

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B1)

(11) 特許番号

特許第4729642号  
(P4729642)

(45) 発行日 平成23年7月20日(2011.7.20)

(24) 登録日 平成23年4月22日(2011.4.22)

(51) Int. Cl.	F I	
H O 1 L 51/50 (2006.01)	H O 5 B 33/14	B
C O 9 K 11/06 (2006.01)	H O 5 B 33/22	B
C O 7 D 403/10 (2006.01)	H O 5 B 33/22	D
C O 7 D 401/14 (2006.01)	C O 9 K 11/06	6 6 0
C O 7 F 15/00 (2006.01)	C O 9 K 11/06	6 9 0
請求項の数 9 (全 59 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2010-157351 (P2010-157351)  
 (22) 出願日 平成22年7月9日(2010.7.9)  
 審査請求日 平成22年7月27日(2010.7.27)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 306037311  
 富士フイルム株式会社  
 東京都港区西麻布2丁目26番30号  
 (74) 代理人 100115107  
 弁理士 高松 猛  
 (74) 代理人 100132986  
 弁理士 矢澤 清純  
 (72) 発明者 松永 淳  
 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地  
 富士フイルム株式会社内  
 (72) 発明者 伊勢 俊大  
 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地  
 富士フイルム株式会社内

審査官 東松 修太郎

最終頁に続く

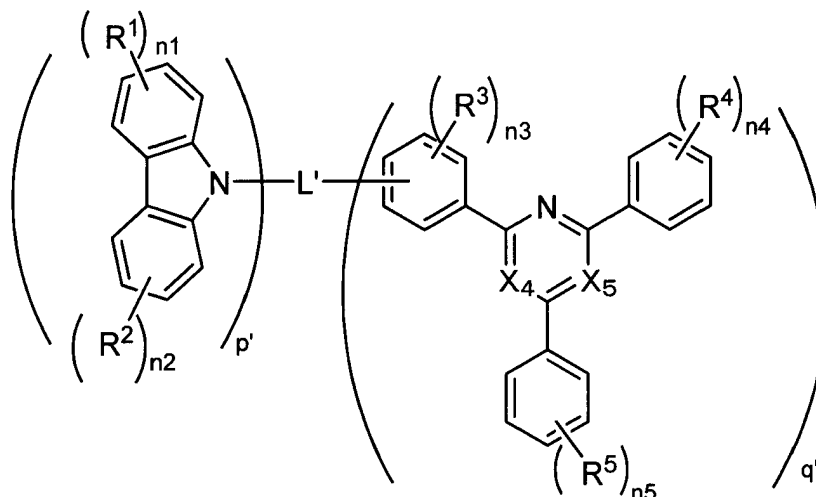
(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

基板上に、一対の電極と、該電極間に発光層を有する有機電界発光素子であって、  
 前記発光層に、以下の一般式(3)で表される化合物と、一般式(E-I)で表される  
 化合物とを含有する、有機電界発光素子。

【化1】



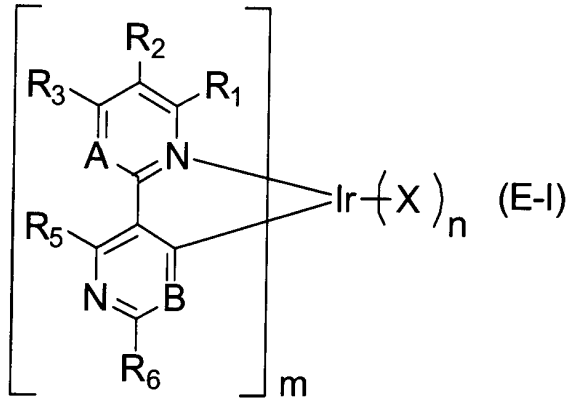
10

(3)

20

一般式(3)中、 $X_4$ 及び $X_5$ はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 $X_4$ 及び $X_5$ を含む環はピリジン又はピリミジンである。 $L'$ は、単結合又はフェニレン基を表す。 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又はtert-ブチル基を表す。 $n_1 \sim n_5$ はそれぞれ独立に0又は1を表し、 $p'$ 及び $q'$ はそれぞれ独立に1又は2を表す。

【化2】



10

20

一般式(E-I)中、Aが、C( $R_4$ )又はNであり、  
 $R_1$ 、 $R_2$ 、及び $R_4$ が、いずれも水素原子であり、  
 $R_3$ が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、  
 BがC( $R_7$ )又はNであり、  
 $R_5$ は、水素原子又はフッ素原子であり、  
 $R_6$ は、水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、  
 $R_7$ は、水素原子又はシアノ基であり、  
 Xは、アセチルアセトナト、ピコリン酸、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル、及びフェニルピラゾールよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

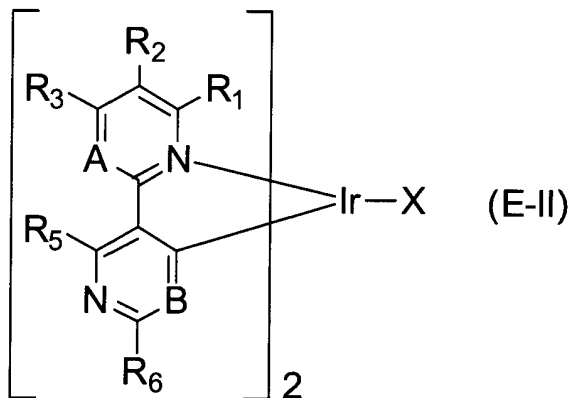
30

$m$ は、2又は3であり、 $n$ は0又は1であり、 $m$ と $n$ との和は3である。

【請求項2】

前記一般式(E-I)で表される化合物が、以下の一般式(E-II)で表される化合物である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

【化3】



40

一般式(E-II)中、Aが、C( $R_4$ )又はNであり、

50

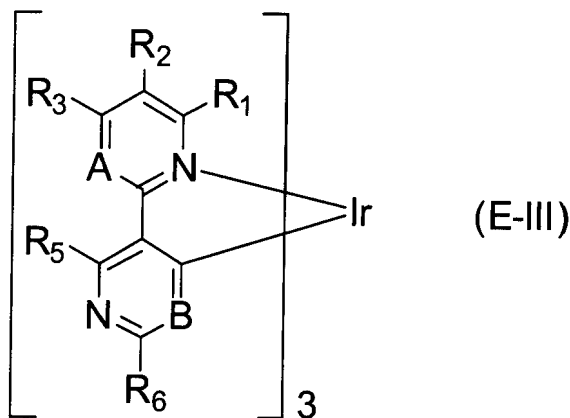
$R_1$ 、 $R_2$  及び  $R_4$  が、いずれも水素原子であり、  
 $R_3$  が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、  
 及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、  
 $B$  が  $C(R_7)$  又は  $N$  であり、  
 $R_5$  は、水素原子又はフッ素原子であり、  
 $R_6$  は、水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、  
 $R_7$  は、水素原子又はシアノ基であり、  
 $X$  は、アセチルアセトナト、ピコリン酸、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル、及びフェニルピラゾールよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

10

## 【請求項3】

前記一般式 (E-I) で表される化合物が、以下の一般式 (E-III) で表される化合物である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

## 【化4】



20

一般式 (E-III) 中、 $A$  が、 $C(R_4)$  又は  $N$  であり、  
 $R_1$ 、 $R_2$  及び  $R_4$  が、いずれも水素原子であり、  
 $R_3$  が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、  
 及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、  
 $B$  が、 $C(R_7)$  又は  $N$  であり、  
 $R_5$  は、水素原子又はフッ素原子であり、  
 $R_6$  は、水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、  
 $R_7$  は、水素原子又はシアノ基である。

30

## 【請求項4】

前記一般式 (E-I) において、 $A$  が  $C(R_4)$  又は  $N$  であり、 $R_1$ 、 $R_2$ 、及び  $R_4$  がいずれも水素原子であり、 $R_3$  が水素原子、又はメチル基、及びジメチルアミノ基よりなる群から選択された電子供与性基であり、 $B$  が  $C(R_7)$  又は  $N$  であり、 $R_5$  はフッ素原子であり、 $R_6$  はフッ素原子又はシアノ基であり、 $R_7$  は水素原子又はシアノ基であり、  
 $X$  はアセチルアセトナト、ピコリン酸、及び1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステルよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

40

## 【請求項5】

前記発光層に含有される、前記一般式 (3) で表される化合物に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が100 ppm以下である、請求項1~4のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

## 【請求項6】

請求項1~5のいずれか一項に記載の、前記一般式 (3) で表される化合物と、前記一般式 (E-I) ~ (E-III) のいずれかで表される化合物とを含有する、発光層。

50

## 【請求項 7】

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

## 【請求項 8】

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

## 【請求項 9】

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、有機電界発光素子（以下、「素子」、「有機EL素子」ともいう）に関し、  
より具体的には、特定構造のカルバゾール化合物と、青色燐光発光材料としての特定構造  
のイリジウム錯体とを含有する有機電界発光素子に関する。

10

## 【背景技術】

## 【0002】

有機電界発光素子は、低電圧駆動で高輝度の発光が得られることから、近年活発な研究  
開発が行われている。一般に有機電界発光素子は、発光層を含む有機層及び該層を挟んだ  
一対の電極から構成されており、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が発  
光層において再結合し、生成した励起子のエネルギーを発光に利用するものである。

## 【0003】

近年、燐光発光材料を用いることにより、素子の高効率化が進んでいる。例えば、燐光  
発光材料としてイリジウム錯体や白金錯体などを用い、発光効率及び耐熱性が向上した有  
機電界発光素子が研究されている。

20

また、発光材料をホスト材料中にドーブした発光層を用いるドーブ型素子が広く採用さ  
れている。

発光材料に関して、特許文献 1 では高い色純度及び低消費電力という特性を有する、青  
色燐光発光材料が開示されており、該材料をドーパントとして、一般的な燐光ホスト材料  
と共に発光層を形成することで、高輝度、高効率、低駆動電圧、高色純度及び長寿命特性  
を持つ有機電界発光素子を製造できることが開示されている。

また近年、ホスト材料の開発も盛んに行われており、例えば特許文献 2 にはアリアルカ  
ルバゾリル基又はカルバゾリルアルキレン基に、窒素含有ヘテロ環基が結合した化合物を  
ホスト材料として用いることが開示されており、該化合物をホスト材料として用いること  
により、青色純度が高い有機電界発光素子が得られることが開示されている。

30

しかしながら、優れた青色色度の特性を有すると共に、効率及び耐久性をより高い水準  
で両立する有機電界発光素子の開発が求められている。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0004】

【特許文献 1】米国特許出願公開第 2005 / 0170209 号明細書

【特許文献 2】特開 2009 - 088538 号公報

## 【発明の概要】

40

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

本発明者らは、特定構造のカルバゾール化合物と、青色燐光発光材料としての特定構造  
のイリジウム錯体とを、発光層中で組み合わせて使用することにより、優れた青色色度の  
特性を有すると共に、従来の有機電界発光素子に対して、外部量子効率及び駆動耐久性を  
より高い水準で両立した有機電界発光素子が提供されることを見出した。

更に、本発明の構成の有機電界発光素子においては、上記の特性に加え、素子駆動前後  
の色度変化が小さいという特性が提供されることを見出した。このような特性は、特許文  
献 1 及び 2 に記載されるものではない。

すなわち、本発明の目的は、優れた青色色度の特性を有すると共に、従来の有機電界発

50

光素子に対して、外部量子効率及び駆動耐久性をより高い水準で両立し、かつ素子駆動前後の色度変化が小さい有機電界発光素子の提供にある。

また、本発明の別の目的は有機電界発光素子に有用な発光層及び組成物を提供することである。更に、本発明の別の目的は有機電界発光素子を含む発光装置、表示装置及び照明装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

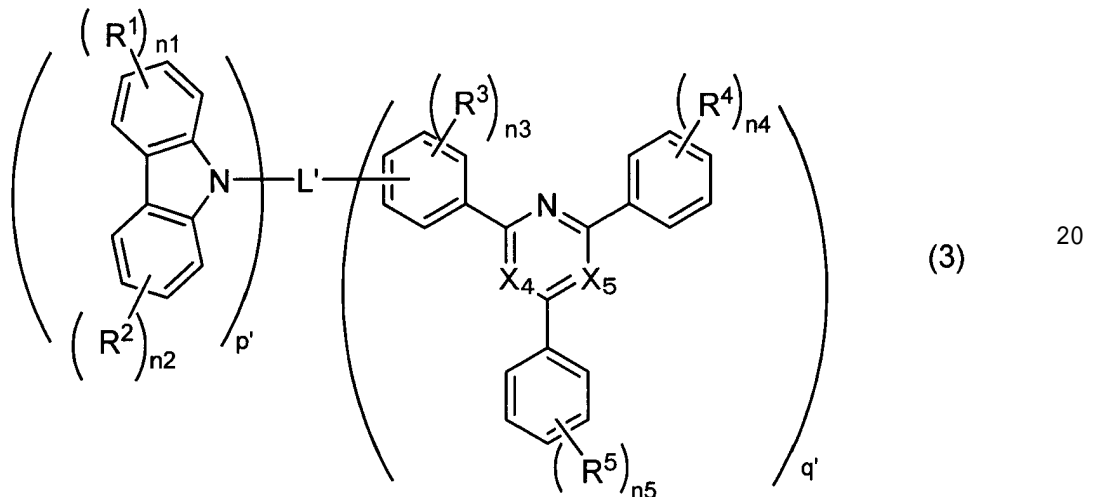
【0006】

すなわち、本発明は下記的手段により達成された。

< 1 >

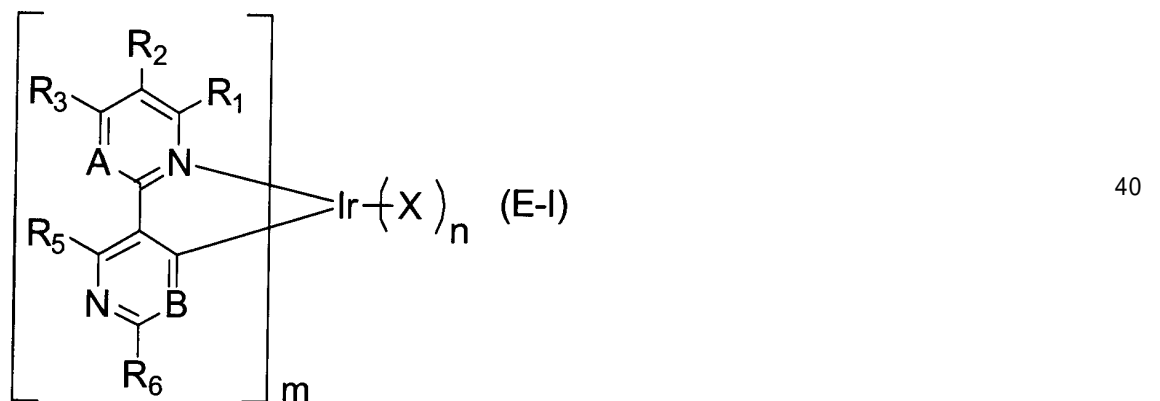
基板上に、一対の電極と、該電極間に発光層を有する有機電界発光素子であって、  
前記発光層に、以下の一般式(3)で表される化合物と、一般式(E-I)で表される化合物とを含有する、有機電界発光素子。

【化51】



一般式(3)中、 $X_4$ 及び $X_5$ はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 $X_4$ 及び $X_5$ を含む環はピリジン又はピリミジンである。 $L'$ は、単結合又はフェニレン基を表す。 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又はtert-ブチル基を表す。 $n_1 \sim n_5$ はそれぞれ独立に0又は1を表し、 $p'$ 及び $q'$ はそれぞれ独立に1又は2を表す。

【化52】



一般式(E-I)中、Aが、C( $R_4$ )又はNであり、

$R_1$ 、 $R_2$ 、及び $R_4$ が、いずれも水素原子であり、

$R_3$ が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、

10

20

30

40

50

及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、

BがC(R<sub>7</sub>)又はNであり、

R<sub>5</sub>は、水素原子又はフッ素原子であり、

R<sub>6</sub>は、水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、

R<sub>7</sub>は、水素原子又はシアノ基であり、

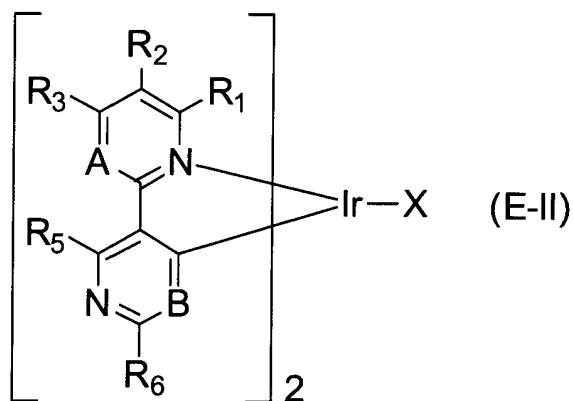
Xは、アセチルアセトナト、ピコリン酸、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル、及びフェニルピラゾールよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

mは、2又は3であり、nは0又は1であり、mとnとの和は3である。

< 2 >

前記一般式(E-I)で表される化合物が、以下の一般式(E-II)で表される化合物である、上記< 1 >に記載の有機電界発光素子。

【化53】



一般式(E-II)中、Aが、C(R<sub>4</sub>)又はNであり、

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>4</sub>が、いずれも水素原子であり、

R<sub>3</sub>が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、

BがC(R<sub>7</sub>)又はNであり、

R<sub>5</sub>は、水素原子又はフッ素原子であり、

R<sub>6</sub>は、水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、

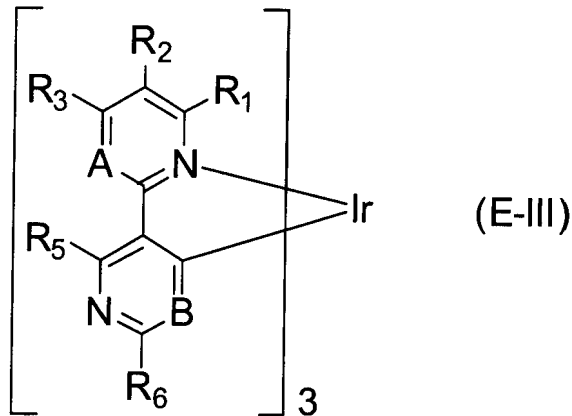
R<sub>7</sub>は、水素原子又はシアノ基であり、

Xは、アセチルアセトナト、ピコリン酸、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル、及びフェニルピラゾールよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

< 3 >

前記一般式(E-I)で表される化合物が、以下の一般式(E-III)で表される化合物である、上記< 1 >に記載の有機電界発光素子。

【化54】



10

一般式 ( E - I I I ) 中、A が、C ( R<sub>4</sub> ) 又は N であり、  
 R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> 及び R<sub>4</sub> が、いずれも水素原子であり、  
 R<sub>3</sub> が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、  
 及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、  
 B が、C ( R<sub>7</sub> ) 又は N であり、  
 R<sub>5</sub> は、水素原子又はフッ素原子であり、  
 R<sub>6</sub> は、水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、  
 R<sub>7</sub> は、水素原子又はシアノ基である。

20

&lt; 4 &gt;

前記一般式 ( E - I ) において、A が C ( R<sub>4</sub> ) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub> が水素原子、又はメチル基、及びジメチルアミノ基よりなる群から選択された電子供与性基であり、B が C ( R<sub>7</sub> ) 又は N であり、R<sub>5</sub> はフッ素原子であり、R<sub>6</sub> はフッ素原子又はシアノ基であり、R<sub>7</sub> は水素原子又はシアノ基であり、X はアセチルアセトナト、ピコリン酸、及び 1, 5 - ジメチル - 3 - ピラゾールカルボン酸エステルよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である、上記 < 1 > に記載の有機電界発光素子。

30

&lt; 5 &gt;

前記発光層に含有される、前記一般式 ( 3 ) で表される化合物に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が 100 ppm 以下である、上記 < 1 > ~ < 4 > のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

&lt; 6 &gt;

