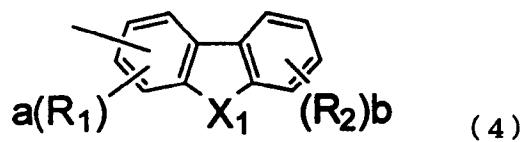
式(1)において、Aは、下記式(3)で表される。

[0009] [化2]



[0010] {式(3)において、Ar₁は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～25のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～25のヘテロアリール基を表し、Ar₃は、下記式(4)で表される。

[0011] [化3]



[0012] (式(4)において、X₁は、O(酸素原子)、又はS(硫黄原子)、NR_a

、又はC R b R cを表す。R aは、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。R b又はR cは、それぞれ独立に、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。

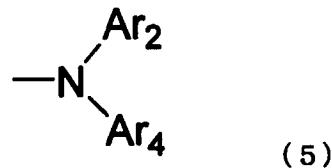
R₁及びR₂は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアリルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリルシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。隣接した複数のR₁及びR₂同士、並びにR₁とR₂は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

aはそれぞれ独立に0～3の整数を表す。

bはそれぞれ独立に0～4の整数を表す。) }

式(1)において、Bは、下記式(5)で表される。

[0013] [化4]



(式(5)において、Ar₂又はAr₄は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～25のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～25のヘテロアリール基を表す。)]

[0014] また、本発明は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、前記芳香族アミン誘導体を単独又は混合物の成分とし

て含有する有機EL素子を提供するものである。

発明の効果

[0015] 本発明の芳香族アミン誘導体を用いた有機EL素子は、発光効率が高く、長時間使用しても劣化しづらく寿命が長い。

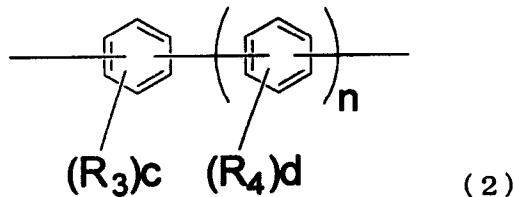
発明を実施するための形態

[0016] 本発明の下記式(1)で表される芳香族アミン誘導体を提供するものである。



式(1)において、Lは、下記式(2)で表される。

[0017] [化5]



[0018] 式(2)において、nは0～3の整数を表し、0～1が好ましい。

R_3 及び R_4 は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。

隣接、又は近接する複数の R_3 同士、 R_4 同士は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

隣接する R_3 と R_4 は互いに結合して、Lが置換もしくは無置換のフルオレン基を形成してもよい。

c、dは、それぞれ独立に、0～4の整数を表し、0～2が好ましい。

[0019] R₃及びR₄のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ステアリル基、2-フェニルイソプロピル基、トリクロロメチル基、トリフルオロメチル基、ベンジル基、α-フェノキシベンジル基、α, α-ジメチルベンジル基、α, α-メチルフェニルベンジル基、α, α-ジトリフルオロメチルベンジル基、トリフェニルメチル基、α-ベンジルオキシベンジル基等が挙げられる。

R₃及びR₄のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基等が挙げられる。

R₃及びR₄のシクロアルキル基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロノニル基、ビシクロヘプチル基、ビシクロオクチル基、トリシクロヘプチル基、アダマンチル基等が挙げられ、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、ビシクロヘプチル基、ビシクロオクチル基、アダマンチル基が好ましい。

R₃及びR₄のトリアルキルシリル基のアルキル基としては、前記アルキル基と同様の例が挙げられる。

R₃及びR₄のアリール基としては、例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、ビフェニル基、4-メチルビフェニル基、4-エチルビフェニル基、4-シクロヘキシルビフェニル基、ターフェニル基、3, 5-ジクロロフェニル基、ナフチル基、5-メチルナフチル基、アントリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基等が挙げられる。

R₃及びR₄のトリアリールシリル基のアリール基としては、前記アリール基と同様の例が挙げられる。

R_3 及び R_4 のアルキルアリールシリル基としては、前記アルキル基、アリール基と同様の例が挙げられる。

R_3 及び R_4 のヘテロアリール基としては、例えば、イミダゾール、ベンゾイミダゾール、ピロール、フラン、チオフェン、オキサジアゾリン、インドリン、カルバゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、ベンズキノン、ピラロジン、イミダゾリジン、ピペリジン等の残基が挙げられる。

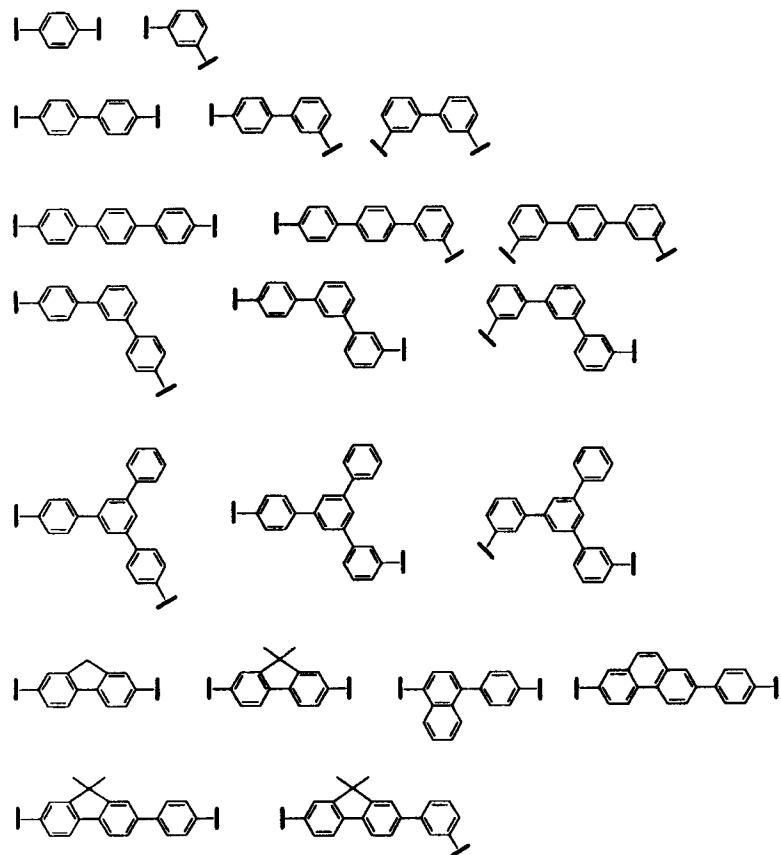
R_3 及び R_4 のハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素及びヨウ素が挙げられる。

[0020] また、隣接、又は近接する複数の R_3 同士、 R_4 同士、あるいは R_3 と R_4 は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基としては、例えば、フルオレニレン基、9, 9-ジメチルフルオレニレン基、フェナントレン基等が挙げられる。

Lの具体例としては、下記構造が挙げられる。

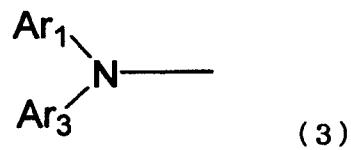
[0021]

[化6]



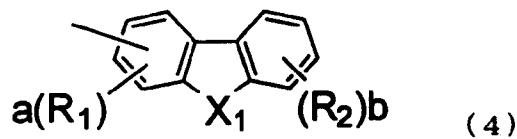
[0022] 式(1)において、Aは、下記式(3)で表される。

[化7]

[0023] 式(3)において、Ar₁は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～25のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～25のヘテロアリール基を表し、Ar₃は、下記式(4)で表される。

Ar₁のアリール基、ヘテロアリール基の具体例としては、前記R₃、R₄と同様の例が挙げられる。

[0024] [化8]



[0025] 式(4)において、 X_1 は、O(酸素原子)、又はS(硫黄原子)、NR_a、又はCR_bR_cを表す。R_aは、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。R_b又はR_cは、それぞれ独立に、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。R_a、R_b及びR_cの示す、アリール基、ヘテロアリール基の例としては、前記R₃及びR₄と同様の例が挙げられる。

R₁及びR₂は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。隣接した複数のR₁及びR₂同士、並びにR₁とR₂は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

R₁及びR₂の示す、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、トリアルキルシリル基、トリアリールシリル基、アルキルアリールシリル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン原子の例としては、R₃及びR₄と同様の例が挙げられる。

また、隣接した複数のR₁及びR₂同士、並びにR₁とR₂は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基としては、R₃同士、R₄同士が互い

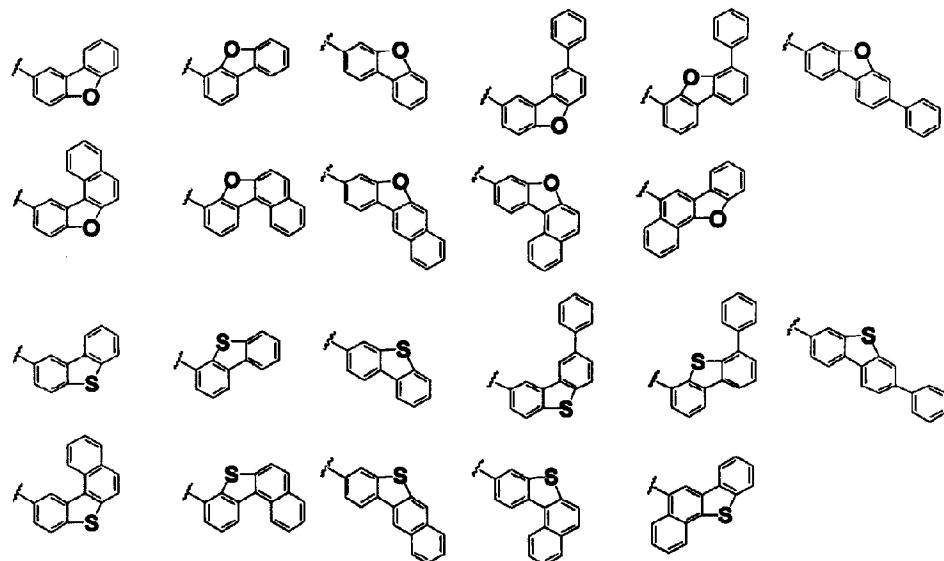
に結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基と同様の例が挙げられる。

aは、それぞれ独立に、0～3の整数を表し、0～2が好ましい。

bは、それぞれ独立に、0～4の整数を表し、0～2が好ましい。

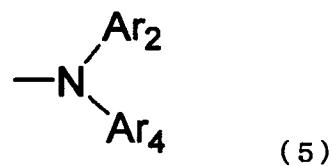
式(4)の具体例としては、下記構造が挙げられる。また下記構造において、S又はOを、前記N R a又はC R b R cに変えた構造が挙げられる。

[0026] [化9]



[0027] 式(1)において、Bは、下記式(5)で表される。

[化10]



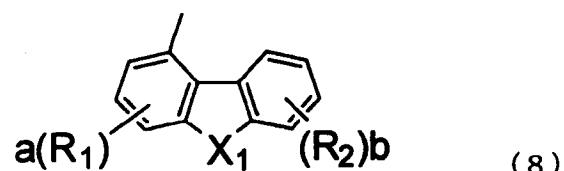
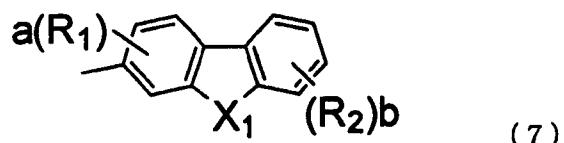
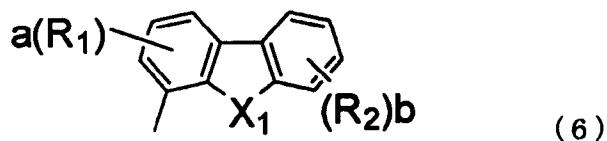
[0028] 式(5)において、Ar₂又はAr₄は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～25のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～25のヘテロアリール基を表す。

Ar₂及びAr₄のアリール基、ヘテロアリール基の具体例としては、前記R₃

、R₄と同様の例が挙げられる。

[0029] 式(1)において、前記A_{r3}は、下記式(6)～(8)のいずれかで表されると好ましく、(6)又は(8)がさらに好ましく、(6)が特に好ましい。

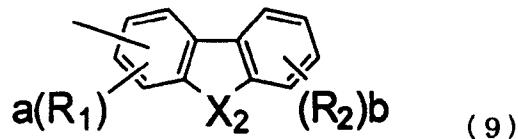
[化11]



(式(6)～(8)において、X₁、R₁、R₂、a、bは、式(4)において用いられたものと同義である。)

[0030] また、式(1)において、前記A_{r1}又はA_{r4}が下記式(9)で表されることが好ましい。

[化12]



[0031] 式(9)において、X₂は、O(酸素原子)、S(硫黄原子)、NR_a、又はCR_bR_cを表す。R_aは、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。R_b

又はR_cは、それぞれ独立に、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。

R_a、R_b及びR_cの示す、アリール基、ヘテロアリール基の具体例としては、前記R₃、R₄と同様の例が挙げられる。

R₁及びR₂は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。隣接した複数のR₁及びR₂同士、並びにR₁とR₂は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

R₁及びR₂の示す、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、トリアルキルシリル基、トリアリールシリル基、アルキルアリールシリル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン原子の例としては、R₃及びR₄と同様の例が挙げられる。

また、隣接した複数のR₁及びR₂同士、並びにR₁とR₂は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基としては、R₃同士、R₄同士が互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基と同様の例が挙げられる。

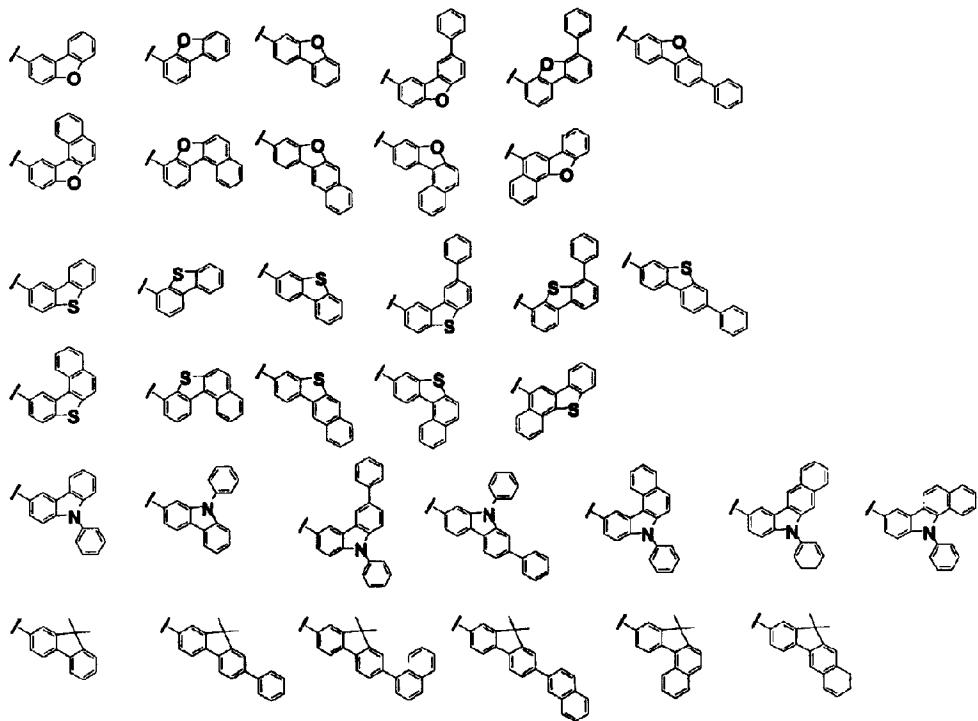
aはそれぞれ独立に0～3の整数を表し、0～2が好ましい。

bはそれぞれ独立に0～4の整数を表し、0～2が好ましい。

式(9)の具体例としては、下記構造が挙げられる。

[0032]

[化13]



[0033] A_{r1}又はA_{r4}は、前記式(6)～(8)のいずれかで表されることが好ましい。

式(1)において、AとBとが同一であると、正孔移動度が向上することが期待でき、AとBとが異なっていると、対称性が崩れることにより材料の結晶化が抑制され、薄膜の安定性が向上することが期待できる。

式(1)において、式(4)及び／又は(9)が3位で結合する場合、π電子系の共役が拡大することにより正孔移動度が増加する。

式(1)は、式(4)又は(9)のような平面性の高いヘテロ環により、下記(A)及び(B)に代表される平面性の高い電子受容性化合物との相互作用が向上する。

また、式(4)又は(9)のような平面性の高いヘテロ環が窒素原子に直結することにより、電子密度が上昇することでイオン化ポテンシャル値が小さくなり、正孔輸送材としてだけではなく、正孔注入材としても用いることができる。

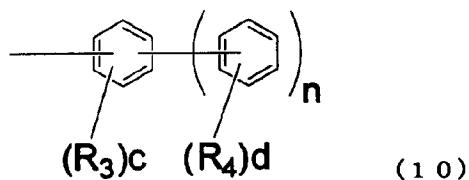
さらに、式（1）は、ジアミン構造を有することから、ホッピングサイトが増加することにより、正孔注入量、正孔移動度が向上する。

[0034] 本発明の芳香族アミン誘導体は、フルオレン構造類似のヘテロ環が窒素原子と直接結合することにより、1重項エネルギーギャップ、および3重項エネルギーギャップを拡大させることができ、ホスト材料と発光を示すドーパント材料とを含有する発光層に隣接する層（正孔輸送層）として用いた場合に発光層からのキャリアの移動、あるいは1重項エネルギー、および3重項エネルギーの移動による発光効率の低下を低減することができる。さらに、該ヘテロ環を有することにより、ガラス転移温度（ T_g ）を大きくすることができ、有機薄膜層の安定性を向上させることができる。

特に、前記ヘテロ環が共役系をより縮小させる位置で窒素原子と結合することにより（例えばジベンゾフランの場合、3位以外の位置）、1重項エネルギーギャップ、および3重項エネルギーギャップをさらに拡大させることができ、例えば3重項のエネルギーギャップを2.6 eV以上とすることができるため、より好ましい。

[0035] また、式（1）において、前記A r₁、A r₂、A r₄のいずれかが下記式（10）で表されることが好ましい。

[化14]

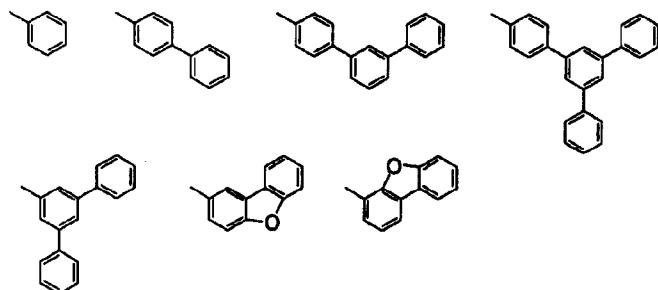


[0036] （式（10）において、R₃、R₄、c、d、nは、式（2）において用いられたものと同義である。）1重項エネルギーギャップ、および3重項エネルギーギャップを拡大させる観点から、nは好ましくは0～3であり、より好ましくは0～1であり、特に好ましくは0である。また、ベンゼン環の結合位置をパラ位以外とすることで分子内の共役系を縮小させることができ、1重

項エネルギーギャップ、および3重項エネルギーギャップをより拡大させる
こともできる。

式（10）で表される置換の具体例としては以下が挙げられるが、これら
に限定されるものではない。

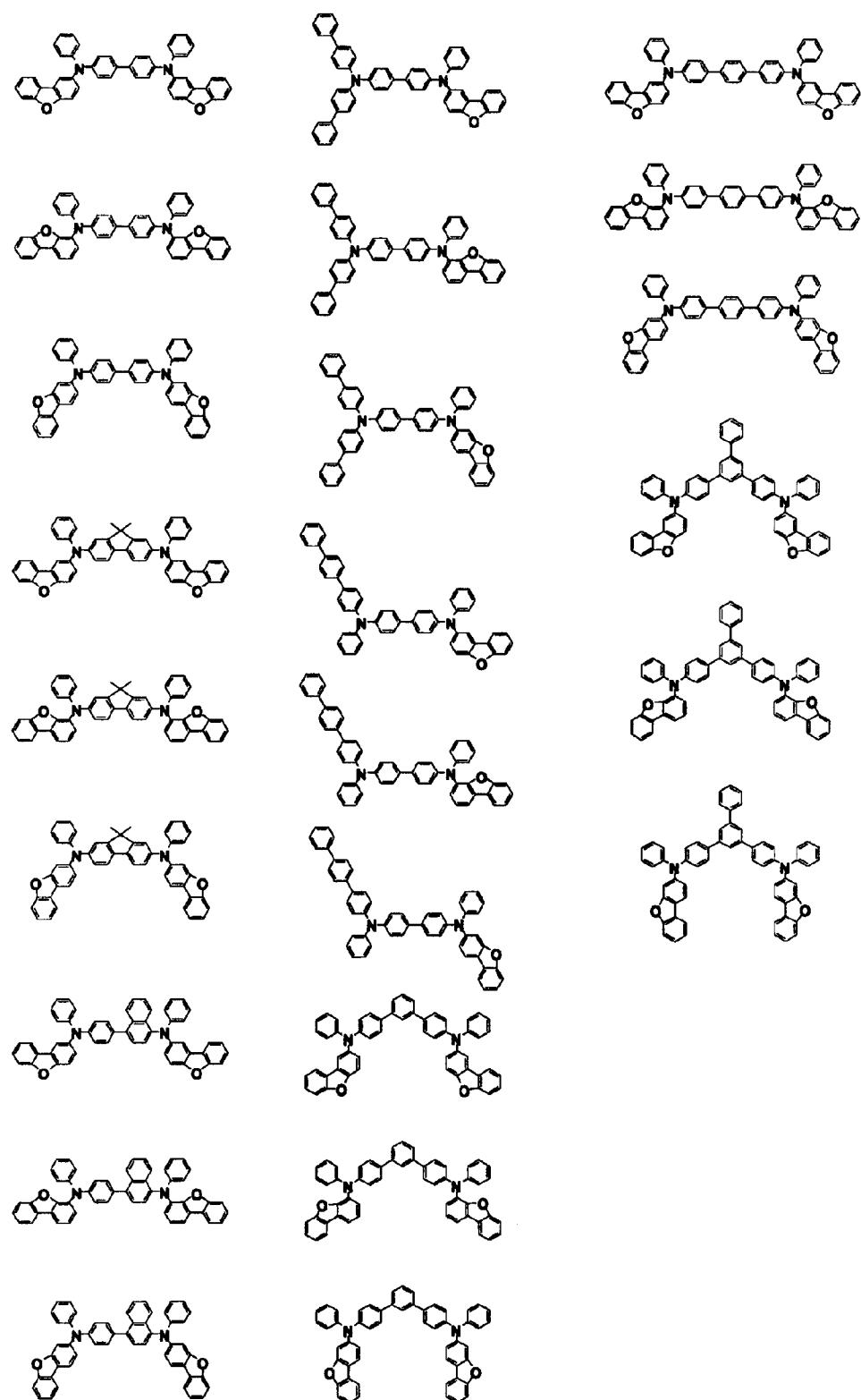
[0037] [化15]



[0038] また、前記A_{r1}、A_{r2}、A_{r4}のいずれかがフェニル基、ビフェニル基、メタターフェニル基で表されると好ましい。

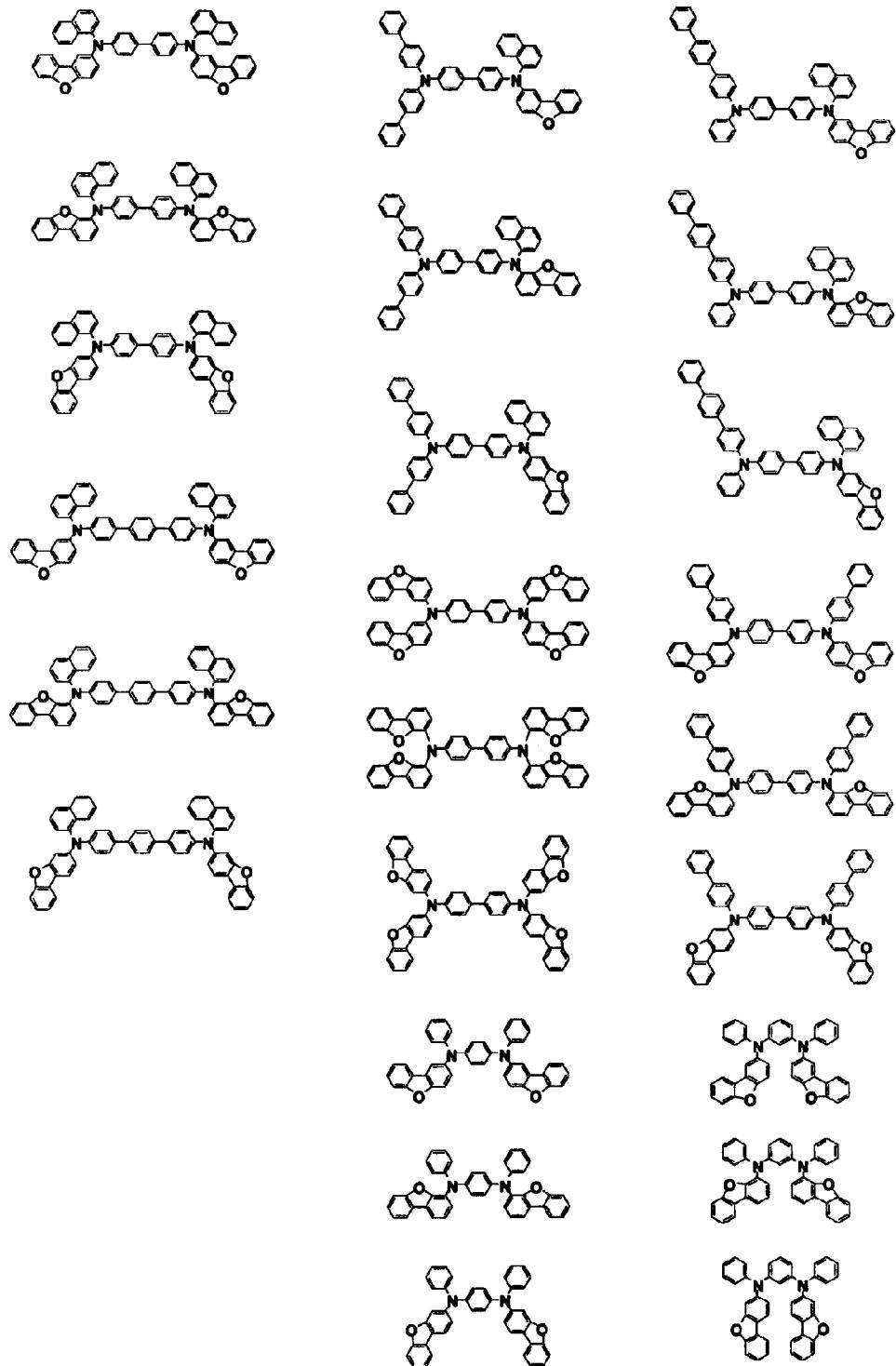
本発明の式（1）で表される芳香族アミン誘導体の具体例を以下に示すが
、これら例示化合物に限定されるものではない。

[化16]



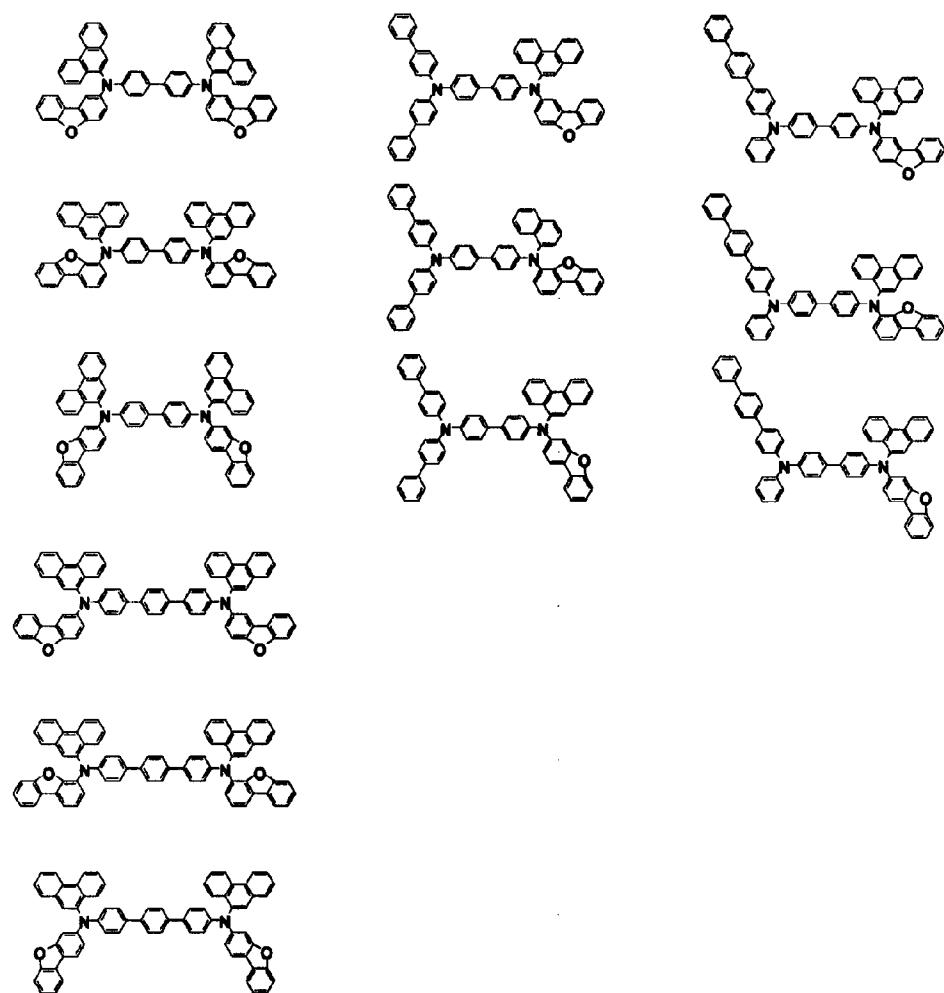
[0039]

[化17]



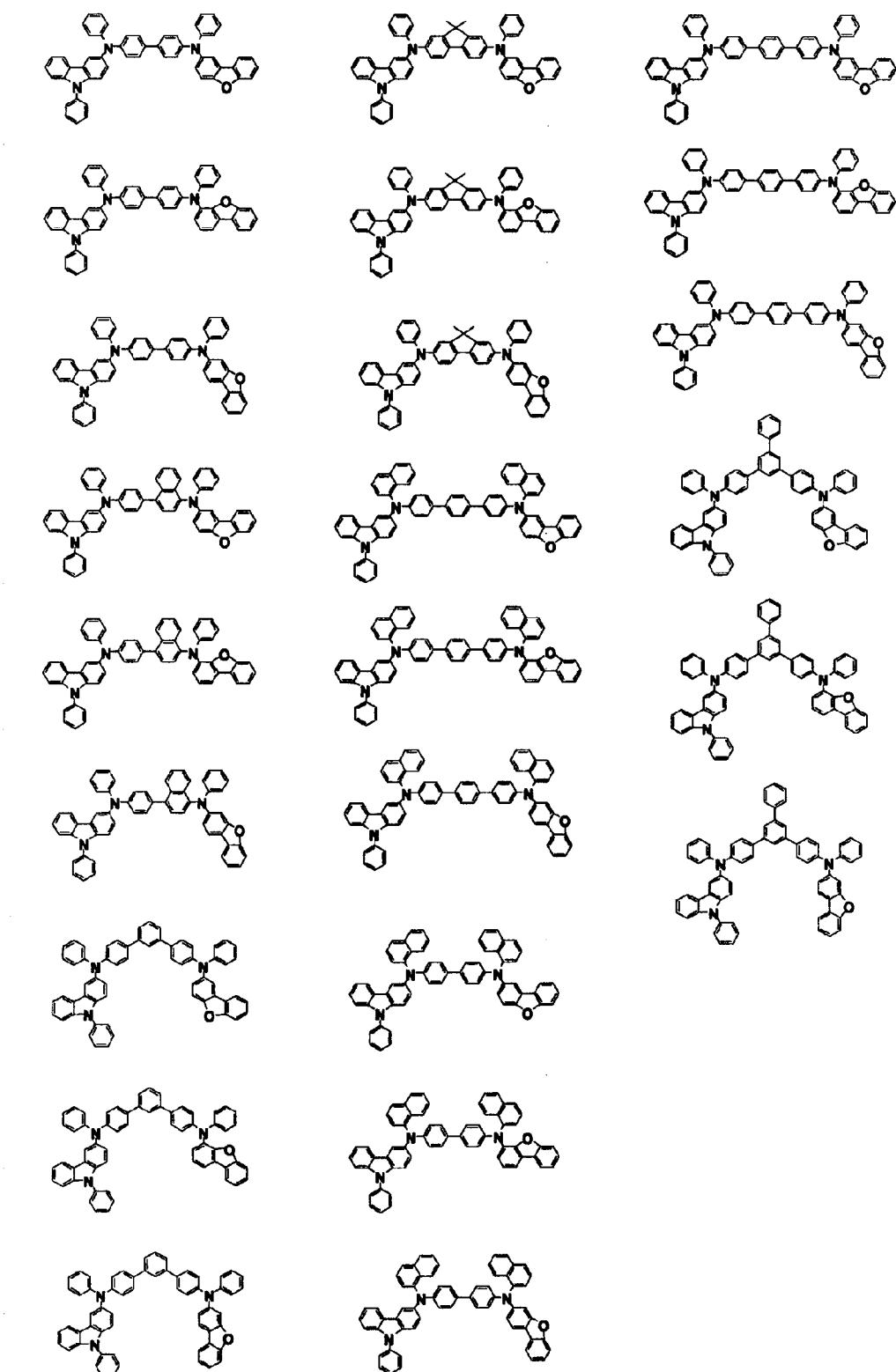
[0040]

[化18]



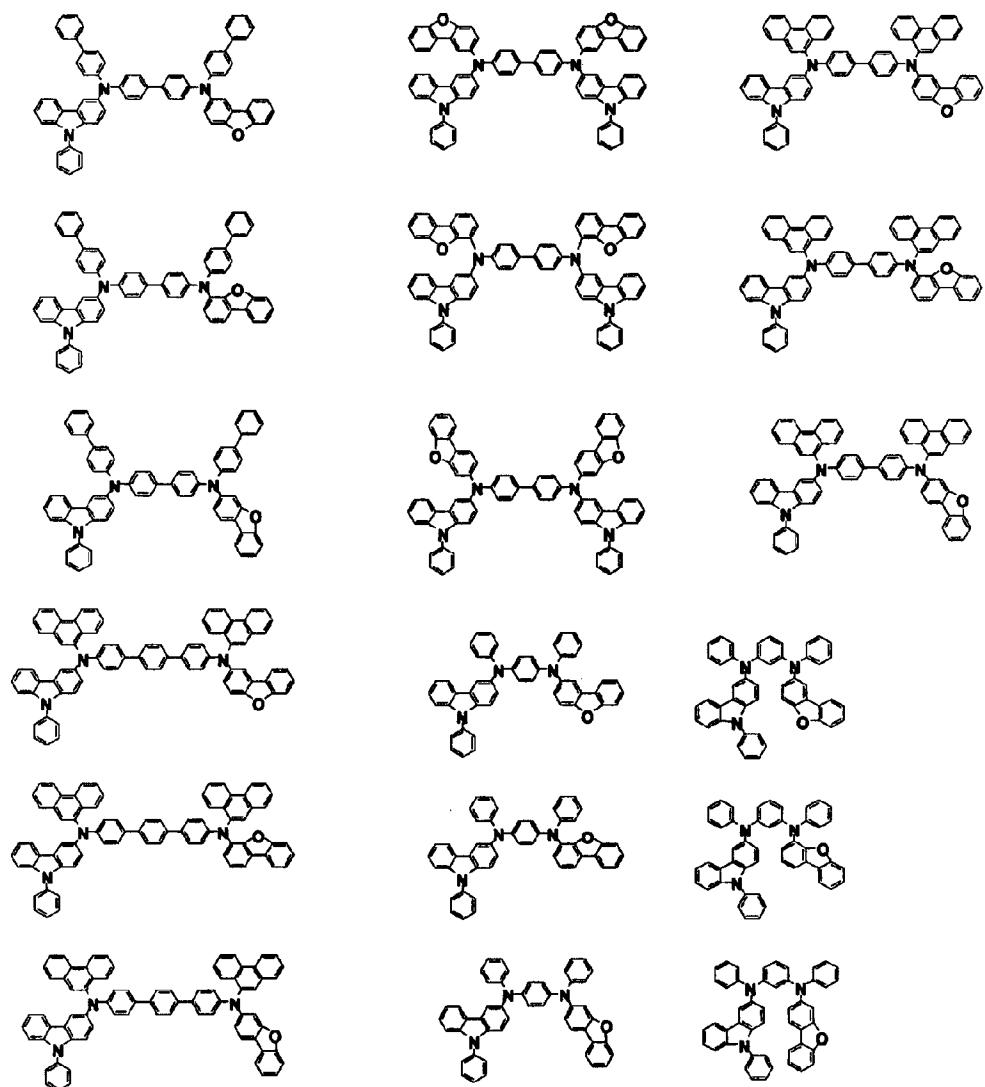
[0041]

[化19]



