

明 細 書

発明の名称：有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。特に、特定の含窒素芳香族複素環の連結構造を有する同系統の化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子という。）に電圧を印加すると、陽極から正孔が、また陰極から電子が、それぞれ発光層に注入される。そして、発光層において、注入された正孔と電子とが再結合し、励起子が形成される。このとき、電子スピンの統計則により、一重項励起子及び三重項励起子が25%：75%の割合で生成する。発光原理に従って分類した場合、蛍光型では、一重項励起子による発光を用いるため、有機EL素子の内部量子効率 η_{int} は25%が限界といわれている。一方、燐光型では、三重項励起子による発光を用いるため、一重項励起子から項間交差が効率的に行われた場合には内部量子効率 η_{int} が100%まで高められることが知られている。

[0003] 従来、有機EL素子においては、蛍光型、及び燐光型の発光メカニズムに応じ、最適な素子設計がなされてきた。特に燐光型の有機EL素子については、その発光特性から、蛍光素子技術の単純な転用では高性能な素子が得られないことが知られている。その理由は、一般的に以下のように考えられている。

まず、燐光発光は、三重項励起子を利用した発光であるため、発光層に用いる化合物のエネルギーギャップが大きくなてはならない。何故なら、ある化合物の一重項エネルギー（最低励起一重項状態と基底状態とのエネルギー差をいう。）の値は、通常、その化合物の三重項エネルギー（最低励起三重項状態と基底状態とのエネルギー差をいう。）の値よりも大きいからであ

る。

従って、燐光発光性ドーパント材料の三重項エネルギーを効率的に素子内に閉じ込めるためには、まず、燐光発光性ドーパント材料の三重項エネルギーよりも大きな三重項エネルギーを有するホスト材料を発光層に用いなければならない。さらに、発光層に隣接する電子輸送層及び正孔輸送層を設ける際に、電子輸送層及び正孔輸送層にも燐光発光性ドーパント材料よりも大きな三重項エネルギーを有する化合物を用いなければならない。このように、従来の有機EL素子の素子設計思想に基づく場合、蛍光型の有機EL素子に用いる化合物と比べて、より大きなエネルギーギャップを有する化合物を燐光型の有機EL素子に用いることにつながり、有機EL素子全体の駆動電圧が上昇する。

[0004] また、蛍光素子で有用であった酸化耐性や還元耐性の高い炭化水素系の化合物は π 電子雲の広がりが大きいいため、エネルギーギャップが小さい。そのため、燐光型の有機EL素子では、このような炭化水素系の化合物が選択され難く、酸素や窒素などのヘテロ原子を含んだ有機化合物が選択され、その結果、燐光型の有機EL素子は、蛍光型の有機EL素子と比較して寿命が短いという問題を有する。

[0005] さらに、燐光発光性ドーパント材料の三重項励起子の励起子緩和速度が一重項励起子と比較して非常に長いことも素子性能に大きな影響を与える。即ち、一重項励起子からの発光は、発光に繋がる緩和速度が速いため、発光層の周辺層（例えば、正孔輸送層や電子輸送層）への励起子の拡散が起きにくく、効率的な発光が期待される。一方、三重項励起子からの発光は、スピン禁制であり緩和速度が遅いため、周辺層への励起子の拡散が起きやすく、特定の燐光発光性化合物以外からは熱的なエネルギー失活が起きてしまう。つまり、蛍光型の有機EL素子と比較して、電子及び正孔の再結合領域のコントロールがより重要となる。

以上のような理由より、燐光型の有機EL素子の高性能化においては、蛍光型の有機EL素子と異なる材料選択及び素子設計が必要となる。

[0006] 特許文献1には、カルバゾールとアジンが連結する燐光ホスト材料と、三重項エネルギーの大きなカルバゾール含有アミン系正孔輸送材料との組合せが開示されている。正孔輸送材料として実績のあるモノアミン系材料が使用されているが、モノアミン系材料の構造上、電荷に対する耐久性が弱く、また、このホスト材料はカルバゾール同士が直接連結していない構造を有するため、イオン化ポテンシャルが大きく、正孔輸送材料とホスト材料との界面において正孔の蓄積が発生し、素子性能に悪影響を及ぼす。

特許文献2には、カルバゾールが連結したビスカルバゾール系の燐光ホスト材料と、三重項エネルギーの大きなカルバゾール含有アミン系正孔輸送材料との組合せが開示されている。ホスト材料としてイオン化ポテンシャルの小さいものが使用されているため正孔輸送材料からの正孔注入性が向上しているが、正孔輸送材料には従来のモノアミン系材料が使用されているので三重項エネルギーが拡散しやすい。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開WO2004/066685号公報

特許文献2：特開2010-241801号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、低電圧駆動が可能で長寿命な有機EL素子を実現することを目的とする。

課題を解決するための手段

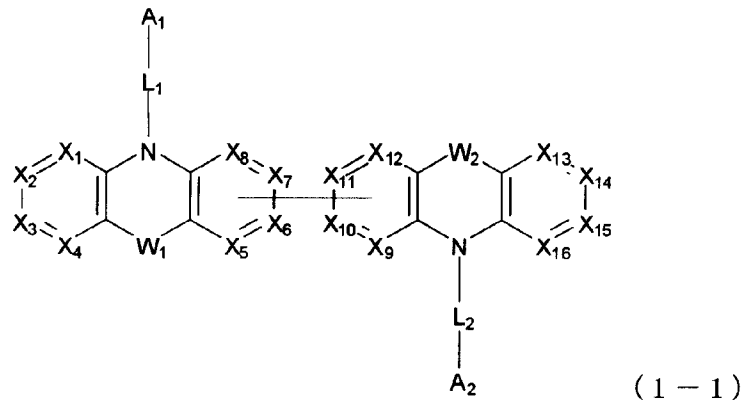
[0009] 本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、特定の含窒素芳香族複素環の連結構造を有する同系統の化合物を、第一有機薄膜層と第二有機薄膜層において用いることで、第一有機薄膜層/第二有機薄膜層界面におけるイオン化ポテンシャルのエネルギー障壁を無くし、該界面に正孔が蓄積されなくなるために、第二有機薄膜層への正孔注入量が増え、これ

に伴って第一有機薄膜層への電子の負荷が軽減するために有機EL素子が長寿命化すること、また、上記特定の含窒素芳香族複素環の連結構造を有する化合物は三重項エネルギーが大きいため、第二有機薄膜層内に三重項励起子を効率的に閉じ込めることが可能であることを見出した。

[0010] すなわち、本発明は、

1. 対向する陽極と陰極との間に、前記陽極側から、第一有機薄膜層と第二有機薄膜層とをこの順に備え、該第一有機薄膜層は下記式(1-1)で表される芳香族複素環誘導体Aを含み、該第二有機薄膜層は下記式(2-1)で表される芳香族複素環誘導体Bを含み、かつ、該芳香族複素環誘導体Aと芳香族複素環誘導体Bとは、互いに異なるものであることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子、

[化1]



[式(1-1)において、

W_1 及び W_2 は、それぞれ独立に、単結合、 CR_1R_2 又は SiR_1R_2 を表わす。

R_1 及び R_2 は、それぞれ独立に、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3~20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7~30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリール基を表す。

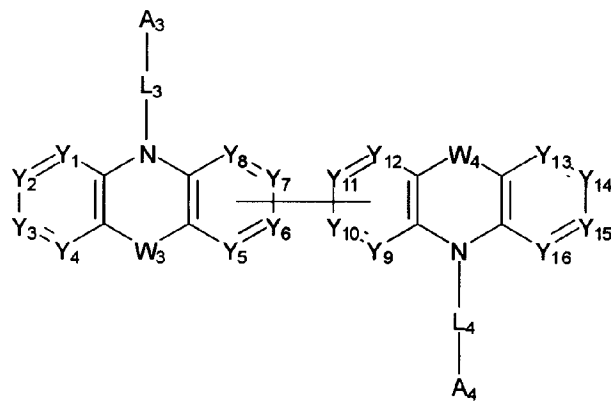
A_1 及び A_2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基を表す。

L_1 及び L_2 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリーレン基を表す。

X_1 ～ X_{16} のうち、 X_5 ～ X_8 のうち一つと、 X_9 ～ X_{12} のうち一つは、互いに結合する炭素原子を表し、それ以外の X_1 ～ X_{16} は、それぞれ独立に、 CR_3 または窒素原子を表す。

R_3 は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～10のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基であるか、隣接する R_3 同士が互いに結合し、環構造を形成する。]

[化2]



(2-1)

[式(2-1)において、

W_3 及び W_4 は、それぞれ独立に、単結合、 CR_4R_5 又は SiR_4R_5 を表わす。

R_4 及び R_5 は、それぞれ独立に、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3~20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7~30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリール基を表す。

L_3 及び L_4 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリーレン基を表す。

Y_1 ~ Y_{16} のうち、 Y_5 ~ Y_8 のうち一つと、 Y_9 ~ Y_{12} のうち一つは、互いに結合する炭素原子を表し、それ以外の Y_1 ~ Y_{16} は、それぞれ独立に、 CR_6 または窒素原子を表す。

R_6 は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3~20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~10のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6~30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数7~30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリール基であるか、隣接する R_6 同士が互いに結合し、環構造を形成する。

A_3 及び A_4 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリール基を表す。]

2. 前記 A_3 及び A_4 の少なくとも1つが下記式(2-a)で表わされる上記1

に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

[化3]



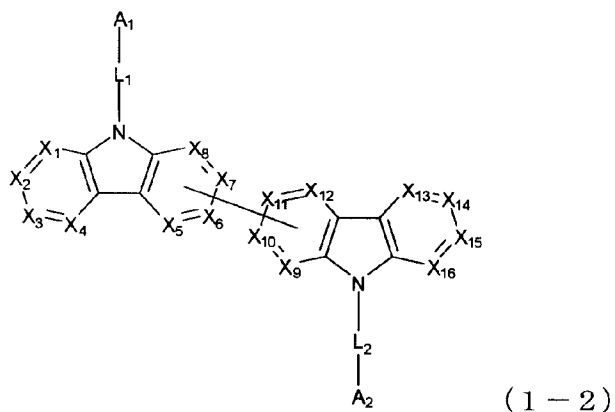
[式 (2-a) において、

$Z_1 \sim Z_5$ は、それぞれ独立に、 CR_7 または窒素原子を表す。

R_7 はそれぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～10のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基であるか、隣接する R_7 同士が互いに結合し、環構造を形成する。]

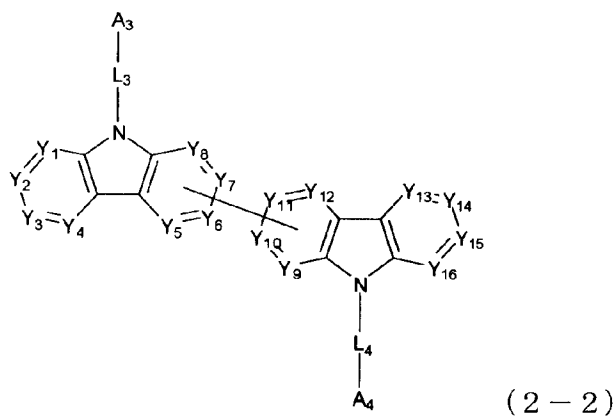
3. 前記芳香族複素環誘導体Aが下記式(1-2)で表され、前記芳香族複素環誘導体Bが下記式(2-2)で表される上記1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

[化4]



[式(1-2)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び $X_1 \sim X_{16}$ は、式(1-1)のものと同一である。]

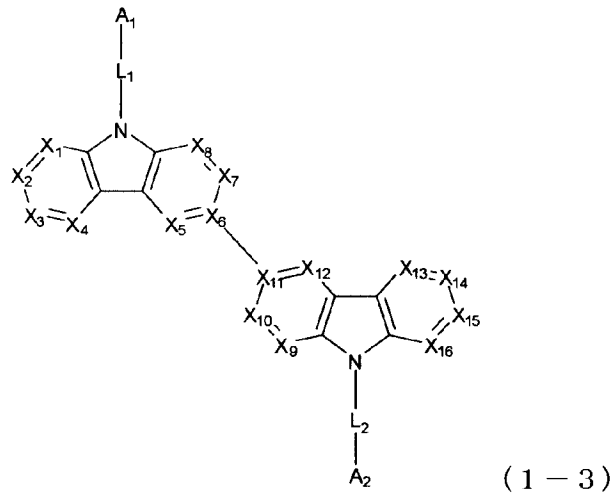
[化5]



[式(2-2)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び $Y_1 \sim Y_{16}$ は、式(2-1)のものと同一である。]

4. 前記芳香族複素環誘導体Aが下記式(1-3)で表される上記1~3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

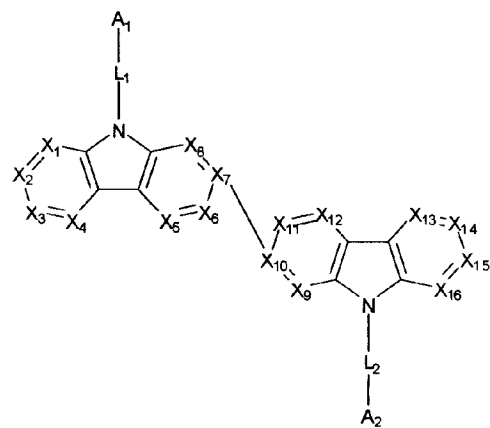
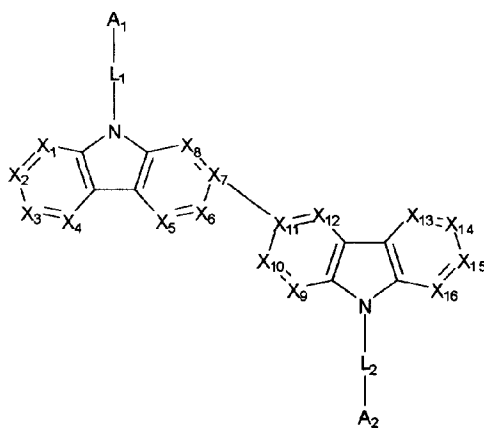
[化6]



[式(1-3)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び $X_1 \sim X_{16}$ は、式(1-1)のものと同一である。]

5. 前記芳香族複素環誘導体Aが下記式(1-4)又は(1-5)で表される上記1~3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

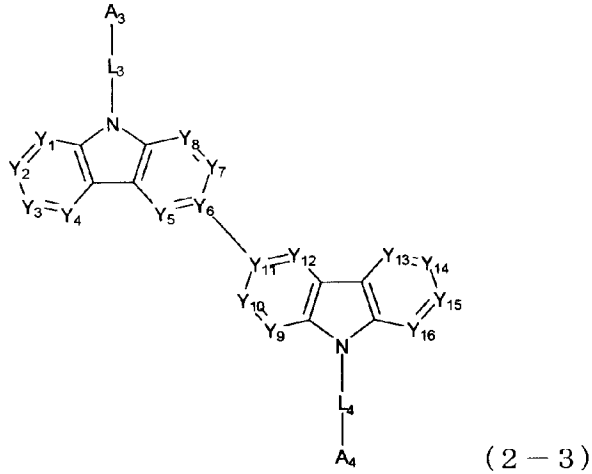
[化7]



[式(1-4)及び(1-5)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び $X_1 \sim X_{16}$ は、式(1-1)のものと同一である。]

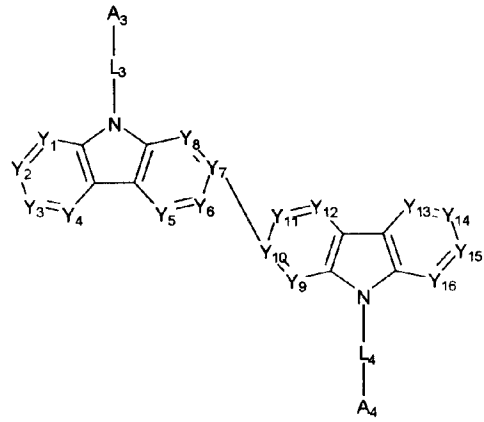
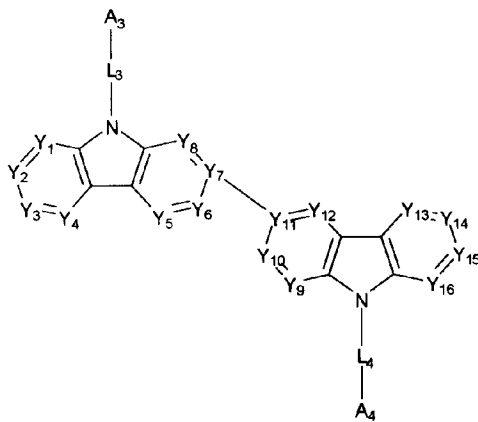
6. 前記芳香族複素環誘導体Bが下記式(2-3)で表される上記1~5の

いずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、
[化8]



[式(2-3)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び $Y_1 \sim Y_{16}$ は、式(2-1)のものと同一である。]

7. 前記芳香族複素環誘導体Bが下記式(2-4)又は(2-5)で表される上記1~5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、
[化9]



[式(2-4)及び(2-5)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び $Y_1 \sim Y_{16}$ は、式(2-1)のものと同一である。]

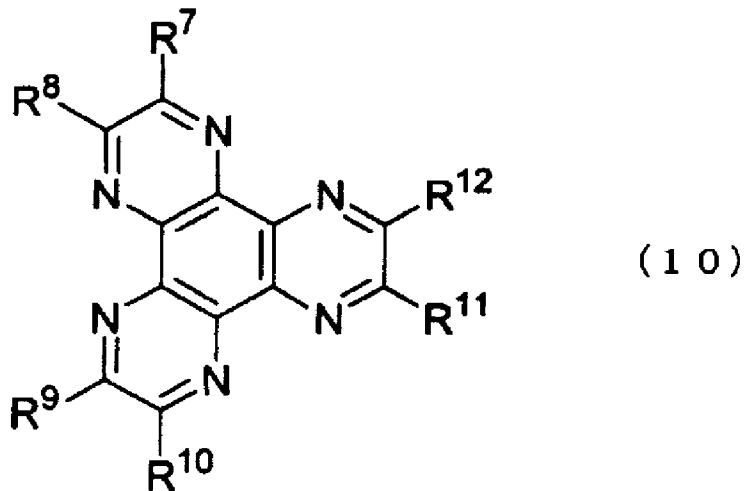
8. 前記芳香族複素環誘導体 A が前記式 (1-3) で表され、前記芳香族複素環誘導体 B が前記式 (2-3) で表される上記 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

9. 前記芳香族複素環誘導体 A が前記式 (1-3) で表され、前記芳香族複素環誘導体 B が前記式 (2-4) 又は前記式 (2-5) で表される上記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10. 前記 A₁ 及び A₂ の少なくとも 1 つが、置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基または置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基である上記 1~9 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

11. 前記第一有機薄膜層に、下記式 (10) で表される化合物を含有する層が接合されている上記 1~10 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

[化10]



(式 (10) 中、R⁷~R¹²は、それぞれ独立にシアノ基、-CONH₂、カルボキシ基、もしくは-COOR¹³ (R¹³は、炭素数 1~20 のアルキル基であ

る)であるか、又はR⁷及びR⁸、R⁹及びR¹⁰、又はR¹¹及びR¹²が互いに結合して-CO-O-CO-を形成する。)

12. 前記第二有機薄膜層が燐光発光性材料を含有する上記1~11のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、及び

13. 前記燐光発光材料がイリジウム(Ir)、オスmium(Os)又は白金(Pt)金属のオルトメタル化錯体である上記12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、
を提供する。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、低電圧駆動が可能で、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は本発明の有機EL素子の一例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明を詳細に説明する。

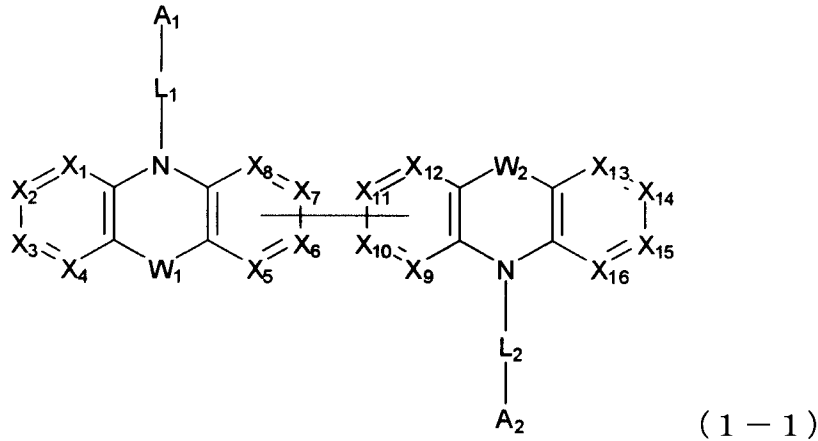
本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、対向する陽極と陰極との間に、前記陽極側から、第一有機薄膜層と第二有機薄膜層とをこの順に備え、該第一有機薄膜層は下記式(1-1)で表される芳香族複素環誘導体Aを含み、該第二有機薄膜層は下記式(2-1)で表される芳香族複素環誘導体Bを含み、かつ、該芳香族複素環誘導体Aと芳香族複素環誘導体Bとは、互いに異なるものであることを特徴とする。

[0014] (芳香族複素環誘導体A)

本発明における芳香族複素環誘導体Aは下記式(1-1)で表される。

[0015]

[化11]



[0016] [式(1-1)において、

W_1 及び W_2 は、それぞれ独立に、単結合、 CR_1R_2 又は SiR_1R_2 を表わす。

R_1 及び R_2 は、それぞれ独立に、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3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基を表す。

A_1 及び A_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6～30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基を表す。

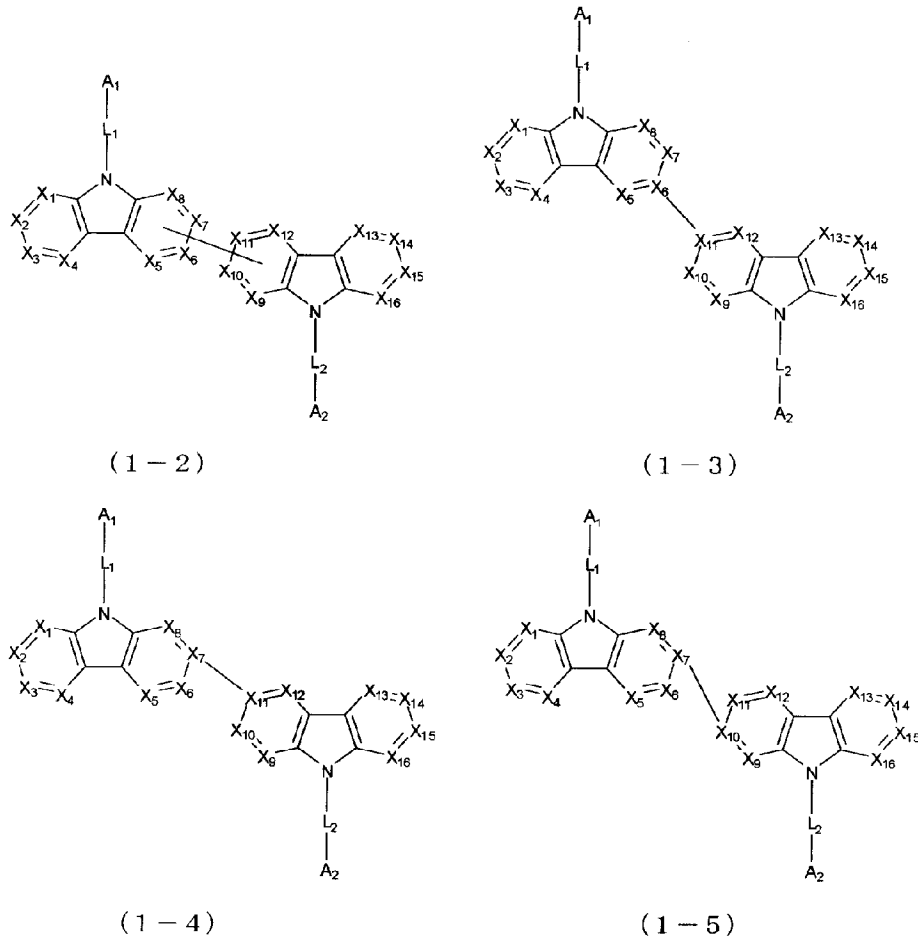
L_1 及び L_2 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリーレン基を表す。

X_1 ～ X_{16} のうち、 X_5 ～ X_8 のうち一つと、 X_9 ～ X_{12} のうち一つは、互いに結合する炭素原子を表し、それ以外の X_1 ～ X_{16} は、それぞれ独立に、 CR_3 または窒素原子を表す。

R₃は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～10のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基であるか、隣接するR₃同士が互いに結合し、環構造を形成する。]

[0017] 上記芳香族複素環誘導体Aとしては、下記式(1-2)、(1-3)、(1-4)又は(1-5)で表されるものが好ましく用いられる。

[化12]



[式(1-2)～(1-5)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び X_1 ～ X_{16} は、式(1-1)のものと同一である。]

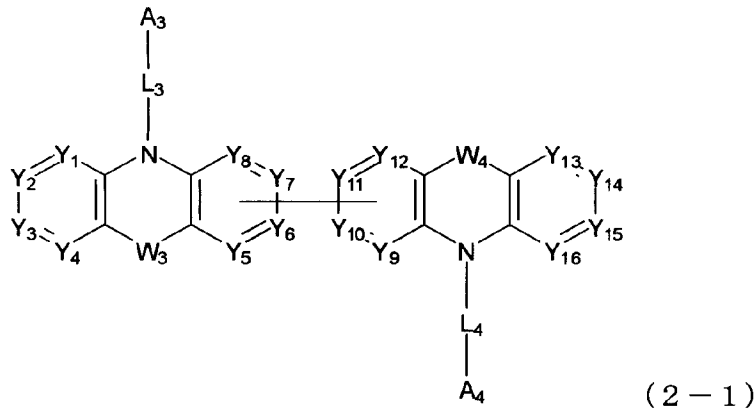
上記芳香族複素環誘導体Aとしては、上記式(1-3)、(1-4)又は(1-5)で表されるものがより好ましく、上記式(1-3)で表されるものがさらに好ましい。

前記 A_1 及び A_2 の少なくとも1つは、置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基または置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基であることが好ましい。

[0018] (芳香族複素環誘導体B)

本発明における芳香族複素環誘導体 B は下記式 (2-1) で表される。

[化13]



[0019] [式 (2-1) において、

W_3 及び W_4 は、それぞれ独立に、単結合、 CR_4R_5 又は SiR_4R_5 を表わす。

R_4 及び R_5 は、それぞれ独立に、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 3 ~ 20 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 30 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 30 のヘテロアリール基を表す。

なお、隣接する R_4 及び R_5 同士が互いに結合を形成し、環構造を形成しても良い。

L_3 及び L_4 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 30 のヘテロアリーレン基を表す。

$Y_1 \sim Y_{16}$ のうち、 $Y_5 \sim Y_8$ のうち一つと、 $Y_9 \sim Y_{12}$ のうち一つは、互いに結合する炭素原子を表し、それ以外の $Y_1 \sim Y_{16}$ は、それぞれ独立に、 CR_6 または窒素原子を表す。

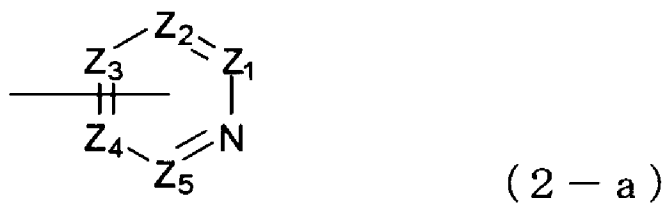
R_6 は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは

無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3～20 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～10 のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 7～30 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリール基であるか、隣接する R₆ 同士が互いに結合し、環構造を形成する。

A₃及びA₄は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリール基を表す。]

[0020] 前記A₃及びA₄は、その少なくとも1つが下記式(2-a)で表わされることが好ましい。

[化14]



[式(2-a)において、

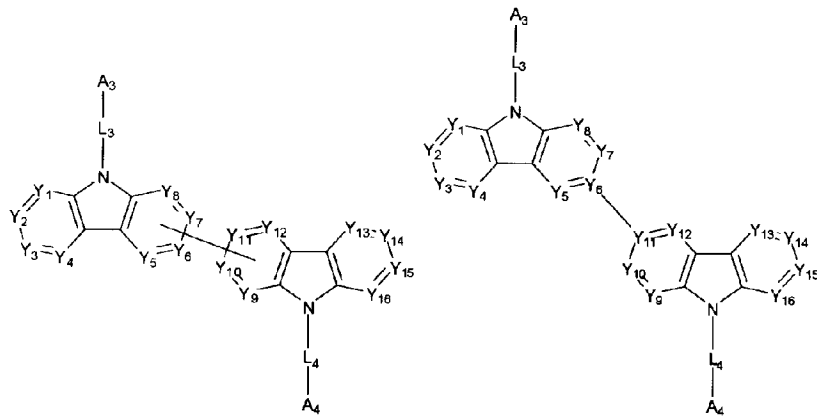
Z₁～Z₅は、それぞれ独立に、C R₇または窒素原子を表す。

R₇はそれぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3～20

のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～10 のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 7～30 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリール基であるか、隣接する R₇同士が互いに結合し、環構造を形成する。]

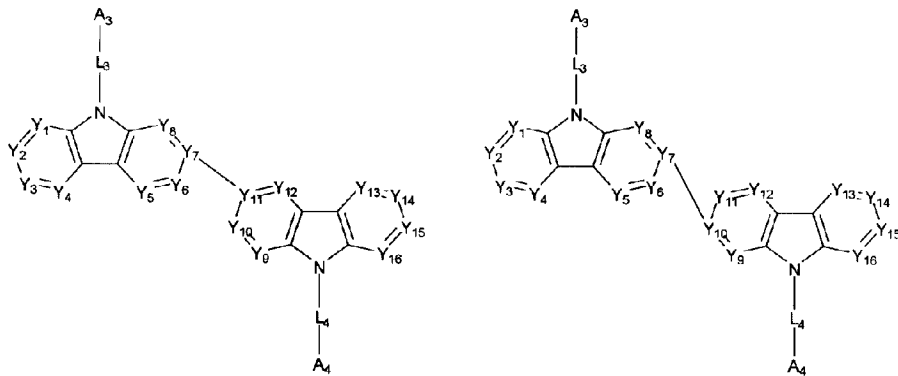
[0021] 上記芳香族複素環誘導体 B としては、下記式 (2-2)、(2-3)、(2-4) 又は (2-5) で表されるものが好ましく用いられる。

[化15]



(2-2)

(2-3)



(2-4)

(2-5)

[式(2-2)～(2-5)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び Y_1 ～ Y_{16} は、式(2-1)のものと同一である。]

上記芳香族複素環誘導体Bとしては、上記式(2-3)、(2-4)又は(2-5)で表されるものがより好ましい。

[0022] R_1 ～ R_7 が表すアルキル基の例としては、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、 s -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 n -ノニル基、 n -デシル基、 n -ウンデシル基、 n -ドデシル基、 n -トリデシル基、 n -テトラデシル基、 n -ペンタデシル基、 n -ヘキサデシル基、 n -ヘプタデシル基、 n -オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基等が挙げられ、好ましくは、メチル基、 t -ブチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基である。

[0023] R_1 ～ R_7 が表すシクロアルキル基の例としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基等が挙げられ、好ましくは、シクロペンチル基、シクロヘキシル基である。

[0024] R_1 ～ R_7 が表すアルコキシ基の例としては、 $-OY$ (ただし Y は前記のアルキル基)で表される基が挙げられ、好ましくは、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基である。

[0025] R_1 ～ R_7 が表すハロアルキル基の例としては、前記のアルキル基の少なくとも1つの水素原子をフッ素原子、塩素原子、ヨード原子、及び臭素原子から選ばれるハロゲン原子で置換して得られる基が挙げられ、好ましくは、トリフルオロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、1, 1, 2, 2, 2-ペンタフルオロエチル基、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-プロピル基である。

[0026] R_1 ～ R_7 が表すハロアルコキシ基の例としては、 $-OY'$ (ただし Y' は前記のハロアルキル基)で表される基が挙げられ、好ましくは、トリフルオロ

メトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 2, 2-ペンタフルオロエトキシ基、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-プロポキシ基である。

[0027] $R_1 \sim R_7$ が表すアルキルシリル基の例としては、 $-SiH_2R$ 、 $-SiHR_2$ 、又は $-SiR_3$ （ただしRは前記のアルキル基であり、2又は3個のRは同一でも異なってもよい）で表される基が挙げられ、好ましくは、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基である。

[0028] $R_1 \sim R_7$ 、 $A_1 \sim A_4$ が表すアリアル基の例としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、フルオレニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、ジベンゾフルオランテニル基、フェナントレニル基、ベンゾフェナントレニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ジベンゾトリフェニレニル基、ナフトトリフェニレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、ピセニル基、ビナフチル基等が挙げられる。

[0029] $R_1 \sim R_7$ が表すアリアルシリル基の例としては、 $-SiH_2R'$ 、 $-SiHR'_2$ 、又は $-SiR'_3$ （ただしR'は前記のアリアル基であり、2又は3個のR'は同一でも異なってもよい）で表される基が挙げられ、好ましくは、トリフェニルシリル基である。

[0030] $R_1 \sim R_7$ が表すアラルキル基の例としては、前記アルキル基の1つの水素原子を前記アリアル基で置換して得られる炭素数が7~30の基が挙げられ、好ましくは、ベンジル基、ナフチルメチル基である。

[0031] $R_1 \sim R_7$ 、 $A_1 \sim A_4$ が表すヘテロアリアル基としては、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル

基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、キサントニル基等が挙げられる。

[0032] A_1 及び A_2 が表すヘテロアリール基としては、ピロリル基、フリル基、チエニル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、ジヒドロアクリジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、キサントニル基等が好ましい。