上記 < 1 > ~ < 5 > のいずれか一項に記載の、前記一般式 ( 3 ) で表される化合物と、前記一般式 ( E - I ) ~ ( E - I I I ) のいずれかで表される化合物とを含有する、発光層。

&lt; 7 &gt;

上記 < 1 > ~ < 5 > のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

40

&lt; 8 &gt;

上記 < 1 > ~ < 5 > のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

&lt; 9 &gt;

上記 < 1 > ~ < 5 > のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

なお、本発明は、上記 < 1 > ~ < 9 > に関するものであるが、参考のため、その他の事項 (例えば下記〔1〕~〔12〕に記載の事項等) についても記載した。

【0007】

〔1〕基板上に、一対の電極と、該電極間に発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層に、以下の一般式 ( 1 ) で表される化合物と、一般式 ( E - I ) で表される化合物とを含有する、有機電界発光素子。

50

【 0 0 0 8 】

【 化 1 】



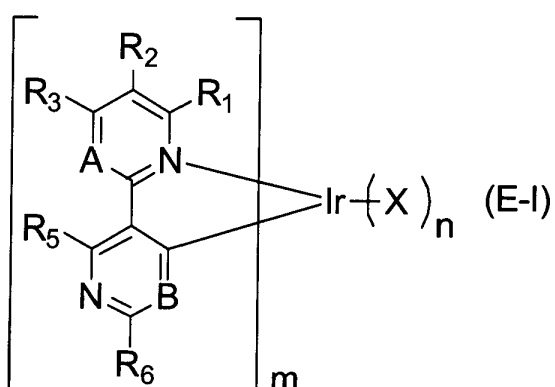
【 0 0 0 9 】

一般式(1)中、Czは置換若しくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基、Lは単結合、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換のシクロアルキレン基、又は置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環、Aは置換若しくは無置換の窒素含有芳香族ヘテロ6員環であり、p及びqはそれぞれ独立に1~6の整数である

10

【 0 0 1 0 】

【 化 2 】



20

【 0 0 1 1 】

一般式(E-I)中、Aは、C(R<sub>4</sub>)又はNであり、

Bは、C(R<sub>7</sub>)又はNであり、

R<sub>1</sub>~R<sub>7</sub>は、それぞれ独立して、水素原子、シアノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアリールアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換のアルキルアミノ基、又は置換若しくは無置換のヘテロ環基であり、R<sub>1</sub>~R<sub>4</sub>よりなる群から選択された2つ以上の隣接した置換基、R<sub>4</sub>とR<sub>5</sub>、及びR<sub>6</sub>とR<sub>7</sub>はそれぞれ、互いに連結されて飽和若しくは不飽和の炭素環、又は飽和若しくは不飽和のヘテロ環を形成していてもよく、

30

Xは、モノアニオン性の二座配位子であり、

mは、2又は3であり、nは0又は1であり、mとnとの和は3である。

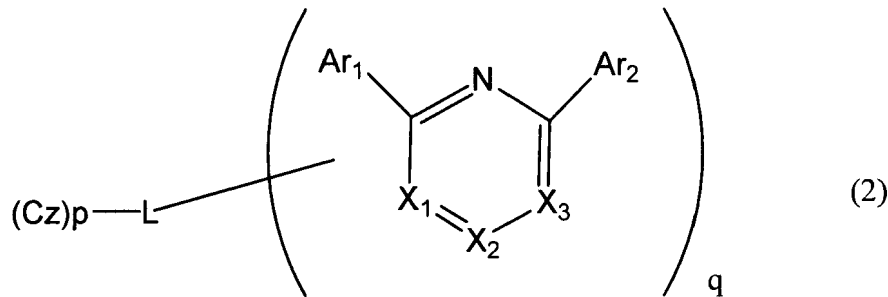
〔2〕前記一般式(1)で表される化合物が、以下の一般式(2)で表される化合物である、上記〔1〕に記載の有機電界発光素子。

40

【 0 0 1 2 】



## 【化3】



10

## 【0013】

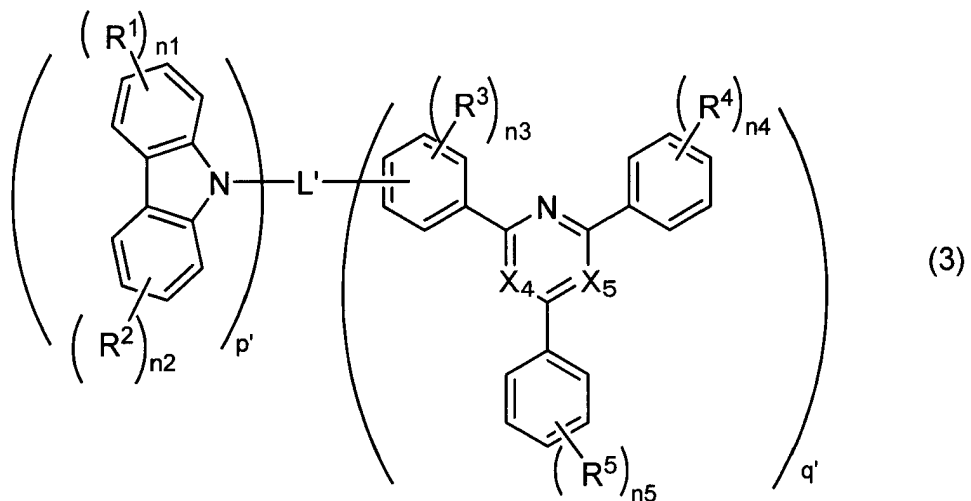
一般式(2)中、式中、Czは置換若しくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基を表す。Lは単結合、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換のシクロアルキレン基、又は置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環を表し、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>又はX<sub>3</sub>の炭素原子と連結する。Ar<sub>1</sub>及びAr<sub>2</sub>はそれぞれ独立に置換又は無置換のアリール基、又は置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基を表し、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>及びX<sub>3</sub>はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子若しくは置換基が結合した炭素原子を表す。p及びqはそれぞれ独立に1～6の整数を表す。

〔3〕前記一般式(2)で表される化合物が、以下の一般式(3)で表される化合物である、上記〔2〕に記載の有機電界発光素子。

20

## 【0014】

## 【化4】



30

## 【0015】

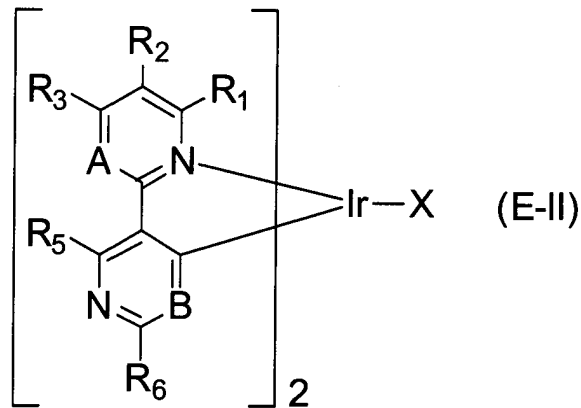
一般式(3)中、X<sub>4</sub>及びX<sub>5</sub>はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、X<sub>4</sub>及びX<sub>5</sub>を含む環はピリジン又はピリミジンである。L'は、単結合又はフェニレン基を表す。R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルbazリル基、又はtert-ブチル基を表す。n<sub>1</sub>～n<sub>5</sub>はそれぞれ独立に0又は1を表し、p'及びq'はそれぞれ独立に1又は2を表す。

40

〔4〕前記一般式(E-I)で表される化合物が、以下の一般式(E-II)で表される化合物である、上記〔1〕～〔3〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

## 【0016】

## 【化5】



10

## 【0017】

一般式(E-I)中、Aが、C(R<sub>4</sub>)又はNであり、

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>4</sub>が、いずれも水素原子であり、

R<sub>3</sub>が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、イソプロピル基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、ジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、

20

BがC(R<sub>7</sub>)又はNであり、

R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>は、互いに独立して、水素原子、又はフッ素原子、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基、及びトリフルオロメチル基よりなる群から選択された電子求引性基であり、

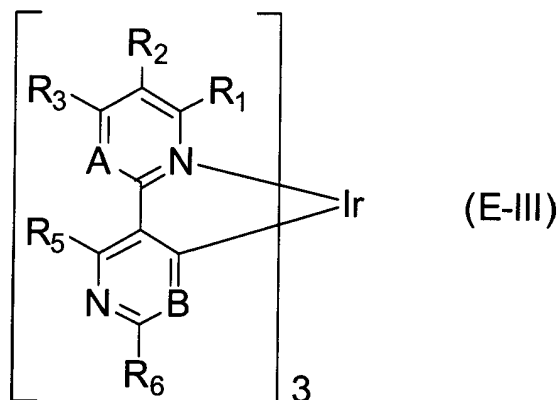
Xが、アセチルアセトナト、ヘキサフルオロアセチルアセトナト、ピコリン酸、サリチルアニリド、キノリンカルボン酸エステル、8-ヒドロキシキノリナト、L-プロリン、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル、イミンアセチルアセトネート、ジベンゾイルメタン、テトラメチルヘプタンジオネート、1-(2-ヒドロキシフェニル)ピラゾレート、及びフェニルピラゾールよりなる群から選択される。

〔5〕前記一般式(E-I)で表される化合物が、以下の一般式(E-III)で表される化合物である、上記〔1〕～〔3〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

30

## 【0018】

## 【化6】



40

## 【0019】

一般式(E-III)中、Aが、C(R<sub>4</sub>)又はNであり、

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>4</sub>が、いずれも水素原子であり、

R<sub>3</sub>が、水素原子、又はメチル基、メトキシ基、イソプロピル基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、ジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェ

50

ニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、

Bが、C(R<sub>7</sub>)又はNであり、

R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>は、互いに独立して、水素原子、又はフッ素原子、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基、及びトリフルオロメチル基よりなる群から選択された電子求引性基である。

〔6〕前記一般式(E-I)において、AがC(R<sub>4</sub>)又はNであり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及びR<sub>4</sub>がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub>が水素原子、又はメチル基、及びジメチルアミノ基よりなる群から選択された電子供与性基であり、BがC(R<sub>7</sub>)又はNであり、R<sub>5</sub>はフッ素原子であり、R<sub>6</sub>はフッ素原子又はシアノ基であり、R<sub>7</sub>は水素原子又はシアノ基であり、Xはアセチルアセトナト、ピコリン酸、及び1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステルよりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である、上記〔1〕～〔3〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

10

〔7〕前記発光層に含有される、前記一般式(1)～(3)のいずれかで表される化合物に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が100ppm以下である、上記〔1〕～〔6〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

〔8〕上記〔1〕～〔7〕のいずれか一項に記載の、前記一般式(1)～(3)のいずれかで表される化合物と、前記一般式(E-I)～(E-III)のいずれかで表される化合物とを含有する、発光層。

〔9〕上記〔1〕～〔7〕のいずれか一項に記載の、前記一般式(1)～(3)のいずれかで表される化合物と、前記一般式(E-I)～(E-III)のいずれかで表される化合物とを含有する、組成物。

20

〔10〕上記〔1〕～〔7〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

〔11〕上記〔1〕～〔7〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

〔12〕上記〔1〕～〔7〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

#### 【発明の効果】

##### 【0020】

30

本発明によれば、優れた青色色度の特性を有すると共に、従来の有機電界発光素子に対して、外部量子効率及び駆動耐久性をより高い水準で両立し、かつ素子駆動前後の色度変化が小さい有機電界発光素子を提供することができる。

##### 【図面の簡単な説明】

##### 【0021】

【図1】本発明に係る有機EL素子の層構成の一例(第1実施形態)を示す概略図である。

【図2】本発明に係る発光装置の一例(第2実施形態)を示す概略図である。

【図3】本発明に係る照明装置の一例(第3実施形態)を示す概略図である。

##### 【発明を実施するための形態】

40

##### 【0022】

下記、一般式(1)～(3)及び一般式(E-I)～(E-III)の説明における水素原子は同位体(重水素原子等)も含み、また更に置換基を構成する原子は、その同位体も含んでいることを表す。

##### 【0023】

本発明において、置換基群A及び置換基Zを下記のように定義する。

##### (置換基群A)

アルキル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、イソプロピル、t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキ

50

シル、ネオペンチルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、4-メチルフェニル、2,6-ジメチルフェニルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、  
10 アルコキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリーロキシ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニロキシ、1-ナフチロキシ、2-ナフチロキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジロキシ、ピラジロキシ、ピリミジロキシ、キノリロキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~  
20 20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニロキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシロキシ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げ  
30 られる。)、アリーロキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニロキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタン  
スルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えば  
40 カルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12  
50 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12

10

20

30

40

50

であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(芳香族ヘテロ環基も包含し、好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、リン原子、ケイ素原子、セレン原子、テルル原子であり、具体的にはピリジル、ピラジニル、ピリミジル、ピリダジニル、ピロリル、ピラゾリル、トリアゾリル、イミダゾリル、オキサゾリル、チアゾリル、イソキサゾリル、イソチアゾリル、キノリル、フリル、チエニル、セレノフェニル、テルロフェニル、ピペリジル、ピペリジノ、モルホリノ、ピロリジル、ピロリジノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル基、アゼピニル基、シロリル基などが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)、シリルオキシ基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。)、ホスホリル基(例えばジフェニルホスホリル基、ジメチルホスホリル基などが挙げられる。))が挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよく、更なる置換基としては、以上に説明した置換基群Aから選択される基を挙げることができる。

(置換基Z)

アルキル基、アルケニル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、アルコキシ基、フェノキシ基、フッ素原子、シリル基、アミノ基、シアノ基又はこれらを組み合わせて成る基を表し、複数の置換基Zは互いに結合してアリール環を形成しても良い。

【0024】

置換基Zが表すアルキル基としては、好ましくは炭素数1~8のアルキル基であり、より好ましくは炭素数1~6のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ブチル基、シクロプロピル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、イソブチル基、又はt-ブチル基が好ましく、メチル基がより好ましい。

置換基Zが表すアルケニル基としては、好ましくは炭素数2~8のアルケニル基であり、より好ましくは炭素数2~6のアルケニル基であり、例えばビニル基、n-プロペニル基、イソプロペニル基、イソブテニル基、n-ブテニル基等が挙げられ、ビニル基、n-プロペニル基、イソブテニル基、又はn-ブテニル基が好ましく、ビニル基がより好ましい。

置換基Zが表すアリール基としては、好ましくは炭素数6~18のアリール基であり、より好ましくは炭素数6~12のアリール基である。例えば、フェニル基、ピフェニル基、ナフチル基、トリル基、キシリル基等が挙げられ、これらのうちフェニル基、ピフェニル基が好ましく、フェニル基がより好ましい。

【0025】

置換基Zが表す芳香族ヘテロ環基としては、好ましくは炭素数4~12の芳香族ヘテロ環基であり、例えばピリジル基、フリル基、チエニル基等が挙げられ、ピリジル基又はフリル基が好ましく、ピリジル基がより好ましい。

置換基Zが表すアルコキシ基としては、好ましくは炭素数1~8のアルコキシ基であり、より好ましくは炭素数1~4のアルコキシ基であり、例えばメトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、イソブトキシ基、t-ブトキシ基、n-ブトキシ基、シクロプロピルオキシ基等が挙げられ、メトキシ基、エトキシ基、イソブトキシ基、

10

20

30

40

50

又は t - ブトキシ基が好ましく、メトキシ基がより好ましい。

置換基 Z が表すシリル基及びアミノ基としては、前述の置換基群 A におけるシリル基及びアミノ基と同様のものが挙げられる。

複数の置換基 Z が互いに結合して形成するアリール環としては、ベンゼン環、ナフタレン環等が挙げられ、ベンゼン環が好ましい。

【 0 0 2 6 】

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、一对の電極と、該電極間に発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層に、以下に説明する一般式 ( 1 ) で表される化合物 ( 特定構造のカルバゾール化合物 ) と一般式 ( E - I ) で表される化合物 ( 青色燐光発光材料としての特定構造のイリジウム錯体 ) とを含有する。

発光層において、一般式 ( 1 ) で表される化合物と、一般式 ( E - I ) で表される化合物とを組み合わせ使用した本発明の構成により、優れた青色色度の特性を有すると共に、外部量子効率及び駆動耐久性をより高い水準で両立し、かつ素子駆動前後の色度変化が小さい有機電界発光素子が提供される理由は定かではないが、次のように推測される。

一般式 ( E - I ) で表される化合物は、深い青色色度の有機電界発光素子の提供を可能にするが、該化合物を使用した従来の素子においては、エミッターである該化合物同士が会合することに起因した外部量子効率及び駆動耐久性の低下、並びに素子の駆動経時による発光位置 ( 励起子生成位置 ) の変化に起因した大きな色度変化が生じていたと考えられる。一方で本発明においては、一般式 ( E - I ) で表される化合物を、特定のホスト材料、すなわち、一般式 ( 1 ) で表される化合物と組み合わせ使用することにより、前述のエミッターの会合や、発光位置の変化が好適に抑制され、深い青色色度の有機電界発光素子において、従来の素子と比較して、外部量子効率及び駆動耐久性が更に向上し、かつ素子駆動前後の色度変化が小さいという効果が得られるものと推測される。なお素子駆動前後の小さい色度変化の効果は、従来の素子からは予期しえぬものである。

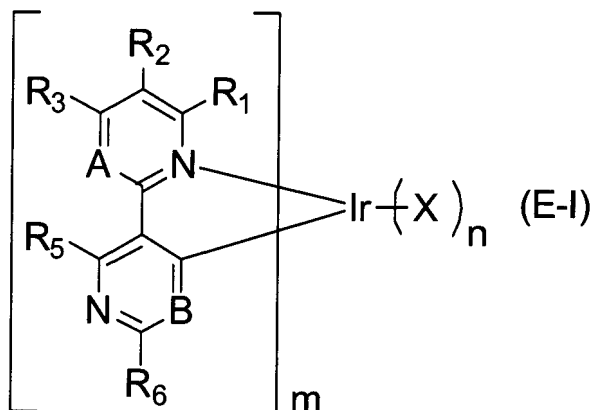
【 0 0 2 7 】

〔一般式 ( E - I ) で表される化合物〕

以下に、一般式 ( E - I ) で表される化合物について説明する。

【 0 0 2 8 】

〔化 7 〕



【 0 0 2 9 】

一般式 ( E - I ) 中、A は、C ( R<sub>4</sub> ) 又は N であり、

B は、C ( R<sub>7</sub> ) 又は N であり、

R<sub>1</sub> ~ R<sub>7</sub> は、それぞれ独立して、水素原子、シアノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアリールアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換のアルキルアミノ基、又は置換若しく

は無置換のヘテロ環基であり、 $R_1 \sim R_4$  よりなる群から選択された2つ以上の隣接した置換基、 $R_4$  と  $R_5$ 、及び  $R_6$  と  $R_7$  はそれぞれ、互いに連結されて飽和若しくは不飽和の炭素環、又は飽和若しくは不飽和のヘテロ環を形成していてもよく、

X は、モノアニオン性の二座配位子であり、

m は、2 又は 3 であり、n は 0 又は 1 であり、m と n との和は 3 である。

【0030】

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキル基が置換基を有する場合、置換基としては前述の置換基 Z が挙げられ、置換基 Z としてはフッ素原子が好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキル基は、好ましくは炭素数 1 ~ 20 のアルキル基であり、炭素数 1 ~ 12 がより好ましく、炭素数 1 ~ 6 が更に好ましい。

10

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルコキシ基が置換基を有する場合、置換基としては前述の置換基 Z が挙げられ、置換基 Z としてはフッ素原子が好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルコキシ基は、好ましくは炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基であり、炭素数 1 ~ 12 がより好ましく、炭素数 1 ~ 6 が更に好ましい。

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリール基が置換基を有する場合、置換基としては前述の置換基 Z が挙げられ、置換基 Z としてはアルキル基又はフッ素原子が好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリール基は、好ましくは炭素数 6 ~ 20 のアリール基であり、炭素数 6 ~ 18 がより好ましく、炭素数 6 ~ 12 が更に好ましい。

【0031】

20

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールオキシ基におけるアリール基は、前述の  $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリール基と同様である。

