

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2019年10月3日(03.10.2019)



(10) 国際公開番号

WO 2019/189033 A1

(51) 国際特許分類:
C07D 405/12 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/012604

(22) 国際出願日: 2019年3月25日(25.03.2019)

(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 2018-063009 2018年3月28日(28.03.2018) JP
特願 2018-150596 2018年8月9日(09.08.2018) JP

(71) 出願人: 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 伊藤 裕勝(ITO, Hirokatsu); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
羽毛田 匡(HAKETA, Tasuku); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
工藤 裕(KUDO, Yu); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人大谷特許事務所(OHTANI PATENT OFFICE); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門E Sビル7階 Tokyo (JP).

(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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, 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.

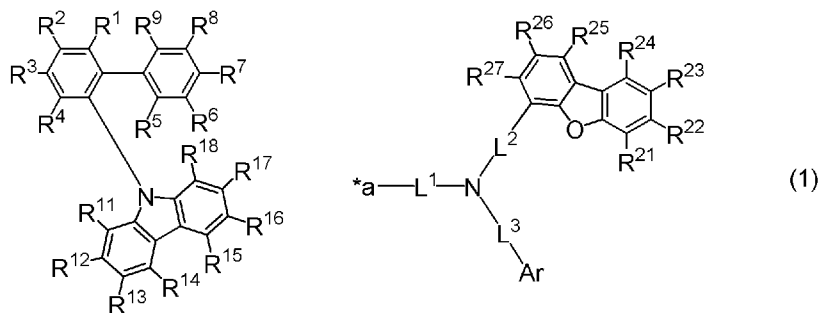
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, 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: COMPOUND, MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENTS, ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ELECTRONIC DEVICE

(54) 発明の名称: 化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び電子機器



(57) Abstract: A compound represented by formula (1) makes it possible to provide an organic electroluminescent element having a further improved life. (In formula (1), R¹ to R⁹, R¹¹ to R¹⁸, R²¹ to R²⁷, Ar, L¹, L² and L³ are as defined in the description.)

(57) 要約: 下記式(1)で表される化合物は、寿命がより改善された有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。(式(1)において、R¹~R⁹、R¹¹~R¹⁸、R²¹~R²⁷、Ar、L¹、L²、及びL³は明細書において定義したとおりである。)



WO 2019/189033 A1

明 細 書

発明の名称：

化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び電子機器

技術分野

[0001] 本発明は、化合物、該化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、該化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子、及び該有機エレクトロルミネッセンス素子を含む電子機器に関する。

背景技術

[0002] 一般に有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）は陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟まれた有機層から構成されている。両電極間に電圧が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が発光領域に注入され、注入された電子と正孔は発光領域において再結合して励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際に光を放出する。従って、電子又は正孔を効率よく発光領域に輸送し、電子と正孔との再結合を促進する化合物の開発は高性能有機EL素子を得る上で重要である。

[0003] 特許文献1は、末端フェニル基のo-位にN-カルバゾリル基を有する4-ビフェニル基が1個、及び、2個のアリール基が中心窒素原子に直接又はリンカーを介して結合したアミン化合物を開示している。

[0004] 特許文献2は、1個の2-（N-カルバゾリル）フェニル基、1個の2-ジベンゾフラニル基、及び、1個のアジン環を有する基又はアジン環を有するアリール基が、中心窒素原子に結合したアミン化合物を開示している。

[0005] 特許文献3は、末端フェニル基のo-位にN-カルバゾリル基を有する4-ビフェニル基が1個、及び、2個の4-ビフェニル基が中心窒素原子に結合したアミン化合物を開示している。

[0006] 特許文献4は、末端フェニル基のm-位にN-カルバゾリル基を有する4-ビフェニル基が1個、1個の4-（4-ジベンゾフラニル）フェニル基

、及び、1個の4-ビフェニル基が中心窒素原子に結合したアミン化合物を開示している。

先行技術文献

特許文献

- [0007] 特許文献1：国際公開第2017/052261A1号公報
特許文献2：韓国公開10-2017-0072041号公報
特許文献3：米国公開第2016/0322580A1号公報
特許文献4：米国公開第2016/0079542A1号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0008] 従来、有機EL素子製造用の材料として多くの化合物が報告されているが、有機EL素子の特性を更に向上させる化合物が依然として求められている。

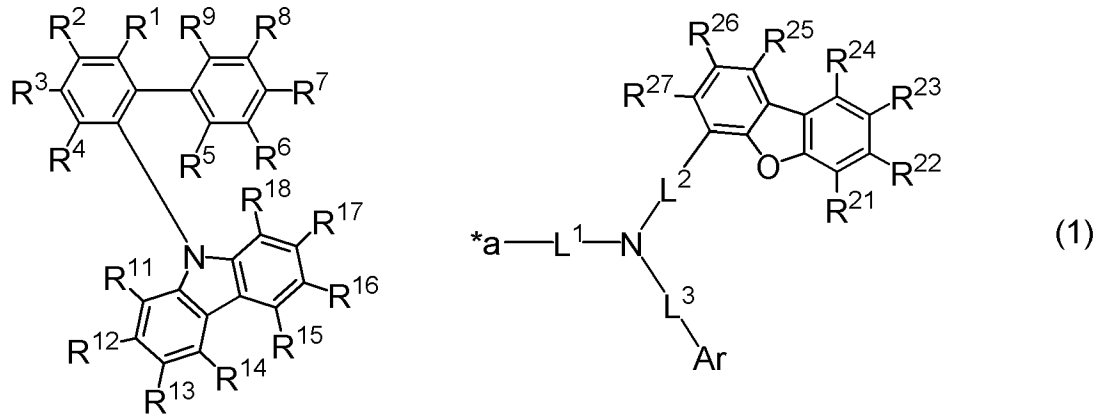
- [0009] 本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、寿命がより改善された有機EL素子及びそのような有機EL素子を実現する新規化合物を提供すること目的とする。

課題を解決するための手段

- [0010] 本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、下記式(1)で表される化合物が、寿命がより改善された有機EL素子を実現することを見出した。

- [0011] 一態様において、本発明は、式(1)で表される化合物(以下、化合物(1)と称することもある)を提供する。

[化1]



(式 (1) において、

R^7 、 R^8 、及び R^9 の1つは、*aに結合する単結合であり；

$R^1 \sim R^6$ 、及び、*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～36のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30ハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルコキシ基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる、

ただし、 $R^1 \sim R^6$ 、及び、*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する；

$R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～

30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～36のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30ハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルコキシ基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる、

ただし、 $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する；

$R^{21} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～36のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30ハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルコキシ基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる、

ただし、 $R^{21} \sim R^{27}$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する；

A_r は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基であり；

L^1 は単結合又は L^{11} であり、 L^{11} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6

～30のアリーレン基であり；

L^2 は単結合又は L^{22} であり、 L^{22} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6

～30のアリーレン基であり；

L^3 は単結合又は L^{33} であり、 L^{33} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6

～30のアリーレン基である。）

[0012] 他の態様において、本発明は、化合物（1）を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供する。

[0013] さらに他の態様において、本発明は、陰極、陽極、及び該陰極と該陽極の間に配置された有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機層が発光層を含み、該有機層の少なくとも1層が化合物（1）を含む有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

[0014] さらに他の態様において、本発明は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を含む電子機器を提供する。

発明の効果

[0015] 化合物（1）は寿命がより改善された有機EL素子を実現する。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]本発明の一態様に係る有機EL素子の層構成の一例を示す概略図である。

[図2]本発明の一態様に係る有機EL素子の層構成の他の例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0017] 本明細書において、「置換もしくは無置換の炭素数 $XX\sim YY$ の ZZ 基」という表現における「炭素数 $XX\sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。

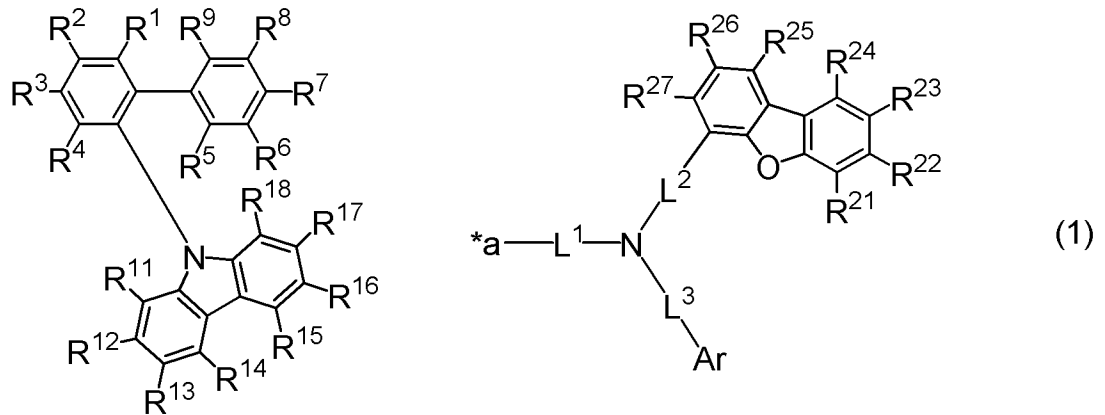
[0018] 本明細書において、「置換もしくは無置換の原子数 $XX\sim YY$ の ZZ 基」という表現における「原子数 $XX\sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の原子数を表すものであり、置換されている場合の置換基の原子数は含めない。

- 。
- [0019] 本明細書において、「置換もしくは無置換のZZ基」という場合における「無置換ZZ基」とは、ZZ基の水素原子が置換基で置換されていないことを意味する。
- [0020] 本明細書において、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわち、軽水素 (protium)、重水素 (deuterium)、及び三重水素 (tritium) を包含する。
- [0021] 本明細書において、「環形成炭素数」とは、原子が環状に結合した構造の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子のうちの炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素には含まない。以下で記される「環形成炭素数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が6であり、ナフタレン環は環形成炭素数が10であり、ピリジン環は環形成炭素数5であり、フラン環は環形成炭素数4である。また、ベンゼン環やナフタレン環に置換基として例えばアルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、環形成炭素数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の炭素数は環形成炭素数に含めない。
- [0022] 本明細書において、「環形成原子数」とは、原子が環状に結合した構造（例えば単環、縮合環、環集合）の化合物（例えば単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子の数を表す。環を構成しない原子（例えば環を構成する原子の結合手を終端する水素原子）や、当該環が置換基によって置換される場合の置換基に含まれる原子は環形成原子数には含まない。以下で記される「環形成原子数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ピリジン環は環形成原子数は6であり、キナゾリン環は環形成原子数が10であり、フラン環の環形成原子数は5である。ピリジン環やキナゾリン環の環形成炭素原子にそれぞれ

結合している水素原子や置換基を構成する原子は、環形成原子数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロビフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の原子数は環形成原子数の数に含めない。

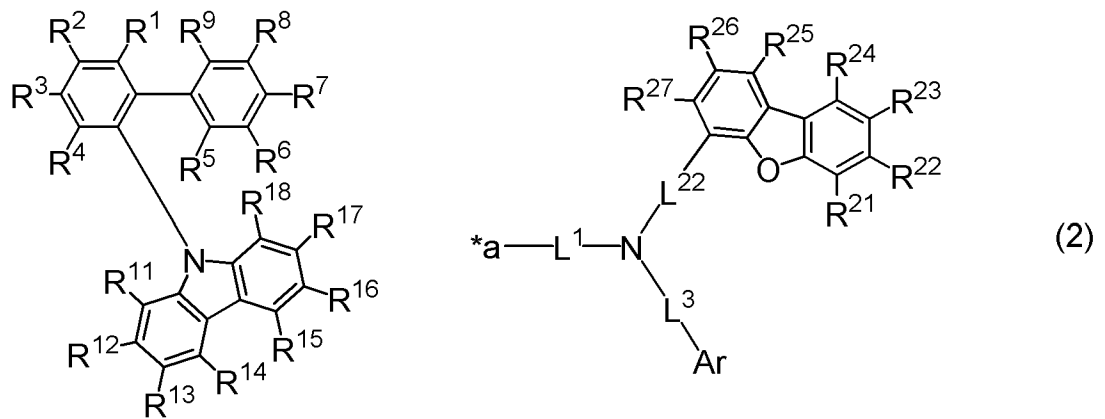
[0023] 本発明の一態様に係る化合物（1）は式（1）で表される。

[化2]



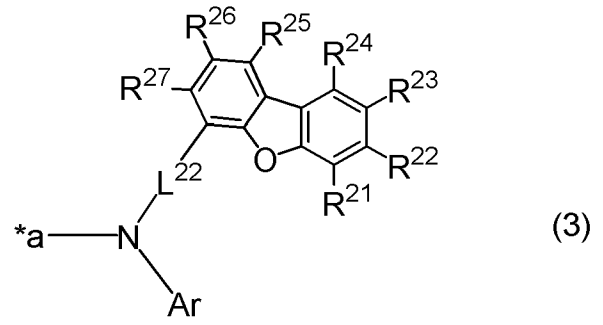
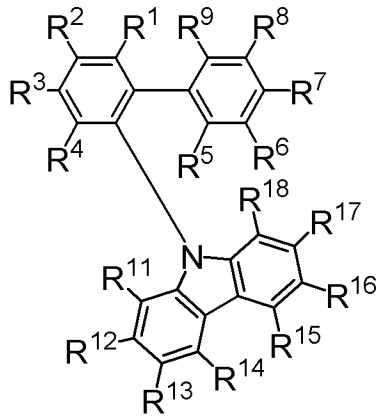
[0024] 本発明の一態様において、化合物（1）は、好ましくは下記式（2）で表される。

[化3]

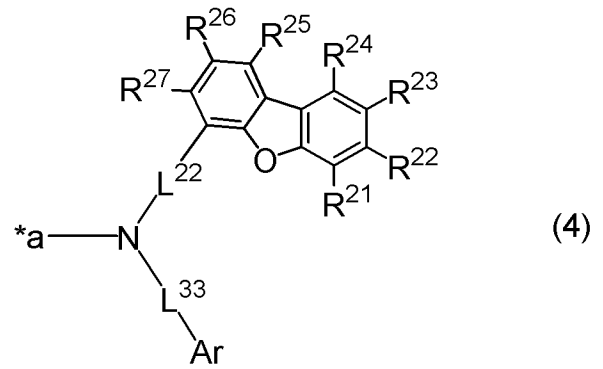
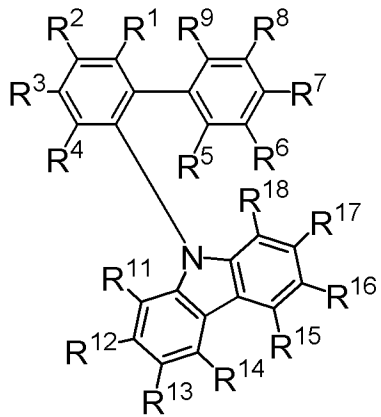


[0025] 本発明の一態様において、化合物（1）は、好ましくは下記式（3）～（6）のいずれかにより表される。

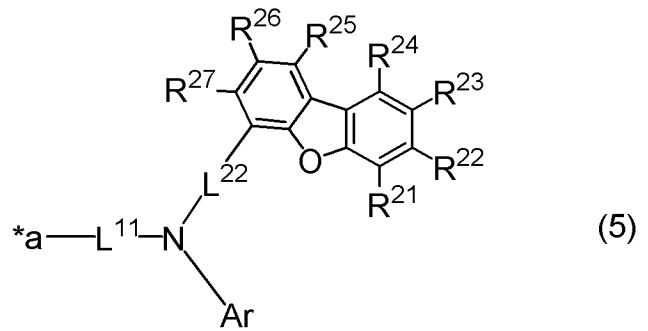
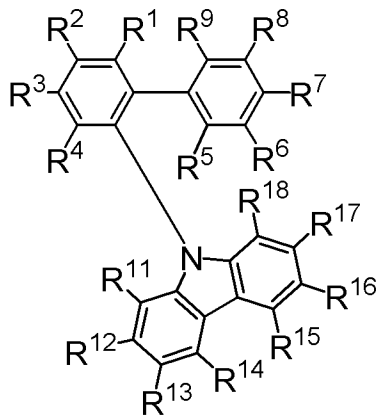
[化4]



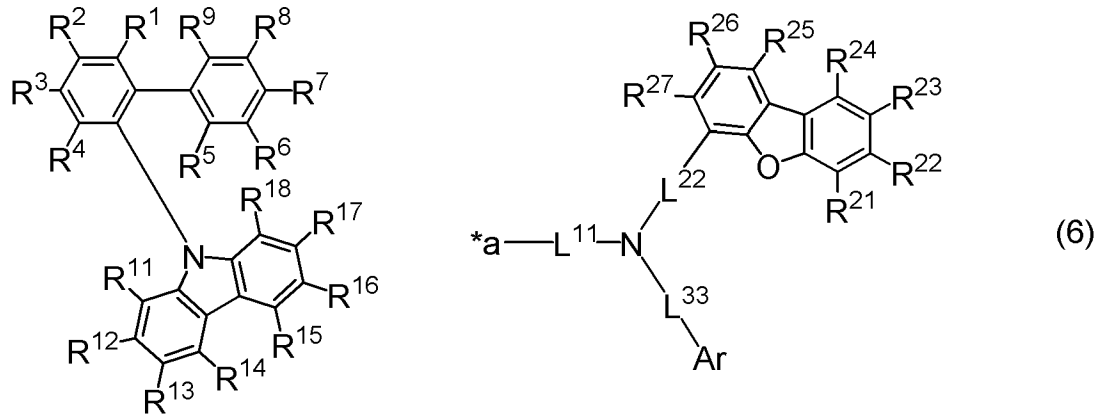
[化5]



[化6]



[化7]



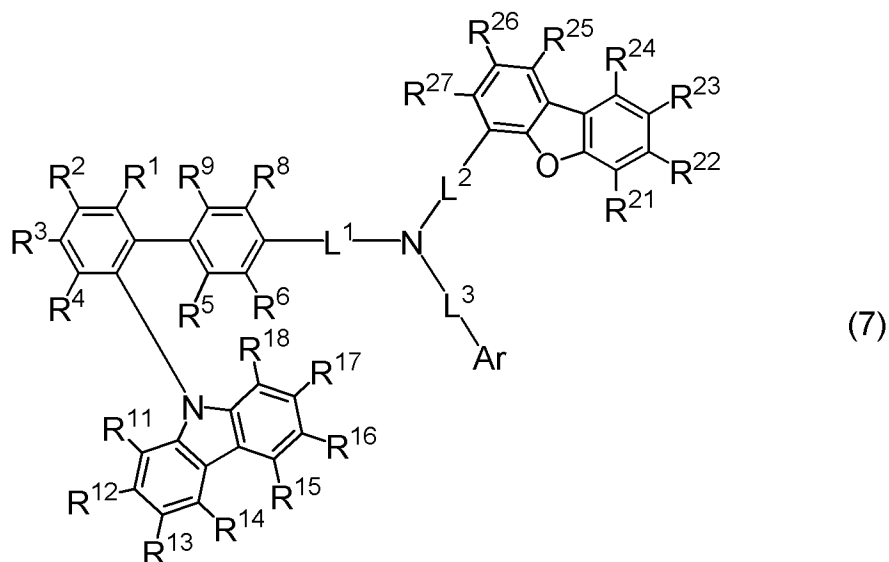
[0026] 本発明の一態様において、化合物（１）は、好ましくは前記式（３）又は（４）で表される。

[0027] 以下、式（１）～（６）及び後述する式（７）～（１２）の各記号を説明する。

[0028] R⁷、R⁸、及びR⁹の１つは、*aに結合する単結合である。すなわち、化合物（１）は、R⁷が*aに結合する単結合である化合物、R⁸が*aに結合する単結合である化合物、又は、R⁹が*aに結合する単結合である化合物である。R⁷又はR⁸が*aに結合する単結合である化合物が好ましく、R⁷が*aに結合する単結合である化合物がより好ましい。

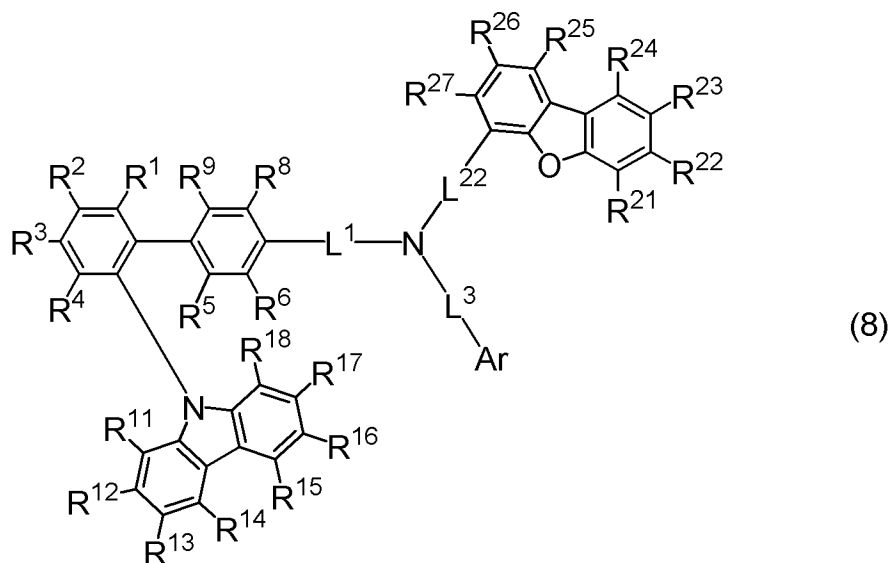
[0029] R⁷が*aに結合する単結合である化合物は下記式（７）で表される。

[化8]



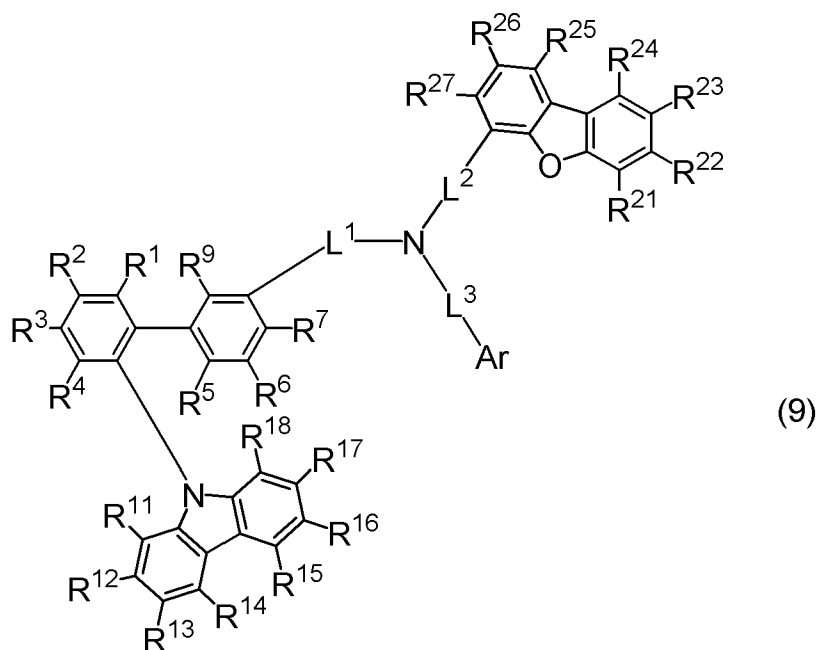
[0030] 式(7)は、好ましくは下記式(8)で表される。

[化9]



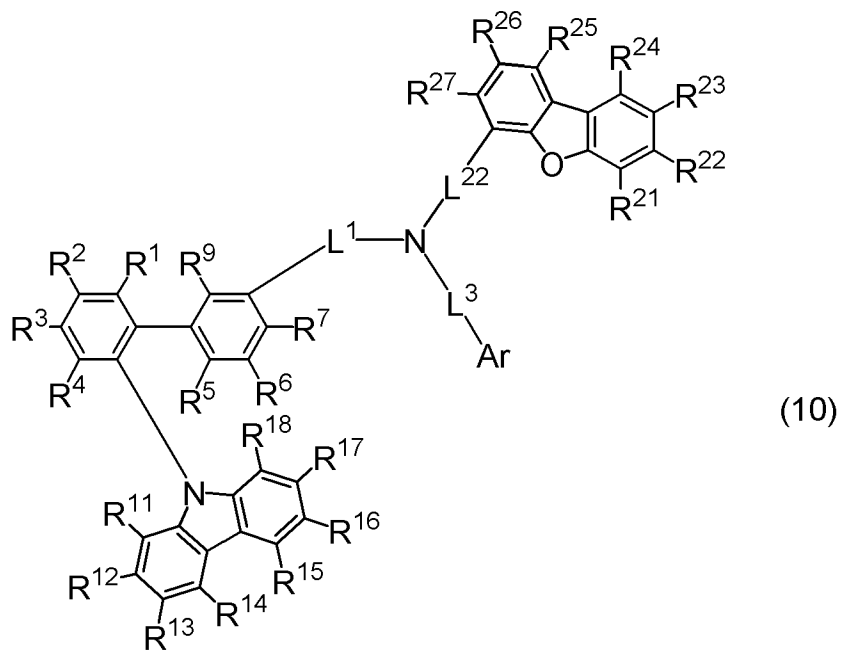
[0031] R⁸が*aに結合する単結合である化合物は下記式(9)で表される。

[化10]



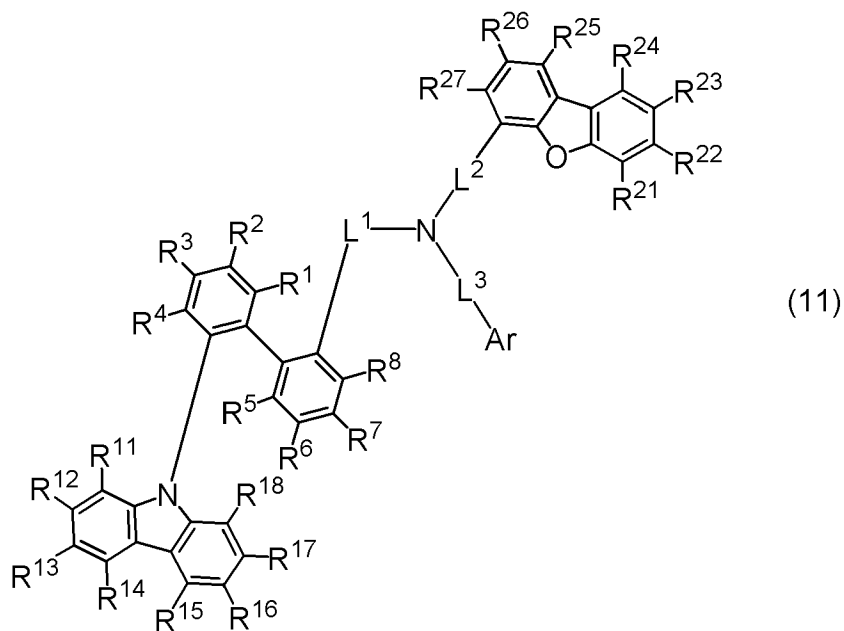
[0032] 式(9)は、好ましくは下記式(10)で表される。

[化11]



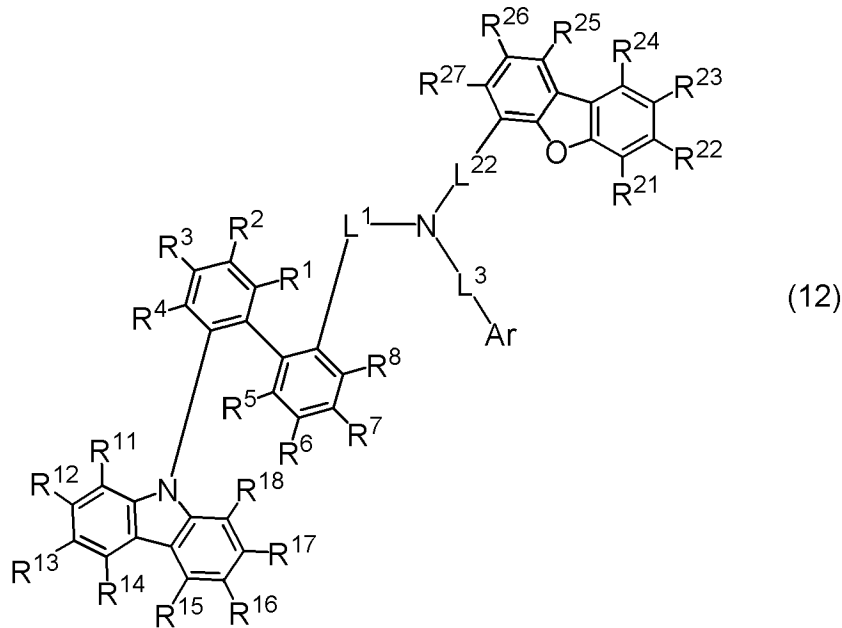
[0033] R⁹が*aに結合する単結合である化合物は下記式(11)で表される。

[化12]



[0034] 式(11)は、好ましくは下記式(12)で表される。

[化13]



[0035] R¹～R⁶、及び、* aに結合する単結合ではないR⁷～R⁹は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子；シアノ基；ニトロ基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基；置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30、好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6のシクロアルキル基；置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基；置換もしくは無置換の炭素数7～36、好ましくは7～26、より好ましくは7～20のアラルキル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルコキシ基；置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリールオキシ基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8ハロアルキル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好まし

くは1～8のハロアルコキシ基；及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30、好ましくは5～24、より好ましくは5～13のヘテロアリール基からなる群から選ばれる。

ただし、 $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、該隣接する2つは互いに結合して環構造を形成する。すなわち、該隣接する2つは、環構造を形成することなく、それぞれ独立して水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する。

すなわち、 $R^1 \sim R^6$ 、及び、* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基を表すか、又は、 $R^1 \sim R^9$ から選ばれる隣接する基と結合して環構造を形成する。

[0036] 前記置換基は、好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれ；より好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる。

[0037] 本発明の一態様において、 $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ から選ばれる隣接する2つは、環構造を形成することなく、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表す。本発明の他の態様において、少なくとも一組の前記隣接する2つは互いに結合して環構造を形成する。

[0038] 前記ハロゲン原子はフッ素原子、塩素原子、臭素原子、又はヨウ素原子であり、フッ素原子が好ましい。

[0039] 前記置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基において、該炭素

数1～30のアルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、又はドデシル基であり、好ましくは、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、又はペンチル基であり、より好ましくは、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、又はt-ブチル基であり、更に好ましくは、メチル基又はt-ブチル基である。

前記置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0040] 前記置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基において、該環形成炭素数3～30のシクロアルキル基は、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、又はシクロヘプチル基であり、好ましくは、シクロペンチル基又はシクロヘキシル基である。

前記置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0041] 前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、該環形成炭素数6～30のアリール基は、例えば、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、ビフェニレニル基、ナフチル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、フルオレニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基、又はトリフェニレニル基であり、好ましくは、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、又は、ナフチル基であり、より好ましくは、フェニル基、2-、3-、又は4-ビフェニリル基、2-、3-、又は4-ο-ターフェニリル基、2-、3-、又は4-m-ターフェニリル基、2-、3-、

又は4-p-ターフェニル基、又は、1-又は2-ナフチル基であり、更に好ましくは、フェニル基、2-、3-、又は4-ビフェニル基、又は、1-又は2-ナフチル基であり、特に好ましくは、フェニル基である。

置換された環形成炭素数6~30のアリール基は、例えば、トリル基、t-ブチルフェニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、9,9-ジフェニルフルオレニル基、又は、スピロビフルオレニル基である。

前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0042] 前記置換もしくは無置換の炭素数7~36のアラルキル基において、該炭素数7~36のアラルキル基のアリール部位は上記の環形成炭素数6~30、好ましくは6~25、より好ましくは6~18のアリール基から選択され、アルキル部位は上記の置換もしくは無置換の炭素数1~30、好ましくは1~18、より好ましくは1~8のアルキル基から選択される。該炭素数7~36のアラルキル基は、例えば、ベンジル基、フェネチル基、又は、フェニルプロピル基であり、ベンジル基が好ましい。

前記置換もしくは無置換の炭素数7~36のアラルキル基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0043] 前記置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基において、該炭素数1~30のアルコキシ基のアルキル部位は上記置換もしくは無置換の炭素数1~30、好ましくは1~18、より好ましくは1~8のアルキル基から選択される。該炭素数1~30のアルコキシ基は、例えば、t-ブトキシ基、プロポキシ基、エトキシ基、又はメトキシ基であり、好ましくは、エトキシ基又はメトキシ基であり、より好ましくは、メトキシ基である。

前記置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0044] 前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールオキシ基において、該環形成炭素数6~30アリールオキシ基のアリール部位は上記置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30、好ましくは6~25、より好まし

くは6～18のアリール基から選択される。該環形成炭素数6～30のアリールオキシ基は、例えば、ターフェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、又はフェノキシ基であり、好ましくは、ビフェニルオキシ基又はフェノキシ基であり、より好ましくは、フェノキシ基である。

前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0045] 前記モノ、ジ又はトリ置換シリル基が有する置換基は、上記置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基、及び、上記置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基から選択される。トリ置換シリル基が好ましく、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、イソプロピルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジメチルシリル基、*t*-ブチルジフェニルシリル基、又はトリトリルシリル基がより好ましい。

前記モノ、ジ又はトリ置換シリル基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0046] 前記置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルキル基において、該炭素数1～30のハロアルキル基は、上記炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基の少なくとも1個の水素原子、好ましくは1～7個の水素原子、又は全ての水素原子をハロゲン原子で置換して得られる基である。該ハロゲン原子は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子から選ばれ、好ましくはフッ素原子である。該ハロアルキル基は炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のフルオロアルキル基が好ましく、ヘプタフルオロプロピル基、ペンタフルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、又はトリフルオロメチル基がより好ましく、ペンタフルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、又はトリフルオロメチル基がさらに好ましく、トリフルオロメチル基が特に好ましい。

前記置換もしくは無置換の炭素数 1～30 のハロアルキル基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0047] 前記置換もしくは無置換の炭素数 1～30 のハロアルコキシ基において、該炭素数 1～30 のハロアルコキシ基のハロアルキル部位は上記炭素数 1～30、好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8 のハロアルキル基から選択される。該ハロアルコキシ基は炭素数 1～30、好ましくは 1～18、より好ましくは 1～8 のフルオロアルコキシ基が好ましく、ヘプタフルオロプロポキシ基、ペンタフルオロエトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、又はトリフルオロメトキシ基がより好ましく、ペンタフルオロエトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、又はトリフルオロメトキシ基がさらに好ましく、トリフルオロメトキシ基が特に好ましい。

前記置換もしくは無置換の炭素数 1～30 のハロアルコキシ基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0048] 前記置換もしくは無置換の環形成原子数 5～30 のヘテロアリアル基において、該環形成原子数 5～30 のヘテロアリアル基は 1～5 個、好ましくは 1～3 個、より好ましくは 1～2 個の環形成ヘテロ原子を含む。該環形成ヘテロ原子は、例えば、窒素原子、硫黄原子及び酸素原子から選択される。該ヘテロアリアル基の自由結合手は環形成炭素原子上に存在するか、又は、物理的に可能な場合には、環形成窒素原子上に存在する。

該環形成原子数 5～30 のヘテロアリアル基は、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、インダゾリル基、ベンゾイソキサゾリル基、

ベンゾイソチアゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、キサントニル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ナフトベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基（ベンゾチエニル基、以下同様）、イソベンゾチオフェニル基（イソベンゾチエニル基、以下同様）、ナフトベンゾチオフェニル基（ナフトベンゾチエニル基、以下同様）、ジベンゾチオフェニル基（ジベンゾチエニル基、以下同様）、又はカルバゾリル基である。

好ましくは、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ナフトベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、イソベンゾチオフェニル基、ナフトベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基（9-カルバゾリル基、又は、1-、2-、3-又は4-カルバゾリル基）である。

置換された環形成原子数5～30のヘテロアリアル基は、例えば、9-フェニルカルバゾリル基、9-ビフェニルカルバゾリル基、9-フェニルフェニルカルバゾリル基、9-ナフチルカルバゾリル基、フェニルジベンゾフラニル基、又はフェニルジベンゾチオフェニル基（フェニルジベンゾチエニル基、以下同様）である。

前記置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリアル基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0049] $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ から選ばれる前記隣接する2つとこれらが結合する2つの環形成炭素原子が形成する前記環構造は、例えば、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～18の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成炭素数5～18の脂肪族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数5～18の芳香族複素環、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～18の脂肪族複素環である。

[0050] 前記環形成炭素数6～18の芳香族炭化水素環は、例えば、ベンゼン環、ビフェニレン環、ナフタレン環、アントラセン環、ベンゾアントラセン環、

フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、フェナレン環、ピレン環、クリセン環、又はトリフェニレン環であり、好ましくはベンゼン環又はナフタレン環である。

[0051] 前記環形成炭素数5～18の脂肪族炭化水素環は、例えば、シクロペンテン環、シクロペンタジエン環、シクロヘキセン環、シクロヘキサジエン環、又は、前記環形成炭素数6～18の芳香族炭化水素環を部分的に水素化して得られる脂肪族環である。

[0052] 前記環形成原子数5～18の芳香族複素環は、例えば、ピロール環、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、インドール環、イソインドール環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、ベンゾイミダゾール環、インダゾール環、ジベンゾフラン環、ナフトベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、ナフトベンゾチオフェン環、カルバゾール環、又はベンゾカルバゾール環である。

[0053] 前記環形成原子数5～18の脂肪族複素環は、例えば、上記環形成原子数5～18の芳香族複素環を部分的に水素化して得られる脂肪族複素環である。

[0054] 本発明の一態様において、 $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ はすべて水素原子であることが好ましい。

[0055] $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子；シアノ基；ニトロ基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基；置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30、好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6のシクロアルキル基；置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基；置換もしくは無置換の炭素数7～36、好ましくは7～26、より好ましくは7～20のアラルキル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルコキシ基；置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好まし

くは6～18のアリールオキシ基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8ハロアルキル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のハロアルコキシ基；及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30、好ましくは5～24、より好ましくは5～13のヘテロアリール基からなる群から選ばれる。

ただし、 $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、該隣接する2つは互いに結合して環構造を形成する。すなわち、該隣接する2つは、環構造を形成することなく、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する。

すなわち、 $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基を表すか、又は、 $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する基と結合して環構造を形成する。

[0056] $R^{11} \sim R^{18}$ が表す前記置換基は、好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれ；より好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる。

[0057] $R^{11} \sim R^{18}$ の置換基の詳細は、 $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではな

い $R^7 \sim R^9$ に関して上記した対応する置換基の詳細と同じである。

[0058] 本発明の一態様において、 $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する2つは環構造を形成することなく、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表す。本発明の他の態様において、少なくとも一組の隣接する2つは、互いに結合して環構造を形成する。

[0059] $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する2つとこれらが結合する2つの環形成炭素原子が形成する環構造の詳細は、 $R^1 \sim R^6$ 及び*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ に関して上記した環構造の詳細と同じである。

[0060] 本発明の一態様において、 $R^{11} \sim R^{18}$ はすべて水素原子であることが好ましい。

[0061] $R^{21} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子；シアノ基；ニトロ基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基；置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30、好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6のシクロアルキル基；置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基；置換もしくは無置換の炭素数7～36、好ましくは7～26、より好ましくは7～20のアラルキル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルコキシ基；置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリールオキシ基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8ハロアルキル基；置換もしくは無置換の炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のハロアルコキシ基；及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30、好ましくは5～24、より好ましく

は5～13のヘテロアリアル基からなる群から選ばれる。

ただし、 $R^{21} \sim R^{27}$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、該隣接する2つは互いに結合して環構造を形成する。すなわち、該隣接する2つは、環構造を形成することなく、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する。

すなわち、 $R^{21} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基を表すか、又は、 $R^{21} \sim R^{27}$ から選ばれる隣接する基と結合して環構造を形成する。

[0062] $R^{21} \sim R^{27}$ が表す前記置換基は、好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリアル基からなる群から選ばれ；より好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリアル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリアル基からなる群から選ばれる。

[0063] $R^{21} \sim R^{27}$ の置換基の詳細は、 $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ に関して上記した対応する置換基の詳細と同じである。

[0064] 本発明の一態様において、 $R^{21} \sim R^{27}$ から選ばれる隣接する2つは環構造を形成することなく、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表す。本発明の他の態様において、少なくとも一組の隣接する2つは、互いに結合して環構造を形成する。

[0065] $R^{21} \sim R^{27}$ から選ばれる隣接する2つとこれらが結合する2つの環形成炭素原子が形成する環構造の詳細は、 $R^1 \sim R^6$ 及び* aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ に関して上記した環構造の詳細と同じである。

[0066] 本発明の一態様において、 $R^{21} \sim R^{27}$ はすべて水素原子であることが好ましい。

[0067] A_r は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基である。前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、該環形成炭素数6～30のアリール基は、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ビフェニレニル基、ナフチル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、フルオレニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基、又はトリフェニレニル基であり、好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、又はトリフェニレニル基であり、より好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、又はナフチル基であり、更に好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、又はターフェニル基である。

該ビフェニル基は2-、3-又は4-ビフェニル基であり、4-ビフェニル基が特に好ましい。

該ターフェニル基は1, 1' : 4', 1''-ターフェニル基、1, 1' : 3', 1''-ターフェニル基、又は1, 1' : 2', 1''-ターフェニル基であり、1, 1' : 4', 1''-ターフェニル-2-イル基、1, 1' : 4', 1''-ターフェニル-3-イル基、1, 1' : 4', 1''-ターフェニル-4-イル基、1, 1' : 3', 1''-ターフェニル-2-イル基、1, 1' : 3', 1''-ターフェニル-3-イル基、1, 1' : 3', 1''-ターフェニル-4-イル基、1, 1' : 2', 1''-ターフェニル-2-イル基、1, 1' : 2', 1''-ターフェニル-3-イル基、又は1, 1' : 2', 1''-ターフェニル-4-イル基が好ましく、1, 1' : 4', 1''-ターフェニル-2-イル基、1, 1' : 4', 1''-ターフェニル-3-イル基、又は1, 1' : 4', 1''-ターフェニル-4-イル基がより好ま

しい。

該ナフチル基は1-ナフチル基及び2-ナフチル基を含む。

該フェナントリル基は1-、2-、3-、4-、又は9-フェナントリル基であり、好ましくは2-又は9-フェナントリル基である。

該トリフェニレニル基は、好ましくは2-トリフェニレニル基である。

置換された環形成炭素数6~30のアリール基は、例えば、9,9-ジメチルフルオレニル基、9,9-ジフェニルフルオレニル基、又は、スピロビフルオレニル基である。

前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0068] L¹は単結合又はL¹¹であり、L¹¹は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30、好ましくは6~25、より好ましくは6~18のアリーレン基である。本発明の一態様においては、L¹は単結合であることが好ましく、他の態様においては、L¹はL¹¹であることが好ましい。

[0069] L¹¹が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリーレン基において、該環形成炭素数6~30のアリーレン基は、例えば、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ビフェニレニレン基、ナフチレン基、アントリレン基、ベンゾアントリレン基、フェナントリレン基、ベンゾフェナントリレン基、フェナレニレン基、ピセニレン基、ペンタフェニレン基、ピレニレン基、クリセニレン基、ベンゾクリセニレン基、フルオレニレン基、フルオランテニレン基、ペリレニレン基、又はトリフェニレニレン基であり、好ましくは、フェニレン基、ビフェニレン基、又はナフチレン基であり、より好ましくは、フェニレン基であり、更に好ましくは、1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、又は1,2-フェニレン基であり、特に好ましくは、1,4-フェニレン基である。

置換された環形成炭素数6~30のアリーレン基は、例えば、9,9-ジメチルフルオレニレン基、9,9-ジフェニルフルオレニレン基、又はスピロビフルオレニレン基である。

前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基は、存在する場合には異性体基を含む。

[0070] L^2 は単結合又は L^{22} であり、 L^{22} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリーレン基である。本発明の一態様においては、 L^2 は単結合であることが好ましく、他の態様においては、 L^2 は L^{22} であることが好ましい。

[0071] L^{22} が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基において、該環形成炭素数6～30のアリーレン基は、例えば、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ビフェニレニレン基、ナフチレン基、アントリレン基、ベンゾアントリレン基、フェナントリレン基、ベンゾフェナントリレン基、フェナレニレン基、ピセニレン基、ペンタフェニレン基、ピレニレン基、クリセニレン基、ベンゾクリセニレン基、フルオレニレン基、フルオランテニレン基、ペリレニレン基、又はトリフェニレニレン基であり、好ましくは、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、又はフェナントリレン基であり、より好ましくは、フェニレン基又はビフェニレン基であり、更に好ましくは、フェニレン基である。

該フェニレン基は、1, 2-フェニレン基、1, 3-フェニレン基、又は1, 4-フェニレン基であり、1, 4-フェニレン基が特に好ましい。

該ビフェニレン基は、好ましくは4, 2'-ビフェニレン基、4, 3'-ビフェニレン基、又は4, 4'-ビフェニレン基であり、4, 4'-ビフェニレン基が特に好ましい。 L^{22} が4, 2'-ビフェニレン基又は4, 3'-ビフェニレン基である場合、4位に中心窒素原子が結合し、2'位又は3'位に4-ジベンゾフラニル構造が結合することが好ましい。

該ナフチレン基は、好ましくは1, 4-ナフチレン基又は2, 6-ナフチレン基である。

該フェナントリレン基は、好ましくは2, 7-フェナントリレン基である。

[0072] L^3 は単結合又は L^{33} であり、 L^{33} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6

～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリーレン基である。本発明の一態様においては、 L^3 は単結合であることが好ましく、他の態様においては、 L^3 は L^{33} であることが好ましい。

