

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

7a

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2012年1月12日 (12.01.2012)

PCT

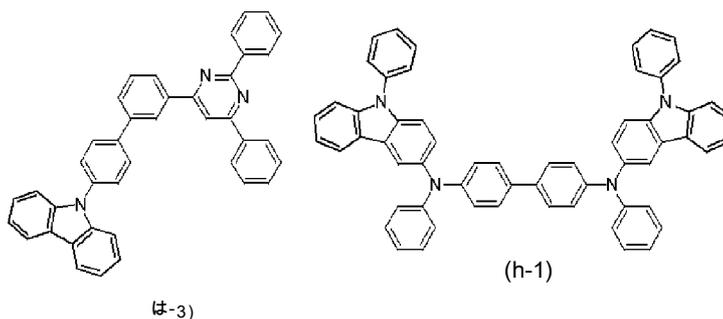
(10) 国際公開番号
WO 2012/005360 A1

- (51) 国際特許分類 :
H01L 51/50 (2006.01) G09F 9/30 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01)
- (21) 国際出願番号 : PCT/JP201 1/065715
- (22) 国際出願日 : 2011年7月8日 (08.07.2011)
- (25) 国際出願の言語 : 日本語
- (26) 国際公開の言語 : 日本語
- (30) 優先権データ :
特願 2010-157352 2010年7月9日 (09.07.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について) : 富士フイルム株式会社 (FUJIFILM Corporation)
[JP/JP]; 〒106003 東京都港区西麻布2丁目26番30号 Tokyo (JP).
- () 発明者 ; および
- () 発明者/出願人 (米国についてのみ) : 益居 健介 (MASUI Kensuke), 木下 正 兎 (KINOSHITA Masaru), 伊勢 俊大 (ISE Toshihiro)
- (74) 代理人 : 高松 猛 , 外 (AKAMATSU Takeshi et al); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目7番13号 虎ノ門イーストビルディング9階 航栄特許事務所 Tokyo OP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :
- 国際調査報告 (条約第21条(3))

- (54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT
- (54) 発明の名称 : 有機電界発光素子



(57) Abstract: Disclosed is an organic electroluminescent element of which the decrease in efficiency during high brightness driving is low, and the initial drop in driving durability is low. The organic electroluminescent element has, on a substrate: a pair of electrodes comprising a positive electrode and a negative electrode; a light-emitting layer between said electrodes; at least one organic layer between said light-emitting layer and said positive electrode; and at least one organic layer between said light emitting layer and said negative electrode. At least one compound, for example the compound represented by the belowmentioned a-3, is contained in the at least one organic layer between said light-emitting layer and said negative electrode, and at least one compound, for example the compound represented by h-1, is contained in the at least one organic layer between said light-emitting layer and said positive electrode.

(57) 要約 : 高輝度駆動時の効率の低下が少なく、かつ駆動耐久性の初期落ちが少ない有機電界発光素子を提供すること。基板上に、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該電極間に発光層を有し、該発光層と該陽極の間に少なくとも一層の有機層を有し、該発光層と該陰極の間に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、該発光層と該陰極の間の少なくとも一層の有機層に例えば下記 (a-3) で表される化合物を少なくとも一つ含有し、該発光層と該陽極の間の少なくとも一層の有機層に例えば (h-1) で表される化合物を少なくとも一つ含有する有機電界発光素子。



WO 2012/005360 A1

明 細 書

発明の名称 : 有機電界発光素子

技術分野

[0001] 本発明は有機電界発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機電界発光素子 (以下、「素子」、有機EL素子」ともいう) は、低電圧駆動で高輝度の発光が得られることから活発に研究開発が行われている。有機電界発光素子は、一对の電極間に有機層を有し、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔とが有機層において再結合し、生成した励起子のエネルギーを発光に利用するものである。

[0003] 近年、燐光発光材料を用いることにより、素子の高効率化が進んでいる。また、発光材料をホスト材料中にドーピングした発光層を用いるドーピング型素子が広く採用されている。

例えば、特許文献1及び2には、発光層において、燐光発光材料としてイリジウム錯体を用い、ホスト材料としてカルバゾール構造と窒素含有芳香族ヘテロ6員環を含む化合物を用いた有機電界発光素子が記載されている。

特許文献4及び5にもカルバゾール構造と窒素含有芳香族ヘテロ6員環を含む化合物を用いた有機電界発光素子が記載されている。

[0004] また、有機電界発光素子の効率及び耐久性等の向上を目的として、電気的な安定性及び高い電荷輸送能力を有する化合物の開発も行われている。

例えば特許文献3及び6には発光層と陽極との間に、フェニルカルバゾール構造を含む特定の化合物からなる層を設けた有機電界発光素子が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1 : 日本国特開2009-88538号公報

特許文献2 : 国際公開第05/085387号

特許文献3 : 日本国特開2006-151979号公報

特許文献4 : 国際公開第07/142083号

特許文献5 : 日本国特開2007-220721号公報

特許文献6 : 日本国特開2007-318101号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 有機電界発光素子は、例えば、テレビ、及び照明用途等では1万cd/m²程度の高輝度での駆動も考えられるが、本発明者らの検討によると、従来の有機電界発光素子では、高輝度駆動時には低輝度駆動時に比べて効率の低下が見られることが分かった。

また、従来の有機電界発光素子を定電流駆動させ、輝度の低下を観察すると、発光開始直後の輝度の低下率が大きく(輝度が初期の95%になるまでの時間が短く)、その後は徐々に輝度が低下する傾向がある。この初期の段階での輝度の低下を「初期落ち」と呼ぶ。この初期落ちは、有機電界発光素子をディスプレイに適用した場合に、固定画像パターン等によって連続点灯にさらされる画素群の輝度低下が、周辺画素に対する輝度段差として観測者に認識される、いわゆる「焼き付き」の原因になる。従って、有機電界発光素子をテレビ等に実用化するためには、この焼き付きを防止する必要がある、駆動耐久性の初期落ちを抑制することが重要となる。

[0007] 本発明の目的は、上記事情に鑑み、高輝度駆動時の効率の低下が少なく、かつ駆動耐久性の初期落ちが少ない有機電界発光素子を提供することである。

課題を解決するための手段

[0008] すなわち、本発明は下記的手段により達成することができる。

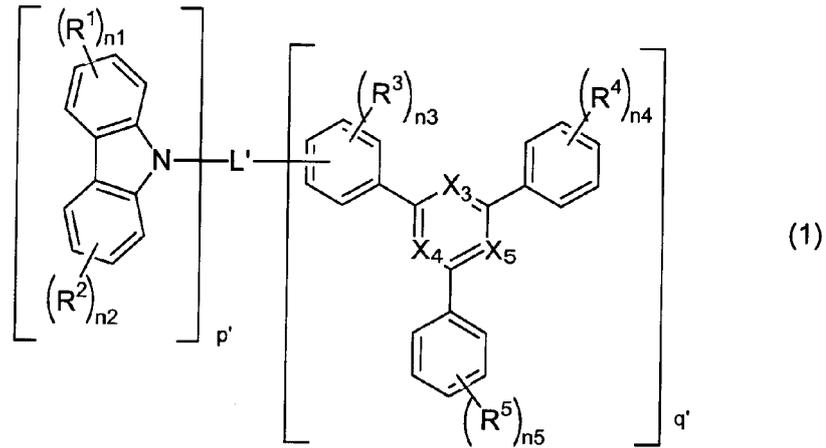
[0009] (1)

基板上に、陽極及び陰極からなる一对の電極と、該電極間に発光層を有し、該発光層と該陽極の間に少なくとも一層の有機層を有し、該発光層と該陰極の間に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、

該発光層と該陰極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (1) で表される化合物を少なくとも一つ含有し、

該発光層と該陽極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (H_1) で表される化合物を少なくとも一つ含有する有機電界発光素子。

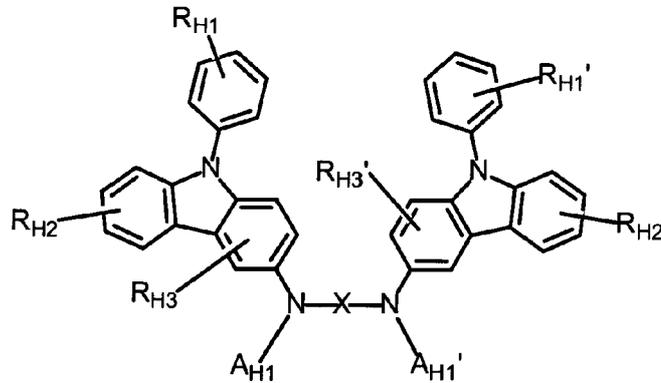
[0010] [化 1]



[001 1] (一般式 (1) 中、 x_3 、 x_4 及び x_5 はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 x_3 、 x_4 及び x_5 を含む環はピリジン又はピリミジンである。L' は、単結合又はベンゼン環を表す。R¹～R⁵ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又は tert-ブチル基を表す。n₁～n₅ はそれぞれ独立に 0 又は 1 を表し、p' 及び q' はそれぞれ独立に 1 又は 2 を表す。)

[001 2]

[化2]



(H-1)

[0013] (一般式 (H-1) 中、X は、置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若しくは無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換の2価のヘテロ環基を表す。

R_{H1}、R_{H1'}、R_{H2}、R_{H2'}、R_{H3}、及びR_{H3'} は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、ヒドロキシ基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。R_{H1}、R_{H2}、及びR_{H3}のうち少なくとも2つが互いに結合して環を形成してもよい。R_{H1'}、R_{H2'}、及びR_{H3'}のうち少なくとも2つが互いに結合して環を形成してもよい。

A_{H1}及びA_{H1'} は、それぞれ独立に、置換若しくは無置換のアリール基、又は、置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基である。))

②)

前記一般式 (H-1) において、A_{H1}及びA_{H1'} が置換若しくは無置換のアリール基である、上記 (1) に記載の有機電界発光素子。

③)

前記一般式 (H-1) において、X が無置換のアリーレン基である、上記

(1) 又は (2) に記載の有機電界発光素子。

(4)

前記一般式 (H-1) において、 A_{H1} 及び A_{H1}' が置換若しくは無置換のフェニル基、ビフェニル基、又はアントリル基である、上記 (1) ~ (3) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

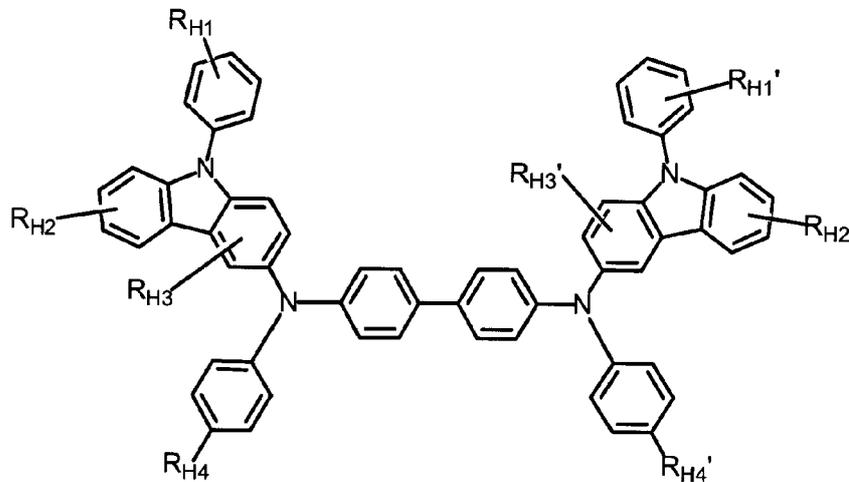
(5)

前記一般式 (H-1) において、 x がフェニレン基、ナフチレン基、又はビフェニレン基である、上記 (1) ~ (4) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

(6)

前記一般式 (H-1) が下記一般式 (H-2) で表される、上記 (1) ~ (5) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

[0014] [化3]



(H-2)

[0015] (一般式 (H-2) 中、 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。

R_{H4} 、及び R_{H4}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、置換若し

くは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。)

(7)

前記 R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ が水素原子である、上記 (1) ~ (6) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

(8)

前記 R_{H4} 、及び $R_{H4'}$ が水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、又はシアノ基である、上記 (6) 又は (7) に記載の有機電界発光素子。

(9)

前記発光層に燐光性発光材料を含有する、上記 (1) ~ (8) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

(10)

前記燐光性発光材料が、イリジウム錯体である、上記 (9) に記載の有機電界発光素子。

[11]

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

(12)

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

(13)

上記 (1) ~ (10) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

(14)

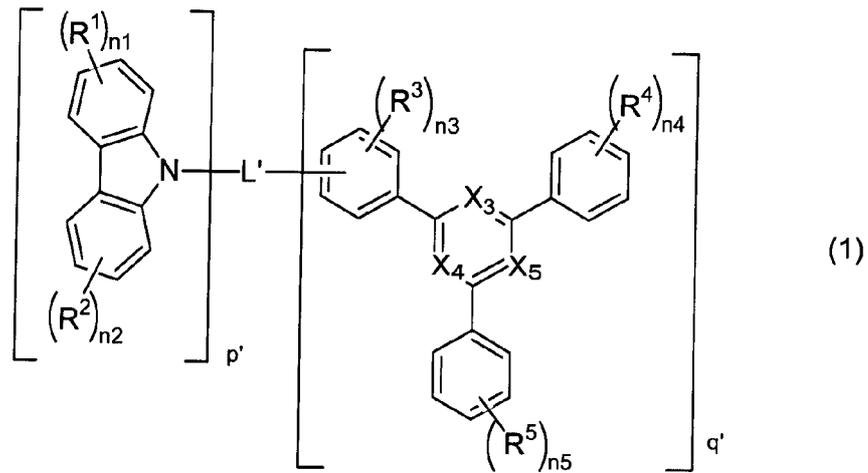
基板上に、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該電極間に発光層を有し、該発光層と該陽極の間に少なくとも一層の有機層を有し、該発光層と該陰

極の間に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、

該発光層と該陰極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (1) で表される化合物を少なくとも一つ含有し、

該発光層と該陽極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (H-2) で表される化合物を少なくとも一つ含有する有機電界発光素子。

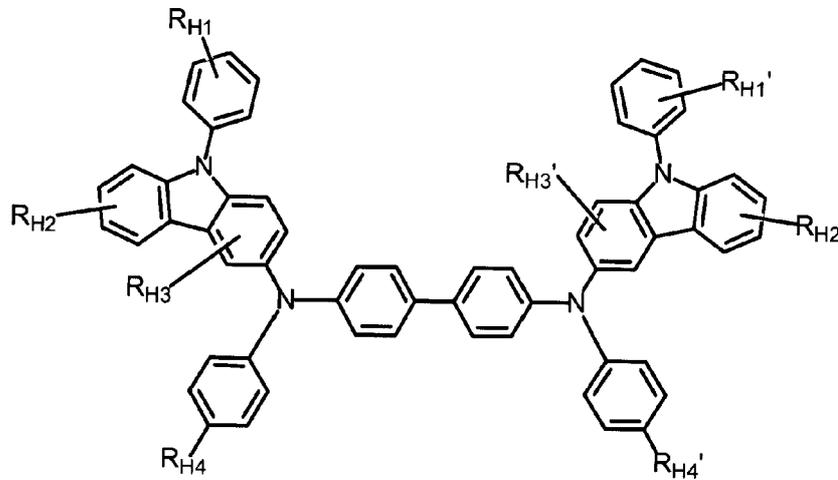
[001 6] [化4]



[001 7] (一般式 (1) 中、 X_3 、 X_4 及び X_5 はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 X_3 、 X_4 及び X_5 を含む環はピリジン又はピリミジンである。 L' は、単結合又はベンゼン環を表す。 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又は tert-ブチル基を表す。 $n_1 \sim n_5$ はそれぞれ独立に 0 又は 1 を表し、 p' は 1 又は 2 を表し、 q' は 1 を表す。)

[001 8]

[化5]



(H-2)

[0019] (一般式 (H-2) 中、 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、及び R_{H2}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、無置換のアルキル基、無置換のアリール基、無置換のピリジル基、又はシアノ基を表す。

R_{H3} 、及び R_{H3}' は水素原子を表す。

R_{H4} 、及び R_{H4}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、無置換のアルキル基、又は無置換のアリール基を表す。)

〔15〕

前記 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、及び R_{H2}' が水素原子である、上記〔14〕に記載の有機電界発光素子。

〔16〕

前記 R_{H4} 、及び R_{H4}' が水素原子、フッ素原子、又は無置換のアルキル基である、上記〔14〕又は〔15〕に記載の有機電界発光素子。

〔17〕

前記発光層に燐光性発光材料を含有する、上記〔14〕～〔16〕のいずれか1項に記載の有機電界発光素子。

〔18〕

前記燐光性発光材料が、イリジウム錯体である、上記〔17〕に記載の有

機電界発光素子。

(19)

上記 (14) ~ (18) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

(20)

上記 (14) ~ (18) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

(21)

上記 (14) ~ (18) のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

発明の効果

[0020] 本発明によれば、高輝度駆動時の効率の低下が少なく、かつ駆動耐久性の初期落ちが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

[0021] [図1]本発明に係る有機電界発光素子の構成の一例を示す概略図である。

[図2]本発明に係る発光装置の一例を示す概略図である。

[図3]本発明に係る照明装置の一例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0022] 一般式 (1) 及び一般式 (H_1) の説明における水素原子は同位体 (重水素原子等) も含み、また更に置換基を構成する原子は、その同位体も含んでいることを表す。

[0023] 本発明において、置換基群 A、及び置換基群 B を下記のように定義する。

(置換基群 A)

アルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 10 であり、例えばメチル、エチル、イソプロピル、t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル、ネオペンチルなどが挙げられる。)、アルケニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数

2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えばビニル、アリル、2-プロテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニル、4-メチルフエニル、2,6-ジメチルフエ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、ジェチルアミノ、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、プロトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルオキシ、ピラジロキシ、ピリミジロキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、アシル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ビ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。)、アリールオキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 7 ~ 30、より好ましくは炭素数 7 ~ 20、特に好ましくは炭素数 7 ~ 12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 1

0 であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 7 ~ 30、より好ましくは炭素数 7 ~ 20、特に好ましくは炭素数 7 ~ 12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基 (好ましくは炭素数 0 ~ 30、より好ましくは炭素数 0 ~ 20、特に好ましくは炭素数 0 ~ 12 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィ

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

[0024] (置換基群 B)

アルキル基 (好ましくは炭素数 1~30、より好ましくは炭素数 1~20、特に好ましくは炭素数 1~10 であり、例えばメチル、エチル、イソプロピル、t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキ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-プテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基 (好ましくは炭素数 2~30、より好ましくは炭素数 2~20、特に好ましくは炭素数 2~10 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基 (好ましくは炭素数 6~30、より好ましくは炭素数 6~20、特に好ましくは炭素数 6~12 であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、シアノ基、ヘテロ環基 (芳香族ヘテロ環基も包含し、好ましくは炭素数 1~30、より好ましくは炭素数 1~12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、リン原子、ケイ素原子、セレン原子、テルル原子であり、具体的にはピリジル、ピラジニル、ピリミジル、ピリダジニル、ピロリル、ピラゾリル、トリアゾリル、イミダゾリル、オキサゾリル、チアゾリル、イソキサゾリル、イソチアゾリル、キノリル、フリル、チェニル、セレノフェニル、テルロフェニル、ペペリジル、ペペリジノ、モルホリノ、ピロリジル、ピロリジノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル基、アゼピニル基、シロリル基などが挙げられる。) これらの置換基は更に置換されてもよく、更なる置換基としては、前記置換基群 B から選択される基を挙げることができる。また、置換基に置換した置換基は更に置換されてもよく、さらなる置換基としては、以上に説明した置換基群 B から選択される基を挙げることができる。また、置換基に置換した置換基に置換した置換基は更に置換されてもよく、さらなる置換基としては、以上に説明した置換基群 B から選択される基を挙げることができる。

[0025] 本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該電極間に発光層を有し、該発光層と該陽極の間に少なくとも一層の有機層を有し、該発光層と該陰極の間に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、

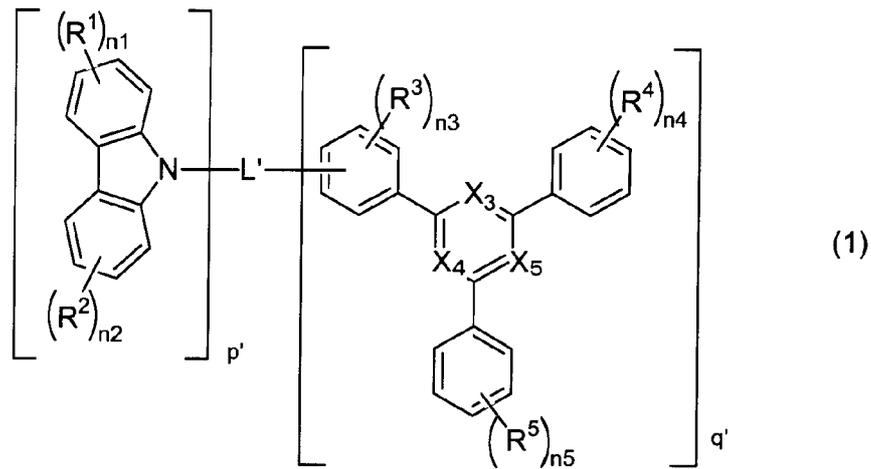
該発光層と該陰極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (1) で表される化合物を少なくとも一つ含有し、

該発光層と該陽極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (H_1) で表される化合物を少なくとも一つ含有する。

[0026] (一般式 (1) で表される化合物)

以下、一般式 (1) で表される化合物について説明する。

[0027] [化6]



[0028] (一般式 (1) 中、 X_3 、 X_4 及び X_5 はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 X_3 、 X_4 及び X_5 を含む環はピリジン又はピリミジンである。 L' は、単結合又はベンゼン環を表す。 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又は tert-ブチル基を表す。 $n_1 \sim n_5$ はそれぞれ独立に 0 又は 1 を表し、 p' 及び q' はそれぞれ独立に 1 又は 2 を表す。)

[0029] 一般式 (1) について説明する。

X_3 、 X_4 及び X_5 はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 x_3 、 x_4 及び x_5 を含む環はピリジン又はピリミジンである。 x_4 及び χ_5 を含む環はピリミジンであることが特に好ましく、 χ_3 は窒素原子であることが好ましく、 x_4 は水素原子が結合した炭素原子であることが好ましく、 X_5 は窒素原子であることが好ましい。

L' は、単結合又はベンゼン環（例えば、 $p' + q$ 、が2の場合はフェニレン基）を表す。 L' は、一般式（1）中の含窒素ヘテロ芳香族構造においてベンゼン環と連結している。

$R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又はtert-ブチル基を表す。 $R^1 \sim R^5$ が複数のとき、複数の $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ同一でも異なってもよい。

$R^1 \sim R^5$ は可能であれば更に置換基を有していてもよく、該置換基としては、フッ素原子、塩素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又はtert-ブチル基が挙げられる。また、該置換基は可能であれば更に置換基を有していてもよく、該更なる置換基としては前記と同様のものが挙げられる。

R^1 及び R^2 はtert-ブチル基又はシリル基であることが好ましく、該シリル基はトリフェニルシリル基であることがより好ましい。

R^3 はピリミジル基が好ましく、該ピリミジル基はフェニル基を置換基として有することが好ましい。

R^4 及び R^5 はフェニル基であることが好ましい。

q' は1であることが好ましい。

[0030] 一般式（1）で表される化合物は、炭素原子、水素原子及び窒素原子のみからなる場合が最も好ましい。

[0031] 一般式（1）で表される化合物の分子量は400以上1000以下であることが好ましく、450以上800以下であることがより好ましく、500以上700以下であることが更に好ましい。

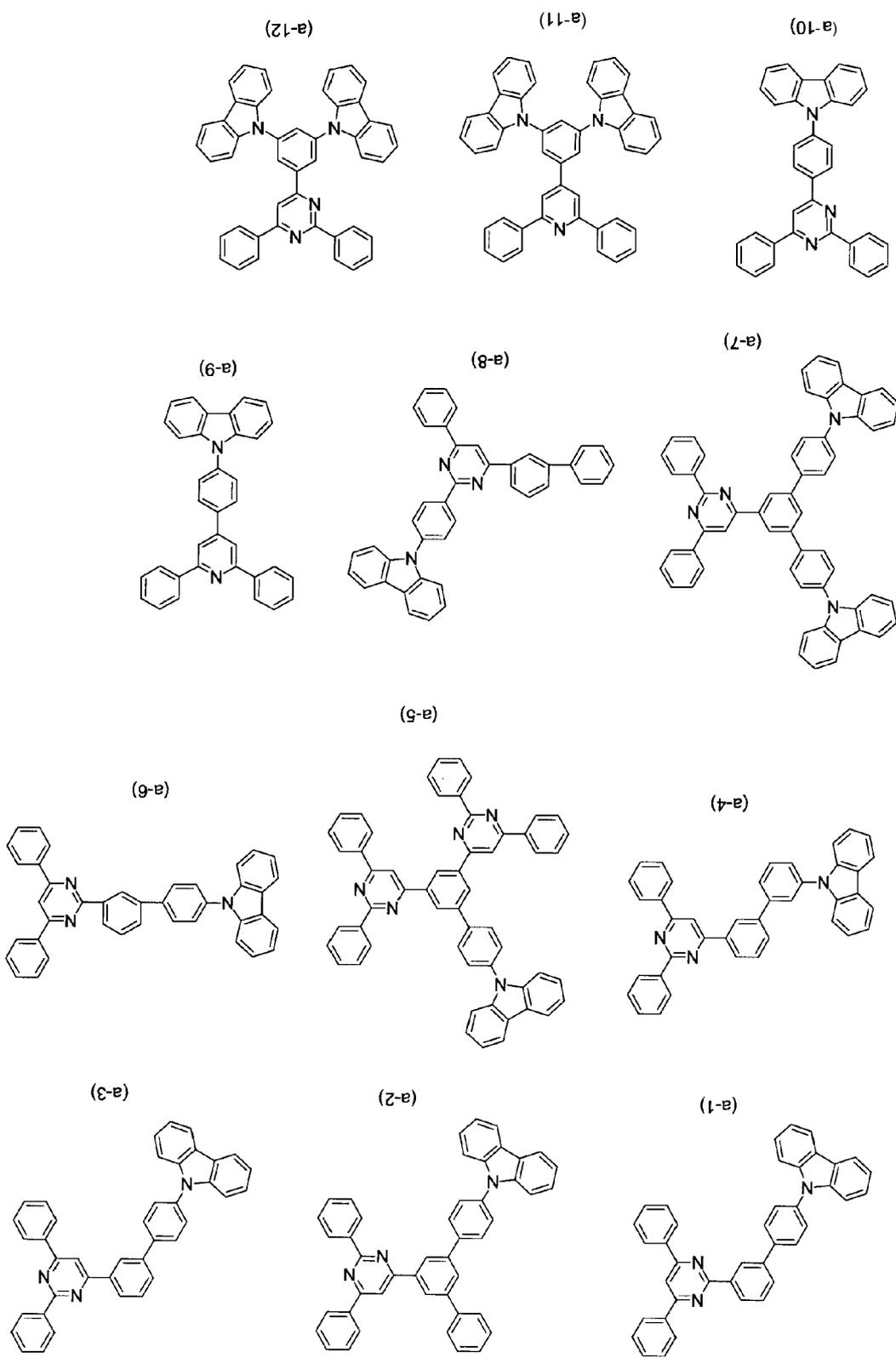
[0032] 一般式 (1) で表される化合物の膜状態での最低励起三重項 (T_1) エネルギーは 2.61 eV (62 kcal/mol) 以上 3.51 eV (80 kcal/mol) 以下であることが好ましく、 2.69 eV (63.5 kcal/mol) 以上 3.51 eV (80 kcal/mol) 以下であることがより好ましく、 2.76 eV (65 kcal/mol) 以上 3.51 eV (80 kcal/mol) であることが更に好ましい。

