

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B1)

(11) 特許番号

特許第4500364号  
(P4500364)

(45) 発行日 平成22年7月14日(2010.7.14)

(24) 登録日 平成22年4月23日(2010.4.23)

(51) Int.Cl. F I  
 H O 1 L 51/50 (2006.01) H O 5 B 33/14 B  
 C O 9 K 11/06 (2006.01) C O 9 K 11/06 6 6 0  
 C O 9 K 11/06 6 9 0

請求項の数 15 (全 68 頁)

<p>(21) 出願番号 特願2009-201154 (P2009-201154)                  (22) 出願日 平成21年8月31日 (2009.8.31)                  審査請求日 平成21年9月30日 (2009.9.30)                   早期審査対象出願</p>	<p>(73) 特許権者 306037311                  富士フイルム株式会社                  東京都港区西麻布2丁目26番30号                  (74) 代理人 100115107                  弁理士 高松 猛                  (74) 代理人 100132986                  弁理士 矢澤 清純                  (72) 発明者 福▲崎▼ 英治                  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 天野 宏樹</p>
---	---

最終頁に続く

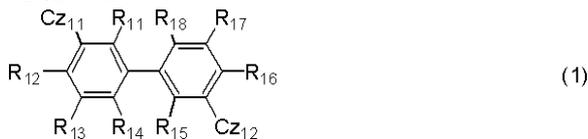
(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

基板上に、一対の電極と、該電極間に発光材料を含有する発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、下記一般式(1)で表される化合物と一般式(D-1)で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする有機電界発光素子。

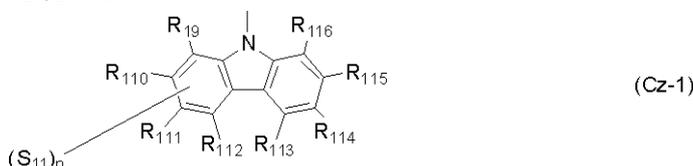
【化1】



10

(式中、R<sub>11</sub> ~ R<sub>18</sub> はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。Cz<sub>11</sub>、及びCz<sub>12</sub> はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-1)を表す。)

【化2】

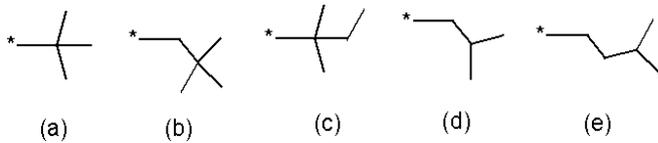


(式中、R<sub>109</sub> ~ R<sub>116</sub> はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基を表す。S<sub>11</sub> は下

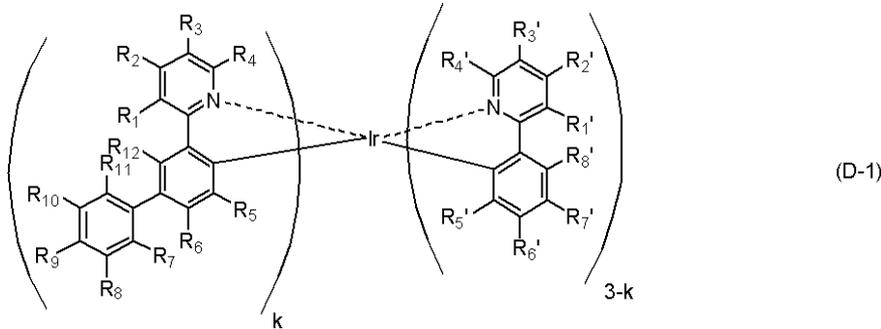
20

記 ( a ) ~ ( e ) のいずれかで表される基を示し、 $R_{19} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。n は 0 又は 1 の整数を表す。)

## 【化 3】



## 【化 4】

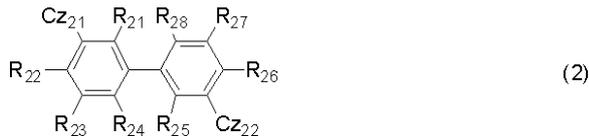


(一般式 ( D - 1 ) 中、 $R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R'_1 \sim R'_8$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$  及び  $R'_1 \sim R'_8$  のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。k は 0 ~ 3 の整数であり、k が 0 の場合の  $R'_1 \sim R'_8$  の炭素数の総数は 2 以上である。)

## 【請求項 2】

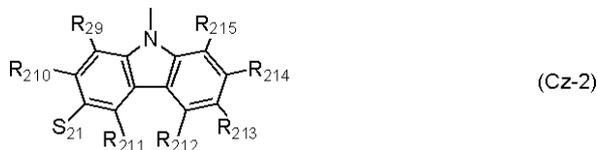
前記一般式 ( 1 ) で表される化合物が、下記一般式 ( 2 ) で表されることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

## 【化 5】



(式中、 $R_{21} \sim R_{28}$  は水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。 $Cz_{21}$ 、 $Cz_{22}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 ( Cz - 2 ) をあらわす。)

## 【化 6】

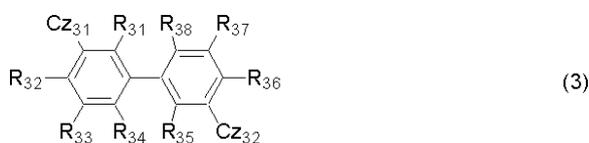


(式中、 $R_{29} \sim R_{215}$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{21}$  は上記 ( a ) ~ ( e ) のいずれかで表される基を表す。)

## 【請求項 3】

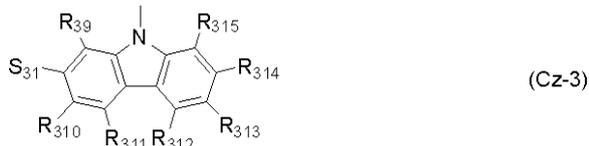
前記一般式 ( 1 ) で表わされる化合物が、下記一般式 ( 3 ) で表されることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

## 【化 7】



(式中、 $R_{31} \sim R_{38}$  は水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。 $Cz_{31}$ 、 $Cz_{32}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 ( Cz - 3 ) をあらわす。)

## 【化 8】



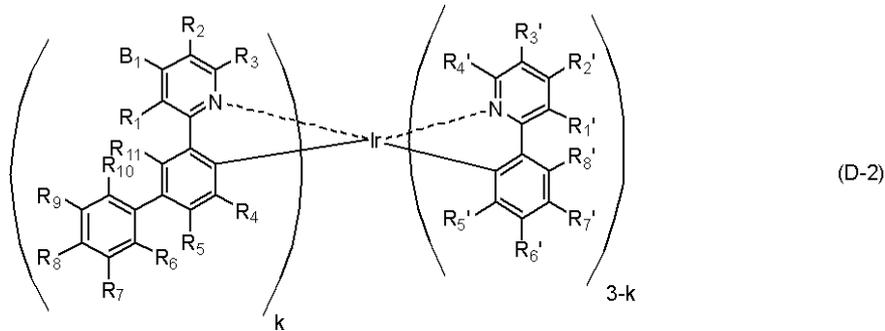
(式中、 $R_{39} \sim R_{315}$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{31}$  は上記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を表す。)

## 【請求項 4】

前記一般式 (D - 1) で表される化合物が、下記一般式 (D - 2) で表される化合物である請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

10

## 【化 9】



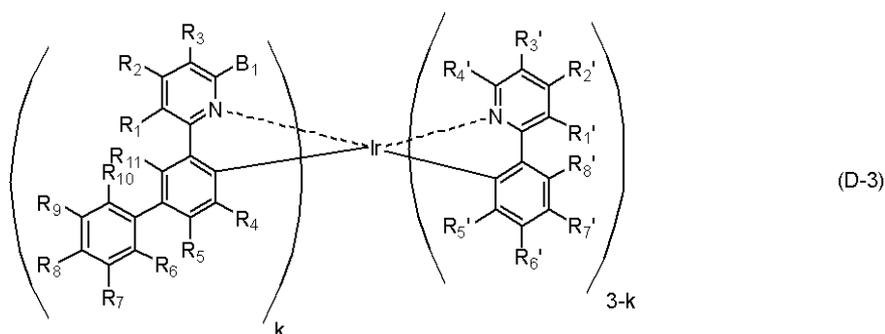
(一般式 (D - 2) 中、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $B_1$  はメチル基、イソプロピル基、又はネオペンチル基である。 $k$  は、1 ~ 3 の整数である。)

20

## 【請求項 5】

前記一般式 (D - 1) で表される化合物が、下記一般式 (D - 3) で表される化合物である請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化 10】



(一般式 (D - 3) 中、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $B_1$  はメチル基、イソプロピル基、又はネオペンチル基である。 $k$  は、1 ~ 3 の整数である。)

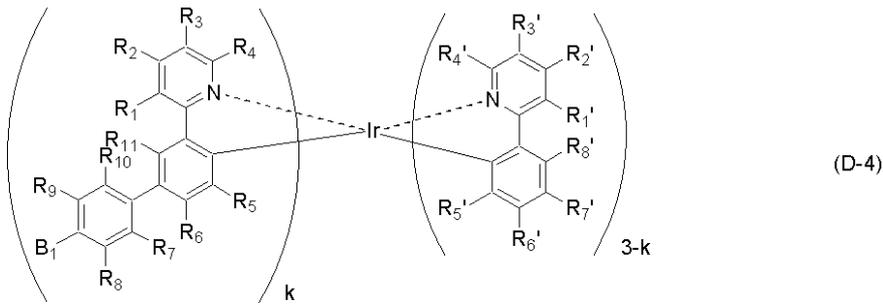
30

40

## 【請求項 6】

前記一般式 (D - 1) で表される化合物が、下記一般式 (D - 4) で表される化合物である請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化 1 1】



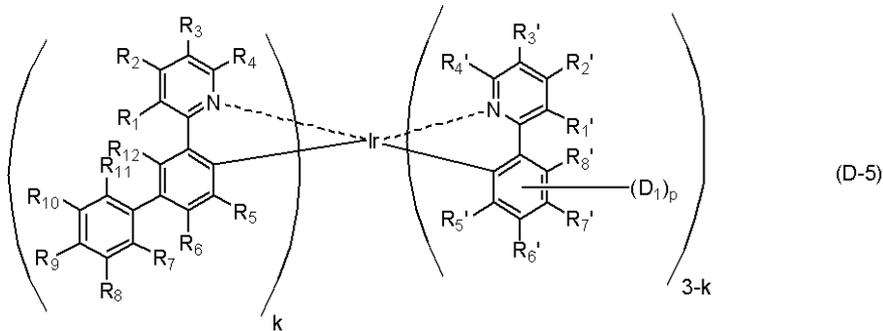
(一般式 (D - 4) 中、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$  は、1 ~ 3 の整数である。)

10

## 【請求項 7】

前記一般式 (D - 1) で表される化合物が、下記一般式 (D - 5) で表される化合物である請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化 1 2】



(一般式 (D - 5) 中、 $R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$  及び  $R_1' \sim R_8'$  のうち少なくとも一つはメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $D_1$  はフッ素原子、トリフルオロメチル基、シアノ基から選択される電子求引性基である。 $D_1$  は  $R_5' \sim R_8'$  中のいずれかに置換する。複数の  $D_1$  は同一であっても異なってもよい。)  $k$  は、1 ~ 3 の整数である。 $p$  は、1 ~ 4 の整数である。)

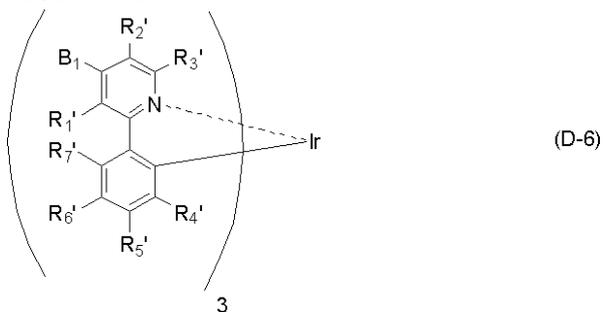
20

30

## 【請求項 8】

前記一般式 (D - 1) で表される化合物が、下記一般式 (D - 6) で表される化合物である請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化 1 3】



(一般式 (D - 6) 中、 $R_1' \sim R_7'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_7'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

40

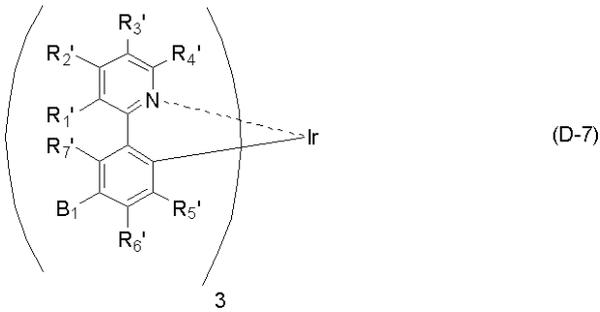
## 【請求項 9】

前記一般式 (D - 1) で表される化合物が、下記一般式 (D - 7) で表される化合物で

50

ある請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 1 4】



10

(一般式 (D - 7) 中、 $R_{1}' \sim R_{7}'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_{1}' \sim R_{7}'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

【請求項 1 0】

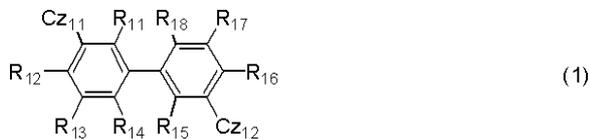
前記一般式 (1) で表される化合物と前記一般式 (D - 1) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有する発光層が、ウエットプロセスで形成されたことを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 1 1】

下記一般式 (1) で表される化合物と一般式 (D - 1) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする組成物。

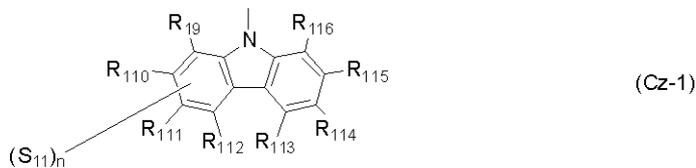
20

【化 1 5】



(式中、 $R_{11} \sim R_{18}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。 $Cz_{11}$ 、及び  $Cz_{12}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 (Cz - 1) を表す。)

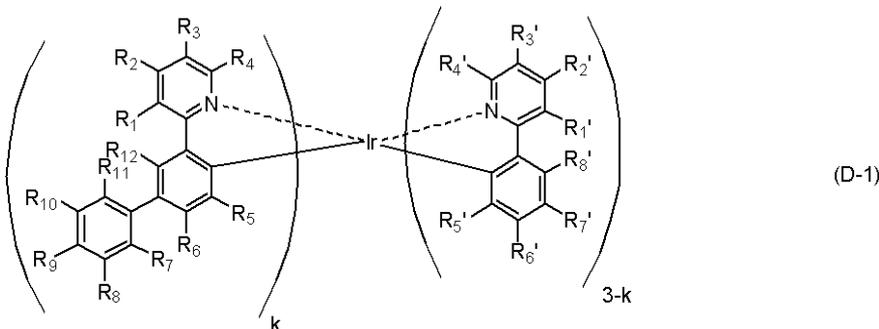
【化 1 6】



30

(式中、 $R_{109} \sim R_{116}$  はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{11}$  は上記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を表し、 $R_{109} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。 $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。)

【化 1 7】



40

(一般式 (D - 1) 中、 $R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、シアノ基を表す。 $R_{1}' \sim R_{8}'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$  及び  $R_{1}' \sim R_{8}'$

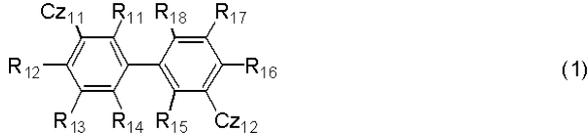
50

8'のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。kは0～3の整数である。)

【請求項12】

下記一般式(1)で表される化合物と一般式(D-1)で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする発光層。

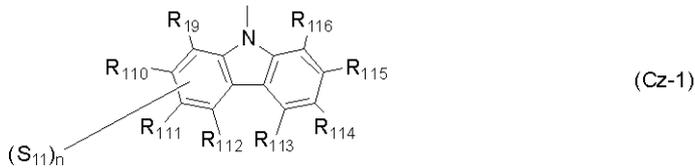
【化18】



10

(式中、R<sub>11</sub>～R<sub>18</sub>はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基を表す。Cz<sub>11</sub>、及びCz<sub>12</sub>はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-1)を表す。)

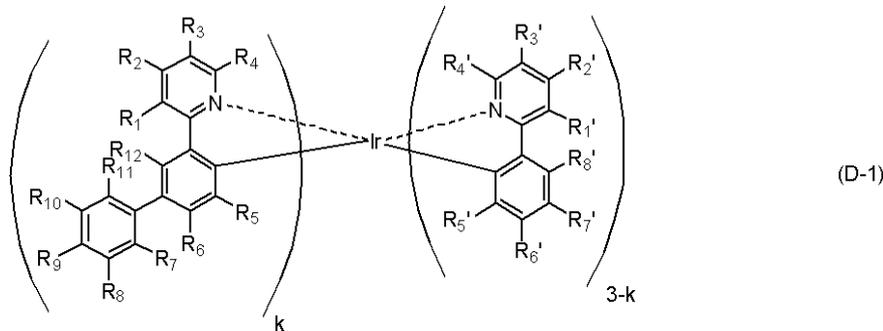
【化19】



(式中、R<sub>109</sub>～R<sub>116</sub>はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基を表す。S<sub>11</sub>は上記(a)～(e)のいずれかで表される基を表し、R<sub>109</sub>～R<sub>112</sub>中のいずれかひとつとして置換する。nは0又は1の整数を表す。)

20

【化20】



30

(一般式(D-1)中、R<sub>1</sub>～R<sub>12</sub>はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、シアノ基を表す。R<sub>1'</sub>～R<sub>8'</sub>はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>12</sub>及びR<sub>1'</sub>～R<sub>8'</sub>のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。kは0～3の整数である。)

【請求項13】

請求項1～10のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

【請求項14】

請求項1～10のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

40

【請求項15】

請求項1～10のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子、特に、有機電界発光素子(発光素子、又はEL素子)に関する。

【背景技術】

【0002】

有機電界発光(EL)素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な

50

表示素子として注目されている。この有機電界発光素子の重要な特性値として消費電力がある。消費電力は電圧と電流の積で表され、所望の明るさを得るに必要な電圧値が低いほど、かつ、電流値を小さくするほど、素子の消費電力を低くすることが出来る。

【0003】

素子に流れる電流値を低くする一つの試みとして、オルトメタル化イリジウム錯体 (Ir(pppy)<sub>3</sub>: tris-ortho-metalated complex of Iridium (III) with 2-phenylpyridine) からの発光を利用した発光素子が報告されている (例えば特許文献1参照)。これらに記載のりん光発光素子は、従来の一重項発光素子に比べて外部量子効率大幅に向上し、電流値を小さくすることに成功している。

10

【0004】

また特定の位置にアルキル基を導入して、耐久性を向上させ、発光スペクトルをシャープ化させた燐光発光材料を使った素子 (特許文献2参照) が報告されているが、さらなる高耐久化が望まれている (特に照明用途などを想定した高輝度駆動時)。

【0005】

発光効率、耐久性改良の高いりん光発光素子として、カルバゾール骨格をビフェニル連結した化合物をホスト材料とした素子 (特許文献3~4) が報告されているが、耐久性の点で、さらなる改良が望まれていた。

【0006】

また、有機電界発光素子の製造において、一对の電極間に設けられる有機層である薄膜を形成する方法としては、蒸着法として真空蒸着、湿式法としてスピンコーティング法、印刷法、インクジェット法等が行われている。

20

中でも湿式法を用いると、蒸着等のドライプロセスでは成膜が困難な高分子の有機化合物も使用可能となり、フレキシブルなディスプレイ等に用いる場合は耐屈曲性や膜強度等の耐久性の点で適しており、特に大面積化した場合に好ましい。

しかし湿式法により得られた有機電界発光素子には素子耐久性に劣るという問題があった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

30

【特許文献1】米国特許出願公開第2008/0297033号明細書

【特許文献2】国際公開第09/073245号パンフレット

【特許文献3】国際公開第00/70655号パンフレット

【特許文献4】国際公開第04/101707号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明の目的は、高耐久性 (特に高輝度駆動時)、かつ素子劣化後の色度ズレの少ない有機電界発光素子の提供にある。

【課題を解決するための手段】

40

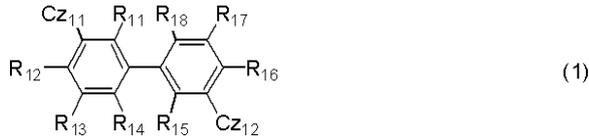
【0009】

この課題は下記手段によって達成された。

< 1 >

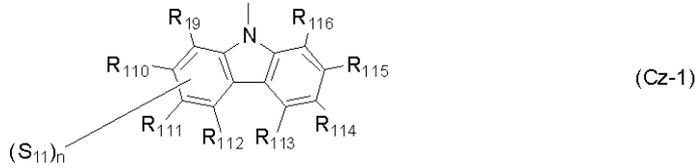
基板上に、一对の電極と、該電極間に発光材料を含有する発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、下記一般式(1)で表される化合物と一般式(D-1)で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする有機電界発光素子。

## 【化 1】



(式中、 $R_{11} \sim R_{18}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。  
 $Cz_{11}$ 、及び  $Cz_{12}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 (Cz-1) を表す。)

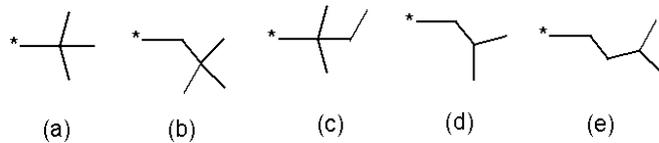
## 【化 2】



10

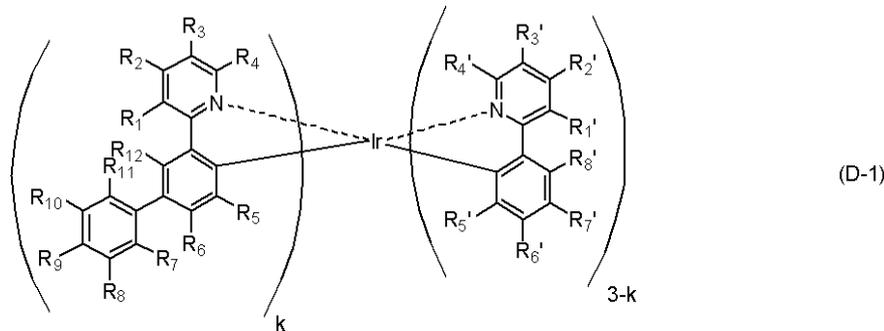
(式中、 $R_{19} \sim R_{116}$  はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{11}$  は下記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を示し、 $R_{19} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。 $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。)

