

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02014/192950

発行日 平成29年2月23日 (2017. 2. 23)

(43) 国際公開日 平成26年12月4日 (2014. 12. 4)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
C07D 209/80 (2006.01)	C07D 209/80 CSP	3K107
C07D 403/04 (2006.01)	C07D 403/04	4C063
C07D 403/10 (2006.01)	C07D 403/10	4C204
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	
C09K 11/06 (2006.01)	H05B 33/22 B	

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 97 頁) 最終頁に続く

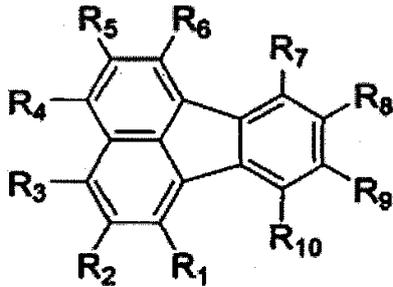
出願番号 特願2015-519982 (P2015-519982)	(71) 出願人 000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(21) 国際出願番号 PCT/JP2014/064545	
(22) 国際出願日 平成26年5月30日 (2014. 5. 30)	
(31) 優先権主張番号 特願2013-116309 (P2013-116309)	(74) 代理人 100078732 弁理士 大谷 保
(32) 優先日 平成25年5月31日 (2013. 5. 31)	(74) 代理人 100131635 弁理士 有永 俊
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(72) 発明者 河村 昌宏 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 水木 由美子 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 伊藤 裕勝 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 羽山 友治 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

最終頁に続く

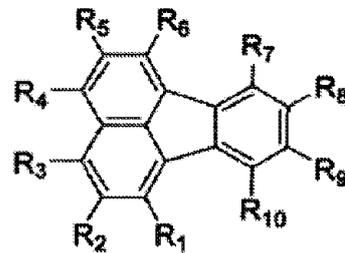
(54) 【発明の名称】 縮合フルオランテン化合物、これを含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、並びにこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

(57) 【要約】

以下の式(1)で示されるフルオランテン化合物は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として有用な新規材料である。式(1)において、基R<sub>1</sub>~R<sub>10</sub>は明細書中に定義される通りである。



(1)



(1)

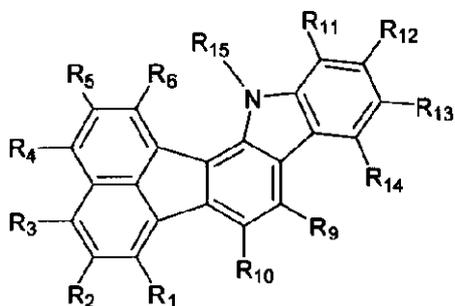


示す。R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub>、R<sub>9</sub> ~ R<sub>15</sub>は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub>およびR<sub>9</sub> ~ R<sub>15</sub>から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

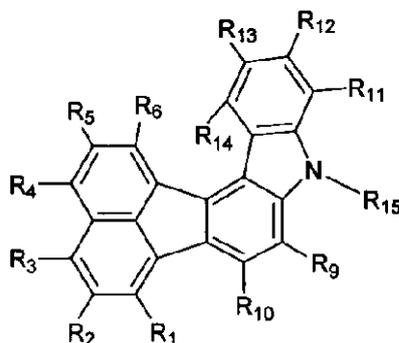
【請求項3】

下記一般式(5)又は(6)で表される、請求項2に記載の縮合フルオランテン化合物。

【化4】



(5)



(6)

10

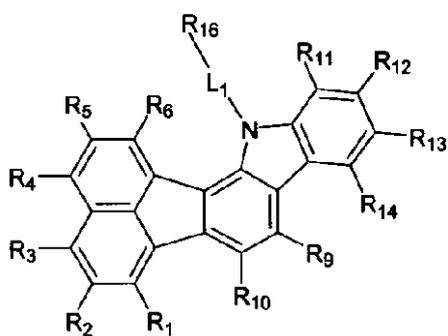
[一般式(5)、(6)において、R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub>、R<sub>9</sub> ~ R<sub>15</sub>は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub>およびR<sub>9</sub> ~ R<sub>15</sub>から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

20

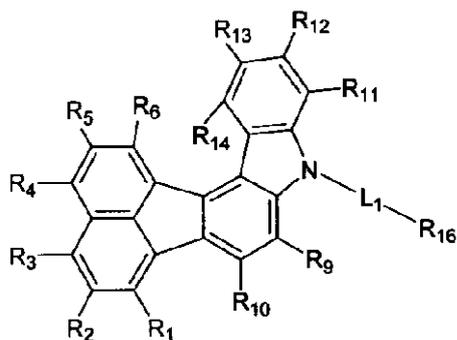
【請求項4】

下記一般式(7)又は(8)で表される、請求項3に記載の縮合フルオランテン化合物。

【化5】



(7)



(8)

30

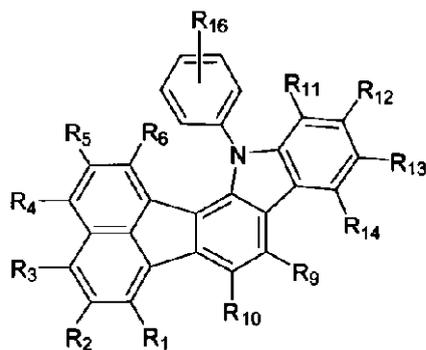
[一般式(7)、(8)において、L<sub>1</sub>は、直接結合、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数6 ~ 30のアリーレン基を示す。R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub>、R<sub>9</sub> ~ R<sub>14</sub>は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub>およびR<sub>9</sub> ~ R<sub>14</sub>から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。R<sub>16</sub>は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6 ~ 30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5 ~ 30の含窒素複素環基を示す。]

40

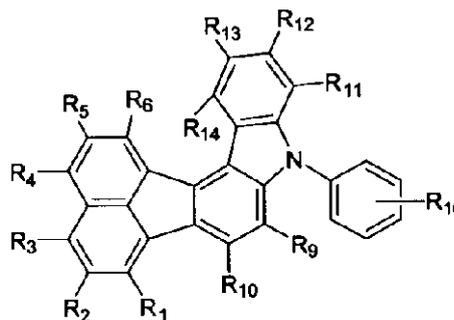
【請求項5】

下記一般式(9)又は(10)で表される、請求項4に記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【化 6】



(9)



(10)

10

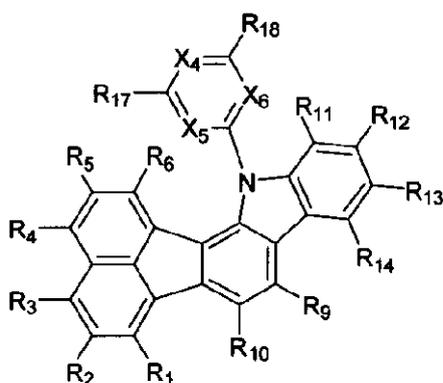
[一般式(9)、(10)において、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{16}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示す。]

## 【請求項 6】

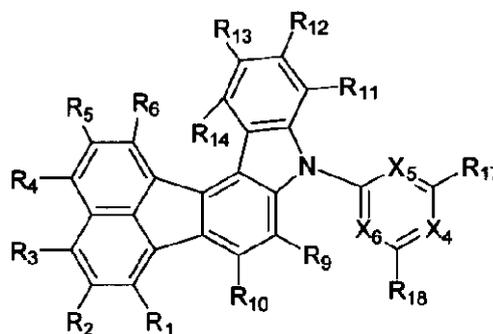
下記一般式(11)又は(12)で表される、請求項4に記載の縮合フルオランテン化合物。

20

## 【化 7】



(11)



(12)

30

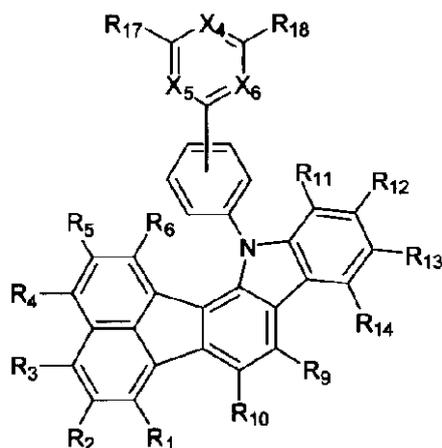
[一般式(11)、(12)において、 $X_4 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

40

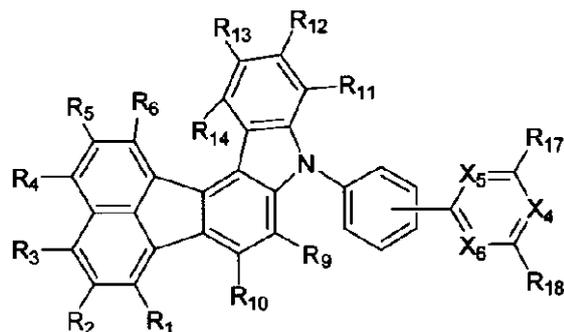
## 【請求項 7】

下記一般式(13)又は(14)で表される、請求項5に記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【化 8】



(13)



(14)

10

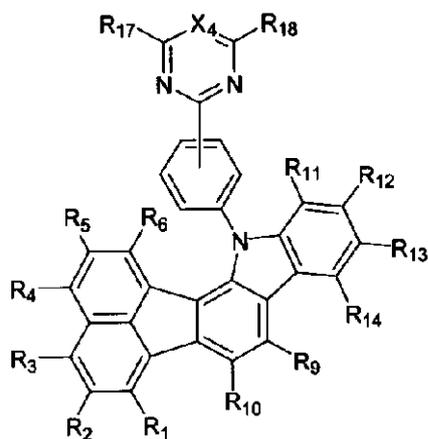
20

[一般式(13)、(14)において、 $X_4 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

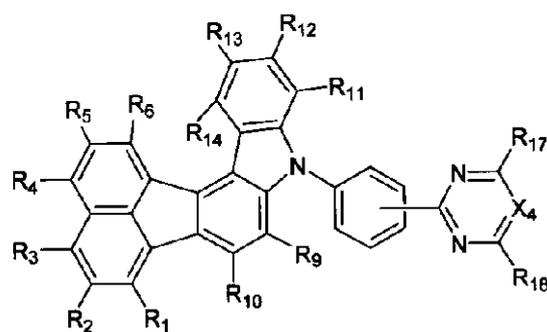
## 【請求項 8】

下記一般式(15)又は(16)で表される、請求項7に記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【化 9】



(15)



(16)

30

40

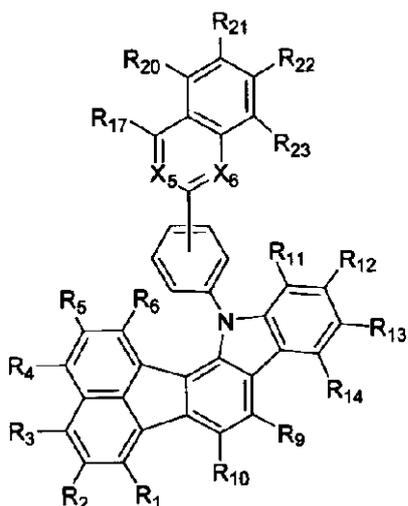
[一般式(15)、(16)において、 $X_4$ は、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

## 【請求項 9】

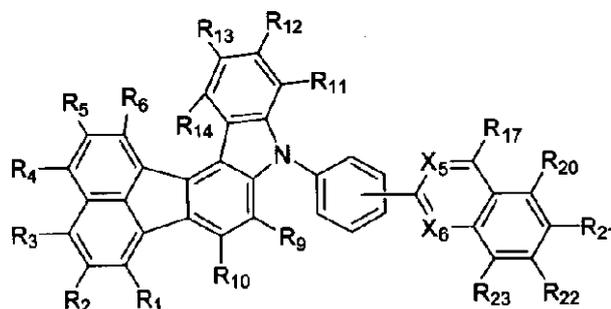
下記一般式(17)又は(18)で表される、請求項7に記載の縮合フルオランテン化合物。

50

## 【化 1 0】



(17)



(18)

10

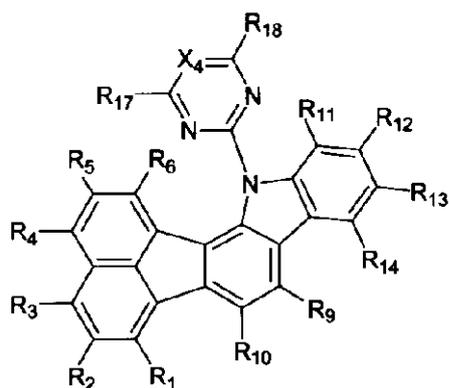
20

[一般式(17)、(18)において、 $X_5 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、 $R_{20} \sim R_{23}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、および $R_{20} \sim R_{23}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17}$ 及び $R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17}$ と $R_{19}$ が、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

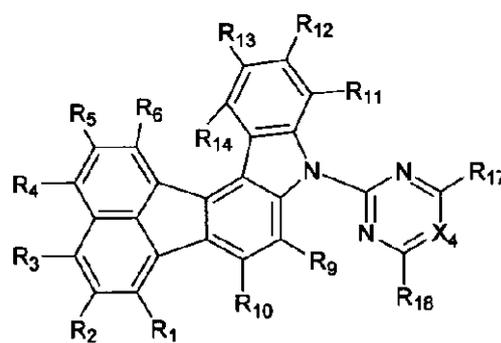
## 【請求項 1 0】

下記一般式(19)又は(20)で表される、請求項6に記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【化 1 1】



(19)



(20)

30

40

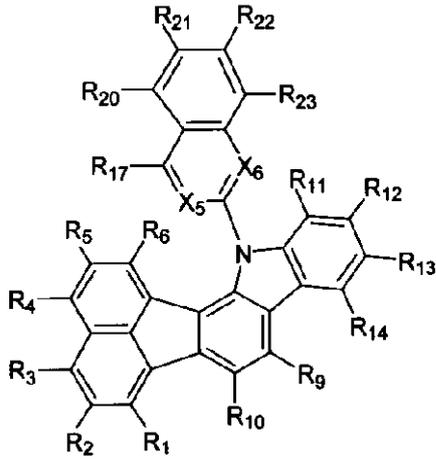
[一般式(19)、(20)において、 $X_4$ は、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

## 【請求項 1 1】

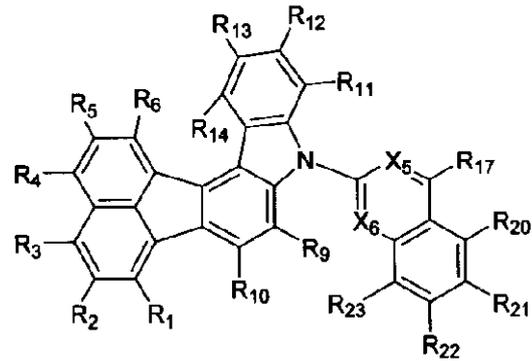
下記一般式(21)又は(22)で表される、請求項6に記載の縮合フルオランテン化合物。

50

## 【化 1 2】



(21)



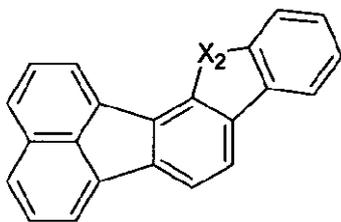
(22)

[ 一般式 ( 2 1 )、( 2 2 ) において、 $X_5 \sim X_6$  は、それぞれ独立に、 $C ( R_{19} )$  又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、 $R_{20} \sim R_{23}$  は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、および  $R_{20} \sim R_{23}$  から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17}$  及び  $R_{19}$  は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基を示し、 $R_{17}$  と  $R_{19}$  が、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

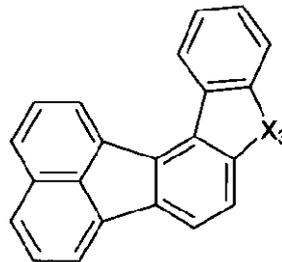
## 【請求項 1 2】

下記一般式 ( 2 3 ) 又は ( 2 4 ) で表される、請求項 2 に記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【化 1 3】



(23)



(24)

[ 一般式 ( 2 3 )、( 2 4 ) において、 $X_2$ 、 $X_3$  は、 $N ( R_{15} )$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。 $R_{15}$  は、水素原子または置換基を示す。]

## 【請求項 1 3】

$R_1 \sim R_{15}$  で表される前記置換基が、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 50 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 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 51 のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 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 ~ 60 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 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 ~ 60 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のハロアルキル基

、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 ~ 50 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 ~ 60 のアリール基から選ばれる置換基を有するスルホニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 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 ~ 60 のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基、カルボキシル基、ビニル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、及びオキセタニル基からなる群から選ばれる基である、請求項 1 ~ 12 のいずれかに記載の縮合フルオランテン化合物。

10

## 【請求項 14】

R<sub>15</sub> が、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 60 のアリール基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリール基である、請求項 1 ~ 3 及び 12 ~ 13 のいずれかに記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【請求項 15】

R<sub>15</sub> が、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、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、フルオレニル基、9,9'-スピロピフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダセニル基、as-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、及びジベンゾアントリル基からなる群より選ばれるアリール基、または、

20

ピロリル基、フリル基、チエニル基、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、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフエニル基、イソベンゾチオフエニル基、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、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフエニル基、カルバゾリル基、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、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサントニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフエニル基、ベンゾフラノベンゾチオフエニル基、ベンゾチエノベンゾチオフエニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフエニル基からなる群より選ばれるヘテロアリール基である、請求項 14 に記載の縮合フルオランテン化合物。

30

40

## 【請求項 16】

R<sub>16</sub> が、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基または環形成原子数 5 ~ 30 のヘテロアリール基を置換基として有する、環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基である、請求項 4 又は 5 に記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【請求項 17】

R<sub>17</sub> 及び R<sub>18</sub> が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基である、請求項 6 ~ 11 のいずれかに記載の縮合フルオランテン化合物。

## 【請求項 18】

前記環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジ

50

ニル基、ピラジニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、キナゾリル基、フェナントロリニル基、ジベンゾキノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、カルバゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、イミダゾピリジニル基、インドリジニル基、ベンズカルバゾリル基、又はジベンズカルバゾリル基である、請求項 4 ~ 1 1 のいずれかに記載の縮合フルオランテン化合物。

【請求項 1 9】

請求項 1 ~ 1 8 のいずれかに記載の縮合フルオランテン化合物を含有する、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 2 0】

陰極と陽極との間に、少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも 1 層が、請求項 1 ~ 1 8 のいずれかに記載の縮合フルオランテン化合物を含有する、有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 2 1】

前記発光層が前記縮合フルオランテン化合物を含有する、請求項 2 0 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 2】

前記陽極と前記発光層との間に、さらに陽極側有機薄膜層を有し、該陽極側有機薄膜層が前記縮合フルオランテン化合物を含有する、請求項 2 0 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項 2 3】

前記陰極と前記発光層との間に、さらに陰極側有機薄膜層を有し、該陰極側有機薄膜層が前記縮合フルオランテン化合物を含有する、請求項 2 0 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 4】

前記発光層が燐光発光材料を含有する、請求項 2 0 ~ 2 3 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 5】

前記発光層が蛍光発光材料を含有する、請求項 2 0 ~ 2 3 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

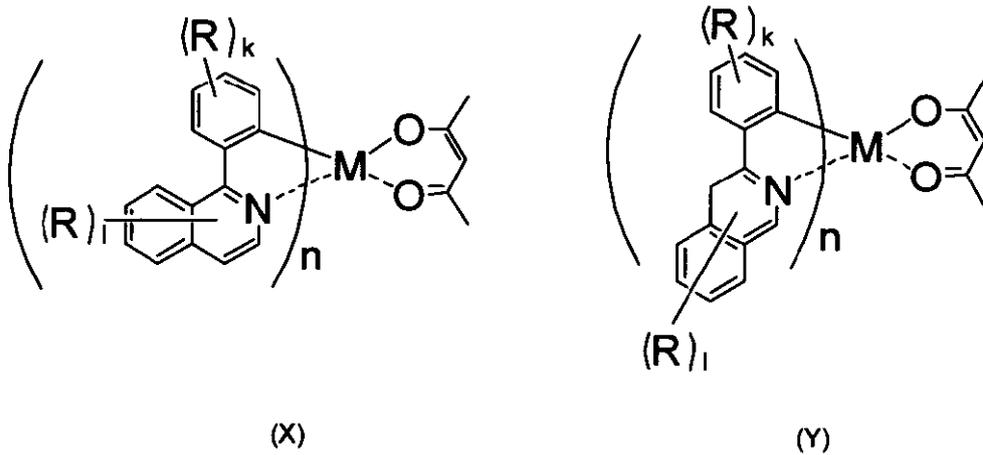
【請求項 2 6】

前記燐光発光材料が、イリジウム ( I r )、オスミウム ( O s )、白金 ( P t ) から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である、請求項 2 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 7】

前記燐光発光材料が、下記一般式 ( X ) 又は ( Y ) で表される錯体である、請求項 2 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 1 4】



10

[ 一般式 ( X )、( Y ) において、R は、それぞれ独立に、水素原子または置換基であり、k は、1 ~ 4 の整数であり、l は、1 ~ 6 の整数である。n は、2 ~ 4 の整数である。M は、I r、O s、または P t である。]

## 【請求項 2 8】

請求項 2 0 ~ 2 7 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備える、電子機器。

20

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0 0 0 1】

本発明は縮合フルオランテン化合物、これを含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、並びにこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器に関する。

## 【背景技術】

## 【0 0 0 2】

一般に有機エレクトロルミネッセンス ( E L ) 素子は陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟まれた 1 層以上の有機薄膜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。

30

## 【0 0 0 3】

また、有機 E L 素子は、発光層に種々の発光材料を用いることにより、多様な発光色を得ることが可能であることから、ディスプレイなどへの実用化研究が盛んである。特に赤色、緑色、青色の三原色の発光材料の研究が最も活発であり、特性向上を目指して鋭意研究がなされている。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0 0 0 4】

【特許文献 1】国際公開第 2 0 1 1 / 0 8 1 4 2 9 号

40

【特許文献 2】韓国公開公報 1 0 - 2 0 1 2 - 0 0 2 0 8 1 6

【特許文献 3】国際公開第 2 0 1 1 / 0 3 7 4 2 9 号

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0 0 0 5】

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、有機 E L 素子材料として有用な新規材料を提供することを目的とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0 0 0 6】

本発明者らが鋭意検討した結果、インドロ [ 2 , 3 - k ] フルオランテン骨格や、イン

50

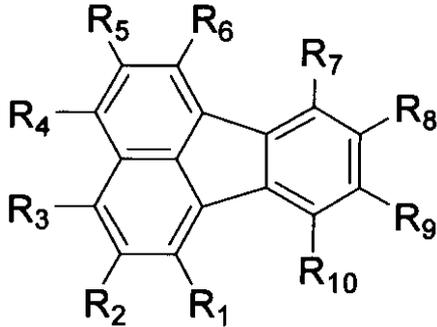
ドロ [ 2 , 3 - b ] フルオランテン骨格を有する縮合フルオランテン化合物とは縮合位置や向きが異なる縮合フルオランテン化合物が、有機 E L 素子用材料として有用であることを見出した。

【 0 0 0 7 】

すなわち、本発明の一実施態様によれば、以下の [ 1 ] ~ [ 4 ] が提供される。

[ 1 ] 少なくとも 1 つの下記一般式 ( 1 ) で表される構造を有する、縮合フルオランテン化合物。

【 化 1 】



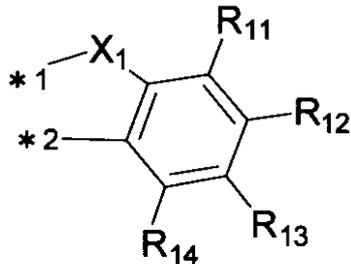
(1)

10

[ 一般式 ( 1 ) において、 $R_1 \sim R_{10}$  は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_{10}$  から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。ただし、隣接する置換基である  $R_7$  と  $R_8$  および  $R_9$  と  $R_{10}$  の少なくとも一方は、互いに結合して、下記一般式 ( 2 ) で表される環構造を形成する。

20

【 化 2 】



(2)

30

( 一般式 ( 2 ) において、 $X_1$  は、 $N ( R_{15} )$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。 $R_{11} \sim R_{15}$  は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_{11} \sim R_{15}$  から選ばれる隣接する 2 つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。\* 1、\* 2 は、 $R_7$  と  $R_8$  もしくは  $R_9$  と  $R_{10}$  が結合している炭素原子との結合位置を示す。 ) ]

【 0 0 0 8 】

[ 2 ] 上記 [ 1 ] に記載の縮合フルオランテン化合物を含有する、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[ 3 ] 陰極と陽極との間に、少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも 1 層が、上記 [ 1 ] に記載の縮合フルオランテン化合物を含有する、有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

[ 4 ] 上記 [ 3 ] に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備える、電子機器。

【 発明の効果 】

【 0 0 0 9 】

本発明は、有機 E L 素子材料として有用な新規材料及びこれを用いてなる有機 E L 素子を提供し得る。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 0 】

【 図 1 】 本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子 ( 以下、「有機 E

50

「素子」ともいう)の一例の概略構成を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0011】

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

また、「置換もしくは無置換の原子数  $X X \sim Y Y$  の  $Z Z$  基」という表現における「原子数  $X X \sim Y Y$ 」は、 $Z Z$  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。

なお、「 $Y Y$ 」は「 $X X$ 」よりも大きく、「 $X X$ 」と「 $Y Y$ 」はそれぞれ1以上の整数を意味する。

10

また、隣接する置換基同士で環を形成する場合は、一方の置換基の炭素数が  $X X \sim Y Y$  の範囲内で最小となる箇所当該環を切り離して、他方の置換基の炭素数も  $X X \sim Y Y$  の範囲内となる構造が含まれる。

【0012】

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数には含まない。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、ピリジニル基は環形成炭素数5であり、フラニル基は環形成炭素数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の数に含めない。

20

【0013】

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、ピリジン環の環形成原子数は6であり、キナゾリン環の環形成原子数は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については、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。

30

【0014】

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*)を含む。

40

また、本明細書中において、「ヘテロアリアル基」、「ヘテロアリーレン基」、「複素環基」、「芳香族複素環」、及び「縮合芳香族複素環基」は、環形成原子として、少なくとも1つのヘテロ原子を含む基であり、該ヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子から選ばれる1種以上であることが好ましい。

さらに、本明細書において、「窒素含有複素環基」は、環形成原子として、少なくとも1つの窒素原子を含む基である。

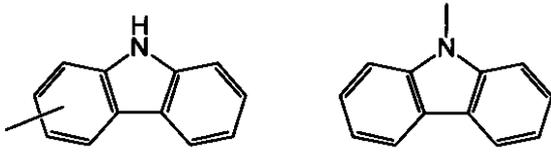
【0015】

本明細書中において、「置換もしくは無置換のカルバゾリル基」は、下記のカルバゾリ

50

ル基、

【化3】



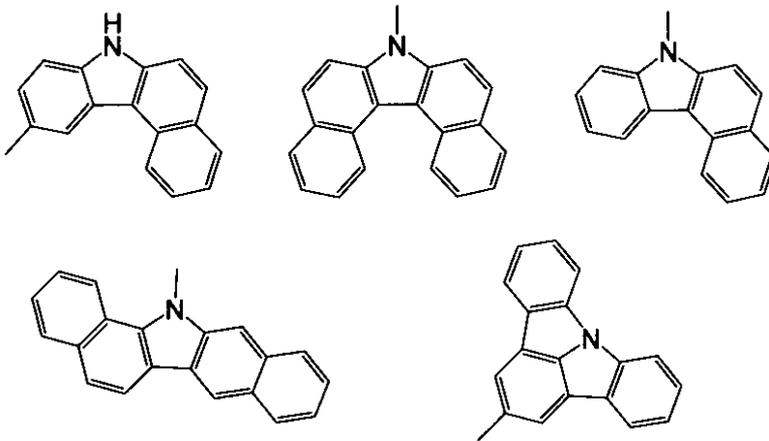
及び上記の基に対して、さらに任意の置換基を有する置換カルバゾリル基を表す。

なお、当該置換カルバゾリル基は、任意の置換基同士が互いに結合して縮環してもよく、窒素原子、酸素原子、ケイ素原子及びセレン原子等のヘテロ原子を含んでもよく、また、結合位置は1位～9位のいずれであってもよい。このような置換カルバゾリル基の具体例として、例えば、下記に示す基が挙げられる。

10

【0016】

【化4】



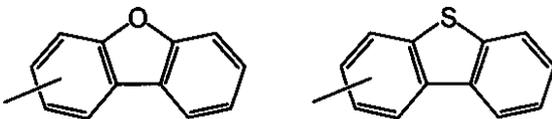
20

【0017】

本明細書において、「置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基」及び「置換もしくは無置換のジベンゾチオフエニル基」は、下記のジベンゾフラニル基及びジベンゾチオフエニル基、

30

【化5】



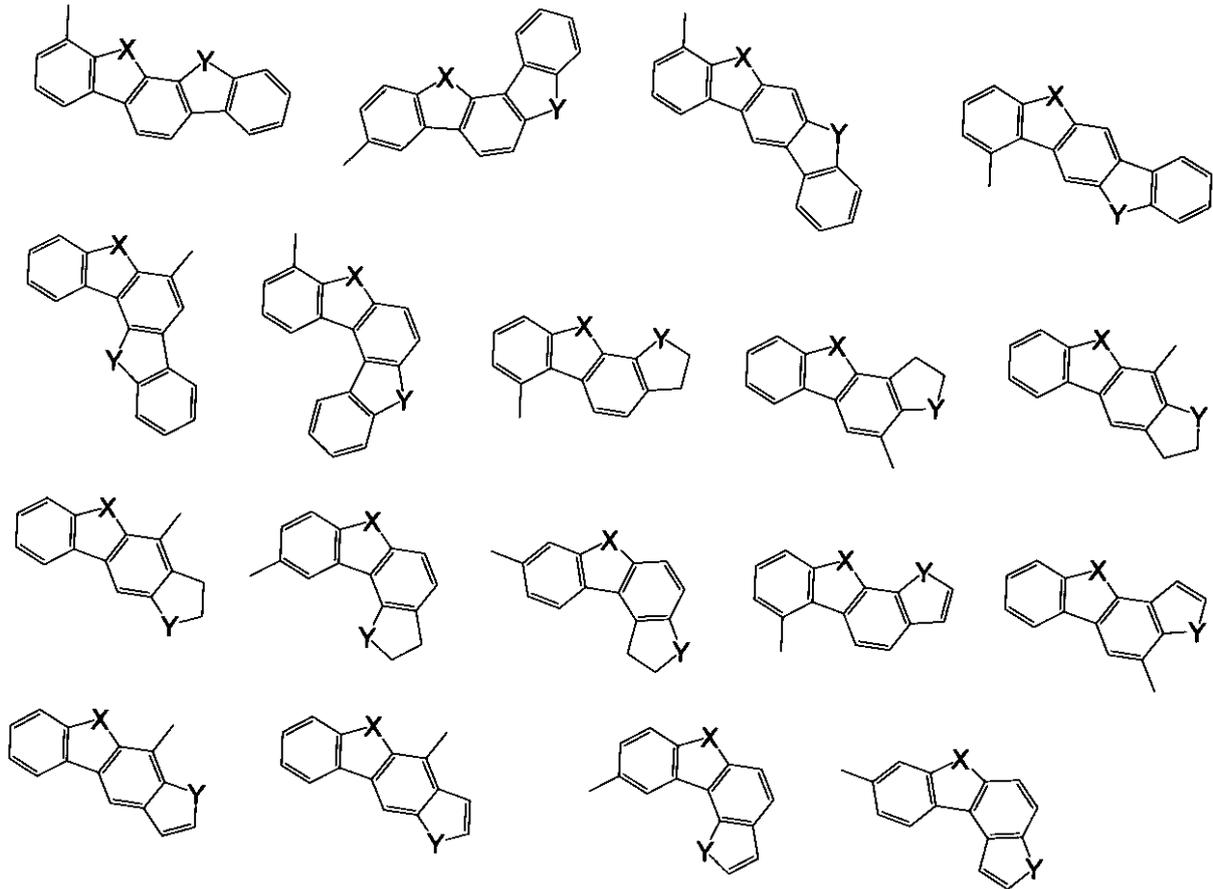
及び上記の基に対して、さらに任意の置換基を有する置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフエニル基を表す。

なお、当該置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフエニル基は、任意の置換基同士が互いに結合して縮環してもよく、窒素原子、酸素原子、ケイ素原子及びセレン原子等のヘテロ原子を含んでもよく、また、結合位置は1位～8位のいずれであってもよい。このような置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフエニル基の具体例として、例えば、下記に示す基が挙げられる。

40

【0018】

## 【化6】



10

20

[ 上記式中、Xは酸素原子又は硫黄原子を表し、Yは酸素原子、硫黄原子、NH、NR<sup>a</sup> (R<sup>a</sup>はアルキル基又はアリアル基である。)、CH<sub>2</sub>、又は、CR<sup>b</sup><sub>2</sub> (R<sup>b</sup>はアルキル基又はアリアル基である。)を表す。]

