

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5563399号  
(P5563399)

(45) 発行日 平成26年7月30日(2014.7.30)

(24) 登録日 平成26年6月20日(2014.6.20)

(51) Int.Cl.	F I	
HO 1 L 51/50 (2006.01)	HO 5 B 33/14	B
CO 7 C 255/51 (2006.01)	HO 5 B 33/22	B
CO 7 F 15/00 (2006.01)	CO 7 C 255/51	
CO 9 K 11/06 (2006.01)	CO 7 F 15/00	E
HO 1 L 27/32 (2006.01)	CO 9 K 11/06	6 6 0
請求項の数 17 (全 90 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2010-171229 (P2010-171229)  
 (22) 出願日 平成22年7月29日(2010.7.29)  
 (65) 公開番号 特開2012-33663 (P2012-33663A)  
 (43) 公開日 平成24年2月16日(2012.2.16)  
 審査請求日 平成25年4月3日(2013.4.3)

(73) 特許権者 512253626  
 ユー・ディー・シー アイランド リミ  
 テッド  
 アイランド ダブリン 4 ボールスブ  
 リッジ ザ スウィープステークス アレ  
 クサンドラ ハウス  
 (74) 代理人 110000109  
 特許業務法人特許事務所サイクス  
 (72) 発明者 渡辺 徹  
 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地  
 富士フィルム株式会社内  
 (72) 発明者 伊勢 俊大  
 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地  
 富士フィルム株式会社内

最終頁に続く

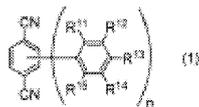
(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子及びp-ジシアノベンゼン構造を有する化合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

基板上に、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層とを有する有機電界発光素子であって、前記少なくとも一層の有機層のいずれか少なくとも一層に、少なくとも一種類の下記一般式(1)で表される化合物を含有する有機電界発光素子。

【化1】



一般式(1)中、R<sup>11</sup>及びR<sup>15</sup>はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、R<sup>11</sup>はR<sup>12</sup>と、R<sup>15</sup>はR<sup>14</sup>と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

R<sup>12</sup>、R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。R<sup>12</sup>とR<sup>13</sup>、及びR<sup>13</sup>とR<sup>14</sup>、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

n は 1、2 又は 3 を表す。

n が 2 又は 3 の時、複数の  $R^{11} \sim R^{15}$  は、それぞれ同一でも異なってもよい。

置換基 C は、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基 C がフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基 C を有していてもよい。

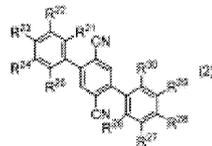
【請求項 2】

前記一般式 (1) において、n が 2 である、請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 3】

前記一般式 (1) で表される化合物が、下記一般式 (2) で表される化合物である、請求項 1 又は 2 に記載の有機電界発光素子。

【化 2】



一般式 (2) 中、 $R^{21}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  及び  $R^{30}$  はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、 $R^{21}$  は  $R^{22}$  と、 $R^{25}$  は  $R^{24}$  と、 $R^{26}$  は  $R^{27}$  と、 $R^{30}$  は  $R^{29}$  と、それぞれ結合して、置換基 C を有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

$R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$  及び  $R^{29}$  はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基 C を有していてもよいフェニル基、置換基 C を有していてもよいナフチル基、置換基 C を有していてもよいフェナントレニル基、置換基 C を有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基 C を有していてもよいフルオレニル基を表す。 $R^{22}$  と  $R^{23}$ 、 $R^{23}$  と  $R^{24}$ 、 $R^{27}$  と  $R^{28}$ 、及び  $R^{28}$  と  $R^{29}$ 、はそれぞれ結合して、置換基 C を有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

置換基 C は、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基 C がフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基 C を有していてもよい。

【請求項 4】

前記一般式 (2) において、 $R^{21}$  と  $R^{26}$ 、 $R^{22}$  と  $R^{27}$ 、 $R^{23}$  と  $R^{28}$ 、 $R^{24}$  と  $R^{29}$ 、及び  $R^{25}$  と  $R^{30}$ 、がそれぞれ同一である、請求項 3 に記載の有機電界発光素子。

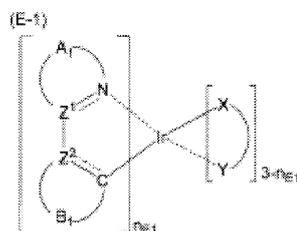
【請求項 5】

前記発光層に、少なくとも一種類の燐光発光材料を含有する、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】

前記燐光発光材料が、下記一般式 (E-1) で表されるイリジウム錯体である、請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

【化 3】



一般式 (E-1) 中、 $Z^1$  及び  $Z^2$  はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。

10

20

30

40

50

$A_1$ は $Z^1$ と窒素原子と共に5又は6員のヘテロ環を形成する原子群を表す。

$B_1$ は $Z^2$ と炭素原子と共に5又は6員環を形成する原子群を表す。

( $X - Y$ )はモノアニオン性の二座配位子を表す。

$n_{E1}$ は1～3の整数を表す。

【請求項7】

前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を、前記発光層に含有する、請求項1～6のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【請求項8】

前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を、前記発光層と前記陰極との間の層に用いる、請求項1～7のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

10

【請求項9】

請求項1～8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10】

請求項1～8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。

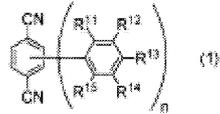
【請求項11】

請求項1～8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。

【請求項12】

下記一般式(1)で表される化合物。

【化4】



20

一般式(1)中、 $R^{11}$ 及び $R^{15}$ はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、 $R^{11}$ は $R^{12}$ と、 $R^{15}$ は $R^{14}$ と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

$R^{12}$ 、 $R^{13}$ 及び $R^{14}$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。 $R^{12}$ と $R^{13}$ 、及び $R^{13}$ と $R^{14}$ 、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

30

$n$ は1、2又は3を表す。

$n$ が2又は3の時、複数の $R^{11} \sim R^{15}$ は、それぞれ同一でも異なってもよい。

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

【請求項13】

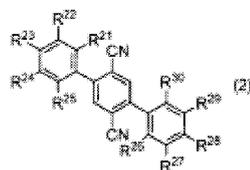
前記一般式(1)において、 $n$ が2である、請求項12に記載の化合物。

40

【請求項14】

下記一般式(2)で表される化合物である、請求項12又は13に記載の化合物。

【化5】



一般式(2)中、 $R^{21}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ 及び $R^{30}$ はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアル

50

キル基を表すか、又は、 $R^{21}$ は $R^{22}$ と、 $R^{25}$ は $R^{24}$ と、 $R^{26}$ は $R^{27}$ と、 $R^{30}$ は $R^{29}$ と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

$R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 及び $R^{29}$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。 $R^{22}$ と $R^{23}$ 、 $R^{23}$ と $R^{24}$ 、 $R^{27}$ と $R^{28}$ 、及び $R^{28}$ と $R^{29}$ 、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

10

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

【請求項15】

前記一般式(2)において、 $R^{21}$ と $R^{26}$ 、 $R^{22}$ と $R^{27}$ 、 $R^{23}$ と $R^{28}$ 、 $R^{24}$ と $R^{29}$ 、及び $R^{25}$ と $R^{30}$ 、がそれぞれ同一である、請求項14に記載の化合物。

【請求項16】

請求項12～15のいずれか一項に記載の、前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する組成物。

20

【請求項17】

請求項12～15のいずれか一項に記載の、前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する薄膜。

【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、及びp-ジシアノベンゼン構造を有する化合物に関する。

【背景技術】

【0002】

有機電界発光素子(以下、「素子」、「有機EL素子」ともいう)は、低電圧駆動で高輝度の発光が得られることから活発に研究開発が行われている。有機電界発光素子は、一对の電極間に有機層を有し、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔とが有機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。

30

【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。更なる素子の発光効率の向上及び駆動電圧の低減のため、オルト位に置換基を有するベンゾニトリル系電荷輸送材料を使用した素子が特許文献1に記載されている。

また素子の駆動電圧の低減、並びに輝度及び耐久性の向上のため、フェニレンに縮合多環芳香族基が2つ以上置換した電荷輸送材料を使用した素子が特許文献2に記載されている。

40

しかしながら、これら従来の電荷輸送材料を用いた素子は耐久性が低く、耐久性の大幅な向上が求められている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2007-266598号公報

【特許文献2】特開2002-329580号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

50

従来の電荷輸送材料を用いた素子は耐久性が低く、耐久性の大幅な向上が求められていた。

従来の電荷輸送材料を用いた素子が有するこの問題に対し、本発明者らは、p - ジシアノベンゼン構造を有し、かつ特定の置換基を有する化合物を用いることにより、耐久性が大幅に向上した有機電界発光素子が提供されることを見出した。

【0006】

すなわち、本発明の目的は、従来の電荷輸送材料を用いた素子に対し、耐久性が大幅に向上した有機電界発光素子を提供することである。

また、本発明の別の目的は、上述の有機電界発光素子に有用な化合物、並びに該化合物を含有する組成物及び薄膜を提供することである。更に、本発明の別の目的は、本発明の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。

10

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らの検討によると、p - ジシアノベンゼン構造を有し、かつ特定の置換基を有する化合物を用いることにより、従来の素子に対し、耐久性が大幅に向上した有機電界発光素子が提供されることを見出した。該化合物は、耐久性が大幅に向上した有機電界発光素子の作製に有用である。

【0008】

すなわち、本発明は下記的手段により達成することができる。

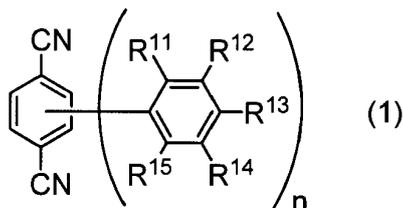
【0009】

20

〔1〕 基板上に、陽極及び陰極からなる一对の電極と、該電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層とを有する有機電界発光素子であって、前記少なくとも一層の有機層のいずれか少なくとも一層に、少なくとも一種類の下記一般式(1)で表される化合物を含有する有機電界発光素子。

【0010】

【化1】



30

【0011】

一般式(1)中、R<sup>11</sup>及びR<sup>15</sup>はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、R<sup>11</sup>はR<sup>12</sup>と、R<sup>15</sup>はR<sup>14</sup>と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

R<sup>12</sup>、R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。R<sup>12</sup>とR<sup>13</sup>、及びR<sup>13</sup>とR<sup>14</sup>、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

40

nは1、2又は3を表す。

nが2又は3の時、複数のR<sup>11</sup>～R<sup>15</sup>は、それぞれ同一でも異なってもよい。

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

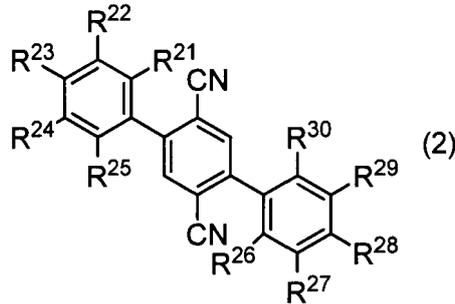
50

〔 2 〕 前記一般式 ( 1 ) において、 $n$  が 2 である、上記〔 1 〕に記載の有機電界発光素子。

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

【 0 0 1 2 】

【化 2】



10

【 0 0 1 3 】

一般式 ( 2 ) 中、 $R^{21}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ 及び $R^{30}$ はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、 $R^{21}$ は $R^{22}$ と、 $R^{25}$ は $R^{24}$ と、 $R^{26}$ は $R^{27}$ と、 $R^{30}$ は $R^{29}$ と、それぞれ結合して、置換基 C を有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

20

$R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 及び $R^{29}$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基 C を有していてもよいフェニル基、置換基 C を有していてもよいナフチル基、置換基 C を有していてもよいフェナントレニル基、置換基 C を有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基 C を有していてもよいフルオレニル基を表す。 $R^{22}$ と $R^{23}$ 、 $R^{23}$ と $R^{24}$ 、 $R^{27}$ と $R^{28}$ 、及び $R^{28}$ と $R^{29}$ 、はそれぞれ結合して、置換基 C を有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

置換基 C は、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基 C がフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基 C を有していてもよい。

30

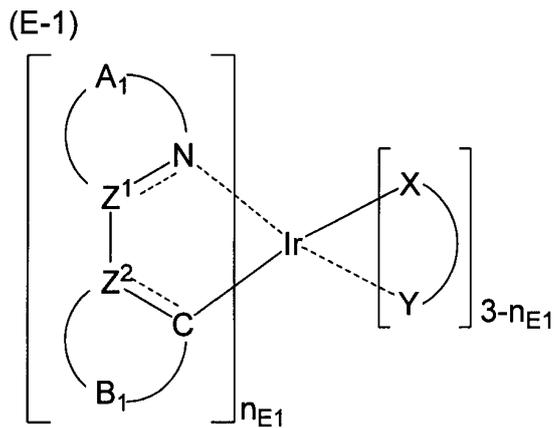
〔 4 〕 前記一般式 ( 2 ) において、 $R^{21}$ と $R^{26}$ 、 $R^{22}$ と $R^{27}$ 、 $R^{23}$ と $R^{28}$ 、 $R^{24}$ と $R^{29}$ 、及び $R^{25}$ と $R^{30}$ 、がそれぞれ同一である、上記〔 3 〕に記載の有機電界発光素子。

〔 5 〕 前記発光層に、少なくとも一種類の燐光発光材料を含有する、上記〔 1 〕～〔 4 〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

〔 6 〕 前記燐光発光材料が、下記一般式 ( E - 1 ) で表されるイリジウム錯体である、上記〔 5 〕に記載の有機電界発光素子。

【 0 0 1 4 】

## 【化3】



## 【0015】

一般式(E-1)中、 $Z^1$ 及び $Z^2$ はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。

$A_1$ は $Z^1$ と窒素原子と共に5又は6員のヘテロ環を形成する原子群を表す。

$B_1$ は $Z^2$ と炭素原子と共に5又は6員環を形成する原子群を表す。

(X-Y)はモノアニオン性の二座配位子を表す。

$n_{E1}$ は1~3の整数を表す。

〔7〕 前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を、前記発光層に含有する、上記〔1〕~〔6〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

〔8〕 前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を、前記発光層と前記陰極との間の層に用いる、上記〔1〕~〔7〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

〔9〕 上記〔1〕~〔8〕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。

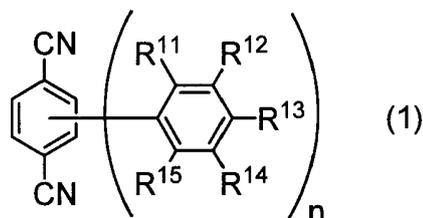
〔10〕 上記〔1〕~〔8〕のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

〔11〕 上記〔1〕~〔8〕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。

〔12〕 下記一般式(1)で表される化合物。

## 【0016】

## 【化4】



## 【0017】

一般式(1)中、 $R^{11}$ 及び $R^{15}$ はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、 $R^{11}$ は $R^{12}$ と、 $R^{15}$ は $R^{14}$ と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

$R^{12}$ 、 $R^{13}$ 及び $R^{14}$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナ

フチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。R<sup>1 2</sup>とR<sup>1 3</sup>、及びR<sup>1 3</sup>とR<sup>1 4</sup>、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

nは1、2又は3を表す。

nが2又は3の時、複数のR<sup>1 1</sup>～R<sup>1 5</sup>は、それぞれ同一でも異なってもよい。

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

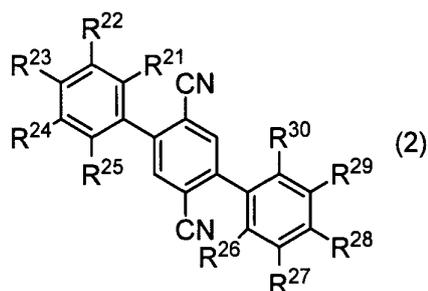
10

〔13〕 前記一般式(1)において、nが2である、上記〔12〕に記載の化合物。

〔14〕 下記一般式(2)で表される化合物である、上記〔12〕又は〔13〕に記載の化合物。

【0018】

【化5】



20

【0019】

一般式(2)中、R<sup>2 1</sup>、R<sup>2 5</sup>、R<sup>2 6</sup>及びR<sup>3 0</sup>はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、R<sup>2 1</sup>はR<sup>2 2</sup>と、R<sup>2 5</sup>はR<sup>2 4</sup>と、R<sup>2 6</sup>はR<sup>2 7</sup>と、R<sup>3 0</sup>はR<sup>2 9</sup>と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

R<sup>2 2</sup>、R<sup>2 3</sup>、R<sup>2 4</sup>、R<sup>2 7</sup>、R<sup>2 8</sup>及びR<sup>2 9</sup>はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。R<sup>2 2</sup>とR<sup>2 3</sup>、R<sup>2 3</sup>とR<sup>2 4</sup>、R<sup>2 7</sup>とR<sup>2 8</sup>、及びR<sup>2 8</sup>とR<sup>2 9</sup>、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

30

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

40

〔15〕 前記一般式(2)において、R<sup>2 1</sup>とR<sup>2 6</sup>、R<sup>2 2</sup>とR<sup>2 7</sup>、R<sup>2 3</sup>とR<sup>2 8</sup>、R<sup>2 4</sup>とR<sup>2 9</sup>、及びR<sup>2 5</sup>とR<sup>3 0</sup>、がそれぞれ同一である、上記〔14〕に記載の化合物。

〔16〕 上記〔12〕～〔15〕のいずれか一項に記載の、前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する組成物。

〔17〕 上記〔12〕～〔15〕のいずれか一項に記載の、前記一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する薄膜。

【発明の効果】

【0020】

本発明によれば、従来の素子に対し、耐久性が大幅に向上した有機電界発光素子を提供

50

することができる。また本発明によれば、耐久性が大幅に向上した有機電界発光素子の作製に有用な化合物を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0021】

【図1】本発明に係る有機電界発光素子の構成の一例を示す概略図である。

【図2】本発明に係る発光装置の一例を示す概略図である。

【図3】本発明に係る照明装置の一例を示す概略図である。

【発明を実施するための形態】

【0022】

本発明において、置換基群 A 及び置換基群 B を以下のように定義する。

10

(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、tert-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、シクロヘキシ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、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラ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。)、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、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオ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、例えばピリジルオキシ、ピラジロキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオ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、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、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(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、例えばフェニルオ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

20

30

40

50

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、ペペリジル、ペペリジノ、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。また、置換基に置換した置換基は更に置換されてもよく、さら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。また、置換基に置換した置換基に置換した置換基は更に置換されてもよく、さら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。

### 【0023】

#### (置換基群B)

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、tert-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、シクロヘキシ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

10

20

30

40

50

ばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリアル基(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、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、シアノ基、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、ペペリジル、ペペリジノ、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。)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、前記置換基群Bから選択される基を挙げることができる。また、置換基に置換した置換基は更に置換されてもよく、さらなる置換基としては、以上に説明した置換基群Bから選択される基を挙げることができる。また、置換基に置換した置換基に置換した置換基は更に置換されてもよく、さらなる置換基としては、以上に説明した置換基群Bから選択される基を挙げることができる。

10

## 【0024】

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層とを有する有機電界発光素子であって、前記少なくとも一層の有機層のいずれか少なくとも一層に、少なくとも一種類の後述の一般式(1)で表される化合物を含有する。

20

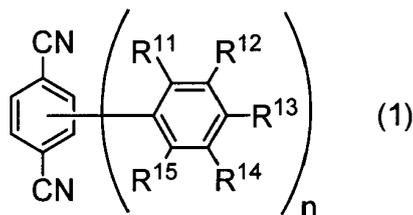
## 【0025】

(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。

## 【0026】

## 【化6】



30

## 【0027】

一般式(1)中、 $R^{11}$ 及び $R^{15}$ はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、 $R^{11}$ は $R^{12}$ と、 $R^{15}$ は $R^{14}$ と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

$R^{12}$ 、 $R^{13}$ 及び $R^{14}$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。 $R^{12}$ と $R^{13}$ 、及び $R^{13}$ と $R^{14}$ 、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

40

$n$ は1、2又は3を表す。

$n$ が2又は3の時、複数の $R^{11}$ ~ $R^{15}$ は、それぞれ同一でも異なってもよい。

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合

50

合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

【0028】

R<sup>1 1</sup>及びR<sup>1 5</sup>はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、R<sup>1 1</sup>はR<sup>1 2</sup>と、R<sup>1 5</sup>はR<sup>1 4</sup>と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。ここで、形成される置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環は、R<sup>1 1</sup>及びR<sup>1 5</sup>が置換しているベンゼン環及び、後述のR<sup>1 2</sup>とR<sup>1 3</sup>、及びR<sup>1 3</sup>とR<sup>1 4</sup>、とがそれぞれ結合して環を形成する場合には、それらにより形成される環も含んだ全体構造を意味する。

R<sup>1 1</sup>及びR<sup>1 5</sup>で表されるアルキル基は、直鎖又は分岐鎖状のアルキル基であり、置換基は有さない。R<sup>1 1</sup>及びR<sup>1 5</sup>で表されるアルキル基は、好ましくは炭素数1～18のアルキル基であり、より好ましくは炭素数1～12のアルキル基であり、更に好ましくは炭素数1～6のアルキル基であり、特に好ましくはメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、t-ブチル基、i-ブチル基、n-ペンチル基、ネオペンチル基、t-アミル基、s-イソアミル基及びn-ヘキシル基、のいずれかであり、最も好ましくはメチル基、i-プロピル基、n-ブチル基、及びt-ブチル基のいずれかである。

10

【0029】

R<sup>1 1</sup>及びR<sup>1 5</sup>はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、R<sup>1 1</sup>はR<sup>1 2</sup>と、R<sup>1 5</sup>はR<sup>1 4</sup>と、それぞれ結合して、無置換のナフタレン環、フェニル基で置換されたナフタレン環、無置換のフェナントレン環、無置換のトリフェニレン環、無置換のフルオレン環、若しくはシクロヘキシル基で置換されたフルオレン環を形成することが好ましく、より好ましくは、R<sup>1 1</sup>及びR<sup>1 5</sup>はそれぞれ独立に、水素原子を表すか、又は、R<sup>1 1</sup>はR<sup>1 2</sup>と、R<sup>1 5</sup>はR<sup>1 4</sup>と、それぞれ結合して、無置換のフェナントレン環を形成することである。

20

【0030】

R<sup>1 2</sup>、R<sup>1 3</sup>及びR<sup>1 4</sup>はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。R<sup>1 2</sup>とR<sup>1 3</sup>、及びR<sup>1 3</sup>とR<sup>1 4</sup>、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。ここで、形成される置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環は、R<sup>1 2</sup>、R<sup>1 3</sup>及びR<sup>1 4</sup>が置換しているベンゼン環及び、前述のR<sup>1 1</sup>とR<sup>1 2</sup>、及びR<sup>1 5</sup>とR<sup>1 4</sup>、とがそれぞれ結合して環を形成する場合には、それらにより形成される環も含んだ全体構造を意味する。

30

【0031】

R<sup>1 2</sup>、R<sup>1 3</sup>及びR<sup>1 4</sup>で表されるアルキル基は、直鎖又は分岐鎖状のアルキル基であり、置換基は有さない。R<sup>1 2</sup>、R<sup>1 3</sup>及びR<sup>1 4</sup>で表されるアルキル基は、好ましくは炭素数1～18のアルキル基であり、より好ましくは炭素数1～12のアルキル基であり、更に好ましくは炭素数1～6のアルキル基であり、特に好ましくはメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、t-ブチル基、i-ブチル基、n-ペンチル基、ネオペンチル基、t-アミル基、s-イソアミル基及びn-ヘキシル基、のいずれかであり、最も好ましくはメチル基、i-プロピル基、n-ブチル基、及びt-ブチル基のいずれかである。

40

【0032】

R<sup>1 2</sup>、R<sup>1 3</sup>及びR<sup>1 4</sup>で表されるシクロアルキル基は、置換基は有さない。R<sup>1 2</sup>、R<sup>1 3</sup>及びR<sup>1 4</sup>で表されるシクロアルキル基は、好ましくは炭素数3～20のシクロアルキル基であり、より好ましくは炭素数5～15のシクロアルキル基であり、更に好ましくは炭素数5～10のシクロアルキル基であり、特に好ましくはシクロペンチル基又は

50

シクロヘキシル基である。

【0033】

$R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  は好ましくはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、無置換のフェニル基、フェニル基を有するフェニル基、アルキル基を有するフェニル基、シアノ基を有するフェニル基、フェナントレニル基及びシアノ基を有するフェニル基、トリフェニレニル基及びシアノ基を有するフェニル基、シアノ基で置換されたビフェニル基を有するフェニル基、フェニル基で置換されたフェニル基及びシアノ基を有するフェニル基、無置換のナフチル基、無置換のフェナントレニル基、無置換のトリフェニレニル基、アルキル基を有するフルオレニル基、又はシアノ基で置換されたターフェニル基を有するフルオレニル基を表すか、或いは、 $R^{12}$  と  $R^{13}$ 、及び  $R^{13}$  と  $R^{14}$ 、はそれぞれ結合して、無置換のナフタレン環、フェニル基を有するナフタレン環、無置換のフェナントレン環、シアノ基及びフェニル基で置換されたフェニル基を有するフェナントレン環、無置換のトリフェニレン環、無置換のフルオレン環、アルキル基を有するフルオレン環、シクロアルキル基を有するフルオレン環、又はフェニル基を有するフルオレン環を形成してもよい。

10

$R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  はより好ましくはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、無置換のフェニル基、フェニル基を有するフェニル基、フェナントレニル基及びシアノ基を有するフェニル基、又は無置換のトリフェニレニル基を表すか、或いは、 $R^{12}$  と  $R^{13}$ 、及び  $R^{13}$  と  $R^{14}$ 、はそれぞれ結合して、無置換のフェナントレン環、無置換のトリフェニレン環、又はアルキル基を有するフルオレン環を形成してもよい。

20

【0034】

$n$  は 1、2 又は 3 を表し、 $n$  は 2 であることが好ましい。 $n$  が 2 の時、一般式 (1) に含まれる  $p$ -ジシアノベンゼン構造に置換する 2 つの置換基の置換位置は、2 位と 3 位、2 位と 5 位、又は 2 位と 6 位であるが、原料化合物の入手容易性及び耐久性向上の観点から置換位置は 2 位と 5 位であることが好ましい。

$n$  が 2 の時、一般式 (1) に含まれる  $p$ -ジシアノベンゼン構造に置換する 2 つの置換基は対称であることが好ましい。

【0035】

置換基  $C$  は、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基  $C$  がフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基  $C$  を有していてもよい。置換基  $C$  としてのアルキル基及びシクロアルキル基の具体例及び好ましい範囲は、前述の  $R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  で表されるアルキル基及びシクロアルキル基の具体例及び好ましい範囲と同様である。

30

置換基  $C$  は、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、又はフェニル基であり、より好ましくはアルキル基、シアノ基、又はフェニル基である。

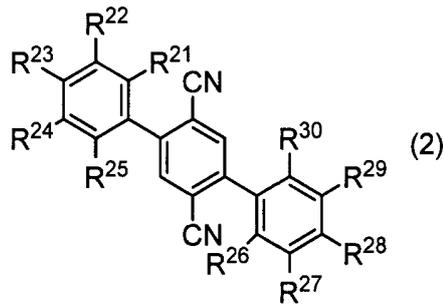
【0036】

前記一般式 (1) で表される化合物は、耐久性向上の観点から下記一般式 (2) で表される化合物であることが好ましい。

【0037】

40

## 【化 7】



10

## 【0038】

一般式(2)中、R<sup>21</sup>、R<sup>25</sup>、R<sup>26</sup>及びR<sup>30</sup>はそれぞれ独立に、水素原子若しくはアルキル基を表すか、又は、R<sup>21</sup>はR<sup>22</sup>と、R<sup>25</sup>はR<sup>24</sup>と、R<sup>26</sup>はR<sup>27</sup>と、R<sup>30</sup>はR<sup>29</sup>と、それぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環若しくはフルオレン環を形成する。

R<sup>22</sup>、R<sup>23</sup>、R<sup>24</sup>、R<sup>27</sup>、R<sup>28</sup>及びR<sup>29</sup>はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、置換基Cを有していてもよいフェニル基、置換基Cを有していてもよいナフチル基、置換基Cを有していてもよいフェナントレニル基、置換基Cを有していてもよいトリフェニレニル基、又は置換基Cを有していてもよいフルオレニル基を表す。R<sup>22</sup>とR<sup>23</sup>、R<sup>23</sup>とR<sup>24</sup>、R<sup>27</sup>とR<sup>28</sup>、及びR<sup>28</sup>とR<sup>29</sup>、はそれぞれ結合して、置換基Cを有していてもよい、ナフタレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環又はフルオレン環を形成してもよい。

20

置換基Cは、アルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基であり、置換基Cがフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、又はフルオレニル基の場合、これら基は更に前記置換基Cを有していてもよい。

## 【0039】

一般式(2)において、R<sup>21</sup>、R<sup>25</sup>、R<sup>26</sup>及びR<sup>30</sup>の具体例及び好ましい範囲は、一般式(1)におけるR<sup>11</sup>及びR<sup>15</sup>の具体例及び好ましい範囲と同様である。

30

一般式(2)において、R<sup>22</sup>、R<sup>23</sup>、R<sup>24</sup>、R<sup>27</sup>、R<sup>28</sup>及びR<sup>29</sup>の具体例及び好ましい範囲は、一般式(1)におけるR<sup>12</sup>、R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>の具体例及び好ましい範囲と同様である。

## 【0040】

原料化合物の入手容易性及び合成容易性の観点から、R<sup>21</sup>とR<sup>26</sup>、R<sup>22</sup>とR<sup>27</sup>、R<sup>23</sup>とR<sup>28</sup>、R<sup>24</sup>とR<sup>29</sup>、及びR<sup>25</sup>とR<sup>30</sup>、がそれぞれ同一であることが好ましい。

## 【0041】

一般式(1)又は(2)で表される化合物は、炭素原子、水素原子及び窒素原子のみからなる化合物である。これにより素子の耐久性の向上がもたらされる。

40

## 【0042】

一般式(1)又は(2)で表される化合物において、R<sup>11</sup>及びR<sup>15</sup>、又はR<sup>21</sup>、R<sup>25</sup>、R<sup>26</sup>及びR<sup>30</sup>は、水素原子若しくはアルキル基であるか、又は、特定の縮合炭化水素構造を形成する場合に限定される。これら基の置換位置(すなわち、p-ジシアノベンゼン構造に対するベンゼン環のオルト位)に例えばフェニル基が置換した場合、p-ジシアノベンゼン構造を含むオルトターフェニル構造を形成する。このオルトターフェニル構造は励起状態において、電子環状反応の進行により、低T<sub>1</sub>成分である環状構造を生じる傾向にあるが、オルトターフェニル構造が一つのみ形成される場合には、一つのオルトターフェニル構造は素子の性能に実質的な悪影響を与えない。しかし、オルトターフェニル構造が複数形成される場合には、低T<sub>1</sub>成分である環状構造の形成傾向が顕著とな

50

る。低 $T_1$ 成分は発光材料の消光剤として働き、耐久性及び外部量子効率の低下を引き起こしやすいため、フェニル基等のアリール基は、*p*-ジシアノベンゼン構造に対するベンゼン環のオルト位の置換基として適切ではない。

【0043】

同様に一般式(1)又は(2)において、*n*が4となる本発明の範囲外の化合物は、前述のオルトターフェニル構造を複数有するため、低 $T_1$ 成分である環状構造の形成傾向が顕著となり、耐久性及び外部量子効率の低下が引き起こされやすい。従って、一般式(1)又は(2)で表される化合物において、*n*は1、2又は3であることが、耐久性の向上の観点で有効である。

【0044】

一般式(1)又は(2)において、同一ベンゼン環状にシアノ基を3つ以上有すると電子親和力が大きくなり過ぎ、有機EL素子を発光させると外部量子効率の低下、駆動電圧の上昇を引き起こしやすいため好ましくない。

【0045】

一般式(1)又は(2)で表される化合物の分子量は通常350以上1500以下であり、450以上1200以下であることが好ましく、500以上1100以下であることがより好ましく、600以上1000以下であることが更に好ましい。分子量が450以上であると良質なアモルファス薄膜形成に有利であり、分子量が1200以下であると溶解性や昇華性が向上し、化合物の純度向上に有利である。

【0046】

一般式(1)又は(2)で表される化合物は、電子親和力が大きく陰極側からの電子注入性に優れるため発光層又は電子輸送層に含有されることが好ましい。

【0047】

一般式(1)又は(2)で表される化合物を有機電界発光素子の発光層のホスト材料や発光層に隣接する層の電荷輸送材料として使用する場合、発光材料より薄膜状態でのエネルギーギャップ(発光材料が燐光発光材料の場合には、薄膜状態での最低励起三重項( $T_1$ )エネルギー)が大きいと、発光がクエンチしてしまうことを防ぎ、効率向上に有利である。一方、化合物の化学的安定性の観点からは、エネルギーギャップ及び $T_1$ エネルギーは大き過ぎない方が好ましい。

一般式(1)又は(2)で表される化合物の膜状態での $T_1$ エネルギーは、2.39 eV(55 kcal/mol)以上3.51 eV(80 kcal/mol)以下であることが好ましく、2.52 eV(58 kcal/mol)以上3.25 eV(75 kcal/mol)以下であることがより好ましく、2.65 eV(61 kcal/mol)以上3.04 eV(70 kcal/mol)以下であることが更に好ましい。特に、発光材料として燐光発光材料を用いる場合には、 $T_1$ エネルギーが上記範囲となることが好ましい。

【0048】

$T_1$ エネルギーは、材料の薄膜の燐光発光スペクトルを測定し、その短波長端から求めることができる。例えば、洗浄した石英ガラス基板上に、材料を真空蒸着法により約50 nmの膜厚に成膜し、薄膜の燐光発光スペクトルを液体窒素温度下でF-7000日立分光蛍光光度計(日立ハイテクノロジーズ)を用いて測定する。得られた発光スペクトルの短波長側の立ち上がり波長をエネルギー単位に換算することにより $T_1$ エネルギーを求めることができる。

【0049】

有機電界発光素子を高温駆動時や素子駆動中の発熱に対して安定して動作させる観点から、一般式(1)又は(2)で表される化合物のガラス転移温度( $T_g$ )は100以上400以下であることが好ましく、120以上400以下であることがより好ましく、140以上400以下であることが更に好ましい。