## 【化 3】



20

## 【化 4】



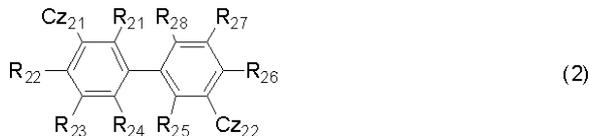
30

(一般式 (D-1) 中、 $R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$  及び  $R_1' \sim R_8'$  のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。 $k$  は 0 ~ 3 の整数であり、 $k$  が 0 の場合の  $R_1' \sim R_8'$  の炭素数の総数は 2 以上である。)

&lt; 2 &gt;

前記一般式 (1) で表される化合物が、下記一般式 (2) で表されることを特徴とする  
 < 1 > に記載の有機電界発光素子。

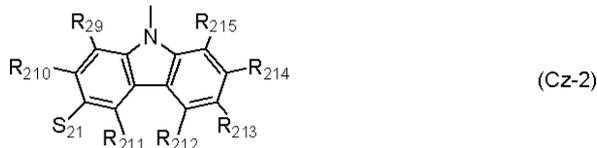
## 【化 5】



(式中、 $R_{21} \sim R_{28}$  は水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。 $Cz_{21}$ 、 $Cz_{22}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 (Cz-2) をあらわす。)

40

## 【化6】



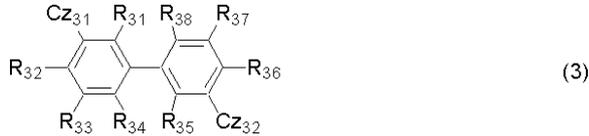
(式中、 $R_{29} \sim R_{215}$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{21}$  は上記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を表す。)

< 3 >

前記一般式 (1) で表わされる化合物が、下記一般式 (3) で表されることを特徴とする < 1 > に記載の有機電界発光素子。

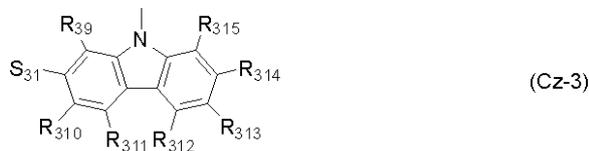
10

## 【化7】



(式中、 $R_{31} \sim R_{38}$  は水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。 $Cz_{31}$ 、 $Cz_{32}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 (Cz-3) をあらわす。)

## 【化8】



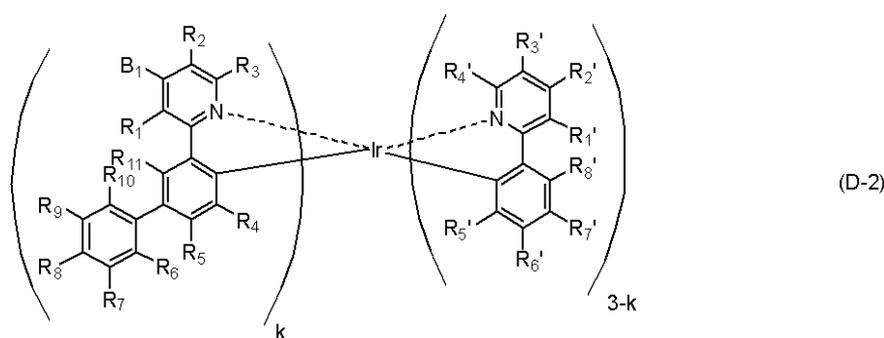
20

(式中、 $R_{39} \sim R_{315}$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{31}$  は上記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を表す。)

< 4 >

前記一般式 (D-1) で表される化合物が、下記一般式 (D-2) で表される化合物である < 1 > ~ < 3 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化9】



30

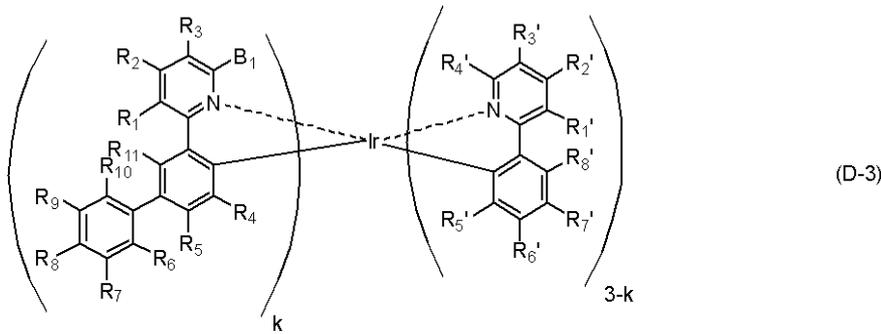
(一般式 (D-2) 中、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $B_1$  はメチル基、イソプロピル基、又はネオペンチル基である。 $k$  は、1 ~ 3 の整数である。)

40

< 5 >

前記一般式 (D-1) で表される化合物が、下記一般式 (D-3) で表される化合物である < 1 > ~ < 3 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化10】



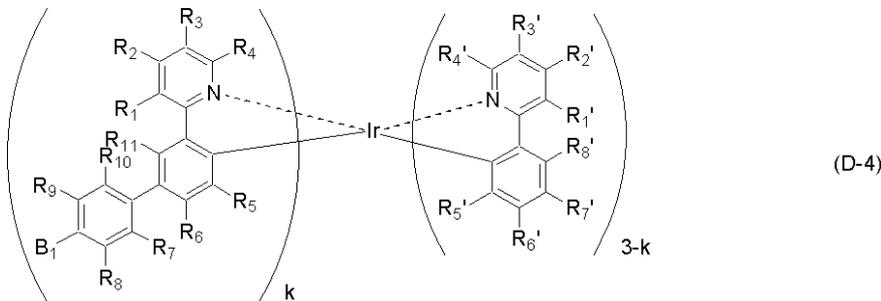
10

(一般式(D-3)中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$ は、1~3の整数である。)

&lt; 6 &gt;

前記一般式(D-1)で表される化合物が、下記一般式(D-4)で表される化合物である<1>~<3>のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化11】



20

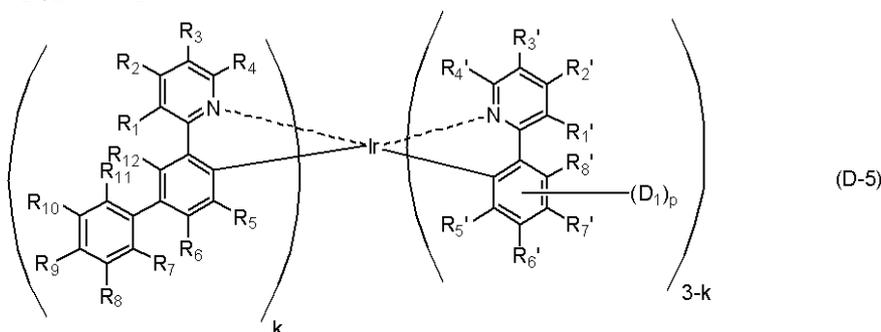
(一般式(D-4)中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$ は、1~3の整数である。)

30

&lt; 7 &gt;

前記一般式(D-1)で表される化合物が、下記一般式(D-5)で表される化合物である<1>~<3>のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【化12】



40

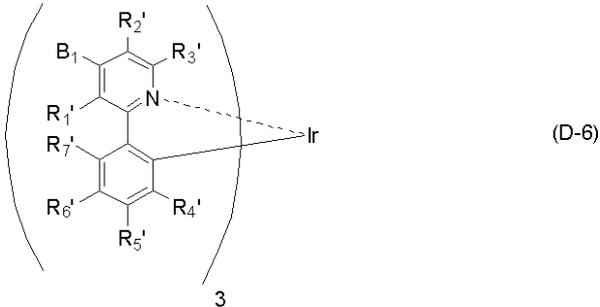
(一般式(D-5)中、 $R_1 \sim R_{12}$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$ 及び $R_1' \sim R_8'$ のうち少なくとも一つはメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $D_1$ はフッ素原子、トリフルオロメチル基、シアノ基から選択される電子求引性基である。 $D_1$ は $R_5' \sim R_8'$ 中のいずれかに置換する。複数の $D_1$ は同一であっても異なってもよい。)  $k$ は、1~3の整数である。 $p$ は、1~4の整数である。)

50

&lt; 8 &gt;

前記一般式 ( D - 1 ) で表される化合物が、下記一般式 ( D - 6 ) で表される化合物である < 1 > ~ < 3 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 1 3】



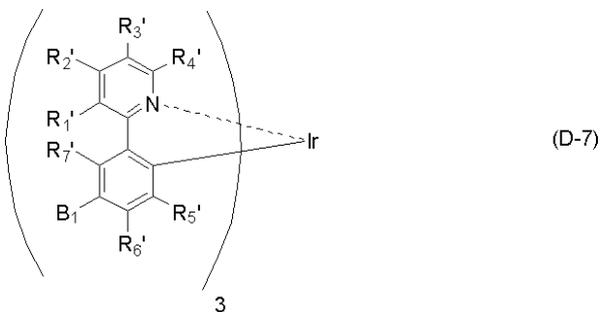
10

(一般式 ( D - 6 ) 中、 $R_1' \sim R_7'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_7'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

&lt; 9 &gt;

前記一般式 ( D - 1 ) で表される化合物が、下記一般式 ( D - 7 ) で表される化合物である < 1 > ~ < 3 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 1 4】



20

(一般式 ( D - 7 ) 中、 $R_1' \sim R_7'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1' \sim R_7'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

30

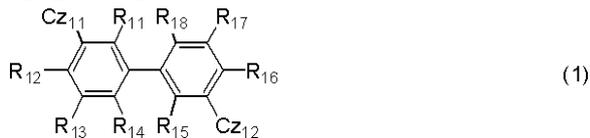
&lt; 1 0 &gt;

前記一般式 ( 1 ) で表される化合物と前記一般式 ( D - 1 ) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有する発光層が、ウエットプロセスで形成されたことを特徴とする < 1 > ~ < 9 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

&lt; 1 1 &gt;

下記一般式 ( 1 ) で表される化合物と一般式 ( D - 1 ) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする組成物。

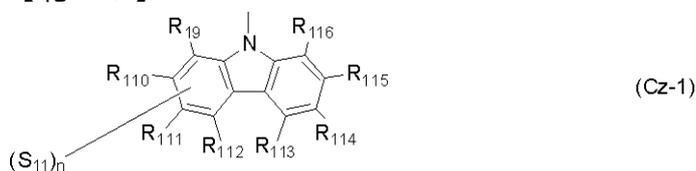
【化 1 5】



40

(式中、 $R_{11} \sim R_{18}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、又はアリール基を表す。 $Cz_{11}$ 、及び  $Cz_{12}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 ( Cz - 1 ) を表す。)

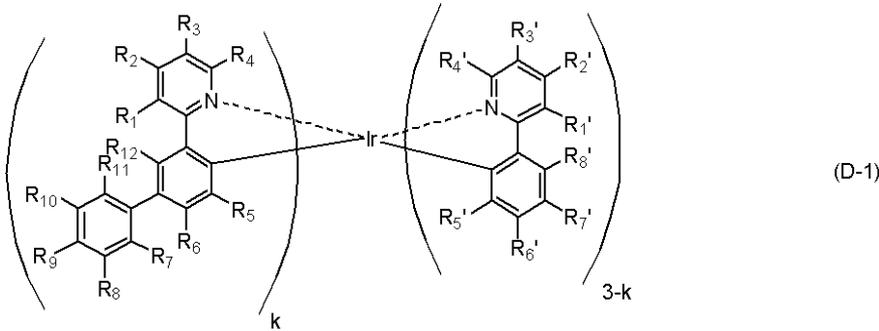
【化 1 6】



50

(式中、 $R_{1,9} \sim R_{1,16}$  はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{1,1}$  は上記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を表し、 $R_{1,9} \sim R_{1,12}$  中のいずれかひとつとして置換する。 $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。)

## 【化 17】



10

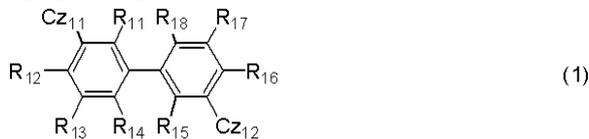
(一般式 (D-1) 中、 $R_1 \sim R_{1,2}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、シアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{1,2}$  及び  $R_1' \sim R_8'$  のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。 $k$  は 0 ~ 3 の整数である。)

## &lt; 1 2 &gt;

下記一般式 (1) で表される化合物と一般式 (D-1) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする発光層。

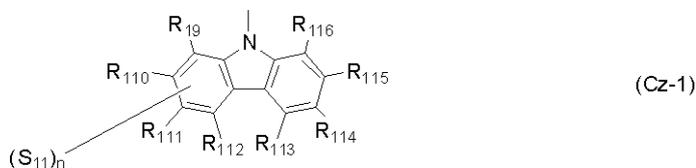
20

## 【化 18】



(式中、 $R_{1,1} \sim R_{1,8}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基を表す。 $Cz_{1,1}$ 、及び  $Cz_{1,2}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 (Cz-1) を表す。)

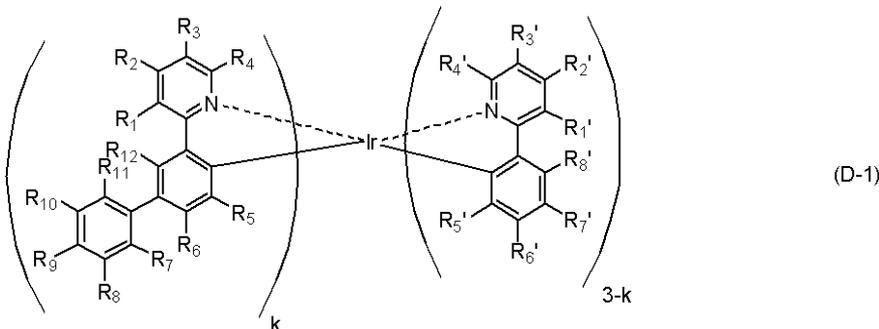
## 【化 19】



30

(式中、 $R_{1,9} \sim R_{1,16}$  はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基を表す。 $S_{1,1}$  は上記 (a) ~ (e) のいずれかで表される基を表し、 $R_{1,9} \sim R_{1,12}$  中のいずれかひとつとして置換する。 $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。)

## 【化 20】



40

(一般式 (D-1) 中、 $R_1 \sim R_{1,2}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素基、シアノ基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、又はシアノ基を表す。 $R_1 \sim R_{1,2}$  及び  $R_1' \sim R_8'$

50

$k$  のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリアル基である。  $k$  は 0 ~ 3 の整数である。

< 1 3 >

< 1 > ~ < 1 0 > のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

< 1 4 >

< 1 > ~ < 1 0 > のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

< 1 5 >

< 1 > ~ < 1 0 > のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

本発明は上記 < 1 > ~ < 1 5 > に関するものであるが、参考のため例えば下記〔 1 〕 ~ 〔 1 5 〕 など、その他の事項についても記載した。

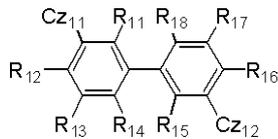
10

〔 1 〕

基板上に、一对の電極と、該電極間に発光材料を含有する発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、下記一般式 ( 1 ) で表される化合物と一般式 ( D - 1 ) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【 0 0 1 0 】

【化 1】



(1)

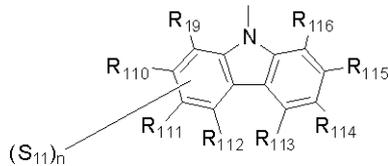
20

【 0 0 1 1 】

( 式中、  $R_{11} \sim R_{18}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。  $Cz_{11}$ 、及び  $Cz_{12}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 ( Cz - 1 ) を表す。 )

【 0 0 1 2 】

【化 2】



(Cz-1)

30

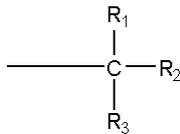
【 0 0 1 3 】

( 式中、  $R_{19} \sim R_{116}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。  $S_{11}$  は下記置換基 ( S ) を示し、  $R_{19} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。  $R_1$  はアルキル基を表し、  $R_2$  は水素原子又はアルキル基を表し、  $R_3$  は水素原子又はアルキル基を表す。  $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。 )

【 0 0 1 4 】

【化 3】

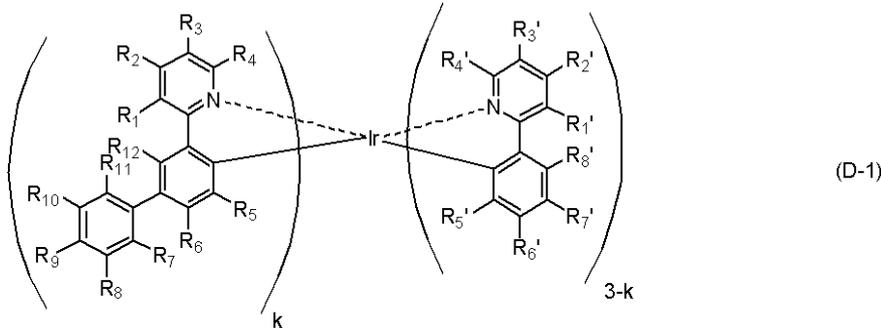
置換基 ( S )



40

【 0 0 1 5 】

## 【化4】



10

## 【0016】

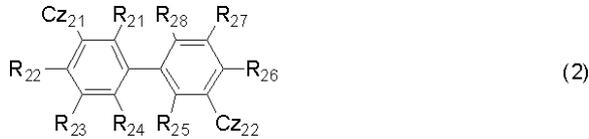
(一般式(D-1)中、 $R_1 \sim R_{12}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$ 及び $R_1' \sim R_8'$ のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。 $k$ は0~3の整数であり、 $k$ が0の場合の $R_1' \sim R_8'$ の炭素数の総数は2以上である。)

## 〔2〕

前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(2)で表されることを特徴とする〔1〕に記載の有機電界発光素子。

## 【0017】

## 【化5】



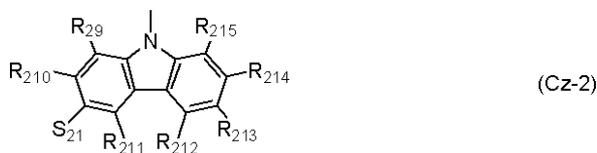
20

## 【0018】

(式中、 $R_{21} \sim R_{28}$ は水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{21}$ 、 $Cz_{22}$ はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-2)をあらわす。)

## 【0019】

## 【化6】



30

## 【0020】

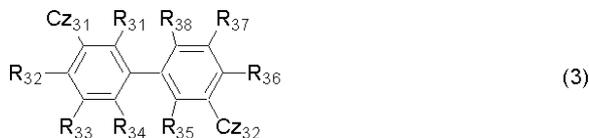
(式中、 $R_{29} \sim R_{215}$ は水素原子又は置換基を表す。 $S_{21}$ は上記置換基Sを表す。)

## 〔3〕

前記一般式(1)で表わされる化合物が、下記一般式(3)で表されることを特徴とする〔1〕に記載の有機電界発光素子。

## 【0021】

## 【化7】



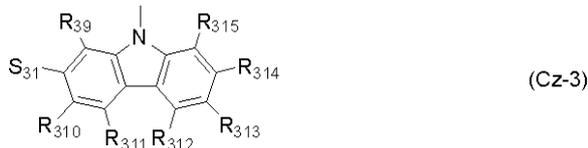
40

## 【0022】

(式中、 $R_{31} \sim R_{38}$ は水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{31}$ 、 $Cz_{32}$ はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-3)をあらわす。)

## 【0023】

【化8】



【0024】

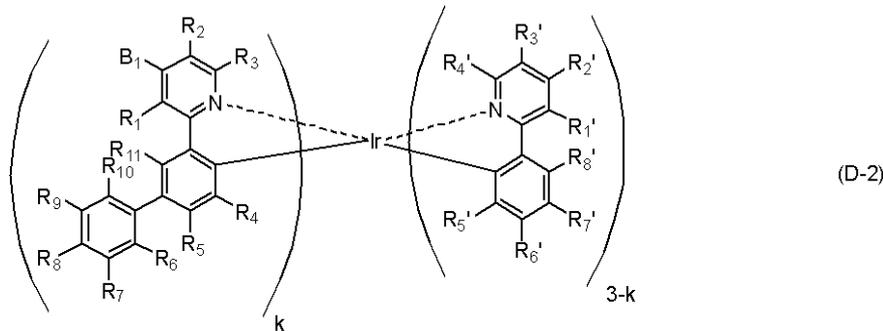
(式中、 $R_{39} \sim R_{315}$  は水素原子又は置換基を表す。 $S_{31}$  は上記置換基  $S$  を表す。)

〔4〕

前記一般式 (D-1) で表される化合物が、下記一般式 (D-2) で表される化合物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の有機電界発光素子。 10

【0025】

【化9】



20

【0026】

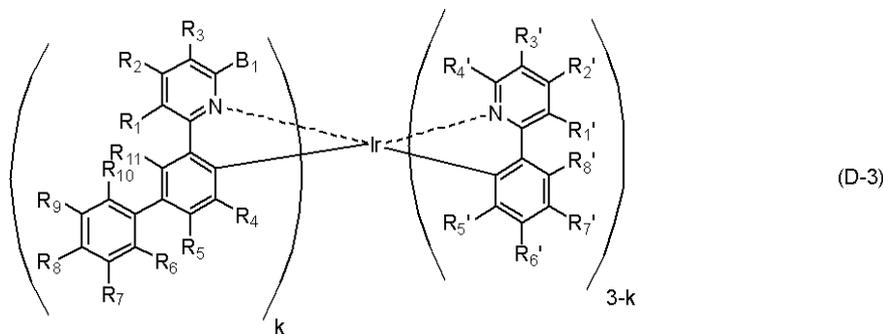
(一般式 (D-2) 中、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$  は、1～3の整数である。)

〔5〕

前記一般式 (D-1) で表される化合物が、下記一般式 (D-3) で表される化合物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の有機電界発光素子。 30

【0027】

【化10】



40

【0028】

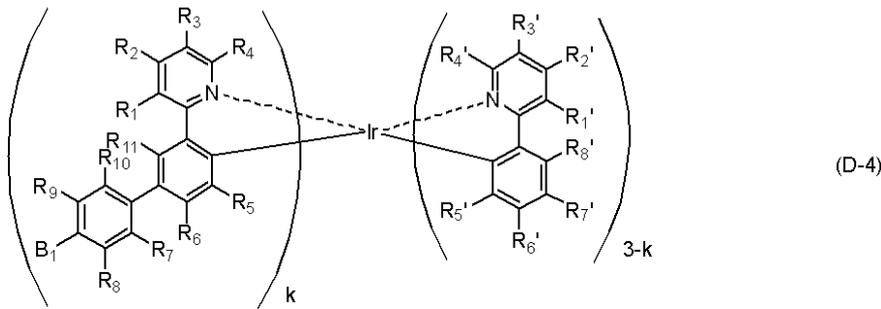
(一般式 (D-3) 中、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$  は、1～3の整数である。)

