

(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
2020年2月27日(27.02.2020)



(10) 国際公開番号

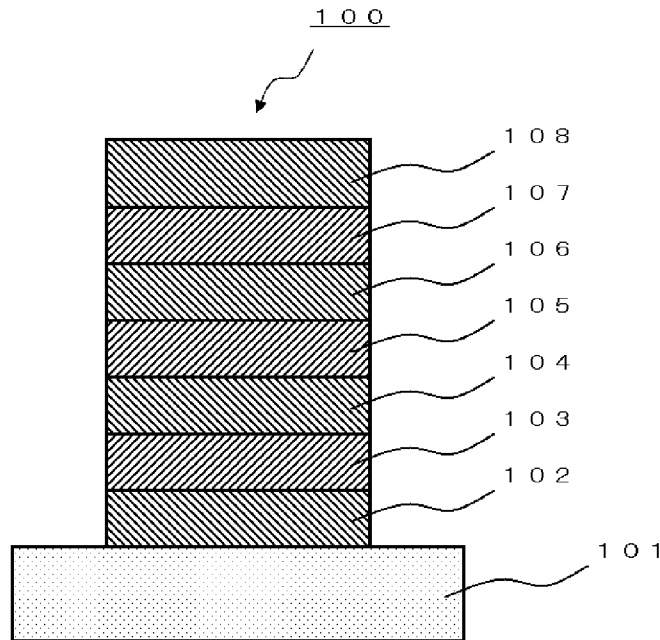
WO 2020/040298 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) *G09F 9/30* (2006.01) 番 1 5 5 号 Hyogo (JP). J N C 株式会社(JNC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008105 東京都千代田区大手町二丁目2番1号 Tokyo (JP).
C09K 11/06 (2006.01) *H01L 27/32* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2019/033069 (72) 発明者: 畠山 琢次 (HATAKEYAMA Takuji); 〒6691337 兵庫県三田市学園2丁目1番地 関西学院大学理工学部内 Hyogo (JP). 近藤 靖宏 (KONDO Yasuhiro); 〒2908551 千葉県市原市五井海岸5番地の1 J N C 石油化学株式会社 市原研究所内 Chiba (JP). 笹田 康幸 (SASADA Yasuyuki); 〒2908551 千葉県市原市五井海岸5番地の1 J N C 石油化学株式会社 市原研究所内 Chiba (JP). 梁井 元樹 (YANAI Motoki); 〒2908551 千葉県市原市
- (22) 国際出願日: 2019年8月23日(23.08.2019)
- (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 2018-156720 2018年8月23日(23.08.2018) JP
 特願 2018-215107 2018年11月15日(15.11.2018) JP
- (71) 出願人: 学校法人 関西学院 (KWANSEI GAKUIN EDUCATIONAL FOUNDATION) [JP/JP]; 〒6628501 兵庫県西宮市上ヶ原一番町1

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, DISPLAY DEVICE, ILLUMINATION DEVICE, LUMINESCENT LAYER FORMING COMPOSITION, AND COMPOUND

(54) 発明の名称: 有機電界発光素子、表示装置、照明装置、発光層形成用組成物、および化合物

[図4]



(57) Abstract: Disclosed is an organic electroluminescent element having a luminescent layer that comprises a host compound as a first component, a thermally-activated delayed fluorescence substance as a second component, and a boron-atom-containing compound as a third component, wherein the following relational formula is satisfied: (Excited singlet energy level determined from shoulder on peak short wavelength side of fluorescence spectrum of first component)



WO 2020/040298 A1

五井海岸 5 番地の 1 JNC 石油化学株式会社 市原研究所内 Chiba (JP).

(74) 代理人:特許業務法人特許事務所サイクス(SIKS & CO.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目 8 番 7 号 京橋日殖ビル 8 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

\geq (Excited singlet energy level determined from shoulder on peak short wavelength side of fluorescence spectrum of second component) \geq (Excited singlet energy level determined from shoulder on peak short wavelength side of fluorescence spectrum of third component).

(57) 要約: 第 1 成分としてホスト化合物、第 2 成分として熱活性化型遅延蛍光体および第 3 成分としてホウ素原子を有する化合物を含む発光層を有する有機電界発光素子であって、(第 1 成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位) \geq (第 2 成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位) \geq (第 3 成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位) の関係式を満たす有機電界発光素子。

明 細 書

発明の名称：

有機電界発光素子、表示装置、照明装置、発光層形成用組成物、および化合物

技術分野

[0001] 本発明は、ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物を含む有機電界発光素子、およびその有機電界発光素子を備えた表示装置および照明装置に関する。また本発明は、有機電界発光素子の発光層形成用組成物、および化合物にも関する。

背景技術

[0002] 従来、電界発光する発光素子を用いた表示装置は、省電力化や薄型化が可能なことから、種々研究され、さらに、有機材料からなる有機電界発光素子（有機EL素子）は、軽量化や大型化が容易なことから活発に検討されてきた。特に、光の三原色の1つである青色などの発光特性を有する有機材料の開発、および正孔、電子などの電荷輸送能を備えた有機材料の開発については、高分子化合物、低分子化合物を問わずこれまで活発に研究されてきた。

[0003] 有機電界発光素子は、陽極および陰極からなる一对の電極と、当該一对の電極間に配置され、有機化合物を含む一層または複数の層とからなる構造を有する。有機化合物を含む層には、発光層や、正孔、電子などの電荷を輸送または注入する電荷輸送／注入層などがあるが、これらの層に適当な種々の有機材料が開発されている。

[0004] 有機電界発光素子の発光機構としては、励起一重項状態からの発光を用いる蛍光発光および励起三重項状態からの発光を用いるりん光発光の主に2つがある。一般的な蛍光発光材料は、励起子利用効率が低く、およそ25%であり、三重項－三重項フュージョン（TTF：Triplet-Triplet Fusion、または、三重項－三重項消滅、TTA：Triplet-Triplet Annihilation）を用いても励起子利用効率は62.5%である。一方、りん光材料は、励起子利

用効率が100%に達する場合もあるが、深い青色発光の実現が困難であり、加えて発光スペクトルの幅が広いため色純度が低いという問題がある。

[0005] そこで、九州大学安達千波矢教授により熱活性化型遅延蛍光（TADF：Thermally Assisting Delayed Fluorescence）機構が提案され（非特許文献1参照）、熱活性化型遅延蛍光体を利用することで発光の励起子利用効率は100%に達するようになった。熱活性化型遅延蛍光体はその構造に起因して色純度が低い幅広い発光スペクトルを与えるが、逆項間交差の速度が極めて速い。

[0006] さらに、安達らはこの長所を利用し、熱活性化型遅延蛍光体をアシスティングドーパント（Assisting Dopant: AD）として利用し、半値幅の狭いドーパントをエミッティングドーパント（Emitting Dopant: ED）として利用するHyper Fluorescence™（TADF Assisting Fluorescence: TAFとも呼ばれる）を提案し、赤色発光および緑色発光の有機電界発光素子において、高効率、高色純度かつ長寿命な素子を開発した（非特許文献2参照）。しかしながら、深い青色の発光はエミッティングドーパントおよびアシスティングドーパントが共に高いエネルギーを必要とするために、効率、色純度および寿命のいずれでも問題があった。

[0007] そこで、関西学院大学畠山教授によりTADF材料の色純度を飛躍的に向上させる新たな分子設計が提案されている（非特許文献3参照）。また、特許文献1では、開示された例えば化合物（1-401）では、ホウ素（電子供与性）と窒素（電子吸引性）の多重共鳴効果を利用した堅牢な平面構造により、結果として吸収および発光のピークのストークスシフトが小さい、色純度の高い発光スペクトルを得ることに成功した。また、式（1-422）のような二量体化合物では、2つのホウ素と2つの窒素が中央のベンゼン環に結合することで、中央のベンゼン環においてさらに多重共鳴効果を増強させており、その結果、極めて狭い発光ピーク幅を有する発光が可能となっている。

先行技術文献

非特許文献

[0008] 非特許文献1: Highly efficient organic light-emitting diodes from delayed fluorescence, Nature 492, 234-238

非特許文献2: NATURE COMMUNICATIONS, 5:4016, Published 30 May 2014, DOI: 10.1038/ncomms5016

非特許文献3: Ultrapure Blue Thermally Activated Delayed Fluorescence Molecules: Efficient HOMO-LUMO Separation by the Multiple Resonance Effect, Advanced Materials, Volume28, Issue14, April 13, 2016, 2777-2781

特許文献

[0009] 特許文献1: 国際公開第2015/102118号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 上述するように、有機電界発光素子に用いられる材料としては種々の材料が開発されているが、発光特性などの有機電界発光特性を更に高め、発光層用材料などの有機電界発光材料の選択肢を増やすために、従来具体的には知られていなかった化合物の組み合わせが望まれている。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体、分子中にホウ素原子を有する化合物を含む発光層を用い、それらの励起一重項エネルギー準位の関係を規定することにより、優れた有機電界発光素子が得られることを見出し、本発明を完成させた。具体的に、本発明は、以下の構成を有する。

[0012] [1]

発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層が、
第1成分として、少なくとも1種のホスト化合物と、
第2成分として、少なくとも1種の熱活性化型遅延蛍光体と、

第3成分として、少なくとも1種のホウ素原子を有する化合物とを含み、前記第1成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位をE(1, S, Sh)、前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位をE(2, S, Sh)、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位をE(3, S, Sh)としたとき、以下の関係式(1)を満たし、

前記第1成分は、前記ホスト化合物の水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれていてもよく、

前記第2成分は、前記熱活性化型遅延蛍光体の水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれていてもよく、

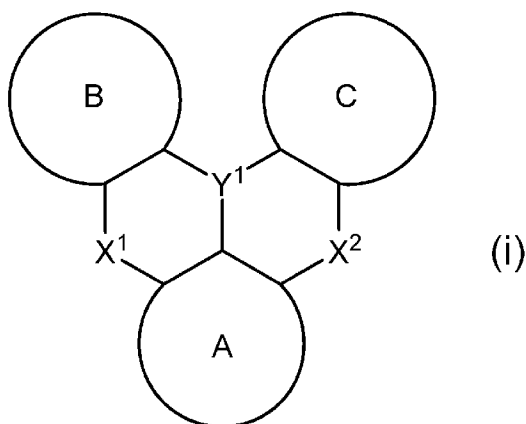
前記第3成分は、前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれていてもよい、有機電界発光素子。

関係式(1) : $E(1, S, Sh) \geq E(2, S, Sh) \geq E(3, S, Sh)$

[2]

前記第3成分として、下記式(i)、(ii)および(iii)のいずれかで表される化合物、および下記式(i)で表される構造を複数有する多量体化合物の少なくとも1つを含む、[1]に記載の有機電界発光素子。

[化1]



(上記式 (i) 中、

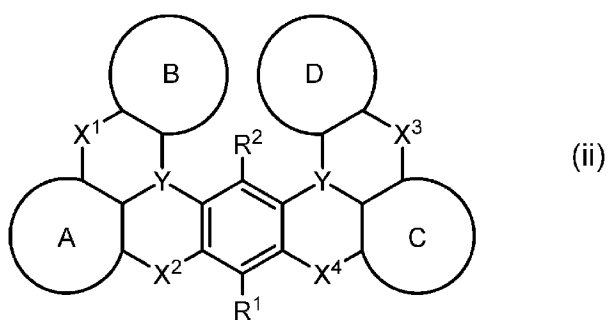
A環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

Y¹は、B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-RまたはGe-Rであり、前記Si-RおよびGe-RのRはアリールまたはアルキルであり、

X¹およびX²は、それぞれ独立して、O、N-R、>CR₂、SまたはSeであり、前記N-RのRおよび>CR₂のRは置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたはアルキルであり、また、前記N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環およびC環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、そして、

式 (i) で表される化合物または構造における少なくとも1つの水素がシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化2]



(上記式 (ii) 中、

A環、B環、C環およびD環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

YはB (ホウ素) であり、

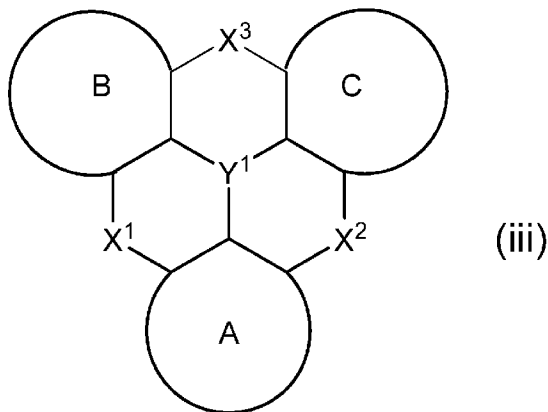
X¹、X²、X³およびX⁴は、それぞれ独立して、>O、>N-R、>CR₂

、 $>S$ または $>S e$ であり、前記 $>N-R$ の R および $>C R_2$ の R は、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたは置換されていてもよいアルキルであり、また、前記 $>N-R$ の R は連結基または単結合により前記A環、B環、C環およびD環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、

R^1 および R^2 は、それぞれ独立して、水素、炭素数1~6のアルキル、炭素数3~12のシクロアルキル、炭素数6~12のアリール、炭素数2~15のヘテロアリールまたはジアリールアミノ（ただしアリールは炭素数6~12のアリール）であり、

式(i i)で表される化合物における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化3]



(上記式(i i i)中、

A環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

Y^1 は、B、P、 $P=O$ 、 $P=S$ 、Al、Ga、As、Si-RまたはGe-Rであり、前記Si-RおよびGe-RのRはアリールまたはアルキルであり、

X^1 、 X^2 および X^3 は、それぞれ独立して、O、N-R、 $>C R_2$ 、SまたはS eであり、前記N-RのRおよび $>C R_2$ のRは置換されていてもよいア

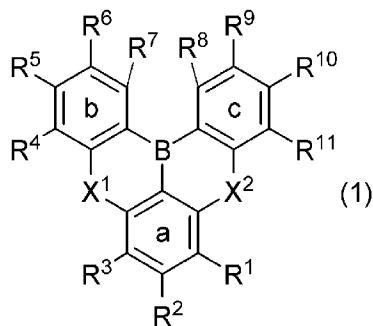
リール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたはアルキルであり、また、前記N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環およびC環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、そして、

式(iii)で表される化合物または構造における少なくとも1つの水素がシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[3]

前記第3成分として、下記式(1)、(2)、(3)および(4)のいずれかで表される化合物を少なくとも1つ含む、[1]または[2]に記載の有機電界発光素子。

[化4]



(上記式(1)中、

R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰およびR¹¹は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、R¹~R³、R⁴~R⁷およびR⁸~R¹¹のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少

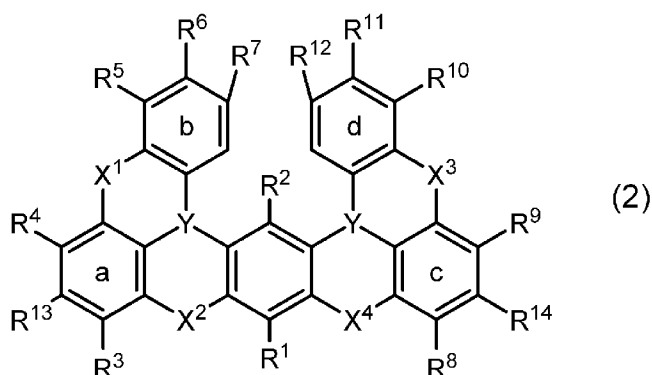
なくとも1つで置換されていてもよく、

X^1 および X^2 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R はアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

ただし、 X^1 および X^2 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式(1)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化5]



(上記式(2)中、

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオまたはアルキル置換シリルであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、 $R^5 \sim R^7$ および $R^{10} \sim R^{12}$ のうちの隣接する基同士が結合してb環またはd環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールア

ミノ、ジヘテロアリアルアミノ、アリアルヘテロアリアルアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリアルオキシ、ヘテロアリアルオキシ、アリアルチオ、ヘテロアリアルチオまたはアルキル置換シリルで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリアル、ヘテロアリアルまたはアルキルで置換されていてもよく、

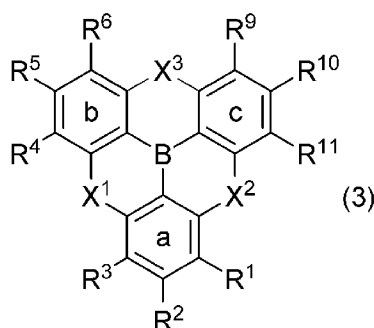
YはB（ホウ素）であり、

X¹、X²、X³およびX⁴は、それぞれ独立して、>O、>N-Rまたは>CR₂であり、前記>N-RのRおよび>CR₂のRは、炭素数6~12のアリアル、炭素数2~15のヘテロアリアル、炭素数3~12のシクロアルキルまたは炭素数1~6のアルキルであり、また、前記>N-RのRおよび>CR₂のRは、-O-、-S-、-C(-R)₂-または単結合により前記a環、b環、c環およびd環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、前記-C(-R)₂-のRは水素または炭素数1~6のアルキルであり、

ただし、X¹、X²、X³、およびX⁴は、同時に>CR₂になることはなく、そして、

式(2)で表される化合物における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化6]



(上記式(3)中、

R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R⁶、R⁹、R¹⁰およびR¹¹は、それぞれ独立して、水素、アリアル、ヘテロアリアル、ジアリアルアミノ、ジアリアル

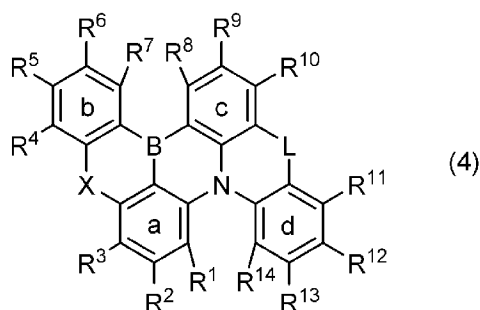
ポリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリーロキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されているとしてもよく、また、 $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^6$ および $R^9 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成しているとしてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリーロキシから選択される少なくとも1つで置換されているとしてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されているとしてもよく、

X^1 、 X^2 および X^3 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ 、または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ のRおよび $>CR_2$ のRはアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されているとしてもよく、

ただし、 X^1 、 X^2 、および X^3 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式(3)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されているともよい。))

[化7]



(上記式(4)中、

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールポリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリーロキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリール

およびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、また、 $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^7$ 、 $R^8 \sim R^{10}$ および $R^{11} \sim R^{14}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環、c環またはd環と共にアリアル環またはヘテロアリアル環を形成していてもよく、形成された環はアリアル、ヘテロアリアル、ジアリアルアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリアルオキシから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、これらはさらにアリアル、ヘテロアリアルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

Xは、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ のRおよび $>CR_2$ のRはアリアル、ヘテロアリアルまたはアルキルであり、これらはアリアル、ヘテロアリアルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

Lは、単結合、 $>CR_2$ 、 $>O$ 、 $>S$ または $>N-R$ であり、前記 $>CR_2$ および $>N-R$ におけるRは、それぞれ独立して、水素、アリアル、ヘテロアリアル、ジアリアルアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリアルオキシであり、これらはさらにアリアル、ヘテロアリアルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

ただし、XおよびLは、同時に $>CR_2$ になることはなく、
そして、

式(4)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[4]

前記第3成分として、前記式(1)、(2)および(4)のいずれかで表される化合物を少なくとも1つを含み、

前記式(1)において、 X^1 および X^2 が、それぞれ独立して、 $>O$ または $>N-R$ であり、

前記式(2)において、 X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 が、それぞれ独立して、 $>O$ または $>N-R$ であり、

前記式（４）において、 X が、 $>O$ および $>N-R$ であり、 L が、単結合である、

[3]に記載の有機電界発光素子。

[5]

前記第3成分として、前記式（１）、（２）、（３）および（４）のいずれかで表される化合物を少なくとも１つを含み、その化合物に存在する環を構成する原子が、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオおよびアルキル置換シリルから選択される少なくとも１つで置換されている、[3]または[4]に記載の有機電界発光素子。

[6]

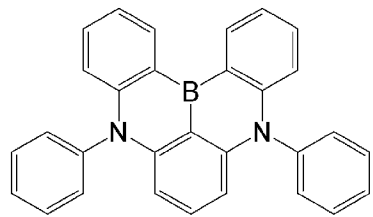
前記第3成分として、前記式（２）で表される化合物を少なくとも１つを含み、その化合物に存在する環を構成する原子が、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオおよびアルキル置換シリルから選択される少なくとも１つで置換され、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも１つで置換されていてもよい、[5]に記載の有機電界発光素子。

[7]

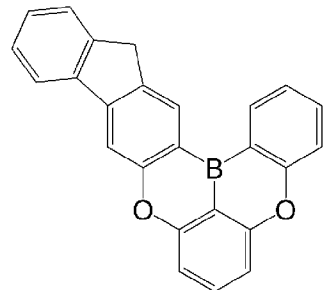
前記第3成分が、下記式で表される部分構造を含む、[1]～[6]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。ただし、前記部分構造における水素は、それぞれ独立して、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびア

ルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよい。

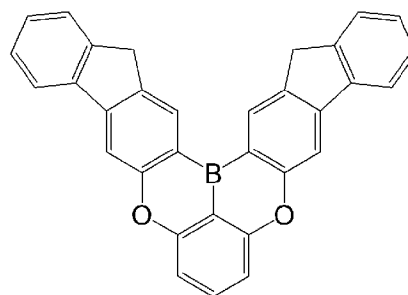
[化8]



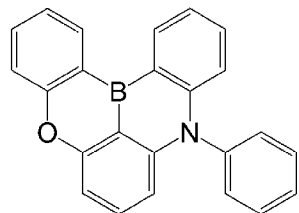
(1-11)



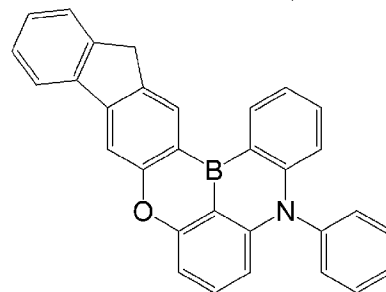
(1-21)



(1-22)

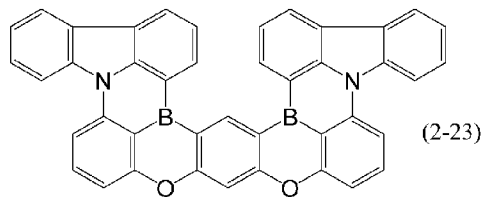
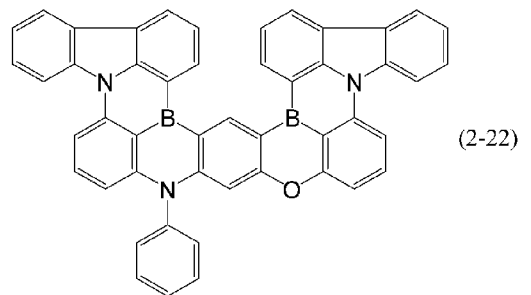
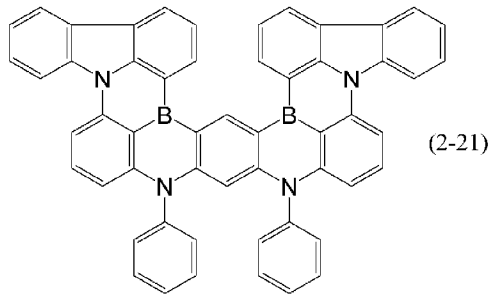
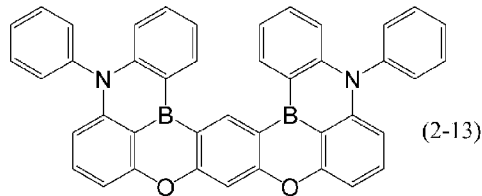
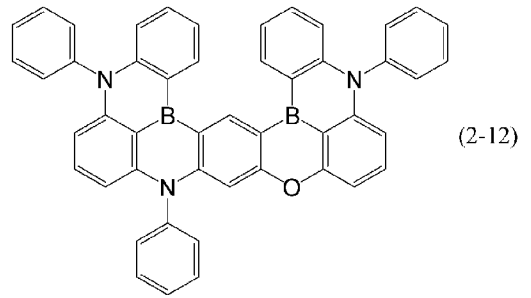
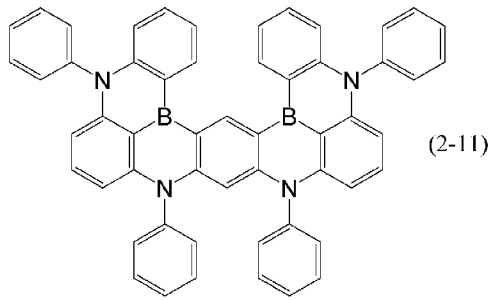


(1-31)

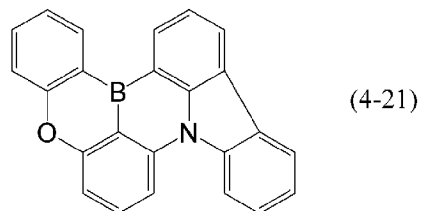
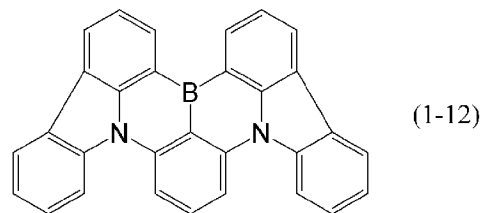
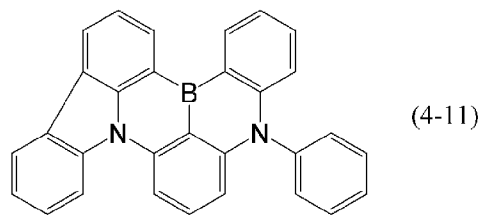


(1-32)

[化9]



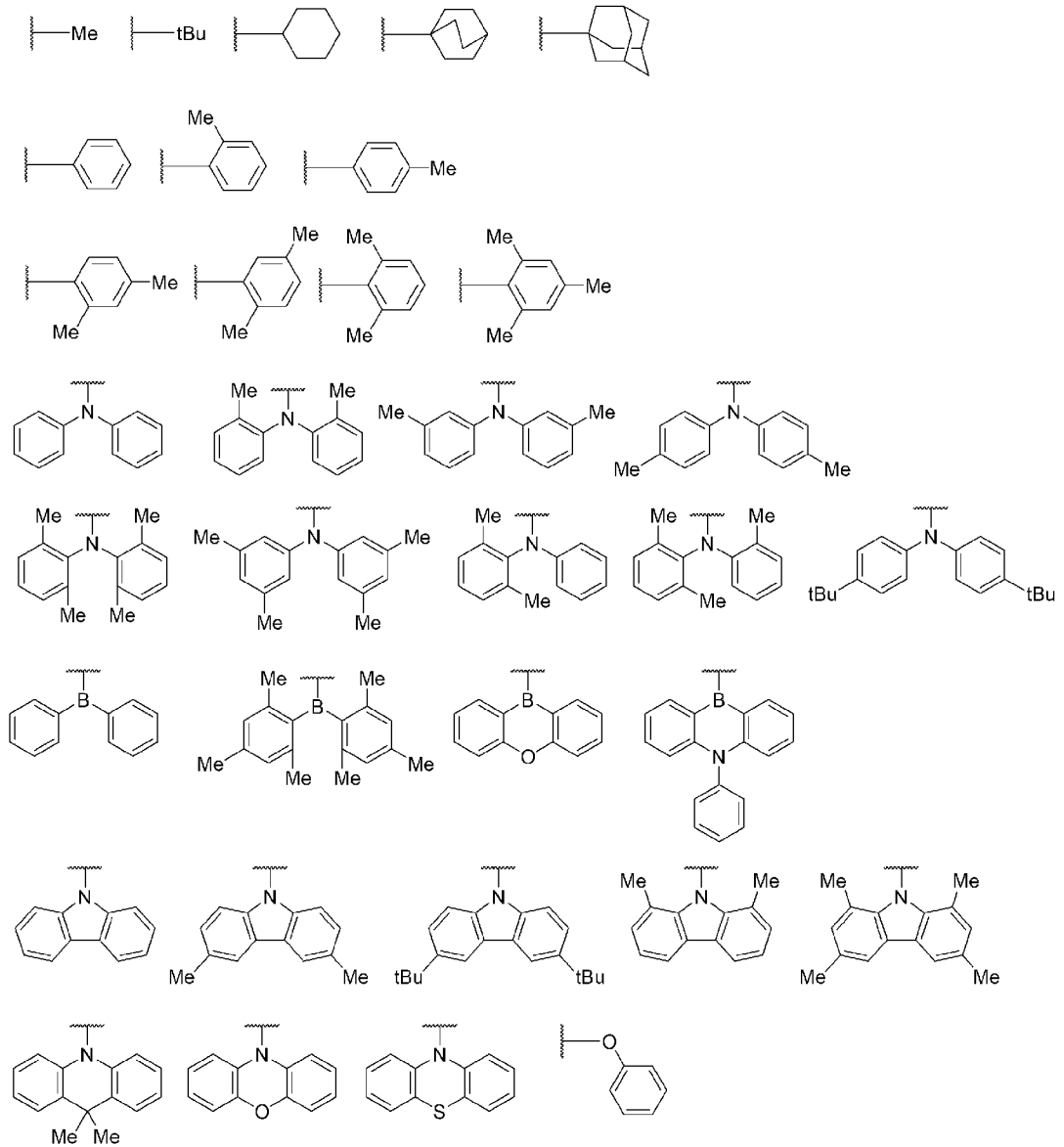
[化10]



[8]

前記式 (1) ~ (4) のいずれかで表される化合物が、以下に記載のいずれかの部分構造を含む、[3] ~ [6] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[化11]



(上記部分構造式中、

Meはメチルを表し、tBuはt-ブチルを表し、波線は結合位置を表す

。

ただし、上記部分構造式における水素は、

それぞれ独立して、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されていてもよく、前記アリールにおける水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、前記ヘテロアリールにおける水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、前記ジアリールアミノにおける水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよい。）

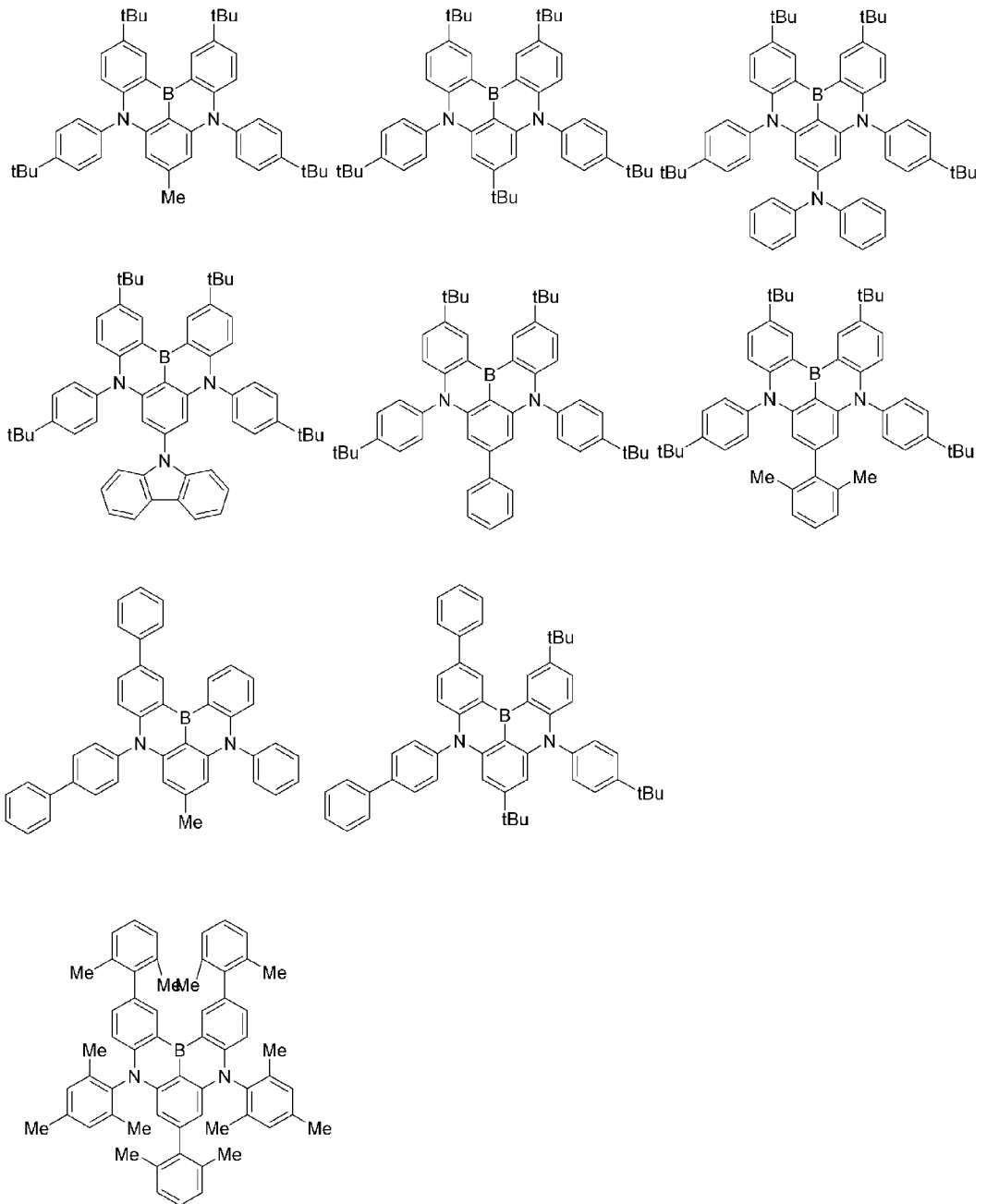
[9]

前記式(1)～(4)のいずれかで表される化合物が、 sp^3 炭素、ホウ素原子に対してm位またはp位に結合する sp^2 炭素原子、または、ホウ素に対してp位に置換する窒素原子、をいずれか1つ有する、[3]～[8]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[10]

前記式(2)で表される化合物が、以下の化合物である、[3]に記載の有機電界発光素子。

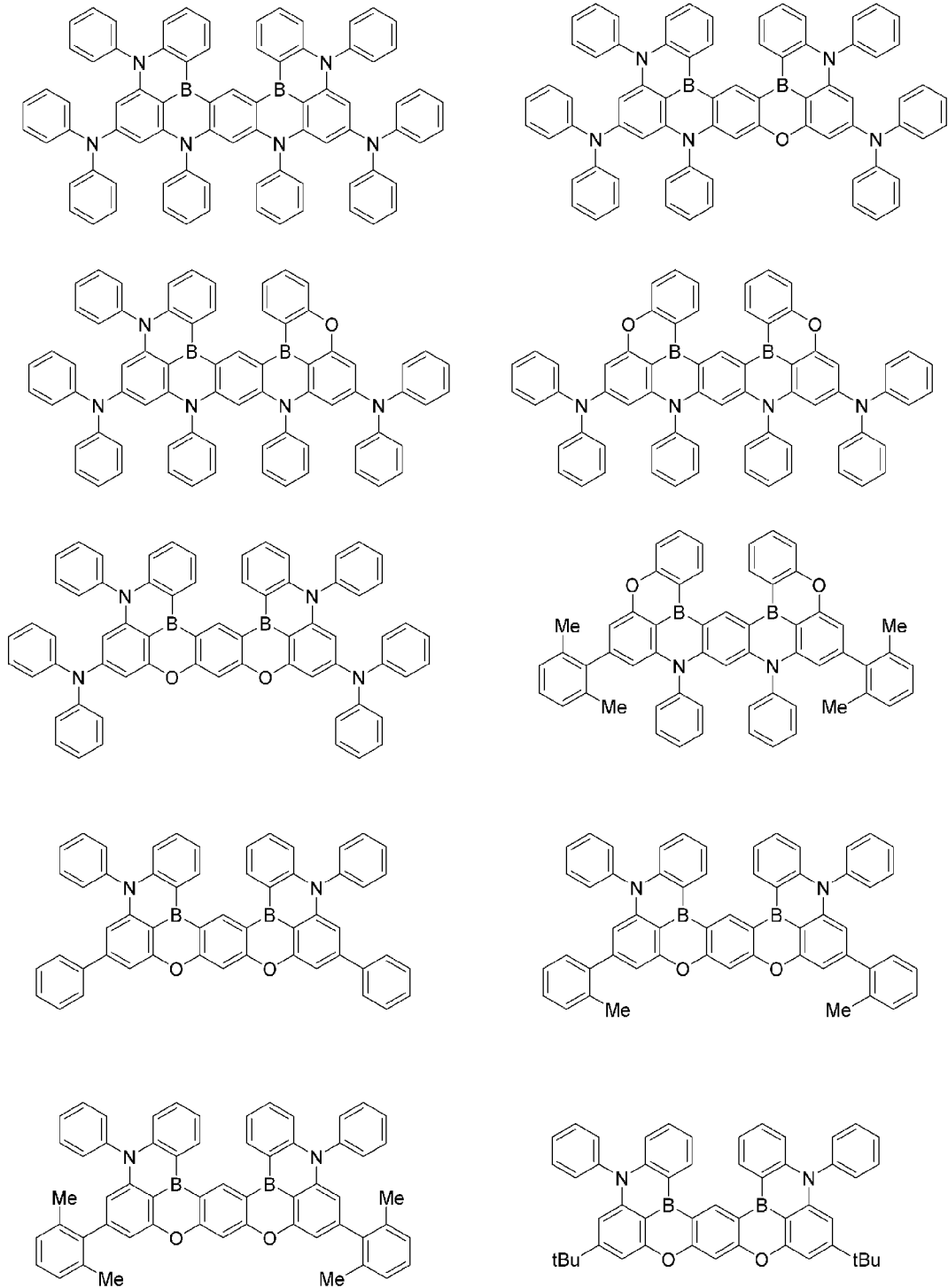
[化12]



[1 1]

前記式(2)で表される化合物が、以下の化合物である、[4]に記載の有機電界発光素子。

[化13]



[1 2]

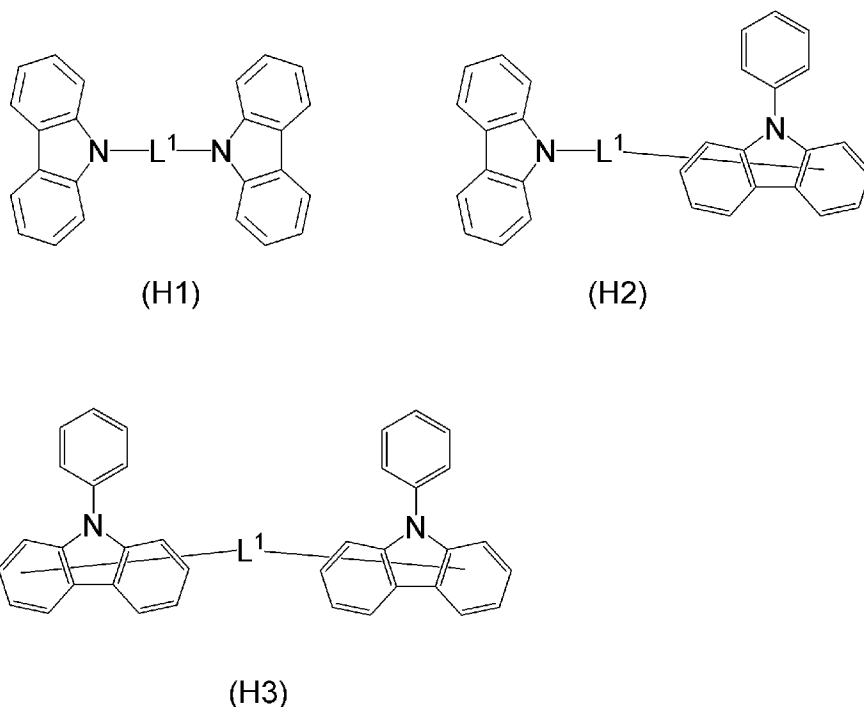
前記第1成分が、部分構造として、カルバゾールおよびフランから選択される少なくとも一つを有する化合物である、[1]～[11]のいずれかー

項に記載の有機電界発光素子。

[13]

前記第1成分が、下記式(H1)、(H2)および(H3)のいずれかで表される化合物を少なくとも一つ含有する、[1]～[12]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[化14]



(上記式(H1)、(H2)および(H3)中、L¹は炭素数6～24のアリーレン、ヘテロアリーレン、ヘテロアリーレンアリーレンまたはアリーレンヘテロアリーレンアリーレンであり、

上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、炭素数1～6のアルキル、シアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。)

[14]

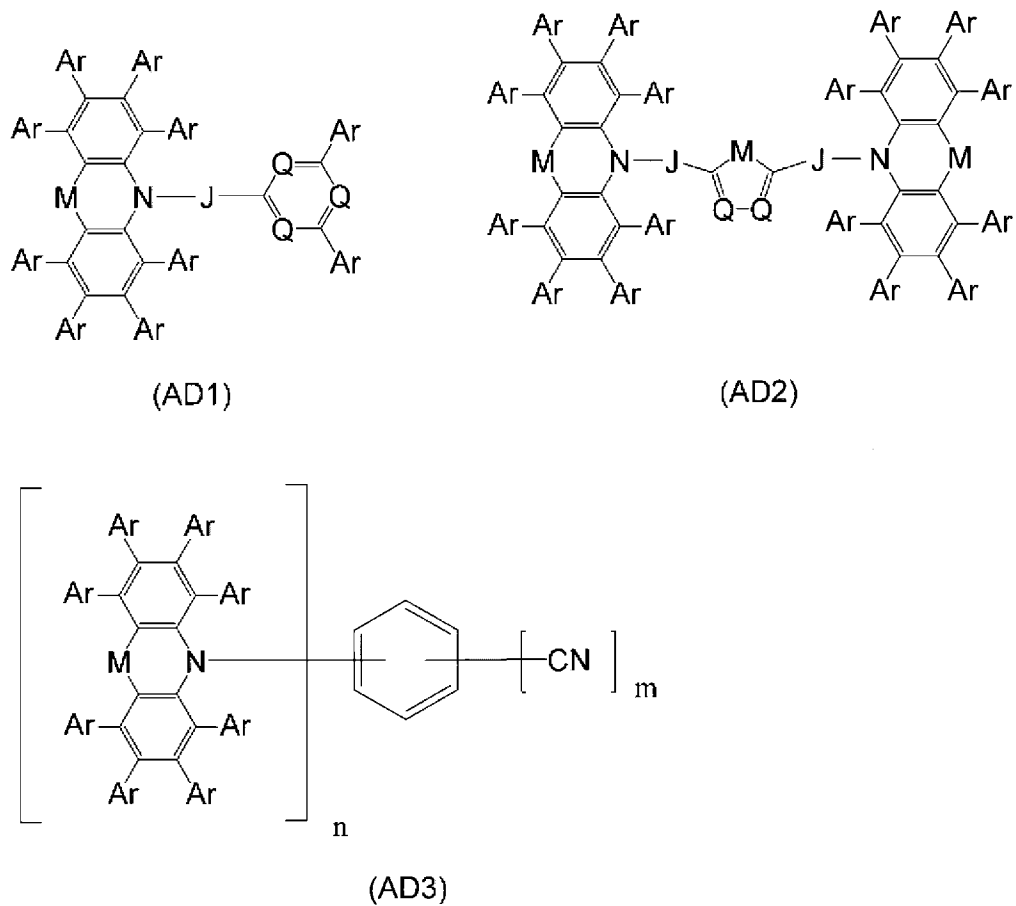
前記第2成分が、部分構造として、カルバゾール、フェノキサジン、アクリジン、トリアジン、ピリミジン、ピラジン、チオキサントレン、ベンゾニトリル、フタロニトリル、イソフタロニトリル、ジフェニルスルホン、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールおよびベンゾフェノンから選択

される少なくとも一つを有する、[1]～[13]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[15]

前記第2成分が、下記式(AD1)、(AD2)および(AD3)のいずれかで表される化合物を少なくとも一つ含有する、[1]～[14]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[化15]



(上記式(AD1)、(AD2)および(AD3)中、

Mは、それぞれ独立して、単結合、 $-O-$ 、 $>N-Ar$ または $>CAr_2$ であり、

Jは、それぞれ独立して、炭素数6～18のアリーレンであり、前記アリーレンは、フェニル、炭素数1～6のアルキルおよび炭素数3～12のシクロアルキルから選択される少なくとも一つで置換されてもよく、

Qは、それぞれ独立して、 $=C(-H)-$ または $=N-$ であり、

A_rは、それぞれ独立して、水素、炭素数6～18のアリール、炭素数6～18のヘテロアリール、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～12のシクロアルキルであり、前記アリールおよびヘテロアリーレンにおける少なくとも1つの水素は、フェニル、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～12のシクロアルキルで置換されてもよく、

mは、1または2であり、

nは、2～(6-m)の整数であり、

上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[16]

前記第2成分が、下記式(DAD1)で表される化合物を少なくとも一つ含有する、[1]～[14]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。



(DAD1)

(上記式(DAD1)中、D¹はドナー性基であり、L¹は単結合または共役連結基であり、A¹はアクセプター性基であり、nは2以上であってA¹が置換しうる最大数以下である整数である。)

[17]

前記第2成分が、下記式(DAD2)で表される化合物を少なくとも一つ含有する、[16]に記載の有機電界発光素子。



(DAD2)

(上記式(DAD2)中、D²およびD³はそれぞれ独立してドナー性基であり、L²およびL³はそれぞれ独立しては単結合または共役連結基であり、A²はアクセプター性基である。)

[18]

前記式(AD1)、(AD2)および(AD3)において、

Mは、それぞれ独立して、単結合、 $-O-$ または $>N-Ar$ であり、
Jは、それぞれ独立して、フェニレンであり、前記フェニレンは、炭素数1～4のアルキルで置換されてもよく、
Qは、それぞれ独立して、 $=N-$ であり、
Arは、それぞれ独立して、水素またはフェニルであり、前記フェニルは、フェニル、炭素数1～4のアルキルで置換されてもよく、
mは、1または2であり、
nは、 $4 \sim (6 - m)$ の整数である、
[17]に記載の有機電界発光素子。

[19]

前記第2成分の逆項間交差速度が、 10^5 s^{-1} 以上である、[1]～[18]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[20]

前記第3成分の遅延蛍光寿命が、 $0.05 \mu\text{sec} \sim 40 \mu\text{sec}$ である、[1]～[19]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[21]

前記第3成分の遅延蛍光寿命が、 $0.05 \mu\text{sec} \sim 20 \mu\text{sec}$ である、[1]～[19]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[22]

前記第3成分の蛍光スペクトルのピークトップおよび吸収スペクトルのピークトップの差より求められるストークスシフトが、 14 nm 以下である、[1]～[21]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[23]

前記第3成分の蛍光スペクトルのピークトップおよび吸収スペクトルのピークトップの差より求められるストークスシフトが、 10 nm 以下である、[1]～[21]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[24]

前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起

一重項エネルギー準位を $E(2, S, Sh)$ 、前記第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, Sh)$ 、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, Sh)$ 、前記第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, Sh)$ としたとき、これらから求められる一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E(2, ST, Sh)$ および $\Delta E(3, ST, Sh)$) が以下の関係にある、[1] ~ [23] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E(2, ST, Sh) = E(2, S, Sh) - E(2, T, Sh) \leq 0.50 \text{ eV}$$

$$\Delta E(3, ST, Sh) = E(3, S, Sh) - E(3, T, Sh) \leq 0.20 \text{ eV}$$

[25]

前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, Sh)$ 、前記第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, Sh)$ 、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, Sh)$ 、前記第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, Sh)$ としたとき、これらから求められる一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E(2, ST, Sh)$ および $\Delta E(3, ST, Sh)$) が以下の関係にある、[1] ~ [24] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E(2, ST, Sh) = E(2, S, Sh) - E(2, T, Sh)$$

$$\Delta E(3, ST, Sh) = E(3, S, Sh) - E(3, T, Sh)$$

$$\Delta E(2, ST, Sh) \geq \Delta E(3, ST, Sh)$$

[26]

前記第2成分の一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E(2, S T, S h)$) が以下の関係にある、[1] ~ [25] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E(2, S T, S h) = E(2, S, S h) - E(2, T, S h) \leq 0.30 \text{ eV}$$

[27]

前記第2成分の一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E(2, S T, S h)$) が以下の関係にある、[1] ~ [26] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E(2, S T, S h) = E(2, S, S h) - E(2, T, S h) \leq 0.15 \text{ eV}$$

[28]

前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, S h)$ 、前記第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, S h)$ 、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, S h)$ 、前記第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, S h)$ としたとき、これらが以下の関係にある、[1] ~ [27] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$E(2, S, S h) \geq E(3, S, S h)$$

$$E(2, T, S h) \leq E(3, T, S h)$$

[29]

前記第3成分の蛍光スペクトルのピークトップおよび吸収スペクトルのピークトップの差より求められるストークスシフトが、10 nm以下である、[1] ~ [28] のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[30]

前記第3成分が、前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離し

た基を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれている、[1]～[29]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[31]

前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した基を繰り返し単位とする高分子化合物が、前記ホスト化合物の水素原子2個が脱離した基も繰り返し単位として有する、[30]に記載の有機電界発光素子。

[32]

前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した基を繰り返し単位とする高分子化合物が、前記遅延蛍光体の水素原子2個が脱離した基も繰り返し単位として有する、[30]または[31]に記載の有機電界発光素子。

[33]

[1]～[32]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を備えた表示装置。

[34]

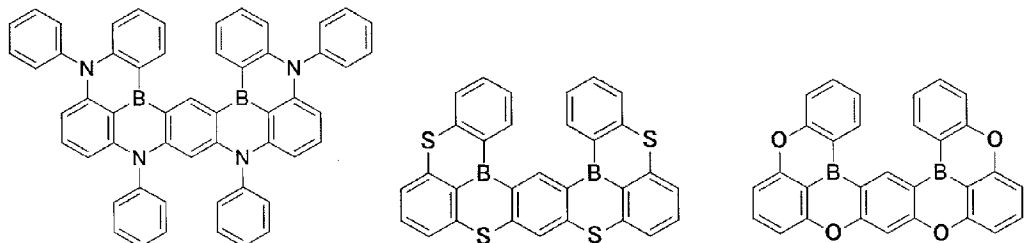
[1]～[32]のいずれか1項に記載の有機電界発光素子を備えた照明装置。

[35]

有機電界発光素子の発光層を塗布形成するための発光層形成用組成物であって、

[1]～[32]のいずれか一項に記載の第1成分、第2成分および第3成分に加えて、第4成分として、少なくとも1種の有機溶媒を含む、発光層形成用組成物（ただし、前記第3成分は下記化合物ではない。）。

[化16]



[36]

前記第4成分における少なくとも1種の有機溶媒の沸点が130℃～350℃である、[35]に記載の発光層形成用組成物。

[37]

前記第4成分が、前記第1成分、前記第2成分、および前記第3成分である化合物の少なくとも1種に対する良溶媒(GS)と貧溶媒(PS)とを含み、前記良溶媒(GS)の沸点(BP_{GS})が前記貧溶媒(PS)の沸点(BP_{PS})よりも低い、[35]または[36]に記載の発光層形成用組成物。

[38]

前記第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して0.0998質量%～4.0質量%であり、

前記第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して0.0001質量%～2.0質量%であり、

前記第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して0.0001質量%～2.0質量%であり、

前記第4成分が発光層形成用組成物の全質量に対して90.0質量%～99.9質量%である、

[35]～[37]のいずれか一項に記載の発光層形成用組成物。

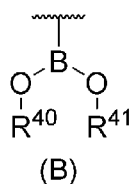
[39]

[35]～[38]のいずれか一項に記載の発光層形成用組成物を用いて形成される発光層を有する有機電界発光素子。

[40]

[2]に記載の式(i i)で表される化合物の少なくとも1つの水素が、下記部分構造(B)、塩素、臭素、またはヨウ素により置換された化合物。

[化17]



(上記部分構造 (B) 中、 R^{40} および R^{41} は、合計炭素数2～10の結合していてもよいアルキルであり、波線部は他の構造との結合部位である。)

[41]

ホウ素原子を有する化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位、熱活性化型遅延蛍光体から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位、およびホスト化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位から選択される少なくとも2種の繰り返し単位を含む高分子化合物。

[42]

ホウ素原子を有する化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位の少なくとも1種、熱活性化型遅延蛍光体から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位の少なくとも1種、およびホスト化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位の少なくとも1種を含む高分子化合物。

発明の効果

[0013] 本発明の有機電界発光素子は、発光層に、ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体、および分子中にホウ素原子を有する化合物を含み、それらの励起一重項エネルギー準位が所定の条件を満たすことにより、有機電界発光特性を更に高めることができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]本発明を適用した有機電界発光素子のホスト、アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントのエネルギー関係の一例を示すエネルギー準位図である。

[図2]本発明を適用した有機電界発光素子のホスト、アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントのエネルギー関係の他の例を示すエネルギー準位図である。

[図3]本発明を適用した有機電界発光素子のホスト、アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントのエネルギー関係のさらに他の例を示す

エネルギー準位図である。

[図4]本実施形態に係る有機電界発光素子を示す概略断面図である。

[図5]一般的な蛍光ドーパントを用いたTAF素子のホスト、アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントのエネルギー関係を示すエネルギー準位図である。

[図6]バンクを有する基板にインクジェット法を用いて有機電界発光素子を作製する方法を説明する図である。

[図7]化合物の基本骨格とTau(Delay)およびストークスシフトとの関係を示す図である。

[図8]化合物の基本骨格と半値幅、外部量子効率および素子寿命との関係を示す図である。

[図9]化合物の置換基とTau(Delay)およびストークスシフトとの関係を示す図である。

[図10]化合物の置換基と半値幅、外部量子効率および素子寿命との関係を示す図である。

[図11]化合物の置換基とストークスシフトおよび半値幅との関係を示す図である。

発明を実施するための形態

[0015] 以下において、本発明について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、代表的な実施形態や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施形態に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は「～」前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、室温は20℃を意味する。

[0016] 1. 用語の説明と本発明のメカニズム

本発明の有機電界発光素子は、ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体、分子中にホウ素原子を有する化合物を利用したものである。

本発明における「ホスト化合物」とは、蛍光スペクトルのピーク短波長側

の肩より求められる励起一重項エネルギー準位が、第2成分としての熱活性化型遅延蛍光体、および、第3成分としてのホウ素原子を有する化合物よりも高い化合物のことを意味する。

「熱活性化型遅延蛍光体」とは、熱エネルギーを吸収して励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差を起こし、その励起一重項状態から放射失活して遅延蛍光を放射しうる化合物のことを意味する。ただし、「熱活性化型遅延蛍光」とは、励起三重項状態から励起一重項状態への励起過程で高次三重項を経るものも含む。例えば、Durham大学 Monkmanらによる論文 (NATURE COMMUNICATIONS, 7:13680, DOI: 10.1038/ncomms13680)、産業技術総合研究所 細貝らによる論文 (Hosokai et al., Sci. Adv. 2017;3: e1603282)、京都大学 佐藤らによる論文 (Scientific Reports, 7:4820, DOI:10.1038/s41598-017-05007-7) および、同じく京都大学 佐藤らによる学会発表 (日本化学会第98春季年会、発表番号: 2I4-15、DABNAを発光分子として用いた有機電界発光における高効率発光の機構、京都大学大学院工学研究科) などが挙げられる。本発明では、対象化合物を含むサンプルについて、300Kで蛍光寿命を測定したとき、遅い蛍光成分が観測されたことをもって該対象化合物が「熱活性化型遅延蛍光体」とであると判定することとする。ここで、遅い蛍光成分とは、蛍光寿命が0.1 μ sec以上であるもののことを言う。蛍光寿命の測定は、例えば蛍光寿命測定装置 (浜松ホトニクス社製、C11367-01) を用いて行うことができる。

「分子中にホウ素原子を有する化合物」は、エミッティングドーパントとして機能させることができ、「熱活性化型遅延蛍光体」は、分子中にホウ素原子を有する化合物の発光をアシストするアシスティングドーパントとして機能させることができる。

以下の説明では、熱活性化型遅延蛍光体をアシスティングドーパントとして用いる有機電界発光素子を、「TAF素子」(TADF Assisting Fluorescence素子) ということがある。

[0017] 図5に一般的な蛍光ドーパントをエミッティングドーパント(ED)に用

いたTAF素子の発光層のエネルギー準位図を示す。図中、ホストの基底状態のエネルギー準位を $E(1, G)$ 、ホストの蛍光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(1, S, S_h)$ 、ホストのリン光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(1, T, S_h)$ 、第2成分であるアシスティングドーパントの基底状態のエネルギー準位を $E(2, G)$ 、第2成分であるアシスティングドーパントの蛍光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, S_h)$ 、第2成分であるアシスティングドーパントのリン光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, S_h)$ 、第3成分であるエミッティングドーパントの基底状態のエネルギー準位を $E(3, G)$ 、第3成分であるエミッティングドーパントの蛍光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, S_h)$ 、第3成分であるエミッティングドーパントのリン光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, S_h)$ とする。TAF素子において、一般的な蛍光ドーパントをエミッティングドーパント(ED)として用いた場合、アシスティングドーパントでアップコンバージョンされたエネルギーはエミッティングドーパントの励起一重項エネルギー準位 $E(3, S, S_h)$ に移り発光する。しかし、アシスティングドーパント上の一部の励起三重項エネルギー $E(2, T, S_h)$ がエミッティングドーパントの励起三重項エネルギー準位 $E(3, T, S_h)$ に移動したり、エミッティングドーパント上で励起一重項エネルギー準位 $E(3, S, S_h)$ から励起三重項エネルギー準位 $E(3, T, S_h)$ への項間交差が起こり、引き続いて基底状態 $E(3, G)$ へ熱的に失活する。この経路により一部のエネルギーは発光に利用されず、エネルギーの無駄が生じる。

[0018] これに対して、本発明の有機電界発光素子では、アシスティングドーパントからエミッティングドーパントに移動したエネルギーを効率よく発光に利用することができ、これにより高い発光効率を実現することができる。これ

は、以下の発光メカニズムによるものと推測される。

すなわち、本発明の有機電界発光素子における好ましいエネルギー関係を図1に示す。本発明の有機電界発光素子においては、エミッティングドーパントとしての、ホウ素原子を有する化合物が高い励起三重項エネルギー準位 $E(3, T, S h)$ を有する。そのため、アシスティングドーパントでアップコンバージョンされた励起一重項エネルギーが、例え、エミッティングドーパントで励起三重項エネルギー準位 $E(3, T, S h)$ へ項間交差した場合にも、エミッティングドーパント上でアップコンバージョンされるか、アシスティングドーパント（熱活性化型遅延蛍光体）上の励起三重項エネルギー準位 $E(2, T, S h)$ へ回収される。したがって、生成した励起エネルギーを無駄なく発光に使用することができる。また、アップコンバージョンおよび発光の機能をそれぞれが得意な2種の分子に分けることで、高いエネルギーの滞留時間が減少し、化合物への負担が減少すると予想される。

[0019] 一方、本発明の第3成分であるホウ素原子を含む化合物については、分子軌道計算より、励起三重項状態から励起一重項状態への順方向および逆方向の項間交差に関与する励起三重項エネルギーが、リン光スペクトルにより観測される励起三重項エネルギーではなく、より高次の励起三重項エネルギーである可能性が指摘されている（日本化学会第98春季年会、発表番号：2I4-15、DABNAを発光分子として用いた有機電界発光における高効率発光の機構、京都大学大学院工学研究科 佐藤徹教授による発表）。発表によれば、ホウ素原子を分子中に有するDABNA 2での逆項間交差は高次三重項軌道を用いるFvHT (Fluorescence via Higher Triplet) 機構であり、高次三重項軌道から基底状態への遷移が抑えられているために高次三重項軌道より励起一重項軌道への遷移が起きることが示唆されている。

[0020] 前記、高次三重項エネルギー準位を考慮した場合、本発明の有機電界発光素子の発光層におけるエネルギー関係は、高次励起三重項エネルギー準位 $E(3, T n)$ が励起一重項エネルギー準位よりわずかに低い場合（TADF機構の場合）には、図2のエネルギー準位図で表すことができ、高次励起三

重項エネルギー準位が励起一重項エネルギー準位よりわずかに高い場合（FvHT機能の場合）には、図3のエネルギー準位図で表すことができる。いずれの場合も、最低三重項軌道からの失活が抑えられているために、図1のエネルギー関係と同様に、良好な素子特性を与えると予想される。しかしながら、分子軌道計算より示唆される高次三重項軌道については現在のところ分光学的に明らかにはされていない。本明細書では、分光学的に測定可能であるとの理由から、励起三重項エネルギー準位をリン光スペクトルより求めたものとしているが、本発明の有機電界発光素子が、図2および図3で示すエネルギー関係を有することを除外するものではない。

[0021] TADF活性な化合物の観点から言えば、D-A型熱活性化型遅延蛍光体（Dは電子ドナー性の原子団を表し、Aは電子アクセプター性の原子団を表す）は、アップコンバージョンの速度が速く、発光の半値幅が広くて色純度が低いという特徴がある。一方、多重共鳴効果（MRE）型の熱活性化型遅延蛍光体は、アップコンバージョンの速度が遅く、発光の半値幅が狭くて色純度が高く、蛍光量子収率（PLQY）が高く、加えて、発光の速度が速いという特徴がある。本発明の有機電界発光素子はこれらの分子の長所を生かした設計である。これにより、半値幅の狭い色味の良いスペクトル、高い外部量子効率、ロールオフの改善、および長寿命が実現できる。

[0022] 論文で示されたTAF素子の条件および上記説明より、本発明の有機電界発光素子におけるホスト化合物（第1成分）、熱活性化型遅延蛍光体（アシティングドーパント、第2成分）およびホウ素原子を有する化合物（エミッティングドーパント、第3成分）のエネルギーの関係を以下にまとめる。

[0023] 第1成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(1, S, S_h)$ 、第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, S_h)$ 、第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, S_h)$ としたとき、以下の関係式（1）を満たす。

関係式 (1) : $E(1, S, S_h) \geq E(2, S, S_h) \geq E(3, S, S_h)$

つまり、エネルギーの閉じ込めおよび／または伝達は第1成分であるホスト化合物が、発光は第3成分であるエミティングドーパントがそれぞれ担う。

ここで、 $E(1, S, S_h) - E(2, S, S_h)$ は $0 \sim 1.0 \text{ eV}$ であることが好ましく、 $E(2, S, S_h) - E(3, S, S_h)$ は $0 \sim 0.20 \text{ eV}$ であることが好ましい。

[0024] 第1成分の蛍光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起一重項エネルギー準位を $E(1, S, P_T)$ 、第2成分の蛍光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, P_T)$ 、第3成分の蛍光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, P_T)$ としたとき、以下の2つの関係式を満たすことが好ましい。

$$E(1, S, P_T) > E(2, S, P_T)$$

$$E(1, S, P_T) > E(3, S, P_T)$$

$E(2, S, P_T)$ と $E(3, S, P_T)$ はいずれが大きくても本発明を適用することができるが、 $E(3, S, P_T) > E(2, S, P_T)$ であることが好ましい。

[0025] 第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, S_h)$ 、第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, S_h)$ 、第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, S_h)$ 、第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, S_h)$ としたとき、これらから求められる一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E(2, S_T, S_h)$ および $\Delta E(3, S_T, S_h)$) が以下の関係にあることが好ましい。

$$\Delta E (2, S T, S h) = E (2, S, S h) - E (2, T, S h) \cong 0.50 \text{ eV}$$

$$\Delta E (3, S T, S h) = E (3, S, S h) - E (3, T, S h) \cong 0.20 \text{ eV}$$

つまり、第2成分においては、TADF活性の指標として $\Delta E (S T)$ の大きさをを用いる。 $\Delta E (S T)$ が小さければ小さいほどTADF活性を示すには有利になる。

ここで、 $\Delta E (2, S T, S h)$ は 0.30 eV 以下であることがより好ましく、 0.15 eV 以下であることがさらに好ましく、 0.10 eV 以下であることがさらに好ましい。 $\Delta E (3, S T, S h)$ は、 0.15 eV 以下であることがより好ましく、 0.10 eV 以下であることがさらに好ましい。

$\Delta E (2, S T, S h)$ と $\Delta E (3, S T, S h)$ は以下の関係にあることが好ましい。

$$\Delta E (2, S T, S h) \geq \Delta E (3, S T, S h)$$

[0026] また、以下の関係にあることも好ましい。

$$E (2, S, S h) \geq E (3, S, S h)$$

$$E (2, T, S h) \leq E (3, T, S h)$$

ここで、 $E (2, S, S h) - E (3, S, S h)$ は $0 \sim 0.20 \text{ eV}$ であることが好ましく、 $E (3, T, S h) - E (2, T, S h)$ は $0 \sim 0.20 \text{ eV}$ であることが好ましい。

これらは図1で示した本発明のTAF素子の設計を示す。

[0027] また、第2成分の逆項間交差速度を $k (2, R I S C)$ 、第3成分の逆項間交差速度を $k (3, R I S C)$ 、第2成分の発光速度を $k (2, P r o m p t)$ および第3成分の発光速度を $k (3, P r o m p t)$ とするとき、以下の関係を満たすことが好ましい。

$$k (2, R I S C) > k (3, R I S C)$$

$$k (2, P r o m p t) < k (3, P r o m p t)$$

[0028] さらに、本明細書中では、宿主化合物について、その蛍光スペクトルの短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(1, S, S_h)$ とし、蛍光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起一重項エネルギー準位を $E(1, S, P_T)$ とし、燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(1, T, S_h)$ とし、燐光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起三重項エネルギー準位を $E(1, T, P_T)$ とする。また、上記の $E(1, S, S_h)$ 、 $E(2, S, S_h)$ 、 $E(3, S, S_h)$ を総称して $E(S, S_h)$ といい、 $E(1, S, P_T)$ 、 $E(2, S, P_T)$ 、 $E(3, S, P_T)$ を総称して $E(S, P_T)$ といい、 $E(1, T, S_h)$ 、 $E(2, T, S_h)$ 、 $E(3, T, S_h)$ を総称して $E(T, S_h)$ といい、 $E(1, T, P_T)$ 、 $E(2, T, P_T)$ 、 $E(3, T, P_T)$ を総称して $E(T, P_T)$ といい、 $\Delta E(2, S_T, P_T)$ および $\Delta E(3, S_T, P_T)$ を総称して $\Delta E(S_T)$ ということとする。

[0029] 本発明において、蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位 $E(S, S_h)$ 、蛍光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起一重項エネルギー準位 $E(S, P_T)$ 、燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位 $E(T, S_h)$ 、燐光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起三重項エネルギー準位 $E(T, P_T)$ 、逆項間交差速度および発光速度は、以下のようにして算出することとする。

ここで、「ピーク短波長側の肩」とは、発光ピークの短波長側の変曲点のことを意味し、「短波長側のピークトップ」とは、発光ピークの発光極大値のうち、最も短波長側の発光極大値に対応するピーク上の位置のことを意味する。

また、各エネルギー準位を測定するための測定サンプルとして、対象化合物が宿主化合物またはアシスティングドーパントである場合には、ガラス基板上に形成した対象化合物の単独膜（Neat膜、厚さ：50nm）を使

用し、対象化合物がエミッティングドーパントである場合には、ガラス基板上に形成した、対象化合物を分散させたポリメチルメタクリレート膜（厚さ：

10 μm 、対象化合物の濃度：1質量％）を使用する。対象化合物を分散させたポリメチルメタクリレート膜の膜厚については、吸収スペクトル、蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルの測定に十分な強度が得られる膜厚であればよく、強度が弱い場合には厚く、強度が強い場合には厚くすればよい。励起光には、吸収スペクトルにおいて得られた吸収ピークの波長を使用し、蛍光スペクトルまたは燐光スペクトルに出現した発光ピークのうち、青色の発光の場合は400～500 nmの範囲に、緑色の発光の場合は480～600 nmの範囲に、赤色の場合は580～700 nmの範囲にそれぞれ出現した発光ピークから得たデータを用いて各エネルギー準位を求めることとする。また、吸収ピークと発光ピークが近く、発光ピーク中に励起光が混合する場合には、より短波長側の吸収ピークや吸収肩を用いてもよい。

[1] 蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位 $E(S, S_h)$

対象化合物を含む測定サンプルに、77 Kで励起光を照射して蛍光スペクトルを観測する。その蛍光スペクトルに現れた発光ピークに対して、その短波長側の変曲点（肩）を通る接線をひき、その接線とベースラインとの交点の波長 (B_{S_h}) [nm] から、下記式を用いて励起一重項エネルギー準位 $E(S, S_h)$ を算出する。

$$E(S, S_h) [eV] = 1240 / B_{S_h}$$

[2] 蛍光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起一重項エネルギー準位 $E(S, P_T)$

対象化合物を含む測定サンプルに、77 Kで励起光を照射して蛍光スペクトルを観測する。その蛍光スペクトルに現れた発光ピークの最も短波長側のピークトップに対応する波長（発光極大波長、 B_{P_T}) [nm] から、下記式を用いて励起一重項エネルギー準位 $E(S, P_T)$ を算出する。

$$E(S, PT) [eV] = 1240 / B_{PT}$$

[3] 燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位 $E(T, Sh)$

対象化合物を含む測定サンプルに、77Kで励起光を照射して燐光スペクトルを観測する。その燐光スペクトルに現れた発光ピークに対して、その短波長側の変曲点（肩）を通る接線をひき、その接線とベースラインとの交点の波長 (C_{Sh}) [nm] から、下記式を用いて励起三重項エネルギー準位 $E(T, Sh)$ を算出する。

$$E(T, Sh) [eV] = 1240 / C_{Sh}$$

[4] 燐光スペクトルの短波長側のピークトップより求められる励起三重項エネルギー準位 $E(T, PT)$

対象化合物を含む測定サンプルに、77Kで励起光を照射して燐光スペクトルを観測する。その燐光スペクトルに現れた発光ピークの最も短波長側のピークトップに対応する波長（発光極大波長、 C_{PT}) [nm] から、下記式を用いて励起三重項エネルギー準位 $E(T, PT)$ を算出する。

$$E(T, PT) [eV] = 1240 / C_{PT}$$

[0030] ここで、D-A（ドナー-アクセプター）型TADF材料とMRE (Multi Resonance Effect、多重共鳴)型化合物では、分子の堅牢性により蛍光およびリン光スペクトルの発光幅が異なるために、極大発光波長が同じでもD-A型熱活性化型遅延蛍光体の方がMRE型化合物分子より分子の持つエネルギーに幅があると考えられる。TAF素子では各成分間でのエネルギー授受を正確に見積もり、構成を設計する必要があるために、励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位をスペクトルの短波長側の肩より見積もる。一般的には、スペクトルの短波長側の変曲点を通る接線とベースラインの交点を、短波長側の肩より求められるエネルギーとする。

短波長側の肩から求められる励起一重項エネルギー準位 $E(S, Sh)$ および励起三重項エネルギー準位 $E(T, Sh)$ は、 $\Delta E(ST)$ の算出と議論に用いるとともに、第1成分であるホスト化合物とアシスティングドーパ

ントとのエネルギーの閉じ込めおよび授受、アシスティングドーパントとエミッティングドーパントとのエネルギーの閉じ込めおよび授受の議論にも用いる。

[0031] [5] 逆項間交差速度

逆項間交差速度は、励起三重項から励起一重項への逆項間交差の速度を示す。アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントの逆項間交差速度は、過渡蛍光分光測定により、Nat. Commun. 2015, 6, 8476. または Organic Electronics 2013, 14, 2721-2726 に記載の方法を用いて算出することができ、具体的には、アシスティングドーパントの逆項間交差速度は 10^5 s^{-1} であり、さらに好ましくは、 10^6 s^{-1} である。

[0032] [6] 発光速度

発光速度は、TADF過程を経ないで励起一重項から基底状態へ蛍光発光を経て遷移する速度を示す。アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントの発光速度は、逆項間交差速度と同様に Nat. Commun. 2015, 6, 8476. または Organic Electronics 2013, 14, 2721-2726 に記載の方法を用いて算出することができ、具体的には、エミッティングドーパントの逆項間交差速度は 10^7 s^{-1} であり、さらに好ましくは、 10^8 s^{-1} である。

[0033] 2. 有機電界発光素子

以下において、本発明の有機電界発光素子を構成する各層について説明する。

2-1. 有機電界発光素子における発光層

発光層は、第1成分としてのホスト化合物、第2成分としての熱活性化型遅延蛍光体、および第3成分としてのホウ素原子を有する化合物を少なくとも含む。

本明細書中では、第2成分としての熱活性化型遅延蛍光体を「アシスティングドーパント」（化合物）といい、第3成分としての、ホウ素原子を有する化合物を「エミッティングドーパント」（化合物）ということがある。

発光層は単一層でも複数層からなってもどちらでもよい。また、ホスト化

合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物は、同一の層内に含まれていてもよく、複数層に少なくとも1成分ずつ含まれていてもよい。発光層が含むホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物は、それぞれ一種類であっても、複数の組み合わせであっても、いずれでもよい。アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントは、マトリックスとしてのホスト化合物中に、全体的に含まれていてもよいし、部分的に含まれていてもよい。アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントがドーブされた発光層は、ホスト化合物とアシスティングドーパントとエミッティングドーパントを三元共蒸着法によって成膜する方法、ホスト化合物とアシスティングドーパントとエミッティングドーパントを予め混合してから同時に蒸着する方法、ホスト化合物とアシスティングドーパントとエミッティングドーパントを有機溶媒に溶解して調製した発光層形成用組成物（塗料）を塗布する、湿式成膜法等により形成することができる。

[0034] ホスト化合物の使用量はホスト化合物の種類によって異なり、そのホスト化合物の特性に合わせて決めればよい。ホスト化合物の使用量の目安は、好ましくは発光層用材料全体の40～99.999質量%であり、より好ましくは50～99.99質量%であり、さらに好ましくは60～99.9質量%である。上記の範囲であれば、例えば、効率的な電荷の輸送と、ドーパントへの効率的なエネルギーの移動の点で好ましい。

[0035] アシスティングドーパント（熱活性化型遅延蛍光体）の使用量はアシスティングドーパントの種類によって異なり、そのアシスティングドーパントの特性に合わせて決めればよい。アシスティングドーパントの使用量の目安は、好ましくは発光層用材料全体の1～60質量%であり、より好ましくは2～50質量%であり、さらに好ましくは5～30質量%である。上記の範囲であれば、例えば、効率的にエネルギーをエミッティングドーパントへ移動させられるという点で好ましい。

[0036] エミッティングドーパント（ホウ素原子を有する化合物）の使用量はエミ

エミッティングドーパントの種類によって異なり、そのエミッティングドーパントの特性に合わせて決めればよい。エミッティングドーパントの使用量の目安は、好ましくは発光層用材料全体の0.001~30質量%であり、より好ましくは0.01~20質量%であり、さらに好ましくは0.1~10質量%である。上記の範囲であれば、例えば、濃度消光現象を防止できるという点で好ましい。

[0037] エミッティングドーパントの使用量は低濃度である方が濃度消光現象を防止できるという点で好ましい。アシスティングドーパントの使用量が高濃度である方が熱活性化型遅延蛍光機構の効率の点からは好ましい。さらには、アシスティングドーパントの熱活性化型遅延蛍光機構の効率の点からは、アシスティングドーパントの使用量に比べてエミッティングドーパントの使用量が低濃度である方が好ましい。

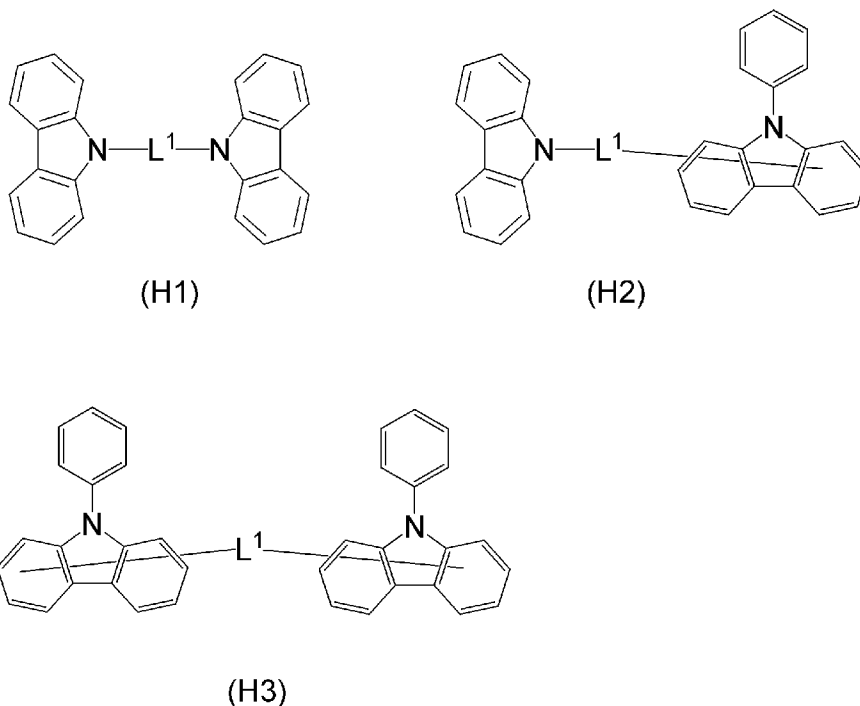
[0038] 2-1-1. ホスト化合物

ホスト化合物としては、公知のものを用いることができ、例えばカルバゾール環およびフラン環の少なくとも一方を有する化合物を挙げることができ、中でも、フラニル基およびカルバゾリル基の少なくとも一方と、アリーレンおよびヘテロアリーレンの少なくとも一方とが結合した化合物を用いることが好ましい。具体例として、mCPやmCBPなどが挙げられる。

[0039] ホスト化合物の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位 $E(1, T, S_h)$ は、発光層内でのTADFの発生を阻害せず促進させる観点から、発光層内において最も高い励起三重項エネルギー準位を有するエミッティングドーパントまたはアシスティングドーパントの励起三重項エネルギー準位 $E(2, T, S_h)$ 、 $E(3, T, S_h)$ に比べて高い方が好ましく、具体的には、ホスト化合物の励起三重項エネルギー準位 $E(1, T, S_h)$ は $E(2, T, S_h)$ 、 $E(3, T, S_h)$ に比べて、0.01 eV以上が好ましく、0.03 eV以上がより好ましく、0.1 eV以上がさらに好ましい。また、ホスト化合物にTADF活性な化合物を用いてもよい。

[0040] ホスト化合物には、例えば、下記式 (H1)、(H2) および (H3) のいずれかで表される化合物を用いることができる。

[化18]



上記式 (H1)、(H2) および (H3) 中、L¹は炭素数6~24のアリーレン、炭素数2~24のヘテロアリーレン、炭素数6~24のヘテロアリーレンアリーレンまたは炭素数6~24のアリーレンヘテロアリーレンアリーレンであり、炭素数6~16のアリーレンが好ましく、炭素数6~12のアリーレンがより好ましく、炭素数6~10のアリーレンが特に好ましく、具体的には、ベンゼン環、ビフェニル環、テルフェニル環およびフルオレン環などの二価の基が挙げられる。ヘテロアリーレンとしては、炭素数2~24のヘテロアリーレンが好ましく、炭素数2~20のヘテロアリーレンがより好ましく、炭素数2~15のヘテロアリーレンがさらに好ましく、炭素数2~10のヘテロアリーレンが特に好ましく、具体的には、ピロール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、ピラゾール環、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環

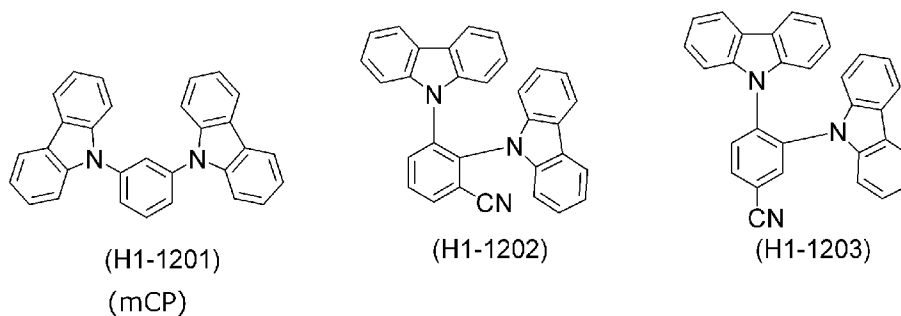
、ピラジン環、トリアジン環、インドール環、イソインドール環、1H-インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、1H-ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シンノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、プリン環、プテリジン環、カルバゾール環、アクリジン環、フェノキサチン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、フェナジン環、インドリジン環、フラン環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、チオフェン環、ベンゾチオフェン環、ジベンゾチオフェン環、フラザン環、オキサジアゾール環およびチアントレン環などの二価の基が挙げられる。

。

上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、炭素数1～6のアルキル、シアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

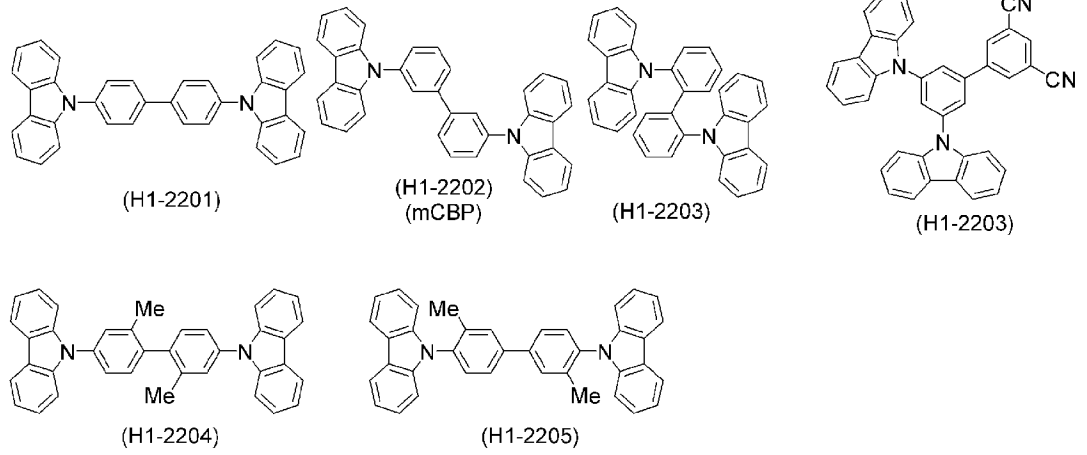
[0041] ホスト化合物としては、好ましくは以下に列挙したいずれかの構造式で表される化合物である。なお、以下に列挙した構造式においては、少なくとも1つの水素が、ハロゲン、シアノ、炭素数1～4のアルキル（例えばメチルやt-ブチル）、フェニルまたはナフチルなどで置換されていてもよい。