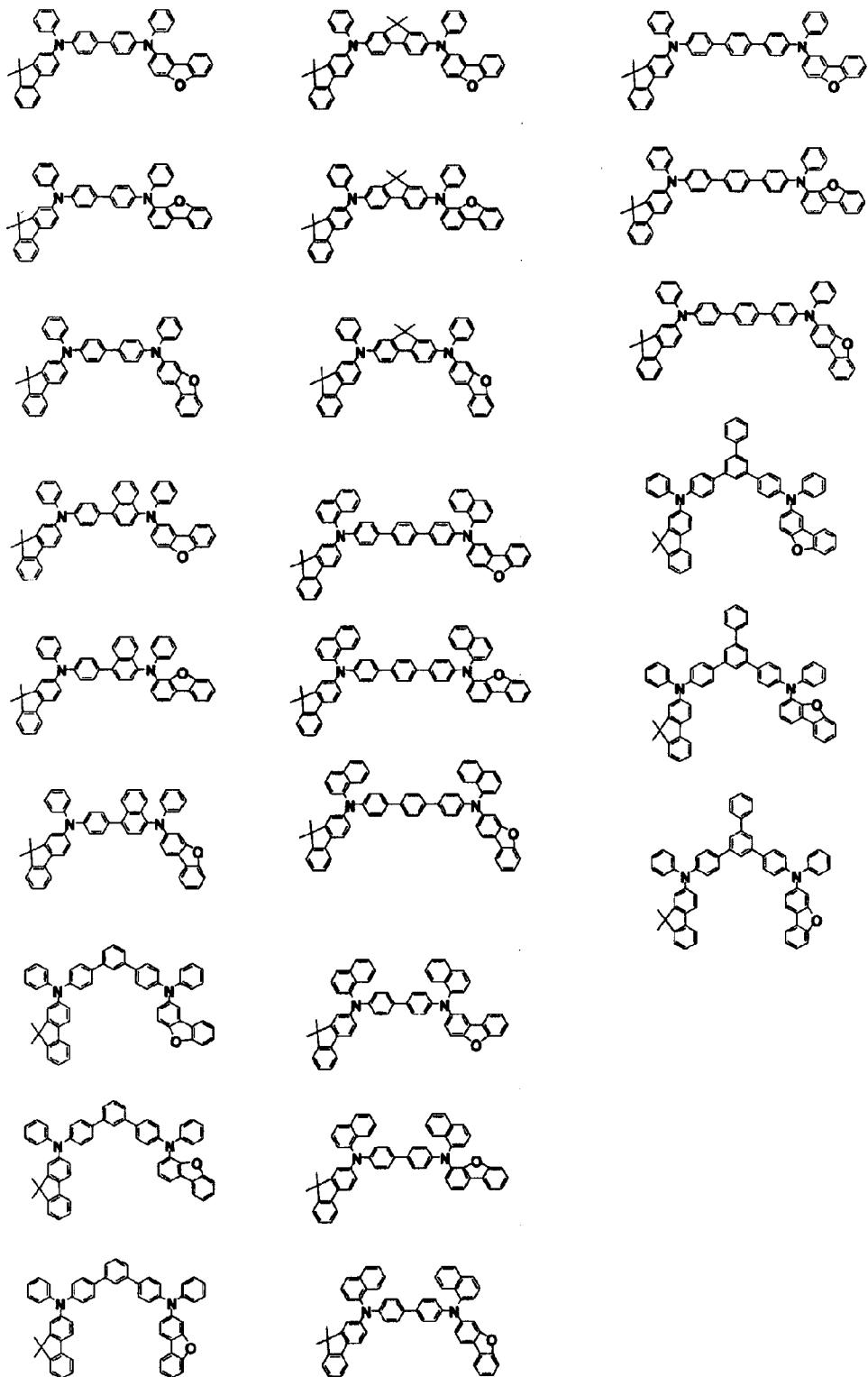
[0042]

[化20]



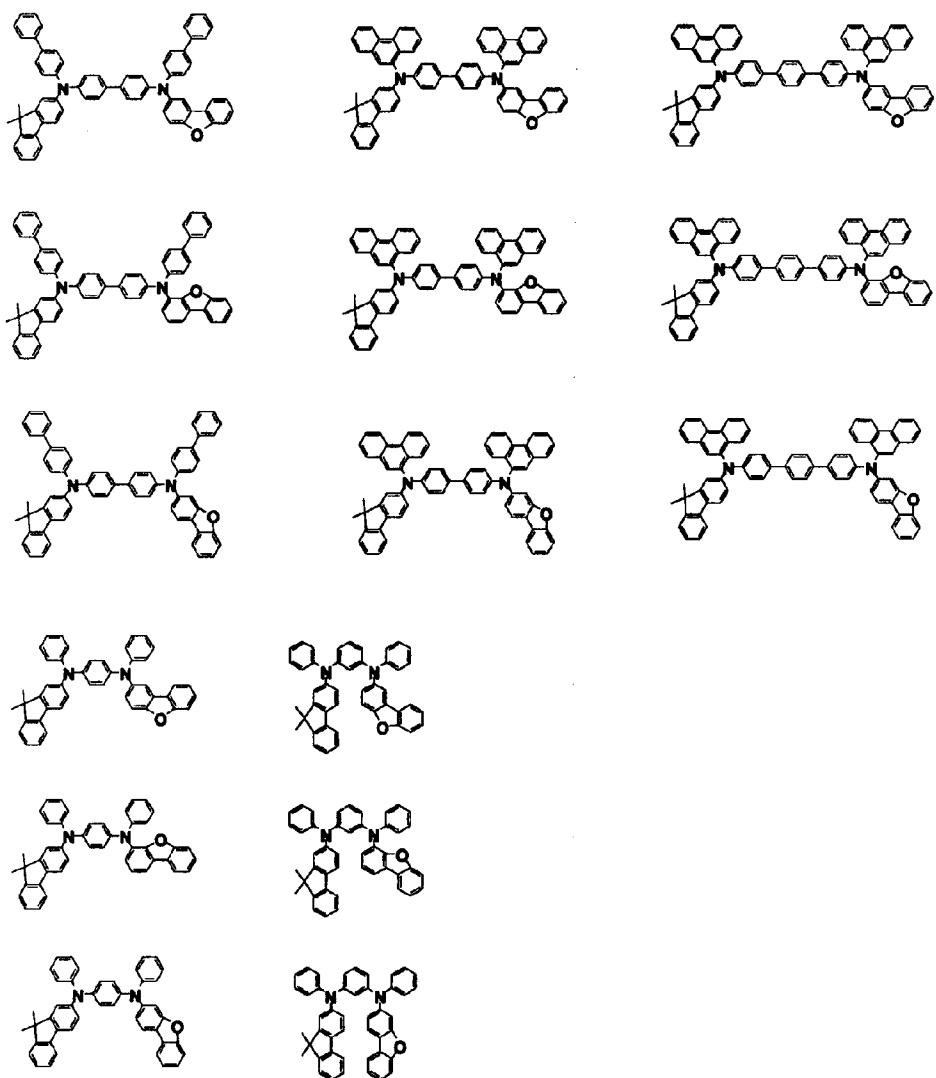
[0043]

[化21]



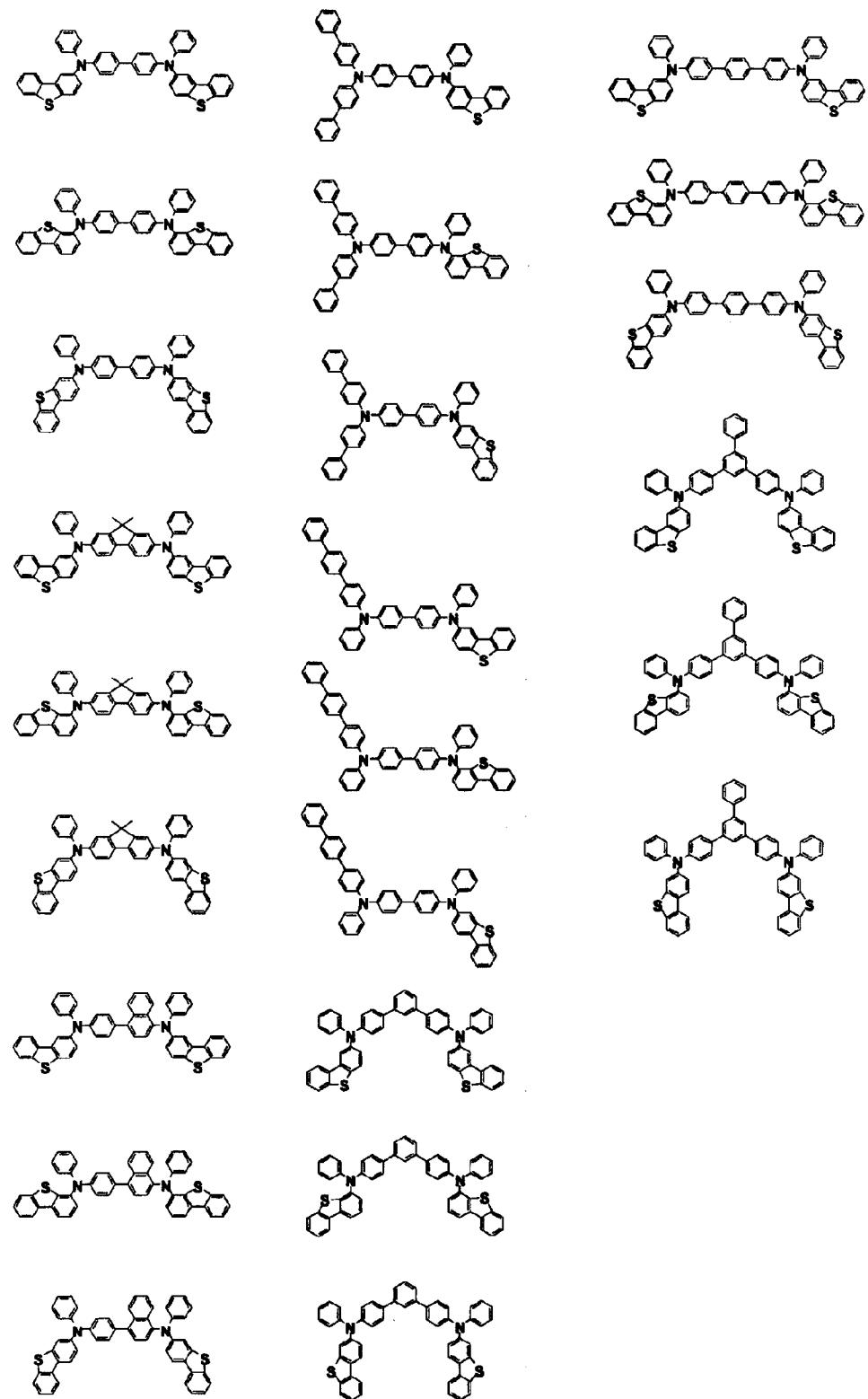
[0044]

[化22]



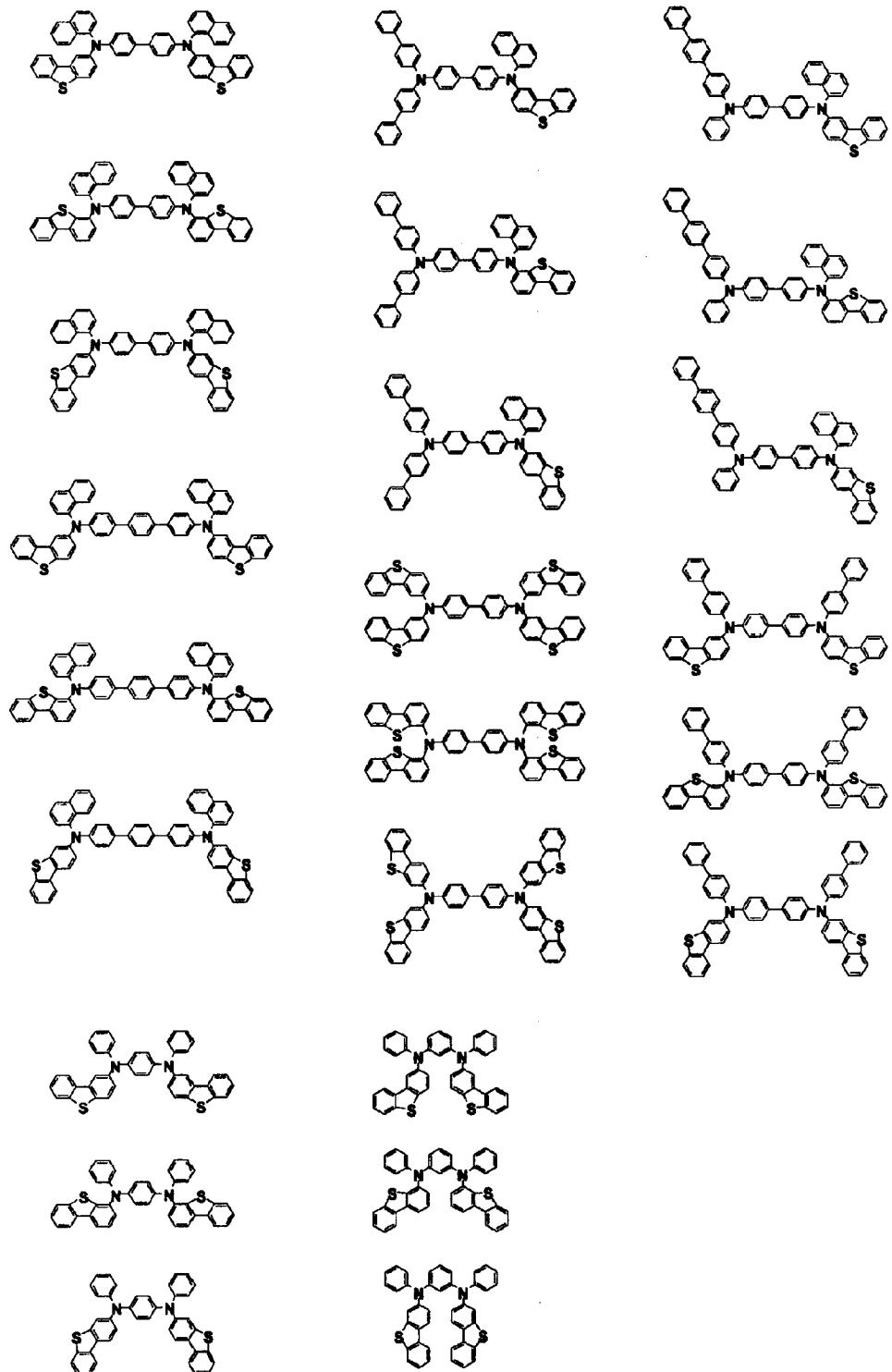
[0045]

[化23]



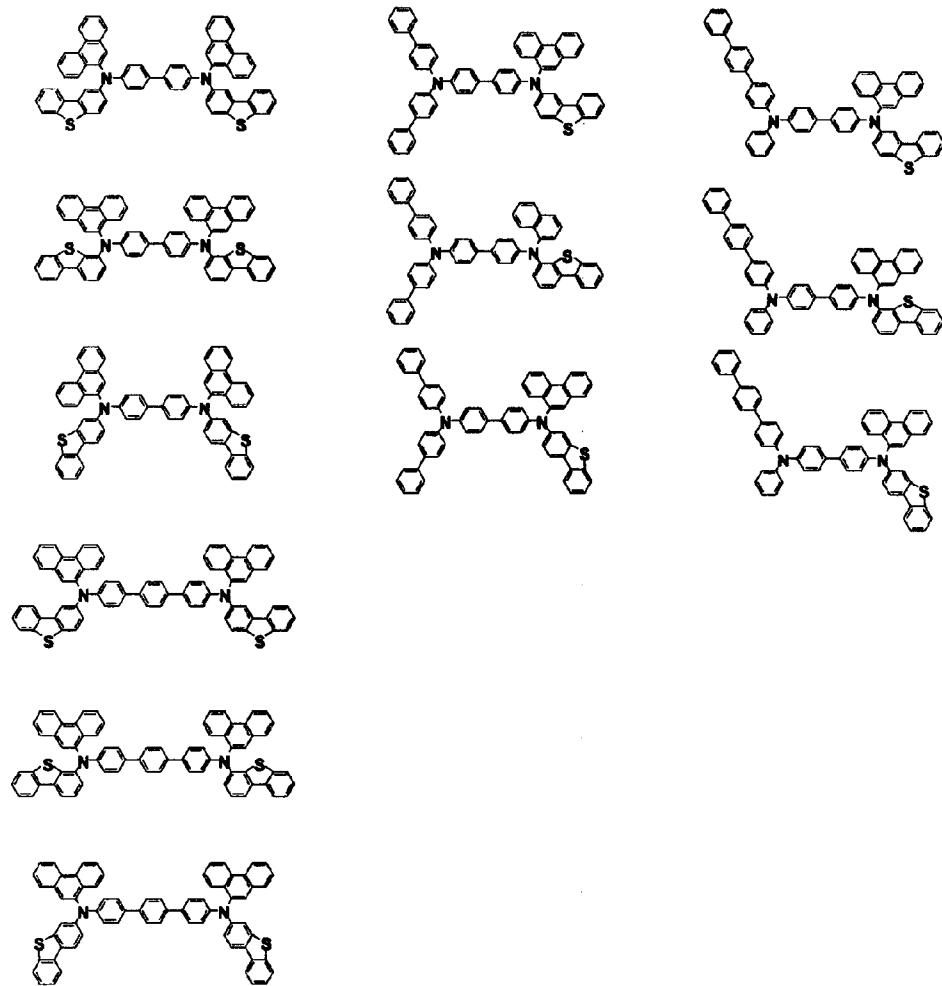
[0046]

[化24]



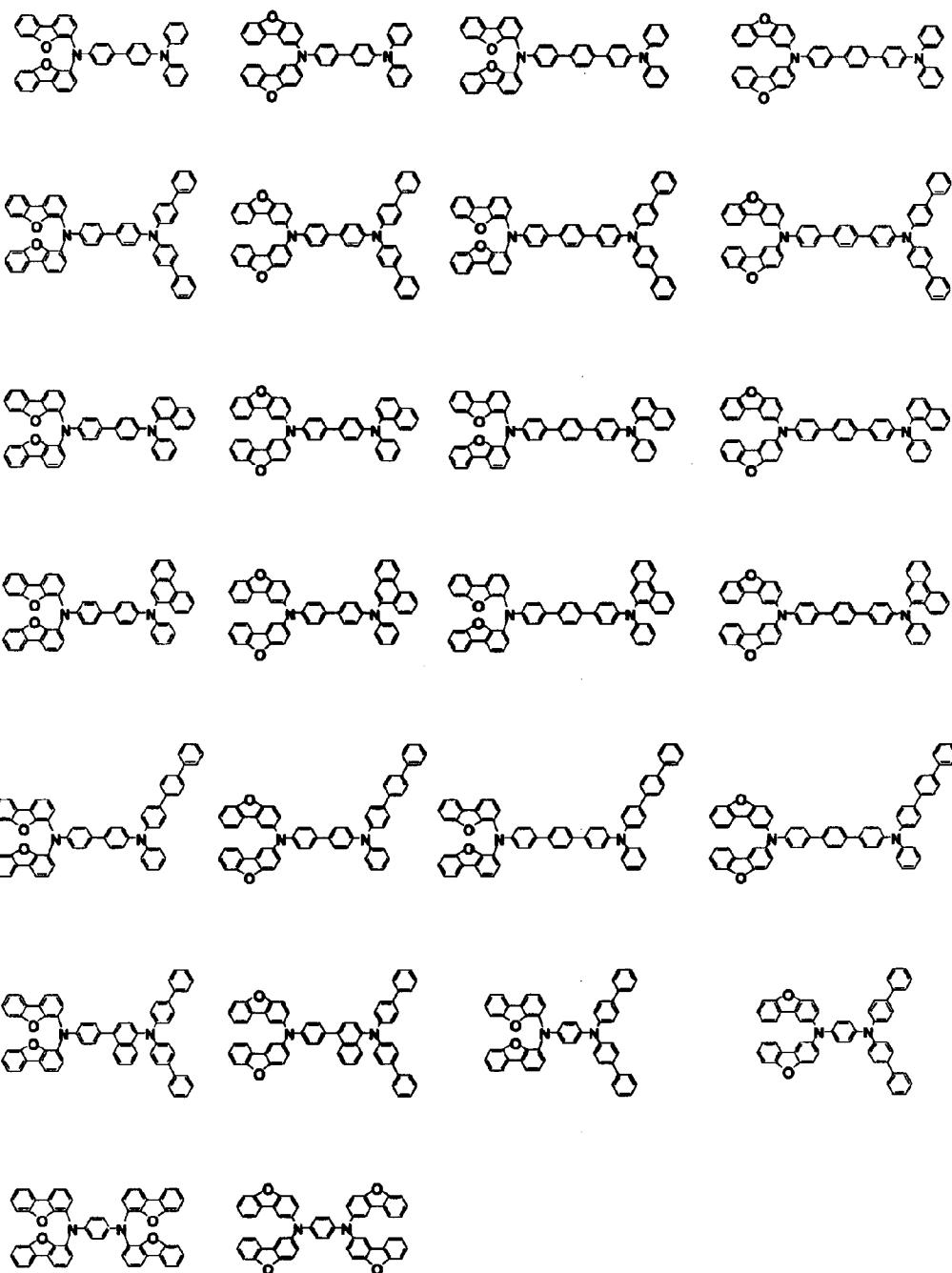
[0047]

[化25]



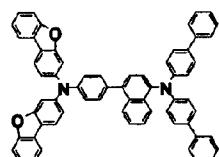
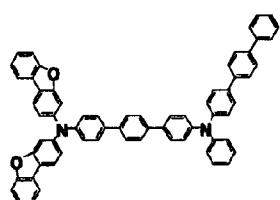
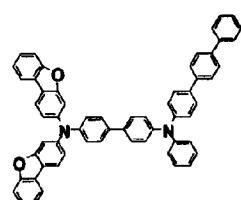
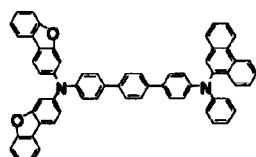
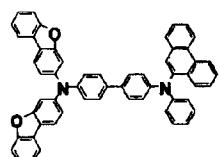
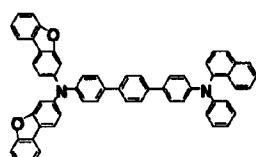
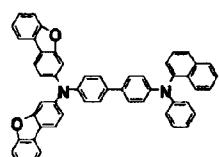
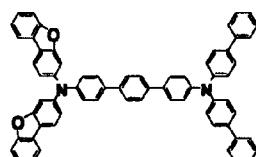
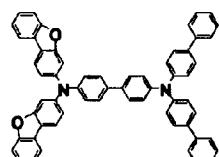
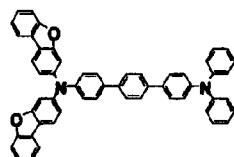
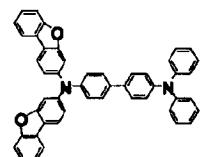
[0048]

[化26]



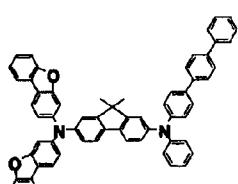
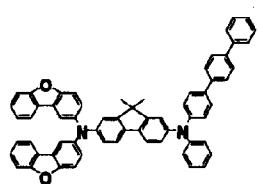
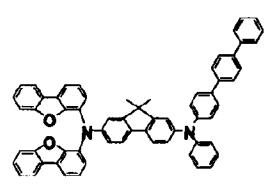
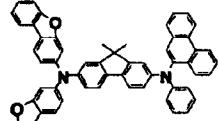
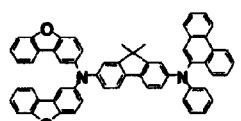
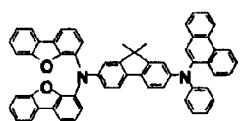
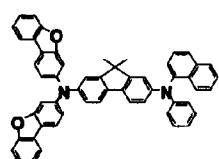
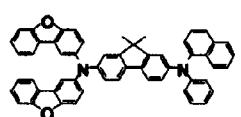
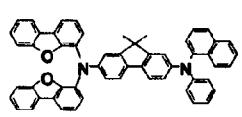
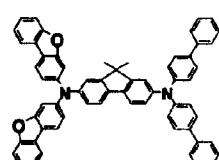
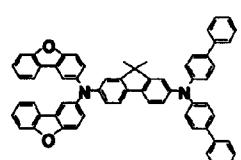
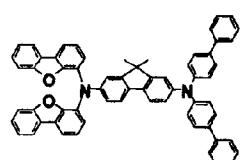
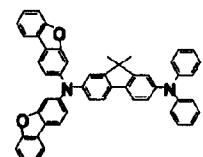
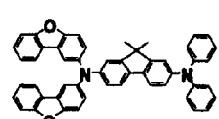
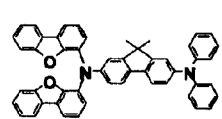
[0049]

[化27]



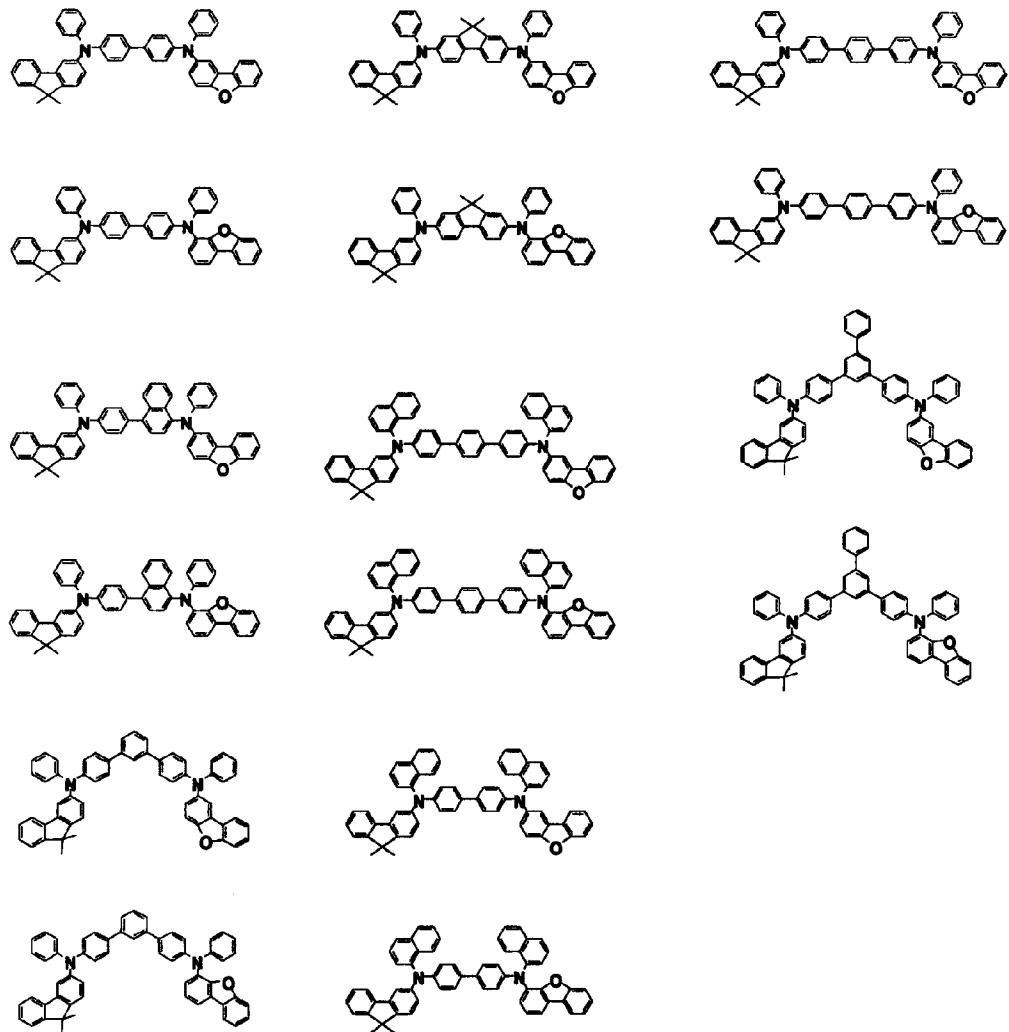
[0050]

[化28]



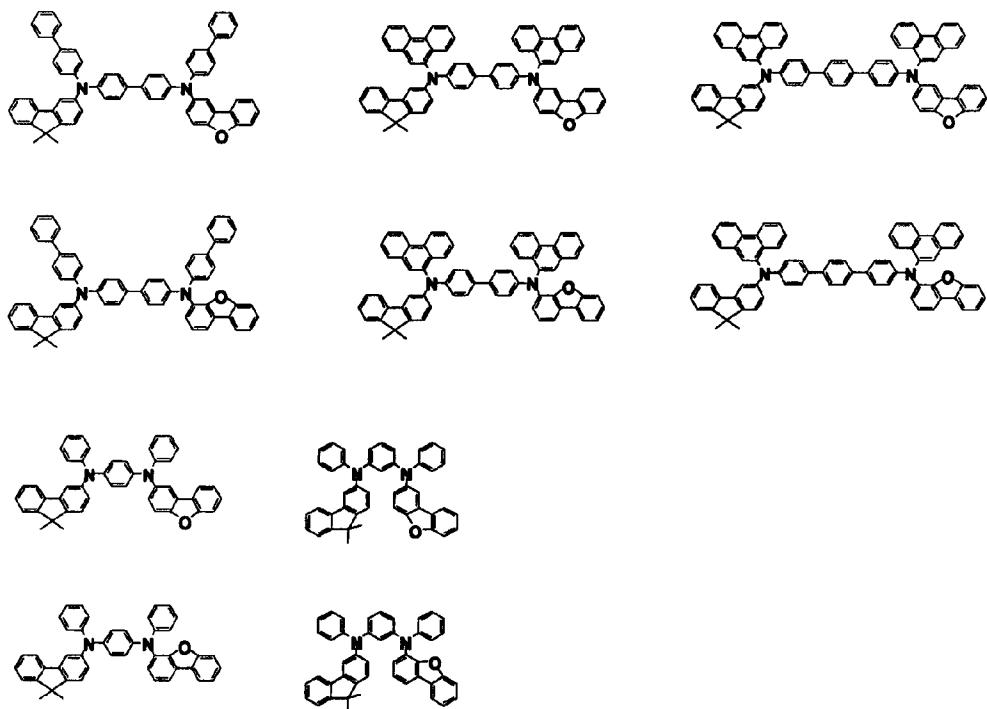
[0051]

[化29]



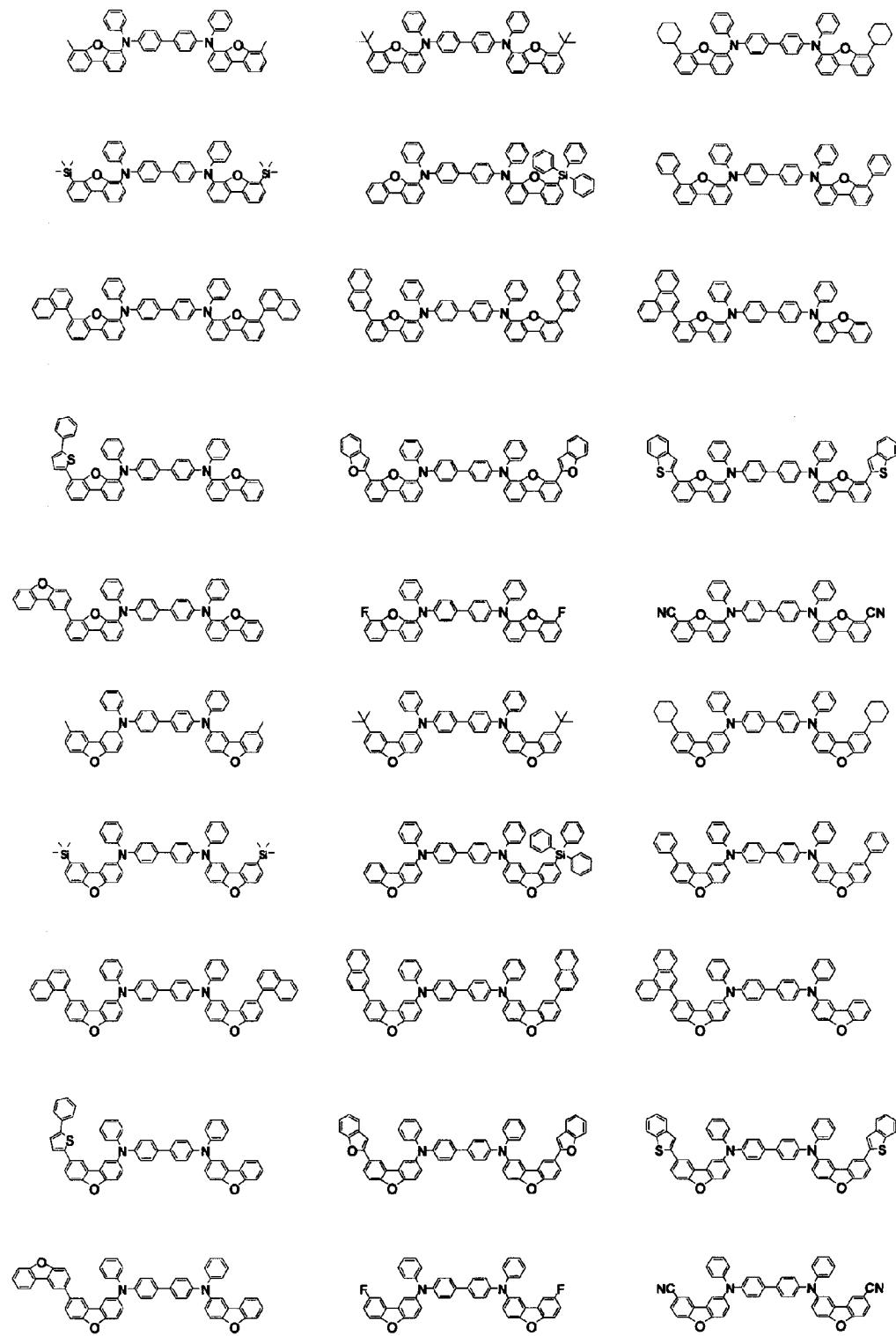
[0052]

[化30]



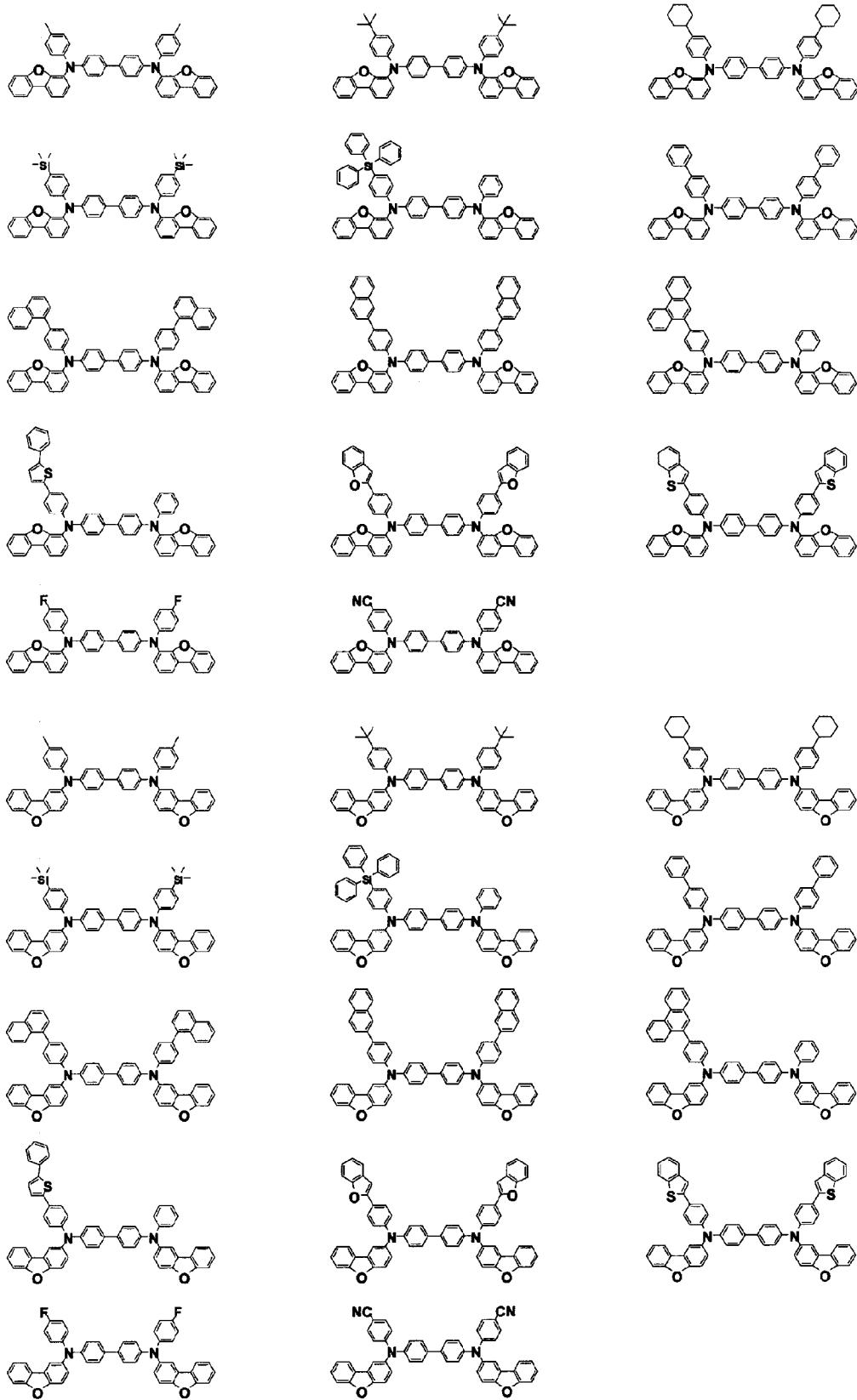
[0053]

[化31]

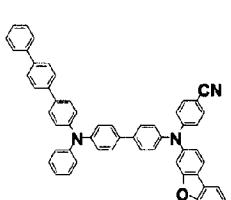
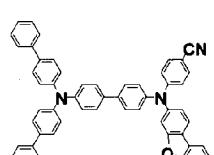
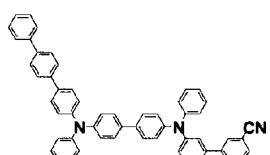
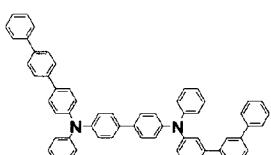
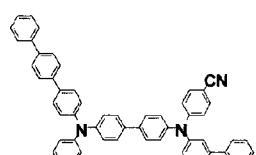
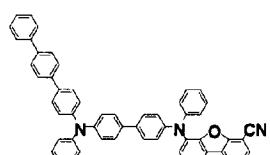
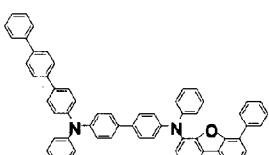
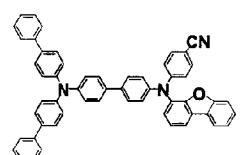
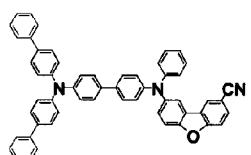
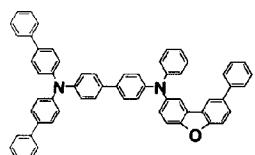
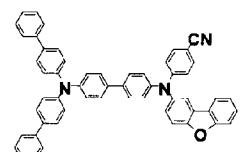
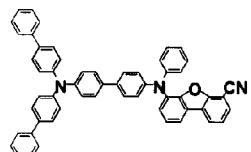
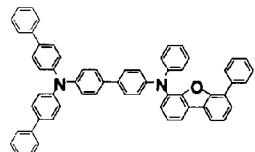


