

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7039412号
(P7039412)

(45)発行日 令和4年3月22日(2022.3.22)

(24)登録日 令和4年3月11日(2022.3.11)

(51)国際特許分類

F I

C 0 7 D 491/147 (2006.01)

C 0 7 D 491/147

C S P

C 0 9 K 11/06 (2006.01)

C 0 9 K 11/06

6 9 0

H 0 1 L 51/50 (2006.01)

H 0 5 B 33/14

B

H 0 5 B 33/22

B

請求項の数 12 (全61頁)

(21)出願番号	特願2018-139292(P2018-139292)	(73)特許権者	000005315 保土谷化学工業株式会社 東京都中央区八重洲二丁目4番1号
(22)出願日	平成30年7月25日(2018.7.25)	(74)代理人	110003339 特許業務法人南青山国際特許事務所
(65)公開番号	特開2020-15682(P2020-15682A)	(74)代理人	100104215 弁理士 大森 純一
(43)公開日	令和2年1月30日(2020.1.30)	(74)代理人	100196575 弁理士 高橋 満
審査請求日	令和3年5月17日(2021.5.17)	(74)代理人	100168181 弁理士 中村 哲平
		(74)代理人	100117330 弁理士 折居 章
		(74)代理人	100160989 弁理士 関根 正好

最終頁に続く

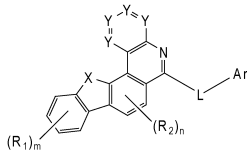
(54)【発明の名称】 アザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物およびその化合物を有する有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(A-1)で表される、アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

【化1】



(A-1)

(式中、Yは相互に同一でも異なっていてもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、またはトリフェニルシリル基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数5~10のシクロアルキル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数2~6の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい

炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を有する炭素原子、または窒素原子を表し、
L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、ま
たは置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、

Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族
複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R₁ および R₂ は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原
子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換
もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換も
しくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状も
しくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアル
キル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケ
ニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキ
ルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキ
シ基を表し、

X は酸素原子、硫黄原子を表し、

m は 0 ~ 4 の整数を表し、n は 0 ~ 2 の整数を表す。

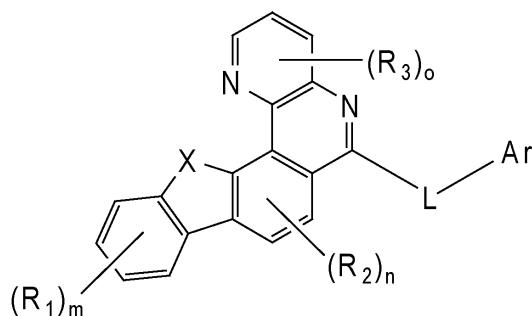
ただし、Y の内、少なくとも 1 カ所以上を窒素原子とし、

m または n が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R₁ または R₂
は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合
、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫
黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

【請求項 2】

下記一般式 (A - 2) で表される、アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

【化 2】



(A - 2)

(式中、L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素
環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、

Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族
複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R₁、R₂ および R₃ は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フ
ッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基
、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換
もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖
状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロ
アルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアル
ケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキ
ルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキ
シ基を表し、

X は酸素原子、硫黄原子を表し、

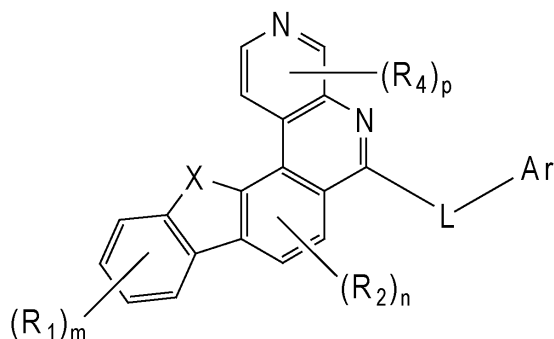
mは0～4の整数を表し、nは0～2の整数を表し、oは0～3の整数を表す。

m、nまたはoが2以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合するR₁、R₂またはR₃は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。

【請求項3】

下記一般式(A-3)で表される、アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

【化3】



10

(A-3)

20

(式中、Lは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の2価基を表し、

Arは水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R₁、R₂およびR₄は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数1～6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数5～10のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数2～6の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数1～6の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数5～10のシクロアルキルオキシ基を表し、

30

Xは酸素原子、硫黄原子を表し、

mは0～4の整数を表し、nは0～2の整数を表し、pは0～3の整数を表す。

m、nまたはpが2以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合するR₁、R₂またはR₄は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。

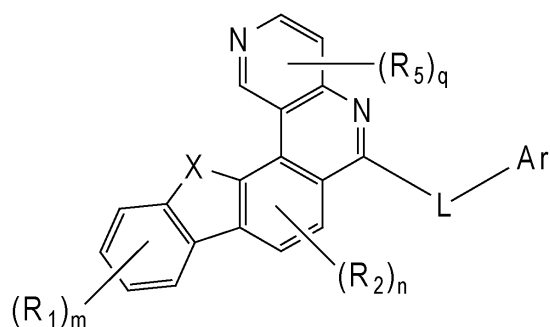
【請求項4】

40

下記一般式(A-4)で表される、アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

50

【化4】



10

(A - 4)

(式中、Lは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の2価基を表し、

Arは水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R₁、R₂およびR₅は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数1～6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数5～10のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数2～6の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数1～6の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数5～10のシクロアルキルオキシ基を表し、

20

Xは酸素原子、硫黄原子を表し、

mは0～4の整数を表し、nは0～2の整数を表し、qは0～3の整数を表す。

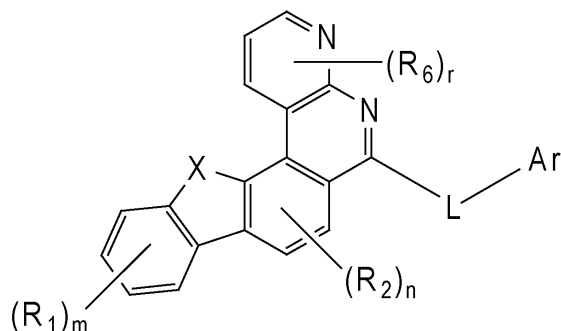
m、nまたはqが2以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合するR₁、R₂またはR₅は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

30

【請求項5】

下記一般式(A - 5)で表される、アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

【化5】



40

(A - 5)

(式中、Lは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の2価基を表し、

Arは水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族

50

複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R_1 、 R_2 および R_6 は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、

10

X は酸素原子、硫黄原子を表し、

m は 0 ~ 4 の整数を表し、 n は 0 ~ 2 の整数を表し、 r は 0 ~ 3 の整数を表す。

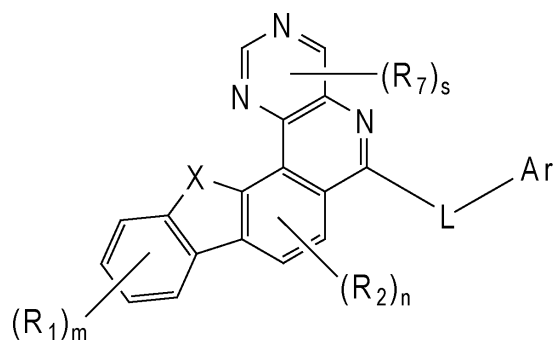
m 、 n または r が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R_1 、 R_2 または R_6 は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

【請求項 6】

下記一般式 (A - 6) で表される、アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

【化 6】

20



30

(A - 6)

(式中、 L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、

Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R_1 、 R_2 および R_7 は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、

40

X は酸素原子、硫黄原子を表し、

m は 0 ~ 4 の整数を表し、 n は 0 ~ 2 の整数を表し、 s は 0 ~ 2 の整数を表す。

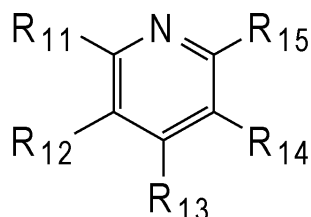
m 、 n または s が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R_1 、 R_2 または R_7 は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

50

【請求項 7】

請求項 2 から請求項 6 記載の一般式 (A - 2) から (A - 6) における L が下記構造式 (B - 1)、(B - 2) または (B - 3) で表され、R₁₁ ~ R₁₅ の内、R₁₆ ~ R₂₁ の内、R₂₂ ~ R₂₉ の内、2 カ所を結合部位とするアザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物。

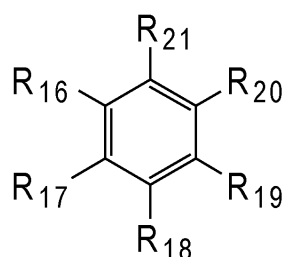
【化 7】



10

(B - 1)

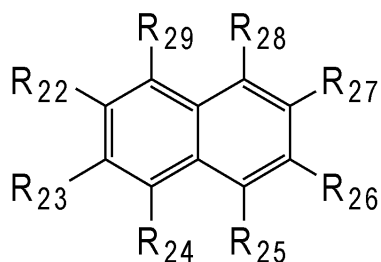
【化 8】



20

(B - 2)

【化 9】



30

(B - 3)

(式中、R₁₁ ~ R₂₉ は相互に同一でも異なってもよく、結合部位としての連結基、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表す。)

40

【請求項 8】

一対の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、請求項 1 ~ 7 のいずれか一項に記載のアザインデノフェナンスレン

50

環構造を有する化合物が、少なくとも1つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】

前記アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が電子輸送層である請求項8記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】

前記アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が正孔阻止層である請求項8記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】

前記アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が発光層である請求項8記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項12】

前記アザインデノフェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が電子注入層である請求項8記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、各種の表示装置に好適な自発光素子である有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と略称する）に適した化合物と素子に関するものであり、詳しくはアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物と、該化合物を用いた有機EL素子に関するものである。

20

【背景技術】

【0002】

有機EL素子は自己発光性素子であるため、液晶素子に比べて明るく視認性に優れ、鮮明な表示が可能であることから、活発な研究がなされてきた。

【0003】

1987年にイーストマン・コダック社のC. W. Tangらは各種の役割を各材料に分担した積層構造素子を開発することにより有機材料を用いた有機EL素子を実用的なものにした。彼らは電子を輸送することのできる蛍光体と正孔を輸送することのできる有機物とを積層し、両方の電荷を蛍光体の層の中に注入して発光させることにより、10V以下の電圧で1000cd/m²以上の高輝度が得られるようになった（例えば、特許文献1および特許文献2参照）。

30

【0004】

現在まで、有機EL素子の実用化のために多くの改良がなされ、積層構造の各種の役割をさらに細分化して、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極を設けた電界発光素子によって高効率と耐久性が達成されるようになってきた（例えば、非特許文献1参照）。

【0005】

また、発光効率の更なる向上を目的として三重項励起子の利用が試みられ、燐光発光性化合物の利用が検討されている（例えば、非特許文献2参照）。そして、熱活性化遅延蛍光（TADF）による発光を利用する素子も開発されている。2011年に九州大学の安達らは、熱活性化遅延蛍光材料を用いた素子によって5.3%の外部量子効率を実現させた（例えば、非特許文献3参照）。

40

【0006】

発光層は、一般的にホスト材料と称される電荷輸送性の化合物に、蛍光性化合物や燐光発光性化合物または遅延蛍光を放射する材料をドーブして作製することもできる。前記非特許文献に記載されているように、有機EL素子における有機材料の選択は、その素子の効率や耐久性など諸特性に大きな影響を与える（例えば、非特許文献2参照）。

【0007】

有機EL素子においては、両電極から注入された電荷が発光層で再結合して発光が得られ

50

るが、正孔、電子の両電荷を如何に効率良く発光層に受け渡すかが重要である。電子注入性を高め、その移動度を高め、更に陽極から注入された正孔をブロックする正孔阻止性を高め、正孔と電子が再結合する確率を向上させ、更に発光層内で生成した励起子を閉じ込めることによって、高効率発光を得ることができる。そのため電子輸送材料の果たす役割は重要であり、電子注入性が高く、電子移動度が大きく、正孔阻止性が高く、さらには正孔に対する耐久性が高い電子輸送材料が求められている。

【0008】

また、素子の寿命に関しては材料の耐熱性やアモルファス性も重要である。耐熱性が低い材料では、素子駆動時に生じる熱により、低い温度でも熱分解が起こり、材料が劣化する。アモルファス性が低い材料では、短い時間でも薄膜の結晶化が起こり、素子が劣化してしまう。そのため使用する材料には耐熱性が高く、アモルファス性が良好な性質が求められる。

10

【0009】

代表的な発光材料であるトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(以後、Alq3と略称する)は電子輸送材料としても一般的に用いられるが、電子移動が遅く、また仕事関数が5.6 eVなので正孔阻止性能が十分とは言えない。

【0010】

電子注入性や移動度などの特性を改良した化合物として、ベンゾトリアゾール構造を有する化合物が提案されているが(例えば、特許文献3)、これらの化合物をまたは電子輸送層に用いた素子では、発光効率などの改良はされているものの、未だ十分とはいえ、さらなる低駆動電圧化や、さらなる高発光効率化が求められている。

20

【0011】

また、正孔阻止性に優れた電子輸送材料として、3-(4-ピフェニル)-4-フェニル-5-(4-t-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール(以後、TAZと略称する)が提案されている(例えば、特許文献4参照)。

【0012】

TAZは仕事関数が6.6 eVと大きく正孔阻止能力が高いために、真空蒸着や塗布などによって作製される蛍光発光層や燐光発光層の、陰極側に積層する電子輸送性の正孔阻止層として使用され、有機EL素子の高効率化に寄与している(例えば、非特許文献4参照)。

30

【0013】

しかし電子輸送性が低いことがTAZにおける大きな課題であり、より電子輸送性の高い電子輸送材料と組み合わせ、有機EL素子を作製することが必要であった(例えば、非特許文献5参照)。

【0014】

また、BCPにおいても仕事関数が6.7 eVと大きく正孔阻止能力が高いものの、ガラス転移点(Tg)が83と低いことから、薄膜の安定性に乏しく、正孔阻止層として十分に機能しているとは言えない。

【0015】

いずれの材料も膜安定性が不足しており、もしくは正孔を阻止する機能が不十分である。有機EL素子の素子特性を改善させるために、電子の注入・輸送性能と正孔阻止能力に優れ、薄膜状態での安定性が高い有機化合物が求められている。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

【0016】

【文献】特開平8-048656号公報

特許第3194657号公報

国際公開第2013/054764号

特許登録第2734341号

国際公開第2014/009310号

50

国際公開第2010/074422号

国際公開第2017/111439号

韓国公開第2010/090139号

【非特許文献】

【0017】

【文献】応用物理学会第9回講習会予稿集55～61ページ(2001)

応用物理学会第9回講習会予稿集23～31ページ(2001)

Appl. Phys. Lett., 98, 083302(2011)

第50回応用物理学関係連合講演会28p-A-6講演予稿集1413ページ(2003)

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会誌11巻1号13～19ページ
(2000)

10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0018】

本発明の目的は高効率、高耐久性の有機EL素子用材料として、電子注入・輸送性能に優れ、正孔阻止能力を有し、薄膜状態での安定性が高い優れた特性を有する有機化合物を提供し、更にこの化合物を用いて、高効率、高耐久性の有機EL素子を提供することにある。

【0019】

本発明が提供しようとする有機化合物が具備すべき物理的な特性としては、(1)電子の注入特性が良いこと、(2)電子の移動度が大きいこと、(3)正孔阻止能力に優れること、(4)薄膜状態が安定であること、(5)耐熱性に優れていることをあげることができる。また、本発明が提供しようとする有機EL素子が具備すべき物理的な特性としては、(1)発光効率および電力効率が高いこと、(2)発光開始電圧が低いこと、(3)実用駆動電圧が低いこと、(4)長寿命であること、をあげることができる。

20

【課題を解決するための手段】

【0020】

そこで本発明者らは上記の目的を達成するために、電子親和性であるアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造の窒素原子が金属に配位する能力を有していること、耐熱性に優れているということに着目して、アザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物を設計して化学合成し、該化合物を用いて種々の有機EL素子を試作し、素子の特性評価を鋭意行なった結果、本発明を完成するに至った。

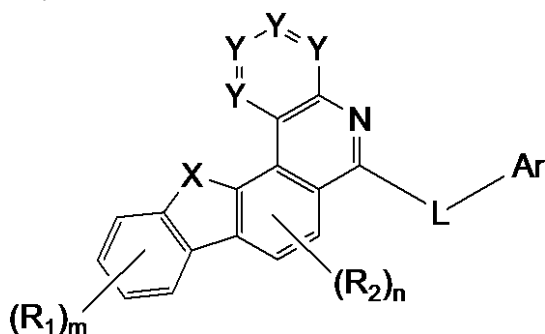
30

【0021】

1)すなわち本発明は、下記一般式(A-1)で表される、アザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物。

【0022】

【化1】



40

(A-1)

(式中、Yは相互に同一でも異なっていてもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、またはトリフェニルシリル基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を有

50

する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を有する炭素原子、または窒素原子を表し、L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、

Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、

R₁ および R₂ は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、

X は酸素原子、硫黄原子を表し、

m は 0 ~ 4 の整数を表し、n は 0 ~ 2 の整数を表す。

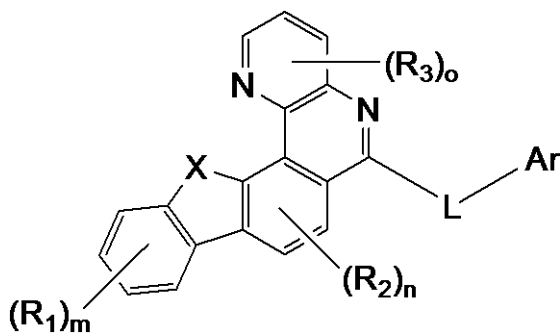
ただし、Y の内、少なくとも 1 カ所以上を窒素原子とし、m または n が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R₁ または R₂ は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

【 0 0 2 3 】

2) また、本発明は、下記一般式 (A - 2) で表される、上記 1) 記載のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物。

【 0 0 2 4 】

【 化 2 】



(A - 2)

(式中、L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、R₁、R₂ および R₃ は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい

炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、X は酸素原子、硫黄原子を表し、m は 0 ~ 4 の整数を表し、n は 0 ~ 2 の整数を表し、o は 0 ~ 3 の整数を表す。m、n または o が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R₁、R₂ または R₃ は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

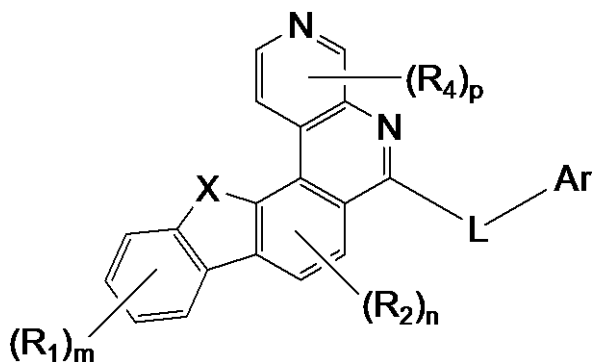
【0025】

3) また、本発明は、下記一般式 (A-3) で表される、上記 1) 記載のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物。

10

【0026】

【化3】



20

(A-3)

(式中、L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、R₁、R₂ および R₄ は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、X は酸素原子、硫黄原子を表し、m は 0 ~ 4 の整数を表し、n は 0 ~ 2 の整数を表し、p は 0 ~ 3 の整数を表す。m、n または p が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R₁、R₂ または R₄ は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。))

30

40

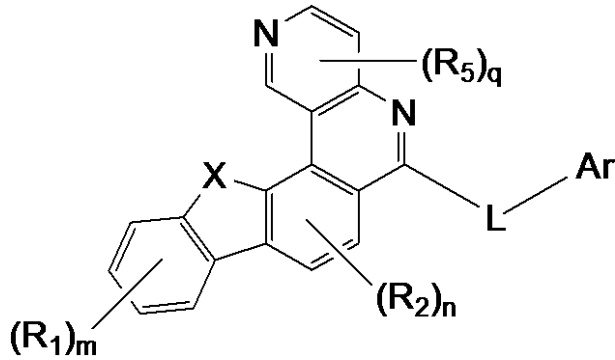
【0027】

4) また、本発明は、下記一般式 (A-4) で表される、上記 1) 記載のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物。

【0028】

50

【化4】



10

(A-4)

(式中、Lは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の2価基を表し、Arは水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、R₁、R₂およびR₅は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数5~10のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数2~6の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数5~10のシクロアルキルオキシ基を表し、Xは酸素原子、硫黄原子を表し、mは0~4の整数を表し、nは0~2の整数を表し、qは0~3の整数を表す。m、nまたはqが2以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合するR₁、R₂またはR₅は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。)

20

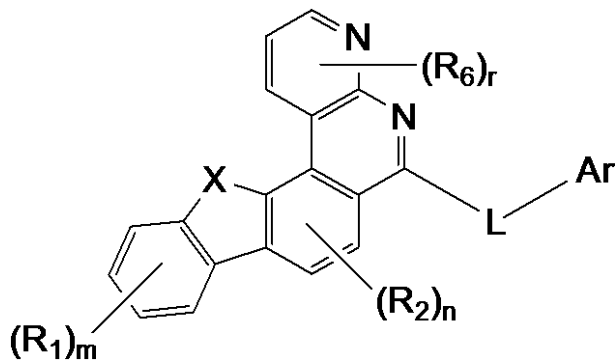
【0029】

5) また、本発明は、下記一般式(A-5)で表される、上記1)記載のアザインデノ[1,2,c]フェナンスレン環構造を有する化合物。

30

【0030】

【化5】



40

(A-5)

(式中、Lは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の2価基を表し、Arは水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、R₁、R₂およびR₆は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ

50

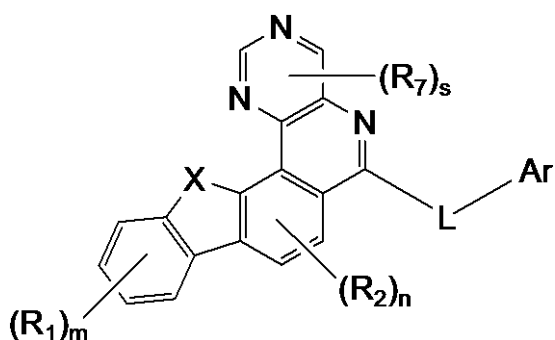
基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、X は酸素原子、硫黄原子を表し、m は 0 ~ 4 の整数を表し、n は 0 ~ 2 の整数を表し、r は 0 ~ 3 の整数を表す。m、n または r が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R₁、R₂ または R₆ は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。) 10

【0031】

6) また、本発明は、下記一般式 (A - 6) で表される、上記 1) 記載のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物。

【0032】

【化 6】



20

(A - 6)

(式中、L は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の 2 価基を表し、Ar は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表し、R₁、R₂ および R₇ は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表し、X は酸素原子、硫黄原子を表し、m は 0 ~ 4 の整数を表し、n は 0 ~ 2 の整数を表し、s は 0 ~ 2 の整数を表す。m、n または s が 2 以上の整数である場合、同一のベンゼン環に複数個結合する R₁、R₂ または R₇ は相互に同一でも異なってもよく、また、置換した同一のベンゼン環に対して、単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成してもよい。) 40

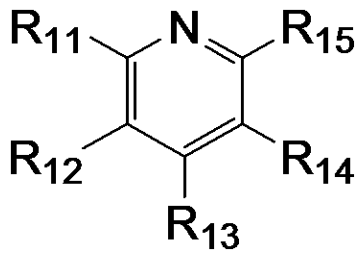
【0033】

7) また、本発明は、L が下記構造式 (B - 1)、(B - 2) または (B - 3) で表される R₁₁ ~ R₁₅ の内、R₁₆ ~ R₂₁ の内、R₂₂ ~ R₂₉ の内、2 力所を結合部位とする、上記 2) から 6) 記載のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物。

50

【 0 0 3 4 】

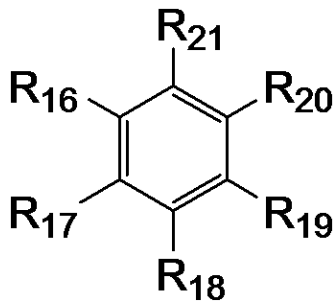
【 化 7 】



(B - 1)

【 0 0 3 5 】

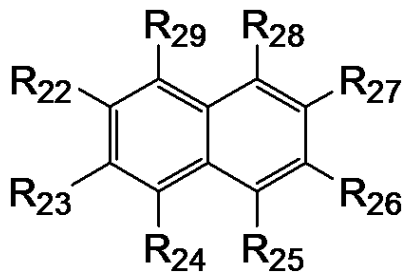
【 化 8 】



(B - 2)

【 0 0 3 6 】

【 化 9 】



(B - 3)

(式中、R₁₁ ~ R₂₉ は相互に同一でも異なってもよく、結合部位としての連結基、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を表す。)

【 0 0 3 7 】

8) また、本発明は、一对の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機 E L 素子において、上記 1) から 7) 記載のいずれか一項に記載のアザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン環構造を有する化合物が、少なくとも 1 つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする有機 E L 素子である。

【 0 0 3 8 】

9) また、本発明は、前記アザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が電子輸送層である上記 8) 記載の有機 E L 素子である。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 9 】

10) また、本発明は、前記アザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が正孔阻止層である上記 8) 記載の有機 E L 素子である。

【 0 0 4 0 】

11) また、本発明は、前記アザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が発光層である上記 8) 記載の有機 E L 素子である。

【 0 0 4 1 】

12) また、本発明は、前記アザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン環構造を有する化合物が用いられている有機層が電子注入層である上記 8) 記載の有機 E L 素子である。

【 0 0 4 2 】

前記一般式 (A - 1) 中の Y は相互に同一でも異なってもよく、窒素原子であり、または水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、またはトリフェニルシリル基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を有する炭素原子、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基を有する炭素原子、置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基を有する炭素原子を表す。

【 0 0 4 3 】

一般式 (A - 1) 中の Y で表される「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基を有する炭素原子」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基を有する炭素原子」、または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を有する炭素原子」における「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、具体的に、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、インデニル基、ピレニル基、ペリレニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、フリル基、ピロリル基、チエニル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、およびカルボリニル基などの他に、炭素数 6 ~ 30 からなるアリール基、または炭素数 2 ~ 30 からなるヘテロアリール基から選択することすることができ、これらの置換基と置換したベンゼン環または同一のベンゼン環に複数置換された置換基同士が単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成していてもよい。

【 0 0 4 4 】

一般式 (A - 1) 中の Y で表される「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有する炭素原子」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基を有する炭素原子」、または「置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を有する炭素原子」における「炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有する炭素原子」、「炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基を有する炭素原子」、または「炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を有する炭素原子」としては、具体的に、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、tert - ブチル基、n - ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、n - ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、1 - アダマンチル基、2 - アダマンチル基、ビニル基、アリル基、イソプロペニル基、および 2 - ブテニル基などをあげることができ、これらの置

10

20

30

40

50

換基と置換したベンゼン環または同一のベンゼン環に複数置換された置換基同士が単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成していてもよい。

【 0 0 4 5 】

一般式 (A - 1) 中の Y で表される「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基を有する炭素原子」、または「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 1 0 のシクロアルキルオキシ基を有する炭素原子」における「炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基を有する炭素原子」、または「炭素原子数 5 ~ 1 0 のシクロアルキルオキシ基を有する炭素原子」としては、具体的に、メチルオキシ基、エチルオキシ基、n - プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、n - 10
ブチルオキシ基、tert - ブチルオキシ基、n - ペンチルオキシ基、n - ヘキシルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロヘプチルオキシ基、シクロオクチルオキシ基、1 - アダマンチルオキシ基、2 - アダマンチルオキシ基などをあげることができ、これらの置換基と置換したベンゼン環または同一のベンゼン環に複数置換された置換基同士が単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成していてもよい。

【 0 0 4 6 】

一般式 (A - 1) 中の Y で表される「置換芳香族炭化水素基を有する炭素原子」、「置換芳香族複素環基を有する炭素原子」、「置換縮合多環芳香族基を有する炭素原子」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基を有する炭素原子」、
20 「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 1 0 のシクロアルキル基を有する炭素原子」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を有する炭素原子」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基を有する炭素原子」、または「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ないし 1 0 のシクロアルキルオキシ基を有する炭素原子」における「置換基」としては、具体的に、重水素原子、シアノ基、ニトロ基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子；トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基などのシリル基；メチル基、エチル基、プロピル基などの炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基；メチルオキシ基、エチルオキシ基、プロピルオキシ基などの炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基；ビニル基、
30 アリル基などのアルケニル基；フェニルオキシ基、トリルオキシ基などのアリーロキシ基；ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基などのアリールアルキルオキシ基；フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、インデニル基、ピレニル基、ペリレニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基などの芳香族炭化水素基もしくは縮合多環芳香族基；ピリジル基、チエニル基、フリル基、ピロリル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルボリニル基などの芳香族複素環基のような基をあげることができ、これらの置換基はさらに、前記例示した置換基が置換していても良い。また、これらの置換基と置換したベンゼン環または同一のベンゼン環に複数置換された置換基同士が単結合、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のアミノ基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成していてもよい。

【 0 0 4 7 】

一般式 (A - 1) ~ (A - 6) 中の A r は水素原子、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。

【 0 0 4 8 】

一般式 (A - 1) ~ (A - 6) 中の A r で表される「置換もしくは無置換の芳香族炭化水

10

20

30

40

50

素基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基」における「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、前記一般式(A-1)中のYにおける「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

【0049】

一般式(A-1)~(A-6)中のArで表される「置換芳香族炭化水素基」、「置換芳香族複素環基」、または「置換縮合多環芳香族基」における「置換基」としては、前記一般式(A-1)中のYにおける「置換基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

10

【0050】

一般式(A-1)~(A-6)中のLは置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基の2価基を表す。

【0051】

一般式(A-1)~(A-6)中のLで表される「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基」における「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、前記一般式(A-1)中のYにおける「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

20

【0052】

一般式(A-1)~(A-6)中のLで表される「置換芳香族炭化水素基」、「置換芳香族複素環基」、または「置換縮合多環芳香族基」における「置換基」としては、前記一般式(A-1)中のYにおける「置換基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

【0053】

一般式(A-1)~(A-6)および構造式(B-1)、(B-2)、(B-3)中のR₁~R₇およびR₁₁~R₂₉は相互に同一でも異なってもよく、水素原子、重水素原子、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基、置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数5~10のシクロアルキル基、置換基を有していてもよい炭素原子数2~6の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基、置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基、または置換基を有していてもよい炭素原子数5~10のシクロアルキルオキシ基を表す。

30

【0054】

一般式(A-1)~(A-6)および構造式(B-1)、(B-2)、(B-3)中のR₁~R₇およびR₁₁~R₂₉で表される「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基」における「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、前記一般式(A-1)中のYにおける「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

40

【0055】

一般式(A-1)~(A-6)および構造式(B-1)、(B-2)、(B-3)中のR₁~R₇およびR₁₁~R₂₉で表される「置換基を有していてもよい炭素原子数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基」、「置換基を有していてもよい炭素原子数5~10のシクロアルキル基」、または「置換基を有していてもよい炭素原子数2~6の直鎖状

50

もしくは分岐状のアルケニル基」における「炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基」、「炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基」、または「炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基」としては、前記一般式 (A - 1) 中の Y における「炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基」、「炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基」、または「炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

【0056】

一般式 (A - 1) ~ (A - 6) および構造式 (B - 1)、(B - 2)、(B - 3) 中の R₁ ~ R₇ および R₁₁ ~ R₂₉ で表される「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基」、または「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基」における「炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基」、または「炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基」としては、前記一般式 (A - 1) 中の Y における「炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基」、または「炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキルオキシ基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

10

【0057】

一般式 (A - 1) ~ (A - 6) および構造式 (B - 1)、(B - 2)、(B - 3) 中の R₁ ~ R₇ および R₁₁ ~ R₂₉ で表される「置換芳香族炭化水素基」、「置換芳香族複素環基」、「置換縮合多環芳香族基」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ~ 10 のシクロアルキル基」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 2 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基」、「置換基を有していてもよい炭素原子数 1 ないし 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基」、または「置換基を有していてもよい炭素原子数 5 ないし 10 のシクロアルキルオキシ基」における「置換基」としては、前記一般式 (A - 1) 中の Y における「置換基」に関して示したものと同様のものをあげることができ、とりうる態様も、同様のものをあげることができる。

20

【0058】

本発明の有機 EL 素子に好適に用いられる、前記一般式 (A - 1) で表されるアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物は、有機 EL 素子の電子注入層、電子輸送層または正孔阻止層の構成材料として使用することができる。電子の移動度が高く電子注入層または電子輸送層の材料として好ましい化合物である。

30

【0059】

本発明の有機 EL 素子は電子の注入・輸送性能、薄膜の安定性や耐久性に優れた有機 EL 素子用の材料を使用しているため、従来の有機 EL 素子に比べて、電子輸送層から発光層への電子輸送効率が向上し、発光効率が向上すると共に、駆動電圧が低下して、有機 EL 素子の耐久性を向上させることができ、高効率、低駆動電圧、長寿命の有機 EL 素子を実現することが可能となった。

【発明の効果】

40

【0060】

本発明の有機 EL 素子は電子の注入・輸送の役割を効果的に発現できる特定のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物を選択したことにより、電子輸送層から発光層へ電子を効率良く注入・輸送できることによって、電子の注入・輸送性能、薄膜の安定性や耐久性に優れ、高効率、低駆動電圧、長寿命の有機 EL 素子を実現することができる。本発明によれば、従来の有機 EL 素子の発光効率および駆動電圧、そして耐久性を改良することができる。

