

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5990385号
(P5990385)

(45) 発行日 平成28年9月14日(2016.9.14)

(24) 登録日 平成28年8月19日(2016.8.19)

(51) Int.Cl.	F I				
H01L 51/50	(2006.01)	H05B	33/14	B	
C07C 255/58	(2006.01)	H05B	33/22	B	
C09K 11/06	(2006.01)	H05B	33/22	D	
C07D 487/06	(2006.01)	C07C	255/58	C S P	
C07D 519/00	(2006.01)	C09K	11/06	6 6 0	
請求項の数 14 (全 71 頁) 最終頁に続く					

(21) 出願番号	特願2012-45643 (P2012-45643)	(73) 特許権者	512253626
(22) 出願日	平成24年3月1日(2012.3.1)		ユー・ディー・シー アイランド リミテッド
(65) 公開番号	特開2013-183010 (P2013-183010A)		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
(43) 公開日	平成25年9月12日(2013.9.12)	(74) 代理人	110000109
審査請求日	平成26年9月24日(2014.9.24)		特許業務法人特許事務所サイクス
		(72) 発明者	渡辺 康介
			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	山本 陽介
			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
最終頁に続く			

(54) 【発明の名称】 化合物、有機電界発光素子用材料、電荷輸送材料、有機電界発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

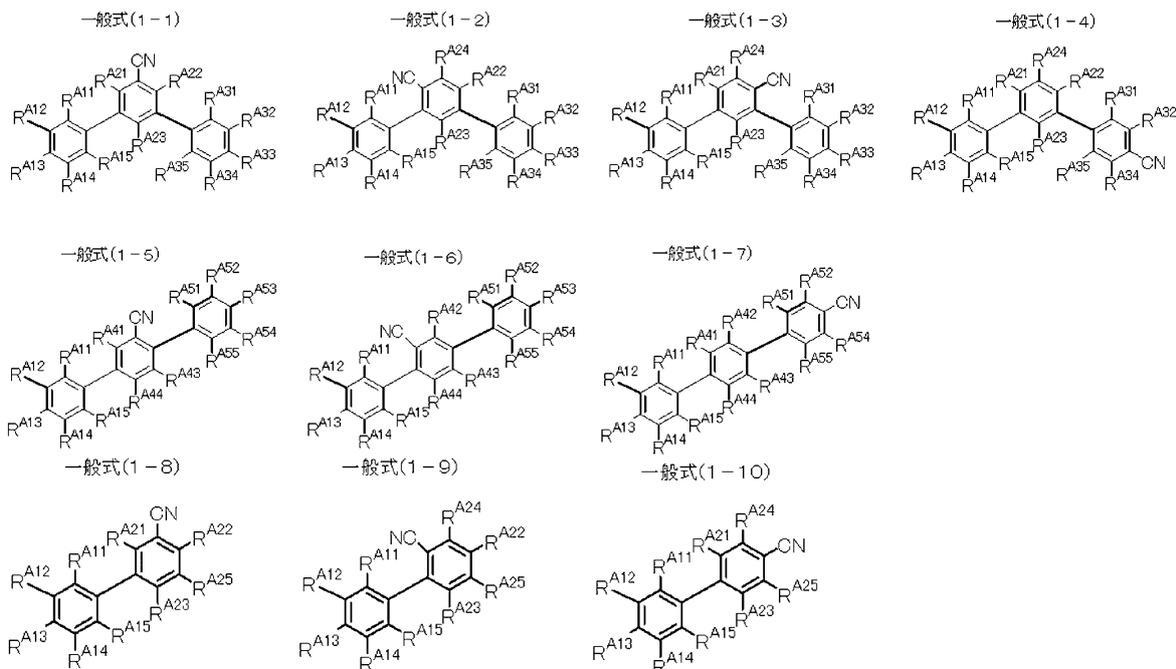
基板と、

該基板上に配置され、陽極及び陰極を含む一对の電極と、

該電極間に配置された有機層とを有し、

前記有機層が、下記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【化1】



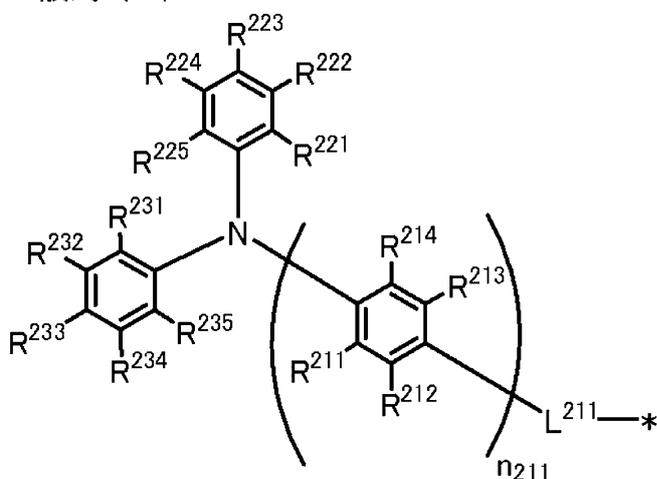
10

[(一般式(1-1) ~ 一般式(1-10) 中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基、アルキル基または下記一般式(2)で表される基を表し、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ の少なくとも一つは下記一般式(2)で表される基である。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基、アルキル基または下記一般式(2)で表される基を表す。一般式(1-8) ~ 一般式(1-10) 中の R^{A25} は、アルキル基、 $-\text{Si}R^{A61}R^{A62}R^{A63}$ 、シアノ基、または下記一般式(2)で表される基を表す。ただし、 R^{A25} が一般式(2)で表される基を表す場合は、 R^{A25} と R^{A23} が互いに結合して環構造を形成することはない。 $R^{A61} \sim R^{A63}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、シアノ基またはアリール基を表す。ただし、シアノ基のオルト位2つが同時にアリール基となることはない。)

20

【化2】

一般式(2)



30

40

(一般式(2) 中、* は結合位置を表す。 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基またはアルキル基を表し、 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ 同士が互いに結合して環を形成してもよい。 n_{211} は0または1を表す。 L^{211} は単結合、フェニレン基またはピフェニレン基を表し、 L^{211} のうち n_{211} で表される繰り返し単位と連結する側が p-フェニレン基であることはない。)

50

なお、化合物が一般式(1-1)または一般式(1-8)で表されるとき、該化合物はジベンゾチオフェン環もジベンゾフラン環も有さない。]

【請求項2】

前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれか中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ 、 $R^{A21} \sim R^{A25}$ および $R^{A31} \sim R^{A33}$ のうち1または2個が前記一般式(2)で表される基であることを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項3】

前記一般式(2)中、 n_{211} が1であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機電界発光素子。

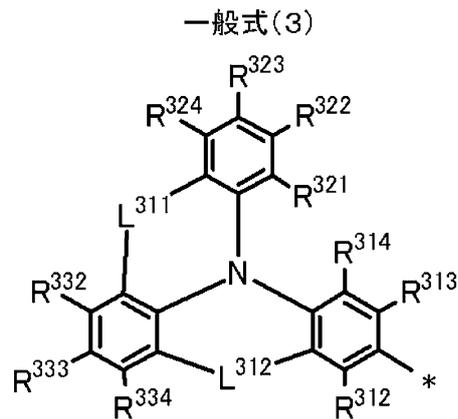
【請求項4】

前記一般式(2)中、 L^{211} が単結合であることを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【請求項5】

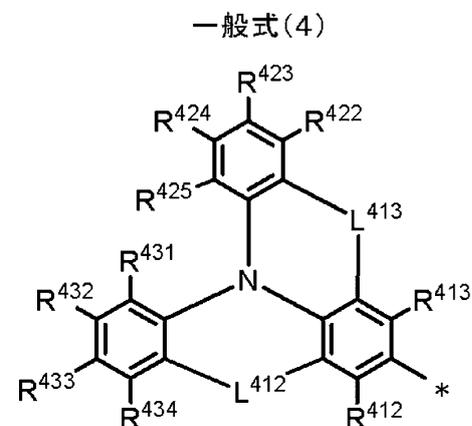
前記一般式(2)で表される基が、下記一般式(3)または一般式(4)で表される基であることを特徴とする請求項1～4のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【化3】



(一般式(3)において、 L^{311} 、 L^{312} はそれぞれ独立に単結合、 $C R^{511} R^{512}$ および $N R^{513}$ のいずれかを表す。 $R^{312} \sim R^{314}$ 、 $R^{321} \sim R^{324}$ 、 $R^{332} \sim R^{334}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基またはアルキル基を表し、 $R^{312} \sim R^{314}$ 、 $R^{321} \sim R^{324}$ 、 $R^{332} \sim R^{334}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ どうしが互いに結合して環を形成してもよい。)

【化4】



(一般式(4)において、 L^{411} 、 L^{412} はそれぞれ独立に単結合、 $C R^{511} R^{512}$ および $N R^{513}$ のいずれかを表す。 R^{412} 、 R^{413} 、 $R^{422} \sim R^{425}$ 、 $R^{431} \sim R^{435}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基またはアルキル基を表し、 R^{412} 、 R^{413} 、 R^{422}

~ R⁴²⁵、R⁴³¹ ~ R⁴³⁵ および R⁵¹¹ ~ R⁵¹³ とうしが互いに結合して環を形成してもよい。)

【請求項 6】

前記有機層が、前記燐光発光材料を含む発光層を有し、
該発光層が前記一般式(1-1) ~ 一般式(1-10)のいずれかで表される構造の化合物を含有することを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【請求項 7】

前記発光層にイリジウム(Ir)錯体を含有することを特徴とする請求項 6 に記載の有機電界発光素子。

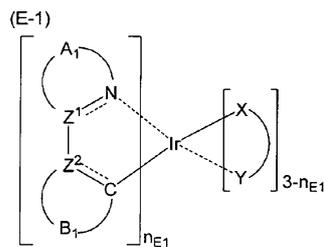
10

【請求項 8】

前記発光層に下記一般式(E-1)で表されるイリジウム(Ir)錯体を用いることを特徴とする請求項 6 または 7 に記載の有機電界発光素子。

一般式(E-1)

【化 5】



20

(一般式(E-1)中、Z¹及びZ²はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。A₁はZ¹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。B₁はZ²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。Z¹及びZ²はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。(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 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含むことを特徴とする発光装置。

30

【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含むことを特徴とする表示装置。

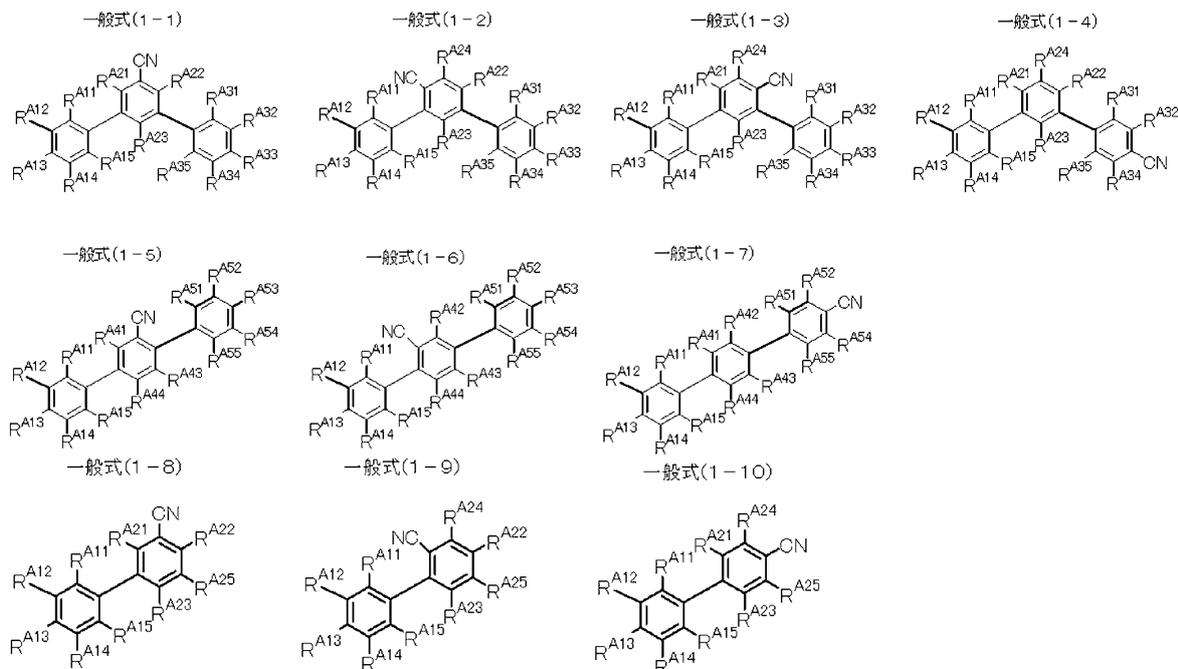
【請求項 11】

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含むことを特徴とする照明装置。

【請求項 12】

下記一般式(1-1) ~ 一般式(1-10)のいずれかで表される化合物。

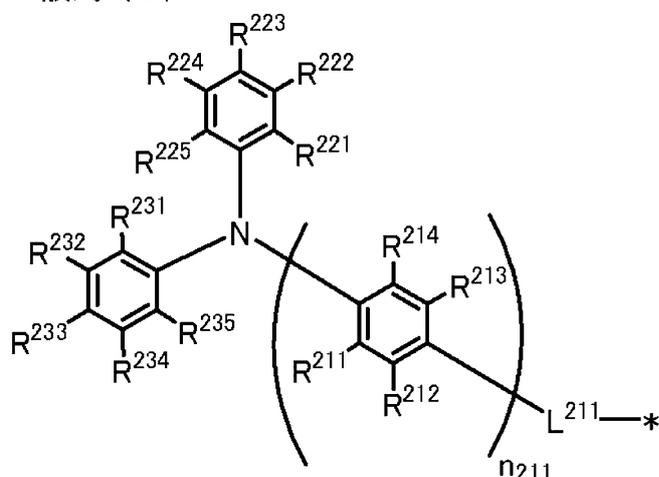
【化6】



〔(一般式(1-1)~一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基、アルキル基または下記一般式(2)で表される基を表し、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ の少なくとも一つは下記一般式(2)で表される基である。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基、アルキル基または下記一般式(2)で表される基を表す。一般式(1-8)~一般式(1-10)中の R^{A25} は、アルキル基、 $-\text{Si}R^{A61}R^{A62}R^{A63}$ 、シアノ基、または下記一般式(2)で表される基を表す。ただし、 R^{A25} が一般式(2)で表される基を表す場合は、 R^{A25} と R^{A23} が互いに結合して環構造を形成することはない。 $R^{A61} \sim R^{A63}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基、アルキル基またはアリール基を表す。ただし、シアノ基のオルト位2つが同時にアリール基となることはない。)

【化7】

一般式(2)



(一般式(2)中、*は結合位置を表す。 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ はそれぞれ独立に水素原子、アリール基またはアルキル基を表し、 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ どうしが互いに結合して環を形成してもよい。 n_{211} は0または1を表す。 L^{211} は単結合、置換されていてもよいフェニレン基、置換されていてもよいピフェニレン基、置換されていてもよいm-ターフェニレンまたは置換されていても

10

20

30

40

50

よい p - ターフェニレンを表す。)

なお、化合物が一般式(1-1)または一般式(1-8)で表されるとき、該化合物はジベンゾチオフェン環もジベンゾフラン環も有さない。]

【請求項13】

請求項12に記載の化合物からなることを特徴とする有機電界発光素子用材料。

【請求項14】

請求項12に記載の化合物からなることを特徴とする電荷輸送材料。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は化合物、有機電界発光素子用材料、電荷輸送材料、有機電界発光素子、発光装置、表示装置および照明装置に関する。

【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、一対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。

【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し、単環の芳香環の個数が5個以下であるベンゾニトリル系電荷輸送材料の使用が特許文献1に記載されている。特許文献1には一部にベンゾニトリルのメタ位にもフェニル基などの置換基を有する化合物や、またその他にジアリールアミノ基を置換基として有するフェニル基を有する化合物などが記載されている。

特許文献2には、シアノ基を置換基として有するメタキルクフェニル構造の化合物が記載されている。特許文献2には、シアノ基を置換基として有するメタキルクフェニル構造の化合物がアリール基を置換基として有していてもよいことが記載されているが、該アリール基がさらにジアリールアミノ基を置換基として有する構造や、ジアリールアミノ基をメタキルクフェニル構造に直接置換基として有する構造については記載がない。

【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2011-233603号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明者らが検討したところ、特許文献1に記載の従来素子では、駆動電圧が高過ぎであり、耐久性にも問題があることが明らかになった。また、特許文献2に記載の化合物を使用した素子は、発光効率が悪いか、駆動電圧が高過ぎるか、耐久性が低いことが明らかになった。すなわち、これまでに報告されている化合物を使用した素子は、いずれも発光効率が悪いか、駆動電圧が高過ぎるか、耐久性が低いという問題点があった。

【0006】

すなわち、本発明の目的は、発光効率が良い、低駆動電圧であり、耐久性が良い有機電界発光素子を提供することである。

【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、特定のベンゾニトリル構造にフェニル基を有し、かつ、特定のアミン構造を有する化合物をりん光発光素子に用いることで、低駆動電圧であり、耐

10

20

30

40

50

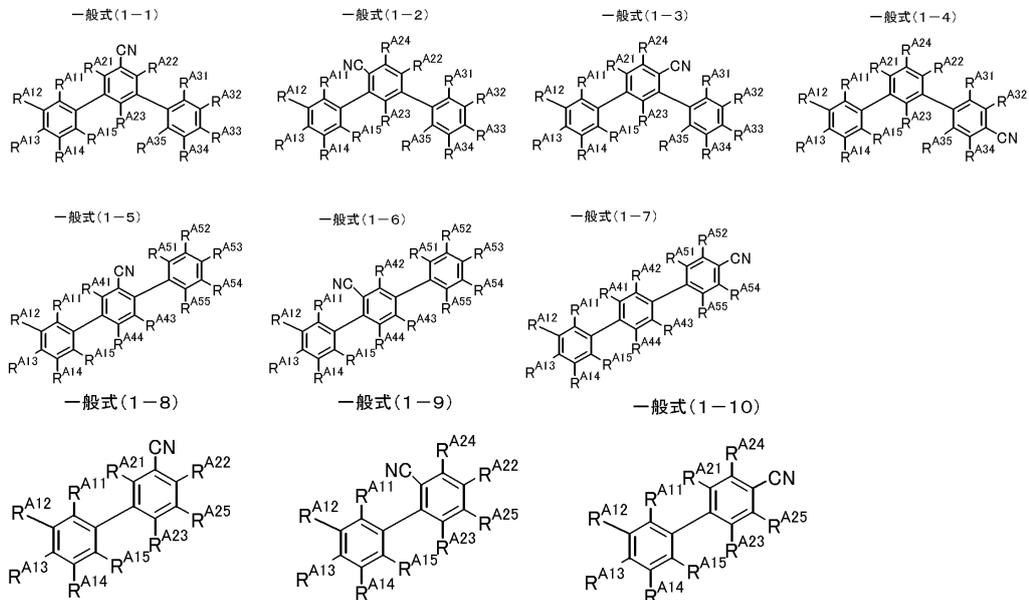
久性が良好である有機電界発光素子が提供されることを見出した。

【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。

[1] 基板と、該基板上に配置され、陽極及び陰極を含む一对の電極と、該電極間に配置された有機層とを有し、前記有機層が、下記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【化1】

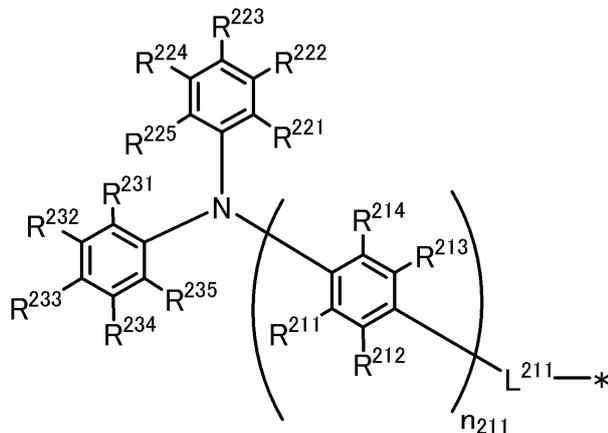


[(一般式(1-1)~一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、置換基または下記一般式(2)で表される基を表し、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ の少なくとも一つは下記一般式(2)で表される基である。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。一般式(1-8)~一般式(1-10)中の R^{A25} は、アルキル基、 $-SiR^{A61}R^{A62}R^{A63}$ 、シアノ基、または下記一般式(2)で表される基を表す。 $R^{A61} \sim R^{A63}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。ただし、シアノ基のオルト位2つが同時にアリール基となることはない。)]

30

【化2】

一般式(2)



(一般式(2)中、*は結合位置を表す。 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。 n_{211} は0または1を表す。 L^{211} は単結合、置換基を有していてもよいフェニレン基、置換基を有していてもよいビフェニレン基、置換基を有していてもよいm

50

-ターフェニレンまたは置換基を有していてもよいp-ターフェニレンを表す。)]

[2] [1]に記載の有機電界発光素子は、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ 、 $R^{A21} \sim R^{A25}$ および $R^{A31} \sim R^{A33}$ のうち1または2個が前記一般式(2)で表される基であることが好ましい。

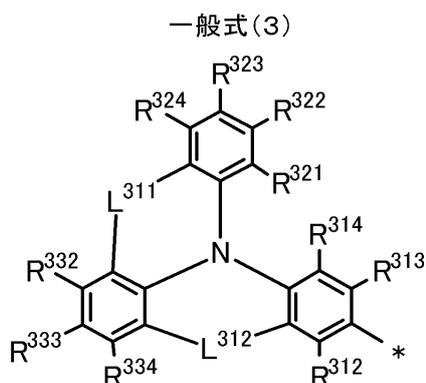
[3] [1]または[2]に記載の有機電界発光素子は、前記一般式(2)中、 n_{211} が1であることが好ましい。

[4] [1]~[3]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子は、前記一般式(2)中、 L^{211} が単結合であることが好ましい。

[5] [1]~[4]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子は、前記一般式(2)で表される基が、下記一般式(3)または一般式(4)で表される基であることが好ましい。

10

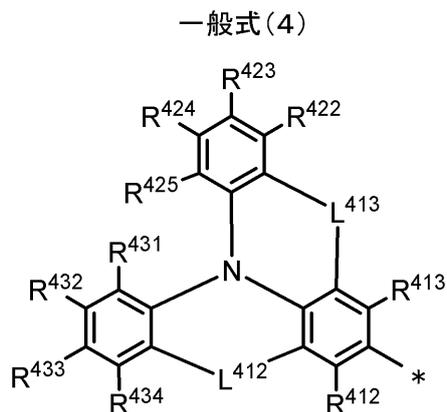
【化3】



20

(一般式(3)において、 L^{311} 、 L^{312} はそれぞれ独立に単結合、 $C R^{511} R^{512}$ および $N R^{513}$ のいずれかを表す。 $R^{312} \sim R^{314}$ 、 $R^{321} \sim R^{324}$ 、 $R^{332} \sim R^{334}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。)