【0050】

一般式(1)又は(2)で表される化合物の純度が低いと、不純物が電荷輸送のトラップとして働いたり、素子の劣化を促進させたりするため、一般式(1)又は(2)で表され

10

20

30

40

50

る化合物の純度は高いほど好ましい。純度は例えば高速液体クロマトグラフィー（HPLC）により測定でき、254 nmの光吸収強度で検出したときの一般式（1）又は（2）で表される化合物の面積比は、好ましくは95.0%以上であり、より好ましくは97.0%以上であり、特に好ましくは99.0%以上であり、最も好ましくは99.9%以上である。

【0051】

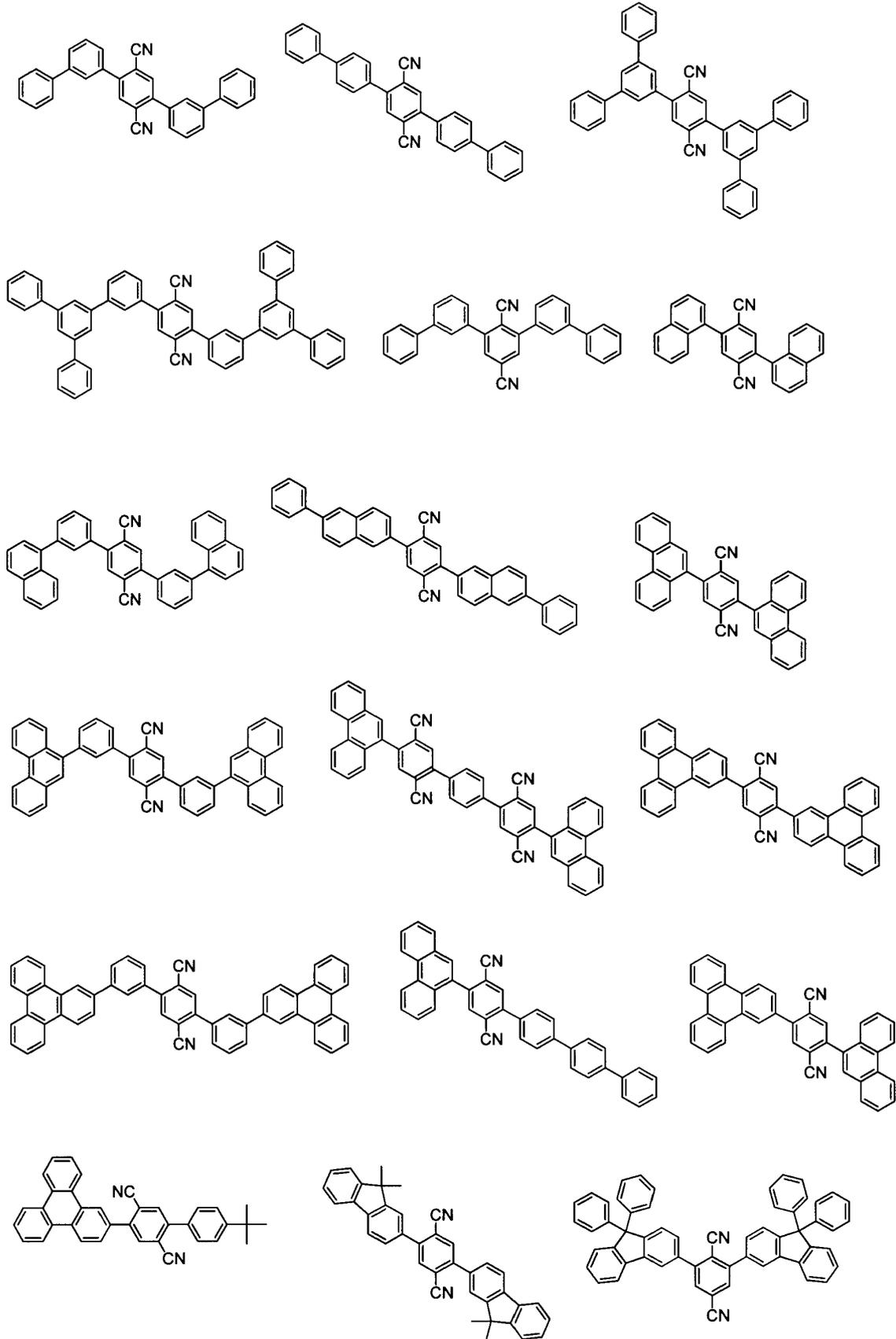
国際公開第2008/117889号に記載のカルバゾール系材料で知られているように、一般式（1）又は（2）で表される化合物の水素原子の一部又は全部を重水素原子で置換した材料も好ましく電荷輸送材料として用いることができる。

【0052】

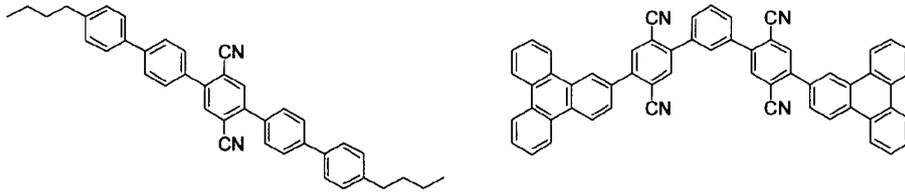
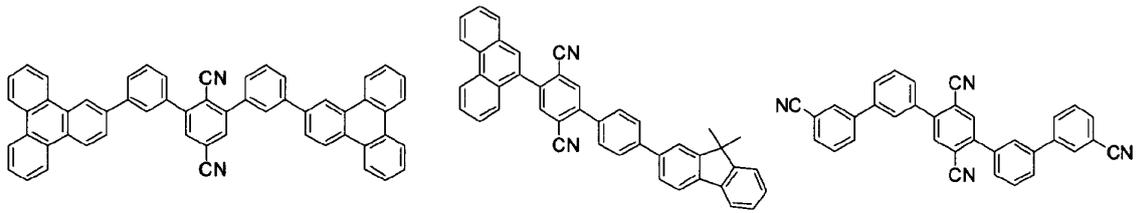
一般式（1）又は（2）で表される化合物の具体例を以下に列挙するが、本発明がこれらに限定されることはない。

【0053】

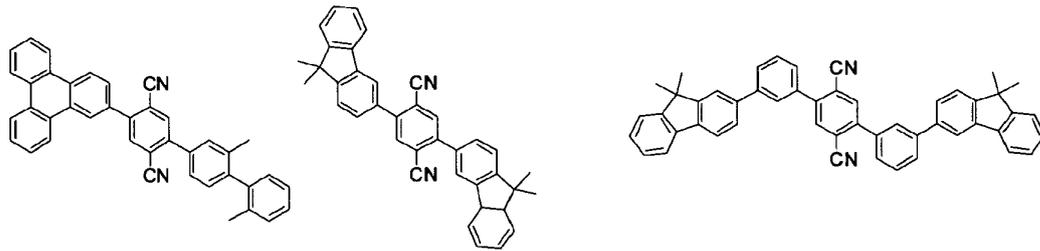
【化 8】



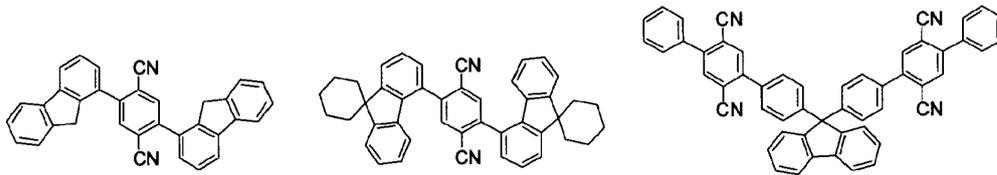
【化9】



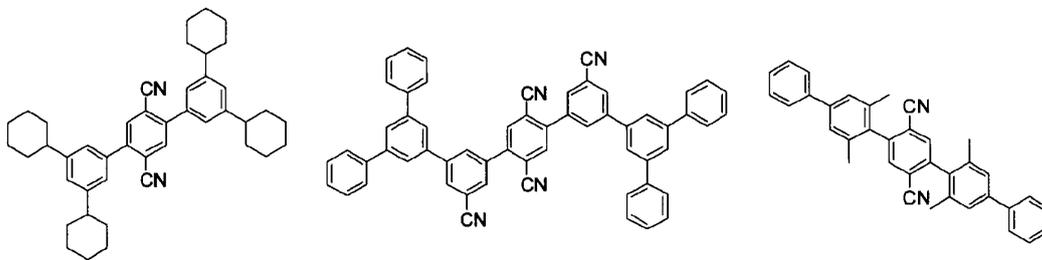
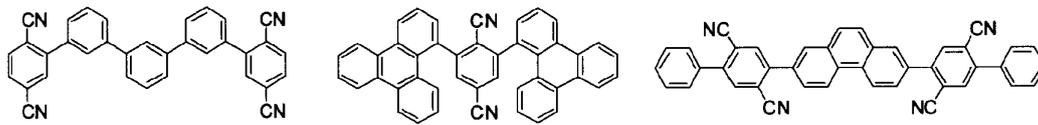
10



20



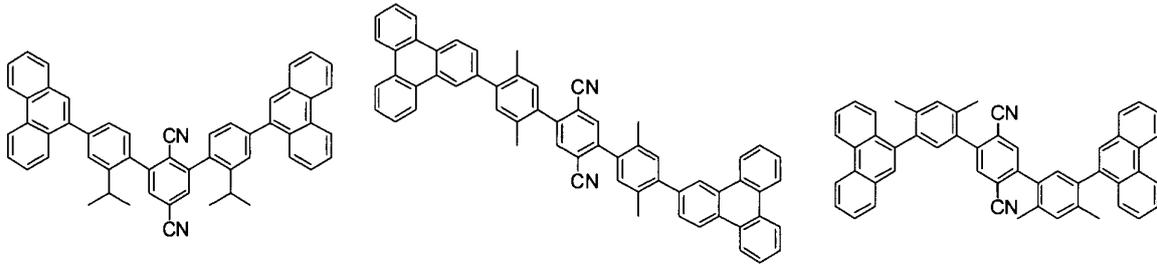
30



40

【0055】

## 【化 10】



## 【0056】

上記一般式(1)又は(2)で表される化合物として例示した化合物は、例えば特開2007-266598等に記載の方法を参照として合成できるがその方法に限定されるものではない。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ただけでなく、無機塩や残留溶媒等を効果的に取り除くことができる。

## 【0057】

本発明において、一般式(1)又は(2)で表される化合物は、その用途が限定されることはなく、有機層内のいずれの層に含有されてもよい。一般式(1)又は(2)で表される化合物の導入層としては、発光層、発光層と陰極との間の層、発光層と陽極との間の層のいずれか、若しくは複数に含有されるのが好ましく、発光層、及び発光層と陰極との間の層のいずれか、若しくは複数に含有されるのがより好ましく、発光層又は発光層と陰極との間の層に含有されるのが特に好ましい。具体的には、発光層、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、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より好ましく、発光層、電子輸送層のいずれか、若しくは複数に含有されることが更に好ましく、発光層又は電子輸送層に含有されることが特に好ましい。

一般式(1)又は(2)で表される化合物を発光層中に含有させる場合、本発明の一般式(1)又は(2)で表される化合物は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、10~96質量%含ませることが更に好ましい。一般式(1)又は(2)で表される化合物を発光層以外の層に更に含有させる場合は、該発光層以外の層の全質量に対して70~100質量%含まれることが好ましく、85~100質量%含まれることがより好ましい。

## 【0058】

〔一般式(1)で表される電荷輸送材料〕

本発明は、上記一般式(1)で表される電荷輸送材料にも関する。上記一般式(1)で表される電荷輸送材料は、好ましくは上記一般式(2)で表される電荷輸送材料である。

本発明の一般式(1)又は(2)で表される化合物及び電荷輸送材料は、電子写真、有機トランジスタ、有機光電変換素子(エネルギー変換用途、センサー用途等)、有機電界発光素子等の有機エレクトロニクス素子に好ましく用いることができ、有機電界発光素子に用いるのが特に好ましい。一般式(1)又は(2)で表される電荷輸送材料の好ましい範囲は前記の通りである。

## 【0059】

〔一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する組成物〕

本発明は上記一般式(1)又は(2)で表される化合物を含む組成物にも関する。本発明の組成物において、一般式(1)又は(2)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30~99質量%であることが好ましく、50~97質量%であることがより好ましく、70~96質量%であることが更に好ましい。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、好ましくはホスト材料、燐光発光材料、炭化水素材料である。

10

20

30

40

50

本発明の組成物は蒸着法やスパッタ法等の乾式製膜法、転写法、印刷法等の湿式製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。

【0060】

〔一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する薄膜〕 本発明は一般式(1)又は(2)で表される化合物を含有する薄膜にも関する。本発明の薄膜は、本発明の組成物を用いて蒸着法やスパッタ法等の乾式製膜法、転写法、印刷法等の湿式製膜法により形成することができる。薄膜の膜厚は用途によっていかなる厚みでもよいが、好ましくは0.1nm~1mmであり、より好ましくは0.5nm~1μmであり、更に好ましくは1nm~200nmであり、特に好ましくは1nm~100nmである。

【0061】

〔有機電界発光素子〕

本発明の有機電界発光素子について詳細に説明する。

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極及び陰極からなる一对の電極と、該電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層とを有する有機電界発光素子であって、前記少なくとも一層の有機層のいずれか少なくとも一層に、少なくとも一種類の後述の一般式(1)で表される化合物を含有する。発光素子の性質上、一对の電極である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。

有機層としては、発光層以外に、正孔注入層、正孔輸送層、ブロック層(正孔ブロック層、励起子ブロック層など)、電子輸送層などが挙げられる。これらの有機層は、それぞれ複数層設けてもよく、複数層設ける場合には同一の材料で形成してもよいし、層毎に異なる材料で形成してもよい。

図1に、本発明に係る有機電界発光素子の構成の一例を示す。図1の有機電界発光素子10は、基板2上に、一对の電極(陽極3と陰極9)の間に発光層6を含む有機層を有する。有機層としては、陽極側3から正孔注入層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。

【0062】

<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。

【0063】

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/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/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。

【0064】

<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

10

20

30

40

50

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。

<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。

10

【0065】

<有機層>

本発明における有機層について説明する。

【0066】

(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製膜法、転写法、印刷法、スピコート法、バーコート法等の溶液塗布法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層が溶液塗布法により形成されることが好ましい。

【0067】

20

(発光層)

発光層は、電界印加時に、陽極、正孔注入層又は正孔輸送層から正孔を受け取り、陰極、電子注入層又は電子輸送層から電子を受け取り、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層である。本発明の有機電界発光素子における発光層は、少なくとも一種の蛍光発光材料又は燐光発光材料を含有し、少なくとも一種の燐光発光材料を含有することが外部量子収率の向上の観点で好ましい。

【0068】

(発光材料)

本発明では、発光層に含有される少なくとも一種の蛍光発光材料又は燐光発光材料に加えて、発光材料として、発光層に含有される蛍光発光材料や燐光発光材料とは異なる蛍光発光材料や燐光発光材料を用いることができる。

30

これら蛍光発光材料や燐光発光材料については、例えば、特開2008-270736号公報の段落番号[0100]~[0164]、特開2007-266458号公報の段落番号[0088]~[0090]に詳述されており、これら公報の記載の事項を本発明に適用することができる。

【0069】

本発明に使用できる燐光発光材料としては、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錯体等の燐光発光性金属錯体化合物が挙

40

50

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、Ir錯体、Pt錯体が特に好ましく、Ir錯体が最も好ましい。

これら燐光発光性金属錯体化合物は、発光層において、前記一般式(1)又は(2)で表される化合物と共に含有されるのが好ましい。

【0070】

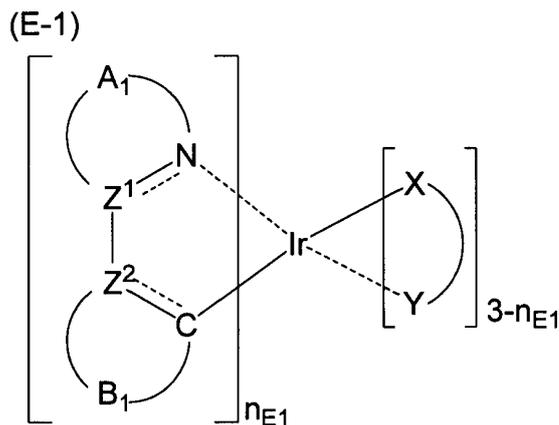
本発明における発光層に含有される燐光発光材料としては、以下に示す一般式(E-1)で表されるイリジウム錯体、又は以下の一般式(C-1)で表される白金錯体を用いることが好ましい。

【0071】

一般式(E-1)について説明する。

【0072】

【化11】



【0073】

一般式(E-1)中、Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。

A<sub>1</sub>はZ<sup>1</sup>と窒素原子と共に5又は6員のヘテロ環を形成する原子群を表す。

B<sub>1</sub>はZ<sup>2</sup>と炭素原子と共に5又は6員環を形成する原子群を表す。

(X-Y)はモノアニオン性の二座配位子を表す。

n<sub>E1</sub>は1~3の整数を表す。

【0074】

n<sub>E1</sub>は1~3の整数を表し、好ましくは2又は3である。

Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>として好ましくは炭素原子である。

【0075】

A<sub>1</sub>はZ<sup>1</sup>と窒素原子と共に5又は6員のヘテロ環を形成する原子群を表す。A<sub>1</sub>、Z<sup>1</sup>及び窒素原子を含む5又は6員のヘテロ環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環などが挙げられる。

錯体の安定性、発光波長制御及び発光量子収率の観点から、A<sub>1</sub>、Z<sup>1</sup>及び窒素原子で形成される5又は6員のヘテロ環として好ましくは、ピリジン環、ピラジン環、イミダゾール環、ピラゾール環であり、より好ましくはピリジン環、イミダゾール環、ピラジン環であり、更に好ましくはピリジン環、イミダゾール環であり、最も好ましくはピリジン環である。

【0076】

前記A<sub>1</sub>、Z<sup>1</sup>及び窒素原子で形成される5又は6員のヘテロ環は置換基を有していてもよく、炭素原子上の置換基としては前記置換基群Aが、窒素原子上の置換基としては前

10

20

30

40

50

記置換基群 B が適用できる。炭素上の置換基として好ましくはアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子である。

【 0 0 7 7 】

置換基は発光波長や電位の制御のために適宜選択されるが、短波長化させる場合には電子供与性基、フッ素原子、芳香環基が好ましく、例えばアルキル基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、フッ素原子、アリール基、芳香族ヘテロ環基などが選択される。また長波長化させる場合には電子求引性基が好ましく、例えばシアノ基、ペルフルオロアルキル基などが選択される。

【 0 0 7 8 】

窒素上の置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、錯体の安定性の観点からアルキル基、アリール基が好ましい。

前記置換基同士は連結して縮合環を形成していてもよく、形成される環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピラゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。これら形成される環は置換基を有していてもよく、置換基としては前述の炭素原子上の置換基、窒素原子上の置換基が挙げられる。

【 0 0 7 9 】

$B_1$  は  $Z^2$  と炭素原子を含む 5 又は 6 員環を表す。 $B_1$ 、 $Z^2$  及び炭素原子で形成される 5 又は 6 員環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピリダジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。

錯体の安定性、発光波長制御及び発光量子収率の観点から  $B_1$ 、 $Z^2$  及び炭素原子で形成される 5 又は 6 員環として好ましくは、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、チオフェン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラゾール環であり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環である。

【 0 0 8 0 】

前記  $B_1$ 、 $Z^2$  及び炭素原子で形成される 5 又は 6 員環は置換基を有していてもよく、炭素原子上の置換基としては前記置換基群 A が、窒素原子上の置換基としては前記置換基群 B が適用できる。炭素上の置換基として好ましくはアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子である。

【 0 0 8 1 】

置換基は発光波長や電位の制御のために適宜選択されるが、長波長化させる場合には電子供与性基、芳香環基が好ましく、例えばアルキル基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、アリール基、芳香族ヘテロ環基などが選択される。また短波長化させる場合には電子求引性基が好ましく、例えばフッ素原子、シアノ基、ペルフルオロアルキル基などが選択される。

【 0 0 8 2 】

窒素上の置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、錯体の安定性の観点からアルキル基、アリール基が好ましい。前記置換基同士は連結して縮合環を形成していてもよく、形成される環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピラゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。これら形成される環は置換基を有していてもよく、置換基としては前述の炭素原子上の置換基、窒素原子上の置換基が挙げられる。

また前記  $A_1$ 、 $Z^1$  及び窒素原子で形成される 5 又は 6 員のヘテロ環の置換基と、前記  $B_1$ 、 $Z^2$  及び炭素原子で形成される 5 又は 6 員環の置換基とが連結して、前述と同様の縮合環を形成していてもよい。

10

20

30

40

50

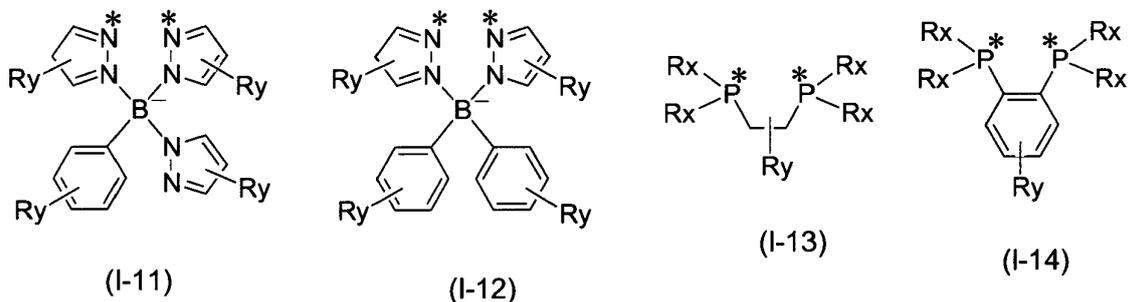
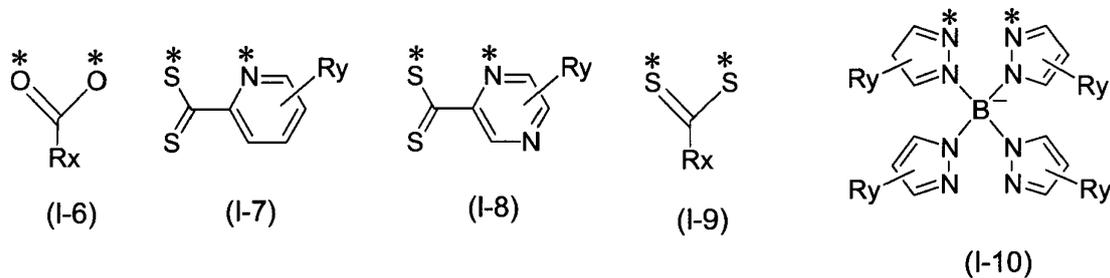
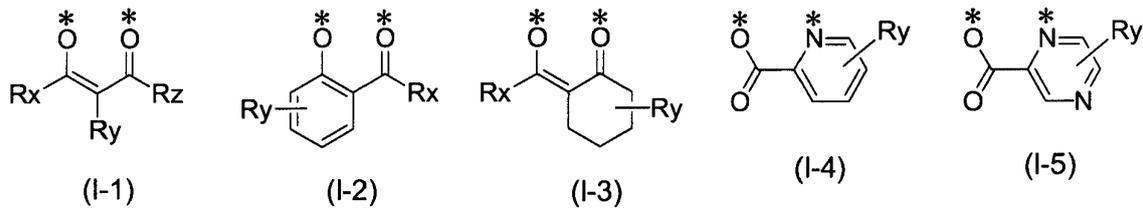
## 【0083】

(X - Y)で表される配位子としては、従来公知の金属錯体に用いられる種々の公知の配位子があるが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag社 H. Yersin著 1987年発行、「有機金属化学 - 基礎と応用 -」裳華房社 山本明夫著 1982年発行等に記載の配位子（例えば、ハロゲン配位子（好ましくは塩素配位子）、含窒素ヘテロアリアル配位子（例えば、ピピリジル、フェナントロリンなど）、ジケトン配位子（例えば、アセチルアセトンなど）が挙げられる。

(X - Y)で表される配位子としては下記一般式(1-1)～(1-14)が好ましいが、本発明はこれらに限定されない。

## 【0084】

## 【化12】



## 【0085】

\*は一般式(E-1)におけるイリジウムへの配位位置を表す。Rx、Ry及びRzはそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。

## 【0086】

Rx、Ry及びRzが置換基を表す場合、該置換基としては前記置換基群Aから選ばれる置換基が挙げられる。好ましくは、Rx、Rzはそれぞれ独立にアルキル基、ペルフルオロアルキル基、フッ素原子、アリール基のいずれかであり、より好ましくは炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のペルフルオロアルキル基、フッ素原子、置換されていても良いフェニル基であり、最も好ましくはメチル基、エチル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子、フェニル基である。Ryは好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、フッ素原子、アリール基のいずれかであり、より好ましくは水素原子、炭素数1～4のアルキル基、置換されていても良いフェニル基であり、最も好ましくは水素原

10

20

30

40

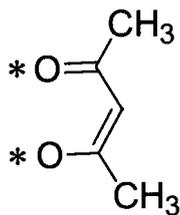
50

子、メチル基のいずれかである。これら配位子は素子中で電荷を輸送したり励起によって電子が集中する部位ではないと考えられるため、 $R_x$ 、 $R_y$ 、 $R_z$ は化学的に安定な置換基であれば良く、本発明の効果にも影響を及ぼさない。錯体合成が容易であるため好ましくは(I-1)、(I-4)、(I-5)であり、最も好ましくは(I-1)である。これらの配位子を有する錯体は、対応する配位子前駆体を用いることで公知の合成例と同様に合成できる。例えば国際公開2009-073245号46ページに記載の方法と同様に、市販のジフルオロアセチルアセトンを用いて以下に示す方法で合成する事ができる。

(X-Y)で表される配位子として好ましくは、ジケトン類あるいはピコリン酸誘導体であり、錯体の安定性と高い発光効率を得られる観点から以下に示されるアセチルアセトネート(acac)であることが最も好ましい。

【0087】

【化13】



acac

【0088】

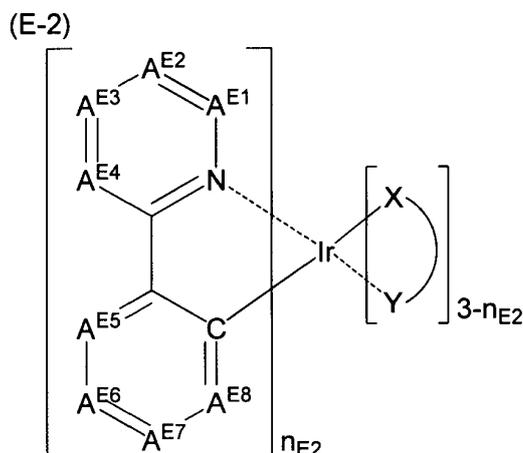
\*はイリジウムへの配位位置を表す。

【0089】

一般式(E-1)で表されるIr錯体の好ましい態様は、一般式(E-2)で表されるIr錯体である。

【0090】

【化14】



【0091】

一般式(E-2)中、 $A^{E1} \sim A^{E8}$ はそれぞれ独立に、窒素原子又はC-R<sup>E</sup>を表す。

R<sup>E</sup>は水素原子又は置換基を表す。

(X-Y)はモノアニオン性の二座配位子を表す。

$n_{E2}$ は1~3の整数を表す。

【0092】

10

20

30

40

50

$A^{E1} \sim A^{E8}$  はそれぞれ独立に、窒素原子又は  $C - R^E$  を表す。 $R^E$  は水素原子又は置換基を表し、 $R^E$  同士が互いに連結して環を形成していてもよい。形成される環としては、前述の一般式 (E - 1) において述べた縮合環と同様のものが挙げられる。 $R^E$  で表される置換基としては、前記置換基群 A として挙げたものが適用できる。

$A^{E1} \sim A^{E4}$  として好ましくは  $C - R^E$  であり、 $A^{E1} \sim A^{E4}$  が  $C - R^E$  である場合に、 $A^{E3}$  の  $R^E$  として好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フッ素原子、又はシアノ基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、又はフッ素原子であり、特に好ましく水素原子、又はフッ素原子であり、 $A^{E1}$ 、 $A^{E2}$  及び  $A^{E4}$  の  $R^E$  として好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フッ素原子、又はシアノ基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、又はフッ素原子であり、特に好ましく水素原子である。

10

## 【0093】

$A^{E5} \sim A^{E8}$  として好ましくは  $C - R^E$  であり、 $A^{E5} \sim A^{E8}$  が  $C - R^E$  である場合に、 $R^E$  として好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、又はフッ素原子であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、又はフッ素原子であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、トリフルオロメチル基、又はフッ素原子である。

20

また可能な場合は置換基同士が連結して縮環構造を形成してもよい。発光波長を短波長側にシフトさせる場合、 $A^{E6}$  が窒素原子であることが好ましい。

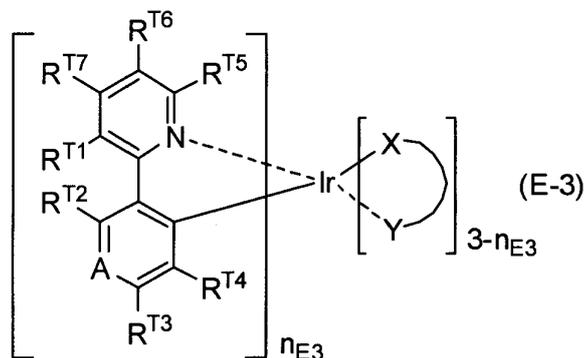
(X - Y)、及び  $n_{E2}$  は一般式 (E - 1) における (X - Y)、及び  $n_{E1}$  と同義であり好ましい範囲も同様である。

## 【0094】

前記一般式 (E - 2) で表される化合物のより好ましい形態は、下記一般式 (E - 3) で表される化合物である。

## 【0095】

## 【化15】



30

## 【0096】

一般式 (E - 3) 中、 $R^{T1}$ 、 $R^{T2}$ 、 $R^{T3}$ 、 $R^{T4}$ 、 $R^{T5}$ 、 $R^{T6}$  及び  $R^{T7}$  は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、 $-CN$ 、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R$ 、 $-C(O)R$ 、 $-NR_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 Z を有していてもよい。R はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

40

A は  $CR'$  又は窒素原子を表し、 $R'$  は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、 $-CN$ 、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、

50

-CO<sub>2</sub>R、-C(O)R、-NR<sub>2</sub>、-NO<sub>2</sub>、-OR、ハロゲン原子、アリアル基又はヘテロアリアル基を表し、更に置換基Zを有していてもよい。Rはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリアル基又はヘテロアリアル基を表す。

R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'は、任意の2つが互いに結合して縮合4~7員環を形成してもよく、該縮合4~7員環は、シクロアルキル、アリアル又はヘテロアリアルであり、該縮合4~7員環は更に置換基Zを有していてもよい。これらのうち、R<sup>T1</sup>とR<sup>T7</sup>、又はR<sup>T5</sup>とR<sup>T6</sup>で縮環してベンゼン環を形成する場合は好ましく、R<sup>T5</sup>とR<sup>T6</sup>で縮環してベンゼン環を形成する場合は特に好ましい。

置換基Zはそれぞれ独立に、ハロゲン原子、-R''、-OR''、-N(R'')<sub>2</sub>、-SR''、-C(O)R''、-C(O)OR''、-C(O)N(R'')<sub>2</sub>、-CN、-NO<sub>2</sub>、-SO<sub>2</sub>、-SOR''、-SO<sub>2</sub>R''、又は-SO<sub>3</sub>R''を表し、R''はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリアル基又はヘテロアリアル基を表す。

(X-Y)は、モノアニオン性の二座配位子を表す。n<sub>E3</sub>は1~3の整数を表す。

#### 【0097】

アルキル基としては、置換基を有していてもよく、飽和であっても不飽和であってもよく、置換してもよい基としては、前述の置換基Zを挙げることができる。R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるアルキル基として、好ましくは総炭素原子数1~8のアルキル基であり、より好ましくは総炭素原子数1~6のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、i-プロピル基、シクロヘキシル基、t-ブチル基等が挙げられる。

シクロアルキル基としては、置換基を有していてもよく、飽和であっても不飽和であってもよく、置換してもよい基としては、前述の置換基Zを挙げることができる。R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるシクロアルキル基として、好ましくは環員数4~7のシクロアルキル基であり、より好ましくは総炭素原子数5~6のシクロアルキル基であり、例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるアルケニル基としては好ましくは炭素数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、1-プロペニル、1-イソプロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。

R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるアルキニル基としては、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、例えばエチニル、プロパルギル、1-プロピニル、3-ペンチニルなどが挙げられる。

#### 【0098】

R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるペルフルオロアルキル基は、前述のアルキル基の全ての水素原子がフッ素原子に置き換えられたものが挙げられる。

#### 【0099】

R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるアリアル基としては、好ましくは、炭素数6から30の置換若しくは無置換のアリアル基、例えば、フェニル基、トリル基、ナフチル基等が挙げられる。

#### 【0100】

R<sup>T1</sup> ~ R<sup>T7</sup>、及びR'で表されるヘテロアリアル基としては、好ましくは、炭素数5~8のヘテロアリアル基であり、より好ましくは、5又は6員の置換若しくは無置換のヘテロアリアル基であり、例えば、ピリジル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、キノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、フリル基、ベンゾフリル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、トリアゾリル基、オキサゾリル基、ベンズオキサゾリル基、チアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、イソチアゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、チアジアゾリル基、イソオキサゾリル基、ベンズイソオキサゾリル基、ピロリジニル基、ピペリジニル

10

20

30

40

50

基、ピペラジニル基、イミダゾリジニル基、チアゾリニル基、スルホラニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基、7ピリドインドリル基などが挙げられる。好ましい例としては、ピリジル基、ピリミジニル基、イミダゾリル基、チエニル基であり、より好ましくは、ピリジル基、ピリミジニル基である。

【0101】

$R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及び $R'$ として好ましくは、水素原子、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、ペルフルオロアルキル基、ジアルキルアミノ基、フルオロ基、アリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、フルオロ基、アリール基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基である。置換基 $Z$ としては、アルキル基、アルコキシ基、フルオロ基、シアノ基、ジアルキルアミノ基が好ましく、水素原子がより好ましい。