【図面の簡単な説明】

【0061】

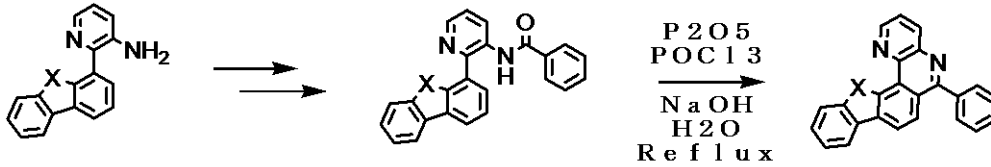
【図 1】実施例 5 ~ 6、比較例 1 ~ 3 の有機 EL 素子構成を示した図である。

50

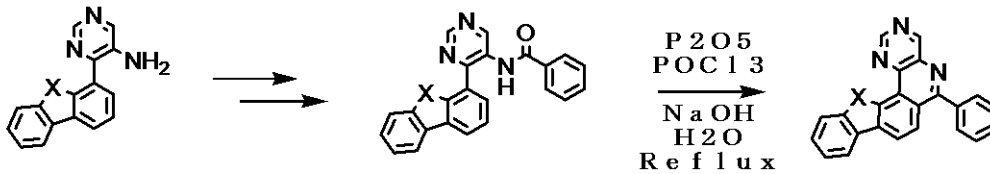
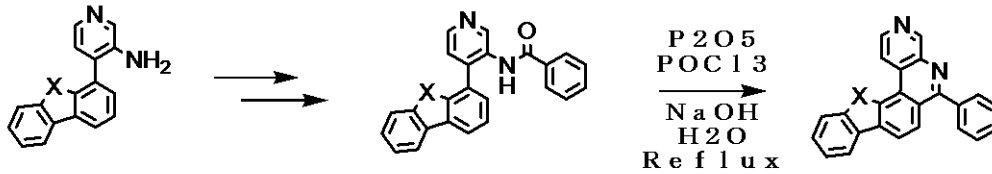
【発明を実施するための形態】

【0062】

本発明のアザインデノ[1,2,c]フェナンスレン環構造を有する化合物は新規な化合物である。これら化合物は例えば以下のように、それ自体公知の方法に準じて合成することができる（例えば、特許文献8参照）。



10



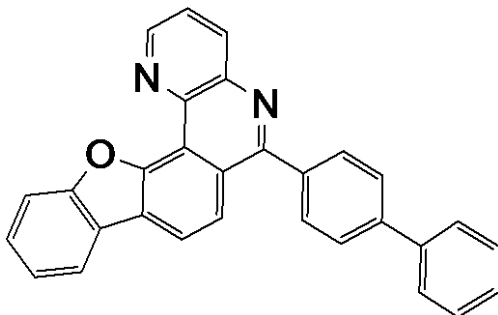
20

【0063】

本発明の有機EL素子に好適に用いられる、前記一般式(A-1)で表されるアザインデノ[1,2,c]フェナンスレン環構造の中で、好ましい化合物の具体例を以下に示すが、これらの化合物に限定されるものではない。

【0064】

【化10】

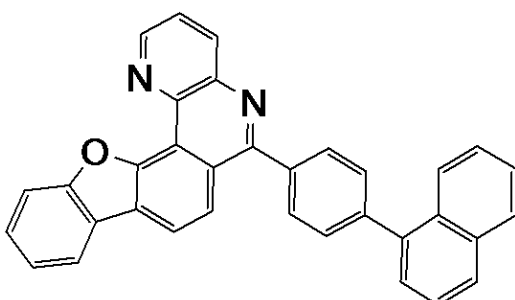


30

(化合物-1)

【0065】

【化11】



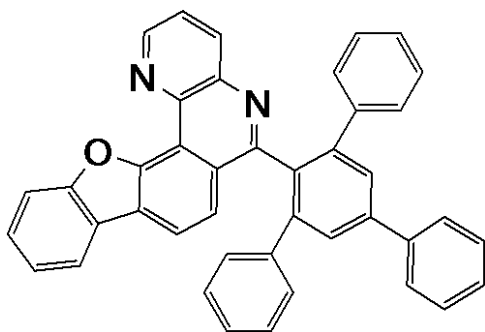
40

50

(化合物 - 2)

【0066】

【化12】

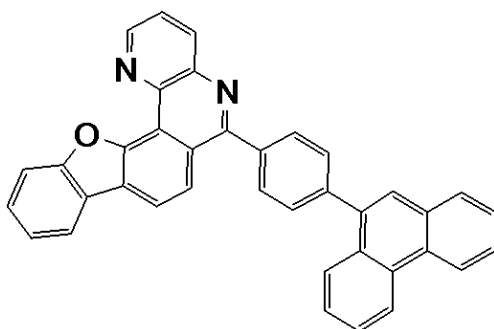


10

(化合物 - 3)

【0067】

【化13】

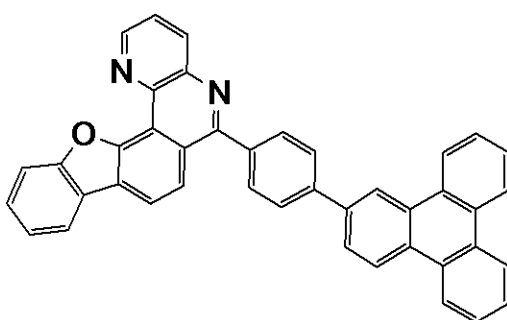


20

(化合物 - 4)

【0068】

【化14】

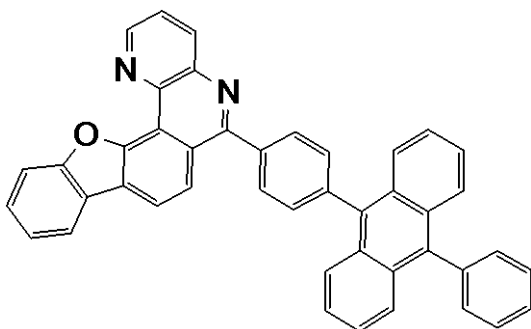


30

(化合物 - 5)

【0069】

【化15】

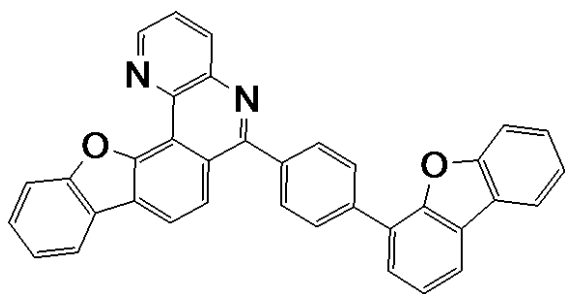


50

(化合物 - 6)

【0070】

【化16】

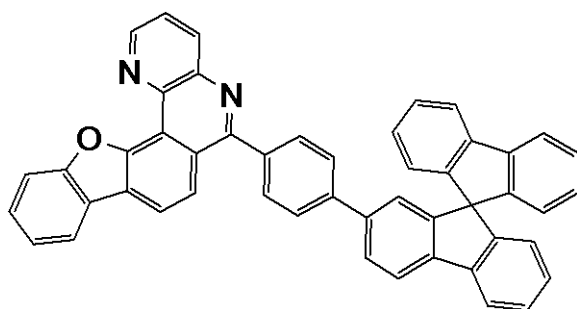


10

(化合物 - 7)

【0071】

【化17】

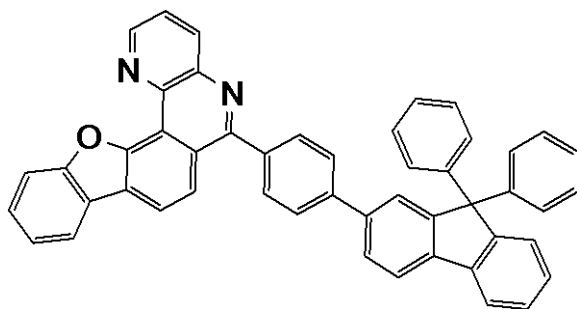


20

(化合物 - 8)

【0072】

【化18】

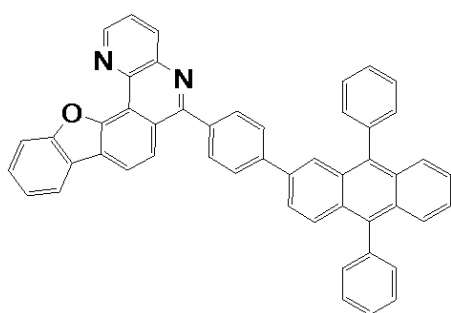


30

(化合物 - 9)

【0073】

【化19】



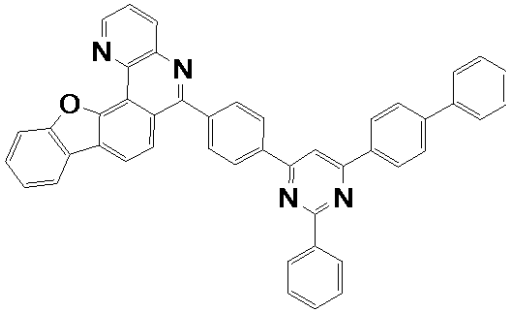
40

(化合物 - 10)

【0074】

50

【化 2 0】

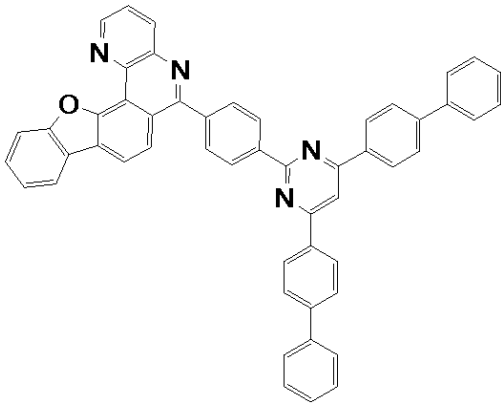


10

(化合物 - 1 1)

【 0 0 7 5】

【化 2 1】

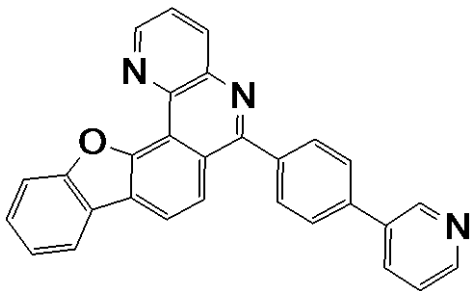


20

(化合物 - 1 2)

【 0 0 7 6】

【化 2 2】

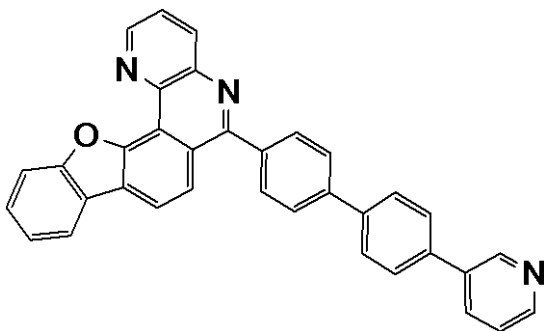


30

(化合物 - 1 3)

【 0 0 7 7】

【化 2 3】



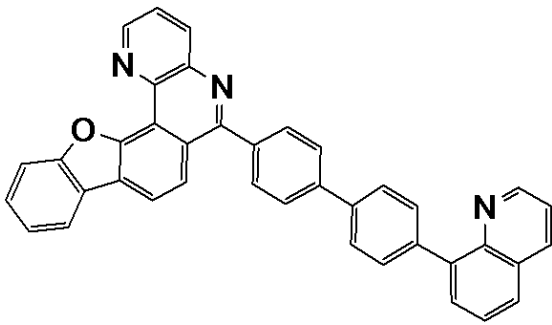
40

(化合物 - 1 4)

50

【0078】

【化24】

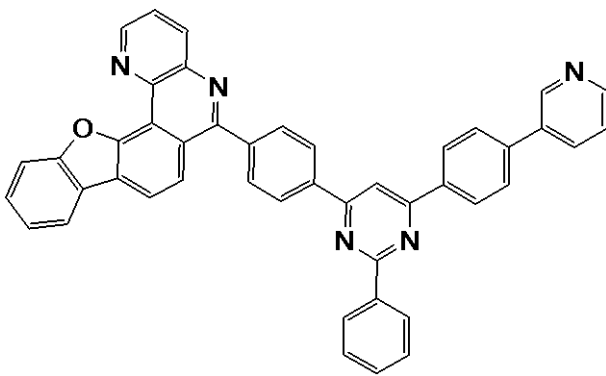


10

(化合物 - 15)

【0079】

【化25】

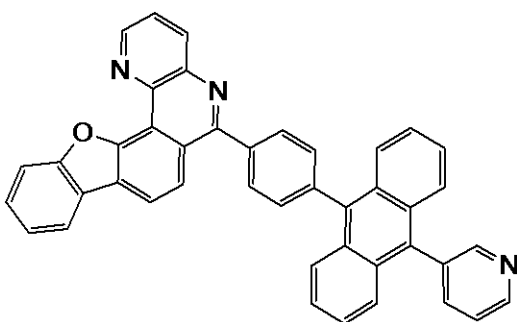


20

(化合物 - 16)

【0080】

【化26】

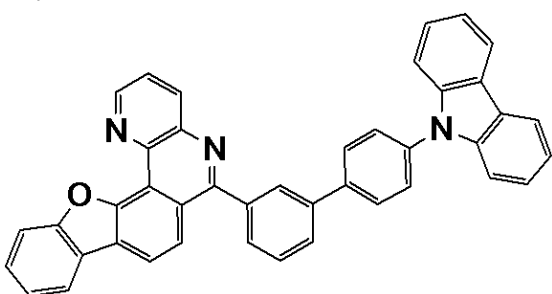


30

(化合物 - 17)

【0081】

【化27】



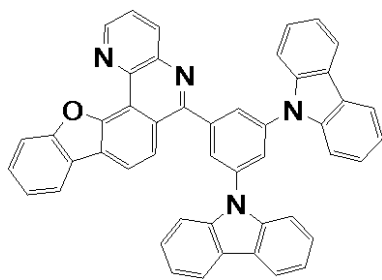
40

(化合物 - 18)

50

【0082】

【化28】

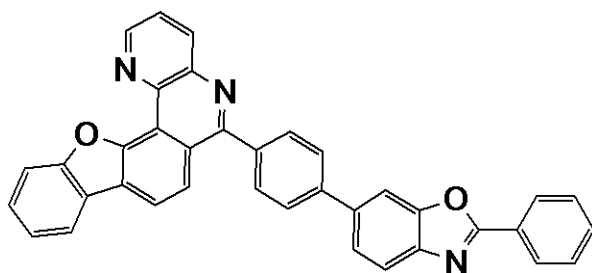


10

(化合物 - 19)

【0083】

【化29】

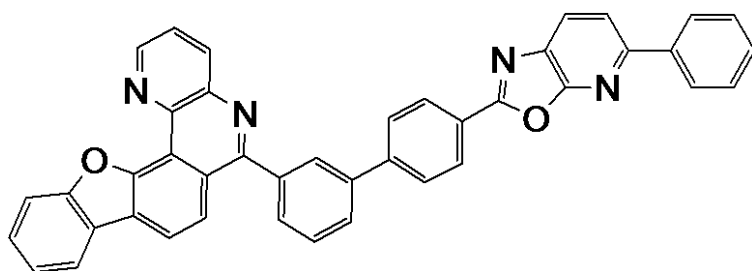


20

(化合物 - 20)

【0084】

【化30】

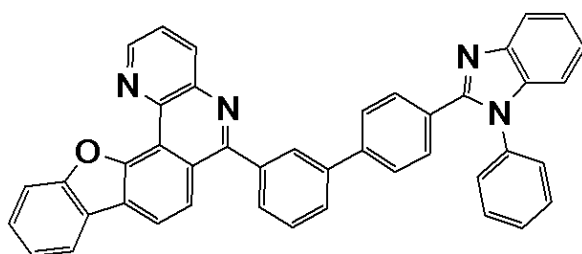


30

(化合物 - 21)

【0085】

【化31】



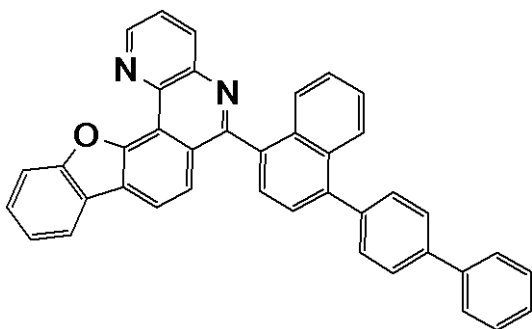
40

(化合物 - 22)

【0086】

50

【化 3 2】

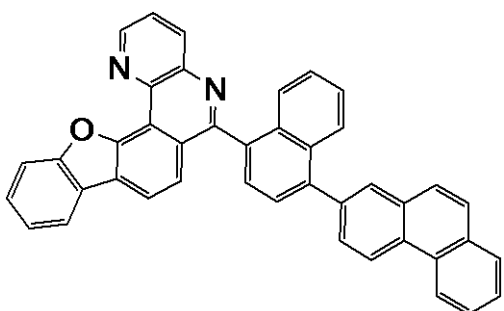


10

(化合物 - 2 3)