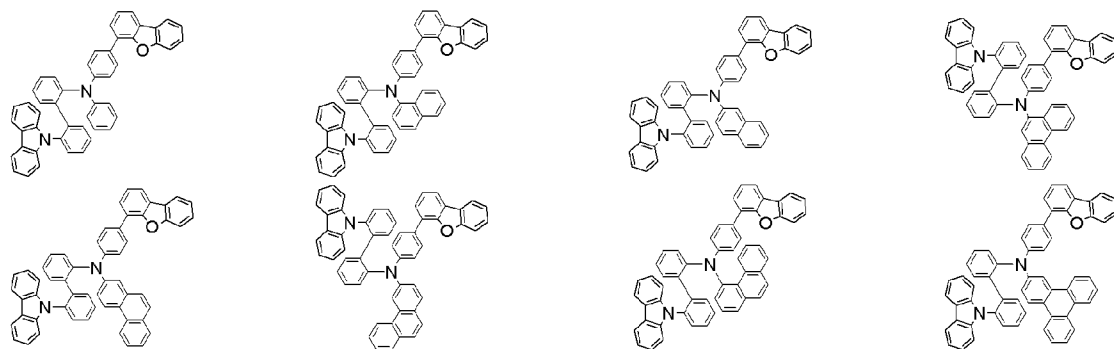
[0073] L^{33} が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基において、該環形成炭素数6～30のアリーレン基は、例えば、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ビフェニレニレン基、ナフチレン基、アントリレン基、ベンゾアントリレン基、フェナントリレン基、ベンゾフェナントリレン基、フェナレニレン基、ピセニレン基、ペンタフェニレン基、ピレニレン基、クリセニレン基、ベンゾクリセニレン基、フルオレニレン基、フルオランテニレン基、ペリレニレン基、又はトリフェニレニレン基であり、好ましくは、フェニレン基であり、より好ましくは、1,4-フェニレン基である。

[0074] 本明細書において、「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基は、特に断らない限り、ハロゲン原子；シアノ基；ニトロ基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基；環形成炭素数3～30、好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6のシクロアルキル基；環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基；炭素数7～36、好ましくは7～26、より好ましくは7～20のアラルキル基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルコキシ基；環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリールオキシ基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基及び環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8ハロアルキル基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のハロアルコキシ基；及び、環形成原子数5～30、好ましくは5～24、より好ましくは5～13のヘテロアリール基からなる群より選ばれる。

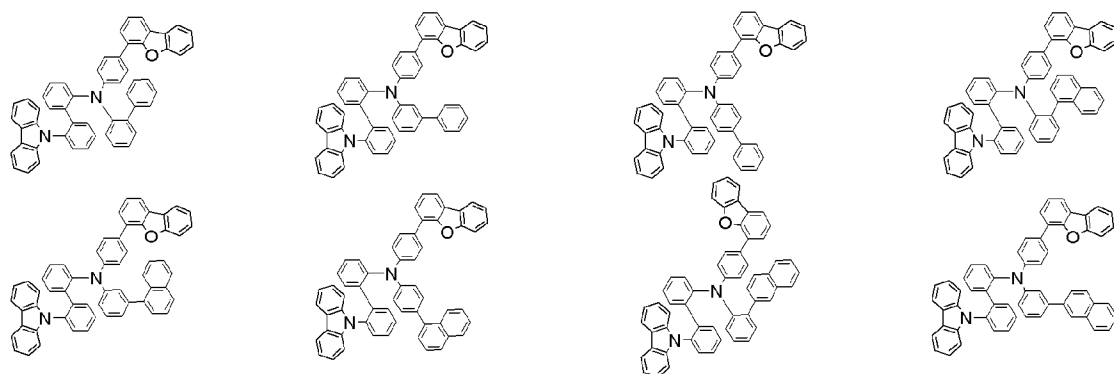
上記任意の置換基の詳細は、 $R^1 \sim R^6$ 、及び、* a に結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ に関して上記した対応する置換基の詳細と同じである。

[0075] 以下に本発明の化合物（1）の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

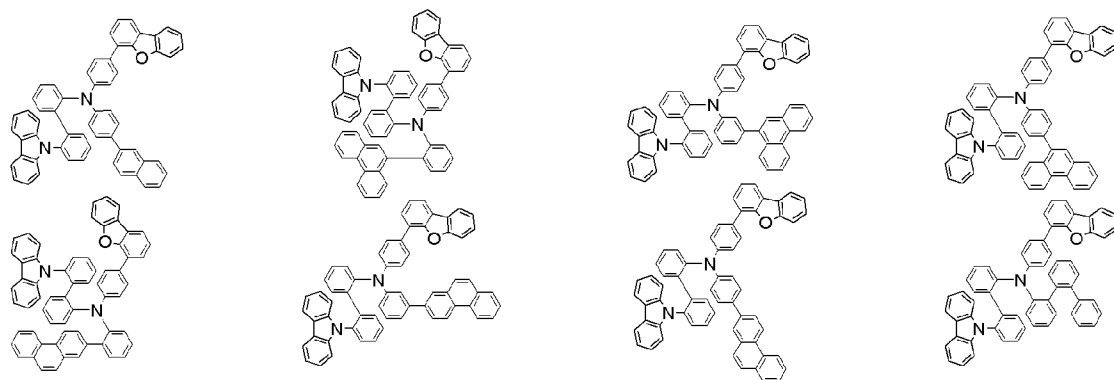
[0076] [化14]



[0077] [化15]

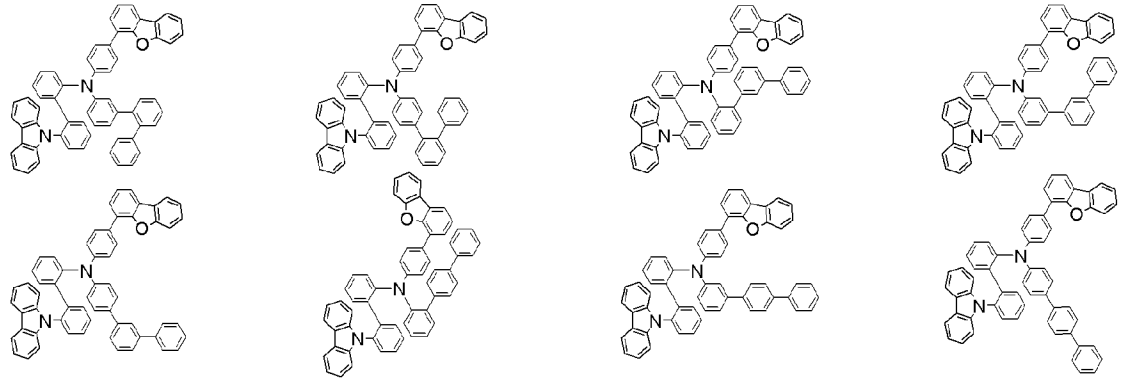


[0078] [化16]

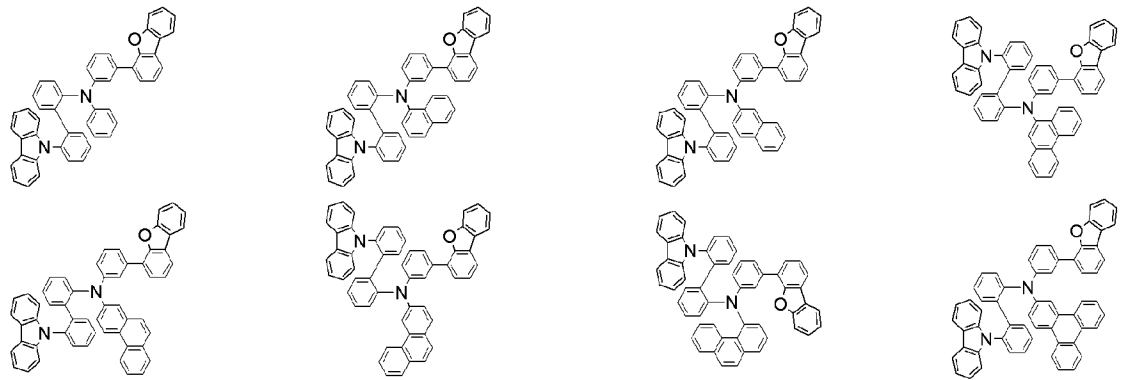


[0079]

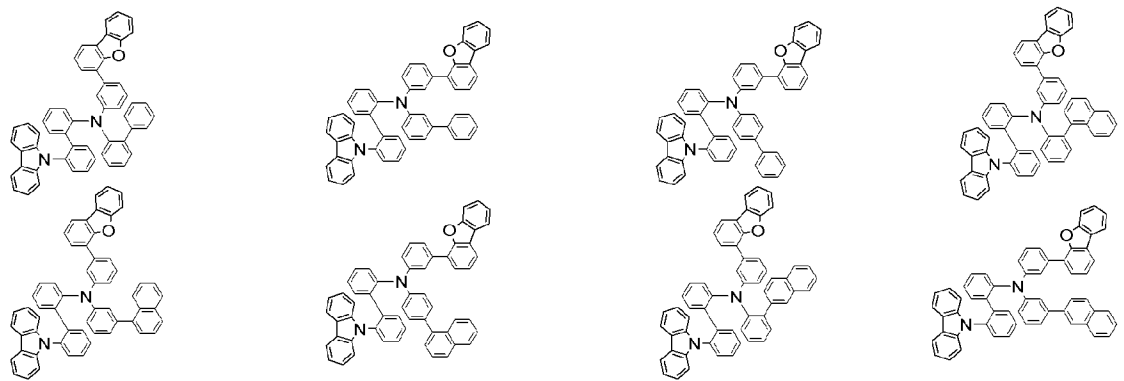
[化17]



[0080] [化18]

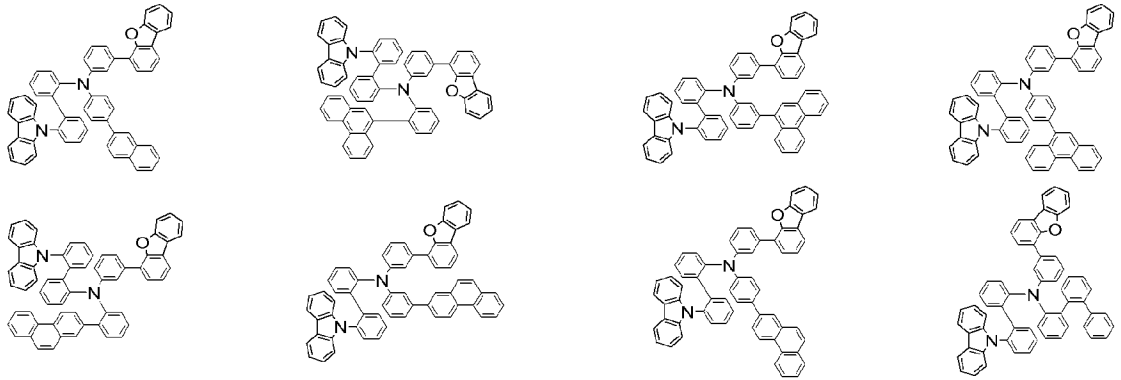


[0081] [化19]

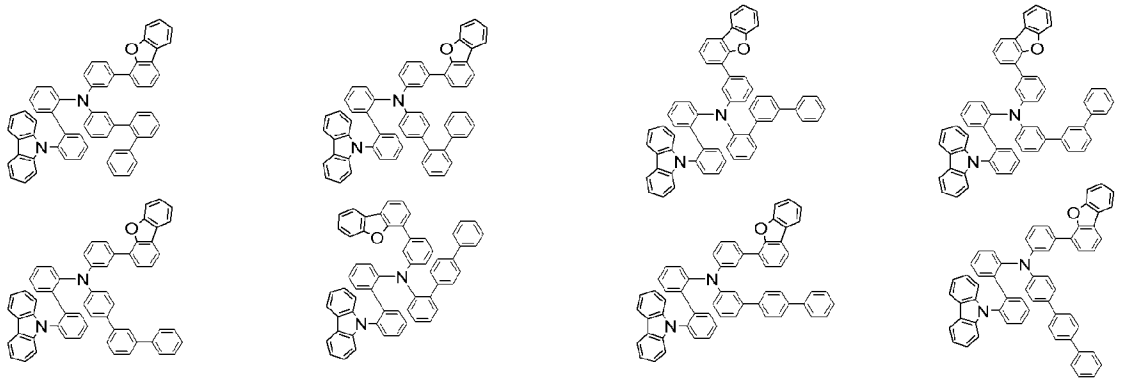


[0082]

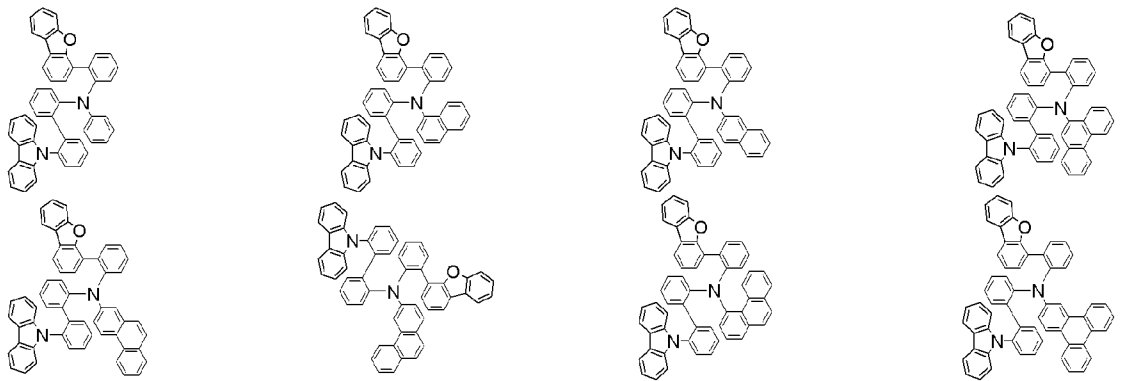
[化20]



[0083] [化21]

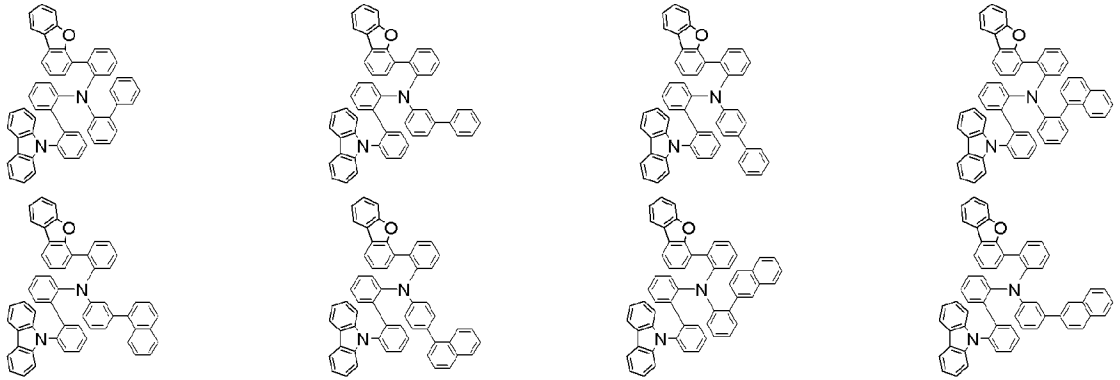


[0084] [化22]

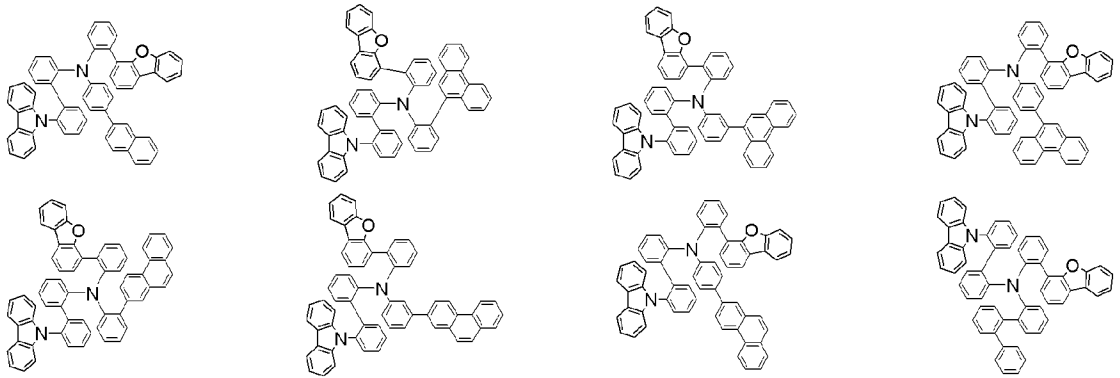


[0085]

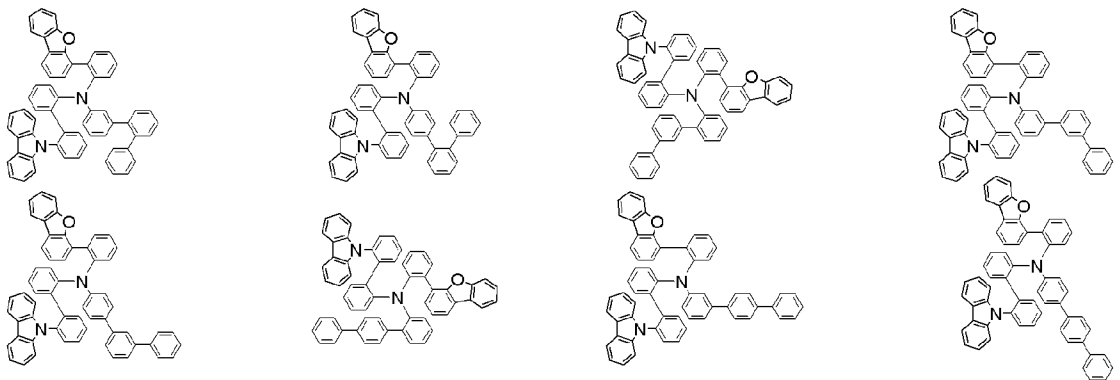
[化23]



[0086] [化24]

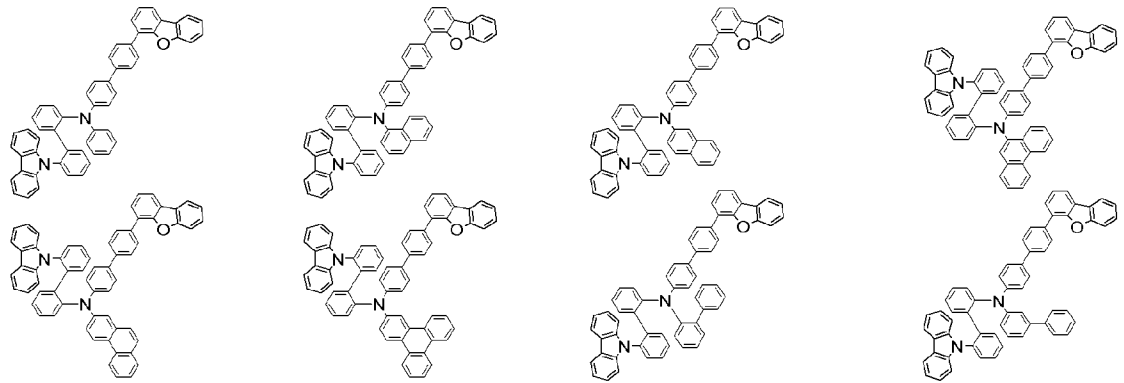


[0087] [化25]

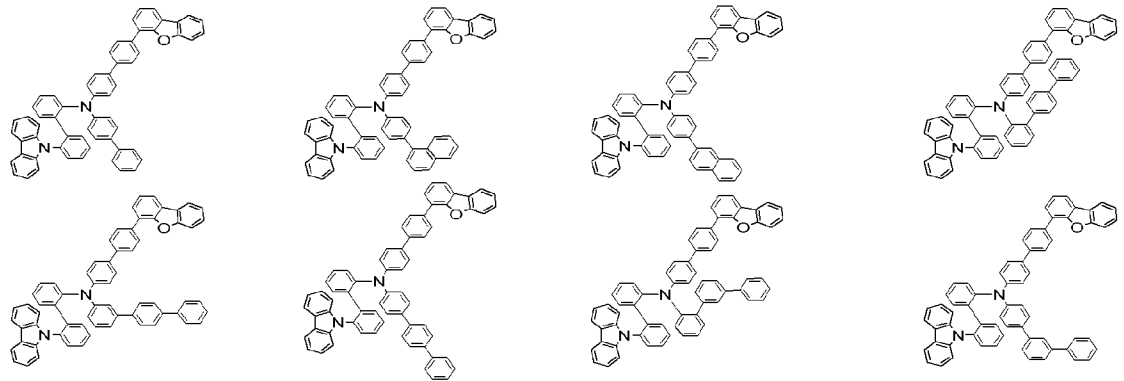


[0088]

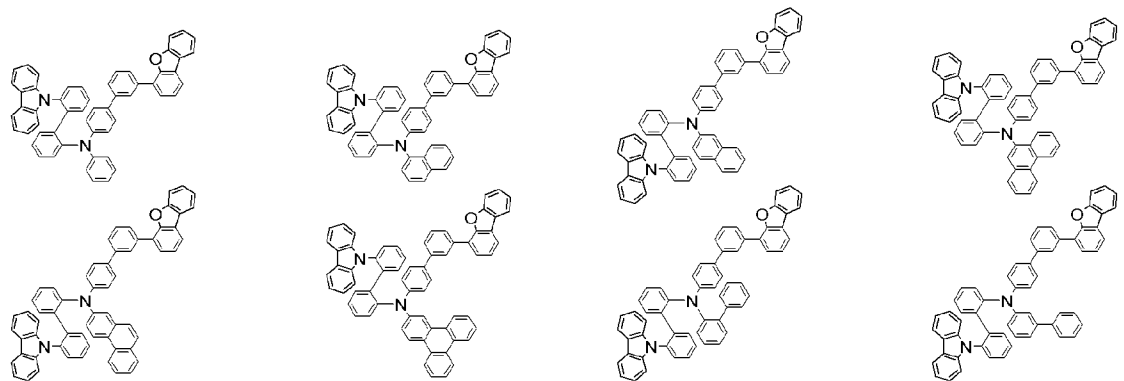
[化26]



[0089] [化27]

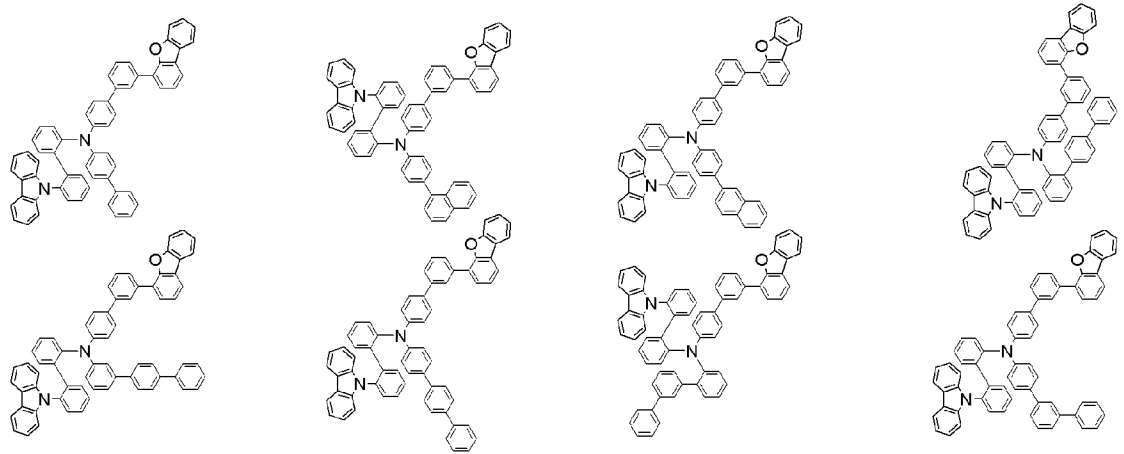


[0090] [化28]

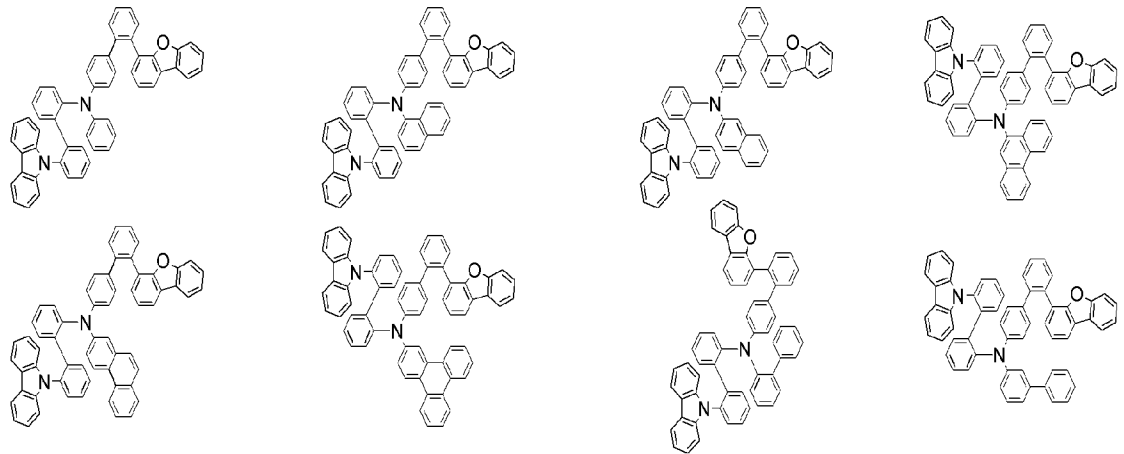


[0091]

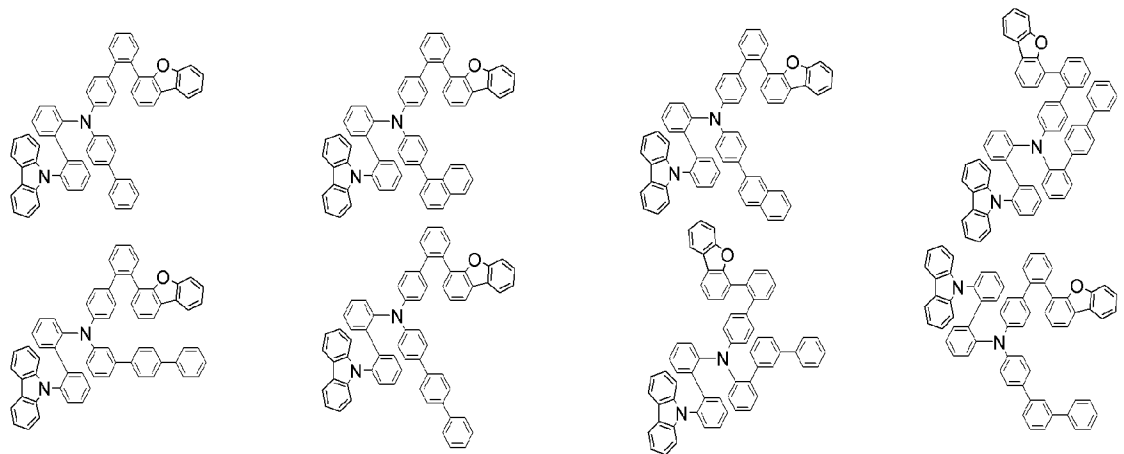
[化29]



[0092] [化30]

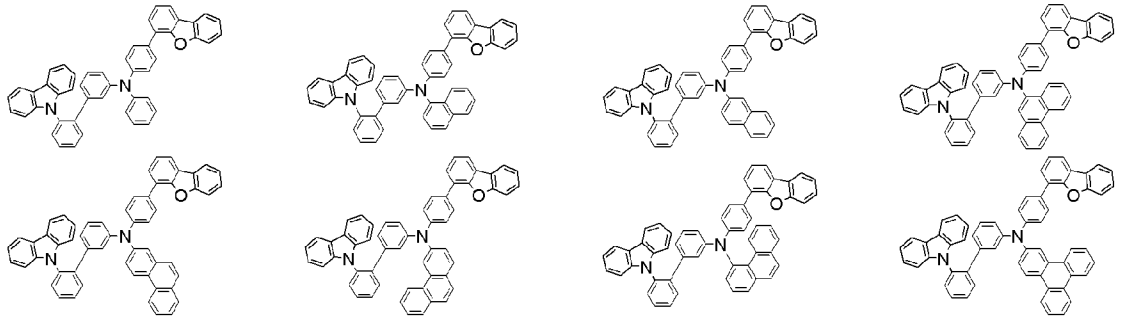


[0093] [化31]

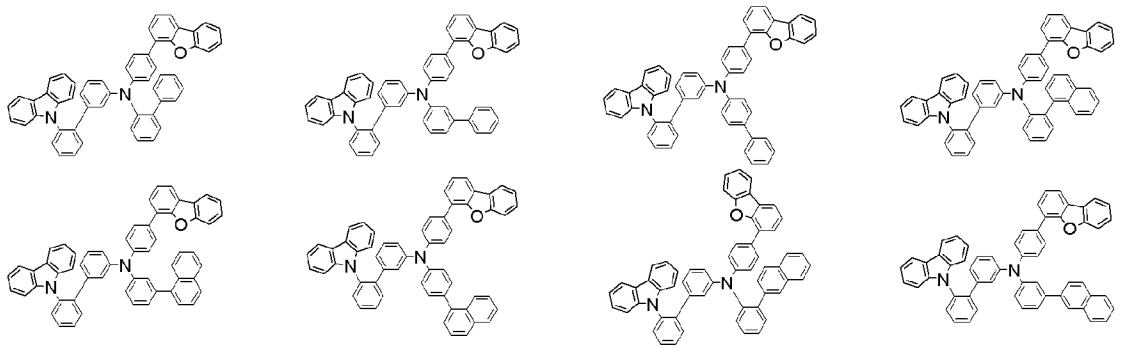


[0094]

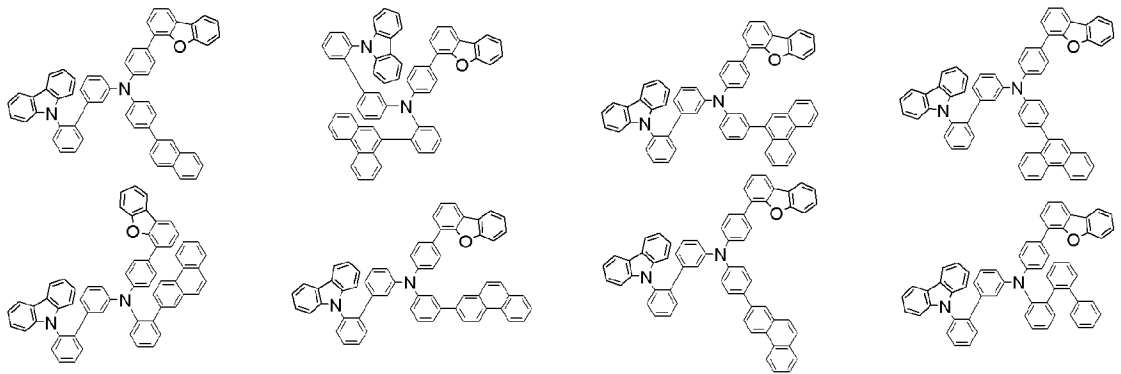
[化32]



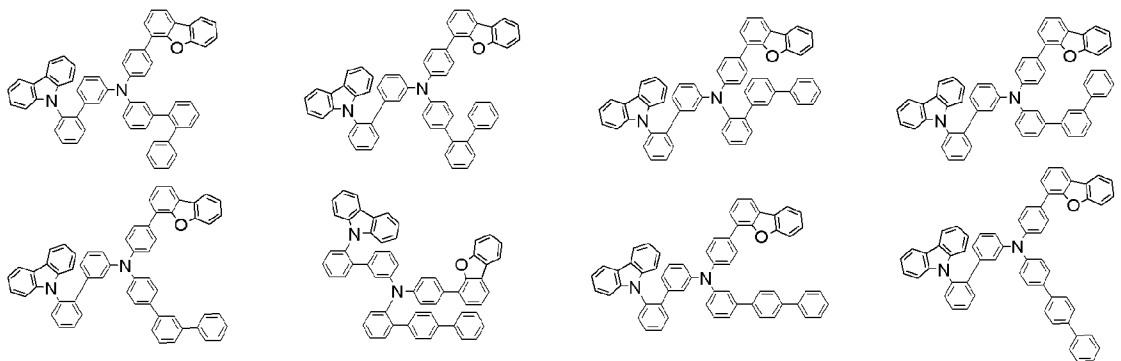
[0095] [化33]



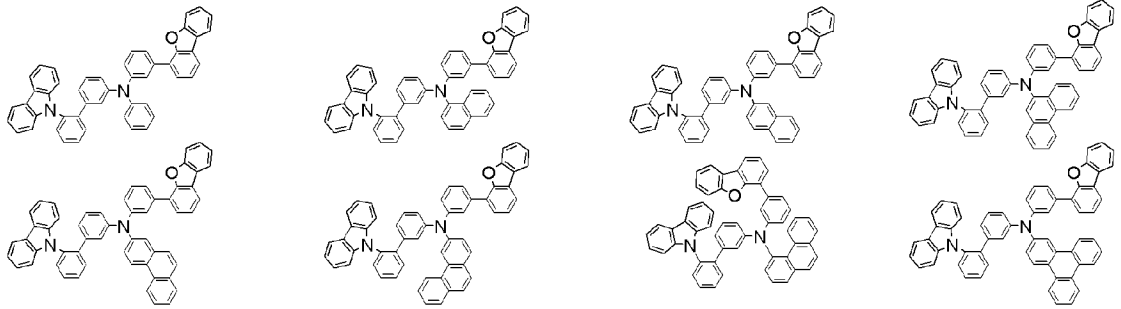
[0096] [化34]



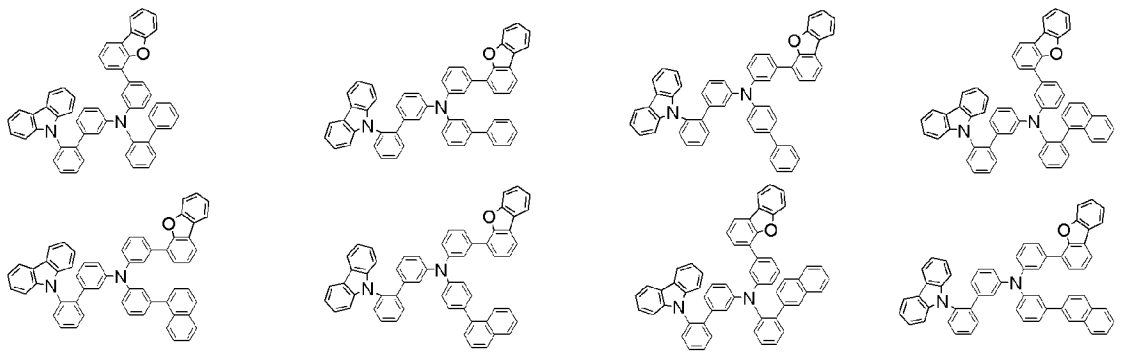
[0097] [化35]



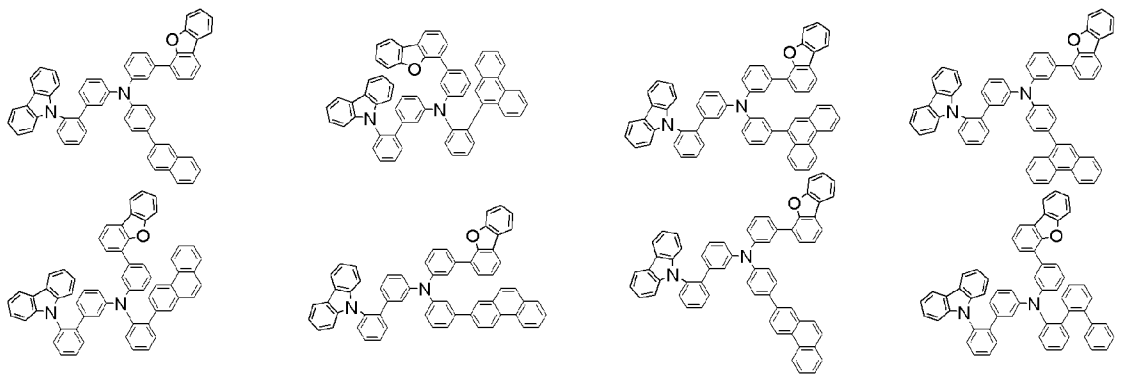
[0098] [化36]



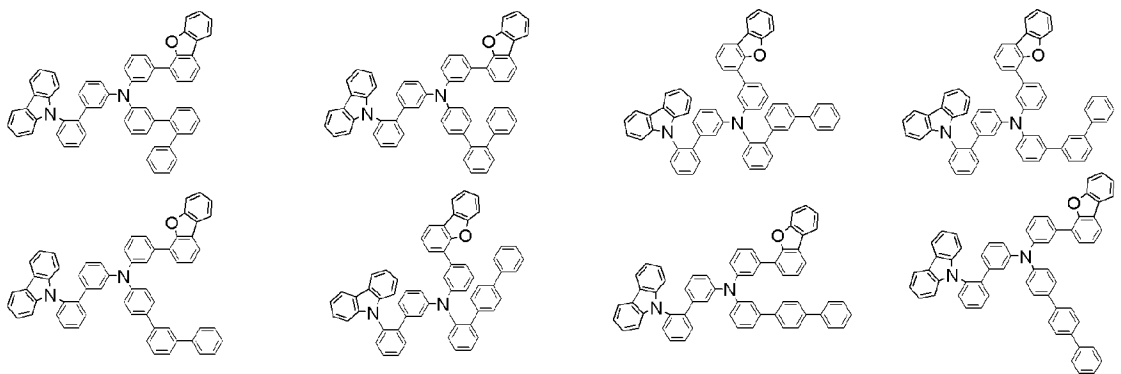
[0099] [化37]



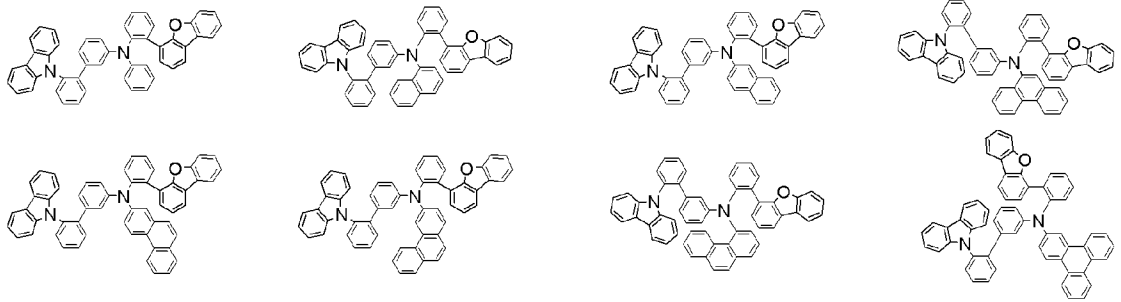
[0100] [化38]



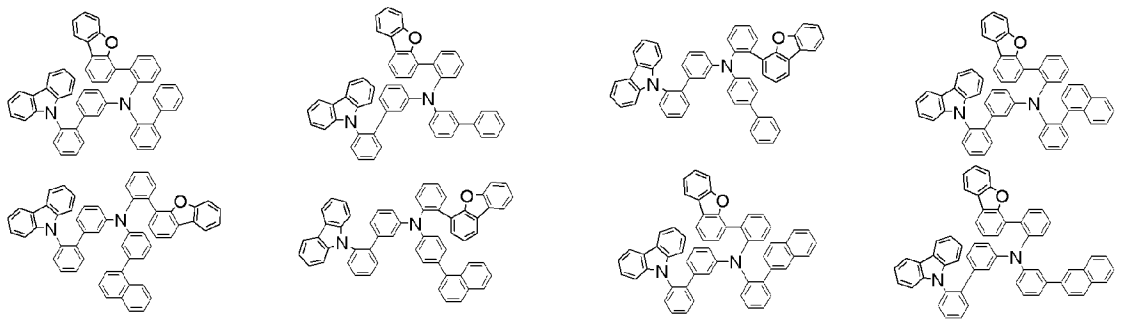
[0101] [化39]



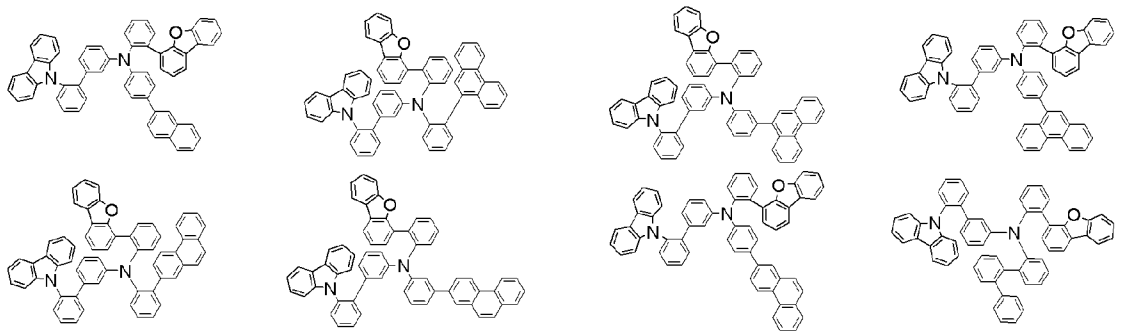
[0102] [化40]



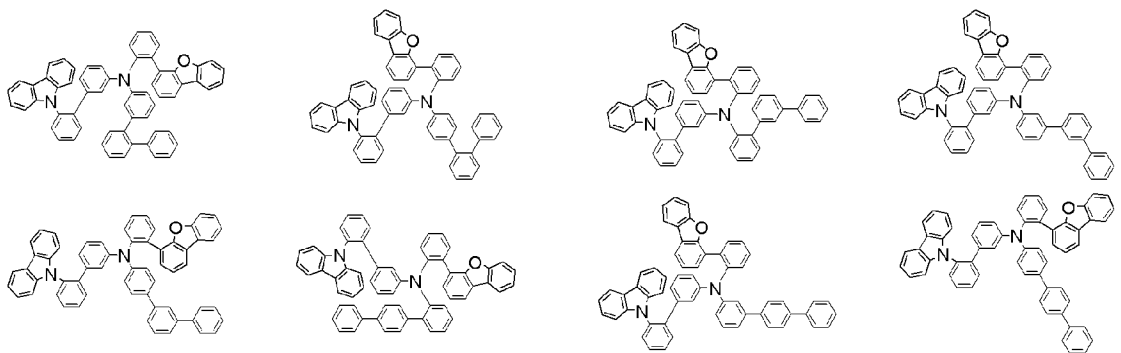
[0103] [化41]



[0104] [化42]

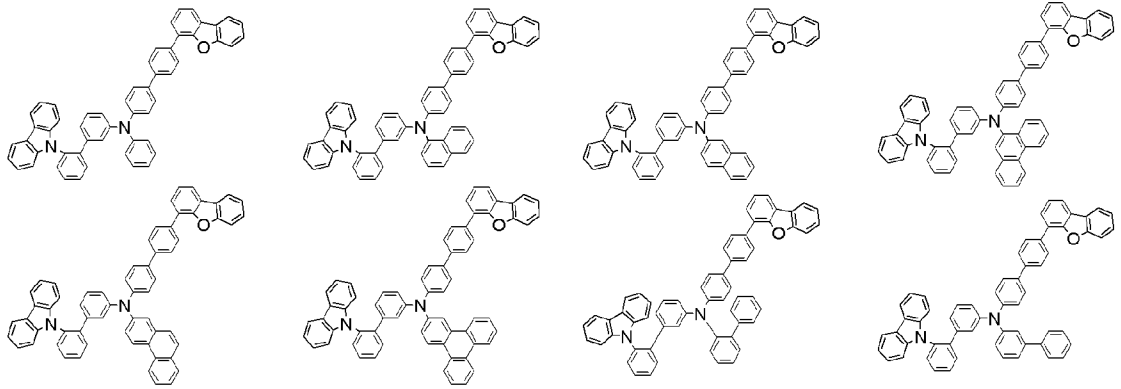


[0105] [化43]

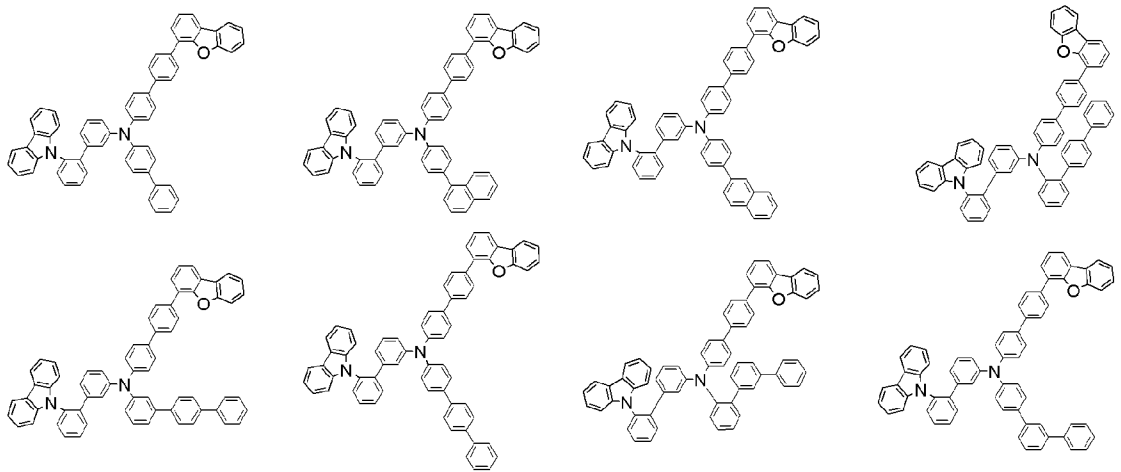


[0106]

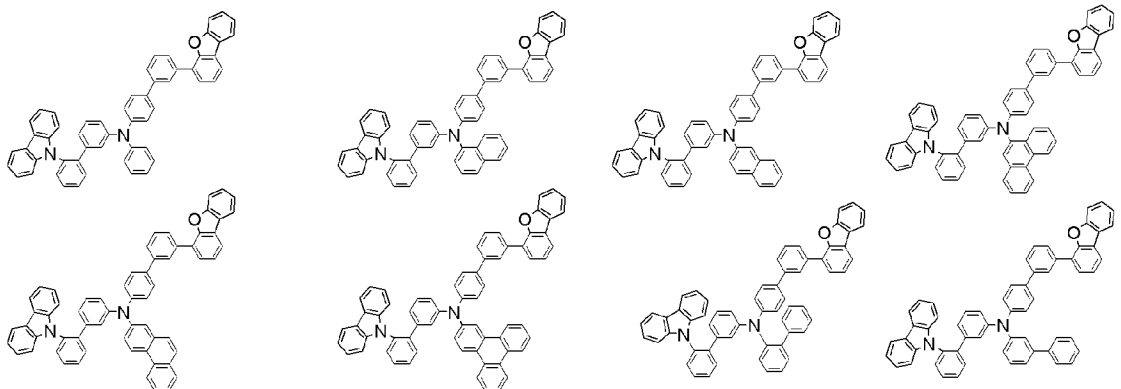
[化44]