[0033] 上記 L_1 ~ L_4 が表すアリーレン基の例としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニリレン基、ターフェニリレン基、クォーターフェニリレン基、フルオレンジイル基、フルオランテンジイル基、ベンゾフルオランテンジイル基、ジベンゾフルオランテンジイル基、フェナントレンジイル基、ベンゾフェナントレンジイル基、トリフェニレンジイル基、ベンゾトリフェニレンジイル基、ジベンゾトリフェニレンジイル基、ナフトトリフェニレンジイル基、クリセニレン基、ベンゾクリセニレン基、ピセニレン基、ビナフチリレン基等が挙げられる。

[0034] 上記 L_1 ~ L_4 が表すヘテロアリーレン基の例としては、ピロールジイル基、フリレン基、チエニレン基、ピリジニレン基、ピリダジニレン基、ピリミジニレン基、ピラジニレン基、トリアジニレン基、イミダゾリレン基、オキサゾリレン基、チアゾリレン基、ピラゾリレン基、イソオキサゾリレン基、イソチアゾリレン基、オキサジアゾリレン基、チアジアゾリレン基、トリアゾリレン基、インドリレン基、イソインドリレン基、ベンゾフラニレン基、イソベンゾフラニレン基、ベンゾチオフェニレン基、インドリジニレン基、キノリジニレン基、キノリレン基、イソキノリレン基、シンノリレン基、フタラジニレン基、キナゾリニレン基、キノキサリニレン基、ベンズイミダゾリ

レン基、ベンズオキサゾリレン基、ベンズチアゾリレン基、インダゾリレン基、ベンズイソキサゾリレン基、ベンズイソチアゾリレン基、カルバゾリレン基、ジベンゾフラニレン基、ジベンゾチオフェニレン基、フェナントリジニリレン基、アクリジニレン基、フェナントロリニレン基、フェナジニレン基、フェノチアジニレン基、フェノキサジニレン基、キサントニレン基等が挙げられる。

[0035] 上記 L_1 及び L_2 が表すヘテロアリーレンとしては、ピロールジイル基、フリレン基、チエニレン基、インドリレン基、イソインドリレン基、ベンゾフラニレン基、イソベンゾフラニレン基、ベンゾチオフェニレン基、インドリジニレン基、カルバゾリレン基、ジベンゾフラニレン基、ジベンゾチオフェニレン基、ジヒドロアクリジニレン基、フェノチアジニレン基、フェノキサジニレン基、キサントニレン基等が好ましい。

[0036] 隣接する $R_1 \sim R_7$ 同士が互いに結合して環を形成する場合、隣接する $R_1 \sim R_7$ は結合してブタン-1, 4-ジイル基、1, 3-ブタジエン-1, 4-ジイル基などの2価の基を形成して、環形成原子と共に環を形成する。

[0037] 上記及び後述する「置換もしくは無置換」という場合の任意の置換基としてはフッ素原子、シアノ基、炭素数1~20のアルキル基、炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数1~20のハロアルキル基、炭素数1~20のハロアルコキシ基、炭素数1~10のアルキルシリル基、環形成炭素数6~30のアリール基、環形成炭素数6~30のアリールオキシ基、炭素数6~30のアリールシリル基、炭素数7~30のアラルキル基、及び環形成原子数5~30のヘテロアリール基が挙げられる。これらの置換基の具体例は上記したとおりである。また、これらの置換基は複数でも良く、複数の場合は互いに同一でも異なっても良い。

また、 A_1 、 A_2 、 L_1 及び L_2 上の置換基におけるヘテロアリール基としては、ピロリル基、フリル基、チエニル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル

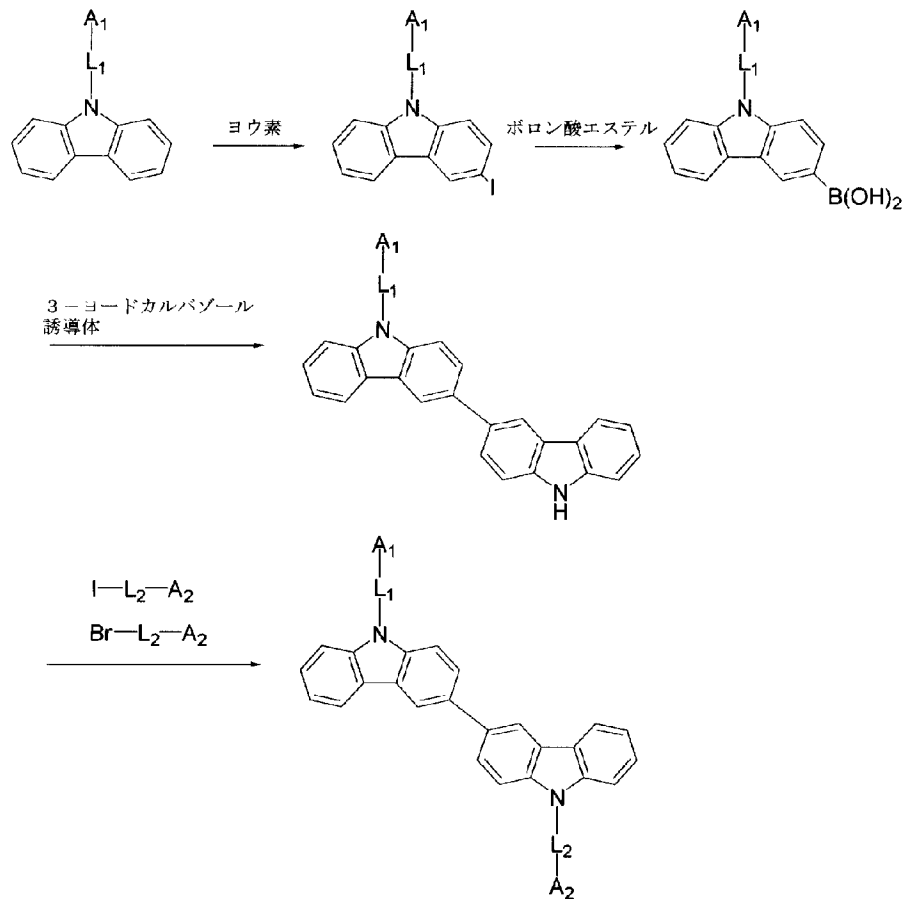
基、ジヒドロアクリジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、又はキサンテニル基が好ましい。

[0038] 前記芳香族複素環誘導体 A が前記式 (1-3) で表され、且つ、前記芳香族複素環誘導体 B が前記式 (2-3) で表されることが好ましい。

また、前記芳香族複素環誘導体 A が前記式 (1-3) で表され、且つ、前記芳香族複素環誘導体 B が前記式 (2-4) 又は前記式 (2-5) で表されることが好ましい。

[0039] 前記式 (1-1) で表される芳香族複素環誘導体 A 及び式 (2-1) で表される芳香族複素環誘導体 B のうち、例えば、3, 3'-ビスカルバゾール誘導体は下記合成ルートにより製造することができる。

[0040] [化16]



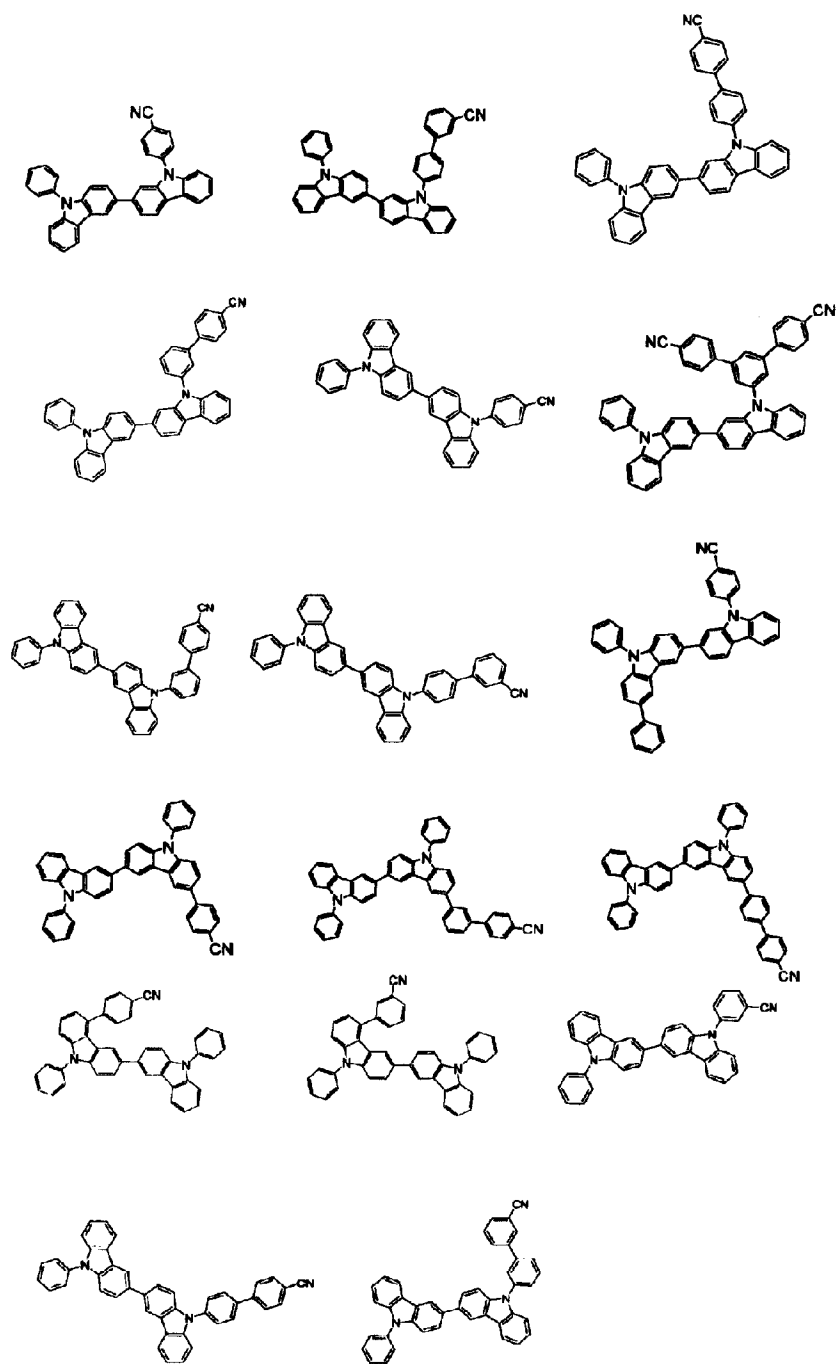
式中、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 は上記と同様である。

[0041] 各素反応は公知であるので、当業者であれば各素反応の条件を容易に選択することができ、他の芳香族複素環誘導体 A や芳香族複素環誘導体 B も容易に合成することが出来る。

[0042] 以下に式 (1-1) で表される芳香族複素環誘導体 A 又は式 (2-1) で表される芳香族複素環誘導体 B の具体例を記載するが、これらに限定されるものではない。

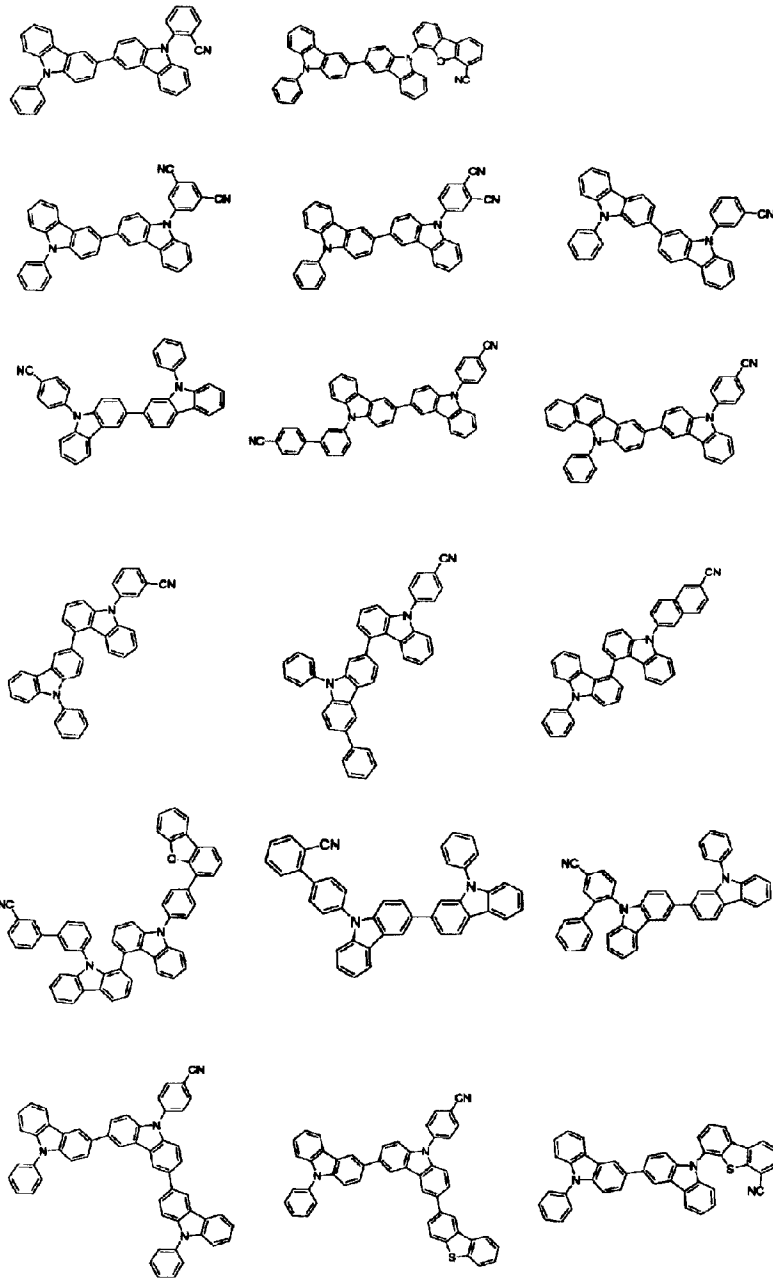
[0043]

[化17]



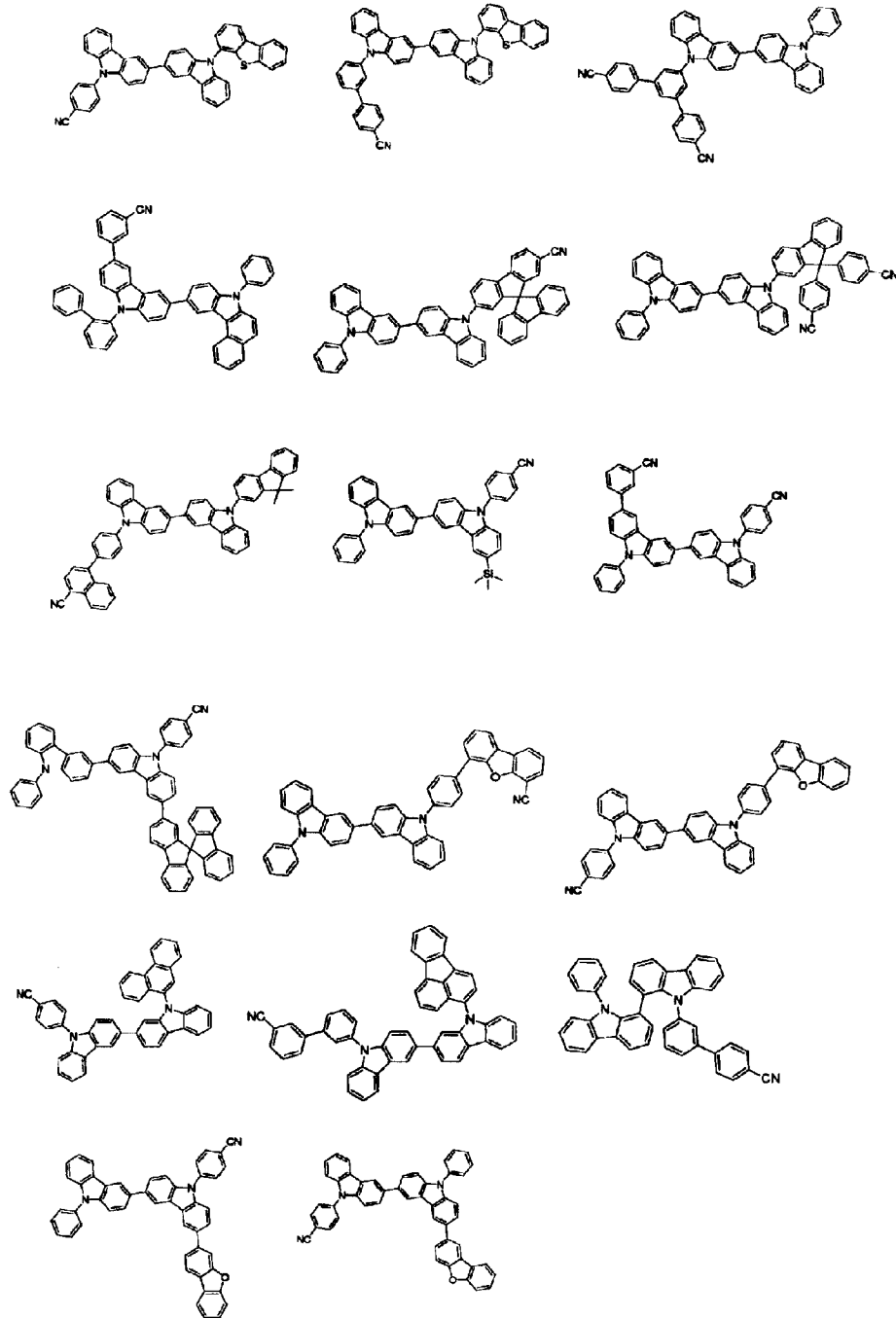
[0044]

[化18]



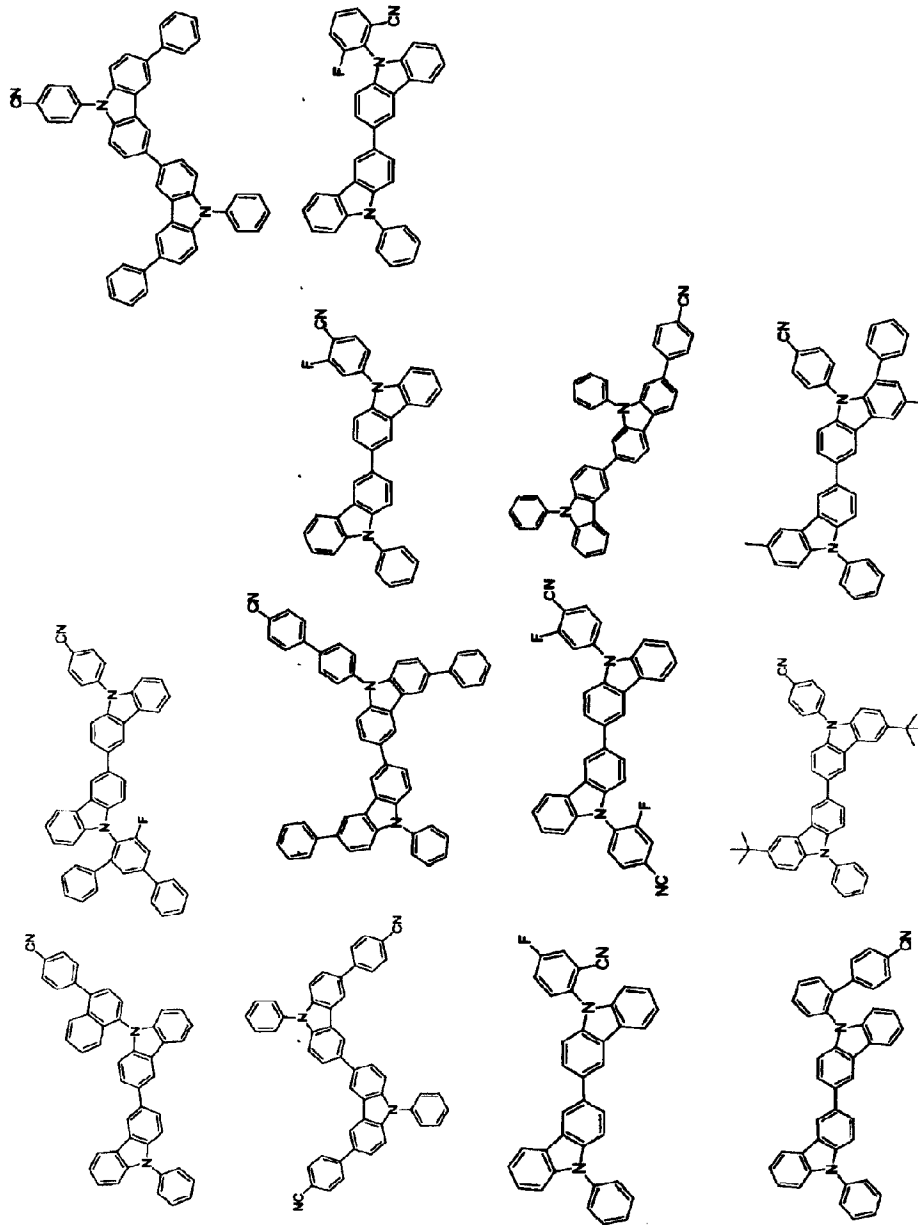
[0045]

[化19]



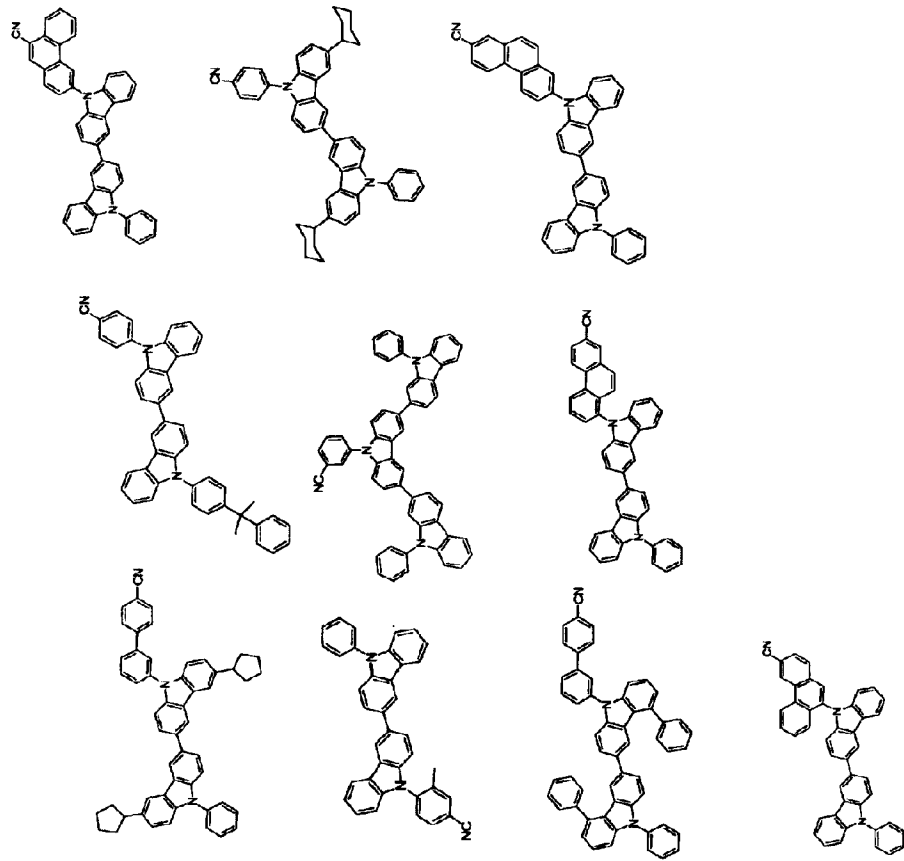
[0046]

[化21]



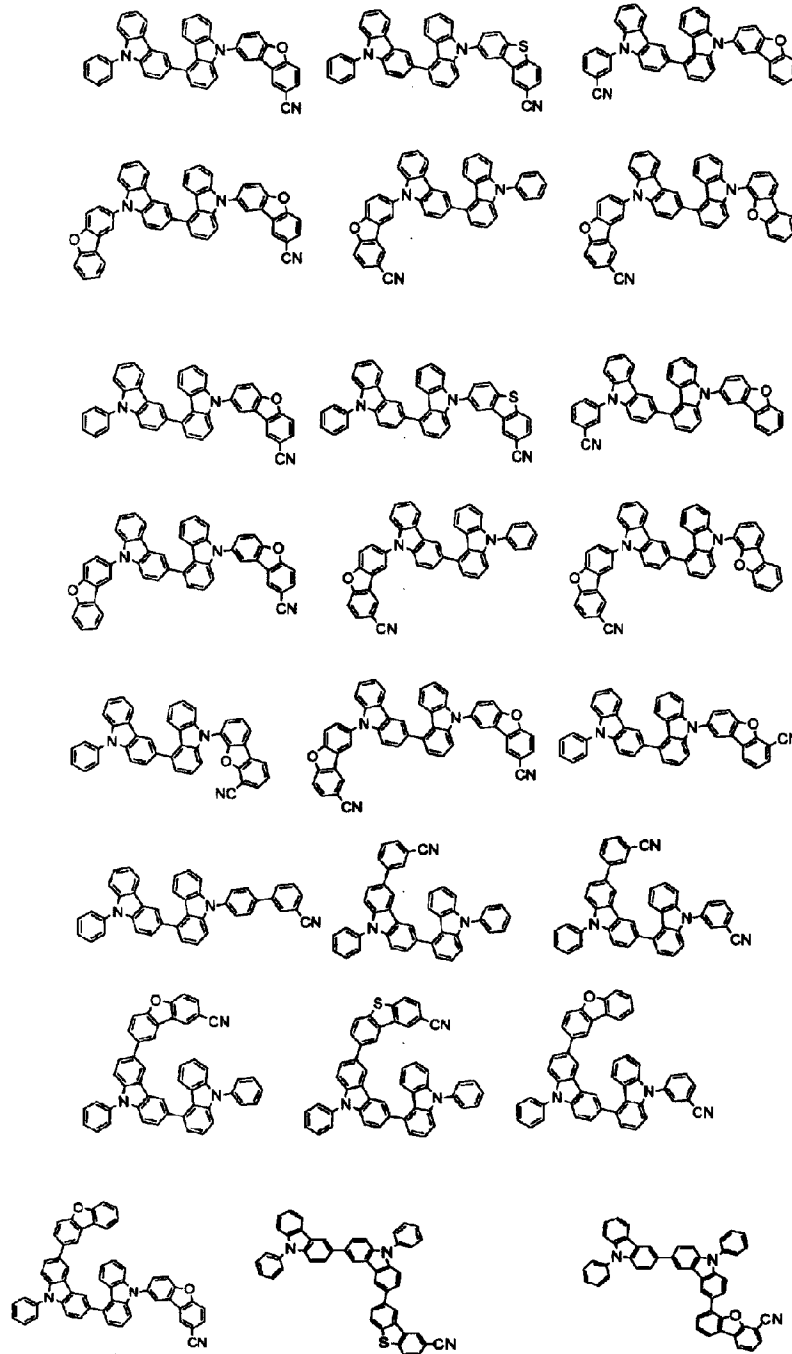
[0048]

[化22]



[0049]

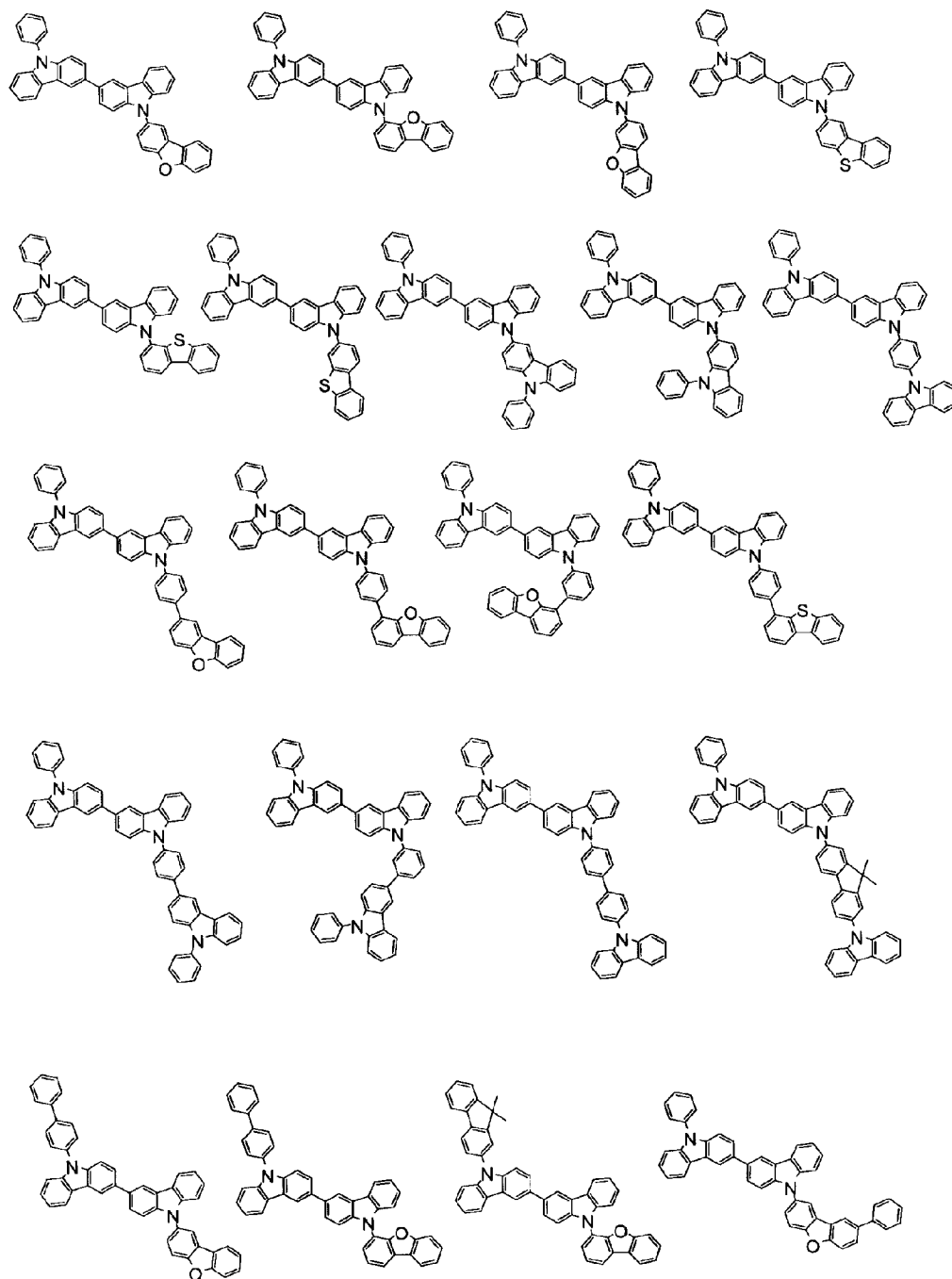
[化23]



[0050] 以下に式(1-1)で表される芳香族複素環誘導体Aの具体例を記載するが、これらに限定されるものではない。

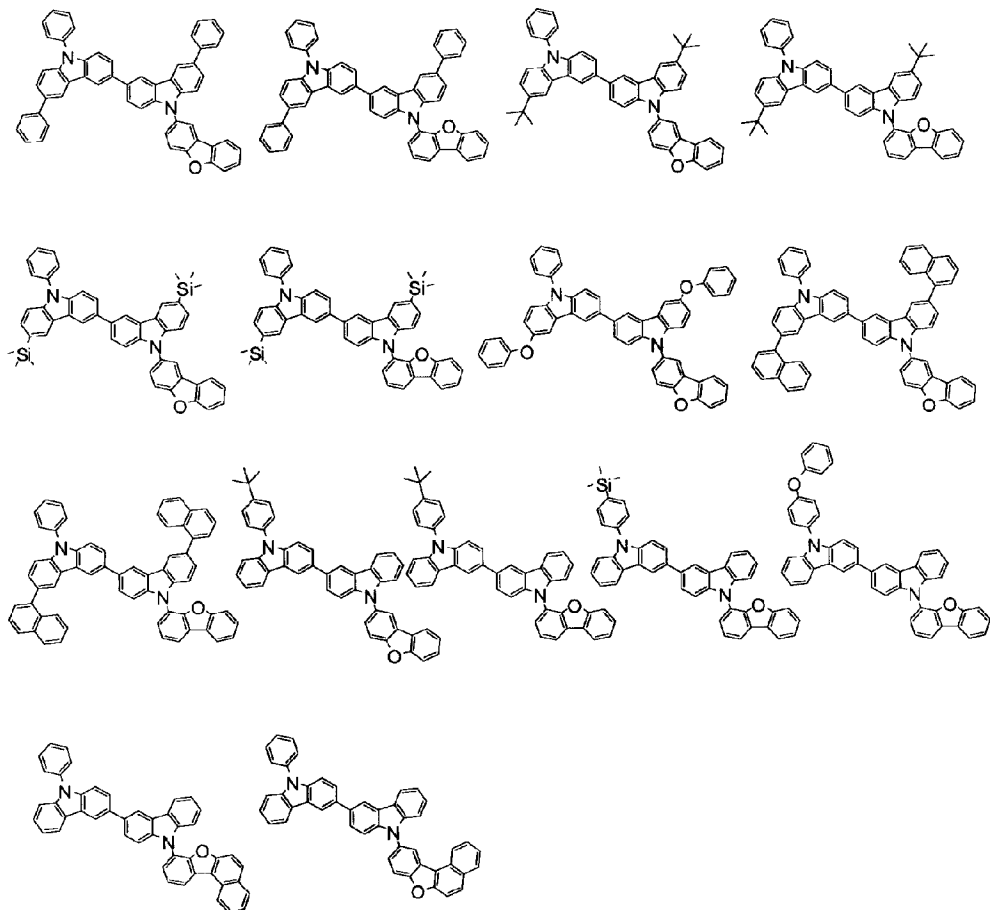
[0051]