〔6〕

前記一般式 (D-1) で表される化合物が、下記一般式 (D-4) で表される化合物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0029】

## 【化11】



## 【0030】

(一般式(D-4)中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$ は、1～3の整数である。)

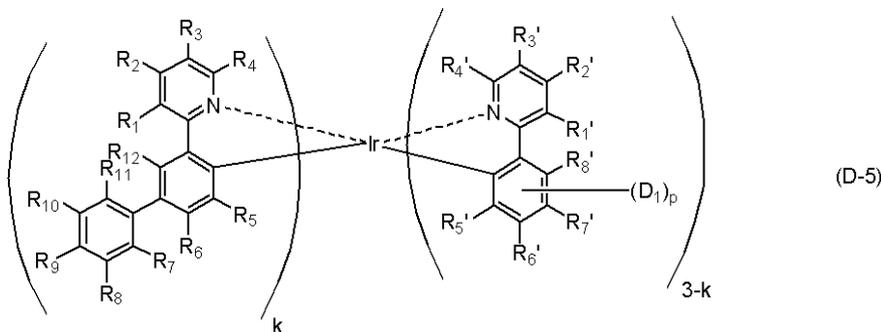
10

## 〔7〕

前記一般式(D-1)で表される化合物が、下記一般式(D-5)で表される化合物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【0031】

## 【化12】



20

## 【0032】

(一般式(D-5)中、 $R_1 \sim R_{12}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$ 及び $R_1' \sim R_8'$ のうち少なくとも一つはメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $D_1$ はフッ素原子、トリフルオロメチル基、シアノ基から選択される電子求引性基である。 $D_1$ は $R_5' \sim R_8'$ 中のいずれかに置換する。複数の $D_1$ は同一であっても異なってもよい。 $k$ は、1～3の整数である。 $p$ は、1～4の整数である。)

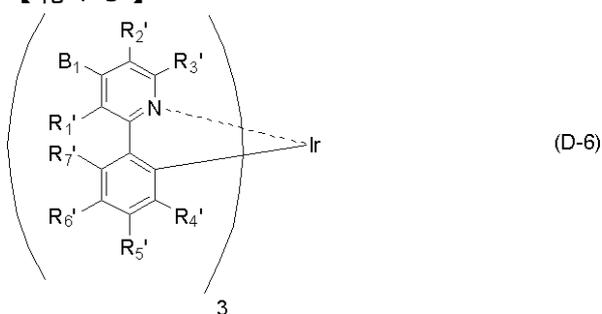
30

## 〔8〕

前記一般式(D-1)で表される化合物が、下記一般式(D-6)で表される化合物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【0033】

## 【化13】



40

## 【0034】

(一般式(D-6)中、 $R_1' \sim R_7'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_7'$ のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$ はメチル基、イソブチル基

50

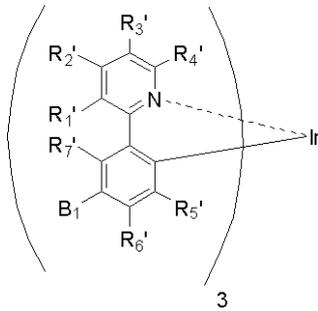
、又はネオペンチル基である。)

〔 9 〕

前記一般式 ( D - 1 ) で表される化合物が、下記一般式 ( D - 7 ) で表される化合物である〔 1 〕 ~ 〔 3 〕 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【 0 0 3 5 】

【 化 1 4 】



(D-7)

10

【 0 0 3 6 】

(一般式 ( D - 7 ) 中、 $R_1' \sim R_7'$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_7'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

〔 1 0 〕

前記一般式 ( 1 ) で表される化合物と前記一般式 ( D - 1 ) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有する発光層が、ウエットプロセスで形成されたことを特徴とする〔 1 〕 ~ 〔 9 〕 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

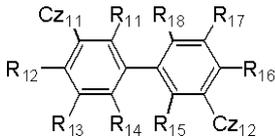
20

〔 1 1 〕

下記一般式 ( 1 ) で表される化合物と一般式 ( D - 1 ) で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする組成物。

【 0 0 3 7 】

【 化 1 5 】



(1)

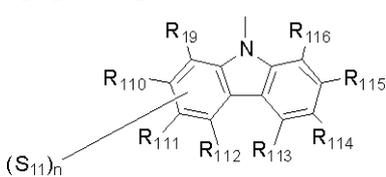
30

【 0 0 3 8 】

(式中、 $R_{111} \sim R_{118}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{11}$ 、及び  $Cz_{12}$  はそれぞれ独立に下記部分構造 ( Cz - 1 ) を表す。)

【 0 0 3 9 】

【 化 1 6 】



(Cz-1)

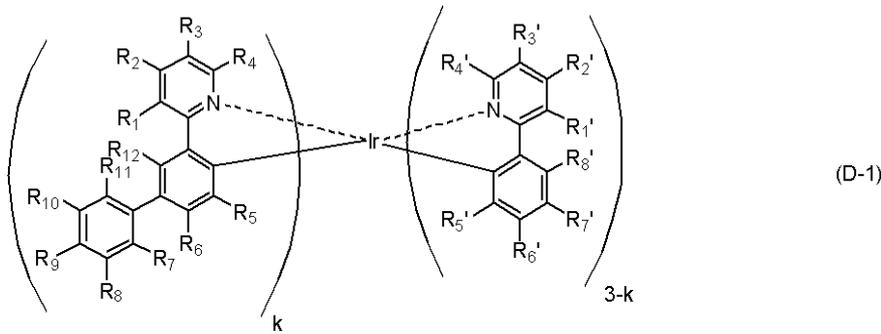
40

【 0 0 4 0 】

(式中、 $R_{119} \sim R_{116}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $S_{11}$  は上記置換基 S を表し、 $R_{119} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。 $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。)

【 0 0 4 1 】

【化17】



10

【0042】

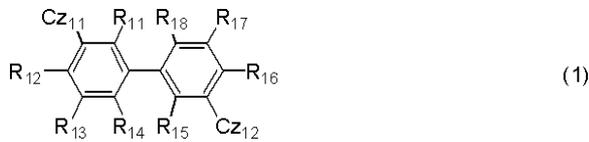
(一般式(D-1)中、 $R_1 \sim R_{12}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R'_1 \sim R'_8$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$ 及び $R'_1 \sim R'_8$ のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。 $k$ は0~3の整数である。)

【12】

下記一般式(1)で表される化合物と一般式(D-1)で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする発光層。

【0043】

【化18】



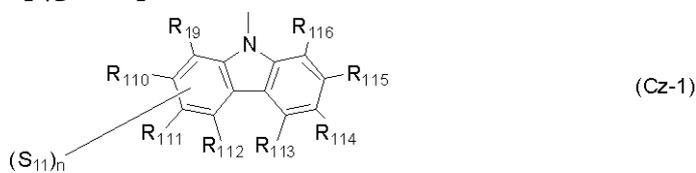
20

【0044】

(式中、 $R_{11} \sim R_{18}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{11}$ 、及び $Cz_{12}$ はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-1)を表す。)

【0045】

【化19】



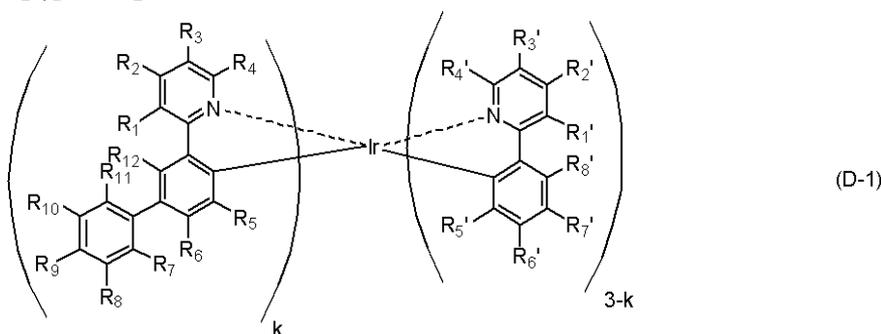
30

【0046】

(式中、 $R_{109} \sim R_{116}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $S_{11}$ は上記置換基Aを表し、 $R_{109} \sim R_{116}$ 中のいずれかひとつとして置換する。 $n$ は0又は1の整数を表す。)

【0047】

【化20】



40

【0048】

50

(一般式(D-1)中、 $R_1 \sim R_{12}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$ 及び $R_1' \sim R_8'$ のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリアル基である。 $k$ は0~3の整数である。)

〔13〕

〔1〕~〔10〕のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

〔14〕

〔1〕~〔10〕のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

〔15〕

〔1〕~〔10〕のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

10

【発明の効果】

【0049】

本発明によれば、高耐久性(特に高輝度駆動時)、かつ素子劣化後の色度ズレの少ない有機電界発光素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0050】

【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】

20

【0051】

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、一対の電極と、該電極間に発光材料を含有する発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、前記一般式(1)で表される化合物と前記一般式(D-1)で表される化合物を少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする。

【0052】

一般式(1)で表される化合物はカルバゾール骨格が3,3'-ビフェニルで連結した3,3'-ジカルバゾリルビフェニルと呼ばれる化合物群である。一般式(1)で表される化合物は、最低励起三重項(T1)エネルギー準位(例えば、3,3'-ジカルバゾリルビフェニル:68kcal/mol)が、発光層ホスト材料として一般的なCBP(4,4'-ジカルバゾリルビフェニル)のT1エネルギー準位(60kcal/mol)と比較して大きいため、励起状態からの分解反応が起こりやすく、素子の駆動耐久性低下を起こしやすいと考えられていた。しかし、本発明では、一般式(1)で表される化合物と一般式(D-1)で表される化合物とを組み合わせることで、素子の耐久性を向上させることができた(特に高輝度駆動時)。

30

【0053】

一般式(1)で表される化合物はCBPと比較して、サイクリックボルタモグラム(CV)測定における酸化電位が高く(例えば、3,3'-ジカルバゾリルビフェニルの酸化電位:  $E = 1.4V$ 、CBPの酸化電位:  $E = 1.3V$ (極大電流値を示す電位で比較。参照電極:  $Ag/Ag^+$ ))、化学的に不安定なジカチオン状態を作りにくいと考えられる。また、3,3'-ビフェニルで連結した一般式(1)で表される化合物は、ジカチオン状態においてキノイド構造をとらないため、ジカチオン状態が失活しても、低T1の発光クエンチャーとなりにくい。一方、CBPはジカチオン状態においてキノイド構造を取り得るため、低T1の発光クエンチャーを生成しやすいと考えられる。

40

【0054】

有機電界発光素子は、素子中に注入された正孔及び電子が、発光層内で再結合、励起子を生成して発光する。素子中に注入された正孔は、発光層内では主にホスト材料中に注入されるため、素子の寿命はホスト材料のカチオン状態における耐久性に依存する。一般式(1)で表される化合物をホストとすると、CBPと比較して化学的に不安定なジカチオンを生成しにくいいため、ホスト材料のジカチオンからの分解、クエンチャー生成が少なく

50

なり、素子の寿命が長くなったと推定される。特に高輝度駆動時は、素子に流れる電流が多く、発光層内に注入される正孔の量が増大し、発光層中内の電荷バランスもキャリア（正孔と電子）の移動度の差から正孔過多になるため、ホスト材料のジカチオン体が多く生成すると考えられ、ジカチオン状態を生成しにくい一般式（１）で表される化合物をホストとすると、素子耐久性が大きく伸びると推察される。

## 【 0 0 5 5 】

更に、一般式（１）で表される化合物と、特定の位置をアルキル基で保護された一般式（D-1）で表される化合物とを組み合わせることで、発光材料とホスト材料間の空間的な距離が離れ、カチオン状態のホスト材料と発光材料間の２量化反応、分解反応が抑制され、素子の耐久性が更に向上すると考えられる。アルキル基導入による効果は、化学的により不安定なホスト材料のジカチオンとの２量化反応、分解反応抑制により強く表われ、高輝度駆動時の素子高耐久化を可能にしたと考えられる。

10

## 【 0 0 5 6 】

また、２量化反応、分解反応が減少する事で、色度に悪影響を及ぼす電荷トラップ、低T1エネルギーの発光成分（長波長発光成分）の生成が抑制されるため、駆動劣化時の色度ズレが少なくなると期待される。

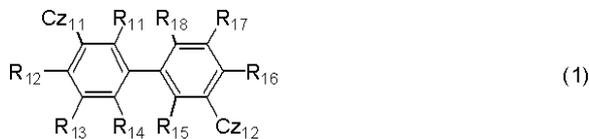
## 【 0 0 5 7 】

〔一般式（１）で表される化合物〕

一般式（１）で表される化合物について詳細に説明する。

## 【 0 0 5 8 】

## 【化 2 1】



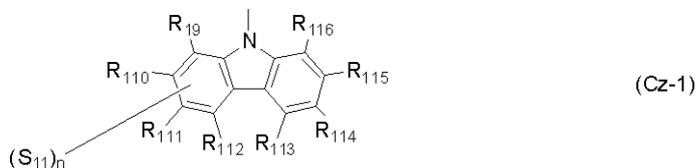
20

## 【 0 0 5 9 】

（式中、 $R_{11} \sim R_{18}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{11}$ 、及び  $Cz_{12}$  はそれぞれ独立に下記部分構造（Cz-1）を表す。）

## 【 0 0 6 0 】

## 【化 2 2】



30

## 【 0 0 6 1 】

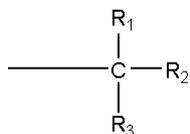
（式中、 $R_{19} \sim R_{116}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $S_{11}$  は下記置換基（S）を示し、 $R_{19} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。 $R_1$  はアルキル基を表し、 $R_2$  は水素原子又はアルキル基を表し、 $R_3$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $n$  は 0 又は 1 の整数を表す。）

40

## 【 0 0 6 2 】

## 【化 2 3】

置換基（S）



## 【 0 0 6 3 】

$R_{11} \sim R_{18}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_{11} \sim R_{18}$  で表される置換基としては下記置換基群 A として挙げたものが適用できる。

50

## 【 0 0 6 4 】

(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、i s o - プロピル、t e r t - ブチル、n - オクチル、n - デシル、n - ヘキサデシルなどが挙げられる。)、脂環式炭化水素基 (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、例えばアダマンチル、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、例えばフェニロキシ、1 - ナフチロキシ、2 - ナフチロキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルオキシ、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 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、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 7 ~ 30、より好ましくは炭素数 7 ~ 20、特に好ましくは炭素数 7 ~ 12 であり、例えばフェニロキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基 (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、例えばフェニロキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基 (好ましくは炭素数 0 ~ 30、より好ましくは炭素数 0 ~ 20、特に好ましくは炭素数 0 ~ 12 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばカルバモイル、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

10

20

30

40

50

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(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、硫黄原子であり、具体的にはイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ペリリル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル基、アゼピニ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。)

10

20

## 【0065】

$R_{11} \sim R_{18}$  は更に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用できる。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

## 【0066】

$R_{11} \sim R_{18}$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヘテロ環オキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、ヘテロ環チオ基、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基、シリルオキシ基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基、であり、特に好ましくは水素原子、アリール基、アルキル基である。

30

## 【0067】

$R_{19} \sim R_{116}$  は水素原子又は置換基を表し、前記置換基群 A として挙げたものが適用できる。

## 【0068】

$R_{19} \sim R_{116}$  は更に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用できる。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

40

## 【0069】

$R_{19} \sim R_{116}$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヘテロ環オキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、ヘテロ環チオ基、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基、シリルオキシ基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環

50

基、であり、特に好ましくは水素原子、又はアルキル基であり、水素原子、又は炭素数 1 ~ 3 のアルキル基であることが好ましく、水素原子であることがより好ましい。

## 【0070】

$S_{11}$  は上記置換基 (S) を示し、 $R_{19} \sim R_{112}$  中のいずれかひとつとして置換する。

## 【0071】

$R_1$  はアルキル基を表す。 $R_1$  として好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、*iso*-プロピル基、ブチル基、又は *tert*-ブチル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、*iso*-プロピル基、又は *tert*-ブチル基であり、更に好ましくはメチル基、エチル基、*iso*-プロピル基、又は *tert*-ブチル基であり、特に好ましくはメチル基、エチル基、又は *tert*-ブチル基である。

10

## 【0072】

$R_2$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $R_2$  として好ましくは、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、*iso*-プロピル基、ブチル基、*tert*-ブチル基であり、更に好ましくは水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基であり、より好ましくは水素原子、メチル基であり、特に好ましくはメチル基である。

## 【0073】

$R_3$  は水素原子又はアルキル基を表す。 $R_3$  として好ましくは水素原子、メチル基であり、より好ましくはメチル基である。

## 【0074】

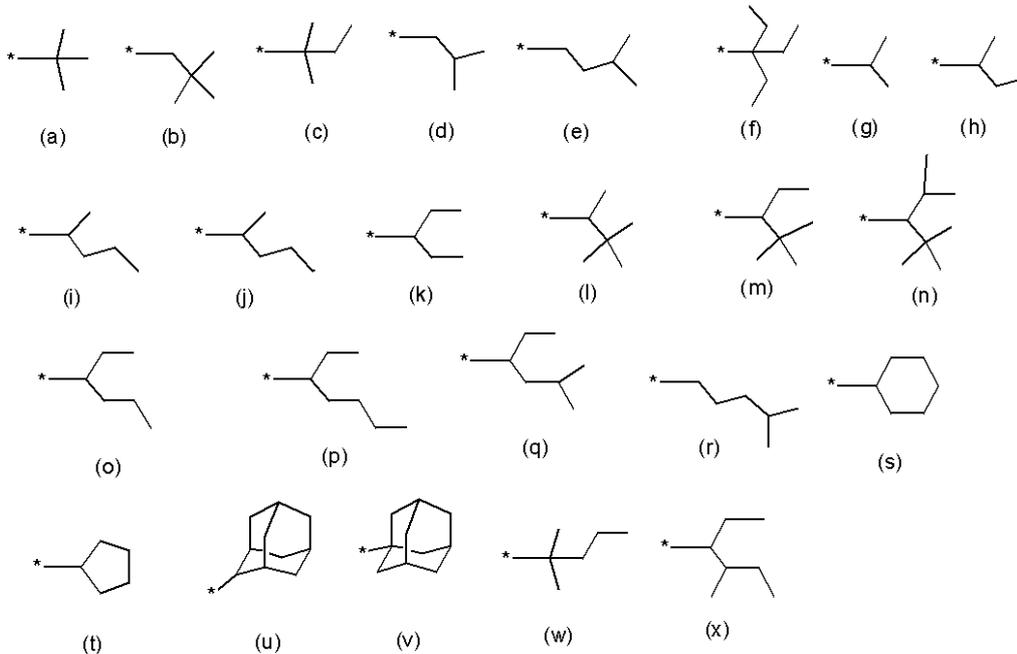
また、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ互いに結合して環を形成していてもよい。環を形成する場合、環員数は特に限定されないが、好ましくは 5 又は 6 員環であり、更に好ましくは 6 員環である。

20

置換基 (S) として好ましくは下記 (a) ~ (x) を挙げることができ、(a) ~ (j) 及び (w) がより好ましく、(a) ~ (g) がより好ましく、(a) ~ (e) が特に好ましく、更に (a) ~ (c) が好ましい。

## 【0075】

## 【化24】



30

40

## 【0076】

$n$  は 0 又は 1 の整数を表し、1 であることが好ましい。 $S_{11}$  で表される置換基が導入されることで、カルバゾール骨格のカチオン、アニオン状態における活性位が保護され、素子中においてホスト材料の分解反応が減少し、素子耐久性が更に向上する。

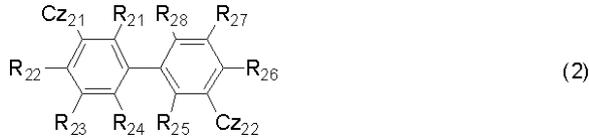
## 【0077】

50

一般式(1)で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式(2)で表される化合物である。一般式(2)で表される化合物は、カルバゾール骨格のカチオン状態における活性位が保護され、素子中においてホスト材料の分解反応が減少し、素子耐久性が更に向上する。

【0078】

【化25】



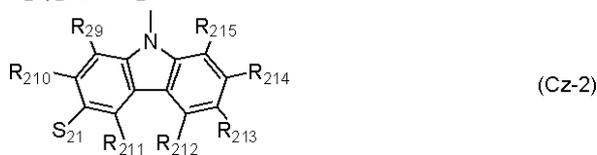
10

【0079】

(式中、 $R_{21} \sim R_{28}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{21}$ 、及び  $Cz_{22}$  はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-2)を表す。)

【0080】

【化26】



20

【0081】

(式中、 $R_{29} \sim R_{215}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $S_{21}$  は上記置換基Sを表す。)

【0082】

一般式(2)において、 $R_{21} \sim R_{28}$ 、 $Cz_{21}$ 、 $Cz_{22}$ 、 $R_{29} \sim R_{215}$ 、及び  $S_{21}$  は一般式(1)における  $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $Cz_{11}$ 、 $Cz_{12}$ 、 $R_{19} \sim R_{116}$ 、及び  $S_{11}$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

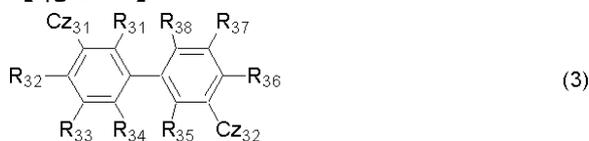
【0083】

一般式(1)で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式(3)で表される化合物である。カルバゾール骨格のアニオン状態における活性位が保護され、素子中においてホスト材料の分解反応が減少し、素子耐久性が更に向上する。

30

【0084】

【化27】

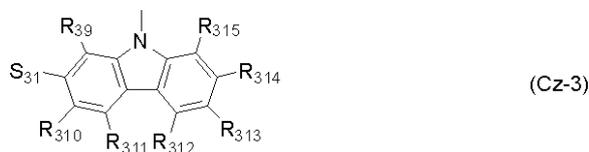


【0085】

(式中、 $R_{31} \sim R_{38}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $Cz_{31}$ 、及び  $Cz_{32}$  はそれぞれ独立に下記部分構造(Cz-3)を表す。)

【0086】

【化28】



40

【0087】

(式中、 $R_{39} \sim R_{315}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $S_{31}$  は上記置換基Sを表す。)

【0088】

一般式(3)において、 $R_{31} \sim R_{38}$ 、 $Cz_{31}$ 、 $Cz_{32}$ 、 $R_{39} \sim R_{315}$ 、及

