(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
2013 年 7 月 18 日(18.07.2013)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2013/105206 A1

(51) 国際特許分類:
C07D 471/04 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
C07D 491/048 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C07D 495/04 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2012/008442

(22) 国際出願日: 2012 年 12 月 28 日(28.12.2012)

(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 2012-001815 2012 年 1 月 10 日(10.01.2012) JP

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

(72) 発明者; および
(71) 出願人 (米国についてのみ): 岩隈 俊裕 **(IWAKUMA, Toshihiro)** [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 西村 和樹 **(NISHIMURA, Kazuki)** [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 渡辺 喜平, 外 **(WATANABE, Kihei** et al.); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目２６番 芝信神田ビル３階 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

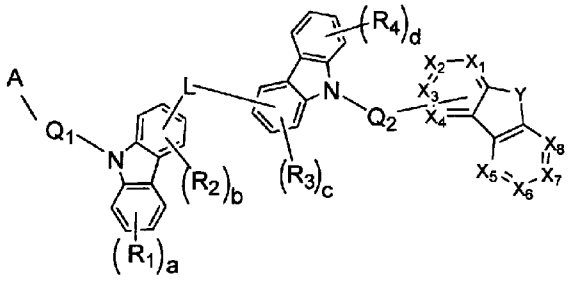
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM,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

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2013/105206 A1

(54) **Title**: MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ELEMENT USING SAME

(54) 発明の名称 : 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた素子



（1）

(57) **Abstract**: A compound represented by formula (1).

(57) 要約: 下記式（１）で表される化合物。

明　細　書

発明の名称 ：

有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた素子

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用材料に好適な新規化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子には、蛍光型及び燐光型があり、それぞれの発光メカニズムに応じ、最適な素子設計が検討されている。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くてはならない。何故なら、ある化合物のエネルギーギャップ（以下、一重項エネルギーともいう。）の値は、通常、その化合物の三重項エネルギー（本発明では、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。

[0003] 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発光層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い三重項エネルギーの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、電子輸送層、及び正孔輸送層に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い化合物を用いることが望ましい。

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ため、概して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、酸素や窒素等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、電子、及び正孔の再結合領域のコントロールが蛍光型の有機ＥＬ素子よりも重要である。

[0006] 以上のような理由から燐光型の有機ＥＬ素子の高性能化には、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になっている。

また、化合物の三重項エネルギーを高めるためにπ共役を切断するような構造をとると、電荷の輸送性が低くなる傾向がある。つまり、電荷の輸送性を高くするためにはπ共役を伸長させる必要があるが、そうすると今度は三重項エネルギーが低くなるという課題が存在する。

[0007] このような状況下、例えば、特許文献１及び２には有機ＥＬ素子材料として２つのカルバゾールが３位同士で結合した３，３－ビスカルバゾールを母骨格とし、その２つのカルバゾールにヘテロ芳香族環置換基が結合した化合物が開示されている。

[0008] 特許文献３には、ビスカルバゾールを母骨格とし、その２つのカルバゾールに含窒素芳香環置換基が結合した化合物が開示されている。

特許文献４には、ビスカルバゾールを母骨格とし，その２つのカルバゾー

ルにさらにカルバゾール骨格が結合した化合物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：国際公開第２０１１／１２５６８０号パンフレット

特許文献2：国際公開第２０１１／１３７０７２号パンフレット

特許文献3：国際公開第２０１１／１３９０５５号パンフレット

特許文献4：国際公開第２０１１／０５５９３４号パンフレット

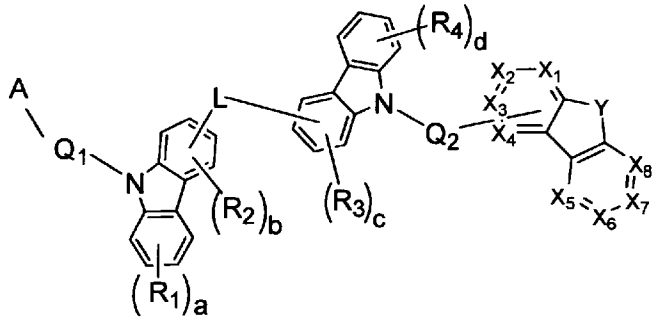
発明の概要

[0010] 本発明の目的は、燐光発光する有機ＥＬ素子の材料として使用できる、三重項エネルギーの高い材料を提供することである。

[0011] 本発明によれば、以下の化合物等が提供される。

１．下記式（１）で表される化合物。

[化1]



（１）

[式（１）中、

Ｌ、Q_1及びQ_2は、それぞれ単結合又は連結基を表す。

Ａは置換若しくは無置換の環形成原子数５～１０の含窒素ヘテロ環基を表す。

X_1～X_8は、それぞれ、Q_2に結合する炭素原子、ＣＨ又はＮを表す。但し、X_1～X_8の少なくとも１つはＮである。

ＹはＯ、Ｓ、Q_2に結合する窒素原子、又はNR_5を表す。

R_1～R_5は、それぞれ、置換若しくは無置換の環形成炭素数６～１８のアリール基、置換若しくは無置換の環形成原子数５～１８のヘテロアリール基

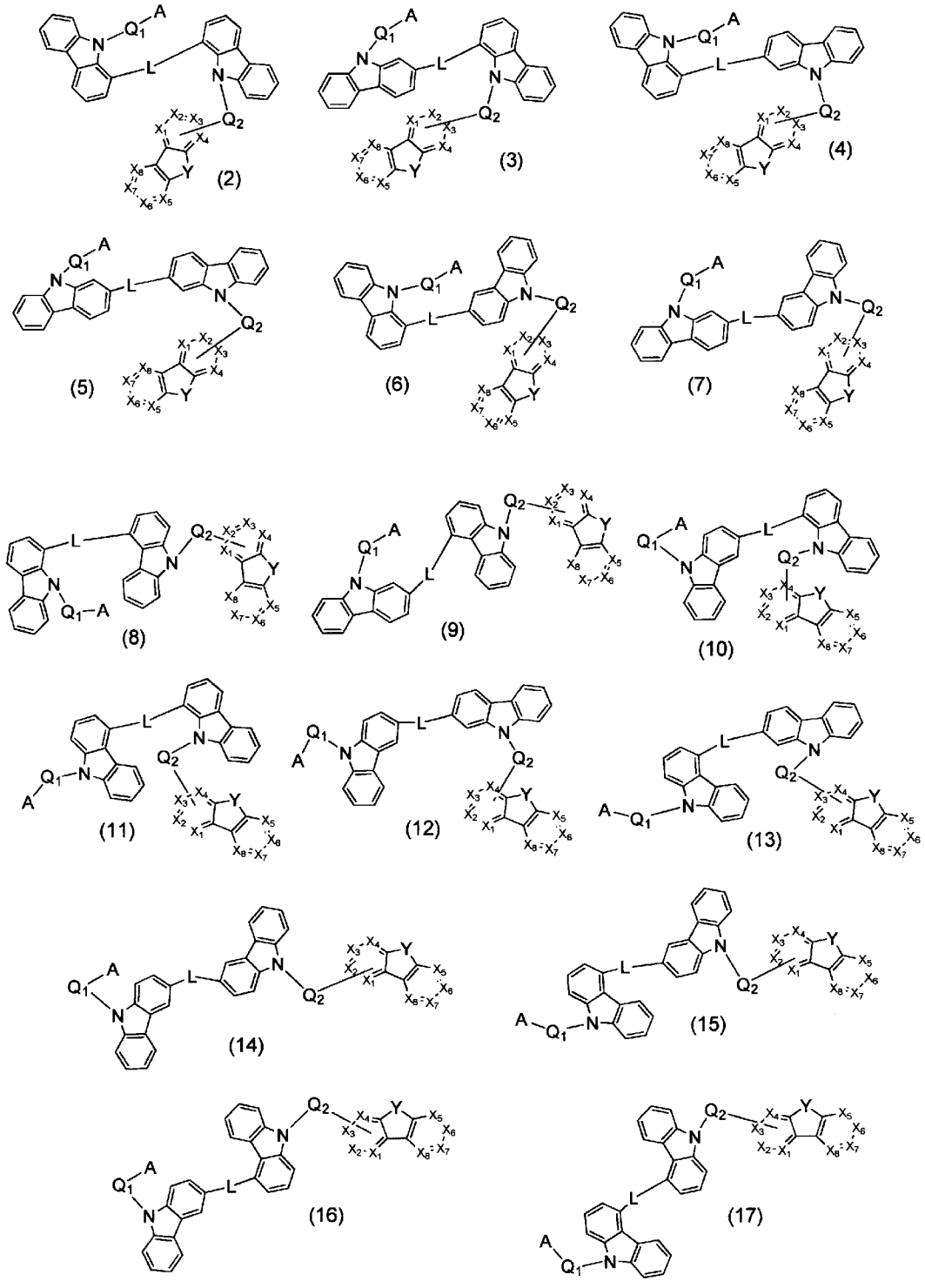
、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のハロアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のハロアルコキシ基、又はシアノ基を表す。

ａ及びｄはそれぞれ０～４の整数を表し、ｂ及びｃはそれぞれ０～３の整数を表す。ａが２以上である場合、R_1はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｂが２以上である場合、R_2はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｃが２以上である場合、R_3はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｄが２以上である場合、R_4はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。］

２．前記式（１）のａ～ｄが０である１に記載の化合物。

３．下記式（２）～（１７）のいずれかで表される化合物である１に記載の化合物。

[化2]



[式（２）～（１７）中、Ａ、Q_1、Q_2、Ｌ、X_1～X_8及びＹは、それぞれ前記式（１）のＡ、Q_1、Q_2、Ｌ、X_1～X_8及びＹと同様である。]

４．前記Ａが、置換若しくは無置換のピリジン環、置換若しくは無置換のピリミジン環、置換若しくは無置換のトリアジン環、置換若しくは無置換のピ

ラジン環又は置換若しくは無置換のキナゾリン環を有する基である１～３のいずれかに記載の化合物。

５．陰極と陽極の間に発光層を含む１層以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも１層が１～４のいずれかに記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

６．前記有機薄膜層が、一層以上の発光層を含み、前記発光層の少なくとも一層が、１～４のいずれかに記載の化合物と燐光発光材料とを含む５に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

７．前記燐光発光材料の三重項エネルギーが、１．８ｅＶ以上２．９ｅＶ未満である６に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

８．前記燐光発光材料が金属錯体を含有し、前記金属錯体が、Ｉｒ、Ｐｔ、Ｏｓ、Ａｕ、Ｃｕ、Ｒｅ及びＲｕから選択される金属原子と配位子とを有する６に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

９．前記配位子が、前記金属原子とオルトメタル結合を有する８に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

１０．発光波長の極大値が、４３０ｎｍ以上７２０ｎｍ以下である５～９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．前記有機薄膜層が、発光層と陰極との間に位置する電子輸送層を一層以上含み、前記電子輸送層の少なくとも一層が、１～４のいずれかに記載の化合物を含む５～１０に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

１２．前記有機薄膜層が、発光層と陰極との間に位置する電子輸送層を二層以上含み、前記電子輸送層の少なくとも一層が１～４のいずれかに記載の化合物を含み、さらに、同一の又は他の電子輸送層が、含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ芳香族炭化水素環化合物、又は含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ縮合芳香族環化合物を含む１１に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0012] 本発明によれば、三重項エネルギーが高い化合物が提供できる。本発明の化合物を使用した有機ＥＬ素子では、駆動電圧が低下し、発光効率も向上す

る。

図面の簡単な説明

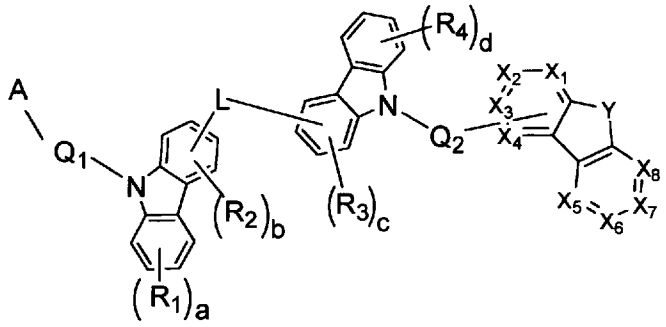
[0013] [図1]本発明の有機ＥＬ素子の一実施形態の層構成を示す概略図である。

[図2]本発明の有機ＥＬ素子の他の実施形態の層構成を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明の化合物は、下記式（１）で表される。

[化3]



（１）

[0015] 式（１）の化合物は、２つのカルバゾール骨格を有し、そのカルバゾールの窒素原子に高い三重項エネルギーを持つ含窒素縮合ヘテロ芳香族環を結合し、かつ、さらにもう一方のカルバゾールの窒素原子に含窒素芳香環置換基を有する。これにより、高いエネルギーレベルを維持しながら、発光層へのキャリアの注入障壁を軽減させることができる。その結果、素子の駆動電圧をより低減することができる。

本発明の化合物は、高い三重項エネルギーが必要な、緑色～赤色燐光素子や、白色燐光素子において、高い発光効率を維持し、かつ駆動電圧を低下させるために有効である。高い発光効率を維持するためには、高い三重項エネルギーを閉じ込める材料が必要である。高い三重項エネルギーを維持するためには、三重項エネルギー励起状態の材料の分子骨格を制御することが重要である。

[0016] 式（１）において、Ｌ、Q_1及びQ_2は、それぞれ単結合又は連結基を表す。

連結基としては、置換又は無置換の環形成炭素数６～１８の芳香族炭化水

素環基、置換又は無置換の環形成原子数５～１８の芳香族複素環基が挙げられる。

Q_1としては、単結合、フェニレン基が好ましい。

Q_2及びＬとしては、単結合、フェニレン基、又はピリジン環、ピリミジン環及びトリアジン環より導かれる基が好ましい。

[0017] Ａは置換若しくは無置換の環形成原子数５～１０の含窒素ヘテロ環基を表す。例えば、置換若しくは無置換のピリジン環、置換若しくは無置換のピリミジン環、置換若しくは無置換のトリアジン環、置換若しくは無置換のピラジン環又は置換若しくは無置換のキナゾリン環を有する基等が挙げられる。Ａとしては、置換若しくは無置換のピリジン環、置換若しくは無置換のピリミジン環、置換若しくは無置換のトリアジン環、又は置換若しくは無置換のキナゾリン環が好ましい。

[0018] X_1～X_8は、それぞれ、Q_2に結合する炭素原子、ＣＨ又はＮを表す。但し、X_1～X_8の少なくとも１つはＮである。

ＹはＯ、Ｓ、Q_2に結合する窒素原子、又はNR_5を表す。

X_1～X_8、及びＹのうち、１つはQ_2又はカルバゾール環の窒素原子と単結合で結合する。

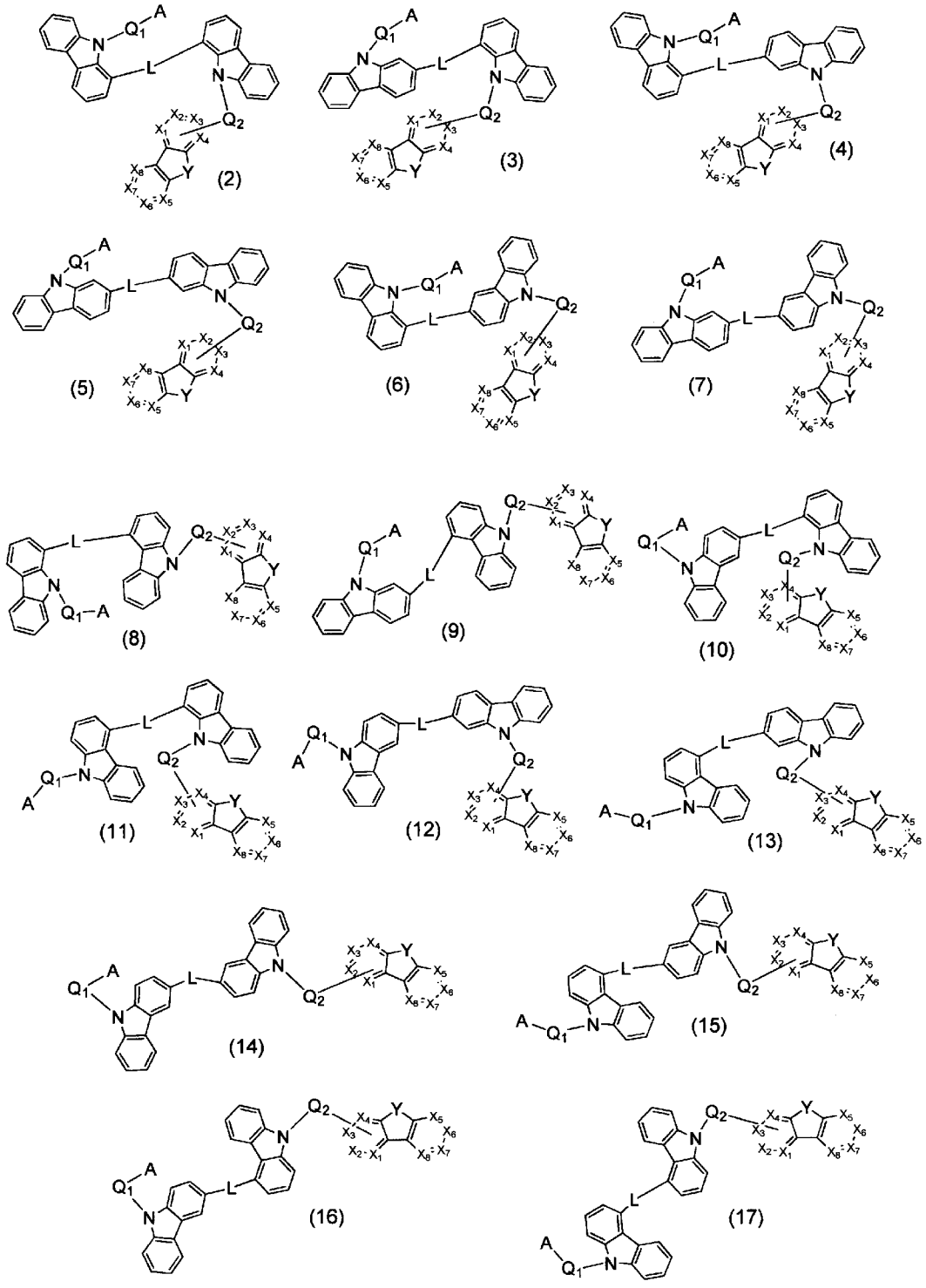
[0019] R_1～R_5は、それぞれ、置換若しくは無置換の環形成炭素数６～１８のアリール基、置換若しくは無置換の環形成原子数５～１８のヘテロアリール基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のハロアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のハロアルコキシ基、又はシアノ基を表す。

[0020] ａ及びｄはそれぞれ０～４の整数を表し、ｂ及びｃはそれぞれ０～３の整数を表す。ａが２以上である場合、R_1はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｂが２以上である場合、R_2はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｃが２以上である場合、R_3はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｄが２以上である場合、R_4はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。

[0021] 本発明においては、ａ～ｄは０、即ち、２つのカルバゾール環が置換基を有さないことが好ましい。これにより、置換基と芳香環との余分な電子の共役が生じないために、良好な三重項エネルギーが得られる。

式（１）の化合物の例としては、下記式（２）～（１７）のいずれかで表される化合物が挙げられる。

[化4]



[0022] 式（２）～（１７）中、Ａ、Q_1、Q_2、Ｌ、X_1～X_8及びＹは、それぞれ式（１）のＡ、Q_1、Q_2、Ｌ、X_1～X_8及びＹと同様である。

式（１）の化合物としては、上記式（７）、（１２）、及び（１７）のいずれかで表される化合物が好ましい。

[0023] 以下、上述した式（１）～（１７）の各基の例について説明する。

本明細書において、アリール基は、単環の芳香族炭化水素環基及び複数の炭化水素環が縮合した縮合芳香族炭化水素環基を含み、ヘテロアリール基は、単環のヘテロ芳香族環基、並びに複数のヘテロ芳香族環が縮合したヘテロ縮合芳香族環基、及び芳香族炭化水素環とヘテロ芳香族環とが縮合したヘテロ縮合芳香族環基を含む。

[0024] 本発明の化合物における水素原子には、中性子数が異なる同位体、即ち、軽水素（protium）、重水素（deuterium）、三重水素（tritium）が含まれる。

[0025] 環形成炭素数６～１８のアリール基の具体例としては、フェニル基、トリフェニレニル基、フルオレニル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基等が挙げられ、好ましくはフェニル基、ビフェニル基、である。

上記アリール基の環形成炭素数は、６～１２であることが好ましい。

尚、「環形成炭素」とは飽和環、不飽和環、又は芳香環を構成する炭素原子を意味する。

連結基である環形成炭素数６～１８の芳香族炭化水素環基としては、上述したアリール基から水素原子を除くことにより導かれる基が挙げられる。具体的には、ベンゼン環、ナフタレン環等が好ましい。

[0026] 環形成原子数５～１８のヘテロアリール基の具体例としては、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、イミダゾリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、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、フェニルカルバゾリル基、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、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、ベンゾチオフェニル基等が挙げられ、好ましくは、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、フェニルカルバゾリル基である。

上記ヘテロアリール基の環形成原子数は、５～１３であることが好ましい

。

尚、「環形成原子」とは飽和環、不飽和環、又は芳香環を構成する原子を意味する。

連結基である環形成原子数５～１８の芳香族複素環基としては、上述したヘテロアリール基から水素原子を除くことにより導かれる基が挙げられる。具体的には、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ピラジン環等が好ましい。

[0027] 炭素数１～２０のアルキル基の具体例としては、直鎖状若しくは分岐状のアルキル基があり、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、ｎ－ヘプチル基、ｎ－オクチル基等が挙げられ、好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基が挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、ｓ－ブチル基、ｔ－ブチル基である。

[0028] 炭素数１～２０のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基等が挙げられ、炭素数が３以上のものは直鎖状、環状又は分岐を有するものでもよく、このうち炭素数１～６のものが好ましい。

[0029] 炭素数１～２０のハロアルキル基としては、上述した炭素数１～２０のアルキル基に１つ以上のハロゲン原子が置換した基が挙げられる。具体的には、フルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、フルオロエチル基、トリフルオロメチルメチル基、ペンタフルオロエチル基等が挙げられる。好ましくは、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基である。

[0030] 炭素数１～２０のハロアルコキシ基としては、上述した炭素数１～２０のアルコキシ基に１つ以上のハロゲン原子が置換した基が挙げられる。具体的には、トリフルオロメトキシ基、ペンタフルオロエトキシ基等が挙げられる

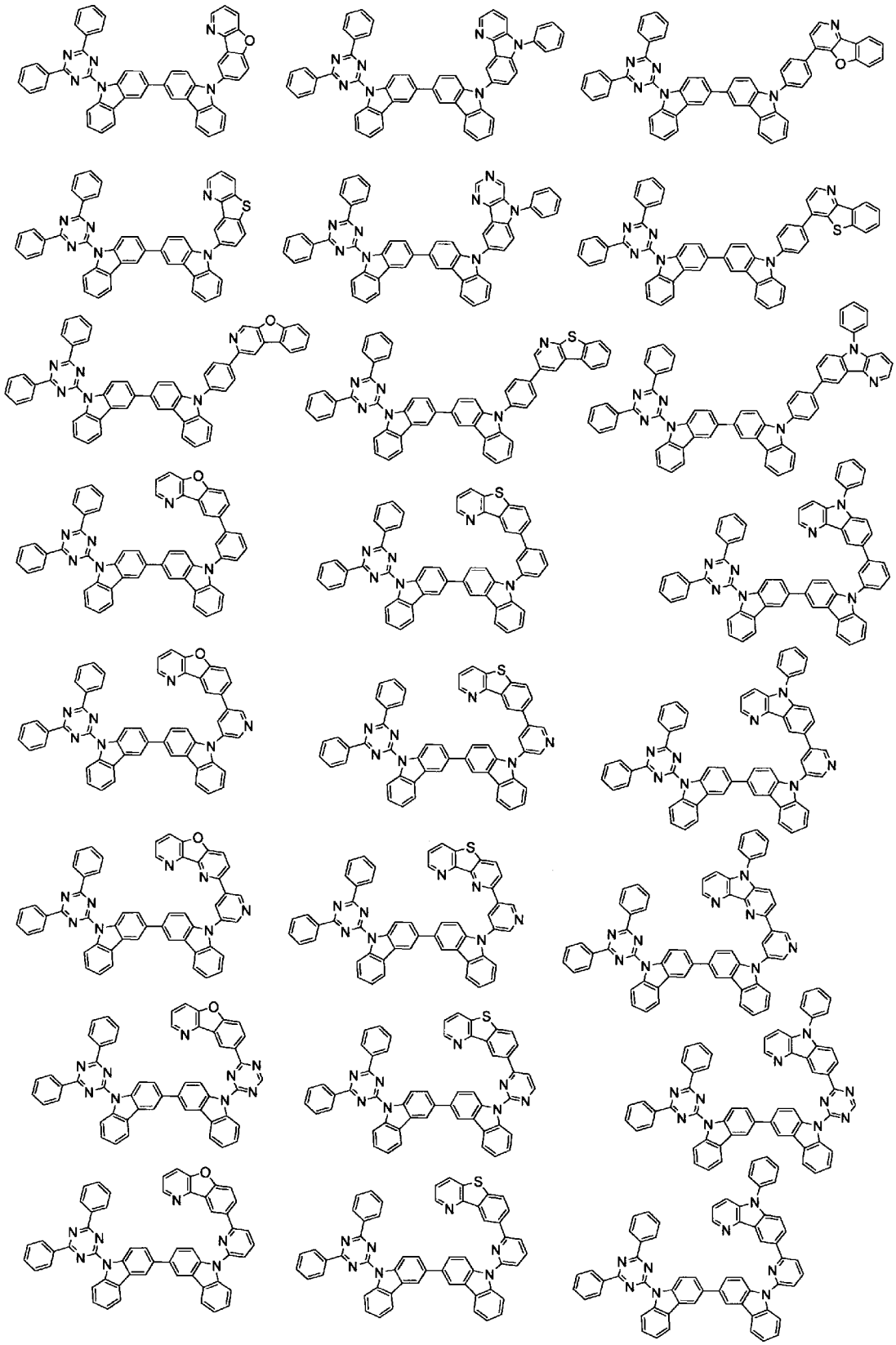
。

[0031] 上述した各基の「置換もしくは無置換の・・・」の置換基としては、上記のアルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基や、置換もしくは無置換のアミノ基、置換もしくは無置換のシリル基、シクロアルキル基、ハロゲン原子（フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。）、フルオロアルキル基、ヒドロキシル基、ニトロ基、シアノ基、カルボキシ基、アリールオキシ基等が挙げられる。これらの置換基は、さらに上述の置換基により置換されていてもよい。