[化24]



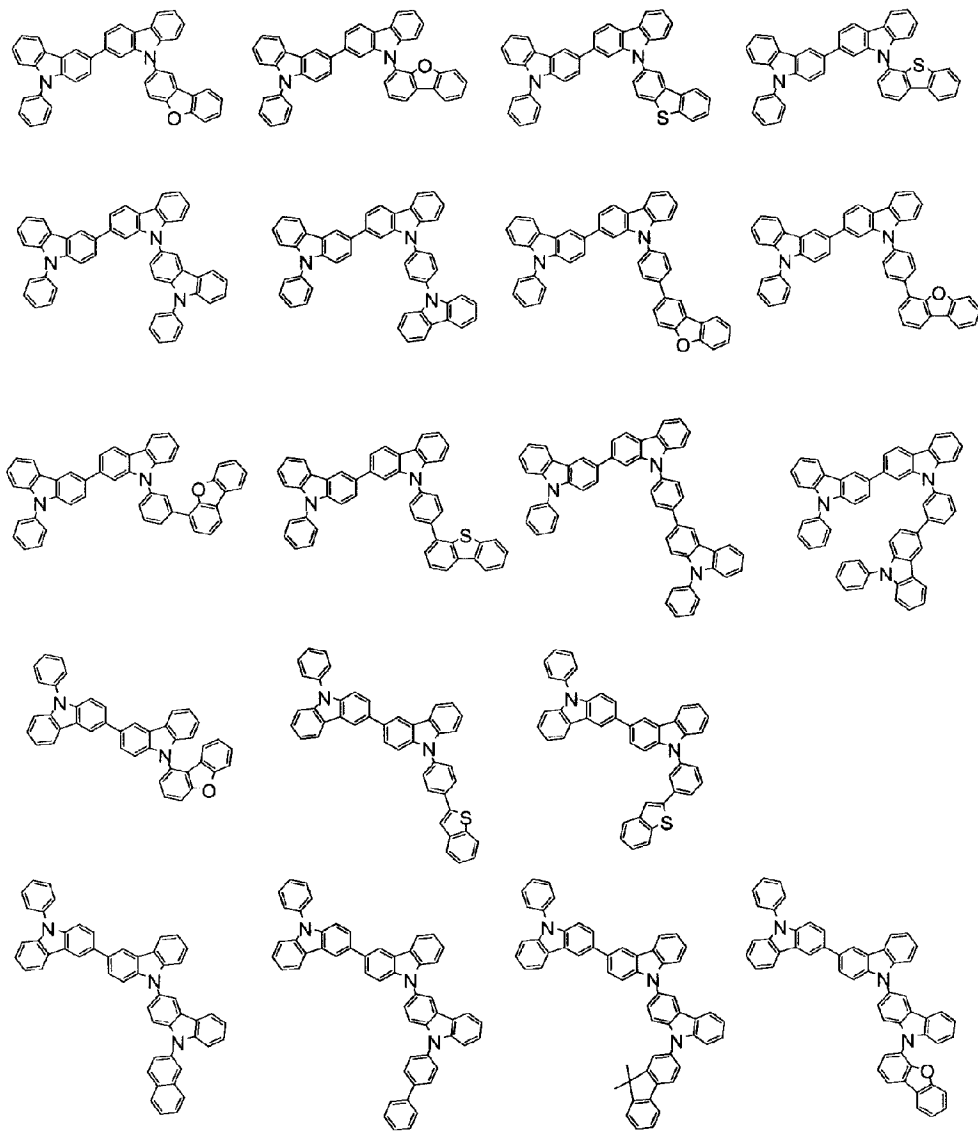
[0052]

[化25]



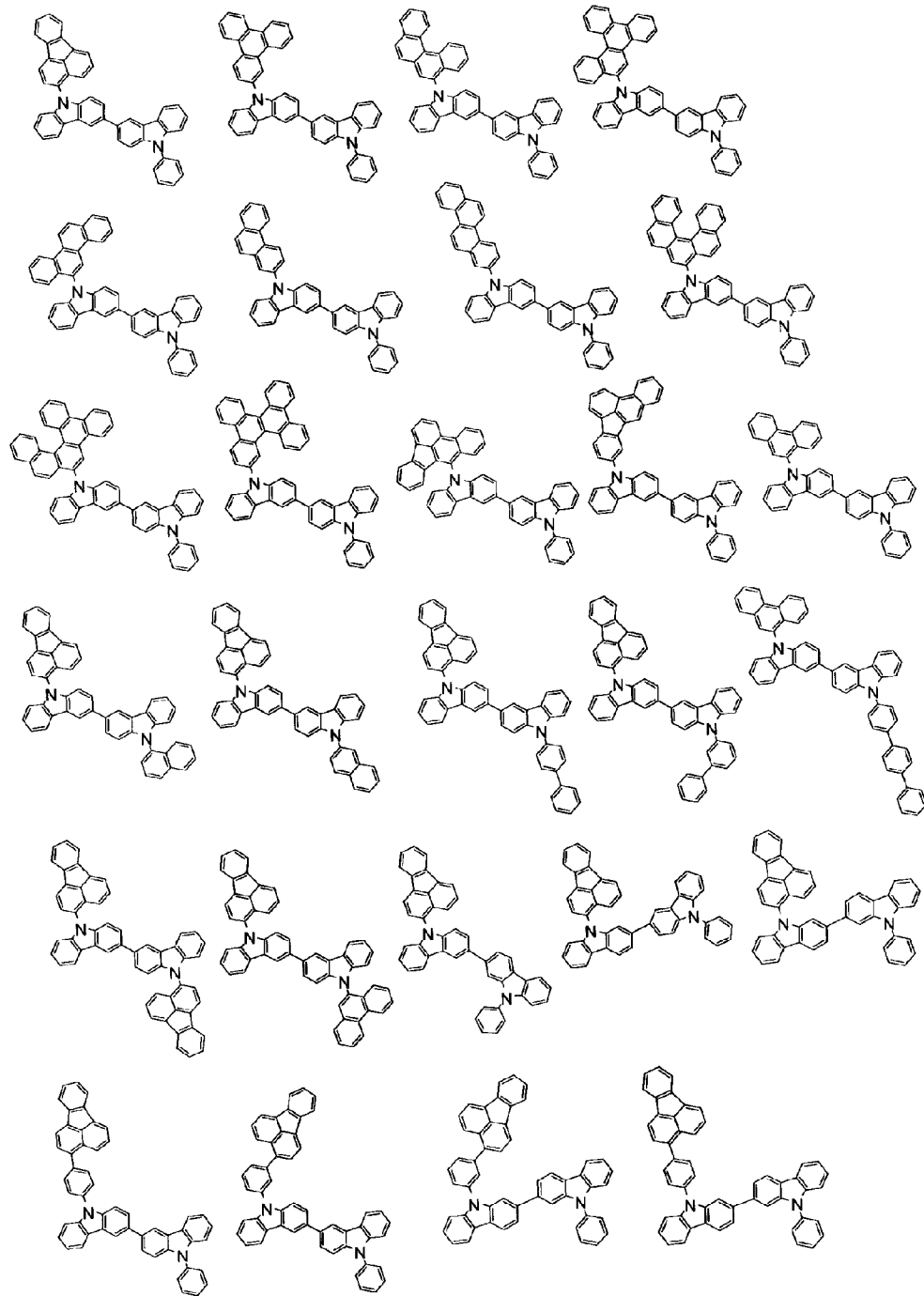
[0053]

[化26]



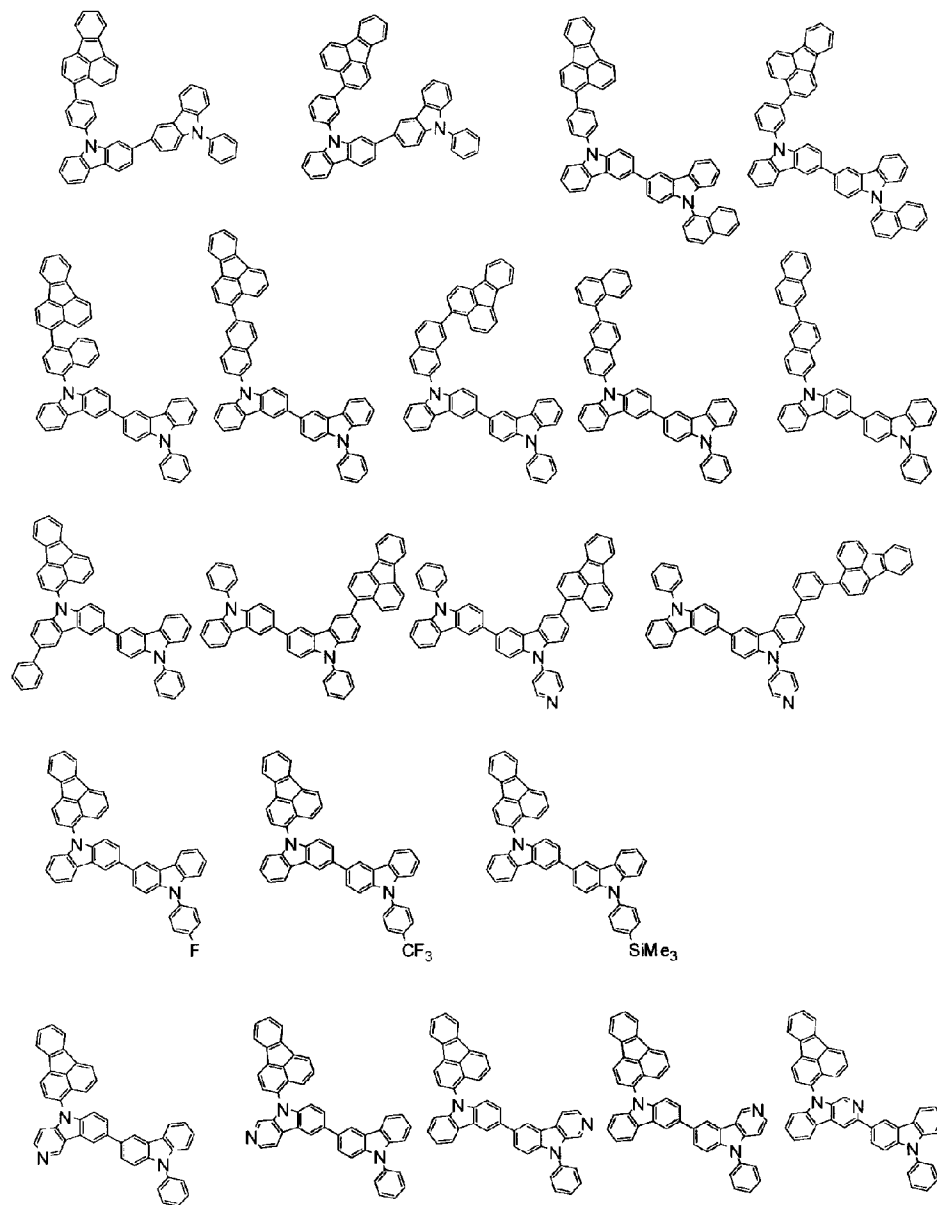
[0054]

[化27]



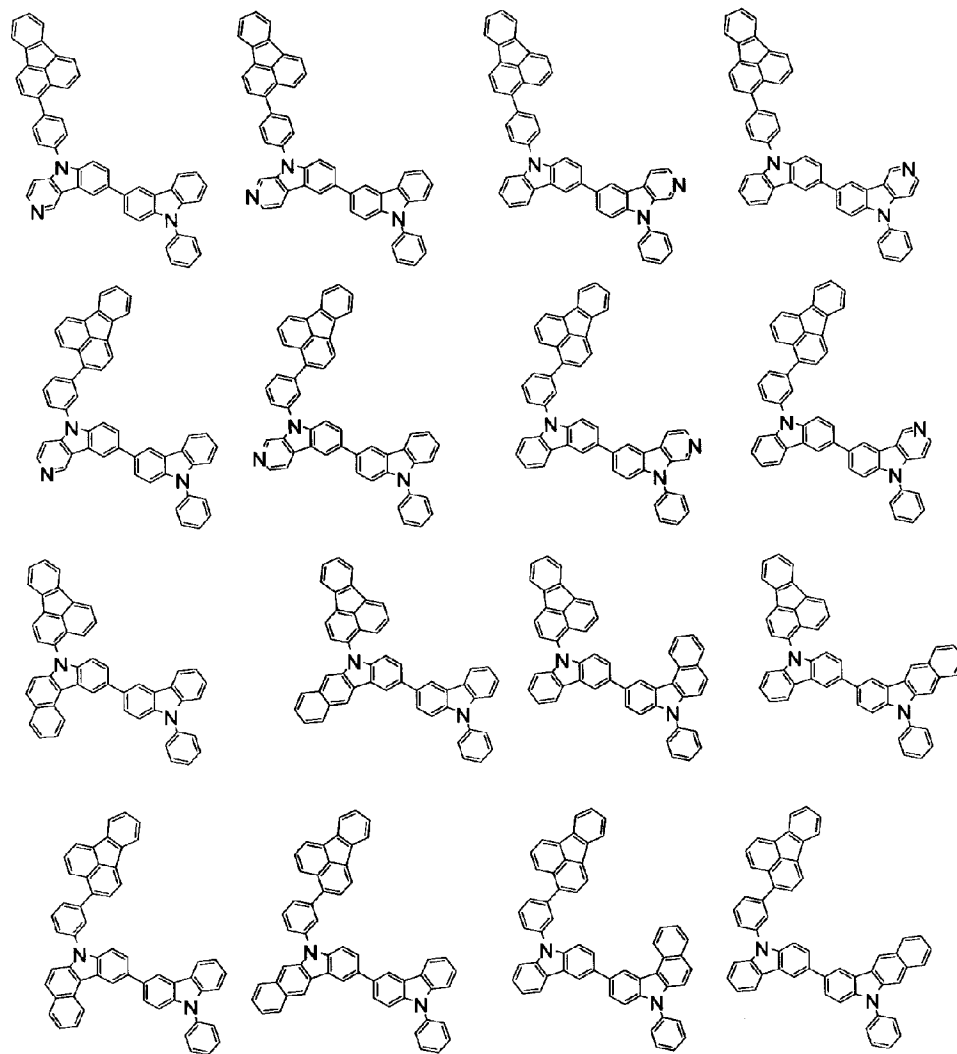
[0055]

[化28]



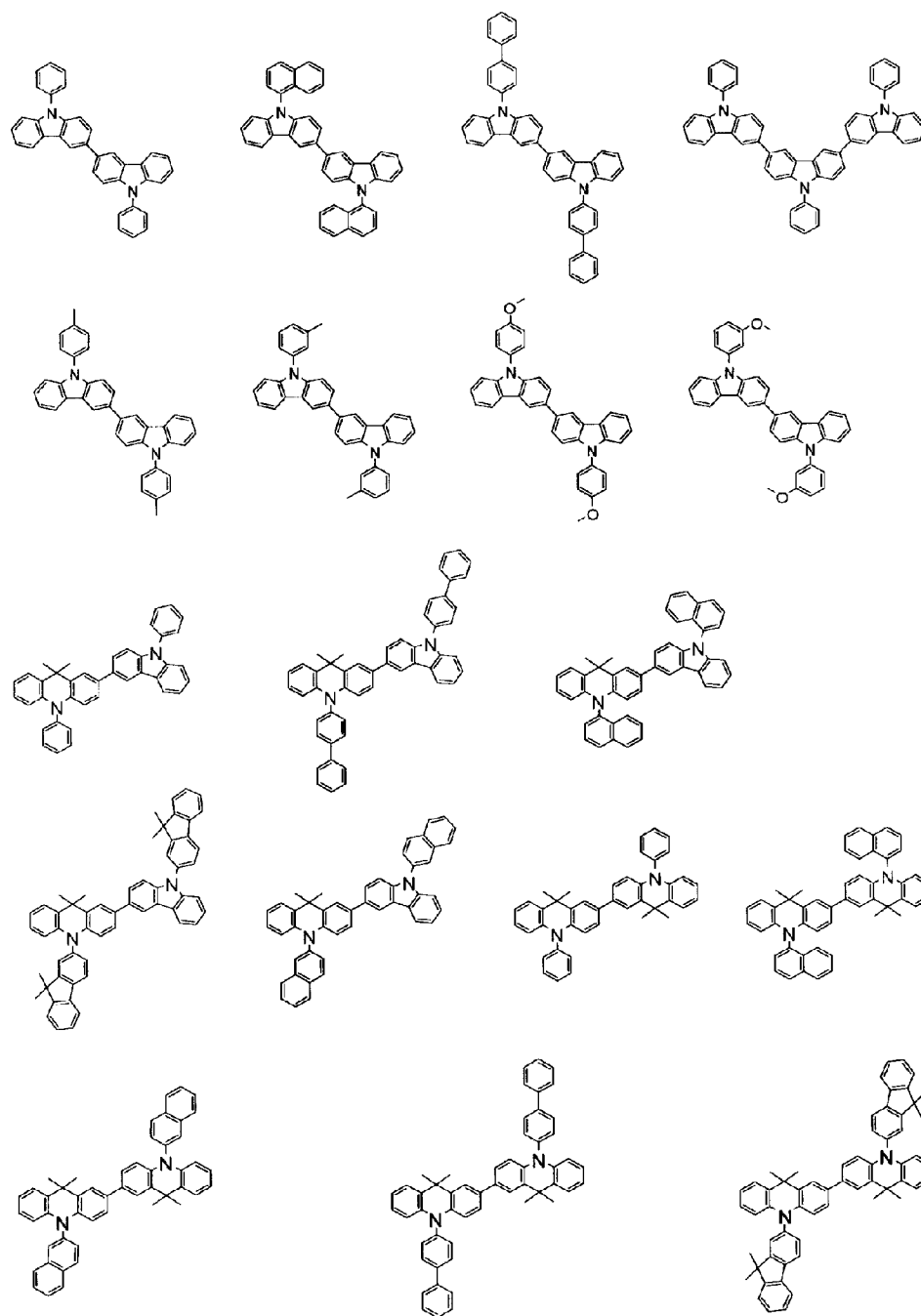
[0056]

[化29]



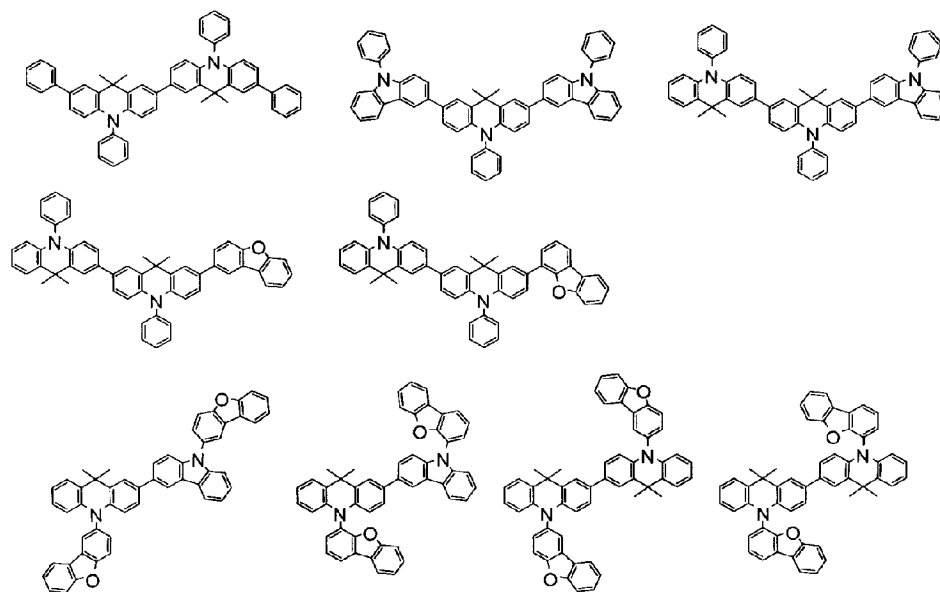
[0057]

[化30]



[0058]

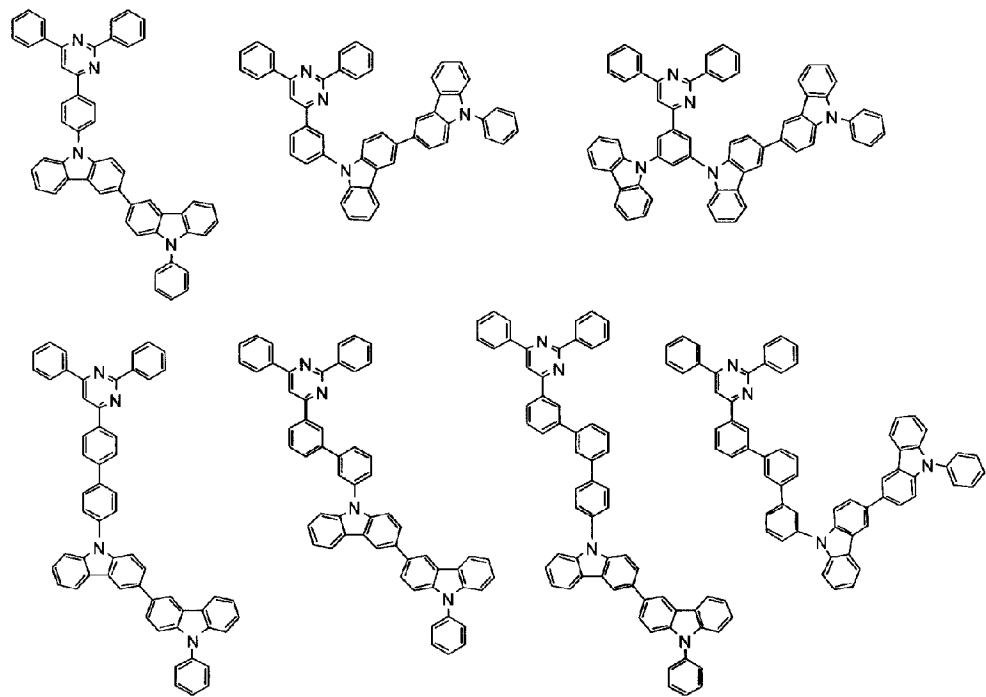
[化31]



[0059] 以下に式（2-1）で表される芳香族複素環誘導体Bの具体例を記載するが、これらに限定されるものではない。

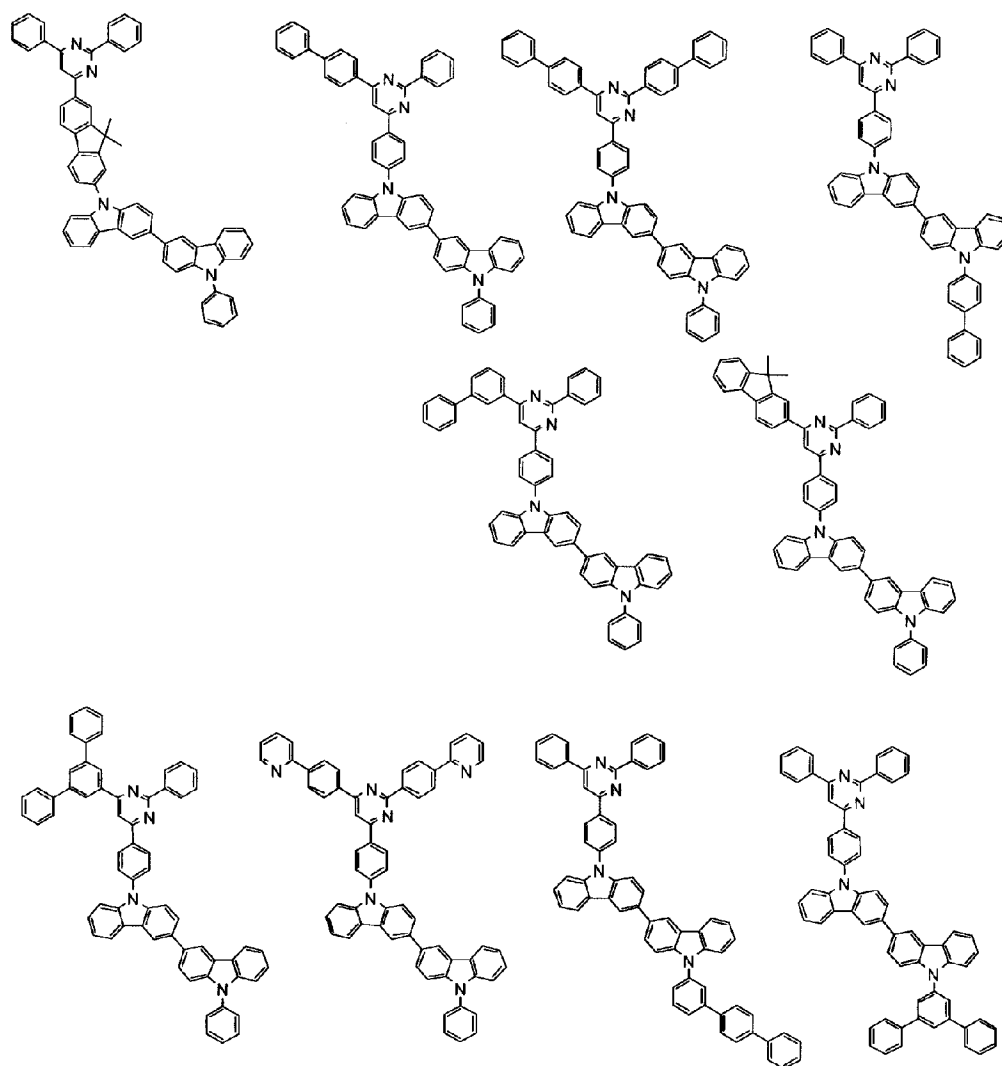
[0060]

[化32]



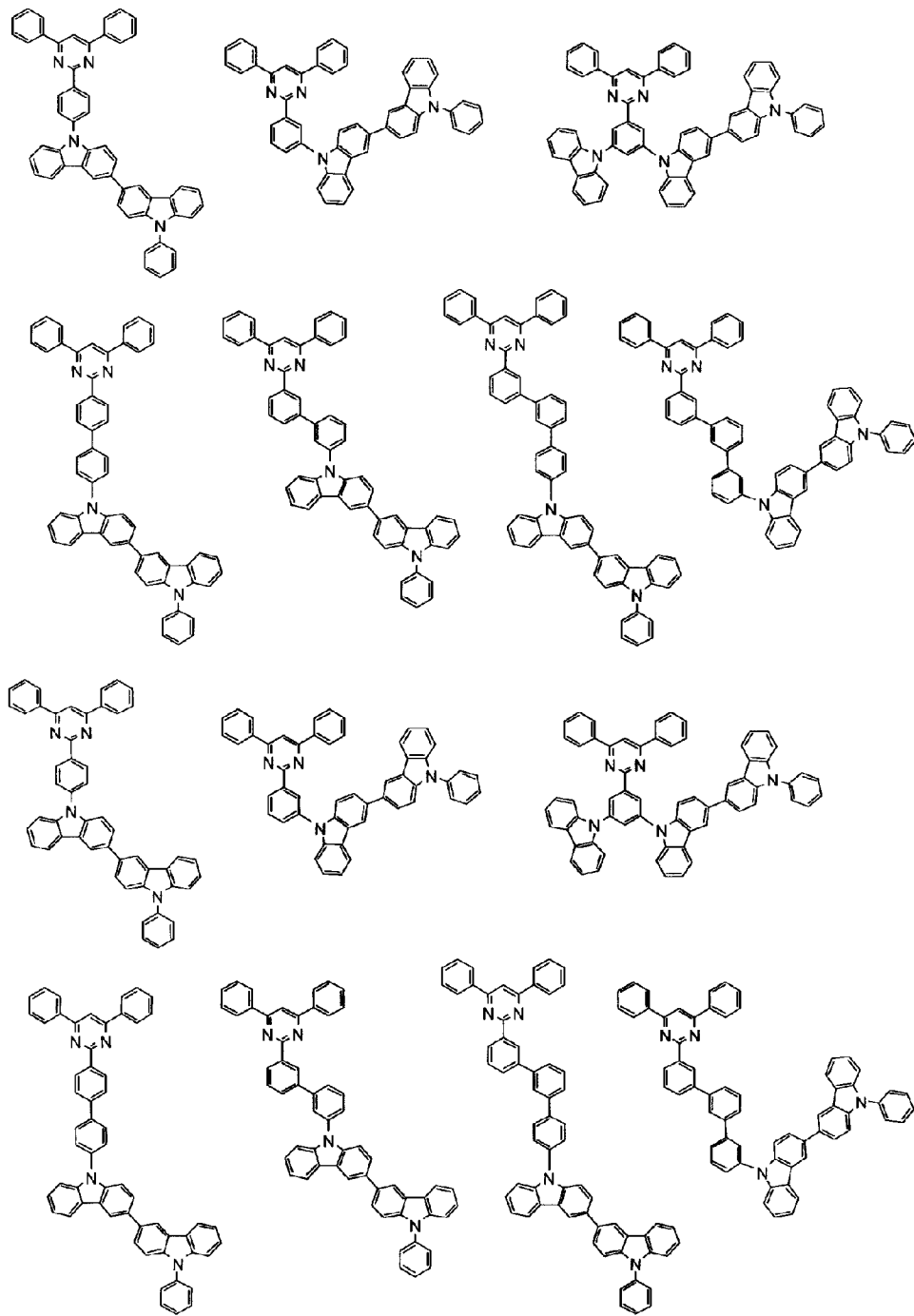
[0061]

[化33]



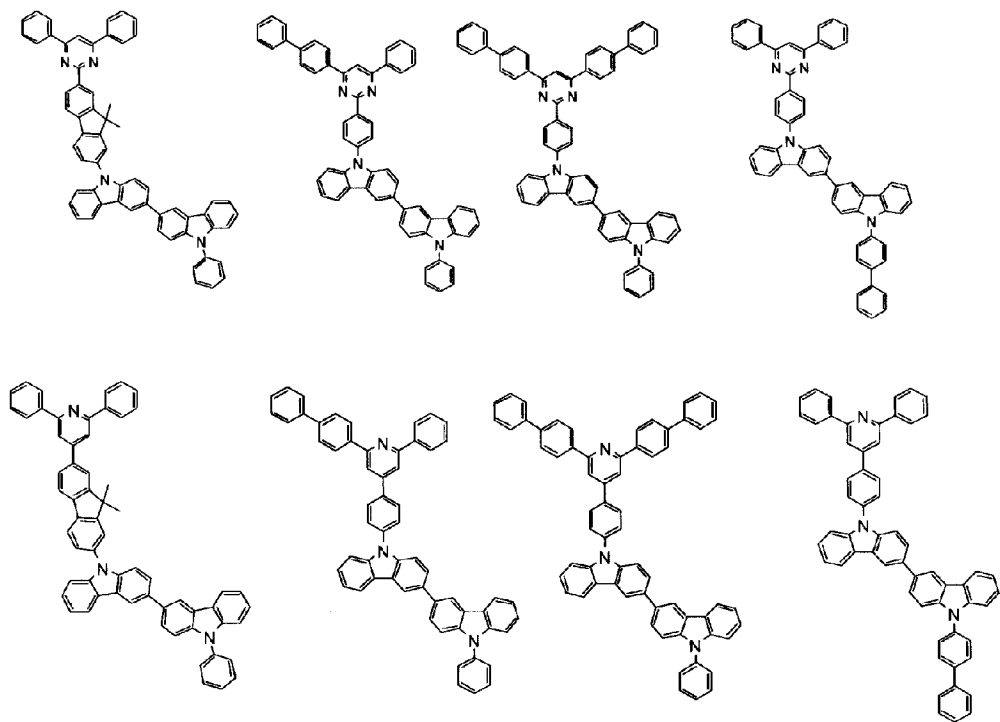
[0062]

[化34]



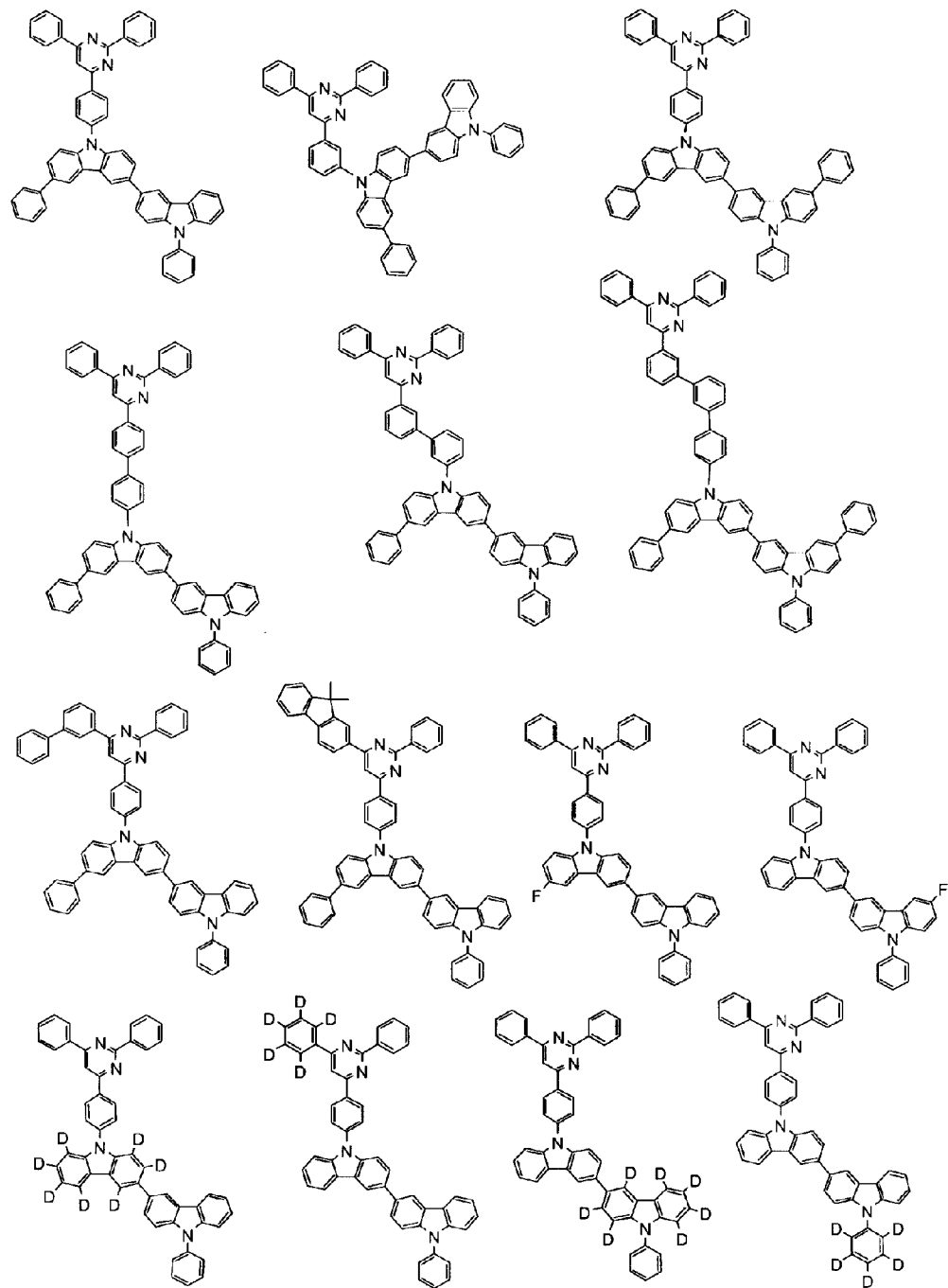
[0063]