50

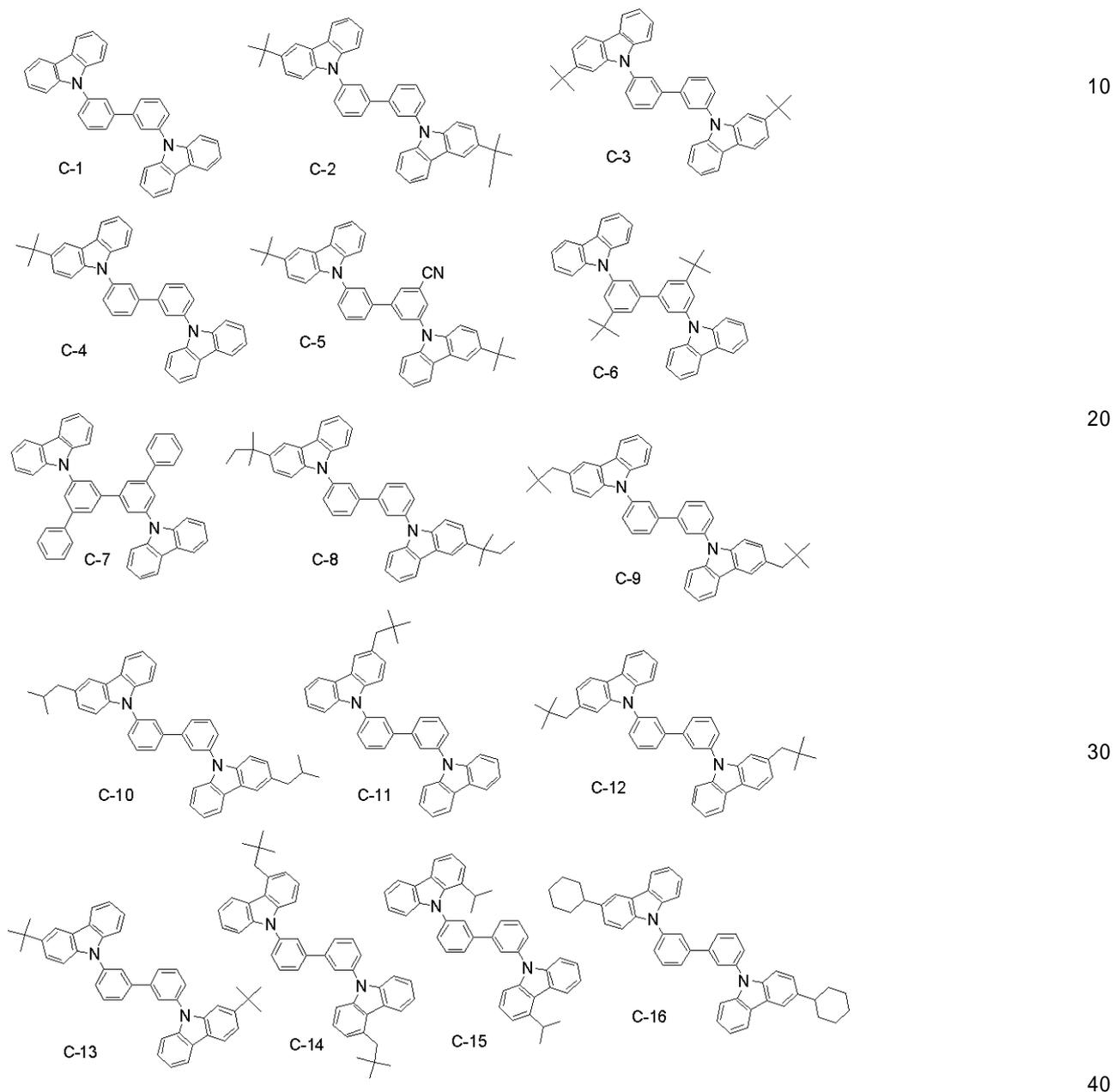
び  $S_{31}$  は一般式 (1) における  $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $Cz_{11}$ 、 $Cz_{12}$ 、 $R_{19} \sim R_{116}$ 、及び  $S_{11}$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0089】

前記一般式 (1) ~ (3) で表される化合物の好ましい具体例を以下に示すが、これら限定するものではない。

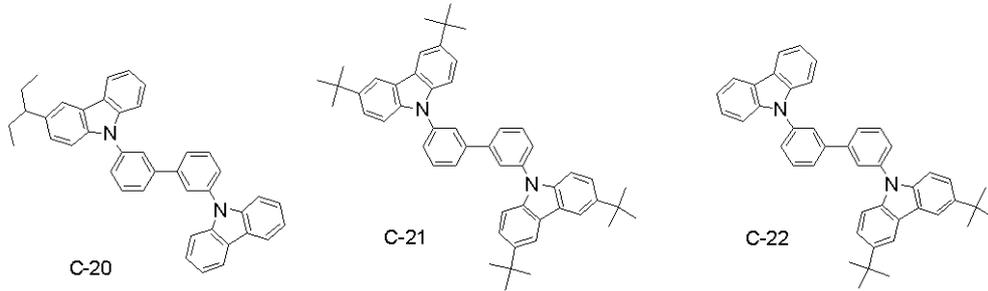
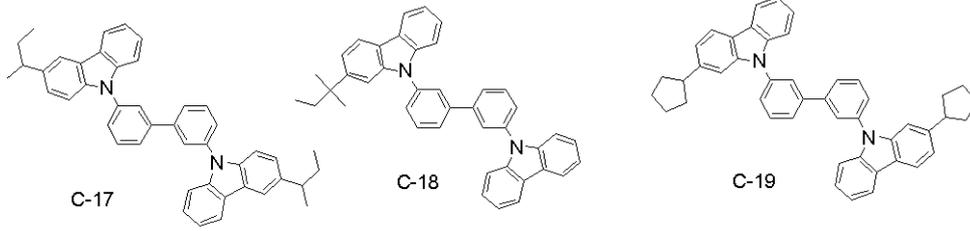
【0090】

【化29】

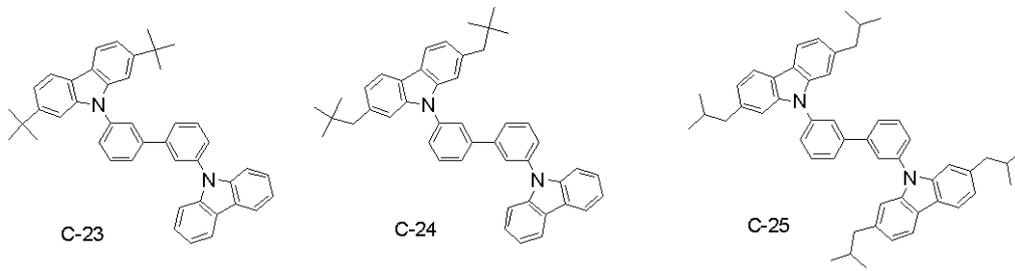


【0091】

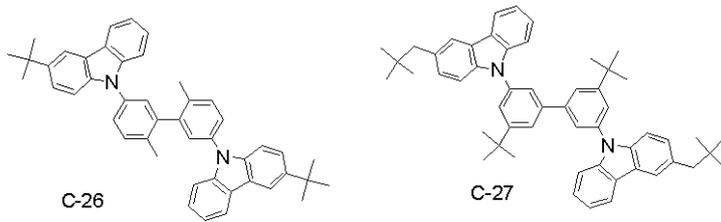
【化 3 0】



10



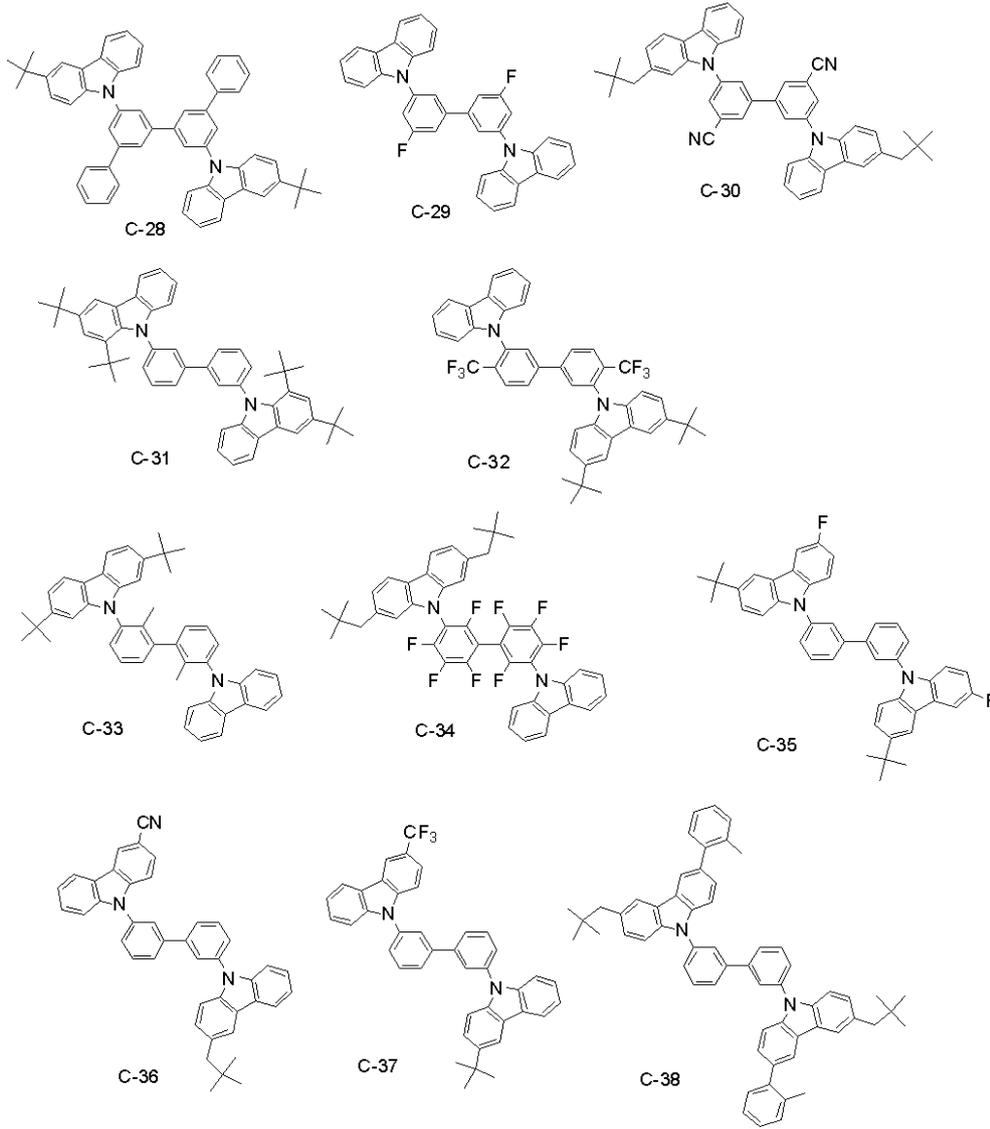
20



30

【 0 0 9 2 】

【化 3 1】



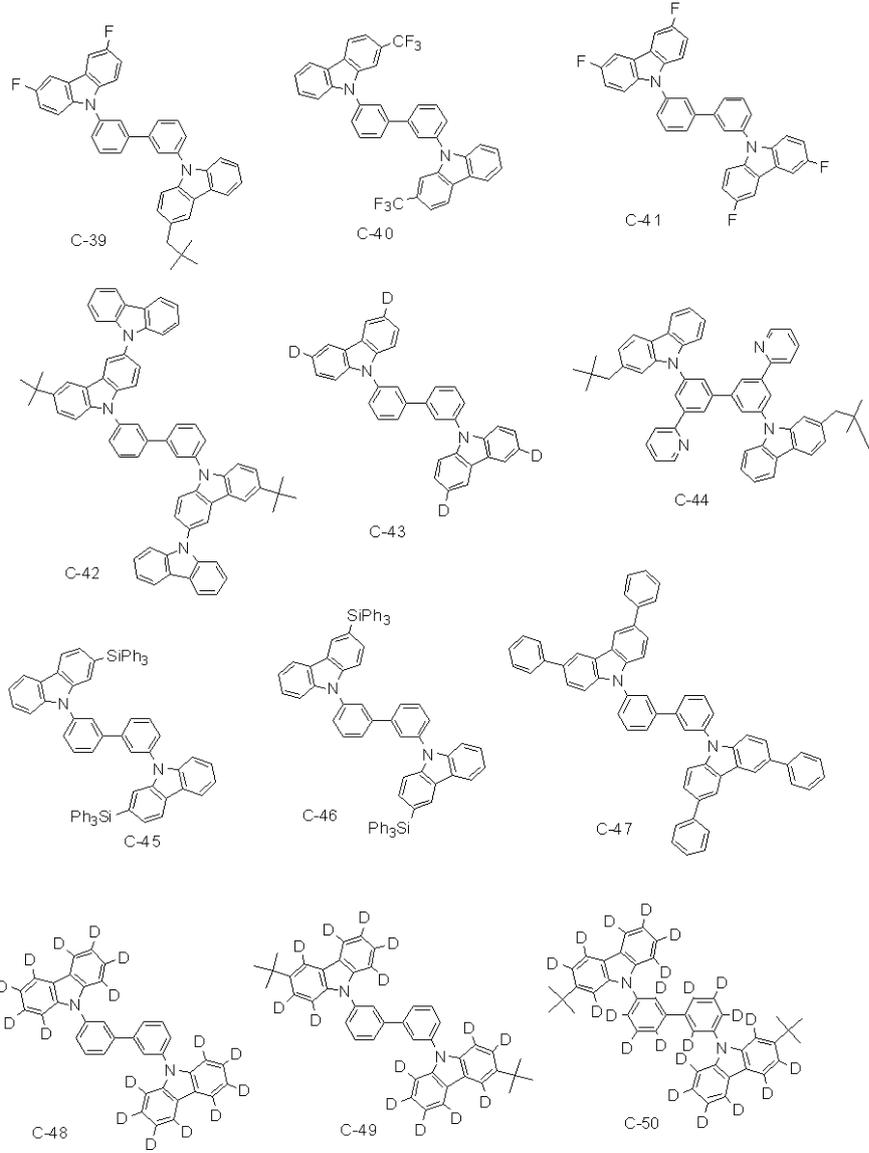
10

20

30

【 0 0 9 3 】

【化 3 2】



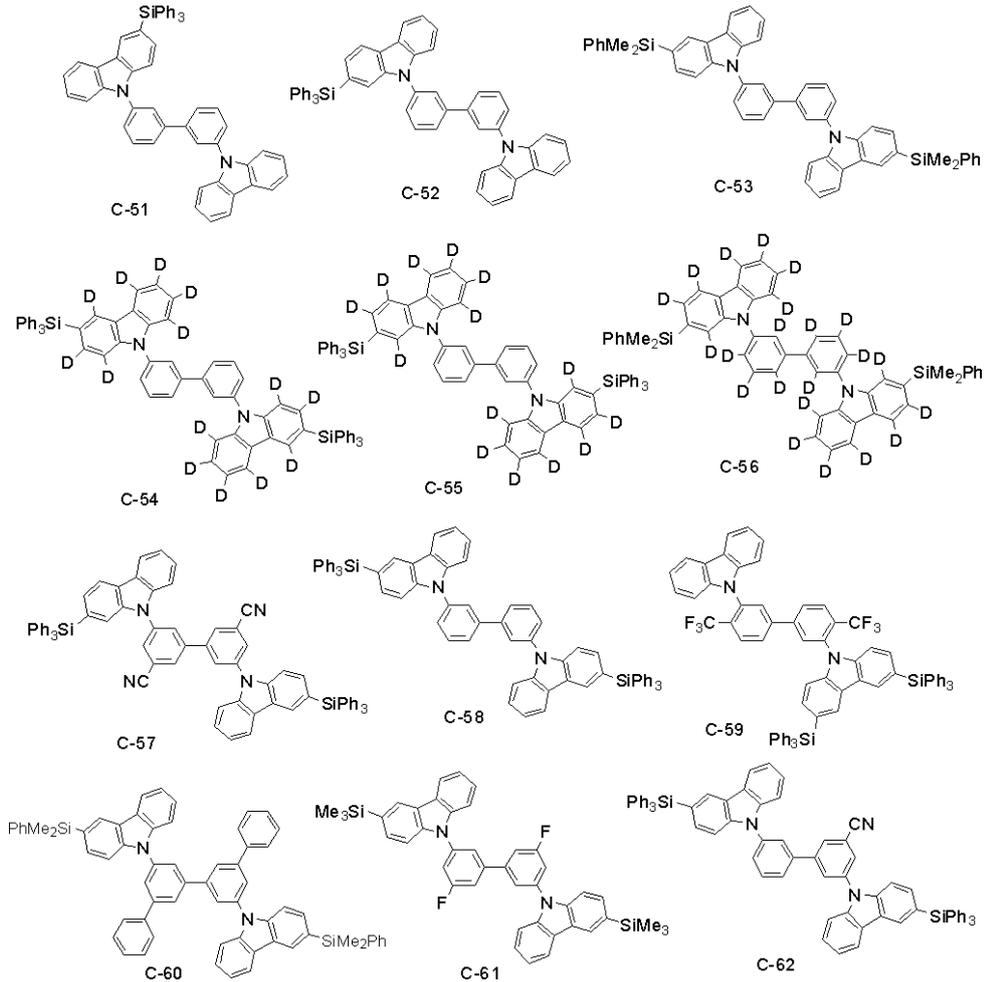
10

20

30

【 0 0 9 4 】

## 【化 3 3】



10

20

## 【0095】

本発明の一般式(1)~(3)で表される化合物は、種々の公知の合成法を組み合わせ

30

て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. T. i e z e, T h . E i c h e r 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・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。

## 【0096】

一般式(1)で表される化合物の合成例として、例示化合物C-24の合成例を以下に

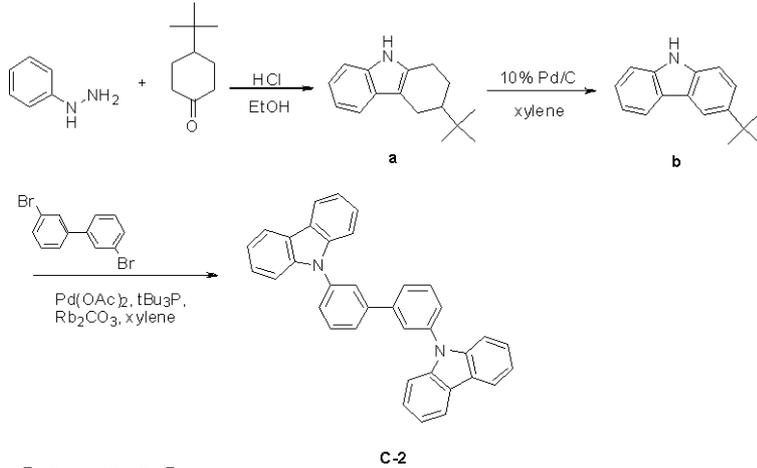
40

## 【0097】

(例示化合物C-24の合成)

## 【0098】

## 【化34】



10

## 【0099】

フェニルヒドラジンのエタノール - 塩酸溶液に 4 - ターシャル - ブチルシクロヘキサノン 1 等量を加え、加熱還流下にて 4 時間攪拌し、化合物 a を収率 90% で得た。化合物 a をキシレン溶媒中、パラジウム / 炭素 (10%) で還元し、化合物 b を収率 61% で合成した。窒素雰囲気下、キシレン溶媒中、化合物 b に 0.45 等量の 3, 3' - ジプロモビフェニル、0.05 等量の酢酸パラジウム、5 等量の炭酸ルビジウムを加えた後、0.15 等量のトリ - ターシャル - ブチルホスフィンを入れ、沸点還流にて 8 時間反応させ、目的の例示化合物 C - 2 を収率 84% で得た。

20

## 【0100】

本発明において、一般式 (1) で表される化合物は、耐久性 (特に高輝度駆動時の耐久性) を向上させる観点から、発光層に含まれるが、その用途が限定されることはなく、有機層内の発光層に加えていずれの層に含有されてもよい。一般式 (1) で表される化合物の導入層としては、発光層以外に、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ことができ

る。

また、一般式 (1) で表される化合物を発光層及び隣接する層の両層に含有させてもよい。

30

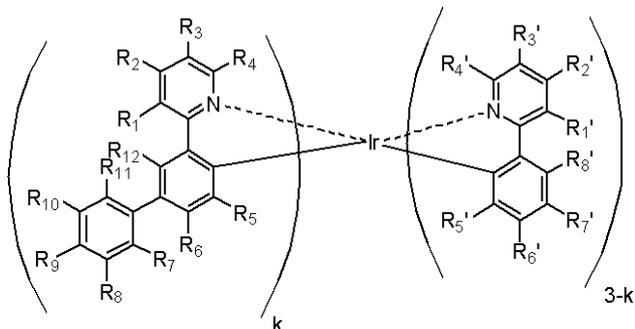
## 【0101】

〔一般式 (D - 1) で表される化合物〕

一般式 (D - 1) で表される化合物について説明する。

## 【0102】

## 【化35】



40

## 【0103】

(一般式 (D - 1) 中、 $R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$  及び  $R_1' \sim R_8'$  のうち少なくとも一つはアルキル基又はアリール基である。 $k$  は 0 ~ 3 の整数であり、 $k$  が 0 の場合の  $R_1' \sim R_8'$  の炭素数の総数は 2 以上である。)

## 【0104】

50

$R_1 \sim R_{12}$  は水素原子又は置換基を表し、該置換基は、前記置換基群 A として挙げたものが適用できる。

【0105】

$R_1 \sim R_{12}$  は更に置換基を有していてもよく、該置換基としては、前記置換基群 A として挙げたものが適用できる。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

【0106】

$R_1 \sim R_{12}$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヘテロ環オキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、ヘテロ環チオ基、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基、シリルオキシ基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基、であり、特に好ましくは水素原子、又はアルキル基である。

10

【0107】

$R_1' \sim R_8'$  は水素原子又は置換基を表し、前記置換基群 A として挙げたものが適用できる。

【0108】

$R_1' \sim R_8'$  は更に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用できる。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

20

【0109】

$R_1' \sim R_8'$  として好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、トリフルオロメチル基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヘテロ環オキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、ヘテロ環チオ基、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基、シリルオキシ基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、トリフルオロメチル基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、脂環式炭化水素基、アリール基、フッ素基、トリフルオロメチル基、シアノ基、シリル基、ヘテロ環基、であり、特に好ましくは水素原子、アルキル基、フッ素基、トリフルオロメチル基、シアノ基である。

30

【0110】

$R_1 \sim R_{12}$  及び  $R_1' \sim R_8'$  のうち少なくとも一つを置換するアルキル基又はアリール基として好ましくは、メチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基、フェニル基、トリル基であり、より好ましくはメチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基であり、更に好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