10

【0102】

$R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及び $R'$ は任意の2つが互いに結合して縮合4～7員環を形成してもよく、該縮合4～7員環は、シクロアルキル、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4～7員環は更に置換基 $Z$ を有していてもよい。形成されるシクロアルキル、アリール、ヘテロアリールの定義及び好ましい範囲は $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及び $R'$ で定義したシクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基と同じである。

また $A$ が $CR'$ を表すと共に、 $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及び $R'$ のうち、0～2つがアルキル基又はフェニル基で、残りが全て水素原子である場合が特に好ましく、 $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及び $R'$ のうち、0～2つがアルキル基で、残りが全て水素原子である場合が特に好ましい。

20

【0103】

$n_{E3}$ は2又は3であることが好ましい。錯体中の配位子の種類は1～2種類から構成されることが好ましく、更に好ましくは1種類である。錯体分子内に反応性基を導入する際には合成容易性という観点から配位子が2種類からなることも好ましい。

( $X-Y$ )は、一般式(E-1)における( $X-Y$ )と同義であり好ましい範囲も同様である。

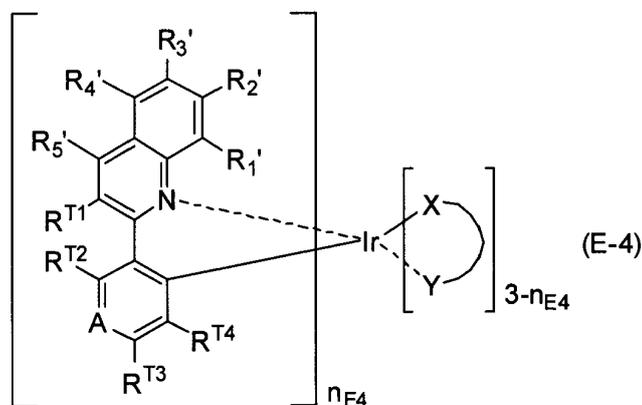
【0104】

前記一般式(E-3)で表される化合物の好ましい形態の一つは、下記一般式(E-4)で表される化合物である。

30

【0105】

【化16】



40

【0106】

一般式(E-4)における $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 $A$ 、( $X-Y$ )及び $n_{E4}$ は、一般式(E-3)における $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 $A$ 、( $X-Y$ )及び $n_{E3}$ と同義であり、好ましい範囲も同様である。 $R_{1'} \sim R_{5'}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロピ

50

ニル基、 $-CO_2R$ 、 $-C(O)R$ 、 $-NR_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基Zを有していてもよい。Rはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

$R_{1'} \sim R_{5'}$ は、任意の2つが互いに結合して縮合4～7員環を形成してもよく、該縮合4～7員環は、シクロアルキル、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4～7員環は更に置換基Zを有していてもよい。

Zはそれぞれ独立に、ハロゲン原子、 $-R''$ 、 $-OR''$ 、 $-N(R'')_2$ 、 $-SR''$ 、 $-C(O)R''$ 、 $-C(O)OR''$ 、 $-C(O)N(R'')_2$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-SO_2$ 、 $-SOR''$ 、 $-SO_2R''$ 、又は $-SO_3R''$ を表し、 $R''$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

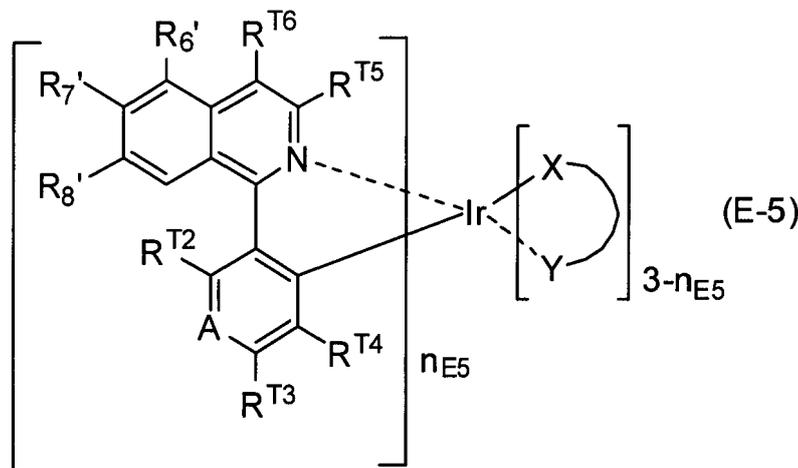
また、 $R_{1'} \sim R_{5'}$ における好ましい範囲は、一般式(E-3)における $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、 $R'$ と同様である。またAが $CR'$ を表すと共に、 $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 $R'$ 、及び $R_{1'} \sim R_{5'}$ のうち、0～2つがアルキル基又はフェニル基で残りが全て水素原子である場合が特に好ましく、 $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 $R'$ 、及び $R_{1'} \sim R_{5'}$ のうち、0～2つがアルキル基で残りが全て水素原子である場合が更に好ましい。

【0107】

前記一般式(E-3)で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式(E-5)で表される化合物である。

【0108】

【化17】



【0109】

一般式(E-5)における $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、A、(X-Y)及び $n_{E5}$ は、一般式(E-3)における $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、A、(X-Y)及び $n_{E3}$ と同義であり、好ましい範囲も同様である。 $R_{6'} \sim R_{8'}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロピニル基、 $-CO_2R$ 、 $-C(O)R$ 、 $-NR_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基Zを有していてもよい。Rはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

$R^{T5}$ 、 $R^{T6}$ 、 $R_{6'} \sim R_{8'}$ は、任意の2つが互いに結合して縮合4～7員環を形成してもよく、該縮合4～7員環は、シクロアルキル、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4～7員環は更に置換基Zを有していてもよい。

Zはそれぞれ独立に、ハロゲン原子、 $-R''$ 、 $-OR''$ 、 $-N(R'')_2$ 、 $-SR''$ 、 $-C(O)R''$ 、 $-C(O)OR''$ 、 $-C(O)N(R'')_2$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-S$

$O_2$ 、 $-SOR''$ 、 $-SO_2R''$ 、又は $-SO_3R''$ を表し、 $R''$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

また、 $R_6' \sim R_8'$ における好ましい範囲は、一般式(E-3)における $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、 $R'$ と同様である。またAが $CR'$ を表すと共に、 $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、 $R'$ 、及び $R_6' \sim R_8'$ のうち、0~2つがアルキル基又はフェニル基で残りが全て水素原子である場合が特に好ましく、 $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、 $R'$ 、及び $R_6' \sim R_8'$ のうち、0~2つがアルキル基で残りが全て水素原子である場合が更に好ましい。

【0110】

一般式(E-4)又は(E-5)で表される燐光発光材料を用いる場合、一般式(1)で表される化合物は、発光層又は電子輸送層に含有されることが好ましい。

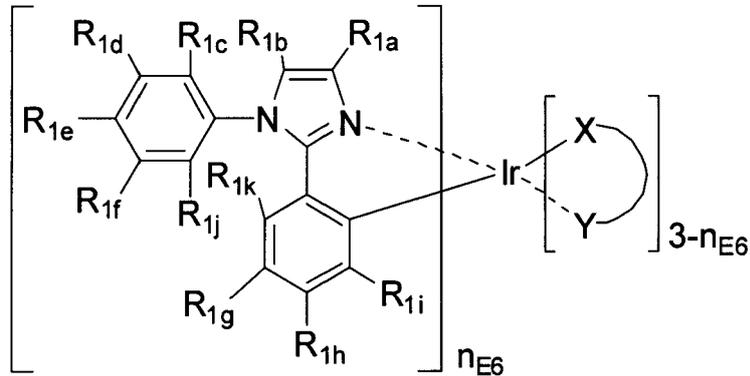
【0111】

一般式(E-1)で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式(E-6)で表される場合である。

【0112】

【化18】

(E-6)



【0113】

一般式(E-6)中、 $R_{1a} \sim R_{1k}$ は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R$ 、 $-C(O)R$ 、 $-NR_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基Zを有していてもよい。Rはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

$R_{1a} \sim R_{1k}$ は、任意の2つが互いに結合して縮合4~7員環を形成してもよく、該縮合4~7員環は、シクロアルキル、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4~7員環は更に置換基Zを有していてもよい。

Zはそれぞれ独立に、ハロゲン原子、 $-R''$ 、 $-OR''$ 、 $-N(R'')_2$ 、 $-SR''$ 、 $-C(O)R''$ 、 $-C(O)OR''$ 、 $-C(O)N(R'')_2$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-SO_2$ 、 $-SOR''$ 、 $-SO_2R''$ 、又は $-SO_3R''$ を表し、 $R''$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

(X-Y)は、モノアニオン性の二座配位子を表す。

$n_{E6}$ は1~3の整数を表す。

【0114】

一般式(E-6)において、 $R_{1a} \sim R_{1k}$ の好ましい範囲は、一般式(E-3)における $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、 $R'$ におけるものと同様である。また $R_{1a} \sim R_{1k}$ のうち、0~2つがアルキル基又はフェニル基で残りが全て水素原子である場合が特に好ましく、 $R_1$

$a \sim R_{1k}$ のうち、0～2つがアルキル基で残りが全て水素原子である場合が更に好ましい。

$R_{1j}$ と $R_{1k}$ とが連結し単結合を形成する場合が特に好ましい。

(X-Y)、及び $n_{E6}$ の好ましい範囲は、一般式(E-3)における(X-Y)、及び $n_{E3}$ と同様である。

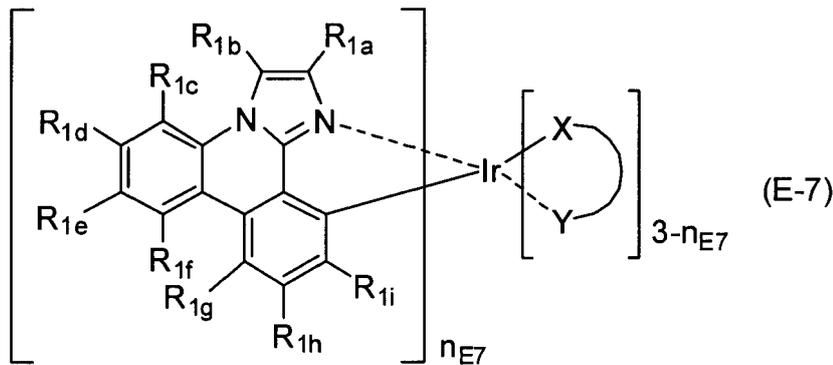
【0115】

一般式(E-6)で表される化合物のより好ましい形態は、下記一般式(E-7)で表される場合である。

【0116】

【化19】

10



20

【0117】

一般式(E-7)中、 $R_{1a} \sim R_{1i}$ は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R$ 、 $-C(O)R$ 、 $-NR_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基Zを有していてもよい。Rはそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

30

$R_{1a} \sim R_{1i}$ は、任意の2つが互いに結合して縮合4～7員環を形成してもよく、該縮合4～7員環は、シクロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基であり、該縮合4～7員環は更に置換基Zを有していてもよい。

Zはそれぞれ独立に、ハロゲン原子、 $-R''$ 、 $-OR''$ 、 $-N(R'')_2$ 、 $-SR''$ 、 $-C(O)R''$ 、 $-C(O)OR''$ 、 $-C(O)N(R'')_2$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-SO_2$ 、 $-SOR''$ 、 $-SO_2R''$ 、又は $-SO_3R''$ を表し、 $R''$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

(X-Y)は、モノアニオン性の二座配位子を表す。

$n_{E7}$ は1～3の整数を表す。

40

【0118】

一般式(E-7)中、 $R_{1a} \sim R_{1i}$ の定義や好ましい範囲は一般式(E-6)における $R_{1a} \sim R_{1i}$ と同様である。また $R_{1a} \sim R_{1i}$ のうち、0～2つがアルキル基又はアリール基で残りが全て水素原子である場合が特に好ましい。(X-Y)、及び $n_{E7}$ の定義や好ましい範囲は一般式(E-3)における(X-Y)、及び $n_{E3}$ と同様である。

【0119】

一般式(E-6)又は(E-7)で表される燐光発光材料を用いる場合、一般式(1)で表される化合物は、発光層又は電子輸送層に含有されることが好ましい。

【0120】

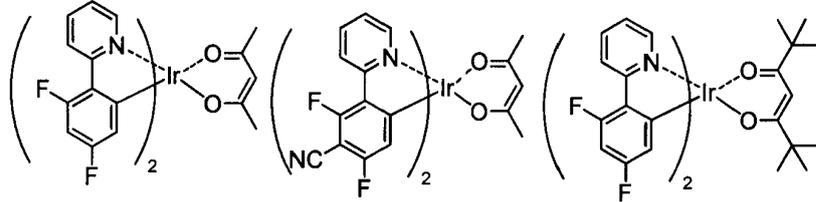
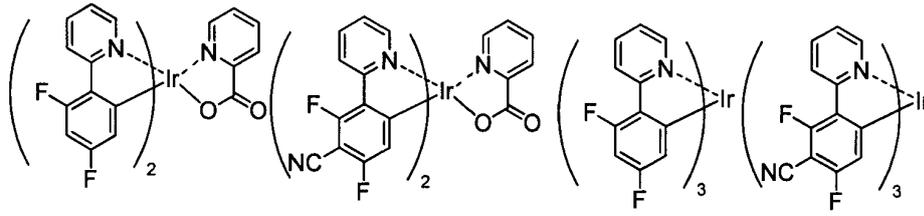
一般式(E-1)で表される化合物の好ましい具体例を以下に列挙するが、以下に限定

50

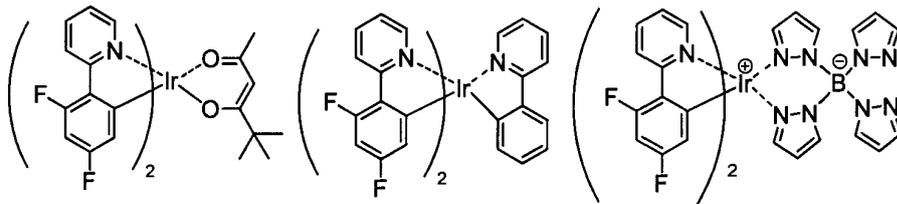
されるものではない。

【 0 1 2 1 】

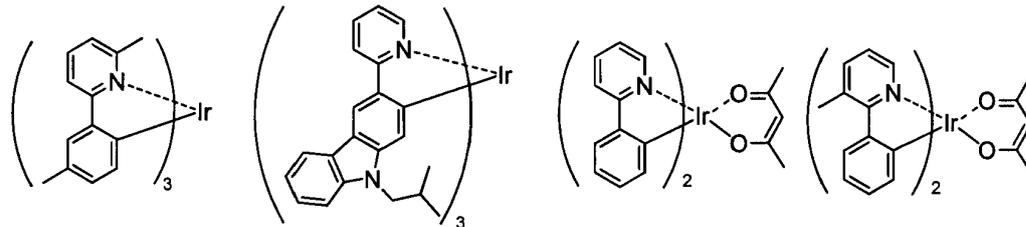
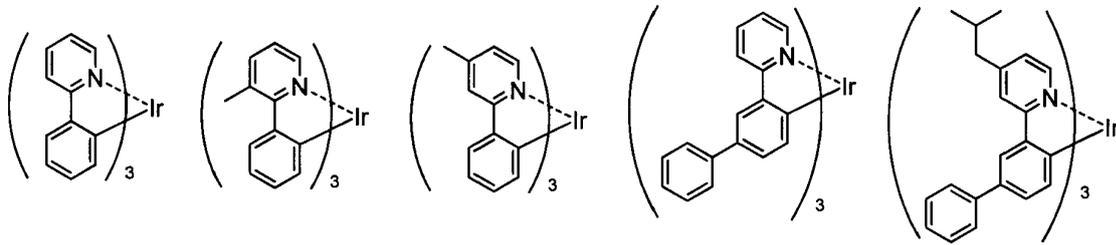
【 化 2 0 】



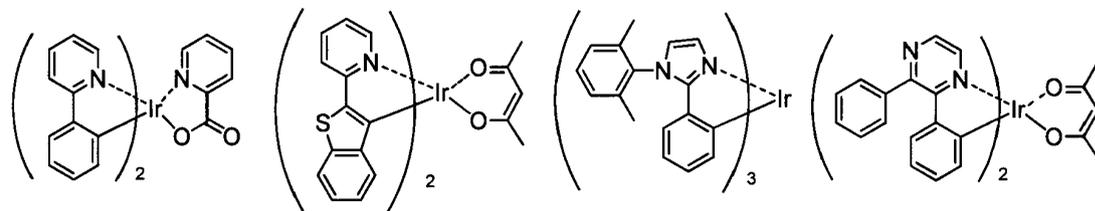
10



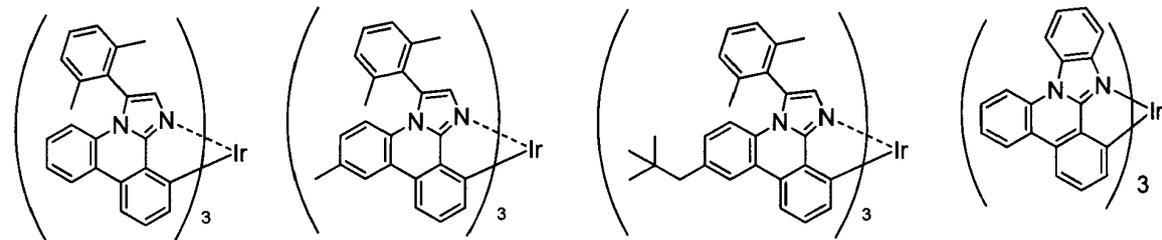
20



30

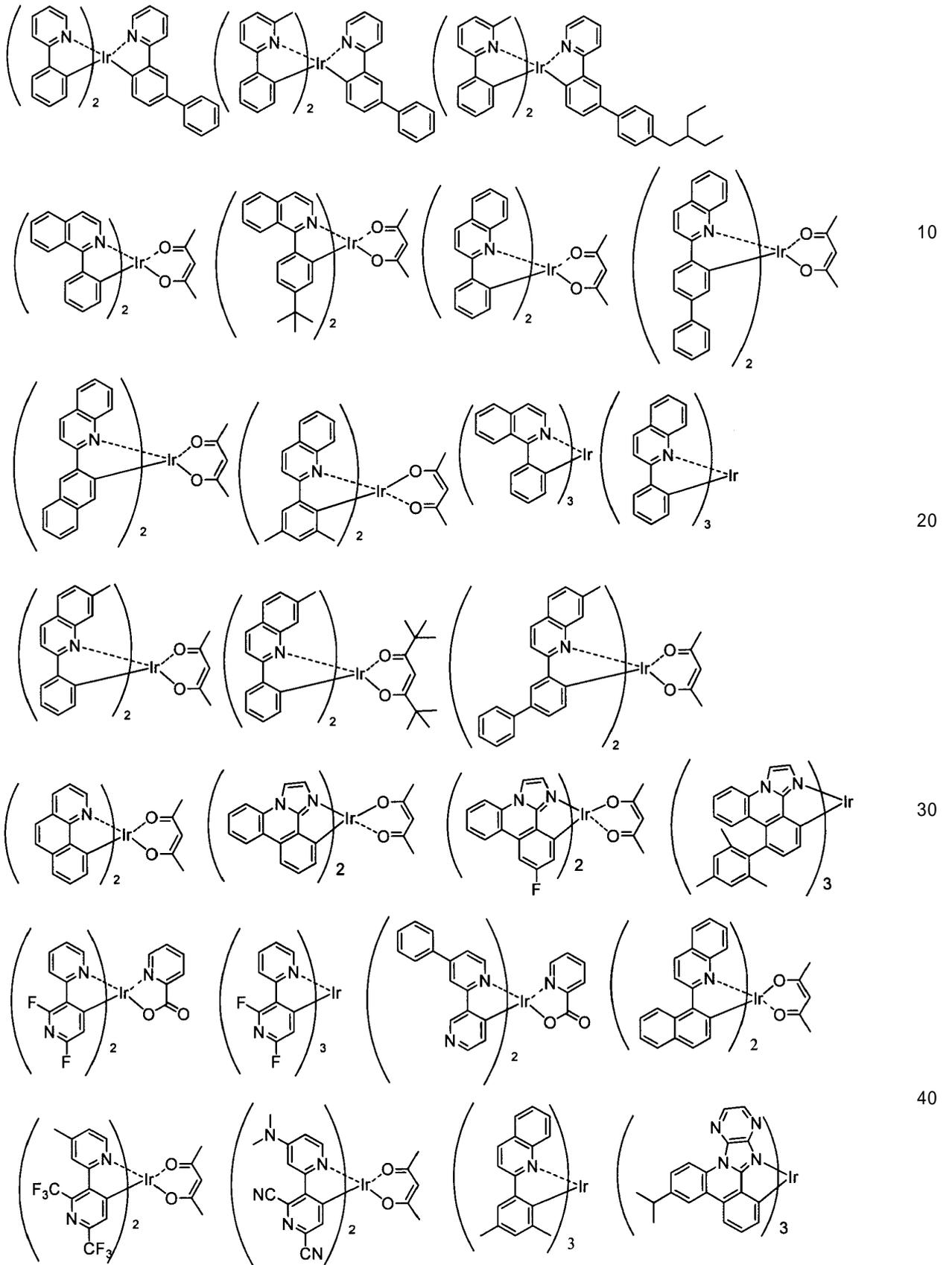


40



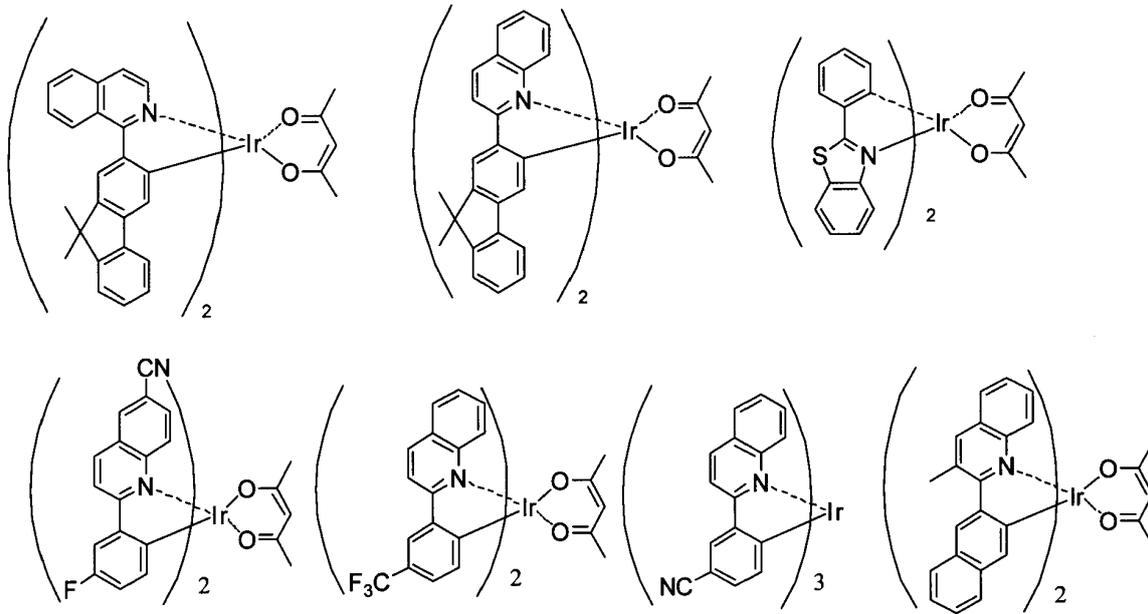
【 0 1 2 2 】

【化 2 1】



【 0 1 2 3 】

## 【化22】



10

## 【0124】

上記一般式(E-1)で表される化合物として例示した化合物は、特開2009-99783号公報に記載の方法や、米国特許7279232号等に記載の種々の方法で合成できる。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。

20

## 【0125】

一般式(E-1)で表される化合物は、発光層に含有されることが好ましいが、その用途が限定されることはなく、更に有機層内のいずれの層に更に含有されてもよい。

## 【0126】

発光層中の一般式(E-1)で表される化合物は、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%~50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%~50質量%含有されることが好ましく、2質量%~40質量%含有されることがより好ましい。

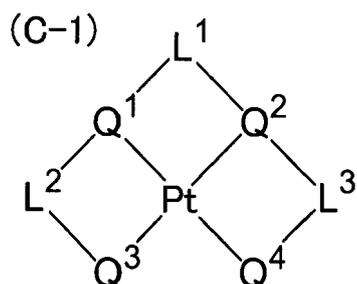
30

## 【0127】

燐光発光材料として用いることができる白金錯体として好ましくは、下記一般式(C-1)で表される白金錯体である。

## 【0128】

## 【化23】



40

## 【0129】

(式中、 $Q^1$ 、 $Q^2$ 、 $Q^3$ 及び $Q^4$ はそれぞれ独立にPtに配位する配位子を表す。 $L^1$ 、 $L^2$ 及び $L^3$ はそれぞれ独立に単結合又は二価の連結基を表す。)

## 【0130】

50

一般式(C-1)について説明する。Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>はそれぞれ独立にPtに配位する配位子を表す。この時、Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>とPtの結合は、共有結合、イオン結合、配位結合などいずれであっても良い。Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>中のPtに結合する原子としては、炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、リン原子が好ましく、Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>中のPtに結合する原子の内、少なくとも一つが炭素原子であることが好ましく、二つが炭素原子であることがより好ましく、二つが炭素原子で、二つが窒素原子であることが特に好ましい。

炭素原子でPtに結合するQ<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>としては、アニオン性の配位子でも中性の配位子でもよく、アニオン性の配位子としてはビニル配位子、芳香族炭化水素環配位子(例えばベンゼン配位子、ナフタレン配位子、アントラセン配位子、フェナントレン配位子など)、ヘテロ環配位子(例えばフラン配位子、チオフェン配位子、ピリジン配位子、ピラジン配位子、ピリミジン配位子、ピリダジン配位子、トリアジン配位子、チアゾール配位子、オキサゾール配位子、ピロール配位子、イミダゾール配位子、ピラゾール配位子、トリアゾール配位子及び、それらを含む縮環体(例えばキノリン配位子、ベンゾチアゾール配位子など))が挙げられる。中性の配位子としてはカルベン配位子が挙げられる。

窒素原子でPtに結合するQ<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>としては、中性の配位子でもアニオン性の配位子でもよく、中性の配位子としては含窒素芳香族ヘテロ環配位子(ピリジン配位子、ピラジン配位子、ピリミジン配位子、ピリダジン配位子、トリアジン配位子、イミダゾール配位子、ピラゾール配位子、トリアゾール配位子、オキサゾール配位子、チアゾール配位子及びそれらを含む縮環体(例えばキノリン配位子、ベンゾイミダゾール配位子など))、アミン配位子、ニトリル配位子、イミン配位子が挙げられる。アニオン性の配位子としては、アミノ配位子、イミノ配位子、含窒素芳香族ヘテロ環配位子(ピロール配位子、イミダゾール配位子、トリアゾール配位子及びそれらを含む縮環体(例えばインドール配位子、ベンゾイミダゾール配位子など))が挙げられる。

酸素原子でPtに結合するQ<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>としては、中性の配位子でもアニオン性の配位子でもよく、中性の配位子としてはエーテル配位子、ケトン配位子、エステル配位子、アミド配位子、含酸素ヘテロ環配位子(フラン配位子、オキサゾール配位子及びそれらを含む縮環体(ベンゾオキサゾール配位子など))が挙げられる。アニオン性の配位子としては、アルコキシ配位子、アリーロキシ配位子、ヘテロアリーロキシ配位子、アシルオキシ配位子、シリルオキシ配位子などが挙げられる。

硫黄原子でPtに結合するQ<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>としては、中性の配位子でもアニオン性の配位子でもよく、中性の配位子としてはチオエーテル配位子、チオケトン配位子、チオエステル配位子、チオアミド配位子、含硫黄ヘテロ環配位子(チオフェン配位子、チアゾール配位子及びそれらを含む縮環体(ベンゾチアゾール配位子など))が挙げられる。アニオン性の配位子としては、アルキルメルカプト配位子、アリールメルカプト配位子、ヘテロアリールメルカプト配位子などが挙げられる。

リン原子でPtに結合するQ<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>としては、中性の配位子でもアニオン性の配位子でもよく、中性の配位子としてはホスフィン配位子、リン酸エステル配位子、亜リン酸エステル配位子、含リンヘテロ環配位子(ホスフィニン配位子など)が挙げられ、アニオン性の配位子としては、ホスフィノ配位子、ホスフィニル配位子、ホスホリル配位子などが挙げられる。

Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>で表される基は、置換基を有していてもよく、置換基としては前記置換基群Aとして挙げたものが適宜適用できる。また置換基同士が連結していても良い(Q<sup>3</sup>とQ<sup>4</sup>が連結した場合、環状四座配位子のPt錯体になる)。

#### 【0131】

Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>、Q<sup>3</sup>及びQ<sup>4</sup>で表される基として好ましくは、炭素原子でPtに結合する芳香族炭化水素環配位子、炭素原子でPtに結合する芳香族ヘテロ環配位子、窒素原子でPtに結合する含窒素芳香族ヘテロ環配位子、アシルオキシ配位子、アルキルオキシ配位子、アリーロキシ配位子、ヘテロアリーロキシ配位子、シリルオキシ配位子であり、

10

20

30

40

50

より好ましくは、炭素原子でPtに結合する芳香族炭化水素環配位子、炭素原子でPtに結合する芳香族ヘテロ環配位子、窒素原子でPtに結合する含窒素芳香族ヘテロ環配位子、アシルオキシ配位子、アリールオキシ配位子であり、更に好ましくは炭素原子でPtに結合する芳香族炭化水素環配位子、炭素原子でPtに結合する芳香族ヘテロ環配位子、窒素原子でPtに結合する含窒素芳香族ヘテロ環配位子、アシルオキシ配位子である。

【0132】

$L^1$ 、 $L^2$  及び  $L^3$  は、単結合又は二価の連結基を表す。 $L^1$ 、 $L^2$  及び  $L^3$  で表される二価の連結基としては、アルキレン基（メチレン、エチレン、プロピレンなど）、アリーレン基（フェニレン、ナフタレンジイル）、ヘテロアリーレン基（ピリジンジイル、チオフェンジイルなど）、イミノ基（ $-NR_L-$ ）（フェニルイミノ基など）、オキシ基（ $-O-$ ）、チオ基（ $-S-$ ）、ホスフィニデン基（ $-PR_L-$ ）（フェニルホスフィニデン基など）、シリレン基（ $-SiR_L R_{L'}$ ）（ジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基など）、又はこれらを組み合わせたものが挙げられる。ここで、 $R_L$  及び  $R_{L'}$  は各々独立してアルキル基又はアリール基を表す。これらの連結基は、更に置換基を有していてもよい。

10

錯体の安定性及び発光量子収率の観点から、 $L^1$ 、 $L^2$  及び  $L^3$  として好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、イミノ基、オキシ基、チオ基、シリレン基であり、より好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基、イミノ基であり、更に好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基であり、更に好ましくは、単結合、メチレン基、フェニレン基であり、更に好ましくは単結合、ジ置換のメチレン基であり、更に好ましくは単結合、ジメチルメチレン基、ジエチルメチレン基、ジイソブチルメチレン基、ジベンジルメチレン基、エチルメチルメチレン基、メチルプロピルメチレン基、イソブチルメチルメチレン基、ジフェニルメチレン基、メチルフェニルメチレン基、シクロヘキサンジイル基、シクロペンタンジイル基、フルオレンジイル基、フルオロメチルメチレン基である。

20

$L^1$  は特に好ましくはジメチルメチレン基、ジフェニルメチレン基、シクロヘキサンジイル基であり、最も好ましくはジメチルメチレン基である。

$L^2$  及び  $L^3$  として最も好ましくは単結合である。

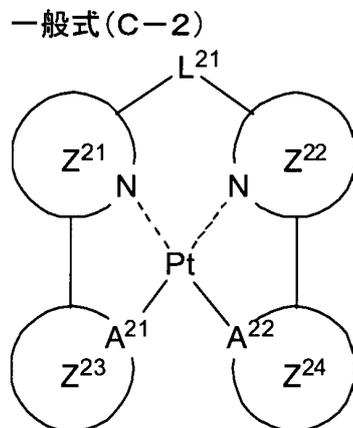
【0133】

一般式(C-1)で表される白金錯体のうち、より好ましくは下記一般式(C-2)で表される白金錯体である。

30

【0134】

【化24】



40

【0135】

(式中、 $L^{21}$  は単結合又は二価の連結基を表す。 $A^{21}$ 、 $A^{22}$  はそれぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 $Z^{21}$ 、 $Z^{22}$  はそれぞれ独立に含窒素芳香族ヘテロ環を表す。 $Z^{23}$ 、 $Z^{24}$  はそれぞれ独立にベンゼン環又は芳香族ヘテロ環を表す。)

【0136】

50

一般式 (C - 2) について説明する。L<sup>2 1</sup> は、前記一般式 (C - 1) 中の L<sup>1</sup> と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0137】

A<sup>2 1</sup>、A<sup>2 2</sup> はそれぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。A<sup>2 1</sup>、A<sup>2 2</sup> の内、少なくとも一方は炭素原子であることが好ましく、A<sup>2 1</sup>、A<sup>2 2</sup> が共に炭素原子であることが、錯体の安定性の観点及び錯体の発光量子収率の観点から好ましい。

【0138】

Z<sup>2 1</sup>、Z<sup>2 2</sup> は、それぞれ独立に含窒素芳香族ヘテロ環を表す。Z<sup>2 1</sup>、Z<sup>2 2</sup> で表される含窒素芳香族ヘテロ環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環などが挙げられる。錯体の安定性、発光波長制御及び発光量子収率の観点から、Z<sup>2 1</sup>、Z<sup>2 2</sup> で表される環として好ましくは、ピリジン環、ピラジン環、イミダゾール環、ピラゾール環であり、より好ましくはピリジン環、イミダゾール環、ピラゾール環であり、更に好ましくはピリジン環、ピラゾール環であり、特に好ましくはピリジン環である。