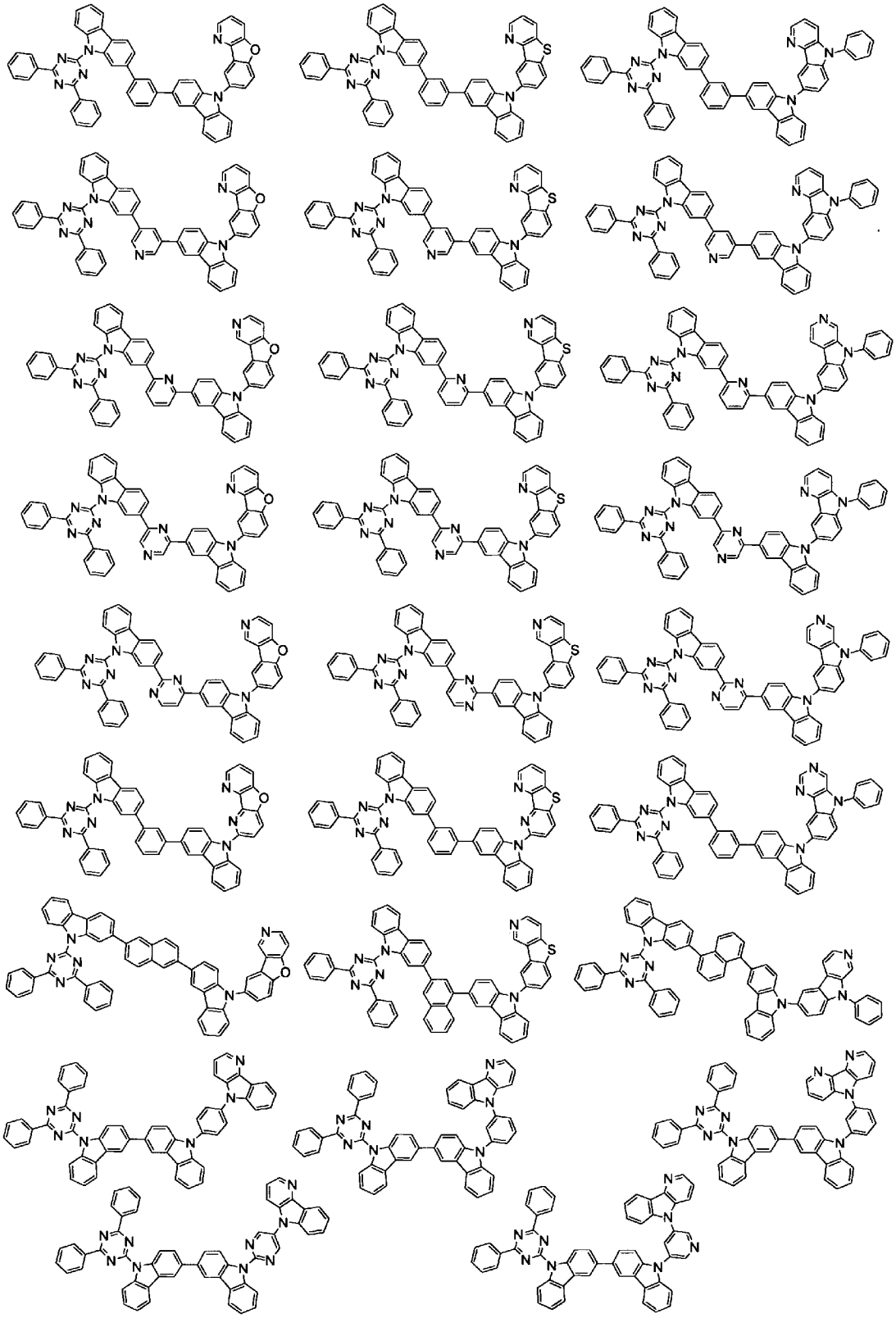
本発明の化合物の具体例を以下に示す。

[0032]

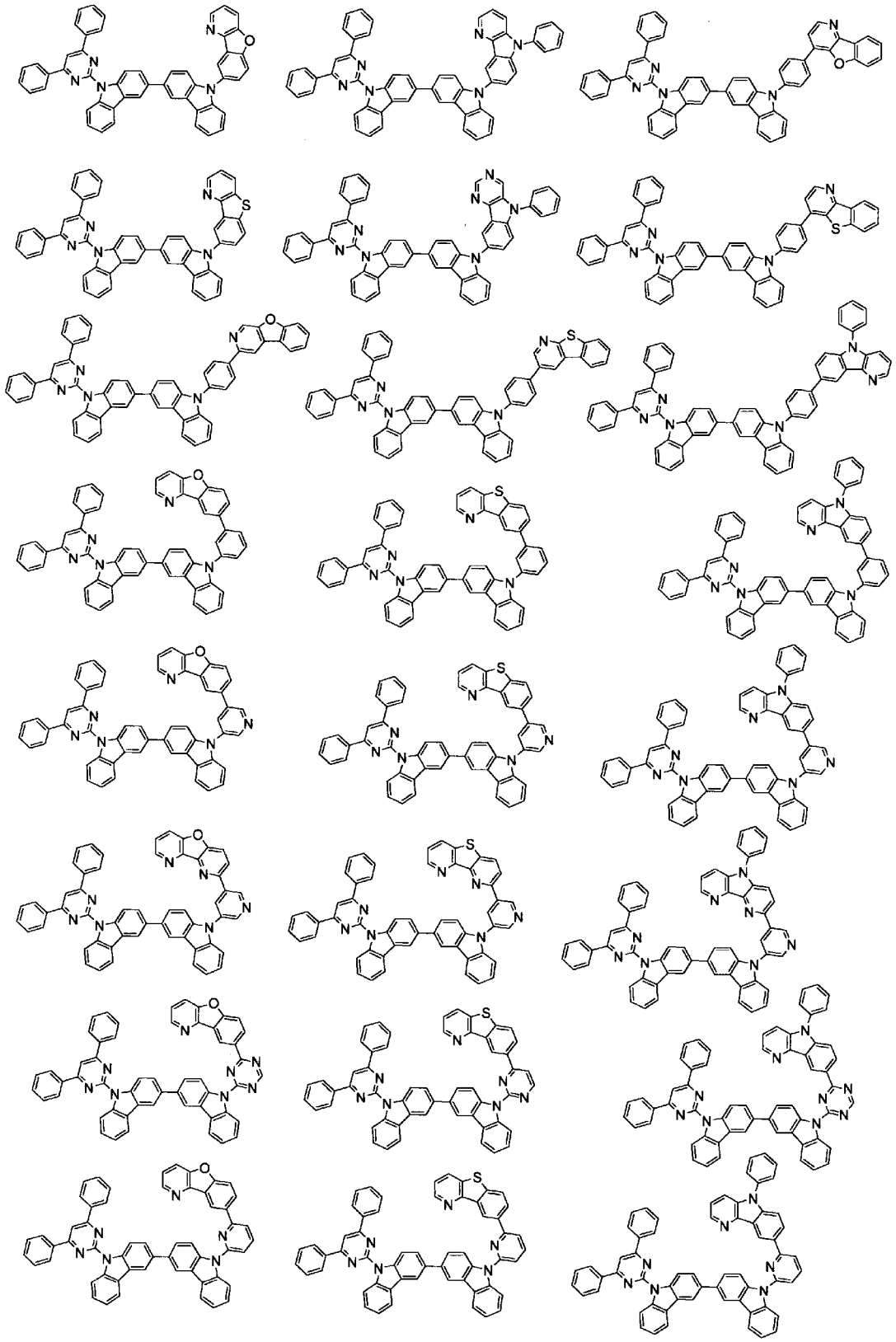
[化5]



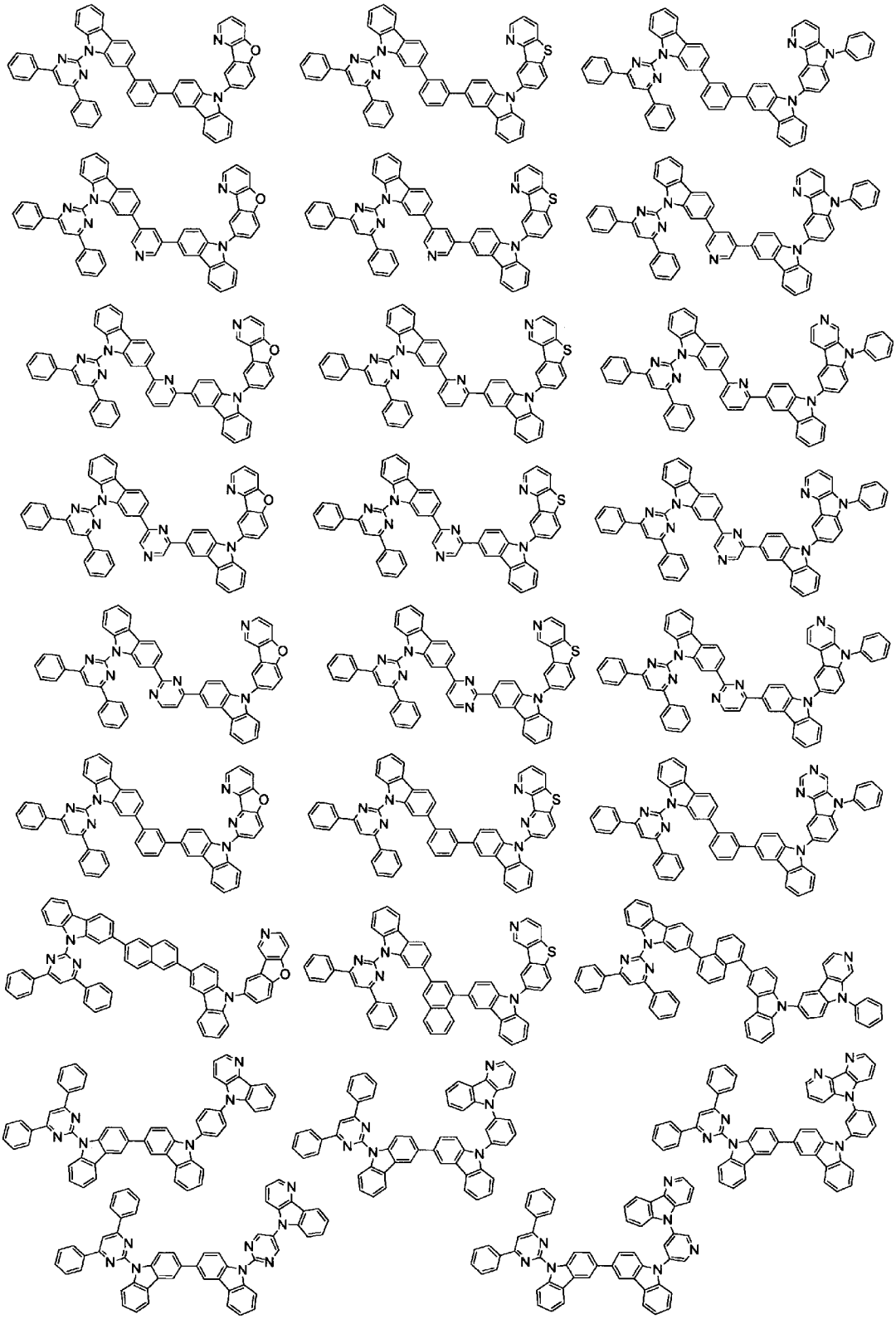
[化6]



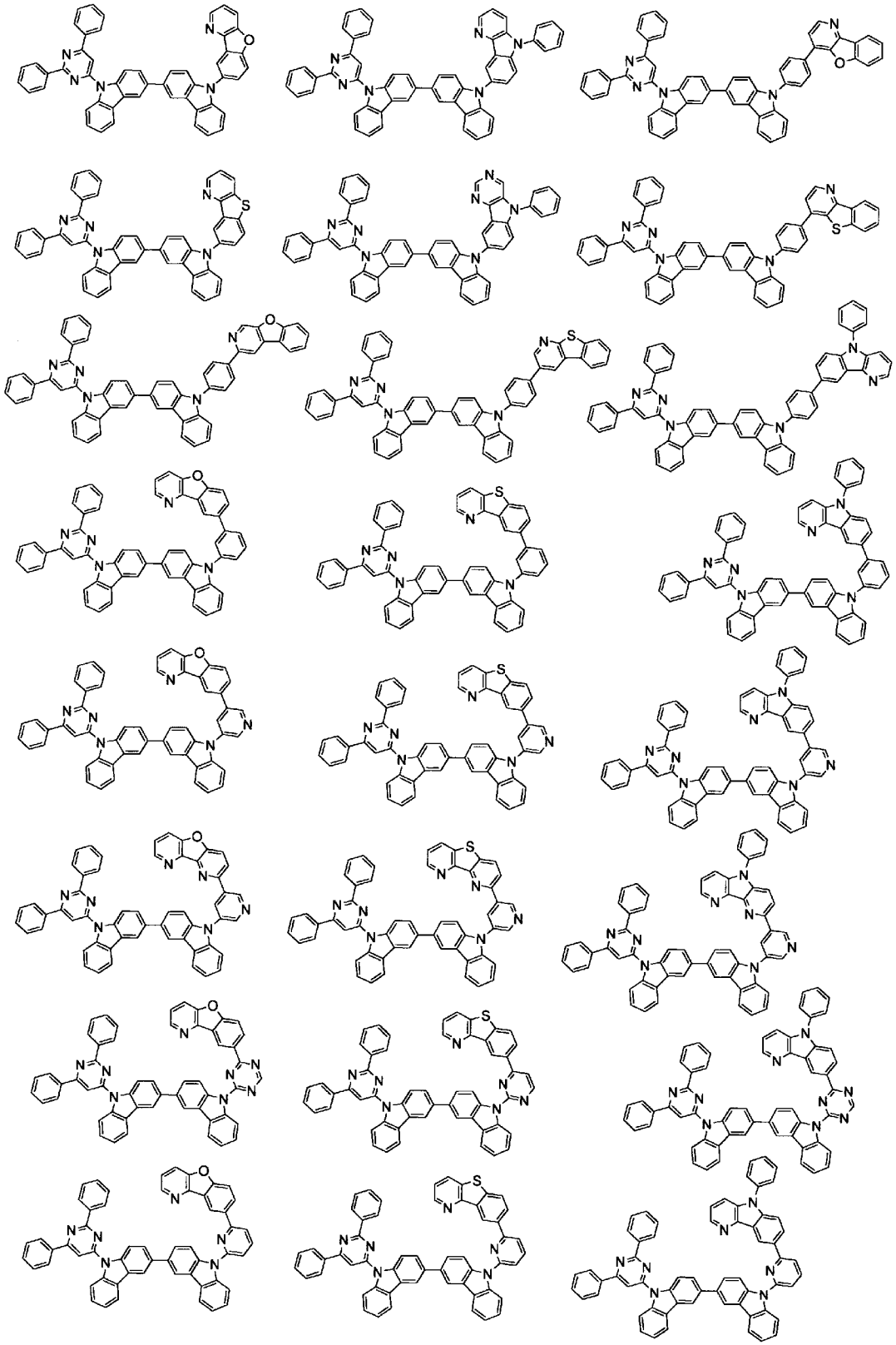
[化7]



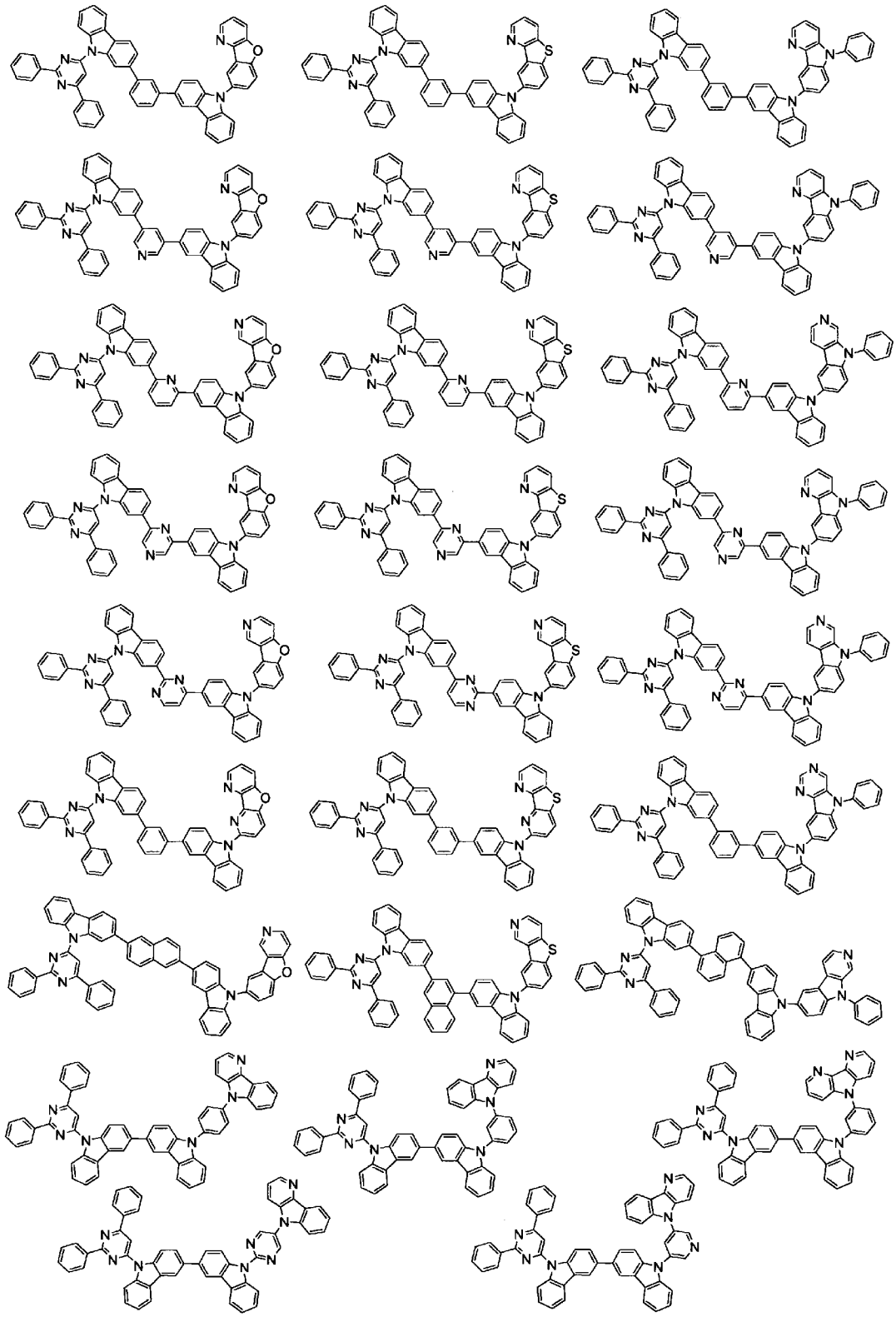
[化8]



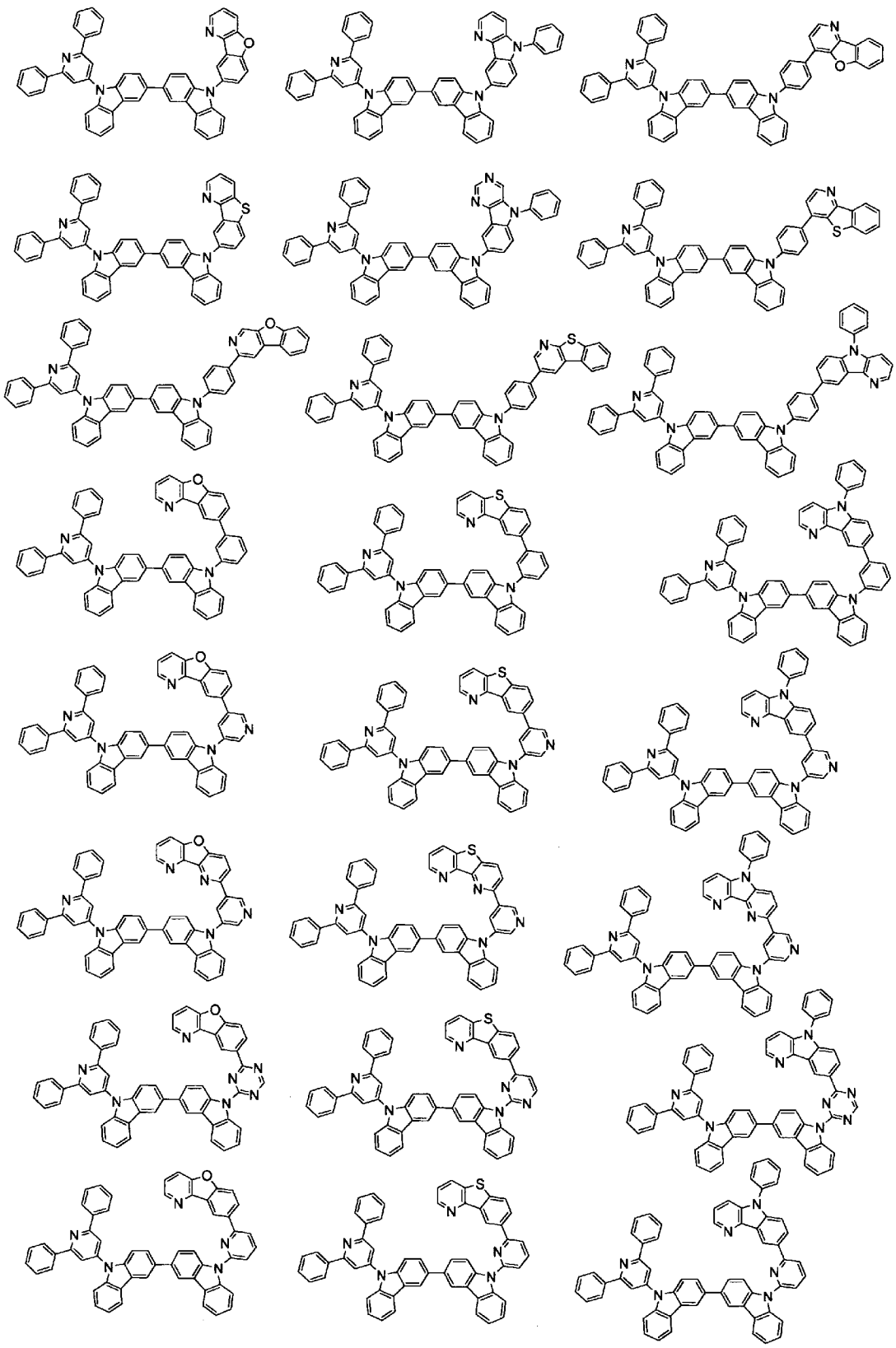
[化9]



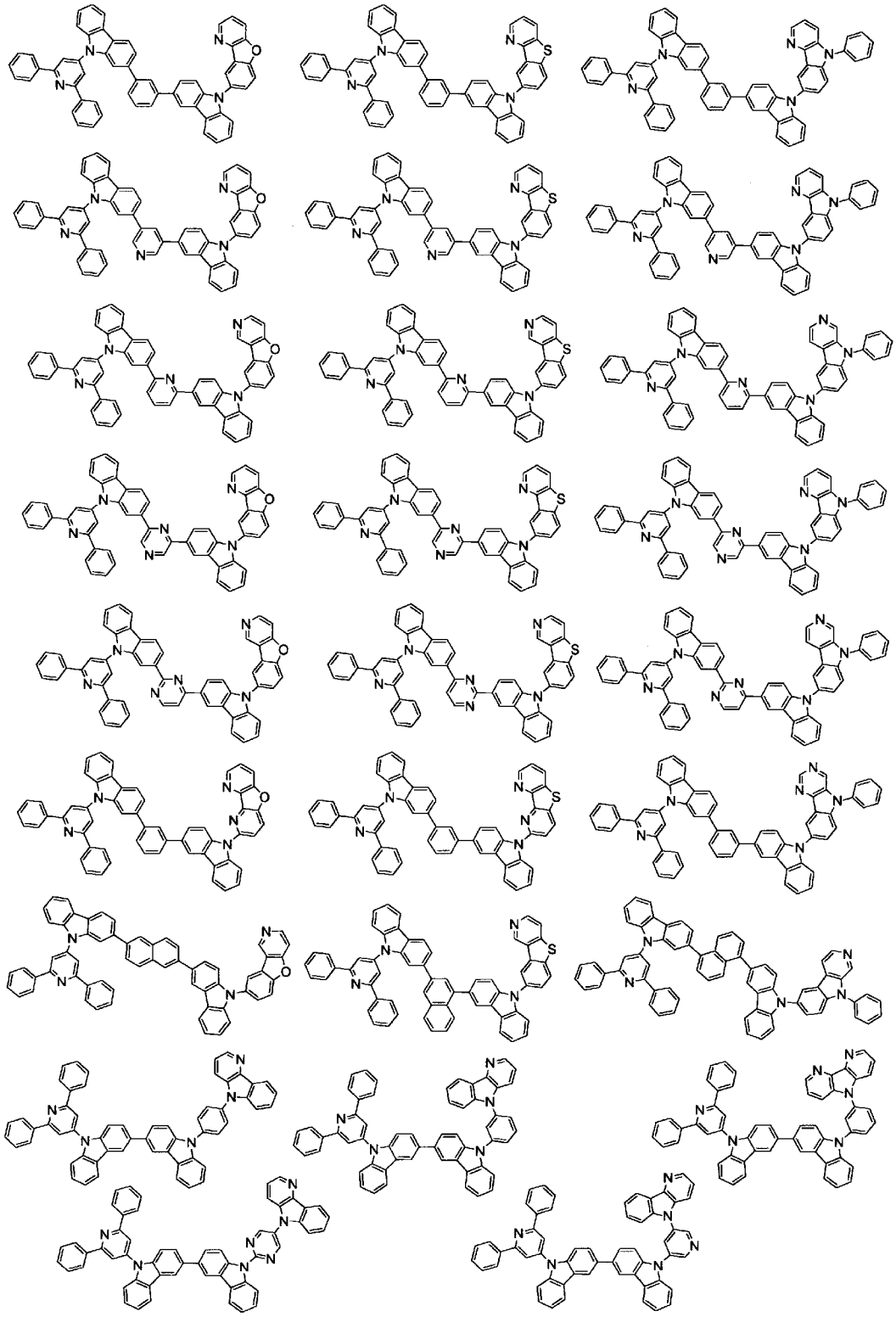
[化10]