【0111】

$k = 0$  の時は  $R_1' \sim R_8'$  のうち少なくとも2つがアルキル基又はアリール基として置換しているのが好ましい、好ましい範囲としてはメチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基、フェニル基、トリル基であり、より好ましくはメチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基であり、更に好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

40

【0112】

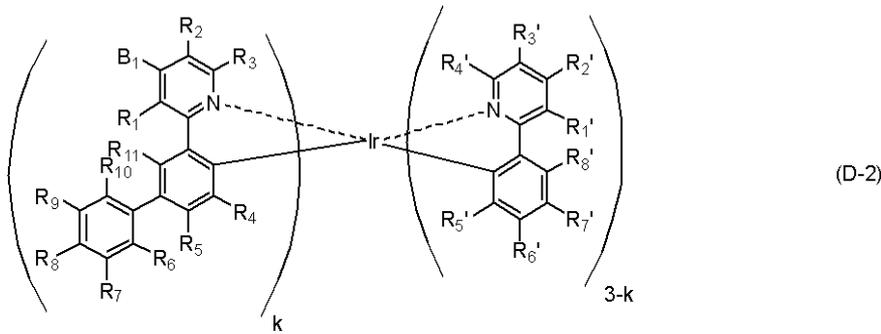
$k$  として好ましくは1である。

【0113】

一般式 (D - 1) で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式 (D - 2) で表される化合物である。

【0114】

## 【化36】



10

## 【0115】

(一般式(D-2)中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$ は1~3の整数である。)

## 【0116】

一般式(D-2)において、 $R_1 \sim R_{11}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ は一般式(D-1)における $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

## 【0117】

$B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基であり、好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

20

## 【0118】

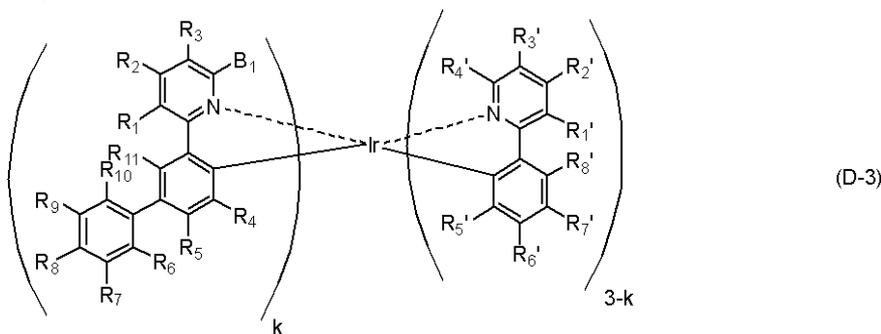
$k$ は1~3の整数であり、好ましくは1である。

## 【0119】

一般式(D-1)で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式(D-3)で表される化合物である。

## 【0120】

## 【化37】



30

## 【0121】

(一般式(D-3)中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $k$ は、1~3の整数である。)

40

## 【0122】

一般式(D-3)において、 $R_1 \sim R_{11}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ は一般式(D-1)における $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

## 【0123】

$B_1$ はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基であり、好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

## 【0124】

$k$ は1~3の整数であり、好ましくは1である。

## 【0125】

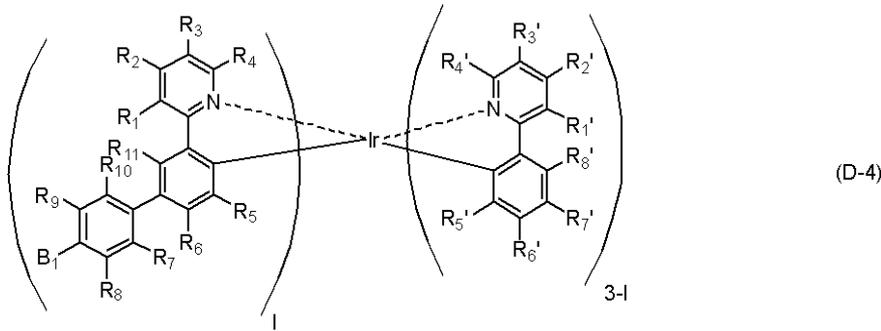
一般式(D-1)で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式(D-

50

4) で表される化合物である。

【0126】

【化38】



10

【0127】

(一般式(D-4)中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $B_1$ はメチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基である。 $k$ は、1~3の整数である。)

【0128】

一般式(D-4)において、 $R_1 \sim R_{11}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ は一般式(D-1)における $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0129】

$B_1$ はメチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基であり、好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

20

【0130】

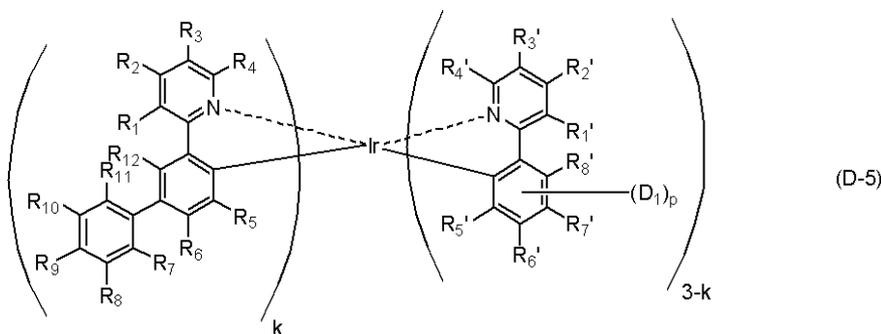
$k$ は1~3の整数であり、好ましくは1である。

【0131】

一般式(D-1)で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式(D-5)で表される化合物である。

【0132】

【化39】



30

【0133】

(一般式(D-5)中、 $R_1 \sim R_{12}$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1' \sim R_8'$ はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1 \sim R_{12}$ 及び $R_1' \sim R_8'$ のうち少なくとも一つはメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。 $D_1$ はフッ素原子、トリフルオロメチル基、シアノ基から選択される電子求引性基である。 $D_1$ は $R_5' \sim R_8'$ 中のいずれかに置換する。複数の $D_1$ は同一であっても異なってもよい。 $k$ は1~3の整数である。 $p$ は1~4の整数である。)

40

【0134】

一般式(D-5)において、 $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ は一般式(D-1)における $R_1 \sim R_{12}$ 、 $R_1' \sim R_8'$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0135】

$R_1 \sim R_{12}$ 及び $R_1' \sim R_8'$ のうち少なくとも一つはメチル基、イソブチル基、又

50

はネオペンチル基であり、より好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

【0136】

$D_1$  はフッ素原子、トリフルオロメチル基、シアノ基で表される電子求引性基であり、好ましくはフッ素原子、シアノ基であり、より好ましくはシアノ基である。 $D_1$  は  $R_5'$  ~  $R_8'$  中のいずれかに置換する。複数の  $D_1$  は同一であっても異なってもよい。

【0137】

$p$  は 1 ~ 4 の整数であり、1 ~ 3 が好ましい。 $D_1$  としてトリフルオロメチル基、シアノ基が  $R_5'$  ~  $R_8'$  に置換する場合、トリフルオロメチル基、シアノ基の数は 1 個が好ましい。

【0138】

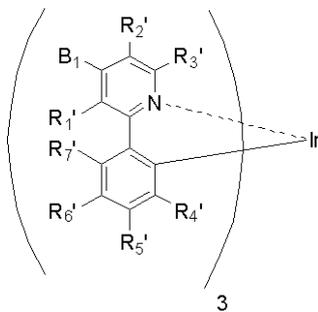
$k$  は 1 ~ 3 の整数であり、好ましくは 2 である。

【0139】

一般式 (D-1) で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式 (D-6) で表される化合物である。

【0140】

【化40】



(D-6)

10

20

【0141】

(一般式 (D-6) 中、 $R_1'$  ~  $R_7'$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1'$  ~  $R_7'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

【0142】

一般式 (D-6) において、 $R_1'$  ~  $R_7'$  は一般式 (D-1) における  $R_1'$  ~  $R_8'$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

30

【0143】

$B_1$  はメチル基、又はイソブチル基、ネオペンチル基であり、好ましくはメチル基、又はイソブチル基であり、より好ましくはメチル基である。

【0144】

$R_1'$  ~  $R_7'$  のうち少なくとも一つを置換するアルキル基として好ましくは、メチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基であり、より好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

【0145】

$B_1$  がメチル基の場合、 $R_3'$  もメチル基であることが好ましい。

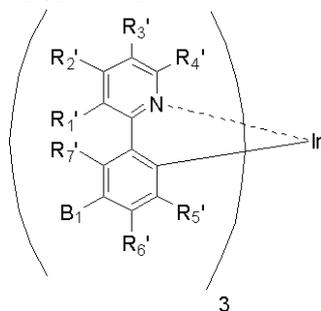
40

【0146】

一般式 (D-1) で表される化合物として、好ましい形態の一つは、下記一般式 (D-7) で表される化合物である。

【0147】

## 【化 4 1】



(D-7)

## 【 0 1 4 8 】

(一般式(D-7)中、 $R_1'$  ~  $R_7'$  はそれぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 $R_1'$  ~  $R_7'$  のうち少なくとも一つはアルキル基である。 $B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基である。)

10

## 【 0 1 4 9 】

一般式(D-7)において、 $R_1'$  ~  $R_7'$  は一般式(D-1)における $R_1'$  ~  $R_8'$  と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

## 【 0 1 5 0 】

$B_1$  はメチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基であり、好ましくはメチル基、又はイソブチル基であり、より好ましくはメチル基である。

## 【 0 1 5 1 】

$R_1'$  ~  $R_7'$  のうち少なくとも一つを置換するアルキル基として好ましくは、メチル基、イソブチル基、又はネオペンチル基であり、より好ましくはメチル基、又はイソブチル基である。

20

## 【 0 1 5 2 】

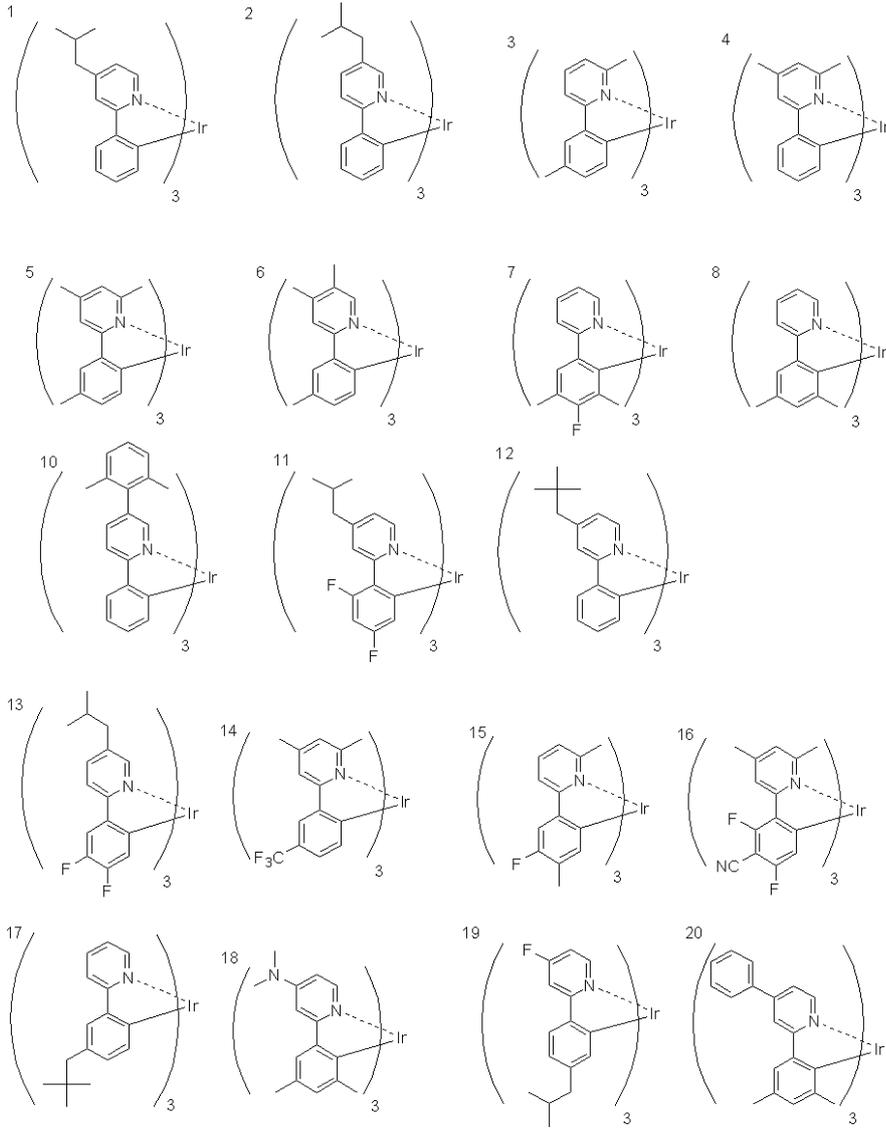
$B_1$  がメチル基の場合、 $R_5'$  もメチル基であることが好ましい。

## 【 0 1 5 3 】

前記一般式(D-1) ~ (D-7) で表される化合物の好ましい具体例を以下に示すが、これら限定されるものではない。

## 【 0 1 5 4 】

【化 4 2】



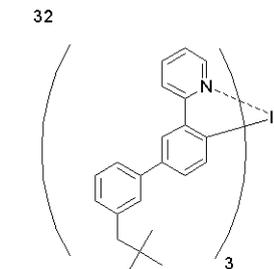
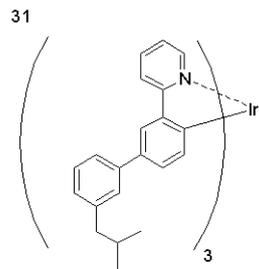
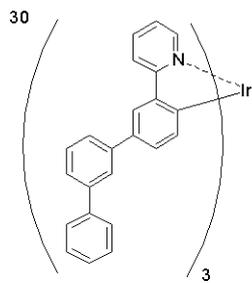
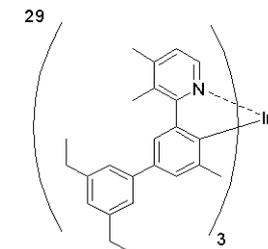
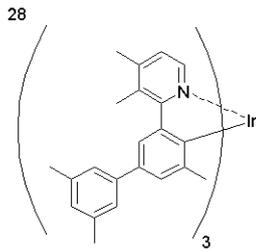
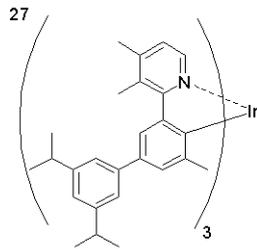
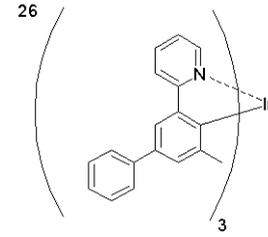
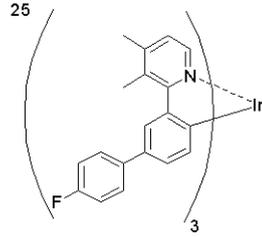
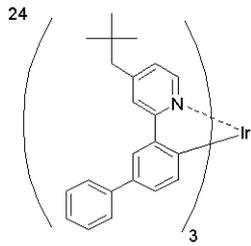
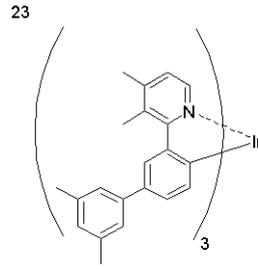
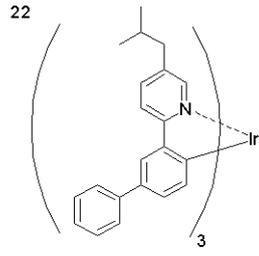
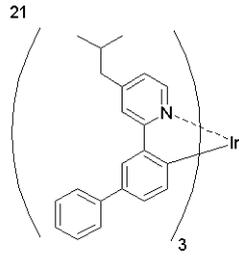
【 0 1 5 5 】

10

20

30

【化 4 3】



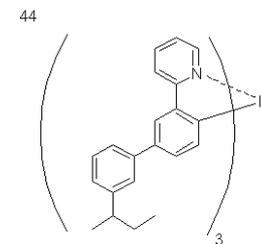
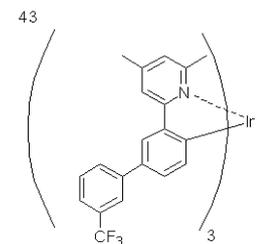
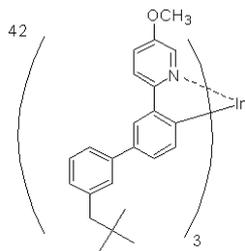
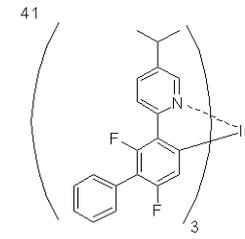
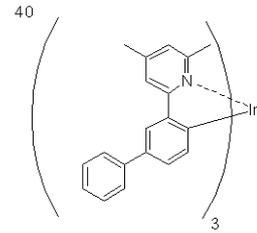
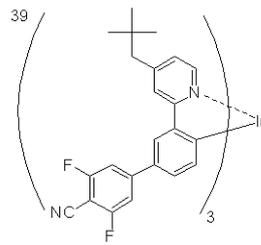
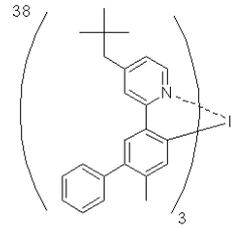
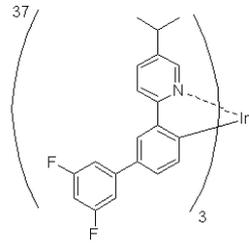
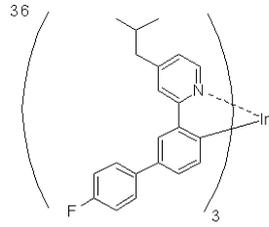
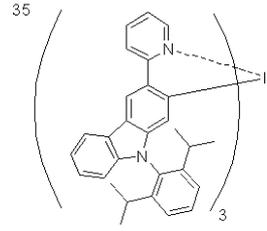
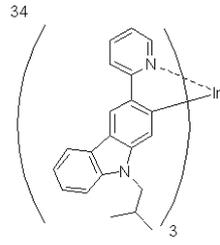
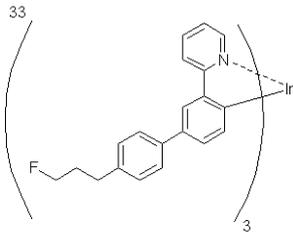
【 0 1 5 6 】