[0107] [化45]

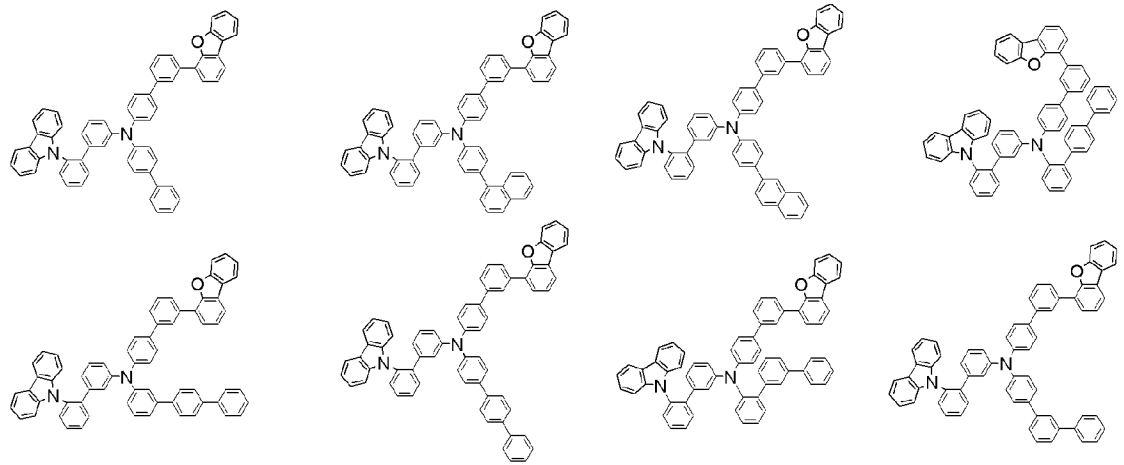


[0108] [化46]

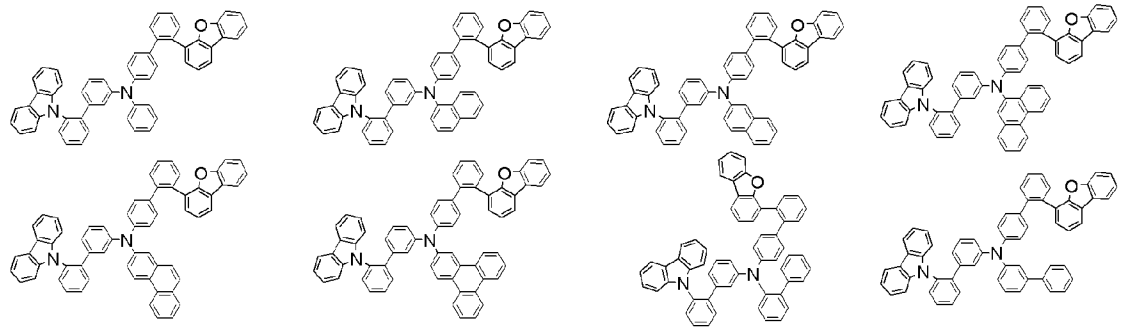


[0109]

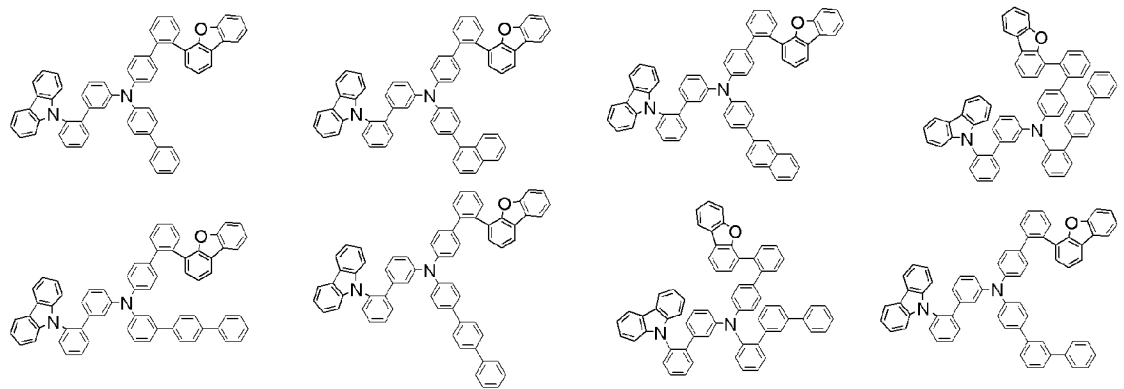
[化47]



[0110] [化48]

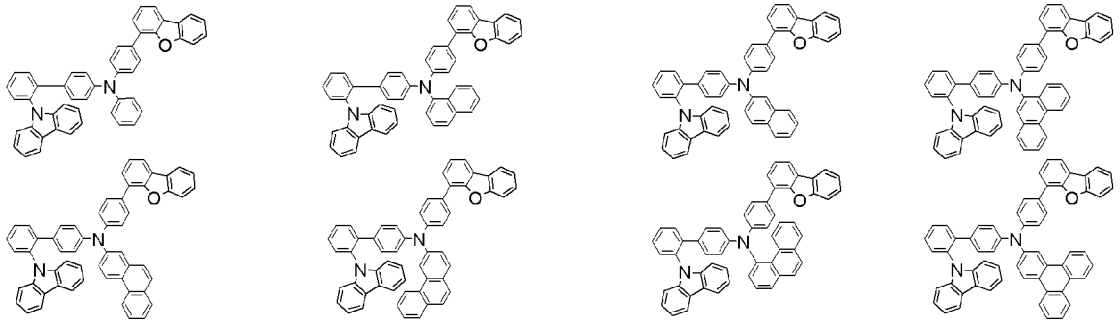


[0111] [化49]

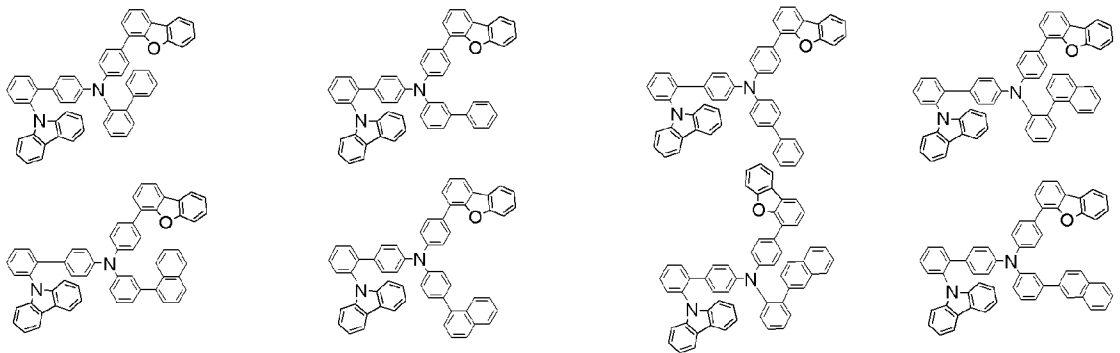


[0112]

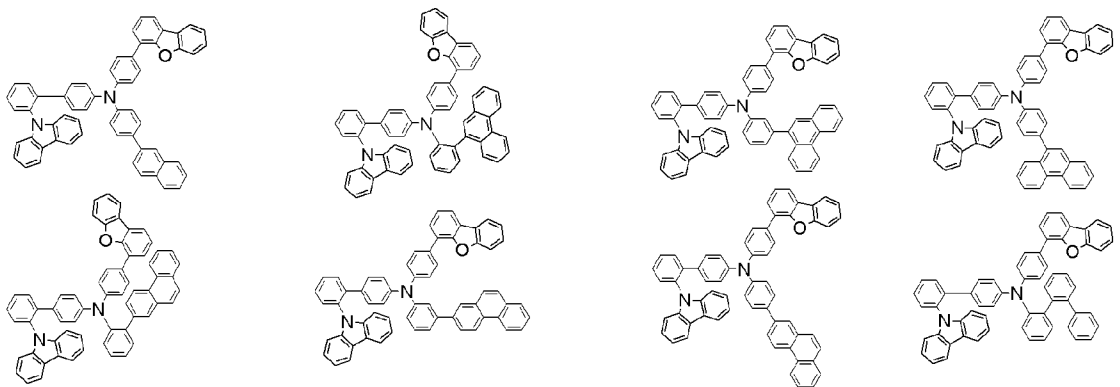
[化50]



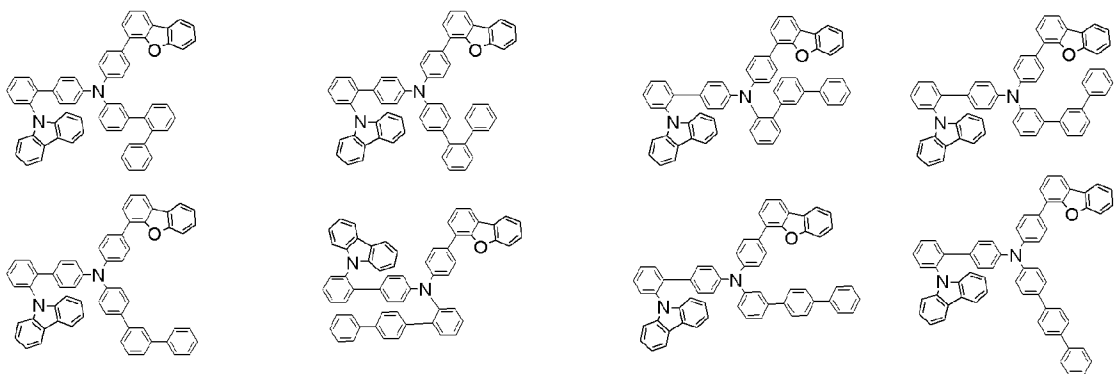
[0113] [化51]



[0114] [化52]



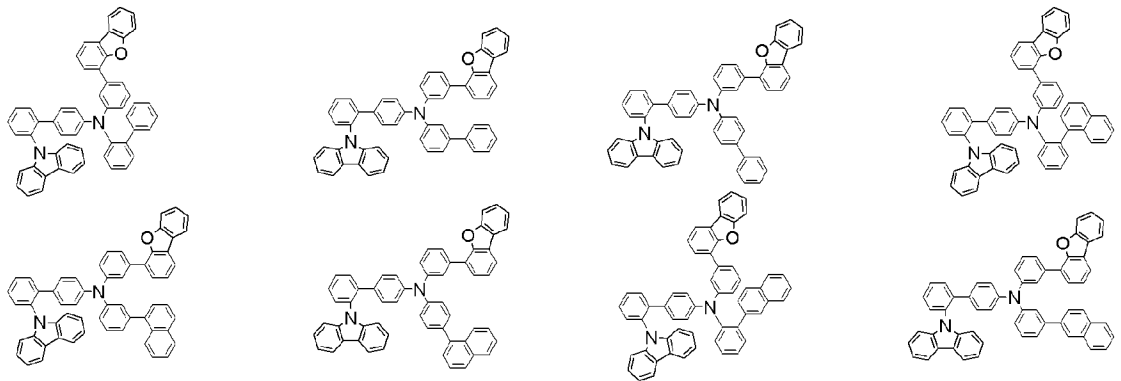
[0115] [化53]



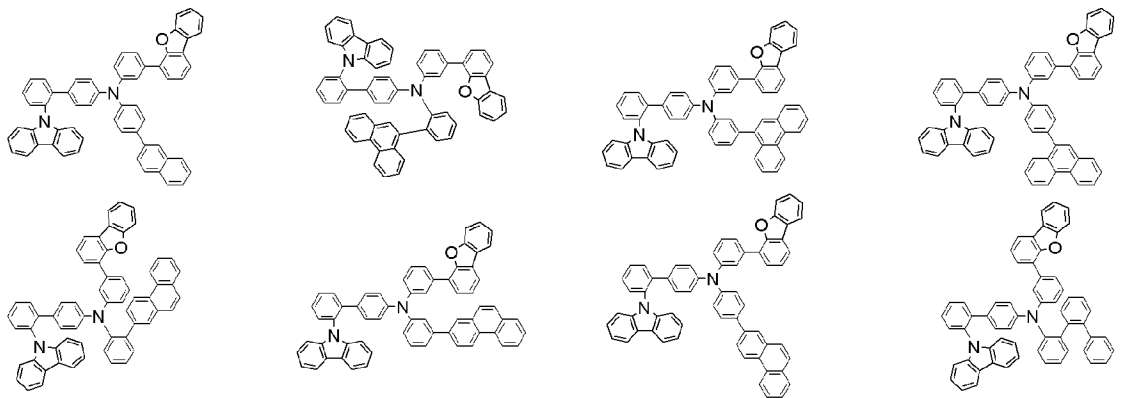
[0116] [化54]



[0117] [化55]

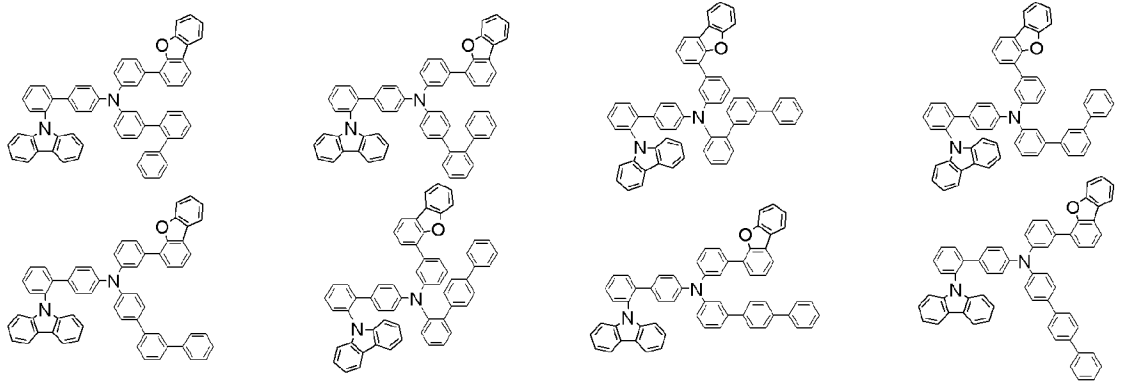


[0118] [化56]

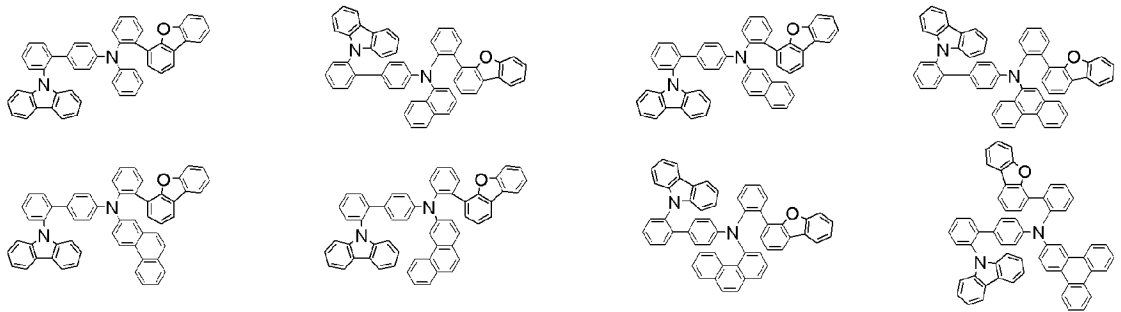


[0119]

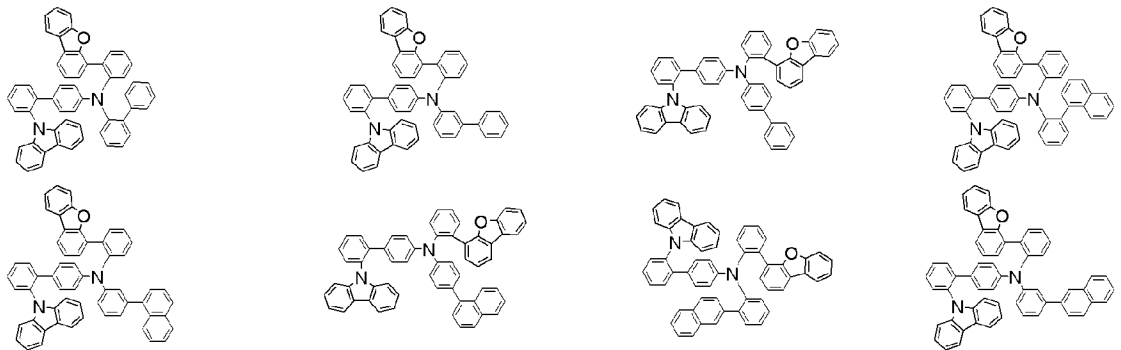
[化57]



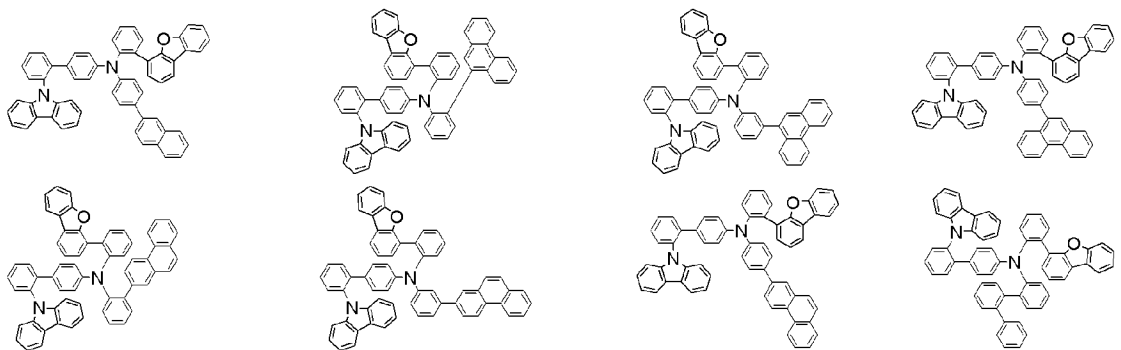
[0120] [化58]



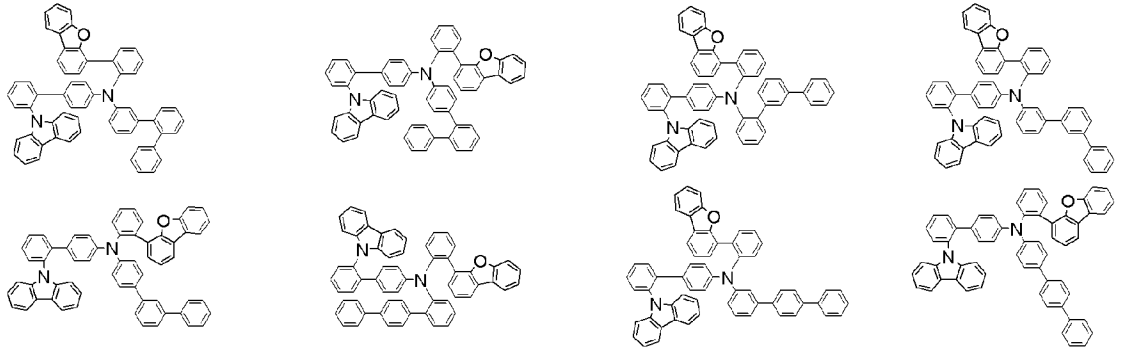
[0121] [化59]



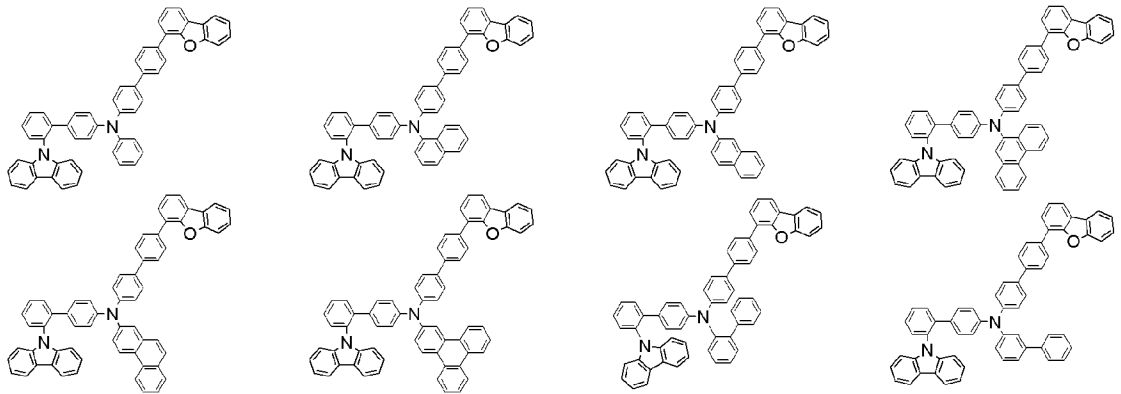
[0122] [化60]



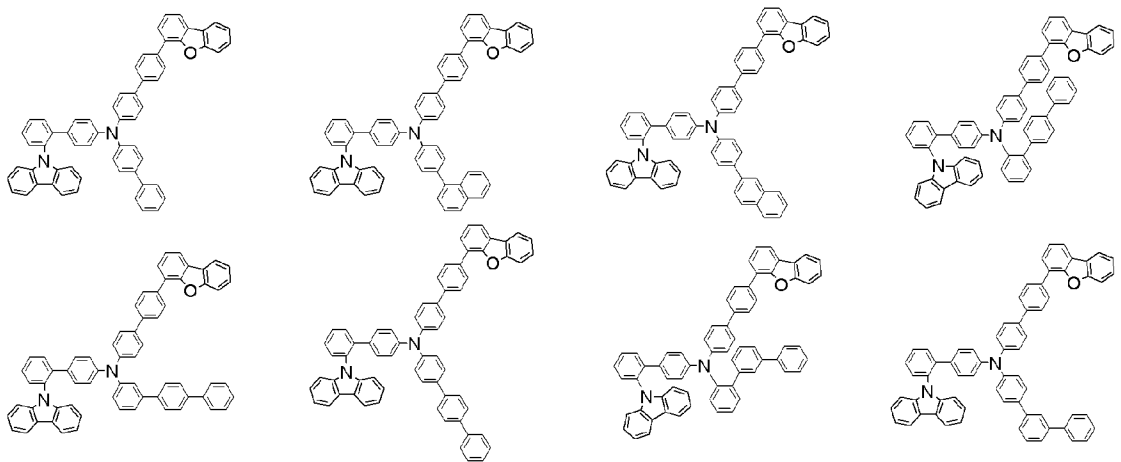
[0123] [化61]



[0124] [化62]

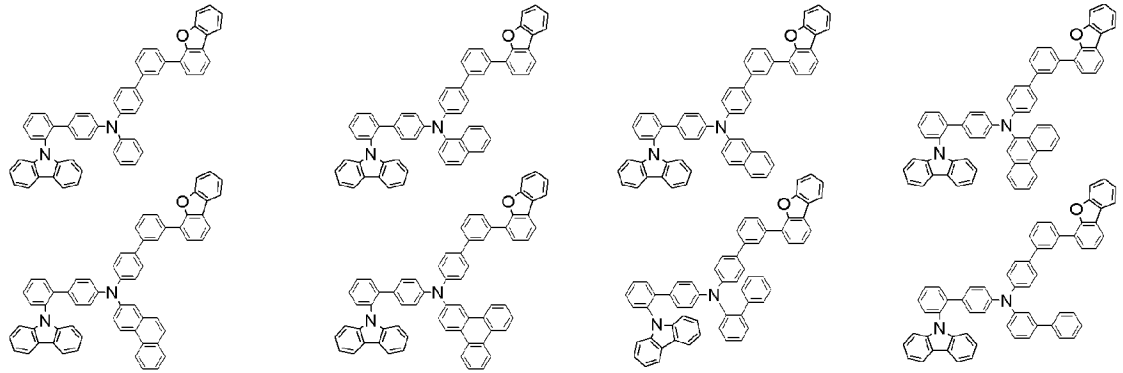


[0125] [化63]

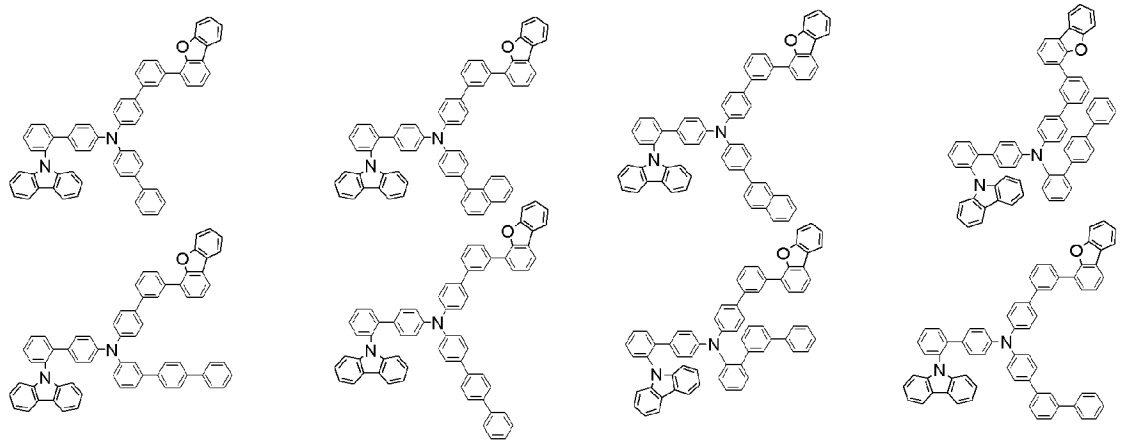


[0126]

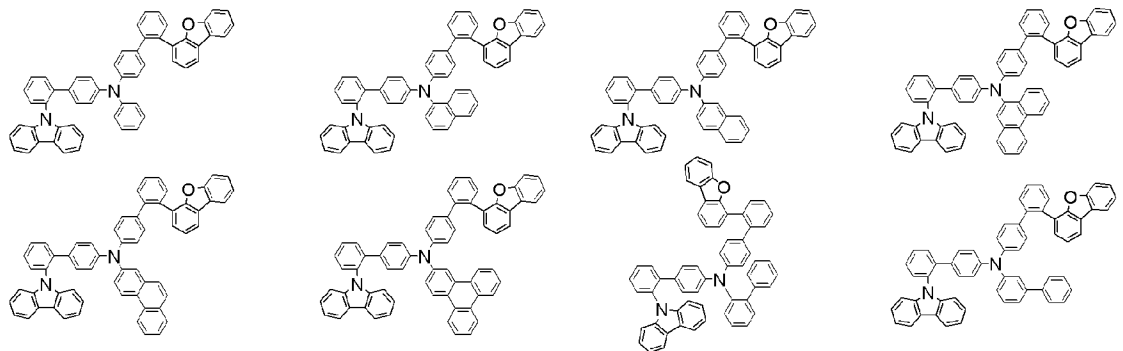
[化64]



[0127] [化65]

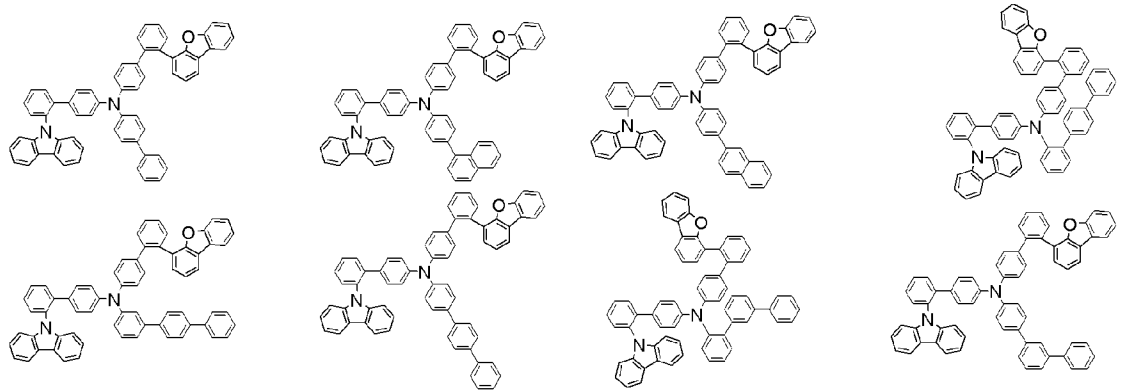


[0128] [化66]

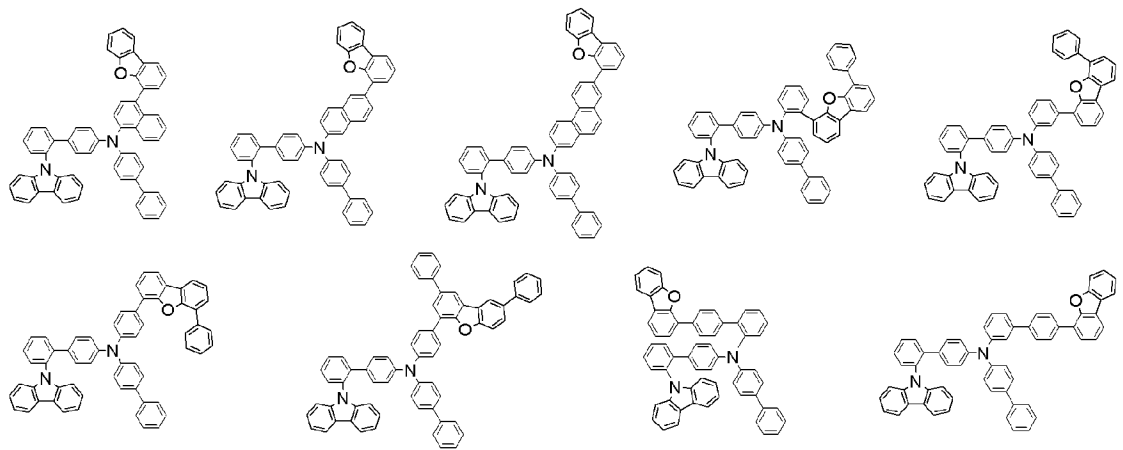


[0129]

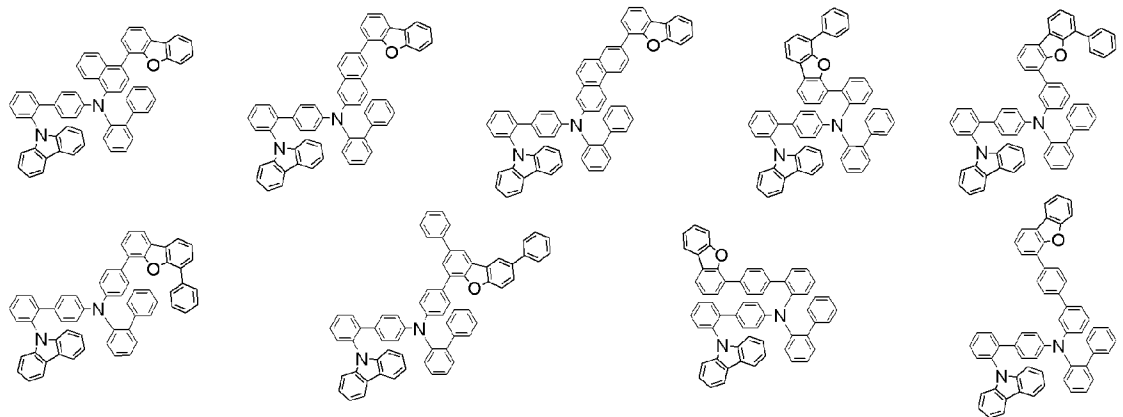
[化67]



[0130] [化68]

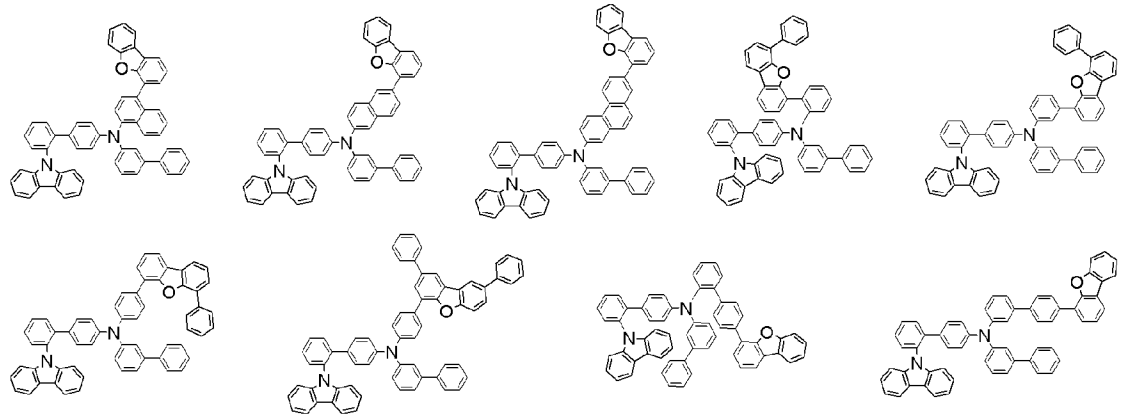


[0131] [化69]

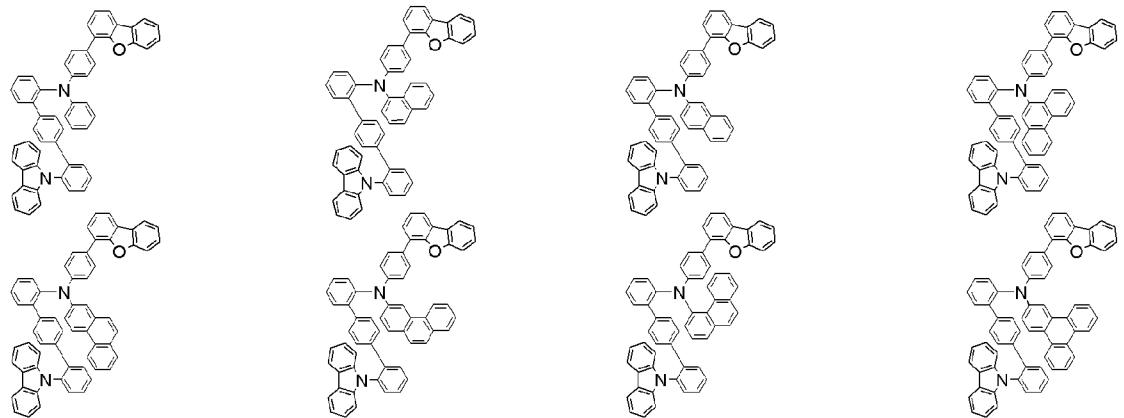


[0132]

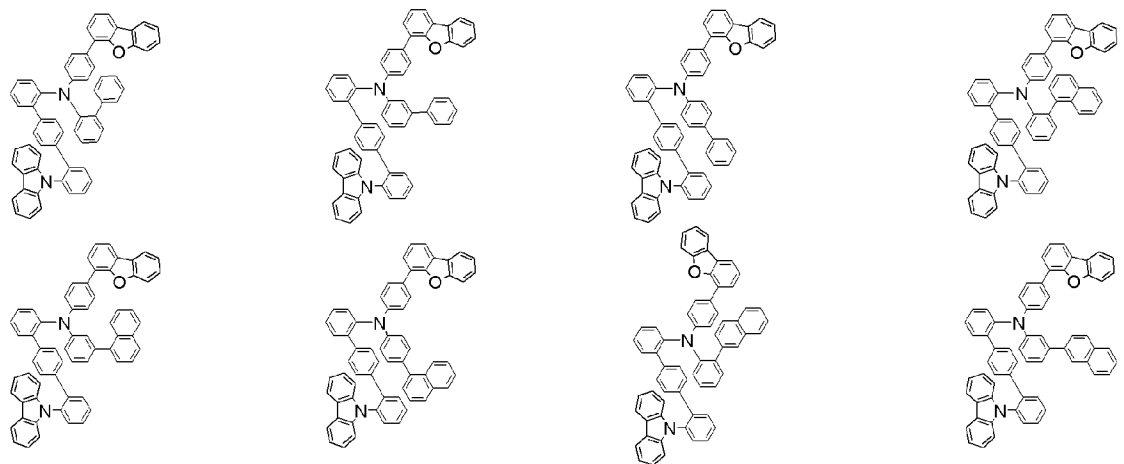
[化70]



[0133] [化71]

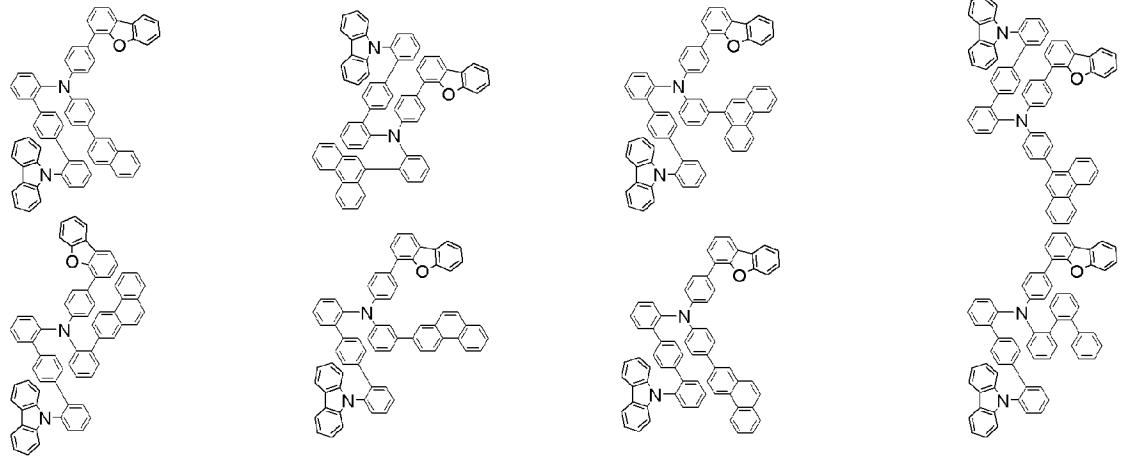


[0134] [化72]

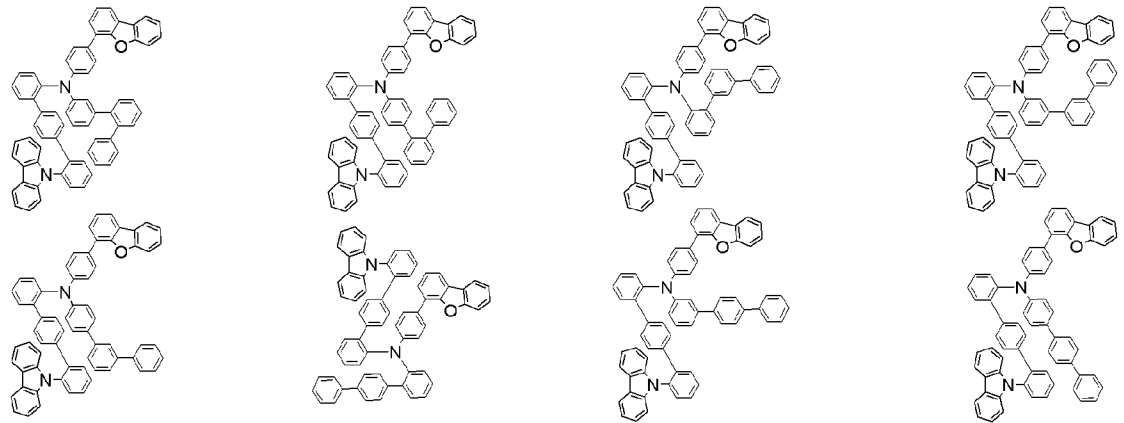


[0135]

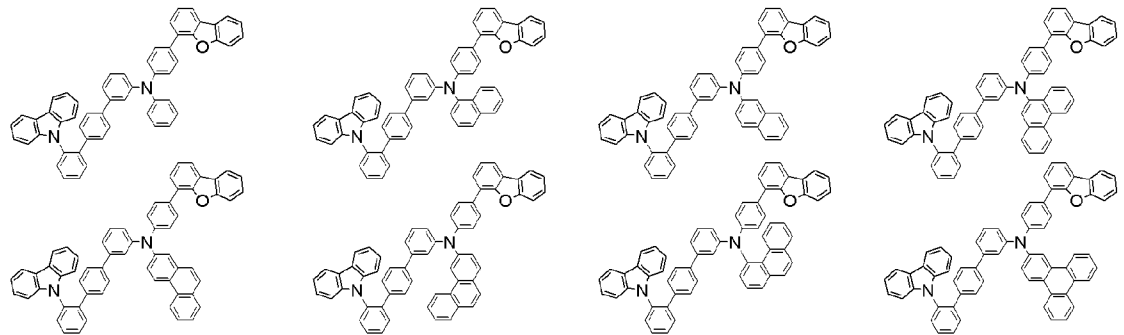
[化73]



[0136] [化74]

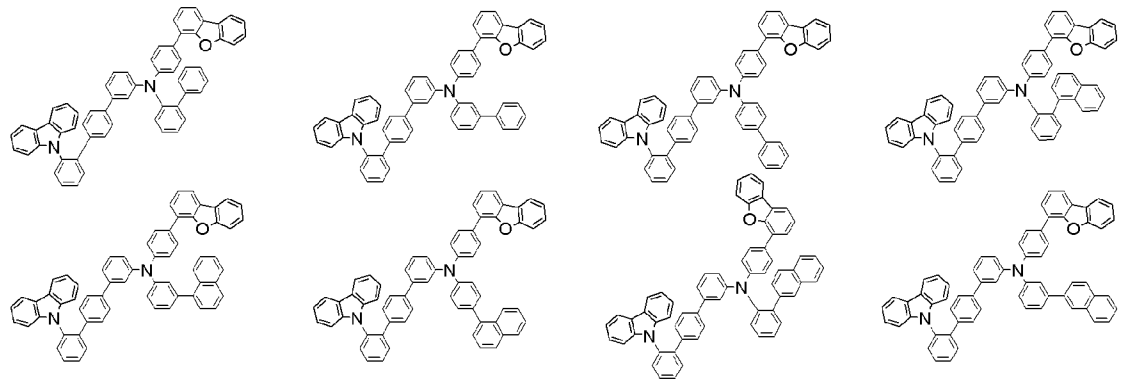


[0137] [化75]

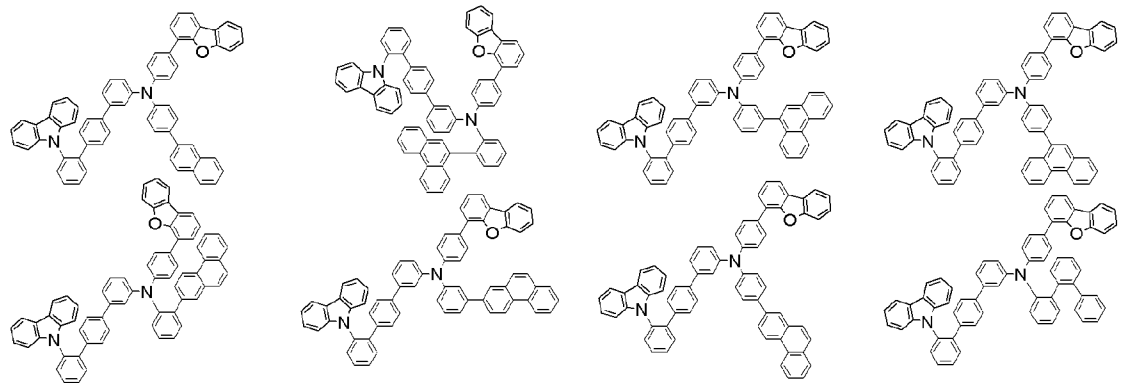


[0138]

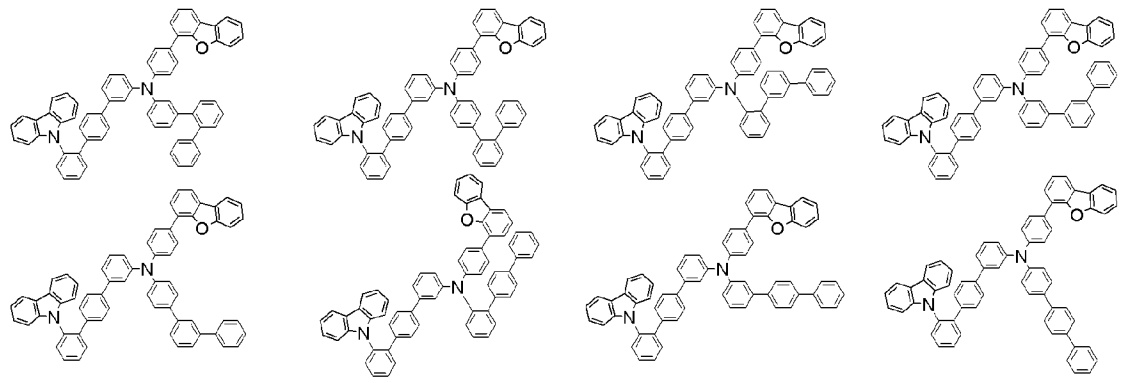
[化76]



[0139] [化77]

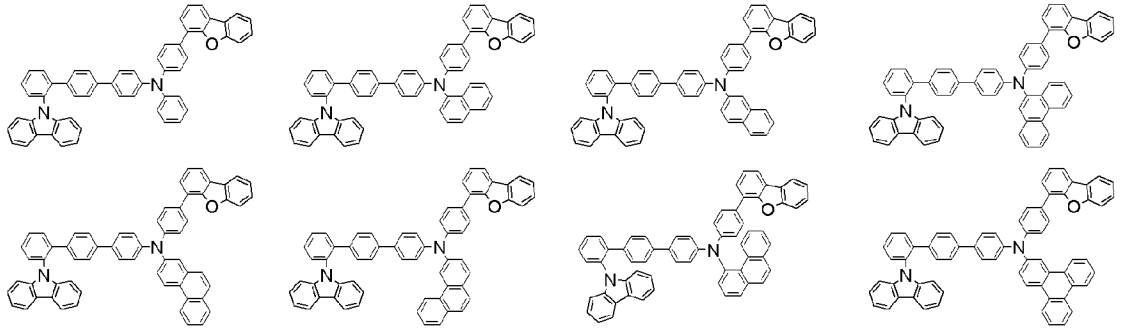


[0140] [化78]