## 【0019】

更に、「置換基」又は「置換もしくは無置換」との記載における置換基としては、炭素数1~50(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3~50(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6~50(好ましくは6~25、より好ましくは6~18)のアリアル基；環形成炭素数6~50(好ましくは6~25、より好ましくは6~18)のアリアル基を有する炭素数7~51(好ましくは7~30、より好ましくは7~20)のアラルキル基；アミノ基；炭素数1~50(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6~50(好ましくは6~25、より好ましくは6~18)のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基；炭素数1~50(好ましくは1~18、より好ましくは1~8)のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭素数6~50(好ましくは6~25、より好ましくは6~18)のアリアル基を有するアリアルオキシ基；炭素数1~50(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6~50(好ましくは6~25、より好ましくは6~18)のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基；環形成原子数5~60(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；炭素数1~50(好ましくは1~18、より好ましくは1~8)のハロアルキル基；ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)；シアノ基；ニトロ基；炭素数1~50(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6~50(好ましくは6~25、より好ましくは6~18)のアリアル基から選ばれる置換基を有するスルホニル基；炭素数1~50(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6~50(好ましくは6~25、よ

30

40

50

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ジ置換ホスホリル基；、アルキルスルホニルオキシ基；アリールスルホニルオキシ基；アルキルカルボニルオキシ基；アリールカルボニルオキシ基；ホウ素含有基；亜鉛含有基；スズ含有基；ケイ素含有基；マグネシウム含有基；リチウム含有基；ヒドロキシ基；アルキル置換又はアリール置換カルボニル基；カルボキシル基；ビニル基；(メタ)アクリロイル基；エポキシ基；並びにオキセタニル基からなる群より選ばれる基であることが好ましい。

これらの置換基は、さらに上述の任意の置換基により置換されていてもよい。また、これらの置換基は、複数の置換基が互いに結合して環を形成していてもよい。

さらに、「置換もしくは無置換」との記載における「無置換」とは、これらの置換基で置換されておらず、水素原子が結合していることを意味する。

10

#### 【0020】

上記置換基の中でも、より好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～50(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3～50(好ましくは3～10、より好ましくは3～8、更に好ましくは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6～50(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1～50(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6～50(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置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50(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、ハロゲン原子、シアノ基である。

20

なお、後述の一般式(1)～(24)中の $R_1 \sim R_{15}$ および $R_{20} \sim R_{23}$ として選択され得る置換基については、後述の(A)群、(B)群、及び(C)群から選択される基がより好ましい。

#### 【0021】

本明細書中、好ましいとする規定は任意に選択することができ、また、好ましいとする規定の組み合わせはより好ましいと言える。

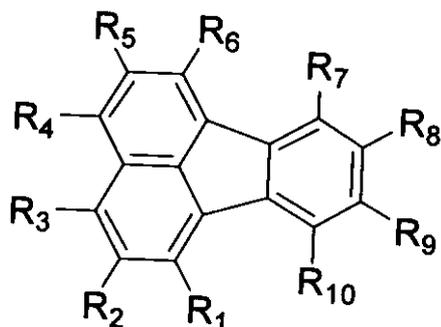
#### 【0022】

[縮合フルオランテン化合物]

本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物は、少なくとも1つの下記一般式(1)

30

【化7】

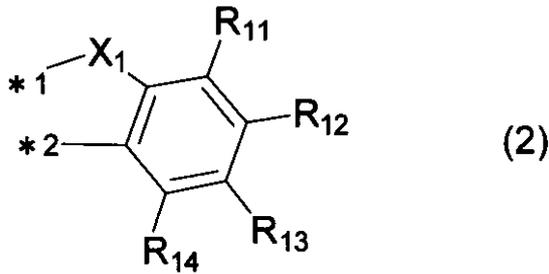


(1)

40

[一般式(1)において、 $R_1 \sim R_{10}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_{10}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。ただし、 $R_7$ と $R_8$ および $R_9$ と $R_{10}$ の少なくとも一方は、互いに結合して、下記一般式(2)で表される環構造を形成する。

## 【化 8】



(一般式(2)において、 $X_1$ は、 $N(R_{15})$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。 $R_{11} \sim R_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_{11} \sim R_{15}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $*1$ 、 $*2$ は、 $R_7$ と $R_8$ もしくは $R_9$ と $R_{10}$ が結合している炭素原子との結合位置を示す。) ]

10

## 【0023】

前記一般式(1)の説明において、「 $R_1 \sim R_{10}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_1$ と $R_2$ 、 $R_2$ と $R_3$ 、 $R_3$ と $R_4$ 、 $R_4$ と $R_5$ 、 $R_5$ と $R_6$ 、 $R_6$ と $R_7$ 、 $R_7$ と $R_8$ 、 $R_8$ と $R_9$ 、 $R_9$ と $R_{10}$ 、および $R_{10}$ と $R_1$ が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよいが、当該環構造を複数形成してもよい。

## 【0024】

20

また、前記一般式(2)において、 $*1$ 、 $*2$ は、 $R_7$ と $R_8$ もしくは $R_9$ と $R_{10}$ が結合している炭素原子との結合位置を示す。例えば、 $*1$ が $R_7$ が結合している炭素原子と結合する場合、 $*2$ は $R_8$ が結合している炭素原子と結合する。また、 $*1$ が $R_8$ が結合している炭素原子と結合し、 $*2$ が $R_7$ が結合している炭素原子と結合してもよい。

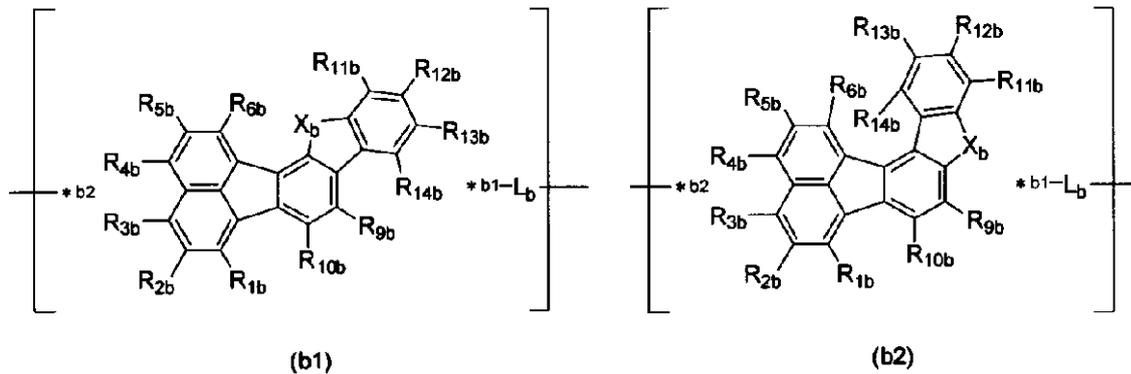
## 【0025】

また、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物としては、下記一般式(b1)又は(b2)で表される繰り返し単位を有する重合体や、下記一般式(d1)又は(d2)で表される繰り返し単位を有する重合体であってもよい。

## 【0026】

## 【化 9】

30



40

## 【0027】

[一般式(b1)、(b2)において、 $X_b$ は、 $N(R_{15b})$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。

$R_{1b} \sim R_{6b}$ 、 $R_{9b} \sim R_{15b}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基、又は $*b1$ 、 $*b2$ との結合手を示し、 $R_{1b} \sim R_{6b}$ 、 $R_{9b} \sim R_{15b}$ のうち隣接する2つは、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。

$L_b$ は、単結合または、2価の連結基を示す。]

$L_b$ で表される2価の連結基の具体例としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数3~60のヘテロアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキレン基等が挙げられる。

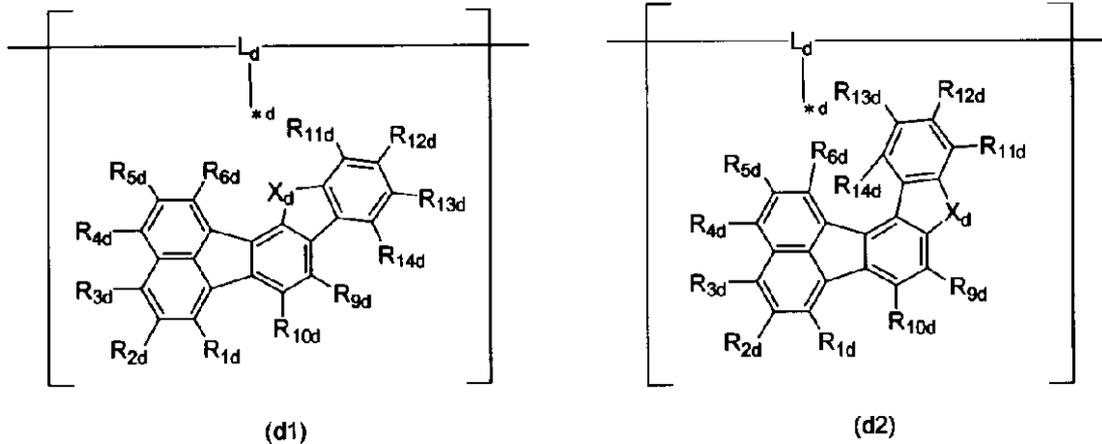
50

## 【0028】

なお、「 $R_{1b} \sim R_{6b}$ 、 $R_{9b} \sim R_{15b}$ のうち隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_{1b}$ と $R_{2b}$ 、 $R_{2b}$ と $R_{3b}$ 、 $R_{3b}$ と $R_{4b}$ 、 $R_{4b}$ と $R_{5b}$ 、 $R_{5b}$ と $R_{6b}$ 、 $R_{9b}$ と $R_{10b}$ 、 $R_{10b}$ と $R_{11b}$ 、 $R_{11b}$ と $R_{12b}$ 、 $R_{12b}$ と $R_{13b}$ 、 $R_{13b}$ と $R_{14b}$ 、および $R_{11b}$ と $R_{15b}$ 等が挙げられる。

## 【0029】

## 【化10】



10

## 【0030】

[一般式(d1)、(d2)において、 $X_d$ は、 $N(R_{15d})$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。

20

$R_{1d} \sim R_{6d}$ 、 $R_{9d} \sim R_{15d}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基、又は $*d$ との結合手を示し、 $R_{1d} \sim R_{6d}$ 、 $R_{9d} \sim R_{15d}$ のうち隣接する2つは、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。

$L_d$ は、3価の有機基を示す。]

$L_d$ で表される3価の連結基の具体例としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60の芳香族炭化水素環から水素原子を3つ取り除いた3価の芳香族炭化水素環基、置換もしくは無置換の環形成原子数3~60の芳香族複素環から水素原子を3つ取り除いた3価の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキリジン基等が挙げられる。

30

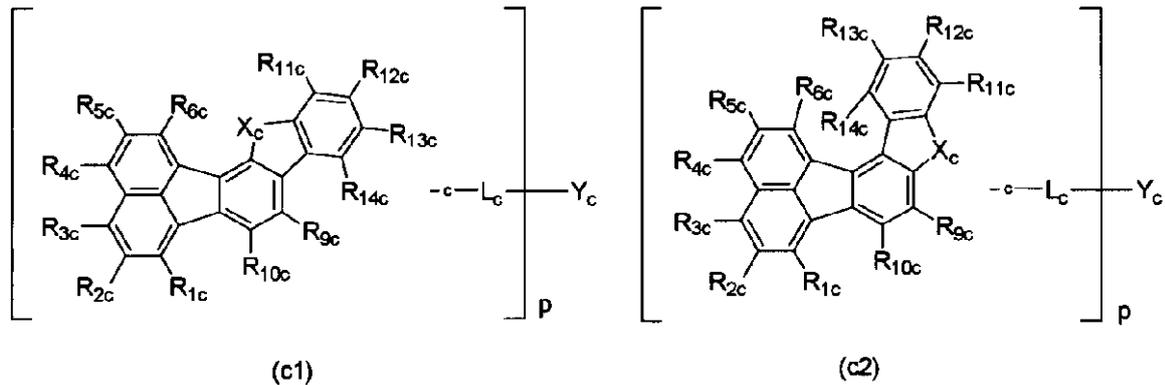
「 $R_{1d} \sim R_{6d}$ 、 $R_{9d} \sim R_{15d}$ のうち隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_{1d}$ と $R_{2d}$ 、 $R_{2d}$ と $R_{3d}$ 、 $R_{3d}$ と $R_{4d}$ 、 $R_{4d}$ と $R_{5d}$ 、 $R_{5d}$ と $R_{6d}$ 、 $R_{9d}$ と $R_{10d}$ 、 $R_{10d}$ と $R_{11d}$ 、 $R_{11d}$ と $R_{12d}$ 、 $R_{12d}$ と $R_{13d}$ 、 $R_{13d}$ と $R_{14d}$ 、および $R_{11d}$ と $R_{15d}$ 等が挙げられる。

## 【0031】

さらに、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物としては、下記一般式(c1)又は(c2)で表される化合物が挙げられる。

## 【0032】

## 【化 1 1】



10

## 【 0 0 3 3】

[一般式 (c1)、(c2) において、 $X_c$  は、 $N(R_{15c})$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。

$R_{1c} \sim R_{6c}$ 、 $R_{9c} \sim R_{15c}$  は、それぞれ独立に、水素原子、置換基又は \*c との結合手を示し、 $R_{1c} \sim R_{6c}$ 、 $R_{9c} \sim R_{15c}$  のうち隣接する 2 つは、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。

$Y_c$  は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 60 の p 個の芳香族炭化水素基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 60 の p 個の複素環基を示す。

20

$L_c$  は、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 60 のヘテロアリーレン基、または、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキレン基を示す。

p は、1 ~ 6 の整数を示す。]

「 $R_{1c} \sim R_{6c}$ 、 $R_{9c} \sim R_{15c}$  のうち隣接する 2 つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_{1c}$  と  $R_{2c}$ 、 $R_{2c}$  と  $R_{3c}$ 、 $R_{3c}$  と  $R_{4c}$ 、 $R_{4c}$  と  $R_{5c}$ 、 $R_{5c}$  と  $R_{6c}$ 、 $R_{9c}$  と  $R_{10c}$ 、 $R_{10c}$  と  $R_{11c}$ 、 $R_{11c}$  と  $R_{12c}$ 、 $R_{12c}$  と  $R_{13c}$ 、 $R_{13c}$  と  $R_{14c}$ 、および  $R_{11c}$  と  $R_{15c}$  等が挙げられる。

## 【 0 0 3 4】

なお、一般式 (b1) 及び (b2) 中の  $R_{1b} \sim R_{6b}$ 、 $R_{9b} \sim R_{15b}$ 、一般式 (d1) 及び (d2) 中の  $R_{1d} \sim R_{6d}$ 、 $R_{9d} \sim R_{15d}$ 、一般式 (c1) 及び (c2) 中の  $R_{1c} \sim R_{6c}$ 、 $R_{9c} \sim R_{15c}$  として選択し得る置換基は、一般式 (1) 中の  $R_1 \sim R_{15}$  として選択し得る置換基と同じものが挙げられ、具体的な置換基は後述のとおりである。

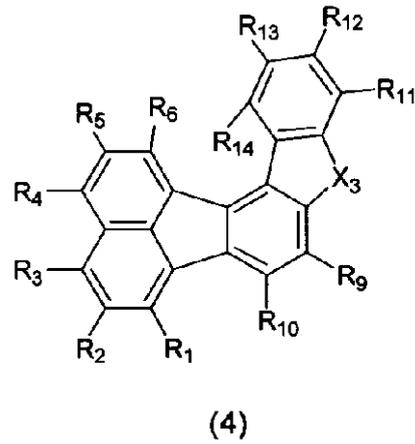
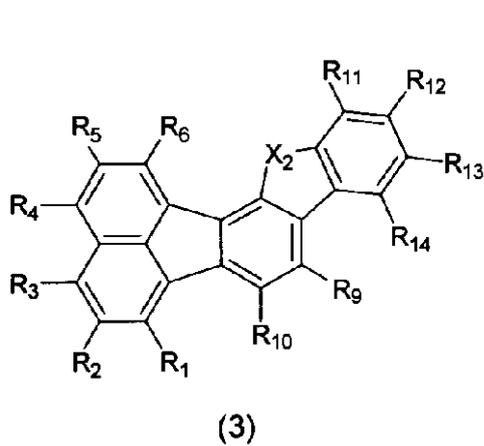
30

## 【 0 0 3 5】

また、少なくとも 1 つの上記一般式 (1) で表される構造を有する、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物としては、下記一般式 (3) ~ (24) のいずれかで表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

## 【 0 0 3 6】

## 【化 1 2】



10

## 【0037】

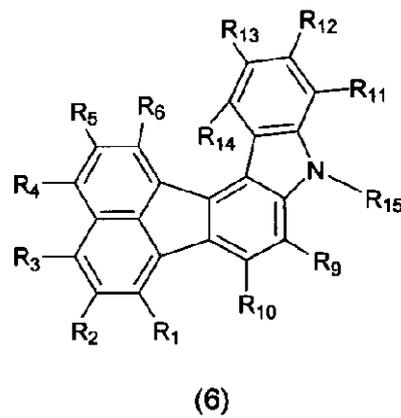
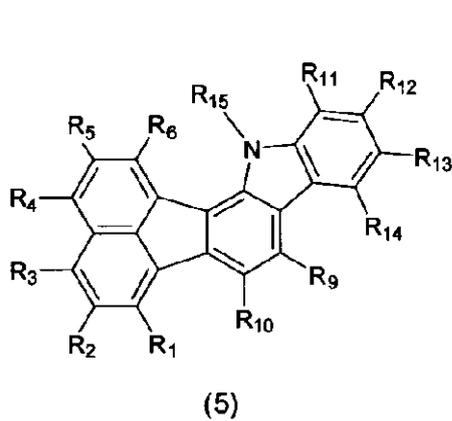
[一般式(3)、(4)において、 $X_1$ は、N( $R_{15}$ )、硫黄原子、又は酸素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{15}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{15}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_1$ と $R_2$ 、 $R_2$ と $R_3$ 、 $R_3$ と $R_4$ 、 $R_4$ と $R_5$ 、 $R_5$ と $R_6$ 、 $R_9$ と $R_{10}$ 、 $R_{10}$ と $R_1$ 、 $R_{11}$ と $R_{12}$ 、 $R_{12}$ と $R_{13}$ 、 $R_{13}$ と $R_{14}$ 、および $R_{11}$ と $R_{15}$ 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよいが、当該環構造を複数形成してもよい。

20

## 【0038】

## 【化 1 3】



30

## 【0039】

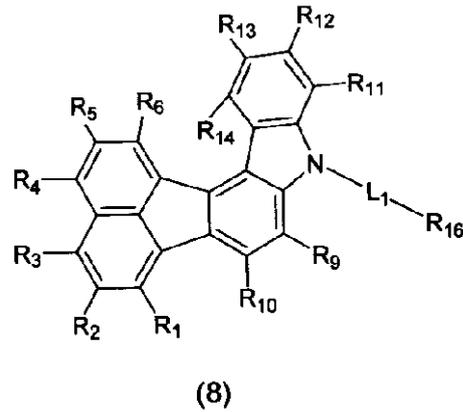
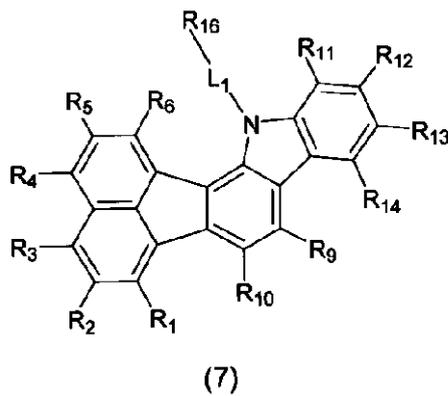
[一般式(5)、(6)において、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{15}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{15}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(3)、(4)での説明と同じである。

40

## 【0040】

## 【化14】



10

## 【0041】

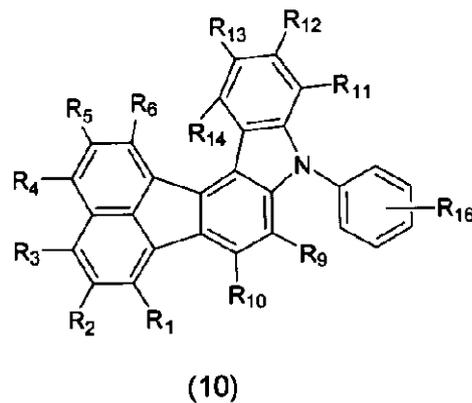
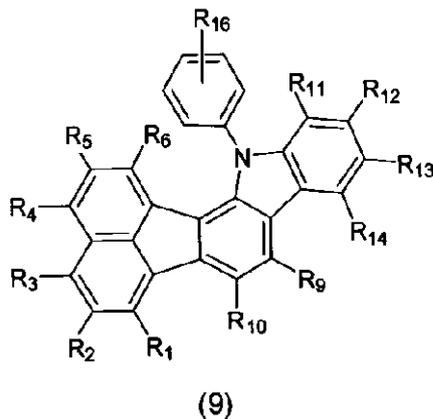
[一般式(7)、(8)において、 $L_1$ は、直接結合(「単結合」と同義、以下同様)、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリーレン基を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{16}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示す。]

20

なお、「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_1$ と $R_2$ 、 $R_2$ と $R_3$ 、 $R_3$ と $R_4$ 、 $R_4$ と $R_5$ 、 $R_5$ と $R_6$ 、 $R_9$ と $R_{10}$ 、 $R_{10}$ と $R_1$ 、 $R_{11}$ と $R_{12}$ 、 $R_{12}$ と $R_{13}$ 、および $R_{13}$ と $R_{14}$ 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよいが、当該環構造を複数形成してもよい。

## 【0042】

## 【化15】



30

## 【0043】

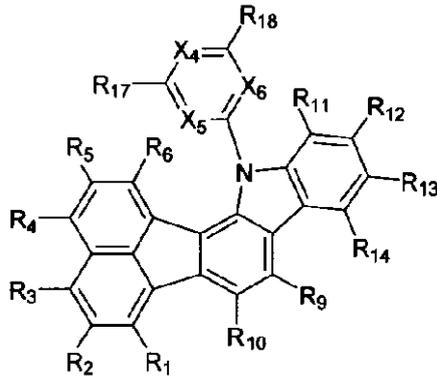
[一般式(9)、(10)において、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{16}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示す。]

40

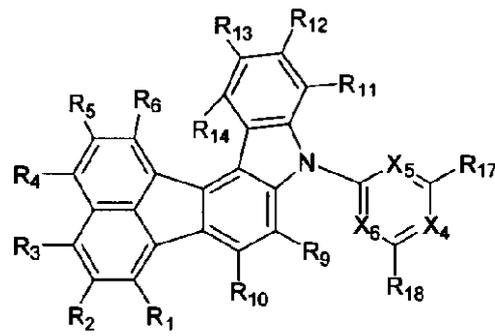
なお、「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(7)、(8)での説明と同じである。

## 【0044】

## 【化 1 6】



(11)



(12)

10

## 【 0 0 4 5】

[一般式(11)、(12)において、 $X_4 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

20

「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(7)、(8)での説明と同じである。

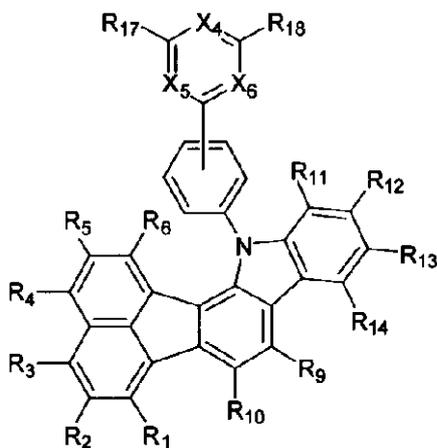
また、「 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $X_4$ が $C(R_{19})$ である場合の $R_{19}$ と $R_{17}$ もしくは $R_{19}$ と $R_{18}$ 、 $X_5$ が $C(R_{19})$ である場合の $R_{19}$ と $R_{17}$ 、 $X_6$ が $C(R_{19})$ である場合の $R_{19}$ と $R_{18}$ 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよいが、当該環構造を複数形成してもよい。

なお、一般式(11)、(12)において、 $R_{17}$ 及び $R_{18}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基であることが好ましい。

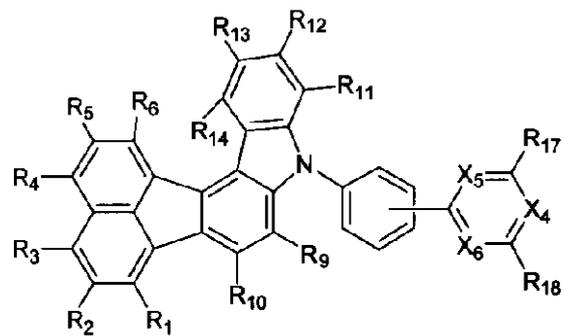
30

## 【 0 0 4 6】

## 【化 1 7】



(13)



(14)

40

## 【 0 0 4 7】

[一般式(13)、(14)において、 $X_4 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し

50

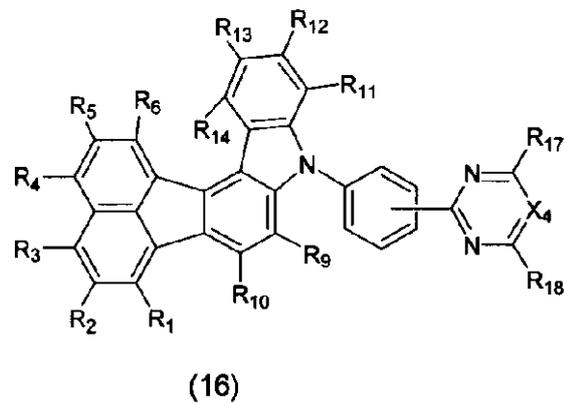
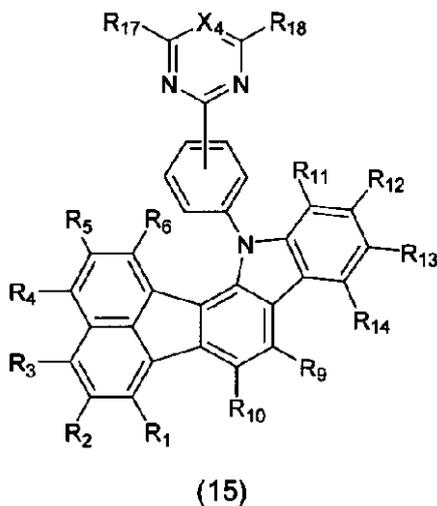
、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(7)、(8)での説明と同じであり、「 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(11)、(12)での説明と同じである。

なお、一般式(13)、(14)において、 $R_{17}$ 及び $R_{18}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

【0048】

【化18】



【0049】

[一般式(15)、(16)において、 $X_4$ は、C( $R_{19}$ )又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(7)、(8)での説明と同じである。

また、「 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $X_4$ がC( $R_{19}$ )である場合の $R_{19}$ と $R_{17}$ もしくは $R_{19}$ と $R_{18}$ 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよいが、当該環構造を複数形成してもよい。

なお、一般式(15)、(16)において、 $R_{17}$ 及び $R_{18}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

【0050】

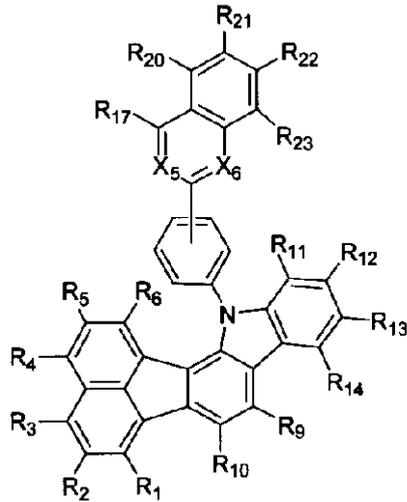
10

20

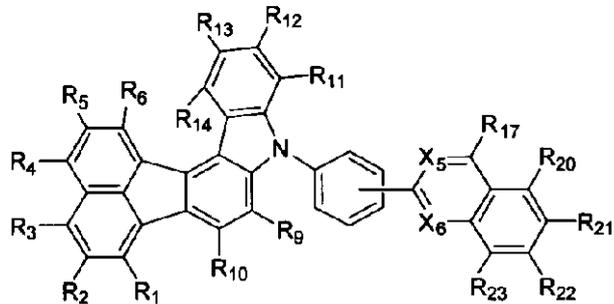
30

40

## 【化19】



(17)



(18)

## 【0051】

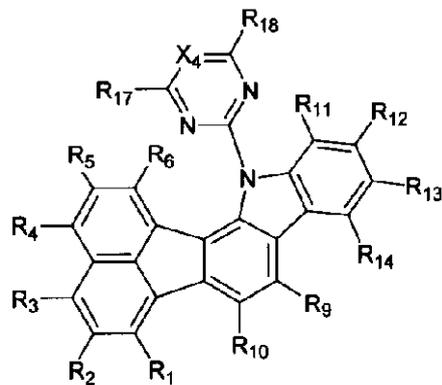
[一般式(17)、(18)において、 $X_5 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、 $R_{20} \sim R_{23}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、および $R_{20} \sim R_{23}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17}$ 及び $R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17}$ と $R_{19}$ が、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

「 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、および $R_{20} \sim R_{23}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせとしては、例えば、 $R_1$ と $R_2$ 、 $R_2$ と $R_3$ 、 $R_3$ と $R_4$ 、 $R_4$ と $R_5$ 、 $R_5$ と $R_6$ 、 $R_9$ と $R_{10}$ 、 $R_{10}$ と $R_{11}$ 、 $R_{11}$ と $R_{12}$ 、 $R_{12}$ と $R_{13}$ 、 $R_{13}$ と $R_{14}$ 、 $R_{20}$ と $R_{21}$ 、 $R_{21}$ と $R_{22}$ 、および $R_{22}$ と $R_{23}$ 等が挙げられる。これらの2つの基は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよいが、当該環構造を複数形成してもよい。

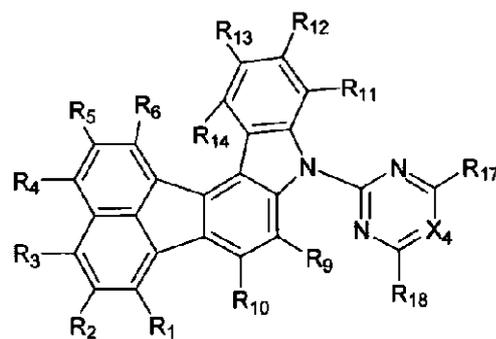
なお、一般式(17)、(18)において、 $R_{17}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基であることが好ましい。

## 【0052】

## 【化20】



(19)



(20)

## 【0053】

[一般式(19)、(20)において、 $X_4$ は、 $C(R_{19})$ 又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim$

10

20

30

40

50

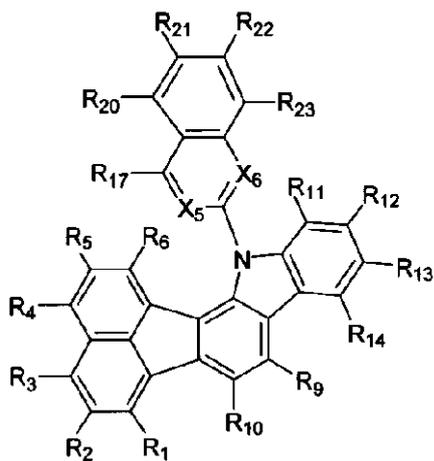
$R_{14}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17} \sim R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

「 $R_1 \sim R_6$ および $R_9 \sim R_{14}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(7)、(8)での説明と同じであり、「 $R_{17} \sim R_{19}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(15)、(16)での説明と同じである。

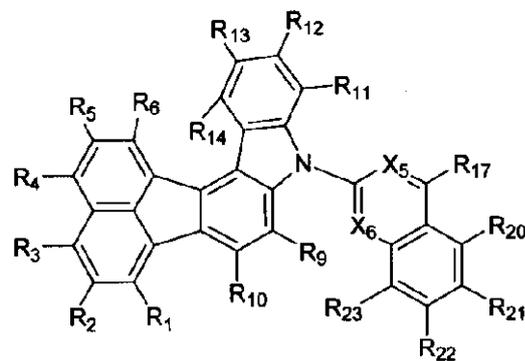
なお、一般式(19)、(20)において、 $R_{17}$ 及び $R_{18}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

【0054】

【化21】



(21)



(22)

【0055】

[一般式(21)、(22)において、 $X_5 \sim X_6$ は、それぞれ独立に、C( $R_{19}$ )又は窒素原子を示す。 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、 $R_{20} \sim R_{23}$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示し、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、および $R_{20} \sim R_{23}$ から選ばれる隣接する2つが、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。 $R_{17}$ 及び $R_{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基を示し、 $R_{17}$ と $R_{19}$ が、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。]

なお、「 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{14}$ 、および $R_{20} \sim R_{23}$ から選ばれる隣接する2つ」の具体的な組み合わせ等の説明は、上述の一般式(17)、(18)での説明と同じである。

また、一般式(21)、(22)において、 $R_{17}$ 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、または置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の含窒素複素環基であることが好ましい。

【0056】

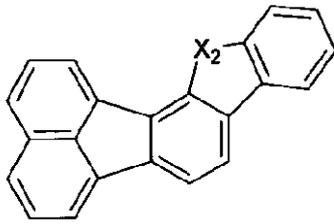
10

20

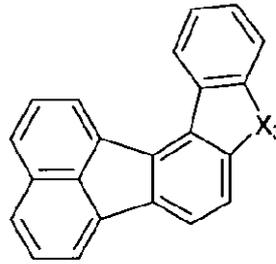
30

40

## 【化 2 2】



(23)