[化35]



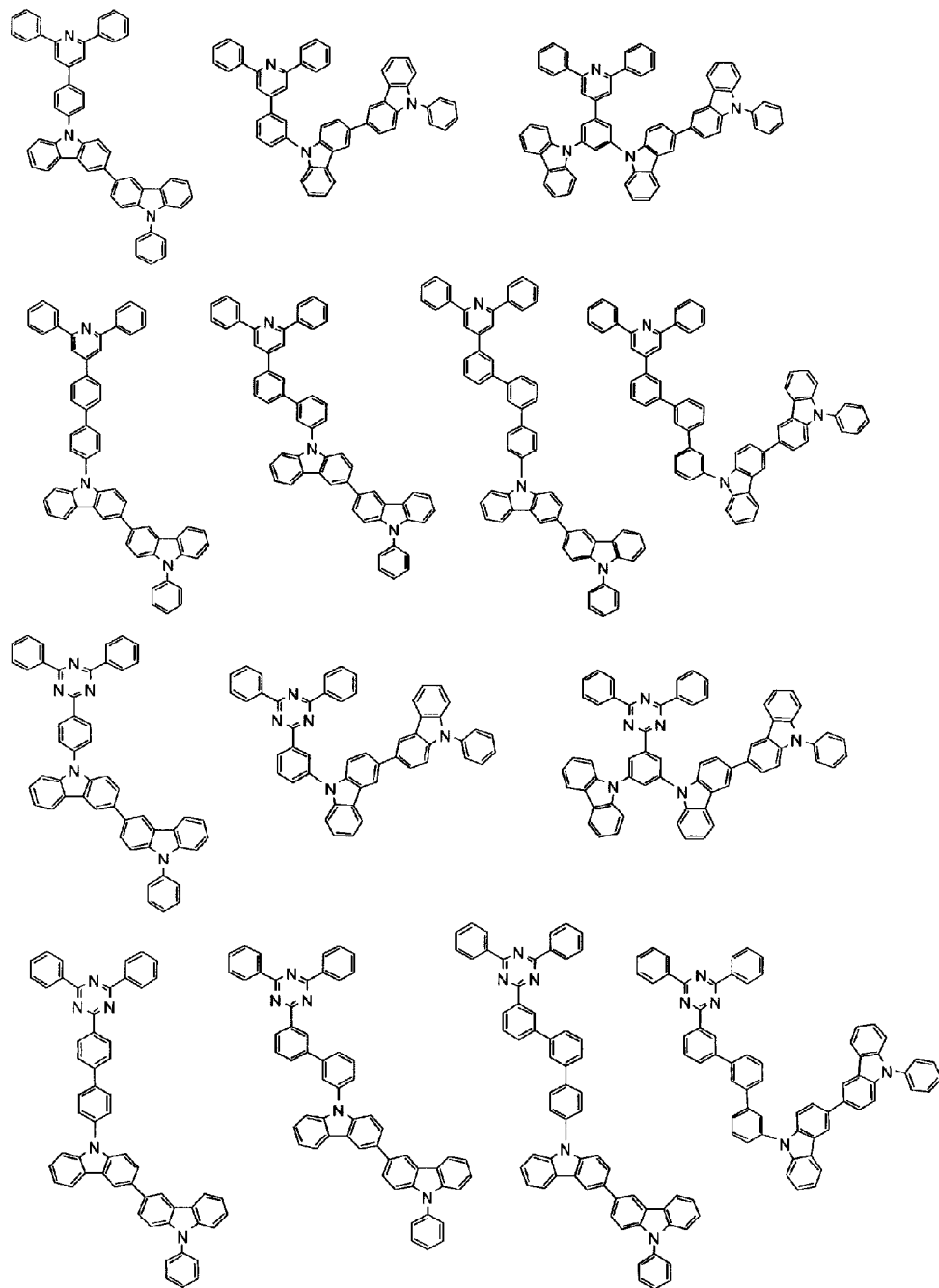
[0064]

[化36]



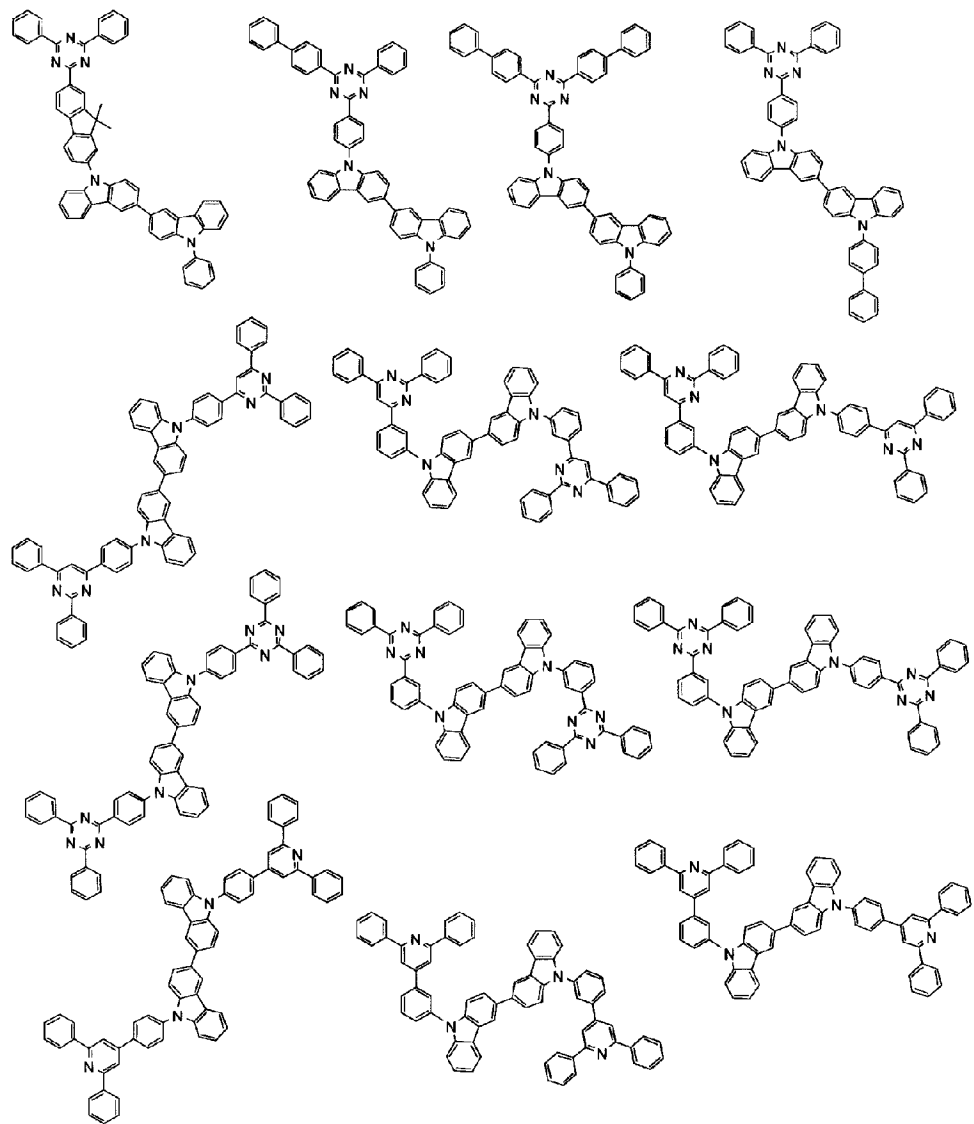
[0065]

[化37]



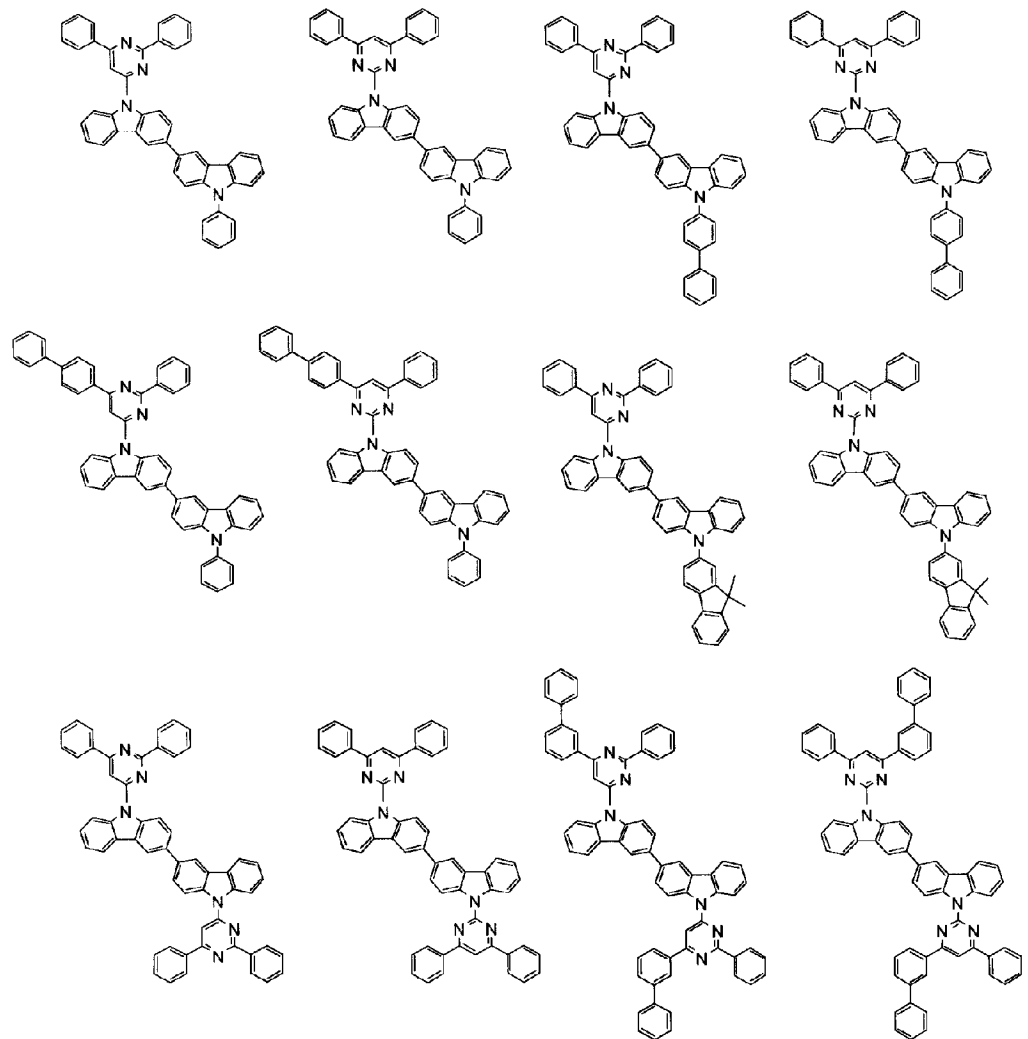
[0066]

[化38]



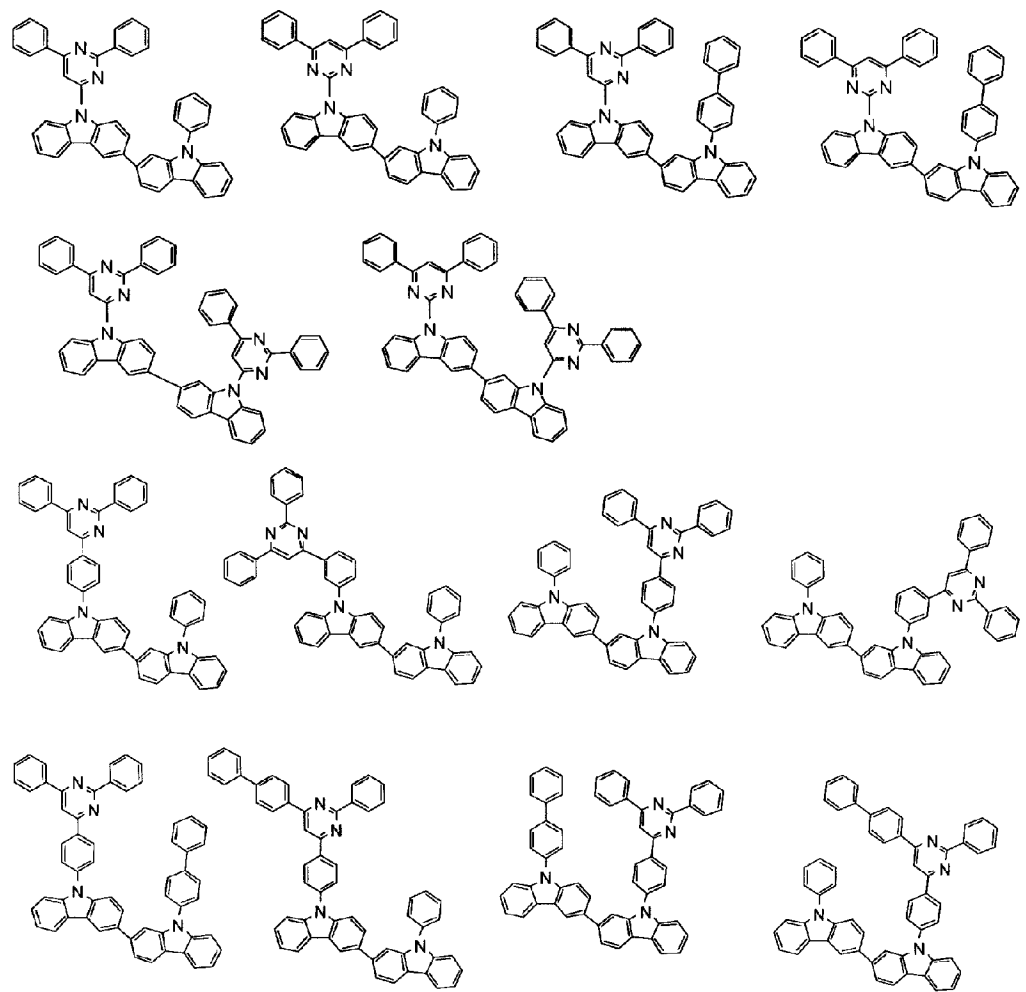
[0067]

[化39]



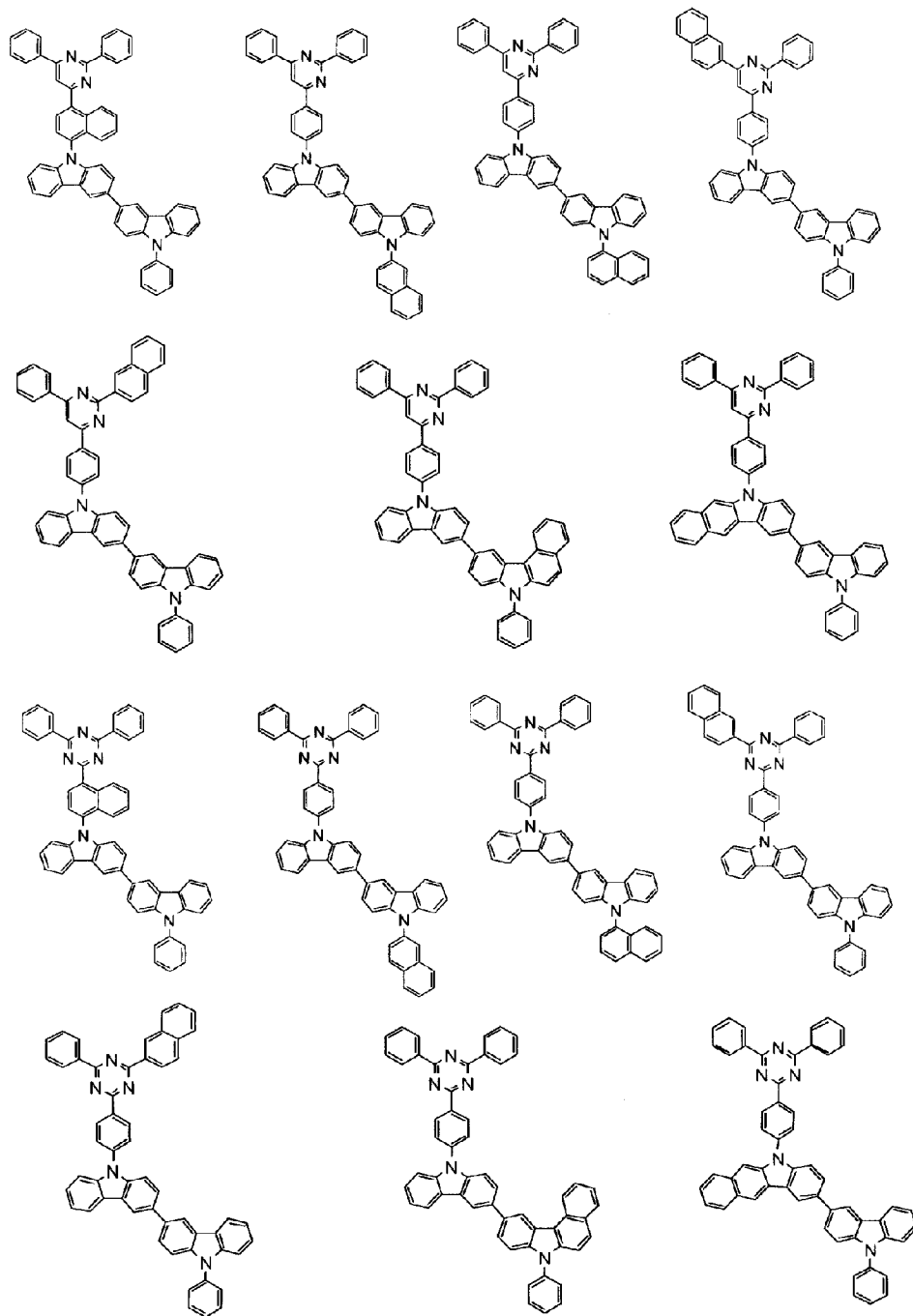
[0068]

[化40]



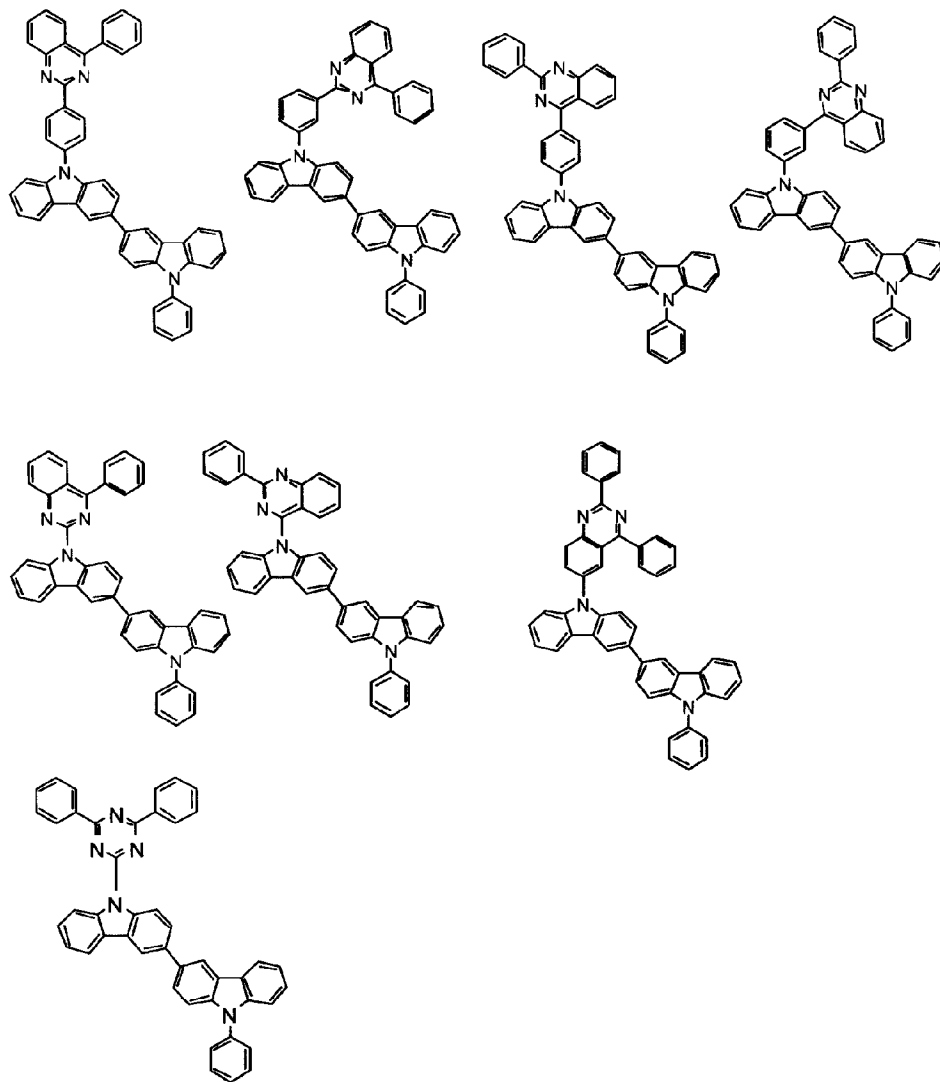
[0069]

[化42]



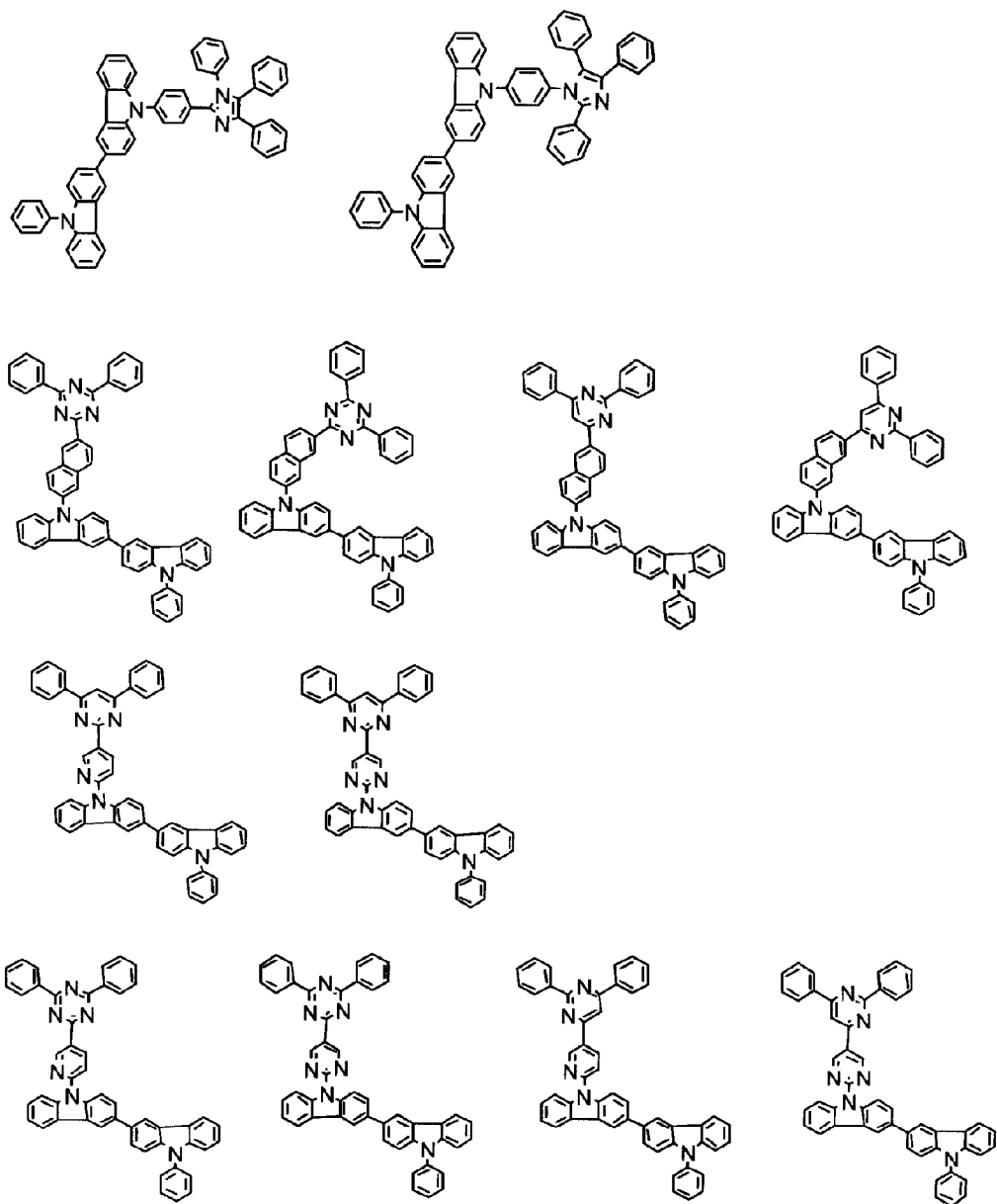
[0071]

[化43]



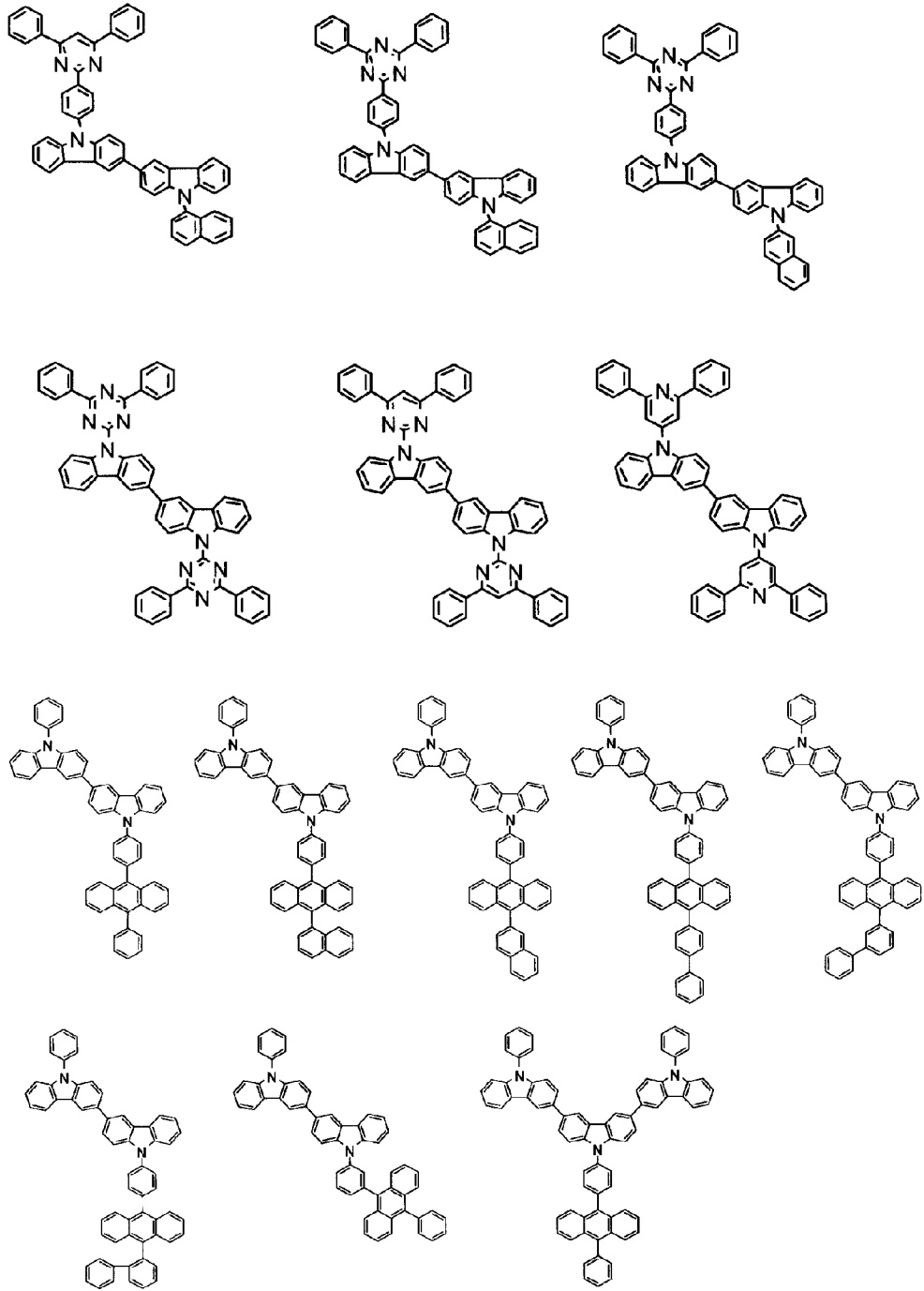
[0072]

[化44]



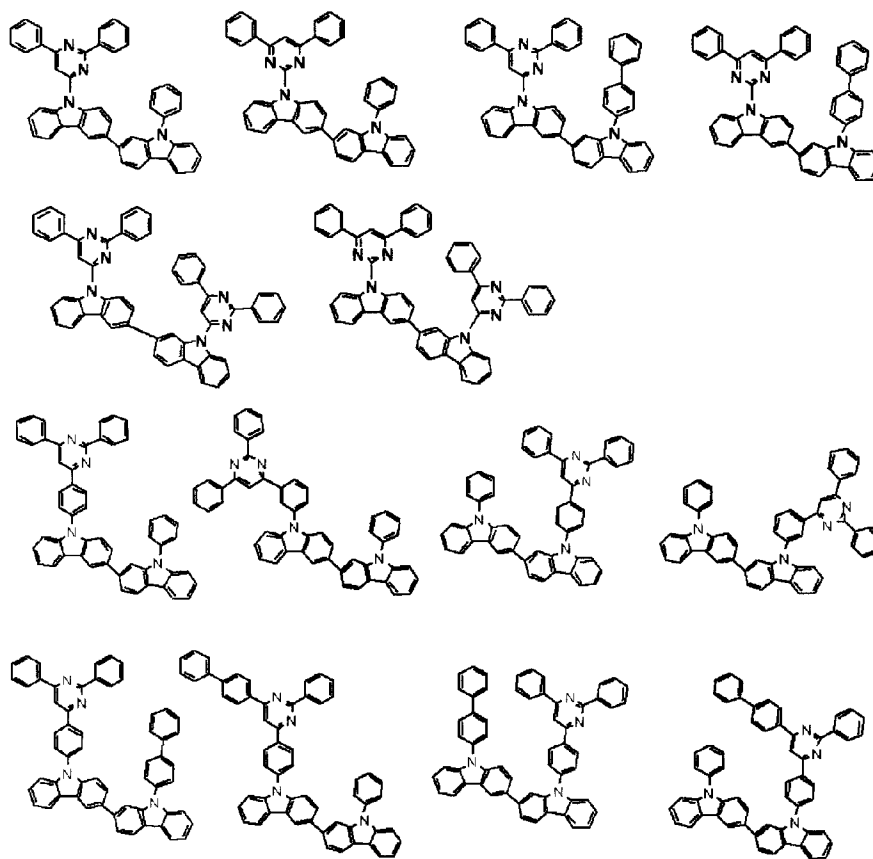
[0073]

[化45]