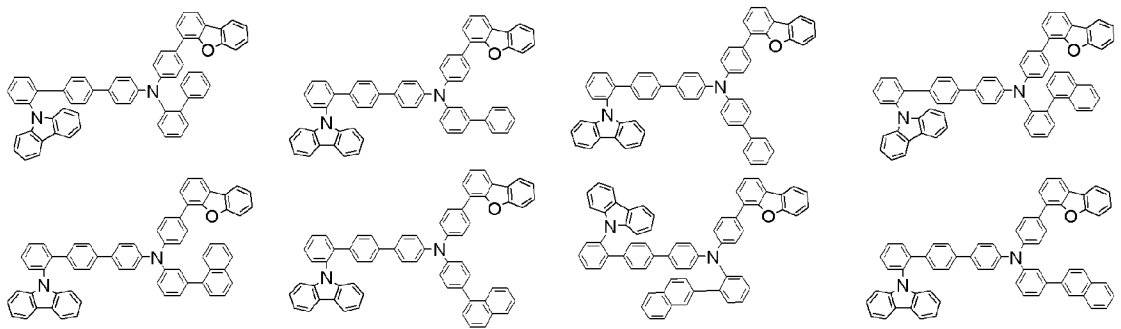


[0141]

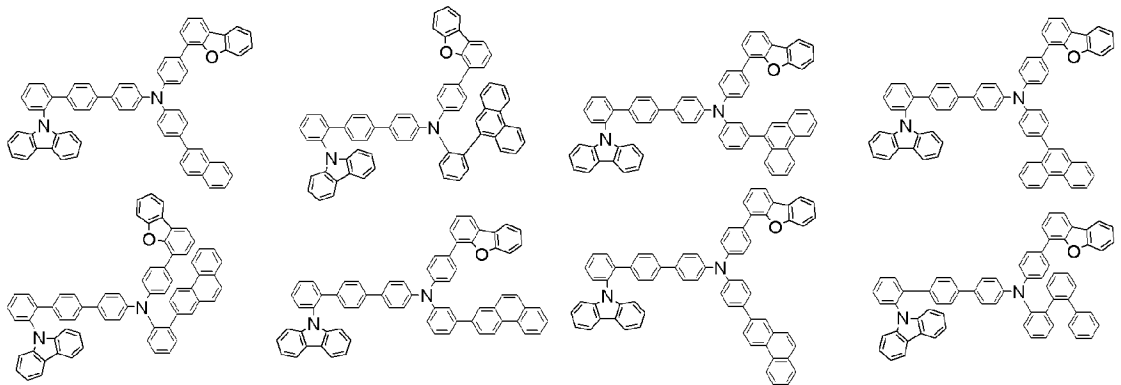
[化79]



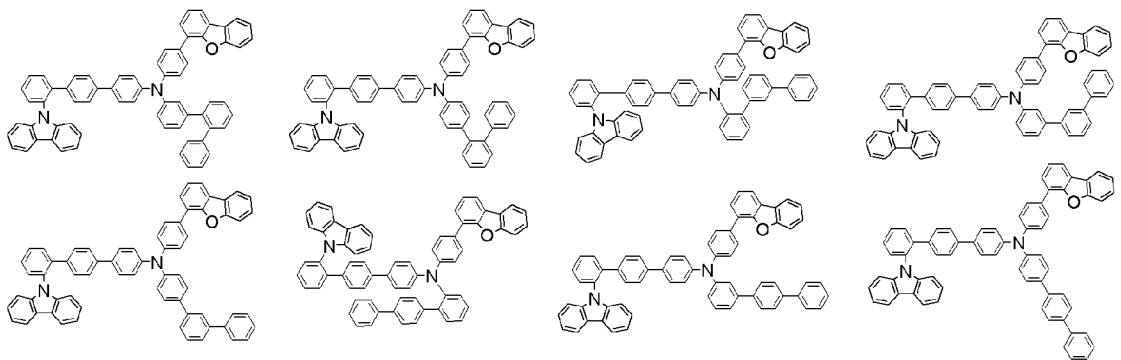
[0142] [化80]



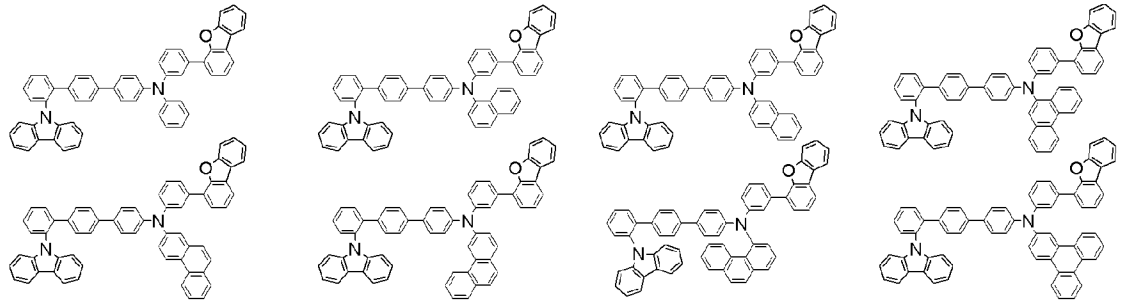
[0143] [化81]



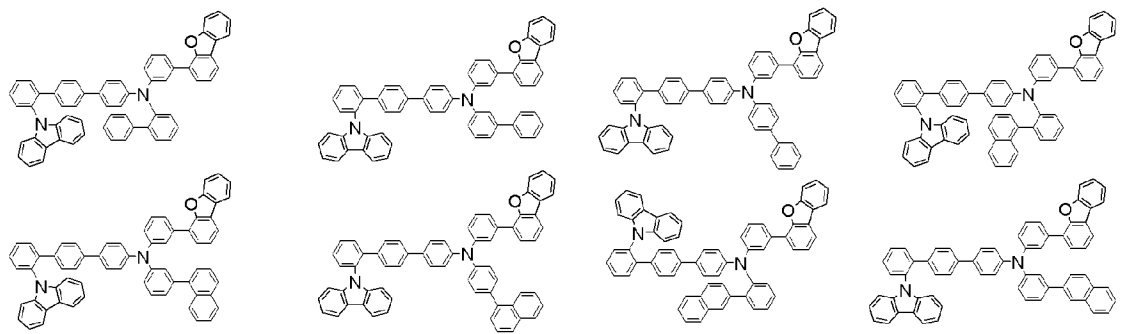
[0144] [化82]



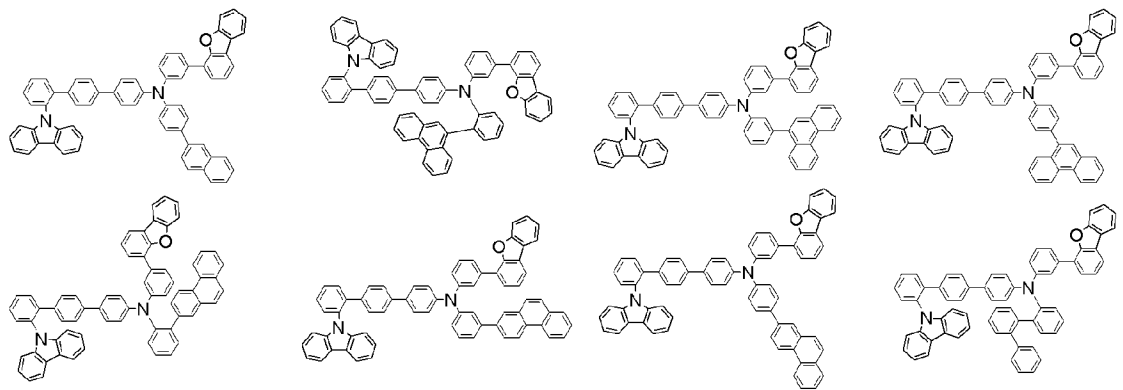
[0145] [化83]



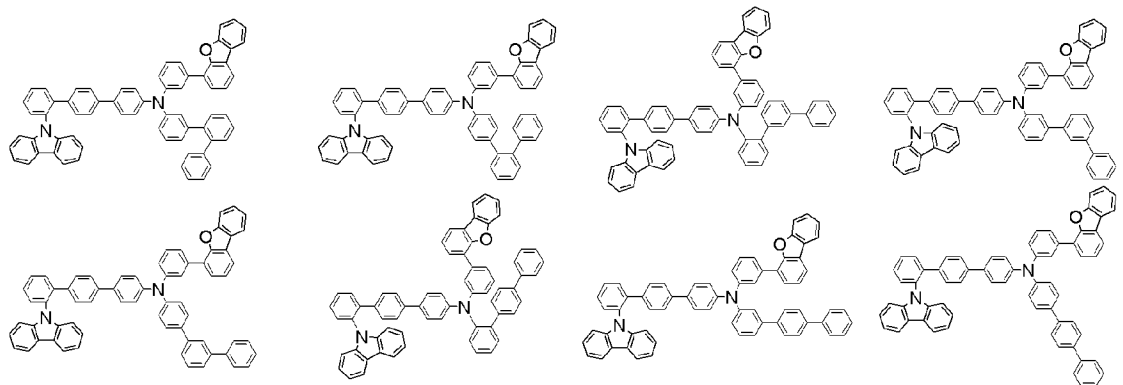
[0146] [化84]



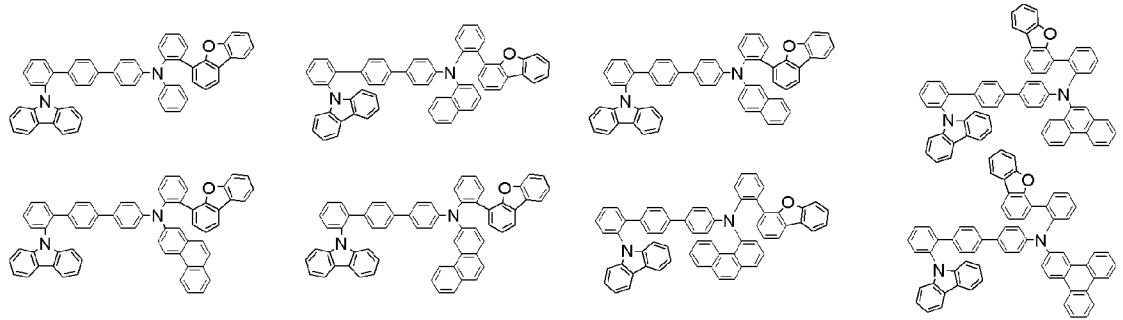
[0147] [化85]



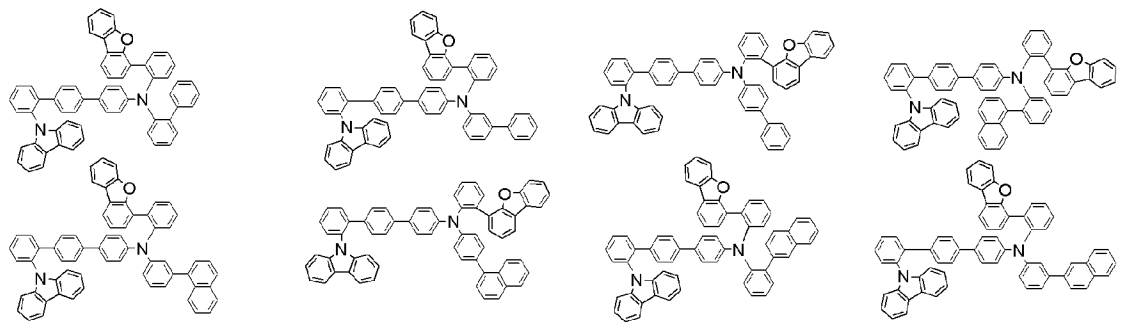
[0148] [化86]



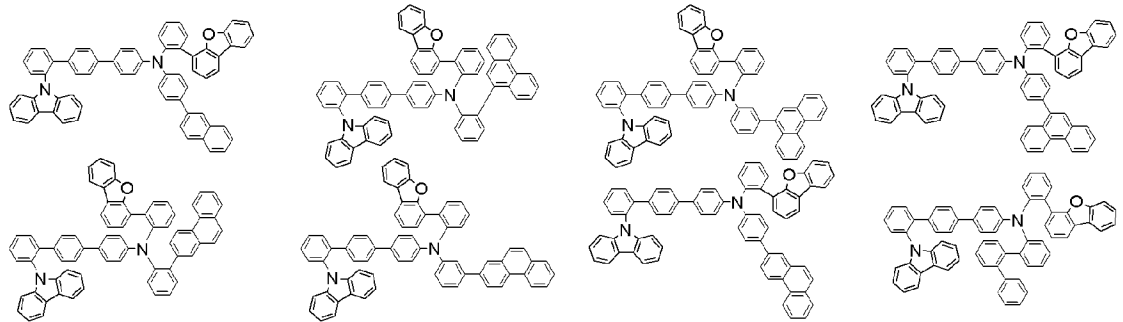
[0149] [化87]



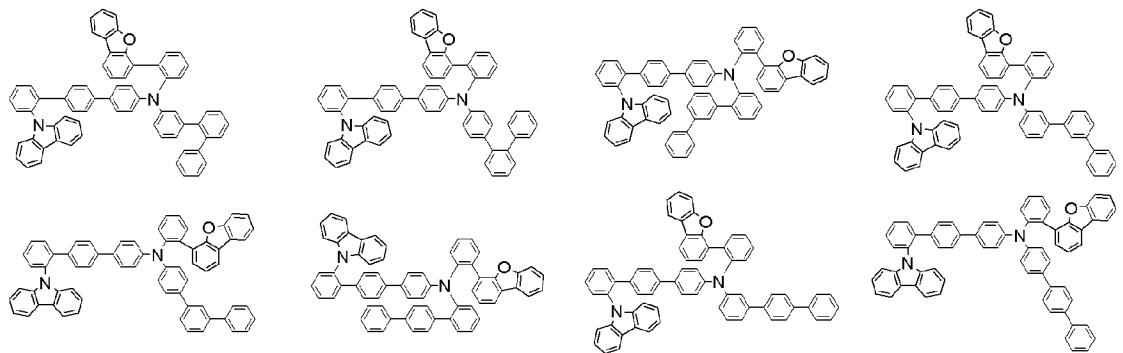
[0150] [化88]



[0151] [化89]

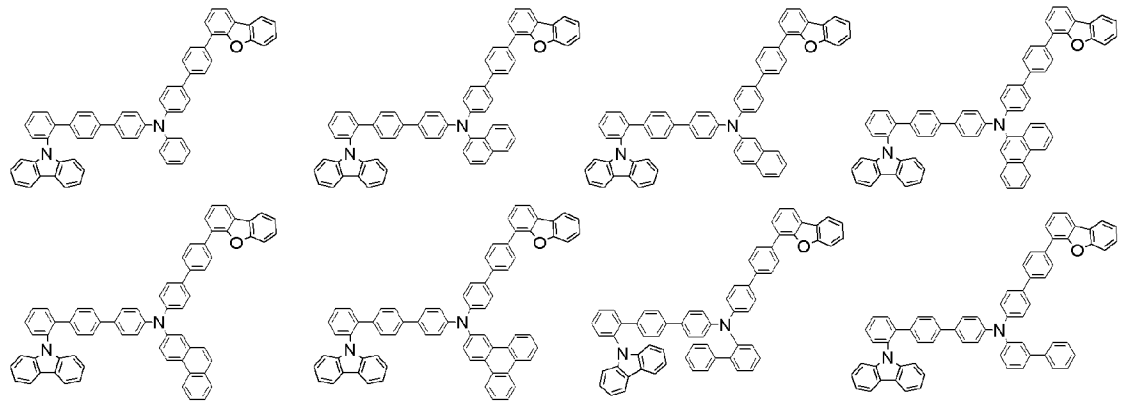


[0152] [化90]

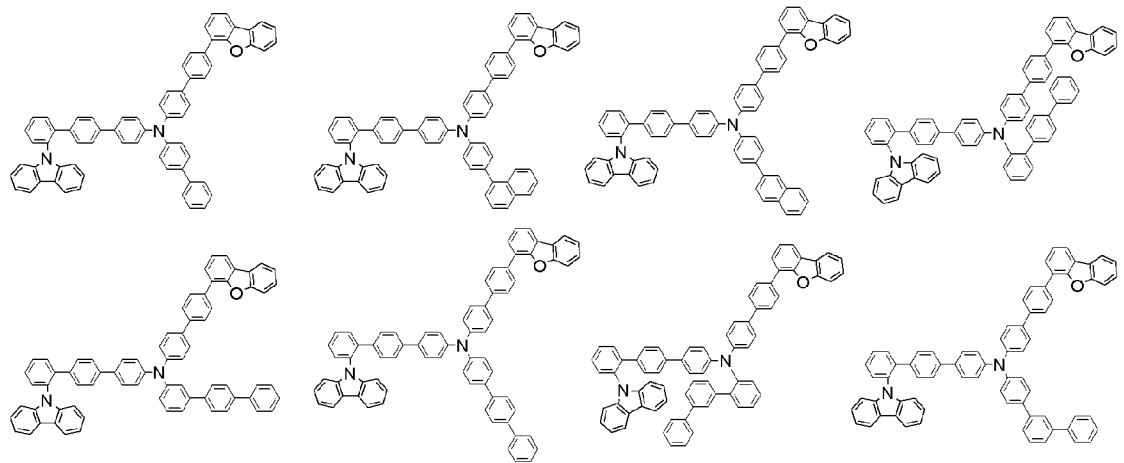


[0153]

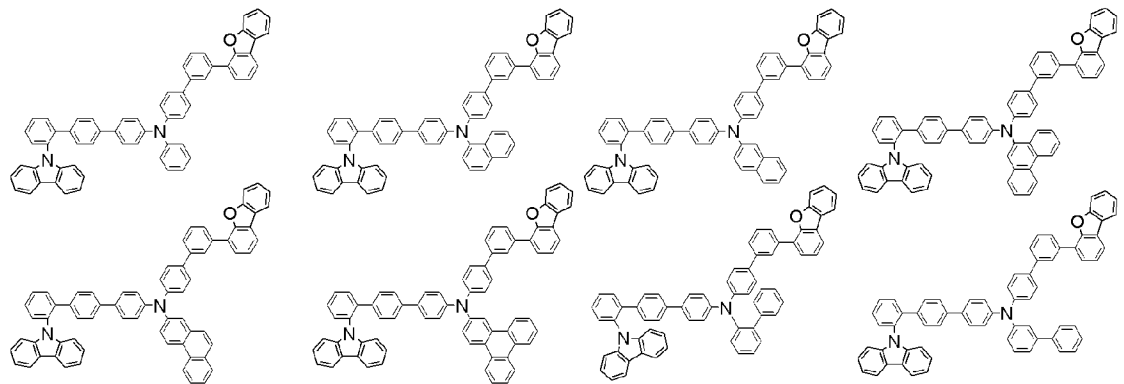
[化91]



[0154] [化92]

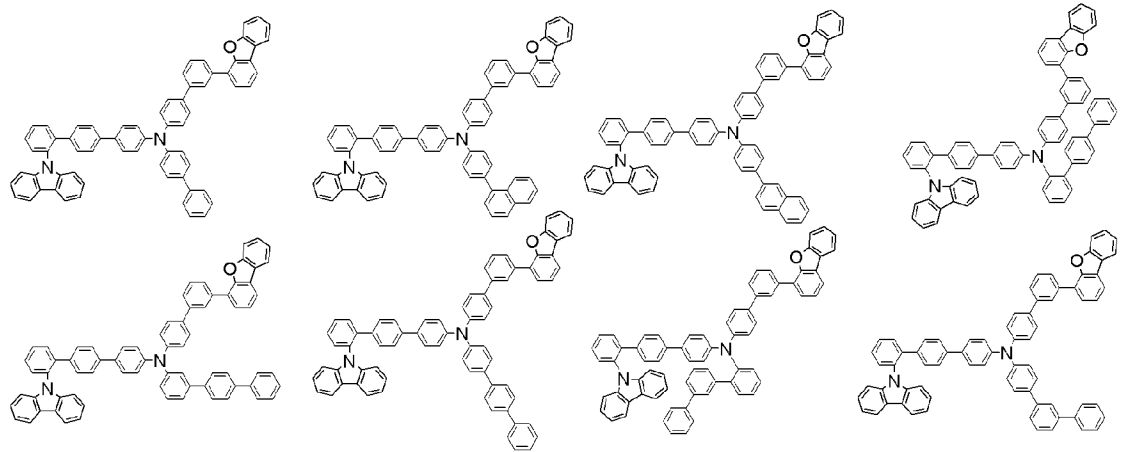


[0155] [化93]

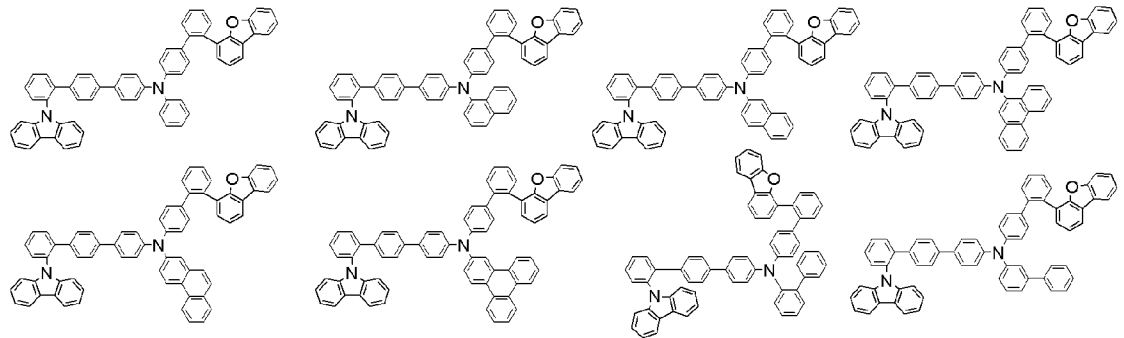


[0156]

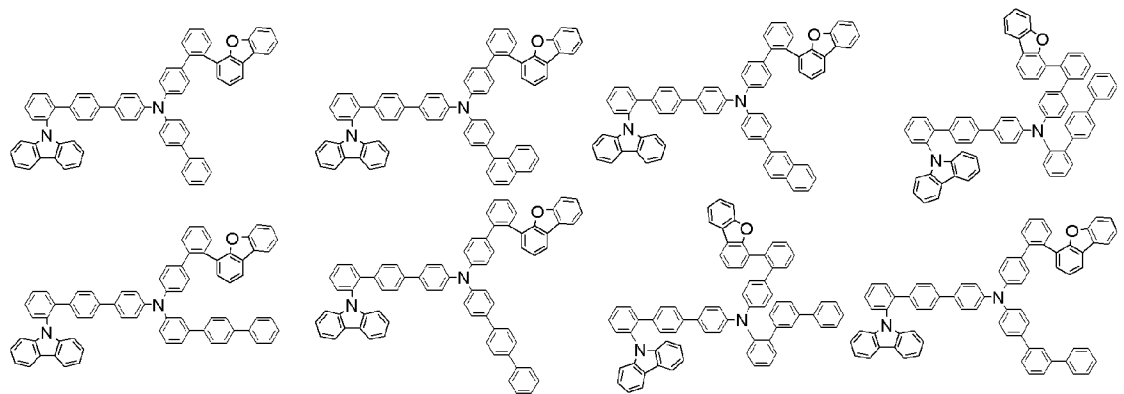
[化94]



[0157] [化95]

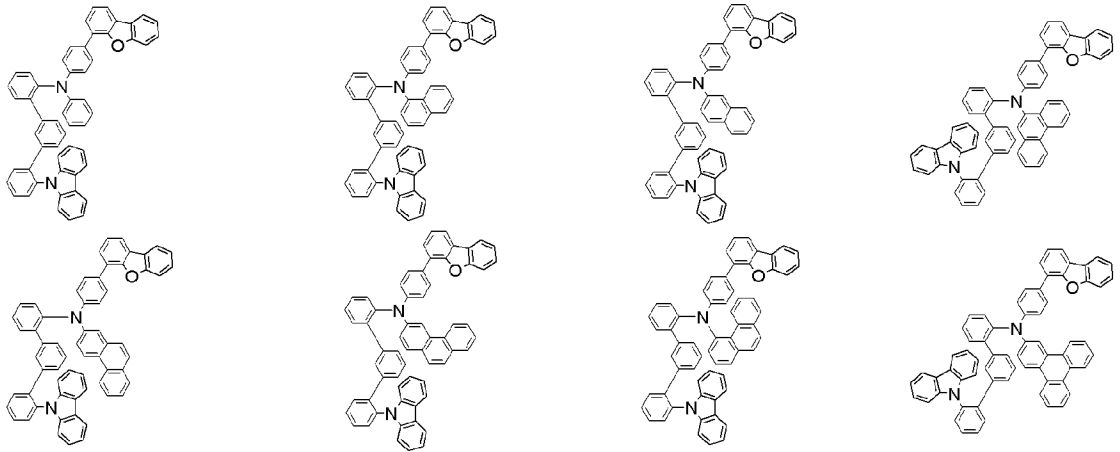


[0158] [化96]

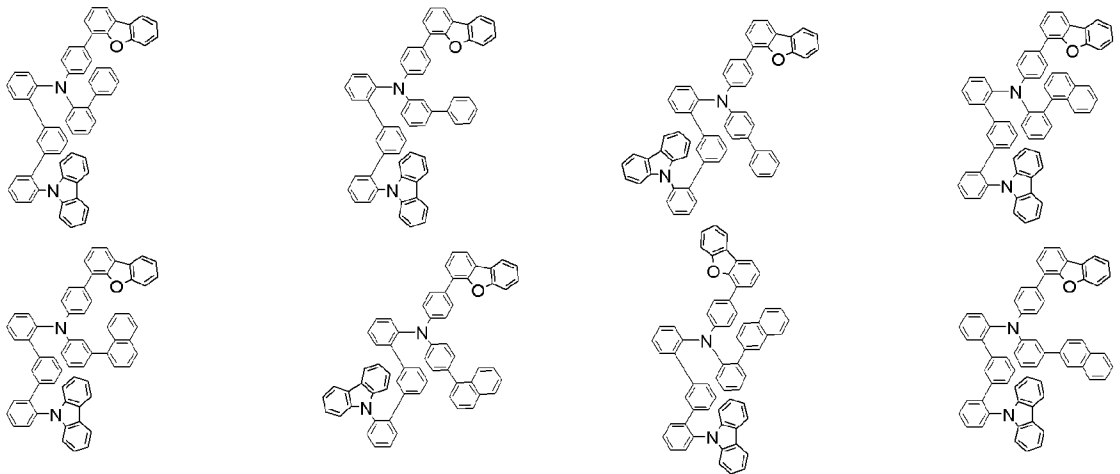


[0159]

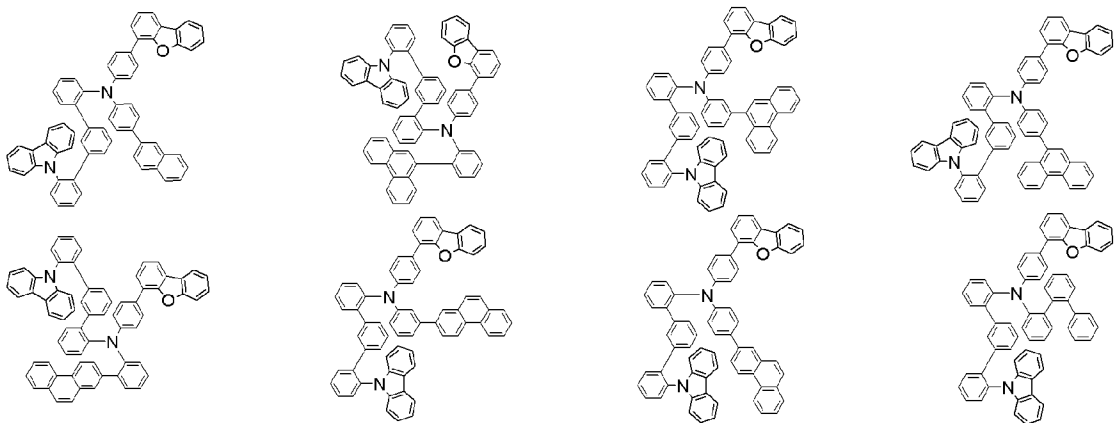
[化97]



[0160] [化98]

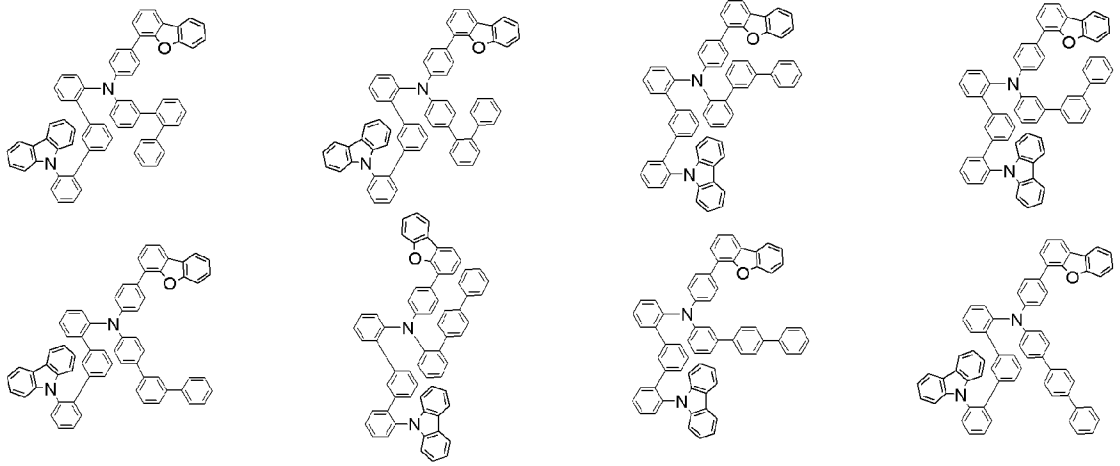


[0161] [化99]

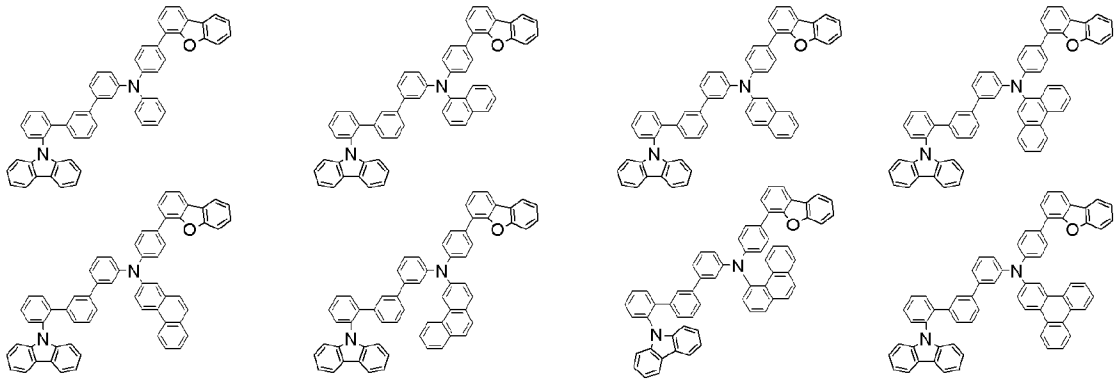


[0162]

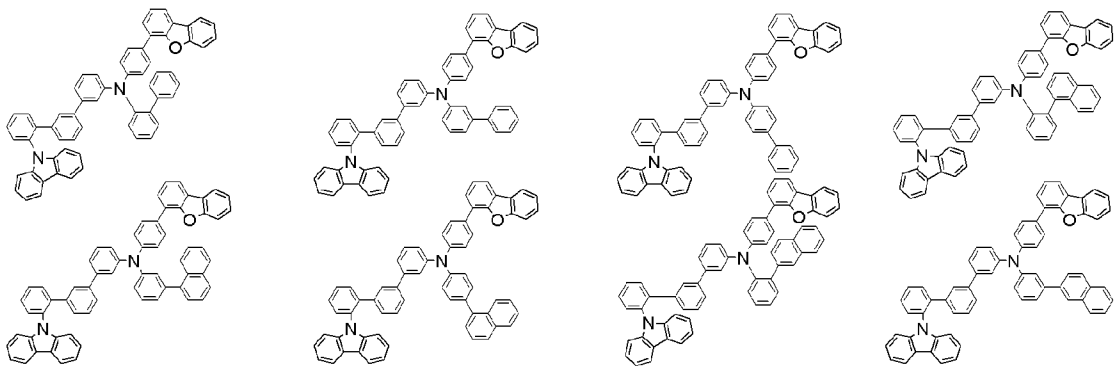
[化100]



[0163] [化101]

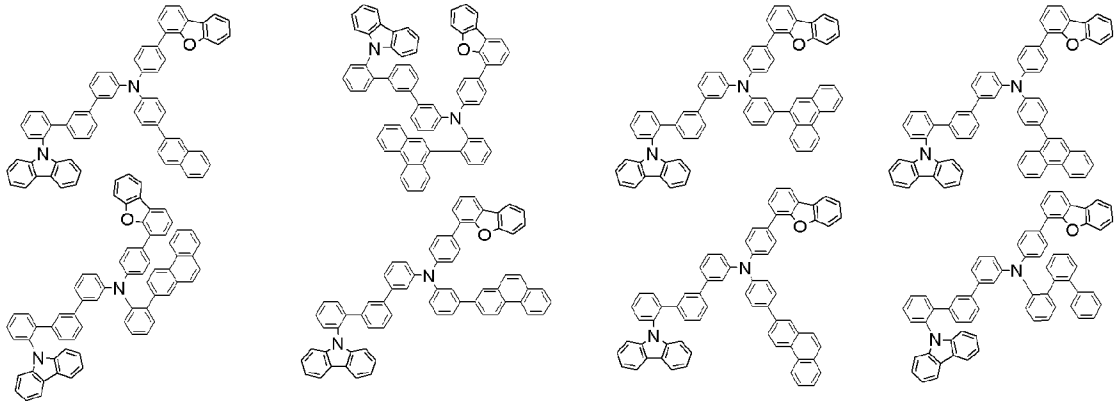


[0164] [化102]

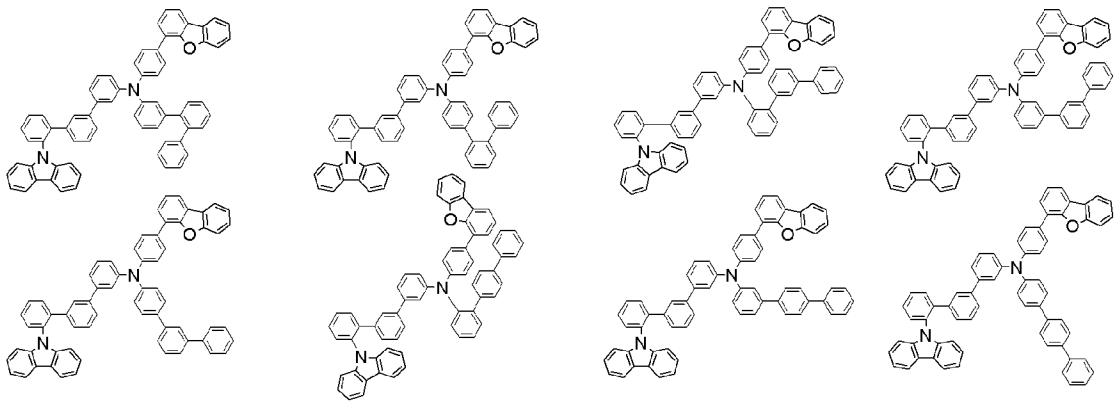


[0165]

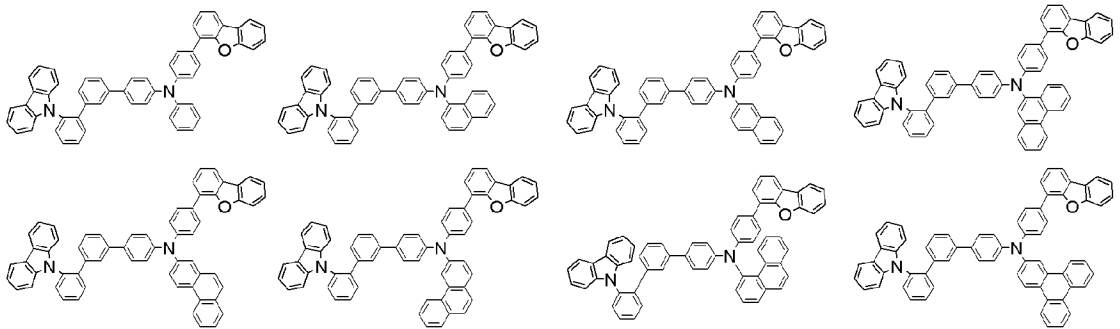
[化103]



[0166] [化104]

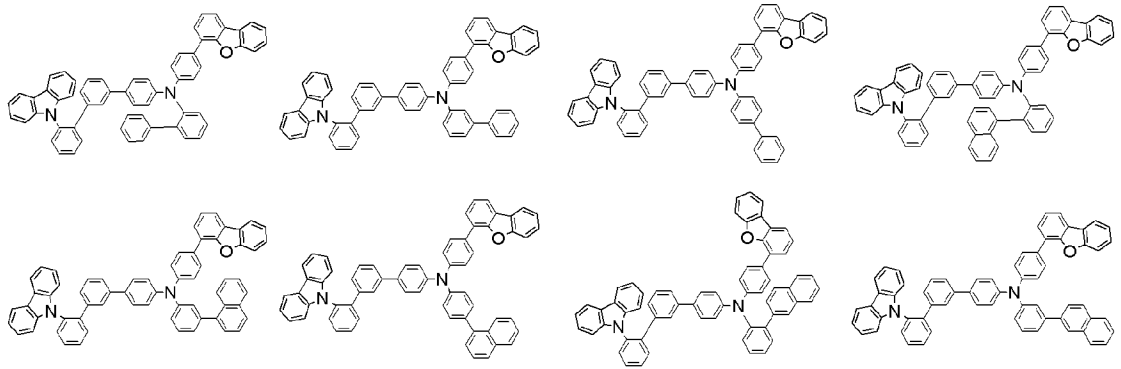


[0167] [化105]

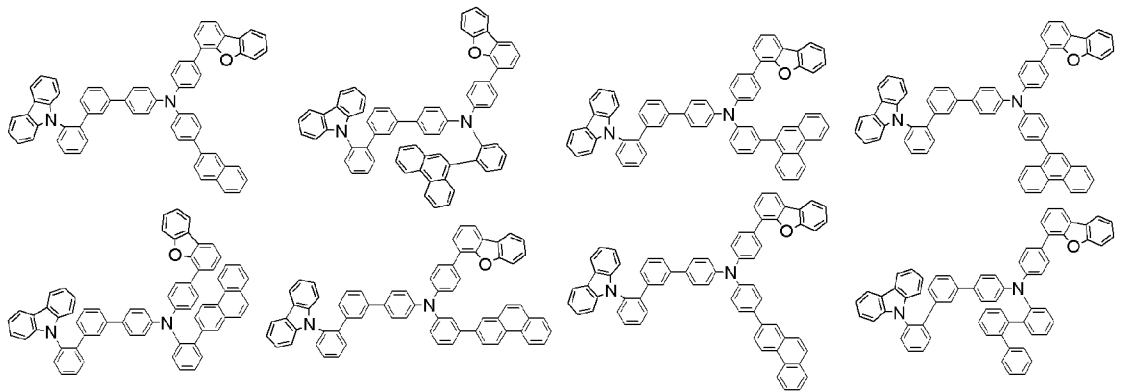


[0168]

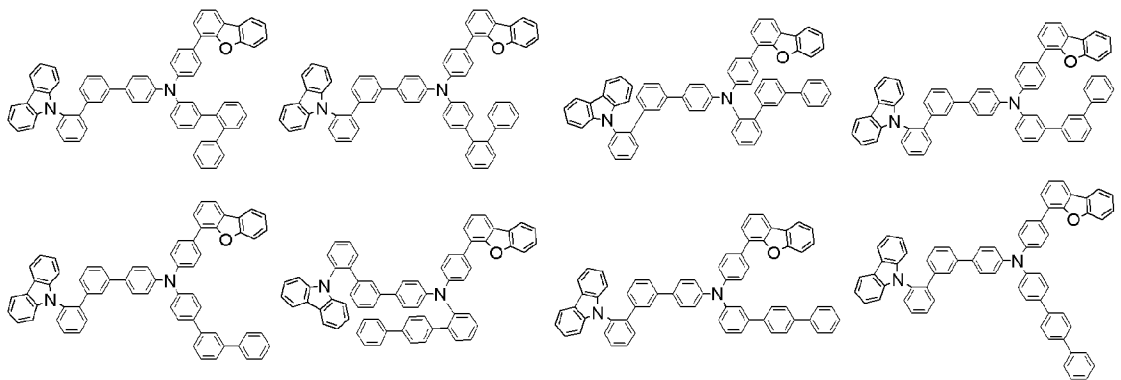
[化106]



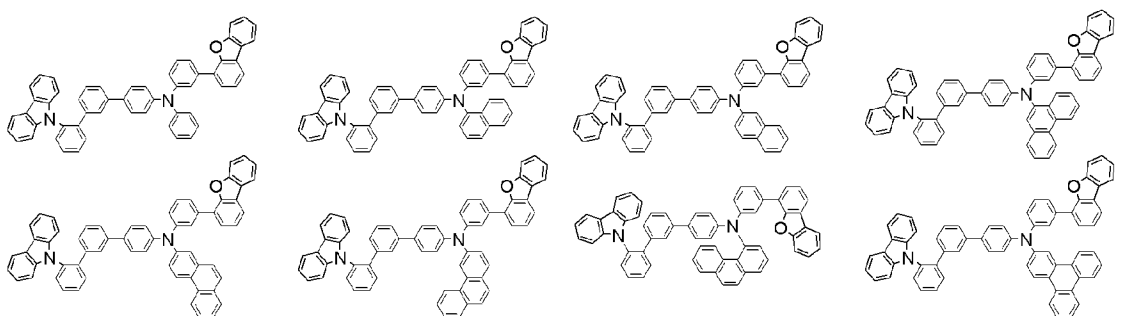
[0169] [化107]



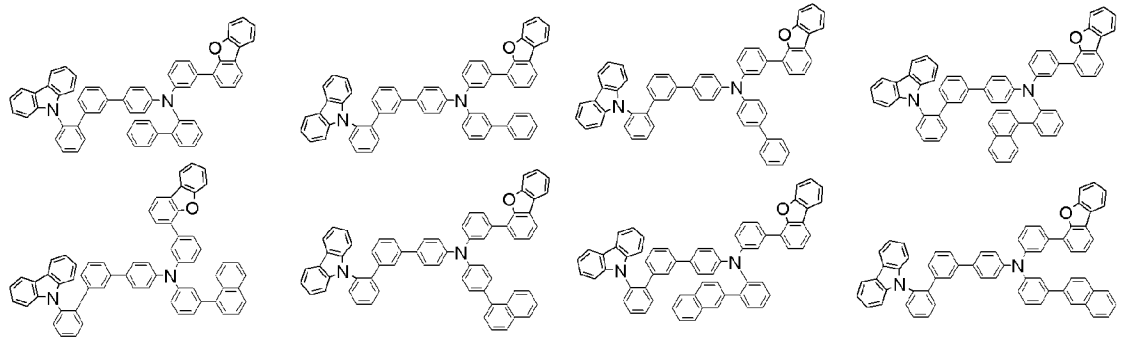
[0170] [化108]



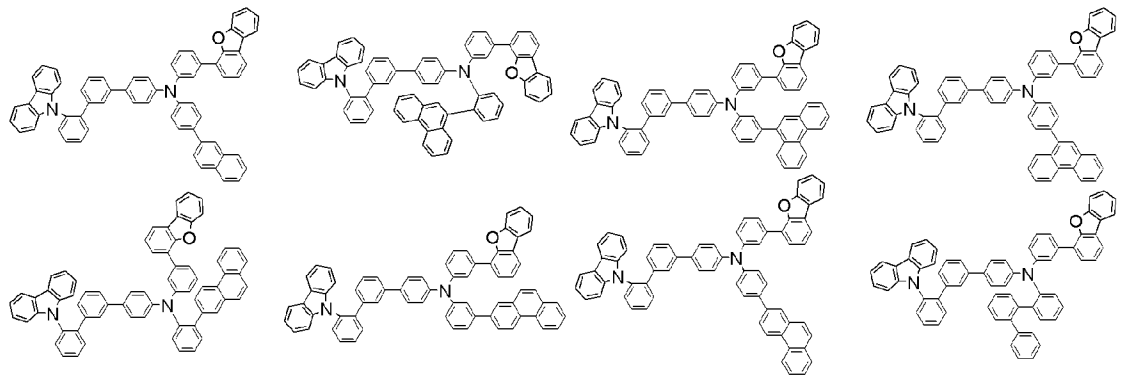
[0171] [化109]



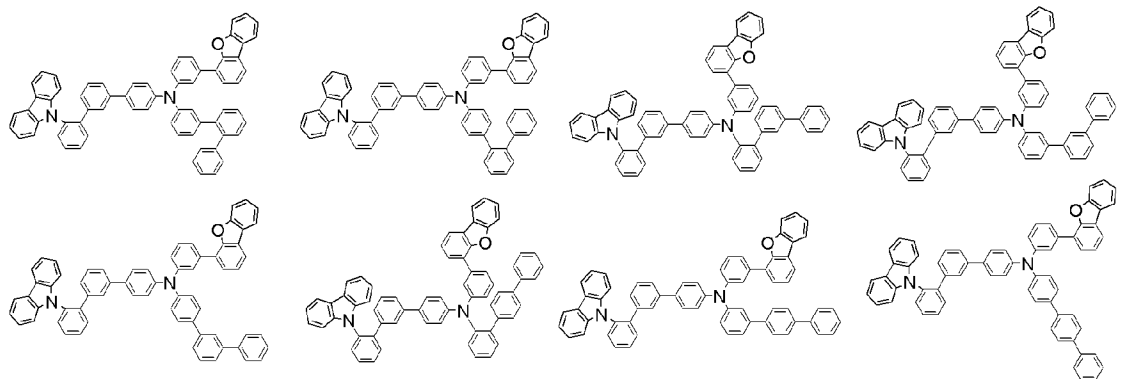
[0172] [化110]