[0054]

[化32]

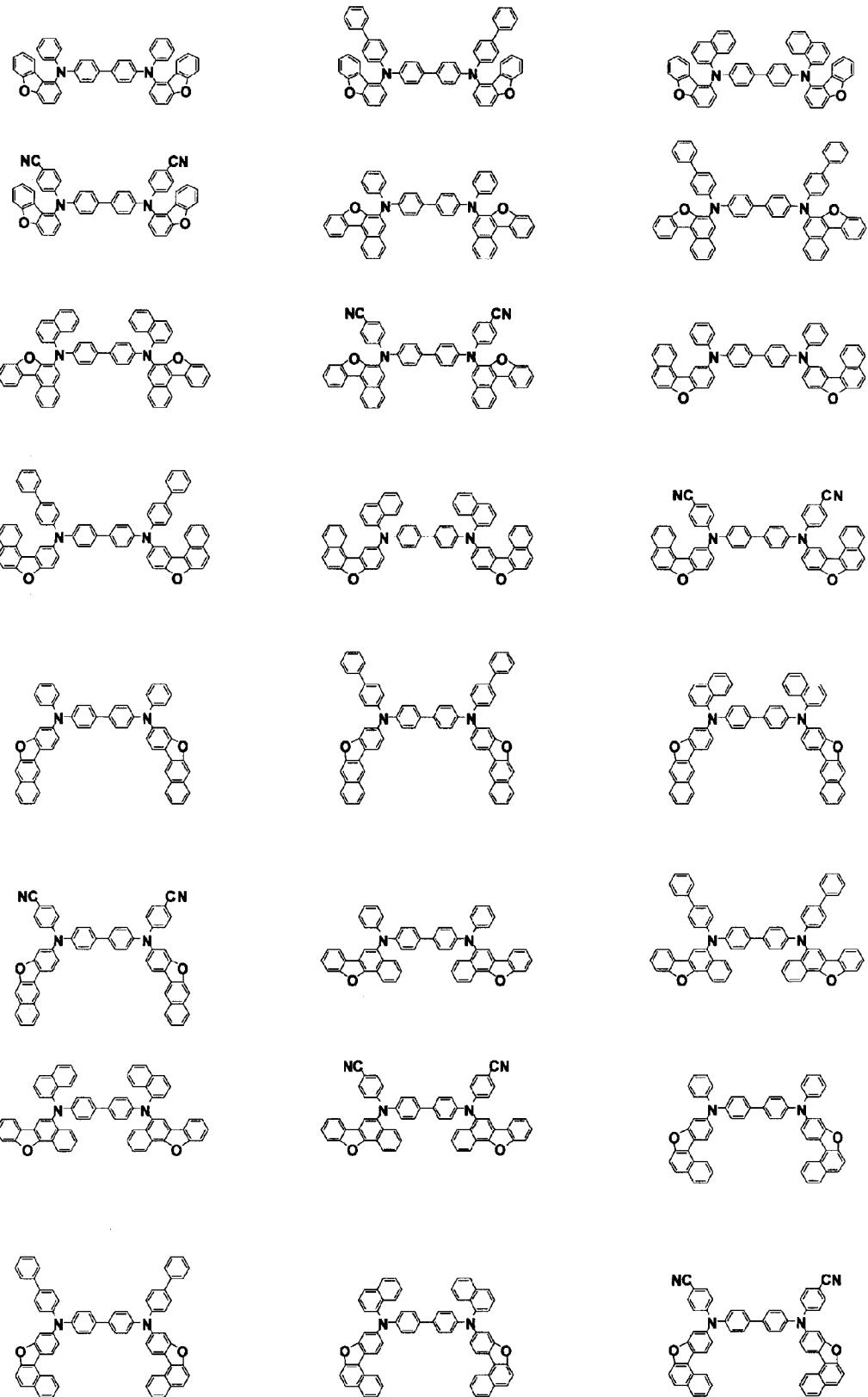


[0055] [化33]

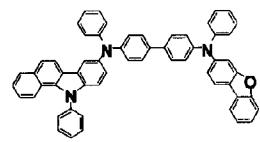
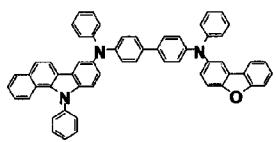
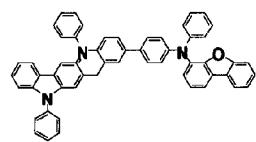
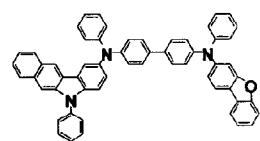
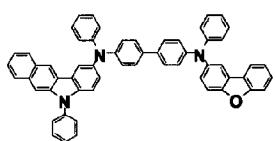
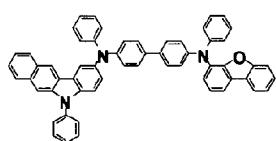
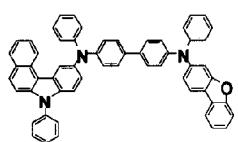
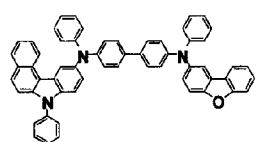
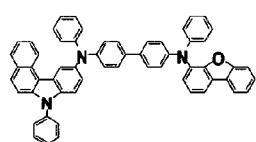
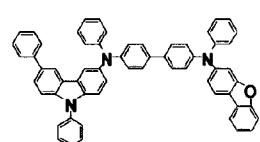
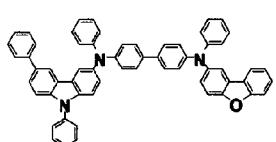
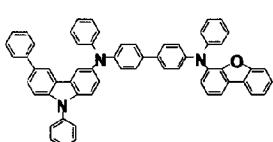
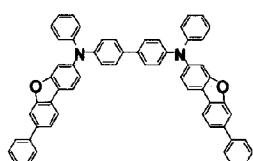
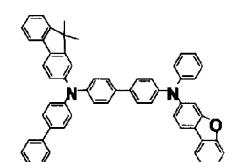
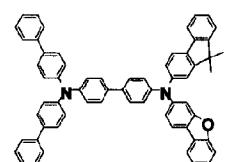
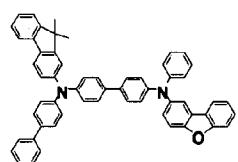
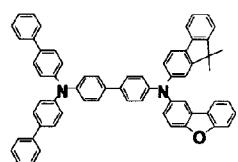
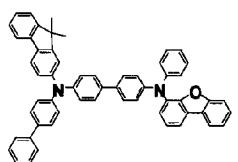
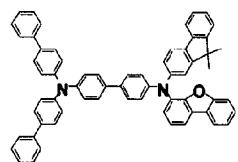


[0056]

[化34]

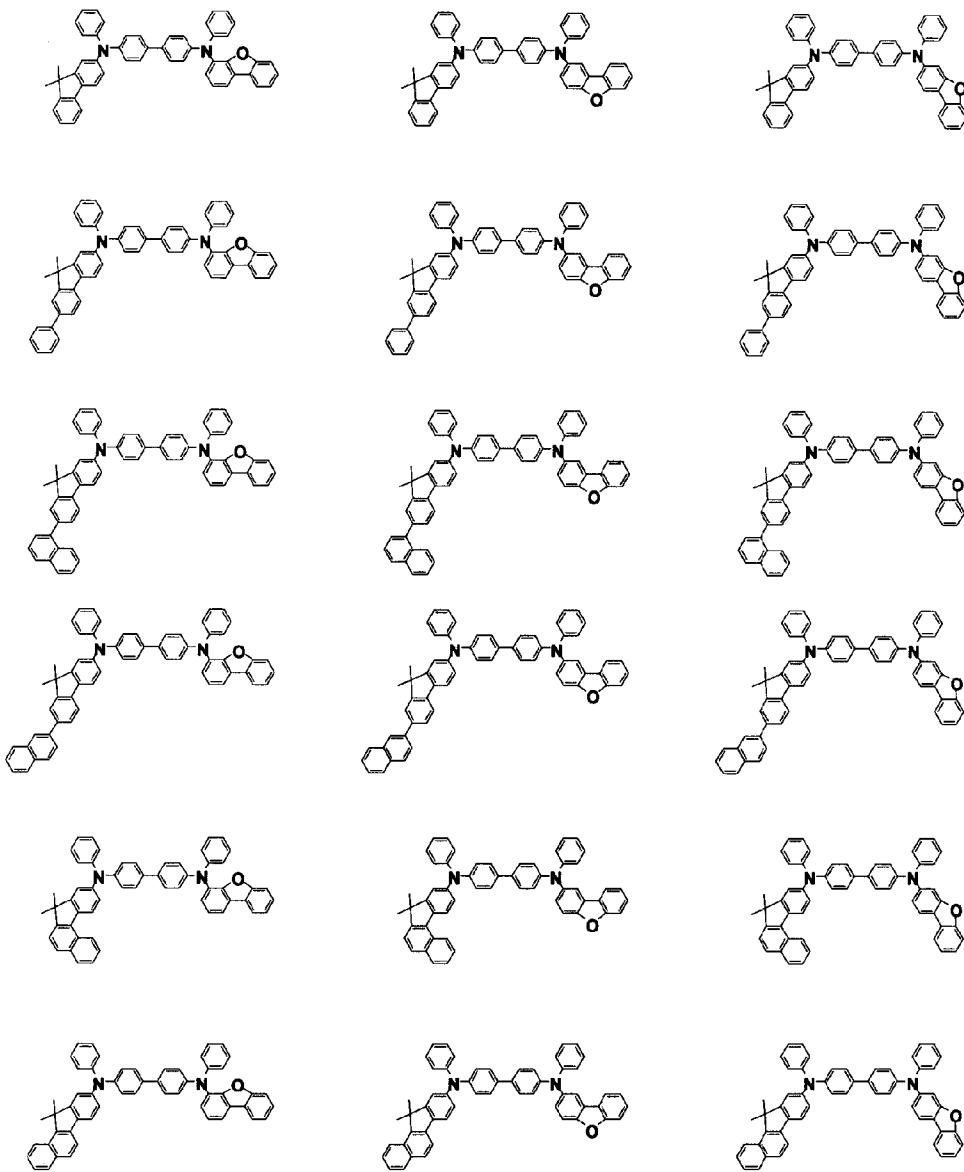


[0057] [化35]



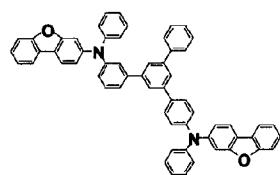
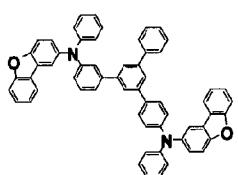
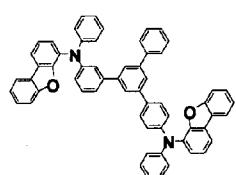
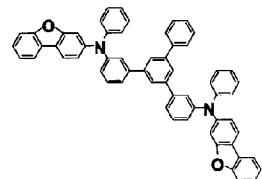
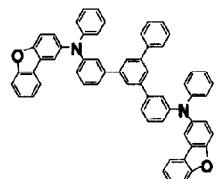
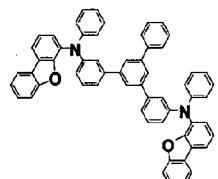
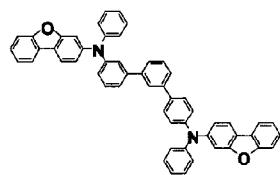
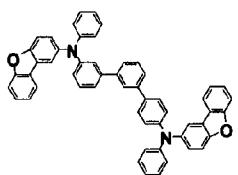
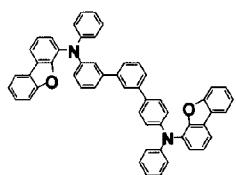
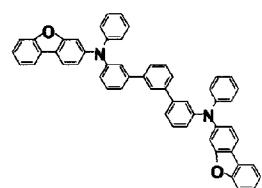
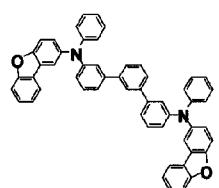
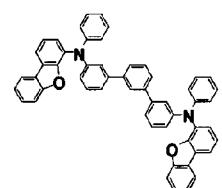
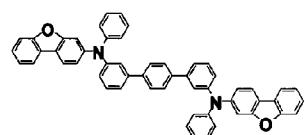
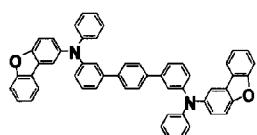
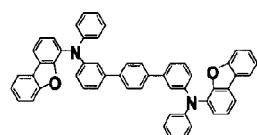
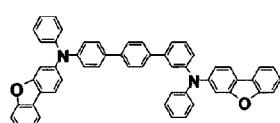
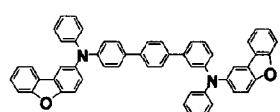
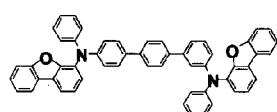
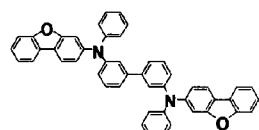
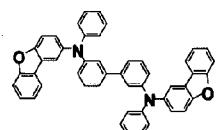
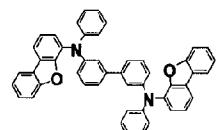
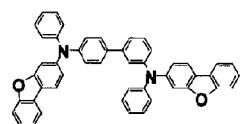
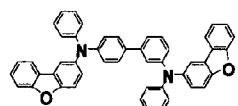
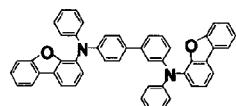
[0058]

[化36]

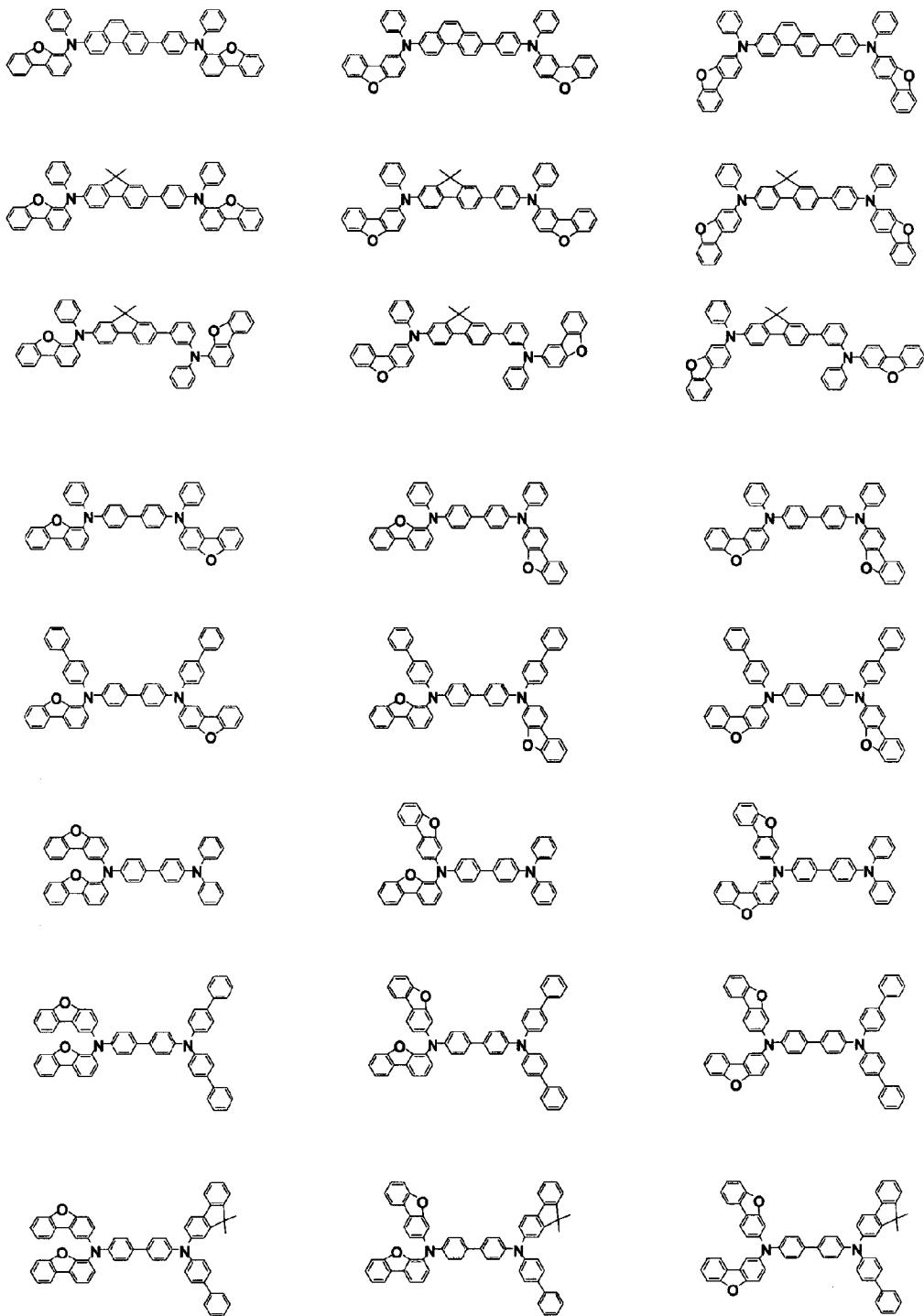


[0059]

[化37]



[0060] [化38]



[0061] 本発明は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少な

くとも一層が、前記芳香族アミン誘導体を単独又は混合物の成分として含有する有機EL素子を提供するものである。

以下、本発明の有機EL素子の素子構成について説明する。

(1) 有機EL素子の構成

本発明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極／発光層／陰極
- (2) 陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- (3) 陽極／発光層／電子注入層／陰極
- (4) 陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
- (5) 陽極／有機半導体層／発光層／陰極
- (6) 陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極
- (7) 陽極／有機半導体層／発光層／付着改善層／陰極
- (8) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
- (9) 陽極／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
- (10) 陽極／無機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
- (11) 陽極／有機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
- (12) 陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／絶縁層／陰極
- (13) 陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子（輸送）注入層／陰極

などの構造を挙げることができる。

これらの中で通常(8)の構成が好ましく用いられるが、これらに限定されるものではない。

[0062] 本発明の芳香族アミン誘導体は、前記正孔輸送層及び／又は正孔注入層に、本発明の芳香族アミン誘導体を含有することが好ましい。

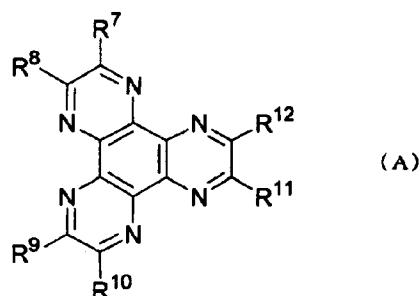
また、前記正孔輸送層及び／又は正孔注入層に、電子受容性化合物を含有する層が接合することが好ましい。

さらに、本発明の芳香族アミン誘導体を含有する層に、電子受容性化合物を含有する層が接合し、かつ、ホスト材料と発光を示すドーパント材料とを

含有する発光層が、前記電子受容性化合物を含有する層との反対面において接合した場合、素子構成を単純化することで、低電圧化及び製造コストの低減が期待される。

前記電子受容性化合物としては下記式（A）又は（B）で表される化合物等の平面性の高い骨格を有するものが好ましい。

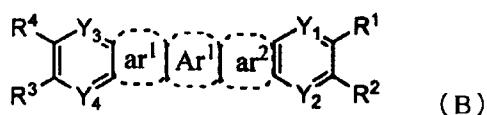
[0063] [化39]



[0064] （上記式（A）中、R⁷～R¹²は、それぞれ独立にシアノ基、-C O N H₂、カルボキシル基、もしくは-C O O R¹³（R¹³は、炭素数1～20のアルキル基である。）を表すか、又は、R⁷及びR⁸、R⁹及びR¹⁰、もしくはR¹¹及びR¹²が一緒になって-C O -O -C O-で示される基を表す。）

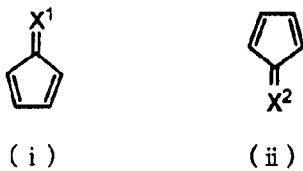
R¹³のアルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i s o -プロピル基、n-ブチル基、i s o -ブチル基、t e r t -ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

[0065] [化40]



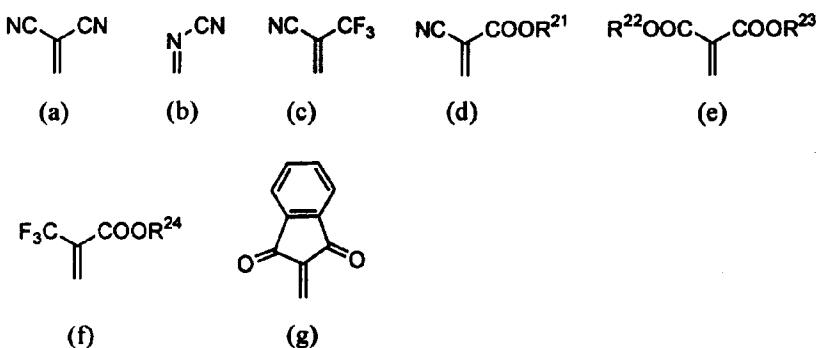
[0066] [上記式（B）中、Ar¹は、環形成炭素数6～24の縮合環、又は環形成原子数6～24の複素環である。Ar¹及びAr²は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、下記式（i）もしくは（ii）である。

[化41]



{式中、X¹及びX²は互いに同一でも異なっていてもよく、下記(a)～(g)に示す二価の基のいずれかである。}

[0067] [化42]



[0068] (式中、R²¹～R²⁴は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基であり、R²²とR²³は互いに結合して環を形成してもよい。)}

式(B)中のR¹～R⁴は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリールオキシ基、又はシアノ基である。R¹～R⁴のうち互いに隣接するものは互い

に結合して環を形成してもよい。Y¹～Y⁴は互いに同一でも異なっていてもよ
く、-N=、-CH=、又はC(R⁵)=であり、R⁵は、置換もしくは無置換
の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のア
リール基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基、ハロゲ
ン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換
もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭
素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～5
0の炭素数6～50のアリールオキシ基、又はシアノ基である。]

[0069] R¹～R⁵の各基の例としては以下の通りである。

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

アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、フルオロ
フェニル基、トリフルオロメチルフェニル基等が挙げられる。

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

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

フルオロアルキル基としては、トリフルオロメチル基、ペントフルオロエ
チル基、パーフルオロシクロヘキシル基、パーフルオロアダマンチル基等が
挙げられる。

アルコキシ基及びフルオロアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ
基、トリフルオロメトキシ基等が挙げられる。

アリールオキシ基の例としては、フェニルオキシ基、ペンタフェニルオキ
シ基、4-トリクロフェニルオキシ基等が挙げられる。

また、これらの置換基の例としては、上記で挙げたハロゲン原子、シアノ
基、アルキル基、アリール基、フルオロアルキル基、又は複素環基と同様な
ものが挙げられる。

$R^1 \sim R^4$ のうち互いに隣接するものは、互いに結合して環を形成していてよい。環の例としては、ベンゼン環、ナフタレン環、ピラジン環、ピリジン環、フラン環等が挙げられる。

[0070] (2) 透光性基板

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

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

[0071] (3) 陽極

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

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

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

[0072] (4) 発光層

有機EL素子の発光層は以下(1)～(3)の機能を併せ持つものである。

(1) 注入機能；電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することが

でき、

陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能

- (2) 輸送機能；注入した電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる機能
- (3) 発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあるあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があつてもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンドルコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の接着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンドルコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

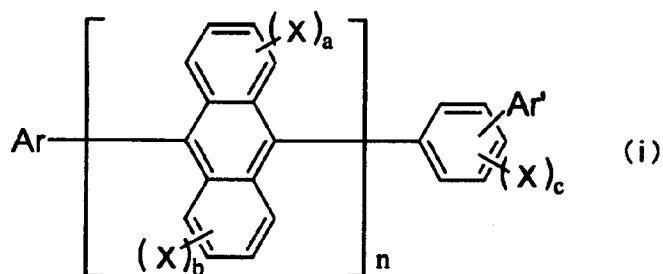
[0073] 本発明の芳香族アミン誘導体を発光材料又はドーピング材料として発光層に用いても良いが、他の発光材料又はドーピング材料としては、例えば、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オ

キシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン及び蛍光色素等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0074] 本発明の有機EL素子の発光層に使用できるホスト材料としては、下記(i)～(ix)で表される化合物が好ましい。

下記一般式(i)で表される非対称アントラセン。

[0075] [化43]



[0076] (式中、Arは置換もしくは無置換の環形成炭素数10～50の縮合芳香族基である。

Ar'は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族基である。

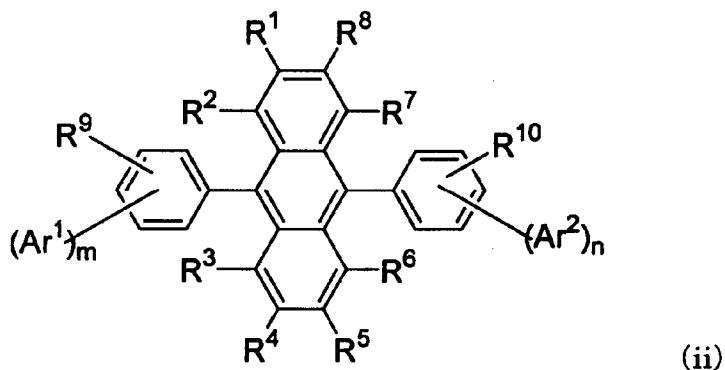
Xは、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、カルボキシリル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基である。

a、b及びcは、それぞれ0～4の整数である。

nは1～3の整数である。また、nが2以上の場合は、[]内は、同じでも異なっていててもよい。)

[0077] 下記一般式(ii)で表される非対称モノアントラセン誘導体。

[化44]

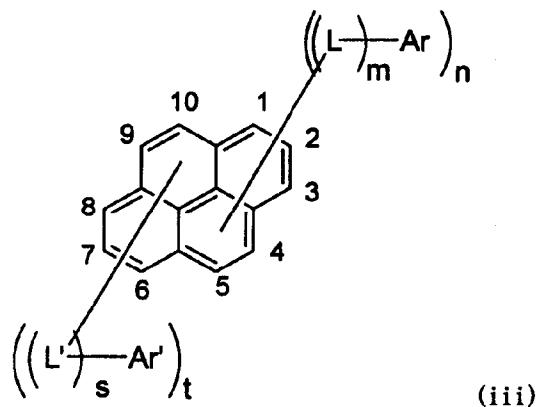


[0078] (式中、 A_{r^1} 及び A_{r^2} は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族環基であり、 m 及び n は、それぞれ1～4の整数である。ただし、 $m=n=1$ でかつ A_{r^1} と A_{r^2} のベンゼン環への結合位置が左右対称型の場合には、 A_{r^1} と A_{r^2} は同一ではなく、 m 又は n が2～4の整数の場合には m と n は異なる整数である。

R^1 ～ R^{10} は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族環基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基である。)

[0079] 下記一般式(iii)で表される非対称ピレン誘導体。

[化45]



[0080] [式中、 A_r 及び $A_{r'}$ は、それぞれ置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 の芳香族基である。

L 及び L' は、それぞれ置換もしくは無置換のフェニレン基、置換もしくは無置換のナフタレン基、置換もしくは無置換のフルオレニレン基又は置換もしくは無置換のジベンゾシロリレン基である。

m は 0 ~ 2 の整数、 n は 1 ~ 4 の整数、 s は 0 ~ 2 の整数、 t は 0 ~ 4 の整数である。

また、 L 又は A_r は、ピレンの 1 ~ 5 位のいずれかに結合し、 L' 又は $A_{r'}$ は、ピレンの 6 ~ 10 位のいずれかに結合する。

ただし、 $n + t$ が偶数の時、 A_r 、 $A_{r'}$ 、 L 、 L' は下記(1) 又は(2)を満たす。

(1) $A_r \neq A_{r'}$ 及び／又は $L \neq L'$ (ここで \neq は、異なる構造の基であることを示す。)

(2) $A_r = A_{r'}$ かつ $L = L'$ の時

(2-1) $m \neq s$ 及び／又は $n \neq t$ 、又は

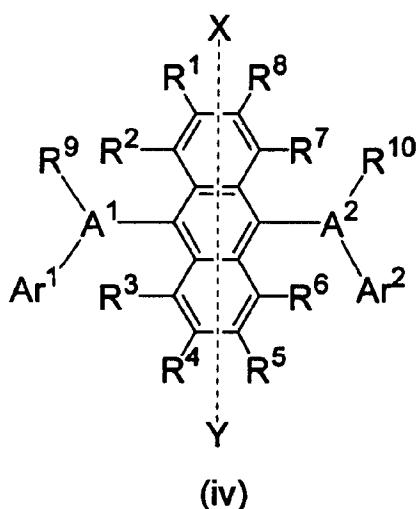
(2-2) $m = s$ かつ $n = t$ の時、

(2-2-1) L 及び L' 、又はピレンが、それぞれ A_r 及び $A_{r'}$ 上の異なる結合位置に結合しているか、(2-2-2) L 及び L' 、又はピレンが、 A_r 及び $A_{r'}$ 上の同じ結合位置で結合している場合、 L 及び L' 又は A_r 及び

A_{r'} のピレンにおける置換位置が 1 位と 6 位、又は 2 位と 7 位である場合はない。]

[0081] 下記一般式(iv)で表される非対称アントラセン誘導体。

[化46]



[0082] (式中、A¹及びA²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 10～20 の縮合芳香族環基である。

A_{r'1}及びA_{r'2}は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 の芳香族環基である。

R¹～R¹⁰は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 の芳香族環基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6～50 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシ基である。

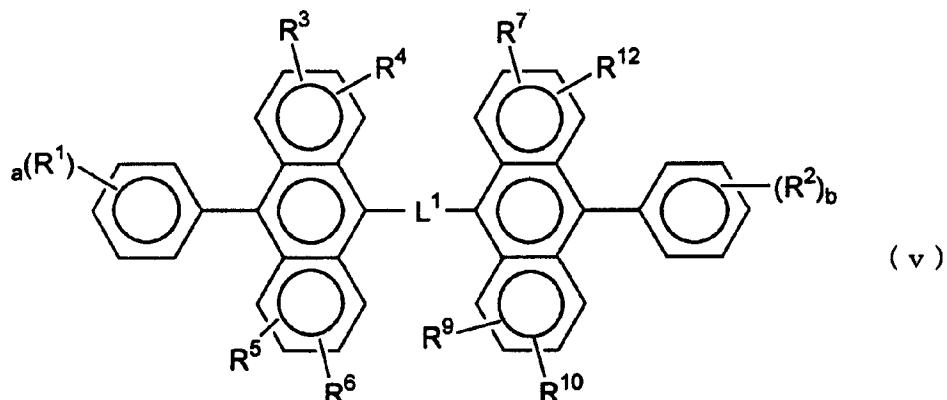
A_{r'1}、A_{r'2}、R⁹及びR¹⁰は、それぞれ複数であってもよく、隣接するもの

同士で飽和もしくは不飽和の環状構造を形成していてもよい。

ただし、一般式（1）において、中心のアントラセンの9位及び10位に、該アントラセン上に示すX-Y軸に対して対称型となる基が結合する場合はない。）

[0083] 下記一般式（v）で表されるアントラセン誘導体。

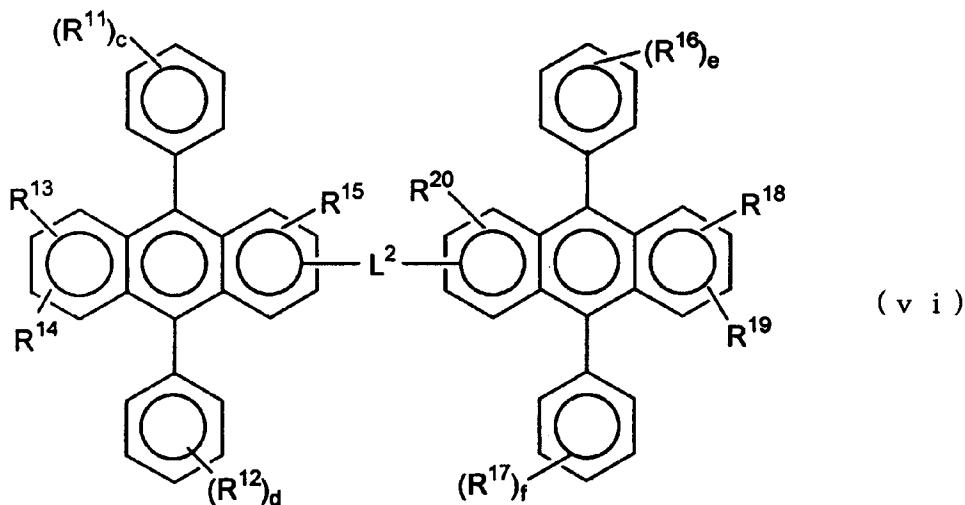
[化47]



[0084] (式中、R¹～R¹⁰は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、置換しても良いアリール基、アルコキシリル基、アリールオキシ基、アルキルアミノ基、アルケニル基、アリールアミノ基又は置換しても良い複素環式基を示し、a及びbは、それぞれ1～5の整数を示し、それらが2以上の場合、R¹同士又はR²同士は、それぞれにおいて、同一でも異なっていてもよく、またR¹同士又はR²同士が結合して環を形成していてもよいし、R³とR⁴、R⁵とR⁶、R⁷とR⁸、R⁹とR¹⁰がたがいに結合して環を形成していてもよい。L¹は単結合、-O-、-S-、-N (R)- (Rはアルキル基又は置換しても良いアリール基である)、アルキレン基又はアリーレン基を示す。)

[0085] 下記一般式（vi）で表されるアントラセン誘導体。

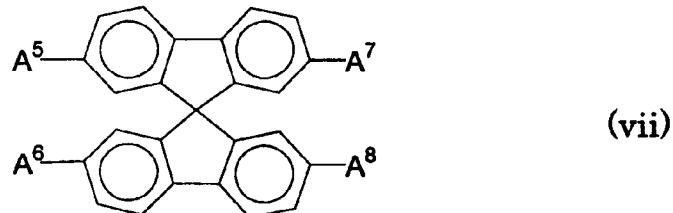
[化48]



[0086] (式中、R¹¹～R²⁰は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルコキシリル基、アリールオキシ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基又は置換しても良い複数環式基を示し、c、d、e及びfは、それぞれ1～5の整数を示し、それらが2以上の場合、R¹¹同士、R¹²同士、R¹⁶同士又はR¹⁷同士は、それぞれにおいて、同一でも異なっていてもよく、またR¹¹同士、R¹²同士、R¹⁶同士又はR¹⁷同士が結合して環を形成していてもよいし、R¹³とR¹⁴、R¹⁸とR¹⁹がたがいに結合して環を形成していてもよい。L²は単結合、—O—、—S—、—N(R)—(Rはアルキル基又は置換しても良いアリール基である)、アルキレン基又はアリーレン基を示す。)

[0087] 下記一般式(vii)で表されるスピロフルオレン誘導体。

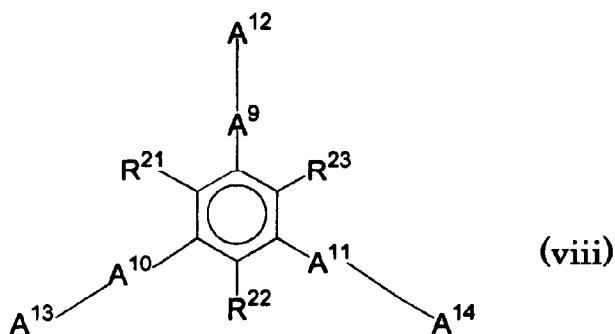
[化49]



[0088] (式中、A⁵～A⁸は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のビフェニリル基又は置換もしくは無置換のナフチル基である。)

[0089] 下記一般式(viii)で表される縮合環含有化合物。

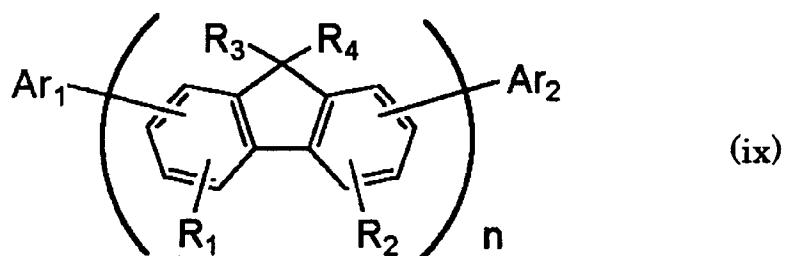
[化50]



[0090] (式中、A⁹～A¹⁴は前記と同じ、R²¹～R²³は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数3～6のシクロアルキル基、炭素数1～6のアルコキシリル基、炭素数5～18のアリールオキシ基、炭素数7～18のアラルキルオキシ基、炭素数5～16のアリールアミノ基、ニトロ基、シアノ基、炭素数1～6のエステル基又はハロゲン原子を示し、A⁹～A¹⁴のうち少なくとも1つは3環以上の縮合芳香族環を有する基である。)

[0091] 下記一般式(ix)で表されるフルオレン化合物。

[化51]



[0092] (式中、R₁及びR₂は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基又はハロゲン原子を表わす

。異なるフルオレン基に結合するR₁同士、R₂同士は、同じであっても異なっていてもよく、同じフルオレン基に結合するR₁及びR₂は、同じであっても異なっていてもよい。R₃及びR₄は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基又は置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合するR₃同士、R₄同士は、同じであっても異なっていてもよく、同じフルオレン基に結合するR₃及びR₄は、同じであっても異なっていてもよい。A_{r₁}及びA_{r₂}は、ベンゼン環の合計が3個以上の置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基又はベンゼン環と複素環の合計が3個以上の置換あるいは無置換の炭素でフルオレン基に結合する縮合多環複素環基を表わし、A_{r₁}及びA_{r₂}は、同じであっても異なっていてもよい。nは、1乃至10の整数を表す。)