(24)

10

## 【 0 0 5 7】

[一般式(23)、(24)において、 $X_2$ 、 $X_3$ は、 $N(R_{15})$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示す。 $R_{15}$ は、水素原子または置換基を示す。]

## 【 0 0 5 8】

上記一般式(1)~(24)において、 $R_1 \sim R_{15}$ および $R_{20} \sim R_{23}$ で表される置換基としては、それぞれ独立に、下記(A)群から選択されるものが好ましく、下記(B)群から選択されるものがより好ましく、下記(C)群から選択されるものがさらに好ましい。

## 【 0 0 5 9】

上記(A)群とは、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~50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6~60のアリール基(「芳香族炭化水素基」と同義、以下同様)、置換もしくは無置換の炭素数7~51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基(「複素環基」と同義、以下同様)、置換もしくは無置換の炭素数1~50のハロアルキル基、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1~50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリールスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、ホウ素含有基、亜鉛含有基、スズ含有基、ケイ素含有基、マグネシウム含有基、リチウム含有基、ヒドロキシ基、アルキル置換又はアリール置換カルボニル基、カルボキシル基、ビニル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、並びにオキセタニル基からなる群である。

20

30

40

## 【 0 0 6 0】

上記(B)群とは、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~50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6~60のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7~51のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテ

50

ロアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のハロアルキル基、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 ~ 50 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 ~ 60 のアリアル基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基、並びに置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 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 ~ 60 のアリアル基からなる群である。

【0061】

上記(C)群とは、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 50 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 ~ 60 のアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 51 のアラルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 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 ~ 60 のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 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 ~ 60 のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、並びにニトロ基からなる群である。

10

【0062】

前記炭素数 1 ~ 50 (好ましくは炭素数 1 ~ 18、より好ましくは炭素数 1 ~ 8) のアルキル基としては、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(異性体を含む)、ヘキシル基(異性体を含む)、ヘプチル基(異性体を含む)、オクチル基(異性体を含む)、ノニル基(異性体を含む)、デシル基(異性体を含む)、ウンデシル基(異性体を含む)、及びドデシル基(異性体を含む)、トリデシル基、テトラデシル基、オクタデシル基、テトラコサニル基、テトラコタニル基等が挙げられ、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(異性体を含む)、ヘキシル基(異性体を含む)、ヘプチル基(異性体を含む)、オクチル基(異性体を含む)、ノニル基(異性体を含む)、デシル基(異性体を含む)、ウンデシル基(異性体を含む)、ドデシル基(異性体を含む)、トリデシル基、テトラデシル基、及びオクタデシル基が好ましく、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(異性体を含む)、ヘキシル基(異性体を含む)、ヘプチル基(異性体を含む)、及びオクチル基(異性体を含む)がより好ましい。

20

30

【0063】

前記環形成炭素数 3 ~ 50 (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としては、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、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基などが挙げられ、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

【0064】

前記環形成炭素数 6 ~ 60 (好ましくは環形成炭素数 6 ~ 25、より好ましくは環形成炭素数 6 ~ 18) のアリアル基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、ナフチルフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、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、フルオレニル基、9,9'-スピロピフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、s-インダセニル基、as-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾフルオランテニル基、テトラセニル基、トリフェニレニル基、ベンゾトリフェニレニル基、ペリレニル基、コロニル基、ジベンゾアントリル基等が挙げられる。

40

【0065】

50

置換もしくは無置換の炭素数 7 ~ 51 のアラルキル基としては、上述の環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリアル基を有するアラルキル基が挙げられる。

【0066】

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 (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 ~ 60 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基としては、上記アルキル基及び上記アリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基が挙げられる。

【0067】

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルコキシ基としては、上述の炭素数 1 ~ 50 (好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8) のアルキル基を有するアルコキシ基が挙げられる。

【0068】

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリアルオキシ基としては、上述の環形成炭素数 6 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリアル基を有するアリアルオキシ基が挙げられる。

【0069】

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 (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 ~ 50 (好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18) のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基としては、上記アルキル基及び上記アリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基が挙げられる。

【0070】

環形成原子数 5 ~ 60 (好ましくは 5 ~ 24、より好ましくは環形成原子数 5 ~ 13) のヘテロアリアル基は、少なくとも 1 個、好ましくは 1 ~ 5 個 (より好ましくは 1 ~ 3 個、さらに好ましくは 1 ~ 2 個) のヘテロ原子、例えば、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子を含むものである。

当該ヘテロアリアル基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、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、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフエニル基、イソベンゾチオフエニル基、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、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフエニル基、カルバゾリル基、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、アザトリフェニレニル基、ジアザトリフェニレニル基、キサンテニル基、アザカルバゾリル基、アザジベンゾフラニル基、アザジベンゾチオフエニル基、ベンゾフラノベンゾチオフエニル基、ベンゾチエノベンゾチオフエニル基、ジベンゾフラノナフチル基、ジベンゾチエノナフチル基、及びジナフトチエノチオフエニル基などが挙げられる。

【0071】

また、上記環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリアル基の具体例としては、下記式で表されるいずれかの化合物より水素原子を 1 つ除いてなる 1 価の基も好ましい。

【0072】

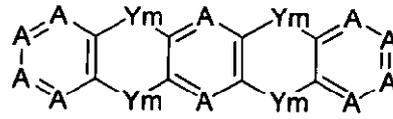
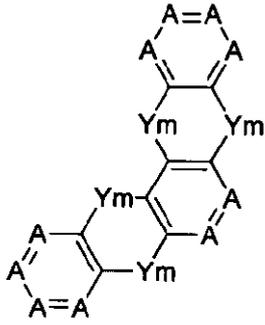
10

20

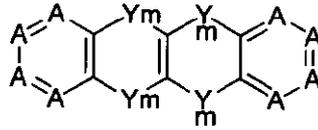
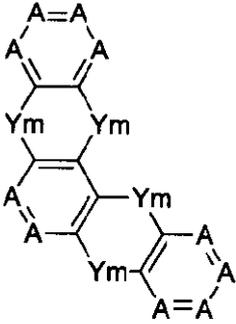
30

40

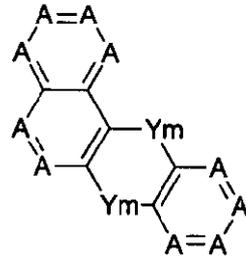
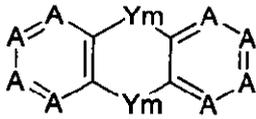
【化 2 3】



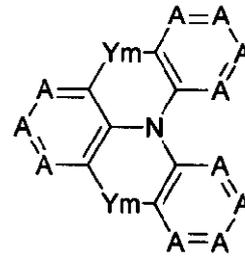
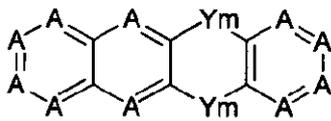
10



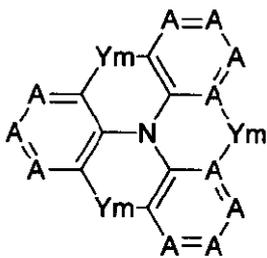
20



30



40



50

## 【 0 0 7 3 】

[ 式中、A は、それぞれ独立に、 $C R^{100}$ 、又は窒素原子を表し、 $R^{100}$  は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、

Y は、それぞれ独立に、単結合、 $C ( R^{101} ) ( R^{102} )$ 、酸素原子、硫黄原子又は  $N ( R^{103} )$  を表し、

$R^{101}$ 、 $R^{102}$  及び  $R^{103}$  は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表わし、m は、それぞれ独立に、0 または 1 を表す。 ]

上記式中における置換基としては、上述のものと同様のものが挙げられる。

## 【 0 0 7 4 】

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 ( 好ましくは 1 ~ 18、より好ましくは 1 ~ 8 ) のハロアルキル基としては、上記アルキル基の水素原子の 1 以上が、ハロゲン原子 ( フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子 ) により置換されたものが挙げられる。

10

## 【 0 0 7 5 】

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 ( 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 ~ 50 ( 好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18 ) のアリアル基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基としては、上記アルキル基又は上記アリアル基から選ばれる置換基を有するスルフォニル基が挙げられる。

## 【 0 0 7 6 】

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 ( 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 ~ 50 ( 好ましくは 6 ~ 25、より好ましくは 6 ~ 18 ) のアリアル基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基としては、上記アルキル基及び上記アリアル基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォリル基が挙げられる。

20

## 【 0 0 7 7 】

前記一般式 ( 1 ) ~ ( 24 ) における、 $R_1 \sim R_{23}$  から選ばれる隣接する 2 つが互いに結合して形成する飽和の環としては、それぞれ、環形成炭素数 5 ~ 50 ( 好ましくは 3 ~ 6、より好ましくは 5 又は 6 ) の脂肪族炭化水素環が好ましい。

また、前記一般式 ( 1 ) ~ ( 24 ) における、 $R_1 \sim R_{23}$  から選ばれる隣接する 2 つが互いに結合して形成する不飽和の環としては、それぞれ、環形成炭素数 6 ~ 50 ( 好ましくは 6 ~ 24、より好ましくは 6 ~ 18 ) の芳香族炭化水素環、又は環形成原子数 5 ~ 50 ( 好ましくは 5 ~ 24、より好ましくは 5 ~ 13 ) の芳香族複素環が好ましい。

30

## 【 0 0 7 8 】

上記環形成炭素数 5 ~ 50 の脂肪族炭化水素環の具体例としては、シクロプロパン環、シクロブタン環、シクロペンタン環、シクロヘキサン環、シクロヘプタン環、シクロオクタン環、アダマンタン環などが挙げられ、シクロペンタン環及びシクロヘキサン環が好ましい。

## 【 0 0 7 9 】

上記環形成炭素数 6 ~ 60 の芳香族炭化水素環の具体例としては、ベンゼン環、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、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、ジベンゾフルオレン環、ピセン環、テトラセン環、ペンタセン環、ピレン環、クリセン環、ベンゾクリセン環、s - インダセン環、as - インダセン環、フルオランテン環、ベンゾフルオランテン環、トリフェニレン環、ベンゾトリフェニレン環、ペリレン環、コロネン環、ジベンゾアントラセン環等が挙げられる。

40

## 【 0 0 8 0 】

上記環形成原子数 5 ~ 60 の芳香族複素環の具体例としては、ピロール環、ピラゾール環、イソインドール環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフエン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環、イソキノリン環、シンノリン環、キノキサリン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ト

50

リアジン環、イミダゾピリジン環、インドール環、インダゾール環、ベンズイミダゾール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサン環、ピペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環、ベンゾ[*c*]ジベンゾフラン環、プリン環、アクリジン環等が挙げられる。

【0081】

なお、一般式(1)において、 $R_1 \sim R_{14}$ がすべて水素原子であることが好ましい。つまり、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物としては、上記一般式(23)または(24)で表される縮合フルオランテン化合物が好ましい。

10

【0082】

本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物は、前記一般式(1)における $R_1 \sim R_{15}$ のうち少なくとも1つが、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基であるものが好ましい。

なお、前記一般式(1)における、 $R_1 \sim R_{15}$ のうち隣接する置換基同士が互いに結合して環を形成する場合には、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリーレン基を有していてもよい。

20

置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリーレン基としては、上記アリール基として挙げられる基から水素原子を1つ除いてなるものが挙げられる。

置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリーレン基としては、上記ヘテロアリール基として挙げられる基から水素原子を1つ除いてなるものが挙げられる。

【0083】

また、 $X_1 \sim X_3$ が $N(R_{15})$ であり、且つ、 $R_{15}$ が置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基、または、置換もしくは無置換の環形成原子数5~60のヘテロアリール基であるものがより好ましい。

縮合フルオランテン化合物が、アリール基(アリーレン基)又はヘテロアリール基(ヘテロアリーレン基)を有することにより、有機EL素子用材料として用いた場合に、該材料を含む有機薄膜の膜質が良好となるなどの効果を奏する。

30

【0084】

$X_1 \sim X_3$ は、 $N(R_{15})$ 、硫黄原子、又は酸素原子を示すが、 $N(R_{15})$ であることが好ましい。つまり、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物としては、上記一般式(5)又は(6)で表される縮合フルオランテン化合物が好ましい。

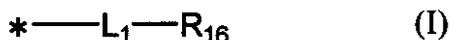
【0085】

さらに、 $R_{15}$ は、下記一般式(I)で表される基が好ましく、下記一般式(II)で表される基、もしくは下記一般式(III)で表される基がより好ましい。

【0086】

【化24】

40

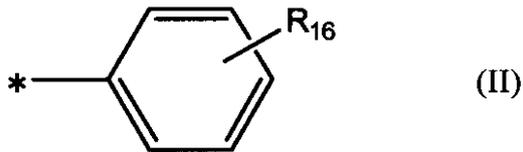


[上記一般式(I)において、 $L_1$ は、直接結合、または、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリーレン基を示す。 $R_{16}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~30のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数5~30の含窒素複素環基を示す。\*は結合位置を示す。]

$R_{15}$ が上記一般式(I)で表される基である化合物としては、上記一般式(7)又は(8)で表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

【0087】

## 【化 2 5】



[ 上記一般式 (II) において、 $R_{16}$  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、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基を示す。  
\* は結合位置を示す。]

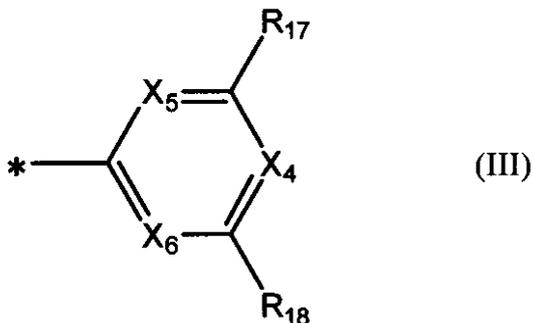
$R_{15}$  が上記一般式 (II) で表される基である化合物としては、上記一般式 (9) 又は (10) で表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

10

なお、上記一般式 (II) において、 $R_{16}$  は、下記一般式 (III) で表される基が好ましい。このような基を有する化合物としては、上記一般式 (13) 又は (14) で表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

## 【0088】

## 【化 2 6】



20

[ 上記一般式 (III) において、 $X_4 \sim X_6$  は、それぞれ独立に、 $C(R_{19})$  又は窒素原子を示す。 $R_{17} \sim R_{19}$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基を示し、隣接する置換基同士は、互いに結合して飽和または不飽和の環構造を形成してもよい。  
\* は結合位置を示す。]

30

## 【0089】

$R_{15}$  が上記一般式 (III) で表される基である化合物としては、上記一般式 (11) 又は (12)、及び上記一般式 (13) 又は (14) で表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

なお、上記一般式 (III) において、 $X_4$  が  $C(R_{19})$  であり、 $X_5$  及び  $X_6$  が窒素原子である基が好ましく、このような基を有する化合物として、上記一般式 (15) 又は (16)、及び上記一般式 (19) 又は (20) で表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

## 【0090】

40

また、上記一般式 (III) において、 $X_4$  が  $C(R_{19})$  であり、 $R_{17}$  又は  $R_{18}$  と  $R_{19}$  とが互いに結合して、飽和または不飽和の環構造を形成している基も好ましく、このような基を有する化合物として、上記一般式 (17) 又は (18)、及び上記一般式 (21) 又は (22) で表される縮合フルオランテン化合物が挙げられる。

## 【0091】

上記一般式 (I) ~ (III)、並びに、上記一般式 (7) ~ (22) において、 $R_{16} \sim R_{19}$  が置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基である場合、当該アリール基としては、上述の具体的に列挙したアリール基のうち、環形成炭素数が 6 ~ 30 のアリール基が挙げられる。

## 【0092】

50

上記一般式 (I) ~ (III)、並びに、上記一般式 (7) ~ (22) において、 $R_{16}$  ~  $R_{19}$  が置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基である場合、当該含窒素複素環基としては、上述のヘテロアリアル基のうち、環形成原子数が 5 ~ 30 であり、且つ窒素原子を含むものが挙げられ、具体的には、ピリジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、ピラジニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、キナゾリル基、フェナントロリニル基、ジベンゾキノキサリニル基、ピロリル基、インドリル基、カルバゾリル基、イミダゾリル基、ベンズイミダゾリル基、イミダゾピリジニル基、インドリジニル基、ベンズカルバゾリル基、ジベンズカルバゾリル基等が挙げられる。

【0093】

上記一般式 (I)、並びに上記一般式 (7) 又は (8) 中の  $L_1$  について、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーレン基としては、上述のアリアル基として挙げられているものから水素原子を 1 つ除いてなる 2 価の基が挙げられ、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の含窒素複素環基としては、 $R_{16}$  ~  $R_{19}$  が含窒素複素環基である場合の含窒素複素環基として挙げられているものから水素原子を 1 つ除いてなる 2 価の基が挙げられる。

10

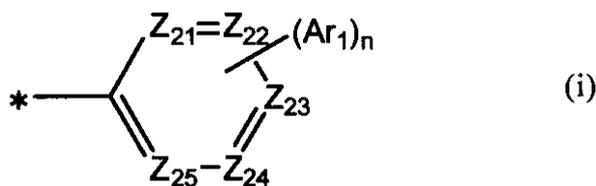
【0094】

なお、 $R_{16}$  ~  $R_{19}$  としては、さらに、下記一般式 (i) で表される基が好ましく、下記一般式 (ii) で表される基がより好ましく、下記一般式 (iii) で表される基が更に好ましい。

【0095】

20

【化27】



[一般式 (i) において、 $Z_{21}$  ~  $Z_{25}$  は、それぞれ独立に、 $C(R_{1A})$  又は窒素原子を表す。

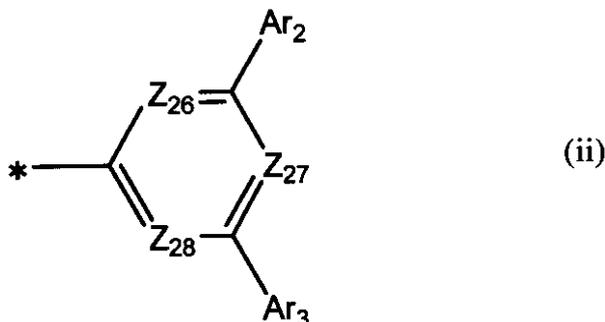
$R_{1A}$  は、それぞれ独立に、水素原子、又は  $Ar_1$  との結合手を表す。

30

$Ar_1$  は、それぞれ独立に、又は置換基を表し、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリアル基である。n は、0 ~ 5 の整数を表す。\* は結合位置を示す。]

【0096】

【化28】



40

【0097】

[一般式 (ii) において、 $Z_{26}$  ~  $Z_{28}$  は、それぞれ独立に、 $C(R_{1A})$  又は窒素原子を表す。

$R_{1A}$  は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換基を表す。

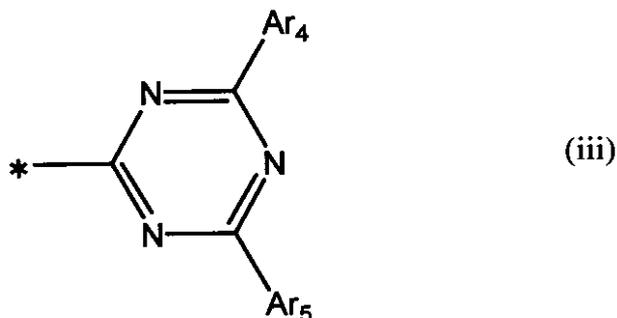
$Ar_2$  及び  $Ar_3$  は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、好ましくは置換もし

50

くは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基である。\*は結合位置を示す。]

【0098】

【化29】



10

【0099】

[一般式(iii)において、 $Ar_4$ 及び $Ar_5$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表し、好ましくは置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基であり、より好ましくは環形成炭素数6～18のアリール基、又は環形成原子数5～13のヘテロアリール基である。\*は結合位置を示す。]

【0100】

20

上記一般式(i)における $Ar_1$ 、上記一般式(ii)における $Ar_2$ 及び $Ar_3$ 、並びに上記一般式(iii)における $Ar_4$ 及び $Ar_5$ で表される置換基としては、上記(A)群から選択されるものが好ましく、(B)群から選択されるものがより好ましく、(C)群から選択されるものが更に好ましい。

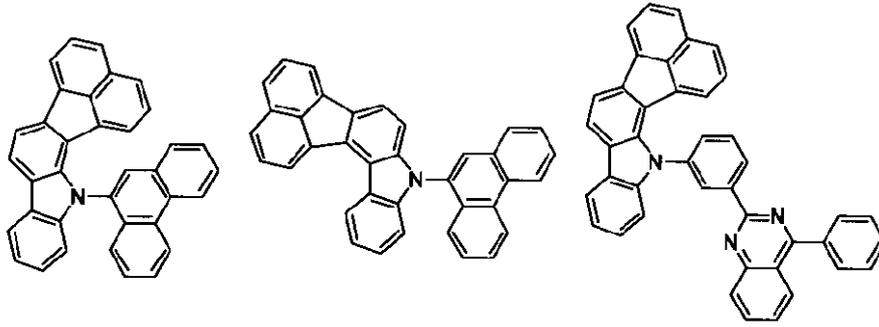
【0101】

以下、少なくとも1つの一般式(1)で表される構造を有する縮合フルオランテン化合物、並びに一般式(3)～(24)のいずれかで表される縮合フルオランテン化合物(以下、これらの化合物をまとめて、「本発明の一実施態様の化合物」ともいう)の具体例を示すが、本発明の化合物はこれらに限定されるものではない。

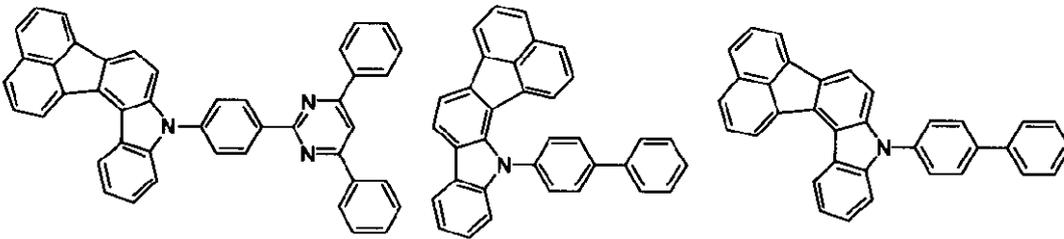
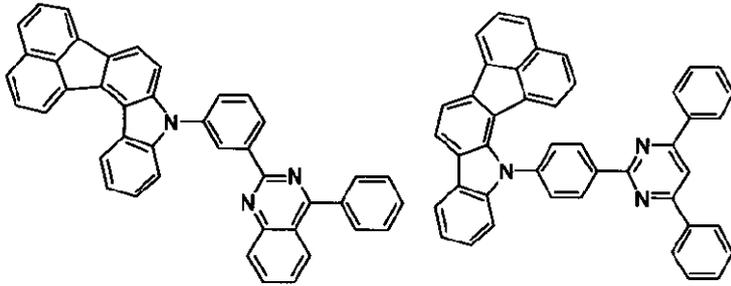
【0102】

30

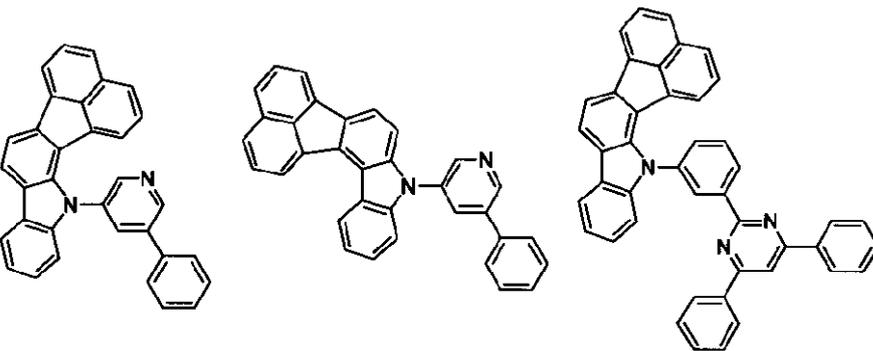
【化 3 0】



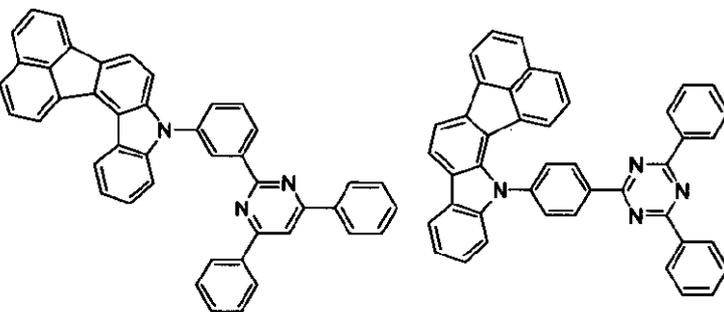
10



20



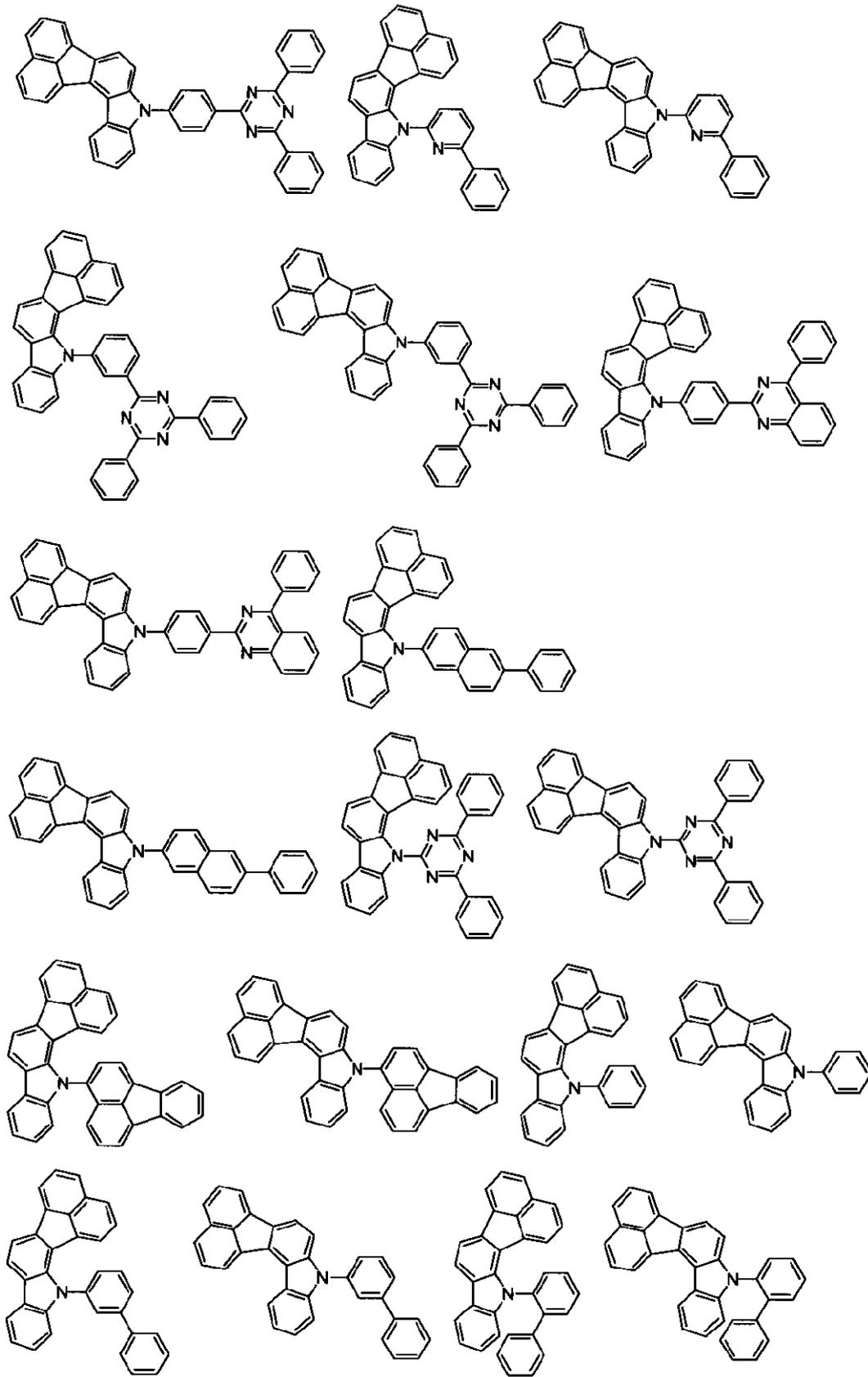
30



40

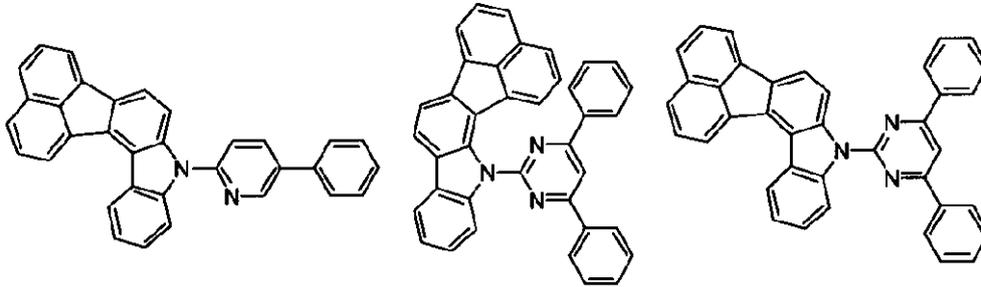
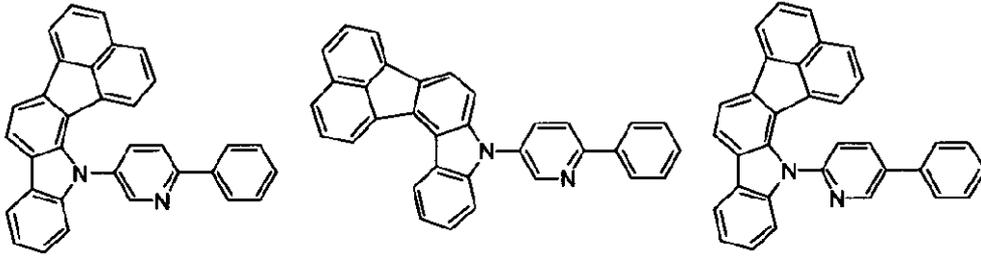
【 0 1 0 3】