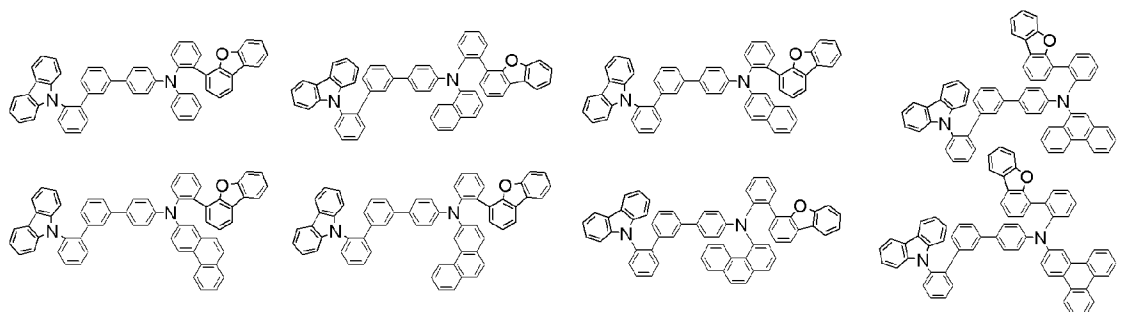
[0173] [化111]



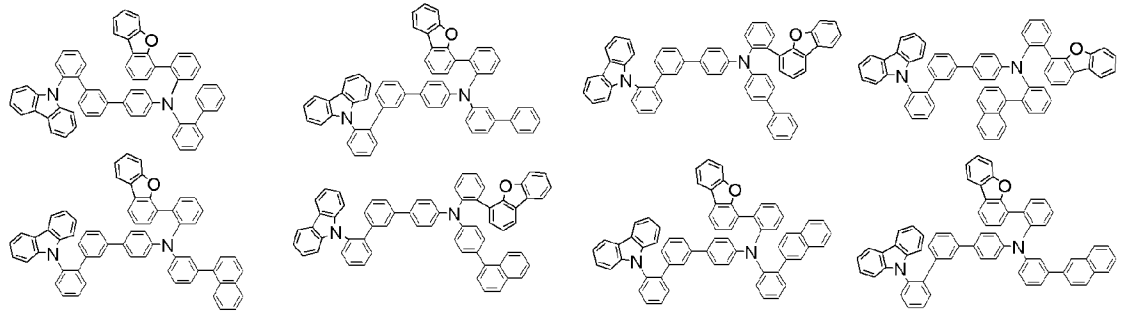
[0174] [化112]



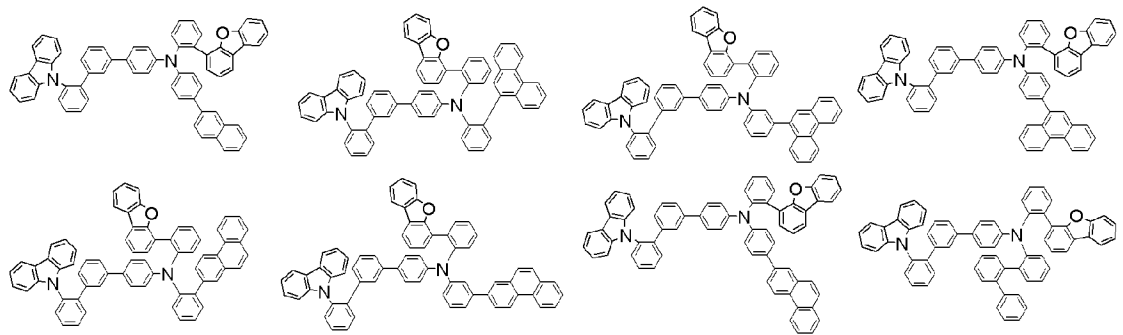
[0175] [化113]



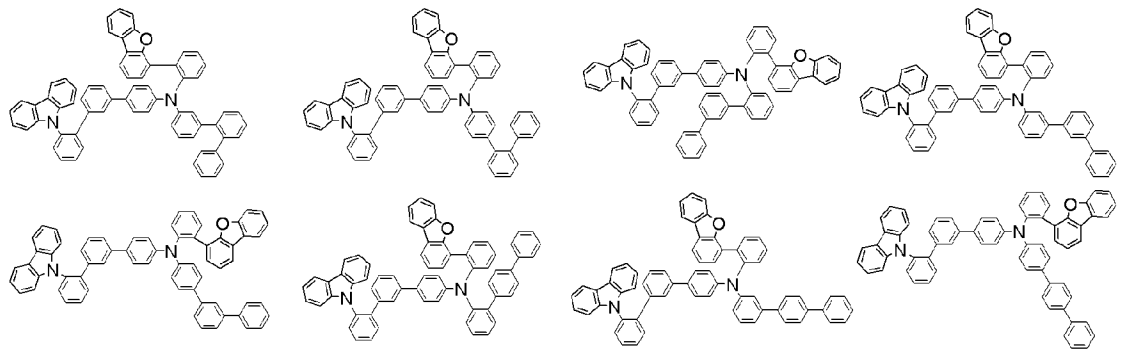
[0176] [化114]



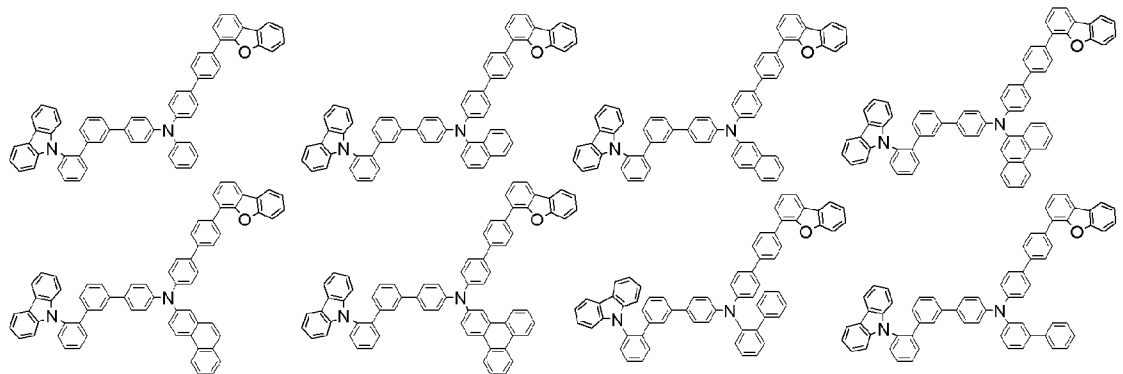
[0177] [化115]



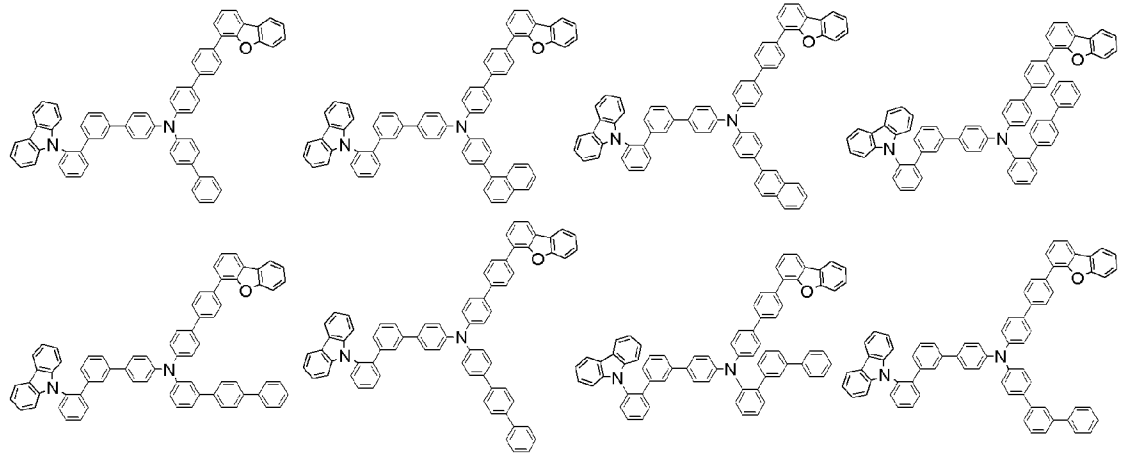
[0178] [化116]



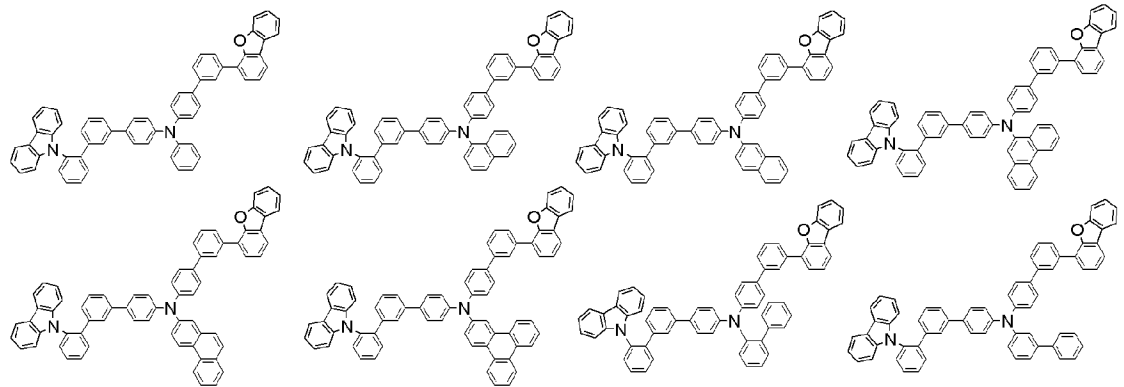
[0179] [化117]



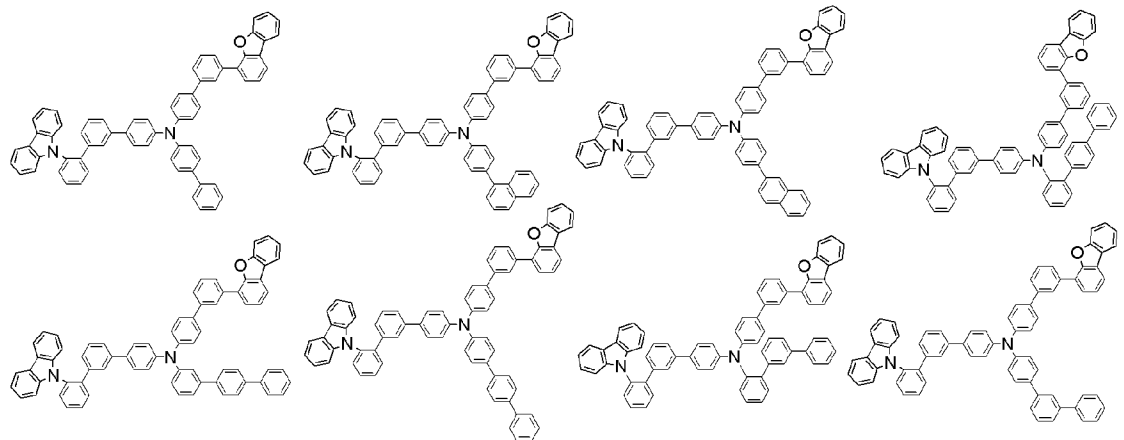
[0180] [化118]



[0181] [化119]

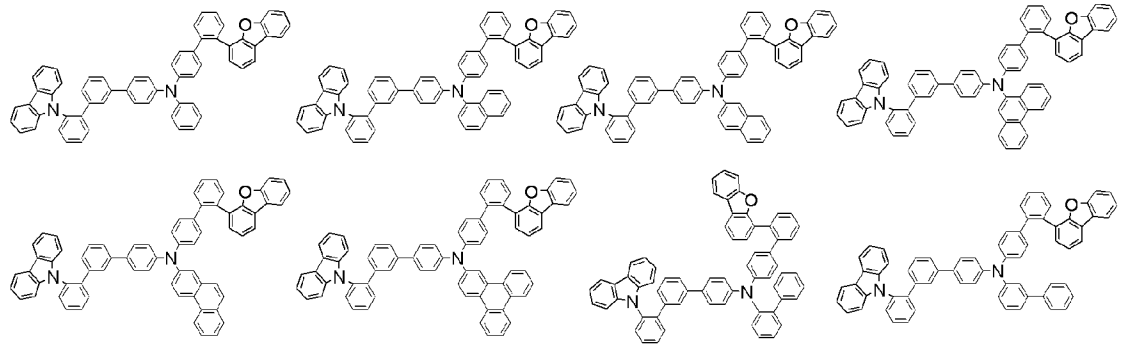


[0182] [化120]

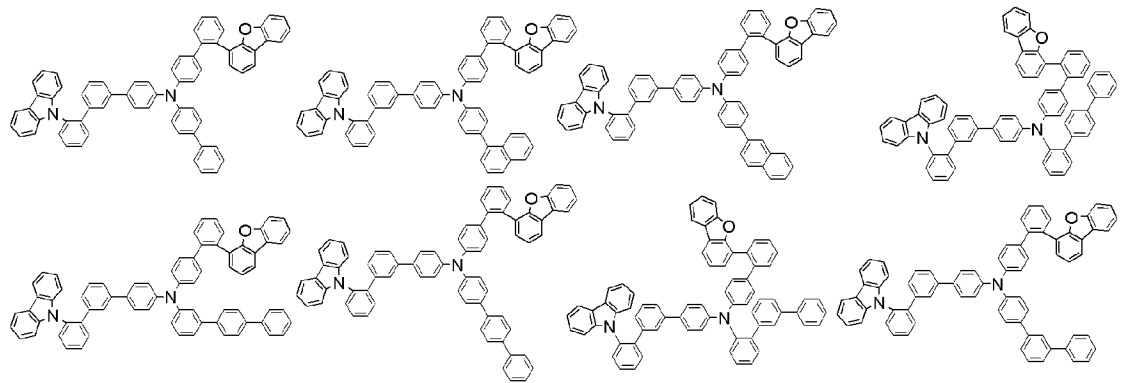


[0183]

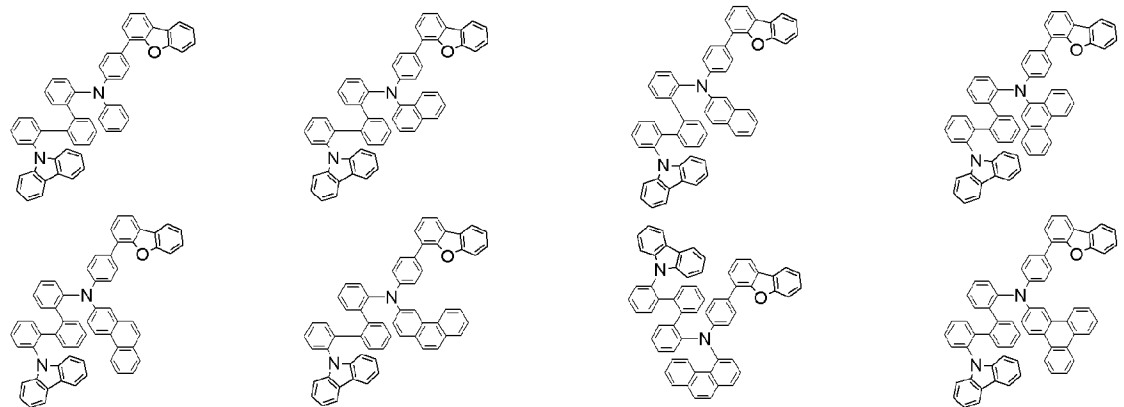
[化121]



[0184] [化122]

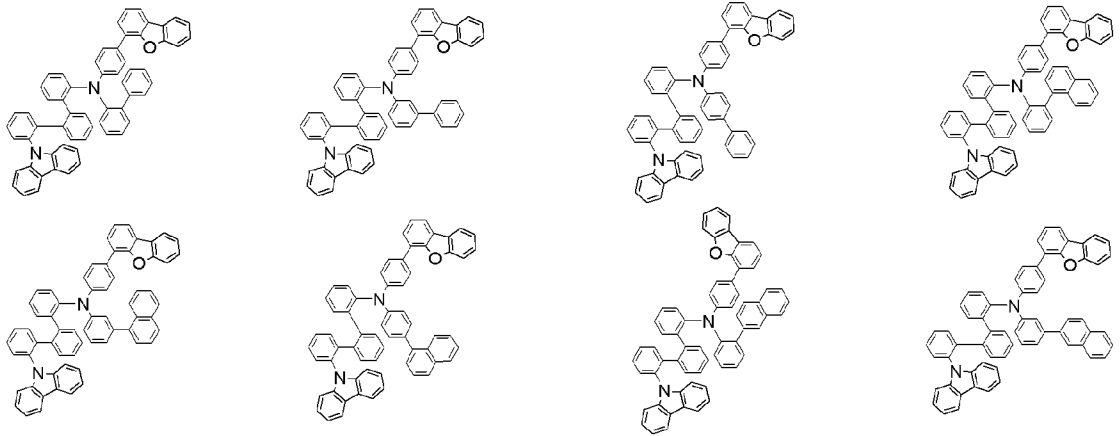


[0185] [化123]

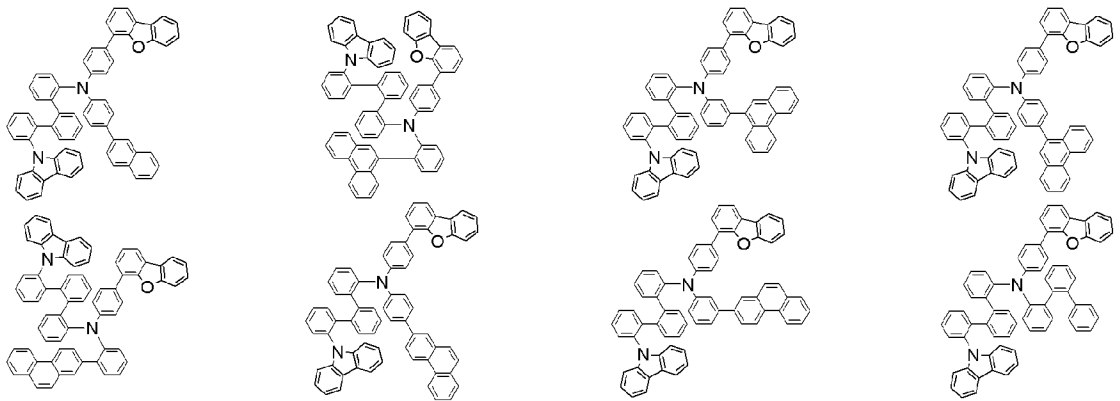


[0186]

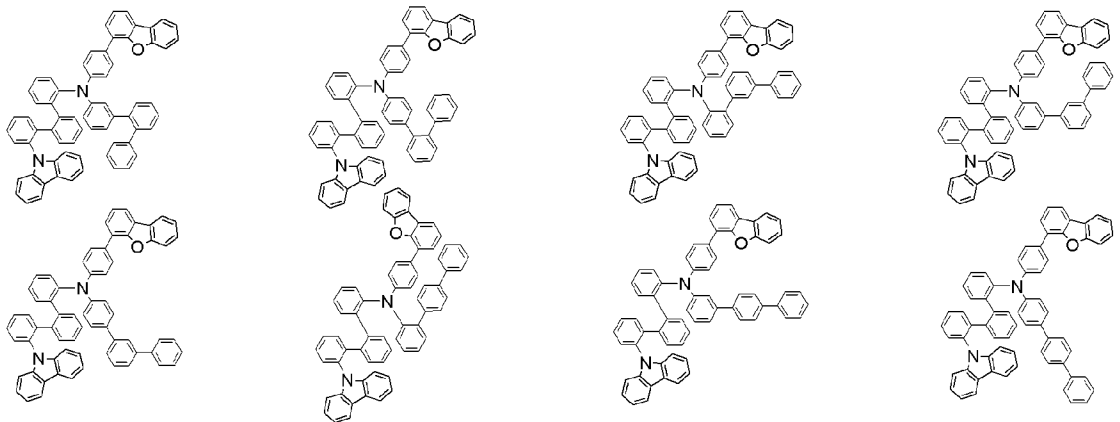
[化124]



[0187] [化125]

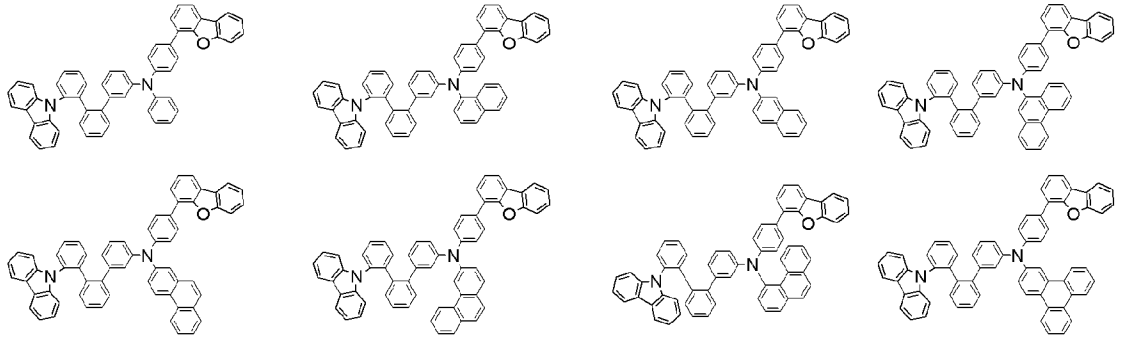


[0188] [化126]

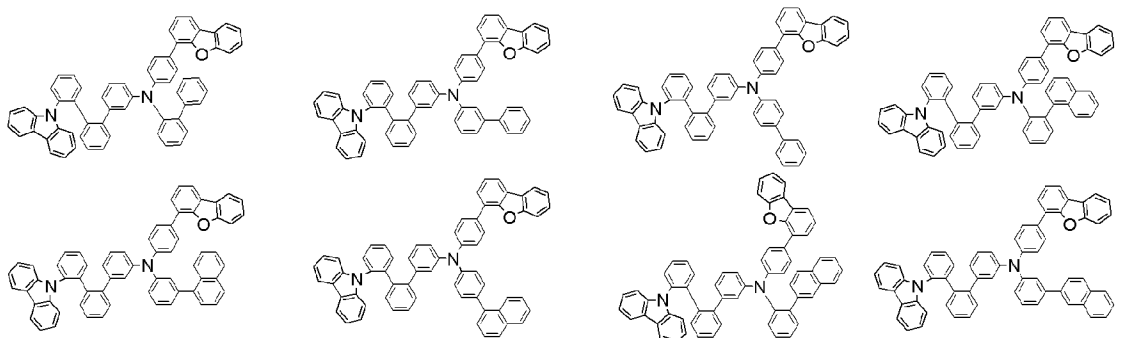


[0189]

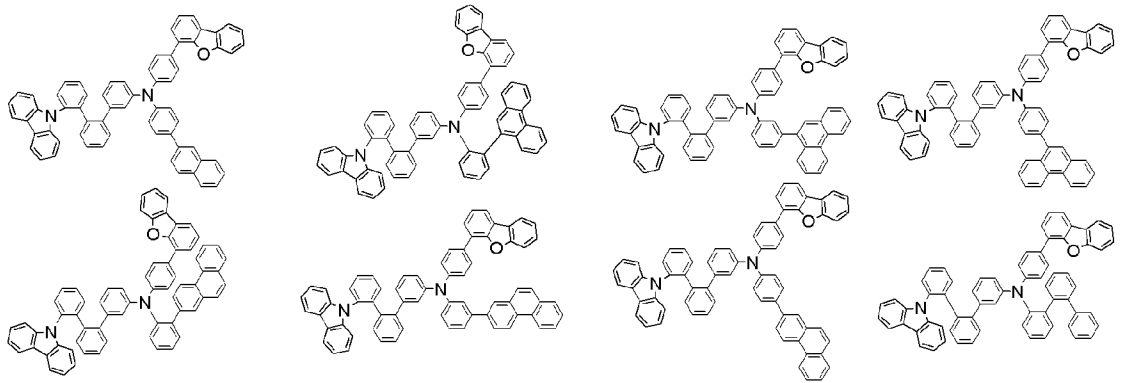
[化127]



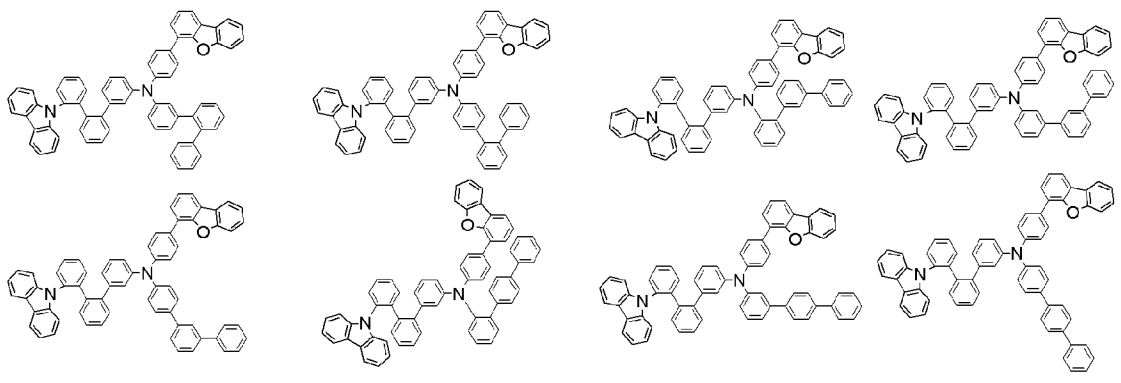
[0190] [化128]



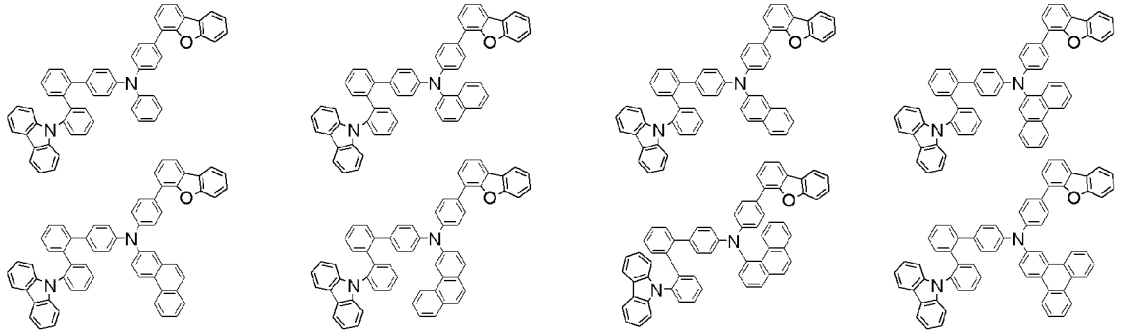
[0191] [化129]



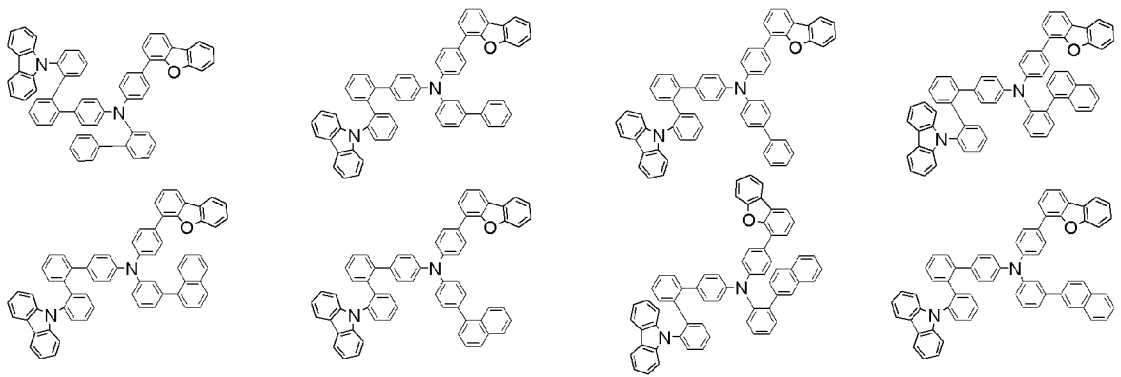
[0192] [化130]



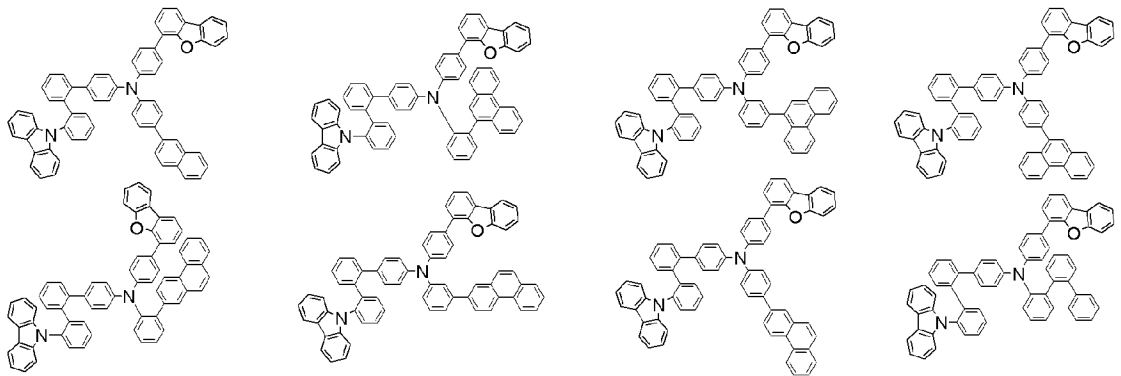
[0193] [化131]



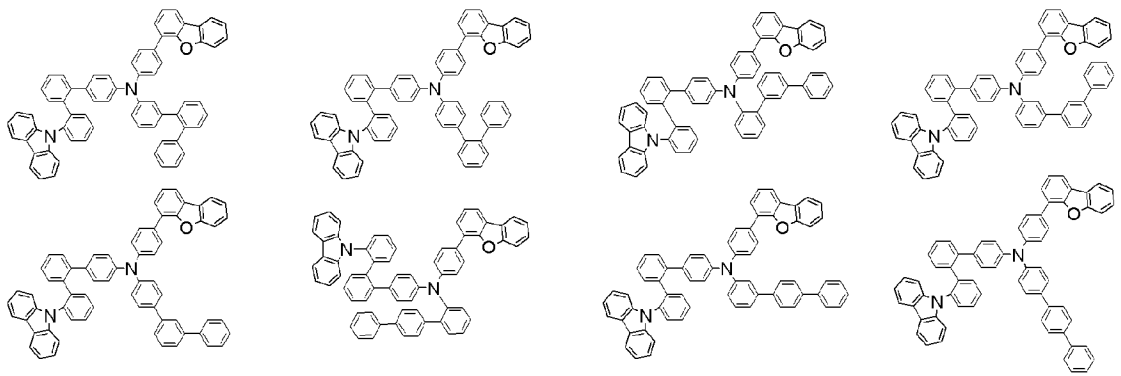
[0194] [化132]



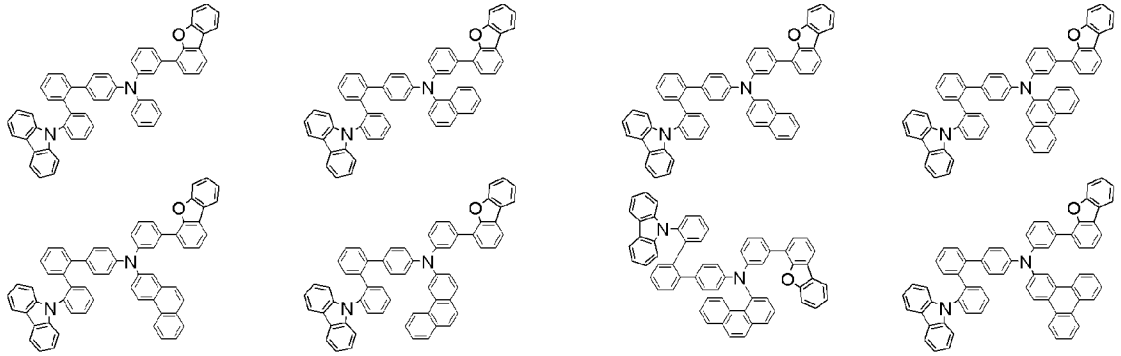
[0195] [化133]



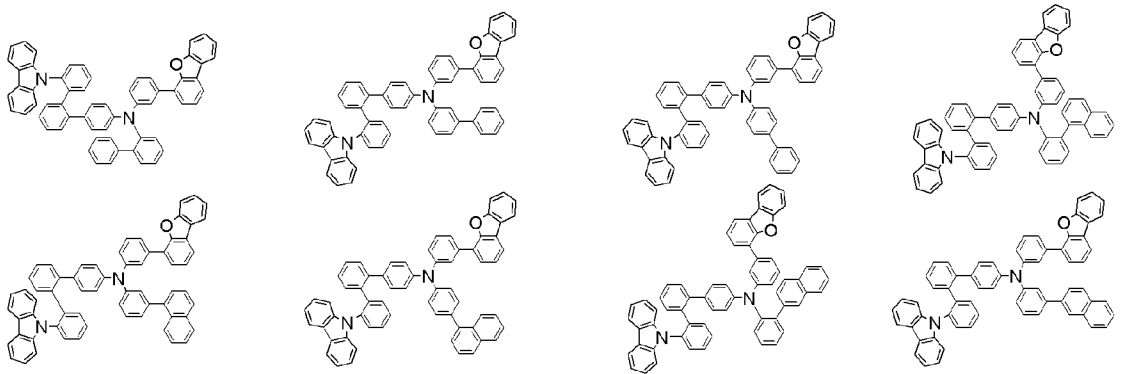
[0196] [化134]



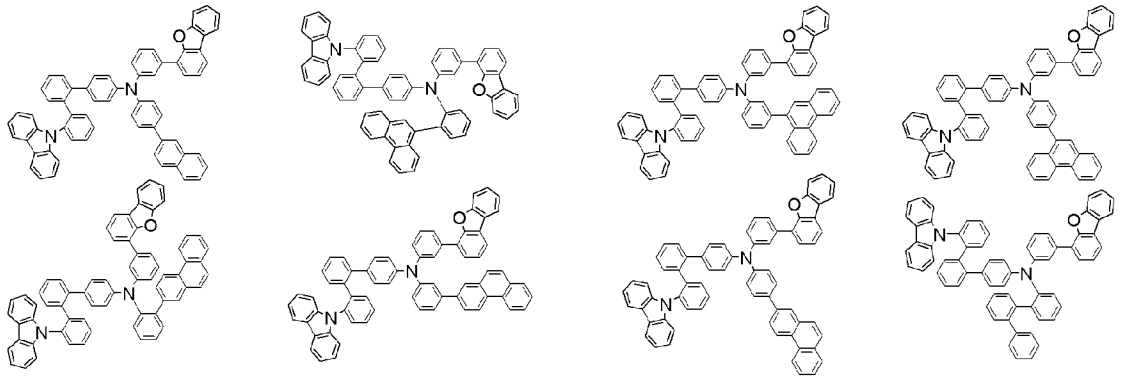
[0197] [化135]



[0198] [化136]

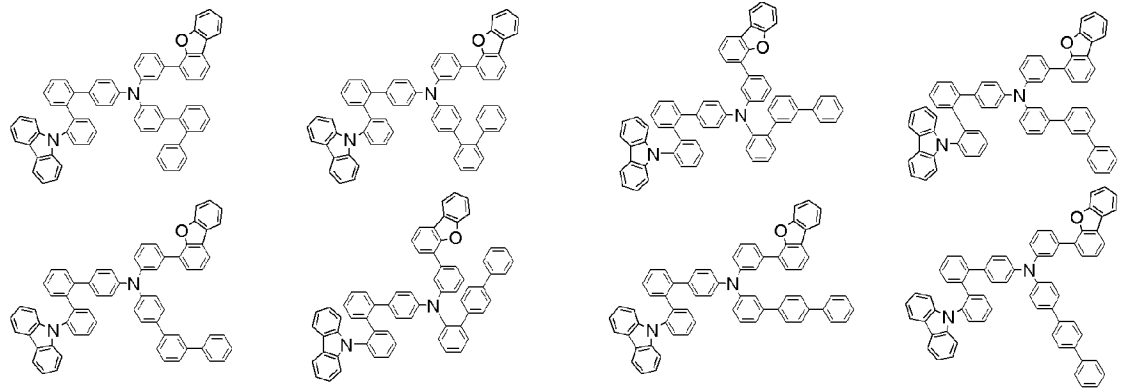


[0199] [化137]

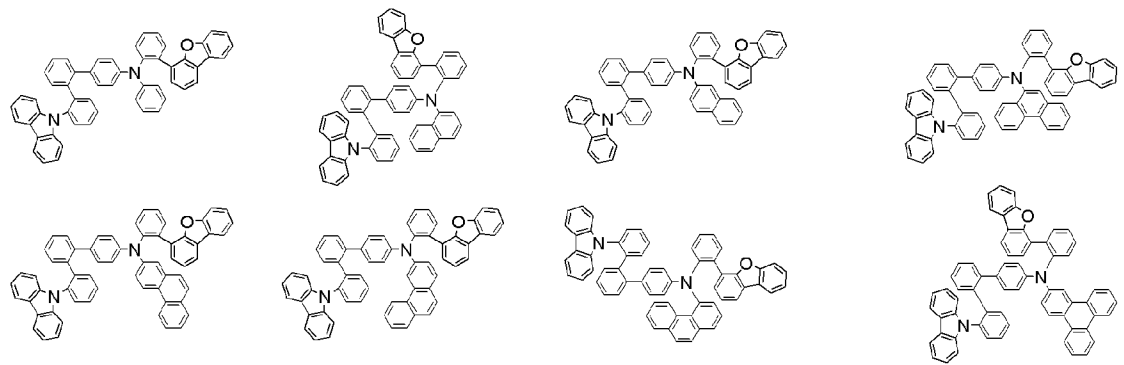


[0200]

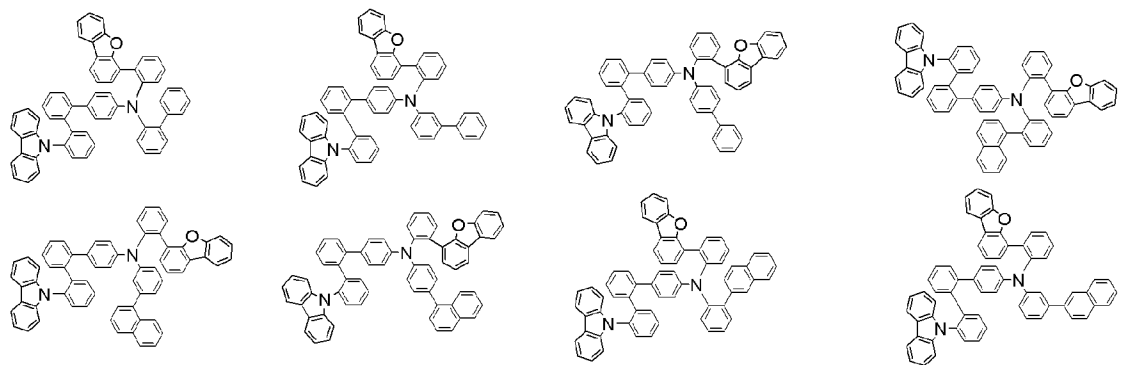
[化138]



[0201] [化139]

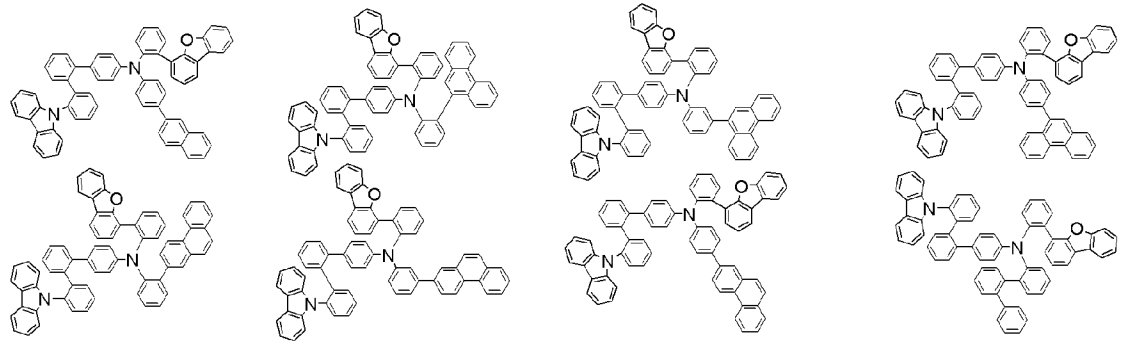


[0202] [化140]

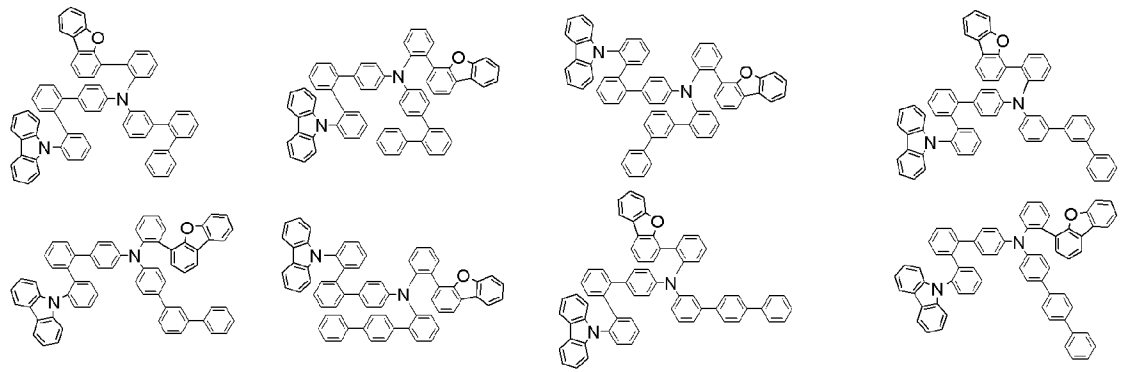


[0203]

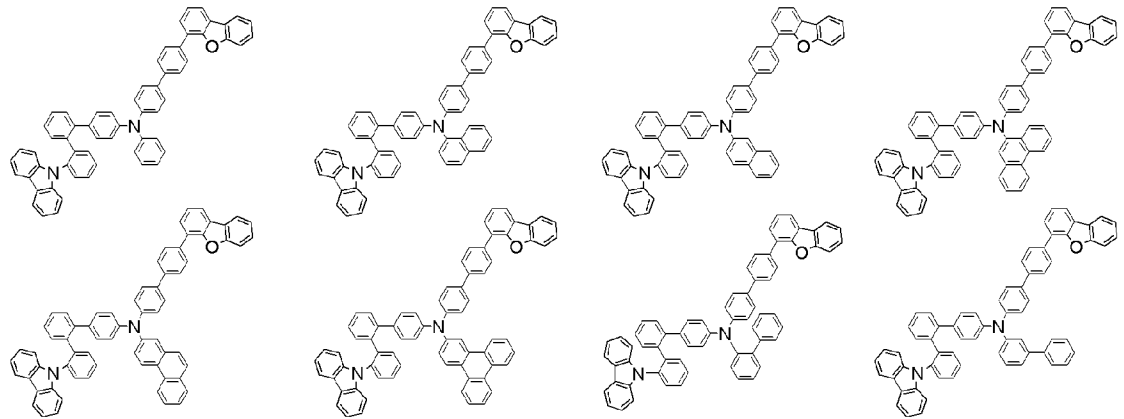
[化141]



[0204] [化142]

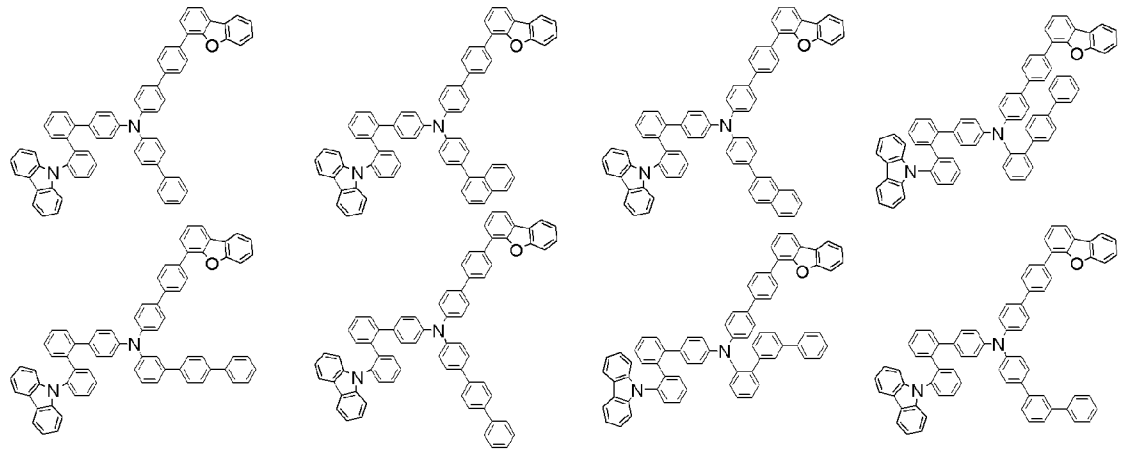


[0205] [化143]