【化4】



30

(一般式(4)において、 L^{411} 、 L^{412} はそれぞれ独立に単結合、 $C R^{511} R^{512}$ および $N R^{513}$ のいずれかを表す。 R^{412} 、 R^{413} 、 $R^{422} \sim R^{425}$ 、 $R^{431} \sim R^{435}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。)

40

[6] [1]~[5]のいずれか一項に記載の有機電界発光素子は、前記有機層が、前記燐光発光材料を含む発光層を有し、該発光層が前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される構造の化合物を含有することが好ましい。

[7] [6]に記載の有機電界発光素子は、前記発光層にイリジウム(Ir)錯体を含有することが好ましい。

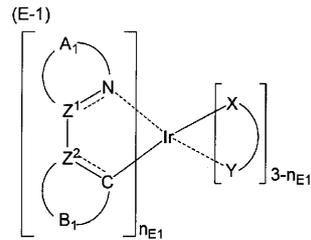
[8] [6]または[7]に記載の有機電界発光素子は、前記発光層に下記一般式(E

50

- 1) で表されるイリジウム (I r) 錯体を用いることが好ましい。

一般式 (E - 1)

【化 5】



(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。 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。($X - Y$) 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。)

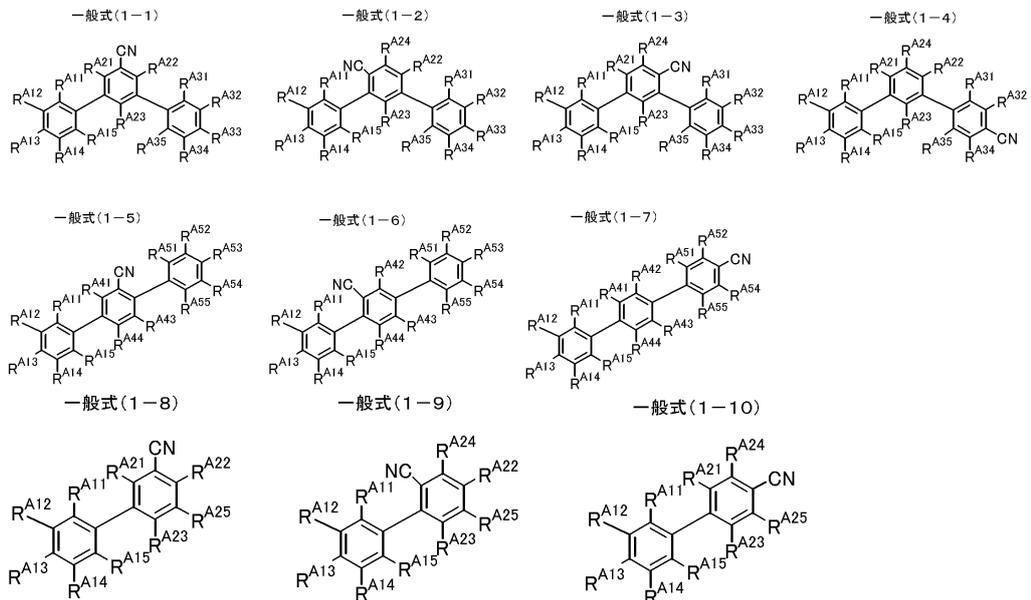
【 9 】 【 1 】 ~ 【 8 】 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を含むことを特徴とする発光装置。

【 10 】 【 1 】 ~ 【 8 】 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を含むことを特徴とする表示装置。

【 11 】 【 1 】 ~ 【 8 】 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を含むことを特徴とする照明装置。

【 12 】 下記一般式 (1 - 1) ~ 一般式 (1 - 10) のいずれかで表される化合物。

【化 6】



[(一般式 (1 - 1) ~ 一般式 (1 - 10) 中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、置換基または下記一般式 (2) で表される基を表し、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ の少なくとも一つは下記一般式 (2) で表される基である。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。一般式 (1 - 8) ~ 一般式 (1 - 10) 中の R^{A25} は、アルキル基、 $-SiR^{A61}R^{A62}R^{A63}$ 、シアノ基、または下記一般式 (2) で表される基を表す。 $R^{A61} \sim R^{A63}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。ただし、シアノ基のオルト位 2 つが同時にアリール基となることはない。)

10

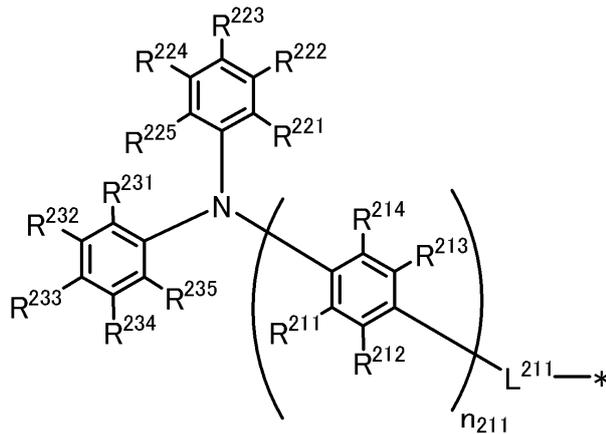
20

30

40

【化 7】

一般式 (2)



10

(一般式(2)中、*は結合位置を表す。R²¹¹~R²¹⁴、R²²¹~R²²⁵およびR²³¹~R²³⁵はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。n₂₁₁は0または1を表す。L²¹¹は単結合、置換基を有していてもよいフェニレン基、置換基を有していてもよいピフェニレン基、置換基を有していてもよいm-ターフェニレンまたは置換基を有していてもよいp-ターフェニレンを表す。)

[13] [12]に記載の化合物からなることを特徴とする有機電界発光素子用材料。

20

[14] [12]に記載の化合物からなることを特徴とする電荷輸送材料。

【発明の効果】

【0009】

本発明によれば、発光効率が良好であり、低駆動電圧であり、耐久性が良好である有機電界発光素子を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0010】

【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。

30

【図4】本発明の化合物1-1-13の¹H-NMRスペクトル図である。

【図5】本発明の化合物1-1-1の¹H-NMRスペクトル図である。

【図6】本発明の化合物1-1-4の¹H-NMRスペクトル図である。

【図7】本発明の化合物1-1-16の¹H-NMRスペクトル図である。

【発明を実施するための形態】

【0011】

以下において、本発明の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施態様に限定されるものではない。尚、本願明細書において「~」とはその前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用される。

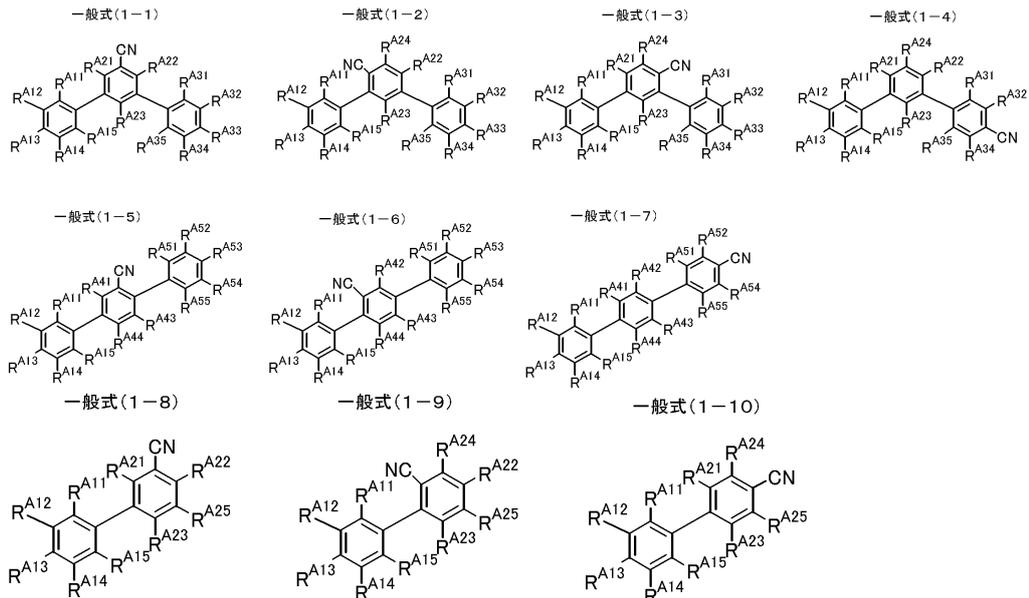
40

【0012】

【化合物】

本発明の化合物は、下記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される構造であることを特徴とする。

【化8】



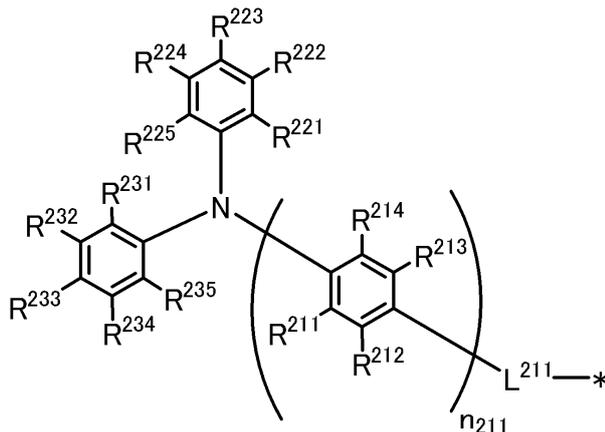
10

〔(一般式(1-1)~一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、置換基または下記一般式(2)で表される基を表し、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ の少なくとも一つは下記一般式(2)で表される基である。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。一般式(1-8)~一般式(1-10)中の R^{A25} は、アルキル基、 $-\text{Si}R^{A61}R^{A62}R^{A63}$ 、シアノ基、または下記一般式(2)で表される基を表す。 $R^{A61} \sim R^{A63}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。ただし、シアノ基のオルト位2つが同時にアリアル基となることはない。)

20

【化9】

一般式(2)



30

〔(一般式(2)中、*は結合位置を表す。 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。 n_{211} は0または1を表す。 L^{211} は単結合、置換基を有していてもよいフェニレン基、置換基を有していてもよいピフェニレン基、置換基を有していてもよいm-ターフェニレンまたは置換基を有していてもよいp-ターフェニレンを表す。)]

40

本発明の化合物はこのような構成を有することで、いかなる理論に拘泥するものでもないが、有機電界発光素子用材料として用いたときに発光効率が良好な上、特定のベンゾニトリル構造及び特定のアミン構造を有することにより劇的な低電圧化と耐久性向上ができる。

発光効率の向上は、このような構造の化合物はLUMO拡張および分子間でのLUMOの重なり増大が起こり、電子授受の効率が向上したためと考えられる。また、縮環構造又はトリアリアルアミン構造などの特定のアミン構造を持たせることで、発光層への正孔注

50

入性正孔輸送性が向上し、効率が改善されると考えている。

低駆動電圧化は、電子親和力の増大によるものと推定している。

本発明の特定のベンゾニトリル構造は特に高耐久化に効果がある。その理由としては、いかなる理論に拘泥するものでもないが、ベンゾニトリル部位は電子受容性が高いために素子駆動時に求電子攻撃を受けやすいと考えられ、ベンゾニトリル部位のベンゼン環に立体障害基（本発明の場合、シアノ基、フェニル基、その他の置換基が相当する）を有することで、該立体障害基のオルト位の反応性が劇的に低下し、その結果耐久性が向上すると考えられる。逆にオルト位に置換基がない部分は反応性が高く、耐久性が悪いと考えている。

本発明の特定のベンゾニトリル構造はシアノ基のオルト位2つが同時にアリール基となることはない。シアノ基のオルト位2つが同時にアリール基があると、電圧が高くなる、及び/または耐久性が低下する。この理由としては、電子輸送部位の立体障害が大きすぎるため電子輸送能が低下し電圧が高くなりやすく、また、電子輸送能の低下により電子移動度が低下し、その結果アニオン状態からの分解が起こりやすくなるため耐久性が低下したものと考えられる。

【0013】

さらに本発明の化合物は、電化輸送材料としても好適に用いられる。

前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物や電荷輸送材料は、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。

本発明の化合物や電荷輸送材料は、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含有する薄膜にも用いることができる。該薄膜は、前記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。

【0014】

以下、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の好ましい範囲について説明する。

なお、本発明において、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)の説明における水素原子は同位体（重水素原子等）も含み、また更に置換基を構成する原子は、その同位体も含んでいることを表す。

本発明において、「置換基」というとき、その置換基は置換されていてもよい。例えば、本発明で「アルキル基」と言う時、フッ素原子で置換されたアルキル基（例えばトリフルオロメチル基）やアリール基で置換されたアルキル基（例えばトリフェニルメチル基）なども含むが、「炭素数1～6のアルキル基」と言うとき、置換されたものも含めた全ての基として炭素数が1～6であることを示す。

【0015】

一般式(1-1)～一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、置換基または一般式(2)で表される基を表し、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ の少なくとも一つは一般式(2)で表される基である。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す。一般式(1-8)～一般式(1-10)中の R^{A25} は、アルキル基、 $-SiR^{A61}R^{A62}R^{A63}$ 、シアノ基、または一般式(2)で表される基を表す。ただし、シアノ基のオルト位2つが同時にアリール基となることはない。

一般式(1-1)～一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ はそれぞれ独立に水素原子、置換基または一般式(2)で表される基を表す。

$R^{A11} \sim R^{A15}$ のうち少なくとも一つは一般式(2)で表される基であり、それ以外は水素原子、後述する置換基群Aで表される基が挙げられ、水素原子、アルキル基、アリール

10

20

30

40

50

基、シアノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シアノ基であることがより好ましく、水素原子であることがさらに好ましい。

【0016】

一般式(1-1)～一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ のうち前記一般式(2)で表される基とは異なる置換基は0～2個であることが好ましく、0または1個であることが好ましく、0個であることが特に好ましい。

一般式(1-1)～一般式(1-10)中、 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ 、 R^{A61} 、 R^{A62} 、 R^{A63} はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、置換基としては後述する置換基群Aで表される基が挙げられる。水素原子、アルキル基、シアノ基、アリール基であることが好ましく、水素原子、シアノ基、アリール基であることがより好ましく、水素原子、シアノ基、アリール基であることがさらに好ましい。ただし、一つのベンゼン環に置換するシアノ基は0～2個が好ましく、0または1個がより好ましく、シアノ基が置換されたベンゼン環は一つであることがさらに好ましい。 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ はシアノ基でない場合は、水素原子、アリール基が好ましく、水素原子がより好ましい。

R^{A61} 、 R^{A62} 、 R^{A63} は、それぞれ独立に水素原子または置換基を表し、アルキル基、アリール基が好ましく、アルキル基がより好ましい。

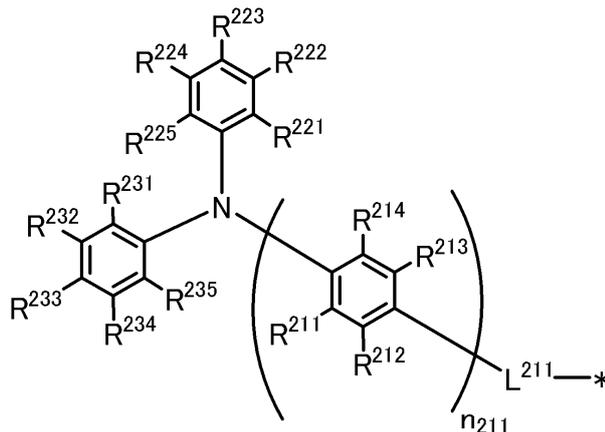
一般式(1-1)～一般式(1-10)中、 $R^{A11} \sim R^{A15}$ 、 $R^{A21} \sim R^{A25}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ および $R^{A61} \sim R^{A63}$ の表す各置換基の好ましい範囲は、後述の置換基群Aの説明中における各置換基の好ましい範囲と同様である。

【0017】

一般式(1-1)～一般式(1-10)中、 $R^{A21} \sim R^{A24}$ 、 $R^{A31} \sim R^{A35}$ 、 $R^{A41} \sim R^{A45}$ 、 $R^{A51} \sim R^{A55}$ 、 R^{A61} 、 R^{A62} 、 R^{A63} のうち0～4個が下記一般式(2)で表される基であり、0～3個が下記一般式(2)で表される基であることがより好ましく、0または1個が下記一般式(2)で表される基であることが特に好ましい。

【化10】

一般式(2)



【0018】

一般式(2)中、*は結合位置を表す。下記一般式(2)で表される基の結合位置は特に制限はないが、 R^{A12} または R^{A13} であることが耐久性の観点から好ましく、 R^{A13} であることがより好ましい。

【0019】

一般式(2)中、 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。

一般式(2)中、 $R^{211} \sim R^{214}$ が表す置換基としては特に制限はないが、置換基群Aで表される基が挙げられる。

R^{212} および R^{213} は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基であることが好ましく、いずれも水素原子であることがより好ましい。

R^{211} は、水素原子であるか、 R^{235} と互いに結合して環を形成することが好ましい。但し、 R^{211} が R^{235} と互いに結合して環を形成する場合、 R^{211} が置換している炭素原子と R^{235} が置換している炭素原子とが単結合、 $CR^{511}R^{512}$ 、 NR^{513} 、 $SiR^{514}R^{515}$ で結合する($R^{511} \sim R^{515}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す)。

同様に、 R^{214} は、水素原子であるか、 R^{221} と互いに結合して環を形成することが好ましい。但し、 R^{214} が R^{221} と互いに結合して環を形成する場合、 R^{214} が置換している炭素原子と R^{221} が置換している炭素原子とが単結合、 $CR^{511}R^{512}$ 、 NR^{513} 、 $SiR^{514}R^{515}$ で結合する。

【0020】

前記炭素原子上の置換基 R^{511} および R^{512} が表す置換基としては、以下の置換基群Aを挙げることができる。

【0021】

《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、n-プロピル、イソプロピル、t-ブチル、n-ヘキシル、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6~14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、フェニルアミノ、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

10

20

30

40

50

1 ~ 12 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数 0 ~ 30、より好ましくは炭素数 0 ~ 20、特に好ましくは炭素数 0 ~ 12 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばカルバモイル、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)、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(芳香族ヘテロ環基も包含し、好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、リン原子、ケイ素原子、セレン原子、テルル原子であり、具体的にはピリジル、ピラジニル、ピリミジル、ピリダジニル、ピロリル、ピラゾリル、トリアゾリル、イミダゾリル、オキサゾリル、チアゾリル、イソキサゾリル、イソチアゾリル、キノリル、フリル、チエニル、セレノフェニル、テルロフェニル、ピペリジル、ピペリジノ、モルホリノ、ピロリジル、ピロリジノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル基、アゼピニル基、シロリル基などが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数 3 ~ 40、より好ましくは炭素数 3 ~ 30、特に好ましくは炭素数 3 ~ 24 であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)、シリルオキシ基(好ましくは炭素数 3 ~ 40、より好ましくは炭素数 3 ~ 30、特に好ましくは炭素数 3 ~ 24 であり、例えばトリメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。)、ホスホリル基(例えばジフェニルホスホリル基、ジメチルホスホリル基などが挙げられる。))が挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよく、更なる置換基としては、以上に説明した置換基群 A から選択される基を挙げることができる。

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、ヘテロアリール基、ジアルキルアミノ基、ジアアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子であり、アルキル基またはアリール基がより好ましく、メチル基またはフェニル基が特に好ましい。

【0022】

前記窒素原子上の置換基 R^{513} が表す置換基としては、以下の置換基群 B を挙げることができる。

《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

10

20

30

40

50

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。)、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。)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、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

R^{513} が表す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、アリール基がより好ましく、フェニル基またはフェニル基で置換されたフェニル基(ビフェニル基)が特に好ましい。

20

【0023】

前記ケイ素原子上の置換基 R^{514} および R^{515} が表す置換基の好ましい範囲は、前記炭素原子上の置換基 R^{511} および R^{512} が表す置換基の好ましい範囲と同様である。

【0024】

一般式(2)中、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ が表す置換基としては特に制限はないが、置換基群Aで表される基などを挙げることができる。

$R^{222} \sim R^{224}$ および $R^{232} \sim R^{234}$ は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基であることが好ましく、水素原子またはアリール基であることがより好ましい。

R^{221} は、水素原子であるか、 R^{214} と互いに結合して環を形成することが好ましい。

R^{215} は、水素原子であるか、 R^{231} と互いに結合して環を形成することが好ましい。但し、 R^{215} が R^{231} と互いに結合して環を形成する場合、 R^{215} が置換している炭素原子と R^{231} が置換している炭素原子とが単結合、 $CR^{511}R^{512}$ 、 NR^{513} 、 $SiR^{514}R^{515}$ で結合する($R^{511} \sim R^{515}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表す)。

30

R^{235} は、水素原子であるか、 R^{211} と互いに結合して環を形成することが好ましい。

一般式(2)中、 $R^{211} \sim R^{214}$ 、 $R^{221} \sim R^{225}$ および $R^{231} \sim R^{235}$ の表す各置換基の好ましい範囲は、前記置換基群Aの説明中における各置換基の好ましい範囲と同様である。

【0025】

一般式(2)中、 n_{211} は0または1を表す。 n_{211} は1であることが、緑りん光の有機電界発光素子に用い場合は好ましい。また、 n_{211} は0であることが、赤りん光の有機電界発光素子に用いる観点からは好ましい。

40

【0026】

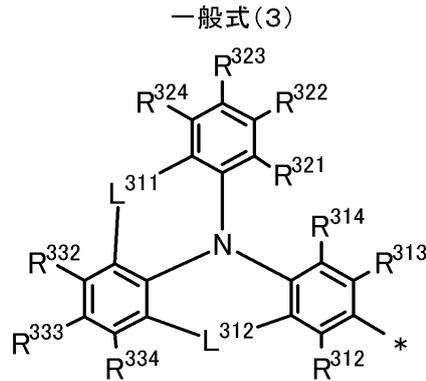
一般式(2)中、 L^{211} は単結合、フェニレン基、ビフェニレン基、m-ターフェニレン、p-ターフェニレンを表す。

L^{211} は単結合またはフェニレン基、ビフェニレン基であることが好ましく、フェニレン基、単結合であることがより好ましく、単結合であることがさらに好ましい。

【0027】

本発明の化合物は、前記一般式(2)で表される基が、下記一般式(3)または一般式(4)で表される基であることが好ましい。

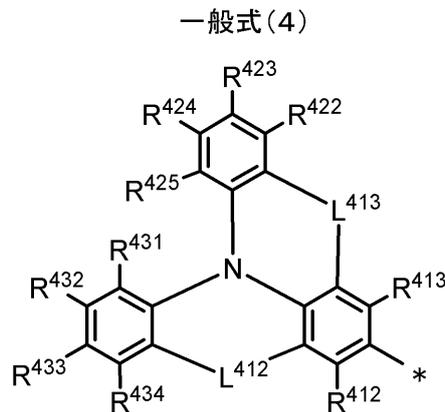
【化 1 1】



10

(一般式(3)において、 L^{311} 、 L^{312} はそれぞれ独立に単結合、 $C R^{511} R^{512}$ および $N R^{513}$ のいずれかを表す。 $R^{312} \sim R^{314}$ 、 $R^{321} \sim R^{324}$ 、 $R^{332} \sim R^{334}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。)