10

20

30

【化 4 4】



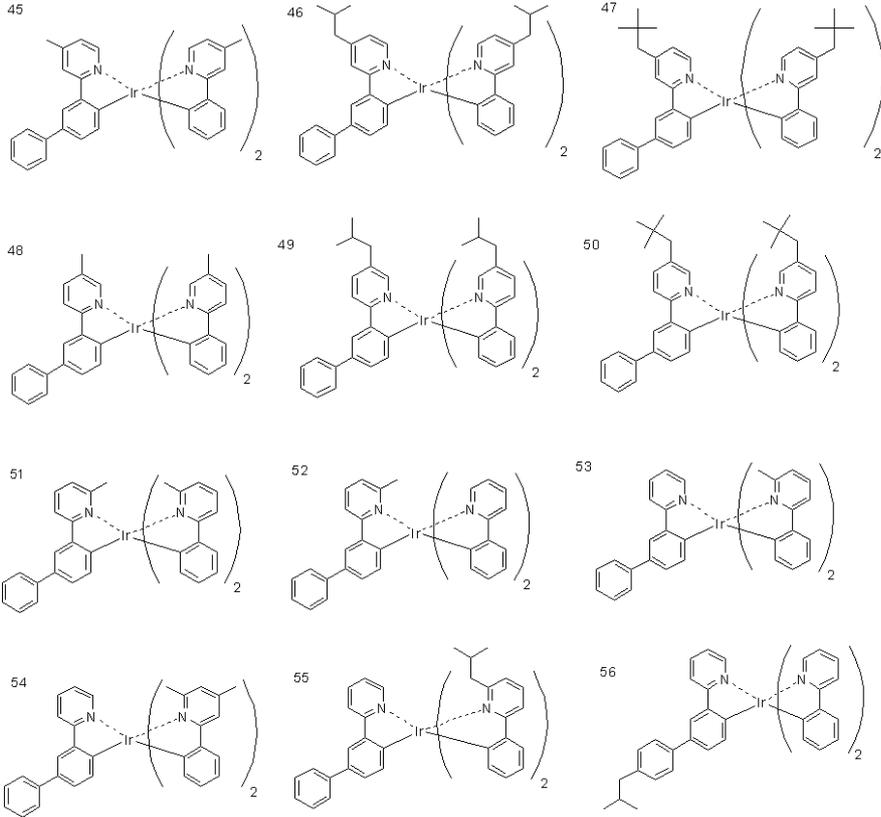
【 0 1 5 7 】

10

20

30

【化 4 5】



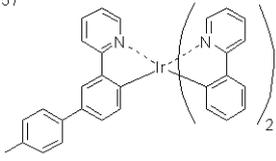
10

20

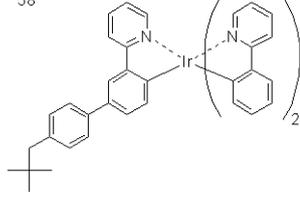
【 0 1 5 8】

【化 4 6】

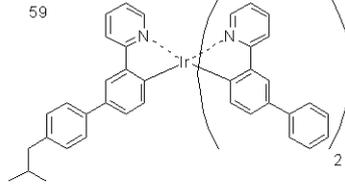
57



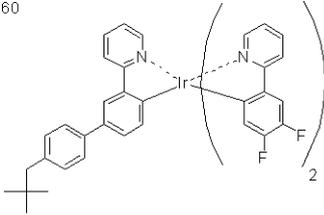
58



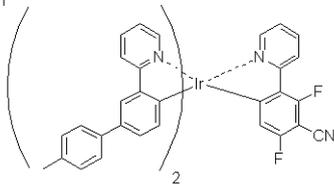
59



60

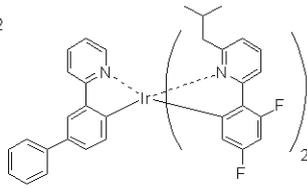


61

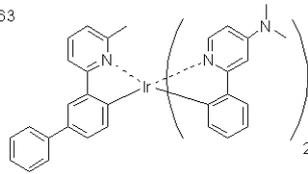


10

62

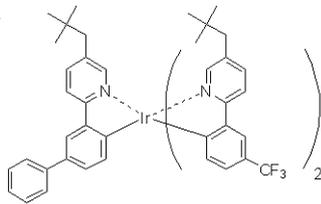


63

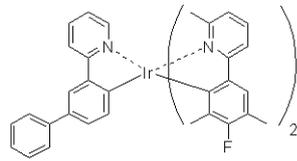


20

64

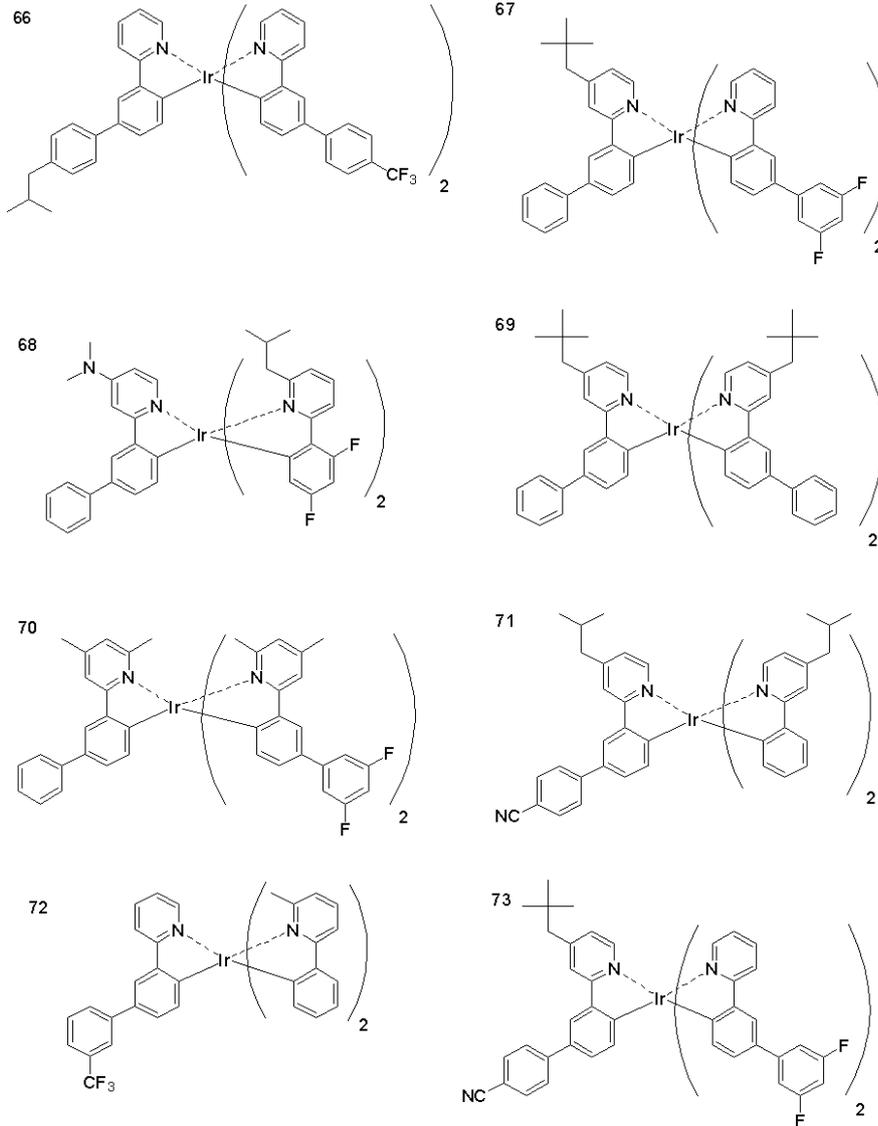


65



【 0 1 5 9】

## 【化 4 7】



10

20

30

## 【 0 1 6 0 】

本発明の一般式 ( D - 1 ) ~ ( D - 7 ) で表される化合物は、種々の公知の合成法を組み合わせて合成することが可能であり、例えば国際公開第 2 0 0 9 / 0 7 3 2 4 5 号、国際公開第 2 0 0 9 / 0 7 3 2 4 6 号に記載の方法で合成できる。

## 【 0 1 6 1 】

本発明は、一般式 ( 1 ) で表される化合物と、一般式 ( D - 1 ) で表される化合物とを少なくとも一種づつ含有する組成物にも関する。

本発明の組成物を用いることで優れた高耐久性 ( 特に高輝度駆動時 )、かつ素子劣化後の色度ズレの少ない有機電界発光素子を得ることができる。

本発明の組成物には更に他の成分を添加することもできる。例えば、一般式 ( 1 ) 以外のホスト材料や一般式 ( D - 1 ) 以外の発光材料、炭化水素基のみからなる材料 ( 好ましくは下記炭化水素化合物 ) を添加することができる。

40

## 【 0 1 6 2 】

本発明の有機電界発光素子は、有機層のいずれかの層が更に、炭化水素化合物を含むことが好ましく、発光層が炭化水素化合物を含むことがより好ましい。

また、炭化水素化合物は下記一般式 ( V I ) で表される化合物であることが好ましい。

一般式 ( V I ) で表される化合物を発光材料とともに適切に用いることにより、材料分子間の相互作用を適切に制御し、隣接分子間のエネルギーギャップ相互作用を均一にすることで駆動電圧を更に低下させることが可能となる。

また、有機電界発光素子において用いられる、一般式 ( V I ) で表される化合物は、化

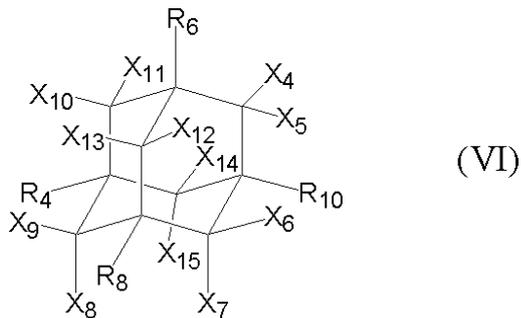
50

学的な安定性に優れ、素子駆動中における材料の分解等の変質が少なく、当該材料の分解物による、有機電界発光素子の効率低下や素子寿命の低下を防ぐことが出来る。

一般式(VI)で表される化合物について説明する。

【0163】

【化48】



10

【0164】

一般式(VI)中、 $R_4$ 、 $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_{10}$ 、 $X_4 \sim X_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基又はアリール基を表す。

【0165】

一般式(VI)の、 $R_4$ 、 $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_{10}$ 、 $X_4 \sim X_{15}$ で表されるアルキル基は、アダマンタン構造、アリール構造で置換されていてもよく、炭素数1~70が好ましく、炭素数1~50がより好ましく、炭素数1~30が更に好ましく、炭素数1~10がより更に好ましく、炭素数1~6が特に好ましく、炭素数2~6の直鎖のアルキル基が最も好ましい。

20

【0166】

一般式(VI)の、 $R_4$ 、 $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_{10}$ 、 $X_4 \sim X_{15}$ で表されるアルキル基としては、例えば、 $n-C_{50}H_{101}$ 基、 $n-C_{30}H_{61}$ 基、3-(3,5,7-トリフェニルアダマンタン-1-イル)プロピル基(炭素数31)、トリチル基(炭素数19)、3-(アダマンタン-1-イル)プロピル基(炭素数13)、9-デカリル基(炭素数10)、ベンジル基(炭素数7)、シクロヘキシル基(炭素数6)、 $n$ -ヘキシル基(炭素数6)、 $n$ -ペンチル基(炭素数5)、 $n$ -ブチル基(炭素数4)、 $n$ -プロピル基(炭素数3)、シクロプロピル基(炭素数3)、エチル基(炭素数2)、メチル基(炭素数1)などが挙げられる。

30

【0167】

一般式(VI)の、 $R_4$ 、 $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_{10}$ 、 $X_4 \sim X_{15}$ で表されるアリール基は、アダマンタン構造、アルキル構造で置換されていてもよく、炭素数6~30が好ましく、炭素数6~20がより好ましく、炭素数6~15が更に好ましく、炭素数6~10が特に好ましく、炭素数6が最も好ましい。

【0168】

一般式(VI)の、 $R_4$ 、 $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_{10}$ 、 $X_4 \sim X_{15}$ で表されるアリール基としては、例えば、1-ピレニル基(炭素数16)、9-アントラセニル基(炭素数14)、1-ナフチル基(炭素数10)、2-ナフチル基(炭素数10)、 $p$ - $t$ -ブチルフェニル基(炭素数10)、2- $m$ -キシリル基(炭素数8)、5- $m$ -キシリル基(炭素数8)、 $o$ -トリル基(炭素数7)、 $m$ -トリル基(炭素数7)、 $p$ -トリル基(炭素数7)、フェニル基(炭素数6)などが挙げられる。

40

【0169】

一般式(VI)の $R_4$ 、 $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_{10}$ は、水素原子であっても、アルキル基であっても、アリール基であってもよいが、前述の高いガラス転移温度が好ましい観点から、少なくともひとつはアリール基であることが好ましく、少なくともふたつはアリール基であることがより好ましく、3ないし4つがアリール基であることが特に好ましい。

【0170】

一般式(VI)の、 $X_4 \sim X_{15}$ は、水素原子であっても、アルキル基であっても、ア

50

リール基であってもよいが、水素原子、又はアリール基であることが好ましく、水素原子であることが特に好ましい。

【0171】

本発明における一般式(VI)で表される化合物の分子量は、有機電界発光素子を真空蒸着プロセスや溶液塗布プロセスを用いて作成するので、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、1000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、350以上がより好ましく、400以上が特に好ましい。

【0172】

一般式(VI)で表される化合物は、室温(25℃)において固体であることが好ましく、室温(25℃)から40℃の範囲において固体であることがより好ましく、室温(25℃)から60℃の範囲において固体であることが特に好ましい。

室温(25℃)において固体を形成しない一般式(VI)で表される化合物を用いる場合は、他の材料と組み合わせることにより、常温で固相を形成させることができる。

【0173】

一般式(VI)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。本発明における一般式(VI)で表される化合物の導入層としては、後述の発光層、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、正孔注入層、正孔輸送層のいずれか、若しくは複数に含有されるのが特に好ましく、発光層に含むことが最も好ましい。

【0174】

一般式(VI)で表される化合物を、有機層中で用いる場合は、一般式(VI)で表される化合物の含量は、電荷輸送性を抑制しない程度の量に制限して用いる必要があり、一般式(VI)で表される化合物は0.1~70質量%含まれることが好ましく、0.1~30質量%含まれることがより好ましく、0.1~2.5質量%含まれることが特に好ましい。

また、一般式(VI)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。

【0175】

一般式(VI)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(VI)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。

【0176】

一般式(VI)で表される化合物の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。

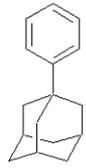
【0177】

10

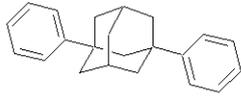
20

30

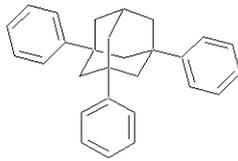
【化 4 9】



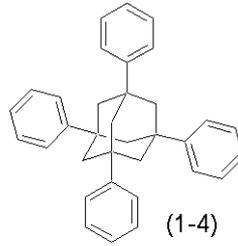
(1-1)



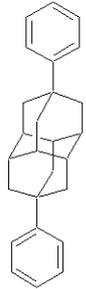
(1-2)



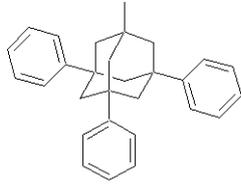
(1-3)



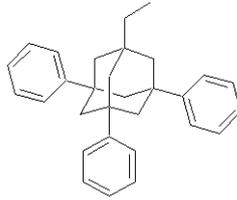
(1-4)



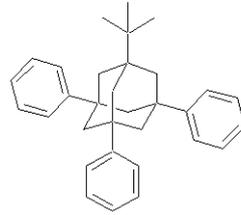
(1-5)



(1-6)

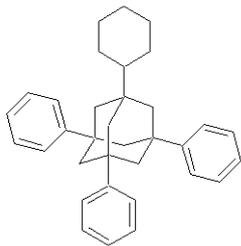


(1-7)

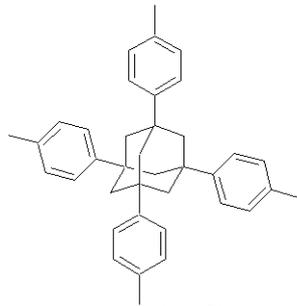


(1-8)

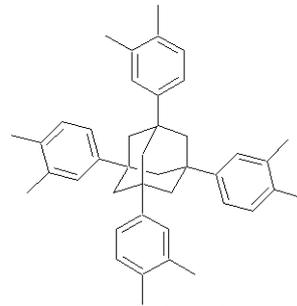
10



(1-9)

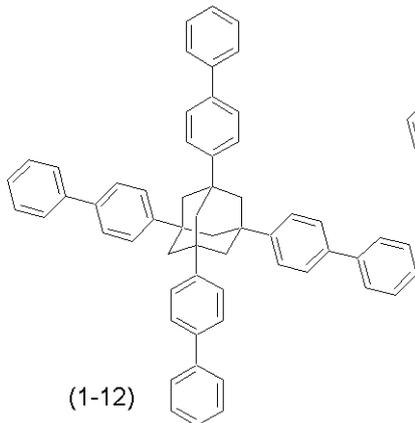


(1-10)

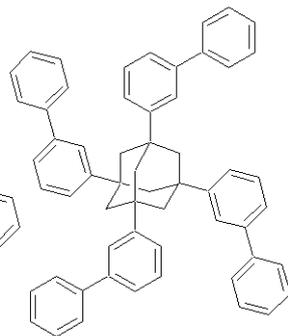


(1-11)

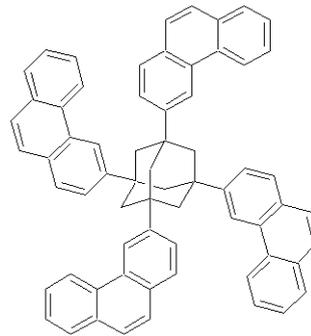
20



(1-12)



(1-13)

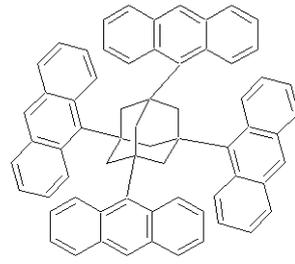
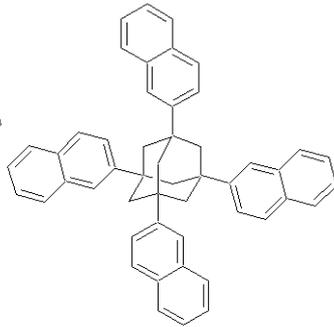
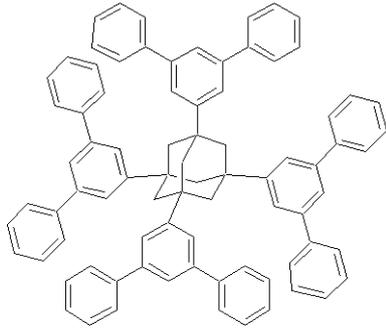


(1-14)

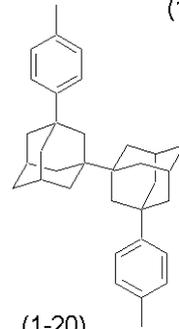
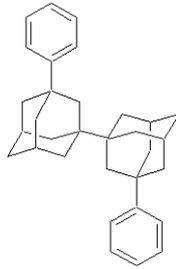
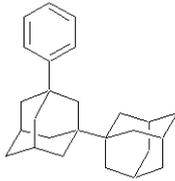
30

【 0 1 7 8 】

【化 5 0】



10

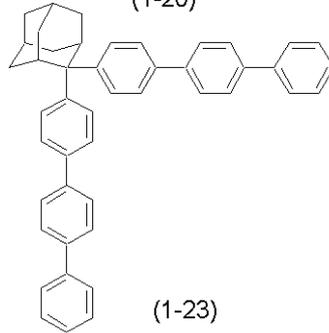
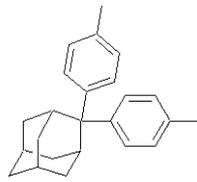
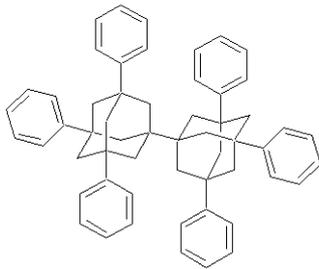


(1-18)

(1-19)

(1-20)

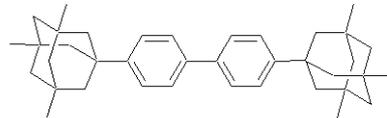
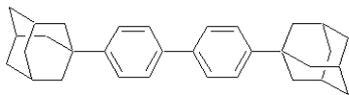
20



(1-21)

(1-22)

(1-23)



(1-24)

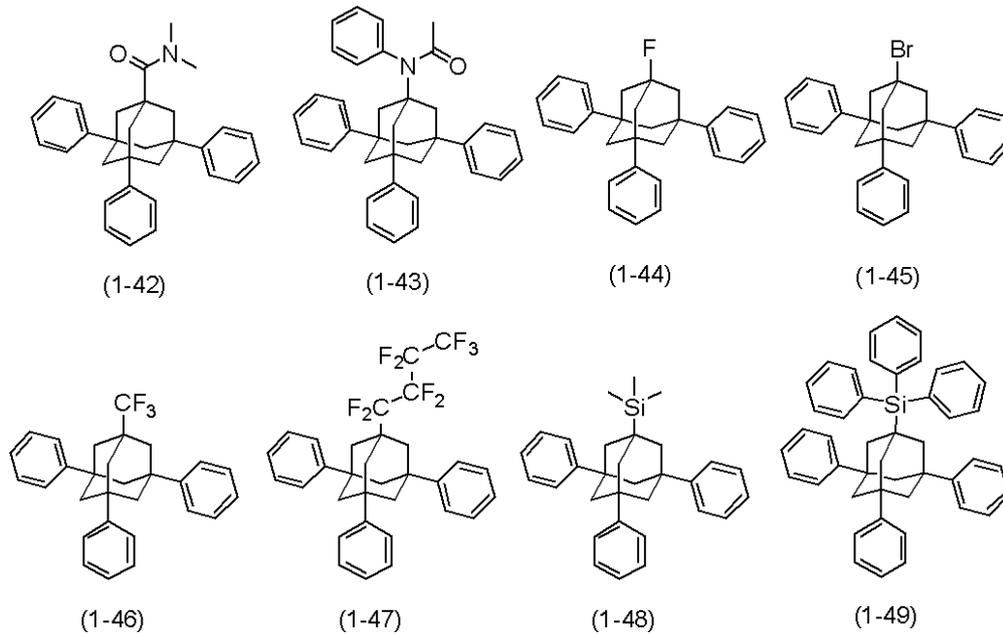
(1-25)

30

【 0 1 7 9 】



## 【化52】



10

## 【0181】

一般式(VI)で表される化合物は、アダマンタン、若しくは、ハロゲン化アダマンタンと、ハロゲン化アルキル若しくは、アルキルマグネシウムハライド(グリニャー試薬)を適当に組み合わせることによって合成できる。例えば、インジウムを用いて、ハロゲン化アダマンタンと、ハロゲン化アルキルをカップリングすることができる(文献1)。またハロゲン化アルキルをアルキル銅試薬に変換し、芳香族化合物のグリニャー試薬とカップリングすることもできる(文献2)。またハロゲン化アルキルを、適当なアリールホウ酸とパラジウム触媒を用いてカップリングすることもできる(文献3)。

20

文献1: Tetrahedron Lett. 39, 1998, 9557-9558.

文献2: Tetrahedron Lett. 39, 1998, 2095-2096.

文献3: J. Am. Chem. Soc. 124, 2002, 13662-13663.