【0139】

前記 Z<sup>2 1</sup>、Z<sup>2 2</sup> で表される含窒素芳香族ヘテロ環は置換基を有していてもよく、炭素原子上の置換基としては前記置換基群 A が、窒素原子上の置換基としては前記置換基群 B が適用できる。炭素原子上の置換基として好ましくはアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子である。置換基は発光波長や電位の制御のために適宜選択されるが、短波長化させる場合には電子供与性基、フッ素原子、芳香環基が好ましく、例えばアルキル基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、フッ素原子、アリール基、芳香族ヘテロ環基などが選択される。また長波長化させる場合には電子求引性基が好ましく、例えばシアノ基、ペルフルオロアルキル基などが選択される。窒素原子上の置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、錯体の安定性の観点からアルキル基、アリール基が好ましい。前記置換基同士は連結して縮合環を形成していてもよく、形成される環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピラゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。

【0140】

Z<sup>2 3</sup>、Z<sup>2 4</sup> は、それぞれ独立にベンゼン環又は芳香族ヘテロ環を表す。Z<sup>2 3</sup>、Z<sup>2 4</sup> で表される含窒素芳香族ヘテロ環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピリダジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。錯体の安定性、発光波長制御及び発光量子収率の観点から Z<sup>2 3</sup>、Z<sup>2 4</sup> で表される環として好ましくは、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、チオフェン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラゾール環であり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環である。

【0141】

前記 Z<sup>2 3</sup>、Z<sup>2 4</sup> で表されるベンゼン環、含窒素芳香族ヘテロ環は置換基を有していてもよく、炭素原子上の置換基としては前記置換基群 A が、窒素原子上の置換基としては前記置換基群 B が適用できる。炭素上の置換基として好ましくはアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子である。置換基は発光波長や電位の制御のために適宜選択されるが、長波長化させる場合には電子供与性基、芳香環基が好ましく、例えばアルキル基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、アリール基、芳香族ヘテロ環基などが選択される。また短波長化させる場合には電子求引性基が好ましく、例えばフッ素原子、シアノ基、ペルフルオロアルキル基などが選択される。窒素原子上の置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、錯体の安定性の観点からア

10

20

30

40

50

ルキル基、アリール基が好ましい。前記置換基同士は連結して縮合環を形成していてもよく、形成される環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピラゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。

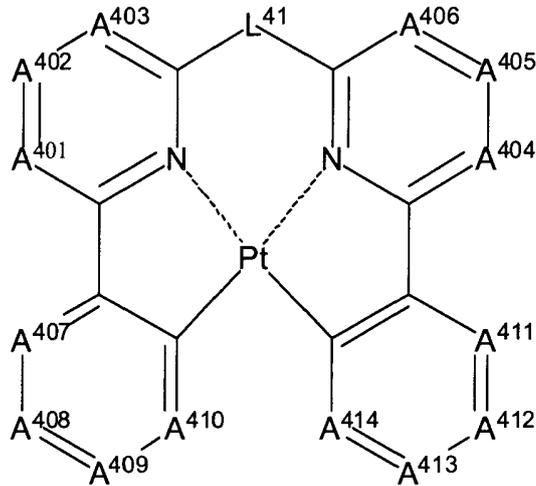
【0142】

一般式(C-2)で表される白金錯体のうち、より好ましい態様の一つは下記一般式(C-4)で表される白金錯体である。

【0143】

【化25】

一般式(C-4)



10

20

【0144】

(一般式(C-4)中、 $A^{401} \sim A^{414}$ はそれぞれ独立にC-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。 $L^{41}$ は単結合又は二価の連結基を表す。)

【0145】

一般式(C-4)について説明する。

$A^{401} \sim A^{414}$ はそれぞれ独立にC-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。

30

Rで表される置換基としては、前記置換基群Aとして挙げたものが適用できる。

$A^{401} \sim A^{406}$ として好ましくはC-Rであり、R同士が互いに連結して環を形成していても良い。 $A^{401} \sim A^{406}$ がC-Rである場合に、 $A^{402}$ 、 $A^{405}$ のRとして好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、フッ素原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、フッ素原子であり、特に好ましくは水素原子、フッ素原子である。 $A^{401}$ 、 $A^{403}$ 、 $A^{404}$ 、 $A^{406}$ のRとして好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、フッ素原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、フッ素原子

40

$L^{41}$ は、前記一般式(C-1)中の $L^1$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0146】

$A^{407} \sim A^{414}$ としては、 $A^{407} \sim A^{410}$ と $A^{411} \sim A^{414}$ のそれぞれにおいて、N(窒素原子)の数は、0~2が好ましく、0~1がより好ましい。発光波長を短波長側にシフトさせる場合、 $A^{408}$ 及び $A^{412}$ のいずれかが窒素原子であることが好ましく、 $A^{408}$ と $A^{412}$ が共に窒素原子であることが更に好ましい。

$A^{407} \sim A^{414}$ がC-Rを表す場合に、 $A^{408}$ 、 $A^{412}$ のRとして好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基

50

、アリアルオキシ基、フッ素原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、ペルフルオロアルキル基、アルキル基、アリアル基、フッ素原子、シアノ基であり、特に好ましくは、水素原子、フェニル基、ペルフルオロアルキル基、シアノ基である。A<sup>407</sup>、A<sup>409</sup>、A<sup>411</sup>、A<sup>413</sup>のRとして好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリアル基、アミノ基、アルコキシ基、アリアルオキシ基、フッ素原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、ペルフルオロアルキル基、フッ素原子、シアノ基であり、特に好ましくは水素原子、フェニル基、フッ素原子である。A<sup>410</sup>、A<sup>414</sup>のRとして好ましくは水素原子、フッ素原子であり、より好ましくは水素原子である。A<sup>407</sup>～A<sup>409</sup>、A<sup>411</sup>～A<sup>413</sup>のいずれかがC-Rを表す場合に、R同士が互いに連結して環を形成していても良い。

10

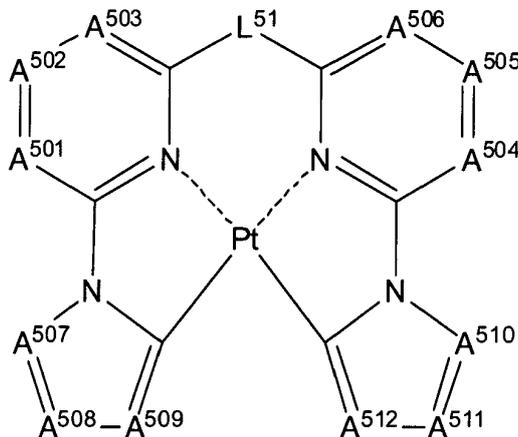
## 【0147】

一般式(C-2)で表される白金錯体のうち、より好ましい態様の一つは下記一般式(C-5)で表される白金錯体である。

## 【0148】

## 【化26】

## (C-5)



20

30

## 【0149】

(一般式(C-5)中、A<sup>501</sup>～A<sup>512</sup>は、それぞれ独立に、C-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。L<sup>51</sup>は単結合又は二価の連結基を表す。)

## 【0150】

一般式(C-5)について説明する。A<sup>501</sup>～A<sup>506</sup>及びL<sup>51</sup>は、前記一般式(C-4)におけるA<sup>401</sup>～A<sup>406</sup>及びL<sup>41</sup>と同義であり、好ましい範囲も同様である。

## 【0151】

A<sup>507</sup>、A<sup>508</sup>及びA<sup>509</sup>とA<sup>510</sup>、A<sup>511</sup>及びA<sup>512</sup>は、及びそれぞれ独立に、C-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。Rで表される置換基としては、前記置換基群Aとして挙げたものが適用できる。A<sup>507</sup>、A<sup>508</sup>及びA<sup>509</sup>とA<sup>510</sup>、A<sup>511</sup>及びA<sup>512</sup>がC-Rである場合に、Rとして好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリアル基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリアルアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、フッ素原子であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリアル基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。A<sup>507</sup>、A<sup>508</sup>及びA<sup>509</sup>とA<sup>510</sup>、A<sup>511</sup>及びA<sup>512</sup>のうち少なくとも一つは窒素原子であることが好ましく、特にA<sup>510</sup>又はA<sup>507</sup>が窒素原子であることが好ましい。

40

50

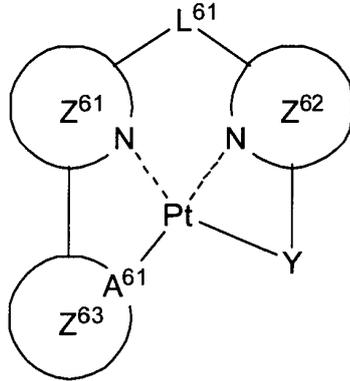
【 0 1 5 2 】

一般式 ( C - 1 ) で表される白金錯体のうち、より好ましい別の態様は下記一般式 ( C - 6 ) で表される白金錯体である。

【 0 1 5 3 】

【 化 2 7 】

一般式 ( C - 6 )



10

【 0 1 5 4 】

( 式中、 $L^{61}$  は単結合又は二価の連結基を表す。 $A^{61}$  はそれぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 $Z^{61}$ 、 $Z^{62}$  はそれぞれ独立に含窒素芳香族ヘテロ環を表す。 $Z^{63}$  はそれぞれ独立にベンゼン環又は芳香族ヘテロ環を表す。 $Y$  は  $Pt$  に結合するアニオン性の非環状配位子である。 )

20

【 0 1 5 5 】

一般式 ( C - 6 ) について説明する。 $L^{61}$  は、前記一般式 ( C - 1 ) 中の  $L^1$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【 0 1 5 6 】

$A^{61}$  は炭素原子又は窒素原子を表す。錯体の安定性の観点及び錯体の発光量子収率の観点から  $A^{61}$  は炭素原子であることが好ましい。

【 0 1 5 7 】

$Z^{61}$ 、 $Z^{62}$  は、それぞれ前記一般式 ( C - 2 ) における  $Z^{21}$ 、 $Z^{22}$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Z^{63}$  は、前記一般式 ( C - 2 ) における  $Z^{23}$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

30

【 0 1 5 8 】

$Y$  は  $Pt$  に結合するアニオン性の非環状配位子である。非環状配位子とは  $Pt$  に結合する原子が配位子の状態では環を形成していないものである。 $Y$  中の  $Pt$  に結合する原子としては、炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子が好ましく、窒素原子、酸素原子がより好ましく、酸素原子が最も好ましい。

炭素原子で  $Pt$  に結合する  $Y$  としてはビニル配位子が挙げられる。窒素原子で  $Pt$  に結合する  $Y$  としてはアミノ配位子、イミノ配位子が挙げられる。酸素原子で  $Pt$  に結合する  $Y$  としては、アルコキシ配位子、アリールオキシ配位子、ヘテロアリールオキシ配位子、アシルオキシ配位子、シリルオキシ配位子、カルボキシル配位子、リン酸配位子、スルホン酸配位子などが挙げられる。硫黄原子で  $Pt$  に結合する  $Y$  としては、アルキルメルカプト配位子、アリールメルカプト配位子、ヘテロアリールメルカプト配位子、チオカルボン酸配位子などが挙げられる。

40

$Y$  で表される配位子は、置換基を有していてもよく、置換基としては前記置換基群  $A$  として挙げたものが適宜適用できる。また置換基同士が連結していても良い。

【 0 1 5 9 】

$Y$  で表される配位子として好ましくは酸素原子で  $Pt$  に結合する配位子であり、より好ましくはアシルオキシ配位子、アルキルオキシ配位子、アリールオキシ配位子、ヘテロアリールオキシ配位子、シリルオキシ配位子であり、更に好ましくはアシルオキシ配位子で

50

ある。

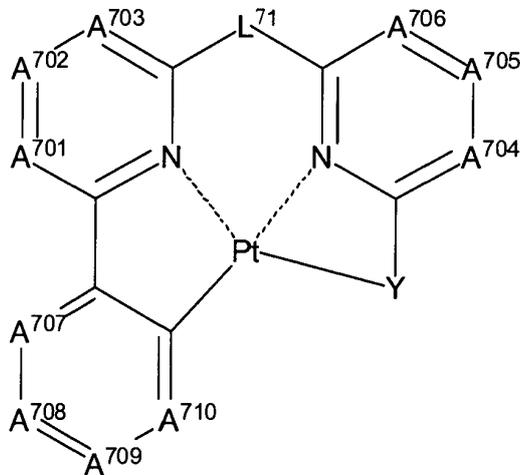
【0160】

一般式(C-6)で表される白金錯体のうち、より好ましい態様の一つは下記一般式(C-7)で表される白金錯体である。

【0161】

【化28】

一般式(C-7)



10

20

【0162】

(式中、 $A^{701} \sim A^{710}$ は、それぞれ独立に、C-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。 $L^{71}$ は単結合又は二価の連結基を表す。YはPtに結合するアニオン性の非環状配位子である。)

【0163】

一般式(C-7)について説明する。 $L^{71}$ は、前記一般式(C-6)中の $L^{61}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $A^{701} \sim A^{710}$ は一般式(C-4)における $A^{401} \sim A^{410}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。Yは一般式(C-6)におけるYと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

30

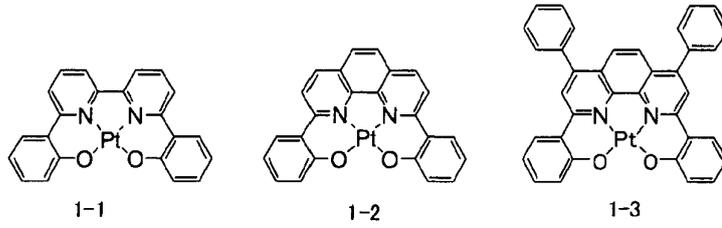
【0164】

一般式(C-1)で表される白金錯体として具体的には、特開2005-310733号公報の〔0143〕～〔0152〕、〔0157〕～〔0158〕、〔0162〕～〔0168〕に記載の化合物、特開2006-256999号公報の〔0065〕～〔0083〕に記載の化合物、特開2006-93542号公報の〔0065〕～〔0090〕に記載の化合物、特開2007-73891号公報の〔0063〕～〔0071〕に記載の化合物、特開2007-324309号公報の〔0079〕～〔0083〕に記載の化合物、特開2006-93542号公報の〔0065〕～〔0090〕に記載の化合物、特開2007-96255号公報の〔0055〕～〔0071〕に記載の化合物、特開2006-313796号公報の〔0043〕～〔0046〕が挙げられ、その他以下に例示する白金錯体が挙げられる。

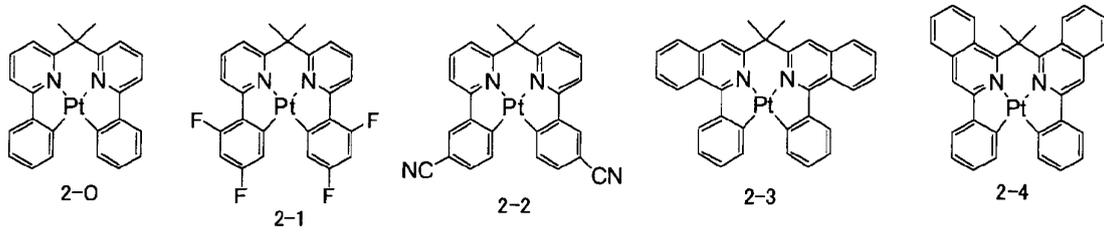
40

【0165】

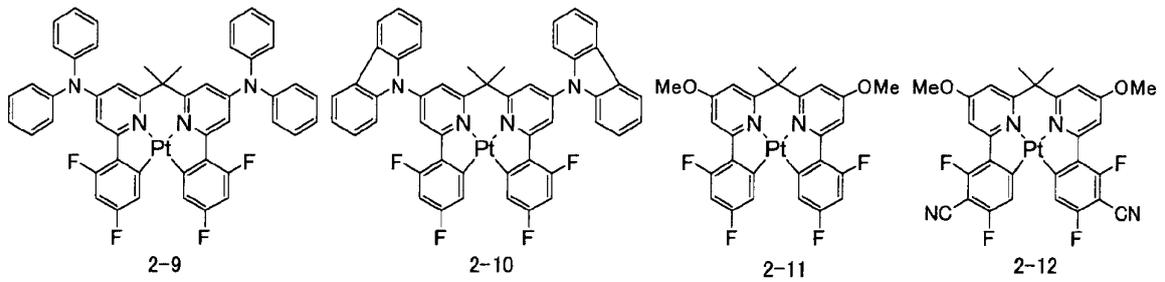
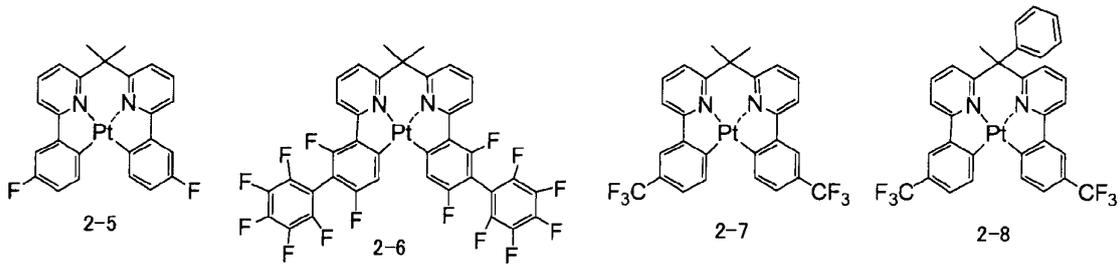
【化 2 9】



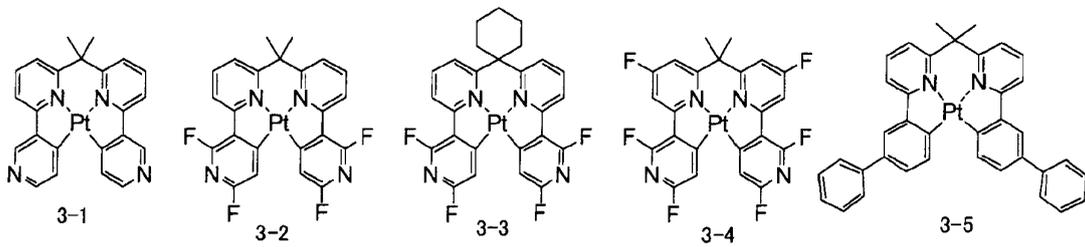
10



20



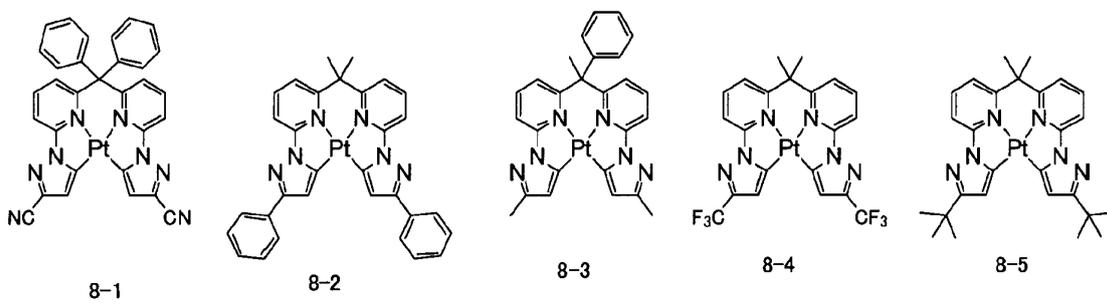
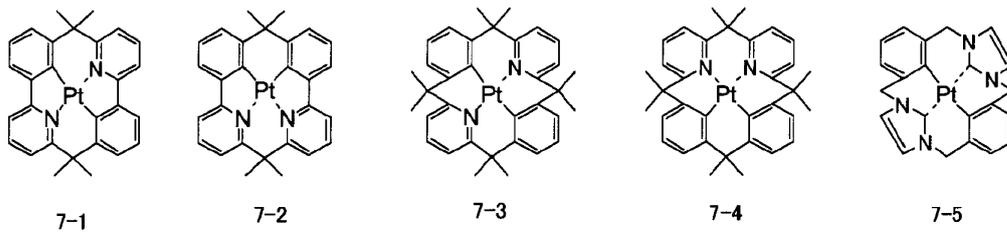
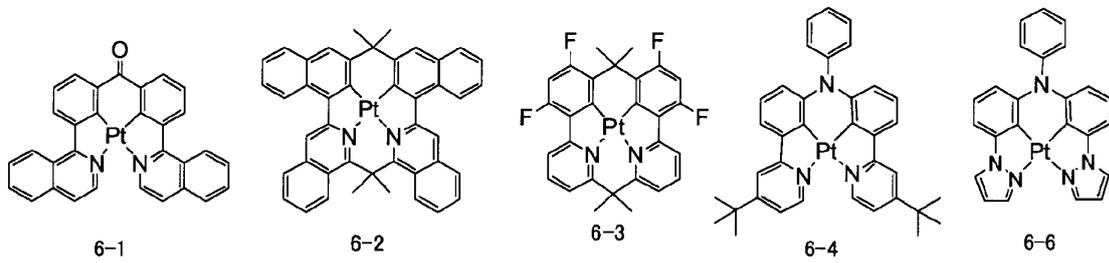
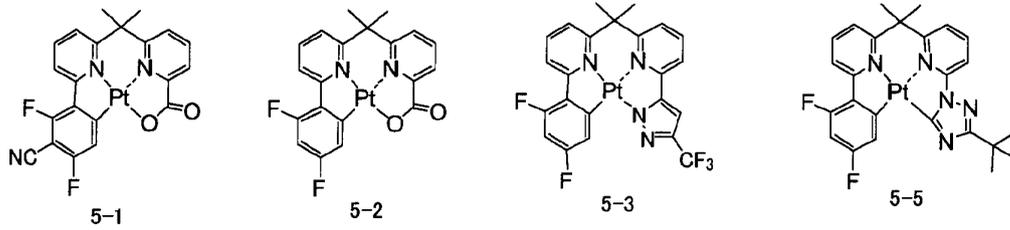
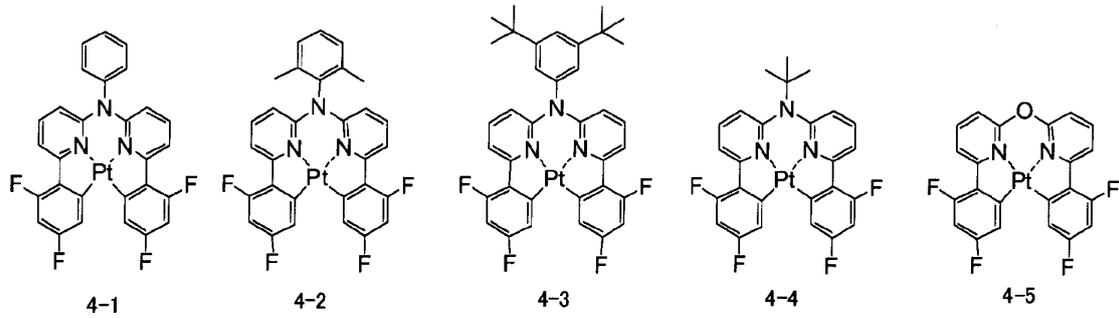
30



40

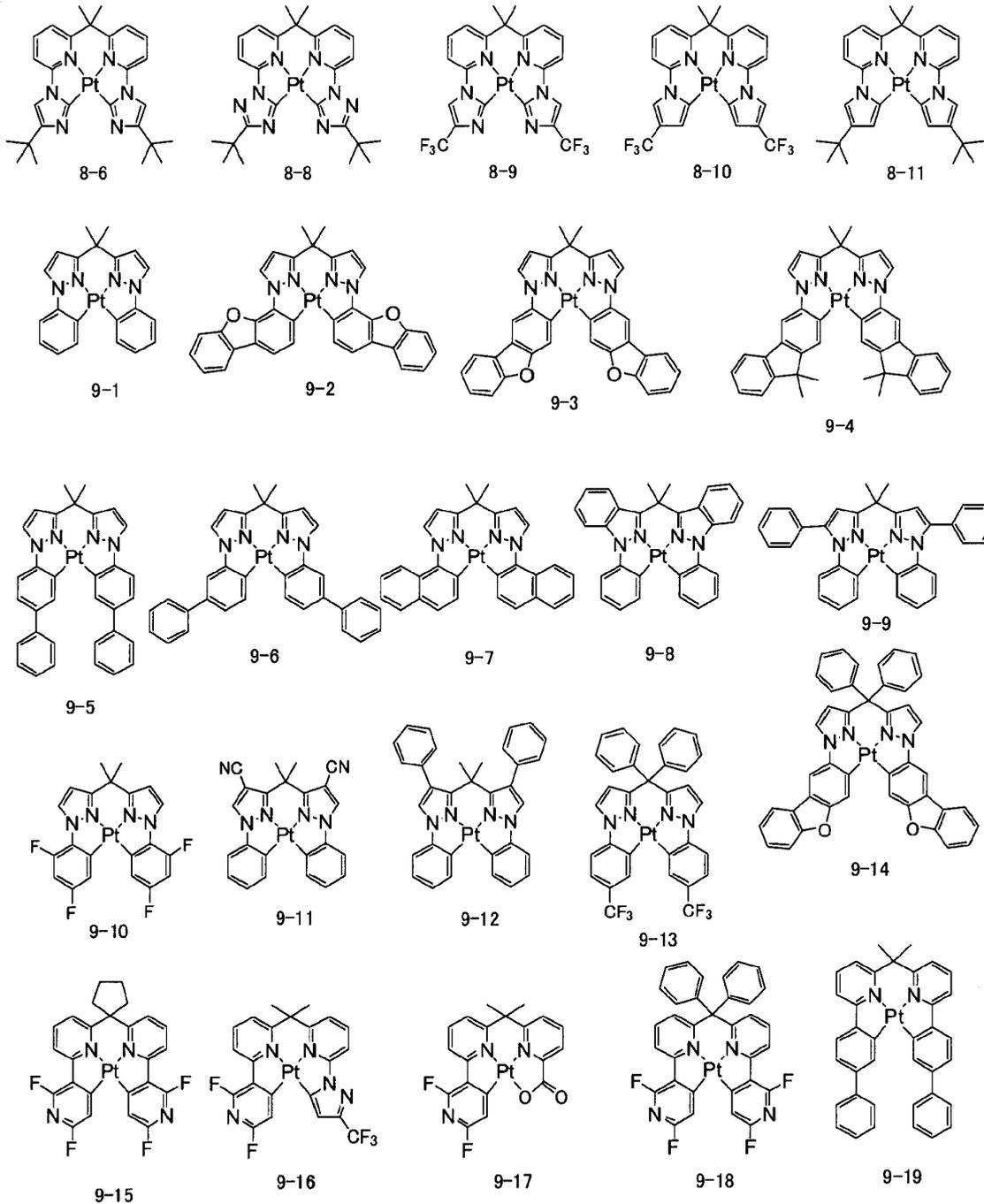
【 0 1 6 6 】

【化 3 0】



【 0 1 6 7 】

## 【化 3 1】



10

20

30

## 【0168】

一般式(C-1)で表される白金錯体化合物は、例えば、*Journal of Organic Chemistry* 53, 786, (1988)、G. R. Newkome et al.) の、789頁、左段53行~右段7行に記載の方法、790頁、左段18行~38行に記載の方法、790頁、右段19行~30行に記載の方法及びその組み合わせ、*Chemische Berichte* 113, 2749 (1980)、H. Lexyほか) の、2752頁、26行~35行に記載の方法等、種々の手法で合成できる。

40

例えば、配位子、又はその解離体と金属化合物を溶媒(例えば、ハロゲン系溶媒、アルコール系溶媒、エーテル系溶媒、エステル系溶媒、ケトン系溶媒、ニトリル系溶媒、アミド系溶媒、スルホン系溶媒、スルホキサイド系溶媒、水などが挙げられる)の存在下、若しくは、溶媒非存在下、塩基の存在下(無機、有機の種々の塩基、例えば、ナトリウムメ

50

トキシド、*t*-ブトキシカリウム、トリエチルアミン、炭酸カリウムなどが挙げられる)、若しくは、塩基非存在下、室温以下、若しくは加熱し(通常の加熱以外にもマイクロウェーブで加熱する手法も有効である)得ることができる。

【0169】

本発明の発光層における一般式(C-1)で表される化合物の含有量は発光層中1~30質量%であることが好ましく、3~25質量%であることがより好ましく、5~20質量%であることが更に好ましい。

【0170】

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。

10

【0171】

本発明の素子における発光層は、発光材料のみで構成されていてもよく、ホスト材料と発光材料の混合層とした構成でもよい。発光材料の種類は一種類であっても二種類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。ホスト材料は一種類であっても二種類以上であってもよく、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よい。

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く、それぞれの層に同じ発光材料やホスト材料を含んでもよいし、層毎に異なる材料を含んでもよい。発光層が複数

20

【0172】

(ホスト材料)

ホスト材料とは、発光層において主に電荷の注入、輸送を担う化合物であり、また、それ自体は実質的に発光しない化合物のことである。ここで「実質的に発光しない」とは、該実質的に発光しない化合物からの発光量が好ましくは素子全体での全発光量の5%以下であり、より好ましくは3%以下であり、更に好ましくは1%以下であることを言う。

ホスト材料としては、一般式(1)又は(2)で表される化合物を用いることができる。

【0173】

その他の本発明に用いることのできるホスト材料としては、例えば、以下の化合物を挙げることができる。

30

ピロール、インドール、カルバゾール、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、フラン、ベンゾフラン、ジベンゾフラン、チオフェン、ベンゾチオフェン、ジベンゾチオフェン、ポリアリーールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、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、オキサジアゾール、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體(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。

40

【0174】

本発明において、併用することができるホスト材料としては、正孔輸送性ホスト材料であっても、電子輸送性ホスト材料であってもよい。

50

本発明において、前記発光層が、ホスト材料を含むことが好ましい。前記ホスト材料は一般式(1)又は(2)で表される化合物、又は下記一般式(4-1)若しくは(4-2)で表される化合物であることが好ましい。

本発明においては、一般式(1)又は(2)で表される化合物を発光層と陰極の間の有機層(好ましくは電子輸送層)に含有する場合、発光層に一般式(4-1)又は(4-2)で表される化合物の少なくとも1つ以上を含むことが好ましい。

【0175】

本発明において、一般式(4-1)又は(4-2)で表される化合物が発光層に含有される場合、一般式(4-1)又は(4-2)で表される化合物は発光層中に30~100質量%含まれることが好ましく、40~100質量%含まれることが好ましく、50~100質量%含まれることが特に好ましい。また、一般式(4-1)又は(4-2)で表される化合物を、複数の有機層に用いる場合はそれぞれの層において、上記の範囲で含有することが好ましい。

【0176】

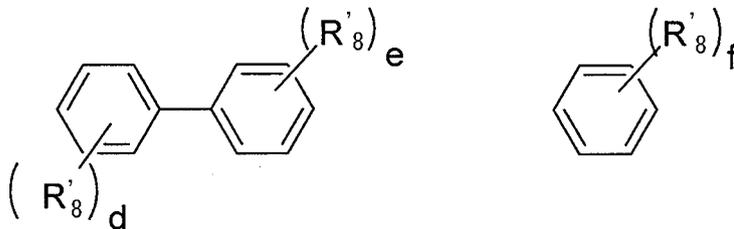
一般式(4-1)又は(4-2)で表される化合物は、いずれかの有機層に、一種類のみを含有していてもよく、複数の一般式(4-1)又は(4-2)で表される化合物を任意の割合で組み合わせて含有していてもよい。

【0177】

【化32】

一般式(4-1)

一般式(4-2)

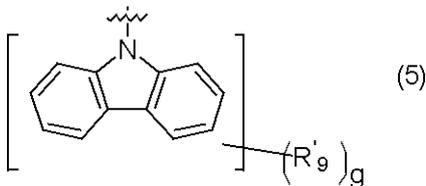


【0178】

(一般式(4-1)及び(4-2)中、d、eは0~3の整数を表し、少なくとも一方は1以上である。fは1~4の整数を表す。R'8はそれぞれ独立に置換基を表し、d、e、fが2以上である場合R'8は互いに異なっていても同じでも良い。また、R'8の少なくとも1つは下記一般式(5)で表されるカルバゾール基を表す。)

【0179】

【化33】



【0180】

(一般式(5)中、R'9はそれぞれ独立に置換基を表す。gは0~8の整数を表す。)

【0181】

R'8はそれぞれ独立に置換基を表し、具体的にはハロゲン原子、アルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、アルキル基、アリール基、ヘテロ環基、又は一般式(5)で表される置換基である。R'8が一般式(5)を表さない場合、好ましくは炭素数10以下のアルキル基、炭素数10以下の置換又は無置換のアリール基であり、更に好ましくは炭素数6以下のアルキル基である。

10

20

30

40

50

## 【0182】

R' <sub>g</sub> はそれぞれ独立に置換基を表し、具体的にはハロゲン原子、アルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、アルキル基、アリール基、ヘテロ環基であり、好ましくは炭素数10以下のアルキル基、炭素数10以下の置換又は無置換のアリール基であり、更に好ましくは炭素数6以下のアルキル基である。

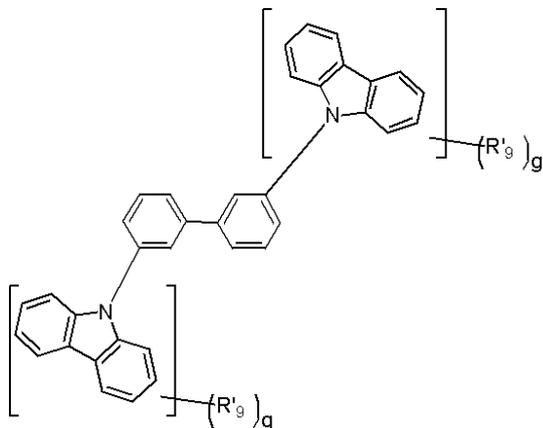
g は0～8の整数を表し、電荷輸送を担うカルバゾール骨格を遮蔽しすぎない観点から0～4が好ましい。また、合成容易さの観点から、カルバゾールが置換基を有する場合、窒素原子に対し、対称になるように置換基を持つものが好ましい。

## 【0183】

一般式(4-1)において、電荷輸送能を保持する観点で、dとeの和は2以上であることが好ましい。また、他方のベンゼン環に対しR' <sub>g</sub> がメタで置換することが好ましい。その理由として、オルト置換では隣り合う置換基の立体障害が大きいため結合が開裂しやすく、耐久性が低くなる。また、パラ置換では分子形状が剛直な棒状へと近づき、結晶化しやすくなるため高温条件での素子劣化が起こりやすくなる。具体的には以下の構造で表される化合物であることが好ましい。以下に示す構造中のR' <sub>g</sub> 及びgは、前記一般式(5)におけるR' <sub>g</sub> 及びgと同義である。