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアルキル基におけるアリール基及びアルキル基は、前述の  $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリール基及び置換若しくは無置換のアルキル基とそれぞれ同様である。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアルキル基は、好ましくは炭素数 7 ~ 20 のアリールアルキル基であり、炭素数 7 ~ 18 がより好ましく、炭素数 7 ~ 12 が更に好ましい。

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアルコキシ基におけるアリール基及びアルコキシ基は、前述の  $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリール基及び置換若しくは無置換のアルコキシ基とそれぞれ同様である。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアルコキシ基は、好ましくは炭素数 7 ~ 20 のアリールアルコキシ基であり、炭素数 7 ~ 18 がより好ましく、炭素数 7 ~ 12 が更に好ましい。

30

【0032】

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアミノ基が置換基を有する場合、置換基としては前述の置換基 Z が挙げられ、置換基 Z としてはアルキル基又はフッ素原子が好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアミノ基におけるアリール基は、前述の  $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリール基と同様であり、 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアミノ基は、好ましくは炭素数 6 ~ 20 のアリールアミノ基であり、炭素数 6 ~ 18 がより好ましく、炭素数 6 ~ 12 が更に好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアリールアミノ基は、置換若しくは無置換のジアリールアミノ基であることが好ましい。

40

$R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキルアミノ基が置換基を有する場合、置換基としては前述の置換基 Z が挙げられ、置換基 Z としてはフッ素原子が好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキルアミノ基におけるアルキル基は、前述の  $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキル基と同様であり、 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキルアミノ基は、好ましくは炭素数 1 ~ 20 のアルキルアミノ基であり、炭素数 1 ~ 12 がより好ましく、炭素数 1 ~ 6 が更に好ましい。 $R_1 \sim R_7$  で表される置換若しくは無置換のアルキルアミノ基は、置換若しくは無置換のジアルキルアミノ基であることが好ましい。

【0033】

50

$R_1 \sim R_7$ で表される置換若しくは無置換のヘテロ環基が置換基を有する場合、置換基としては前述の置換基Zが挙げられ、置換基Zとしてはアルキル基又はフッ素原子が好ましい。 $R_1 \sim R_7$ で表される置換若しくは無置換のヘテロ環基は、好ましくは炭素数2～20のヘテロ環基であり、炭素数4～12がより好ましく、炭素数4～6が更に好ましい。

【0034】

$R_1 \sim R_4$ よりなる群から選択された2つ以上の隣接した置換基、 $R_4$ と $R_5$ 、又は $R_6$ と $R_7$ が互いに連結されて形成される飽和若しくは不飽和の炭素環は、好ましくは炭素数3～20であり、より好ましくは炭素数5～12である。

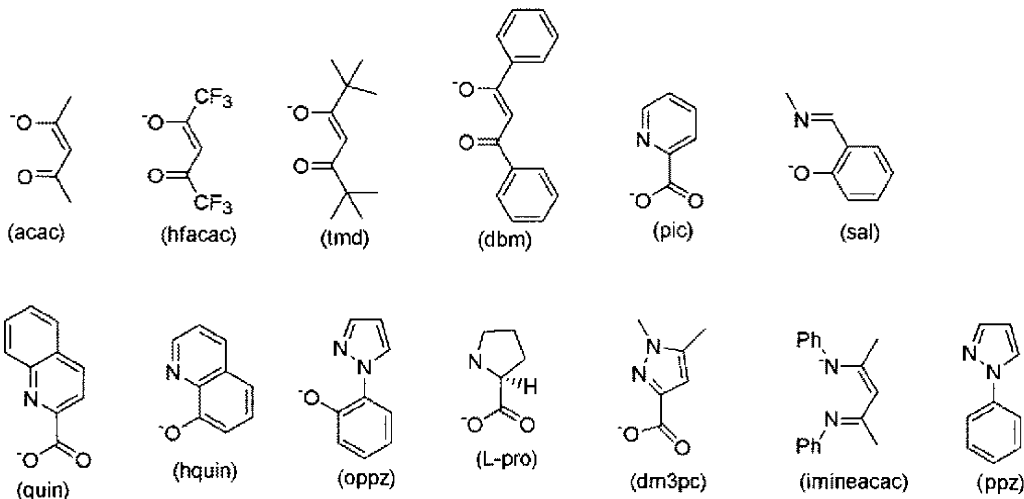
$R_1 \sim R_4$ よりなる群から選択された2つ以上の隣接した置換基、 $R_4$ と $R_5$ 、又は $R_6$ と $R_7$ が互いに連結されて形成される飽和若しくは不飽和のヘテロ環は、好ましくは炭素数2～20であり、より好ましくは炭素数4～12である。

【0035】

前記一般式(E-I)において、Xはモノアニオン性の二座配位子であり、具体的には以下に示されるアセチルアセトナト(acac)、ヘキサフルオロアセチルアセトナト(hfacac)、ピコリン酸(pic)、サリチルアニリド(sal)、キノリンカルボン酸エステル(quin; quinolinecarboxylate)、8-ヒドロキシキノリナート(hquin; 8-hydroxyquinolinate)、L-プロリン(L-pro)、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル(dm3pc; 1,5-dimethyl-3-pyrazolecarboxylate)、イミンアセチルアセトネート(imineacac)、ジベンゾイルメタン(dbm)、テトラメチルヘプタンジオネート(tmd; tetramethylheptandionate)、1-(2-ヒドロキシフェニル)ピラゾレート(oppz; 1-(2-hydroxyphenyl)pyrazolate)、及びフェニルピラゾール(ppz)よりなる群から選択されるものが好ましく挙げられる。

【0036】

【化8】



【0037】

前記一般式(E-I)において、AがC( $R_4$ )又はNであり、 $R_1$ 、 $R_2$ 、及び $R_4$ がいずれも水素原子であり、 $R_3$ が水素原子、又はメチル基、メトキシ基、イソプロピル基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、ジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、BがC( $R_7$ )又はNであり、 $R_5$ 、 $R_6$ 、及び $R_7$ は水素原子、又はフッ素原子、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基、及びトリフルオロメチル基よりなる群から選択された電子求引性基であるのが好ましい。

より好ましくは、前記一般式(E-I)において、AがC( $R_4$ )又はNであり、 $R_1$

10

20

30

40

50



、 $R_2$ 、及び $R_4$ がいずれも水素原子であり、 $R_3$ が水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、 $B$ が $C(R_7)$ 又は $N$ であり、 $R_5$ は水素原子又はフッ素原子であり、 $R_6$ は水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、 $R_7$ は水素原子又はシアノ基であり、 $X$ はアセチルアセトナト(acac)、ピコリン酸(pic)、1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル(dm3pc; 1,5-dimethyl-3-pyrazole carboxylate)、及びフェニルピラゾール(ppz)よりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

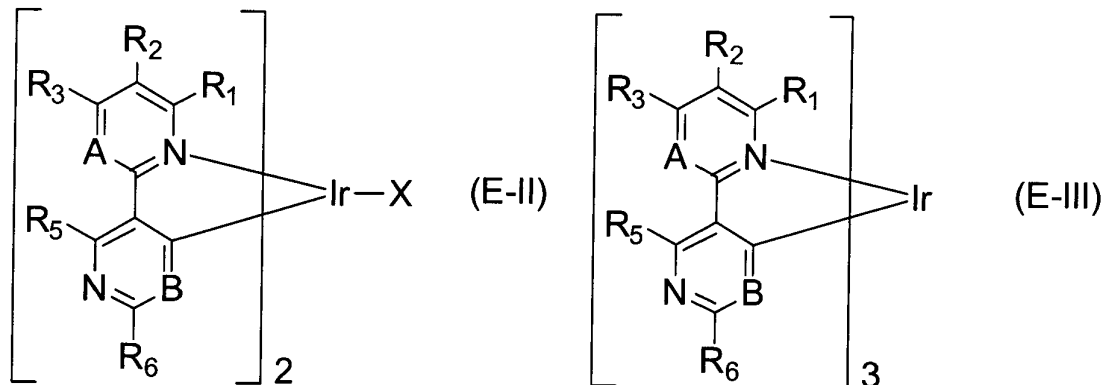
更に好ましくは、前記一般式(E-I)において、 $A$ が $C(R_4)$ 又は $N$ であり、 $R_1$ 、 $R_2$ 、及び $R_4$ がいずれも水素原子であり、 $R_3$ が水素原子、又はメチル基、及びジメチルアミノ基よりなる群から選択された電子供与性基であり、 $B$ が $C(R_7)$ 又は $N$ であり、 $R_5$ はフッ素原子であり、 $R_6$ はフッ素原子又はシアノ基であり、 $R_7$ は水素原子又はシアノ基であり、 $X$ はアセチルアセトナト(acac)、ピコリン酸(pic)、及び1,5-ジメチル-3-ピラゾールカルボン酸エステル(dm3pc; 1,5-dimethyl-3-pyrazole carboxylate)よりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

【0038】

本発明において、前記一般式(E-I)で示されるイリジウム化合物は、 $m$ と $n$ との組み合わせによって下記一般式(E-II)又は(E-III)の青色発光化合物に区分することができる。

【0039】

【化9】



【0040】

前記一般式(E-II)及び(E-III)中、

$A$ は、 $C(R_4)$ 又は $N$ であり、

$B$ は、 $C(R_7)$ 又は $N$ であり、

$R_1 \sim R_7$ は、それぞれ独立して、水素原子、シアノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアリールアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換のアルキルアミノ基、又は置換若しくは無置換のヘテロ環基であり、 $R_1 \sim R_4$ よりなる群から選択された2つ以上の隣接した置換基、 $R_4$ と $R_5$ 、及び $R_6$ と $R_7$ はそれぞれ、互いに連結されて飽和若しくは不飽和の炭素環、又は飽和若しくは不飽和のヘテロ環を形成していてもよく、

$X$ は、モノアニオン性の二座配位子である。

一般式(E-II)及び(E-III)における、 $A$ 、 $B$ 、 $R_1 \sim R_7$ 及び $X$ の具体例及び好ましい範囲と

同様である。

【0041】

前記一般式 (E - I I) 又は (E - I I I) において、好ましくは、A が C (R<sub>4</sub>) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub> が水素原子、又はメチル基、メトキシ基、イソプロピル基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、ジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、B が C (R<sub>7</sub>) 又は N であり、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、及び R<sub>7</sub> は互いに独立して水素原子、又はフッ素原子、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基、及びトリフルオロメチル基よりなる群から選択された電子求引性基であり、X がアセチルアセトナト (a c a c)、ヘキサフルオロアセチルアセトナト (h f a c a c)、ピコリン酸 (p i c)、サリチルアニリド (s a l)、キノリンカルボン酸エステル (q u i n)、8 - ヒドロキシキノリナート (h q u i n)、L - プロリン (L - p r o)、1, 5 - ジメチル - 3 - ピラゾールカルボン酸エステル (d m 3 p c)、イミンアセチルアセトネート (i m i n e a c a c)、ジベンゾイルメタン (d b m)、テトラメチルヘプタンジオネート (t m d)、1 - (2 - ヒドロキシフェニル) ピラゾレート (o p p z)、及びフェニルピラゾール (p p z) よりなる群から選択される。

10

前記一般式 (E - I I) において、より好ましくは、A が C (R<sub>4</sub>) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub> が水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、B が C (R<sub>7</sub>) 又は N であり、R<sub>5</sub> は水素原子又はフッ素原子であり、R<sub>6</sub> は水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、R<sub>7</sub> は水素原子又はシアノ基であり、X はアセチルアセトナト (a c a c)、ピコリン酸 (p i c)、1, 5 - ジメチル - 3 - ピラゾールカルボン酸エステル (d m 3 p c; 1, 5 - d i m e t h y l - 3 - p y l a z o l e c a r b o x y l a t e)、及びフェニルピラゾール (p p z) よりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

20

前記一般式 (E - I I) において、更に好ましくは、A が C (R<sub>4</sub>) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub> が水素原子、又はメチル基であり、B が C (R<sub>7</sub>) 又は N であり、R<sub>5</sub> はフッ素原子であり、R<sub>6</sub> はフッ素原子又はシアノ基であり、R<sub>7</sub> は水素原子又はシアノ基であり、X はアセチルアセトナト (a c a c)、ピコリン酸 (p i c)、及び 1, 5 - ジメチル - 3 - ピラゾールカルボン酸エステル (d m 3 p c; 1, 5 - d i m e t h y l - 3 - p y l a z o l e c a r b o x y l a t e) よりなる群から選択されるモノアニオン性の二座配位子である。

30

【0042】

また前記一般式 (E - I I I) において、より好ましくは、A が C (R<sub>4</sub>) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub> が水素原子、又はメチル基、メトキシ基、ジメチルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択された電子供与性基であり、B が C (R<sub>7</sub>) 又は N であり、R<sub>5</sub> は水素原子又はフッ素原子であり、R<sub>6</sub> は水素原子、フッ素原子又はシアノ基であり、R<sub>7</sub> は水素原子又はシアノ基である。

40

前記一般式 (E - I I I) において、更に好ましくは、A が C (R<sub>4</sub>) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> がいずれも水素原子であり、R<sub>3</sub> が水素原子、又はメチル基、及びジメチルアミノ基よりなる群から選択された電子供与性基であり、B が C (R<sub>7</sub>) 又は N であり、R<sub>5</sub> はフッ素原子であり、R<sub>6</sub> はフッ素原子又はシアノ基であり、R<sub>7</sub> は水素原子である。

【0043】

前記一般式 (E - I) ~ (E - I I I) において、A が C (R<sub>4</sub>) 又は N であり、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、及び R<sub>4</sub> が水素原子である場合、R<sub>3</sub> は水素原子、又はメチル基、メトキシ基、イソプロピル基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、ジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ピロリジニル基、及びフェニル基よりなる群から選択される電子供与性基であ

50

り、BはC(R<sub>7</sub>)又はNであり、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、及びR<sub>7</sub>は水素原子、又はフッ素原子、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基、及びトリフルオロメチル基よりなる群から選択された電子求引性基を形成できる。

## 【0044】

上述した一般式(E-I)で表される化合物の代表例としては、後述する実施例において使用する化合物(19)、化合物(33)、化合物(136)、化合物(138)、化合物(142)などが好ましく挙げられる。

## 【0045】

また、前記化合物の具体例として、下記表にA、B、R<sub>1</sub>~R<sub>7</sub>、及びXの好ましい組み合わせを示す。

## 【0046】

なお、下記表中、Aとして記載した「C」はC(R<sub>4</sub>)で示される基を意味し、Bとして記載した「C」はC(R<sub>7</sub>)で示される基を意味する。

## 【0047】

## 【表1】

表1

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	X
1	C	C	H	H	H	H	F	H	H	acac
2	C	C	H	H	H	H	F	F	H	acac
3	C	C	H	H	H	H	F	F	CN	acac
4	C	C	H	H	メチル基	H	F	H	H	acac
5	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	H	acac
6	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	CN	acac
7	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	H	acac
8	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	H	acac
9	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	H	acac
10	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	H	acac
11	C	C	H	H	フェニル基	H	F	H	H	acac
12	C	C	H	H	フェニル基	H	F	F	H	acac
13	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	H	acac
14	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	H	acac
15	C	C	H	H	H	H	F	H	H	pic
16	C	C	H	H	H	H	F	F	H	pic
17	C	C	H	H	H	H	F	F	CN	pic
18	C	C	H	H	メチル基	H	F	H	H	pic
19	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	H	pic
20	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	CN	pic
21	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	H	pic
22	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	H	pic
23	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	H	pic
24	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	H	pic
25	C	C	H	H	フェニル基	H	F	H	H	pic
26	C	C	H	H	フェニル基	H	F	F	H	pic
27	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	H	pic
28	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	H	pic

## 【0048】

10

20

30

40

【表2】

表2

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	X
29	C	C	H	H	H	H	F	H	H	dm3pc
30	C	C	H	H	H	H	F	F	H	dm3pc
31	C	C	H	H	H	H	F	F	CN	dm3pc
32	C	C	H	H	メチル基	H	F	H	H	dm3pc
33	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	H	dm3pc
34	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	CN	dm3pc
35	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	H	dm3pc
36	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	H	dm3pc
37	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	H	dm3pc
38	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	H	dm3pc
39	C	C	H	H	フェニル基	H	F	H	H	dm3pc
40	C	C	H	H	フェニル基	H	F	F	H	dm3pc
41	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	H	dm3pc
42	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	H	dm3pc
43	C	C	H	H	H	H	F	H	H	ppz
44	C	C	H	H	H	H	F	F	H	ppz
45	C	C	H	H	H	H	F	F	CN	ppz
46	C	C	H	H	メチル基	H	F	H	H	ppz
47	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	H	ppz
48	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	CN	ppz
49	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	H	ppz
50	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	H	ppz
51	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	H	ppz
52	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	H	ppz
53	C	C	H	H	フェニル基	H	F	H	H	ppz
54	C	C	H	H	フェニル基	H	F	F	H	ppz
55	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	H	ppz
56	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	H	ppz

10

20

30

【0049】

【表3】

表3

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	X
57	C	N	H	H	H	H	F	H	acac
58	C	N	H	H	H	H	H	F	acac
59	C	N	H	H	H	H	F	F	acac
60	C	N	H	H	メチル基	H	F	H	acac
61	C	N	H	H	メチル基	H	H	F	acac
62	C	N	H	H	メチル基	H	F	F	acac
63	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	acac
64	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	acac
65	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	acac
66	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	acac
67	C	N	H	H	フェニル基	H	F	H	acac
68	C	N	H	H	フェニル基	H	F	F	acac
69	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	acac
70	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	acac
71	C	N	H	H	H	H	F	H	pic
72	C	N	H	H	H	H	F	F	pic
73	C	N	H	H	H	H	F	H	pic
74	C	N	H	H	メチル基	H	F	F	pic
75	C	N	H	H	メチル基	H	F	H	pic
76	C	N	H	H	メチル基	H	F	F	pic
77	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	pic
78	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	pic
79	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	pic
80	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	pic
81	C	N	H	H	フェニル基	H	F	H	pic
82	C	N	H	H	フェニル基	H	F	F	pic
83	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	pic
84	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	pic

10

20

30

【0050】

【表4】

表4

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	X
85	C	N	H	H	H	H	F	H	dm3pc
86	C	N	H	H	H	H	H	F	dm3pc
87	C	N	H	H	H	H	F	F	dm3pc
88	C	N	H	H	メチル基	H	F	H	dm3pc
89	C	N	H	H	メチル基	H	H	F	dm3pc
90	C	N	H	H	メチル基	H	F	F	dm3pc
91	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	dm3pc
92	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	dm3pc
93	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	dm3pc
94	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	dm3pc
95	C	N	H	H	フェニル基	H	F	H	dm3pc
96	C	N	H	H	フェニル基	H	F	F	dm3pc
97	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	dm3pc
98	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	dm3pc
99	C	N	H	H	H	H	F	H	ppz
100	C	N	H	H	H	H	F	F	ppz
101	C	N	H	H	H	H	F	H	ppz
102	C	N	H	H	メチル基	H	F	F	ppz
103	C	N	H	H	メチル基	H	F	H	ppz
104	C	N	H	H	メチル基	H	F	F	ppz
105	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	ppz
106	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	ppz
107	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	ppz
108	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	ppz
109	C	N	H	H	フェニル基	H	F	H	ppz
110	C	N	H	H	フェニル基	H	F	F	ppz
111	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	ppz
112	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	ppz

10

20

30

【0051】

【表5】  
表5

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	X
113	N	C	H	H	H	F	H	H	acac
114	N	C	H	H	H	F	F	H	acac
115	N	C	H	H	H	F	F	CN	acac
116	N	C	H	H	H	F	H	H	pic
117	N	C	H	H	H	F	F	H	pic
118	N	C	H	H	H	F	F	CN	pic
119	N	C	H	H	H	F	H	H	dm3pc
120	N	C	H	H	H	F	F	H	dm3pc
121	N	C	H	H	H	F	F	CN	dm3pc
122	N	C	H	H	H	F	H	H	ppz
123	N	C	H	H	H	F	F	H	ppz
124	N	C	H	H	H	F	F	CN	ppz

10

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	X
125	C	N	H	H	H	H	H	H	pic
126	C	N	H	H	H	H	F	H	pic
127	C	N	H	H	H	H	H	F	pic
128	C	N	H	H	H	H	F	F	pic
129	C	N	H	H	H	H	F	CN	pic
130	C	N	H	H	H	H	H	H	ppz
131	C	N	H	H	H	H	F	H	ppz
132	C	N	H	H	H	H	H	F	ppz
133	C	N	H	H	H	H	F	F	ppz
134	C	N	H	H	H	H	F	CN	ppz

20

【0052】

30

【表6】

表6

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>
135	C	C	H	H	H	H	F	H	H
136	C	C	H	H	H	H	F	F	H
137	C	C	H	H	H	H	F	F	CN
138	C	C	H	H	メチル基	H	F	H	H
139	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	H
140	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	CN
141	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	H
142	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	H
143	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	H
144	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	H
145	C	C	H	H	フェニル基	H	F	H	H
146	C	C	H	H	フェニル基	H	F	F	H
147	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	H
148	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	H
149	C	C	H	H	H	H	F	H	H
150	C	C	H	H	H	H	F	F	H
151	C	C	H	H	H	H	F	F	CN
152	C	C	H	H	メチル基	H	F	H	H
153	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	H
154	C	C	H	H	メチル基	H	F	F	CN
155	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H	H
156	C	C	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F	H
157	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	H	H
158	C	C	H	H	ピロリジニル基	H	F	F	H
159	C	C	H	H	フェニル基	H	F	H	H
160	C	C	H	H	フェニル基	H	F	F	H
161	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H	H
162	C	C	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F	H

10

20

30

【0053】



【表 7】  
表 7

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>
163	C	N	H	H	H	H	F	H
164	C	N	H	H	H	H	H	F
165	C	N	H	H	H	H	F	F
166	C	N	H	H	メチル基	H	F	H
167	C	N	H	H	メチル基	H	H	F
168	C	N	H	H	メチル基	H	F	F
169	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H
170	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F
171	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	H
172	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	F
173	C	N	H	H	フェニル基	H	F	H
174	C	N	H	H	フェニル基	H	F	F
175	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H
176	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F
177	C	N	H	H	H	H	F	H
178	C	N	H	H	H	H	F	F
179	C	N	H	H	H	H	F	H
180	C	N	H	H	メチル基	H	F	F
181	C	N	H	H	メチル基	H	F	H
182	C	N	H	H	メチル基	H	F	F
183	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	H
184	C	N	H	H	ジメチルアミノ基	H	F	F
185	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	H
186	C	N	H	H	ピロリジニル基	H	F	F
187	C	N	H	H	フェニル基	H	F	H
188	C	N	H	H	フェニル基	H	F	F
189	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	H
190	C	N	H	H	CH <sub>3</sub> O	H	F	F

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>
191	N	C	H	H	H	F	H	H
192	N	C	H	H	H	F	F	H
193	N	C	H	H	H	F	F	CN

【 0 0 5 4 】

【表 8】

表8

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>
194	C	N	H	H	H	H	H	H
195	C	N	H	H	H	H	F	H
196	C	N	H	H	H	H	H	F
197	C	N	H	H	H	H	F	F
198	C	N	H	H	H	H	F	CN

10

化合物	A	B	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>
199	N	N	H	H	H	H	H
200	N	N	H	H	H	F	H
201	N	N	H	H	H	H	F
202	N	N	H	H	H	F	F
203	N	N	H	H	H	F	CN

## 【0055】

上記一般式(E-I)で表される化合物は、例えば、米国特許出願公開第2005/0170209号明細書の段落番号〔0028〕～〔0032〕に記載の方法にしたがって合成可能である。

20

## 【0056】

一般式(E-I)で表される化合物は、発光層の全質量に対して0.1～30質量%含ませることが好ましく、1～20質量%含ませることがより好ましく、3～15質量%含ませることが更により好ましい。

## 【0057】

〔一般式(1)で表される化合物〕

以下、一般式(1)で表される化合物について説明する。

## 【0058】

【化10】



30

## 【0059】

一般式(1)中、Czは置換若しくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基、Lは単結合、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換のシクロアルキレン基、又は置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環、Aは置換若しくは無置換の窒素含有芳香族ヘテロ6員環であり、p及びqはそれぞれ独立に1～6の整数である。

40

## 【0060】

以下、一般式(1)で表される化合物について説明する。

Czは、置換若しくは無置換のアリールカルbazリル基又はカルbazリルアリール基である。

アリールカルbazリル基及びカルbazリルアリール基におけるアリール基は、炭素数6～30が好ましく、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、ピレニル基、フルオレニル基、ピフェニル基、ターフェニル基等が挙げられ、これらのうち、フェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、ターフェニル基が好ましく、フェニル基、ピフェニル基がより好ましい。

アリールカルbazリル基及びカルbazリルアリール基におけるカルbazリル環(カルバ

50

ゾリル基)上でのアリアル基の置換位置は、特に限定されないが、化学的安定性やキャリア輸送性の観点から、アリアル基がカルバゾール環の2位、3位、6位、7位又は9位に置換していることが好ましく、カルバゾール環の3位、6位又は9位に置換していることがより好ましく、カルバゾール環の9位(N位)に置換していることが最も好ましい。

Czがアリアルカルバゾリル基の場合、特に限定されないが、化学的安定性やキャリア輸送性の観点から、アリアルカルバゾリル基のカルバゾール環の2位、3位、6位、7位又は9位(N位)でLと連結することが好ましく、カルバゾール環の3位、6位又は9位(N位)でLと連結することがより好ましく、カルバゾール環の9位(N位)でLと連結することが最も好ましい。

具体的には、Czはフェニル基にカルバゾリル基が9位(N位)で置換してなる基、又はN-カルバゾリル基の3位及び6位がフェニル基で置換されてなる基が好ましい。

また、Czとしてはカルバゾリルアリアル基であることが好ましい。

#### 【0061】

Aは、置換若しくは無置換の窒素含有ヘテロ芳香族6員環であり、好ましくは炭素数2~40の窒素含有ヘテロ芳香族6員環である。Aは複数の置換基を有してもよく、置換基が互いに結合して環を形成してもよい。

窒素含有ヘテロ芳香族6員環又は窒素含有ヘテロ芳香族6員環を含む窒素含有ヘテロ芳香族環としては、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、トリアジン、アザインドリジン、インドリジン、プリン、プテリジン、 $\beta$ -カルボリン、ナフチリジン、キノキサリン、ターピリジン、ビピリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、イミダゾピリジン等が挙げられ、これらのうち、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジンがより好ましく、ピリジン、ピリミジンが更に好ましく、ピリミジンが最も好ましい。

#### 【0062】

Lは、単結合、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換のシクロアルキレン基、置換若しくは無置換のヘテロ芳香族環である。なお、一般式(1)においてp+qが3以上を表す場合、Lは、前記アリーレン基からp+q-2個の任意の水素原子を除いたp+q個の基、シクロアルキレン基からp+q-2個の任意の水素原子を除いたp+q個の基、又はp+q個の芳香族ヘテロ環基を表す。Lが有する置換基としては、前記置換基群Aとしてあげたものが適用でき、好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、シクロヘキシル基、シクロペンチル基、フェニル基、トリル基、キシリル基、ピリジル基、ピリミジル基、チエニル基、フルオロ基、シアノ基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロフェニル基、トリフェニルシリル基、トリメチルシリル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、ブチル基、フェニル基、ピリジル基、ピリミジル基、フルオロ基、シアノ基、トリフルオロメチル基であり、更に好ましくはメチル基、フェニル基、フルオロ基である。

アリーレン基としては、炭素数6~30のアリーレン基が好ましく、例えば、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ナフチレン基、アントラニレン基、フェナンスリレン基、ビレニレン基、クリセニレン基、フルオランテニレン基、パーフルオロアリーレン基等が挙げられ、これらのうちフェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、パーフルオロアリーレン基が好ましく、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基がより好ましく、フェニレン基、ビフェニレン基が更に好ましい。

シクロアルキレン基としては、炭素数5~30のシクロアルキレン基が好ましく、例えばシクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロヘプチレン基などが挙げられ、これらのうちシクロペンチレン基、シクロヘキシレン基が好ましく、シクロヘキシレン基がより好ましい。

ヘテロ芳香族環としては、炭素数2~30のヘテロ芳香族環が好ましく、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5

10

20

30

40

50

- イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3  
 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5  
 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフ  
 ラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラ  
 ニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノリル基、3 -  
 キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 -  
 キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソ  
 キノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノ  
 キサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2  
 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、9 - カルバゾリル基、1  
 - フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 -  
 フェナンスリジニル基、6 - フェナンスリジニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェ  
 ナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - ア  
 クリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - ア  
 クリジニル基、1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3  
 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イ  
 ル基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基  
 、1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、  
 1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1,  
 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 -  
 フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェ  
 ナンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 8 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 10 - フェナ  
 ンスロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナ  
 ンスロリン - 4 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナ  
 ンスロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナ  
 ンスロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8 - フェナ  
 ンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェ  
 ナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェ  
 ナンスロリン - 8 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェ  
 ナンスロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェ  
 ナンスロリン - 3 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェ  
 ナンスロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェ  
 ナンスロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェ  
 ナンスロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェ  
 ノチアジニル基、2 - フェ  
 ノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェ  
 ノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェ  
 ノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサ  
 ゴリル基、4 - オキサ  
 ゴリル基、5 - オキサゴリル基、2 - オキサジアゴリル基、5 - オキサジアゴリル基  
 、3 - フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イ  
 ル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチ  
 ルピ  
 ロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イ  
 ル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - ブ  
 チ  
 ルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メ  
 チ  
 ル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル

10

20

30

40

50

基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - ブチル - 1 - インドリル基、4 - t - ブチル - 1 - インドリル基、2 - t - ブチル - 3 - インドリル基、4 - t - ブチル - 3 - インドリル基等が挙げられ、これらのうち、ピリジニル基、キノリル基、インドリル基、カルバゾリル基が好ましく、ピリジニル基、カルバゾリル基がより好ましい。

Lとしては、単結合、フェニレン基、ビフェニレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、ピリジニル基、カルバゾリル基が好ましく、単結合、フェニレン基、ビフェニレン基、シクロヘキシレン基、ピリジニル基がより好ましく、単結合、フェニレン基が更に好ましい。

【 0 0 6 3 】

また、上記一般式 ( 1 ) における Cz、A 及び L の置換基としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン原子、カルバゾリル基、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、シリル基、トリフルオロメチル基、カルボニル基、カルボキシル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のアリールアルキル基、置換若しくは無置換の芳香族基、置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルキルオキシ基等が挙げられる。これらのうち、フッ素原子、メチル基、パーフルオロフェニレン基、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、アダマンチル基、ベンジル基、ニトロ基、シアノ基、シリル基、トリフルオロメチル基、カルバゾリル基及びこれらの中の組み合わせからなる基が好ましく、フッ素原子、メチル基、フェニル基、ピリジル基、ピリミジル基、シアノ基、シリル基、カルバゾリル基、及びこれらの中の組み合わせからなる基がより好ましく、フェニル基、ピリジル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、及びこれらの中の組み合わせからなる基が更に好ましく、フェニル基が最も好ましい。また、置換基を複数有する場合、該置換基は互いに結合して環を形成してもよい。

【 0 0 6 4 】

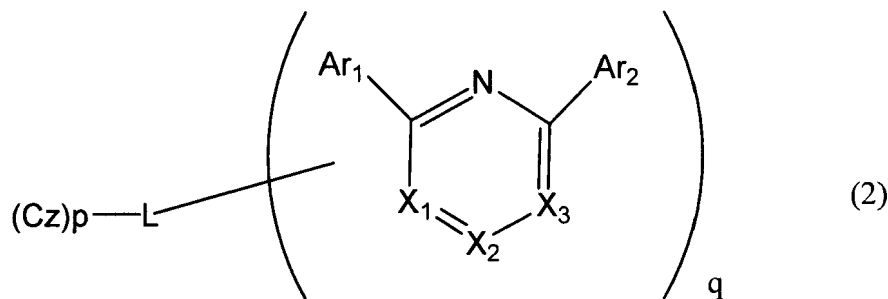
p、q は、それぞれ独立に 1 ~ 6 の整数であり、それぞれ 1 ~ 4 であることが好ましく、1 ~ 3 であることがより好ましく、1 ~ 2 であることが更に好ましい。

【 0 0 6 5 】

一般式 ( 1 ) で表される化合物は、以下の一般式 ( 2 ) で表される化合物であることが、駆動耐久性の観点でより好ましい。

【 0 0 6 6 】

【 化 1 1 】



【 0 0 6 7 】

一般式 ( 2 ) 中、Cz は置換若しくは無置換のアリールカルバゾリル基又はカルバゾリルアリール基を表す。L は単結合、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換のシクロアルキレン基、又は置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環を表し、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> 又は X<sub>3</sub> の炭素原子と連結する。Ar<sub>1</sub> 及び Ar<sub>2</sub> はそれぞれ独立に置換又は無置換のアリール基、又は置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基を表し、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> 及び X<sub>3</sub> はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子若しくは置換基が結合した炭素原子を表す。p 及び q はそれぞれ独立に 1 ~ 6 の整数を表す。

【 0 0 6 8 】

一般式(2)について説明する。

一般式(2)中、Cz、L、p及びqの定義は、一般式(1)におけるCz、L、p及びqと同様であり、好ましいものも同様である。

Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>はそれぞれ独立に置換又は無置換のアリール基、アリーレン基、又は芳香族ヘテロ環基である。

アリール基は置換又は無置換の炭素数6~30のものが好ましく、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、パーフルオロアリール基等が挙げられ、これらのうちフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、パーフルオロアリール基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基がより好ましく、フェニル基、ビフェニル基が更に好ましい。

10

アリーレン基としては置換又は無置換の炭素数6~30のものが好ましく、具体例や好ましい基は前述の一般式(1)におけるLの説明で挙げたものと同様である。芳香族ヘテロ環基としては、置換又は無置換の炭素数2~30のものが好ましく、具体例や好ましい基は前述の一般式(1)におけるLの説明で挙げたものと同様である。これらに置換基が結合する場合、置換基の具体例や好ましい基は前述の一般式(1)におけるCz、Aの置換基として挙げたものと同様である。

Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>は、好ましくはそれぞれ独立に、フェニル基又はピリジル基である。

X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、X<sub>3</sub>は、それぞれ独立に、窒素原子又は水素原子若しくは置換基が結合した炭素原子を表す。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、X<sub>3</sub>のうち、0~2個が窒素原子である場合が好ましく、0~1個が窒素原子である場合がより好ましく、1個が窒素原子である場合が最も好ましい。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、X<sub>3</sub>のいずれかに窒素原子が含まれる場合、X<sub>1</sub>及びX<sub>3</sub>のいずれか一方が窒素原子であることが好ましい。一般式(2)におけるX<sub>1</sub>~X<sub>3</sub>を含む環がピリジン又はピリミジンを表すことが好ましく、ピリミジンを表すことがより好ましい。炭素原子に結合する置換基の具体例や好ましい基は前述の一般式(1)におけるCz、Aの置換基として挙げたものと同様である。また、一般式(2)においてLの連結位置は特に限定されないが、化学的安定性やキャリア輸送性の観点からAr<sup>1</sup>の炭素原子と連結することが好ましい。

20

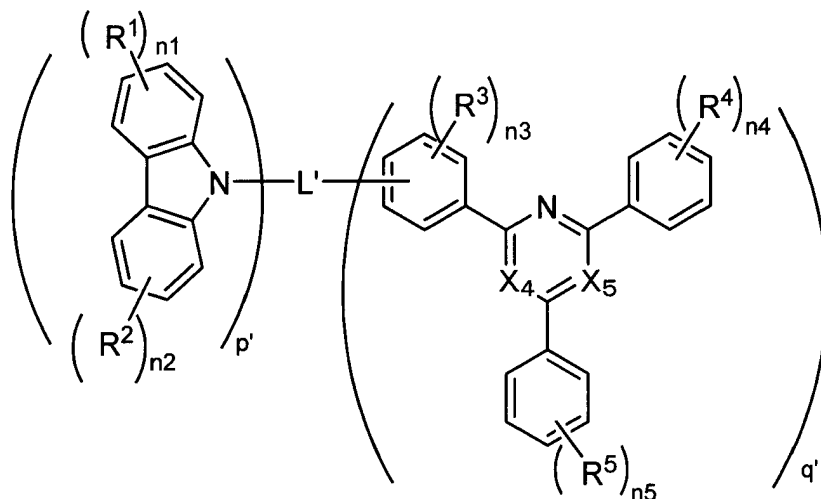
【0069】

一般式(2)で表される化合物は、以下の一般式(3)で表される化合物であることが、駆動耐久性の観点で更により好ましい。

30

【0070】

【化12】



(3)

40

【0071】

一般式(3)中、X<sub>4</sub>、X<sub>5</sub>はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子若しくは置換基が結合した炭素原子を表し、X<sub>4</sub>又はX<sub>5</sub>のいずれか一方は窒素原子であり、他方は水素原

50



1) 以上  $3.51 \text{ eV}$  ( $80 \text{ kcal/mol}$ ) であることが更に好ましい。

【0077】

一般式(1)で表される化合物のガラス転移温度( $T_g$ )は  $80$  以上  $400$  以下であることが好ましく、 $100$  以上  $400$  以下であることがより好ましく、 $120$  以上  $400$  以下であることが更に好ましい。

【0078】

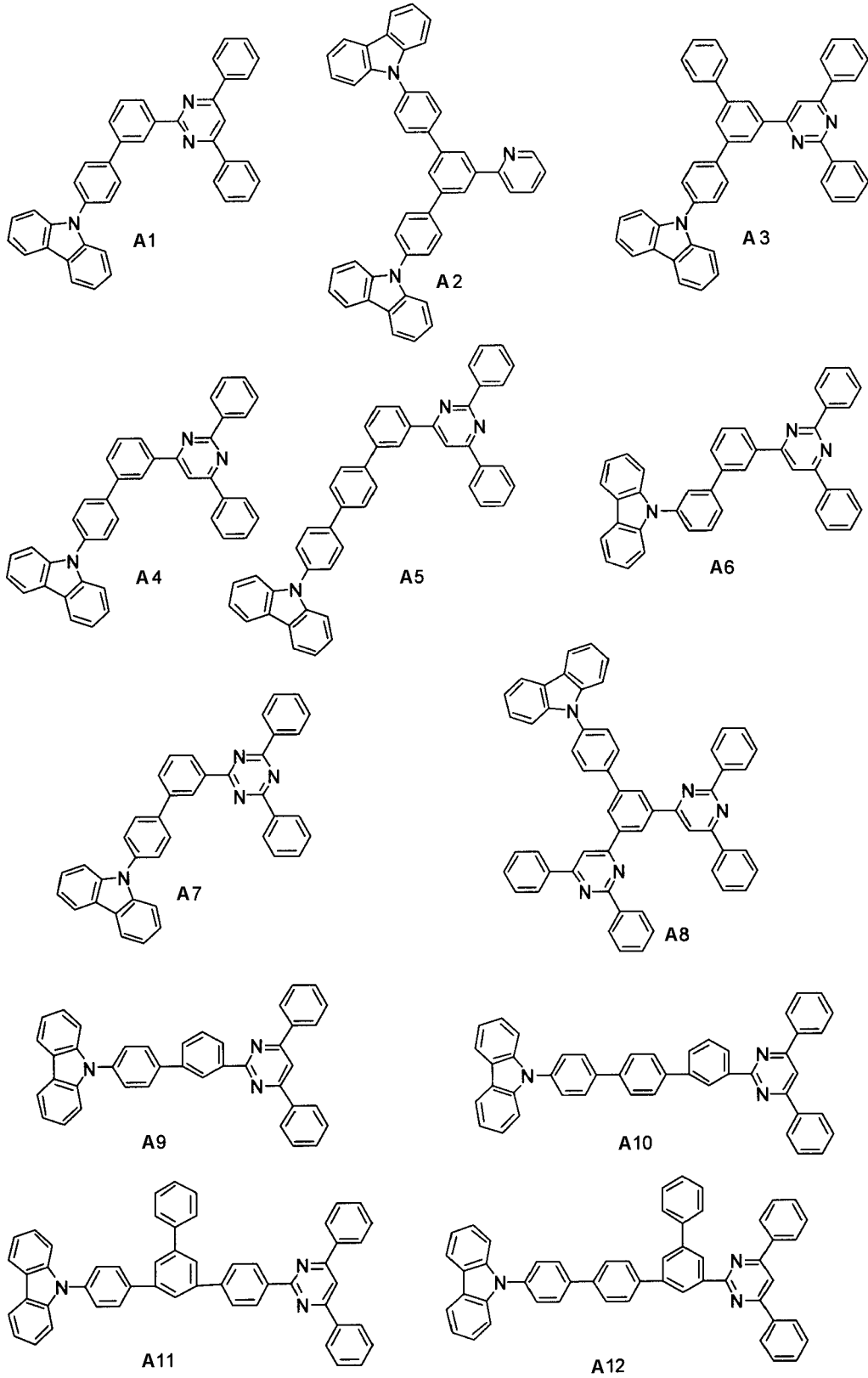
一般式(1)が水素原子を有する場合、同位体(重水素原子等)も含む。この場合化合物中の全ての水素原子が同位体に置き換わっていてもよく、また一部が同位体を含む化合物である混合物でもよい。