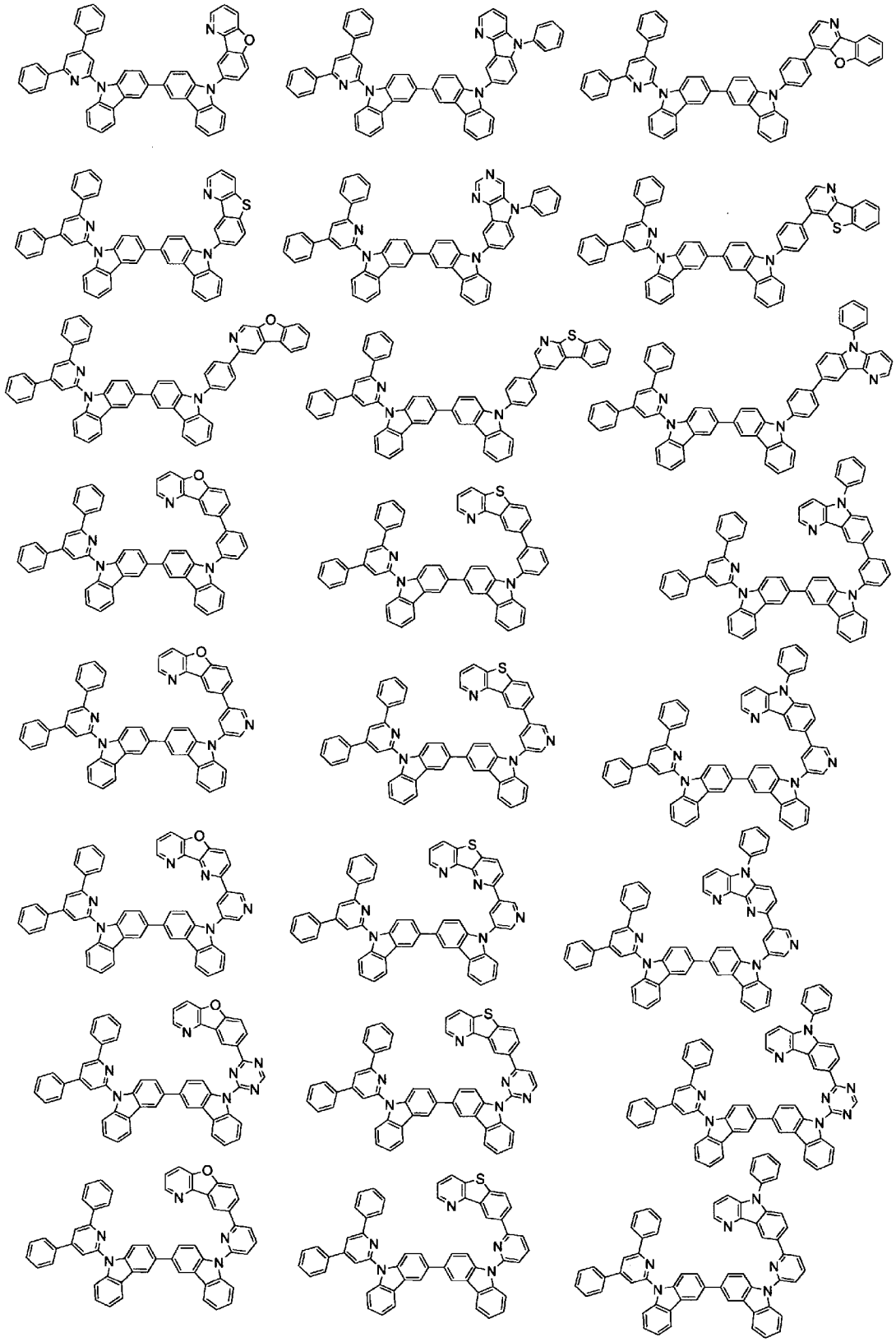
[化11]



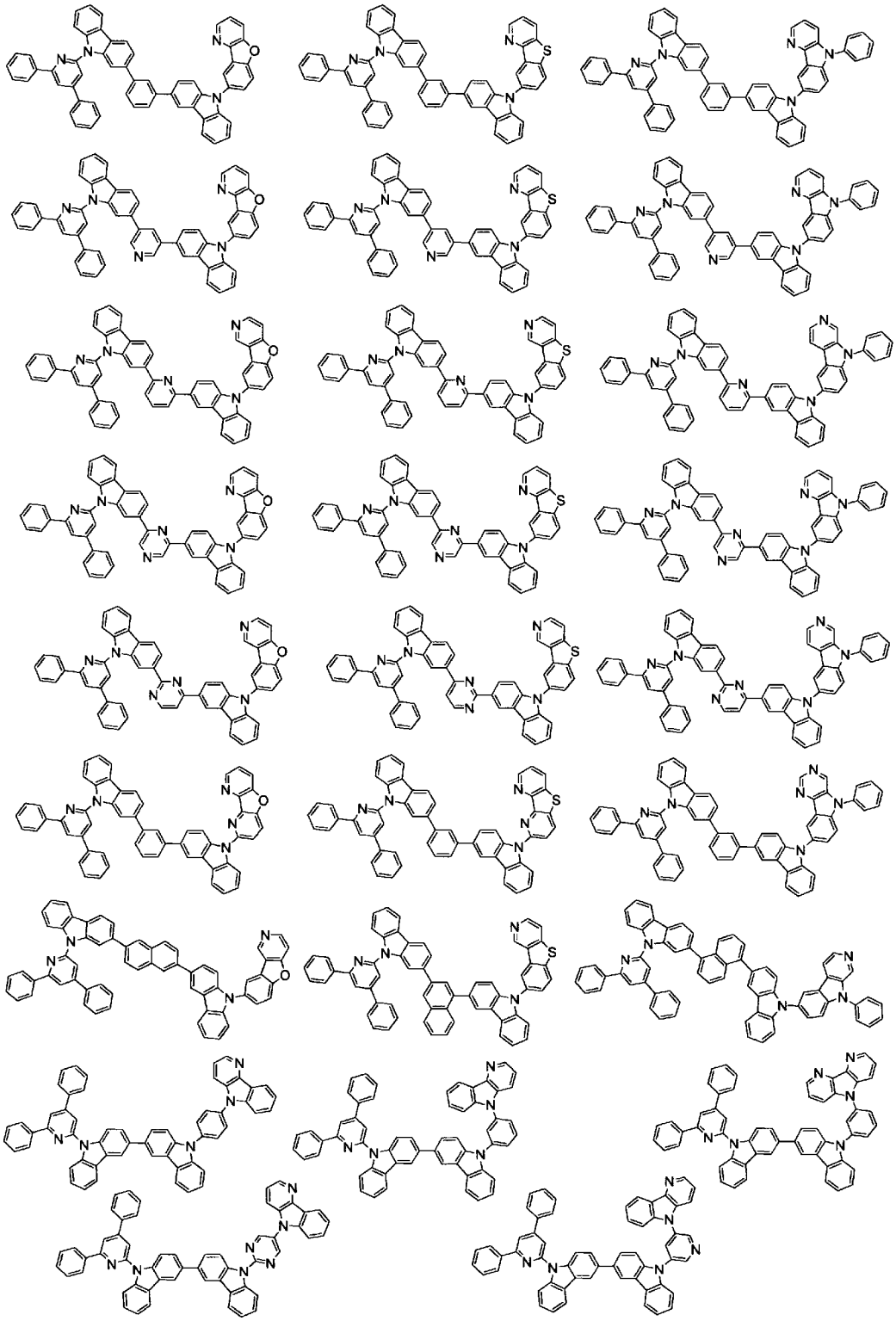
[化12]



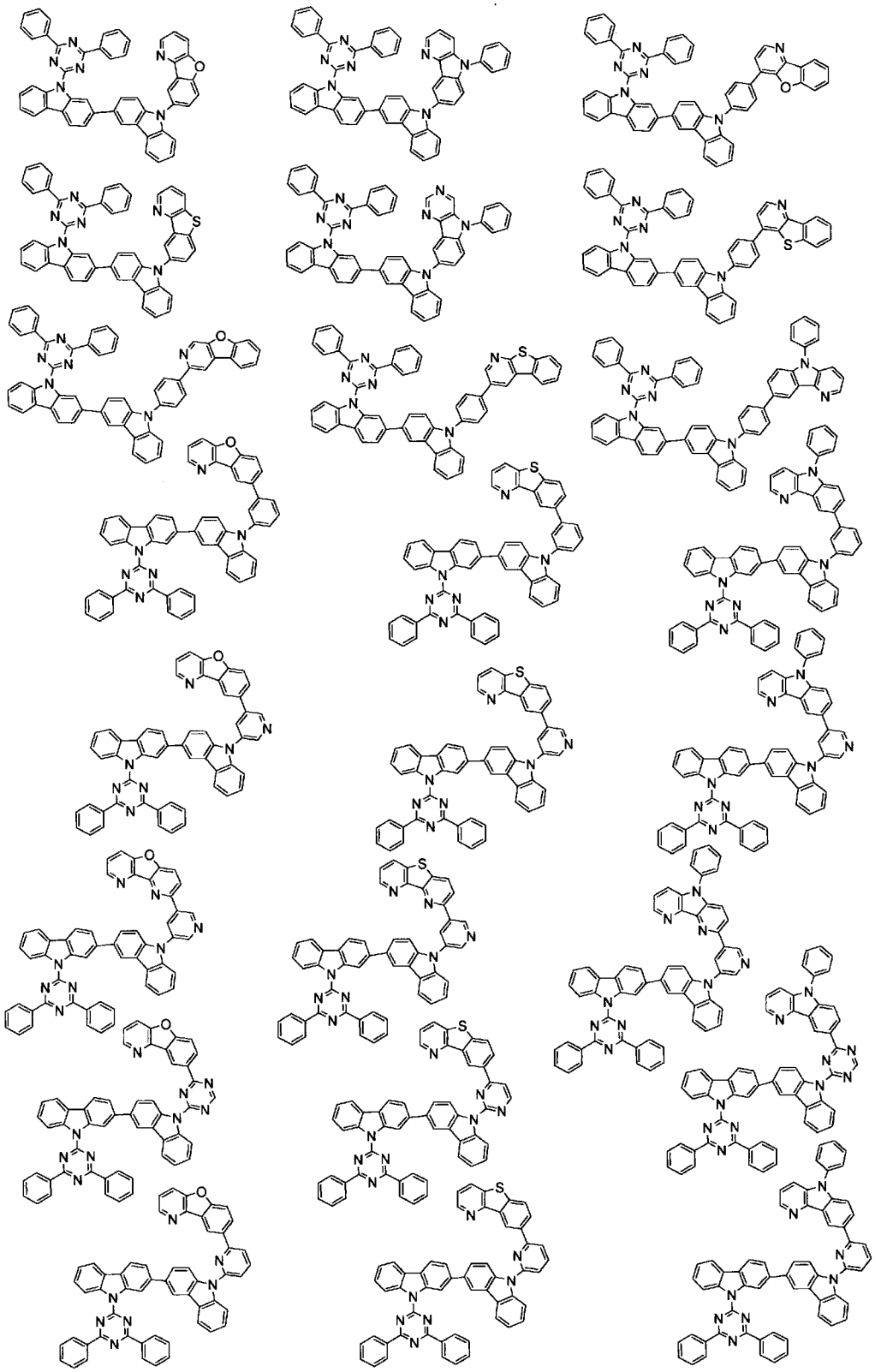
[化13]



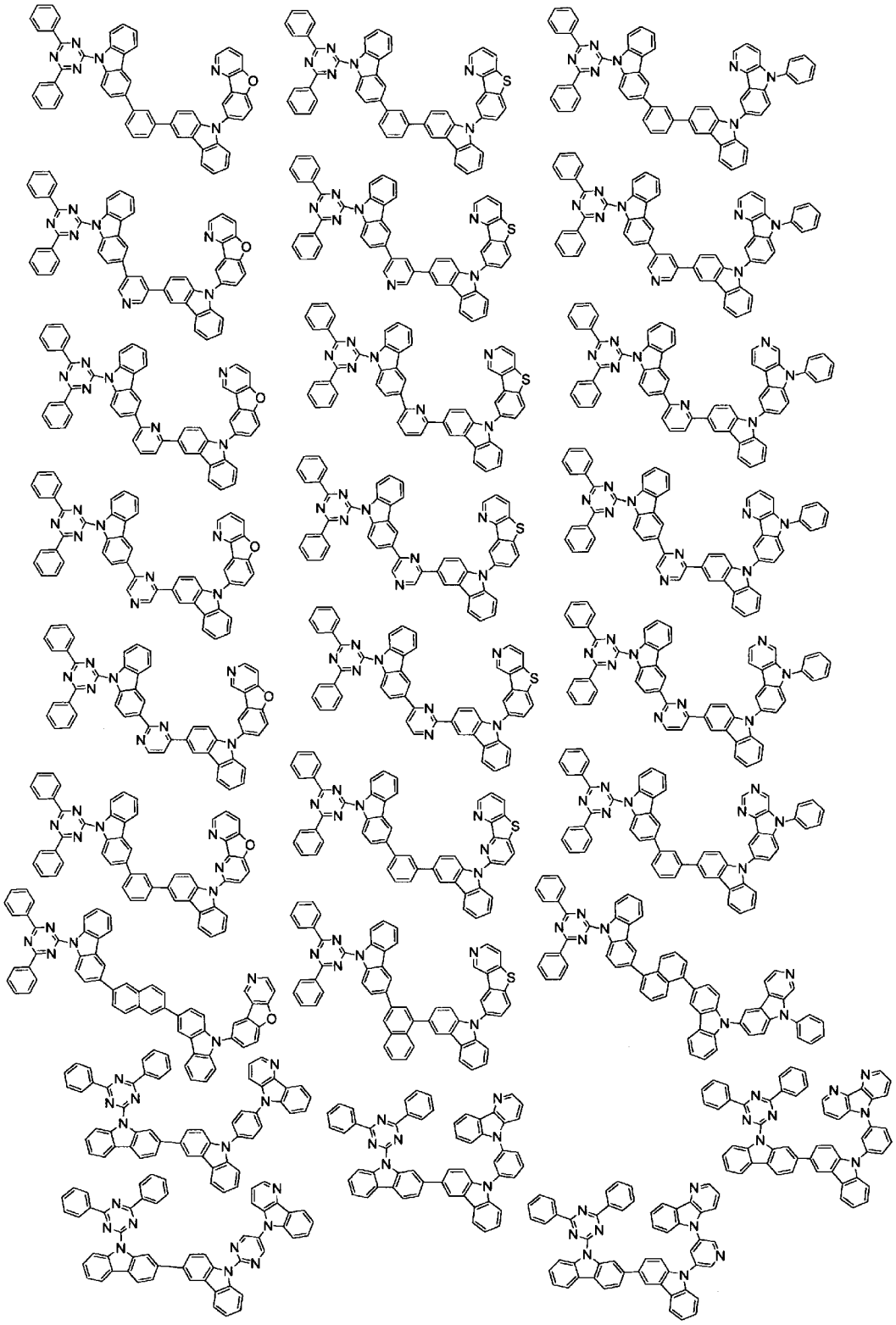
[化14]



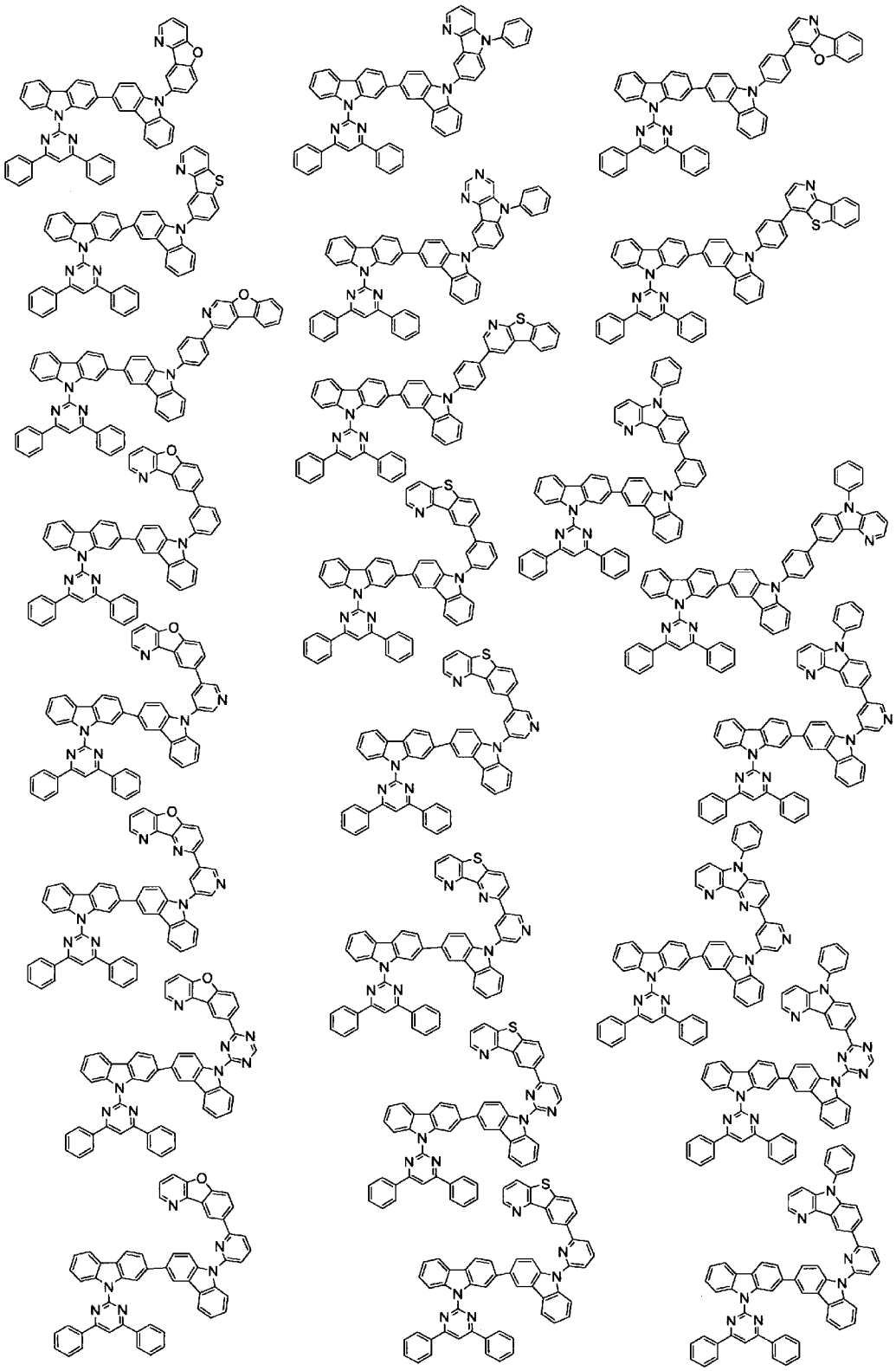
[化15]



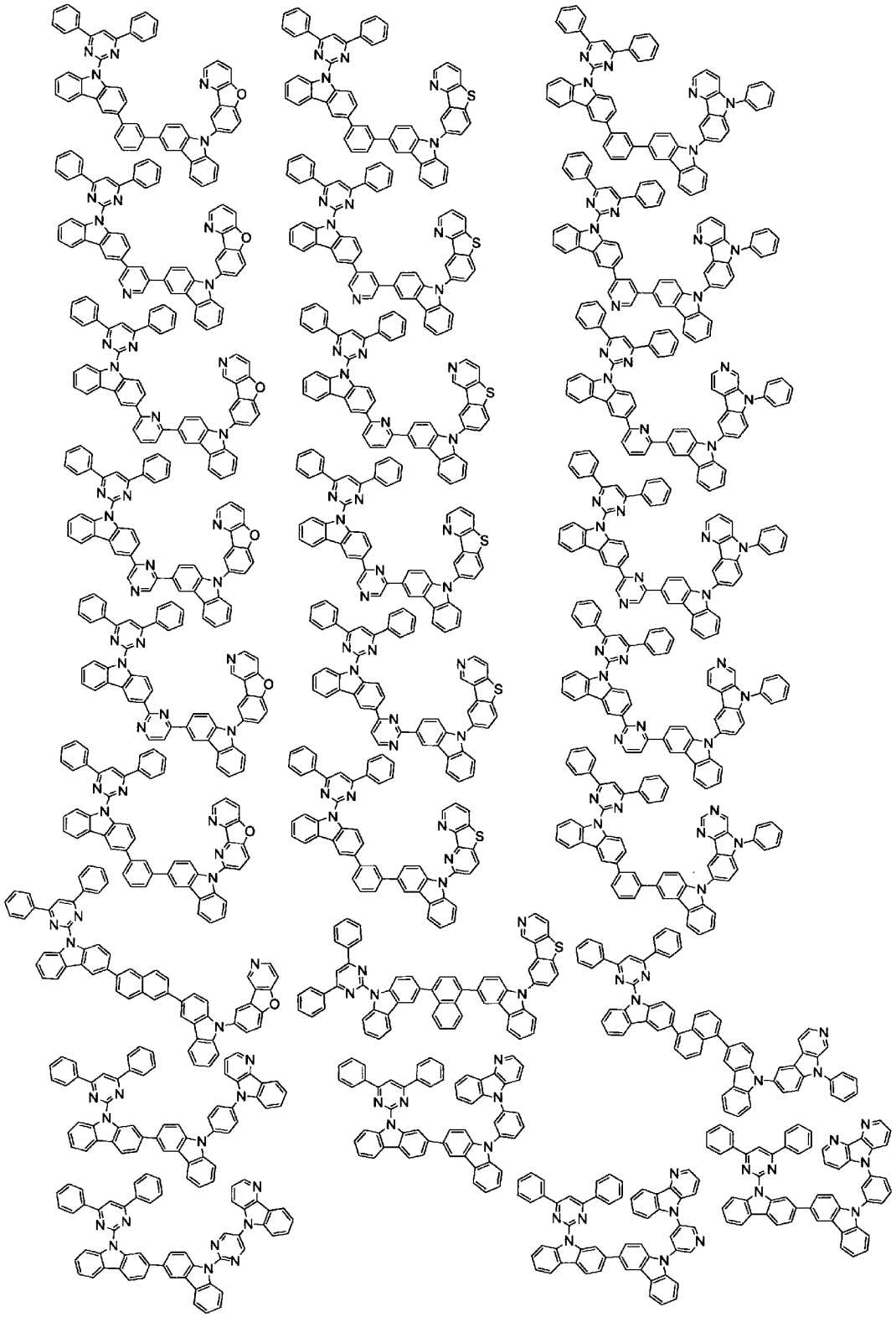
[化16]