[0042] [化19]

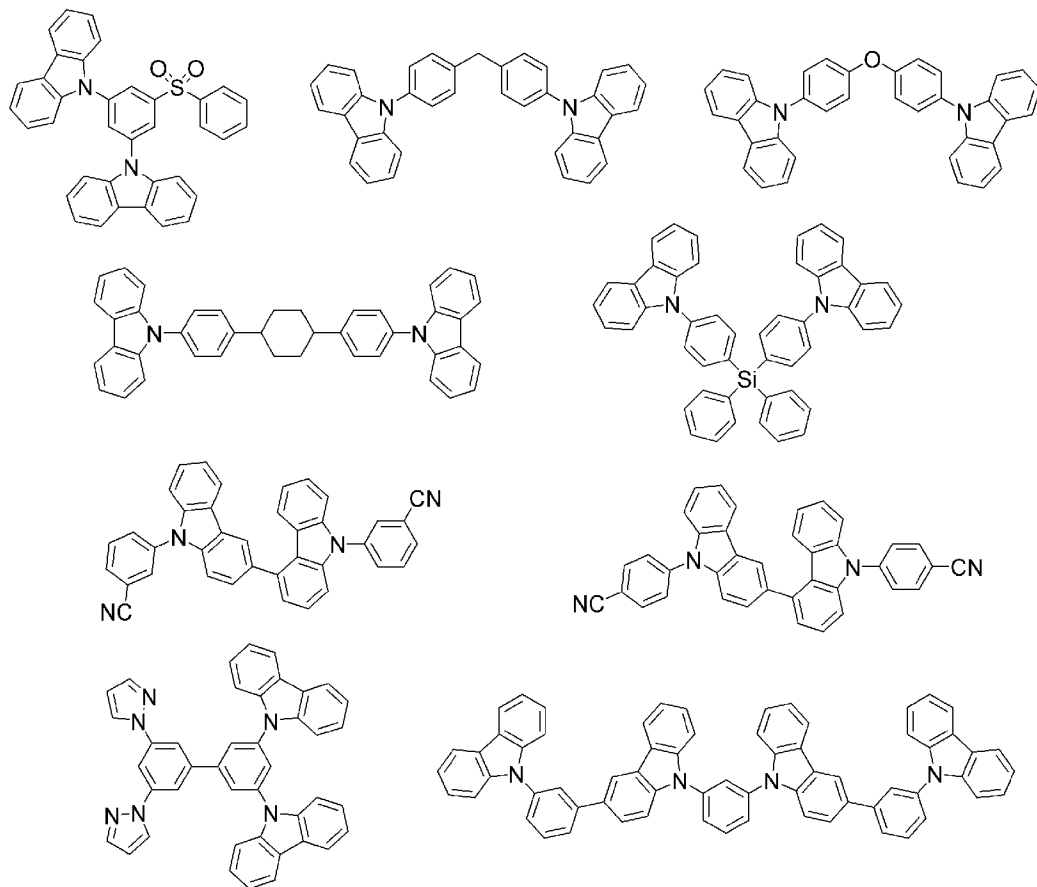


[0043]

[化20]

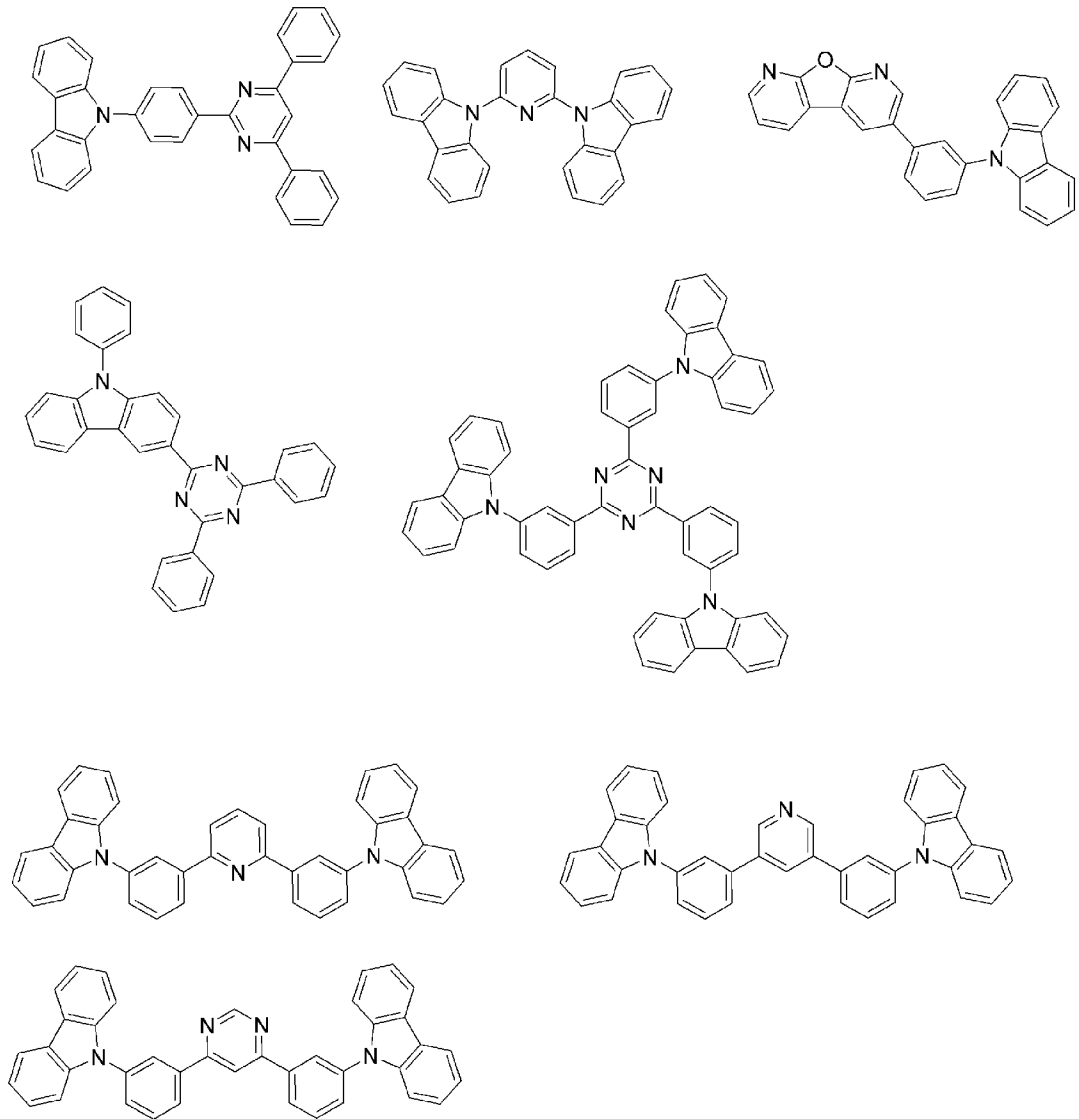


[0044] [化21]



[0045]

[化22]



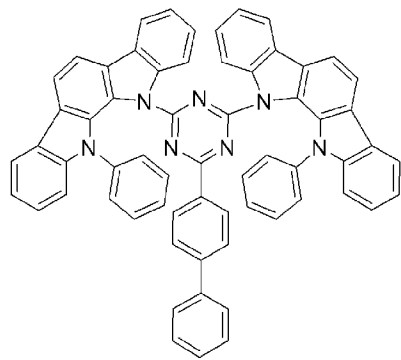
[0046] 2-1-2. 熱活性化型遅延蛍光体（アシスティングドーパント）

本発明で用いる熱活性化型遅延蛍光体（TADF化合物）は、ドナーと呼ばれる電子供与性の置換基とアクセプターと呼ばれる電子受容性の置換基を用いて分子内のHOMO（Highest Occupied Molecular Orbital）とLUMO（Lowest Unoccupied Molecular Orbital）を局在化させて、効率的な逆項間交差（reverse intersystem crossing）が起きるようにデザインされた、ドナー-アクセプター型熱活性化型遅延蛍光体（D-A型TADF化合物）であることが好ましい。

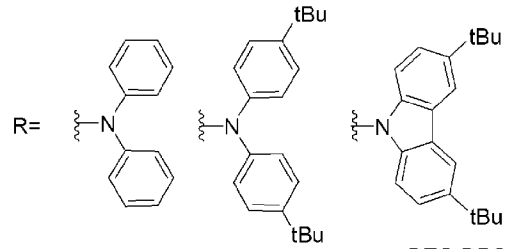
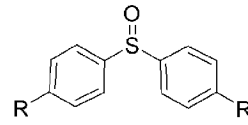
ジンおよびジフェニルージヒドロジベンゾアザシリンなどが挙げられる。アクセプター性の構造としては、スルホニルジベンゼン、ベンゾフェノン、フェニレンビス（フェニルメタノン）、ベンゾニトリル、イソニコチノニトリル、フタロニトリル、イソフタロニトリル、パラフタロニトリル、ベンゼントリカルボニトリル、トリアゾール、オキサゾール、チアジアゾール、ベンゾチアジアゾール、ベンゾビス（チアジアゾール）、ベンゾオキサゾール、ベンゾビス（オキサゾール）、キノリン、ベンゾイミダゾール、ジベンゾキノキサリン、ヘプタアザフェナレン、チオキサントンジオキシド、ジメチルアントラセノン、アントラセンジオン、シクロヘプタビピリジン、フルオレンジカルボニトリル、トリエフェニルtriaジン、ピラジンジカルボニトリル、ピリミジン、フェニルピリミジン、メチルピリミジン、ピリジンジカルボニトリル、ジベンゾキノキサリンジカルボニトリル、ビス（フェニルスルホニル）ベンゼン、ジメチルチオキサントンジオキド、チアンスレンテトラオキシドおよびトリス（ジメチルフェニル）ボランが挙げられる。特に、本発明の熱活性化型遅延蛍光を有する化合物は、部分構造として、カルバゾール、フェノキサジン、アクリジン、トリアジン、ピリミジン、ピラジン、チオキサントン、ベンゾニトリル、フタロニトリル、イソフタロニトリル、ジフェニルスルホン、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールおよびベンゾフェノンから選択される少なくとも一つを有する化合物であることが好ましい。

[0048] 本発明の発光層の第2成分として用いる化合物は、熱活性化型遅延蛍光体であって、その発光スペクトルがエミッティングドープメントの吸収ピークと少なくとも一部重なる化合物であることが好ましい。以下において、本発明の発光層の第2成分（熱活性化型遅延蛍光体）として用いることができる化合物を例示する。ただし、本発明において熱活性化型遅延蛍光体として用いることができる化合物は、以下の例示化合物によって限定的に解釈されることはない。下記式において、Meはメチルを表し、t-Buはt-ブチルを表し、Phはフェニルを表し、波線は結合位置を表す。

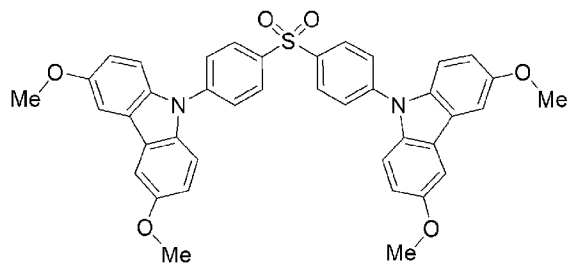
[0049] [化23]



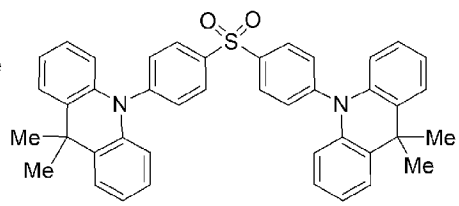
PIC-TRZ



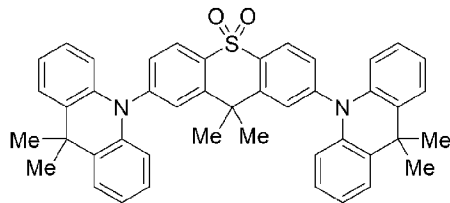
DTC-DPS



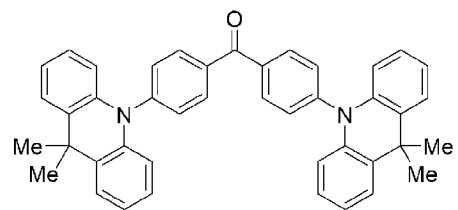
DMOC-DPS



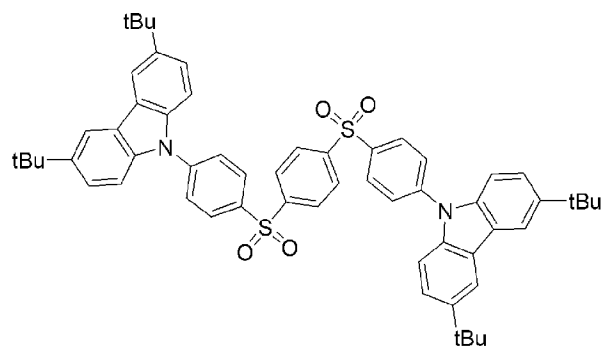
DMAC-DPS



DMTDAc



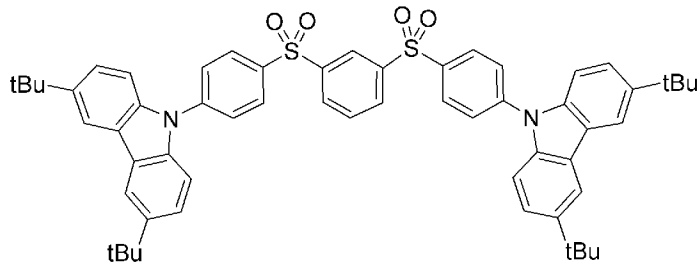
DMAC-BP



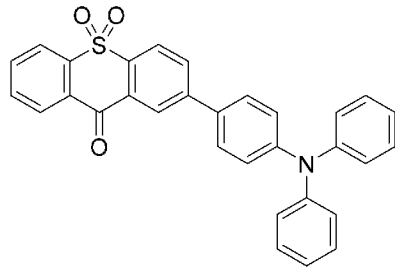
DTC-pBPSB

[0050]

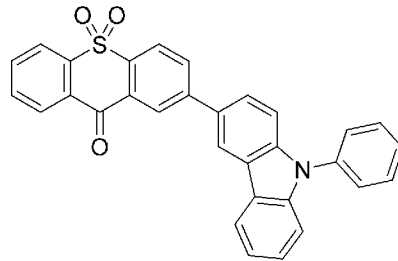
[化24]



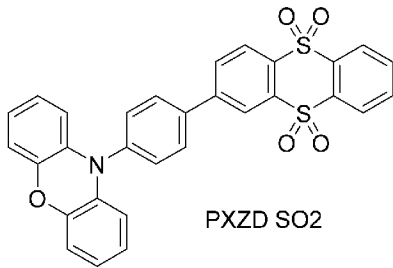
DTC-mBPSB



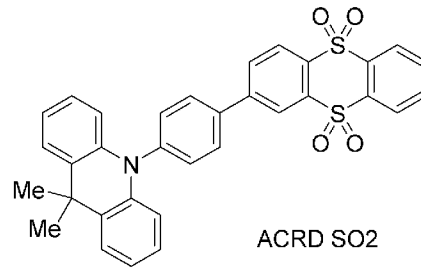
TXO-TPA



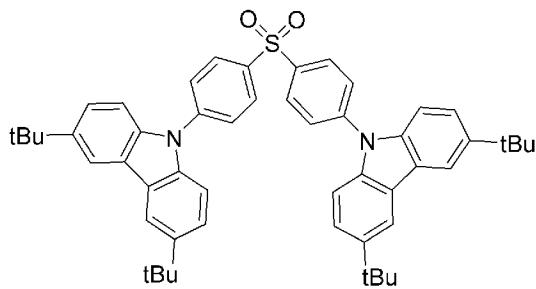
TXO-PhCz



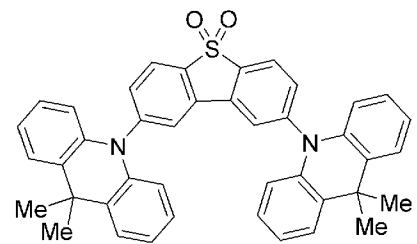
PXZD SO2



ACRD SO2



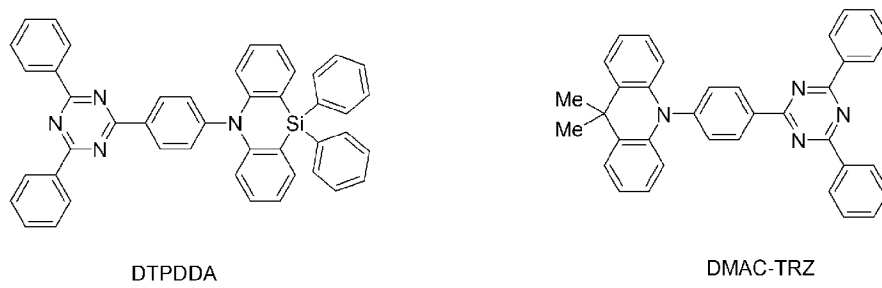
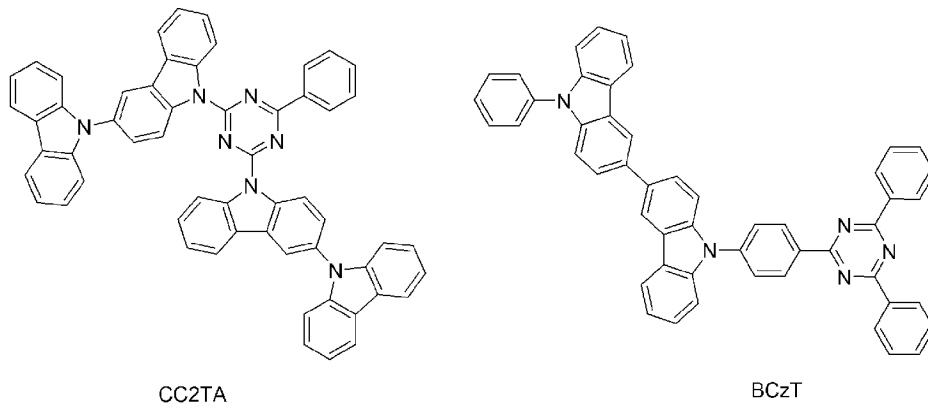
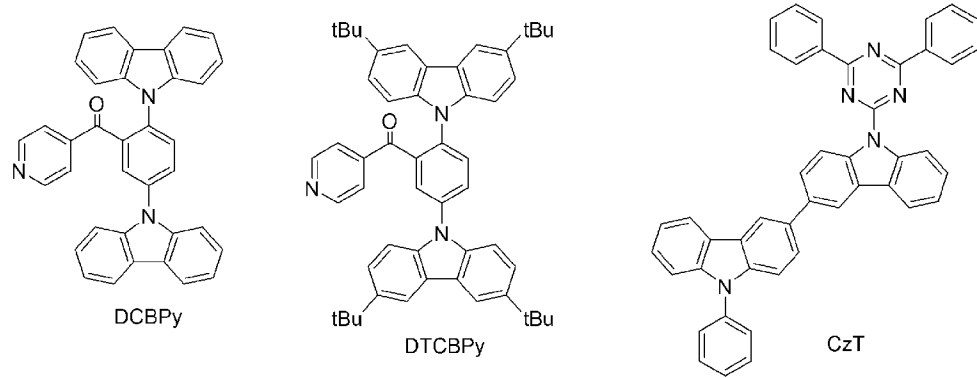
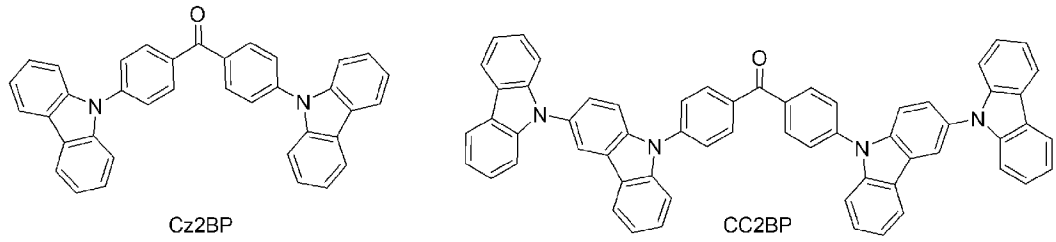
DTC-DBT



DTAO

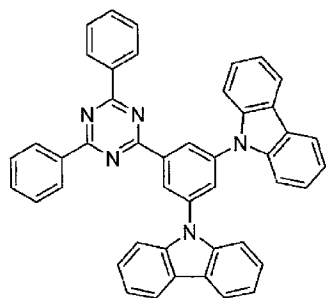
[0051]

[化25]

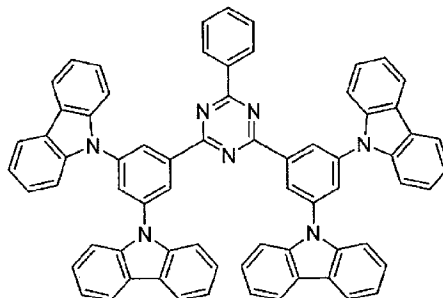


[0052]

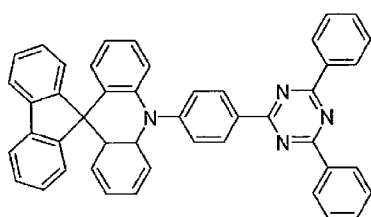
[化26]



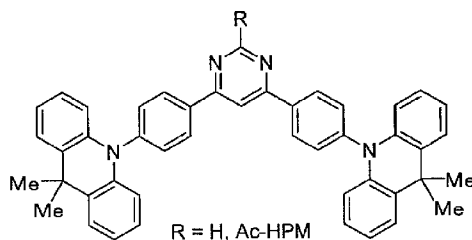
DCzTrz



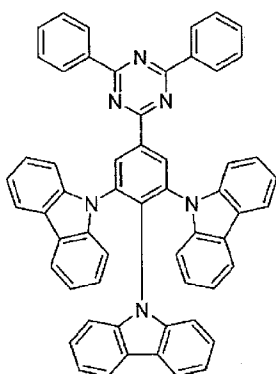
DDCzTrz



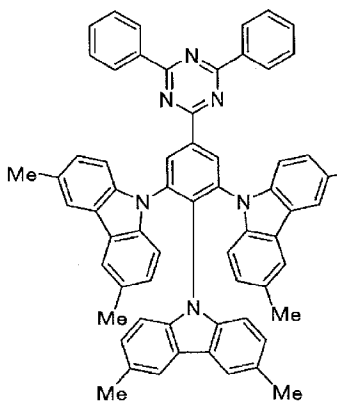
spiroAC-TRZ



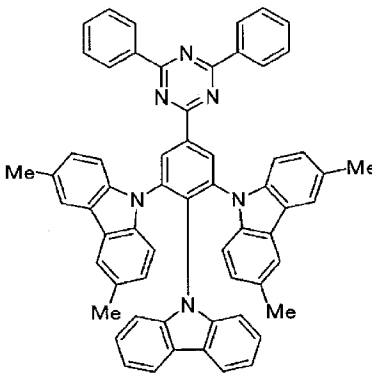
R = H, Ac-HPM
R = Ph, Ac-PPM
R = Me Ac-MPM



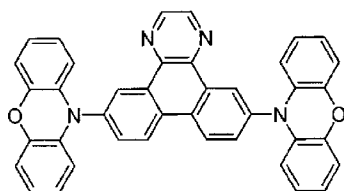
TCzTrz



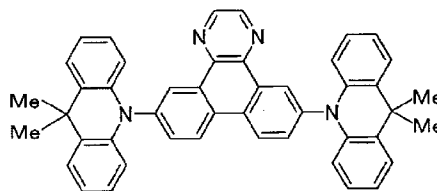
TmCzTrz



DCzmCzTrz



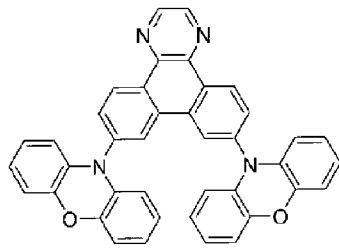
ATP-PXZ



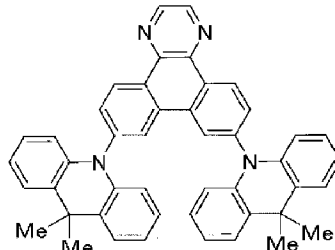
ATP-ACR

[0053]

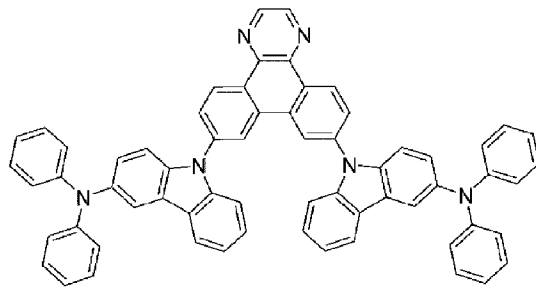
[化27]



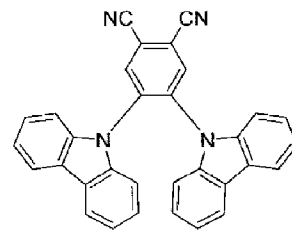
m-ATP-PXZ



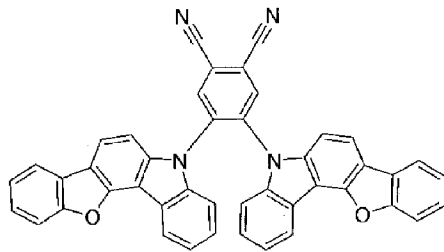
m-ATP-ACR



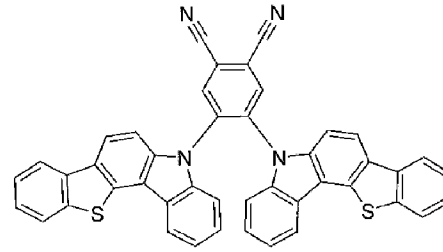
m-ATP-CDP



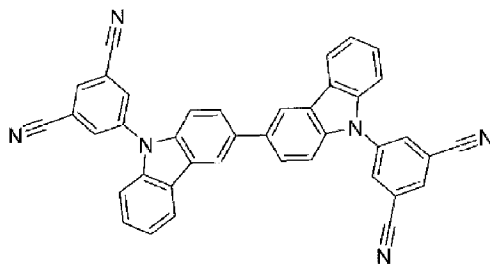
2CzPN



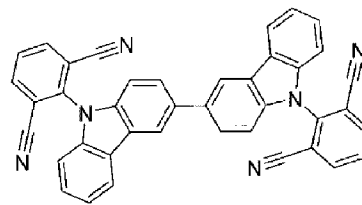
BFCz-2CN



BTCz-2CN



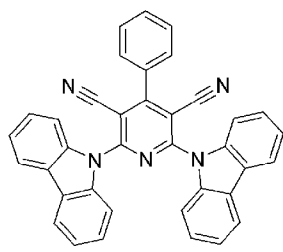
35IPNDCz



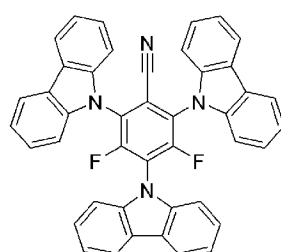
26IPNDCz

[0054]

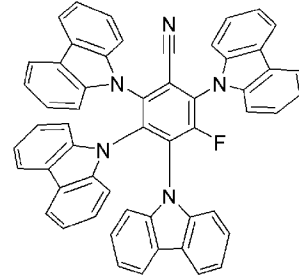
[化28]



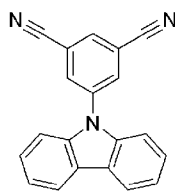
CPC



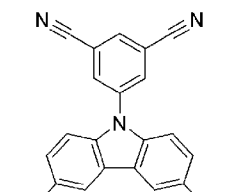
3CzFCN



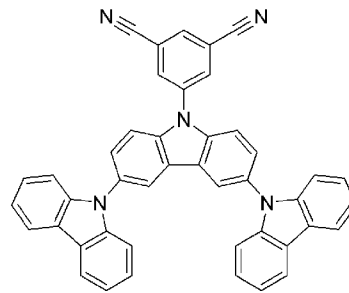
4CzFCN



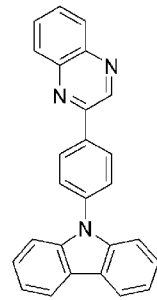
DCN1



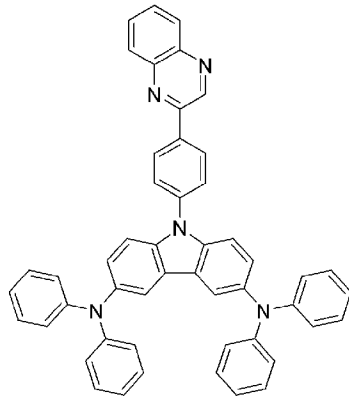
DCN2



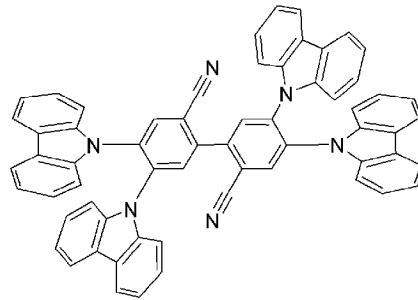
DCN3



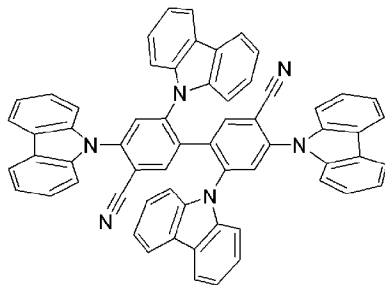
CZQ



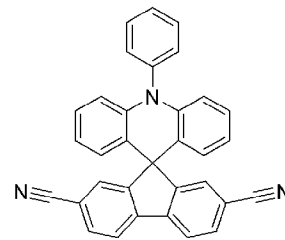
DACQ



CNBPCz



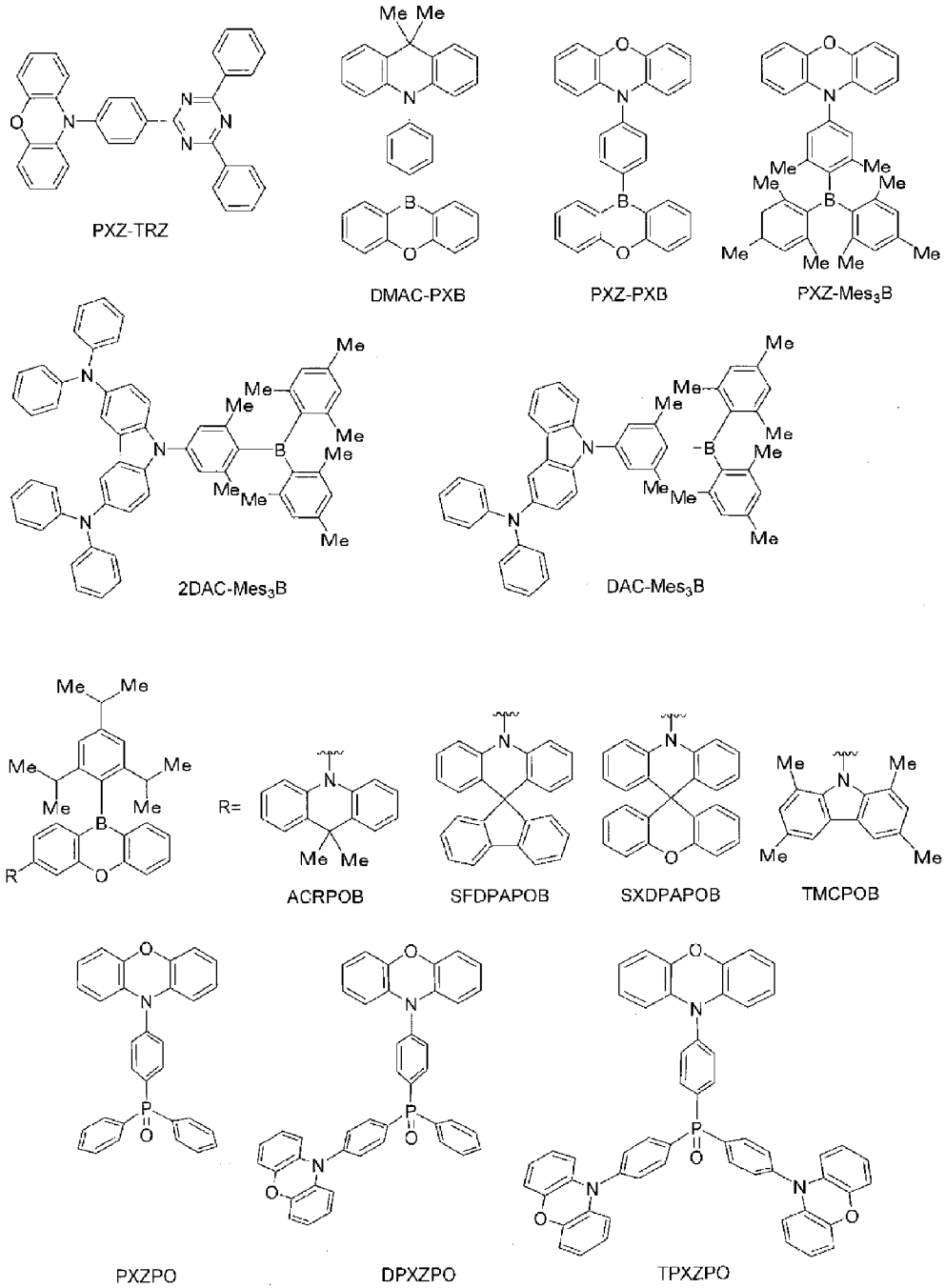
CzBPCN



ACRFLCN

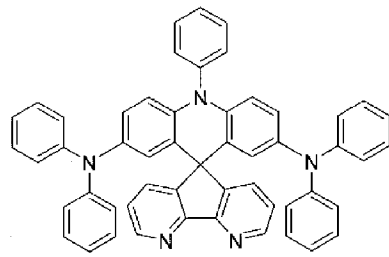
[0055]

[化29]

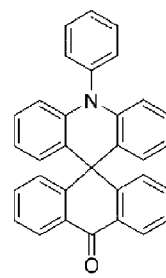


[0056]

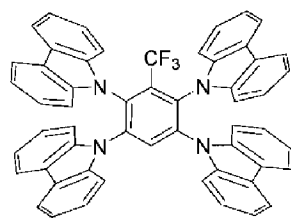
[化30]



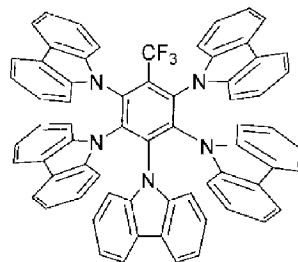
DPAA-AF



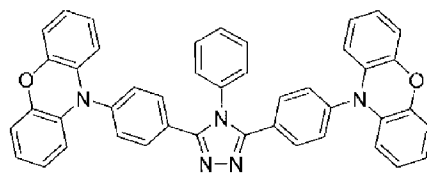
ACRSA



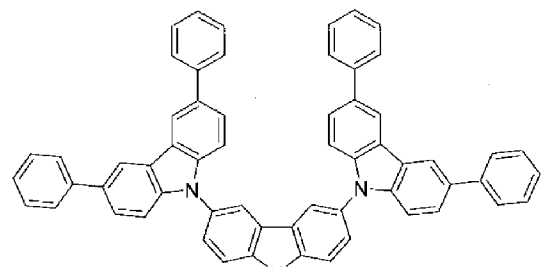
4CzCF₃Ph



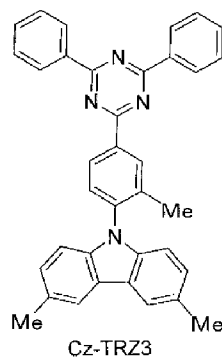
5CzCF₃Ph



2PXZ-TAZ



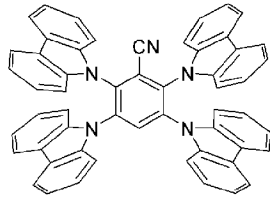
BDPCC-TPTA



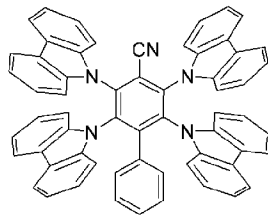
Cz-TRZ3

[0057]

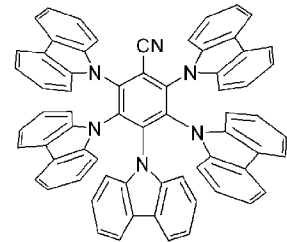
[化31]



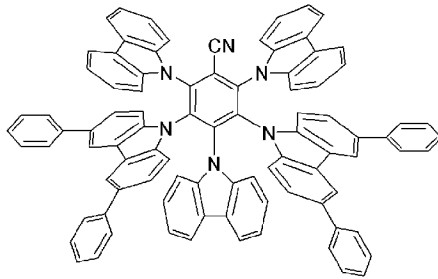
4CzBN



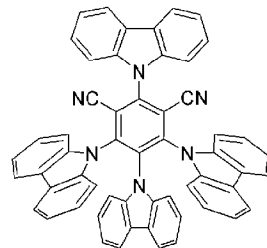
4CzBN-Ph



5CzBN

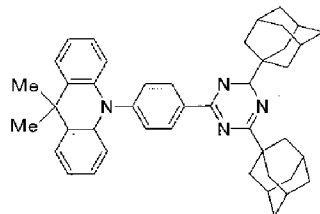


3Cz2DPhCzBN

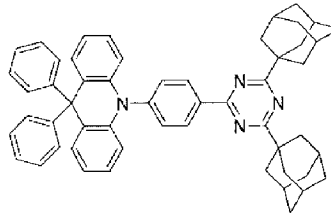


4CzIPN

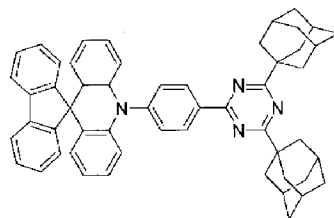
[0058] [化32]



MA-TA



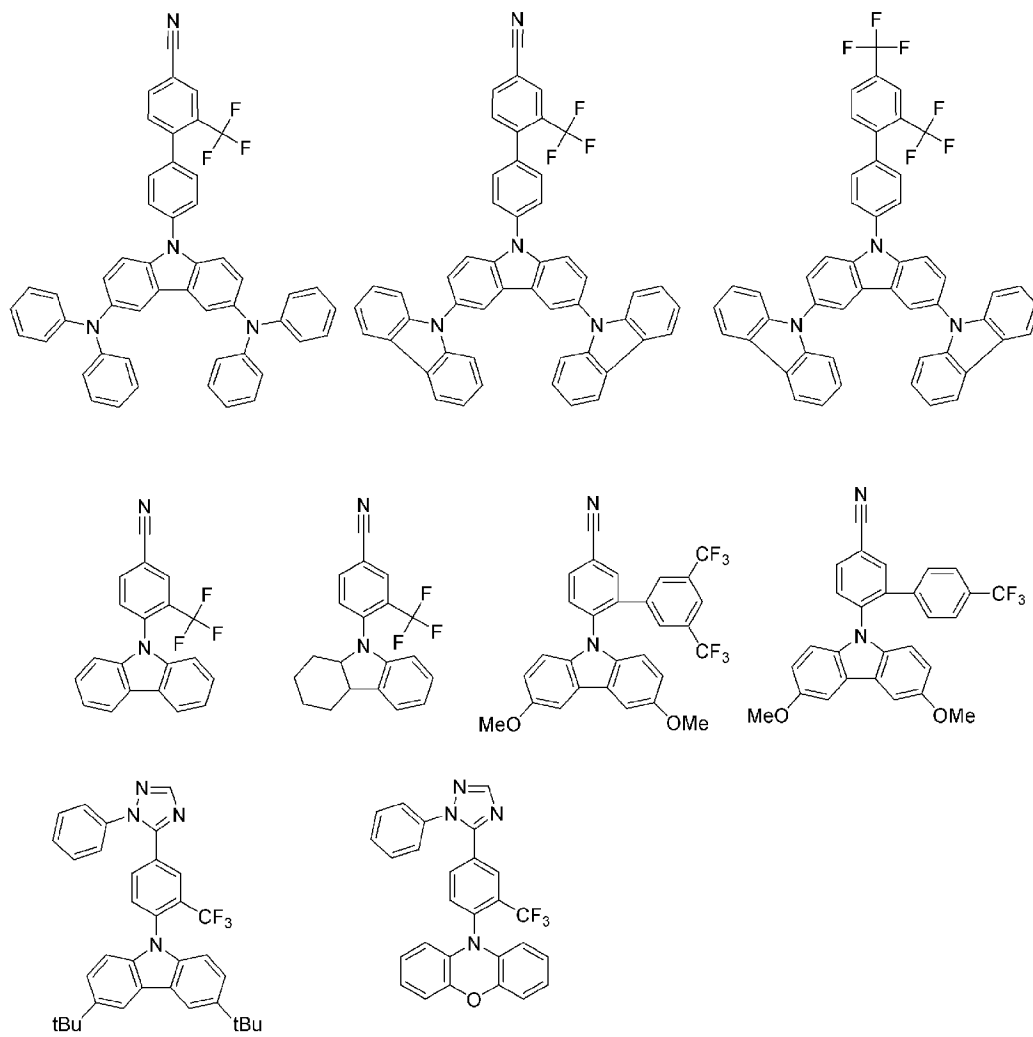
PA-TA



FA-TA

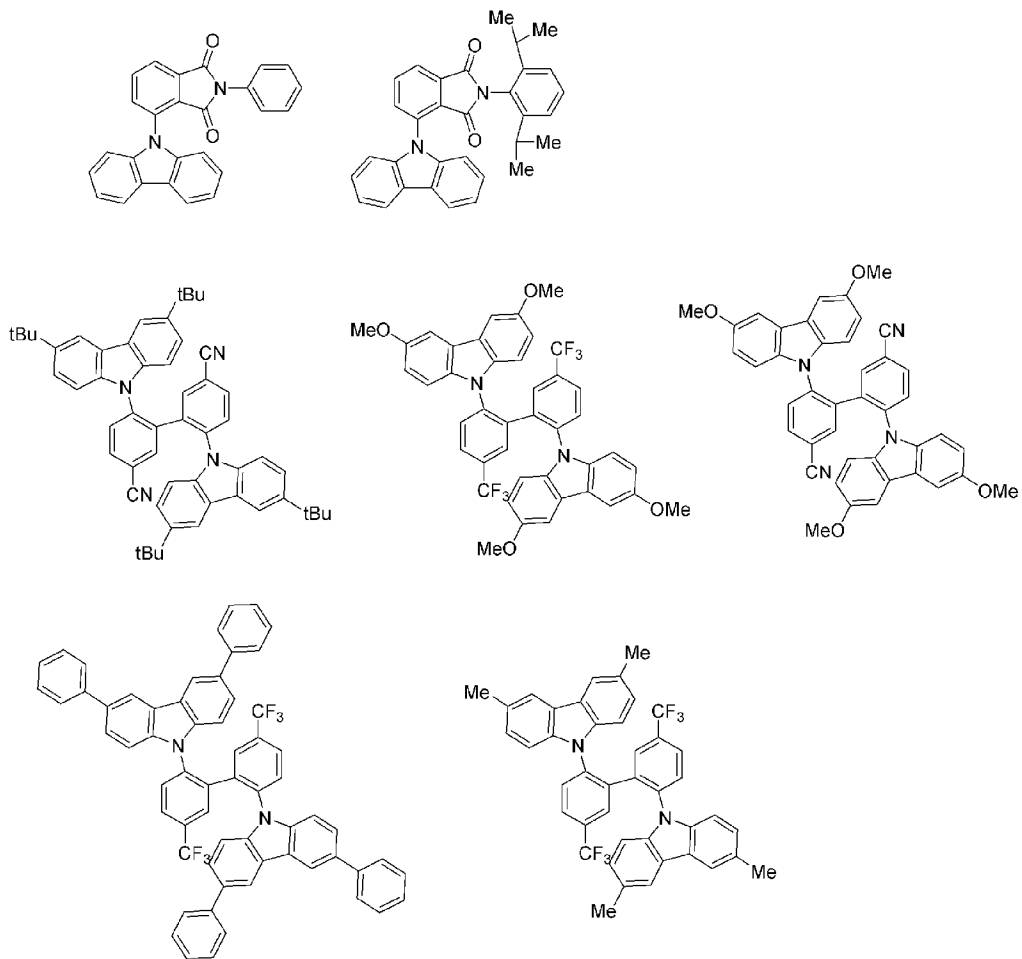
[0059]

[化33]



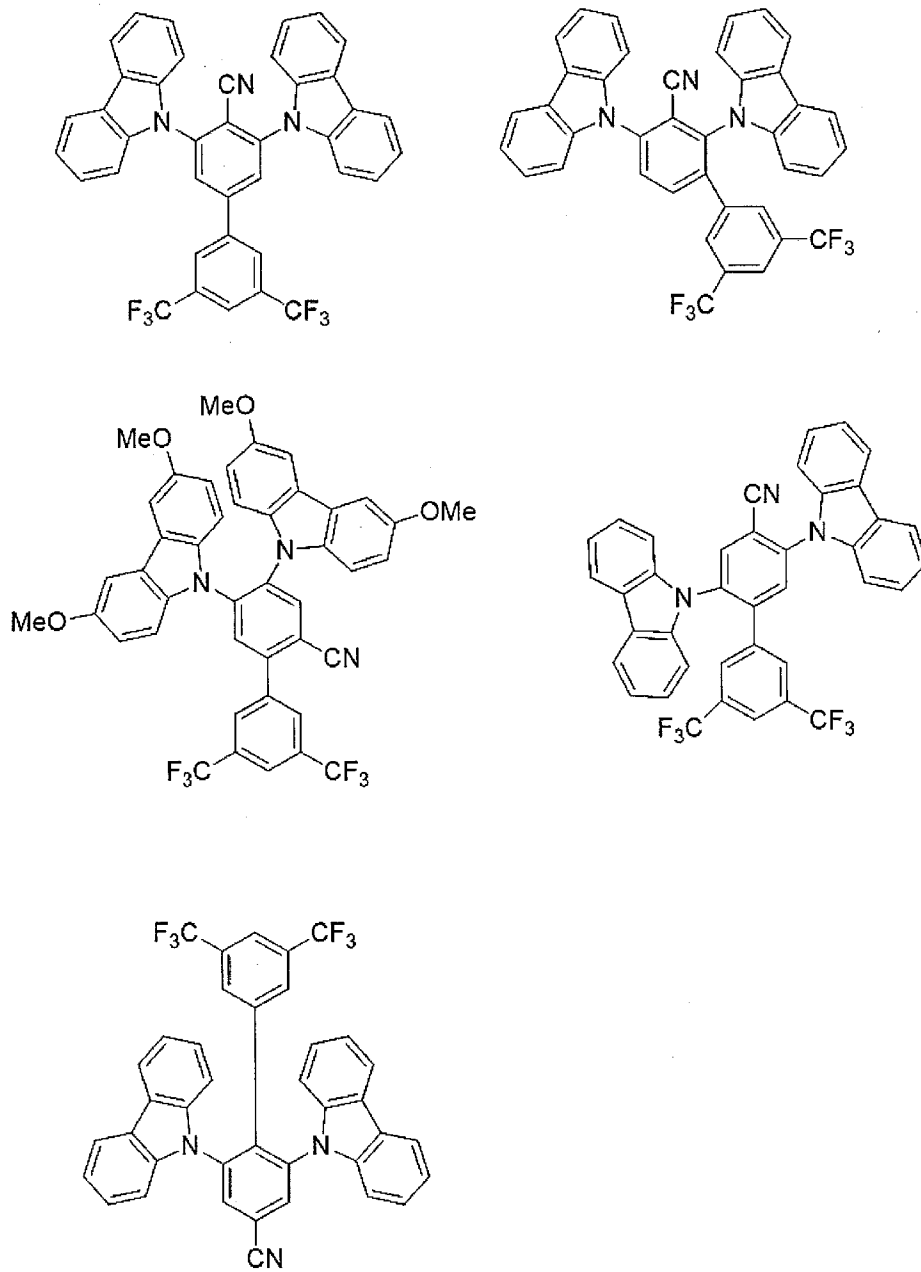
[0060]

[化34]



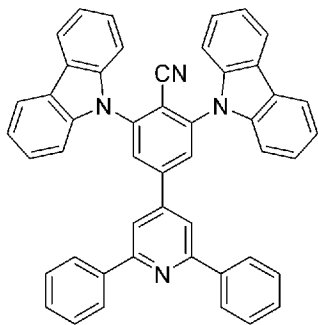
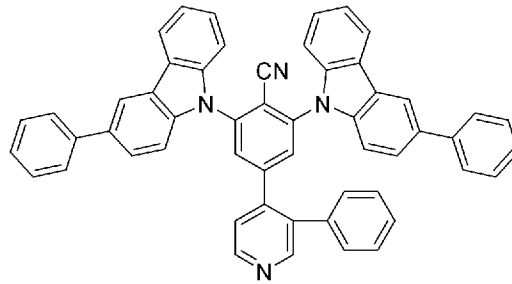
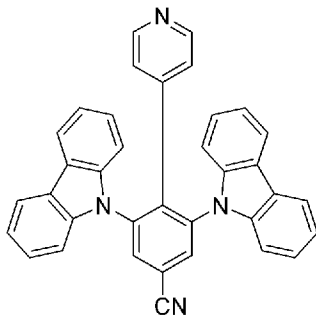
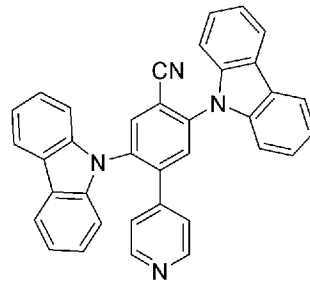
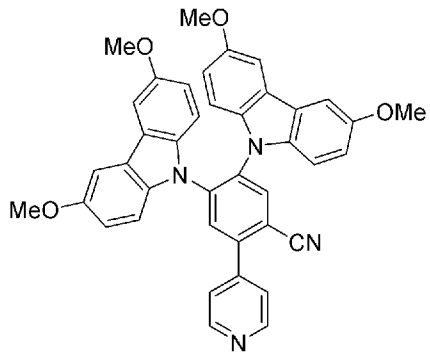
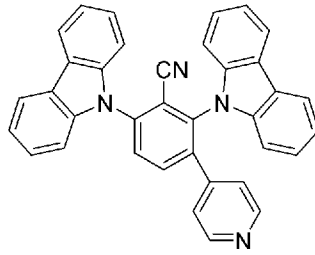
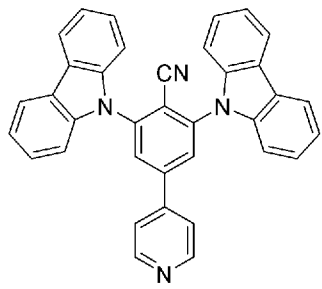
[0061]

[化35]



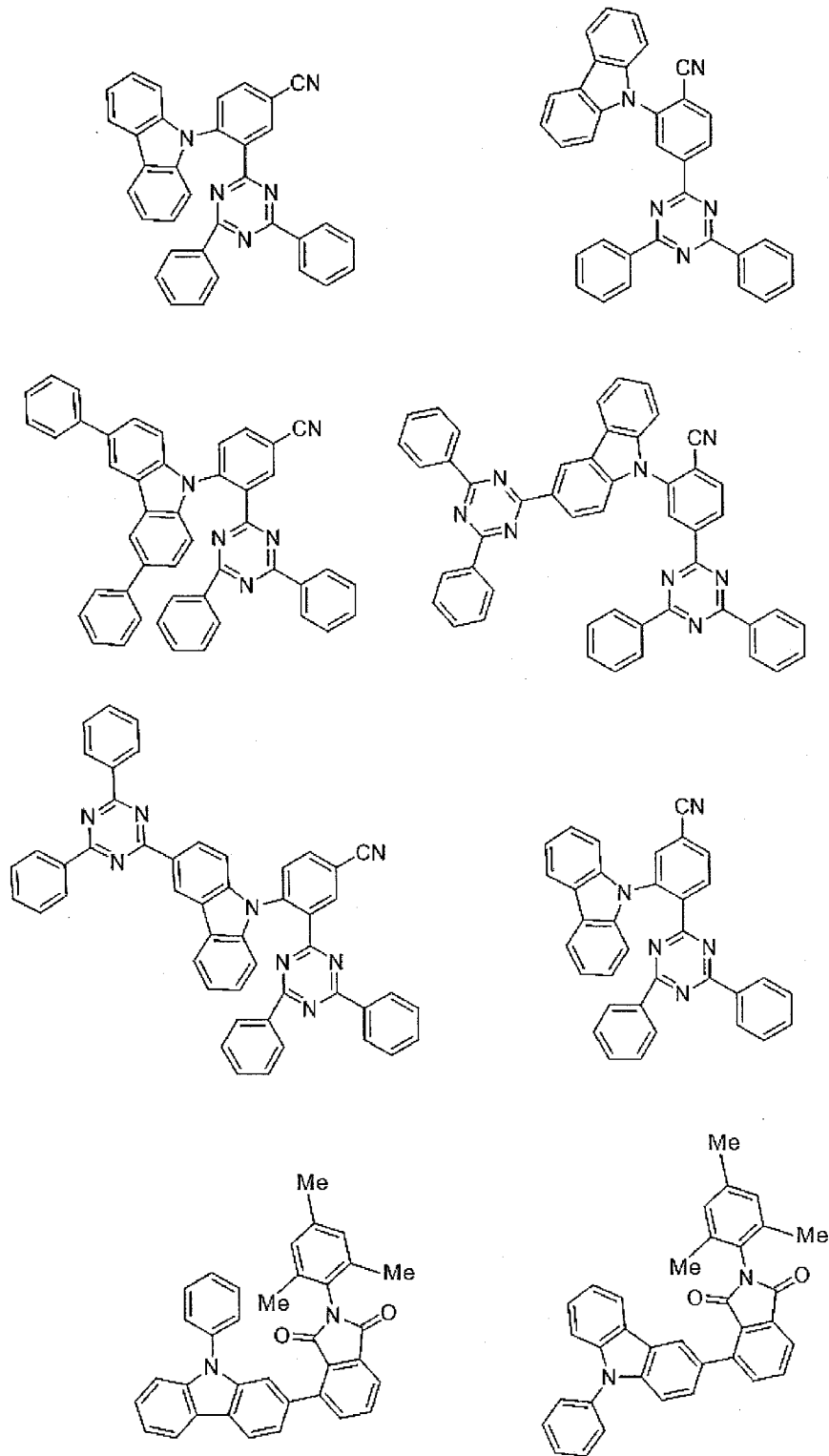
[0062]

[化36]



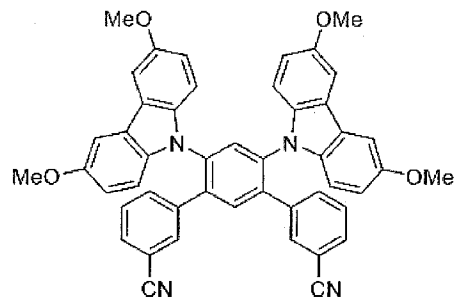
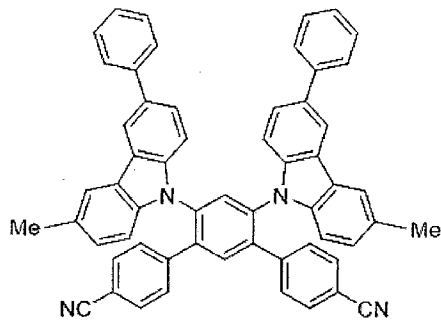
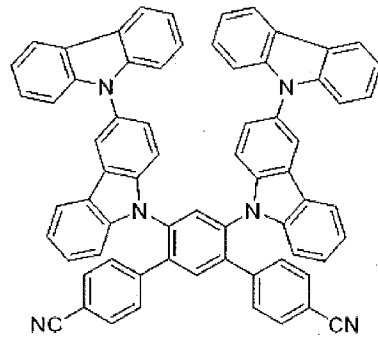
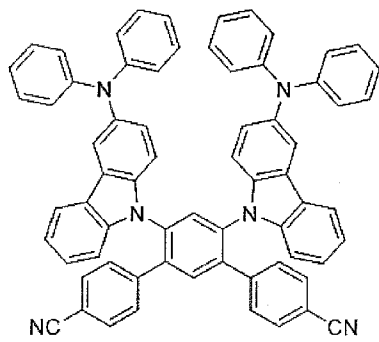
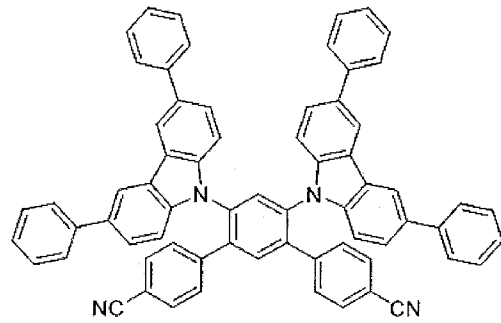
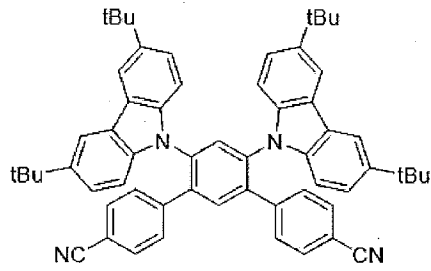
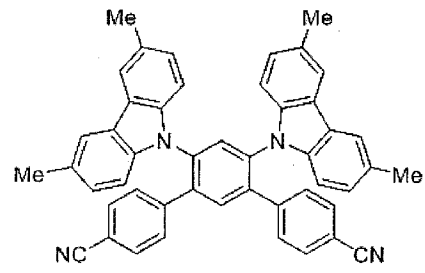
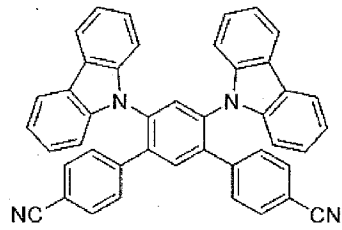
[0063]

[化37]



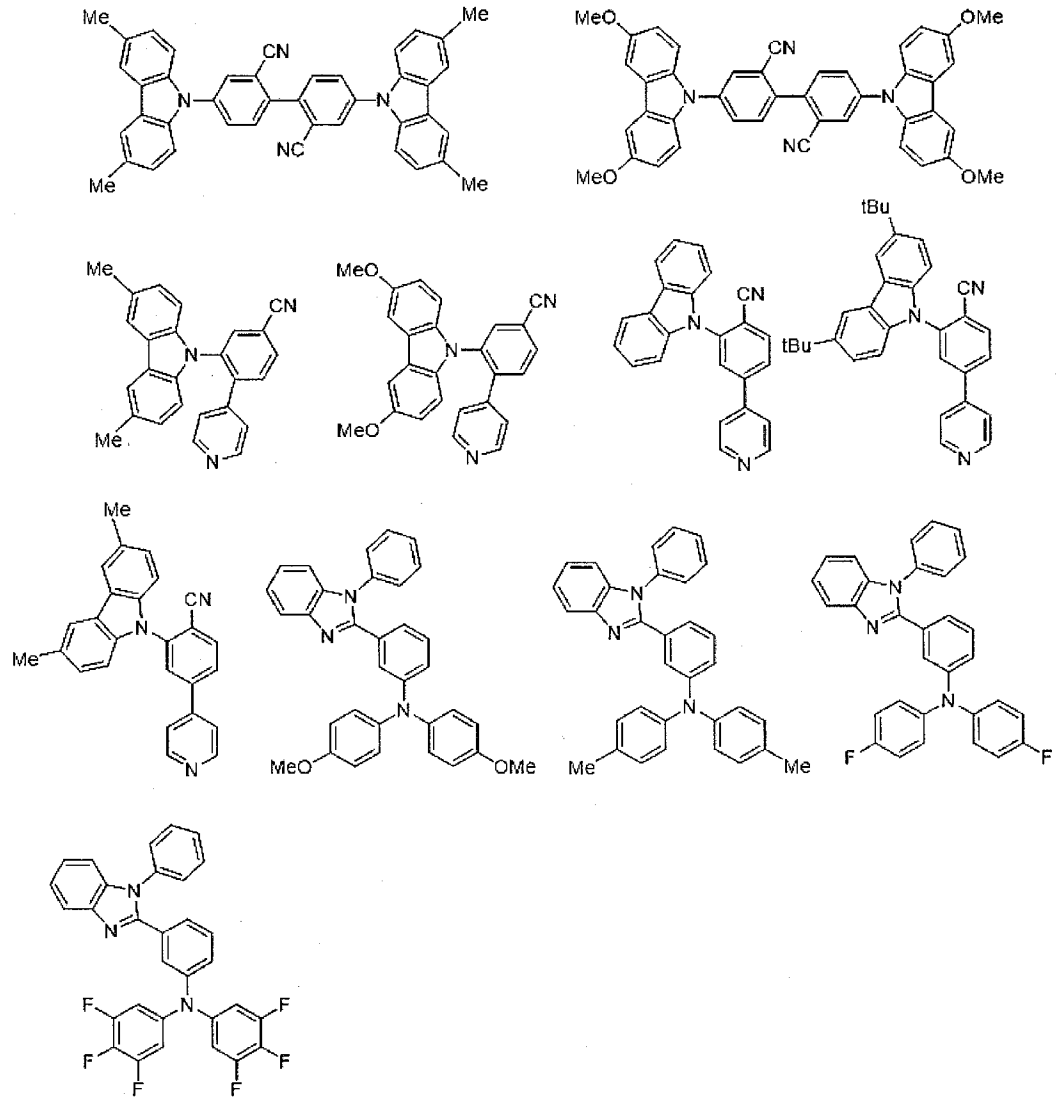
[0064]

[化38]



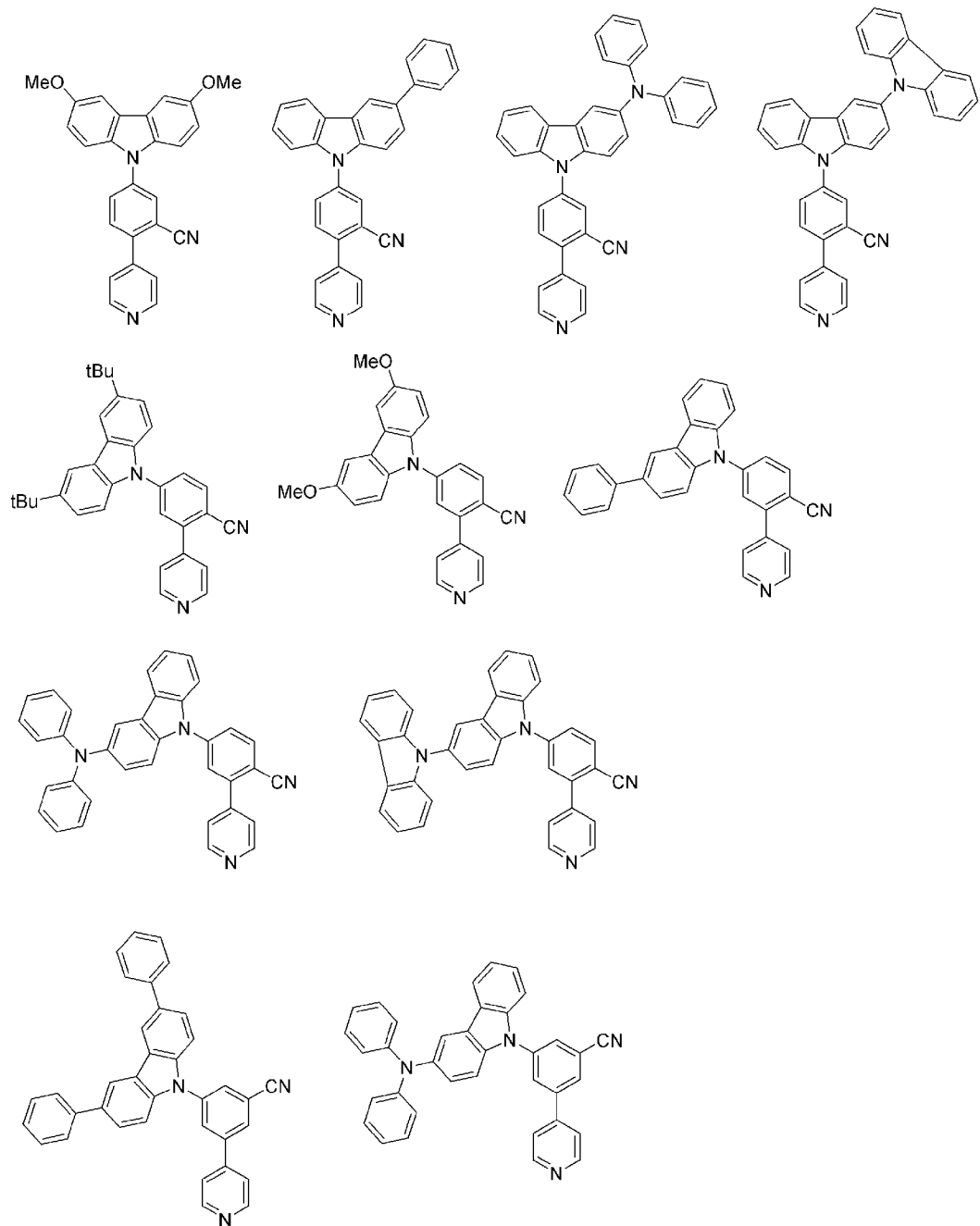
[0065]

[化39]



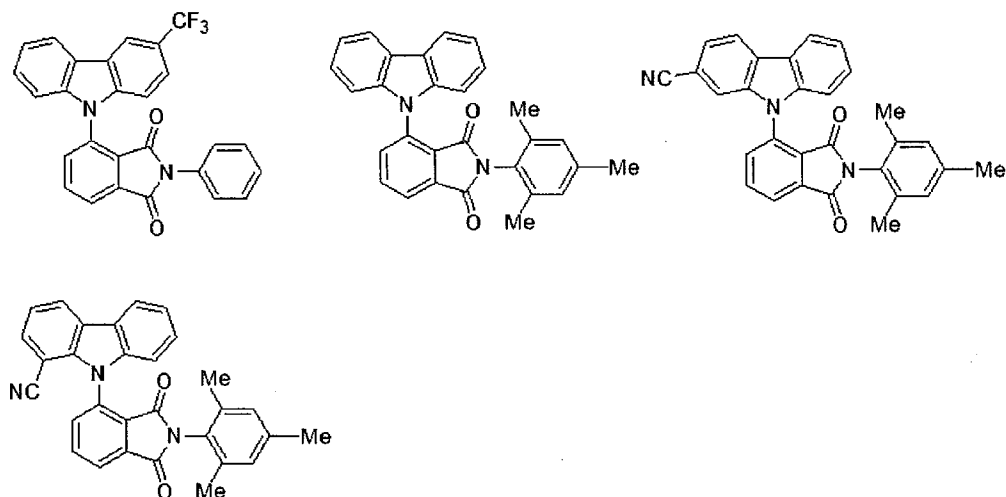
[0066]

[化40]



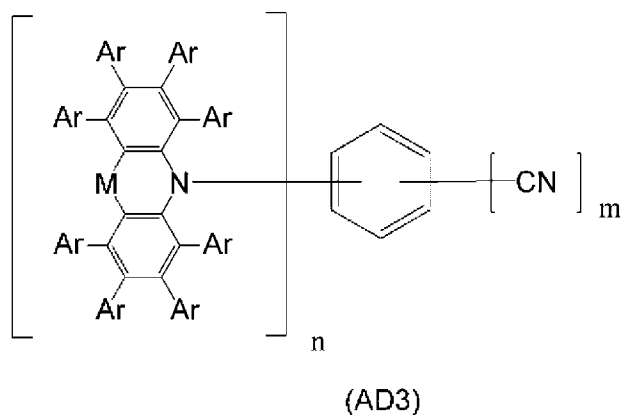
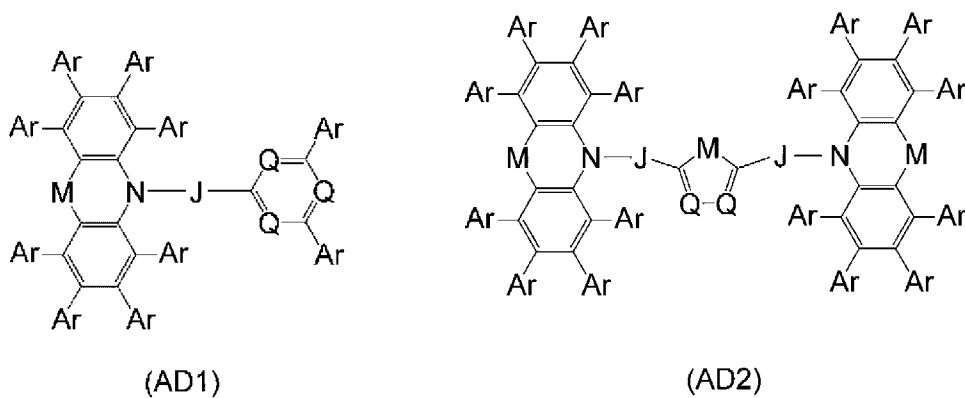
[0067]

[化41]



[0068] さらに、熱活性化型遅延蛍光体として、下記式 (AD1)、(AD2) および (AD3) のいずれかで表される化合物も用いることができる。

[化42]



[0069] 上記式 (AD1)、(AD2) および (AD3) 中、

Mは、それぞれ独立して、単結合、 $-O-$ 、 $>N-Ar$ または $>CAr_2$ であり、形成する部分構造のHOMOの深さおよび励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位の高さの観点から、好ましくは、単結合、 $-O-$ または $>N-Ar$ である。Jはドナー性の部分構造とアクセプター性の部分構造を分けるスペーサー構造であり、それぞれ独立して、炭素数6～18のアリーレンであり、ドナー性の部分構造とアクセプター性の部分構造から染み出す共役の大きさの観点から、炭素数6～12のアリーレンが好ましい。より具体的には、フェニレン、メチルフェニレンおよびジメチルフェニレンが挙げられる。Qは、それぞれ独立して、 $=C(-H)-$ または $=N-$ であり、形成する部分構造のLUMOの浅さおよび励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位の高さの観点から、好ましくは、 $=N-$ である。Arは、それぞれ独立して、水素、炭素数6～24のアリール、炭素数2～24のヘテロアリール、炭素数1～12のアルキルまたは炭素数3～18のシクロアルキルであり、形成する部分構造のHOMOの深さおよび励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位の高さの観点から、好ましくは、水素、炭素数6～12のアリール、炭素数2～14のヘテロアリール、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数6～10のシクロアルキルであり、より好ましくは、水素、フェニル、トリル、キシリル、メシチル、ピフェニル、ピリジル、ビピリジル、トリアジル、カルバゾリル、ジメチルカルバゾリル、ジ-tert-ブチルカルバゾリル、ベンゾイミダゾールまたはフェニルベンゾイミダゾールであり、さらに好ましくは、水素、フェニルまたはカルバゾリルである。mは、1または2である。nは、 $\sim(6-m)$ の整数であり、立体障害の観点から、好ましくは、 $4\sim(6-m)$ の整数である。さらに、上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

[0070] 本発明の発光層の第2成分として用いる化合物は、より具体的に言えば、 $4CzBN$ 、 $4CzBN-Ph$ 、 $5CzBN$ 、 $3Cz2DPPhCzBN$ 、4

CzIPN、2PXZ-TAZ、Cz-TRZ3、BDPCC-TPTA、MA-TA、PA-TA、FA-TA、PXZ-TRZ、DMAC-TRZ、BCzT、DCzTrz、DDCzTRz、spiroAC-TRZ、Ac-HPM、Ac-PPM、Ac-MPM、TCzTrz、TmCzTrzおよびDCzmCzTrzであることが好ましい。

[0071] 本発明の発光層の第2成分として用いる化合物は、1つのドナーDと1つのアクセプターAが直接結合または連結基を介して結合しているD-Aで表されるドナーアクセプター型TADF化合物でもよいが、1つのアクセプターAに複数のドナーDが直接結合または連結基を介して結合している下記式(DAD1)で表される構造を有するものであることが、有機電界発光素子の特性がより優れたものになるため好ましい。



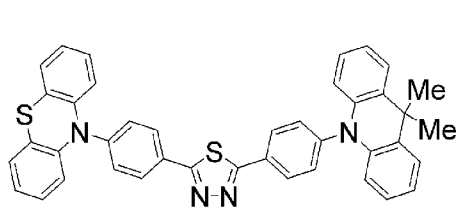
式(DAD1)には、下記式(DAD2)で表される化合物が含まれる。



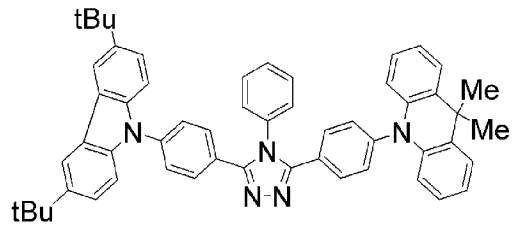
式(DAD1)および式(DAD2)において、D¹、D²およびD³はそれぞれ独立してドナー性基を表す。ドナー性基としては、上記のドナー性の構造を採用することができる。A¹およびA²はそれぞれ独立してアクセプター性基を表す、アクセプター性基としては、上記のアクセプター性の構造を採用することができる。L¹、L²およびL³はそれぞれ独立して単結合または共役連結基を表す。共役連結基はドナー性基とアクセプター性基を分けるスペーサー構造であり、炭素数6~18のアリーレンであることが好ましく、炭素数6~12のアリーレンがより好ましい。L¹、L²およびL³は、それぞれ独立してフェニレン、メチルフェニレンまたはジメチルフェニレンであることがさらに好ましい。式(DAD1)におけるnは2以上であって、A¹が置換しうる最大数以下の整数を表す。nは例えば2~10の範囲内で選択したり、2~6の範囲内で選択したりしてもよい。nが2であるとき、式(DAD

2) で表される化合物になる。n個のD¹は同一であっても異なってもよく、n個のL¹は同一であっても異なってもよい。式(DAD1)および式(DAD2)で表される化合物の好ましい具体例として、2PXZ-TAZや下記の化合物をあげることができるが、本発明で採用することができる第2成分はこれらの化合物に限定されない。

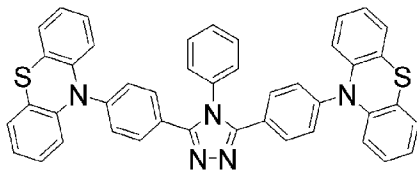
[0072] [化43]



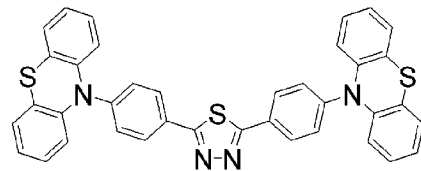
2132345-87-8



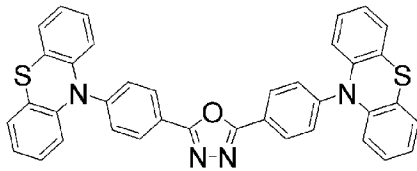
2132345-84-5



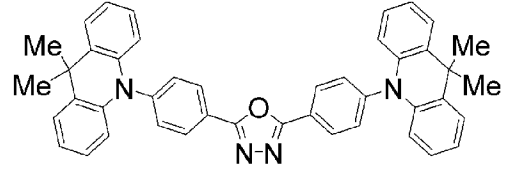
2089035-64-1



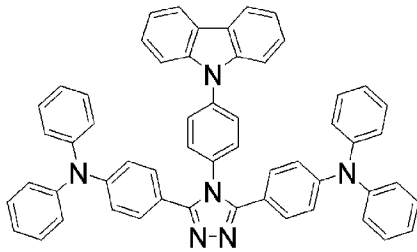
2089035-62-9



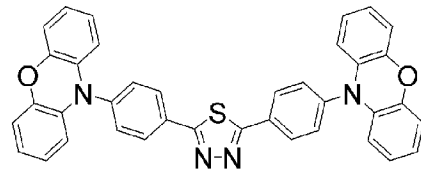
2089035-60-7



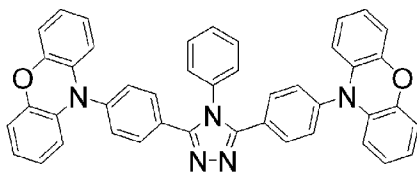
2052997-36-9



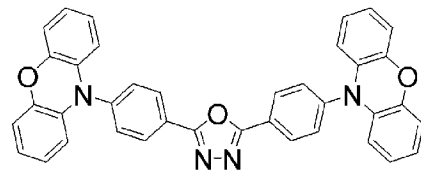
1803144-39-9



1622181-02-5



1447998-15-3

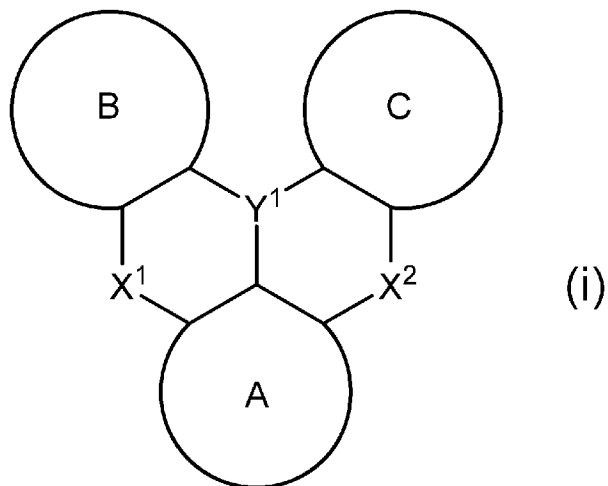


1447998-13-1

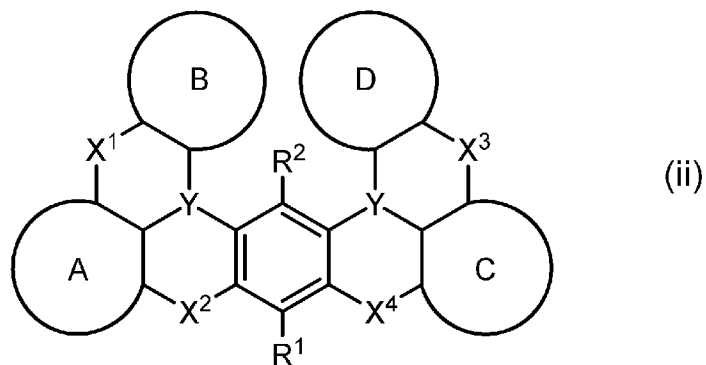
[0073] 2-1-3. ホウ素原子を有する化合物（エミッティングドーパント）

本発明の有機電界発光素子の発光層は、第3成分としてホウ素原子を有する化合物を含む。発光層は、ホウ素原子を有する化合物として、下記式（i）、（ii）、および（iii）のいずれかで表される化合物、および下記式（i）で表される構造を複数有する多量体化合物の少なくとも1つを含むことが好ましい。

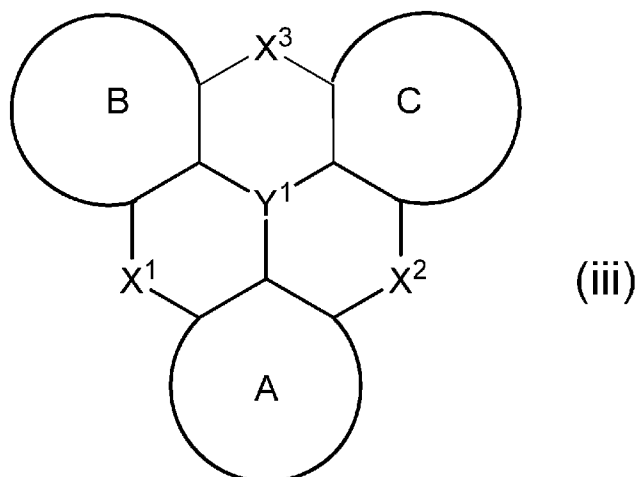
[化44]



[化45]

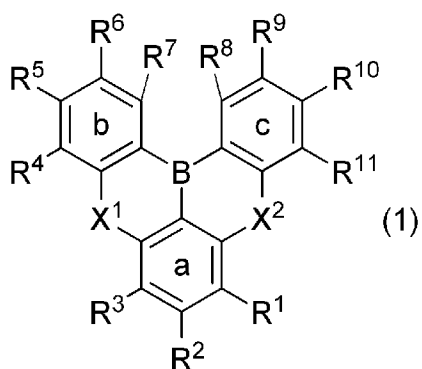


[化46]

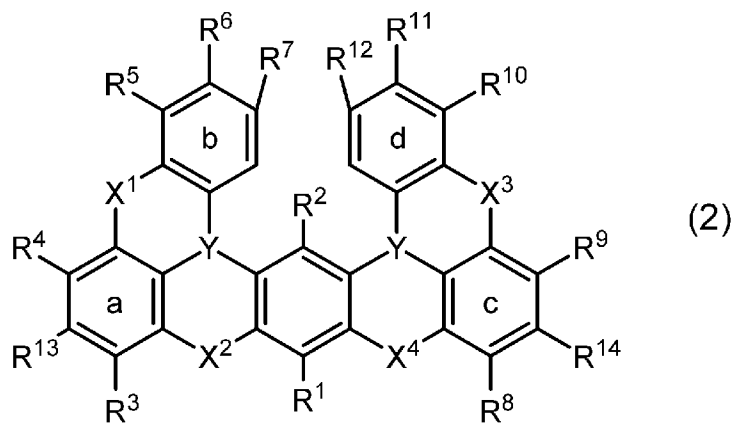


[0074] 本発明の有機電界発光素子の発光層は、第3成分（ホウ素原子を有する化合物）として、下記式（1）、（2）、（3）および（4）のいずれかで表される化合物を少なくとも1つ含むことがより好ましい。

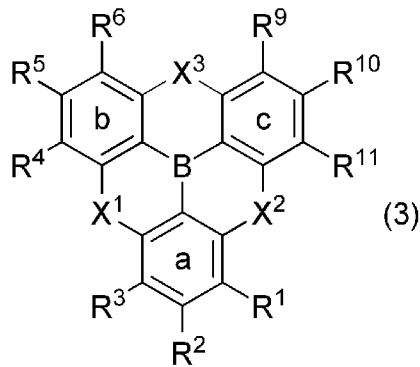
[化47]



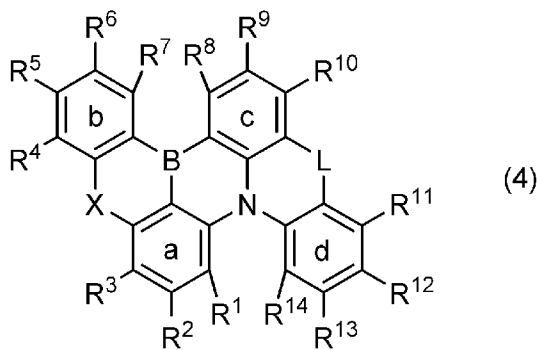
[化48]



[化49]



[化50]



[0075] 例えば有機電界発光ディスプレイ用の発光材料としては、蛍光材料、りん光材料、熱活性化型遅延蛍光（TADF）材料の3種類が利用されているが、蛍光材料は、発光効率が低く、およそ25～62.5%程度である。一方、りん光材料とTADF材料は、発光効率が100%に達する場合もあるが、いずれも色純度が低い（発光スペクトルの幅が広い）という問題がある。ディスプレイでは、光の三原色である赤・緑・青色の発光を混合することによりさまざまな色を表現しているが、それぞれの色純度が低いと、再現できない色ができてしまい、ディスプレイの画質が大きく低下する。そこで、市販のディスプレイでは、発光スペクトルから不必要な色を光学フィルターで除去することにより、色純度を高めてから（スペクトル幅を狭くしてから）使用している。したがって、元々のスペクトル幅が広いと除去する割合が増えるために、発光効率が高い場合でも、実質的な効率は大きく低下する。例えば、市販のスマートフォンの青色の発光スペクトルの半値幅は、およそ2

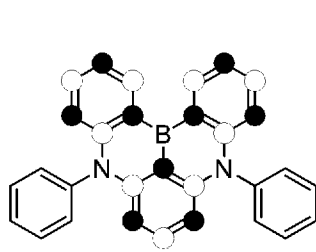
0～25 nm程度であるが、一般的な蛍光材料の半値幅は40～60 nm程度、りん光材料は60～90 nm程度、TADF材料だと70～100 nm程度である。蛍光材料を用いた場合は半値幅が比較的狭いため不要な色を一部除去するだけで足りるが、りん光材料やTADF材料を用いた場合は半分以上除去する必要がある。このような背景から、発光効率と色純度の両方を兼ね備えた発光材料の開発が望まれていた。

[0076] 一般にTADF材料は、ドナーと呼ばれる電子供与性の置換基とアクセプターと呼ばれる電子受容性の置換基を用いて分子内のHOMOとLUMOを局在化させて、効率的な逆項間交差 (reverse intersystem crossing) が起きるようにデザインされているが、ドナーやアクセプターを用いると励起状態での構造緩和が大きくなり (ある分子においては、基底状態と励起状態では安定構造が異なるため、外部刺激により基底状態から励起状態への変換が起きると、その後、励起状態における安定構造へと構造が変化する)、色純度が低い幅広い発光スペクトルを与えることになる。

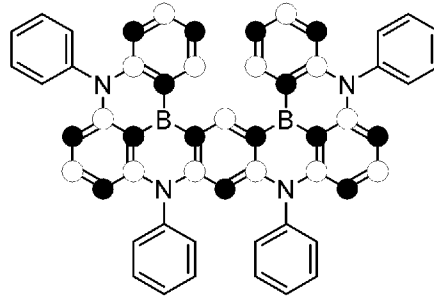
[0077] そこで、国際公開第2015/102118号公報では、TADF材料の色純度を飛躍的に向上させる新たな分子設計を提案している。当該文献に開示された例えば化合物(1-401)では、ホウ素(電子供与性)と窒素(電子吸引性)の多重共鳴効果を利用することで、6つの炭素からなるベンゼン環上の3つの炭素(黒丸)にHOMOを、残りの3つの炭素(白丸)にLUMOを局在化させることに成功している。この効率的な逆項間交差により、当該化合物の発光効率は最大で100%に達する。さらに、化合物(1-401)のホウ素と窒素はHOMOとLUMOを局在化させるだけでなく、3つのベンゼン環を縮環させることにより堅牢な平面構造を維持し、励起状態での構造緩和を抑制するという役割も担っており、結果として吸収および発光のピークのストークスシフトが小さい、色純度の高い発光スペクトルを得ることに成功している。その発光スペクトルの半値幅は28 nmであり、実用化されている高色純度の蛍光材料をも凌駕するレベルの色純度を示している。また、式(1-422)のような二量体化合物では、2つのホウ素と2つの窒

素が中央のベンゼン環に結合することで、中央のベンゼン環においてさらに多重共鳴効果を増強させており、その結果、極めて狭い発光ピーク幅を有する発光が可能となっている。

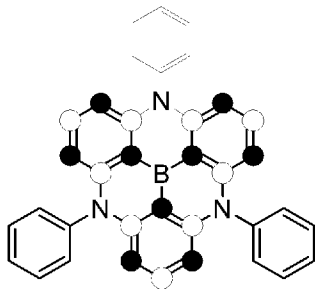
[化51]



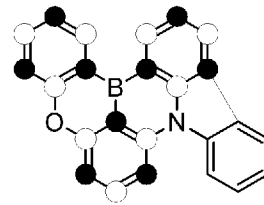
WO2015/102118記載の
化合物(1-401)



WO2015/102118記載の
化合物(1-422)



特願2016-174209記載の
化合物(1-1)



特願2018-110876記載の
化合物(BOCz-0001)

[0078] 我々は鋭意研究の結果、(i) 多重共鳴効果を調節する元素を適切な位置に導入する、(ii) 分子を歪ませて平面性を減少させるために適切な位置に置換基を導入する、(iii) 平面性の高い構造を適切な位置に導入する、という、3つのアプローチを適切に組み合わせることで、化合物において、発光波長および発光スペクトルの半値幅の調整、高い発光効率および小さな ΔE (S T) を化合物において実現した (WO2015/102118、特願2016-174209、特願2017-097142、特願2017-248014、PCT/JP2018/18731、特願2018-107092、特願2018-110876)。本発明の素子においては、本化合物をエミッタングドープメントとして利用することで、アシスティングドープメントからエミッタングドープメントへの高いエネルギー移動効率、適切な発光波長および発光スペクトルの半値幅、高い色純度、高い素子効率および小さいロールオフ

、および長寿命を実現した。

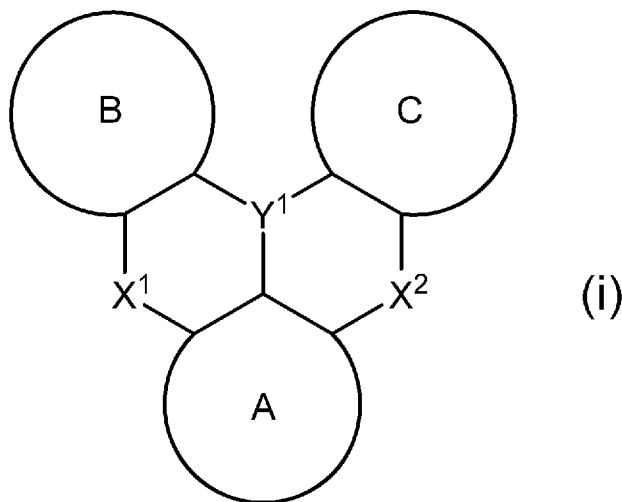
上記の式 (i)、(ii)、および (iii) のいずれかで表される化合物、式 (i) で表される構造を複数有する多量体化合物、式 (1)、(2)、(3) および (4) のいずれかで表される化合物は、これらの具体的な化合物例について、さらに検討を行って一般化したものである。

第3成分は通常の蛍光体であっても、熱活性化型遅延蛍光体であってもよい。

以下において、各式およびその具体例について説明する。

[0079] 2-1-3 (i) . 第3成分：下記式 (i) で表される化合物

[化52]



上記式 (i) において、

A環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

Y^1 は、B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-RまたはGe-Rであり、前記Si-RおよびGe-RのRはアリールまたはアルキルであり、

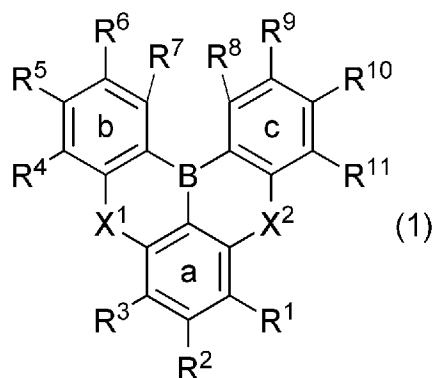
X^1 および X^2 は、それぞれ独立して、O、N-R、 $>CR_2$ 、SまたはSeであり、前記N-RのRおよび $>CR_2$ のRは置換されていてもよいアリール

、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたはアルキルであり、また、前記N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環およびC環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、そして、

式(i)で表される化合物または構造における少なくとも1つの水素がシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

[0080] 第3成分としての式(i)で表される化合物は、下記式(1)で表される化合物であることが好ましい。

[化53]



上記式(1)において、

R¹~R¹¹ (以降、「R¹等」ともいう)は、それぞれ独立して、水素、アリーール、ヘテロアリーール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリーールオキシ (以上、第1置換基) であり、これらはさらにアリーール、ヘテロアリーールおよびアルキルから選択される少なくとも1つ (以上、第2置換基) で置換されていてもよく、また、R¹~R³、R⁴~R⁷およびR⁸~R¹¹のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリーール環またはヘテロアリーール環を形成していてもよく、形成された環はアリーール、ヘテロアリーール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリーールオキシから選択される少なくとも1つ (以上、第1置換基) で置換されていてもよく、これらはさらにアリーール、ヘテロアリーールおよびアルキルから選択される少なくと

も1つ（以上、第2置換基）で置換されていてもよく、

X^1 および X^2 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R はアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

ただし、 X^1 および X^2 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式（1）で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

[0081] R^1 等の「アリール」（第1置換基）は、単環であっても、2以上の芳香族炭化水素環が縮合した縮合環であっても、2以上の芳香族炭化水素環が連結した連結環であってもよい。2以上の芳香族炭化水素環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。「アリール」は、例えば、炭素数6～30のアリールであり、炭素数6～20のアリールが好ましく、炭素数6～16のアリールがより好ましく、炭素数6～12のアリールがさらに好ましく、炭素数6～10のアリールが特に好ましい。

[0082] 具体的なアリールとしては、単環系であるフェニル、二環系であるビフェニル、縮合二環系であるナフチル、三環系であるテルフェニル（*m*-テルフェニル、*o*-テルフェニル、*p*-テルフェニル）、縮合三環系である、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントレニル、縮合四環系であるトリフェニレニル、ピレニル、ナфтаセニル、縮合五環系であるペリレニル、ペンタセニルなどが挙げられる。

[0083] R^1 等の「ヘテロアリール」（第1置換基）は、単環であっても、1以上の複素環と1以上の複素環または1以上の芳香族炭化水素環が縮合した縮合環であっても、2以上の複素環が連結した連結環であってもよい。2以上の複素環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝

状に連結したものであってもよい。「ヘテロアリアル」は、例えば、炭素数 2～30 のヘテロアリアルであり、炭素数 2～25 のヘテロアリアルが好ましく、炭素数 2～20 のヘテロアリアルがより好ましく、炭素数 2～15 のヘテロアリアルがさらに好ましく、炭素数 2～10 のヘテロアリアルが特に好ましい。また、ヘテロアリアルは、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を 1 ないし 5 個含有する複素環などである。

[0084] 具体的なヘテロアリアルとしては、例えば、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、オキサジアゾリル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピラゾリル、ピリジニル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、インドリル、イソインドリル、1H-インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1H-ベンゾトリアゾリル、キノリニル、イソキノリニル、シンノリニル、キナゾリニル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサチイニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、インドリジニル、フラニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、チオフェニル、ベンゾチオフェニル、ジベンゾチオフェニル、フラザニル、オキサジアゾリル、チアントレニルなどが挙げられる。

[0085] R¹等の「ジアリアルアミノ」（第 1 置換基）中の「アリアル」および「アリアルオキシ」（第 1 置換基）中の「アリアル」としては、上述したアリアルの説明を引用できる。

[0086] R¹等の「ジアリアルボリル」（第 1 置換基）中の「アリアル」としては、上述したアリアルの説明を引用できる。

[0087] R¹等の「アルキル」（第 1 置換基）は、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数 1～24 の直鎖アルキルまたは炭素数 3～24 の分岐鎖アルキルである。炭素数 1～18 のアルキル（炭素数 3～18 の分岐鎖アル

キル)が好ましく、炭素数1~12のアルキル(炭素数3~12の分岐鎖アルキル)がより好ましく、炭素数1~6のアルキル(炭素数3~6の分岐鎖アルキル)がさらに好ましく、炭素数1~4のアルキル(炭素数3~4の分岐鎖アルキル)が特に好ましい。

[0088] 具体的なアルキルとしては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、*t*-ペンチル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3, 3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、*n*-ヘプチル、1-メチルヘキシル、*n*-オクチル、*t*-オクチル、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチル、*n*-ノニル、2, 2-ジメチルヘプチル、2, 6-ジメチル-4-ヘプチル、3, 5, 5-トリメチルヘキシル、*n*-デシル、*n*-ウンデシル、1-メチルデシル、*n*-ドデシル、*n*-トリデシル、1-ヘキシルヘプチル、*n*-テトラデシル、*n*-ペンタデシル、*n*-ヘキサデシル、*n*-ヘプタデシル、*n*-オクタデシル、*n*-エイコシルなどが挙げられる。

[0089] R^1 等の「シクロアルキル」(第1置換基)は、1つの環からなるシクロアルキル、複数の環からなるシクロアルキル、環内で共役しない二重結合を含むシクロアルキルおよび環外に分岐を含むシクロアルキルのいずれでもよく、例えば、炭素数3~12のシクロアルキルである。炭素数5~10のシクロアルキルが好ましく、炭素数6~10のシクロアルキルがより好ましい。

[0090] 具体的なシクロアルキルとしては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、ビスシクロ[2, 2, 1]ヘプチル、ビスシクロ[2, 2, 2]オクチル、デカヒドロナフチル、アダマンチルなどが挙げられる。

[0091] R^1 等の「アルコキシ」(第1置換基)は、直鎖状であっても分岐鎖状であってもよい。例えば、炭素数1~24の直鎖または炭素数3~24の分岐鎖のアルコキシである。炭素数1~18のアルコキシ(炭素数3~18の分岐鎖のアルコキシ)が好ましく、炭素数1~12のアルコキシ(炭素数3~1

2の分岐鎖のアルコキシ)がより好ましく、炭素数1~6のアルコキシ(炭素数3~6の分岐鎖のアルコキシ)がさらに好ましく、炭素数1~4のアルコキシ(炭素数3~4の分岐鎖のアルコキシ)が特に好ましい。

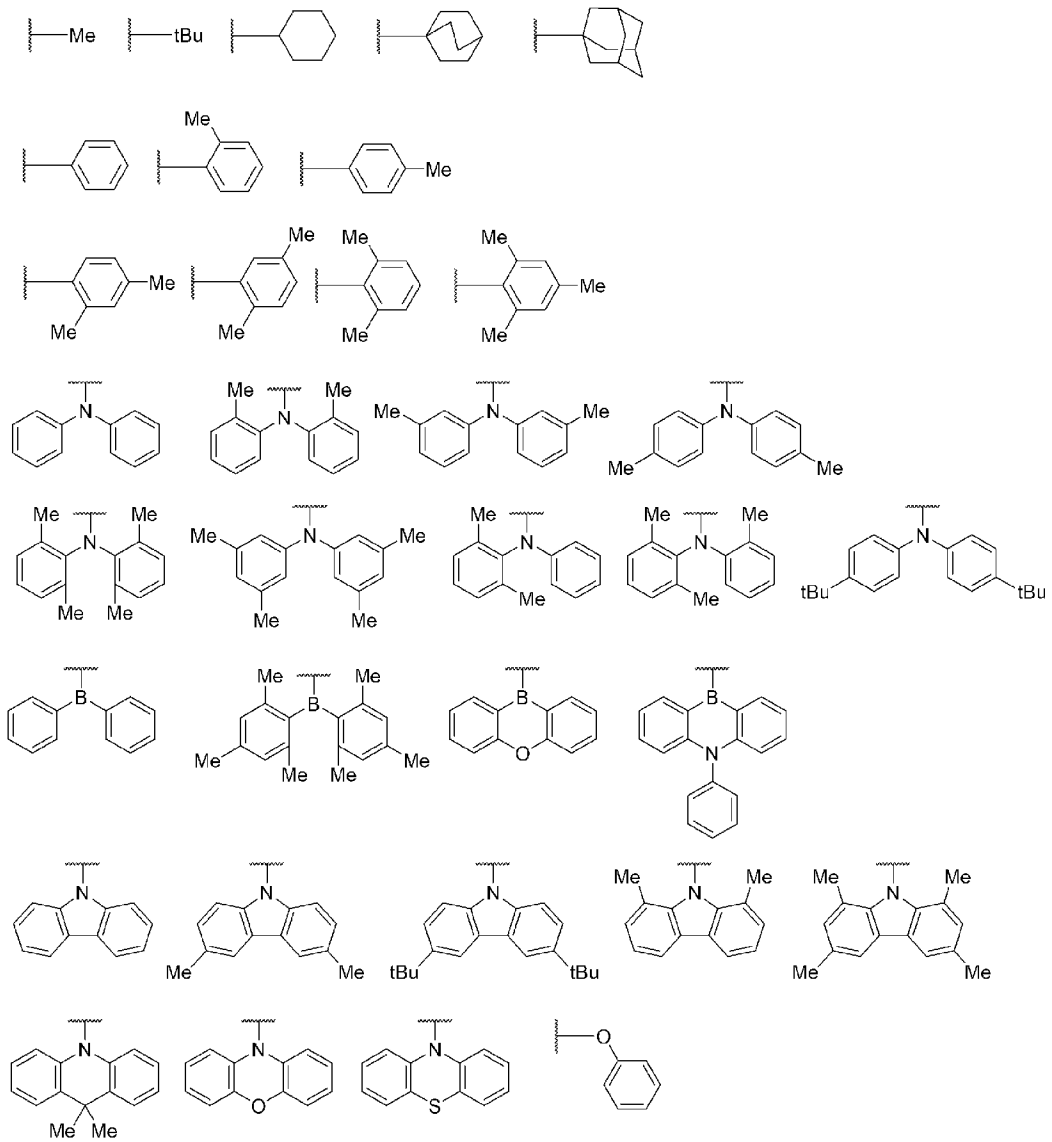
[0092] 具体的なアルコキシとしては、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、イソブトキシ、s-ブトキシ、t-ブトキシ、ペンチルオキシ、ヘキシルオキシ、ヘプチルオキシ、オクチルオキシなどが挙げられる。

[0093] R¹等(第1置換基)にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル(以上、第2置換基)としては、上述した第1置換基としてのアリール、ヘテロアリールまたはアルキルの説明を引用できる。

[0094] 具体的には、R¹等(第1置換基)の構造の立体障害性、電子供与性および電子吸引性により発光波長を調整することができ、好ましくは以下の式で表される基であり、より好ましくは、メチル、t-ブチル、ビスクロオクチル、シクロヘキシル、アダマンチル、フェニル、o-トリル、p-トリル、2,4-キシリル、2,5-キシリル、2,6-キシリル、2,4,6-メシチル、ジフェニルアミノ、ジ-p-トリルアミノ、ビス(p-(t-ブチル)フェニル)アミノ、ジフェニルボリル、ジメシチルボリル、ジベンゾオキサボリニル、フェニルジベンゾジボリニル、カルバゾリル、3,6-ジメチルカルバゾリル、3,6-ジ-t-ブチルカルバゾリルおよびフェノキシであり、さらに好ましくは、メチル、t-ブチル、フェニル、o-トリル、2,6-キシリル、2,4,6-メシチル、ジフェニルアミノ、ジ-p-トリルアミノ、ビス(p-(t-ブチル)フェニル)アミノ、カルバゾリル、3,6-ジメチルカルバゾリルおよび3,6-ジ-t-ブチルカルバゾリルである。合成の容易さの観点からは、立体障害が大きい方が選択的な合成のために好ましく、具体的には、t-ブチル、o-トリル、2,6-キシリル、2,4,6-メシチル、3,6-ジメチルカルバゾリルおよび3,6-ジ-t-ブチルカルバゾリルが好ましい。

[0095]

[化54]



式において、Meはメチルを表し、tBuはt-ブチルを表し、波線は結合位置を表す。

[0096] 式(1)における $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^7$ および $R^8 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士は、互いに結合してa環、b環またはc環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、式(1)で表される多環芳香族化合物は、a環、b環およびc環における置換基の相互の結合形態によって化合物を構成する環構造が変化する。例えば、a環の R^3 とb環の R^4 、b環の R^7 とc環の R^8 、c環の R^{11} とa環の R^1 などは「隣接する基同士」には該当せ

ず、これらが結合することはない。すなわち、「隣接する基」とは同一環上で隣接する基を意味する。

[0097] 形成された「アリール環」または「ヘテロアリール環」は、上述した第1置換基としてのアリールまたはヘテロアリの、無価の環である。ただし、形成された環の炭素数は縮合前の環の炭素数を含む。

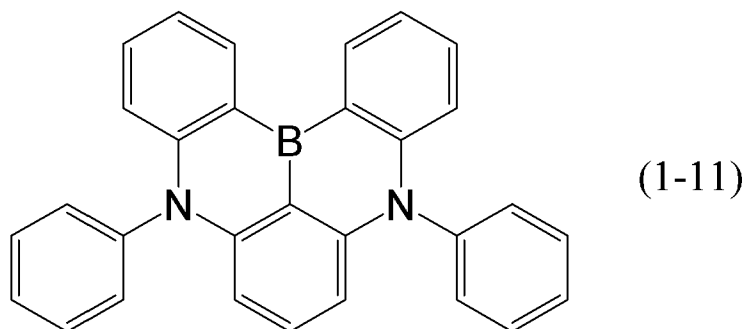
[0098] 形成されたアリール環またはヘテロアリール環に置換する、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシ（以上、第1置換基）、また、当該第1置換基にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル（以上、第2置換基）としては、上述したR¹等（第1置換基）としてのアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシの説明を引用できる。

[0099] 式(1)におけるXは、>O、>N-R、>CR₂、>Sまたは>Seであり、>Oおよび>N-Rが好ましい。

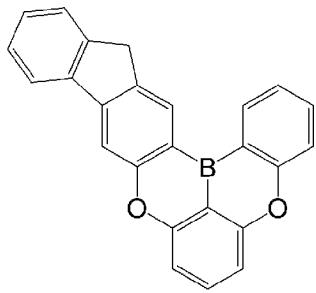
[0100] >N-RのRおよび>CR₂のRであるアリール、ヘテロアリールまたはアルキル（以上、第1置換基）、また、当該第1置換基にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル（以上、第2置換基）としては、上述したR¹等（第1置換基）としてのアリール、ヘテロアリールまたはアルキルの説明を引用できる。

[0101] 式(1)で表される化合物は、下記部分構造を含む化合物であることが好ましい。

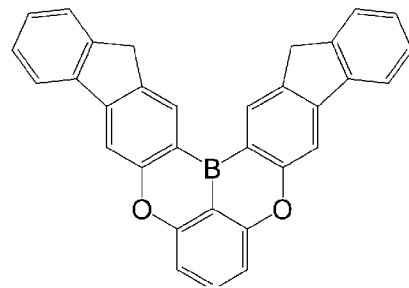
[化55]



[化56]

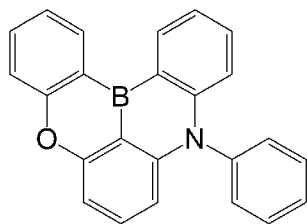


(1-21)

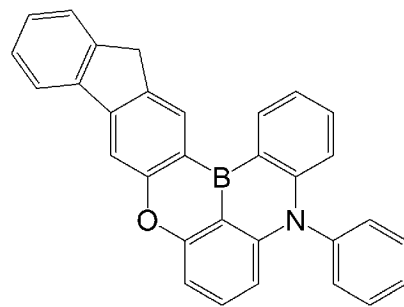


(1-22)

[化57]



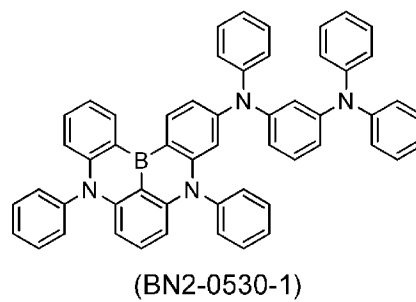
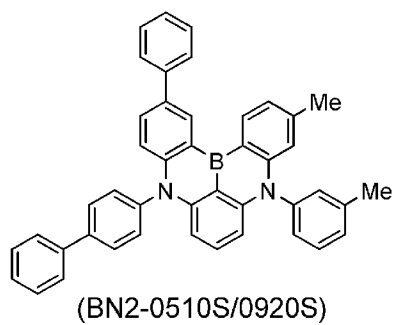
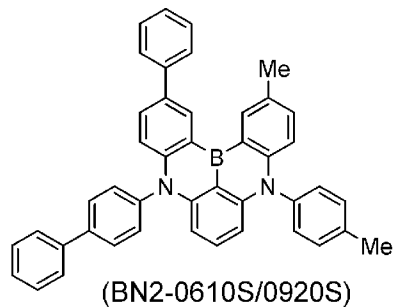
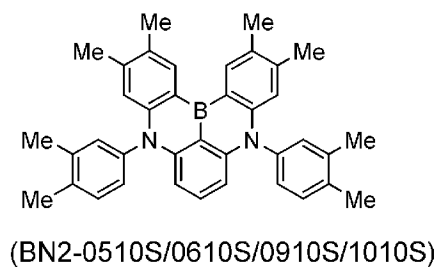
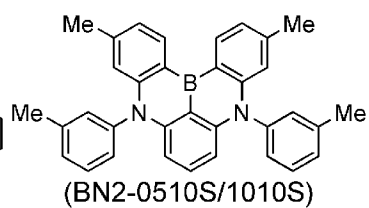
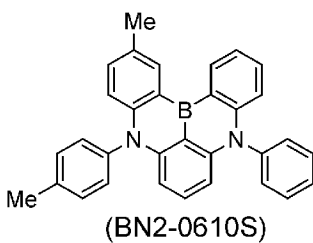
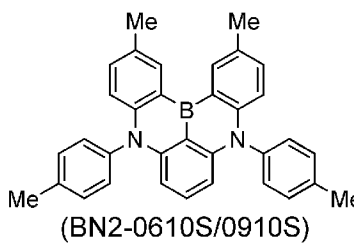
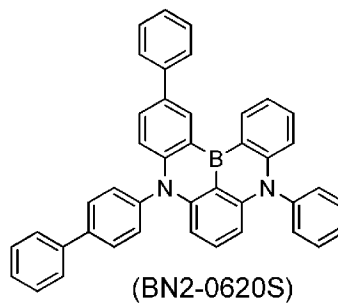
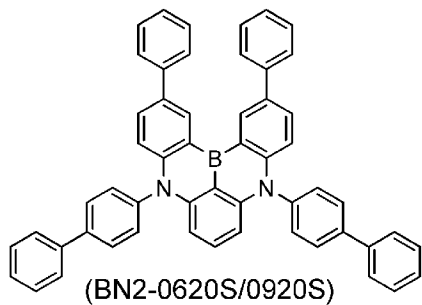
(1-31)



(1-32)

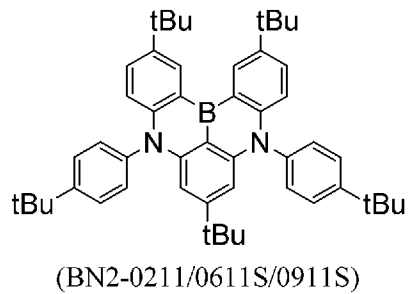
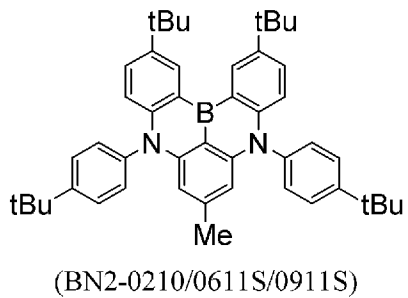
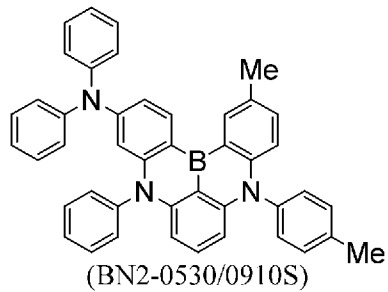
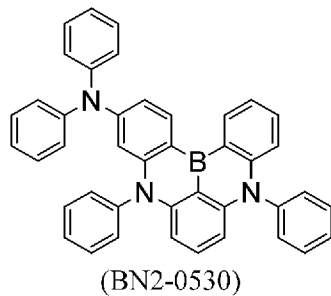
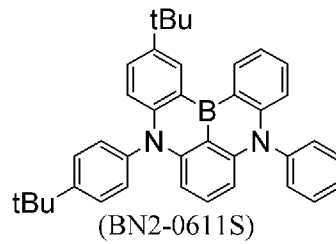
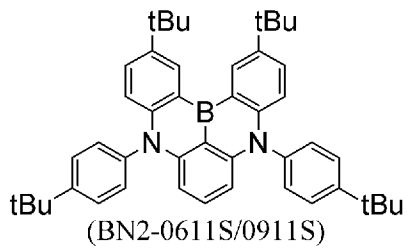
[0102] 次に、具体的な構造を示す。下記式において、Meはメチルを表し、tBuおよびt-Buはt-ブチルを表し、Phはフェニルを表す。

[化58]



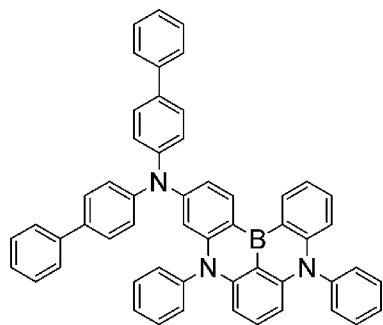
[0103]

[化59]

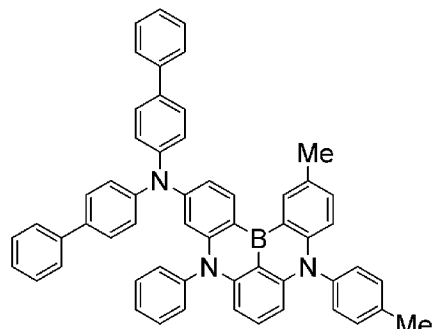


[0104]

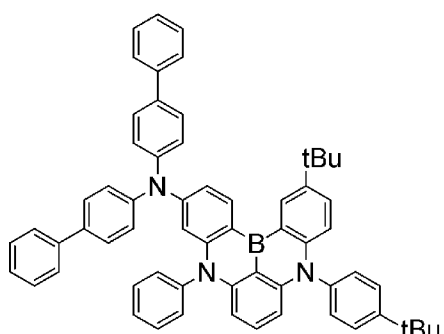
[化60]



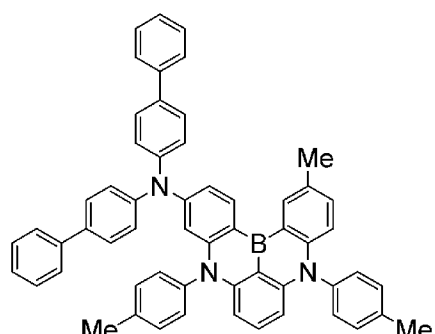
(BN2-0530-2)



(BN2-0530/0910S)



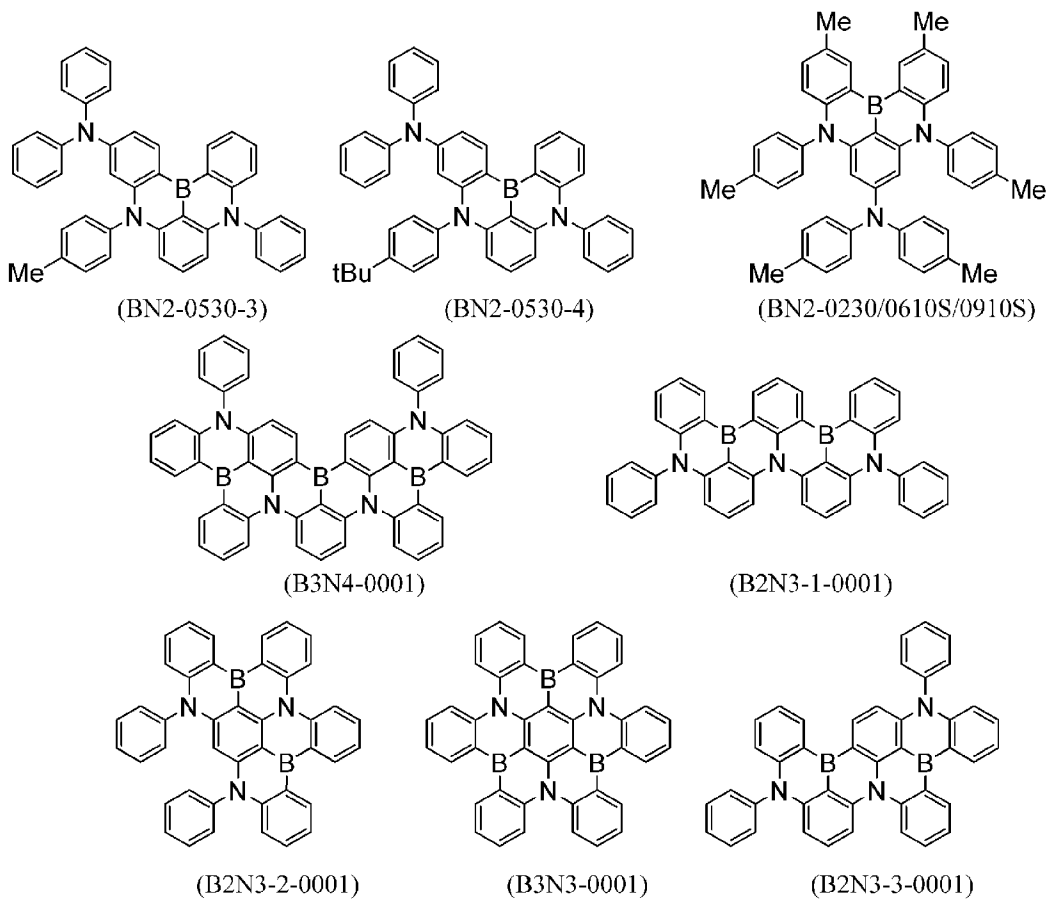
(BN2-0530/0911S)



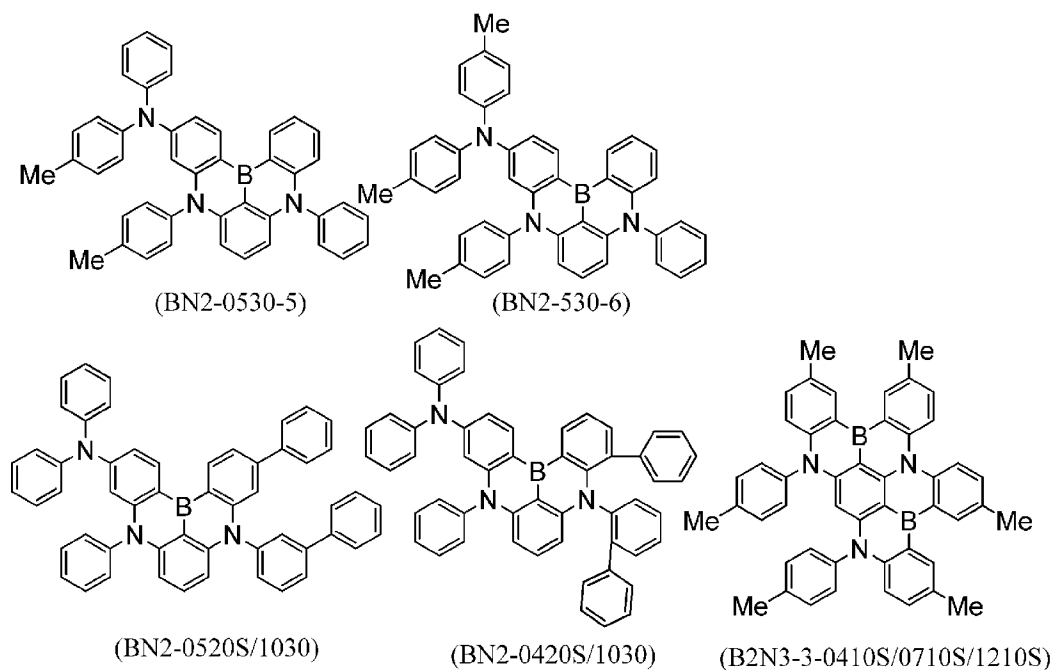
(BN2-0530/0910S-1)

[0105]

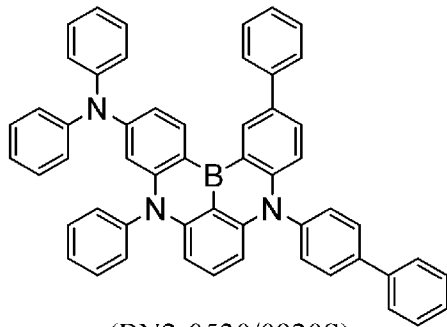
[化61]



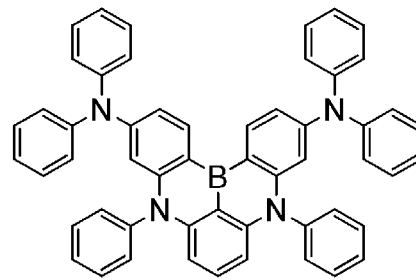
[0106] [化62]



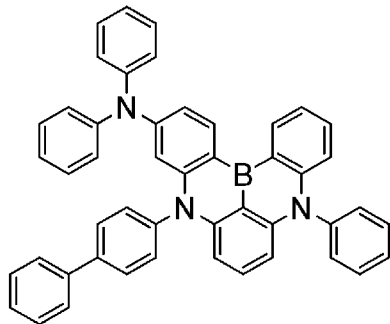
[0107] [化63]



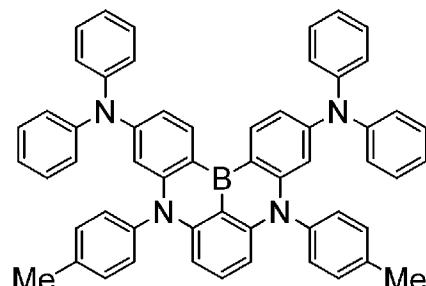
(BN2-0530/0920S)



(BN2-0530/1030)

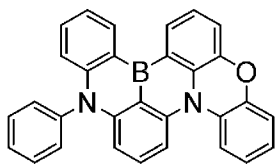


(BN2-0530-7)

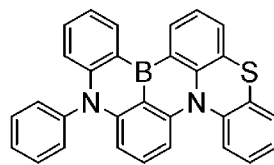


(BN2-0530/1030S-1)

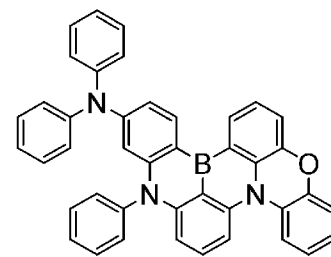
[0108] [化64]



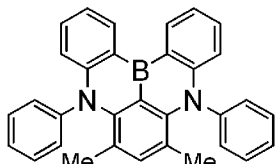
(BNPx-0001)



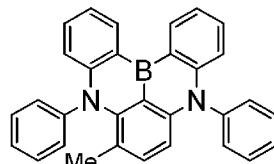
(BNPt-0001)



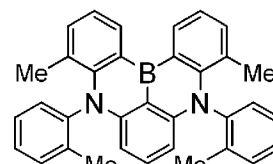
(BNPx-0530)



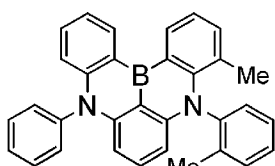
(BN2-0110S)



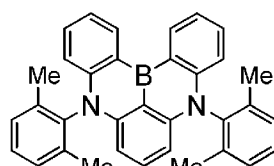
(BN2-0110)



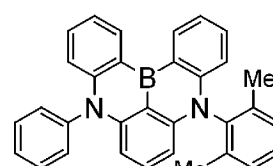
(BN2-0410S/1110S)



(BN2-0410S)

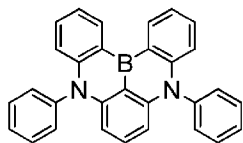


(BN2-0001-2)

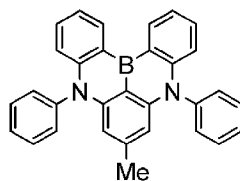


(BN2-0001-3)

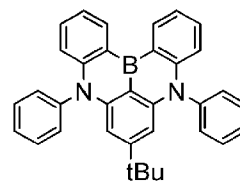
[0109] [化65]



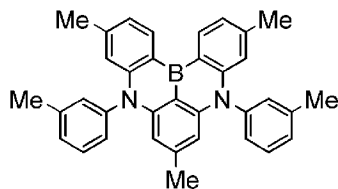
(BN2-0001)



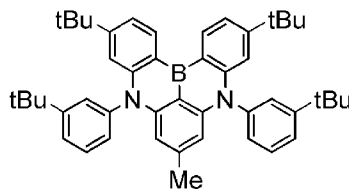
(BN2-0210)



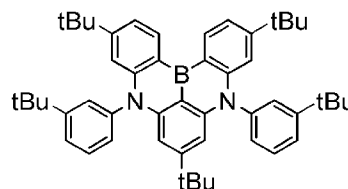
(BN2-0211)



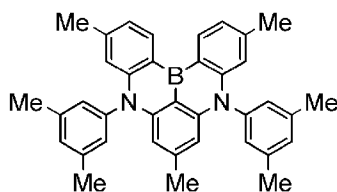
(BN2-0210/0510S/1010S)



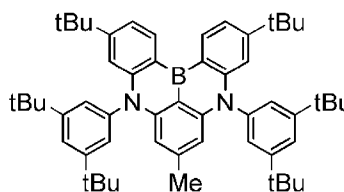
(BN2-0210/0511S/1011S)



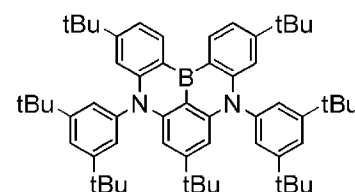
(BN2-0211/0511S/1011S)



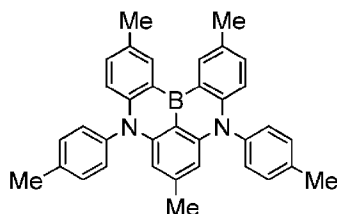
(BN2-0210/0510S/1010S-1)



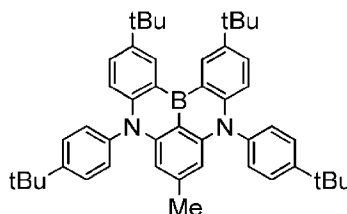
(BN2-0210/0511S/1011S-1)



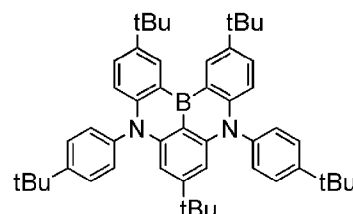
(BN2-0211/0511S/1011S-1)



(BN2-0210/0610S/0910S)



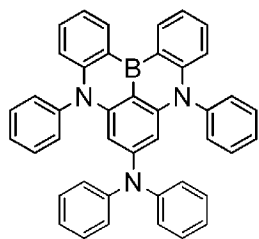
(BN2-0210/0611S/0911S)



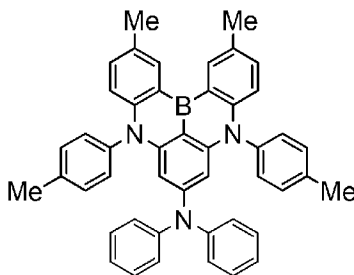
(BN2-0211/0611S/0911S)

[0110]

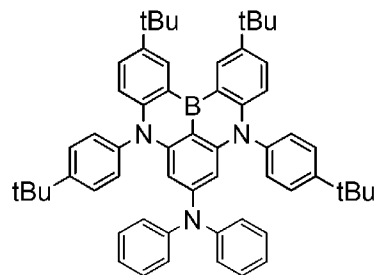
[化66]



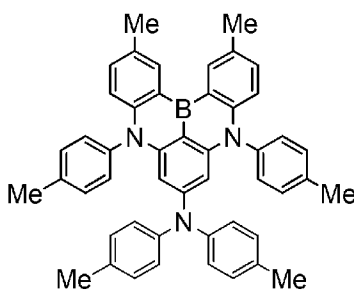
(BN2-0230)



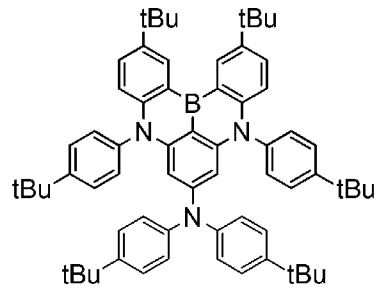
(BN2-0230/0610S/0910S)



(BN2-0230/0611S/0911S)

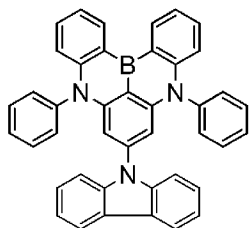


(BN2-0230/0610S/0910S-1)

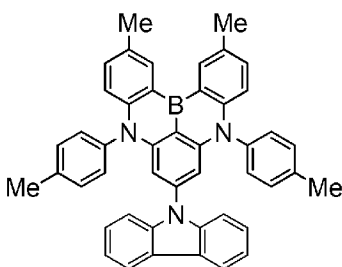


(BN2-0230/0611S/0911S-1)

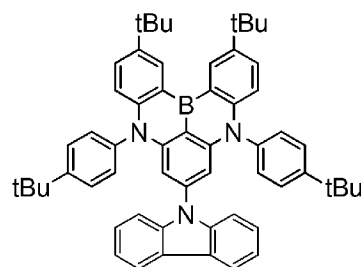
[0111] [化67]



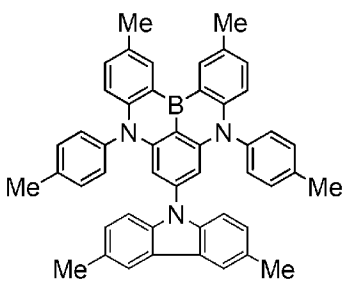
(BN2-0231)



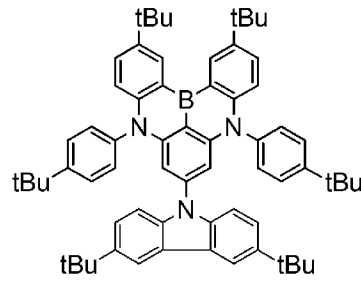
(BN2-0231/0610S/0910S)



(BN2-0231/0611S/0911S)



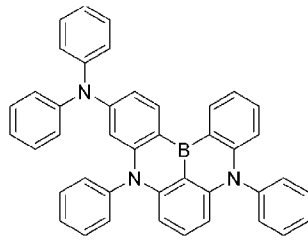
(BN2-0231/0610S/0910S-1)



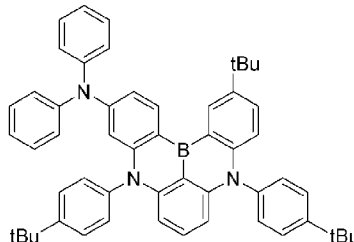
(BN2-0231/0611S/0911S-1)

[0112]

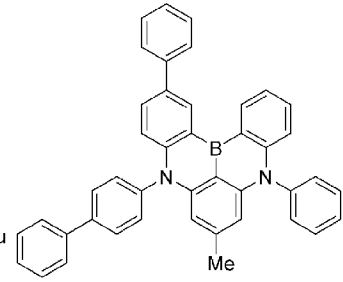
[化68]



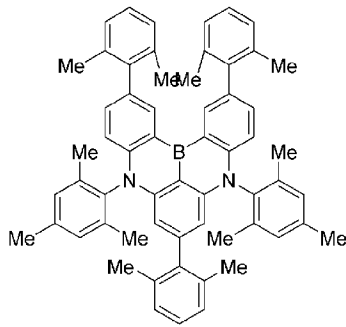
BN2-0530



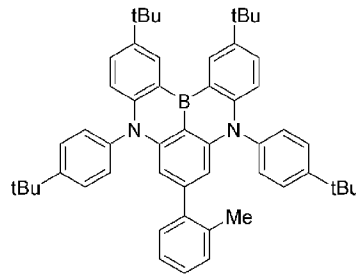
BN2-0530/0911S-1



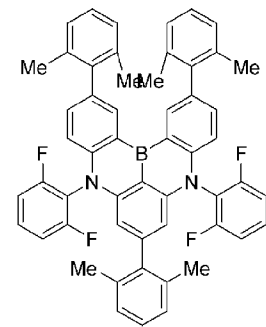
BN2-0210/0620



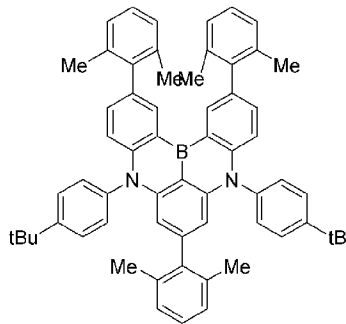
BN2-0220/0620/0920-M1



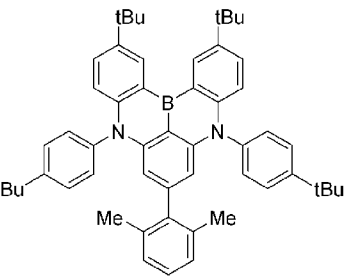
BN2-0220/0611/0911-M1



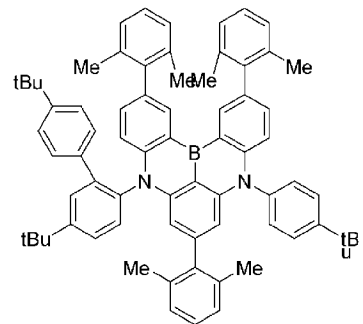
BN2-0220/0620/0920-MF3



BN2-0220/0620/0920-MB1



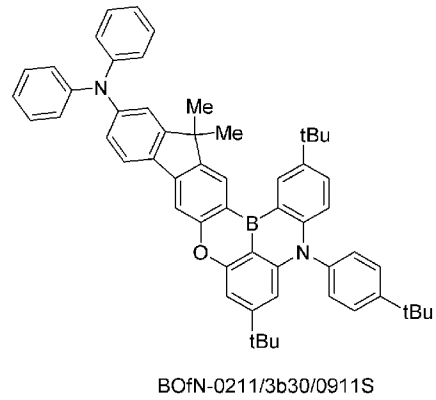
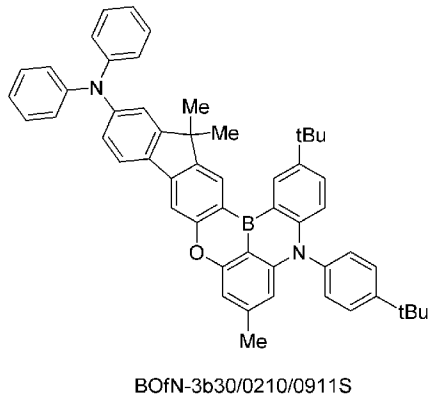
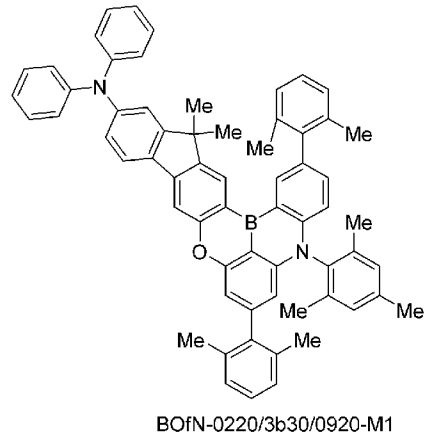
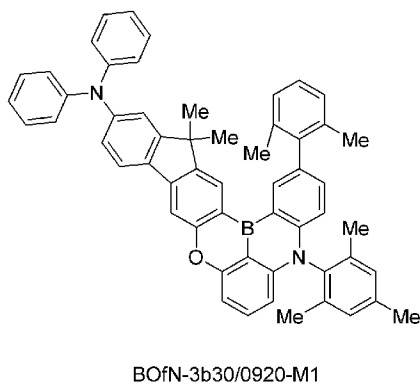
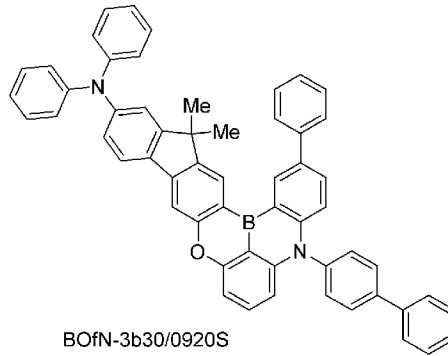
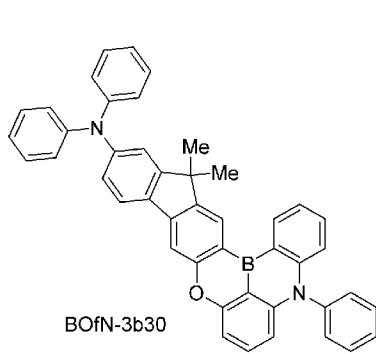
BN2-0220/0611S/0911S



BN2-0220/0620/0920-BP1

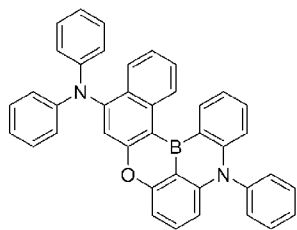
[0113]

[化69]

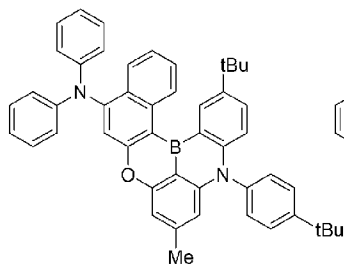


[0114]

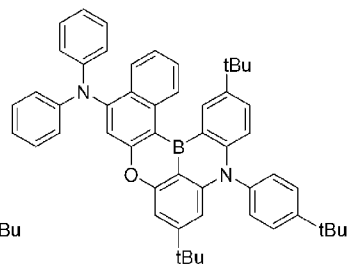
[化70]



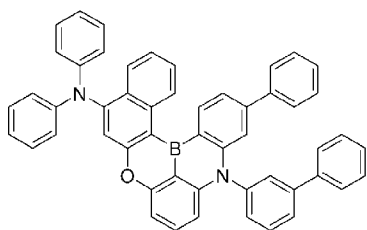
BOnN-0530



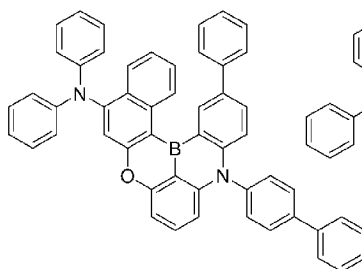
BOnN-0210/0530/0911S



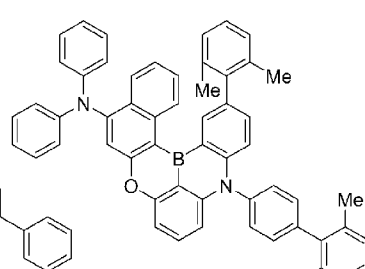
BOnN-0211/0530/0911S



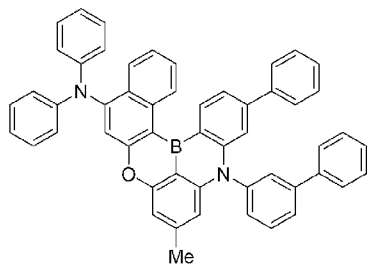
BOnN-0530/1020S



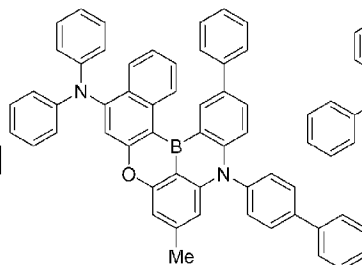
BOnN-0530/0920S



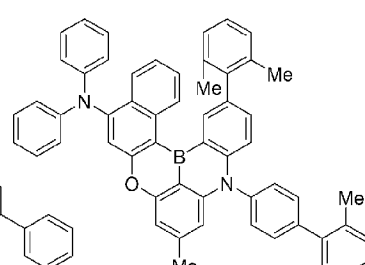
BOnN-0530/0920S



BOnN-0210/0530/1020S



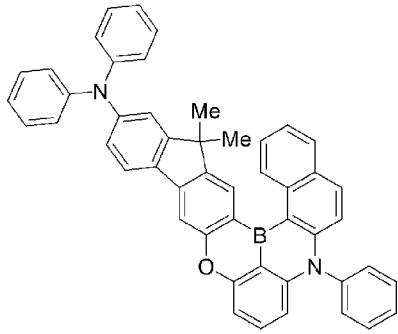
BOnN-0210/0530/0920S



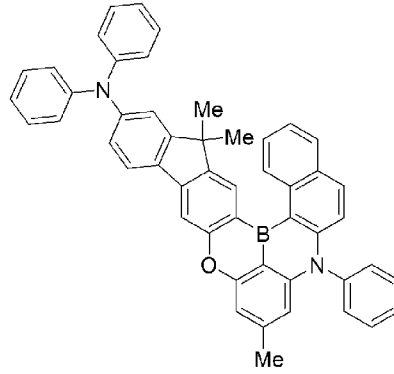
BOnN-0210/0530/0920S

[0115]

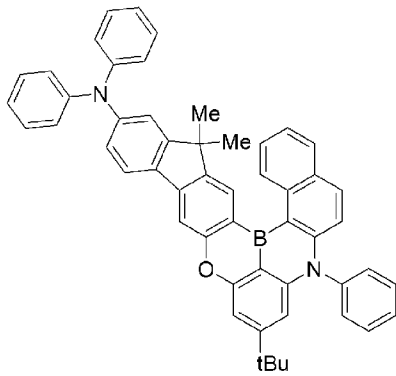
[化71]



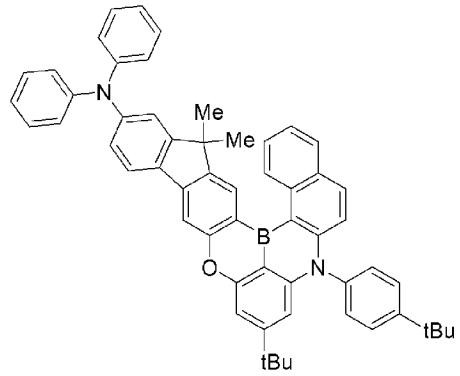
BOfNn-3b30



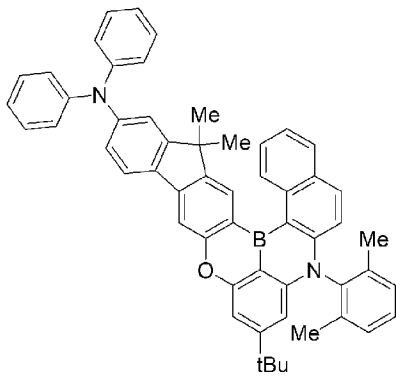
BOfNn-0210/3b30



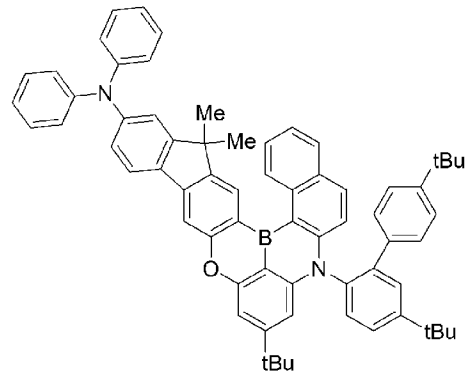
BOfNn-0211/3b30



BOfNn-0211/3b30-1



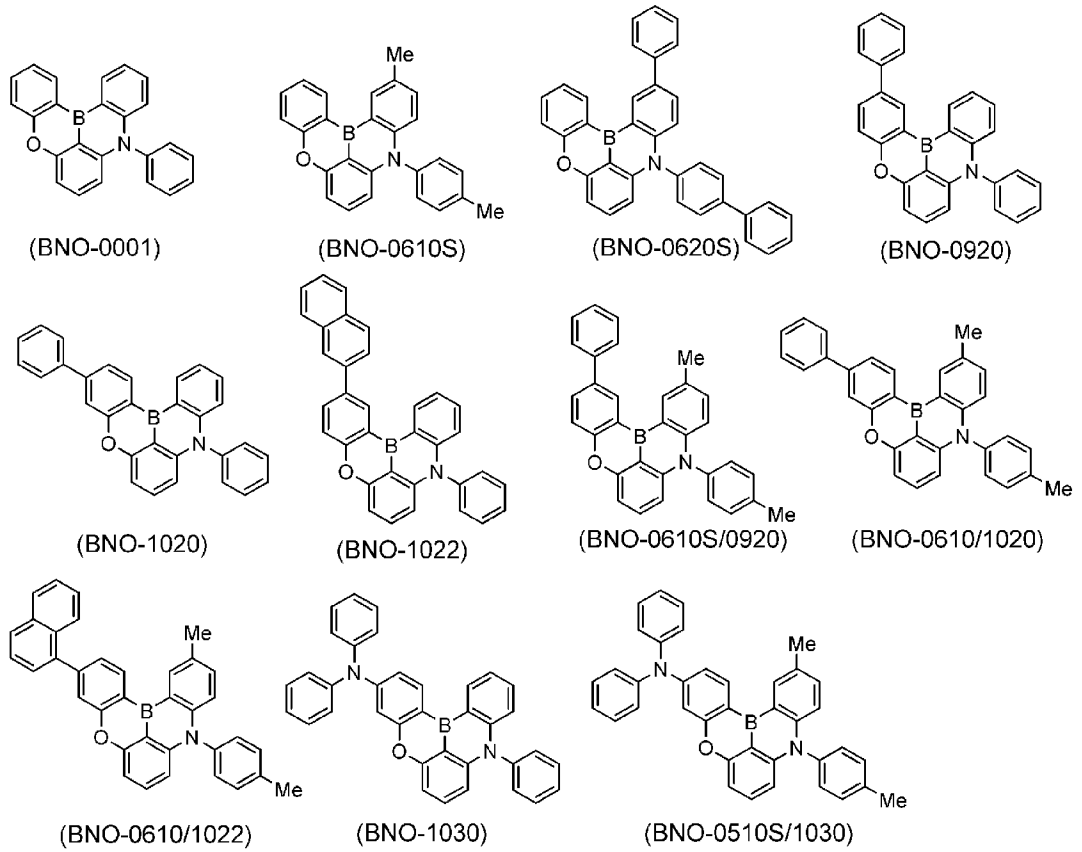
BOfNn-0211/3b30-2



BOfNn-0211/3b30-3

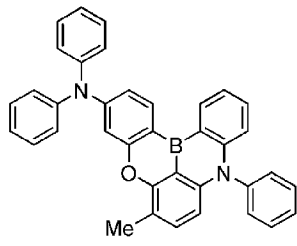
[0116]

[化72]

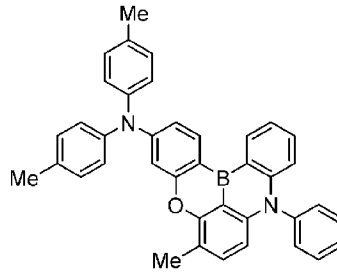


[0117]

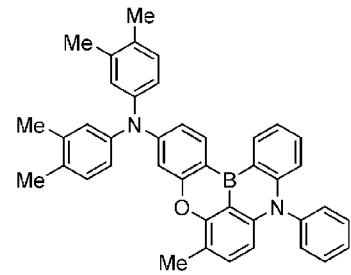
[化73]



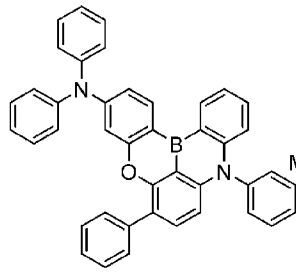
(BNO-0110/1030)



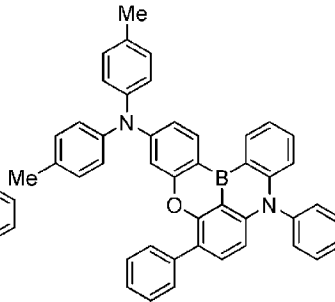
(BNO-0110/1030-1)



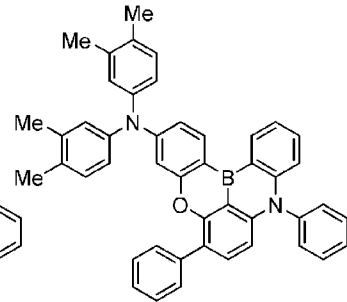
(BNO-0110/1030-2)



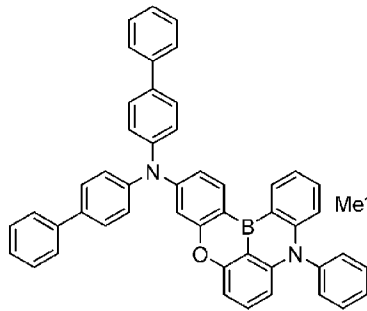
(BNO-0120/1030)



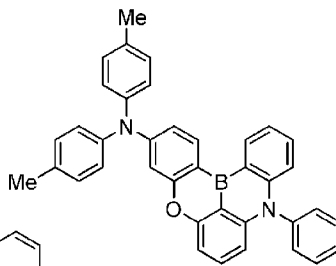
(BNO-0120/1030-1)



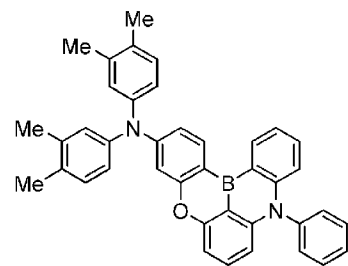
(BNO-0120/1030-2)



(BNO-1030-1)



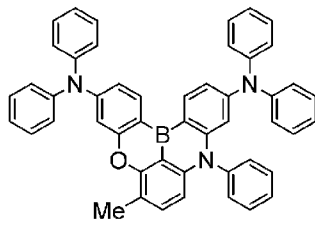
(BNO-1030-2)



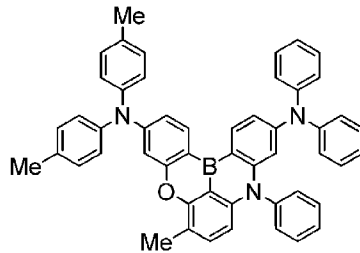
(BNO-1030-3)

[0118]

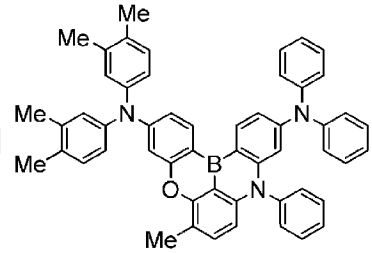
[化74]



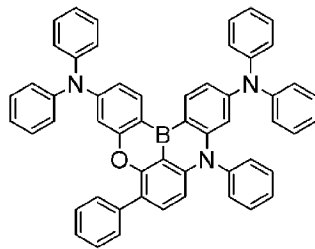
(BNO-0110/0530/1030)



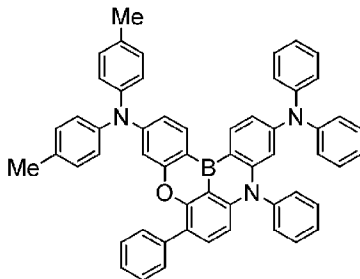
(BNO-0110/0530/1030-1)



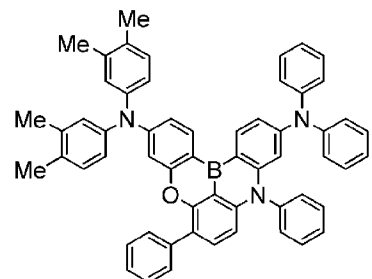
(BNO-0110/0530/1030-2)



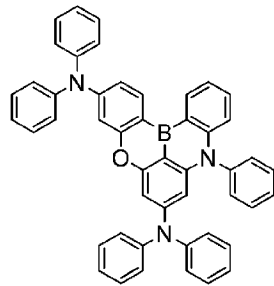
(BNO-0120/0530/1030)



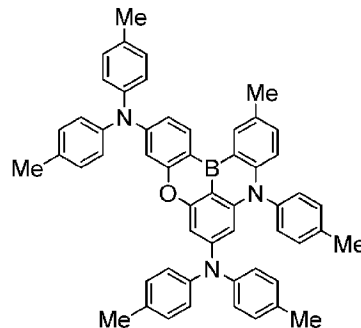
(BNO-0120/0530/1030-1)



(BNO-0110/0530/1030-2)



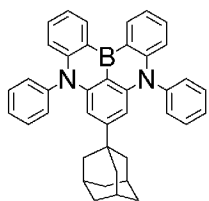
(BNO-0230/1030)



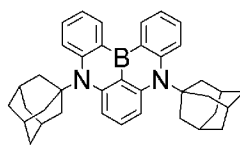
(BNO-0230/0611S/1030-1)

[0119]

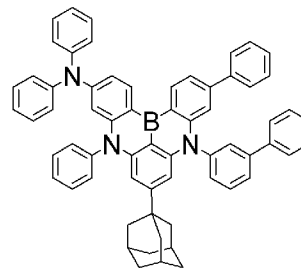
[化75]



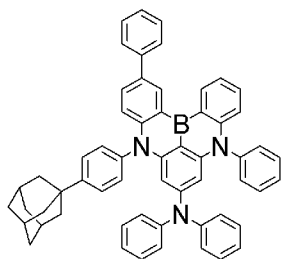
(BN2-0215)



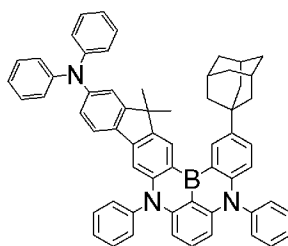
(BN2-n15-0001)



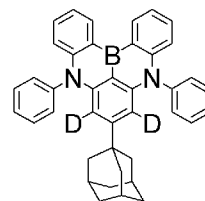
(BN2-0215/0530/1020S)



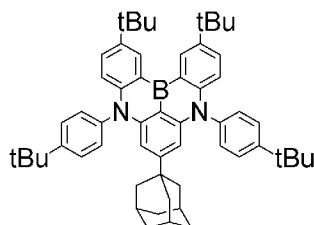
(BN2-0230/0620-1)



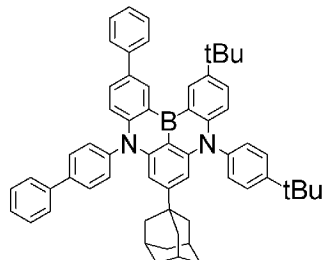
(BN2f-b330/0915)



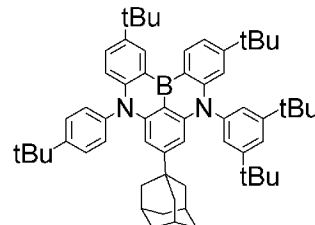
(BN2-0215-D1)



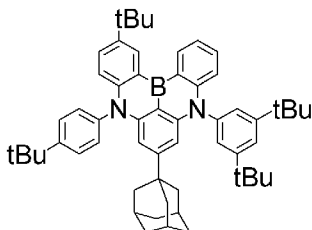
(BN2-0215/0611S/0911S)



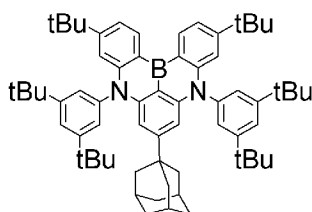
(BN2-0215/0611S/0920S)



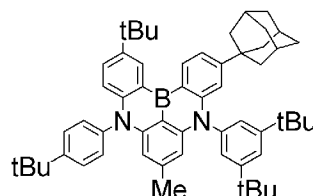
(BN2-0215/0511S/0911S)



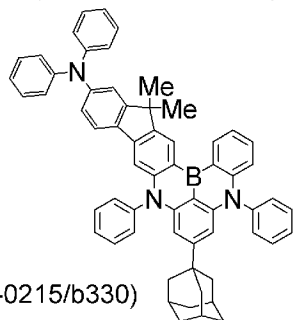
(BN2-0215/0611S-1)



(BN2-0215/0511S/1011S)



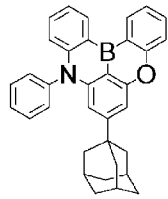
(BN2-0210/0515/1011S-1)



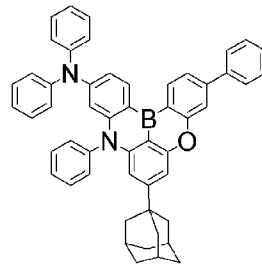
(BN2f-0215/b330)

[0120]

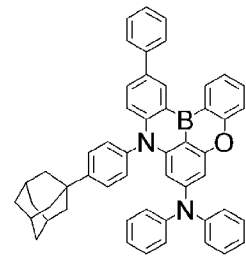
[化76]



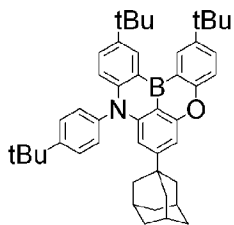
(BNO-0215)



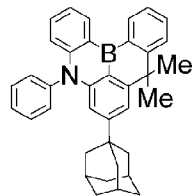
(BNO-0215/0530/1020)



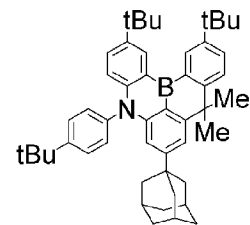
(BNO-0230/0520-1)



(BNO-0215/0611S/0911)



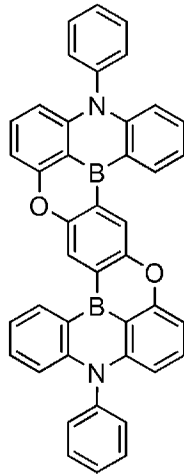
(BNC-0215-0001)



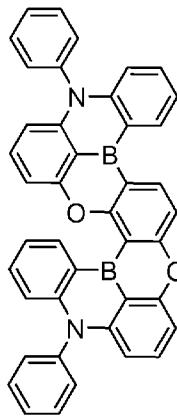
(BNC-0215/0611S/0911)

[0121]

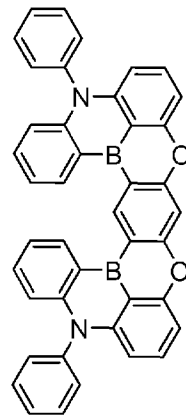
[化77]



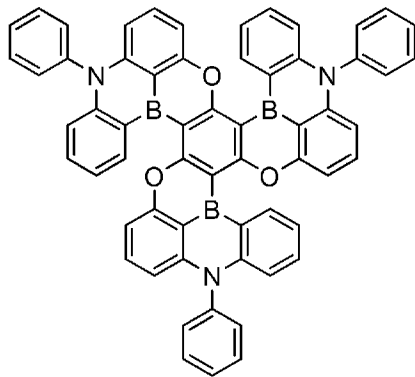
(pB2pO2N2-1-0001)



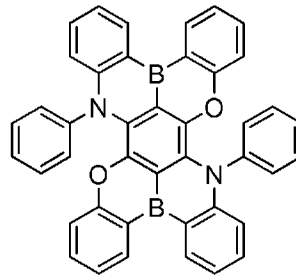
(mB2mO2N2-1-0001)



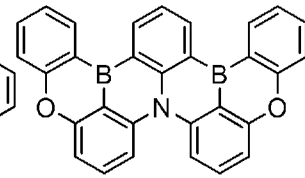
(B2O2N2-0001)



(mB3mO3N3-1-0001)



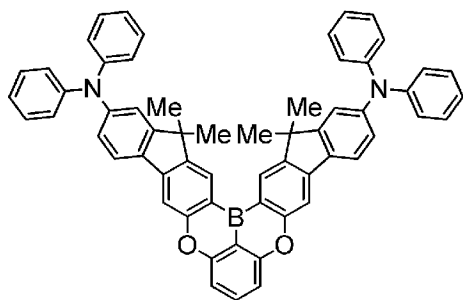
(pB2pN2pO2-1-0001)



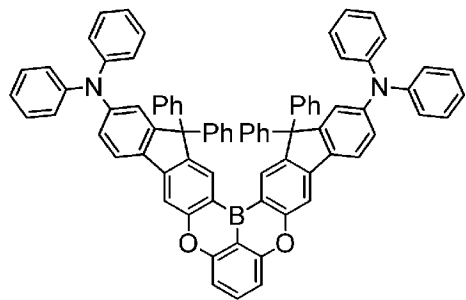
(mB2NO2-1-0001)

[0122]

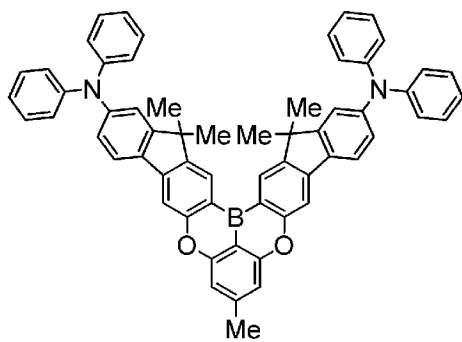
[化78]



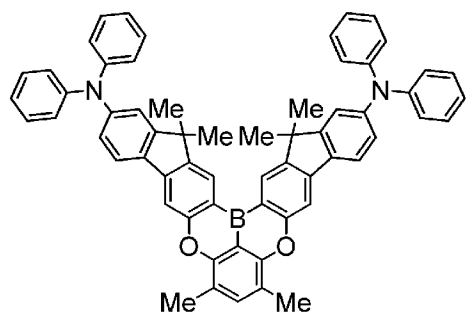
(BOf2-b330/c330)



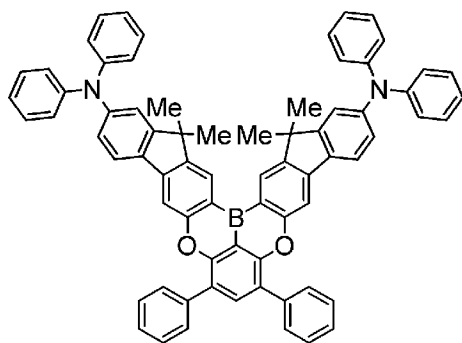
(BOfp2-b330/c330)



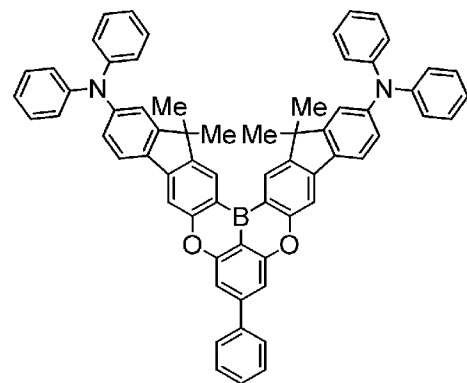
(BOf2-0210/b330/c330)



(BOf2-0110S/b330/c330)



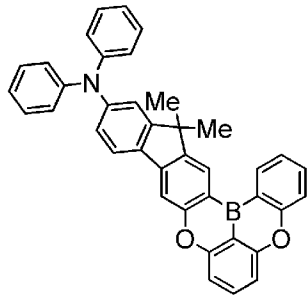
(BOf2-0220S/b330/c330)



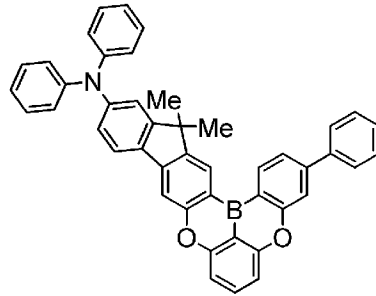
(BOf2-0220/b330/c330)

[0123]

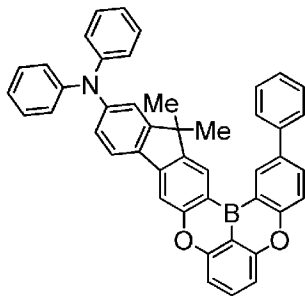
[化79]



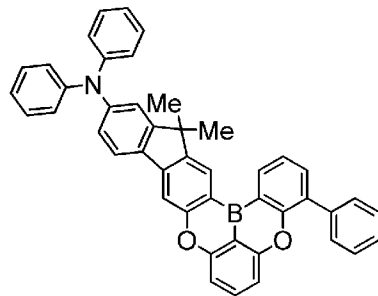
(BO2f-b330)



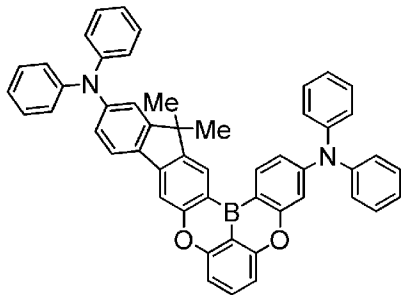
(BO2f-0520/b330)



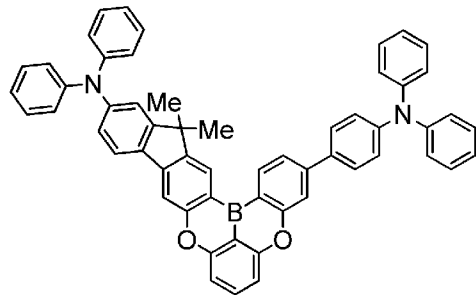
(BO2f-0620/b330)



(BO2f-0430/b330)



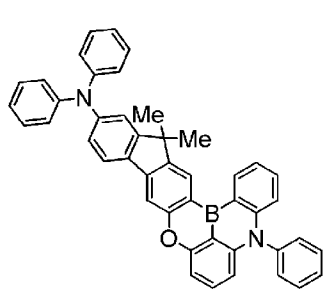
(BO2f-0530/b330)



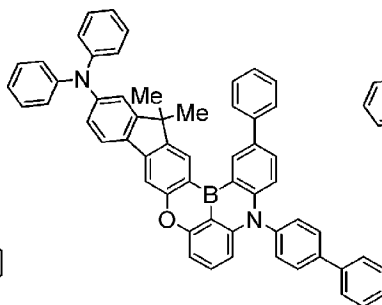
(BO2f-0320/b330-1)

[0124]

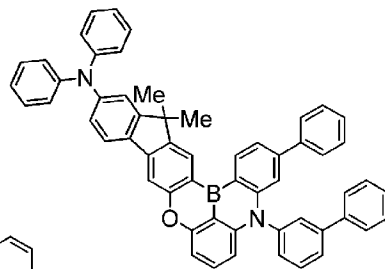
[化80]



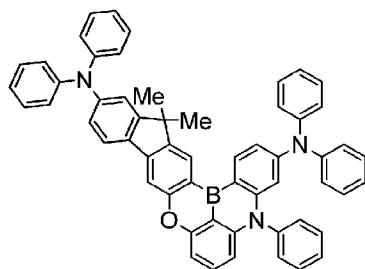
(BNOF-b330)



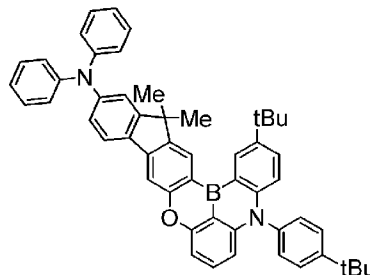
(BNOF-0620S/b330)



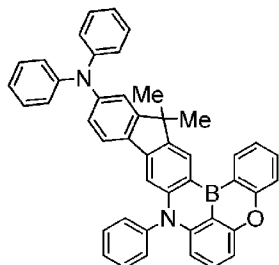
(BNOF-0520S/b330)



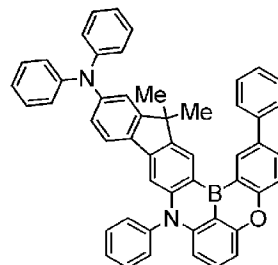
(BNOF-0530/b330)



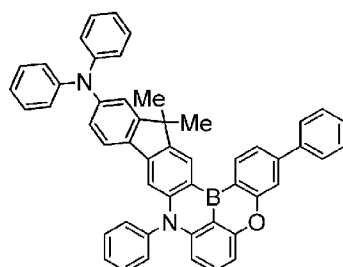
(BNOF-0611S/b330)



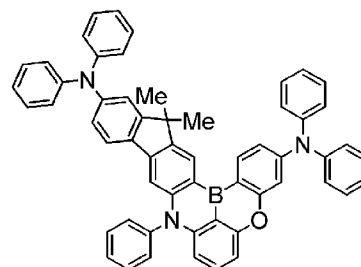
(BNfO-b330)



(BNfO-0920/b330)



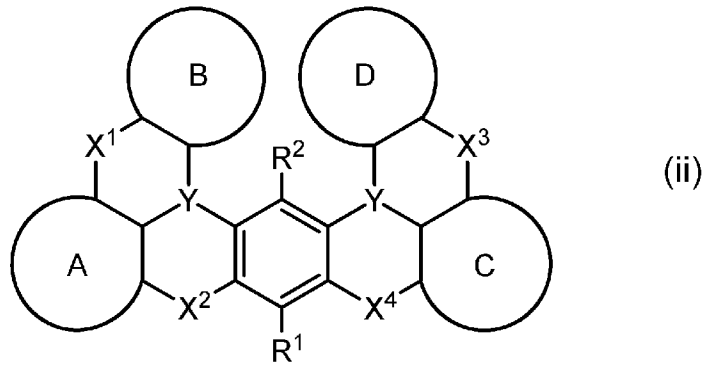
(BNfO-1020/b330)



(BNOF-1030/b330)

[0125] 2-1-3 (ii). 第3成分: 下記式 (ii) で表される化合物

[化81]



上記式 (ii) において、

A環、B環、C環およびD環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

YはB（ホウ素）であり、

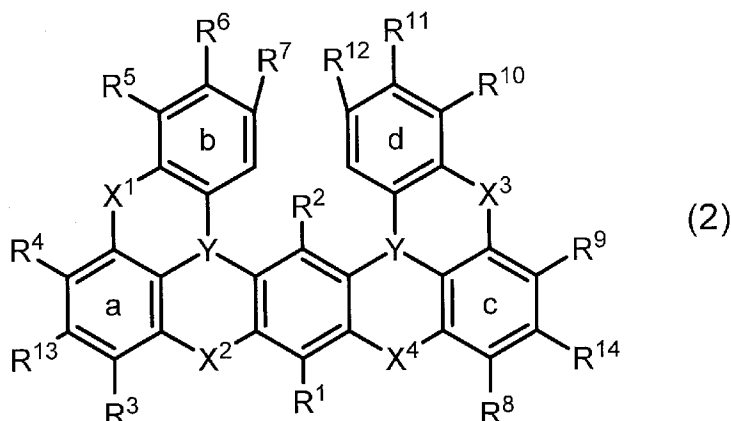
X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ 、 $>CR_2$ 、 $>S$ または $>Se$ であり、前記 $>N-R$ のRおよび $>CR_2$ のRは、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたは置換されていてもよいアルキルであり、また、前記 $>N-R$ のRは連結基または単結合により前記A環、B環、C環およびD環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、

R^1 および R^2 は、それぞれ独立して、水素、炭素数1～6のアルキル、炭素数3～12のシクロアルキル、炭素数6～12のアリール、炭素数2～15のヘテロアリールまたはジアリールアミノ（ただしアリールは炭素数6～12のアリール）であり、

式 (ii) で表される化合物における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

[0126] 第3成分としての式 (ii) で表される化合物は、下記式 (2) で表される化合物であることが好ましい。

[化82]



上記式 (2) において、

$R^1 \sim R^{14}$ (以降、「 R^1 等」ともいう) は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオまたはアルキル置換シリルであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、 $R^5 \sim R^7$ および $R^{10} \sim R^{12}$ のうちの隣接する基同士が結合してb環またはd環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオまたはアルキル置換シリルで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、

YはB (ホウ素) であり、

X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ のRおよび $>CR_2$ のRは、炭素数6~12のアリール、炭素数2~15のヘテロアリール、炭素数3~12のシクロアルキ

ルまたは炭素数 1～6 のアルキルであり、また、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(-R)_2-$ または単結合により前記 a 環、b 環、c 環および d 環から選択される少なくとも 1 つと結合していてもよく、前記 $-C(-R)_2-$ の R は水素または炭素数 1～6 のアルキルであり、

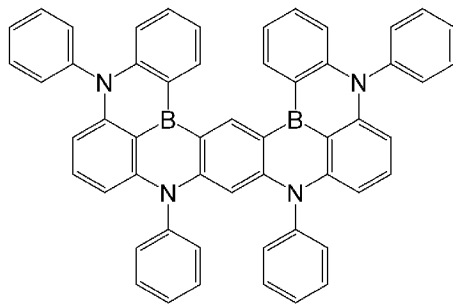
ただし、 X^1 、 X^2 、 X^3 、および X^4 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式 (2) で表される化合物および構造における少なくとも 1 つの水素はシアン、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

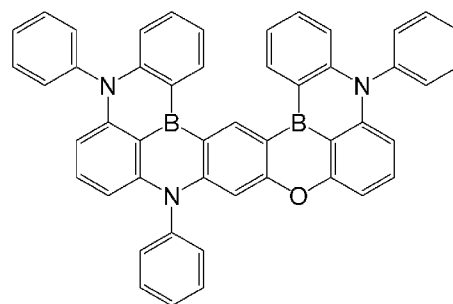
[0127] 上記式 (2) における、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシ (以上、第 1 置換基)、また、当該第 1 置換基にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル (以上、第 2 置換基) としては、上述した R^1 等 (第 1 置換基) としてのアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシの説明を引用できる。

[0128] 上記式 (2) で表される化合物は下記部分構造を含む化合物であることが好ましい。

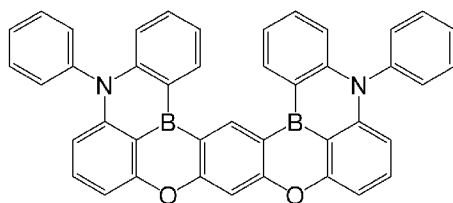
[化83]



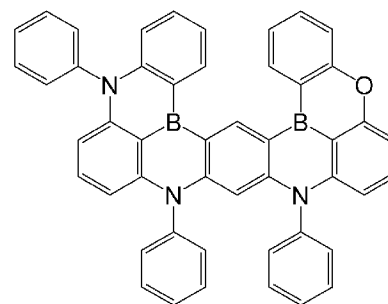
(2-11)



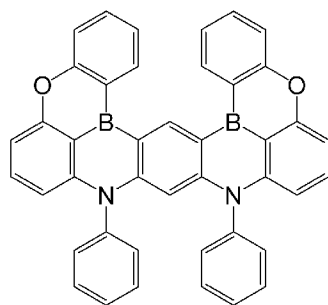
(2-12)



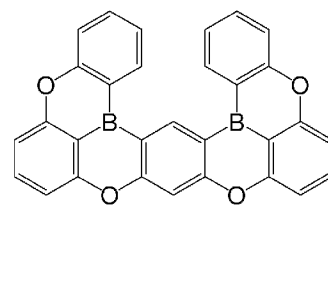
(2-13)



(2-14)



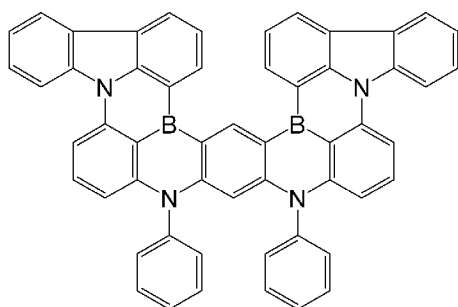
(2-15)



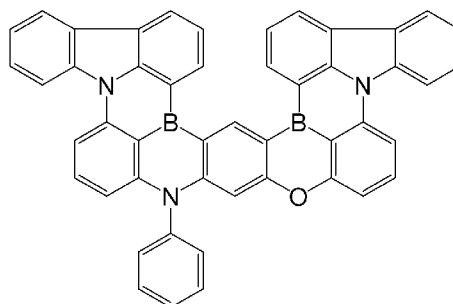
(2-16)

[0129]

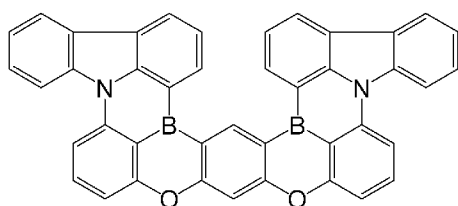
[化84]



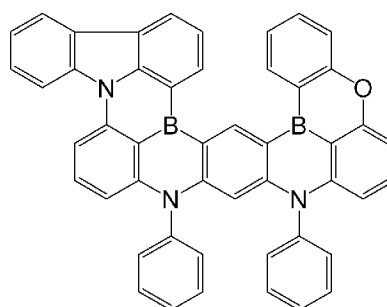
(2-21)



(2-22)



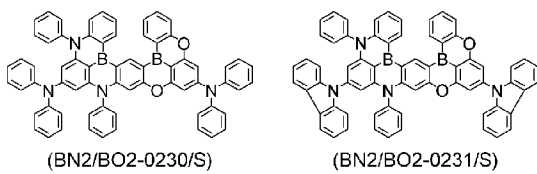
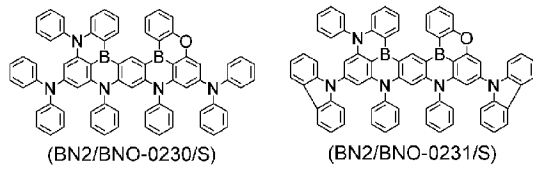
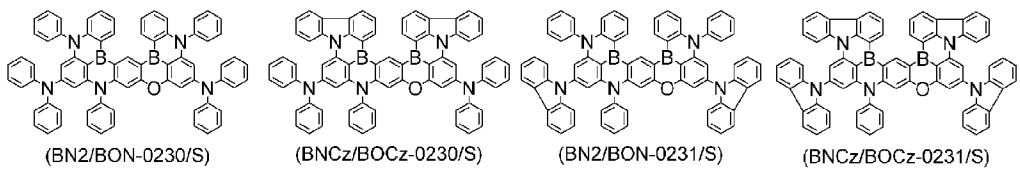
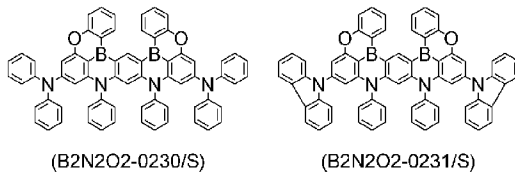
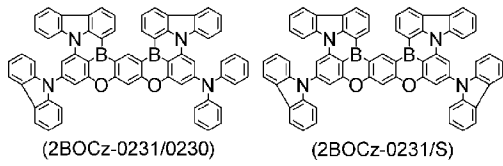
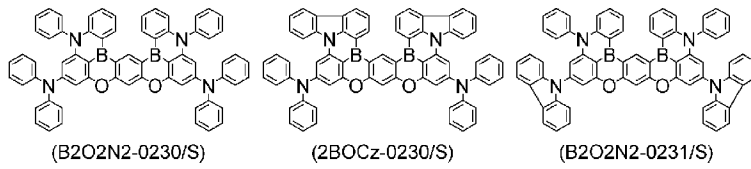
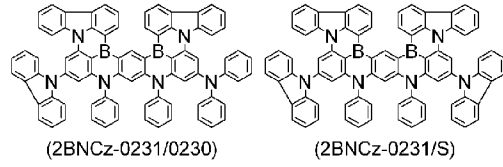
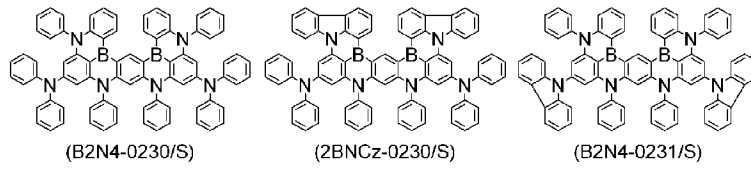
(2-23)



(2-24)

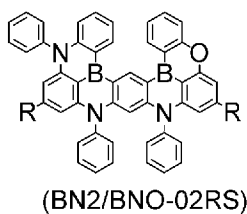
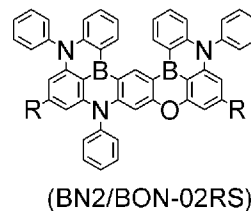
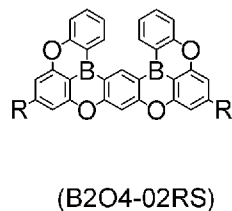
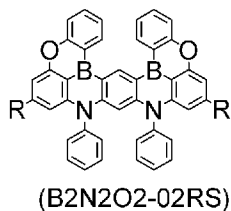
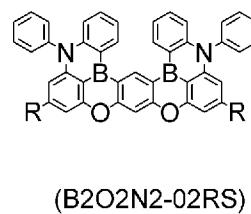
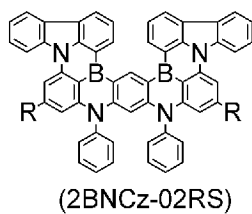
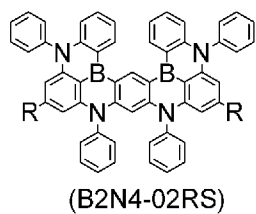
[0130] 以下に、上記式(2)で表される化合物の具体的な構造を示す。下記式において、Meはメチルを表し、tBuはt-ブチルを表し、Phはフェニルを表す。

[化85]



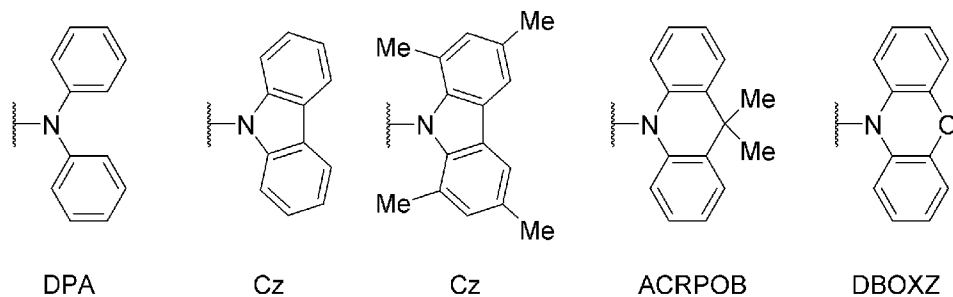
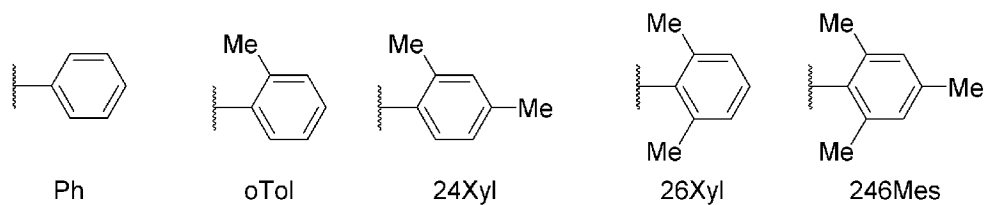
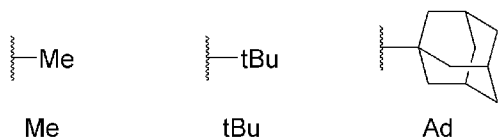
[0131]

[化86]

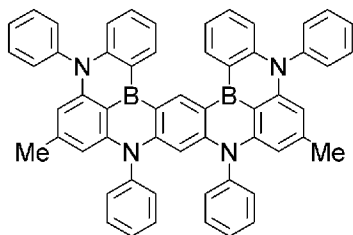


[0132] 上記の構造におけるRは、以下のいずれかの基である。

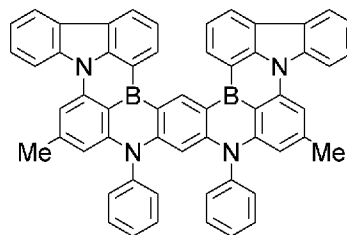
[化87]



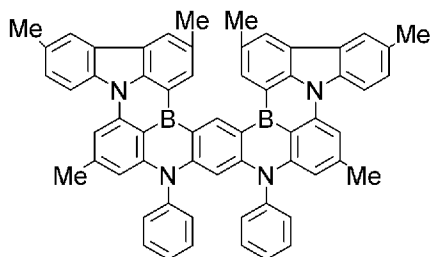
[0133] [化88]



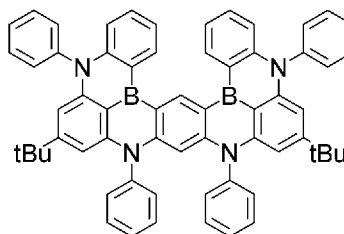
(B2N4-0210/S)



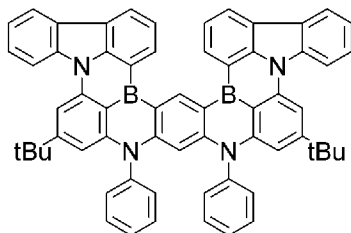
(2BNCz-0210/S)



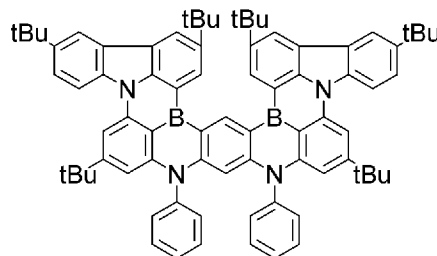
(2BNCz-0210/0610S/S)



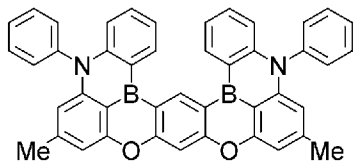
(B2N4-0211/S)



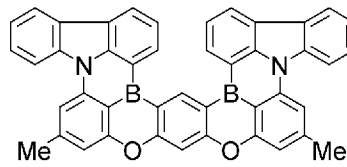
(2BNCz-0211/S)



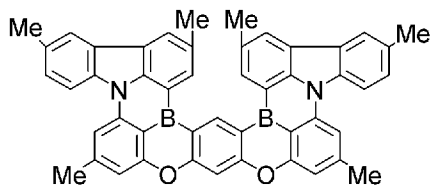
(2BNCz-0211/0611S/S)



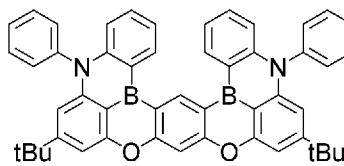
(B2O2N2-0210/S)



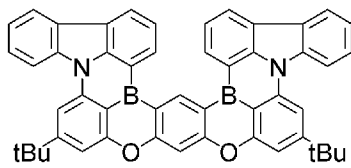
(2BOCz-0210/S)



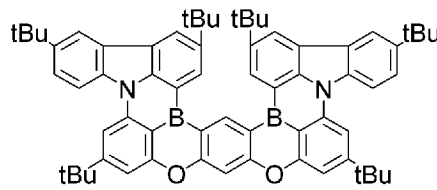
(2BOCz-0210/0610S/S)



(B2O2N2-0211/S)



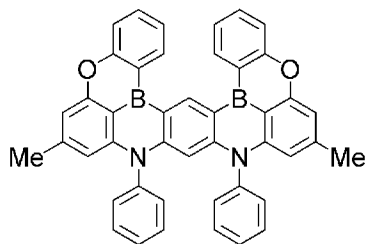
(2BOCz-0211/S)



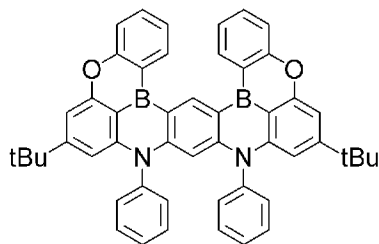
(2BOCz-0211/0611S/S)

[0134]

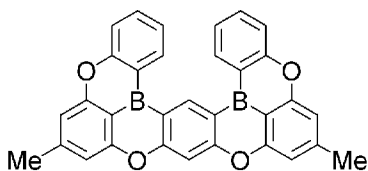
[化89]



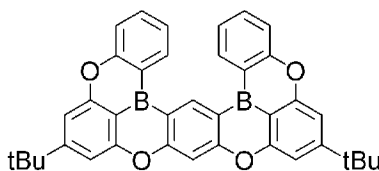
(B2N2O2-0210/S)



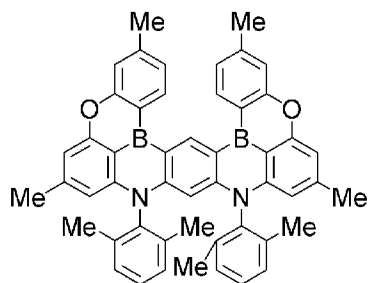
(B2N2O2-0211/S)



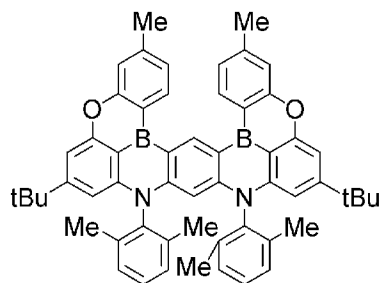
(B2O4-0210/S)



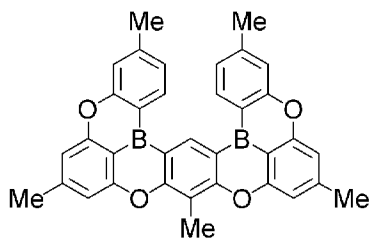
(B2O4-0211/S)



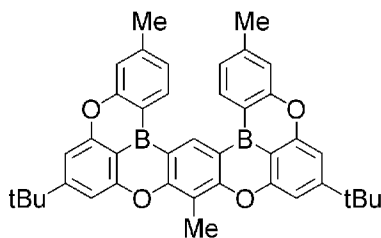
(B2N2O2-0210/0510/S-1)



(B2N2O2-0211/0510/S-1)



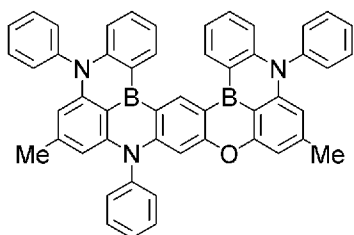
(B2O4-0210/0510/1110/S)



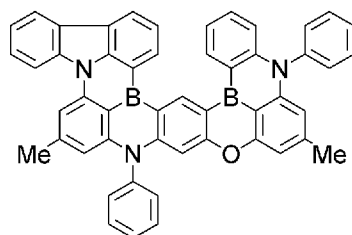
(B2O4-0211/0510/1110/S)

[0135]

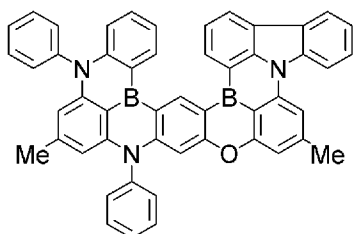
[化90]



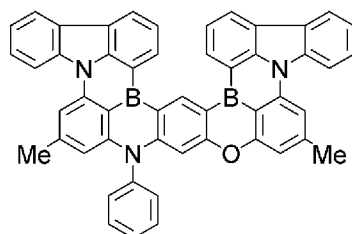
(BN2/BON-0210/S)



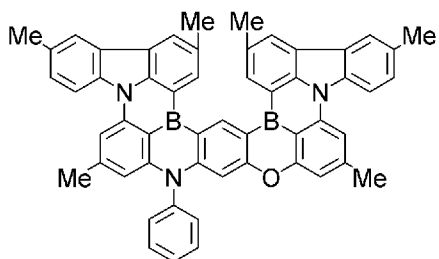
(BNCz/BON-0210/S)



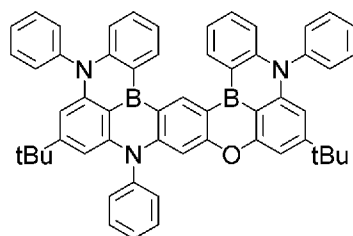
(BN2/BOCz-0210/S)



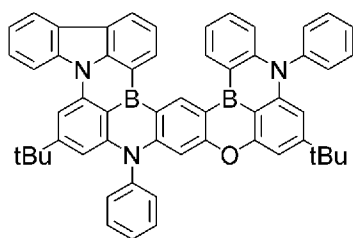
(BNCz/BOCz-0210/S)



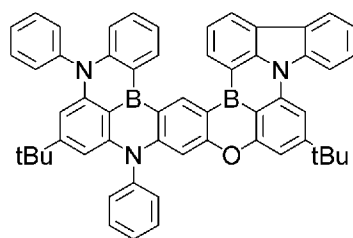
(BNCz/BOCz-0210/0610S/S)



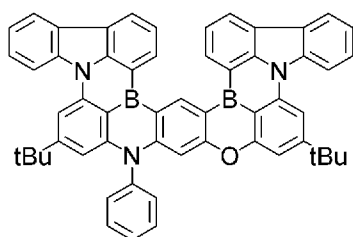
(BN2/BON-0211/S)



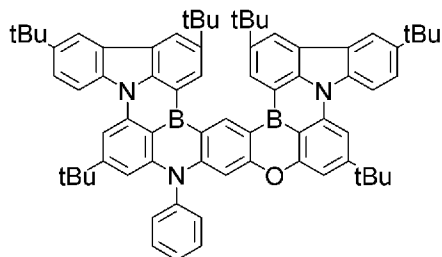
(BNCz/BON-0211/S)



(BN2/BOCz-0211/S)



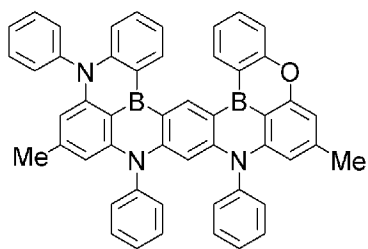
(BNCz/BOCz-0211/S)



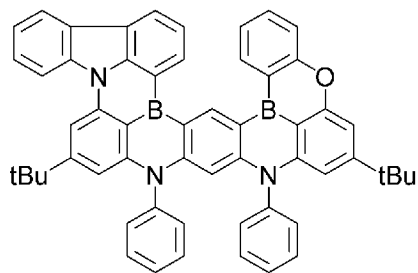
(BNCz/BOCz-0211/0611S/S)

[0136]

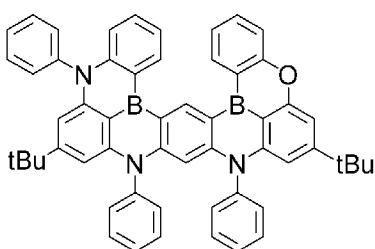
[化91]



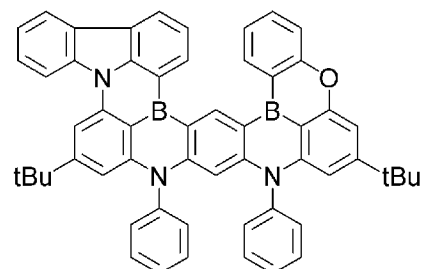
(BN2/BNO-0210/S)



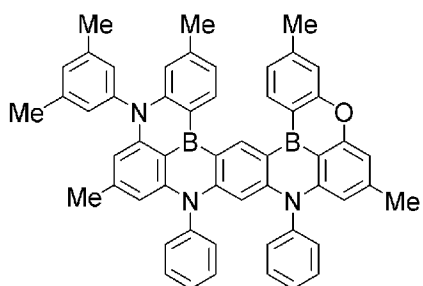
(BNCz/BNO-0211/S)



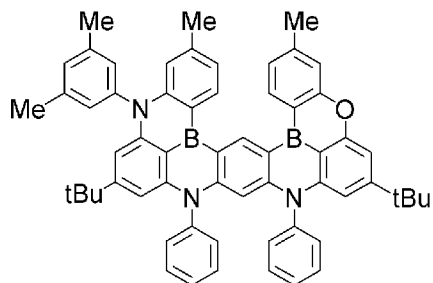
(BN2/BNO-0211/S)



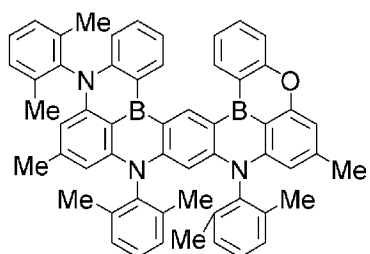
(BNCz/BNO-0211/S)



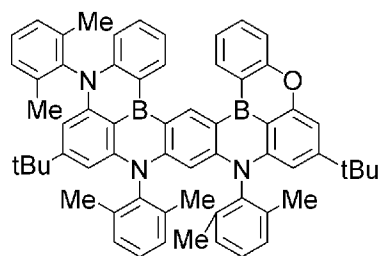
(BN2/BNO-0210/0510/S-1)



(BN2/BNO-0211/0510/S-1)



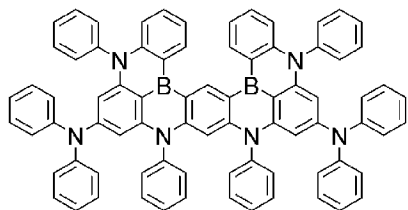
(BN2/BNO-0210/0510/S-2)



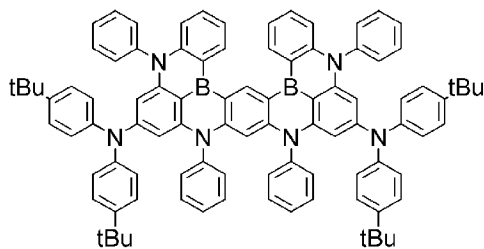
(BN2/BNO-0211/0510/S-2)

[0137]

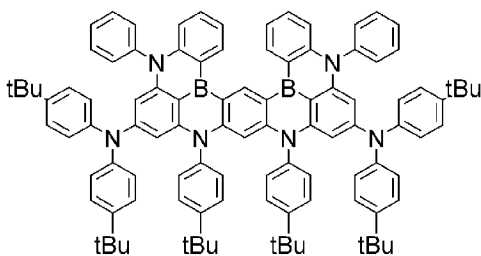
[化92]



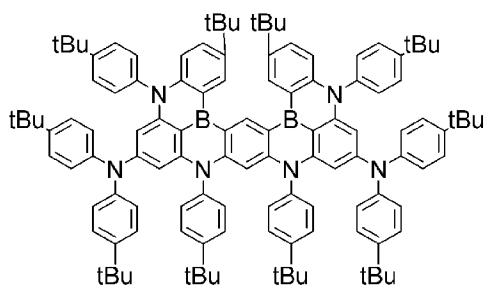
(B2N4-0230/S)



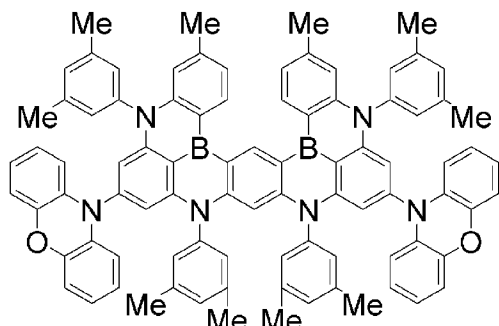
(B2N4-0230/S-B1)



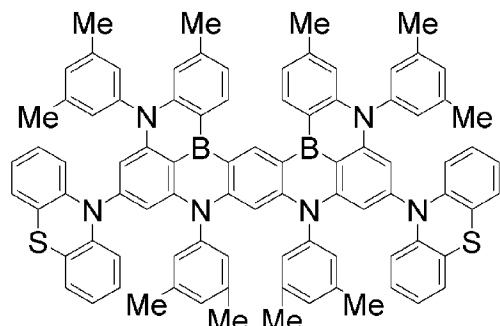
(B2N4-0230/S-B2)



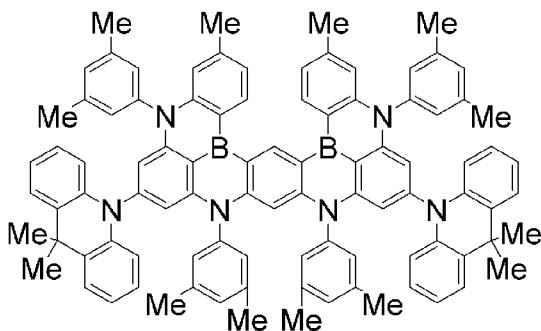
(B2N4-0230/S-B3)



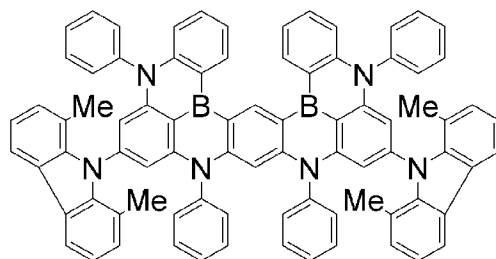
B2N4-0232/S-M1



B2N4-0234/S-M1



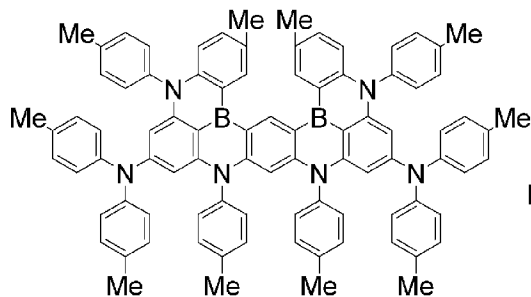
B2N4-0235/S-M1



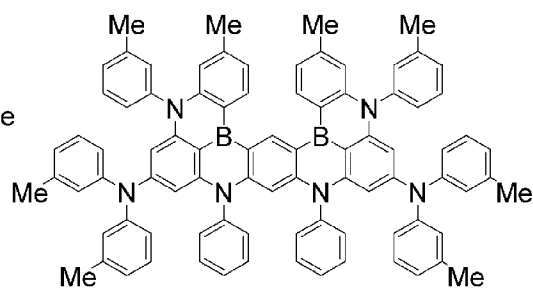
B2N4-0231/S-M1

[0138]

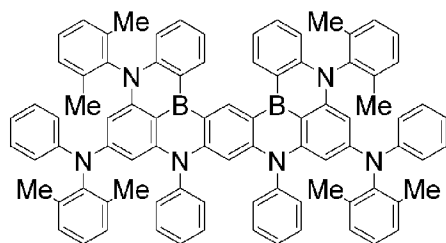
[化93]



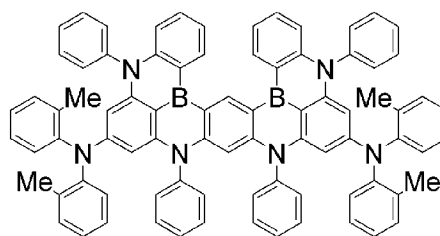
B2N4-0230/S-M1



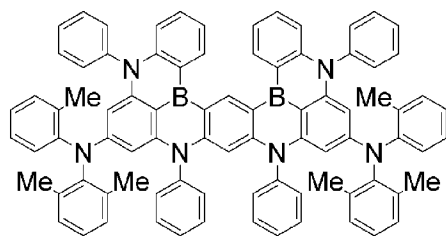
B2N4-0230/S-M2



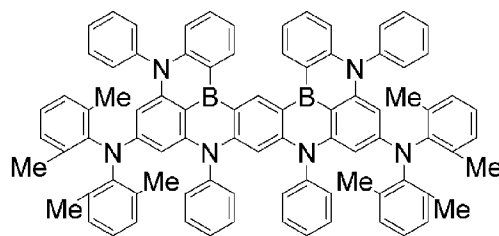
B2N4-0230/S-M3



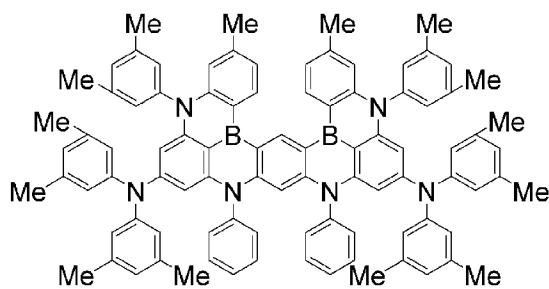
B2N4-0230/S-M4



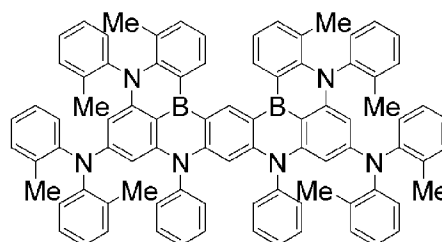
B2N4-0230/S-M5



B2N4-0230/S-M6



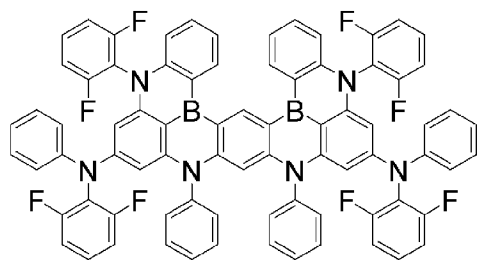
B2N4-0230/S-M7



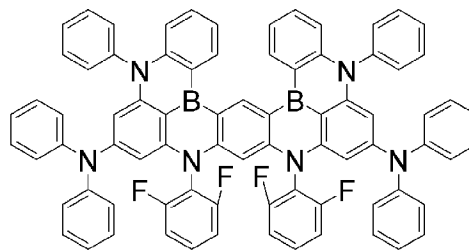
B2N4-0230/S-M8

[0139]

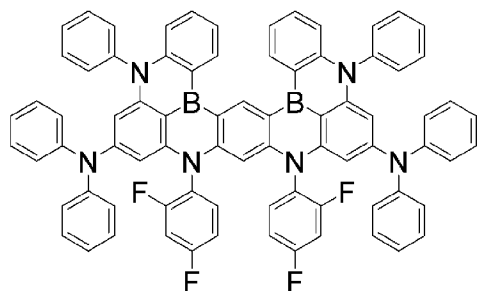
[化94]



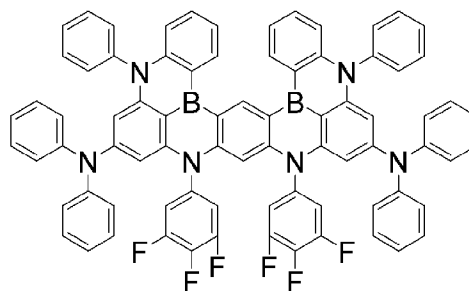
B2N4-0230/S-F1



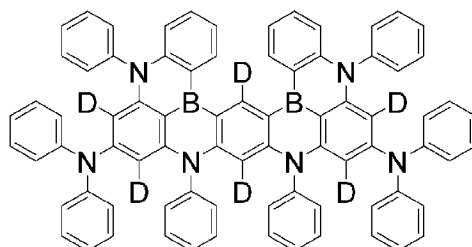
B2N4-0230/S-F2



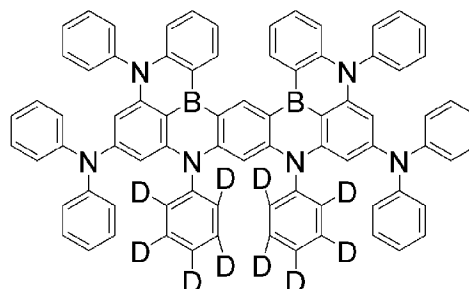
B2N4-0230/S-F3



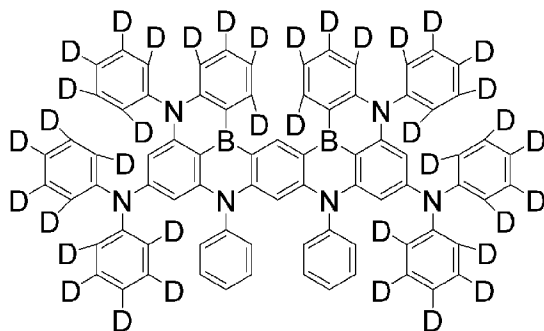
B2N4-0230/S-F4



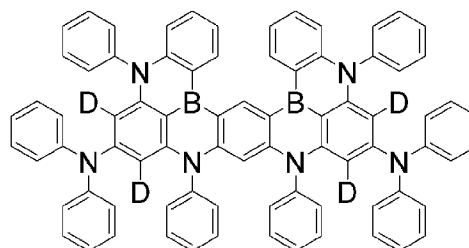
B2N4-0230/S-D1



B2N4-0230/S-D2



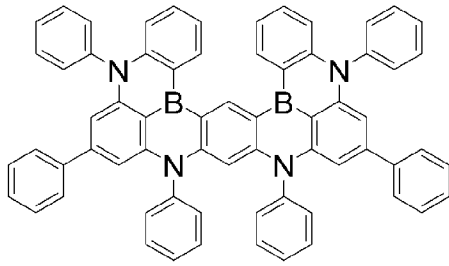
B2N4-0230/S-D3



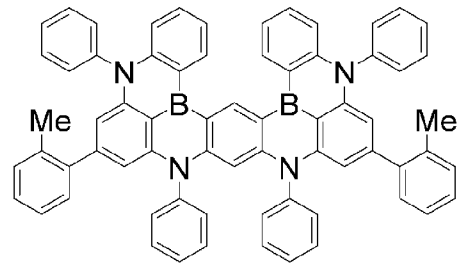
B2N4-0230/S-D4

[0140]

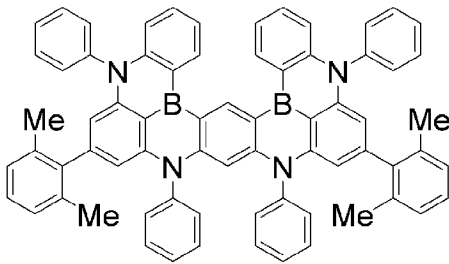
[化95]



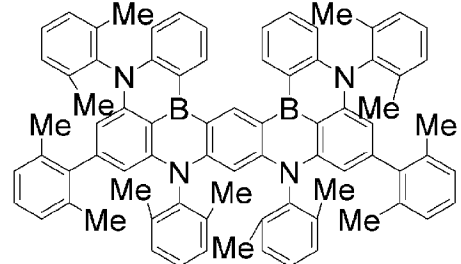
B2N4-0220/S



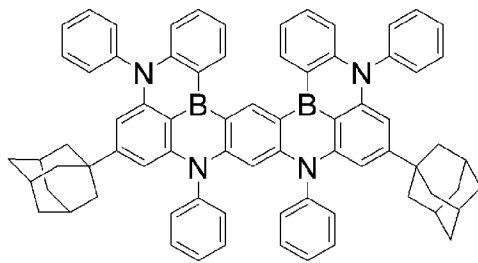
B2N4-0220/S-M1



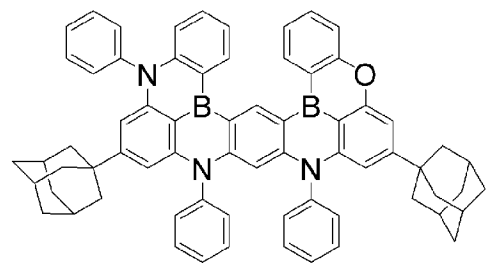
B2N4-0220/S-M2



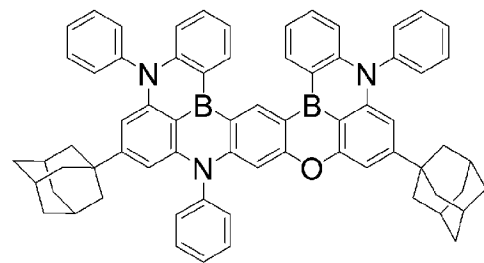
B2N4-0220/S-M3



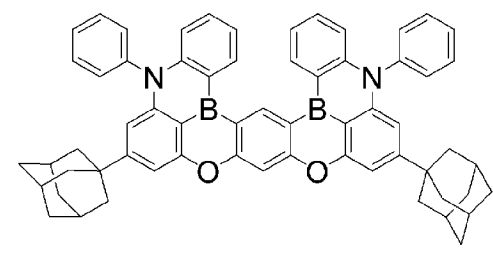
B2N4-0215/S



BN2/BNO-0215/S



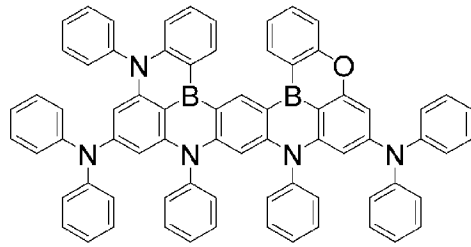
BN2/BON-0215/S



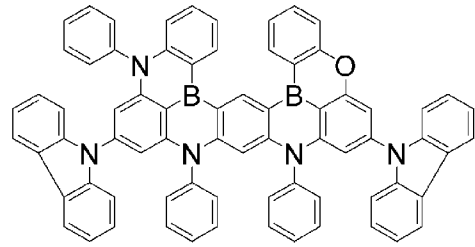
B2O2N2-0215/S

[0141]

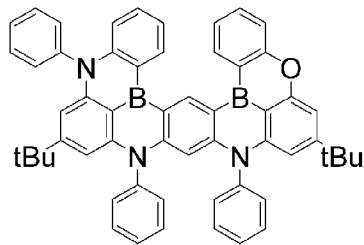
[化96]



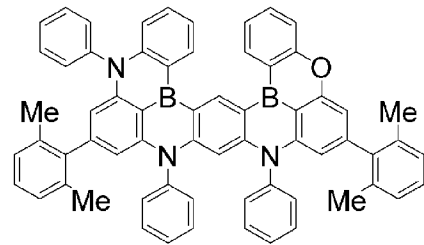
BN2/BNO-0230/S



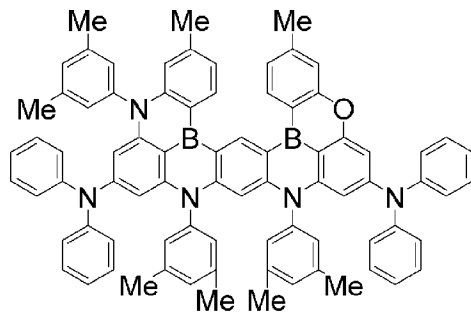
BN2/BNO-0231/S



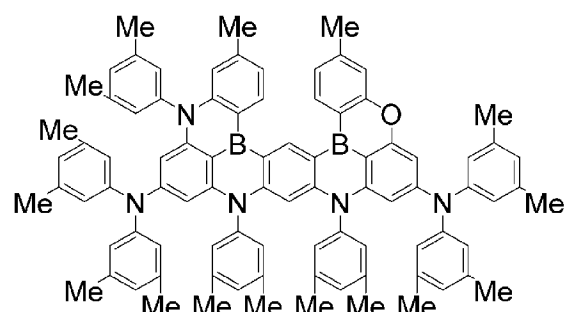
BN2/BNO-0221/S



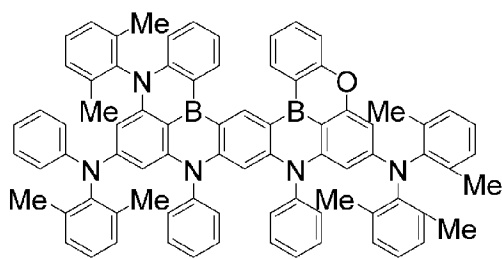
BN2/BNO-0221/S-M1



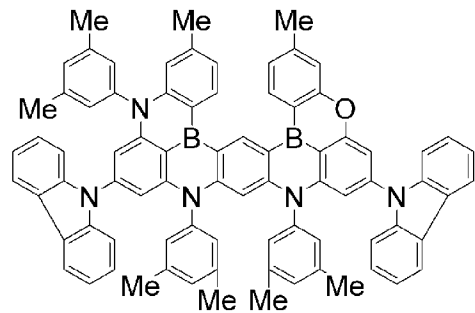
BN2/BNO-0230/S-M1



BN2/BNO-0230/S-M2



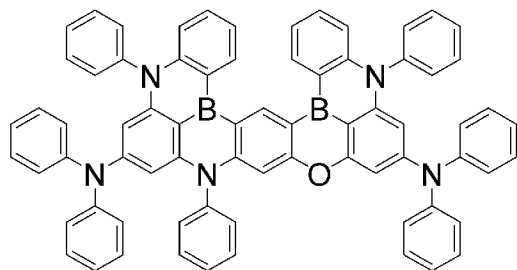
BN2/BNO-0230/S-M3



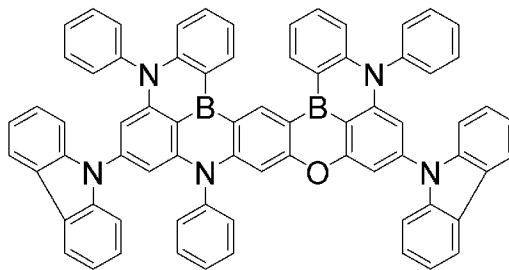
BN2/BNO-0231/S-M1

[0142]

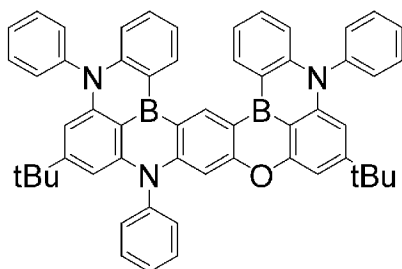
[化97]



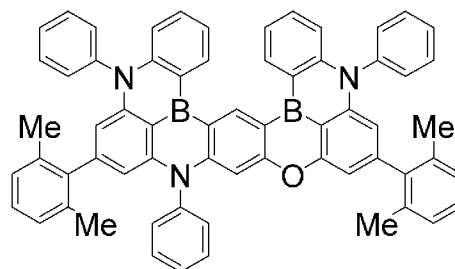
BN2/BON-0230/S



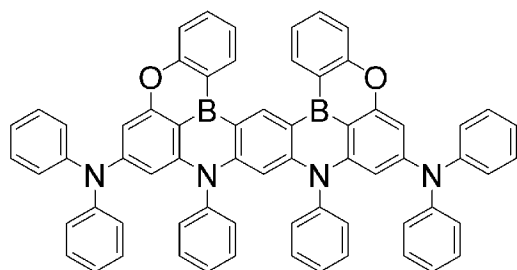
BN2/BON-0231/S



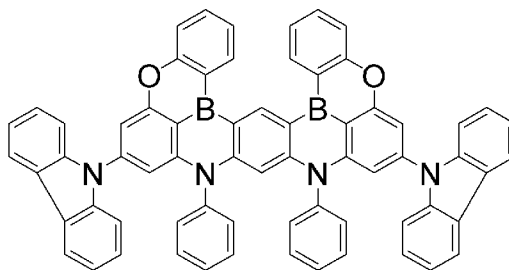
BN2/BON-0211/S



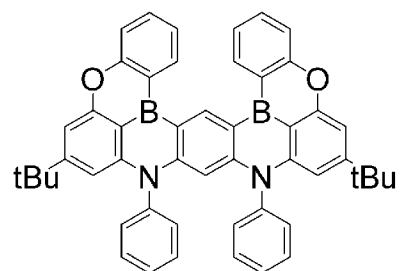
BN2/BON-0221/S-M1



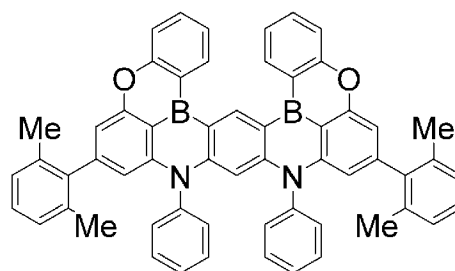
B2N2O2-0230/S



B2N2O2-0231/S



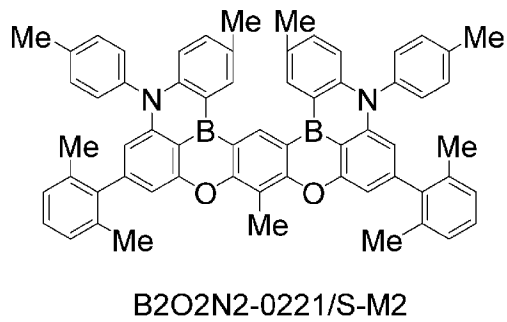
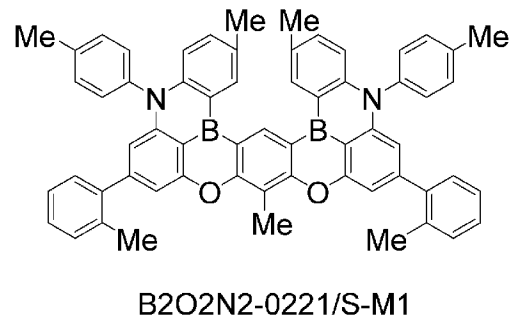
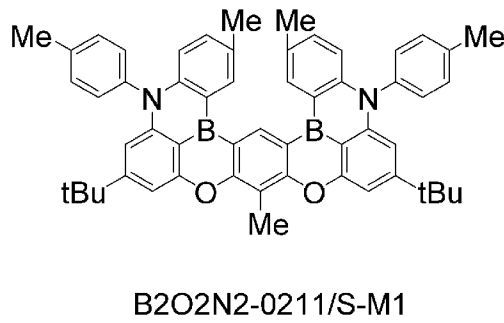
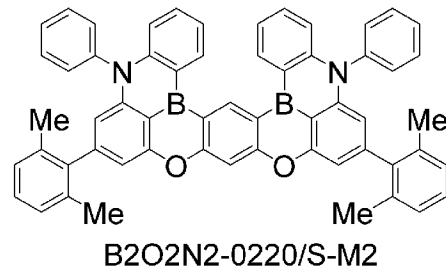
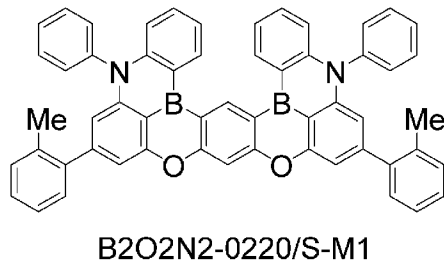
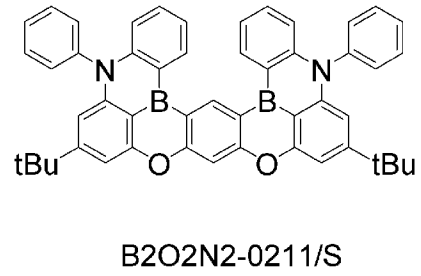
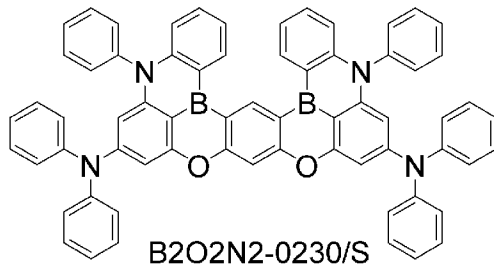
B2N2O2-0211/S



B2N2O2-0220/S-M1

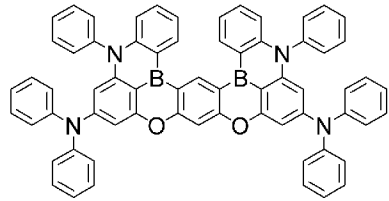
[0143]

[化98]

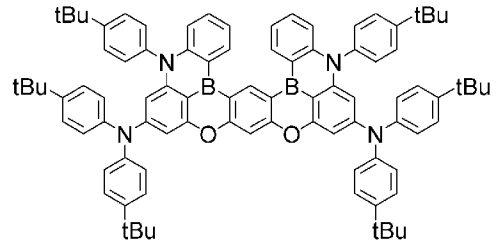


[0144]

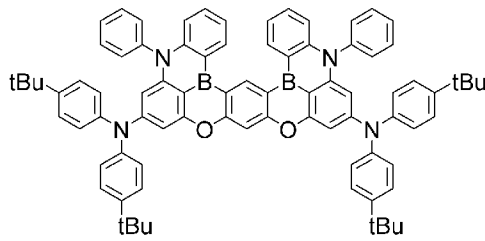
[化99]



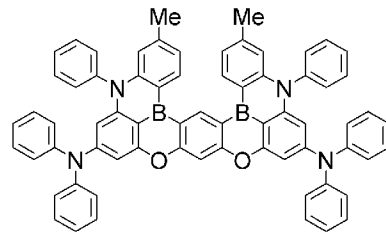
(B2O2N2-0230/S)



(B2O2N2-0230/S-1)

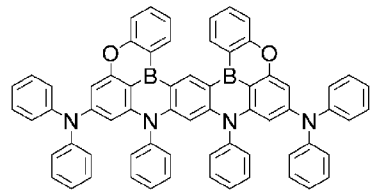


(B2O2N2-0230/S-2)

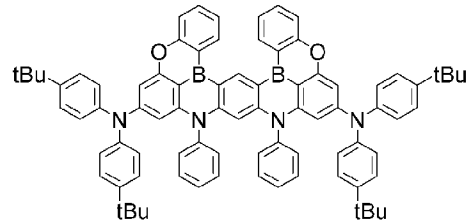


(B2O2N2-0230/0510/S)

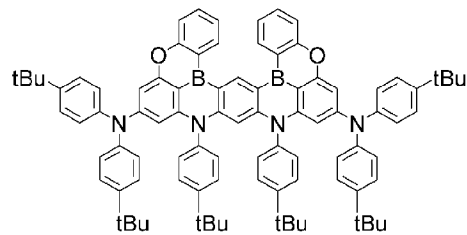
[0145] [化100]



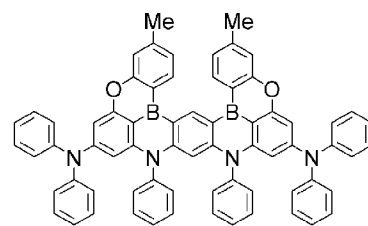
(B2N2O2-0230/S)



(B2N2O2-0230/S-1)



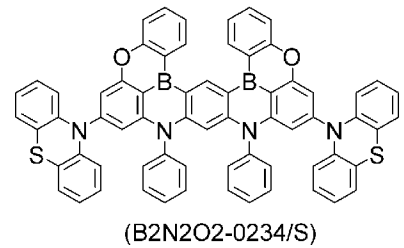
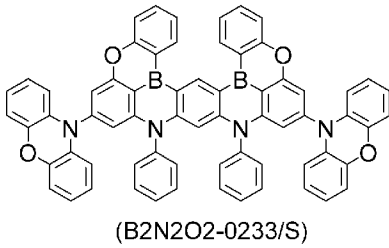
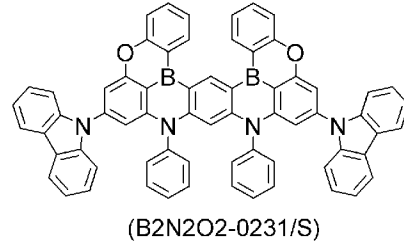
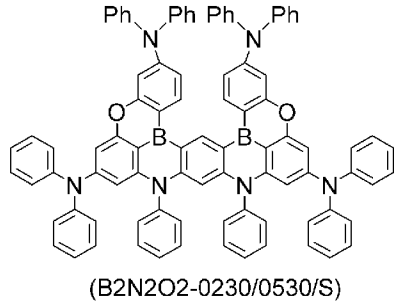
(B2N2O2-0230/S-1)



(B2N2O2-0230/0510/S)

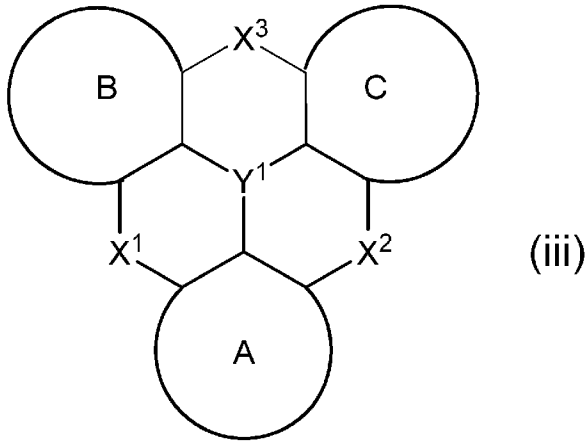
[0146]

[化101]



[0147] 2-1-3 (iii). 第3成分：下記式 (iii) で表される化合物

[化102]



上記式 (iii) において、

A環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

Y¹は、B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-RまたはGe-Rであり、前記Si-RおよびGe-RのRはアリールまたはアルキルであり、

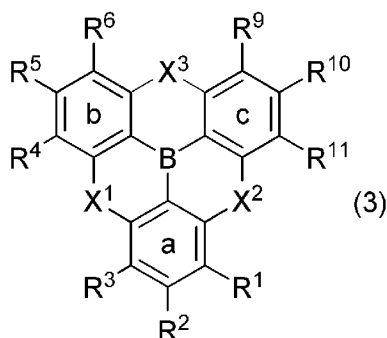
X¹、X²およびX³は、それぞれ独立して、O、N-R、>CR₂、Sまた

はS eであり、前記N-RのRおよび $>CR_2$ のRは置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたはアルキルであり、また、前記N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環およびC環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、そして、

式(iii)で表される化合物または構造における少なくとも1つの水素がシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

[0148] 式(iii)で表される化合物は、下記式(3)で表される化合物であることが好ましい。

[化103]



上記式(3)において、

R¹~R¹¹ (以降、「R¹等」ともいう)は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、また、R¹~R³、R⁴~R⁶およびR⁹~R¹¹のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

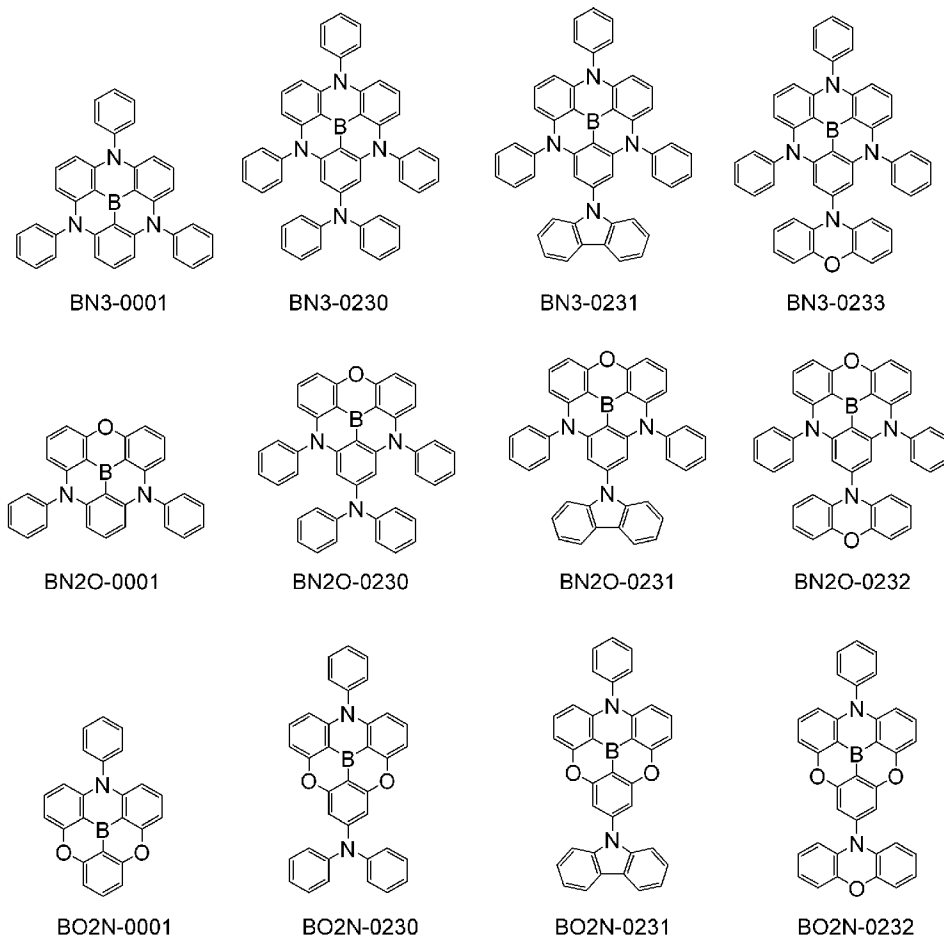
X^1 、 X^2 および X^3 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ 、または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R はアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、ただし、 X^1 、 X^2 、および X^3 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式(3)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアン、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

[0149] 上記式(3)における、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシ(以上、第1置換基)、また、当該第1置換基にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル(以上、第2置換基)としては、上述した R^1 等(第1置換基)としてのアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシの説明を引用できる。

[0150] 以下に、上記式(3)の具体的な構造を示す。

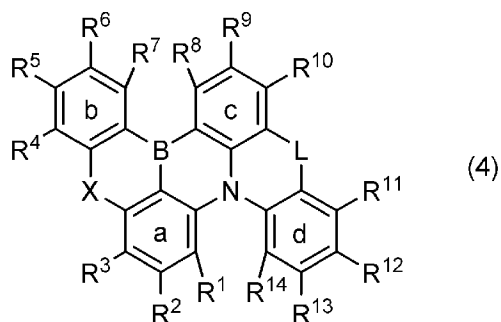
[化104]



[0151] 2-1-3 (iv) . 第3成分：下記式(4)で表される化合物

上記の式(i)で表される化合物は、下記式(4)で表される化合物であることも好ましい。

[化105]



上記式(4)において、

R¹~R¹⁴ (以降、「R¹等」ともいう)は、それぞれ独立して、水素、ア

リール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、また、 $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^7$ 、 $R^8 \sim R^{10}$ および $R^{11} \sim R^{14}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環、c環またはd環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

Xは、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ のRはアリール、ヘテロアリールまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

Lは、単結合、 $>CR_2$ 、 $>O$ 、 $>S$ または $>N-R$ であり、前記 $>CR_2$ および $>N-R$ におけるRは、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

ただし、XおよびLは、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式(4)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアン、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

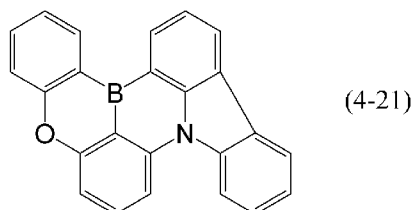
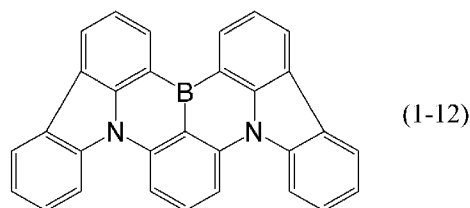
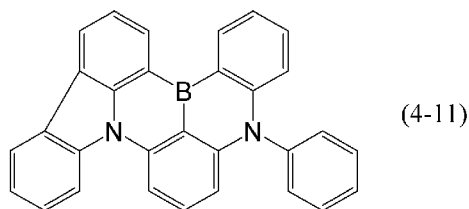
[0152] 上記式(4)における、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシ(以上、第1置換基)、また、当該第1置換基にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル(以上、第2置換基)としては、上述した R^1 等(第1置換基)としてのアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシの説明を引用できる。

[0153] 式(4)におけるLは、単結合、 $>CR_2$ 、 $>O$ 、 $>S$ または $>N-R$ であり、単結合、 $>O$ または $>N-R$ が好ましく、単結合がより好ましい。

[0154] $>CR_2$ および $>N-R$ のRであるアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシ(以上、第1置換基)、また、当該第1置換基にさらに置換するアリール、ヘテロアリールまたはアルキル(以上、第2置換基)としては、上述したR¹等(第1置換基)としてのアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシの説明を引用できる。

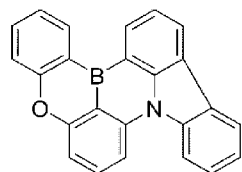
[0155] 式(4)で表される化合物は下記部分構造を含む化合物であることが好ましい。

[化106]



[0156] 以下に、上記式(4)で表される化合物の具体的な構造を示す。下記式において、Meはメチルを表し、t-Buはt-ブチルを表す。

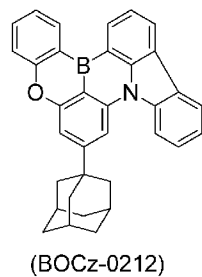
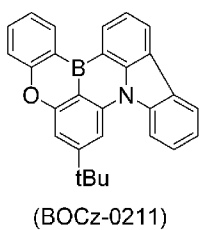
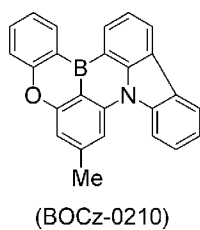
[化107]



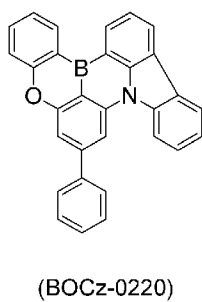
(BOCz-0001)

[0157]

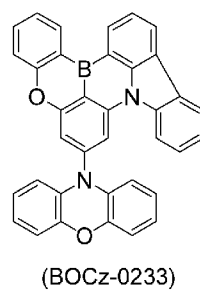
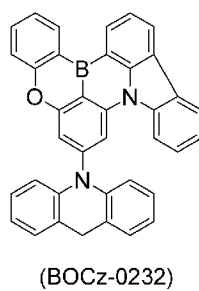
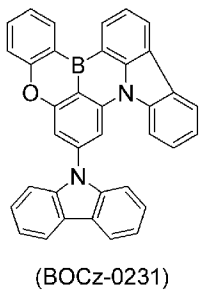
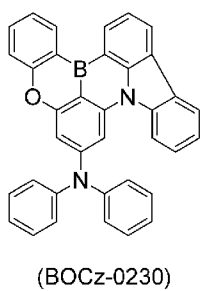
[化108]



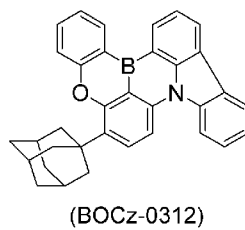
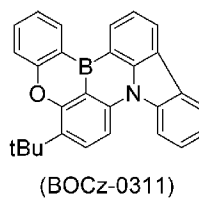
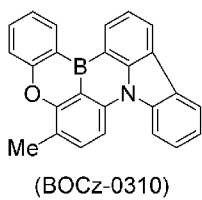
[0158] [化109]



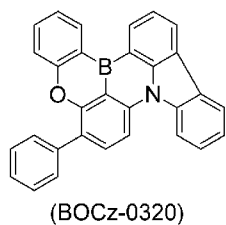
[0159] [化110]



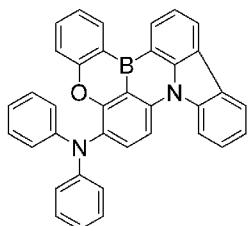
[0160] [化111]



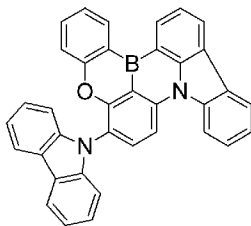
[0161] [化112]



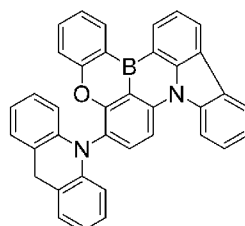
[0162] [化113]



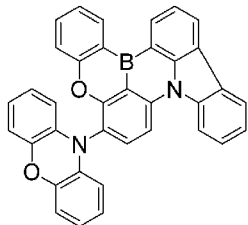
(BOCz-0330)



(BOCz-0331)

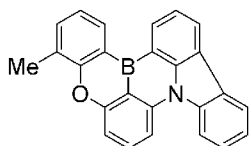


(BOCz-0332)

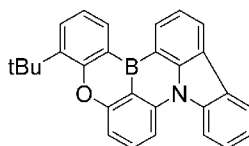


(BOCz-0333)

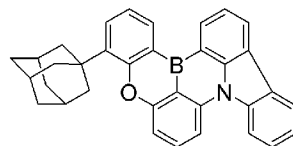
[0163] [化114]



(BOCz-0410)

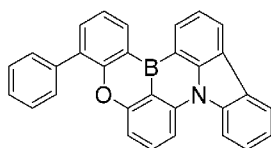


(BOCz-0411)



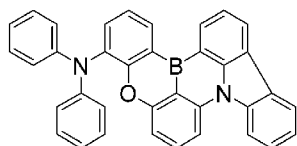
(BOCz-0412)

[0164] [化115]

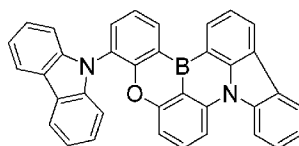


(BOCz-0420)

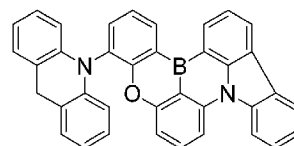
[0165] [化116]



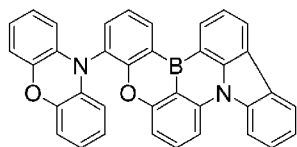
(BOCz-0430)



(BOCz-0431)

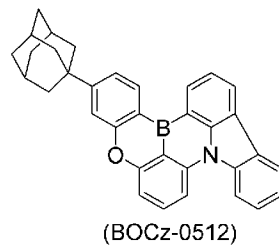
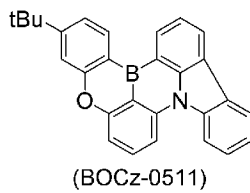
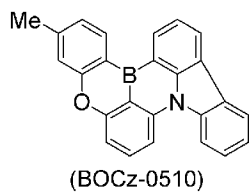


(BOCz-0432)

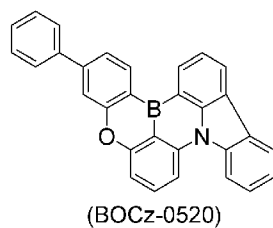


(BOCz-0433)

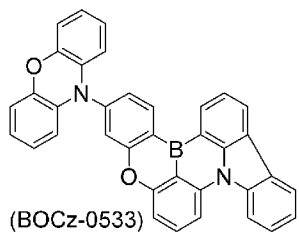
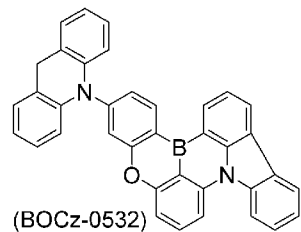
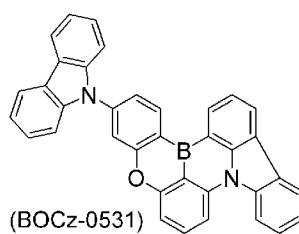
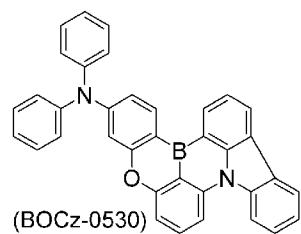
[0166] [化117]



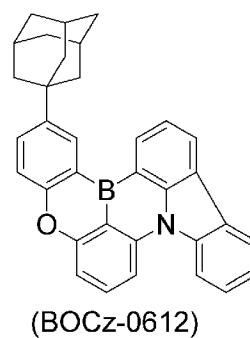
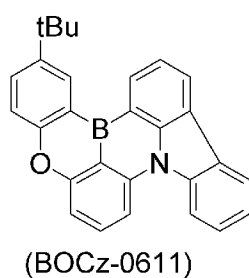
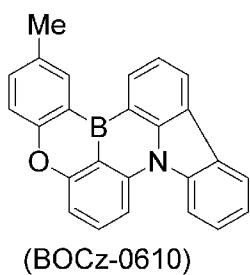
[0167] [化118]



[0168] [化119]

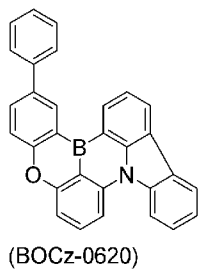


[0169] [化120]

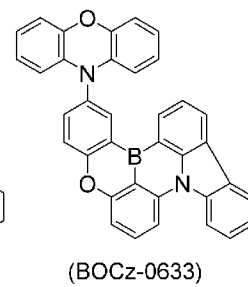
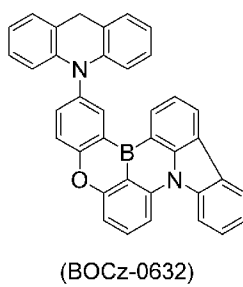
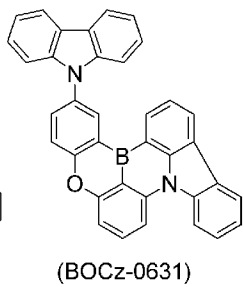
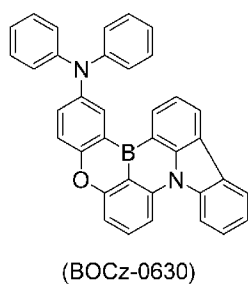


[0170]

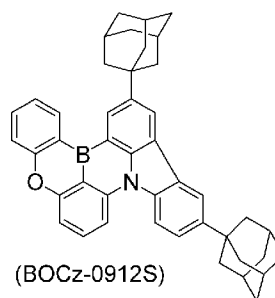
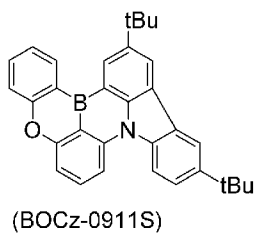
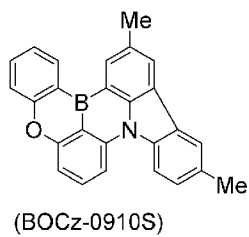
[化121]



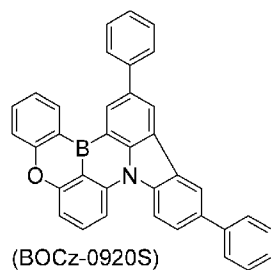
[0171] [化122]



[0172] [化123]

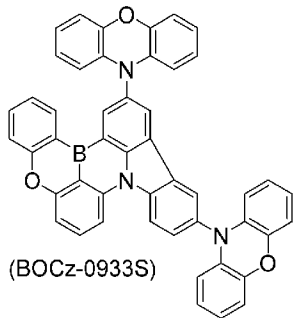
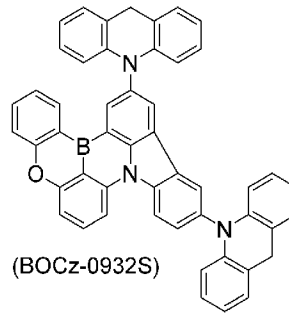
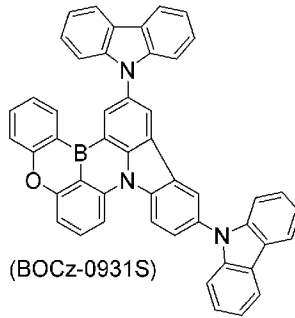
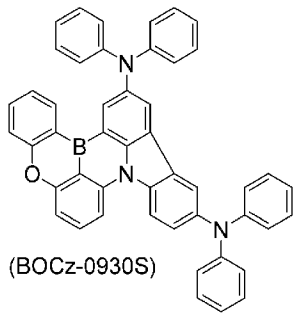


[0173] [化124]

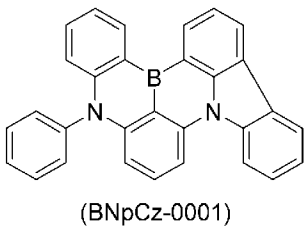


[0174]

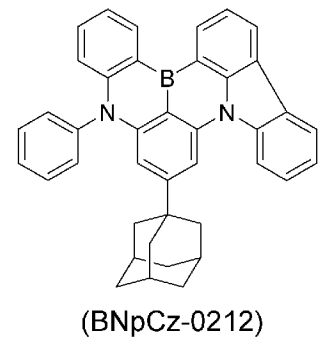
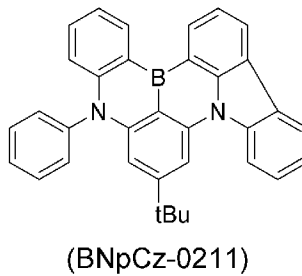
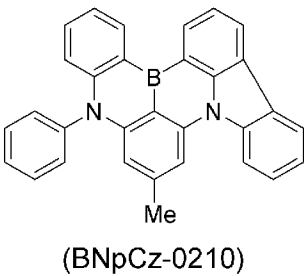
[化125]



[0175] [化126]

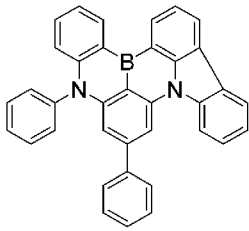


[0176] [化127]



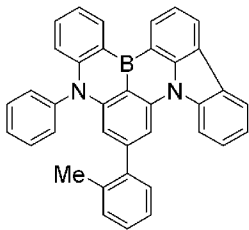
[0177]

[化128]

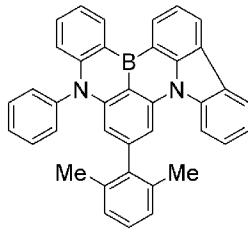


(BNpCz-0220)

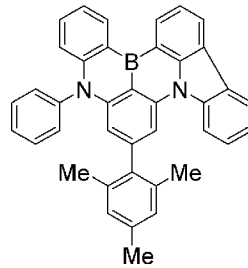
[0178] [化129]



(BNpCz-0220-1)

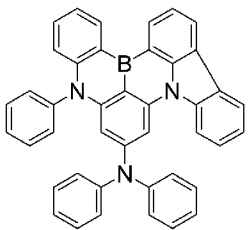


(BNpCz-0220-2)

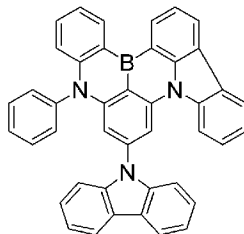


(BNpCz-0220-3)

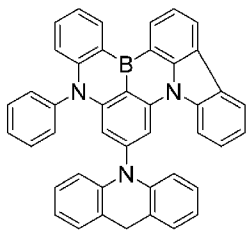
[0179] [化130]



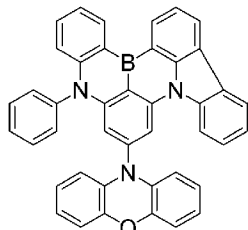
(BNpCz-0230)



(BNpCz-0231)

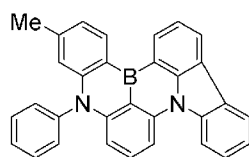


(BNpCz-0232)

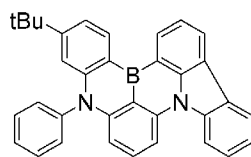


(BNpCz-0233)

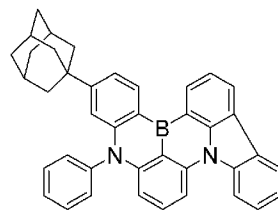
[0180] [化131]



(BNpCz-0510)

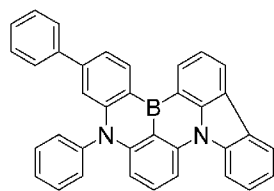


(BNpCz-0511)



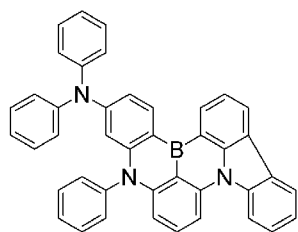
(BNpCz-0512)

[0181] [化132]

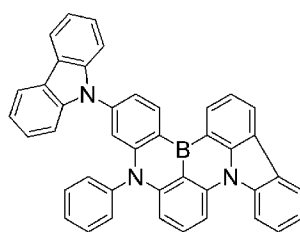


(BNpCz-0520)

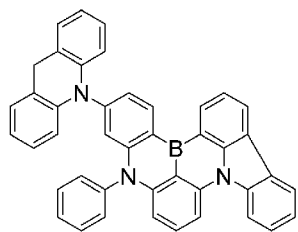
[0182] [化133]



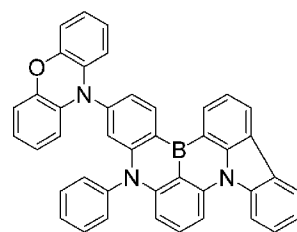
(BNpCz-0530)



(BNpCz-0531)

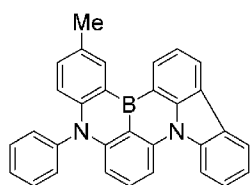


(BNpCz-0532)

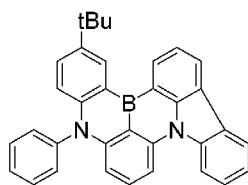


(BNpCz-0533)

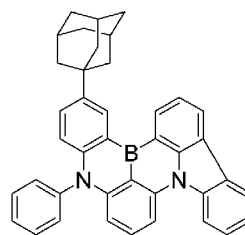
[0183] [化134]



(BNpCz-0610)

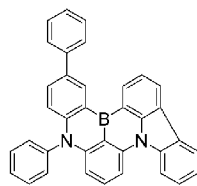


(BNpCz-0611)



(BNpCz-0612)

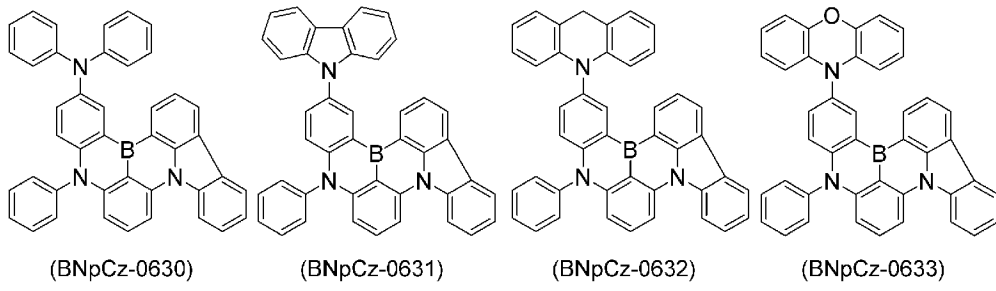
[0184] [化135]



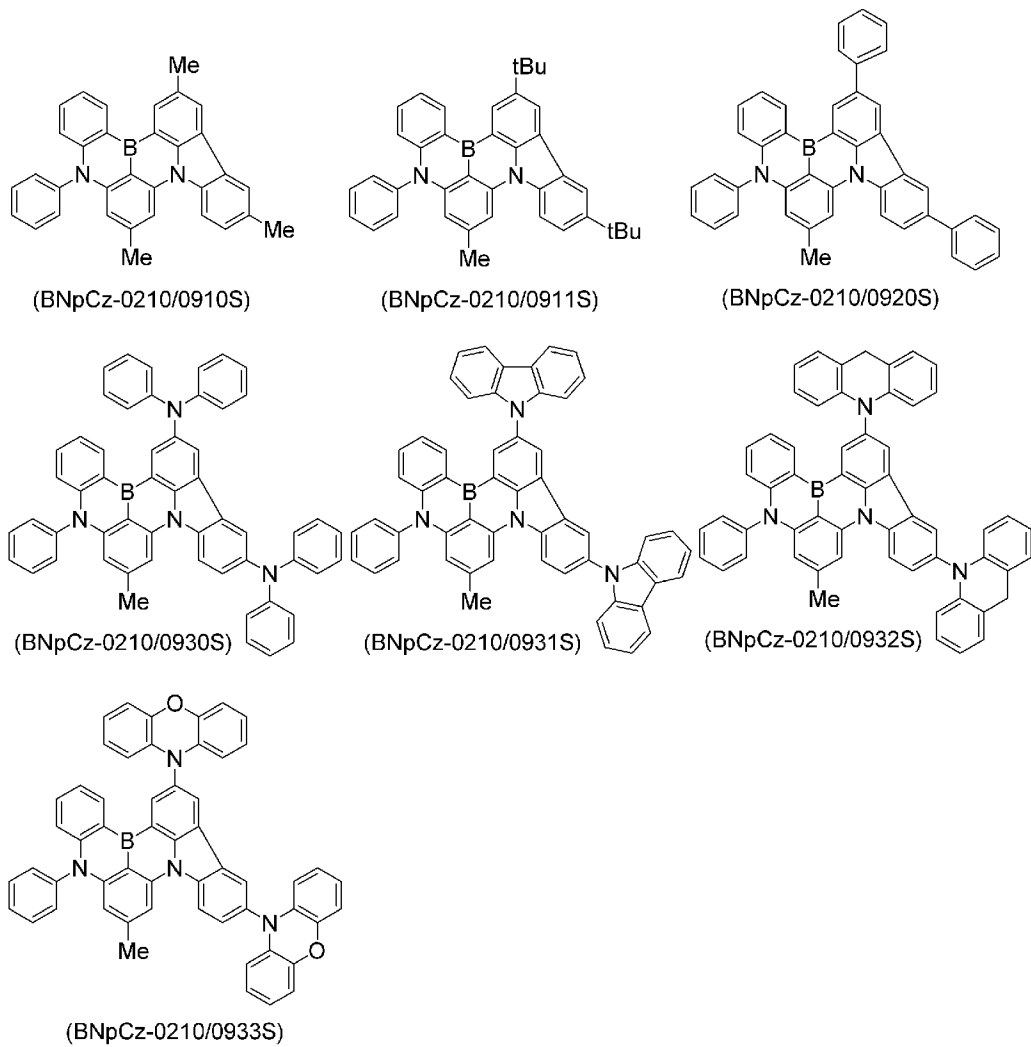
(BNpCz-0620)

[0185]

[化136]

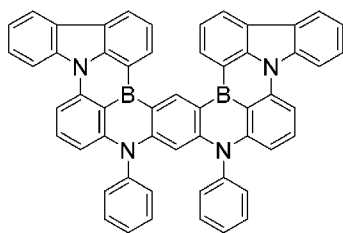


[0186] [化137]



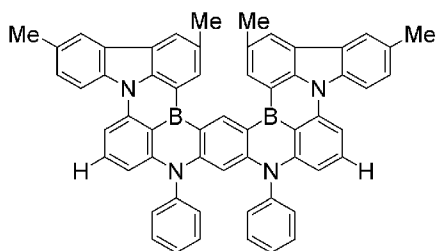
[0187]

[化138]

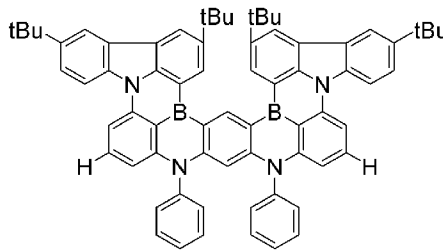


(22BNpCz-0001)

[0188] [化139]

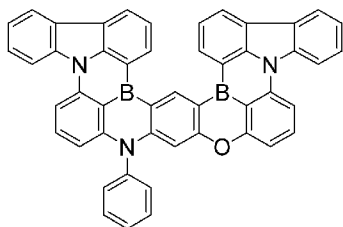


(22BNpCz-0910S/S)



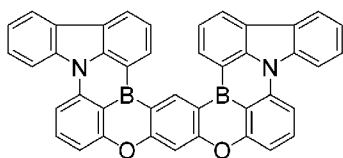
(22BNpCz-0910S/S)

[0189] [化140]



(22BOCz/NpCz-0001)

[0190] [化141]



(22BOCz-0001)

[0191] 本発明の第3成分は、式(i)～(iii)で表される化合物の少なくとも一つであり、より具体的には、式(1)～(4)で表される化合物の少なくとも一つであることが好ましい。高いPLQYの観点からは、式(i)および(ii)で表される化合物が好ましく、式(iii)で表される化合物がより好ましい。より具体的には、ホウ素原子を含む共役構造の平面性が高い

ほうが好ましく、式(1)、(2)および(4)が好ましく、式(2)および(4)がより好ましい。また、小さな ΔE (ST)の観点からは、式(i)および(ii)で表される化合物が好ましく、式(iii)で表される化合物がより好ましい。より具体的には、X、X¹、X²、X³およびX⁴が窒素であるほうが好ましく、式(1)、(2)および(4)が好ましく、式(1)および(4)がより好ましい。また、大きなSOCの観点からは、式(i)および(ii)が好ましい。より具体的には、ホウ素原子を含む共役構造が完全な平面ではなく歪んでいるほうがよく、式(1)、(2)および(4)が好ましく、式(1)および(4)がより好ましく、式(1)がさらに好ましい。

[0192] 2-1-3 (v) . 第3成分：好ましい置換基

第3成分として用いることができる式(i)～(iii)および式(1)～(4)で表される化合物は、化合物内に存在する環に置換基が結合していない無置換体であってもよいが、適切な置換基で置換されている化合物を用いることが好ましい。適切な置換基で置換されている化合物を第3成分として用いることにより、無置換体を用いた場合よりも、有機電界発光素子の特性がより優れたものになる。好ましい置換基として、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオおよびアルキル置換シリルをあげることができ；より好ましい置換基として、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシをあげることができ；さらに好ましい置換基としてアリール、ジアリールアミノ、アルキルをあげることができ；さらにより好ましい置換基としてジアリールアミノ、アルキルをあげることができ；特に好ましい置換基としてジアリールアミノをあげることができる。ここでいうアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル

、シクロアルキル、アルコキシ、アリーールオキシ、ヘテロアリーールオキシ、アリーールチオ、ヘテロアリーールチオおよびアルキル置換シリルは、これらにおける少なくとも1つの水素が、アリーール、ヘテロアリーール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよい。

[0193] ジアリーールアミノにおける2つのアリーールは、同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。アリーールとしては、単環系であるフェニル、二環系であるビフェニリル、縮合二環系であるナフチル、三環系であるテルフェニリル（*m*-テルフェニリル、*o*-テルフェニリル、*p*-テルフェニリル）、縮合三環系である、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントレニル、縮合四環系であるトリフェニレニル、ピレニル、ナフタセニル、縮合五環系であるペリレニル、ペンタセニルなどが挙げられる。ジアリーールアミノのアリーールが置換されている場合は、アリーールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていることが好ましい。また、ジアリーールアミノを構成する2つのアリーール基が互いに結合していない基を特に選択して用いてもよい。例えば、ジフェニルアミノ、ジ（4-メチルフェニル）アミノ、ジ（4-*t*-ブチルフェニル）アミノなどがあげられる。

[0194] 具体的なアルキルとしては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、*t*-ペンチル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3, 3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、*n*-ヘプチル、1-メチルヘキシル、*n*-オクチル、*t*-オクチル、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチル、*n*-ノニル、2, 2-ジメチルヘプチル、2, 6-ジメチル-4-ヘプチル、3, 5, 5-トリメチルヘキシル、*n*-デシル、*n*-ウンデシル、1-メチルデシル、*n*-ドデシル、*n*-トリデシル、1-ヘキシルヘプチル、*n*-テトラデシル、*n*-ペンタデシル、*n*-ヘキサデシル、*n*-ヘプタデシル、*n*-オクタデシル、*n*-エイコシルなどがあげられる。

[0195] 好ましい置換基を有する化合物を第3成分として用いることにより、有機電界発光素子の外部量子収率が向上したり、半値幅が狭くなったり、素子寿命が長くなったりする等の性能の向上が見られる。また、適切な置換基で置換することにより、遅延蛍光の寿命 τ (Delay)を短くしたり、ストークスシフトを小さくしたりすることもでき、それにより有機電界発光素子の性能を向上させることもできる。

適切に置換基を選択する等の手法をとることにより、第2成分と第3成分については下記の特に好ましいエネルギー構造を構築し、採用することができる。

$$E(3, T, Sh) \geq E(2, T, Sh)$$

$$\Delta E(2, ST, Sh) \geq \Delta E(3, ST, Sh)$$

第3成分のストークスシフトが10nm以下

また、下記のエネルギー構造も好ましい。

$$E(3, T, Sh) \leq E(2, T, Sh)$$

$$\Delta E(2, ST, Sh) \leq \Delta E(3, ST, Sh)$$

第3成分のストークスシフトが15nm以下

さらに、下記のエネルギー構造も好ましい。

$$E(3, T, Sh) \leq E(2, T, Sh)$$

$$\Delta E(2, ST, Sh) \geq \Delta E(3, ST, Sh)$$

第3成分のストークスシフトが15nmより大きい

また、上記のいずれのエネルギー構造においても、 $E(3, S, PT) \geq E(2, S, PT)$ であることが好ましい。

[0196] 2-1-4. 高分子化合物

本発明の有機電界発光素子の発光層に含まれる第1成分は、ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。本発明の有機電界発光素子の発光層に含まれる第2成分は、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。本発明の有機電界発光素子の発光層に含

まれる第3成分は、ホウ素原子を有する化合物から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。脱離する2個の水素原子は、化合物中の任意の2原子とすることができる。同一の環構造に結合している2個の水素原子であってもよいし、そうでなくてもよい。

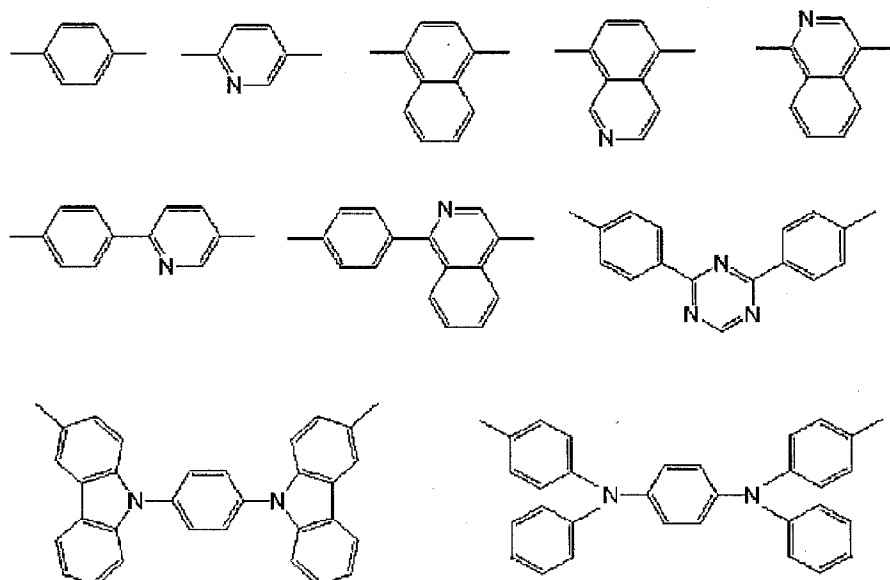
[0197] 発光層に含まれる高分子化合物は、ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含むとともに、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造も繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。発光層に含まれる高分子化合物は、ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含むとともに、ホウ素原子を含む化合物から水素原子2個が脱離した構造も繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。発光層に含まれる高分子化合物は、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含むとともに、ホウ素原子を含む化合物から水素原子2個が脱離した構造も繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。また、発光層に含まれる高分子化合物は、ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位として含むとともに、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造も繰り返し単位として含み、なおかつ、ホウ素原子を含む化合物から水素原子2個が脱離した構造も繰り返し単位として含む高分子化合物であってもよい。

[0198] 発光層に含まれる高分子化合物に含まれる、ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位は2種以上であってもよい。発光層に含まれる高分子化合物に含まれる、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位は2種以上であってもよい。発光層に含まれる高分子化合物に含まれる、ホウ素原子を含む化合物から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位は2種以上であってもよい。

[0199] 発光層に含まれる高分子化合物は、ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位、およびホウ素原子を含む化合物から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位から選択される少なくとも1

つの繰り返し単位の他に、これらとは異なる繰り返し単位を1種以上含んでもよい。そのような繰り返し単位として、正孔輸送性を示す構造を含む繰り返し単位、電子輸送性を示す構造を含む繰り返し単位、正孔輸送性や電子輸送性を示さない繰り返し単位などを適宜選択して採用することができる。好ましい繰り返し単位として、アリーレン、ヘテロアリーレン、2種以上のアリーレンが結合した基、2種以上のヘテロアリーレンが結合した基、少なくとも1種のアリーレンと少なくとも1種のヘテロアリーレンが結合した基、少なくとも1種のアリーレンと少なくとも1種の-N(R^A)-で表される基が結合した基、少なくとも1種のヘテロアリーレンと少なくとも1種の-N(R^A)-で表される基が結合した基、少なくとも1種のアリーレンと少なくとも1種のヘテロアリーレンと少なくとも1種の-N(R^A)-で表される基が結合した基を例示することができる。ここでいうアリーレン、ヘテロアリーレンは置換されていてもよく、その置換基としては炭素数1~30のアルキル、炭素数6~22のアリール、環骨格構成原子数5~22のヘテロアリールを例示することができる。またR^Aとして、炭素数1~30のアルキル、炭素数6~22のアリール、環骨格構成原子数5~22のヘテロアリールを例示することができる。繰り返し単位の具体例として、以下の構造をあげることができる。下記の構造に存在する水素原子は、炭素数1~30のアルキル、炭素数6~22のアリール、環骨格構成原子数5~22のヘテロアリール等で置換されていてもよい。

[化142]



[0200] 発光層に含まれる高分子化合物を構成する各繰り返し単位のリモル比は特に制限されない。ホスト化合物から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位、熱活性型遅延蛍光体から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位、ホウ素原子を含む化合物から水素原子2個が脱離した構造を有する繰り返し単位が存在するとき、各繰り返し単位は0.01~100モル%の範囲内で選択することができる。また、これらの繰り返し単位以外の繰り返し単位が存在するとき、その繰り返し単位のリモル比は0.01~99.99モル%の範囲内で選択することができる。

[0201] 高分子化合物は、公知の重合反応により合成することができる。例えば、公知のカップリング反応を用いて合成することが可能である。すなわち、高分子化合物を構成する第1の繰り返し単位の両末端に塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、 $-O-S(=O)_2R^B$ 等の反応性基を結合させた化合物と、第2の繰り返し単位の両末端に第1の繰り返し単位の両末端の反応性基とカップリング反応を起こす官能基を結合させた化合物とを反応させることにより、容易に目的とする高分子化合物を合成することができる。ここで R^B は、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、または置換されていてもよいアリール等である。第1の繰り返し単位の両末端の

反応性基とカップリング反応を起こす官能基としては、 $-B(OR^C)_2$ 、 BF_3R^D 、 MgR^E 、 ZnR^F 、 $Sn(R^G)_3$ を例示することができる。ここで R^C および R^G は、水素原子、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル等であり、2つ以上 R^C または R^G は互いに連結して環状構造を形成してもよい。 R^D は、Li、Na、K、Rb、Cs等である。 R^E および R^F は、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子である。

[0202] カップリング反応は、触媒の存在下で行うことが好ましい。触媒としては、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド、ビス(トリス-*o*-メトキシフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)、酢酸パラジウム、テトラキス(トリフェニルホスフィン)ニッケル(0)、[1,3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパン]ニッケル(II)ジクロリド、ビス(1,4-シクロオクタジエン)ニッケル(0)、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、フッ化カリウム、フッ化セシウム、リン酸三カリウム、フッ化テトラブチルアンモニウム、水酸化テトラエチルアンモニウム、水酸化テトラブチルアンモニウム、塩化テトラブチルアンモニウム、臭化テトラブチルアンモニウムを用いることができる。カップリング反応を $-100\sim 200^\circ\text{C}$ にて1~24時間程度行うことにより、目的とする高分子化合物を合成することができる。

[0203] (その他の有機層)

本発明の有機電界発光素子は、発光層の他に、1以上の有機層を有していてもよい。有機層としては、例えば、電子輸送層、正孔輸送層、電子注入層および正孔注入層等を挙げることができ、さらに、その他の有機層を有していてもよい。

図4に、これらの有機層を備えた有機電界発光素子の層構成の一例を示す。図4において、101は基板、102は陽極、103は正孔注入層、104は正孔輸送層、105は発光層、106は電子輸送層、107は電子注入

層、108は陰極をそれぞれ示す。

以下において、有機電界発光素子において、発光層の他に設けられる有機層、陰極および陽極、基板について説明する。

[0204] 2-2. 有機電界発光素子における電子注入層、電子輸送層

電子注入層107は、陰極108から移動してくる電子を、効率よく発光層105内または電子輸送層106内に注入する役割を果たす。電子輸送層106は、陰極108から注入された電子または陰極108から電子注入層107を介して注入された電子を、効率よく発光層105に輸送する役割を果たす。電子輸送層106および電子注入層107は、それぞれ、電子輸送・注入材料の一種または二種以上を積層、混合により形成される。

[0205] 電子注入・輸送層とは、陰極から電子が注入され、さらに電子を輸送することを司る層であり、電子注入効率が高く、注入された電子を効率よく輸送することが望ましい。そのためには電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが好ましい。しかしながら、正孔と電子の輸送バランスを考えた場合に、陽極からの正孔が再結合せずに陰極側へ流れるのを効率よく阻止できる役割を主に果たす場合には、電子輸送能力がそれ程高くなくても、発光効率を向上させる効果は電子輸送能力が高い材料と同等に有する。したがって、本実施形態における電子注入・輸送層は、正孔の移動を効率よく阻止できる層の機能も含まれてもよい。

[0206] 電子輸送層106または電子注入層107を形成する材料（電子輸送材料）としては、光導電材料において電子伝達化合物として従来から慣用されている化合物、有機電界発光素子の電子注入層および電子輸送層に使用されている公知の化合物の中から任意に選択して用いることができる。

[0207] 電子輸送層または電子注入層に用いられる材料としては、炭素、水素、酸素、硫黄、ケイ素およびリンの中から選ばれる一種以上の原子で構成される芳香族環もしくは複素芳香族環からなる化合物、ピロール誘導体およびその縮合環誘導体および電子受容性窒素を有する金属錯体の中から選ばれる少な

くとも一種を含有することが好ましい。具体的には、ナフタレン、アントラセンなどの縮合環系芳香族環誘導体、4, 4' -ビス (ジフェニルエテニル) ビフェニルに代表されるスチリル系芳香族環誘導体、ペリノン誘導体、クマリン誘導体、ナフタルイミド誘導体、アントラキノンやジフェノキノンなどのキノン誘導体、リンオキサイド誘導体、カルバゾール誘導体およびインドール誘導体などが挙げられる。電子受容性窒素を有する金属錯体としては、例えば、ヒドロキシフェニルオキサゾール錯体などのヒドロキシアゾール錯体、アゾメチン錯体、トロポロン金属錯体、フラボノール金属錯体およびベンゾキノリン金属錯体などが挙げられる。これらの材料は単独でも用いられるが、異なる材料と混合して使用しても構わない。

[0208] また、他の電子伝達化合物の具体例として、ピリジン誘導体、ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、フェナントロリン誘導体、ペリノン誘導体、クマリン誘導体、ナフタルイミド誘導体、アントラキノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体 (1, 3 -ビス [(4 -tert -ブチルフェニル) 1, 3, 4 -オキサジアゾリル] フェニレンなど)、チオフェン誘導体、トリアゾール誘導体 (N -ナフチル -2, 5 -ジフェニル -1, 3, 4 -トリアゾールなど)、チアジアゾール誘導体、オキシシン誘導体の金属錯体、キノリノール系金属錯体、キノキサリン誘導体、キノキサリン誘導体のポリマー、ベンザゾール類化合物、ガリウム錯体、ピラゾール誘導体、パーフルオロ化フェニレン誘導体、トリアジン誘導体、ピラジン誘導体、ベンゾキノリン誘導体 (2, 2' -ビス (ベンゾ [h] キノリン -2 -イル) -9, 9' -スピロビフルオレンなど)、イミダゾピリジン誘導体、ボラン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体 (トリス (N -フェニルベンゾイミダゾール -2 -イル) ベンゼンなど)、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、キノリン誘導体、テルピリジンなどのオリゴピリジン誘導体、ビピリジン誘導体、テルピリジン誘導体 (1, 3 -ビス (4' - (2, 2' : 6' 2'' -テルピリジニル) ベンゼンなど)、ナフチリジン誘導体 (ビス (1 -ナフチル) -4 - (1

、8-ナフチリジン-2-イル)フェニルホスフィンオキサイドなど)、アルダジン誘導体、カルバゾール誘導体、インドール誘導体、リンオキサイド誘導体、ビススチリル誘導体などが挙げられる。

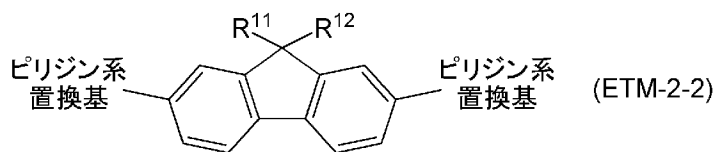
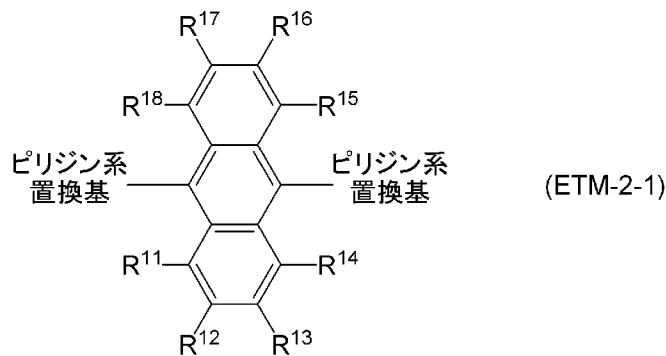
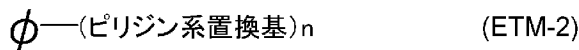
[0209] 上述した材料は単独でも用いられるが、異なる材料と混合して使用しても構わない。

[0210] 上述した材料の中でも、ボラン誘導体、ピリジン誘導体、フルオランテン誘導体、BO系誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオレン誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ピリミジン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、およびキノリノール系金属錯体が好ましい。

[0211] 2-2-1. ピリジン誘導体

ピリジン誘導体は、例えば下記式 (ETM-2) で表される化合物であり、好ましくは式 (ETM-2-1) または式 (ETM-2-2) で表される化合物である。

[化143]



[0212] ϕ は、n個のアリール環 (好ましくはn個のベンゼン環、ナフタレン環、

アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環)であり、 n は1~4の整数である。

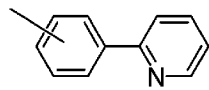
[0213] 上記式 (E TM-2-1) において、 $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素、アルキル (好ましくは炭素数1~24のアルキル)、シクロアルキル (好ましくは炭素数3~12のシクロアルキル) またはアリール (好ましくは炭素数6~30のアリール) である。

[0214] 上記式 (E TM-2-2) において、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立して、水素、アルキル (好ましくは炭素数1~24のアルキル)、シクロアルキル (好ましくは炭素数3~12のシクロアルキル) またはアリール (好ましくは炭素数6~30のアリール) であり、 R^{11} および R^{12} は結合して環を形成していてもよい。

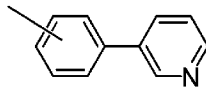
[0215] 各式において、「ピリジン系置換基」は、下記式 (P y-1) ~式 (P y-15) のいずれかであり、ピリジン系置換基はそれぞれ独立して炭素数1~4のアルキルで置換されていてもよい。また、ピリジン系置換基はフェニレン基やナフチレン基を介して各式における ϕ 、アントラセン環またはフルオレン環に結合していてもよい。

[0216]

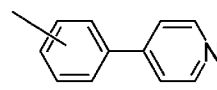
[化144]



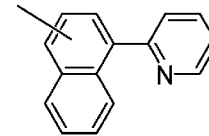
(Py-1)



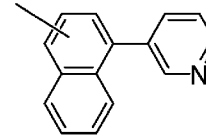
(Py-2)



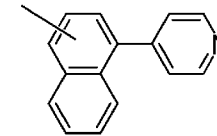
(Py-3)



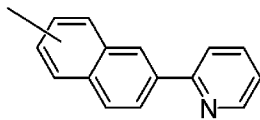
(Py-4)



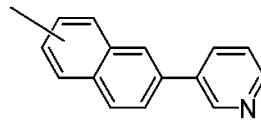
(Py-5)



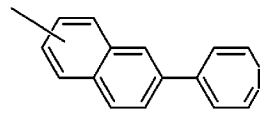
(Py-6)



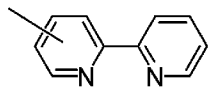
(Py-7)



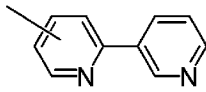
(Py-8)



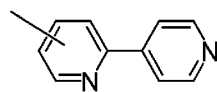
(Py-9)



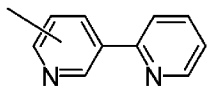
(Py-10)



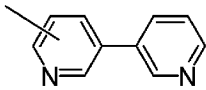
(Py-11)



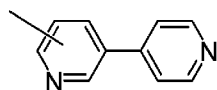
(Py-12)



(Py-13)



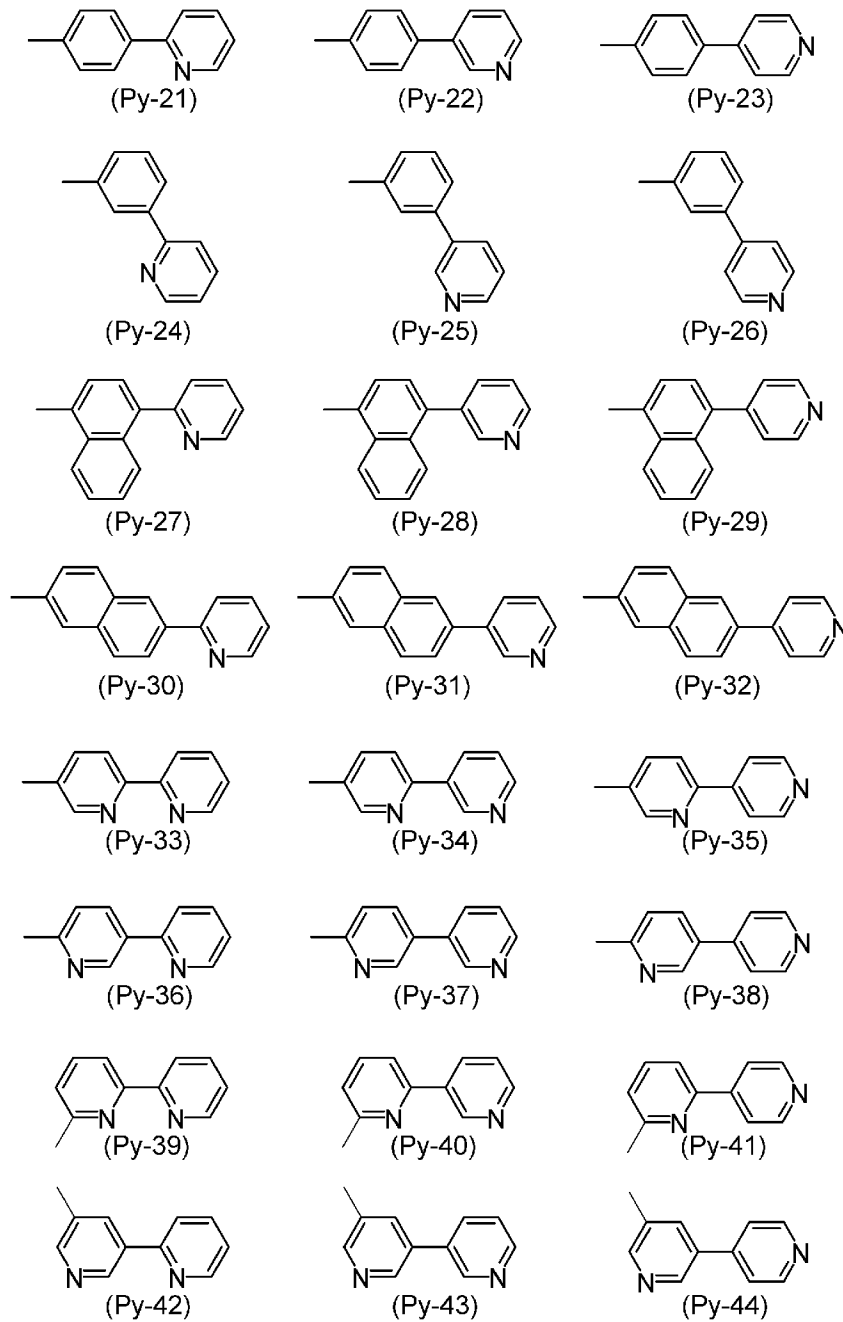
(Py-14)



(Py-15)

[0217] ピリジン系置換基は、上記式 (Py-1) ~ 式 (Py-15) のいずれかであるが、これらの中でも、下記式 (Py-21) ~ 式 (Py-44) のいずれかであることが好ましい。

[化145]



[0218] 各ピリジン誘導体における少なくとも1つの水素が重水素で置換されていてもよく、また、上記式 (ETM-2-1) および式 (ETM-2-2) における2つの「ピリジン系置換基」のうちの一方はアールで置き換えられていてもよい。

[0219] R¹¹~R¹⁸における「アルキル」としては、直鎖および分枝鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1~24の直鎖アルキルまたは炭素数3~24の分

枝鎖アルキルが挙げられる。好ましい「アルキル」は、炭素数1～18のアルキル（炭素数3～18の分枝鎖アルキル）である。より好ましい「アルキル」は、炭素数1～12のアルキル（炭素数3～12の分枝鎖アルキル）である。さらに好ましい「アルキル」は、炭素数1～6のアルキル（炭素数3～6の分枝鎖アルキル）である。特に好ましい「アルキル」は、炭素数1～4のアルキル（炭素数3～4の分枝鎖アルキル）である。

[0220] 具体的な「アルキル」としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、*t*-ペンチル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3, 3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、*n*-ヘプチル、1-メチルヘキシル、*n*-オクチル、*t*-オクチル、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチル、*n*-ノニル、2, 2-ジメチルヘプチル、2, 6-ジメチル-4-ヘプチル、3, 5, 5-トリメチルヘキシル、*n*-デシル、*n*-ウンデシル、1-メチルデシル、*n*-ドデシル、*n*-トリデシル、1-ヘキシルヘプチル、*n*-テトラデシル、*n*-ペンタデシル、*n*-ヘキサデシル、*n*-ヘプタデシル、*n*-オクタデシル、*n*-エイコシルなどが挙げられる。

[0221] ピリジン系置換基に置換する炭素数1～4のアルキルとしては、上記アルキルの説明を引用することができる。

[0222] $R^{11} \sim R^{18}$ における「シクロアルキル」としては、例えば、炭素数3～12のシクロアルキルが挙げられる。好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3～10のシクロアルキルである。より好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3～8のシクロアルキルである。さらに好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3～6のシクロアルキルである。

具体的な「シクロアルキル」としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、シクロヘプチル、メチルシクロヘキシル、シクロオクチルまたはジメチルシクロヘキシルなどが挙げられる。

[0223] R¹¹~R¹⁸における「アリール」は、単環であっても、2以上の芳香族炭化水素環が縮合した縮合環であっても、2以上の芳香族炭化水素環が連結した連結環であってもよい。2以上の芳香族炭化水素環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。好ましいアリールは炭素数6~30のアリールであり、より好ましいアリールは炭素数6~18のアリールであり、さらに好ましくは炭素数6~14のアリールであり、特に好ましくは炭素数6~12のアリールである。

[0224] 具体的なアリールとしては、例えば、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールであるビフェニル（2-ビフェニル、3-ビフェニル、4-ビフェニル）、縮合二環系アリールであるナフチル（1-ナフチル、2-ナフチル）、三環系アリールであるテルフェニル（m-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-4'-イル、m-テルフェニル-5'-イル、o-テルフェニル-3'-イル、o-テルフェニル-4'-イル、p-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-2-イル、m-テルフェニル-3-イル、m-テルフェニル-4-イル、o-テルフェニル-2-イル、o-テルフェニル-3-イル、o-テルフェニル-4-イル、p-テルフェニル-2-イル、p-テルフェニル-3-イル、p-テルフェニル-4-イル）、縮合三環系アリールである、アセナフチレニル（アセナフチレン-1-イル、アセナフチレン-3-イル、アセナフチレン-4-イル、アセナフチレン-5-イル）、フルオレニル（フルオレン-1-イル、フルオレン-2-イル、フルオレン-3-イル、フルオレン-4-イル、フルオレン-9-イル）、フェナレニル（フェナレン-1-イル、フェナレン-2-イル）、フェナントリル（1-フェナントリル、2-フェナントリル、3-フェナントリル、4-フェナントリル、9-フェナントリル）、四環系アリールであるクアテルフェニル（5'-フェニル-m-テルフェニル-2-イル、5'-フェニル-m-テルフェニル-3-イル、5'-フェニル-m-テルフェニル-4-イル、m-クアテルフェニル）、縮合四環系アリール

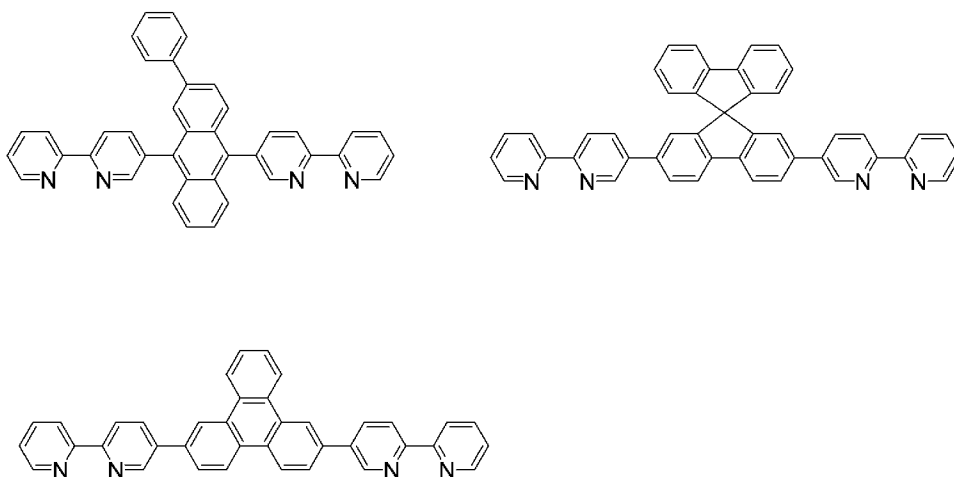
であるトリフェニレン（トリフェニレン-1-イル、トリフェニレン-2-イル）、ピレニル（ピレン-1-イル、ピレン-2-イル、ピレン-4-イル）、ナフタセニル（ナフタセン-1-イル、ナフタセン-2-イル、ナフタセン-5-イル）、縮合五環系アリアルであるペリレニル（ペリレン-1-イル、ペリレン-2-イル、ペリレン-3-イル）、ペンタセニル（ペンタセン-1-イル、ペンタセン-2-イル、ペンタセン-5-イル、ペンタセン-6-イル）などが挙げられる。

[0225] 好ましい「炭素数6～30のアリアル」は、フェニル、ナフチル、フェナントリル、クリセニルまたはトリフェニレニルなどが挙げられ、さらに好ましくはフェニル、1-ナフチル、2-ナフチルまたはフェナントリルが挙げられ、特に好ましくはフェニル、1-ナフチルまたは2-ナフチルが挙げられる。

[0226] 上記式（ETM-2-2）におけるR¹¹およびR¹²は結合して環を形成していてもよく、この結果、フルオレン骨格の5員環には、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキサン、フルオレンまたはインデンなどがスピロ結合していてもよい。

[0227] このピリジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物が挙げられる。

[化146]



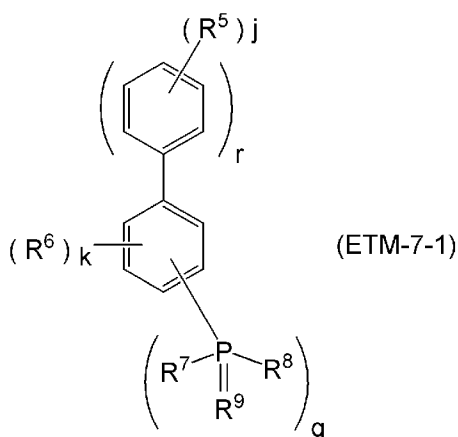
[0228] このピリジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造すること

ができる。

[0229] 2-2-2. ホスフィンオキサイド誘導体

ホスフィンオキサイド誘導体は、例えば下記式 (ETM-7-1) で表される化合物である。詳細は国際公開第2013/079217号公報にも記載されている。

[化147]



R^5 は、置換または無置換の、炭素数1～20のアルキル、炭素数6～20のアリールまたは炭素数5～20のヘテロアリールであり、

R^6 は、CN、置換または無置換の、炭素数1～20のアルキル、炭素数1～20のヘテロアルキル、炭素数6～20のアリール、炭素数5～20のヘテロアリール、炭素数1～20のアルコキシまたは炭素数6～20のアリールオキシであり、

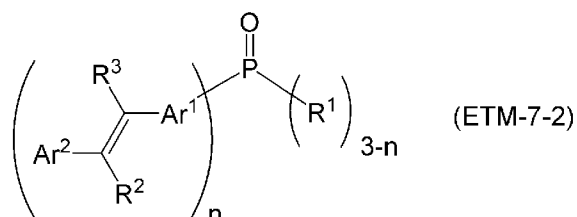
R^7 および R^8 は、それぞれ独立して、置換または無置換の、炭素数6～20のアリールまたは炭素数5～20のヘテロアリールであり、

R^9 は酸素または硫黄であり、

j は0または1であり、 k は0または1であり、 r は0～4の整数であり、 q は1～3の整数である。

[0230] ホスフィンオキサイド誘導体は、例えば下記式 (ETM-7-2) で表される化合物でもよい。

[化148]



- [0231] $R^1 \sim R^3$ は、同じでも異なってもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、複素環基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシ基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、および隣接置換基との間に形成される縮合環の中から選ばれる。
- [0232] $A r^1$ は、同じでも異なってもよく、アリーレン基またはヘテロアリーレン基であり、 $A r^2$ は、同じでも異なってもよく、アリール基またはヘテロアリール基である。ただし、 $A r^1$ および $A r^2$ のうち少なくとも一方は置換基を有しているか、または隣接置換基との間に縮合環を形成している。 n は0～3の整数であり、 n が0のとき不飽和構造部分は存在せず、 n が3のとき R^1 は存在しない。
- [0233] これらの置換基の内、アルキル基とは、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などの飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。置換されている場合の置換基には特に制限は無く、例えば、アルキル基、アリール基、複素環基などを挙げる事ができ、この点は、以下の記載にも共通する。また、アルキル基の炭素数は特に限定されないが、入手の容易性やコストの点から、通常、1～20の範囲である。
- [0234] また、シクロアルキル基とは、例えば、シクロプロピル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどの飽和脂環式炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルキル基部分の炭素数は特に限定されないが、通常、3～20の範囲である。

- [0235] また、アラルキル基とは、例えば、ベンジル基、フェニルエチル基などの脂肪族炭化水素を介した芳香族炭化水素基を示し、脂肪族炭化水素と芳香族炭化水素はいずれも無置換でも置換されていてもかまわない。脂肪族部分の炭素数は特に限定されないが、通常、1～20の範囲である。
- [0236] また、アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基、ブタジエニル基などの二重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルケニル基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～20の範囲である。
- [0237] また、シクロアルケニル基とは、例えば、シクロペンテニル基、シクロペンタジエニル基、シクロヘキセン基などの二重結合を含む不飽和脂環式炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。
- [0238] また、アルキニル基とは、例えば、アセチレニル基などの三重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルキニル基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～20の範囲である。
- [0239] また、アルコキシ基とは、例えば、メトキシ基などのエーテル結合を介した脂肪族炭化水素基を示し、脂肪族炭化水素基は無置換でも置換されていてもかまわない。アルコキシ基の炭素数は特に限定されないが、通常、1～20の範囲である。
- [0240] また、アルキルチオ基とは、アルコキシ基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換された基である。
- [0241] また、アリールエーテル基とは、例えば、フェノキシ基などのエーテル結合を介した芳香族炭化水素基を示し、芳香族炭化水素基は無置換でも置換されていてもかまわない。アリールエーテル基の炭素数は特に限定されないが、通常、6～40の範囲である。
- [0242] また、アリールチオエーテル基とは、アリールエーテル基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換された基である。
- [0243] また、アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニリル

基、フェナントリル基、テルフェニル基、ピレニル基などの芳香族炭化水素基を示す。アリール基は、無置換でも置換されていてもかまわない。アリール基の炭素数は特に限定されないが、通常、6～40の範囲である。

[0244] また、複素環基とは、例えば、フラニル基、チオフェニル基、オキサゾリル基、ピリジル基、キノリニル基、カルバゾリル基などの炭素以外の原子を有する環状構造基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。複素環基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～30の範囲である。

[0245] ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素を示す。

[0246] アルデヒド基、カルボニル基、アミノ基には、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環などで置換された基も含むことができる。

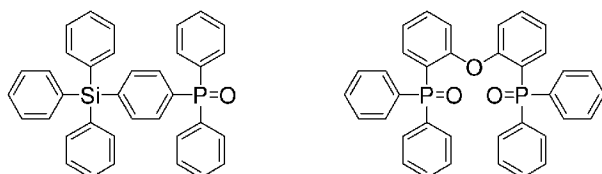
[0247] また、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環は無置換でも置換されていてもかまわない。

[0248] シリル基とは、例えば、トリメチルシリル基などのケイ素化合物基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。シリル基の炭素数は特に限定されないが、通常、3～20の範囲である。また、ケイ素数は、通常、1～6である。

[0249] 隣接置換基との間に形成される縮合環とは、例えば、 Ar^1 と R^2 、 Ar^1 と R^3 、 Ar^2 と R^2 、 Ar^2 と R^3 、 R^2 と R^3 、 Ar^1 と Ar^2 などの間で形成された共役または非共役の縮合環である。ここで、 n が1の場合、2つの R^1 同士で共役または非共役の縮合環を形成してもよい。これら縮合環は、環内構造に窒素、酸素、硫黄原子を含んでいてもよいし、さらに別の環と縮合してもよい。

[0250] このホスフィンオキサイド誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物が挙げられる。

[化149]

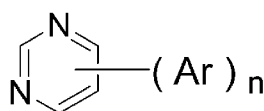


[0251] このホスフィンオキサイド誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

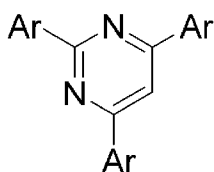
[0252] 2-2-3. ピリミジン誘導体

ピリミジン誘導体は、例えば下記式 (ETM-8) で表される化合物であり、好ましくは下記式 (ETM-8-1) で表される化合物である。詳細は国際公開第2011/021689号公報にも記載されている。

[化150]



(ETM-8)



(ETM-8-1)

[0253] Arは、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、または置換されていてもよいヘテロアリールである。nは1~4の整数であり、好ましくは1~3の整数であり、より好ましくは2または3である。

[0254] 「置換されていてもよいアリール」の「アリール」は、単環であっても、2以上の芳香族炭化水素環が縮合した縮合環であっても、2以上の芳香族炭化水素環が連結した連結環であってもよい。2以上の芳香族炭化水素環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。「アリール」としては、例えば、炭素数6~30のアリールが挙げられ、好ましくは炭素数6~24のアリール、より好ましくは炭素数6~20のアリール、さらに好ましくは炭素数6~12のアリールである。

[0255] 具体的なアリールとしては、例えば、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールであるビフェニル (2-ビフェニル, 3-ビフェニル, 4-ビフェニル)、縮合二環系アリールであるナフチル (1-ナフチル, 2-ナフチル)、三環系アリールであるテルフェニル (m-テルフェニル-2'-イル, m-テルフェニル-4'-イル, m-テルフェニル-5'-イル, o-テルフェニル-3'-イル, o-テルフェニル-4'-イル, p

ーテルフェニル-2' -イル、m-テルフェニル-2-イル、m-テルフェニル-3-イル、m-テルフェニル-4-イル、o-テルフェニル-2-イル、o-テルフェニル-3-イル、o-テルフェニル-4-イル、p-テルフェニル-2-イル、p-テルフェニル-3-イル、p-テルフェニル-4-イル)、縮合三環系アリールである、アセナフチレニル(アセナフチレン-1-イル, アセナフチレン-3-イル, アセナフチレン-4-イル, アセナフチレン-5-イル)、フルオレニル(フルオレン-1-イル, フルオレン-2-イル, フルオレン-3-イル, フルオレン-4-イル, フルオレン-9-イル)、フェナレニル(フェナレン-1-イル, フェナレン-2-イル)、フェナントリル(1-フェナントリル, 2-フェナントリル, 3-フェナントリル, 4-フェナントリル, 9-フェナントリル)、四環系アリールであるクアテルフェニリル(5'-フェニル-m-テルフェニル-2-イル, 5'-フェニル-m-テルフェニル-3-イル, 5'-フェニル-m-テルフェニル-4-イル, m-クアテルフェニリル)、縮合四環系アリールであるトリフェニレン(トリフェニレン-1-イル, トリフェニレン-2-イル)、ピレニル(ピレン-1-イル, ピレン-2-イル, ピレン-4-イル)、ナфтаセニル(ナфтаセン-1-イル, ナфтаセン-2-イル, ナфтаセン-5-イル)、縮合五環系アリールであるペリレニル(ペリレン-1-イル, ペリレン-2-イル, ペリレン-3-イル)、ペンタセニル(ペンタセン-1-イル, ペンタセン-2-イル, ペンタセン-5-イル, ペンタセン-6-イル)などが挙げられる。

[0256] 「置換されていてもよいヘテロアリール」の「ヘテロアリール」は、単環であっても、1以上の複素環と1以上の複素環または1以上の芳香族炭化水素環が縮合した縮合環であっても、2以上の複素環が連結した連結環であってもよい。2以上の複素環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数2~30のヘテロアリールが挙げられ、炭素数2~25のヘテロアリールが好ましく、炭素数2~20のヘテロアリールが

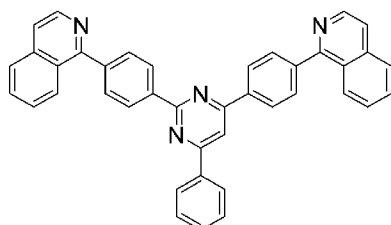
より好ましく、炭素数 2～15 のヘテロアリアルがさらに好ましく、炭素数 2～10 のヘテロアリアルが特に好ましい。また、ヘテロアリアルとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を 1 ないし 5 個含有する複素環などが挙げられる。

[0257] 具体的なヘテロアリアルとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾ [b] チエニル、インドリル、イソインドリル、1H-インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1H-ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチイニル、チアントレニル、インドリジニルなどが挙げられる。

[0258] また、上記アリアルおよびヘテロアリアルは置換されていてもよく、それぞれ例えば上記アリアルやヘテロアリアルで置換されていてもよい。

[0259] このピリミジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物が挙げられる。

[化151]



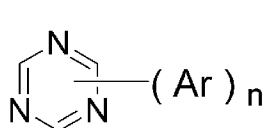
[0260] このピリミジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

[0261] 2-2-4. トリアジン誘導体

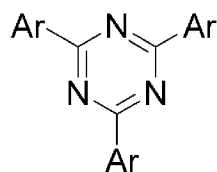
トリアジン誘導体は、例えば下記式 (E TM-10) で表される化合物で

あり、好ましくは下記式 (ETM-10-1) で表される化合物である。詳細は米国公開公報 2011/0156013 号公報に記載されている。

[化152]



(ETM-10)



(ETM-10-1)

[0262] Ar は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、または置換されていてもよいヘテロアリールである。n は 1~4 の整数であり、好ましくは 1~3 の整数であり、より好ましくは 2 または 3 である。

[0263] 「置換されていてもよいアリール」の「アリール」としては、例えば、炭素数 6~30 のアリールが挙げられ、好ましくは炭素数 6~24 のアリール、より好ましくは炭素数 6~20 のアリール、さらに好ましくは炭素数 6~12 のアリールである。

[0264] 具体的なアリールとしては、例えば、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールであるビフェニル (2-ビフェニル, 3-ビフェニル, 4-ビフェニル)、縮合二環系アリールであるナフチル (1-ナフチル, 2-ナフチル)、三環系アリールであるテルフェニル (m-テルフェニル-2'-イル, m-テルフェニル-4'-イル, m-テルフェニル-5'-イル, o-テルフェニル-3'-イル, o-テルフェニル-4'-イル, p-テルフェニル-2'-イル, m-テルフェニル-2-イル, m-テルフェニル-3-イル, m-テルフェニル-4-イル, o-テルフェニル-2-イル, o-テルフェニル-3-イル, o-テルフェニル-4-イル, p-テルフェニル-2-イル, p-テルフェニル-3-イル, p-テルフェニル-4-イル)、縮合三環系アリールである、アセナフチレニル (アセナフチレン-1-イル, アセナフチレン-3-イル, アセナフチレン-4-イル, アセナフチレン-5-イル)、フルオレニル (フルオレン-1-イル, フルオレン-2-イル, フルオレン-3-イル, フルオレン-4-イル, フルオレン-

−9−イル)、フェナレニル(フェナレン−1−イル、フェナレン−2−イル)、フェナントリル(1−フェナントリル、2−フェナントリル、3−フェナントリル、4−フェナントリル、9−フェナントリル)、四環系アリールであるクアテルフェニル(5′−フェニル−m−テルフェニル−2−イル、5′−フェニル−m−テルフェニル−3−イル、5′−フェニル−m−テルフェニル−4−イル、m−クアテルフェニル)、縮合四環系アリールであるトリフェニレン(トリフェニレン−1−イル、トリフェニレン−2−イル)、ピレニル(ピレン−1−イル、ピレン−2−イル、ピレン−4−イル)、ナфтаセニル(ナфтаセン−1−イル、ナфтаセン−2−イル、ナфтаセン−5−イル)、縮合五環系アリールであるペリレニル(ペリレン−1−イル、ペリレン−2−イル、ペリレン−3−イル)、ペンタセニル(ペンタセン−1−イル、ペンタセン−2−イル、ペンタセン−5−イル、ペンタセン−6−イル)などが挙げられる。

[0265] 「置換されていてもよいヘテロアリール」の「ヘテロアリール」は、単環であっても、1以上の複素環と1以上の複素環または1以上の芳香族炭化水素環が縮合した縮合環であっても、2以上の複素環が連結した連結環であってもよい。2以上の複素環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数2〜30のヘテロアリールが挙げられ、炭素数2〜25のヘテロアリールが好ましく、炭素数2〜20のヘテロアリールがより好ましく、炭素数2〜15のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数2〜10のヘテロアリールが特に好ましい。また、ヘテロアリールとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1ないし5個含有する複素環などが挙げられる。

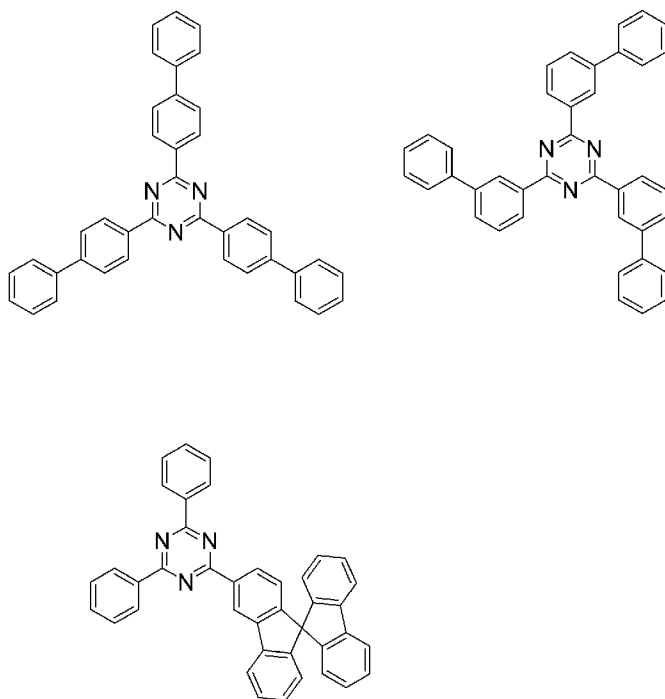
[0266] 具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラ

ジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾ [b] チエニル、インドリル、イソインドリル、1 H-インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1 H-ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチイニル、チアントレニル、インドリジニルなどが挙げられる。

[0267] また、上記アリールおよびヘテロアリールは置換されていてもよく、それぞれ例えば上記アリールやヘテロアリールで置換されていてもよい。

[0268] このトリアジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物が挙げられる。

[化153]



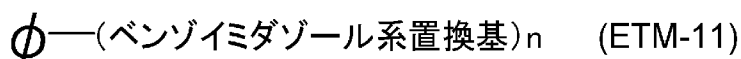
[0269] このトリアジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

[0270] 2-2-5. ベンゾイミダゾール誘導体

ベンゾイミダゾール誘導体は、例えば下記式 (E T M-11) で表される

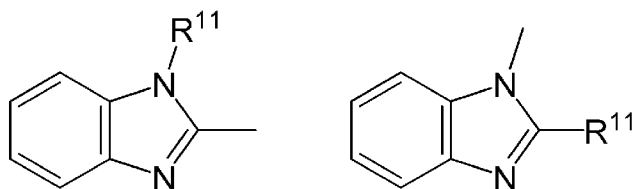
化合物である。

[化154]



[0271] ϕ は、 n 価のアリール環（好ましくは n 価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環）であり、 n は1～4の整数であり、「ベンゾイミダゾール系置換基」は、上記式（ETM-2）、式（ETM-2-1）および式（ETM-2-2）における「ピリジン系置換基」の中のピリジル基がベンゾイミダゾール基に置き換わった置換基であり、ベンゾイミダゾール誘導体における少なくとも1つの水素は重水素で置換されているもよい。

[化155]



ベンゾイミダゾール基

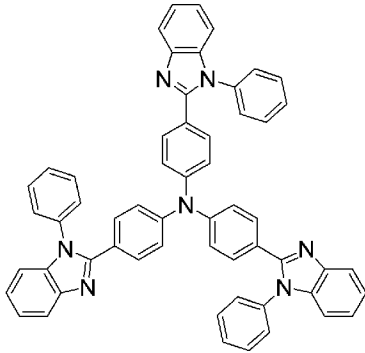
[0272] 上記ベンゾイミダゾール基における R^{11} は、水素、炭素数1～24のアルキル、炭素数3～12のシクロアルキルまたは炭素数6～30のアリールであり、上記式（ETM-2-1）および式（ETM-2-2）における R^{11} の説明を引用することができる。

[0273] ϕ は、さらに、アントラセン環またはフルオレン環であることが好ましく、この場合の構造は上記式（ETM-2-1）または式（ETM-2-2）での説明を引用することができ、各式中の $R^{11} \sim R^{18}$ は上記式（ETM-2-1）または式（ETM-2-2）での説明を引用することができる。また、上記式（ETM-2-1）または式（ETM-2-2）では2つのピリジン系置換基が結合した形態で説明されているが、これらをベンゾイミダゾール

ル系置換基に置き換えるときには、両方のピリジン系置換基をベンゾイミダゾール系置換基で置き換えてもよいし（すなわち $n=2$ ）、いずれか1つのピリジン系置換基をベンゾイミダゾール系置換基で置き換えて他方のピリジン系置換基を $R^{11} \sim R^{18}$ で置き換えてもよい（すなわち $n=1$ ）。さらに、例えば上記式（ETM-2-1）における $R^{11} \sim R^{18}$ の少なくとも1つをベンゾイミダゾール系置換基で置き換えて「ピリジン系置換基」を $R^{11} \sim R^{18}$ で置き換えてもよい。

[0274] このベンゾイミダゾール誘導体の具体例としては、例えば1-フェニル-2-(4-(10-フェニルアントラセン-9-イル)フェニル)-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、2-(4-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、2-(3-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、5-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)-1,2-ジフェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、1-(4-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)フェニル)-2-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、2-(4-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、1-(4-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)フェニル)-2-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、5-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)-1,2-ジフェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾールなどが挙げられる。

[化156]

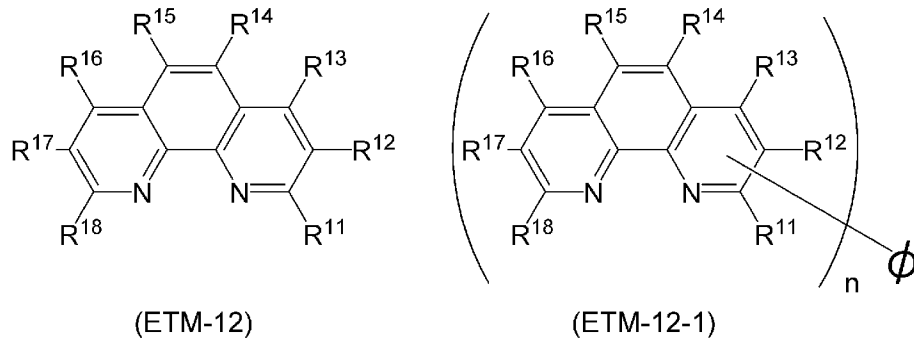


[0275] このベンゾイミダゾール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

[0276] 2-2-6. フェナントロリン誘導体

フェナントロリン誘導体は、例えば下記式 (ETM-12) または式 (ETM-12-1) で表される化合物である。詳細は国際公開2006/021982号公報に記載されている。

[化157]



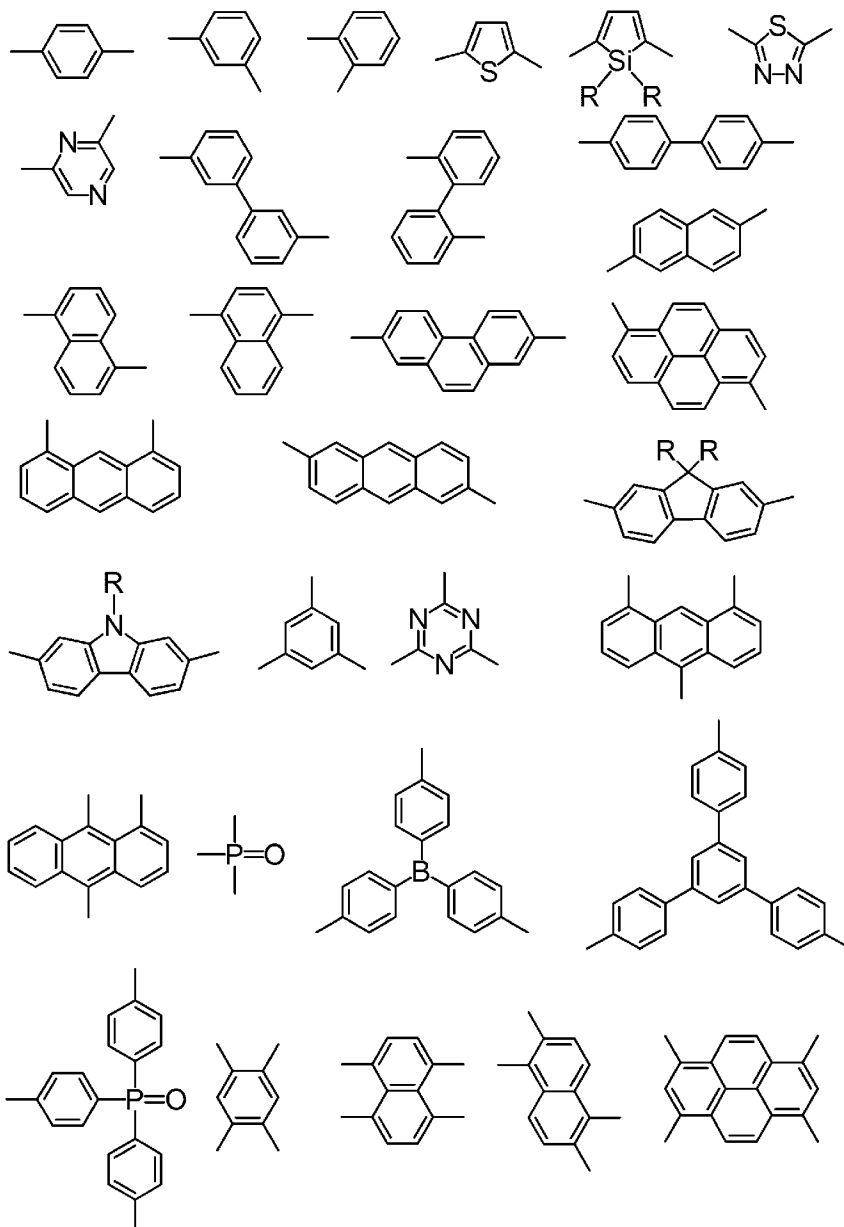
[0277] ϕ は、 n 価のアリール環（好ましくは n 価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環）であり、 n は 1~4 の整数である。

[0278] 各式の $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素、アルキル（好ましくは炭素数 1~24 のアルキル）、シクロアルキル（好ましくは炭素数 3~12 のシクロアルキル）またはアリール（好ましくは炭素数 6~30 のアリール）である。また、上記式 (ETM-12-1) においては $R^{11} \sim R^{18}$ のいずれかがアリール環である ϕ と結合する。

[0279] 各フェナントロリン誘導体における少なくとも1つの水素が重水素で置換されていてもよい。

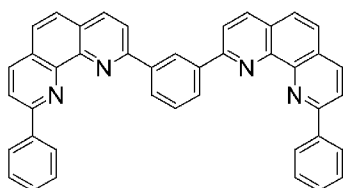
[0280] $R^{11} \sim R^{18}$ におけるアルキル、シクロアルキルおよびアリアルとしては、上記式 (ETM-2) における $R^{11} \sim R^{18}$ の説明を引用することができる。また、 ϕ は上記した例のほかに、例えば、以下の構造式が挙げられる。なお、下記構造式中の R は、それぞれ独立して、水素、メチル、エチル、イソプロピル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、ビフェニリルまたはテルフェニリルである。

[化158]



[0281] このフェナントロリン誘導体の具体例としては、例えば4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン、9,10-ジ(1,10-フェナントロリン-2-イル)アントラセン、2,6-ジ(1,10-フェナントロリン-5-イル)ピリジン、1,3,5-トリ(1,10-フェナントロリン-5-イル)ベンゼン、9,9'-ジフルオールビス(1,10-フェナントロリン-5-イル)、バソクプロインや1,3-ビス(2-フェニル-1,10-フェナントロリン-9-イル)ベンゼンなどが挙げられる。

[化159]

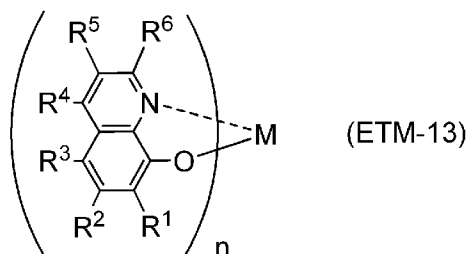


[0282] このフェナントロリン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

[0283] 2-2-7. キノリノール系金属錯体

キノリノール系金属錯体は、例えば下記式 (ETM-13) で表される化合物である。

[化160]



式中、 $R^1 \sim R^6$ は水素または置換基であり、MはLi、Al、Ga、BeまたはZnであり、nは1~3の整数である。

[0284] キノリノール系金属錯体の具体例としては、8-キノリノールリチウム、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)

アルミニウム、トリス (3, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、トリス (4, 5-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、トリス (4, 6-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (フェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (4-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (4-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2, 3-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2, 6-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3, 4-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2, 6-ジフェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2, 4, 6-トリフェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2, 4, 6-トリメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2, 4, 5, 6-テトラメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (1-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (4-フェニルフェ

ノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジ-*t*-ブチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム- μ -オキソ-ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム- μ -オキソ-ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム- μ -オキソ-ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム- μ -オキソ-ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム- μ -オキソ-ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム- μ -オキソ-ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (10-ヒドロキシベンゾ [h] キノリン) ベリリウムなどが挙げられる。

[0285] このキノリノール系金属錯体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

[0286] 電子輸送層または電子注入層には、さらに、電子輸送層または電子注入層を形成する材料を還元できる物質を含んでいてもよい。この還元性物質は、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体および希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも1つを好適に使用することができる。

[0287] 好ましい還元性物質としては、Na (仕事関数 2.36 eV)、K (同 2

、 2.8 eV ）、 Rb （同 2.16 eV ）または Cs （同 1.95 eV ）などのアルカリ金属や、 Ca （同 2.9 eV ）、 Sr （同 $2.0\sim 2.5\text{ eV}$ ）または Ba （同 2.52 eV ）などのアルカリ土類金属が挙げられ、仕事関数が 2.9 eV 以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性物質は、 K 、 Rb または Cs のアルカリ金属であり、さらに好ましくは Rb または Cs であり、最も好ましいのは Cs である。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子輸送層または電子注入層を形成する材料への比較的少量の添加により、有機電界発光素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が 2.9 eV 以下の還元性物質として、これら二種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、 Cs を含んだ組み合わせ、例えば、 Cs と Na 、 Cs と K 、 Cs と Rb 、または Cs と Na と K との組み合わせが好ましい。 Cs を含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子輸送層または電子注入層を形成する材料への添加により、有機電界発光素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0288] 2-3. 有機電界発光素子における陰極

陰極108は、電子注入層107および電子輸送層106を介して、発光層105に電子を注入する役割を果たす。

[0289] 陰極108を形成する材料としては、電子を有機層に効率よく注入できる物質であれば特に限定されないが、陽極102を形成する材料と同様の物質を用いることができる。なかでも、スズ、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、クロム、金、白金、鉄、亜鉛、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウムおよびマグネシウムなどの金属またはそれらの合金（マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、フッ化リチウム/アルミニウムなどのアルミニウム-リチウム合金など）などが好ましい。電子注入効率を上げて素子特性を向上させるためには、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウム、カルシウム、マグネシウムまたはこれら低仕事関数金属を含む合金が有効である。しかしながら、これらの低仕事関数金

属は一般に大気中で不安定であることが多い。この点を改善するために、例えば、有機層に微量のリチウム、セシウムやマグネシウムをドーピングして、安定性の高い電極を使用する方法が知られている。その他のドーパントとしては、フッ化リチウム、フッ化セシウム、酸化リチウムおよび酸化セシウムのような無機塩も使用することができる。ただし、これらに限定されない。

[0290] さらに、電極保護のために白金、金、銀、銅、鉄、スズ、アルミニウムおよびインジウムなどの金属、またはこれら金属を用いた合金、そしてシリカ、チタニアおよび窒化ケイ素などの無機物、ポリビニルアルコール、塩化ビニル、炭化水素系高分子化合物などを積層することが、好ましい例として挙げられる。これらの電極の作製法も、抵抗加熱、電子ビーム蒸着、スパッタリング、イオンプレーティングおよびコーティングなど、導通を取ることができれば特に制限されない。

[0291] 2-4. 有機電界発光素子における正孔注入層、正孔輸送層

正孔注入層103は、陽極102から移動してくる正孔を、効率よく発光層105内または正孔輸送層104内に注入する役割を果たすものである。正孔輸送層104は、陽極102から注入された正孔または陽極102から正孔注入層103を介して注入された正孔を、効率よく発光層105に輸送する役割を果たすものである。正孔注入層103および正孔輸送層104は、それぞれ、正孔注入・輸送材料の一種または二種以上を積層、混合するか、正孔注入・輸送材料と高分子結着剤の混合物により形成される。また、正孔注入・輸送材料に塩化鉄(III)のような無機塩を添加して層を形成してもよい。

[0292] 正孔注入・輸送性物質としては電界を与えられた電極間において正極からの正孔を効率よく注入・輸送することが必要で、正孔注入効率が高く、注入された正孔を効率よく輸送することが望ましい。そのためにはイオン化ポテンシャルが小さく、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが好

ましい。

[0293] 正孔注入層103および正孔輸送層104を形成する材料としては、光導電材料において、正孔の電荷輸送材料として従来から慣用されている化合物、p型半導体、有機電界発光素子の正孔注入層および正孔輸送層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。それらの具体例は、カルバゾール誘導体（N-フェニルカルバゾール、ポリビニルカルバゾールなど）、ビス（N-アリールカルバゾール）またはビス（N-アルキルカルバゾール）などのビスカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体（芳香族第3級アミノを主鎖あるいは側鎖に持つポリマー、1,1-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）シクロヘキサン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ（3-メチルフェニル）-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジナフチル-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ（3-メチルフェニル）-4,4'-ジフェニル-1,1'-ジアミン、N,N'-ジナフチル-N,N'-ジフェニル-4,4'-ジフェニル-1,1'-ジアミン、N⁴,N^{4'}-ジフェニル-N⁴,N^{4'}-ビス（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン、N⁴,N⁴,N^{4'}-テトラ[1,1'-ビフェニル]-4-イル）-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン、4,4',4''-トリス（3-メチルフェニル（フェニル）アミノ）トリフェニルアミンなどのトリフェニルアミン誘導体、スターバーストアミン誘導体など）、スチルベン誘導体、フタロシアニン誘導体（無金属、銅フタロシアニンなど）、ピラゾリン誘導体、ヒドラゾン系化合物、ベンゾフラン誘導体やチオフェン誘導体、オキサジアゾール誘導体、キノキサリン誘導体（例えば、1,4,5,8,9,12-ヘキサアザトリフェニレン-2,3,6,7,10,11-ヘキサカルボニトリルなど）、ポルフィリン誘導体などの複素環化合物、ポリシランなどである。ポリマー系では前記単量体を側鎖に有するポリカーボネートやスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾールおよびポリシランなどが好ましいが、

発光素子の作製に必要な薄膜を形成し、陽極から正孔が注入できて、さらに正孔を輸送できる化合物であれば特に限定されるものではない。

[0294] また、有機半導体の導電性は、そのドーピングにより、強い影響を受けることも知られている。このような有機半導体マトリックス物質は、電子供与性の良好な化合物、または、電子受容性の良好な化合物から構成されている。電子供与物質のドーピングのために、テトラシアノキノンジメタン (TCNQ) または 2, 3, 5, 6-テトラフルオロテトラシアノ-1, 4-ベンゾキノンジメタン (F4TCNQ) などの強い電子受容体が知られている (例えば、文献「M. Pfeiffer, A. Beyer, T. Fritz, K. Leo, Appl. Phys. Lett., 73(22), 3202-3204(1998)」および文献「J. Blochwitz, M. Pfeiffer, T. Fritz, K. Leo, Appl. Phys. Lett., 73 (6), 729-731 (1998)」を参照)。これらは、電子供与型ベース物質 (正孔輸送物質) における電子移動プロセスによって、いわゆる正孔を生成する。正孔の数および移動度によって、ベース物質の伝導性が、かなり大きく変化する。正孔輸送特性を有するマトリックス物質としては、例えばベンジジン誘導体 (TPD など) またはスターバーストアミン誘導体 (TDATA など)、あるいは、特定の金属フタロシアニン (特に、亜鉛フタロシアニン ZnPC など) が知られている (特開2005-167175号公報)。

[0295] また、湿式成膜法を用いて正孔注入層 103 および正孔輸送層 104 を形成する材料としては、上記に記載の蒸着に用いられる正孔注入層 103 および正孔輸送層 104 を形成する材料に加えて、正孔注入性および正孔輸送性の高分子、正孔注入性および正孔輸送性の架橋性高分子、正孔注入性および正孔輸送性の高分子前駆体、および、重合開始剤などを用いることができる。例えば、PEDOT:PSS、ポリアニリン化合物 (特開2005-108828号公報、国際公開第2010/058776号、国際公開第2013/042623号等に記載)、フルオレンポリマー (特開2011-251984号公報、特開2011-501449号公報、特開2012-533661号公報等に記載)、「Xiaohui Yang, David C. Muller, Dieter Neher, Klaus Meerholz, Organic Electronics, 12, 2253-2257 (2011)」、 「Phili

pp Zacharias, Malte C. Gather, Markus Rojahn, Oskar Nuyken, Klaus Meerholz, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46, 4388-4392 (2007)」、 「Chei-Yen, Yu-Cheng Lin, Wen-Yi Hung, Ken-Tsung Wong, Raymond C. Kwong, Sean C. Xia, Yu-Hung Chen, Chih-I Wu, *J. Mater. Chem.*, 19, 3618-3626(2009)」、 「Fei Huang, Yen-Ju Cheng, Yong Zhang, Michelle S. Liu, Alex K.-Y. Jen, *J. Mater. Chem.*, 18, 4495-4509(2008)」、 「Carlos A. Zuniga, Jassem Abdallah, Wojciech Haske, Yadong Zhang, Igor Coropceanu, Stephen Barlow, Bernard Kippelen, Seth R. Marder, *Adv. Mater.*, 25, 1739-1744(2013)」、 「Wen-Yi Hung, Chi-Yen Lin, Tsang-Lung Cheng, Shih-Wei Yang, Atul Chaskar, Gang-Lun Fan, Ken-Tsung Wong, Teng-Chih Chao, Mei-Rung Tseng, *Organic Electronics*, 13, 2508-2515 (2012)」等に記載の化合物が挙げられる。

[0296] 2-5. 有機電界発光素子における陽極

陽極102は、発光層105へ正孔を注入する役割を果たすものである。なお、陽極102と発光層105との間に正孔注入層103および／または正孔輸送層104が設けられている場合には、これらを介して発光層105へ正孔を注入することになる。

[0297] 陽極102を形成する材料としては、無機化合物および有機化合物があげられる。無機化合物としては、例えば、金属（アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、クロムなど）、金属酸化物（インジウムの酸化物、スズの酸化物、インジウムスズ酸化物（ITO）、インジウム亜鉛酸化物（IZO）など）、ハロゲン化金属（ヨウ化銅など）、硫化銅、カーボンブラック、ITOガラスやネサガラスなどがあげられる。有機化合物としては、例えば、ポリ（3-メチルチオフェン）などのポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリンなどの導電性ポリマーなどがあげられる。その他、有機電界発光素子の陽極として用いられている物質の中から適宜選択して用いることができる。

[0298] 透明電極の抵抗は、発光素子の発光に十分な電流が供給できればよいので限定されないが、発光素子の消費電力の観点からは低抵抗であることが望ま

しい。例えば、 $300\ \Omega/\square$ 以下のITO基板であれば素子電極として機能するが、現在では $10\ \Omega/\square$ 程度の基板の供給も可能になっていることから、例えば $100\sim 5\ \Omega/\square$ 、好ましくは $50\sim 5\ \Omega/\square$ の低抵抗品を使用することが特に望ましい。ITOの厚みは抵抗値に合わせて任意に選ぶ事ができるが、通常 $50\sim 300\ \text{nm}$ の間で用いられることが多い。

[0299] 有機電界発光素子における陽極にはバンク（隔壁材料）を有していてもよい。湿式成膜法により有機電界発光素子を形成する場合、バンク内に各層形成用組成物または発光層形成用組成物を滴下し乾燥させることで任意の層を得ることができる。

[0300] バンクの作製にはフォトリソグラフィ技術を用いることができる。フォトリソグラフィの利用可能なバンク材としては、無機系材料、および有機系材料を用いることができ、無機系材料としては例えば、 SiN_x 、 SiO_x およびその混合物、有機系材料としては、例えば、ポジ型レジスト材料およびネガ型レジスト材料を用いることができる。また、スパッタリング法、インクジェット法、グラビアオフセット印刷、リバーソフセット印刷、スクリーン印刷などのパターン可能な印刷法も用いることができる。その際には永久レジスト材料を用いることもできる。また、バンクは多層構造を有していてもよく、異なる種類の材料が用いられていてもよい。

[0301] バンクに用いられる有機系材料としては、多糖類およびその誘導体、ヒドロキシルを有するエチレン性モノマーの単独重合体および共重合体、生体高分子化合物、ポリアクリロイル化合物、ポリエステル、ポリスチレン、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリスルフィド、ポリスルホン、ポリフェニレン、ポリフェニルエーテル、ポリウレタン、エポキシ（メタ）アクリレート、メラミン（メタ）アクリレート、ポリオレフィン、環状ポリオレフィン、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合ポリマー（ABS）、シリコーン樹脂、ポリ塩化ビニル、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、ポリアセテート、ポリノルボルネン、合成ゴム、ポリフルオロビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリヘキサフルオロ

プロピレン等のフッ化ポリマー、フルオロオレフィン-ヒドロカーボンオレフィンの共重合ポリマー、フルオロカーボンポリマー、が挙げられるが、それだけに限定されない。

[0302] 以下にバンクのフォトリソグラフィ技術での有機系材料を用いた形成方法の例を示す。電極が形成された素子基板に、発光層形成用組成物などの機能層形成用組成物に対して撥液性を示す材料を塗布し、乾燥することにより、樹脂層を形成する。この樹脂層に対して露光用マスクを用いて露光工程および現像工程を行うことにより、電極が形成された素子基板上にバンクが形成できる。この後、必要であれば、機能層形成用組成物をムラなく広げるため、バンクの表面の不純物を取り除くための、溶媒による洗浄・乾燥工程や紫外線処理等の工程を行ってもよい。

[0303] 2-6 有機電界発光素子における基板

基板101は、有機電界発光素子100の支持体となるものであり、通常、石英、ガラス、金属、プラスチックなどが用いられる。基板101は、目的に応じて板状、フィルム状、またはシート状に形成され、例えば、ガラス板、金属板、金属箔、プラスチックフィルム、プラスチックシートなどが用いられる。なかでも、ガラス板、および、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂製の板が好ましい。ガラス基板であれば、ソーダライムガラスや無アルカリガラスなどが用いられ、また、厚みも機械的強度を保つのに十分な厚みがあればよいので、例えば、0.2mm以上あればよい。厚さの上限値としては、例えば、2mm以下、好ましくは1mm以下である。ガラスの材質については、ガラスからの溶出イオンが少ない方がよいので無アルカリガラスの方が好ましいが、SiO₂などのバリアコートを施したソーダライムガラスも市販されているのでこれを使用することができる。また、基板101には、ガスバリア性を高めるために、少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜などのガスバリア膜を設けてもよく、特にガスバリア性が低い合成樹脂製の板、フィルムまたはシートを基板101として用いる場合にはガスバリア膜を設けるのが好ましい

。

[0304] 2-7. 有機電界発光素子の作製方法

有機電界発光素子を構成する各層は、各層を構成すべき材料を蒸着法、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング、分子積層法、印刷法、スピンコート法またはキャスト法、コーティング法などの方法で薄膜とすることにより、形成することができる。このようにして形成された各層の膜厚については特に限定はなく、材料の性質に応じて適宜設定することができるが、通常2 nm～5000 nmの範囲である。膜厚は通常、水晶発振式膜厚測定装置などで測定できる。蒸着法を用いて薄膜化する場合、その蒸着条件は、材料の種類、膜の目的とする結晶構造および会合構造などにより異なる。蒸着条件は一般的に、蒸着用ルツボの加熱温度+50～+400℃、真空度 10^{-6} ～ 10^{-3} Pa、蒸着速度0.01～50 nm/秒、基板温度-150～+300℃、膜厚2 nm～5 μmの範囲で適宜設定することが好ましい。

[0305] 次に、有機電界発光素子を作製する方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物を含む発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機電界発光素子の作製法について説明する。

[0306] 2-7-1. 蒸着法

適当な基板上に、陽極材料の薄膜を蒸着法などにより形成させて陽極を作製した後、この陽極上に正孔注入層および正孔輸送層の薄膜を形成させる。この上に、ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物を共蒸着し薄膜を形成させて発光層とし、この発光層の上に電子輸送層、電子注入層を形成させ、さらに陰極用物質からなる薄膜を蒸着法などにより形成させて陰極とすることにより、目的の有機電界発光素子が得られる。なお、上述の有機電界発光素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

蒸着法で発光層を形成する際には、第3成分として式(i i)で表される

化合物や式(2)で表される化合物を選択して用いることが好ましい。特に式(2)の $R^1 \sim R^{14}$ の少なくとも1つが置換基である化合物を選択して用いることが好ましい。ここでいう置換基としては、上記の第3成分における好ましい置換基を採用することができる。中でも、炭素数1~24のアルキル、置換されていてもよいジアリアルアミノを特に好ましく採用することができる。これらの置換基を有する化合物を用いて発光層を蒸着法で形成した場合は、置換基を有しない対応化合物、式(i)で表される化合物、式(i i i)で表される化合物、あるいは式(4)で表される化合物を用いて蒸着法で形成した場合よりも、有機電界発光素子の外部量子効率が高く特性が優れている。

また、第3成分として式(i)または式(i i i)で表される化合物を用いて蒸着法で発光層を形成する場合は、上記の第3成分における好ましい置換基を採用することが好ましく、炭素数1~24のアルキル、置換されていてもよいジアリアルアミノを有する化合物を用いることが特に好ましい。これらの置換基を有する化合物を用いて発光層を蒸着法で形成した場合は、置換基を有しない対応化合物を用いて蒸着法で形成した場合よりも、有機電界発光素子の外部量子効率が高く長寿命であり特性が優れている。

[0307] 2-7-2. 湿式成膜法

発光層形成用組成物を使用する場合は、湿式成膜法を用いることによって成膜される。

[0308] 湿式成膜法は、一般的には、基板に発光層形成用組成物を塗布する塗布工程および塗布された発光層形成用組成物から溶媒を取り除く乾燥工程を経ることで塗膜を形成する。塗布工程の違いにより、スピンコーターを用いる手法をスピコート法、スリットコーターを用いるスリットコート法、版を用いるグラビア、オフセット、リバーソffset、フレキソ印刷法、インクジェットプリンタを用いる手法をインクジェット法、霧状に吹付ける手法をスプレー法と呼ぶ。乾燥工程には、風乾、加熱、減圧乾燥などの方法がある。乾燥工程は1回のみ行なってもよく、異なる方法や条件を用いて複数回行

なってもよい。また、例えば、減圧下での焼成のように、異なる方法を併用してもよい。

[0309] 湿式成膜法とは溶液を用いた成膜法であり、例えば、一部の印刷法（インクジェット法）、スピコート法またはキャスト法、コーティング法などである。湿式成膜法は真空蒸着法と異なり高価な真空蒸着装置を用いる必要が無く、大気圧下で成膜することができる。加えて、湿式成膜法は大面積化や連続生産が可能であり、製造コストの低減につながる。

[0310] 一方で、真空蒸着法と比較した場合には、湿式成膜法は積層化が難しい。湿式成膜法を用いて積層膜を作製する場合、上層の組成物による下層の溶解を防ぐ必要があり、溶解性を制御した組成物、下層の架橋および直交溶媒（orthogonal solvent、互いに溶解し合わない溶媒）などが駆使される。しかしながら、それらの技術を用いても、全ての膜の塗布に湿式成膜法を用いるのは難しい場合がある。

[0311] 2-7-3. 真空蒸着法と湿式成膜法の併用

そこで、一般的には、幾つかの層だけを湿式成膜法を用い、残りを真空蒸着法で有機電界発光素子を作製するという方法が採用される。

[0312] 例えば、湿式成膜法を一部適用し有機電界発光素子を作製する手順を以下に示す。

（手順1）陽極の真空蒸着法による成膜

（手順2）正孔注入層の湿式成膜法による成膜

（手順3）正孔輸送層の湿式成膜法による成膜

（手順4）ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物を含む発光層形成用組成物の湿式成膜法による成膜

（手順5）電子輸送層の真空蒸着法による成膜

（手順6）電子注入層の真空蒸着法による成膜

（手順7）陰極の真空蒸着法による成膜

この手順を経ることで、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／ホスト材料、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物を含む発光層／電子輸

送層／電子注入層／陰極からなる有機電界発光素子が得られる。

[0313] 2-7-4. インクジェットによる有機電界発光素子の作製例

図6を参考にして、バンクを有する基板にインクジェット法を用いて有機電界発光素子を作製する方法を説明する。まず、バンク(200)は基板(110)上の電極(120)の上に設けられている。この場合、インクジェットヘッド(300)より、バンク(200)間にインクの液滴(310)を滴下し、乾燥させることで塗膜(130)を作製することができる。これを繰り返し、次の塗膜(140)、さらに発光層(150)まで作製し、真空蒸着法を用い電子輸送層、電子注入層および電極を成膜すれば、バンク材で発光部位が区切られた有機電界発光素子を作製することができる。

[0314] このように作製した有機電界発光素子は、水分や酸素から保護するために、封止層(図示省略)によって覆うことが好ましい。例えば、外部から水分や酸素などが浸入すると、発光機能が阻害され、発光効率の低下や、発光しない暗点(ダークスポット)が発生する。また、発光寿命が短くなる可能性がある。封止層としては、例えば、水分や酸素などの透過性が低い、酸化シリコン(SiON)などの無機絶縁材料を用いることができる。また、透明なガラスや不透明なセラミックなどの封止基板を、有機電界発光素子が形成された素子基板に接着剤を介して貼り付けることにより、有機電界発光素子を封止してもよい。

[0315] 2-8. 有機電界発光素子の応用例

また、本発明は、有機電界発光素子を備えた表示装置または有機電界発光素子を備えた照明装置などにも応用することができる。

有機電界発光素子を備えた表示装置または照明装置は、本実施形態にかかるとる有機電界発光素子と公知の駆動装置とを接続するなど公知の方法によって製造することができ、直流駆動、パルス駆動、交流駆動など公知の駆動方法を適宜用いて駆動することができる。

[0316] 表示装置としては、例えば、カラーフラットパネルディスプレイなどのパネルディスプレイ、フレキシブルカラー有機電界発光(EL)ディスプレイ

などのフレキシブルディスプレイなどが挙げられる（例えば、特開平10-335066号公報、特開2003-321546号公報、特開2004-281086号公報など参照）。また、ディスプレイの表示方式としては、例えば、マトリクスおよび／またはセグメント方式などが挙げられる。なお、マトリクス表示とセグメント表示は同じパネルの中に共存していてもよい。

[0317] マトリクスでは、表示のための画素が格子状やモザイク状など二次元的に配置されており、画素の集合で文字や画像を表示する。画素の形状やサイズは用途によって決まる。例えば、パソコン、モニター、テレビの画像および文字表示には、通常一辺が300 μ m以下の四角形の画素が用いられ、また、表示パネルのような大型ディスプレイの場合は、一辺がmmオーダーの画素を用いることになる。モノクロ表示の場合は、同じ色の画素を配列すればよいが、カラー表示の場合には、赤、緑、青の画素を並べて表示させる。この場合、典型的にはデルタタイプとストライプタイプがある。そして、このマトリクスの駆動方法としては、線順次駆動方法やアクティブマトリクスのどちらでもよい。線順次駆動の方が構造が簡単であるという利点があるが、動作特性を考慮した場合、アクティブマトリクスの方が優れる場合があるので、これも用途によって使い分けることが必要である。

[0318] セグメント方式（タイプ）では、予め決められた情報を表示するようにパターンを形成し、決められた領域を発光させることになる。例えば、デジタル時計や温度計における時刻や温度表示、オーディオ機器や電磁調理器などの動作状態表示および自動車のパネル表示などが挙げられる。

[0319] 照明装置としては、例えば、室内照明などの照明装置、液晶表示装置のバックライトなどが挙げられる（例えば、特開2003-257621号公報、特開2003-277741号公報、特開2004-119211号公報など参照）。バックライトは、主に自発光しない表示装置の視認性を向上させる目的に使用され、液晶表示装置、時計、オーディオ装置、自動車パネル、表示板および標識などに使用される。特に、液晶表示装置、中でも薄型化が課題となっているパソコン用途のバックライトとしては、従来方式が蛍光灯や導光板からなっているため薄型化

が困難であることを考えると、本実施形態に係る発光素子を用いたバックライトは薄型で軽量が特徴になる。

[0320] 3. 発光層形成用組成物

本発明の発光層形成用組成物は、有機電界発光素子の発光層を湿式法により形成するための組成物である。発光層形成用組成物は、第1成分として少なくとも1種のホスト化合物と、第2成分として少なくとも1種の熱活性化型遅延蛍光体と、第3成分として少なくとも1種のホウ素原子を有する化合物と、第4成分として少なくとも1種の有機溶媒を含む組成物である。ホスト化合物、熱活性化型遅延蛍光体およびホウ素原子を有する化合物については、上記の有機電界発光素子における発光層の説明にて記載した化合物を用いることができる。

[0321] 3-1. 有機溶媒

本発明の発光層形成用組成物は、少なくとも1種の有機溶媒を含むことが好ましい。成膜時に有機溶媒の蒸発速度を制御することで、成膜性および塗膜の欠陥の有無、表面粗さ、平滑性を制御および改善することができる。また、インクジェット法を用いた成膜時は、インクジェットヘッドのピンホールでのメニスカス安定性を制御し、吐出性を制御・改善することができる。加えて、膜の乾燥速度および誘導体分子の配向を制御することで、該発光層形成用組成物より得られる発光層を有する有機電界発光素子の電気特性、発光特性、効率、および寿命を改善することができる。

[0322] 3-1-1. 有機溶媒の物性

発光層形成用組成物に第4成分として含まれる少なくとも1種の有機溶媒の沸点は、130℃～350℃であり、140℃～300℃がより好ましく、150℃～250℃がさらに好ましい。沸点が130℃より高い場合、インクジェットの吐出性の観点から好ましい。また、沸点が350℃より低い場合、塗膜の欠陥、表面粗さ、残留溶媒および平滑性の観点から好ましい。良好なインクジェットの吐出性、製膜性、平滑性および低い残留溶媒の観点から、2種以上の有機溶媒を含む構成がより好ましい。一方で、場合によっ

ては、運搬性などを考慮し、発光層形成用組成物中から溶媒を除去することで固形状態とした組成物であってもよい。

[0323] 本発明の発光層形成用組成物は、第1成分、第2成分および第3成分である化合物の少なくとも1種に対する良溶媒(GS)と貧溶媒(PS)とを第4成分として含み、良溶媒(GS)の沸点(BP_{GS})が貧溶媒(PS)の沸点(BP_{PS})よりも低いことが特に好ましい。

高沸点の貧溶媒を加えることで成膜時に低沸点の良溶媒が先に揮発し、組成物中の含有物の濃度と貧溶媒の濃度が増加し速やかな成膜が促される。これにより、欠陥が少なく、表面粗さが小さい、平滑性の高い塗膜が得られる。

[0324] 溶解度の差($S_{GS} - S_{PS}$)は、1%以上であることが好ましく、3%以上であることがより好ましく、5%以上であることがさらに好ましい。沸点の差($BP_{PS} - BP_{GS}$)は、10°C以上であることが好ましく、30°C以上であることがより好ましく、50°C以上であることがさらに好ましい。

[0325] 有機溶媒は、成膜後に、真空、減圧、加熱などの乾燥工程により塗膜より取り除かれる。加熱を行う場合、塗布製膜性改善の観点からは、第1成分、第2成分および第3成分である化合物のうち最も高いガラス転移温度(T_g) + 30°C以下で行うことが好ましい。また、残留溶媒の削減の観点からは、第2成分および第3成分である化合物のうち最も低いガラス転移点(T_g) - 30°C以上で加熱することが好ましい。加熱温度が有機溶媒の沸点より低くても膜が薄いために、有機溶媒は十分に取り除かれる。また、異なる温度で複数回乾燥を行ってもよく、複数の乾燥方法を併用してもよい。

[0326] 3-1-2. 有機溶媒の具体例

発光層形成用組成物に用いられる有機溶媒としては、炭化水素系溶媒、アルキルベンゼン系溶媒、フェニルエーテル系溶媒、アルキルエーテル系溶媒、環状ケトン系溶媒、脂肪族ケトン系溶媒、単環性ケトン系溶媒、ジエステル骨格を有する溶媒および含フッ素系溶媒などが挙げられ、具体例として、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、ノナノール、

デカノール、ウンデカノール、ドデカノール、テトラデカノール、ヘキサノール、ヘプタン-2-オール、オクタン-2-オール、デカン-2-オール、ドデカン-2-オール、シクロヘキサノール、 α -テルピネオール、 β -テルピネオール、 γ -テルピネオール、 δ -テルピネオール、テルピネオール（混合物）、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジプロピレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールエチルメチルエーテル、ジエチレングリコールイソプロピルメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールブチルメチルエーテル、トリプロピレングリコールジメチルエーテル、トリエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノフェニルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールジブチルエーテル、トリエチレングリコールブチルメチルエーテル、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、テトラエチレングリコールジメチルエーテル、*p*-キシレン、*m*-キシレン、*o*-キシレン、2,6-ルチジン、2-フルオロ-*m*-キシレン、3-フルオロ-*o*-キシレン、2-クロロベンゾ三フッ化物、クメン、トルエン、2-クロロ-6-フルオロトルエン、2-フルオロアニソール、アニソール、2,3-ジメチルピラジン、ブromoベンゼン、4-フルオロアニソール、3-フルオロアニソール、3-トリフルオロメチルアニソール、メシチレン、1,2,4-トリメチルベンゼン、*t*-ブチルベンゼン、2-メチルアニソール、フェネトール、ベンゾジオキソール、4-メチルアニソール、*s*-ブチルベンゼン、3-メチルアニソール、4-フルオロ-3-メチルアニソール、シメン、1,2,3-トリメチルベンゼン、1,2-ジクロロベンゼン、2-フルオロベンゾニトリル、4-フルオロベラトロール、2,6-ジメチルアニソール、*n*-ブチルベンゼン、3-フルオロベンゾニトリル、デカリン（デカヒドロナフタレン）、ネオペン

チルベンゼン、2, 5-ジメチルアニソール、2, 4-ジメチルアニソール、ベンゾニトリル、3, 5-ジメチルアニソール、ジフェニルエーテル、1-フルオロ-3, 5-ジメトキシベンゼン、安息香酸メチル、イソペンチルベンゼン、3, 4-ジメチルアニソール、o-トルニトリル、n-アミルベンゼン、ベラトロール、1, 2, 3, 4-テトラヒドロナフタレン、安息香酸エチル、n-ヘキシルベンゼン、安息香酸プロピル、シクロヘキシルベンゼン、1-メチルナフタレン、安息香酸ブチル、2-メチルビフェニル、3-フェノキシトルエン、2, 2'-ビトリル、ドデシルベンゼン、ジペンチルベンゼン、テトラメチルベンゼン、トリメトキシベンゼン、トリメトキシトルエン、2, 3-ジヒドロベンゾフラン、1-メチル-4-(プロポキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ブチルオキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ペンチルオキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ヘキシルオキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ヘプチルオキシメチル)ベンゼン、ベンゼンベンジルブチルエーテル、ベンジルペンチルエーテル、ベンジルヘキシルエーテル、ベンジルヘプチルエーテル、ベンジルオクチルエーテル、ニトロベンゼン、ジメチルニトロベンゼン、アミノビフェニル、ジフェニルアミンなどが挙げられるが、それだけに限定されない。また、溶媒は単一で用いてもよく、混合してもよい。

[0327] 有機溶媒としては、アルキルベンゼン系溶媒、フェニルエーテル系溶媒、またはこれらの混合溶媒が好ましい。アルキルベンゼン系溶媒としてはシクロヘキシルベンゼンが好ましく、フェニルエーテル系溶媒としては3-フェノキシトルエンが好ましい。シクロヘキシルベンゼンと3-フェノキシトルエンとの混合溶媒も好ましい。このとき、両者の質量比は特に限定されないが、例えば2:8~8:2であればよく、5:5~8:2が好ましい。

[0328] 3-2. 任意成分

発光層形成用組成物は、その性質を損なわない範囲で、任意成分を含んでもよい。任意成分としては、バインダーおよび界面活性剤等が挙げられる。

[0329] 3-2-1. バインダー

発光層形成用組成物は、バインダーを含有していてもよい。バインダーは、成膜時には膜を形成するとともに、得られた膜を基板と接合する。また、該発光層形成用組成物中で他の成分を溶解および分散および結着させる役割を果たす。

[0330] 発光層形成用組成物に用いられるバインダーとしては、例えば、アクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-ビニルアルコール共重合体、アクリロニトリル-エチレン-スチレン共重合体（AES）樹脂、アイオノマー、塩素化ポリエーテル、ジアリルフタレート樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、テフロン（登録商標）、アクリロニトリル-ブタジエーン-スチレン共重合体（ABS）樹脂、アクリロニトリル-スチレン共重合体（AS）樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、アルキド樹脂、ポリウレタン、および、上記樹脂およびポリマーの共重合体、が挙げられるが、それだけに限定されない。

[0331] 発光層形成用組成物に用いられるバインダーは、1種のみであってもよく複数種を混合して用いてもよい。

[0332] 3-2-2. 界面活性剤

発光層形成用組成物は、例えば、発光層形成用組成物の膜面均一性、膜表面の親溶媒性および撥液性の制御のために界面活性剤を含有してもよい。界面活性剤は、親水性基の構造からイオン性および非イオン性に分類され、さらに、疎水性基の構造からアルキル系およびシリコン系およびフッ素系に分類される。また、分子の構造から、分子量が比較的小さく単純な構造を有する単分子系および分子量が大きく側鎖や枝分かれを有する高分子系に分類される。また、組成から、単一系、二種以上の界面活性剤および基材を混合した混合系に分類される。該発光層形成用組成物に用いることのできる界面活性剤としては、全ての種類の界面活性剤を用いることができる。

[0333] 界面活性剤としては、例えば、ポリフロ－No. 45、ポリフロ－KL－245、ポリフロ－No. 75、ポリフロ－No. 90、ポリフロ－No. 95（商品名、共栄社化学工業（株）製）、ディスパーベイク（Disperrbyk）161、ディスパーベイク162、ディスパーベイク163、ディスパーベイク164、ディスパーベイク166、ディスパーベイク170、ディスパーベイク180、ディスパーベイク181、ディスパーベイク182、BYK300、BYK306、BYK310、BYK320、BYK330、BYK342、BYK344、BYK346（商品名、ビッケミー・ジャパン（株）製）、KP－341、KP－358、KP－368、KF－96－50CS、KF－50－100CS（商品名、信越化学工業（株）製）、サーフロンSC－101、サーフロンKH－40（商品名、セイミケミカル（株）製）、フタージェント222F、フタージェント251、FTX－218（商品名、（株）ネオス製）、EFTOP EF－351、EFTOP EF－352、EFTOP EF－601、EFTOP EF－801、EFTOP EF－802（商品名、三菱マテリアル（株）製）、メガファックF－470、メガファックF－471、メガファックF－475、メガファックR－08、メガファックF－477、メガファックF－479、メガファックF－553、メガファックF－554（商品名、DIC（株）製）、フルオロアルキルベンゼンスルホン酸塩、フルオルアルキルカルボン酸塩、フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル、フルオロアルキルアンモニウムヨージド、フルオロアルキルベタイン、フルオロアルキルスルホン酸塩、ジグリセリンテトラキス（フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル）、フルオロアルキルトリメチルアンモニウム塩、フルオロアルキルアミノスルホン酸塩、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンラウレート、ポリオキシエチレンオレエート、ポリオキシエチレンステアレート、ポリオキシエチレンラウリルアミン、ソルビタンラウレート、ソルビタンパルミテート、ソルビタンステアレー

ト、ソルビタンオレエート、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタンラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンパルミテート、ポリオキシエチレンソルビタンステアレート、ポリオキシエチレンソルビタンオレエート、ポリオキシエチレンナフチルエーテル、アルキルベンゼンスルホン酸塩およびアルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩を挙げることができる。

界面活性剤は1種で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0334] 3-3. 発光層形成用組成物の組成および物性

本発明の発光層形成用組成物では、第1成分、第2成分および第3成分として、優れた溶解性、成膜性、湿式塗布性、熱的安定性、および面内配向性の少なくとも1つを満たす化合物を選択する。また、優れた溶解性、製膜性、湿式塗布性、および面内配向性の観点から、炭素数1~24のアルキル、ジアリールアミノ、炭素数5~24のシクロアルキル、炭素数6~24のアリールおよび炭素数5~24のヘテロアリールで置換されている化合物を選択することが好ましい。

[0335] 第1成分としては、m位に置換基を有するフェニレン、トリアジン、ピリジン、カルバゾール、ジベンゾフランまたはジベンゾチオフェンを分子中に有する化合物を選択することが好ましい。第2成分としては、溶解性と成膜性の観点からは分子中にアルキルまたはシクロアルキルを有する化合物が好ましく、また、効率の観点からはオーバリティの高いより棒状の分子が好ましく、例えば、オキサジアゾール、チアジアゾールおよびトリアゾールを分子中に有する化合物が好ましく、式2 P X Z-T A Zを選択することが好ましい。第3成分としては、溶解性と成膜性の観点からは分子中にアルキルまたはシクロアルキルを有する化合物が好ましく、また、効率の観点からはオーバリティの高いより棒状の分子が好ましく、例えば式(2)で表される化合物が好ましく、B2N4-0230/S-M1、B2N4-0220/S-M1、B2N4-0211/S-M1、B2N2BN0-0230/S-M1、およびB202N2-0220/S-M1である化合物を選択することが好ましい。

[0336] 本発明の発光層形成用組成物における各成分の含有量は、特に限定されないが、第1成分の含有量は、第1成分、第2成分および第3成分の総質量に対して、好ましくは40質量%~98.999質量%であり、より好ましくは50質量%~97.99質量%であり、さらに好ましくは60質量%~94.9質量%である。第2成分の含有量は、第1成分、第2成分および第3成分の総質量に対して、1質量%~60質量%であり、より好ましくは2質量%~50質量%であり、さらに好ましくは5質量%~30質量%である。第3成分の含有量は、第1成分、第2成分および第3成分の総質量に対して、好ましくは0.001質量%~30質量%であり、より好ましくは0.01~20質量%であり、さらに好ましくは0.1~10質量%である。上記の範囲であれば、例えば、濃度消光現象を防止できるという点で好ましい。

[0337] さらに本発明の発光層形成用組成物が有機溶媒を含むとき、第1成分、第2成分および第3成分の各成分の含有量は、発光層形成用組成物中の各成分の良好な溶解性、保存安定性および成膜性、ならびに、該発光層形成用組成物から得られる塗膜の良質な膜質、また、インクジェット法を用いた場合の良好な吐出性、該組成物を用いて作製された発光層を有する有機電界発光素子の、良好な電気特性、発光特性、効率、寿命の観点から、決定すればよい。例えば、上記の観点から、発光層形成用組成物の第1成分、第2成分および第3成分の総質量に対して、第1成分が40~98.999質量%、第2成分が1質量%~60質量%、第3成分が0.001質量%~30質量%が好ましい。より好ましくは、発光層形成用組成物の第1成分、第2成分および第3成分の総質量に対して、第1成分が50質量%~97.99質量%、第2成分が2質量%~50質量%、第3成分が0.01質量%~20質量%である。さらに好ましくは、発光層形成用組成物の第1成分、第2成分および第3成分の総質量に対して、第1成分が60質量%~94.9質量%、第2成分が5質量%~30質量%、第3成分が0.1質量%~10質量%である。

[0338] 本発明の発光層形成用組成物における各成分の含有量は、発光層形成用組

成物中の各成分の良好な溶解性、保存安定性および成膜性、ならびに、該発光層形成用組成物から得られる塗膜の良質な膜質、また、インクジェット法を用いた場合の良好な吐出性、該組成物を用いて作製された発光層を有する有機電界発光素子の、良好な電気特性、発光特性、効率、寿命の観点から、決定すればよい。例えば、上記の観点から、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.0998質量%~4.0質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.0001質量%~2.0質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.0001質量%~2.0質量%、第4成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、90.0質量%~99.9質量%が好ましい。

[0339] より好ましくは、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.17質量%~4.0質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.03質量%~1.0質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.03質量%~1.0質量%、第4成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、93.0質量%~99.77質量%である。さらに好ましくは、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.25質量%~2.5質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.05質量%~0.5質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.05質量%~0.5質量%、第4成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、96.5質量%~99.7質量%である。他に好ましい態様としては、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.095質量%~4.0質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.003質量%~1.0質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.002質量%~1.0質量%、第4成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、92.0質量%~99.9質量%である。

[0340] 発光層形成用組成物は、上述した成分を、公知の方法で攪拌、混合、加熱、冷却、溶解、分散等を適宜選択して行うことによって製造できる。また、調製後に、ろ過、脱ガス（デガスとも言う）、イオン交換処理および不活性

ガス置換・封入処理等を適宜選択して行ってもよい。

[0341] 発光層形成用組成物の粘度としては、高粘度である方が、良好な成膜性とインクジェット法を用いた場合の良好な吐出性が得られる。一方、低粘度である方が薄い膜を作りやすい。このことから、該発光層形成用組成物の粘度は、25℃における粘度が0.3 mPa・s～3 mPa・sであることが好ましく、1 mPa・s～3 mPa・sであることがより好ましい。本発明において、粘度は円錐平板型回転粘度計（コーンプレートタイプ）を用いて測定した値である。

[0342] 発光層形成用組成物の表面張力としては、低い方が良好な成膜性および欠陥のない塗膜が得られる。一方、高い方が良好なインクジェット吐出性を得られる。このことから、該発光層形成用組成物の粘度は、25℃における表面張力が20 mN/m～40 mN/mであることが好ましく、20 mN/m～30 mN/mであることがより好ましい。本発明において、表面張力は懸滴法を用いて測定した値である。

実施例

[0343] 以下、本発明を実施例によって具体的に説明する。以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。

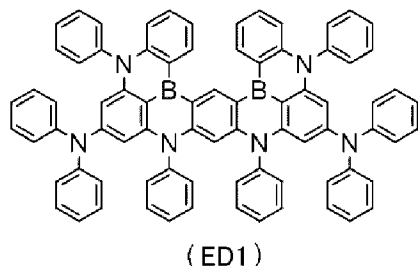
以下に、実施例で使用した化合物の合成例を示す。

[0344] 1. 化合物の合成

合成例（1）

化合物（ED1）：N⁷，N⁷，N¹³，N¹³，5，9，11，15-オクタフェニル-5，9，11，15-テトラヒドロ-5，9，11，15-テトラアザ-19b，20b-ジボラジナフト[3，2，1-de：1'，2'，3'-j k] ペンタセン-7，13-ジアミンの合成

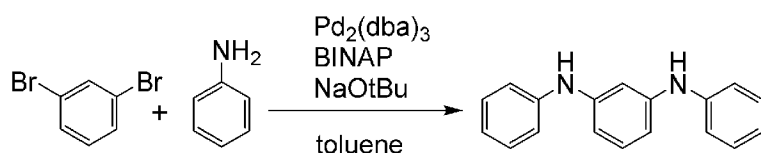
[化161]



[0345] [第1段]

窒素雰囲気下、1,3-ジブロモベンゼン (25.0 g、106 mmol)、アニリン (20.3 ml、223 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ニパラジウム (0) ($\text{Pd}_2(\text{dba})_3$) (971 mg、1.06 mmol)、2,2'-ビス (ジフェニルホスフィノ) -1,1'-ビナフチル (BINAP: 1.98 g、3.18 mmol)、 NaOtBu (25.5 g、265 mmol) およびトルエン (400 ml) の入ったフラスコを 110°C に加熱し、18時間攪拌した。反応液を室温まで冷却し、シリカゲルを用いて濾過し (溶離液: トルエン)、溶媒を減圧留去して粗生成物を得た。得られた粗生成物をトルエンに溶解させた後、適当量を減圧留去し、ヘキサンを加え再沈殿させることで、 N^1, N^3 -ジフェニルベンゼン-1,3-ジアミン (16.5 g、収率60%) を白色固体として得た。

[化162]



[0346] NMRスペクトルにより得られた化合物の構造を確認した。

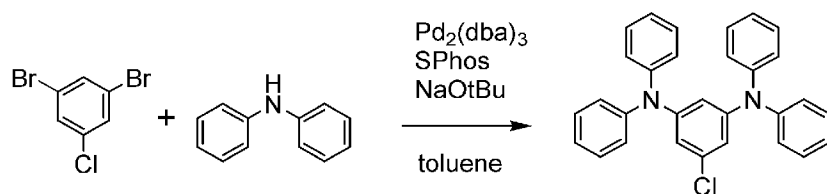
$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): $\delta = 5.63$ (s, 2H)、6.60 (dd, 2H)、6.74 (t, 1H)、6.90 (t, 2H)、7.06 (d, 4H)、7.12 (t, 1H)、7.24 (dt, 4H)。

[0347] [第2段]

窒素雰囲気下、1,3-ジブロモ-5-クロロベンゼン (8.11 g、3

0 mmol)、ジフェニルアミン (10.1 g、60 mmol)、Pd₂(dba)₃ (550 mg、0.6 mmol)、2-ジシクロヘキシルフェニルホスフィノ-2',6'-ジメトキシジフェニル (SPhos: 0.493 g、1.2 mmol)、ナトリウム tert-ブトキシド (NaOtBu) (8.60 g、90 mmol) およびトルエン (300 ml) の入ったフラスコを 80°C に加熱し、15 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却し、シリカゲルを用いて濾過し (溶離液: トルエン)、溶媒を減圧留去して粗生成物を得た。得られた粗生成物をトルエンに溶解させた後、減圧留去することで飽和溶液を調製し、ヘキサンを加え再沈殿させることで、5-クロロ-N¹, N¹, N³, N³-テトラフェニルベンゼン-1,3-ジアミン (5.66 g、収率 43%) を白色固体として得た。

[化163]



[0348] NMRスペクトルにより得られた化合物の構造を確認した。

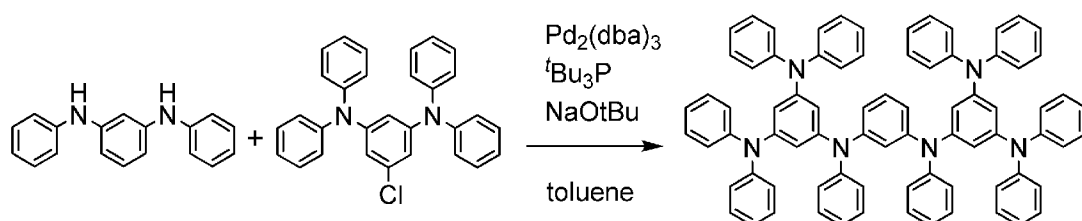
¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ = 6.56 (d, 2H)、6.64 (t, 1H)、7.00 (t, 4H)、7.05 (d, 8H)、7.21 (dd, 8H)。

[0349] [第3段]

窒素雰囲気下、第1段で合成したN¹, N³-ジフェニルベンゼン-1,3-ジアミン (1.34 g、5.1 mmol)、第2段で合成した5-クロロ-N¹, N¹, N³, N³-テトラフェニルベンゼン-1,3-ジアミン (4.80 g、11 mmol)、Pd₂(dba)₃ (0.140 g、0.15 mmol)、トリ-tert-ブチルホスフィン (60.7 mg、0.30 mmol)、NaOtBu (1.47 g、15 mmol) およびトルエン (200 ml) の入ったフラスコを 110°C に加熱し、8 時間攪拌した。反応液を

室温まで冷却し、シリカゲルを用いて濾過し（溶離液：トルエン）、溶媒を減圧留去して粗生成物を得た。得られた粗生成物をヘキサン、メタノールの順に洗浄することで、 $N^1, N^{1'}$ - (1, 3-フェニレン) ビス (N^1, N^3, N^3, N^5, N^5 -ペンタフェニルベンゼン-1, 3, 5-トリアミン (4.80 g、収率87%) を白色固体として得た。

[化164]



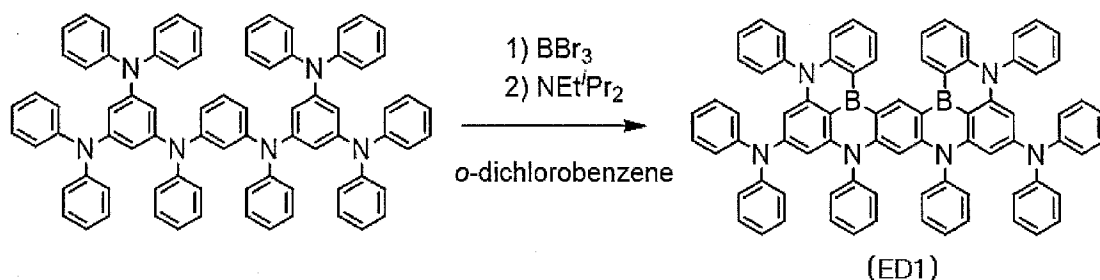
[0350] NMRスペクトルにより得られた化合物の構造を確認した。

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CDCl_3) : $\delta = 6.38$ (d, 4H)、 6.41 (t, 2H)、 6.58 (dd, 2H)、 6.70 (t, 1H)、 $6.88-6.90$ (m, 14H)、 6.85 (t, 1H)、 6.99 (d, 16H)、 $7.08-7.15$ (m, 20H)。

[0351] [第4段]

$N^1, N^{1'}$ - (1, 3-フェニレン) ビス (N^1, N^3, N^3, N^5, N^5 -ペンタフェニルベンゼン-1, 3, 5-トリアミン (3.24 g、3.0 mmol) およびオルトジクロロベンゼン (400 ml) の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、室温で、三臭化ホウ素 (1.13 ml、12 mmol) を加えた。滴下終了後、 180°C まで昇温して20時間攪拌した。その後、再び室温まで冷却して、 N -ジイソプロピルエチルアミン (7.70 ml、45 mmol) を加え、発熱が収まるまで攪拌した。その後、 60°C で減圧下、反応溶液を留去して粗生成物を得た。得られた粗生成物をアセトニトリル、メタノール、トルエンの順に洗浄し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：トルエン）で精製後粗体を o -ジクロロベンゼンで2回再結晶を行い、その後 1×10^{-4} mmHgの減圧下、 440°C にて昇華精製を行うことで、化合物 (ED1) を1.17 g得た。

[化165]



[0352] NMRスペクトルにより得られた化合物の構造を確認した。

¹H-NMR (400MHz, CDCl₃) : δ = 5.72 (s, 2H)、5.74 (s, 2H)、5.86 (s, 1H)、6.83 (d, 2H)、6.88-6.93 (m, 12H)、7.05 (t, 8H)、7.12-7.19 (m, 6H)、7.24-7.26 (m, 4H)、7.05 (d, 4H)、7.12 (dd, 8H)、7.12-7.19 (m, 6H)、7.32 (d, 4H)、7.38 (dd, 2H)、7.42 (t, 2H)、7.46 (dd, 2H)、7.47 (dd, 4H)、9.30 (d, 2H)、10.5 (s, 1H)。

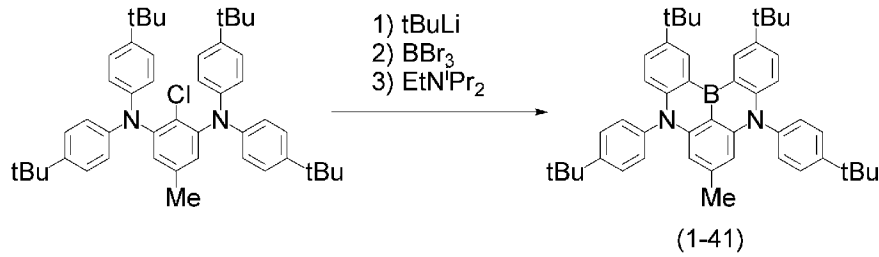
[0353] ¹³C-NMR (101MHz, CDCl₃) : 99.5 (2C+2C)、103.4 (1C)、116.8 (2C)、120.0 (2C)、123.1 (4C)、125.3 (8C)、127.1 (2C)、127.6 (2C)、128.5 (8C)、129.6 (4C)、129.8 (4C)、130.2 (4C+2C)、130.3 (4C)、135.0 (2C)、142.1 (2C)、142.5 (2C)、143.3 (1C)、146.8 (4C)、147.9 (2C+2C)、148.0 (2C)、150.1 (2C)、151.1 (2C)。

[0354] 合成例 (2)

化合物 (1-41) : 2, 12-ジ-*t*-ブチル-5, 9-ビス (4-*t*-ブチル) フェニル) -7-メチル-5, 9-ジヒドロ-5, 9-ジアザ-13*b*-ボラナフト [3, 2, 1-*d e*] アントラセンの合成

[0355]

[化166]



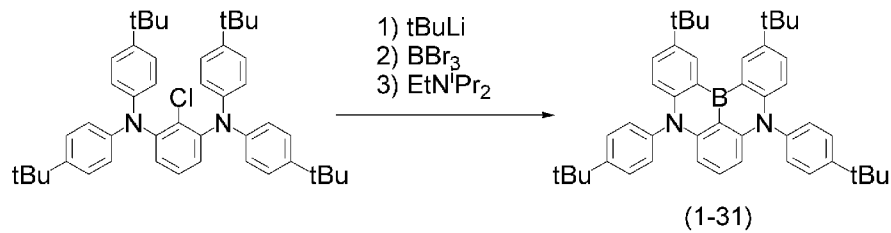
化合物（１－４１）は、国際公開第２０１５／１０２１１８号の「合成例（３２）」に記載された方法に準じて合成した。

[0356] 以下、合成例（１－２）～（１－４）、（１－９）～（１－１４）では、前述した合成例（１－１）と同様の方法を用い、各化合物を合成した。

[0357] 合成例（３）

化合物（１－３１）：２，１２－ジ－ｔ－ブチル－５，９－ビス（４－（ｔ－ブチル）フェニル）－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト〔３，２，１－ｄｅ〕アントラセンの合成

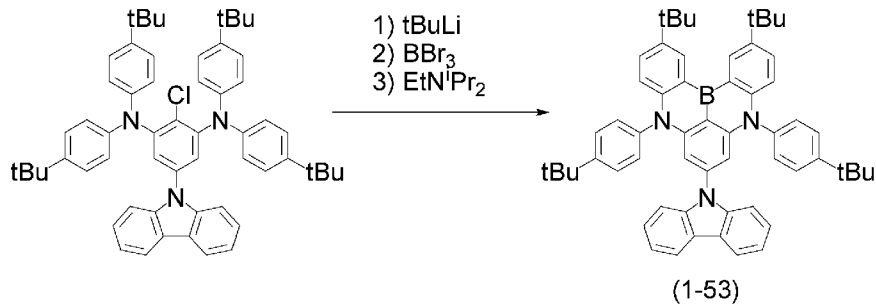
[化167]



[0358] 合成例（４）

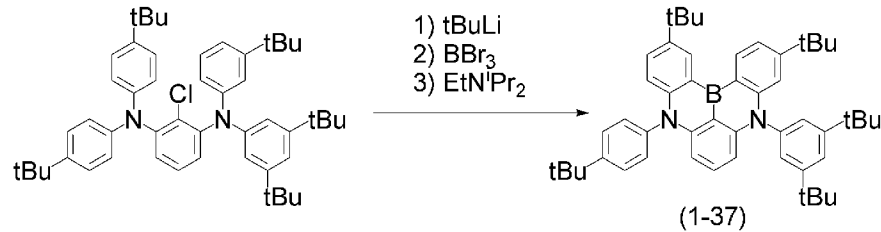
化合物（１－５３）：２，１２－ジ－ｔ－ブチル－５，９－ビス（４－（ｔ－ブチル）フェニル）－７－（９Ｈ－カルバゾール－９－イル）－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト〔３，２，１－ｄｅ〕アントラセンの合成

[化168]

[0359] 合成例 (5)

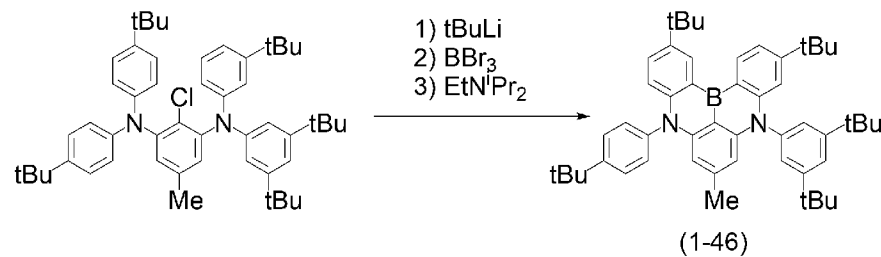
化合物 (1-37) : 3, 12-ジ-*t*-ブチル-9-(4-(*t*-ブチル)フェニル)-5-(3, 5-ジ-*t*-ブチルフェニル)-5, 9-ジヒドロ-5, 9-ジアザ-13b-ボラナフト [3, 2, 1-de] アントラセンの合成

[化169]

[0360] 合成例 (6)

化合物 (1-46) : 3, 12-ジ-*t*-ブチル-9-(4-(*t*-ブチル)フェニル)-5-(3, 5-ジ-*t*-ブチルフェニル)-7-メチル-5, 9-ジヒドロ-5, 9-ジアザ-13b-ボラナフト [3, 2, 1-de] アントラセンの合成

[化170]

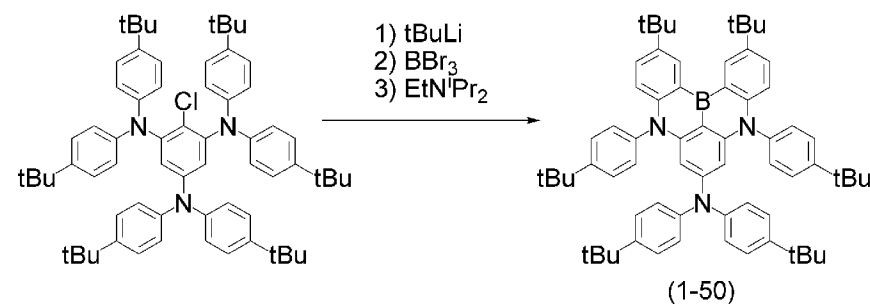


[0361] 化合物(1-46)は、国際公開第2015/102118号の「合成例(32)」に記載された方法に準じて合成した。

[0362] 合成例(7)

化合物(1-50) : 2,12-ジ-*t*-ブチル-N,N,5,9-テトラキス(4-(*t*-ブチル)フェニル)-5,9-ジヒドロ-5,9-ジアザ-13*b*-ボラナフト[3,2,1-*d,e*]アントラセン-7-アミンの合成

[化171]

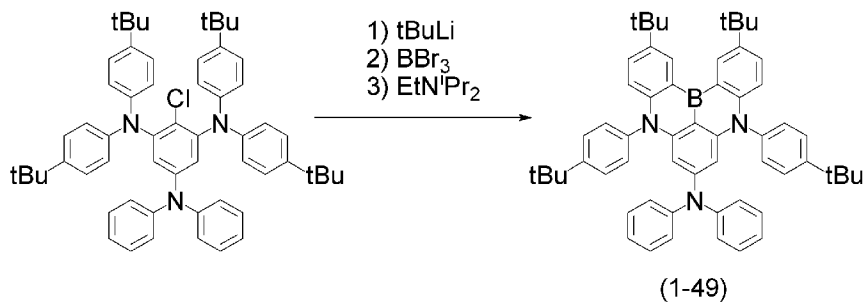


[0363] 化合物(1-50)は、国際公開第2015/102118号の「合成例(32)」に記載された方法に準じて合成した。

[0364] 合成例(8)

化合物(1-49) : 2,12-ジ-*t*-ブチル-5,9-ビス(4-(*t*-ブチル)フェニル)-N,N-ジフェニル-5,9-ジヒドロ-5,9-ジアザ-13*b*-ボラナフト[3,2,1-*d,e*]アントラセン-7-アミンの合成

[化172]

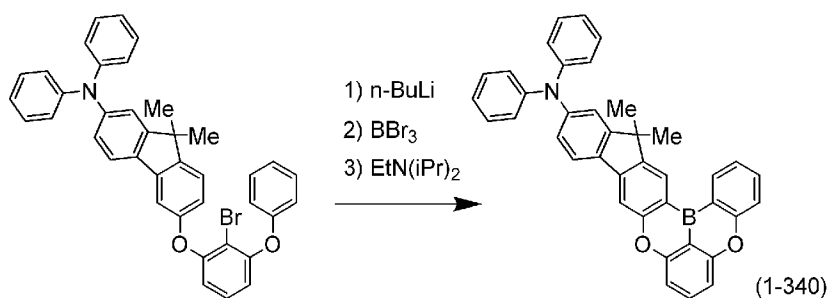


[0365] 化合物(1-49)は、特開2016-88927号公報の「比較合成例

(1)」に記載された方法に準じて合成した。

[0366] 合成例 (9)

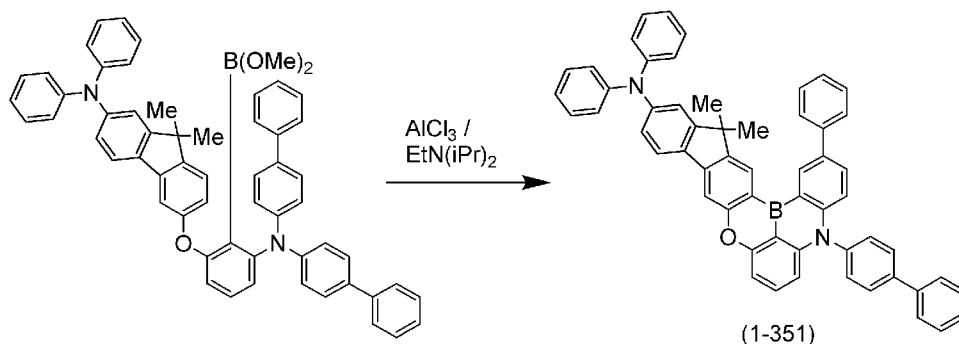
式 (1-340) の化合物 : 15, 15-ジメチル-N, N-ジフェニル-15H-5, 9-ジオキサ-16b-ボラインデノ [1, 2-b] ナフト [1, 2, 3-fg] アントラセン-13-アミンの合成
[化173]



[0367] 化合物 (1-340) は、国際公開第 2017/126443 号の「合成例 (4)」に記載された方法に準じて合成した。

[0368] 合成例 (10)

式 (1-351) の化合物 : 5-([1, 1'-ビフェニル]-4-イル)-15, 15-ジメチル-N, N, 2-トリフェニル-5H, 15H-9-オキサ-5-アザ-16b-ボラインデノ [1, 2-b] ナフト [1, 2, 3-fg] アントラセン-13-アミンの合成
[化174]



[0369] 化合物 (1-351) は、国際公開第 2017/126443 号の「合成例 (5)」に記載された方法に準じて合成した。

[0370] 2. 基礎物性の評価

サンプルの準備

評価対象の化合物の吸収特性と発光特性（蛍光と燐光）を評価する際には、評価対象の化合物のみを薄膜化し評価するか、あるいは、評価対象の化合物を適切なマトリックス材料中に分散して薄膜化して評価した。

[0371] 評価対象の化合物のみを薄膜化し評価する際は、化合物をガラス基板上に厚さ30～100nmで真空蒸着してサンプルとした。

評価対象の化合物を適切なマトリックス材料中に分散する際のマトリックス材料としては、市販のPMMA（ポリメチルメタクリレート）を用いた。本実施例では、PMMAと評価対象の化合物をトルエン中で溶解させた後、スピンコーティング法により石英製の透明支持基板（10mm×10mm）上に厚さ10nmの薄膜を形成してサンプルを作製した。サンプルの濃度は1質量%とした。

[0372] 吸収特性と発光特性の評価

サンプルの吸収スペクトルの測定は、紫外可視近赤外分光光度計（（株）島津製作所、UV-2600）を用いて行った。また、サンプルの蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルの測定は、分光蛍光光度計（日立ハイテック（株）製、F-7000）を用いて行った。

[0373] 蛍光スペクトルの測定に対しては、室温で340nm前後の適切な励起波長で励起しフォトルミネッセンスを測定した。燐光スペクトルの測定に対しては、付属の冷却ユニットを使用して、前記サンプルを液体窒素に浸した状態（温度77K）で測定した。燐光スペクトルを観測するため、光学チョップパを使用して励起光照射から測定開始までの遅れ時間を調整した。サンプルは適切な励起波長で励起しフォトルミネッセンスを測定した。

[0374] 第3成分の各化合物については、室温における吸収スペクトルのピークトップと発光スペクトルのピークトップの差からストークスシフトを求めた。

[0375] また、絶対PL量子収率測定装置（浜松ホトニクス（株）製、C9920-02G）を用いて蛍光量子収率（PLQY）を測定した。

さらに、直流電流を連続的に印加して発光強度が初期の50%になるまで

の時間を測定し、素子寿命 (LT50) を評価した。

[0376] 蛍光寿命 (遅延蛍光) の評価

蛍光寿命測定装置 (浜松ホトニクス (株) 製、C11367-01) を用いて300Kで蛍光寿命を測定した。具体的には、適切な励起波長で測定される極大発光波長において蛍光寿命の早い発光成分と遅い発光成分を観測した。蛍光を発光する一般的な有機電界発光材料の室温における蛍光寿命測定では、熱による3重項成分の失活により、燐光に由来する3重項成分が関与する遅い発光成分が観測されることはほとんどない。評価対象の化合物において遅い発光成分が観測された場合は、励起寿命の長い3重項エネルギーが熱活性化により1重項エネルギーに移動して遅延蛍光として観測されたことを示すことになる。ここでは、遅延蛍光の蛍光寿命をTau(Delay)として測定した。

[0377] E (S, S_h)、E (T, S_h)、E (S, P_T)、E (T, P_T) および ΔE (S_T) の算出

一重項励起エネルギー準位 E (S, S_h) は、蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩を通る接線とベースラインとの交点における波長 B_{S_h} (nm) から、 $E (S, S_h) = 1240 / B_{S_h}$ で算出した。また、三重項励起エネルギー準位 E (T, S_h) は、燐光スペクトルのピーク短波長側の肩を通る接線とベースラインとの交点における波長 C_{S_h} (nm) から、 $E (T, S_h) = 1240 / C_{S_h}$ で算出した。さらに蛍光スペクトルの極大ピーク発光波長も測定した。

本明細書では、第1成分の一重項励起エネルギー準位を E (1, S, S_h)、第2成分の一重項励起エネルギー準位を E (2, S, S_h)、第3成分の一重項励起エネルギー準位を E (3, S, S_h)、第1成分の三重項励起エネルギー準位を E (1, T, S_h)、第2成分の三重項励起エネルギー準位を E (2, T, S_h)、第3成分の三重項励起エネルギー準位を E (3, T, S_h) と表示する。

[0378] ΔE (S_T) は E (S, S_h) と E (T, S_h) のエネルギー差である。

$\Delta E (ST) = E (S, Sh) - E (T, Sh)$ で定義される。また、 $\Delta E (ST)$ は、例えば、”Purely organic electroluminescent material realizing 100% conversion from electricity to light”, H. Kaji, H. Suzuki, T. Fukushima, K. Shizu, K. Katsuaki, S. Kubo, T. Komino, H. Oiwa, F. Suzuki, A. Wakamiya, Y. Murata, C. Adachi, Nat. Commun. 2015, 6, 8476. に記載の方法でも算出することができる。

本明細書では、第1成分の $\Delta E (ST)$ を $\Delta E (1, ST, Sh)$ 、第2成分の $\Delta E (ST)$ を $\Delta E (2, ST, Sh)$ 、第3成分の $\Delta E (ST)$ を $\Delta E (3, ST, Sh)$ と表示する。

[0379] 実施例と比較例で用いた第1成分の化合物について基礎物性を測定した結果を以下の表にまとめて示す。

[表1]

第1成分 化合物	基礎物性			測定条件
	E(1,S,Sh) [eV]	E(1,T,Sh) [eV]	$\Delta E(1,ST,Sh)$ [eV]	
mCBP	3.63	2.82	0.81	Neat
PYD-2Cz	3.59	2.85	0.74	Neat
26DCzPPy	3.43	2.93	0.50	Neat
POS-DF-C	3.60	2.90	0.70	Neat
3DBTB	3.58	2.95	0.63	Neat
DT-3PS-C	3.60	2.93	0.67	Neat
DFPyDF-C	3.50	2.85	0.65	Neat

[0380] 実施例と比較例で用いた第2成分の化合物について基礎物性を測定した結果を以下の表にまとめて示す。

[表2]

第2成分 化合物	基礎物性			測定条件
	E(2,S,Sh) [eV]	E(2,T,Sh) [eV]	$\Delta E(2,ST,Sh)$ [eV]	
2PXZ-TAZ	2.89	2.60	0.29	Neat
BDPCC-TPTA	2.83	2.65	0.18	Neat
Cz-TRZ3	2.99	2.69	0.30	Neat
26Cz4TMC-BN	2.90	2.66	0.24	Neat
35TMC-BN	2.90	2.70	0.20	Neat
2356TBC-BN	2.87	2.63	0.24	Neat
26BDA-BN	2.80	2.58	0.22	Neat
BP-2DPA	2.69	2.55	0.14	Neat
4CzIPN	2.53	2.40	0.13	Neat

[0381] 実施例と比較例で用いた第3成分の化合物について基礎物性を測定した結果を以下の表にまとめて示す。表中、R-BD2は燐光スペクトルを観測できず、E(3, T, Sh)が非常に低いことが示唆された。また、表中「N.D.」は測定していないことを示す。

[表3]

第3成分 化合物	基礎物性					測定条件
	E(3,S,Sh) [eV]	E(3,T,Sh) [eV]	$\Delta E(3,ST,Sh)$ [eV]	ストークスシフト [nm]	Tau(Delay) [μ s]	
ED1	2.73	2.72	0.01	8	3.6	1%PMMA
R-BD1	2.60	2.63	-0.03	11	N.D.	1%PMMA
R-BD2	2.78	低い	大きい	19	N.D.	1%PMMA
B2N2-0230/S-M1	2.71	2.70	0.01	11	4	1%PMMA
B2N2-0230/S-M2	2.71	2.70	0.01	11	4	1%PMMA
B2N2-0230/S-M3	2.77	2.76	0.01	9	2	1%PMMA
B2N2-0230/S-M4	2.77	2.76	0.01	8	3	1%PMMA
B2N2-0230/S-M5	2.77	2.76	0.01	8	2	1%PMMA
B2N2-0230/S-F1	2.78	2.76	0.02	11	3	1%PMMA
B2N2-0230/S-F2	2.81	2.81	0.00	8	3	1%PMMA
B2N2-0230/S-F3	2.73	2.71	0.02	11	3	1%PMMA
B2N2-0230/S-D1	2.73	2.72	0.01	11	4	1%PMMA
B2N2-0230/S-D2	2.73	2.72	0.01	9	4	1%PMMA
B2N2-0230/S-D3	2.73	2.72	0.01	11	4	1%PMMA
B2N2-0220/S	2.63	2.55	0.08	10	17	1%PMMA
BN2/BNO-0230/S	2.79	2.77	0.02	14	5	1%PMMA
BN2/BNO-0231/S	2.79	2.71	0.08	15	12	1%PMMA
BN2/BNO-0211/S	2.77	2.67	0.10	14	20	1%PMMA
BN2/BNO-0221/S-M1	2.78	2.69	0.09	14	18	1%PMMA
BN2/BON-0230/S	2.73	2.69	0.04	13	7	1%PMMA
BN2/BON-0231/S	2.73	2.65	0.08	14	19	1%PMMA
BN2/BON-0211/S	2.71	2.60	0.11	13	27	1%PMMA
BN2/BON-0221/S-M1	2.72	2.62	0.10	13	24	1%PMMA
B2N2O2-0230/S	2.81	2.70	0.11	12	29	1%PMMA
B2N2O2-0231/S	2.79	2.65	0.14	13	38	1%PMMA
B2N2O2-0211/S	2.74	2.62	0.12	12	43	1%PMMA
B2N2O2-0220/S-M1	2.75	2.63	0.12	12	42	1%PMMA
B2O2N2-0230/S	2.85	2.74	0.11	12	30	1%PMMA
B2O2N2-0211/S	2.82	2.68	0.14	13	41	1%PMMA
B2O2N2-0220/S-M1	2.77	2.65	0.12	12	53	1%PMMA
B2O2N2-0220/S-M2	2.79	2.67	0.12	12	49	1%PMMA

[表4]

第3成分 化合物	基礎物性					測定条件
	E(3,S,Sh) [eV]	E(3,T,Sh) [eV]	$\Delta E(3,ST,Sh)$ [eV]	ストークスシフト [nm]	Tau(Delay) [μs]	
R-BD3	2.80	2.61	0.19	17	60	1%PMMA
R-BD4	2.76	2.58	0.18	20	42	1%PMMA
R-BD5	2.92	2.71	0.21	17	N.D.	1%PMMA
BN2-0611S/0911S	2.81	2.58	0.23	16	30	1%PMMA
BN2-0210/0611S/0911S	2.82	2.61	0.21	16	29	1%PMMA
BN2-0231/0611S/0911S	2.82	2.63	0.19	13	70	1%PMMA
BN2-0230	2.86	2.70	0.16	18	29	1%PMMA
BN2-0530	2.83	2.64	0.19	19	42	1%PMMA
BN2-0210/0620	2.82	2.61	0.21	20	40	1%PMMA
BN2-0220/0620/0920-M1	2.76	2.59	0.17	14	70	1%PMMA
BN2-0220/0611/0911-M1	2.79	2.55	0.24	17	N.D.	1%PMMA
BN2-0220/0620/0920-MF3	2.85	2.68	0.17	13	77	1%PMMA
BONF-3b30	2.80	2.48	0.32	9	N.D.	1%PS
BONF-3b30/0920S	2.80	2.46	0.34	10	N.D.	1%PS
BONF-3b30/0920-M1	2.80	2.48	0.32	9	N.D.	1%PS
BONF-0220/3b30/0920-M1	2.80	2.48	0.32	9	N.D.	1%PS
BO _n N-0530/1020S	2.80	2.42	0.38	15	N.D.	1%PS
BO _n N-3b30	2.77	2.44	0.33	8	N.D.	1%PS

[0382] 以下の表に、主な化合物の蛍光スペクトルの極大ピーク発光波長を測定した結果を示す。

[表5]

化合物		極大ピーク発光波長 [nm]	測定条件
第1成分	mCBP	356	Neat
第2成分	2PXZ-TAZ	489	Neat
	BDPCC-TPTA	484	Neat
	Cz-TRZ3	468	Neat
第3成分	ED1	465	1%PMMA

[0383] 3. 有機電界発光素子の作製

有機電界発光素子を作製し、電圧を印加して電流密度、輝度、色度および外部量子効率を測定した。作製した有機電界発光素子の構成として、まず以下の構成A（表1）を選定して評価した。構成Aは熱活性化型遅延蛍光用材料に適合した構成である。構成Aは文献（Adv. Mater. 2016, 28, 2777-2781）で示された高い効率を期待できる素子構成である。ただし、本発明の化合物の適用はこれらの構成に限定されず、各層の膜厚や構成材料は本発明の化合物の基礎物性によって適宜変更することができる。

[0384] <実施例1-1から1-3および比較例1-1から1-4>

スパッタリングにより200nmの厚さに製膜したITOを50nmまで研磨した、26mm×28mm×0.7mmのガラス基板（（株）オプトサイエンス製）を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置（長州産業（株）製）の基板ホルダーに固定し、NPD、TcTa、mCP、第1成分（mCBP）、第2成分（下の表に記載の化合物）、第3成分（ED1）およびTSPO1をそれぞれ入れたタンタル製蒸着用ポート、LiFおよびアルミニウムをそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

[0385] 透明支持基板のITO膜の上に順次、下記各層を形成した。真空槽を 5×10^{-4} Paまで減圧し、まず、NPDを加熱して膜厚40nmになるように蒸着し、次に、TcTaを加熱して膜厚15nmになるように蒸着して2層からなる正孔注入輸送層を形成した。次に、mCPを加熱して膜厚15nm

になるように蒸着して電子阻止層を形成した。次に、下の表に記載される第1成分、第2成分および第3成分を同時に加熱して膜厚20nmになるように共蒸着して発光層を形成した。第1成分、第2成分および第3成分の質量比が下の表に記載される比になるように蒸着速度を調節した。次に、TSP01を加熱して膜厚30nmになるように蒸着して電子輸送層を形成した。以上の各層の蒸着速度は0.01~1nm/秒とした。その後、LiFを加熱して膜厚1nmになるように0.01~0.1nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、アルミニウムを加熱して膜厚100nmになるように蒸着して陰極を形成し、有機電界発光素子を得た。このとき、アルミニウムの蒸着速度は1nm~10nm/秒になるように調節した。

[0386]

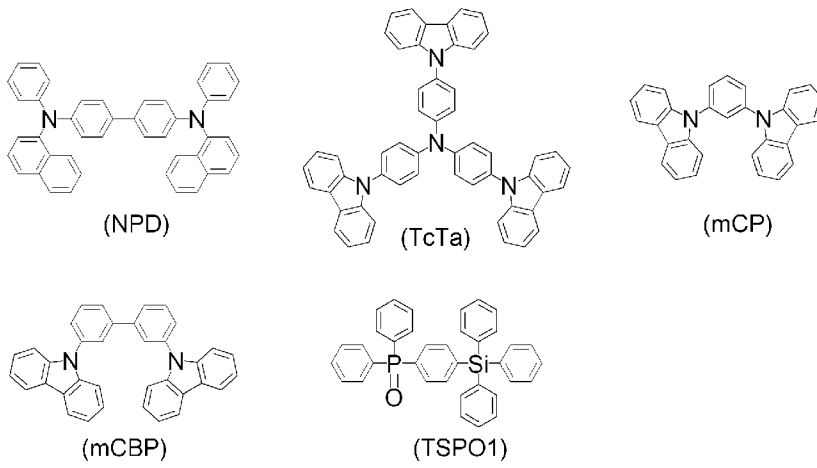
[表6]

(有機電界発光素子の構成A)

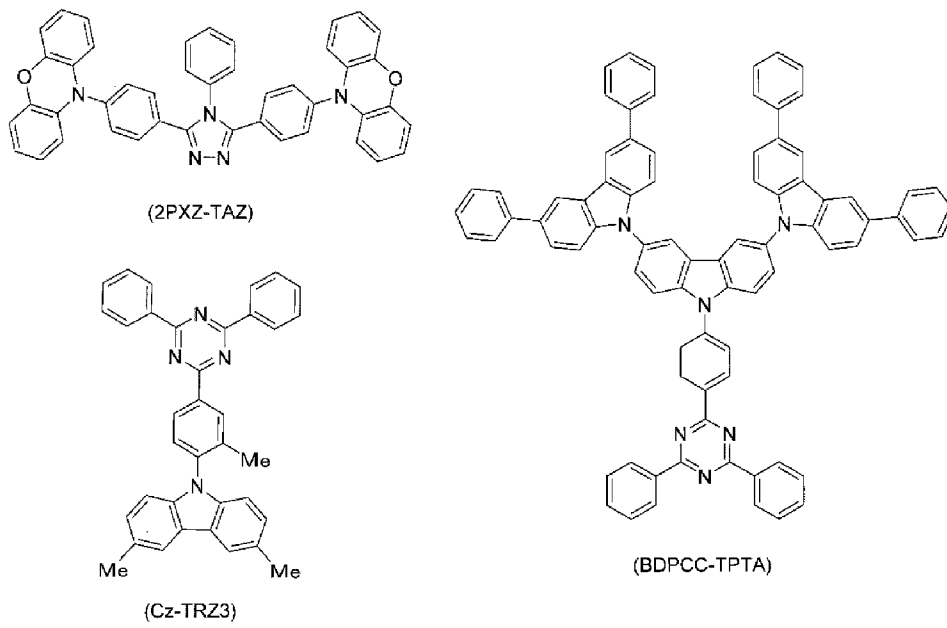
	正孔注入層 (40nm)	正孔輸送層 (15nm)	電子阻止層 (15nm)	発光層 (20nm)			電子輸送層 (30nm)	陰極 (1nm/ 100nm)
				第1成分	第2成分	第3成分		
実施例1-1	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2PXZ-TAZ	ED1	TSP01	LiF/AI
比較例1-1	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2PXZ-TAZ	なし	TSP01	LiF/AI
実施例1-2	NPD	TcTa	mCP	mCBP	BDPCC-TPTA	ED1	TSP01	LiF/AI
比較例1-2	NPD	TcTa	mCP	mCBP	BDPCC-TPTA	なし	TSP01	LiF/AI
実施例1-3	NPD	TcTa	mCP	mCBP	Cz-TRZ3	ED1	TSP01	LiF/AI
比較例1-3	NPD	TcTa	mCP	mCBP	Cz-TRZ3	なし	TSP01	LiF/AI
比較例1-4	NPD	TcTa	mCP	mCBP	なし	ED1	TSP01	LiF/AI

[0387]

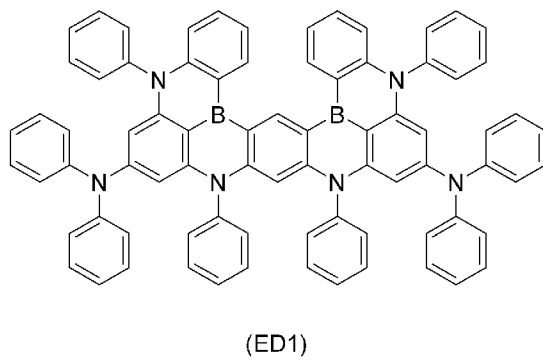
[化175]



[0388] [化176]



[0389] [化177]



[0390] 作製した実施例 1-1 から 1-3 および比較例 1-1 から 1-4 の各有機

電界発光素子について、ITO電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、蛍光ピーク波長、半値幅および外部量子効率を測定した。結果を下の表に示す。なお、下の表におけるE(S, Sh)の関係およびE(T, Sh)の関係は、第1成分、第2成分および第3成分のエネルギー準位の大小関係を示している。例えば、E(S, Sh)の関係において「1>2>3」と表示されているものは、 $E(1, S, Sh) > E(2, S, Sh) > E(3, S, Sh)$ であることを意味している。

[0391] [表7]

	物性の比較		100cd/m ² のときの評価結果		
	E(S,Sh)の関係	E(T,Sh)の関係	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]
実施例1-1	1>2>3	1>3>2	471	19	29.3
比較例1-1	1>2	1>2	471	72	6.5
実施例1-2	1>2>3	1>2>3	471	19	19.4
比較例1-2	1>2	1>2	464	74	10.6
実施例1-3	1>2>3	1>3>2	471	18	24.7
比較例1-3	1>2	1>2	453	76	4.1
比較例1-4	1>3	1>3	471	18	17.5

[0392] 発光色は、実施例1-1から1-3、比較例1-3および比較例1-4が深い青色（ディープブルー）であり、比較例1-1が空色（スカイブルー）から緑がかった青色（グリニッシュブルー）であり、比較例1-2が青色（ブルー）であった。

[0393] 実施例1-1から1-3と比較例1-1から1-4を比較すると、 $E(1, S, Sh) \geq E(2, S, Sh) \geq E(3, S, Sh)$ の関係を満たす第1成分、第2成分および第3成分を組み合わせて発光層に用いたときに、色味が良好で半値幅が狭く、外部量子収率が高くなることが確認された。発光層に第3成分を用いなかったときは半値幅が広くなって外部量子効率が低下し、発光層に第2成分を用いなかった場合は外部量子効率が低下する結果となった。また、発光層に用いる第2成分の構造により与える特性は異なり、D-A-D型の構造を有する2PXZ-TAZを用いた実施例1-1が最も高い

外部量子効率を与えることが確認された。

[0394] <実施例 1-4 から 1-11 および比較例 1-5 >

下の表に記載される材料を用いた点を変更し、その他は実施例 1-1 と同じ手順により、実施例 1-4 から 1-11 および比較例 1-5 の有機電界発光素子を製造した。実施例 1-4、比較例 1-5、実施例 1-5 では第 3 成分の化合物を替え、実施例 1-6 から 1-11 では第 1 成分の化合物を替えている。

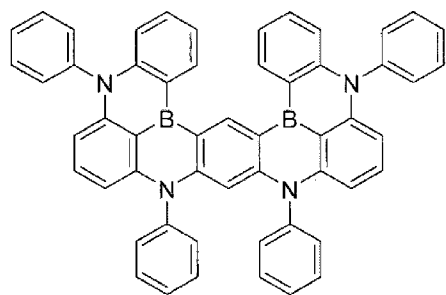
[0395]

[表8]

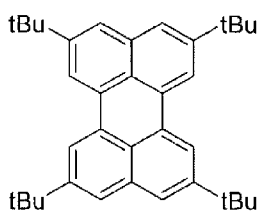
(有機電界発光素子の構成A)

	正孔注入層 (40nm)	正孔輸送層 (15nm)	電子阻止層 (15nm)	発光層 (20nm)				電子輸送層 (30nm)	陰極 (1nm/ 100nm)
				第1成分	第2成分	第3成分	質量比		
実施例1-4	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2PXZ-TAZ	R-BD1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
比較例1-5	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2PXZ-TAZ	R-BD2	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-5	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2PXZ-TAZ	R-BD3	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-6	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Gz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-7	NPD	TcTa	mCP	26DCzPPy	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-8	NPD	TcTa	mCP	POS-DF-C	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-9	NPD	TcTa	mCP	3DBTB	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-10	NPD	TcTa	mCP	DT-3PS-C	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI
実施例1-11	NPD	TcTa	mCP	DFPyDF-C	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	TSPO1	LiF/AI

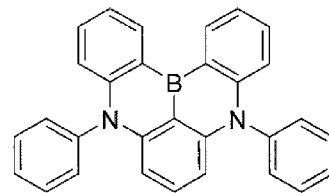
[化178]



R-BD1

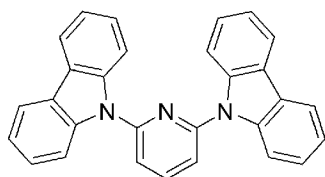


R-BD2

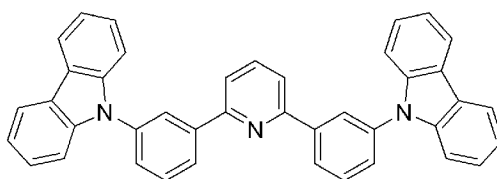


R-BD3

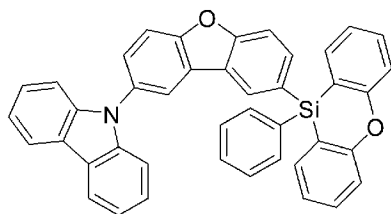
[0397] [化179]



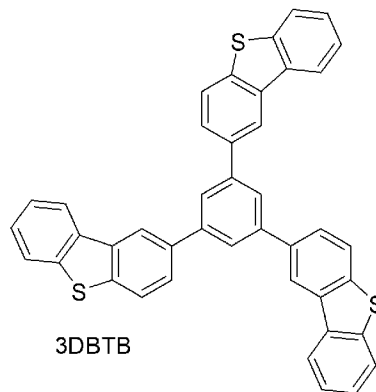
PYD-2Cz



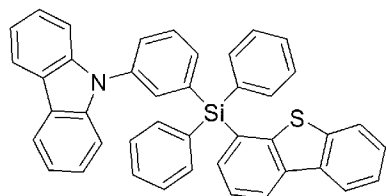
26DCzPPy



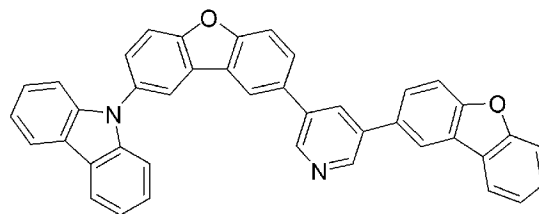
POS-DF-C



3DBTB



DT-3PS-C



DFPyDF-C

[0398] 作製した実施例 1-4 から 1-11 および比較例 1-5 の各有機電界発光素子について、実施例 1-1 と同様に ITO 電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、蛍光ピーク波長、半値幅および外部量子効率を測定した。結果を下の表に示す。

[0399] [表9]

(有機電界発光素子の構成A)	物性の比較		100cd/m ² のときの評価結果			
	E(S,Sh)の関係	E(T,Sh)の関係	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]	
実施例1-4	1>2>3	1>3>2	485	20	13.4	
比較例1-5	1>2>3	1>3>2	461	50	6.9	
実施例1-5	1>2>3	1>2>3	460	28	13.6	
実施例1-6	1>2>3	1>3>2	471	19	27.1	
実施例1-7	1>2>3	1>3>2	471	19	28.0	
実施例1-8	1>2>3	1>3>2	471	18	28.1	
実施例1-9	1>2>3	1>3>2	471	18	24.3	
実施例1-10	1>2>3	1>3>2	471	18	23.5	
実施例1-11	1>2>3	1>3>2	471	18	22.0	

[0400] 実施例1-4から1-11および比較例1-5では、いずれもE(1, S, Sh) ≥ E(2, S, Sh) ≥ E(3, S, Sh)の関係式を満たす第1成分、第2成分および第3成分を組み合わせて発光層に用いているが、第3成分としてホウ素原子を有さない化合物であるR-BD2を用いた比較例1-5よりも、第3成分としてホウ素原子を有する化合物を用いた実施例1-4から1-11の方が半値幅が小さくて外部量子効率が高かった。

また、式(i)の化合物であるRD-3を第3成分として用いた実施例1-5よりも、式(i)の二量体に相当する式(ii)の化合物であるRD-

1やED1を第3成分として用いた実施例1-4および1-6から1-11の方が半値幅が小さくて、より好ましい特性を示した。また、実施例の中では、 $E(1, T, Sh) > E(3, T, Sh) > E(2, T, Sh)$ である実施例1-4および1-6から1-11の方が、 $E(1, T, Sh) > E(2, T, Sh) > E(3, T, Sh)$ である実施例1-5よりも、半値幅が小さくて外部量子効率も同等以上であった。特に、ジアリールアミノ基で置換された構造を有するED1を第3成分として用いた場合には、特に半値幅が小さくて外部量子効率が高く、有機電界発光素子としての特性が一段と優れたものであることが確認された。

[0401] <実施例1-12から1-15および比較例1-6>

下の表に記載される材料を用いた点を変更し、その他は実施例1-1と同じ手順により、実施例1-4から1-11および比較例1-5の有機電界発光素子を製造した。これらの具体例では、第2成分の化合物を替えている。

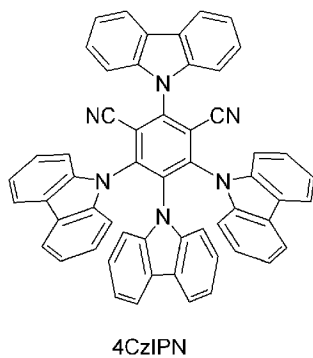
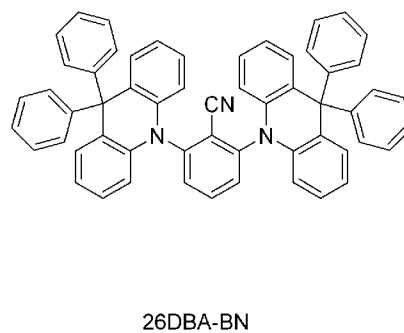
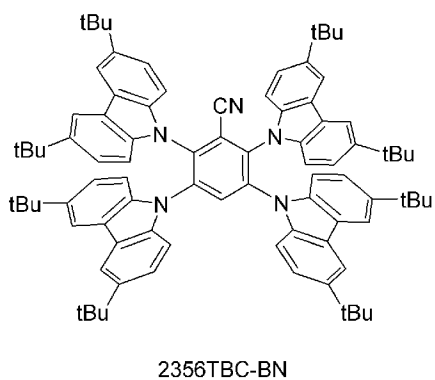
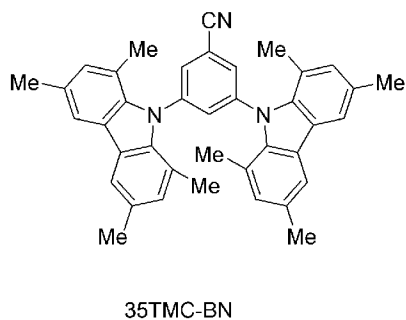
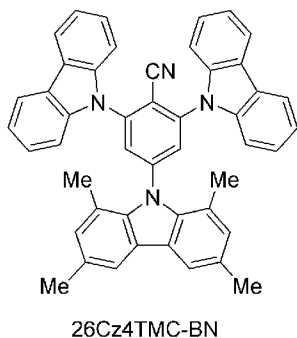
[0402]

[表10]

(有機電界発光素子の構成A)

	正孔注入層 (40nm)	正孔輸送層 (15nm)	電子阻止層 (15nm)	発光層 (20nm)			電子輸送層 (30nm)	陰極 (1nm/ 100nm)
				第1成分	第2成分	第3成分		
実施例1-12	NPD	TcTa	mCP	mCBP	26Cz4TMC-BN	ED1	TSP01	LiF/AI
実施例1-13	NPD	TcTa	mCP	mCBP	35TMC-BN	ED1	TSP01	LiF/AI
実施例1-14	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2356TBC-BN	ED1	TSP01	LiF/AI
実施例1-15	NPD	TcTa	mCP	mCBP	26BDA-BN	ED1	TSP01	LiF/AI
比較例1-6	NPD	TcTa	mCP	mCBP	4CzIPN	ED1	TSP01	LiF/AI

[化180]



[0404] 作製した実施例 1-12 から 1-15 および比較例 1-6 の各有機電界発光素子について、実施例 1-1 と同様に ITO 電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、蛍光ピーク波長、半値幅および外部量子効率を測定した。結果を下の表に示す。

[0405]

[表11]

	物性の比較		100cd/m ² のときの評価結果		
	E(S,Sh)の関係	E(T,Sh)の関係	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]
実施例1-12	1>2>3	1>3>2	471	19	22.8
実施例1-13	1>2>3	1>3>2	471	19	23.1
実施例1-14	1>2>3	1>3>2	471	18	24.4
実施例1-15	1>2>3	1>3>2	471	18	24.3
比較例1-6	1>3>2	1>3>2	479	25	15.8

[0406] $E(1, S, Sh) \geq E(2, S, Sh) \geq E(3, S, Sh)$ の関係を満たす第1成分、第2成分および第3成分を組み合わせて発光層に用いた実施例1-12から1-15が、 $E(1, S, Sh) \geq E(2, S, Sh) \geq E(3, S, Sh)$ の関係を満たさない比較例1-6よりも半値幅が狭く、外部量子収率が高かった。また、実施例1-12から1-15の結果は、第2成分の種類を替えても、良好な特性が維持されることを示している。

[0407] <実施例1-16から1-26>

下の表に記載される材料を用いて、電子輸送層を厚み10nmの電子輸送層1と厚み20nmの電子輸送層2の2層形成して構成Bとした点を変更し、その他は実施例1-1と同じ手順により、実施例1-16から1-26の有機電界発光素子を製造した。実施例1-23の電子輸送層2は、BPY-TP2およびLiqを加熱してそれぞれの比が質量比で7:3になるように膜厚20nmに蒸着することにより形成した。また、実施例1-24の電子輸送層2は、SF3-TRZおよびLiqを加熱してそれぞれの比が質量比で7:3になるように膜厚20nmに蒸着することにより形成した。

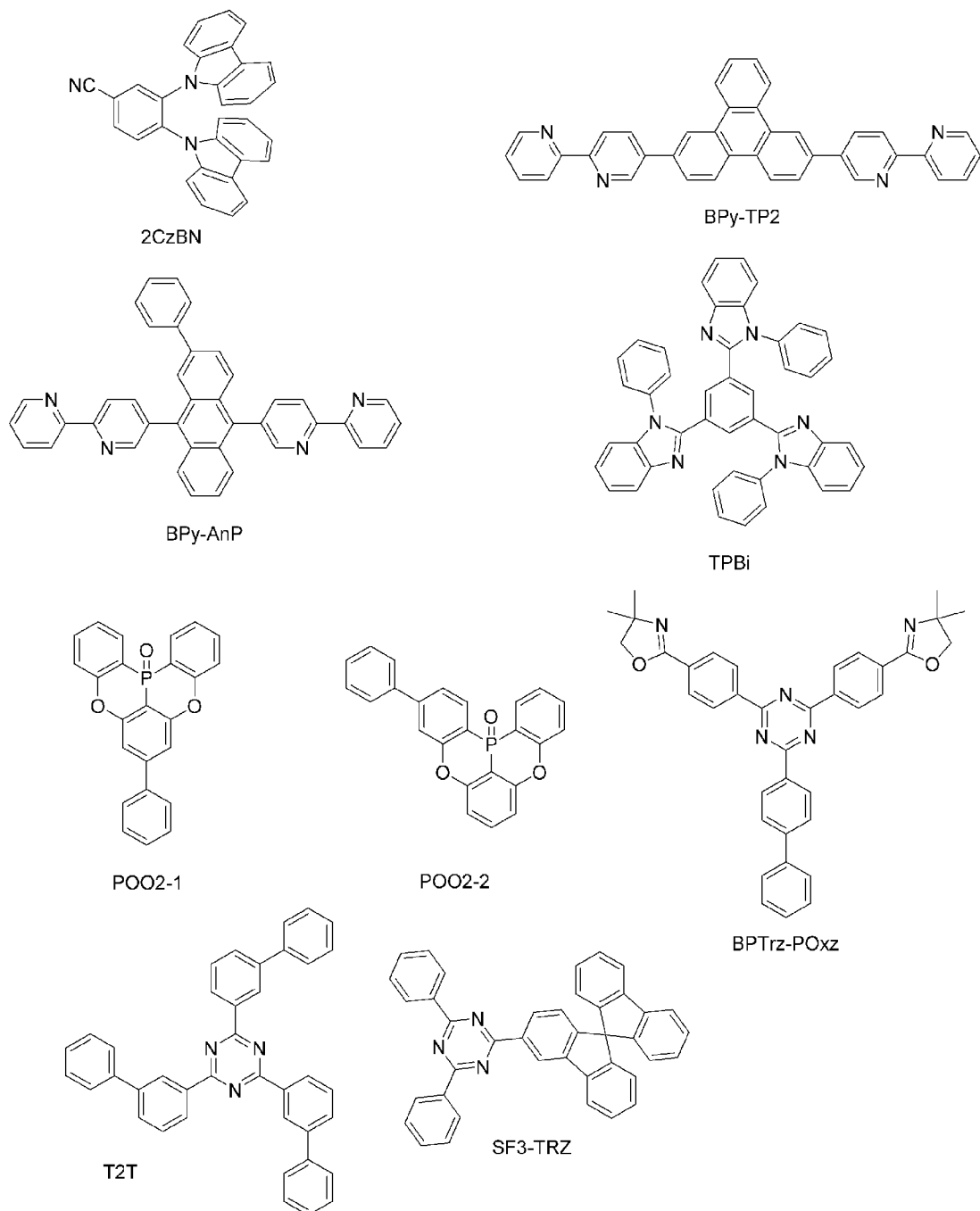
[0408]

[表12]

(有機電界発光素子の構成B)

	正孔注入層 (40nm)	正孔輸送層 (15nm)	電子阻止層 (15nm)	発光層 (20nm)				電子輸送層1 (10nm)	電子輸送層2 (20nm)	陰極 (1nm/ 100nm)
				第1成分	第2成分	第3成分	質量比			
実施例1-16	NPD	TcTa	mCP	mCBP	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	BPy-TP2	LiF/Al
実施例1-17	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	BPy-TP2	LiF/Al
実施例1-18	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	Bpy-AnP	LiF/Al
実施例1-19	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	SF3-TRZ	LiF/Al
実施例1-20	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	TPBi	LiF/Al
実施例1-21	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	T2T	TPBi	LiF/Al
実施例1-22	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	POO2-1	BPy-TP2	LiF/Al
実施例1-23	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	POO2-2	BPy-TP2	LiF/Al
実施例1-24	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	BPTrz-POxz	BPy-TP2	LiF/Al
実施例1-25	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	BPy-TP2+ Liq(7:3)	LiF/Al
実施例1-26	NPD	TcTa	mCP	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	90/9/1	2CzBN	SF3-TRZ+ Liq(7:3)	LiF/Al

[化181]



[0410] 作製した実施例 1-16 から 1-26 の各有機電界発光素子について、実施例 1-1 と同様に ITO 電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、蛍光ピーク波長、半値幅、外部量子効率を測定し、さらに素子寿命 (LT50) も測定した。結果を下の表に示す。

[0411]

[表13]

(有機電界発光素子の構成B)	物性の比較		100cd/m ² のときの評価結果				
	E(S,Sh)の関係	E(T,Sh)の関係	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]	LT50 [hr]	
	実施例1-16	1>2>3	1>3>2	471	19	22.3	120
実施例1-17	1>2>3	1>3>2	471	18	24.5	154	
実施例1-18	1>2>3	1>3>2	471	19	20.9	144	
実施例1-19	1>2>3	1>3>2	471	19	23.7	149	
実施例1-20	1>2>3	1>3>2	471	19	17.4	102	
実施例1-21	1>2>3	1>3>2	471	18	23.2	112	
実施例1-22	1>2>3	1>3>2	471	19	21.9	131	
実施例1-23	1>2>3	1>3>2	471	18	21.8	132	
実施例1-24	1>2>3	1>3>2	471	18	22.5	102	
実施例1-25	1>2>3	1>3>2	471	18	21.0	111	
実施例1-26	1>2>3	1>3>2	471	19	20.4	115	

[0412] 実施例1-16から1-26において、電子輸送層を2層形成した有機電界発光素子においても良好な特性を示すことが確認された。また、いずれの有機電界発光素子も十分な素子寿命を有することが確認された。

[0413] <実施例1-27から1-55および比較例1-7>

下の表に記載される材料を用いた点を変更し、その他は実施例1-14と同じ手順により、実施例1-27から1-55および比較例1-7の構成B

の有機電界発光素子を製造した。実施例1-27から1-55では、式(i)で表される多様な化合物を第3成分として用いて評価した。

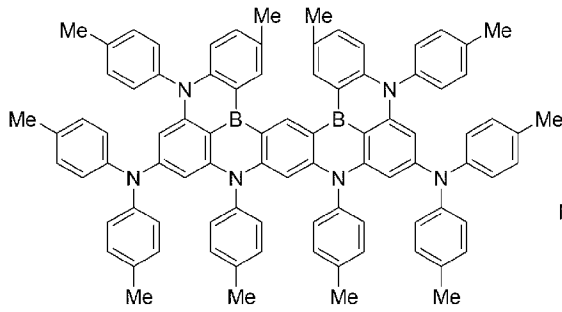
[0414] [表14]

(有機電界発光素子の構成B)

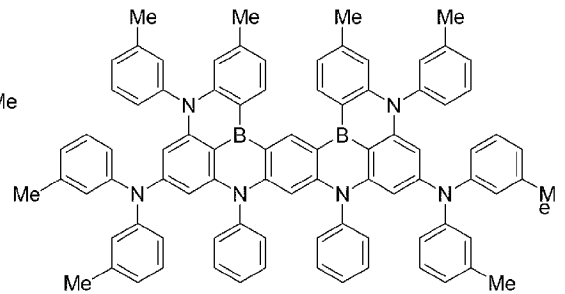
	正孔注入層 (40nm)	正孔輸送層 (15nm)	電子阻止層 (15nm)	発光層 (20nm)				電子輸送層1 (10nm)	電子輸送層2 (20nm)	陰極 (1nm/100nm)
				第1成分	第2成分	第3成分	質量比			
実施例1-27	NPD	TcTa	mCP	mOBP	2PXZ-TAZ	R-BD1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
比較例1-7	NPD	TcTa	mCP	mOBP	2PXZ-TAZ	R-BD2	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-28	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M1	90/9/1	2CzBN	B2PAn	LiF/Al
実施例1-29	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M2	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-30	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M3	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-31	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M4	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-32	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M5	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-33	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-F1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-34	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-F2	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-35	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-F3	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-36	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-D1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-37	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-D2	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-38	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-D3	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-39	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0220/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-40	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0230/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-41	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0231/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-42	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0211/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-43	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0221/S-M1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-44	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BON-0230/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-45	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BON-0231/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-46	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BON-0211/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-47	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BON-0221/S-M1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-48	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N202-0230/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-49	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N202-0231/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-50	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N202-0211/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-51	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N202-0220/S-M1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-52	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0230/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-53	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0211/S	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-54	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0220/S-M1	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al
実施例1-55	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0220/S-M2	90/9/1	2CzBN	BP _y -TP2	LiF/Al

[0415]

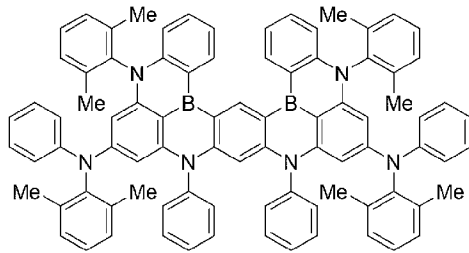
[化182]



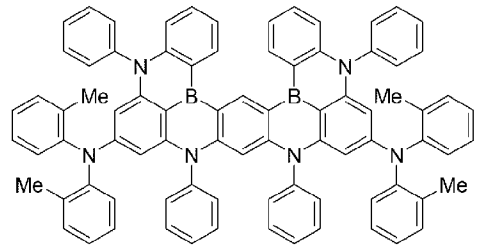
B2N4-0230/S-M1



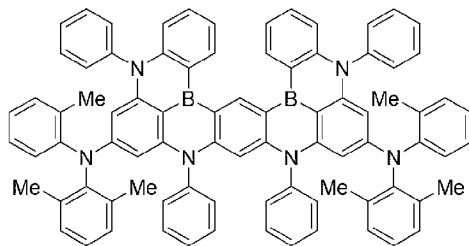
B2N4-0230/S-M2



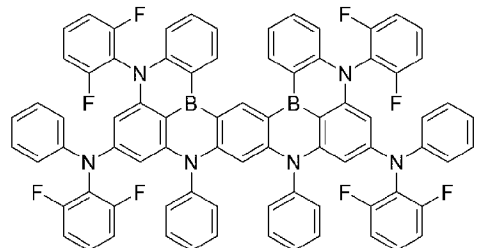
B2N4-0230/S-M3



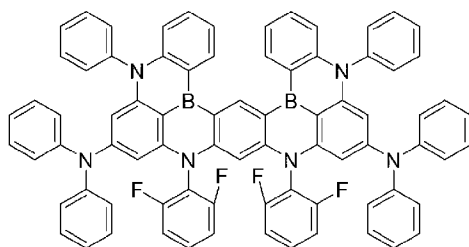
B2N4-0230/S-M4



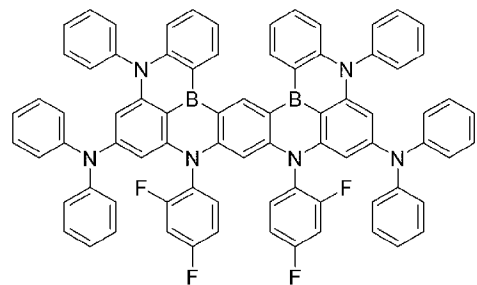
B2N4-0230/S-M5



B2N4-0230/S-F1



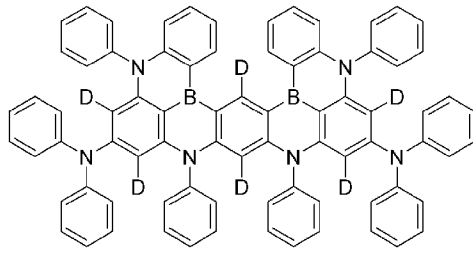
B2N4-0230/S-F2



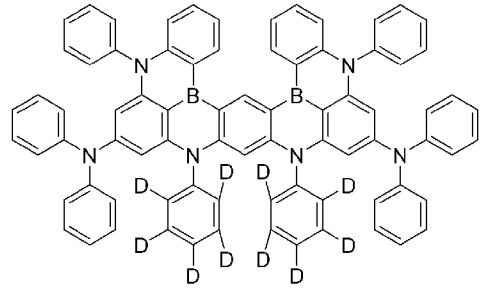
B2N4-0230/S-F3

[0416]

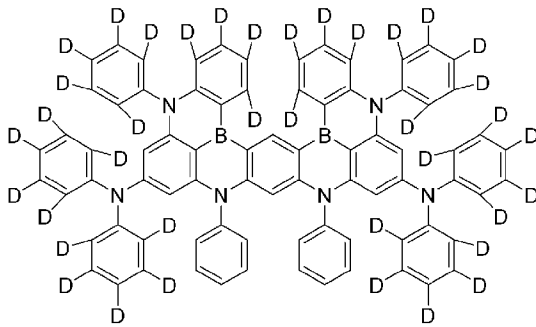
[化183]



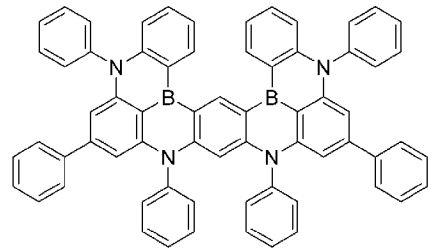
B2N4-0230/S-D1



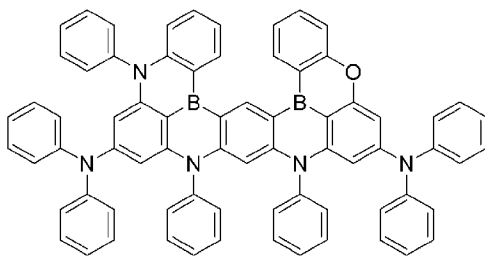
B2N4-0230/S-D2



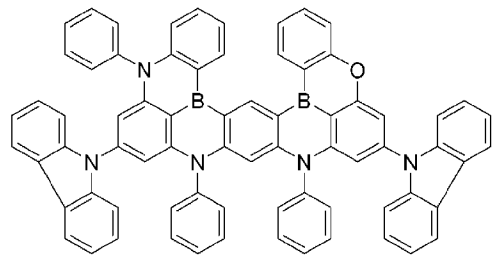
B2N4-0230/S-D3



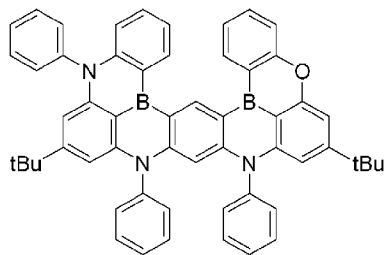
B2N4-0220/S



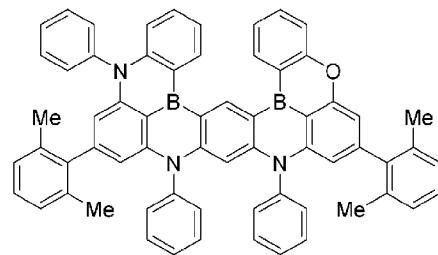
BN2/BNO-0230/S



BN2/BNO-0231/S



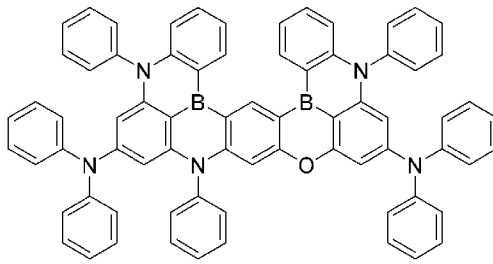
BN2/BNO-0221/S



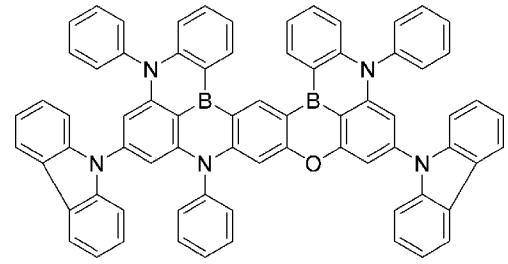
BN2/BNO-0221/S-M1

[0417]

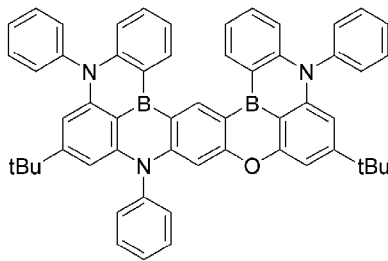
[化184]



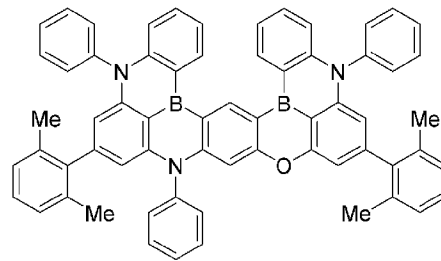
BN2/BON-0230/S



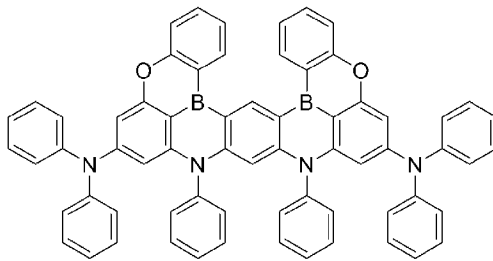
BN2/BON-0231/S



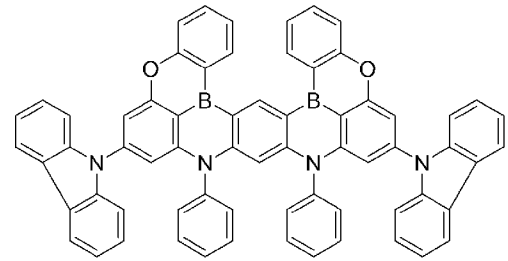
BN2/BON-0211/S



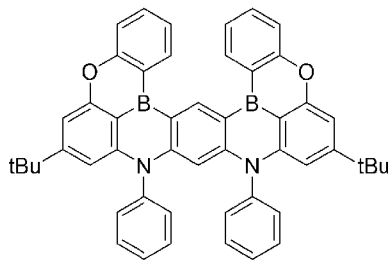
BN2/BON-0221/S-M1



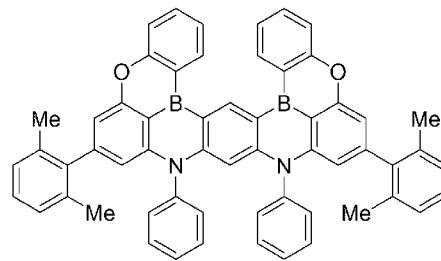
B2N2O2-0230/S



B2N2O2-0231/S



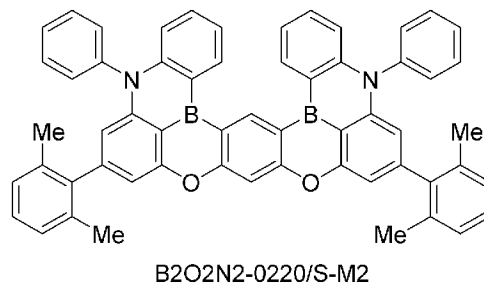
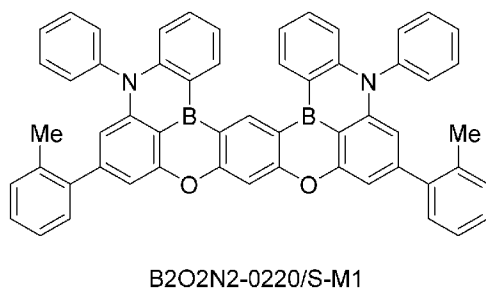
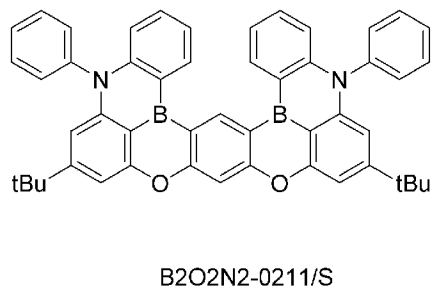
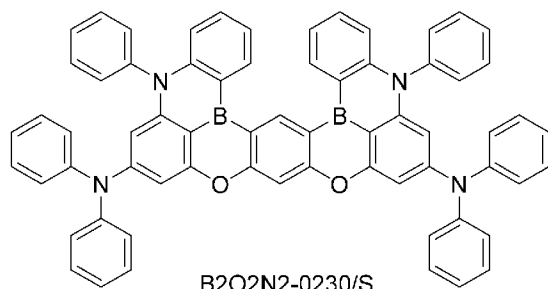
B2N2O2-0211/S



B2N2O2-0220/S-M1

[0418]

[化185]



[0419] 作製した実施例 1 - 2 7 から 1 - 5 5 と比較例 1 - 7 の各有機電界発光素子について、実施例 1 - 1 6 と同様に I T O 電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、蛍光ピーク波長、半値幅、外部量子効率、素子寿命 (L T 5 0) を測定した。結果を以下の表に示す。

[0420]

[表15]

	物性の比較				100cd/m ² のときの評価結果			
	E(S,Sh)の關係	E(T,Sh)の關係	ΔE(3,ST,Sh)	ΔE(ST,Sh)の關係	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]	LT50 [hr]
実施例1-27	1>2>3	1>3>2	-0.03	2>3	485	20	11.2	88
比較例1-7	1>2>3	1>2>3	大きい	27.00	461	50	5.9	50
実施例1-28	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	472	18	24.0	154
実施例1-29	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	475	18	24.0	147
実施例1-30	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	475	18	23.5	150
実施例1-31	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	465	18	23.3	154
実施例1-32	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	465	18	23.2	154
実施例1-33	1>2>3	1>3>2	0.02	2>3	465	18	22.9	103
実施例1-34	1>2>3	1>3>2	0.00	2>3	464	18	21.5	110
実施例1-35	1>2>3	1>3>2	0.02	2>3	459	18	21.8	97
実施例1-36	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	472	18	20.5	151
実施例1-37	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	472	18	23.7	150
実施例1-38	1>2>3	1>3>2	0.01	2>3	472	18	23.5	152
実施例1-39	1>2>3	1>2>3	0.08	2>3	472	18	22.7	150
実施例1-40	1>2>3	1>3>2	0.02	2>3	490	19	21.5	138
実施例1-41	1>2>3	1>3>2	0.08	2>3	464	20	21.9	146
実施例1-42	1>2>3	1>3>2	0.10	2>3	468	24	20.0	138
実施例1-43	1>2>3	1>3>2	0.09	2>3	470	23	20.6	131
実施例1-44	1>2>3	1>3>2	0.04	2>3	468	22	20.3	133
実施例1-45	1>2>3	1>3>2	0.08	2>3	475	21	21.0	145
実施例1-46	1>2>3	1>3>2	0.11	2>3	478	24	19.8	132
実施例1-47	1>2>3	1>3>2	0.10	2>3	480	23	20.2	125
実施例1-48	1>2>3	1>3>2	0.11	2>3	477	22	20.4	128
実施例1-49	1>2>3	1>3>2	0.14	2>3	460	19	19.9	124
実施例1-50	1>2>3	1>3>2	0.12	2>3	467	23	18.1	114
実施例1-51	1>2>3	1>3>2	0.12	2>3	474	22	19.1	110
実施例1-52	1>2>3	1>3>2	0.11	2>3	471	21	19.6	111
実施例1-53	1>2>3	1>3>2	0.14	2>3	454	19	20.3	123
実施例1-54	1>2>3	1>3>2	0.12	2>3	462	23	19.0	111
実施例1-55	1>2>3	1>3>2	0.12	2>3	469	22	19.8	100

[0421] 実施例1-27から1-55および比較例1-7では、いずれもE(1, S, Sh) ≥ E(2, S, Sh) ≥ E(3, S, Sh)を満たす第1成分、第2成分および第3成分を組み合わせて発光層に用いているが、第3成分としてホウ素原子を有さない化合物であるR-BD2を用いた比較例1-7よりも、第3成分としてホウ素原子を有する化合物を用いた実施例1-27から1-55の方が半値幅が小さくて外部量子効率が高く素子寿命も長かった。

実施例1-27から1-38および1-40から1-55は、いずれもE

$(1, T, S h) > E(3, T, S h) \geq E(2, T, S h)$ の関係式を満たすため、素子寿命が長く外部量子効率も高かった。一方、 $E(1, T, S h) > E(2, T, S h) > E(3, T, S h)$ である有機電界発光素子のうち、実施例 1-39 は $\Delta E(3, S T, S h)$ が 0.08 eV で十分に低いことから、半値幅が小さく外部量子効率が高かった。一方、比較例 1-7 は、第 3 成分である R-BD2 からの燐光発光が認められず、 $\Delta E(3, S T, S h)$ が大きいことから、半値幅が大きくて外部量子効率が低かった。

実施例 1-27 から 1-55 は、いずれも式 (i) で表される構造を有する。式 (i) の骨格が二量化した多量体骨格を有するとともに、骨格が対称形を有していることから、良好な特性を示すものと考えられる。

[0422] <実施例 1-56 から 1-72 および比較例 1-8>

下の表に記載される材料を用いた点を変更し、その他は実施例 1-14 と同じ手順により、実施例 1-56 から 1-72 および比較例 1-8 の構成 B の有機電界発光素子を製造した。実施例 1-56 から 1-72 では、式 (i) で表される多様な化合物を第 3 成分として用いて評価した。

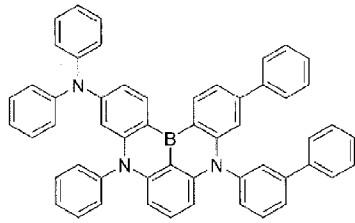
[0423]

[表16]

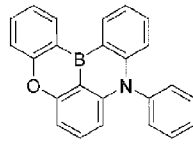
(有機電界発光素子の構成B)

	正孔注入層 (40nm)	正孔輸送層 (15nm)	電子阻止層 (15nm)	発光層 (20nm)				電子輸送層1 (10nm)	電子輸送層2 (20nm)	陰極 (1nm/ 100nm)
				第1成分	第2成分	第3成分	質量比			
実施例1-56	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD3	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-57	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD4	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-58	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0611S/0911S	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-59	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0210/0611S/0911S	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-60	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-61	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0230	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-62	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0530	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-63	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0210/0620	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-64	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0220/0620/0920-M1	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-65	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0220/0611/0911-M1	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-66	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0220/0620/0920-MF3	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
比較例1-8	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD5	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-67	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-3b30	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-68	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-3b30/0920S	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-69	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-3b30/0920-M1	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-70	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-0220/3b30/0920-M1	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-71	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BOmN-0530/1020S	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al
実施例1-72	NPD	TcTa	mCP	PDY-2Cz	2PXZ-TAZ	BOmN-3b30	90/9/1	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al

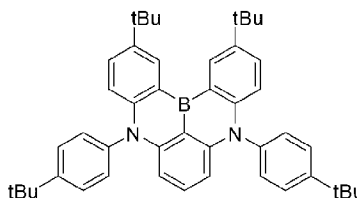
[化186]



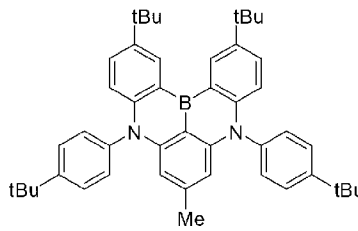
R-BD4



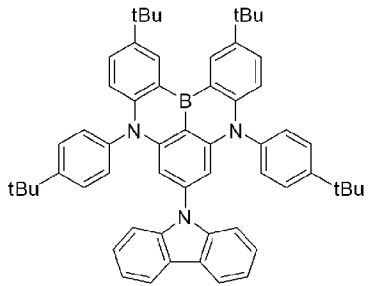
R-BD5



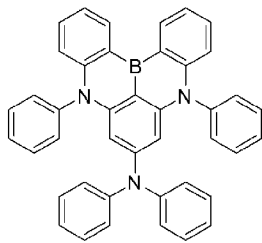
BN2-0611S/0911S



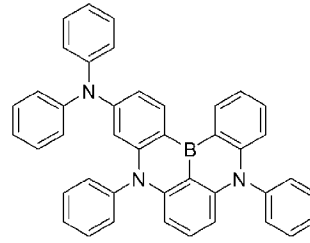
BN2-0210/0611S/0911S



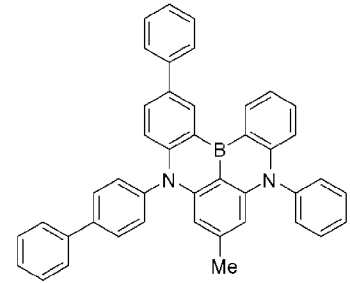
BN2-0231/0611S/0911S



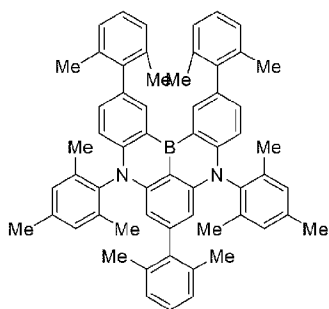
BN2-0230



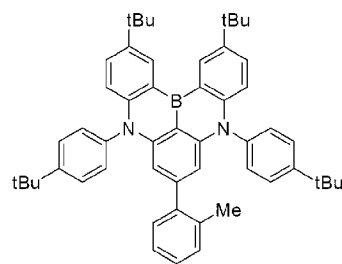
BN2-0530



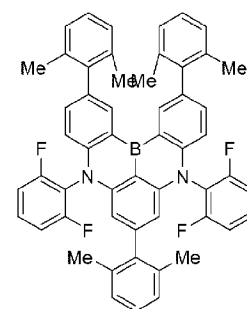
BN2-0210/0620



BN2-0220/0620/0920-M1



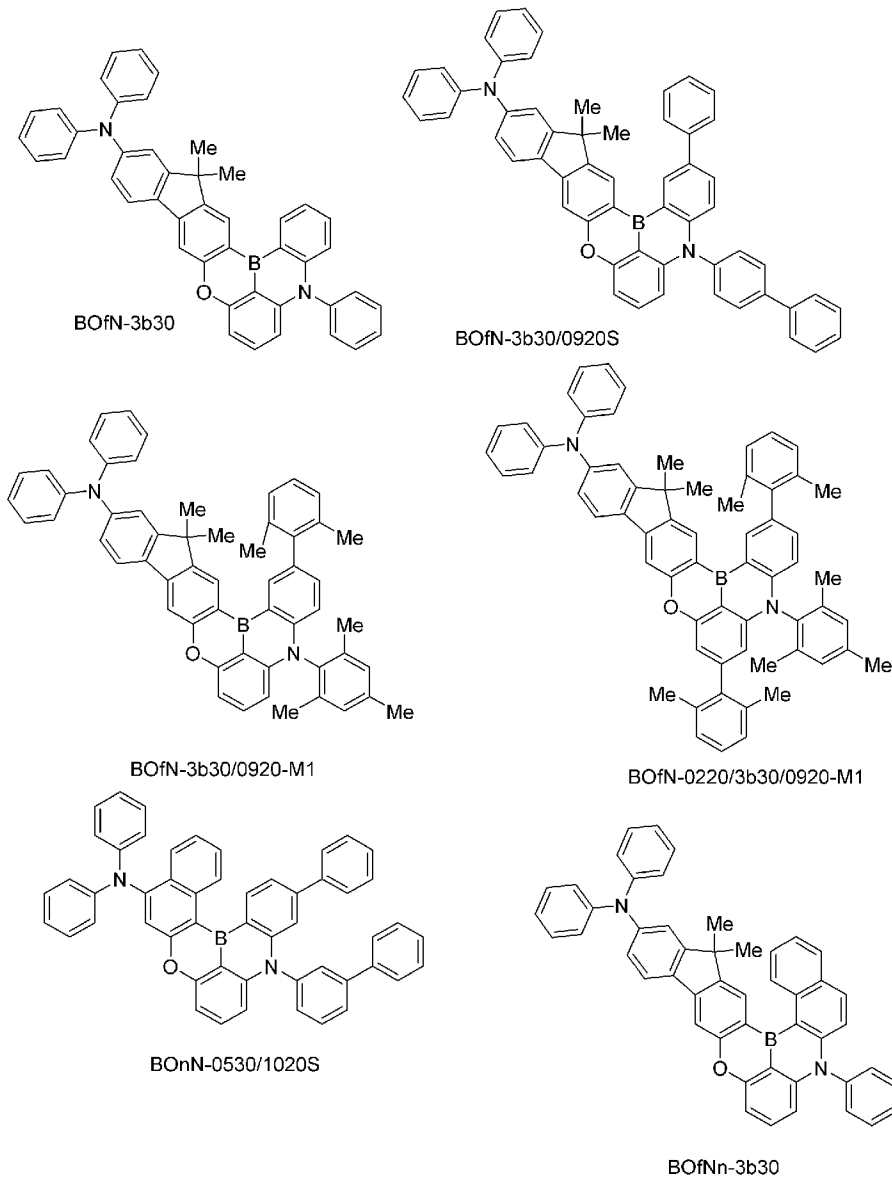
BN2-0220/0611/0911-M1



BN2-0220/0620/0920-MF3

[0425]

[化187]



[0426] 作製した実施例 1-56 から 1-72 と比較例 1-8 の各有機電界発光素子について、実施例 1-16 と同様に ITO 電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、蛍光ピーク波長、半値幅、外部量子効率、素子寿命 (LT50) を測定した。E (3, T, Sh) が 0.3 eV 未満であって、 $\Delta E (2, ST, Sh)$ が $\Delta E (3, ST, Sh)$ よりも大きい実施例 1-56 から 1-66 および比較例 1-8 の測定結果を以下の表に示す。また、E (3, T, Sh) が 0.3 eV 以上であって、 $\Delta E (3, ST, Sh)$ が $\Delta E (2, ST, Sh)$ よりも大きい実施例 1-67 から 1-72

の測定結果について、後掲の表に示す。

[0427] [表17]

	物性の比較			100cd/m ² のときの評価結果				
	E(S,Sh)の 関係	$\Delta E(3,ST,Sh)$	$\Delta E(ST,Sh)$ の関係	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]	LT50 [hr]	
実施例1-56	1>2>3	0.19	2>3	466	28	12.3	87	
実施例1-57	1>2>3	0.18	2>3	470	30	13.2	95	
実施例1-58	1>2>3	0.23	2>3	463	27	14.6	115	
実施例1-59	1>2>3	0.21	2>3	462	27	14.9	116	
実施例1-60	1>2>3	0.19	2>3	459	27	16.8	113	
実施例1-61	1>2>3	0.16	2>3	458	26	14.0	108	
実施例1-62	1>2>3	0.19	2>3	463	27	13.4	99	
実施例1-63	1>2>3	0.21	2>3	466	28	12.9	96	
実施例1-64	1>2>3	0.17	2>3	469	24	15.5	109	
実施例1-65	1>2>3	0.24	2>3	467	24	13.0	101	
実施例1-66	1>2>3	0.17	2>3	454	24	15.0	111	
比較例1-8	1>2>3	0.21	2>3	448	26	12.8	70	

[0428] その結果、 $E(1, S, Sh) \geq E(2, S, Sh) \geq E(3, S, Sh)$ の関係を満たす第1成分、第2成分および第3成分を組み合わせて発光層に用

いた実施例 1-56 から 1-72 の素子寿命 (LT50) が長い反面、 $E(1, S, Sh) \geq E(2, S, Sh) \geq E(3, S, Sh)$ の関係を満たさない比較例 1-8 の素子寿命 (LT50) が短いことが確認された。

実施例 1-56 から 1-72 の半値幅は 22~30 nm の範囲内であり、外部量子効率 は 12.0~16.8% の範囲内であり、素子寿命 (LT50) は 82~116 時間の範囲内であった。いずれも良好な特性ではあるが、上記の実施例 1-27 から 1-55 の方がさらに良好な特性を示した。このことは、式 (i) で表される構造を有する化合物を第 3 成分として用いる場合よりも、式 (ii) のように式 (i) が多量化した構造を有する化合物を第 3 化合物として用いる方が、特性が一段と良好になることを示している。

[0429] この傾向は、実施例 1-27 から 1-72 で用いた第 3 成分の化合物を基本骨格の構造別に分類して、各基本骨格ごとに半値幅、外部量子効率および素子寿命 (LT50) の各データを平均してグラフにした図 8 から明らかである。図 8 では、B2N2O2、B2N4、B2O2N2、BN2、BN2/BN0、BN2/BON、BONf、B0nN、BN2、BON の各基本骨格を有する化合物別に半値幅、外部量子効率および素子寿命 (LT50) を平均してグラフ化した結果を順に示している。基本骨格を示す B2N2O2、B2N4、B2O2N2、BN2、BN2/BN0、BN2/BON、BONf、B0nN、BN2、BON は、本明細書で参照している第 3 成分の各化合物の略号の一部として含まれている。図 7 には、これらの各基本骨格を有する化合物の Tau(Delay) とストークスシフトを平均してグラフ化した結果も示す。図 7 と図 8 を見ると、Tau(Delay) が小さいものが素子寿命 (LT50) が長く、また、半値幅が狭くて、外部量子効率も高い傾向があることがうかがえる。式 (ii) で表される化合物は式 (i) で表される化合物よりも Tau(Delay) が小さく、式 (ii) で表される化合物を第 3 成分として用いた有機電界発光素子の特性がより優れたものになっている。式 (ii) で表される化合物の中でも、特に B2N4 の基本骨格を有する化合物が好ましい。

[0430] Tau(Delay) が小さい式 (ii) で表される化合物を第 3 成分として用いた実施例 1-27 から 1-55 の測定結果に基づいて、基本骨格に置換する置

置換基の種類と半値幅、外部量子効率および素子寿命 (LT50) の関係をグラフ化して図10に示した。図9には、置換基ごとのTau(Delay)とストークスシフトの平均値のグラフを示す。図9および図10では、カルバゾリル (Cz)、ジフェニルアミノ (DPA)、ジフェニルアミノとフッ素原子の両方 (DPA&F)、フェニル (Ph)、tert-ブチル (tBu) で置換された化合物に分けてグラフ化している。なお、ジフェニルアミノ (DPA) とフェニル (Ph) はアルキル置換されているものを含む。図9および図10より、ジフェニルアミノ (DPA) で置換されている化合物がTau(Delay)もストークスシフトもともに小さくて、素子寿命 (LT50) が長く、また、半値幅が狭くて、外部量子効率も高い。ただし、ジフェニルアミノとともにフッ素原子でも置換されたDPA&Fは、素子寿命 (LT50) がジフェニルアミノ単独で置換された場合ほど長くない。置換基としてはジフェニルアミノ (DPA) が素子特性の改善に特に優れた効果を示し、カルバゾリル (Cz)、フェニル (Ph)、tert-ブチル (tBu) も良好な効果を示す。

[0431] 図11は、式(i)で表される化合物を第3成分として用いた実施例1-56から1-66の測定結果に基づいて、基本骨格に置換する置換基の種類とストークスシフトの平均値および半値幅の平均値との関係をグラフ化したものである。フェニル (Ph) で置換されている化合物のストークスシフトが小さくて、半値幅が狭いことが確認された。特にオルト位がアルキル置換されたフェニル基の効果が優れていた。

[0432] 図7によると、式(i)で表される化合物であるBONfとBOnNのストークスシフトが小さいことが示されている。BONfとBOnNはいずれも $\Delta E(3, ST, Sh)$ が0.3eV超でやや大きいため、これらの化合物を第3成分として用いた実施例1-67から1-72は $E(1, T, Sh) > E(2, T, Sh) > E(3, T, Sh)$ の関係にあり、また、 $\Delta E(3, ST, Sh) > \Delta E(2, ST, Sh)$ の関係にある。このような実施例1-67から1-72について、第3成分のストークスシフトと素子特性の評価結果を以下の表に示す。下の表の結果は、ストークスシフトが小さい

方が、素子寿命 (LT50) が長くなる傾向を示している。このことから、 $E(1, T, Sh) > E(2, T, Sh) > E(3, T, Sh)$ の関係にある場合であっても、第3成分としてストークスシフトが小さい化合物を用いれば素子特性を良好になることが示された。

[0433]

[表18]

	物性の比較					100cd/m ² のときの評価結果				
	E(S,Sh)の關係	E(T,Sh)の關係	$\Delta E(3,ST,Sh)$	$\Delta E(ST,Sh)$ の關係	ストークスシフト [nm]	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]	LT50 [hr]	
実施例1-67	1>2>3	1>2>3	0.32	3>2	9	458	22	15.2	94	
実施例1-68	1>2>3	1>2>3	0.34	3>2	10	459	24	15.0	91	
実施例1-69	1>2>3	1>2>3	0.32	3>2	9	458	22	15.2	94	
実施例1-70	1>2>3	1>2>3	0.32	3>2	9	458	22	15.5	100	
実施例1-71	1>2>3	1>2>3	0.38	3>2	15	464	30	12.0	82	
実施例1-72	1>2>3	1>2>3	0.33	3>2	8	462	22	15.9	97	

[0434] 4. 発光層形成用組成物

次に、本発明をさらに詳細に説明するために、本発明の発光層形成用組成物の具体例とその評価結果を示すが、本発明はこれらの具体例に限定されない。

[0435] <実施例 2-1 から 2-3 2>

下の表に示す第1成分、第2成分、第3成分および第4成分を表に記載される比率で混合して攪拌することにより、発光層形成用組成物を調製した。表中、第4成分として用いているT o lはトルエン、D H N pはデカヒドロナフタレン、3 P x Tは3-フェノキシトルエン、c 6 Bはシクロヘキシルベンゼン、A n i sはアニソール、X y lはキシレン（混合物）、1 M N pは1-メチルナフタレン、8 Bはn-オクチルベンゼン、D P Eはジフェニルエーテル、4 F A n i sは4-フルオロアニソールである。

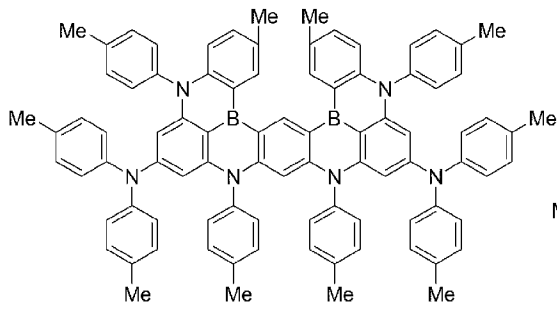
[0436]

[表19]

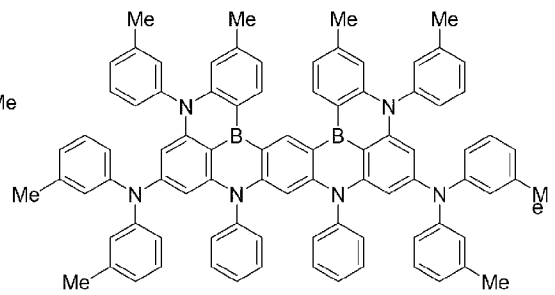
	発光層形成用組成物					
	成分と比率					固形分濃度 [質量%]
	第1成分	第2成分	第3成分	第4成分	質量比	
実施例2-1	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	ED1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-2	26DGzPPy	2PXZ-TAZ	ED1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-3	DFPyDF-C	2PXZ-TAZ	ED1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-4	PYD-2Cz	26Cz4TMC-BN	ED1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-5	PYD-2Cz	35TMC-BN	ED1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-6	PYD-2Cz	BP-2DPA	ED1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
比較例2-1	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD1	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
比較例2-2	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD2	Tol+DHNp(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-7	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M1	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-8	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M2	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-9	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M3	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-10	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M4	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-11	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2N4-0230/S-M5	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-12	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0230/S-M1	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-13	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0230/S-M2	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-14	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2/BNO-0231/S-M1	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-15	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0211/S-M1	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-16	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0221/S-M1	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-17	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	B2O2N2-0221/S-M2	3PxT+c6B(9:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-18	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD3	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-19	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0210/0611S/0911S	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-20	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-21	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0220/0620/0920-M1	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-22	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-3b30	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-23	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-3b30/0920-M1	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-24	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BONf-3b30	Tol+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-25	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	Anis+DHNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-26	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	Xyl+1MNp(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-27	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	3PxT+c6B(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-28	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	8B+DPE(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-29	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	c6B+DPE(7:3)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-30	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	c6B+3PxT+4FAnis(6:3:1)	0.9/0.09/0.01/99	1
実施例2-31	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	3PxT+c6B(7:3)	1.8/0.18/0.02/98	2
実施例2-32	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	3PxT+c6B(7:3)	1.4/0.58/0.02/98	2
実施例2-33	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0231/0611S/0911S	3PxT+c6B(7:3)	1.6/0.39/0.01/98	2

[0437]

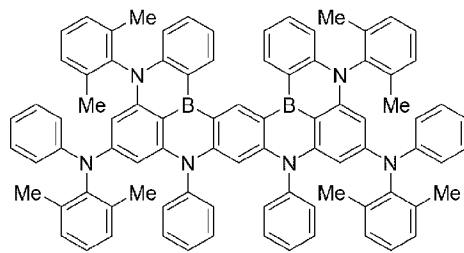
[化188]



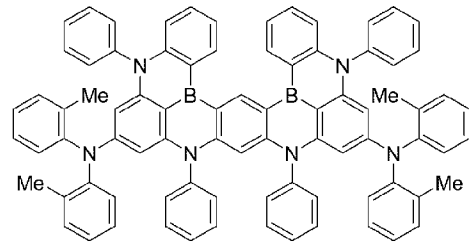
B2N4-0230/S-M1



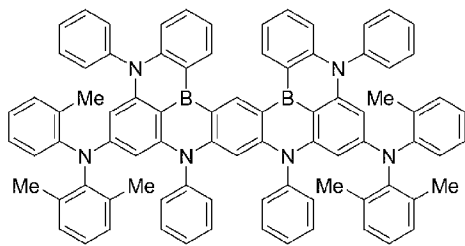
B2N4-0230/S-M2



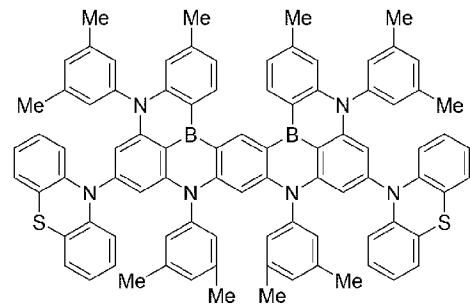
B2N4-0230/S-M3



B2N4-0230/S-M4



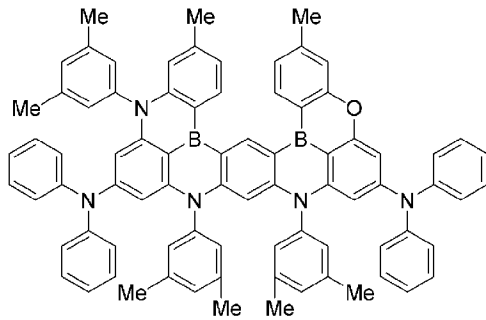
B2N4-0230/S-M5



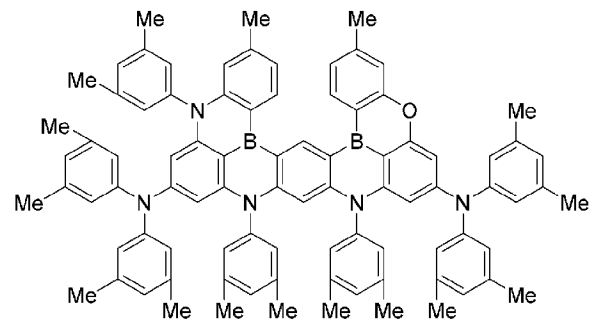
B2N4-0234/S-M1

[0438]

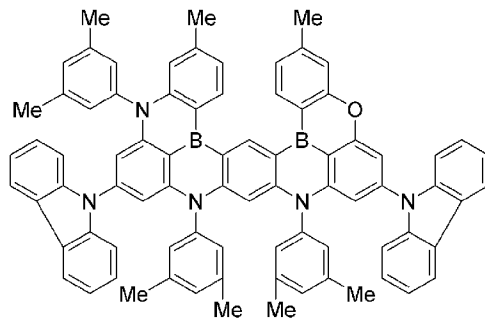
[化189]



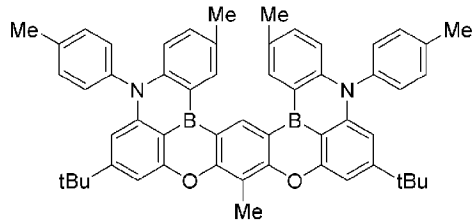
BN2/BNO-0230/S-M1



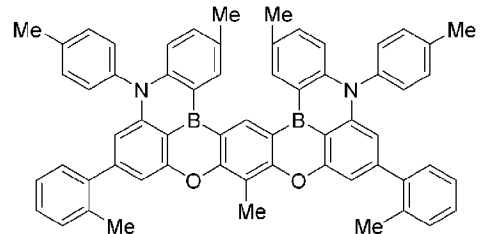
BN2/BNO-0230/S-M2



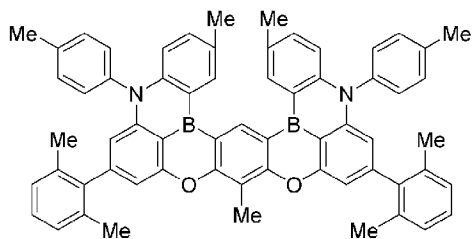
BN2/BNO-0231/S-M1



B2O2N2-0211/S-M1



B2O2N2-0221/S-M1



B2O2N2-0221/S-M2

[0439] 調製した各発光層形成用組成物について、以下の評価を行った。

[0440] (1) 溶解性評価

インクジェット塗布用インク組成物としての有用性を評価するために、各発光層形成用組成物の濁りおよび沈殿を確認して溶解性を評価した。濁りお

よび沈殿のないものを「OK」、濁りまたは沈殿が起きたものを「NG」とした。

[0441] (2) 製膜性の評価

溶解性の評価において「OK」であった発光層形成用組成物に関して、下記の手順でスピコート成膜またはインクジェット印刷後に得られた膜の製膜性を評価した。製膜後に、膜に、ピンホールまたは析出またはムラのあるものを「×」、ピンホール、化合物の析出およびムラのないものを「○」、ピンホール、化合物の析出およびムラがなく、平滑性が高いもの ($R_a < 5 \text{ nm}$) を「◎」で示した。

[0442] (スピコート)

厚み0.5 mm、サイズ28×26 mmの清浄なガラス基板に、照射エネルギー1000 mJ/cm² (低圧水銀灯 (254 ナノメートル)) を照射することでUV-O₃処理を行った。次いで、0.3~0.6 mLのインク組成物をガラス上に滴下し、スピコート (スロープ、5秒間→500~5000 rpm、10秒間→スロープ、5秒間) を行った。さらに、120℃のホットプレート上で10分間乾燥させた。

[0443] (インクジェット)

インクジェットを用いて、100 ppiのピクセル内に吐出し、100℃で乾燥させた。

インクジェットの吐出安定性についても、インクジェット吐出開始直後と24時間連続運転後にそれぞれ評価を行った。吐出安定性が不良であるものを「×」、良好であるものを「○」、極めて良好であるものを「◎」とした。

[0444] 評価結果は下の表に示すとおりであった。なお、実施例2-27、2-31、2-32、2-33については、粘度と表面張力も併せて掲載した。

[0445]

[表20]

	評価結果						
	溶解性	製膜性		インクジェット吐出安定性		粘度 [mPa・a]	表面張力 [mN/m]
		スピノコート	インクジェット	初期	24時間後		
実施例2-1	OK	○	○	○	-	-	-
実施例2-2	OK	○	○	○	-	-	-
実施例2-3	OK	○	○	○	-	-	-
実施例2-4	OK	○	○	○	-	-	-
実施例2-5	OK	○	○	○	-	-	-
実施例2-6	OK	○	○	○	-	-	-
比較例2-1	NG	×	×	-	-	-	-
比較例2-2	NG	×	×	-	-	-	-
実施例2-7	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-8	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-9	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-10	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-11	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-12	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-13	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-14	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-15	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-16	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-17	OK	◎	◎	○	○	-	-
実施例2-18	OK	○	○	○	-	-	-
実施例2-19	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-20	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-21	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-22	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-23	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-24	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-25	OK	◎	◎	◎	○	-	-
実施例2-26	OK	◎	◎	◎	○	-	-
実施例2-27	OK	◎	◎	◎	◎	3.6	35.8
実施例2-28	OK	◎	○	○	-	-	-
実施例2-29	OK	◎	◎	◎	◎	-	-
実施例2-30	OK	◎	◎	◎	◎	-	-
実施例2-31	OK	◎	◎	◎	◎	3.6	35.7
実施例2-32	OK	◎	◎	◎	◎	4.2	35.4
実施例2-33	OK	◎	◎	◎	◎	4	35.5

[0446] ホウ素原子を有さない化合物R-BD2を第3成分として用いた比較例2

− 2 は溶解性が悪く、その後の評価を行うことができなかった。また、ホウ素原子を有する化合物であっても、分子量が大きくて無置換の R − B D 1 を用いた比較例 2 − 1 は溶解性が悪かった。一方、ホウ素原子を有する化合物であって、分子量が小さい無置換の R − B D 3 や、分子量が大きくても置換基を有する化合物を用いた実施例 2 − 1 から 2 − 3 3 は、溶解性、製膜性およびインクジェット吐出安定性がいずれも良好であった。

[0447] 5. 発光層形成用組成物を用いて作製した有機電界発光素子

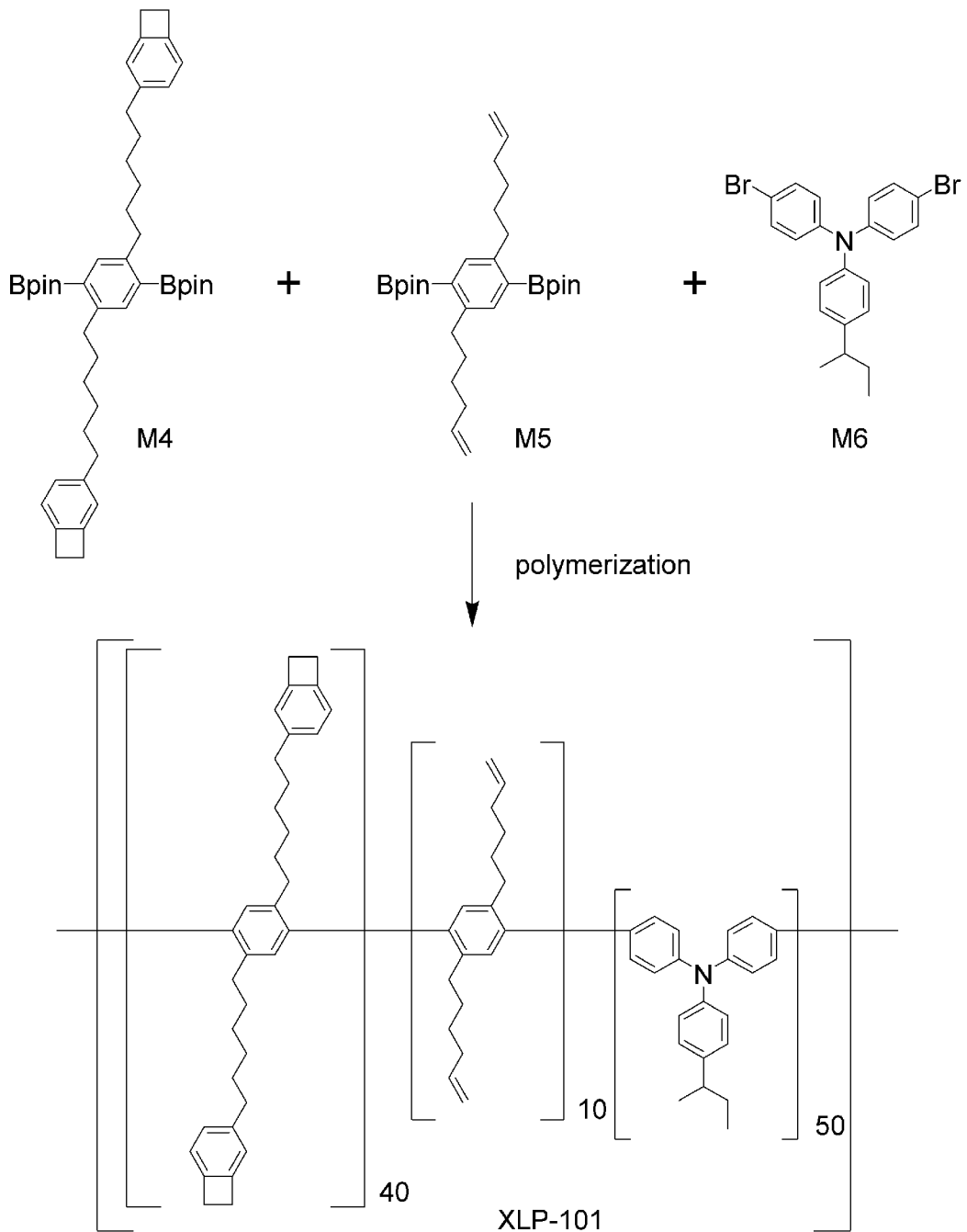
次に、有機層を塗布形成して得られる有機電界発光素子について説明する。発光層の形成する際には、発光層形成用組成物を使用した。

[0448] X L P − 1 0 1 の合成

まず、特開 2 0 1 8 − 6 1 0 2 8 号公報に記載の方法に従い、下記の反応により高分子正孔輸送化合物である X L P − 1 0 1 を合成した。M 4 の隣に M 5 または M 6 が結合した共重合体を得られ、仕込み比より各ユニットは 4 0 : 1 0 : 5 0 (モル比) であると推測される。なお、下記式において、B p i n はピナコラートボリルである。

[0449]

[化190]

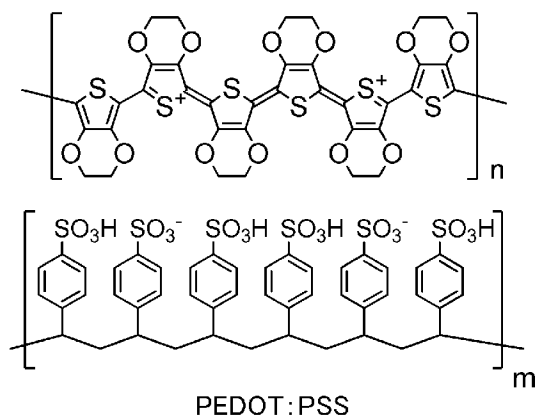


[0450] PEDOT : PSS溶液

市販のPEDOT : PSS溶液 (Clevios(TM) P VP AI4083、PEDOT : PSSの水分散液、Heraeus Holdings社製) を用いた。

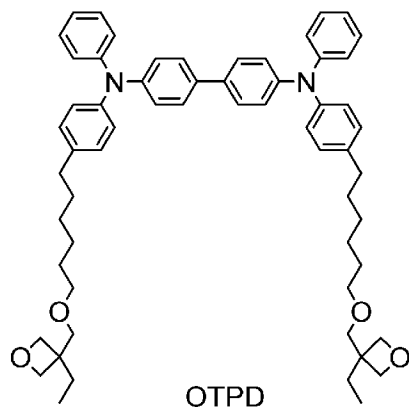
[0451]

[化191]

[0452] OTPD溶液の調製

OTPD (LT-N159、Luminescence Technology Corp社製) およびIK-2 (光カチオン重合開始剤、サンアプロ社製) をトルエンに溶解させ、OTPD濃度0.7質量%、IK-2濃度0.007質量%のOTPD溶液を調製した。

[0453] [化192]

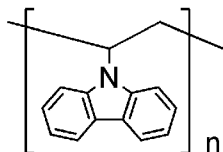
[0454] XL P-101溶液の調製

キシレンにXL P-101を0.6質量%の濃度で溶解させ、0.6質量%XL P-101溶液を調製した。

[0455] PCz溶液の調製

PCz (ポリビニルカルbazール) をジクロロベンゼンに溶解させ、0.7質量%PCz溶液を調製した。

[化193]



PCz

[0456] <実施例3-1>

I T O が 1 5 0 n m の 厚 さ に 蒸 着 さ れ た ガ ラ ス 基 板 上 に 、 P E D O T : P S S 溶 液 を ス ピ ン コ ー ト し 、 2 0 0 ° C の ホ ッ プ レ ー ト 上 で 1 時 間 焼 成 す る こ と で 、 膜 厚 4 0 n m の P E D O T : P S S 膜 を 成 膜 し た (正 孔 注 入 層) 。 次 い で 、 O T P D 溶 液 を ス ピ ン コ ー ト し 、 8 0 ° C の ホ ッ プ レ ー ト 上 で 1 0 分 間 乾 燥 し た 後 、 露 光 機 で 露 光 強 度 1 0 0 m J / c m ² で 露 光 し 、 1 0 0 ° C の ホ ッ プ レ ー ト 上 で 1 時 間 焼 成 す る こ と で 、 溶 液 に 不 溶 な 膜 厚 3 0 n m の O T P D 膜 を 成 膜 し た (正 孔 輸 送 層) 。 次 い で 、 実 施 例 2 - 1 9 で 調 製 し た 発 光 層 形 成 用 組 成 物 を ス ピ ン コ ー ト し 、 1 2 0 ° C の ホ ッ プ レ ー ト 上 で 1 時 間 焼 成 す る こ と で 、 膜 厚 2 0 n m の 発 光 層 を 成 膜 し た 。

[0457] 作製した多層膜を市販の蒸着装置（昭和真空（株）製）の基板ホルダーに固定し、2 Cz BN および B Py - TP 2 を入れたモリブデン製蒸着用ポート、Li F を入れたモリブデン製蒸着用ポート、アルミニウムを入れたタングステン製蒸着用ポートを装着した。真空槽を 5×10^{-4} Pa まで減圧した後、2 Cz BN を加熱して膜厚 1 0 n m になるように蒸着して電子輸送層 1 を形成した。次いで、B Py - TP 2 を加熱して膜厚 2 0 n m になるように蒸着して電子輸送層 2 を形成した。電子輸送層を形成する際の蒸着速度は 1 n m / 秒とした。その後、Li F を加熱して膜厚 1 n m になるように 0. 0 1 ~ 0. 1 n m / 秒の蒸着速度で蒸着した。次いで、アルミニウムを加熱して膜厚 1 0 0 n m になるように蒸着して陰極を形成した。このようにして有機電界発光素子を得た。

[0458] <実施例3-2>

実施例 3 - 1 と 同 様 の 方 法 で 有 機 電 界 発 光 素 子 を 得 た 。 な お 、 正 孔 輸 送 層

は、XLP-101溶液をスピコートし、200℃のホットプレート上で1時間焼成することで、膜厚30nmの膜を成膜した。

[0459] <実施例3-3>

実施例2-19で調製した発光層形成用組成物の代わりに実施例2-2で調製した発光層形成用組成物を用いた以外、実施例3-1と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。なお、正孔輸送層は、XLP-101溶液をスピコートし、200℃のホットプレート上で1時間焼成することで、膜厚30nmの膜を成膜した。

[0460] <実施例3-4>

実施例2-19で調製した発光層形成用組成物の代わりに実施例2-18で調製した発光層形成用組成物を用いた以外、実施例3-1と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。なお、正孔輸送層は、XLP-101溶液をスピコートし、200℃のホットプレート上で1時間焼成することで、膜厚30nmの膜を成膜した。

[0461] <比較例3-1>

実施例2-18で調製した発光層形成用組成物の代わりに比較例2-2で調製した発光層形成用組成物を用いた以外、実施例3-4と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。

[0462] <実施例3-5>

実施例3-1と同様の方法で有機電界発光素子を得た。なお、正孔輸送層は、PCz溶液をスピコートし、120℃のホットプレート上で1時間焼成することで、膜厚30nmの膜を成膜した。

[0463]

[表21]

	発光層形成用組成物				100cd/m ² のときの評価結果			
	使用した組成物	第1成分	第2成分	第3成分	発光面	ピーク波長 [nm]	半値幅 [nm]	外部量子効率 [%]
実施例3-1	実施例2-19	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0210/0611S/0911S	均一	460	30	7.5
実施例3-2	実施例2-19	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0210/0611S/0911S	均一	460	28	9.8
実施例3-3	実施例2-2	26DCzPPy	2PXZ-TAZ	ED1	均一	474	21	12.9
実施例3-4	実施例2-18	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD3	ムラ有り	467	30	4.1
比較例3-1	比較例2-2	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	R-BD2	発光せず	-	-	-
実施例3-5	実施例2-19	PYD-2Cz	2PXZ-TAZ	BN2-0210/0611S/0911S	均一	460	28	8

[0464] 本発明の発光層形成用組成物を用いて有機電界発光素子を製造できること

が確認された。ホウ素を含む化合物である R-BD3 は溶解性が優れており、湿式成膜法を用いて作製された有機電界発光素子において発光が見られ、ピーク波長が青色であり、半値幅も小さく、色味が優れていた。また、実施例 3-2 とおよび実施例 3-4 を比較すると置換基を有するエミッティングドープントを用いた素子は外部量子効率が優れていた。

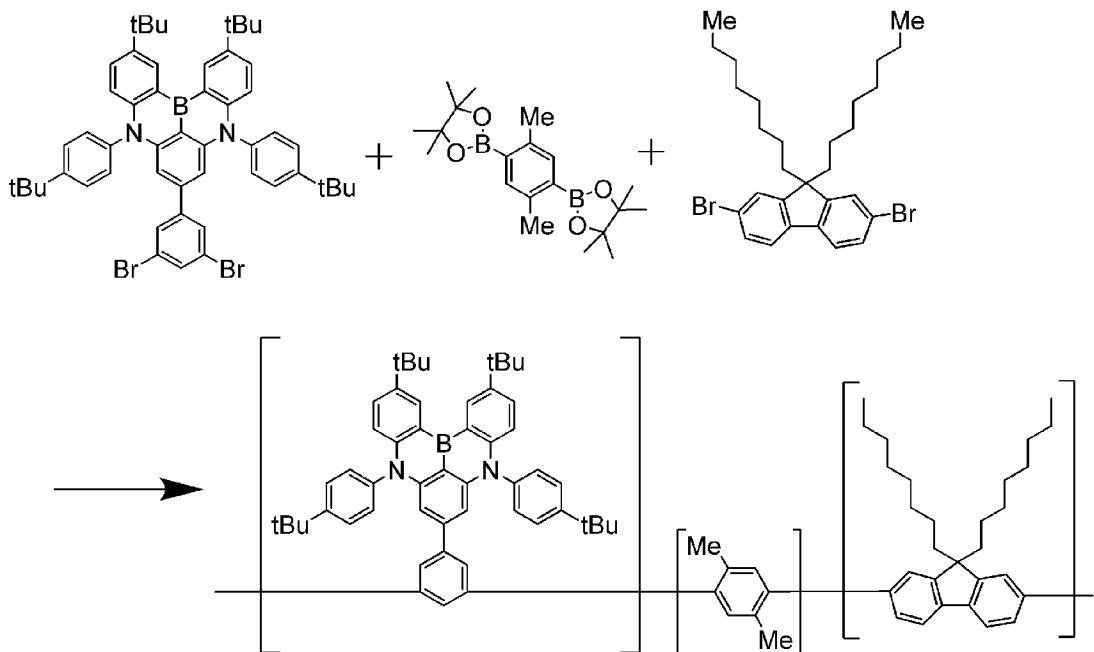
[0465] 6. 高分子化合物を含む組成物

本発明の発光層形成用組成物は高分子化合物や架橋性の化合物を含んでもよい。また、本発明の有機電界発光素子は高分子化合物や架橋性の化合物を含んでもよい。

[0466] <実施例 4-1>

国際特許公開番号 WO 2019/004248 に記載の方法で以下の第 1 成分であるホストと第 3 成分であるホウ素原子を有する構造を含む高分子を合成することができる。

[化194]

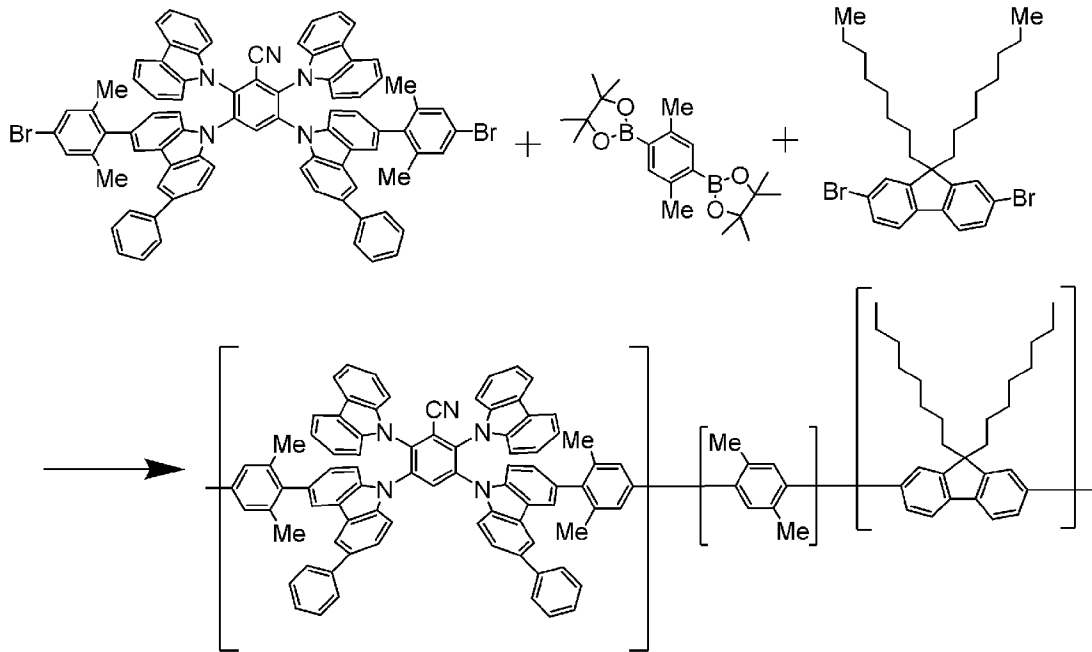


[0467] 上記ポリマーは第 1 成分および第 3 成分を分子中に含むポリマーである。第 2 成分である熱活性化型遅延蛍光体を加えると本発明の発光層形成用組成物である。

[0468] <実施例 4 - 2>

国際特許公開番号WO2019/004248に記載の方法で以下の第1成分であるホストと第2成分である熱活性化型遅延蛍光体の構造を含む高分子を合成することができる。

[化195]

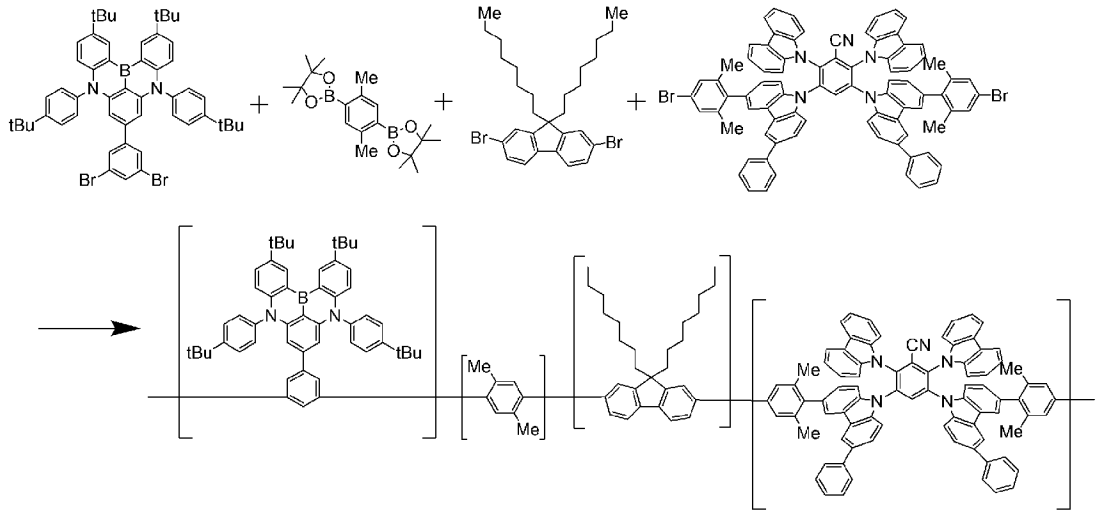


[0469] 上記ポリマーは第1成分および第2成分を分子中に含むポリマーである。第3成分であるホウ素原子を有する化合物を加えると本発明の発光層形成用組成物である。

[0470] <実施例 4 - 3>

国際特許公開番号WO2019/004248に記載の方法で以下の第1成分であるホストと第2成分である熱活性化型遅延蛍光体と第3成分であるホウ素原子を有する構造を含む高分子を合成することができる。

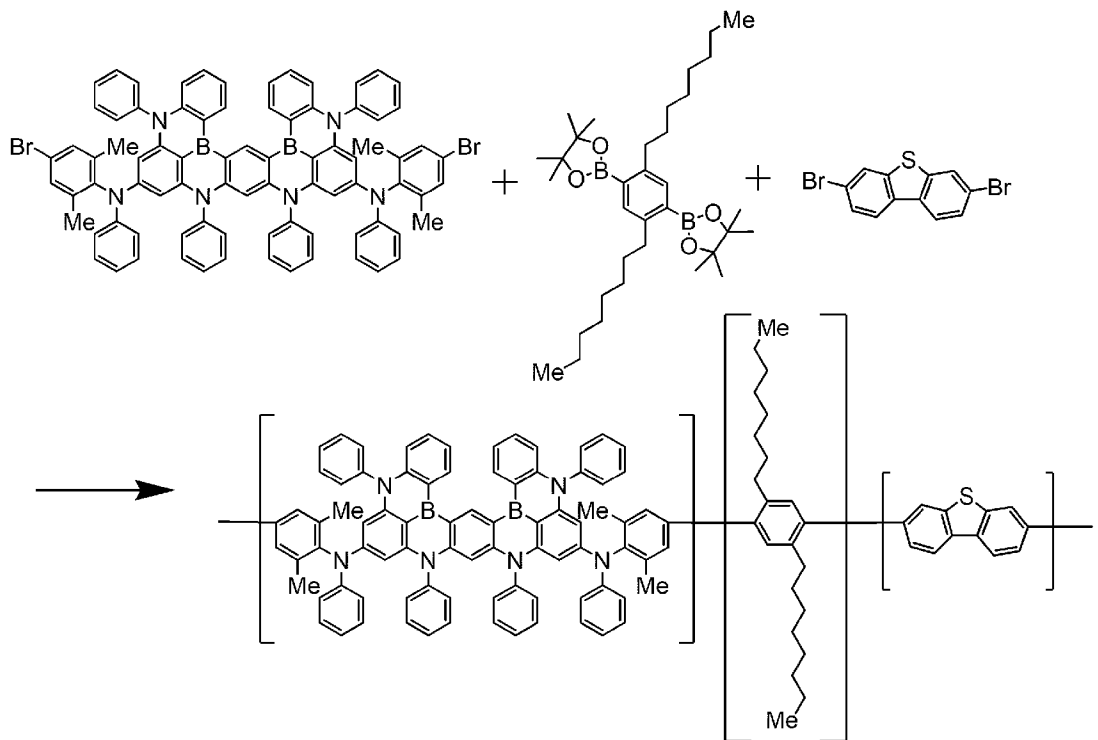
[化196]



[0471] <実施例4-4>

国際特許公開番号WO2019/004248に記載の方法で以下の第1成分であるホストと第3成分であるホウ素原子を有する構造を含む高分子を合成することができる。第2成分である熱活性化型遅延蛍光体を加えると本発明の発光層形成用組成物である。

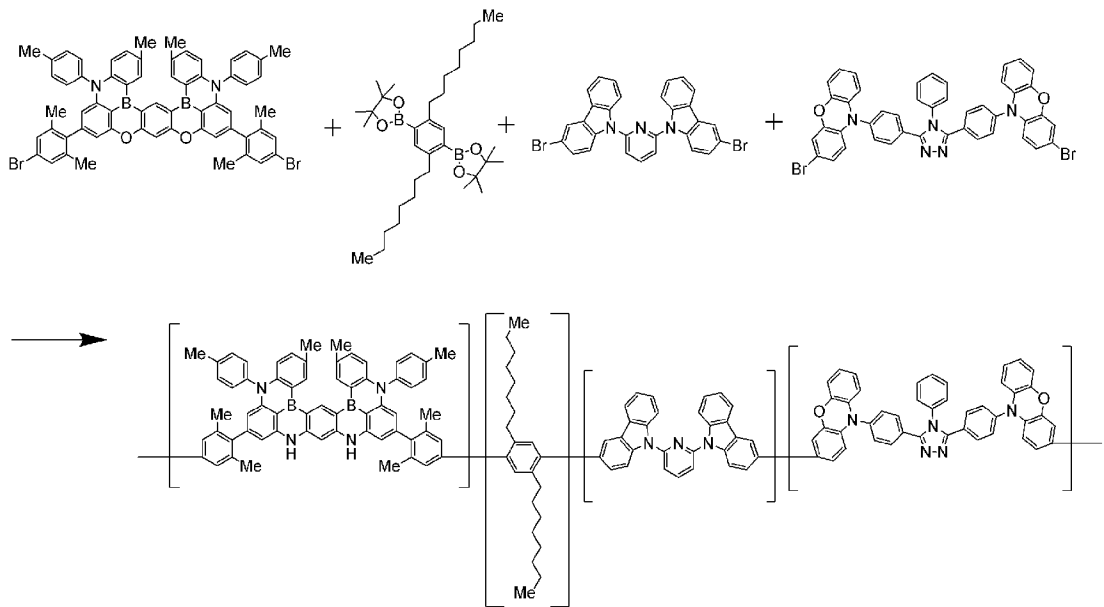
[化197]



[0472] <実施例4-5>

国際特許公開番号WO2019/004248に記載の方法で以下の第1成分であるホストと第3成分であるホウ素原子を有する構造を含む高分子を合成することができる。第2成分である熱活性化型遅延蛍光体を加えると本発明の発光層形成用組成物である。

[化198]



なお、ポリマーに加える第1成分、第2成分または第3成分には、本発明で第1成分、第2成分または第3成分として用いることができる単分子を採用することができる。

符号の説明

- [0473] 100 有機電界発光素子
 101 基板
 102 陽極
 103 正孔注入層
 104 正孔輸送層
 105 発光層
 106 電子輸送層
 107 電子注入層

108 陰極

請求の範囲

[請求項1]

発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層が、
第1成分として、少なくとも1種のホスト化合物と、
第2成分として、少なくとも1種の熱活性化型遅延蛍光体と、
第3成分として、少なくとも1種のホウ素原子を有する化合物とを
含み、

前記第1成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位をE(1, S, S_h)、前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位をE(2, S, S_h)、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位をE(3, S, S_h)としたとき、以下の関係式(1)を満たし、

前記第1成分は、前記ホスト化合物の水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれていてもよく、

前記第2成分は、前記熱活性化型遅延蛍光体の水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれていてもよく、