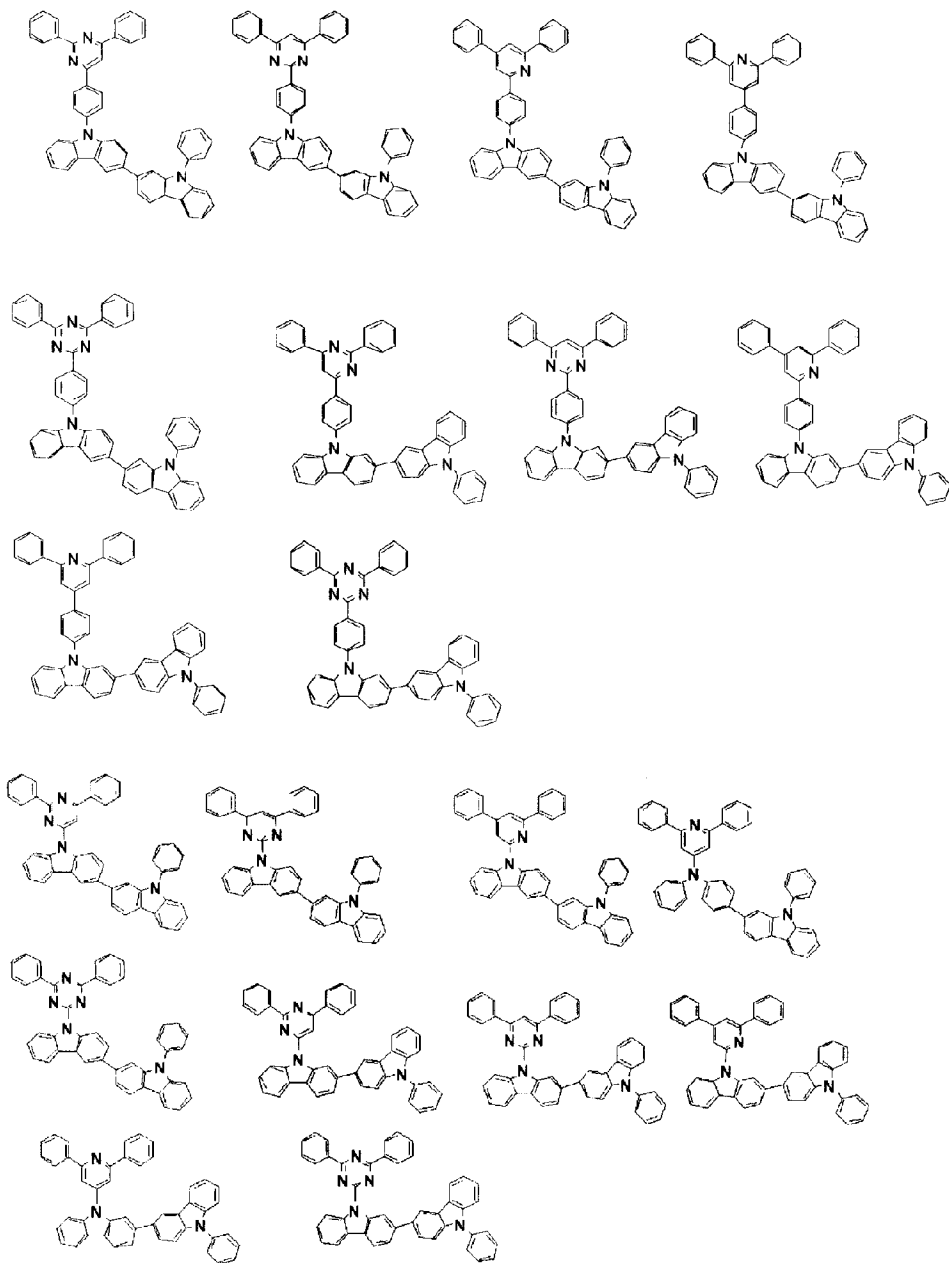
[0074]

[化46]



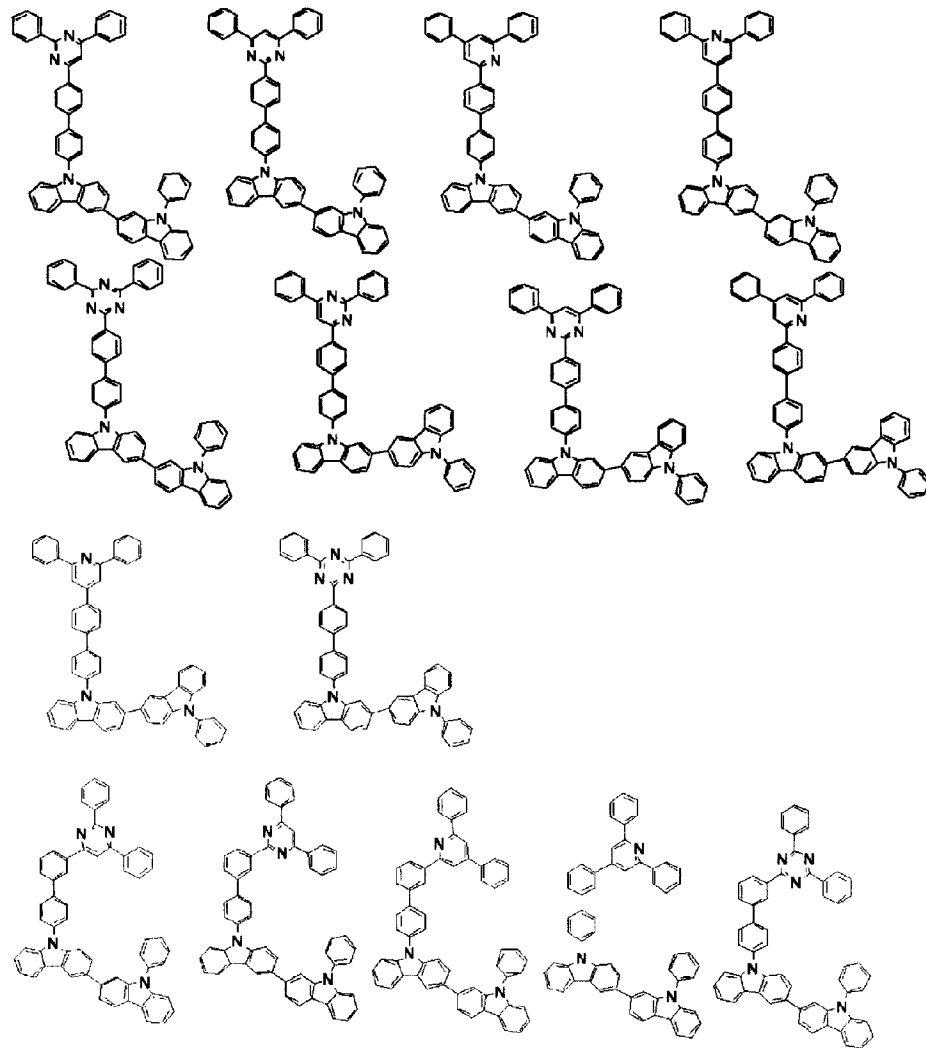
[0075]

[化47]



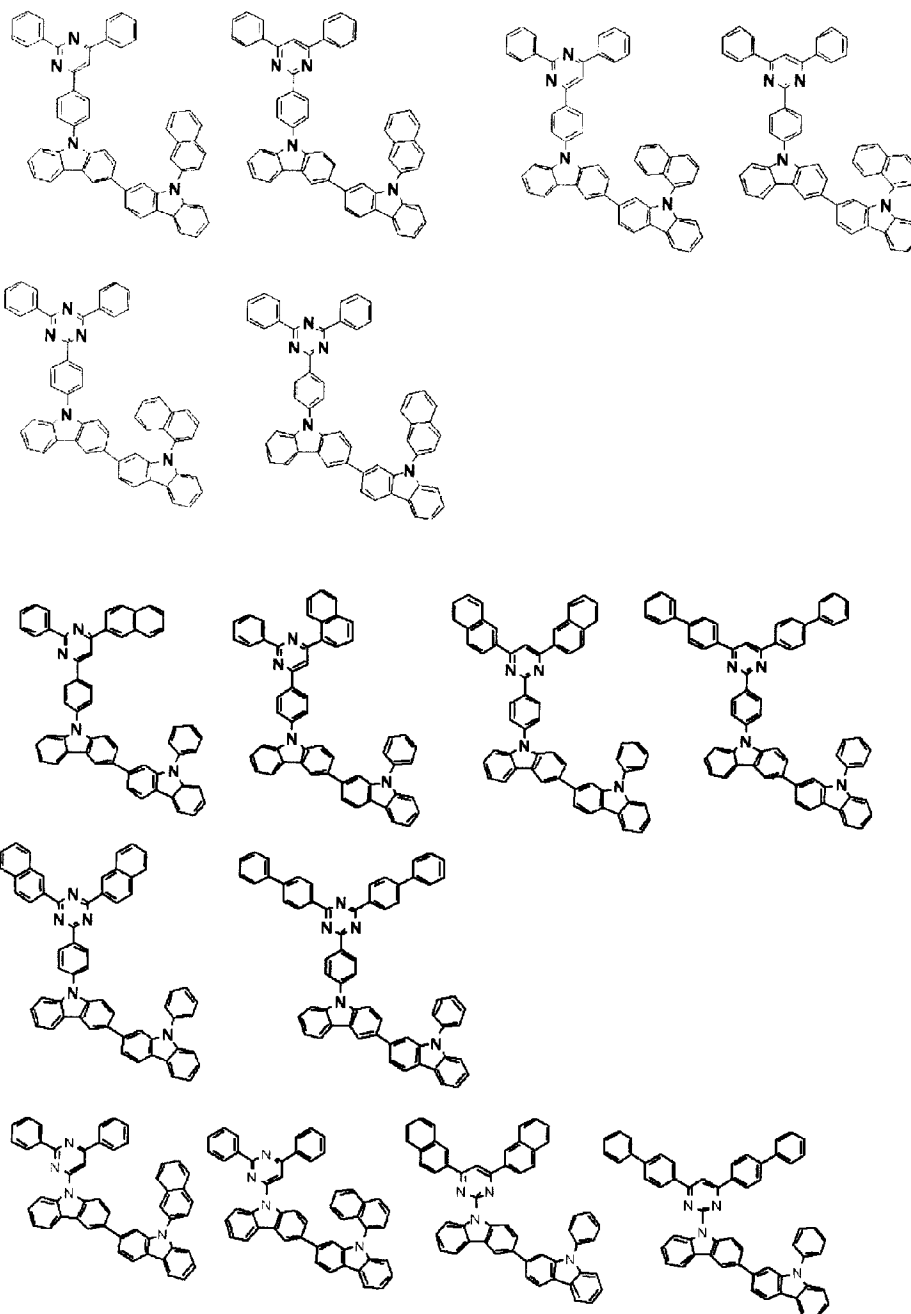
[0076]

[化48]



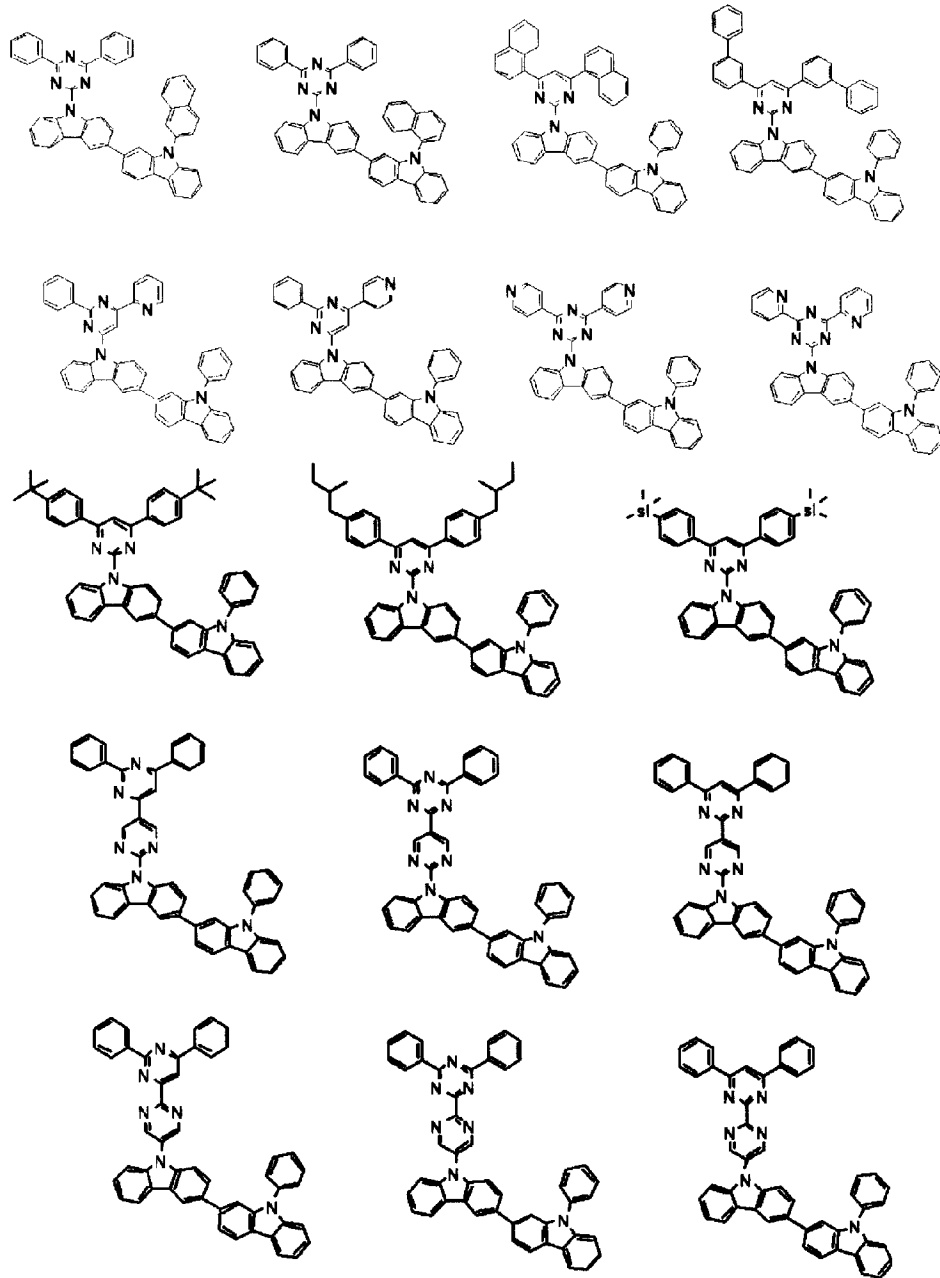
[0077]

[化49]



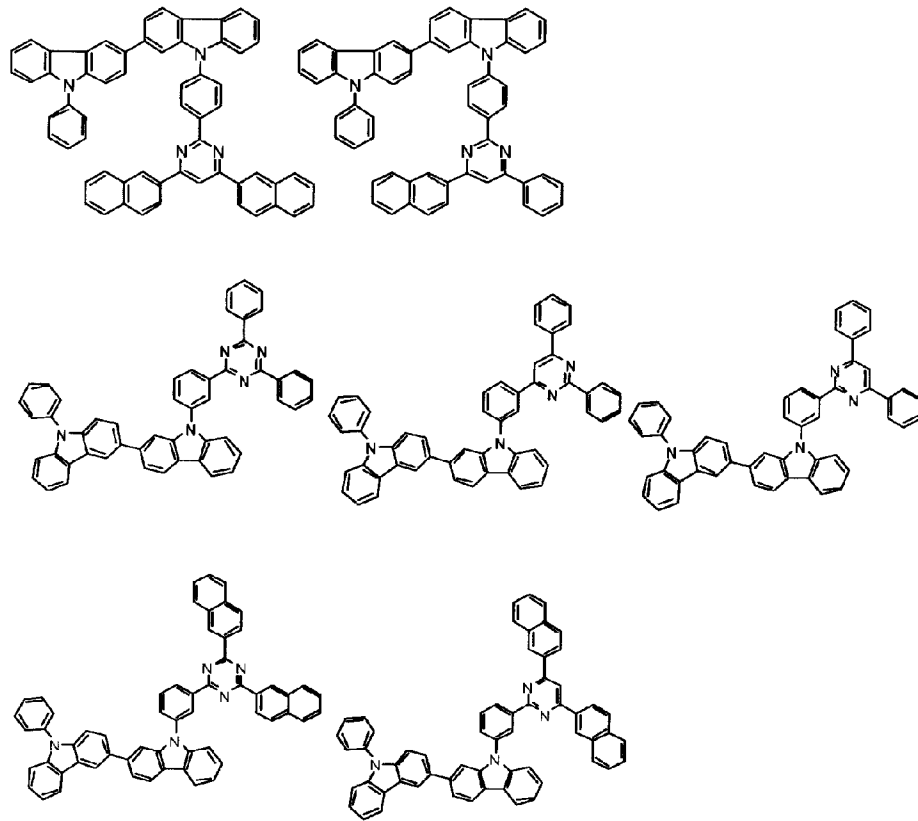
[0078]

[化50]



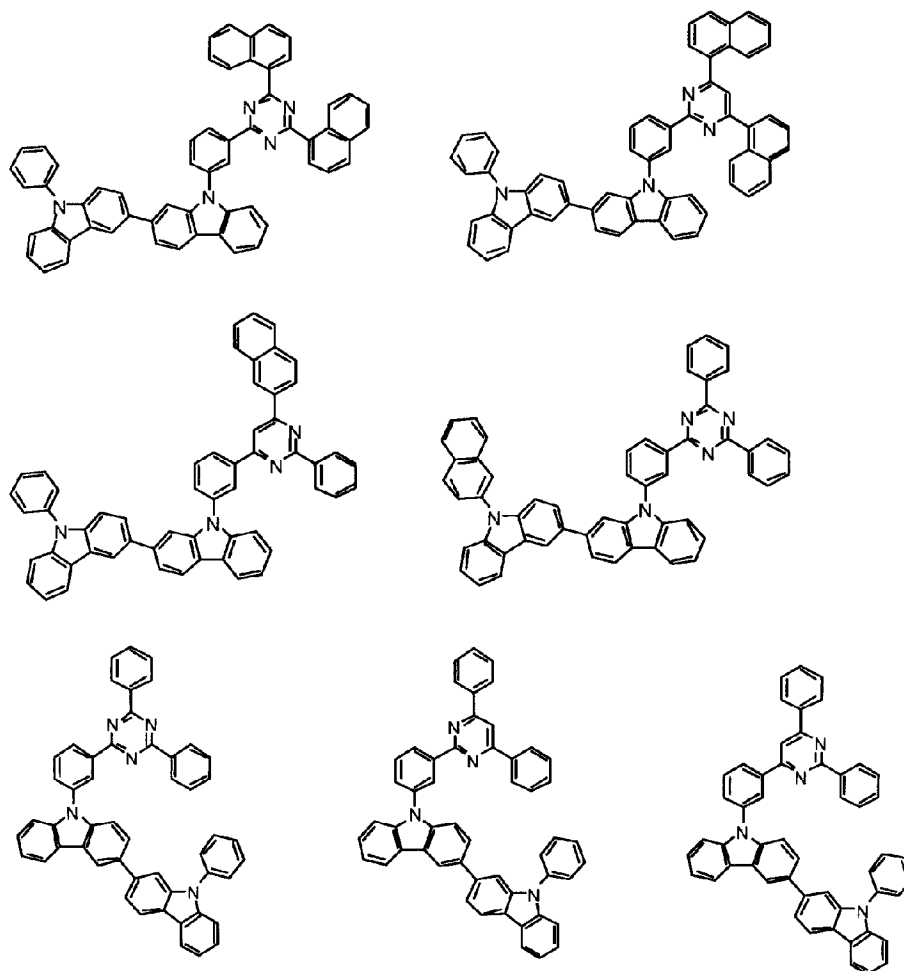
[0079]

[化51]



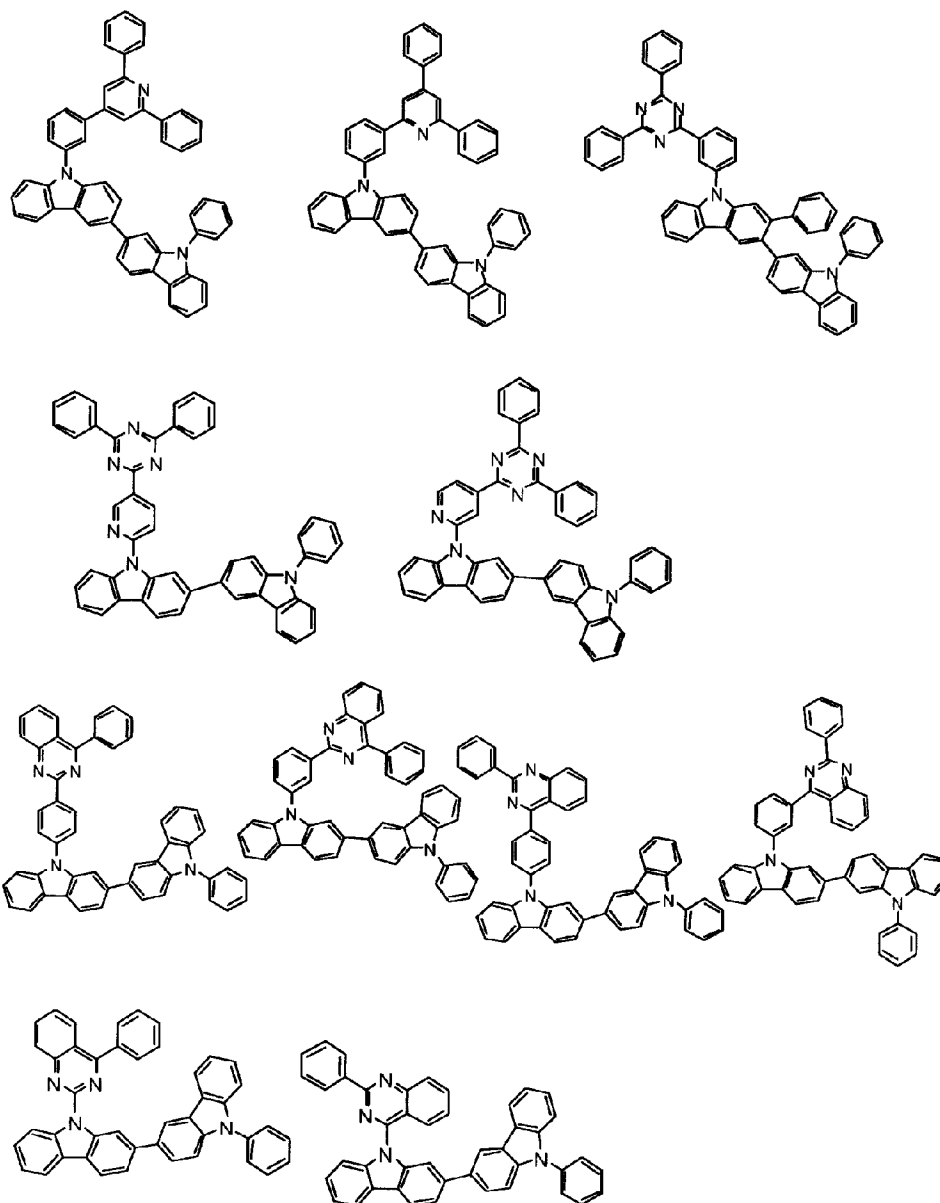
[0080]

[化52]



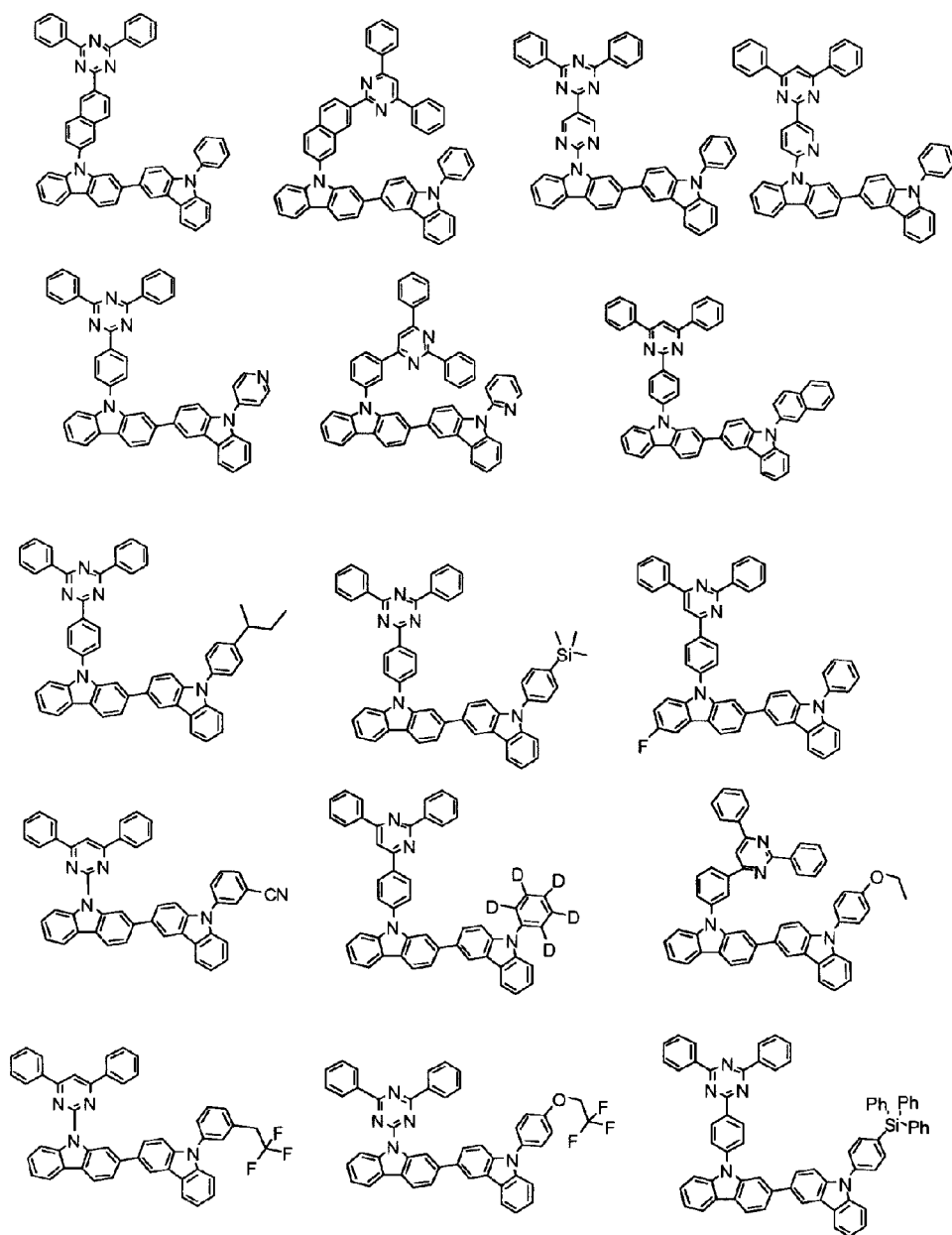
[0081]

[化53]



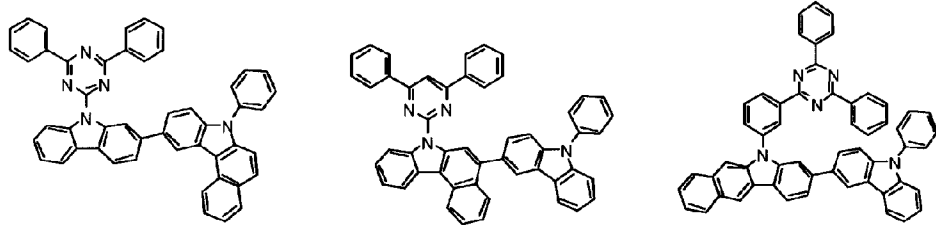
[0082]

[化54]



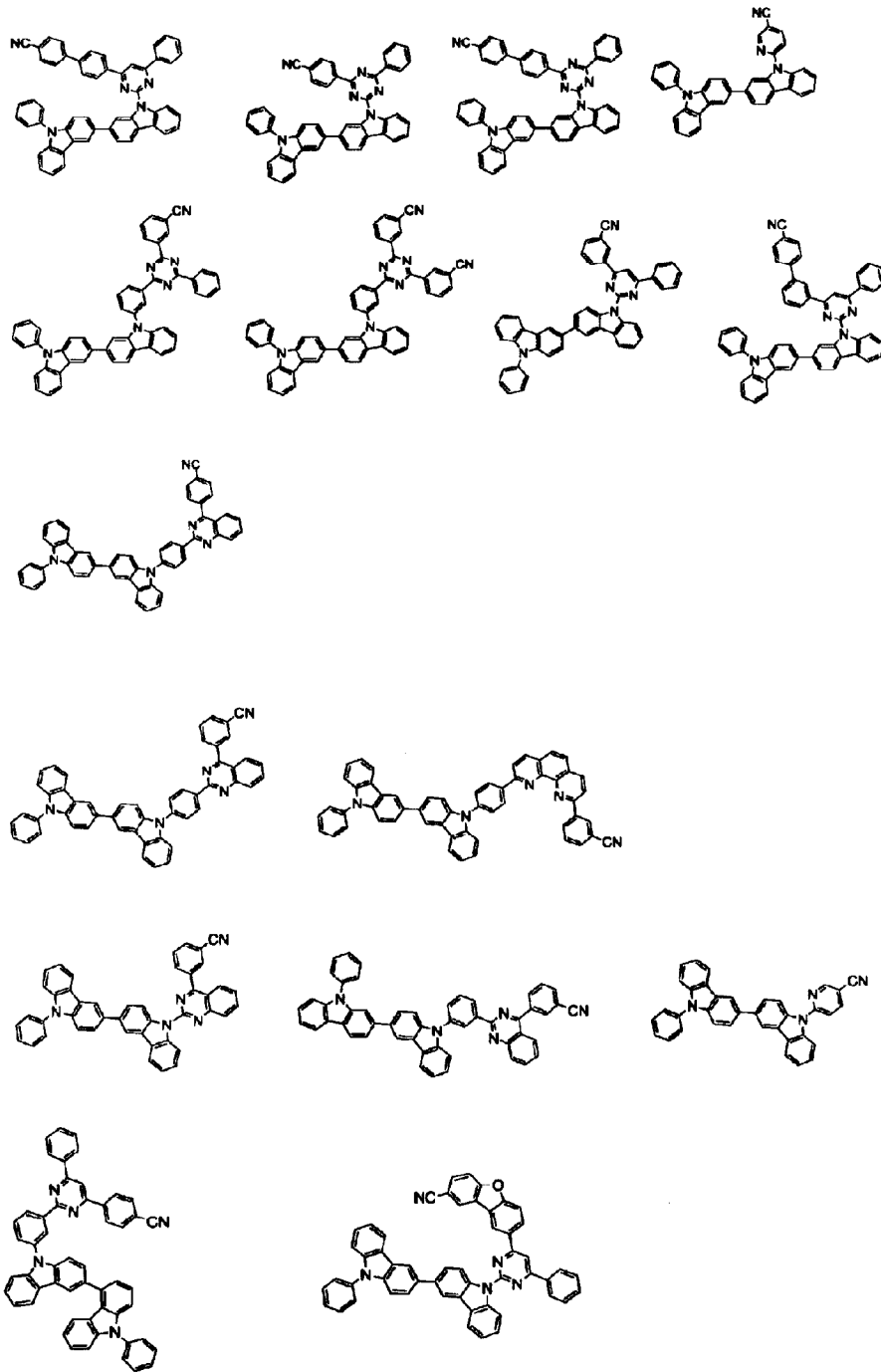
[0083]

[化55]



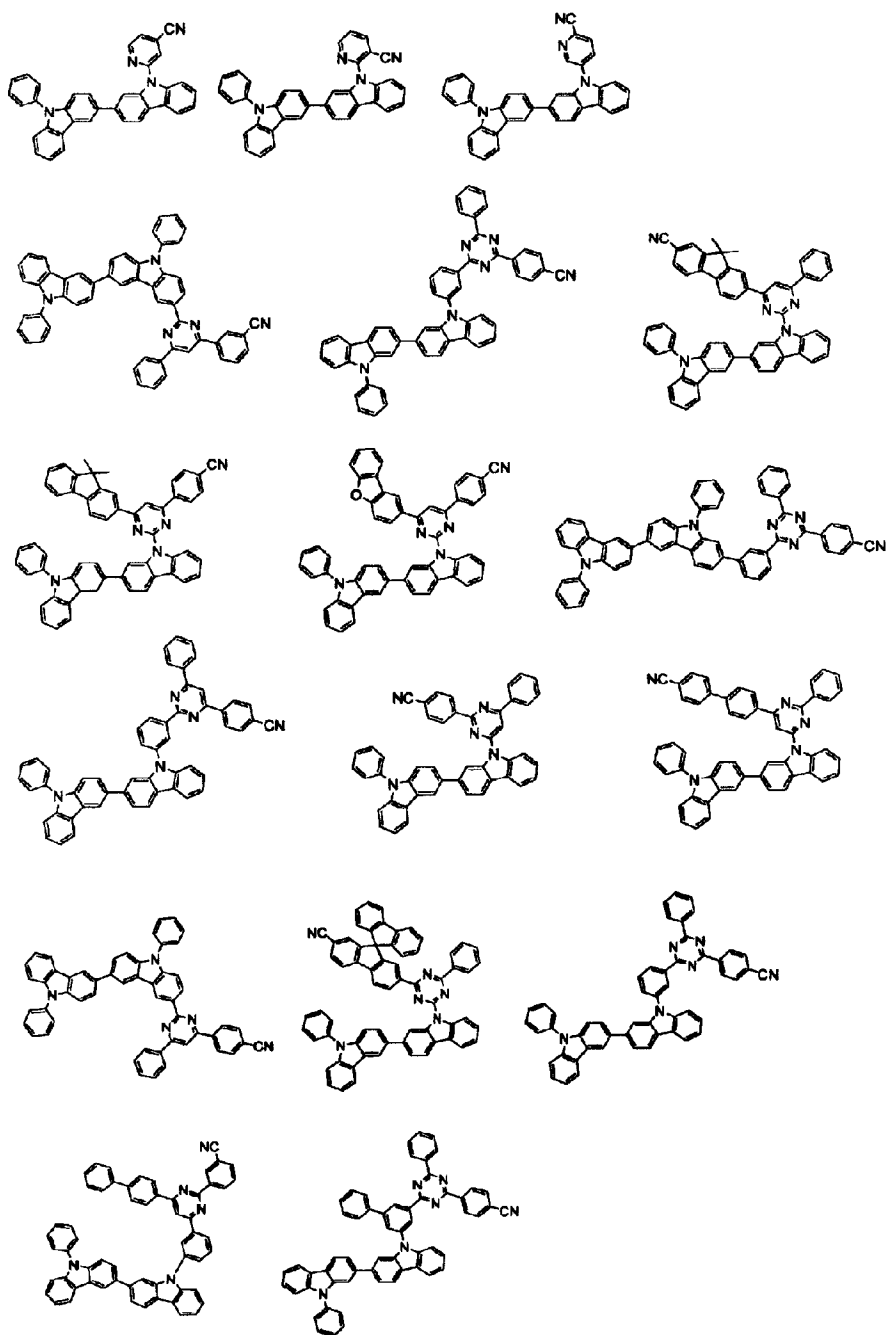
[0084]