【化 1 2】



20

(一般式(4)において、 L^{411} 、 L^{412} はそれぞれ独立に単結合、 $C R^{511} R^{512}$ および $N R^{513}$ のいずれかを表す。 R^{412} 、 R^{413} 、 $R^{422} \sim R^{425}$ 、 $R^{431} \sim R^{435}$ および $R^{511} \sim R^{513}$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、該置換基どうしが互いに結合して環を形成してもよい。)

30

【0028】

一般式(3)および(4)中、 $R^{511} \sim R^{513}$ の好ましい範囲は、一般式(2)における $R^{511} \sim R^{513}$ の好ましい範囲と同様である。

一般式(3)および(4)中、 R^{312} 、 R^{313} 、 R^{412} および R^{413} の好ましい範囲は、一般式(2)における R^{212} および R^{213} の好ましい範囲と同様である。

一般式(3)および(4)中、 R^{314} 、 R^{321} 、 R^{425} および R^{431} が表す置換基としては特に制限はないが、置換基群Aで表される基が挙げられる。

40

R^{314} 、 R^{321} 、 R^{425} および R^{431} は、それぞれ独立に水素原子であることが好ましい。

一般式(3)および(4)中、 $R^{322} \sim R^{324}$ 、 $R^{332} \sim R^{334}$ 、 $R^{422} \sim R^{424}$ および $R^{432} \sim R^{434}$ の好ましい範囲は、一般式(2)における $R^{322} \sim R^{324}$ および $R^{332} \sim R^{334}$ の好ましい範囲と同様である。

【0029】

発光材料が緑色光を発する燐光材料である場合、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物中、前記環員が炭素原子または窒素原子であって環員数が6の単環の芳香環はパラ位で連結する個数は3個以下であることが好ましい。例えば、p-ターフェニレン基構造の末端に、さらに環員が炭素原子または窒素原子であって環員数が6の単環の芳香環(ベンゼン環など)が連結する場合は、メタ位で連結することが好ま

50

しい。発光材料が赤色光を発する燐光材料である場合は、前記環員が炭素原子または窒素原子であって環員数が6の単環の芳香環はパラ位で連結する個数は5個以下であることが好ましく、4個以下であることがより好ましい。

【0030】

前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物は、さらに有機電界発光素子の有機層に用いる場合において、その有機層のどの機能層に用いるかによってさらに好ましい構造が異なる。前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物のさらに好ましい構造については、本発明の有機電界発光素子の説明において後述する。

【0031】

発光材料が緑色光を発する燐光材料である場合、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の膜状態での T_1 エネルギーは、56 kcal/mol以下であることが好ましく、57 kcal/mol以上70 kcal/mol以下であることがより好ましく、58 kcal/mol以上66 kcal/mol以下であることが更に好ましい。発光材料が赤色光を発する燐光材料である場合、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の膜状態での T_1 エネルギーは、47 kcal/mol以上80 kcal/mol以下であることが好ましく、48 kcal/mol以上70 kcal/mol以下であることがより好ましく、49 kcal/mol以上66 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。

【0032】

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。

【0033】

本発明の電荷輸送材料では、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の分子量は、1000以下であることが好ましく、500~1000であることがより好ましく、600~900であることが特に好ましい。分子量をこの範囲とすることで、膜質が良好で、昇華精製・蒸着適性に優れた材料が得られる。特に、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の分子量が600~1000であることが、蒸着適性の観点から好ましい。

【0034】

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(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物のガラス転移温度(T_g)は80以上400以下であることが好ましく、100以上400以下であることがより好ましく、120以上400以下であることが更に好ましい。

【0035】

一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれか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(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表され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(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の面積比は、好ましくは99.00%以上であり、より好ましくは99.50%以上であり、特に好ましくは99.90%以上であり、最も好ましくは99.9%以上である。

【0036】

10

20

30

40

50

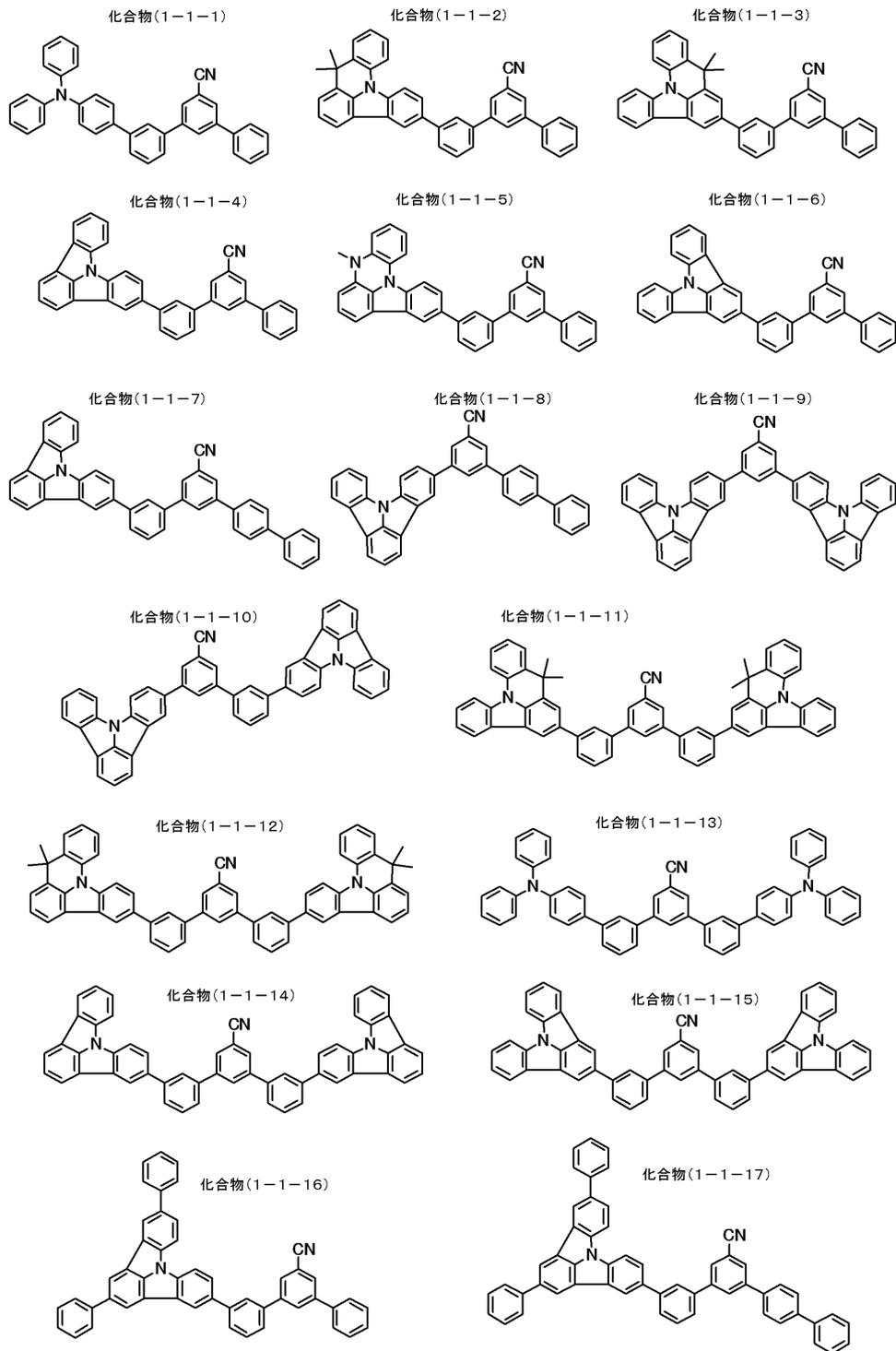
国際公開第2008/117889号に記載のカルバゾール系材料で知られているように、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の水素原子の一部又は全部を重水素原子で置換した材料も好ましく電荷輸送材料として用いることができる。

【0037】

一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれか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。