## 【0184】

## 【化34】

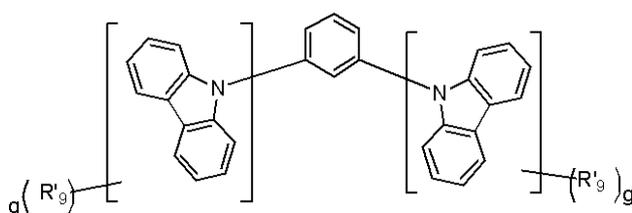


## 【0185】

一般式(4-2)において、電荷輸送能を保持する観点で、fは2以上であることが好ましい。fが2又は3の場合、同様の観点からR' <sub>g</sub> が互いにメタで置換することが好ましい。具体的には以下の構造で表される化合物であることが好ましい。以下に示す構造中のR' <sub>g</sub> 及びgは、前記一般式(5)におけるR' <sub>g</sub> 及びgと同義である。

## 【0186】

## 【化35】



## 【0187】

一般式(4-1)及び(4-2)が水素原子を有する場合、水素の同位体(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水素同位体に置き換わっていてもよく、また一部が水素同位体を含む化合物である混合物でもよい。好ましくは一般式(5)におけるR' <sub>g</sub> が重水素によって置換されたものであり、特に好ましくは以下の構造が挙げられる。

## 【0188】

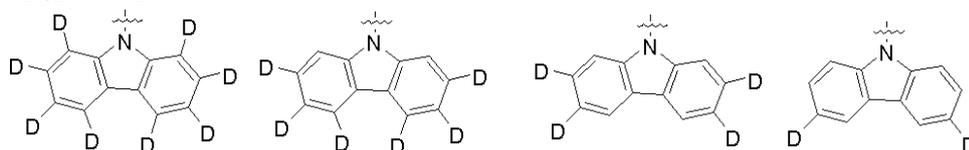
10

20

30

40

## 【化 3 6】



## 【0189】

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。

## 【0190】

一般式(4-1)及び(4-2)で表される化合物は、種々の公知の合成法を組み合わせることで合成することが可能である。最も一般的には、カルバゾール化合物に関してはアリー  
 ルヒドラジンとシクロヘキサン誘導体との縮合体のアザーコーブ転位反応の後、脱水素芳  
 香族化による合成(L. F. Tieze, Th. Eichler 著、高野、小笠原訳、精密  
 有機合成、339頁(南江堂刊))が挙げられる。また、得られたカルバゾール化合物と  
 ハロゲン化アリール化合物のパラジウム触媒を用いるカップリング反応に関してはテトラ  
 ヘドロン・レターズ39巻617頁(1998年)、同39巻2367頁(1998年)  
 及び同40巻6393頁(1999年)等に記載の方法が挙げられる。反応温度、反応時  
 間については特に限定されることはなく、前記文献に記載の条件が適用できる。また、m  
 C Pなどのいくつかの化合物は市販されているものを好適に用いることができる。

10

## 【0191】

本発明において、一般式(4-1)及び(4-2)で表される化合物は、真空蒸着プロ  
 セスで薄層を形成することが好ましいが、溶液塗布などのウェットプロセスも好適に用い  
 ることができる。化合物の分子量は、蒸着適性や溶解性の観点から2000以下であるこ  
 とが好ましく、1200以下であることがより好ましく、800以下であることが特に好  
 ましい。また蒸着適性の観点では、分子量が小さすぎると蒸気圧が小さくなり、気相から  
 固相への変化がおきず、有機層を形成することが困難となるので、250以上が好ましく  
 、300以上が特に好ましい。

20

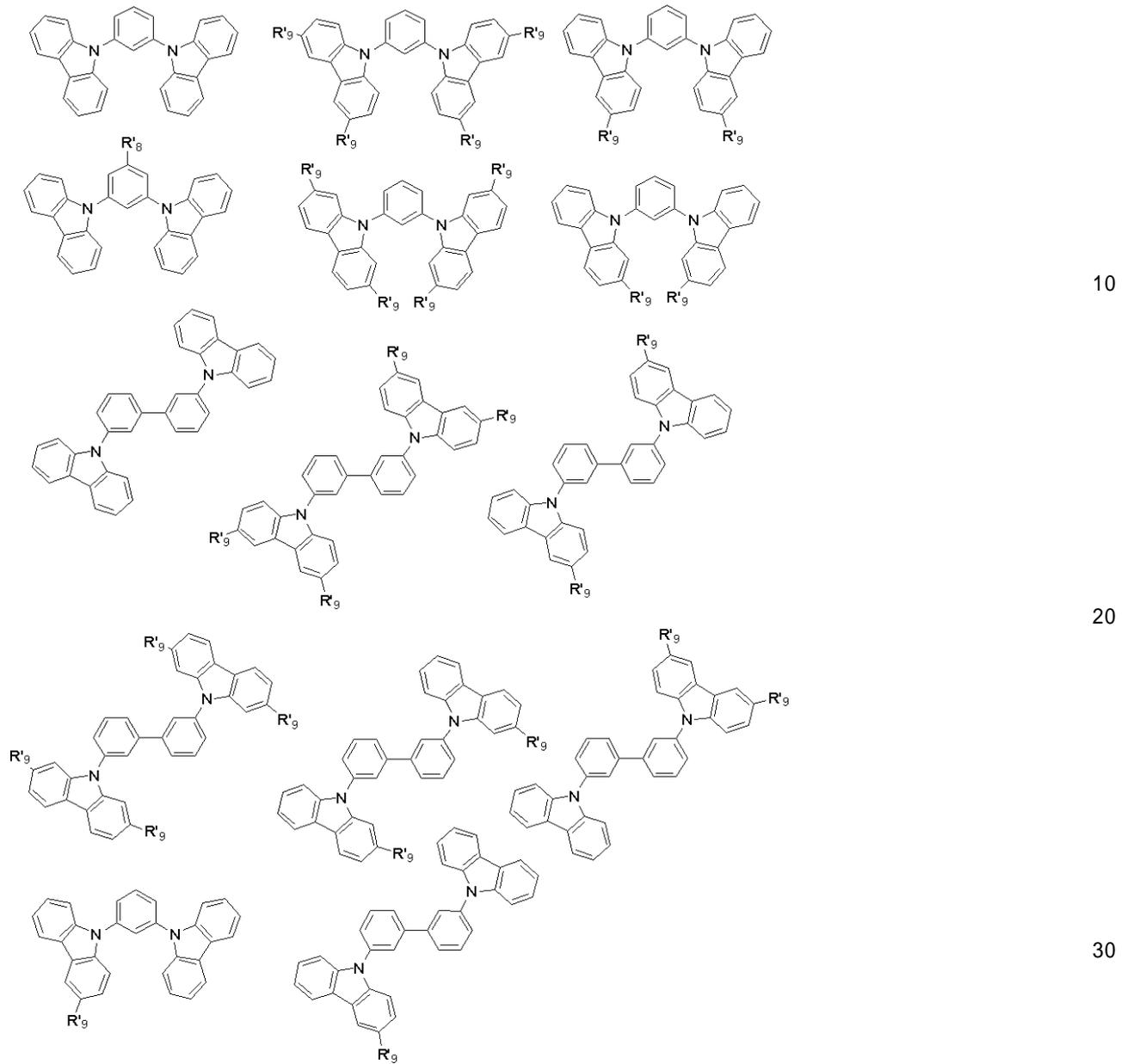
## 【0192】

一般式(4-1)及び(4-2)は、以下に示す構造若しくはその水素原子が1つ以上  
 重水素原子で置換された化合物であることが好ましい。以下に示す構造中のR'<sub>8</sub>は、前  
 記一般式(4-1)及び(4-2)におけるR'<sub>8</sub>と同義であり、R'<sub>9</sub>は、前記一般式  
 (5)におけるR'<sub>9</sub>と同義である。

30

## 【0193】

## 【化 3 7】

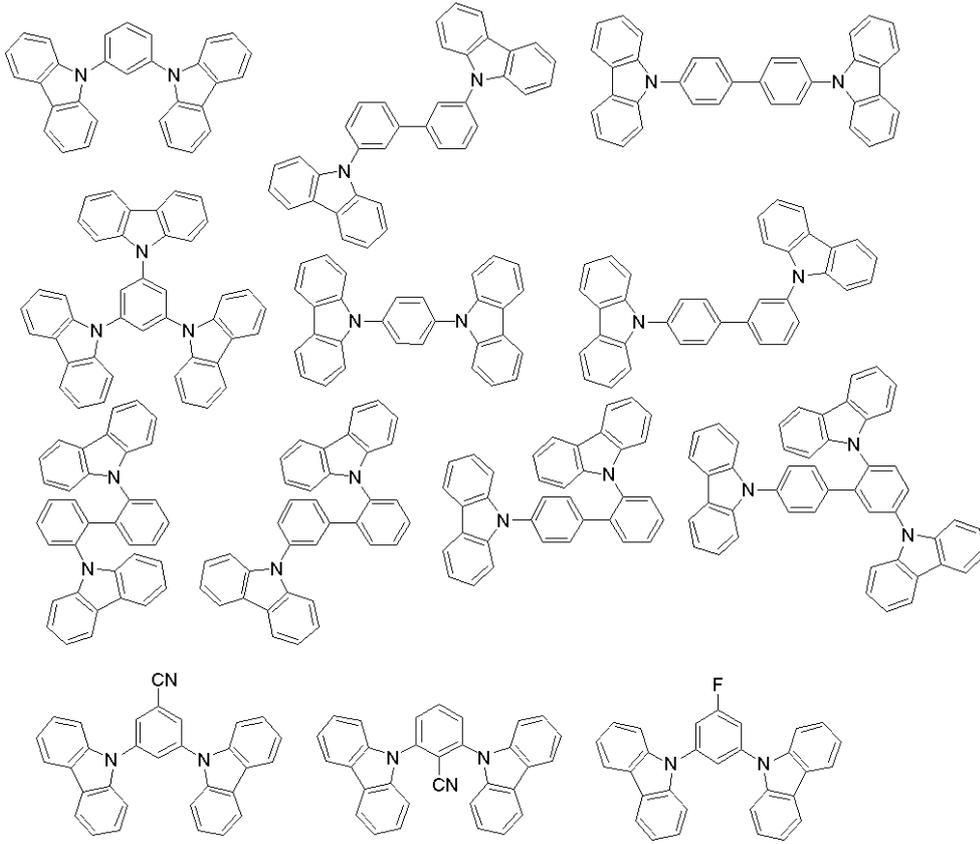


## 【 0 1 9 4 】

以下に、本発明における一般式(4-1)及び(4-2)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。

## 【 0 1 9 5 】

【化 3 8】

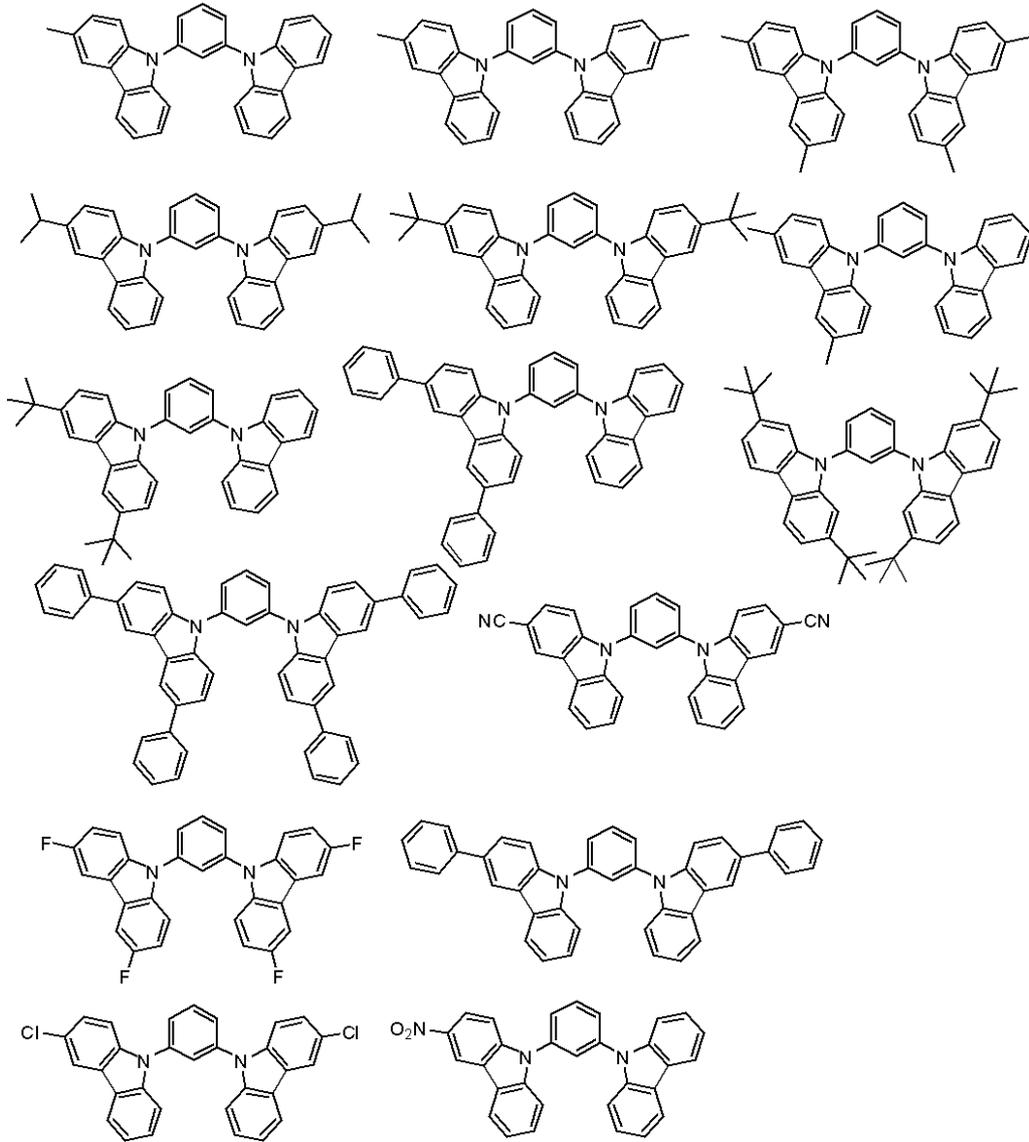


10

20

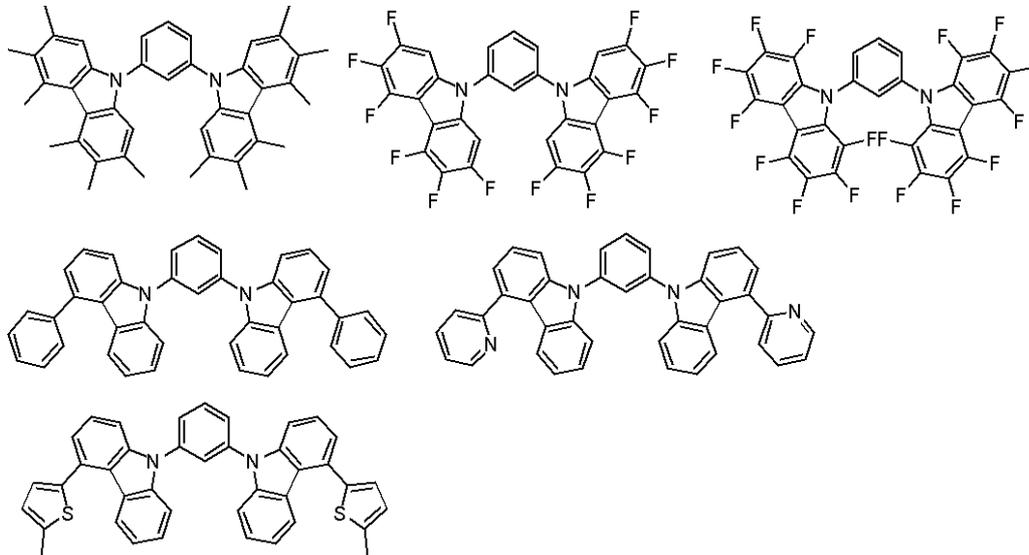
【 0 1 9 6】

【化39】



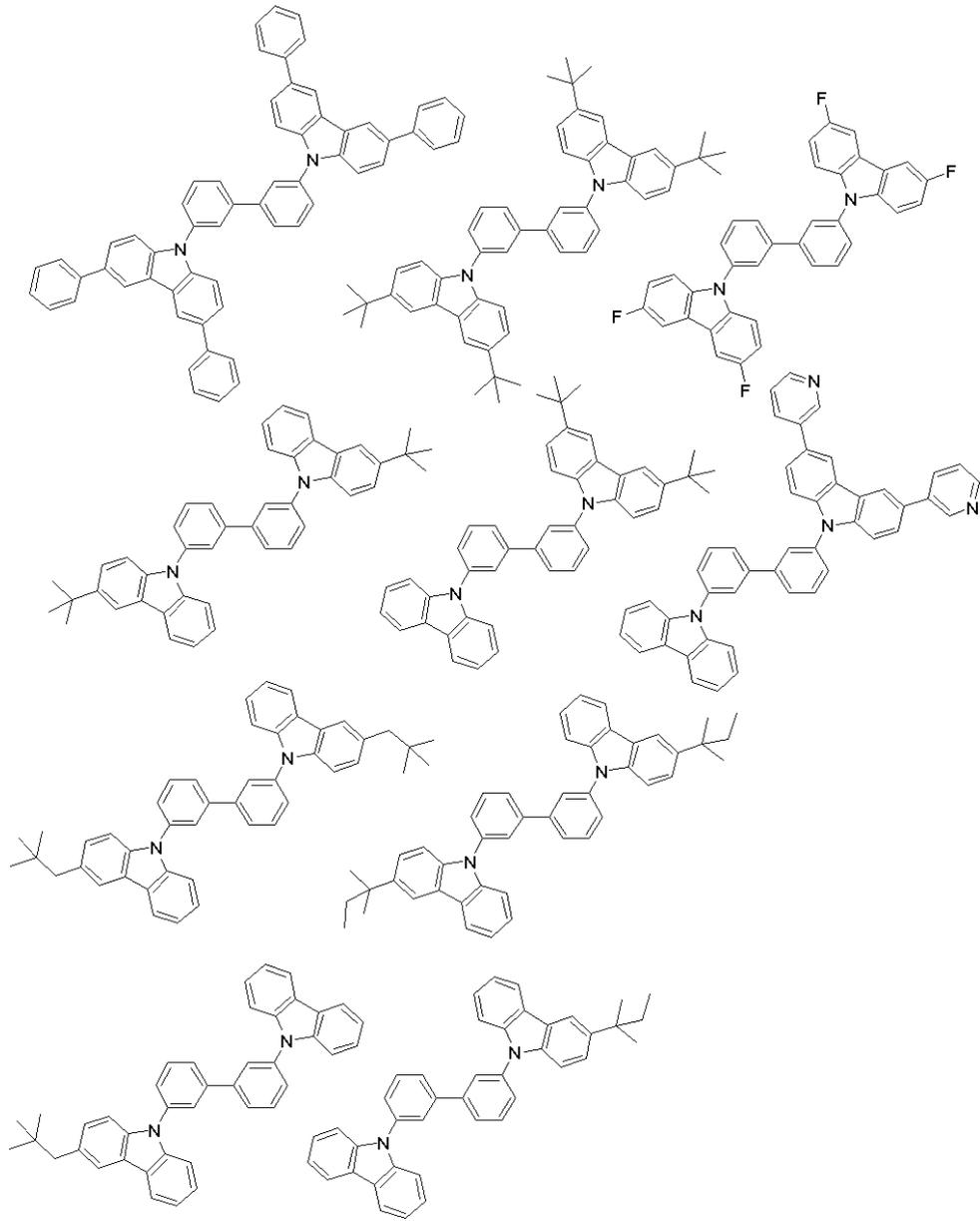
【0197】

【化40】



【0198】

【化 4 1】



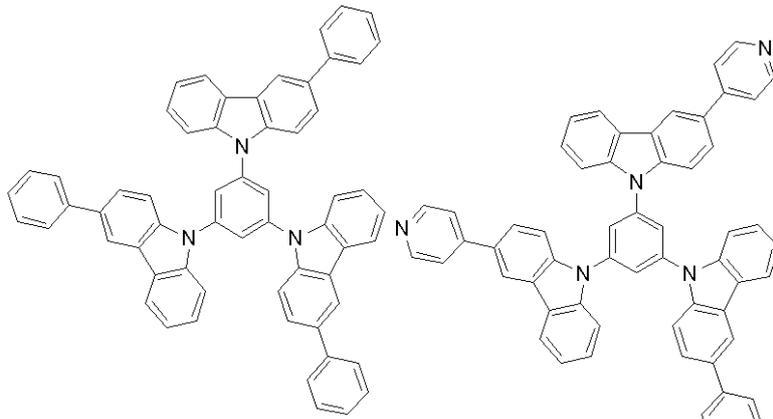
10

20

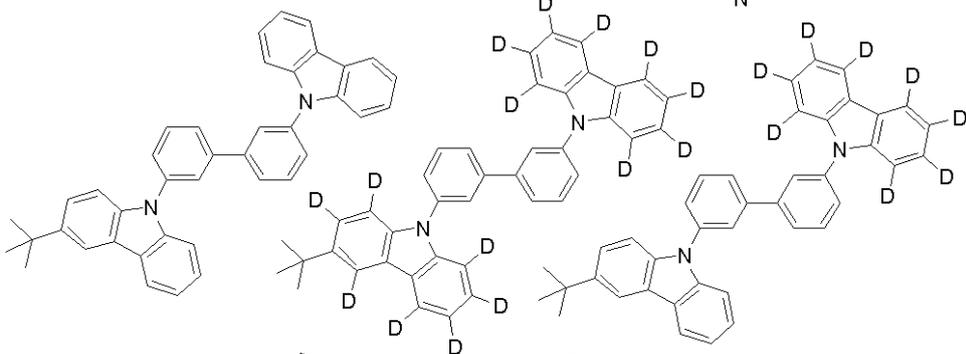
30

【 0 1 9 9 】

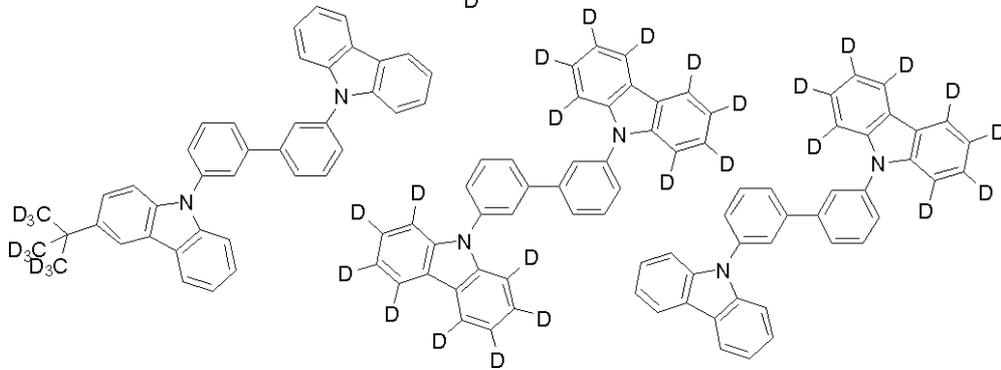
【化 4 2】



10



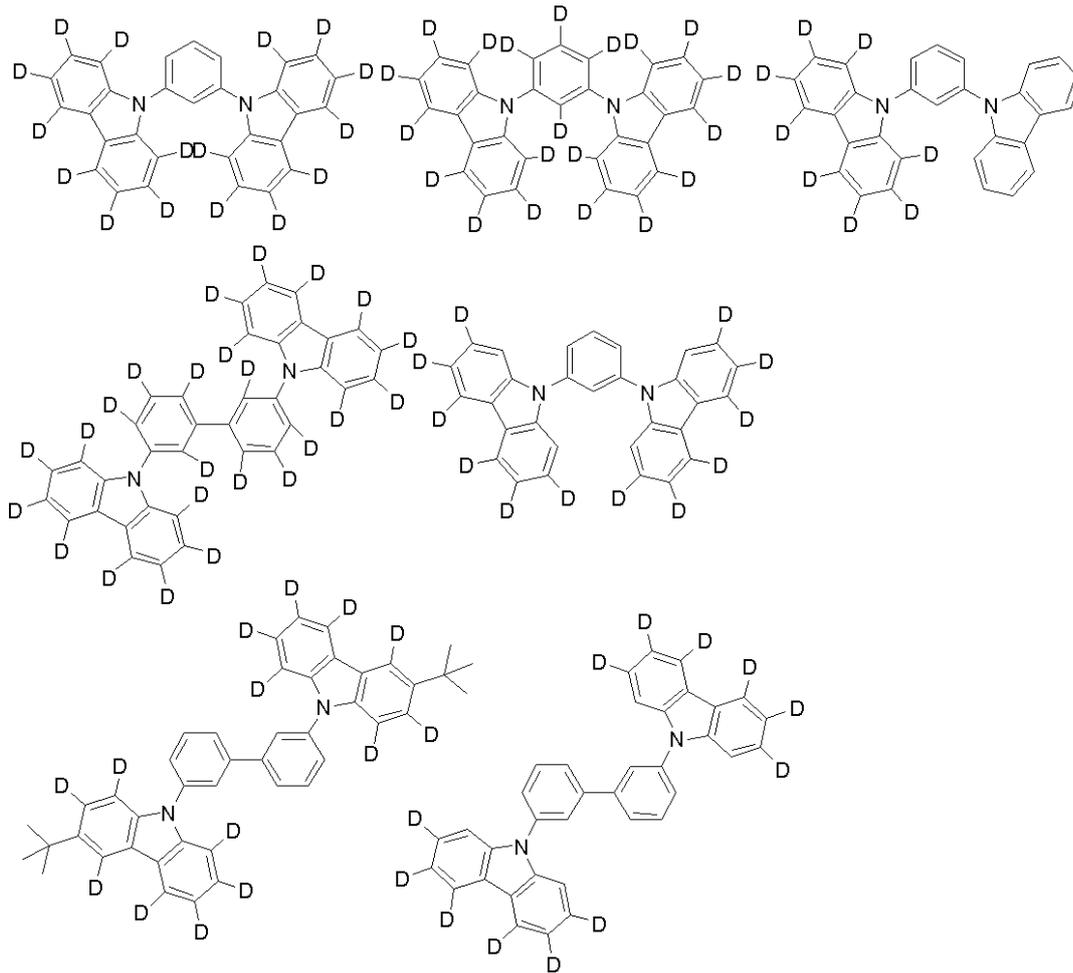
20



30

【 0 2 0 0 】

## 【化 4 3】



10

20

## 【0201】

発光層において、前記ホスト材料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。ホスト材料の  $T_1$  が燐光発光材料の  $T_1$  より  $0.1 \text{ eV}$  以上大きいことが好ま

30

しく、 $0.2 \text{ eV}$  以上大きいことがより好ましく、 $0.3 \text{ eV}$  以上大きいことが更に好ましい。ホスト材料の  $T_1$  が燐光発光材料の  $T_1$  より小さいと発光を消光してしまうためホスト材料には燐光発光材料より大きな  $T_1$  が求められる。また、ホスト材料の  $T_1$  が燐光発光材料より大きい場合でも、両者の  $T_1$  差が小さい場合には一部、燐光発光材料からホスト材料への逆エネルギー移動が起こるため、効率低下や耐久性低下の原因となる。従って、 $T_1$  が十分に大きく、化学的安定性及びキャリア注入・輸送性の高いホスト材料が求められている。

## 【0202】

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  $15 \text{ 質量}\%$  以上  $95 \text{ 質量}\%$  以下であることが好ましい。発光層に、一般式（1）又は（2）で表される化合物を含む複数種類のホスト化合物を含む場合、一般式（1）又は（2）で表される化合物は全ホスト化合物中  $50 \text{ 質量}\%$  以上  $99 \text{ 質量}\%$  以下であることが好ましい。

40

## 【0203】

〔一般式（M-1）で表される化合物〕

本発明の有機電界発光素子は、前記一对の電極が陽極を含み、前記発光層と該陽極との間に少なくとも一層の有機層を含むことが好ましく、該有機層に少なくとも一層の下記一般式（M-1）で表される化合物を含有することが好ましい。

## 【0204】

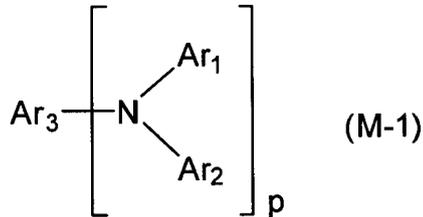
50

一般式 (M - 1) で表される化合物は発光層と陽極の間の発光層に隣接する有機層に含有されることがより好ましいが、その用途が限定されることはなく、有機層内のいずれの層に更に含有されてもよい。本発明にかかる一般式 (M - 1) で表される化合物の導入層としては、発光層、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、電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有することができる。

一般式 (M - 1) で表される化合物が含有される、発光層と陽極の間の発光層に隣接する有機層は正孔輸送層であることがより好ましい。

【 0 2 0 5 】

【 化 4 4 】



10

【 0 2 0 6 】

一般式 (M - 1) 中、 $\text{Ar}_1$  及び  $\text{Ar}_2$  はそれぞれ独立してアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールアミノ、アルキルアミノ、モルホリノ、チオモルホリノ、N、O、及び S から選択される 1 以上のヘテロ原子を含有する 5 若しくは 6 員ヘテロシクロアルキル又はシクロアルキルを表し、更に置換基 Z を有していてもよい。また  $\text{Ar}_1$  及び  $\text{Ar}_2$  は、単結合、アルキレン、若しくはアルケニレン (縮合環の有無を問わない) により互いに結合して、縮合 5 ~ 9 員環を形成してもよい。

20

$\text{Ar}_3$  はアルキル、アリール、ヘテロアリール、アリールアミノを表し、更に置換基 Z を有していてもよい。

Z はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、 $-\text{R}''$ 、 $-\text{OR}''$ 、 $-\text{N}(\text{R}'')$ <sub>2</sub>、 $-\text{SR}''$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{R}''$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{OR}''$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{R}'')$ <sub>2</sub>、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{NO}_2$ 、 $-\text{SO}_2$ 、 $-\text{SOR}''$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}''$ 、又は  $-\text{SO}_3\text{R}''$  を表し、 $\text{R}''$  はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

30

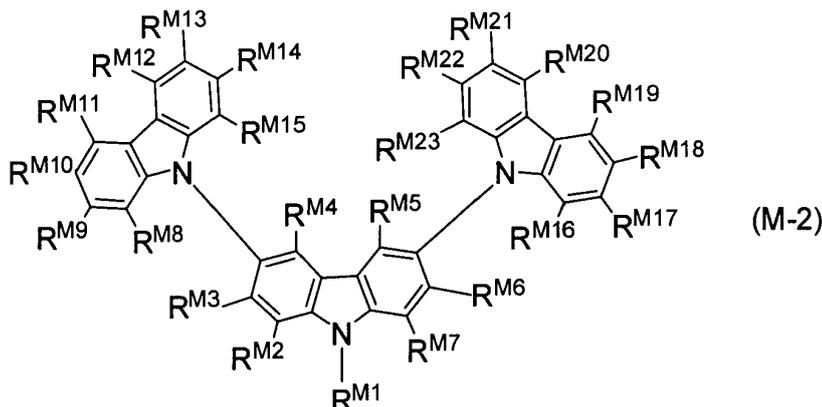
p は 1 ~ 4 の整数であり、p が 2 以上のとき  $\text{Ar}_1$  及び  $\text{Ar}_2$  はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。

【 0 2 0 7 】

一般式 (M - 1) で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式 (M - 2) で表される場合である。

【 0 2 0 8 】

【 化 4 5 】



40

50

## 【0209】

一般式 (M - 2) 中、 $R^{M1}$  はアルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表す。

$R^{M2} \sim R^{M23}$  はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アミノ基、シリル基、シアノ基、ニトロ基、又はフッ素原子を表す。

## 【0210】

一般式 (M - 2) 中、 $R^{M1}$  はアルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 8)、アリール基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30)、又はヘテロアリール基 (好ましくは炭素数 4 ~ 12) を表し、これらは前述の置換基 Z を有していても良い。 $R^{M1}$  として好ましくは、アリール基、又はヘテロアリール基であり、より好ましくはアリール基である。 $R^{M1}$  のアリール基が置換基を有する場合の好ましい置換基としては、アルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、アリール基、アルコキシ基が挙げられ、アルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、又はアリール基がより好ましく、アルキル基、シアノ基、又はアリール基が更に好ましい。 $R^{M1}$  のアリール基は、好ましくは置換基 Z を有していてもよいフェニル基であり、より好ましくはアルキル基又はシアノ基を有していてもよいフェニル基である。

10

## 【0211】

$R^{M2} \sim R^{M23}$  はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 8)、アリール基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30)、ヘテロアリール基 (好ましくは炭素数 4 ~ 12)、アルコキシ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 8)、アリールオキシ基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30)、アミノ基 (好ましくは炭素数 0 ~ 24)、シリル基 (好ましくは炭素数 0 ~ 18)、シアノ基、ニトロ基、又はフッ素原子を表し、これらは前述の置換基 Z を有していても良い。

20

## 【0212】

$R^{M2}$ 、 $R^{M7}$ 、 $R^{M8}$ 、 $R^{M15}$ 、 $R^{M16}$  及び  $R^{M23}$  として好ましくは、水素原子、又は置換基 Z を有していても良いアルキル基若しくはアリール基であり、更に好ましくは水素原子である。

$R^{M4}$ 、 $R^{M5}$ 、 $R^{M11}$ 、 $R^{M12}$ 、 $R^{M19}$  及び  $R^{M20}$  として好ましくは、水素原子、置換基 Z を有していても良いアルキル基若しくはアリール基、又はフッ素原子であり、更に好ましくは水素原子である。

30

$R^{M3}$ 、 $R^{M6}$ 、 $R^{M9}$ 、 $R^{M14}$ 、 $R^{M17}$  及び  $R^{M22}$  として好ましくは、水素原子、置換基 Z を有していても良いアルキル基若しくはアリール基、フッ素原子、又はシアノ基であり、より好ましくは水素原子、又は置換基 Z を有していても良いアルキル基であり、更に好ましくは水素原子である。