[化56]



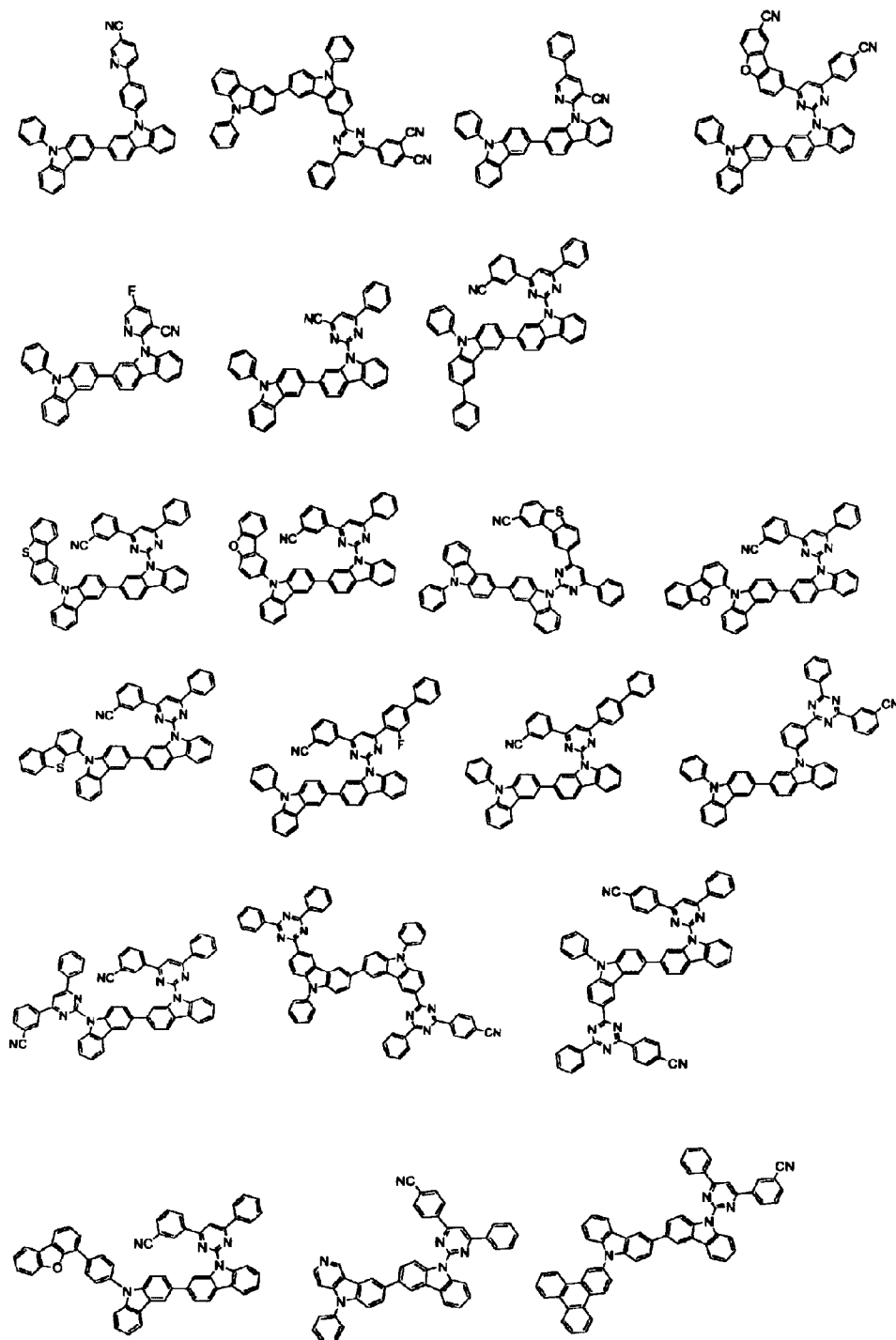
[0085]

[化57]



[0086]

[化58]



[0087] (有機EL素子)

本発明の有機EL素子は陰極と陽極との間に、前記陽極側から、第一有機薄膜層と第二有機薄膜層とをこの順に備え、第一有機薄膜層と第二有機薄膜

層とが接触していることが好ましい。

第一有機薄膜層は、好ましくは正孔輸送層又はスペース層であり、第二有機薄膜層は、好ましくは発光層である。

[0088] 以下、本発明の有機EL素子の構成について説明する。

本発明の有機EL素子は、燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光／燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよい。ここで、「発光ユニット」とは、一層以上の有機層を含み、そのうちの一層が発光層であり、注入された正孔と電子が再結合することにより発光することができる最小単位をいう。

従って、シンプル型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(1) 陽極／発光ユニット／陰極

[0089] また、上記発光ユニットは、燐光発光層や蛍光発光層を複数有する積層型であってもよく、その場合、各発光層の間に、燐光発光層で生成された励起子が蛍光発光層に拡散することを防ぐ目的で、スペース層を有していてもよい。発光ユニットの代表的な層構成を以下に示す。

(a) 正孔輸送層／発光層（／電子輸送層）

(b) 正孔輸送層／第一燐光発光層／第二燐光発光層（／電子輸送層）

(c) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）

(d) 正孔輸送層／第一燐光発光層／第二燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）

(e) 正孔輸送層／第一燐光発光層／スペース層／第二燐光発光層／スペース層／蛍光発光層（／電子輸送層）

(f) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／第一蛍光発光層／第二蛍光発光層（／電子輸送層）

本発明の第一有機薄膜層及び第二有機薄膜層は、上述のように、第一有機薄膜層が第二有機薄膜層に対して陽極側に設けられれば特に限定されず、例

例えば上記層構成（e）においては、第一有機薄膜層及び第二有機薄膜層の組み合わせが、正孔輸送層及び第一燐光発光層の組み合わせ、第一燐光発光層及びスペース層の組み合わせ、スペース層及び第二燐光発光層の組み合わせ、第二燐光発光層及びスペース層の組み合わせ、並びにスペース層及び蛍光発光層の組み合わせのいずれであってもよい。好ましくは、第二有機薄膜層は発光層である。第二有機薄膜層が発光層であると、発光層への正孔障壁が減り、発光層界面において正孔の蓄積がなくなるため、励起子の生成が促進し、生成された励起子がクエンチすることなく効率よく発光する。

[0090] 上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光層（d）において、正孔輸送層／第一燐光発光層（赤色発光）／第二燐光発光層（緑色発光）／スペース層／蛍光発光層（青色発光）／電子輸送層といった層構成が挙げられる。

なお、各発光層と正孔輸送層あるいはスペース層との間には、適宜、電子障壁層を設けてもよい。また、各発光層と電子輸送層との間には、適宜、正孔障壁層を設けてもよい。電子障壁層や正孔障壁層を設けることで、電子又は正孔を発光層内に閉じ込めて、発光層における電荷の再結合確率を高め、発光効率を向上させることができる。

[0091] タンデム型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

（2）陽極／第一発光ユニット／中間層／第二発光ユニット／陰極

ここで、上記第一発光ユニット及び第二発光ユニットとしては、例えば、それぞれ独立に上述の発光ユニットと同様のものを選択することができる。

上記中間層は、一般的に、中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、第一発光ユニットに電子を、第二発光ユニットに正孔を供給する、公知の材料構成を用いることができる。

[0092] 図1に、本発明の有機EL素子の一例の概略構成を示す。有機EL素子1は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット10とを有する。発光ユニット10は、燐光ホスト材料と燐光ド

ーパントを含む少なくとも1つの燐光発光層を含む発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔輸送層6等、発光層5と陰極4との間に電子輸送層7等を形成してもよい。また、発光層5の陽極3側に電子障壁層を、発光層5の陰極4側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における励起子の生成確率を高めることができる。

[0093] なお、本明細書において、蛍光ドーパントと組み合わせられたホストを蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたホストを燐光ホストと称する。蛍光ホストと燐光ホストは分子構造のみにより区分されるものではない。すなわち、燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を構成する材料を意味し、蛍光発光層を構成する材料として利用できないことを意味しているわけではない。蛍光ホストについても同様である。

[0094] (基板)

本発明の有機EL素子は、透光性基板上に作製する。透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、400nm~700nm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、石英等を原料として用いてなるものを挙げられる。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レート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を原料として用いてなるものを挙げる事ができる。

[0095] (陽極)

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役割を担うものであり、4.5eV以上の仕事関数を有するものを用いることが効果的である。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(NESA)、酸化インジウム亜鉛酸化物、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。発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を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/\square 以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10nm~1 μ m、好ましくは10nm~200nmの範囲で選択される。

[0096] (陰極)

陰極は電子注入層、電子輸送層又は発光層に電子を注入する役割を担うものであり、仕事関数の小さい材料により形成するのが好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。陰極も、陽極と同様に、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。また、必要に応じて、陰極側から発光を取り出してもよい。

[0097] (発光層)

発光機能を有する有機層であって、ドーピングシステムを採用する場合、ホスト材料とドーパント材料を含んでいる。このとき、ホスト材料は、主に電子と正孔の再結合を促し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有し、ドーパント材料は、再結合で得られた励起子を効率的に発光させる機能を有する。

燐光素子の場合、ホスト材料は主にドーパントで生成された励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。

[0098] ここで、上記発光層は、例えば、電子輸送性のホストと正孔輸送性のホストを組み合わせるなどして、発光層内のキャリアバランスを調整するダブルホスト（ホスト・コホストともいう）を採用してもよい。本発明の第二有機薄膜層に用いられる芳香族複素環誘導体Bは、この場合、正孔輸送性のコホストとして機能する。

また、量子収率の高いドーパント材料を二種類以上入れることによって、

それぞれのドーパントが発光するダブルドーパントを採用してもよい。具体的には、ホスト、赤色ドーパント及び緑色ドーパントを共蒸着することによって、発光層を共通化して黄色発光を実現する態様が挙げられる。

[0099] 上記発光層は、複数の発光層を積層した積層体とすることで、発光層界面に電子と正孔を蓄積させて、再結合領域を発光層界面に集中させて、量子効率を向上させることができる。

[0100] 発光層への正孔の注入し易さと電子の注入し易さは異なってもよく、また、発光層中での正孔と電子の移動度で表される正孔輸送能と電子輸送能が異なってもよい。

[0101] 発光層は、例えば蒸着法、スピコート法、LB法等の公知の方法により形成することができる。また、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かした溶液をスピ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。

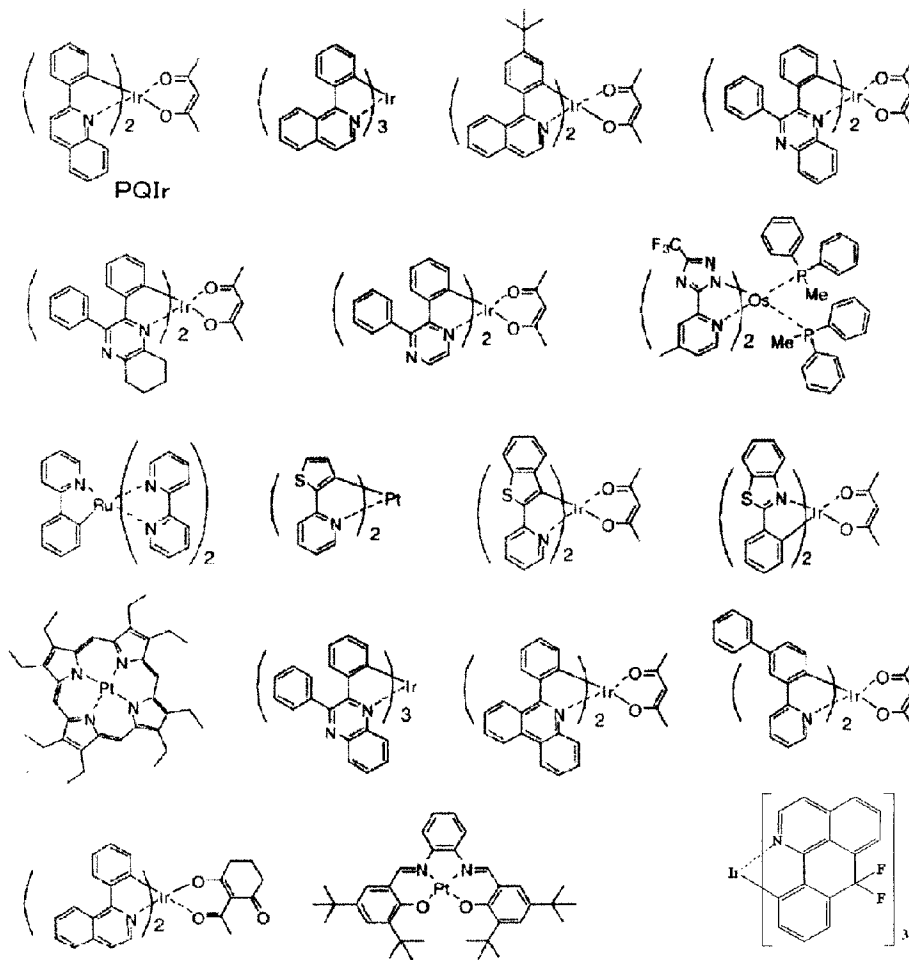
[0102] 発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

[0103] 発光層を形成する燐光ドーパント（燐光発光材料）は三重項励状態から発光することのできる化合物であり、三重項励状態から発光する限り特に限定されないが、Ir, Pt, Os, Au, Cu, Re及びRuから選択される少なくとも一つの金属と配位子とを含む有機金属錯体であることが好ましい。前記配位子は、オルトメタル結合を有することが好ましい。燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、Ir, Os及びPtから選ばれる金属原子を含有する金属錯体が好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体がより好ましく、イリジウム錯体及び白金錯体がさらに好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が特に好ましい。

[0104] 燐光ドーパントの発光層における含有量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%が好ましく、1～30質量%がより好ましい。燐光ドーパントの含有量が0.1質量%以上であると十分な発光が得られ、70質量%以下であると濃度消光を避けることができる。

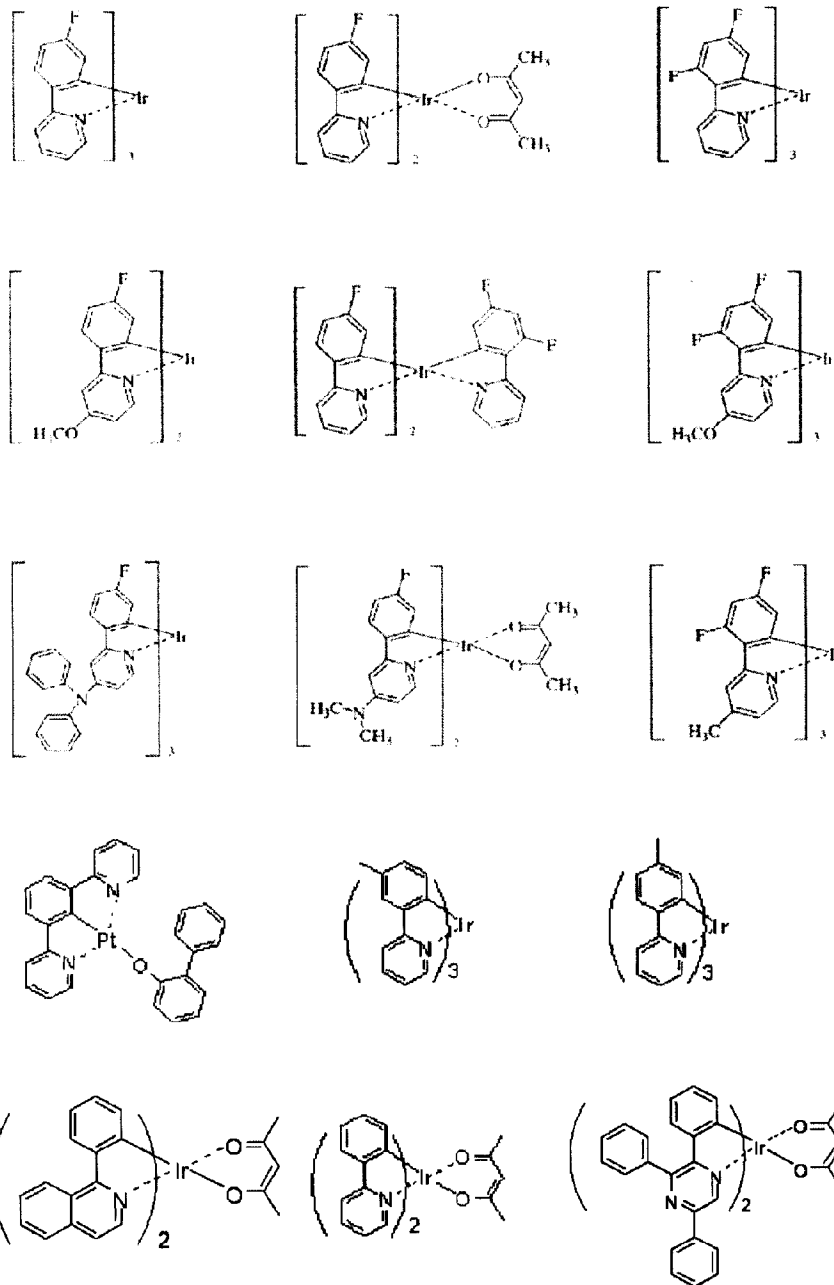
[0105] 好ましい有機金属錯体の具体例を、以下に示す。

[0106] [化59]



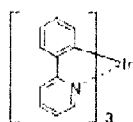
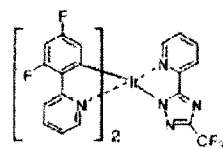
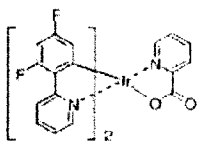
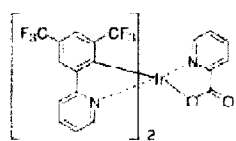
[0107]

[化60]

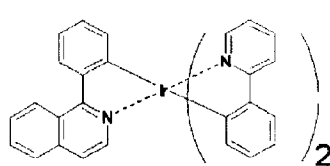
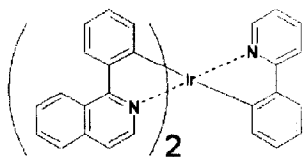
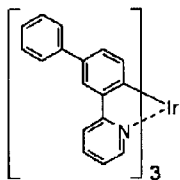
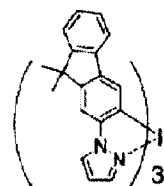
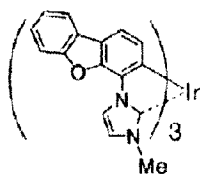
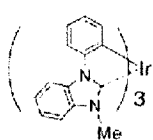
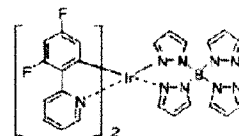
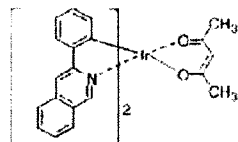


[0108]

[化61]

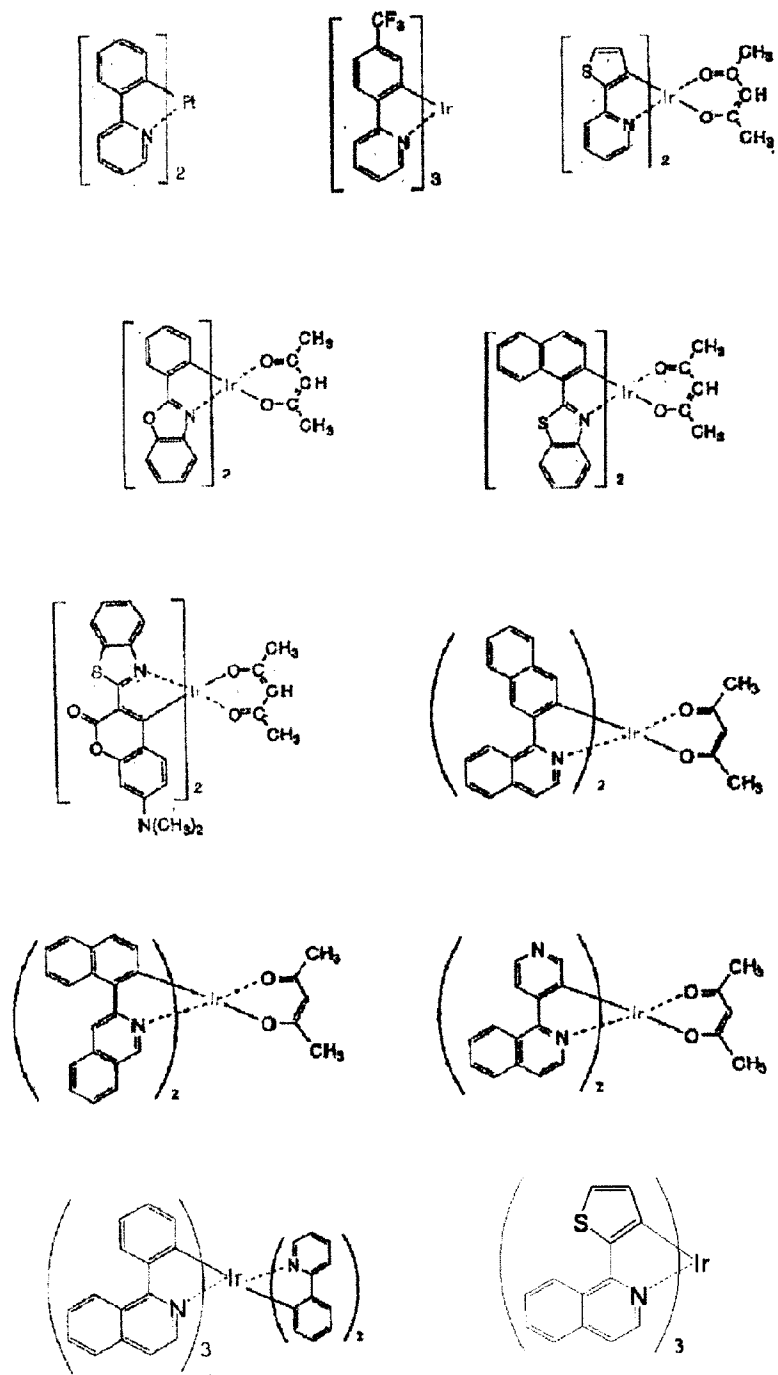


$\text{Ir}(\text{ppy})_3$



[0109]

[化62]



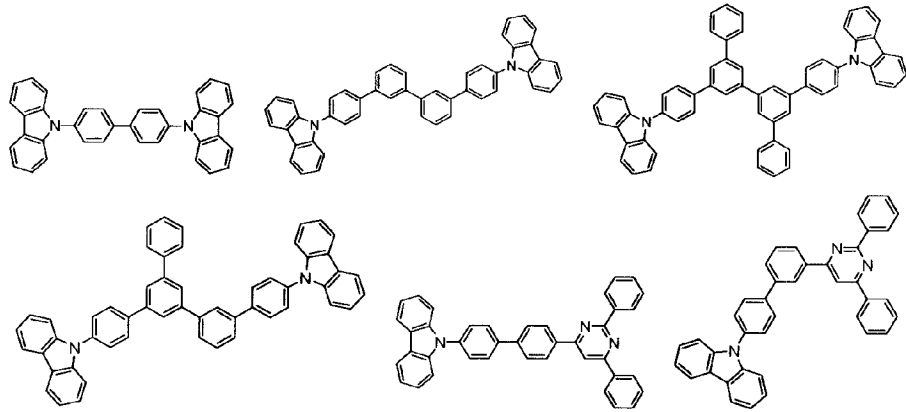
[0110] 燐光ホストは、燐光ドーパントの三重項エネルギーを効率的に発光層内に閉じ込めることにより、燐光ドーパントを効率的に発光させる機能を有する化合物である。燐光ホストとしては、上記目的に応じて適宜選択することが

できる。

[0111] 燐光ホストの具体例としては、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。燐光ホスト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。

[0112]

[化63]



[0113] 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、さらに好ましくは10～50 nmである。5 nm以上であると発光層の形成が容易であり、50 nm以下であると駆動電圧の上昇が避けられる。

[0114] (電子供与性ドーパント)

本発明の有機EL素子は、陰極と発光ユニットとの界面領域に電子供与性ドーパントを有することも好ましい。このような構成によれば、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。ここで、電子供与性ドーパントとは、仕事関数3.8 eV以下の金属を含有するものをいい、その具体例としては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

[0115] アルカリ金属としては、Na (仕事関数：2.36 eV)、K (仕事関数：2.28 eV)、Rb (仕事関数：2.16 eV)、Cs (仕事関数：1.95 eV) 等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。アルカリ土類金属としては、Ca (仕事関数：2.9 eV)、Sr (仕事関数：2.0 eV～2.5 eV)、B

a (仕事関数：2.52 eV) 等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

[0116] アルカリ金属化合物としては、Li₂O、Cs₂O、K₂O等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、Li₂O、NaFが好ましい。アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa_xSr_{1-x}O (0 < x < 1)、Ba_xCa_{1-x}O (0 < x < 1) 等が挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。希土類金属化合物としては、YbF₃、ScF₃、ScO₃、Y₂O₃、Ce₂O₃、GdF₃、TbF₃等が挙げられ、YbF₃、ScF₃、TbF₃が好ましい。

[0117] アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、β-ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

[0118] 電子供与性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する有機化合物（発光材料や電子注入材料）を同時に蒸着させ、有機化合物に電子供与性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で有機化合物：電子供与性ドーパント = 100 : 1 ~ 1 : 100、好ましくは5 : 1 ~ 1 : 5である。

[0119] 電子供与性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光

材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1 nm~15 nmで形成する。電子供与性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05 nm~1 nmで形成する。

本発明の有機EL素子における、主成分と電子供与性ドーパントの割合は、モル比で主成分：電子供与性ドーパント=5：1~1：5であると好ましく、2：1~1：2であるとさらに好ましい。

[0120] (電子輸送層)

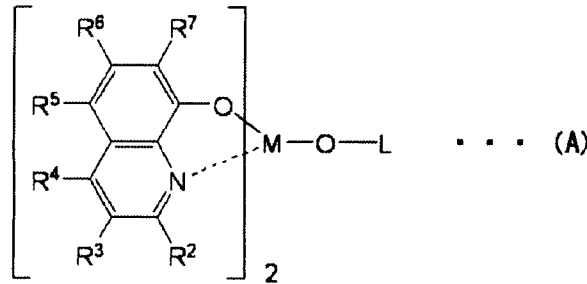
発光層と陰極との間に形成される有機層であって、電子を陰極から発光層へ輸送する機能を有する。電子輸送層が複数層で構成される場合、陰極に近い有機層を電子注入層と定義することがある。電子注入層は、陰極から電子を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

[0121] 電子輸送層に用いる電子輸送性材料としては、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。また、含窒素環誘導体としては、含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する芳香族環、又は含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する縮合芳香族環化合物が好ましい。

この含窒素環誘導体としては、例えば、下記式(A)で表される含窒素環金属キレート錯体が好ましい。

[0122]

[化64]



[0123] 式 (A) における R²~R⁷は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、アミノ基、炭素数 1~40 の炭化水素基、炭素数 1~40 のアルコキシ基、炭素数 6~50 のアリアルオキシ基、アルコキシカルボニル基、または、環形成炭素数 5~50 の芳香族複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

[0124] ハロゲン原子としては、例えば、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

[0125] 置換されていてもよいアミノ基の例としては、アルキルアミノ基、アリアルアミノ基、アラルキルアミノ基が挙げられる。

アルキルアミノ基及びアラルキルアミノ基は -N Q¹Q² と表される。Q¹及び Q²は、それぞれ独立に、炭素数 1~20 のアルキル基又は炭素数 1~20 のアラルキル基を表す。Q¹及び Q²の一方は水素原子又は重水素原子であってもよい。

アリアルアミノ基は -N A r¹A r² と表され、A r¹及び A r²は、それぞれ独立に、炭素数 6~50 の非縮合芳香族炭化水素基及び縮合芳香族炭化水素基を表す。A r¹及び A r²の一方は水素原子又は重水素原子であってもよい。

[0126] 炭素数 1~40 の炭化水素基はアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリアル基、及びアラルキル基を含む。

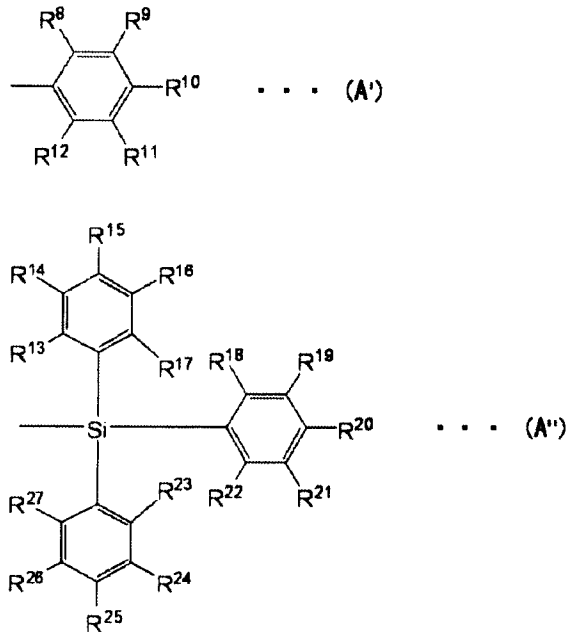
[0127] アルコキシカルボニル基は -C O O Y' と表され、Y' は炭素数 1~20

のアルキル基を表す。

[0128] Mは、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、Inであると好ましい。

[0129] Lは、下記式 (A') 又は (A'') で表される基である。

[0130] [化65]



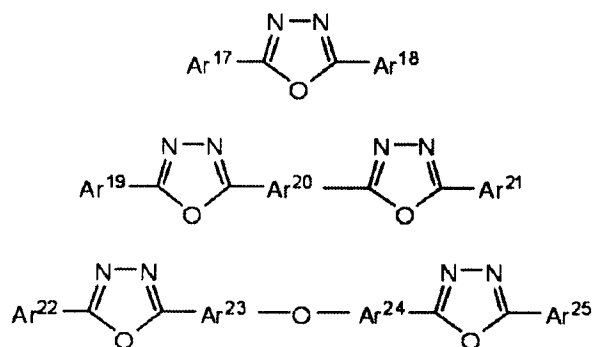
[0131] 式 (A') 中、R⁸~R¹²は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、または置換もしくは無置換の炭素数1~40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、前記式 (A'') 中、R¹³~R²⁷は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1~40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

[0132] 式 (A') 及び式 (A'') のR⁸~R¹²及びR¹³~R²⁷が示す炭素数1~40の炭化水素基は、前記式 (A) 中のR²~R⁷が示す炭化水素基と同様である。また、R⁸~R¹²及びR¹³~R²⁷の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の2価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'

’-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4’-ジイル基等が挙げられる。

[0133] 電子輸送層に用いられる電子伝達性化合物としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環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、オキシシ（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）アルミニウムを用いることができる。そして、オキサジアゾール誘導体としては、下記のを挙げるができる。

[0134] [化66]



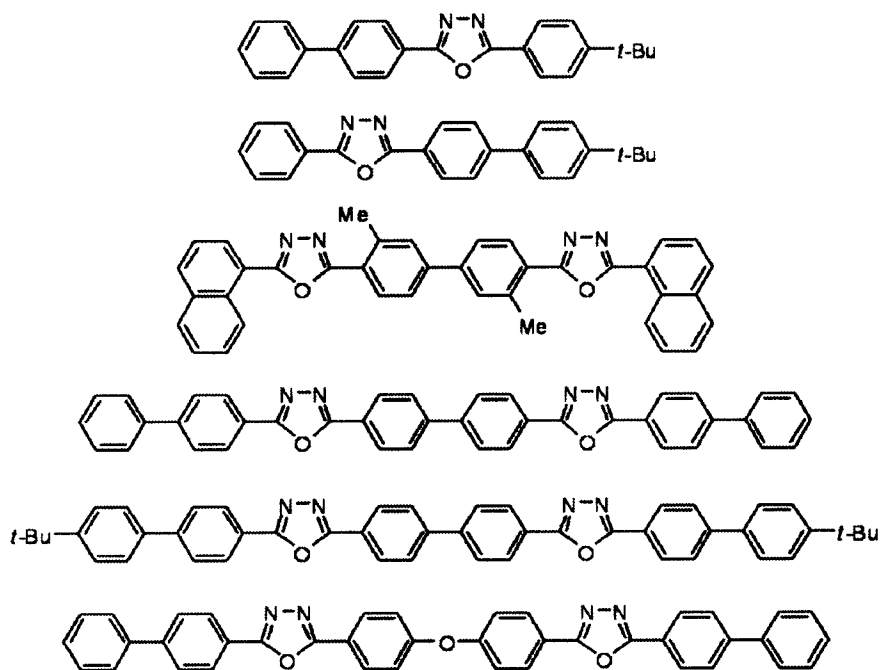
[0135] 前記式中、Ar¹⁷、Ar¹⁸、Ar¹⁹、Ar²¹、Ar²²及びAr²⁵は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、Ar¹⁷とAr¹⁸、Ar¹⁹とAr²¹、Ar²²とAr²⁵は、たがいに同一でも異なってもよい。芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレン基、ピレニル基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

[0136] Ar²⁰、Ar²³及びAr²⁴は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数6～50の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、Ar²³とAr²⁴

は、たがいに同一でも異なってもよい。2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

[0137] これらの電子伝達性化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のを挙げる事ができる。