【0038】

【化13】



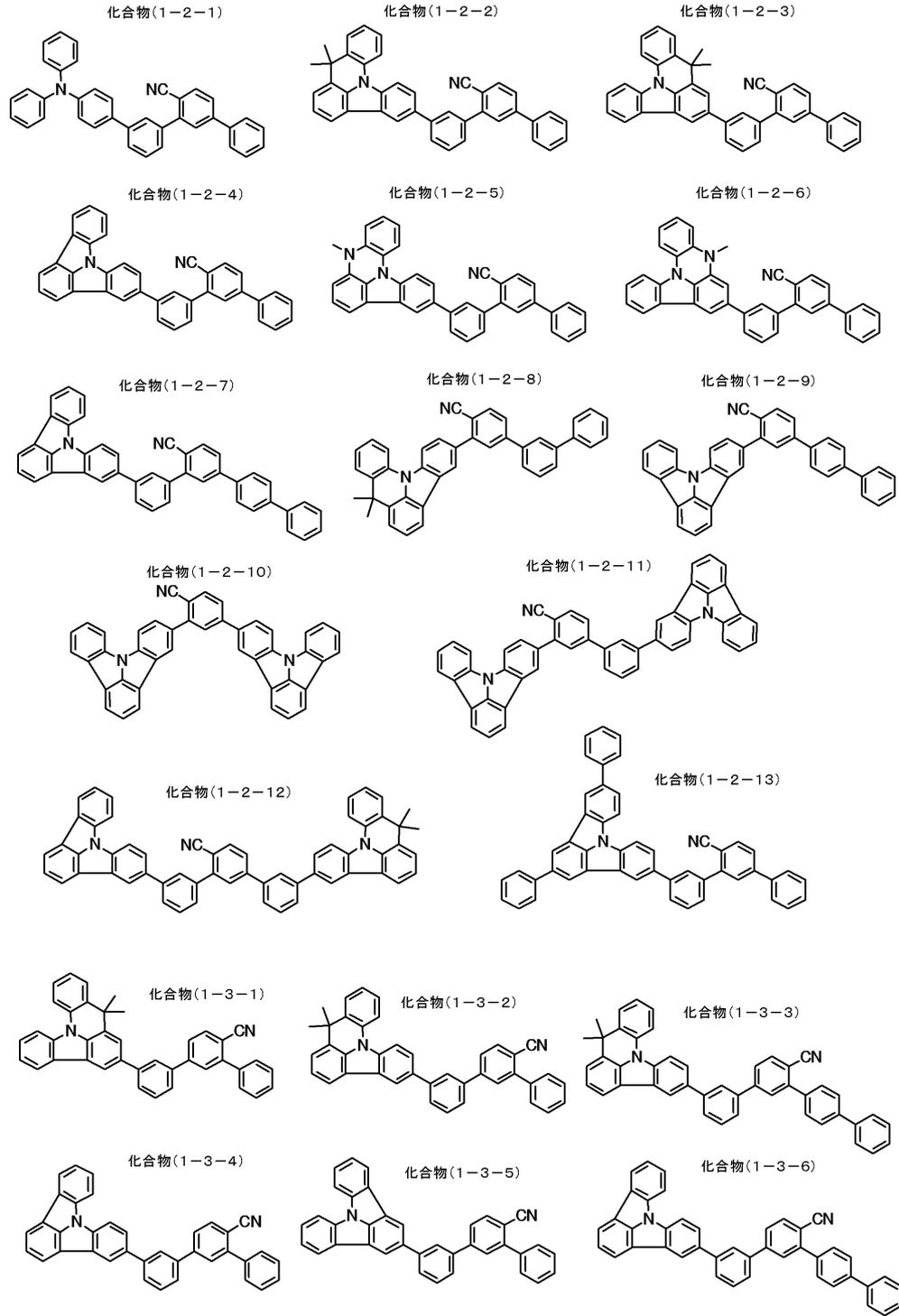
10

20

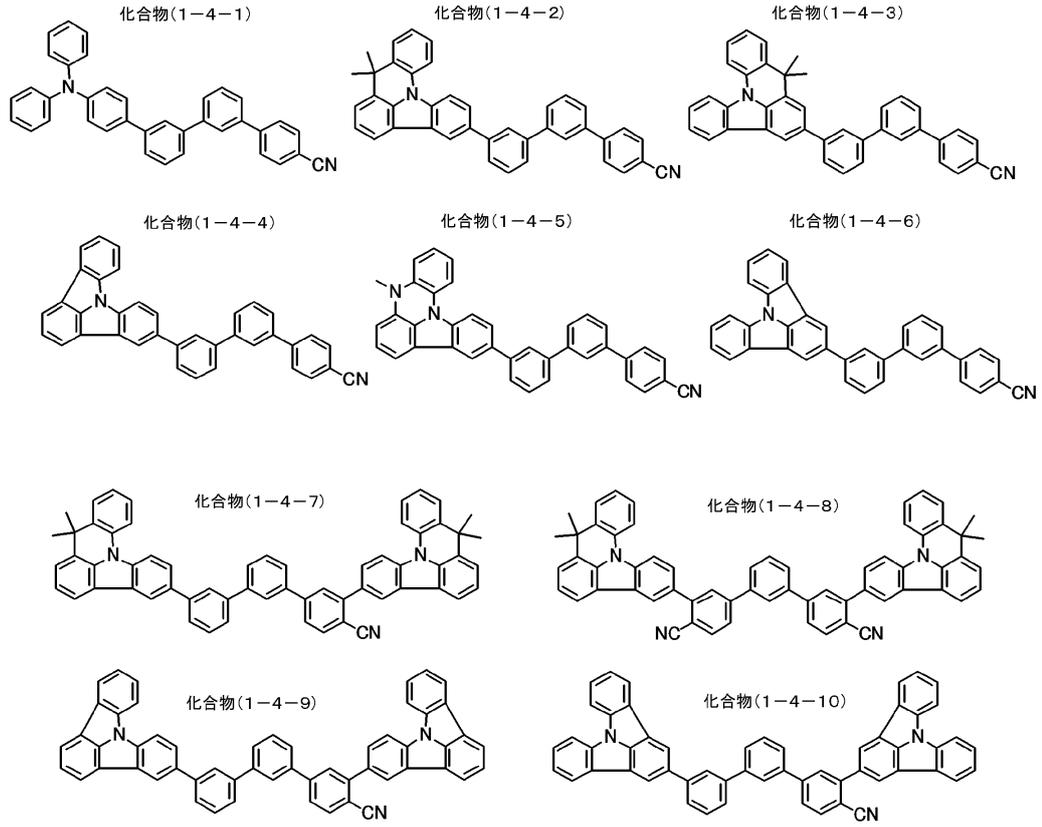
30

40

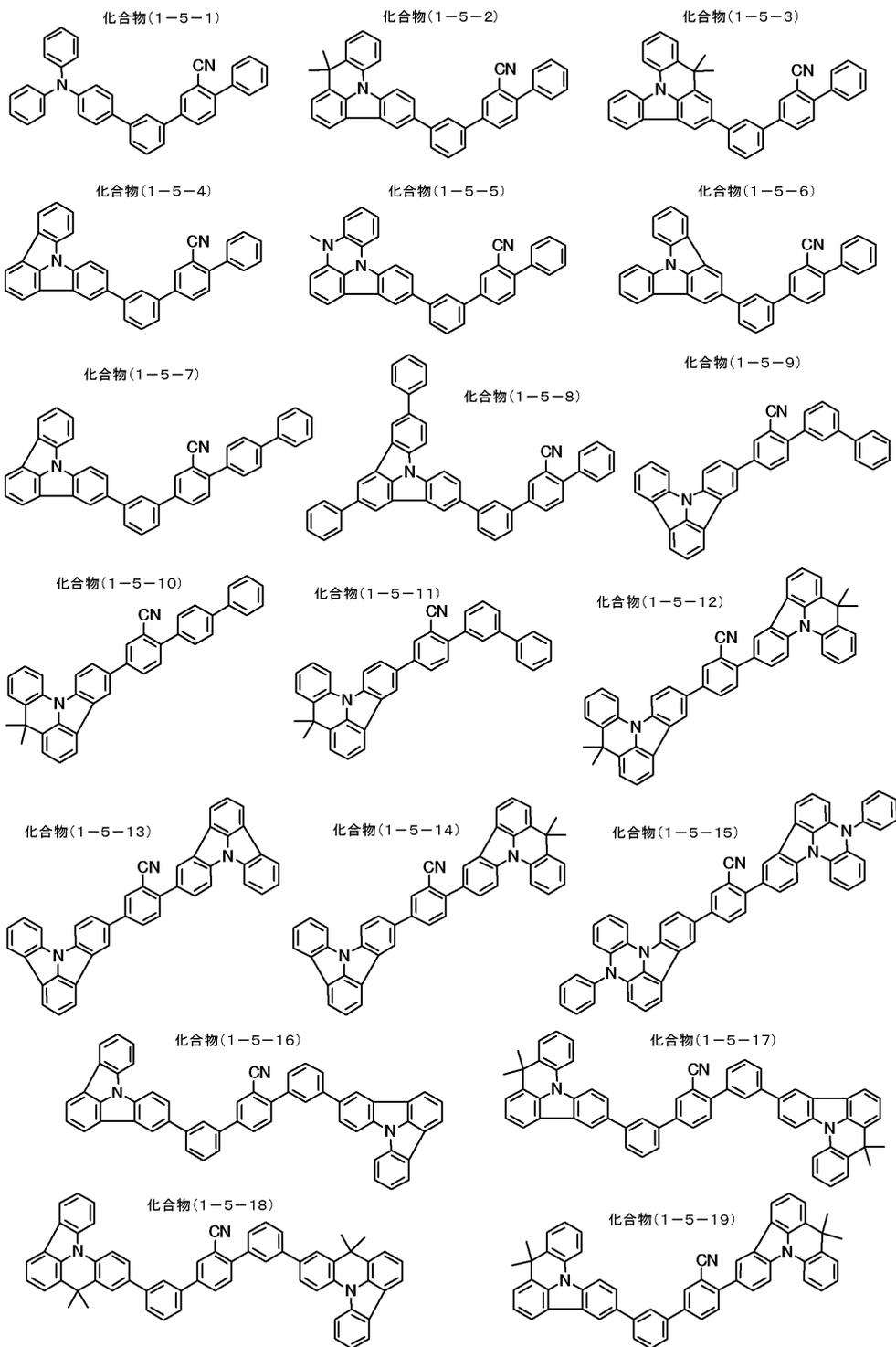
【化 1 4】



【化 1 5】



【化 1 6】



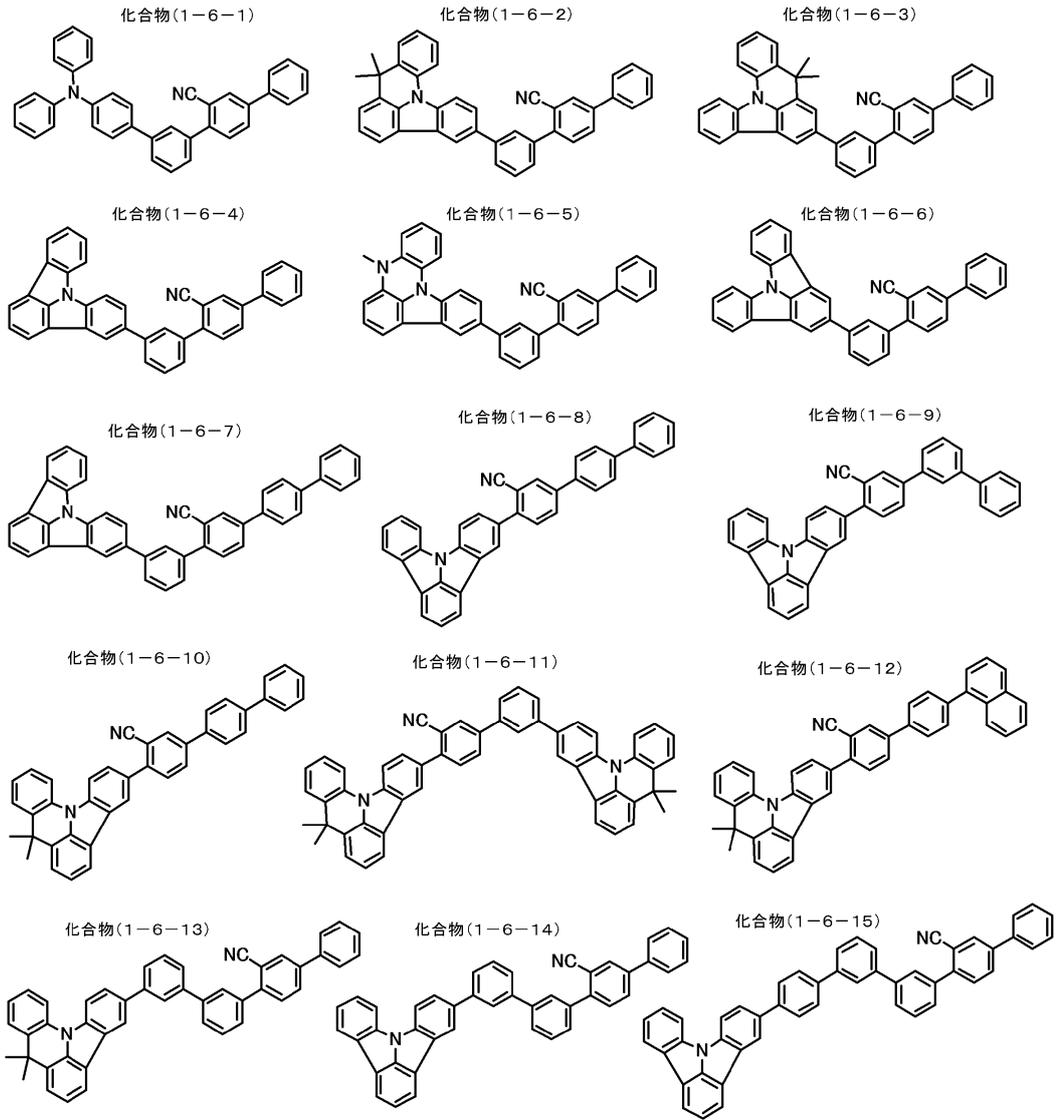
10

20

30

40

【化 17】

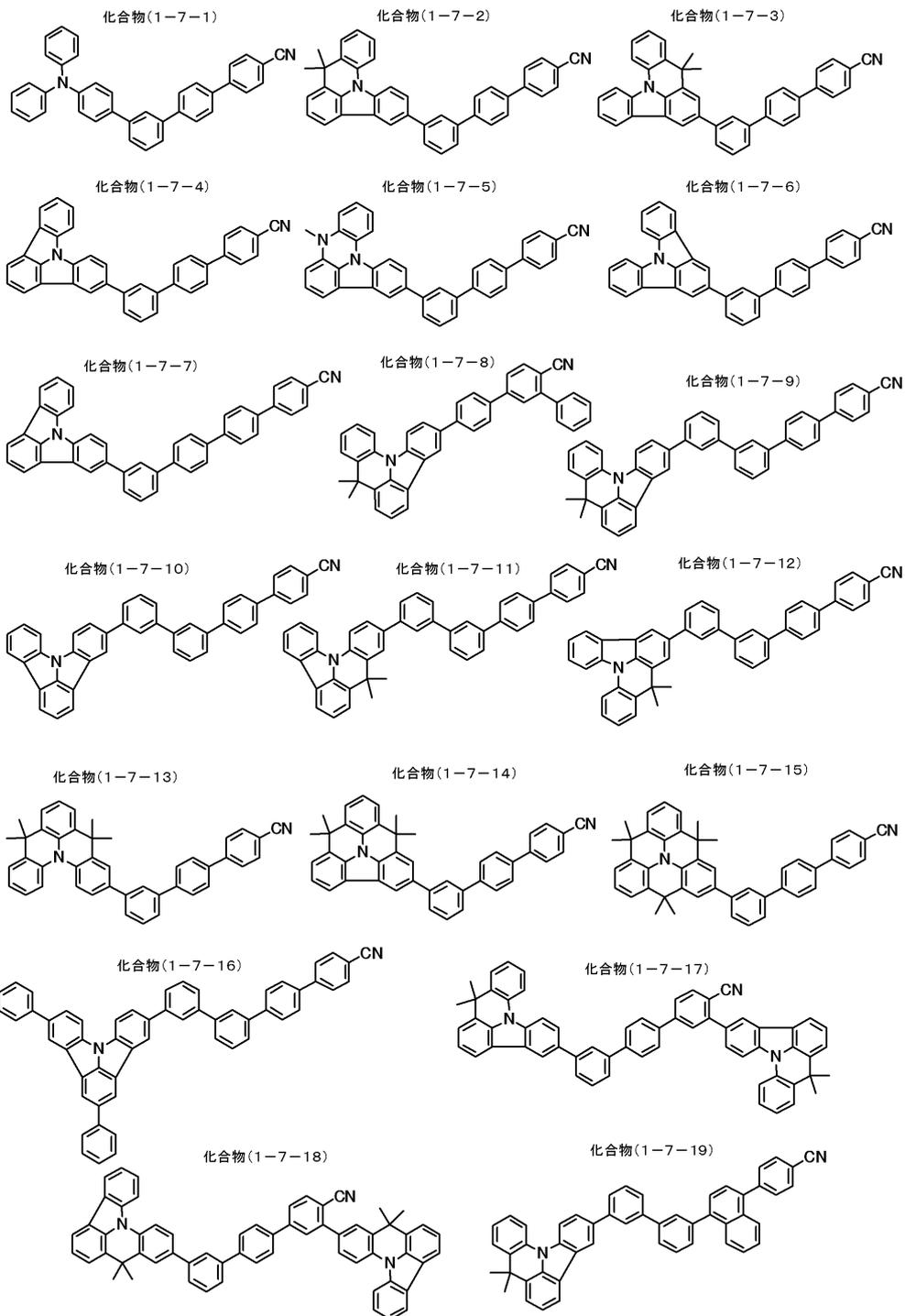


10

20

30

【化 1 8】

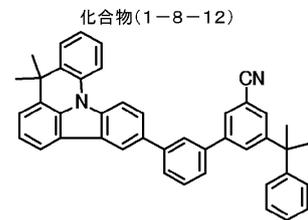
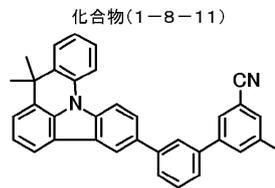
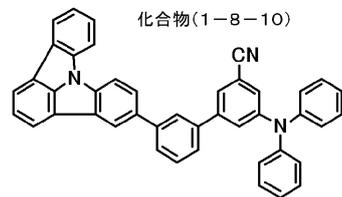
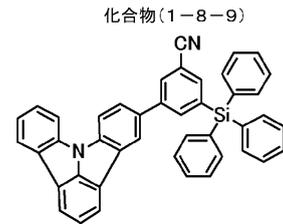
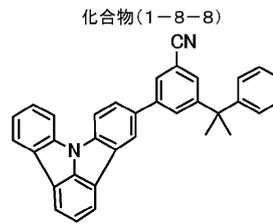
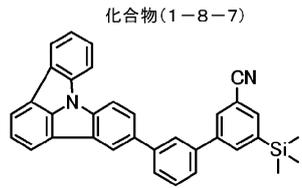
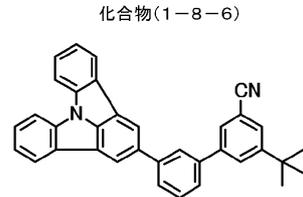
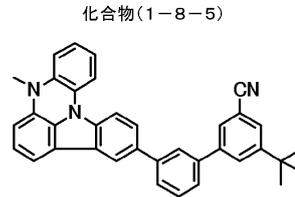
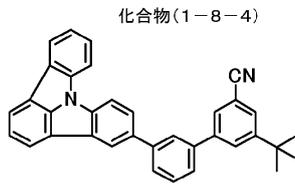
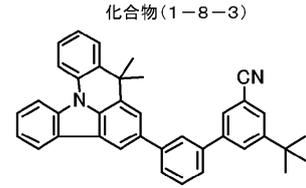
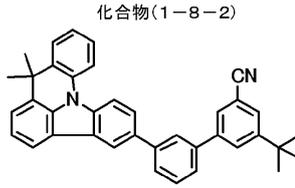
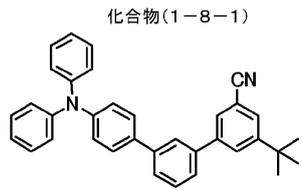


10

20

30

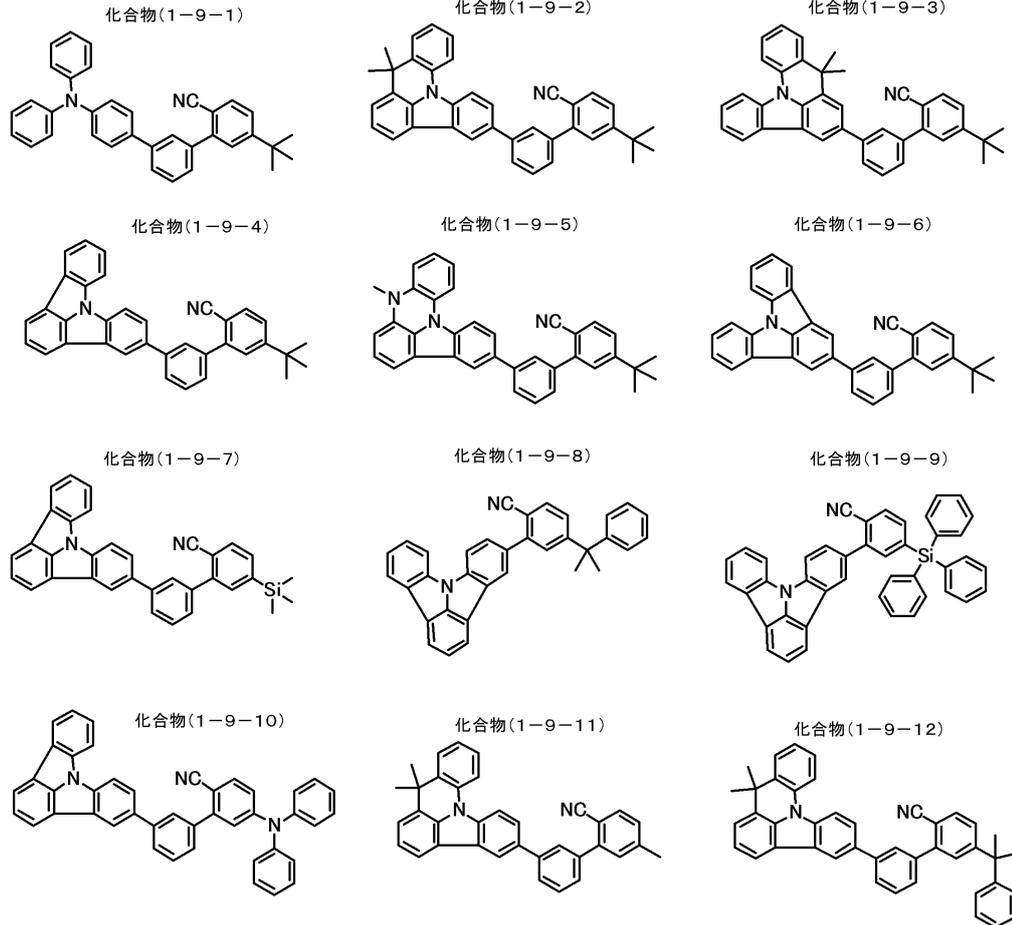
【化 1 9】



10

20

【化20】



10

20

【0039】

上記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物は、特開2007-266598号公報、特開2011-233603号公報等に記載の方法や、その他公知の反応を組み合わせることで合成できる。

30

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。

【0040】

[有機電界発光素子]

本発明の有機電界発光素子は、基板と、該基板の上に配置され、陽極及び陰極を含む一対の電極と、該電極間に配置された有機層とを有し、前記有機層が、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする。

【0041】

本発明の有機電界発光素子の構成は、特に制限されることはない。図1に、本発明の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、一対の電極(陽極3と陰極9)の間に有機層を有する。

40

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。

以下、本発明の有機電界発光素子の好ましい態様について、基板、電極、有機層、保護層、封止容器、駆動方法、発光ピーク波長、用途の順で詳細に説明する。

【0042】

<基板>

50

本発明の有機電界発光素子は、基板を有する。

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

【0043】

<電極>

本発明の有機電界発光素子は、前記基板上に配置され、陽極及び陰極を含む一对の電極を有する。

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。

【0044】

(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。

【0045】

(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。

【0046】

<有機層>

本発明の有機電界発光素子は、前記電極間に配置された有機層を有し、前記有機層が、下記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする。前記有機層が、燐光発光材料と前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含むことが好ましい。

前記有機層は、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全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。

以下、本発明の有機電界発光素子における、有機層の構成、有機層の形成方法、有機層を構成する各層の好ましい態様および各層に使用される材料について順に説明する。

【0047】

(有機層の構成)

本発明の有機電界発光素子では、前記有機層が、電荷輸送層を含むことが好ましい。

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。

本発明の有機電界発光素子では、前記燐光発光材料を含む発光層とその他の有機層を有し、前記発光層が前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含有することが好ましい。さらに、本発明の有機電界発光素子では、前記有機層が、前記燐光発光材料を含む発光層とその他の有機層を有することがより好ましい。但し、本発明の有機電界発光素子は、前記有機層が発光層とその他の有機層を有する場合であっても、必ずしも明確に層間が区別されなくてもよい。

10

20

30

40

50

【0048】

本発明の有機電界発光素子は、前記有機層が燐光発光材料と前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含むことが好ましい。このとき、前記燐光発光材料と前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物が含まれる場所に特に制限はない。本発明では、前記有機層が、前記燐光発光材料を含む発光層とその他の有機層を有し、前記発光層が前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含有することがより好ましい。このとき、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物が、発光層のホスト材料(以下、ホスト化合物とも言う)として用いられることが好ましい。

【0049】

本発明において、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物は、その用途が限定されることはなく、有機電界発光素子の陰極と陽極の間の有機層内のいずれの層に含有されてもよい。一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれか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または複数に含有されるのが好ましく、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(正孔ブロック層、電子ブロック層など)のいずれか、または複数に含有されるのがより好ましく、発光層、励起子ブロック層、電荷ブロック層、電子輸送層、電子注入層のいずれかに含有されることが特に好ましく、発光層または正孔ブロック層のいずれかに含有されることがより特に好ましい。

本発明では、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層、発光層と陰極との間で発光層に隣接する有機層(発光層に隣接する陰極側の層)、及び発光層側で陰極に隣接する電子注入層のいずれかに含有されることが好ましく、発光層及び発光層に隣接する陰極側の層のいずれかに含有されることがより好ましく、発光層に含有されることが更に好ましい。また、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層及び発光層に隣接する陰極側の層の両層に含有させてもよい。

【0050】

《一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層中に発光層のホスト材料として含有させる場合》

一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層中に発光層のホスト材料として含有させる場合、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれか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。

【0051】

前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層のホスト材料として用いる場合、発光材料の極大発光波長(以下、発光ピーク波長とも言う)は、400~700nmであることが好ましく、470~600nmであることがより好ましく、490~550nmであることがさらに好ましく、510~540nmであることが最も好ましい。

【0052】

《一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層以外の層に含有させる場合》

前記有機層が、前記燐光発光材料を含む発光層とその他の有機層を有し、前記発光層と前記陰極との間に配置されたその他の有機層が、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される構造の化合物を含有することも好ましい。その中でも、前記有機層が電子輸送層または正孔ブロック層(より好ましくは正孔ブロック層)を有し、前記電子輸送層または前記正孔ブロック層が前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含有することがより好ましい。前記一般式(1-1)~一般式

10

20

30

40

50

(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層以外の層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。

【0053】

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。

【0054】

(有機層の形成方法)

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、バーコート法等の湿式製膜法(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。

本発明の有機電界発光素子は、前記一对の電極間に配置された有機層が、少なくとも一層の前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含む組成物の蒸着により形成された層を含むことが好ましい。

【0055】

(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。但し、本発明における前記発光層は、このようなメカニズムによる発光に必ずしも限定されるものではない。本発明の有機電界発光素子における発光層は、少なくとも一種の燐光発光材料を含有することが好ましい。

【0056】

本発明の有機電界発光素子における前記発光層は、前記発光材料のみで構成されていてもよく、ホスト材料と前記発光材料の混合層とした構成でもよい。前記発光材料の種類は一種であっても二種以上であってもよい。前記ホスト材料は電荷輸送材料であることが好ましい。前記ホスト材料は一種であっても二種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、前記発光層は、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。

【0057】

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。発光層が複数の場合、それぞれの発光層が異なる発光色で発光してもよい。

【0058】

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。

【0059】

本発明の有機電界発光素子は、前記発光層が前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を含有することが好ましい態様であり、前記発光層のホスト材料として前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を用いることがより好ましい態様である。ここで、本明細書中、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。

以下、前記発光層の材料として、前記発光材料、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物以外のその他のホスト材料について順に説明する。なお、前記一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物は、本発明の有機電界発光素子において前記発光層以外に用いられてもよい。

【0060】

(発光材料)

本発明における発光材料としては、燐光発光材料、蛍光発光材料等いずれも用いることができる。

本発明における発光層は、色純度を向上させるためや発光波長領域を広げるために２種類以上の発光材料を含有することができる。発光材料の少なくとも一種が燐光発光材料であることが好ましい。

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

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。

【0061】

本発明に使用できる燐光発光材料としては、例えば、US 6303238 B1、US 6097147、WO 00/57676、WO 00/70655、WO 01/08230、WO 01/39234 A2、WO 01/41512 A1、WO 02/02714 A2、WO 02/15645 A1、WO 02/44189 A1、WO 05/19373 A2、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、EP 1211257、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、WO 07/095118、WO 10/111175、WO 10/027583、WO 10/028151 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、イリジウム (Ir) 錯体、白金 (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げられる。特に好ましくは、イリジウム (Ir) 錯体、白金 (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イリジウム (Ir) 錯体、白金 (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、イリジウム (Ir) 錯体、白金 (Pt) 錯体が特に好ましく、イリジウム (Ir) 錯体が最も好ましい。

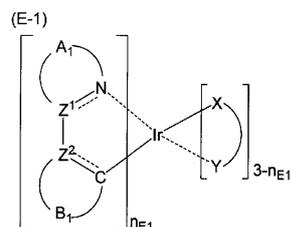
【0062】

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 (Ir) 錯体、又は以下の白金 (Pt) 錯体を用いることが好ましい。

【0063】

一般式 (E-1)

【化 2 1】



【0064】

10

20

30

40

50

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。 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。(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。

【0065】

Z^1 及び Z^2 として好ましくは炭素原子である。 n_{E1} は 2 又は 3 が好ましく、この場合 Z^1 、 Z^2 、 A_1 、 B_1 を含む配位子が 2 つまたは 3 つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なっても良い。

【0066】

A_1 、 Z^1 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。 A_1 、 Z^1 及び窒素原子で形成される 5 又は 6 員のヘテロ環は置換基を有していてもよい。

【0067】

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、ピロール環などが挙げられる。 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い。

【0068】

前記置換基としては前記置換基群 A が挙げられる。置換基同士は連結して環を形成していてもよく、形成される環としては、不飽和の 4 ~ 7 員環、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、形成される環上の置換基を介してさらに環を形成してもよい。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。形成される環上の置換基を介してさらに環を形成してもよい。

【0069】

(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、含窒素ヘテロアリール配位子、ジケトン配位子などが挙げられ、下記一般式 (1 - 1) ~ (1 - 39) が好ましく、一般式 (1 - 1)、(1 - 4)、(1 - 15)、(1 - 16)、(1 - 17)、(1 - 18)、(1 - 19)、(1 - 22)、(1 - 25)、(1 - 28)、(1 - 29)、(1 - 36)、(1 - 39) がより好ましい。ただし、本発明はこれらに限定されない。

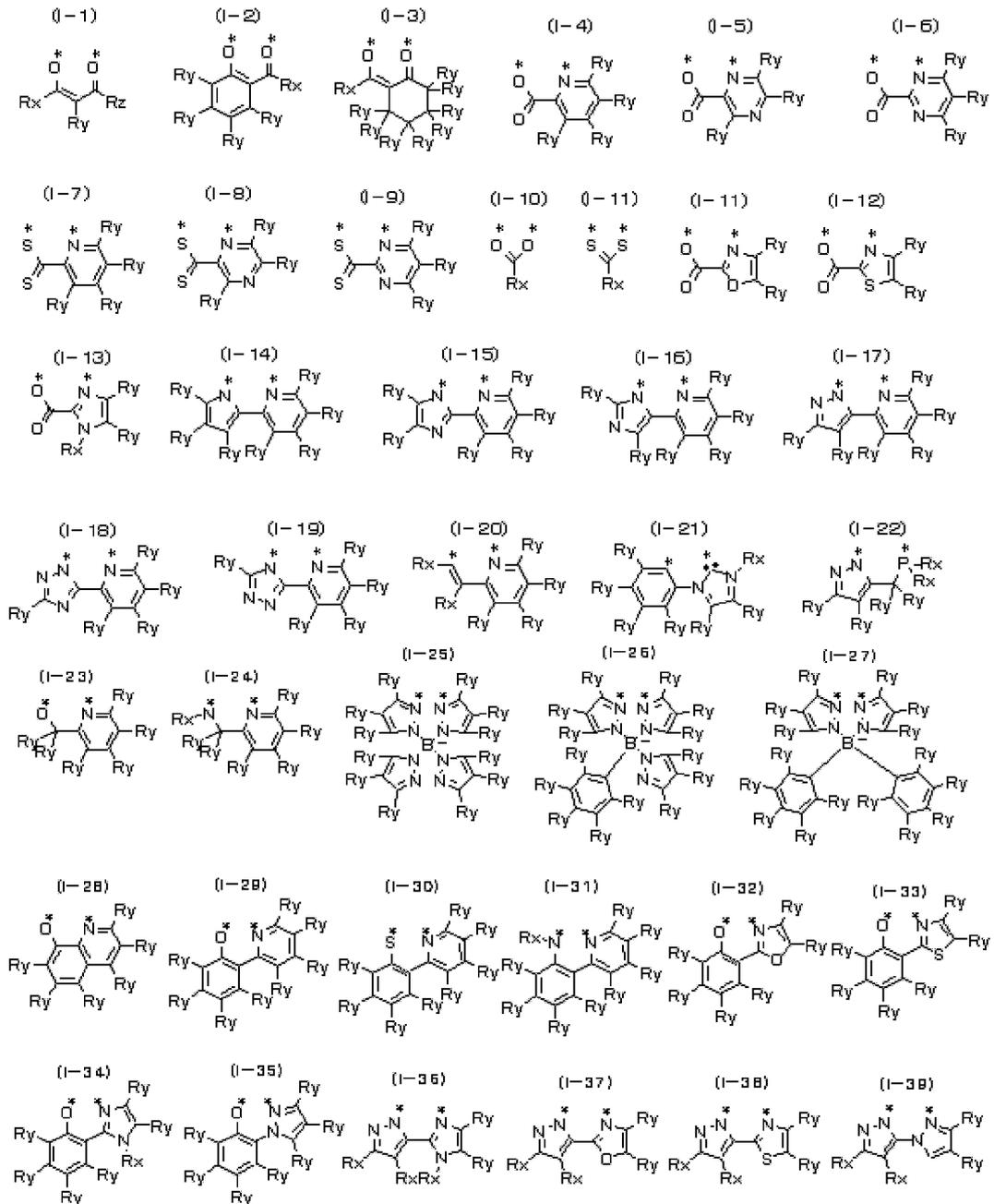
【0070】

10

20

30

【化 2 2】



10

20

30

40

【0071】

* は一般式 (E - 1) におけるイリジウム (Ir) 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。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。Rx、Rz は好ましくは、それぞれ独立にアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基である。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、シアノ基、アリール基のいずれかである。一つの配位子内に複数存在する Rx 及び Ry はそれぞれ同じであっても異なってもよい。

【0072】

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。

【0073】

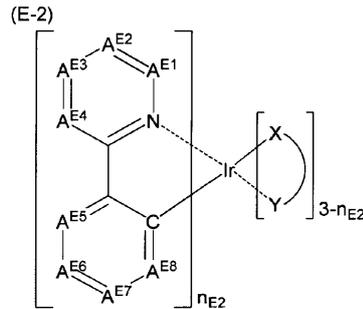
一般式 (E - 1) で表されるイリジウム (Ir) 錯体の好ましい態様は、下記一般式 (E - 2) で表されるイリジウム (Ir) 錯体である。

【0074】

一般式 (E - 2)

50

【化23】



10

【0075】

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^Eを表す。R^Eは水素原子又は置換基を表す。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。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。(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。 n_{E2} が2又は3の場合、 $A^{E1} \sim A^{E8}$ を含む配位子が2つまたは3つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

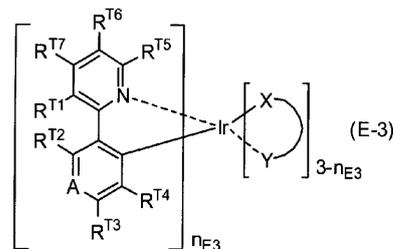
【0076】

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。

20

【0077】

【化24】



30

【0078】

一般式(E-3)中、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 及び R^{T7} は、前記R^Eと同義である。AはCR[']、[']、[']、[']又は窒素原子を表し、R[']、[']、[']、[']は前記R^Eと同義である。 $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及びR[']、[']、[']、[']は、近接する任意の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、シクロアルケン、シクロカルカジエン、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4~7員環は更に置換基群Aで表される置換基を有していてもよい。(X-Y)及び n_{E3} 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。 n_{E3} が2又は3の場合、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 及びAを含む配位子が2つまたは3つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

40

【0079】

A、 $R^{T1} \sim R^{T7}$ の好ましい範囲は、用途に応じて求められる発光色によって異なる。以下に、目的とする発光色として青色~水色、緑色~黄色、黄橙色~赤色の3つの領域に分けて説明する。ただし、これらの記載に限定されるものではない。