【化 3 1】

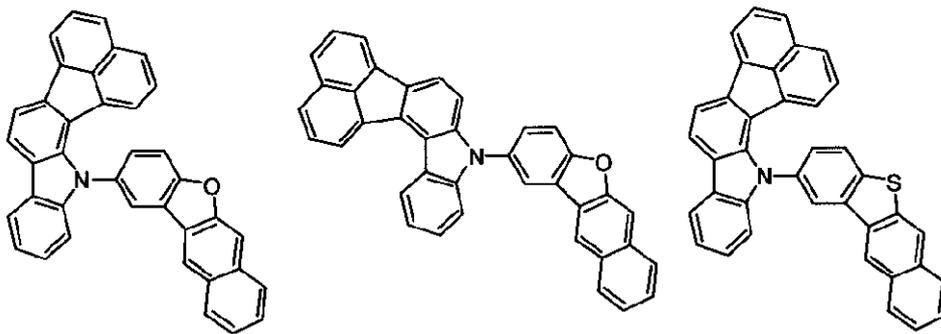


【 0 1 0 4 】

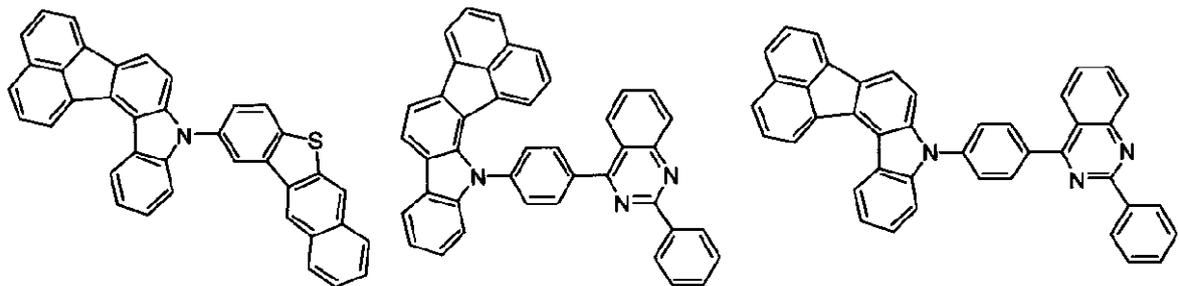
【化 3 2】



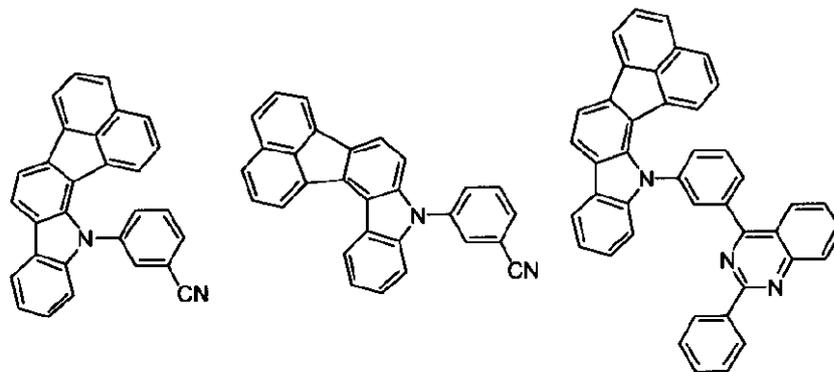
10



20



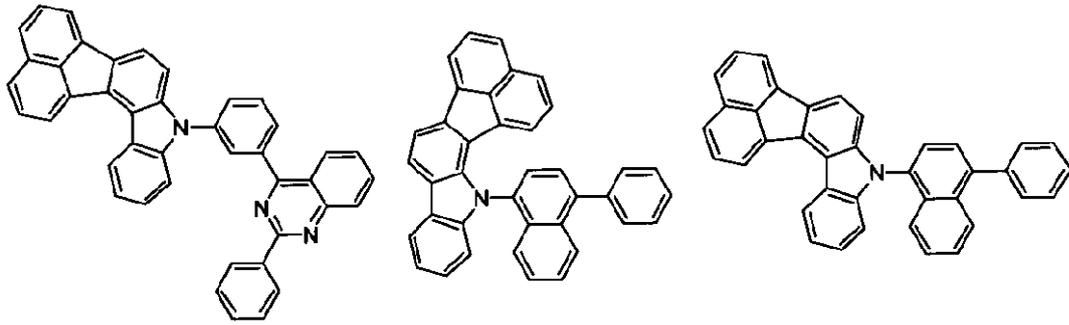
30



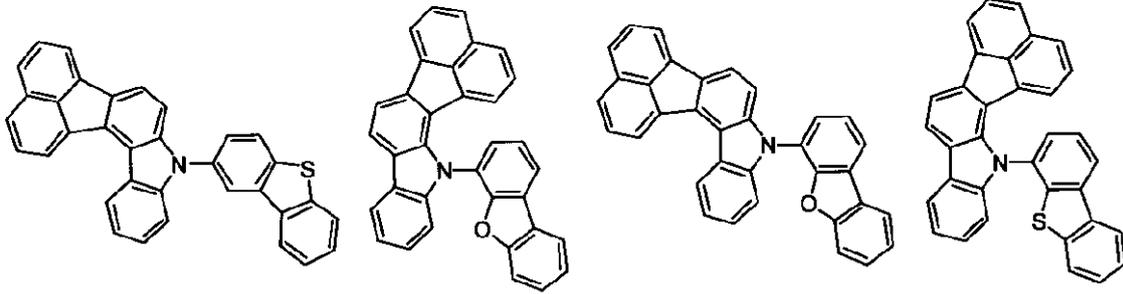
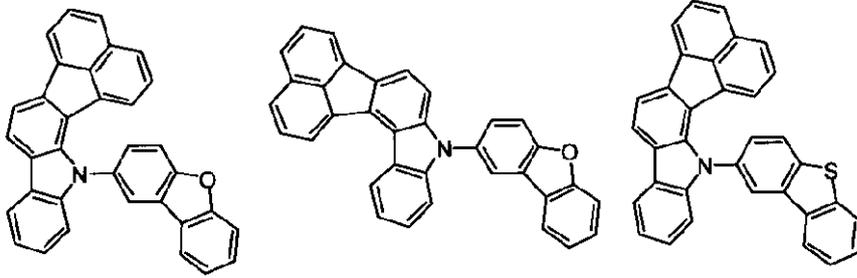
40

【 0 1 0 5 】

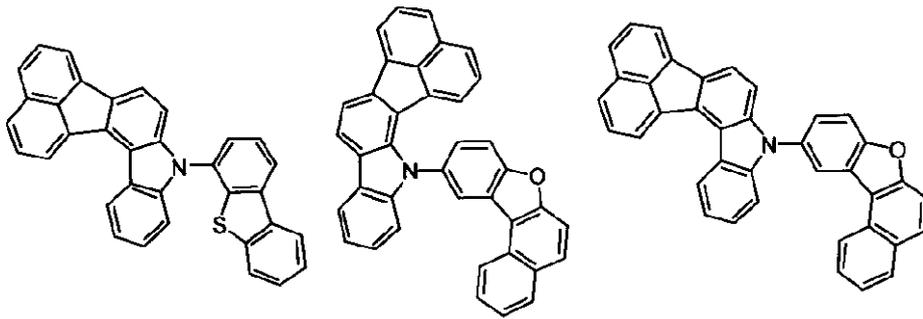
【化 3 3】



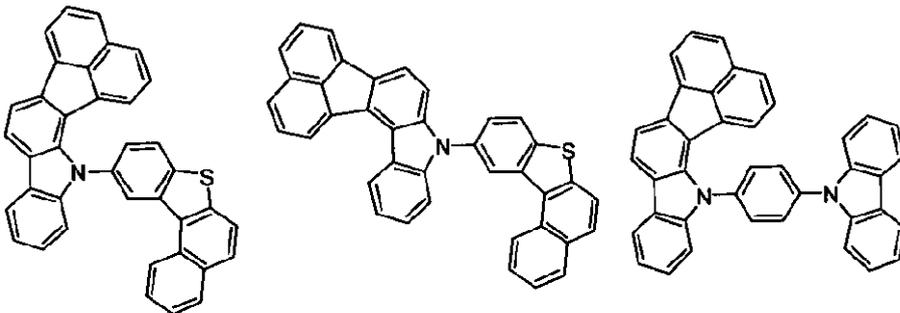
10



20



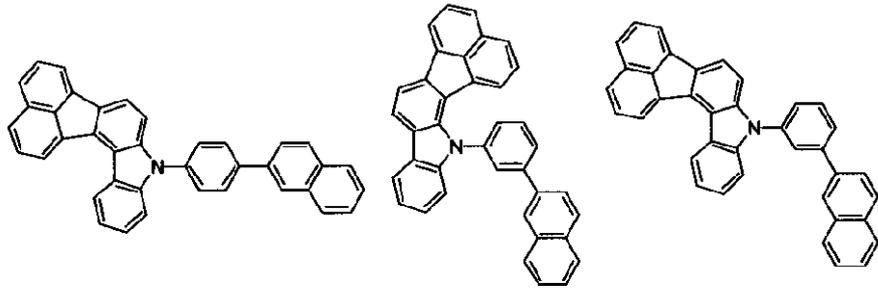
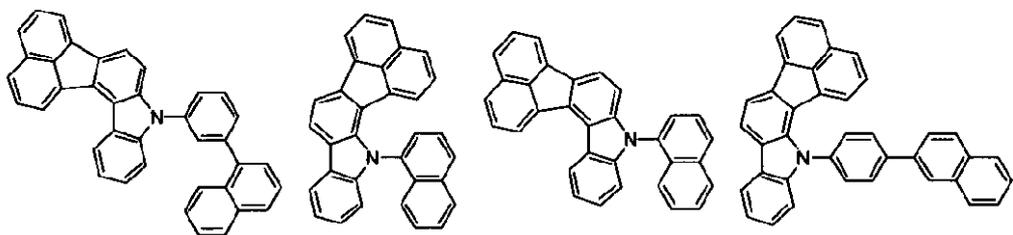
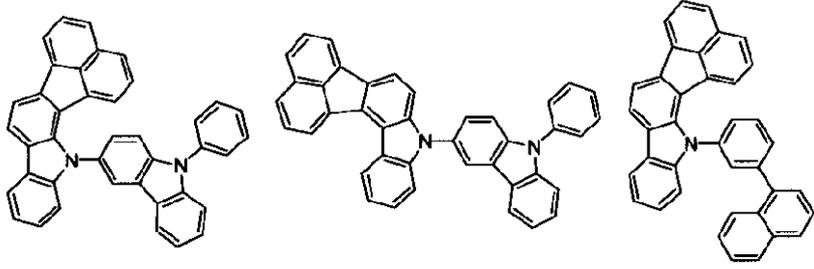
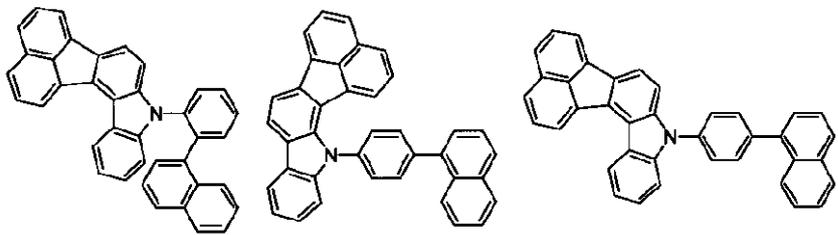
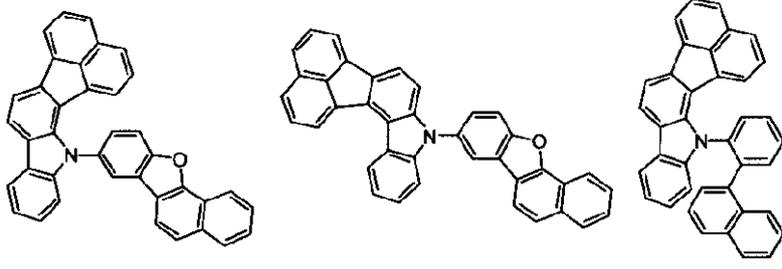
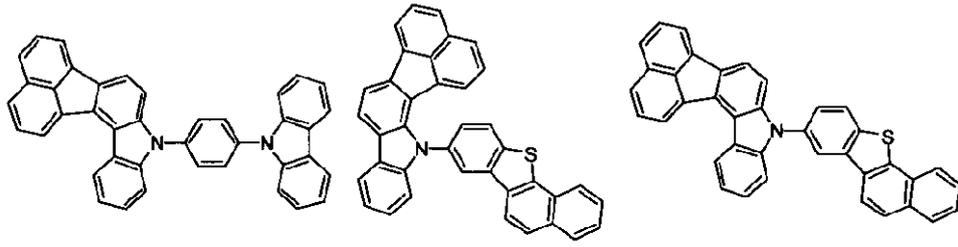
30