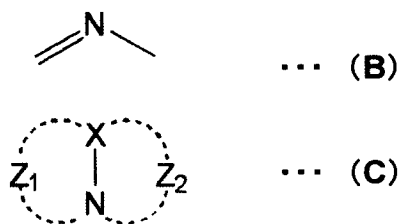
[0138] [化67]



[0139] 電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の一般式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、下記式(B)に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記式(C)に示す構造のものが挙げられる。

[0140]

[化68]



[0141] 前記式 (C) 中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z₁ならびにZ₂は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

[0142] 含窒素複素環誘導体は、さらに好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物である。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記式 (B) と (C) もしくは上記式 (B) と下記式 (D) を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物が好ましい。

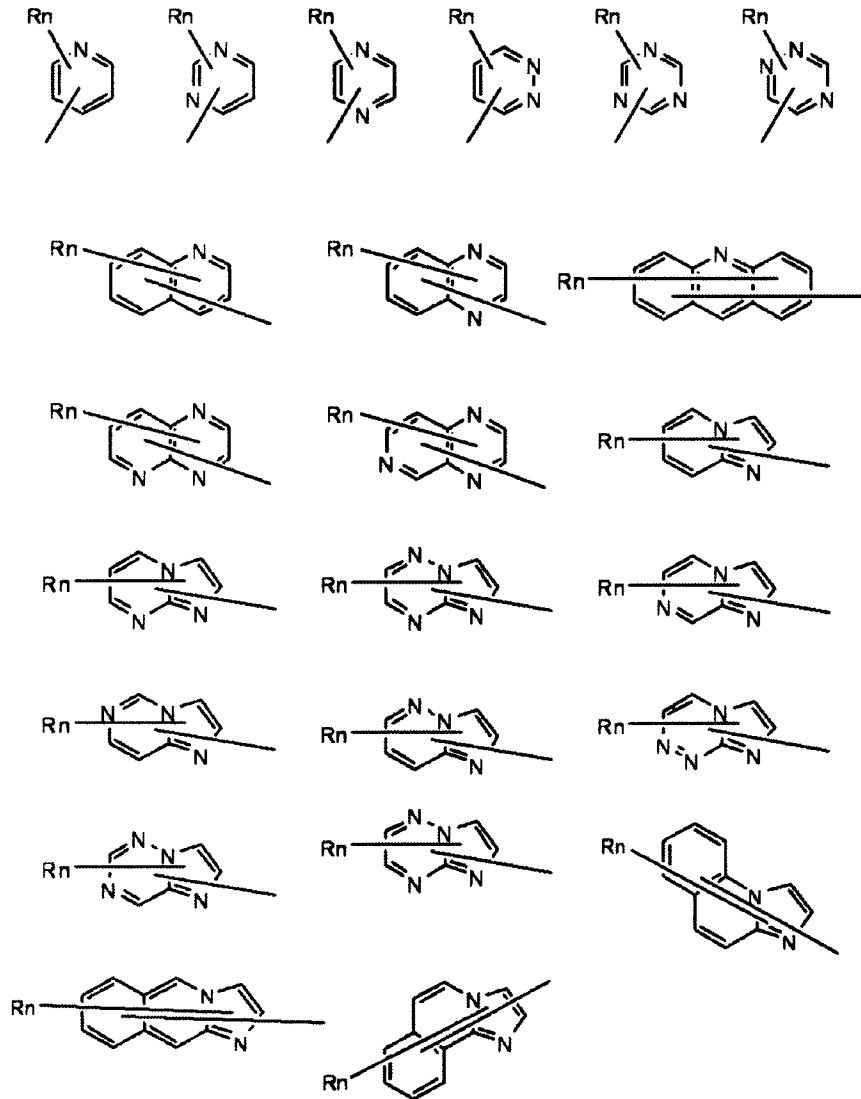
[0143] [化69]



[0144] 前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の一般式で表される含窒素複素環基から選択される。

[0145]

[化70]



[0146] 前記各式中、Rは、炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、炭素数1～20のアルキル基、または炭素数1～20のアルコキシ基であり、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は互いに同一又は異なってもよい。

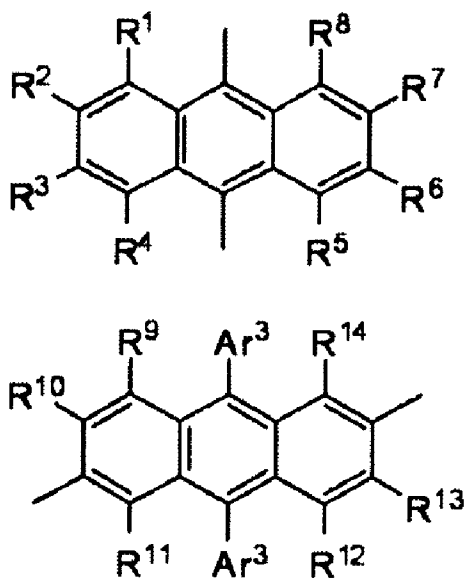
[0147] さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。

[化72]



[0150] Ar¹は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。

[化73]

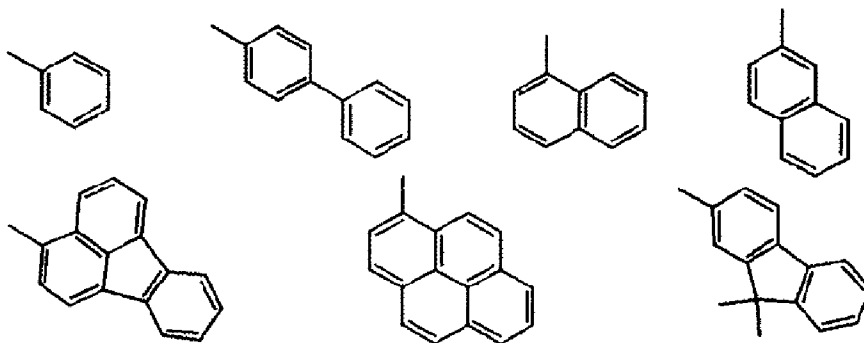


[0151] 前記式中、R¹～R¹⁴は、それぞれ独立して、水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の

炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、 $A r^3$ は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基または置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。また、 $R^1 \sim R^8$ は、いずれも水素原子又は重水素原子である含窒素複素環誘導体であってもよい。

[0152] $A r^2$ は、例えば、下記の群から選択される。

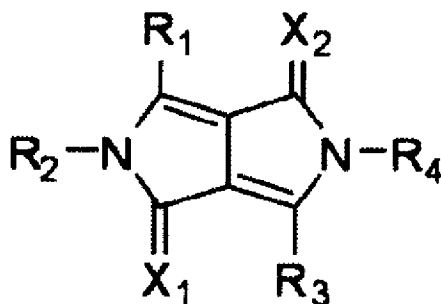
[化74]



[0153] 電子伝達性化合物としての含窒素芳香多環有機化合物には、この他、下記の化合物も好適に用いられる。

[0154]

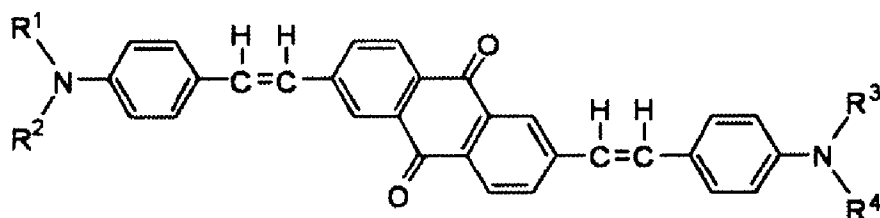
[化75]



[0155] 前記式中、R₁～R₄は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20の脂肪族基、置換もしくは無置換の炭素数3～20の脂肪族式環基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の芳香族環基、置換もしくは無置換の炭素数3～50の複素環基を表し、X₁、X₂は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、またはジシアノメチレン基を表す。

[0156] また、電子伝達性化合物として、下記の化合物も好適に用いられる。

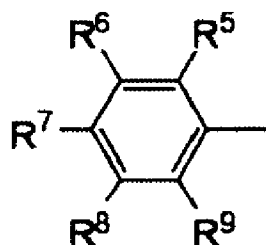
[化76]



[0157] 前記式中、R¹、R²、R³及びR⁴は互いに同一のまたは異なる基であって、

下記式で表わされる芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である。

[化77]

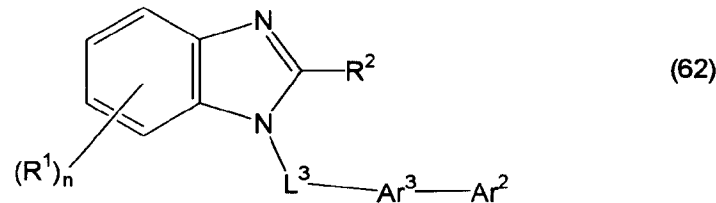
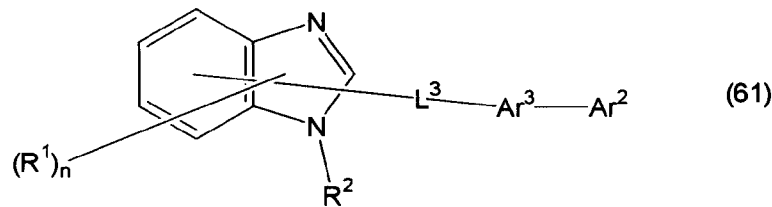
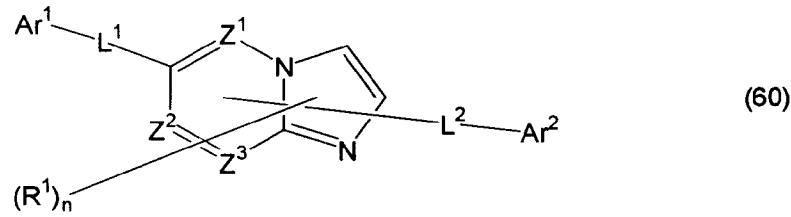


[0158] 前記式中、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸及びR⁹は互いに同一または異なる基であって、水素原子、重水素原子、飽和もしくは不飽和の炭素数1～20のアルコキシ基、飽和もしくは不飽和の炭素数1～20のアルキル基、アミノ基、または炭素数1～20のアルキルアミノ基である。R⁵、R⁶、R⁷、R⁸及びR⁹の少なくとも1つは水素原子、重水素原子以外の基である。

[0159] さらに、電子伝達性化合物は、該含窒素複素環基または含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

[0160] 本発明の有機EL素子の電子輸送層は、下記式(60)～(62)で表される含窒素複素環誘導体を少なくとも1種含むことが特に好ましい。

[化78]



[0161] (式中、 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環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、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1～20のハロアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数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もよい。また、隣接する2つの R^1 同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の炭化水素環を形成していてもよい。

Ar^1 は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基である。

Ar^2 は、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1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換

換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 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環形成炭素数 10～50 の縮合芳香族炭化水素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 9～50 の縮合芳香族複素環基である。

$A r^3$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 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環形成炭素数 6～50 のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 9～50 の 2 価の縮合芳香族複素環基である。)

[0162] 環形成炭素数 6～50 のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、クリセニル基、ピレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、トリル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基としては、ピローリル基、フリル基、チエニル基、シローリル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、イミダゾリル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、セレノフェニル基、オキサジアゾリル基、トリアゾーリル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キノキサリニル基、アクリジニル基、イミダゾ [1, 2-a] ピリジニル基、イミダゾ [1, 2-a] ピリミジニル基などが挙げられる。

炭素数 1～20 のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられる。

炭素数 1～20 のハロアルキル基としては、前記アルキル基の 1 又は 2 以上の水素原子をフッ素、塩素、ヨウ素および臭素から選ばれる少なくとも 1 のハロゲン原子で置換して得られる基が挙げられる。

炭素数 1～20 のアルコキシ基としては、前記アルキル基をアルキル部位

としては有する基が挙げられる。

環形成炭素数6～50のアリーレン基としては、前記アリール基から水素原子1個を除去して得られる基が挙げられる。

環形成原子数9～50の2価の縮合芳香族複素環基としては、前記ヘテロアリール基として記載した縮合芳香族複素環基から水素原子1個を除去して得られる基が挙げられる。

[0163] 電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは1nm～100nmである。

[0164] また、電子輸送層に隣接して設けることができる電子注入層の構成成分として、含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、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。

[0165] このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、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ニド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点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、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ニドとしては、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 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

[0166] また、半導体としては、 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Sb 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

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ていれば、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、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、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。

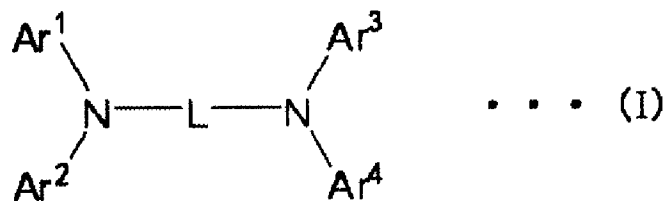
[0167] このような絶縁体又は半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、0.1 nm～15 nm程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の電子供与性ドーパントを含有していても好ましい。

[0168] (正孔輸送層)

発光層と陽極との間に形成される有機層であって、正孔を陽極から発光層へ輸送する機能を有する。正孔輸送層が複数層で構成される場合、陽極に近い有機層を正孔注入層と定義することがある。正孔注入層は、陽極から正孔を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

[0169] 正孔輸送層を形成する他の材料としては、芳香族アミン化合物、例えば、下記一般式(1)で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

[化79]



[0170] 前記一般式(1)において、Ar¹～Ar⁴は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは

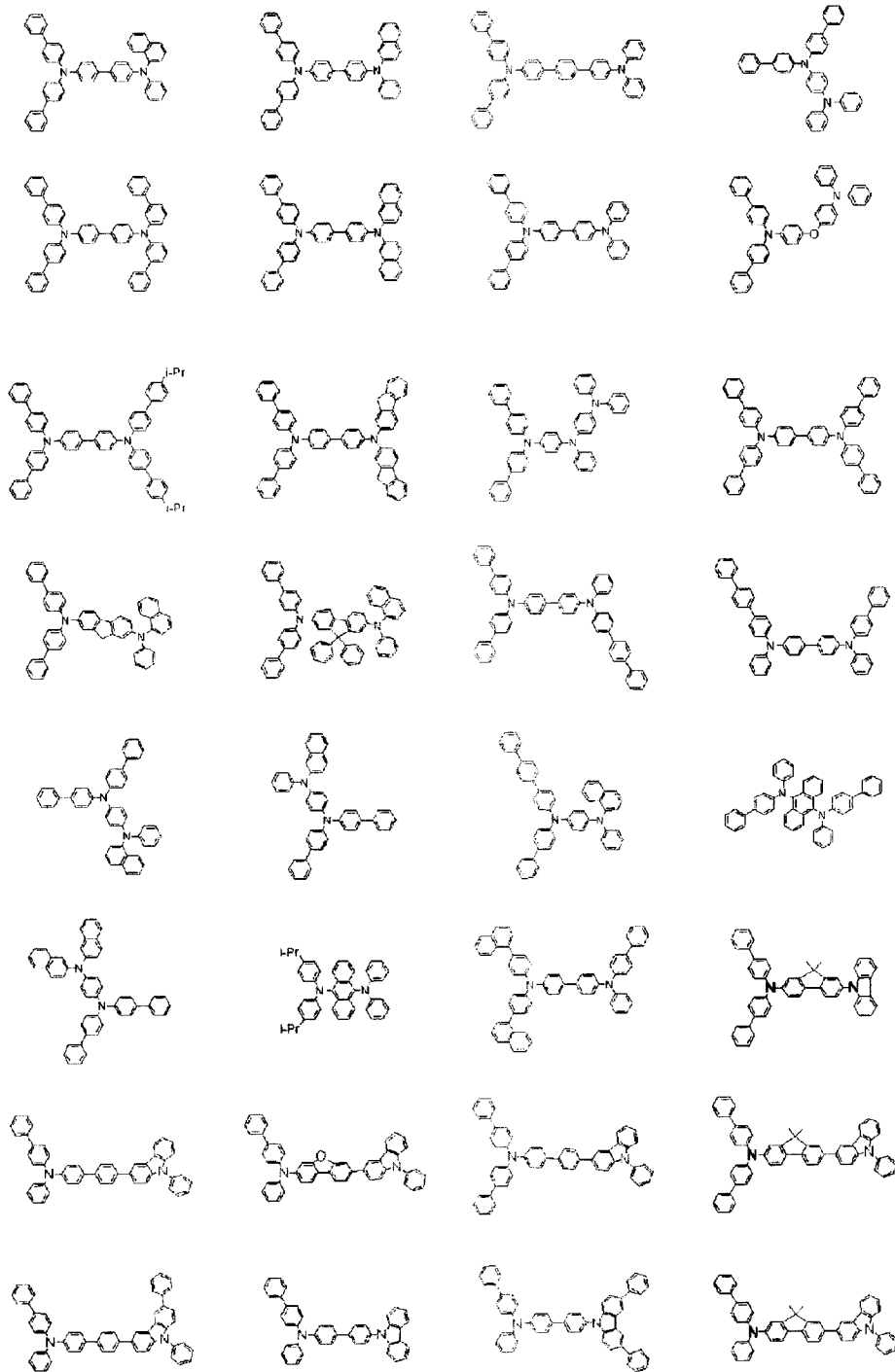
無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、
または、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環
基又は縮合芳香族複素環基が結合した基を表す。

また、前記一般式 (1) において、L は置換もしくは無置換の環形成炭素
数 6 ～ 50 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は置換もしく
は無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基
を表す。

[0171] 一般式 (1) の化合物の具体例を以下に記す。

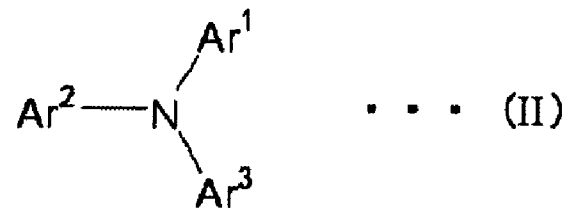
[0172]

[化80]



[0173] また、下記式 (I I) の芳香族アミンも正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

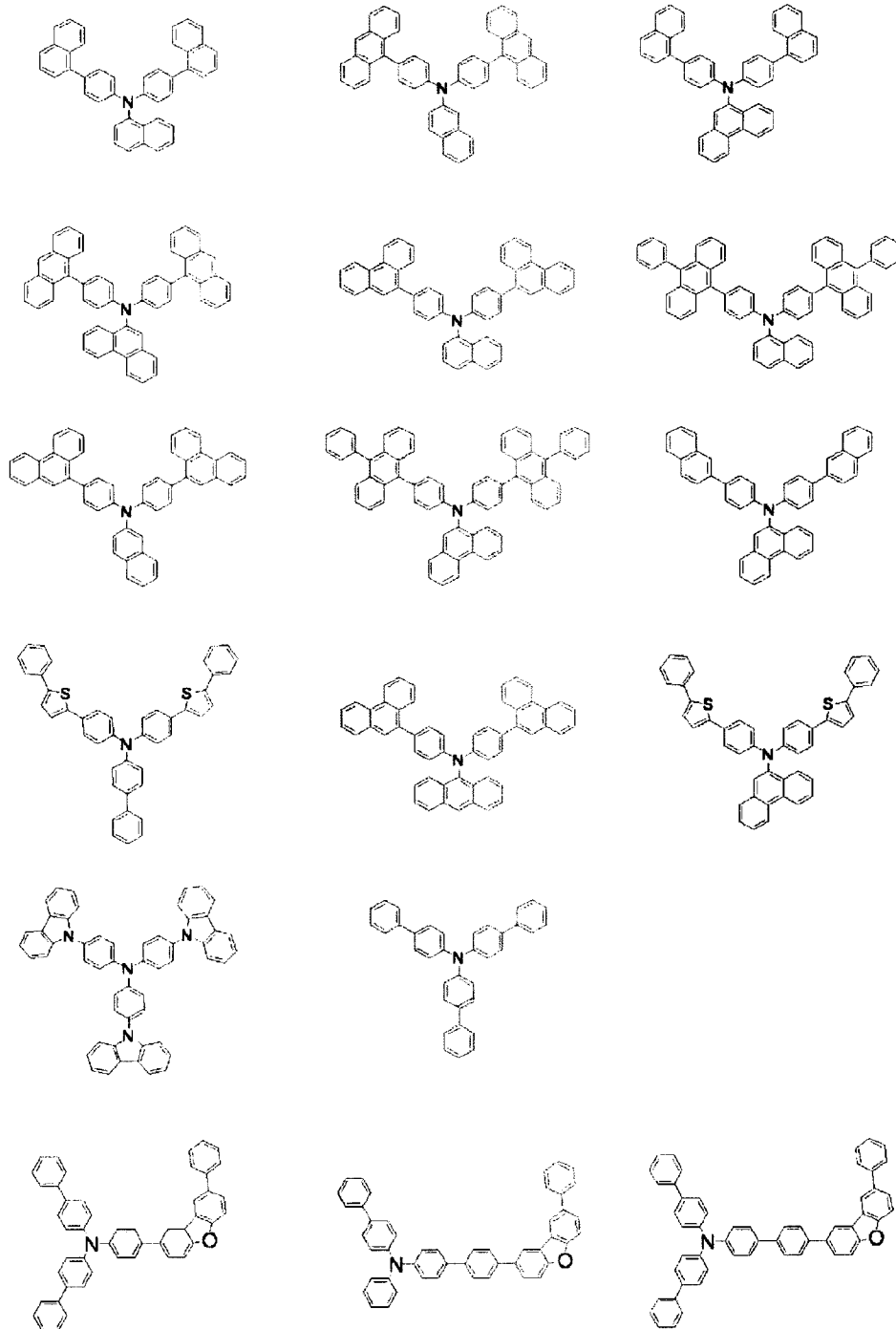
[0174] [化81]



[0175] 前記式 (I I) において、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ の定義は前記一般式 (I) の $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ の定義と同様である。以下に一般式 (I I) の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

[0176]

[化82]



[0177] 本発明の有機EL素子の正孔輸送層は第1正孔輸送層（陽極側）と第2正孔輸送層（陰極側）の2層構造にしてもよい。

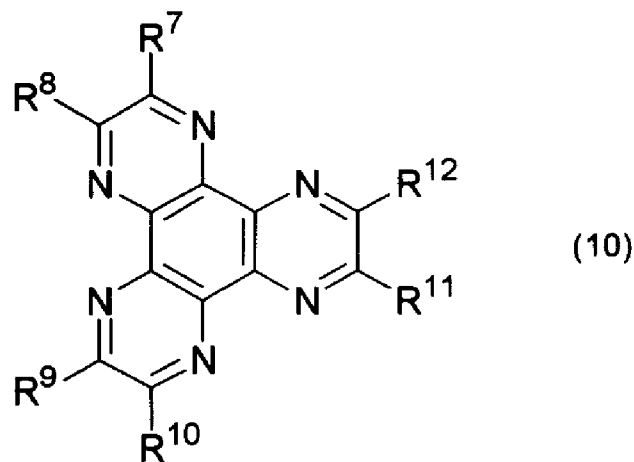
[0178] 正孔輸送層の膜厚は特に限定されないが、10～200nmであるのが好

ましい。

[0179] 本発明の有機EL素子では、正孔輸送層または第1正孔輸送層の陽極側に電子受容性化合物を含有する層を接合してもよい。これにより駆動電圧の低下及び製造コストの低減が期待される。

[0180] 前記電子受容性化合物としては下記式(10)で表される化合物が好ましい。

[化83]



[0181] (上記式(10)中、 $R^7 \sim R^{12}$ は同一でも異なっていてもよく、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシル基、又は $-\text{COOR}^{13}$ (R^{13} は炭素数1~20のアルキル基又は炭素数3~20のシクロアルキル基)を表す。ただし、 R^7 及び R^8 、 R^9 及び R^{10} 、及び R^{11} 及び R^{12} の1又は2以上の対が一緒になって $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を表してもよい。)

[0182] R^{13} としては、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、 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。

[0183] 電子受容性化合物を含有する層の膜厚は特に限定されないが、5~20 nmであるのが好ましい。

[0184] (n/p ドーピング)

上述の正孔輸送層や電子輸送層においては、特許第3695714号明細書に記載されているように、ドナー性材料のドーピング（n）やアクセプター性材料のドーピング（p）により、キャリア注入能を調整することができる。

nドーピングの代表例としては、電子輸送材料にLiやCs等の金属をドーピングする方法が挙げられ、pドーピングの代表例としては、正孔輸送材料にF₄T CNQ等のアクセプター材料をドーピングする方法が挙げられる。

[0185] （スペース層）

上記スペース層とは、例えば、蛍光発光層と燐光発光層とを積層する場合に、燐光発光層で生成する励起子を蛍光発光層に拡散させない、あるいは、キャリアバランスを調整する目的で、蛍光発光層と燐光発光層との間に設けられる層である。また、スペース層は、複数の燐光発光層の間に設けることもできる。

スペース層は発光層間に設けられるため、電子輸送性と正孔輸送性を兼ね備える材料であることが好ましい。また、隣接する燐光発光層内の三重項エネルギーの拡散を防ぐため、三重項エネルギーが2.6 eV以上であることが好ましい。スペース層に用いられる材料としては、上述の正孔輸送層に用いられるものと同様のものが挙げられる。

[0186] （障壁層）

本発明の有機EL素子は、発光層に隣接する部分に、電子障壁層、正孔障壁層、トリプレット障壁層といった障壁層を有することが好ましい。ここで、電子障壁層とは、発光層から正孔輸送層へ電子が漏れることを防ぐ層であり、正孔障壁層とは、発光層から電子輸送層へ正孔が漏れることを防ぐ層である。

トリプレット障壁層は、後述するように、発光層で生成する三重項励起子が、周辺の層へ拡散することを防止し、三重項励起子を発光層内に閉じ込めることによって三重項励起子の発光ドープメント以外の電子輸送層の分子上でのエネルギー失活を抑制する機能を有する。

トリプレット障壁層を設ける場合、発光層中の燐光発光性ドーパントの三重項エネルギーを E^T_d 、トリプレット障壁層として用いる化合物の三重項エネルギーを E^T_{TB} とすると、 $E^T_d < E^T_{TB}$ のエネルギー大小関係であれば、エネルギー関係上、燐光発光性ドーパントの三重項励起子が閉じ込められ（他分子へ移動できなくなり）、該ドーパント上で発光する以外のエネルギー失活経路が断たれ、高効率に発光することができると推測される。ただし、 $E^T_d < E^T_{TB}$ の関係が成り立つ場合であってもこのエネルギー差 $\Delta E^T = E^T_{TB} - E^T_d$ が小さい場合には、実際の素子駆動環境である室温程度の環境下では、周辺の熱エネルギーにより吸熱的にこのエネルギー差 ΔE^T を乗り越えて三重項励起子が他分子へ移動することが可能であると考えられる。特に燐光発光の場合は蛍光発光に比べて励起子寿命が長いため、相対的に吸熱的励起子移動過程の影響が現れやすくなる。室温の熱エネルギーに対してこのエネルギー差 ΔE^T は大きい程好ましく、0.1 eV以上であるとさらに好ましく、0.2 eV以上であると特に好ましい。

[0187] 本発明における三重項エネルギーとは、以下のようにして測定する。

まず、試料をEPA溶媒（ジエチルエーテル：イソペンタン：エタノール＝5：5：2（容積比））に10 μmol/Lで溶解させ、燐光測定用試料とする。この燐光測定用試料を石英セルに入れ、温度77 Kで励起光を照射し、放射される燐光の燐光スペクトルを測定する。これを基に換算式 E^T (eV) = 1239.85 / λ_{edge} によって求めた値と定義する。「 λ_{edge} 」とは、縦軸にりん光強度、横軸に波長をとって、りん光スペクトルを表したときに、りん光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸の交点の波長値（単位：nm）を意味する。

発光層の宿主材料としては、 $A_b - A_h \leq 0.1$ eVとなるものが好ましい。ここで、 A_b は障壁層材料のアフィニティーを表し、 A_h は発光層宿主材料のアフィニティーを表す。

本発明におけるアフィニティー A_f （電子親和力）とは、材料の分子に電子を一つ与えた時に放出または吸収されるエネルギーをいい、放出の場合は正

、吸収の場合は負と定義する。アフィニティ A_f は、イオン化ポテンシャル I_p と光学エネルギーギャップ $E_g(S)$ とにより次のように規定する。

$$A_f = I_p - E_g(S)$$

ここで、イオン化ポテンシャル I_p は、各材料の化合物から電子を取り去ってイオン化するために要するエネルギーを意味し、本発明では大気中光電子分光装置（AC-3、理研計器株式会社製）で測定した正の符号を持つ値である。光学エネルギーギャップ $E_g(S)$ は、伝導レベルと価電子レベルとの差をいい、本発明では各材料のジクロロメタン希薄溶液の紫外・可視光吸収スペクトルの長波長側接線とベースライン（吸収ゼロ）との交点の波長値をエネルギーに換算して求めた正の符号を持つ値である。

また、トリプレット障壁層を構成する材料の電子移動度は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。有機材料の電子移動度の測定方法としては、Time of Flight法等幾つかの方法が知られているが、ここではインピーダンス分光法で決定される電子移動度をいう。

電子注入層は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。これにより陰極からの電子輸送層への電子注入が促進され、ひいては隣接する障壁層、発光層への電子注入も促進し、より低電圧での駆動を可能にするためである。

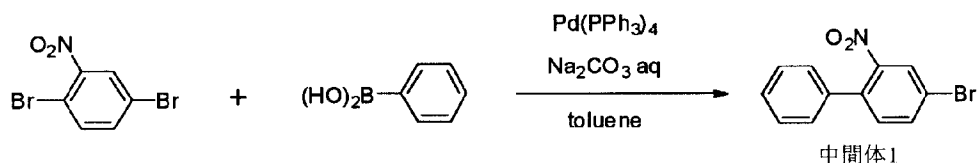
実施例

[0188] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらにより何ら限定されるものではない。

[0189] 合成例 1

(中間体 1 の合成)

[化84]

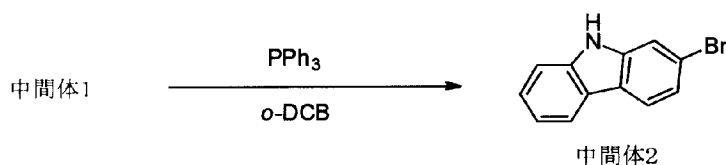


[0190] アルゴン気流下、2-ニトロ-1,4-ジブロモベンゼン (11.2 g、40 mmol)、フェニルボロン酸 (4.9 g、40 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (1.39 g、1.2 mmol)、トルエン (120 mL)、2 M炭酸ナトリウム水溶液 (60 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体1 (6.6 g、収率59%) を得た。FD-MS (フィールドディソープシオンマスペクトル) の分析により、中間体1と同一した。

[0191] (中間体2の合成)

[化85]



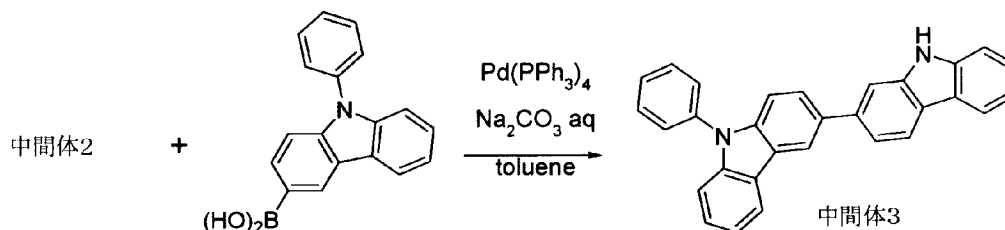
アルゴン気流下、中間体1 (6.6 g、23.7 mmol)、トリフェニルホスフィン (15.6 g、59.3 mmol)、o-ジクロロベンゼン (24 mL) を順次加えて8時間180°Cで加熱した。

室温まで反応液を冷却した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体2 (4 g、収率68%) を得た。FD-MS (フィールドデ

イソープシヨンマススペクトル) の分析により、中間体 2 と同定した。

[0192] (中間体 3 の合成)

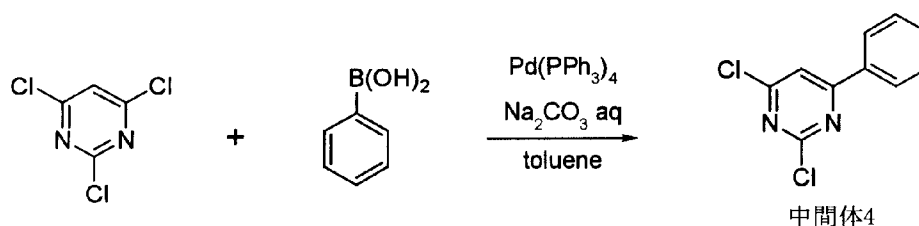
[化86]



[0193] 中間体 1 の合成において、2-ニトロ-1,4-ジブロモベンゼンの代わりに中間体 2 を用い、フェニルボロン酸の代わりに 9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。FD-MS (フィールドディソープシヨンマススペクトル) の分析により、中間体 3 と同定した。

[0194] (中間体 4 の合成)

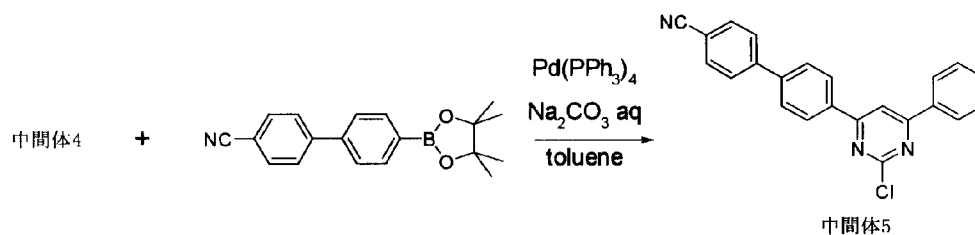
[化87]