【0 0 8 7】

【化 3 3】

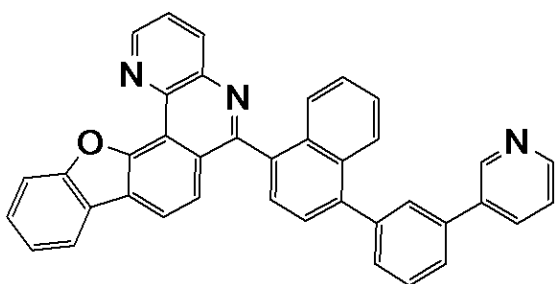


20

(化合物 - 2 4)

【0 0 8 8】

【化 3 4】

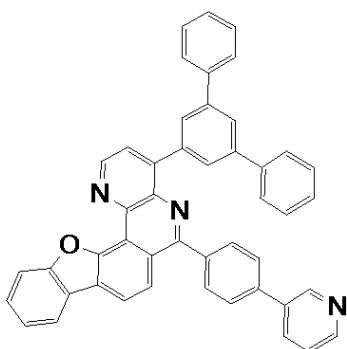


30

(化合物 - 2 5)

【0 0 8 9】

【化 3 5】



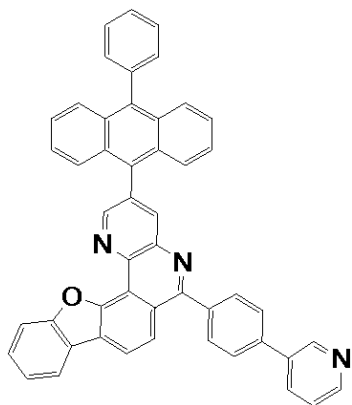
40

(化合物 - 2 6)

【0 0 9 0】

50

【化 3 6】

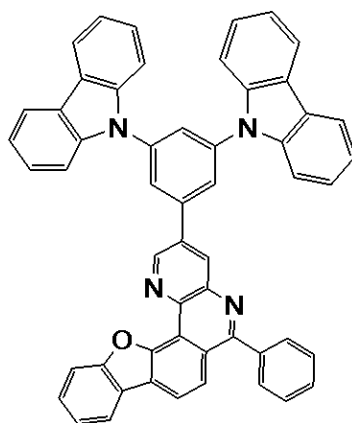


10

(化合物 - 2 7)

【 0 0 9 1】

【化 3 7】

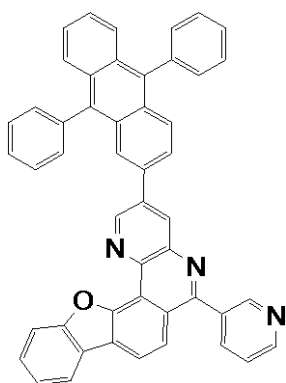


20

(化合物 - 2 8)

【 0 0 9 2】

【化 3 8】



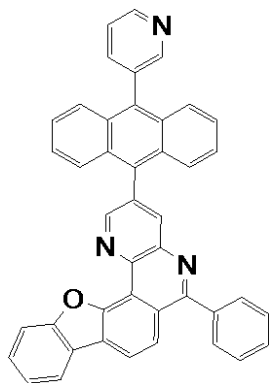
40

(化合物 - 2 9)

【 0 0 9 3】

50

【化 3 9】

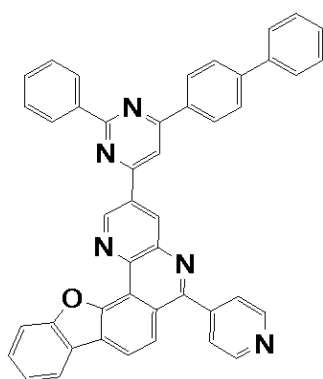


10

(化合物 - 3 0)

【 0 0 9 4】

【化 4 0】

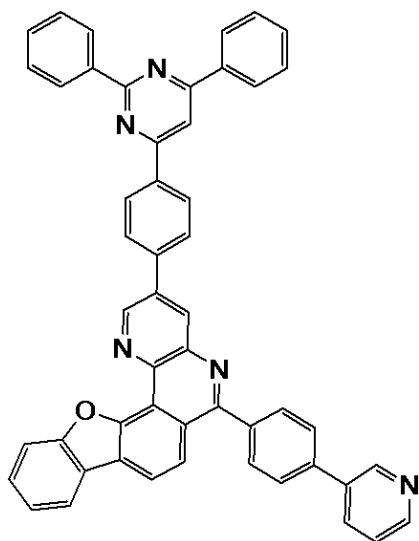


20

(化合物 - 3 1)

【 0 0 9 5】

【化 4 1】



30

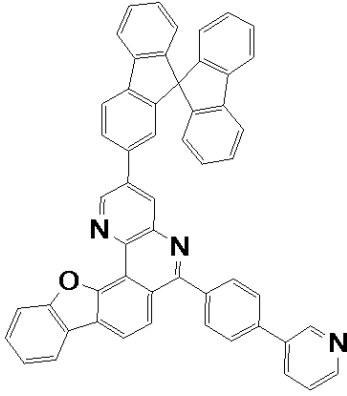
40

(化合物 - 3 2)

【 0 0 9 6】

50

【化 4 2】

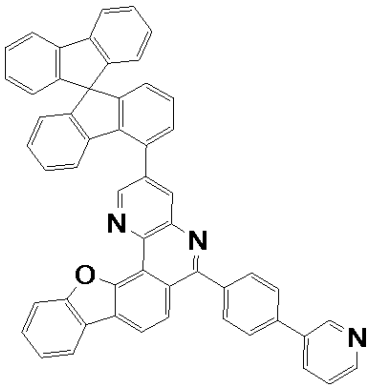


10

(化合物 - 3 3)

【 0 0 9 7 】

【化 4 3】

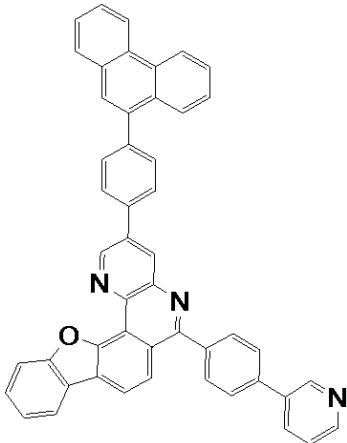


20

(化合物 - 3 4)

【 0 0 9 8 】

【化 4 4】



30

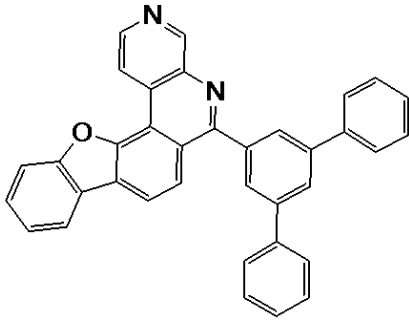
40

(化合物 - 3 5)

【 0 0 9 9 】

50

【化 4 5】

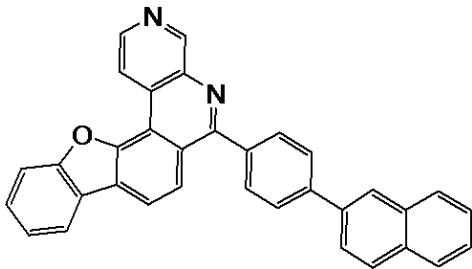


10

(化合物 - 3 6)

【0 1 0 0】

【化 4 6】

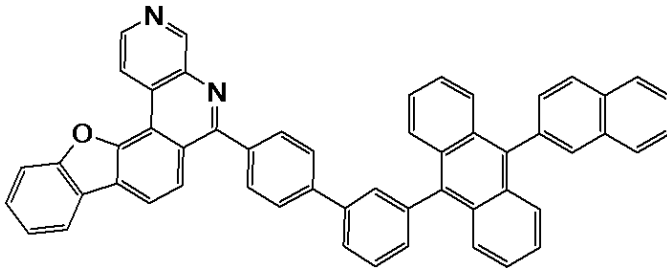


20

(化合物 - 3 7)

【0 1 0 1】

【化 4 7】

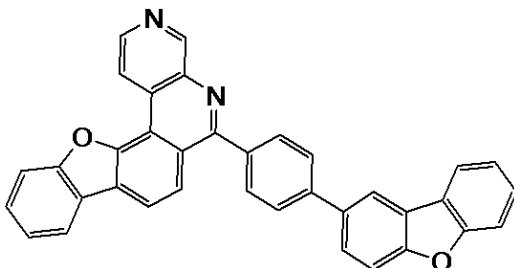


30

(化合物 - 3 8)

【0 1 0 2】

【化 4 8】



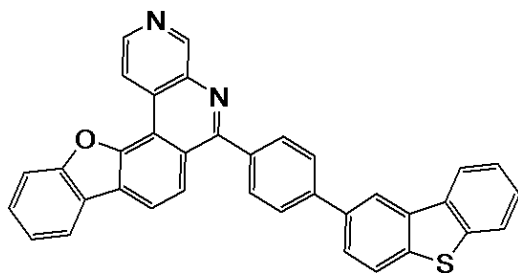
40

(化合物 - 3 9)

【0 1 0 3】

50

【化 4 9】

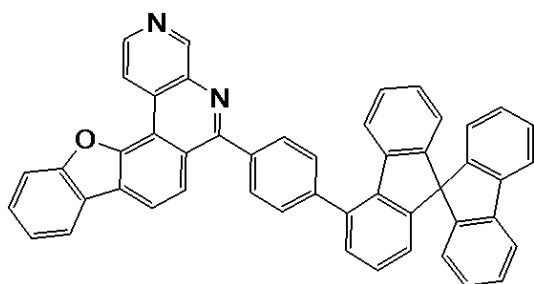


(化合物 - 4 0)

10

【0 1 0 4】

【化 5 0】

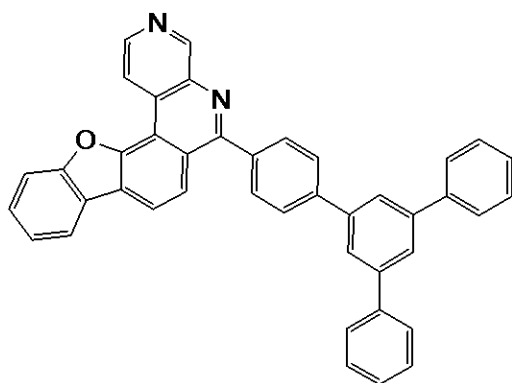


20

(化合物 - 4 1)

【0 1 0 5】

【化 5 1】

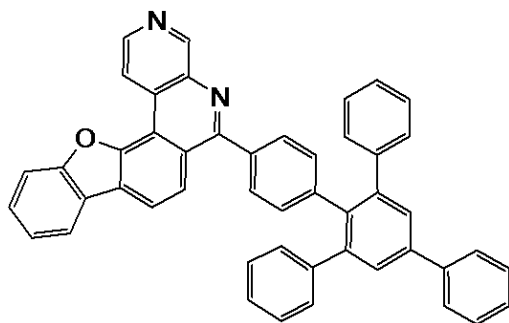


30

(化合物 - 4 2)

【0 1 0 6】

【化 5 2】



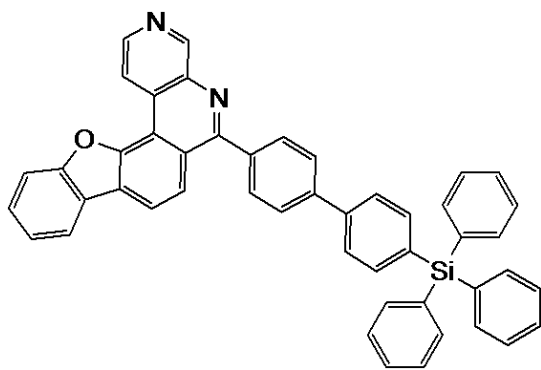
40

(化合物 - 4 3)

【0 1 0 7】

50

【化 5 3】

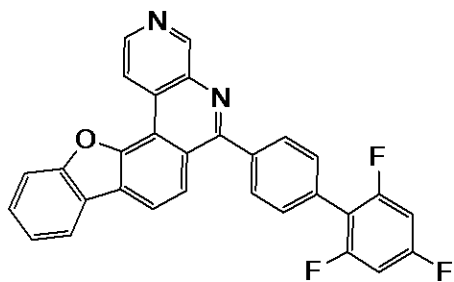


10

(化合物 - 4 4)

【 0 1 0 8 】

【化 5 4】

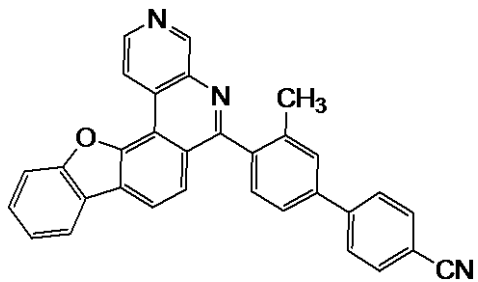


20

(化合物 - 4 5)

【 0 1 0 9 】

【化 5 5】

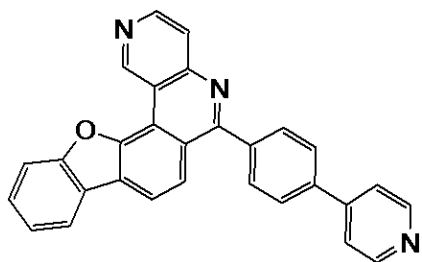


30

(化合物 - 4 6)

【 0 1 1 0 】

【化 5 6】



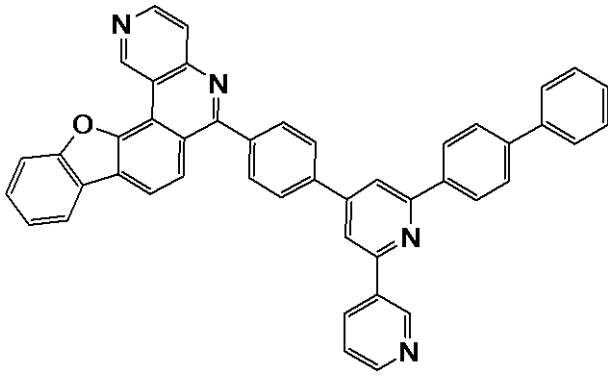
40

(化合物 - 4 7)

【 0 1 1 1 】

50

【化 5 7】

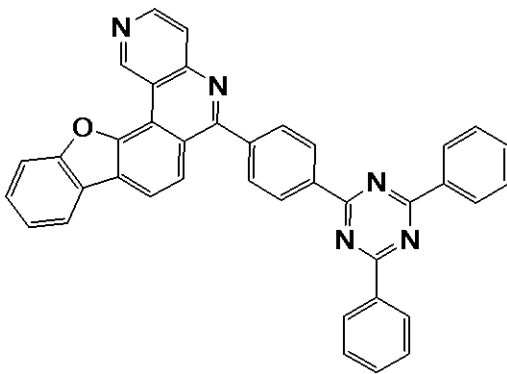


10

(化合物 - 4 8)

【 0 1 1 2 】

【化 5 8】

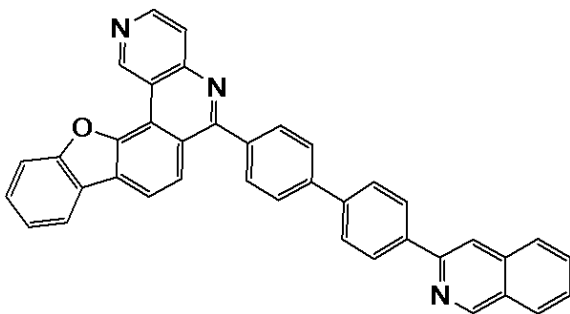


20

(化合物 - 4 9)

【 0 1 1 3 】

【化 5 9】

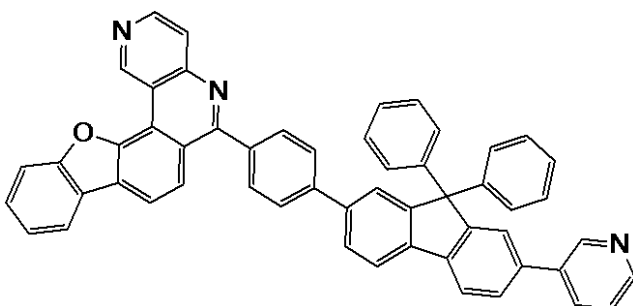


30

(化合物 - 5 0)

【 0 1 1 4 】

【化 6 0】



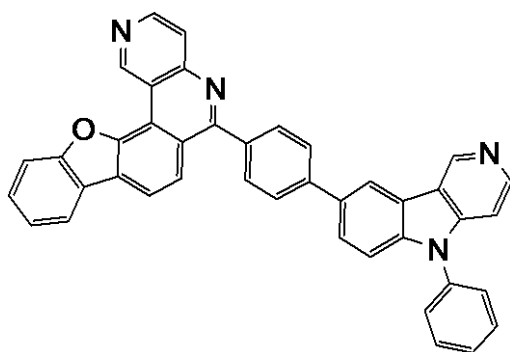
40

50

(化合物 - 5 1)