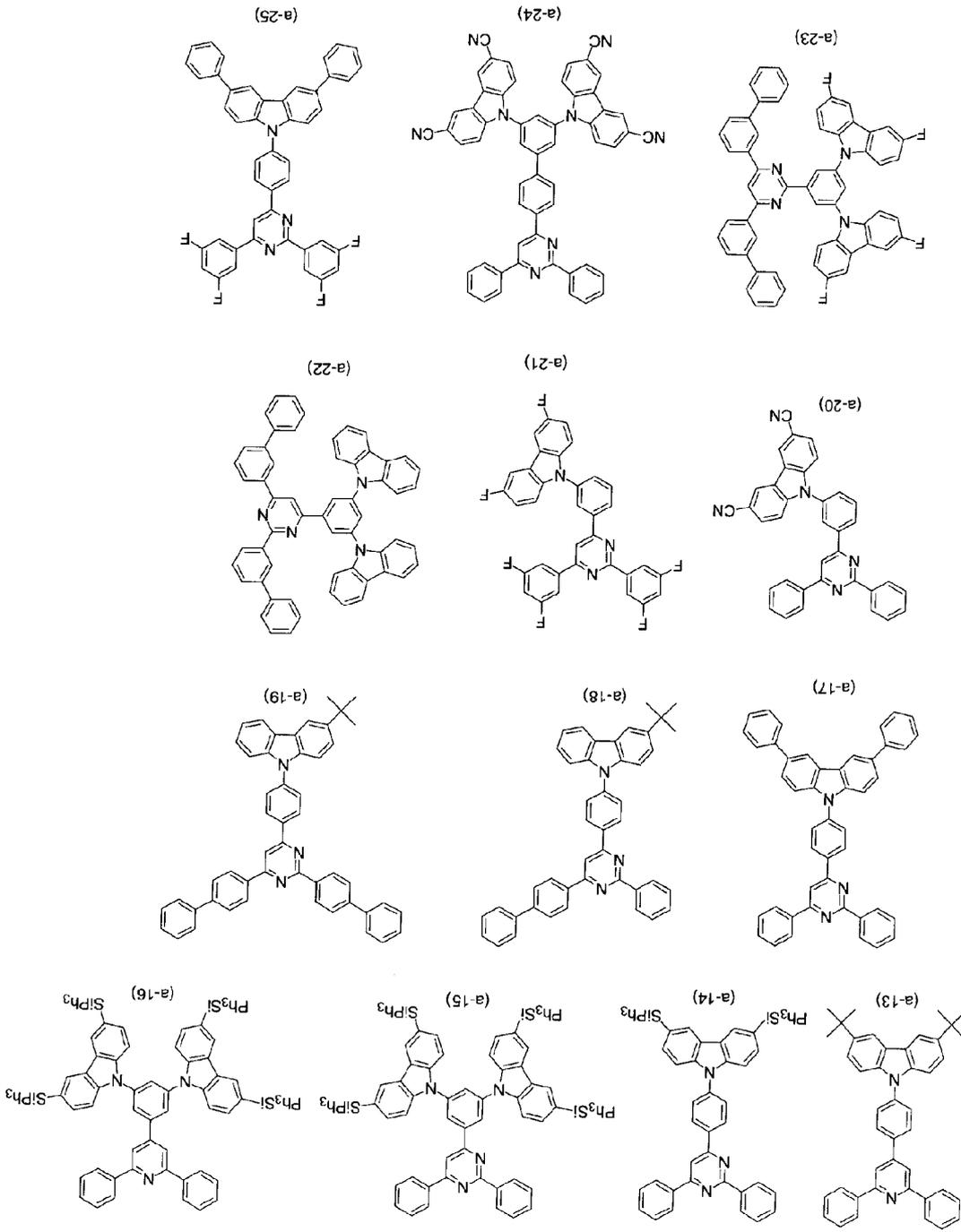
[0033] 一般式 (1) で表される化合物のガラス転移温度 (T_g) は 80°C 以上 400°C 以下であることが好ましく、 100°C 以上 400°C 以下であることがより好ましく、 120°C 以上 400°C 以下であることが更に好ましい。

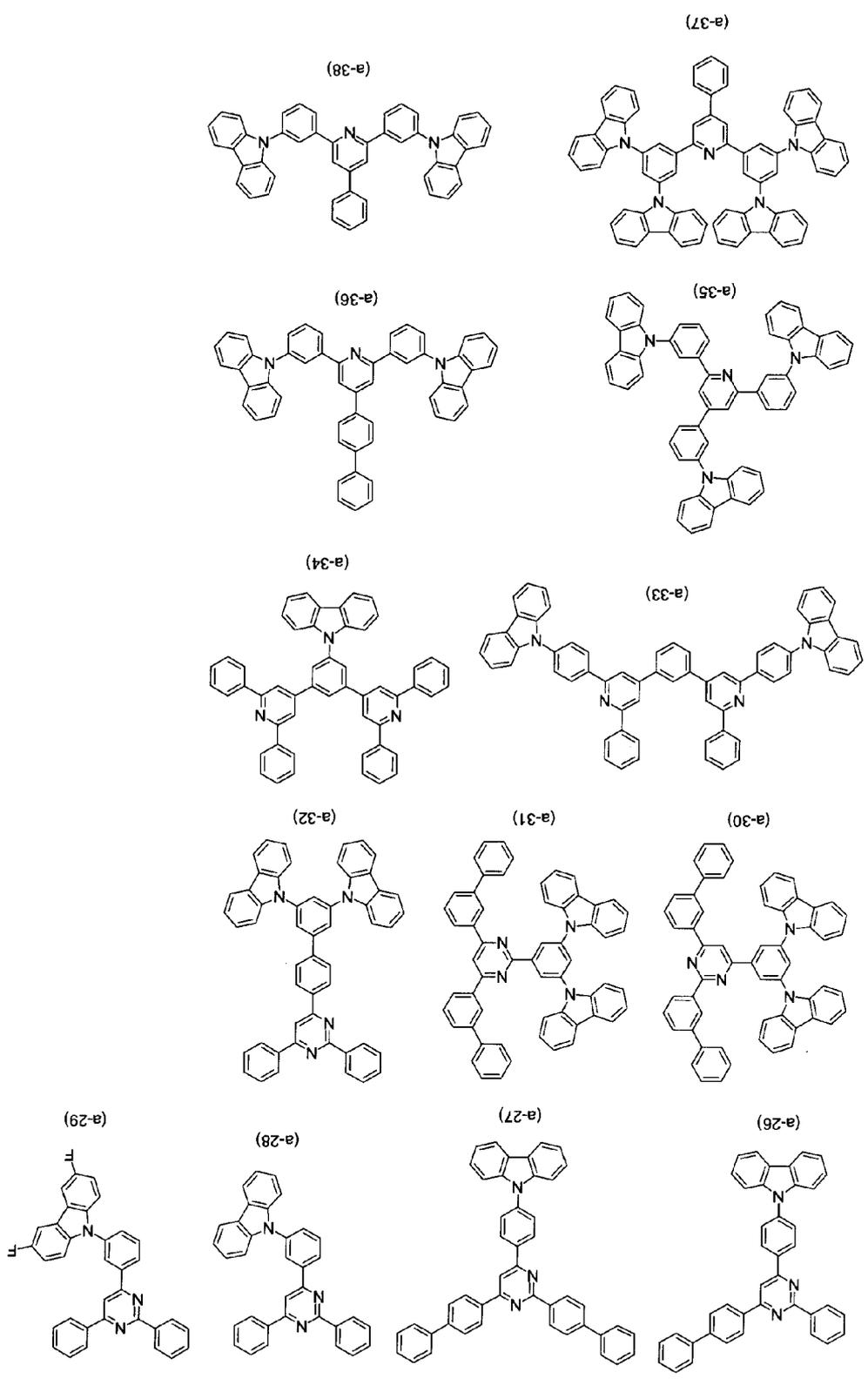
[0034] 一般式 (1) が水素原子を有する場合、同位体 (重水素原子等) も含む。この場合化合物中の全ての水素原子が同位体に置き換わっていてもよく、また一部が同位体を含む化合物である混合物でもよい。

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

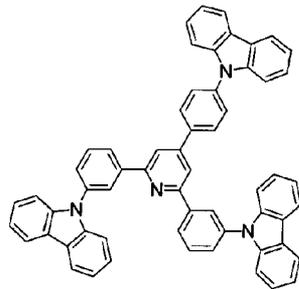
[0035]



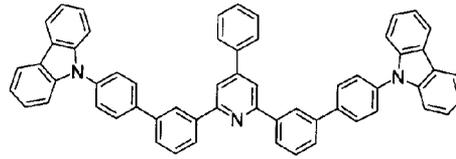




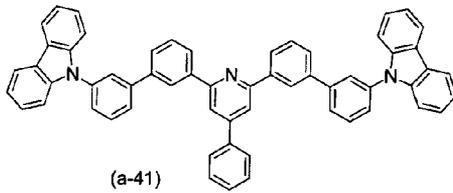
[化10]



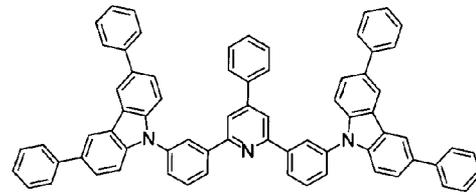
(a-39)



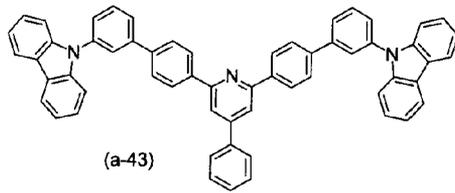
(a-40)



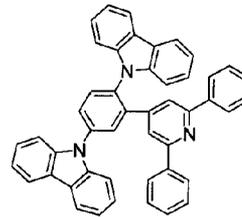
(a-41)



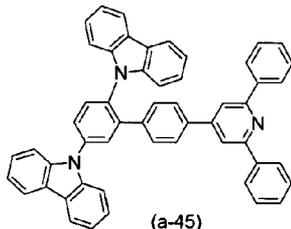
(a-42)



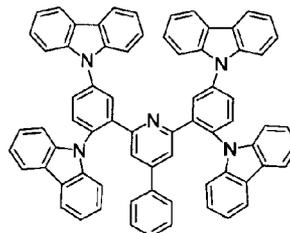
(a-43)



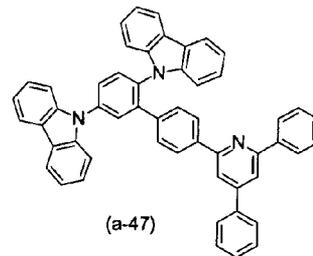
(a-44)



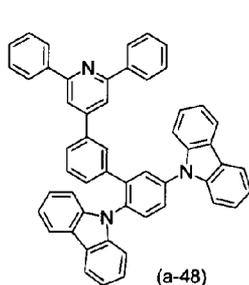
(a-45)



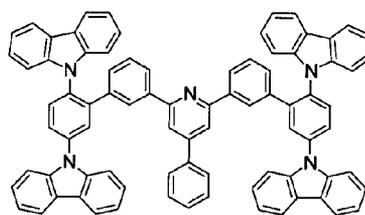
(a-46)



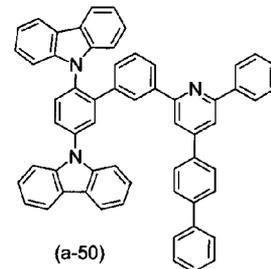
(a-47)



(a-48)



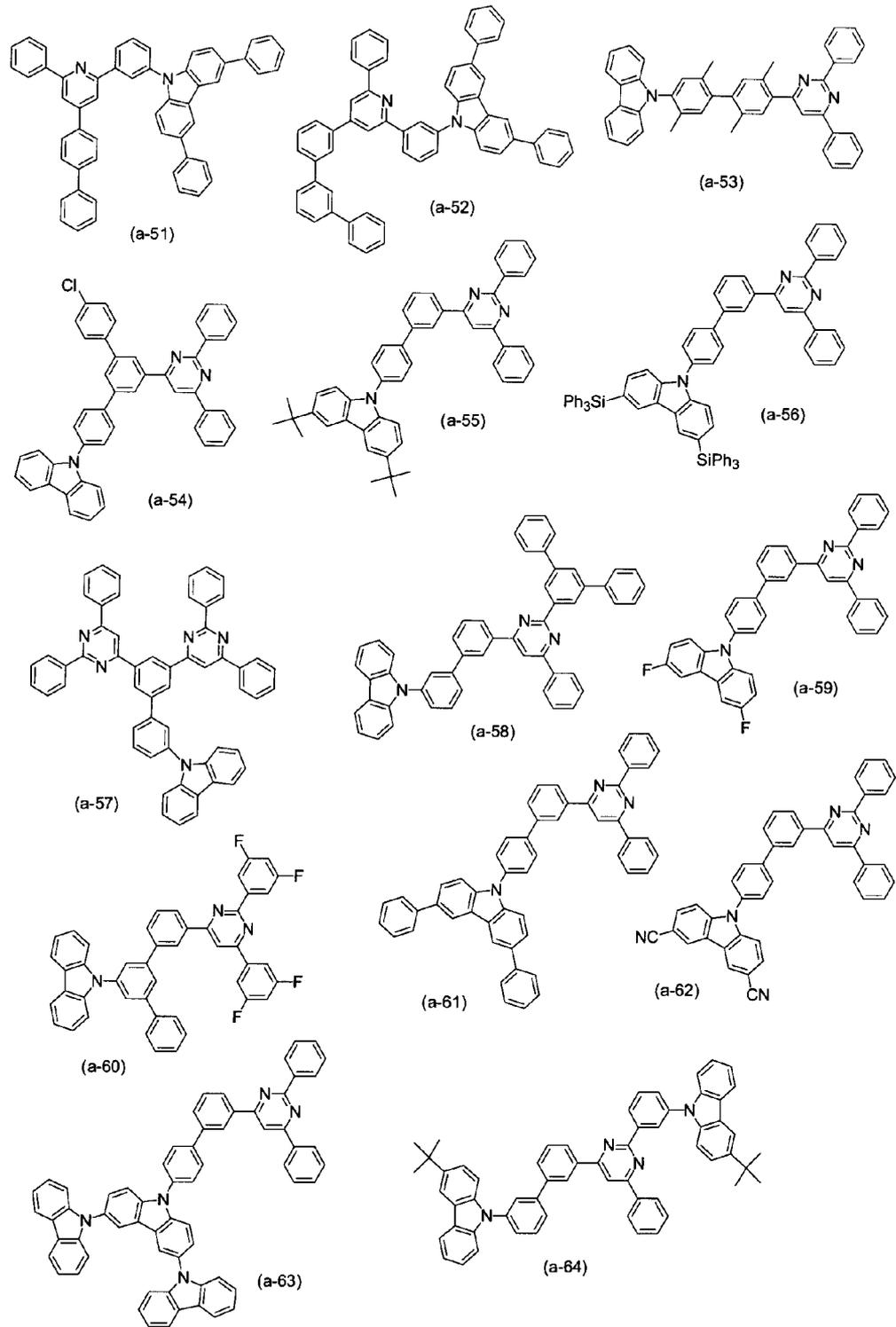
(a-49)



(a-50)

[0039]

[化 11]



[0040] 上記一般式 (1) で表される化合物として例示した化合物は、国際公開第 03/080760号パンフレットに記載の方法や、国際公開第03/078541号パンフレットに記載の方法、国際公開第05/085387号パ

ンフレットに記載の方法等、種々の方法で合成できる。

例えば、上記例示化合物 (a₃) は、m-プロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第05/085387号パンフレット段落 [0074] - [0075] (45頁、11行~46頁、18行) に記載の方法で合成することができる。上記例示化合物 (a₁₇) は、3,5-ジプロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第03/080760号パンフレットの46頁、9行~46頁、12行に記載の方法で合成することができる。また、上記例示化合物 (a₃₉) は、N-フェニルカルバゾールを出発原料に用い、国際公開第05/022962号パンフレットの137頁、10行~139頁、9行に記載の方法で合成することができる。

[0041] 合成後、カラムクロマトグラフィー、再結晶等による精製を行った後、昇華精製により精製することが好ましい。昇華精製により、有機不純物を分離できるだけでなく、無機塩や残留溶媒等を効果的に取り除くことができる。

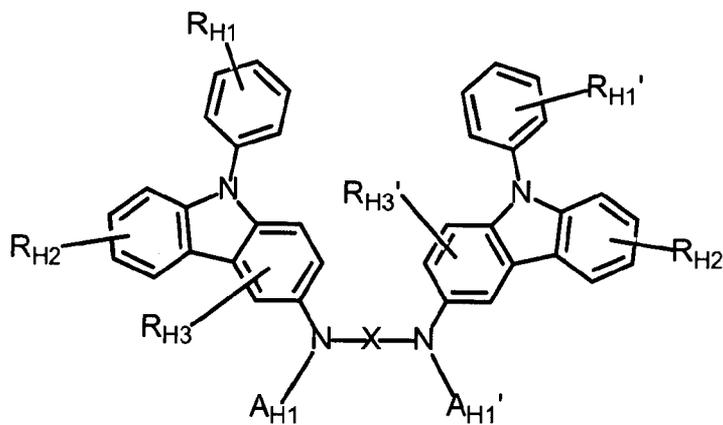
[0042] 本発明において、一般式 (1) で表される化合物は、その用途が限定されることはなく、発光層と陰極の間の有機層に加え、その他の有機層のうちいずれの層に含有されてもよい。一般式 (1) で表される化合物の導入層としては、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、励起子ブロック層、及び電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有されるのが好ましく、発光層、電子輸送層、又は電子注入層がより好ましく、電子輸送層が更に好ましい。

一般式 (1) で表される化合物は陰極と発光層の間の有機層に含有させる場合は、該有機層の全質量に対して70~100質量%含まれることが好ましく、85~100質量%含まれることがより好ましい。一般式 (1) で表される化合物を発光層に含有させる場合は、発光層の全質量に対して0.1~99質量%含ませることが好ましく、1~95質量%含ませることがより好ましく、10~95質量%含ませることがより好ましい。

[0043] (一般式 (H₁) で表される化合物)

下記一般式 (H-1) で表される化合物について説明する。

[0044] [化12]



(H-1)

[0045] (一般式 (H_1) 中、X は、置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若しくは無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換の2 価のヘテロ環基を表す。

R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、ヒドロキシ基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。 R_{H1} 、 R_{H2} 、及び R_{H3} のうち少なくとも2 つが互いに結合して環を形成してもよい。 $R_{H1'}$ 、 $R_{H2'}$ 、及び $R_{H3'}$ のうち少なくとも2 つが互いに結合して環を形成してもよい。

A_{H1} 及び $A_{H1'}$ は、それぞれ独立に、置換若しくは無置換のアリール基、又は、置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基である。)

[0046] 本発明の有機電界発光素子において、一般式 (H_1) で表される化合物は陽極と発光層の間の少なくとも一層の有機層に含有されるが、その他の層に更に含有されてもよい。

[0047] 本発明の素子では、高輝度駆動時の効率低下が抑制されることが分かった。これは、発光層に一般式 (1) で表される化合物を含有し、かつ発光層と

陽極の間の少なくとも一層の有機層に一般式 (H-1) で表される化合物を含有することで、高輝度領域、すなわち高電流領域での発光層への正孔及び電子の注入量において、一般式 (H-1) で表される化合物による正孔注入量と、一般式 (1) で表される化合物による電子注入量の間で均衡がとれたことを主因として考えられる。

また、本発明の素子では、駆動耐久性の初期落ちが抑制されることが分かった。駆動耐久性の初期落ちの原因は、発光層と隣接層の間の界面で電子又は正孔の溜まりが発生して界面劣化を引き起こすことを主因と考えられるが、本発明では、発光層への正孔注入量、電子注入量の均衡が取れると電子と正孔の再結合が促進され、前記電子又は正孔の溜まりが解消されて初期落ち抑制が図れたと推測される。

[0048] 一般式 (H-1) において、X は、置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若しくは無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換のアリーレン基、置換若しくは無置換の2価のヘテロ環基を表す。

[0049] X が置換若しくは無置換のアルキレン基を表す場合、該アルキレン基としては、好ましくは炭素数 1~30、より好ましくは炭素数 1~20 のアルキレン基であり、例えばメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、オクチレン基、デシレン基、ヘキサデシレン基、シクロプロピレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基などが挙げられる。

該アルキレン基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記置換基群 A から選択される置換基が挙げられ、好ましくはアルキル基 (好ましくは炭素数 1~8 のアルキル基であり、より好ましくは炭素数 1~6 のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ブチル基、シクロプロピル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、イソブチル基、又はt-ブチル基が好ましい。)、アリール基 (好ましくは炭素数 6~18 のアリール基であり、より好ましくは炭素数 6~12 のアリール基であり、例えば、フェニル基、ビフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基等が挙げられ、フェニル基、又はビフェニル

基が好ましい。)、ハロゲン原子(好ましくはフッ素原子)、シアノ基、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~20であり、特にメトキシ基、エトキシ基が好ましい。)、又は芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数2~12の芳香族ヘテロ環基であり、例えばピリジル基、フリル基、チエニル基等が挙げられ、ピリジル基がより好ましい。)である。

[0050] Xが置換若しくは無置換のアルケニレン基を表す場合、該アルケニレン基としては、好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20のアルケニレン基であり、例えばビニル基、アリル基、2-プテニル基、3-ペンテニル基などが挙げられる。

該アルケニレン基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記アルケニレン基が置換基を有する場合の置換基と同様である。

[0051] Xが置換若しくは無置換のアリーレン基を表す場合、該アリーレン基としては、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のアリーレン基である。該アリーレン基としては、例えば、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントリレン基、ターフェニレン基、フルオレニレン基、フェナントリレン基、ピレニレン基、トリフェニレニレン基などが挙げられ、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、又はアントリレン基が好ましく、フェニレン基、ナフチレン基(好ましくは、1,5-ナフチレン基)、又はビフェニレン基がより好ましく、ビフェニレン基が更に好ましい。

該アリーレン基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記アルケニレン基が置換基を有する場合の置換基と同様である。

[0052] Xが置換若しくは無置換の2価のヘテロ環基を表す場合、該2価のヘテロ環基としては、窒素原子、酸素原子、リン原子、又は硫黄原子から選択された1、2又は3個のヘテロ原子を含むことが好ましい。ヘテロ環基としては、シクロアルキル基又はアリール基の環を形成する少なくとも1つの炭素原子が、前記ヘテロ原子に置き換わった基が挙げられる。2価のヘテロ環基は1価のヘテロ環基から1つの水素原子を除してなる基である。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 の 2 価のヘテロ環基である。該 2 価のヘテロ環基としては、2 価の芳香族ヘテロ環基が好ましく、該 2 価の芳香族ヘテロ環基としては、例えば、2 価のアゾール基、2 価のジアゾール基、2 価のトリアゾール基、2 価のオキサゾール基、2 価のチアゾール基、2 価のピリジル基、2 価のフリル基、2 価のチェニル基等が挙げられ、2 価のアゾール基、2 価のジアゾール基、2 価のピリジル基が好ましい。また、該ヘテロ環は縮環構造を有していてもよく、例えばキノリン環などが挙げられる。

該 2 価のヘテロ環基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記アルキレン基が置換基を有する場合の置換基と同様である。

[0053] X は、置換若しくは無置換のアリーレン基を表すことが好ましく、無置換のアリーレン基を表すことがより好ましい。X がアリーレン基である場合の具体例及び好ましい範囲は前記の通りである。

[0054] 一般式 (H-1) において、 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、ヒドロキシ基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。

[0055] R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' がハロゲン原子を表す場合、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられ、フッ素原子が好ましい。

[0056] R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' が置換若しくは無置換のアルキル基を表す場合、該アルキル基としては、炭素数 1 ~ 30 が好ましく、炭素数 1 ~ 20 がより好ましく、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、sec-ブチル基、ペンチル基、イソアミル基、ヘキシル基などを挙げることができ、上記アルキル基のうち一つ以上の水素原子はハロゲン原子、炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ

基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、アミジノ基、ヒドラジン、ヒドラゾン、カルボン酸基、スルホン酸基、リン酸基などの置換基に置換しても良い。

[0057] R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ が置換若しくは無置換のアルコキシ基を表す場合、該アルコキシ基としては、炭素数 1 ~ 30 が好ましく、炭素数 1 ~ 20 がより好ましく、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、イソアミルオキシ基、ヘキシルオキシ基などを挙げることができ、上記アルコキシ基のうち一つ以上の水素原子は、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、アミジノ基、ヒドラジン、ヒドラゾン、カルボン酸基、スルホン酸基、リン酸基などの置換基に置換しても良い。

[0058] R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ が置換若しくは無置換のアリール基を表す場合、該アリール基としては、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 のアリール基である。該アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、ターフェニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、ピレニル基、トリフェニレニル基などが挙げられ、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、又はターフェニル基が好ましい。上記アリール基のうち一つ以上の水素原子は、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 30 のアルキル基、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、アミジノ基、ヒドラジン、ヒドラゾン、カルボン酸基、スルホン酸基、リン酸基などの置換基に置換しても良い。

[0059] R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ が置換若しくは無置換のアリールオキシ基を表す場合、該アリールオキシ基としては、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 のアリールオキシ基である。該アリールオキシ基としては、例えば、フェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、ビフェニルオキシ基などが挙げられ、フェニルオキシ基、ナフチルオキシ基が好ましい。上記アリールオキシ基のうち一つ以上の水素原子は、ハロゲン原子、炭素数 1~30 のアルキル基、炭素数 1~30 のアルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、アミジノ基、ヒドラジン、ヒドラゾン、カルボン酸基、スルホン酸基、リン酸基などの置換基に置換しても良い。

[0060] R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ が置換若しくは無置換のヘテロ環基を表す場合、該ヘテロ環基としては、窒素原子、酸素原子、リン原子、又は硫黄原子から選択された 1、2 又は 3 個のヘテロ原子を含むことが好ましい。ヘテロ環基としては、シクロアルキル基又はアリール基の環を形成する少なくとも 1 つの炭素原子が、前記ヘテロ原子に置き換わった基が挙げられる。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 のヘテロ環基である。該ヘテロ環基としては、芳香族ヘテロ環基が好ましく、該芳香族ヘテロ環基としては、例えば、アゾール基、ジアゾール基、トリアゾール基、オキサゾール基、チアゾール基、ピリジル基、フリル基、チエニル基等が挙げられ、アゾール基、ジアゾール基、ピリジル基が好ましい。また、該ヘテロ環は縮環構造を有していてもよく、例えばキノリン環などが挙げられる。

該ヘテロ環基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記置換基群 A から選択される置換基が挙げられ、具体的には、ハロゲン原子、炭素数 1~30 のアルキル基、炭素数 1~30 のアルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、アミジノ基、ヒドラジン、ヒドラゾン、カルボン酸基、スルホン酸基、リン酸基などが挙げられる。

[0061] R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ が置換若しくは無置換のアミノ基を表す場合、該置換基としては、好ましくはアルキル基（好ましくは炭素数 1~8 のアルキル基であり、より好ましくは炭素数 1~6 のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル

基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ブチル基、シクロプロピル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、イソブチル基、又は*t*-ブチル基が好ましい。)、アリール基 (好ましくは炭素数6~18のアリール基であり、より好ましくは炭素数6~12のアリール基であり、例えば、フェニル基、ビフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基等が挙げられ、フェニル基、又はビフェニル基が好ましい。) である。

[0062] R_{H1} 、 R_{H2} 、及び R_{H3} のうち少なくとも2つが互いに結合して環を形成してもよい。例えば、2つの R_{H1} が結合して環を形成してもよい。 R_{H1}' 、 R_{H2}' 、及び R_{H3}' についても同様である。該環としては芳香族環が好ましく、ベンゼン環が特に好ましい。

[0063] R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' は、水素原子、アルキル基、ハロゲン原子、アリール基、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であることが好ましく、水素原子、メチル基、フッ素原子、フェニル基、シアノ基、ピリジル基であることがより好ましく、水素原子であることが更に好ましい。

[0064] 一般式 (H-1) 中、 A_{H1} 及び A_{H1}' は、それぞれ独立に、置換若しくは無置換のアリール基、又は、置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基である。

[0065] A_{H1} 及び A_{H1}' が置換若しくは無置換のアリール基を表す場合、該アリール基としては、好ましくは炭素数6~30、特に好ましくは炭素数6~20のアリール基である。該アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、ターフェニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、ピレニル基、トリフェニレニル基などが挙げられ、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、又はアントリル基が更に好ましい。

該アリール基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記置換基群Aから選択される置換基が挙げられ、好ましくはアルキル基 (好ましくは炭素数1~8のアルキル基であり、より好ましくは炭素数1~6のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、イソ

ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ブチル基、シクロプロピル基等が挙げられ、メチル基、エチル基、イソブチル基、又は*t*-ブチル基が好ましい。)、アリール基 (好ましくは炭素数6~18のアリール基であり、より好ましくは炭素数6~12のアリール基であり、例えば、フェニル基、ビフェニル基、フルオレニル基、ナフチル基等が挙げられ、フェニル基、又はビフェニル基が好ましい。)、ハロゲン原子 (好ましくはフッ素原子)、シアノ基、アルコキシ基 (好ましくは炭素数1~20であり、特にメトキシ基、エトキシ基が好ましい。)、又は芳香族ヘテロ環基 (好ましくは炭素数2~12の芳香族ヘテロ環基であり、例えばピリジル基、フリル基、チエニル基等が挙げられ、ピリジル基がより好ましい。)であり、特に好ましくは、シアノ基、アルキル基、ハロゲン原子、アルコキシ基である。

[0066] A_{H_1} 及び A_{H_1}' が置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基を表す場合、該芳香族ヘテロ環基としては、好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12の芳香族ヘテロ環基である。該芳香族ヘテロ環基としては、例えば、アゾール基、ジアゾール基、トリアゾール基、オキサゾール基、チアゾール基、ピリジル基、フリル基、チエニル基、カルバゾリル基等が挙げられる。

該ヘテロ環基が置換基を有する場合、該置換基としては、前記 A_{H_1} 及び A_{H_1}' がアリール基の場合に有しても良い置換基と同様である。

[0067] A_{H_1} 及び A_{H_1}' は、置換若しくは無置換のアリール基であることが好ましい。 A_{H_1} 及び A_{H_1}' がアリール基である場合の具体例及び好ましい範囲は前記の通りである。

[0068] A_{H_1} 及び A_{H_1}' の具体例としては、フェニル基、エチルフェニル基、エチルビフェニル基、*o*-、*m*-若しくは *p*-フルオロフェニル基、ジクロロフェニル基、ジシアノフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、*o*-、*m*-若しくは *p*-トリル基、*o*-、*m*-若しくは *p*-クメニル基、メシチル基、フェノキシフェニル基、(α 、 α -ジメチルベンゼン)フェニル基、(*N*、*N'*-ジメチル)アミノフェニル基、(*N*、*N'*-ジフェニル)アミノ

フェニル基、ペンタレニル基、インデニル基、ナフチル基、メチルナフチル基、アントラセニル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、アセナフチルレニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、アントラキノリル基、メチルアントリル基、フェナントリル基、トリフェニレン基、ピレニル基、クリセニル基、エチルークリセニル基、ピセニル基、フェリレニル基、クロロフェリレニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、テトラフェニレニル基、ヘキサフェニル基、ヘキサセニル基、ルビセニル基、コロネリル基、トリナフチレニル基、ヘプタフェニル基、ヘプタセニル基、ピラントレニル基、オブレニル基、カルバゾリル基などを挙げるができる。

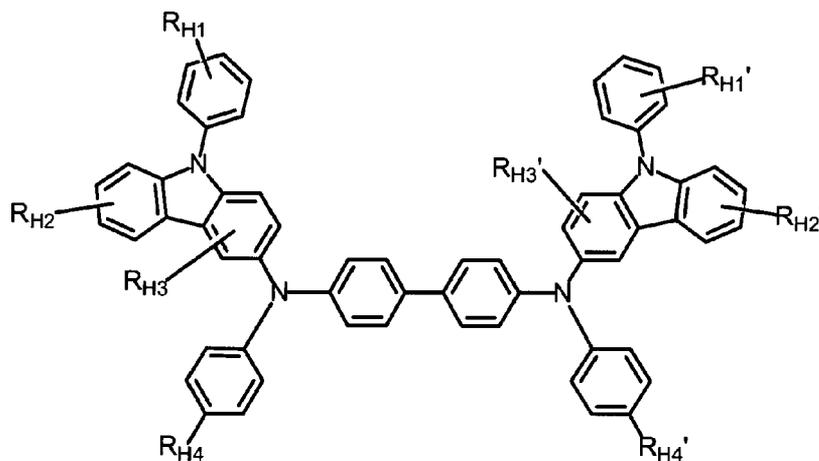
A_{H_1} 及び A_{H_1}' は望ましくは、フェニル基、低級アルキルフェニル基、低級アルコキシフェニル基、シアノフェニル基、フェノキシフェニル基、ハロフェニル基、ナフチル基、低級アルキルナフチル基、低級アルコキシナフチル基、シアノナフチル基、ハロナフチル基、フルオレニル基、カルバゾリル基、低級アルキルカルバゾリル基、ビフェニル基、低級アルキルビフェニル基、低級アルコキシビフェニル基、チオフェニル基、インドリル基又はピリジル基である。前述した低級アルキル及び低級アルコキシの炭素数は 1~5 の範囲が望ましい。

更に望ましくは、 A_{H_1} 及び A_{H_1}' はフルオレニル基、カルバゾリル基、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基から選択される単環、二環、三環のアリール基又はこれらの芳香族環に炭素数 1~3 の低級アルキル、炭素数 1~3 の低級アルコキシ、シアノ、フェノキシ、フェニル又はハロゲンが 1~3 個、望ましくは 1 個のハロゲンが置換されたアリール基などを挙げるができる。

[0069] 一般式 (H-1) で表される化合物は下記一般式 (H-2) で表されることが好ましい。

[0070]

[化13]



(H-2)

[0071] (一般式 (H-2) 中、 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。

R_{H4} 、及び R_{H4}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。)

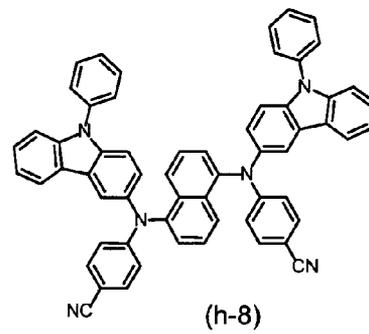
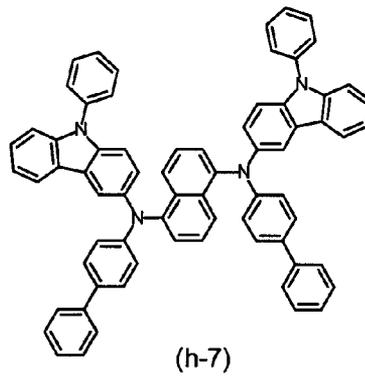
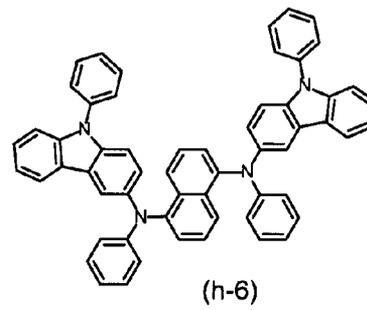
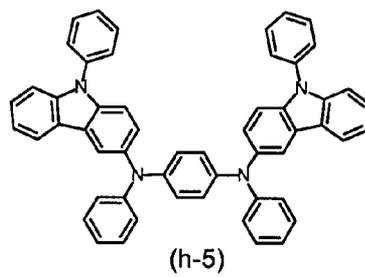
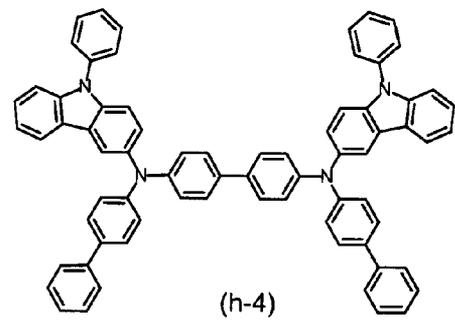
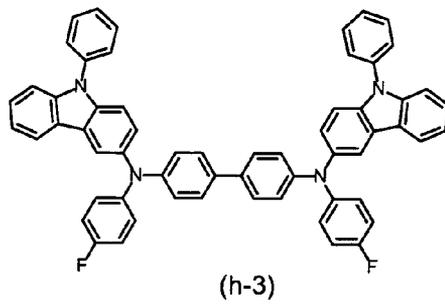
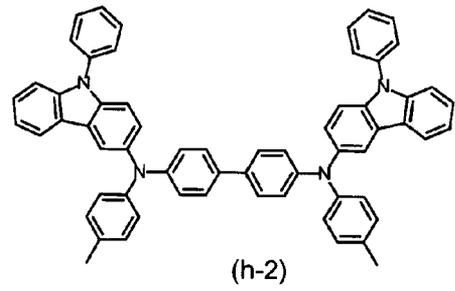
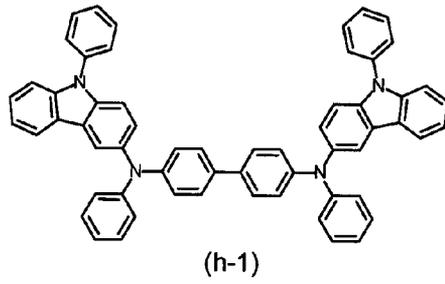
[0072] 一般式 (H-2) 中、 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' の好ましい範囲は、各々一般式 (H-1) における R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' の好ましい範囲と同様である。

[0073] R_{H4} 、及び R_{H4}' についての好ましい範囲も R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' の好ましい範囲と同様であるが、水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基 (好ましくは炭素数 1~30 のアルキル基であり、メチル基、エチル基などが特に好ましい。)、又はシアノ基が特に好ましい。

[0074] 一般式 (H-1) で表される化合物の具体例を以下に示すが、これらに限

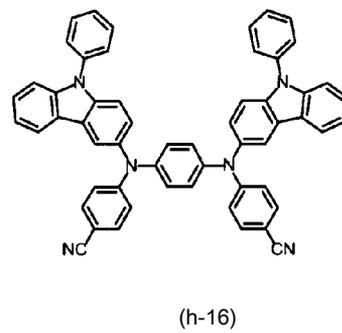
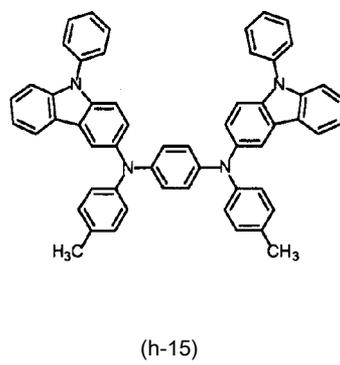
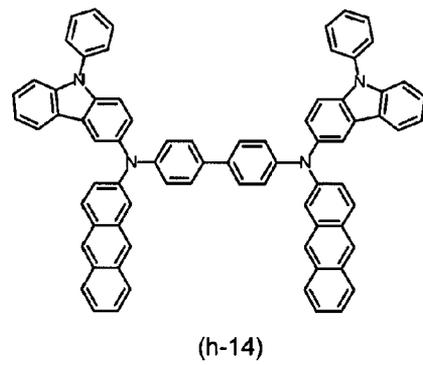
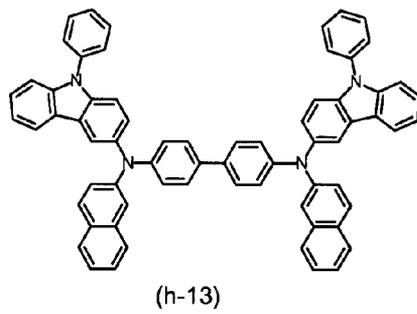
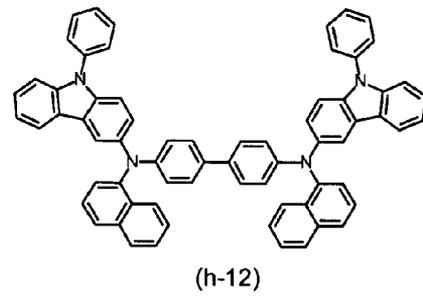
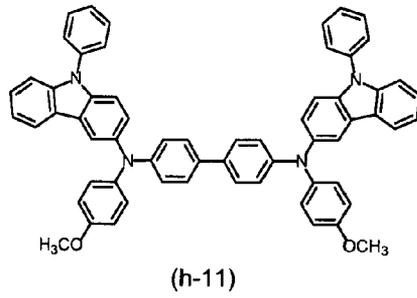
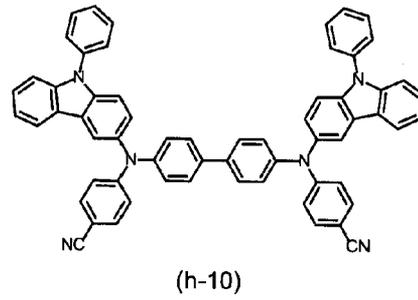
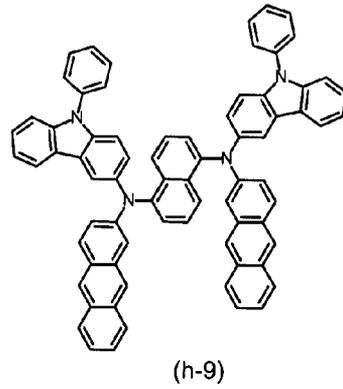
定されない。

[0075] [化14]



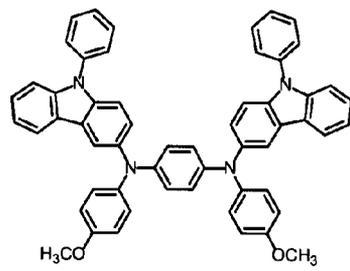
[0076]

[化 15]

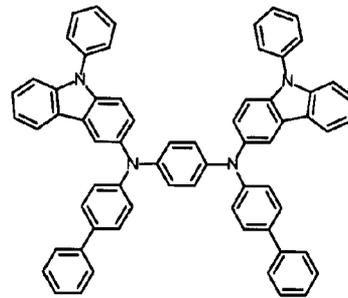


[0077]

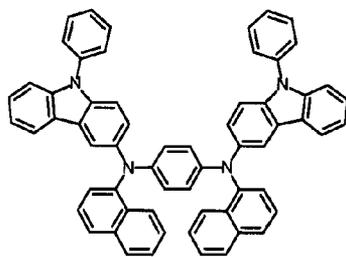
[化16]



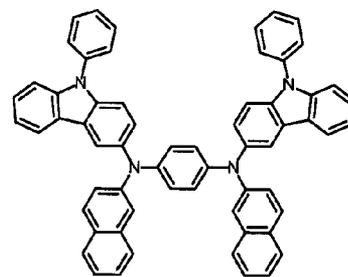
(h-17)



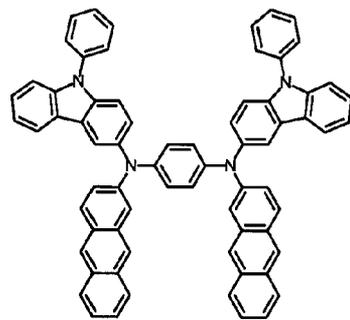
(h-18)



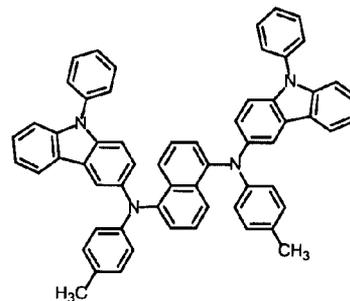
(h-19)



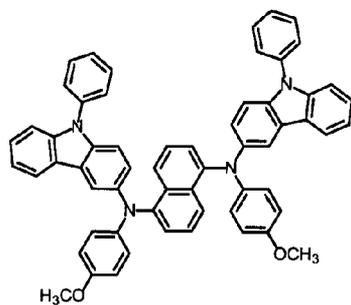
(h-20)



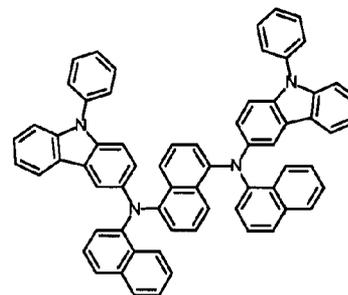
(h-21)



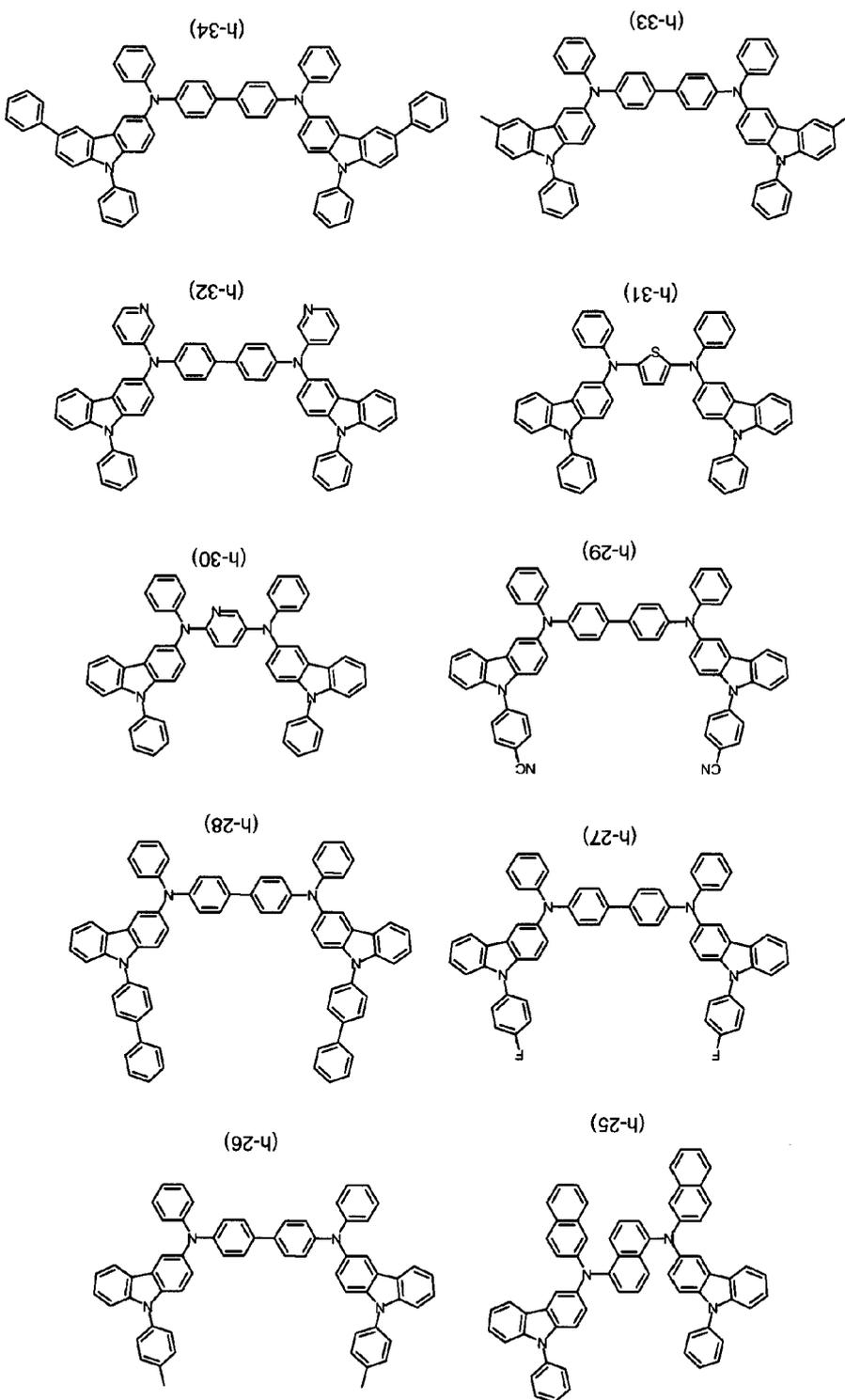
(h-22)



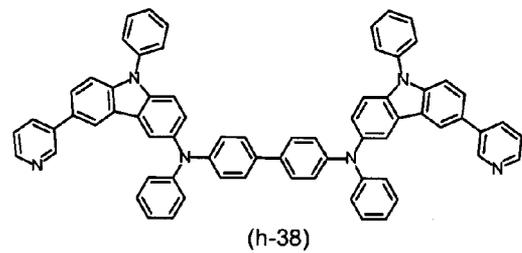
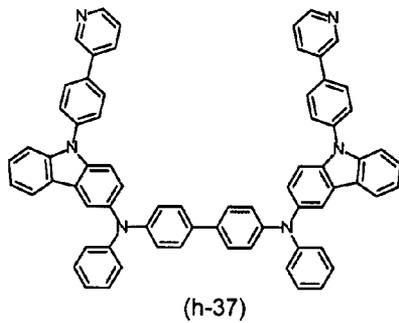
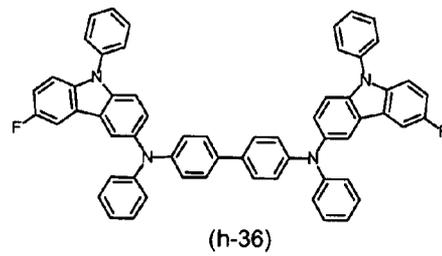
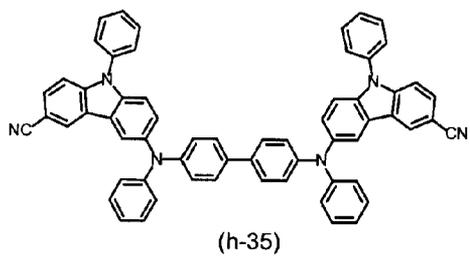
(h-23)



(h-24)



[化18]



[0080] 一般式 (H₁) で表される化合物は、特開2006_151979号公報に記載の方法で合成できる。

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

[0081] 本発明の発光素子において、一般式 (H₁) で表される化合物は発光層と陽極の間の少なくとも一層の有機層に含有されるが、その用途が限定されることはなく、その他のいずれの層に更に含有されてもよい。本発明にかかる一般式 (H₁) で表される化合物の導入層としては、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、励起子ブロック層、電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有することができる。

一般式 (H₁) で表される化合物が含有される発光層と陽極の間の有機層は、正孔注入層、正孔輸送層であることがより好ましく、正孔注入層であることが更に好ましい。

[0082] 有機電界発光素子)

本発明の素子について詳細に説明する。

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極及び陰極からなる一对の電極と、該電極間に発光層を有し、発光層と陽極の間に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、発光層に前記一般式 (1) で表される化合物を少なくとも一つ含有し、発光層と陽極の間の有機層の少なくとも一層に前記一般式 (H-1) で表される化合物を少なくとも一つ含有する。

[0083] 本発明の有機電界発光素子において、発光層は有機層であり、発光層と陽極の間に更に少なくとも一層の有機層を含むが、更に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2上において、陽極3と陰極9との間に発光層6が挟まれている。具体的には、陽極3と陰極9との間に正孔注入層4、正孔輸送層5、発光層6、正孔ブロック層7、及び電子輸送層8がこの順に積層されている。

[0084] < 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。

[0085] 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

極

- 陽極/ 正孔注入層/ 正孔輸送層/ 発光層/ 電子輸送層/ 電子注入層/ 陰

極

- 陽極/ 正孔注入層/ 正孔輸送層/ 発光層/ プロック層/ 電子輸送層/ 陰

極

- 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／プロック層／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。

[0086] < 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。

[0087] < 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。

[0088] < 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。

[0089] 基板、陽極、陰極については、特開2008_270736号公報の段落番号(0070)～(0089)に記載の事項を本発明に適用することができる。

[0090] < 有機層 >

本発明における有機層について説明する。

[0091] 有機層の形成)

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

[0092] 発光層)

発光層は、電界印加時に、陽極、正孔注入層、又は正孔輸送層から正孔を受け取り、陰極、電子注入層、又は電子輸送層から電子を受け取り、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層である。

[0093] 基板、陽極、陰極、有機層、発光層については、例えば、特開2008—270736、特開2007—266458に詳述されており、これらの公報に記載の事項を本発明に適用することができる。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。

[0094] (発光材料)

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

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

本発明における発光材料は、更に前記ホスト材料との間で、 $1.2\text{ eV} > \Delta I_p > 0.2\text{ eV}$ 、及び／又は $1.2\text{ eV} > \Delta E_a > 0.2\text{ eV}$ の関係を満たすことが駆動耐久性の観点で好ましい。ここで、 ΔI_p は、ホスト材料と発光材料の I_p 値の差を、 ΔE_a はホスト材料と発光材料の E_a 値の差を意味する。

前記発光材料の少なくとも一種が白金錯体材料又はイリジウム錯体材料であることが好ましく、イリジウム錯体材料であることがより好ましい。

蛍光発光材料、燐光発光材料については、例えば、特開2008—270736の段落番号(0100)～(0164)、特開2007—266458の段落番号(0088)～(0090)に詳述されており、これらの公報

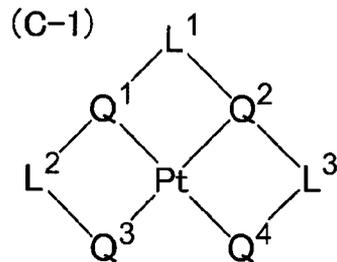
に記載の事項を本発明に適用することができる。

[0095] 発光効率等の観点からは、燐光発光材料が好ましい。本発明に使用できる燐光発光材料としては、例えば、US 6 3 0 3 2 3 8 B 1、US 6 0 9 7 1 4 1、WO 0 0 / 5 7 6 7 6、WO 0 0 / 7 0 6 5 5、WO 0 1 / 0 8 2 3 0、WO 0 1 / 3 9 2 3 4 A 2、WO 0 1 / 4 1 5 1 2 A 1、WO 0 2 / 0 2 7 1 4 A 2、WO 0 2 / 1 5 6 4 5 A 1、WO 0 2 / 4 4 1 8 9 A 1、WO 0 5 / 1 9 3 7 3 A 2、特開 2 0 0 1 - 2 4 7 8 5 9、特開 2 0 0 2 - 3 0 2 6 7 1、特開 2 0 0 2 - 1 1 7 9 7 8、特開 2 0 0 3 - 1 3 3 0 7 4、特開 2 0 0 2 - 2 3 5 0 7 6、特開 2 0 0 3 - 1 2 3 9 8 2、特開 2 0 0 2 - 1 7 0 6 8 4、EP 1 2 1 1 2 5 7、特開 2 0 0 2 - 2 2 6 4 9 5、特開 2 0 0 2 - 2 3 4 8 9 4、特開 2 0 0 1 - 2 4 7 8 5 9、特開 2 0 0 1 - 2 9 8 4 7 0、特開 2 0 0 2 - 1 7 3 6 7 4、特開 2 0 0 2 - 2 0 3 6 7 8、特開 2 0 0 2 - 2 0 3 6 7 9、特開 2 0 0 4 - 3 5 7 7 9 1、特開 2 0 0 6 - 2 5 6 9 9 9、特開 2 0 0 7 - 1 9 4 6 2、特開 2 0 0 7 - 8 4 6 3 5、特開 2 0 0 7 - 9 6 2 5 9 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、I r 錯体、P t 錯体、C u 錯体、R e 錯体、W 錯体、R h 錯体、R u 錯体、P d 錯体、O s 錯体、E u 錯体、T b 錯体、G d 錯体、D y 錯体、及び C e 錯体が挙げられる。特に好ましくは、I r 錯体、P t 錯体、又は R e 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 I r 錯体、P t 錯体、又は R e 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、I r 錯体、P t 錯体が特に好ましく、I r 錯体が最も好ましい。

[0096] 白金錯体として好ましくは、下記一般式 (C-1) で表される白金錯体である。

[0097]

[化 19]



[0098] (式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 はそれぞれ独立にPtに配位する配位子を表す。 L^1 、 L^2 及び L^3 はそれぞれ独立に単結合又は二価の連結基を表す。)

[0099] 一般式 (C-1) について説明する。 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 はそれぞれ独立にPtに配位する配位子を表す。この時、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 とPtの結合は、共有結合、イオン結合、配位結合などいずれであっても良い。 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 中のPtに結合する原子としては、炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、リン原子が好ましく、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 中のPtに結合する原子の内、少なくとも一つが炭素原子であることが好ましく、二つが炭素原子であることがより好ましく、二つが炭素原子で、二つが窒素原子であることが特に好ましい。

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

窒素原子でPtに結合する Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 としては、中性の配位子でもアニオン性の配位子でもよく、中性の配位子としては含窒素芳香族ヘテ

口環配位子 (ピリジン配位子、ピラジン配位子、ピリミジン配位子、ピリダジン配位子、トリアジン配位子、イミダゾール配位子、ピラゾール配位子、トリアゾール配位子、オキサゾール配位子、チアゾール配位子及びそれらを含む縮環体 (例えばキノリン配位子、ベンゾイミダゾール配位子など))、アミン配位子、ニトリル配位子、イミン配位子が挙げられる。アニオン性の配位子としては、アミノ配位子、イミノ配位子、含窒素芳香族ヘテロ口環配位子 (ピロール配位子、イミダゾール配位子、トリアゾール配位子及びそれらを含む縮環体 (例えばインドール配位子、ベンゾイミダゾール配位子など)) が挙げられる。