以下に、一般式(1)で表される化合物の具体例を例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、下記具体例中の Ph はフェニル基を表す。

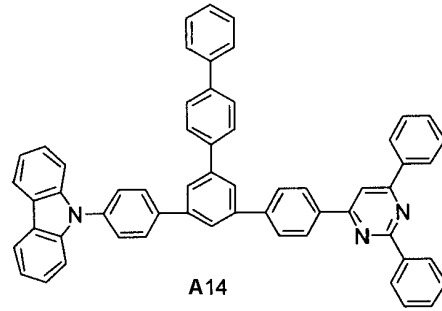
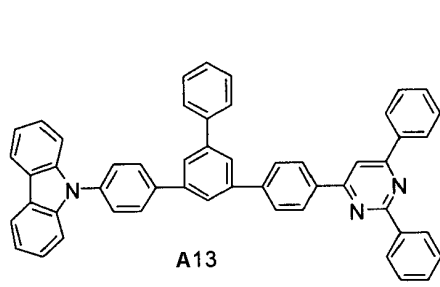
【0079】



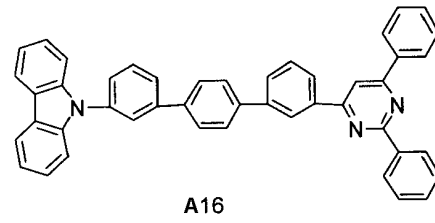
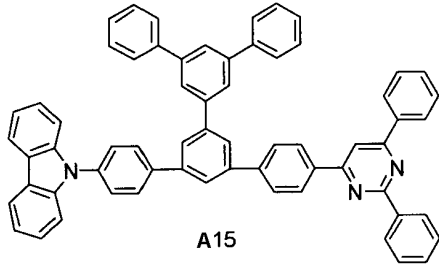
【化 1 3】



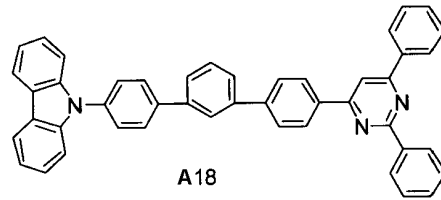
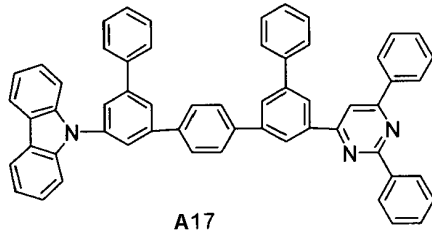
【化 1 4】



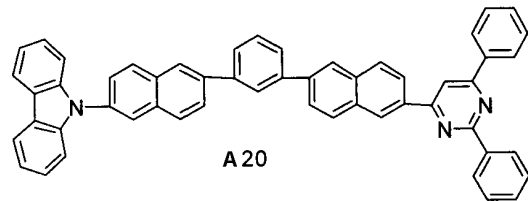
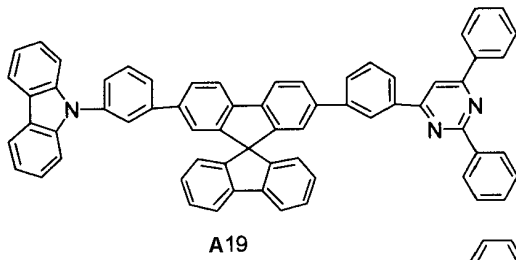
10



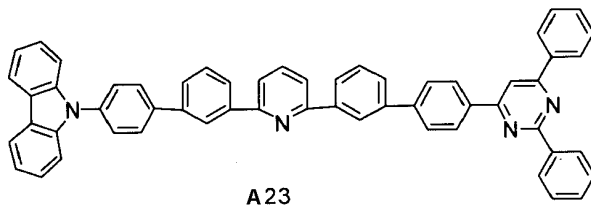
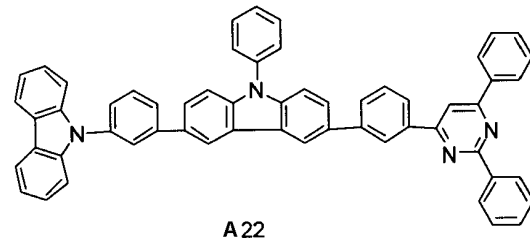
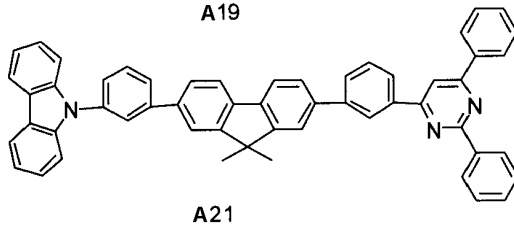
20



30

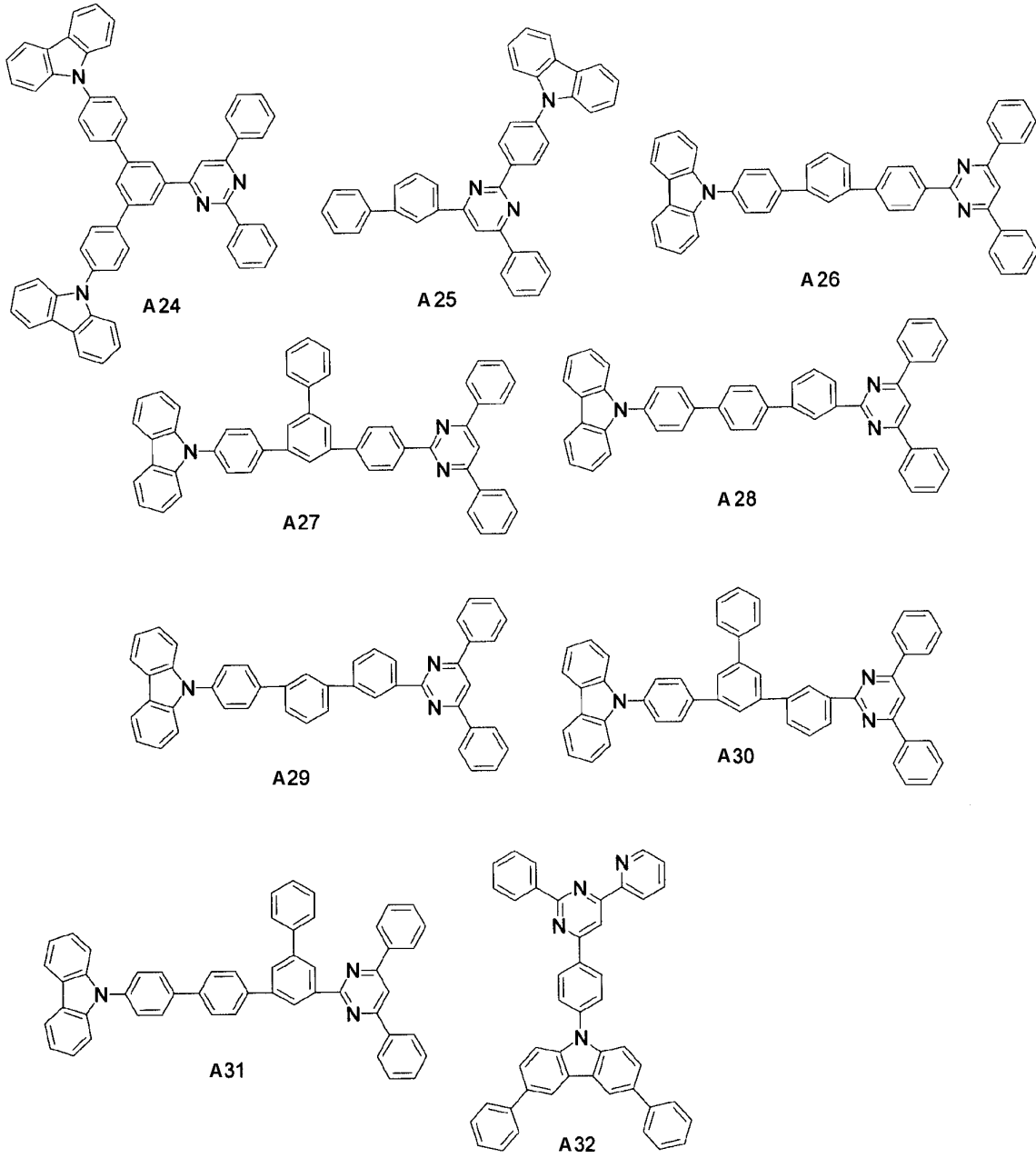


40



【 0 0 8 1 】

【化 1 5】



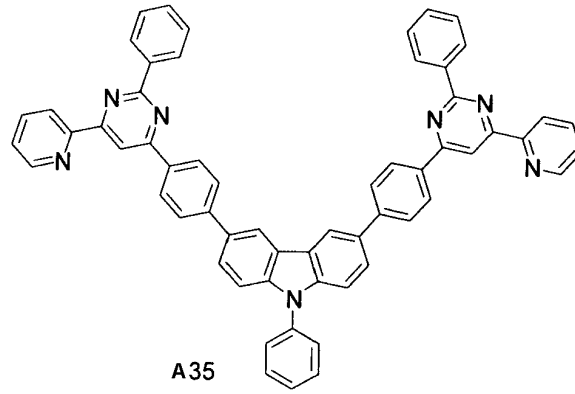
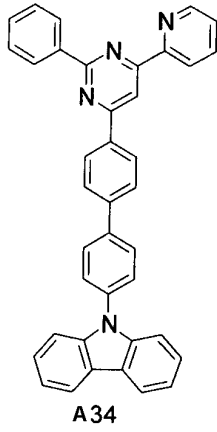
10

20

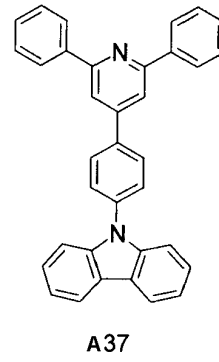
30

【 0 0 8 2 】

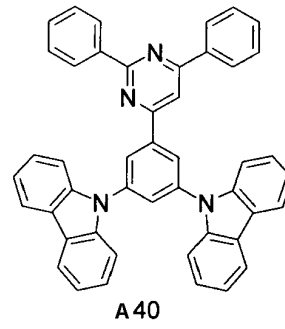
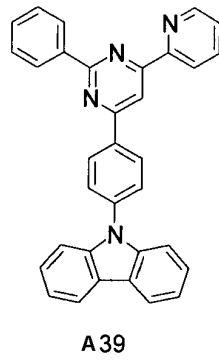
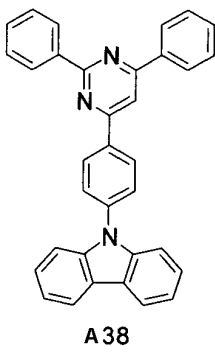
【化 1 6】



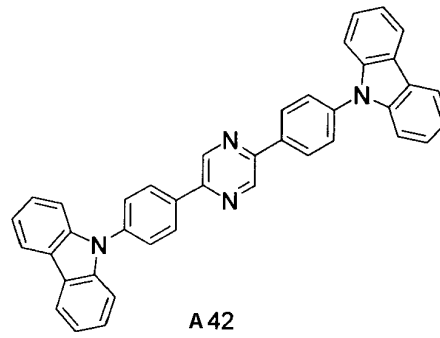
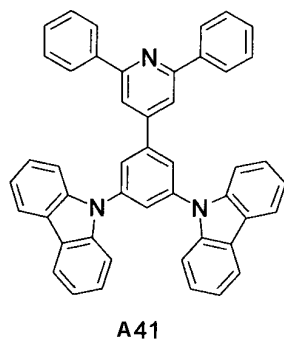
10



20



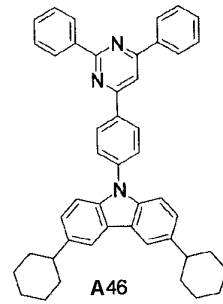
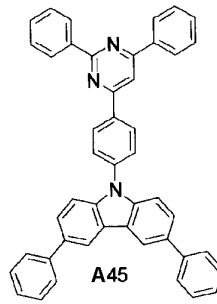
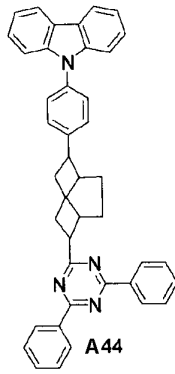
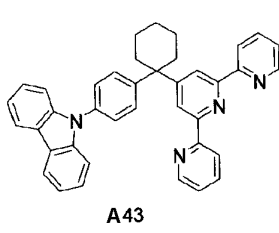
30



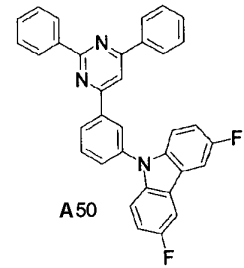
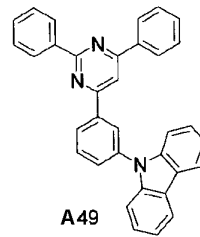
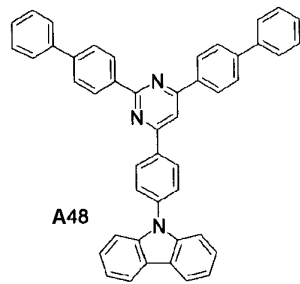
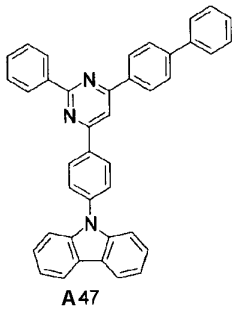
40

【 0 0 8 3 】

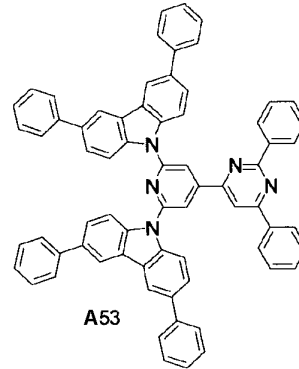
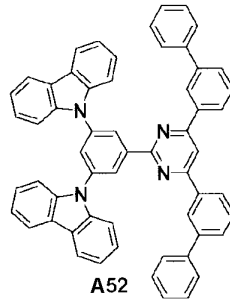
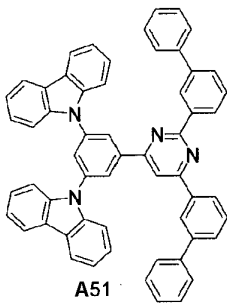
【化 17】



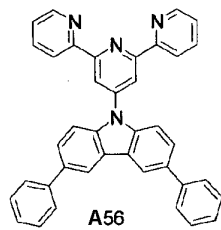
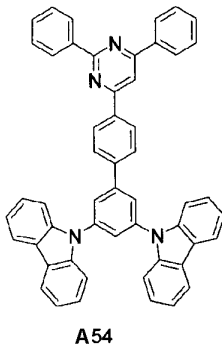
10



20



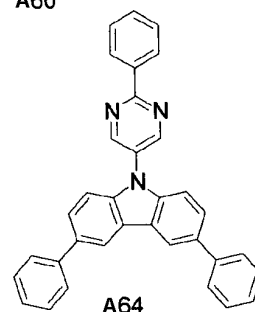
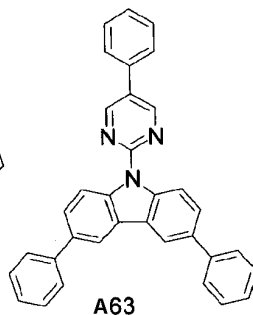
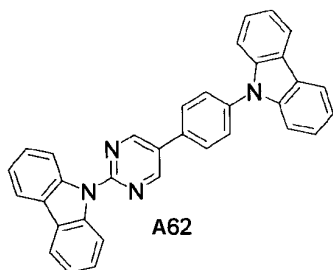
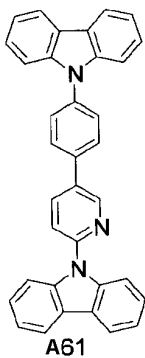
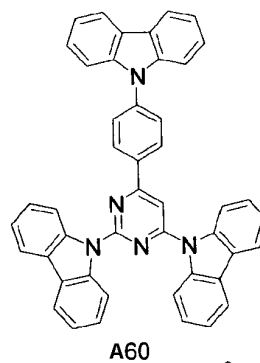
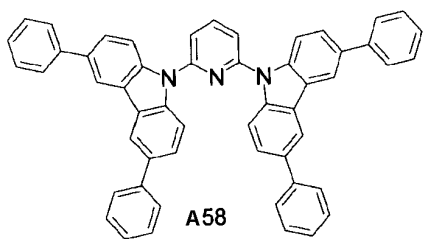
30



40

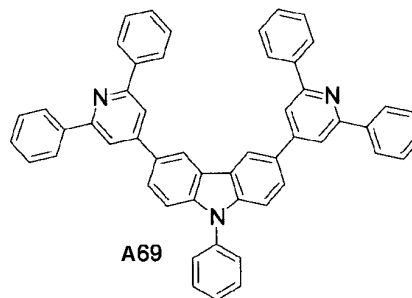
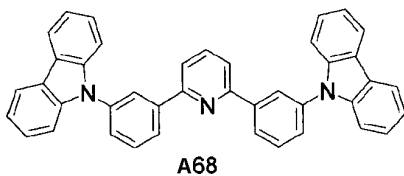
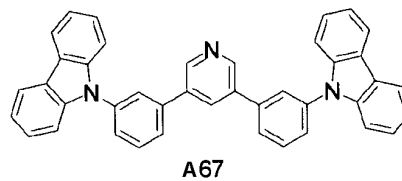
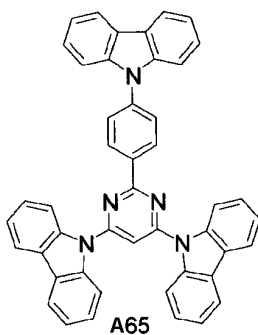
【 0 0 8 4 】

【化 1 8】

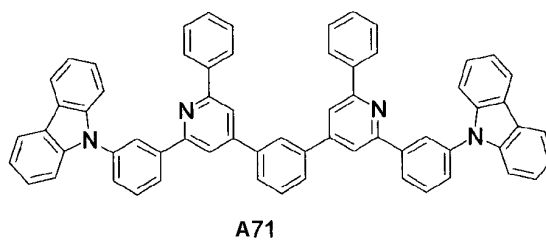
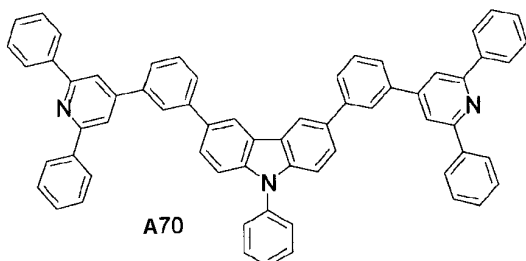