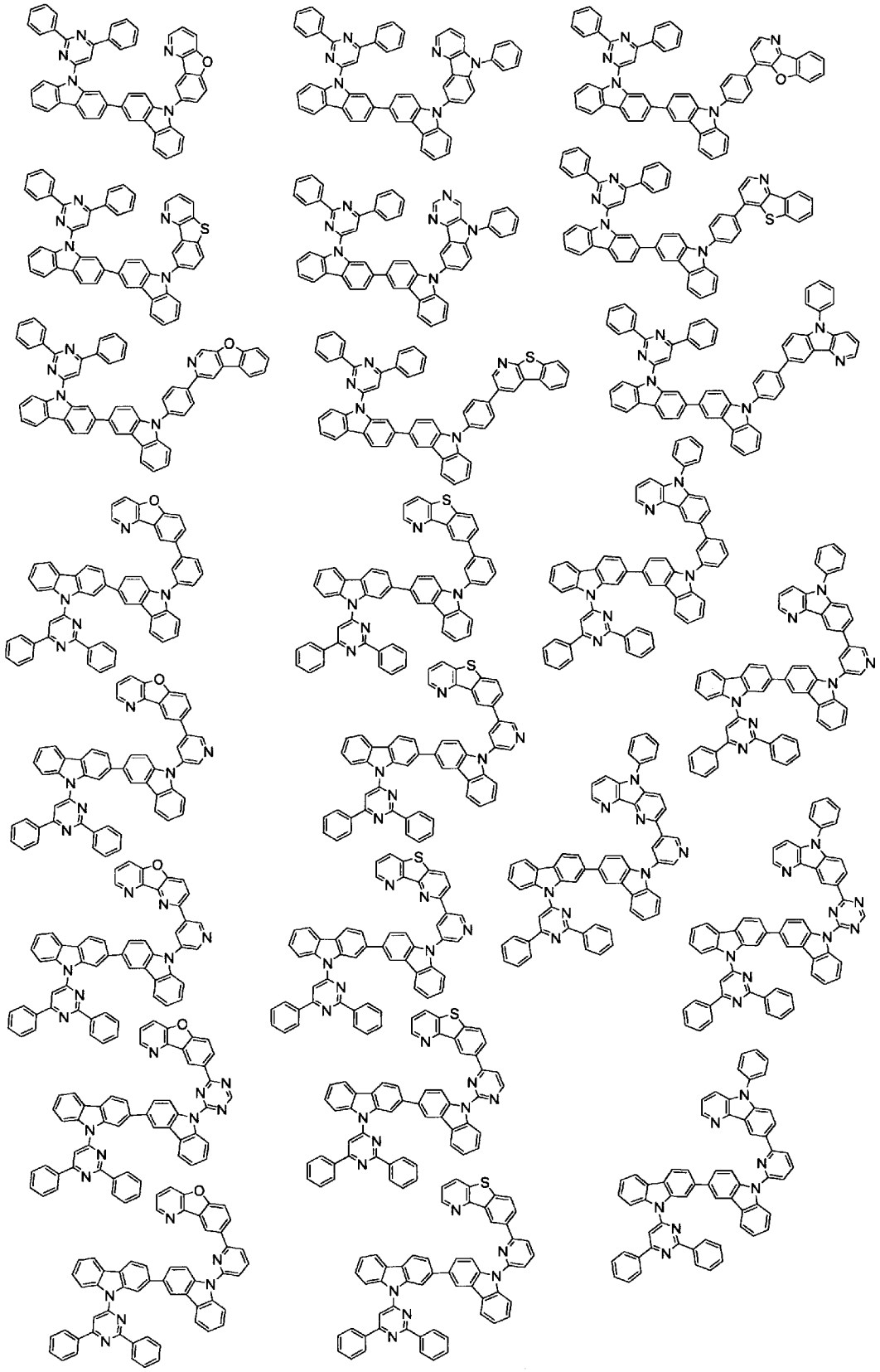
[化17]



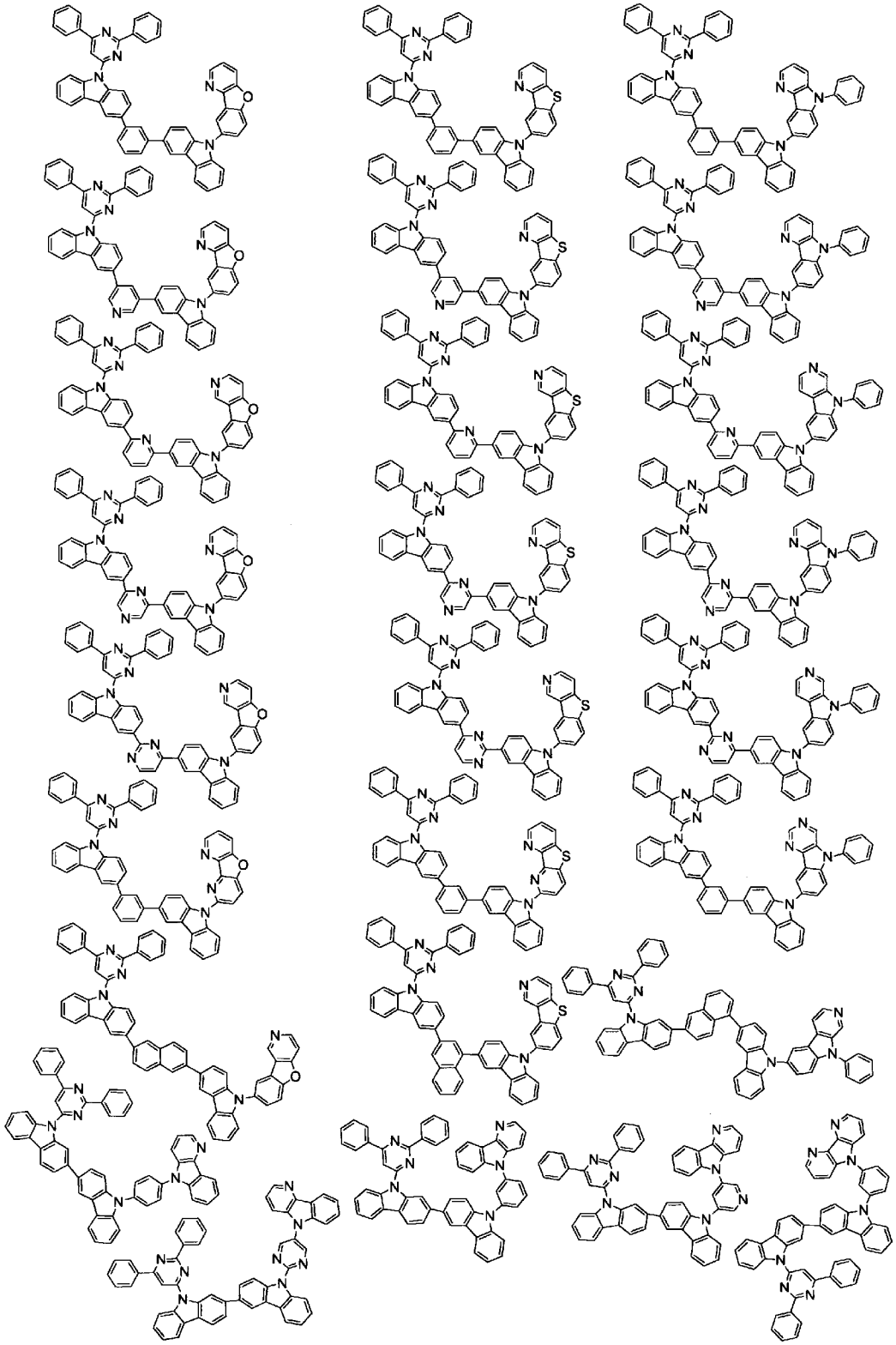
[化18]



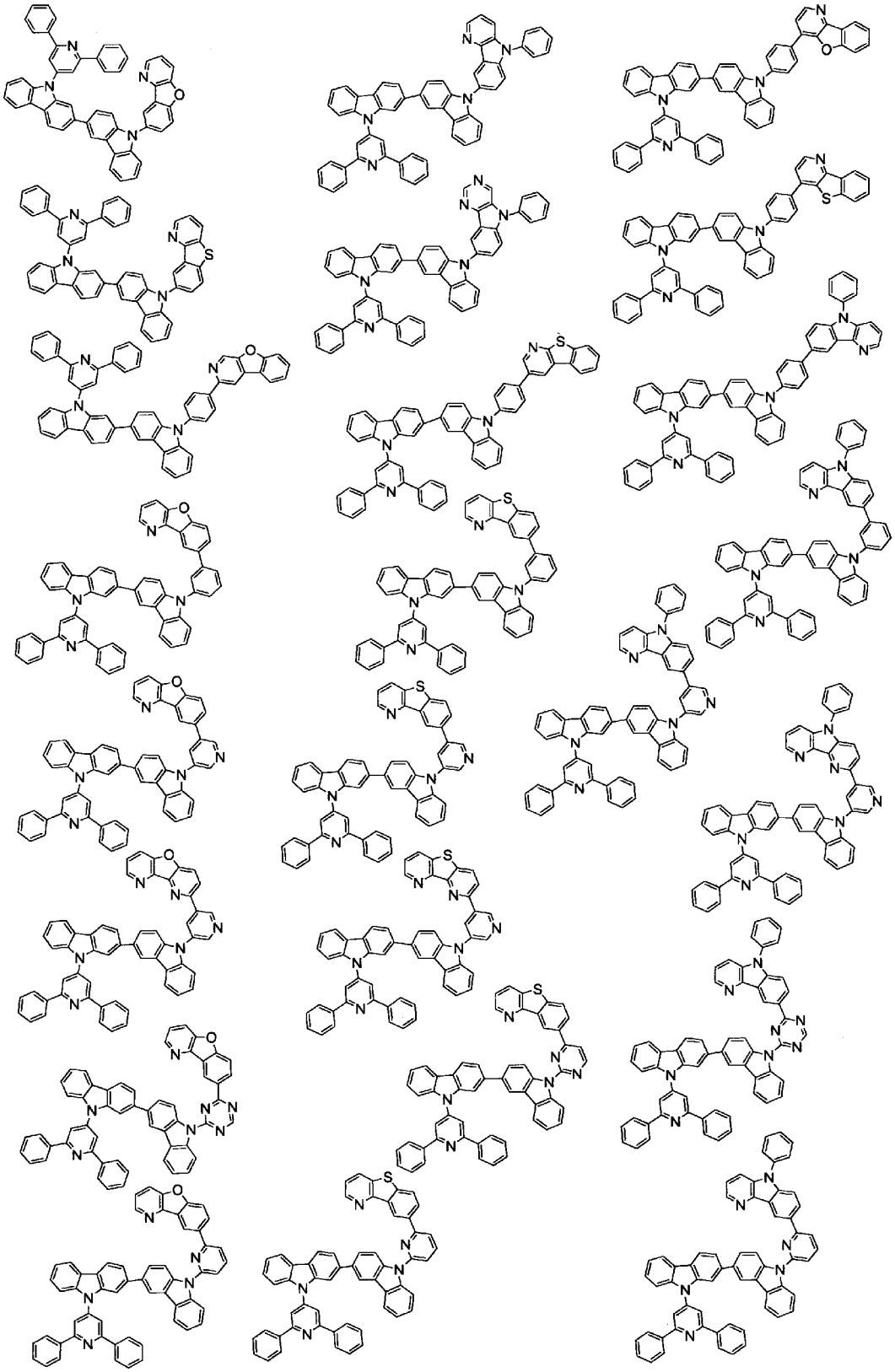
[化19]



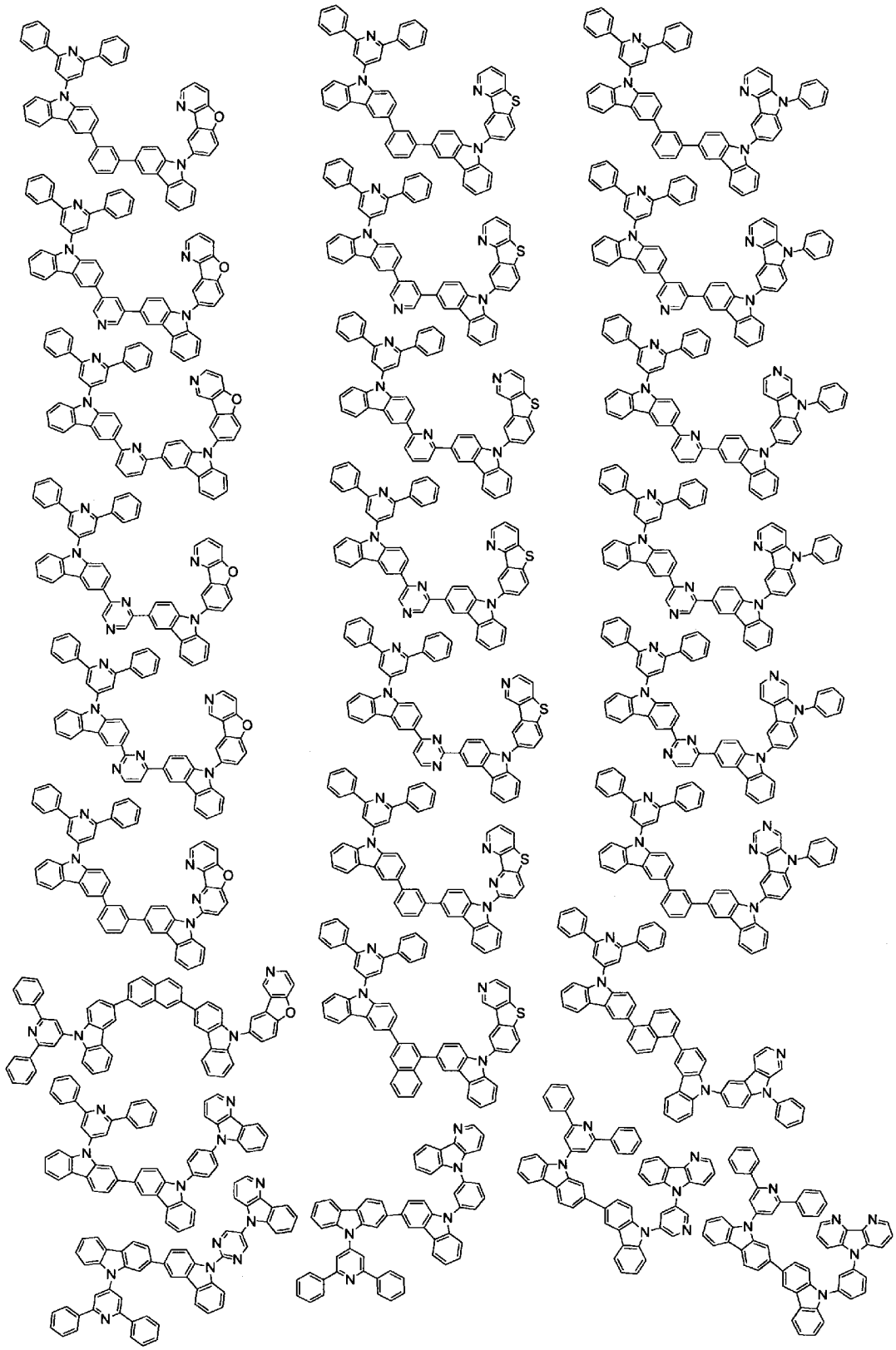
[化20]



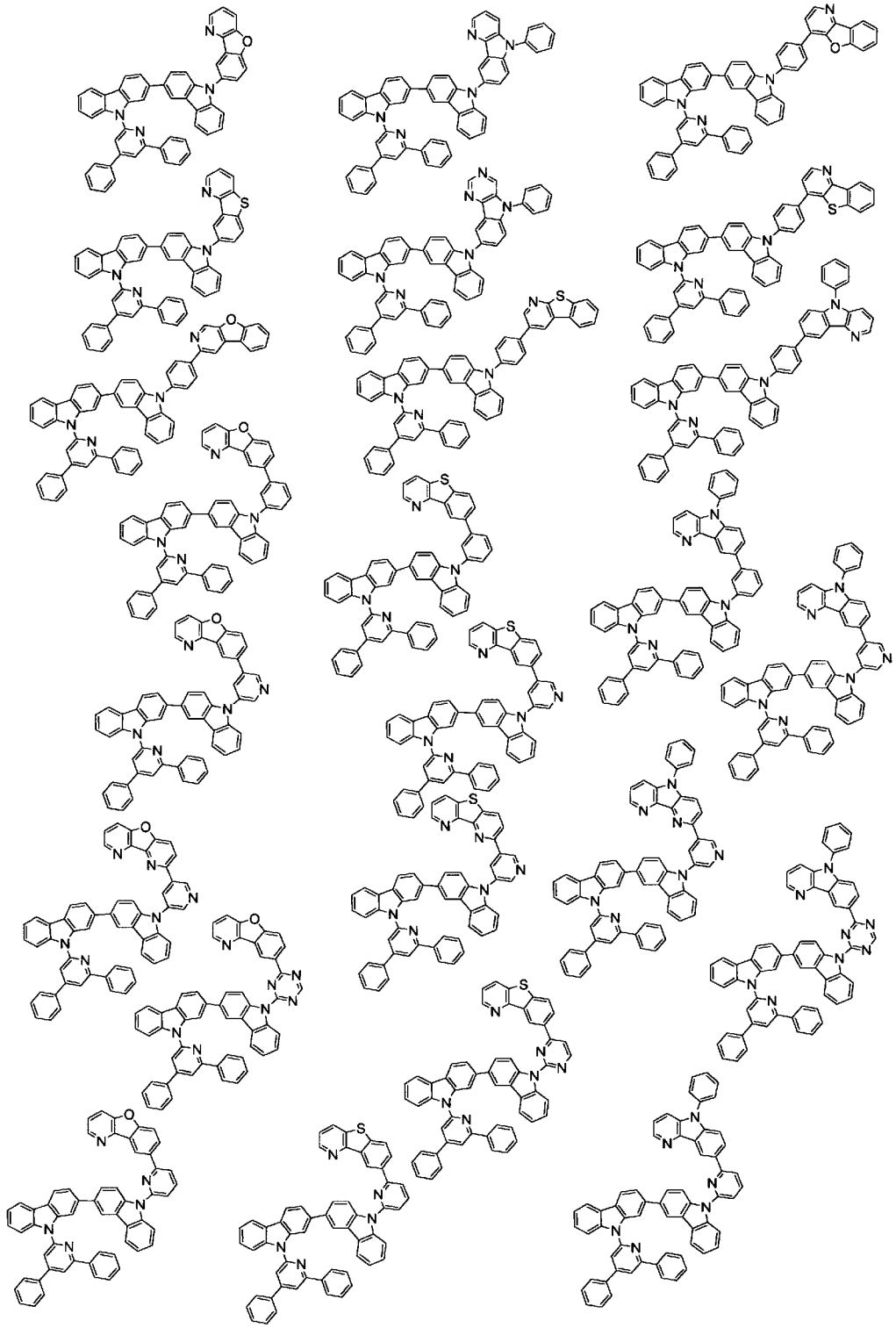
[化21]



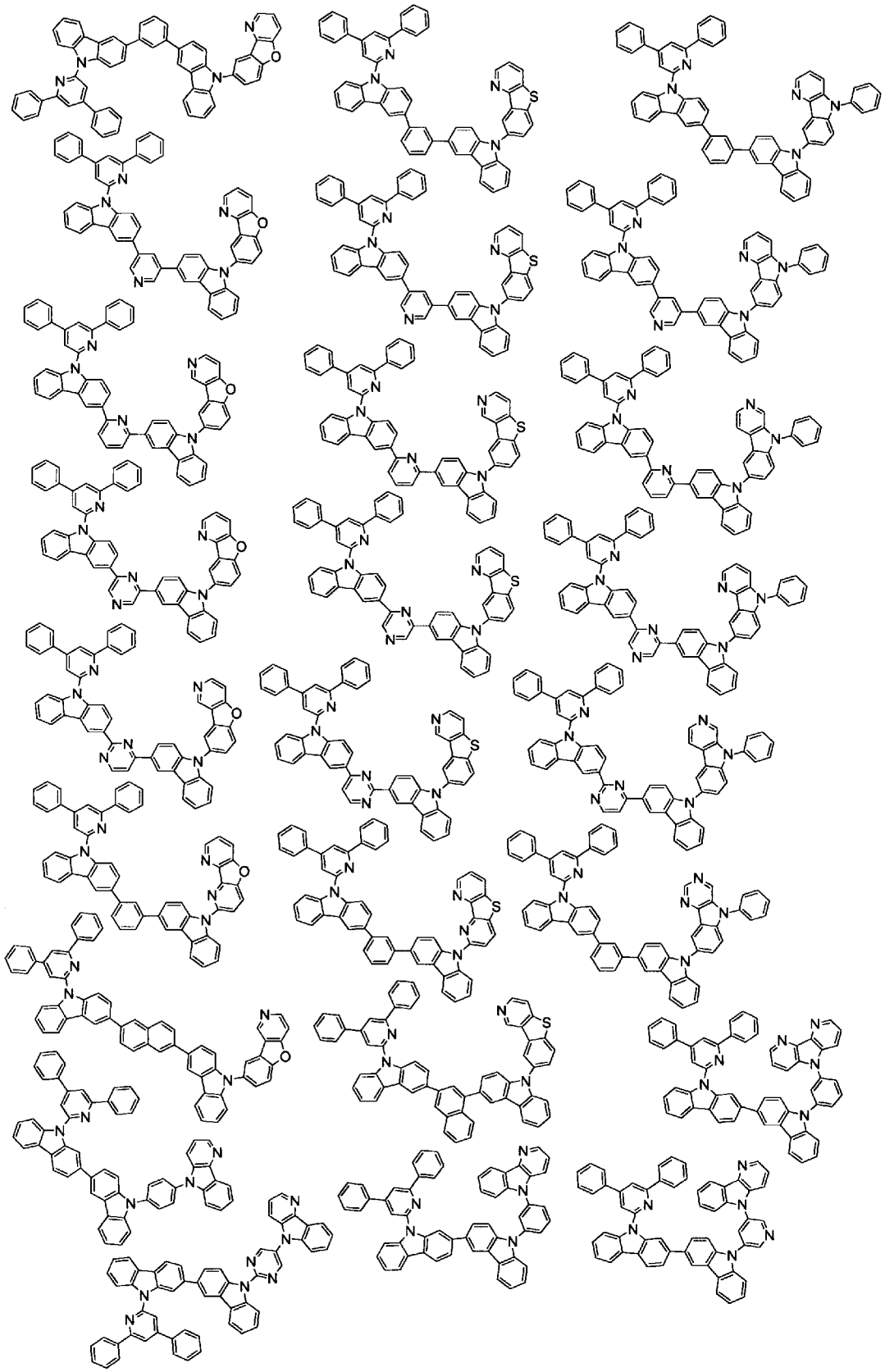
[化22]



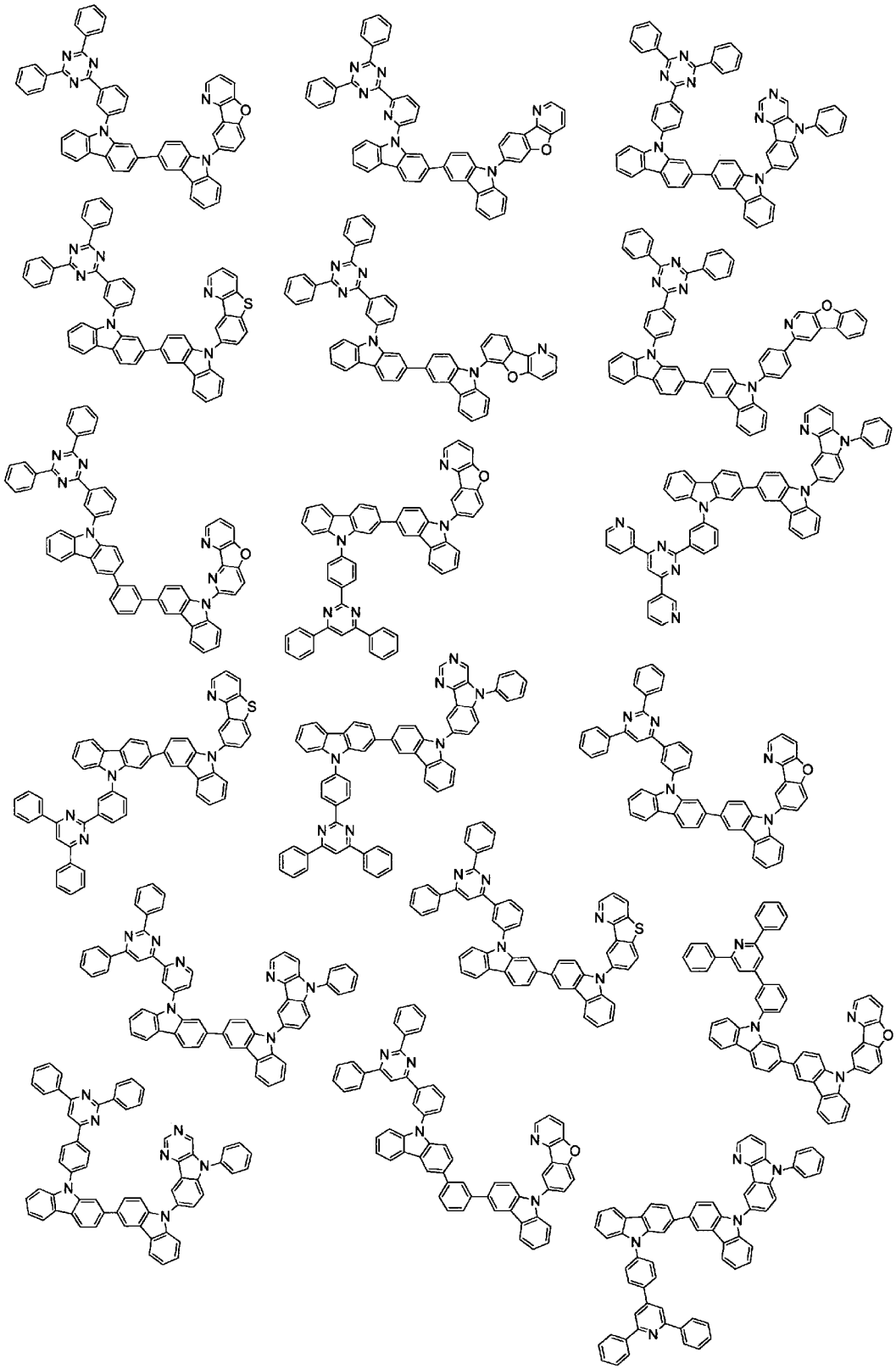
[化23]