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

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

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

。

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

[01 00] Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 で表される基として好ましくは、炭素原子でPtに結合する芳香族炭化水素環配位子、炭素原子でPtに結合する芳香族ヘテロ環配位子、窒素原子でPtに結合する含窒素芳香族ヘテロ環配位子、アシルオキシ配位子、アルキルオキシ配位子、アリールオキシ配位子、ヘテロアリールオキシ配位子、シリルオキシ配位子であり、より好ましくは、炭素原子でPtに結合する芳香族炭化水素環配位子、炭素原子でPtに結合する芳香族ヘテロ環配位子、窒素原子でPtに結合する含窒素芳香族ヘテロ環配位子、アシルオキシ配位子、アリールオキシ配位子であり、更に好ましくは炭素原子でPtに結合する芳香族炭化水素環配位子、炭素原子でPtに結合する芳香族ヘテロ環配位子、窒素原子でPtに結合する含窒素芳香族ヘテロ環配位子、アシルオキシ配位子である。

[01 01] L^1 、 L^2 及び L^3 は、単結合又は二価の連結基を表す。 L^1 、 L^2 及び L^3 で表される二価の連結基としては、アルキレン基 (メチレン、エチレン、プロピレンなど)、アリーレン基 (フェニレン、ナフタレンジイル)、ヘテロアリーレン基 (ピリジンジイル、チオフェンジイルなど)、イミノ基 ($L-NR-$) (フェニルイミノ基など)、オキシ基 ($L-O-$)、チオ基 ($L-S-$)、ホスフィニデン基 ($L-PR-$) (フェニルホスフィニデン基など)、シリレン基 ($L-SiRR'-$) (ジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基など)、又はこれらを組み合わせたものが挙げられる。ここで、R及びR'としては各々独立してアルキル基、アリール基等が挙げられる。これらの連結基は、更に置換基を有していてもよい。

錯体の安定性及び発光量子収率の観点から、 L^1 、 L^2 及び L^3 として好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、イミノ基

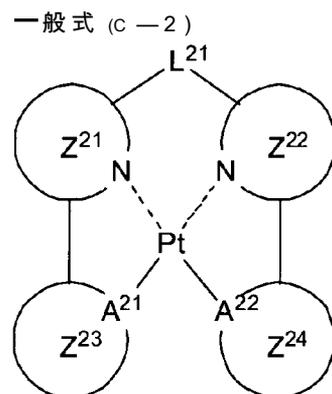
、オキシ基、チオ基、シリレン基であり、より好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基、イミノ基であり、更に好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基であり、更に好ましくは、単結合、メチレン基、フェニレン基であり、更に好ましくは単結合、ジ置換のメチレン基であり、更に好ましくは単結合、ジメチルメチレン基、ジエチルメチレン基、ジイソブチルメチレン基、ジベンジルメチレン基、エチルメチルメチレン基、メチルプロピルメチレン基、イソブチルメチルメチレン基、ジフェニルメチレン基、メチルフェニルメチレン基、シクロヘキサンジイル基、シクロペンタンジイル基、フルオレンジイル基、フルオロメチルメチレン基である。

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

L^2 及び L^3 として最も好ましくは単結合である。

[01 02] 一般式 (C - 1) で表される白金錯体のうち、より好ましくは下記一般式 (C - 2) で表される白金錯体である。

[01 03] [化20]



[01 04] (式中、 L^{21} は単結合又は二価の連結基を表す。 A^{21} 、 A^{22} はそれぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 Z^{21} 、 Z^{22} はそれぞれ独立に含窒素芳香族ヘテロ環を表す。 Z^{23} 、 Z^{24} はそれぞれ独立にベンゼン環又は芳香族ヘテロ環を表す。)

[01 05] 一般式 (C - 2) について説明する。 L^{21} は、前記一般式 (C - 1) 中の L^1 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

- [01 06] A^{2i} 、 A^{22} はそれぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 A^{2i} 、 A^{22} の内、少なくとも一方は炭素原子であることが好ましく、 A^{2i} 、 A^{22} が共に炭素原子であることが、錯体の安定性の観点及び錯体の発光量子収率の観点から好ましい。
- [01 07] Z^{2i} 、 Z^{22} は、それぞれ独立に含窒素芳香族ヘテロ環を表す。 Z^{2i} 、 Z^{22} で表される含窒素芳香族ヘテロ環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環などが挙げられる。錯体の安定性、発光波長制御及び発光量子収率の観点から、 Z^{2i} 、 Z^{22} で表される環として好ましくは、ピリジン環、ピラジン環、イミダゾール環、ピラゾール環であり、より好ましくはピリジン環、イミダゾール環、ピラゾール環であり、更に好ましくはピリジン環、ピラゾール環であり、特に好ましくはピリジン環である。
- [01 08] 前記 Z^{2i} 、 Z^{22} で表される含窒素芳香族ヘテロ環は置換基を有していてもよく、炭素原子上の置換基としては前記置換基群Aが、窒素原子上の置換基としては前記置換基群Bが適用できる。炭素原子上の置換基として好ましくはアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子である。置換基は発光波長や電位の制御のために適宜選択されるが、短波長化させる場合には電子供与性基、フッ素原子、芳香環基が好ましく、例えばアルキル基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、フッ素原子、アリール基、芳香族ヘテロ環基などが選択される。また長波長化させる場合には電子求引性基が好ましく、例えばシアノ基、ペルフルオロアルキル基などが選択される。窒素原子上の置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、錯体の安定性の観点からアルキル基、アリール基が好ましい。前記置換基同士は連結して縮合環を形成していてもよく、形成される環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピラ

ゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。

[01 09] Z^{23} 、 Z^{24} は、それぞれ独立にベンゼン環又は芳香族ヘテロ環を表す。 Z^{23} 、 Z^{24} で表される含窒素芳香族ヘテロ環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピリダジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ビラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。錯体の安定性、発光波長制御及び発光量子収率の観点から Z^{23} 、 Z^{24} で表される環として好ましくは、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、チオフェン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラゾール環であり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環である。

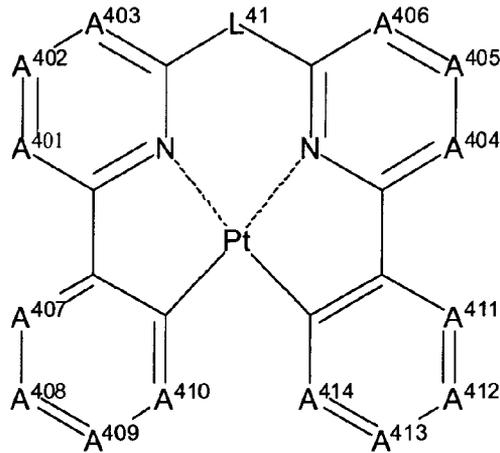
[01 10] 前記 Z^{23} 、 Z^{24} で表されるベンゼン環、含窒素芳香族ヘテロ環は置換基を有していてもよく、炭素原子上の置換基としては前記置換基群 A が、窒素原子上の置換基としては前記置換基群 B が適用できる。炭素上の置換基として好ましくはアルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルコキシ基、シアノ基、フッ素原子である。置換基は発光波長や電位の制御のために適宜選択されるが、長波長化させる場合には電子供与性基、芳香環基が好ましく、例えばアルキル基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、アリール基、芳香族ヘテロ環基などが選択される。また短波長化させる場合には電子求引性基が好ましく、例えばフッ素原子、シアノ基、ペルフルオロアルキル基などが選択される。窒素原子上の置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、錯体の安定性の観点からアルキル基、アリール基が好ましい。前記置換基同士は連結して縮合環を形成していてもよく、形成される環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ビラゾール環、チオフェン環、フラン環などが挙げられる。

[01 11] 一般式 (C-2) で表される白金錯体のうち、より好ましい態様の一つは

下記一般式 (C-4) で表される白金錯体である。

[01 12] [化21]

一般式 (C-4)



[01 13] (一般式 (C-4) 中、 $A_{401} \sim A_{416}$ はそれぞれ独立に $C-R$ 又は窒素原子を表す。R は水素原子又は置換基を表す。L⁴¹ は単結合又は二価の連結基を表す。)

[01 14] 一般式 (C-4) について説明する。

$A_{401} \sim A_{416}$ はそれぞれ独立に $C-R$ 又は窒素原子を表す。R は水素原子又は置換基を表す。

R で表される置換基としては、前記置換基群 A として挙げたものが適用できる。

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

であり、特に好ましく水素原子である。

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

[01 15] $A^{407} \sim A^{414}$ としては、 $A^{407} \sim A^{41}$ と $A^{411} \sim A^{414}$ のそれぞれにおいて、N (窒素原子) の数は、0 ~ 2 が好ましく、0 ~ 1 がより好ましい。発光波長を短波長側にシフトさせる場合、 A^{408} 及び A^{412} のいずれかが窒素原子であることが好ましく、 A^{408} と A^{412} が共に窒素原子であることが更に好ましい。

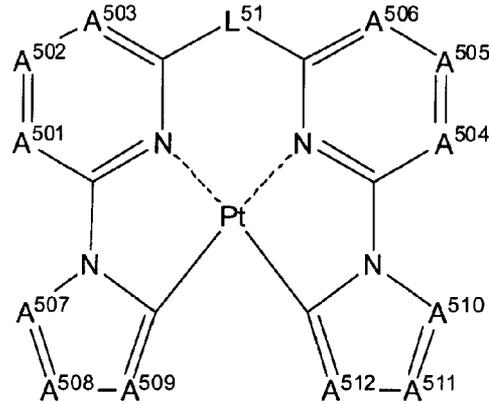
$A^{407} \sim A^{414}$ がC-Rを表す場合に、 A^{408} 、 A^{412} のRとして好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フッ素原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、ペルフルオロアルキル基、アルキル基、アリール基、フッ素原子、シアノ基であり、特に好ましくは、水素原子、フェニル基、ペルフルオロアルキル基、シアノ基である。 A^{407} 、 A^{409} 、 A^{411} 、 A^{413} のRとして好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フッ素原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、ペルフルオロアルキル基、フッ素原子、シアノ基であり、特に好ましく水素原子、フェニル基、フッ素原子である。 A^{41} 、 A^{414} のRとして好ましくは水素原子、フッ素原子であり、より好ましくは水素原子である。 $A^{407} \sim A^{409}$ 、 A^{41} 、 A^{413} のいずれかがC-Rを表す場合に、R同士が互いに連結して環を形成していても良い。

[01 16] 一般式 (C-2) で表される白金錯体のうち、より好ましい態様の一つは下記一般式 (C-5) で表される白金錯体である。

[01 17]

[化 22]

(C-5)



[0118] (一般式 (C-5) 中、A⁵⁰¹~A⁵¹²は、それぞれ独立に、C-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。L⁵¹は単結合又は二価の連結基を表す。)

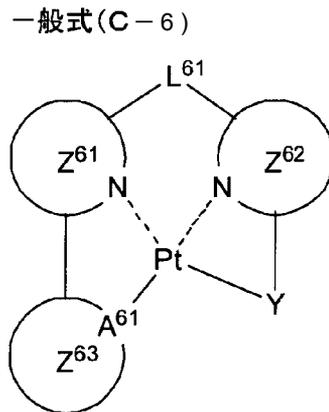
[0119] 一般式 (C-5) について説明する。A⁵⁰¹~A⁵⁰⁶及びL⁵¹は、前記一般式 (C-4) におけるA⁴⁰¹~A⁴⁰⁶及びL⁴¹と同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0120] A⁵⁰⁷、A⁵⁰⁸及びA⁵⁰⁹とA⁵¹⁰、A⁵¹¹及びA⁵¹²は、及びそれぞれ独立に、C-R又は窒素原子を表す。Rは水素原子又は置換基を表す。Rで表される置換基としては、前記置換基群Aとして挙げたものが適用できる。A⁵⁰⁷、A⁵⁰⁸及びA⁵⁰⁹とA⁵¹⁰、A⁵¹¹及びA⁵¹²がC-Rである場合に、Rとして好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、フッ素原子であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。A⁵⁰⁷、A⁵⁰⁸及びA⁵⁰⁹とA⁵¹⁰、A⁵¹¹及びA⁵¹²のうち少なくとも一つは窒素原子であることが好ましく、特にA⁵¹⁰又はA⁵¹¹

。⁷が窒素原子であることが好ましい。

[01 21] 一般式 (C — 1) で表される白金錯体のうち、より好ましい別の態様は下記一般式 (C — 6) で表される白金錯体である。

[01 22] [化23]



[01 23] (式中、しは単結合又は二価の連結基を表す。A_{6i}はそれぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。Z_{6i}、Z⁶²はそれぞれ独立に含窒素芳香族ヘテロ環を表す。Z⁶³はそれぞれ独立にベンゼン環又は芳香族ヘテロ環を表す。YはPtに結合するアニオン性の非環状配位子である。)

[01 24] 一般式 (C — 6) について説明する。L_{6i}は、前記一般式 (C — 1) 中のL¹と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

[01 25] A_{6i}は炭素原子又は窒素原子を表す。錯体の安定性の観点及び錯体の発光量子収率の観点からA⁶¹は炭素原子であることが好ましい。

[01 26] Z_{6i}、Z₆₂は、それぞれ前記一般式 (C — 2) におけるZ_{2i}、Z₂₂と同義であり、また好ましい範囲も同様である。Z⁶³は、前記一般式 (C — 2) におけるZ²³と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

[01 27] YはPtに結合するアニオン性の非環状配位子である。非環状配位子とはPtに結合する原子が配位子の状態では環を形成していないものである。Y中のPtに結合する原子としては、炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子が好ましく、窒素原子、酸素原子がより好ましく、酸素原子が最も好ましい。

炭素原子でPtに結合するYとしてはビニル配位子が挙げられる。窒素原

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

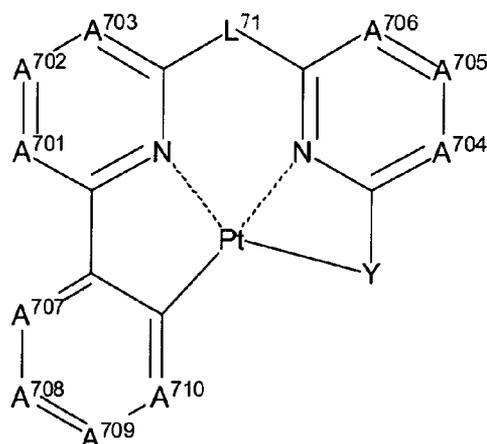
Y で表される配位子は、置換基を有していてもよく、置換基としては前記置換基群 A として挙げたものが適宜適用できる。また置換基同士が連結していても良い。

[01 28] Y で表される配位子として好ましくは酸素原子で Pt に結合する配位子であり、より好ましくはアシルオキシ配位子、アルキルオキシ配位子、アリールオキシ配位子、ヘテロアリールオキシ配位子、シリルオキシ配位子であり、更に好ましくはアシルオキシ配位子である。

[01 29] 一般式 (C-6) で表される白金錯体のうち、より好ましい態様の一つは下記一般式 (C-7) で表される白金錯体である。

[01 30] [化 24]

一般式 (C-7)



[0131] (式中、 $A^{701} \sim A^{710}$ は、それぞれ独立に、C-R 又は窒素原子を表す。R は水素原子又は置換基を表す。 L^{71} は単結合又は二価の連結基を表す。Y は

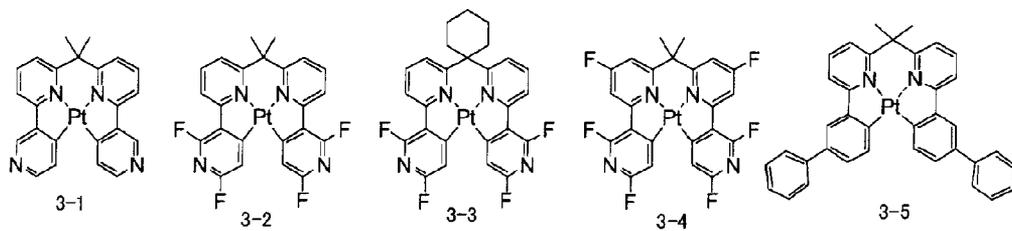
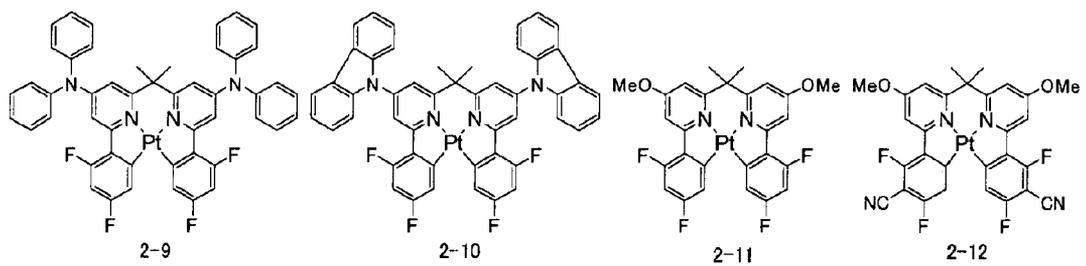
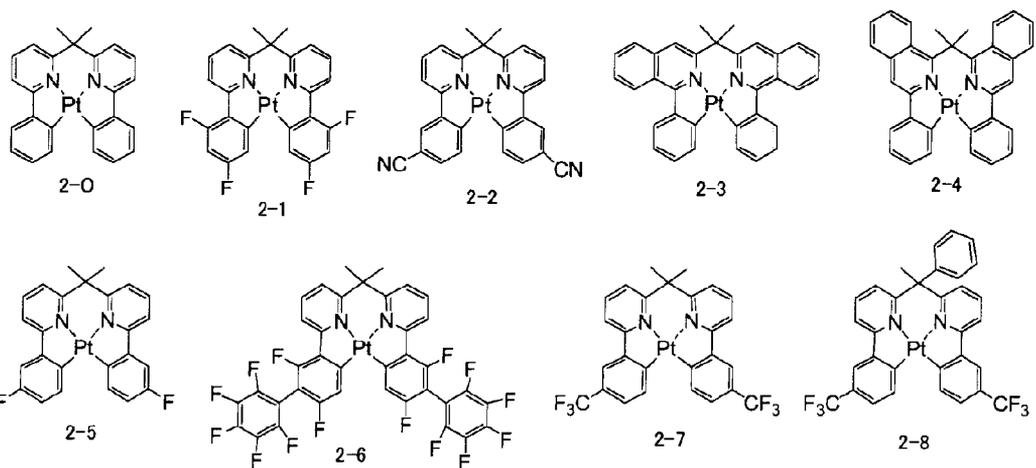
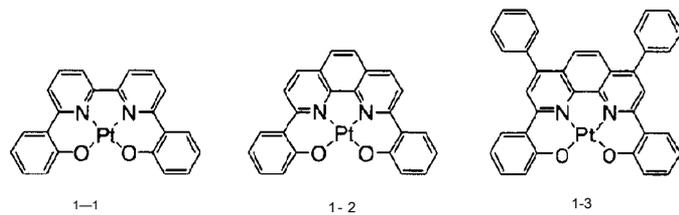
Ptに結合するアニオン性の非環状配位子である。)

[0132] 一般式 (C-7) について説明する。L_{7i}は、前記一般式 (C-6) 中のL⁶¹と同義であり、また好ましい範囲も同様である。A^{7o1}~ A_{7i}は一般式 (C-4) におけるA_{4o1}~ A_{4i}と同義であり、また好ましい範囲も同様である。Yは一般式 (C-6) におけるYと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

[0133] 一般式 (C-1) で表される白金錯体として具体的には、特開2005-310733号公報の(0143)~(0152)、(0157)~(0158)、(0162)~(0168)に記載の化合物、特開2006-256999号公報の(0065)~(0083)に記載の化合物、特開2006-93542号公報の(0065)~(0090)に記載の化合物、特開2007-73891号公報の(0063)~(0071)に記載の化合物、特開2007-324309号公報の(0079)~(0083)に記載の化合物、特開2006-93542号公報の(0065)~(0090)に記載の化合物、特開2007-96255号公報の(0055)~(0071)に記載の化合物、特開2006-313796号公報の(0043)~(0046)が挙げられ、その他以下に例示する白金錯体が挙げられる。

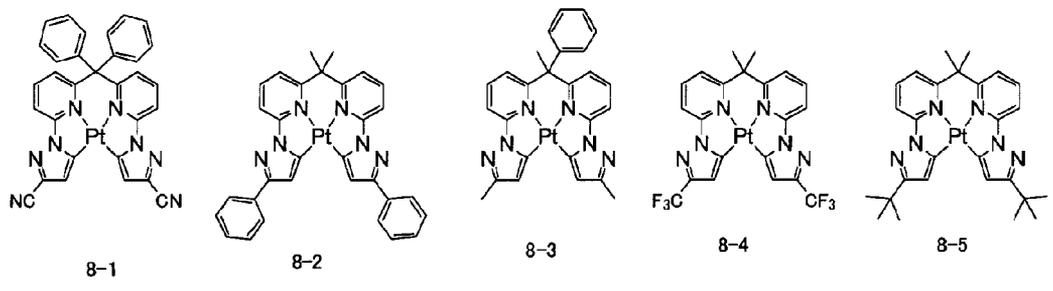
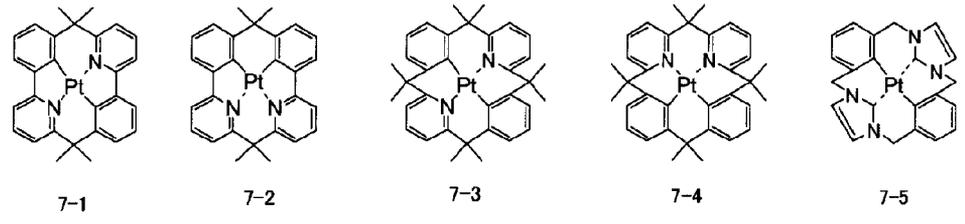
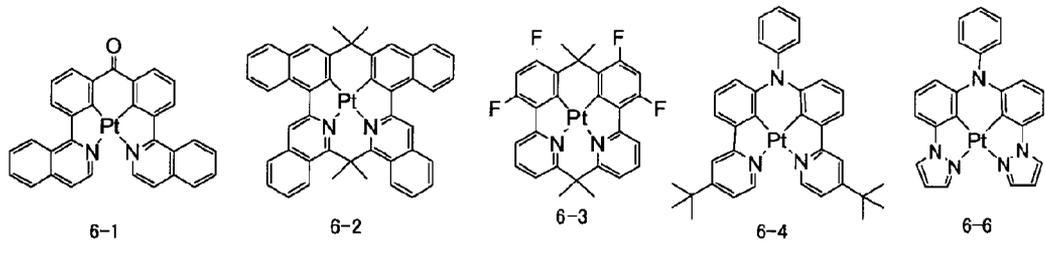
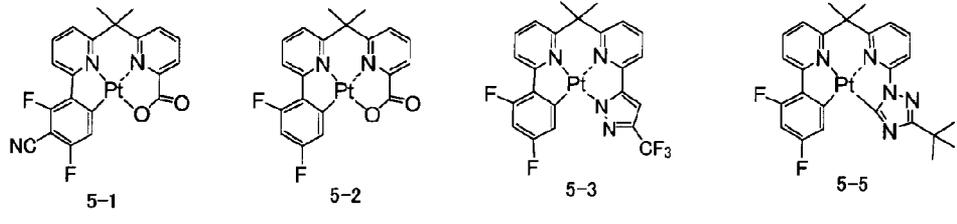
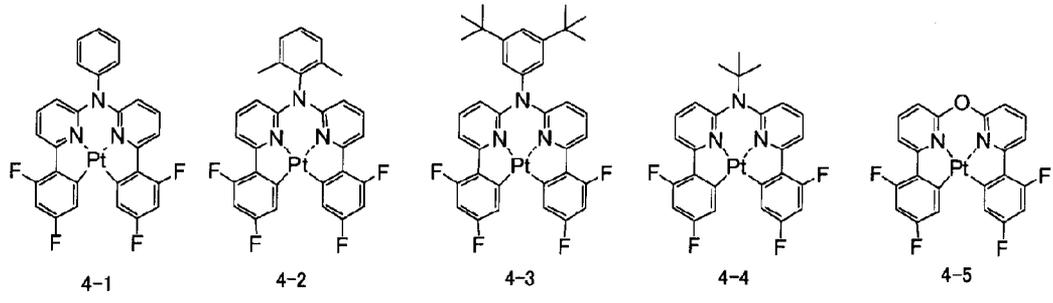
[0134]

[化 25]



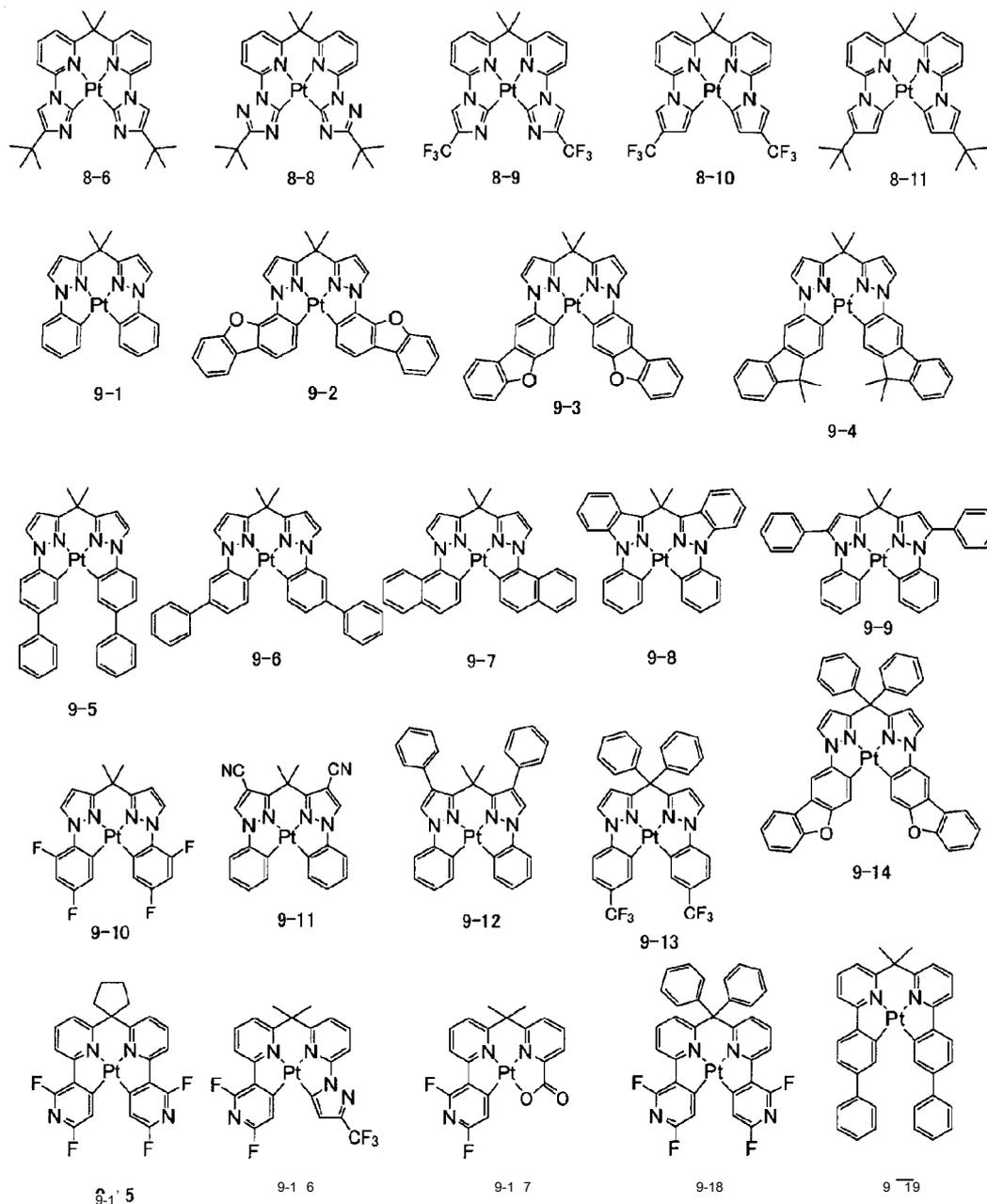
[0135]