【 0 1 1 5 】

【 化 6 1 】

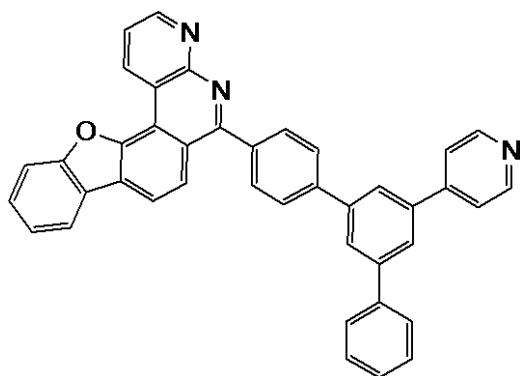


10

(化合物 - 5 2)

【 0 1 1 6 】

【 化 6 2 】

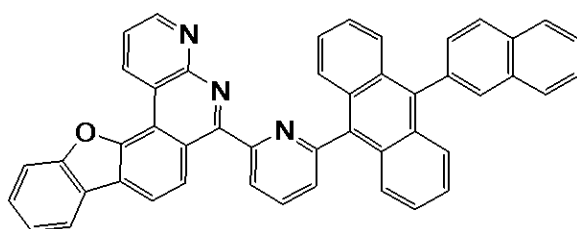


20

(化合物 - 5 3)

【 0 1 1 7 】

【 化 6 3 】

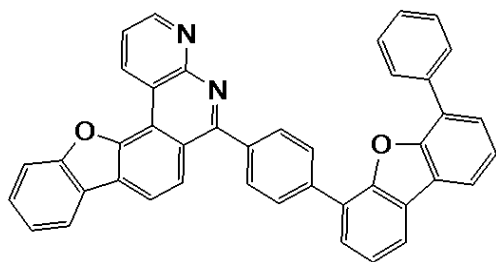


30

(化合物 - 5 4)

【 0 1 1 8 】

【 化 6 4 】



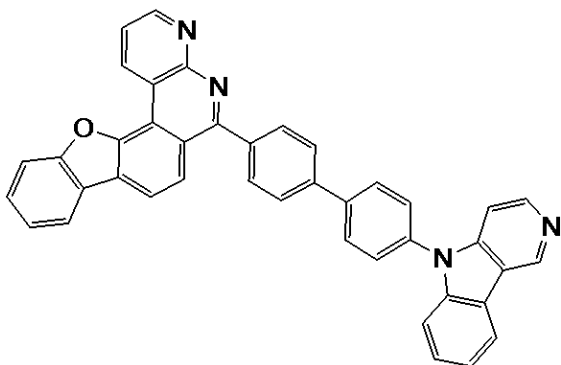
40

(化合物 - 5 5)

【 0 1 1 9 】

50

【化 6 5】

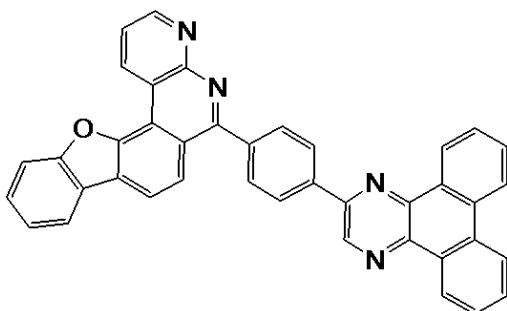


10

(化合物 - 5 6)

【0 1 2 0】

【化 6 6】

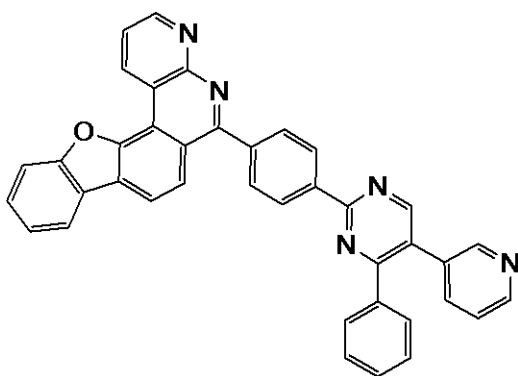


20

(化合物 - 5 7)

【0 1 2 1】

【化 6 7】

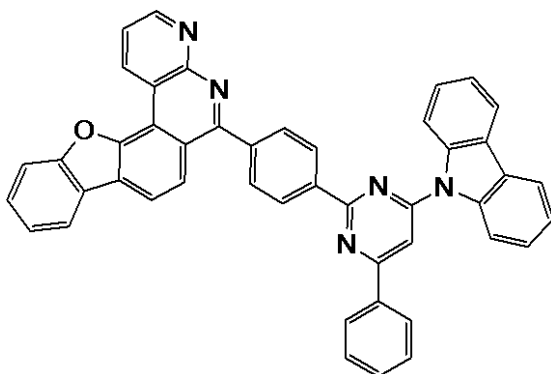


30

(化合物 - 5 8)

【0 1 2 2】

【化 6 8】



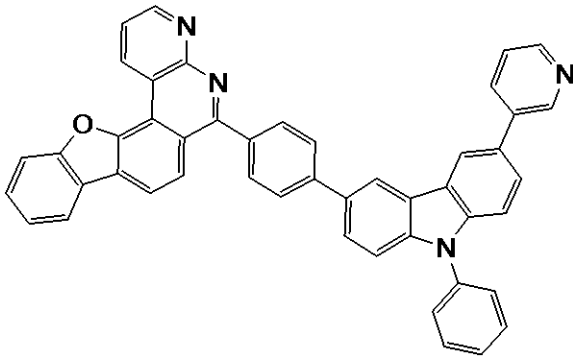
40

50

(化合物 - 59)

【0123】

【化69】

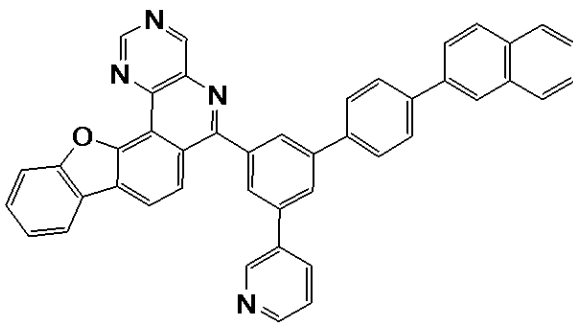


10

(化合物 - 60)

【0124】

【化70】

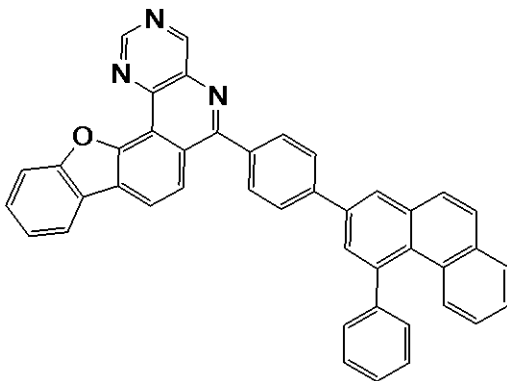


20

(化合物 - 61)

【0125】

【化71】



30

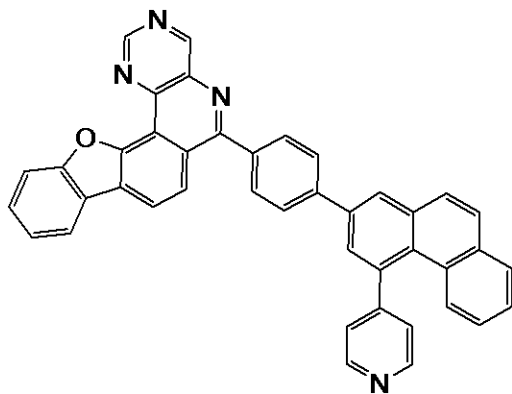
(化合物 - 62)

【0126】

40

50

【化72】

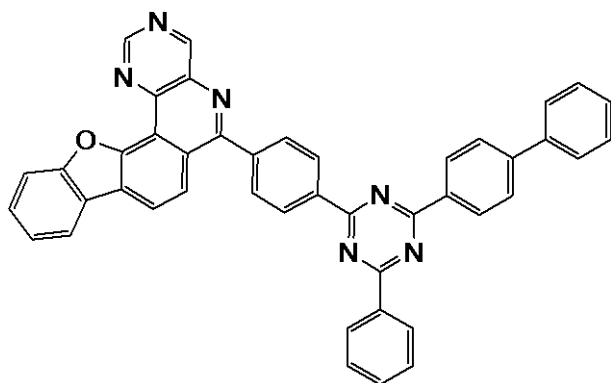


10

(化合物 - 63)

【0127】

【化73】

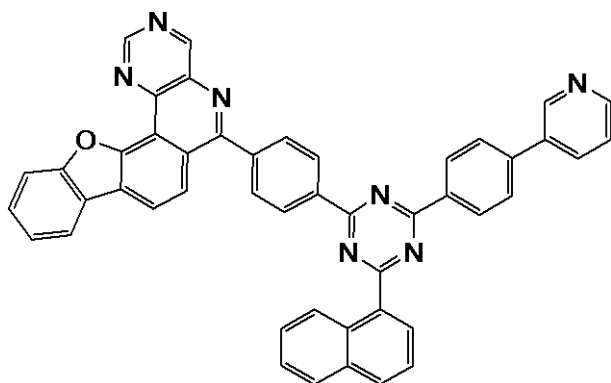


20

(化合物 - 64)

【0128】

【化74】



30

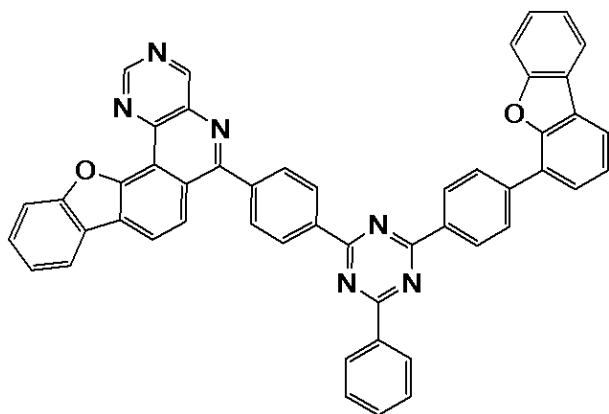
(化合物 - 65)

【0129】

40

50

【化 7 5】

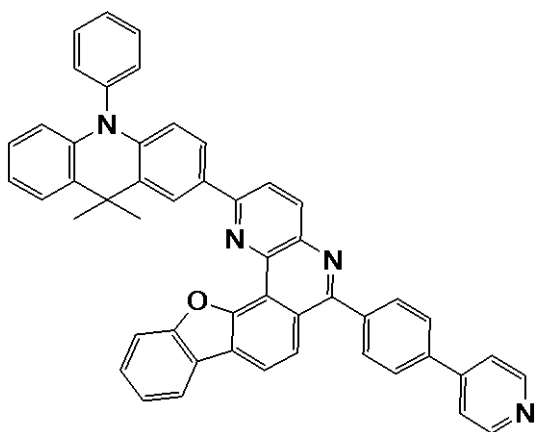


10

(化合物 - 6 6)

【0 1 3 0】

【化 7 6】

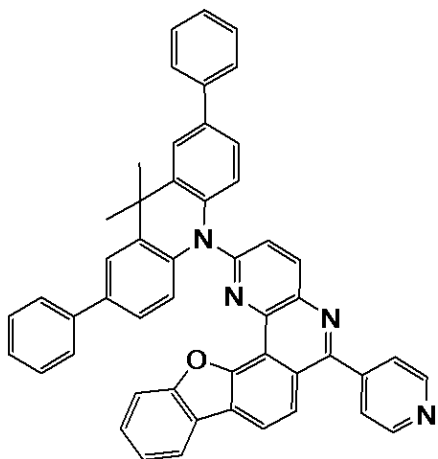


20

(化合物 - 6 7)

【0 1 3 1】

【化 7 7】



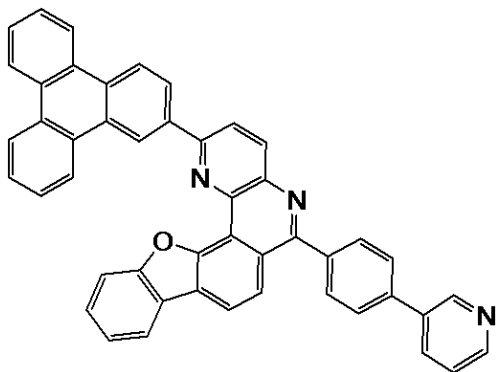
40

(化合物 - 6 8)

【0 1 3 2】

50

【化78】

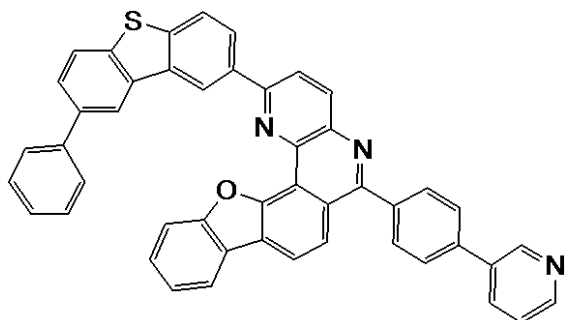


10

(化合物 - 69)

【0133】

【化79】

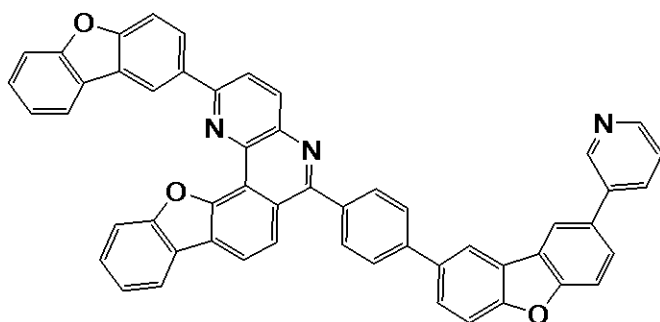


20

(化合物 - 70)

【0134】

【化80】

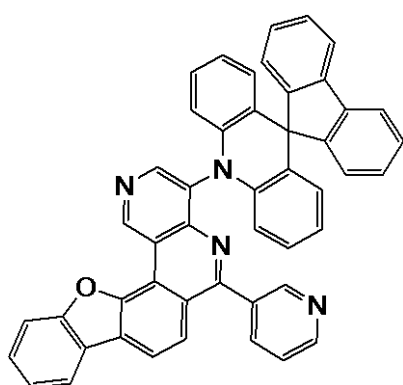


30

(化合物 - 71)

【0135】

【化81】



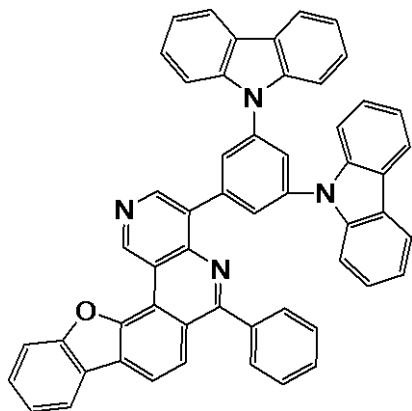
40

50

(化合物 - 72)

【0136】

【化82】

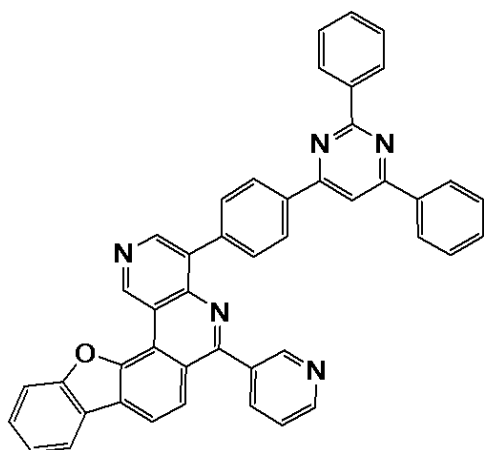


10

(化合物 - 73)

【0137】

【化83】

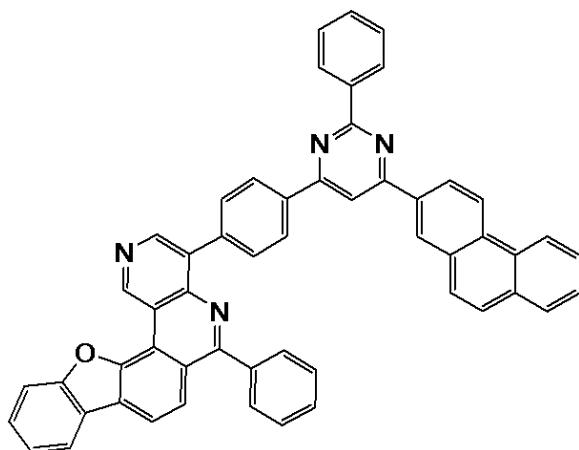


20

(化合物 - 74)