10

20



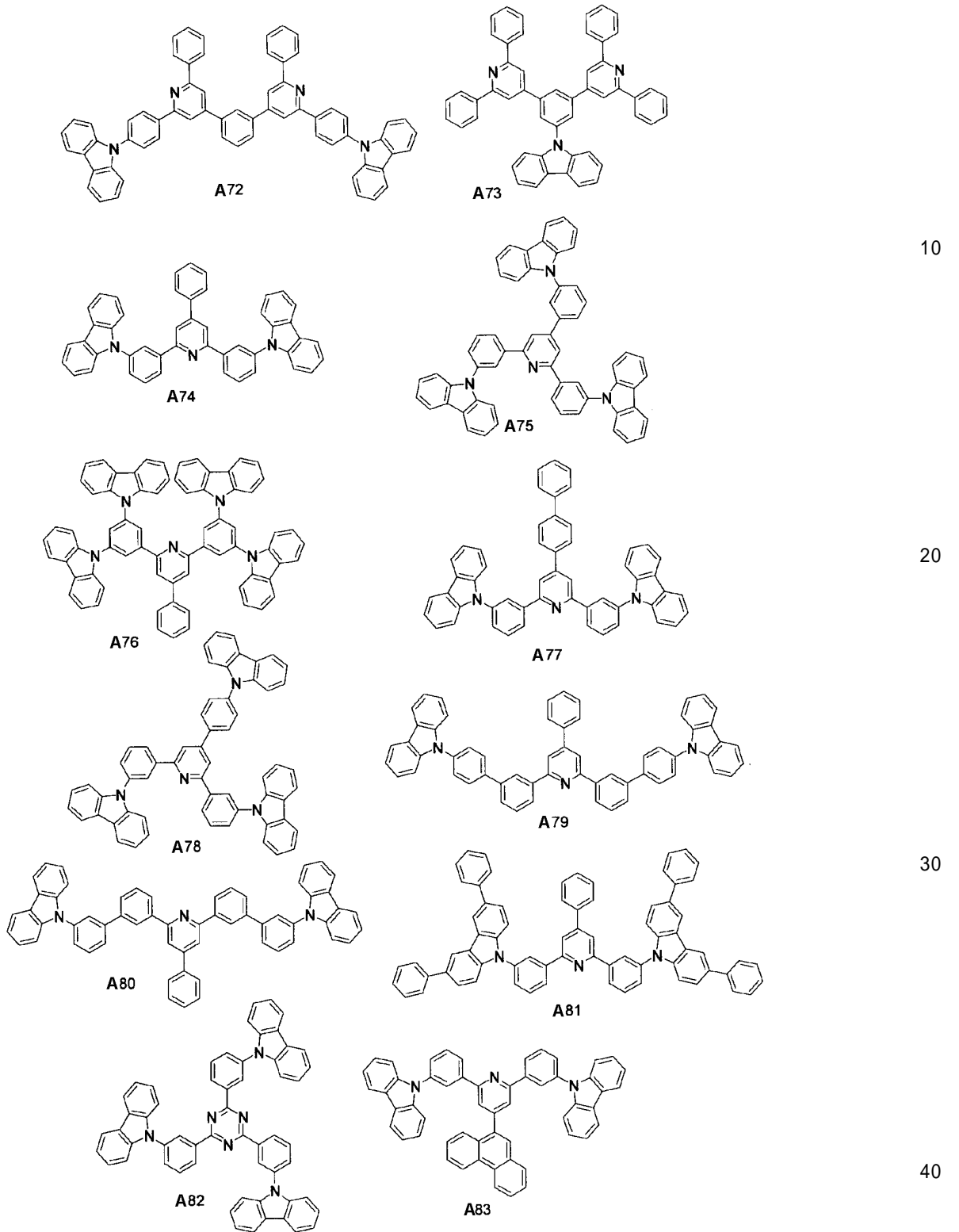
30



40

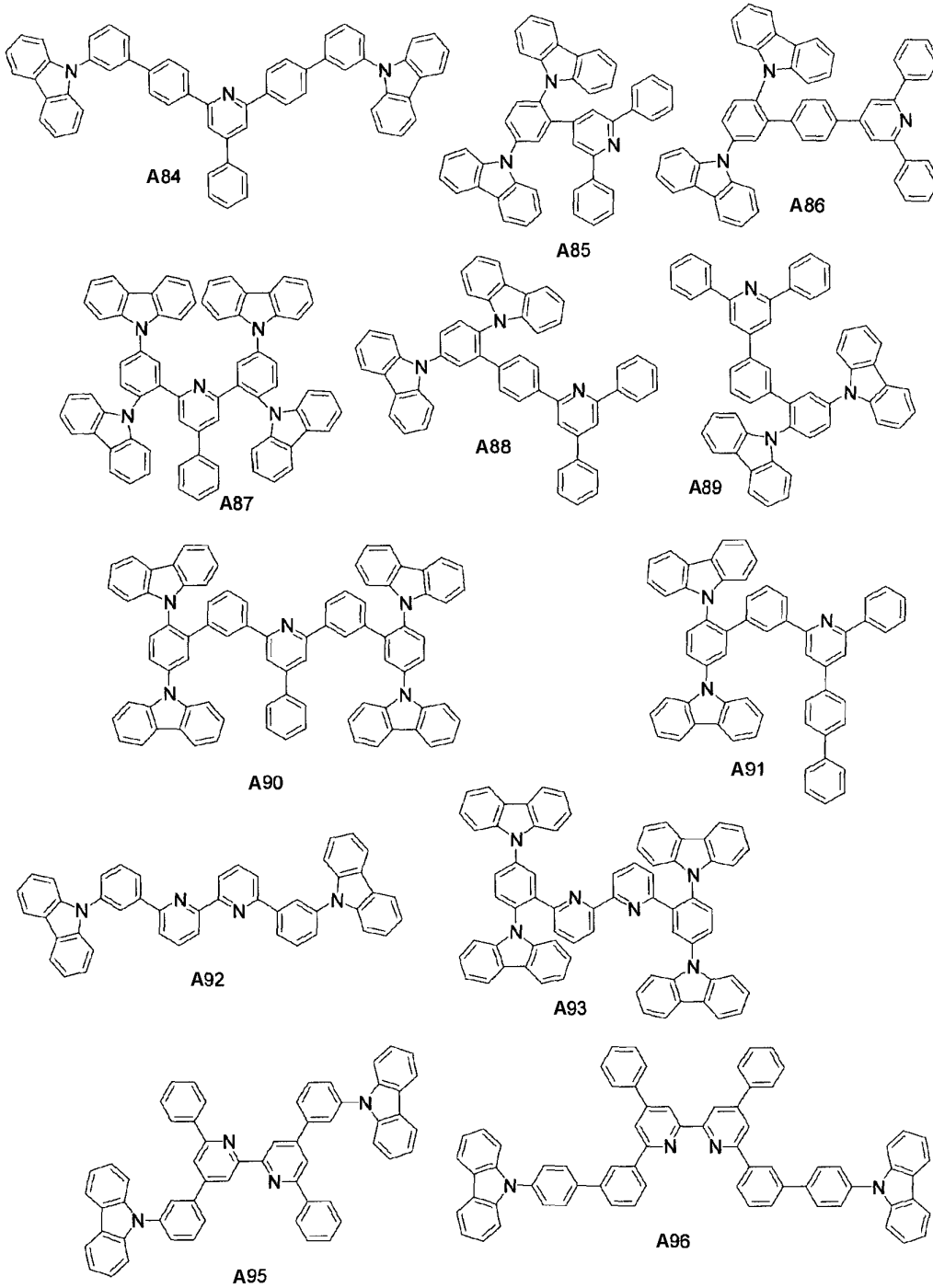
【 0 0 8 5 】

【化 19】



【 0 0 8 6 】

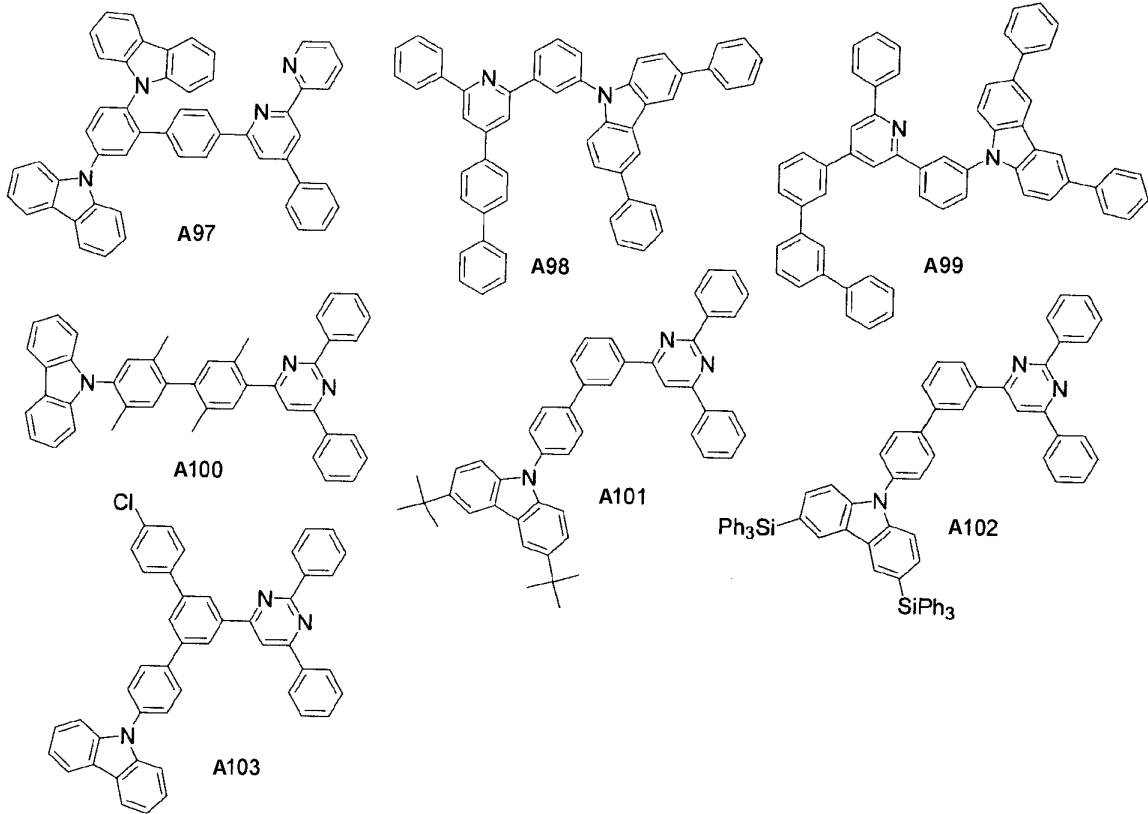
【化 20】



【 0 0 8 7 】



【化 2 1】

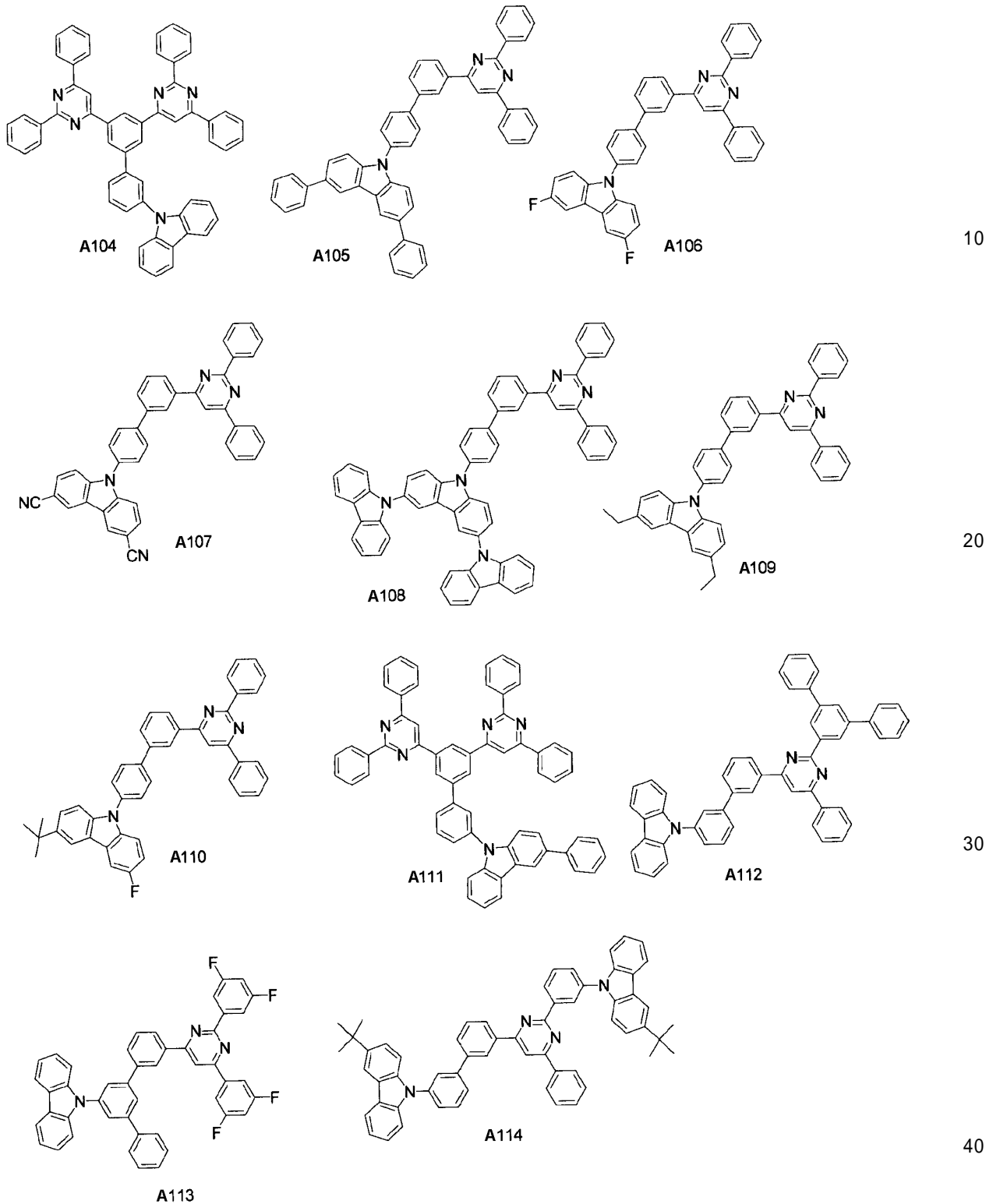


10

20

【 0 0 8 8 】

## 【化 2 2】



## 【0089】

上記一般式(1)で表される化合物として例示した化合物は、国際公開第03/080760号パンフレットに記載の方法や、国際公開第03/078541号パンフレットに記載の方法、国際公開第05/085387号パンフレットに記載の方法等、種々の方法で合成できる。

例えば、上記例示化合物A4は、m-プロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第05/085387号パンフレット段落[0074]-[0075](45頁、1

10

20

30

40

50

1行～46頁、18行)に記載の方法で合成することができる。上記例示化合物A45の化合物は、3,5-ジブロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第03/080760号パンフレットの46頁、9行～46頁、12行に記載の方法で合成することができる。また、上記例示化合物A77の化合物は、N-フェニルカルバゾールを出発原料に用い、国際公開第05/022962号パンフレットの137頁、10行～139頁、9行に記載の方法で合成することができる。

#### 【0090】

一般式(1)で表される化合物は、前述のWO05/085387やWO03/080760に記載されるように、アリールハライドとアリールボロン酸(若しくはボロン酸エステル)又はカルバゾールをカップリングして合成することができる。この際、合成中間体であるアリールハライド(例えば、カルバゾール部位を有するアリールハライド又はピリミジン部位を有するアリールハライド)、該合成中間体を合成する出発原料、中間体で使用されるアリールハライド等が不純物として生成し得る。これらアリールハライド等の不純物(すなわち、一般式(1)で表される化合物の製造時に含まれるハロゲン元素含有化合物)に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が、一般式(1)で表される化合物中に100ppm以下(すなわち、一般式(1)で表される化合物1kg中のハロゲン元素量が100mg以下)で存在すると、それら不純物としての臭素、ヨウ素又は塩素元素含有化合物が電荷トラップになる、反応性が高い等の理由により有機電界発光素子の外部量子効率や駆動耐久性などの素子特性に悪影響を及ぼすことを良好に抑制し、外部量子効率と駆動耐久性を高レベルで両立させることができるので好ましい。特に、一般式(1)で表される化合物中の、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が、100ppm以下であることにより駆動耐久性が顕著に向上する。但し、一般式(1)で表される化合物が臭素、ヨウ素又は塩素のハロゲン元素を有する場合には、一般式(1)で表される化合物自身が有するハロゲン元素は、ここで言う“一般式(1)で表される化合物中の、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計”には含まれない。一般式(1)で表される化合物中の、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計を、50ppm以下とすることがより好ましく、より好ましくは10ppm以下とすることである。

#### 【0091】

本発明の一般式(1)で表される化合物中の不純物に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計は、理想的には0ppmであることが好ましい。一方、不純物に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が0ppmであることを測定することも現実的には不可能である。また、製造工程や精製工程数の増加や使用するエネルギー増加により影響する環境負荷の観点からは、不純物の種類によっては、本発明の電荷輸送材料中に極少量存在させた方が好ましい。したがって、耐久性向上と環境負荷抑制との双方の観点から、本発明の不純物に含まれる、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計は、一般式(1)で表される化合物に対して0.001ppm以上100ppm以下であることが好ましく、0.005ppm以上50ppm以下であることがより好ましく、0.01ppm以上10ppm以下であることが更に好ましい。

#### 【0092】

本発明の一般式(1)で表される化合物中の、前述のアリールハライド等の不純物に含まれる、臭素、ヨウ素については誘導結合プラズマ-質量分析(ICP-MS)により又、塩素については電量滴定法によりハロゲン質量濃度を、本発明の一般式(1)で表される化合物の純度は、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)により求めることができる。本発明においては、254nmにおける吸収強度の面積比を臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度や純度の指標に用いる。アリールハライドのピーク位置は、本発明の一般式(1)の化合物の合成中間体であるアリールハライドと比較することで確認できる。また、その他の不純物ピークの構造は、液体クロマトグラフ

10

20

30

40

50

イー / 質量分析法 ( LC / MS ) により推定できる。

【 0 0 9 3 】

また、本発明の一般式 ( 1 ) で表される化合物の純度は、99.0 質量%以上であることが好ましく、99.5 質量%以上であることがより好ましく、99.9 質量%以上であることが更に好ましい。

【 0 0 9 4 】

本発明の一般式 ( 1 ) で表される化合物は、WO 0 5 / 0 8 5 3 8 7 や WO 0 3 / 0 8 0 7 6 0 に記載される方法などの種々の方法で合成することができる。

合成後、カラムクロマトグラフィー、再結晶等による精製を行った後、昇華精製により精製することが好ましい。昇華精製により、有機不純物を分離できるだけでなく、無機塩や残留溶媒等を効果的に取り除くことができる。

10

【 0 0 9 5 】

本発明において、一般式 ( 1 ) で表される化合物は、その用途が限定されることはなく、発光層に加え、発光層以外の有機層内のいずれの層に含有されてもよい。一般式 ( 1 ) で表される化合物の導入層としては、発光層に加え、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、励起子ブロック層、及び電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有されるのが好ましい。

本発明では、高温駆動時の色度変化をより抑えるために、一般式 ( 1 ) で表される化合物を発光層に加え、発光層に隣接する層のいずれかに含有されることが好ましい。また、一般式 ( 1 ) で表される化合物を発光層及び隣接する層の両層に含有させてもよい。

20

一般式 ( 1 ) で表される化合物の発光層中の含有量は、本発明の一般式 ( 1 ) で表される化合物を発光層の全質量に対して 0.1 ~ 99 質量% 含ませることが好ましく、1 ~ 97 質量% 含ませることがより好ましく、10 ~ 97 質量% 含ませることがより好ましい。