[化26]



[0 136]

[化27]



[0137] 一般式 (C-1) で表される白金錯体化合物は、例えば、Journal of Organic Chemistry 53, 786, (1988)、G. R. Newkome et al. の、789頁、左段53行～右段7行に記載の方法、790頁、左段18行～38行に記載の方法、790頁、右段19行～30行に記載の方法及びその組み合わせ、Chemische Berichte 113, 2749 (1980)、H. Lexy

ほか)の、2752頁、26行〜35行に記載の方法等、種々の手法で合成できる。

例えば、配位子、又はその解離体と金属化合物を溶媒(例えば、ハロゲン系溶媒、アルコール系溶媒、エーテル系溶媒、エステル系溶媒、ケトン系溶媒、ニトリル系溶媒、アミド系溶媒、スルホン系溶媒、スルホキサイド系溶媒、水などが挙げられる)の存在下、若しくは、溶媒非存在下、塩基の存在下(無機、有機の種々の塩基、例えば、ナトリウムメトキシド、t-ブトキシカリウム、トリエチルアミン、炭酸カリウムなどが挙げられる)、若しくは、塩基非存在下、室温以下、若しくは加熱し(通常の加熱以外にもマイクロウェーブで加熱する手法も有効である)得ることができる。

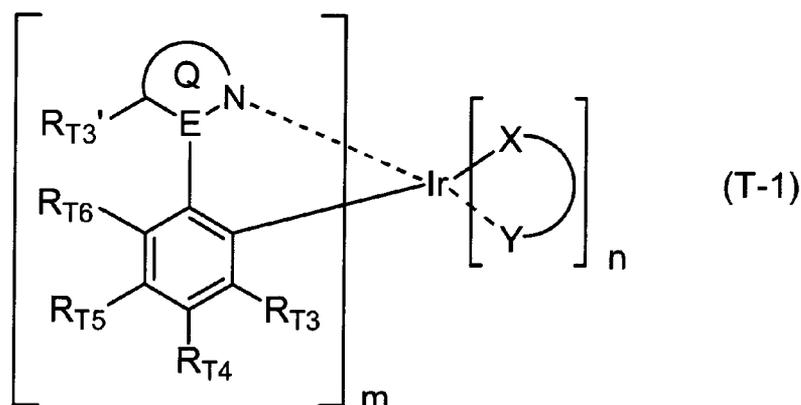
[0138] 本発明の発光層における一般式(C-1)で表される化合物の含有量は発光層中1~30質量%であることが好ましく、3~25質量%であることがより好ましく、5~20質量%であることが更に好ましい。

[0139] イリジウム錯体として好ましくは、下記一般式(T-1)で表されるイリジウム錯体である。

(一般式(T-1)で表される化合物)

一般式(T-1)で表される化合物について説明する。

[0140] [化28]



[0141] (一般式(T-1)中、 $R_{T3'}$ 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペ

ルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R_T$ 、 $-C(O)R_T$ 、 $-N(R_T)_2$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR_T$ 、ハロゲン原子、アリアル基又はヘテロアリアル基を表し、更に置換基Tを有していてもよい。

Eは炭素原子又は窒素原子を表す。

Qは窒素を1つ以上含む5員又は6員の芳香族複素環又は縮合芳香族複素環である。

該環Qにおいて、EとNを結ぶ線は一本の線で表されているが、結合種は問わず、それぞれ単結合でも二重結合でも良い。

R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} は隣り合う任意の2つが互いに結合して縮合4~7員環を形成してもよく、該縮合4~7員環は、シクロアルキル、アリアル又はヘテロアリアルであり、該縮合4~7員環は更に置換基Tを有していてもよい。

$R_{T3'}$ と R_{T6} は、 $-C(R_T)_2-C(R_T)_2-$ 、 $-CR_T=CR_T-$ 、 $-C(R_T)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-NR_T-$ 、 $-O-C(R_T)_2-$ 、 $-NR_T-C(R_T)_2-$ 及び $-N=CR_T-$ から選択される連結基によって連結されて環を形成してもよく、 R_T はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリアル基、又はヘテロアリアル基を表し、更に置換基Tを有していてもよい。また、2つの R_T は互いに結合して環を形成してもよい。

置換基Tはそれぞれ独立に、フッ素原子、 $-R'$ 、 $-OR'$ 、 $-N(R')_2$ 、 $-SR'$ 、 $-C(O)R'$ 、 $-C(O)OR'$ 、 $-C(O)N(R')_2$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-SO_2$ 、 $-SOR'$ 、 $-SO_2R'$ 、又は $-SO_3R'$ を表し、 R' はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリアル基又はヘテロアリアル基を表す。

(X-Y)は、配位子を表す。mは1~3の整数、nは0~2の整数を表す。m+nは3である。)

[0142] アルキル基としては、置換基を有していてもよく、置換してもよい基とし

ては、前述の置換基 T を挙げるができる。R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるアルキル基として、好ましくは総炭素原子数 1~8 のアルキル基であり、より好ましくは総炭素原子数 1~6 のアルキル基であり、例えばメチル基、エチル基、i-プロピル基、シクロヘキシル基、t-ブチル基等が挙げられる。

シクロアルキル基としては、置換基を有していてもよく、置換してもよい基としては、前述の置換基 T を挙げるができる。R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるシクロアルキル基として、好ましくは環員数 4~7 のシクロアルキル基であり、より好ましくは総炭素原子数 5~6 のシクロアルキル基であり、例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるアルケニル基としては好ましくは炭素数 2~30、より好ましくは炭素数 2~20、特に好ましくは炭素数 2~10 であり、例えばビニル、アリル、1-プロペニル、1-イソプロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。

R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるアルキニル基としては、好ましくは炭素数 2~30、より好ましくは炭素数 2~20、特に好ましくは炭素数 2~10 であり、例えばエチニル、プロパルギル、1-プロピニル、3-ペンチニルなどが挙げられる。

[0143] R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるヘテロアルキル基は前記アルキル基の少なくとも 1 つの炭素が O、N、R_T、又は S に置き換わった基を挙げるができる。

[0144] R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられ、フッ素原子であることが好ましい。

[0145] R_{T3'}、R_{T3}、R_{T4}、R_{T5}、R_{T6} で表されるアリール基としては、好ましくは、炭素数 6 から 30 の置換若しくは無置換のアリール基であり、より好ましくは炭素数 6~20 のアリール基である。該アリール基としては、例え

ば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、ターフェニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、ピレニル基、トリフェニレニル基、トリル基などが挙げられ、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、又はターフェニル基が好ましく、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基がより好ましい。

[0146] R_{T3} 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 、 R_{T6} で表されるヘテロアリール基としては、好ましくは、炭素数 5 ~ 8 のヘテロアリール基であり、より好ましくは、5 又は 6 員の置換若しくは無置換のヘテロアリール基であり、例えば、ピリジル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、キノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、フリル基、ベンゾフリル基、チェニル基、ベンゾチェニル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、トリアゾリル基、オキサゾリル基、ベンズオキサゾリル基、チアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、イソチアゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、チアジアゾリル基、イソオキサゾリル基、ベンズイソオキサゾリル基、ピロリジニル基、ピペリジニル基、ピペラジニル基、イミダゾリジニル基、チアゾリニル基、スルホラニル基、カルバゾリル基、ジベンゾフリル基、ジベンゾチェニル基、ピリドインドリル基などが挙げられる。好ましい例としては、ピリジル基、ピリミジニル基、イミダゾリル基、チェニル基であり、より好ましくは、ピリジル基、ピリミジニル基である。

[0147] R_{T3}' 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} として好ましくは、水素原子、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、ペルフルオロアルキル基、ジアルキルアミノ基、フッ素原子、アリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、フッ素原子、アリール基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基である。置換基 T としては、アルキル基、アルコキシ基、フッ素原子、シアノ基、ジアルキルアミノ基が好ましく、水素原子がより好ましい。

[0148] R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} は隣り合う任意の 2 つが互いに結合して縮合 4

~ 7 員環を形成してもよく、該縮合 4 ~ 7 員環は、シクロアルキル、アリール又はヘテロアリールであり、該縮合 4 ~ 1 員環は更に置換基 T を有していてもよい。また、該縮合 4 ~ 7 員環は更に 4 ~ 7 員環により縮合していてもよい。形成されるシクロアルキル、アリール、ヘテロアリールの定義及び好ましい範囲は $R_{T3'}$ 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 、 R_{T6} で定義したシクロアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基と同じである。

[0149] 環 Q が表す芳香族複素環としては、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピラゾール環、ピロール環、イミダゾール環、トリアゾール環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、等が挙げられる。好ましくはピリジン環、ピラジン環、ピラゾール環であり、より好ましくはピリジン環又はピラゾール環である。

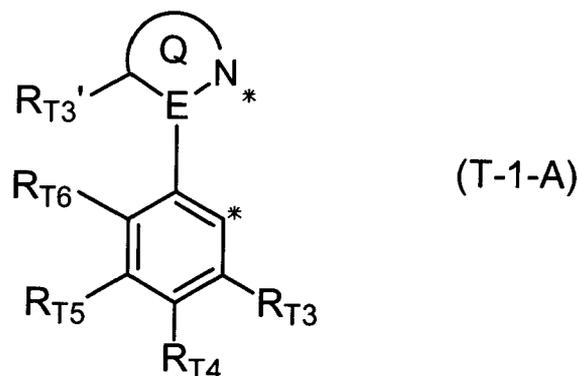
[0150] 環 Q が表す縮合芳香族複素環としては、キノリン環、イソキノリン環、キノキサリン環等が挙げられる。好ましくはキノリン環、イソキノリン環であり、より好ましくはキノリン環である。

[0151] m は 1 ~ 3 であることが好ましく、2 又は 3 であることがより好ましい。すなわち、n は 0 又は 1 であることが好ましい。錯体中の配位子の種類は 1 又は 2 種類から構成されることが好ましく、更に好ましくは 1 種類である。錯体分子内に反応性基を導入する際には合成容易性という観点から配位子が 2 種類からなることも好ましい。

[0152] 一般式 (T-1) で表される金属錯体は、一般式 (T-1) における下記一般式 (T-1-A) で表される配位子若しくはその互変異性体と、(X-Y) で表される配位子若しくはその互変異性体との組み合わせを含んで構成されるか、該金属錯体の配位子の全てが下記一般式 (T-1-A) で表される配位子又はその互変異性体のみで構成されていてもよい。

[0153]

[化29]



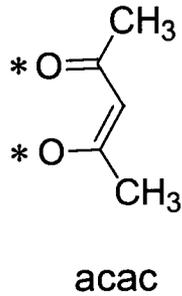
[01 54] (一般式 (T-1-A) 中、 $R_{T3'}$ 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 、 R_{T6} 、E 及び Q は、一般式 (T-1) における、 $R_{T3'}$ 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 、 R_{T6} 、E 及び Q と同義である。* はイリジウムへの配位位置を表す。)

[01 55] 更に従来公知の金属錯体形成に用いられる、所謂配位子として当該業者が周知の配位子 (配位化合物ともいう) を必要に応じて (X-Y) で表される配位子として有していてもよい。

[01 56] 従来公知の金属錯体に用いられる配位子としては、種々の公知の配位子があるが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag 社 H. Yersin 著 1987 年発行、有機金属化学—基礎と応用—裳華房社 山本明夫著 1982 年発行等に記載の配位子 (例えば、ハロゲン配位子 (好ましくは塩素配位子)、含窒素ヘテロアリアル配位子 (例えば、ピピリジル、フェナントロリンなど)、ジケトン配位子 (例えば、アセチルアセトンなど) が挙げられる。(X-Y) で表される配位子として好ましくは、ジケトン類あるいはピコリン酸誘導体であり、錯体の安定性と高い発光効率を得られる観点から以下に示されるアセチルアセトネート (acac) であることが最も好ましい。

[0157]

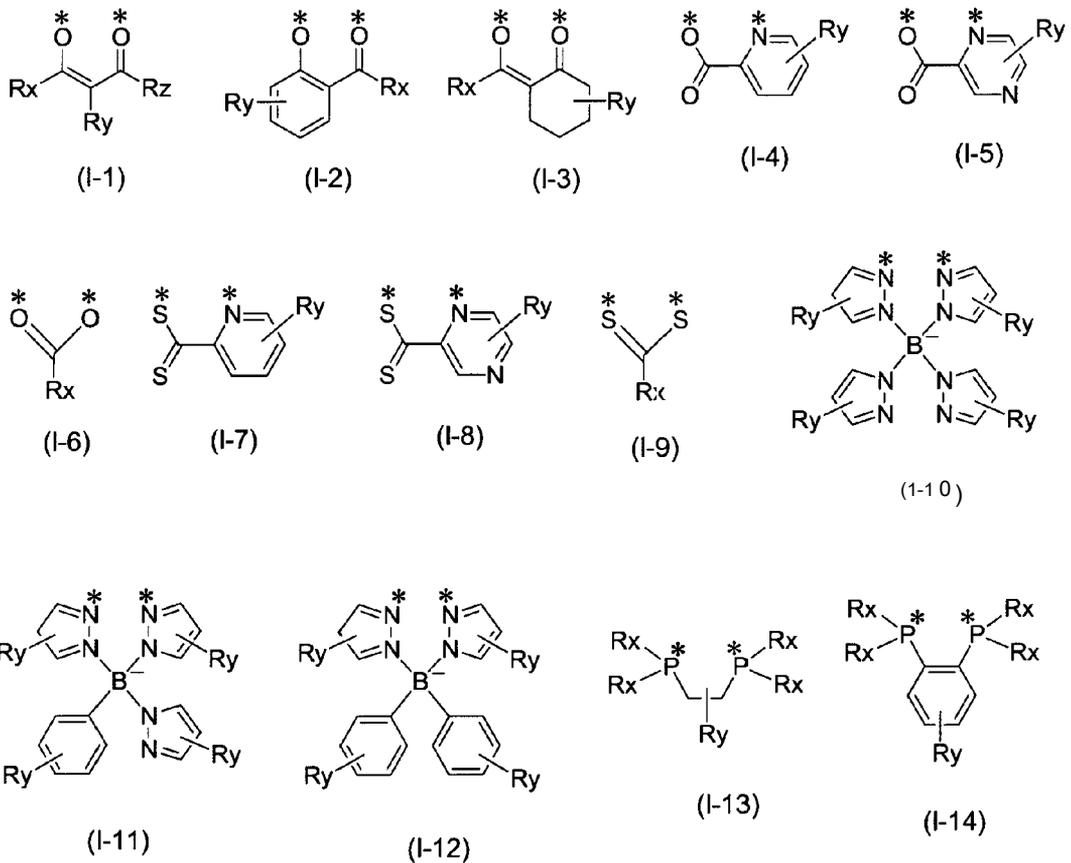
[化 30]



[01 58] * はイリジウムへの配位位置を表す。

以下に、(X - Y) で表される配位子の例を具体的に挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

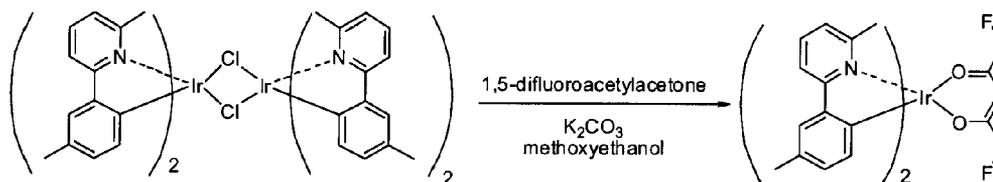
[01 59] [化 31]



[01 60] 上記 (X - Y) で表される配位子の例において、* は一般式 (T - 1) におけるイリジウムへの配位位置を表す。Rx、Ry 及び Rz はそれぞれ独立

に水素原子又は置換基を表す。該置換基としては前記置換基群 A から選ばれる置換基が挙げられる。好ましくは、 R_x 、 R_z はそれぞれ独立にアルキル基、ペルフルオロアルキル基、フッ素原子、アリール基のいずれかであり、より好ましくは炭素数 1~4 のアルキル基、炭素数 1~4 のペルフルオロアルキル基、フッ素原子、置換されていても良いフェニル基であり、最も好ましくはメチル基、エチル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子、フェニル基である。 R_y は好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、フッ素原子、アリール基のいずれかであり、より好ましくは水素原子、炭素数 1~4 のアルキル基、置換されていても良いフェニル基であり、最も好ましくは水素原子、メチル基のいずれかである。これら配位子は素子中で電荷を輸送したり励起によって電子が集中する部位ではないと考えられるため、 R_x 、 R_y 、 R_z は化学的に安定な置換基であれば良く、本発明の効果にも影響を及ぼさない。錯体合成が容易であるため好ましくは (1_1)、(1_4)、(1_5) であり、最も好ましくは (1_1) である。これらの配位子を有する錯体は、対応する配位子前駆体を用いることで公知の合成例と同様に合成できる。例えば国際公開 2009-073245 号 46 ページに記載の方法と同様に、市販のジフルオロアセチルアセトンを用いて以下に示す方法で合成する事ができる。

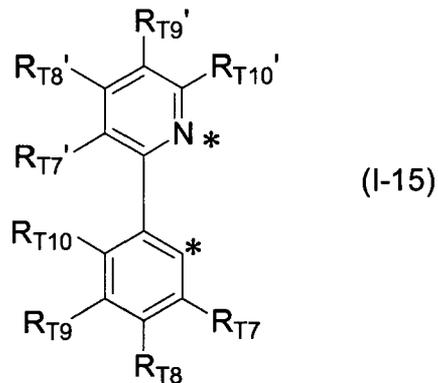
[0161] [化 32]



[0162] また、配位子として一般式 (1-15) に示すモノアニオン性配位子を用いる事もできる。

[0163]

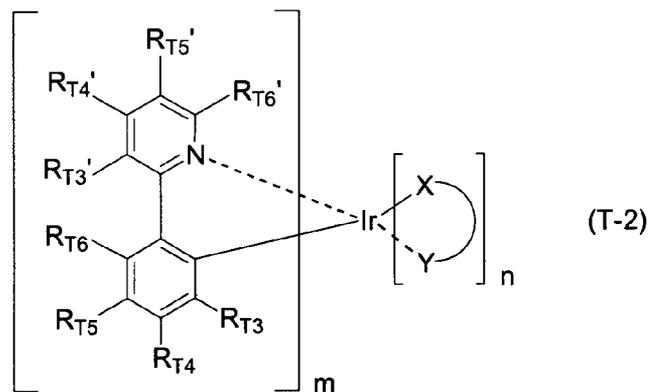
[化33]



[01 64] 一般式 (1 - 15) における $R_{T7} \sim R_{T10}$ は、一般式 (T - 1) における $R_{T3} \sim R_{T6}$ と同義であり、好ましい範囲も同様である。 $R_{T7'} \sim R_{T10'}$ は、 $R_{T3'}$ と同義であり、好ましい範囲も $R_{T3'}$ と同様である。* はイリジウムへの配位位置を表す。

[01 65] 前記一般式 (T - 1) で表される化合物は、好ましくは下記一般式 (T - 2) で表される化合物である。

[01 66] [化34]



[01 67] (一般式 (T - 2) 中、 $R_{T3'} \sim R_{T6'}$ 及び $R_{T3} \sim R_{T6}$ はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R_T$ 、 $-C(O)R_T$ 、 $-N(R_T)$ や $-NO_2$ 、 $-OR_T$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 T を有していてもよい。

R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} は隣り合う任意の2つが互いに結合して縮合4～7員環を形成してもよく、該縮合4～7員環は更に置換基Tを有していてもよい。

R_{T3}' と R_{T6} は、 $-C(R_T)_2-C(R_T)_2-$ 、 $-CR_T=CR_T-$ 、 $-C(R_T)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-NR_T-$ 、 $-O-C(R_T)_2-$ 、 $-NR_T-C(R_T)_2-$ 及び $-N=CR_T-$ から選択される連結基によって連結されて環を形成してもよい。

R_T はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表し、更に置換基Tを有していてもよい。

置換基Tはそれぞれ独立に、フッ素原子、 $-R'$ 、 $-OR'$ 、 $-N(R')$ 、 $-SR'$ 、 $-C(O)R'$ 、 $-C(O)OR'$ 、 $-C(O)N(R')$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-SO_2$ 、 $-SOR'$ 、 $-SO_2R$ 、又は $-SO_3R$ を表し、 R' はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

(X-Y)は、配位子を表す。mは1～3の整数、nは0～2の整数を表す。m+nは3である。)

[0168] 一般式(T-2)における R_{T3} 、 $R_{T3} \sim R_{T6}$ 、(X-Y)、m及び η の好ましい範囲は、一般式(T-1)における R_{T3}' 、 $R_{T3} \sim R_{T6}$ 、(X-Y)、m及び η の好ましい範囲と同様である。

R_{T4}' は水素原子、アルキル基、アリール基、フッ素原子が好ましく、水素原子がより好ましい。

R_{T5}' 及び R_{T6}' は水素原子を表すか、又は互いに結合して縮合4～7員環式基を形成することが好ましく、該縮合4～7員環式基は、シクロアルキル、シクロヘテロアルキル、アリール、又はヘテロアリールであることがより好ましく、アリールであることが更に好ましい。

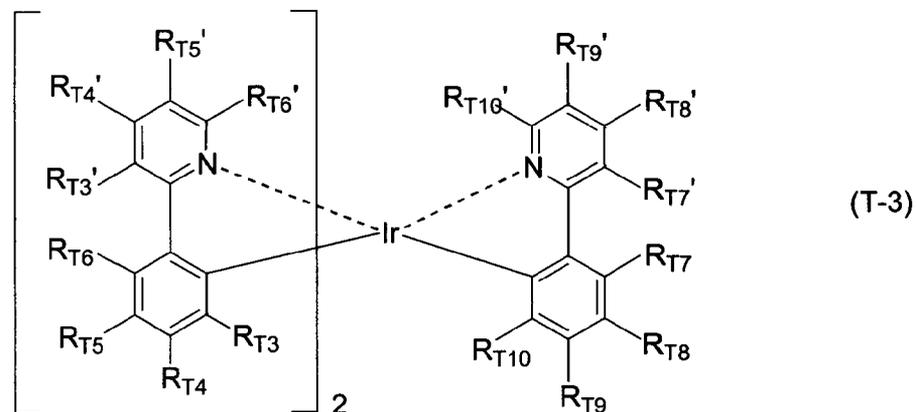
$R_{T4}' \sim R_{T6}'$ における置換基Tとしてはアルキル基、アルコキシ基、フ

ツ素原子、シアノ基、アルキルアミノ基、ジアリールアミノ基が好ましく、アルキル基がより好ましい。

[01 69] 前記一般式 (T-2) で表される化合物の好ましい形態の一つは、一般式 (T-2) において $R_{T3'}$ 、 $R_{T4'}$ 、 $R_{T5'}$ 、 $R_{T6'}$ 、 R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} のうち、隣り合う任意の2つが互いに結合して縮合環を形成しない場合である。

[01 70] 前記一般式 (T-2) で表される化合物の好ましい形態の一つは、下記一般式 (T-3) で表される場合である。

[01 71] [化35]



[01 72] 一般式 (T-3) における $R_{T3'}$ ~ $R_{T6'}$ 、 R_{T3} ~ R_{T6} は、一般式 (T-2) における $R_{T3'}$ ~ $R_{T6'}$ 、 R_{T3} ~ R_{T6} と同義であり、好ましい範囲も同様である。

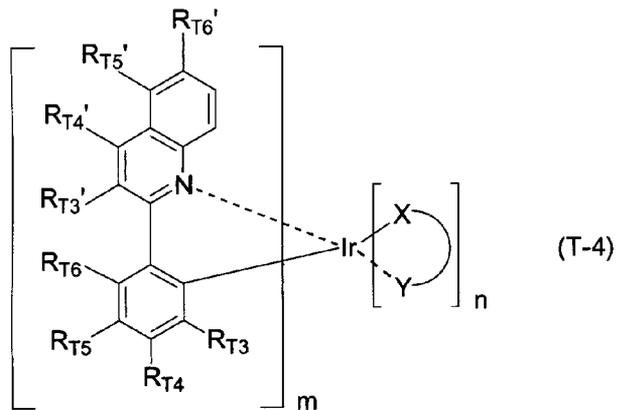
R_{T7} ~ R_{T10} は、 R_{T3} ~ R_{T6} と同義であり、好ましい範囲も同様である。

$R_{T7'}$ ~ $R_{T10'}$ は、 $R_{T3'}$ ~ $R_{T6'}$ と同義であり、好ましい範囲も同様である。

[01 73] 前記一般式 (T-2) で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式 (T-4) で表される化合物である。

[01 74]

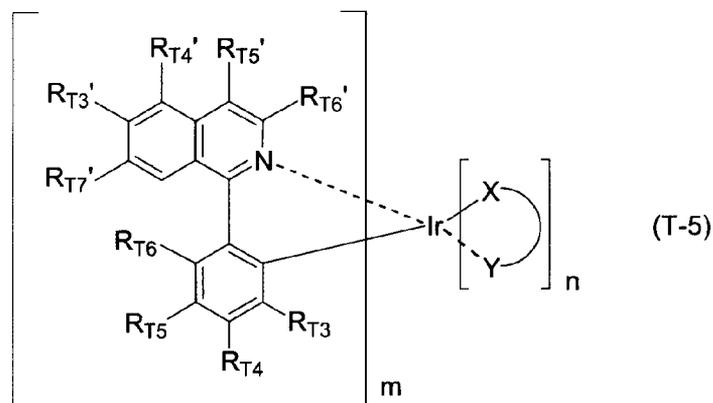
[化36]



[0175] 一般式 (T-4) における R_{T3} , ~ R_{T6} , $R_{T3} \sim R_{T6}$, (X - Y), m 及び n は、一般式 (T-2) における R_{T3} , ~ R_{T6} , $R_{T3} \sim R_{T6}$, (X - Y), m 及び n と同義であり、好ましい範囲も同様である。 $R_{T3'} \sim R_{T6'}$ 及び $R_{T3} \sim R_{T6}$ のうち、0 ~ 2 つがアルキル基又はフェニル基で残りが全て水素原子である場合が特に好ましく、 $R_{T3'} \sim R_{T6'}$ 及び $R_{T3} \sim R_{T6}$ のうち、1 つ又は 2 つがアルキル基で残りが全て水素原子である場合が更に好ましい。

[0176] 前記一般式 (T-2) で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式 (T-5) で表される化合物である。

[0177] [化37]

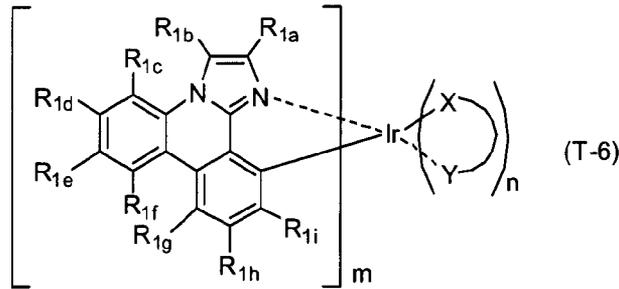


[0178] 一般式 (T-5) における R_{T3} , ~ $R_{T7'}$, $R_{T3} \sim R_{T6}$, (X - Y), m

及び n は、一般式 (T-2) における R_{T3} 、 $\sim R_{T6}$ 、 $R_{T3} \sim R_{T6}$ 、(X-Y)、 m 及び n と同義であり、好ましいものも同様である。

[01 79] 一般式 (T-1) で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式 (T-6) で表される場合である。

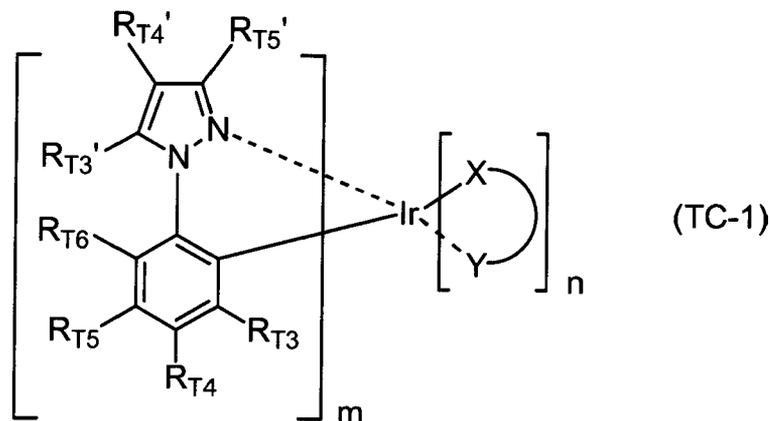
[01 80] [化 38]