【0138】

【化84】



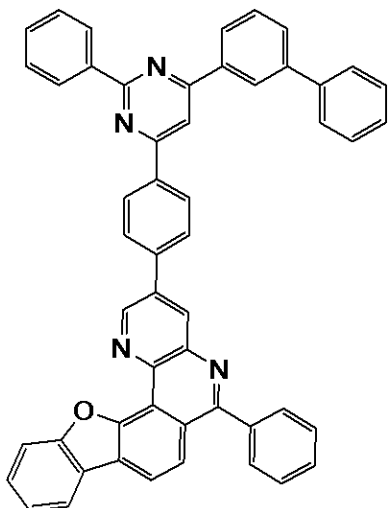
40

(化合物 - 75)

【0139】

50

【化 8 5】

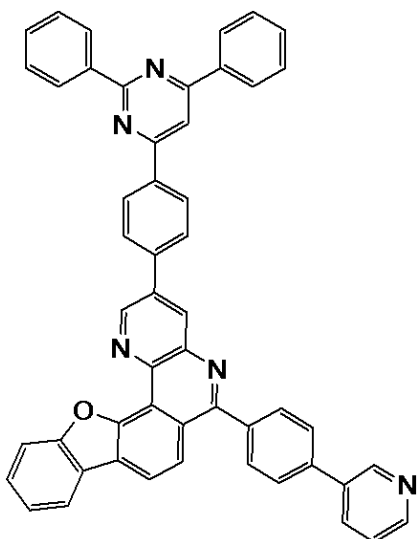


10

(化合物 - 7 6)

【0 1 4 0】

【化 8 6】



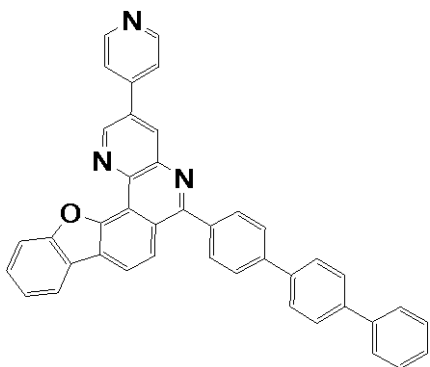
20

30

(化合物 - 7 7)

【0 1 4 1】

【化 8 7】



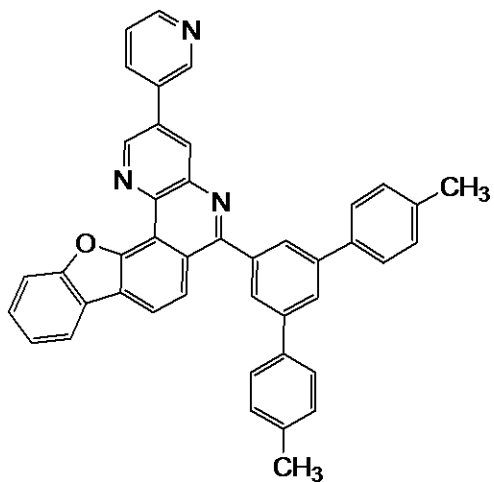
40

(化合物 - 7 8)

【0 1 4 2】

50

【化 8 8】

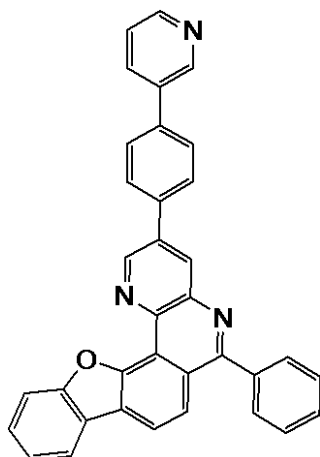


10

(化合物 - 7 9)

【 0 1 4 3】

【化 8 9】

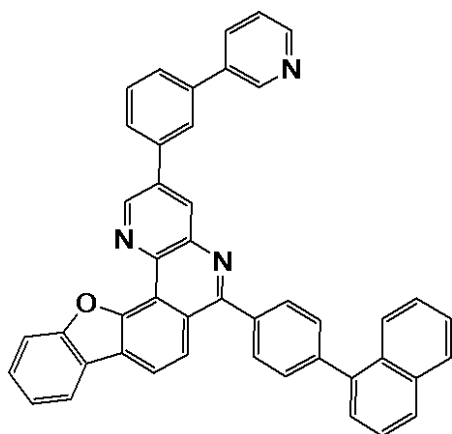


20

(化合物 - 8 0)

【 0 1 4 4】

【化 9 0】



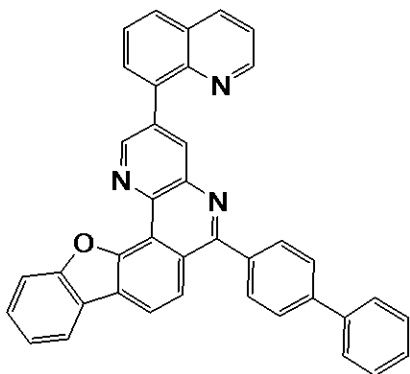
40

(化合物 - 8 1)

【 0 1 4 5】

50

【化 9 1】

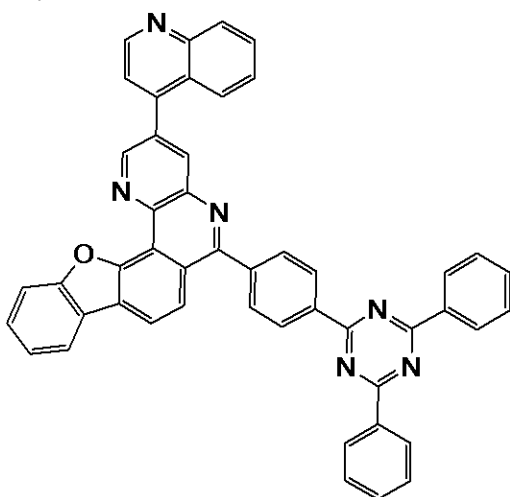


10

(化合物 - 8 2)

【 0 1 4 6 】

【化 9 2】

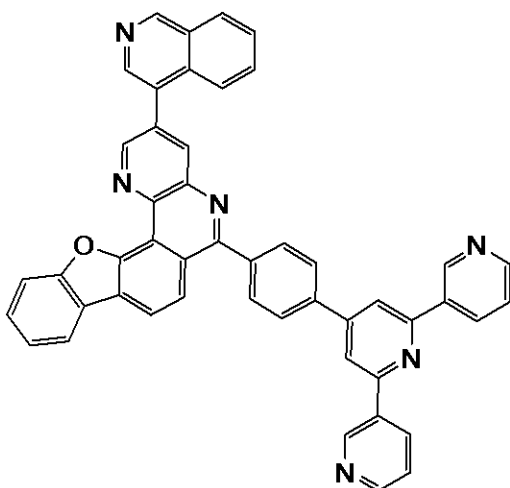


20

(化合物 - 8 3)

【 0 1 4 7 】

【化 9 3】



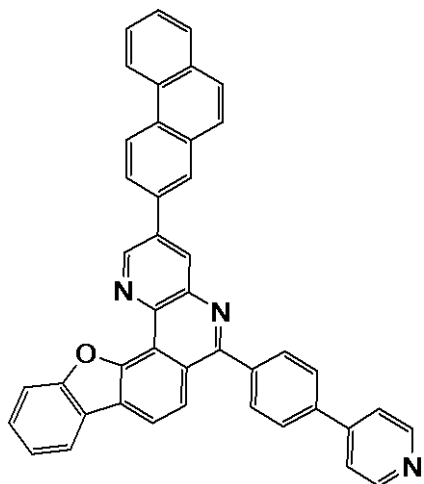
40

(化合物 - 8 4)

【 0 1 4 8 】

50

【化94】

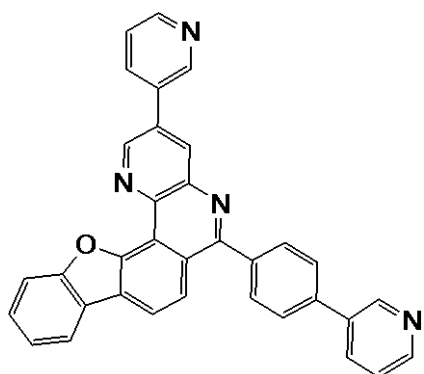


10

(化合物 - 85)

【0149】

【化95】

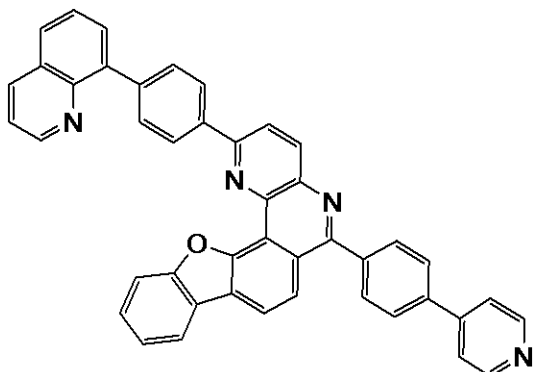


20

(化合物 - 86)

【0150】

【化96】



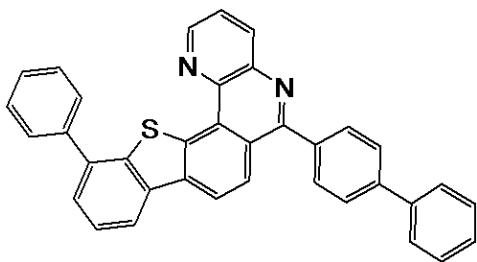
40

(化合物 - 87)

【0151】

50

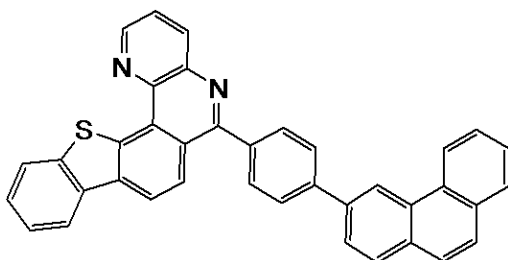
【化97】



(化合物 - 88)

【0152】

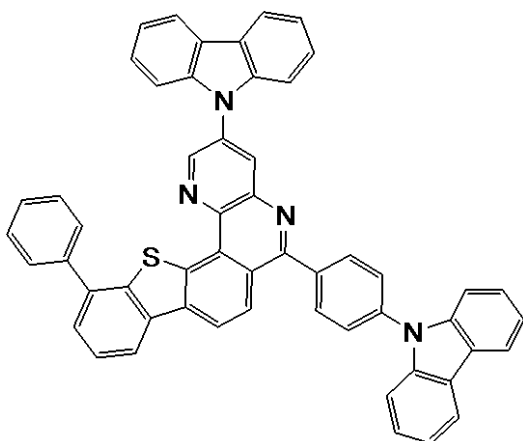
【化98】



(化合物 - 89)

【0153】

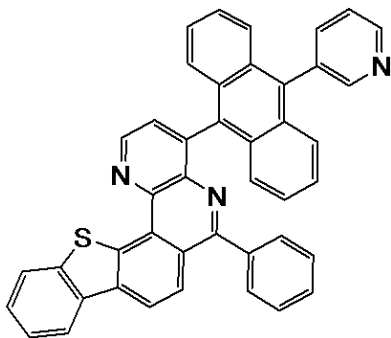
【化99】



(化合物 - 90)

【0154】

【化100】



(化合物 - 91)

【0155】

10

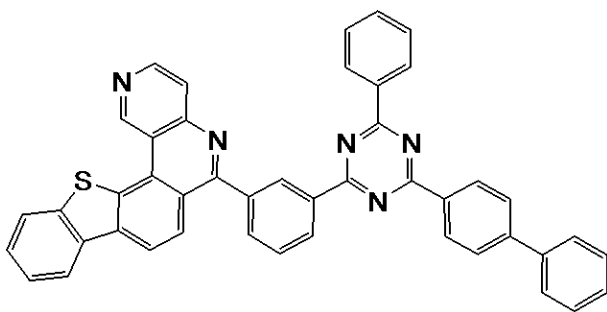
20

30

40

50

【化101】

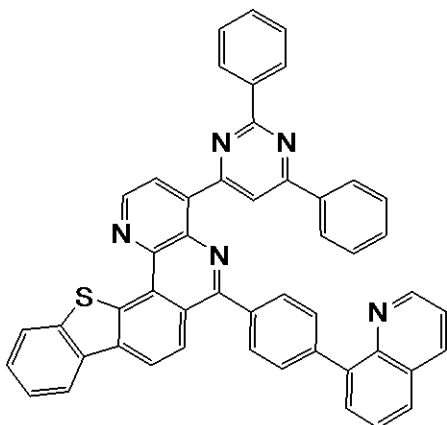


10

(化合物 - 92)

【0156】

【化102】

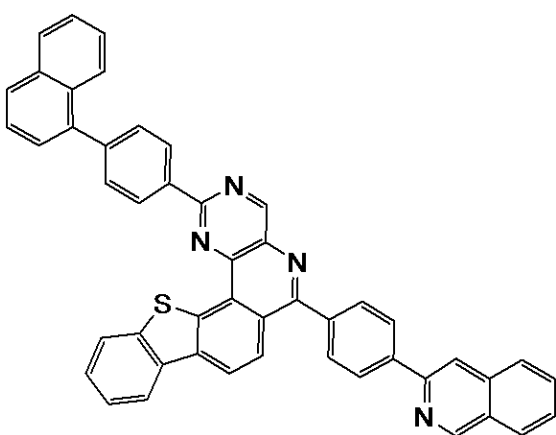


20

(化合物 - 93)

【0157】

【化103】



30

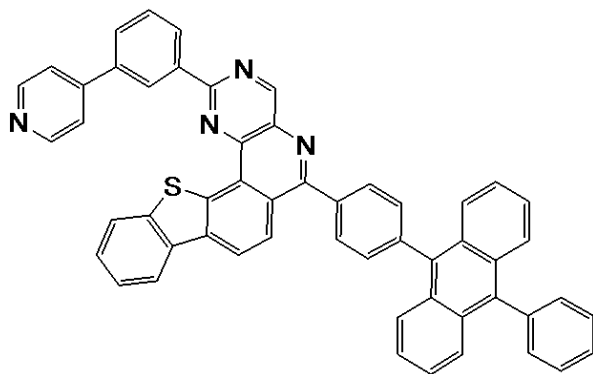
(化合物 - 94)

【0158】

40

50

【化104】

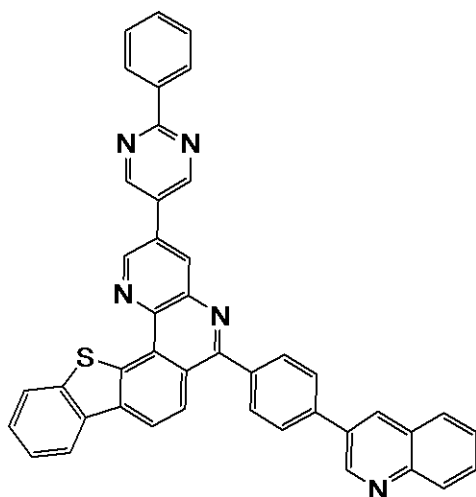


10

(化合物 - 95)

【0159】

【化105】

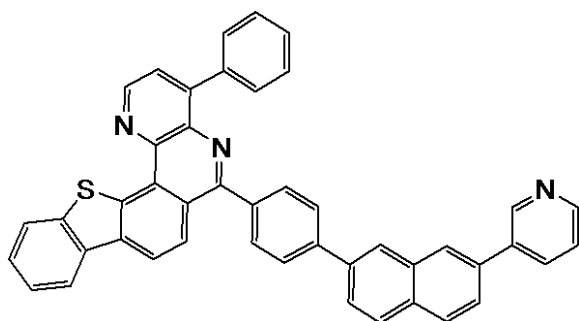


20

(化合物 - 96)

【0160】

【化106】



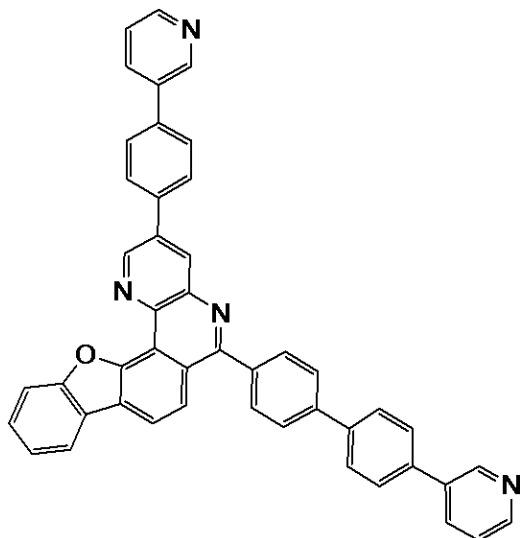
40

(化合物 - 97)