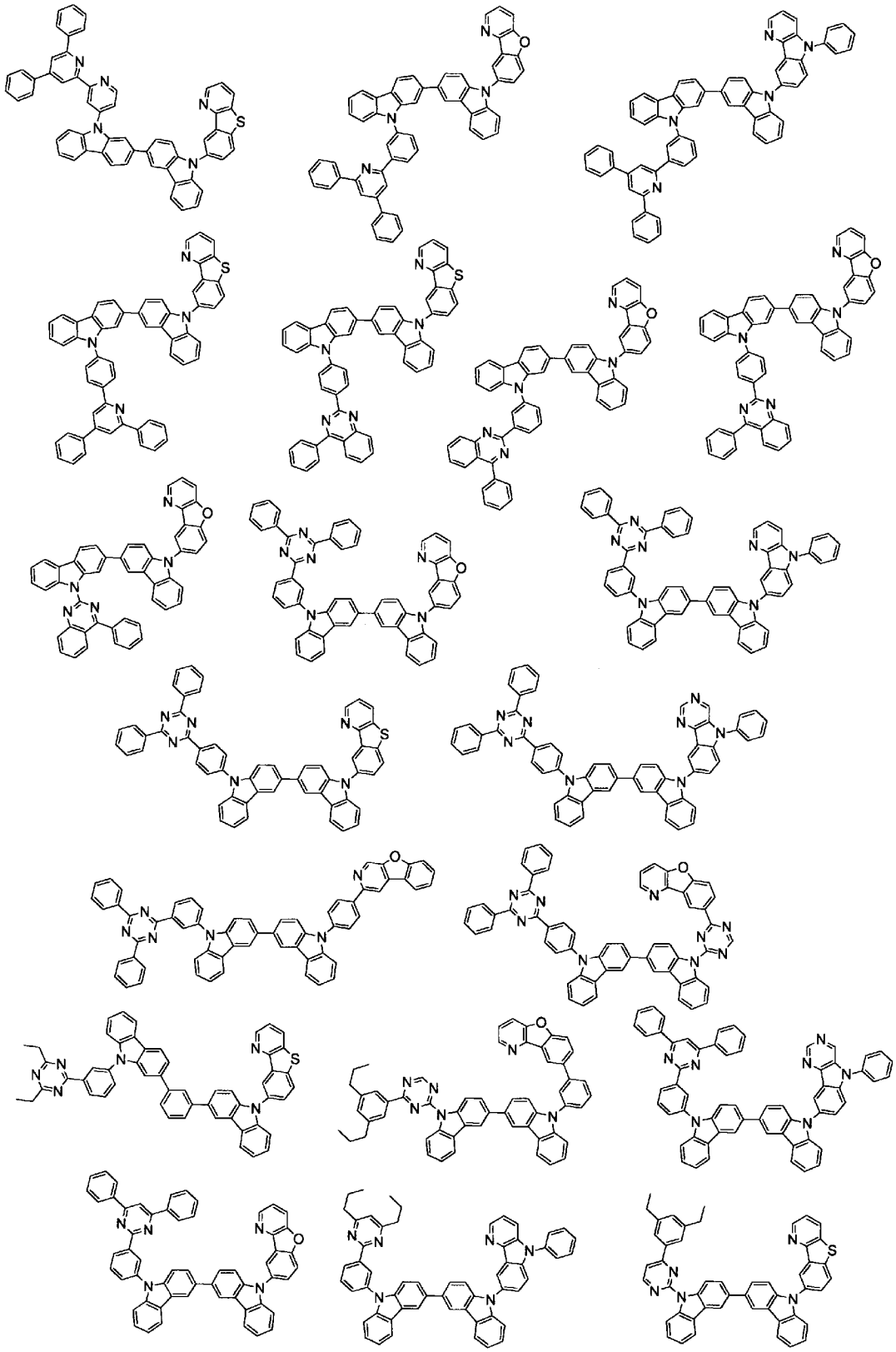
[化24]



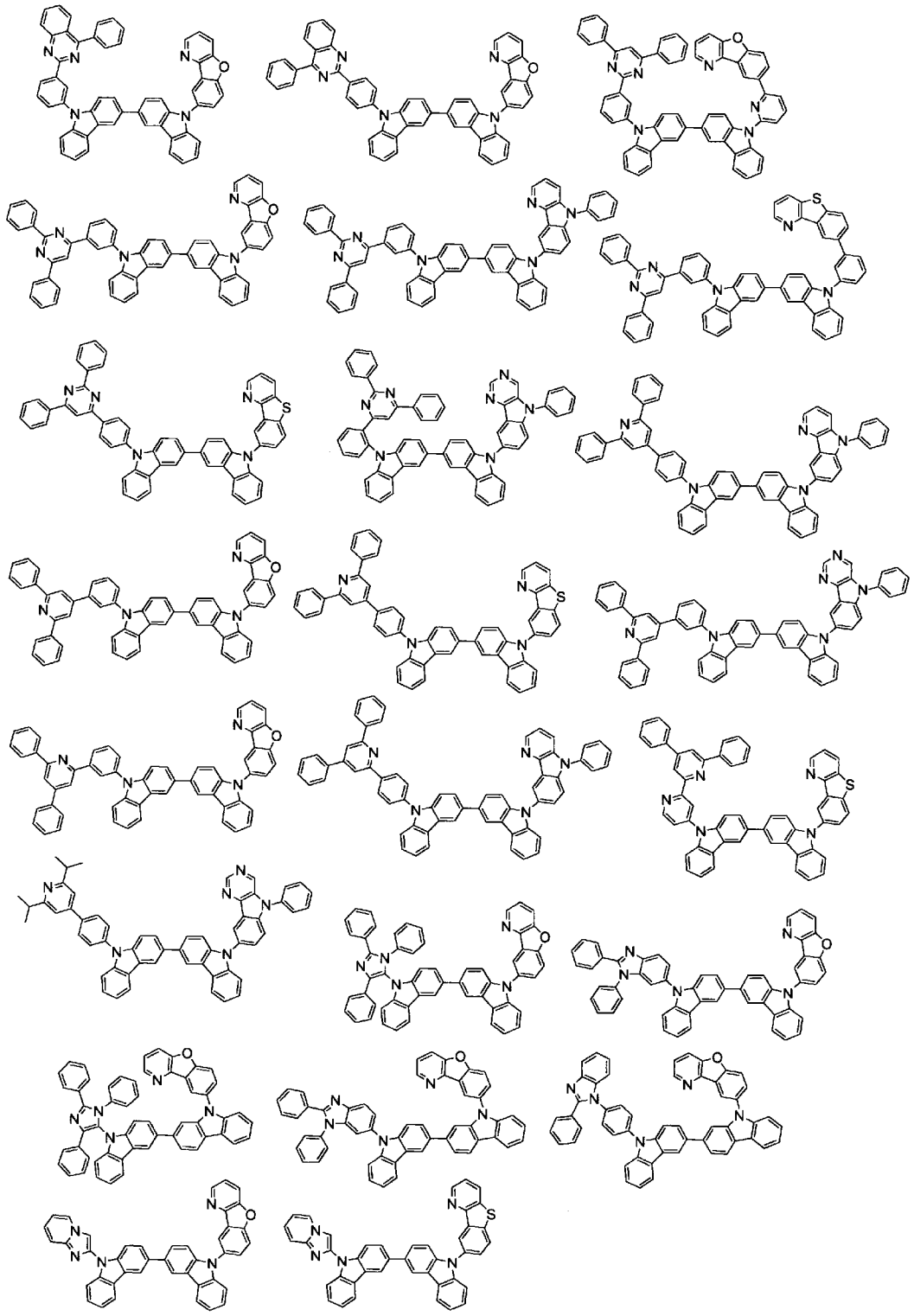
[化25]



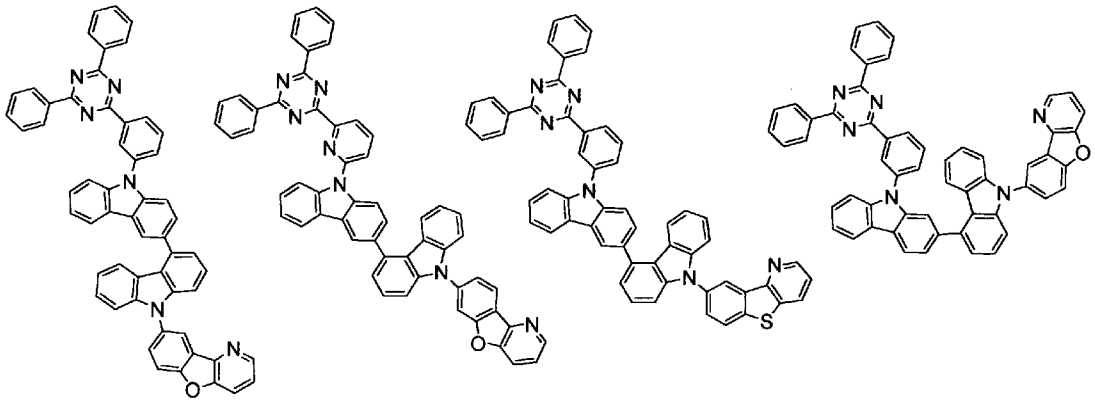
[化26]



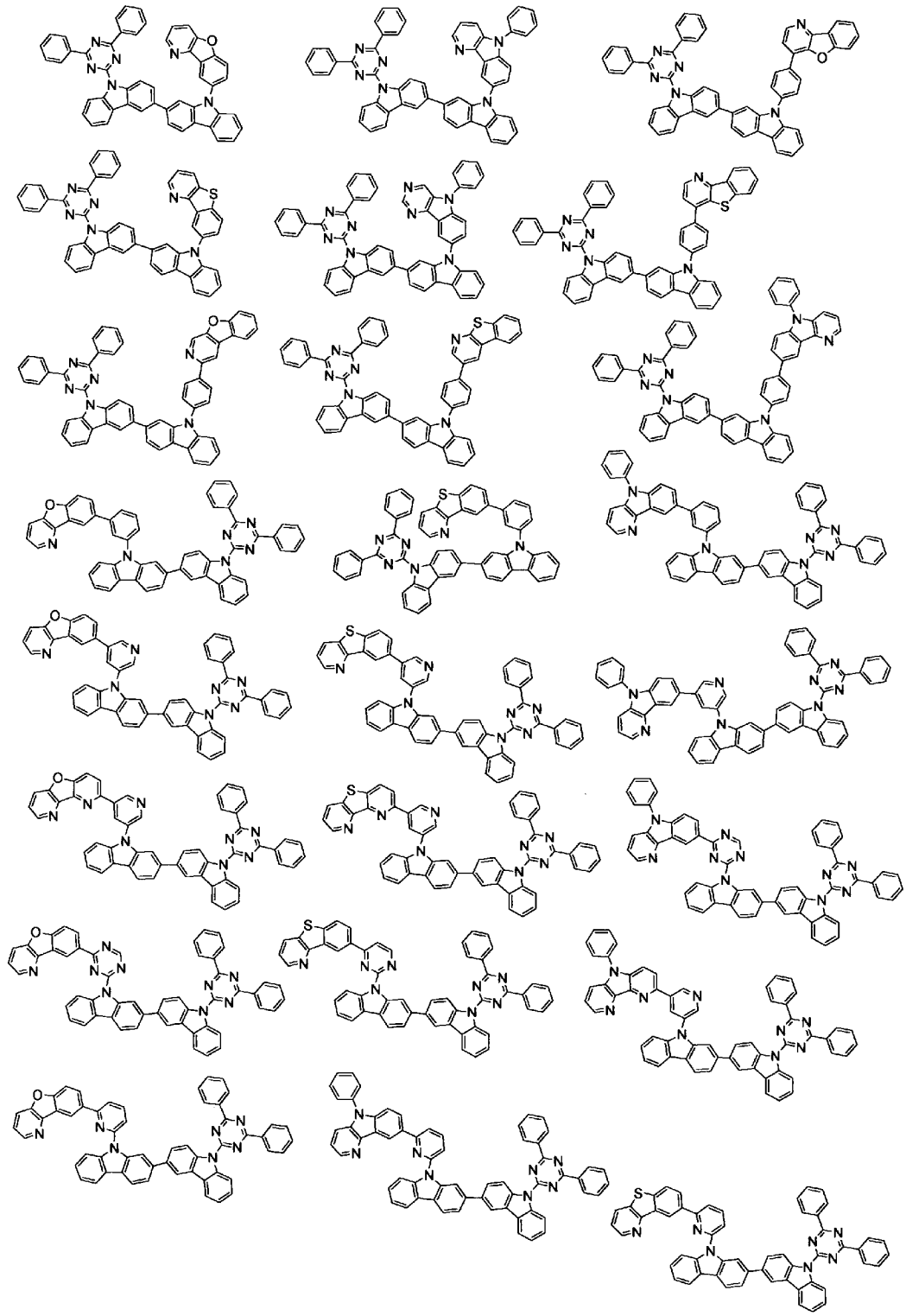
[化27]



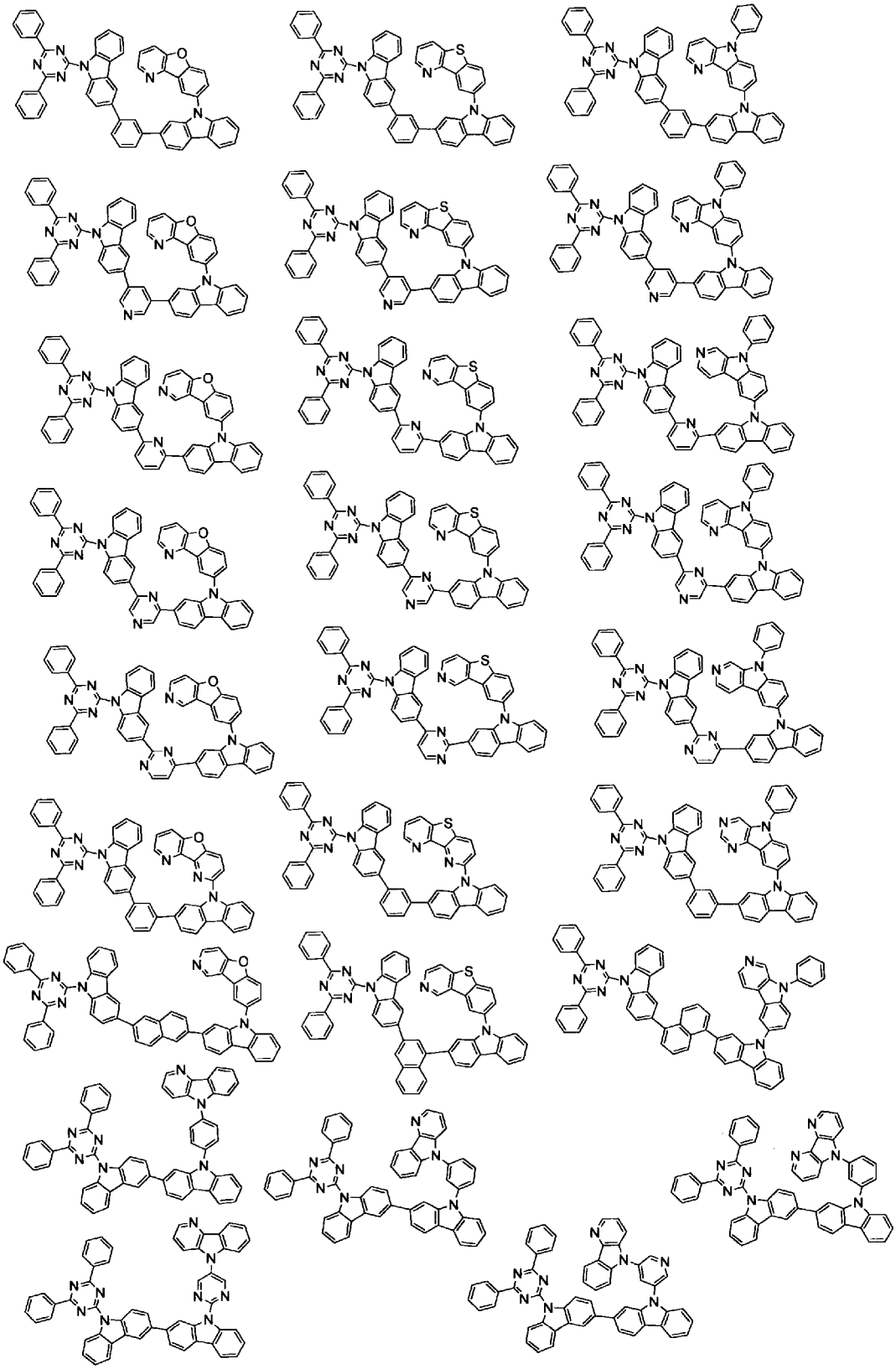
[化28]



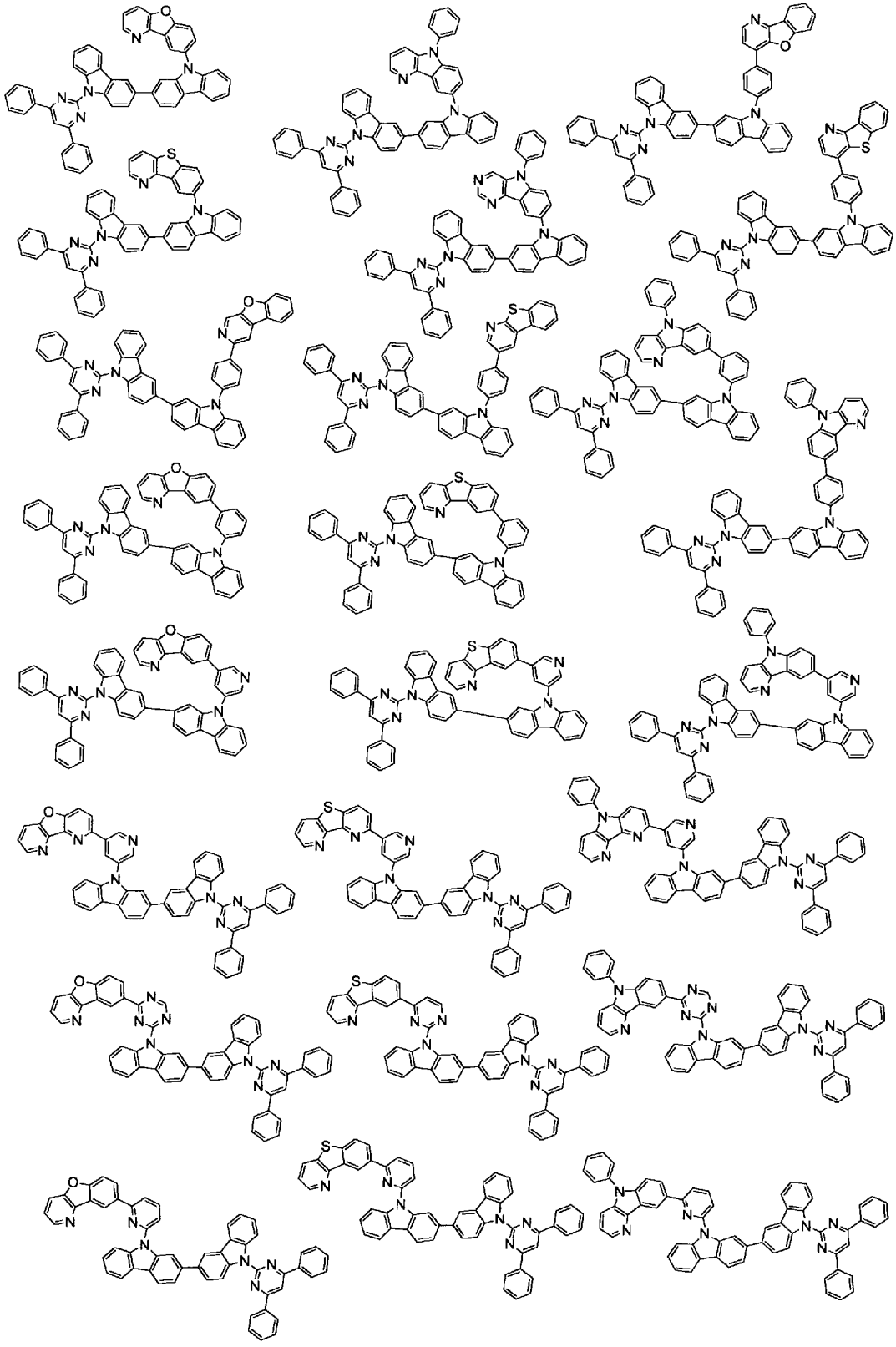
[化29]



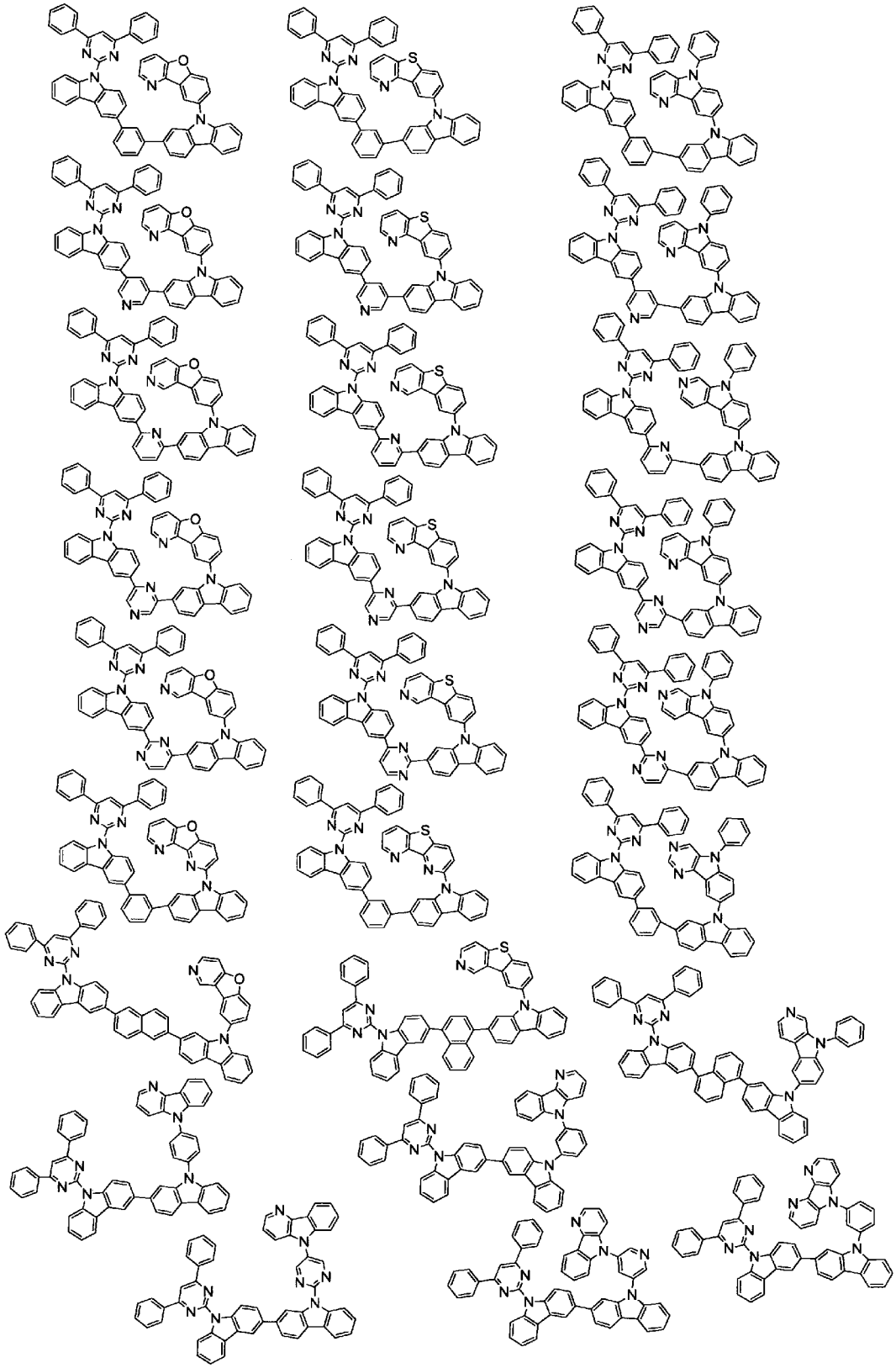
[化30]



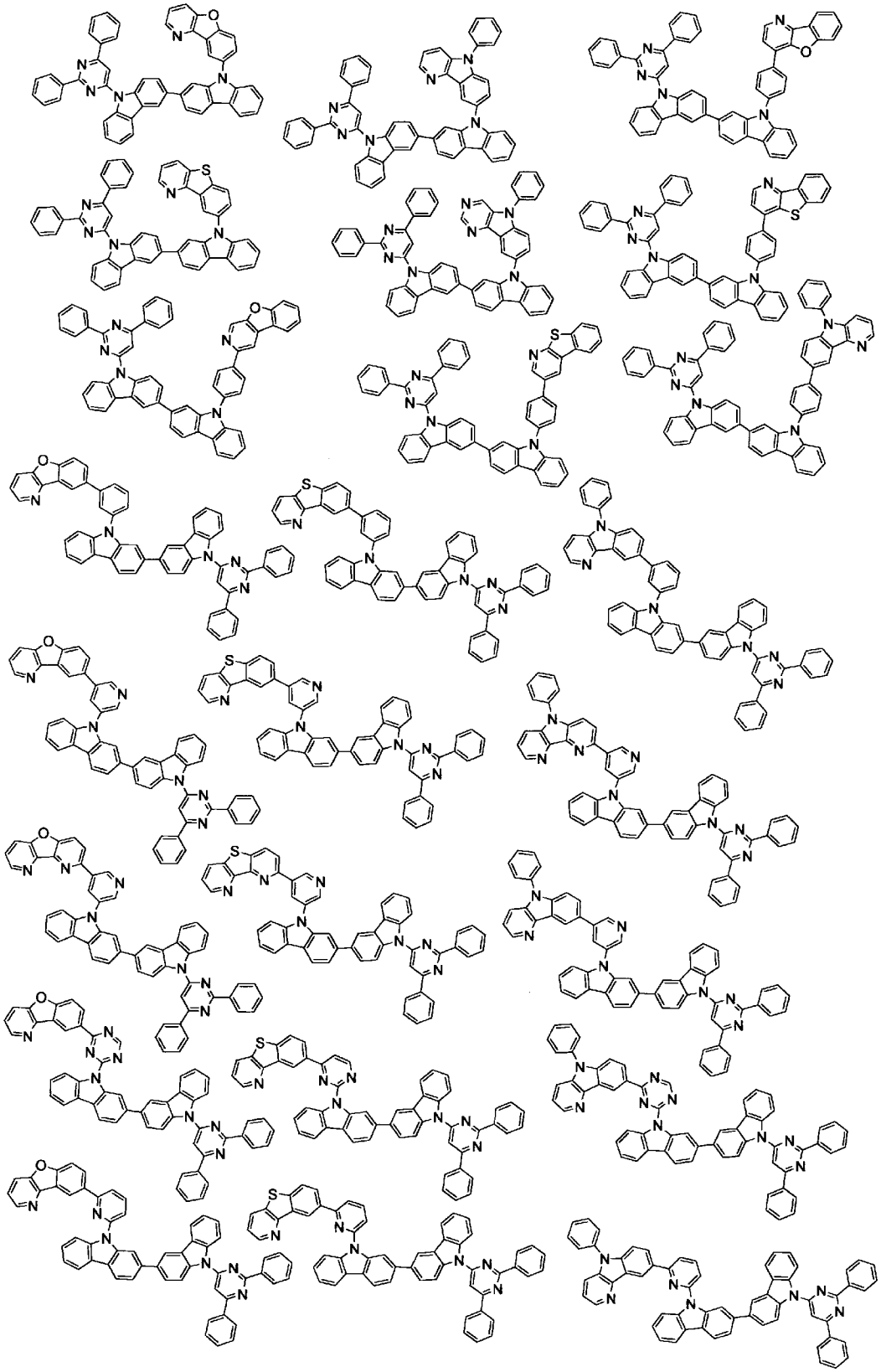
[化31]