[01 81] 一般式 (T-6) 中、 $R_{1a} \sim R_{1i}$ の定義や好ましい範囲は一般式 (T-1) における $R_{T3} \sim R_{T6}$ におけるものと同様である。また $R_{1a} \sim R_{1i}$ のうち、0 ~ 2 つがアルキル基又はアリール基で残りが全て水素原子である場合が特に好ましい。(X-Y)、 m 、及び n の定義や好ましい範囲は一般式 (T-1) における (X-Y)、 m 、及び n と同様である。

[01 82] 一般式 (T-1) で表される化合物の好ましい別の形態は、下記一般式 (TC-1) で表される場合である。

[01 83] [化 39]



[01 84] (一般式 (TC-1) 中、 $R_{T3'} \sim R_{T5'}$ 及び $R_{T3} \sim R_{T6}$ はそれぞれ独立

に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R_T$ 、 $-C(O)R_T$ 、 $-N(R_T)$ 及び $-NO_2$ 、 $-OR_T$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 T を有していてもよい。

R_{T3} 、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} は隣り合う任意の 2 つが互いに結合して縮合 4 ~ 7 員環を形成してもよく、該縮合 4 ~ 7 員環は更に置換基 T を有していてもよい。

$R_{T3'}$ 、 $R_{T4'}$ 、及び $R_{T5'}$ は隣り合う任意の 2 つが互いに結合して縮合 4 ~ 7 員環を形成してもよく、該縮合 4 ~ 7 員環は更に置換基 T を有していてもよい。

$R_{T3'}$ と R_{T6} は、 $-C(R_T)_2-C(R_T)_2-$ 、 $-CR_T=CR_T-$ 、 $-C(R_T)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-NR_T-$ 、 $-O-C(R_T)_2-$ 、 $-NR_T-C(R_T)_2-$ 及び $-N=CR_T-$ から選択される連結基によって連結されて環を形成してもよい。

R_T はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 T を有していてもよい。

置換基 T はそれぞれ独立に、フッ素原子、 $-R'$ 、 $-OR'$ 、 $-N(R')$ 、 $-SR'$ 、 $-C(O)R'$ 、 $-C(O)OR'$ 、 $-C(O)N(R')$ 、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $-SO_2$ 、 $-SOR'$ 、 $-SO_2R'$ 、又は $-SO_3R'$ を表し、 R' はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

(X - Y) は、配位子を表す。m は 1 ~ 3 の整数、n は 0 ~ 2 の整数を表す。m + n は 3 である。)

[0185] 一般式 (TC - 1) における R_{T3} 、 $R_{T3} \sim R_{T6}$ 、(X - Y)、m 及び n の好ましい範囲は、一般式 (T - 1) における $R_{T3'}$ 、 $R_{T3} \sim R_{T6}$ 、(X - Y)、m 及び n の好ましい範囲と同様である。

R_{T4}' は水素原子、アルキル基、アリール基が好ましく、水素原子又はアリール基がより好ましい。該アリール基として、好ましくは炭素数 6 から 30 の置換若しくは無置換のアリール基であり、より好ましくは炭素数 6 ~ 20 のアリール基である。該アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基、ターフェニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、ピレニル基、トリフェニレニル基、トリル基などが挙げられ、フェニル基、フルオレニル基、ナフチル基、ビフェニル基、トリフェニレニル基、アントリル基、又はターフェニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、トリフェニレニル基がより好ましい。

[01 86] R_{T5}' は水素原子、アルキル基、又はアリール基が好ましく、水素原子又はアルキル基がより好ましい。該アルキル基として、好ましくは炭素数 1 ~ 10 であり、例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基、*n*-オクチル基、*n*-デシル基、*n*-ヘキサデシル基、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ネオペンチル基などが挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基であり、より好ましくはメチル基である。

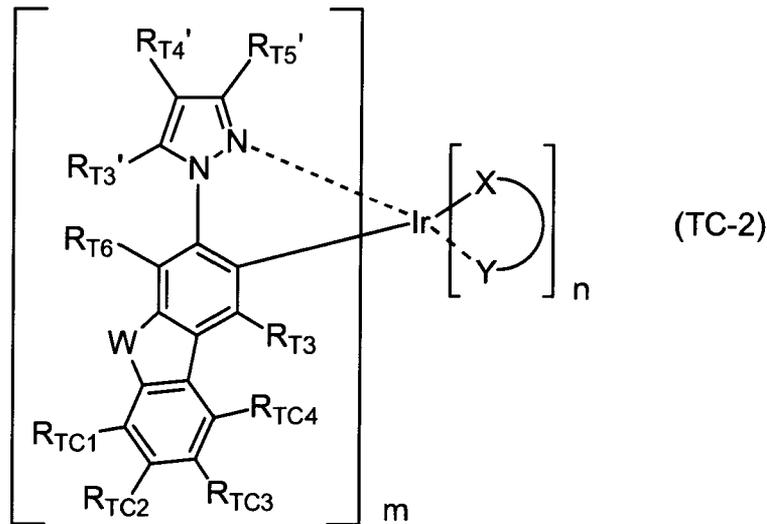
[01 87] 前記一般式 (TC-1) の好ましい形態の一つは、 R_{T4} 、 R_{T5} 及び R_{T6} のうち、隣り合う任意の 2 つが互いに結合して縮合環を形成する場合である。該環としてはシクロアルキル、シクロヘテロアルキル、アリール、又はヘテロアリールであることがより好ましい。特に、 R_{T4} 、 R_{T5} が互いに結合してヘテロアリール環を形成することが好ましい。

[01 88] 一般式 (TC-1) において、*m* は 3 であることが好ましく、*n* は 0 であることが好ましい。

[01 89] 一般式 (TC-1) は、好ましくは下記一般式 (TC-2) である。

[01 90]

[化40]



[0191] (一般式 (TC-2) 中、 $R_{T3'}$ ~ $R_{T5'}$ 、 R_{T3} 、 R_{T6} 、及び R_{TC1} ~ R_{TC4} はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シアノ基、ペルフルオロアルキル基、トリフルオロビニル基、 $-CO_2R_T$ 、 $-C(O)R_T$ 、 $-N(R_T)$ 、 $-NO_2$ 、 $-OR_T$ 、ハロゲン原子、アリール基又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 T を有していてもよい。

$R_{T3'}$ 、 $R_{T4'}$ 、及び $R_{T5'}$ は隣り合う任意の 2 つが互いに結合して縮合 4 ~ 7 員環を形成してもよく、該縮合 4 ~ 7 員環は更に置換基 T を有していてもよい。

$R_{T3'}$ と R_{T6} は、 $-C(R_T)_2-C(R_T)_2-$ 、 $-CR_T=CR_T-$ 、 $-C(R_T)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-NR_T-$ 、 $-O-C(R_T)_2-$ 、 $-NR_T-C(R_T)_2-$ 及び $-N=CR_T-$ から選択される連結基によって連結されて環を形成してもよい。

R_T はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基、又はヘテロアリール基を表し、更に置換基 T を有していてもよい。

置換基 T はそれぞれ独立に、フッ素原子、 $-R'$ 、 $-OR'$ 、 $-N(R')$ 、 $-SR'$ 、 $-C(O)R'$ 、 $-C(O)OR'$ 、 $-C(O)N(R')$

2、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{NO}_2$ 、 $-\text{SO}_2$ 、 $-\text{SOR}'$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}$ 、又は $-\text{SO}_3\text{R}$ 、を表し、 R' はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ヘテロアルキル基、アリール基又はヘテロアリール基を表す。

W は、水素原子若しくは置換基 T が結合した炭素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表す。

($\text{X}-\text{Y}$) は、配位子を表す。 m は 1~3 の整数、 n は 0~2 の整数を表す。 $m+n$ は 3 である。)

[01 92] 一般式 (TC-2) における $\text{R}_{\text{T}3}$ 、 $\sim \text{R}_{\text{T}5}$ 、 $\text{R}_{\text{T}3}$ 及び $\text{R}_{\text{T}6}$ 、($\text{X}-\text{Y}$)、 m 及び η の好ましい範囲は、一般式 (TC-1) における $\text{R}_{\text{T}3}' \sim \text{R}_{\text{T}5}$ 、 $\text{R}_{\text{T}3}$ 及び $\text{R}_{\text{T}6}$ 、($\text{X}-\text{Y}$)、 m 及び n の好ましい範囲と同様である。

$\text{R}_{\text{TC}1} \sim \text{R}_{\text{TC}4}$ の好ましい範囲は $\text{R}_{\text{T}3}$ の好ましい範囲と同様であり、水素原子、アルキル基、アリール基であることが好ましく、水素原子であることがより好ましい。

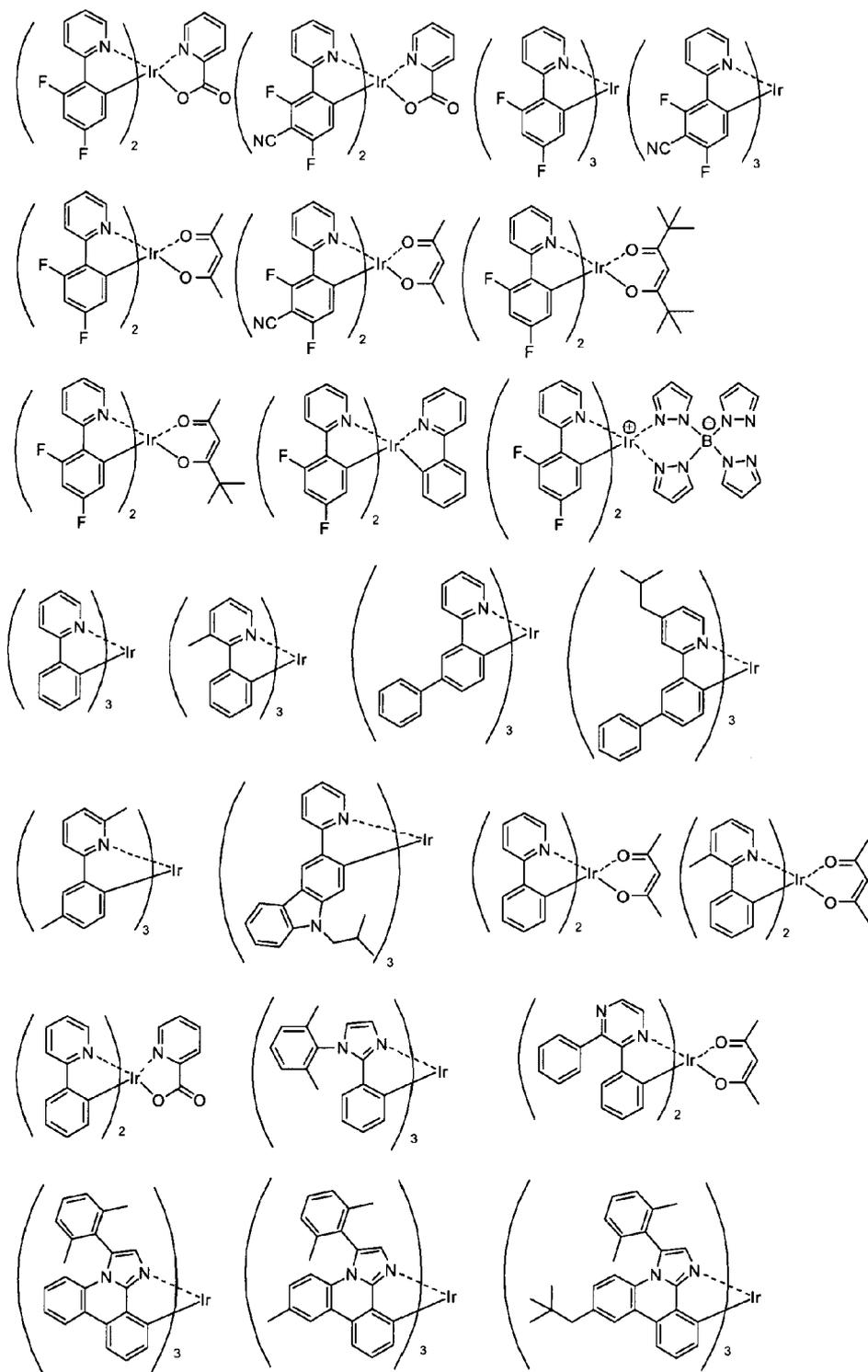
W は置換基 τ を有する炭素原子であることが好ましく、該置換基 τ としてはアルキル基が好ましく、該アルキル基としては、好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、 t -ブチル基であり、より好ましくはメチル基である。

また、一般式 (TC-1) については特開 2008-147353 号公報にも記載されている。

[01 93] 一般式 (T-1) で表される化合物の好ましい具体例を以下に列挙するが、以下に限定されるものではない。

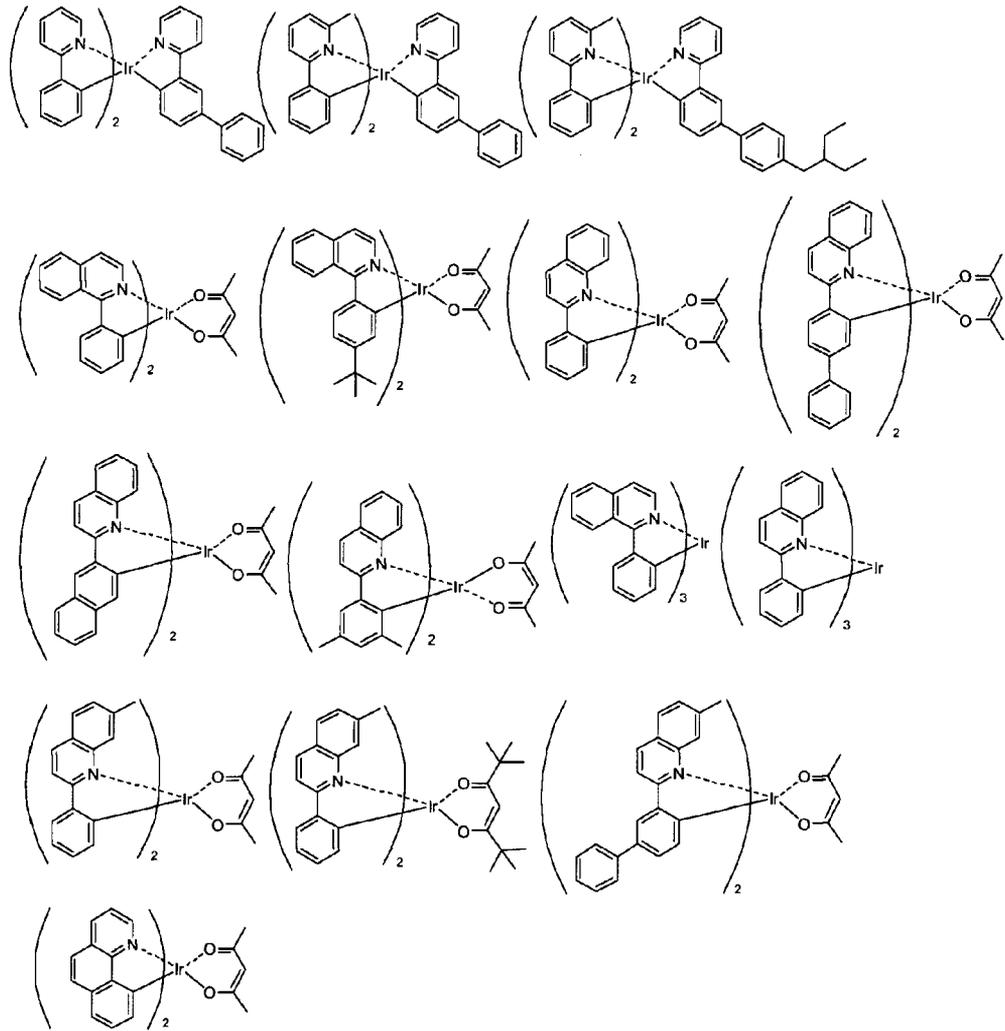
[01 94]

[化41]



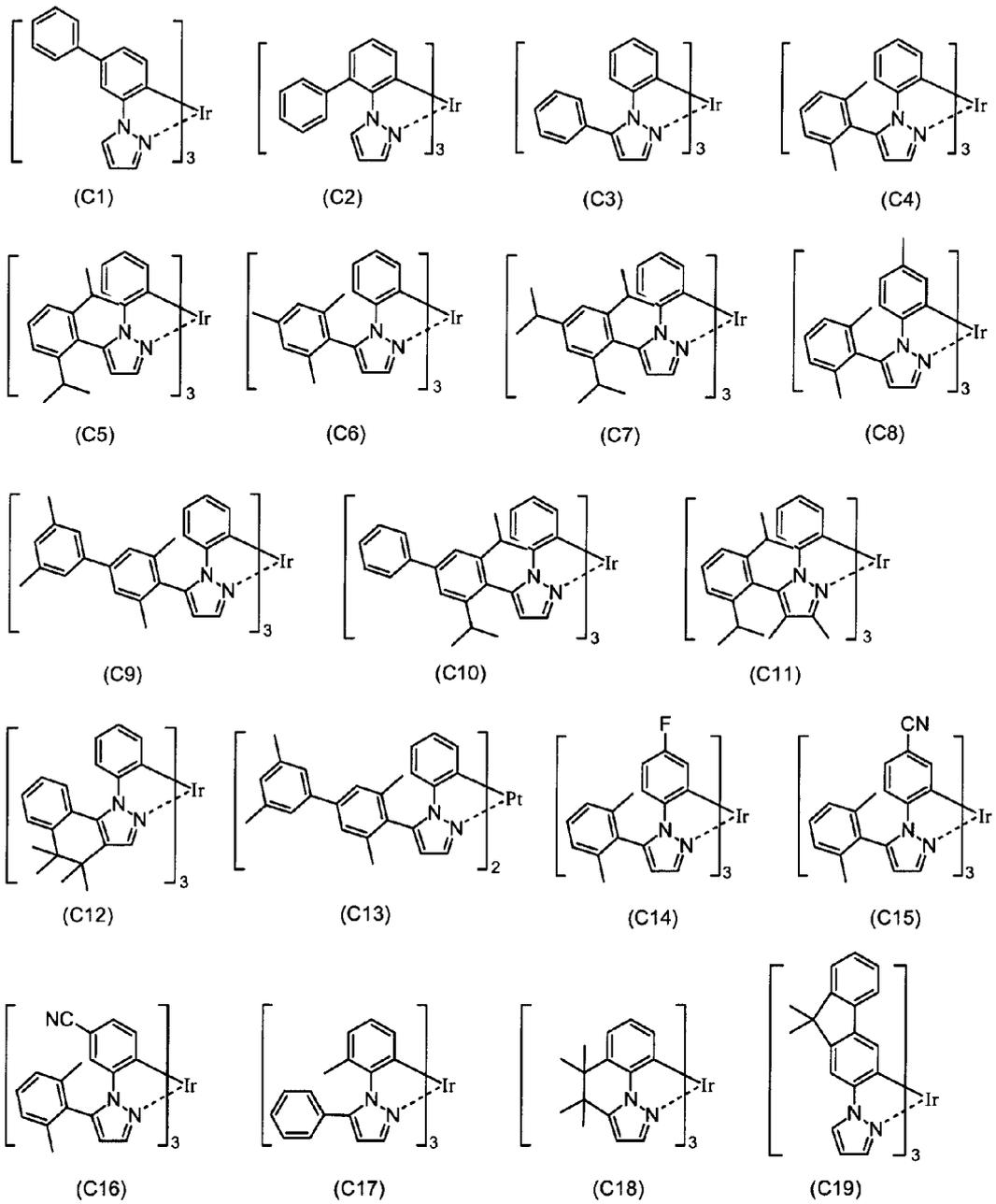
[0195]

[化 42]



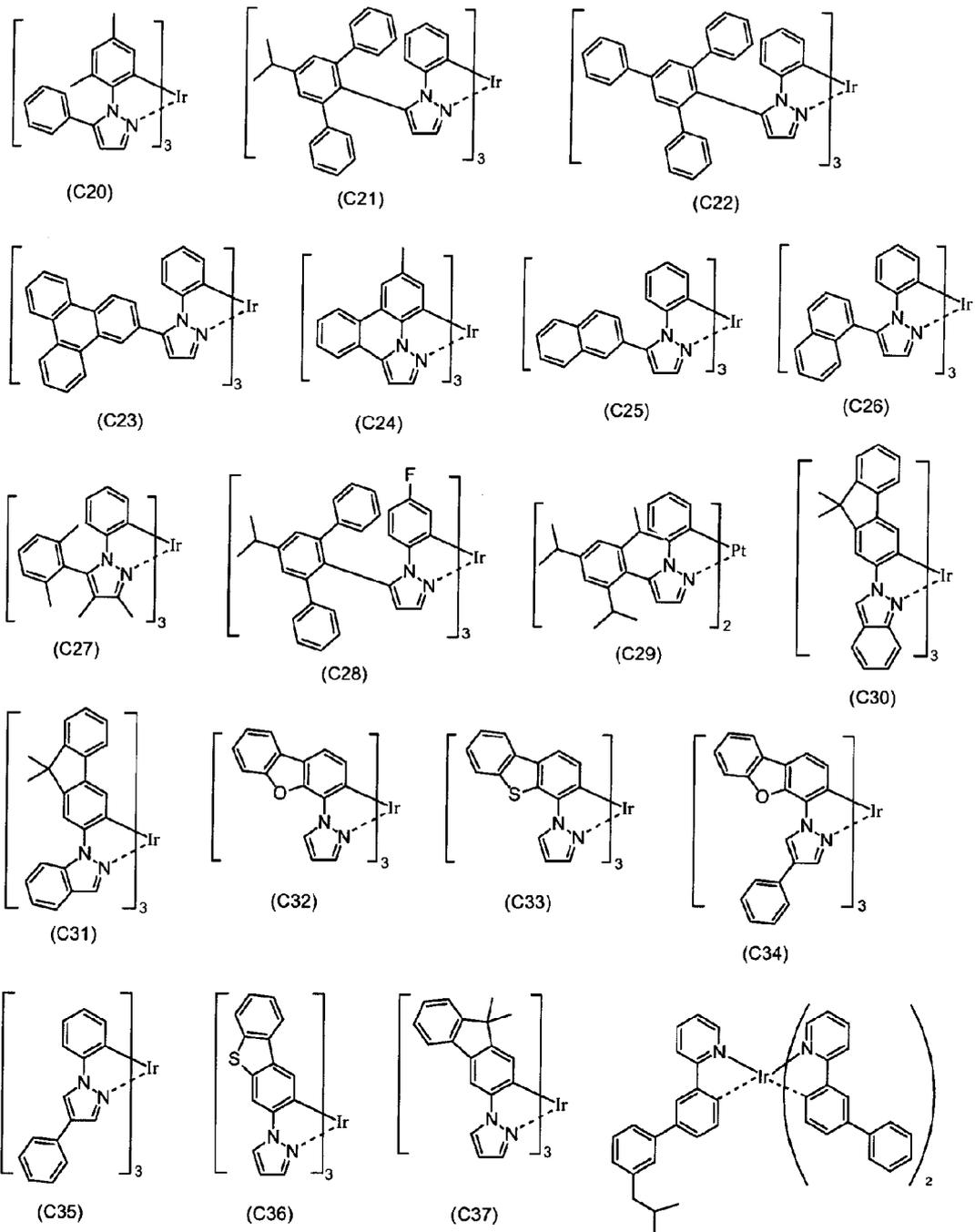
[0196]

[化43]



[01 97]

[化44]



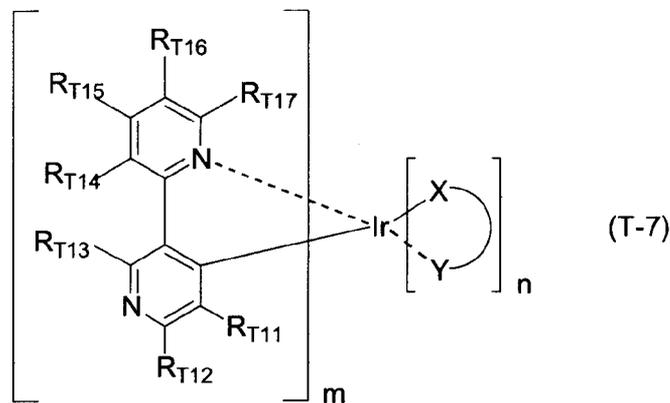
[0198] 上記一般式 (T-1) で表される化合物として例示した化合物は、特開 2009-99783 号公報に記載の方法や、米国特許 7279232 号等に記載の種々の方法で合成できる。合成後、カラムクロマトグラフィー、再結晶等による精製を行った後、昇華精製により精製することが好ましい。昇華

精製により、有機不純物を分離できるだけでなく、無機塩や残留溶媒等を効果的に取り除くことができる。

[0199] 一般式 (T-1) で表される化合物は、発光層に含有されるが、その用途が限定されることはなく、更に有機層内のいずれの層に更に含有されてもよい。

[0200] イリジウム錯体として、一般式 (T-1) で表される化合物以外に、下記一般式 (T-7) で表される化合物や、カルベンを配位子として有するものも好ましく用いることができる。

[0201] [化45]

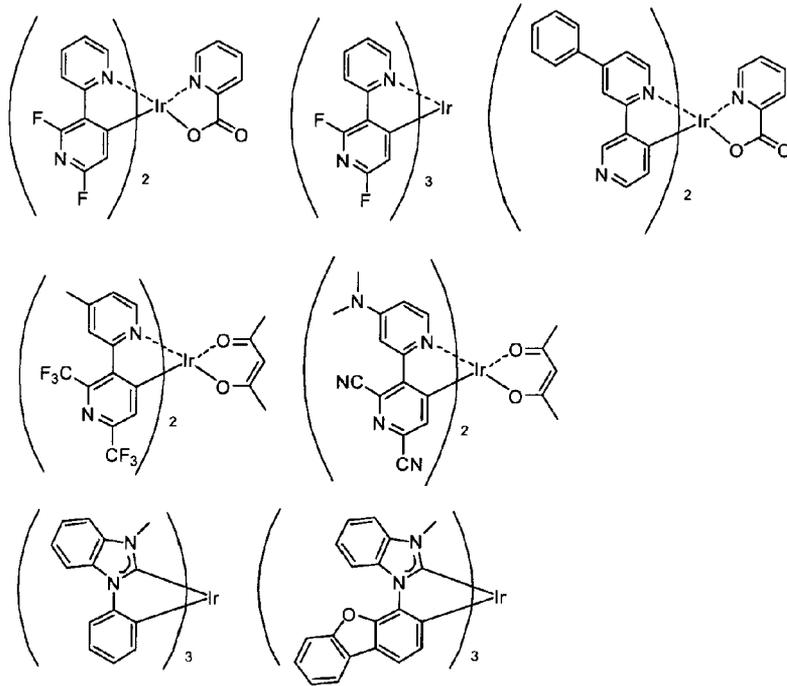


[0202] 一般式 (T-7) 中、 $R_{T11} \sim R_{T17}$ は、一般式 (T-2) における $R_{T3} \sim R_{T6}$ と同義であり、好ましい範囲も同様である。また、 (X_Y) 、 n 、及び m は一般式 (T-2) における (X_Y) 、 n 、及び m と同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0203] これらの好ましい具体例を以下に列挙するが、以下に限定されるものではない。

[0204]

[化46]



[0205] 発光層中の発光材料は、発光層中に一般的に発光層を形成する全化合物質量に対して、0.1質量%～50質量%含有されるが、耐久性、外部量子効率の観点から1質量%～50質量%含有されることが好ましく、2質量%～40質量%含有されることがより好ましい。

[0206] 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～500 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～200 nmであるのがより好ましく、5 nm～100 nmであるのが更に好ましい。

[0207] 本発明の素子における発光層は、ホスト材料と発光材料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、ドープメ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。

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。

[0208] < ホスト材料 >

本発明に用いられるホスト材料は、一般式 (1) で表される化合物であることが好ましい。

[0209] 本発明に用いられるホスト材料として、一般式 (1) で表される化合物の他、以下の化合物を含有していても良い。

ホスト材料は電子輸送材料及びホール輸送性材料を挙げることができ、電荷輸送材料であることが好ましい。ホスト材料は1種であっても2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。

例えば、ピロール、インドール、カルバゾール (例えばCBP (4,4'-ジ(9-カルバゾリル)ビフェニル)、3,3'-ジ(9-カルバゾリル)ビフェニル)、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、カルポジイミド、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。