【0161】

50

【化 1 0 7】

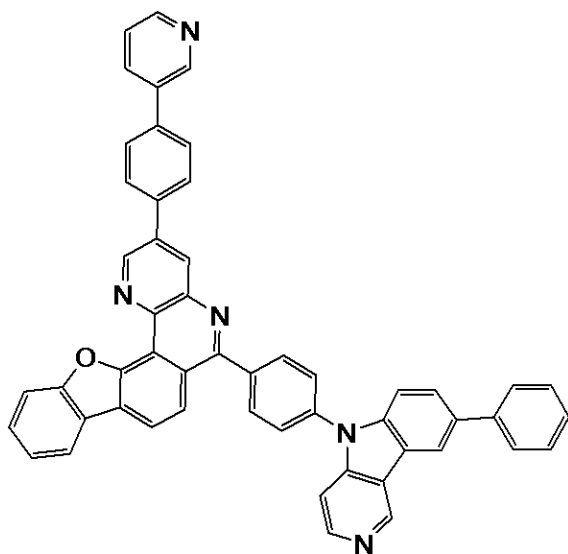


10

(化合物 - 9 8)

【 0 1 6 2】

【化 1 0 8】



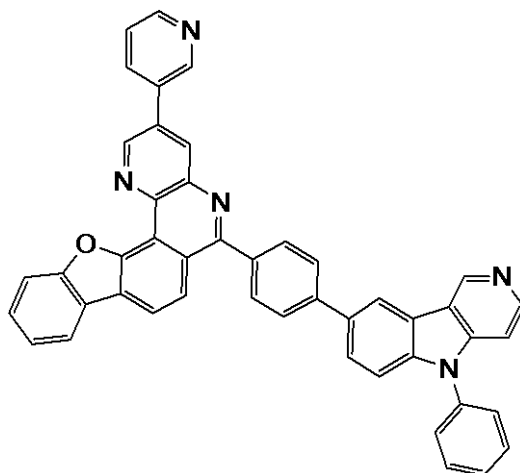
20

30

(化合物 - 9 9)

【 0 1 6 3】

【化 1 0 9】



40

50

(化合物 - 100)

【0164】

一般式(A-1)~(A-6)で表されるアザインデノ[1,2,c]フェナンスレン環構造を有する化合物の精製はカラムクロマトグラフによる精製、シリカゲル、活性炭、活性白土等による吸着精製、溶媒による再結晶や晶析法、昇華精製法などによって行った。化合物の同定は、NMR分析によって行なった。物性値として、融点、ガラス転移点(Tg)と仕事関数の測定を行った。融点は蒸着性の指標となるものであり、ガラス転移点(Tg)は薄膜状態の安定性の指標となり、仕事関数は正孔輸送性や正孔阻止性の指標となるものである。

【0165】

融点とガラス転移点(Tg)は、粉体を用いて高感度示差走査熱量計(ブルカー・エイエックスエス製、DSC3100SA)によって測定した。

【0166】

仕事関数は、ITO基板の上に100nmの薄膜を作製して、イオン化ポテンシャル測定装置(住友重機械工業株式会社製、PYS-202)によって求めた。

【0167】

本発明の有機EL素子の構造としては、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層及び陰極からなるもの、また、正孔輸送層と発光層の間に電子阻止層を有するもの、発光層と電子輸送層の間に正孔阻止層を有するものがあげられる。これらの多層構造においては有機層を何層か省略あるいは兼ねることが可能であり、例えば正孔注入層と正孔輸送層を兼ねた構成とすること、電子注入層と電子輸送層を兼ねた構成とすること、などもできる。また、同一の機能を有する有機層を2層以上積層した構成とすることが可能であり、正孔輸送層を2層積層した構成、発光層を2層積層した構成、電子輸送層を2層積層した構成、などもできる。

【0168】

本発明の有機EL素子の陽極としては、ITOや金のような仕事関数の大きな電極材料が用いられる。

【0169】

本発明の有機EL素子の正孔注入層として、銅フタロシアニンに代表されるポルフィリン化合物のほか、スターバースト型のトリフェニルアミン誘導体、分子中にトリフェニルアミン構造またはカルバゾリル構造を2個以上有し、それぞれが単結合またはヘテロ原子を含まない2価基で連結した構造を有するアリールアミン化合物などの他に、ヘキサシアノアザトリフェニレンのようなアクセプター性の複素環化合物や塗布型の高分子材料を用いることができる。これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0170】

本発明の有機EL素子の正孔輸送層として、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(以後、TPDと略称する)やN,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(p-ナフチル)-ベンジジン(以後、NPДと略称する)、N,N,N',N'-テトラピフェニルベンジジンなどのベンジジン誘導体、1,1-ビス[(ジ-4-トリルアミノ)フェニル]シクロヘキサン(以後、TAPCと略称する)、分子中にトリフェニルアミン構造またはカルバゾリル構造を2個以上有し、それぞれが単結合またはヘテロ原子を含まない2価基で連結した構造を有するアリールアミン化合物、例えば、N,N,N',N'-テトラピフェニルベンジジンなどを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。また、正孔の注入・輸送層として、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)(以後、PEDOTと略称する)/ポリ(スチレンスルフォネート)(以後、PSSと略称する)などの塗布型の高分子材料を用いることができる。これらの材料は蒸着法その他、スピコ

10

20

30

40

50

ート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0171】

また、正孔注入層あるいは正孔輸送層において、該層に通常使用される材料に対し、さらにトリスプロモフェニルアミンヘキサクロルアンチモン、ラジアレノ誘導体（例えば、特許文献5参照）をPドーピングしたのものや、TPDなどのベンジジン誘導体の構造をその部分構造に有する高分子化合物などを用いることができる。

【0172】

本発明の有機EL素子の電子阻止層として、4, 4', 4''-トリ(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン（以後、TC TAと略称する）、9, 9-ビス[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]フルオレン、1, 3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン（以後、mCPと略称する）、2, 2-ビス(4-カルバゾール-9-イルフェニル)アダマンタン（以後、Ad-Czと略称する）などのカルバゾール誘導体、9-[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]-9-[4-(トリフェニルシリル)フェニル]-9H-フルオレンに代表されるトリフェニルシリル基とトリアリールアミン構造を有する化合物などの電子阻止作用を有する化合物を用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0173】

本発明の有機EL素子の発光層として、本発明のアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物のほか、Alq₃をはじめとするキノリノール誘導体の金属錯体、各種の金属錯体、アントラセン誘導体、ビスチリルベンゼン誘導体、ピレン誘導体、オキサゾール誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体などを用いることができる。また、発光層をホスト材料とドーパント材料とで構成してもよく、ホスト材料として、アントラセン誘導体が好ましく用いられるが、そのほか、本発明のアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物を初めとする前記発光材料に加え、インドール環を縮合環の部分構造として有する複素環化合物、カルバゾール環を縮合環の部分構造として有する複素環化合物、カルバゾール誘導体、チアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ポリジアルキルフルオレン誘導体などを用いることができる。またドーパント材料としては、キナクリドン、クマリン、ルブレン、ペリレンおよびそれらの誘導体、ベンゾピラン誘導体、ローダミン誘導体、アミノスチリル誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜してもよいが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用してもよく、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としてもよい。

【0174】

また、発光材料として燐光発光体を使用することも可能である。燐光発光体としては、イリジウムや白金などの金属錯体の燐光発光体を使用することができる。Ir(ppy)₃などの緑色の燐光発光体、FIrpic、FIr6などの青色の燐光発光体、Btp₂Ir(acac)などの赤色の燐光発光体などが用いられ、このときのホスト材料としては正孔注入・輸送性のホスト材料として4, 4'-ジ(N-カルバゾリル)ピフェニル（以後、CBPと略称する）やTC TA、mCPなどのカルバゾール誘導体などに加え、ピリドインドール環構造を有する化合物を用いることができる。電子輸送性のホスト材料として、p-ビス(トリフェニルシリル)ベンゼン（以後、UGH₂と略称する）や2, 2', 2''-(1, 3, 5-フェニレン)-トリス(1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール)（以後、TPBIと略称する）や本発明のアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造などを用いることができ、高性能の有機EL素子を作製することができる。

【0175】

10

20

30

40

50

燐光性の発光材料のホスト材料へのドーピングは濃度消光を避けるため、発光層全体に対して1～30重量パーセントの範囲で、共蒸着によってドーピングすることが好ましい。

【0176】

また、発光材料としてPIC-TRZ、CC2TA、PXZ-TRZ、4CzIPNなどのCDCB誘導体などの遅延蛍光を放射する材料を使用することも可能である。(例えば、非特許文献3参照)これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0177】

本発明の有機EL素子の正孔阻止層として、本発明のアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物のほか、バソクプロイン(以後、BCPと略称する)などのフェナントロリン誘導体や、アルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリナート)-4-フェニルフェノレート(以後、BA1qと省略する)などのキノリノール誘導体の金属錯体、各種の希土類錯体、オキサゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ピリミジン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ベンゾアゾール誘導体など、正孔阻止作用を有する化合物を用いることができる。これらの材料は電子輸送層の材料を兼ねてもよい。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0178】

本発明の有機EL素子の電子輸送層として、本発明のアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物のほか、Alq₃、BA1qをはじめとするキノリノール誘導体の金属錯体、各種金属錯体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ピリミジン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピリジン誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンゾアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、アントラセン誘導体、カルボジイミド誘導体、キノキサリン誘導体、ピリドインドール誘導体、フェナントロリン誘導体、シロール誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0179】

本発明の有機EL素子の電子注入層として、本発明のアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物のほか、フッ化リチウム、フッ化セシウムなどのアルカリ金属塩、フッ化マグネシウムなどのアルカリ土類金属塩、リチウムキノリノールなどのキノリノール誘導体の金属錯体、酸化アルミニウムなどの金属酸化物、あるいはイッテルビウム(Yb)、サマリウム(Sm)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)、セシウム(Cs)などの金属などを用いることができるが、電子輸送層と陰極の好ましい選択においては、これを省略することができる。

【0180】

さらに、電子注入層あるいは電子輸送層において、該層に通常使用される材料に対し、セシウムなどの金属をNドーピングしたものをを用いることができる。

【0181】

本発明の有機EL素子の陰極として、アルミニウムのような仕事関数の低い電極材料や、マグネシウム銀合金、マグネシウムカルシウム合金、マグネシウムインジウム合金、アルミニウムマグネシウム合金のような、より仕事関数の低い合金やITO、IZOなどが電極材料として用いられる。

【0182】

以下、本発明の実施の形態について、実施例により具体的に説明するが、本発明はその要

10

20

30

40

50

旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

【実施例 1】

【0183】

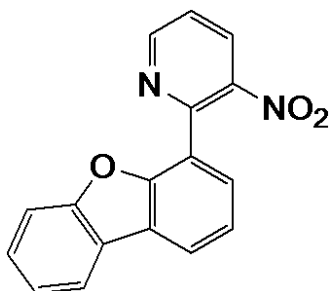
< 6 - { 4 - (10 - フェニル - アントラセン - 9 - イル) フェニル } - 13 - オキサ - 1, 5 - ジアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン (化合物 - 6) の合成 >

反応容器に 2 - クロロ - 3 - ニトロピリジン : 15.0 g、ジベンゾフラン - 4 - ボロン酸 : 21.0 g、トルエン : 105 mL、エタノール : 26 mL を仕込み、続いて、予め炭酸カリウム : 15.7 g を H₂O : 56 mL に溶解した水溶液を加えて 30 分間超音波を照射しながら窒素ガスを通気した。テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム : 2.2 g を加えて加熱還流下にて一晩撹拌した。放冷した後、酢酸エチルを系内に加えて抽出操作を行い、有機層を濃縮して粗製物を得た。この粗製物に n - ヘプタンを加えて析出した固体を濾過して取り出すことで、2 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) - 3 - ニトロピリジン (中間体 - 1) 27.5 g (収率 100%) を得た。

10

【0184】

【化 110】



20

(中間体 - 1)

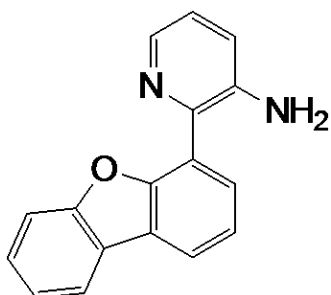
【0185】

続いて、反応容器に 2 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) - 3 - ニトロピリジン (中間体 - 1) : 27.5 g、鉄粉 : 24.9 g、エタノール : 410 mL を仕込み、塩化アンモニウム水 : 200 mL を加えて加熱還流下にて一晩撹拌した。放冷した後、濾過して得た濾液にジクロロメタンを加えて抽出操作を行い、有機層を濃縮することで、3 - アミノ - 2 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) - ピリジン (中間体 - 2) 22.5 g (収率 92%) を得た。

30

【0186】

【化 111】



40

(中間体 - 2)

【0187】

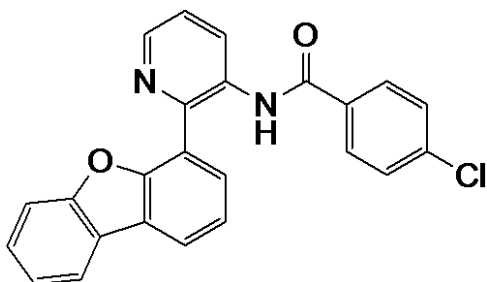
続いて、反応容器に 3 - アミノ - 2 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) - ピリジン (中間体 - 2) : 22.5 g、トリエチルアミン : 9.6 g、ジクロロメタン : 225 mL を仕込み、氷冷撹拌した系内に、予め 4 - クロロベンゾイルクロライド : 16.6 g をジクロロメタン : 160 mL に溶解した溶液を滴下した。反応温度を室温まで上げた後、一晩撹拌した。反応系内に、H₂O を加えて抽出操作を行い、有機層を濃縮して粗製物を得た。こ

50

の粗製物に *n*-ヘプタンを加えて析出した固体を濾過して取り出すことで、4-クロロ-N- { 2 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) - ピリジン - 3 - イル } - ベンズアミド (中間体 - 3) 34.0 g (収率 98%) を得た。

【0188】

【化112】



10

(中間体 - 3)

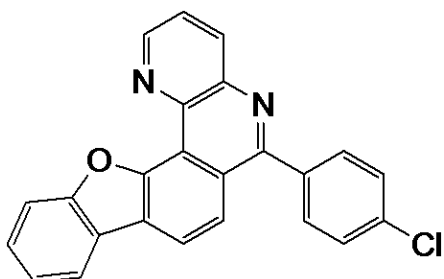
【0189】

続いて、反応容器に 4-クロロ-N- { 2 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) - ピリジン - 3 - イル } - ベンズアミド (中間体 - 3) : 15.0 g、塩化ホスホリル : 17.3 g、1,2-ジクロロベンゼンを仕込み、12 N 塩酸 : 2 ml を加えて 140 にて一晩攪拌した。放冷した後、NaOH 水溶液を加えて中和した。抽出操作を行い、有機層を濃縮して粗製物を得た。この粗製物にメタノールを加えて析出した固体を濾過して取り出すことで、6 - (4 - クロロ - フェニル) - 13 - オキサ - 1,5 - ジアザインデノ [1,2, c] フェナンスレン (中間体 - 4) 6.0 g (収率 42%) を得た。

20

【0190】

【化113】



30

(中間体 - 4)

【0191】

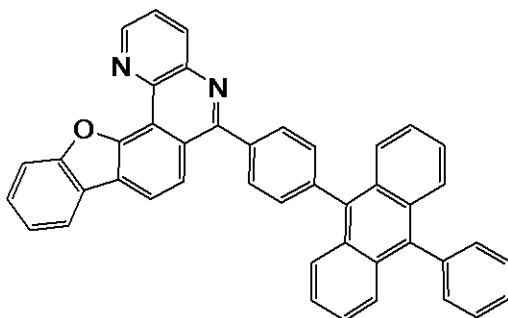
続いて、反応容器に 6 - (4 - クロロ - フェニル) - 13 - オキサ - 1,5 - ジアザインデノ [1,2, c] フェナンスレン (中間体 - 4) : 8.1 g、9 - (10 - フェニル) アントラセンボロン酸 : 7.6 g、トルエン : 56 mL、エタノール : 14 mL を仕込み、続いて、予め炭酸カリウム : 5.9 g を H₂O : 21 mL に溶解した水溶液を加えて 30 分間超音波を照射しながら窒素ガスを通気した。テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム : 0.7 g を加えて加熱還流下にて 2 日間攪拌した。放冷した後、酢酸エチルを系内に加えて抽出操作を行い、有機層を濃縮して粗製物を得た。この粗製物をジクロロメタン / 酢酸エチル混合溶媒を用いて、カラムクロマトグラフィーによる精製を行うことで、6 - { 4 - (10 - フェニル - アントラセン - 9 - イル) フェニル } - 13 - オキサ - 1,5 - ジアザインデノ [1,2, c] フェナンスレン (化合物 - 6) の黄色粉体 4.2 g (収率 33%) を得た。

40

【0192】

50

【化 1 1 4】



(化合物 - 6)

【0 1 9 3】

得られた黄色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl₃) で以下の26個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.39 (1H)、8.74 (1H)、8.46 (2H)、8.22 (1H)、8.11 (2H)、8.09 (1H)、7.95 (2H)、7.88 (1H)、7.82 - 7.74 (4H)、7.72 - 7.59 (4H)、7.55 (3H)、7.44 (4H)。