40

【 0 1 0 6 】

【化 3 4】



10

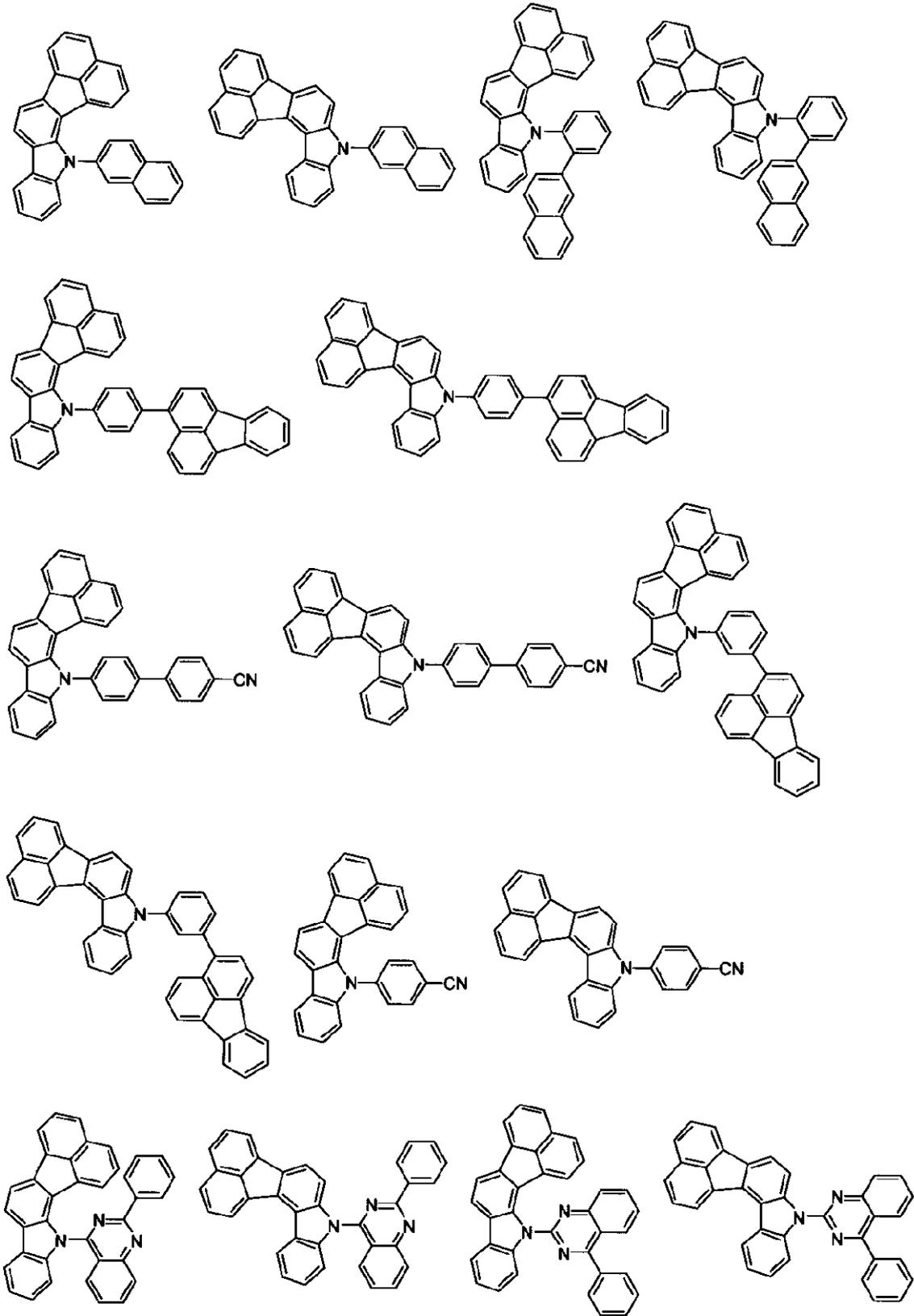
20

30

40

【 0 1 0 7 】

【化 3 5】



10

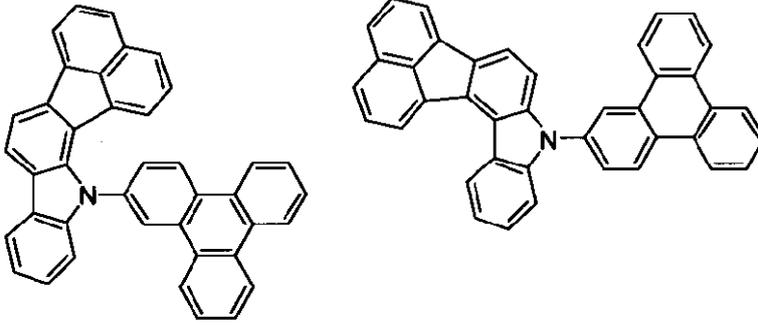
20

30

40

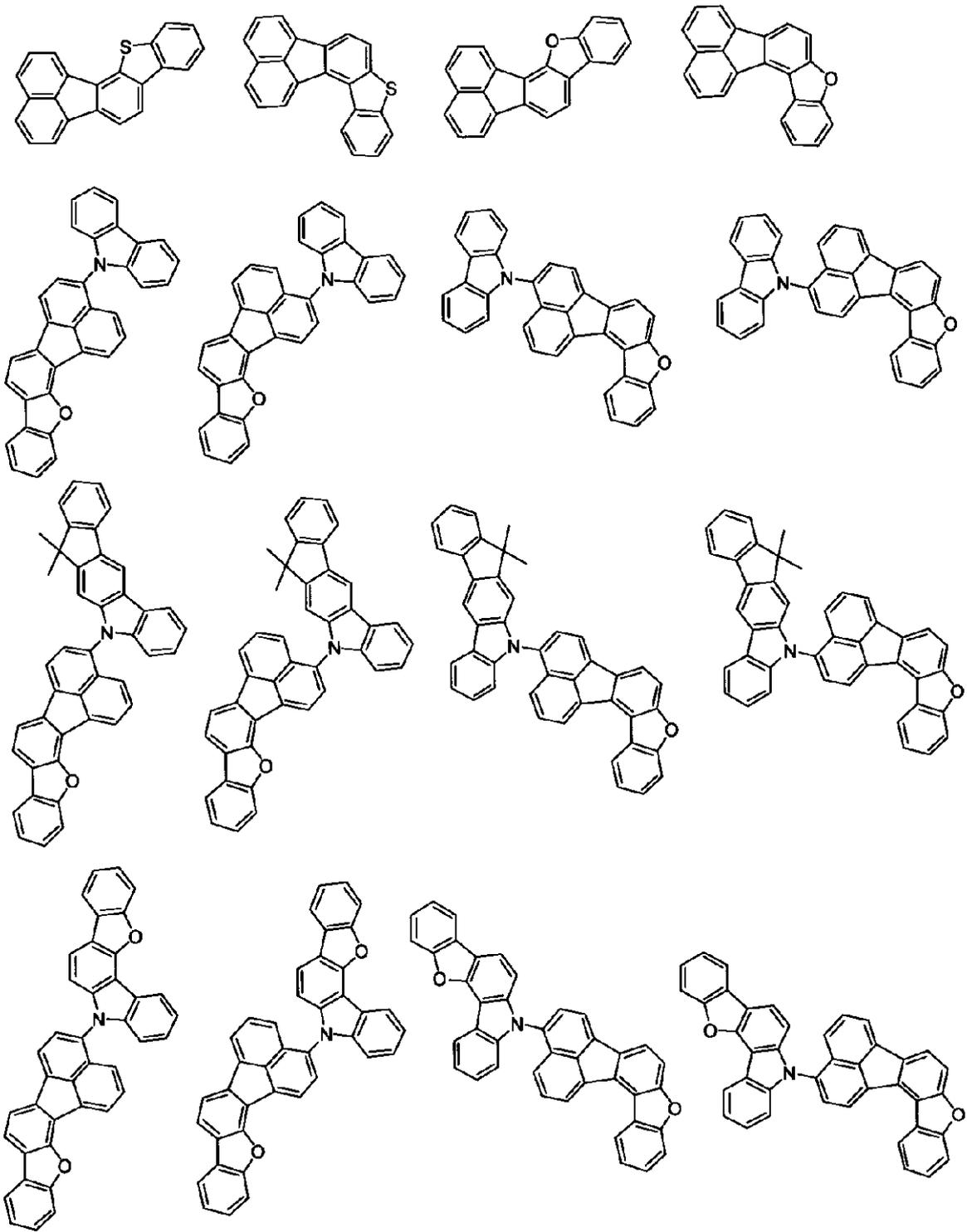
【 0 1 0 8 】

【化 3 6】



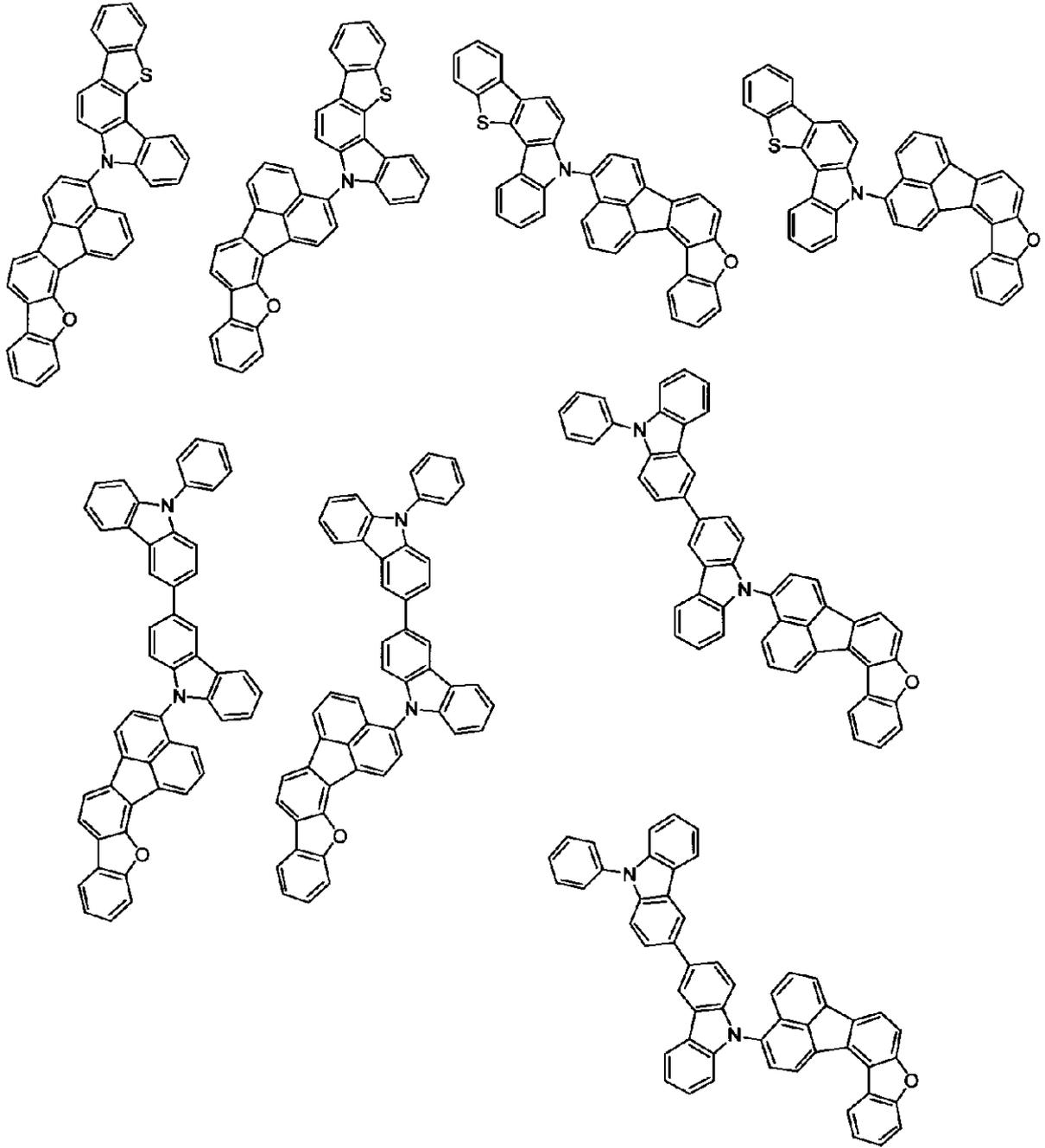
【 0 1 0 9 】

【化 3 7】



【 0 1 1 0 】

【化 3 8】



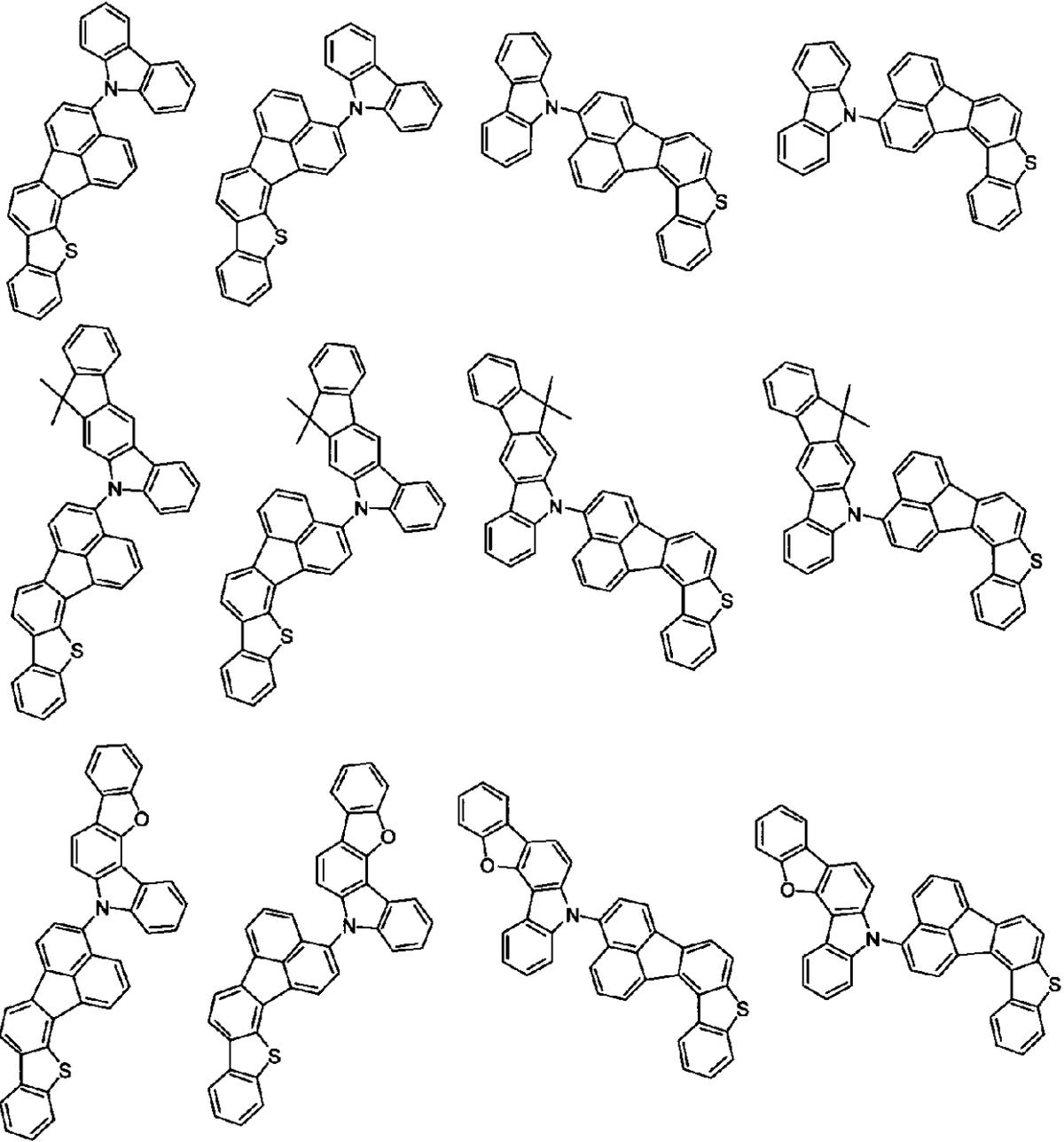
10

20

30

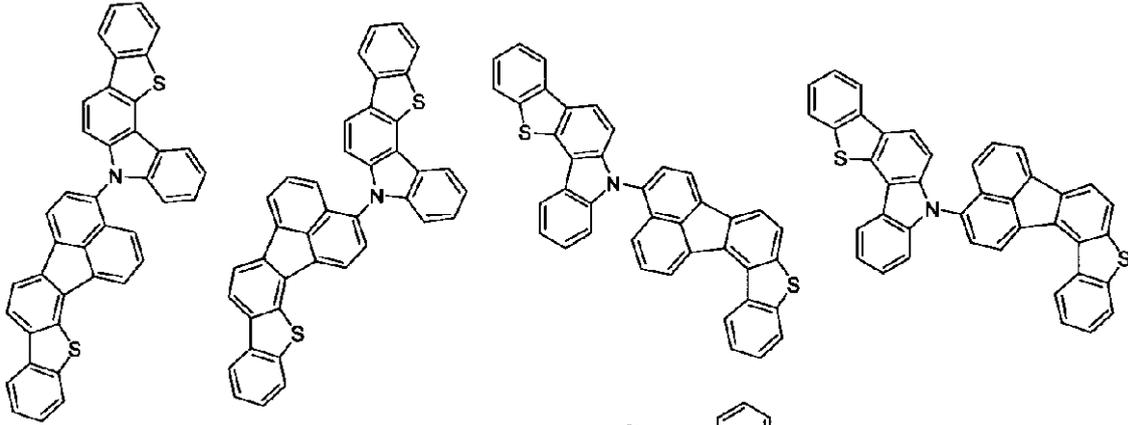
【 0 1 1 1 】

【化 3 9】

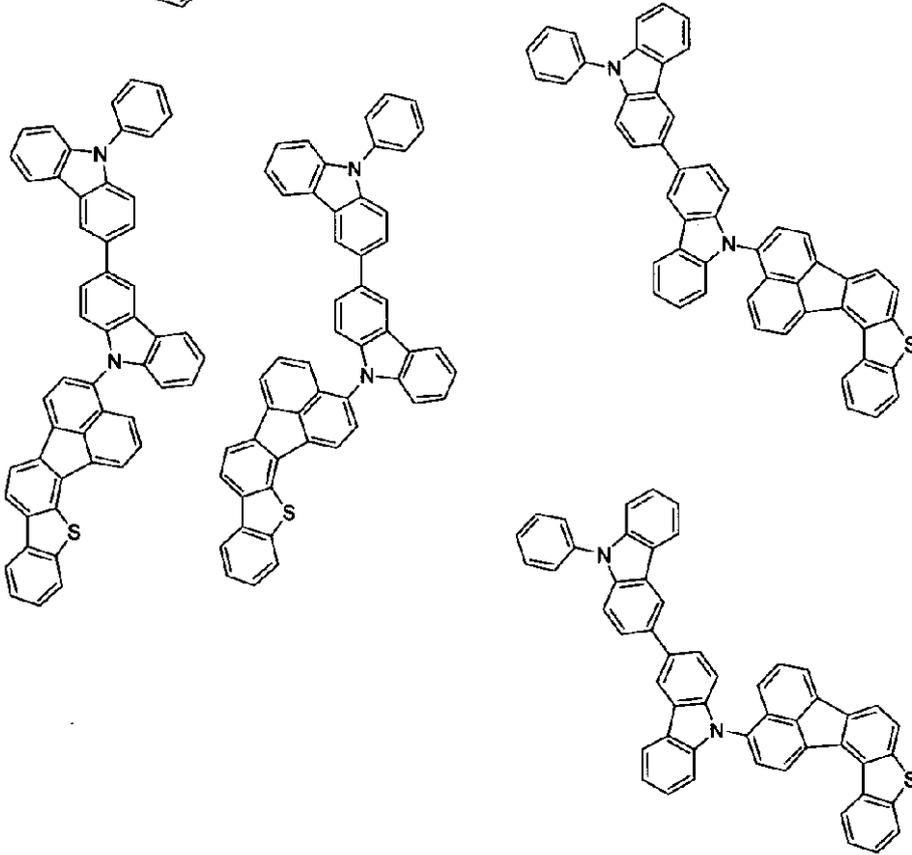


【 0 1 1 2】

【化 4 0】



10

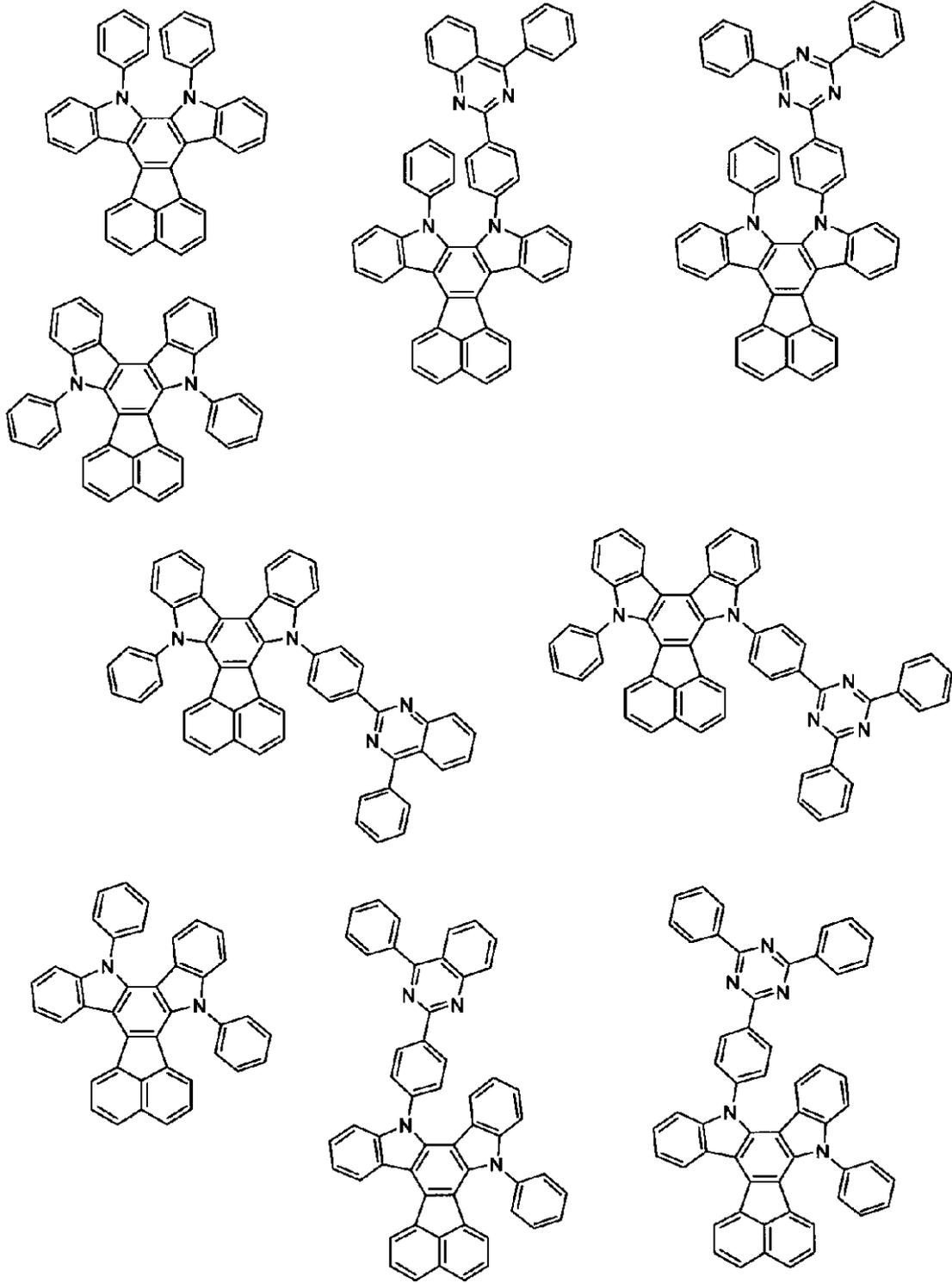


20

30

【 0 1 1 3 】

【化 4 1】



10

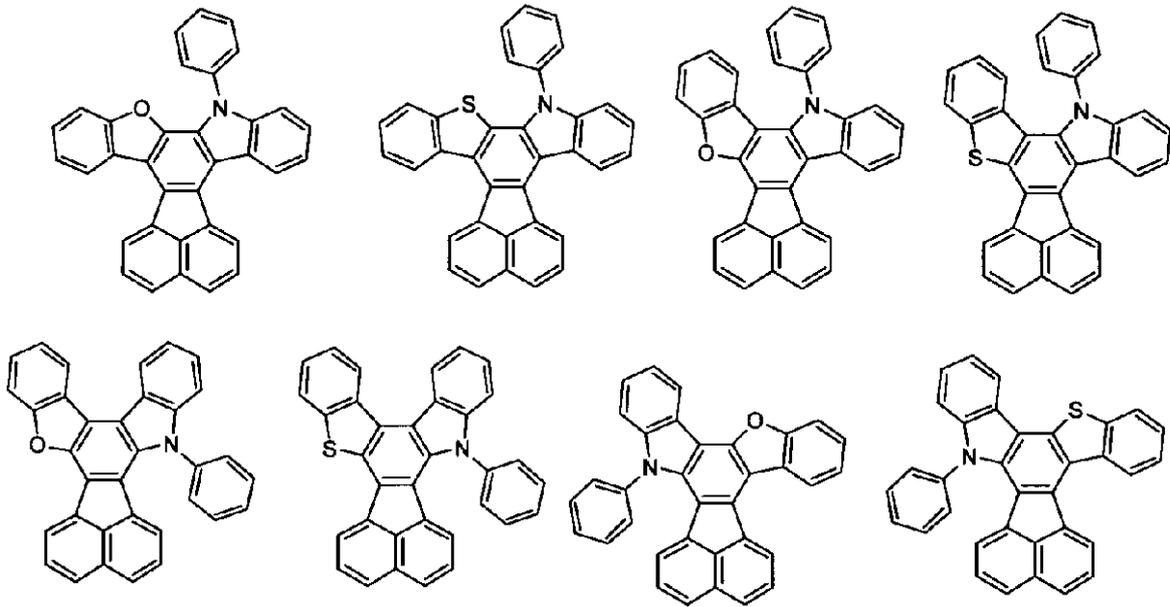
20

30

40

【 0 1 1 4 】

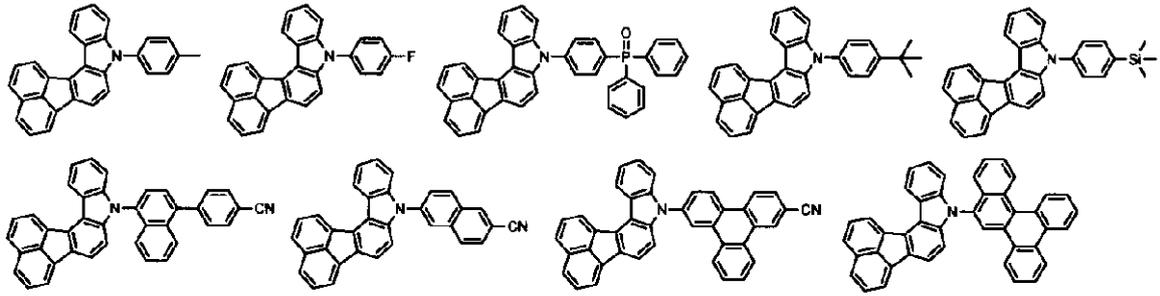
【化 4 2】



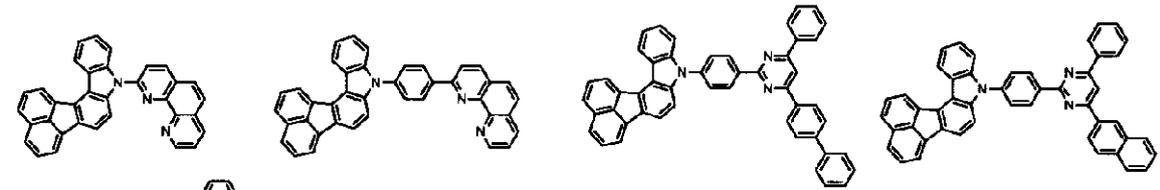
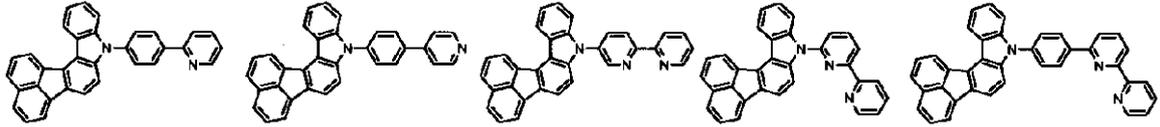
10

【 0 1 1 5 】

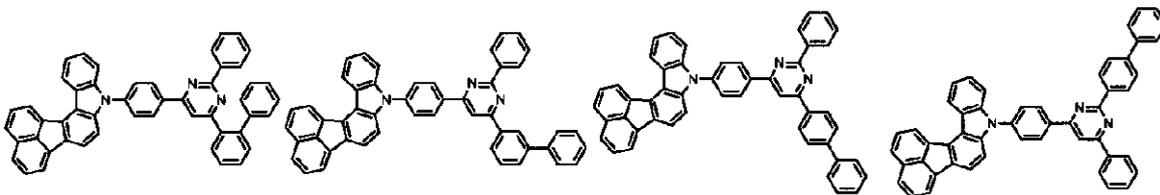
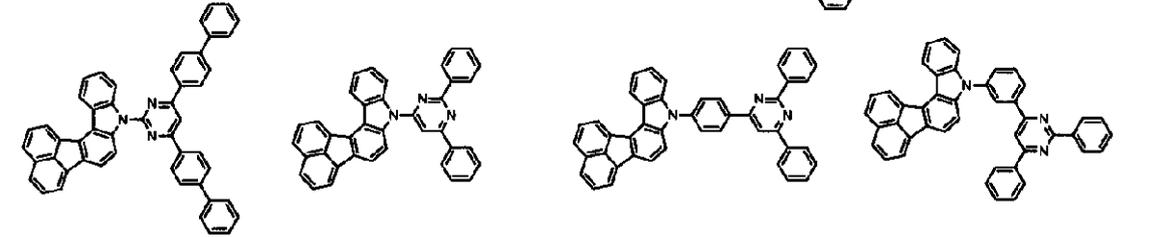
【化 4 3】



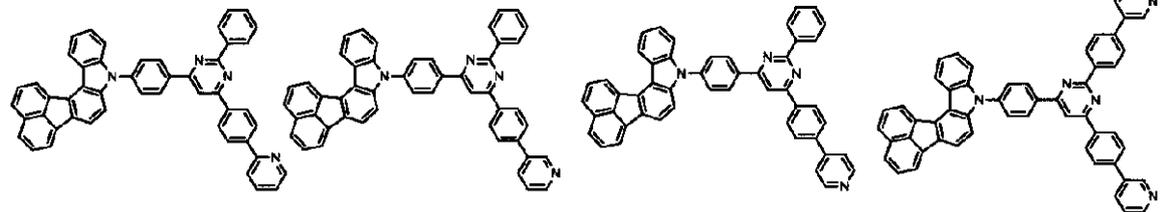
10



20



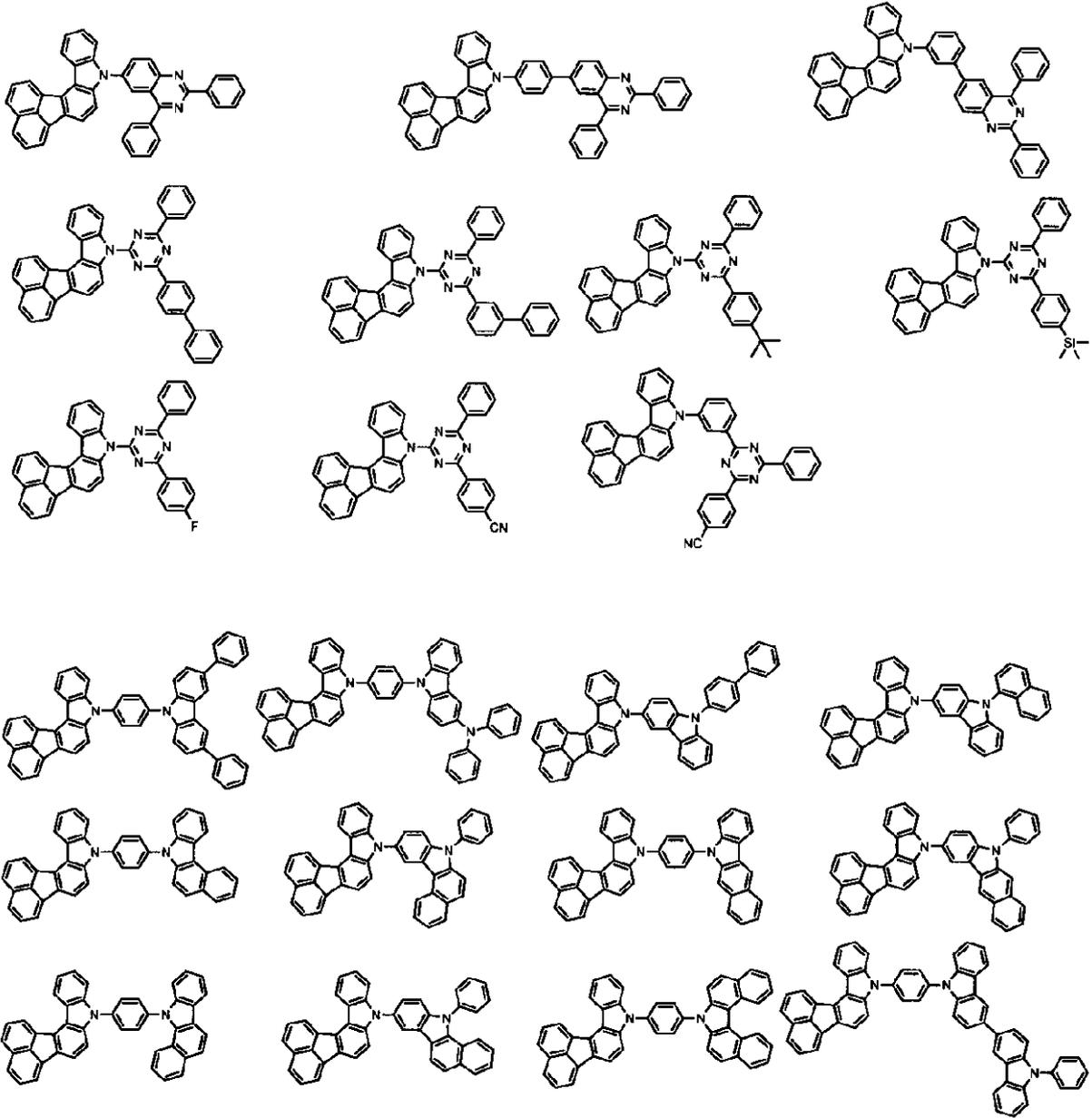
30



40

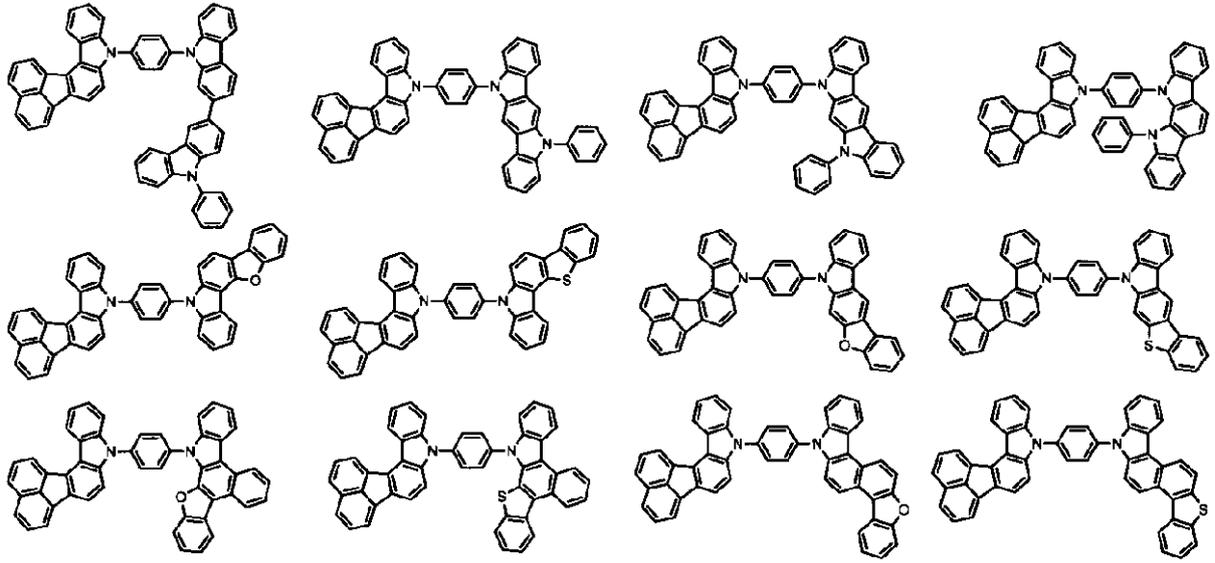
【 0 1 1 6 】

【化 4 4】



【 0 1 1 7 】

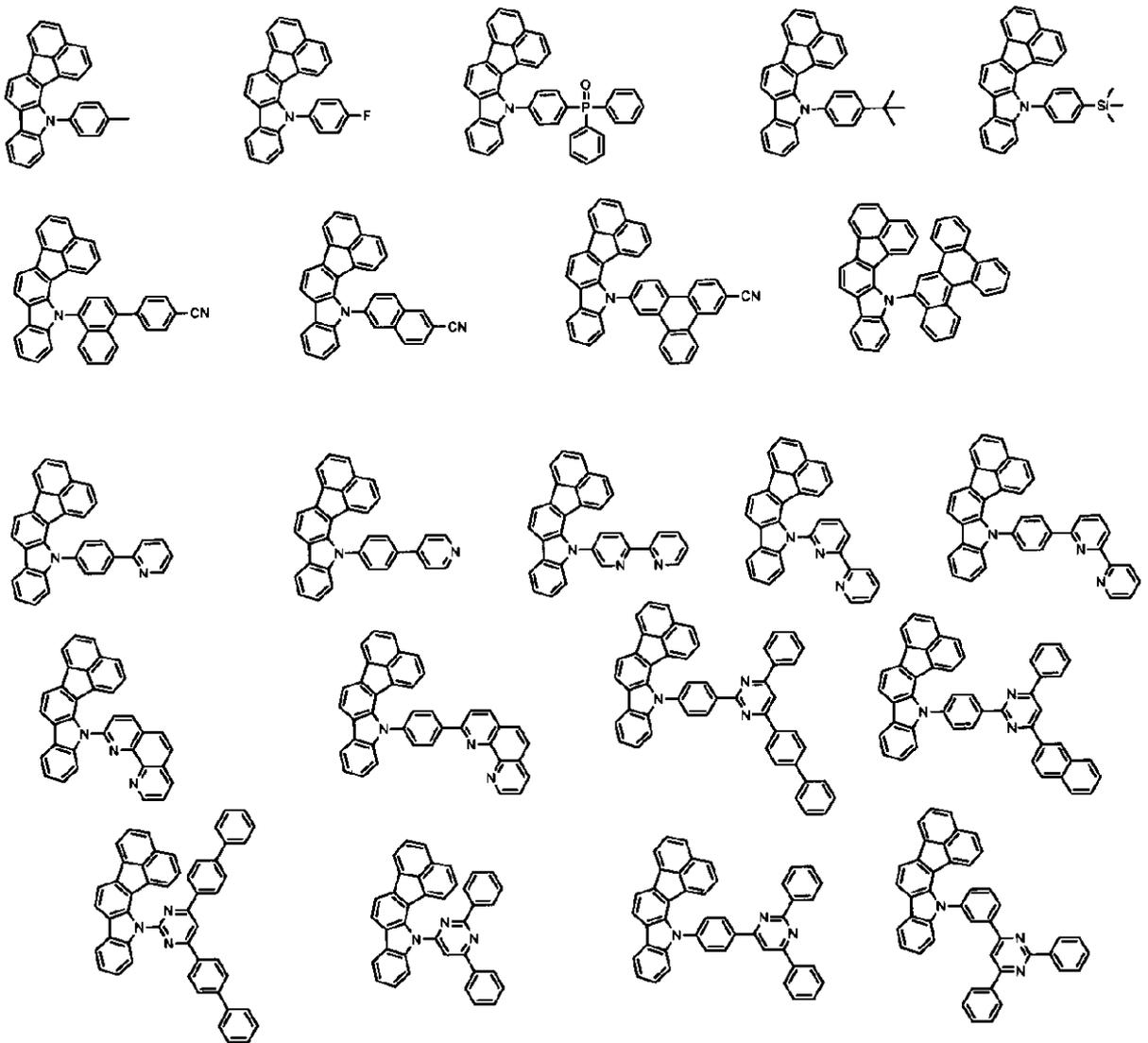
【化 4 5】



10

【 0 1 1 8】

【化 4 6】



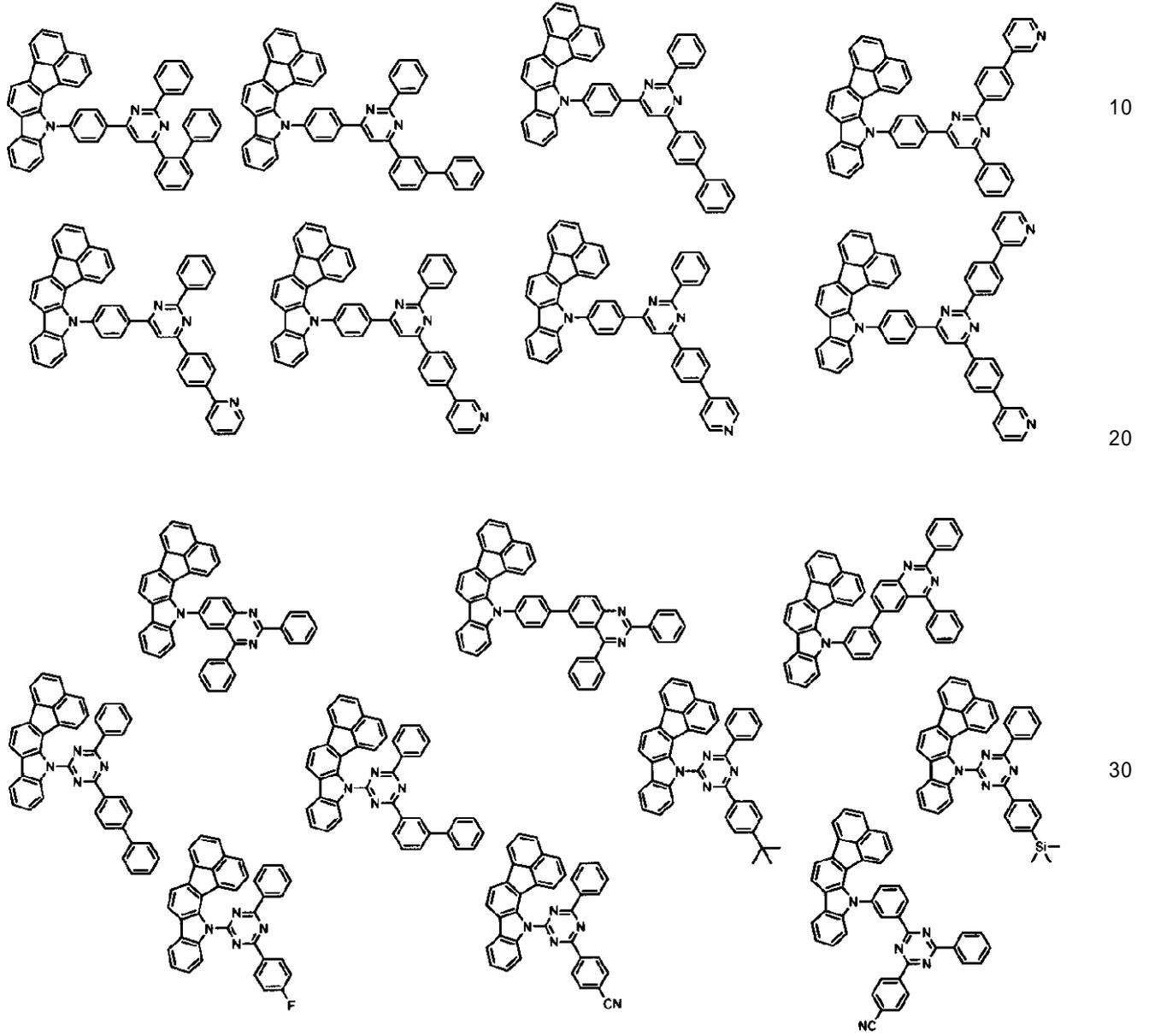
20

30

40

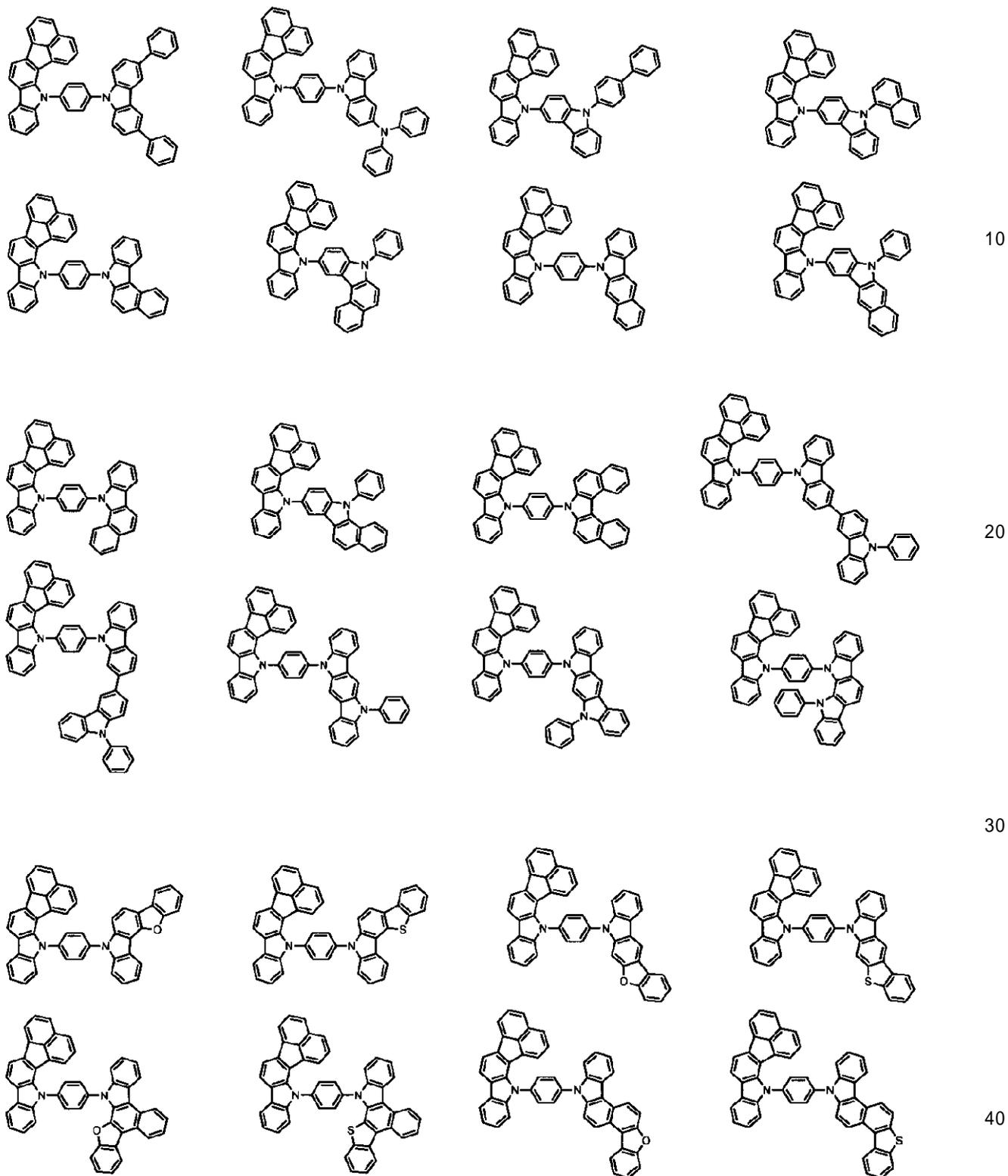
50

【 0 1 1 9 】  
【 化 4 7 】



【 0 1 2 0 】

## 【化 4 8】



## 【0121】

本発明の一実施態様の化合物は、有機EL素子用材料として有効であり、特に有機EL素子の発光層形成用材料、陽極側有機薄膜層（正孔輸送層、正孔注入層等）形成用材料、陰極側有機薄膜層（電子輸送層、電子注入層等）形成用材料として有効である。

## 【 0 1 2 2 】

[ 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料 ]

本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、上記縮合フルオランテン化合物を含む。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料における縮合フルオランテン化合物の含有量は、特に制限されず、例えば、1質量%以上であればよく、10質量%以上であることが好ましく、50質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましく、90質量%以上であることが特に好ましい。

本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、有機EL素子における材料として有用であり、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料及びドーパント材料や、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料として用いることができる。また、蛍光発光ユニット及び燐光発光ユニットのいずれにおいても、有機EL素子の陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層や、有機EL素子の陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層の材料、すなわち、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層、電子阻止層等の材料としても有用である。

ここで、「発光ユニット」とは、一層以上の有機層を含み、そのうちの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ことができる最小単位をいう。

## 【 0 1 2 3 】

( 有機EL素子 )

次に、本発明の一実施態様の有機EL素子について説明する。

本発明の一実施態様の有機EL素子は、陰極と陽極の間に発光層を含有する有機薄膜層を有し、この有機薄膜層のうちの少なくとも1層が、前述した本発明の一実施態様の化合物を含む。

前述の本発明の一実施態様の化合物が含まれる有機薄膜層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる陽極側有機薄膜層（正孔輸送層、正孔注入層等）、発光層、陰極と発光層との間に設けられる陰極側有機薄膜層（電子輸送層、電子注入層等）、スペース層、障壁層等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

前述の本発明の一実施態様の化合物は、上記いずれの層に含まれていてもよく、例えば、蛍光発光ユニットの発光層におけるホスト材料やドーパント材料、燐光発光ユニットの発光層におけるホスト材料等として用いることが好ましい。また、発光ユニットの正孔輸送層や正孔注入層等の陽極側有機薄膜層、電子輸送層や電子注入層等の陰極側有機薄膜層に前述の本発明の一実施態様の化合物を含有してもよい。

## 【 0 1 2 4 】

本発明の一実施態様の有機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、燐光発光型であることが好ましい。ここで、「発光ユニット」とは、一層以上の有機層を含み、そのうちの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ことができる最小単位をいう。

## 【 0 1 2 5 】

従って、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。発光ユニットの代表的な層構成を以下に示す。

( a ) 正孔輸送層 / 発光層 ( / 電子輸送層 )

( b ) 正孔輸送層 / 第一燐光発光層 / 第二燐光発光層 ( / 電子輸送層 )

( c ) 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 )

- ( d ) 正孔輸送層 / 第一燐光発光層 / 第二燐光発光層 / スペース層 / 蛍光発光層 ( / 電子輸送層 )
- ( e ) 正孔輸送層 / 第一燐光発光層 / スペース層 / 第二燐光発光層 / スペース層 / 蛍光発光層 ( / 電子輸送層 )
- ( f ) 正孔輸送層 / 燐光発光層 / スペース層 / 第一蛍光発光層 / 第二蛍光発光層 ( / 電子輸送層 )
- ( g ) 正孔輸送層 / 電子障壁層 / 発光層 ( / 電子輸送層 )
- ( h ) 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔障壁層 ( / 電子輸送層 )
- ( i ) 正孔輸送層 / 蛍光発光層 / トリプレット障壁層 ( / 電子輸送層 )

10

【 0 1 2 6 】

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、上記積層発光層 ( d ) において、正孔輸送層 / 第一燐光発光層 ( 赤色発光 ) / 第二燐光発光層 ( 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との間には、適宜、電子障壁層を設けてもよい。また、各発光層と電子輸送層との間には、適宜、正孔障壁層を設けてもよい。電子障壁層や正孔障壁層を設けることで、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。

【 0 1 2 7 】

タンデム型有機 E L 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。

20

- ( 2 ) 陽極 / 第一発光ユニット / 中間層 / 第二発光ユニット / 陰極

ここで、上記第一発光ユニット及び第二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と同様のものを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、第一発光ユニットに電子を、第二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。

【 0 1 2 8 】

図 1 に、本発明の一実施態様の有機 E L 素子の一例の概略構成を示す。有機 E L 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 1 0 とを有する。発光ユニット 1 0 は、燐光ホスト材料と燐光ドーパント ( 燐光発光材料 ) を含む少なくとも 1 つの燐光発光層を含む発光層 5 を有する。発光層 5 と陽極 3 との間に正孔注入・輸送層 6 等、発光層 5 と陰極 4 との間に電子注入・輸送層 7 等を形成してもよい。また、発光層 5 の陽極 3 側に電子障壁層を、発光層 5 の陰極 4 側に正孔障壁層を、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確率を高めることができる。

30

【 0 1 2 9 】

なお、本明細書において、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構成する材料を意味し、蛍光発光層を構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。

40

【 0 1 3 0 】

- ( 基板 )

本発明の一実施態様の有機 E L 素子は、透光性基板上に作製する。透光性基板は有機 E L 素子を支持する基板であり、400nm ~ 700nm の可視領域の光の透過率が 50% 以上で平滑な基板が好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を原料

50

として用いてなるものを挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を原料として用いてなるものを挙げるができる。

#### 【0131】

(陽極)

有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有するものを用いることが効果的である。陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅等が挙げられる。陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 / 以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10 nm ~ 1 μm、好ましくは10 nm ~ 200 nmの範囲で選択される。

10

#### 【0132】

(陰極)

陰極は電子注入層、電子輸送層又は発光層に電子を注入する役割を担うものであり、仕事関数の小さい材料により形成するのが好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。陰極も、陽極と同様に、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、必要に応じて、陰極側から発光を取り出してもよい。

20

#### 【0133】

(発光層)

発光機能を有する有機層であって、ドーピングシステムを採用する場合、ホスト材料とドーパント材料を含んでいる。このとき、ホスト材料は、主に電子と正孔の再結合を促し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有し、ドーパント材料は、再結合で得られた励起子を効率的に発光させる機能を有する。

燐光素子の場合、ホスト材料は主にドーパントで生成された励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。

30

#### 【0134】

ここで、上記発光層は、例えば、電子輸送性のホストと正孔輸送性のホストを組み合わせるなどして、発光層内のキャリアバランスを調整するダブルホスト(ホスト・コホストともいう)を採用してもよい。

また、量子収率の高いドーパント材料を二種類以上入れることによって、それぞれのドーパントが発光するダブルドーパントを採用してもよい。具体的には、ホスト、赤色ドーパント及び緑色ドーパントを共蒸着することによって、発光層を共通化して黄色発光を実現する態様が挙げられる。

#### 【0135】

上記発光層は、複数の発光層を積層した積層体とすることで、発光層界面に電子と正孔を蓄積させて、再結合領域を発光層界面に集中させて、量子効率を向上させることができる。

発光層への正孔の注入し易さと電子の注入し易さは異なってもよく、また、発光層中での正孔と電子の移動度で表される正孔輸送能と電子輸送能が異なってもよい。

40

#### 【0136】

発光層は、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法により形成することができる。また、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かした溶液をスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物

50

から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

【0137】

発光層を形成する燐光ドーパント（燐光発光材料）は三重項励起状態から発光することができる化合物であり、三重項励起状態から発光する限り特に限定されないが、Ir, Pt, Os, Au, Cu, Re及びRuから選択される少なくとも一つの金属と配位子とを含む有機金属錯体であることが好ましい。前記配位子は、オルトメタル結合を有することが好ましい。燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、Ir, Os及びPtから選ばれる金属原子を含有する金属錯体が好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体、特にIr, Os, Ptから選択される金属原子のオルトメタル化錯体がより好ましく、イリジウム錯体及び白金錯体がさらに好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が特に好ましい。