[021 0] 本発明における発光層において、前記ホスト材料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。

[021 1] また、本発明におけるホスト化合物の含有量は、特に限定されるものではないが、発光効率、駆動電圧の観点から、発光層を形成する全化合物質量に対して15質量%以上95質量%以下であることが好ましい。

[021 2] （電荷輸送層）

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

[021 3] （正孔注入層、正孔輸送層）

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

正孔注入層、正孔輸送層については、例えば、特開2008_270736、特開2007_266458に詳述されており、これらの公報に記載の事項を本発明に適用することができる。

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

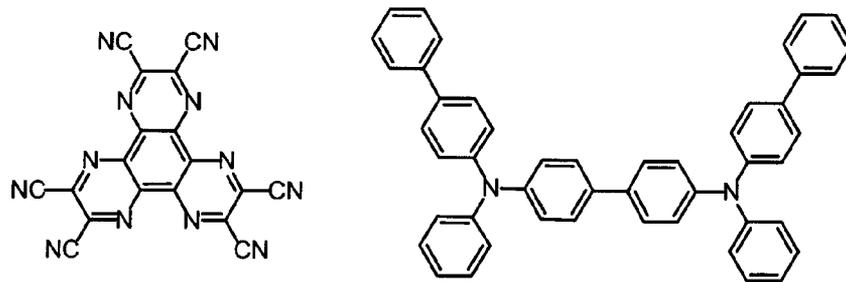
正孔注入層の厚さとしては、0.1nm~200nmであるのが好ましく、0.5nm~100nmであるのがより好ましく、1nm~100nmで

あるのが更に好ましい。

また、本発明においては、前記一般式 (H-1) で表される化合物を正孔注入層、又は正孔輸送層に含有することが好ましく、正孔注入層に含有することがより好ましい。

また、下記化合物も正孔注入材料・正孔輸送材料として用いることができる。

[0214] [化47]



[0215] 正孔注入層には電子受容性ドーパントを含有することが好ましい。正孔注入層に電子受容性ドーパントを含有することにより、正孔注入性が向上し、駆動電圧が低下する、効率が向上するなどの効果がある。電子受容性ドーパントとは、ドーパされる材料から電子を引き抜き、ラジカルカチオンを発生させることが可能な材料であれば有機材料、無機材料のうちいかなるものでもよいが、例えば、テトラシアノキノジメタン (TCNQ)、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン (F₄-TCNQ)、酸化モリブデンなどが挙げられる。

[0216] 正孔注入層中の電子受容性ドーパントは、正孔注入層を形成する全化合物質量に対して、0.1質量%~50質量%含有されることが好ましく、0.1質量%~40質量%含有されることがより好ましく、0.5質量%~30質量%含有されることがより好ましい。

[0217] (電子注入層、電子輸送層)

電子注入層、電子輸送層は、陰極又は陰極側から電子を受け取り陽極側に輸送する機能を有する層である。これらの層に用いる電子注入材料、電子輸

送材料は低分子化合物であつても高分子化合物であつてもよい。

電子注入層、電子輸送層については、例えば、特開2008-270736、特開2007-266458に詳述されており、これらの公報に記載の事項を本発明に適用することができる。

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

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

また、本発明においては、前記一般式(1)で表される化合物を電子注入層、又は電子輸送層に含有することが好ましく、電子輸送層に含有することがより好ましい。

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

[0218] 電子注入層中の電子供与性ドーパントは、電子注入層を形成する全化合物質量に対して、0.1質量%~50質量%含有されることが好ましく、0.1質量%~40質量%含有されることがより好ましく、0.5質量%~30質量%含有されることがより好ましい。

[0219] (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、陰極側に通じ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、本発明における一般式(1)で表される化合物のほか、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、トリフェニレン誘導体、カルバゾール誘導体等が挙げられる。

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

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。

[0220] (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、陽極側に通じぬけることを防止する機能を有する層である。本発明において、発光層と陽極側で隣接する有機層として、電子ブロック層を設けることができる。

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

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

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。

[0221] (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。

保護層に含まれる材料としては、水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。

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。

[0222] (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。

また、封止容器と発光素子の間の空間に水分吸収剤又は不活性液体を封入してもよい。水分吸収剤としては、特に限定されることはないが、例えば、酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化燐、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシープ、ゼオライト、酸化マグネシウム等を挙げることができる。不活性液体としては、特に限定されることはないが、例えば、パラフィン類、流動パラフィン類、ペルフルオロアルカンヤペルフルオロアミン、ペルフルオロエーテル等のフッ素系溶剤、塩素系溶剤、シリコーンオイル類が挙げられる。

[0223] (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2784

615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。

[0224] 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。外部量子効率の数値は20℃で素子を駆動したときの外部量子効率の最大値、若しくは、20℃で素子を駆動したときの100～300cd/m²付近での外部量子効率の値を用いることができる。

[0225] 本発明の有機電界発光素子の内部量子効率は、30%以上であることが好ましく、50%以上が更に好ましく、70%以上が更に好ましい。素子の内部量子効率は、外部量子効率を光取り出し効率で除して算出される。通常の有機EL素子では光取り出し効率は約20%であるが、基板の形状、電極の形状、有機層の膜厚、無機層の膜厚、有機層の屈折率、無機層の屈折率等を工夫することにより、光取り出し効率を20%以上にすることが可能である。

[0226] 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。

[0227] （本発明の発光素子の用途）

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

[0228] （発光装置）

次に、図2を参照して本発明の発光装置について説明する。

本発明の発光装置は、前記有機電界発光素子を用いてなる。

図2は、本発明の発光装置の一例を概略的に示した断面図である。

図2の発光装置20は、基板（支持基板）2、有機電界発光素子10、封

止容器 16 等により構成されている。

[0229] 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。

[0230] 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。

[0231] （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 からの発光が光散乱部材 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

[0232] 以下、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0233] 実施例で使用した一般式(1)で表される化合物は、国際公開第03/080760号パンフレット、国際公開第03/078541号パンフレット、国際公開第05/085387号パンフレット、国際公開第05/022962号パンフレット等を参考に合成した。例えば、化合物(a₃)は、*m*-プロモベンゾアルデヒドを出発原料に用い、国際公開第05/085387号パンフレット[0074] - [0075] (45頁、11行~46頁、18行)に記載の方法で合成することができる。

一般式(H-1)で表される化合物は特開2006-151979号公報を参考に合成した。

[0234] なお、本実施例に用いた有機材料は全て昇華精製したものをを用い、高速液体クロマトグラフィー(東ソーTSKgel 0DS-100Z)により分析し、254nmの吸収強度面積比で99.9%以上のものをを用いた。

[0235] [実施例1~30、比較例1~20]

<有機電界発光素子の作製>

厚み0.7mm、2.5cm角の酸化インジウム錫(ITO)膜を有するガラス基板(ITO膜厚は120nm)を洗浄容器に入れ、2-プロパノール中で超音波洗浄した後、30分間UV-オゾン処理を行った。この透明陽極(ITO膜)上に真空蒸着装置(トツキ社製、SMALL-ELVES)を用いて真空蒸着法にて以下の有機化合物層を順次蒸着した。

第1層(正孔注入層):表1に示した材料:膜厚60nm

第2層:NPD:膜厚30nm

第3層:CBP及びIr(ppy)₃(質量比95:5):膜厚30nm

第4層(電子輸送層):表1に示した材料:膜厚30nm

該第4層上に、BCP1nm及びフッ化リチウム1nm及び金属アルミニ

ウム 100 nm をこの順に蒸着し陰極とした。

この積層体を、大気に触れさせることなく、窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止缶及び紫外線硬化型の接着剤 (XNR 5516HV、長瀬チバ(株)製)を用いて封止し、有機電界発光素子を得た。

[0236] (評価)

作製した有機電界発光素子の低輝度及び高輝度駆動時の発光効率、並びに駆動耐久性の初期落ち時間を以下のように評価した。

[0237] < 発光効率の測定 >

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計SR-3を用いて測定した。これらを元に輝度が100 cd/m²での外部量子効率、及び輝度が15000 cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

[0238] < 駆動耐久性の初期落ち時間の測定 >

素子を初期輝度15000 cd/m²にて定電流駆動させ、輝度が初期の95%になる時間(すなわち輝度が初期から5%落ちる時間)を測定した。

結果は、比較例1の初期落ち時間を100として相対値で示した。

[0239]

ほ 1]

表1

	正孔 注入層 材料	電子 輸送層 材料	外部量子 効率(%) (100cd/m ²)	外部量子 効率(%) (15,000cd/m ²)	初期落ち 時間(相対値) (15,000cd/m ²)
実施例 1	h-1	a-3	14.0	13.1	380
実施例 2	h-1	a-5	14.1	12.3	340
実施例 3	h-1	a-28	13.8	12.2	330
実施例 4	h-1	a-32	14.1	12.6	260
実施例 5	h-1	a-34	13.9	12.7	280
実施例 6	h-1	a-55	13.9	12.7	340
実施例 7	h-1	a-56	14.1	12.3	380
実施例 8	h-1	a-57	13.8	11.2	330
実施例 9	h-1	a-58	14.1	12.1	360
実施例 10	h-2	a-3	13.8	12.9	330
実施例 11	h-3	a-3	14.3	12.3	340
実施例 12	h-4	a-3	13.6	11.2	350
実施例 13	h-5	a-3	13.2	11.4	220
実施例 14	h-6	a-3	13.3	11.1	230
実施例 15	h-7	a-3	12.8	11.1	220
実施例 16	h-8	a-3	12.6	11.3	230
実施例 17	h-9	a-3	13.8	11.4	240
実施例 18	h-26	a-3	13.5	12.3	320
実施例 19	h-27	a-3	13.2	12.3	330
実施例 20	h-28	a-3	13.4	12.1	310
実施例 21	h-29	a-3	13.8	12.6	300
実施例 22	h-30	a-3	13.6	12.3	230
実施例 23	h-31	a-3	13.9	12.1	240
実施例 24	h-32	a-3	13.2	12.4	220
実施例 25	h-33	a-3	13.9	12.5	290
実施例 26	h-34	a-3	13.2	12.7	300
実施例 27	h-35	a-3	13.4	12.4	310
実施例 28	h-36	a-3	12.9	11.9	320
実施例 29	h-37	a-3	12.8	11.9	310
実施例 30	h-38	a-3	13.7	12.8	310
比較例 1	2TNATA	Alq	9.8	9.5	100
比較例 2	h-1	Alq	10.6	9.8	120
比較例 3	h-1	ETL-A	11.3	10.1	130
比較例 4	h-1	ETL-B	10.8	10.3	130
比較例 5	h-1	ETL-C	10.7	10.5	150
比較例 6	h-2	ETL-A	10.8	9.8	130
比較例 7	h-3	ETL-A	10.9	9.1	140
比較例 8	h-4	ETL-A	10.9	9.9	210
比較例 9	h-5	ETL-A	10.8	9.5	150
比較例 10	CuPc	a-3	11.9	9.8	150
比較例 11	2TNATA	a-3	11.7	10.1	130
比較例 12	Ir(ppy) ₃	a-3	11.6	1.3	140
比較例 13	2TNATA	a-5	11.9	10.8	120
比較例 14	2TNATA	a-28	11.5	10.3	210
比較例 15	2TNATA	a-32	11.9	10.5	150
比較例 16	2TNATA	a-34	11.6	10.2	130
比較例 17	2TNATA	a-55	11.8	10.1	130
比較例 18	2TNATA	a-56	11.7	10.3	130
比較例 19	2TNATA	a-57	11.9	10.5	150
比較例 20	2TNATA	a-58	11.6	11.3	210

[0240] [実施例 3 1、比較例 2 1~2 3]

素子構成を、ガラス基板 / ITO (120 nm) / HIL-1 (10 nm) / 正孔輸送層 (80 nm) / BA1q+Ir-B (質量比95:5) (30 nm) / 電子輸送層 (30 nm) / BCP (1 nm) / LiF (1 nm) / Al (100 nm) に変更し、正孔輸送層の材料と電子輸送層の材料を下記表2に示すように変更した以外は上記実施例1と同様にして有機電界発光素子を作製した。

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計SR-3を用いて測定した。これらを元に輝度が100cd/m²での外部量子効率、及び輝度が3000cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度3000cd/m²にて定電流駆動させ、輝度が初期の95%になる時間（すなわち輝度が初期から5%落ちる時間）を、比較例21を100として相対値で示した。

結果を表2に示した。

[0241] [表2]

表2

	正孔輸送層材料	電子輸送層材料	外部量子効率(%) (100cd/m ²)	外部量子効率(%) (3000cd/m ²)	初期落ち時間(相対値) (3000cd/m ²)
実施例31	h-1	a-3	11.0	9.7	250
比較例21	NPD	ETL-A	8.8	8.2	100
比較例22	NPD	a-3	10.9	9.2	110
比較例23	h-1	ETL-A	10.3	9.1	120

[0242] [実施例32、比較例24~26]

素子構成を、ガラス基板 / ITO (120 nm) / 正孔注入層 (60 nm) / HIL-1 (10 nm) / NPD (20 nm) / Zn-1+Ir-B (質量比95:5) (30 nm) / 電子輸送層 (30 nm) / Alq (1 nm) / LiF (1 nm) / Al (100 nm) に変更し、正孔注入層の材料と電子輸送層の材料を下記表3に示すように変更した以外は上記実施例1と同

様にして有機電界発光素子を作製した。

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計SR-3を用いて測定した。これらを元に輝度が100cd/m²での外部量子効率、及び輝度が3000cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度3000cd/m²にて定電流駆動させ、輝度が初期の95%になる時間（すなわち輝度が初期から5%落ちる時間）を、比較例24を100として相対値で示した。

結果を表3に示した。

[0243] [表3]

表3

	正孔注入層材料	電子輸送層材料	外部量子効率(%) (100cd/m ²)	外部量子効率(%) (3000cd/m ²)	初期落ち時間(相対値) (3000cd/m ²)
実施例32	h-2	a-3	13.2	12.1	340
比較例24	2TNATA	ETL-A	10.2	10.0	100
比較例25	2TNATA	a-3	11.9	10.3	140
比較例26	h-2	ETL-A	12.2	11.1	150

[0244] [実施例33、比較例27~29]

素子構成を、ガラス基板/ITO(120nm)/正孔注入層(60nm)/HTL-A(30nm)/a-3+Ir-A(質量比95:5)(30nm)/電子輸送層(30nm)/Alq(1nm)/LiF(1nm)/Al(100nm)に変更し、正孔注入層の材料と電子輸送層の材料を下記表4に示すように変更した以外は上記実施例1と同様にして有機電界発光素子を作製した。

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計SR-3を用いて測定した。これらを元に輝度が100cd/m²での外部量子効率、及び輝度が15000cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度 15000 cd/m^2 にて定電流駆動させ、輝度が初期の 95% になる時間（すなわち輝度が初期から 5% 落ちる時間）を、比較例 27 を 100 として相対値で示した。

結果は表 4 に示した。

[0245] [表4]

表4

	正孔 注入層 材料	電子 輸送層 材料	外部量子 効率(%) (100 cd/m^2)	外部量子 効率(%) ($15,000 \text{ cd/m}^2$)	初期落ち 時間(相対値) ($15,000 \text{ cd/m}^2$)
実施例 33	h-2	a-3	14.2	13.2	360
比較例 27	2TNATA	ETL-A	10.2	9.2	100
比較例 28	2TNATA	a-3	10.9	10.2	140
比較例 29	h-2	ETL-A	11.3	10.1	130

[0246] [実施例 34、比較例 30～32]

素子構成を、ガラス基板 / ITO (120 nm) / 正孔注入層 (60 nm) / NPD (30 nm) / mCP+Ir-C (質量比 85 : 15) (30 nm) / 電子輸送層 (30 nm) / Liq (1 nm) / Al (100 nm) に変更し、正孔注入層の材料と電子輸送層の材料を下記表 5 に示すように変更した以外は上記実施例 1 と同様にして有機電界発光素子を作製した。

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット 2400 を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計 SR-3 を用いて測定した。これらを元に輝度が 100 cd/m^2 での外部量子効率、及び輝度が 2000 cd/m^2 での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度 2000 cd/m^2 にて定電流駆動させ、輝度が初期の 95% になる時間（すなわち輝度が初期から 5% 落ちる時間）を、比較例 30 を 100 として相対値で示した。

結果を表 5 に示した。

[0247]

[表5]

表5

	正孔注入層材料	電子輸送層材料	外部量子効率(%) (100cd/m ²)	外部量子効率(%) (2000cd/m ²)	初期落ち時間(相対値) (2000cd/m ²)
実施例 34	h-3	a-28	10.2	9.2	330
比較例 30	2TNATA	ETL-A	9.2	8.5	100
比較例 31	2TNATA	a-28	9.9	9.2	150
比較例 32	h-3	ETL-A	9.3	7.3	140

[0248] [実施例 3 5、比較例 3 3]

正孔注入層及び電子輸送層に下記表 6 に示した材料を用い、下記素子構成の有機電界発光素子を作成した。

素子構成 : ガラス基板 / ITO (70 nm) / 正孔注入層 (95 nm) / B-2 + 錯体 K-1 (質量比 93 : 7) (40 nm) / a-3 (電子輸送層) (25 nm) / Alq (5 nm) / LiF (1 nm) / Al (150 nm)

得られた素子を以下のように評価した。

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計SR-3を用いて測定した。これらを元に輝度が100cd/m²での外部量子効率、及び輝度が15000cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度2,000cd/m²にて定電流駆動させた際、輝度が初期の95%になる時間(すなわち輝度が初期から5%落ちる時間)を、比較例33の結果を100として相対値で示した。

結果を表6に示した。

[0249] [表6]

表6

	正孔注入層	電子輸送層	外部量子効率 (100cd/m ²)	外部量子効率 (15,000cd/m ²)	初期落ち時間 (相対値)
比較例 33	TCTA	a-3	8.0%	6.0%	100
実施例 35	h-1	a-3	9.2%	7.7%	220

[0250] 上記表 6 の結果から、実施例 3 5 の素子は、比較例 3 3 の素子に対して、高輝度駆動時の効率の低下が抑制され、かつ初期落ち時間が長いことがわかる。

[0251] [実施例 3 6、比較例 3 4]

正孔注入層及び電子輸送層に下記表 7 に示した材料を用い、下記素子構成の有機電界発光素子を作成した。

素子構成：ガラス基板／ITO (70 nm)／正孔注入層 (80 nm)／mCP (10 nm)／化合物 A + 化合物 D (質量比 92.5 : 7.5) (40 nm) / a-3 (電子輸送層) (30 nm) / Alq (5 nm) / LiF (0.1 nm) / Al (150 nm)

得られた素子を以下のように評価した。

KEITHLEY 社製ソースメジャーユニット 2400 を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計 SR-3 を用いて測定した。これらを元に輝度が 100 cd/m²での外部量子効率、及び輝度が 15000 cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度 2,000 cd/m²にて定電流駆動させた際、輝度が初期の 95% になる時間 (すなわち輝度が初期から 5% 落ちる時間) を、比較例 3 4 の結果を 100 として相対値で示した。

[0252] [表 7]

表 7

	正孔注入層	電子輸送層	外部量子効率 (100cd/m ²)	外部量子効率 (15,000cd/m ²)	初期落ち時間 (相対値)
比較例 34	TCTA	a-3	7.5%	6.0%	100
実施例 36	h-1	a-3	8.5%	8.0%	210

[0253] 上記表 7 の結果から、実施例 3 6 の素子は、比較例 3 4 の素子に対して、高輝度駆動時の効率の低下が抑制され、かつ初期落ち時間が長いことがわかる。

[0254] [実施例 3 7、比較例 3 5]

正孔注入層及び電子輸送層に下記表 8 に示した材料を用い、下記素子構成

の有機電界発光素子を作成した。

素子構成 : ガラス基板 / ITO (130 nm) / h-3 (正孔注入層) (160 nm) / NPD (30 nm) / CBP+Ir(ppy)₃ (質量比92 : 8) (30 nm) / 電子輸送層 (5 nm) / Alq (25 nm) / LiF (0.3 nm) / Al (150 nm)

得られた素子を以下のように評価した。

KEITHLEY社製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流電圧を各素子に印加し発光させ、その輝度と発光スペクトルをトプコン社製輝度計SR-3を用いて測定した。これらを元に輝度が100cd/m²での外部量子効率、及び輝度が15000cd/m²での外部量子効率を輝度換算法により算出した。

「初期落ち時間」は、素子を初期輝度15,000cd/m²にて定電流駆動させた際、輝度が初期の95%になる時間 (すなわち輝度が初期から5%落ちる時間) を、比較例36の結果を100として相対値で示した。

[0255] [表8]

表8

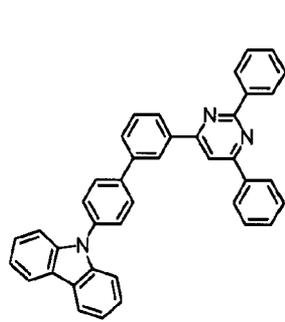
	正孔注入層	電子輸送層	外部量子効率 (100cd/m ²)	外部量子効率 (15,000cd/m ²)	初期落ち時間 (相対値)
比較例 35	h-3	BAIq	8.0%	4.0%	100
実施例 37	h-3	a-5	14.0%	11.0%	510

[0256] 上記表8の結果から、実施例37の素子は、比較例35の素子に対して、高輝度駆動時の効率の低下が抑制され、かつ初期落ち時間が長いことがわかる。

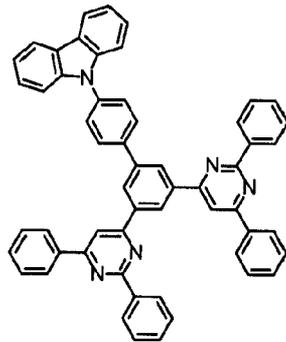
[0257] 表1~8の結果から、実施例の素子は、比較例の素子に対して、高輝度駆動時の効率の低下が抑制され、かつ初期落ち時間が長いことがわかる。また、例えば比較例1と比較例2との対比、及び比較例1と比較例11との対比により、本発明における電子輸送層の材料及び正孔注入層の材料をそれぞれ別個に使用した場合の特性向上幅よりも、本発明における電子輸送層の材料と正孔注入層の材料とを組み合わせた場合の特性向上幅のほうが高いことがわかる。

[0258] 以下に実施例及び比較例で用いた化合物を示す。

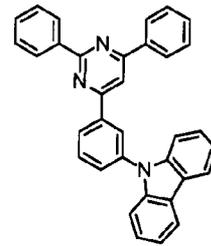
[0259] [化48]



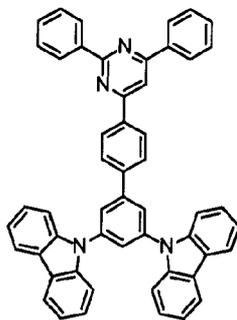
(a-3)



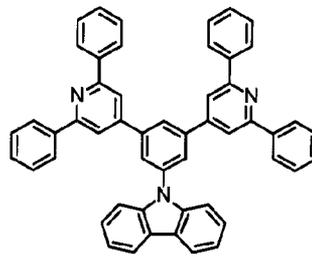
(a-5)



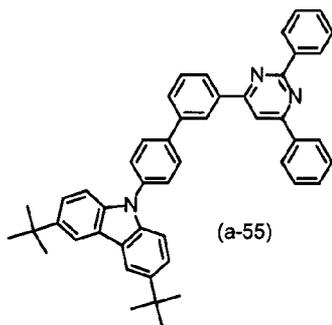
(a-28)



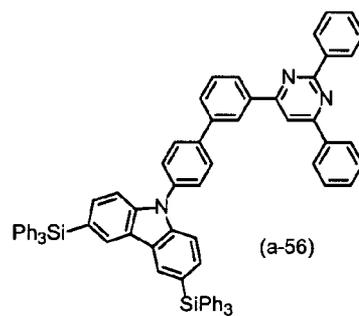
(a-32)



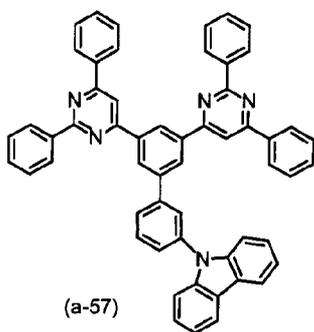
(a-34)



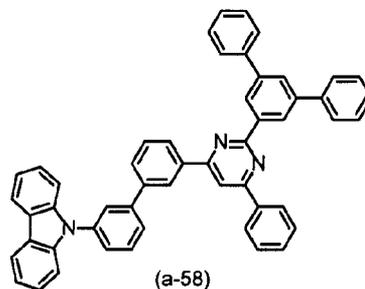
(a-55)



(a-56)

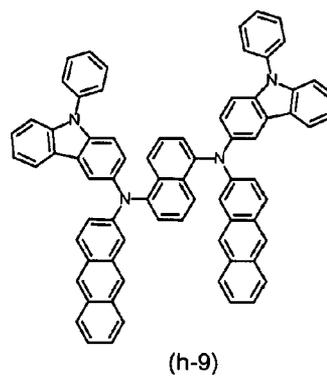
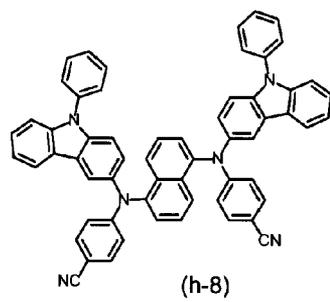
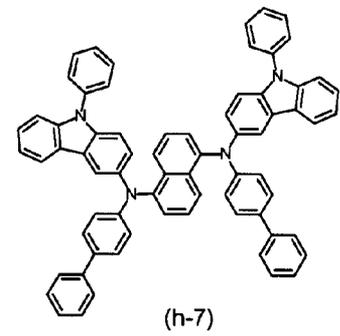
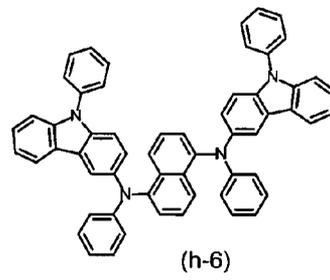
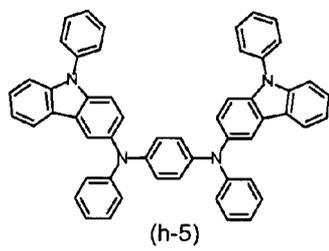
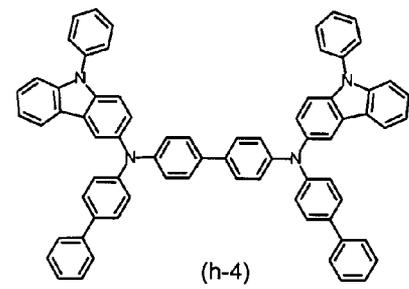
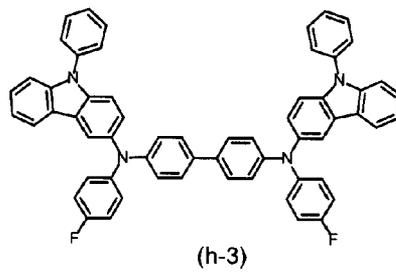
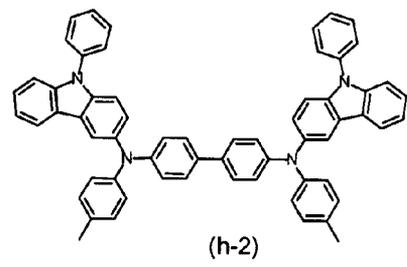
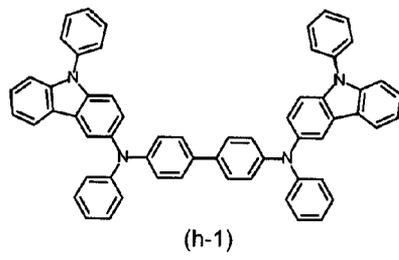


(a-57)



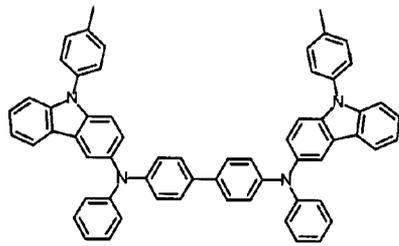
(a-58)

[0260] [化49]