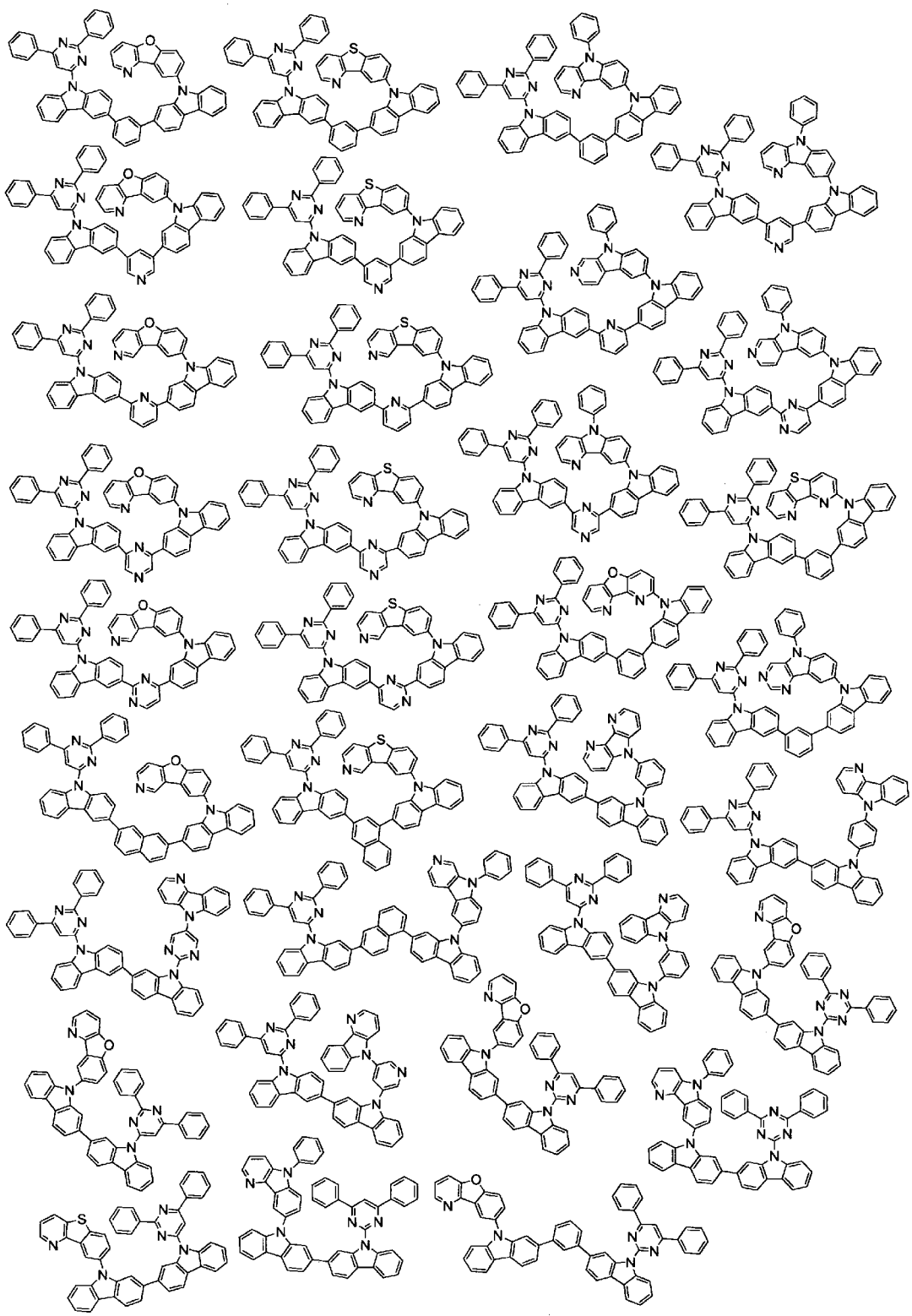
[化32]



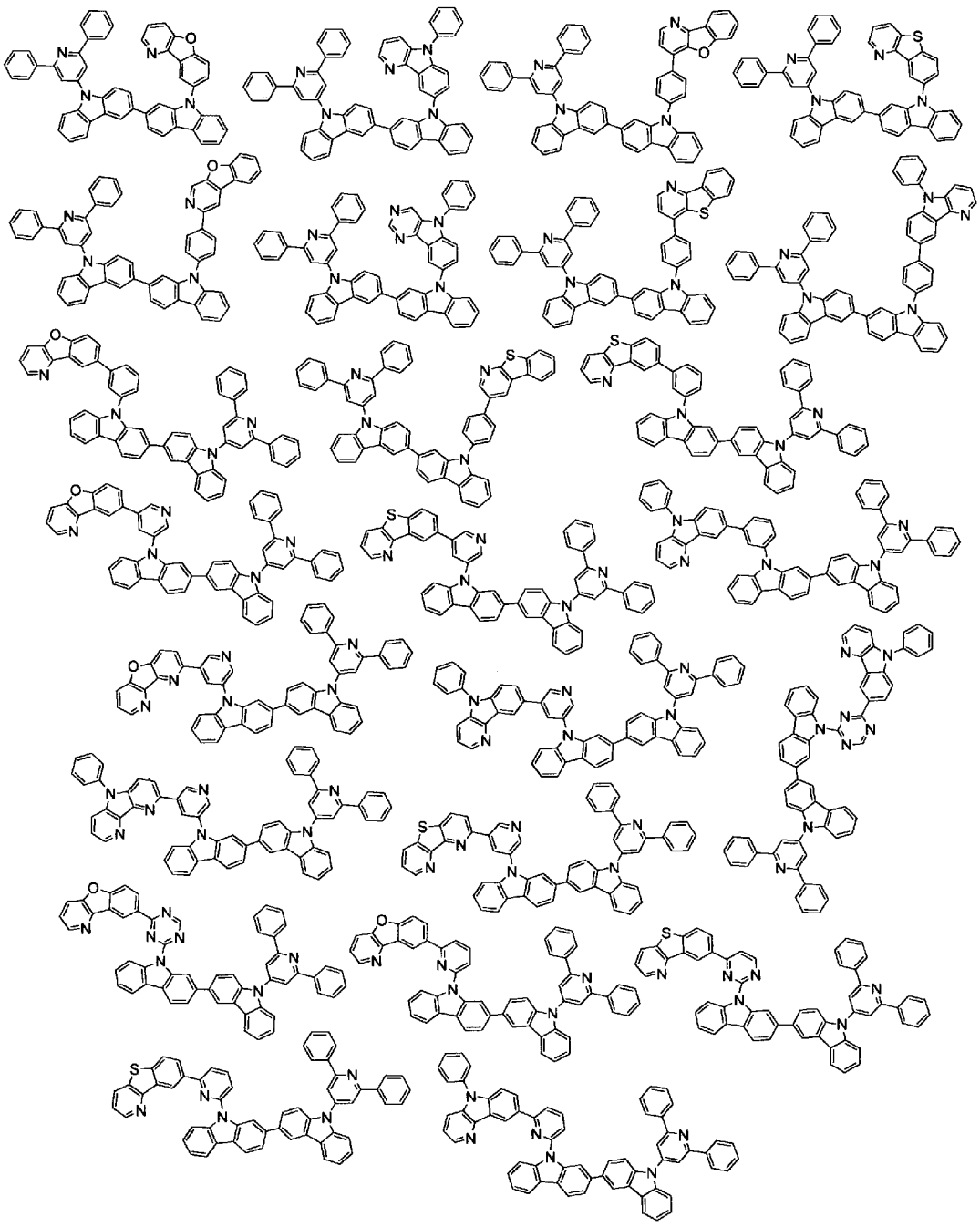
[化33]



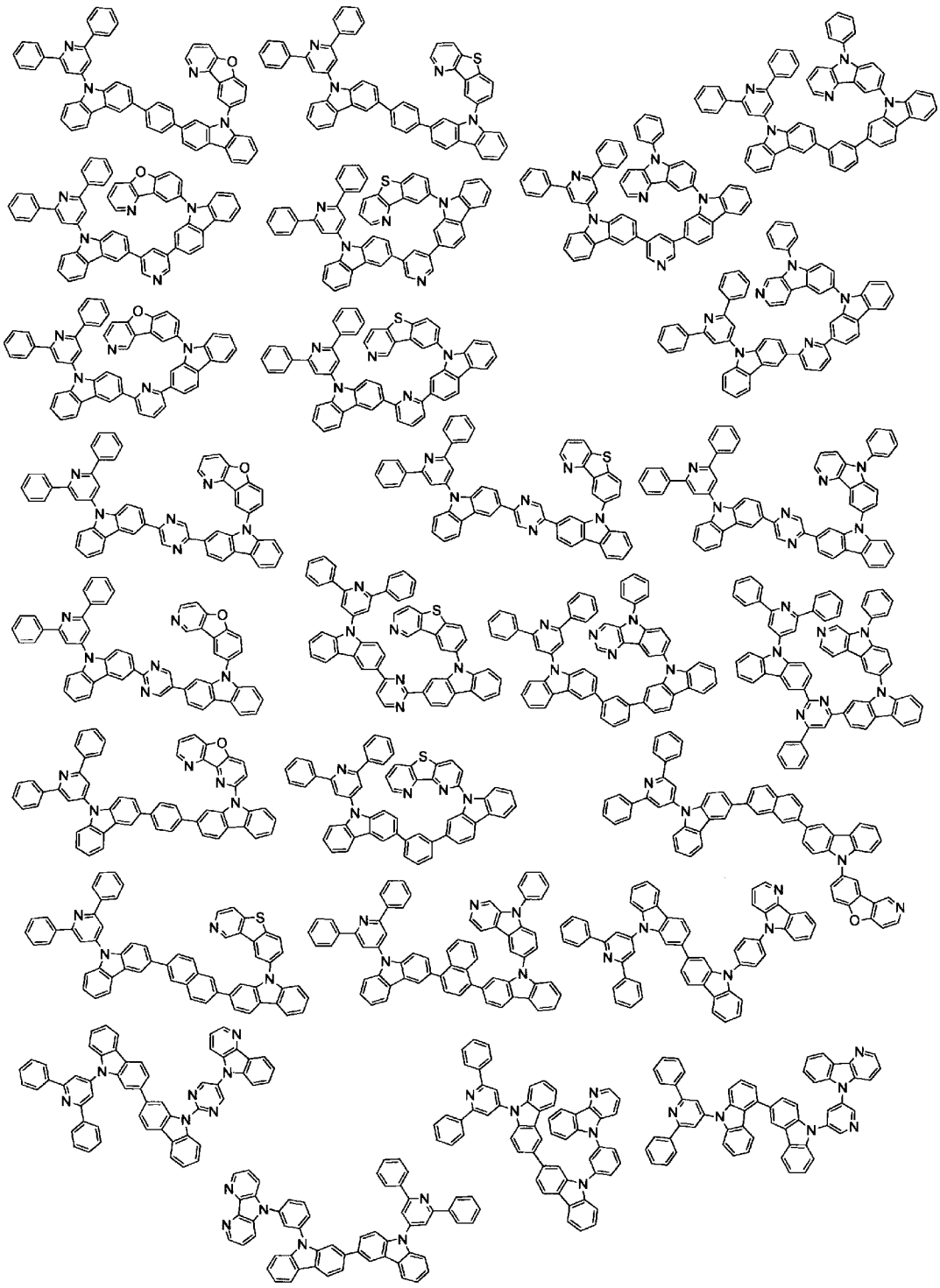
[化34]



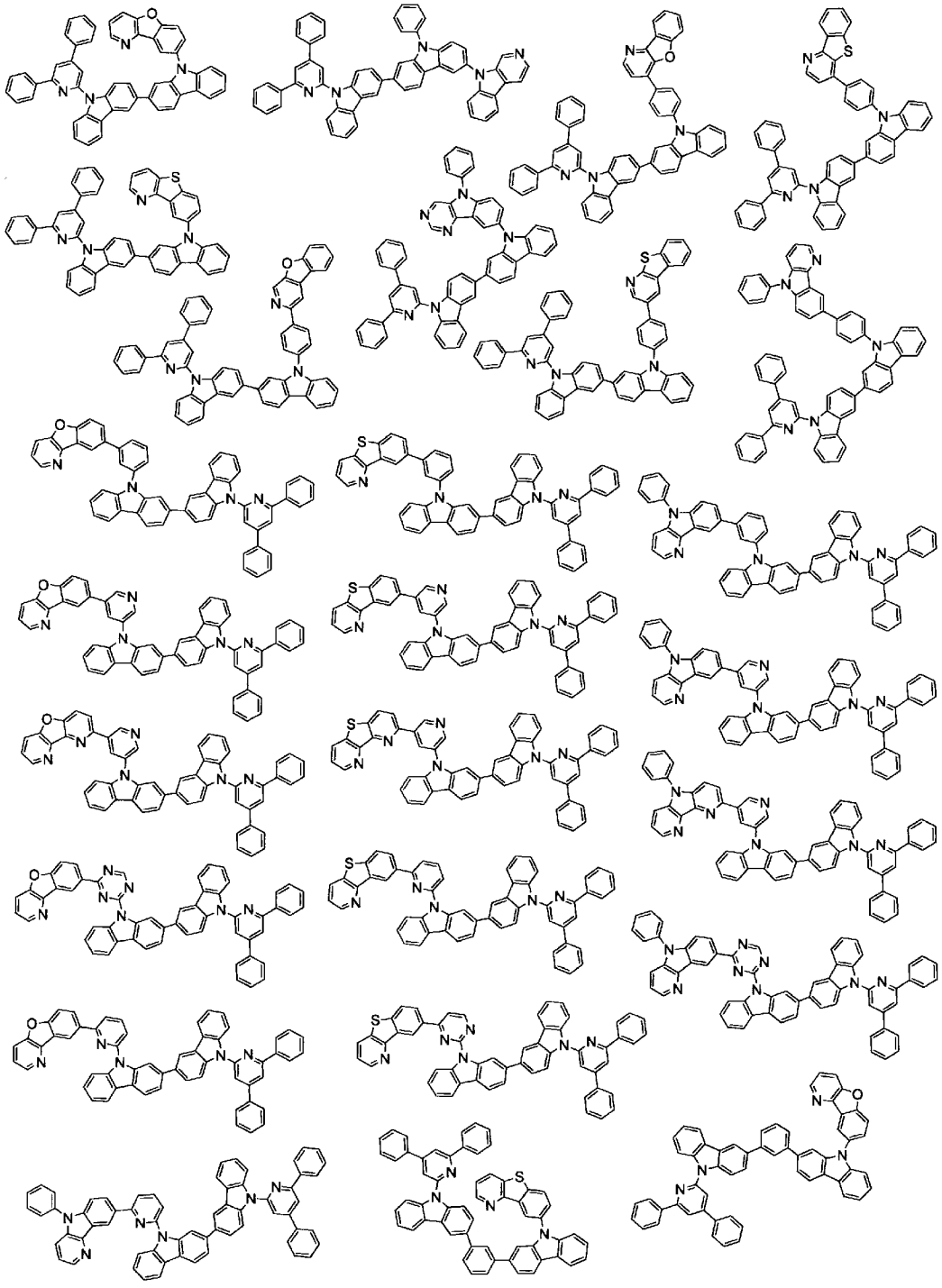
[化35]



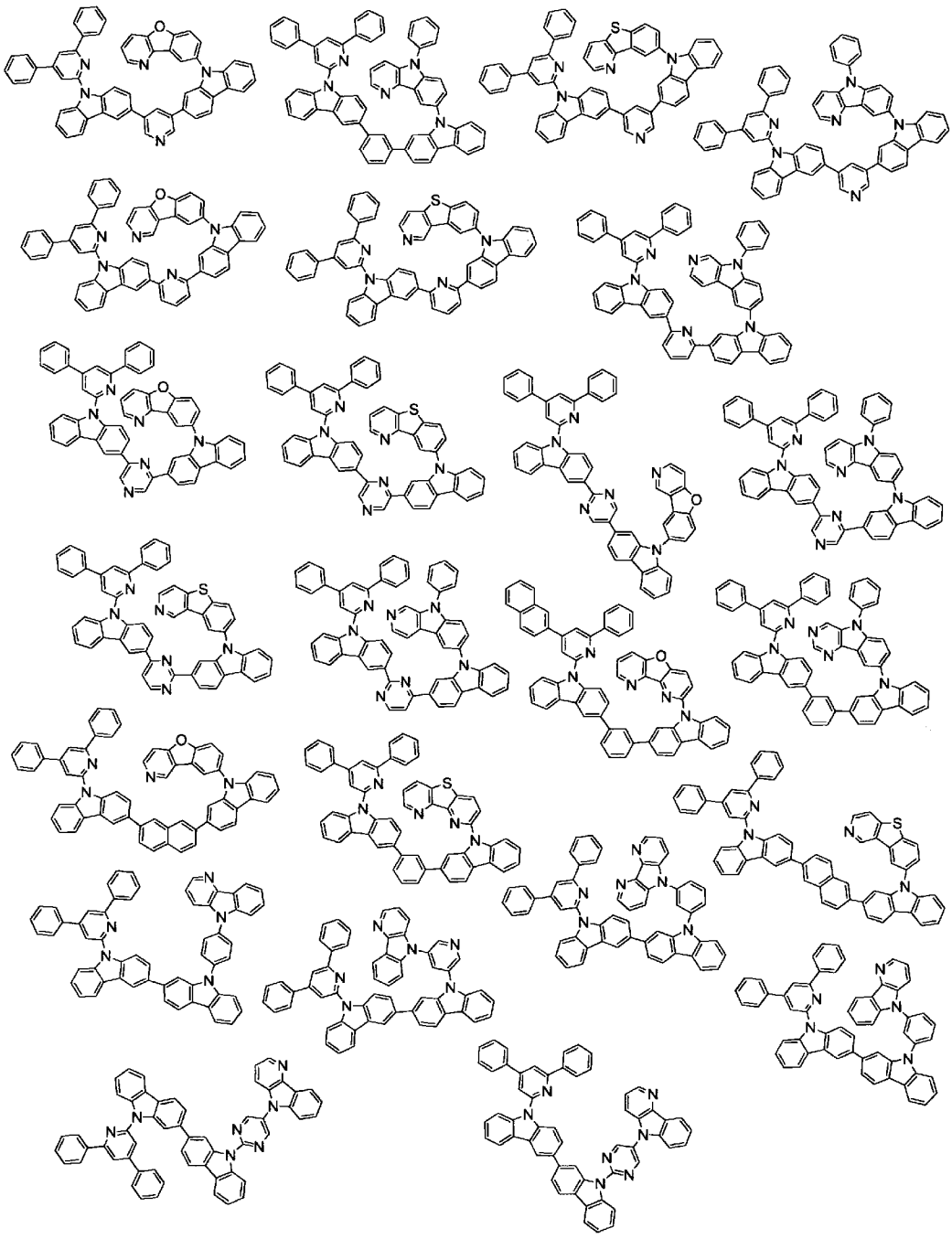
[化36]



[化37]



[化38]



[0033] 本発明の化合物は、後述する合成例に準じて製造することができる。

[0034] 本発明の化合物は、有機ＥＬ素子を構成する有機薄膜層の材料として好適に使用できる。特に、燐光発光する有機ＥＬ素子の発光層、発光層に隣接する層、例えば、正孔障壁層、電子障壁層、電子輸送層の材料等として好ましい。

[0035] 続いて、本発明の有機ＥＬ素子について説明する。

本発明の有機ＥＬ素子は、陽極と陰極の間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有する。そして、有機薄膜層の少なくとも一層が、本発明の有機ＥＬ素子用材料を含有する。

[0036] 図１は、本発明の有機ＥＬ素子の一実施形態の層構成を示す概略図である。

有機ＥＬ素子１は、基板１０上に、陽極２０、正孔輸送帯域３０、燐光発光層４０、電子輸送帯域５０及び陰極６０を、この順で積層した構成を有する。正孔輸送帯域３０は、正孔輸送層又は正孔注入層等を意味する。同様に、電子輸送帯域５０は、電子輸送層又は電子注入層等を意味する。これらは形成しなくともよいが、好ましくは1層以上形成する。この素子において有機薄膜層は、正孔輸送帯域３０に設けられる各有機層、燐光発光層４０及び電子輸送帯域５０に設けられる各有機層である。これら有機薄膜層のうち、少なくとも１層が本発明の有機ＥＬ素子用材料を含有する。これにより、有機ＥＬ素子の駆動電圧を低くできる。

尚、本発明の化合物（以下、本発明の有機ＥＬ素子用材料ということがある。）を含有する有機薄膜層に対するこの材料の含有量は、好ましくは１～１００重量％である。

[0037] 本発明の有機ＥＬ素子においては、燐光発光層４０が本発明の有機ＥＬ素子用材料を含有することが好ましく、特に、発光層のホスト材料として使用することが好ましい。本発明の材料は、三重項エネルギーが十分に大きいため、青色の燐光発光性ドーパント材料を使用しても、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発光層内に閉じ込めることができる。尚、青色発光層に限らず、より長波長の光（緑～赤色等）の発光層にも使用できる。

本発明では、素子の発光波長の極大値を、４３０ｎｍ以上７２０ｎｍ以下にすることができる。

[0038] 燐光発光層は、燐光発光性材料（燐光ドーパント）を含有する。燐光ド－

パントとしては、金属錯体化合物が挙げられ、好ましくはＩｒ，Ｐｔ，Ｏｓ，Ａｕ，Ｃｕ，Ｒｅ及びＲｕから選択される金属原子と、配位子とを有する化合物である。配位子は、オルトメタル結合を有すると好ましい。

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、燐光ドーパントは、Ｉｒ，Ｏｓ及びＰｔから選ばれる金属原子を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。ドーパントは、１種単独でも、２種以上の混合物でもよい。

[0039] 燐光発光材料の三重項エネルギーは、１．８ｅＶ以上２．９ｅＶ未満であることが好ましい。これにより、色純度の良い赤色～青色の発光が得られる。

[0040] 燐光発光層における燐光ドーパントの添加濃度は特に限定されるものではないが、好ましくは０．１～３０重量％（ｗｔ％）、より好ましくは０．１～２０重量％（ｗｔ％）である。

[0041] また、燐光発光層４０に隣接する層に本発明の材料を使用することも好ましい。例えば、図１の素子の正孔輸送帯域３０と燐光発光層４０の間に、本発明の材料を含有する層（陽極側隣接層）を形成した場合、該層は電子障壁層としての機能や励起子阻止層としての機能を有する。

一方、燐光発光層４０と電子輸送帯域５０の間に本発明の材料を含有する層（陰極側隣接層）を形成した場合、該層は正孔障壁層としての機能や励起子阻止層としての機能を有する。

尚、障壁層（阻止層）とは、キャリアの移動障壁、又は励起子の拡散障壁の機能を有する層である。発光層から正孔輸送帯域へ電子が漏れることを防ぐための有機層を主に電子障壁層と定義し、発光層から電子輸送帯域へ正孔が漏れることを防ぐための有機層を正孔障壁層と定義することがある。また、発光層で生成された三重項励起子が、三重項エネルギーが発光層よりも低い準位を有する周辺層へ拡散することを防止するための有機層を励起子阻止

層（トリプレット障壁層）と定義することがある。

また本発明の化合物を燐光発光層４０に隣接する層に用い，かつ更にその隣接する層に接合する他の有機薄膜層に用いることもできる。

[0042] さらに、発光層を２層以上形成する場合、発光層間に形成するスペース層としても好適である。

図２は、本発明の有機ＥＬ素子の他の実施形態の層構成を示す概略図である。

有機ＥＬ素子２は、燐光発光層と蛍光発光層を積層したハイブリッド型の有機ＥＬ素子の例である。

有機ＥＬ素子２は、燐光発光層４０と電子輸送帯域５０の間にスペース層４２と蛍光発光層４４を形成した他は、上記有機ＥＬ素子１と同様な構成を有する。燐光発光層４０及び蛍光発光層４４を積層した構成では、燐光発光層４０で形成された励起子を蛍光発光層４４に拡散させないため、蛍光発光層４４と燐光発光層４０の間にスペース層４２を設けることがある。本発明の材料は、三重項エネルギーが大きいため、スペース層として機能できる。