30

## 【0182】

アリール基を有するアダマンタン骨格は、アダマンタン、若しくは、ハロゲン化アダマンタンと、対応するアレーンやアリールハライドを適当に組み合わせることにより合成できる。

## 【0183】

なお、上記に示した製造方法において、定義された置換基が、ある合成方法の条件下で変化するか、又は該方法を実施するのに不適切な場合、官能基の保護、脱保護(例えば、プロテクティブ・グループ・イン・オーガニック・シンセシス(Protective Groups in Organic Synthesis)、グリーン(T. W. Greene)著、ジョン・ワイリー・アンド・サンズ・インコーポレイテッド(John Wiley & Sons Inc.) (1981年)等)等の手段により容易に製造が可能である。また、必要に応じて適宜置換基導入等の反応工程の順序を変化させることも可能である。

40

## 【0184】

本発明の組成物において、一般式(1)で表される化合物は、組成物中の全固形分に対して、15質量%以上95質量%以下の範囲が好ましく、40質量%以上95質量%以下の範囲がより好ましい。一般式(D-1)で表される化合物は、組成物中の全固形分に対して、1質量%以上30質量%以下の範囲が好ましく、5質量%以上20質量%以下の範

50

図がより好ましい。

【 0 1 8 5 】

〔有機電界発光素子〕

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、一对の電極と、該電極間に発光材料を含有する発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、前記一般式(1)で表される化合物と前記一般式(D-1)で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有する。

【 0 1 8 6 】

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

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

図1は、本発明に係る有機電界発光素子の構成の一例を示している。図1に示される本発明に係る有機電界発光素子10は、支持基板12上において、陽極4と陰極9との間に発光層6が挟まれている。具体的には、陽極4と陰極9との間に正孔注入層4、正孔輸送層5、発光層6、正孔ブロック層7、及び電子輸送層8がこの順に積層されている。

【 0 1 8 7 】

<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背面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背面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。

【 0 1 8 8 】

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

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

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

【 0 1 8 9 】

<基板>

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

<陽極>

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

<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

20

30

40

50

## 【 0 1 9 0 】

基板、陽極、陰極については、特開 2 0 0 8 - 2 7 0 7 3 6 号公報の段落番号〔 0 0 7 0 〕～〔 0 0 8 9 〕に記載の事項を本発明に適用することができる。

## 【 0 1 9 1 】

< 有機層 >

本発明における有機層について説明する。

## 【 0 1 9 2 】

- 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、スピコート法等の湿式製膜法（ウエットプロセス）のいずれによっても好適に形成することができる。

10

本発明において、一般式（ 1 ）で表される化合物と一般式（ D - 1 ）で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有する発光層をウエットプロセスで形成することが製造コスト低減の観点から好ましい。

## 【 0 1 9 3 】

（発光層）

本発明の発光層は、前記一般式（ 1 ）で表される化合物と前記一般式（ D - 1 ）で表される化合物とを少なくとも一種ずつ含有する。

< 発光材料 >

本発明における発光材料は前記一般式（ D - 1 ）で表される化合物であることが好ましい。

20

## 【 0 1 9 4 】

発光層中の発光材料は、発光層中に一般的に発光層を形成する全化合物の質量に対して、 0 . 1 質量% ~ 5 0 質量% 含有されることが好ましく、耐久性、外部量子効率の観点から 1 質量% ~ 5 0 質量% 含有されることがより好ましく、 2 質量% ~ 4 0 質量% 含有されることが更に好ましい。

発光層中の前記一般式（ D - 1 ）で表される化合物は、発光層中に耐久性、外部量子効率の観点から 1 質量% ~ 3 0 質量% 含有されることが好ましく、 5 質量% ~ 2 0 質量% 含有されることがより好ましい。

## 【 0 1 9 5 】

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、 3 nm ~ 2 0 0 nm であるのがより好ましく、 5 nm ~ 1 0 0 nm であるのが更に好ましい。

30

## 【 0 1 9 6 】

本発明の素子における発光層は、発光材料とホスト材料との混合層とした構成でも良い。発光材料は蛍光発光材料でも燐光発光材料であっても良く、ドーパントは一種であっても二種以上であっても良い。ホスト材料は電荷輸送材料であることが好ましい。ホスト材料は一種であっても二種以上であっても良く、例えば、電子輸送性のホスト材料とホール輸送性のホスト材料を混合した構成が挙げられる。更に、発光層中に電荷輸送性を有さず、発光しない材料を含んでいても良い。

40

また、発光層は一層であっても二層以上の多層であってもよい。また、それぞれの発光層が異なる発光色で発光してもよい。

## 【 0 1 9 7 】

< ホスト材料 >

## 【 0 1 9 8 】

本発明に用いられるホスト材料として、以下の化合物を含有していても良い。例えば、ピロール、インドール、カルバゾール（例えば C B P（ 4 , 4 ' - ジ（ 9 - カルバゾイル）ピフェニル））、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、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置換カルコン、ス

50

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。

10

## 【0199】

本発明における発光層において、前記宿主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。

## 【0200】

宿主材料は前記一般式(1)で表される化合物であることが好ましい。

また、本発明における宿主化合物の含有量は、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。

20

発光層中の前記一般式(1)で表される化合物は、発光層中に発光効率、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く、40質量%以上95質量%以下であることがより好ましい。

## 【0201】

(蛍光発光材料)

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

30

## 【0202】

(燐光発光材料)

本発明に使用できる燐光発光材料としては、例えば、US 6 303 238 B1、US 6 097 147、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、更に好ましい発光性ドーパントとしては、Ir

40

50

錯体、Pt錯体、Cu錯体、Re錯体、W錯体、Rh錯体、Ru錯体、Pd錯体、Os錯体、Eu錯体、Tb錯体、Gd錯体、Dy錯体、及びCe錯体が挙げられる。特に好ましくは、Ir錯体、Pt錯体、又はRe錯体であり、中でも金属-炭素結合、金属-窒素結合、金属-酸素結合、金属-硫黄結合の少なくとも一つの配位様式を含むIr錯体、Pt錯体、又はRe錯体が好ましい。更に、発光効率、駆動耐久性、色度等の観点で、3座以上の多座配位子を含むIr錯体、Pt錯体、又はRe錯体が特に好ましい。

【0203】

燐光発光材料の含有量は、発光層中に、発光層の総質量に対して、0.1質量%以上50質量%以下の範囲が好ましく、0.2質量%以上50質量%以下の範囲がより好ましく、0.3質量%以上40質量%以下の範囲が更に好ましく、20質量%以上30質量%以下の範囲が最も好ましい。

10

【0204】

本発明に用いることのできる燐光発光材料の含有量は、発光層の総質量に対して、0.1質量%以上50質量%以下の範囲が好ましく、1質量%以上40質量%以下の範囲がより好ましく、5質量%以上30質量%以下の範囲が最も好ましい。特に5質量%以上30質量%以下の範囲では、その有機電界発光素子の発光の色度は、燐光発光材料の添加濃度依存性が小さい。

【0205】

- 正孔注入層、正孔輸送層 -

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

20

本発明に関し、有機層として、電子受容性ドーパントを含有する正孔注入層又は正孔輸送層を含むことが好ましい。

【0206】

- 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。

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

30

【0207】

- 正孔ブロック層 -

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

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

40

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。

【0208】

- 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

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、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。

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。

#### 【0209】

<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。

#### 【0210】

<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。

#### 【0211】

(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。

#### 【0212】

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

#### 【0213】

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

#### 【0214】

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

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

共振構造を形成するためには、2つの反射板の有効屈折率、反射板間の各層の屈折率と厚みから決定される光路長を所望の共振波長の得るのに最適な値となるよう調整される。第一の態様の場合の計算式は特開平9-180883号明細書に記載されている。第二の態様の場合の計算式は特開2004-127795号明細書に記載されている。

#### 【0215】

本発明の有機電界発光素子の外部量子効率としては、5%以上が好ましく、7%以上がより好ましい。外部量子効率の数值は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100~300 cd/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。

10

20

30

40

50

## 【 0 2 1 6 】

本発明の有機電界発光素子の内部量子効率、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。

## 【 0 2 1 7 】

本発明の有機電界発光素子は、350nm以上700nm以下に極大発光波長（発光スペクトルの最大強度波長）を有するものが好ましく、より好ましくは350nm以上600nm以下、更に好ましくは400nm以上520nm以下、特に好ましくは400nm以上465nm以下である。

## 【 0 2 1 8 】

（本発明の発光素子の用途）

本発明の発光素子は、発光装置、ピクセル、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、又は光通信等に好適に利用できる。特に、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。

## 【 0 2 1 9 】

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11等により構成されている。

## 【 0 2 2 0 】

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。

## 【 0 2 2 1 】

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。

## 【 0 2 2 2 】

（照明装置）

次に、図3を参照して本発明の実施形態に係る照明装置について説明する。

図3は、本発明の実施形態に係る照明装置の一例を概略的に示した断面図である。

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

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

【実施例】

10

20

30

40

50

## 【 0 2 2 3 】

〔有機電解発光素子の作製〕

&lt;実施例 1 &gt;

〔比較例 1 - 1 の素子の作製〕

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、銅フタロシアニンを10nm蒸着し、この上に、NPD(N, N'-ジ- -ナフチル-N, N'-ジフェニル)-ベンジジン)を70nm蒸着した(正孔輸送層)。この上に、H-1とA-1を90:10の比率(質量比)で30nm蒸着した(発光層)。この上に、BAIq[ビス-(2-メチル-8-キノリノレート)-4-(フェニルフェノレート)アルミニウム]を30nm蒸着した(電子輸送層)。この上に、フッ化リチウムを3nm蒸着した後、アルミニウム60nmを蒸着した。このものを、大気に触れさせることなく、アルゴンガスで置換したグローブボックス内に入れ、ステンレ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、比較例1-1の有機電界発光素子を得た。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加して発光させた結果、A-1に由来するりん光発光が得られた。

10

## 【 0 2 2 4 】

〔実施例 1 - 1 ~ 1 - 4 2、比較例 1 - 2 ~ 1 - 1 9 の素子の作製〕

発光材料及びホスト材料に用いた化合物を表1に記載のものに変更した以外は比較例1-1と同様に素子を作製し、評価した。それぞれ用いた発光材料に由来するりん光発光が得られた。得られた結果を表1にまとめた。

20

## 【 0 2 2 5 】

〔素子の評価〕

(駆動耐久性の評価)

得られた有機電界発光素子を、東京システム開発(株)製のOLEDテストシステムST-D型にセットし、外気温70℃において、定電流モードにて初期輝度1000cd/m<sup>2</sup>及び10000cd/m<sup>2</sup>の条件で駆動し、輝度半減時間を測定した。

## 【 0 2 2 6 】

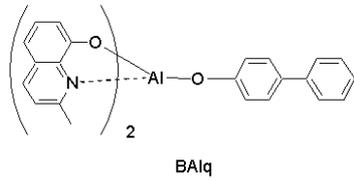
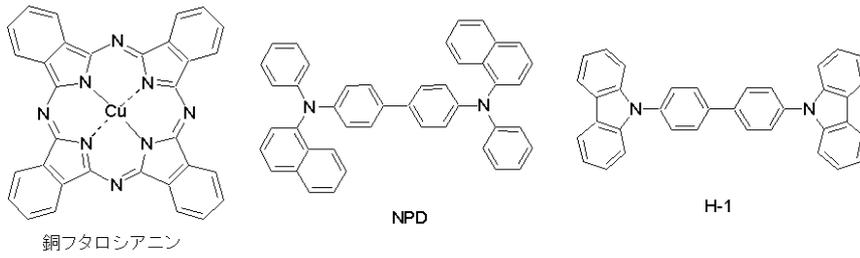
(色度の評価)

色度(CIE色度)は輝度が10000cd/m<sup>2</sup>になるよう直流電圧を印加し、(株)島津製作所製の発光スペクトル測定システム(ELS1500)により発光スペクトルを測定し、算出した。色度は初期色度と、輝度半減後の色度を評価した。また、初期色度と輝度半減後の色度との差の絶対値を色度差として求めた。該色度差の値が小さいほど劣化時の色度変化が少なく優れている。

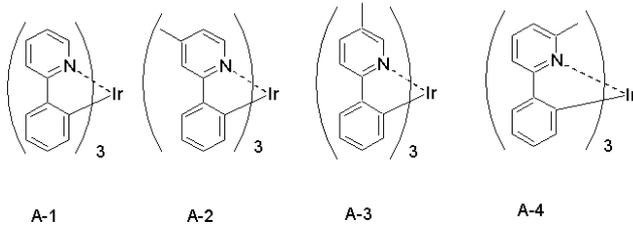
30

## 【 0 2 2 7 】

【化53】



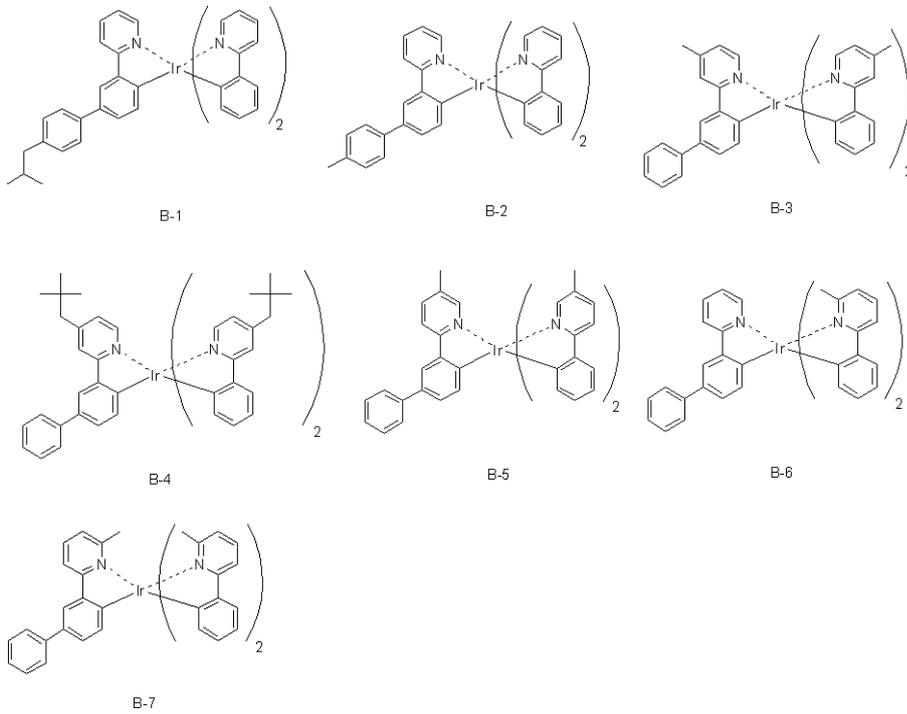
10



20

【0228】

【化54】

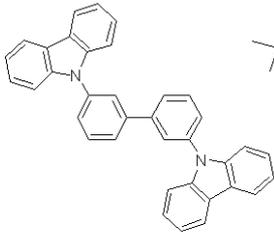


30

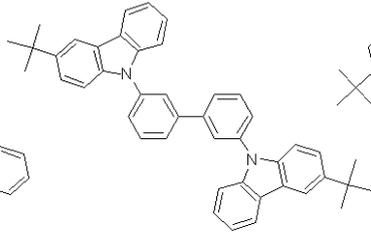
40

【0229】

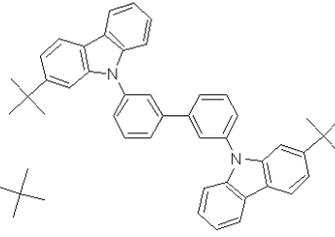
【化 5 5】



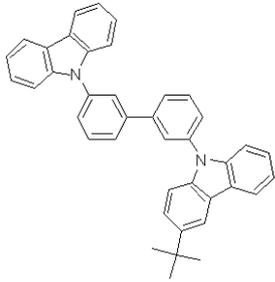
C-1



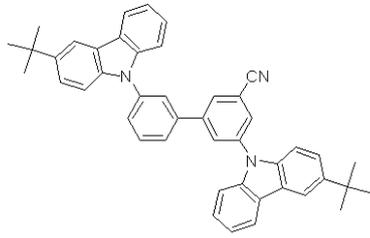
C-2



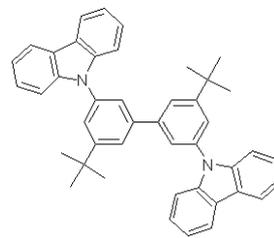
C-3



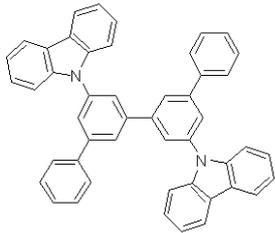
C-4



C-5



C-6



C-7

【 0 2 3 0 】

10

20

【表1】

表1

	発光層		1000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	10000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	初期 色度	輝度半減後 の色度	色度差
	発光 材料	基材 材料					
比較例1-1	A-1	H-1	1000	131	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.02)
比較例1-2	A-1	C-1	1081	163	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.05, 0.01)
比較例1-3	A-1	C-2	1183	178	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.05, 0.02)
比較例1-4	B-1	H-1	1058	155	(0.33, 0.63)	(0.37, 0.61)	(0.04, 0.02)
比較例1-5	B-2	H-1	1116	162	(0.33, 0.62)	(0.38, 0.61)	(0.05, 0.01)
実施例1-1	B-1	C-1	1298	245	(0.33, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例1-2	B-1	C-2	1327	313	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例1-3	B-1	C-3	1304	267	(0.33, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例1-4	B-1	C-4	1317	264	(0.33, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例1-5	B-1	C-6	1213	225	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例1-6	B-1	C-7	1277	234	(0.33, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例1-7	B-2	C-1	1309	263	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例1-8	B-2	C-2	1563	340	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例1-9	B-2	C-3	1388	294	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例1-10	B-2	C-4	1414	289	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-11	B-2	C-6	1226	213	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例1-12	B-2	C-7	1283	238	(0.33, 0.62)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.00)
比較例1-6	A-2	H-1	932	133	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.05, 0.02)
比較例1-7	A-2	C-1	964	139	(0.30, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.06, 0.01)
比較例1-8	A-2	C-2	986	145	(0.30, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.05, 0.02)
比較例1-9	B-3	H-1	991	153	(0.32, 0.62)	(0.37, 0.61)	(0.05, 0.01)
比較例1-10	B-4	H-1	983	148	(0.32, 0.62)	(0.38, 0.60)	(0.06, 0.02)
実施例1-13	B-3	C-1	1184	221	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-14	B-3	C-2	1233	289	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.02)
実施例1-15	B-3	C-3	1210	245	(0.32, 0.61)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.01)
実施例1-16	B-3	C-5	1005	240	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-17	B-3	C-6	1087	198	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例1-18	B-3	C-7	1144	214	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-19	B-4	C-1	1133	241	(0.31, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例1-20	B-4	C-2	1197	318	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-21	B-4	C-3	1141	273	(0.32, 0.61)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.00)
実施例1-22	B-4	C-4	1023	266	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-23	B-4	C-6	1051	206	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例1-24	B-4	C-7	1092	233	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.60)	(0.02, 0.02)
比較例1-11	A-3	H-1	488	44	(0.30, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.05, 0.02)
比較例1-12	A-3	C-1	537	52	(0.30, 0.63)	(0.34, 0.60)	(0.04, 0.03)
比較例1-13	A-3	C-2	511	56	(0.30, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.06, 0.02)
比較例1-14	B-5	H-1	560	68	(0.32, 0.62)	(0.37, 0.59)	(0.05, 0.03)
実施例1-25	B-5	C-1	663	131	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.60)	(0.02, 0.02)
実施例1-26	B-5	C-2	707	158	(0.32, 0.61)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.00)
実施例1-27	B-5	C-3	652	133	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例1-28	B-5	C-4	668	147	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-29	B-5	C-6	606	108	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例1-30	B-5	C-7	637	129	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.60)	(0.02, 0.02)
比較例1-15	A-4	H-1	653	63	(0.30, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.06, 0.02)
比較例1-16	A-4	C-1	669	66	(0.30, 0.61)	(0.36, 0.59)	(0.06, 0.02)
比較例1-17	A-4	C-2	679	71	(0.30, 0.61)	(0.36, 0.60)	(0.06, 0.01)
比較例1-18	B-6	H-1	765	77	(0.32, 0.63)	(0.37, 0.61)	(0.05, 0.02)
比較例1-19	B-7	H-1	652	73	(0.30, 0.63)	(0.36, 0.60)	(0.06, 0.03)
実施例1-31	B-6	C-1	853	189	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.02)
実施例1-32	B-6	C-2	922	231	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例1-33	B-6	C-3	822	196	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-34	B-6	C-5	810	177	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.03)
実施例1-35	B-6	C-6	814	179	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例1-36	B-6	C-7	834	183	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例1-37	B-7	C-1	768	176	(0.30, 0.63)	(0.34, 0.62)	(0.04, 0.01)
実施例1-38	B-7	C-2	859	221	(0.29, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.04, 0.01)
実施例1-39	B-7	C-3	794	182	(0.30, 0.63)	(0.33, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例1-40	B-7	C-5	703	167	(0.30, 0.62)	(0.34, 0.60)	(0.04, 0.02)
実施例1-41	B-7	C-6	720	168	(0.30, 0.63)	(0.33, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例1-42	B-7	C-7	735	173	(0.30, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.04, 0.01)

10

20

30

40

上記結果から明らかなように、本発明の実施例の素子は比較例の素子に比べ、駆動耐久性が高くなり（特に高輝度駆動時）、劣化時の色度ずれが少ない。なお色度差は初期色度と輝度半減後の色度との差の絶対値であり、例えば比較例 1 - 1 では、色度差 = ( | 0.32 - 0.36 | , | 0.62 - 0.60 | ) = ( 0.04 , 0.02 ) である。

なお、ホスト材料として化合物 C - 5 を使用した実施例 1 - 1 6、実施例 1 - 3 4、実施例 1 - 4 0 は、「実施例」とあるのを「参考例」と読み替えるものとする。

【 0 2 3 2 】

< 実施例 2 >

( 実施例 2 - 1 の素子の作製 )

比較例 1 - 1 において発光層の膜組成を H - 1 と A - 1 を 9 0 : 1 0 ( 質量比 ) から、C - 8 と B - 2 を 9 0 : 1 0 ( 質量比 ) に変えて蒸着した以外 ( 膜厚 : 3 0 n m )、比較例 1 - 1 と同様にして実施例 2 - 1 の有機 E L 素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2 4 0 0 型を用いて、直流定電圧を有機 E L 素子に印加して発光させた結果、B - 2 に由来する発光が得られた。

10

【 0 2 3 3 】

( 実施例 2 - 2 ~ 2 - 9 の作製 )

実施例 2 - 1 で使用した材料を、表 2 に記載の材料に変更した以外は実施例 2 - 1 と同様にして実施例 2 - 2 ~ 2 - 9、比較例 2 - 1 ~ 2 - 9 の素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2 4 0 0 型を用いて、直流定電圧を有機 E L 素子に印加して発光させた結果、それぞれの発光材料に由来する色の発光が得られた。

20

【 0 2 3 4 】

( 素子の評価 )

( 駆動耐久性の評価 )

実施例 1 と同様に評価した。

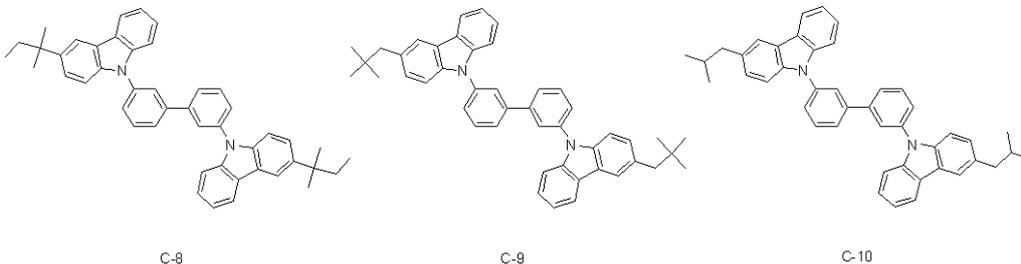
( 色度の評価 )

実施例 1 と同様に評価した。

評価結果を表 2 に示した。なお比較のために比較例 1 - 5、1 - 9、1 - 1 8、実施例 1 - 8、実施例 1 - 1 4、実施例 1 - 3 2 で作製した素子の結果も示した。

【 0 2 3 5 】

【 化 5 6 】



C-8

C-9

C-10

【 0 2 3 6 】

30

【表 2】

表 2

	発光層		1000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	10000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	初期 色度	輝度半減後 の色度	色度差
	発光 材料	ホト 材料					
比較例1-5	B-2	H-1	1116	162	(0.33, 0.62)	(0.38, 0.61)	(0.05, 0.01)
実施例1-8	B-2	C-2	1563	340	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例2-1	B-2	C-8	1488	320	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例2-2	B-2	C-9	1479	311	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.62)	(0.03, 0.00)
実施例2-3	B-2	C-10	1374	286	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.60)	(0.03, 0.03)
比較例1-9	B-3	H-1	991	153	(0.32, 0.62)	(0.37, 0.61)	(0.05, 0.01)
実施例1-14	B-3	C-2	1233	289	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.02)
実施例2-4	B-3	C-8	1139	268	(0.32, 0.61)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.01)
実施例2-5	B-3	C-9	1164	273	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.02)
実施例2-6	B-3	C-10	1089	242	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.04, 0.01)
比較例1-18	B-6	H-1	765	77	(0.32, 0.63)	(0.37, 0.61)	(0.05, 0.02)
実施例1-32	B-6	C-2	922	231	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例2-7	B-6	C-8	858	206	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.02)
実施例2-8	B-6	C-9	875	214	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例2-9	B-6	C-10	807	189	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.03, 0.02)