10

【0138】

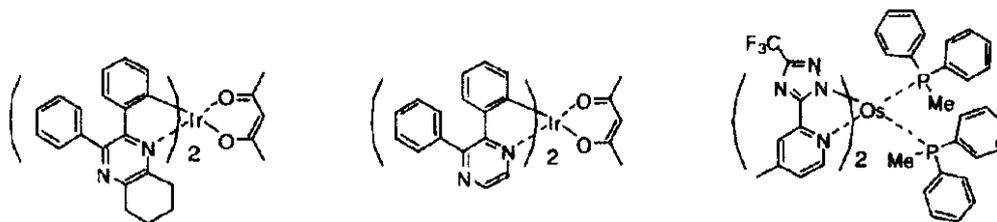
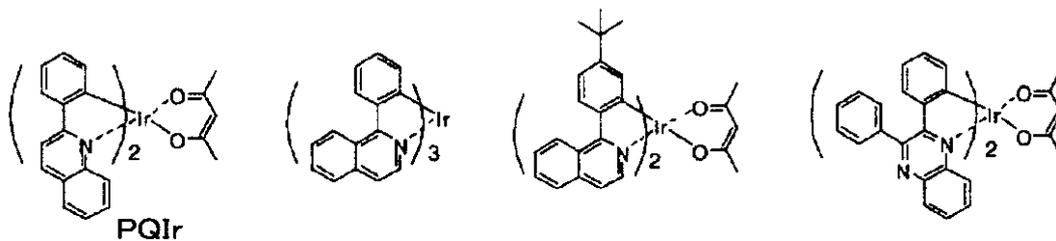
燐光ドーパントの発光層における含有量は特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1～70質量%が好ましく、1～30質量%がより好ましい。燐光ドーパントの含有量が0.1質量%以上であると十分な発光が得られ、70質量%以下であると濃度消光を避けることができる。

【0139】

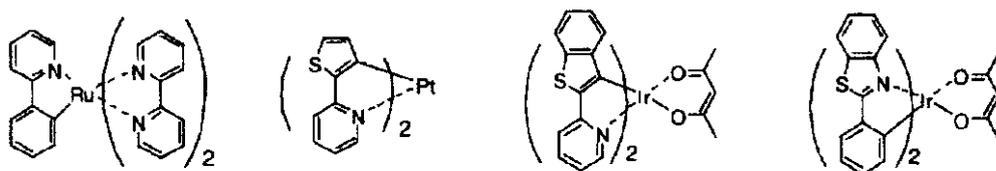
燐光ドーパントとして好ましい有機金属錯体の具体例を、以下に示す。

20

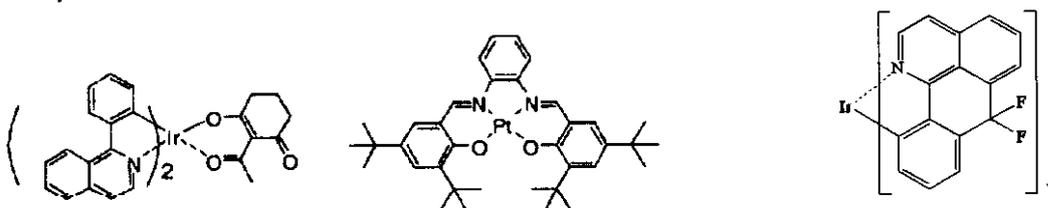
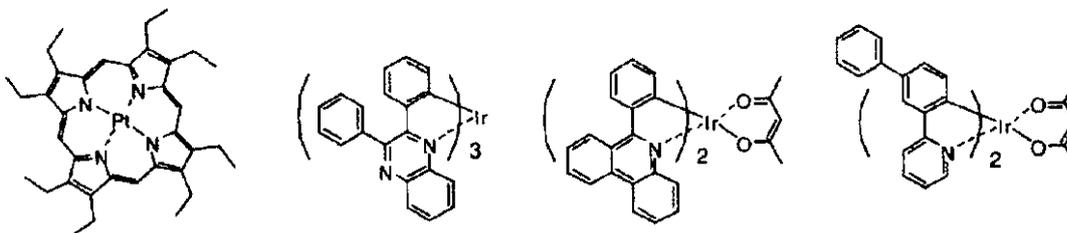
【化 4 9】



10



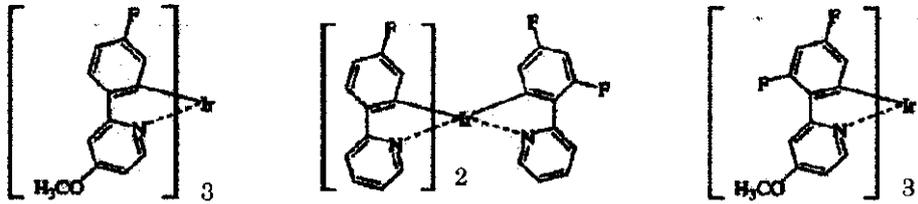
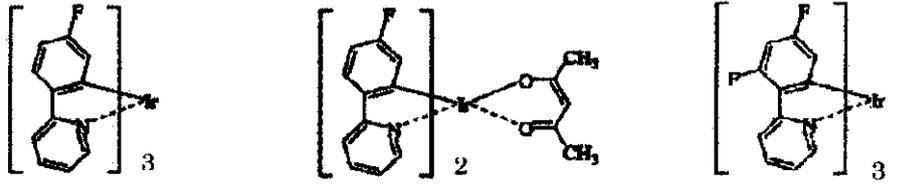
20



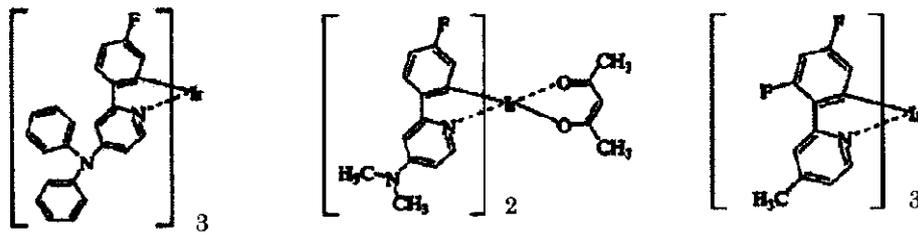
30

【 0 1 4 0】

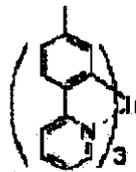
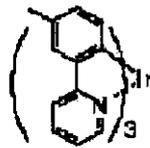
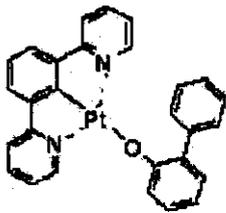
【化50】



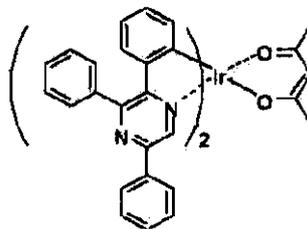
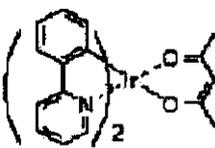
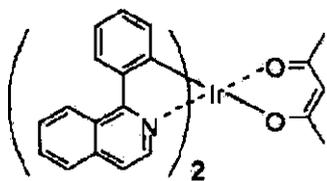
10



20



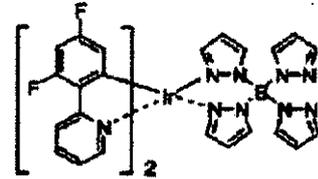
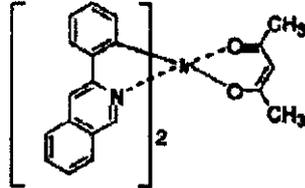
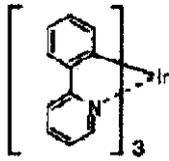
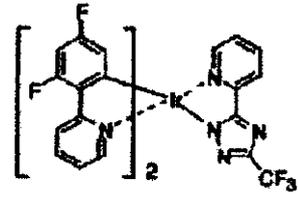
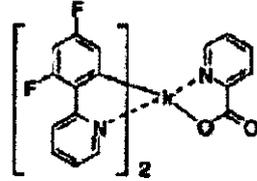
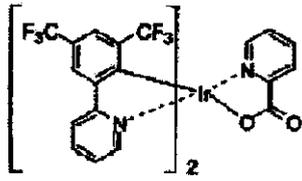
30



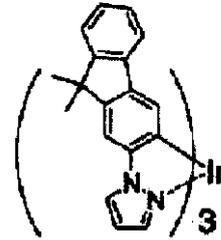
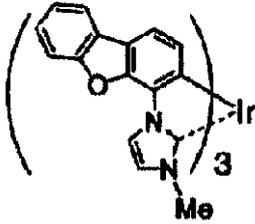
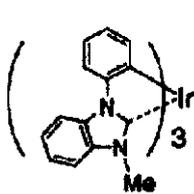
【0141】

40

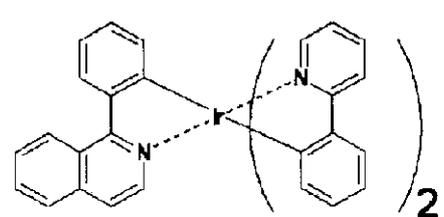
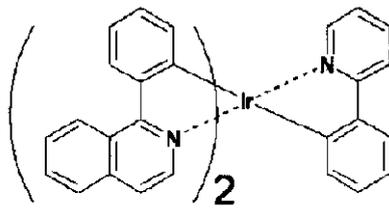
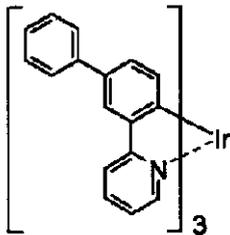
【化 5 1】



10



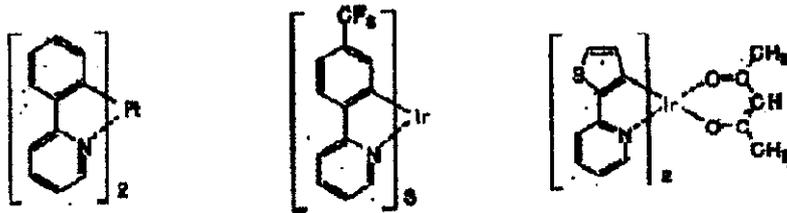
20



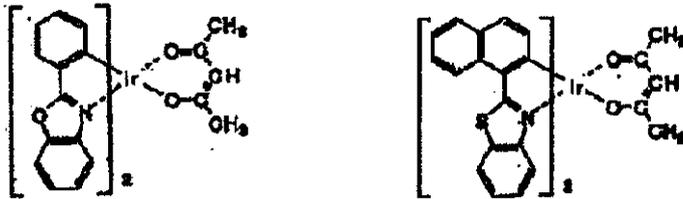
30

【 0 1 4 2 】

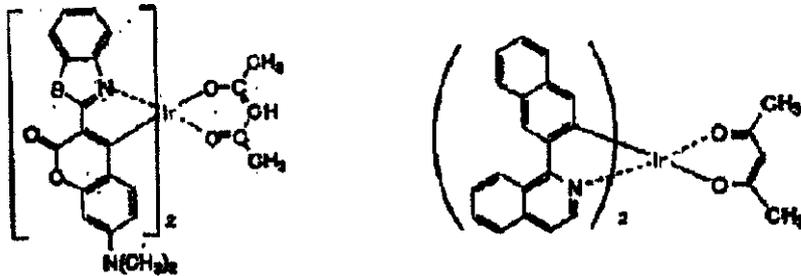
【化 5 2】



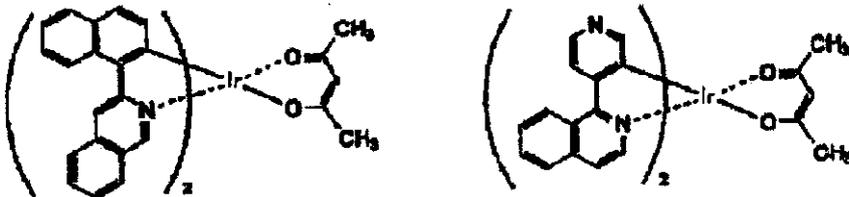
10



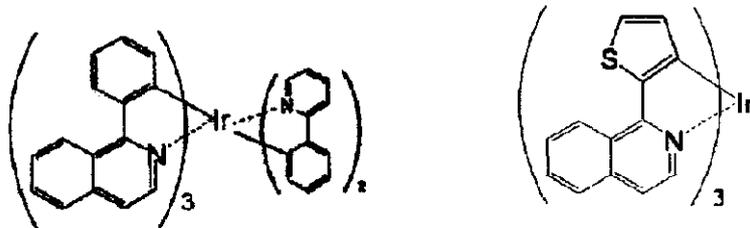
20



30



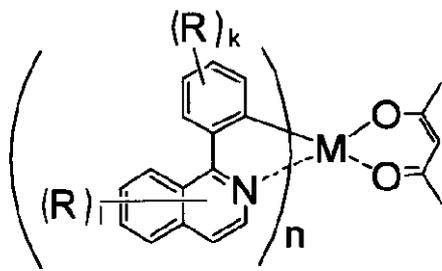
40



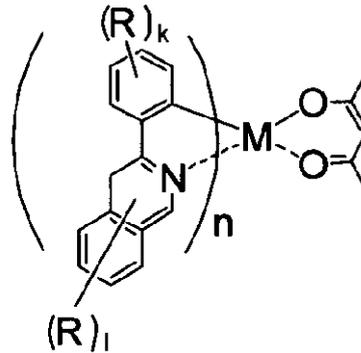
【 0 1 4 3】

さらに、本発明の一実施態様の有機EL素子においては、燐光ドーパントとして、下記一般式(X)又は(Y)で表される錯体が好ましい。

【化 5 3】



(X)



(Y)

10

【 0 1 4 4 】

一般式 ( X )、( Y )において、Rは、それぞれ独立に、水素原子または置換基であり、kは、1 ~ 4の整数であり、lは、1 ~ 6の整数である。nは、2 ~ 4の整数である。Mは、I r、O s、またはP tである。Rの置換基としては、一般式 ( 1 )の置換基と同様の例が挙げられる。

【 0 1 4 5 】

燐光ホストは、燐光ドーパントの三重項エネルギーを効率的に発光層内に閉じ込めることにより、燐光ドーパントを効率的に発光させる機能を有する化合物である。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は燐光ホストとして有用であるが、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料以外の化合物も、燐光ホストとして、上記目的に応じて適宜選択することができる。

20

本発明の一実施態様の有機EL素子用材料とそれ以外の化合物を同一の発光層内の燐光ホスト材料として併用してもよいし、複数の発光層がある場合には、そのうちの一つの発光層の燐光ホスト材料として本発明の一実施態様の有機EL素子用材料を用い、別の一つの発光層の燐光ホスト材料として本発明の一実施態様の有機EL素子用材料以外の化合物を用いてもよい。また、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は発光層以外の有機層にも使用しうるものであり、その場合には発光層の燐光ホストとして、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料以外の化合物を用いてもよい。

30

【 0 1 4 6 】

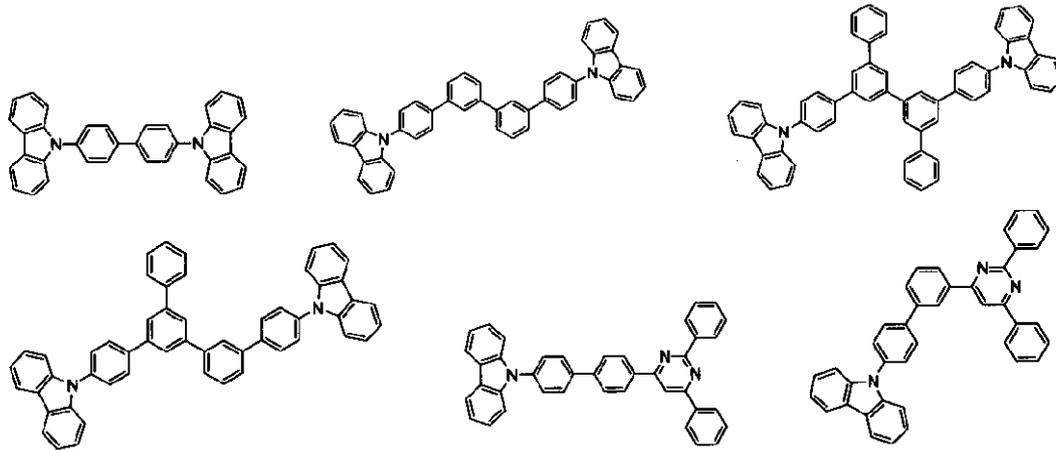
本発明の一実施態様の有機EL素子用材料以外の化合物で、燐光ホストとして好適な化合物の具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8 - キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体ポリシラン系化合物、ポリ ( N - ビニルカルバゾール ) 誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。燐光ホストは単独で使用しても良いし、2種以上を併用しても良い。具体例としては、以下のような化合物が挙げられる。

40

【 0 1 4 7 】

50

## 【化54】



10

## 【0148】

本発明の一実施態様の有機EL素子は、蛍光発光材料を含有する発光層、つまり蛍光発光層を有していてもよい。蛍光発光層としては、公知の蛍光発光材料を含有する。該蛍光発光材料としては、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体及びアリアルアミン誘導体から選択される少なくとも1種が好ましく、アントラセン誘導体、アリアルアミン誘導体がより好ましい。特に、ホスト材料としてはアントラセン誘導体が好ましく、ドーパントとしてはアリアルアミン誘導体が好ましい。具体的には、国際公開第2010/134350号や国際公開第2010/134352号に記載する好適な材料が選択される。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、蛍光発光層の蛍光発光材料として用いてもよく、蛍光発光層のホスト材料として用いてもよい。

20

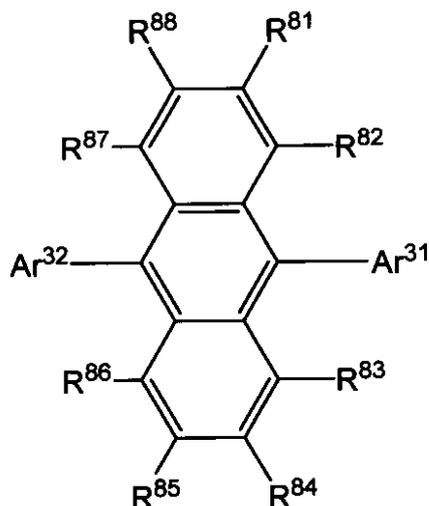
## 【0149】

蛍光発光材料としての前記アントラセン誘導体の環形成炭素数は、好ましくは26~100、より好ましくは26~80、さらに好ましくは26~60である。該アントラセン誘導体としては、より具体的には下記式(100)で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

30

## 【0150】

## 【化55】



(100)

40

## 【0151】

(上記式(100)中、Ar<sup>31</sup>及びAr<sup>32</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリアル基又は環形成原子数5~50のヘテロアリアル基である。

R<sup>81</sup>~R<sup>88</sup>は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~5

50

0のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシル基である。)

上記環形成炭素数6～50のアリール基としては、いずれも、環形成炭素数6～40のアリール基が好ましく、環形成炭素数6～30のアリール基がより好ましい。

上記環形成原子数5～50のヘテロアリール基としては、いずれも、環形成原子数5～40のヘテロアリール基が好ましく、環形成原子数5～30のヘテロアリール基がより好ましい。

上記炭素数1～50のアルキル基としては、炭素数1～30のアルキル基が好ましく、炭素数1～10のアルキル基がより好ましく、炭素数1～5のアルキル基がさらに好ましい。

上記炭素数1～50のアルコキシ基としては、炭素数1～30のアルコキシ基が好ましく、炭素数1～10のアルコキシ基がより好ましく、炭素数1～5のアルコキシ基がさらに好ましい。

上記炭素数7～50のアラルキル基としては、炭素数7～30のアラルキル基が好ましく、炭素数7～20のアラルキル基がより好ましい。

上記環形成炭素数6～50のアリールオキシ基としては、環形成炭素数6～40のアリールオキシ基が好ましく、環形成炭素数6～30のアリールオキシ基がより好ましい。

上記環形成炭素数6～50のアリールチオ基としては、環形成炭素数6～40のアリールチオ基が好ましく、環形成炭素数6～30のアリールチオ基がより好ましい。

上記炭素数2～50のアルコキシカルボニル基としては、炭素数2～30のアルコキシカルボニル基が好ましく、炭素数2～10のアルコキシカルボニル基がより好ましく、炭素数2～5のアルコキシカルボニル基がさらに好ましい。

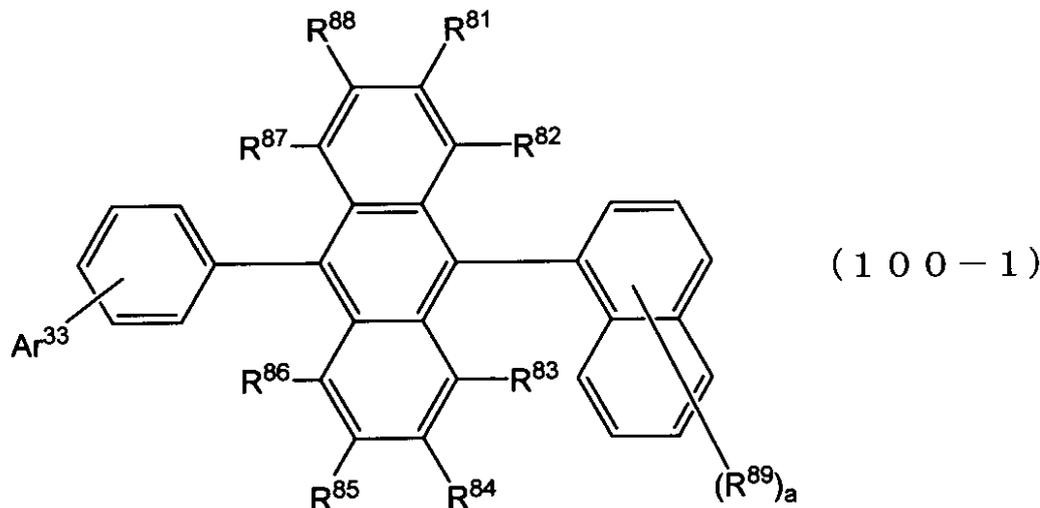
上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

特に、 $Ar^{31}$ 及び $Ar^{32}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基であることが好ましい。

また、式(100)で表されるアントラセン誘導体としては、下記式(100-1)で表されるアントラセン誘導体が好ましい。

【0152】

【化56】



【0153】

(上記式(100-1)中、 $Ar^{33}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のア

リール基又は環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基である。R<sup>81</sup> ~ R<sup>88</sup> は、前記定義の通りである。R<sup>89</sup> は、R<sup>81</sup> ~ R<sup>88</sup> の定義と同じである。a は、1 ~ 7 の整数である。)

R<sup>81</sup> ~ R<sup>88</sup> は、好ましいものも前記同様である。また、R<sup>89</sup> の好ましいものも、R<sup>81</sup> ~ R<sup>88</sup> と同様である。a は 1 ~ 3 の整数が好ましく、1 又は 2 がより好ましい。

Ar<sup>33</sup> が表す環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基としては、環形成炭素数 6 ~ 40 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6 ~ 20 のアリール基がさらに好ましく、環形成炭素数 6 ~ 12 のアリール基が特に好ましい。

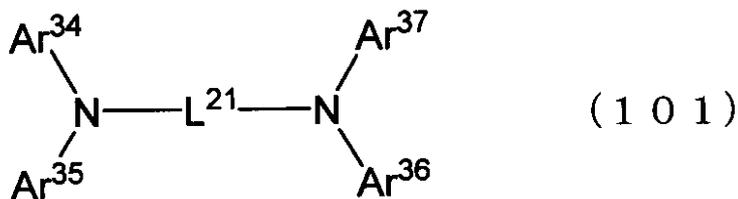
【0154】

蛍光発光材料としての前記アリールアミン誘導体としては、アリールジアミン誘導体が好ましく、ピレン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がより好ましく、ピレン骨格及びジベンゾフラン骨格を含有するアリールジアミン誘導体がさらに好ましい。

アリールジアミン誘導体としては、より具体的には、下記式 (101) で表されるアリールジアミン誘導体が好ましい。

【0155】

【化57】



【0156】

(式 (101) 中、Ar<sup>34</sup> ~ Ar<sup>37</sup> は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリール基を表す。

L<sup>21</sup> は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリーレン基を表す。)

上記環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基としては、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリール基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 20 のアリール基がより好ましく、環形成炭素数 6 ~ 12 のアリール基がさらに好ましく、フェニル基、ナフチル基が特に好ましい。

上記環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリール基としては、環形成原子数 5 ~ 40 のヘテロアリール基が好ましく、環形成原子数 5 ~ 30 のヘテロアリール基がより好ましく、環形成原子数 5 ~ 20 のヘテロアリール基がさらに好ましい。ヘテロアリール基としては、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフエニル基などが挙げられ、ジベンゾフラニル基が好ましい。該ヘテロアリール基の好ましい置換基としては、環形成炭素数 6 ~ 30 (好ましくは 6 ~ 20、より好ましくは 6 ~ 12) のアリール基が挙げられ、フェニル基、ナフチル基がより好ましい。

上記環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基としては、環形成炭素数 6 ~ 40 のアリーレン基が好ましく、環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーレン基がより好ましく、環形成炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基がさらに好ましく、ピレニル基が特に好ましい。

【0157】

発光層は、ダブルホスト (ホスト・コホストともいう) としてもよい。具体的に、発光層において電子輸送性のホストと正孔輸送性のホストを組み合わせることで、発光層内のキャリアバランスを調整してもよい。

また、ダブルドープメントとしてもよい。発光層において、量子収率の高いドープメント材料を 2 種類以上入れることによって、それぞれのドープメントが発光する。例えば、ホストと赤色ドープメント、緑色のドープメントを共蒸着することによって、黄色の発光層を実現することがある。

【0158】

10

20

30

40

50

また、発光層は、必要に応じて正孔輸送材、電子輸送材、ポリマーバインダーを含有してもよい。

さらに、発光層の膜厚は、好ましくは5～50nm、より好ましくは7～50nm、最も好ましくは10～50nmである。5nm未満では発光層形成が困難となり、色度の調整が困難となる恐れがあり、50nmを超えると駆動電圧が上昇する恐れがある。

#### 【0159】

(電子供与性ドーパント)

本発明の一実施態様の有機EL素子は、陰極と発光ユニットとの界面領域に電子供与性ドーパントを有することも好ましい。このような構成によれば、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。ここで、電子供与性ドーパントとは、仕事関数3.8eV以下の金属を含有するものをいい、その具体例としては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

10

#### 【0160】

アルカリ金属としては、Na(仕事関数:2.36eV)、K(仕事関数:2.28eV)、Rb(仕事関数:2.16eV)、Cs(仕事関数:1.95eV)等が挙げられ、仕事関数が2.9eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。アルカリ土類金属としては、Ca(仕事関数:2.9eV)、Sr(仕事関数:2.0eV～2.5eV)、Ba(仕事関数:2.52eV)等が挙げられ、仕事関数が2.9eV以下のものが特に好ましい。希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9eV以下のものが特に好ましい。

20

#### 【0161】

アルカリ金属化合物としては、Li<sub>2</sub>O、Cs<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、Li<sub>2</sub>O、NaFが好ましい。アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>O(0<x<1)、Ba<sub>x</sub>Ca<sub>1-x</sub>O(0<x<1)等が挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。希土類金属化合物としては、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、ScO<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GdF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>等が挙げられ、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>が好ましい。

30

#### 【0162】

アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、-ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

40

#### 【0163】

電子供与性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する有機化合物(発光材料や電子注入材料)を同時に蒸着させ、有機化合物に電子供与性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で有機化合物:電子供与性ドーパント=100:1～1:100、好ましくは5:1～1:5である。

#### 【0164】

電子供与性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注

50



ル基、及びアラルキル基を含む。

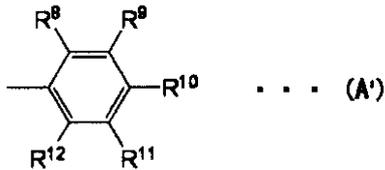
アルコキシカルボニル基は  $-COOY'$  と表され、 $Y'$  は炭素数 1 ~ 20 のアルキル基を表す。

M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、In であると好ましい。

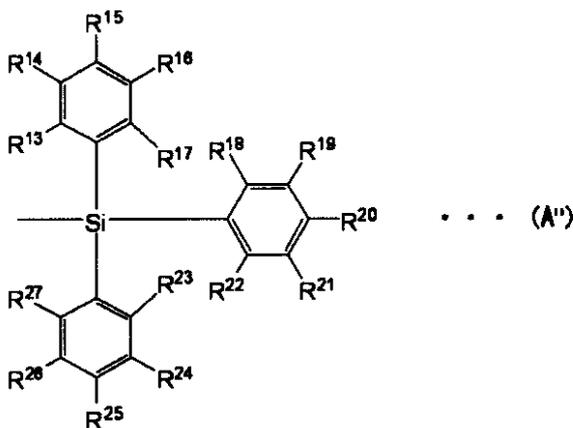
L は、下記式 (A') 又は (A'') で表される基である。

【0171】

【化59】



10



20

【0172】

式 (A') 中、 $R^8 \sim R^{12}$  は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、または置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、前記式 (A'') 中、 $R^{13} \sim R^{27}$  は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

30

【0173】

式 (A') 及び式 (A'') の  $R^8 \sim R^{12}$  及び  $R^{13} \sim R^{27}$  が示す炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基は、前記式 (A) 中の  $R^2 \sim R^7$  が示す炭化水素基と同様である。また、 $R^8 \sim R^{12}$  及び  $R^{13} \sim R^{27}$  の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の 2 価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン - 2, 2' - ジイル基、ジフェニルエタン - 3, 3' - ジイル基、ジフェニルプロパン - 4, 4' - ジイル基等が挙げられる。

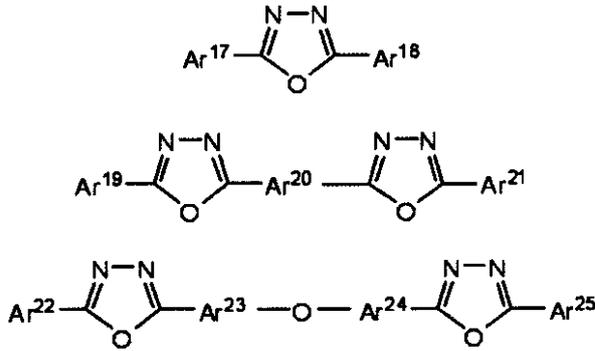
【0174】

電子輸送層に用いられる電子伝達性化合物としては、8 - ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環誘導体が好適である。上記 8 - ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシノ (一般に 8 - キノリノール又は 8 - ヒドロキシキノリン) のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えばトリス (8 - キノリノール) アルミニウムを用いることができる。そして、オキサジアゾール誘導体としては、下記のものを用いることができる。

40

【0175】

## 【化60】



10

## 【0176】

前記式中、 $Ar^{17}$ 、 $Ar^{18}$ 、 $Ar^{19}$ 、 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ 及び $Ar^{25}$ は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数6～50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 $Ar^{17}$ と $Ar^{18}$ 、 $Ar^{19}$ と $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ と $Ar^{25}$ は、たがいに同一でも異なってもよい。芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

## 【0177】

$Ar^{20}$ 、 $Ar^{23}$ 及び $Ar^{24}$ は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数6～50の2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基を示し、 $Ar^{23}$ と $Ar^{24}$ は、たがいに同一でも異なってもよい。2価の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ピフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。これらの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。

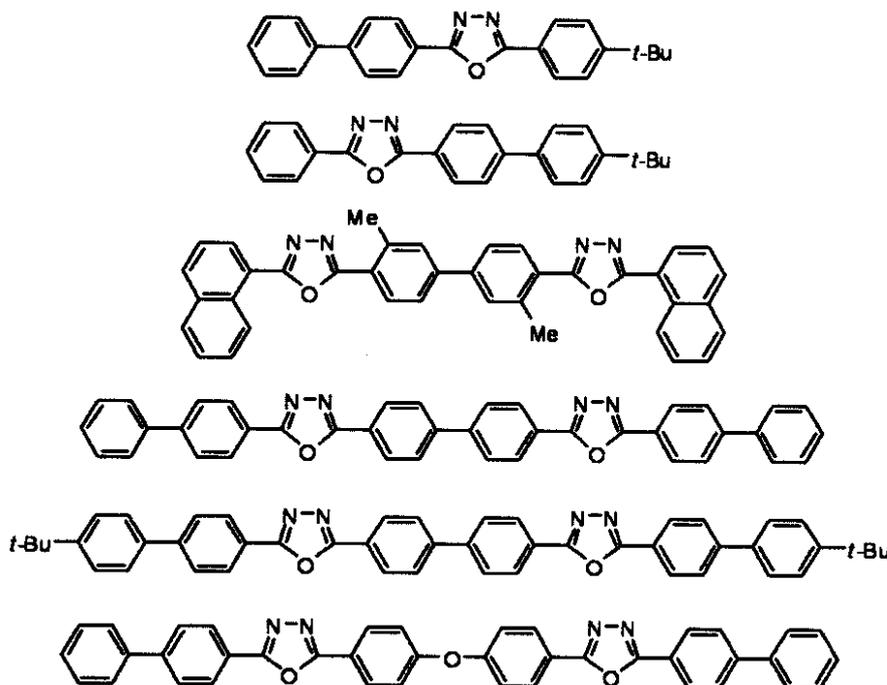
20

## 【0178】

これらの電子伝達性化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のを挙げる事ができる。

## 【0179】

## 【化61】



40

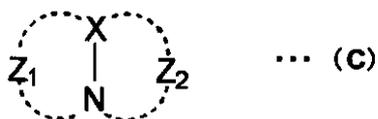
50

## 【0180】

電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体は、以下の式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、下記式(B)に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、下記式(C)に示す構造のものが挙げられる。