【0080】

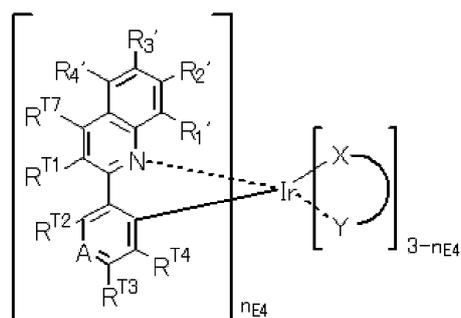
黄橙色~赤色の発光色を得るためには、前記一般式(E-1)で表される化合物は、下記一般式(E-4)、一般式(E-5)または一般式(E-6)で表される化合物であることが好ましい。

【0081】

50

一般式 (E - 4)

【化 2 5】



10

【 0 0 8 2】

一般式 (E - 4) における $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 R^{T7} 、 A (CR''' 又は窒素原子)、 $(X - Y)$ 及び n_{E4} は、一般式 (E - 3) における $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 R^{T7} 、 A 、 $(X - Y)$ 及び n_{E3} と同義である。 $R_{1'} \sim R_{4'}$ は前記 R^E と同義である。

$R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 R^{T7} 、 $R_{1'} \sim R_{4'}$ 、 R''' は、近接する任意の 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、シクロアルケン、シクロカルカジエン、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合 4 ~ 7 員環は更に置換基群 A で表される置換基有していてもよい。

n_{E4} が 2 又は 3 の場合、 $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 R^{T7} 、 A 及び $R_{1'} \sim R_{4'}$ を含む配位子が 2 つまたは 3 つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

20

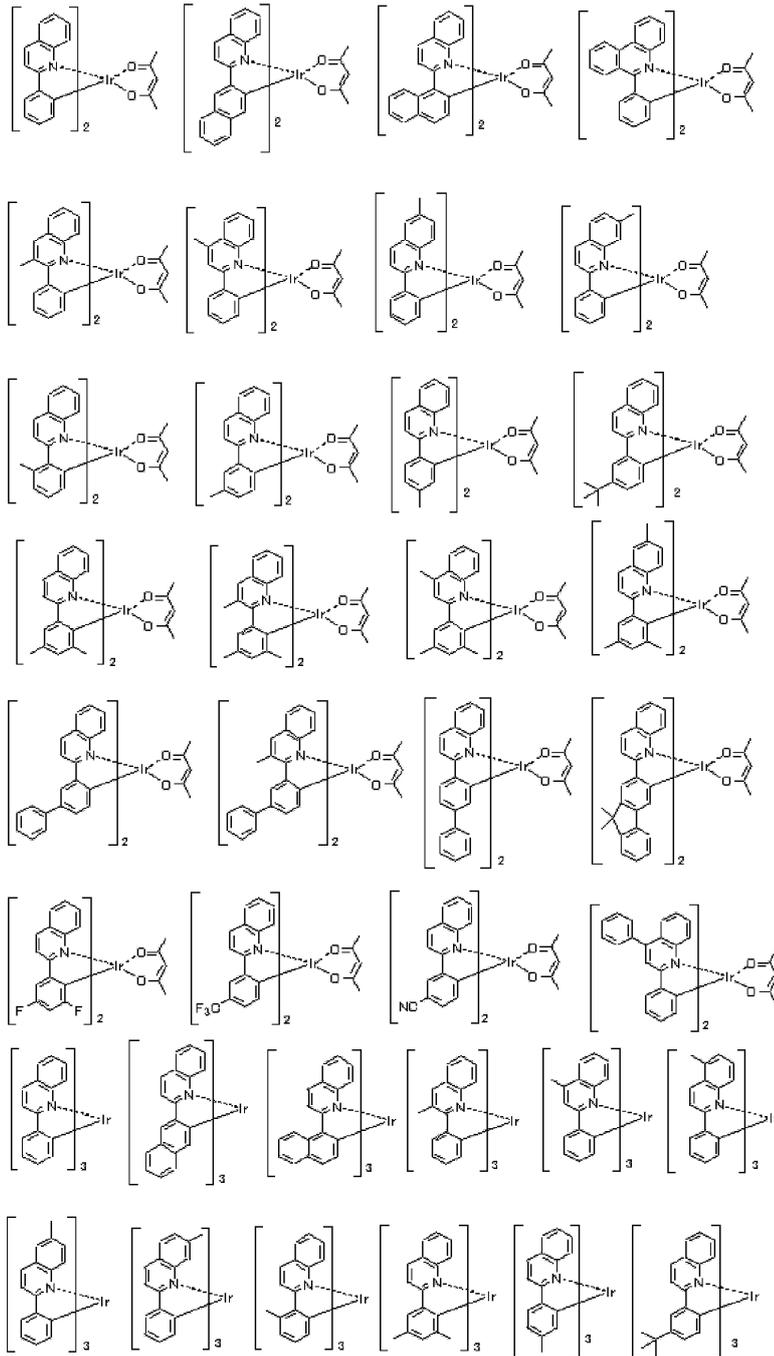
【 0 0 8 3】

$R_{1'} \sim R_{4'}$ は、水素原子、フッ素原子、アルキル基、アリール基であることが好ましい。また、 A が CR''' を表すと共に、 $R^{T1} \sim R^{T4}$ 、 R^{T7} 、 R''' のうち 0 ~ 3 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好ましい。

【 0 0 8 4】

一般式 (E - 4) 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、以下に限定されるものではない。

【化 2 6】



10

20

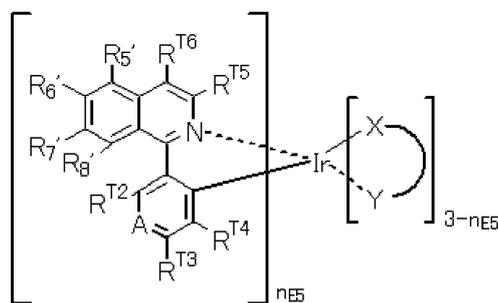
30

【 0 0 8 5】

一般式 (E - 5)

【 0 0 8 6】

【化 2 7】



50

【 0 0 8 7 】

一般式 (E - 5) における $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、 A (CR'''' 又は窒素原子)、 $(X - Y)$ 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} と同義である。 $R_5' \sim R_8'$ は一般式 (E - 4) における $R_1' \sim R_4'$ と同義である。

$R^{T2} \sim R^{T6}$ 、 $R_5' \sim R_8'$ 、 R'''' は、近接する任意の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、シクロアルケン、シクロカルカジエン、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4～7員環は更に置換基群 A で表される置換基を有していてもよい。

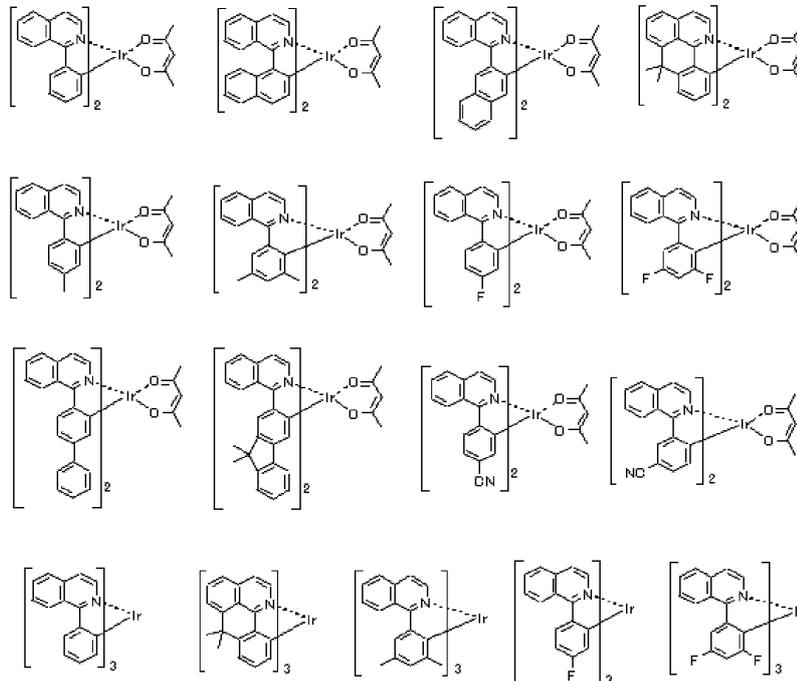
n_{E5} が2又は3の場合、 $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、 A 及び $R_5' \sim R_8'$ を含む配位子が2つまたは3つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

また、 $R_5' \sim R_8'$ における好ましい範囲は、一般式 (E - 4) における $R_1' \sim R_4'$ の好ましい範囲と同じである。また A が CR'''' を表すと共に、 $R^{T2} \sim R^{T6}$ 、 R'''' 、及び $R_5' \sim R_8'$ のうち、0～3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好ましい。

【 0 0 8 8 】

一般式 (E - 5) 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、以下に限定されるものではない。

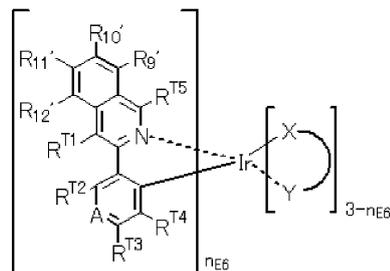
【 化 2 8 】



【 0 0 8 9 】

一般式 (E - 6)

【 化 2 9 】



【 0 0 9 0 】

一般式 (E - 6) における $R^{T1} \sim R^{T5}$ 、 A (CR'''' 又は窒素原子)、 $(X - Y)$

10

20

30

40

50

及び n_{E6} は、一般式 (E - 3) における $R^{T1} \sim R^{T5}$ 、A、(X - Y) 及び n_{E3} と同義である。 $R_{9'} \sim R_{12'}$ は一般式 (E - 4) における $R_1' \sim R_4'$ と同義である。

$R^{T1} \sim R^{T5}$ 、 $R_{9'} \sim R_{12'}$ 、 R'''' は、近接する任意の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、シクロアルケン、シクロカルカジエン、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4~7員環は更に置換基群Aで表される置換基を有していてもよい。

n_{E6} が2又は3の場合、 $R^{T1} \sim R^{T5}$ 、A及び $R_{9'} \sim R_{12'}$ を含む配位子が2つまたは3つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

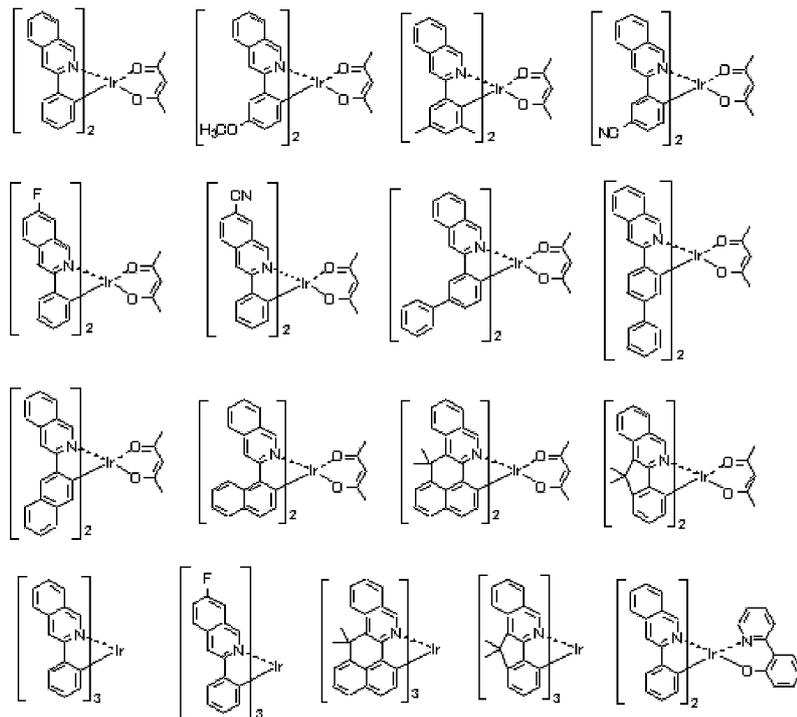
また、 $R_{9'} \sim R_{12'}$ における好ましい範囲は、一般式 (E - 4) における $R_1' \sim R_4'$ の好ましい範囲と同じである。またAがC R'''' を表すと共に、 $R^{T1} \sim R^{T5}$ 、 R'''' 、及び $R_{9'} \sim R_{12'}$ のうち、0~3つがアルキル基又はフェニル基で残りが全て水素原子である場合が好ましい。

10

【 0 0 9 1 】

一般式 (E - 6) 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、以下に限定されるものではない。

【 化 3 0 】



20

30

【 0 0 9 2 】

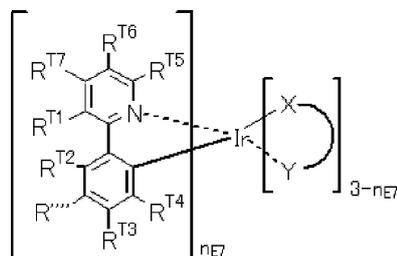
緑色~黄色の発光色を得るためには、前記一般式 (E - 1) で表される化合物は、下記一般式 (E - 7) で表される化合物であることが好ましい。

【 0 0 9 3 】

一般式 (E - 7)

40

【 化 3 1 】



一般式 (E - 7) 中、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 R'''' 、(X

50

- Y) 及び n_{E3} は一般式 (E - 3) 中の R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ 、(X - Y) 及び n_{E3} と同義である。 $R^{T1} \sim R^{T7}$ 、及び $R^{''''}$ は、近接する任意の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、シクロアルケン、シクロカルカジエン、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合4~7員環は更に置換基群Aで表される置換基を有していてもよい。

n_{E7} が2又は3の場合、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 及び $R^{''''}$ を含む配位子が2つまたは3つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

【0094】

R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ は、水素原子、フッ素原子、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、シアノ基であることが好ましい。

10

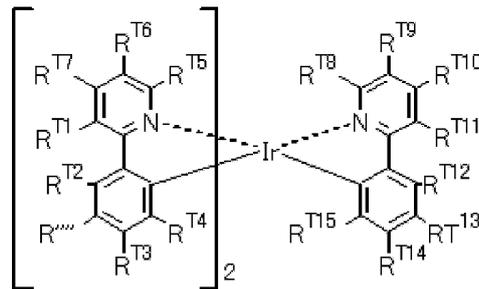
【0095】

n_{E7} は3であることが好ましく、さらに、一般式 (E - 7) は一般式 (E - 7 - 1) で表される化合物であることが好ましい。

【0096】

一般式 (E - 7 - 1)

【化32】



20

一般式 (E - 7 - 1) 中、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ は一般式 (E - 7) 中の R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ と同義であり好ましい範囲も同じである。 $R^{T8} \sim R^{T15}$ は R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ と同義であり好ましい範囲も同じであるが、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ を含むフェニルピリジン配位子と $R^{T8} \sim R^{T15}$ を含むフェニルピリジン配位子は互いに異なる。

30

【0097】

緑色~黄色の発光色のうち、緑色に近い発光色を得るためには、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ は水素原子、フッ素原子、アルキル基、シアノ基であることがより好ましく、 R^{T1} 、 R^{T5} 、 R^{T4} 、 $R^{''''}$ の1~3個がアルキル基であることがさらに好ましい。 $R^{T8} \sim R^{T11}$ は水素原子またはアルキル基であることがより好ましい。また、 $R^{T12} \sim R^{T15}$ は水素原子、アルキル基、シアノ基、アリール基であることがより好ましい。アルキル基、シアノ基、アリール基の置換位置としては、 R^{T13} または R^{T14} であることが好ましい。該アリール基は、さらに置換基を有していてもよく、置換基を介して縮合環を形成してもよい。

40

【0098】

緑色~黄色の発光色のうち、黄色に近い発光色を得るためには、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 、 $R^{''''}$ は水素原子、アルキル基であることがより好ましく、 R^{T1} 、 R^{T5} 、 R^{T4} 、 $R^{''''}$ の1~3個がアルキル基であることがさらに好ましい。 $R^{T8} \sim R^{T11}$ は少なくとも1つがアリール基であることがより好ましく、 R^{T9} 、 R^{T10} のいずれか1つがアリール基で残りは水素原子またはアルキル基であることがさらに好ましい。該アリール基は、さらに置換基を有していてもよく、置換基を介して縮合環を形成してもよい。

【0099】

一般式 (E - 7 - 1) は、一般式 (E - 7 - 1) 中に一般式 (E - 7 - 2) で表される

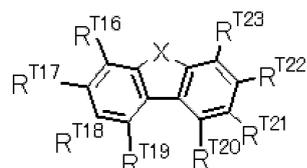
50

部分構造を有することも好ましい。一般式 (E - 7 - 2) を有することにより、ホスト材料との組み合わせによって低電圧化や高耐久化といった効果が顕著に現れる場合がある。

【0100】

一般式 (E - 7 - 2)

【化33】



一般式 (E - 7 - 2) 中、X は - O - 、 - S - 、 - N R^{T24} - 、 - C R^{T25} R^{T26} - 、 - S i R^{T27} R^{T28} - であり、R^{T16} ~ R^{T28} のいずれか一つが単結合または置換基を介して一般式 (E - 7 - 1) 中の一部と結合する。

【0101】

一般式 (E - 7 - 2) 中、R^{T16} ~ R^{T28} のいずれか一つが単結合もしくはアリール基を介して一般式 (E - 7 - 1) 中的一部分と結合することが好ましく、緑色に近い発光色を得たい場合には R^{T13} または R^{T14} で結合することがより好ましく、R^{T13} で結合することがさらに好ましい。黄色に近い発光色を得たい場合には R^{T9} または R^{T10} で結合することがより好ましい。

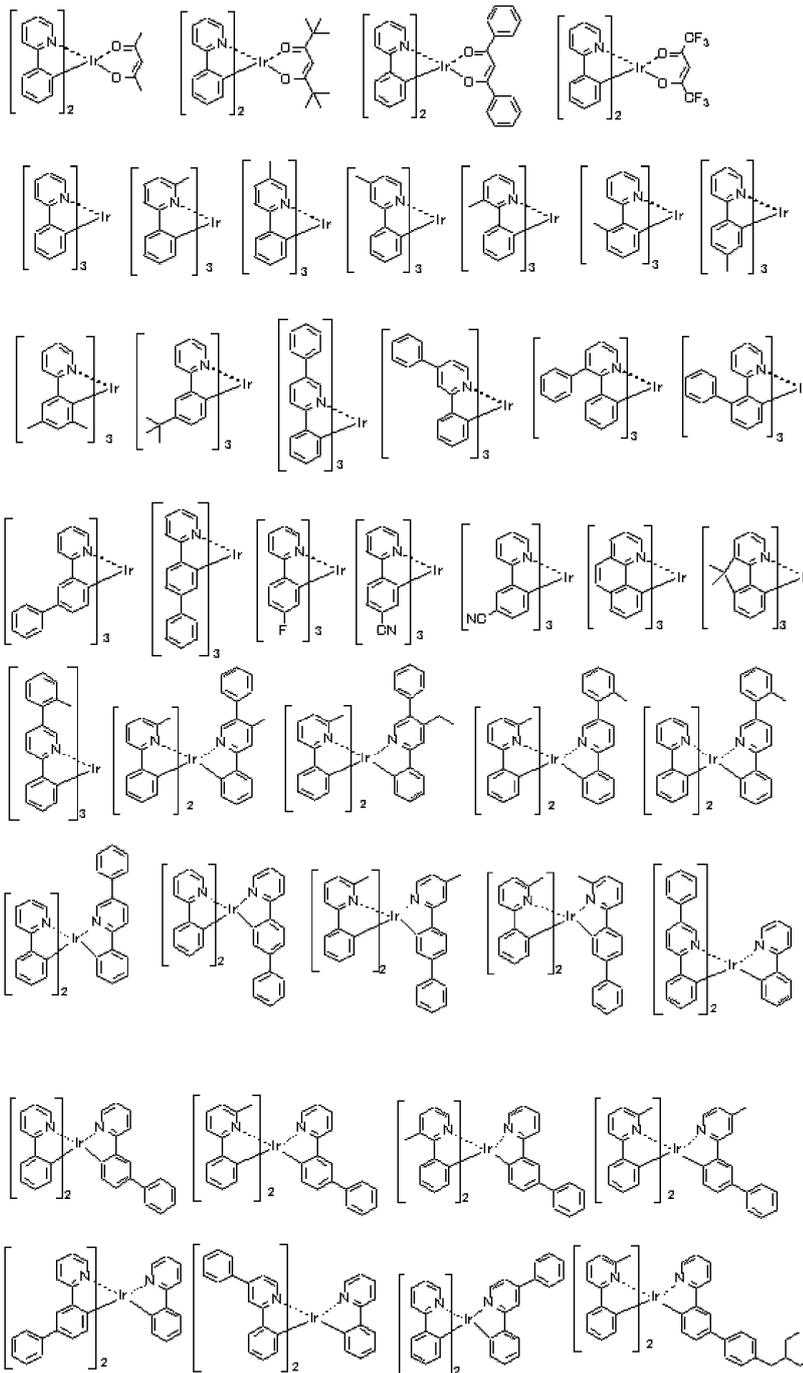
X は - O - 、 - S - 、 - N R^{T24} - 、 - C R^{T25} R^{T26} - であることが好ましく、- O - 、 - S - であることがより好ましい。

X が - O - 、 - S - のときは、R^{T16} の位置で単結合を介して一般式 (E - 7 - 1) 中的一部分と結合することが好ましく、X が - N R^{T24} - のときは、R^{T18} または R^{T24} の位置で単結合を介して一般式 (E - 7 - 1) 中的一部分と結合することが好ましく、X が - C R^{T25} R^{T26} - のときは、R^{T17} の位置で単結合を介して一般式 (E - 7 - 1) 中的一部分と結合することが好ましい。

【0102】

一般式 (E - 7) 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、以下に限定されるものではない。