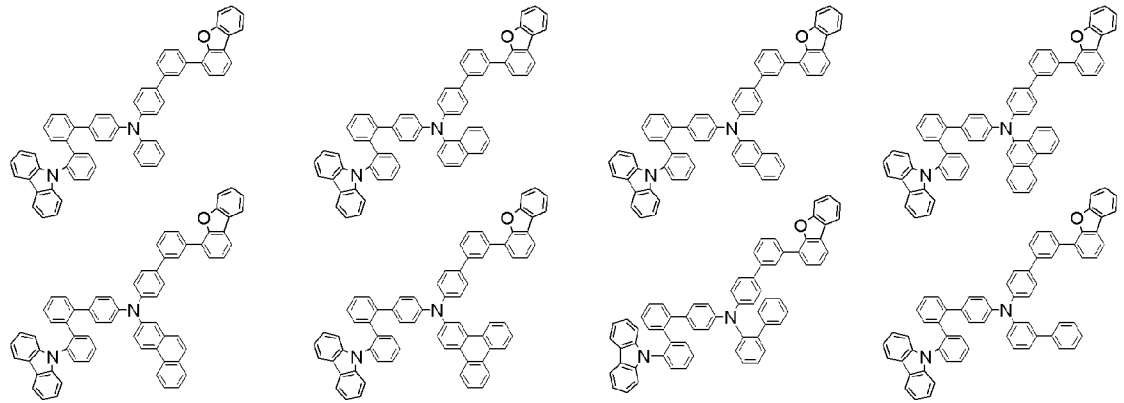


[0206]

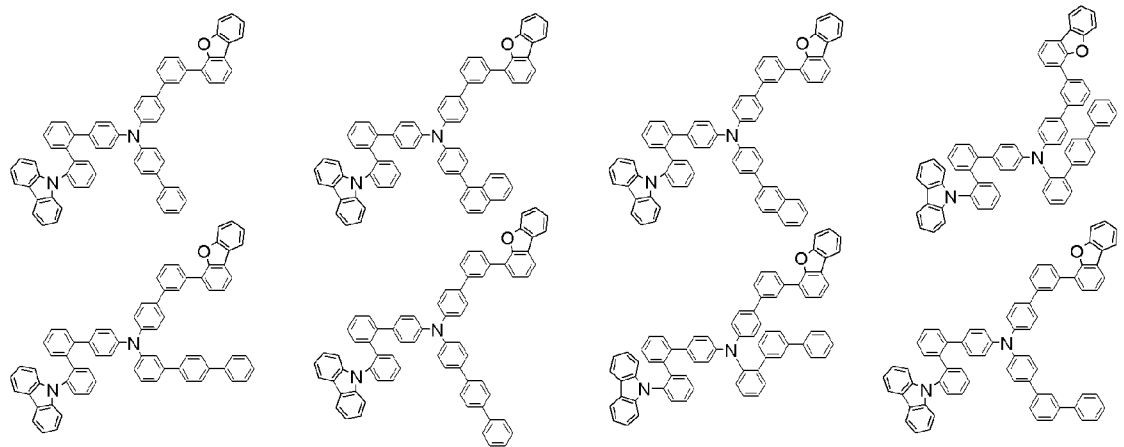
[化144]



[0207] [化145]

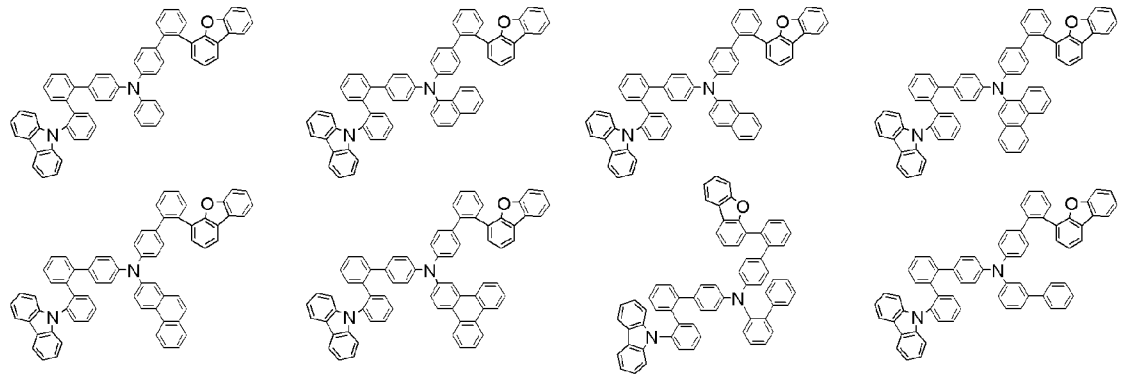


[0208] [化146]

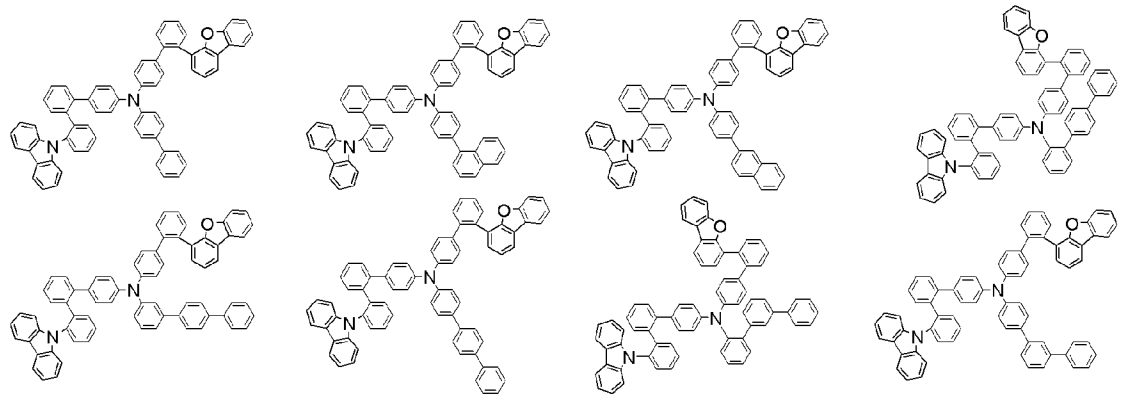


[0209]

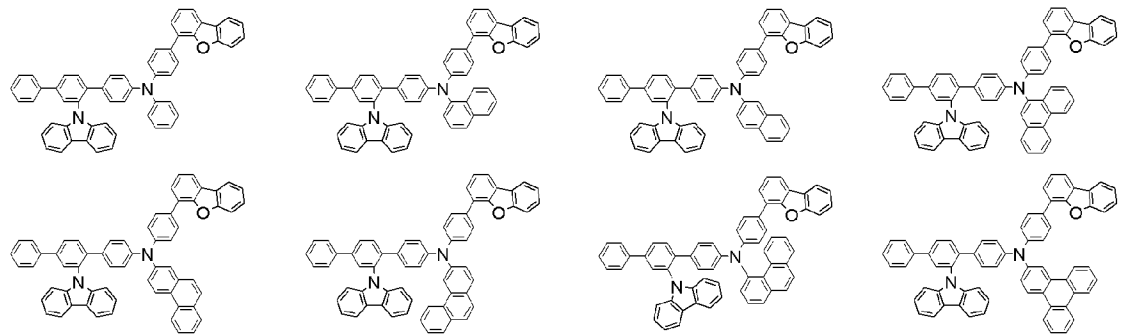
[化147]



[0210] [化148]

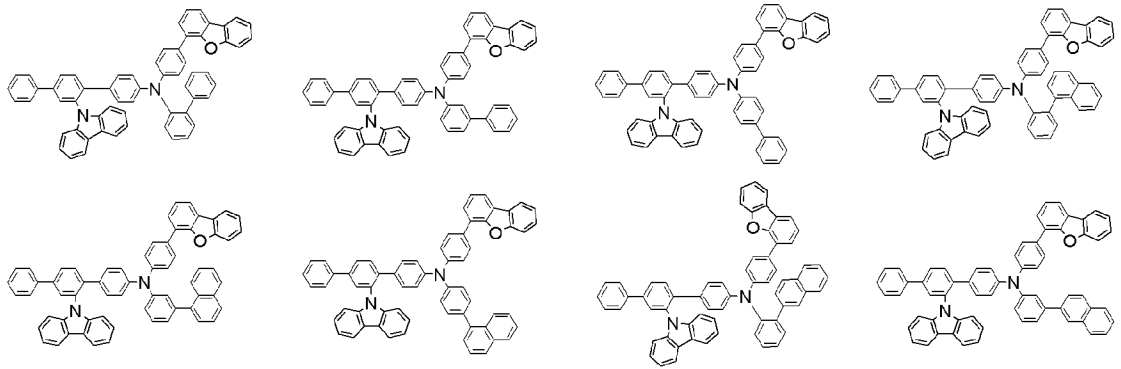


[0211] [化149]

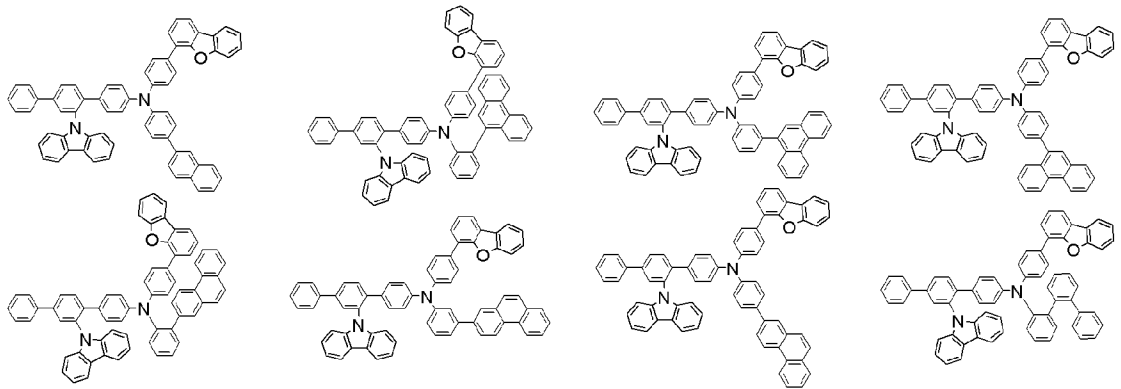


[0212]

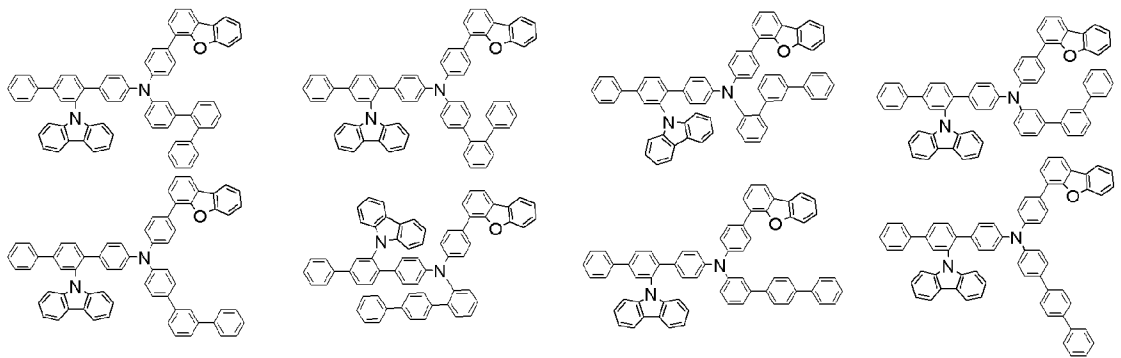
[化150]



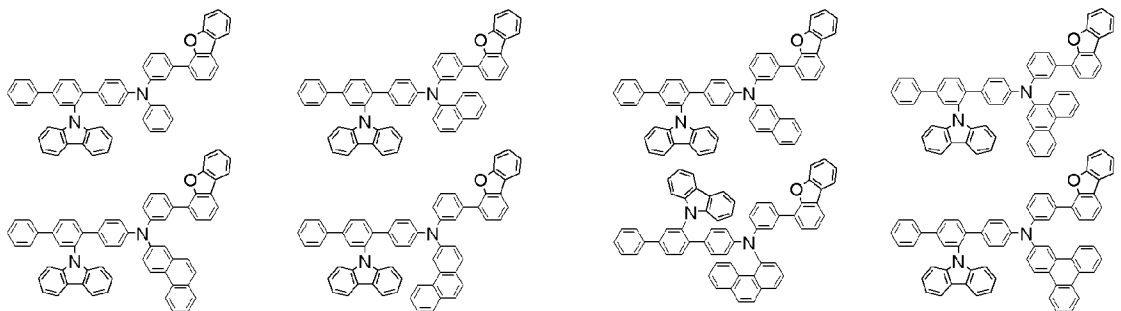
[0213] [化151]



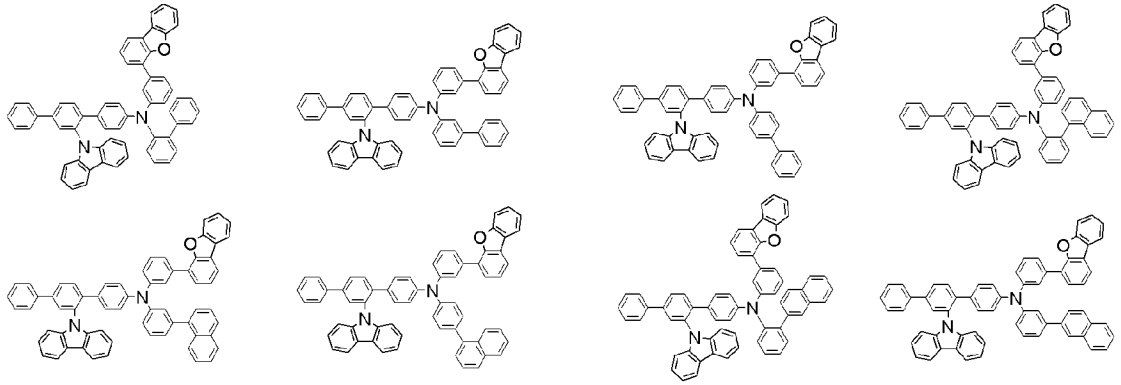
[0214] [化152]



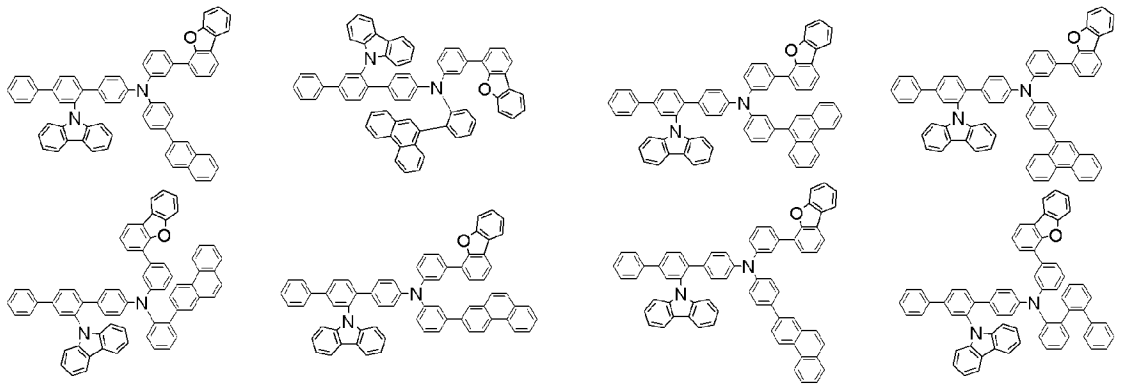
[0215] [化153]



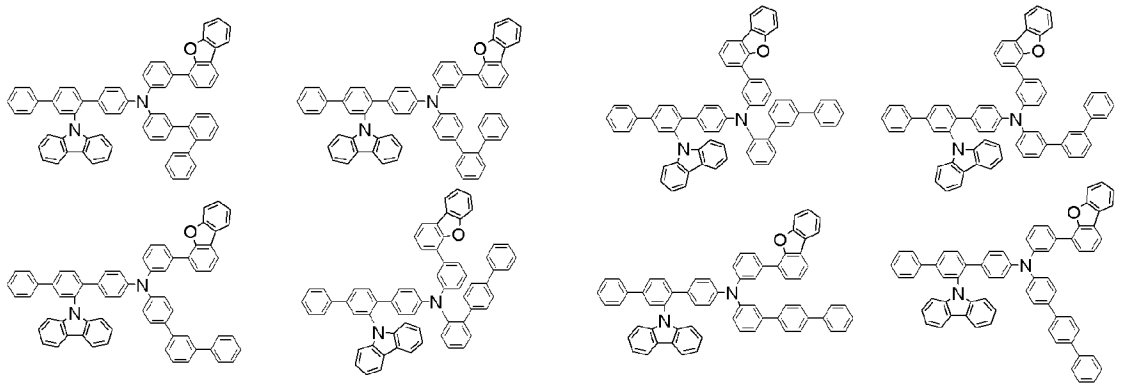
[0216] [化154]



[0217] [化155]

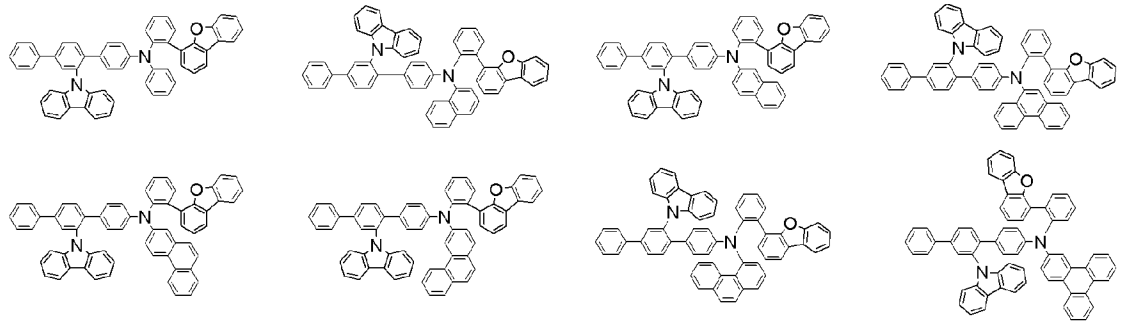


[0218] [化156]

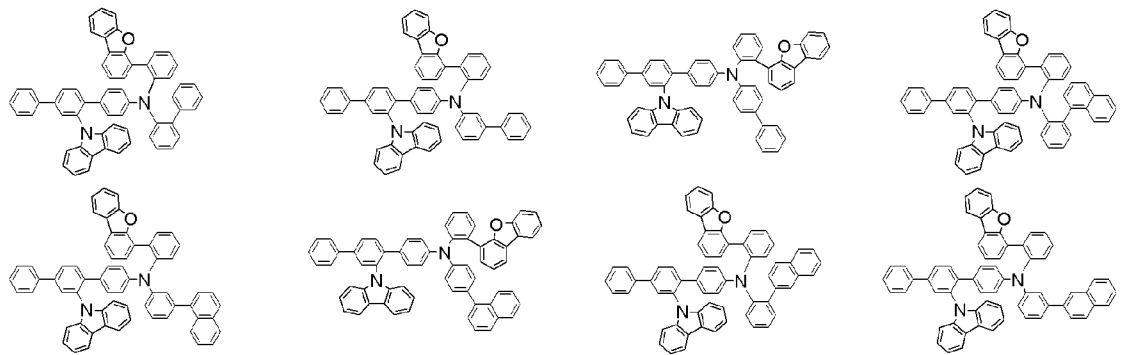


[0219]

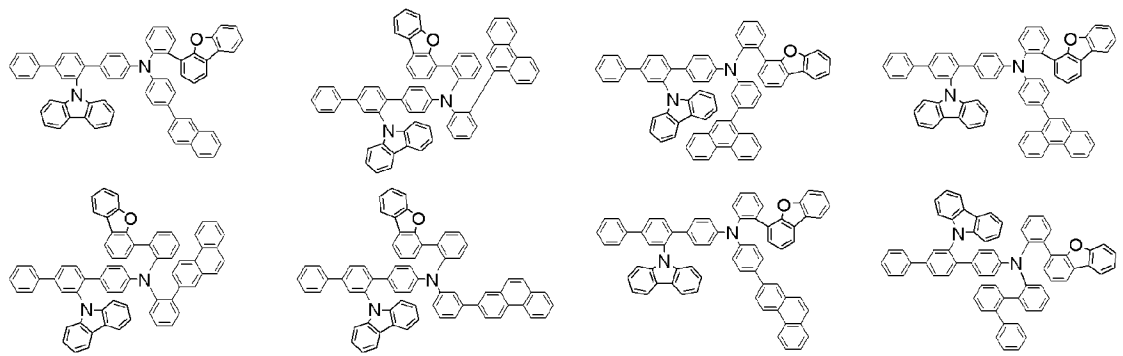
[化157]



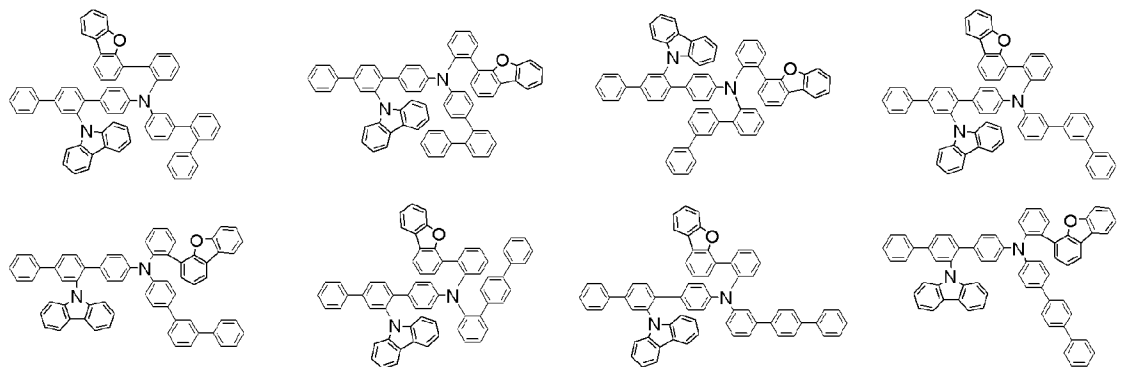
[0220] [化158]



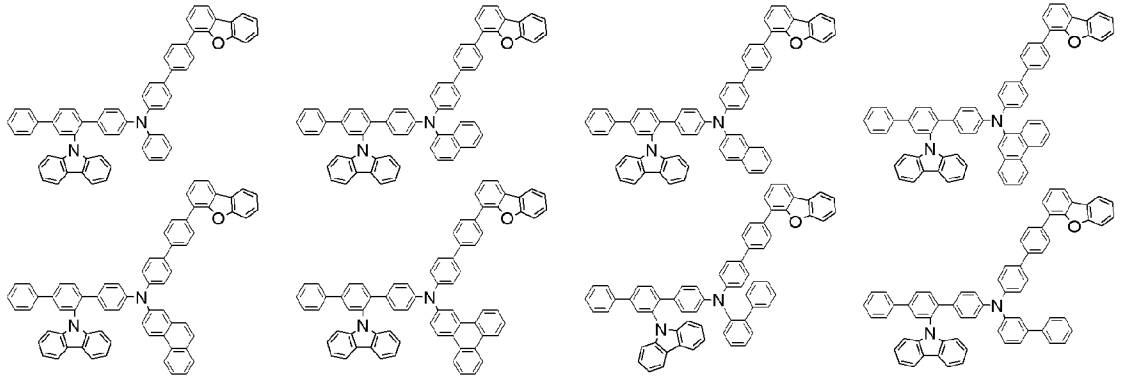
[0221] [化159]



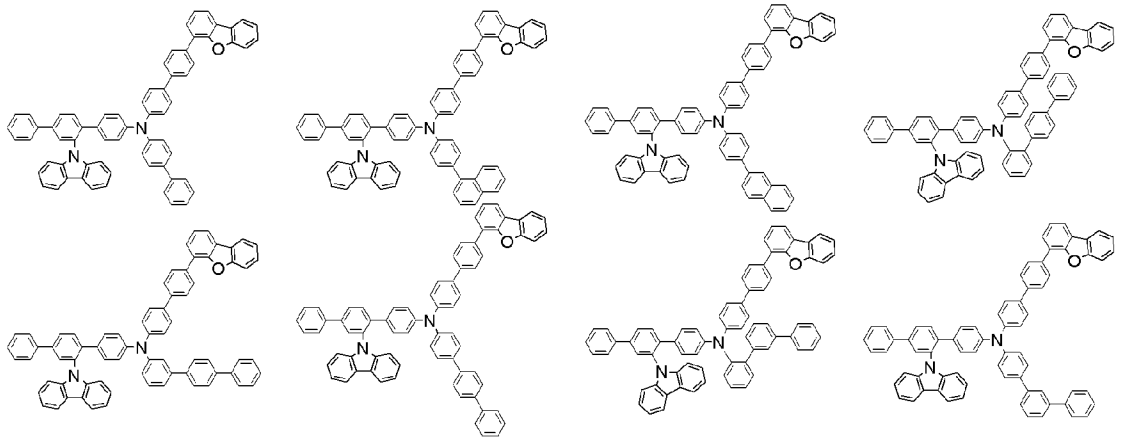
[0222] [化160]



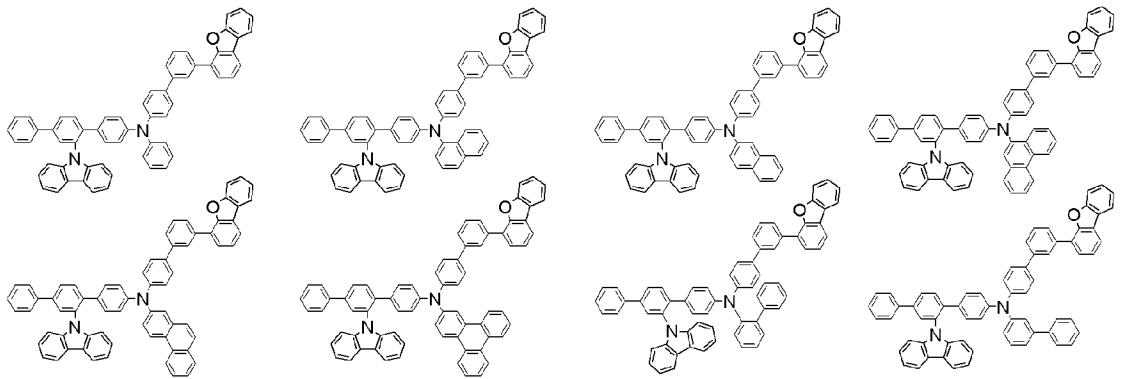
[0223] [化161]



[0224] [化162]

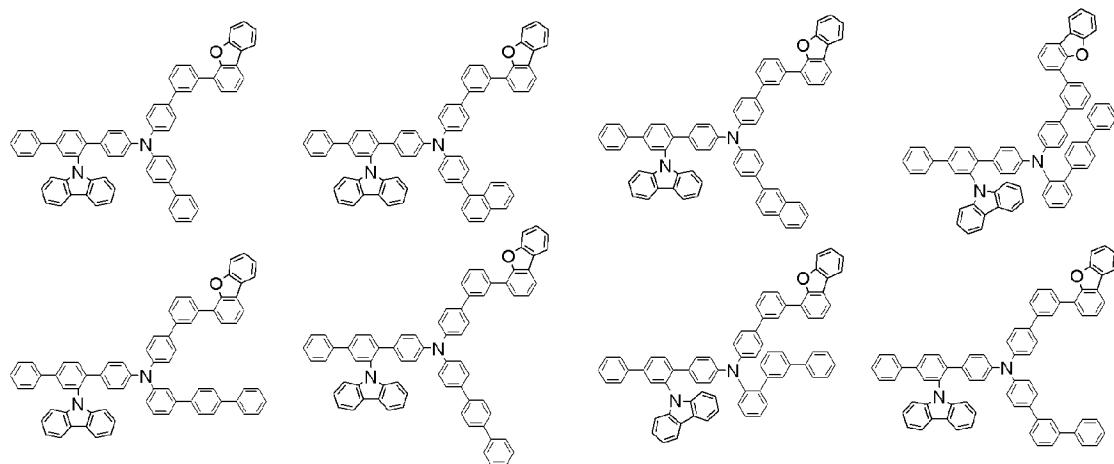


[0225] [化163]

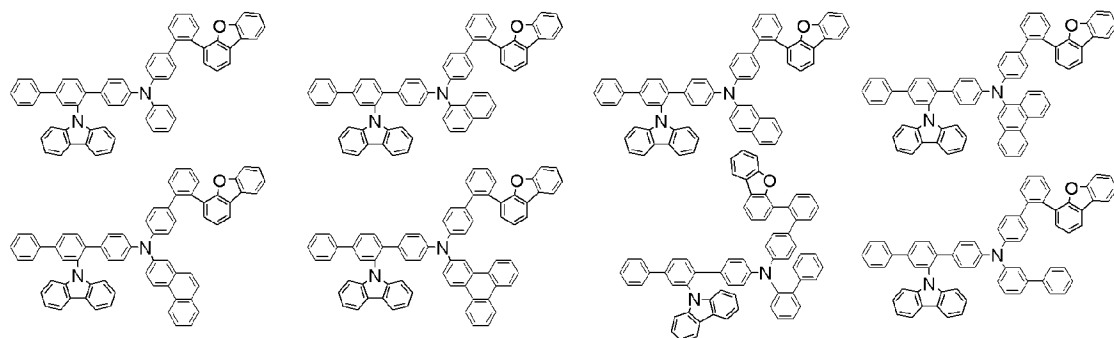


[0226]

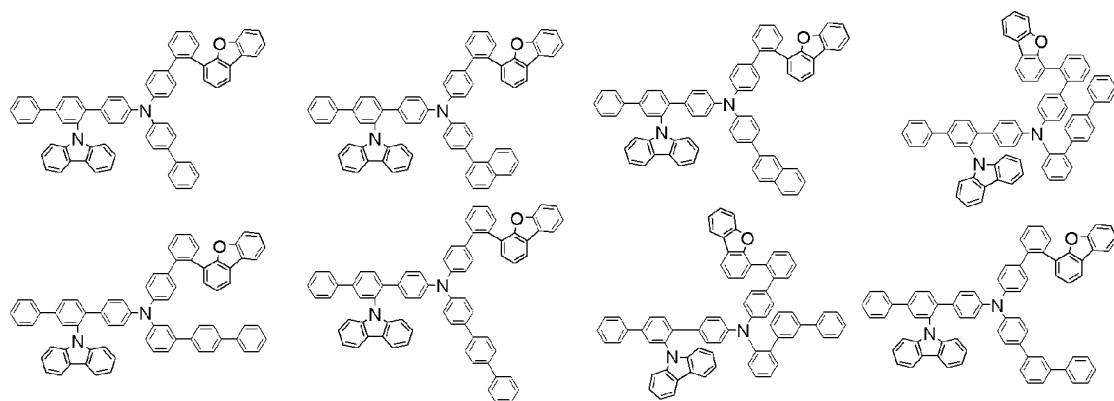
[化164]



[0227] [化165]



[0228] [化166]



[0229] 化合物（１）の製造方法は特に制限されず、当業者であれば以下の実施例に記載する方法により、或いは、該方法を公知の合成方法を参考にして変更した方法により容易に製造することができる。

[0230] 有機EL素子用材料

本発明の有機EL素子用材料は、化合物（１）を含む。本発明の有機EL

素子用材料における化合物（１）の含有量は、特に制限されず、例えば、１質量％以上（１００％を含む）であり、１０質量％以上（１００％を含む）であることが好ましく、５０質量％以上（１００％を含む）であることがより好ましく、８０質量％以上（１００％を含む）であることがさらに好ましく、９０質量％以上（１００％を含む）であることが特に好ましい。本発明の有機ＥＬ素子用材料は、有機ＥＬ素子の製造に有用である。

[0231] 有機ＥＬ素子

次に、本発明の有機ＥＬ素子について説明する。

有機ＥＬ素子は、陰極、陽極、及び、陰極と陽極の間に有機層を含む。該有機層は発光層を含み、該有機層の少なくとも一層が化合物（１）を含む。

化合物（１）が含まれる有機層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる正孔輸送帯域（正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、励起子阻止層等）、発光層、スペース層、陰極と発光層との間に設けられる電子輸送帯域（電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等）等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。化合物（１）は好ましくは蛍光又は燐光ＥＬ素子の正孔輸送帯域又は発光層の材料、より好ましくは正孔輸送帯域の材料、更に好ましくは正孔輸送層、電子阻止層、又は励起子阻止層の材料として用いられる。

[0232] 本発明の有機ＥＬ素子は、蛍光又は燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光／燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよく、中でも、蛍光発光型の素子であることが好ましい。ここで、「発光ユニット」とは、有機層を含み、そのうちの少なくとも一層が発光層であり、注入された正孔と電子が再結合することにより発光する最小単位をいう。

[0233] 例えば、シンプル型有機ＥＬ素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

（１）陽極／発光ユニット／陰極

また、上記発光ユニットは、燐光発光層や蛍光発光層を複数有する積層型であってもよく、その場合、各発光層の間に、燐光発光層で生成された励起子が蛍光発光層に拡散することを防ぐ目的で、スペース層を有していてもよい。シンプル型発光ユニットの代表的な層構成を以下に示す。括弧内の層は任意である。

- (a) (正孔注入層／) 正孔輸送層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (b) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (c) (正孔注入層／) 正孔輸送層／第1 蛍光発光層／第2 蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (d) (正孔注入層／) 正孔輸送層／第1 燐光発光層／第2 燐光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (e) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (f) (正孔注入層／) 正孔輸送層／第1 燐光発光層／第2 燐光発光層／スペース層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (g) (正孔注入層／) 正孔輸送層／第1 燐光発光層／スペース層／第2 燐光発光層／スペース層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (h) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／第1 蛍光発光層／第2 蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (i) (正孔注入層／) 正孔輸送層／電子阻止層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (j) (正孔注入層／) 正孔輸送層／電子阻止層／燐光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (k) (正孔注入層／) 正孔輸送層／励起子阻止層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)
- (l) (正孔注入層／) 正孔輸送層／励起子阻止層／燐光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

送層／電子注入層)

(m) (正孔注入層／) 第1正孔輸送層／第2正孔輸送層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

(n) (正孔注入層／) 第1正孔輸送層／第2正孔輸送層／燐光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

(o) (正孔注入層／) 第1正孔輸送層／第2正孔輸送層／蛍光発光層／第1電子輸送層／第2電子輸送層 (／電子注入層)

(p) (正孔注入層／) 第1正孔輸送層／第2正孔輸送層／燐光発光層／第1電子輸送層／第2電子輸送層 (／電子注入層)

(q) (正孔注入層／) 正孔輸送層／蛍光発光層／正孔阻止層 (／電子輸送層／電子注入層)

(r) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層／正孔阻止層 (／電子輸送層／電子注入層)

(s) (正孔注入層／) 正孔輸送層／蛍光発光層／励起子阻止層 (／電子輸送層／電子注入層)

(t) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層／励起子阻止層 (／電子輸送層／電子注入層)

[0234] 上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光ユニット (f) において、(正孔注入層／) 正孔輸送層／第1燐光発光層 (赤色発光) ／第2燐光発光層 (緑色発光) ／スペース層／蛍光発光層 (青色発光) ／電子輸送層といった層構成等が挙げられる。

なお、各発光層と正孔輸送層あるいはスペース層の間には、適宜、電子阻止層を設けてもよい。また、各発光層と電子輸送層の間には、適宜、正孔阻止層を設けてもよい。電子阻止層や正孔阻止層を設けることで、電子又は正孔を発光層内に閉じ込めて、発光層における電荷の再結合確率を高め、発光効率を向上させることができる。

[0235] タンデム型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を

挙げることができる。

(2) 陽極／第1発光ユニット／中間層／第2発光ユニット／陰極

ここで、上記第1発光ユニット及び第2発光ユニットとしては、例えば、それぞれ独立に上述の発光ユニットから選択することができる。

上記中間層は、一般的に、中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、第1発光ユニットに電子を、第2発光ユニットに正孔を供給する、公知の材料構成を用いることができる。

[0236] 図1に、本発明の有機EL素子の構成の一例を示す概略図である。有機EL素子1は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット10とを有する。発光ユニット10は、発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔輸送帯域6（正孔注入層、正孔輸送層等）、発光層5と陰極4との間に電子輸送帯域7（電子注入層、電子輸送層等）を有する。また、発光層5の陽極3側に電子阻止層（図示せず）を、発光層5の陰極4側に正孔阻止層（図示せず）を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における励起子の生成効率をさらに高めることができる。

[0237] 図2は、本発明の有機EL素子の他の構成を示す概略図である。有機EL素子11は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット20とを有する。発光ユニット20は、発光層5を有する。陽極3と発光層5の間に配置された正孔輸送帯域は、第1正孔輸送層6a及び第2正孔輸送層6bから形成されている。また、発光層5と陰極4の間に配置された電子輸送帯域は、第1電子輸送層7a及び第2電子輸送層7bから形成されている。

[0238] なお、本発明において、蛍光ドーパント（蛍光発光材料）と組み合わせられたホストを蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わせられたホストを燐光ホストと称する。蛍光ホストと燐光ホストは分子構造のみにより区分されるものではない。すなわち、燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を形成する材料を意味し、蛍光発光層を形成する材料として利用で

きないことを意味しているわけではない。蛍光ホストについても同様である。

[0239] 基板

基板は、有機EL素子の支持体として用いられる。基板としては、例えば、ガラス、石英、プラスチックなどの板を用いることができる。また、可撓性基板を用いてもよい。可撓性基板としては、例えば、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエーテルスルホン、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリフッ化ビニル、ポリ塩化ビニルからなるプラスチック基板等が挙げられる。また、無機蒸着フィルムを用いることもできる。

[0240] 陽極

基板上に形成される陽極には、仕事関数の大きい（具体的には4.0 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム-酸化スズ（ITO：Indium Tin Oxide）、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ、酸化インジウム-酸化亜鉛、酸化タングステンおよび酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、グラフェン等が挙げられる。この他、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タングステン（W）、クロム（Cr）、モリブデン（Mo）、鉄（Fe）、コバルト（Co）、銅（Cu）、パラジウム（Pd）、チタン（Ti）、または前記金属の窒化物（例えば、窒化チタン）等が挙げられる。

[0241] これらの材料は、通常、スパッタリング法により成膜される。例えば、酸化インジウム-酸化亜鉛は、酸化インジウムに対し1~10 wt%の酸化亜鉛を加えたターゲットを、酸化タングステンおよび酸化亜鉛を含有した酸化インジウムは、酸化インジウムに対し酸化タングステンを0.5~5 wt%、酸化亜鉛を0.1~1 wt%含有したターゲットを用いることにより、スパッタリング法で形成することができる。その他、真空蒸着法、塗布法、インクジェット法、スピコート法などにより作製してもよい。

[0242] 陽極に接して形成される正孔注入層は、陽極の仕事関数に関係なく正孔注

入が容易である材料を用いて形成されるため、電極材料として一般的に使用される材料（例えば、金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物、元素周期表の第1族または第2族に属する元素）を用いることができる。

仕事関数の小さい材料である、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金（例えば、MgAg、AlLi）、ユーロピウム（Eu）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金等を用いることもできる。なお、アルカリ金属、アルカリ土類金属、およびこれらを含む合金を用いて陽極を形成する場合には、真空蒸着法やスパッタリング法を用いることができる。さらに、銀ペーストなどを用いる場合には、塗布法やインクジェット法などを用いることができる。

[0243] 正孔注入層

正孔注入層は、正孔注入性の高い材料（正孔注入性材料）を含む層である。化合物（1）を単独で又は下記の材料と組み合わせて正孔注入層に用いてもよい。

[0244] 化合物（1）以外の正孔注入性材料としては、モリブデン酸化物、チタン酸化物、バナジウム酸化物、レニウム酸化物、ルテニウム酸化物、クロム酸化物、ジルコニウム酸化物、ハフニウム酸化物、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。

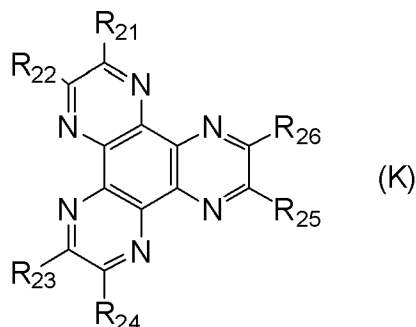
[0245] 低分子の有機化合物である4, 4', 4''-トリス（N, N-ジフェニルアミノ）トリフェニルアミン（略称：TDATA）、4, 4', 4''-トリス〔N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（略称：MTDATA）、4, 4'-ビス〔N-（4-ジフェニルアミノフェニル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：DPAB）、4, 4'-ビス（N-〔4-〔N'-（3-メチルフェニル）-N'-フェニル

ルアミノ] フェニル} -N-フェニルアミノ) ビフェニル (略称: D N T P D)、1, 3, 5-トリス [N- (4-ジフェニルアミノフェニル) -N-フェニルアミノ] ベンゼン (略称: D P A 3 B)、3- [N- (9-フェニルカルバゾール-3-イル) -N-フェニルアミノ] -9-フェニルカルバゾール (略称: P C z P C A 1)、3, 6-ビス [N- (9-フェニルカルバゾール-3-イル) -N-フェニルアミノ] -9-フェニルカルバゾール (略称: P C z P C A 2)、3- [N- (1-ナフチル) -N- (9-フェニルカルバゾール-3-イル) アミノ] -9-フェニルカルバゾール (略称: P C z P C N 1) 等の芳香族アミン化合物等も正孔注入層材料として挙げられる。

[0246] 高分子化合物 (オリゴマー、 dendrimer、ポリマー等) を用いることもできる。例えば、ポリ (N-ビニルカルバゾール) (略称: P V K)、ポリ (4-ビニルトリフェニルアミン) (略称: P V T P A)、ポリ [N- (4- {N' - [4- (4-ジフェニルアミノ) フェニル] フェニル-N' -フェニルアミノ} フェニル) メタクリルアミド] (略称: P T P D M A)、ポリ [N, N' -ビス (4-ブチルフェニル) -N, N' -ビス (フェニル) ベンジジン] (略称: P o l y - T P D) などの高分子化合物が挙げられる。また、ポリ (3, 4-エチレンジオキシチオフェン) /ポリ (スチレンスルホン酸) (P E D O T / P S S)、ポリアニリン /ポリ (スチレンスルホン酸) (P A n i / P S S) 等の酸を添加した高分子化合物を用いることもできる。

[0247] さらに、下記式 (K) で表されるヘキサアザトリフェニレン (H A T) 化合物などのアクセプター材料を化合物 (1) と組み合わせて用いることも好ましい。

[化167]



[0248] (上記式中、 $R_{21} \sim R_{26}$ は、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシル基、又は $-\text{COOR}_{27}$ (R_{27} は炭素数1～20のアルキル基又は炭素数3～20のシクロアルキル基を表す)を表す。また、 R_{21} 及び R_{22} 、 R_{23} 及び R_{24} 、及び R_{25} 及び R_{26} から選ばれる隣接する2つが互いに結合して $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を形成してもよい。)

R_{27} としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

[0249] 正孔輸送層

正孔輸送層は、正孔輸送性の高い材料（正孔輸送性材料）を含む層である。化合物（1）を単独で又は下記の化合物と組み合わせて正孔輸送層に用いることが好ましい。

[0250] 化合物（1）以外の正孔輸送性材料としては、例えば、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体等を使用する事ができる。

芳香族アミン化合物としては、例えば、4, 4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル（略称：NPB）やN, N'-ビス(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン（略称：TPD）、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：BAFLP）、4, 4'-ビス [N-(9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル（略称：DFLDPBi）、4, 4', 4''-

トリス (N, N-ジフェニルアミノ) トリフェニルアミン (略称: TDATA)、4, 4', 4''-トリス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリフェニルアミン (略称: MTDATA)、及び、4, 4'-ビス [N-(スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル (略称: BSPB) が挙げられる。上記化合物は、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する。

[0251] カルバゾール誘導体としては、例えば、4, 4'-ジ (9-カルバゾリル) ビフェニル (略称: CBP)、9-[4-(9-カルバゾリル) フェニル]-10-フェニルアントラセン (略称: CzPA)、及び、9-フェニル-3-[4-(10-フェニル-9-アントリル) フェニル]-9H-カルバゾール (略称: PCzPA) が挙げられる。

アントラセン誘導体としては、例えば、2-t-ブチル-9, 10-ジ (2-ナフチル) アントラセン (略称: t-BuDNA)、9, 10-ジ (2-ナフチル) アントラセン (略称: DNA)、及び、9, 10-ジフェニルアントラセン (略称: DPAnth) が挙げられる。

ポリ (N-ビニルカルバゾール) (略称: PVK) やポリ (4-ビニルトリフェニルアミン) (略称: PVTPA) 等の高分子化合物を用いることもできる。

但し、電子輸送性よりも正孔輸送性の方が高い化合物であれば、上記以外の化合物を用いてもよい。

[0252] 正孔輸送層は、単層構造でもよく、2以上の層を含む多層構造でもよい。例えば、正孔輸送層は第1正孔輸送層 (陽極側) と第2正孔輸送層 (陰極側) を含む2層構造であってもよい。本発明の一態様において、前記単層構造の正孔輸送層は発光層に隣接していることが好ましく、又、前記多層構造中の最も発光層に近い正孔輸送層、例えば、上記第2正孔輸送層、は発光層に隣接していることが好ましい。本発明の他の態様において、前記単層構造の正孔輸送層と発光層の間に、又は、前記多層構造中の最も発光層に近い正孔輸送層と発光層の間に、後述する阻止層などを介在させてもよい。

前記2層構造の正孔輸送層において、化合物(1)は第1正孔輸送層と第2正孔輸送層の一方に含まれていてもよいし、双方に含まれていてもよい、但し、第1正孔輸送層に含まれる化合物(1)と第2正孔輸送層に含まれる化合物(1)は異なる。

本発明の一態様においては、化合物(1)が第1正孔輸送層に含まれるのが好ましく、他の態様においては、化合物(1)が第2正孔輸送層に含まれるのが好ましく、さらに他の態様においては、化合物(1)が第1正孔輸送層と第2正孔輸送層に含まれるのが好ましい。

[0253] 発光層のドーパント材料

発光層は、発光性の高い材料(ドーパント材料)を含む層であり、種々の材料を用いることができる。例えば、蛍光発光材料や燐光発光材料をドーパント材料として用いることができる。蛍光発光材料は一重項励起状態から発光する化合物であり、燐光発光材料は三重項励起状態から発光する化合物である。