## 【0181】

## 【化62】



10

## 【0182】

前記式(C)中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z<sub>1</sub>ならびにZ<sub>2</sub>は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

## 【0183】

含窒素複素環誘導体は、さらに好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物である。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記式(B)と(C)もしくは上記式(B)と下記式(D)を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物が好ましい。

20

## 【0184】

## 【化63】



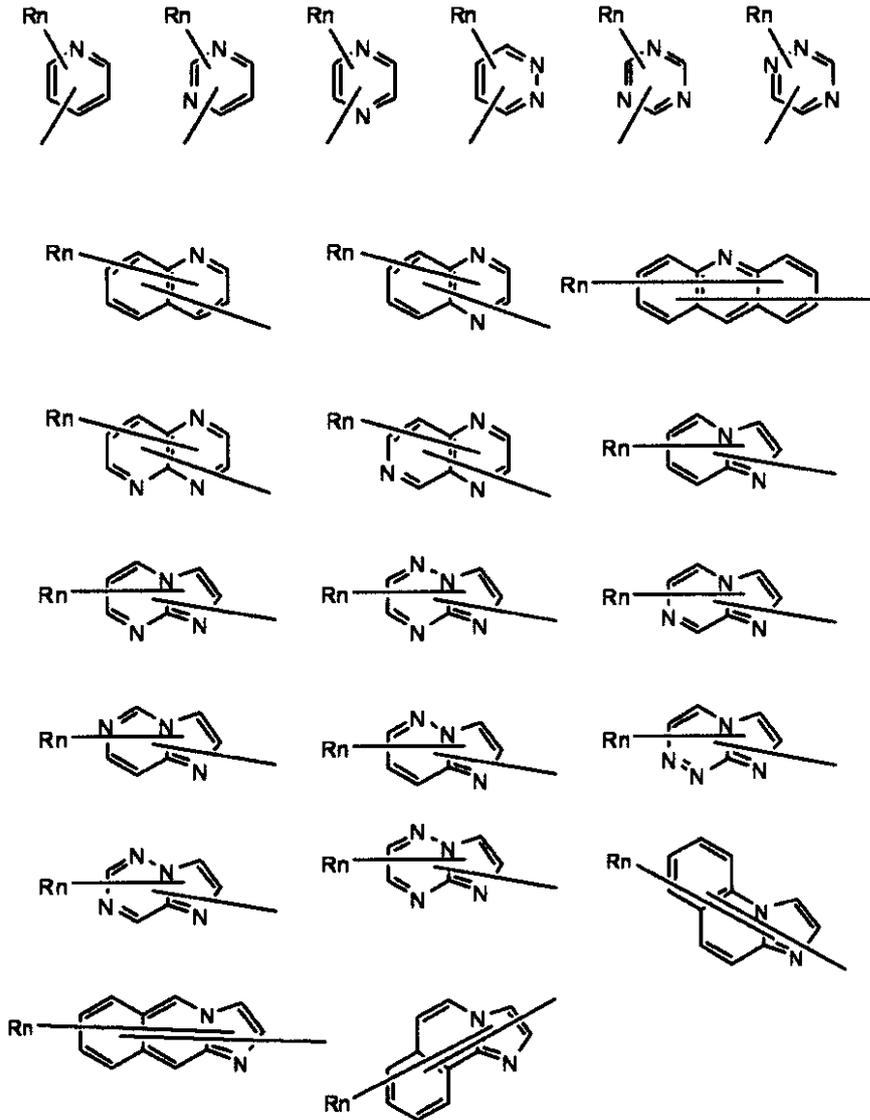
## 【0185】

前記の含窒素芳香多環有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の式で表される含窒素複素環基から選択される。

30

## 【0186】

## 【化 6 4】



10

20

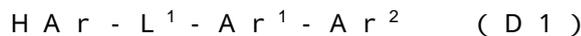
30

## 【0187】

前記各式中、Rは、炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、炭素数1～20のアルキル基、または炭素数1～20のアルコキシ基であり、nは0～5の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数のRは互いに同一又は異なってもよい。

## 【0188】

さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式(D1)で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。



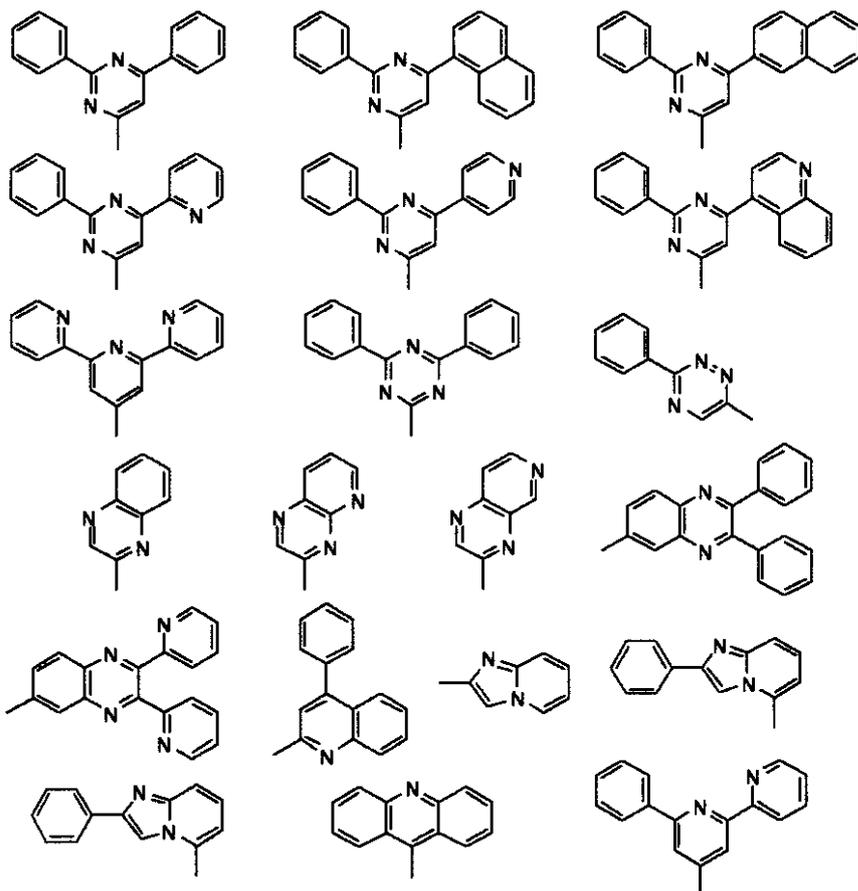
40

前記式(D1)中、HArは、置換もしくは無置換の炭素数3～40の含窒素複素環基であり、L<sup>1</sup>は単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、Ar<sup>1</sup>は置換もしくは無置換の炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、Ar<sup>2</sup>は置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。

## 【0189】

HArは、例えば、下記の群から選択される。

【化65】



10

20

30

【0190】

L<sup>1</sup>は、例えば、下記の群から選択される。

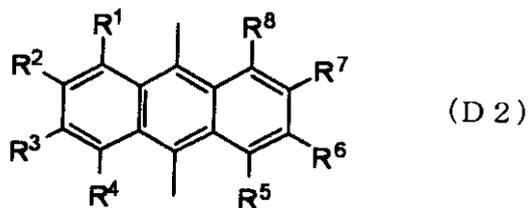
【化66】



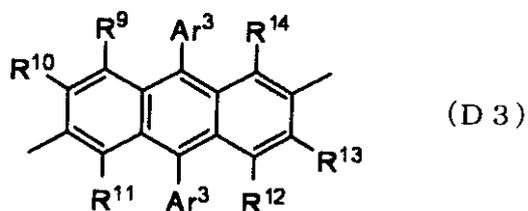
【0191】

Ar<sup>1</sup>は、例えば、下記式(D2)、式(D3)で表される基から選択される。

【化67】



40



【0192】

前記式(D2)、式(D3)中、R<sup>1</sup>~R<sup>14</sup>は、それぞれ独立して、水素原子、重水素

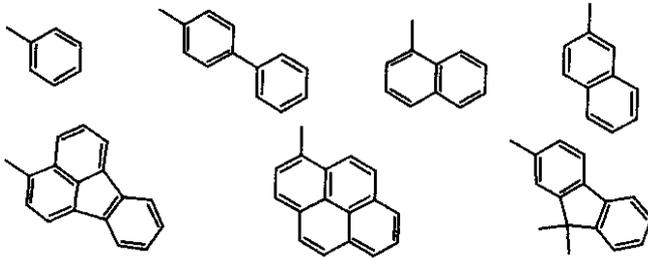
50

原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 40 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基であり、 $Ar^3$  は、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基または置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 40 の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基である。また、 $R^1 \sim R^8$  は、いずれも水素原子又は重水素原子である含窒素複素環誘導体であってもよい。

【0193】

$Ar^2$  は、例えば、下記の群から選択される。

【化68】



10

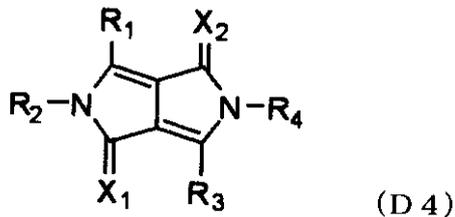
【0194】

電子伝達性化合物としての含窒素芳香多環有機化合物には、この他、下記式 (D4) で表される化合物も好適に用いられる。

20

【0195】

【化69】



30

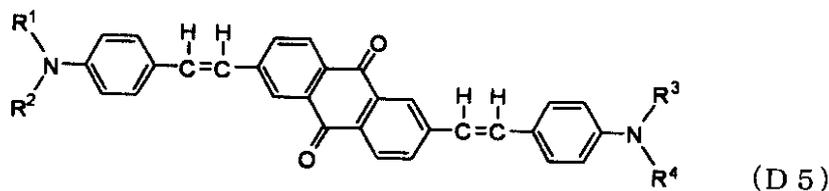
【0196】

前記式 (D4) 中、 $R_1 \sim R_4$  は、それぞれ独立に、水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の脂肪族基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 20 の脂肪族式環基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 50 の芳香族環基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 50 の複素環基を表し、 $X_1$ 、 $X_2$  は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、またはジシアノメチレン基を表す。

【0197】

また、電子伝達性化合物として、下記式 (D5) で表される化合物も好適に用いられる。

【化70】

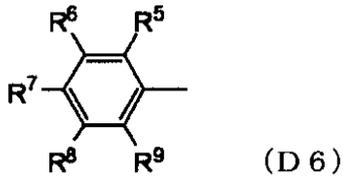


40

【0198】

前記式 (D5) 中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  及び  $R^4$  は互いに同一のまたは異なる基であって、下記式 (D6) で表される芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基である。

## 【化 7 1】



## 【0199】

前記式 (D6) 中、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$  及び  $R^9$  は互いに同一または異なる基であって、水素原子、重水素原子、飽和もしくは不飽和の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシル基、飽和もしくは不飽和の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、アミノ基、または炭素数 1 ~ 20 のアルキルアミノ基である。 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$  及び  $R^9$  の少なくとも 1 つは水素原子、重水素原子以外の基である。

10

## 【0200】

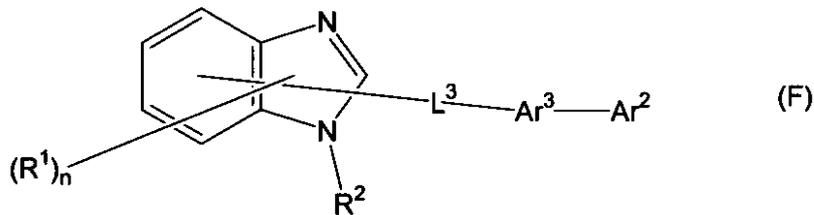
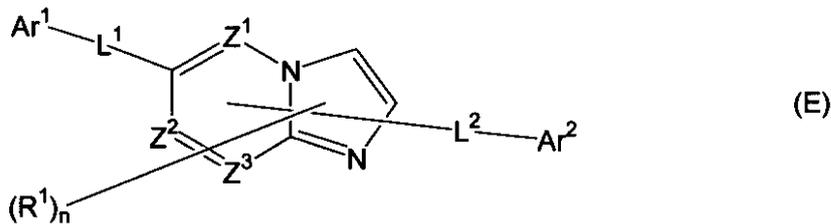
さらに、電子伝達性化合物は、該含窒素複素環基または含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

## 【0201】

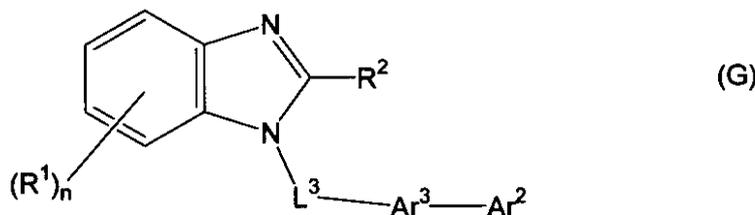
本発明の一実施態様の有機 EL 素子の電子輸送層は、下記式 (E) ~ (G) で表される含窒素複素環誘導体を少なくとも 1 種含むことが特に好ましい。

20

## 【化 7 2】



30



40

## 【0202】

(式 (E) ~ 式 (G) 中、 $Z^1$ 、 $Z^2$  及び  $Z^3$  は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

$R^1$  及び  $R^2$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

$n$  は、0 ~ 5 の整数であり、 $n$  が 2 以上の整数であるとき、複数の  $R^1$  は互いに同一でも異なってもよい。また、隣接する 2 つの  $R^1$  同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の炭化水素環を形成していてもよい。

50

$A r^1$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基である。

$A r^2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～60のヘテロアリール基である。

但し、 $A r^1$ 、 $A r^2$ のいずれか一方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数10～50の縮合芳香族炭化水素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数9～50の縮合芳香族複素環基である。

$A r^3$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリーレン基である。

$L^1$ 、 $L^2$ 及び $L^3$ は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数9～50の2価の縮合芳香族複素環基である。)

### 【0203】

環形成炭素数6～50のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナフタセニル基、クリセニル基、ピレニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、トリル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

環形成原子数5～60のヘテロアリール基としては、ピロリル基、フリル基、チエニル基、シローリル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、イミダゾリル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、セレノフェニル基、オキサジアゾリル基、トリアゾリル基、ピラジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キノキサリニル基、アクリジニル基、イミダゾ[1,2-a]ピリジニル基、イミダゾ[1,2-a]ピリミジニル基などが挙げられる。

炭素数1～20のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられる。

炭素数1～20のハロアルキル基としては、前記アルキル基の1又は2以上の水素原子をフッ素、塩素、ヨウ素および臭素から選ばれる少なくとも1のハロゲン原子で置換して得られる基が挙げられる。

炭素数1～20のアルコキシ基としては、前記アルキル基をアルキル部位としては有する基が挙げられる。

環形成炭素数6～50のアリーレン基としては、前記アリール基から水素原子1個を除去して得られる基が挙げられる。

環形成原子数9～50の2価の縮合芳香族複素環基としては、前記ヘテロアリール基として記載した縮合芳香族複素環基から水素原子1個を除去して得られる基が挙げられる。

### 【0204】

電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは1nm～100nmである。

また、電子輸送層に隣接して設けることができる電子注入層の構成成分として、含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

### 【0205】

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 $Li_2O$ 、 $K_2O$ 、 $Na_2S$ 、 $Na_2Se$ 及び $Na_2O$ が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 $CaO$ 、 $BaO$ 、 $SrO$ 、 $BeO$ 、 $BaS$ 及び $CaSe$ が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 $LiF$ 、

10

20

30

40

50

NaF、KF、LiCl、KCl及びNaCl等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF<sub>2</sub>、BaF<sub>2</sub>、SrF<sub>2</sub>、MgF<sub>2</sub>及びBeF<sub>2</sub>等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

【0206】

また、半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

10

【0207】

このような絶縁体又は半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、0.1nm~15nm程度である。また、本発明の一実施態様における電子注入層は、前述の電子供与性ドーパントを含有していても好ましい。

【0208】

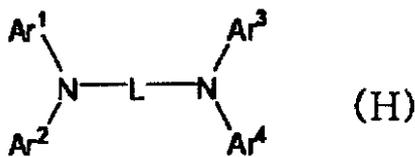
(正孔輸送層)

発光層と陽極との間に形成される有機層であって、正孔を陽極から発光層へ輸送する機能を有する。正孔輸送層が複数層で構成される場合、陽極に近い有機層を正孔注入層と定義することがある。正孔注入層は、陽極から正孔を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。本発明の一実施態様の有機EL素子用材料は、正孔輸送層に含有される正孔輸送材料として用いることもできる。

20

正孔輸送層を形成する他の材料としては、芳香族アミン化合物、例えば、下記式(H)で表される芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

【化73】



30

【0209】

前記式(H)において、Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>4</sup>は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5~50の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、または、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基が結合した基を表す。

また、前記式(H)において、Lは置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基を表す。

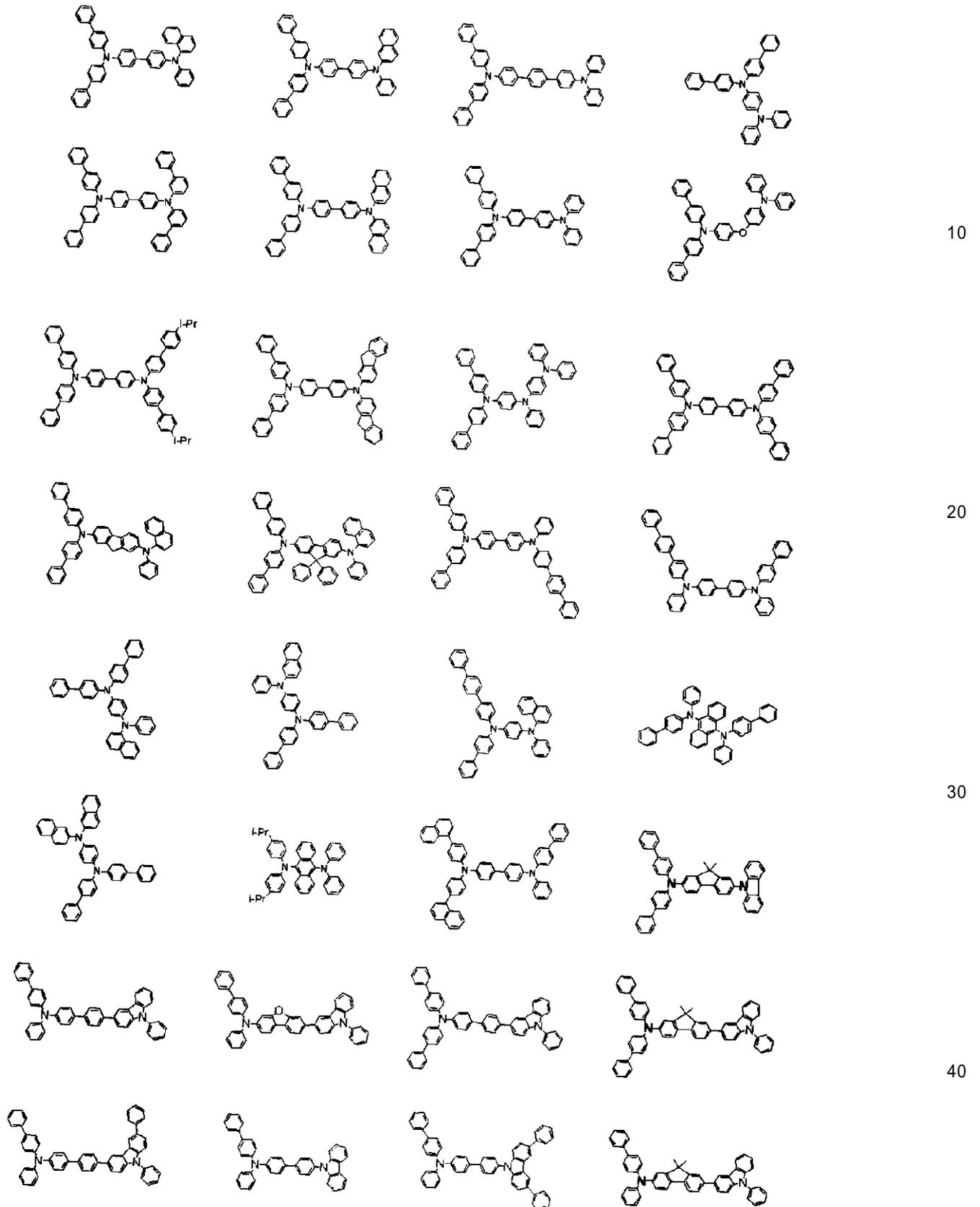
【0210】

式(H)の化合物の具体例を以下に記す。

40

【0211】

## 【化 7 4】

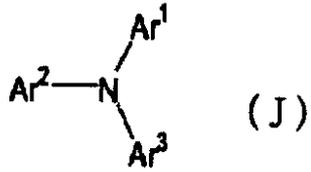


## 【 0 2 1 2】

また、下記式 ( J ) で表される芳香族アミンも正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

## 【 0 2 1 3】

【化 7 5】



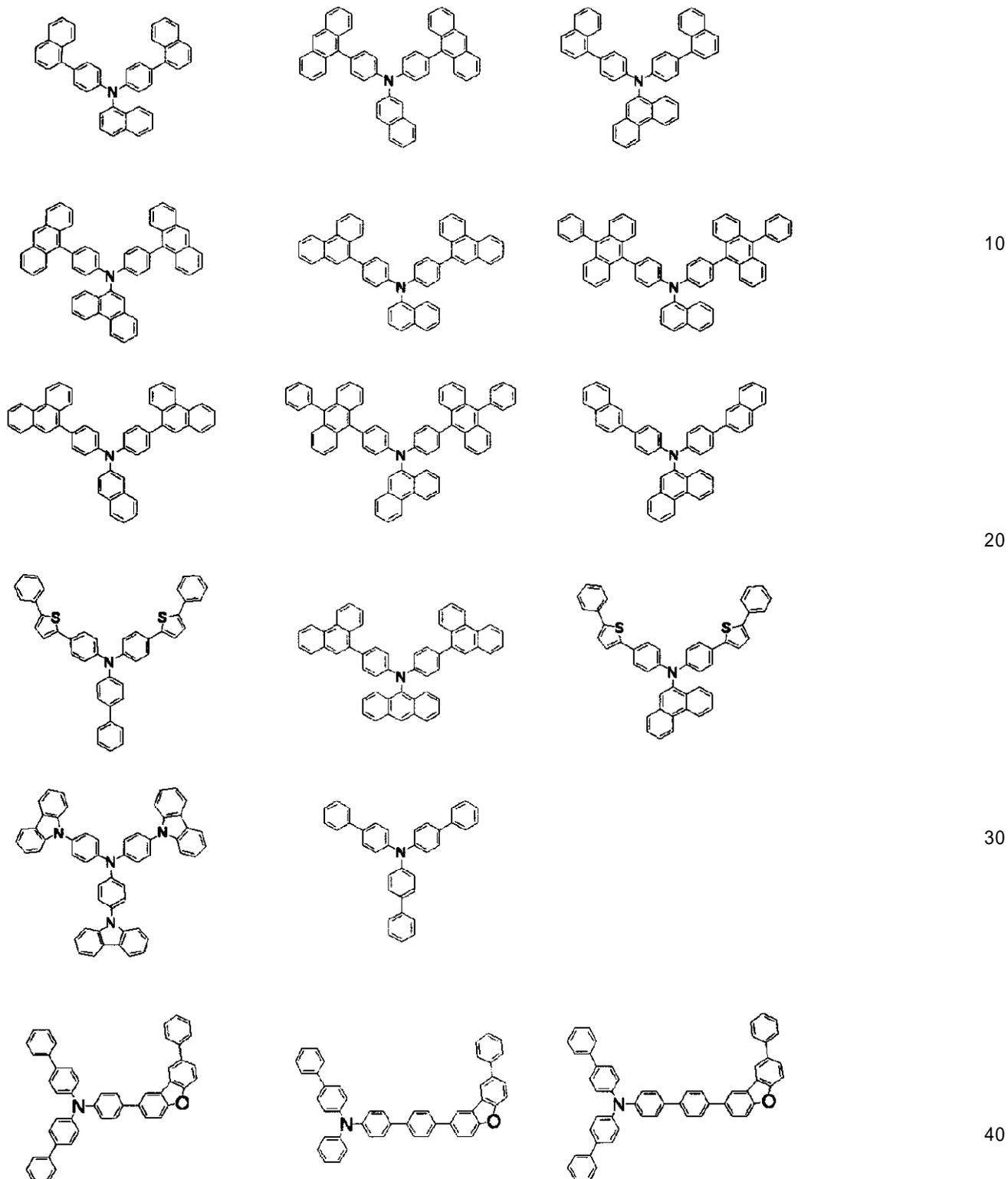
【 0 2 1 4 】

前記式 ( J ) において、 $A r^1 \sim A r^3$  の定義は前記式 ( H ) の  $A r^1 \sim A r^4$  の定義と同様である。以下に式 ( J ) の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

10

【 0 2 1 5 】

## 【化 7 6】



## 【0216】

本発明の一実施態様の有機EL素子の正孔輸送層は第1正孔輸送層（陽極側）と第2正孔輸送層（陰極側）の2層構造にしてもよい。

正孔輸送層の膜厚は特に限定されないが、10～200nmであるのが好ましい。

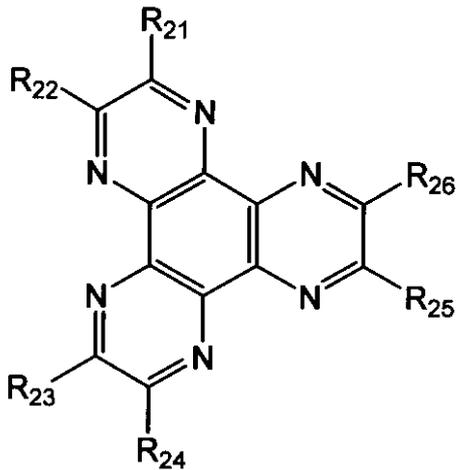
## 【0217】

本発明の一実施態様の有機EL素子では、正孔輸送層または第1正孔輸送層の陽極側にアクセプター材料を含有する層を接合してもよい。これにより駆動電圧の低下及び製造コストの低減が期待される。

前記アクセプター材料としては下記式 (K) で表される化合物が好ましい。

【0218】

【化77】



(K)

10

【0219】

(上記式 (K) 中、R<sub>21</sub> ~ R<sub>26</sub> は互いに同一でも異なっていてもよく、それぞれ独立にシアノ基、-CONH<sub>2</sub>、カルボキシ基、又は-COOR<sub>27</sub> (R<sub>27</sub> 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。ただし、R<sub>21</sub> 及び R<sub>22</sub>、R<sub>23</sub> 及び R<sub>24</sub>、並びに R<sub>25</sub> 及び R<sub>26</sub> の 1 又は 2 以上の対が一緒になって -CO-O-CO- で示される基を形成してもよい。)

20

R<sub>27</sub> 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。

アクセプター材料を含有する層の膜厚は特に限定されないが、5 ~ 20 nm であるのが好ましい。

【0220】

(n/pドーピング)

上述の正孔輸送層や電子輸送層においては、特許第 3695714 号明細書に記載されているように、ドナー性材料のドーピング (n) やアクセプター性材料のドーピング (p) により、キャリア注入能を調整することができる。

30

nドーピングの代表例としては、電子輸送材料に Li や Cs 等の金属をドーピングする方法が挙げられ、pドーピングの代表例としては、正孔輸送材料に F<sub>4</sub>T C N Q (2,3,5,6-Tetrafluoro-7,7,8,8-tetracyanoquinodimethane) 等のアクセプター材料をドーピングする方法が挙げられる。

【0221】

(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。

40

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。スペース層用の材料として、本発明の有一実施態様の有機 EL 素子用材料を用いることもできる。

【0222】

(障壁層)

本発明の有一実施態様の有機 EL 素子は、発光層に隣接する部分に、電子障壁層、正孔障壁層、トリプレット障壁層といった障壁層を有することが好ましい。ここで、電子障壁層

50

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、正孔障壁層とは、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。正孔障壁層用の材料として、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料を用いることもできる。

トリプレット障壁層は、発光層で生成する三重項励起子が、周辺の層へ拡散することを防止し、三重項励起子を発光層内に閉じ込めることによって三重項励起子の発光ドーパント以外の電子輸送層の分子上でのエネルギー失活を抑制する機能を有する。

トリプレット障壁層を設ける場合、燐光素子においては、発光層中の燐光発光性ドーパントの三重項エネルギーを $E^T_d$ 、トリプレット障壁層として用いる化合物の三重項エネルギーを $E^T_{TB}$ とすると、 $E^T_d < E^T_{TB}$ のエネルギー大小関係であれば、エネルギー関係上、燐光発光性ドーパントの三重項励起子が閉じ込められ（他分子へ移動できなくなり）、該ドーパント上で発光する以外のエネルギー失活経路が断たれ、高効率に発光することができると推測される。ただし、 $E^T_d < E^T_{TB}$ の関係が成り立つ場合であってもこのエネルギー差  $E^T = E^T_{TB} - E^T_d$  が小さい場合には、実際の素子駆動環境である室温程度の環境下では、周辺の熱エネルギーにより吸熱的にこのエネルギー差  $E^T$  を乗り越えて三重項励起子が他分子へ移動することが可能であると考えられる。特に燐光発光の場合は蛍光発光に比べて励起子寿命が長いため、相対的に吸熱的励起子移動過程の影響が現れやすくなる。室温の熱エネルギーに対してこのエネルギー差  $E^T$  は大きい程好ましく、 $0.1 \text{ eV}$  以上であるとさらに好ましく、 $0.2 \text{ eV}$  以上であると特に好ましい。一方、蛍光素子においては、国際公開W02010/134350A1に記載するTTF素子構成のトリプレット障壁層用の材料として、本発明の一実施態様の有機EL素子用材料を用いることも

10

20

#### 【0223】

また、トリプレット障壁層を構成する材料の電子移動度は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。有機材料の電子移動度の測定方法としては、Time of Flight法等幾つかの方法が知られているが、ここではインピーダンス分光法で決定される電子移動度をいう。

電子注入層は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。これにより陰極からの電子輸送層への電子注入が促進され、ひいては隣接する障壁層、発光層への電子注入も促進し、より低電圧での駆動を可能にするためである。

30

#### 【0224】

本発明の一実施態様の有機エレクトロルミネッセンス素子は、有機ELパネルモジュール等の表示部品、テレビ、携帯電話、若しくはパーソナルコンピュータ等の表示装置、及び、照明、若しくは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】

#### 【0225】

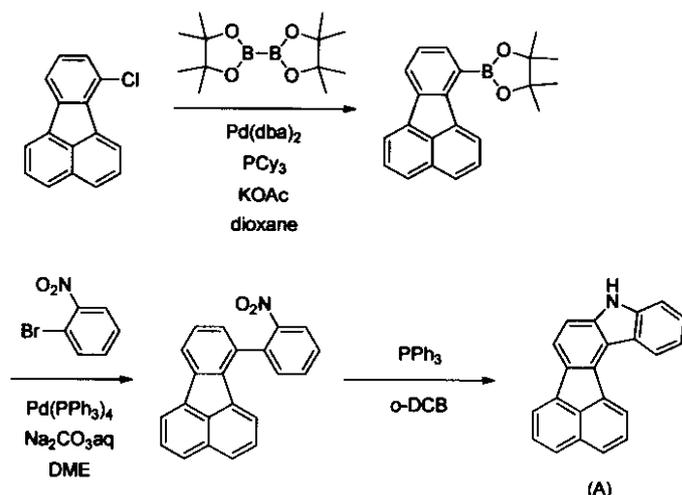
以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容により何ら限定されるものではない。

#### 【0226】

合成例1（中間体（A）の合成）

40

## 【化 7 8】



10

## 【 0 2 2 7】

## (1) フルオランテン - 7 - ボロン酸ピナコールエステルの合成

アルゴン雰囲気下、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム 1.29 g、トリシクロヘキシルホスフィン 1.51 g を仕込み、ジオキサン 45 mL を加え、室温(25)で 30 分攪拌した。ビスピナコラートジボロン 20.9 g、既知の方法で合成した 7-クロロフルオランテン 17.7 g、酢酸カリウム 11.0 g をフラスコに加え、80 で、48 時間攪拌をした。

20

室温(25)まで冷却後、水を加えた後、トルエンで抽出した。有機層を水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、フルオランテン - 7 - ボロン酸ピナコールエステルを 15.2 g 得た。

## 【 0 2 2 8】

## (2) 7 - (2 - ニトロフェニル)フルオランテンの合成

アルゴン雰囲気下、フルオランテン - 7 - ボロン酸ピナコールエステル 15.2 g、2 - ブロモニトロベンゼン 10.3 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0) 1.18 g、DME 200 mL、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 100 mL をフラスコに仕込み、24 時間加熱還流しながら攪拌した。

30

室温(25)まで冷却後、反応溶液をトルエンで抽出した。水層を除去し、有機層を飽和食塩水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた後、濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し 7 - (2 - ニトロフェニル)フルオランテンを 12.3 g 得た。

## 【 0 2 2 9】

## (3) 中間体 (A) の合成

アルゴン雰囲気下、7 - (2 - ニトロフェニル)フルオランテン 12.3 g、トリフェニルホスフィン 24.9 g、o - ジクロロベンゼン 400 mL を仕込み、48 時間加熱還流しながら攪拌した。

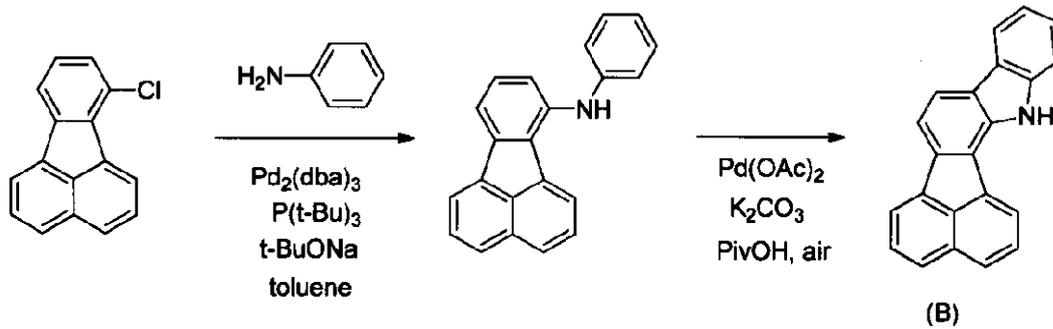
40

室温(25)まで冷却後、ヘキサン 1 L を加え析出した結晶をろ過した。得られた結晶をトルエンで再結晶し、上記中間体 (A) を 5.54 g 得た。

## 【 0 2 3 0】

## 合成例 2 (中間体 (B) の合成)

## 【化 7 9】



10

## 【 0 2 3 1】

## (1) N - ( 7 - フルオランテニル ) アニリンの合成

アルゴン雰囲気下、7 - クロロフルオランテン 2 . 3 6 g、アニリン 0 . 9 3 g、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム 0 . 1 8 3 g、トリ - t - ブチルホスホニウムテトラフルオロホウ酸塩 0 . 1 5 g、t - ブトキシナトリウム 1 . 9 g、無水トルエン 5 0 mL を順次加えて 8 時間加熱還流した。

室温 ( 2 5 ) まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。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、N - ( 7 - フルオランテニル ) アニリンを 2 . 2 g 得た。

## 【 0 2 3 2】

20

## (2) 中間体 ( B ) の合成

N - ( 7 - フルオランテニル ) アニリン 2 . 2 g、酢酸パラジウム 0 . 1 7 g、炭酸カリウム 1 . 1 g、ピバル酸 9 0 mL を仕込み、空気下、1 2 0 で 2 4 時間加熱撹拌した。

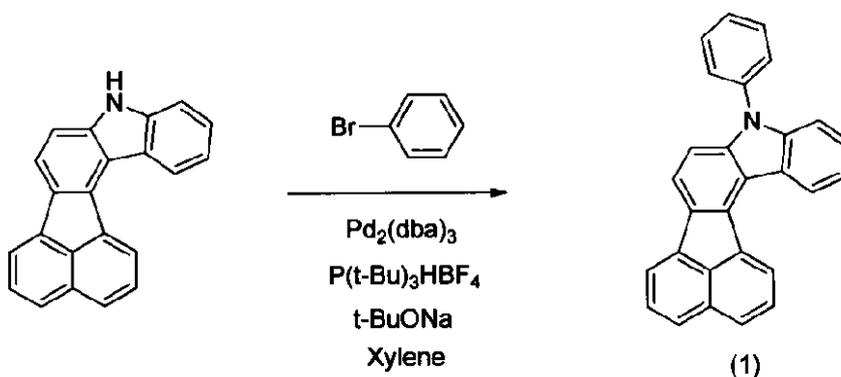
室温 ( 2 5 ) まで冷却後、反応溶液をジクロロメタンで抽出し、飽和炭酸ナトリウム水溶液で洗浄し、さらに有機層を水で洗浄した後、硫酸マグネシウムで乾燥させた。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、上記中間体 ( B ) 1 . 1 g を得た。

## 【 0 2 3 3】

## 実施例 1 ( 化合物 ( 1 ) の合成 )

30

## 【化 8 0】



40

## 【 0 2 3 4】

アルゴン雰囲気下、ブロモベンゼン 1 . 5 7 g、合成例 1 で得た中間体 ( A ) 3 . 4 9 g、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム 0 . 1 8 3 g、トリ - t - ブチルホスホニウムテトラフルオロホウ酸塩 0 . 1 5 g、t - ブトキシナトリウム 1 . 9 g、無水キシレン 5 0 mL を順次加えて、8 時間加熱還流した。

室温 ( 2 5 ) まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。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、上記化合物 ( 1 ) を 2 . 6 g 得た。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 3 6 7 .