【化 3 4】

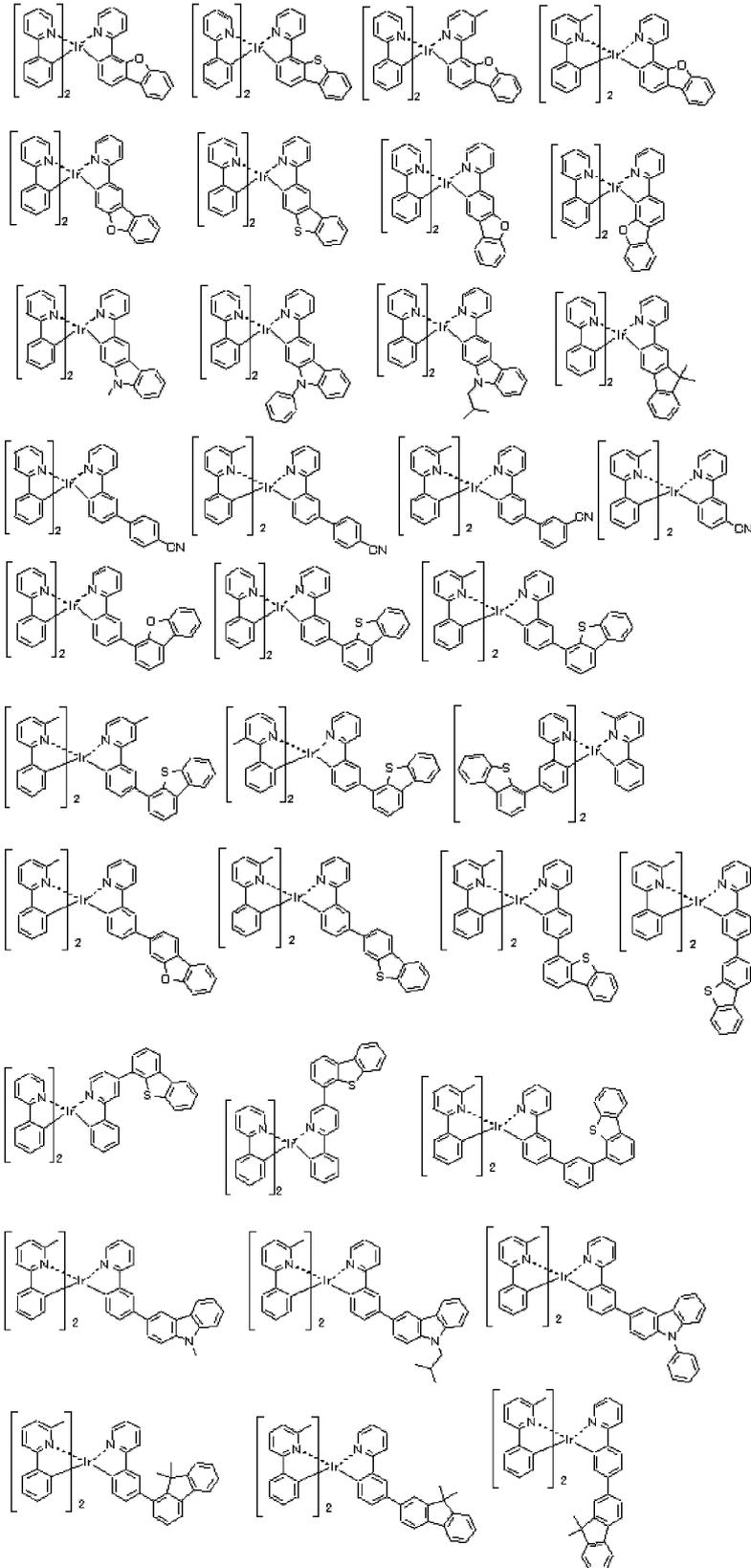


10

20

30

【化 3 5】



【0103】

青色～水色の発光色を得るためには、前記一般式(E-1)で表される化合物は下記一般式(E-8)または一般式(E-9)で表される化合物であることが好ましい。

【0104】

一般式(E-8)

10

20

30

40

50

一般式 (E - 9) 中、 $R^{T29} \sim R^{T34}$ 、(X - Y)、 n_{E8} は一般式 (E - 3) 中の $R^{T1} \sim R^{T6}$ (X - Y)、 n_{E3} と同義である。 R^{T35} は置換基を表し、該置換基としては前記置換基群 B が挙げられる。 $R^{T29} \sim R^{T35}$ は、近接する任意の 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、シクロアルケン、シクロカルカジエン、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合 4 ~ 7 員環は更に置換基群 A で表される置換基を有していてもよい。

n_{E7} が 2 又は 3 の場合、 R^{T1} 、 R^{T2} 、 R^{T3} 、 R^{T4} 、 R^{T5} 、 R^{T6} 、 R^{T7} 及び R'''' を含む配位子が 2 つまたは 3 つ存在することになるが、該配位子は互いに同じであっても異なってもよい。

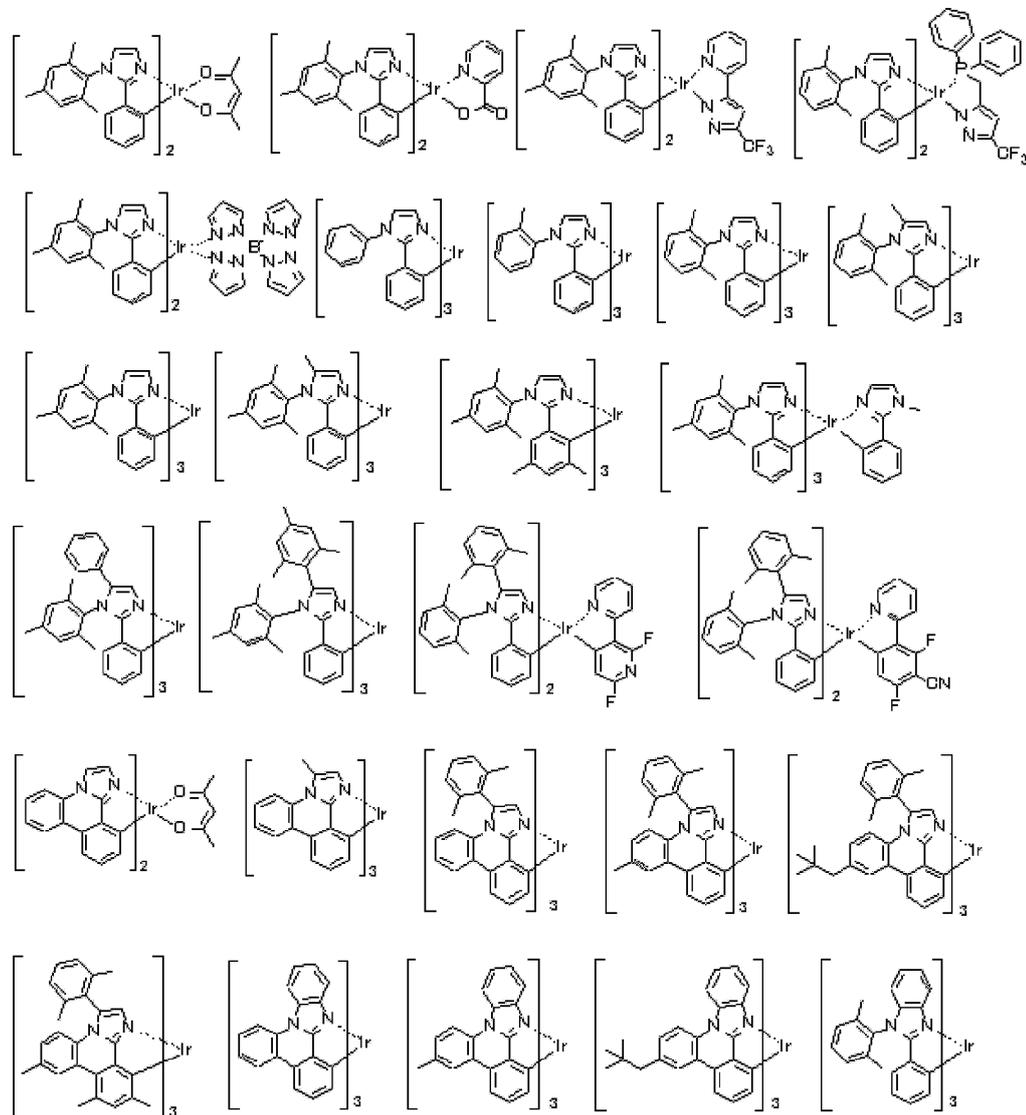
【0109】

$R^{T29} \sim R^{T34}$ は水素原子、アルキル基、アリール基、シアノ基であることが好ましい。 R^{T35} はアルキル基、アリール基であることが好ましい。 R^{T35} は R^{T29} と連結して環を形成することが好ましく、 R^{T35} と R^{T29} とがアリール基を介して結合し、その結果含窒素 6 員環が形成されることがより好ましい。 R^{T35} は R^{T29} と連結した該アリール基はさらに置換基を有していてもよく、耐久性の観点からアルキル基によって置換されることがさらに好ましい。

【0110】

一般式 (E - 9) 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、以下に限定されるものではない。

【化39】



10

20

30

40

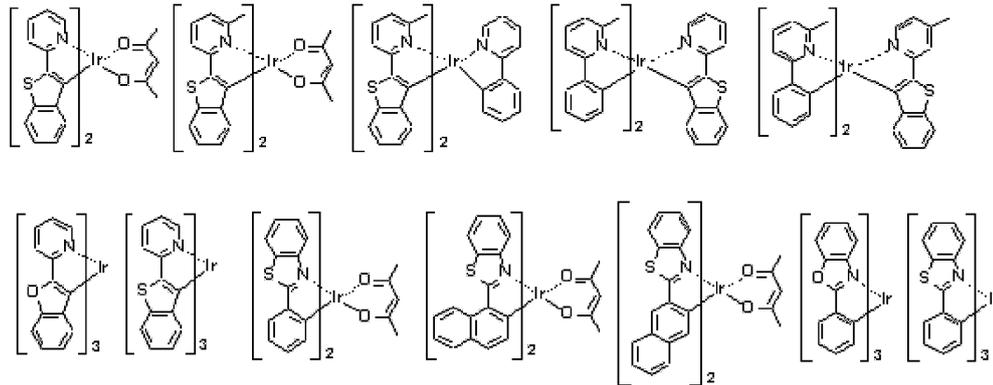
50

【 0 1 1 1 】

一般式 (E - 1) で表される化合物の上記以外の好ましい具体例を以下に列挙するが、以下に限定されるものではない。

【 0 1 1 2 】

【 化 4 0 】



10

【 0 1 1 3 】

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 2 0 0 9 - 9 9 7 8 3 号公報に記載の方法や、米国特許 7 2 7 9 2 3 2 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

【 0 1 1 4 】

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。

【 0 1 1 5 】

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0.2質量% ~ 50質量%含有されることが好ましく、0.3質量% ~ 40質量%含有されることがより好ましく、0.4質量% ~ 30質量%含有されることがさらに好ましく、0.5質量% ~ 20質量%含有されることが特に好ましい。

30

【 0 1 1 6 】

一般式 (1 - 1) ~ (1 - 1 0) のいずれかで表される化合物と、一般式 (E - 1) ~ (E - 9) のいずれかで表される化合物を発光層中で組み合わせて使用することが、本発明では特に好ましい。

【 0 1 1 7 】

前記白金 (Pt) 錯体として具体的には、特開 2 0 0 5 - 3 1 0 7 3 3 号公報の [0 1 4 3] ~ [0 1 5 2]、[0 1 5 7] ~ [0 1 5 8]、[0 1 6 2] ~ [0 1 6 8] に記載の化合物、特開 2 0 0 6 - 2 5 6 9 9 9 号公報の [0 0 6 5] ~ [0 0 8 3] に記載の化合物、特開 2 0 0 6 - 9 3 5 4 2 号公報の [0 0 6 5] ~ [0 0 9 0] に記載の化合物、特開 2 0 0 7 - 7 3 8 9 1 号公報の [0 0 6 3] ~ [0 0 7 1] に記載の化合物、特開 2 0 0 7 - 3 2 4 3 0 9 号公報の [0 0 7 9] ~ [0 0 8 3] に記載の化合物、特開 2 0 0 6 - 9 3 5 4 2 号公報の [0 0 6 5] ~ [0 0 9 0] に記載の化合物、特開 2 0 0 7 - 9 6 2 5 5 号公報の [0 0 5 5] ~ [0 0 7 1] に記載の化合物、特開 2 0 0 6 - 3 1 3 7 9 6 号公報の [0 0 4 3] ~ [0 0 4 6] が挙げられる。

40

【 0 1 1 8 】

発光層の厚さは、特に限定されるものではないが、通常、2 nm ~ 5 0 0 nmであるのが好ましく、中でも、外部量子効率の観点で、5 nm ~ 2 0 0 nmであるのがより好ましく、1 0 nm ~ 1 0 0 nmであるのが更に好ましい。

【 0 1 1 9 】

50

本発明の有機電界発光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であっても二種以上であってもよい。ホスト材料は電荷輸送材料であることが好ましい。ホスト材料は一種であっても二種以上であってもよく、例えば、電子輸送性のホスト材料と正孔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。発光層が複数の場合、それぞれの発光層が異なる発光色で発光してもよい。

【0120】

(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(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を用いることができる。

【0121】

その他の本発明有機電界発光素子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。

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、チオフェン、ベンゾチオフェン、ジベンゾチオフェン、フラン、ベンゾフラン、ジベンゾフラン、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、縮環芳香族炭化水素化合物(フルオレン、ナフタレン、フェナントレン、トリフェニレン等)、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体(置換基や縮環を有していてもよい)等を挙げることができる。

これらのうち、カルバゾール、ジベンゾチオフェン、ジベンゾフラン、アリーールアミン、縮環芳香族炭化水素化合物、金属錯体が特に好ましい。

【0122】

本発明の有機電界発光素子における発光層において、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。

【0123】

発光層において、前記ホスト材料の膜状態で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 eV以上大きいことが好ましく、0.2 eV以上大きいことがより好ましく、0.3 eV以上大きいことが更に好ましい。

ホスト材料の膜状態での 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

10

20

30

40

50

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。

【0124】

また、本発明有機電界発光素子における発光層におけるホスト化合物の含有量は、特に限定されるものではないが、発光効率、駆動電圧の観点から、発光層を形成する全化合物質量に対して15質量%以上95質量%以下であることが好ましい。発光層に、一般式(1-1)~一般式(1-10)のいずれか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(1-1)~一般式(1-10)のいずれかで表される化合物は全ホスト化合物中50質量%以上99質量%以下であることが好ましい。

10

【0125】

(その他の層)

本発明の有機電界発光素子は、前記発光層以外のその他の層を有していてもよい。

前記有機層が有していてもよい前記発光層以外のその他の有機層として、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。前記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、
- ・陽極/正孔注入層/正孔輸送層/ブロック層/発光層/ブロック層/電子輸送層/電子注入層/陰極。

20

本発明の有機電界発光素子は、(A)前記陽極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層を少なくとも一層含むことが好ましい。前記(A)前記陽極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層としては、陽極側から正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層を挙げることができる。

30

本発明の有機電界発光素子は、(B)前記陰極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層少なくとも一層含むことが好ましい。前記(B)前記陰極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層としては、陰極側から電子注入層、電子輸送層、正孔ブロック層を挙げることができる。

具体的には、本発明の有機電界発光素子の好ましい態様の一例は、図1に記載される態様であり、前記有機層として、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態様である。

以下、これら本発明の有機電界発光素子が有していてもよい前記発光層以外のその他の層について、説明する。

【0126】

(A)陽極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層

まず、(A)前記陽極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層について説明する。

【0127】

(A-1)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。その中でも、正孔注入層、正孔輸送層に好ましく用いられる材料について説明する。

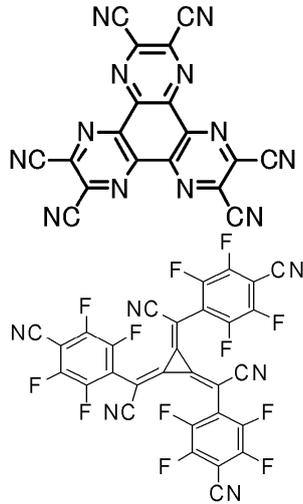
50

【 0 1 2 8 】

本発明の有機電界発光素子は、下記の化合物を前記発光層と前記陽極との間の有機層に含有することが好ましく、正孔注入層に含有することがより好ましい。

具体的には、以下の構造の化合物が好ましい。

【化 4 1】



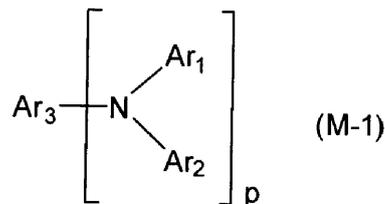
10

【 0 1 2 9 】

本発明の有機電界発光素子は、少なくとも一種の下記一般式 (M - 1) で表される化合物を前記発光層と前記陽極との間の有機層に含有することが好ましく、正孔輸送層に含有することがより好ましい。

【 0 1 3 0 】

【化 4 2】



30

【 0 1 3 1 】

一般式 (M - 1) 中、 Ar_1 及び 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 Ar_1 及び 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。

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。

40

Z はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、 $-\text{R}''$ 、 $-\text{OR}''$ 、 $-\text{N}(\text{R}'')_2$ 、 $-\text{SR}''$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{R}''$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{OR}''$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{R}'')_2$ 、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{NO}_2$ 、 $-\text{SO}_2$ 、 $-\text{SOR}''$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}''$ 、又は $-\text{SO}_3\text{R}''$ を表し、 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。

p は1 ~ 4の整数であり、pが2以上のとき Ar_1 及び Ar_2 はそれぞれ同一でも異なってもよい。

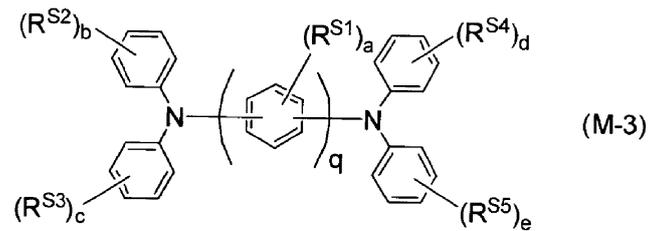
【 0 1 3 2 】

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。

50

【 0 1 3 3 】

【 化 4 3 】



【 0 1 3 4 】

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。

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 1 3 5 】

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。 $R^{S1} \sim R^{S5}$ 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。

$R^{S1} \sim R^{S5}$ 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 1 3 6 】

$R^{S1} \sim R^{S5}$ 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 1 3 7 】

$R^{S1} \sim R^{S5}$ 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。

【 0 1 3 8 】

$R^{S1} \sim R^{S5}$ 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

10

20

30

40

50

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

【0139】

$R^{S1} \sim R^{S5}$ 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。

【0140】

$R^{S1} \sim R^{S5}$ 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。

20

【0141】

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。

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。

30

【0142】

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含有していてもよい。

【0143】

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又は二種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0144】

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、eV(57kcal/mol)以上3.25eV(75kcal/mol)以下であることがより好ましく、2.52eV(58kcal/mol)以上3.04eV(70kcal/mol)以下であることが更に好ましい

【0145】

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

50

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。

【0146】

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. Eicher 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・レーターズ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

【0147】

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。

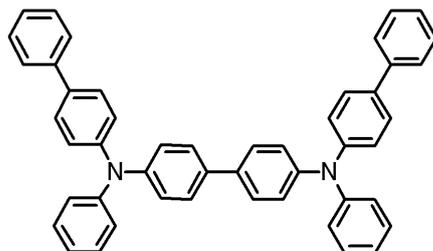
20

【0148】

前記正孔輸送材料としては、前記一般式(M-1)で表される化合物の中でも、下記の構造の化合物が好ましい。

【0149】

【化44】



30

【0150】

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)、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン(F₄-TCNQ)、酸化モリブデンなどが挙げられる。

40

【0151】

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。

【0152】

(A-2) 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

50

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、1 nm ~ 500 nmであるのが好ましく、3 nm ~ 100 nmであるのがより好ましく、5 nm ~ 50 nmであるのが更に好ましい。

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

電子ブロック層に用いる材料は、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。電子ブロック層に用いる材料の膜状態での T_1 が燐光発光材料の T_1 より0.1 eV以上大きいことが好ましく、0.2 eV以上大きいことがより好ましく、0.3 eV以上大きいことが更に好ましい。

10

【0153】

(B) 陰極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層

次に、前記(B) 陰極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層について説明する。

【0154】

(B-1) 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。

20

電子輸送材料として、前記一般式(1-1) ~ 一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を用いることができ、その好ましい態様は、上述の一般式(1-1) ~ 一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層以外の層に含有させる場合の説明のとおりである。その他の電子輸送材料としては、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。

30

【0155】

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500 nm以下であることが好ましい。

電子輸送層の厚さとしては、1 nm ~ 500 nmであるのが好ましく、5 nm ~ 200 nmであるのがより好ましく、10 nm ~ 100 nm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、0.1 nm ~ 200 nmであるのが好ましく、0.2 nm ~ 100 nmであるのがより好ましく、0.5 nm ~ 50 nmであるのが更に好ましい。

40

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。

【0156】

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

50

【0157】

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。

【0158】

(B-2) 正孔ブロック層

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

正孔ブロック層を構成する有機化合物の膜状態での T_1 エネルギーは、発光層で生成する励起子のエネルギー移動を防止し、発光効率を低下させないために、発光材料の T_1 エネルギーよりも高いことが好ましい。

正孔ブロック層を構成する有機化合物の例としては、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を用いることができる。

前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物以外の、正孔ブロック層を構成するその他の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、本発明の化合物等が挙げられる。本発明において、正孔ブロック層は実際に正孔をブロックする機能に限定せず、発光層の励起子が電子輸送層に拡散させない、若しくはエネルギー移動消光をブロックする機能を有していてもよい。本発明の化合物は正孔ブロック層としても好ましく適用できる。

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。

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

正孔ブロック層に用いる材料は、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。正孔ブロック層に用いる材料の膜状態での T_1 が燐光発光材料の T_1 より0.1eV以上大きいことが好ましく、0.2eV以上大きいことがより好ましく、0.3eV以上大きいことが更に好ましい。

【0159】

(B-3) 陰極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層に特に好ましく用いられる材料

本発明の有機電界発光素子は、前記(B)陰極と前記発光層との間に好ましく配置される有機層の材料に特に好ましく用いられる材料として、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物および下記一般式(O-1)で表される化合物を挙げることができる。

以下、前記一般式(O-1)で表される化合物について説明する。

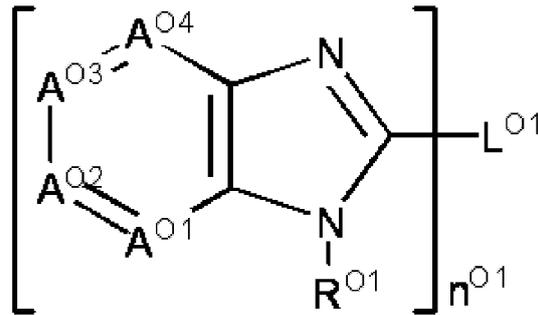
【0160】

本発明の有機電界発光素子は、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種の下記一般式(O-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(O-1)について説明する。

【0161】

【化45】

(O-1)



10

【0162】

(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。)