[0093] 以上のホスト材料の中でも、好ましくはアントラセン誘導体、さらに好ましくはモノアントラセン誘導体、特に好ましくは非対称アントラセンである。

また、ドーパントの発光材料としては、燐光発光性の化合物を用いることもできる。燐光発光性の化合物としては、ホスト材料にカルバゾール環を含む化合物が好ましい。ドーパントとしては三重項励起子から発光することができる化合物であり、三重項励起子から発光する限り特に限定されないが、I_r、R_u、P_d、P_t、O_s及びR_eからなる群から選択される少なくとも一つの金属を含む金属錯体であることが好ましく、ポルフィリン金属錯体又はオルトメタル化金属錯体が好ましい。

オルトメタル化金属錯体を形成する配位子としては種々のものがあるが、好ましい配位子としては、2-フェニルピリジン誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体、2-フェニルキノリン誘導体等が挙げられる。これらの誘導体は必要に応じて置換基を有しても良い。特に、フッ素化物、トリフルオロメチル基を導入したものが、青色系ドーパントとしては好ましい。さらに補助配位子としてアセチルアセトナート、ピクリン酸等の上記配位子以外の

配位子を有していても良い。

燐光発光性のドーパントの発光層における含有量としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1～70質量%であり、1～30質量%が好ましい。燐光発光性化合物の含有量が0.1質量%未満では発光が微弱でありその含有効果が十分に発揮されず、70質量%を超える場合は、濃度消光と言われる現象が顕著になり素子性能が低下する。

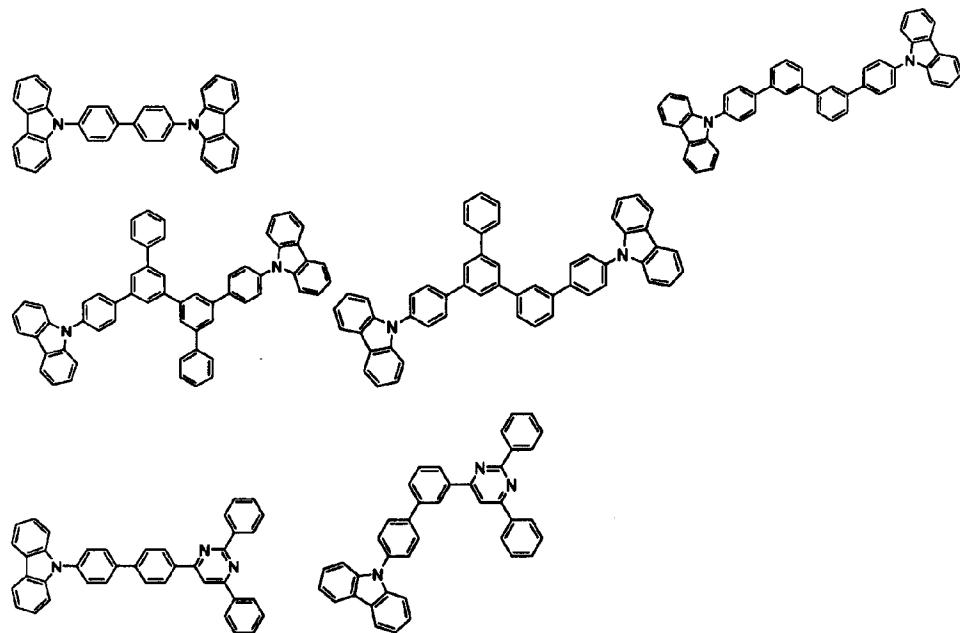
カルバゾール環を含む化合物からなる燐光発光に好適なホストは、その励起状態から燐光発光性化合物へエネルギー移動が起こる結果、燐光発光性化合物を発光させる機能を有する化合物である。ホスト化合物としては励起子エネルギーを燐光発光性化合物にエネルギー移動できる化合物ならば特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。カルバゾール環以外に任意の複素環などを有していても良い。

[0094] このようなホスト化合物の具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、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、ピラゾロン誘導体、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、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、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール) 誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン

誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。ホスト化合物は単独で使用しても良いし、2種以上を併用しても良い。

具体例としては、以下のような化合物が挙げられる。

[0095] [化52]



[0096] また、発光層は、必要に応じて正孔輸送材、電子輸送材、ポリマーバインダーを含有しても良い。

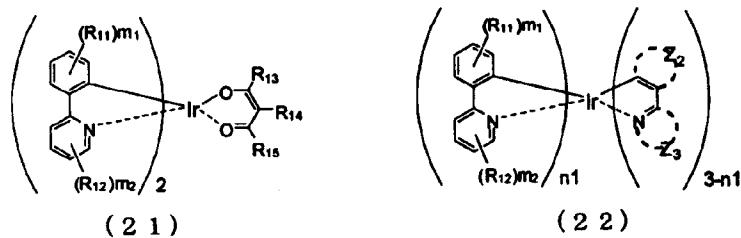
さらに、発光層の膜厚は、好ましくは5～50 nm、より好ましくは7～50 nm、最も好ましくは10～50 nmである。5 nm未満では発光層形成が困難となり、色度の調整が困難となる恐れがあり、50 nmを超えると駆動電圧が上昇する恐れがある。

[0097] さらに、本発明の芳香族アミン誘導体を含有する層に、ホスト材料と発光を示すドーパント材料とを含有する発光層が接合した場合、素子構成を単純化することで、低電圧化及び製造コストの低減が期待される。

この場合のドーパント材料としては、Ir, Pt, Os, Cu, Ru, Re, Auから選択される金属を含有する金属錯体化合物であると好ましく、下記式(21)～(29)で表される部分構造を有する金属錯体化合物又は

その互換異性体であると好ましい。

[0098] [化53]



[0099] (式中、 R_{11} 、 R_{12} はそれぞれ独立に炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルケニル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接する複数の R_{11} 同士、 R_{12} 同士は、それぞれ独立に、飽和又は不飽和の2価の基を形成しても良い。

R_{13} ～ R_{15} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～20のアルキル基を表す。

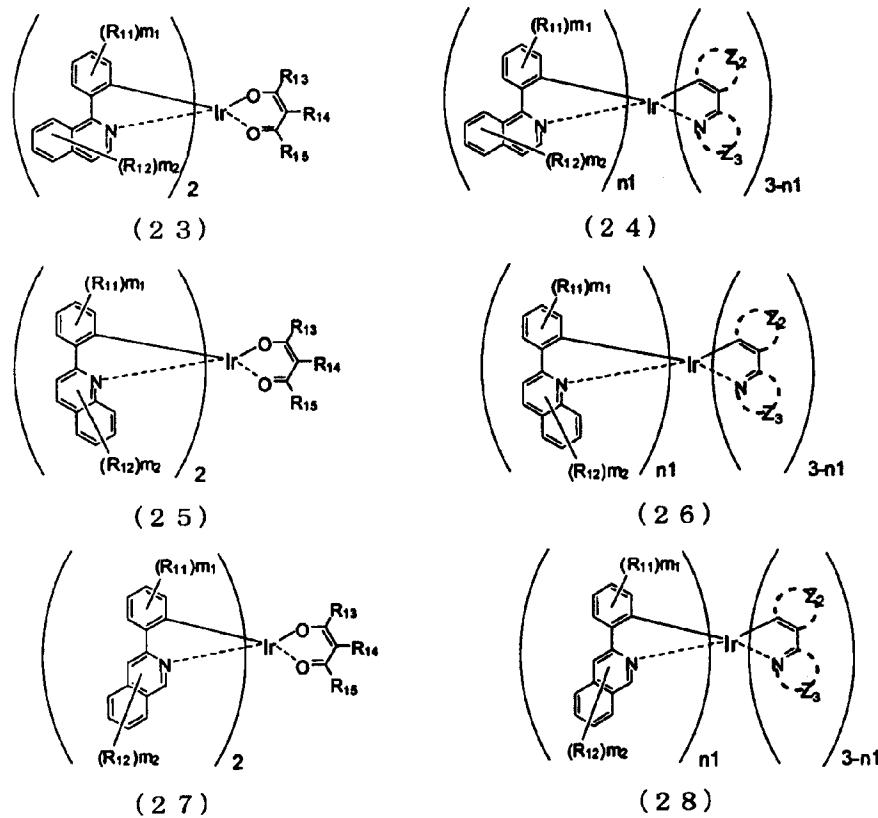
Z_2 は環形成炭素数6～25のアリール環、もしくは環形成原子数5～25のヘテロアリール環を形成する原子団を表し、 Z_3 は、環形成原子数5～25の含窒素ヘテロアリール環を形成する原子団を表す。

m_1 、 m_2 は、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。

n_1 は、1～3の整数を表す。)

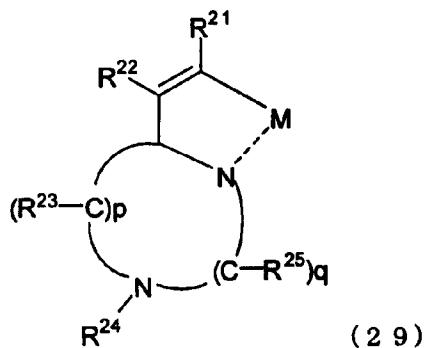
[0100]

[化54]



(式 (23) ~ (28) において、R₁₁~R₁₅、Z₂、Z₃、m₁、m₂、n₁は、式 (21) 及び (22) において用いられたものと同義である。)

[0101] [化55]



[0102] (式中、R₂₁~R₂₅は、それぞれ独立に、水素原子、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、置換もし

くは無置換のアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシリ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアシル基、又は置換もしくは無置換の炭素数1～30の芳香族基を表し、また、R₂₁とR₂₂、R₂₃とR₂₄、R₂₄とR₂₅は、互いに結合して環構造を形成してもよい。

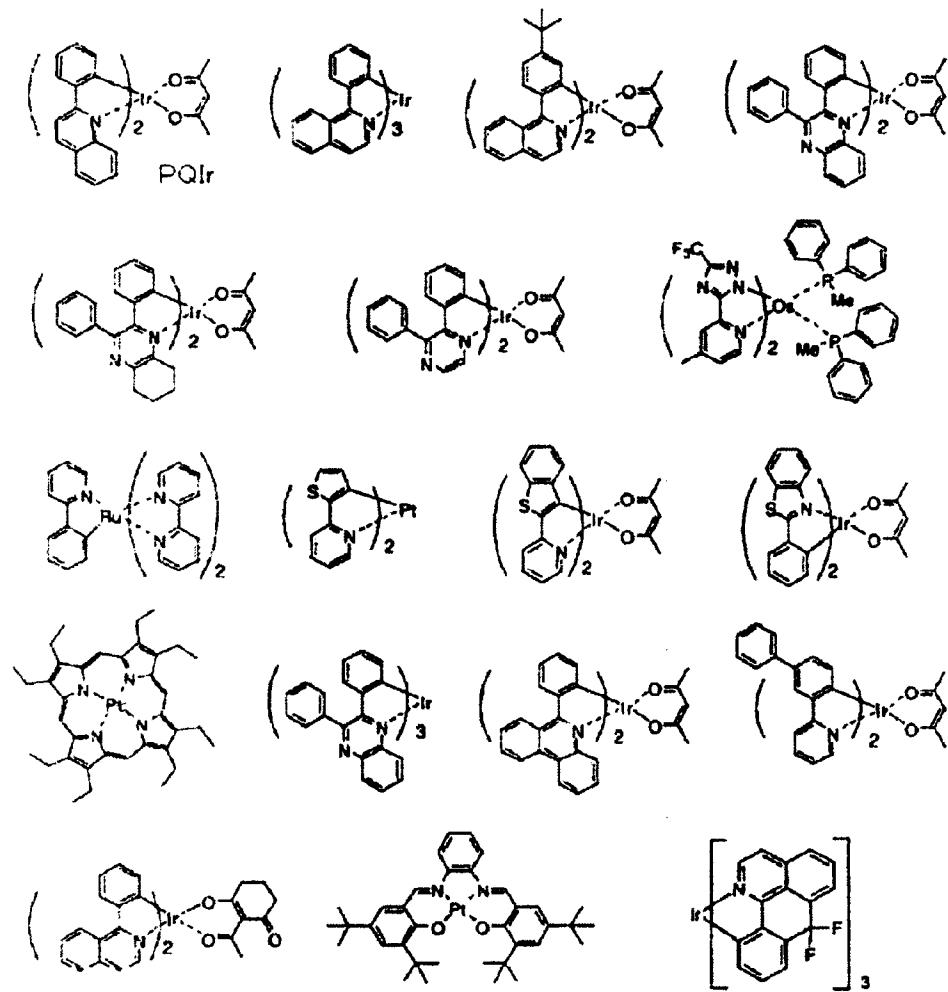
p及びqは、それぞれ、0～3の整数であり、p+qは2又は3である。また、pが2以上の整数のとき、複数のR₂₃は互いに結合して環構造を形成してもよく、qが2以上の整数のとき、複数のR₂₅は互いに結合して環構造を形成してもよい。

Mは、イリジウム(Ir)、ロジウム(Rh)、白金(Pt)又はパラジウム(Pd)の金属原子である。)

これらドーパント材料の具体例としては、例えば、PQIr(iridium(III) bis(2-phenyl quinolyl-N,C²) acetylacetone)、Ir(ppy)₃(fac-tris(2-phenylpyridine) iridium)の他、下記の化合物が挙げられる。

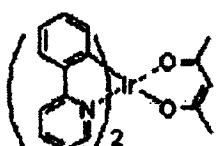
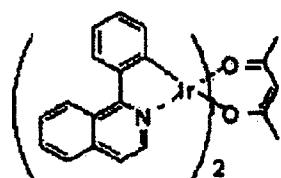
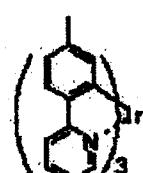
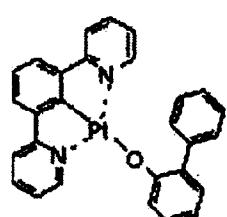
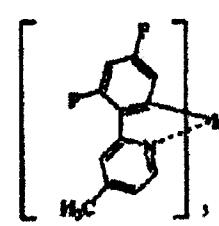
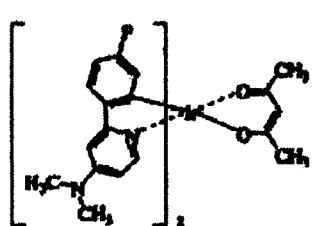
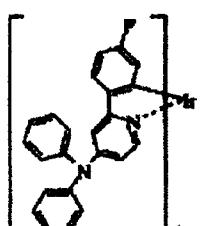
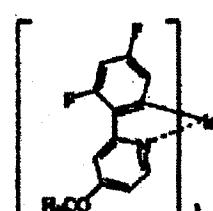
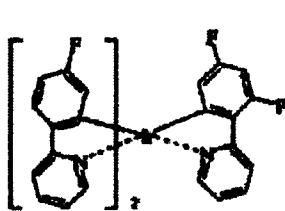
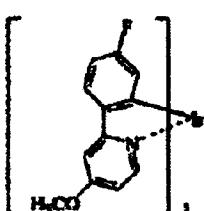
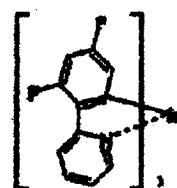
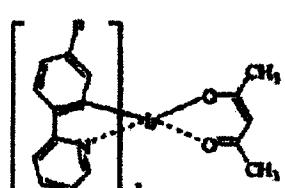
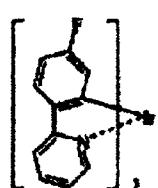
[0103]

[化56]



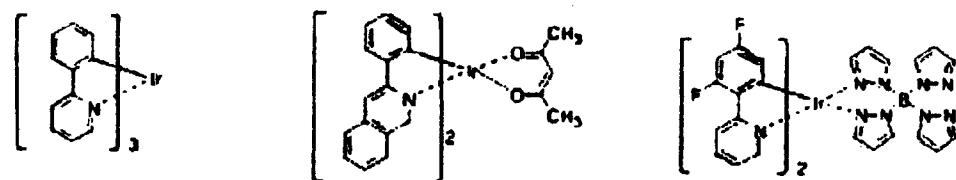
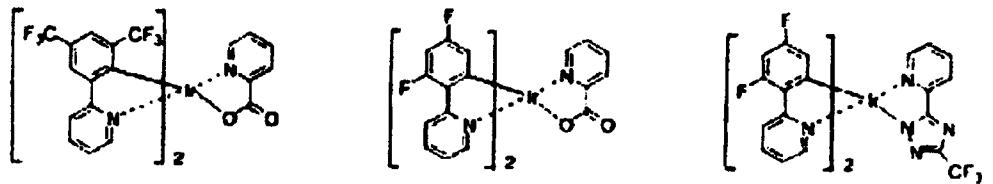
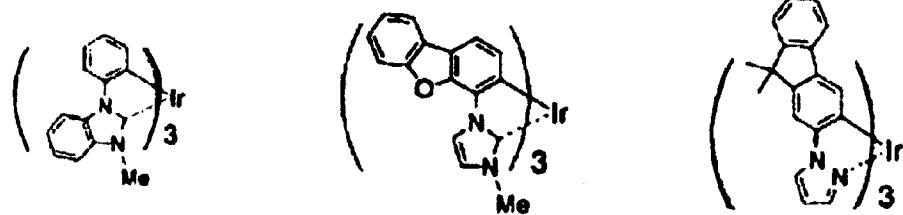
[0104]

[化57]



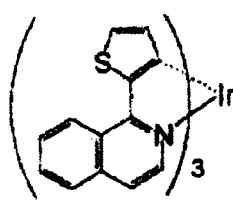
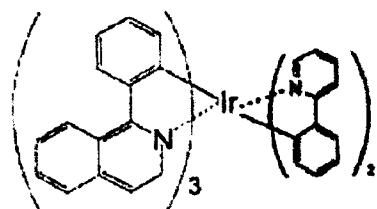
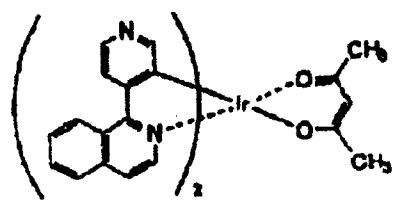
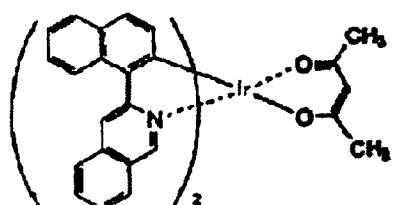
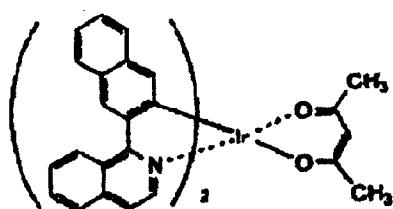
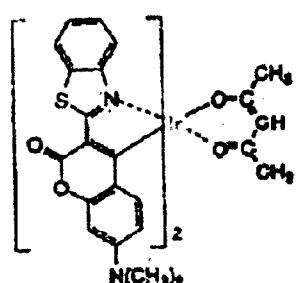
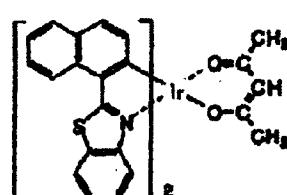
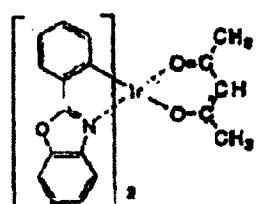
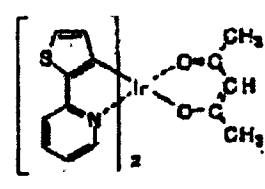
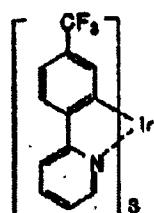
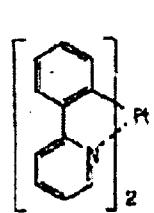
[0105]

[化58]

 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ 

[0106]

[化59]



[0107] 本発明では、前記燐光ドーパントは、最高発光輝度の波長が470 nm以上700 nm以下であることが好ましい。さらに好ましくは、480 nm以上700 nm以下であり、特に好ましくは、500 nm以上650 nm以下である。

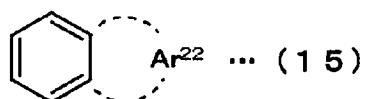
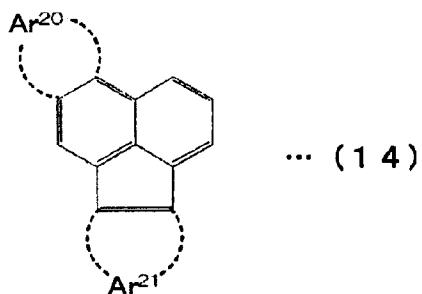
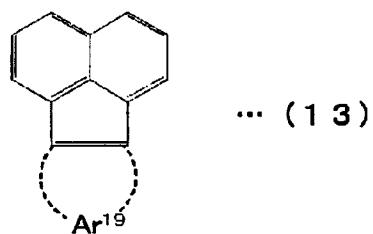
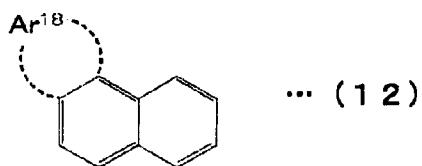
このような発光波長の燐光ドーパントを本発明のホストにドープして燐光発光層を構成することにより、高効率な有機EL素子とできる。

[0108] また、この場合のホスト材料は、置換もしくは無置換の多環式縮合芳香族骨格部を有する化合物であると好ましく、この多環式縮合芳香族骨格部が、置換もしくは無置換の、フェナントレンジイル、クリセンジイル、フルオランテンジイル、トリフェニレンジイルの群から選ばれることが好ましい。

前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記の式（12）～（15）のいずれかで表される化合物であると好ましい。

[0109]

[化60]



[0110] (式中、 $\text{Ar}^{18} \sim \text{Ar}^{22}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数4～10の縮合環構造を表す。)

前記多環式縮合芳香族骨格部を有する化合物の多環式縮合芳香族骨格部が、フェナントレン、クリセン、フルオランテン、トリフェニレンを有する基で置換されていることが好ましい。

[0111] 式(12)で表される化合物としては、例えば、置換もしくは無置換の、フェナントレン、クリセンなどが挙げられる。

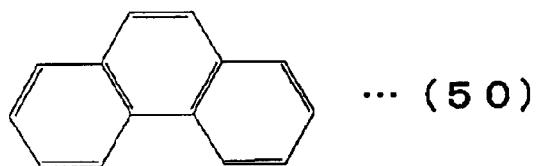
式(13)で表される化合物としては、例えば、置換もしくは無置換の、アセナフチレン、アセナフテン、フルオランテンなどが挙げられる。

式(14)で表される化合物としては、例えば、置換もしくは無置換のベンゾフルオランテンなどが挙げられる。

式（15）で表される化合物としては、例えば、置換もしくは無置換のナフタレンなどが挙げられる。

[0112] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式（50）で表されるフェナントレンの単体又は誘導体であることが好ましい。

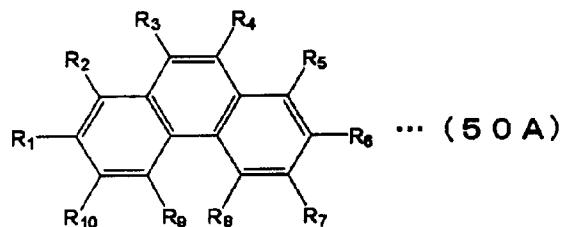
[化61]



[0113] フェナントレン誘導体の置換基としては、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、メルカプト基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、複素環基、ハロゲン、ハロアルカン、ハロアルケン、ハロアルキン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、エステル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサニル基が挙げられる。

このようなフェナントレン誘導体としては、例えば、下記式（50A）のものが挙げられる。

[0114] [化62]

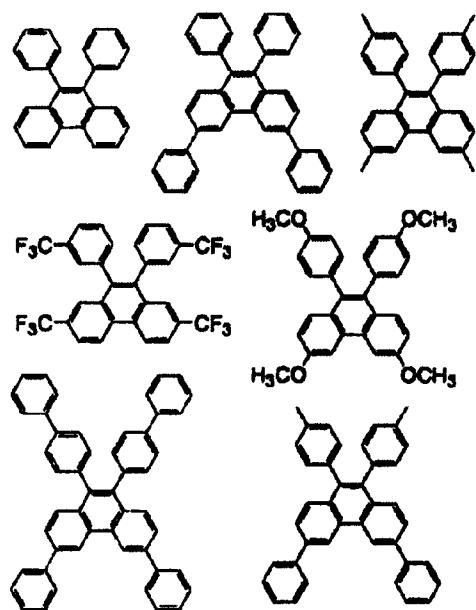


[0115] 式（50A）中、R₁～R₁₀は、それぞれ独立に、水素原子又は、環形成炭素数5～30の置換基もしくは無置換のアリール基、炭素数1から30の分岐又は直鎖のアルキル基、炭素数3から20の置換若又は無置換のシクロアル

キル基が単独又は複数の組み合わせで構成される置換基を表す。

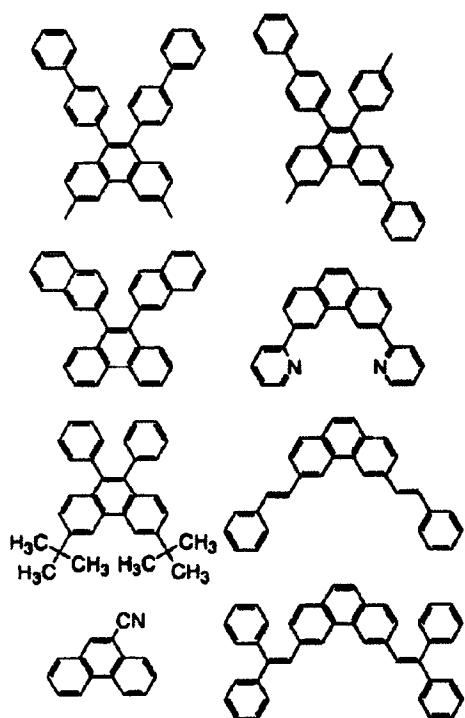
式(50)で表されるフェナントレン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

[0116] [化63]

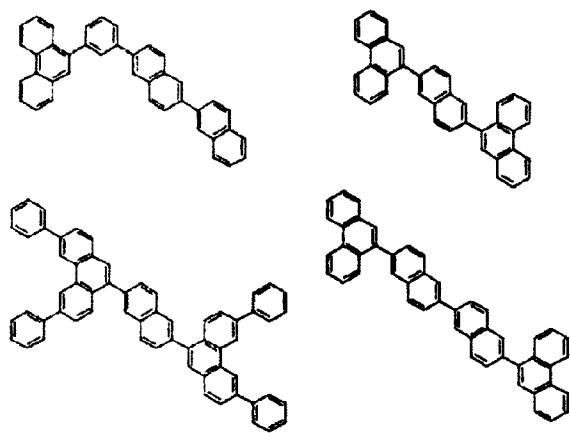


[0117]

[化64]

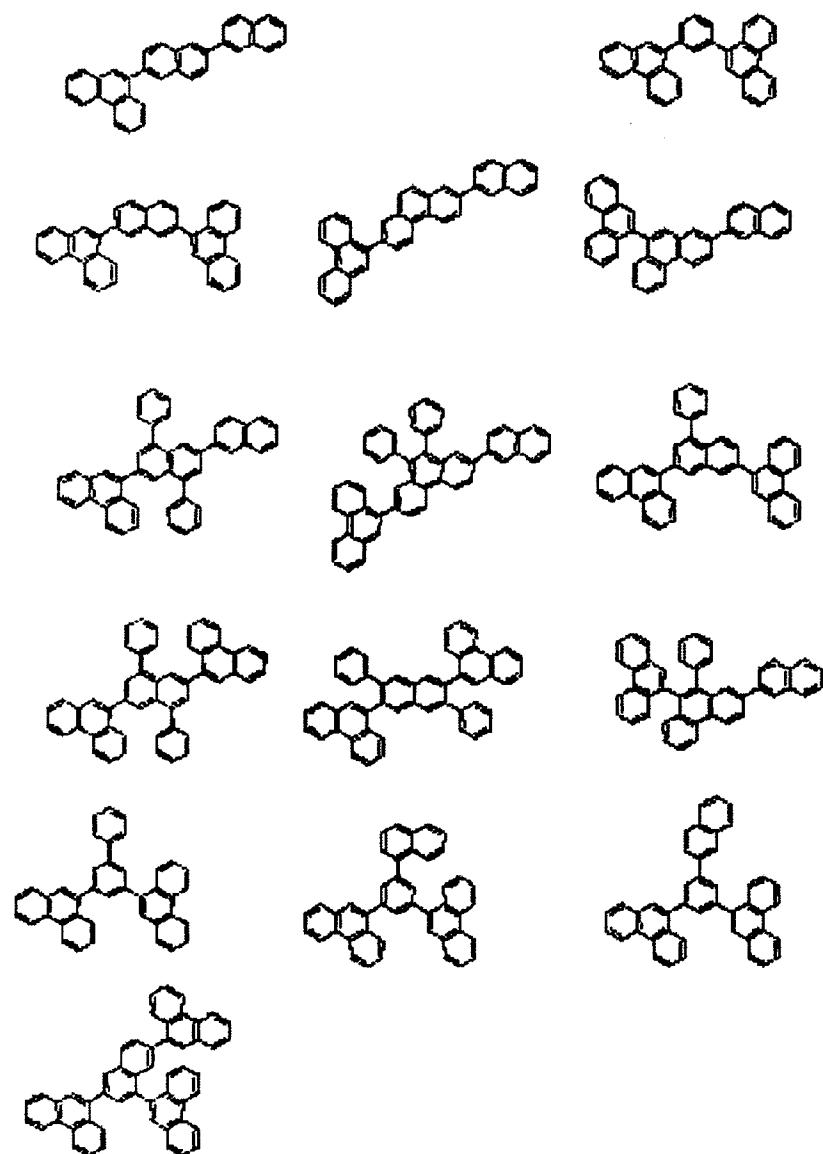


[0118] [化65]



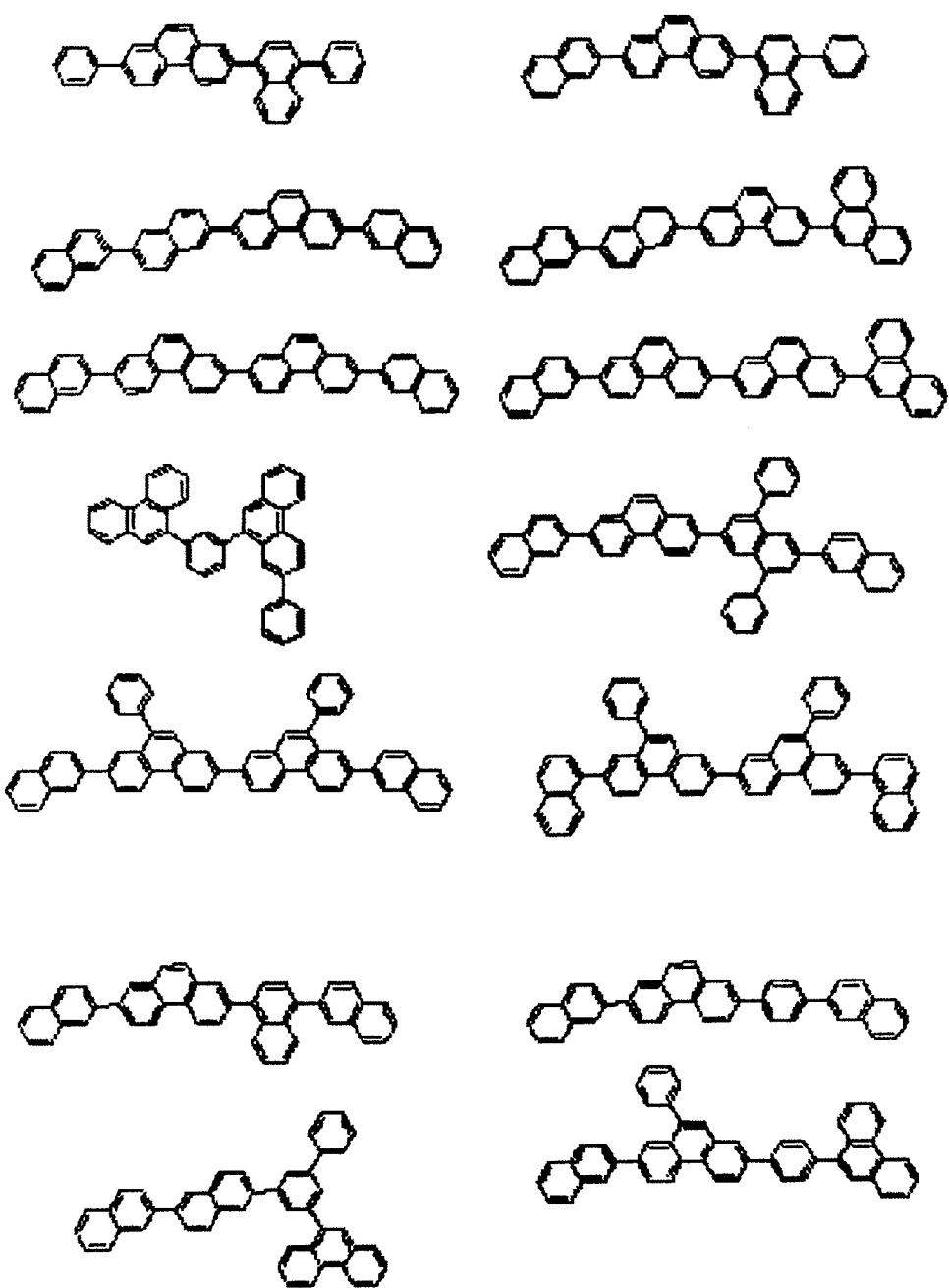
[0119]

[化66]



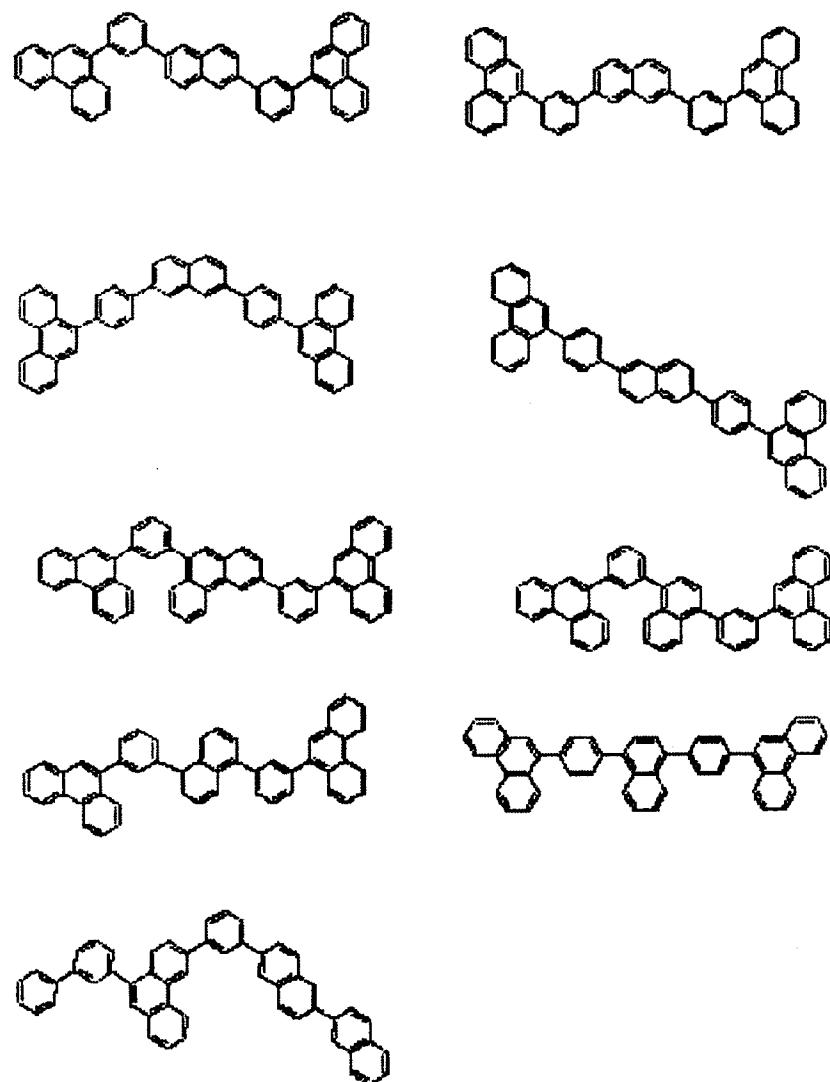
[0120]

[化67]



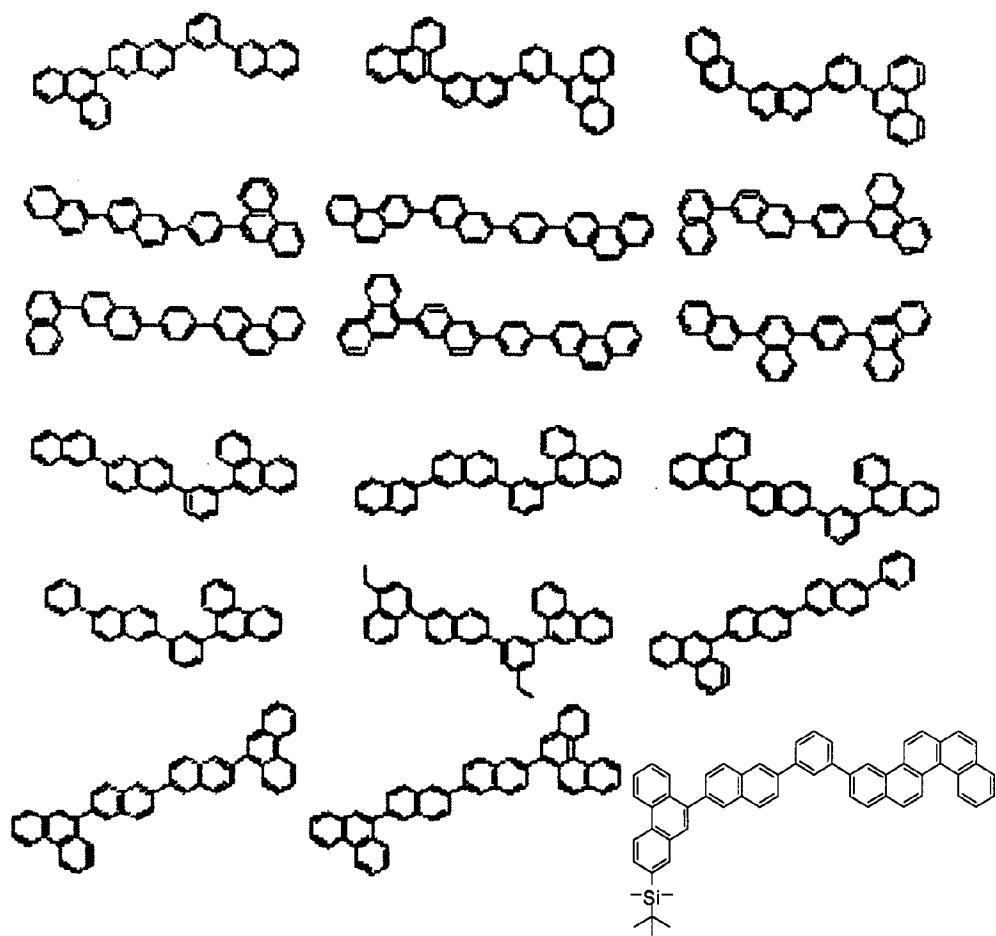
[0121]