[0043] 有機ＥＬ素子２において、例えば、燐光発光層を黄色発光とし、蛍光発光層を青色発光層とすることにより、白色発光の有機ＥＬ素子が得られる。尚、本実施形態では燐光発光層及び蛍光発光層を１層ずつとしているが、これに限らず、それぞれ２層以上形成してもよく、照明や表示装置等、用途に合わせて適宜設定できる。例えば、白色発光素子とカラーフィルタを利用してフルカラー発光装置とする場合、演色性の観点から、赤、緑、青（ＲＧＢ）、赤、緑、青、黄（ＲＧＢＹ）等、複数の波長領域の発光を含んでいることが好ましい場合がある。

[0044] 上述した実施形態の他に、本発明の有機ＥＬ素子は、公知の様々な構成を採用できる。また、発光層の発光は、陽極側、陰極側、あるいは両側から取り出すことができる。

[0045] 本発明の有機ＥＬ素子では、上述した本発明の有機ＥＬ素子用材料を使用した層以外の構成については、特に限定されず、公知の材料等を使用できる

。以下、実施形態１の素子の層について簡単に説明するが、本発明の有機ＥＬ素子に適用される材料は以下に限定されない。

[0046] ［基板］

基板としてはガラス板、ポリマー板等を用いることができる。

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

[0047] ［陽極］

陽極は例えば導電性材料からなり、４ｅＶより大きな仕事関数を有する導電性材料が適している。

上記導電性材料としては、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等及びそれらの合金、ＩＴＯ基板、ＮＥＳＡ基板に使用される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が挙げられる。

陽極は、必要があれば２層以上の層構成により形成されていてもよい。

[0048] ［陰極］

陰極は例えば導電性材料からなり、４ｅＶより小さな仕事関数を有する導電性材料が適している。

上記導電性材料としては、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン、アルミニウム、フッ化リチウム等及びこれらの合金が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

また、上記合金としては、マグネシウム／銀、マグネシウム／インジウム、リチウム／アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、蒸着源の温度、雰囲気、真空度等により

制御され、適切な比率に選択される。

陰極は、必要があれば２層以上の層構成により形成されていてもよく、陰極は上記導電性材料を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。

[0049] 発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は１０％より大きくすることが好ましい。

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

[0050] [発光層]

本発明の有機ＥＬ素子層材料以外の材料で燐光発光層を形成する場合、燐光発光層の材料として公知の材料が使用できる。具体的には、特願２００５－５１７９３８号等を参照すればよい。

本発明の有機ＥＬ素子は、図２に示す素子のように蛍光発光層を有していてもよい。蛍光発光層としては、公知の材料が使用できる。

[0051] 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。

発光層は単層でもよく、また、積層構造でもよい。発光層を積層させると、発光層界面に電子と正孔を蓄積させることによって再結合領域を発光層界面に集中させることができる。これによって、量子効率を向上させる。

[0052] [正孔注入層及び正孔輸送層]

正孔注入・輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常５．６ｅＶ以下と小さい層である。

正孔注入・輸送層の材料としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば10^4～10^6Ｖ／ｃｍの電界印加時に、少なくとも10^{-4}ｃｍ^2／Ｖ・秒であれば好ましい。

[0053] 正孔注入・輸送層の材料としては、具体的には、トリアゾール誘導体（米国特許３，１１２，１９７号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許３，１８９，４４７号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭３７－１６０９６号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許３，６１５，４０２号明細書、同第３，８２０，９８９号明細書、同第３，５４２，５４４号明細書、特公昭４５－５５５号公報、同５１－１０９８３号公報、特開昭５１－９３２２４号公報、同５５－１７１０５号公報、同５６－４１４８号公報、同５５－１０８６６７号公報、同５５－１５６９５３号公報、同５６－３６６５６号公報等参照）、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体（米国特許第３，１８０，７２９号明細書、同第４，２７８，７４６号明細書、特開昭５５－８８０６４号公報、同５５－８８０６５号公報、同４９－１０５５３７号公報、同５５－５１０８６号公報、同５６－８００５１号公報、同５６－８８１４１号公報、同５７－４５５４５号公報、同５４－１１２６３７号公報、同５５－７４５４６号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第３，６１５，４０４号明細書、特公昭５１－１０１０５号公報、同４６－３７１２号公報、同４７－２５３３６号公報、同５４－１１９９２５号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第３，５６７，４５０号明細書、同第３，２４０，５９７号明細書、同第３，６５８，５２０号明細書、同第４，２３２，１０３号明細書、同第４，１７５，９６１号明細書、同第４，０１２，３７６号明細書、特公昭４９－３５７０２号公報、同３９－２７５７７号公報、特開昭５５－１４４２５０号公報、同５６－１１９１３２号公報、同５６－２２４３７号公報、西独特許第１，１１０，５１８号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第３，５２６，５０１号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第３，２５７，２０３号明細書等に開示のもの）、スチリルアントラセン誘

導体（特開昭５６－４６２３４号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭５４－１１０８３７号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第３，７１７，４６２号明細書、特開昭５４－５９１４３号公報、同５５－５２０６３号公報、同５５－５２０６４号公報、同５５－４６７６０号公報、同５７－１１３５０号公報、同５７－１４８７４９号公報、特開平２－３１１５９１号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭６１－２１０３６３号公報、同第６１－２２８４５１号公報、同６１－１４６４２号公報、同６１－７２２５５号公報、同６２－４７６４６号公報、同６２－３６６７４号公報、同６２－１０６５２号公報、同６２－３０２５５号公報、同６０－９３４５５号公報、同６０－９４４６２号公報、同６０－１７４７４９号公報、同６０－１７５０５２号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第４，９５０，９５０号明細書）、ポリシラン系（特開平２－２０４９９６号公報）、アニリン系共重合体（特開平２－２８２２６３号公報）等を挙げることができる。

また、ｐ型Ｓｉ、ｐ型ＳｉＣ等の無機化合物も正孔注入材料として使用することができる。

[0054] 正孔注入・輸送層の材料には架橋型材料を用いることができ、架橋型の正孔注入輸送層としては、例えば、Chem. Mater. 2008, 20, 413-422、Chem. Mater. 2011, 23(3), 658-681、WO2008108430、WO2009102027、WO2009123269、WO2010016555、WO2010018813等の架橋材を、熱、光等により不溶化した層が挙げられる。

[0055] ［電子注入層及び電子輸送層］

電子注入・輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きい層である。

有機ＥＬ素子は発光した光が電極（例えば陰極）により反射するため、直接陽極から取り出される発光と、電極による反射を経由して取り出される発光とが干渉することが知られている。この干渉効果を効率的に利用するため、電子注入・輸送層は数ｎｍ～数μｍの膜厚で適宜選ばれるが、特に膜厚が

厚いとき、電圧上昇を避けるために、10^4～10^6Ｖ／ｃｍの電界印加時に電子移動度が少なくとも10^{-5}ｃｍ^2／Ｖｓ以上であることが好ましい。

[0056] 電子注入・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員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ芳香族炭化水素環化合物、又は含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ縮合芳香族環化合物が好ましく、例えば、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ベンズイミダゾール環、フェナントロリン環、キナゾリン環等を骨格に含む化合物が挙げられる。

[0057] その他、ドナー性材料のドーピング（ｎ）、アクセプター材料のドーピング（ｐ）により、半導体性を備えた有機層を形成してもよい。Ｎドーピングの代表例は、電子輸送性材料にＬｉやＣｓ等の金属をドーピングさせるものであり、Ｐドーピングの代表例は、正孔輸送性材料にＦ４ＴＣＮＱ等のアクセプター材をドープするものである（例えば、特許第３６９５７１４号参照）。

[0058] 本発明においては、電子輸送層（電子注入層）を一層以上含み、電子輸送層の少なくとも一層が、本発明の化合物を含むことが好ましい。

これにより、駆動電圧の低い有機ＥＬ素子が実現できる。

また、電子輸送層（電子注入層）を二層以上含み、電子輸送層の少なくとも一層が本発明の化合物を含み、さらに、同一の又は他の電子輸送層が、上述した含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ芳香族炭化水素環化合物、又は含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ縮合芳香族環化合物を含むことが好ましい。これにより、電子注入が良好な有機ＥＬ素子が実現できるので、駆動電圧を低減することができる。

[0059] 本発明の有機ＥＬ素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれか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。

電子供与性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、及び希土類金属化合物などから選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

有機金属錯体としては、アルカリ金属を含む有機金属錯体、アルカリ土類金属を含む有機金属錯体、及び希土類金属を含む有機金属錯体などから選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

[0060] アルカリ金属としては、リチウム（Ｌｉ）（仕事関数：２．９３ｅＶ）、ナトリウム（Ｎａ）（仕事関数：２．３６ｅＶ）、カリウム（Ｋ）（仕事関数：２．２８ｅＶ）、ルビジウム（Ｒｂ）（仕事関数：２．１６ｅＶ）、セシウム（Ｃｓ）（仕事関数：１．９５ｅＶ）などが挙げられ、仕事関数が２．９ｅＶ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または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、カルシウム（Ｃａ）（仕事関数：２．９ｅＶ）、ストロンチウム（Ｓｒ）（仕事関数：２．０ｅＶ以上２．５ｅＶ以下）、バリウム（Ｂａ）（仕事関数：２．５２ｅＶ）などが挙げられ、仕事関数が２．９ｅＶ以下のものが特に好ましい。

希土類金属としては、スカンジウム（Ｓｃ）、イットリウム（Ｙ）、セリウム（Ｃｅ）、テルビウム（Ｔｂ）、イッテルビウム（Ｙｂ）などが挙げられ、仕事関数が２．９ｅＶ以下のものが特に好ましい。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機ＥＬ素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

[0061] アルカリ金属化合物としては、酸化リチウム（Li_2O）、酸化セシウム（Cs_2O）、酸化カリウム（K_2O）などのアルカリ酸化物、フッ化リチウム（ＬｉＦ）、フッ化ナトリウム（ＮａＦ）、フッ化セシウム（ＣｓＦ）、フッ化カリウム（ＫＦ）などのアルカリハロゲン化物などが挙げられ、フッ化リチウム（ＬｉＦ）、酸化リチウム（Li_2O）、フッ化ナトリウム（ＮａＦ）が好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、酸化バリウム（ＢａＯ）、酸化ストロンチウム（ＳｒＯ）、酸化カルシウム（ＣａＯ）及びこれらを混合したストロンチウム酸バリウム（$Ba_xSr_{1-x}O$）（０＜ｘ＜１）、カルシウム酸バリウム（$Ba_xCa_{1-x}O$）（０＜ｘ＜１）などが挙げられ、ＢａＯ、ＳｒＯ、ＣａＯが好ましい。

希土類金属化合物としては、フッ化イッテルビウム（YbF_3）、フッ化スカンジウム（ScF_3）、酸化スカンジウム（ScO_3）、酸化イットリウム（Y_2O_3）、酸化セリウム（Ce_2O_3）、フッ化ガドリニウム（GdF_3）、フッ化テルビウム（TbF_3）などが挙げられ、YbF_3、ScF_3、TbF_3が好ましい。

[0062] 有機金属錯体としては、上記の通り、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ージケトン類、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。

[0063] 電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の添加形態としては、界面領域に層状または島状に形成することが好ましい。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及び有機金属錯体の少なくともいずれかを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に電子供与性ドーパント及び有機金属錯体還元ドーパントの少なくともいずれかを分散する方法が好ましい。分散濃度は通常、モル比で有機物：電子供与性ドーパント及び／又は有機金属錯体＝１００

：１～１：１００であり、好ましくは５：１～１：５である。

[0064] 電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれか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、電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれか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以上１５ｎｍ以下で形成する。

[0065] 電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれか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及び有機金属錯体の少なくともいずれか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以上１ｎｍ以下で形成する。

[0066] また、本発明の有機ＥＬ素子における、主成分（発光材料又は電子注入材料）と、電子供与性ドーパント及び有機金属錯体の少なくともいずれかの割合としては、モル比で、主成分：電子供与性ドーパント及び／又は有機金属錯体＝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。

[0067] 本発明の有機ＥＬ素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピンコーティング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法等の公知の方法を適用することができる。

各層の膜厚は特に限定されるものではないが、適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても充分な発光輝度が得られない。通常の膜厚は５ｎｍ～１０μｍの範囲が適しているが、１０ｎｍ～０．２μｍの範囲がさらに好ましい。

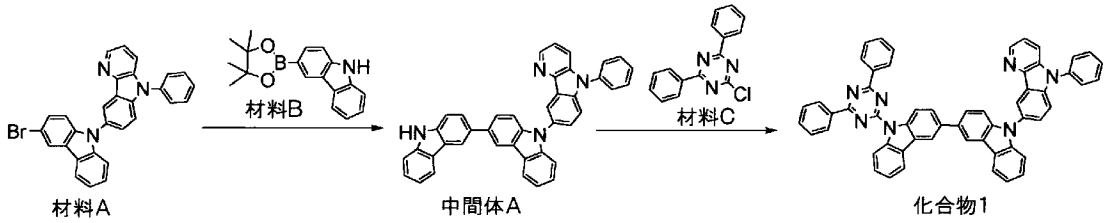
実施例

[0068] ［化合物の合成］

合成実施例１

下記の合成スキームにより化合物１を合成した。

[化39]



[0069] アルゴン雰囲気下，３つ口フラスコに材料Ａ　４．９ｇ（１０ｍｍｏｌ）、材料Ｂ　２．９ｇ（１０ｍｍｏｌ）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）４６０ｍｇ（０．４ｍｍｏｌ）、炭酸ナトリウム３．２ｇ（３０ｍｍｏｌ）、水１５ｍｌ、ジメトキシエタン６０ｍＬを入れ、２０時間加熱還流しながら撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、反応混合物に水を加え、室温にて１時間撹拌し、メタノールを加えた。固体を濾取し、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Ａを３．８ｇ（収率６６％）得た。

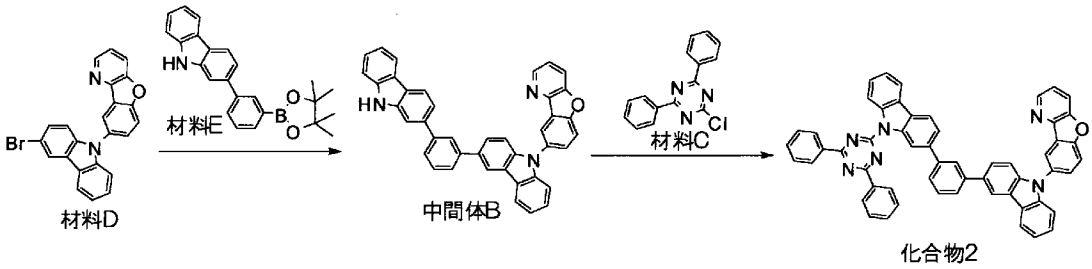
アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに中間体Ａを３．０ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、材料Ｃ　１．４ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１３７ｍｇ（０．１５０ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩８６ｍｇ（０．３ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム７９０ｍｇ（７．２８ｍｍｏｌ）を加えて１２時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物１を２．１ｇ（収率５０％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８０５であった。

[0070] 合成実施例２

下記の合成スキームにより化合物２を合成した。

[化40]



[0071] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｄ　４．１ｇ（１０ｍｍｏｌ）、材料Ｅ　３．７ｇ（１０ｍｍｏｌ）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）４６０ｍｇ（０．４ｍｍｏｌ）、炭酸ナトリウム３．２ｇ（３０ｍｍｏｌ）、水１５ｍｌ、ジメトキシエタン８０ｍＬを入れ、２０時間加熱還流しながら撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、反応混合物に水を加え、室温にて１時間撹拌し、メタノールを加えた。固体を濾取し、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Ｂを３．１ｇ（収率５４％）得た。

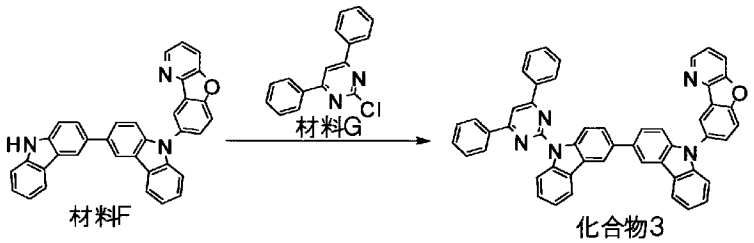
アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに中間体Ｂを３．０ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、材料Ｃ　１．４ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１３７ｍｇ（０．１５０ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩８６ｍｇ（０．３ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム７９０ｍｇ（７．２８ｍｍｏｌ）を加えて１２時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物２を２．０ｇ（収率４７％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８０６であった。

[0072] 合成実施例３

下記の合成スキームにより化合物３を合成した。

[化41]



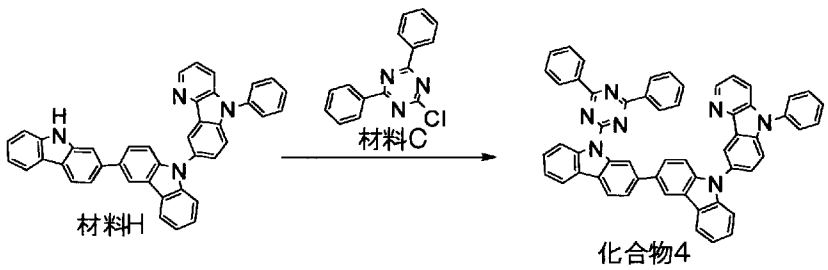
[0073] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｆ　３．０ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、材料Ｇ　１．６ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１６４ｍｇ（０．１８ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩１０３ｍｇ（０．３６ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム８１５ｍｇ（８．４８ｍｍｏｌ）を加えて４時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物３を１．４ｇ（収率３１％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ７２９であった。

[0074] 合成実施例４

下記の合成スキームにより化合物４を合成した。

[化42]



[0075] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｈを３．０ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、材料Ｃ　１．４ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１３７ｍｇ（０．１５ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩８６ｍｇ（０．３ｍｍｏｌ）、乾燥キシ

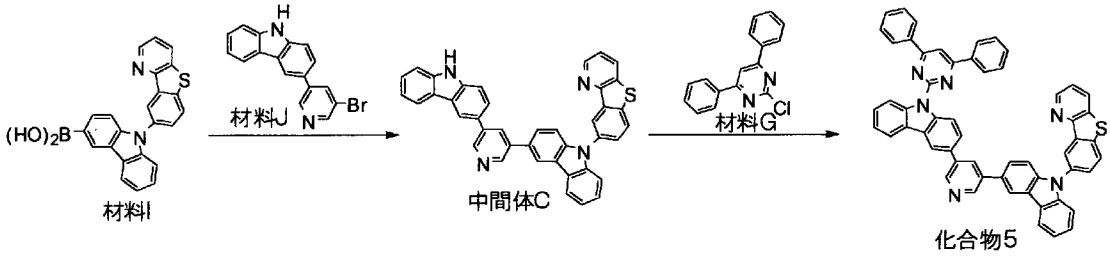
レン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム７９０ｍｇ（７．２８ｍｍｏｌ）を加えて１２時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物４を１．９ｇ（収率４５％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８０５であった。

[0076] 合成実施例５

下記の合成スキームにより化合物５を合成した。

[化43]



[0077] アルゴン雰囲気下、材料Ｉを３．９ｇ（１０ｍｍｏｌ）、材料Ｊを３．２ｇ（１０ｍｍｏｌ）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）４６２ｍｇ（０．４ｍｍｏｌ）、トルエン８０ｍｌ、ジメトキシエタン４０ｍｌ、２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液　１５．１ｇを加え、８５℃にて、１２時間撹拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え１時間撹拌した。濾過後、ジクロロメタンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、溶媒を減圧下留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製及び再結晶化し、中間体Ｃを３．２ｇ（収率５４％）得た。

アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに中間体Ｃ　３．０ｇ（５．１ｍｍｏｌ）、材料Ｇ　１．４ｇ（５．１ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１３７ｍｇ（０．１５ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩８６ｍｇ（０．３０ｍｍｏｌ）、乾燥

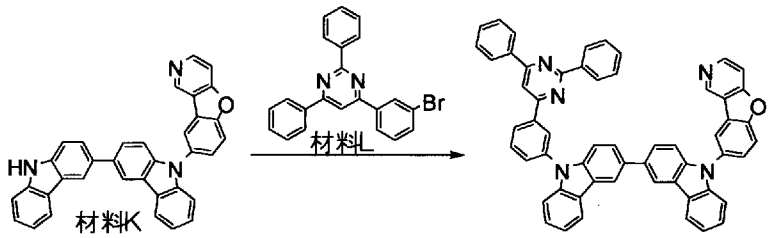
キシレン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム６８０ｍｇ（７．１ｍｍｏｌ）を加えて４時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物５を１．６ｇ（収率３８％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８２２であった。

[0078] 合成実施例６

下記の合成スキームにより化合物６を合成した。

[化44]



化合物6

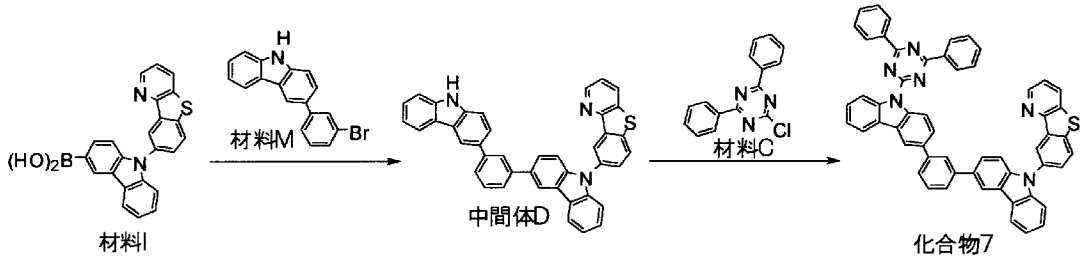
[0079] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｋ　３．０ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、材料Ｌ　２．４ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）３３０ｍｇ（０．３６ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフロロホウ酸塩２１２ｍｇ（０．７２ｍｍｏｌ）、ｔ－ブトキシナトリウム８０６ｍｇ（８．４ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン７０ｍＬを加えて１６時間撹拌しながら加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷し、セライト［Ｃｅｌｉｔｅ（登録商標）、製造元：Ｃｅｌｉｔｅ　Ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎ］で濾過後、減圧下溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製して、再結晶操作を施し、化合物６を１．８ｇ（収率３７％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８０５であった。

[0080] 合成実施例７

下記の合成スキームにより化合物７を合成した。

[化45]



[0081] アルゴン雰囲気下、材料Ｉを３．９ｇ（１０ｍｍｏｌ）、材料Ｍを３．２ｇ（１０ｍｍｏｌ）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）４６２ｍｇ（０．４ｍｍｏｌ）、トルエン８０ｍｌ、ジメトキシエタン４０ｍｌ、２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液　１５．１ｇを加え、８５℃にて、１２時間撹拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え１時間撹拌した。濾過後、ジクロロメタンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製及び再結晶化し、中間体Ｄを３．０ｇ（収率５１％）得た。

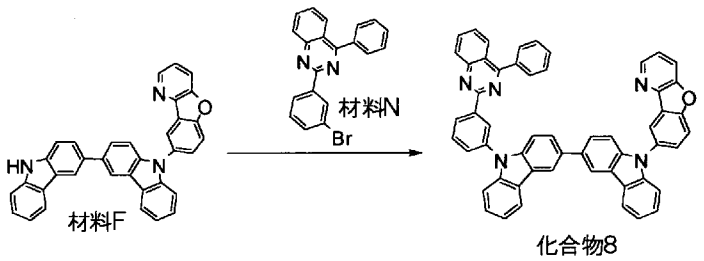
アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに中間体Ｄを２．９５ｇ（５．０ｍｍｏｌ）、材料Ｃ　１．３５ｇ（５．２ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１３７ｍｇ（０．１５０ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩８６ｍｇ（０．３ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム７６０ｍｇ（７．０ｍｍｏｌ）を加えて１２時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物７を１．８ｇ（収率４４％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８２２であった。

[0082] 合成実施例８

下記の合成スキームにより化合物８を合成した。

[化46]



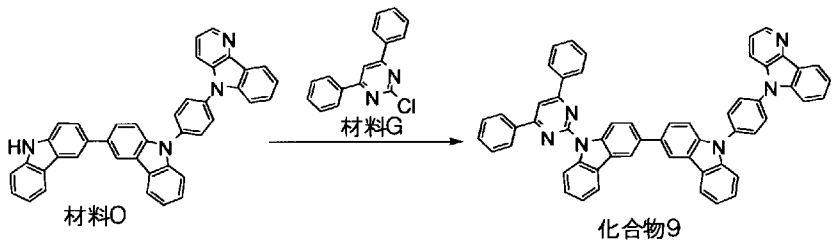
[0083] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｆ ３．０ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、材料Ｎ ２．１６ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）３３０ｍｇ（０．３６ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフロロホウ酸塩２１２ｍｇ（０．７２ｍｍｏｌ）、ｔ－ブトキシナトリウム８０６ｍｇ（８．４ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン７０ｍＬを加えて１４時間撹拌しながら加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷し、セライトで濾過後、減圧下溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製して、再結晶操作を施し、化合物８を２．１ｇ（収率４５％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ７７９であった。

[0084] 合成実施例９

下記の合成スキームにより化合物９を合成した。

[化47]



[0085] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｏ ３．４ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、材料Ｇ １．６ｇ（６．０ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）１６４ｍｇ（０．１８ｍｍｏｌ）、トリｔ－ブチルホスフィンテトラフルオロホウ酸塩１０３ｍｇ（０．３６ｍｍｏｌ）、乾燥