[0254] 発光層に用いることができる青色系の蛍光発光材料として、ピレン誘導体、スチリルアミン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、フルオレン誘導体、ジアミン誘導体、トリアリールアミン誘導体等が使用できる。具体的には、N, N'-ビス[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]-N, N'-ジフェニルスチルベン-4, 4'-ジアミン(略称: YGA2S)、4-(9H-カルバゾール-9-イル)-4'-(10-フェニル-9-アントリル)トリフェニルアミン(略称: YGAPA)、4-(10-フェニル-9-アントリル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン(略称: PCBAPA)などが挙げられる。

[0255] 発光層に用いることができる緑色系の蛍光発光材料として、芳香族アミン誘導体等を使用できる。具体的には、N-(9, 10-ジフェニル-2-アントリル)-N, 9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン(略称: 2PCAPA)、N-[9, 10-ビス(1, 1'-ビフェニル-2-イ

ル) - 2 - アントリル] - N, 9 - ジフェニル - 9H - カルバゾール - 3 - アミン (略称: 2PCABPhA)、N - (9, 10 - ジフェニル - 2 - アントリル) - N, N', N' - トリフェニル - 1, 4 - フェニレンジアミン (略称: 2DPAPA)、N - [9, 10 - ビス (1, 1' - ビフェニル - 2 - イル) - 2 - アントリル] - N, N', N' - トリフェニル - 1, 4 - フェニレンジアミン (略称: 2DPABPhA)、N - [9, 10 - ビス (1, 1' - ビフェニル - 2 - イル)] - N - [4 - (9H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] - N - フェニルアントラセン - 2 - アミン (略称: 2YGABPhA)、N, N, 9 - トリフェニルアントラセン - 9 - アミン (略称: DPhAPhA) などが挙げられる。

[0256] 発光層に用いることができる赤色系の蛍光発光材料として、テトラセン誘導体、ジアミン誘導体等が使用できる。具体的には、N, N, N', N' - テトラキス (4 - メチルフェニル) テトラセン - 5, 11 - ジアミン (略称: p - mPhTD)、7, 14 - ジフェニル - N, N, N', N' - テトラキス (4 - メチルフェニル) アセナフト [1, 2 - a] フルオランテン - 3, 10 - ジアミン (略称: p - mPhAFD) などが挙げられる。

[0257] 発光層に用いることができる青色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体が使用される。具体的には、ビス [2 - (4', 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N, C2'] イリジウム (III) テトラキス (1 - ピラゾリル) ボラート (略称: Flr6)、ビス [2 - (4', 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N, C2'] イリジウム (III) ピコリナート (略称: Flrpic)、ビス [2 - (3', 5' - ビストリフルオロメチルフェニル) ピリジナト - N, C2'] イリジウム (III) ピコリナート (略称: Ir(CF3ppy)2(pic))、ビス [2 - (4', 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N, C2'] イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: Flracac) などが挙げられる。

[0258] 発光層に用いることができる緑色系の燐光発光材料として、イリジウム錯

体等が使用される。トリス（2-フェニルピリジナト-N, C2'）イリジウム（111）（略称：Ir（ppy）₃）、ビス（2-フェニルピリジナト-N, C2'）イリジウム（111）アセチルアセトナート（略称：Ir（ppy）₂（aac））、ビス（1, 2-ジフェニル-1H-ベンゾイミダゾラト）イリジウム（111）アセチルアセトナート（略称：Ir（pbi）₂（aac））、ビス（ベンゾ[h]キノリナト）イリジウム（111）アセチルアセトナート（略称：Ir（bzq）₂（aac））などが挙げられる。

[0259] 発光層に用いることができる赤色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、白金錯体、テルビウム錯体、ユーロピウム錯体等の金属錯体が使用される。具体的には、ビス〔2-（2'-ベンゾ〔4, 5- α 〕チエニル）ピリジナト-N, C3'〕イリジウム（111）アセチルアセトナート（略称：Ir（btp）₂（aac））、ビス（1-フェニルイソキノリナト-N, C2'）イリジウム（111）アセチルアセトナート（略称：Ir（piq）₂（aac））、（アセチルアセトナート）ビス〔2, 3-ビス（4-フルオロフェニル）キノキサリナト〕イリジウム（111）（略称：Ir（Fdpq）₂（aac））、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-ポルフィリン白金（11）（略称：PtOEP）等の有機金属錯体が挙げられる。

[0260] また、トリス（アセチルアセトナート）（モノフェナントロリン）テルビウム（111）（略称：Tb（aac）₃（Phen））、トリス（1, 3-ジフェニル-1, 3-プロパンジオナト）（モノフェナントロリン）ユーロピウム（111）（略称：Eu（DBM）₃（Phen））、トリス〔1-（2-テノイル）-3, 3, 3-トリフルオロアセトナト〕（モノフェナントロリン）ユーロピウム（111）（略称：Eu（TTA）₃（Phen））等の希土類金属錯体は、希土類金属イオンからの発光（異なる多重度の電子遷移）であるため、燐光発光材料として用いることができる。

[0261] 発光層のホスト材料

発光層は、上述したドーパント材料を他の材料（ホスト材料）に分散させた構成としてもよい。化合物（１）をホスト材料として用いてもよいし、その他各種の材料を用いることもできる。ドーパント材料よりも最低空軌道準位（LUMO準位）が高く、最高占有軌道準位（HOMO準位）が低い材料を用いることが好ましい。

[0262] 化合物（１）以外のホスト材料としては、例えば

- (１) アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、又は亜鉛錯体等の金属錯体、
- (２) オキサジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、又はフェナントロリン誘導体等の複素環化合物、
- (３) カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、又はクリセン誘導体等の縮合芳香族化合物、
- (４) トリアリールアミン誘導体又は縮合多環芳香族アミン誘導体等の芳香族アミン化合物が使用される。

[0263] 例えば、トリス（８－キノリノラト）アルミニウム（I I I）（略称：A I q）、トリス（４－メチル－８－キノリノラト）アルミニウム（I I I）（略称：A I m q 3）、ビス（１０－ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（I I）（略称：B e B q 2）、ビス（２－メチル－８－キノリノラト）（４－フェニルフェノラト）アルミニウム（I I I）（略称：B A I q）、ビス（８－キノリノラト）亜鉛（I I）（略称：Z n q）、ビス[２－（２－ベンゾオキサゾリル）フェノラト]亜鉛（I I）（略称：Z n P B O）、ビス[２－（２－ベンゾチアゾリル）フェノラト]亜鉛（I I）（略称：Z n B T Z）などの金属錯体；

２－（４－ビフェニル）－５－（４－t e r t－ブチルフェニル）－１， ３， ４－オキサジアゾール（略称：P B D）、１， ３－ビス[５－（p－t e r t－ブチルフェニル）－１， ３， ４－オキサジアゾール－２－イル]ベンゼン（略称：O X D－７）、３－（４－ビフェニル）－４－フェニル－５－（４－t e r t－ブチルフェニル）－１， ２， ４－トリアゾール（略称：T A Z）、２， ２’， ２’ ’－（１， ３， ５－ベンゼントリイル）トリ

ス（１－フェニル－１Ｈ－ベンゾイミダゾール）（略称：TPBI）、バソフェナントロリン（略称：BPhen）、バソキュプロイン（略称：BCP）などの複素環化合物；

９－〔４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル〕－９Ｈ－カルバゾール（略称：CzPA）、３，６－ジフェニル－９－〔４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル〕－９Ｈ－カルバゾール（略称：DP CzPA）、９，１０－ビス（３，５－ジフェニルフェニル）アントラセン（略称：DPPA）、９，１０－ジ（２－ナフチル）アントラセン（略称：DNA）、２－tert－ブチル－９，１０－ジ（２－ナフチル）アントラセン（略称：t－BuDNA）、９，９’－ビアントリル（略称：BANT）、９，９’－（スチルベン－３，３’－ジイル）ジフェナントレン（略称：DPNS）、９，９’－（スチルベン－４，４’－ジイル）ジフェナントレン（略称：DPNS2）、３，３’，３’’－（ベンゼン－１，３，５－トリイル）トリピレン（略称：TPB3）、９，１０－ジフェニルアントラセン（略称：DPAnth）、６，１２－ジメトキシ－５，１１－ジフェニルクリセンなどの縮合芳香族化合物；及び

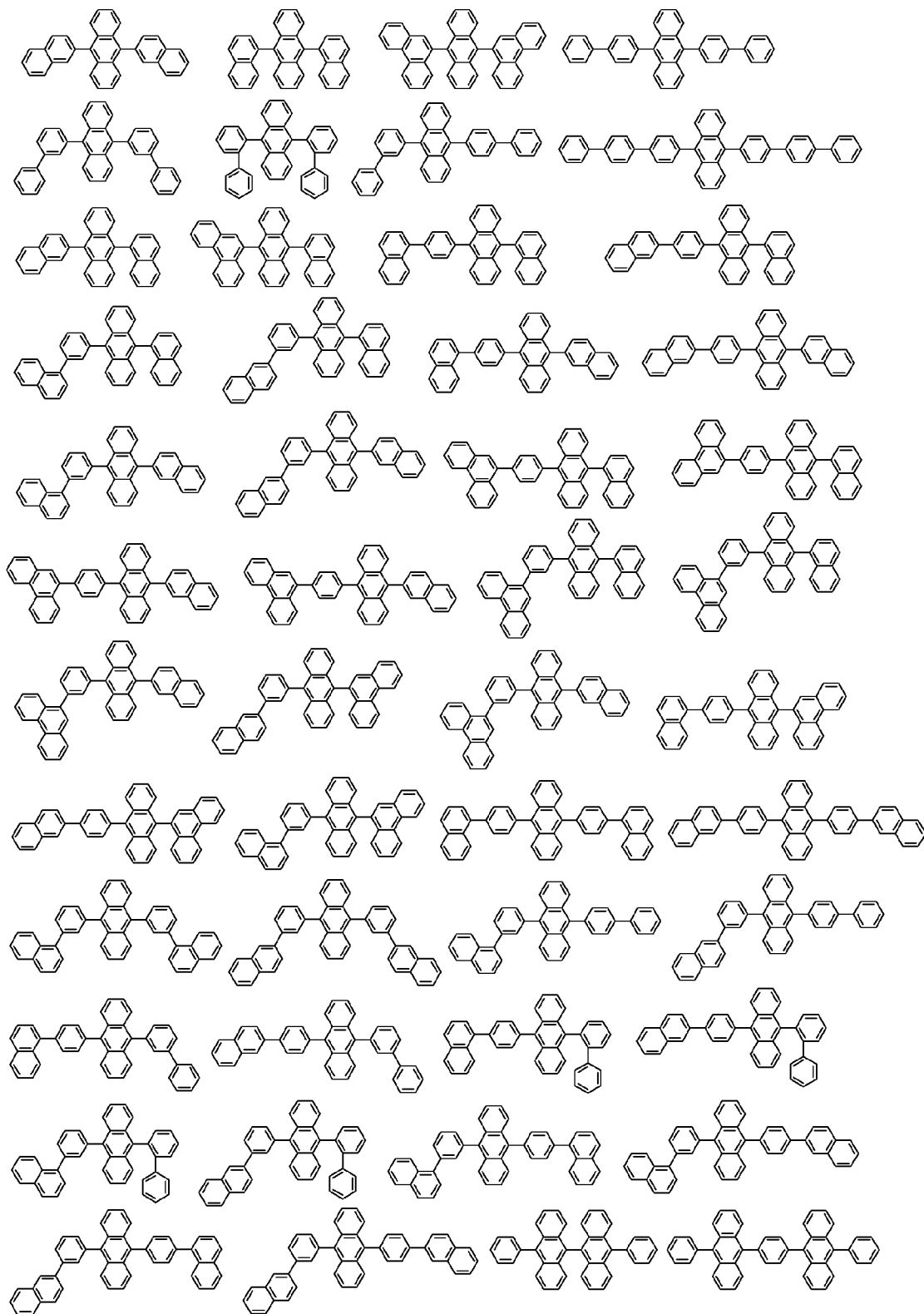
N，N－ジフェニル－９－〔４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル〕－９Ｈ－カルバゾール－３－アミン（略称：CzA1PA）、４－（１０－フェニル－９－アントリル）トリフェニルアミン（略称：DP h PA）、N，９－ジフェニル－N－〔４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル〕－９Ｈ－カルバゾール－３－アミン（略称：PCAPA）、N，９－ジフェニル－N－〔４－〔４－（１０－フェニル－９－アントリル）フェニル〕フェニル〕－９Ｈ－カルバゾール－３－アミン（略称：PCAPBA）、N－（９，１０－ジフェニル－２－アントリル）－N，９－ジフェニル－９Ｈ－カルバゾール－３－アミン（略称：2PCAPA）、４，４’－ビス〔N－（１－ナフチル）－N－フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：NPBまたは α -NPD）、N，N’－ビス（３－メチルフェニル）－N，N’－ジフェニル－〔１，１’－ビフェニル〕－４，４’－ジアミン（略称

: TPD)、4, 4'-ビス [N-(9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル (略称: DF LDPBi)、4, 4'-ビス [N-(スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル (略称: BSPB) などの芳香族アミン化合物を用いることができる。ホスト材料は複数種用いてもよい。

[0264] 特に、青色蛍光素子の場合には、下記のアントラセン化合物をホスト材料として用いることが好ましい。

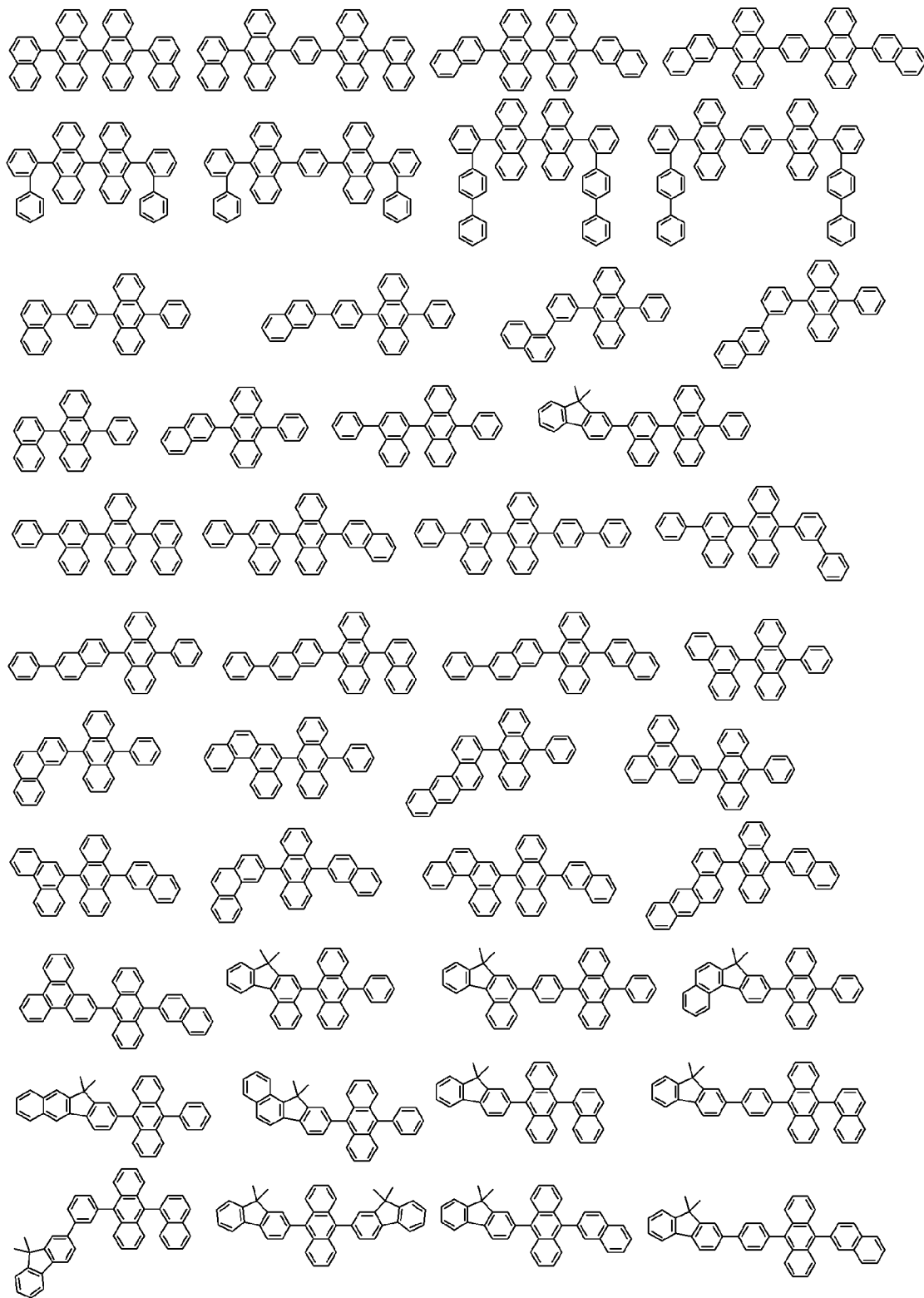
[0265]

[化168]



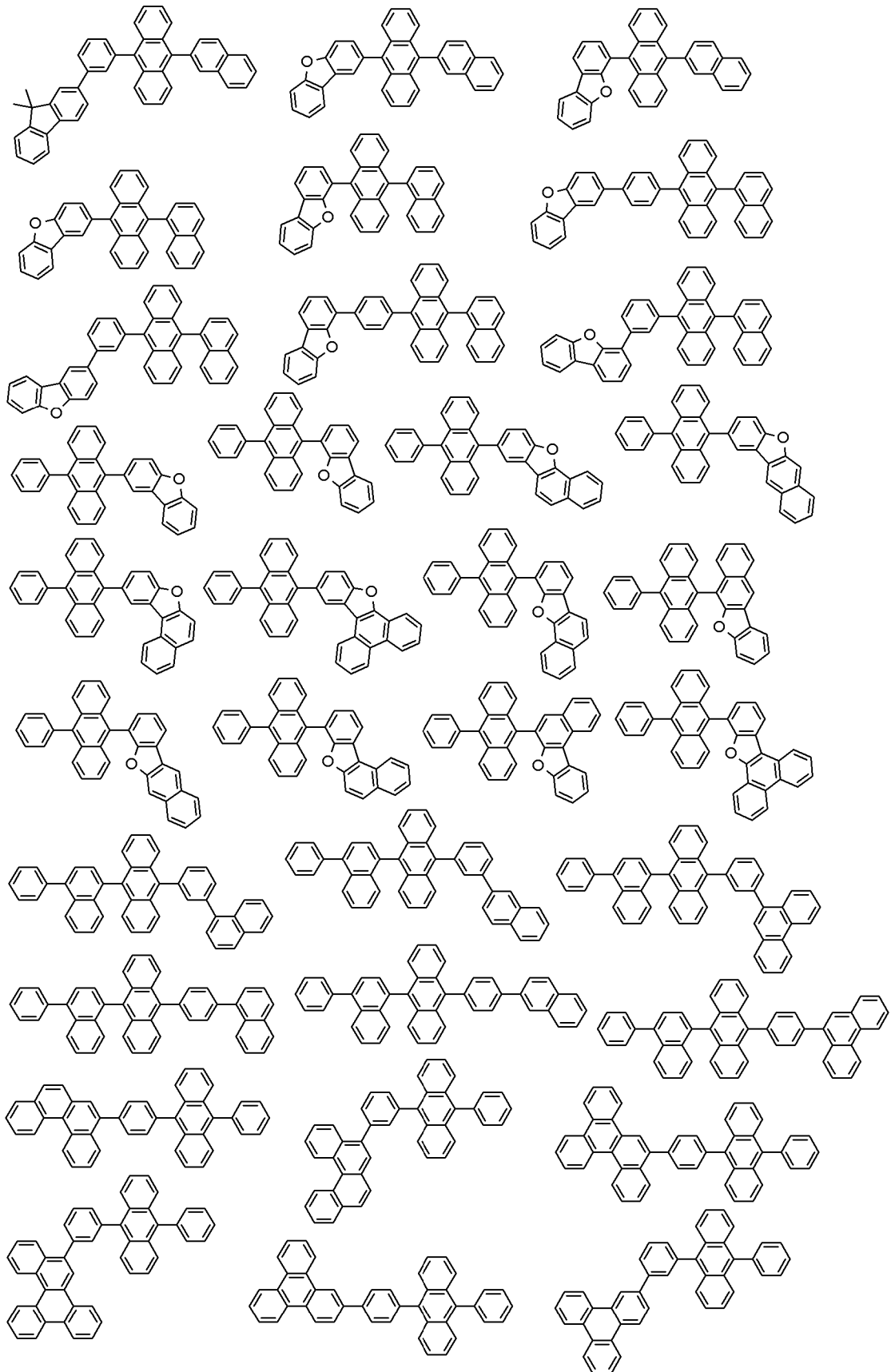
[0266]

[化169]



[0267]

[化170]



[0268] 電子輸送層

電子輸送層は電子輸送性の高い材料（電子輸送性材料）を含む層である。

電子輸送層には、例えば、

- (1) アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、亜鉛錯体等の金属錯体、
- (2) イミダゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、アジン誘導体、カルバゾール誘導体、フェナントロリン誘導体等の複素芳香族化合物、
- (3) 高分子化合物を使用することができる。

[0269] 金属錯体としては、例えば、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（ 111 ）（略称：Alq）、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（略称：Almq₃）、ビス（10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（略称：BeBq₂）、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（4-フェニルフェノラト）アルミニウム（ 111 ）（略称：BAAlq）、ビス（8-キノリノラト）亜鉛（ 11 ）（略称：Znq）、ビス〔2-（2-ベンゾオキサゾリル）フェノラト〕亜鉛（ 11 ）（略称：ZnPB₂O）、ビス〔2-（2-ベンゾチアゾリル）フェノラト〕亜鉛（ 11 ）（略称：ZnBTZ）が挙げられる。

[0270] 複素芳香族化合物としては、例えば、2-（4-ビフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール（略称：PBD）、1,3-ビス〔5-（ptert-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル〕ベンゼン（略称：OXD-7）、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-フェニル-5-（4-ビフェニル）-1,2,4-トリアゾール（略称：TAZ）、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-（4-エチルフェニル）-5-（4-ビフェニル）-1,2,4-トリアゾール（略称：p-EtTAZ）、バソフェナントロリン（略称：BPhen）、バソキュプロイン（略称：BCP）、4,4'-ビス（5-メチルベンゾオキサゾール-2-イル）スチルベン（略称：BzOs）が挙げられる。

[0271] 高分子化合物としては、例えば、ポリ〔（9,9-ジヘキシルフルオレン

−2, 7−ジイル) −c o− (ピリジン−3, 5−ジイル)] (略称: P F −P y)、ポリ [(9, 9−ジオクチルフルオレン−2, 7−ジイル) −c o− (2, 2′ −ビピリジン−6, 6′ −ジイル)] (略称: P F −B P y) が挙げられる。

[0272] 上記材料は、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する材料である。なお、正孔輸送性よりも電子輸送性の高い材料であれば、上記以外の材料を電子輸送層に用いてもよい。

[0273] 電子輸送層は、単層でもよく、2以上の層を含む多層でもよい。例えば、電子輸送層は第1電子輸送層（陽極側）と第2電子輸送層（陰極側）を含む層であってもよい。2以上の電子輸送層は、それぞれ前記電子輸送性材料により形成される。

[0274] 電子注入層

電子注入層は、電子注入性の高い材料を含む層である。電子注入層には、リチウム (L i)、セシウム (C s)、カルシウム (C a)、フッ化リチウム (L i F)、フッ化セシウム (C s F)、フッ化カルシウム (C a F₂)、リチウム酸化物 (L i O_x) 等のアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を用いることができる。その他、電子輸送性を有する材料にアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を含有させたもの、具体的にはA l q中にマグネシウム (M g) を含有させたもの等を用いてもよい。なお、この場合には、陰極からの電子注入をより効率良く行うことができる。

あるいは、電子注入層に、有機化合物と電子供与体（ドナー）とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、有機化合物が電子供与体から電子を受け取るため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、受け取った電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体的には、例えば上述した電子輸送層を構成する材料（金属錯体や複素芳香族化合物等）を用いることができる。電子供与体としては、有機化合物に対し電子供与性を示す材料であればよい。具体的には、

アルカリ金属、アルカリ土類金属及び希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラシアフルバレン（略称：TTF）等の有機化合物を用いることもできる。

[0275] 陰極

陰極には、仕事関数の小さい（具体的には3.8 eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金（例えば、MgAg、AlLi）、ユーロピウム（Eu）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金等が挙げられる。

なお、アルカリ金属、アルカリ土類金属、これらを含む合金を用いて陰極を形成する場合には、真空蒸着法やスパッタリング法を用いることができる。また、銀ペーストなどを用いる場合には、塗布法やインクジェット法などを用いることができる。

なお、電子注入層を設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、ITO、グラフェン、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ等様々な導電性材料を用いて陰極を形成することができる。これらの導電性材料は、スパッタリング法やインクジェット法、スピコート法等を用いて成膜することができる。

[0276] 絶縁層

有機EL素子は、超薄膜に電界を印加するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一对の電極間に絶縁性の薄膜層からなる絶縁層を挿入してもよい。

絶縁層に用いられる材料としては、例えば、酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸化リチウム、弗化セシウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシウム、酸化カルシウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム等が挙げられる。なお、これらの混合物や積層物を用いてもよい。

[0277] スペース層

上記スペース層とは、例えば、蛍光発光層と燐光発光層とを積層する場合に、燐光発光層で生成する励起子を蛍光発光層に拡散させない、あるいは、キャリアバランスを調整する目的で、蛍光発光層と燐光発光層との間に設けられる層である。また、スペース層は、複数の燐光発光層の間に設けることもできる。

スペース層は発光層間に設けられるため、電子輸送性と正孔輸送性を兼ね備える材料であることが好ましい。また、隣接する燐光発光層内の三重項エネルギーの拡散を防ぐため、三重項エネルギーが2.6 eV以上であることが好ましい。スペース層に用いられる材料としては、上述の正孔輸送層に用いられるものと同様のものが挙げられる。

[0278] 阻止層

電子阻止層、正孔阻止層、励起子阻止層などの阻止層を発光層に隣接して設けてもいい。電子阻止層とは発光層から正孔輸送層へ電子が漏れることを防ぐ層であり、正孔阻止層とは発光層から電子輸送層へ正孔が漏れることを防ぐ層である。励起子阻止層は発光層で生成した励起子が周辺層へ拡散することを防止し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。

[0279] 前記有機EL素子の各層は従来公知の蒸着法、塗布法等により形成することができる。例えば、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)などの蒸着法、あるいは、層を形成する化合物の溶液を用いた、ディッピング法、スピニング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

[0280] 各層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い駆動電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常5 nm～10 μmであり、10 nm～0.2 μmがより好ましい。

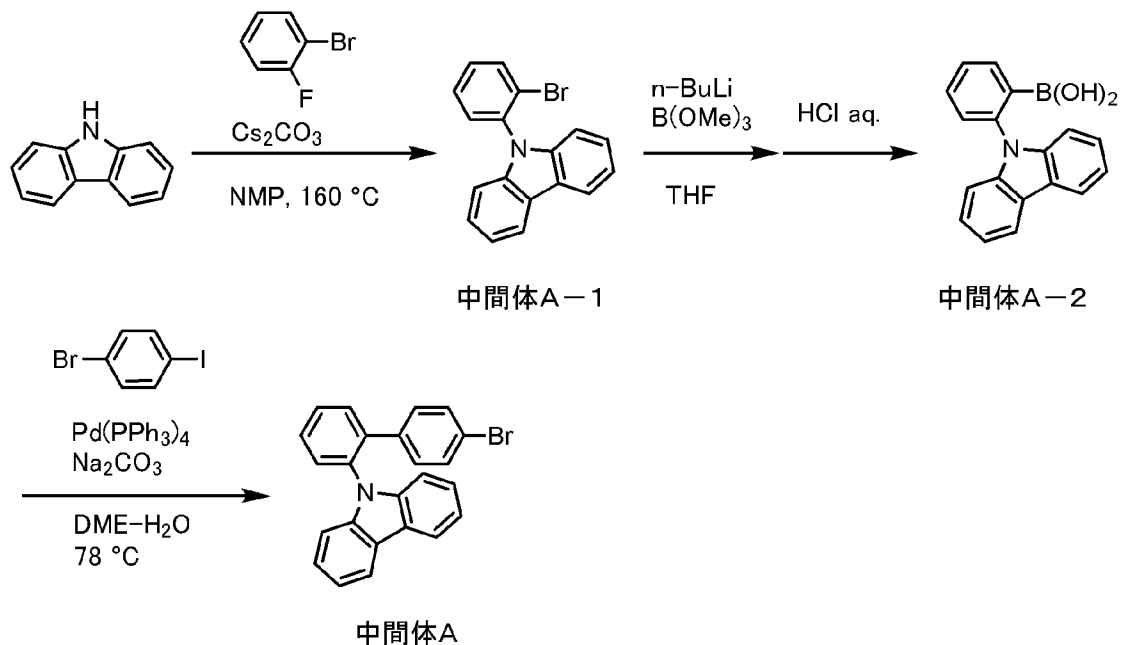
[0281] 前記有機EL素子は、有機ELパネルモジュール等の表示部品、テレビ、携帯電話、パーソナルコンピュータ等の表示装置、及び、照明、車両用灯具の発光装置等の電子機器に使用できる。

実施例

[0282] 以下、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0283] 中間体合成例 A 中間体 A の合成

[化171]



[0284] (A-1) 中間体 A-1 の合成

カルバゾール (10 g、59.8 mmol) 及び炭酸セシウム (39.0 g、120 mmol) の N-メチルピロリドン (NMP、59.8 mL) 溶液に 1-ブromo-2-フルオロベンゼン (7.80 mL、71.8 mmol) を加え、160 °C にて 16 時間加熱攪拌した。反応液を室温に冷却し、

トルエンを加え、不溶物を濾別した。得られた溶液を水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製した。得られた残渣を結晶化して、中間体A-1 (18.3 g)を得た。収率94%であった。

[0285] (A-2) 中間体A-2の合成

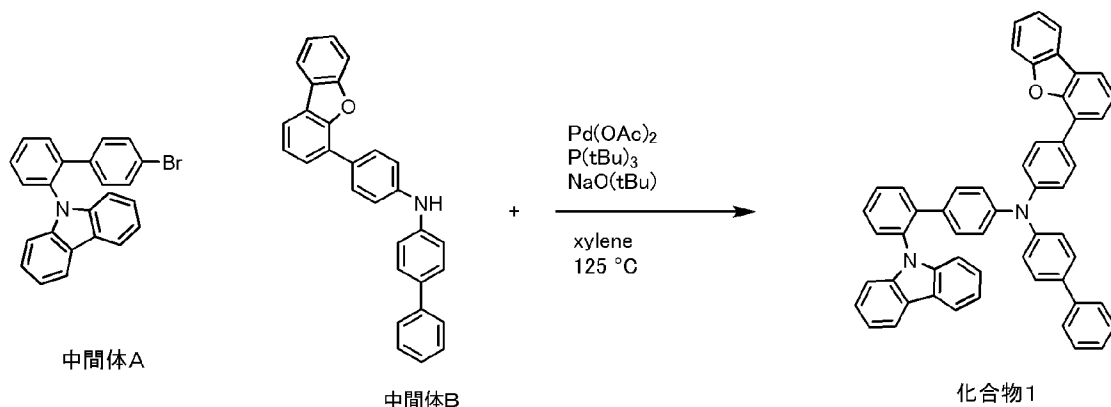
アルゴン雰囲気下、中間体A-1 (8.0 g、24.8 mmol) のテトラヒドロフラン (THF、124 mL) 溶液をドライアイス/アセトンバスにて冷却した。冷却した溶液に1.6 M n-ブチルリチウムヘキサン溶液 (17.1 mL、27.3 mmol) を滴下して加え、2時間攪拌した。ホウ酸トリメチル (3.33 mL、29.8 mmol) のTHF (10 mL) 溶液を滴下し、1時間攪拌した後、ドライアイス/アセトンバスをはずして室温へ昇温した。反応液を氷水浴で冷却し、2 M塩酸を加えた後、室温に昇温し、1時間攪拌した。得られた反応液を酢酸エチルで抽出し、有機層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧濃縮した。得られた残渣を結晶化し、中間体A-2 (4.91 g)を得た。収率69%であった。

[0286] (A-3) 中間体Aの合成

アルゴン雰囲気下、中間体A-2 (4.16 g、14.5 mmol)、1-ブロモ-4-ヨードベンゼン (4.92 g、17.4 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (0.324 g、0.28 mmol)、及び炭酸ナトリウム (3.07 g、29 mmol) のエチレンジグリコールジメチルエーテル (DME、40 mL) /水 (7 mL) 溶液を78°Cにて18時間攪拌した。室温に冷却したのち、メタノールを加え、精製した固体を濾取した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーおよび再結晶にて精製し、中間体A (3.98 g)を得た。収率69%であった。

[0287] 合成例1 化合物1の合成

[化172]

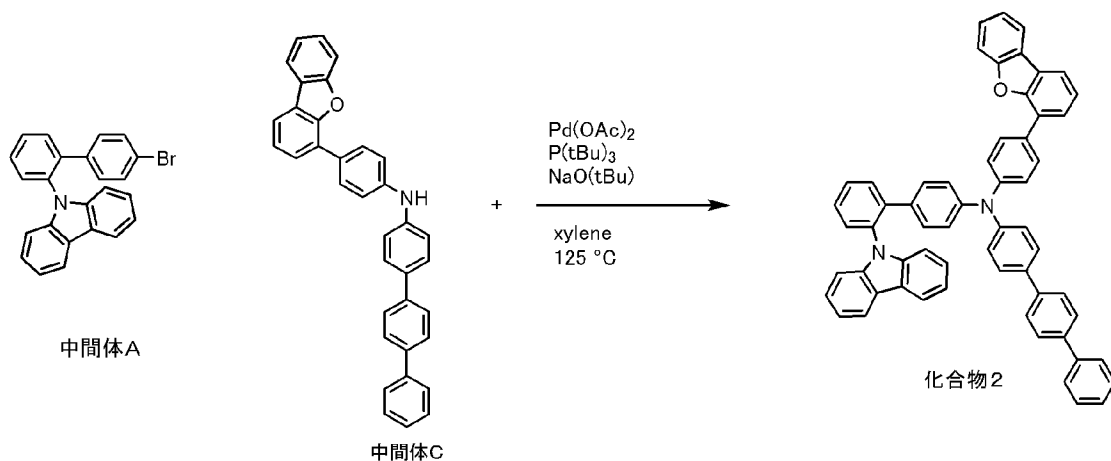


[0288] アルゴン雰囲気下、中間体A (3.18g、8.0mmol)、WO2007/125714に記載の方法と同様にして合成した中間体B (3.29g、8.0mmol)、酢酸パラジウム(II) (0.036g、0.16mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (0.065g、0.32mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (0.93g、9.6mmol)、及びキシレン (50mL) の混合物を125℃にて2.5時間攪拌した。反応液を室温に冷却し、メタノールを加え攪拌し、析出した固体を濾取した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーおよび再結晶にて精製し、白色固体 (3.14g) を得た。収率54%であった。

得られた化合物は、マスペクトル分析の結果 (分子量728.28に対して $m/e = 728$)、化合物1であった。

[0289] 合成例2 化合物2の合成

[化173]

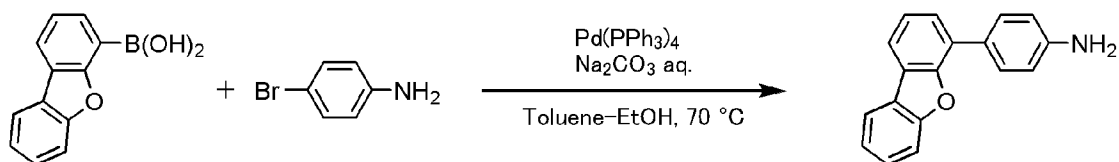


[0290] 中間体BのかわりにWO2010/061824に記載の方法と同様にして合成した中間体Cを用いたほかは合成例1と同様の操作を行った。

得られた化合物は、マスマスペクトル分析の結果（分子量804.31に対して $m/e = 804$ ）、化合物2であった。

[0291] 中間体合成例D 中間体Dの合成

[化174]

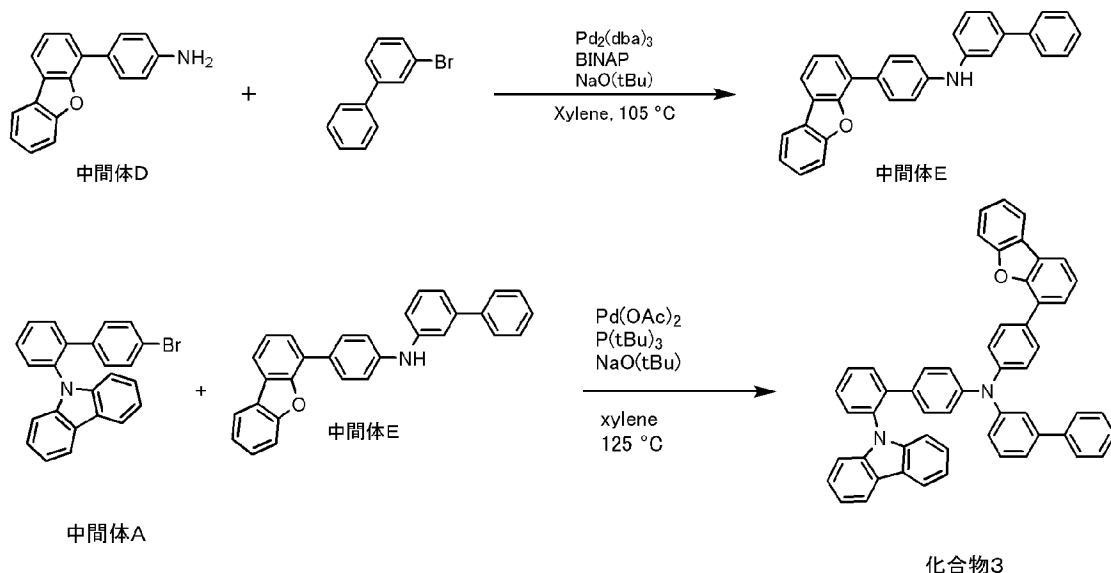


中間体D

[0292] アルゴン雰囲気下、4-ブロモアニリン（23.7g、138mmol）、ジベンゾフラン-4-イルボロン酸（29.2g、138mmol）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）（3.18g、2.75mmol）、2M炭酸ナトリウム水溶液（138mL）、トルエン（300mL）、及びエタノール（100mL）の混合物を70℃にて2時間攪拌した。室温に戻した後、反応溶液をトルエンで抽出した。トルエン層を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、濾過し、減圧濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーおよび再結晶にて生成し、中間体D（20.9g）を得た。収率58%であった。

[0293] 合成例3 化合物3の合成

[化175]



[0294] (3-1) 中間体Eの合成

アルゴン雰囲気下、中間体D (2.09 g、8.06 mmol) 及び3-ブロモビフェニル (1.45 g、6.2 mmol) のキシレン (35 mL) 溶液を85 °Cに加熱した。トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (0) (85.2 mg、0.093 mmol)、2, 2'-ビス (ジフェニルホスフィノ) -1, 1'-ビナフチル (BINAP) (116 mg、0.186 mmol)、及びナトリウム-t-ブトキシド (1.19 g、12.4 mmol) を加えた後、105 °Cまで昇温し、混合物を16時間攪拌した。室温に戻した後、反応液に水を加え、分液した。有機層を減圧濃縮した後、残渣をカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体E (1.66 g) を得た。収率65%であった。

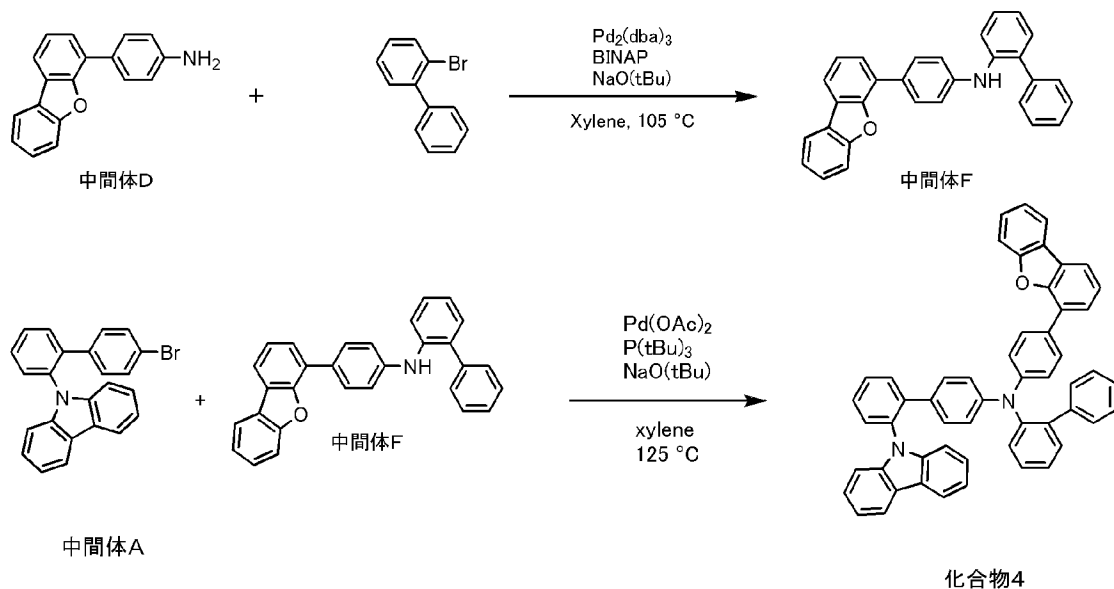
[0295] (3-2) 化合物3の合成

中間体Bの代わりに中間体Eを用いたほかは合成例1と同様の操作を行った。

得られた化合物は、マスペクトル分析の結果 (分子量728.28に対し $m/e = 728$)、化合物3であった。

[0296] 合成例4 化合物4の合成

[化176]



[0297] (4-1) 中間体Fの合成

3-ブロモビフェニルの代わりに2-ブロモビフェニルを用いたほかは合成例3の(3-1)と同様の操作を行い中間体Fを得た。

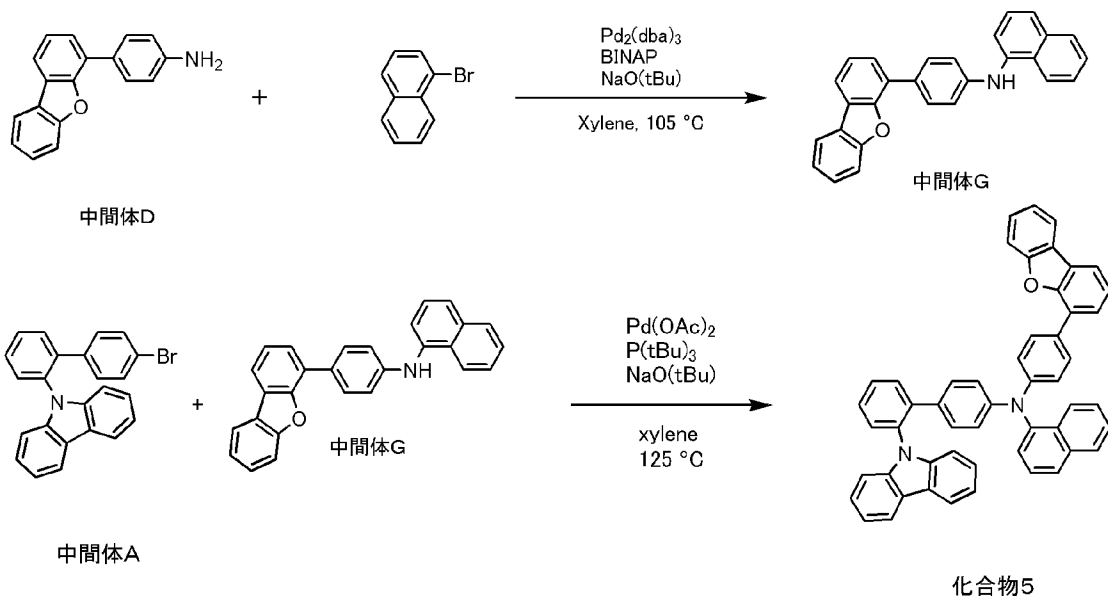
[0298] (4-2) 化合物4の合成

中間体Bのかわりに中間体Fを用いたほかは合成例1と同様の操作を行った。

得られた化合物は、マスペクトル分析の結果(分子量728.28に対し $m/e = 728$)、化合物4であった。

[0299] 合成例5 化合物5の合成

[化177]