[化68]



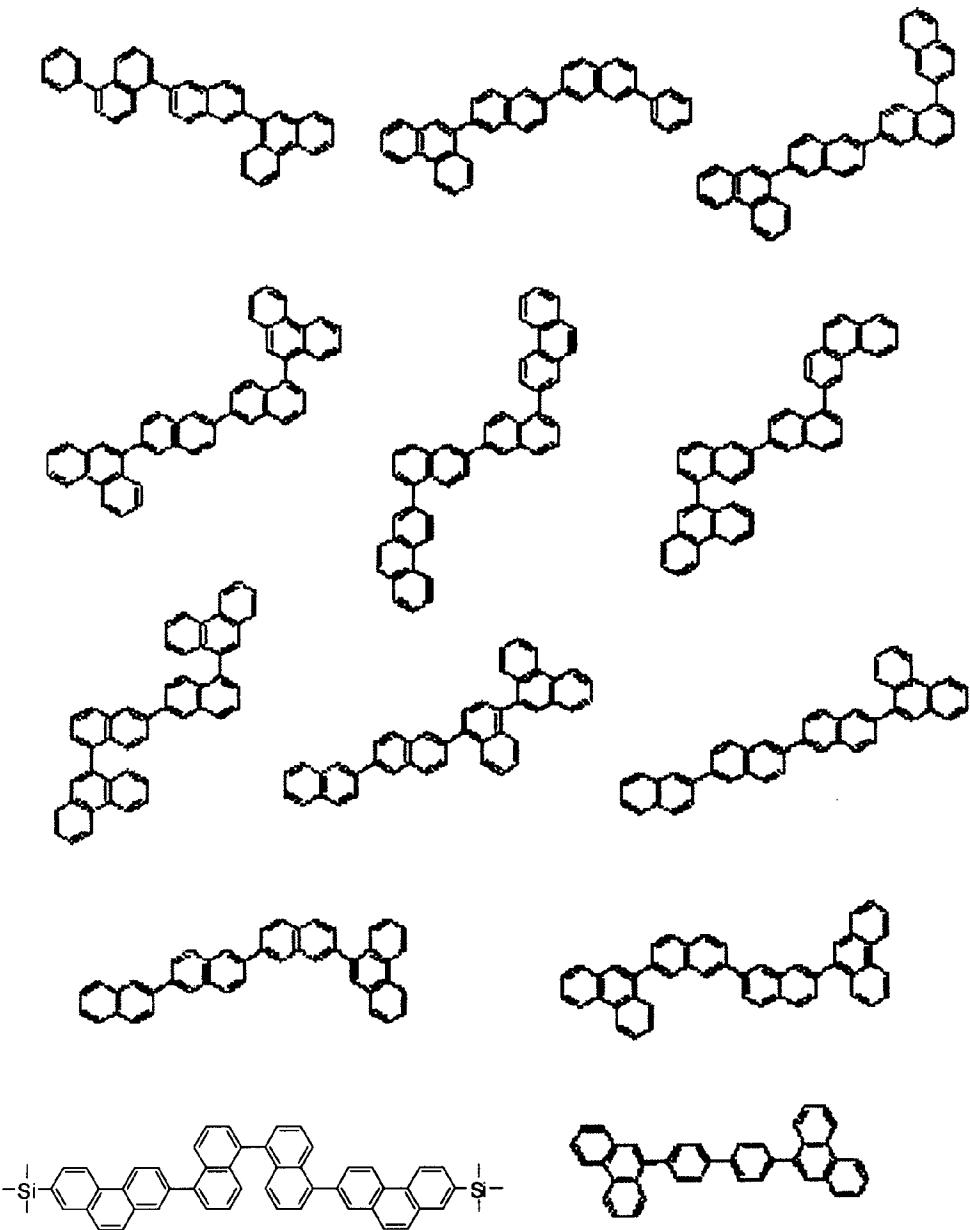
[0122]

[化69]



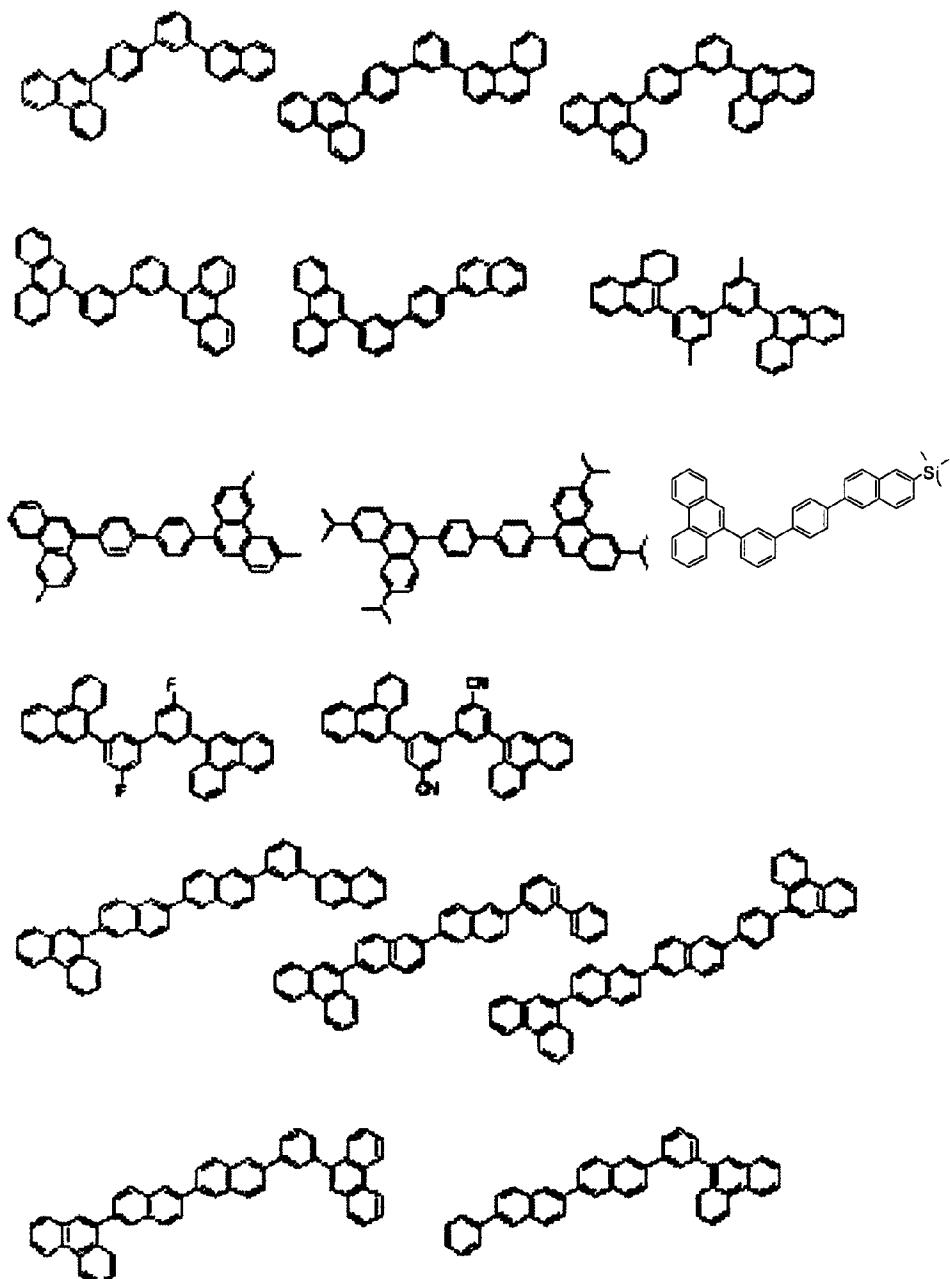
[0123]

[化70]



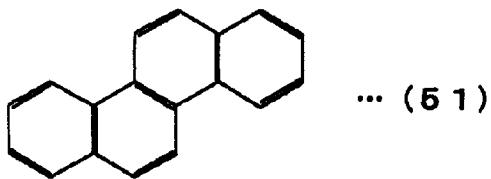
[0124]

[化71]



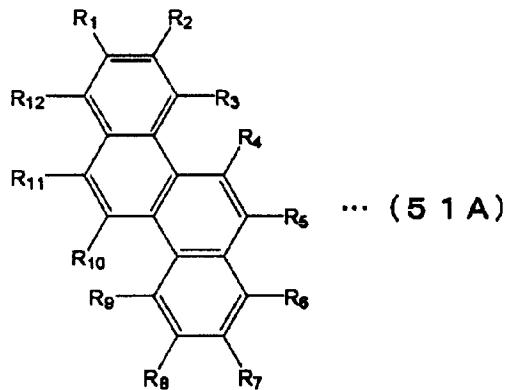
[0125] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式（51）で表されるクリセンの単体又は誘導体であることが好ましい。

[化72]



[0126] このようなクリセン誘導体としては、例えば、下記式（51A）のものが挙げられる。

[化73]

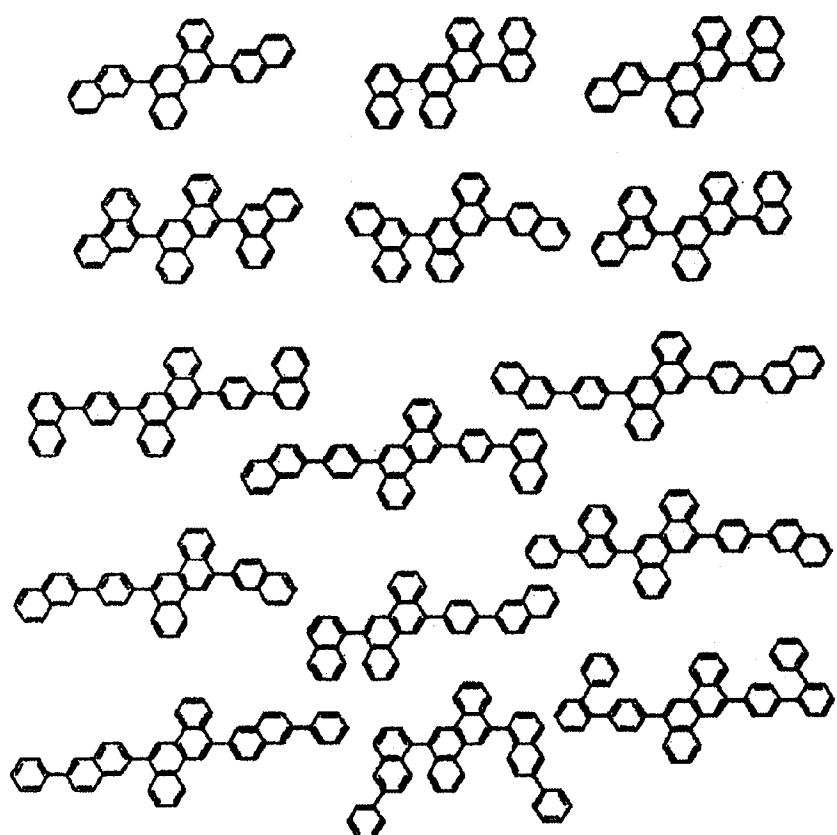


[0127] 式（51A）中、R₁～R₁₂は、それぞれ独立に、水素原子又は、環形成炭素数5～30の置換基もしくは無置換のアリール基、炭素数1から30の分岐又は直鎖のアルキル基、炭素数3から20の置換若又は無置換のシクロアルキル基が単独又は複数の組み合わせで構成される置換基を表す。

式（51）で表されるクリセン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

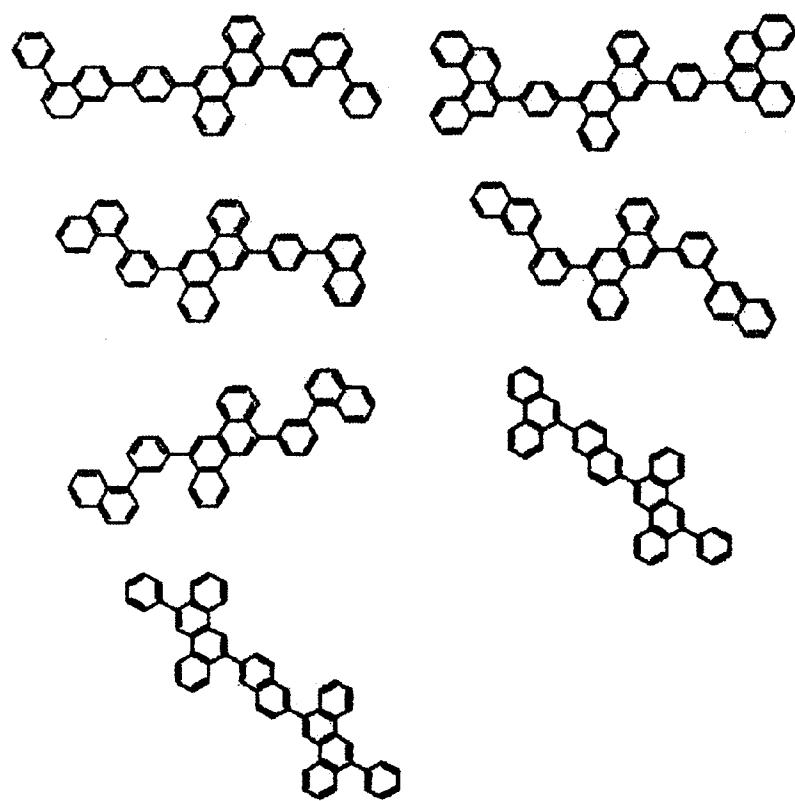
[0128]

[化74]



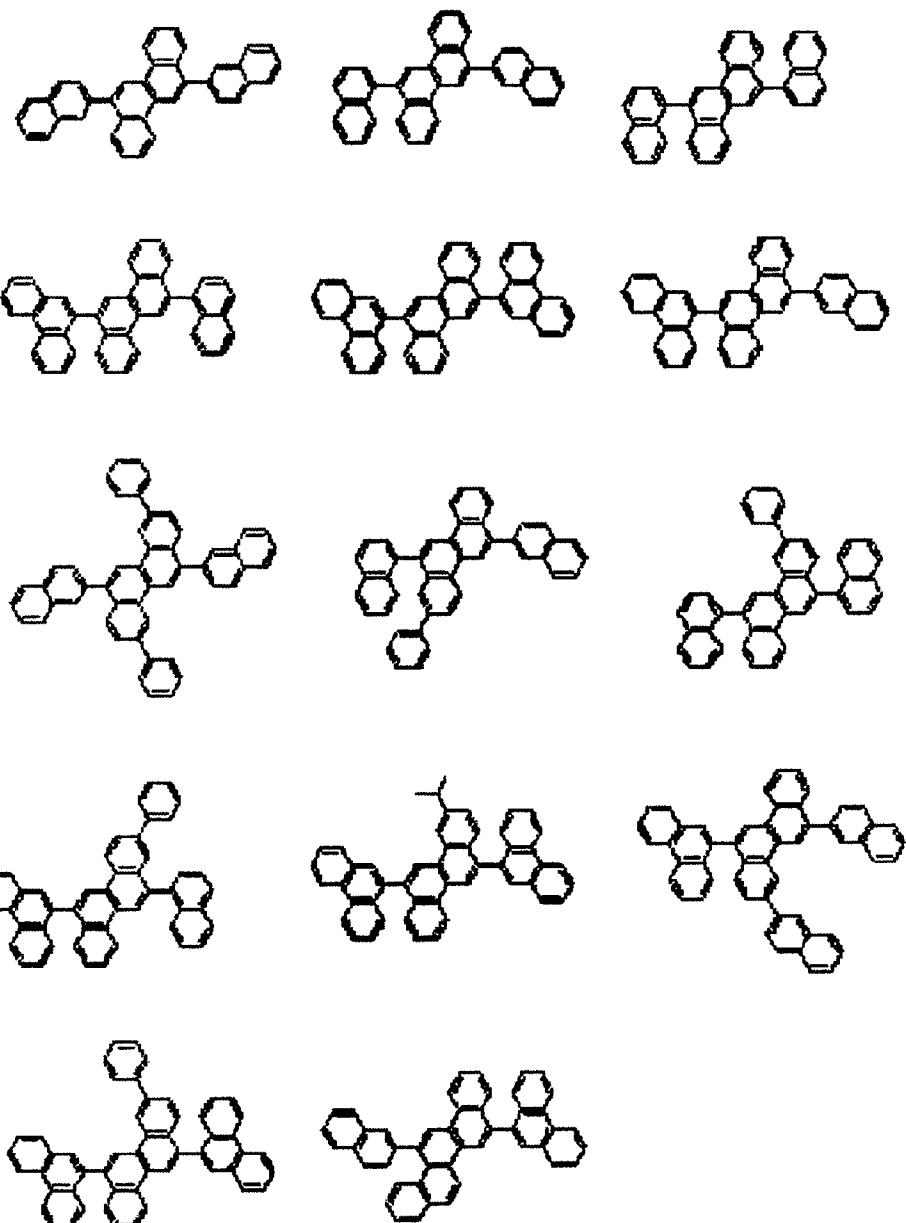
[0129]

[化75]



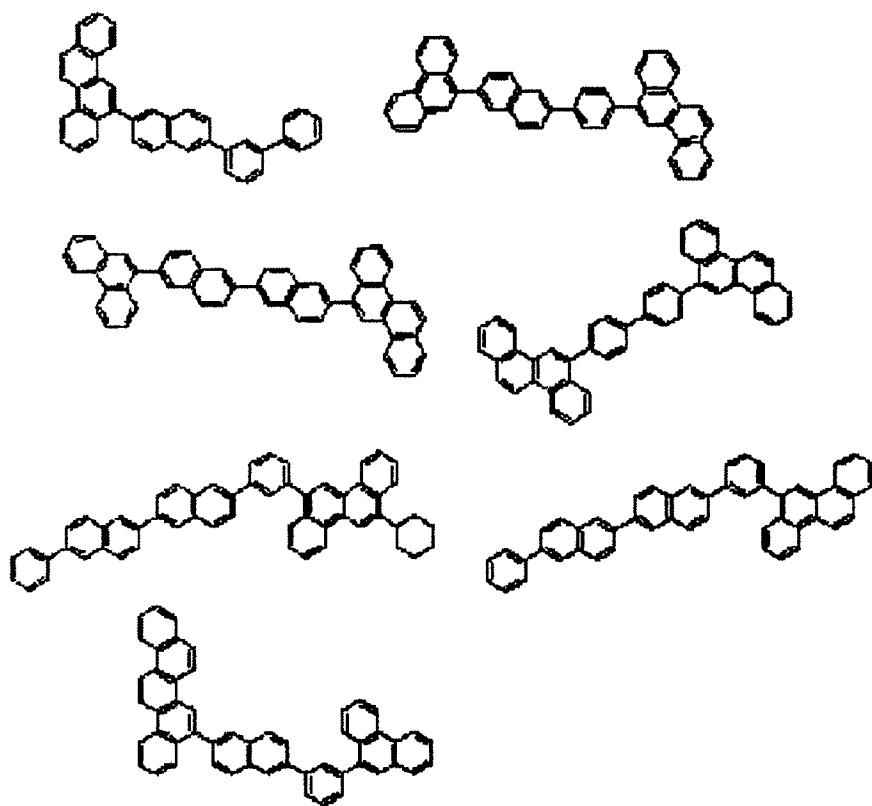
[0130]

[化76]



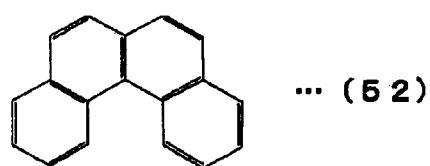
[0131]

[化77]



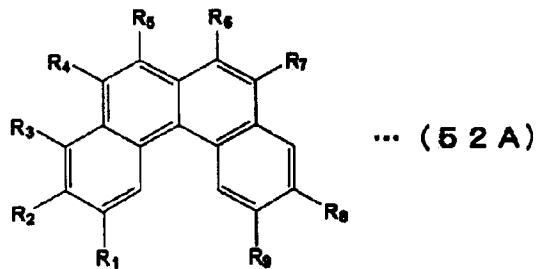
[0132] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式（52）で表される化合物（ベンゾ [c] フェナントレン）の単体又は誘導体であることが好ましい。

[化78]



[0133] このようなベンゾ [c] フェナントレン誘導体としては、例えば、下記式（52A）のものが挙げられる。

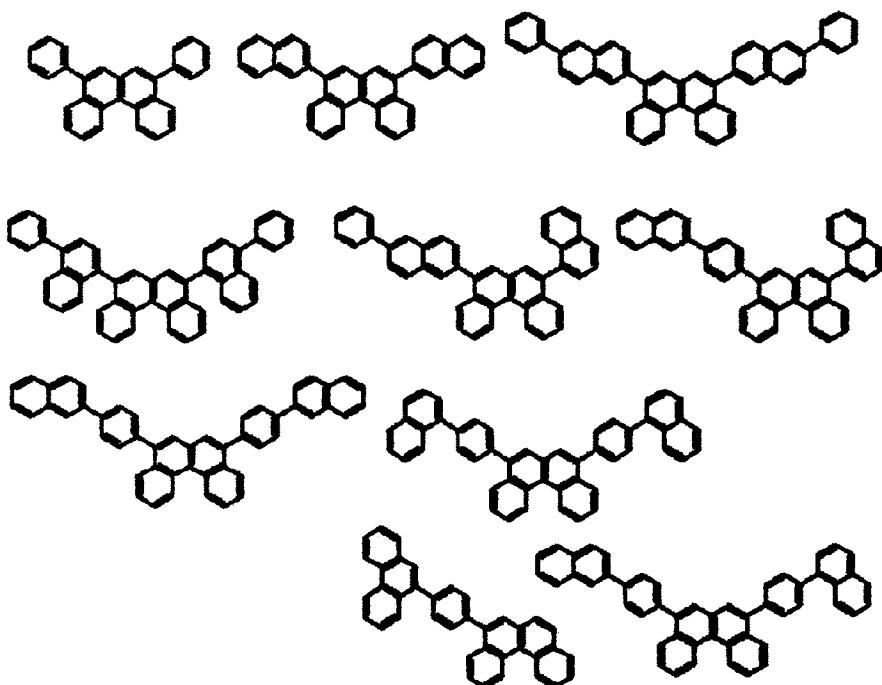
[化79]



[0134] 式(52A)中、R₁～R₉は、それぞれ独立に、水素原子又は、環形成炭素数5～30の置換基もしくは無置換のアリール基、炭素数1から30の分岐又は直鎖のアルキル基、炭素数3から20の置換若又は無置換のシクロアルキル基が単独又は複数の組み合わせで構成される置換基を表す。

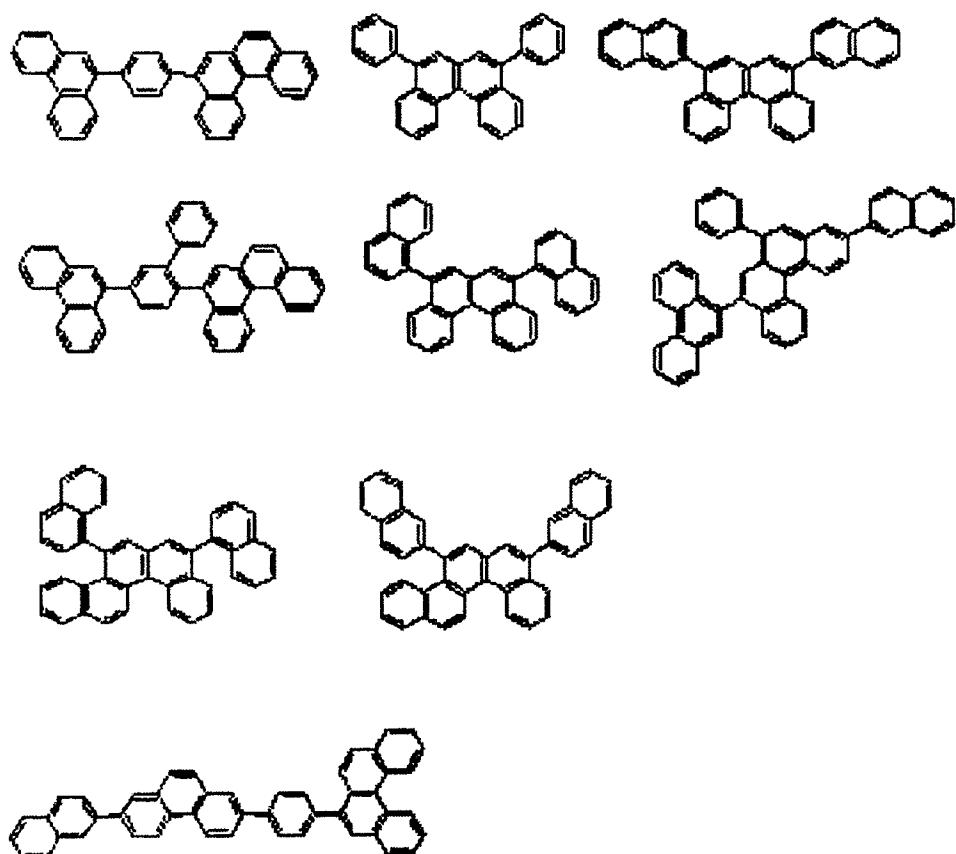
式(52)で表されるベンゾ[c]フェナントレン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

[0135] [化80]



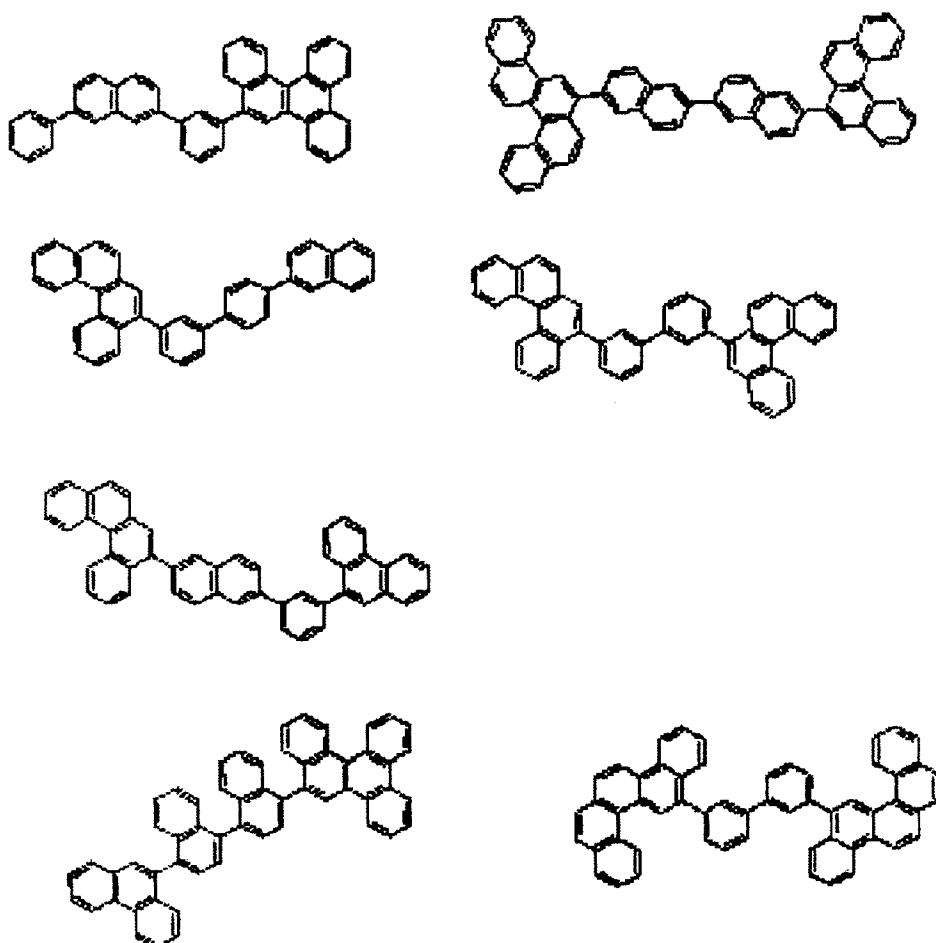
[0136]

[化81]



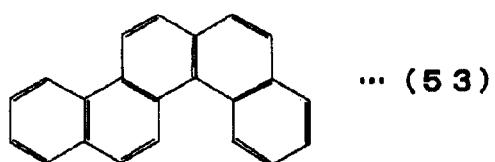
[0137]

[化82]



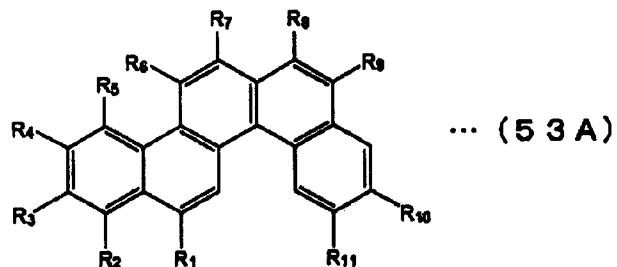
[0138] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式（53）で表される化合物（ベンゾ [c] クリセン）の単体又は誘導体であることが好ましい。

[化83]



[0139] このようなベンゾ [c] クリセン誘導体としては、例えば、下記式（53 A）のものが挙げられる。

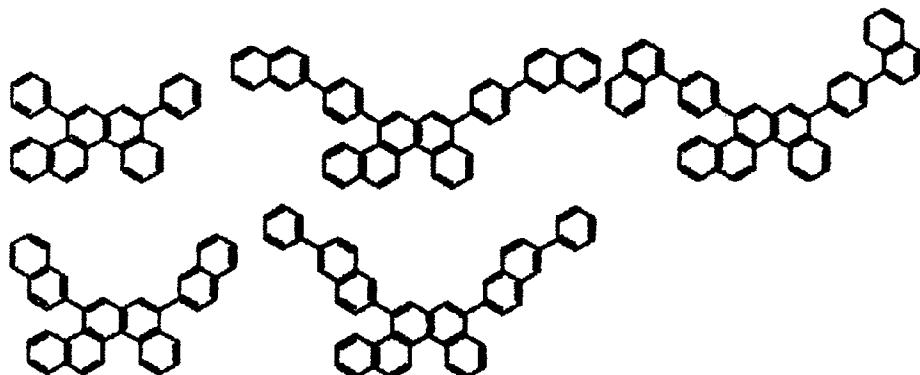
[化84]



[0140] 式（53A）中、R₁～R₁₁は、それぞれ独立に、水素原子又は、環形成炭素数5～30の置換基もしくは無置換のアリール基、炭素数1から30の分岐又は直鎖のアルキル基、炭素数3から20の置換もしくは無置換のシクロアルキル基が単独又は複数の組み合わせで構成される置換基を表す。

式（53）で表されるベンゾ[c]クリセン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

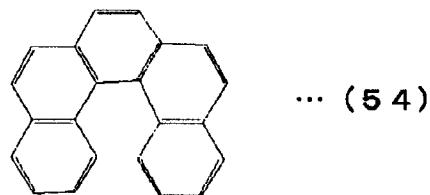
[0141] [化85]



[0142] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式（54）で表される化合物（ジベンゾ[c,g]フェナントレン）の単体又は誘導体であることが好ましい。

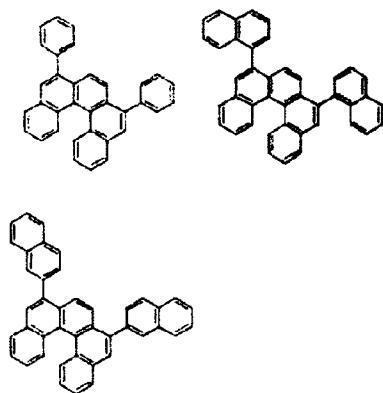
[0143]

[化86]



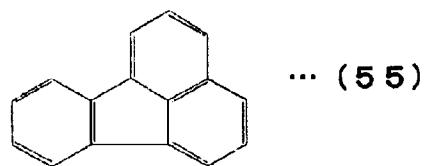
[0144] このような化合物の誘導体としては、例えば、下記のものが挙げられる。

[化87]



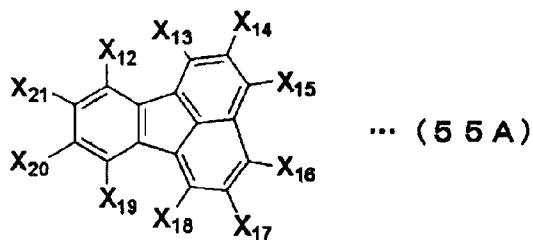
[0145] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式(55)で表されるフルオランテンの単体又は誘導体であることが好ましい。

[化88]



[0146] このようなフルオランテン誘導体としては、例えば、下記式(55A)のものが挙げられる。

[化89]



[0147] 式(55A)中、 $X_{12} \sim X_{21}$ は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐又は環状のアルキル基、直鎖、分岐又は環状のアルコキシ基、あるいは置換もしくは未置換のアリール基を表す。

なお、アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基などの炭素環式芳香族基、例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基などの複素環式芳香族基を表す。

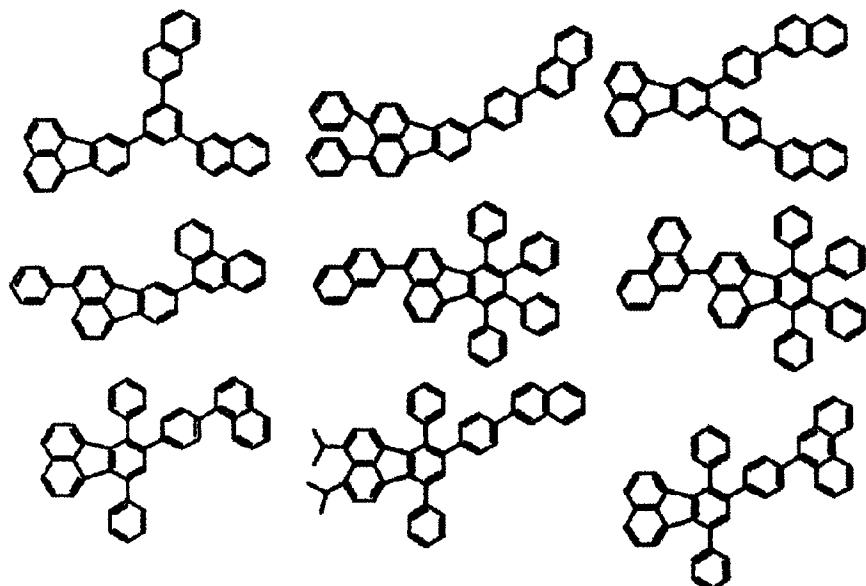
[0148] $X_{12} \sim X_{21}$ は、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子）、炭素数1～16の直鎖、分岐又は環状のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、シクロペンチル基、n-ヘキシル基、3,3-ジメチルブチル基、シクロヘキシル基、n-ヘプチル基、シクロヘキシルメチル基、n-オクチル基、tert-オクチル基、2-エチルヘキシル基、n-ノニル基、n-デシル基、n-ドデシル基、n-テトラデシル基、n-ヘキサデシル基など）、炭素数1～16の直鎖、分岐又は環状のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、3,3-ジメチルブチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、n-ヘプチルオキシ基、n-オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、n-ノニルオキシ基、n-デシルオキシ基、n-ドデシルオキシ基、n-テトラデシルオキシ基、n-ヘキサデシルオキシ基など）

)、あるいは炭素数4～16の置換もしくは未置換のアリール基（例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、4-tert-ペンチルフェニル基、4-n-ヘキシルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-n-オクチルフェニル基、4-n-デシルフェニル基、2, 3-ジメチルフェニル基、2, 4-ジメチルフェニル基、2, 5-ジメチルフェニル基、3, 4-ジメチルフェニル基、5-インダニル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-5-ナフチル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-6-ナフチル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、4-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘキシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基、4-n-ヘプチルオキシフェニル基、4-n-オクチルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、2, 3-ジメトキシフェニル基、2, 5-ジメトキシフェニル基、3, 4-ジメトキシフェニル基、2-メトキシ-5-メチルフェニル基、3-メチル-4-メトキシフェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、4-クロロフェニル基、4-ブロモフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、3, 4-ジクロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-4-メトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、4-エトキシ-1-ナフチル基、6-メトキシ-2-ナフチル基、7-エトキシ-2-ナフチル基、2-フリル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2

ーピリジル基、3ーピリジル基、4ーピリジル基など)であり、より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又は炭素数6～12のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基又は炭素数6～10の炭素環式芳香族基である。