$R^{M10}$ 、 $R^{M13}$ 、 $R^{M18}$  及び  $R^{M21}$  として好ましくは、水素原子、置換基 Z を有していても良いアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基若しくはアミノ基、ニトロ基、フッ素原子、又はシアノ基であり、より好ましくは水素原子、置換基 Z を有していても良いアルキル基若しくはアリール基、ニトロ基、フッ素原子、又はシアノ基であり、更に好ましくは水素原子、又は置換基 Z を有していても良いアルキル基である。アルキル基が置換基を有する場合の置換基としては、フッ素原子が好ましく、置換基 Z を有していても良いアルキル基の炭素数は好ましくは 1 ~ 6 であり、より好ましくは 1 ~ 4 である。

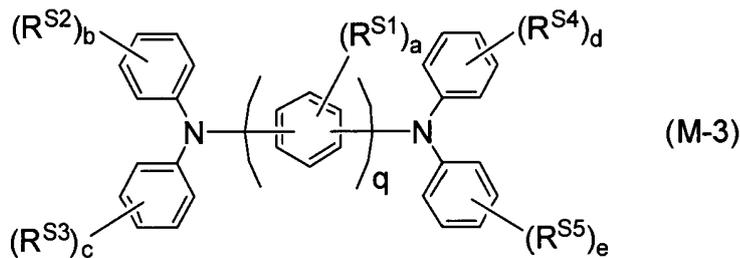
40

## 【0213】

一般式 (M - 1) で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式 (M - 3) で表される場合である。

## 【0214】

## 【化 4 6】



10

## 【 0 2 1 5 】

一般式 (M-3) 中、 $R^{S1} \sim R^{S5}$  はそれぞれ独立にアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、 $-CN$ 、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R$ 、 $-C(O)R$ 、 $-NR_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 Z を有していてもよい。R はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルハロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。複数の  $R^{S1} \sim R^{S5}$  が存在するとき、それらは互いに結合して環を形成してもよく、更に置換基 Z を有していてもよい。

a は 0 ~ 4 の整数を表し、複数の  $R^{S1}$  が存在するとき、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して環を形成してもよい。b ~ e はそれぞれ独立に 0 ~ 5 の整数を表し、それぞれ複数の  $R^{S2} \sim R^{S5}$  が存在するとき、それらは同一でも異なってもよく、任意の 2 つが結合し環を形成してもよい。

20

q は 1 ~ 5 の整数であり、q が 2 以上のとき複数の  $R^{S1}$  は同一でも異なってもよく、互いに結合して環を形成していてもよい。

## 【 0 2 1 6 】

アルキル基としては、置換基を有していてもよく、飽和であっても不飽和であってもよく、置換してもよい基としては、前述の置換基 Z を挙げるができる。 $R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるアルキル基として、好ましくは総炭素原子数 1 ~ 8 のアルキル基であり、より好ましくは総炭素原子数 1 ~ 6 のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、i-プロピル基、シクロヘキシル基、t-ブチル基等が挙げられる。

30

シクロアルキル基としては、置換基を有していてもよく、飽和であっても不飽和であってもよく、置換してもよい基としては、前述の置換基 Z を挙げることができる。 $R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるシクロアルキル基として、好ましくは環員数 4 ~ 7 のシクロアルキル基であり、より好ましくは総炭素原子数 5 ~ 6 のシクロアルキル基であり、例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

$R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるアルケニル基としては好ましくは炭素数 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、1-プロペニル、1-イソプロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。

40

$R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるアルキニル基としては、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、例えばエチニル、プロパルギル、1-プロピニル、3-ペンチニルなどが挙げられる。

## 【 0 2 1 7 】

$R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるペルフルオロアルキル基は、前述のアルキル基の全ての水素原子がフッ素原子に置き換えられたものが挙げられる。

## 【 0 2 1 8 】

$R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるアリール基としては、好ましくは、炭素数 6 から 30 の置換若しくは無置換のアリール基、例えば、フェニル基、トリル基、ピフェニル基、ターフェニル基等が挙げられる。

50

## 【0219】

$R^{S1} \sim R^{S5}$  で表されるヘテロアリール基としては、好ましくは、炭素数5～8のヘテロアリール基であり、より好ましくは、5又は6員の置換若しくは無置換のヘテロアリール基であり、例えば、ピリジル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、キノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、フリル基、ベンゾフリル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、トリアゾリル基、オキサゾリル基、ベンズオキサゾリル基、チアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、イソチアゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、チアジアゾリル基、イソオキサゾリル基、ベンズイソオキサゾリル基、ピロリジニル基、ピペリジニル基、ピペラジニル基、イミダゾリジニル基、チアゾリニル基、スルホラニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基、ピリドインドリル基などが挙げられる。好ましい例としては、ピリジル基、ピリミジニル基、イミダゾリル基、チエニル基であり、より好ましくは、ピリジル基、ピリミジニル基である。

10

## 【0220】

$R^{S1} \sim R^{S5}$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、ペルフルオロアルキル基、ジアルキルアミノ基、フルオロ基、アリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、フルオロ基、アリール基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基である。置換基Zとしては、アルキル基、アルコキシ基、フルオロ基、シアノ基、ジアルキルアミノ基が好ましく、水素原子、アルキル基がより好ましい。

20

## 【0221】

$R^{S1} \sim R^{S5}$  は任意の2つが互いに結合して縮合4～7員環を形成してもよく、該縮合4～7員環は、シクロアルキル、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4～7員環は更に置換基Zを有していてもよい。形成されるシクロアルキル、アリール、ヘテロアリールの定義及び好ましい範囲は $R^{S1} \sim R^{S5}$  で定義したシクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基と同じである。

## 【0222】

一般式(M-1)で表される化合物を、正孔輸送層中で用いる場合は、一般式(M-1)で表される化合物は50～100質量%含まれることが好ましく、80～100質量%含まれることが好ましく、95～100質量%含まれることが特に好ましい。

30

また、一般式(M-1)で表される化合物を、複数の有機層に用いる場合はそれぞれの層において、上記の範囲で含有することが好ましい。

## 【0223】

一般式(M-1)で表される化合物は、いずれかの有機層に、一種類のみを含有していてもよく、複数の一般式(M-1)で表される化合物を任意の割合で組み合わせて含有していてもよい。

## 【0224】

一般式(M-1)で表される化合物を含む正孔輸送層の厚さとしては、1nm～500nmであるのが好ましく、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。また、該正孔輸送層は発光層に接して設けられている事が好ましい。

40

該正孔輸送層は、上述した材料の一種類又は二種類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。

## 【0225】

一般式(M-1)で表される化合物の膜状態での最低励起三重項( $T_1$ )エネルギーは2.52eV(58kcal/mol)以上3.47eV(80kcal/mol)以下であることが好ましく、2.60eV(60kcal/mol)以上3.25eV(75kcal/mol)以下であることがより好ましく、2.69eV(62kcal/mol)以上3.04eV(70kcal/mol)以下であることが更に好ましい

50

## 【0226】

一般式(M-1)を構成する水素原子は、水素の同位体(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水素同位体に置き換わっていてもよく、また一部が水素同位体を含む化合物である混合物でもよい。

## 【0227】

一般式(M-1)で表される化合物は、種々の公知の合成法を組み合わせることで合成することが可能である。最も一般的には、カルバゾール化合物に関してはアリールヒドラジンとシクロヘキサン誘導体との縮合体のアザーコープ転位反応の後、脱水素芳香族化による合成(L. F. Tieze, Th. Eichler 著、高野、小笠原訳、精密有機合成、339頁(南江堂刊))が挙げられる。また、得られたカルバゾール化合物とハロゲン化アリール化合物のパラジウム触媒を用いるカップリング反応に関してはテトラヘドロン・レターズ39巻617頁(1998年)、同39巻2367頁(1998年)及び同40巻6393頁(1999年)等に記載の方法が挙げられる。反応温度、反応時間については特に限定されることはなく、前記文献に記載の条件が適用できる。

10

## 【0228】

本発明の一般式(M-1)で表される化合物は、真空蒸着プロセスで薄層を形成することが好ましいが、溶液塗布などのウェットプロセスも好適に用いることが出来る。化合物の分子量は、蒸着適性や溶解性の観点から2000以下であることが好ましく、1200以下であることがより好ましく、800以下であることが特に好ましい。また蒸着適性の観点では、分子量が小さすぎると蒸気圧が小さくなり、気相から固相への変化がおきず、有機層を形成することが困難となるので、250以上が好ましく、300以上が特に好ましい。

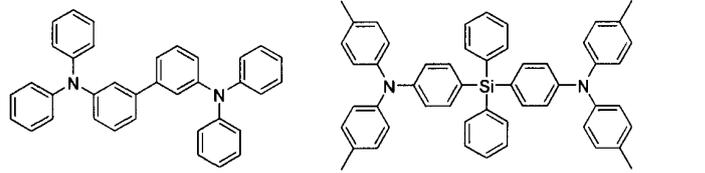
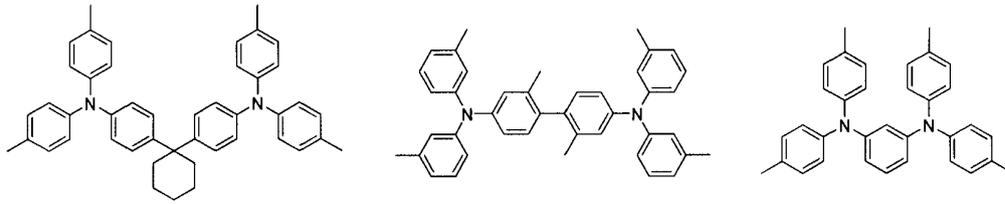
20

## 【0229】

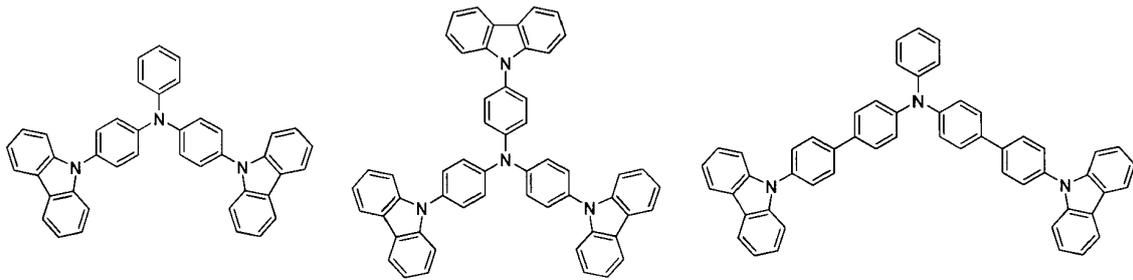
以下に、一般式(M-1)で表される化合物の具体例を示すが、本発明がこれらに限定されることはない。

## 【0230】

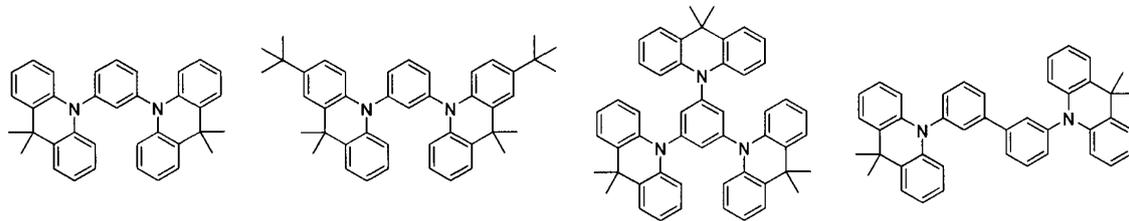
【化 4 7】



10



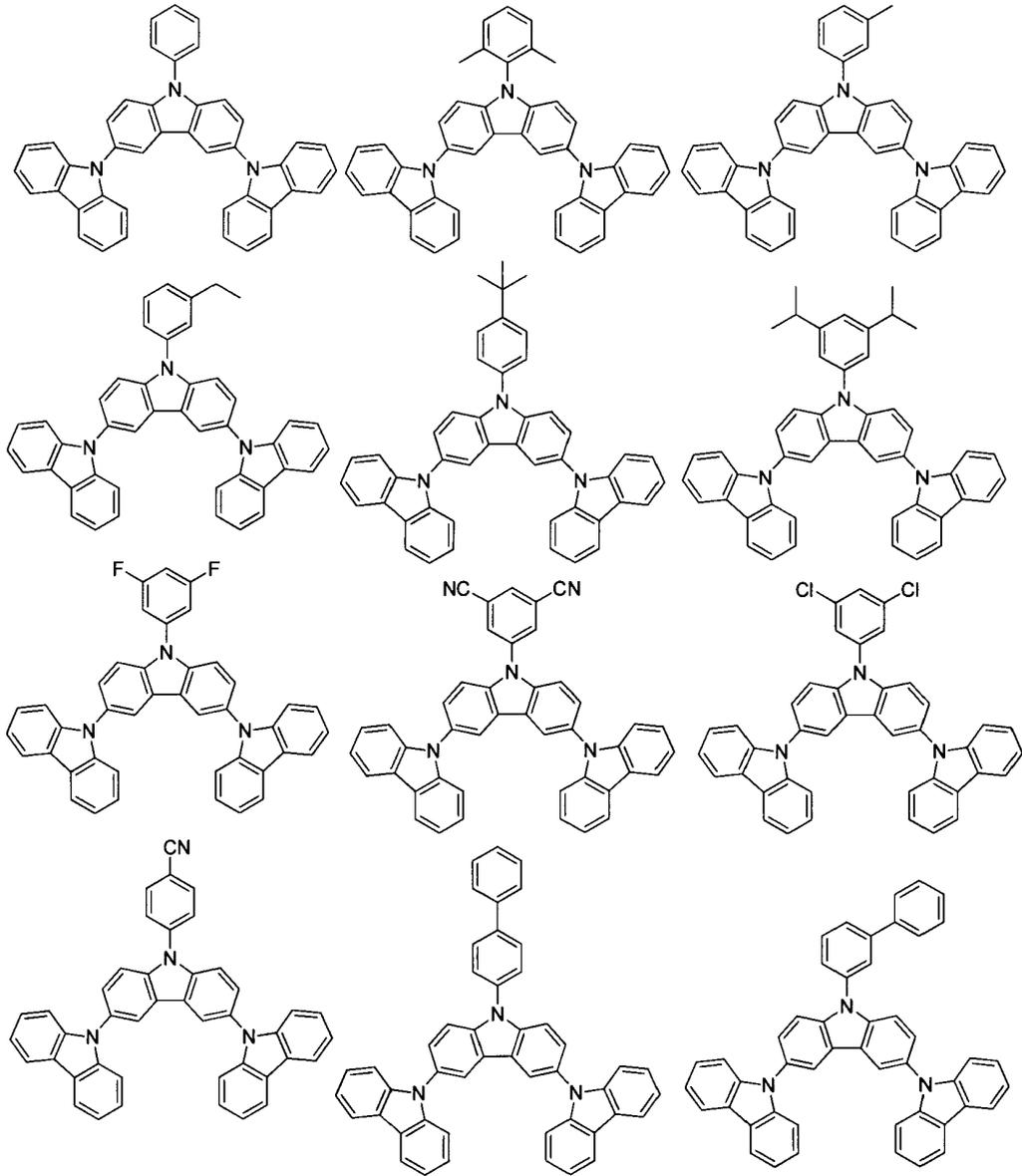
20



【 0 2 3 1】

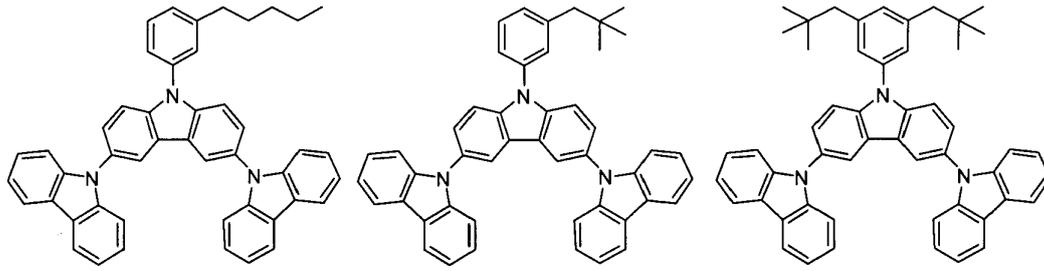
30

【化 4 8】

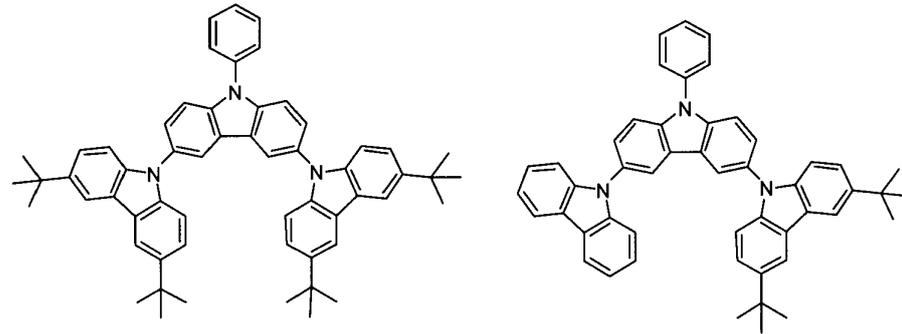
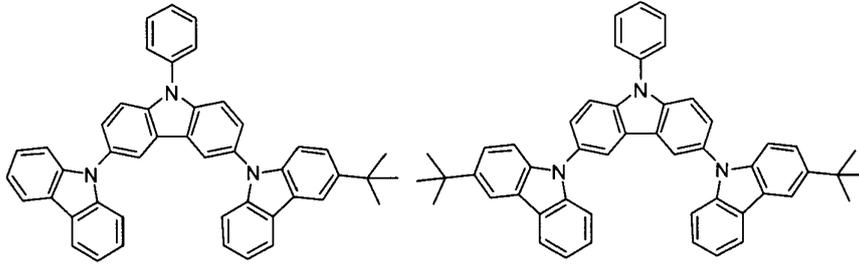


【 0 2 3 2 】

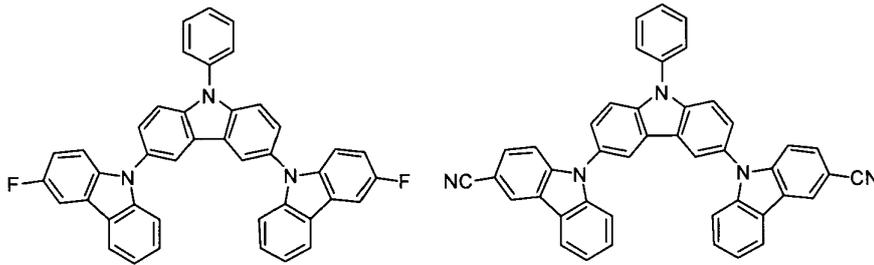
【化 4 9】



10



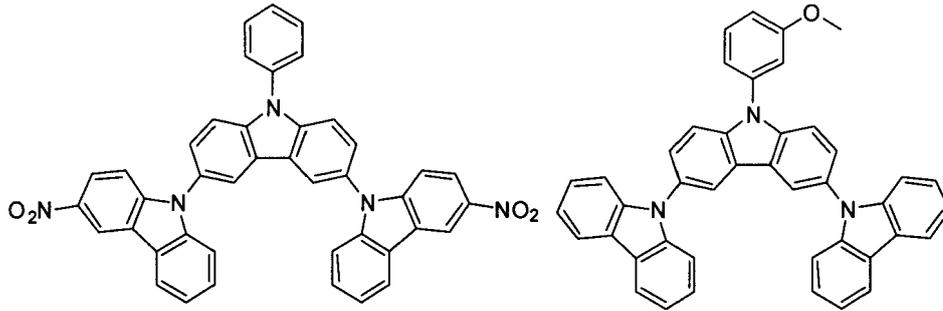
20



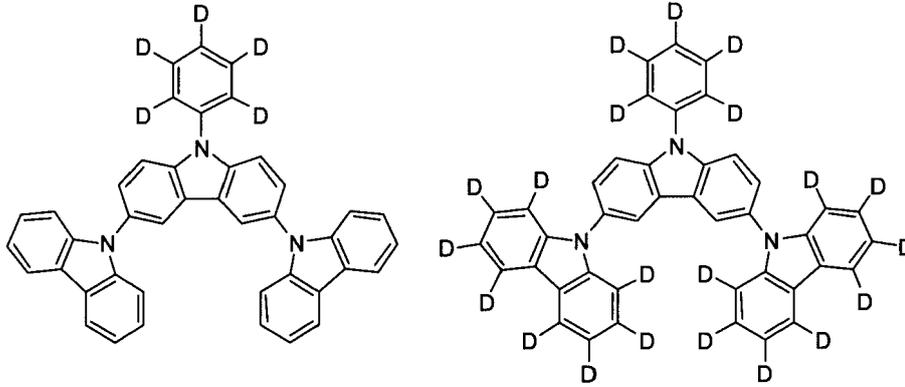
30

【 0 2 3 3 】

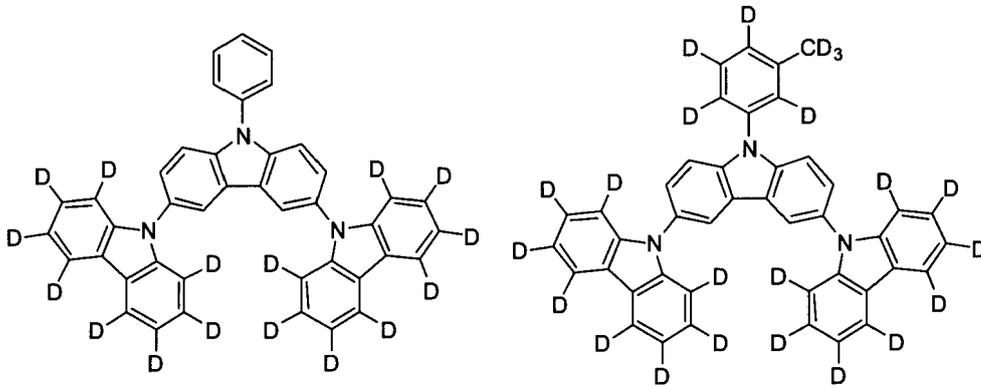
【化50】



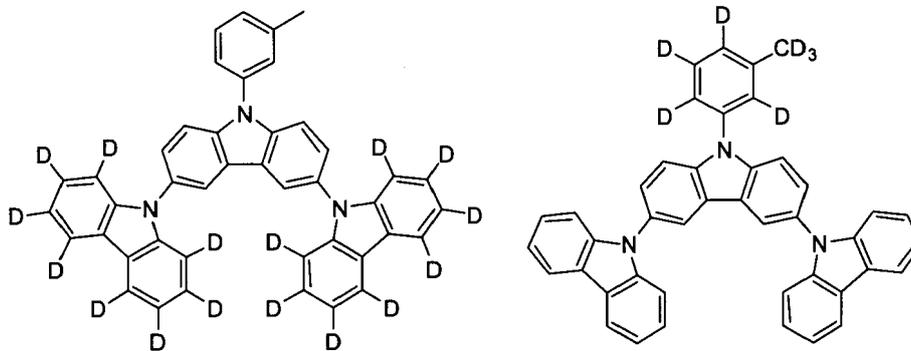
10



20



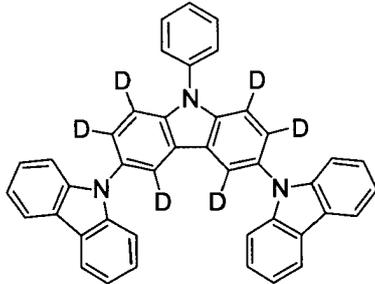
30



40

【0234】

## 【化51】



10

## 【0235】

## 〔芳香族炭化水素化合物〕

本発明の有機電界発光素子は、前記一对の電極が陰極を含み、前記発光層と該陰極との間に少なくとも一層の有機層を含むことが好ましく、該有機層に芳香族炭化水素化合物を含有することが好ましい。

芳香族炭化水素化合物は、発光層と陰極の間の発光層に隣接する有機層に含有されることがより好ましいが、その用途が限定されることはなく、有機層内のいずれの層に更に含有されてもよい。本発明にかかる芳香族炭化水素化合物の導入層としては、発光層、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、電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有することができる。

20

芳香族炭化水素化合物が含有される、発光層と陰極の間の発光層に隣接する有機層は電荷ブロック層又は電子輸送層であることが好ましく、電子輸送層であることがより好ましい。

## 【0236】

芳香族炭化水素化合物は合成容易さの観点から炭素原子と水素原子のみからなることが好ましい。

芳香族炭化水素化合物を発光層以外の層に含有させる場合は、70～100質量%含まれることが好ましく、85～100質量%含まれることがより好ましい。芳香族炭化水素化合物を発光層に含有させる場合は、発光層の全質量に対して0.1～99質量%含まれることが好ましく、1～95質量%含まれることがより好ましく、10～95質量%含まれることがより好ましい。

30

炭素原子と水素原子のみからなり、分子量が400～1200の範囲にあり、総炭素数13～22の縮合多環骨格を有する炭化水素化合物を用いることが好ましい。総炭素数13～22の縮合多環骨格としては、フルオレン、アントラセン、フェナントレン、テトラセン、クリセン、ペンタセン、ピレン、ペリレン、トリフェニレンのいずれかであることが好ましく、 $T_1$ の観点からフルオレン、トリフェニレン、フェナントレンがより好ましく、化合物の安定性、電荷注入・輸送性の観点からトリフェニレンが更に好ましく、一般式(Tp-1)で表される化合物であることが特に好ましい。

## 【0237】

一般式(Tp-1)で表される炭化水素化合物は、分子量が400～1200の範囲であることが好ましく、より好ましくは400～1000であり、更に好ましくは400～800である。分子量が400以上であれば良質なアモルファス薄膜が形成でき、分子量が1200以下であると溶媒への溶解性や昇華及び蒸着適正の面で好ましい。

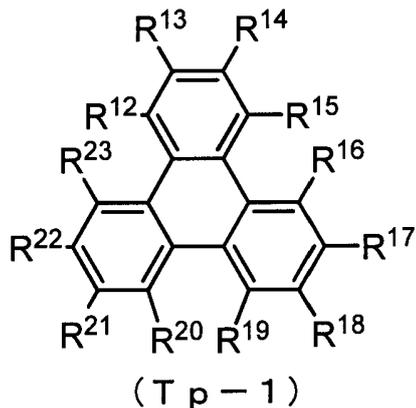
40

## 【0238】

一般式(Tp-1)で表される炭化水素化合物はその用途が限定されることはなく、発光層に隣接する有機層だけでなく有機層内のいずれの層に更に含有されてもよい。

## 【0239】

## 【化52】



10

## 【0240】

(一般式(Tp-1)において、 $R^{12} \sim R^{23}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基又はアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基で置換されていてもよいフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基を表す。ただし、 $R^{12} \sim R^{23}$ が全て水素原子になることはない。)

## 【0241】

$R^{12} \sim R^{23}$ が表すアルキル基としては、置換基若しくは無置換の、例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-オクチル基、*n*-デシル基、*n*-ヘキサデシル基、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などが挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、*tert*-ブチル基、シクロヘキシル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、又は*tert*-ブチル基である。

20

## 【0242】

$R^{12} \sim R^{23}$ として好ましくは、炭素数1~4のアルキル基又は炭素数1~4のアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基(これらは更にアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基で置換されていてもよい)で置換されていてもよい、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基であることが更に好ましい。

30

フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基(これらは更にアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、若しくはトリフェニレニル基で置換されていてもよい)で置換されていてもよい、ベンゼン環であることが特に好ましい。

## 【0243】

一般式(Tp-1)におけるアリール環の総数は2~8個であることが好ましく、3~5個であることが好ましい。この範囲とすることで、良質なアモルファス薄膜が形成でき、溶媒への溶解性や昇華及び蒸着適正が良好になる。

40

## 【0244】

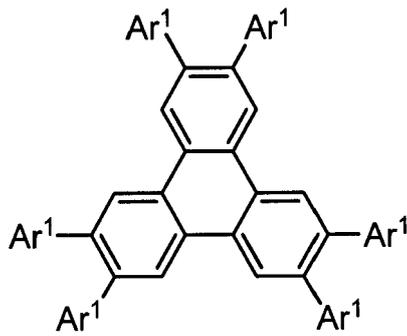
$R^{12} \sim R^{23}$ は、それぞれ独立に、総炭素数が20~50であることが好ましく、総炭素数が20~36であることがより好ましい。この範囲とすることで、良質なアモルファス薄膜が形成でき、溶媒への溶解性や昇華及び蒸着適正が良好になる。

## 【0245】

本発明の一の態様において、前記一般式(Tp-1)で表される炭化水素化合物は下記一般式(Tp-2)で表される炭化水素化合物であることが好ましい。

## 【0246】

## 【化53】



(Tp-2)

10

## 【0247】

(一般式(Tp-2)中、複数のAr<sup>1</sup>は同一であり、アルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、又はトリフェニレニル基で置換されていてもよいフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、又はトリフェニレニル基を表す。)

## 【0248】

Ar<sup>1</sup>が表すアルキル基及びアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、又はトリフェニレニル基で置換されていてもよいフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、又はトリフェニレニル基としては、R<sup>12</sup>~R<sup>23</sup>で挙げたものと同義であり、好ましいものも同様である。

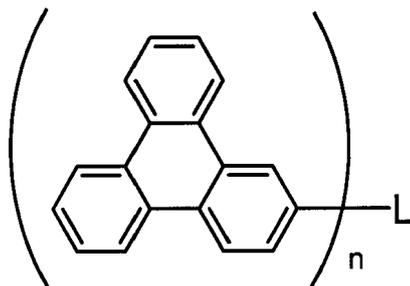
20

## 【0249】

本発明の他の態様において、前記一般式(Tp-1)で表される炭化水素化合物は、下記一般式(Tp-3)で表される炭化水素化合物であることが好ましい。

## 【0250】

## 【化54】



一般式(Tp-3)

30

## 【0251】

(一般式(Tp-3)中、Lはアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、又はトリフェニレニル基で置換されていてもよいフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、トリフェニレニル基又はこれらを組み合わせて成るn個の連結基を表す。nは1~6の整数を表す。)

40

## 【0252】

Lが表すn個の連結基を形成するアルキル基、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、又はトリフェニレニル基としては、R<sup>12</sup>~R<sup>23</sup>で挙げたものと同義である。

Lとして好ましくは、アルキル基又はベンゼン環で置換されていてもよいベンゼン環、フルオレン環、又はこれらを組み合わせて成るn個の連結基である。

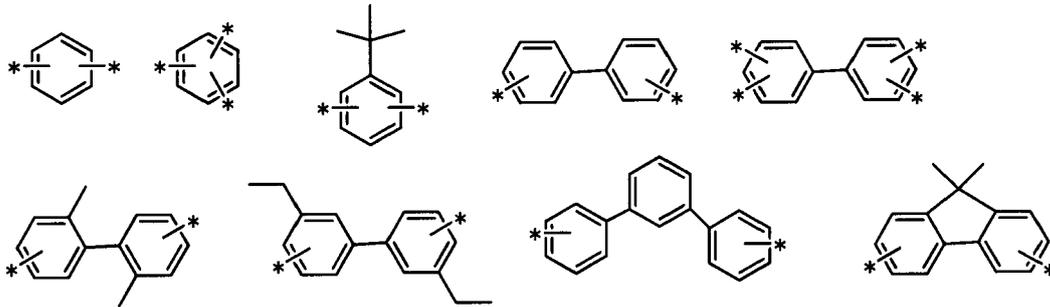
以下にLの好ましい具体例を挙げるがこれらに限定されるものではない。なお具体例中

50

\*でトリフェニレン環と結合する。

【0253】

【化55】



10

【0254】

nは1～5であることが好ましく、1～4であることがより好ましい。

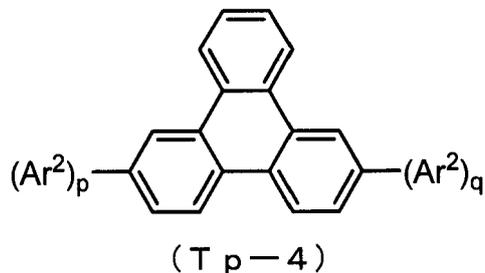
【0255】

本発明の他の態様において、前記一般式(Tp-1)で表される炭化水素化合物は、下記一般式(Tp-4)で表される炭化水素化合物であることが好ましい。

【0256】

【化56】

20



30

【0257】

(一般式(Tp-4)において、複数存在する場合のAr<sup>2</sup>は同一であり、Ar<sup>2</sup>はアルキル基、フェニル基、ナフチル基、トリフェニレン基で置換、又はこれらを組み合わせる基を表す。p、及びqはそれぞれ独立に0又は1を表すが、pとqが同時に0になることはない。p、及びqが0を表す場合、Ar<sup>2</sup>は水素原子を表す。)

【0258】

Ar<sup>2</sup>として好ましくは、炭素数1～4のアルキル基、フェニル基、ナフチル基、トリフェニレン基を組み合わせる基であり、より好ましくは、メチル基、t-ブチル基、フェニル基、トリフェニレン基を組み合わせる基である。

Ar<sup>2</sup>は、メタ位が炭素数1～4のアルキル基、フェニル基、ナフチル基、トリフェニレン基、又はこれらを組み合わせる基で置換されたベンゼン環であることが特に好ましい。

40

【0259】

本発明にかかる炭化水素化合物を有機電界発光素子の発光層のホスト材料や発光層に隣接する層の電荷輸送材料として使用する場合、発光材料より薄膜状態でのエネルギーギャップ(発光材料が燐光発光材料の場合には、薄膜状態での最低励起三重項(T<sub>1</sub>)エネルギー)が大きいと、発光がクエンチしてしまうことを防ぎ、効率向上に有利である。一方、化合物の化学的安定性の観点からは、エネルギーギャップ及びT<sub>1</sub>エネルギーは大き過ぎない方が好ましい。一般式(Tp-1)で表される炭化水素化合物の膜状態でのT<sub>1</sub>エネルギーは、52 kcal/mol以上80 kcal/mol以下であることが好ましく

50

、55 kcal/mol以上68 kcal/mol)以下であることがより好ましく、58 kcal/mol以上63 kcal/mol以下であることが更に好ましい。特に、発光材料として燐光発光材料を用いる場合には、 $T_1$  エネルギーが上記範囲となることが好ましい。