[0300] (5-1) 中間体Gの合成

3-ブロモビフェニルの代わりに1-ブロモナフタレンを用いたほかは合成例3の(3-1)と同様の操作を行い中間体Gを得た。

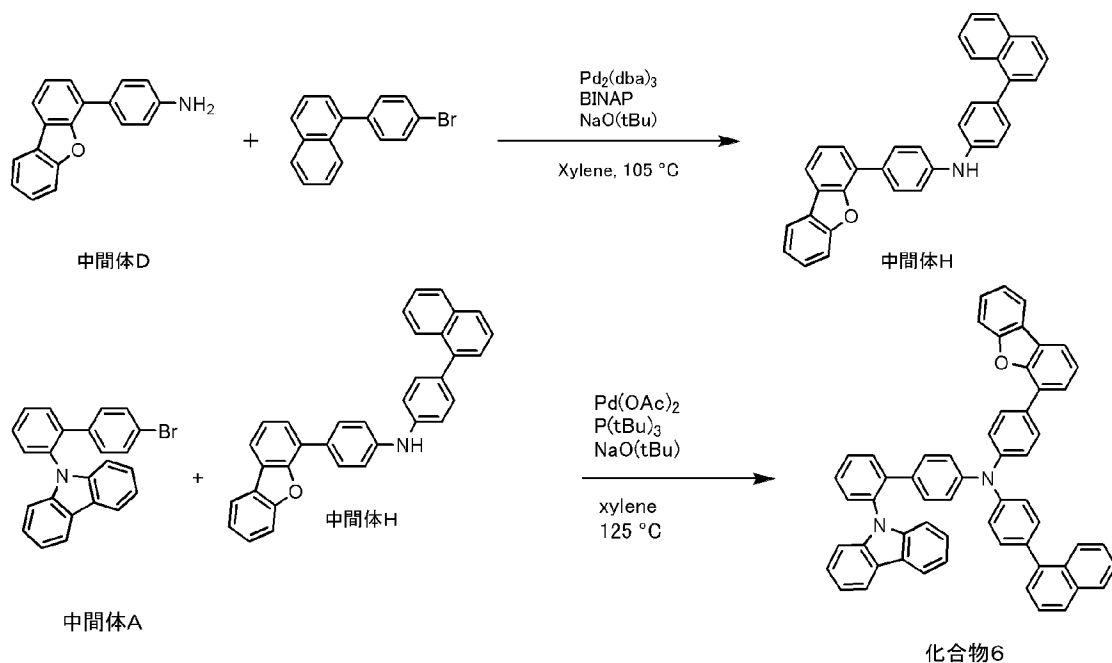
[0301] (5-2) 化合物5の合成

中間体Bの代わりに中間体Gを用いたほかは合成例1と同様の操作を行った。

得られた化合物は、マスマスペクトル分析の結果(分子量702.27に対し $m/e = 702$)、化合物5であった。

[0302] 合成例6 化合物6の合成

[化178]



[0303] (6-1) 中間体Hの合成

3-ブロモビフェニルの代わりに1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンを用いたほかは合成例3の(3-1)と同様の操作を行い中間体Hを得た。

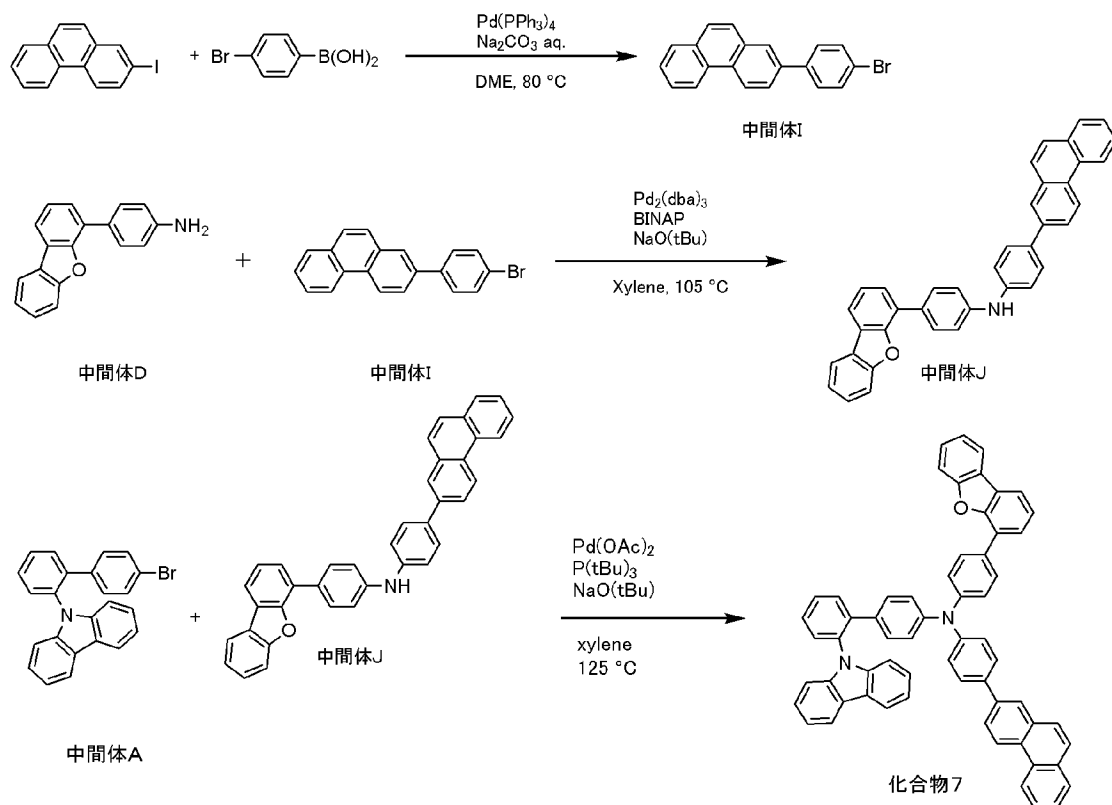
[0304] (6-2) 化合物6の合成

中間体Bの代わりに中間体Hを用いたほかは合成例1と同様の操作を行った。

得られた化合物は、マスペクトル分析の結果(分子量778.30に対し $m/e = 778$)、化合物6であった。

[0305] 合成例7 化合物7の合成

[化179]



[0306] (7-1) 中間体 I の合成

窒素雰囲気下、WO2009/116628に記載の方法で合成した2-ヨードフェナントレン (3.04 g、10.0 mmol)、4-ブロモフェニルボロン酸 (2.00 g、10.0 mmol)、テラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (0.231 g、0.200 mmol)、2M炭酸ナトリウム水溶液 (60 mL、120 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (DME) (50 mL)、及び水 (60 mL) の混合物を80°Cで5時間攪拌した。反応液を室温に冷却した後、析出した結晶を濾取し、ヘキサン、次いで水で洗浄し、乾燥して、目的とする中間体 I (3.28 g) を得た。収率99%であった。

[0307] (7-2) 中間体 J の合成

3-ブロモビフェニルの代わりに中間体 I を用いたほかは合成例3の(3-1)と同様の操作を行い中間体 J を得た。

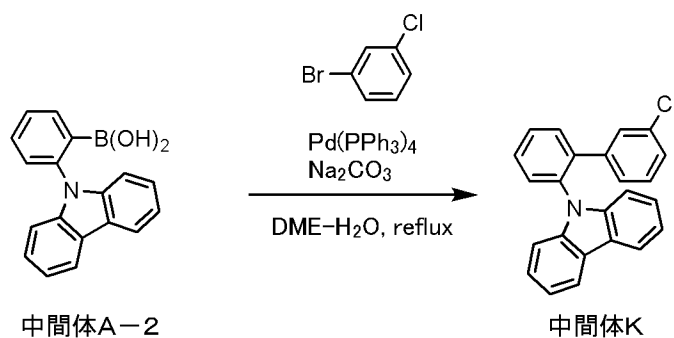
[0308] (7-3) 化合物 7 の合成

中間体Bのかわりに(7-2)で合成した中間体Jを用いたほかは合成例1と同様の操作を行った。

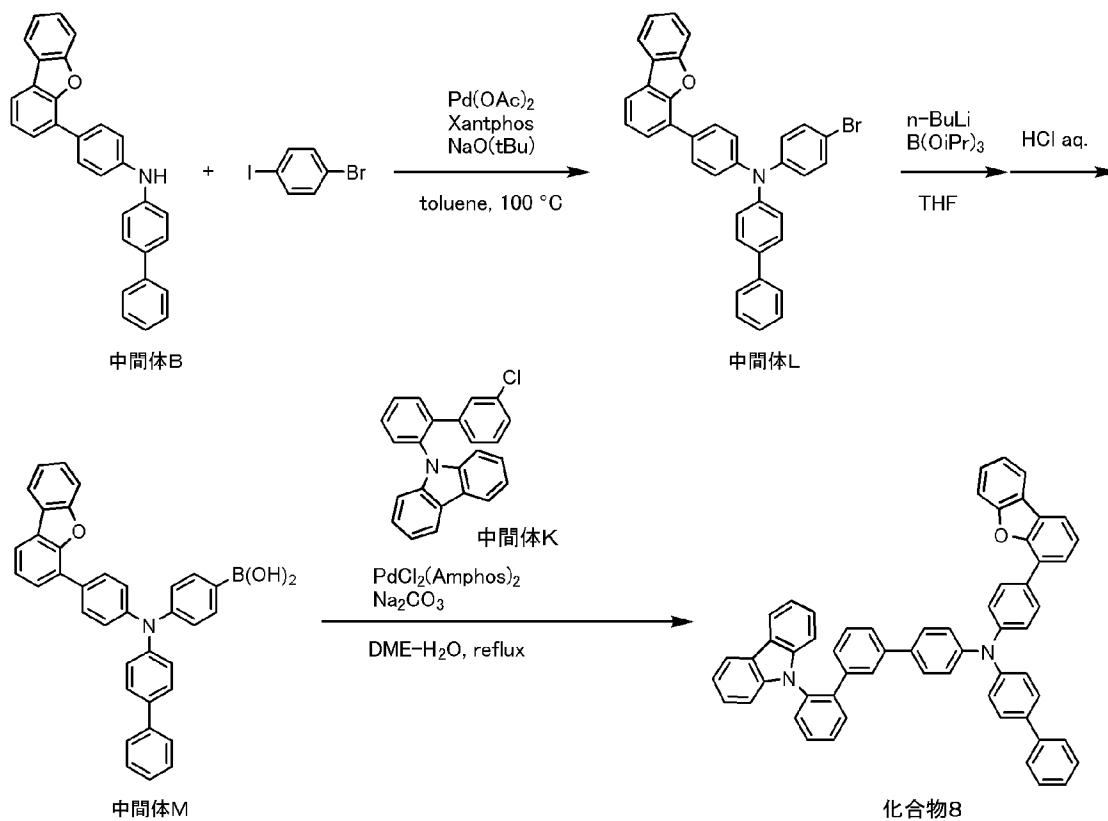
得られた化合物は、マスペクトル分析の結果(分子量828.31に対し $m/e = 828$)、化合物6であった。

[0309] 合成例8 化合物8の合成

[化180]



[化181]



[0310] (8-1) 中間体Kの合成

アルゴン雰囲気下、中間体合成例Aの(A-2)と同様の方法で合成した

中間体A-2 (2.18 g、7.59 mmol), 1-ブロモ-3-クロロベンゼン (1.60 g、8.36 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (0.17 g、0.147 mmol)、2M炭酸ナトリウム水溶液 (12 mL、24 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (DME) (40 mL)の混合物を7時間還流した。反応液を室温に冷却した後、水を加え酢酸エチルで抽出した。酢酸エチル層を水および飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、濾過した後、濾液を減圧濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体K (2.52 g)を得た。収率94%であった。

[0311] (8-2) 中間体Lの合成

アルゴン雰囲気下、WO2007/125714に記載の方法と同様にして合成した中間体B (12.35 g、30.0 mmol)、1-ブロモ-4-ヨードベンゼン (8.49 g、30.0 mmol)、酢酸パラジウム(II) (0.07 g、0.313 mmol)、Xantphos (0.17 g、0.294 mmol)、ナトリウム-t-ブトキシド (4.32 g、45.0 mmol)、及びトルエン (150 mL)の混合物を100°Cで23時間攪拌した。反応液を室温に冷却した後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。得られた有機層をセライト濾過し、濾液を水および飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。濾過した後、濾液を減圧濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体L (14.65 g)を得た。収率86%であった。

[0312] (8-3) 中間体Mの合成

アルゴン雰囲気下、中間体L (8.4 g、14.83 mmol)のTHF (110 mL)溶液をドライアイス/メタノールバスで冷却し、n-ブチルリチウムの1.5Mヘキサン溶液 (12 mL、18.6 mmol)を滴下して加え、1時間攪拌した。反応液にホウ酸トリスプロピル (11 mL、47.7 mmol)を滴下して加え、1時間攪拌した後、室温でさらに1時間半攪拌した。反応液に1M塩酸 (20 mL)および水 (110 mL)を加え

30分攪拌した。得られた反応液を分液し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、濾過した後、濾液を減圧濃縮した。得られた残渣を酢酸エチルで洗浄し、中間体M (3.74 g) を得た。収率48%であった。

[0313] (8-4) 化合物8の合成

アルゴン雰囲気下、中間体M (2.33 g、4.38 mmol)、中間体K (1.55 g、4.38 mmol)、PdCl₂(Amphos)₂ (0.06 g、0.085 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (DME) (37 mL)、及び2M炭酸ナトリウム水溶液 (7 mL、14 mmol) の混合物を5時間還流した。反応液を室温に冷却し、析出した固体を濾取し、DMEおよび水で洗浄した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーおよび再結晶にて精製し、白色固体 (1.60 g) を得た。収率45%であった。

得られた化合物は、マスマスペクトル分析の結果 (分子量804.31に対しm/e = 804)、化合物8であった。

[0314] 実施例1

有機EL素子の製造

25 mm × 75 mm × 1.1 mmのITO透明電極付きガラス基板 (ジオマテック株式会社製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行った後、UVオゾン洗浄を30分間行った。ITO透明電極の厚さは130 nmとした。

洗浄後のITO透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まずITO透明電極を覆うようにして下記化合物 (H1-1) を蒸着して膜厚5 nmの正孔注入層を形成した。

次に、この正孔注入層上に、下記化合物HT-1 (第1正孔輸送層材料) を蒸着して膜厚80 nmの第1正孔輸送層を形成した。

次に、この第1正孔輸送層上に、合成実施例1で合成した化合物1 (第2正孔輸送層材料) を蒸着して膜厚10 nmの第2正孔輸送層を形成した。

次に、この第2正孔輸送層上に、化合物BH-1（ホスト材料）と化合物BD-1（ドーパント材料）を共蒸着し、膜厚25nmの発光層を形成した。化合物BD-1の発光層中の濃度は4.0質量%であった。

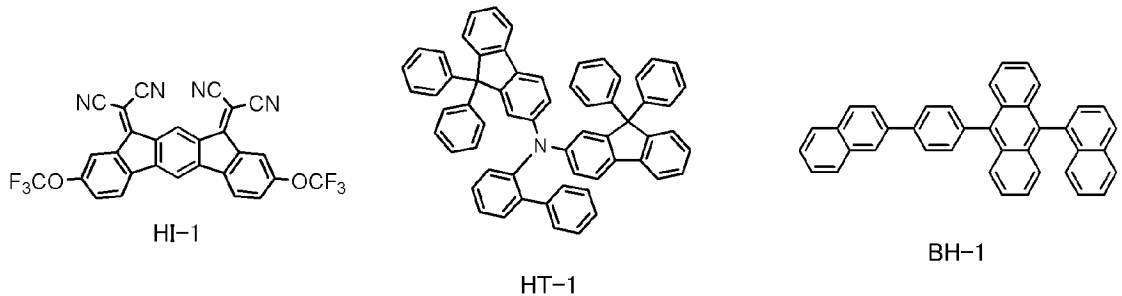
次に、この発光層の上に、下記化合物ET-1を蒸着して膜厚10nmの第1電子輸送層を形成した。

次に、この第1電子輸送層の上に、下記化合物ET-2を蒸着して膜厚15nmの第2電子輸送層を形成した。

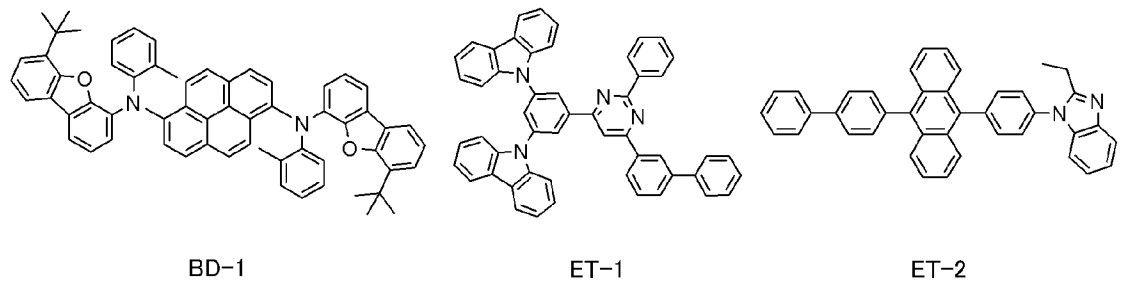
次に、この第2電子輸送層上に、LiFを蒸着して膜厚1nmの電子注入性電極（陰極）を形成した。

そして、このLiF膜上に金属Alを蒸着して膜厚80nmの金属Al陰極を形成した。

[0315] [化182]



[化183]



[0316] 素子寿命の測定

得られた有機EL素子を電流密度 50 mA/cm^2 で直流駆動し、輝度が初期輝度の95%に減少するまでの時間を測定し、これを95%寿命（LT95）とした。結果を表1に示す。

[0317] 実施例2～8

化合物 1 に代えて、化合物 2～8 のそれぞれを第 2 正孔輸送層材料として用いた以外は実施例 1 と同様にして各有機 EL 素子を製造し、実施例 1 と同様にして 95% 寿命 (LT95) を測定した。結果を表 1 に示す。

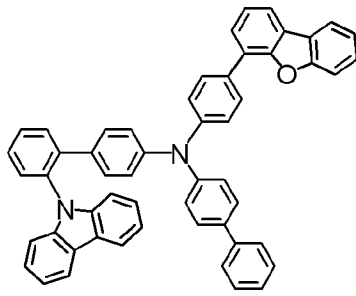
[0318] 比較例 1 及び 2

化合物 1 に代えて、比較化合物 1 (特許文献 3 に記載の化合物) 又は比較化合物 2 (特許文献 4 に記載の化合物) を第 2 正孔輸送層材料として用いた以外は実施例 1 と同様にして各有機 EL 素子を製造し、実施例 1 と同様にして 95% 寿命 (LT95) を測定した。結果を表 1 に示す。

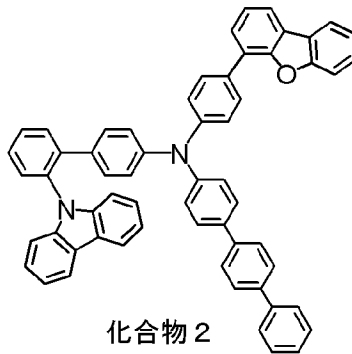
[0319] [表1]

	第 2 正孔輸送層の材料	LT95 (h)
実施例 1	化合物 1	140
実施例 2	化合物 2	140
実施例 3	化合物 3	120
実施例 4	化合物 4	130
実施例 5	化合物 5	120
実施例 6	化合物 6	140
実施例 7	化合物 7	145
実施例 8	化合物 8	145
比較例 1	比較化合物 1	85
比較例 2	比較化合物 2	90

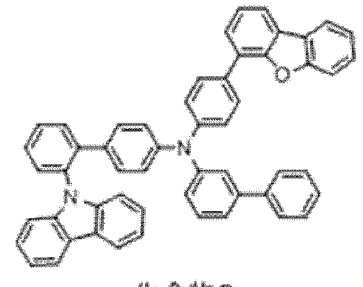
[化184]



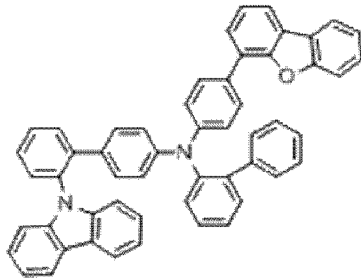
化合物 1



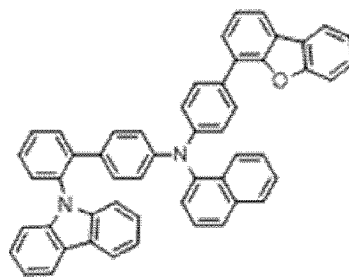
化合物 2



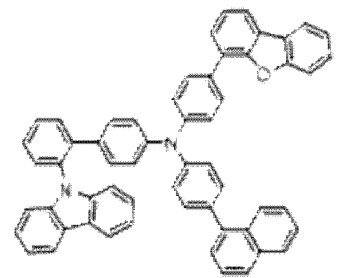
化合物 3



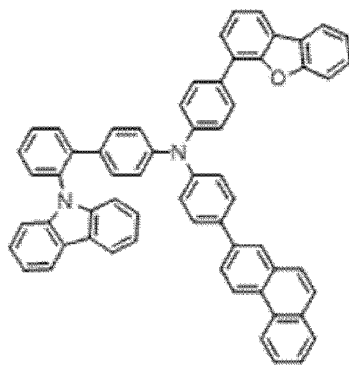
化合物 4



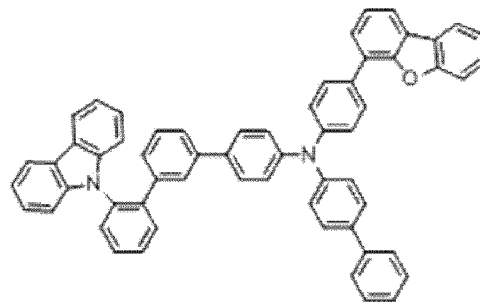
化合物 5



化合物 6

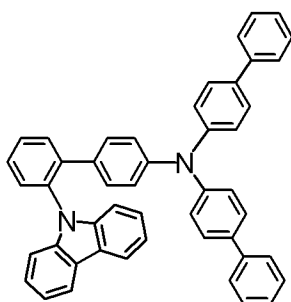


化合物 7

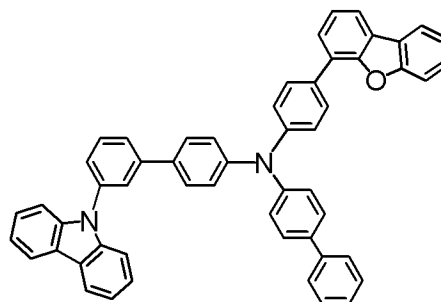


化合物 8

[化185]



比較化合物 1



比較化合物 2

[0320] 本発明の化合物 1 ~ 8 は、

構造的要件 A : 4-ジベンゾフラニル基、及び

構造的要件 B : N-カルバゾリル基が末端ベンゼン環の o-位に結合している
ビフェニル基

の双方を満たす。

比較化合物 1 は、構造的要件 A を満たさない。N-カルバゾリル基がビフェニル基の末端ベンゼン環の m-位に結合しているため、比較化合物 2 は構造的要件 B を満たさない。

表 1 から明らかなように、構造的要件 A と B の双方を満たす本発明の化合物 1 ~ 8 は、構造的要件 A と B の一方のみを満たす比較化合物 1 及び 2 に比べて、著しく改善された素子寿命を提供する。

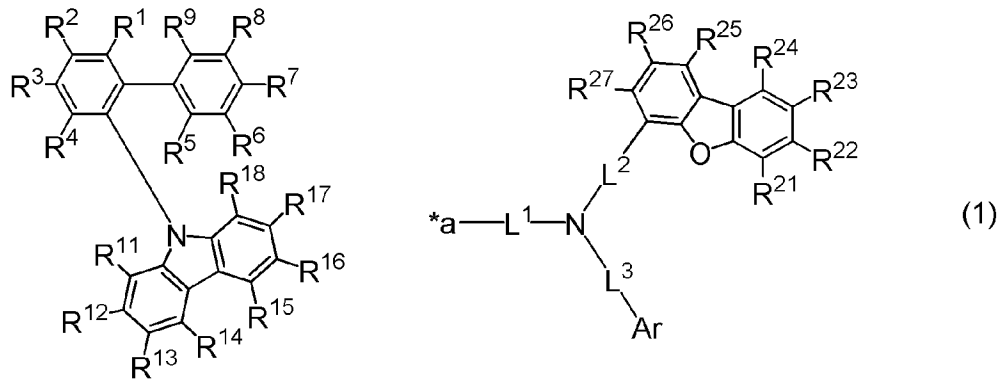
符号の説明

- [0321] 1、11 有機 EL 素子
- 2 基板
 - 3 陽極
 - 4 陰極
 - 5 発光層
 - 6 正孔輸送帯域 (正孔輸送層)
 - 6 a 第 1 正孔輸送層
 - 6 b 第 2 正孔輸送層
 - 7 電子輸送帯域 (電子輸送層)
 - 7 a 第 1 電子輸送層
 - 7 b 第 2 電子輸送層
 - 10、20 発光ユニット

請求の範囲

[請求項1] 下記式（1）で表される化合物。

[化1]



（式（1）において、

R^7 、 R^8 、及び R^9 の1つは、*aに結合する単結合であり；

$R^1 \sim R^6$ 、及び、*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～36のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30ハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルコキシ基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる、

ただし、 $R^1 \sim R^6$ 、及び、*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前

記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する；

$R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～36のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30ハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアルコキシ基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる、

ただし、 $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する；

$R^{21} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～36のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30ハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロアル

コキシ基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリアル基からなる群から選ばれる、

ただし、 $R^{21} \sim R^{27}$ から選ばれる隣接する2つは、それぞれ独立して、水素原子又は前記置換基を表すか、又は、互いに結合して環構造を形成する；

A_r は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリアル基であり；

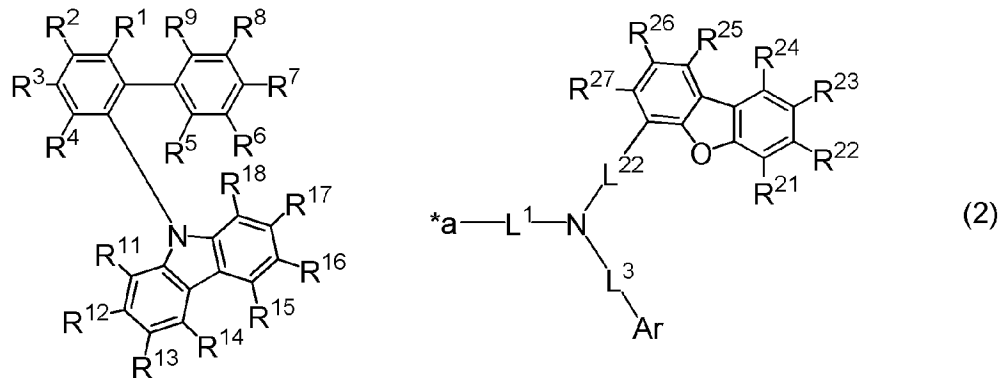
L^1 は単結合又は L^{11} であり、 L^{11} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基であり；

L^2 は単結合又は L^{22} であり、 L^{22} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基であり；

L^3 は単結合又は L^{33} であり、 L^{33} は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基である。）

[請求項2] 下記式（2）で表される請求項1に記載の化合物。

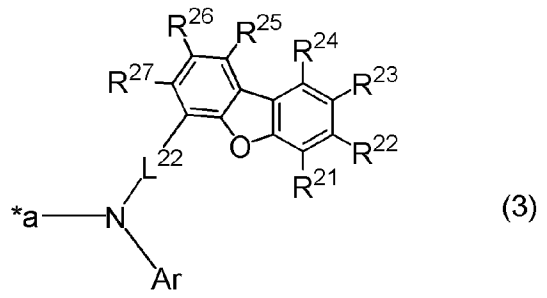
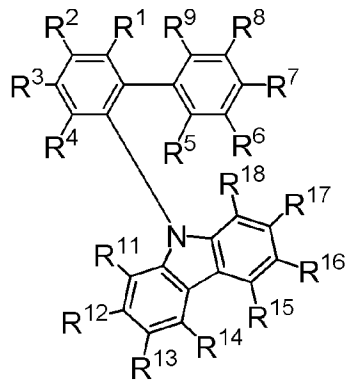
[化2]



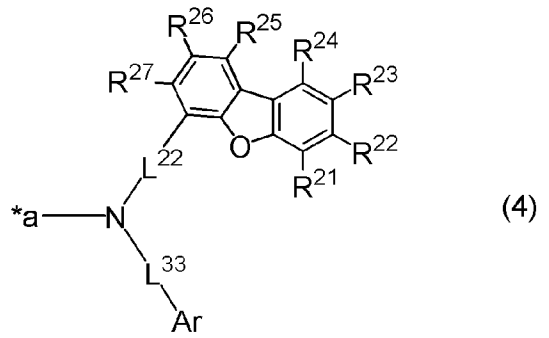
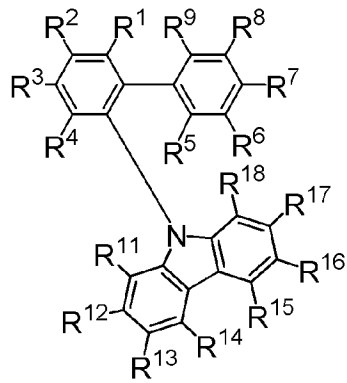
(式（2）において、 $R^1 \sim R^9$ 、 $R^{11} \sim R^{18}$ 、 $R^{21} \sim R^{27}$ 、 A_r 、 L^1 、 L^{22} 、及び L^3 は式（1）において定義したとおりである。）

[請求項3] 下記式（3）～（6）のいずれかにより表される請求項1又は2に記載の化合物。

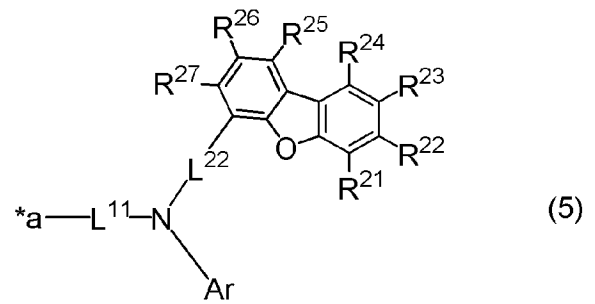
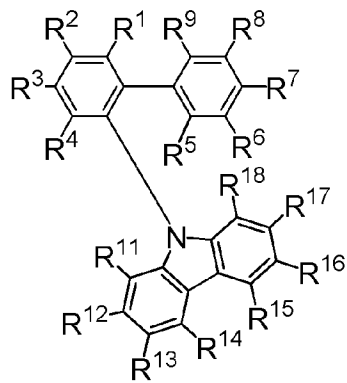
[化3]



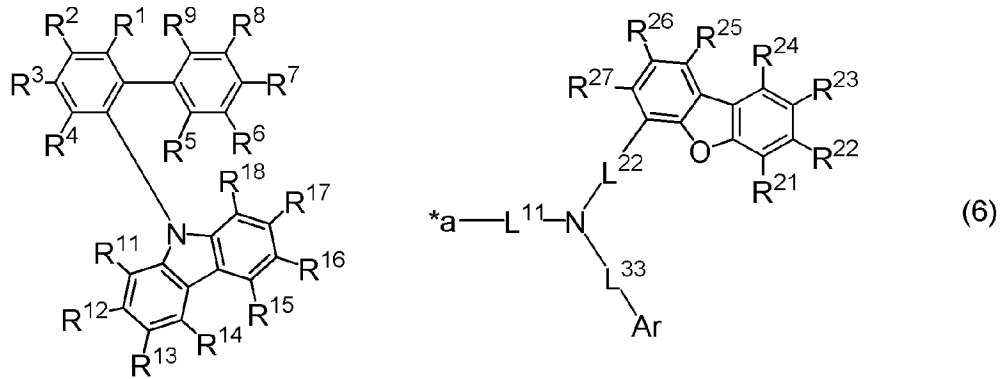
[化4]



[化5]



[化6]



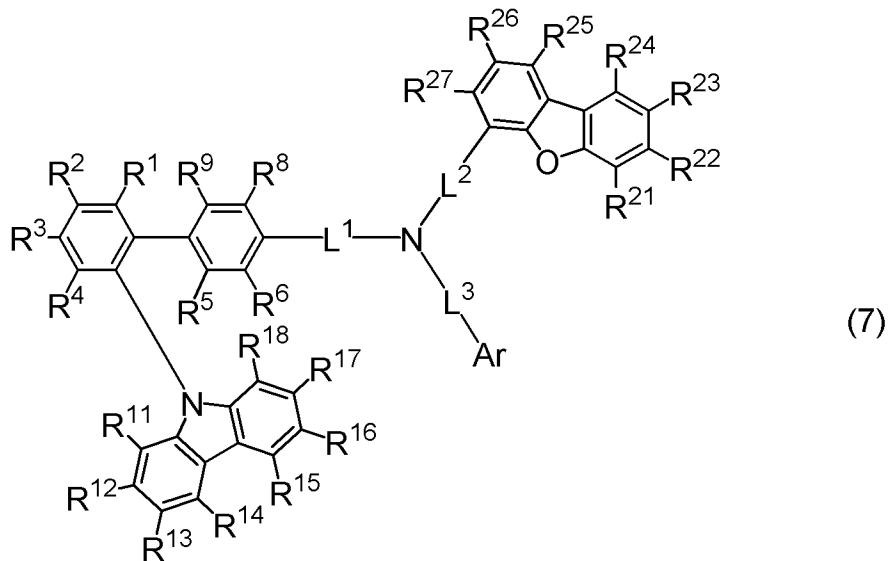
(式(3)～(6)において、 $R^1 \sim R^9$ 、 $R^{11} \sim R^{18}$ 、 $R^{21} \sim R^{27}$ 、 Ar 、 L^{11} 、 L^{22} 、及び L^{33} は式(1)において定義したとおりである。)

[請求項4] 前記式(3)又は(4)で表される請求項1～3のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項5] R^7 又は R^8 が* a に結合する単結合である請求項1～4のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項6] 下記式(7)で表される請求項1又は5に記載の化合物。

[化7]

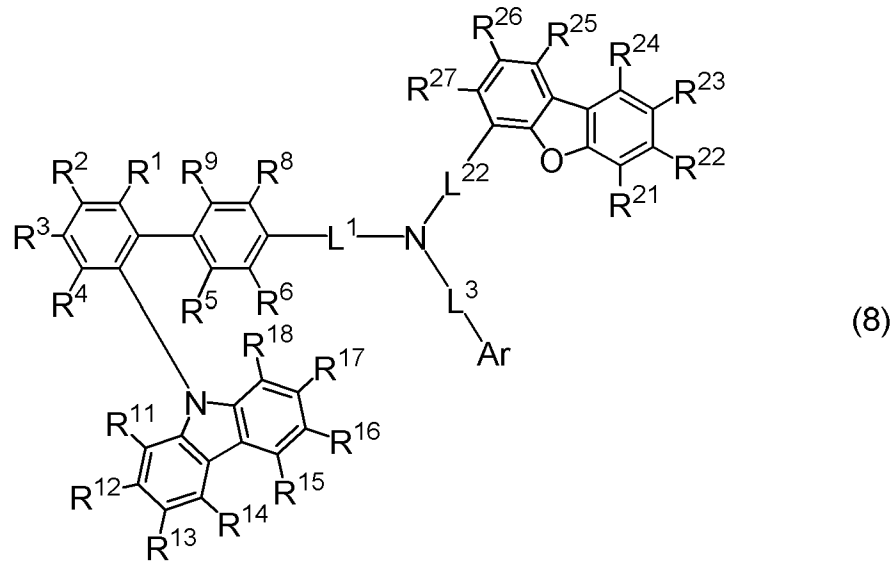


(式(7)において、 $R^1 \sim R^6$ 、 R^8 、 R^9 、 $R^{11} \sim R^{18}$ 、 $R^{21} \sim R^{27}$ 、 Ar 、 L^1 、 L^2 、及び L^3 は式(1)において定義したとおりで

ある。)

[請求項7] 下記式(8)で表される請求項1～6のいずれか1項に記載の化合物。

[化8]



(式(8)において、 $R^1 \sim R^6$ 、 R^8 、 R^9 、 $R^{11} \sim R^{18}$ 、 $R^{21} \sim R^{27}$ 、 Ar 、 L^1 、 L^{22} 、及び L^3 は式(1)において定義したとおりである。)

[請求項8] Ar が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、該環形成炭素数6～30のアリール基が、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ビフェニレニル基、ナフチル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、フルオレニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基、及び、トリフェニレニル基からなる群から選ばれる請求項1～7のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項9] Ar が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、該環形成炭素数6～30のアリール基がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、及びトリフェニレニル基からなる群から選ばれる請求項1～8のい

れか1項に記載の化合物。

[請求項10] $L^{11} \sim L^{33}$ が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基において、該環形成炭素数6～30のアリーレン基が、それぞれ独立して、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ビフェニレニレン基、ナフチレン基、アントリレン基、ベンゾアントリレン基、フェナントリレン基、ベンゾフェナントリレン基、フェナレニレン基、ピセニレン基、ペンタフェニレン基、プレニレン基、クリセニレン基、ベンゾクリセニレン基、フルオレニレン基、フルオランテニレン基、ペリレニレン基、及びトリフェニレニレン基からなる群から選ばれる請求項1～9のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項11] L^{11} が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基において、該環形成炭素数6～30のアリーレン基が、フェニレン基、ビフェニレン基、及びナフチレン基からなる群から選ばれる請求項1～10のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項12] L^{22} が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基において、該環形成炭素数6～30のアリーレン基が、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、及びフェナントリレン基からなる群から選ばれる請求項1～11のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項13] L^{33} が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリーレン基において、該環形成炭素数6～30のアリーレン基がフェニレン基である請求項1～12のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項14] L^1 が単結合である請求項1～13のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項15] $R^1 \sim R^6$ 、及び、*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形

成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる請求項1～14のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項16] $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる請求項1～15のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項17] $R^{21} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換基であり、該置換基は、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれる請求項1～16のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項18] $R^1 \sim R^6$ 、及び、*aに結合する単結合ではない $R^7 \sim R^9$ から選ばれる隣接する2つが環構造を形成しない請求項1～17のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項19] $R^{11} \sim R^{18}$ から選ばれる隣接する2つが環構造を形成しない請求

項 1 ~ 18 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項20] R²¹ ~ R²⁷から選ばれる隣接する 2 つが環構造を形成しない請求項 1 ~ 19 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項21] R¹ ~ R⁶、及び、* a に結合する単結合ではない R⁷ ~ R⁹がすべて水素原子である請求項 1 ~ 20 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項22] R¹¹ ~ R¹⁸のすべてが水素原子である請求項 1 ~ 21 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項23] R²¹ ~ R²⁷のすべてが水素原子である請求項 1 ~ 22 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項24] 請求項 1 ~ 23 のいずれか 1 項に記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項25] 陰極、陽極、及び該陰極と該陽極の間に有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機層が発光層を含み、該有機層の少なくとも 1 層が請求項 1 ~ 23 のいずれか 1 項に記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項26] 前記有機層が前記陽極と前記発光層の間に正孔輸送帯域を含み、該正孔輸送帯域が前記化合物を含む請求項 25 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項27] 前記正孔輸送帯域が陽極側の第 1 正孔輸送層と陰極側の第 2 正孔輸送層を含み、該第 1 正孔輸送層、該第 2 正孔輸送層、又は双方が前記化合物を含む請求項 26 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

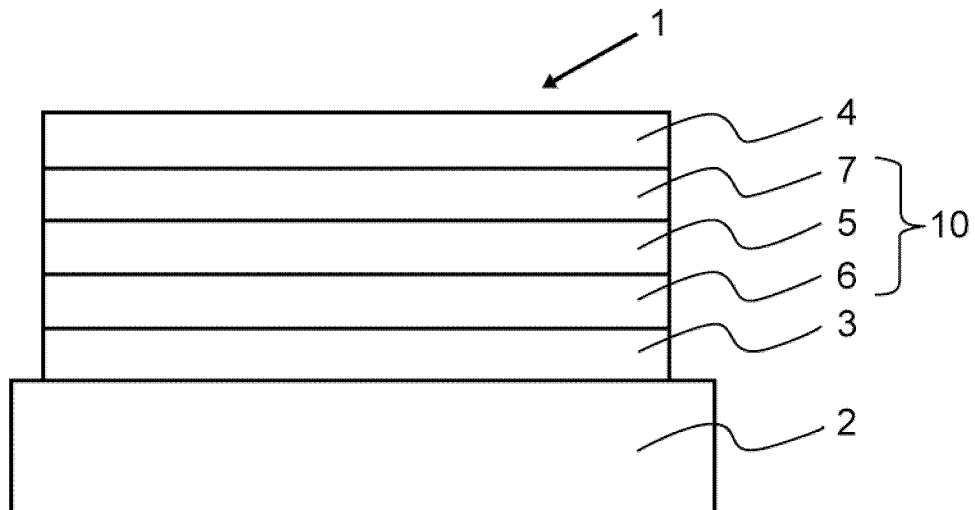
[請求項28] 前記第 1 正孔輸送層が前記化合物を含む請求項 27 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項29] 前記第 2 正孔輸送層が前記化合物を含む請求項 27 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

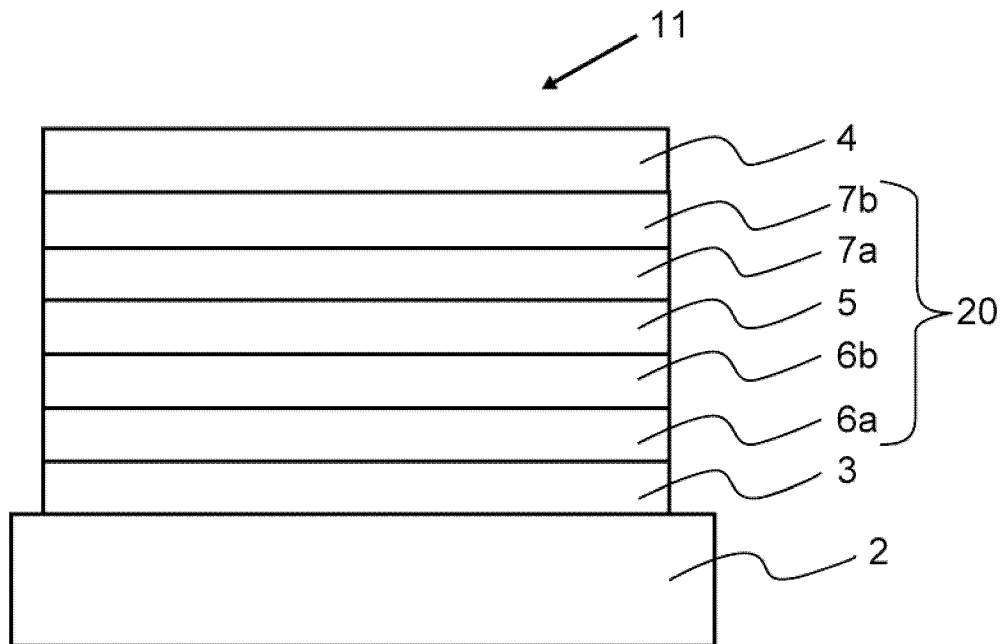
[請求項30] 前記第 2 正孔輸送層が前記発光層に隣接している請求項 27 ~ 29 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- [請求項31] 前記発光層が蛍光ドーパント材料を含む請求項25～30のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。
- [請求項32] 前記発光層が燐光ドーパント材料を含む請求項25～30のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。
- [請求項33] 請求項25～32のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネセンス素子を含む電子機器。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/012604

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C07D405/12 (2006.01) i, H01L51/50 (2006.01) 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)

Int.Cl. C07D405/12, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAplus/REGISTRY (STN), MARPAT (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	KR 10-2015-0116337 A (DUK SAN NEOLUX CO., LTD.) 15 October 2015, claims, paragraph [0032], compound P-51, examples (Family: none)	1-20, 22-33 21
Y A	JP 2016-058549 A (SAMSUNG DISPLAY CO., LTD.) 21 April 2016, claims, compound 22 & JP 2016-58550 A & US 2016/0079542 A1, claims, compound 22 & KR 10-2016-0030429 A	1-20, 22-33 21

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 07.06.2019	Date of mailing of the international search report 18.06.2019
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/012604

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	KR 10-2016-0054855 A (CHEONGJU UNIVERSITY INDUSTRY & ACADEMY COOPERATION FOUNDATION) 17 May 2016, claims, compounds 1-27 (Family: none)	1-20, 22-33 21
A	WO 2017/052261 A1 (LG CHEM, LTD.) 30 March 2017, claims, examples & US 2018/0090688 A1, claims, examples & CN 107531627 A & KR 10-2017-0036641 A & TW 201722915 A	1-33
P, A	WO 2018/164239 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 13 September 2018, claims, examples (Family: none)	1-33
P, A	WO 2018/164201 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 13 September 2018, claims, examples (Family: none)	1-33
P, A	WO 2018/155826 A1 (LG CHEM, LTD.) 30 August 2018, claims, pages 15, 17 & KR 10-2018-0098130 A & CN 109476597 A	1-33

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07D405/12(2006.01)i, H01L51/50(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)) Int.Cl. C07D405/12, H01L51/50											
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 <table style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:30%;">日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2019年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2019年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2019年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2019年	日本国実用新案登録公報	1996-2019年	日本国登録実用新案公報	1994-2019年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2019年										
日本国実用新案登録公報	1996-2019年										
日本国登録実用新案公報	1994-2019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/REGISTRY (STN), MARPAT (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 A	KR 10-2015-0116337 A (DUK SAN NEOLUX CO LTD) 2015.10.15, 特許請求の範囲, 段落[0032], 化合物 P-51, 実施例 (ファミリーなし)	1-20, 22-33 21									
Y A	JP 2016-058549 A (三星ディスプレイ株式会社) 2016.04.21, 特許請求の範囲, 化合物 22 & JP 2016-58550 A & US 2016/0079542 A1, claims, compound 22 & KR 10-2016-0030429 A	1-20, 22-33 21									
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> 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		の日の後に公表された文献									
「A」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		「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であっ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									
「E」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		「X」特に関連のある文献であって、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									
「L」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)		「Y」特に関連のある文献であって、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									
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献									
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願											
国際調査を完了した日 07.06.2019		国際調査報告の発送日 18.06.2019									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 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) 吉海 周	4 P 6287								
		電話番号 03-3581-1101 内線	3492								

C (続き) . 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 A	KR 10-2016-0054855 A (CHEONGJU UNIVERSITY INDUSTRY & ACADEMY COOPERATION FOUNDATION) 2016. 05. 17, 特許請求の範囲, 化合物 1-27 (ファミリーなし)	1-20, 22-33 21
A	WO 2017/052261 A1 (LG CHEM, LTD.) 2017. 03. 30, 請求の範囲, 実施例 & US 2018/0090688 A1, claims, EXAMPLES & CN 107531627 A & KR 10-2017-0036641 A & TW 201722915 A	1-33
P, A	WO 2018/164239 A1 (出光興産株式会社) 2018. 09. 13, 請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-33
P, A	WO 2018/164201 A1 (出光興産株式会社) 2018. 09. 13, 請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-33
P, A	WO 2018/155826 A1 (LG CHEM, LTD.) 2018. 08. 30, 請求の範囲, 第 15, 17 頁 & KR 10-2018-0098130 A & CN 109476597 A	1-33