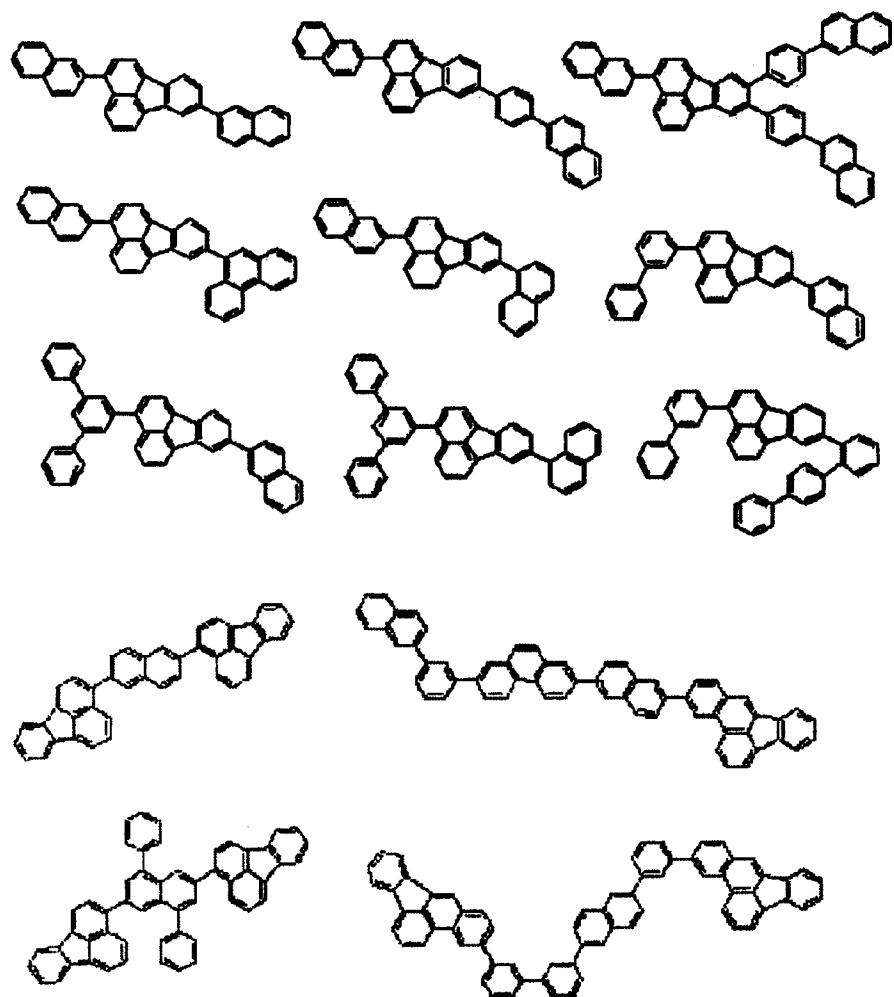
[0149] 式(55)で表されるフルオランテン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

[化90]



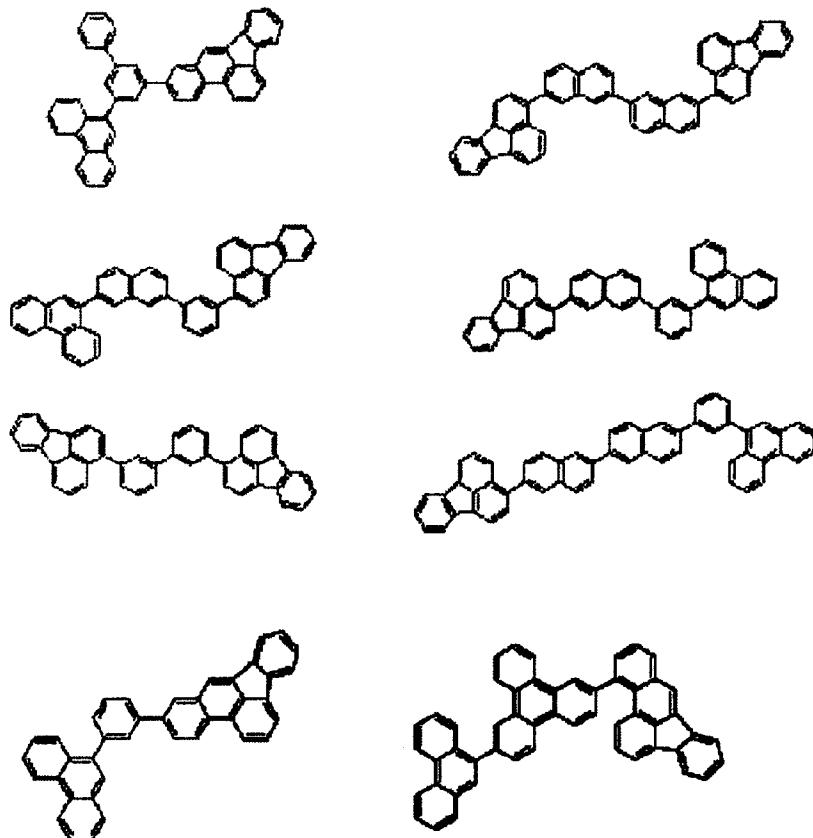
[0150]

[化91]



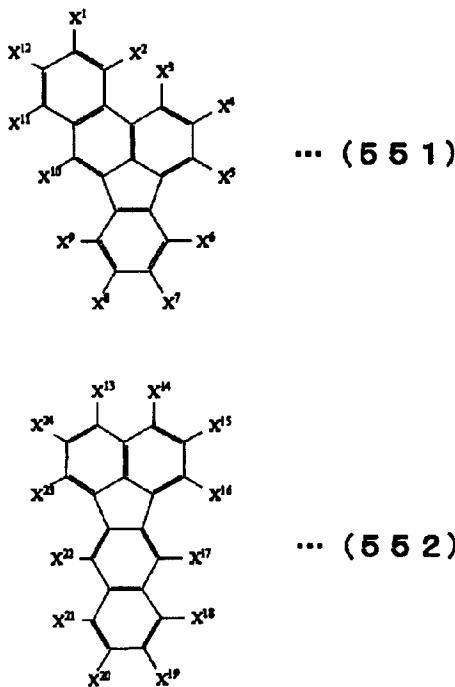
[0151]

[化92]



[0152] 置換もしくは無置換のベンゾフルオランテンとしては、例えば、下記式（551）で表されるベンゾ[b]フルオランテンの単体又は誘導体や、式（552）で表されるベンゾ[k]フルオランテンの単体又は誘導体が挙げられる。

[化93]



[0153] 式(551)及び式(552)中、 $X^1 \sim X^{24}$ は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐又は環状のアルキル基、直鎖、分岐又は環状のアルコキシ基、あるいは置換もしくは未置換のアリール基を表す。

なお、アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基などの炭素環式芳香族基、例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基などの複素環式芳香族基を表す。

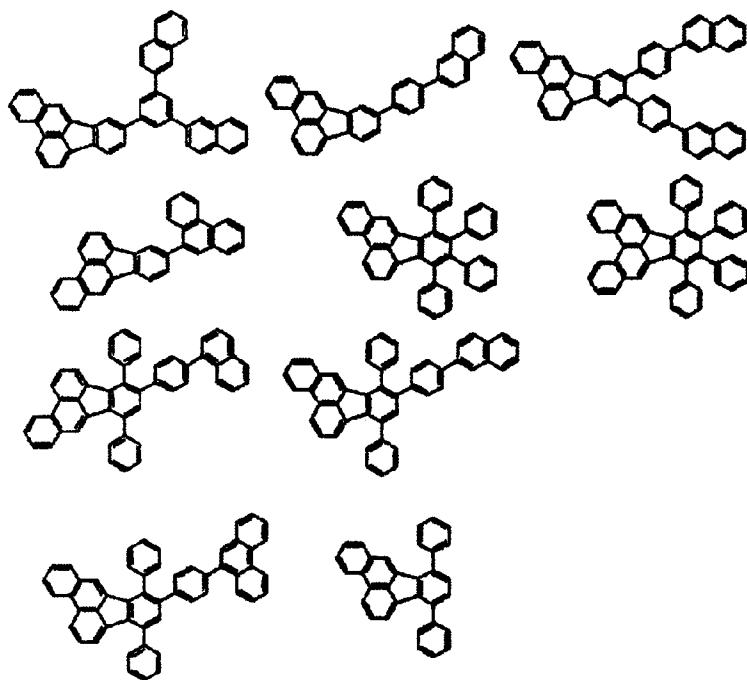
[0154] $X^1 \sim X^{24}$ は、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子）、炭素数1～16の直鎖、分岐又は環状のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、シクロペンチル基、n-ヘキシル基、3,3-ジメチルブチル基、シクロヘキシル基、n-ヘプチル基、シクロヘキシルメチル基、n-オクチル基、tert-オクチル基、2-エチルヘキシル基、n-ノニル基、n-デシル基、n-ドデシル基、n-テトラデシル基、n-ヘキサデシル基など）、炭素数1～16の直鎖、分岐

又は環状のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブロキシ基、イソブロキシ基、*sec*-ブロキシ基、*n*-ペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基、3, 3-ジメチルブチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、*n*-ヘプチルオキシ基、*n*-オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、*n*-ノニルオキシ基、*n*-デシルオキシ基、*n*-ドデシルオキシ基、*n*-テトラデシルオキシ基、*n*-ヘキサデシルオキシ基など）、あるいは炭素数4～16の置換もしくは未置換のアリール基（例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、4-*n*-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-*n*-ブチルフェニル基、4-*tert*-ブチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、4-*tert*-ペンチルフェニル基、4-*n*-ヘキシルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-*n*-オクチルフェニル基、4-*n*-デシルフェニル基、2, 3-ジメチルフェニル基、2, 4-ジメチルフェニル基、5-インダニル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-5-ナフチル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-6-ナフチル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、4-*n*-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、4-*n*-ブロキシフェニル基、4-*n*-ペンチルオキシフェニル基、4-*n*-ヘキシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基、4-*n*-ヘプチルオキシフェニル基、4-*n*-オクチルオキシフェニル基、4-*n*-デシルオキシフェニル基、2, 3-ジメトキシフェニル基、2, 5-ジメトキシフェニル基、3, 4-ジメトキシフェニル基、2-メトキシ-5-メチルフェニル基、3-メチル-4-メトキシフェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、4-クロロフェニル基、4-ブロモフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基）。

ニル基、3,4-ジクロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、3-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-4-メトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、4-エトキシ-1-ナフチル基、6-メトキシ-2-ナフチル基、7-エトキシ-2-ナフチル基、2-フリル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基など)であり、より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又は炭素数6~12のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基又は炭素数6~10の炭素環式芳香族基である。

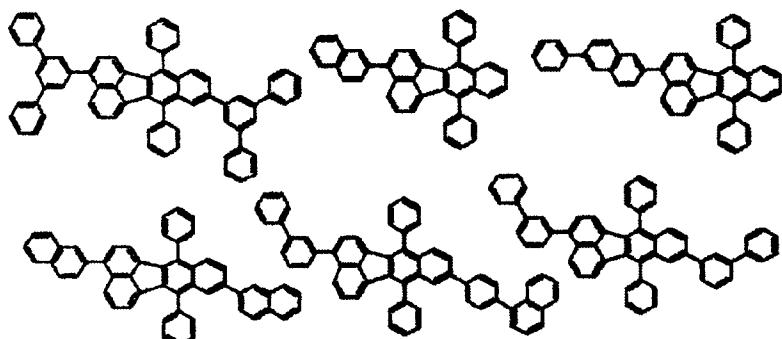
[0155] 式(551)で表されるベンゾ[b]フルオランテン誘導体としては、例えば、下記のものが挙げられる。

[化94]



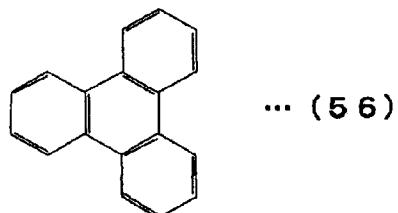
[0156] 式(552)で表されるベンゾ[k]フルオランテン誘導体としては、例えば、下記のものが挙げられる。

[化95]



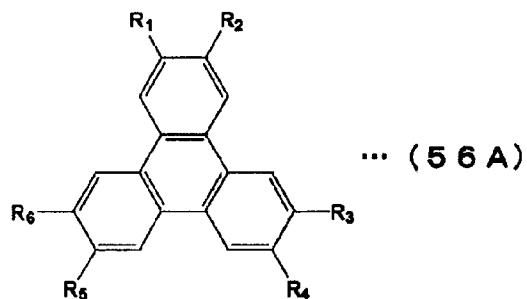
[0157] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記式(56)で表されるトリフェニレンの単体又は誘導体であることが好ましい。

[化96]



[0158] このようなトリフェニレン誘導体としては、例えば、下記式(56A)のものが挙げられる。

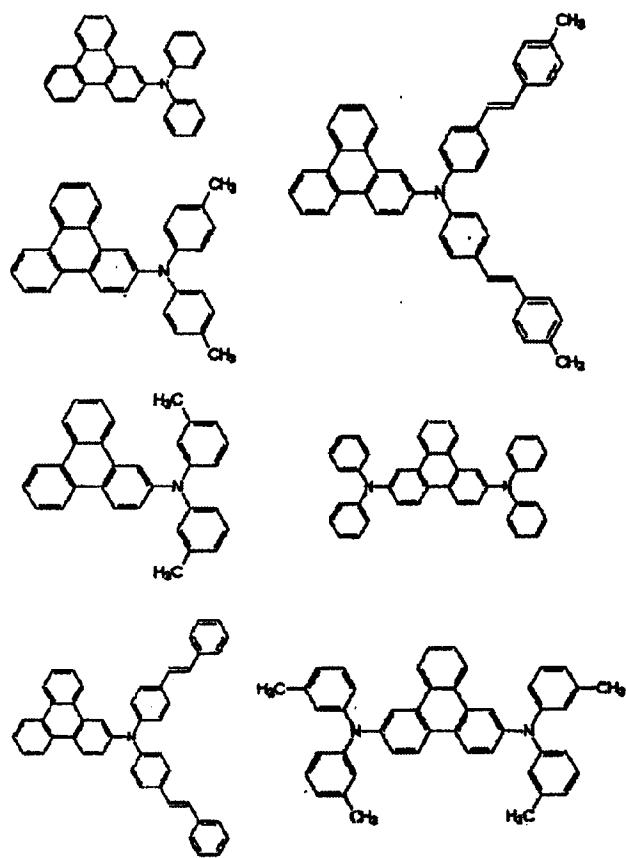
[化97]



[0159] 式（56A）中、R₁～R₆は、それぞれ独立に、水素原子又は、環形成炭素数5～30の置換基もしくは無置換のアリール基、炭素数1から30の分岐又は直鎖のアルキル基、炭素数3から20の置換若又は無置換のシクロアルキル基が単独又は複数の組み合わせで構成される置換基を表す。

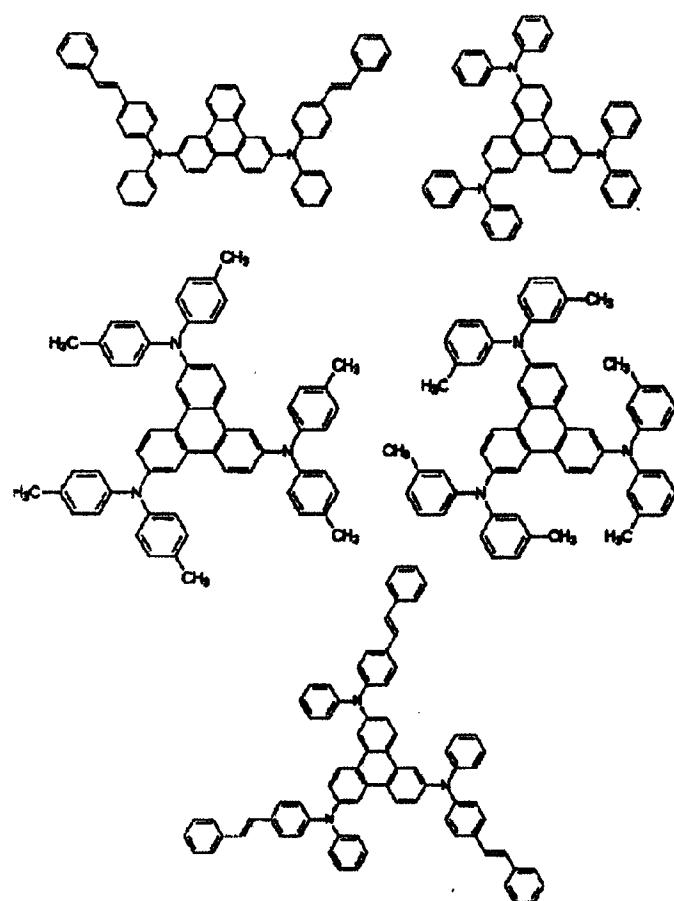
式（56）で表されるトリフェニレン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

[0160] [化98]



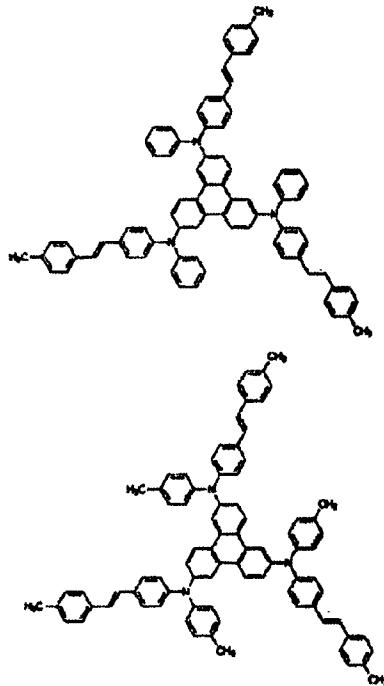
[0161]

[化99]

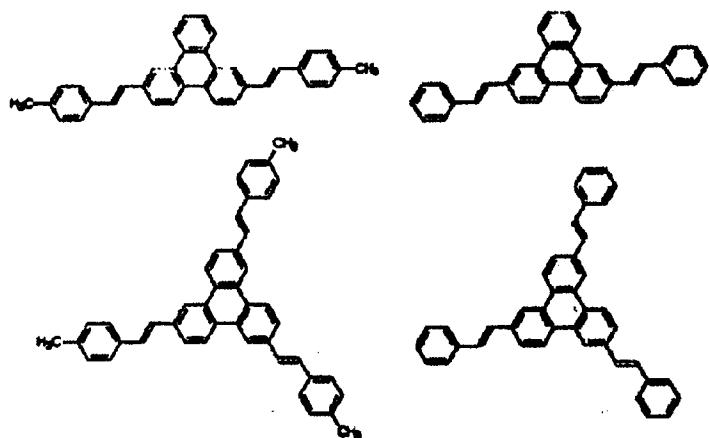


[0162]

[化100]

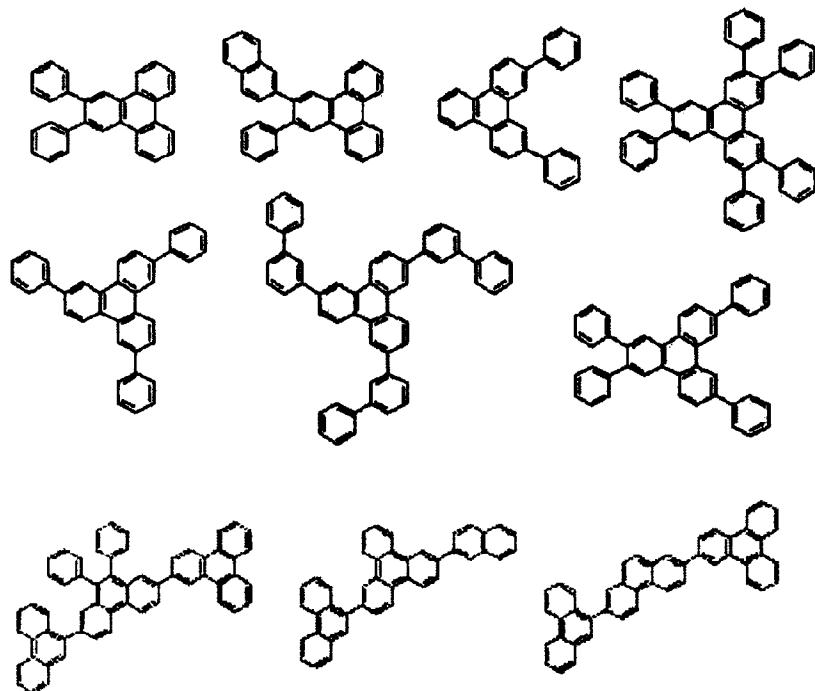


[0163] [化101]



[0164]

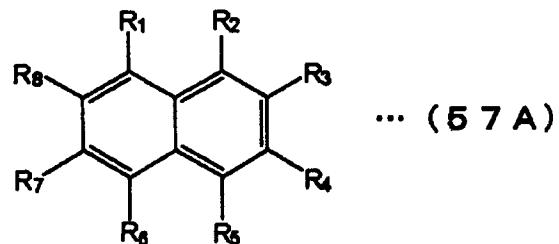
[化102]



[0165] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、ナフタレンの単体又は誘導体であることが好ましい。

ナフタレン誘導体としては、例えば、下記式（57A）のものが挙げられる。

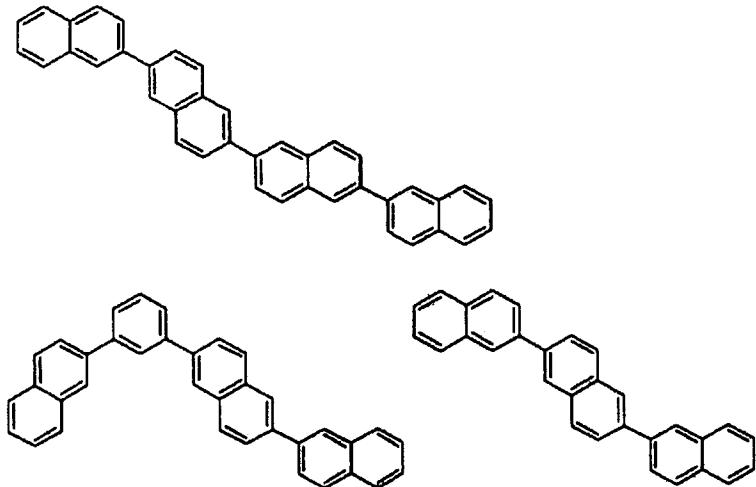
[0166] [化103]



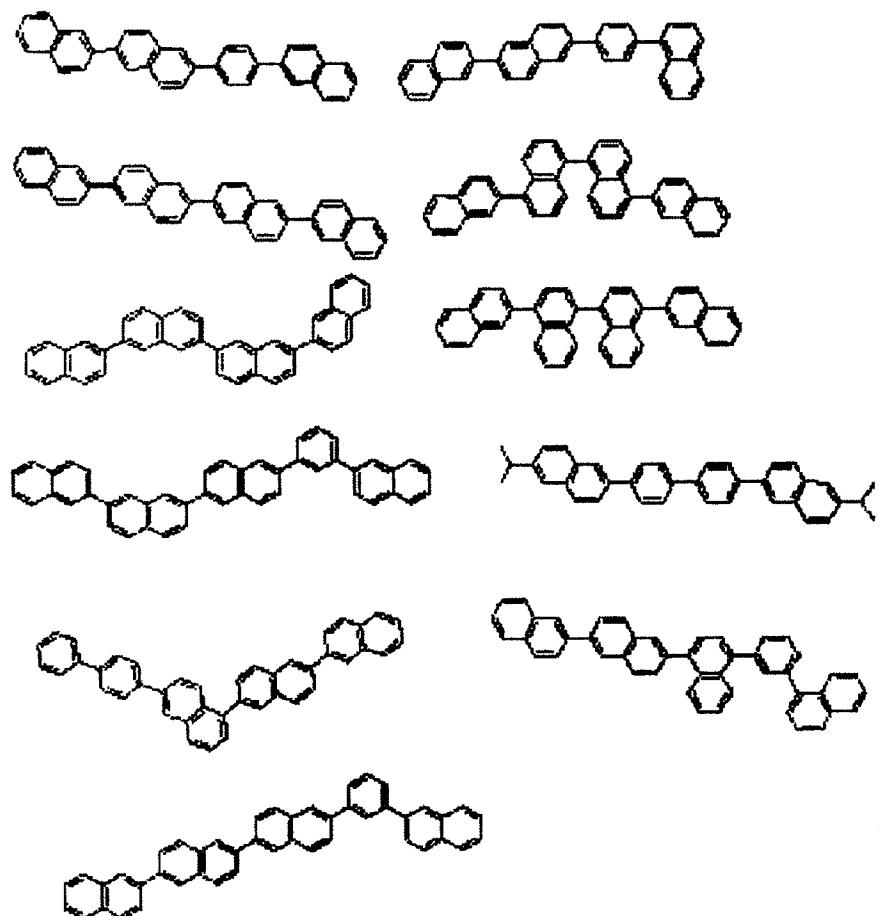
[0167] 式（57A）中、R₁～R₈は、それぞれ独立に、水素原子又は、環形成炭素数5～30の置換基もしくは無置換のアリール基、炭素数1から30の分岐又は直鎖のアルキル基、炭素数3から20の置換若又は無置換のシクロアルキル基が単独又は複数の組み合わせで構成される置換基を表す。

ナフタレン誘導体の具体例としては、下記のものが挙げられる。

[0168] [化104]

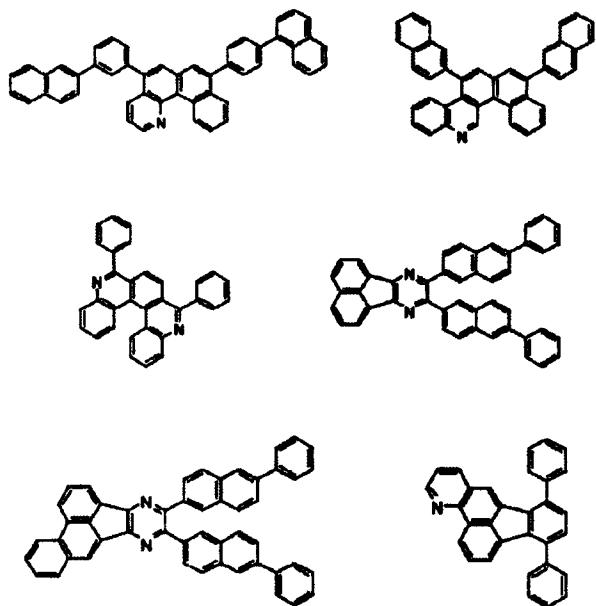


[0169] [化105]



[0170] なお、多環式縮合芳香族骨格部には、窒素原子が含まれていてもよく、例えば、下記のものであってもよい。

[化106]



[0171] 本発明では、前記多環式縮合芳香族骨格部は、置換もしくは無置換の、フェナントレン又はクリセンであることが好ましい。

フェナントレン又はクリセンとしては、例えば、上述のものが挙げられる。

多環式縮合芳香族骨格部が、置換もしくは無置換の、フェナントレン又はクリセンであれば、 $Eg(S)$ と $Eg(T)$ の差が小さく、有機EL素子の低電圧化及び長寿命化が図れる。

[0172] (5) 電子注入・輸送層

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

また、有機EL素子は発光した光が電極（この場合は陰極）により反射するため、直接陽極から取り出される発光と、電極による反射を経由して取り

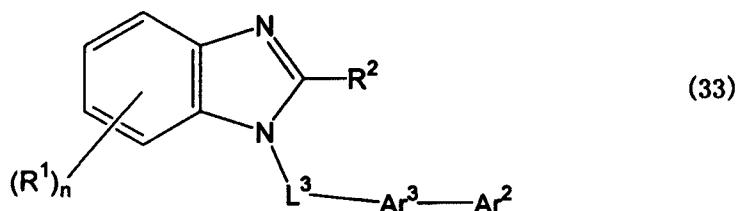
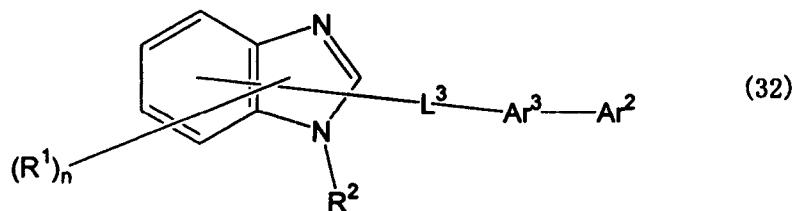
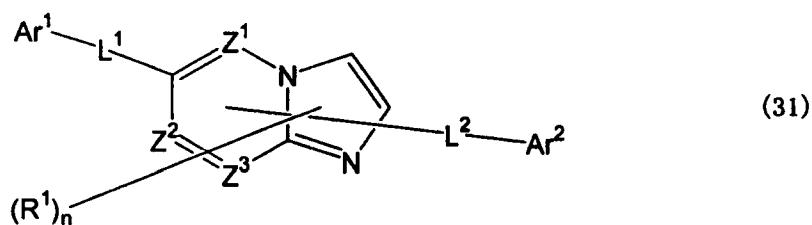
出される発光とが干渉することが知られている。この干渉効果を効率的に利用するため、電子注入・輸送層は数 nm～数 μ mの膜厚で適宜選ばれるが、特に膜厚が厚いとき、電圧上昇を避けるために、 $10^4\sim 10^6$ V/cmの電界印加時に電子移動度が少なくとも 10^{-5} cm²/V s以上であることが好ましい。

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

[0173] また、本発明においては、前記発光層よりも前記陰極側に設けられた電子輸送層及び/又は電子注入層を有し、下記式(31)～(33)のいずれかで表される含窒素複素環誘導体、式(34)及び(35)のいずれかで表される化合物、(36)で表される化合物が該電子輸送層及び/又は電子注入層に含有されていると好ましい。

[0174]

[化107]



[0175] (式 (31) ~ (33) 中、 Z^1 、 Z^2 及び Z^3 は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 のヘテロアリール基、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

n は、0 ~ 5 の整数であり、 n が 2 以上の整数であるとき、複数の R^1 は互いに同一でも異なっていてもよい。また、隣接する複数の R^1 同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環を形成してもよい。

Ar^1 は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 のヘテロアリール基である。

Ar^2 は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数

3～50のヘテロアリール基である。

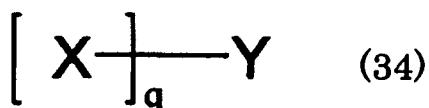
但し、Ar¹、Ar²のいずれか一方は、置換もしくは無置換の炭素数10～50の縮合環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数9～50のヘテロ縮合環基である。

Ar³は、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリーレン基又は置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリーレン基である。

L¹、L²及びL³は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数9～50のヘテロ縮合環基又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。)

R¹、R²、Ar¹、Ar²の示すアリール基、ヘテロアリール基、アルキル基の具体例としては、一般式(1)のR₃及びR₄と同様の例が挙げられ、アルコキシ基としては、そのアルキル基に酸素原子が結合した例が挙げられる。Ar³、L¹、L²及びL³の示すアリーレン基としては、そのアリール基の2価の例、ヘテロ縮合環基としてはヘテロアリール基のうち炭素数が適合する縮合環基が挙げられる。

[0176] [化108]

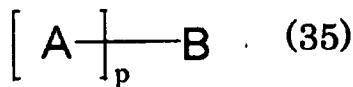


(式中、Xは窒素原子あるいは硫黄原子を含んだ縮合環であり、Yは単結合、アルキル鎖、アルキレン鎖、シクロアルキル鎖、アリール鎖、複素環鎖、シリル鎖、エーテル鎖、あるいはチオエーテル鎖のいずれかより単独又は組み合わせたものより選ばれる。qは2以上の自然数である。)

また、式(34)で表される化合物の分子量は480以上である。)

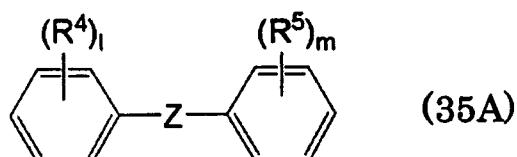
[0177]

[化109]



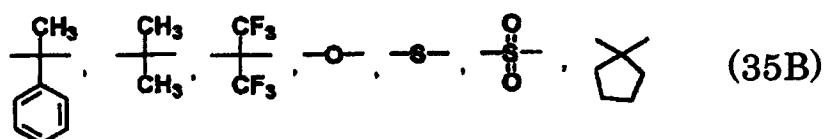
(式中、Aはフェナントロリン骨格又はベンゾキノリン骨格を有する置換基である。Bは下記式(35A)で表される構造を有するp値の有機基である。pは2以上の自然数である。)

[0178] [化110]

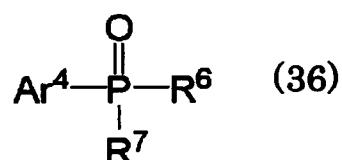


(式中、R⁴とR⁵はそれぞれ独立にアルキル基又はアリール基（フェニル基に縮合したアリール基を含む）のいずれかである。lとmはそれぞれ独立に0～5までの自然数である。Zは下記式(35B)から選ばれた少なくとも1種である。)

[0179] [化111]



[0180] [化112]



(式中、R⁶及びR⁷は同じでも異なっていてもよく、それぞれ、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、シアノ基、カルボニル基、エステル基、カルバモイル基、アミノ基、シリル基、並びに隣接置換基との間に形成される縮合環の中から選ばれる。Ar⁴はアリール基又はヘテロアリール基を表す。)

[0181] なお、本発明において、上記各式の「置換もしくは無置換の···基」において、任意の置換基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数7～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、アミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、カルボキシル基等が挙げられる。

これらの中でも、炭素数1～10のアルキル基、炭素数5～7のシクロアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基が好ましく、炭素数1～6のアルキル基、炭素数5～7のシクロアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が特に好ましい。

[0182] 本発明の有機EL素子の好ましい形態に、電子を輸送する領域又は陰極と有機層の界面領域に、還元性ドーパントを含有する素子がある。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元ができる物質と定義される。したがって、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ

土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物又は希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

また、より具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、N a（仕事関数：2. 36 eV）、K（仕事関数：2. 28 eV）、R b（仕事関数：2. 16 eV）及びC s（仕事関数：1. 95 eV）からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、C a（仕事関数：2. 9 eV）、S r（仕事関数：2. 0～2. 5 eV）、及びB a（仕事関数：2. 52 eV）からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2. 9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、R b及びC sからなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、R b又はC sであり、最も好ましのは、C sである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が2. 9 eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組合せも好ましく、特に、C sを含んだ組み合わせ、例えば、C sとN a、C sとK、C sとR bあるいはC sとN aとKとの組み合わせであることが好ましい。C sを組み合わせて含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0183] 本発明においては陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けても良い。この時、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイト、アルカリ土類金属カルコゲナイト、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらの

アルカリ金属カルコゲナイト等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができるので好ましい。具体的には、好ましいアルカリ金属カルコゲナイトとしては、例えば、 Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイトとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 、及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、半導体としては、 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Nb 及び Zn の少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイト、アルカリ土類金属カルコゲナイト、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

[0184] (6) 陰極

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

この陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜

を形成させることにより、作製することができる。

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

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

[0185] (7) 絶縁層

有機EL素子は超薄膜に電界を印可するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一対の電極間に絶縁性の薄膜層を挿入することが好ましい。

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

[0186] (8) 有機EL素子の製造方法

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

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

まず、適当な透光性基板上に陽極材料からなる薄膜を1μm以下、好ましくは10～200nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して陽極を作製する。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンドルコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成する

ことが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物（正孔注入層の材料）、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50～450°C、真空度10⁻⁷～10⁻³ Torr、蒸着速度0.01～50 nm／秒、基板温度-50～300°C、膜厚5 nm～5 μmの範囲で適宜選択することが好ましい。

[0187] 次に、正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて真空蒸着法、スパッタリング、スピンドル法、キャスト法等の方法により有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じような条件範囲の中から選択することができる。

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

本発明の芳香族アミン誘導体は、発光帯域や正孔輸送帯域のいずれの層に含有させるかによって異なるが、真空蒸着法を用いる場合は他の材料との共蒸着をすることができる。また、スピンドル法を用いる場合は、他の材料と混合することによって含有させることができる。

最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。

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

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

[0188] 本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンドル法等による形成方法を用いることができる

。本発明の有機EL素子に用いる、前記一般式（1）で示される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピノコーティング法、キャスティング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が好ましい。

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

実施例

[0189] 以下、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されない。

<合成例1（中間体1の合成）>

アルゴン気流下、1000mLの三つ口フラスコに4-ブロモビフェニルを4.7g、ヨウ素を2.3g、過ヨウ素酸2水和物を9.4g、水を42mL、酢酸を360mL、硫酸を11mL入れ65°Cで30分攪拌後、90°Cで6時間反応した。反応物を氷水に注入し、ろ過した。水で洗浄後、メタノールで洗浄することにより6.7gの白色粉末を得た。フィールドディソープションマススペクトル（以下、FD-MS）の分析により、C₁₂H₈BrI = 359に対し、m/z = 358と360の主ピークが得られたので、中間体1と同定した。

[0190] <合成例2（中間体2の合成）>

アルゴン気流下、ジ-4-ビフェニリルアミン10g、4,4'-ジブロモビ

フェニル 9. 7 g、*t*-ブトキシナトリウム 3 g、ビス（トリフェニルホスフィン）塩化パラジウム（II）0. 5 g 及びキシレン 500 mL を入れ、130°C にて 24 時間反応した。

冷却後、水 1000 mL を加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9. 1 g の白色粉末を得た。FD-MS の分析により、該白色粉末を中間体 2 と同定した。

[0191] <合成例 3（中間体 3 の合成）>

アルゴン雰囲気下、ジベンゾフラン 78. 0 g に脱水テトラヒドロフラン 600 mL を加え、-30°C に冷却し、*n*-ブチルリチウムヘキサン溶液（1. 65 M）300 mL を滴下して、攪拌しながら 1 時間かけて室温まで昇温した。室温で 5 時間攪拌後、-60°C まで冷却し、1, 2-ジブロモエタン 60 mL を 1 時間かけて滴下した。

室温で 15 時間攪拌した後、氷水 1000 mL に注ぎ、有機層をジクロロメタンで抽出した。飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、ろ別後、濃縮した。得られた固体を、シリカゲルクロマトグラフィー（トルエン）で精製し、テトラヒドロフラン／メタノールで洗浄し、減圧乾燥したところ、70 g の固体を得た。FD-MS の分析により、中間体 3 と同定した。

<合成例 4（中間体 4 の合成）>

窒素雰囲気下、ジベンゾフラン 150 g に酢酸 1000 mL を加え、加熱溶解させた。臭素 188 g を時々水冷しながら滴下した後、空冷下に 20 時間攪拌した。析出した結晶を濾別し、酢酸、水で順次洗浄し、減圧下乾燥させた。得られた結晶を、減圧蒸留にて精製した後、メタノールで数回再結晶を繰り返し、66. 8 g の固体を得た。FD-MS の分析により、該固体を中間体 4 と同定した。

[0192] <合成例 5（中間体 5 の合成）>

アルゴン雰囲気下、1-ブロモ-3-フルオロー-4-ヨードベンゼン120.0g、2-メトキシフェニルボロン酸72.7g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)9.2g(にトルエン1000ミリリットル、2M濃度の炭酸ナトリウム水溶液500ミリリットルを加え、10時間還流させながら加熱した。

反応終了後、直ちにろ過した後、水層を除去した。有機層を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、4-ブロモ-2-フルオロー-2'-メトキシビフェニルの白色結晶89.6gを得た(収率80%)。