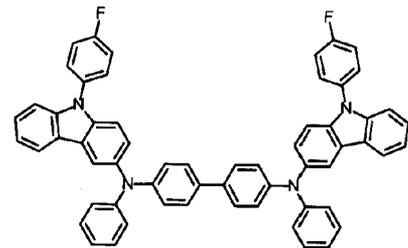


[026 1]

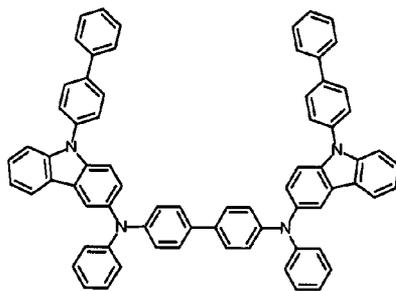
[化50]



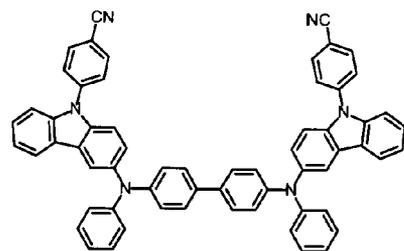
(h-26)



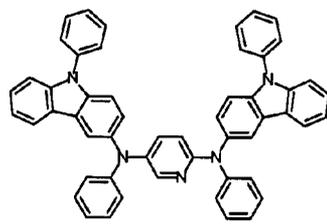
(h-27)



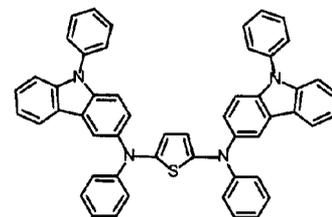
(h-28)



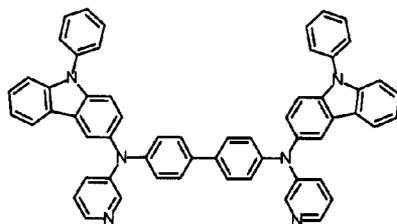
(h-29)



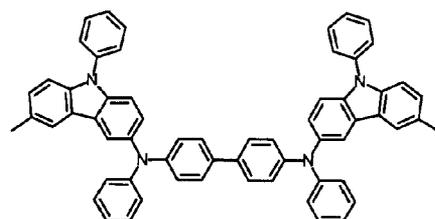
(h-30)



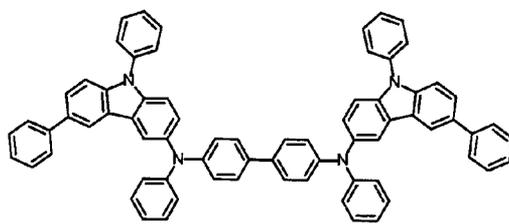
(h-31)



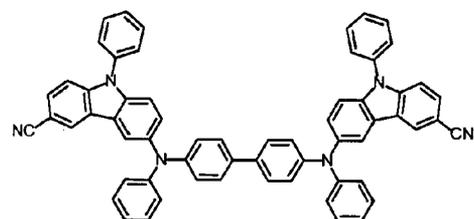
(h-32)



(h-33)



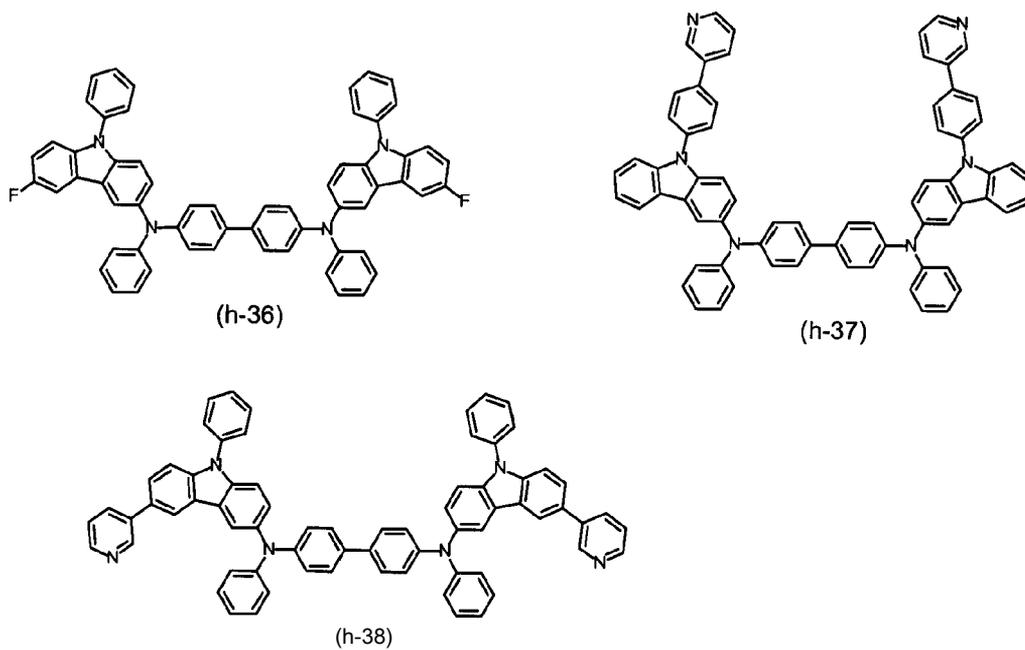
(h-34)



(h-35)

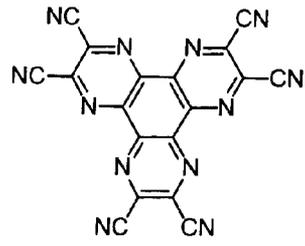
[0262]

[化51]

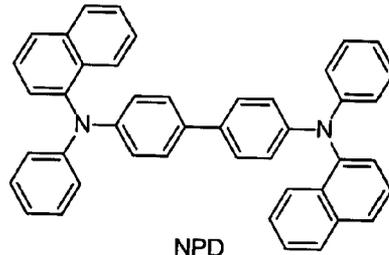


[0263]

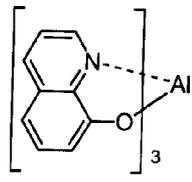
[化 52]



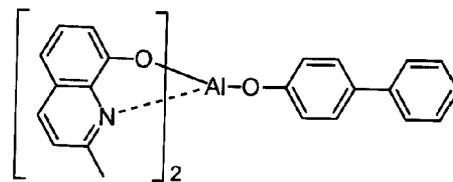
HIL-1



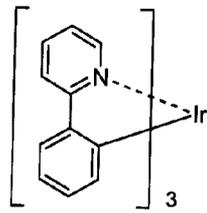
NPD



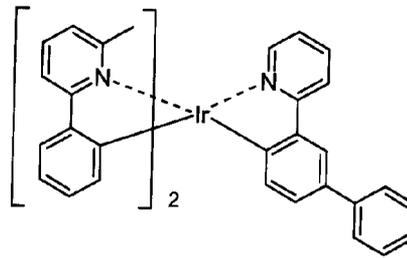
Alq



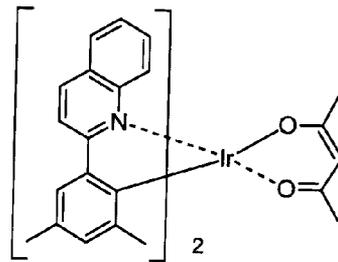
BAlq



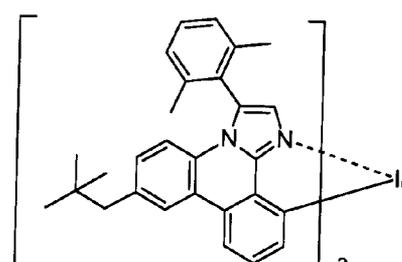
Ir(ppy)₃



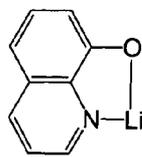
Ir-A



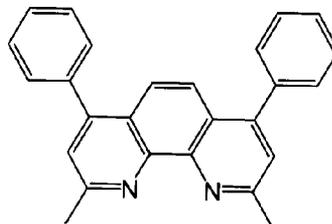
Ir-B



Ir-C



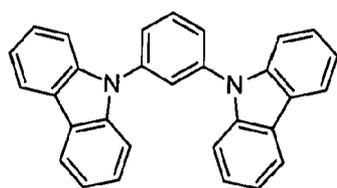
Liq



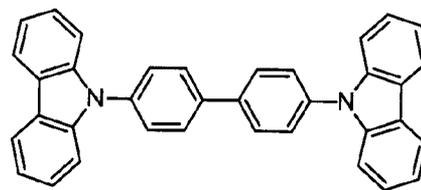
BCP

[0264]

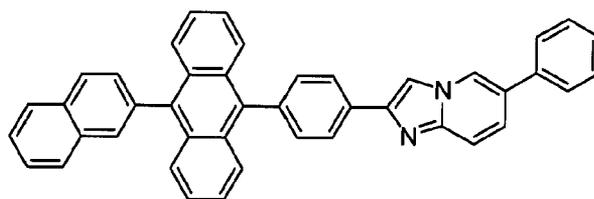
[化 53]



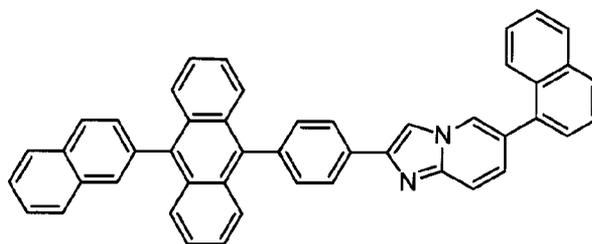
mCP



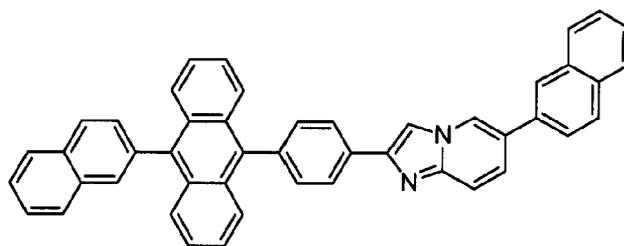
CBP



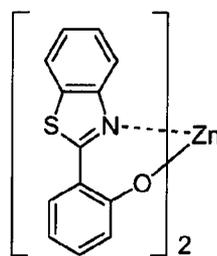
ETL-A



ETL-B

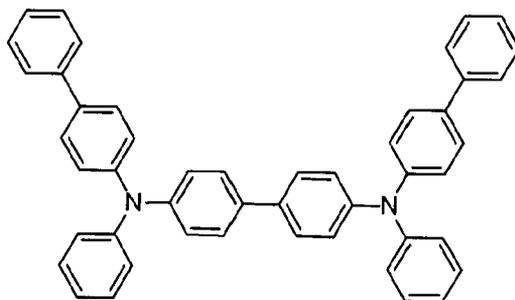


ETL-C

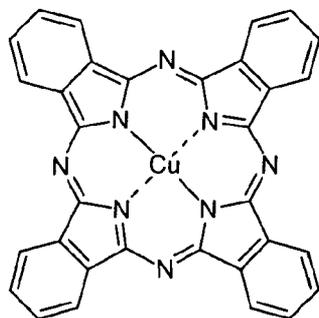


Zn-1

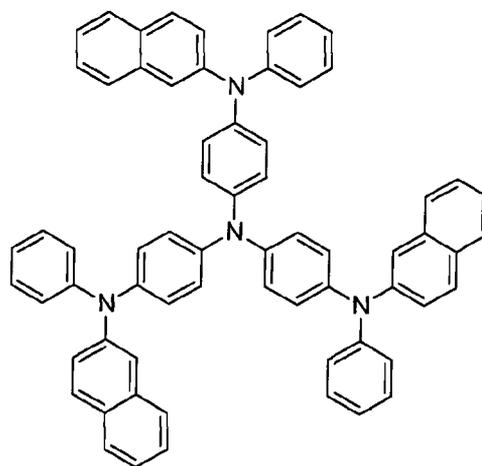
[0265] [化54]



HTL-A



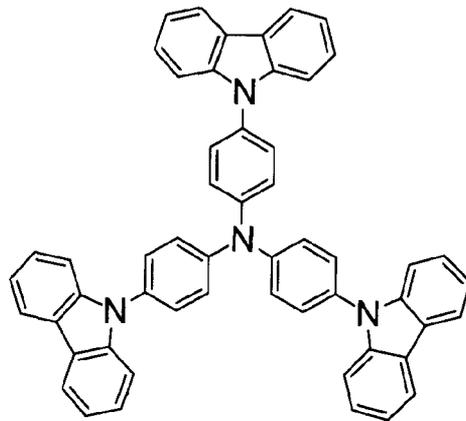
CuPc



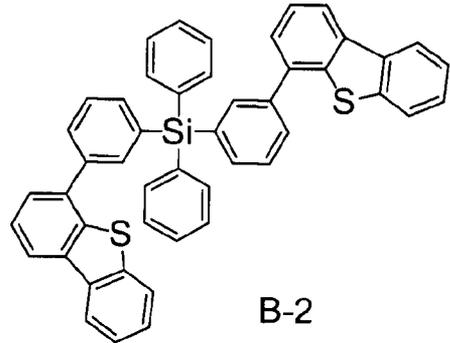
2TNATA

[0266]

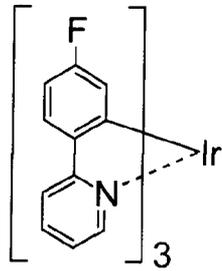
[化55]



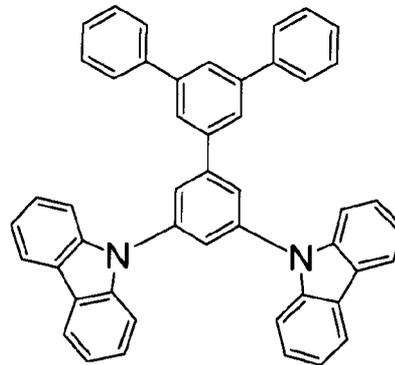
TCTA



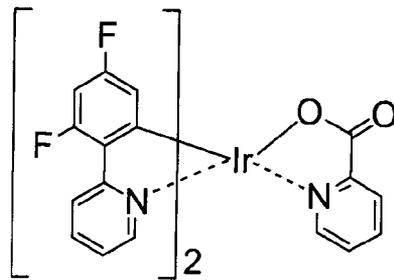
B-2



K-1



化合物A



化合物D

産業上の利用可能性

[0267] 本発明によれば、高輝度駆動時の効率の低下が少なく、かつ駆動耐久性の初期落ちが少ない有機電界発光素子を提供することができる。

[0268] 本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神

と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

本出願は、2010年7月9日出願の日本特許出願(特願2010-157352)に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

符号の説明

[0269]	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
	11 - - -	有機層
	12 . . . •	保護層
	14 . . - -	接着層
	16 - - -	封止容器
	20 - - -	発光装置
	30 . • -	光散乱部材
	31 . • -	透明基板
	30 A - - •	光入射面
	30 B - - •	光出射面
	32 - - -	微粒子
	40 . . . -	照明装置

請求の範囲

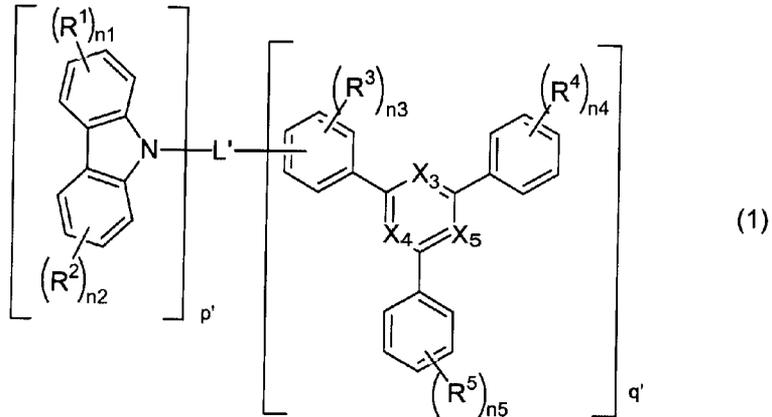
[請求項 1]

基板上に、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該電極間に発光層を有し、該発光層と該陽極の間に少なくとも一層の有機層を有し、該発光層と該陰極の間に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、

該発光層と該陰極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (1) で表される化合物を少なくとも一つ含有し、

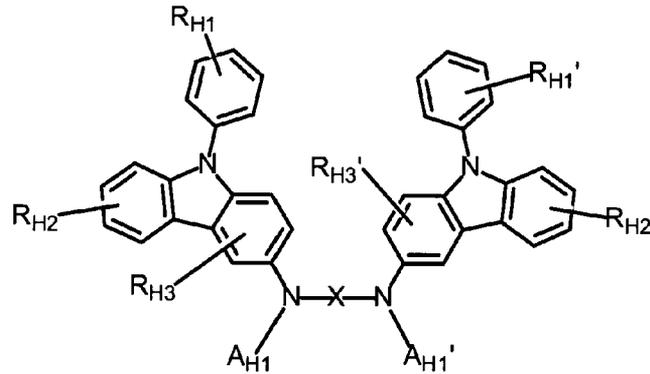
該発光層と該陽極の間の少なくとも一層の有機層に下記一般式 (H-1) で表される化合物を少なくとも一つ含有する有機電界発光素子。

[化 1]



(一般式 (1) 中、 X_3 、 X_4 及び X_5 はそれぞれ独立に窒素原子又は水素原子が結合した炭素原子であり、 χ_3 、 χ_4 及び χ_5 を含む環はピリジン又はピリミジンである。 L' は、単結合又はベンゼン環を表す。 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立にフッ素原子、メチル基、フェニル基、シアノ基、ピリジル基、ピリミジル基、シリル基、カルバゾリル基、又はtert-ブチル基を表す。 $n_1 \sim n_5$ はそれぞれ独立に0又は1を表し、 p' 及び q' はそれぞれ独立に1又は2を表す。)

[化2]



(H-1)

(一般式 (H-1) 中、 x は、置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若しくは無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換のアリールレン基、置換若しくは無置換の2個のヘテロ環基を表す。

R_{H1} 、 $R_{H1'}$ 、 R_{H2} 、 $R_{H2'}$ 、 R_{H3} 、及び $R_{H3'}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、ヒドロキシ基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。 R_{H1} 、 R_{H2} 、及び R_{H3} のうち少なくとも2つが互いに結合して環を形成してもよい。 $R_{H1'}$ 、 $R_{H2'}$ 、及び $R_{H3'}$ のうち少なくとも2つが互いに結合して環を形成してもよい。

A_{H1} 及び $A_{H1'}$ は、それぞれ独立に、置換若しくは無置換のアリール基、又は、置換若しくは無置換の芳香族ヘテロ環基である。))

[請求項2] 前記一般式 (H-1) において、 A_{H1} 及び $A_{H1'}$ が置換若しくは無置換のアリール基である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

[請求項3] 前記一般式 (H-1) において、 x が無置換のアリールレン基である、請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

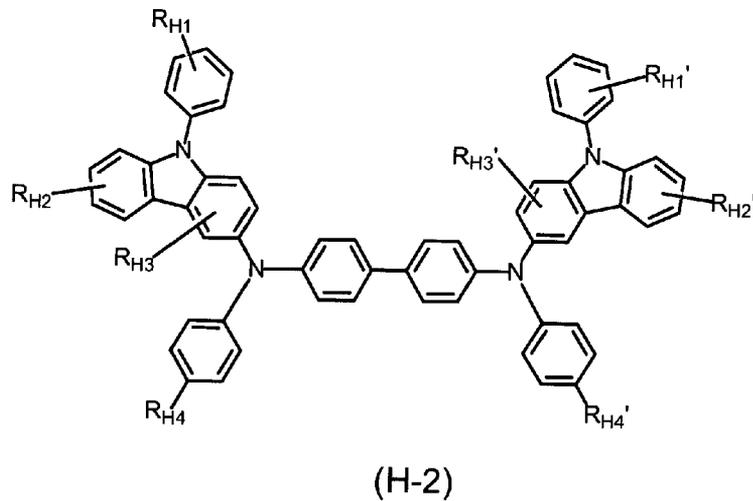
[請求項4] 前記一般式 (H-1) において、 A_{H1} 及び $A_{H1'}$ が置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、又はアントリル基である、請求

項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

[請求項 5] 前記一般式 (H-1) において、 x がフェニレン基、ナフチレン基、又はビフェニレン基である、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

[請求項 6] 前記一般式 (H-1) が下記一般式 (H-2) で表される、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

[化 3]



(一般式 (H-2) 中、 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。

R_{H4} 、及び R_{H4}' は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環基、シアノ基、又は、置換若しくは無置換のアミノ基を表す。)

[請求項 7] 前記 R_{H1} 、 R_{H1}' 、 R_{H2} 、 R_{H2}' 、 R_{H3} 、及び R_{H3}' が水素原子である、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

[請求項 8] 前記 R_{H4} 、及び R_{H4}' が水素原子、フッ素原子、置換若しくは無

置換のアルキル基、又はシアノ基である、請求項 6 又は 7 に記載の有機電界発光素子。

[請求項 9] 前記発光層に燐光性発光材料を含有する、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

[請求項 10] 前記燐光性発光材料が、イリジウム錯体である、請求項 9 に記載の有機電界発光素子。

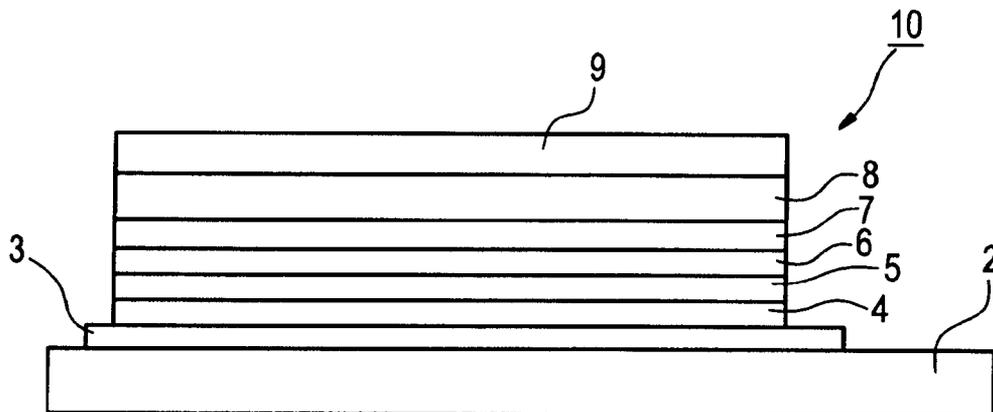
[請求項 11] 請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた発光装置。

[請求項 12] 請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた表示装置。

[請求項 13] 請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子を用いた照明装置。

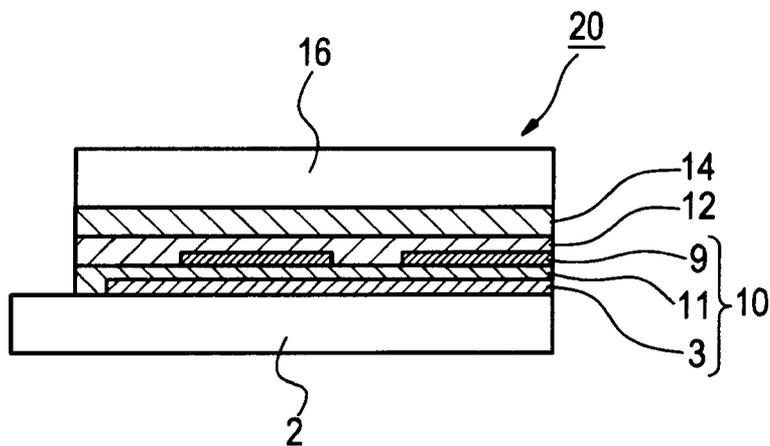
[図1]

FIG. 1



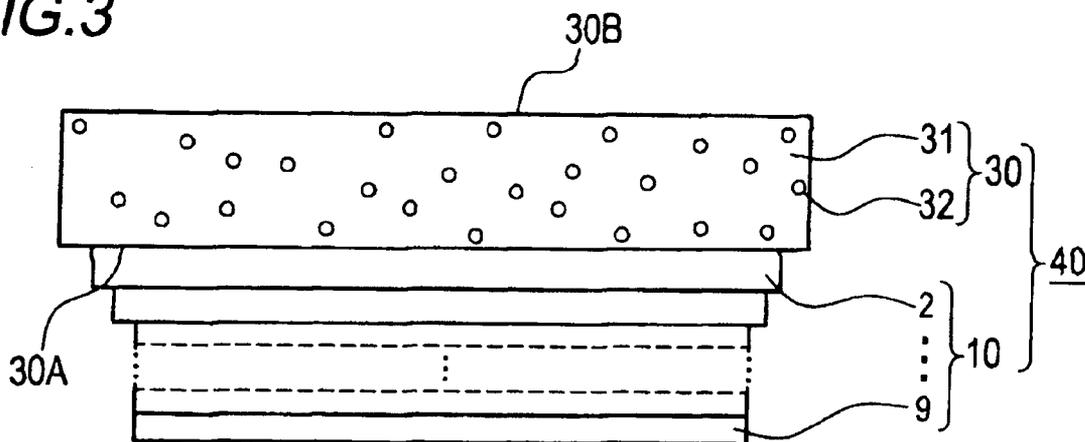
[図2]

FIG. 2



[図3]

FIG. 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/065715

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01 L51 /50 (2 0 0 6 . 0 1) i , C 〇 K I 〇 / 0 6 (2 0 0 6 . 0 1) i , G 0 9 F 9 / 3 0 (2 0 0 6 . 0 1) i , H 0 1 L 2 7 / 3 2 (2 0 0 6 . 0 1) i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H 0 1 L 5 1 / 5 0 , C 0 9 K 1 1 / 0 6 , G 0 9 F 9 / 3 0 , H 0 1 L 2 7 / 3 2 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1 996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2011 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994 - 2011 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2 0 0 7 / 1 4 2 0 8 3 A I (I d e m i t s u K o s a n C o . , L t d .) , 1 3 D e c e m b e r 2 0 0 7 (1 3 . 1 2 . 2 0 0 7) , p a r a g r a p h s [0 0 7 6] t o [0 0 7 7] & US 2 0 0 9 / 0 2 2 4 6 5 8 A I & EP 2 0 3 4 5 3 8 A I & KR 1 0 - 2 0 0 9 - 0 0 1 6 6 8 4 A & CN 1 0 1 4 6 1 0 7 4 A	1 - 1 3
Y	J P 2 0 0 7 - 3 1 8 1 0 1 A (S a m s u n g S D I C O . , L t d .) , 1 3 D e c e m b e r 2 0 0 7 (1 3 . 1 2 . 2 0 0 7) , c l a i m s & US 2 0 0 7 / 0 2 3 1 5 0 3 A 1 & EP 1 8 6 2 5 2 4 A I & DE 6 0 2 0 0 7 0 0 0 8 3 9 D & KR 1 0 - 2 0 0 7 - 0 1 1 4 5 6 2 A & CN 1 0 1 0 8 3 3 0 8 A & ES 2 3 2 3 3 8 9 T	1 - 1 3
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 0 8 A u g u s t , 2 0 1 1 (0 8 . 0 8 . 1 1)		Date of mailing of the international search report 1 6 A u g u s t , 2 0 1 1 (1 6 . 0 8 . 1 1)
Name and mailing address of the ISA/ J a p a n e s e P a t e n t O f f i c e		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) IntCl. H01L51/50 (2006.01) i, C09K11/06 (2006.01) i, G09F9/30 (2006.01) i, H01L27/32 (2006.01) i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) IntCl. H01L51/50, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2011年 日本国実用新案登録公報 1996-2011年 日本国登録実用新案公報 1994-2011年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAplus (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2007/142083 A1 (出光興産株式会社) 2007. 12. 13, [0076] -[0077] & US 2009/0224658 AI & EP 2034538 AI & KR 10-2009-0016684 A & CN 101461074 A	1-13
Y	JP 2007-318101 A (三星エスアイ株式会社) 2007. 12. 13, 特許請求の範囲 & US 2007/0231503 AI & EP 1862524 AI & DE 602007000839 D & KR 10-2007-0114562 A & CN 101083308 A & ES 2323389 T	1-13
Γ c 欄の続きにも文献が列挙されている。  パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー IA) 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの IE) 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの I) 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) ro) 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 rp) 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 T) 国際出願日又は優先日後に公表された文献であつて出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの X) 特に関連のある文献であつて、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの IY) 特に関連のある文献であつて、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの &) 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 08.08.2011	国際調査報告の発送日 16.08.2011	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 東松 修太郎 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 3208