10

20

## 【0237】

&lt;実施例3&gt;

(実施例3-1の素子の作製)

比較例1-1において発光層の膜組成をH-1とA-1を90:10(質量比)から、C-1とB-8を90:10(質量比)に変えて蒸着した以外(膜厚:30nm)、比較例1-1と同様にして実施例3-1の有機EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、B-8に由来する発光が得られた。

## 【0238】

(実施例3-2~3-21、比較例3-1~3-3の素子の作製)

実施例3-1で使用した材料を、表3に記載の材料に変更した以外は実施例3-1と同様にして実施例3-2~3-21、比較例3-1~3-3の素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、それぞれの発光材料に由来する色の発光が得られた。

30

## 【0239】

〔素子の評価〕

(駆動耐久性の評価)

得られた有機電界発光素子を、東京システム開発(株)製のOLEDテストシステムST-D型にセットし、外気温70℃において、定電流モードにて初期輝度1000cd/m<sup>2</sup>及び10000cd/m<sup>2</sup>の条件で駆動し、輝度半減時間を測定した。

40

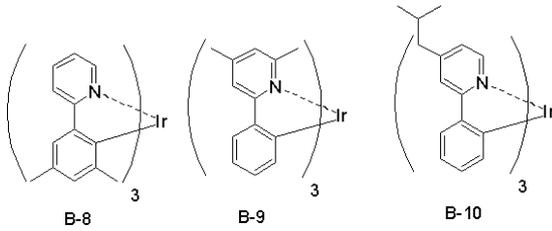
(色度の評価)

実施例1と同様に評価した。

評価結果を表3に示した。なお比較のために比較例1-1~1-3、1-15~1-17で作製した素子についても同じ条件で評価した。

## 【0240】

【化57】



【0241】

【表3】

表3

	発光層		1000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	10000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	初期色度	輝度半減後 の色度	色度差
	発光 材料	ホト 材料					
比較例1-1	A-1	H-1	1000	131	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.02)
比較例1-2	A-1	C-1	1081	163	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.05, 0.01)
比較例1-3	A-1	C-2	1183	178	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.05, 0.02)
比較例3-1	B-8	H-1	950	119	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例3-1	B-8	C-1	1139	195	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.60)	(0.02, 0.03)
実施例3-2	B-8	C-2	1216	211	(0.32, 0.63)	(0.33, 0.61)	(0.01, 0.02)
実施例3-3	B-8	C-3	1141	204	(0.32, 0.63)	(0.33, 0.61)	(0.01, 0.02)
実施例3-4	B-8	C-4	1125	196	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.60)	(0.02, 0.02)
実施例3-5	B-8	C-7	1088	189	(0.32, 0.63)	(0.33, 0.61)	(0.01, 0.02)
実施例3-6	B-8	C-8	1143	195	(0.32, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.01, 0.01)
実施例3-7	B-8	C-9	1168	207	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.62)	(0.02, 0.01)
比較例1-15	A-4	H-1	653	63	(0.30, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.06, 0.02)
比較例1-16	A-4	C-1	669	66	(0.30, 0.61)	(0.36, 0.59)	(0.06, 0.02)
比較例1-17	A-4	C-2	679	71	(0.30, 0.61)	(0.36, 0.60)	(0.06, 0.01)
比較例3-2	B-9	H-1	583	59	(0.32, 0.63)	(0.38, 0.61)	(0.06, 0.02)
実施例3-8	B-9	C-1	735	123	(0.31, 0.63)	(0.35, 0.60)	(0.04, 0.03)
実施例3-9	B-9	C-2	817	159	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例3-10	B-9	C-3	746	138	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例3-11	B-9	C-4	722	126	(0.31, 0.63)	(0.34, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例3-12	B-9	C-7	701	117	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例3-13	B-9	C-8	760	153	(0.31, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例3-14	B-9	C-9	784	152	(0.31, 0.63)	(0.33, 0.62)	(0.02, 0.01)
比較例3-3	B-10	H-1	605	60	(0.31, 0.62)	(0.38, 0.60)	(0.07, 0.02)
実施例3-15	B-10	C-1	688	173	(0.31, 0.63)	(0.33, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例3-16	B-10	C-2	762	204	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例3-17	B-10	C-3	685	185	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.62)	(0.02, 0.00)
実施例3-18	B-10	C-4	663	169	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例3-19	B-10	C-7	659	151	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例3-20	B-10	C-8	714	188	(0.31, 0.63)	(0.34, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例3-21	B-10	C-9	729	197	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)

【0242】

上記結果から明らかのように、本発明の実施例の素子は比較例の素子に比べ、駆動耐久性が高くなり（特に高輝度駆動時）、劣化時の色度ずれが少ない。

【0243】

<実施例4>

(実施例4-1の素子の作製)

比較例1-1において発光層の膜組成をH-1とA-1を90:10(質量比)から、C-1とB-11を90:10(質量比)に変えて蒸着した以外(膜厚:30nm)、比較例1-1と同様にして実施例4-1の有機EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、B-11に由来する発光が得られた。

【0244】

10

20

30

40

50

(実施例4-2~4-9、比較例4-1~4-3の素子の作製)

実施例3-1で使用した材料を、表3に記載の材料に変更した以外は実施例3-1と同様にして実施例4-2~4-9、比較例4-1~4-3の素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、それぞれの発光材料に由来する色の発光が得られた。

【0245】

(素子の評価)

(駆動耐久性の評価)

実施例1と同様に評価した。

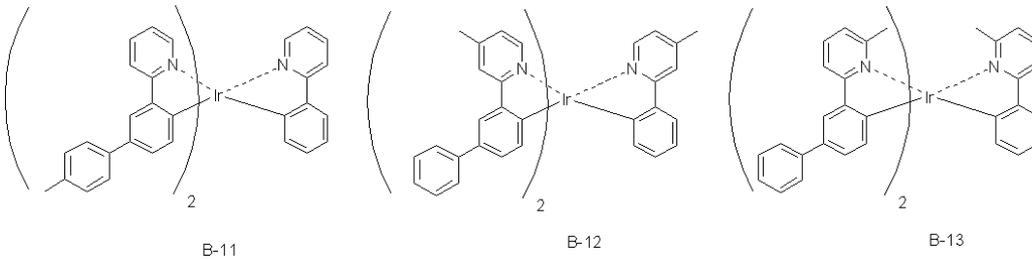
(色度の評価)

実施例1と同様に評価した。

評価結果を表4に示した。なお比較のために比較例1-5、1-9、1-19、実施例1-8、1-14、1-38、2-1、2-2、2-4、2-5で作製した素子の結果も示した。

【0246】

【化58】



【0247】

【表4】

表4

	発光層		1000cd/m <sup>2</sup> での輝度半減時間(相対値)	10000cd/m <sup>2</sup> での輝度半減時間(相対値)	初期色度	輝度半減後の色度	色度差
	発光材料	ホト材料					
比較例1-5	B-2	H-1	1116	162	(0.33, 0.62)	(0.38, 0.61)	(0.05, 0.01)
実施例1-8	B-2	C-2	1563	340	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例2-1	B-2	C-8	1488	320	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例2-2	B-2	C-9	1479	311	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.62)	(0.03, 0.00)
比較例4-1	B-11	H-1	1038	136	(0.33, 0.62)	(0.39, 0.61)	(0.06, 0.01)
実施例4-1	B-11	C-2	1413	312	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例4-2	B-11	C-8	1348	286	(0.32, 0.63)	(0.36, 0.61)	(0.04, 0.02)
実施例4-3	B-11	C-9	1355	288	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.62)	(0.04, 0.00)
比較例1-9	B-3	H-1	991	153	(0.32, 0.62)	(0.37, 0.61)	(0.05, 0.01)
実施例1-14	B-3	C-2	1233	289	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.05, 0.02)
実施例2-4	B-3	C-8	1139	268	(0.31, 0.61)	(0.35, 0.60)	(0.04, 0.01)
実施例2-5	B-3	C-9	1164	273	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.05, 0.02)
比較例4-2	B-12	H-1	881	136	(0.31, 0.62)	(0.37, 0.61)	(0.06, 0.01)
実施例4-4	B-12	C-2	1132	266	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.05, 0.01)
実施例4-5	B-12	C-8	1037	247	(0.31, 0.61)	(0.35, 0.60)	(0.04, 0.01)
実施例4-6	B-12	C-9	1055	250	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.05, 0.01)
比較例1-19	B-7	H-1	652	73	(0.30, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.05, 0.01)
実施例1-38	B-7	C-2	859	221	(0.29, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.04, 0.01)
比較例4-3	B-13	H-1	549	61	(0.30, 0.62)	(0.36, 0.62)	(0.06, 0.00)
実施例4-7	B-13	C-2	746	185	(0.29, 0.62)	(0.32, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例4-8	B-13	C-8	699	172	(0.30, 0.62)	(0.33, 0.62)	(0.03, 0.00)
実施例4-9	B-13	C-9	710	178	(0.30, 0.62)	(0.32, 0.61)	(0.02, 0.01)

【0248】

< 実施例 5 >

( 実施例 5 - 1 の素子の作製 )

比較例 1 - 1 において発光層の膜組成を H - 1 と A - 1 を 90 : 10 ( 質量比 ) から、C - 1 と B - 16 を 90 : 10 ( 質量比 ) に変えて蒸着した以外 ( 膜厚 : 30 nm )、比較例 1 - 1 と同様にして実施例 5 - 1 の有機 EL 素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2400 型を用いて、直流定電圧を有機 EL 素子に印加して発光させた結果、B - 16 に由来する発光が得られた。

【 0 2 4 9 】

( 実施例 5 - 2 ~ 5 - 17、比較例 5 - 1 ~ 5 - 4 の素子の作製 )

実施例 5 - 1 で使用した材料を、表 5 に記載の材料に変更した以外は実施例 5 - 1 と同様にして実施例 5 - 2 ~ 5 - 17、比較例 5 - 1 ~ 5 - 4 の素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2400 型を用いて、直流定電圧を有機 EL 素子に印加して発光させた結果、それぞれの発光材料に由来する色の発光が得られた。

10

【 0 2 5 0 】

( 素子の評価 )

( 駆動耐久性の評価 )

実施例 1 と同様に評価した。

( 色度の評価 )

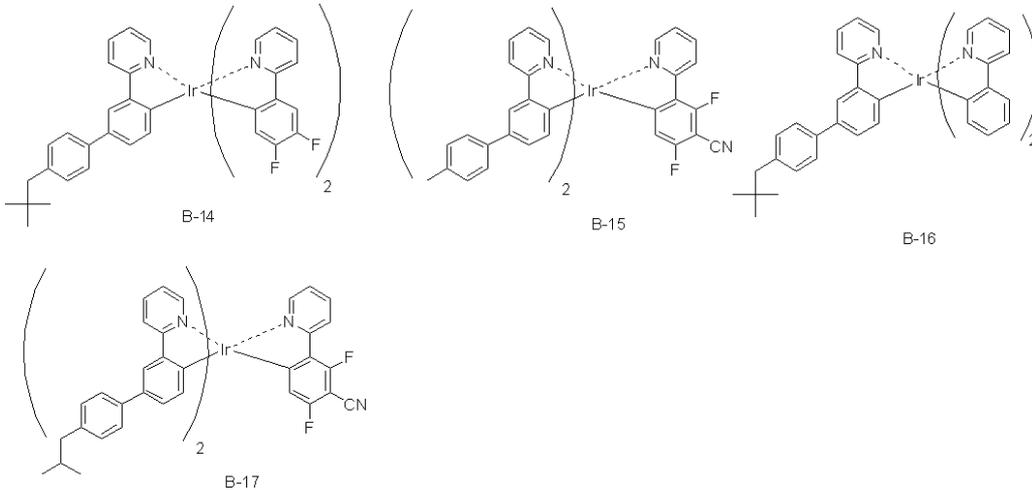
実施例 1 と同様に評価した。

評価結果を表 5 に示した。なお比較のために比較例 1 - 1、1 - 3、4 - 1、実施例 4 - 1 ~ 4 - 3 で作製した素子の結果も示した。

20

【 0 2 5 1 】

【 化 5 9 】



30

【 0 2 5 2 】

【表 5】

表 5

	発光層		1000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	10000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	初期色度	輝度半減後 の色度	色度差
	発光 材料	ホト 材料					
比較例1-1	A-1	H-1	1000	131	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.04, 0.02)
比較例1-3	A-1	C-2	1183	178	(0.31, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.05, 0.02)
比較例5-1	B-16	H-1	1093	158	(0.33, 0.63)	(0.37, 0.61)	(0.04, 0.02)
実施例5-1	B-16	C-1	1279	255	(0.33, 0.62)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.00)
実施例5-2	B-16	C-2	1510	343	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例5-3	B-16	C-4	1388	278	(0.33, 0.62)	(0.36, 0.60)	(0.03, 0.02)
実施例5-4	B-16	C-8	1419	321	(0.33, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.01)
比較例5-2	B-14	H-1	1231	171	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例5-5	B-14	C-1	1447	368	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.63)	(0.02, 0.00)
実施例5-6	B-14	C-2	1682	390	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例5-7	B-14	C-4	1399	343	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例5-8	B-14	C-8	1581	362	(0.32, 0.63)	(0.34, 0.62)	(0.02, 0.01)
比較例4-1	B-11	H-1	1038	136	(0.33, 0.62)	(0.39, 0.61)	(0.06, 0.01)
実施例4-1	B-11	C-2	1413	312	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例4-2	B-11	C-8	1348	286	(0.32, 0.63)	(0.36, 0.61)	(0.04, 0.02)
実施例4-3	B-11	C-9	1355	288	(0.32, 0.62)	(0.36, 0.62)	(0.04, 0.00)
比較例5-3	B-15	H-1	1455	193	(0.31, 0.62)	(0.35, 0.60)	(0.04, 0.02)
実施例5-9	B-15	C-1	1893	395	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例5-10	B-15	C-2	2258	425	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.62)	(0.02, 0.00)
実施例5-11	B-15	C-4	1880	388	(0.32, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例5-12	B-15	C-8	2129	396	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例5-13	B-15	C-9	2153	411	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.62)	(0.02, 0.00)
比較例5-4	B-17	H-1	1310	177	(0.31, 0.63)	(0.35, 0.60)	(0.04, 0.03)
実施例5-14	B-17	C-1	1737	358	(0.31, 0.62)	(0.34, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例5-15	B-17	C-2	2004	384	(0.31, 0.62)	(0.33, 0.62)	(0.02, 0.00)
実施例5-16	B-17	C-8	1888	358	(0.32, 0.63)	(0.33, 0.61)	(0.01, 0.02)
実施例5-17	B-17	C-9	1924	368	(0.31, 0.62)	(0.34, 0.60)	(0.03, 0.02)

## 【0253】

上記結果から明らかなように、本発明の実施例の素子は比較例の素子に比べ、駆動耐久性が高くなり（特に高輝度駆動時）、劣化時の色度ずれが少ない。

## 【0254】

<実施例6>

(実施例6-1の素子の作製)

比較例1-1において発光層の膜組成をH-1とA-1を90:10(質量比)から、C-1とB-16を90:10(質量比)に変えて蒸着した以外(膜厚:30nm)、比較例1-1と同様にして実施例6-1の有機EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、B-16に由来する発光が得られた。

## 【0255】

(実施例6-2~6-12の素子の作製)

実施例6-1で使用した材料を、表6に記載の材料に変更した以外は実施例6-1と同様にして実施例6-2~6-12の素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、それぞれの発光材料に由来する色の発光が得られた。

## 【0256】

[素子の評価]

(駆動耐久性の評価)

実施例1と同様に評価した。

10

20

30

40

50



## 【0260】

&lt;実施例7&gt;

(比較例7-1の素子の作製)

0.5mm厚み、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 $10 \Omega / \square$ )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。これにポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS)を純水で70%に希釈した溶液をスピンコーターで塗布し、50nmの正孔輸送層を設けた。H-1:A-1=93/7(質量比)を溶解したメチレンクロライド溶液をスピンコーターで塗布し、30nmの発光層を得た。この上に、BA1q[ビス-(2-メチル-8-キノリノレート)-4-(フェニルフェノレート)アルミニウム]を40nm蒸着した。この有機化合物層の上に、蒸着装置内で陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nm及び陰極としてアルミニウム150nmを蒸着した。これを大気に触れさせることなく、アルゴンガスで置換したグローブボックス内に入れ、ステンレ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、比較例5-1の有機EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、化合物A-1に由来する発光が得られた。

10

## 【0261】

(実施例7-1~7-21、比較例7-2~7-7の素子の作製)

比較例7-1で使用した材料を、表7に記載の材料に変更した以外は比較例7-1と同様にして比較例7-2~7-7、実施例7-1~7-21の素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、それぞれの発光材料に由来する色の発光が得られた。

20

## 【0262】

〔素子の評価〕

(駆動耐久性の評価)

得られた有機電界発光素子を、東京システム開発(株)製のOLEDテストシステムST-D型にセットし、外気温 $70 \pm 1^\circ\text{C}$ において、定電流モードにて初期輝度 $1000 \text{ cd/m}^2$ 及び $5000 \text{ cd/m}^2$ の条件で駆動し、輝度半減時間を測定した。

(色度の評価)

30

実施例1と同様に評価した。

評価結果を表7に示した。

## 【0263】

【表 7】

表 7

	発光層		1000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	5000cd/m <sup>2</sup> での輝度 半減時間 (相対値)	初期色度	輝度半減後 の色度	色度差
	発光 材料	ホスト 材料					
比較例7-1	A-1	H-1	1000	97	(0.32, 0.62)	(0.38, 0.60)	(0.06, 0.02)
比較例7-2	A-1	C-1	1078	116	(0.32, 0.62)	(0.37, 0.62)	(0.05, 0.00)
比較例7-3	A-1	C-2	1093	125	(0.31, 0.63)	(0.37, 0.62)	(0.06, 0.01)
比較例7-4	B-14	H-1	1207	129	(0.33, 0.63)	(0.38, 0.62)	(0.05, 0.01)
比較例7-5	B-16	H-1	1176	116	(0.33, 0.63)	(0.39, 0.61)	(0.06, 0.02)
実施例7-1	B-14	C-1	1385	254	(0.34, 0.63)	(0.37, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例7-2	B-14	C-2	1531	302	(0.32, 0.64)	(0.35, 0.62)	(0.03, 0.02)
実施例7-3	B-14	C-3	1320	266	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例7-4	B-14	C-8	1533	283	(0.32, 0.64)	(0.34, 0.63)	(0.02, 0.01)
実施例7-5	B-14	C-9	1528	303	(0.32, 0.64)	(0.33, 0.63)	(0.01, 0.01)
実施例7-6	B-14	C-10	1371	265	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例7-7	B-16	C-1	1253	213	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例7-8	B-16	C-2	1489	318	(0.34, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.02, 0.01)
実施例7-9	B-16	C-3	1263	207	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例7-10	B-16	C-8	1466	302	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例7-11	B-16	C-9	1503	328	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.02, 0.01)
実施例7-12	B-16	C-10	1337	259	(0.34, 0.62)	(0.36, 0.61)	(0.02, 0.01)
比較例7-6	B-6	H-1	748	67	(0.33, 0.63)	(0.38, 0.60)	(0.05, 0.03)
実施例7-13	B-6	C-1	796	156	(0.33, 0.63)	(0.36, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例7-14	B-6	C-2	859	175	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.01)
実施例7-15	B-6	C-8	843	165	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.62)	(0.03, 0.01)
実施例7-16	B-6	C-9	864	178	(0.32, 0.62)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.01)
比較例7-7	B-18	H-1	565	59	(0.33, 0.62)	(0.39, 0.59)	(0.06, 0.03)
実施例7-17	B-18	C-1	632	123	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例7-18	B-18	C-2	735	142	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.02)
実施例7-19	B-18	C-3	620	119	(0.33, 0.63)	(0.37, 0.60)	(0.04, 0.03)
実施例7-20	B-18	C-8	729	133	(0.33, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.02, 0.02)
実施例7-21	B-18	C-9	736	140	(0.32, 0.63)	(0.35, 0.61)	(0.03, 0.02)

10

20

30

## 【 0 2 6 4 】

上記結果から明らかなように、本発明の素子は比較素子に比べ、駆動耐久性が高くなり（特に高輝度駆動時）、劣化時の色度ずれが少ない。実施例7は発光層を塗布で作製したものであり、製造コストの点で優れている。

## 【符号の説明】

## 【 0 2 6 5 】

- 2・・・基板
- 3・・・陽極
- 4・・・正孔注入層
- 5・・・正孔輸送層
- 6・・・発光層
- 7・・・正孔ブロック層
- 8・・・電子輸送層
- 9・・・陰極
- 10・・・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

40

50

- 20・・・発光装置
- 30・・・光散乱部材
- 30A・・・光入射面
- 30B・・・光出射面
- 32・・・微粒子
- 40・・・照明装置

【要約】

【課題】本発明の目的は、高耐久性（特に高輝度駆動時）、かつ素子劣化後の色度ズレの少ない有機電界発光素子の提供にある。

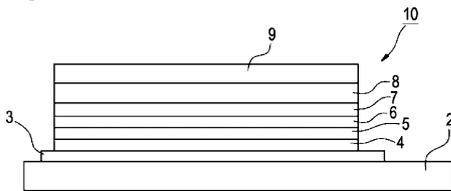
【解決手段】基板上に、一对の電極と、該電極間に発光材料を含有する発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機電界発光素子であって、該発光層が、特定の3,3'-ジカルバゾールリルビフェニル化合物と特定構造を有するイリジウム錯体とを少なくとも一種ずつ含有することを特徴とする有機電界発光素子。

10

【選択図】なし

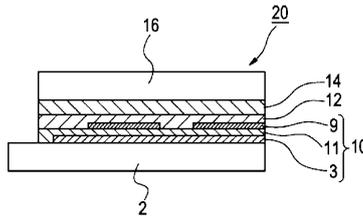
【図1】

FIG.1



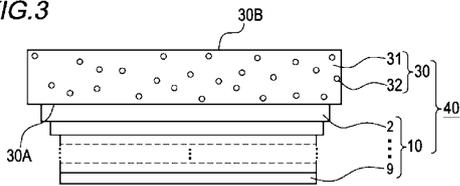
【図2】

FIG.2



【図3】

FIG.3



---

フロントページの続き

- (56)参考文献 国際公開第2009/073246(WO,A1)  
国際公開第2009/073245(WO,A1)  
特表2007-522126(JP,A)  
特表2005-536565(JP,A)  
特開2005-047811(JP,A)  
特開2004-210785(JP,A)  
国際公開第2008/140114(WO,A1)  
特開2007-123392(JP,A)  
特開2005-302722(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)

C09K11/06  
H05B33  
CA/REGISTRY(STN)