【0260】

$T_1$  エネルギーは、前述の一般式(1)の説明における方法と同様の方法により求めることができる。

【0261】

有機電界発光素子を高温駆動時や素子駆動中の発熱に対して安定して動作させる観点から、本発明にかかる炭化水素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。

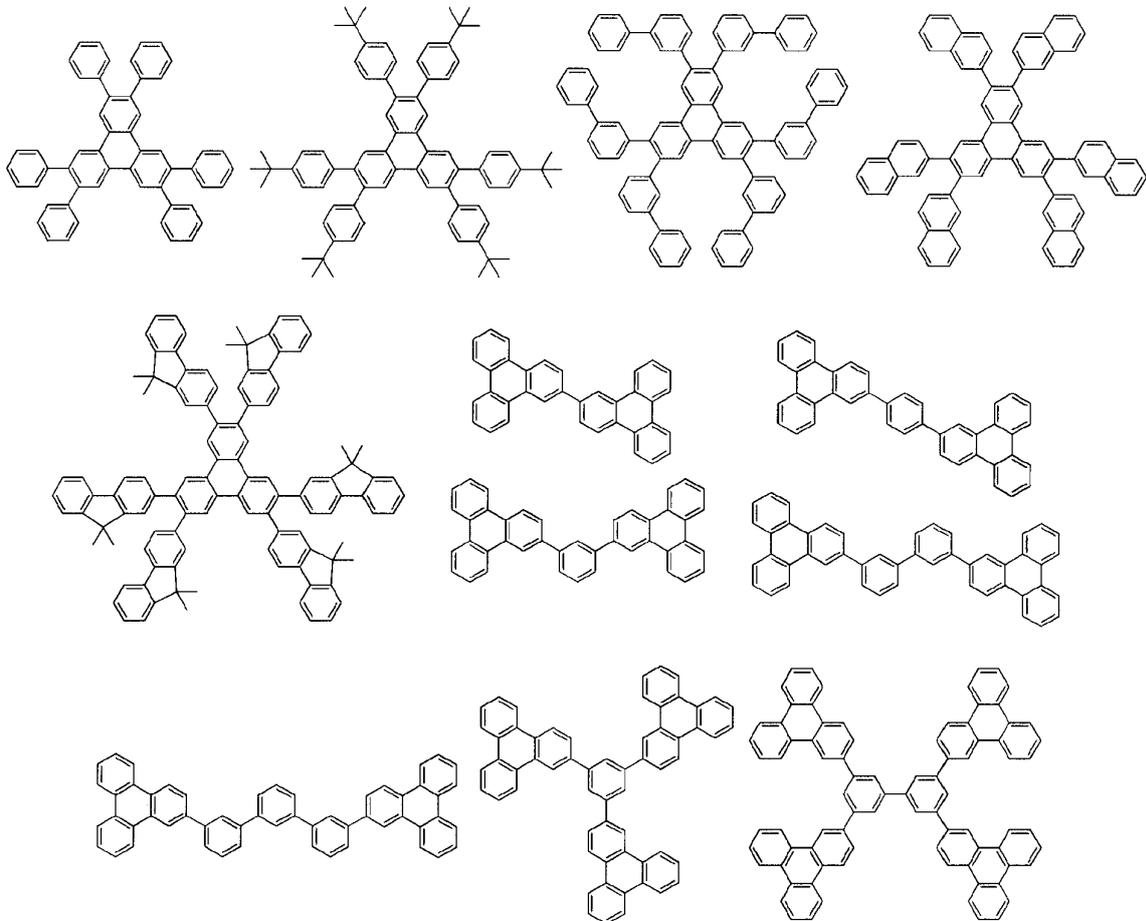
10

【0262】

以下に、本発明にかかる炭化水素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。

【0263】

【化57】



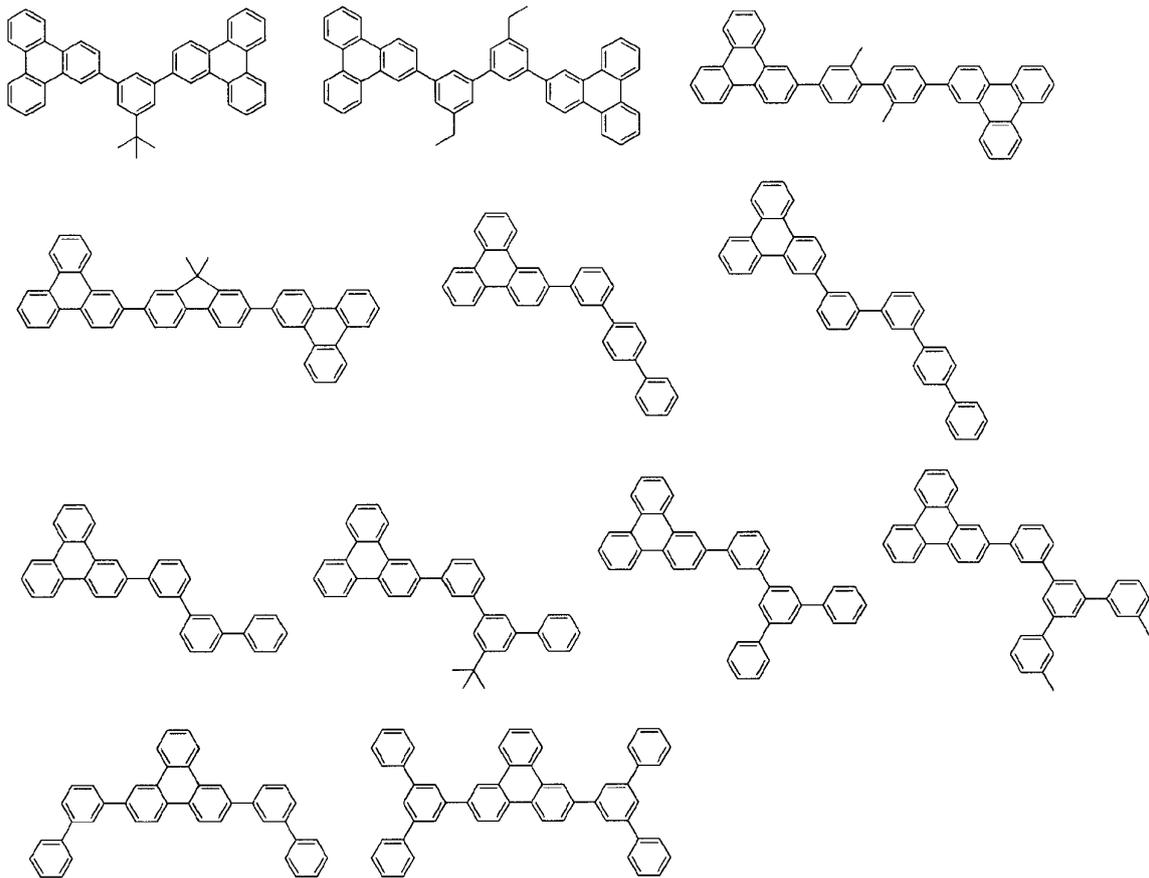
20

30

40

【0264】

## 【化58】



## 【0265】

上記本発明にかかる炭化水素化合物として例示した化合物は、国際公開第05/013388号パンフレット、国際公開第06/130598号パンフレット、国際公開第09/021107号パンフレット、US2009/0009065、国際公開第09/008311号パンフレット及び国際公開第04/018587号パンフレットに記載の方法で合成できる。

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。

## 【0266】

〔一般式(0-1)で表される化合物〕

本発明の発光素子は、発光層と陰極との間に少なくとも一層の有機層を含むことが好ましく、該有機層に少なくとも一層の下記一般式(0-1)で表される化合物を含有することが素子の効率や駆動電圧の観点から好ましい。以下に、一般式(0-1)について説明する。

## 【0267】

10

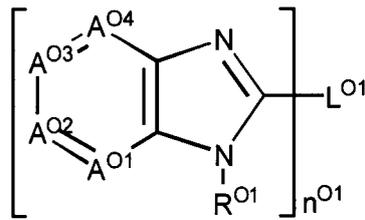
20

30

40

【化59】

(O-1)



【0268】

(一般式(O-1)中、 $R^{O1}$ は、アルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表す。 $A^{O1} \sim A^{O4}$ はそれぞれ独立に、 $C-R^A$ 又は窒素原子を表す。 $R^A$ は水素原子、アルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表し、複数の $R^A$ は同じでも異なっても良い。 $L^{O1}$ は、アリール環又はヘテロアリール環からなる二価～六価の連結基を表す。 $n^{O1}$ は2～6の整数を表す。)

10

【0269】

$R^{O1}$ は、アルキル基(好ましくは炭素数1～8)、アリール基(好ましくは炭素数6～30)、又はヘテロアリール基(好ましくは炭素数4～12)を表し、これらは前述の置換基群Aから選ばれる置換基を有していても良い。 $R^{O1}$ として好ましくはアリール基、又はヘテロアリール基であり、より好ましくはアリール基である。 $R^{O1}$ のアリール基が置換基を有する場合の好ましい置換基としては、アルキル基、アリール基又はシアノ基が挙げられ、アルキル基又はアリール基がより好ましく、アリール基が更に好ましい。 $R^{O1}$ のアリール基が複数の置換基を有する場合、該複数の置換基は互いに結合して5又は6員環を形成していても良い。 $R^{O1}$ のアリール基は、好ましくは置換基群Aから選ばれる置換基を有していても良いフェニル基であり、より好ましくはアルキル基又はアリール基が置換していてもよいフェニル基であり、更に好ましくは無置換のフェニル基又は2-フェニルフェニル基である。

20

【0270】

$A^{O1} \sim A^{O4}$ はそれぞれ独立に、 $C-R^A$ 又は窒素原子を表す。 $A^{O1} \sim A^{O4}$ のうち、0～2つが窒素原子であるのが好ましく、0又は1つが窒素原子であるのがより好ましい。 $A^{O1} \sim A^{O4}$ の全てが $C-R^A$ であるか、又は $A^{O1}$ が窒素原子で、 $A^{O2} \sim A^{O4}$ が $C-R^A$ であるのが好ましく、 $A^{O1}$ が窒素原子で、 $A^{O2} \sim A^{O4}$ が $C-R^A$ であるのがより好ましく、 $A^{O1}$ が窒素原子で、 $A^{O2} \sim A^{O4}$ が $C-R^A$ であり、 $R^A$ が全て水素原子であるのが更に好ましい。

30

【0271】

$R^A$ は水素原子、アルキル基(好ましくは炭素数1～8)、アリール基(好ましくは炭素数6～30)、又はヘテロアリール基(好ましくは炭素数4～12)を表し、これらは前述の置換基群Aから選ばれる置換基を有していても良い。また複数の $R^A$ は同じでも異なっても良い。 $R^A$ として好ましくは水素原子又はアルキル基であり、より好ましくは水素原子である。

40

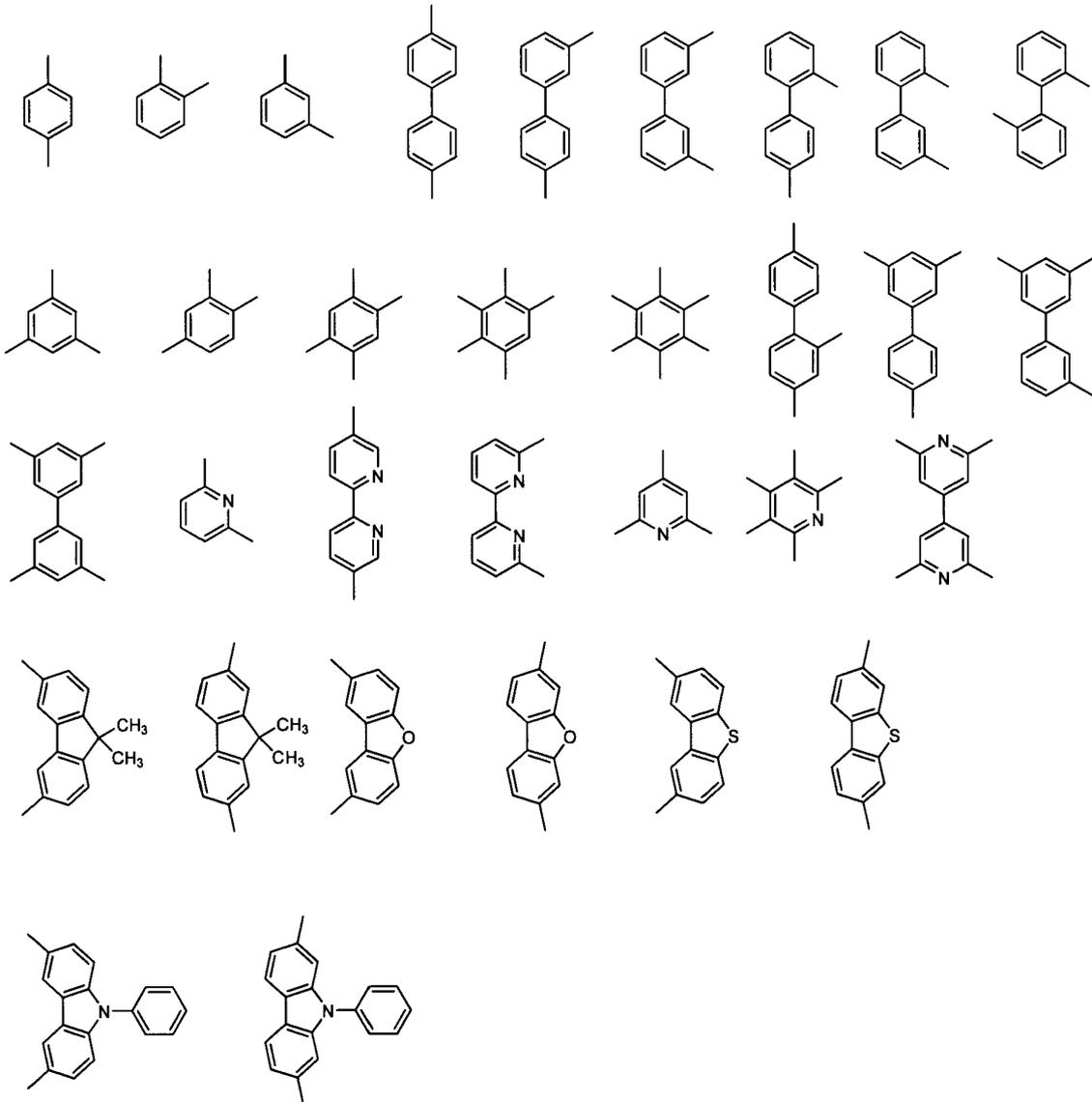
【0272】

$L^{O1}$ は、アリール環(好ましくは炭素数6～30)又はヘテロアリール環(好ましくは炭素数4～12)からなる二価～六価の連結基を表す。 $L^{O1}$ として好ましくは、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、アリールトリイル基、又はヘテロアリールトリイル基であり、より好ましくはフェニレン基、ピフェニレン基、又はベンゼントリイル基であり、更に好ましくはビフェニレン基、又はベンゼントリイル基である。 $L^{O1}$ は前述の置換基群Aから選ばれる置換基を有していても良く、置換基を有する場合の置換基としてはアルキル基、アリール基、又はシアノ基が好ましい。 $L^{O1}$ の具体例としては、以下のものが挙げられる。

【0273】

50

## 【化60】



10

20

30

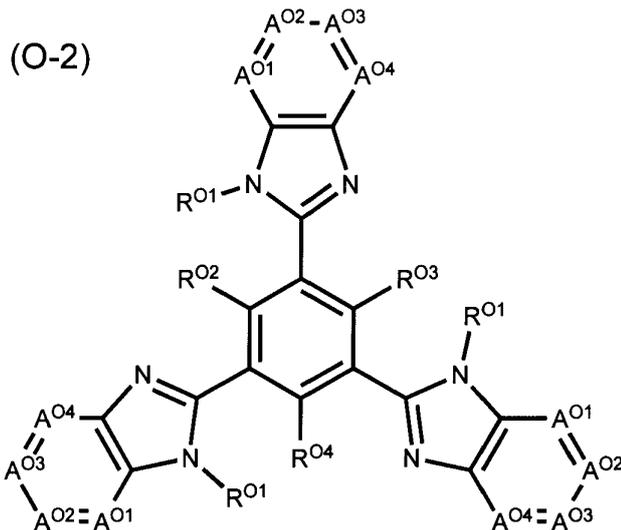
## 【0274】

$n^{01}$  は 2 ~ 6 の整数を表し、好ましくは 2 ~ 4 の整数であり、より好ましくは 2 又は 3 である。 $n^{01}$  は、素子効率の観点では最も好ましくは 3 であり、素子の耐久性の観点では最も好ましくは 2 である。

一般式 (0-1) で表される化合物は、より好ましくは下記一般式 (0-2) で表される化合物である。

## 【0275】

## 【化 6 1】



10

## 【 0 2 7 6 】

(一般式 (O - 2) 中、R<sup>01</sup> はアルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表す。R<sup>02</sup> ~ R<sup>04</sup> はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表す。A<sup>01</sup> ~ A<sup>04</sup> はそれぞれ独立に、C - R<sup>A</sup> 又は窒素原子を表す。R<sup>A</sup> は水素原子、アルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表し、複数の R<sup>A</sup> は同じでも異なっても良い。)

20

## 【 0 2 7 7 】

R<sup>01</sup> 及び A<sup>01</sup> ~ A<sup>04</sup> は、前記一般式 (O - 1) 中の R<sup>01</sup> 及び A<sup>01</sup> ~ A<sup>04</sup> と同義であり、またそれらの好ましい範囲も同様である。

R<sup>02</sup> ~ R<sup>04</sup> はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 8)、アリール基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30)、又はヘテロアリール基 (好ましくは炭素数 4 ~ 12) を表し、これらは前述の置換基群 A から選ばれる置換基を有していても良い。R<sup>02</sup> ~ R<sup>04</sup> として好ましくは水素原子、アルキル基、又はアリール基であり、より好ましくは水素原子、又はアリール基であり、最も好ましくは水素原子である。

30

## 【 0 2 7 8 】

前記一般式 (O - 1) で表される化合物は、高温保存時の安定性、高温駆動時、駆動時の発熱に対して安定して動作させる観点から、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) は 100 ~ 300 であることが好ましく、120 ~ 300 であることがより好ましく、120 ~ 300 であることが更に好ましく、140 ~ 300 であることが更に好ましい。

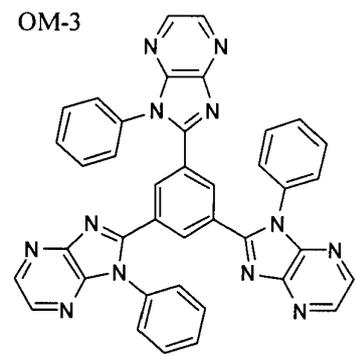
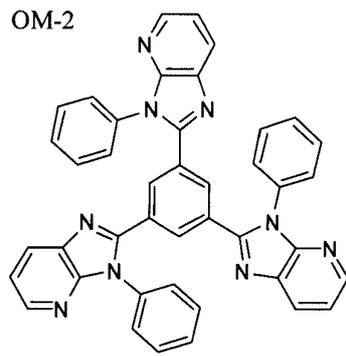
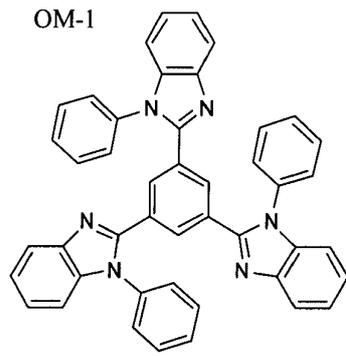
## 【 0 2 7 9 】

一般式 (O - 1) で表される化合物の具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

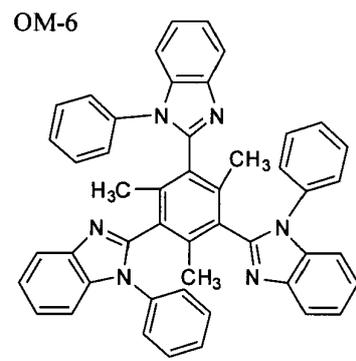
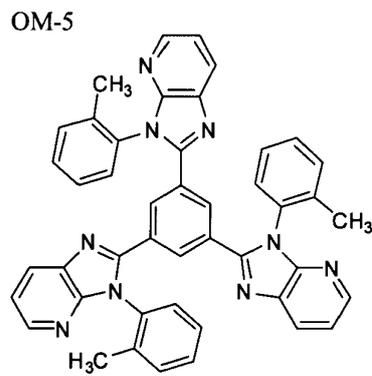
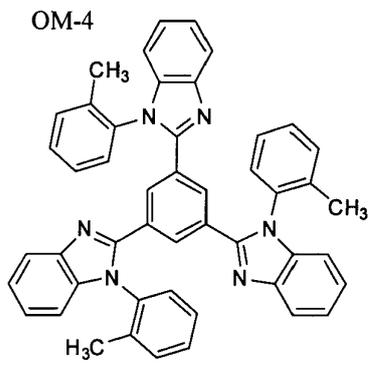
40

## 【 0 2 8 0 】

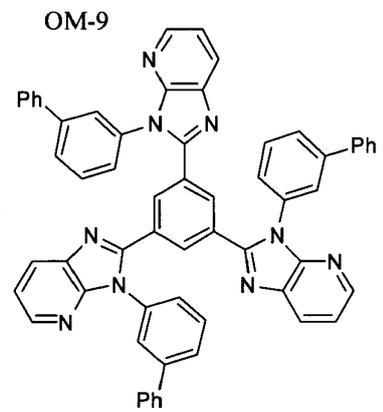
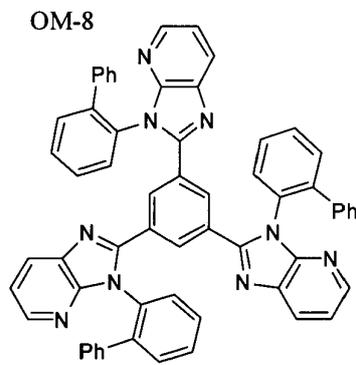
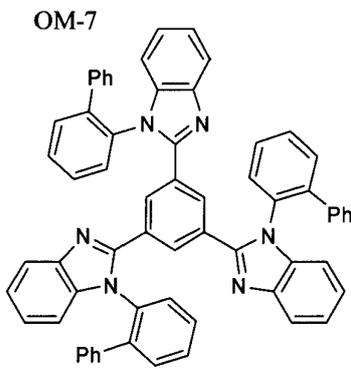
【化62】



10



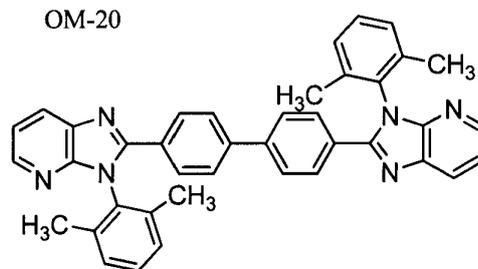
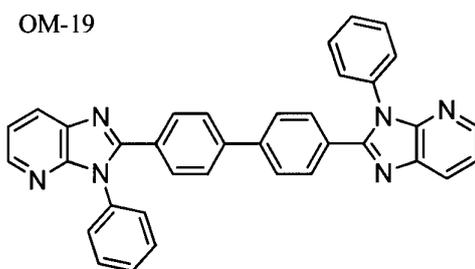
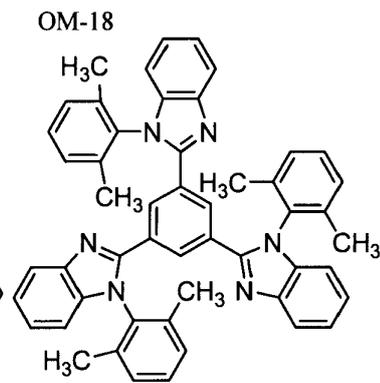
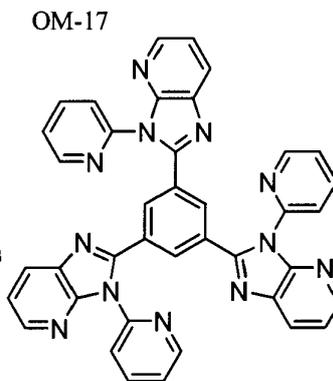
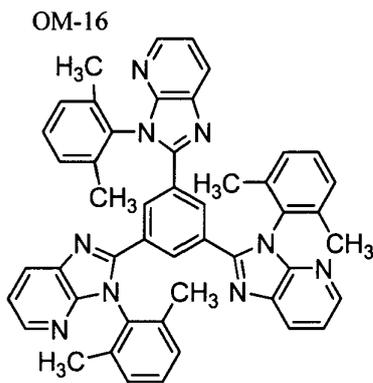
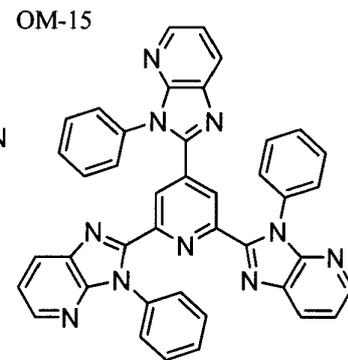
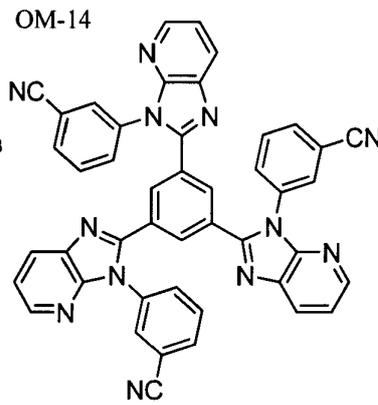
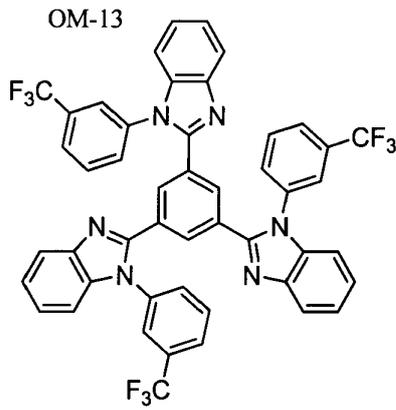
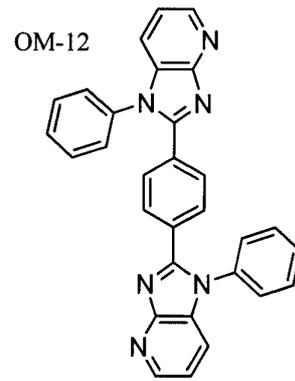
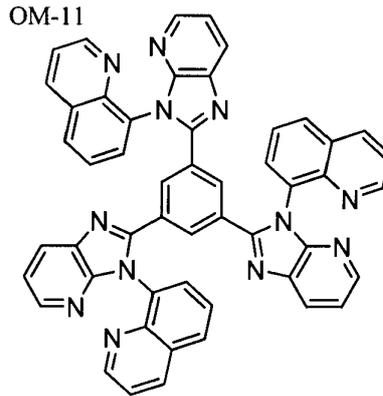
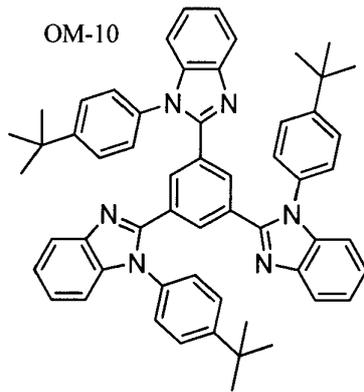
20



30

【0281】

## 【化 6 3】



10

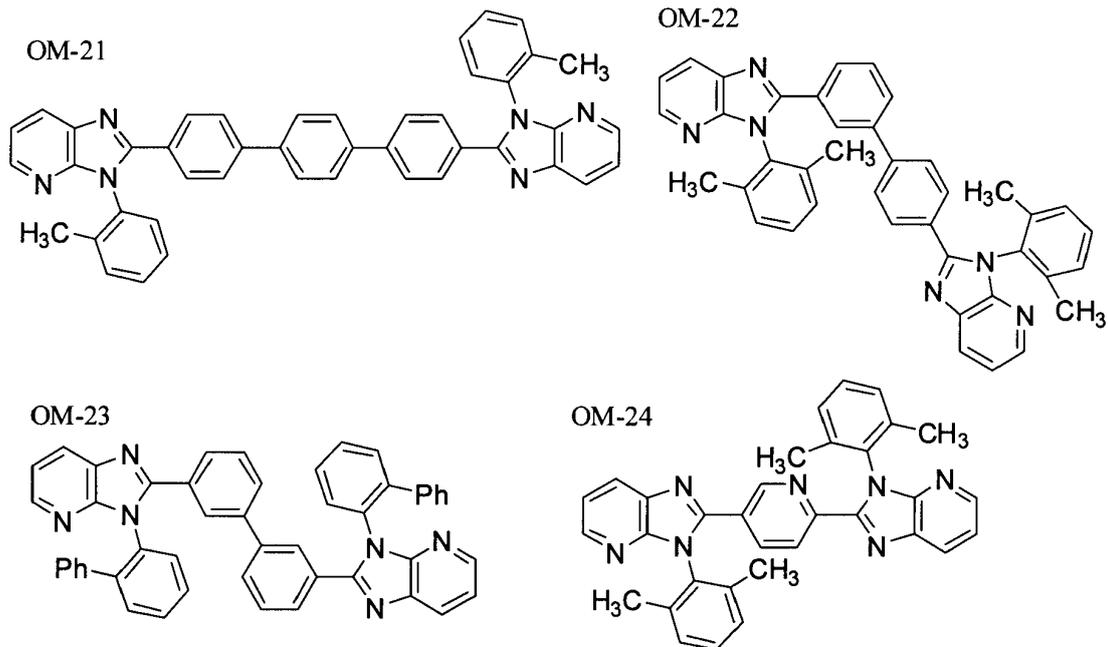
20

30

40

## 【 0 2 8 2 】

## 【化64】



10

20

## 【0283】

前記一般式(0-1)で表される化合物は、特開2001-335776号に記載の方法で合成可能である。合成後、カラムクロマトグラフィー、再結晶、再沈殿など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、水分等を効果的に取り除くことが可能である。

## 【0284】

本発明の発光素子において、一般式(0-1)で表される化合物は発光層と陰極との間の有機層に含有されるが、発光層に隣接する陰極側の層に含有されることが好ましい。

## 【0285】

(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。

30

## 【0286】

(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。

正孔注入層、正孔輸送層については、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。

40

## 【0287】

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、テトラシアノキノジメタン(TCNQ)、テト

50

ラフルオロテトラシアノキノジメタン (F<sub>4</sub>-TCNQ)、酸化モリブデンなどが挙げられる。

【0288】

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、0.2質量%～30質量%含有されることがより好ましい。

【0289】

(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。これらの層に用いる電子注入材料、電子輸送材料は低分子化合物であっても高分子化合物であってもよい。

電子輸送材料としては、本発明の一般式(1)又は(2)で表される化合物を用いることができる。その他の材料としては、ピリジン誘導体、キノリン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、フタラジン誘導体、フェナントロリン誘導体、トリアジン誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、シロールに代表される有機シラン誘導体、等を含む層であることが好ましい。

【0290】

電子注入層、電子輸送層の厚さは、駆動電圧を下げるという観点から、各々500nm以下であることが好ましい。

電子輸送層の厚さとしては、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。また、電子注入層の厚さとしては、0.1nm～200nmであるのが好ましく、0.2nm～100nmであるのがより好ましく、0.5nm～50nmであるのが更に好ましい。

電子注入層、電子輸送層は、上述した材料の1種又は2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。

【0291】

電子注入層には電子供与性ドーパントを含むことが好ましい。電子注入層に電子供与性ドーパントを含むことにより、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、ドーブ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、テトラチアフルバレン(TTF)、テトラチアナフタセン(TTT)、ビス-[1,3ジエチル-2-メチル-1,2-ジヒドロベンズイミダゾリル]などのジヒドロイミダゾール化合物、リチウム、セシウムなどが挙げられる。

【0292】

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%含有されることがより好ましい。

【0293】

(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

10

20

30

40

50

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。

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。

10

正孔ブロック層は、上述した材料の一種類又は二種類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。

#### 【0294】

(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。

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。

20

電子ブロック層は、上述した材料の一種類又は二種類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。

#### 【0295】

(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。

#### 【0296】

(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。

30

#### 【0297】

(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2-148687号、同6-301355号、同5-29080号、同7-134558号、同8-234685号、同8-241047号の各公報、特許第2784615号、米国特許5828429号、同6023308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。

40

#### 【0298】

本発明の有機電界発光素子の外部量子効率としては、7%以上が好ましく、10%以上がより好ましく、12%以上が更に好ましい。外部量子効率の数値は20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、20で素子を駆動したときの300~400cd/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。

#### 【0299】

本発明の有機電界発光素子の内部量子効率は、30%以上であることが好ましく、50%以上が更に好ましく、70%以上が更に好ましい。素子の内部量子効率は、外部量子効

50

率を光取り出し効率で除して算出される。通常の有機EL素子では光取り出し効率は約20%であるが、基板の形状、電極の形状、有機層の膜厚、無機層の膜厚、有機層の屈折率、無機層の屈折率等を工夫することにより、光取り出し効率を20%以上にすることが可能である。

#### 【0300】

(本発明の素子の用途)

本発明の素子は、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。

10

#### 【0301】

(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20は、透明基板(支持基板)2、有機電界発光素子10、封止容器16等により構成されている。

#### 【0302】

有機電界発光素子10は、基板2上に、陽極(第一電極)3、有機層11、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12が積層されており、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。

20

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。

#### 【0303】

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。

#### 【0304】

(照明装置)

次に、図3を参照して本発明の照明装置について説明する。

図3は、本発明の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。

30

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。

40

#### 【実施例】

#### 【0305】

以下、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 【0306】

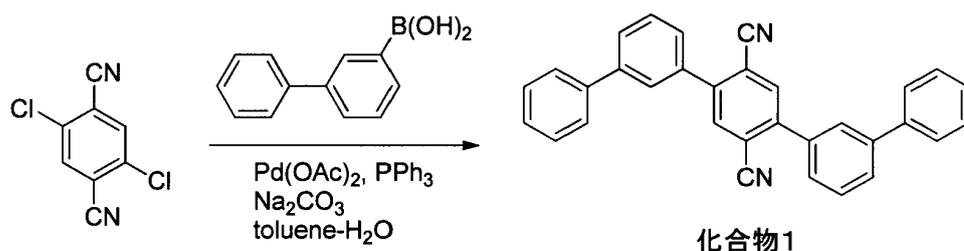
1. 合成例

(合成例1) 化合物1の合成

#### 【0307】

50

## 【化65】



10

## 【0308】

2,4-ジクロロテレフタロニトリル 1.97 g (10 mmol)、3-ビフェニルボロン酸 4.16 g (21 mmol)、酢酸パラジウム 0.22 g (1 mmol)、トリフェニルホスフィン 1.05 g (4 mmol)、炭酸ナトリウム 3.18 g (30 mmol)、トルエン 30 ml、純水 15 ml を、窒素雰囲気下、100 で6時間攪拌した。反応液を室温まで放冷した後、酢酸エチル、純粋を加え、析出した沈殿を濾取した。得られた固体をテトラヒドロフラン-イソプロピルアルコールで再結晶することにより 1.88 g の化合物 1 を得た (収率 43%)。得られた粗生成物を昇華精製することで、HPLC で測定した純度が 99.93% であることを確認した。

20

$^1\text{H NMR}$  (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 8.47 (s, 2H), 8.01 (s, 2H), 7.87 - 7.67 (m, 10H), 7.53 (t, J = 7.6 Hz, 4H), 7.43 (t, J = 7.3 Hz, 2H).