【実施例 2】

【0 1 9 4】

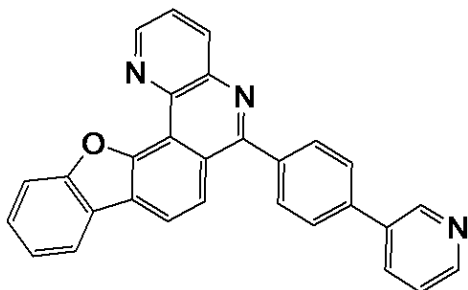
< 6 - { 4 - (ピリジン - 3 - イル) フェニル } - 1 3 - オキサ - 1 , 5 - ジアザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン (化合物 - 1 3) の合成 >

反応容器に 6 - (4 - クロロ - フェニル) - 1 3 - オキサ - 1 , 5 - ジアザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン (中間体 - 4) : 6 . 0 g、3 - ピリジルボロン酸 : 2 . 3 g、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) : 0 . 3 g、トリシクロヘキシルホスフィン : 0 . 4 g、リン酸三カリウム : 1 0 . 0 g を仕込み、1 , 4 - ジオキサソ / H₂O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。

放冷した後、メタノールを加えて析出した固体を採取して粗製物を得た。粗製物をモノクロロベンゼンにて再結晶精製を行うことによって、6 - { 4 - (ピリジン - 3 - イル) フェニル } - 1 3 - オキサ - 1 , 5 - ジアザインデノ [1 , 2 , c] フェナンスレン (化合物 - 1 3) の白色粉体 3 . 2 g (収率 4 7 %) を得た。

【0 1 9 5】

【化 1 1 5】



(化合物 - 1 3)

【0 1 9 6】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl₃) で以下の17個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.35 (1H)、9.01 (1H)、8.69 (1H)、8.62 (1H)、8.28 (2H)、8.16 (1H)、8.05 (1H)、8.03 (1H)、7.91 (4H)、7.83 (1H)、7.66 (1H)、7.51 (1H)、7.47 (1H)。

10

20

30

40

50

【実施例 3】

【0197】

一般式(A-1)で表されるアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物について、高感度示差走査熱量計(ブルカー・エイエックスエス製、DSC3100SA)によって融点とガラス転移点を測定した。

融点	ガラス転移点	
実施例1の化合物	364	184
実施例2の化合物	278	111

【0198】

一般式(A-1)で表されるアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物は100以上のガラス転移点を有しており、薄膜状態が安定であることを示すものである。

10

【実施例 4】

【0199】

一般式(A-1)で表されるアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物を用いて、ITO基板の上に膜厚100nmの蒸着膜を作製して、イオン化ポテンシャル測定装置(住友重機械工業株式会社製、PYS-202)によって仕事関数を測定した。

仕事関数

実施例1の化合物	6.02 eV
実施例2の化合物	6.62 eV

20

【0200】

一般式(A-1)で表されるアザインデノ[1, 2, c]フェナンスレン環構造を有する化合物はAlq₃などの一般的な電子輸送材料がもつ仕事関数5.8~6.0eVと比較して、好適なエネルギー準位を示しており、良好な電子輸送能力を有していることが分かる。

【実施例 5】

【0201】

有機EL素子は、図1に示すように、ガラス基板1上に透明陽極2としてITO電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、正孔阻止層6、電子輸送層7、電子注入層8、陰極(アルミニウム電極)9の順に蒸着して作製した。

30

【0202】

具体的には、膜厚50nmのITOを成膜したガラス基板1をイソプロピルアルコール中にて超音波洗浄を20分間行った後、200に加熱したホットプレート上にて10分間乾燥を行った。その後、UVオゾン処理を15分間行った後、このITO付きガラス基板を真空蒸着機内に取り付け、0.001Pa以下まで減圧した。続いて、透明陽極2を覆うように正孔注入層3として、下記構造式の電子アクセプター(Acceptor-1)と下記構造式の化合物(HTM-1)を、蒸着速度比がAcceptor-1:HTM-1=3:97となる蒸着速度で二元蒸着を行い、膜厚10nmとなるように形成した。この正孔注入層3の上に、正孔輸送層4として下記構造式の化合物(HTM-1)を膜厚60nmとなるように形成した。この正孔輸送層4の上に、発光層5として下記構造式の化合物(EMD-1)と下記構造式の化合物(EMH-1)を、蒸着速度比がEMD-1:EMH-1=5:95となる蒸着速度で二元蒸着を行い、膜厚20nmとなるように形成した。この発光層5の上に、正孔阻止層兼電子輸送層6および7として本発明実施例1の化合物(化合物-6)と下記構造式の化合物(ETM-1)を、蒸着速度比が本発明実施例1の化合物-6:ETM-1=50:50となる蒸着速度で二元蒸着を行い、膜厚30nmとなるように形成した。この正孔阻止層兼電子輸送層6および7の上に、電子注入層8としてフッ化リチウムを膜厚1nmとなるように形成した。最後に、アルミニウムを100nm蒸着して陰極9を形成した。作製した有機EL素子について、大気中、常温で特性測定を行った。作製した有機EL素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表1にまとめて

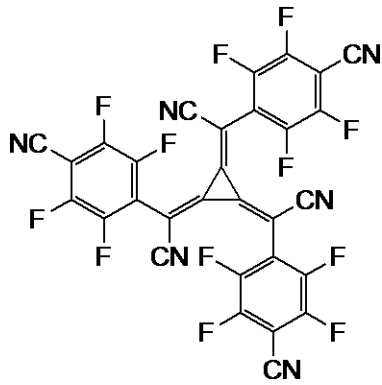
40

50

示した。

【 0 2 0 3 】

【 化 1 1 6 】

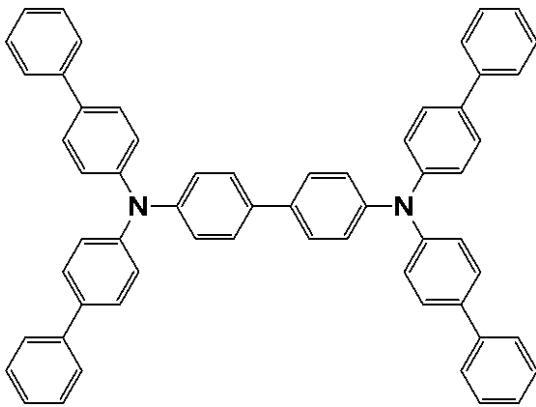


10

(Acceptor - 1)

【 0 2 0 4 】

【 化 1 1 7 】

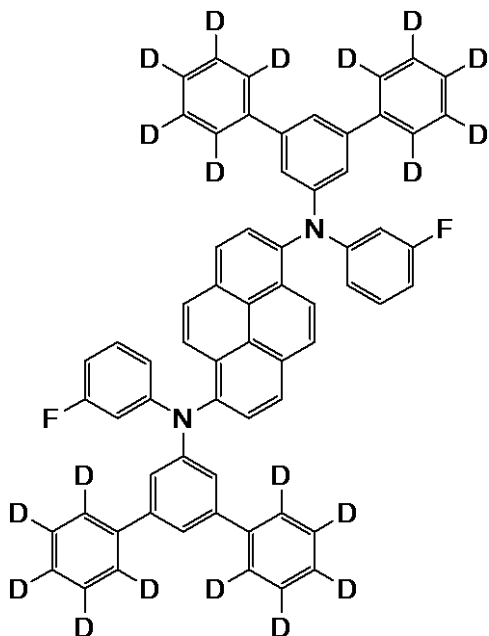


20

(H T M - 1)

【 0 2 0 5 】

【 化 1 1 8 】



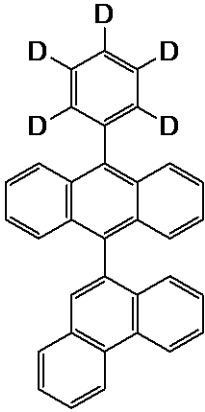
40

(E M D - 1)

【 0 2 0 6 】

50

【化 1 1 9】

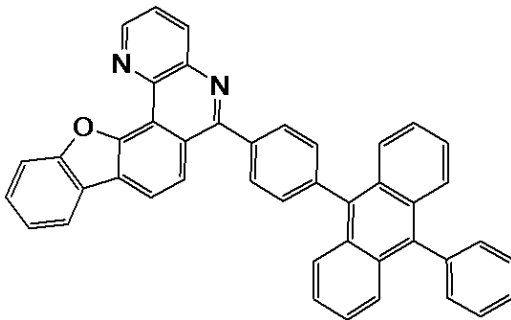


10

(E M H - 1)

【 0 2 0 7 】

【化 1 2 0】

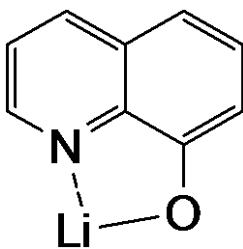


20

(化合物 - 6)

【 0 2 0 8 】

【化 1 2 1】



30

(E T M - 1)

【 実施例 6 】

【 0 2 0 9 】

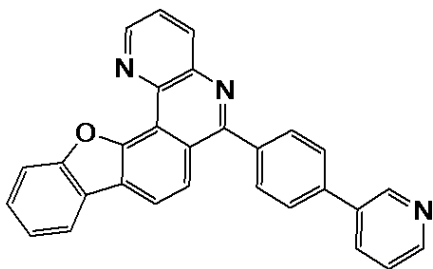
実施例 5 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 6) に代えて実施例 2 の化合物 (化合物 - 1 3) を用い、蒸着速度比が (化合物 - 1 3) : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

【 0 2 1 0 】

50

【化 1 2 2】



(化合物 - 1 3)

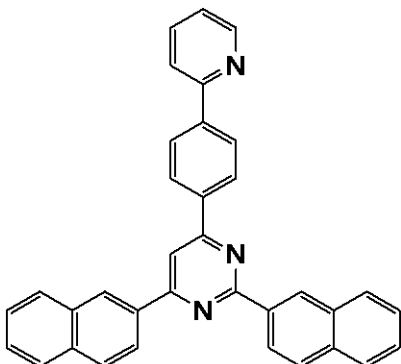
【0 2 1 1】

[比較例 1]

比較のために、実施例 5 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 6) に代えて、下記構造式の化合物 (ETM - 2) (例えば、特許文献 6 参照) を用い、蒸着速度比が ETM - 2 : ETM - 1 = 50 : 50 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 EL 素子を作製した。作製した有機 EL 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 EL 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

【0 2 1 2】

【化 1 2 3】



(ETM - 2)

【0 2 1 3】

[比較例 2]

比較のために、実施例 5 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 6) に代えて、下記構造式の化合物 (ETM - 3) (例えば、特許文献 7 参照) を用い、蒸着速度比が ETM - 3 : ETM - 1 = 50 : 50 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 EL 素子を作製した。作製した有機 EL 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 EL 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

【0 2 1 4】

10

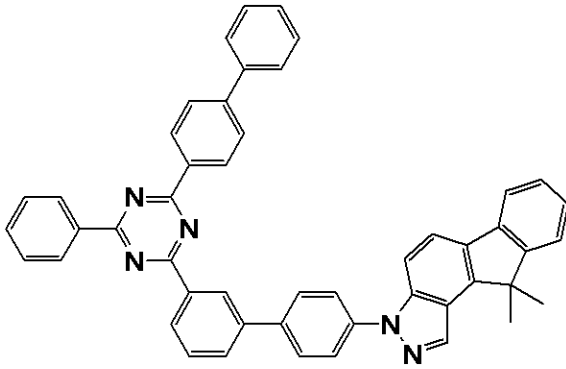
20

30

40

50

【化 1 2 4】



10

(E T M - 3)

【 0 2 1 5 】

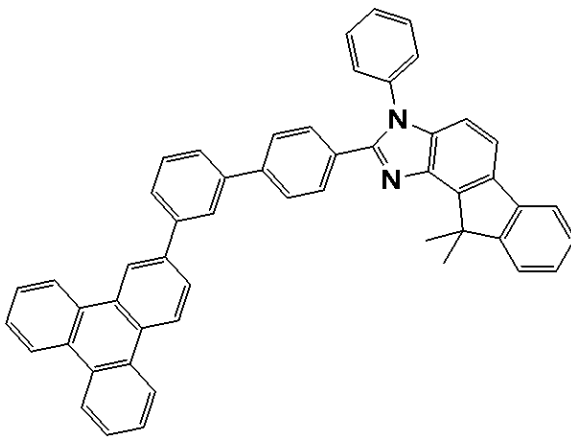
[比較例 3]

比較のために、実施例 5 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 6) に代えて、下記構造式の化合物 (E T M - 4) (例えば、特許文献 7 参照) を用い、蒸着速度比が E T M - 4 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

【 0 2 1 6 】

【 化 1 2 5 】



30

(E T M - 4)

【 0 2 1 7 】

実施例 5 ~ 6 および比較例 1 ~ 3 で作製した有機 E L 素子を用いて、素子寿命を測定した結果を表 1 にまとめて示した。素子寿命は、発光開始時の発光輝度 (初期輝度) を 2 0 0 0 c d / m 2 として定電流駆動を行った時、発光輝度が 1 9 0 0 c d / m 2 (初期輝度を 1 0 0 % とした時の 9 5 % に相当 : 9 5 % 減衰) に減衰するまでの時間として測定した。

40

【 0 2 1 8 】

50

【表 1】

	正孔阻止層兼 電子輸送層	電圧[V] (@10mA/cm ²)	輝度[cd/m ²] (@10mA/cm ²)	発光効率[cd/A] (@10mA/cm ²)	電力効率[lm/W] (@10mA/cm ²)	素子寿命 95%減衰
実施例5	化合物-6/ ETM-1	3.47	891	8.93	8.09	127時間
実施例6	化合物-13/ ETM-1	3.55	897	8.98	7.96	115時間
比較例1	ETM-2/ ETM-1	3.66	753	7.53	6.45	43時間
比較例2	ETM-3/ ETM-1	3.76	695	6.95	5.80	65時間
比較例3	ETM-4/ ETM-1	3.81	762	7.62	6.28	63時間

【0219】

表 1 に示す様に、電流密度 10 mA / cm² の電流を流したときの駆動電圧は、前記構造式の化合物 ETM - 2 ~ 4 を用いた比較例 1 ~ 3 の有機 EL 素子の 3.66 ~ 3.81 V に対し、実施例 5 ~ 6 の有機 EL 素子では 3.47 ~ 3.55 V と低電圧化した。また、発光効率においては、比較例 1 ~ 3 の有機 EL 素子の 6.95 ~ 7.62 cd / A に対し、実施例 5 ~ 6 の有機 EL 素子では 8.93 ~ 8.98 cd / A と向上し、電力効率においても、比較例 1 ~ 3 の有機 EL 素子の 5.80 ~ 6.45 lm / W に対し、実施例 5 ~ 6 の有機 EL 素子では 7.96 ~ 8.09 lm / W と大きく向上した。特に、素子寿命 (95% 減衰) においては、比較例 1 ~ 3 の有機 EL 素子における 43 ~ 65 時間に対し、実施例 5 ~ 6 の有機 EL 素子では 115 ~ 127 時間と、大きく長寿命化している。

【0220】

このように本発明の有機 EL 素子は、前記構造式の化合物 (ETM - 2 ~ 4) を用いた素子と比較して、発光効率および電力効率に優れており、長寿命の有機 EL 素子を実現できることがわかった。

【産業上の利用可能性】

【0221】

本発明の、特定のアザインデノ [1, 2, c] フェナンスレン環構造を有する化合物は、電子の注入特性が良く、電子輸送能力に優れており、薄膜状態が安定であるため、有機 EL 素子用の化合物として優れている。該化合物を用いて有機 EL 素子を作製することにより、高い効率を得ることができると共に、駆動電圧を低下させることができ、耐久性を改善させることができる。例えば、家庭電化製品や照明の用途への展開が可能となった。

【符号の説明】

【0222】

- 1 ガラス基板
- 2 透明陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 正孔阻止層
- 7 電子輸送層
- 8 電子注入層
- 9 陰極

10

20

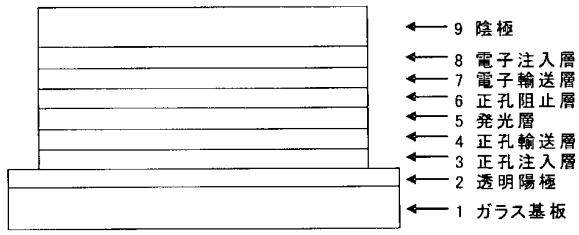
30

40

50

【図面】

【図 1】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (74)代理人 100168745
弁理士 金子 彩子
- (74)代理人 100176131
弁理士 金山 慎太郎
- (74)代理人 100197398
弁理士 千葉 絢子
- (74)代理人 100197619
弁理士 白鹿 智久
- (72)発明者 加瀬 幸喜
東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内
- (72)発明者 金 是仁
東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内
- (72)発明者 平山 雄太
東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内
- 審査官 阿久津 江梨子
- (56)参考文献 米国特許出願公開第2017/0133601 (US, A1)
国際公開第2016/064088 (WO, A2)
特表2017-523156 (JP, A)
韓国公開特許第10-2016-0007438 (KR, A)
国際公開第2017/095100 (WO, A1)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
C07D 491/147
C09K 11/06
H01L 51/50
CAplus/REGISTRY (STN)