【0163】

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

30

【0164】

$A^{O1} \sim A^{O4}$ 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。

【0165】

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

【0166】

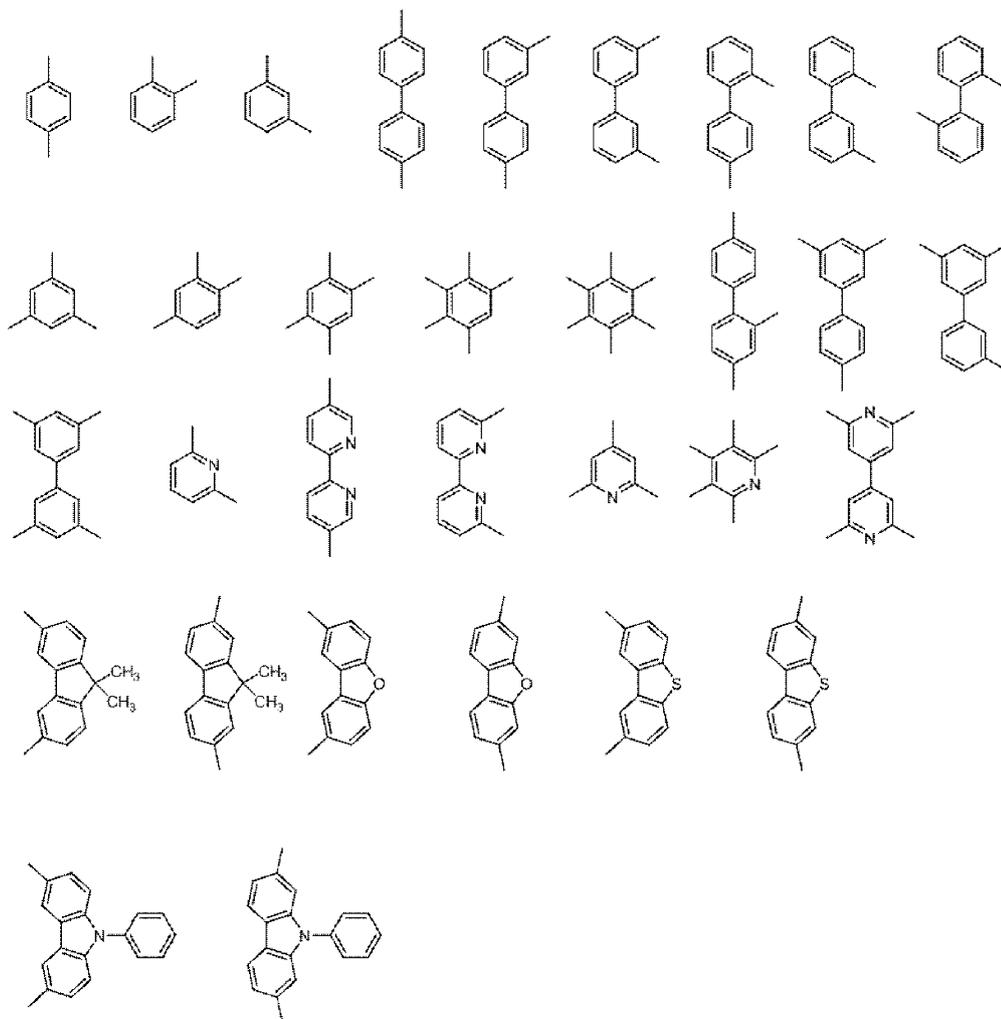
L^{O1} は、アリール環(好ましくは炭素数6～30)又はヘテロアリール環(好ましくは炭素数4～12)からなる二価～六価の連結基を表す。 L^{O1} として好ましくは、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、アリールトリイル基、又はヘテロアリールトリイル基であり、より好ましくはフェニレン基、ピフェニレン基、又はベンゼントリイル基であり、更に好ましくはピフェニレン基、又はベンゼントリイル基である。 L^{O1} は前述の置換基群Aから選ばれる置換基を有していても良く、置換基を有する場合の置換基としてはアルキル基

50

、アリール基、又はシアノ基が好ましい。L⁰¹の具体例としては、以下のものが挙げられる。

【0167】

【化46】



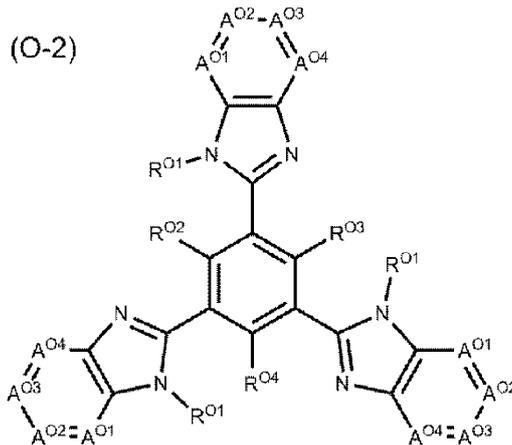
【0168】

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。

【0169】

【化 4 7】



10

【 0 1 7 0】

(一般式 (O - 2) 中、R⁰¹はアルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表す。R⁰² ~ R⁰⁴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。A⁰¹ ~ A⁰⁴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。)

20

【 0 1 7 1】

R⁰¹及びA⁰¹ ~ A⁰⁴は、前記一般式 (O - 1) 中のR⁰¹及びA⁰¹ ~ A⁰⁴と同義であり、またそれらの好ましい範囲も同様である。

R⁰² ~ R⁰⁴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。R⁰² ~ R⁰⁴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。

【 0 1 7 2】

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_g) 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。

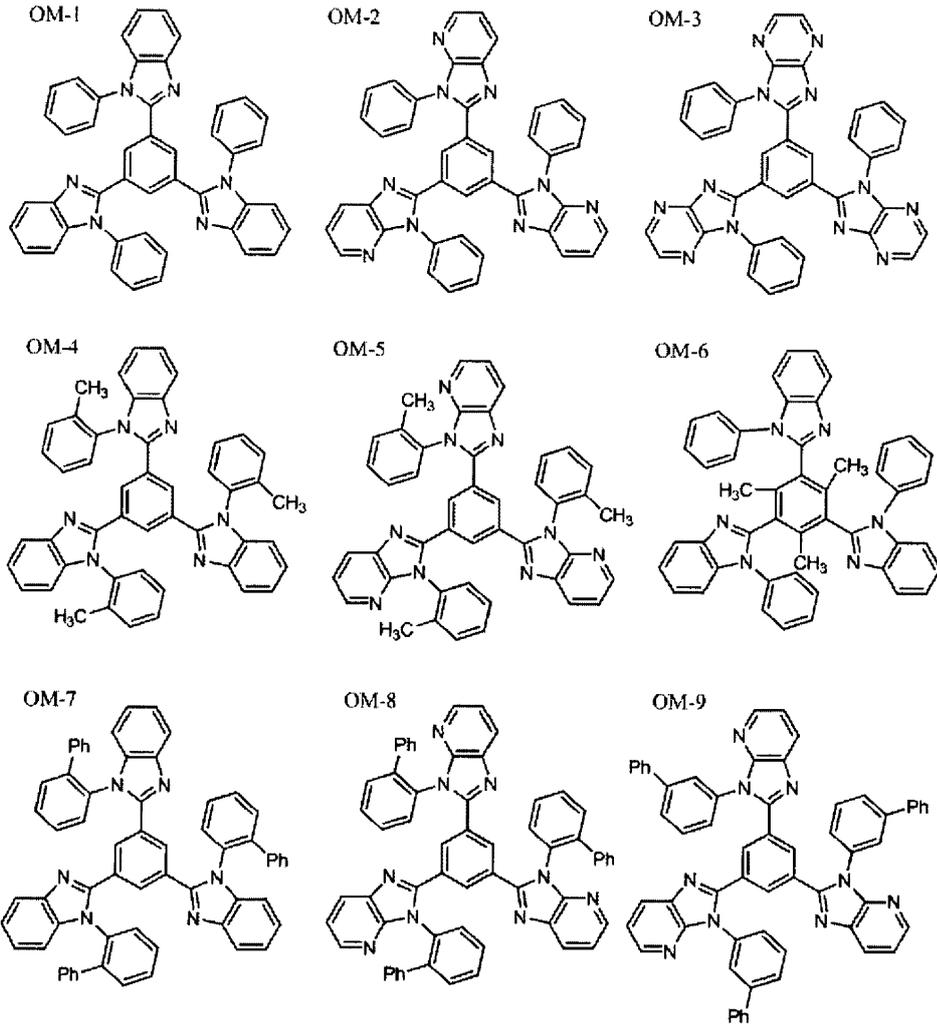
30

【 0 1 7 3】

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。

【 0 1 7 4】

【化 4 8】



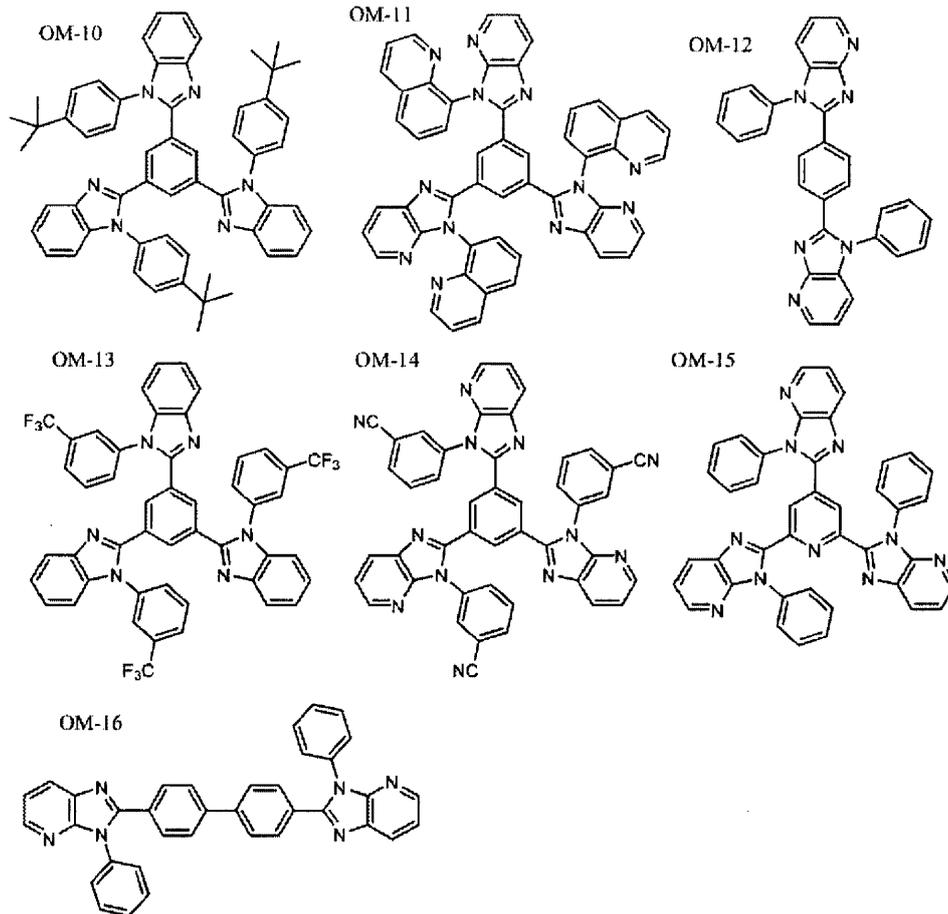
10

20

【 0 1 7 5 】

30

【化49】



10

20

【0176】

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。

30

【0177】

本発明の有機電界発光素子において、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ことが好ましいが、発光層に隣接する陰極側の層に含有されることがより好ましい。

一般式(0-1)で表される化合物は、添加する有機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。

【0178】

<保護層>

本発明において、有機電界発光素子全体は、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。なお、保護層の材料は無機物であっても、有機物であってもよい。

40

【0179】

<封止容器>

本発明の有機電界発光素子は、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。

【0180】

50

(駆動方法)

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。

【0181】

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/m²付近での外部量子効率の値を用いることができる。

10

【0182】

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。

20

【0183】

< 発光ピーク波長 >

本発明の有機電界発光素子は、その発光ピーク波長に制限はない。例えば、光の三原色のうち、赤色の発光に用いても、緑色の発光に用いても、青色の発光に用いてもよい。その中でも、本発明の有機電界発光素子は、発光ピーク波長が500～700nmであることが、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物の最低励起三重項(T₁)エネルギーの観点から好ましい。

具体的には、本発明の有機電界発光素子において、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を発光層のホスト材料として用いる場合は、発光ピーク波長が500～700nmであることが好ましく、520～650nmであることがより好ましく、520～550nmであることが特に好ましい。

30

一方、本発明の有機電界発光素子において、前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物を正孔ブロック層の電荷輸送材料として用いる場合は、発光ピーク波長が400～700nmであることが好ましく、450～650nmであることがより好ましく、500～650nmであることが特に好ましい。

【0184】

< 本発明の有機電界発光素子の用途 >

本発明の有機電界発光素子は、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、発光装置、照明装置、表示装置等の発光輝度が高い領域で駆動されるデバイスに好ましく用いられる。

40

【0185】

[発光装置]

本発明の発光装置は、本発明の有機電界発光素子を含むことを特徴とする。

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、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。

【0186】

50

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。

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。

【0187】

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。

10

【0188】

[照明装置]

本発明の照明装置は、本発明の有機電界発光素子を含むことを特徴とする。

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。

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。

20

【0189】

[表示装置]

本発明の表示装置は、本発明の有機電界発光素子を含むことを特徴とする。

本発明の表示装置としては、例えば、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などを挙げることができる。

30

【実施例】

【0190】

以下に実施例を挙げて本発明をさらに具体的に説明する。以下の実施例に示す材料、使用量、割合、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り、適宜、変更することができる。従って、本発明の範囲は以下に示す具体例に限定されるものではない。

【0191】

[実施例1]

1. 合成例

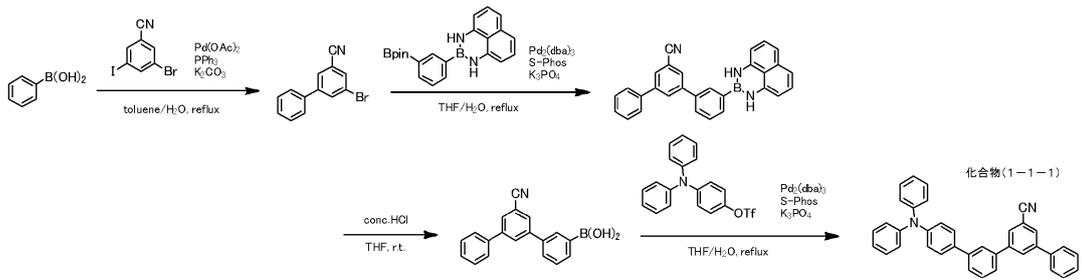
前記一般式(1-1)～一般式(1-10)のいずれかで表される化合物は、公知の反応を組み合わせて以下のスキームにしたがって合成できる。

40

【0192】

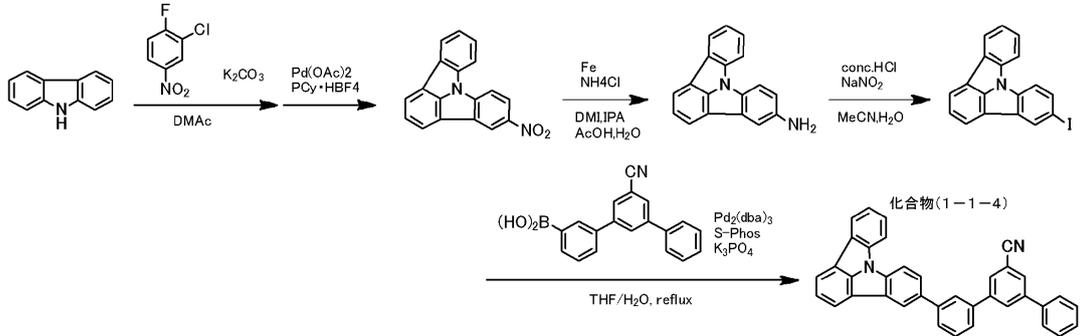
【化50】

化合物(1-1-1)の合成:



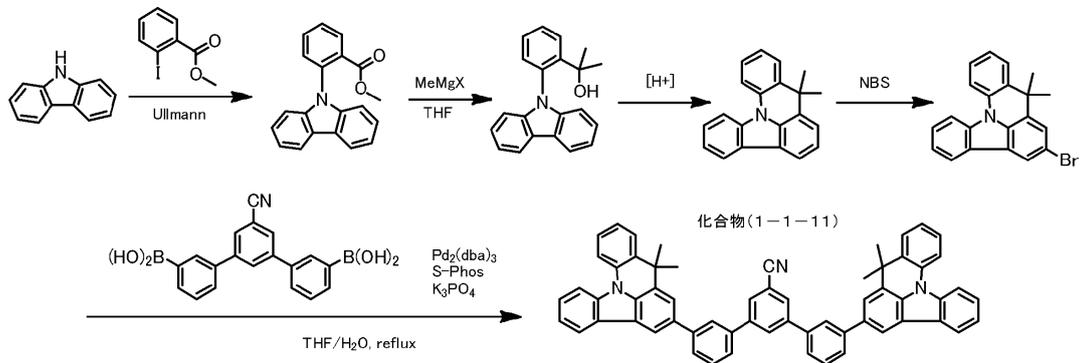
10

化合物(1-1-4)の合成:



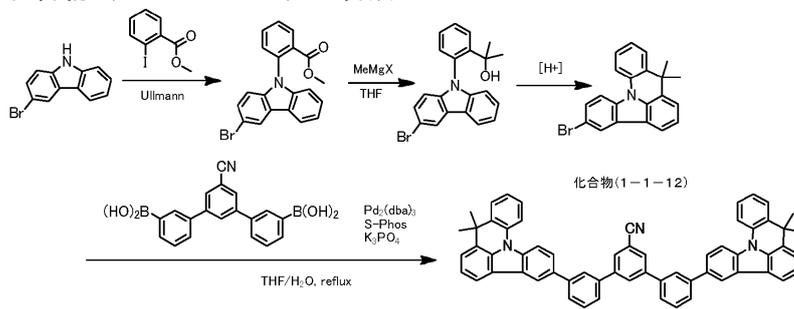
20

化合物(1-1-11)の合成:



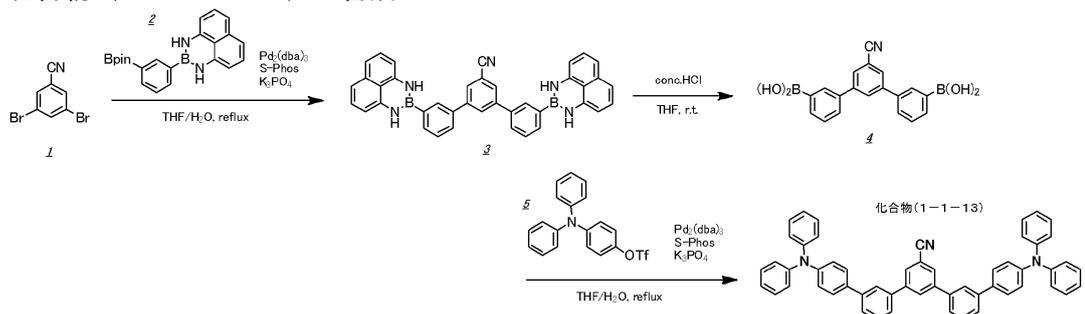
30

化合物(1-1-12)の合成:



40

化合物(1-1-13)の合成:



上記化合物(1-1-13)の合成の詳細

K₃PO₄ 17.2g、化合物1 3.2g、テトラヒドロフラン100ml、蒸留水100mlを3つ口フラスコに入れ、脱気及び窒素置換を施した。そこへ、S-Phos 2.22g、化合物2 10g、Pd₂(dba)₃ 1.24gを加え、11時間加熱還流させた。室温に戻し、有機層を濃縮し、トルエンを溶離液としたシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製を行い、化合物3 7.4gを得た。

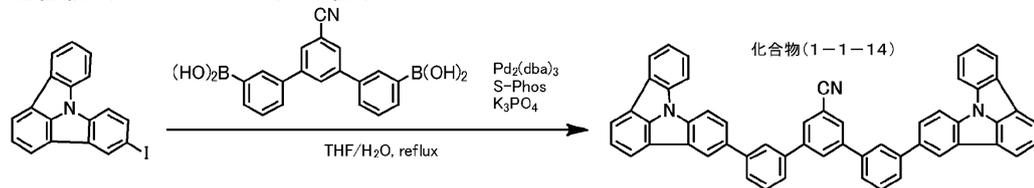
3つ口フラスコに化合物3 7.4g、テトラヒドロフラン140ml、塩酸7ml / 蒸留水7mlの混合溶液を加え、室温に3日間反応させた。沈殿物をろ過し、濾液に食塩含有塩酸水溶液400mlおよび酢酸エチル300mlを添加し、有機層を抽出した。有機層を濃縮し、トルエンを加えてさらに濃縮し、沈殿物をろ過した。ろ物をトルエンで洗浄し、化合物4 3.58gを得た。

3つ口フラスコにK₃PO₄ 1.86g、化合物5 2.52g、テトラヒドロフラン10ml、蒸留水10mlをいれ、脱気及び窒素置換を施した。そこへ、S-Phos 0.24g、化合物4 1g、Pd₂(dba)₃ 0.133gを加え、6時間加熱還流させた。室温に戻し、有機層を濃縮し、トルエン/ヘキサンを溶離液としたシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製を行い、メタノール及びアセトンを少量加え超音波を施すことで沈殿物を精製させ、吸引ろ過およびアセトン洗浄を施し、白色固体1.4gを得た。これを昇華精製し、化合物(1-1-13) 1.2gを得た。

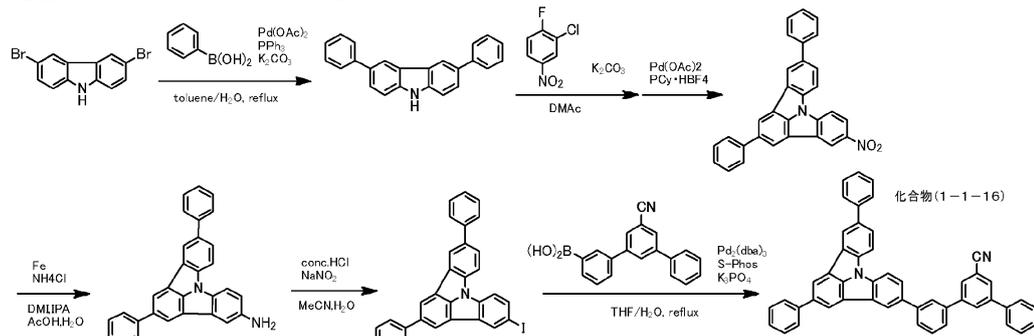
【0194】

【化51】

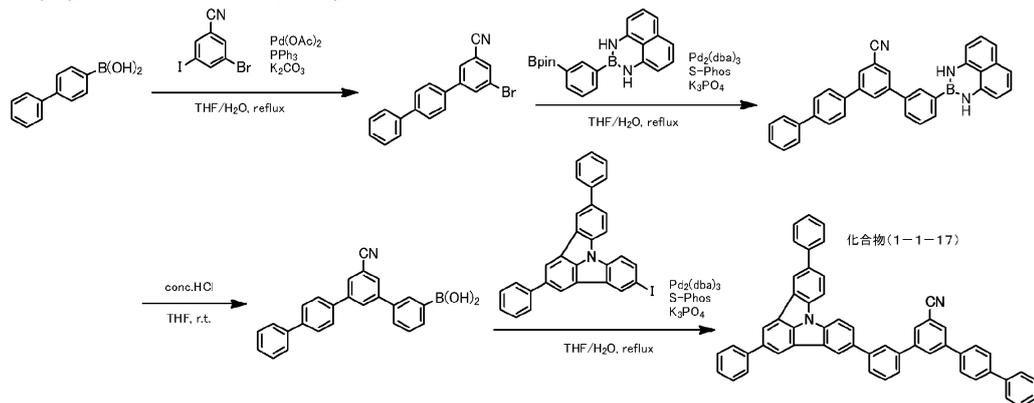
化合物(1-1-14)の合成:



化合物(1-1-16)の合成:

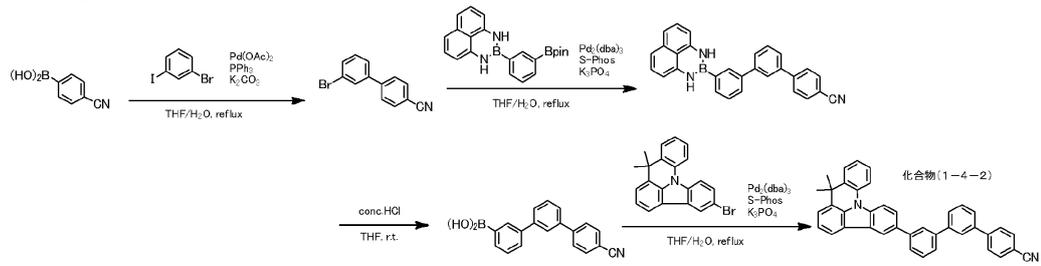


化合物(1-1-17)の合成:

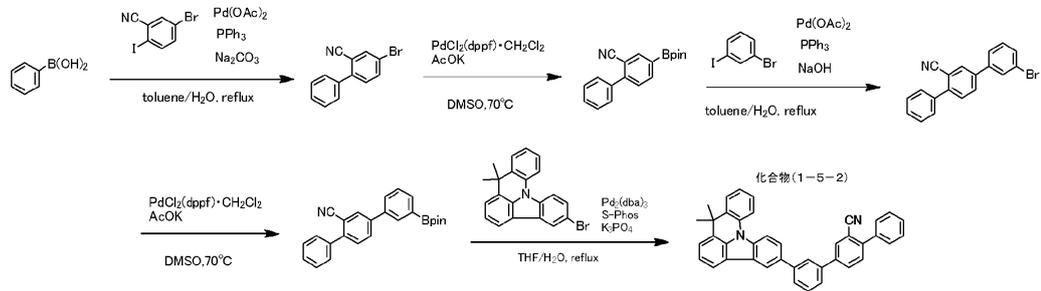


【化52】

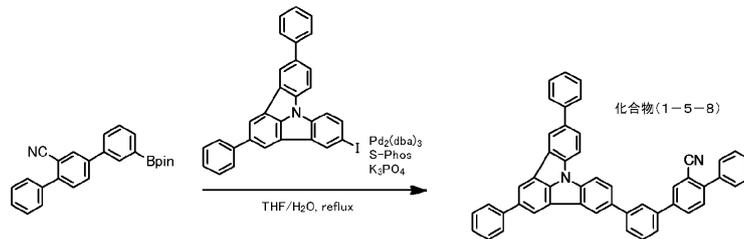
化合物(1-4-2)の合成:



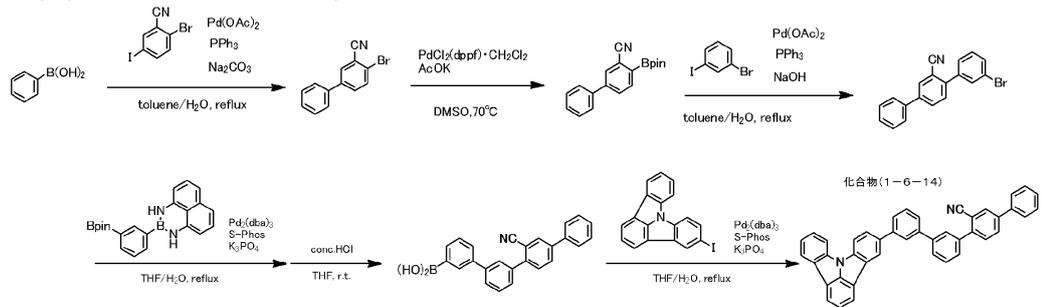
化合物(1-5-2)の合成:



化合物(1-5-8)の合成:



化合物(1-6-14)の合成:



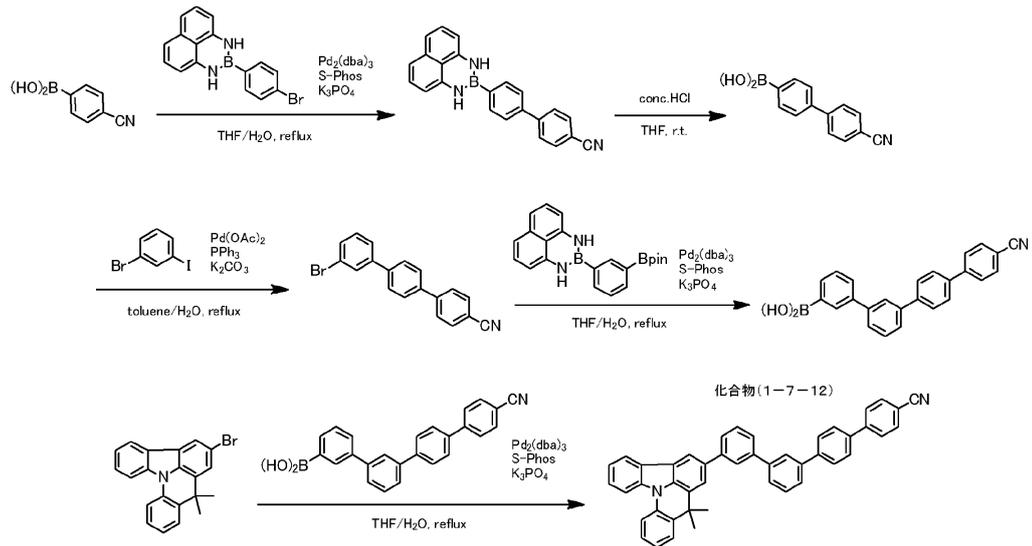
10

20

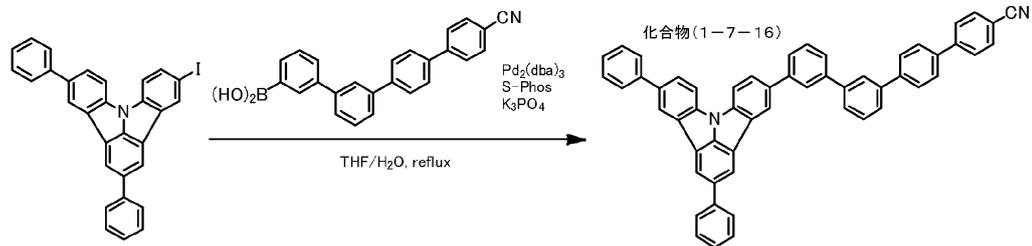
30

【化53】

化合物(1-7-12)の合成:



化合物(1-7-16)の合成:



これを昇華精製し、化合物(1-1-1)、(1-1-4)、(1-1-11)~(1-1-14)、(1-1-16)、(1-1-17)、(1-4-2)、(1-5-2)、(1-5-8)、(1-6-14)、(1-7-12)、(1-7-16)を得た。得られた化合物は400MHzの¹H-NMRにて同定した。

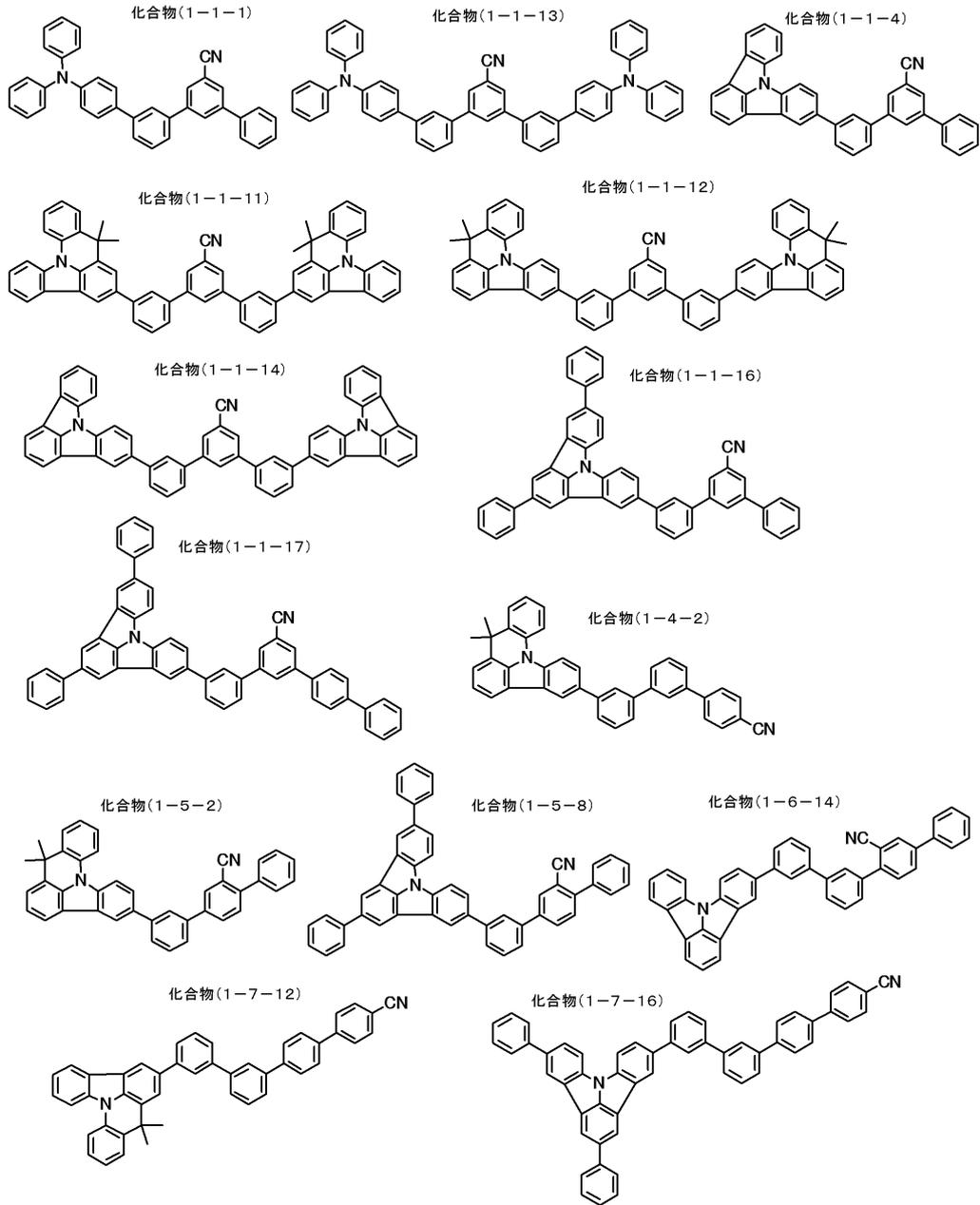
化合物(1-1-13)、(1-1-1)、(1-1-4)および(1-1-16)の¹H-NMRスペクトルをそれぞれ図4~図7に記載した。

【0195】

以上のように合成し、実施例で使用した化合物を、同じく実施例で使用した比較化合物と共に、以下に示す。

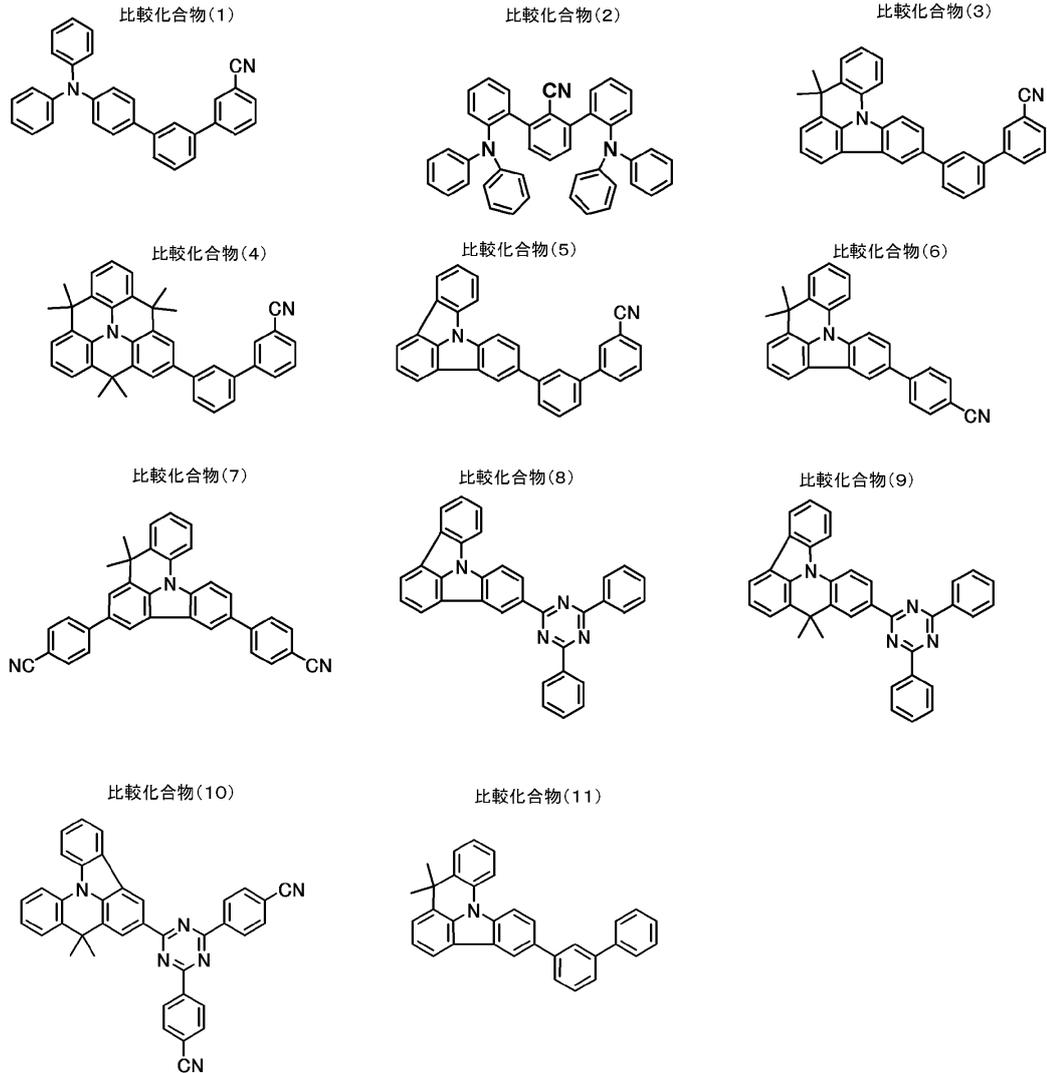
【0196】

【化54】



【0197】

【化55】



10

20

30

【0198】

[実施例101]

<素子作製・評価>：緑発光素子で発光層のホスト材料としての使用

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 TSK Gel ODS-100Z）により純度（254nmの吸収強度面積比）が99.1%以上であることを確認した。

【0199】

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10⁴Ω/□）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層を順次蒸着した。

第1層：下記化合物（A）：膜厚10nm

第2層：HTL-1：膜厚30nm

第3層：化合物（1-1-1）及びGD-1（質量比85：15）：膜厚40nm

第4層：ETL-1：膜厚40nm

この上に、フッ化リチウム1nm及び金属アルミニウム100nmをこの順に蒸着し陰極とした。

この積層体を、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101の有機電界発光素子を得た。

40

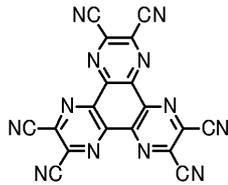
50

【 0 2 0 0 】

正孔注入層の材料（第 1 層）

化合物（A）：H A T - C N

【 化 5 6 】

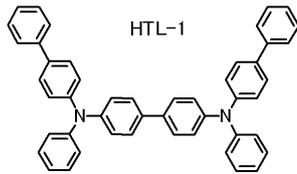


10

【 0 2 0 1 】

正孔輸送材料（第 2 層）

【 化 5 7 】



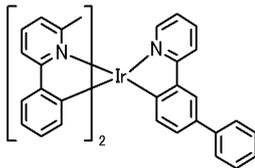
【 0 2 0 2 】

発光層の材料（第 3 層）

ホスト材料：本発明の化合物（1 - 1 - 1）

発光材料：G D - 1

【 化 5 8 】



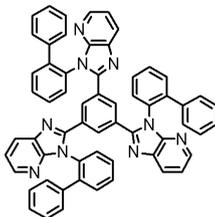
20

【 0 2 0 3 】

【 化 5 9 】

電子輸送材料（第 4 層）

E T L - 1



30

【 0 2 0 4 】

[実施例 1 0 2 ~ 1 1 4、比較例 1 0 1 ~ 1 1 1)

実施例 1 0 1 の有機電界発光素子の調製において、第 3 層の化合物（1 - 1 - 1）を、下記表 1 に示す化合物及び上述の比較化合物（1）～比較化合物（11）に置き換える以外は実施例 1 0 1 と同様にして、実施例 1 0 2 ~ 1 1 4、比較例 1 0 1 ~ 1 1 1 の有機電界発光素子を得た。

40

【 0 2 0 5 】

これらの素子を以下の方法で、効率、耐久性、駆動電圧の観点で評価した結果を下記表 1 に示す。

【 0 2 0 6 】

（駆動電圧）

50

各素子を輝度が 1000 cd/m^2 になるように直流電圧を印加して発光させる。この時の印加電圧を駆動電圧評価の指標とした。駆動電圧が 5 V 未満である場合を、 5 V 以上 5.5 V 未満である場合を、 5.5 V 以上 6 V 未満である場合を、 6 V 以上 7 V 未満である場合を、 7 V 以上である場合を \times として、下記表1に示した。

【0207】

(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ピーク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^2 付近の外部量子効率を輝度換算法により算出した。

10

外部量子効率が 15% 以上である場合を、 10% 以上 15% 未満である場合を、 8% 以上 10% 未満である場合を、 8% 未満である場合を \times として、下記表1に示した。

【0208】

(耐久性)

各素子を、室温(20)で輝度が 5000 cd/m^2 になるように直流電圧を印加して発光させ続け、輝度が 4000 cd/m^2 になるまでに要した時間を耐久性の指標とした。 600 時間以上である場合を、 400 時間以上 600 時間未満である場合を、 200 時間以上 400 時間未満である場合を、 100 時間以上 200 時間未満である場合を、 100 時間未満である場合を \times として、下記表1に示した。

20

【0209】

【表 1】

	ホスト材料	駆動電圧	外部量子効率	耐久性
実施例 101	化合物 (1-1-1)	◎	○	△
実施例 102	化合物 (1-1-4)	◎	○	○
実施例 103	化合物 (1-1-11)	○○	◎	○
実施例 104	化合物 (1-1-12)	○○	◎	○
実施例 105	化合物 (1-1-13)	◎	○	△
実施例 106	化合物 (1-1-14)	◎	○	◎
実施例 107	化合物 (1-1-16)	◎	○	◎
実施例 108	化合物 (1-1-17)	◎	○	◎
実施例 109	化合物 (1-4-2)	◎	◎	△
実施例 110	化合物 (1-5-2)	◎	○	△
実施例 111	化合物 (1-5-8)	◎	○	○○
実施例 112	化合物 (1-6-14)	◎	○	○○
実施例 113	化合物 (1-7-12)	◎	◎	△
実施例 114	化合物 (1-7-16)	◎	○	○○
比較例 101	比較化合物 (1)	◎	◎	×
比較例 102	比較化合物 (2)	○	○	×
比較例 103	比較化合物 (3)	◎	◎	×
比較例 104	比較化合物 (4)	◎	◎	×
比較例 105	比較化合物 (5)	◎	○	×
比較例 106	比較化合物 (6)	◎	◎	×
比較例 107	比較化合物 (7)	○	×	×
比較例 108	比較化合物 (8)	○	×	×
比較例 109	比較化合物 (9)	○	×	×
比較例 110	比較化合物 (10)	×	×	×
比較例 111	比較化合物 (11)	○	○	×

10

20

30

【0210】

上記表 1 より、本発明の化合物を緑りん光発光素子の発光層のホスト材料として用いることで、発光効率が良好であり、低駆動電圧で、かつ、耐久性に優れた有機電界発光素子が得られることが分かった。

なお、実施例 101 ~ 114 で作製した有機電界発光素子の発光ピーク波長は 510 ~ 530 nm であった。

一方、比較化合物を緑りん光発光素子の発光層のホスト材料として用いると耐久性が悪いことがわかった。

【0211】

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

40

また、本発明の素子は耐久性にも優れ、発光装置、表示装置、照明装置に好適である。

【符号の説明】

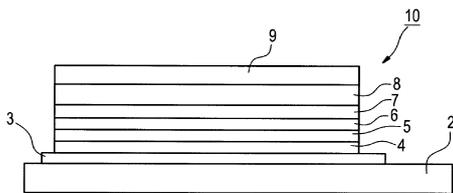
【0212】

- 2・・・基板
- 3・・・陽極
- 4・・・正孔注入層
- 5・・・正孔輸送層
- 6・・・発光層

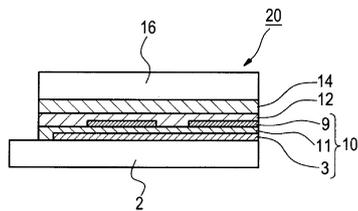
50

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

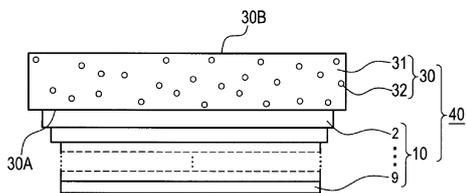
【図 1】



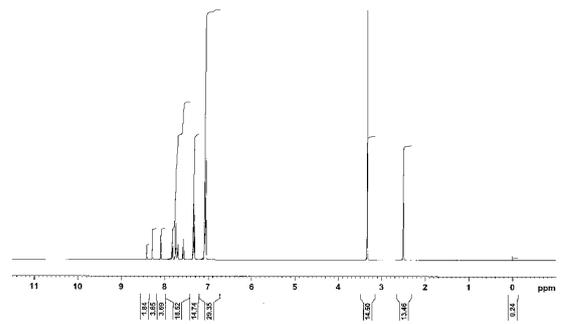
【図 2】



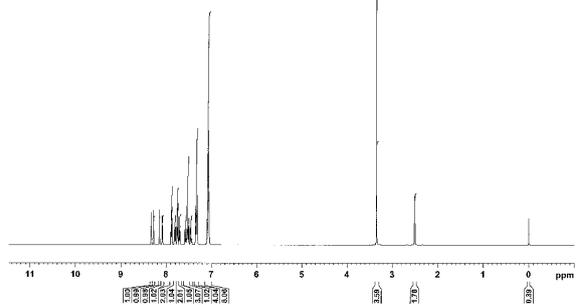
【図 3】



【図 4】



【図 5】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
C 0 9 K 11/06 6 9 0
C 0 7 D 487/06
C 0 7 D 519/00 3 1 1

(72)発明者 板井 雄一郎
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 岩井 好子

(56)参考文献 特開2011-233603(JP,A)
特開2011-176250(JP,A)
特開2011-153276(JP,A)
特開2010-245063(JP,A)
国際公開第2012/015017(WO,A1)
特開平02-134642(JP,A)
韓国公開特許第10-2012-0001576(KR,A)
特開2007-266598(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H 0 1 L 5 1 / 5 0
C 0 7 C 2 5 5 / 5 8
C 0 7 D 4 8 7 / 0 6
C 0 7 D 5 1 9 / 0 0
C 0 9 K 1 1 / 0 6
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)