【 0 0 9 6 】

〔一般式 ( E - I ) で表される化合物と、一般式 ( 1 ) で表される化合物とを含有する発光層〕

本発明は前記一般式 ( E - I ) で表される化合物と、前記一般式 ( 1 ) で表される化合物とを含む発光層にも関する。本発明の発光層は有機電界発光素子に用いることができる。発光層における前記一般式 ( E - I ) で表される化合物と、前記一般式 ( 1 ) で表される化合物との質量比は、1 / 99 ~ 30 / 70 であることが好ましく、3 / 97 ~ 20 / 80 であることがより好ましい。

30

【 0 0 9 7 】

〔一般式 ( E - I ) で表される化合物と、一般式 ( 1 ) で表される化合物とを含有する組成物〕

本発明は前記一般式 ( E - I ) で表される化合物と、前記一般式 ( 1 ) で表される化合物とを含有する組成物にも関する。

本発明の組成物において、一般式 ( E - I ) で表される化合物の含有量は、組成物中の全固形分に対して 1 ~ 40 質量% であることが好ましく、3 ~ 20 質量% であることがより好ましい。

本発明の組成物において、一般式 ( 1 ) で表される化合物の含有量は、組成物中の全固形分に対して 50 ~ 99 質量% であることが好ましく、70 ~ 97 質量% であることがより好ましい。

40

本発明の組成物における他に含有しても良い成分としては、有機物でも無機物でもよく、有機物としては、後述するホスト材料、蛍光発光材料、燐光発光材料、炭化水素材料として挙げた材料が適用できる。

本発明の組成物は蒸着法やスパッタ法等の乾式成膜法、転写法、印刷法等の湿式成膜法により有機電界発光素子の有機層を形成することができる。

【 0 0 9 8 】

〔有機電界発光素子〕

本発明の素子について詳細に説明する。

50

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、一对の電極と、該電極間に発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層に、前述の一般式(1)で表される化合物と、前述の一般式(E-I)で表される化合物とを含有する。

【0099】

本発明の有機電界発光素子において、発光層は有機層であり、更に複数の有機層を有していてもよい。

発光素子の性質上、陽極及び陰極のうち少なくとも一方の電極は、透明若しくは半透明であることが好ましい。

図1は、本発明に係る有機電界発光素子の構成の一例を示している。図1に示される本発明に係る有機電界発光素子10は、基板2上において、陽極3と陰極9との間に発光層6が挟まれている。具体的には、陽極3と陰極9との間に正孔注入層4、正孔輸送層5、発光層6、正孔ブロック層7、及び電子輸送層8がこの順に積層されている。

10

【0100】

<有機層の構成>

前記有機層の層構成としては、特に制限はなく、有機電界発光素子の用途、目的に応じて適宜選択することができるが、前記透明電極上に又は前記半透明電極上に形成されるのが好ましい。この場合、有機層は、前記透明電極又は前記半透明電極上の前面又は一面に形成される。

有機層の形状、大きさ、及び厚み等については、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。

20

【0101】

具体的な層構成として、下記が挙げられるが本発明はこれらの構成に限定されるものではない。

- ・陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極、
- ・陽極/正孔輸送層/発光層/ブロック層/電子輸送層/陰極、
- ・陽極/正孔輸送層/発光層/ブロック層/電子輸送層/電子注入層/陰極、
- ・陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/ブロック層/電子輸送層/陰極、
- ・陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/ブロック層/電子輸送層/電子注入層/陰極。

有機電界発光素子の素子構成、基板、陰極及び陽極については、例えば、特開2008-270736号公報に詳述されており、該公報に記載の事項を本発明に適用することができる。

30

【0102】

<基板>

本発明で使用する基板としては、有機層から発せられる光を散乱又は減衰させない基板であることが好ましい。有機材料の場合には、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性、及び加工性に優れていることが好ましい。

<陽極>

陽極は、通常、有機層に正孔を供給する電極としての機能を有していればよく、その形状、構造、大きさ等については特に制限はなく、発光素子の用途、目的に応じて、公知の電極材料の中から適宜選択することができる。前述のごとく、陽極は、通常透明陽極として設けられる。

40

<陰極>

陰極は、通常、有機層に電子を注入する電極としての機能を有していればよく、その形状、構造、大きさ等については特に制限はなく、発光素子の用途、目的に応じて、公知の電極材料の中から適宜選択することができる。

【0103】

基板、陽極、陰極については、特開2008-270736号公報の段落番号〔0070〕～〔0089〕に記載の事項を本発明に適用することができる。

【0104】

50

## &lt;有機層&gt;

本発明における有機層について説明する。

## 【0105】

## -有機層の形成-

本発明の有機電界発光素子において、各有機層は、蒸着法やスパッタ法等の乾式成膜法、転写法、印刷法、スピンコート法、バーコート法等の溶液塗布プロセスのいずれによっても好適に形成することができる。有機層の少なくとも1層が溶液塗布プロセスにより形成されたことも好ましい。

## 【0106】

## (発光層)

10

## &lt;発光材料&gt;

本発明における発光材料は、前記一般式(E-I)で表される化合物であることが好ましい。

## 【0107】

発光層中の発光材料は、発光層中に一般的に発光層を形成する全化合物質量に対して、0.1質量%~30質量%含有されるが、耐久性、外部量子効率の観点から1質量%~20質量%含有されることが好ましく、3質量%~15質量%含有されることがより好ましい。

## 【0108】

発光層の厚さは、特に限定されるものではないが、通常、2nm~500nmであるのが好ましく、中でも、外部量子効率の観点で、3nm~200nmであるのがより好ましく、5nm~100nmであるのが更に好ましい。

20

## 【0109】

本発明の素子における発光層は、ホスト材料と発光材料との混合層とした構成である。発光材料は一種であっても二種以上であっても良い。ホスト材料は電荷輸送材料であることが好ましい。ホスト材料は一種であっても二種以上であっても良く、例えば、電子輸送性のホスト材料とホール輸送性のホスト材料を混合した構成が挙げられる。更に、発光層中に電荷輸送性を有さず、発光しない材料を含んでいても良い。本発明の素子における発光層としては、ホスト材料として一般式(1)で表される化合物と、発光材料として一般式(E-I)で表される化合物とを少なくとも用いたものである。

30

また、発光層は一層であっても二層以上の多層であってもよい。発光層が複数の場合、一般式(1)で表される化合物及び(E-I)で表される化合物を二層以上の発光層に含んでもよい。また、それぞれの発光層が異なる発光色で発光してもよい。

## 【0110】

## &lt;ホスト材料&gt;

本発明に用いるホスト材料は、前記一般式(1)で表される化合物が好ましい。

一般式(1)で表される化合物は、正孔と電子の両電荷を輸送可能な化合物であり、一般式(E-I)で表される化合物と組み合わせることで、前述の本発明の効果が得られる。

## 【0111】

40

本発明に用いられるホスト材料として、以下の化合物を更に含有していても良い。例えば、ピロール、インドール、カルバゾール(CBP(4,4'-ジ(9-カルバゾリル)ビフェニル)など)、アザインドール、アザカルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、チオフェン、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラズロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン、カーボン膜、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、イミダゾール、ピラゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾ

50

-ル、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、フッ素置換芳香族化合物、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体及びそれらの誘導体（置換基や縮環を有していてもよい）等を挙げることができる。

#### 【0112】

本発明における発光層において、前記ホスト材料（一般式（1）で表される化合物も含む）の三重項最低励起エネルギー（ $T_1$ エネルギー）が、前記燐光発光材料の $T_1$ エネルギーより高いことが色純度、発光効率、駆動耐久性の点で好ましい。

10

#### 【0113】

また、本発明におけるホスト化合物の含有量は、特に限定されるものではないが、発光効率、駆動電圧の観点から、発光層を形成する全化合物質量に対して15質量%以上98質量%以下であることが好ましい。

#### 【0114】

（蛍光発光材料）

本発明に使用できる蛍光発光材料の例としては、例えば、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルプタジエン誘導体、テトラフェニルプタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、縮合芳香族化合物、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサジン誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノール誘導体の錯体やピロメテン誘導体の錯体に代表される各種錯体等、ポリチオフエン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体などの化合物等が挙げられる。

20

#### 【0115】

（燐光発光材料）

本発明に使用できる燐光発光材料としては、一般式（E-I）で表される化合物の他、例えば、US6303238B1、US6097147、WO00/57676、WO00/70655、WO01/08230、WO01/39234A2、WO01/41512A1、WO02/02714A2、WO02/15645A1、WO02/44189A1、WO05/19373A2、特開2001-247859、特開2002-302671、特開2002-117978、特開2003-133074、特開2002-235076、特開2003-123982、特開2002-170684、EP1211257、特開2002-226495、特開2002-234894、特開2001-247859、特開2001-298470、特開2002-173674、特開2002-203678、特開2002-203679、特開2004-357791、特開2006-256999、特開2007-19462、特開2007-84635、特開2007-96259等の特許文献に記載の燐光発光化合物などが挙げられ、中でも、更に好ましい発光材料としては、Ir錯体、Pt錯体、Cu錯体、Re錯体、W錯体、Rh錯体、Ru錯体、Pd錯体、Os錯体、Eu錯体、Tb錯体、Gd錯体、Dy錯体、及びCe錯体が挙げられる。特に好ましくは、Ir錯体、Pt錯体、又はRe錯体であり、中でも金属-炭素結合、金属-窒素結合、金属-酸素結合、金属-硫黄結合の少なくとも一つの配位様式を含むIr錯体、Pt錯体、又はRe錯体が好ましい。更に、発光効率、駆動耐久性、色度等の観点で、3座以上の多座配位子を含むIr錯体、Pt錯体、又はRe錯体が特に好ましい。

30

40

#### 【0116】

本発明に用いることのできる燐光発光材料（一般式（E-I）で表される化合物及び／

50

又は併用する燐光発光材料)の含有量は、発光層の総質量に対して、0.1質量%以上50質量%以下の範囲が好ましく、0.3質量%以上40質量%以下の範囲がより好ましく、0.5質量%以上30質量%以下の範囲が最も好ましい。特に0.5質量%以上30質量%以下の範囲では、その有機電界発光素子の発光の色度は、燐光発光材料の添加濃度依存性が小さい。

本発明の有機電界発光素子は、上記一般式(E-I)で表される化合物の少なくとも一種を該発光層の総質量に対して0.5~30質量%含有することが最も好ましい。

【0117】

(電荷輸送層)

電荷輸送層とは、有機電界発光素子に電圧を印加した際に電荷移動が起こる層をいう。具体的には正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層、発光層、正孔ブロック層、電子輸送層又は電子注入層が挙げられる。好ましくは、正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層又は発光層である。塗布法により形成される電荷輸送層が正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層又は発光層であれば、低コストかつ高効率な有機電界発光素子の製造が可能となる。また、電荷輸送層として、より好ましくは、正孔注入層、正孔輸送層又は電子ブロック層である。

10

【0118】

- 正孔注入層、正孔輸送層 -

正孔注入層、正孔輸送層は、陽極又は陽極側から正孔を受け取り陰極側に輸送する機能を有する層である。

20

正孔注入層には電子受容性ドーパントを含有することが好ましい。正孔注入層に電子受容性ドーパントを含有することにより、正孔注入性が向上し、駆動電圧が低下する、効率が向上するなどの効果がある。電子受容性ドーパントとは、ドーパされる材料から電子を引き抜き、ラジカルカチオンを発生させることが可能な材料であれば有機材料、無機材料のうちいかなるものでもよいが、例えばベンゾキノンやその誘導体、及び金属酸化物等が挙げられ、好ましくはテトラシアノキノジメタン(TCNQ)、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン(F<sub>4</sub>-TCNQ)、酸化モリブデンである。

【0119】

正孔注入層中の電子受容性ドーパントは、正孔注入層を形成する全化合物質量に対して、0.01質量%~50質量%含有されることが好ましく、0.1質量%~40質量%含有されることがより好ましく、0.5質量%~30質量%含有されることが更に好ましい。

30

【0120】

- 電子注入層、電子輸送層 -

電子注入層、電子輸送層は、陰極又は陰極側から電子を受け取り陽極側に輸送する機能を有する層である。

電子注入層には電子供与性ドーパントを含有することが好ましい。電子注入層に電子供与性ドーパントを含有させることにより、電子注入性が向上し、駆動電圧が低下する、効率が向上するなどの効果がある。電子供与性ドーパントとは、ドーパされる材料に電子を与え、ラジカルアニオンを発生させることが可能な材料であれば有機材料、無機材料のうちいかなるものでもよいが、例えば、テトラシアフルバレン(TTF)、テトラシアナフタセン(TTT)、リチウム、セシウムなどが挙げられる。

40

正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層については、特開2008-270736号公報の段落番号〔0165〕~〔0167〕に記載の事項を本発明に適用することができる。

【0121】

本発明の素子において、電子受容性ドーパント又は電子供与性ドーパントを含有した素子は、それらを含有しない素子に対し、外部量子効率の相対値が向上する。その理由は明らかでないが、次のように考えている。電子注入性やホール注入性が向上すると、発光層内の電荷バランスが崩れ、発光位置が変化する。正孔注入性が向上すると発光層の陰極側

50



界面に電荷がたまり、その位置での発光する割合が増加し、電子注入性が向上すると発光層の陽極側界面に電荷がたまり、その位置での発光する割合が増加する。電子受容性ドーパント又は電子供与性ドーパントを含有しない素子では、この発光位置の変化が大きく、それぞれ正孔ブロック層、電子ブロック層により励起子の失活を受け、効率が大きく低下したのに対し、電子受容性ドーパント又は電子供与性ドーパントを含有した素子では、発光位置が大きく変化せず、効率が維持されるため、結果として外部量子効率の相対値が向上すると考えられる。

#### 【0122】

電子注入層中の電子供与性ドーパントは、電子注入層を形成する全化合物質量に対して、0.01質量%～50質量%含有されることが好ましく、0.1質量%～40質量%含有されることがより好ましく、0.5質量%～30質量%含有されることが更に好ましい。

10

#### 【0123】

##### - 正孔ブロック層 -

正孔ブロック層は、陽極側から発光層に輸送された正孔が、陰極側に通りぬけることを防止する機能を有する層である。本発明において、発光層と陰極側で隣接する有機層として、正孔ブロック層を設けることができる。

正孔ブロック層を構成する有機化合物の例としては、アルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリナト)4-フェニルフェノレート(Aluminum(III)bis(2-methyl-8-quinolinato)4-phenylphenolate(BALqと略記する))等のアルミニウム錯体、トリアゾール誘導体、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(2,9-Dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline(BCPと略記する))等のフェナントロリン誘導体、等が挙げられる。

20

正孔ブロック層の厚さとしては、1nm～500nmであるのが好ましく、5nm～200nmであるのがより好ましく、10nm～100nmであるのが更に好ましい。

正孔ブロック層は、上述した材料の一種又は二種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

#### 【0124】

##### - 電子ブロック層 -

電子ブロック層は、陰極側から発光層に輸送された電子が、陽極側に通りぬけることを防止する機能を有する層である。本発明において、発光層と陽極側で隣接する有機層として、電子ブロック層を設けることができる。

30

電子ブロック層を構成する有機化合物の例としては、例えば前述の正孔輸送材料として挙げたものが適用できる。

電子ブロック層の厚さとしては、1nm～500nmであるのが好ましく、5nm～200nmであるのがより好ましく、10nm～100nmであるのが更に好ましい。

電子ブロック層は、上述した材料の一種又は二種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

40

#### 【0125】

##### <保護層>

本発明において、有機EL素子全体は、保護層によって保護されていてもよい。

保護層については、特開2008-270736号公報の段落番号〔0169〕～〔0170〕に記載の事項を本発明に適用することができる。

#### 【0126】

##### <封止容器>

本発明の素子は、封止容器を用いて素子全体を封止してもよい。

封止容器については、特開2008-270736号公報の段落番号〔0171〕に記載の事項を本発明に適用することができる。

#### 【0127】

50

( 駆動 )

本発明の有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に直流（必要に応じて交流成分を含んでもよい）電圧（通常 2 ボルト～ 15 ボルト）、又は直流電流を印加することにより、発光を得ることができる。

本発明の有機電界発光素子の駆動方法については、特開平 2 - 1 4 8 6 8 7 号、同 6 - 3 0 1 3 5 5 号、同 5 - 2 9 0 8 0 号、同 7 - 1 3 4 5 5 8 号、同 8 - 2 3 4 6 8 5 号、同 8 - 2 4 1 0 4 7 号の各公報、特許第 2 7 8 4 6 1 5 号、米国特許 5 8 2 8 4 2 9 号、同 6 0 2 3 3 0 8 号の各明細書等に記載の駆動方法を適用することができる。

【 0 1 2 8 】

本発明の発光素子は、種々の公知の工夫により、光取り出し効率を向上させることができる。例えば、基板表面形状を加工する（例えば微細な凹凸パターンを形成する）、基板・ITO層・有機層の屈折率を制御する、基板・ITO層・有機層の膜厚を制御すること等により、光の取り出し効率を向上させ、外部量子効率を向上させることが可能である。

10

【 0 1 2 9 】

本発明の発光素子の外部量子効率としては、外部量子効率が 5 % 以上 1 0 0 % 以下であることが好ましく、より好ましくは 1 0 % 以上 1 0 0 % 以下であり、更に好ましくは 1 5 % 以上 1 0 0 % 以下であり、特に好ましくは 2 0 % 以上 3 0 % 以下であることが好ましい。外部量子効率の数値は 2 0 で素子を駆動したときの外部量子効率の最大値、若しくは、2 0 で素子を駆動したときの 1 0 0 ~ 2 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> 付近での外部量子効率の値を用いることができる。

20

【 0 1 3 0 】

本発明の発光素子は、陽極側から発光を取り出す、いわゆるトップエミッション方式であっても良い。

【 0 1 3 1 】

本発明における有機 EL 素子は、共振器構造を有しても良い。例えば、透明基板上に、屈折率の異なる複数の積層膜よりなる多層膜ミラー、透明又は半透明電極、発光層、及び金属電極を重ね合わせて有する。発光層で生じた光は多層膜ミラーと金属電極を反射板としてその間で反射を繰り返し共振する。

別の好ましい態様では、透明基板上に、透明又は半透明電極と金属電極がそれぞれ反射板として機能して、発光層で生じた光はその間で反射を繰り返し共振する。

30

共振構造を形成するためには、2つの反射板の有効屈折率、反射板間の各層の屈折率と厚みから決定される光路長を所望の共振波長の得るのに最適な値となるよう調整される。第一の態様の場合の計算式は特開平 9 - 1 8 0 8 8 3 号明細書に記載されている。第二の態様の場合の計算式は特開 2 0 0 4 - 1 2 7 7 9 5 号明細書に記載されている。

【 0 1 3 2 】

( 本発明の発光素子の用途 )

本発明の発光素子は、発光装置、ピクセル、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、又は光通信等に好適に利用できる。特に、照明装置、表示装置等の発光輝度が高い領域で駆動されるデバイスに好ましく用いられる。

40

【 0 1 3 3 】

( 発光装置 )

次に、図 2 を参照して本発明の発光装置について説明する。

本発明の発光装置は、前記有機電界発光素子を用いてなる。

図 2 は、本発明の発光装置の一例を概略的に示した断面図である。

図 2 の発光装置 2 0 は、基板（支持基板）2、有機電界発光素子 1 0、封止容器 1 6 等により構成されている。

【 0 1 3 4 】

有機電界発光素子 1 0 は、基板 2 上に、陽極（第一電極）3、有機層 1 1、陰極（第二電極）9 が順次積層されて構成されている。また、陰極 9 上には、保護層 1 2 が積層され

50

ており、更に、保護層 12 上には接着層 14 を介して封止容器 16 が設けられている。なお、各電極 3、9 の一部、隔壁、絶縁層等は省略されている。

ここで、接着層 14 としては、エポキシ樹脂等の光硬化型接着剤や熱硬化型接着剤を用いることができ、例えば熱硬化性の接着シートを用いることもできる。

#### 【0135】

本発明の発光装置の用途は特に制限されるものではなく、例えば、照明装置のほか、テレビ、パーソナルコンピュータ、携帯電話、電子ペーパー等の表示装置とすることができる。