前記第3成分は、前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した構造を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれていてもよい、

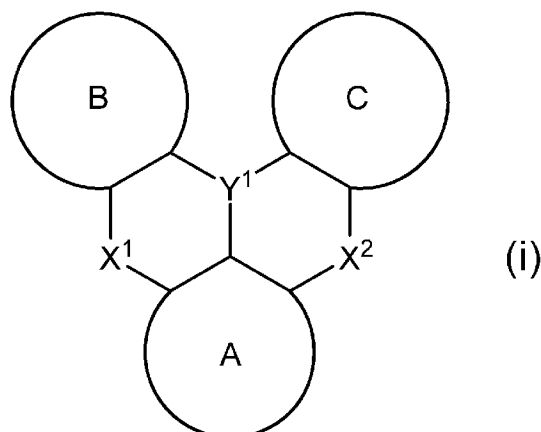
有機電界発光素子。

関係式(1)： $E(1, S, S_h) \geq E(2, S, S_h) \geq E(3, S, S_h)$

[請求項2]

前記第3成分として、下記式(i)、(ii)および(iii)のいずれかで表される化合物、および下記式(i)で表される構造を複数有する多量体化合物の少なくとも1つを含む、請求項1に記載の有機電界発光素子。

[化1]



(上記式 (i) 中、

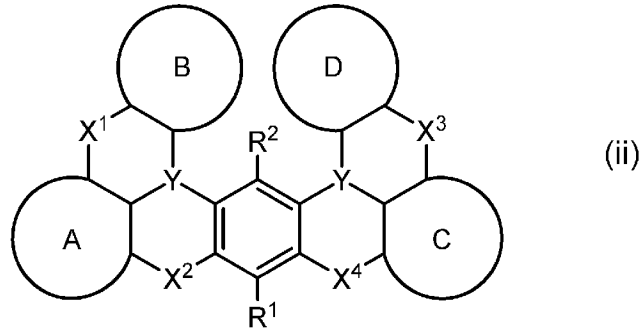
A環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

Y¹は、B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-RまたはGe-Rであり、前記Si-RおよびGe-RのRはアリールまたはアルキルであり、

X¹およびX²は、それぞれ独立して、O、N-R、>CR₂、SまたはSeであり、前記N-RのRおよび>CR₂のRは置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたはアルキルであり、また、前記N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環およびC環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、そして、

式 (i) で表される化合物または構造における少なくとも1つの水素がシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化2]



(上記式 (i i) 中、

A環、B環、C環およびD環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されているとしてもよく、

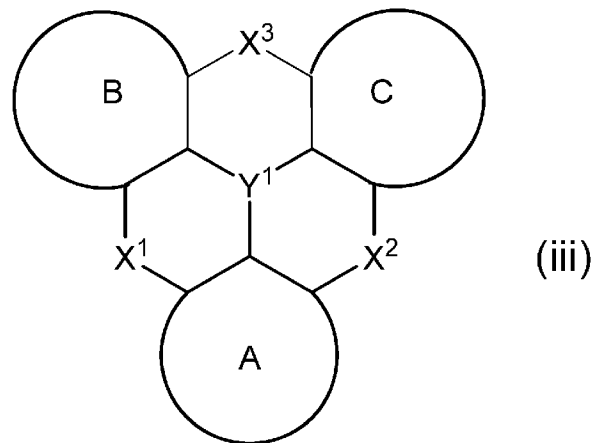
YはB（ホウ素）であり、

X¹、X²、X³およびX⁴は、それぞれ独立して、>O、>N-R、>CR₂、>Sまたは>Seであり、前記>N-RのRおよび>CR₂のRは、置換されているともよいアリール、置換されているともよいヘテロアリール、置換されているともよいシクロアルキルまたは置換されているともよいアルキルであり、また、前記>N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環、C環およびD環から選択される少なくとも1つと結合しているとしてもよく、

R¹およびR²は、それぞれ独立して、水素、炭素数1～6のアルキル、炭素数3～12のシクロアルキル、炭素数6～12のアリール、炭素数2～15のヘテロアリールまたはジアリールアミノ（ただしアリールは炭素数6～12のアリール）であり、

式 (i i) で表される化合物における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されているともよい。）

[化3]



(上記式 (iii) 中、

A環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、

Y¹は、B、P、P=O、P=S、Al、Ga、As、Si-RまたはGe-Rであり、前記Si-RおよびGe-RのRはアリールまたはアルキルであり、

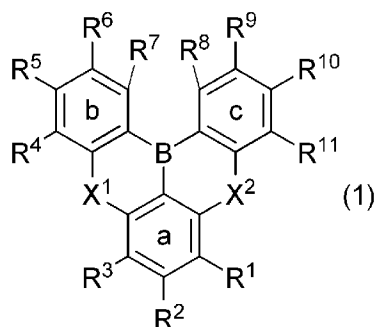
X¹、X²およびX³は、それぞれ独立して、O、N-R、>CR₂、SまたはSeであり、前記N-RのRおよび>CR₂のRは置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されてもよいシクロアルキルまたはアルキルであり、また、前記N-RのRは連結基または単結合により前記A環、B環およびC環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、そして、

式 (iii) で表される化合物または構造における少なくとも1つの水素がシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[請求項3]

前記第3成分として、下記式 (1)、(2)、(3) および (4) のいずれかで表される化合物を少なくとも1つ含む、請求項1または2に記載の有機電界発光素子。

[化4]



(上記式 (1) 中、

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} および R^{11} は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、 $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^7$ および $R^8 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシから選択される少なくとも 1 つで置換されていてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも 1 つで置換されていてもよく、

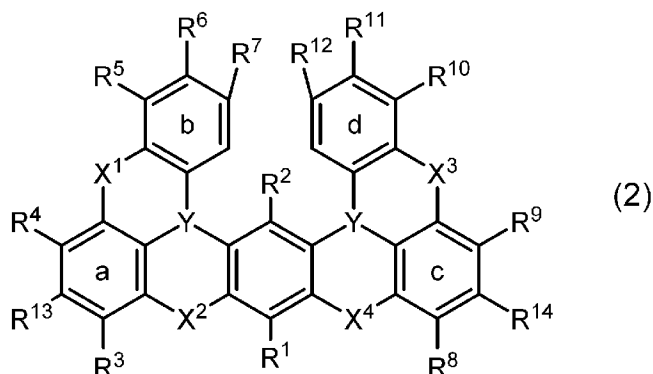
X^1 および X^2 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R はアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも 1 つで置換されていてもよく、

ただし、 X^1 および X^2 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、
そして、

式 (1) で表される化合物および構造における少なくとも 1 つの水

素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。)

[化5]



(上記式 (2) 中、

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオまたはアルキル置換シリルであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、 $R^5 \sim R^7$ および $R^{10} \sim R^{12}$ のうちの隣接する基同士が結合してb環またはd環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオまたはアルキル置換シリルで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、

YはB (ハウ素) であり、

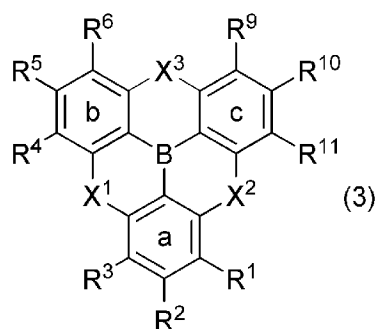
X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R は、炭素数6～12のアリール、炭素数2～15のヘテロアリール、炭素数3～12のシクロアルキルまたは炭素数1～6のアルキルであり、また、前記 $>N-R$ の R および $>CR_2$ の R は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(-R)_2-$ または単結合により前記a環、b環、c環およびd環から選択される少なくとも1つと結合していてもよく、前記 $-C(-R)_2-$ の R は水素または炭素数1～6のアルキルであり、

ただし、 X^1 、 X^2 、 X^3 、および X^4 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、

そして、

式(2)で表される化合物における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化6]



(上記式(3)中、

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^9 、 R^{10} および R^{11} は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、また、 $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^6$ および $R^9 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリール環またはヘテロ

アリール環を形成していてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

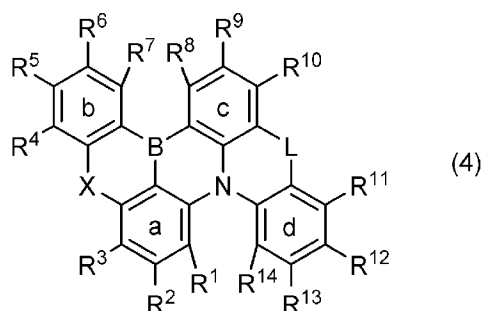
X^1 、 X^2 および X^3 は、それぞれ独立して、 $>O$ 、 $>N-R$ 、または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ のRおよび $>CR_2$ のRはアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

ただし、 X^1 、 X^2 、および X^3 は、同時に $>CR_2$ になることはなく、

そして、

式(3)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[化7]



(上記式(4)中、

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさ

らにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、また、 $R^1 \sim R^3$ 、 $R^4 \sim R^7$ 、 $R^8 \sim R^{10}$ および $R^{11} \sim R^{14}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環、c環またはd環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシおよびアリールオキシから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

Xは、 $>O$ 、 $>N-R$ または $>CR_2$ であり、前記 $>N-R$ のRおよび $>CR_2$ のRはアリール、ヘテロアリールまたはアルキルであり、これらはアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

Lは、単結合、 $>CR_2$ 、 $>O$ 、 $>S$ または $>N-R$ であり、前記 $>CR_2$ および $>N-R$ におけるRは、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらはさらにアリール、ヘテロアリールおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよく、

ただし、XおよびLは、同時に $>CR_2$ になることはなく、そして、

式(4)で表される化合物および構造における少なくとも1つの水素はシアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[請求項4]

前記第3成分として、前記式(1)、(2)および(4)のいずれかで表される化合物を少なくとも1つを含み、

前記式(1)において、 X^1 および X^2 が、それぞれ独立して、 $>O$ または $>N-R$ であり、

前記式(2)において、 X^1 、 X^2 、 X^3 および X^4 が、それぞれ独

立して、 $>O$ または $>N-R$ であり、

前記式(4)において、 X が、 $>O$ および $>N-R$ であり、 L が、単結合である、

請求項3に記載の有機電界発光素子。

[請求項5]

前記第3成分として、前記式(1)、(2)、(3)および(4)のいずれかで表される化合物を少なくとも1つを含み、その化合物に存在する環を構成する原子が、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオおよびアルキル置換シリルから選択される少なくとも1つで置換されている、請求項3または4に記載の有機電界発光素子。

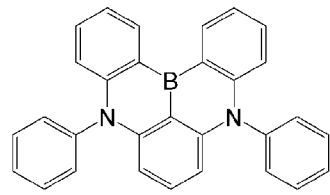
[請求項6]

前記第3成分として、前記式(2)で表される化合物を少なくとも1つを含み、その化合物に存在する環を構成する原子が、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジアリールボリル、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、ヘテロアリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリールチオおよびアルキル置換シリルから選択される少なくとも1つで置換され、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよい、請求項5に記載の有機電界発光素子。

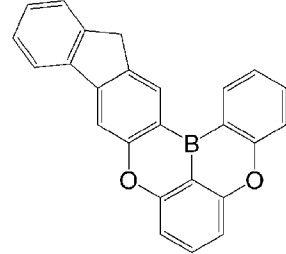
[請求項7]

前記第3成分が、下記式で表される部分構造を含む、請求項1~6のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。ただし、前記部分構造における水素は、それぞれ独立して、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されてもよく、これらはさらにアリール、ヘテロアリール、シクロアルキルおよびアルキルから選択される少なくとも1つで置換されていてもよい。

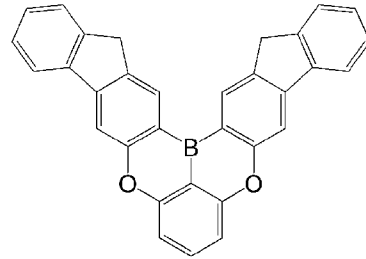
[化8]



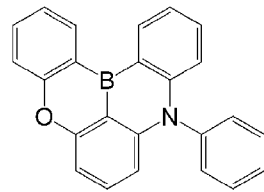
(1-11)



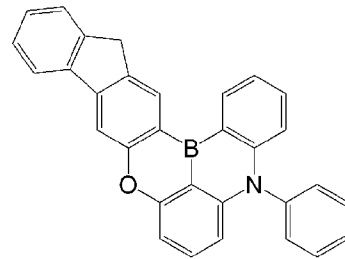
(1-21)



(1-22)

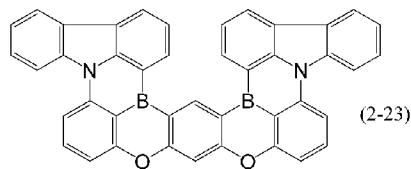
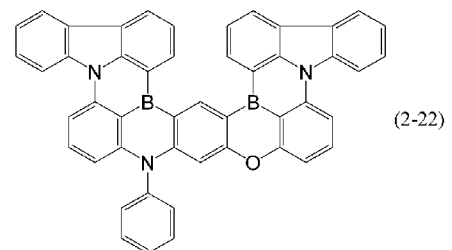
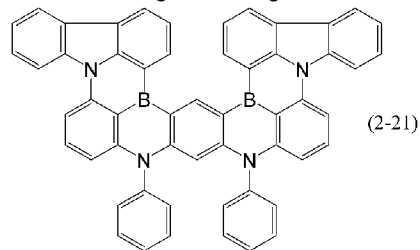
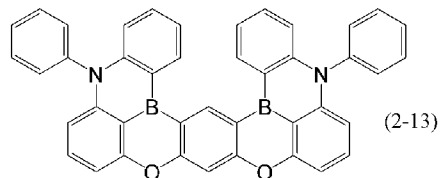
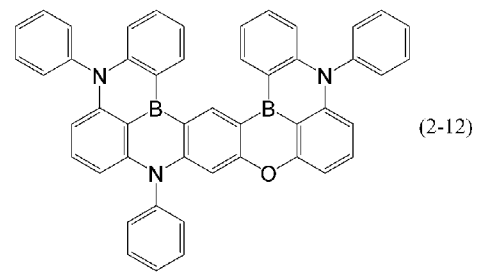
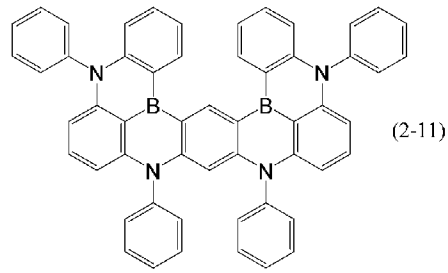


(1-31)

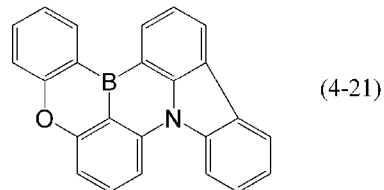
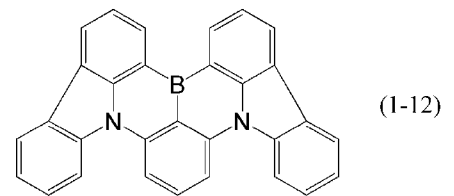
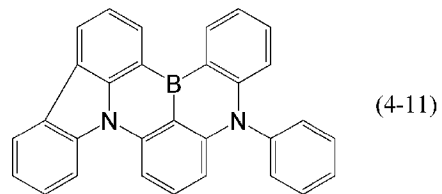


(1-32)

[化9]



[化10]

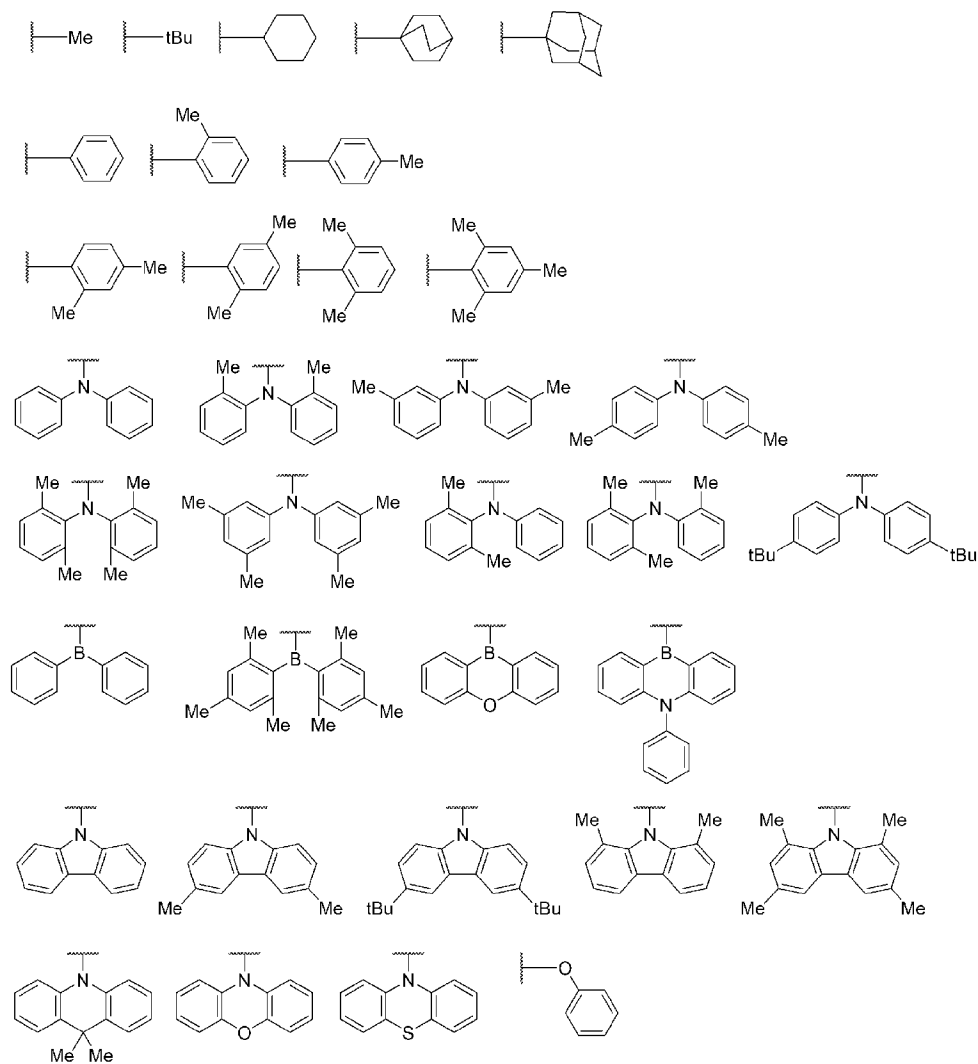


[請求項8]

前記式(1)～(4)のいずれかで表される化合物が、以下に記載のいずれかの部分構造を含む、請求項3～6のいずれか一項に記載の

有機電界発光素子。

[化11]



(上記部分構造式中、

Meはメチルを表し、tBuはt-ブチルを表し、波線は結合位置を表す。

ただし、上記部分構造式における水素は、

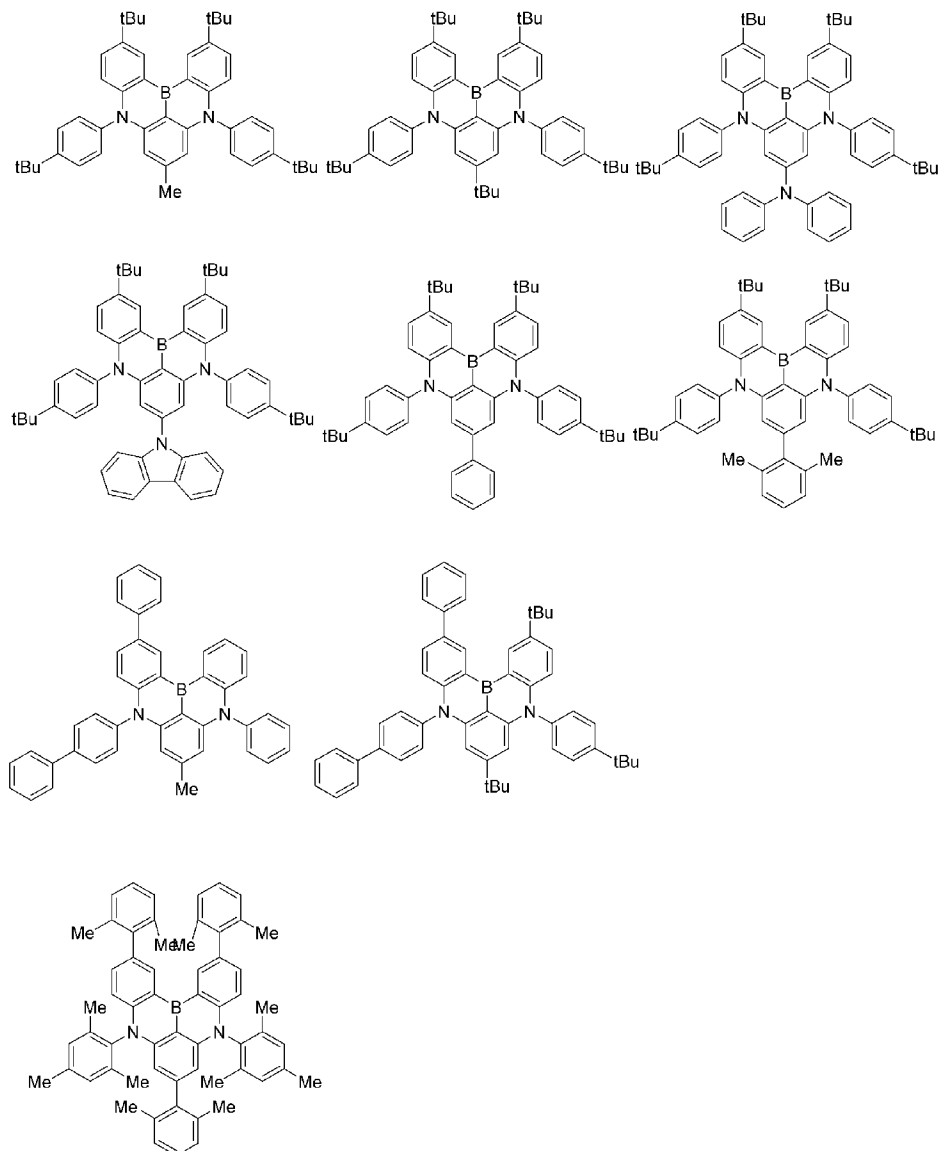
それぞれ独立して、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されていてもよく、前記アリールにおける水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、前記ヘテロアリールにおける水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されて

いてもよく、前記ジアリールアミノにおける水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよい。)

[請求項9] 前記式(1)～(4)のいずれかで表される化合物が、 sp^3 炭素、ホウ素原子に対してm位またはp位に結合する sp^2 炭素原子、または、ホウ素に対してp位に置換する窒素原子、をいずれか1つ有する、請求項3～8のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項10] 前記式(2)で表される化合物が、以下の化合物である、請求項3に記載の有機電界発光素子。

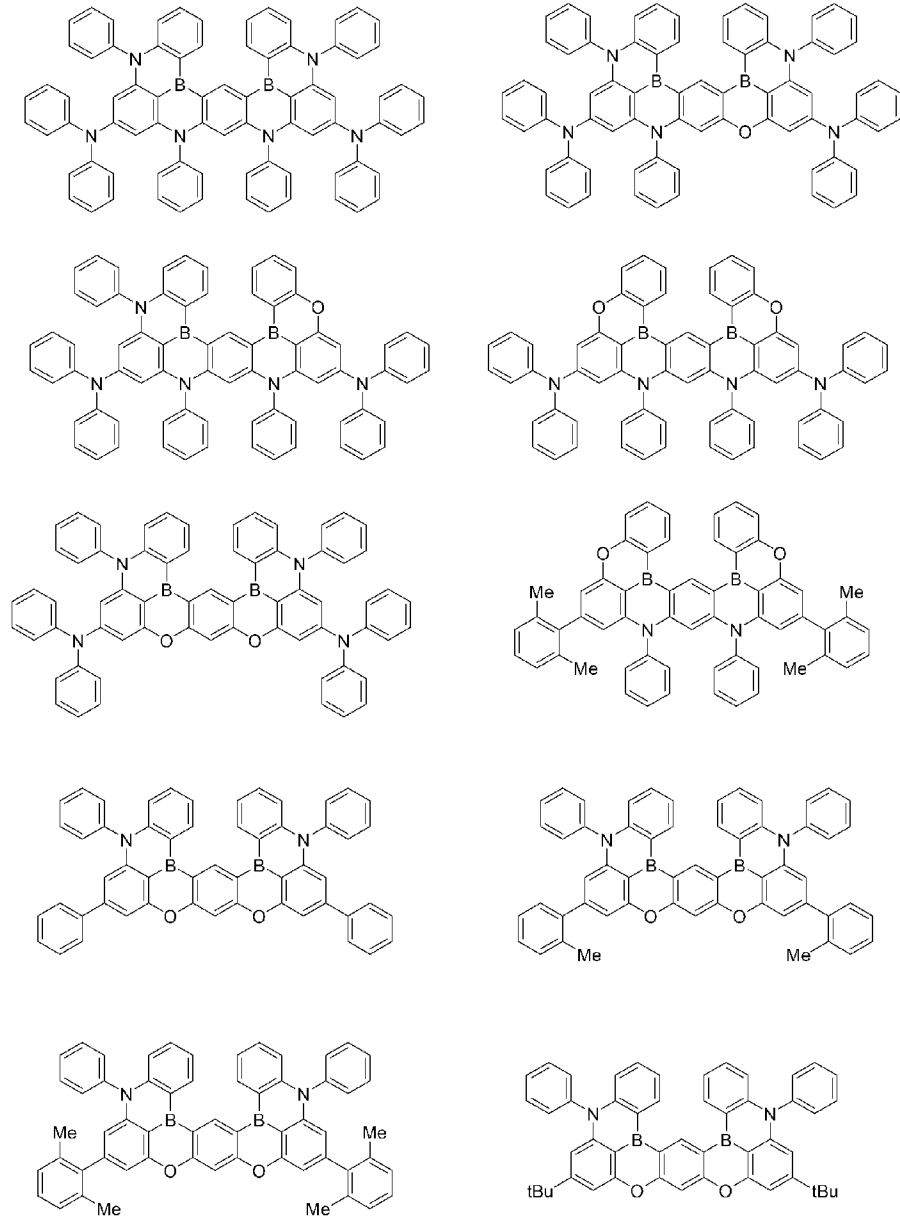
[化12]



[請求項11] 前記式(2)で表される化合物が、以下の化合物である、請求項4

に記載の有機電界発光素子。

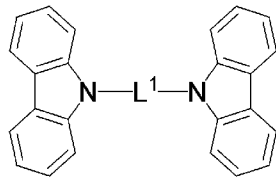
[化13]



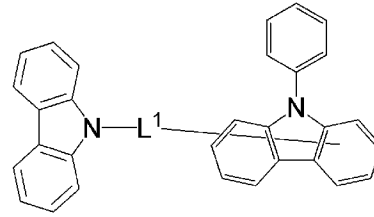
[請求項12] 前記第1成分が、部分構造として、カルバゾールおよびフランから選択される少なくとも一つを有する化合物である、請求項1～11のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項13] 前記第1成分が、下記式(H1)、(H2)および(H3)のいずれかで表される化合物を少なくとも一つ含有する、請求項1～12のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

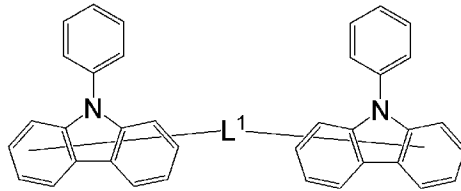
[化14]



(H1)



(H2)



(H3)

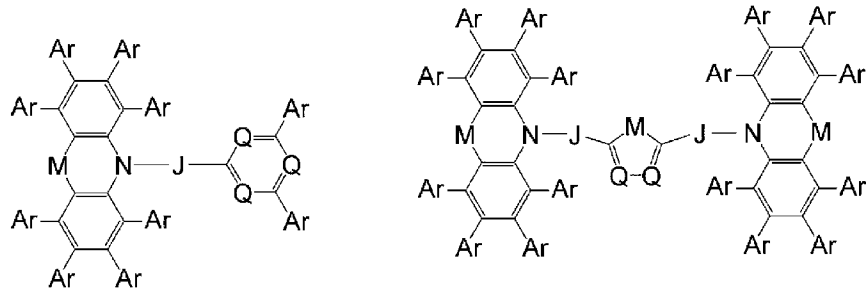
(上記式 (H1)、(H2) および (H3) 中、L¹は炭素数6～24のアリーレン、ヘテロアリーレン、ヘテロアリーレンアリーレンまたはアリーレンヘテロアリーレンアリーレンであり、

上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、炭素数1～6のアルキル、シアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。)

[請求項14] 前記第2成分が、部分構造として、カルバゾール、フェノキサジン、アクリジン、トリアジン、ピリミジン、ピラジン、チオキサテン、ベンゾニトリル、フタロニトリル、イソフタロニトリル、ジフェニルスルホン、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールおよびベンゾフェノンから選択される少なくとも一つを有する、請求項1～13のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

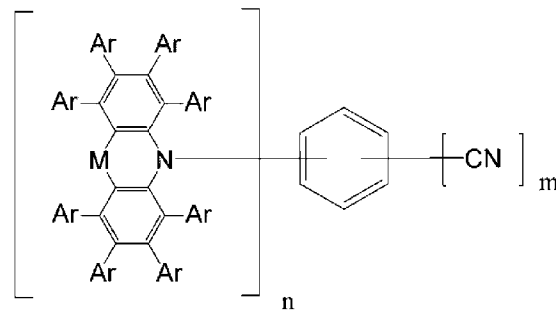
[請求項15] 前記第2成分が、下記式 (AD1)、(AD2) および (AD3) のいずれかで表される化合物を少なくとも一つ含有する、請求項1～14のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[化15]



(AD1)

(AD2)



(AD3)

(上記式 (AD1)、(AD2) および (AD3) 中、

Mは、それぞれ独立して、単結合、 $-O-$ 、 $>N-Ar$ または $>C-Ar_2$ であり、

Jは、それぞれ独立して、炭素数6～18のアリーレンであり、前記アリーレンは、フェニル、炭素数1～6のアルキルおよび炭素数3～12のシクロアルキルから選択される少なくとも1つで置換されてもよく、

Qは、それぞれ独立して、 $=C(-H)-$ または $=N-$ であり、

Arは、それぞれ独立して、水素、炭素数6～18のアリール、炭素数6～18のヘテロアリール、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～12のシクロアルキルであり、前記アリールおよびヘテロアリーレンにおける少なくとも1つの水素は、フェニル、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～12のシクロアルキルで置換されてもよく、

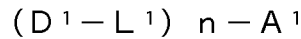
mは、1または2であり、

nは、2～(6-m)の整数であり、

上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。))

[請求項16]

前記第2成分が、下記式(DAD1)で表される化合物を少なくとも一つ含有する、請求項1～14のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

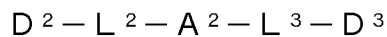


(DAD1)

(上記式(DAD1)中、D¹はドナー性基であり、L¹は単結合または共役連結基であり、A¹はアクセプター性基であり、nは2以上であってA¹が置換しうる最大数以下である整数である。)

[請求項17]

前記第2成分が、下記式(DAD2)で表される化合物を少なくとも一つ含有する、請求項16に記載の有機電界発光素子。



(DAD2)

(上記式(DAD2)中、D²およびD³はそれぞれ独立してドナー性基であり、L²およびL³はそれぞれ独立しては単結合または共役連結基であり、A²はアクセプター性基である。)

[請求項18]

前記式(AD1)、(AD2)および(AD3)において、

Mは、それぞれ独立して、単結合、-O-または>N-A_rであり、

Jは、それぞれ独立して、フェニレンであり、前記フェニレンは、炭素数1～4のアルキルで置換されてもよく、

Qは、それぞれ独立して、=N-であり、

A_rは、それぞれ独立して、水素またはフェニルであり、前記フェニルは、フェニル、炭素数1～4のアルキルで置換されてもよく、

mは、1または2であり、

n は、 $4 \sim (6 - m)$ の整数である、

請求項 17 に記載の有機電界発光素子。

[請求項19] 前記第2成分の逆項間交差速度が、 10^5 s^{-1} 以上である、請求項1～18のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項20] 前記第3成分の遅延蛍光寿命が、 $0.05 \mu\text{sec} \sim 40 \mu\text{sec}$ である、請求項1～19のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項21] 前記第3成分の遅延蛍光寿命が、 $0.05 \mu\text{sec} \sim 20 \mu\text{sec}$ である、請求項1～19のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項22] 前記第3成分の蛍光スペクトルのピークトップおよび吸収スペクトルのピークトップの差より求められるストークスシフトが、 14 nm 以下である、請求項1～21のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項23] 前記第3成分の蛍光スペクトルのピークトップおよび吸収スペクトルのピークトップの差より求められるストークスシフトが、 10 nm 以下である、請求項1～21のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項24] 前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, S_h)$ 、前記第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, S_h)$ 、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, S_h)$ 、前記第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, S_h)$ としたとき、これらから求められる一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E(2, S T, S_h)$ および $\Delta E(3, S T, S_h)$) が以下の関係にある、請求項1～23のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E(2, S T, S_h) = E(2, S, S_h) - E(2, T, S_h) \leq 0.50 \text{ eV}$$

$$\Delta E (3, S T, S h) = E (3, S, S h) - E (3, T, S h) \leq 0.20 \text{ eV}$$

[請求項25] 前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E (2, S, S h)$ 、前記第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E (2, T, S h)$ 、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E (3, S, S h)$ 、前記第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E (3, T, S h)$ としたとき、これらから求められる一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E (2, S T, S h)$ および $\Delta E (3, S T, S h)$) が以下の関係にある、請求項1～24のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E (2, S T, S h) = E (2, S, S h) - E (2, T, S h)$$

$$\Delta E (3, S T, S h) = E (3, S, S h) - E (3, T, S h)$$

$$\Delta E (2, S T, S h) \geq \Delta E (3, S T, S h)$$

[請求項26] 前記第2成分の一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E (2, S T, S h)$) が以下の関係にある、請求項1～25のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E (2, S T, S h) = E (2, S, S h) - E (2, T, S h) \leq 0.30 \text{ eV}$$

[請求項27] 前記第2成分の一重項三重項エネルギー差 ($\Delta E (2, S T, S h)$) が以下の関係にある、請求項1～26のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$\Delta E (2, S T, S h) = E (2, S, S h) - E (2, T, S h) \leq 0.15 \text{ eV}$$

[請求項28] 前記第2成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められ

る励起一重項エネルギー準位を $E(2, S, S_h)$ 、前記第2成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(2, T, S_h)$ 、前記第3成分の蛍光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起一重項エネルギー準位を $E(3, S, S_h)$ 、前記第3成分の燐光スペクトルのピーク短波長側の肩より求められる励起三重項エネルギー準位を $E(3, T, S_h)$ としたとき、これらが以下の関係にある、請求項1～27のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

$$E(2, S, S_h) \geq E(3, S, S_h)$$

$$E(2, T, S_h) \leq E(3, T, S_h)$$

[請求項29] 前記第3成分の蛍光スペクトルのピークトップおよび吸収スペクトルのピークトップの差より求められるストークスシフトが、10nm以下である、請求項1～28のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項30] 前記第3成分が、前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した基を繰り返し単位とする高分子化合物として含まれている、請求項1～29のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

[請求項31] 前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した基を繰り返し単位とする高分子化合物が、前記ホスト化合物の水素原子2個が脱離した基も繰り返し単位として有する、請求項30に記載の有機電界発光素子。

[請求項32] 前記ホウ素原子を有する化合物の水素原子2個が脱離した基を繰り返し単位とする高分子化合物が、前記遅延蛍光体の水素原子2個が脱離した基も繰り返し単位として有する、請求項30または31に記載の有機電界発光素子。

[請求項33] 請求項1～32のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を備えた表示装置。

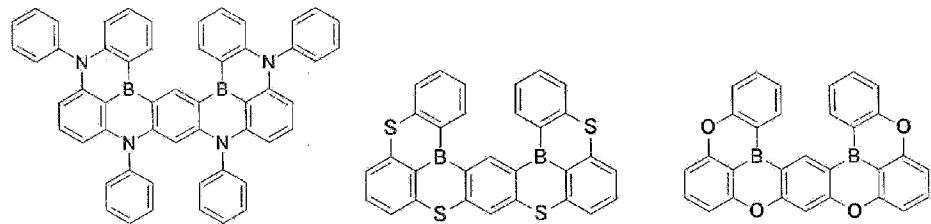
[請求項34] 請求項1～32のいずれか1項に記載の有機電界発光素子を備えた

照明装置。

[請求項35] 有機電界発光素子の発光層を塗布形成するための発光層形成用組成物であって、

請求項1～32のいずれか一項に記載の第1成分、第2成分および第3成分に加えて、第4成分として、少なくとも1種の有機溶媒を含む、発光層形成用組成物（ただし、前記第3成分は下記化合物ではない。）。

[化16]



[請求項36] 前記第4成分における少なくとも1種の有機溶媒の沸点が130℃～350℃である、請求項35に記載の発光層形成用組成物。

[請求項37] 前記第4成分が、前記第1成分、前記第2成分、および前記第3成分である化合物の少なくとも1種に対する良溶媒（GS）と貧溶媒（PS）とを含み、前記良溶媒（GS）の沸点（BP_{GS}）が前記貧溶媒（PS）の沸点（BP_{PS}）よりも低い、請求項35または36に記載の発光層形成用組成物。

[請求項38] 前記第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して0.0998質量%～4.0質量%であり、

前記第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して0.0001質量%～2.0質量%であり、

前記第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して0.0001質量%～2.0質量%であり、

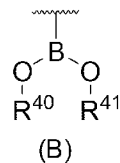
前記第4成分が発光層形成用組成物の全質量に対して90.0質量%～99.9質量%である、

請求項35～37のいずれか一項に記載の発光層形成用組成物。

[請求項39] 請求項35～38のいずれか一項に記載の発光層形成用組成物を用いて形成される発光層を有する有機電界発光素子。

[請求項40] 請求項2に記載の式(i i)で表される化合物の少なくとも1つの水素が、下記部分構造(B)、塩素、臭素、またはヨウ素により置換された化合物。

[化17]

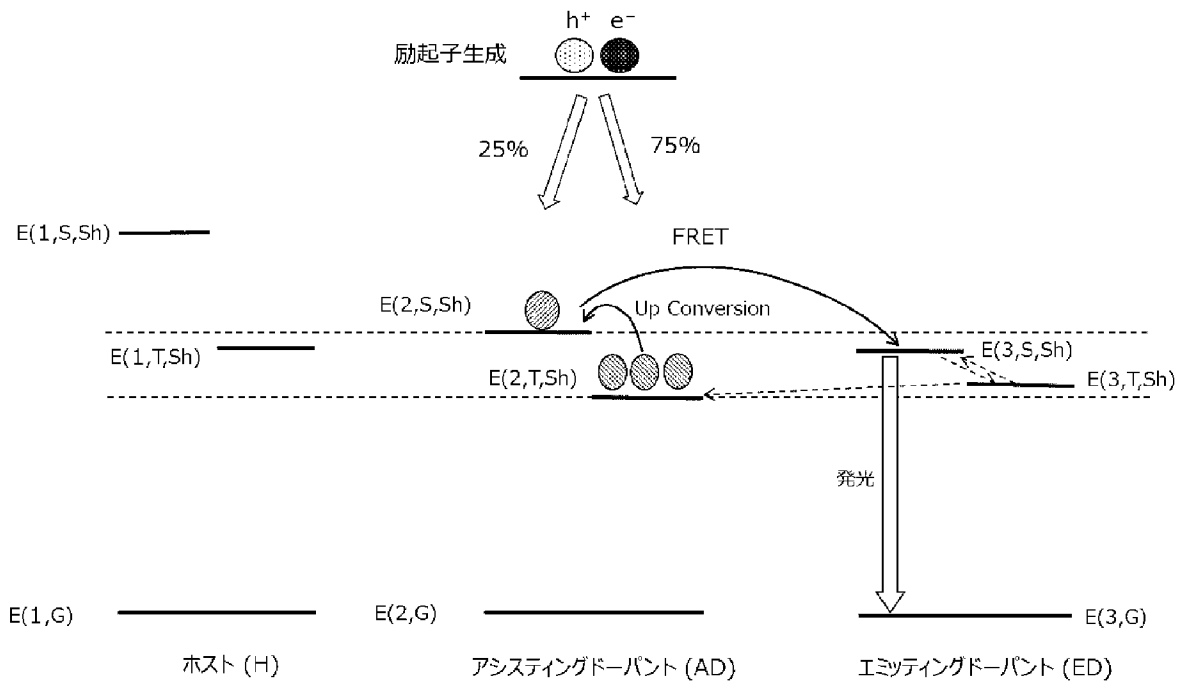


(上記部分構造(B)中、R⁴⁰およびR⁴¹は、合計炭素数2～10の結合していてもよいアルキルであり、波線部は他の構造との結合部位である。)

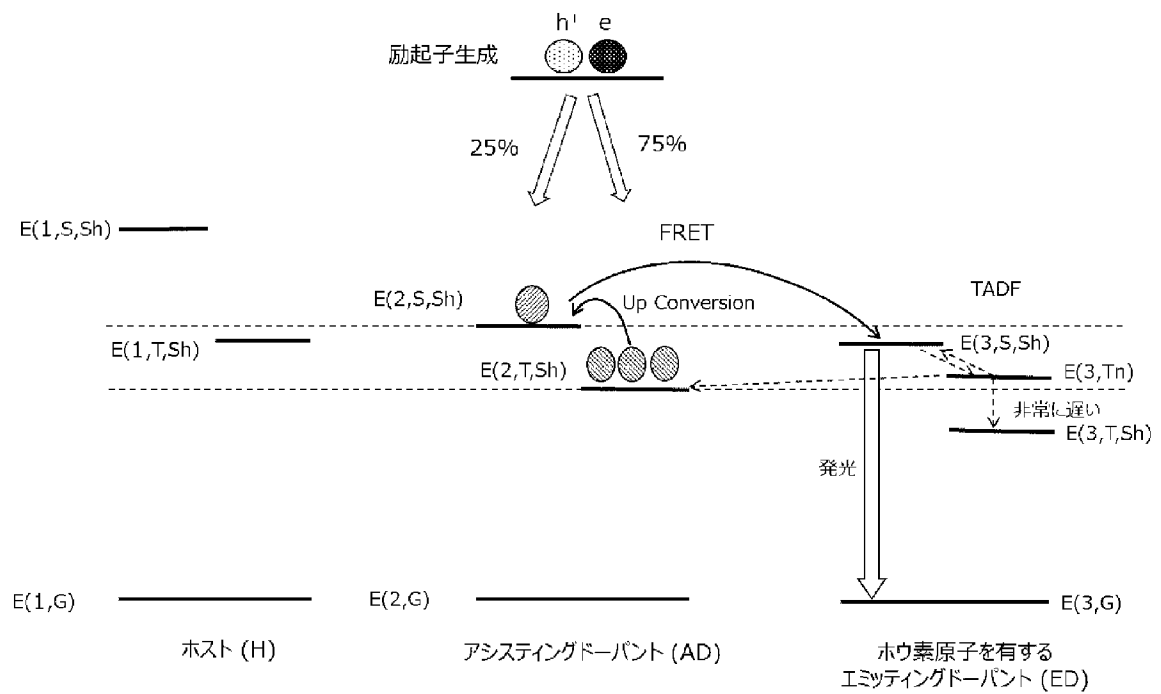
[請求項41] ホウ素原子を有する化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位、熱活性化型遅延蛍光体から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位、およびホスト化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位から選択される少なくとも2種の繰り返し単位を含む高分子化合物。

[請求項42] ホウ素原子を有する化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位の少なくとも1種、熱活性化型遅延蛍光体から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位の少なくとも1種、およびホスト化合物から水素原子2個を脱離した構造を含む繰り返し単位の少なくとも1種を含む高分子化合物。

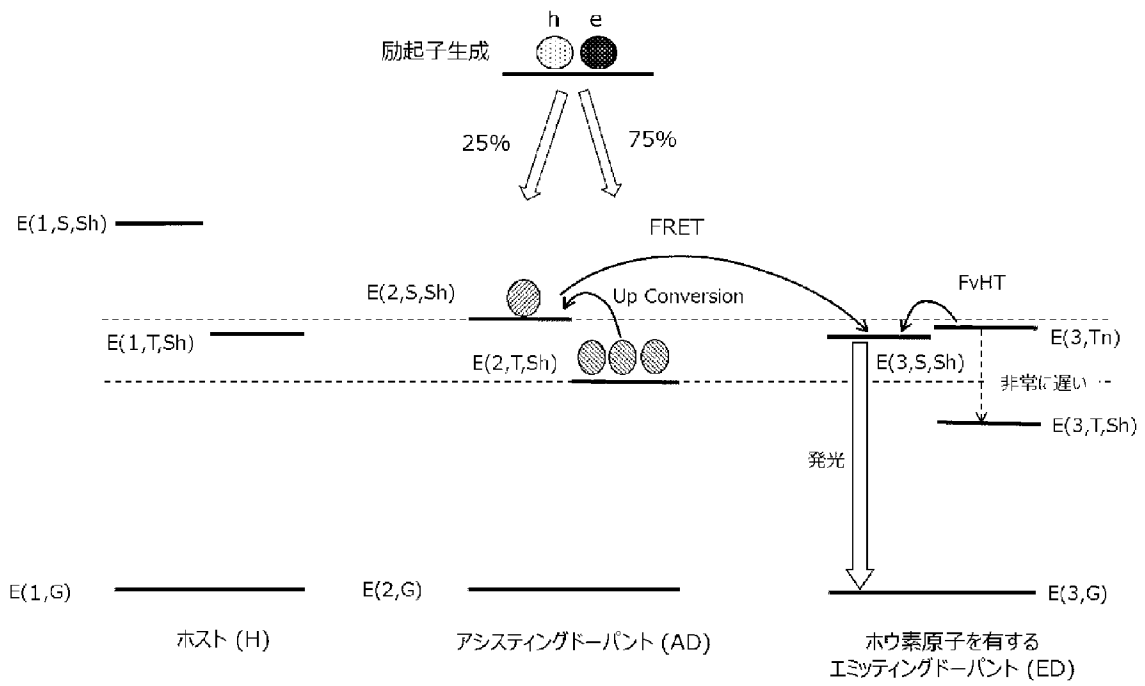
[図1]



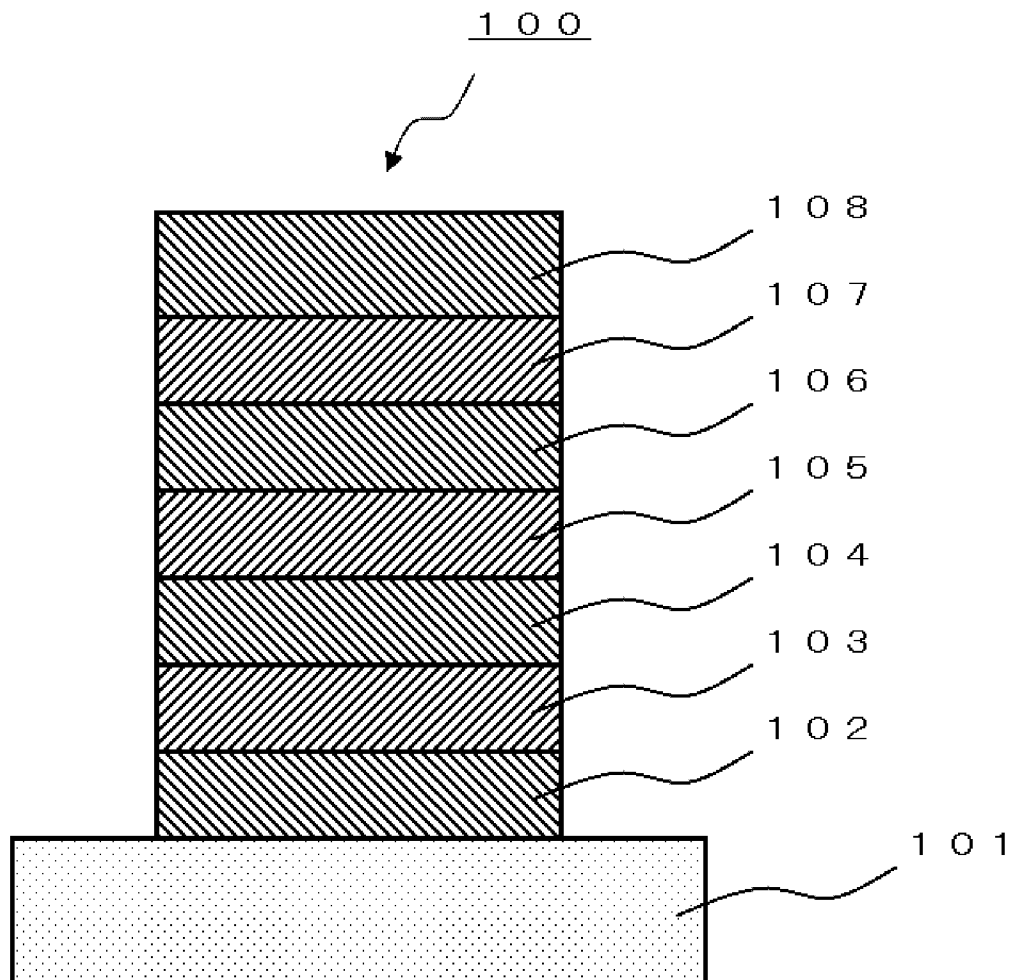
[図2]



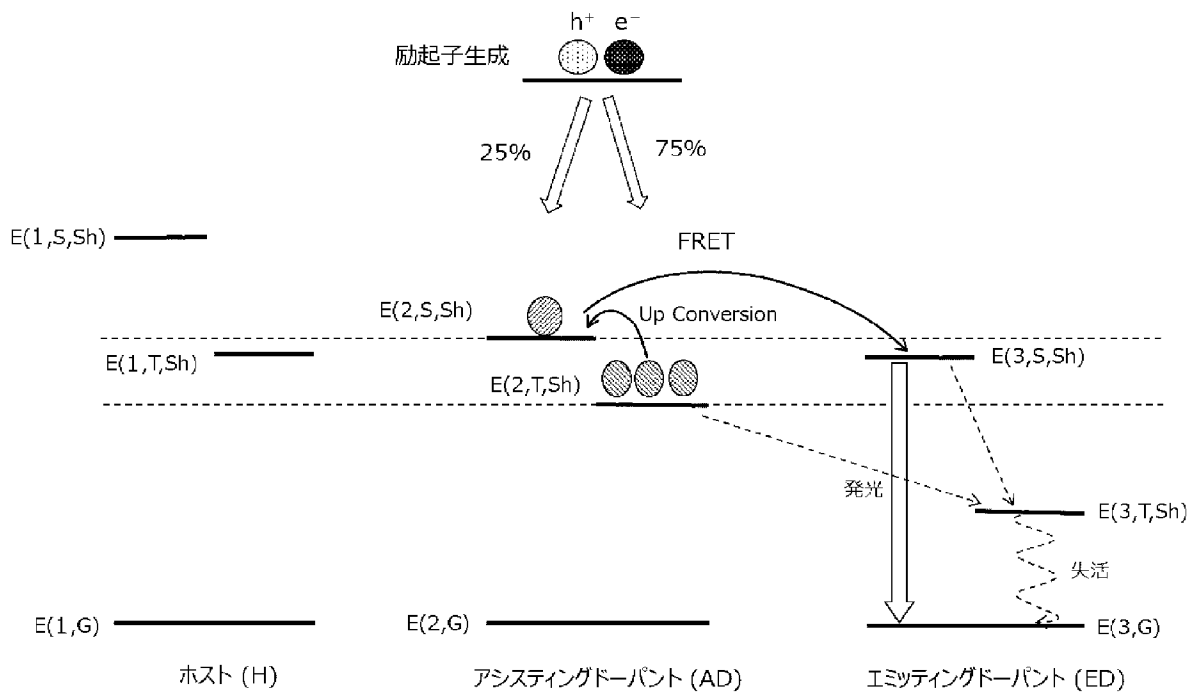
[図3]



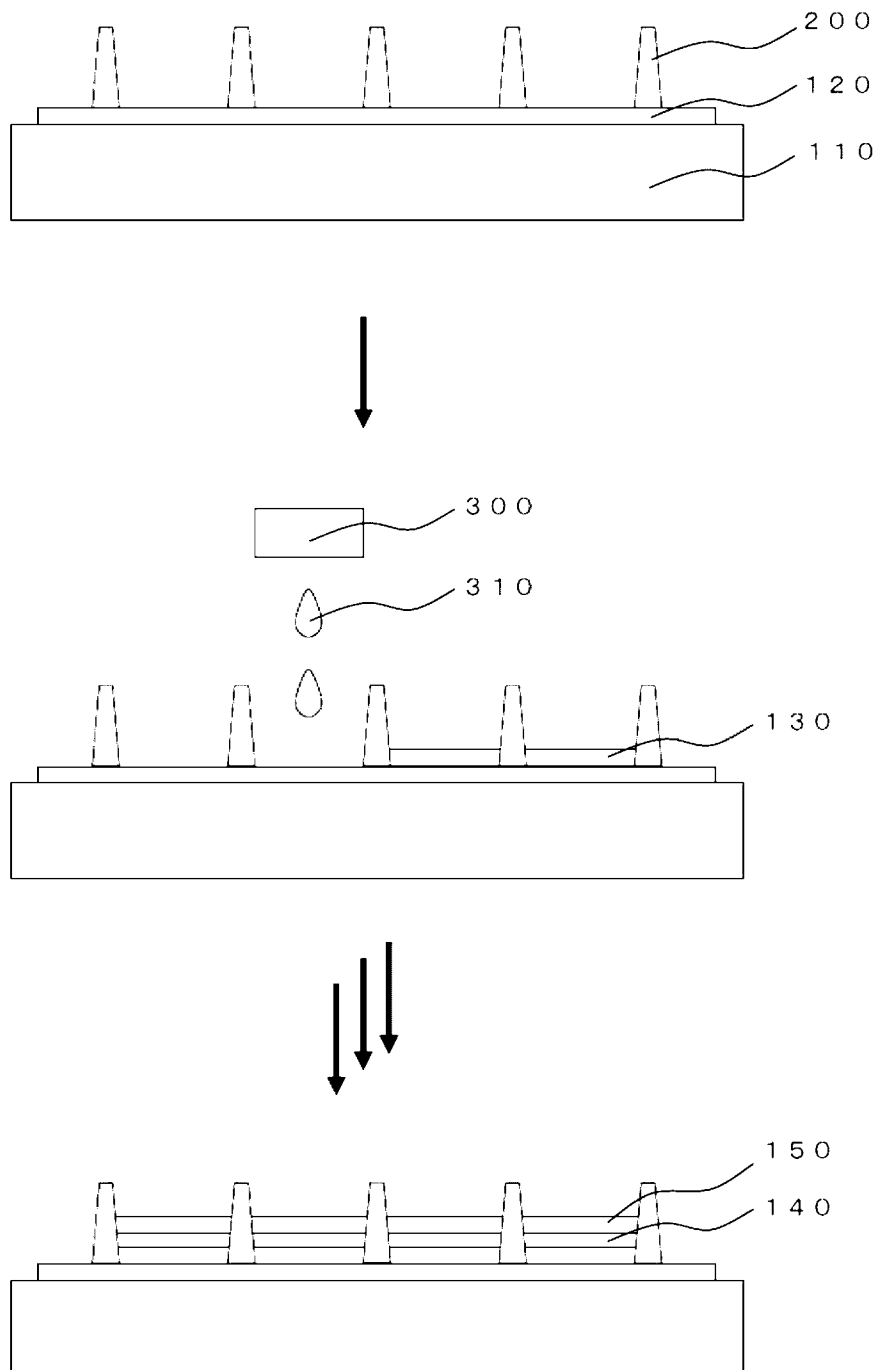
[図4]



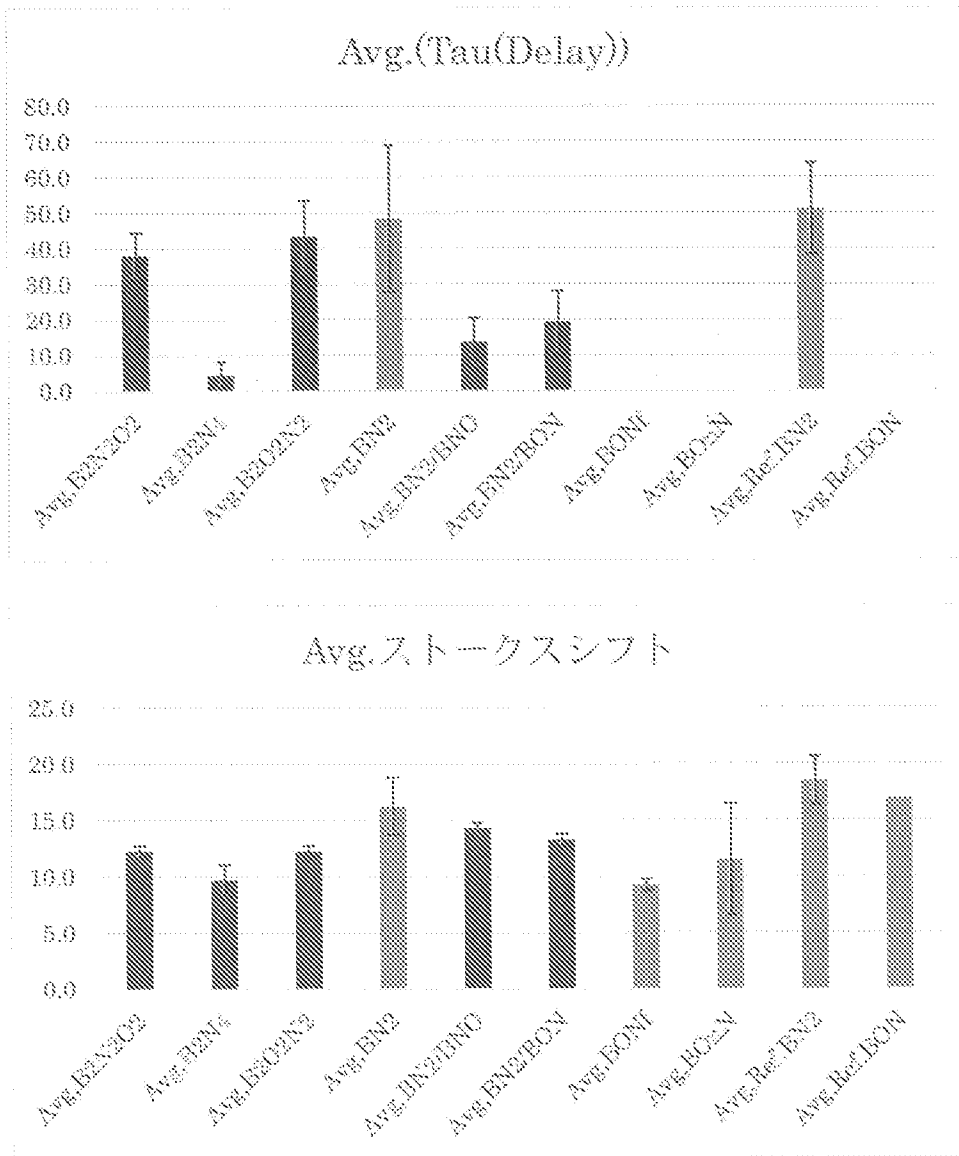
[図5]



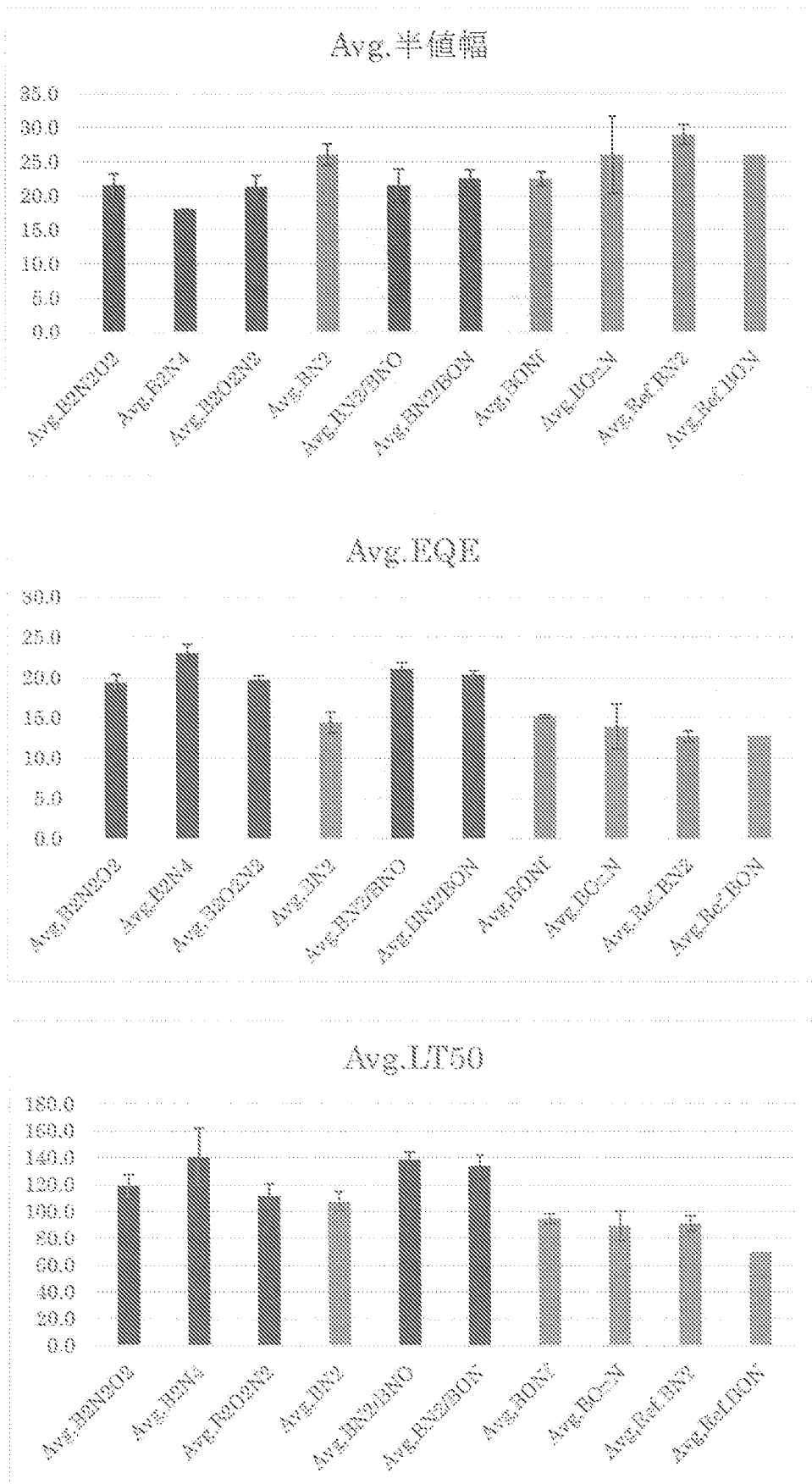
[図6]



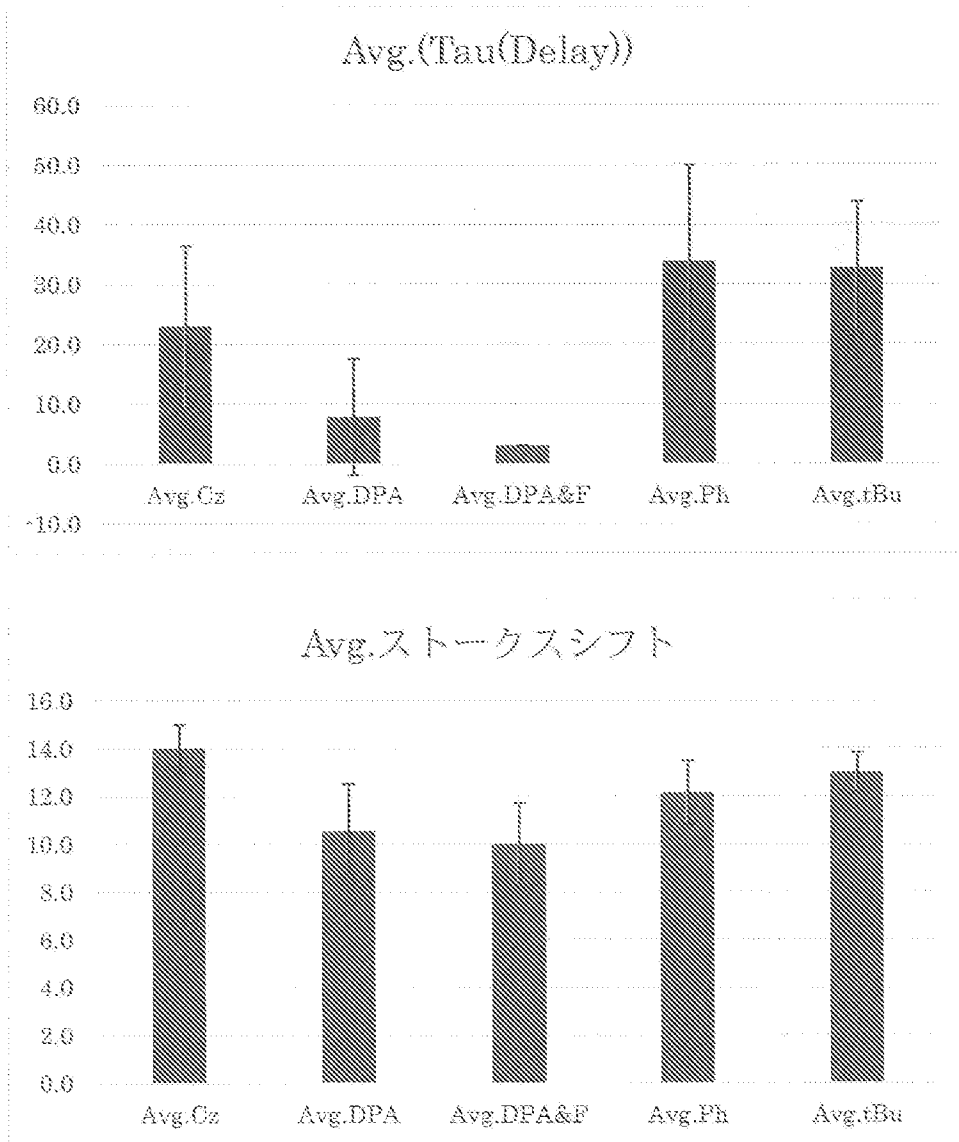
[図7]



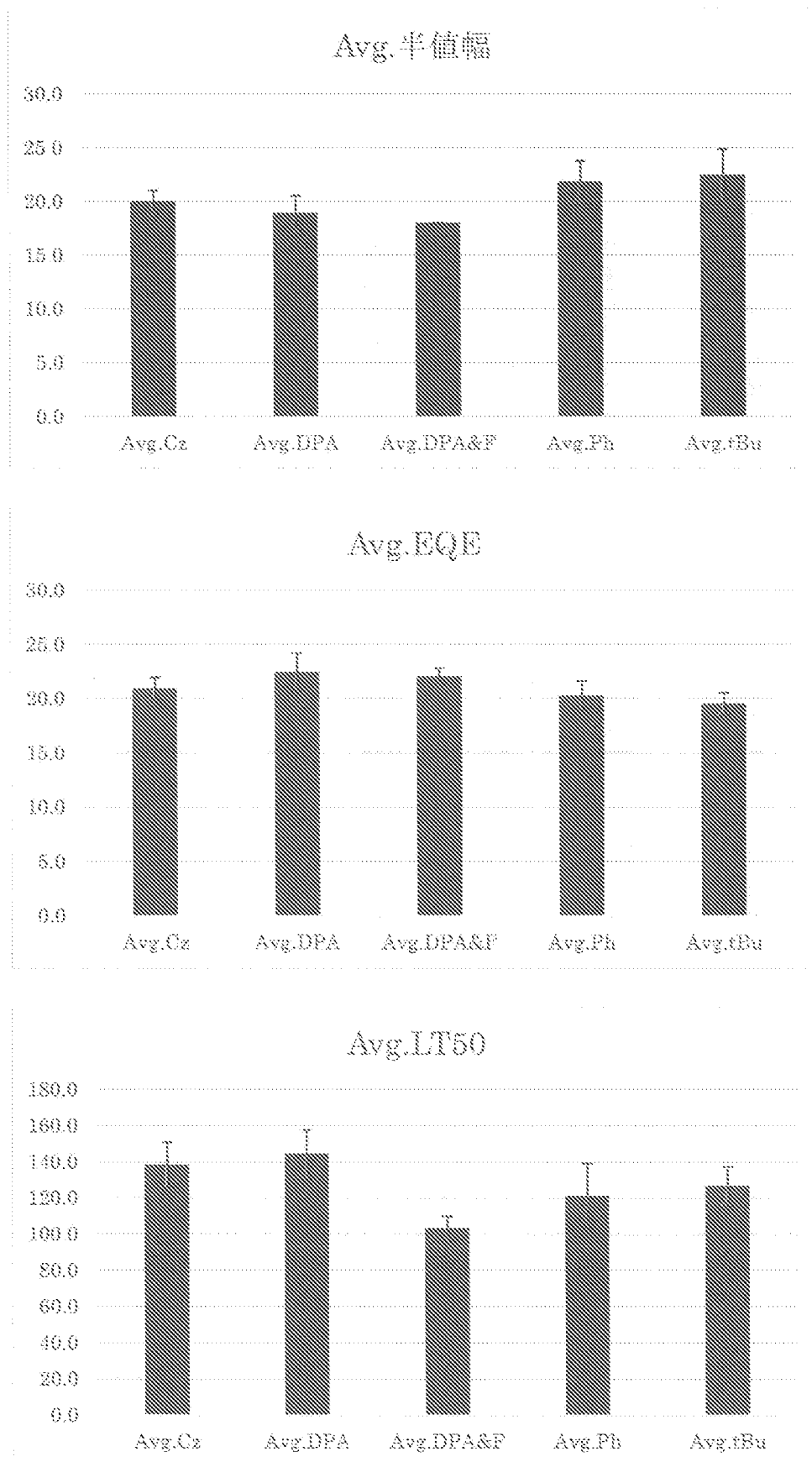
[図8]



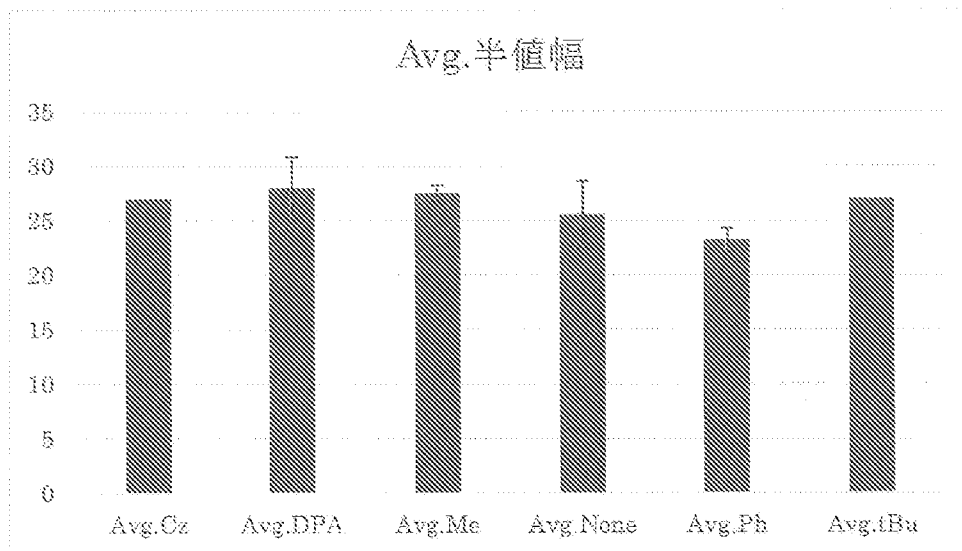
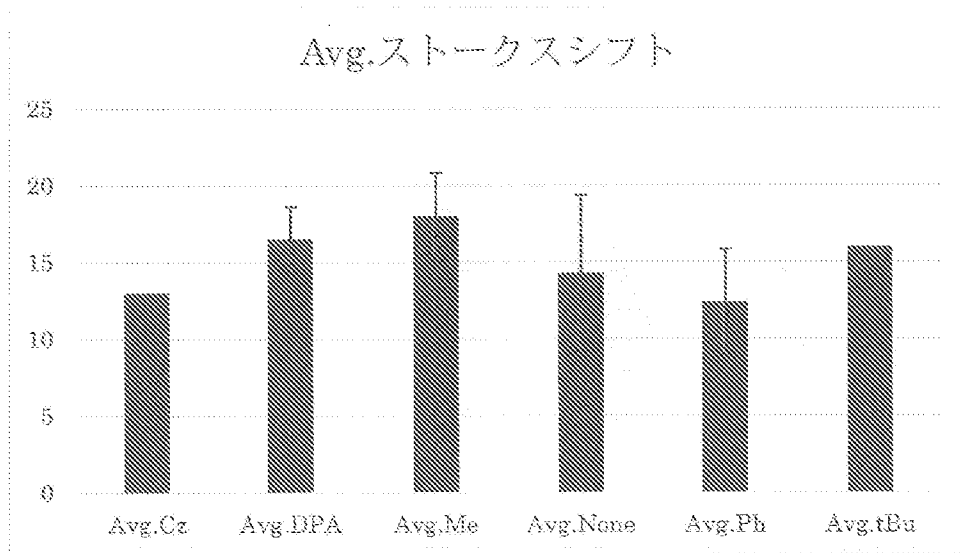
[図9]



[図10]



[図11]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/033069

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. H01L51/50 (2006.01) i, C09K11/06 (2006.01) i, G09F9/30 (2006.01) i,
H01L27/32 (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)

Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), CPlus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2017/146192 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 31 August 2017, paragraphs [0170], [0250], [0256], [0301]-[0302], [0311], [0380]-[0381], [0386], [0396], fig. 5 & US 2019/0081249 A1, paragraphs [0197], [0301], [0307], [0382], [0430]-[0431], [0452], [0488], fig. 5 & EP 3422431 A1 & CN 108701771 A & KR 10-2018-0114033 A	1, 12-19, 22-23, 26-27, 29, 33-34 2-11, 20-21, 24-25, 28, 30-32, 35-42

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"I" 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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 02 October 2019 (02.10.2019)	Date of mailing of the international search report 21 October 2019 (21.10.2019)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/033069

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2018/0123049 A1 (INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, DANKOOK UNIVERSITY) 03 May 2018, paragraph [0189] & WO 2016/159479 A1 & EP 3275968 A1 & KR 10-2016-0116297 A & CN 107667102 A	26-27
P, X	WO 2018/181188 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 04 October 2018, paragraphs [0418]-[0419], [0425]-[0427], fig. 5 (in particular, examples 1-3 using boron-containing compound BN-1) (Family: none)	1-5, 7-9, 12, 14-16, 19, 24-27, 33-34
P, X	WO 2019/132506 A1 (LG CHEM, LTD.) 04 July 2019, paragraphs [0358]-[0359] (in particular, comparative example using boron-containing compound GD3) & KR 10-2019-0078539 A	1-5, 7-9, 12-16, 19, 24, 26, 33-34
P, X	KR 10-2019-0078541 A (LG CHEM, LTD.) 04 July 2019, paragraphs [0481], [0486] (in particular, examples 1-1 to 1-81 using boron-containing compounds 1-81) (Family: none)	1-5, 7-9, 12-16, 19, 24, 26, 33-34
A	HOSOKAI, Takuya et al., "Evidence and mechanism of efficient thermally activated delayed fluorescence promoted by delocalized excited states", Science Advances, 10 May 2017, vol. 3, e1603282 (in particular, table 1, physical property values of 4CzBN and 4CzIPN)	19, 26
A	JP 2016-122672 A (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 07 July 2016, paragraph [0348] (in particular, table 1, compound D3, physical property value) & US 2016/0028025 A1, paragraph [0419] & WO 2014/148493 A1	27
P, X	WO 2019/062685 A1 (JIANGSU SUNERA TECHNOLOGY CO., LTD.) 04 April 2019, tables 1, 5 (in particular, examples 21-32 using boron-containing compound B-15) & CN 107507921 A	1-3, 5, 8-9, 12, 14-16, 19, 24-27, 33-34
P, X	WO 2019/151204 A1 (KWANSEI GAKUIN EDUCATIONAL FOUNDATION) 08 August 2019, paragraphs [0447], [0456], [0458] (in particular, example 5 using boron-containing compound B3-3001) (Family: none)	1-9, 11, 14-29, 33-34

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/033069

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2018/203666 A1 (LG CHEM, LTD.) 08 November 2018, claim 9 (in particular, chemical formula 2-3, descriptions of halogen as substituent) & KR 10-2018-0122298 A & TW 201843165 A	40
P, X	WO 2019/004247 A1 (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.) 03 January 2019, paragraphs [0511]-[0531] (Family: none)	41
P, X	WO 2019/004248 A1 (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.) 03 January 2019, paragraphs [0404]-[0407] (Family: none)	41
A	JP 2016-006033 A (SHARP CORP.) 14 January 2016, paragraphs [0394]-[0395] (Family: none)	1-42
E, A	WO 2019/163808 A1 (KYUSHU UNIVERSITY) 29 August 2019, paragraph [0068] (Family: none)	1-42
P, A	HAN, Si-Hyun et al., "Ideal blue thermally activated delayed fluorescence emission assisted by a thermally activated delayed fluorescence assistant dopant through a fast reverse intersystem crossing mediated cascade energy transfer process", Journal of Materials Chemistry C, 14 March 2019, vol. 7, pp. 3082-3089	1-5, 7-9, 14, 16-20, 24

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32

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	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019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)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), CPlus/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	WO 2017/146192 A1 (出光興産株式会社) 2017.08.31, 段落 [170], [0250], [0256], [0301]-[0302], [0311], [0380]-[0381], [0386], [0396], 図 5	1, 12-19, 22-23, 26-27, 29, 33-34
A	& US 2019/0081249 A1, 段落 [0197], [0301], [0307], [0382], [0430]-[0431], [0452], [0488], 図 5 & EP 3422431 A1 & CN 108701771 A & KR 10-2018-0114033 A	2-11, 20-21, 24-25, 28, 30-32, 35-42

☑ 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

02.10.2019

国際調査報告の発送日

21.10.2019

国際調査機関の名称及びあて先

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

特許庁審査官 (権限のある職員)

辻本 寛司

20

3908

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	US 2018/0123049 A1 (INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, DANKOOK UNIVERSITY) 2018.05.03, 段落 [0189] & WO 2016/159479 A1 & EP 3275968 A1 & KR 10-2016-0116297 A & CN 107667102 A	26-27
P, X	WO 2018/181188 A1 (出光興産株式会社) 2018.10.04, 段落 [0418]-[0419], [0425]-[0427], 図 5 (特に、ホウ 素含有化合物 B N - 1 を使用する実施例 1 ~ 3) (ファミリーなし)	1-5, 7-9, 12, 14-16, 19, 24-27, 33-34
P, X	WO 2019/132506 A1 (LG CHEM, LTD.) 2019.07.04, 段落 [0358]-[0359] (特に、ホウ素含有化合物 G D 3 を使用する比較例 3) & KR 10-2019-0078539 A	1-5, 7-9, 12-16, 19, 24, 26, 33-34
P, X	KR 10-2019-0078541 A (LG CHEM, LTD.) 2019.07.04, 段落 [0481], [0486] (特に、ホウ素含有化合物 1 ~ 8 1 を使用する実施例 1 - 1 ~ 1 - 8 1) (ファミリーなし)	1-5, 7-9, 12-16, 19, 24, 26, 33-34
A	HOSOKAI, Takuya et al., Evidence and mechanism of efficient thermally activated delayed fluorescence promoted by delocalized excited states, Science Advances, 2017.05.10, Vol.3, e1603282 (特に、表 1 の 4CzBN 及び 4CzIPN の物性値)	19, 26
A	JP 2016-122672 A (出光興産株式会社) 2016.07.07, 段落 [0348] (特に、表 1 の化合物 D 3 の物性値) & US 2016/0028025 A1, 段落 [0419] & WO 2014/148493 A1	27
P, X	WO 2019/062685 A1 (JIANGSU SUNERA TECHNOLOGY CO., LTD.) 2019.04.04, 表 1, 5 (特に、ホウ素含有化合物 B - 1 5 を使用する実 施例 2 1 ~ 3 2) & CN 107507921 A	1-3, 5, 8-9, 12, 14-16, 19, 24-27, 33-34
P, X	WO 2019/151204 A1 (学校法人関西学院) 2019.08.08, 段落 [0447], [0456], [0458] (特に、ホウ素含有化合物 B 3 - 3 0 0 1 を使用する実施例 5) (ファミリーなし)	1-9, 11, 14-29, 33-34

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2018/203666 A1 (LG CHEM, LTD.) 2018. 11. 08, 請求項 9 (特に、[化学式 2-3]及び置換基としてのハロ ゲンの記載) & KR 10-2018-0122298 A & TW 201843165 A	40
P, X	WO 2019/004247 A1 (住友化学株式会社) 2019. 01. 03, 段落 [0511]-[0531] (ファミリーなし)	41
P, X	WO 2019/004248 A1 (住友化学株式会社) 2019. 01. 03, 段落 [0404]-[0407] (ファミリーなし)	41
A	JP 2016-006033 A (シャープ株式会社) 2016. 01. 14, 段落 [0394]-[0395] (ファミリーなし)	1-42
E, A	WO 2019/163808 A1 (国立大学法人九州大学) 2019. 08. 29, 段落 [0068] (ファミリーなし)	1-42
P, X	HAN, Si Hyun et al., Ideal blue thermally activated delayed fluorescence emission assisted by a thermally activated delayed fluorescence assistant dopant through a fast reverse intersystem crossing mediated cascade energy transfer process, Journal of Materials Chemistry C, 2019. 03. 14, Vol. 7, p. 3082-3089	1-5, 7-9, 14, 16-20, 24