[0195] 中間体 1 の合成において、2-ニトロ-1,4-ジブロモベンゼンの代わりに 2,4,6-トリクロロピリミジンを用いて同様の方法で合成した。FD-MS (フィールドディソープシヨンマススペクトル) の分析により、中間体 8 (⇒中間体 4) と同定した。

[0196] (中間体 5 の合成)

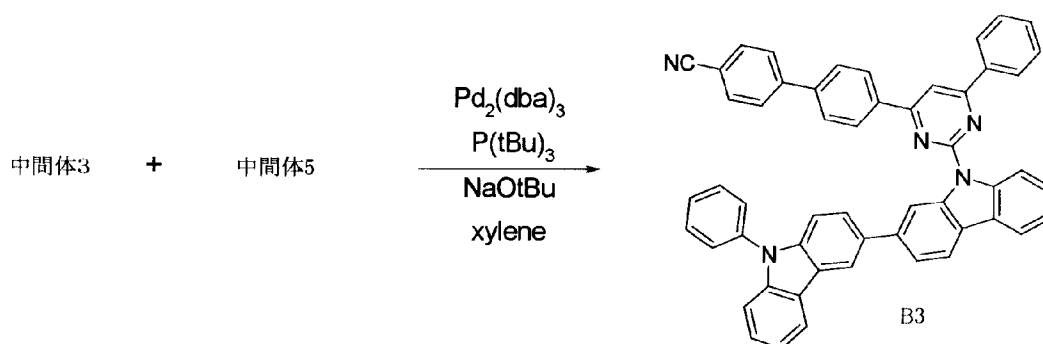
[化88]



[0197] 中間体 1 の合成において、2-ニトロ-1,4-ジブロモベンゼンの代わりに中間体 4 を用い、フェニルボロン酸の代わりに 4'-(4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル)ビフェニル-4-カルボニトリルを用いて同様の方法で合成した。FD-MS (フィールドディソープションマスペクトル) の分析により、中間体 5 と同定した。

[0198] (化合物 B 3 の合成)

[化89]



[0199] アルゴン気流下、中間体 3 (6.93 g、17.0 mmol)、中間体 5 (7.50 g、20.4 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (623 mg、0.680 mmol)、トリー-*t*-ブチルホスフィン (343 mg、1.7 mmol)、*t*-ブトキシナトリウム (3.27 g、34.0 mmol)、無水キシレン (85 mL) を順次加えて 8 時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去し

た。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、11.1 gの淡黄色固体（化合物B3）を得た。

得られた化合物について、FD-MS（フィールドディソープションマスマスペクトル）を以下に示す。

FDMS, calcd for $C_{53}H_{33}N_5 = 739$, found $m/z = 739$ (M+)

[0200] 実施例1

（有機EL素子の作製）

25 mm × 75 mm × 1.1 mmのITO透明電極付きガラス基板（ジオマティック社製）に、イソプロピルアルコール中で5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV（Ultraviolet）オゾン洗浄を施した。

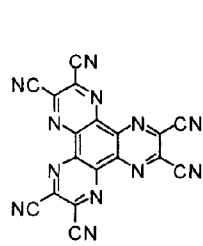
洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして下記電子受容性化合物（A）を蒸着し、膜厚5 nmのA膜を成膜した。このA膜上に、第1正孔輸送材料として下記芳香族アミン誘導体（X1）を蒸着し、膜厚120 nmの第1正孔輸送層を成膜した。第1正孔輸送層の成膜に続けて、第2正孔輸送材料として下記カルバゾール誘導体（H1）を蒸着し、膜厚47 nmの第2正孔輸送層を成膜した。

この正孔輸送層上に、りん光用ホストである化合物（B1）とりん光用ドープメントであるIr(ppp)₃とを厚さ40 nmで共蒸着し、りん光発光層を得た。Ir(ppp)₃の濃度は、10質量%であった。

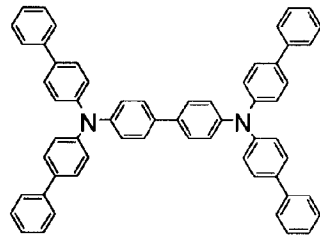
続いて、このりん光発光層上に、厚さ20 nmの化合物（C）、厚さ1 nmのLiF、厚さ80 nmの金属Alを順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極であるLiFについては、1 Å/minの速度で形成した。

[0201]

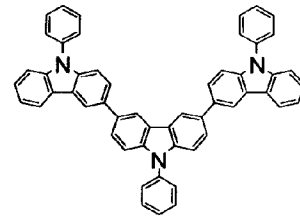
[化90]



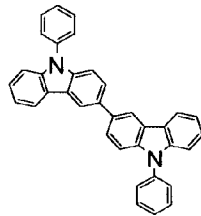
(A)



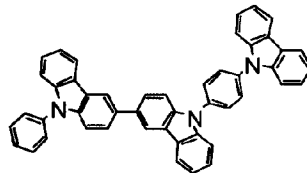
(X1)



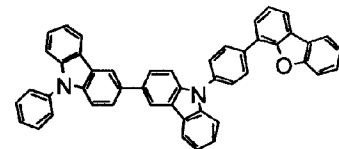
(H1)



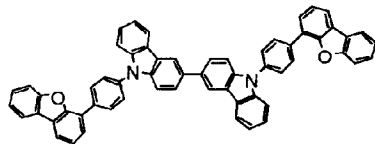
(H2)



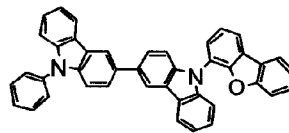
(H3)



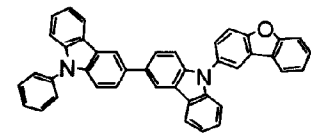
(H4)



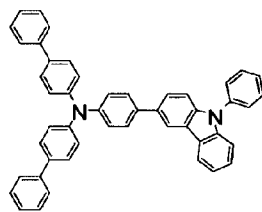
(H5)



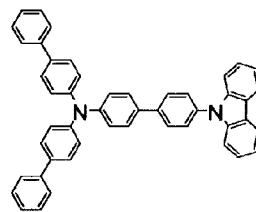
(H6)



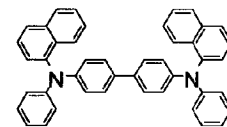
(H7)



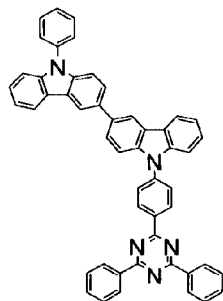
(H8)



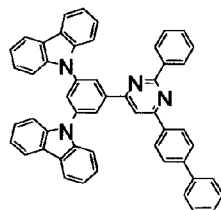
(H9)



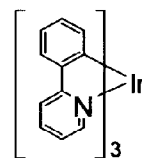
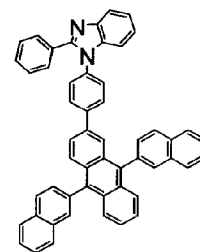
(H10)



(B1)



(B2)

Ir(ppy)₃

(C)

[0202] (有機EL素子の発光性能評価)

以上のように作製した有機EL素子を直流電流駆動により発光させ、輝度(L)、電流密度を測定し、電流密度10mA/cm²における電流効率(L

／J)、駆動電圧(V)を求めた。

さらに初期輝度5200cd/m²における素子寿命を求めた。結果を表1に示す。

[0203] 実施例2～7

(有機EL素子の製造及び発光性能評価)

実施例1において、第2正孔輸送材料としてカルバゾール誘導体(H1)の代わりに、表1に示すものを用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製し、その発光性能を評価した。結果を表1に示す。

[0204] 比較例1～6

(有機EL素子の製造及び発光性能評価)

実施例1において、第2正孔輸送材料としてカルバゾール誘導体(H1)の代わりに、表1に示す正孔輸送材料を用い、りん光用ホストである化合物(B1)の代わりに、表1に示すホスト材料を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製し、その発光性能を評価した。結果を表1に示す。

[0205] [表1]

表 1

	正孔輸送材料	ホスト材料	測定結果		
			発光効率 (cd/A) @10mA/cm ²	駆動電圧(V) @10mA/cm ²	90%寿命 (時間)
実施例 1	H1	B1	62.6	3.8	466
実施例 2	H2	B1	66.7	4.9	634
実施例 3	H3	B1	66.8	4.9	623
実施例 4	H4	B1	62.1	4.5	458
実施例 5	H5	B1	61.2	4.6	433
実施例 6	H6	B1	67.4	5.0	565
実施例 7	H7	B1	65.0	4.2	445
比較例 1	H1	B2	65.0	3.9	111
比較例 2	H5	B2	64.1	5.0	231
比較例 3	H8	B1	60.8	4.1	213
比較例 4	H8	B2	64.8	4.2	98
比較例 5	H9	B1	57.7	4.2	10
比較例 6	H10	B1	35.5	4.6	118

[0206] 上記正孔輸送材料及びホスト材料につき、イオン化ポテンシャル (I_p) 及び三重項エネルギーの測定結果を表 2 に示す。

[0207] [表2]

表 2

	化合物	I_p (eV)	$E_g(T)$ (eV)
正孔輸送材料	H1	5.5	2.8
	H2	5.6	2.9
	H3	5.6	2.9
	H4	5.7	2.8
	H5	5.7	2.8
	H6	5.7	2.9
	H7	5.6	2.9
	H8	5.5	2.6
	H9	5.6	2.6
	H10	5.5	2.5
ホスト材料	B1	5.7	2.8
	B2	6.1	2.7

[0208] 表 1 より、実施例 1～7 において製造された本発明の有機 EL 素子は、比較例 1～6 において製造された従来の有機 EL 素子に比べ、長寿命であることがわかる。

また、実施例 1 と比較例 1、あるいは実施例 5 と比較例 2 の比較により、ホストとして B 2 よりも B 1 を使用する方が、有機 EL 素子が低電圧化、長寿命化することがわかる。実施例で正孔輸送材料として用いるカルバゾール誘導体は、正孔輸送性が低い、ホスト化合物 B 1 は正孔輸送性が高いため、両者を組み合わせることにより発光層内のキャリアバランスが向上するため、低電圧、長寿命であると考えられる。一方、ホスト化合物 B 2 は電子輸送性が高く、発光層内のキャリアバランスが崩れる結果、比較例 1、及び 2 に見られるように高電圧、短寿命であると考えられる。

比較例 3、及び 4 においては、正孔輸送材料 H 8 の正孔輸送性が高いため、B 1 を用いることによる低電圧効果は抑えられるが、B 1 の正孔輸送性が高いため長寿命化すると考えられる。

[0209] 実施例 8

(有機EL素子の作製)

25 mm×75 mm×1.1 mmのITO透明電極付きガラス基板（ジオマティック社製）に、イソプロピルアルコール中で5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV（Ultraviolet）オゾン洗浄を施した。

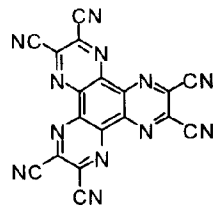
洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして下記電子受容性化合物（A）を蒸着し、膜厚5 nmのA膜を成膜した。このA膜上に、第1正孔輸送材料として下記芳香族アミン誘導体（X2）を蒸着し、膜厚65 nmの第1正孔輸送層を成膜した。第1正孔輸送層の成膜に続けて、第2正孔輸送材料として下記カルバゾール誘導体（H1）を蒸着し、膜厚10 nmの第2正孔輸送層を成膜した。

この正孔輸送層上に、りん光用ホストである化合物（B3）とりん光用ドープアントであるIr(bzq)₃とを厚さ25 nmで共蒸着し、りん光発光層を得た。Ir(bzq)₃の濃度は、10質量%であった。

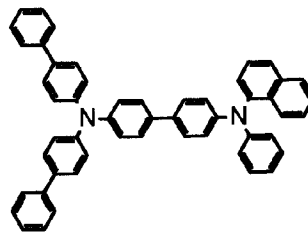
続いて、このりん光発光層上に、厚さ35 nmの化合物（C2）、厚さ1 nmのLiF、厚さ80 nmの金属Alを順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極であるLiFについては、1 Å/minの速度で形成した。

[0210]

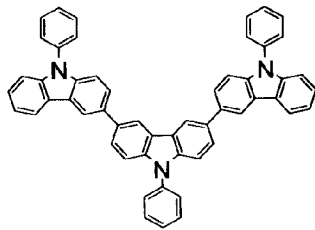
[化91]



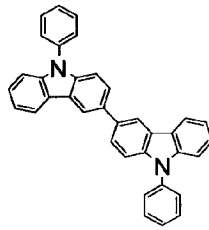
(A)



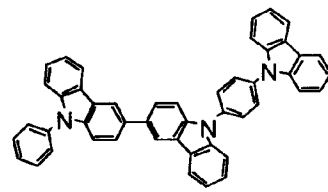
(X2)



(H1)



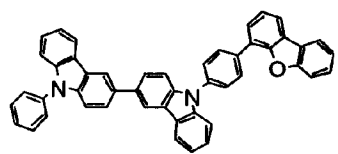
(H2)



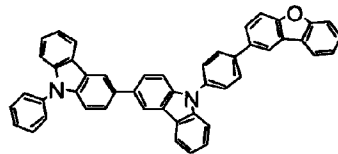
(H3)

[0211]

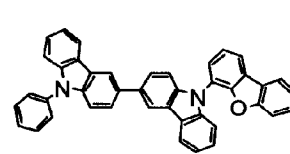
[化92]



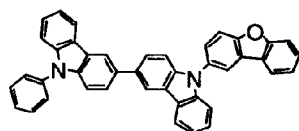
(H4)



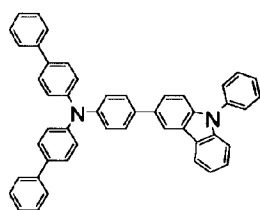
(H5)



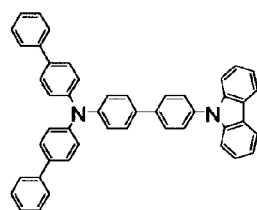
(H6)



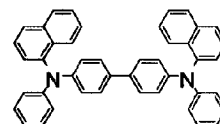
(H7)



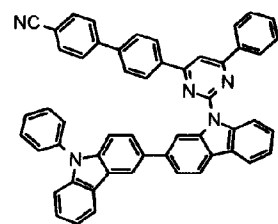
(H8)



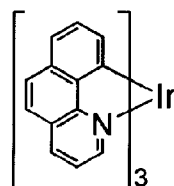
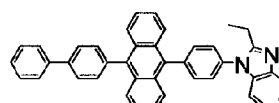
(H9)



(H10)



(B3)

Ir(bzq)₃

(C2)

[0212] (有機EL素子の発光性能評価)

以上のように作製した有機EL素子を直流電流駆動により発光させ、輝度 (cd/m^2)、電流密度を測定し、電流密度 $10 \text{ mA}/\text{cm}^2$ における発光効率 (cd/A)、駆動電圧 (V) を求めた。さらに電流密度 $50 \text{ mA}/\text{cm}^2$ における初期輝度の80%となる素子寿命を求めた。結果を表3に示す。

[0213] 実施例9~14

(有機EL素子の製造及び発光性能評価)

実施例8において、第2正孔輸送材料としてカルバゾール誘導体(H1)

の代わりに、表3に示すものを用いた以外は、実施例8と同様にして有機EL素子を作製し、その発光性能を評価した。結果を表3に示す。

[0214] 比較例7～9

(有機EL素子の製造及び発光性能評価)

実施例8において、第2正孔輸送材料としてカルバゾール誘導体(H1)の代わりに、表3に示す正孔輸送材料を用いた以外は、実施例8と同様にして有機EL素子を作製し、その発光性能を評価した。結果を表3に示す。

[0215] [表3]

表3

		正孔輸送材料	ホスト材料	測定結果		
				発光効率 (cd/A) @10mA/cm ²	駆動電圧 (V) @10mA/cm ²	80%寿命 (時間)
実施例	8	H1	B3	65.4	3.1	360
	9	H2	B3	68.3	3.5	450
	10	H3	B3	67.8	3.5	440
	11	H4	B3	64.9	3.2	350
	12	H5	B3	64.5	3.2	340
	13	H6	B3	68.4	3.6	430
	14	H7	B3	67.9	3.0	340
比較例	7	H8	B3	60.5	3.0	245
	8	H9	B3	65.2	3.0	10
	9	H10	B3	57.5	3.2	250

[0216] 表3より、実施例8～14において製造された本発明の有機EL素子は、比較例7～9において製造された有機EL素子に比べ、長寿命であることがわかる。

産業上の利用可能性

[0217] 本発明の有機EL素子は、長寿命であり、低電圧での駆動が可能である。

符号の説明

- [0218]
- 1 有機エレクトロルミネッセンス素子
 - 2 基板

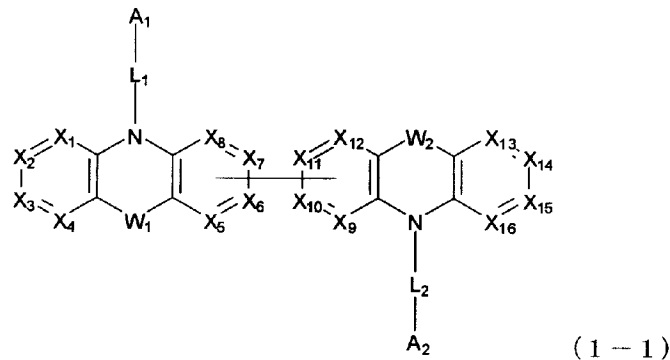
- 3 陽極
- 4 陰極
- 5 発光層
- 6 正孔輸送層
- 7 電子輸送層
- 10 発光ユニット

請求の範囲

[請求項1]

対向する陽極と陰極との間に、前記陽極側から、第一有機薄膜層と第二有機薄膜層とをこの順に備え、該第一有機薄膜層は下記式(1-1)で表される芳香族複素環誘導体Aを含み、該第二有機薄膜層は下記式(2-1)で表される芳香族複素環誘導体Bを含み、かつ、該芳香族複素環誘導体Aと芳香族複素環誘導体Bとは、互いに異なるものであることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]



[式(1-1)において、

W_1 及び W_2 は、それぞれ独立に、単結合、 CR_1R_2 又は SiR_1R_2 を表わす。

R_1 及び R_2 は、それぞれ独立に、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3~20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7~30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリール基を表す。

A_1 及び A_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6~30のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2~30のヘテロアリール基を表す。

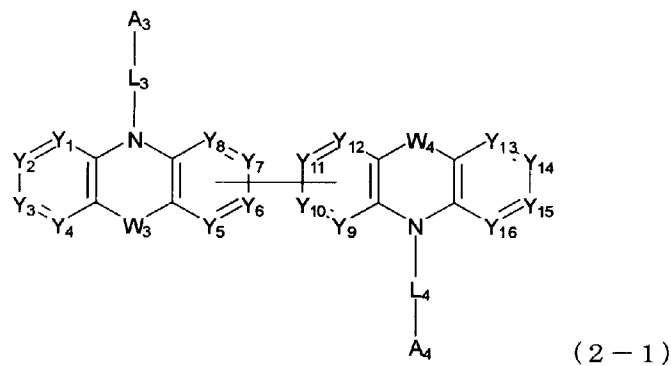
L_1 及び L_2 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環

形成炭素数6～30のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリーレン基を表す。

$X_1 \sim X_{16}$ のうち、 $X_5 \sim X_8$ のうち一つと、 $X_9 \sim X_{12}$ のうち一つは、互いに結合する炭素原子を表し、それ以外の $X_1 \sim X_{16}$ は、それぞれ独立に、 CR_3 または窒素原子を表す。

R_3 は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～10のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基であるか、隣接する R_3 同士が互いに結合し、環構造を形成する。]

[化2]



[式(2-1)において、

W_3 及び W_4 は、それぞれ独立に、単結合、 CR_4R_5 又は SiR_4R_5 を表わす。

R_4 及び R_5 は、それぞれ独立に、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 3～20 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 7～30 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリール基を表す。

L_3 及び L_4 は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリーレン基を表す。

$Y_1 \sim Y_{16}$ のうち、 $Y_5 \sim Y_8$ のうち一つと、 $Y_9 \sim Y_{12}$ のうち一つは、互いに結合する炭素原子を表し、それ以外の $Y_1 \sim Y_{16}$ は、それぞれ独立に、 CR_6 または窒素原子を表す。

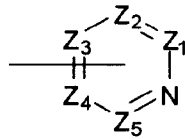
R_6 は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3～20 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～10 のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 6～30 のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 7～30 のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリール基であるか、隣接する R_6 同士が互いに結合し、環構造を形成する。

A_3 及び A_4 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 2～30 のヘテロアリール基を表す。]

[請求項2]

前記 A_3 及び A_4 の少なくとも 1 つが下記式 (2-a) で表わされる請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化3]



(2-a)

[式(2-a)において、

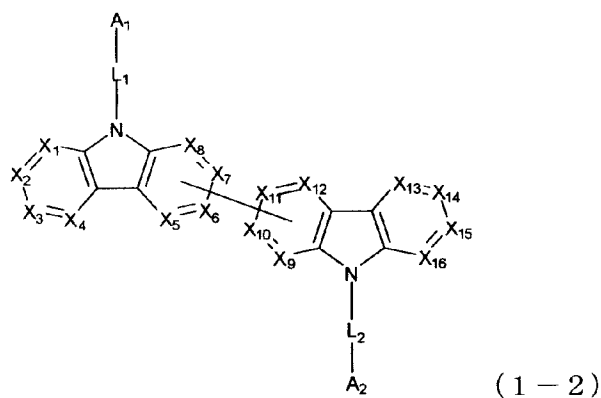
$Z_1 \sim Z_5$ は、それぞれ独立に、 CR_7 または窒素原子を表す。

R_7 はそれぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～10のアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6～30のアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は、置換もしくは無置換の環形成炭素数2～30のヘテロアリール基であるか、隣接する R_7 同士が互いに結合し、環構造を形成する。]

[請求項3]

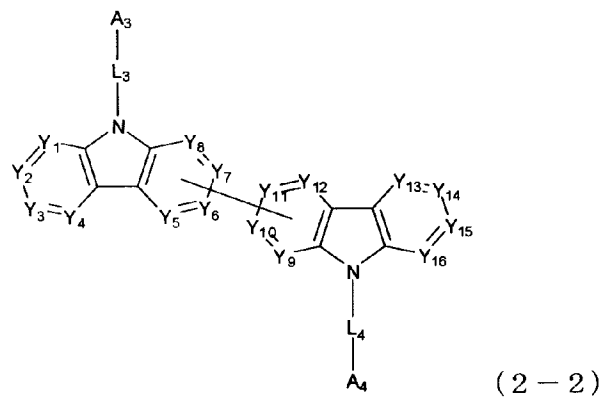
前記芳香族複素環誘導体Aが下記式(1-2)で表され、前記芳香族複素環誘導体Bが下記式(2-2)で表される請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化4]



[式(1-2)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び $X_1 \sim X_{16}$ は、式(1-1)のものと同一である。]

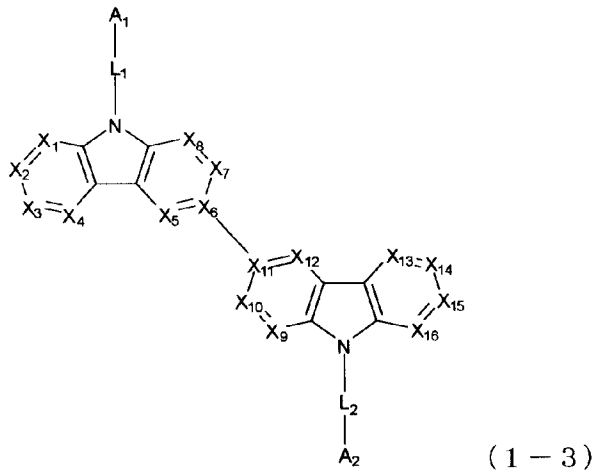
[化5]



[式(2-2)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び $Y_1 \sim Y_{16}$ は、式(2-1)のものと同一である。]

[請求項4] 前記芳香族複素環誘導体Aが下記式(1-3)で表される請求項1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

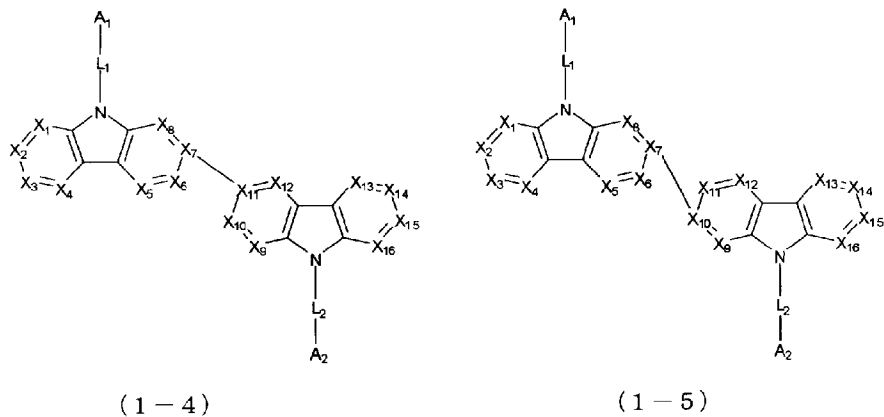
[化6]



[式(1-3)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び $X_1 \sim X_{16}$ は、式(1-1)のものと同一である。]

[請求項5] 前記芳香族複素環誘導体Aが下記式(1-4)又は(1-5)で表される請求項1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化7]

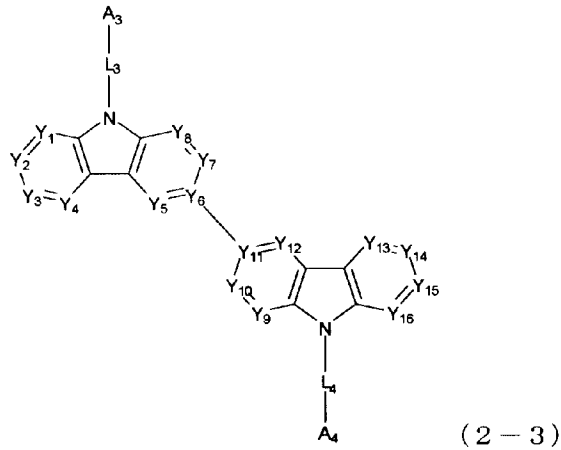


[式(1-4)及び(1-5)において、 A_1 、 A_2 、 L_1 、 L_2 及び $X_1 \sim X_{16}$ は、式(1-1)のものと同一である。]

[請求項6] 前記芳香族複素環誘導体Bが下記式(2-3)で表される請求項1

～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化8]

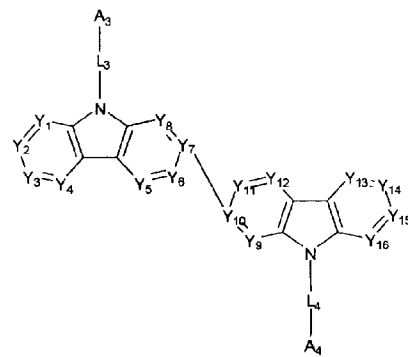
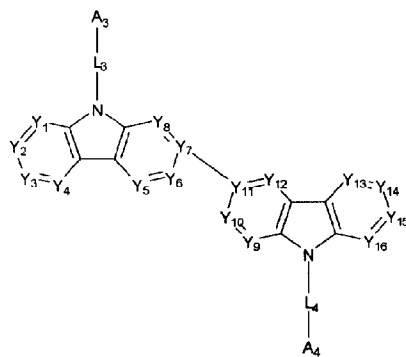


[式(2-3)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び $Y_1 \sim Y_{16}$ は、式(2-1)のものと同一である。]

[請求項7]

前記芳香族複素環誘導体Bが下記式(2-4)又は(2-5)で表される請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化9]



[式(2-4)及び(2-5)において、 A_3 、 A_4 、 L_3 、 L_4 及び $Y_1 \sim Y_{16}$ は、式(2-1)のものと同一である。]

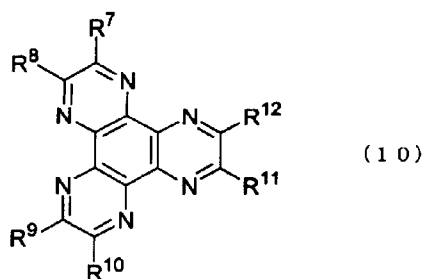
[請求項8] 前記芳香族複素環誘導体Aが前記式(1-3)で表され、前記芳香族複素環誘導体Bが前記式(2-3)で表される請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項9] 前記芳香族複素環誘導体Aが前記式(1-3)で表され、前記芳香族複素環誘導体Bが前記式(2-4)又は前記式(2-5)で表される請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項10] 前記A₁及びA₂の少なくとも1つが、置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基または置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基である請求項1~9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項11] 前記第一有機薄膜層に、下記式(10)で表される化合物を含有する層が接合されている請求項1~10のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化10]



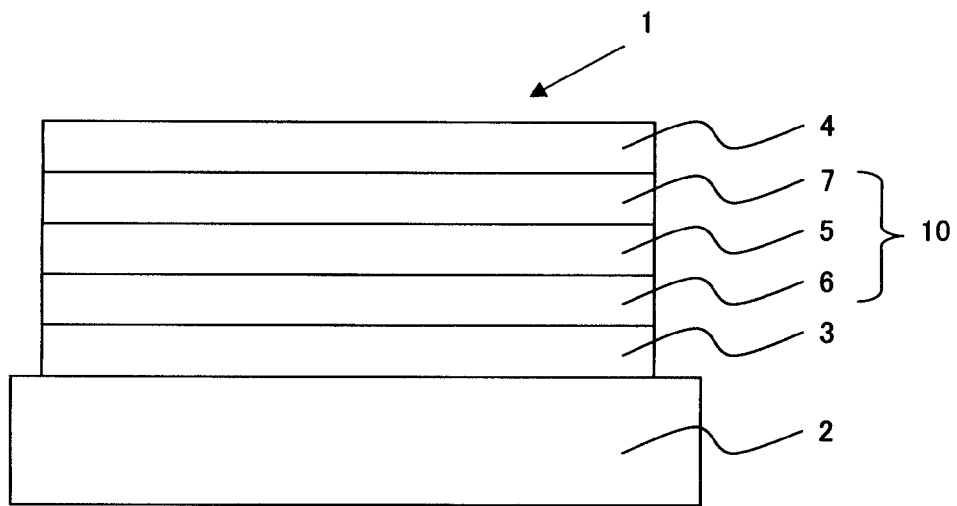
(式(10)中、R⁷~R¹²は、それぞれ独立にシアノ基、-CONH₂、カルボキシ基、もしくは-COOR¹³(R¹³は、炭素数1~20のアルキル基である)であるか、又はR⁷及びR⁸、R⁹及びR¹⁰、又はR¹¹及びR¹²が互いに結合して-CO-O-CO-を形成する。)

[請求項12] 前記第二有機薄膜層が燐光発光性材料を含有する請求項1~11のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項13] 前記燐光発光性材料がイリジウム(Ir)、オスミウム(Os)又

は白金（Pt）金属のオルトメタル化錯体である請求項12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063163

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01) i, C09K11/06(2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50, C09K11/06

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

CA/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 A	US 2011/0260138 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORP.), 27 October 2011 (27.10.2011), paragraphs [0015] to [0026], [0148] to [0156]; table 1 & WO 2011/137072 A	1-4, 6, 8, 10 5, 7, 9, 11-13
P, X A	WO 2012/008281 A1 (Toray Industries, Inc.), 19 January 2012 (19.01.2012), paragraphs [0015] to [0045], [0143]; tables 4, 6 (Family: none)	1, 3, 4, 6, 8, 11 2, 5, 7, 9, 10, 12, 13
A	WO 2010/150593 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 29 December 2010 (29.12.2010), paragraphs [0053], [0055]; tables 1 to 4 (Family: none)	1-13

 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
25 July, 2012 (25.07.12)Date of mailing of the international search report
07 August, 2012 (07.08.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063163

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004-319441 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 11 November 2004 (11.11.2004), paragraphs [0008] to [0011] & US 2005/0147842 A1 & WO 2004/089043 A1 & TW 239220 B	1-13
A	JP 2000-38064 A (Toray Industries, Inc.), 03 March 2000 (03.03.2000), paragraph [0036] (Family: none)	1-13
A	JP 2009-302041 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 24 December 2009 (24.12.2009), paragraphs [0179] to [0189] & US 2009/0284139 A1 & EP 2120275 A2 & KR 10-2009-0119731 A	1-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2012年
日本国実用新案登録公報	1996-2012年
日本国登録実用新案公報	1994-2012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)

CA/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 A	US 2011/0260138 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 2011.10.27, 段落 [0015] - [0026], [0148] - [0156], TABLE.1 & WO 2011/137072 A	1-4, 6, 8, 10 5, 7, 9, 11-13
P, X A	WO 2012/008281 A1 (東レ株式会社) 2012.01.19, 段落 [0015] - [0045], [0143], [表4], [表6] (ファミリーなし)	1, 3, 4, 6, 8, 11 2, 5, 7, 9, 10, 12, 13

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

25.07.2012

国際調査報告の発送日

07.08.2012

国際調査機関の名称及びあて先

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

特許庁審査官 (権限のある職員)

井 亀 諭

20

4844

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2010/150593 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2010. 12. 29, 段落 [0053] , [0055] , [表 1] - [表 4] (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2004-319441 A (三洋電機株式会社) 2004. 11. 11, 段落 【0008】 - 【0011】 & US 2005/0147842 A1 & WO 2004/089043 A1 & TW 239220 B	1-13
A	JP 2000-38064 A (東レ株式会社) 2000. 03. 03, 段落 【0036】 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2009-302041 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2009. 12. 24, 段落 【0179】 - 【0189】 & US 2009/0284139 A1 & EP 2120275 A2 & KR 10-2009-0119731 A	1-13