アルゴン雰囲気下、4-ブロモ-2-フルオロー-2'-メトキシビフェニル89.6gにジクロロメタン900ミリリットルを加え、氷冷下攪拌した。三臭化ホウ素95.9gを滴下して加え、その後、室温で12時間攪拌した。反応終了後、水200ミリリットルを加え、1時間攪拌後、水層を除去した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、4-ブロモ-2-フルオロー-2'-ヒドロキシビフェニルの白色結晶68.1gを得た(収率70%)。

4-ブロモ-2-フルオロー-2'-ヒドロキシビフェニル68.1g、炭酸カリウム70.4gにN-メチルピロリドン1500ミリリットルを加え、180°Cで3時間攪拌した。反応終了後、水を加え、トルエンで抽出した。有機層を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、濃縮した。残渣をトルエンから再結晶して精製し、3-ブロモジベンゾフランの白色結晶44.2gを得た(収率60%)。FD-MSの分析により、中間体5と同定した。

[0193] <合成例6(中間体6の合成)>

アルゴン気流下、中間体3を24.7g、アニリン14.0g、t-ブトキシナトリウム28.8g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)1.4g、2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1,1'-ビナフチル1.9g及びトルエン350mLを入れ、130°Cにて24時間反応した。

冷却後、混合物をセライト濾過し、濾液を減圧下で濃縮した。得られた粗

生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、20.7 gの白色粉末を得た。FD-MSの分析により、該白色粉末を中間体6と同定した。

<合成例7（中間体7の合成）>

合成例6において、中間体3の代わりに中間体4を24.7 g用いた以外は同様に反応を行ったところ、22.6 gの白色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体7と同定した。

<合成例8（中間体8の合成）>

合成例6において、中間体3の代わりに中間体5を24.7 g用いた以外は同様に反応を行ったところ、23.8 gの白色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体8と同定した。

[0194] <合成例9（中間体9の合成）>

9-フェニルカルバゾール17.7 g、ヨウ化カリウム6.03 g及びヨウ素酸カリウム7.78 gに、硫酸5.90 mL及びエタノールを加え、75°Cにて2時間反応した。

冷却後、水、酢酸エチルを加えて分液、抽出した後、重曹水、水を用いて有機層を洗浄し、濃縮し、得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒：トルエン）で精製し、得られた固体を減圧乾燥したところ、21.8 gの白色固体を得た。FD-MSの分析により、該白色固体を中間体9と同定した。

<合成例10（中間体10の合成）>

合成例6において、中間体3の代わりに中間体9を36.9 g用いた以外は同様に反応を行ったところ、26.8 gの白色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体10と同定した。

<合成例11（中間体11の合成）>

合成例6において、中間体3の代わりに中間体1を35.9 g用い、アニリンの代わりに中間体10を33.4 g用いた以外は同様に反応を行ったところ、43.8 gの白色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体11

と同定した。

[0195] <合成例 1 2 (中間体 1 2 の合成) >

アルゴン気流下、1-アセトアミド37.0 g、中間体3を49.4 g、炭酸カリウム109 g、銅粉2.5 g及びデカルシン400 mLを仕込み、190°Cにて4日間反応した。反応後冷却し、トルエン200 mLを添加し、不溶分を濾取した。濾取物をクロロホルム500 mLに溶解し、不溶分を除去後、活性炭処理し、濃縮した。これにアセトン300 mLを加え、析出晶を27.6 g濾取した。FD-MSの分析により、中間体12と同定した。

<合成例 1 3 (中間体 1 3 の合成) >

合成例 1 2において、1-アセトアミドの代わりに中間体 1 2 を 22.5 g 用い、中間体 3 の代わりに 1-ブロモナフタレンを 20.7 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、21.0 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析により、中間体 1 3 と同定した。

<合成例 1 4 (中間体 1 4 の合成) >

アルゴン気流下、中間体 1 3 を 21.0 g、キシレン 500 mL、水 50 mL に懸濁し、8.5% 水酸化カリウム水溶液 21 g を添加後、120°C で 8 時間反応した。反応後、水 1 L 中に反応液を注加し、析出晶を濾取し、水、メタノールで洗浄した。得られた結晶をテトラヒドロフラン 300 mL に加熱溶解し、活性炭処理後濃縮し、アセトンを加えて結晶を析出させた。これを濾取し、15.1 g の白色粉末を得た。FD-MS の分析により、中間体 1 4 と同定した。

[0196] <合成例 1 5 (中間体 1 5 の合成) >

合成例 1 3において、中間体 3 の代わりに 4-ブロモビフェニルを 23.3 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、22.6 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析により、中間体 1 5 と同定した。

<合成例 1 6 (中間体 1 6 の合成) >

合成例 1 4において、中間体 1 3 の代わりに中間体 1 5 を 22.6 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、16.0 g の淡黄色粉末を得た。FD

—MSの分析により、中間体16と同定した。

<合成例17（中間体17の合成）>

合成例12において、中間体3の代わりに中間体4を49.4g用いた以外は同様に反応を行ったところ、25.3gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体17と同定した。

[0197] <合成例18（中間体18の合成）>

合成例13において、中間体12の代わりに中間体17を22.5g用いた以外は同様に反応を行ったところ、23.2gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体18と同定した。

<合成例19（中間体19の合成）>

合成例14において、中間体13の代わりに中間体18を23.2g用いた以外は同様に反応を行ったところ、16.7gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体19と同定した。

<合成例20（中間体20の合成）>

合成例12において、中間体3の代わりに中間体5を49.4g用いた以外は同様に反応を行ったところ、24.7gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体20と同定した。

[0198] <合成例21（中間体21の合成）>

合成例13において、中間体12の代わりに中間体20を22.5g用いた以外は同様に反応を行ったところ、21.8gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体21と同定した。

<合成例22（中間体22の合成）>

合成例14において、中間体13の代わりに中間体21を21.8g用いた以外は同様に反応を行ったところ、13.5gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体22と同定した。

<合成例23（中間体23の合成）>

合成例13において、中間体12の代わりに中間体20を22.5g、中間体3の代わりに4-ブロモビフェニルを23.3g用いた以外は同様に反応

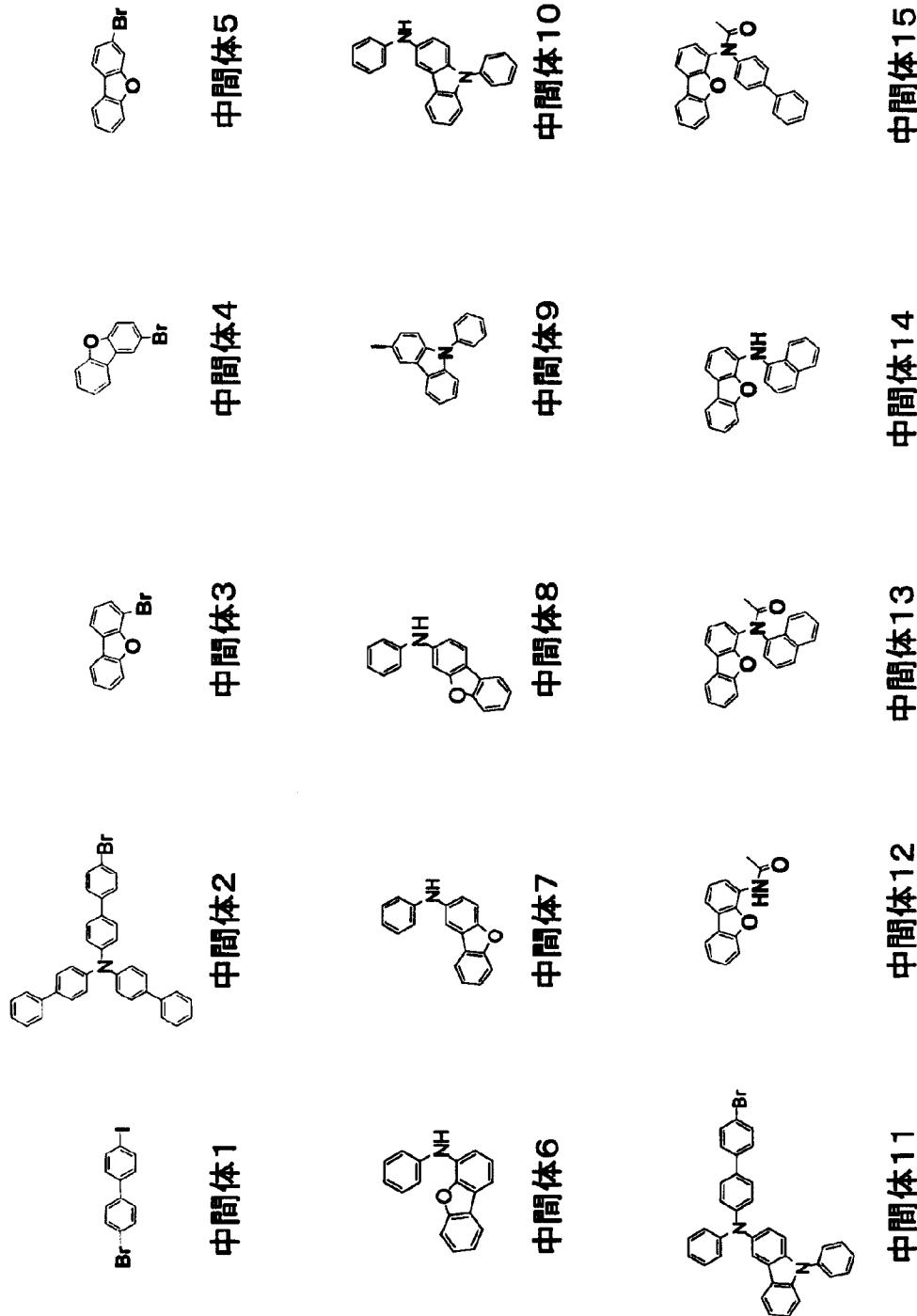
を行ったところ、21.4 g の淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体23と同定した。

<合成例24（中間体24の合成）>

合成例14において、中間体13の代わりに中間体23を21.4 g用いた以外は同様に反応を行ったところ、13.8 g の淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、中間体24と同定した。

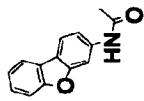
[0199] 合成例1～24で合成した中間体の構造式は下記の通りである。

[化113]

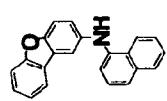


[0200]

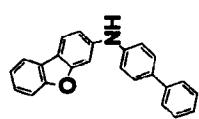
[化114]



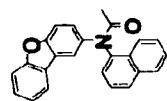
中間体20



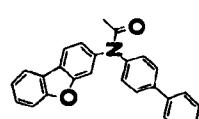
中間体19



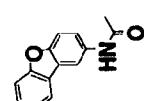
中間体24



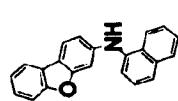
中間体18



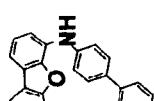
中間体23



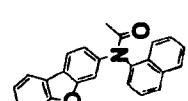
中間体17



中間体22



中間体16



中間体21

[0201] <合成実施例 1 (芳香族アミン誘導体 (H 1) の製造) >

アルゴン気流下、中間体 6 を 5. 2 g、4, 4' -ジヨードビフェニルを 4. 1 g、t-ブトキシナトリウム 1. 3 g、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム 4.6 mg、トリート-ブチルホスフィン 2.1 mg 及び脱水トルエン 50 mL を入れ、80°Cにて2時間反応させた。

冷却後、水 500 mL を加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、4. 7 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体 (H 1) と同定した。

<合成実施例 2 (芳香族アミン誘導体 (H 2) の製造) >

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 8 を 5. 2 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、4. 3 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体 (H 2) と同定した。

<合成実施例 3 (芳香族アミン誘導体 (H 3) の製造) >

合成実施例 1において、中間体 6 を 2. 6 g 用い、4, 4' -ジヨードビフェニルの代わりに中間体 2 を 5. 5 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 0 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体 (H 3) と同定した。

[0202] <合成実施例 4 (芳香族アミン誘導体 (H 4) の製造) >

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 7 を 2. 6 g 用い、4, 4' -ジヨードビフェニルの代わりに中間体 2 を 5. 5 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 1 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体 (H 4) と同定した。

<合成実施例 5 (芳香族アミン誘導体 (H 5) の製造) >

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 8 を 2. 6 g 用い、4, 4' -ジヨードビフェニルの代わりに中間体 2 を 5. 5 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、4. 9 g の淡黄色粉末を得た。FD-MS の分析

により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 5）と同定した。

＜合成実施例 6（芳香族アミン誘導体（H 6）の製造）＞

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 1 6 を 6. 7 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 7 g の淡黄色粉末を得た。FD-M S の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 6）と同定した。

[0203] ＜合成実施例 7（芳香族アミン誘導体（H 7）の製造）＞

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 2 4 を 6. 7 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 5 g の淡黄色粉末を得た。FD-M S の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 7）と同定した。

＜合成実施例 8（芳香族アミン誘導体（H 8）の製造）＞

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 1 4 を 6. 2 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 3 g の淡黄色粉末を得た。FD-M S の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 8）と同定した。

＜合成実施例 9（芳香族アミン誘導体（H 9）の製造）＞

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 1 9 を 6. 2 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 2 g の淡黄色粉末を得た。FD-M S の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 9）と同定した。

[0204] ＜合成実施例 10（芳香族アミン誘導体（H 10）の製造）＞

合成実施例 1において、中間体 6 の代わりに中間体 2 2 を 6. 2 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、4. 8 g の淡黄色粉末を得た。FD-M S の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 10）と同定した。

＜合成実施例 11（芳香族アミン誘導体（H 11）の製造）＞

合成実施例 1において、4, 4' -ジヨードビフェニルの代わりに 4, 4' -ジヨード-p-ターフェニル 4. 8 g 用いた以外は同様に反応を行ったところ、5. 5 g の淡黄色粉末を得た。FD-M S の分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体（H 11）と同定した。

＜合成実施例 12（芳香族アミン誘導体（H 12）の製造）＞

合成実施例1において、中間体6の代わりに中間体7を5.2g用い、4',4'-ジヨードビフェニルの代わりに4,4'-ジヨード-p-ターフェニル4.8g用いた以外は同様に反応を行ったところ、6.0gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体(H12)と同定した。

[0205] <合成実施例13(芳香族アミン誘導体(H13)の製造)>

合成実施例1において、中間体6を2.6g用い、4,4'-ジヨードビフェニルの代わりに中間体11を5.7g用いた以外は同様に反応を行ったところ、5.0gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体(H13)と同定した。

<合成実施例14(芳香族アミン誘導体(H14)の製造)>

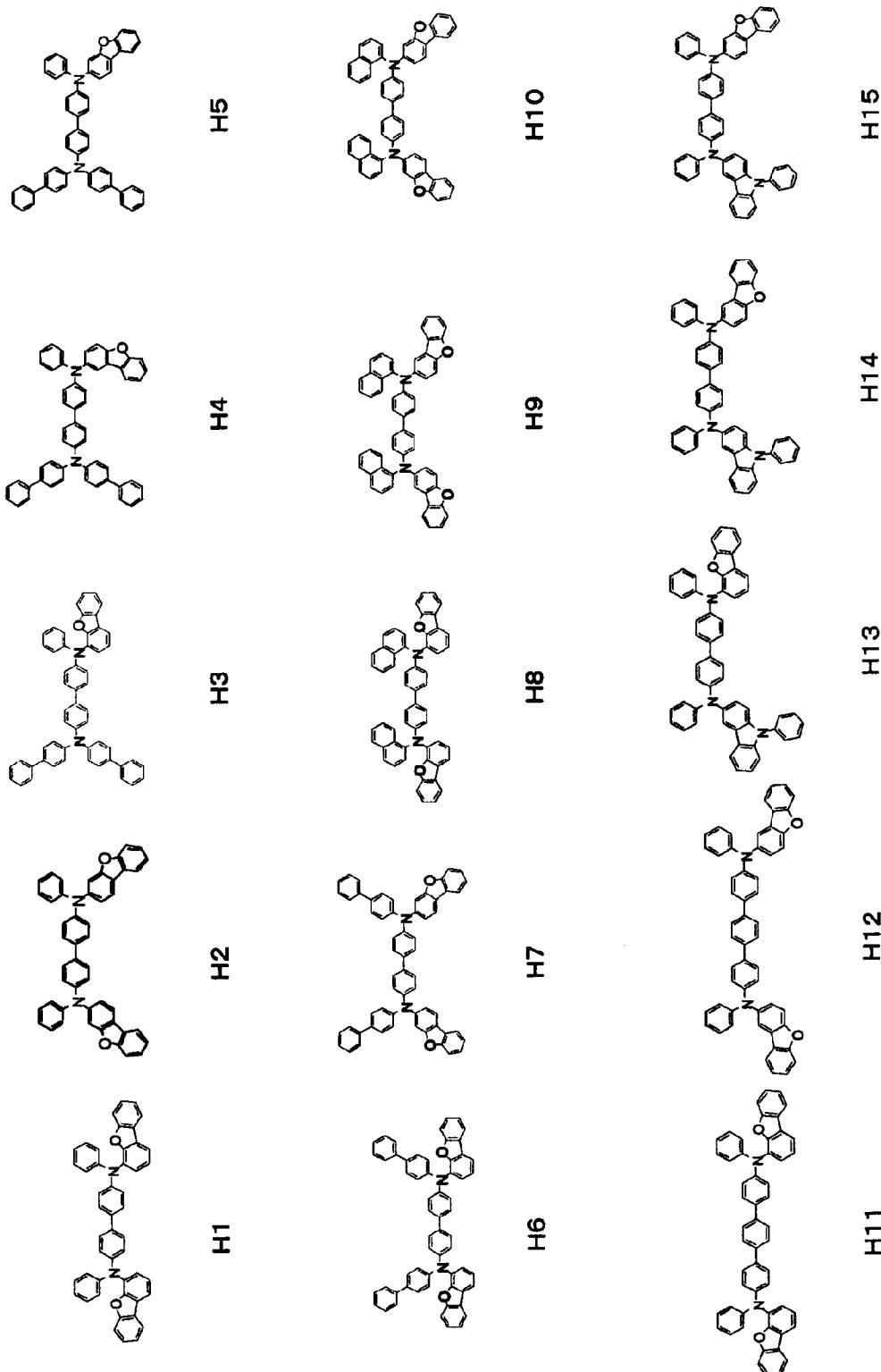
合成実施例1において、中間体6の代わりに中間体7を2.6g用い、4',4'-ジヨードビフェニルの代わりに中間体11を5.7g用いた以外は同様に反応を行ったところ、4.8gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体(H14)と同定した。

<合成実施例15(芳香族アミン誘導体(H15)の製造)>

合成実施例1において、中間体6の代わりに中間体8を2.6g用い、4',4'-ジヨードビフェニルの代わりに中間体11を5.7g用いた以外は同様に反応を行ったところ、5.3gの淡黄色粉末を得た。FD-MSの分析により、該淡黄色粉末を芳香族アミン誘導体(H15)と同定した。

[0206] 合成実施例1～15で合成した芳香族アミン誘導体の構造式は下記の通りである。

[化115]



[0207] [実施例 1－1 (有機EL素子の製造)]

25 mm × 75 mm × 厚さ 1.1 mm の ITO 透明電極付きガラス基板（ジオマティック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。

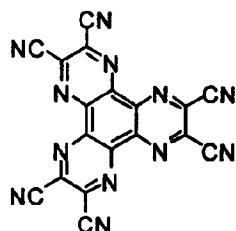
洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして下記電子受容性化合物（C-1）を蒸着し、膜厚 10 nm の C-1 膜を成膜した。この C-1 膜上に、正孔輸送材料として前記合成実施例 1 で得た芳香族アミン誘導体（H1）を蒸着し、膜厚 70 nm の正孔輸送層を成膜した。さらに下記化合物 EM1 を蒸着し、膜厚 40 nm の発光層を成膜した。同時に発光分子として、下記のスチリルアミン誘導体（D1）を、EM1 と D1 の重量比（EM1 : D1）が 40 : 2 になるように蒸着した。

この膜上に、下記有機金属錯体（A1q）を膜厚 10 nm となるよう成膜した。この層は、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントである Li⁻（Li⁻ 源：サエスゲッター社製）と A1q を二元蒸着させ、電子注入層（陰極）として A1q : Li⁻ 膜（膜厚 10 nm）を形成した。この A1q : Li⁻ 膜上に金属 Al を蒸着させ金属陰極を形成し有機 EL 素子を形成した。

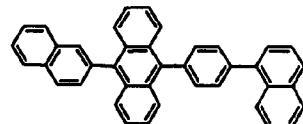
得られた有機 EL 素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及び DC 定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

[0208]

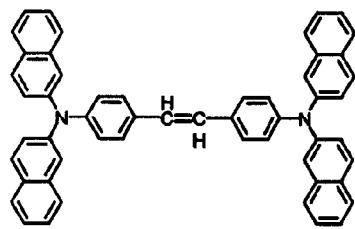
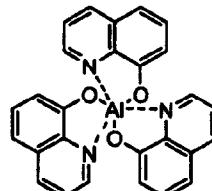
[化116]



電子受容性化合物 (C-1)



(EM1)

スチリルアミン誘導体
(D1)有機金属錯体
(Alq)

[0209] [実施例 1-2～1-10 (有機EL素子の製造)]

実施例 1-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体 (H1) の代わりに表 1 に記載の各芳香族アミン誘導体を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及び DC 定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

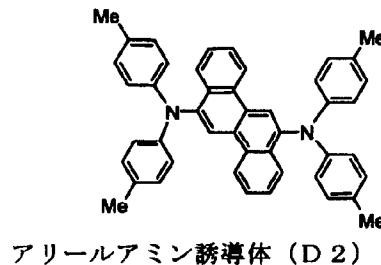
[0210] [実施例 1-11 (有機EL素子の製造)]

実施例 1-1において、スチリルアミン誘導体 (D1) の代わりに下記アリールアミン誘導体 (D2) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及び DC 定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

[0211]

[化117]

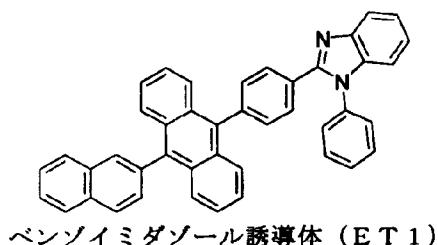


[0212] [実施例 1－12 (有機EL素子の製造)]

実施例 1－1において、電子輸送材料として有機金属錯体 (A 1 q) の代わりに下記ベンゾイミダゾール誘導体 (ET 1) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表1に示す。

[0213] [化118]

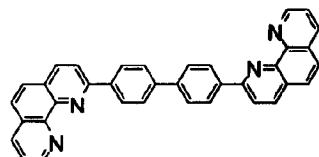


[0214] [実施例 1－13 (有機EL素子の製造)]

実施例 1－1において、電子輸送材料として有機金属錯体 (A 1 q) の代わりに下記フェナントロリン誘導体 (ET 2) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表1に示す。

[化119]

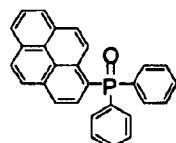


フェナントロリン誘導体（ET 2）

[0215] [実施例 1－14（有機EL素子の製造）]

実施例 1－1において、電子輸送材料として有機金属錯体（A 1 q）の代わりに下記 fosfainoquinodimethane誘導体（ET 3）を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd/m²、室温及び DC 定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

[化120]



fosfainoquinodimethane誘導体（ET 3）

[0216] [比較例 1－1～1－3]

実施例 1－1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H 1）の代わりに表 1 に示す様に下記比較化合物 1～3 のいずれかを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd/m²、室温及び DC 定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

[0217]

[化121]



[0218] [比較例 1－4]

実施例 1－1 1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H 1）の代わりに前記比較化合物 1 を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

[0219] [比較例 1－5]

実施例 1－1 2において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H 1）の代わりに前記比較化合物 1 を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度 5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表 1 に示す。

[0220]

[表1]

表 1

		正孔輸送材料	発光色	測定結果		
				発光効率 (cd/A)	駆動電圧 (V)	半減寿命 (時間)
実施例	1-1	H1	青色	7.2	7.2	410
	1-2	H2	青色	7.0	6.8	390
	1-3	H3	青色	7.2	7.2	390
	1-4	H4	青色	7.2	7.0	400
	1-5	H5	青色	7.1	6.8	370
	1-6	H6	青色	7.2	7.2	400
	1-7	H7	青色	7.0	6.6	370
	1-8	H8	青色	7.2	7.2	390
	1-9	H9	青色	7.0	7.0	390
	1-10	H10	青色	6.9	6.5	360
	1-11	H1	青色	7.2	6.9	390
	1-12	H1	青色	7.1	6.6	380
	1-13	H1	青色	7.1	6.5	380
	1-14	H1	青色	7.0	6.5	370
比較例	1-1	比較化合物1	青色	6.3	7.8	260
	1-2	比較化合物2	青色	6.0	7.9	250
	1-3	比較化合物3	青色	6.0	7.8	240
	1-4	比較化合物1	青色	6.5	7.9	250
	1-5	比較化合物1	青色	6.4	7.5	250

[0221] 表1より、本発明の芳香族アミン誘導体を用いた有機EL素子は、公知の芳香族アミン誘導体を用いた有機EL素子に比べ、低駆動電圧で高発光効率を得ることができ、さらに素子寿命が伸びていることがわかる。

[0222] [実施例2-1 (有機EL素子の製造)]

25mm×75mm×厚さ1.1mmのITO透明電極付きガラス基板（ジオマティック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。

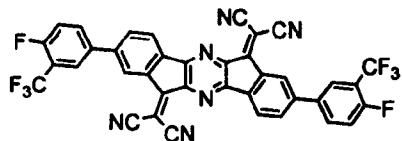
洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして下記電子受容性化合物(C-2)を蒸着し、膜厚10nmのC-2膜を成膜した。このC-2膜上に、正孔輸送材料として前記合成実施例1で得た芳香族アミン誘導体(H1)を蒸着し、膜厚70nmの正孔輸送層を成膜した。さらに前記化合物EM1を蒸着し、膜厚40nmの発光層を成膜した。同時に発光分子として、前記のスチリルアミン誘導体(D1)を、EM

1とD 1の重量比（E M 1 : D 1）が4 0 : 2になるように蒸着した。

この膜上に、前記有機金属錯体（A 1 q）を膜厚10 nmとなるよう成膜した。この層は、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントであるLi（Li源：サエスゲッター社製）とA 1 qを二元蒸着させ、電子注入層（陰極）としてA 1 q : Li膜（膜厚10 nm）を形成した。このA 1 q : Li膜上に金属Alを蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を形成した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0223] [化122]



電子受容性化合物（C - 2）

[0224] [実施例 2-2～2-10（有機EL素子の製造）]

実施例2-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H 1）の代わりに表2に記載の各芳香族アミン誘導体を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0225] [実施例 2-11（有機EL素子の製造）]

実施例2-1において、スチリルアミン誘導体（D 1）の代わりに前記アリールアミン誘導体（D 2）を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd

／m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0226] [実施例2-12 (有機EL素子の製造)]

実施例2-1において、電子輸送材料として有機金属錯体(A1q)の代わりに前記ベンゾイミダゾール誘導体(ET1)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0227] [実施例2-13 (有機EL素子の製造)]

実施例2-1において、電子輸送材料として有機金属錯体(A1q)の代わりに前記フェナントロリン誘導体(ET2)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0228] [実施例2-14 (有機EL素子の製造)]

実施例2-1において、電子輸送材料として有機金属錯体(A1q)の代わりに前記オスフィンオキサイド誘導体(ET3)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0229] [比較例2-1～2-3]

実施例2-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体(H1)の代わりに表2に示す様に前記比較化合物1～3のいずれかを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命

を測定した結果を表2に示す。

[0230] [比較例2-4]

実施例2-1-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに前記比較化合物1を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0231] [比較例2-5]

実施例2-1-2において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに前記比較化合物1を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表2に示す。

[0232]

[表2]

表 2

		正孔輸送材料	発光色	測定結果		
				発光効率 (cd/A)	駆動電圧 (V)	半減寿命 (時間)
実施例	2-1	H1	青色	7.2	7.3	400
	2-2	H2	青色	6.9	6.8	380
	2-3	H3	青色	7.2	7.3	390
	2-4	H4	青色	7.2	7.0	400
	2-5	H5	青色	7.0	6.8	370
	2-6	H6	青色	7.0	7.2	400
	2-7	H7	青色	6.8	6.6	370
	2-8	H8	青色	7.1	7.2	400
	2-9	H9	青色	7.1	7.0	400
	2-10	H10	青色	6.8	6.5	370
	2-11	H1	青色	7.2	6.9	390
	2-12	H1	青色	7.0	6.6	380
	2-13	H1	青色	7.1	6.5	370
	2-14	H1	青色	7.0	6.6	370
比較例	2-1	比較化合物1	青色	6.3	7.8	260
	2-2	比較化合物2	青色	6.0	8.0	260
	2-3	比較化合物3	青色	6.0	7.8	240
	2-4	比較化合物1	青色	6.5	7.9	250
	2-5	比較化合物1	青色	6.3	7.5	260

[0233] 表2より、本発明の芳香族アミン誘導体を用いた有機EL素子は、公知の芳香族アミン誘導体を用いた有機EL素子に比べ、低駆動電圧で高発光効率を得ることができ、さらに素子寿命が伸びていることがわかる。

[0234] [実施例3-1（有機EL素子の製造）]

25mm×75mm×厚さ1.1mmのITO透明電極付きガラス基板（ジオマティック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。

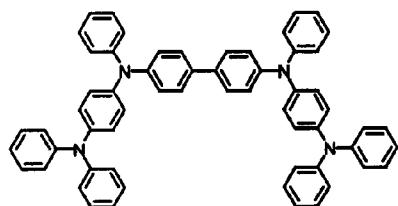
洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして下記芳香族第三級アミン誘導体（H232）を蒸着し、膜厚60nmのH232膜を正孔注入層として成膜した。このH232膜上に、正孔輸送材料として前記合成実施例1で得た芳香族アミン誘導体（H1）を蒸着し、膜厚20nmの正孔輸送層を成膜した。さらに前記化合物EM1を蒸着し、膜厚40nmの発光層を成膜した。同時に発光分子として、前記のス

チリルアミン誘導体（D 1）を、EM 1とD 1の重量比（EM 1 : D 1）が40:2になるように蒸着した。

この膜上に、前記有機金属錯体（A 1 q）を膜厚10nmとなるよう成膜した。この層は、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントであるLi（Li源：サエスゲッター社製）とA 1 qを二元蒸着させ、電子注入層（陰極）としてA 1 q : Li膜（膜厚10nm）を形成した。このA 1 q : Li膜上に金属Alを蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を形成した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0235] [化123]



芳香族第三級アミン誘導体（H 232）

[0236] [実施例3-2～3-10（有機EL素子の製造）]

実施例3-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H 1）の代わりに表3に記載の各芳香族アミン誘導体を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0237] [実施例3-11（有機EL素子の製造）]

実施例3-1において、スチリルアミン誘導体（D 1）の代わりに前記アリールアミン誘導体（D 2）を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製

した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0238] [実施例3-12(有機EL素子の製造)]

実施例3-1において、電子輸送材料として有機金属錯体(A1q)の代わりに前記ベンゾイミダゾール誘導体(ET1)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

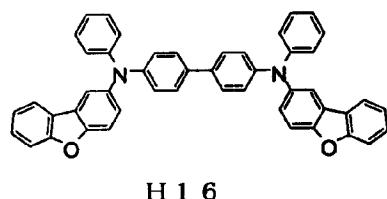
得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0239] [実施例3-13(有機EL素子の製造)]

実施例3-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体(H1)の代わりに表3に示す様に下記化合物H16を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0240] [化124]



[0241] [比較例3-1～3-3]

実施例3-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体(H1)の代わりに表3に示す様に前記比較化合物1～3のいずれかを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0242] [比較例3-4]

実施例3-1-1において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに前記比較化合物1を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0243] [比較例3-5]

実施例3-1-2において、正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに前記比較化合物1を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の発光色を観察し、さらに、初期輝度5000 cd / m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率、駆動電圧及び発光の半減寿命を測定した結果を表3に示す。

[0244]

[表3]

表 3

		正孔輸送材料	発光色	測定結果		
				発光効率 (cd/A)	駆動電圧 (V)	半減寿命 (時間)
実施例	3-1	H1	青色	7.2	7.3	400
	3-2	H2	青色	6.8	7.0	370
	3-3	H3	青色	7.1	7.2	400
	3-4	H4	青色	7.1	7.0	400
	3-5	H5	青色	6.8	6.8	360
	3-6	H6	青色	7.1	7.0	400
	3-7	H7	青色	6.7	6.8	380
	3-8	H8	青色	7.0	7.2	400
	3-9	H9	青色	7.0	7.1	400
	3-10	H10	青色	6.9	6.8	370
	3-11	H1	青色	7.2	7.1	370
	3-12	H1	青色	6.9	6.6	360
	3-13	H16	青色	7.1	7.2	390
比較例	3-1	比較化合物1	青色	6.2	8.0	250
	3-2	比較化合物2	青色	6.2	8.0	250
	3-3	比較化合物3	青色	5.9	7.9	260
	3-4	比較化合物1	青色	6.2	7.8	250
	3-5	比較化合物1	青色	6.3	7.6	260

[0245] [実施例 4-1 (有機EL素子の製造)]

25 mm × 75 mm × 厚さ 1.1 mm の ITO 透明電極付きガラス基板（ジオマティック株式会社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして前記電子受容性化合物 (C-1) を蒸着し、膜厚 5 nm の C-1 膜を成膜した。この C-1 膜上に、第 1 正孔輸送材料として下記芳香族アミン誘導体 (X1) を蒸着し、膜厚 50 nm の第 1 正孔輸送層を成膜した。第 1 正孔輸送層の成膜に続けて、第 2 正孔輸送材料として前記合成実施例 1 で得た芳香族アミン誘導体 (H1) を蒸着し、膜厚 60 nm の第 2 正孔輸送層を成膜した。

さらに、この第 2 正孔輸送層上に、下記化合物 (EM2) を蒸着し、膜厚

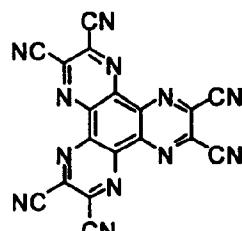
45 nmの発光層を成膜した。同時に燐光発光材料として下記化合物（D 3）を共蒸着した。化合物D 1の濃度は7.5質量%であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

そして、この発光層成膜に続けて下記化合物（E T 4）を膜厚30 nmで成膜した。このET 1膜は電子輸送層として機能する。

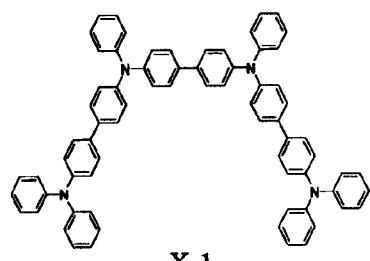
次に、LiFを電子注入性電極（陰極）として成膜速度0.1オングストレーム/m inで膜厚を1 nmとした。このLiF膜上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚80 nmで形成し有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子の初期輝度2000 cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

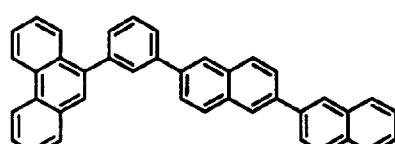
[0246] [化125]



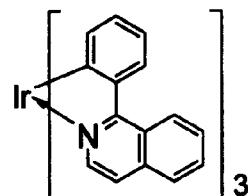
電子受容性化合物（C-1）



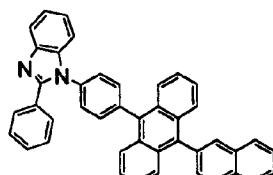
X-1



EM 2



D 3



ET 4

[0247] 実施例4-1において、芳香族アミン誘導体（H 1）のEg(T)は以下

に示すようにして測定した。

E g (T) (3重項エネルギーギャップ) :

熒光発光スペクトルに基づいて測定した。

材料をEPA溶媒（容積比でジエチルエーテル：イソペンタン：エタノール=5:5:2）に $10\text{ }\mu\text{mol/L}$ で溶解し、熒光測定用試料とした。この熒光測定用試料を石英セルに入れ、77Kに冷却し、励起光を照射し、放射される熒光の波長を測定した。

得られた熒光スペクトルの短波長側の立ちあがりに対して接線を引き、この接線とベースラインとの交点の波長値をエネルギーに換算した値を励起3重項エネルギーギャップE g (T)とした。

なお、測定には市販の測定装置F-4500（日立製）を用いた。

[0248] 実施例4-1において、芳香族アミン誘導体(H1)のTgは以下に示すようにして測定した。

Tgはパーキンエルマー社DSC「Pyris1」を使用し、下記測定条件での2回目のヒーティングの値を用いた。

[測定条件]

(i) 30°CからMAX温度へ加熱(10°C/分)

(ii) MAX温度で3分間保持

(iii) MAX温度から-50°Cへ冷却(200°C/分)

(iv) -50°Cで10分間保持

(v) -50°CからMAX温度へ加熱(10°C/分)

MAX温度はTg-DTAでの融点プラス約30°C、分解温度が近い場合はそれに応じて修正した。

[0249] [実施例4-2～4-4(有機EL素子の製造)]

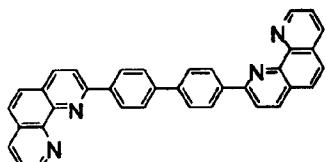
実施例4-1において、第2正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体(H1)の代わりに、表4に示す芳香族アミン誘導体を用いた以外は、実施例4-1と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度 2000 cd/m^2 、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果

を表4に示す。

[0250] [実施例4-5(有機EL素子の製造)]

実施例4-1において、電子輸送材料として(ET4)の代わりに前記フェナントロリン誘導体(ET2)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[化126]

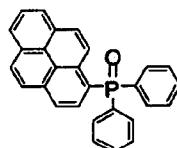


フェナントロリン誘導体(ET2)

[0251] [実施例4-6(有機EL素子の製造)]

実施例4-1において、電子輸送材料として(ET4)の代わりに前記 fosfainoキサイド誘導体(ET3)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[化127]



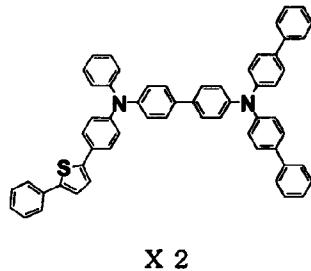
fosfainoキサイド誘導体(ET3)