## 【0309】

(合成例 2) 化合物 2 の合成

合成例 1 において、3-ビフェニルボロン酸を 4-ビフェニルボロン酸に換える以外は合成例 1 と同様にして、化合物 2 を合成した。

$^1\text{H NMR}$  (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 8.36 (s, 2H), 7.92 (d, J = 8.4 Hz, 4H), 7.85 - 7.78 (m, 8H), 7.53 (t, J = 7.6 Hz, 4H), 7.44 (t, J = 7.2 Hz, 2H).

30

## 【0310】

(合成例 3) 化合物 3 の合成

合成例 1 において、3-ビフェニルボロン酸を 3-(3,5-ジフェニルフェニル)フェニルボロン酸に換える以外は合成例 1 と同様にして化合物 3 を合成した。

$^1\text{H NMR}$  (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 8.52 (s, 2H), 8.25 (s, 2H), 8.10 - 8.08 (m, 2H), 8.05 (s, 4H), 7.95 (s, 2H), 7.90 (d, J = 7.6 Hz, 8H), 7.80 - 7.72 (m, 4H), 7.53 (t, J = 7.6 Hz, 8H), 7.43 (t, J = 7.4 Hz, 4H).

40

## 【0311】

(合成例 4) 化合物 4 の合成

合成例 1 において、3-ビフェニルボロン酸を 9-フェナントレンボロン酸に換える以外は合成例 1 と同様にして化合物 4 を合成した。

$^1\text{H NMR}$  (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.04 (d, J = 8.4 Hz, 2H), 8.99 (d, J = 8.4 Hz, 2H), 8.50 (s, 2H), 8.16 - 8.12 (m, 3H), 8.45 (s, 1H), 7.91 - 7.65 (m, 10H).

## 【0312】

(合成例 5) 化合物 5 の合成

合成例 1 において、3-ビフェニルボロン酸を 2-トリフェニレンボロン酸に換える以

50

外は合成例 1 と同様にして化合物 5 を合成した。

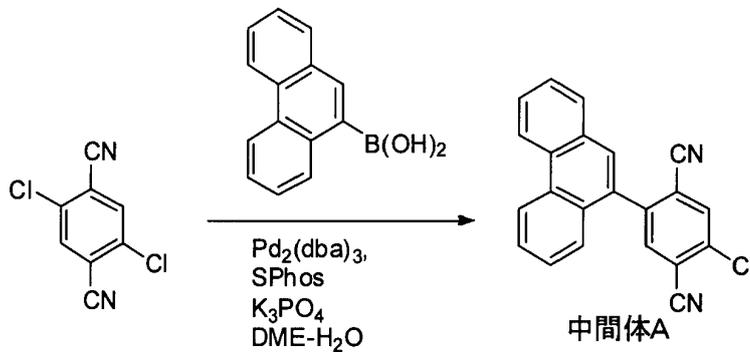
$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.22 (s, 2H), 9.07 (d, J = 9.2 Hz, 2H), 9.03 - 9.00 (m, 2H), 8.98 - 8.93 (m, 2H), 8.92 - 8.87 (m, 4H), 8.69 (s, 2H), 8.8.12 (d, J = 8.4 Hz, 2H), 7.83 - 7.76 (m, 8H).

【0313】

(合成例 6) 化合物 6 の合成

【0314】

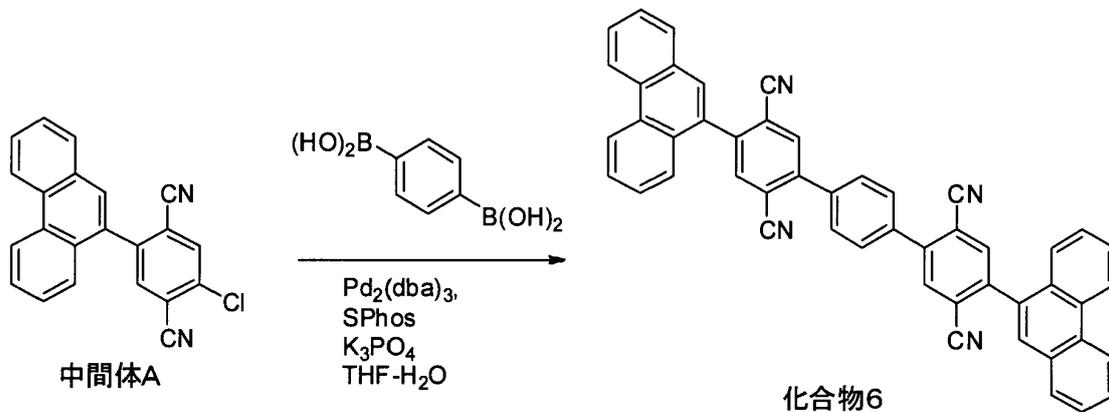
【化66】



10

【0315】

【化67】



20

30

【0316】

2,4-ジクロロテレフタロニトリル 9.85 g (50 mmol)、9-フェナントレンボロン酸 1.1 g (50 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.46 g (0.5 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル(SPhos) 0.82 g (2 mmol)、リン酸カリウム 21.2 g (100 mmol)、ジメトキシエタン 50 ml、純水 50 ml を窒素雰囲気下、50 で 3 時間攪拌した。反応液を室温まで放冷した後、析出した沈殿を濾取し酢酸エチル、純水、エタノールで洗浄した。得られた固体を酢酸エチルで更に洗浄することにより 9.1 g の中間体 A を得た(収率 54%)。

40

【0317】

中間体 A 1.7 g (5 mmol)、1,4-フェニレンジボロン酸 0.42 g (2.5 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.02 g (0.025 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル(SPhos) 0.04 g (0.1 mmol)、リン酸カリウム 2.1 g (10 mmol)、テトラヒドロフラン 80 ml、純水 20 ml を窒素雰囲気下、100 で 4 時間攪拌した。

50

反応液を室温まで放冷した後、析出した沈殿を濾取しテトラヒドロフラン、純水で洗浄した。得られた固体を純水、テトラヒドロフランで更に洗浄することにより1.4 gの化合物6を得た(収率82%)。

$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.04 (d, J = 8.8 Hz, 2H), 8.98 (d, J = 8.8 Hz, 2H), 8.55 (s, 2H), 8.47 (s, 2H), 8.13 (d, J = 7.4 Hz, 2H), 8.08 (s, 4H), 8.04 (s, 2H), 7.87 - 7.60 (m, 10H).

【0318】

(合成例7)化合物7の合成

中間体A 1.7 g (5 mmol)、4-p-ターフェニルボロン酸 1.4 g (5 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム 0.02 g (0.025 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル(SPhos) 0.04 g (0.1 mmol)、リン酸カリウム 2.1 g (10 mmol)、テトラヒドロフラン 80 ml、純水 20 mlを窒素雰囲気下、100℃で3時間攪拌した。反応液を室温まで放冷した後、析出した沈殿を濾取しテトラヒドロフラン、純水で洗浄した。得られた固体を純水、テトラヒドロフランで更に洗浄することにより1.8 gの化合物7を得た(収率68%)。

$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.02 (d, J = 8.8 Hz, 1H), 8.97 (d, J = 8.0 Hz, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.41 (s, 1H), 8.11 (d, J = 6.6 Hz, 1H), 8.03 - 8.00 (m, 3H), 7.95 - 7.91 (m, 4H), 7.86 - 7.74 (m, 7H), 7.68 (t, J = 7.8 Hz, 1H), 7.62 (d, J = 8.4 Hz, 1H), 7.52 (t, J = 7.6 Hz, 2H), 7.41 (t, J = 7.5 Hz, 1H).

【0319】

(合成例8)化合物8の合成

合成例6、合成例7と同様の反応において、9-フェナントレンボロン酸を4-tert-ブチルフェニルボロン酸に、4-p-ターフェニルボロン酸を2-トリフェニレンボロン酸に換えることで化合物8を合成した。

$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.16 (s, 1H), 9.02 (d, J = 8.8 Hz, 1H), 8.99 - 8.96 (m, 1H), 8.94 - 8.91 (m, 1H), 8.89 - 8.86 (m, 2H), 8.57 (s, 1H), 8.35 (s, 1H), 8.06 (d, J = 8.5 Hz, 1H), 7.82 - 7.75 (m, 4H), 7.70 (d, J = 8.4 Hz, 2H), 7.64 (d, J = 8.4 Hz, 2H).

【0320】

(合成例9)化合物9の合成

合成例7において、4-p-ターフェニルボロン酸を2-トリフェニレンボロン酸に換える以外は合成例7と同様にして化合物9を合成した。

$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.26 (s, 1H), 9.10 - 8.94 (m, 5H), 8.91 - 8.87 (m, 2H), 8.71 (s, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.17 - 8.13 (m, 2H), 8.05 (s, 1H), 7.87 - 7.63 (m, 9H).

【0321】

(合成例10)化合物10の合成

合成例1において、3-ビフェニルボロン酸を3-(2-トリフェニレンル)フェニルボロン酸に換える以外は合成例1と同様にして化合物10を合成した。

$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 9.19 (s, 2H), 9.09 - 9.05 (m, 2H), 8.97 (d, J = 9.2 Hz, 2H), 8.92 - 8.83 (m, 6H), 8.61 (s, 2H), 8.38 (s, 2H), 8.22 - 8.17 (m, 4H), 7.84 - 7.72 (m, 12H).

10

20

30

40

50

## 【0322】

(合成例11)化合物11の合成

合成例1において、3-ピフェニルボロン酸を9,9-ジメチルフルオレン-2-ボロン酸に換える以外は合成例1と同様にして化合物11を合成した。

$^1\text{H}$  NMR (400 MHz, in DMSO-d<sub>6</sub>); (ppm) = 8.40 (s, 2H), 8.06 (d, J = 8.0 Hz, 2H), 7.97 - 7.94 (m, 4H), 7.73 (d, J = 8.0 Hz, 2H), 7.63 - 7.61 (m, 2H), 7.43 - 7.38 (m, 2H).

## 【0323】

## 2. 素子評価

以下に記載する実施例及び比較例の各素子の性能は以下のように評価した。

## 【0324】

## (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 cd/m<sup>2</sup>付近の外部量子効率を輝度換算法により算出した。効率は数字が大きいほど好ましい。

## (b) 駆動電圧

各素子を輝度が1000 cd/m<sup>2</sup>になるように直流電圧を印加した時の印加電圧を駆動電圧とした。駆動電圧は数字が小さいほど好ましい。

## (c) 素子耐久性

以下に記載する各素子作成例に示した輝度になるように直流電圧を印加して発光させ続け、輝度がある輝度まで減少するのに要した時間を駆動耐久性の指標とした。耐久性は数字が大きいほど好ましい。

## 【0325】

## 3. 素子作成例

素子作製に用いた材料は全て昇華精製を行い、高速液体クロマトグラフィー(東ソーTSKgel ODS-100Z)により純度(254nmの吸収強度面積比)が99.9%以上であることを確認した。

なお以下の実施例の見出しの横に記載される括弧書きは、発光色及び本発明の化合物をどの材料として使用したかを示す。ここで「ETL」は電子輸送材料を意味する。

## 【0326】

## 素子作成例1 (赤ホスト)

厚み0.5mm、2.5cm角のITO膜を有するガラス基板(ジオマテック社製、表面抵抗10 / )を洗浄容器に入れ、2-プロパノール中で超音波洗浄した後、30分間UV-オゾン処理を行った。この透明陽極(ITO膜)上に真空蒸着法にて以下の有機化合物層を順次蒸着した。

第1層: LG101 : 膜厚10nm

第2層: NPD : 膜厚30nm

第3層: 化合物1及びRD-1(質量比90:10) : 膜厚30nm

第4層: BA1q : 膜厚5nm

第5層: Alq : 膜厚45nm

この上に、フッ化リチウム1nm及び金属アルミニウム70nmをこの順に蒸着し陰極とした。

このものを、大気に触れさせることなく、窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止缶及び紫外線硬化型の接着剤(XNR5516HV、長瀬チバ(株)製)を用いて封止し、実施例1の素子を得た。同様に実施例1の第3層で使用した化合物1に代えて、以下の表1中に示す第3層材料を用い、かつ第4層の材料として表1中に示す材料を用いることにより、実施例2~15、比較例1~5の素子を得た。表中に示す耐

10

20

30

40

50

久性は、各素子の輝度が  $3000 \text{ cd/m}^2$  から  $2700 \text{ cd/m}^2$  になるまでに要した時間とし、実施例 1 の素子を 1 とした相対値で示した。

【0327】

【表1】

表1

素子番号	第3層材料	第4層材料	発光色	効率 (%)	駆動電圧 (V)	耐久性 (相対値)
実施例1	化合物1	BAIq	赤	13	7	1.0
実施例2	化合物3	BAIq	赤	13	8	1.2
実施例3	化合物4	BAIq	赤	12	8	1.5
実施例4	化合物5	BAIq	赤	13	8	1.6
実施例5	化合物7	BAIq	赤	12	8	0.9
実施例6	化合物8	BAIq	赤	12	7	0.9
実施例7	化合物9	BAIq	赤	12	7	1.8
実施例8	化合物10	BAIq	赤	12	8	1.4
実施例9	化合物11	BAIq	赤	13	7	1.2
実施例10	化合物1	ET-1	赤	14	7	1.2
実施例11	化合物1	ET-2	赤	14	7	1.0
実施例12	化合物1	ET-3	赤	13	8	1.5
実施例13	化合物4	ET-1	赤	14	7	1.8
実施例14	化合物4	ET-2	赤	13	7	1.3
実施例15	化合物4	ET-3	赤	12	8	1.8
比較例1	比較化合物1	BAIq	赤	12	8	<0.1
比較例2	比較化合物2	BAIq	赤	13	9	<0.1
比較例3	比較化合物3	BAIq	赤	9	11	<0.1
比較例4	比較化合物4	BAIq	-	-	-	-
比較例5	比較化合物5	BAIq	赤	10	10	<0.1

【0328】

なお表1中、比較例4の素子は発光しなかったため、効率、駆動電圧及び耐久性は正しく評価出来なかった。比較例4の素子が発光しなかった理由は定かではないが、比較化合物4の  $T_1$  エネルギーは発光材料の  $T_1$  エネルギーよりも小さいため、消光されたと推測される。

【0329】

素子作成例2 (赤 ETL)

層構成を以下に示すものに変えた以外は実施例1と同様にして素子を作製し、実施例16の素子を得た。同様に第4層の材料として表2中に示す材料を用いることにより、実施例17~19、比較例6、7の素子を得た。効率、駆動電圧及び耐久性は実施例1と同様に評価し、耐久性は実施例16の素子を1とした相対値で示した。

第1層: LG101 : 膜厚 10 nm

第2層: NPD : 膜厚 30 nm

第3層: BAIq及びRD-2(質量比95:5) : 膜厚 30 nm

第4層: 化合物1 : 膜厚 5 nm

第5層: Alq : 膜厚 45 nm

【0330】

10

20

30

40

【表 2】

表 2

素子番号	第4層材料	効率 (%)	駆動電圧 (V)	耐久性 (相対値)
実施例16	化合物1	13	7	1.0
実施例17	化合物2	12	7	0.8
実施例18	化合物6	12	8	0.8
実施例19	化合物9	13	8	1.5
比較例6	比較化合物1	13	8	<0.1
比較例7	比較化合物2	13	8	<0.1

10

## 【0331】

素子作成例 3 (緑ホスト)

層構成を以下に示すものに変えた以外は実施例 1 と同様にして素子を作製し、実施例 20 の素子を得た。同様に実施例 20 の第 3 層の材料として表 3 中に示す材料を用い、第 4 層で使用した化合物 1 に代えて、以下の表 3 中に示す第 4 層材料を用い、かつ第 5 層の材料として表 3 中に示す材料を用いることにより、実施例 21 ~ 24、比較例 8 ~ 11 の素子を得た。耐久性は各素子の輝度が  $5000 \text{ cd/m}^2$  から  $4500 \text{ cd/m}^2$  になるまでに要した時間とし、実施例 20 の素子を 1 とした相対値で示した。また効率及び駆動電

20

第 1 層: CuPc : 膜厚 10 nm

第 2 層: NPD : 膜厚 25 nm

第 3 層: NPD : 膜厚 5 nm

第 4 層: 化合物 1 及び GD-1 (質量比 90:10) : 膜厚 30 nm

第 5 層: ET-3 : 膜厚 5 nm

第 6 層: Alq : 膜厚 45 nm

## 【0332】

【表 3】

表 3

素子番号	第3層材料	第4層材料	第5層材料	発光色	効率 (%)	駆動電圧 (V)	耐久性 (相対値)
実施例20	NPD	化合物1	ET-3	緑	14	6	1.0
実施例21	NPD	化合物3	ET-3	緑	13	6	0.9
実施例22	NPD	化合物10	ET-3	緑	13	7	1.3
実施例23	NPD	化合物1	化合物1	緑	14	7	1.6
実施例24	HT-1	化合物1	ET-3	緑	14	6	0.8
比較例8	NPD	比較化合物1	ET-3	緑	13	7	<0.1
比較例9	NPD	比較化合物3	ET-3	緑	8	11	<0.1
比較例10	NPD	比較化合物4	ET-3	-	-	-	-
比較例11	NPD	比較化合物5	ET-3	緑	11	10	<0.1

30

40

## 【0333】

なお表 3 中、比較例 10 の素子は発光しなかったため、効率、駆動電圧及び耐久性は正しく評価出来なかった。比較例 10 の素子が発光しなかった理由は定かではないが、比較化合物 4 の  $T_1$  エネルギーは発光材料の  $T_1$  エネルギーよりも小さいため、消光されたと推測される。

## 【0334】

素子作成例 4 (緑 ETL)

層構成を以下に示すものに変えた以外は実施例 20 と同様にして素子を作製し、実施例 25 の素子を得た。同様に第 5 層の材料として表 4 中に示す材料を用いることにより、実

50

実施例 26 ~ 28、比較例 12、13 の素子を得た。効率、駆動電圧及び耐久性は実施例 20 と同様に評価し、耐久性は実施例 25 の素子を 1 とした相対値で示した。

第 1 層：2-TNATA 及び F<sub>4</sub>-TCNQ (質量比 99.7 : 0.3) : 膜厚 160 nm

第 2 層：NPD : 膜厚 5 nm

第 3 層：HT-1 : 膜厚 3 nm

第 4 層：mCBP 及び GD-2 (質量比 85 : 15) : 膜厚 30 nm

第 5 層：化合物 1 : 膜厚 5 nm

第 6 層：BCP 及び Li (質量比 99.4 : 0.6) : 膜厚 25 nm

【0335】

【表 4】

10

表 4

素子番号	第5層材料	効率 (%)	駆動電圧 (V)	耐久性 (相対値)
実施例25	化合物1	14	7	1.0
実施例26	化合物4	12	7	1.8
実施例27	化合物7	12	8	0.9
実施例28	化合物10	14	8	1.6
比較例12	比較化合物1	14	7	<0.1
比較例13	比較化合物3	8	10	<0.1

20

【0336】

素子作成例 5 (青 ETL)

層構成を以下に示すものに変えた以外は実施例 1 と同様に素子を作製し、実施例 29 の素子を得た。同様に第 4 層の材料として表 5 中に示す材料を用いることにより、実施例 30 ~ 33、比較例 14、15 の素子を得た。耐久性は各素子の輝度が 1000 cd/m<sup>2</sup> から 500 cd/m<sup>2</sup> になるまでに要した時間とし、実施例 29 の素子を 1 とした相対値で示した。効率及び駆動電圧は実施例 1 と同様に評価した。

第 1 層：CuPc : 膜厚 10 nm

第 2 層：TPAC : 膜厚 30 nm

第 3 層：mCBP 及び BD-1 (質量比 90 : 10) : 膜厚 30 nm

第 4 層：化合物 1 : 膜厚 5 nm

第 5 層：ET-2 : 膜厚 25 nm

【0337】

【表 5】

30

表 5

素子番号	第4層材料 (電子輸送材料)	発光色	効率 (%)	駆動電圧 (V)	耐久性 (相対値)
実施例29	化合物1	青	11	7	1.0
実施例30	化合物3	青	11	7	1.2
実施例31	化合物5	青	10	7	2.0
実施例32	化合物9	青	10	8	1.6
実施例33	化合物11	青	9	7	1.5
比較例14	比較化合物1	青	10	8	<0.1
比較例15	比較化合物2	青	11	7	<0.1

40

【0338】

表 1 ~ 5 の結果から、本発明の化合物を用いた実施例の素子は、比較例の素子と比べて

50

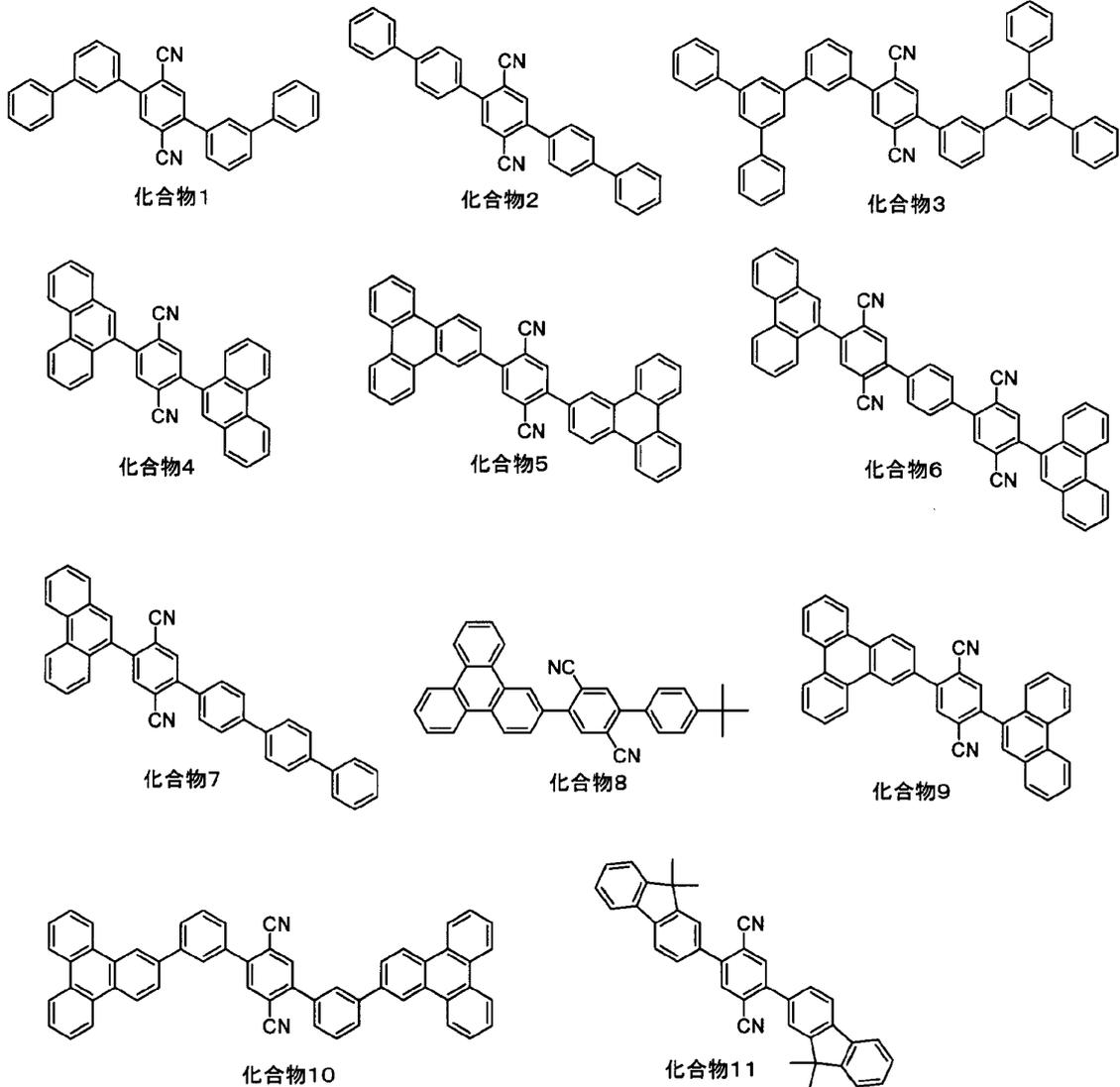
、耐久性が大幅に向上していることが分かる。

【0339】

以下に実施例及び比較例で用いた化合物の構造を示す。

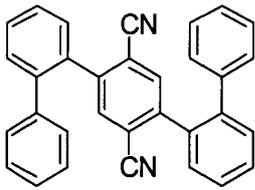
【0340】

【化68】

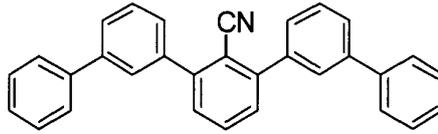


【0341】

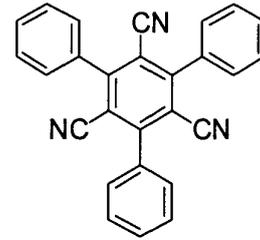
【化69】



比較化合物1

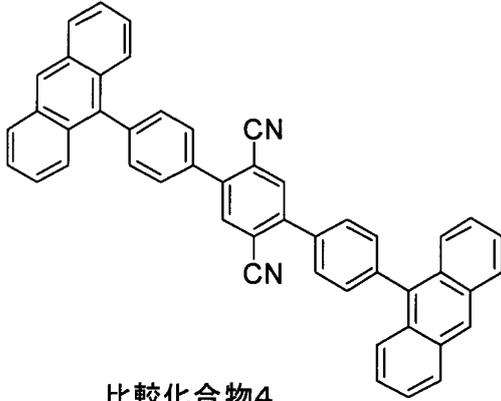


比較化合物2

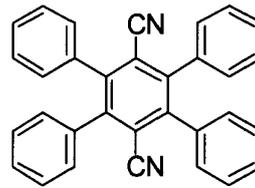


比較化合物3

10



比較化合物4

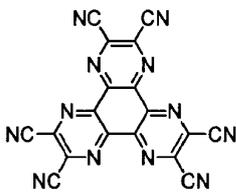


比較化合物5

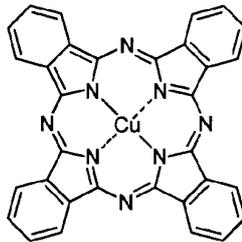
20

【0342】

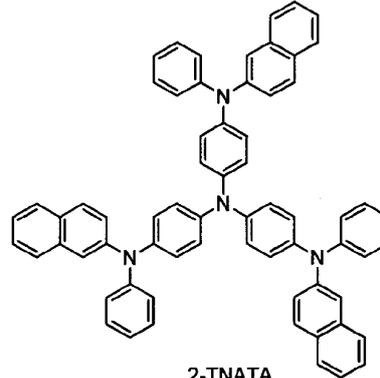
【化70】



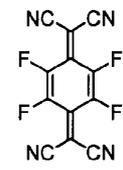
LG 101



CuPc

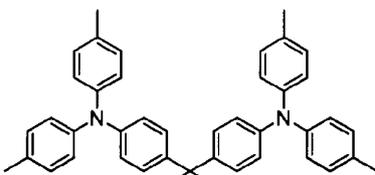


2-TNATA

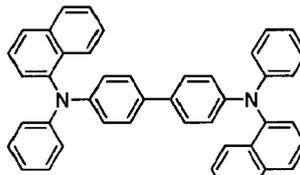


F<sub>4</sub>-TCNQ

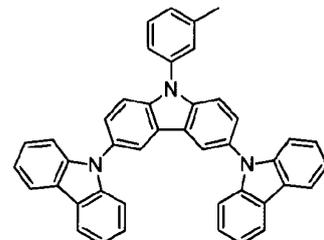
30



TPAC



NPD

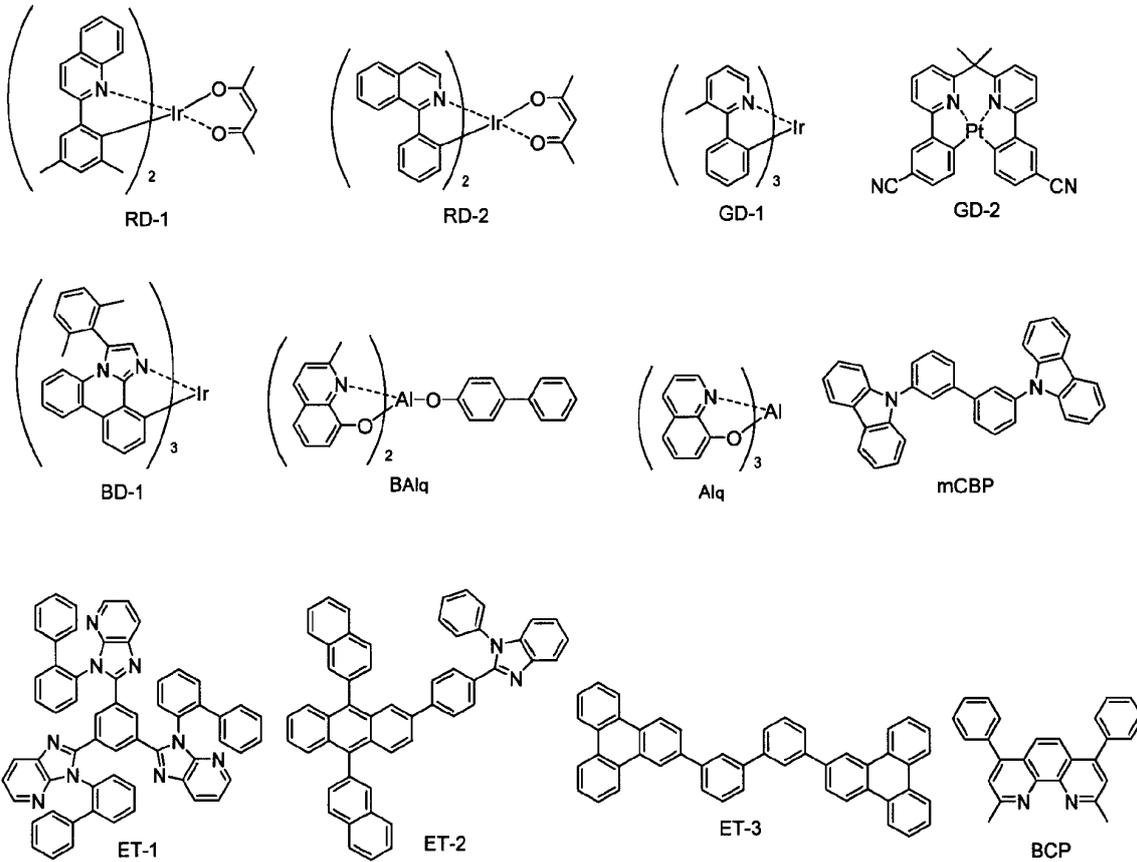


HT-1

40

【0343】

【化 7 1】



10

20

【符号の説明】

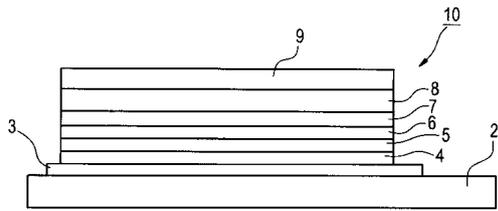
【 0 3 4 4 】

- 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
- 1 0 . . . 有機電界発光素子 (有機 E L 素子)
- 1 1 . . . 有機層
- 1 2 . . . 保護層
- 1 4 . . . 接着層
- 1 6 . . . 封止容器
- 2 0 . . . 発光装置
- 3 0 . . . 光散乱部材
- 3 0 A . . . 光入射面
- 3 0 B . . . 光出射面
- 3 1 . . . 透明基板
- 3 2 . . . 微粒子
- 4 0 . . . 照明装置

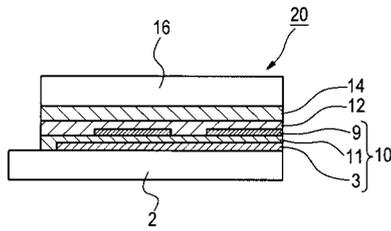
30

40

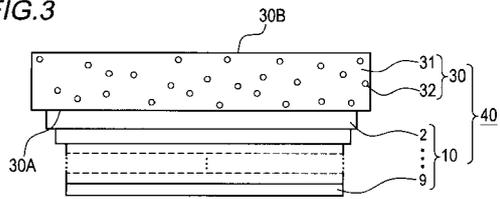
【 図 1 】  
FIG.1



【 図 2 】  
FIG.2



【 図 3 】  
FIG.3



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
G 0 9 F 9/30 (2006.01) C 0 9 K 11/06 6 9 0  
F 2 1 Y 105/00 (2006.01) G 0 9 F 9/30 3 6 5  
F 2 1 Y 105:00 1 0 0

(72)発明者 北村 哲  
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 武田 玲  
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 米久田 康智  
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 本田 博幸

(56)参考文献 特開2002-329580(JP,A)  
特開2003-105332(JP,A)  
特開2007-266598(JP,A)  
特開2009-170810(JP,A)  
国際公開第2010/074087(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)  
H 0 1 L 5 1 / 5 0  
C A p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )