

(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
2014 年 12 月 11 日(11.12.2014)



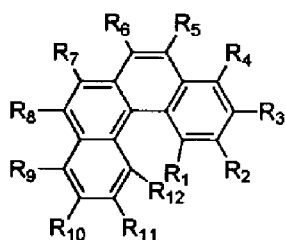
(10) 国際公開番号
WO 2014/196580 A1

- (51) 国際特許分類:
C07D 209/80 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
C07D 403/04 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C07D 403/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/064883
- (22) 国際出願日: 2014 年 6 月 4 日(04.06.2014)
- (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 2013-117795 2013 年 6 月 4 日(04.06.2013) JP
- (71) 出願人: 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: 河村 昌宏(KAWAMURA, Masahiro); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 水木 由美子(MIZUKI, Yumiko); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 伊藤裕勝(ITO, Hirokatsu); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 羽山 友治(HAYAMA, Tomoharu); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 羽毛田 匡(HAKETA, Tasuku); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保(OHTANI, Tamotsu); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 虎ノ門 E S ビル 7 階 特許業務法人大谷特許事務所 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, BN, 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, IR, IS, JP, KE, KG, 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, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

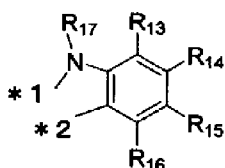
[続葉有]

(54) Title: NITROGEN-CONTAINING HETEROCYCLIC DERIVATIVE, ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT MATERIAL USING SAME, AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND ELECTRONIC DEVICE USING SAME

(54) 発明の名称: 含窒素複素環誘導体、これを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、並びにこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器



(1)



(a)

(57) Abstract: Provided are: a nitrogen-containing heterocyclic derivative having an indole structure bonded to a benzophenanthrene ring, indicated by formula (1); a material for organic electroluminescence elements using same; and an organic electroluminescence element and an electronic device using same. Provided is a novel material useful as an organic electroluminescence element material. [In formula (1), R₁-R₁₂ each independently indicate a hydrogen atom or a substituent group and two adjacent atoms/groups selected from R₁-R₁₂ can form a saturated or unsaturated bivalent group that mutually bond to form a ring. At least one group of two adjacent atoms/groups selected from R₁-R₁₂ mutually bond and form a ring structure indicated by formula (a). R₁₃-R₁₇ each independently indicate a hydrogen atom or a substituent group and two adjacent atoms/groups selected from R₁₃-R₁₇ can mutually bond and form a saturated or unsaturated bivalent group.]

(57) 要約: インドール構造が、ベンゾフェナントレン環に結合した下記式 (1) で表される含窒素複素環誘導体、これを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、並びにこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器であり、有機エレクトロルミネッセンス素子材料として有用な新規材料を提供する。〔式 (1) において、R₁~R₁₂ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、R₁~R₁₂ から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。ただし、R₁~R₁₂ から選ばれる隣接する 2 つの少なくとも 1 組は、互いに結合して、下記式 (a) で表される環構造を形成している。R₁₃~R₁₇ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、R₁₃~R₁₇ から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。〕

る。R₁₃~R₁₇ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、R₁₃~R₁₇ から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。〕



WO 2014/196580 A1



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

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

含窒素複素環誘導体、これを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、並びにこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

技術分野

[0001] 本発明は含窒素複素環誘導体、これを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、並びにこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器に関する。

背景技術

[0002] 一般に有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子は陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟まれた１層以上の有機薄膜層から構成されている。両電極間に電圧が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が発光領域に注入され、注入された電子と正孔は発光領域において再結合して励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際に光を放出する。

また、有機ＥＬ素子は、発光層に種々の発光材料を用いることにより、多様な発光色を得ることが可能であることから、ディスプレイなどへの実用化研究が盛んである。特に赤色、緑色、青色の三原色の発光材料の研究が最も活発であり、特性向上を目指して鋭意研究がなされている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献１：韓国公開公報１０－２０１２－００２１２０３

特許文献２：国際公開第２０１１／０３７４２９号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、有機ＥＬ素子材

料として有用な新規材料を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

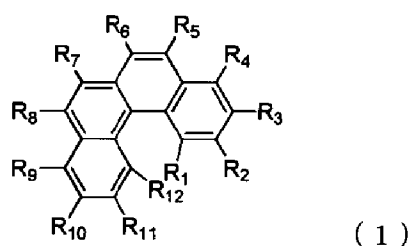
[0005] 本発明者らが鋭意検討した結果、インドール構造が、ベンゾフェナントレン環に結合した含窒素複素環誘導体を有機EL素子用材料として用いることが有用であることを見出した。

[0006] すなわち、本発明の一実施態様によれば、以下〔1〕～〔4〕が提供される。

〔1〕

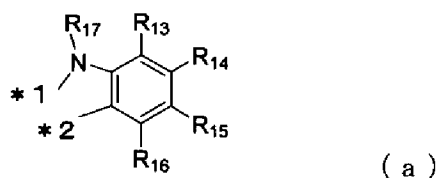
下記式（1）で表される含窒素複素環誘導体。

〔化1〕



〔式（1）において、 $R_1 \sim R_{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。ただし、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つの少なくとも1組は、互いに結合して、下記式（a）で表される環構造を形成している。

〔化2〕



$R_{13} \sim R_{17}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_{13} \sim R_{17}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。*1、*2は、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つの少なくとも1組が結合している炭素原子との結合位置を示す。]

[0007] [2]

前記含窒素複素環誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[3]

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1層が、前記含窒素複素環誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

[4]

前記有機エレクトロルミネッセンス素子を備える電子機器。

発明の効果

[0008] 本発明は、有機EL素子材料として有用な新規材料及びこれを用いてなる有機EL素子を提供する。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の実施形態に係る有機EL素子の一例の概略構成を示す図である。

発明を実施するための形態

[0010] 本明細書において、「置換もしくは無置換の炭素数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「炭素数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。ここで、「 YY 」は「 XX 」よりも大きく、「 XX 」と「 YY 」はそれぞれ1以上の整数を意味する。

[0011] 本明細書において、「置換もしくは無置換の原子数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「原子数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の原子数を表すものであり、置換されている場合の置換基の原子数は含めない。ここで、「 YY 」は「 XX 」よりも大きく、「 XX 」と「 YY 」はそれぞれ1以上の整数を意味する。

[0012] 本明細書において、「置換もしくは無置換の ZZ 基」という場合における

「無置換ZZ基」とは、ZZ基の水素原子が置換基で置換されていないことを意味する。

[0013] 本明細書において、「環形成炭素数」とは、原子が環状に結合した構造の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子のうちの炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素には含まない。以下で記される「環形成炭素数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が6であり、ナフタレン環は環形成炭素数が10であり、ピリジニル基は環形成炭素数5であり、フラニル基は環形成炭素数4である。また、ベンゼン環やナフタレン環に置換基として例えばアルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、環形成炭素数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の炭素数は環形成炭素数に含めない。

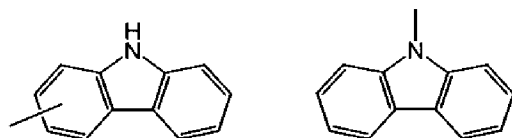
[0014] 本明細書において、「環形成原子数」とは、原子が環状に結合した構造（例えば単環、縮合環、環集合）の化合物（例えば単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子の数を表す。環を構成しない原子（例えば環を構成する原子の結合手を終端する水素原子）や、当該環が置換基によって置換される場合の置換基に含まれる原子は環形成原子数には含まない。以下で記される「環形成原子数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ピリジン環は環形成原子数は6であり、キナゾリン環は環形成原子数が10であり、フラン環の環形成原子数は5である。ピリジン環やキナゾリン環の環形成炭素原子にそれぞれ結合している水素原子や置換基を構成する原子は、環形成原子数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の原子数は環形成原子数の数に含めない。

[0015] 本明細書において、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわ

ち、軽水素 (protium)、重水素 (deuterium) 及び三重水素 (tritium) を包含する。

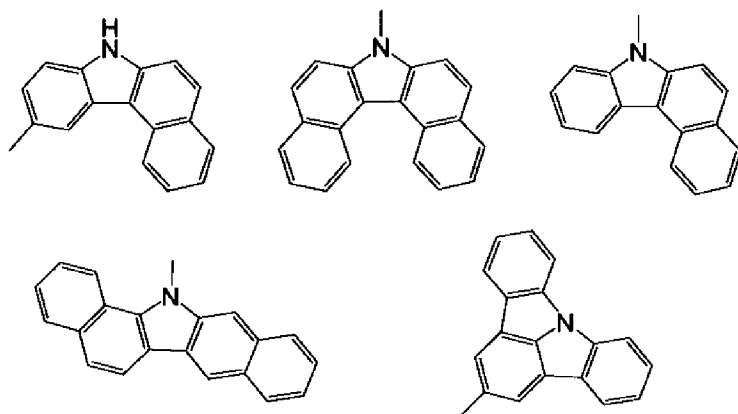
[0016] 本明細書において、置換もしくは無置換のカルバゾリル基は、下記のカルバゾリル基、

[化3]



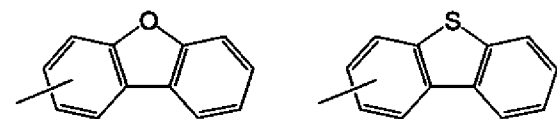
及び上記した任意の置換基を有する置換カルバゾリル基に加えて、例えば、下記の置換カルバゾリル基も含む。

[化4]



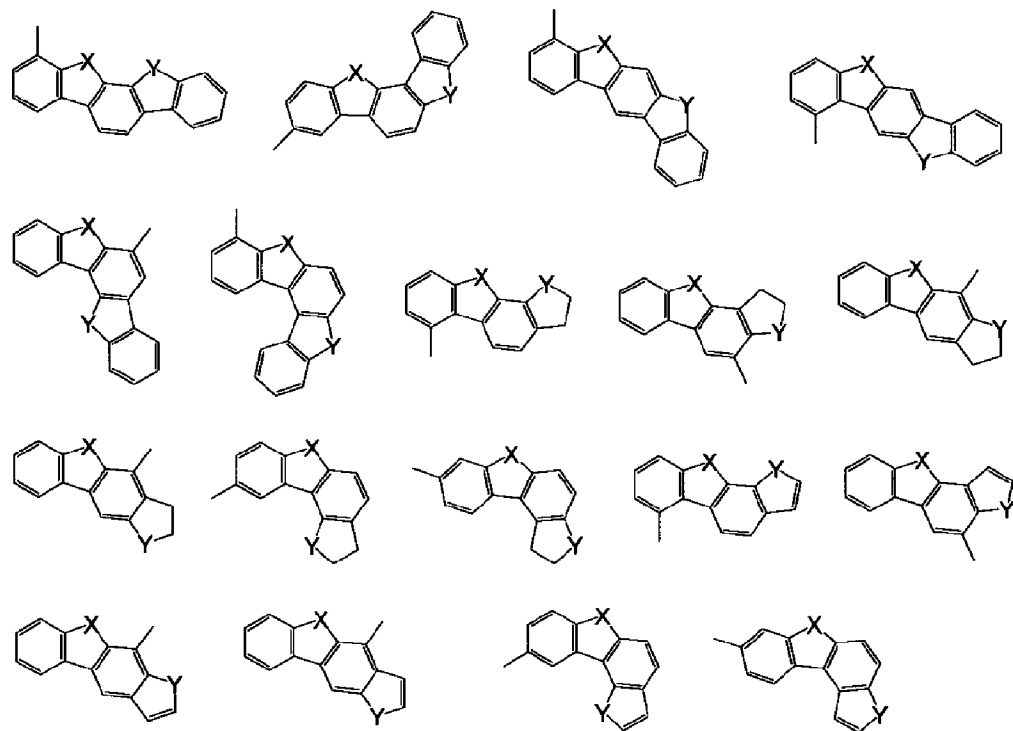
[0017] 本明細書において、置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基及び置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基は、下記のジベンゾフラニル基及びジベンゾチオフェニル基、

[化5]



及び上記した任意の置換基を有する置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基に加えて、例えば、下記の置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基も含む。

[化6]



(式中、Xは酸素原子又は硫黄原子を表し、Yは酸素原子、硫黄原子、NH、 NR^a (R^a はアルキル基又はアリール基)、 CH_2 、又は、 CR^b_2 (R^b はアルキル基又はアリール基)を表す。)

[0018] 更に、「置換基」又は「置換もしくは無置換」との記載における置換基としては、炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基；環形成炭素数3～50（好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6）のシクロアルキル基；環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基；環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基を有する炭素数7～51（好ましくは7～30、より好ましくは7～20）のアラルキル基；アミノ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭

素数 6～50（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基を有するアリールオキシ基；炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び環形成炭素数 6～50（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基；環形成原子数 5～50（好ましくは 5～24、より好ましくは 5～13）のヘテロアリール基；炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のハロアルキル基；ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）；シアノ基；ニトロ基；炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び環形成炭素数 6～50（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基；炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び環形成炭素数 6～50（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基；、アルキルスルホニルオキシ基；アリールスルホニルオキシ基；アルキルカルボニルオキシ基；アリールカルボニルオキシ基；ホウ素含有基；亜鉛含有基；スズ含有基；ケイ素含有基；マグネシウム含有基；リチウム含有基；ヒドロキシ基；アルキル置換又はアリール置換カルボニル基；カルボキシル基；ビニル基；（メタ）アクリロイル基；エポキシ基；並びにオキセタニル基からなる群より選ばれる基であることが好ましい。

これらの置換基は、さらに上述の任意の置換基により置換されていてもよい。

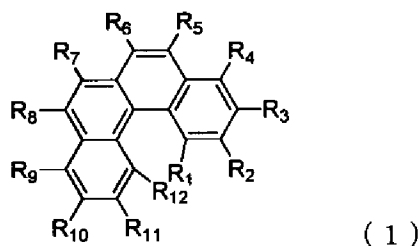
また、これらの置換基は、複数の置換基が互いに結合して環を形成していてもよい。

さらに、「置換もしくは無置換」との記載における「無置換」とは、これらの置換基で置換されておらず、水素原子が結合していることを意味する。

[0019] [含窒素複素環誘導体]

本発明の一実施態様の含窒素複素環誘導体は、下記式（1）で表される。

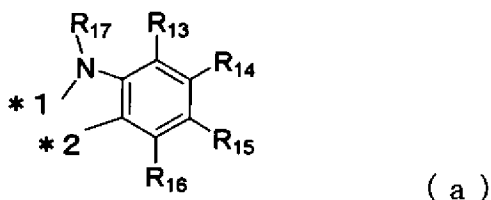
[0020] [化7]



(1)

[0021] 式(1)において、 $R_1 \sim R_{12}$ は、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。ただし、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つの少なくとも1組は、互いに結合して、下記一般式(a)で表される環構造を形成している。

[0022] [化8]

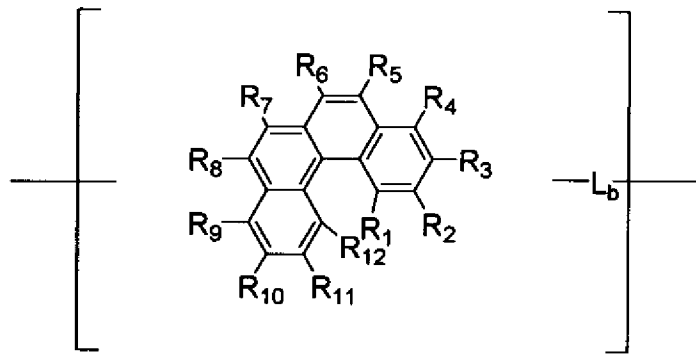


(a)

[0023] $R_{13} \sim R_{17}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_{13} \sim R_{17}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。また、一般式(a)において、*1、*2は、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つの少なくとも1組が結合している炭素原子との結合位置を示す。例えば、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つがR₅、R₆である場合、*1が、R₆が結合している炭素原子と結合する場合は、*2はR₅が結合している炭素原子と結合する。また、*1が、R₅が結合している炭素原子と結合する場合は、*2はR₆が結合している炭素原子と結合してもよい。

[0024] また、本発明の一実施形態の含窒素複素環誘導体としては、下記一般式(b)で表される繰り返し単位を有する重合体や、下記一般式(d)で表される繰り返し単位を有する重合体であってもよい。

[0025] [化9]

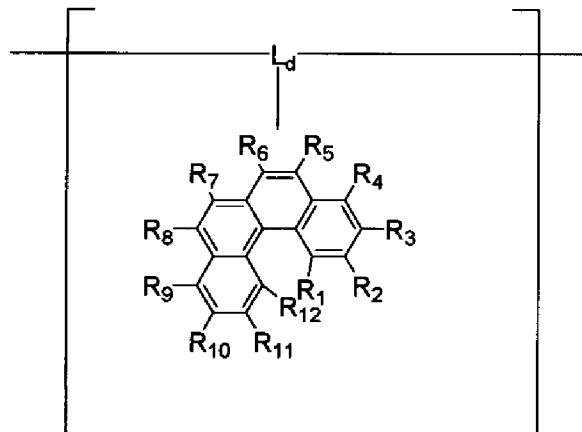


(b)

[0026] [式 (b) において、R₁～R₁₂は、それぞれ独立に、式 (1) と同じ。L_bは、単結合または、2 価の連結基を示す。]

L_bで表される 2 価の連結基の具体例としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数 3～60 のヘテロアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキレン基等が挙げられる。

[0027] [化10]

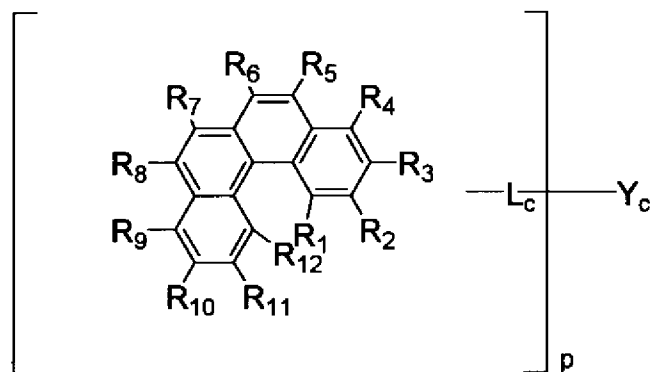


(d)

[0028] [式 (d) において、R₁～R₁₂は、それぞれ独立に、式 (1) と同じ。L_dは、3 価の有機基を示す。]

[0029] さらに、上記含窒素複素環誘導体としては、下記式 (c) で表されるものがより好ましい。

[0030] [化11]



(c)

[0031] [式(c)において、 $R_1 \sim R_{12}$ は、それぞれ独立に、式(1)と同じ。

Y_c は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のp価の芳香族炭化水素基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数3～60のp価の複素環基を示す。

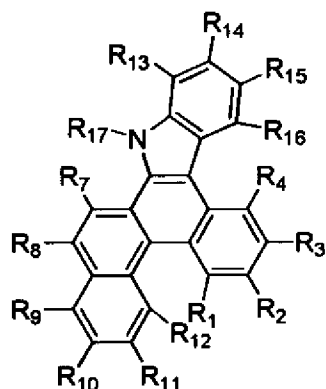
L_c は、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～60のヘテロアリーレン基、または、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキレン基を示す。

pは、1～6の整数を示す。]

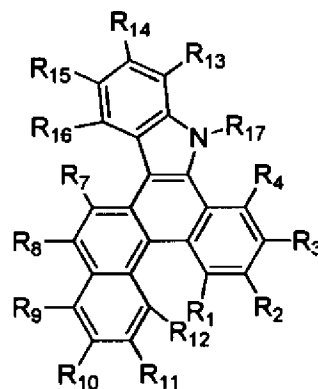
[0032] 本発明の式(1)の一実施態様の含窒素複素環誘導体として、 $R_1 \sim R_{12}$ のうち、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_3 と R_4 、 R_5 と R_6 、 R_7 と R_8 、 R_9 と R_{10} 、 R_{10} と R_{11} 、および R_{11} と R_{12} のいずれかが式(a)で表される環構造を形成すると好ましく、中でも、 R_5 と R_6 が式(a)となる下記式(2)または(3)で表される含窒素複素環誘導体が好ましい。

[0033]

[化12]



(2)



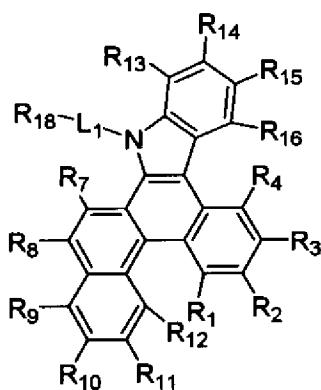
(3)

[0034] [式(2)、(3)において、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{17}$ は、それぞれ独立に、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{17}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

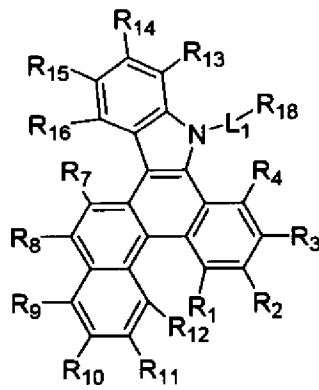
なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{17}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_3 と R_4 、 R_7 と R_8 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、 R_{10} と R_{11} 、 R_{11} と R_{12} 、 R_{13} と R_{14} 、 R_{14} と R_{15} 、 R_{15} と R_{16} 、 R_1 と R_{12} 、 R_{13} と R_{17} 、 R_7 と R_{17} 、 R_4 と R_{17} 、 R_4 と R_{16} 及び R_7 と R_{16} 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよいが、当該二価の基を複数形成してもよい。

[0035] さらに、本発明の式(1)の一実施態様の含窒素複素環誘導体としては、下記(4)～(21)のいずれかで表されるものが好ましく挙げられる。

[化13]



(4)

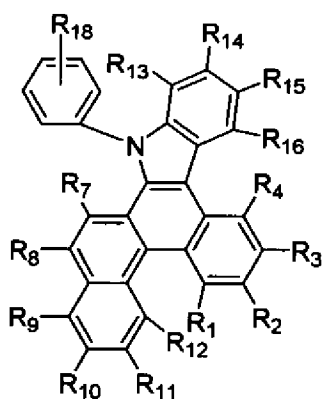


(5)

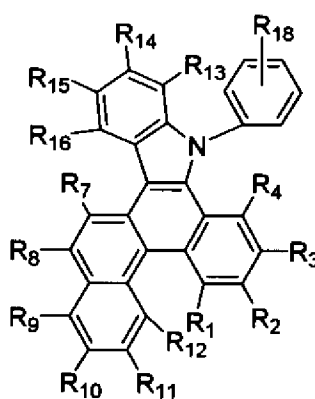
[0036] [式(4)、(5)において、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、それぞれ独立に、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 R_{18} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示す。 L_1 は、単結合、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基を示す。]

なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_3 と R_4 、 R_7 と R_8 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、 R_{10} と R_{11} 、 R_{11} と R_{12} 、 R_{13} と R_{14} 、 R_{14} と R_{15} 、 R_{15} と R_{16} 、 R_1 と R_{12} 、 R_4 と R_{16} 及び R_7 と R_{16} 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよいが、当該二価の基を複数形成してもよい。

[0037] [化14]



(6)



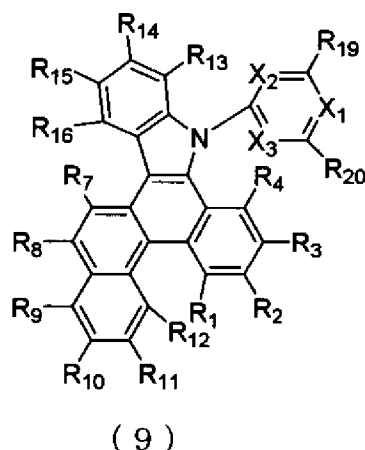
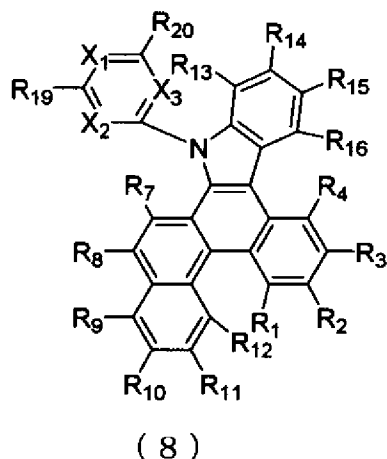
(7)

[0038] [式(6)、(7)において、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ 及び R_{18} は、それぞれ独立に、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ 及び R_{18} から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ 及び R_{18} から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_3 と R_4 、 R_7 と R_8 、 R_8

と R_9 、 R_9 と R_{10} 、 R_{10} と R_{11} 、 R_{11} と R_{12} 、 R_{13} と R_{14} 、 R_{14} と R_{15} 、 R_{15} と R_{16} 、 R_1 と R_{12} 、 R_4 と R_{16} 、 R_7 と R_{16} 、 R_{13} と R_{18} 、 R_7 と R_{18} 及び R_4 と R_{18} 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよいが、当該二価の基を複数形成してもよい。

[0039] [化15]



[0040] [式 (8)、(9) において、 $X_1 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ が選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

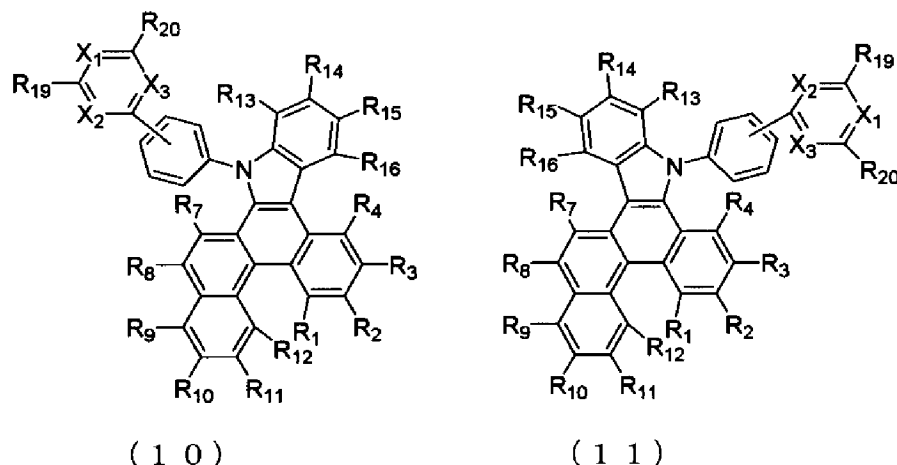
なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式(4)、(5)での説明と同じである。

また、「 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 X_1 が $C(R_{21})$ である場合の R_{21} と R_{19} もしくは R_{21} と R_{20} 、 X_2 が $C(R_{21})$ である場合の R_{21} と R_{19} 、 X_3 が $C(R_{21})$ である場合の R_{21} と R_{20} 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよいが、当該二価の基を複数形成してもよ

い。

式（８）、（９）において、 R_{19} 及び R_{20} 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、または置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０の含窒素複素環基であることが好ましい。

[0041] [化16]

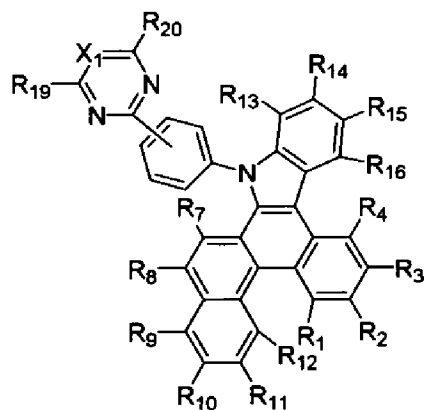


[0042] [式（１０）、（１１）において、 $X_1 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する２つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～３０のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する２つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

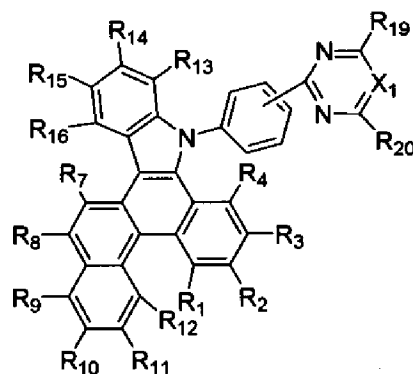
なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する２つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式（４）、（５）での説明と同じであり、「 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する２つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式（８）、（９）での説明と同じである。

また、式（１０）、（１１）において、 R_{19} 及び R_{20} 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、または置換もしくは無置換の環形成原子数５～３０の含窒素複素環基であることが好ましい

[0043] [化17]



(1 2)



(1 3)

[0044] [式 (1 2)、(1 3)において、 X_1 は、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。

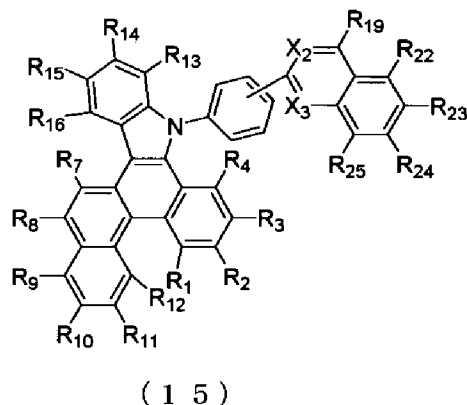
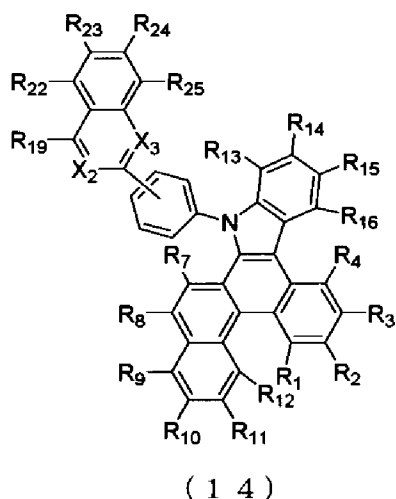
$R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくはは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくはは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式(4)、(5)での説明と同じである。

また、「 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、例えば、 X_1 が $C(R_{21})$ である場合の R_{21} と R_{19} もしくは R_{21} と R_{20} 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよいが、当該二価の基を複数形成してもよい。

式(12)、(13)において、 R_{19} 及び R_{20} は、それぞれ独立に、置換もしくはは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくはは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

[0045] [化18]



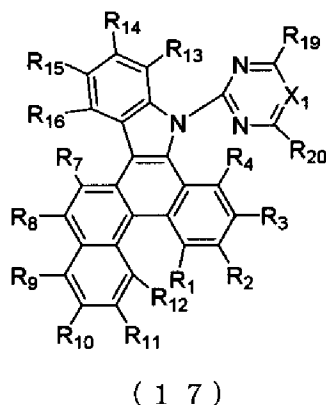
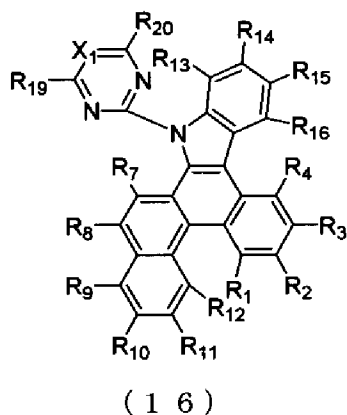
[0046] [式 (1 4)、(1 5) において、 $X_2 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 R_{19} 、 $R_{21} \sim R_{25}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 30 の含窒素複素環基を示し、 R_{19} 及び $R_{21} \sim R_{25}$ から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する 2 つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式 (4)、(5) での説明と同じである。

また、式 (1 4)、(1 5) において、 R_{19} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 30 の含窒素複素環基であることが好ましい。

[0047]

[化19]



[式 (1 6)、(1 7) において、 X_1 は、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

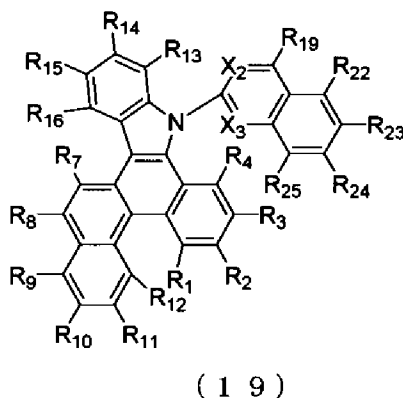
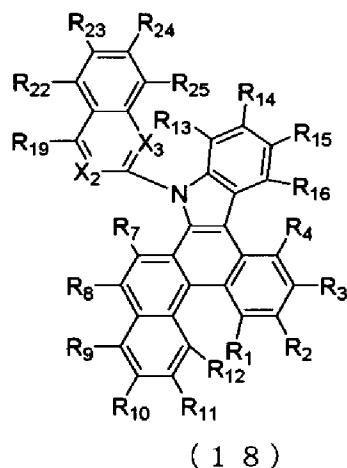
なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式 (4)、(5) での説明と同じであり、「 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式 (1 2)、(1 3) での説明と同じである。

また、式 (1 6)、(1 7) において、 R_{19} 及び R_{20} 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、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

。

[0048]

[化20]

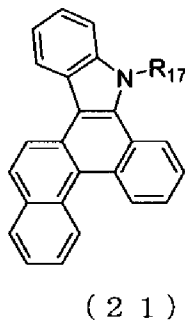
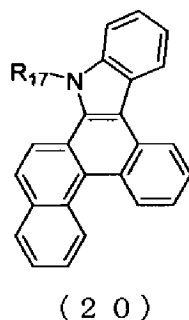


[0049] [式(18)、(19)において、 $X_2 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、C(R_{21})、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 R_{19} 、 $R_{21} \sim R_{25}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 R_{19} 及び $R_{21} \sim R_{25}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の式(4)、(5)での説明と同じである。

また、式(18)、(19)において、 R_{19} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

[0050] [化21]



[0051] [式(20)、(21)において、 R_{17} は、前記と同じ。]

[0052] 上記式(1)～(21)及び(b)～(d)において、 $R_1 \sim R_{17}$ 及び $R_{22} \sim R_{25}$ で表される置換基としては、それぞれ独立に、下記(A)群から選択されるものが好ましく、下記(B)群から選択されるものがより好ましく、下記(C)群から選択されるものがさらに好ましく、下記(D)群から選択されるものが特に好ましい。

[0053] 上記(A)群とは、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環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基(「芳香族炭化水素基」と同義、以下同様)、置換もしくは無置換の炭素数7～61のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、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6～60のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基(「複素環基」と同義、以下同様)、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基、カルボキシル基、ビニル基、(メタ)アクリロイル基、エポ

キシ基、並びにオキセタニル基からなる群である。

[0054] 上記（Ｂ）群とは、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環形成炭素数３～５０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数７～５１のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、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６～６０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数５～６０のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、並びに置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基からなる群である。

[0055] 上記（Ｃ）群とは、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環形成炭素数３～５０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数７～５１のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、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６～６０のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換も

しくは無置換の環形成原子数 5～60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、並びにニトロ基からなる群である。

[0056] 上記 (D) 群とは、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環形成炭素数 3～50 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～60 のヘテロアリール基、ハロゲン原子、シアノ基からなる群である。

[0057] 前記炭素数 1～50 (好ましくは炭素数 1～18、より好ましくは炭素数 1～8) のアルキル基としては、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、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体を含む)、ヘキシル基 (異性体を含む)、ヘプチル基 (異性体を含む)、オクチル基 (異性体を含む)、ノニル基 (異性体を含む)、デシル基 (異性体を含む)、ウンデシル基 (異性体を含む)、及びドデシル基 (異性体を含む)、トリデシル基、テトラデシル基、オクタデシル基、テトラコサニル基、テトラコンタニル基等が挙げられ、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、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体を含む)、ヘキシル基 (異性体を含む)、ヘプチル基 (異性体を含む)、オクチル基 (異性体を含む)、ノニル基 (異性体を含む)、デシル基 (異性体を含む)、ウンデシル基 (異性体を含む)、ドデシル基 (異性体を含む)、トリデシル基、テトラデシル基、及びオクタデシル基が好ましく、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、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体を含む)、ヘキシル基 (異性体を含む)、ヘプチル基 (異性体を含む)、及びオクチル基 (異性体を含む) がより好ましい。

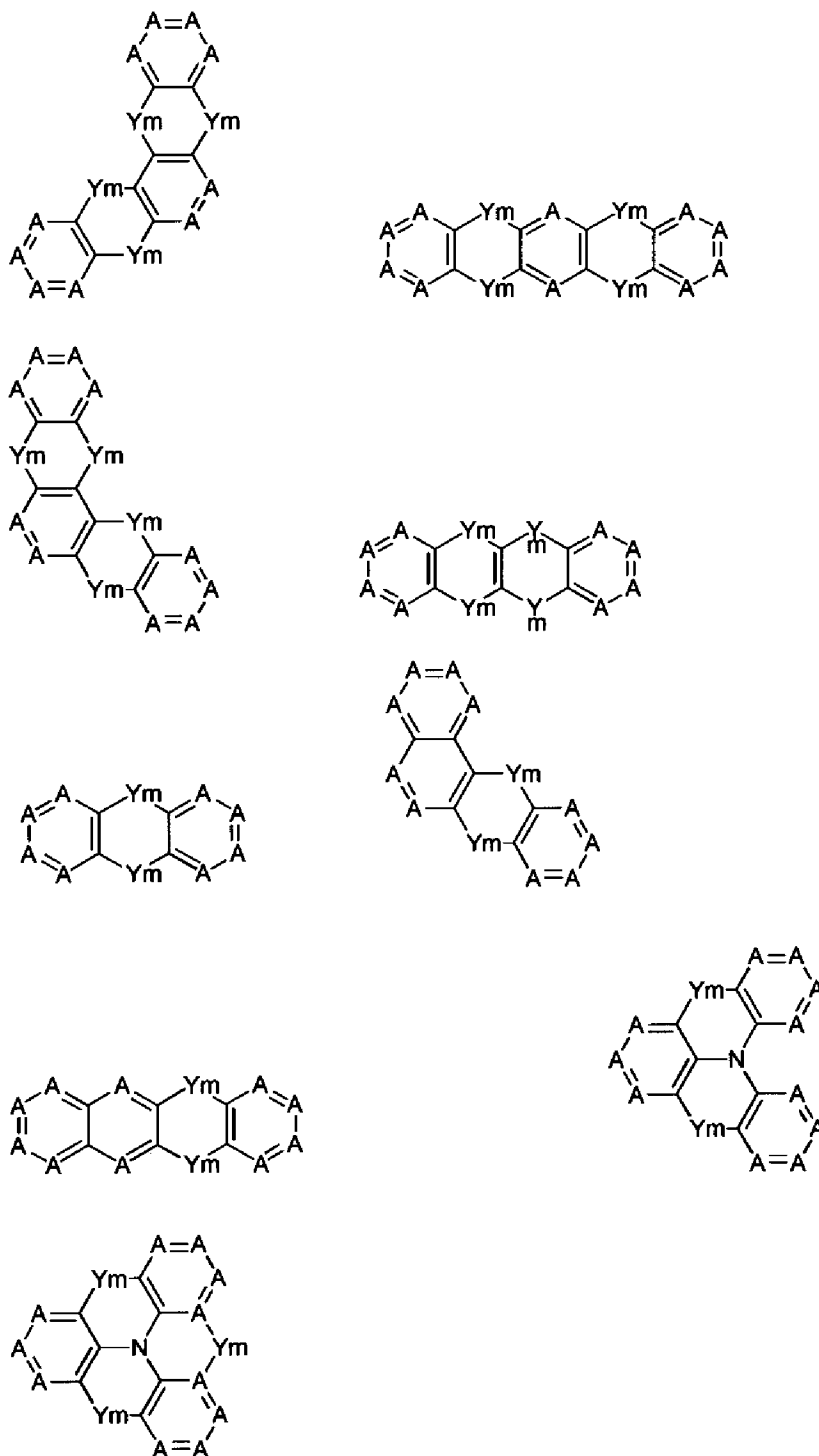
- [0058] 前記環形成炭素数3～50（好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6）のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基などが挙げられ、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。
- [0059] 前記環形成炭素数6～60（好ましくは環形成炭素数6～25、より好ましくは環形成炭素数6～18）のアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9'-スピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダセニル基、a-s-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、ジベンゾアントリル基等が挙げられる。
- [0060] 環形成原子数5～60（好ましくは5～24、より好ましくは環形成原子数5～13）のヘテロアリール基は少なくとも1個、好ましくは1～5個（より好ましくは1～3個、さらに好ましくは1～2個）のヘテロ原子、例えば、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子を含む。該ヘテロアリール基としては、例えば、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、テトラゾリル基、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、イソ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、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、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、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ベンゾフラノベンゾチオフェニル基、ベンゾチエノベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフェニル基などが挙げられる。

[0061] また、上記環形成原子数 5 ～ 60 のヘテロアリール基の具体例としては、下記式で表されるいずれかの化合物より水素原子を 1 つ除いてなる 1 価の基も好ましい。

[0062]

[化22]



[式中、Aは、それぞれ独立に、 C R^{100} 、又は窒素原子を表し、 R^{100} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、

Yは、それぞれ独立に、単結合、 $\text{C (R}^{101}) \text{ (R}^{102})$ 、酸素原子、硫黄原子

又は $N(R^{103})$ を表し、

R^{101} 、 R^{102} 及び R^{103} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表わし、 m は、それぞれ独立に、0 または 1 を表す。]

上記式中における置換基としては、上述のものと同様のものが挙げられる。

[0063] 前記環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基を有する総炭素数 7～61 のアラルキル基としては、上記アリール基を有するアラルキル基が挙げられる。

前記炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び環形成炭素数 6～60 のアリール基（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基が挙げられる。

前記炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基を有するアルコキシ基としては、上記アルキル基を有するアルコキシ基が挙げられる。

前記環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基を有するアリールオキシ基としては、上記アリール基を有するアリールオキシ基が挙げられる。

[0064] 炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基が挙げられる。

前記炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のハロアルキル基としては、上記アルキル基の水素原子の 1 以上が、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）により置換されたものが挙げられる。

[0065] 前記炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び前記環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基としては、上記アルキル基又は上記アリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。

前記炭素数 1～50（好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8）のアルキル基及び前記環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～25、より好ましくは 6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォル基としては、上記アルキル基及び上記アリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォル基が挙げられる。

[0066] 上記一般式（b）において L_b で表される置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリーレン基、及び上記一般式（c）において L_c で表される置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリーレン基の具体例としては、上記アリール基として挙げられたものから水素原子を 1 つ除いてなるものが挙げられる。

上記一般式（b）において L_b で表される置換もしくは無置換の環形成原子数 3～60 のヘテロアリーレン基、及び上記一般式（c）において L_c で表される置換もしくは無置換の環形成原子数 3～60 の 2 価のヘテロアリーレン基の具体例としては、上記ヘテロアリーレン基として挙げられたものから水素原子を 1 つ除いてなるものが挙げられる。

上記一般式（b）において L_b で表される置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキレン基、及び上記一般式（c）において L_c で表される置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキレン基の具体例としては、上記アルキル基として挙げられたものから水素原子を 1 つ除いてなるものが挙げられる。

また、上記一般式（d）において L_d で表される 3 価の有機基の具体例としては、上記 L_b 及び L_c で表される 2 価の基より水素原子を 1 つ除いてなるものが挙げられる。

[0067] なお、前記一般式（１）～（２１）における、 $R_1 \sim R_{25}$ から選ばれる隣接する２つが互いに結合して環を形成する場合には、本発明の一実施態様の含窒素複素環誘導体は、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０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５～６０のヘテロアリーレン基を有していてもよい。

置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリーレン基としては、上記アリーレン基として挙げられる基から水素原子を１つ除いてなるものが挙げられる。

置換もしくは無置換の環形成原子数５～６０のヘテロアリーレン基としては、上記ヘテロアリーレン基として挙げられる基から水素原子を１つ除いてなるものが挙げられる。

[0068] 本発明の一実施態様の含窒素複素環誘導体は、置換基として環構造含有基を有するものが好ましく、特に、 R_{17} が環構造含有基を有するものが好ましい。

含窒素複素環誘導体が環構造含有基を有することにより、有機ＥＬ素子用材料として用いた場合に、該材料を含む有機薄膜の膜質が良好となるなどの効果を奏する。

[0069] 環構造含有基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数５～６０（好ましくは３～６、より好ましくは５又は６）のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８）のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８）のアリーレン基を有する総炭素数７～６１のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０のアリーレン基（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８）を置換基として有するアミノ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８）のアリーレン基を有するアリーレンオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～６０（好ましくは６～２４、より好ましくは６～１８）のアリーレン基を置換基として有するシリル基、置

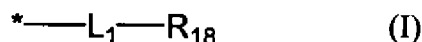
換もしくは無置換の環形成原子数 5～60（好ましくは 5～24、より好ましくは 5～13）のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～24、より好ましくは 6～18）のアリール基を置換基として有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60（好ましくは 6～24、より好ましくは 6～18）のアリール基を置換基として有するホスフォニル基から選択される基を含有する基が挙げられ、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～60 のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリール基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基を含有する基がより好ましい。これらの基の詳細は、上述のものと同様である。

[0070] これらの中でも、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～60 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5～60 のヘテロアリール基であることが好ましい。

上記環構造含有基としては、置換基上に環構造含有基を有するものも包含され、この置換基の具体例としては、上述したものが挙げられる。

[0071] また、 R_{17} は、特に下記一般式（I）で表される基が好ましく、下記一般式（II）で表される基、もしくは下記一般式（III）で表される基がより好ましい。

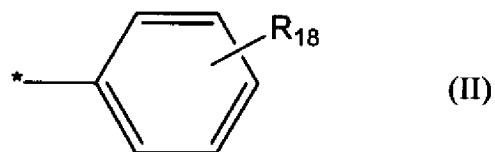
[0072] [化23]



[上記一般式（I）において、 L_1 は、単結合、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリーレン基を示す。 R_{18} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5～30 の含窒素複素環基を示す。*は結合位置を示す。]

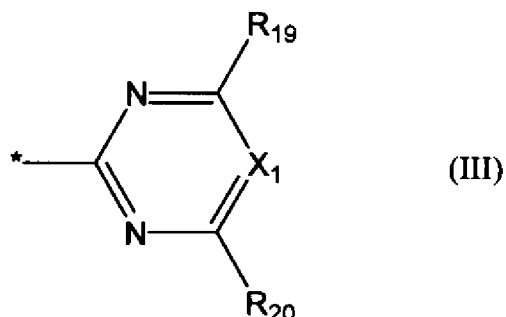
[0073]

[化24]



[上記一般式 (II) において、 R_{18} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 30 の含窒素複素環基を示す。*は結合位置を示す。]

[0074] [化25]



[上記一般式 (III) において、 X_1 は、C (R_{21})、又は窒素原子を示す。 R_{19} ～ R_{20} 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、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 30 の含窒素複素環基を示し、隣接する置換基同士は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。*は結合位置を示す。]

[0075] つまり、 R_{17} が上記一般式 (I) で表される基である化合物としては、上記式 (4) または (5) で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。

また、 R_{17} が上記一般式 (II) で表される基である化合物としては、上記一般式 (6) または (7) で表される含窒素複素環誘導体が挙げられ、 R_{17} が上記一般式 (III) で表される基である化合物としては、上記一般式 (16) または (17) で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。

[0076] 上記式 (I) ～ (III)、並びに、上記式 (4) ～ (19) において、 R_{18} ～ R_{25} が置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基である場合、当該アリール基としては、上述のアリール基のうち、環形成炭素数が 6 ～

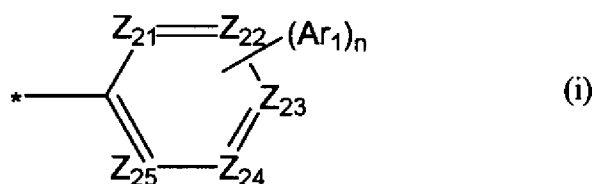
30のものが挙げられる。

[0077] 上記式(1)～(III)、並びに、上記式(4)～(19)において、 R_{18} ～ R_{25} が置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基である場合、当該含窒素複素環基としては、上述のヘテロアリール基のうち、環形成原子数が5～30であり、且つ窒素原子を含むものが挙げられ、具体的には、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、ピラジニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、キナゾリル基、フェナントロリニル基、ジベンゾキノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、カルバゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、イミダゾピリジニル基、インドリジニル基、ベンズカルバゾリル基、ジベンズカルバゾリル基等が挙げられる。

[0078] 上記式(1)、並びに上記一般式(4)または(5)中の L_1 について、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基としては、上述のアリール基として挙げられているものから水素原子を1つ除いてなる2価の基が挙げられ、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基としては、 R_{16} ～ R_{19} が含窒素複素環基である場合の含窒素複素環基として挙げられているものから水素原子を1つ除いてなる2価の基が挙げられる。

[0079] なお、 R_{18} ～ R_{21} としては、さらに、下記式(i)で表される基が好ましく、下記式(ii)で表される基がより好ましく、下記式(iii)で表される基が更に好ましい。

[0080] [化26]

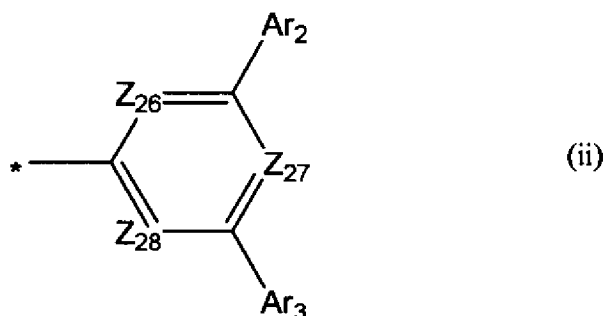


[0081] [式(i)]において、 Z_{21} ～ Z_{25} は、それぞれ独立に、C(R_1)又は窒素原子を表す。

R_1 は、それぞれ独立に、水素原子、又は Ar_1 との結合手を表す。

Ar_1 は、それぞれ独立に、置換基を表し、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基である。 n は、0～5の整数を表す。 $*$ は結合位置を示す。]

[0082] [化27]

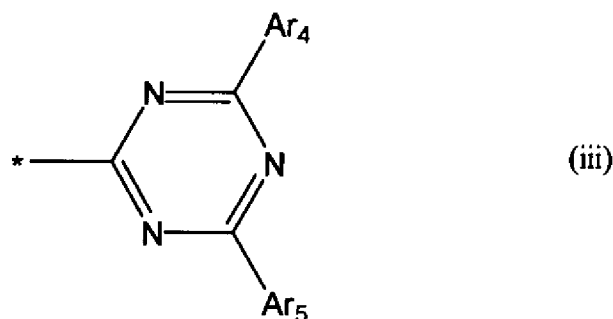


[0083] [式 (ii) において、 $Z_{26} \sim Z_{28}$ は、それぞれ独立に、 $C(R_1)$ 又は窒素原子を表す。

R_1 は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換基を表す。

Ar_2 及び Ar_3 は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基である。 $*$ は結合位置を示す。]

[0084] [化28]



[0085] [式 (iii) において、 Ar_4 及び Ar_5 は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基であり、より好ましくは環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成

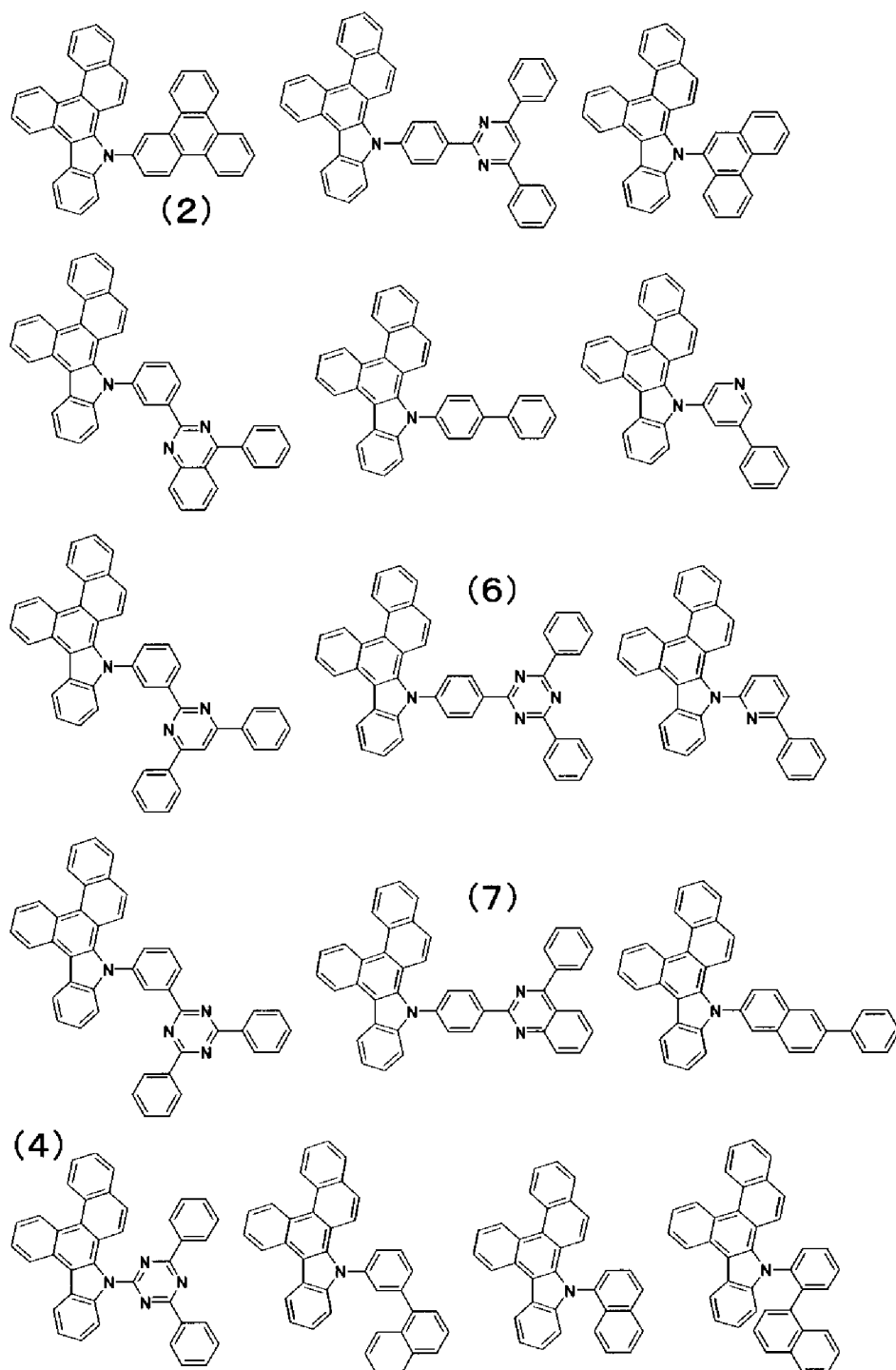
原子数 5 ～ 13 のヘテロアリール基である。＊は結合位置を示す。]

[0086] 上記式 (i) における A_{r1} 、上記式 (ii) における A_{r2} 及び A_{r3} 、並びに上記式 (iii) における A_{r4} 及び A_{r5} で表される置換基としては、上記 (A) 群から選択されるものが好ましく、(B) 群から選択されるものがより好ましく、(C) 群から選択されるものがさらに好ましく、(D) 群から選択されるものが特に好ましい。

[0087] 以下に上記式 (1) ～ (21) で表される含窒素複素環誘導体の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

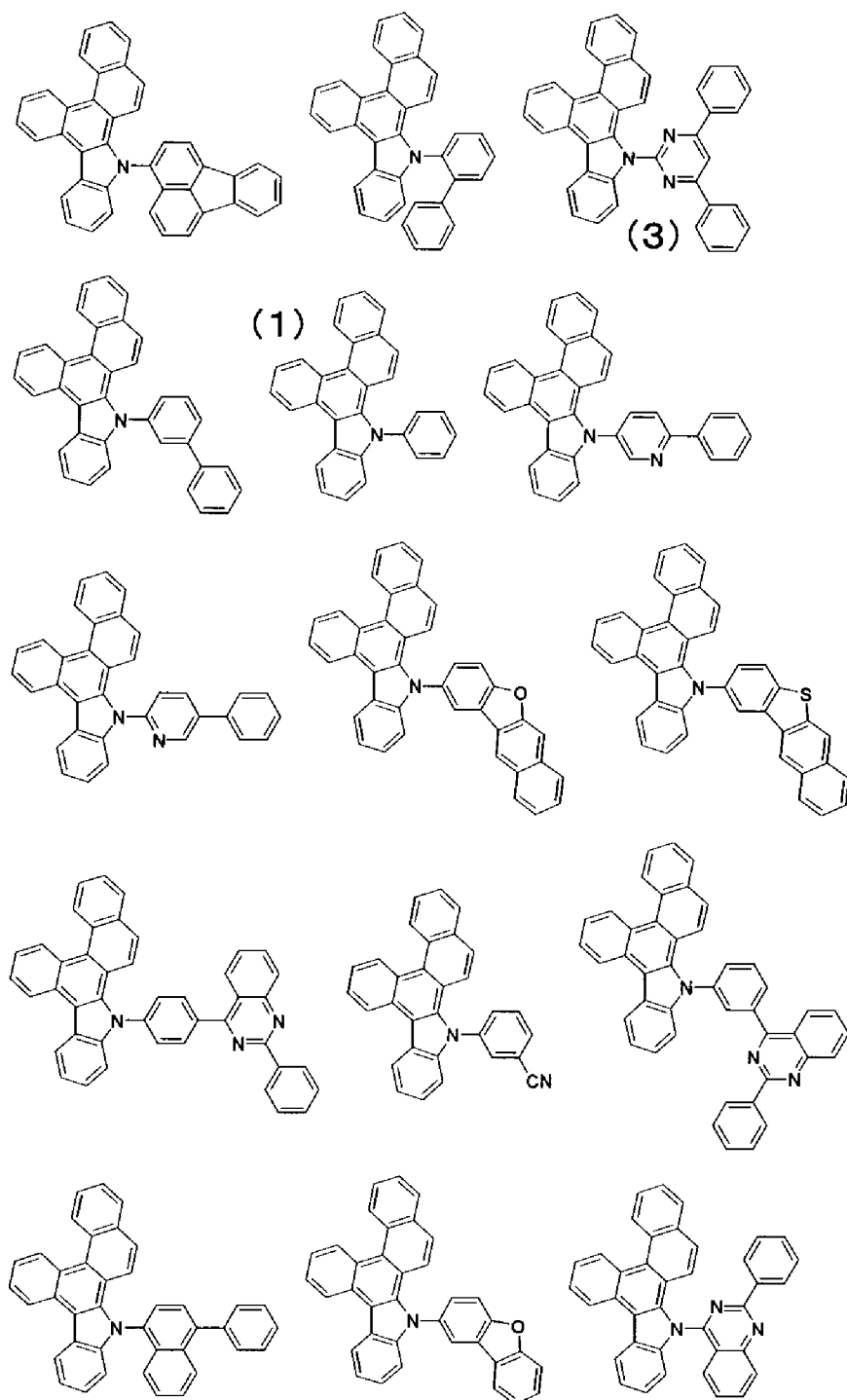
[0088]

[化29]



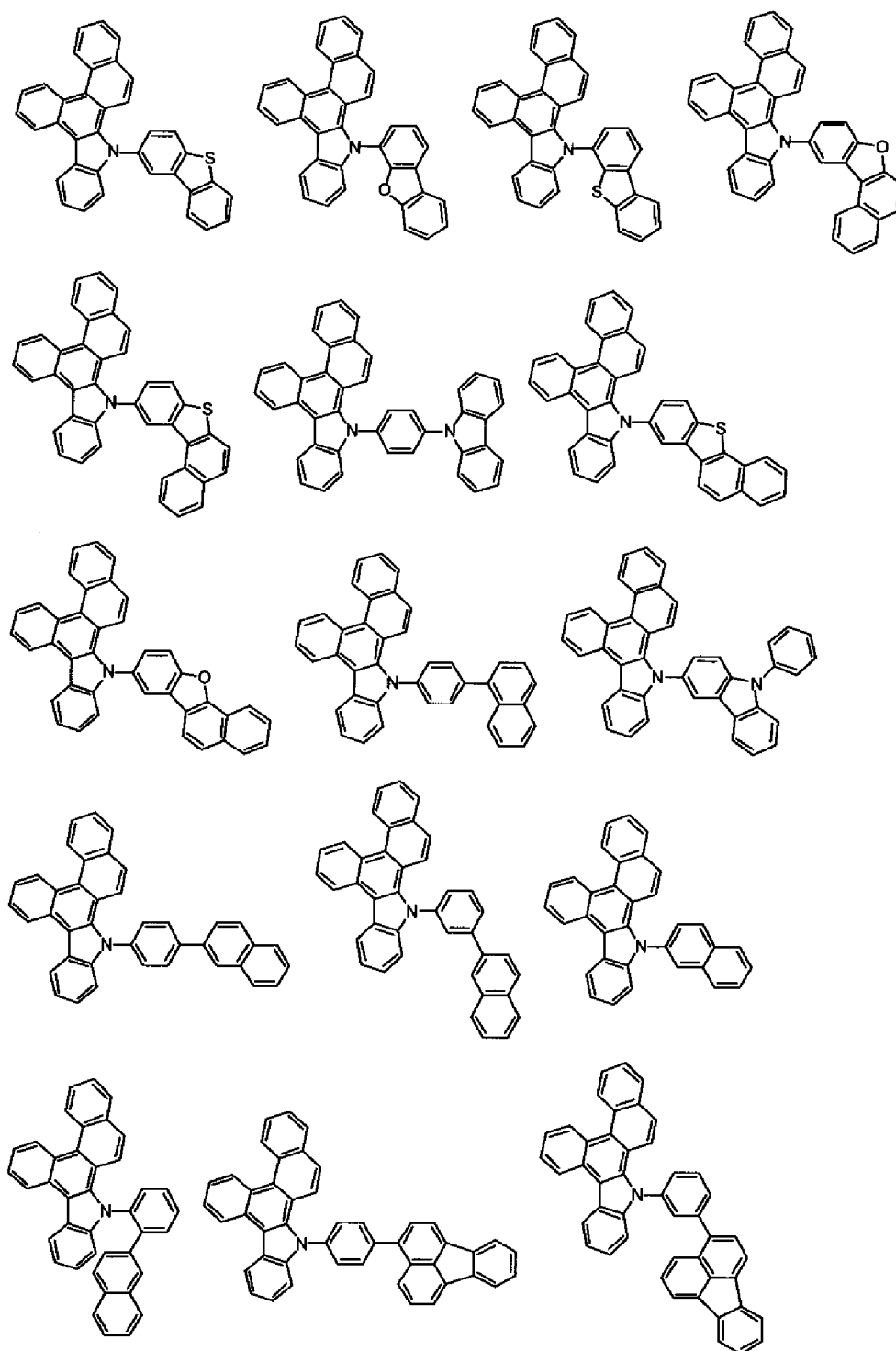
[0089]

[化30]



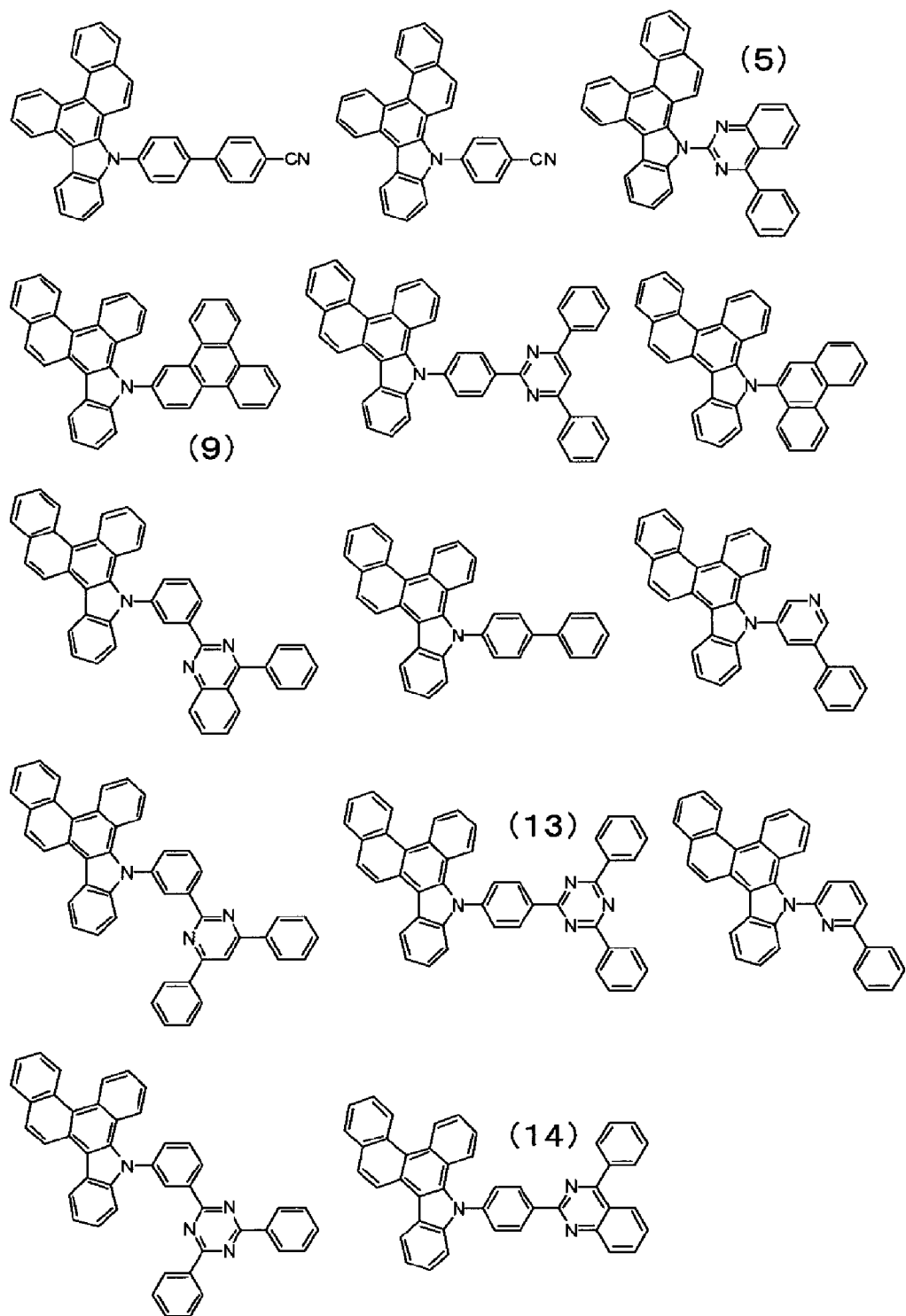
[0090]

[化31]



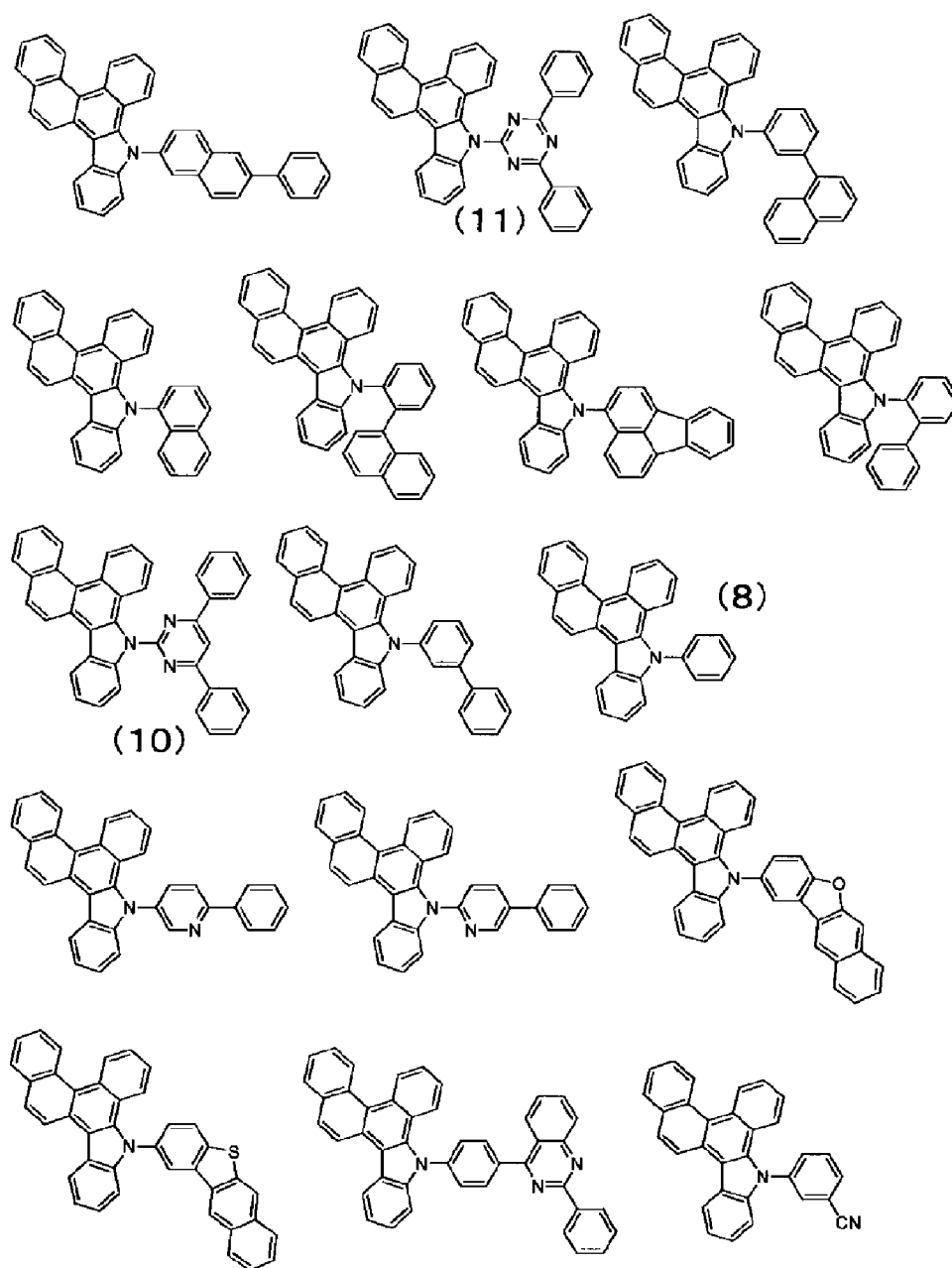
[0091]

[化32]



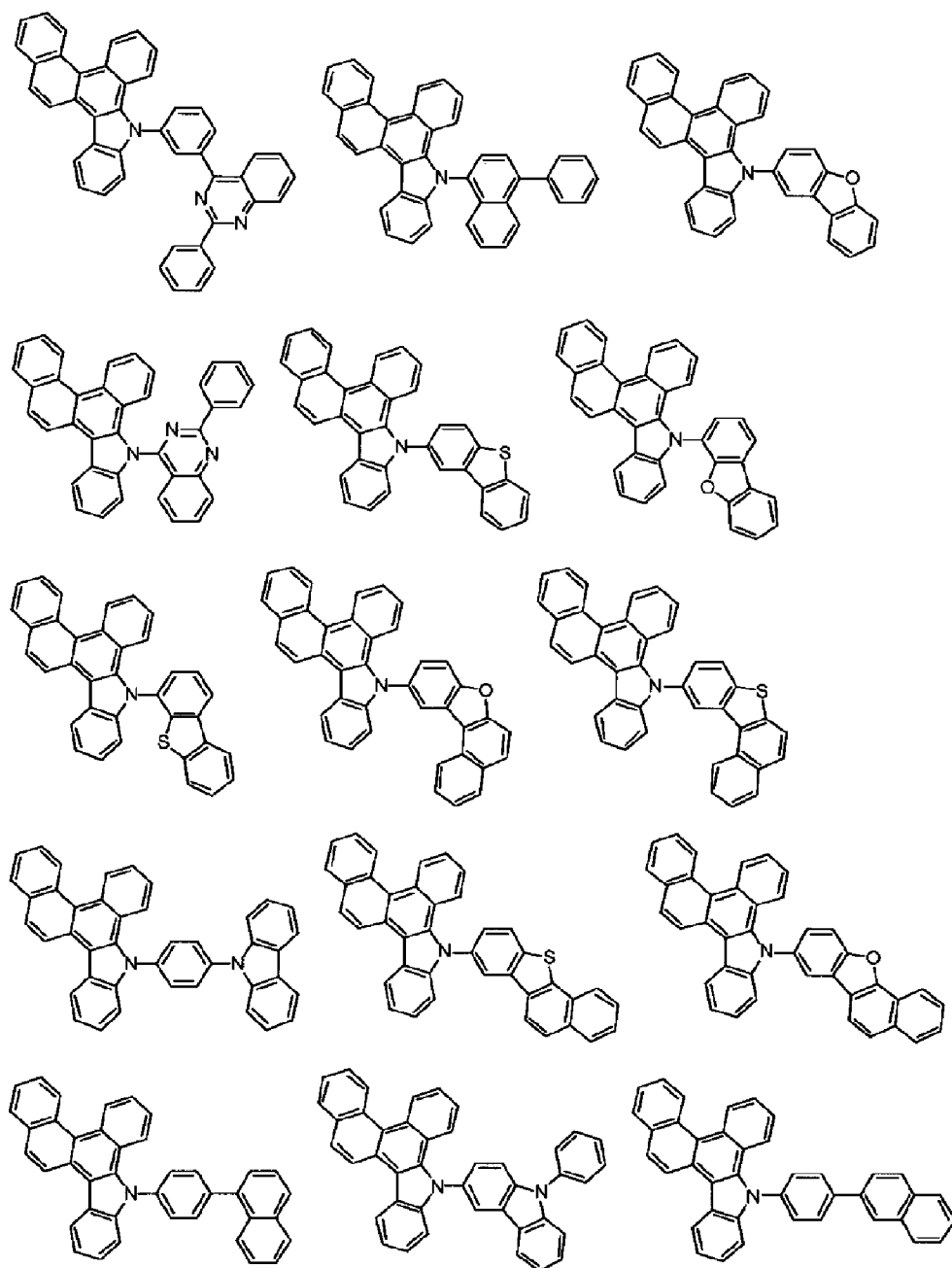
[0092]

[化33]



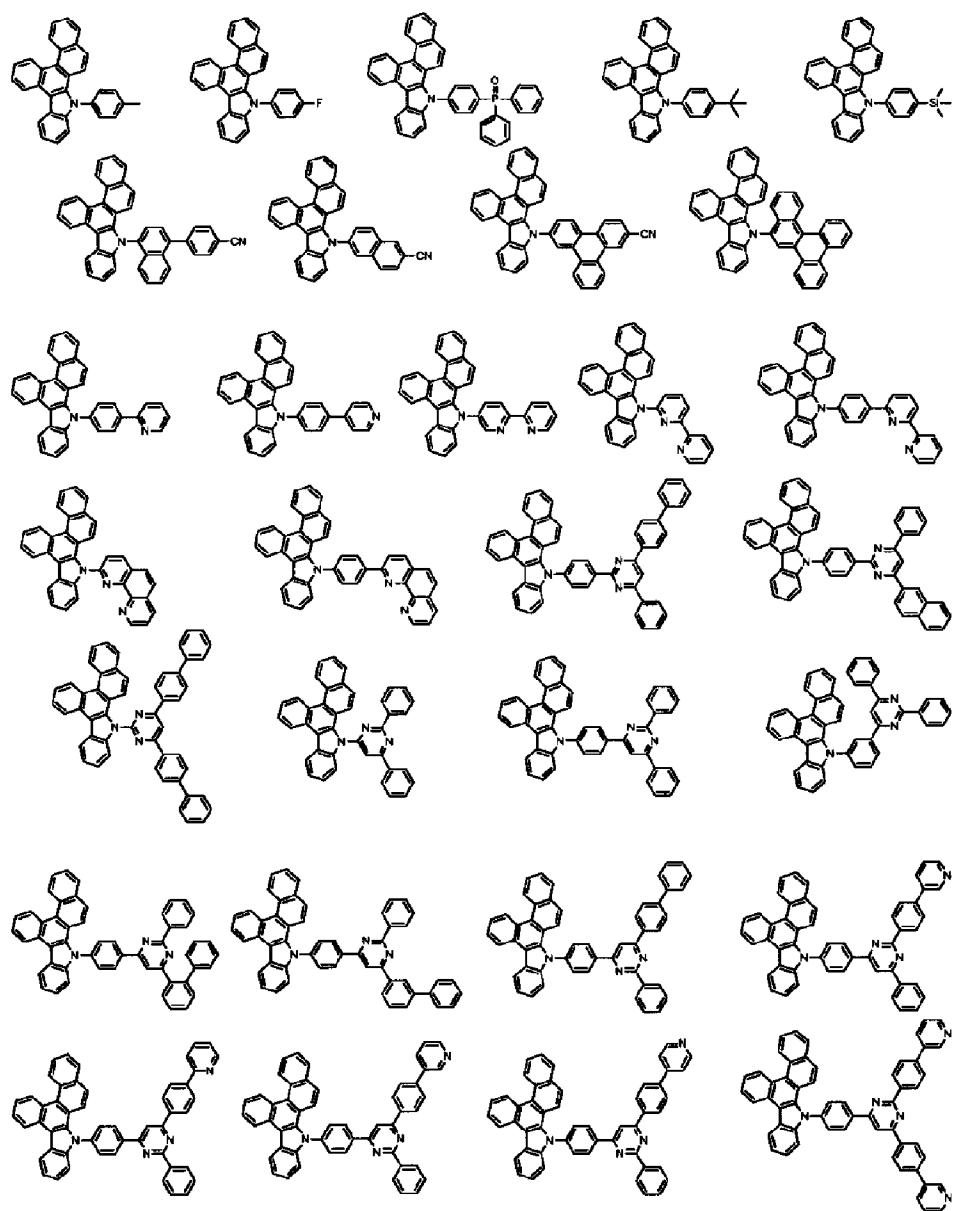
[0093]

[化34]



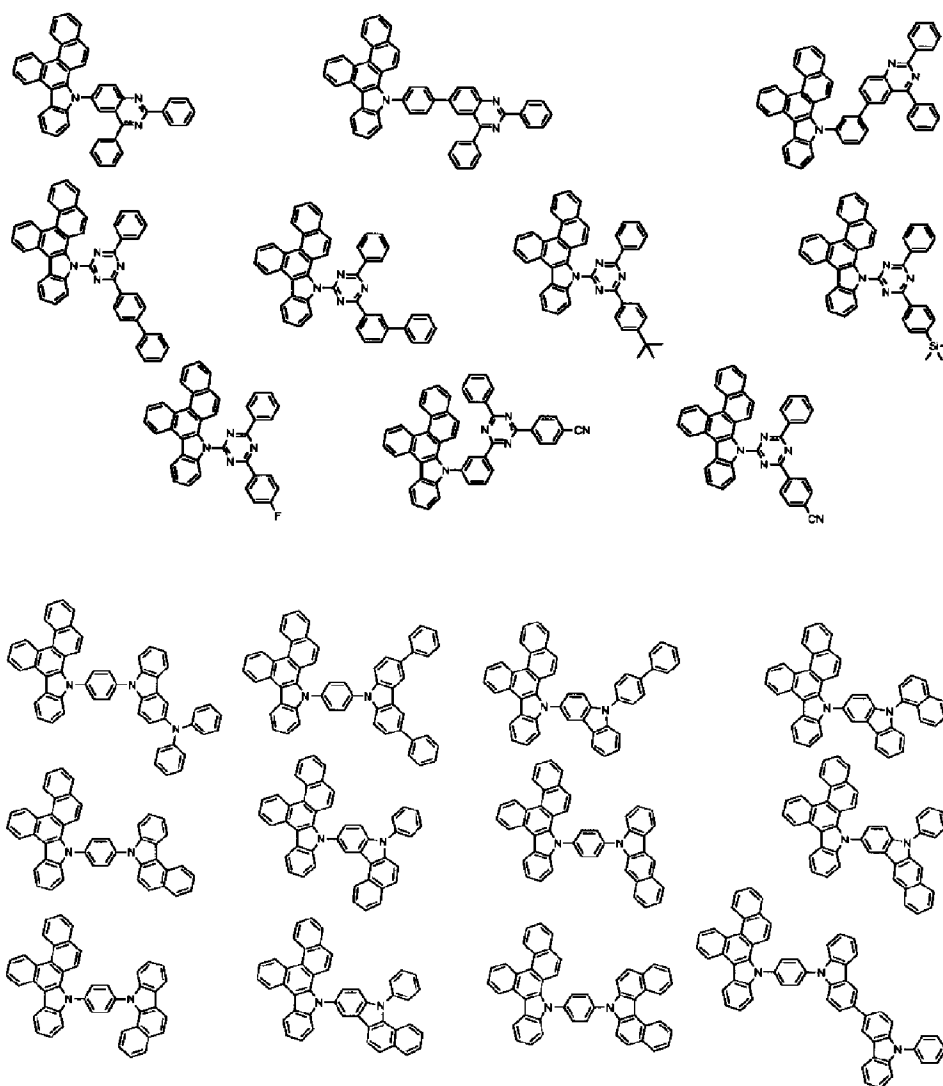
[0094]

[化36]



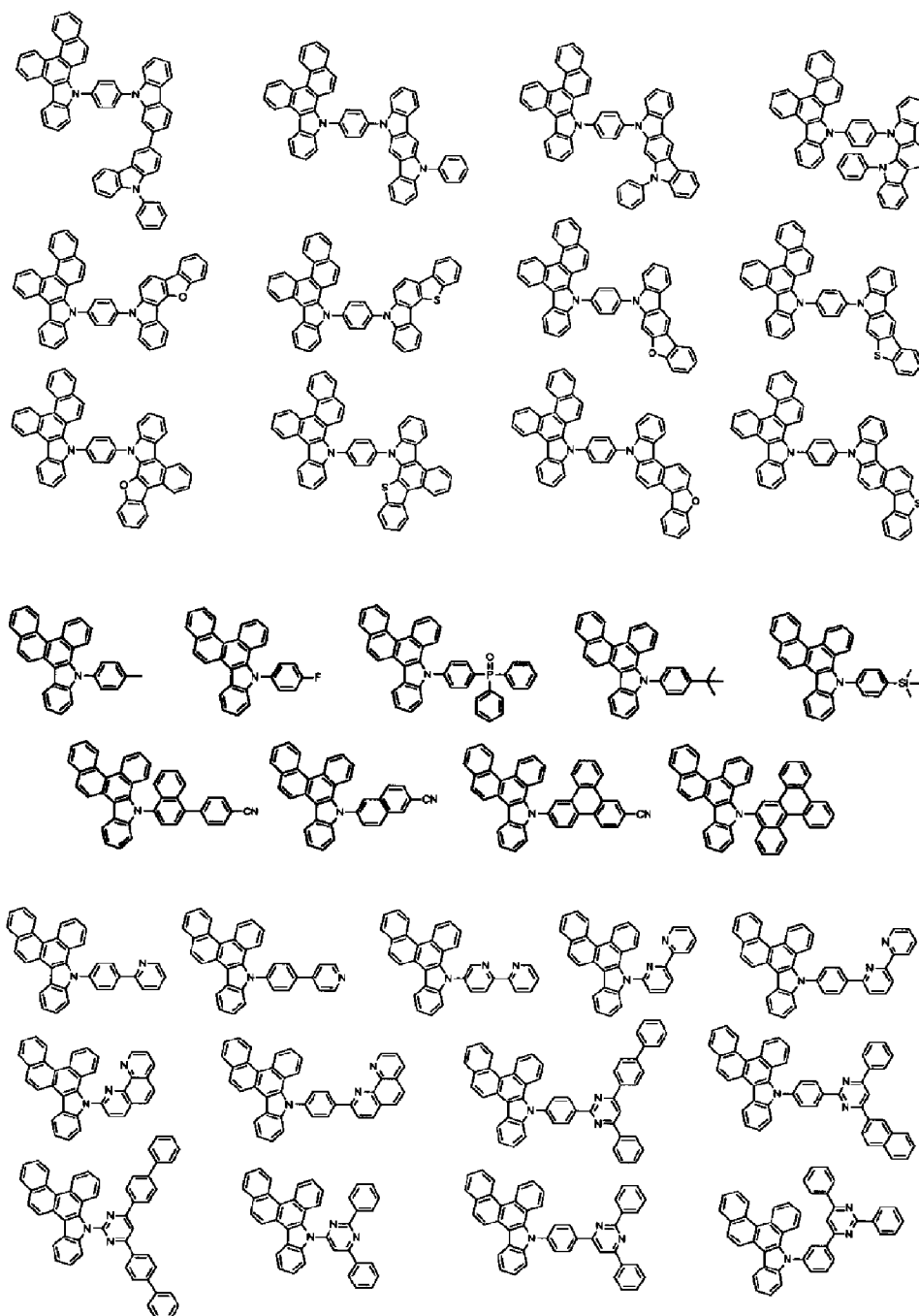
[0096]

[化37]



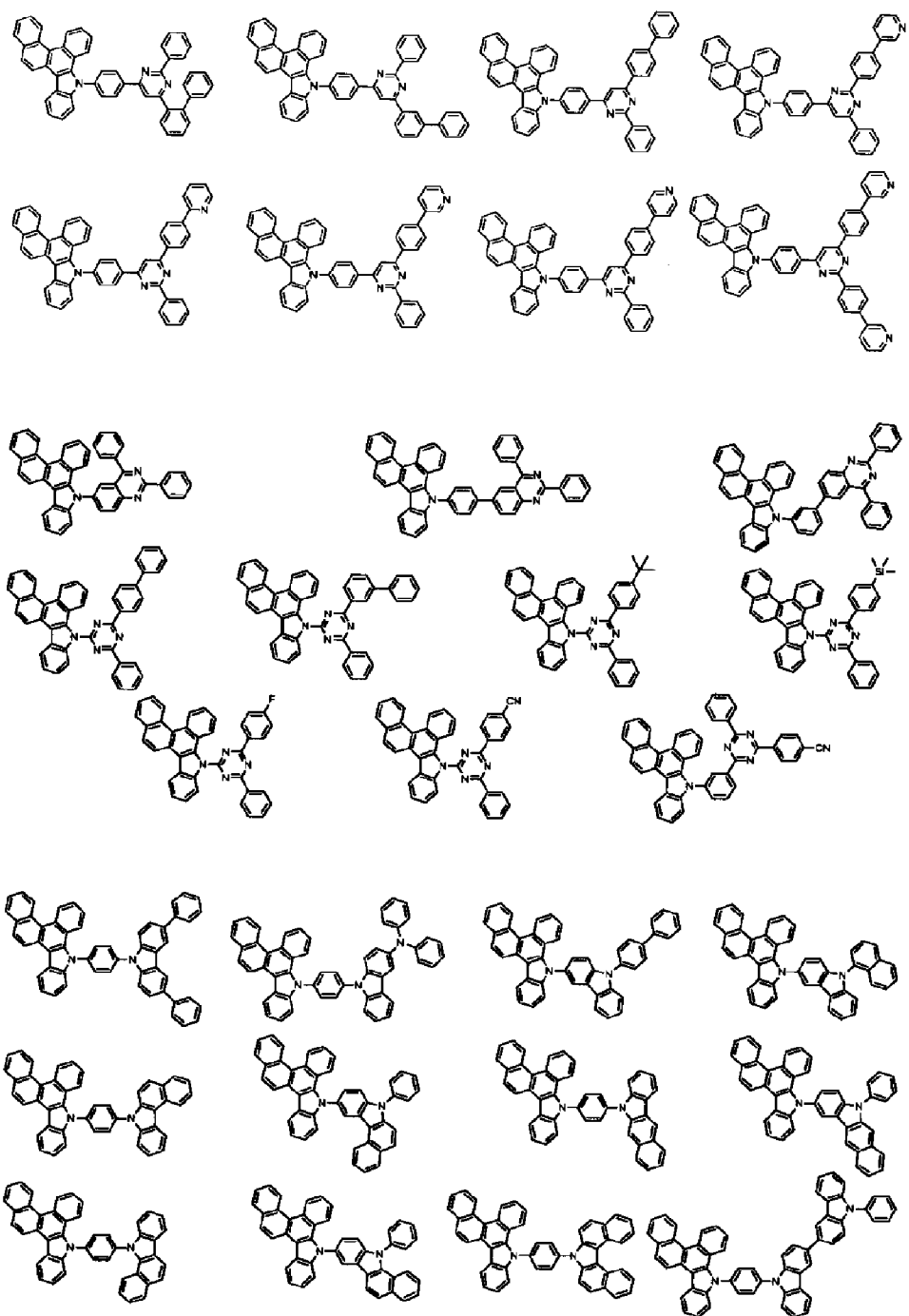
[0097]

[化38]



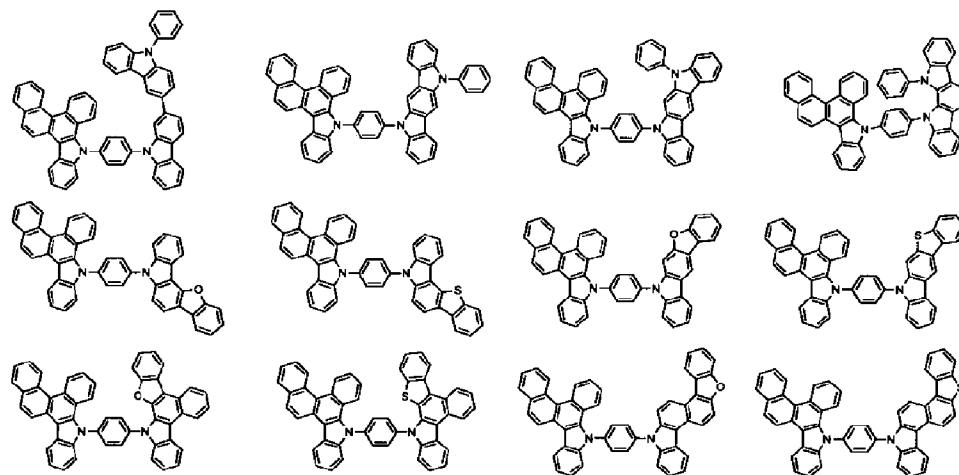
[0098]

[化39]



[0099]

[化40]



[0100] 本発明の一実施態様の化合物は、有機EL素子用材料として有用であり、特に有機EL素子の発光層形成用材料、陽極側有機薄膜層（正孔輸送層、正孔注入層等）形成用材料、陰極側有機薄膜層（電子輸送層、電子注入層等）形成用材料として有用である。

[0101] [有機エレクトロルミネッセンス素子用材料]

本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、上記含窒素複素環誘導体を含む。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料における含窒素複素環誘導体の含有量は、特に制限されず、例えば、1質量%以上であればよく、10質量%以上であることが好ましく、50質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましく、90質量%以上であることが特に好ましい。

本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、有機EL素子における材料として有用であり、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料及びドーパント材料や、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料として用いることができる。また、蛍光発光ユニット及び燐光発光ユニットのいずれにおいても、有機EL素子の陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層や、有機EL素子の陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層の材料、すなわち、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層、電子阻止層等の材料としても有用である。

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。

[0102] (有機EL素子)

次に、本発明の一実施態様の有機EL素子について説明する。

本発明の一実施態様の有機EL素子は、陰極と陽極の間に発光層を含有する有機薄膜層を有し、この有機薄膜層のうちの少なくとも1層が前述した本発明の一実施態様の化合物を含むことを特徴とする。

前述の本発明の一実施態様の化合物が含まれる有機薄膜層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層（正孔輸送層、正孔注入層等）、発光層、陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層（電子輸送層、電子注入層等）、スペース層、障壁層等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。前述の本発明の一実施態様の化合物は、上記いずれの層に含まれていてもよく、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料やドーパント材料、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料等として用いることが好ましい。また、発光ユニットの正孔輸送層や正孔注入層等の陽極側有機薄膜層、電子輸送層や電子注入層等の陰極有機薄膜層に前述の本発明の一実施形態の化合物を含有してもよい。

[0103] 本発明の一実施態様の有機EL素子は、蛍光又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く、中でも、燐光発光型であることが好ましい。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。

[0104] 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

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）
- (g) 正孔輸送層／電子障壁層／発光層（／電子輸送層）
- (h) 正孔輸送層／発光層／正孔障壁層（／電子輸送層）
- (i) 正孔輸送層／蛍光発光層／トリプレット障壁層（／電子輸送層）

[0105] 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等が挙げられる。

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。

[0106] 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。

[0107] 図1に、本発明の一実施態様の有機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（燐光発光材料）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との間に正孔注入・輸送層（陽極側有機薄膜層）6等、発光層5と陰極4との間に電子注入・輸送層（陰極側有機薄膜層）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。

[0108] なお、本明細書において、蛍光ドーパント（蛍光発光材料）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。

[0109] （基板）

本発明の一実施態様の有機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ことができる。

[0110] (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、4.5 eV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 (NSA)、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 $\Omega/\square$ 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 μ m、好ましくは10 nm~200 nmの範囲で選択される。

[0111] (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。

[0112] (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。

[0113] 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。

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。

[0114] 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。

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。

[0115] 発光層は、例えば蒸着法、スピンコート法、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ン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。

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。

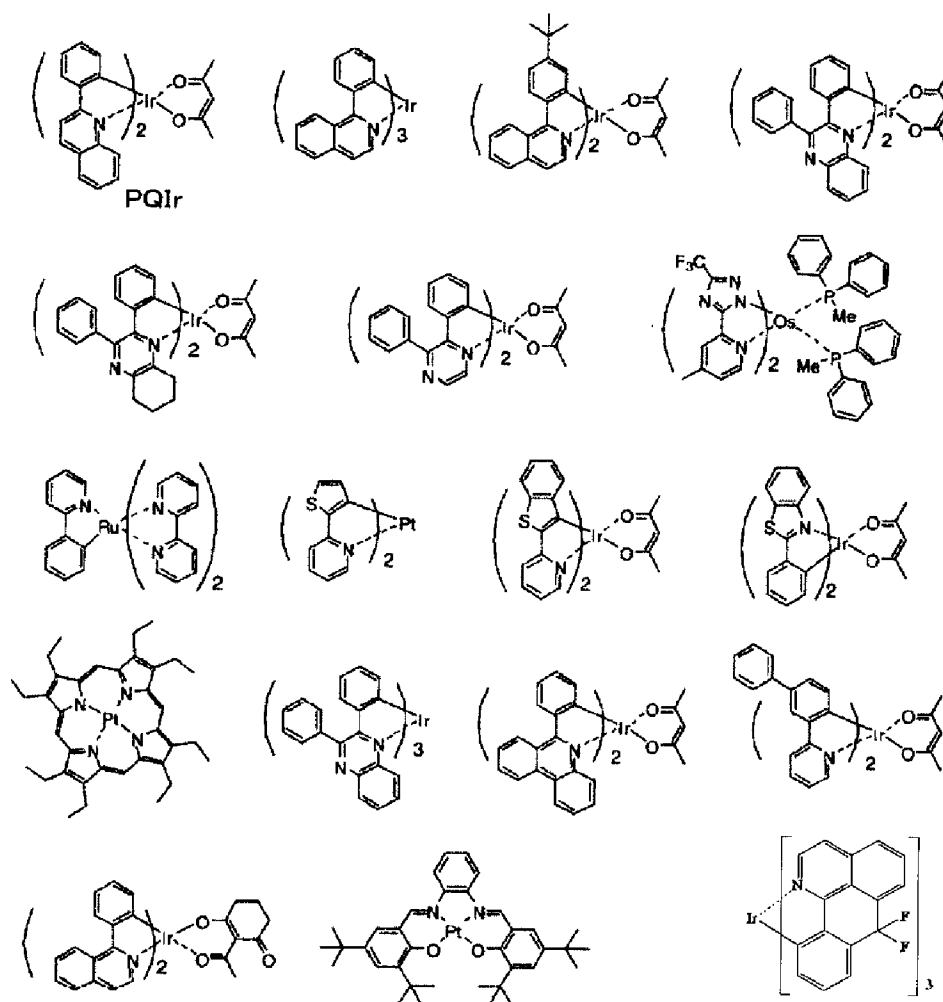
[0116] 発光層を形成する燐光ドーパント（燐光発光材料）は三重項励起状態から発光することのできる化合物であり、三重項励起状態から発光する限り特に

限定されないが、I r, P t, O s, A u, C u, R e 及び R u 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、I r, O s 及び P t 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、特にイリジウム、オスミウム、白金から選択される金属原子のオルトメタル化錯体により好ましく、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。

[0117] 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。

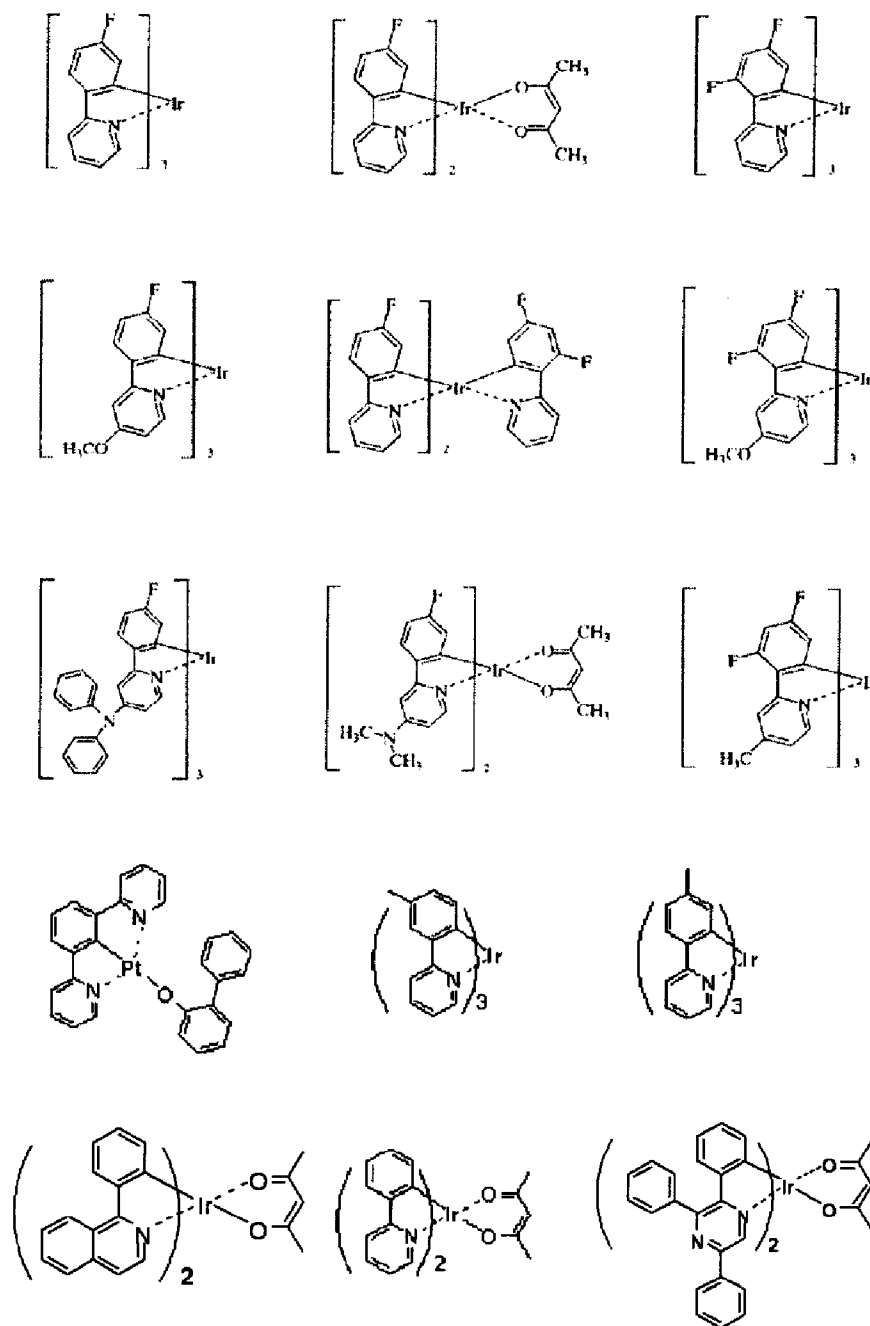
[0118] 燐光ドーパントとして好ましい有機金属錯体の具体例を、以下に示す。

[化41]



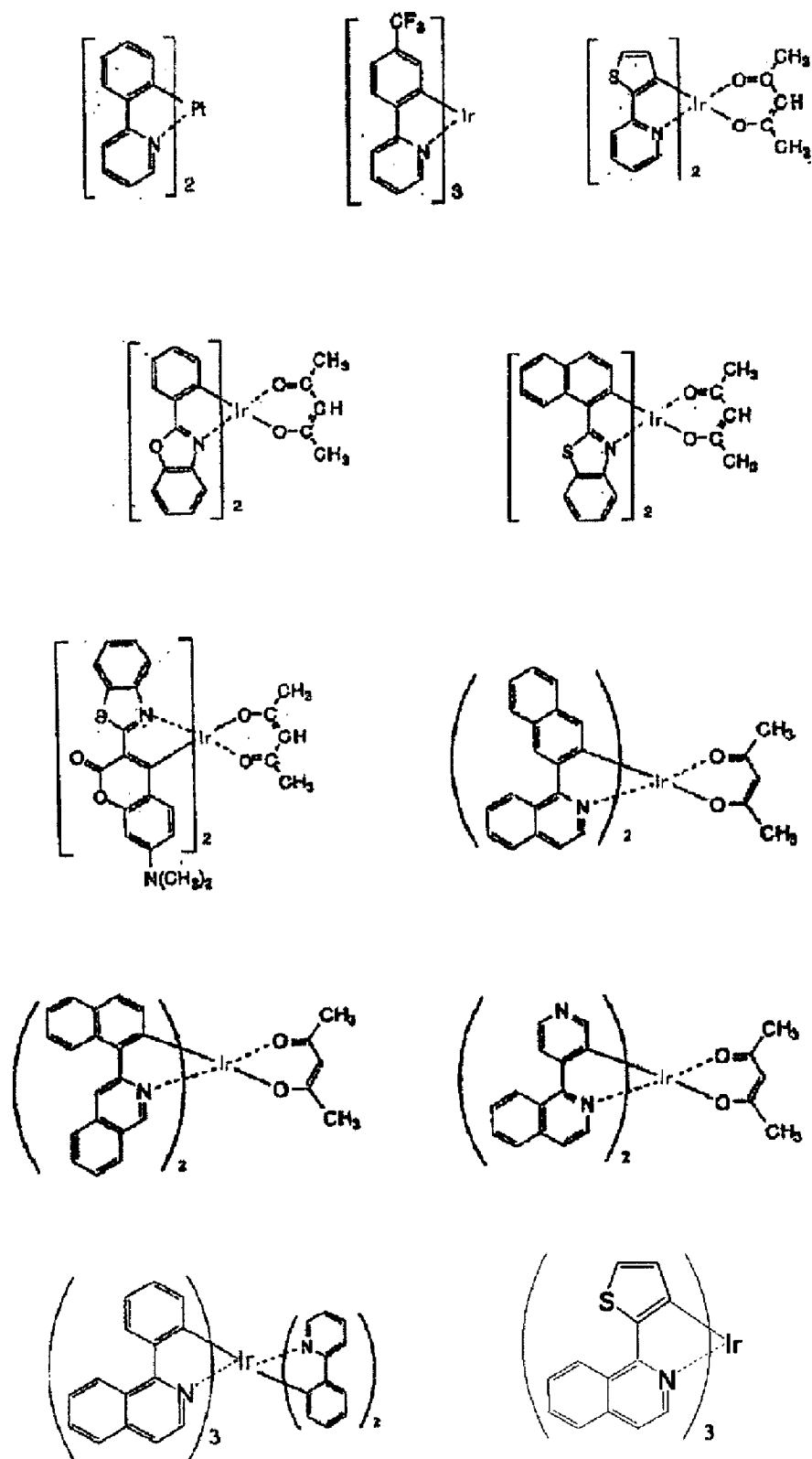
[0119]

[化42]



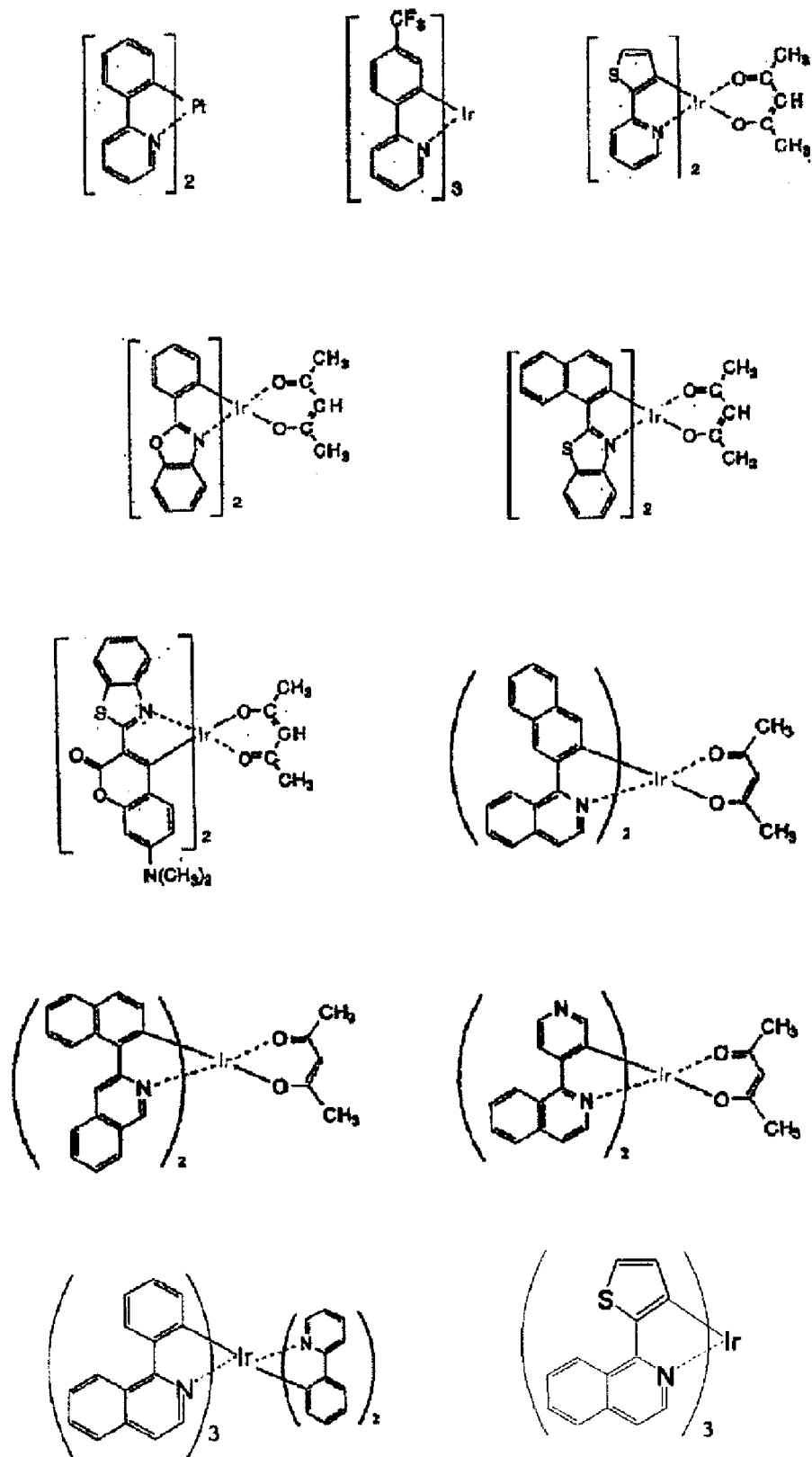
[0120]

[化43]



[0121]

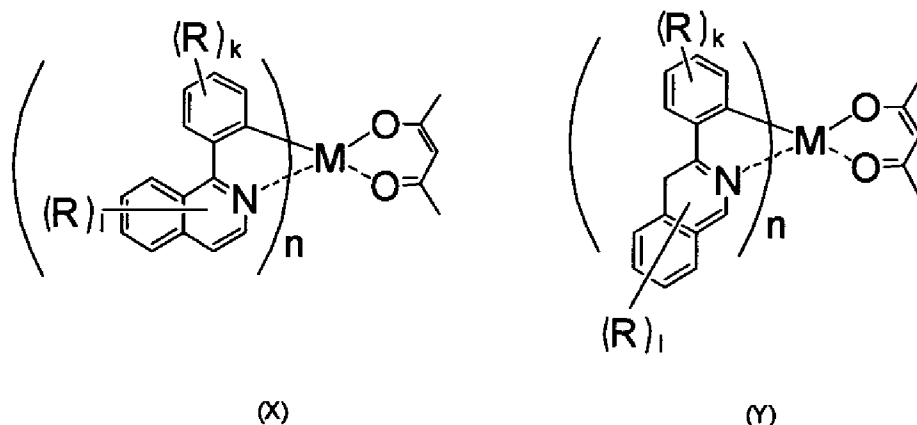
[化44]



[0122] さらに、本発明においては、燐光ドーパントとして、下記式 (X) 又は (

Y) で表される錯体が好ましい。

[化45]



[0123] [式 (X)、(Y) において、R は、それぞれ独立に、水素原子または置換基、k は、1～4 の整数、l は、1～6 の整数、n は、2～4 の整数である。M は、I r、O s、または P t である。]

R の置換基としては、一般式 (1) の置換基と同様の例が挙げられる。

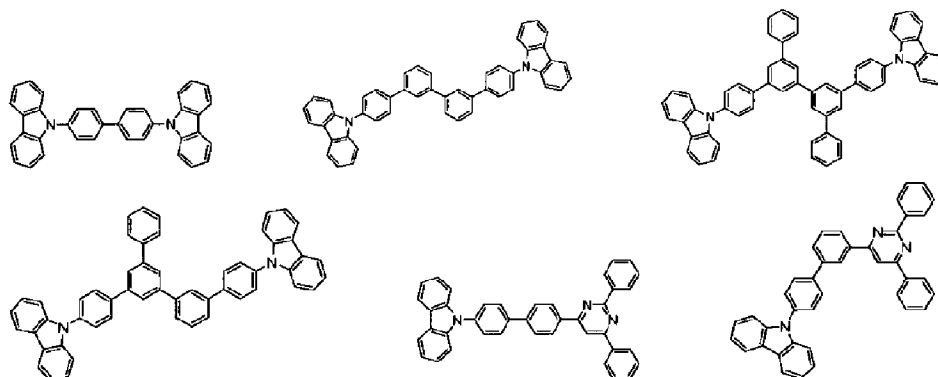
[0124] 燐光ホストは、燐光ドーパントの三重項エネルギーを効率的に発光層内に閉じ込めることにより、燐光ドーパントを効率的に発光させる機能を有する化合物である。本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料は燐光ホストとして有用であるが、本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料以外の化合物も、燐光ホストとして、上記目的に応じて適宜選択することができる。

本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料とそれ以外の化合物を同一の発光層内の燐光ホスト材料として併用してもよいし、複数の発光層がある場合には、そのうちの一つの発光層の燐光ホスト材料として本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料を用い、別の一つの発光層の燐光ホスト材料として本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料以外の化合物を用いてもよい。また、本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料は発光層以外の有機層にも使用しうるものであり、その場合には発光層の燐光ホストとして、本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料以外の化合物を用いてもよい。

[0125] 本発明の一実施態様の有機 E L 素子用材料以外の化合物で、燐光ホストとして好適な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。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。

[0126] [化46]

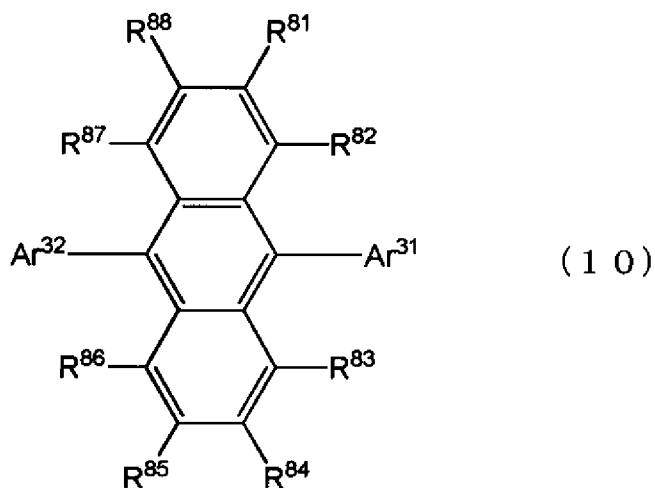


[0127] 本発明の一実施態様の有機EL素子は、蛍光発光材料を含有する発光層、つまり蛍光発光層を有していてもよい。蛍光発光層としては、公知の蛍光発

光材料を使用できる。該蛍光発光材料としては、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体及びアリールアミン誘導体から選択される少なくとも1種が好ましく、アントラセン誘導体、アリールアミン誘導体がより好ましい。特に、ホスト材料としてはアントラセン誘導体が好ましく、ドーパントとしてはアリールアミン誘導体が好ましい。具体的には、国際公開第2010/134350号や国際公開第2010/134352号に記載する好適な材料が選択される。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、蛍光発光層の蛍光発光材料として用いてもよく、蛍光発光層のホスト材料として用いてもよい。

[0128] 蛍光発光材料としての前記アントラセン誘導体の環形成炭素数は、好ましくは26～100、より好ましくは26～80、さらに好ましくは26～60である。該アントラセン誘導体としては、より具体的には下記式(10)で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

[化47]



[0129] (上記式(10)中、Ar³¹及びAr³²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のアリール基又は環形成原子数5～50のヘテロアリール基である。

R⁸¹～R⁸⁸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1～50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 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 2～50 のアルコシカルボニル基、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ル基である。)

上記環形成炭素数 6～50 のアリール基としては、いずれも、環形成炭素数 6～40 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6～30 のアリール基がより好ましい。

上記環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基としては、いずれも、環形成原子数 5～40 のヘテロアリール基が好ましく、環形成原子数 5～30 のヘテロアリール基がより好ましい。

上記炭素数 1～50 のアルキル基としては、炭素数 1～30 のアルキル基が好ましく、炭素数 1～10 のアルキル基がより好ましく、炭素数 1～5 のアルキル基がさらに好ましい。

上記炭素数 1～50 のアルコキシ基としては、炭素数 1～30 のアルコキシ基が好ましく、炭素数 1～10 のアルコキシ基がより好ましく、炭素数 1～5 のアルコキシ基がさらに好ましい。

上記炭素数 7～50 のアラルキル基としては、炭素数 7～30 のアラルキル基が好ましく、炭素数 7～20 のアラルキル基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6～50 のアリールオキシ基としては、環形成炭素数 6～40 のアリールオキシ基が好ましく、環形成炭素数 6～30 のアリールオキシ基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6～50 のアリールチオ基としては、環形成炭素数 6～40 のアリールチオ基が好ましく、環形成炭素数 6～30 のアリールチオ基がより好ましい。

上記炭素数 2～50 のアルコシカルボニル基としては、炭素数 2～30 のアルコシカルボニル基が好ましく、炭素数 2～10 のアルコシカルボ

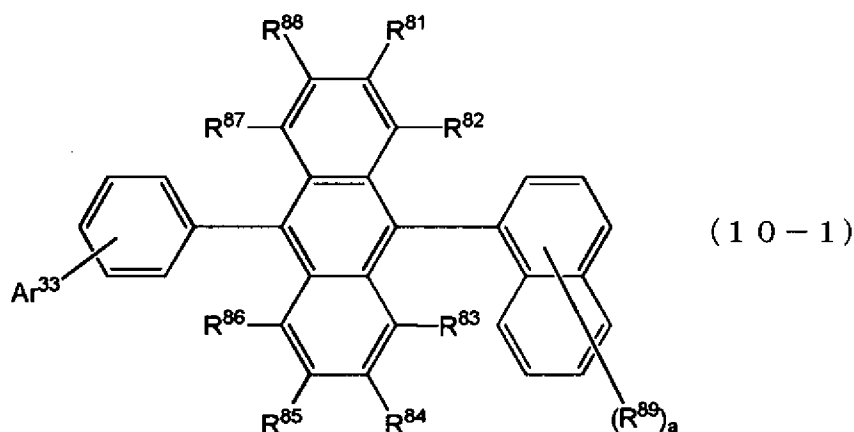
ニル基がより好ましく、炭素数 2 ～ 5 のアルコシカルボニル基がさらに好ましい。

上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

特に、 Ar^{31} 及び Ar^{32} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基であることが好ましい。

また、式 (10) で表されるアントラセン誘導体としては、下記式 (10-1) で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

[化48]



[0130] (上記式 (10-1) 中、 Ar^{33} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基又は環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基である。 $R^{81} \sim R^{88}$ は、前記定義の通りである。 R^{89} は、 $R^{81} \sim R^{88}$ の定義と同じである。 a は、1 ～ 7 の整数である。)

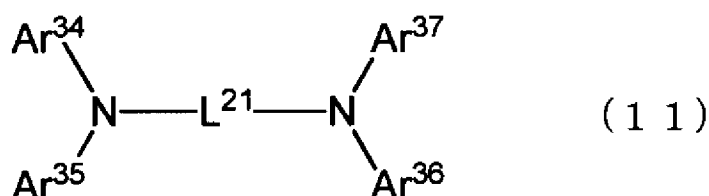
$R^{81} \sim R^{88}$ は、好ましいものも前記同様である。また、 R^{89} の好ましいものも、 $R^{81} \sim R^{88}$ と同様である。 a は 1 ～ 3 の整数が好ましく、1 又は 2 がより好ましい。

Ar^{33} が表す環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基としては、環形成炭素数 6 ～ 40 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6 ～ 20 のアリール基がさらに好ましく、環形成炭素数 6 ～ 12 のアリール基が特に好ましい。

[0131] 蛍光発光材料としての前記アリールアミン誘導体としては、アリールジアミン誘導体が好ましく、ピレン骨格を含有するアリールジアミン誘導体により好ましく、ピレン骨格及びジベンゾフラン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がさらに好ましい。

アリールジアミン誘導体としては、より具体的には、下記式(11)で表されるアリールジアミン誘導体が好ましい。

[化49]



[0132] (式(11)中、 $\text{Ar}^{34} \sim \text{Ar}^{37}$ 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を表す。

L^{21} 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を表す。)

上記環形成炭素数6～50のアリール基としては、環形成炭素数6～30のアリール基が好ましく、環形成炭素数6～20のアリール基がより好ましく、環形成炭素数6～12のアリール基がさらに好ましく、フェニル基、ナフチル基が特に好ましい。

上記環形成原子数5～50のヘテロアリール基としては、環形成原子数5～40のヘテロアリール基が好ましく、環形成原子数5～30のヘテロアリール基がより好ましく、環形成原子数5～20のヘテロアリール基がさらに好ましい。ヘテロアリール基としては、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などが挙げられ、ジベンゾフラニル基が好ましい。該ヘテロアリール基の好ましい置換基としては、環形成炭素数6～30(好ましくは6～20、より好ましくは6～12)のアリール基が挙げられ、フェニル基、ナフチル基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基としては、環形成炭素数 6 ～ 40 のアリーレン基が好ましく、環形成炭素数 6 ～ 30 のアリーレン基がより好ましく、環形成炭素数 6 ～ 20 のアリーレン基がさらに好ましく、ピレニル基が特に好ましい。

[0133] 発光層は、ダブルホスト（ホスト・コホストともいう）としてもよい。具体的に、発光層において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ことで、発光層内のキャリアバランスを調整してもよい。

また、ダブルドーパントとしてもよい。発光層において、量子収率の高いドーパント材料を 2 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。例えば、ホストと赤色ドーパント、緑色のドーパントを共蒸着することによって、黄色の発光層を実現することがある。

[0134] 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よい。

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。

[0135] （電子供与性ドーパント）

本発明の一実施態様の有機 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用い、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。

[0136] 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

、 9.5 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： $2.0\text{ eV}\sim 2.5\text{ eV}$ ）、 Ba （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。

[0137] アルカリ金属化合物としては、 Li_2O 、 Cs_2O 、 K_2O 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 、 Li_2O 、 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 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ （ $0 < x < 1$ ）、 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$ （ $0 < x < 1$ ）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、 YbF_3 、 ScF_3 、 ScO_3 、 Y_2O_3 、 Ce_2O_3 、 GdF_3 、 TbF_3 等が挙げられ、 YbF_3 、 ScF_3 、 TbF_3 が好ましい。

[0138] 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。

[0139] 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。

[0140] 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0.1nm～15nm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0.05nm～1nmで形成する。

本発明の一実施態様の有機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。

[0141] (電子輸送層)

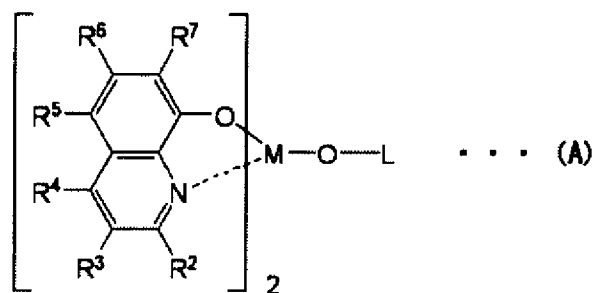
電子輸送層は、発光層と陰極との間に形成される有機層であって、電子を陰極から発光層へ輸送する機能を有する。電子輸送層が複数層で構成される場合、陰極に近い有機層を電子注入層と定義することがある。電子注入層は、陰極から電子を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、電子輸送層に含有される電子輸送材料として用いることもできる。

[0142] 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。

[0143]

[化50]



[0144] 式 (A) における $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、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 のアリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、または、環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基であり、これらは置換されていてもよい。

[0145] 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。

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、アリールアミノ基、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 $-N Q^1 Q^2$ と表される。 Q^1 及び Q^2 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。 Q^1 及び Q^2 の一方は水素原子又は重水素原子であってもよい。

アリールアミノ基は $-N A r^1 A r^2$ と表され、 $A r^1$ 及び $A r^2$ 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または縮合芳香族炭化水素基を表す。 $A r^1$ 及び $A r^2$ の一方は水素原子又は重水素原子であってもよい。

[0146] 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、アリール基、及びアラルキル基を含む。

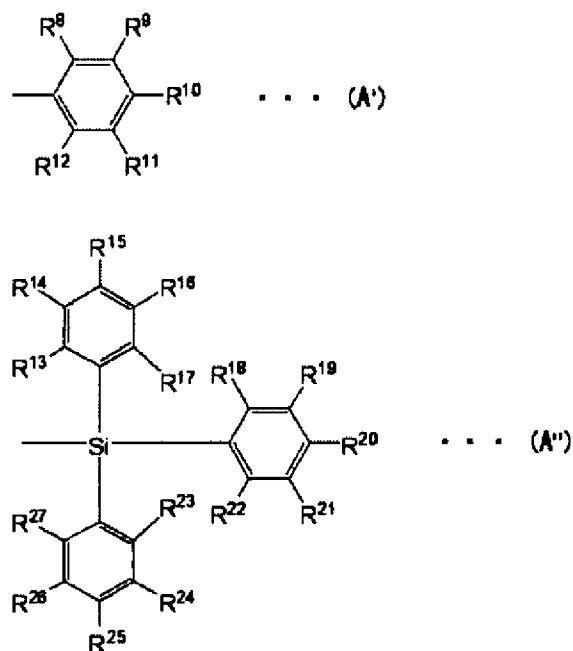
アルコキシカルボニル基は $-C O O Y'$ と表され、 Y' は炭素数 1 ～ 20 のアルキル基を表す。

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、 $1 \sim n$ であると好ましい。

Lは、下記式(A')又は(A'')で表される基である。

[0147] [化51]



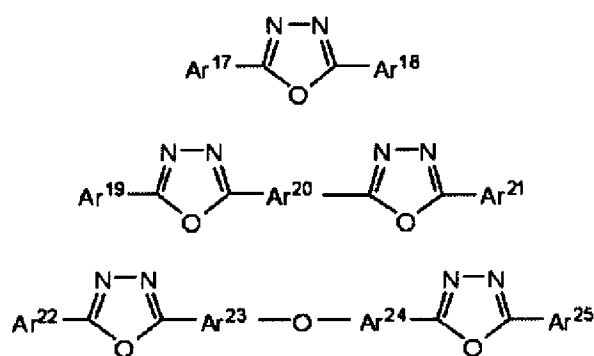
[0148] 式(A')中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、または置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、前記式(A'')中、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

[0149] 式(A')及び式(A'')の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数1～40の炭化水素基は、前記式(A)中の $R^2 \sim R^7$ が示す炭化水素基と同様である。また、 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ 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。

[0150] 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、下記のことを挙げるができる。

[0151] [化52]



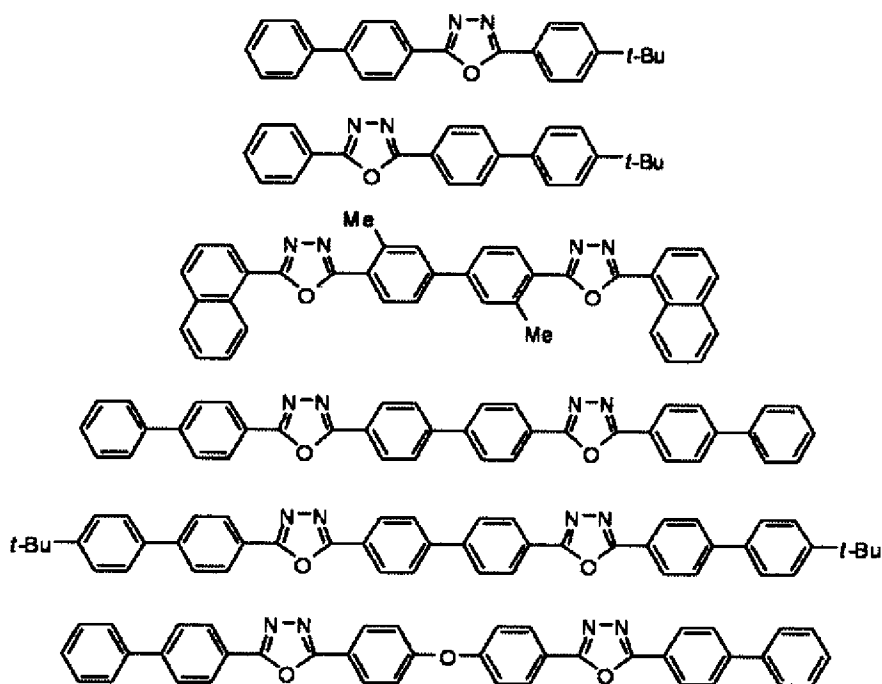
[0152] 前記式中、 Ar^{17} 、 Ar^{18} 、 Ar^{19} 、 Ar^{21} 、 Ar^{22} 及び Ar^{25} は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数 6～50 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 Ar^{17} と Ar^{18} 、 Ar^{19} と Ar^{21} 、 Ar^{22} と Ar^{25} は、たがいに同一でも異なってもよい。芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 1～10 のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

[0153] Ar^{20} 、 Ar^{23} 及び Ar^{24} は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数 6～60 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、 Ar^{23} と Ar^{24} 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。

[0154] 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

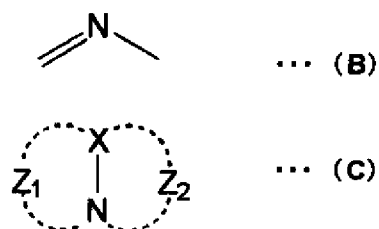
れる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のを挙げる事ができる。

[0155] [化53]



[0156] 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。

[0157] [化54]



[0158] 前記式（C）中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。 Z_1 ならびに Z_2 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。

[0159] 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

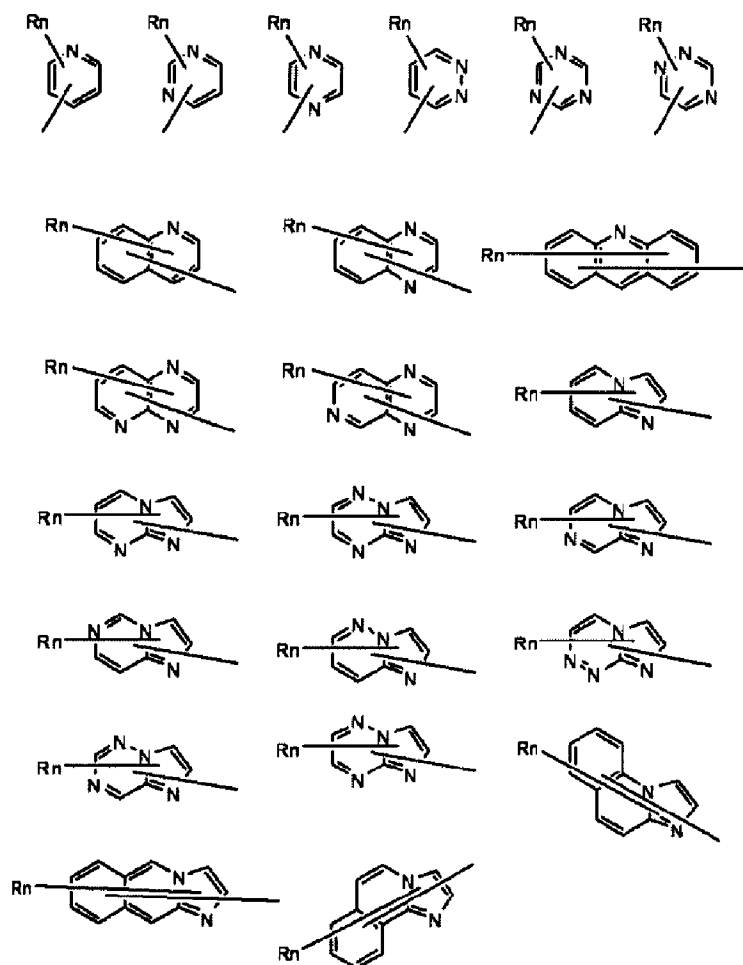
窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記式（B）と（C）もしくは上記式（B）と下記式（D）を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物が好ましい。

[0160] [化55]



[0161] 前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の式で表される含窒素複素環基から選択される。

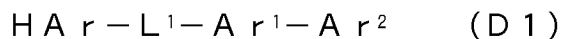
[0162] [化56]



[0163] 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。

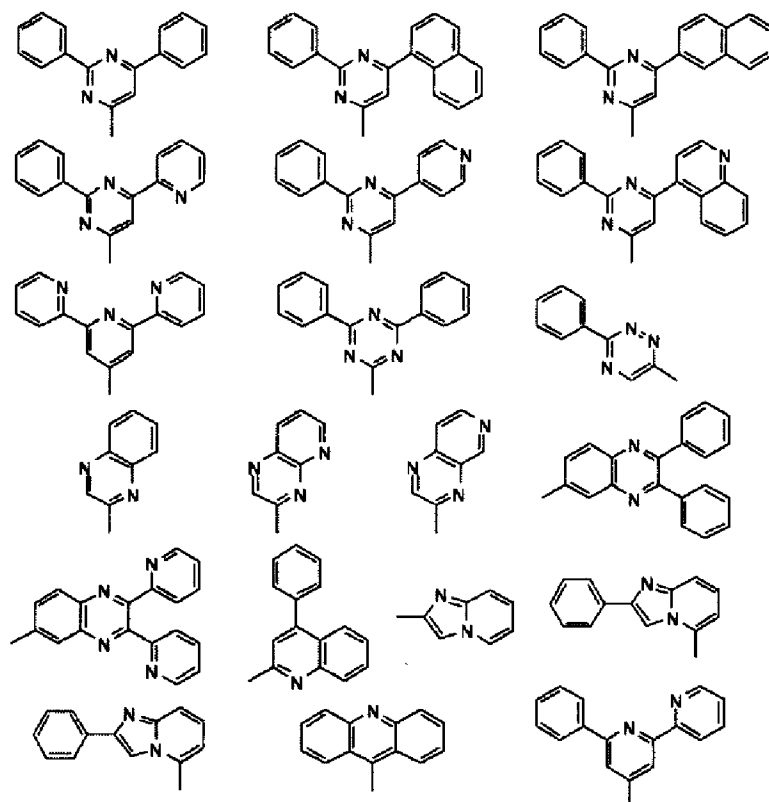
[0164] さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式 (D 1) で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。



前記式(D 1)中、H A rは、置換もしくは無置換の炭素数3～40の含窒素複素環基であり、L'は単結合、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又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 r¹は置換もしくは無置換の炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、A r²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又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。

[0165] H A rは、例えば、下記の群から選択される。

[化57]



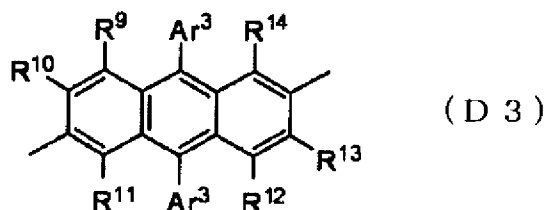
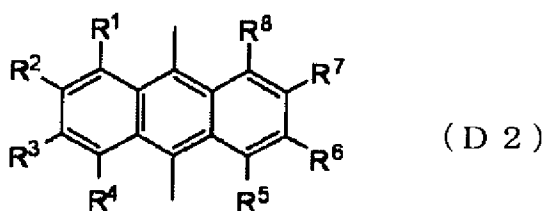
[0166] L^1 は、例えば、下記の群から選択される。

[化58]



[0167] Ar^1 は、例えば、下記式 (D 2)、式 (D 3) ので表される基から選択される。

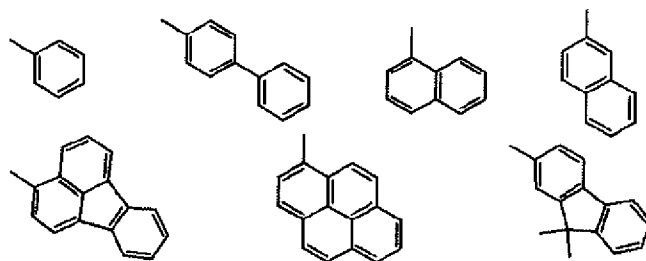
[化59]



[0168] 前記式 (D 2)、式 (D 3) 中、 $R^1 \sim R^{14}$ 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、 Ar^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。

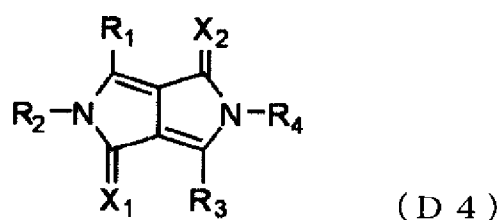
[0169] Ar^2 は、例えば、下記の群から選択される。

[化60]



[0170] 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。

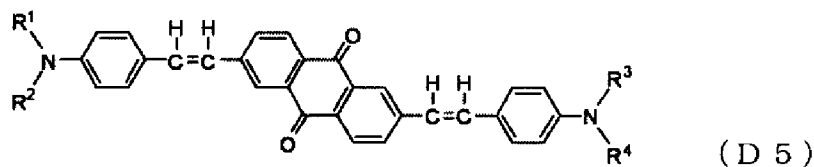
[0171] [化61]



[0172] 前記式 (D 4) 中、 $R_1 \sim R_4$ 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、 X_1 、 X_2 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。

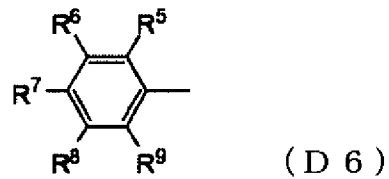
[0173] また、電子伝達性化合物として、下記の化合物も好適に用いられる。

[化62]



[0174] 前記式 (D 5) 中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は互いに同一のまたは異なる基であって、下記式 (D 6) で表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63]

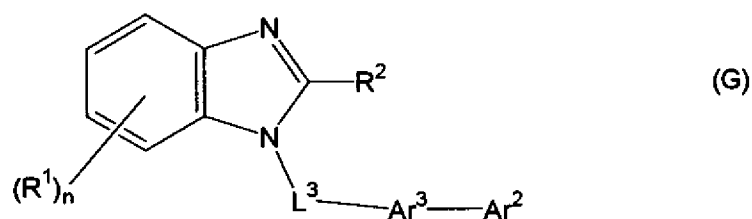
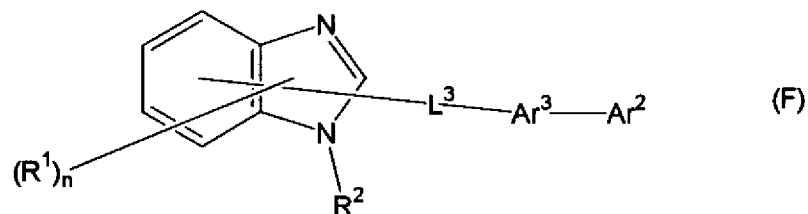
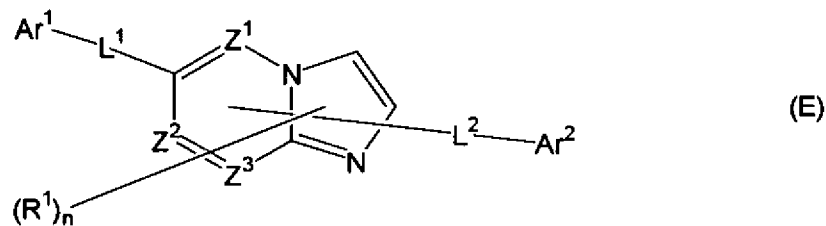


[0175] 前記式 (D 6) 中、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 は互いに同一または異なる基であって、水素原子、重水素原子、飽和もしくは不飽和の炭素数1～20のアルコキシル基、飽和もしくは不飽和の炭素数1～20のアルキル基、アミノ基、または炭素数1～20のアルキルアミノ基である。 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 の少なくとも1つは水素原子、重水素原子以外の基である。

[0176] 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。

[0177] 本発明の一実施態様の有機EL素子の電子輸送層は、下記式 (E) ～ (G) 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64]



[0178] (式(E)～式(G)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。

A_{r^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。

A_{r^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。)

[0179] 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。

[0180] 電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは1 nm～100 nmである。

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。

[0181] 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。

[0182] 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。

[0183] 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、 $0.1\text{ nm} \sim 15\text{ nm}$ 程度である。また、本発明の一実施態様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。

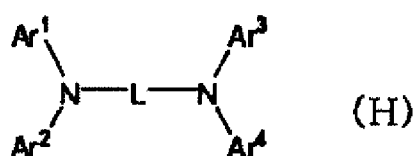
[0184] (正孔輸送層)

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。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、正孔輸送層に含有される正孔輸送材料として用いることもできる。

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、下記式（H）で表される芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

[化65]



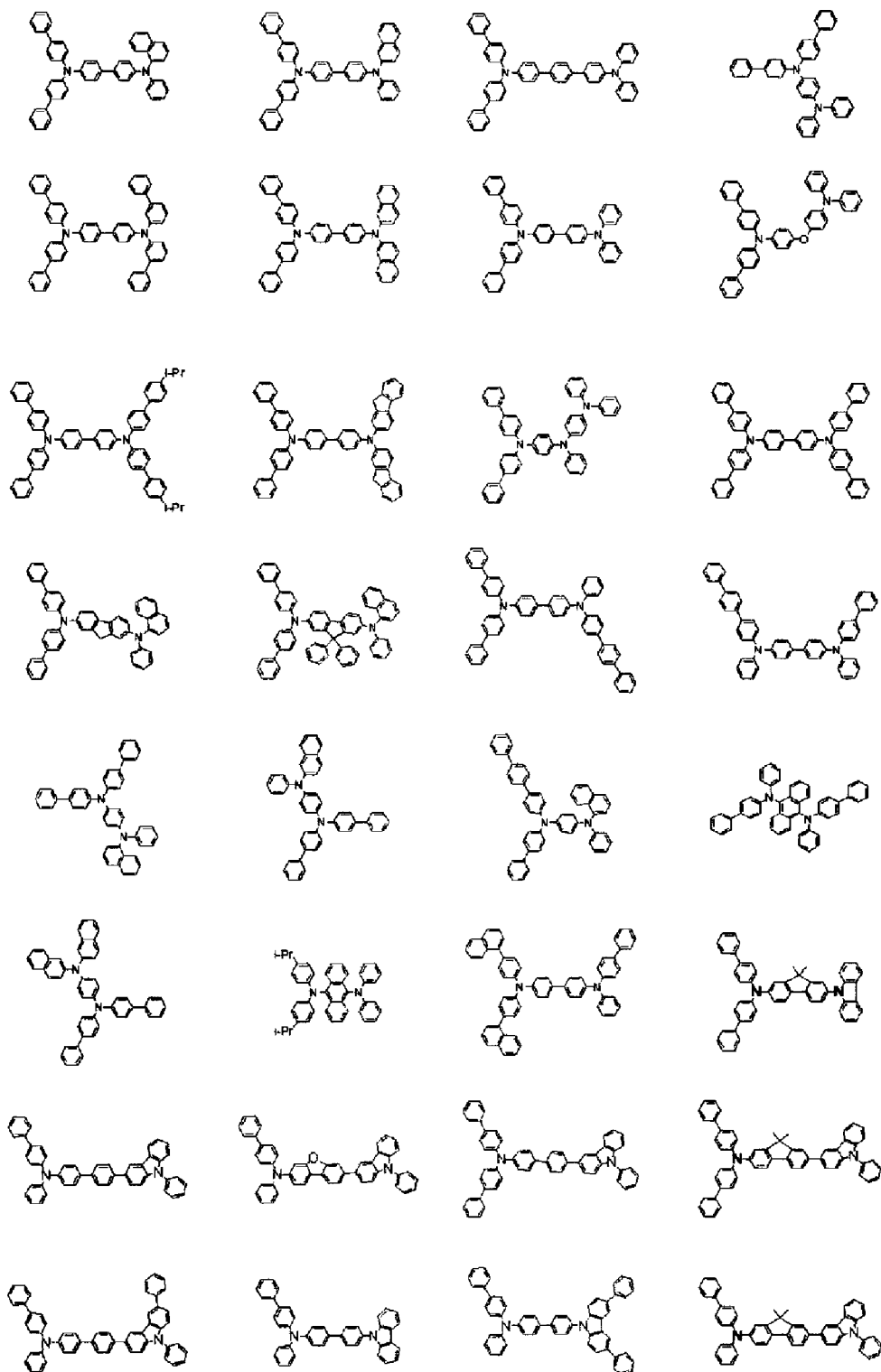
[0185] 前記式（H）において、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、または、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基が結合した基を表す。

また、前記式（H）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。

[0186] 式（H）の化合物の具体例を以下に記す。

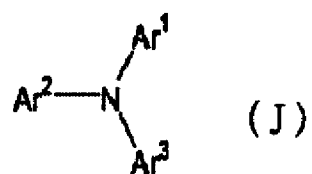
[0187]

[化66]



[0188] また、下記式（J）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。

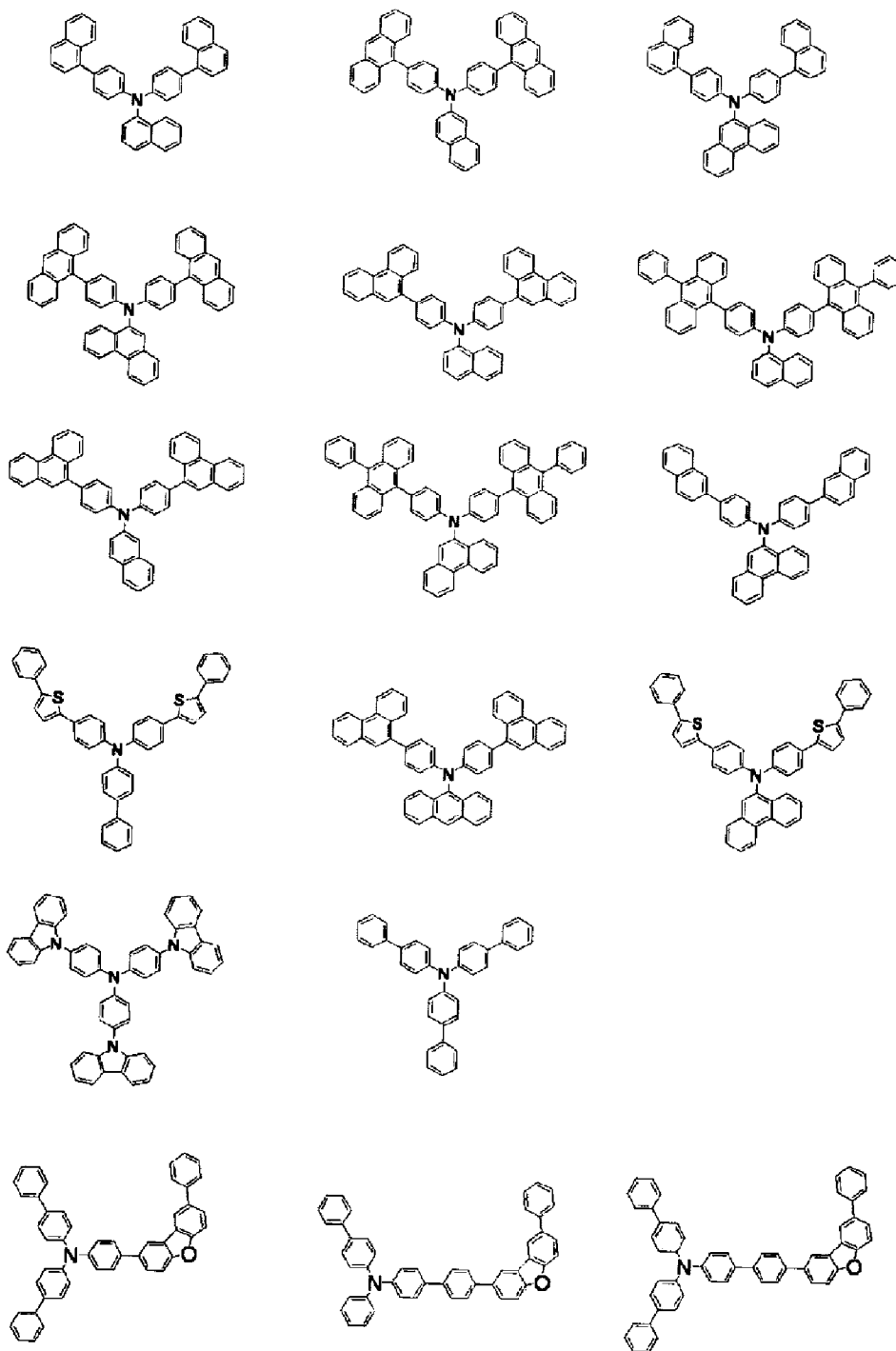
[化67]



[0189] 前記式 (J) において、 $Ar^1 \sim Ar^3$ の定義は前記式 (H) の $Ar^1 \sim Ar^4$ の定義と同様である。以下に式 (J) 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。

[0190]

[化68]



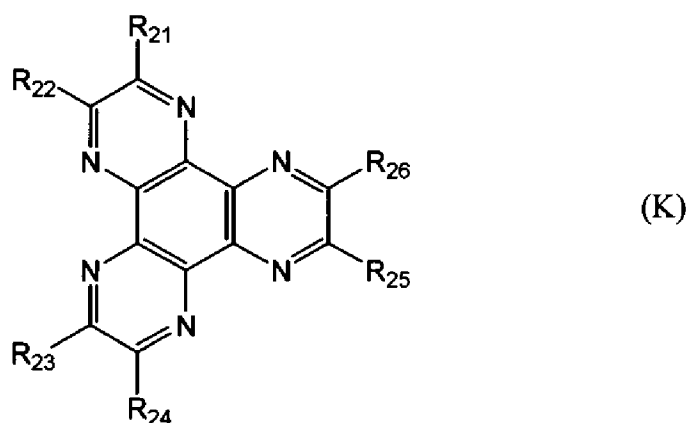
[0191] 本発明の一実施態様の有機EL素子の正孔輸送層は第1正孔輸送層（陽極側）と第2正孔輸送層（陰極側）の2層構造にしてもよい。

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。

[0192] 本発明の一実施態様の有機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アクセプター材料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。

前記アクセプター材料としては下記式(K)で表される化合物が好ましい。

[0193] [化69]



[0194] (上記式(K)中、R₂₁～R₂₆は互いに同一でも異なってもよく、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシル基、又は $-\text{COOR}_{27}$ (R₂₇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)を表す。ただし、R₂₁及びR₂₂、R₂₃及びR₂₄、並びにR₂₅及びR₂₆の1又は2以上の対が一緒になって $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を形成してもよい。)

R₂₇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。

アクセプター材料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。

[0195] (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F₄TCNQ (2, 3, 5, 6-tetrafluoro-7, 7, 8, 8-tetracyanoquinodimethane) 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。

[0196] (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。スペース層用の材料として、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

[0197] (障壁層)

本発明の一実施態様の有機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。正孔障壁層用の材料として、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

トリプレット障壁層は、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パ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、燐光素子においては、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。一方、蛍光素子においては、国際公開WO 2010/134350 A1に記載するTTF素子構成のトリプレット障壁層用の材料として、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

[0198] 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0.04～0.5 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0.04～0.5 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。

[0199] 本発明の一実施態様の有機エレクトロルミネッセンス素子は、有機ELパ

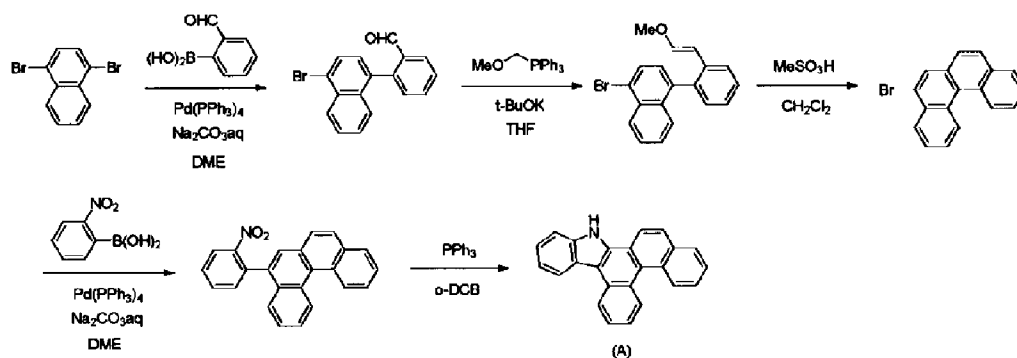
ネルモジュール等の表示部品、テレビ、携帯電話、若しくはパーソナルコンピュータ等の表示装置、及び、照明、若しくは車両用灯具の発光装置等の電子機器に使用できる。

実施例

[0200] 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。

合成例 1（中間体（A）の合成）

[0201] [化70]



[0202] (1) 1-ブロモ-4-(2-ホルミルフェニル)ナフタレンの合成

アルゴン雰囲気下、1,4-ジブロモナフタレン 230 g、2-ホルミルフェニルボロン酸 121 g、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）18.5 g をフラスコに仕込み、ジメトキシフラン（DME）2.4 L、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 1.2 L を加え、8 時間加熱還流撹拌した。室温（25℃）まで冷却後、水層を除去した。有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、目的の 1-ブロモ-4-(2-ホルミルフェニル)ナフタレン 170 g（収率 67%）を得た。

[0203] (2) 1-ブロモ-4-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]ナフタレンの合成

アルゴン雰囲気下、1-ブロモ-4-(2-ホルミルフェニル)ナフタレン 170 g、メトキシメチルトリフェニルホスフォニウムクロリド 207 g

、テトラヒドロフラン（THF）2.0 Lを仕込み、室温（25℃）にて攪拌中に、t-ブトキシカリウム73.6 gを加えた。室温（25℃）にて2時間攪拌した後、水1.5 Lを加えた。反応溶液をジエチルエーテルで抽出し、水層を除去した。有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、目的の1-ブromo-4-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]ナフタレン180 g（収率99%）を得た。

[0204] (3) 5-ブromoベンゾ[c]フェナントレンの合成

1-ブromo-4-[1-(2-メトキシビニル)フェニル]ナフタレン180 g、ジクロロメタン1.0 Lを仕込み、室温（25℃）下攪拌中にメタンスルホン酸を25 mL加えた。室温（25℃）で8時間攪拌を続けた。反応終了後10%炭酸カリウム水溶液1 Lを加えた。水層を除去し、有機層を水、飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。硫酸マグネシウムを濾別後、有機層を濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、目的の5-ブromoベンゾ[c]フェナントレン24.4 g（収率15%）を得た。

[0205] (4) 5-(2-ニトロフェニル)ベンゾ[c]フェナントレンの合成

アルゴン雰囲気下2-ニトロフェニルボロン酸2.00 g、5-ブromoベンゾ[c]フェナントレン6.12 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0)0.462 g、DME 80 mL、2M炭酸ナトリウム水溶液40 mLをフラスコに仕込み、24時間加熱還流攪拌した。室温（25℃）まで冷却後、反応溶液をトルエンを用いて抽出し、水層を除去した後、有機層を飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し5-(2-ニトロフェニル)ベンゾ[c]フェナントレン5.72 gを得た。

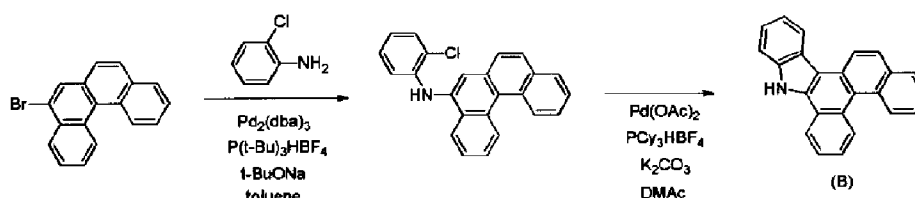
[0206] (5) 中間体(A)の合成

アルゴン雰囲気下、5-(2-ニトロフェニル)ベンゾ[c]フェナント

レン 5.72 g、トリフェニルホスフィン 10.7 g、*o*-ジクロロベンゼン 200 mL を仕込み、48 時間加熱還流撹拌した。室温 (25℃) まで冷却後、ヘキサン 1 L を加え析出した結晶をろ取した。得られた固体をトルエンで再結晶し、中間体 (A) 3.20 g を得た。

[0207] 合成例 2 (中間体 (B) の合成)

[化71]



[0208] (1) 5-(2-クロロアニリノ)ベンゾ[c]フェナントレンの合成

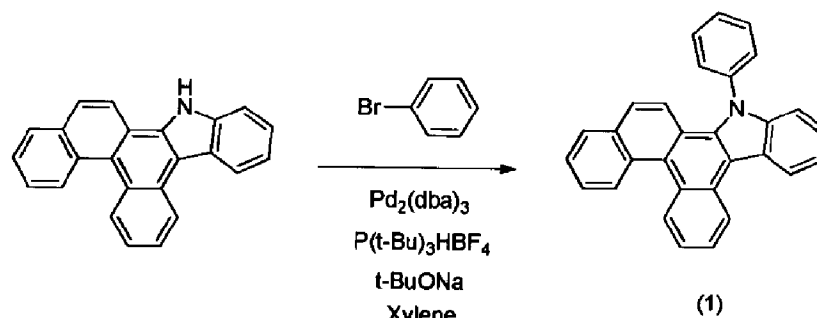
アルゴン雰囲気下、3-ブロモフルオランテン 12.3 g、2-クロロアニリン 5.60 g、トリスジベンジリデンアセトンジパラジウム (0) 0.732 g、トリ-*t*-ブチルホスフィンテトラフルオロハイドロボレート 0.926 g、ナトリウム-*t*-ブトキシド 7.68 g、脱水トルエン 400 mL をフラスコに仕込み、80℃で8時間加熱撹拌した。室温 (25℃) まで冷却した後、反応溶液をトルエンで抽出し、セライトろ過した。ろ液を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、5-(2-クロロアニリノ)ベンゾ[c]フェナントレン 11.32 g を得た。

[0209] (2) 中間体 (B) の合成

アルゴン雰囲気下、5-(2-クロロアニリノ)ベンゾ[c]フェナントレン 11.32 g、酢酸パラジウム 0.22 g、炭酸カリウム 8.84 g、トリシクロヘキシルホスフィンテトラフルオロハイドロボレート 0.70 g、*N,N*-ジメチルアセトアミド 80 mL をフラスコに仕込み、140℃で24時間加熱撹拌した。室温 (25℃) まで冷却後、トルエンを用いて抽出し、不溶物をろ別した。ろ液を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィで精製し、中間体 (B) 4.20 g を得た。

[0210] 実施例 1 (化合物 1 の合成)

[化72]

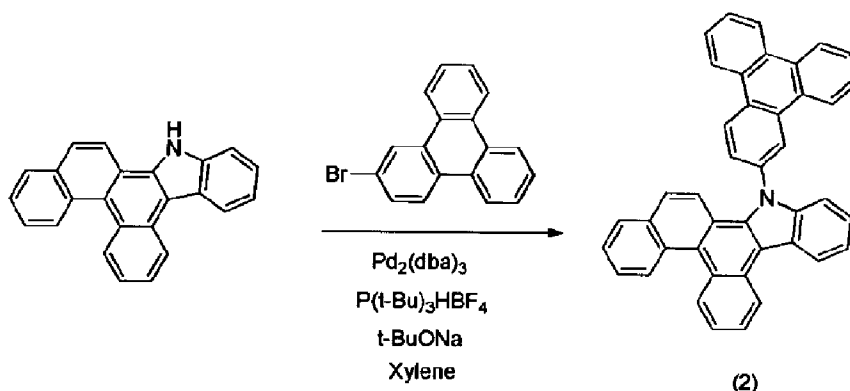


[0211] アルゴン気流下、ブロモベンゼン 1.57 g、中間体 (A) 3.80 g、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム 0.183 g、トリ-*t*-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 0.15 g、*t*-ブトキシナトリウム 1.9 g、無水キシレン 50 mL を順次加えて 8 時間加熱還流した。

室温 (25℃) 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にて精製し、化合物 1 3.2 g を得た。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 393.15 に対し、 $m/e = 393$ であった。

[0212] 実施例 2 (化合物 2 の合成)

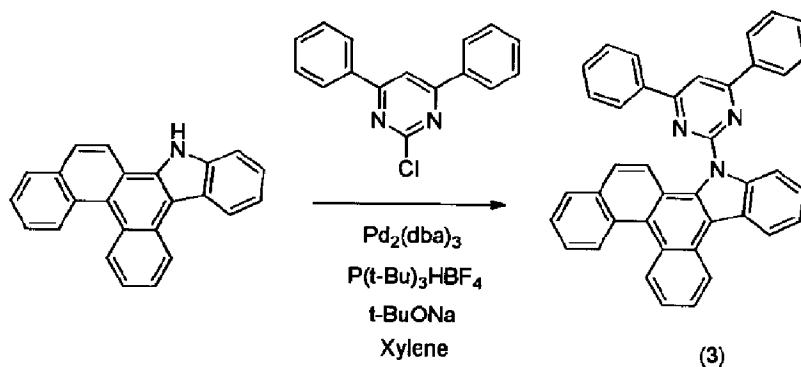
[化73]



[0213] 化合物 1 の合成において、ブロモベンゼンの代わりに 2-ブロモトリフェニレンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 543.20 に対し、 $m/e = 543$ であった。

[0214] 実施例 3 (化合物 3 の合成)

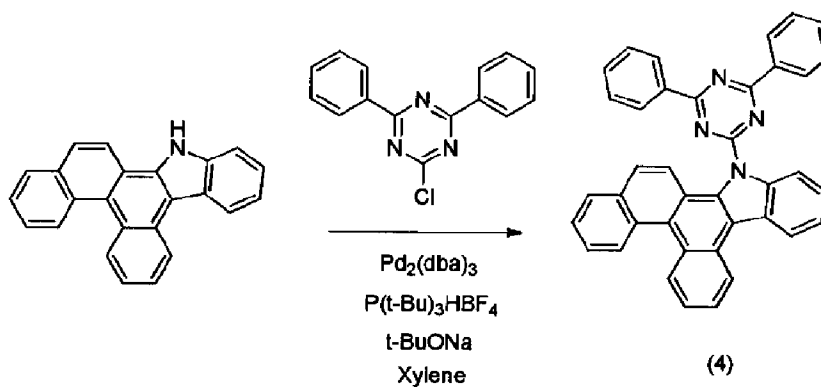
[化74]



[0215] 化合物 1 の合成において、ブロモベンゼンの代わりに 2-クロロ-4,6-ジフェニルピリミジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスマスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 547.20 に対し、 $m/e = 547$ であった。

[0216] 実施例 4（化合物 4 の合成）

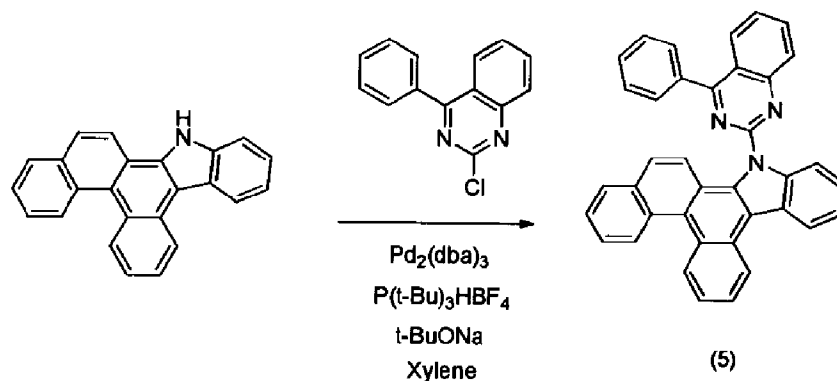
[化75]



[0217] 化合物 1 の合成において、ブロモベンゼンの代わりに 2-クロロ-4,6-ジフェニルトリアジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスマスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 548.20 に対し、 $m/e = 548$ であった。

[0218] 実施例 5（化合物 5 の合成）

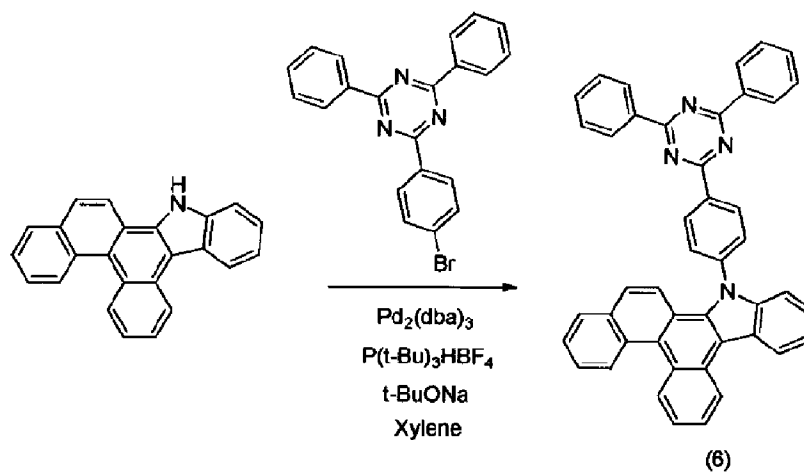
[化76]



[0219] 化合物 1 の合成において、ブロモベンゼンの代わりに既知の方法で合成した 2-クロロ-4-フェニルキナゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 521.61 に対し、 $m/e = 521$ であった。

[0220] 実施例 6（化合物 6 の合成）

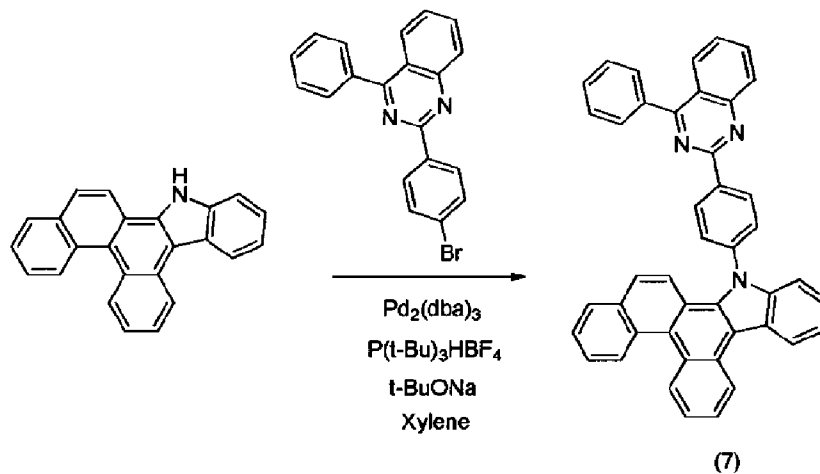
[化77]



[0221] 化合物 1 の合成において、ブロモベンゼンの代わりに既知の方法で合成した 2-(4-ブロモフェニル)-4,6-ジフェニル-1,3,5-三iazin-5-カルボン酸を用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 624.23 に対し、 $m/e = 624$ であった。

[0222] 実施例 7（化合物 7 の合成）

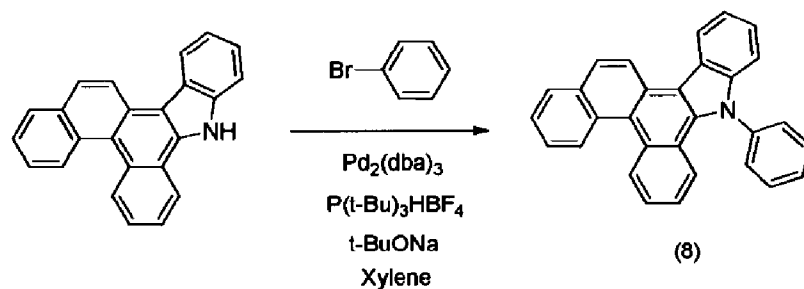
[化78]



[0223] 化合物 1 の合成において、ブロモベンゼンの代わりに既知の方法で合成した 2-（4-ブロモフェニル）-4-フェニルキナゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 597.22 に対し、 $m/e = 597$ であった。

[0224] 実施例 8（化合物 8 の合成）

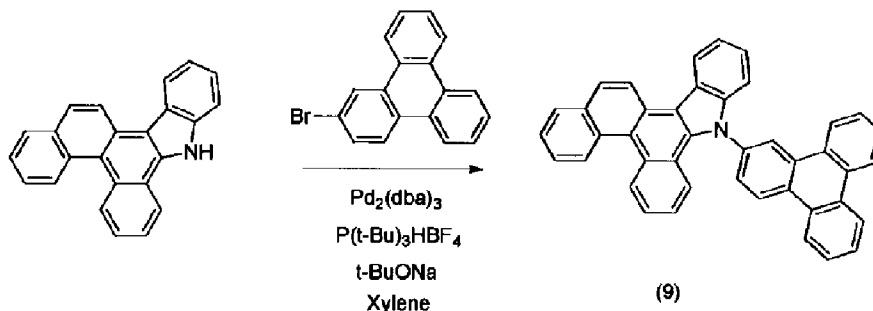
[化79]



[0225] 化合物 1 の合成において、中間体（A）の代わりに中間体（B）を用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 393.15 に対し、 $m/e = 393$ であった。

[0226] 実施例 9（化合物 9 の合成）

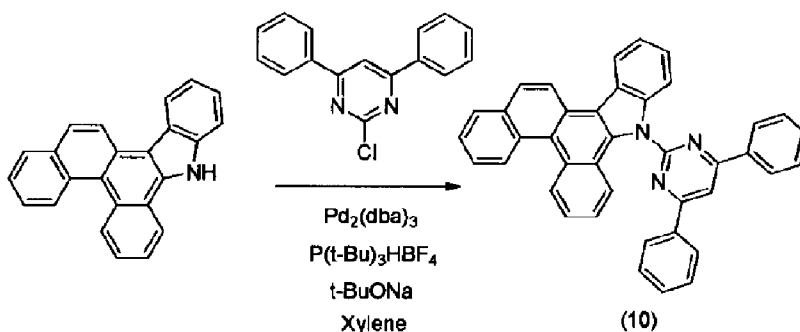
[化80]



[0227] 化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに中間体 (B) を、ブロモベンゼンの代わりに 2-ブロモトリフェニレンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 543.20 に対し、 $m/e = 543$ であった。

[0228] 実施例 10 (化合物 10 の合成)

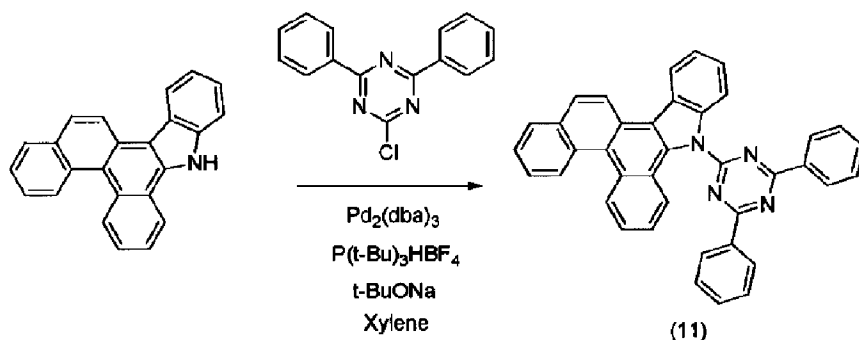
[化81]



[0229] 化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに中間体 (B) を、ブロモベンゼンの代わりに 2-クロロ-4,6-ジフェニルピリミジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 547.20 に対し、 $m/e = 547$ であった。

[0230] 実施例 11 (化合物 11 の合成)

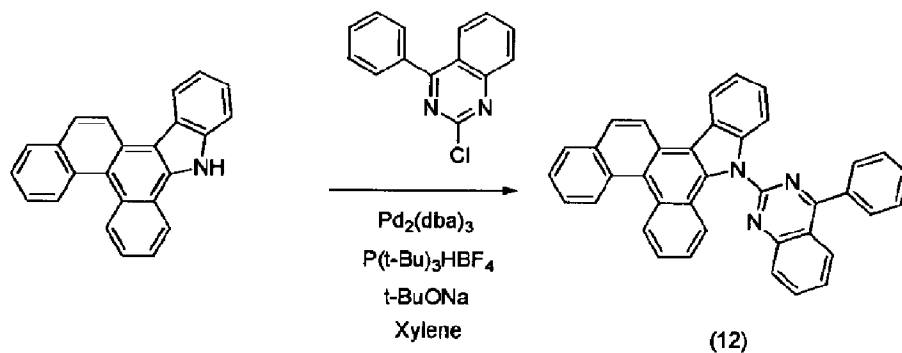
[化82]



[0231] 化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに中間体 (B) を、ブロモベンゼンの代わりに 2-クロロ-4,6-ジフェニル triアジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 548.20 に対し、 $m/e = 548$ であった。

[0232] 実施例 12 (化合物 12 の合成)

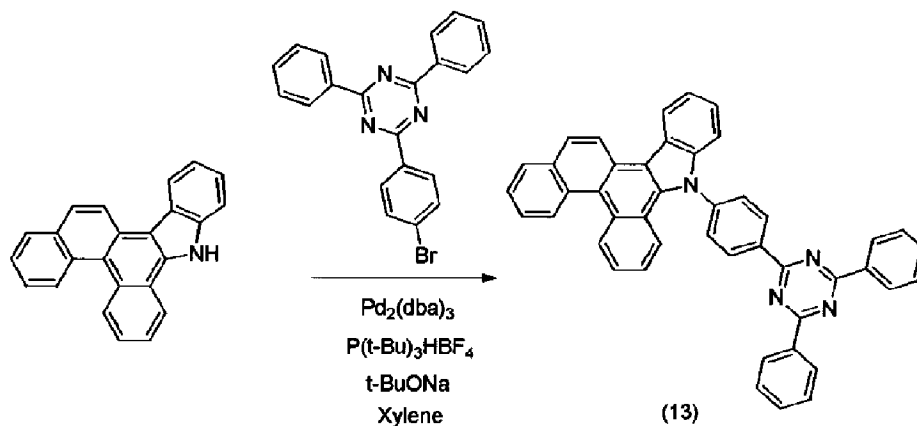
[化83]



[0233] 化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに中間体 (B) を、ブロモベンゼンの代わりに既知の方法で合成した 2-クロロ-4-フェニルキナゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 521.19 に対し、 $m/e = 521$ であった。

[0234] 実施例 13 (化合物 13 の合成)

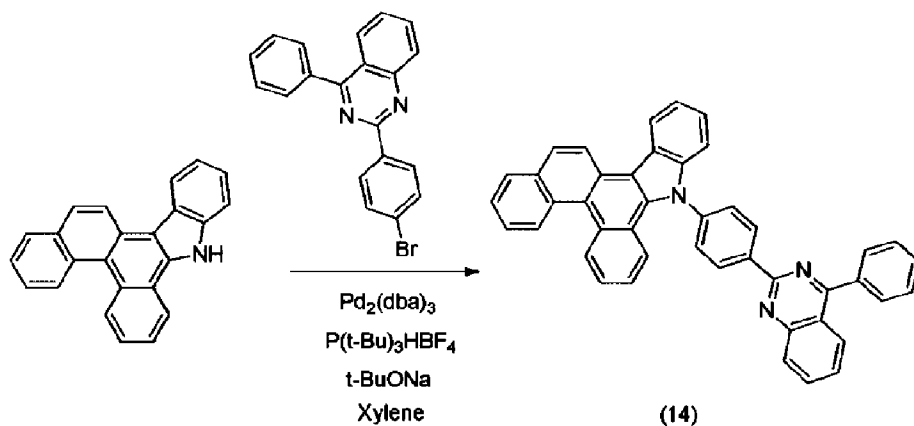
[化84]



[0235] 化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに中間体 (B) を、ブromoベンゼンの代わりに既知の方法で合成した 2-(4-ブromoフェニル)-4,6-ジフェニル-1,3,5-三iazinを用いて同様の方法で合成した。このものは、マssスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 624.23 に対し、 $m/e = 624$ であった。

[0236] 実施例 14 (化合物 14 の合成)

[化85]



[0237] 化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに中間体 (B) を、ブromoベンゼンの代わりに既知の方法で合成した 2-(4-ブromoフェニル)-4-フェニル-1,3,5-三iazolinを用いて同様の方法で合成した。このものは、マssスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 597.22 に対し、 $m/e = 597$ であった。

上記反応に倣い、目的物に合わせた既知の代替反応や原料を用いることで、本願請求項で規定の範囲内に属する化合物を合成することができる。

[0238] 実施例 15（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 分間行った。

洗浄後の 130 nm 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第 1 正孔輸送材料として下記化合物 HT-1 を蒸着し、膜厚 45 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化合物 HT-2 を蒸着し、膜厚 10 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、ホスト材料として前記実施例 11 で得た化合物 11 と、燐光発光材料として下記化合物 RD-1 とを共蒸着し、膜厚 40 nm の燐光発光層を成膜した。発光層内における化合物 RD-1 の濃度は 5.0 質量%であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

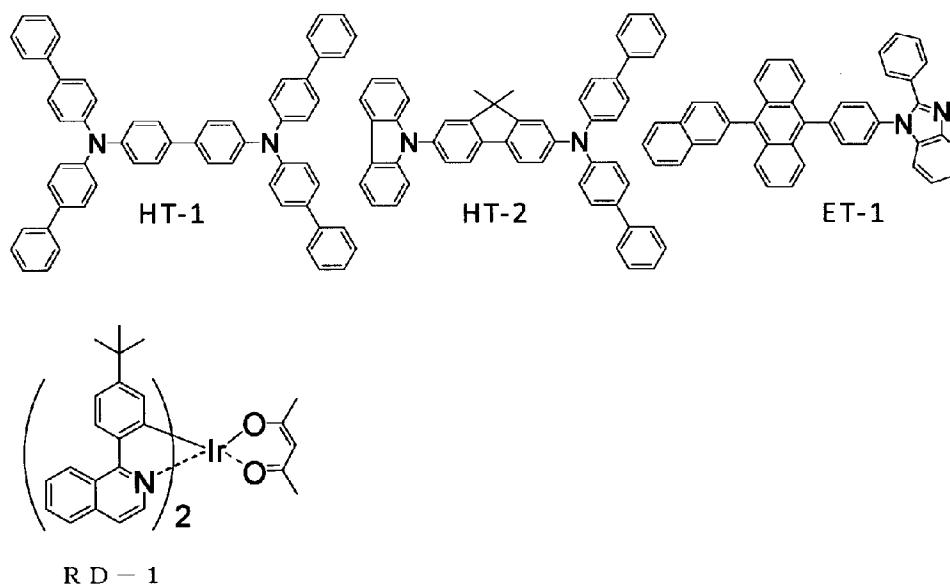
そして、この発光層成膜に続けて下記化合物 ET-1 を膜厚 40 nm で成膜した。この化合物 ET-1 膜は第 1 電子輸送層として機能する。

次に、LiF を電子注入性電極（陰極）として成膜速度 0.01 nm/sec で成膜し、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。

以下に、実施例および比較例で使用した化合物を示す。

[0239]

[化86]



[0240] 上述のようにして得られた有機EL素子について、下記のようにして発光特性を評価した。

(有機EL素子の発光特性評価)

得られた有機EL素子の室温及びDC定電流駆動（電流密度10mA/cm²）での外部量子効率を輝度計（ミノルタ社製分光輝度放射計CS-1000）を用いて測定した。結果を表1に示す。

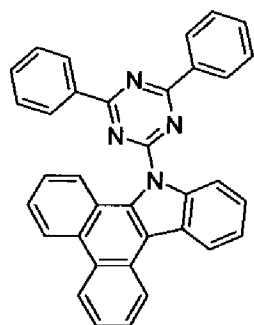
[0241] 実施例16～22

実施例15において、燐光発光層のホスト材料として、化合物11の代わりに表1に記載した化合物を用いた以外は、実施例15と同様にして有機EL素子をそれぞれ製造した。また、実施例15と同様に、発光特性評価を行った。結果を表1に示す。

[0242] 比較例1

実施例15において、燐光発光層のホスト材料として、化合物11の代わりに下記比較化合物1を用いた以外は、実施例15と同様にして有機EL素子を製造した。また、実施例15と同様に、発光特性評価を行った。結果を表1に示す。

[0243] [化87]



比較化合物 1

[0244] [表1]

表1

	発光層 ホスト材料	電圧 (V)	外部量子効率 (%)
実施例 1 5	化合物 1 1	3.31	16.2
実施例 1 6	化合物 4	3.26	15.5
実施例 1 7	化合物 5	3.35	16.6
実施例 1 8	化合物 6	3.22	15.3
実施例 1 9	化合物 7	3.19	15.1
実施例 2 0	化合物 1 2	3.39	16.8
実施例 2 1	化合物 1 3	3.28	15.8
実施例 2 2	化合物 1 4	3.27	15.6
比較例 1	比較化合物 1	3.50	13.1

[0245] 実施例 1 5 ～ 2 2 と比較例 1 との対比より、本発明の一実施態様の含窒素複素環誘導体を用いた有機 E L 素子は、比較例 1 の有機 E L 素子と比較し、発光効率が優れていることが確認できる。

符号の説明

- [0246]
- 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 陽極側有機薄膜層

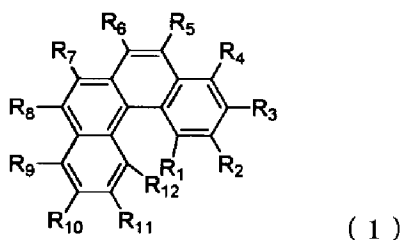
7 陰極側有機薄膜層

10 発光ユニット

請求の範囲

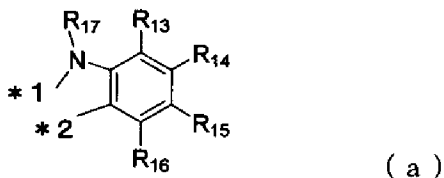
[請求項1] 下記式（1）で表される含窒素複素環誘導体。

[化1]



[式（1）において、 $R_1 \sim R_{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。ただし、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つの少なくとも1組は、互いに結合して、下記式（a）で表される環構造を形成している。

[化2]

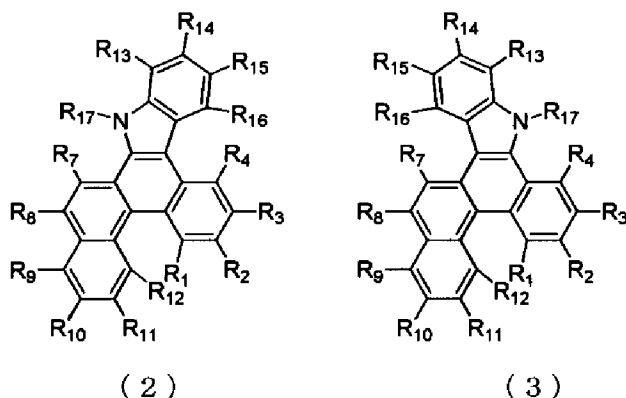


$R_{13} \sim R_{17}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_{13} \sim R_{17}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。*1、*2は、 $R_1 \sim R_{12}$ から選ばれる隣接する2つの少なくとも1組が結合している炭素原子との結合位置を示す。]

[請求項2] R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_3 と R_4 、 R_5 と R_6 、 R_7 と R_8 、 R_9 と R_{10} 、 R_{10} と R_{11} 、および R_{11} と R_{12} のいずれかが、式（a）で表される環構造を形成していることを特徴とする請求項1に記載の含窒素複素環誘導体。

[請求項3] 下記式（2）または（3）で表されることを特徴とする請求項1又は2記載の含窒素複素環誘導体。

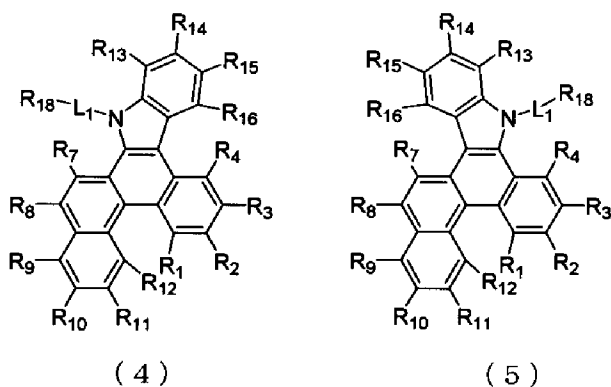
[化3]



[式 (2)、(3) において、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{17}$ は、それぞれ独立に、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{17}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項4] 下記式 (4) または (5) で表されることを特徴とする請求項3記載の含窒素複素環誘導体。

[化4]

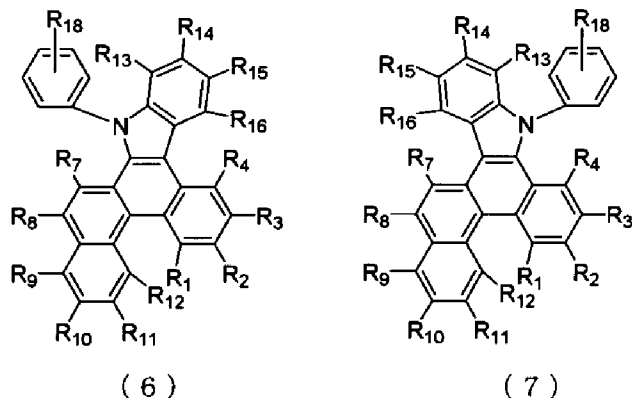


[式 (4)、(5) において、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、それぞれ独立に、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 R_{18} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示す。 L_1 は、単結合、または、置換もしくは無

置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリーレン基を示す。]

[請求項5] 下記式 (6) または (7) で表されることを特徴とする請求項4記載の含窒素複素環誘導体。

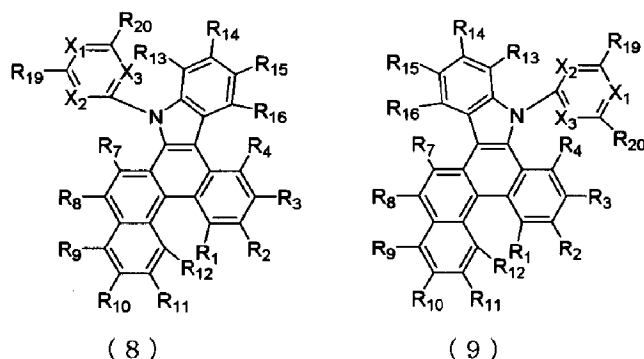
[化5]



[式 (6)、(7) において、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ 及び R_{18} は、それぞれ独立に、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ 及び R_{18} から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項6] 下記式 (8) または (9) で表されることを特徴とする請求項4記載の含窒素複素環誘導体。

[化6]

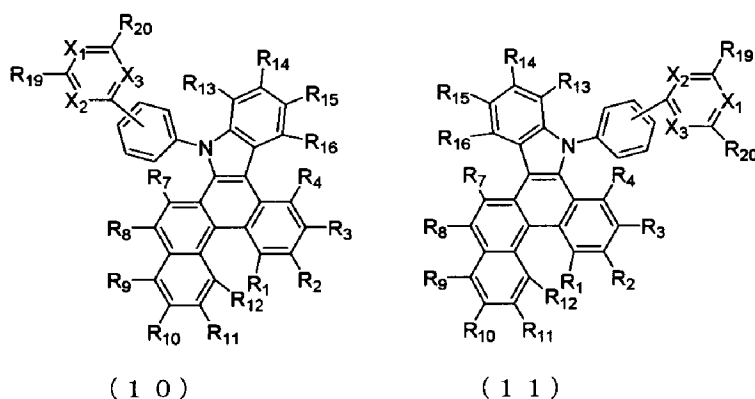


[式 (8)、(9) において、 $X_1 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、C (R_2)、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 R_{19}

～ R_{21} 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項7] 下記式(10)または(11)で表されることを特徴とする請求項5記載の含窒素複素環誘導体。

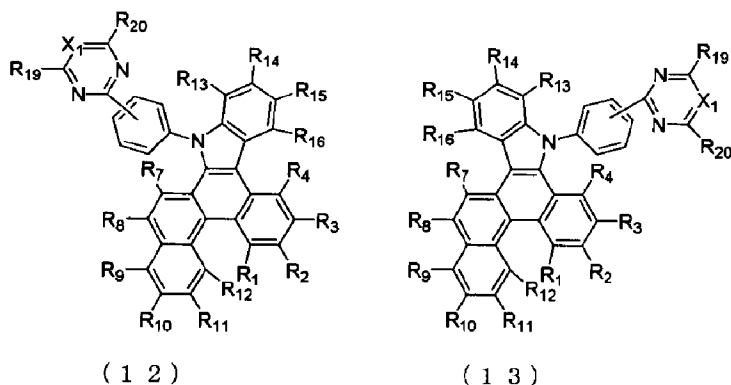
[化7]



[式(10)、(11)において、 $X_1 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、C(R_{21})、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項8] 下記式(12)または(13)で表されることを特徴とする請求項7記載の含窒素複素環誘導体。

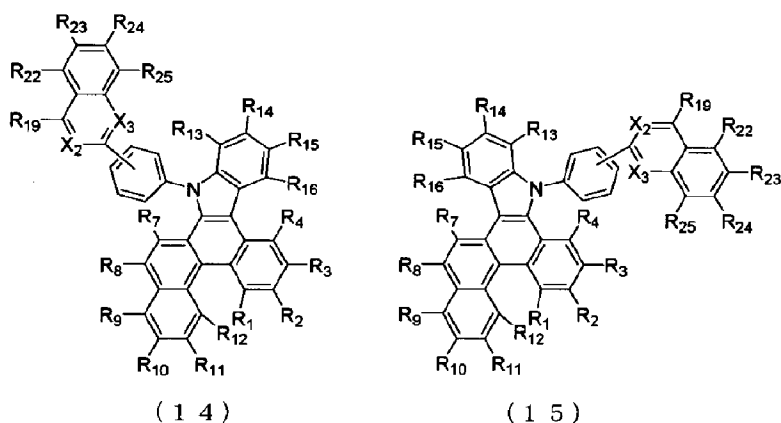
[化8]



[式 (1 2)、(1 3) において、 X_1 は、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項9] 下記式 (1 4) または (1 5) で表されることを特徴とする請求項7記載の含窒素複素環誘導体。

[化9]

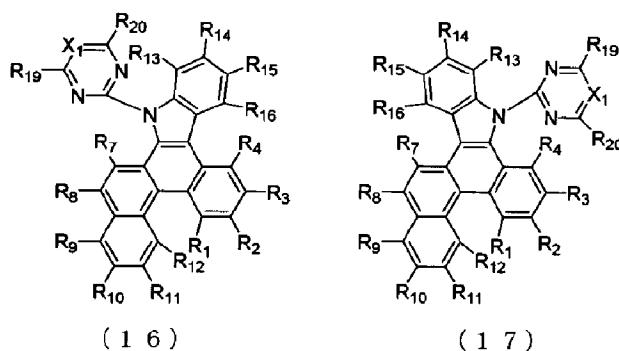


[式 (1 4)、(1 5) において、 $X_2 \sim X_3$ は、それぞれ独立に、 C

(R_{21})、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 R_{19} 、 $R_{21} \sim R_{25}$ 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 R_{19} 及び $R_{21} \sim R_{25}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項10] 下記式(16)または(17)で表されることを特徴とする請求項6記載の含窒素複素環誘導体。

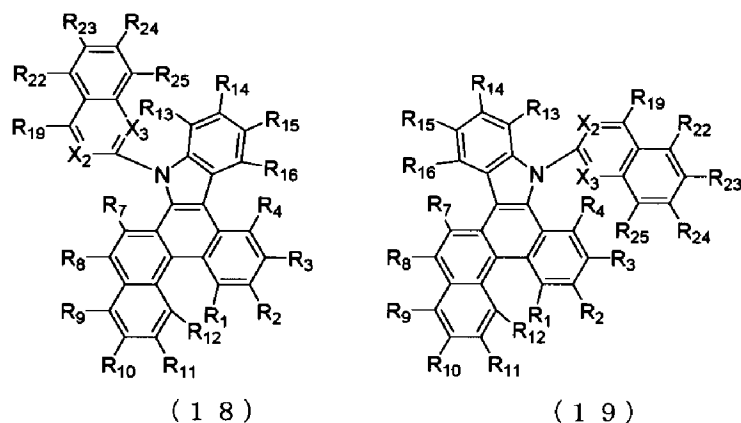
[化10]



[式(16)、(17)において、 X_1 は、 $C(R_{21})$ 、又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_4$ 、 $R_7 \sim R_{16}$ は、前記と同じであり、 $R_1 \sim R_4$ 及び $R_7 \sim R_{16}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。 $R_{19} \sim R_{21}$ 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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{19} \sim R_{21}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項11] 下記式(18)または(19)で表されることを特徴とする請求項6記載の含窒素複素環誘導体。

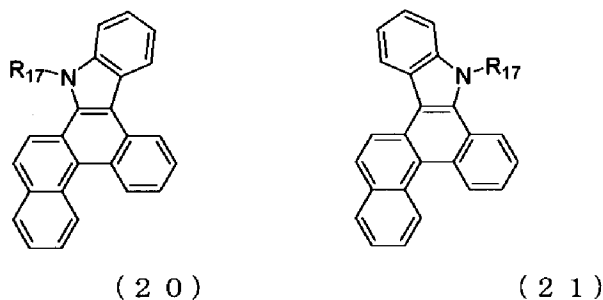
[化11]



[式(18)、(19)において、X₂～X₃は、それぞれ独立に、C(R₂₁)、又は窒素原子を示す。R₁～R₄、R₇～R₁₆は、前記と同じであり、R₁～R₄及びR₇～R₁₆から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。R₁₉、R₂₁～R₂₅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6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、R₁₉及びR₂₁～R₂₅から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して環を形成する飽和または不飽和の二価の基を形成してもよい。]

[請求項12] 下記式(20)または(21)で表されることを特徴とする請求項4記載の含窒素複素環誘導体。

[化12]



[式(20)、(21)において、R₁₇は、前記と同じ。]

[請求項13] R₁～R₁₇で表される前記置換基が、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環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～61のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、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6～60のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルイル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基、カルボキシ基、ビニル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、及びオキセタニル基からなる群から選ばれる基である、請求項1～12のいずれかに記載の含窒素複素環誘導体。

[請求項14]

R_{17} が、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基である、請求項1～3及び12～13のいずれかに記載の含窒素複素環誘導体。

[請求項15]

R₁₇が、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、9, 9' -スピロビフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s -インダセニル基、a s -インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、及びジベンゾアントリル基からなる群より選ばれるアリール基、または、

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、テトラゾリル基、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、イソ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、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、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、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサントニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ベンゾフラノベンゾチオフェニル基、ベンゾチエノベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラノナフチル

基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフェニル基からなる群より選ばれるヘテロアリール基である、請求項14に記載の含窒素複素環誘導体。

[請求項16] R_{18} が、環形成炭素数6～30のアリール基または環形成原子数5～30のヘテロアリール基を置換基として有する、環形成原子数5～30の含窒素複素環基である、請求項4又は5に記載の含窒素複素環誘導体。

[請求項17] R_{19} 及び R_{20} が、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、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基である、請求項6～11のいずれかに記載の含窒素複素環誘導体。

[請求項18] 前記環形成原子数5～30の含窒素複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、ピラジニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、キナゾリル基、フェナントロリニル基、ジベンゾキノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、カルバゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、イミダゾピリジニル基、インドリジニル基、ベンズカルバゾリル基、又はジベンズカルバゾリル基である、請求項4～11のいずれかに記載の含窒素複素環誘導体。

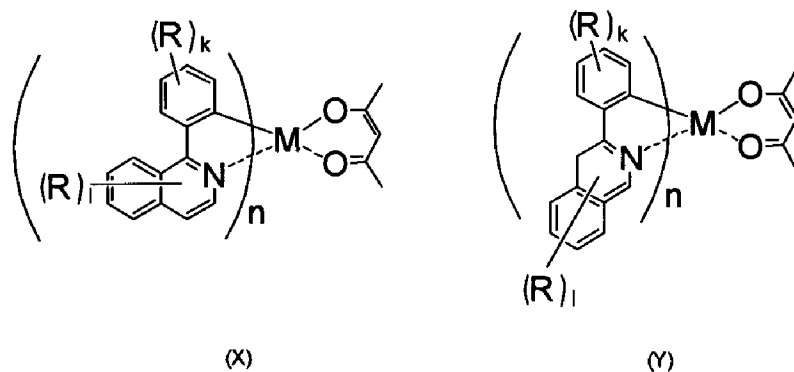
[請求項19] 請求項1～18のいずれかに記載の含窒素複素環誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項20] 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1層が、請求項1～18のいずれかに記載の含窒素複素環誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項21] 前記発光層が前記含窒素複素環誘導体を含有する請求項20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- [請求項22] 前記陽極と前記発光層との間に、さらに陽極側有機薄膜層を有し、該陽極側有機薄膜層が前記含窒素複素環誘導体を含む請求項20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項23] 前記陰極と前記発光層との間に、さらに陰極側有機薄膜層を有し、該陰極側有機薄膜層が前記含窒素複素環誘導体を含む請求項20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項24] 前記発光層が燐光発光材料を含む請求項20～23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25] 前記発光層が蛍光発光材料を含む請求項20～23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26] 前記燐光発光材料が、イリジウム（I r）、オスミウム（O s）、白金（P t）から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である請求項24に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項27] 前記燐光発光材料が、下記式（X）又は（Y）で表される錯体である請求項26に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

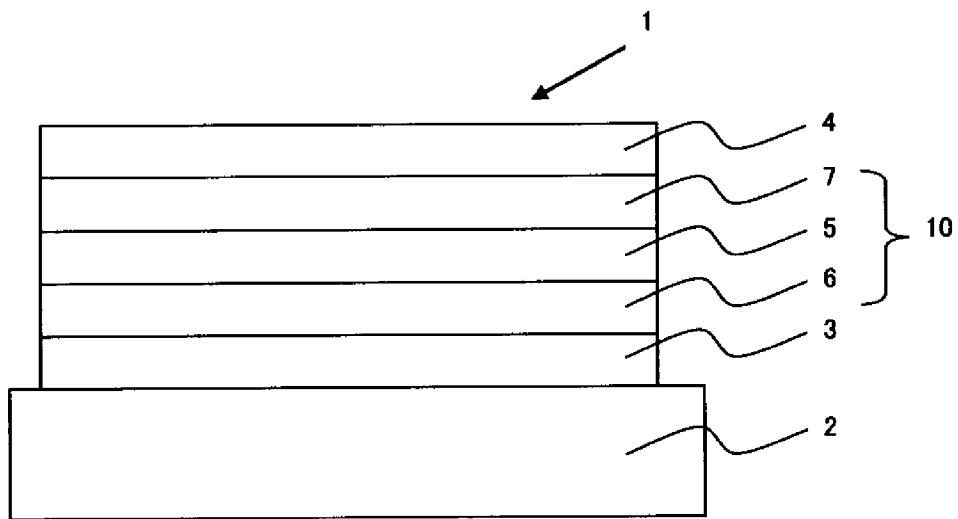
[化13]



[式（X）、（Y）において、Rは、それぞれ独立に、水素原子または置換基、kは、1～4の整数、lは、1～6の整数、nは、2～4の整数である。Mは、I r、O s、またはP tである。]

- [請求項28] 請求項20～27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を備える電子機器。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/064883

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D209/80(2006.01)i, C07D403/04(2006.01)i, C07D403/10(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)

C07D209/80, C07D403/04, C07D403/10, 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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	HIRANO, Kimio et al, Gold(I)-Catalyzed Polycyclizations of Polyenyne-Type Anilines Based on Hydroamination and Consecutive Hydroarylation Cascade, Journal of Organic Chemistry, 2011, Vol.76, No.21, p.9068-9080	1-3 4-28
A	WO 2011/037429 A2 (DUKSAN HI-METAL CO., LTD.), 31 March 2011 (31.03.2011), entire text & KR 10-2011-0034103 A & KR 10-2011-0044587 A	1-28
A	KR 10-1219492 B1 (DUKSAN HI-METAL CO., LTD.), 17 June 2011 (17.06.2011), entire text (Family: none)	1-28

☒ 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
14 July, 2014 (14.07.14)

Date of mailing of the international search report
22 July, 2014 (22.07.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/064883

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 2010-59158 A (Gracel Display Inc.), 18 March 2010 (18.03.2010), entire text & US 2010/0096982 A1 & EP 2161319 A2 & KR 10-2010-0028154 A & CN 101671227 A	1-28
A	WO 2011/139125 A2 (DOOSAN CORP.), 10 November 2011 (10.11.2011), entire text & JP 2013-532371 A & US 2013/0048975 A1 & KR 10-2011-0123106 A	1-28
A	JP 2011-79822 A (Samsung Mobile Display Co., Ltd.), 21 April 2011 (21.04.2011), entire text & US 2011/0084256 A1 & EP 2308843 A1 & KR 10-2011-0039108 A & CN 102040589 A & TW 201120008 A	1-28
P,X	US 2014/0117326 A1 (LEE, Sun-Young et al.), 01 May 2014 (01.05.2014), particularly, page 11, right column, 3rd part; page 16, left column, 4th part & KR 10-2014-0117326 A	1,2,13-15, 19-28
P,X	CN 103524398 A (SHANDONG UNIVERSITY), 22 January 2014 (22.01.2014), entire text (Family: none)	1,2,13-15, 19-28

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C07D209/80(2006.01)i, C07D403/04(2006.01)i, C07D403/10(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（I P C））

Int.Cl. C07D209/80, C07D403/04, C07D403/10, 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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	HIRANO, Kimio et al, Gold(I)-Catalyzed Polycyclizations of Polyenyne-Type Anilines Based on Hydroamination and Consecutive Hydroarylation Cascade, Journal of Organic Chemistry, 2011, Vol.76, No.21, p.9068-9080	1-3 4-28
A	WO 2011/037429 A2 (DUKSAN HI-METAL CO., LTD.) 2011.03.31, 全文 & KR 10-2011-0034103 A & KR 10-2011-0044587 A	1-28

☒ 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

1 4 . 0 7 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

2 2 . 0 7 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

砂原 一公

4 P

4 7 6 3

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 9 2

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	KR 10-1219492 B1 (DUKSAN HI-METAL CO., LTD.) 2011.06.17, 全文 (ファミリーなし)	1-28
A	JP 2010-59158 A (グラセル・ディスプレイ・インコーポレーテッド) 2010.03.18, 全文 & US 2010/0096982 A1 & EP 2161319 A2 & KR 10-2010-0028154 A & CN 101671227 A	1-28
A	WO 2011/139125 A2 (DOOSAN CORPORATION) 2011.11.10, 全文 & JP 2013-532371 A & US 2013/0048975 A1 & KR 10-2011-0123106 A	1-28
A	JP 2011-79822 A (三星モバイルディスプレイ株式会社) 2011.04.21, 全文 & US 2011/0084256 A1 & EP 2308843 A1 & KR 10-2011-0039108 A & CN 102040589 A & TW 201120008 A	1-28
P, X	US 2014/0117326 A1 (LEE, Sun-Young et al) 2014.05.01, 特に、第 1 1 頁右欄第 3 段目、第 1 6 頁左欄第 4 段目 & KR 10-2014-0117326 A	1, 2, 13-15, 19-28
P, X	CN 103524398 A (SHANDONG UNIVERSITY) 2014.01.22, 全文 (ファミリーなし)	1, 2, 13-15, 19-28