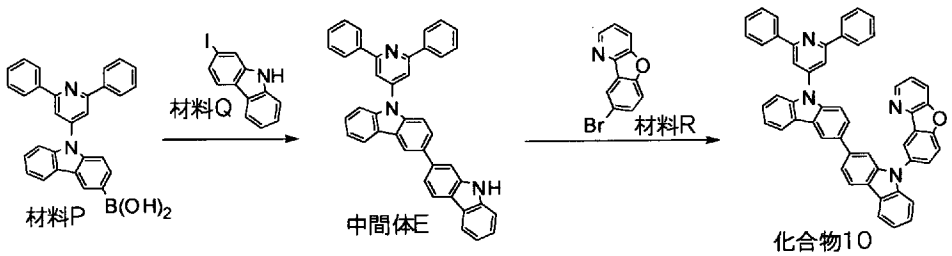
キシレン５０ｍＬを加えて加熱還流しながら撹拌し、更にｔ－ブトキシナトリウム８１５ｍｇ（８．４８ｍｍｏｌ）を加えて６時間撹拌した。反応混合物を室温まで放冷し、メタノールを加えて析出物を濾取した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製、及び再結晶操作をして化合物９を１．９ｇ（収率３９％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ８０４であった。

[0086] 合成実施例１０

下記の合成スキームにより化合物１０を合成した。

[化48]



[0087] アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに材料Ｐ　３．０ｇ（６．８ｍｍｏｌ）、材料Ｑ　２．０ｇ（６．８ｍｍｏｌ）、［１、１’－ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン］ジクロロパラジウム（ＩＩ）１１１ｍｇ（０．１３６ｍｍｏｌ）、炭酸ナトリウム２．１６ｇ（２０．４ｍｍｏｌ）、水１０ｍｌ、乾燥トルエン８０ｍＬを加えて１８時間撹拌しながら加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷し、セライトで濾過後、減圧下溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製して、再結晶操作をして、中間体Ｅを２．５ｇ（収率６６％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ５６１であった。

アルゴン雰囲気下、３つ口フラスコに中間体Ｅ　２．２ｇ（４．０ｍｍｏｌ）、材料Ｒ　９９０ｍｇ（４．０ｍｍｏｌ）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（０）３４０ｍｇ（０．３７２ｍｍｏｌ）、トリｔ－

ブチルホスフィンテトラフロロホウ酸塩２１８ｍｇ（０．７５ｍｍｏｌ）、ｔ－ブトキシナトリウム８３４ｍｇ（８．６８ｍｍｏｌ）、乾燥キシレン５０ｍｌを加えて２０時間撹拌しながら加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷し、セライトで濾過後、減圧下溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、再結晶により精製し、化合物１０を１．５ｇ（収率５１％）得た。

得られた固体についてＦＤ－マススペクトルで分子量を測定したところ７２８であった。

[0088] 上記化合物１～１０の三重項エネルギーを測定した。三重項エネルギーは、Ｆ－４５００（日立社製）を用いて測定した。三重項エネルギーの換算式は以下の通りである。

換算式：三重項エネルギー（ｅＶ）＝１２３９．８５／λ_{ph}

式中、「λ_{ph}：単位：ｎｍ」とは、縦軸にリン光強度、横軸に波長をとって、リン光スペクトルを表したときに、リン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を意味する。

各化合物を溶媒に溶解（試料１０（μｍｏｌ／リットル）、ＥＰＡ（ジエチルエーテル：イソペンタン：エタノール＝５：５：５（容積比）、各溶媒は分光用グレード）し、リン光測定用試料とした。石英セルへ入れたリン光測定用試料を７７（Ｋ）に冷却し、励起光をリン光測定用試料に照射し、波長を変えながらリン光強度を測定した。リン光スペクトルは、縦軸をリン光強度、横軸を波長とした。

このリン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、その接線と横軸との交点の波長値λ_{ph}（ｎｍ）を求めた。

燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線は以下のように引く。燐光スペクトルの短波長側から、スペクトルの極大値のうち、最も短波長側の極大値までスペクトル曲線上を移動する際に、長波長側に向けて曲線上の各点における接線を考える。この接線は、曲線が立ち上がるにつれ（つまり縦軸が増加するにつれ）、傾きが増加する。この傾きの値が極大値をとる

点において引いた接線を、当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とする。

尚、スペクトルの最大ピーク強度の１０％以下のピーク強度をもつ極大点は、上述の最も短波長側の極大値には含めず、最も短波長側の極大値に最も近い、傾きの値が極大値をとる点において引いた接線を当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とする。

化合物１～１０及び燐光発光材料である後述の材料４、材料６の三重項エネルギーを表１に示す。

[0089] [表1]

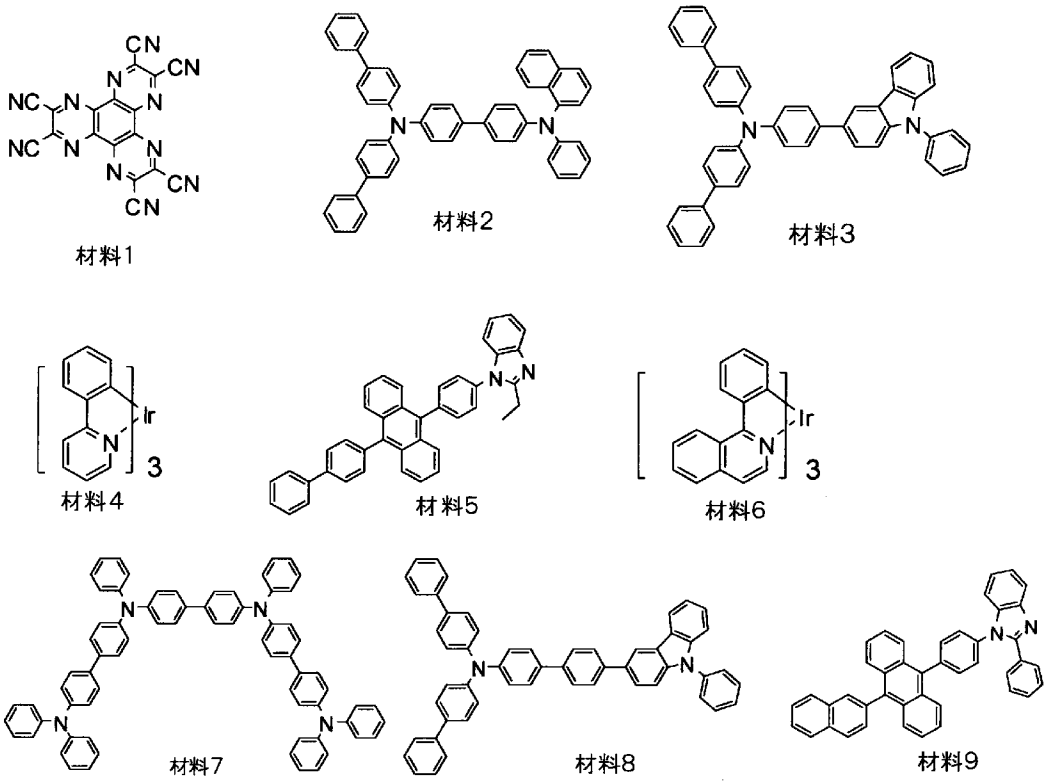
	三重項エネルギー（ｅＶ）
化合物１	２．９
化合物２	２．８
化合物３	２．９
化合物４	２．８
化合物５	２．８
化合物６	２．９
化合物７	２．９
化合物８	２．６
化合物９	２．８
化合物１０	２．８
材料４	２．６
材料６	２．１

[0090] [有機ＥＬ素子の作製]

上述の合成実施例で得た化合物を使用して、有機ＥＬ素子を作製した。尚

、下記例で使用した材料を以下に示す。

[化49]



[0091] 実施例１

２５ｍｍ×７５ｍｍ×１．１ｍｍ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の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。ＩＴＯ膜厚は７０ｎｍとした。

洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、ガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして、材料１を厚さ５ｎｍで蒸着し、正孔注入層を得た。次いで、この膜上に、材料２を厚さ６５ｎｍで蒸着し、第１の正孔輸送層を得た。次いで、この膜上に、材料３を厚さ１０ｎｍで蒸着し、第２の正孔輸送層を得た。

正孔輸送層上に、燐光ホスト材料として合成実施例１で得た化合物１と燐光発光材料である材料４（フェイシャル体）を厚さ２５ｎｍで共蒸着し、燐

光発光層を得た。燐光発光層内における化合物１の濃度は９０質量%、材料４の濃度は１０質量%であった。

続いて、この燐光発光層上に、材料５を厚さ３５ｎｍで蒸着し、電子輸送層を得た。さらに、厚さ１ｎｍのＬｉＦ、厚さ８０ｎｍの金属Ａｌを順次積層し、陰極を得た。尚、電子注入性電極であるＬｉＦについては、０．１Å／ｍｉｎの速度で形成し、有機ＥＬ素子を作製した。

[0092] ［有機ＥＬ素子の発光性能評価］

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、電流密度を測定し、電流密度１０ｍＡ／ｃｍ^{2}における電圧及び発光効率（外部量子効率）を求めた。評価結果を表２に示す。

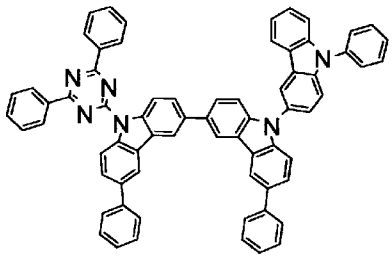
[0093] 実施例２～８

燐光ホスト材料として化合物１の代わりに表２に示す化合物を用いた以外は、実施例１と同様にして有機ＥＬ素子を作製し、評価した。結果を表２に示す。

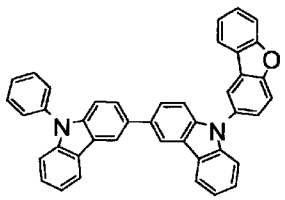
[0094] 比較例１、２

燐光ホスト材料として化合物１の代わりに、それぞれ表２に示す下記比較化合物１又は２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、評価した。結果を表２に示す。

[化50]



比較化合物1



比較化合物2

[0095]

[表2]

	発光層 ホスト材料	電圧 (V)	外部量子 効率(%)
実施例1	化合物1	3.2	18.7
実施例2	化合物2	3.3	17.8
実施例3	化合物3	3.1	19.8
実施例4	化合物4	3.0	17.3
実施例5	化合物5	3.0	17.2
実施例6	化合物6	3.3	17.5
実施例7	化合物7	3.4	16.8
実施例8	化合物9	3.3	18.2
比較例1	比較化合物1	3.9	15.1
比較例2	比較化合物2	4.0	17.2

[0096] 実施例９

２５ｍｍ×７５ｍｍ×１．１ｍｍ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の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。ＩＴＯ膜厚は１３０ｎｍとした。

洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして、材料１を厚さ５ｎｍで蒸着し、正孔注入層を得た。次いで、この膜上に、材料７を厚さ５０ｎｍで蒸着し、第１の正孔輸送層を得た。次いで、この膜上に、材料８を厚さ６０ｎｍで蒸着し、第２の正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、燐光ホスト材料として合成実施例４で得た化合物４と燐光発光材料である材料６（フェイシャル体）を厚さ４５ｎｍで共蒸着し

、燐光発光層を得た。燐光発光層内における化合物４の濃度は９２質量%、材料６の濃度は８質量%であった。

続いて、この燐光発光層上に、材料９を厚さ３０ｎｍで蒸着し、電子輸送層を得た。さらに、厚さ１ｎｍのＬｉＦ、厚さ８０ｎｍの金属Ａｌを順次積層し、陰極を得た。尚、電子注入性電極であるＬｉＦについては、０．１Å／ｍｉｎの速度で形成し、有機ＥＬ素子を作製した。

[0097] ［有機ＥＬ素子の発光性能評価］

作製した有機ＥＬ素子を直流電流駆動により輝度２０００ｃｄ/m^2で発光させ、電圧及び発光効率（ｃｄ/Ａ）を求めた。結果を表３に示す。

[0098] 実施例１０、１１

燐光ホスト材料として、化合物４の代わりに表３に示す化合物を用いた以外は、実施例９と同様にして有機ＥＬ素子を作製し、評価した。結果を表３に示す。

[0099] 比較例３、４

燐光ホスト材料として、化合物４の代わりに表３に示す化合物を用いた以外は、実施例９と同様にして有機ＥＬ素子を作製し、評価した。結果を表３に示す。

[0100] [表3]

	発光層 ホスト材料	発光層 発光材料	電圧 (V)	発光効率 (cd/A)
実施例 9	化合物 4	材料 6	3.4	10
実施例 10	化合物 8	材料 6	3.2	12
実施例 11	化合物 10	材料 6	3.2	11
比較例 3	比較化合物 1	材料 6	4.0	7.8
比較例 4	比較化合物 2	材料 6	4.2	5.6

[0101] 実施例の結果から、本発明の化合物を発光層に用いた場合、比較例より、

低電圧であり高効率な素子が得られることが確認できた。

産業上の利用可能性

[0102] 本発明の化合物は、有機ＥＬ素子、有機ＥＬディスプレイ、照明、有機半導体、有機太陽電池等に利用できる。

本発明の有機ＥＬ素子は、壁掛けテレビのフラットパネルディスプレイ等の平面発光体、複写機、プリンター、液晶ディスプレイのバックライト又は計器類等の光源、表示板、標識灯等に利用できる。

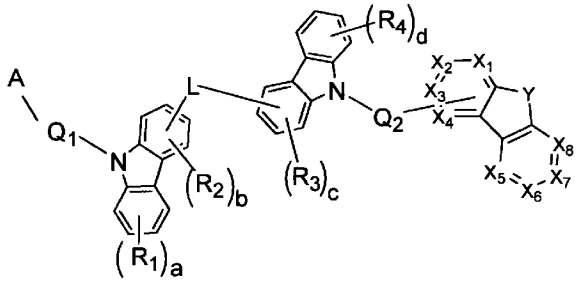
[0103] 上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

この明細書に記載の文献及び本願のパリ優先の基礎となる日本出願明細書の内容を全てここに援用する。

請求の範囲

［請求項1］ 下記式（１）で表される化合物。

［化51］



（１）

［式（１）中、

Ｌ、Ｑ$_1$及びＱ$_2$は、それぞれ単結合又は連結基を表す。

Ａは置換若しくは無置換の環形成原子数５～１０の含窒素ヘテロ環基を表す。

Ｘ$_1$～Ｘ$_8$は、それぞれ、Ｑ$_2$に結合する炭素原子、ＣＨ又はＮを表す。但し、Ｘ$_1$～Ｘ$_8$の少なくとも１つはＮである。

ＹはＯ、Ｓ、Ｑ$_2$に結合する窒素原子、又はＮＲ$_5$を表す。

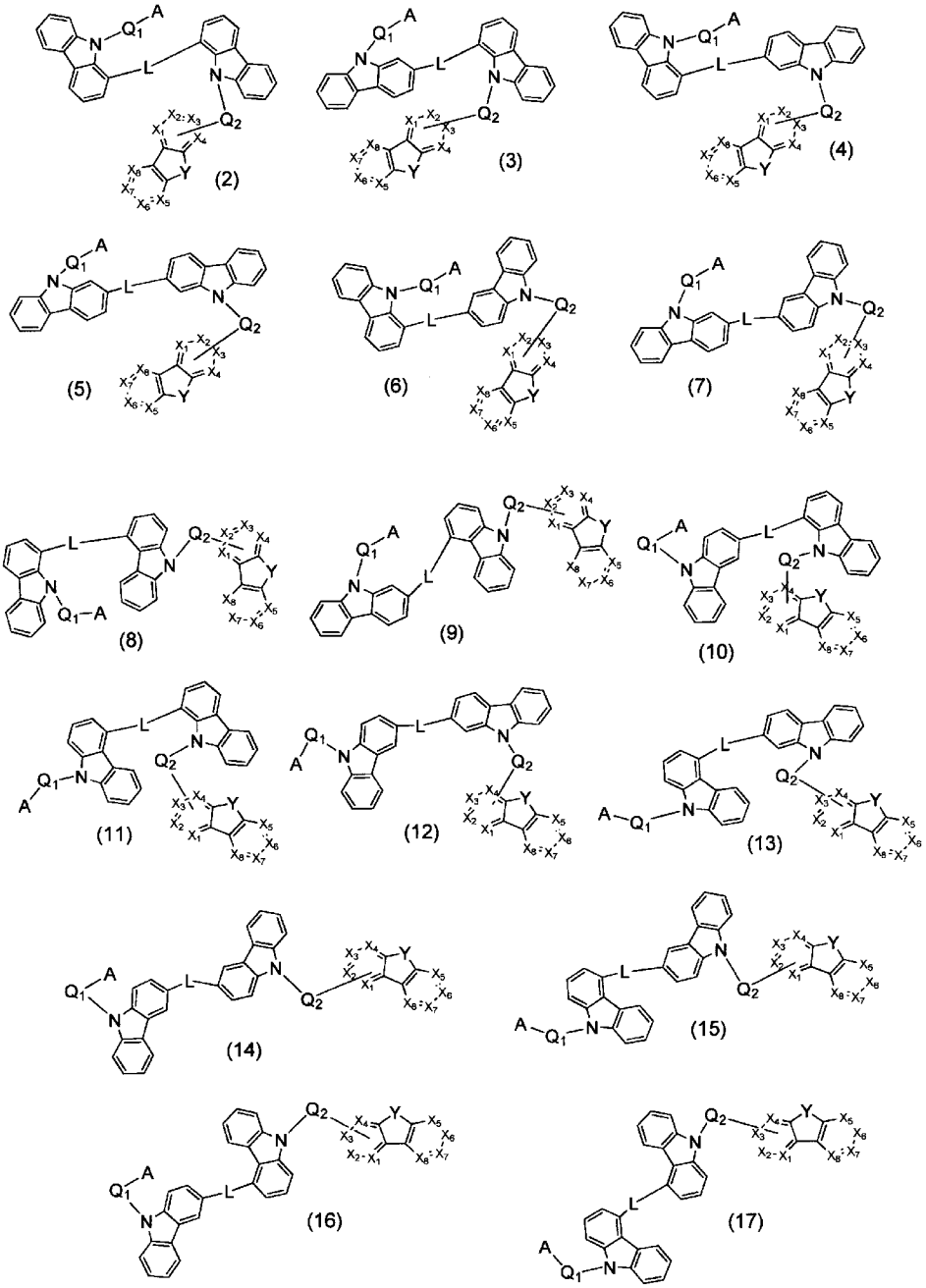
Ｒ$_1$～Ｒ$_5$は、それぞれ、置換若しくは無置換の環形成炭素数６～１８のアリール基、置換若しくは無置換の環形成原子数５～１８のヘテロアリール基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のアルコキシ基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のハロアルキル基、置換若しくは無置換の炭素数１～２０のハロアルコキシ基、又はシアノ基を表す。

ａ及びｄはそれぞれ０～４の整数を表し、ｂ及びｃはそれぞれ０～３の整数を表す。ａが２以上である場合、Ｒ$_1$はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｂが２以上である場合、Ｒ$_2$はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｃが２以上である場合、Ｒ$_3$はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。ｄが２以上である場合、Ｒ$_4$はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。］

［請求項2］ 前記式（１）のａ～ｄが０である請求項１に記載の化合物。

[請求項3] 下記式（２）～（１７）のいずれかで表される化合物である請求項１に記載の化合物。

[化52]



[式（２）～（１７）中、Ａ、Q_1、Q_2、Ｌ、X_1～X_8及びＹは、それぞれ前記式（１）のＡ、Q_1、Q_2、Ｌ、X_1～X_8及びＹと同様である。]

[請求項4] 前記Ａが、置換若しくは無置換のピリジン環、置換若しくは無置換

のピリミジン環、置換若しくは無置換のトリアジン環、置換若しくは無置換のピラジン環又は置換若しくは無置換のキナゾリン環を有する基である請求項１～３のいずれかに記載の化合物。

[請求項5] 陰極と陽極の間に発光層を含む１層以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも１層が請求項１～４のいずれかに記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項6] 前記有機薄膜層が、一層以上の発光層を含み、

前記発光層の少なくとも一層が、請求項１～４のいずれかに記載の化合物と燐光発光材料とを含む請求項５に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項7] 前記燐光発光材料の三重項エネルギーが、１．８ｅＶ以上２．９ｅＶ未満である請求項６に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項8] 前記燐光発光材料が金属錯体を含有し、

前記金属錯体が、Ｉｒ、Ｐｔ、Ｏｓ、Ａｕ、Ｃｕ、Ｒｅ及びＲｕから選択される金属原子と配位子とを有する請求項６に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項9] 前記配位子が、前記金属原子とオルトメタル結合を有する請求項８に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

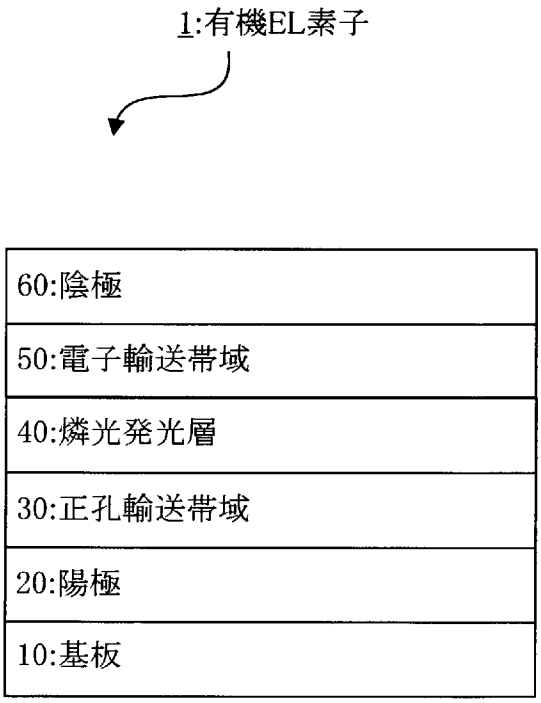
[請求項10] 発光波長の極大値が、４３０ｎｍ以上７２０ｎｍ以下である請求項５～９のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項11] 前記有機薄膜層が、発光層と陰極との間に位置する電子輸送層を一層以上含み、前記電子輸送層の少なくとも一層が、請求項１～４のいずれかに記載の化合物を含む請求項５～１０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。

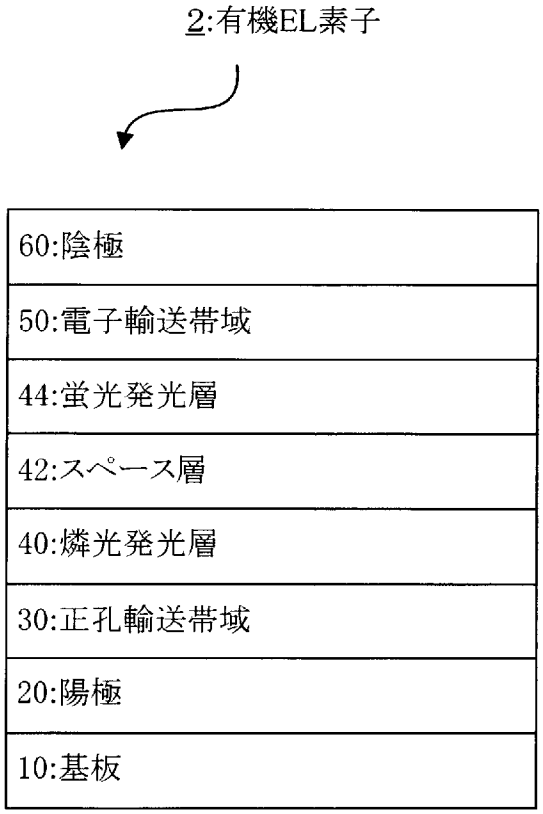
[請求項12] 前記有機薄膜層が、発光層と陰極との間に位置する電子輸送層を二層以上含み、前記電子輸送層の少なくとも一層が請求項１～４のいずれかに記載の化合物を含み、さらに、同一の又は他の電子輸送層が、含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ芳香族炭化水素環化

合物、又は含窒素６員環若しくは５員環骨格を有するヘテロ縮合芳香族環化合物を含む請求項１１に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]


1:有機EL素子
60:陰極
50:電子輸送帯域
40:燐光発光層
30:正孔輸送帯域
20:陽極
10:基板

[図2]


2:有機EL素子
60:陰極
50:電子輸送帯域
44:蛍光発光層
42:スペース層
40:燐光発光層
30:正孔輸送帯域
20:陽極
10:基板

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2012/008442

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C07D471/04(2006.01)i, *C07D491/048*(2006.01)i, *C07D495/04*(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)
C07D471/04, C07D491/048, C07D495/04, 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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAplus(STN), 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	JP 2011-84531 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 28 April 2011 (28.04.2011), claims; compound 38 (Family: none)	1-12
X	WO 2011/137072 A1 (Universal Display Corp.), 03 November 2011 (03.11.2011), claims; paragraph [0062]; pages 23 to 26 & US 2011/0260138 A1 & CN 102869659 A	1-12
P,A	WO 2012/108389 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 August 2012 (16.08.2012), & US 2012/0223295 A1	1-12

☒ 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 01 March, 2013 (01.03.13)	Date of mailing of the international search report 12 March, 2013 (12.03.13)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2009)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2012/008442

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,A	WO 2012/023947 A1 (Universal Display Corp.), 23 February 2012 (23.02.2012), (Family: none)	1-12

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１２／００８４４２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07D471/04(2006.01)i, C07D491/048(2006.01)i, C07D495/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07D471/04, C07D491/048, C07D495/04, C09K11/06, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１３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(STN), 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	JP 2011-84531 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2011.04.28, 特許請求の範囲、化合物38等（ファミリーなし）	1-12
X	WO 2011/137072 A1 (Universal Display Corporation) 2011.11.03, CLAIMS、[0062]、p.23-26等 & US 2011/0260138 A1 & CN102869659 A	1-12
PA	WO 2012/108389 A1 (出光興産株式会社) 2012.08.16, & US 2012/0223295 A1	1-12

☑　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	国際調査報告の発送日
０１．０３．２０１３	１２．０３．２０１３

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｐ　９１５９
冨永　保
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４９２

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
PA	WO 2012/023947 A1 (Universal Display Corporation) 2012.02.23, (ファミリーなし)	1-12