#### 【0136】

(照明装置)

次に、図3を参照して本発明の実施形態に係る照明装置について説明する。

図3は、本発明の実施形態に係る照明装置の一例を概略的に示した断面図である。

本発明の実施形態に係る照明装置40は、図3に示すように、前述した有機EL素子10と、光散乱部材30とを備えている。より具体的には、照明装置40は、有機EL素子10の基板2と光散乱部材30とが接触するように構成されている。

光散乱部材30は、光を散乱できるものであれば特に制限されないが、図3においては、透明基板31に微粒子32が分散した部材とされている。透明基板31としては、例えば、ガラス基板を好適に挙げることができる。微粒子32としては、透明樹脂微粒子を好適に挙げることができる。ガラス基板及び透明樹脂微粒子としては、いずれも、公知のものを使用できる。このような照明装置40は、有機電界発光素子10からの発光が散乱部材30の光入射面30Aに入射されると、入射光を光散乱部材30により散乱させ、散乱光を光出射面30Bから照明光として出射するものである。

#### 【実施例】

#### 【0137】

以下に実施例を挙げて本発明を更に具体的に説明するが、本発明の範囲は以下の具体例に制限されるものではない。なお、実施例6～9、14及び15は、それぞれ参考例6～9、14及び15と読み替えるものとする。

#### 【0138】

一般式(E-I)で表される化合物は、米国特許出願公開第2005/0170209号を参考に合成した。例えば、化合物19は米国特許出願公開第2005/0170209号の9頁に記載の合成例2の方法で合成した。

#### 【0139】

例示化合物A4、例示化合物A43は、国際公開第03/080760号パンフレット、国際公開第03/078541号パンフレット、国際公開第05/085387号パンフレット、国際公開第05/022962号パンフレット等を参考に合成した。例えば、化合物例示化合物A4は、m-プロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第05/085387号パンフレット[0074]-[0075](45頁、11行～46頁、18行)に記載の方法で合成することができる。また化合物例示化合物A45は、3,5-ジプロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第03/080760号パンフレットの46頁、9行～46頁、12行に記載の方法で合成することができる。また、化合物例示化合物A77は、N-フェニルカルバゾールを出発原料に用い、国際公開第05/022962号パンフレットの137頁、10行～139頁、9行に記載の方法で合成することができる。

また実施例で使用した一般式(1)で表される化合物及び比較例で宿主材料として使用した化合物については、それら化合物の合成後、昇華精製することにより、表9に記載の臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計値を有する化合物(宿主材料)として調整し、使用した。これら化合物中の、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計は、臭素及びヨウ素をICP-MS法により、塩素を電量滴定法により測定した。

#### 【0140】

なお、本実施例に用いた有機材料は全て昇華精製したものを、高速液体クロマトグラフィー（東ソー TSK gel ODS-100Z）により分析し、254nmの吸収強度面積比で99.9%以上のものを用いた。

【0141】

〔比較例1〕有機電界発光素子の製造

ITO ( $15 \text{ } / \text{cm}^2$  (1200)) がコーニングされたガラス基板を  $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm} \times 0.7 \text{ mm}$  サイズで切り出してイソプロピルアルコールと純水とで各5分間超音波洗浄した後、30分間UVオゾン洗浄した。前記ITOガラス基板（陽極）上に銅フタロシアニン (CuPc) を真空蒸着することにより厚さ600 の正孔注入層を形成した。次いで、前記正孔注入層上にN, N'-ビス(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-[1,1-ピフェニル]-4,4'-ジアマン (TPD) を真空蒸着することにより厚さ300 の正孔輸送層を形成した。

10

【0142】

前記正孔輸送層上に発光層ホストとしてSDI-BH-22を95質量部と、ドーパントとしてFirpic 5質量部とを真空共蒸着することにより、厚さ300 の発光層を形成した。

【0143】

その後、前記発光層上にBALqを真空蒸着することにより厚さ50 の正孔ブロック層を形成した。次いで、前記正孔ブロック層上にAlq3を真空蒸着することにより厚さ200 の電子輸送層を形成した。更に、この電子輸送層上にLiFを真空蒸着することにより厚さ10 の電子注入層を形成し、この電子注入層上にAlを真空蒸着することにより厚さ3000 の陰極を形成することによって比較例1の有機電界発光素子を製造した。

20

【0144】

〔比較例2～6及び実施例1～18〕

比較例1における発光層の構成材料、及び使用したホスト材料中の臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計を、下記表9中に示す材料及び濃度に変更した以外は、比較例1と同様にして、比較例2～6及び実施例1～18の有機電界発光素子を得た。表9中、色度変化の評価における記号「<」は不等号を意味し、例えば「<0.005」は色度変化が0.005未満であったことを意味する。

30

【0145】

【表 9】

表 9

	発光層構成		ハロゲン元素 (臭素、ヨウ素 及び塩素)質量 濃度の合計	外部量子 効率 (相対値)	駆動耐久性 (相対値)	色度座標 (x, y)	色度変化 ( $\Delta x, \Delta y$ )
	ドーパ ント	ホスト					
比較例 1	Firpic	SDI-BH-22	4ppm	100	100	(0.170,0.400)	(0.01,0.02)
比較例 2	19	SDI-BH-22	4ppm	107	130	(0.144,0.127)	(0.02,0.04)
比較例 3	19	SDI-BH-22	43ppm	103	113	(0.144,0.127)	(0.02,0.04)
比較例 4	19	SDI-BH-22	94ppm	100	100	(0.144,0.127)	(0.02,0.04)
比較例 5	19	SDI-BH-22	104ppm	95	94	(0.144,0.127)	(0.02,0.04)
比較例 6	Firpic	A6	4ppm	97	180	(0.170,0.400)	(0.01,0.02)
本発明 1	19	A6	4ppm	112	440	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 2	19	A6	42ppm	111	360	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 3	19	A6	92ppm	109	320	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 4	19	A6	102ppm	108	135	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 5	136	A6	4ppm	114	400	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 6	19	A43	5ppm	112	420	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 7	136	A43	5ppm	115	380	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 8	19	A67	4ppm	112	400	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 9	136	A67	4ppm	116	360	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 10	33	A6	4ppm	113	410	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 11	138	A6	4ppm	109	440	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 12	142	A6	4ppm	112	420	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 13	19	A45	2ppm	111	444	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 14	19	A32	3ppm	112	424	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 15	19	A53	<1ppm	109	402	(0.144,0.127)	(<0.005,<0.005)
本発明 16	115	A6	2ppm	108	430	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 17	129	A6	3ppm	105	426	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)
本発明 18	203	A6	4ppm	106	432	(0.144,0.135)	(<0.005,<0.005)

10

20

## 【 0 1 4 6 】

(有機電界発光素子の性能評価)

上記のように得られた各素子の性能は以下のように評価した。

## 【 0 1 4 7 】

(a) 外部量子効率

東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2400 を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社製輝度計 BM-8 を用いて測定した。発光スペクトルと発光波長は浜松ホトニクス製スペクトルアナライザー PMA-11 を用いて測定した。これらを元に輝度が  $1000 \text{ cd/m}^2$  付近の外部量子効率を輝度換算法により算出し、表 9 においては比較例 1 の値を 100 として、相対値で示した。外部量子効率は数字が大きいほど優れており好ましい。

30

## 【 0 1 4 8 】

(b) 駆動耐久性

各素子を輝度が  $1000 \text{ cd/m}^2$  になるように直流電圧を印加して発光させ続け、輝度が  $500 \text{ cd/m}^2$  になるまでに要した時間を耐久性の指標とし、表 9 においては比較例 1 の値を 100 として、相対値で示した。駆動耐久性は数字が大きいほど優れており好ましい。

40

## 【 0 1 4 9 】

(c) 色度座標

各素子の色度座標は、国際照明委員会が定める表色系により、色度座標系で CIE (x, y) として得た。なお、x の値は 0.1 に近づくほど青色が深くなる、すなわち純粋な青色に近づくことを意味し、本願において好ましい。また y の値は大きく 0.8 に近づくほど、緑色が強くなることを意味し、本願において好ましくない。

## 【 0 1 5 0 】

50

(d) 駆動前後の色度変化 各素子を輝度が $5000\text{ cd/m}^2$ になるように直流電圧を印加して発光させた。この時の色度( $x$ 、 $y$ )を、輝度が $4000\text{ cd/m}^2$ に到達した時の色度( $x$ 、 $y$ )と比較し、両者の $x$ 値、 $y$ 値の差を( $x$ 、 $y$ )の形で表記し、駆動前後の色度変化の指標とした。 $x$ 、 $y$ の値は小さいほど好ましい。

【0151】

表9の結果から明らかのように、一般式(1)で表される特定構造のカルバゾール化合物と、一般式(E-I)で表される特定構造のイリジウム錯体とを発光層に使用した本発明の素子は、優れた青色色度の特性を有すると共に、それらの両者若しくはいずれか一方を使用しない比較例の素子と比べて、外部量子効率及び駆動耐久性をより高い水準で両立し、かつ素子駆動前後の色度変化が極めて小さいことが分かる。

10

また本発明の素子1~3と本発明の素子4との結果から明らかのように、一般式(1)で表される特定構造のカルバゾール化合物中の、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が $100\text{ ppm}$ 以下となる場合に、外部量子効率及び駆動耐久性が良化し、特に駆動耐久性において顕著な良化が見られた。一方で比較例3~5の結果から明らかのように、本発明の一般式(1)で表される化合物ではない化合物をホスト材料として使用した構成においては、該化合物中の、臭素、ヨウ素及び塩素からなる群より選択されるハロゲン元素の質量濃度の合計が $100\text{ ppm}$ 以下となる場合においても、駆動耐久性における顕著な良化は見られなかった。

【0152】

発光装置、表示装置、照明装置の場合、各画素部で高い電流密度を通じて瞬間的に高輝度発光させる必要があり、本発明の発光素子はそのような場合に発光効率が高くなるように設計されているため、有利に利用することができる。

20

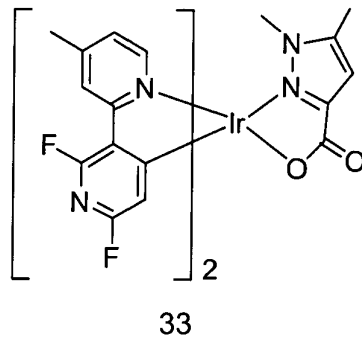
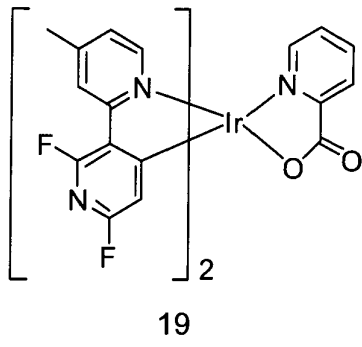
また、本発明の素子は車載用途などの高温環境で使用する際においても発光効率や耐久性にも優れ、発光装置、表示装置、照明装置に好適である。

【0153】

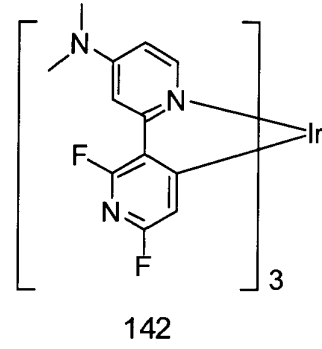
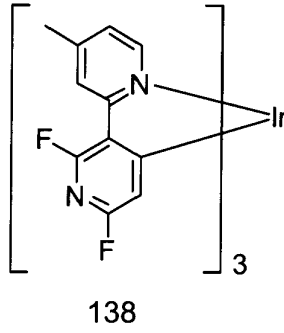
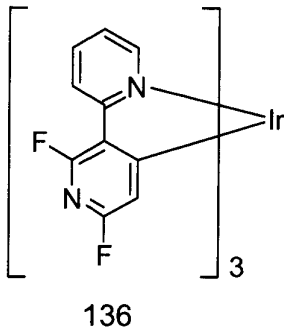
上記実施例及び比較例で使用した化合物の構造を以下に示す。

【0154】

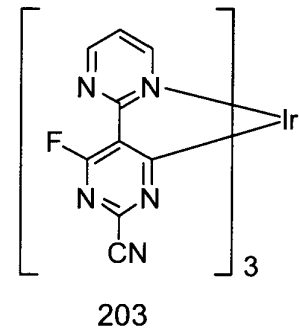
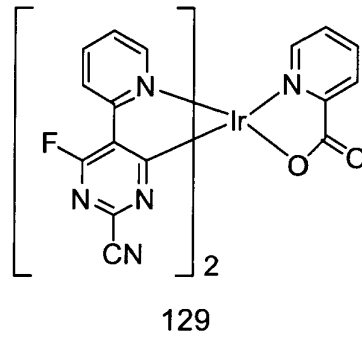
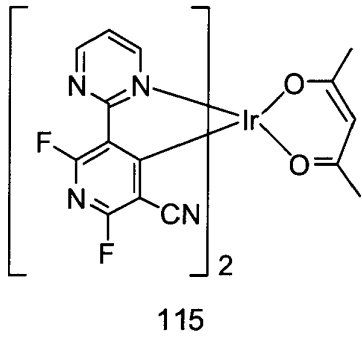
【化 2 3】



10



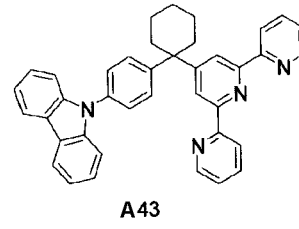
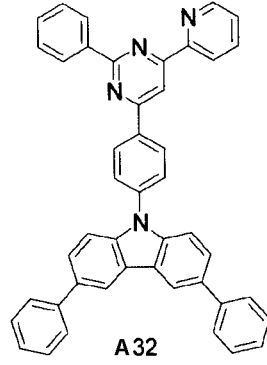
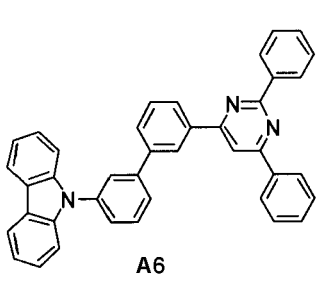
20



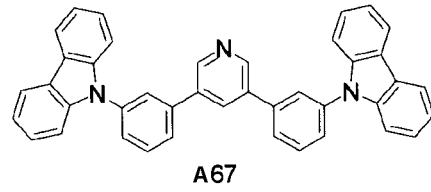
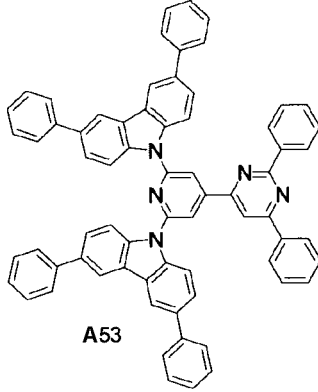
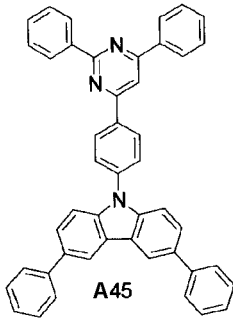
30

【 0 1 5 5 】

【化24】



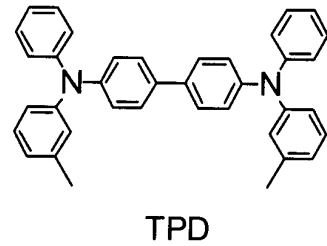
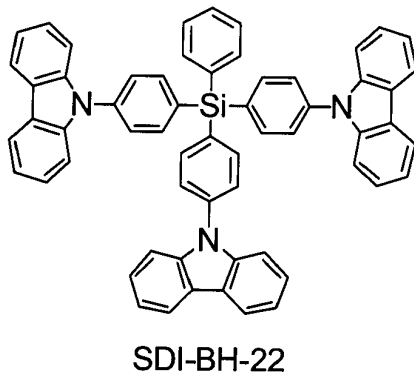
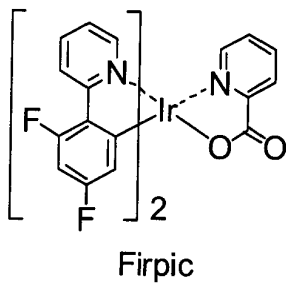
10



20

【0156】

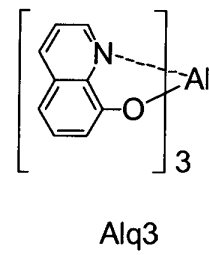
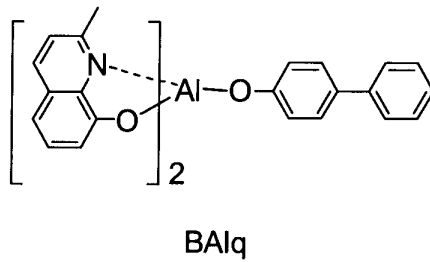
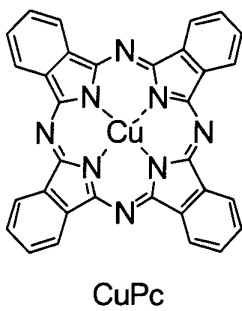
【化25】



30

【0157】

【化26】



40

50



## 【符号の説明】

## 【0158】

2	基板	
3	陽極	
4	正孔注入層	
5	正孔輸送層	
6	発光層	
7	正孔ブロック層	
8	電子輸送層	
9	陰極	10
10	有機電界発光素子（有機EL素子）	
11	有機層	
12	保護層	
14	接着層	
16	封止容器	
20	発光装置	
30	光散乱部材	
30A	光入射面	
30B	光出射面	
31	透明基板	20
32	微粒子	
40	照明装置	

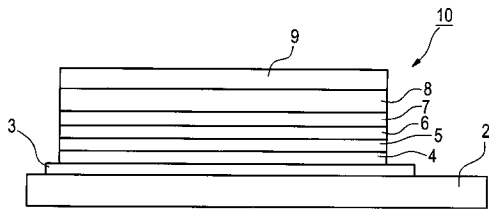
## 【要約】（修正有）

【課題】優れた青色色度の特性を有すると共に、従来の有機電界発光素子に対して、外部量子効率及び駆動耐久性をより高い水準で両立し、かつ素子駆動前後の色度変化が小さい有機電界発光素子を提供すること。有機電界発光素子に有用な発光層及び組成物を提供すること。更に、有機電界発光素子を含む発光装置、表示装置及び照明装置を提供すること。

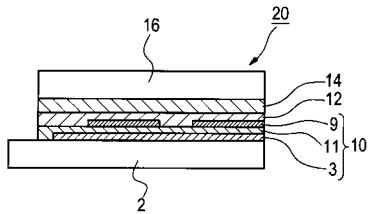
【解決手段】基板上2に、一对の電極と、該電極間に発光層6を有する有機電界発光素子10であって、前記発光層6に、特定構造のカルバゾール化合物と、青色燐光発光材料としての特定構造のイリジウム錯体とを含有する、有機電界発光素子10。

## 【選択図】図1

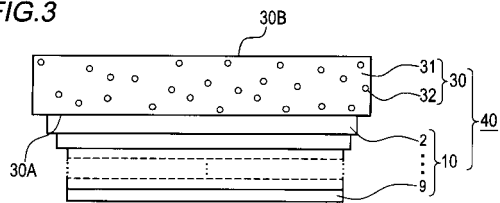
【 図 1 】  
FIG.1



【 図 2 】  
FIG.2



【 図 3 】  
FIG.3



---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
C 0 7 D 403/10  
C 0 7 D 401/14  
C 0 7 F 15/00 E

(56)参考文献 特開2006-182921(JP,A)  
特開2009-088538(JP,A)  
特開2009-057367(JP,A)  
特開2005-220136(JP,A)  
国際公開第2006/008976(WO,A1)  
国際公開第2005/097940(WO,A1)  
特許第4474493(JP,B2)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
H 0 1 L 5 1 / 5 0 - 5 1 / 5 6  
C 0 7 D 4 0 1 / 1 4  
C 0 7 D 4 0 3 / 1 0  
C 0 9 K 1 1 / 0 6  
C 0 7 F 1 5 / 0 0  
C A / R E G I S T R Y ( S T N )