[0252] [実施例4-7(有機EL素子の製造)]

実施例4-1において、第1正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体(X1)の代わりに、下記芳香族アミン誘導体(X2)を用いた以外は、実施例4-1と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を

表4に示す。

[化128]



[0253] [実施例4-8～4-10（有機EL素子の製造）]

実施例4-7において、第2正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに、表4に示す芳香族アミン誘導体を用いた以外は、実施例4-7と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[0254] [実施例4-11（有機EL素子の製造）]

実施例4-5において、第1正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（X1）の代わりに、前記芳香族アミン誘導体（X2）を用いた以外は、実施例4-5と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[0255] [実施例4-12（有機EL素子の製造）]

実施例4-6において、第1正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（X1）の代わりに、前記芳香族アミン誘導体（X2）を用いた以外は、実施例4-6と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[0256] [実施例4-13、4-14（有機EL素子の製造）]

実施例4-1において、第2正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに、表4に示す芳香族アミン誘導体を用いた以外は、実施例4

－1と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000 cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[0257] [実施例4-15、4-16（有機EL素子の製造）]

実施例4-7において、第2正孔輸送材料として芳香族アミン誘導体（H1）の代わりに、表4に示す芳香族アミン誘導体を用いた以外は、実施例4-7と同様にして有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の初期輝度2000 cd/m²、室温及びDC定電流駆動での発光効率を測定した結果を表4に示す。

[0258] [表4]

表 4

		第1正孔輸送層	第2正孔輸送層	発光効率 (cd/A)	Eg (T) (eV)	Tg (°C)
実施例	4-1	X1	H1	25.5	2.61	107
	4-2	X1	H3	24.8	2.59	127
	4-3	X1	H4	24.8	2.59	129
	4-4	X1	H6	24.5	2.59	145
	4-5	X1	H1	25.6	2.61	107
	4-6	X1	H1	25.5	2.61	107
	4-7	X2	H1	22.8	2.61	107
	4-8	X2	H3	22.5	2.59	127
	4-9	X2	H4	22.4	2.59	129
	4-10	X2	H6	22.6	2.59	145
	4-11	X2	H1	22.9	2.61	107
	4-12	X2	H1	22.8	2.61	107
	4-13	X1	H2	22.2	2.56	109
	4-14	X1	H7	22.3	2.54	146
	4-15	X2	H2	20.5	2.56	109
	4-16	X2	H7	20.0	2.54	146

産業上の利用可能性

[0259] 以上詳細に説明したように、本発明の芳香族アミン誘導体を用いた有機EL素子は、発光効率が高く、長時間使用しても劣化しづらく寿命が長い。このため、壁掛けテレビの平面発光体やディスプレイのバックライト等の光源として有用である。

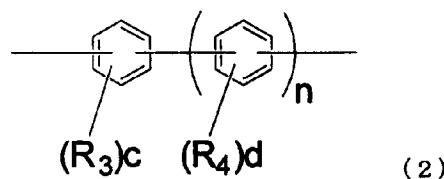
請求の範囲

[請求項1] 下記式(1)で表される芳香族アミン誘導体。



[式(1)において、Lは、下記式(2)で表される。]

[化1]



(式(2)において、nは0～3の整数を表す。)

R_3 及び R_4 は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。

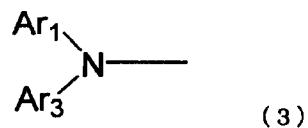
隣接、又は近接する複数の R_3 同士、 R_4 同士は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

隣接する R_3 と R_4 は互いに結合して、Lが置換もしくは無置換のフルオレニレン基を形成してもよい。

c、dはそれぞれ独立に0～4の整数を表す。)

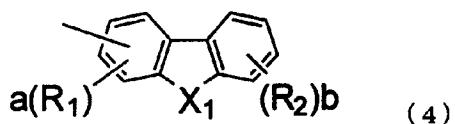
式(1)において、Aは、下記式(3)で表される。

[化2]



{式（3）において、 Ar_1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～25のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～25のヘテロアリール基を表し、 Ar_3 は、下記式（4）で表される。}

[化3]



{式（4）において、 X_1 は、O（酸素原子）、又はS（硫黄原子）、NR_a、又はCR_bR_cを表す。R_aは、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。R_b又はR_cは、それぞれ独立に、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。

R_1 及び R_2 は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。隣接した複数の R_1 及び R_2 同士、並びに R_1 と R_2 は

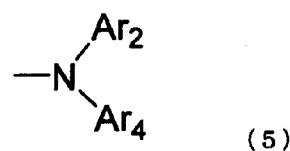
互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

aはそれぞれ独立に0～3の整数を表す。

bはそれぞれ独立に0～4の整数を表す。) }

式(1)において、Bは、下記式(5)で表される。

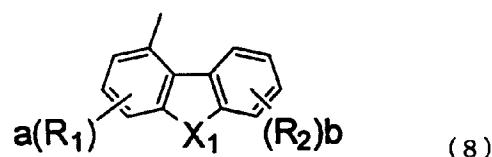
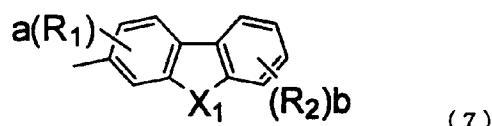
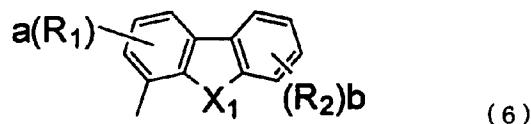
[化4]



(式(5)において、Ar₂又はAr₄は、置換もしくは無置換の環形炭素数6～25のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～25のヘテロアリール基を表す。)]

[請求項2] 前記Ar₃は、下記式(6)～(8)のいずれかで表されることを特徴とする請求項1に記載の芳香族アミン誘導体。

[化5]



(式(6)～(8)において、X₁は、O(酸素原子)、又はS(硫黄原子)、NR_a、又はCR_bR_cを表す。Raは、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。Rb又はRcは、それぞれ独立に、環

形成炭素数 6 ~ 25 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 25 のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。

R₁及びR₂は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数 2 ~ 15 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数 3 ~ 15 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 15 のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数 6 ~ 25 のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数 1 ~ 15 のアルキル基及び環形成炭素数 6 ~ 25 のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数 6 ~ 25 のアリール基、環形成原子数 5 ~ 25 のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。隣接した複数のR₁及びR₂同士、並びにR₁とR₂は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

a はそれぞれ独立に 0 ~ 3 の整数を表す。

b はそれぞれ独立に 0 ~ 4 の整数を表す。)

[請求項3] 前記 X₁が、O (酸素原子) 又は S (硫黄原子) である請求項 1 に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項4] 前記 X₁が、O (酸素原子) である請求項 1 に記載の芳香族アミン誘導体。

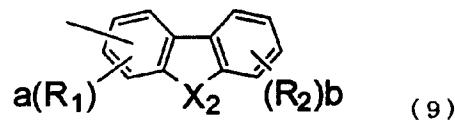
[請求項5] 前記 A_{r3}が、前記式 (6) 又は (8) で表されることを特徴とする請求項 1 に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項6] 前記 A_{r3}が、前記式 (6) で表されることを特徴とする請求項 1 に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項7] 前記 A_{r3}が、前記式 (6) で表されることを特徴とする請求項 4 に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項8] 前記 A_{r1}又は A_{r4}が下記式 (9) で表されることを特徴とする請求項 1 ~ 4 に記載の芳香族アミン誘導体。

[化6]



(式(9)において、 X_2 は、O（酸素原子）、S（硫黄原子）、N R_a 、又は $C R_b R_c$ を表す。 R_a は、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。 R_b 又は R_c は、それぞれ独立に、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基からなる群より選ばれる基を表す。

R_1 及び R_2 は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。隣接した複数の R_1 及び R_2 同士、並びに R_1 と R_2 は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

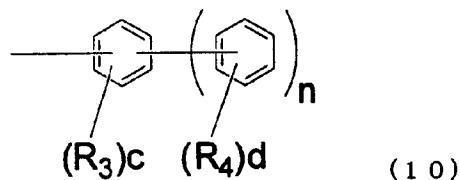
a はそれぞれ独立に0～3の整数を表す。

b はそれぞれ独立に0～4の整数を表す。)

[請求項9] 前記 A_{r_1} 又は A_{r_4} は、前記式(6)～(8)のいずれかで表されることを特徴とする請求項1に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項10] 前記 A_{r_1} 、 A_{r_2} 、 A_{r_4} のいずれかが下記式(10)で表されることを特徴とする請求項1に記載の芳香族アミン誘導体。

[化7]



(式 (10)において、nは0～3の整数を表す。)

R_3 及び R_4 は、それぞれ独立に、炭素数1～15の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数2～15の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、炭素数3～15のシクロアルキル基、炭素数1～15のアルキル基を有するトリアルキルシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基を有するトリアリールシリル基、炭素数1～15のアルキル基及び環形成炭素数6～25のアリール基を有するアルキルアリールシリル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基からなる群より選ばれる基を表す。

隣接、又は近接する複数の R_3 同士、 R_4 同士は互いに結合して環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

隣接する R_3 と R_4 は互いに結合して、Lが置換もしくは無置換のフルオレニレン基を形成してもよい。

c、dはそれぞれ独立に0～4の整数を表す。)

[請求項11]

前記Ar₁、Ar₂、Ar₄のいずれかがフェニル基、ビフェニル基、メターフェニル基で表されることを特徴とする請求項1に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項12]

AとBとが同一であることを特徴とする請求項1に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項13]

AとBとが異なることを特徴とする請求項1に記載の芳香族アミン誘導体。

[請求項14]

陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有

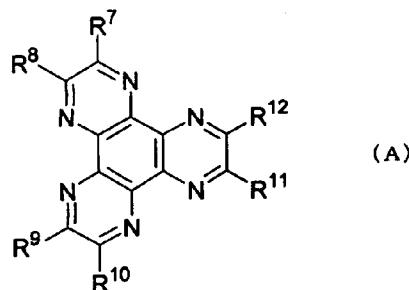
機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、請求項1～13のいずれかに記載の芳香族アミン誘導体を単独又は混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項15] 前記有機薄膜層として少なくとも正孔輸送層及び／又は正孔注入層を有し、該正孔輸送層及び／又は正孔注入層に前記芳香族アミン誘導体を含有することを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項16] 前記芳香族アミン誘導体を含有する層に、電子受容性化合物を含有する層が接合することを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項17] 前記電子受容性化合物が下記式(A)で表されることを特徴とする請求項16に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

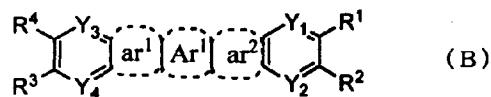
[化8]



(上記式(A)中、R⁷～R¹²は、それぞれ独立にシアノ基、-CONH₂、カルボキシル基、もしくは-COO R¹³ (R¹³は、炭素数1～20のアルキル基である。)を表すか、又は、R⁷及びR⁸、R⁹及びR¹⁰、もしくはR¹¹及びR¹²が一緒になって-CO-O-CO-で示される基を表す。)

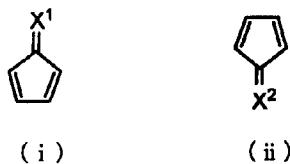
[請求項18] 前記電子受容性化合物が下記式(B)で表されることを特徴とする請求項16に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化9]



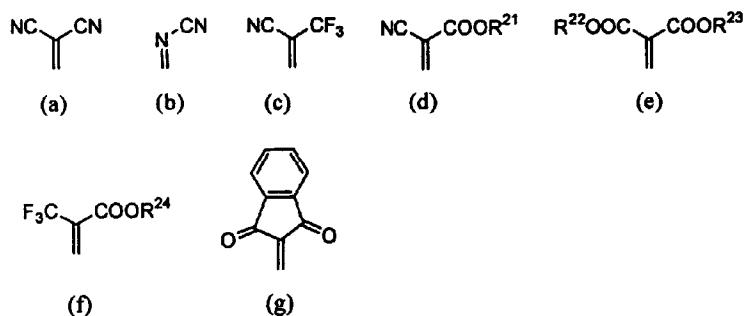
[上記式 (B) 中、 Ar^1 は、環形成炭素数 6 ~ 24 の縮合環、又は環形成原子数 6 ~ 24 の複素環である。 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、下記式 (i) もしくは (ii) である。

[化10]



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

[化11]



(式中、 R^{21} ~ R^{24} は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 50 の複素環基であり、 R^{22} と R^{23} は互いに結合し

て環を形成してもよい。) }

式 (B) 中の R¹～R⁴は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6～50 の炭素数 6～50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 3～50 の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6～50 の炭素数 6～50 のアリールオキシ基、又はシアノ基である。R¹～R⁴のうち互いに隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。Y¹～Y⁴は互いに同一でも異なっていてもよく、-N=、-CH=、又は C (R⁵) = であり、R⁵は、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6～50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 3～50 の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6～50 の炭素数 6～50 のアリールオキシ基、又はシアノ基である。]

[請求項19]

前記芳香族アミン誘導体を含有する層に、ホスト材料と発光を示すドーパント材料とを含有する発光層が接合することを特徴とする請求項 1 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項20]

前記芳香族アミン誘導体を含有する層に、ホスト材料と発光を示すドーパント材料とを含有する発光層が、前記電子受容性化合物を含有する層との反対面において接合することを特徴とする請求項 1 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

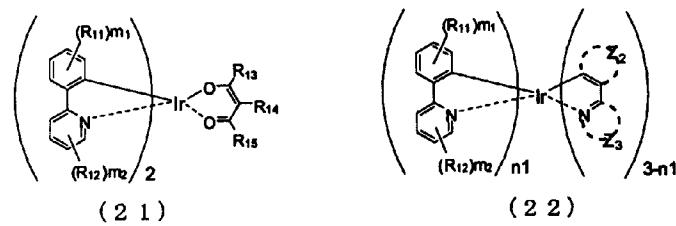
[請求項21]

前記ドーパント材料が、Ir, Pt, Os, Cu, Ru, Re, Au から選択される金属を含有する金属錯体化合物である請求項 1 9 に

記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項22] 前記ドーパント材料が下記式(21)又は(22)で表される部分構造を有する金属錯体化合物又はその互変異性体からなることを特徴とする請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化12]



(式中、 R_{11} 、 R_{12} はそれぞれ独立に炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルケニル基、環形成炭素数6～25のアリール基、環形成原子数5～25のヘテロアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接する複数の R_{11} 同士、 R_{12} 同士は、それぞれ独立に、飽和又は不飽和の2価の基を形成しても良い。

$R_{13} \sim R_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～20のアルキル基を表す。

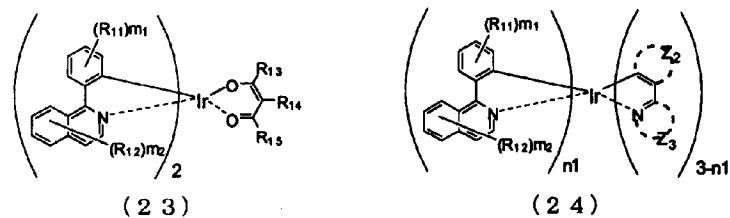
Z_2 は環形成炭素数6～25のアリール環、もしくは環形成原子数5～25のヘテロアリール環を形成する原子団を表し、 Z_3 は、環形成原子数5～25の含窒素ヘテロアリール環を形成する原子団を表す。

m_1 、 m_2 は、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。

n_1 は、1～3の整数を表す。)

[請求項23] 前記ドーパント材料が下記式(23)又は(24)で表される部分構造を有する金属錯体化合物又はその互変異性体からなることを特徴とする請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

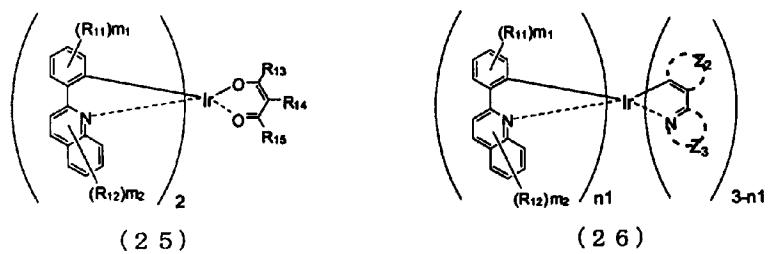
[化13]



(式（23）及び（24）において、 $R_{11} \sim R_{15}$ 、 Z_2 、 Z_3 、 m_1 、 m_2 、 n_1 は、式（21）及び（22）において用いられたものと同義である。)

[請求項24] 前記ドーパント材料が下記式（25）又は（26）で表される部分構造を有する金属錯体化合物又はその互変異性体からなることを特徴とする請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

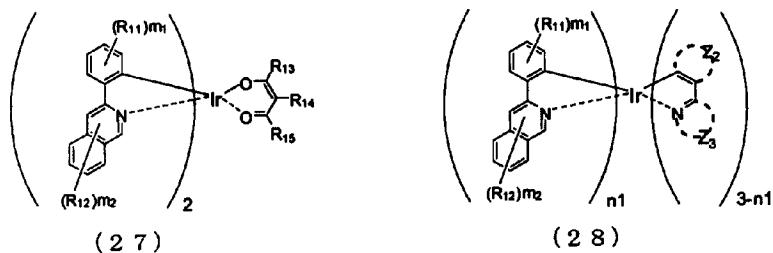
[化14]



(式（25）及び（26）において、 $R_{11} \sim R_{15}$ 、 Z_2 、 Z_3 、 m_1 、 m_2 、 n_1 は、式（21）及び（22）において用いられたものと同義である。)

[請求項25] 前記ドーパント材料が下記式（27）又は（28）で表される部分構造を有する金属錯体化合物又はその互変異性体からなることを特徴とする請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

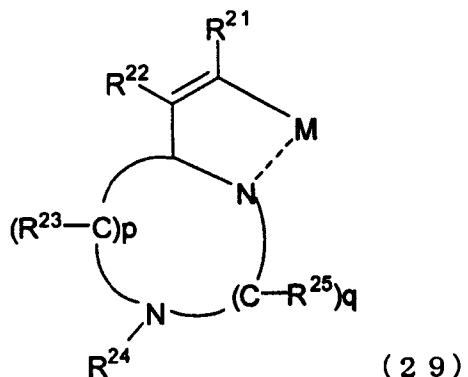
[化15]



(式 (27) 及び (28) において、 $R_{11} \sim R_{15}$ 、 Z_2 、 Z_3 、 m_1 、 m_2 、 n_1 は、式 (21) 及び (22) において用いられたものと同義である。)

[請求項26] 前記ドーパント材料が下記式 (29) で表される部分構造を有する金属錯体化合物又はその互変異性体からなることを特徴とする請求項 19 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化16]



(式中、 $R_{21} \sim R_{25}$ は、それぞれ独立に、水素原子、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換のアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアシル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 30 の芳香族基を表し、また、 R_{21} と R_{22} 、 R_{23} と R_{24} 、 R_{24} と R_{25} は、互いに結合して環構造を形成

していてもよい。

p 及び q は、それぞれ、0～3の整数であり、 $p + q$ は2又は3である。また、 p が2以上の整数のとき、複数のR 2 3は互いに結合して環構造を形成していてもよく、 q が2以上の整数のとき、複数のR 2 5は互いに結合して環構造を形成していてもよい。

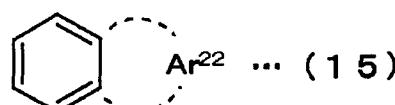
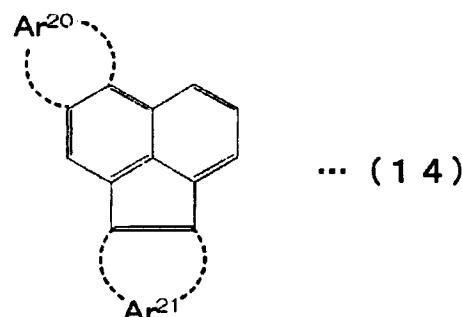
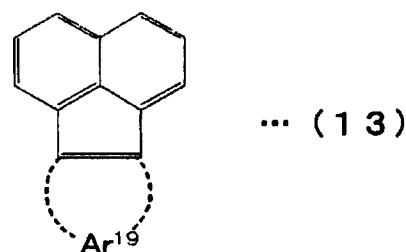
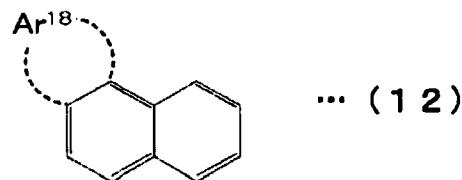
M は、イリジウム（Ir）、ロジウム（Rh）、白金（Pt）又はパラジウム（Pd）
の金属原子である。）

[請求項27] 前記ホスト材料は、置換または無置換の多環式縮合芳香族骨格部を有する化合物である請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項28] 前記多環式縮合芳香族骨格部を有する化合物の多環式縮合芳香族骨格部が、置換または無置換の、フェナントレンジイル、クリセンジイル、フルオランテンジイル、トリフェニレンジイルの群から選ばれることを特徴とする請求項27に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項29] 前記多環式縮合芳香族骨格部は、下記の式（12）～（15）のいずれかで表されることを特徴とする請求項27に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化17]



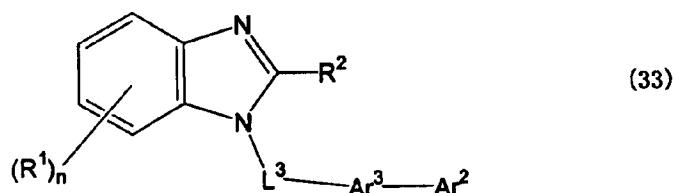
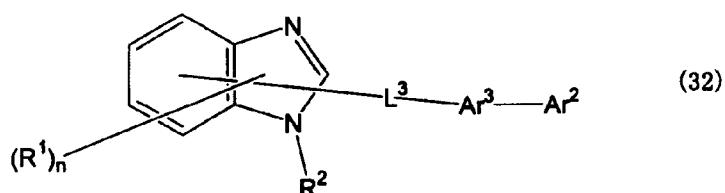
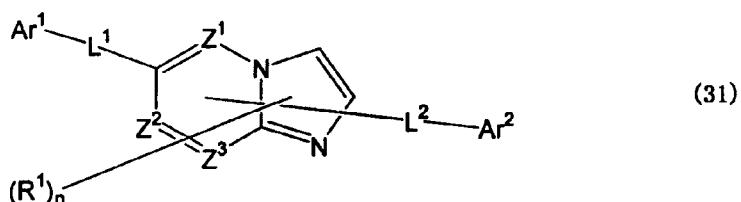
(式中、 $\text{Ar}^{18} \sim \text{Ar}^{22}$ は、置換または無置換の核炭素数4から10の縮合環構造を表す。)

[請求項30] 前記多環式縮合芳香族骨格部を有する化合物の多環式縮合芳香族骨格部が、フェナントレン、クリセン、フルオランテン又はトリフェニレンを有する基で置換されていることを特徴とする請求項27に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項31] 前記有機薄膜層として前記発光層よりも前記陰極側に設けられた電子輸送層及び／又は電子注入層を有し、下記式(31)～(33)のいずれかで表される含窒素複素環誘導体が該電子輸送層及び／又は電

子注入層に含有されている、請求項 1 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化18]



(式 (31) ~ (33) 中、Z¹、Z²及びZ³は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

R¹及びR²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 のヘテロアリール基、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

n は、0 ~ 5 の整数であり、n が 2 以上の整数であるとき、複数の R¹ は互いに同一でも異なっていてもよい。また、隣接する複数の R¹ 同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環を形成していてもよい。

Ar¹ は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 のヘテロアリール基である。

A_r^2 は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリール基である。

但し、 A_r^1 、 A_r^2 のいずれか一方は、置換もしくは無置換の炭素数10～50の縮合環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数9～50のヘテロ縮合環基である。

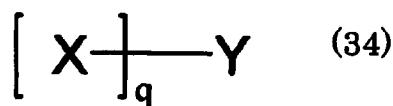
A_r^3 は、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリーレン基又は置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリーレン基である。

L^1 、 L^2 及び L^3 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数9～50のヘテロ縮合環基又は置換もしくは無置換のフルオレニン基である。)

[請求項32]

前記有機薄膜層として前記発光層よりも前記陰極側に設けられた電子輸送層及び／又は電子注入層を有し、下記式(34)及び(35)のいずれかで表される化合物が該電子輸送層及び／又は電子注入層に含有されている、請求項14に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化19]



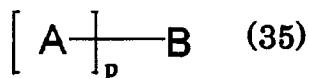
(式(34)中、Xは窒素原子あるいは硫黄原子を含んだ縮合環であり、Yは単結合、アルキル鎖、アルキレン鎖、シクロアルキル鎖、アリール鎖、複素環鎖、シリル鎖、エーテル鎖、あるいはチオエーテル鎖のいずれかより単独又は組み合わせたものより選ばれる。qは2以

上の自然数である。

また、式(34)で表される化合物の分子量は480以上である。

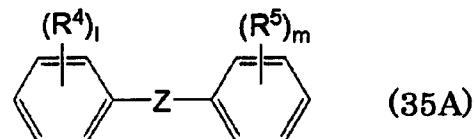
)

[化20]



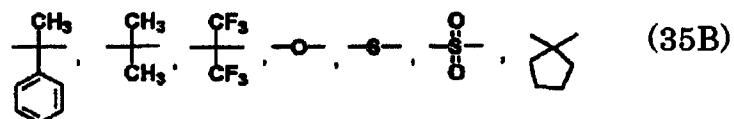
(式(35)中、Aはフェナントロリン骨格又はベンゾキノリン骨格を有する置換基である。Bは下記式(35A)で表される構造を有するp価の有機基である。pは2以上の自然数である。)

[化21]



(式(35A)中、R⁴とR⁵はそれぞれ独立にアルキル基又はアリール基(フェニル基に縮合したアリール基を含む)のいずれかである。lとmはそれぞれ独立に0~5までの自然数である。Zは下記式(35B)から選ばれた少なくとも1種である。)

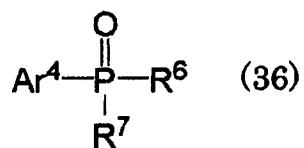
[化22]



[請求項33]

前記有機薄膜層として前記発光層よりも前記陰極側に設けられた電子輸送層及び/又は電子注入層を有し、下記式(36)で表される化合物が該電子輸送層及び/又は電子注入層に含有されている、請求項14に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化23]



(式(36)中、R⁶及びR⁷は同じでも異なっていてもよく、それぞれ、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、複素環基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、ヘテロアリール基、シアノ基、カルボニル基、エステル基、カルバモイル基、アミノ基、シリル基、並びに隣接置換基との間に形成される縮合環の中から選ばれる。Ar⁴はアリール基又はヘテロアリール基を表す。)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/051045

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D307/91 (2006.01) i, C07D405/12 (2006.01) i, C09K11/06 (2006.01) i,
H01L51/50 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C07D307/91, C07D405/12, C09K11/06, H01L51/50

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X P, Y	KR 10-2010-0123172 A (DUKSAN HI-METAL CO., LTD.), 24 November 2010 (24.11.2010), entire text; particularly, abstract; claims 1 to 12; compounds 6, 8, 14, 22, 24, 30, 32, 38, 46, 47, 52; preparation examples 1, 3, 5 to 6; paragraphs [0152] to [0187] (Family: none)	1-33 1-33
X Y	WO 2009/084512 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 09 July 2009 (09.07.2009), entire text; particularly, abstract; claims 1 to 22; paragraphs [0024] to [0030], [0033]; synthesis examples 1 to 3; examples 1 to 3 & EP 2239259 A1 & US 2010/314615 A1 & CN 101910147 A & KR 10-2010-0097181 A	1-33 1-33

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 April, 2011 (12.04.11)

Date of mailing of the international search report
26 April, 2011 (26.04.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/051045

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2009-292806 A (Chemipro Kasei Kaisha, Ltd.), 17 December 2009 (17.12.2009), entire text; particularly, abstract; claims 1 to 4; pages 26 to 37, 54 to 65, 82 to 93, 110 to 121, 122 to 137; examples 3, 6 to 14 (Family: none)	1-33 1-33
X Y	JP 11-035532 A (Canon Inc.), 09 February 1999 (09.02.1999), entire text; particularly, abstract; claims 1 to 2, 4 to 13, 15 to 22; pages 7 to 12; illustrative compound no. 1 to 23; pages 15 to 21; illustrative compound no. 34 to 56; pages 24 to 32; illustrative compound no. 70 to 82, 86 to 98, 102; examples 1 to 11 & EP 879868 A2 & US 2003/157364 A1 & DE 69804529 T	1-33 1-33
X Y	JP 2007-318101 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 06 December 2007 (06.12.2007), cited in the description of the present application as 'patent document 11'; entire text; particularly, abstract; claims 1 to 4, 8 to 30; compounds 1 to 27; synthesis examples 1 to 5; examples 1 to 2, 7, 9, 11 & US 2007/231503 A1 & EP 1862524 A1 & DE 602007000839 D & CN 101083308 A & ES 2323389 T & KR 10-2007-0114562 A	1-33 1-33
X Y	JP 2006-151979 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 15 June 2006 (15.06.2006), cited in the description of the present application as 'patent document 11'; entire text; particularly, abstract; claims 1 to 13; paragraph [0032]; compounds 1 to 24; synthesis examples 1 to 2; examples 1 to 2 & US 2006/0115680 A1 & EP 1661888 A1 & CN 1978441 A & DE 602005010961 D & KR 10-2006-0059613 A	1-33 1-33
P,X P,Y	WO 2010/013675 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 04 February 2010 (04.02.2010), entire text; particularly, abstract; claims 1, 22 to 27; compounds DM-17-1, DM-17-3, DM-17-4, DM-17-6, DM17-23, DM-17-24, DM-17-25; synthesis examples 1, 3, 4; examples 1 to 64 (Family: none)	1-33 1-33

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP2011/051045
--

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X P,Y	<p>WO 2010/013676 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 04 February 2010 (04.02.2010), entire text; particularly, abstract; claims 1, 22 to 27; synthesis examples 1, 3, 4; examples 1 to 352 (Family: none)</p> <p>WO 2010/122810 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 28 October 2010 (28.10.2010), entire text; particularly, abstract; claims 1 to 20; compounds D-1 to D-113; preparation examples 1 to 17; examples 1 to 42 (Family: none)</p>	1-33 1-33 1-33 1-33
A	<p>WO 2007/125714 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 08 November 2007 (08.11.2007), cited in the description of the present application as 'patent document 7'; entire text; particularly, abstract; claims 1 to 11, 13 to 18; pages 16 to 19; synthesis examples 1 to 15; examples 1 to 9 & US 2007/0278938 A1 & EP 2011790 A1 & CN 101432272 A & KR 10-2008-0112325 A</p>	1-33

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/051045

In the aromatic amine derivative represented by formula (1) described in claim 1, each of the variable parts L, Ar₁, Ar₂, Ar₃ and Ar₄ can have an unspecified arbitrary substituent or the like and can also have an unspecified fused ring structure. In the alternatives and the definitions of the variable parts, it is unclear as to what types of ring structures can be included specifically within the scope of the "aryl group having 6 to 25 ring-constituting carbon atoms" and the "heteroaryl group having 5 to 25 ring-constituting atoms". Therefore, it is impossible to understand clearly as to what compounds having what types of structures are included within the scope, in addition to the compounds specifically exemplified in the description.

Further, with respect to the aromatic amine derivative represented by formula (1) described in claim 1, unspecified and great many substituents and partial structures having largely different structures and properties can be employed as alternatives for multiple variable parts of the derivative. However, those compounds which are supported in the meaning within PCT Article 6 in the description, i.e., compounds which are confirmed to be produced actually and for which data for demonstrating the achievement of the solution of such a problem that an organic electroluminescent element material having a long service life and high luminous efficiency can be provided are shown, are only compounds synthesized in synthetic examples 1-15 and having specific structures and others (compounds H1 to H16; compounds represented by formula (1) wherein L is an unsubstituted biferene or terphenylene, Ar₁ is an unsubstituted phenyl, biphenyl or naphthyl, Ar₃ is an unsubstituted dibenzofuranyl or 9-phenylcarbazolyl, and Ar₂ and/or Ar₄ is an unsubstituted phenyl, biphenyl, naphthyl, dibenzofuranyl or 9-phenylcarbazolyl and has at least one dibenzofuran structure moiety), which are just some of compounds represented by formula (1).

Such being the case, in this international search, with respect to the aromatic amine derivative represented by formula (1), the search was carried out only on the above-stated compounds H1 to H16 and compounds having analogous structures to those of the above-stated compounds H1 to H16.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C07D307/91(2006.01)i, C07D405/12(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C07D307/91, C07D405/12, C09K11/06, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2011年
日本国実用新案登録公報	1996-2011年
日本国登録実用新案公報	1994-2011年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	KR 10-2010-0123172 A (DUKSAN HI-METAL CO., LTD.) 2010.11.24,	1~33
P, Y	文献全体、特に、要約、請求項1~12、化合物6, 8, 14, 22, 24, 30, 32, 38, 46, 47, 52、製造例1, 3, 5~6、[0152]~[0187] (ファミリーなし)	1~33
X	WO 2009/084512 A1 (出光興産株式会社) 2009.07.09,	1~33
Y	文献全体、特に、要約、請求項1~22、[0024]~[0030], [0033], 合成実施例1~3、実施例1~3, & EP 2239259 A1 & US 2010/314615 A1 & CN 101910147 A	1~33

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 12.04.2011	国際調査報告の発送日 26.04.2011
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/JP） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 井上 典之 電話番号 03-3581-1101 内線 3492 4P 9360

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
	& KR 10-2010-0097181 A	
X	JP 2009-292806 A (ケミプロ化成株式会社) 2009. 12. 17,	1~33
Y	文献全体, 特に, 要約, 請求項1~4, 第26頁~第37頁, 第54頁~第65頁, 第82頁~93頁, 第110頁~121頁, 第122頁~137頁, 実施例3, 6~14, (ファミリーなし)	1~33
X	JP 11-035532 A (キヤノン株式会社) 1999. 02. 09,	1~33
Y	文献全体, 特に, 要約, 請求項1~2, 4~13, 15~22, 第7頁~第12頁, 例示化合物No. 1~23, 第15頁~第21頁, 例示化合物No. 34~56, 第24頁~第32頁, 例示化合物No. 70~82, 86~98, 102, 実施例1~11, & EP 879868 A2 & US 2003/157364 A1 & DE 69804529 T	1~33
X	JP 2007-318101 A (三星エスディアイ株式会社) 2007. 12. 06,	1~33
Y	本願明細書中で「特許文献11」として引用 文献全体, 特に, 要約, 請求項1~4, 8~30, 化合物1~27, 合成例1~5, 実施例1~2, 7, 9, 11, & US 2007/231503 A1 & EP 1862524 A1 & DE 602007000839 D & CN 101083308 A & ES 2323389 T & KR 10-2007-0114562 A	1~33
X	JP 2006-151979 A (三星エスディアイ株式会社) 2006. 06. 15,	1~33
Y	本願明細書中で「特許文献11」として引用 文献全体, 特に, 要約, 請求項1~13, [0032], 化合物1~24, 合成例1~2, 実施例1~2, & US 2006/0115680 A1 & EP 1661888 A1 & CN 1978441 A & DE 602005010961 D & KR 10-2006-0059613 A	1~33
P, X	WO 2010/013675 A1 (出光興産株式会社) 2010. 02. 04,	1~33
P, Y	文献全体, 特に, 要約, 請求項1, 22~27, 化合物DM-17-1, DM-17-3, DM-17-4, DM-17-6, DM-17-23, DM-17-24, DM-17-25, 合成例1, 3, 4, 実施例1~64, (ファミリーなし)	1~33
P, X	WO 2010/013676 A1 (出光興産株式会社) 2010. 02. 04,	1~33
P, Y	文献全体, 特に, 要約, 請求項1, 22~27, 合成例1, 3, 4, 実施例1~352, (ファミリーなし)	1~33

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2010/122810 A1 (出光興産株式会社) 2010. 10. 28,	1~33
P, Y	文献全体, 特に, 要約, 請求項 1~20, 化合物 D-1~D-113, 製造例 1~17, 実施例 1~42, (ファミリーなし)	1~33
A	WO 2007/125714 A1 (出光興産株式会社) 2007. 11. 08, 本願明細書中で「特許文献 7」として引用 文献全体, 特に, 要約, 請求項 1~11, 13~18, 第 16 頁~第 19 頁, 合成実施例 1~15, 実施例 1~9, & US 2007/0278938 A1 & EP 2011790 A1 & CN 101432272 A & KR 10-2008-0112325 A	1~33

請求項1に記載の式(1)で表される芳香族アミン誘導体は、可変部分L、Ar₁、Ar₂、Ar₃及びAr₄が、不特定な任意の置換基等を有し得るうえ、不特定な縮合環構造をとり得るものとされ、これらの可変部分の選択肢や定義における「環形成炭素数6～25のアリール基」及び「環形成原子数5～25のヘテロアリール基」には具体的に如何なる環構造までが含まれるのかも不明であるため、明細書中において具体的に例示された化合物以外に、如何なる構造の化合物までを範囲として包含しているのか明確に把握することができない。

また、請求項1に記載の式(1)で表される芳香族アミン誘導体は、複数の可変部分において構造及び性質が大きく異なる不特定で極めて膨大な置換基や部分構造を選択肢とするものであるが、明細書においてPCT第6条の意味で裏付けられた化合物、即ち、実際に製造されたことが確認でき、また、寿命が長く高発光効率な有機エレクトロルミネッセンス素子材料を提供するという課題を解決できると認め得るデータが示された化合物は、上記式(1)に含まれる化合物のうちのごく僅かなものである、合成実施例1～15で合成された特定の構造の化合物等(化合物H1～H16；上記式(1)において、Lが無置換のビフェレン又はターフェニレンであり、Ar₁が無置換のフェニル、ビフェニル又はナフチルであり、Ar₃が無置換のジベンゾフラニル又は9-フェニルカルバゾリルであり、Ar₂及び/又はAr₄が無置換のフェニル、ビフェニル、ナフチル、ジベンゾフラニル又は9-フェニルカルバゾリルであり、少なくとも一つのジベンゾフラン構造部分を必ず有するもの)のみである。

よって、この国際調査においては、上記式(1)で表される芳香族アミン誘導体について、上記化合物H1～H16及びこれらに構造が類似する化合物に限定して調査を行った。