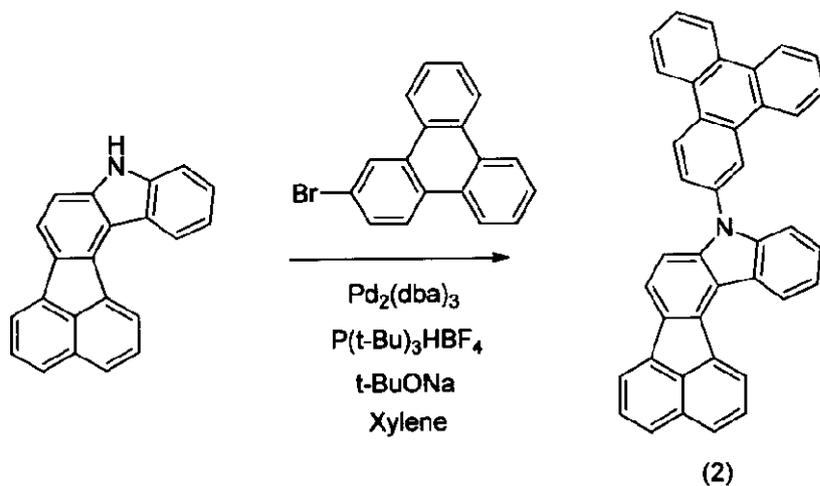
50

14 に対し、 $m/e = 367$ であった。

【0235】

実施例2 (化合物(2)の合成)

【化81】



10

【0236】

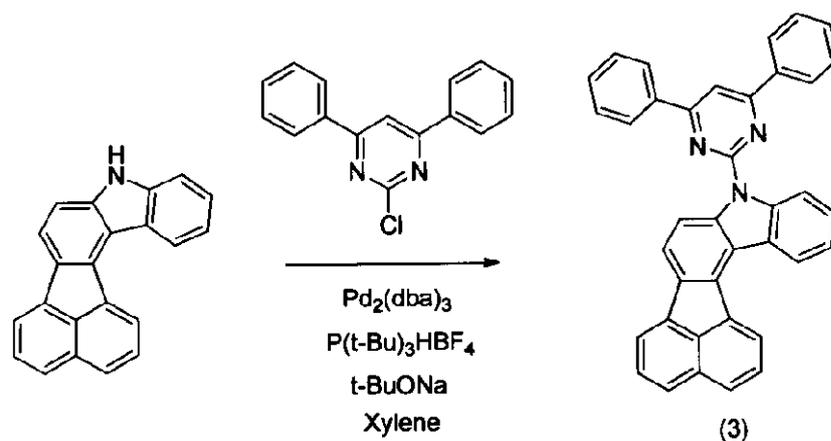
化合物(1)の合成において、プロモベンゼンの代わりに、2-ブロモトリフェニレンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量517.18に対し、 $m/e = 517$ であった。

20

【0237】

実施例3 (化合物(3)の合成)

【化82】



30

【0238】

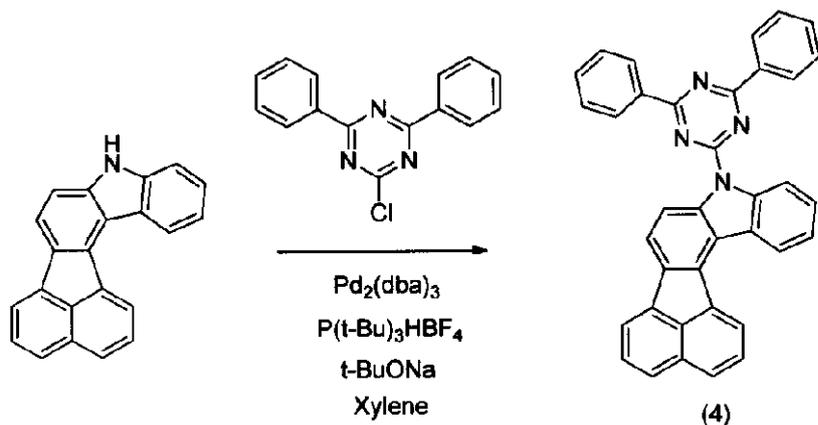
化合物(1)の合成において、プロモベンゼンの代わりに、2-クロロ-4,6-ジフェニルピリミジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量521.19に対し、 $m/e = 521$ であった。

40

【0239】

実施例4 (化合物(4)の合成)

## 【化 8 3】



10

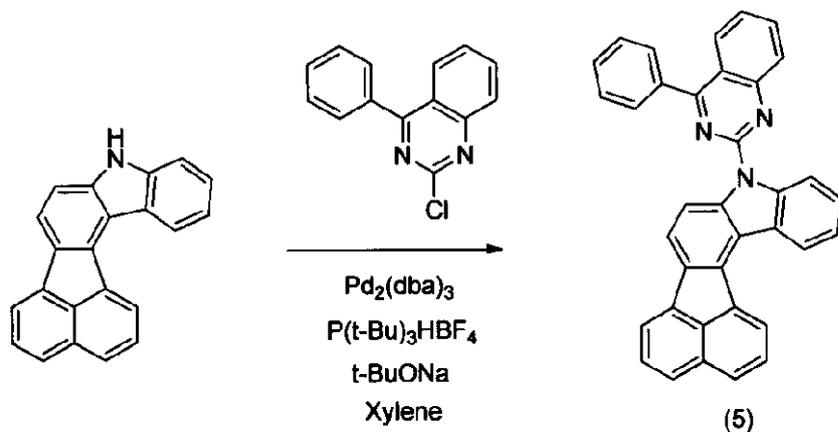
## 【 0 2 4 0】

化合物(1)の合成において、プロモベンゼンの代わりに、2-クロロ-4,6-ジフェニルtriaジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量522.18に対し、 $m/e = 522$ であった。

## 【 0 2 4 1】

実施例5(化合物(5)の合成)

## 【化 8 4】



20

30

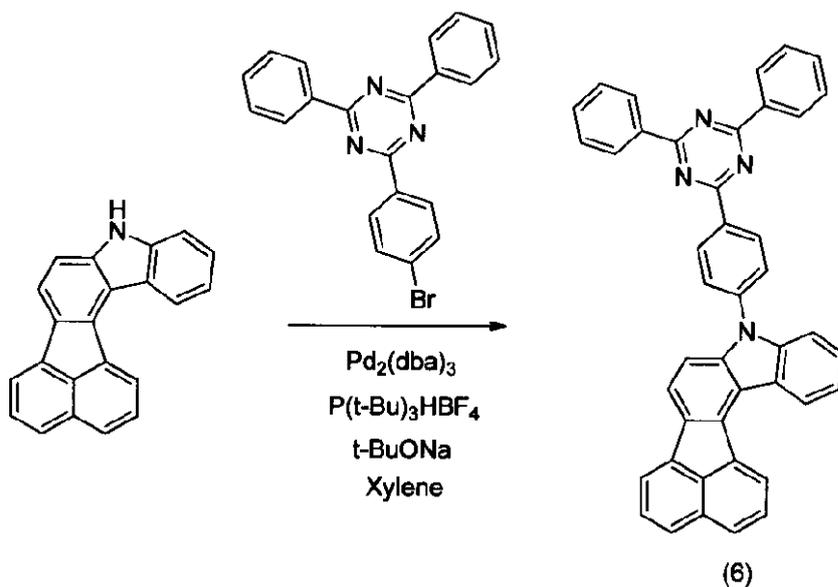
## 【 0 2 4 2】

化合物(1)の合成において、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した2-クロロ-4-フェニルキノゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量495.17に対し、 $m/e = 495$ であった。

## 【 0 2 4 3】

実施例6(化合物(6)の合成)

## 【化 8 5】



10

## 【 0 2 4 4 】

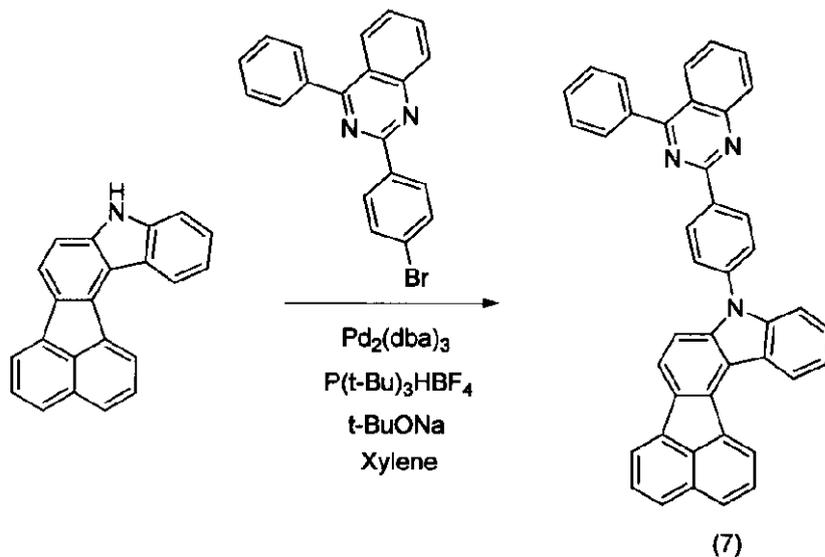
化合物 ( 1 ) の合成において、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した 2 - ( 4 - プロモフェニル ) - 4 , 6 - ジフェニル triアジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 5 9 8 . 2 2 に対し、 $m / e = 5 9 8$ であった。

20

## 【 0 2 4 5 】

実施例 7 ( 化合物 ( 7 ) の合成 )

## 【化 8 6】



30

## 【 0 2 4 6 】

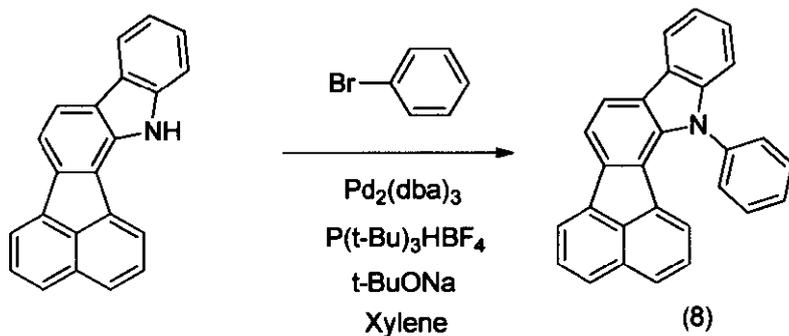
化合物 ( 1 ) の合成において、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した 2 - ( 4 - プロモフェニル ) - 4 - フェニルキナゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 5 7 1 . 2 0 に対し、 $m / e = 5 7 1$ であった。

## 【 0 2 4 7 】

実施例 8 ( 化合物 ( 8 ) の合成 )

40

【化 8 7】



10

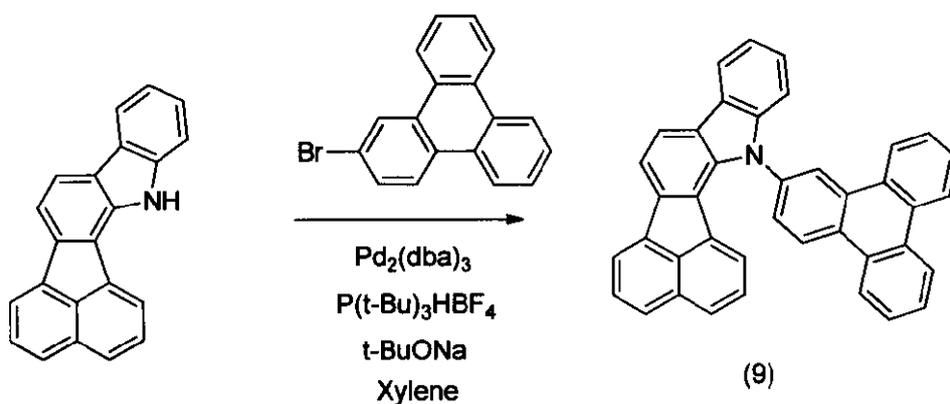
【 0 2 4 8】

化合物 ( 1 ) の合成において、中間体 ( A ) の代わりに、合成例 2 で得た中間体 ( B ) を用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 3 6 7 . 1 4 に対し、 $m/e = 3 6 7$ であった。

【 0 2 4 9】

実施例 9 ( 化合物 ( 9 ) の合成 )

【化 8 8】



20

【 0 2 5 0】

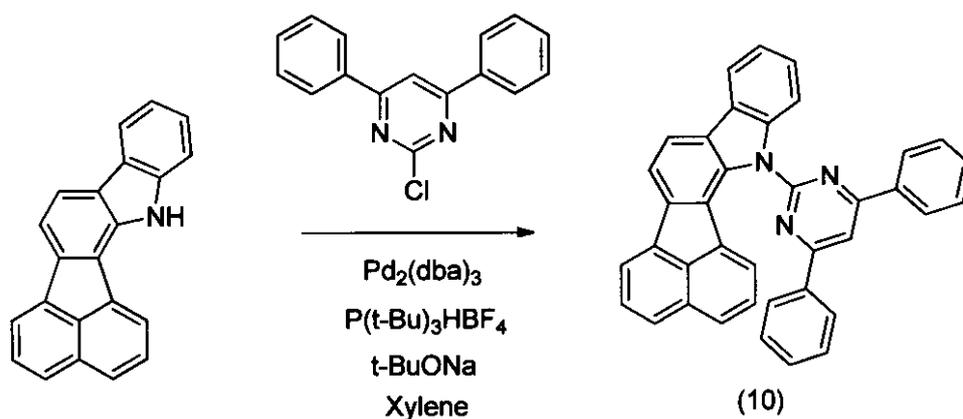
化合物 ( 1 ) の合成において、中間体 ( A ) の代わりに、合成例 2 で得た中間体 ( B ) を、プロモベンゼンの代わりに、2 - プロモトリフェニレンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 5 1 7 . 1 8 に対し、 $m/e = 5 1 7$ であった。

30

【 0 2 5 1】

実施例 1 0 ( 化合物 ( 1 0 ) の合成 )

【化 8 9】



40

【 0 2 5 2】

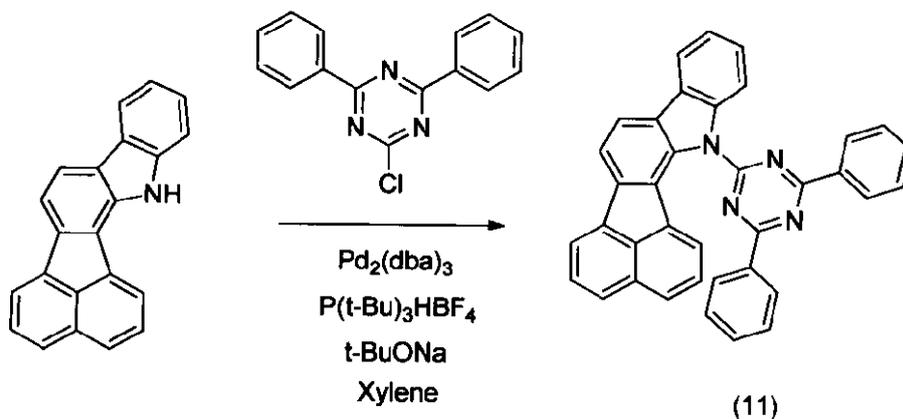
50

化合物(1)の合成において、中間体(A)の代わりに、合成例2で得た中間体(B)を、プロモベンゼンの代わりに、2-クロロ-4,6-ジフェニルピリミジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量521.19に対し、 $m/e = 521$ であった。

【0253】

実施例11(化合物(11)の合成)

【化90】



10

【0254】

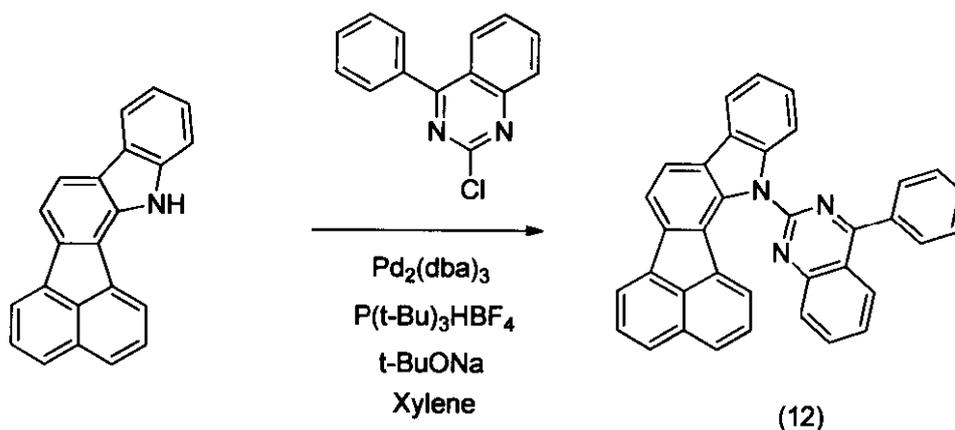
化合物(1)の合成において、中間体(A)の代わりに、合成例2で得た中間体(B)を、プロモベンゼンの代わりに、2-クロロ-4,6-ジフェニルtriaジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量522.18に対し、 $m/e = 522$ であった。

20

【0255】

実施例12(化合物(12)の合成)

【化91】



30

【0256】

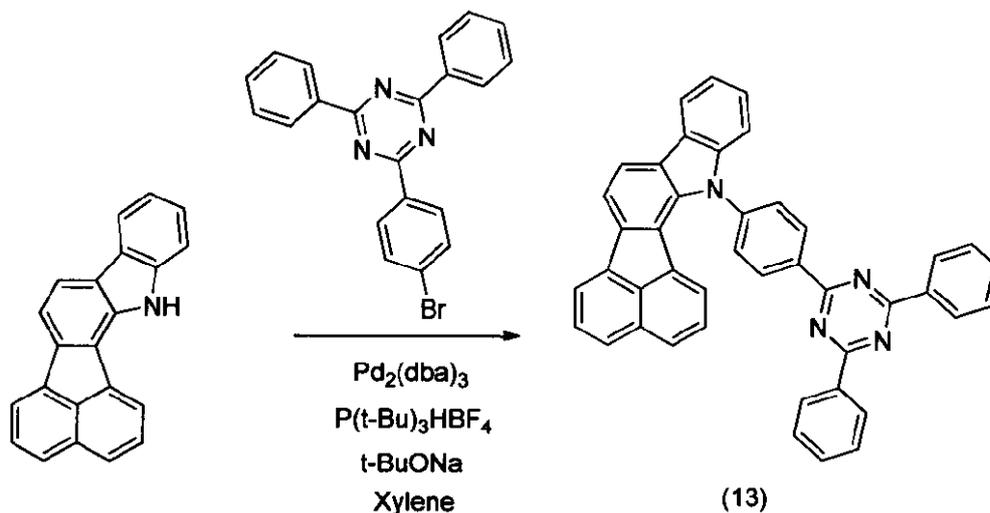
化合物(1)の合成において、中間体(A)の代わりに、合成例2で得た中間体(B)を、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した2-クロロ-4-フェニルキナゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量495.17に対し、 $m/e = 495$ であった。

40

【0257】

実施例13(化合物(13)の合成)

## 【化 9 2】



10

## 【0258】

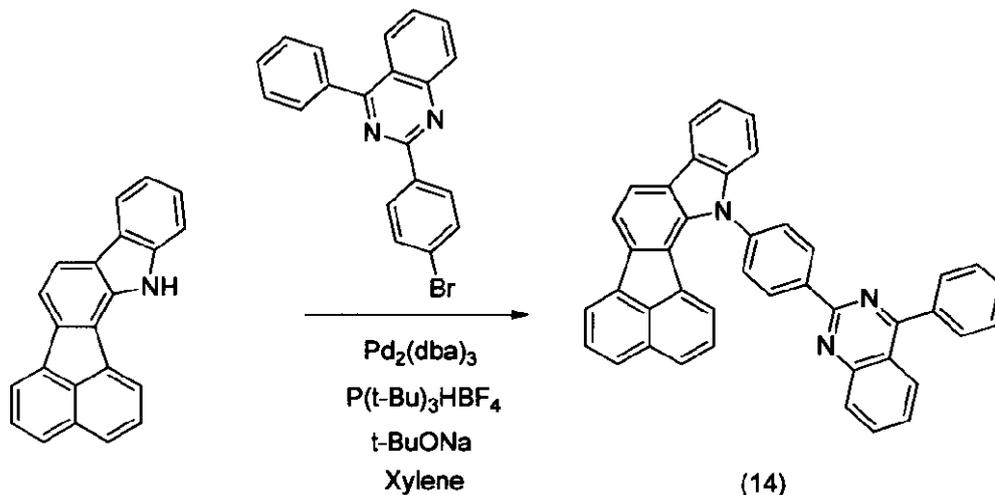
化合物(1)の合成において、中間体(A)の代わりに、合成例2で得た中間体(B)を、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した2-(4-プロモフェニル)-4,6-ジフェニル triアジンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量598.22に対し、 $m/e = 598$ であった。

20

## 【0259】

実施例14(化合物(14)の合成)

## 【化 9 3】



30

## 【0260】

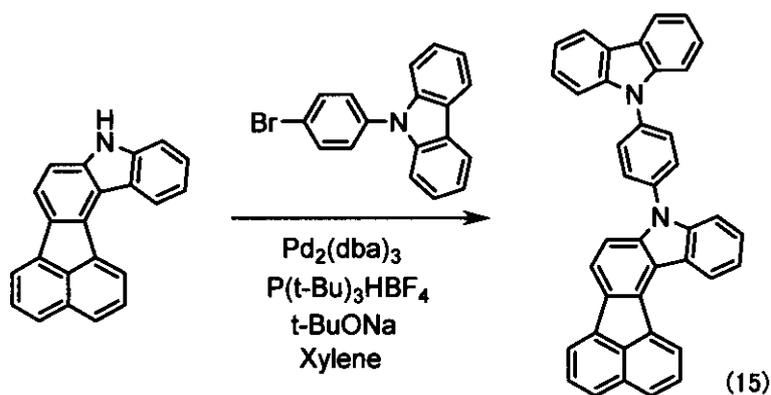
化合物(1)の合成において、中間体(A)の代わりに、合成例2で得た中間体(B)を、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した2-(4-プロモフェニル)-4-フェニルキナゾリンを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量571.20に対し、 $m/e = 571$ であった。

40

## 【0261】

実施例15(化合物(15)の合成)

## 【化 9 4】



10

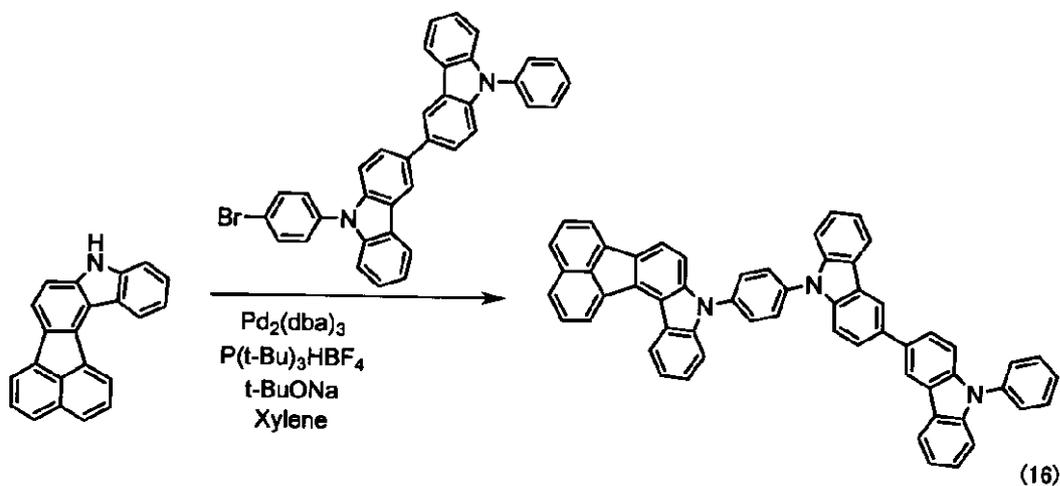
## 【 0 2 6 2】

化合物 ( 1 ) の合成において、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した 9 - ( 4 - プロモフェニル ) カルバゾールを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 5 3 2 . 1 9 に対し、 $m/e = 5 3 2$ であった。

## 【 0 2 6 3】

実施例 1 6 ( 化合物 ( 1 6 ) の合成 )

## 【化 9 5】



20

30

## 【 0 2 6 4】

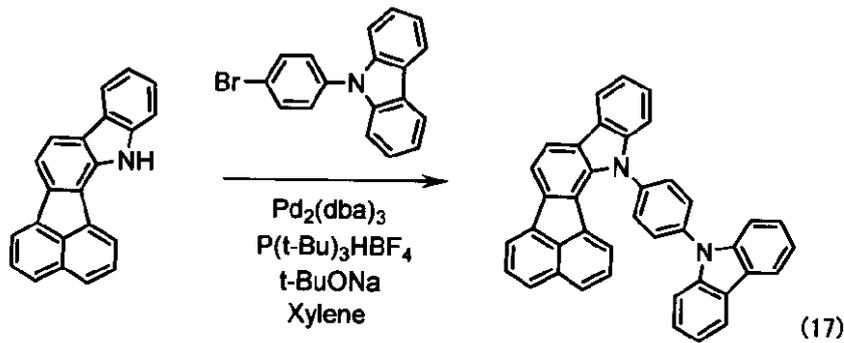
化合物 ( 1 ) の合成において、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した 9 - ( 4 - プロモフェニル ) - 3 - ( 9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル ) カルバゾールを用いて同様の方法で合成した。このものは、マスペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 7 7 3 . 2 8 に対し、 $m/e = 7 7 3$ であった。

## 【 0 2 6 5】

実施例 1 7 ( 化合物 ( 1 7 ) の合成 )

40

## 【化 9 6】



10

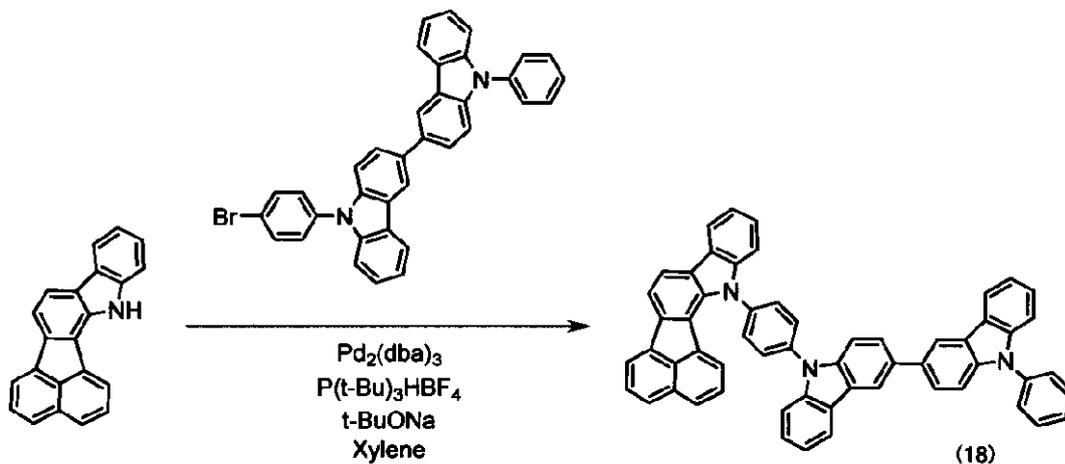
## 【0266】

化合物 1 の合成において、中間体 (A) の代わりに、合成例 2 で得た中間体 (B) を、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した 9 - (4 - プロモフェニル) カルバゾールを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 532.19 に対し、 $m/e = 532$  であった。

## 【0267】

実施例 18 (化合物 (18) の合成)

## 【化 9 7】



20

30

## 【0268】

化合物 (1) の合成において、中間体 (A) の代わりに、合成例 2 で得た中間体 (B) を、プロモベンゼンの代わりに、既知の方法で合成した 9 - (4 - プロモフェニル) - 3 - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル) カルバゾールを用いて同様の方法で合成した。このものは、マススペクトル分析の結果、目的物であり、分子量 773.28 に対し、 $m/e = 773$  であった。

## 【0269】

なお、以上の合成反応を参照し、目的物に合わせた既知の代替反応や原料を用いることで、本願請求項で規定の化合物を合成することができる。

40

## 【0270】

実施例 19 (有機 EL 素子の製造)

25 mm × 75 mm × 厚さ 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 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。

洗浄後の 130 nm の透明電極ライン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、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして第 1 正孔輸送材料として下記化合物 HT - 1 を蒸着し、膜厚 45 nm の第 1 正孔輸送層を成膜した。第 1 正孔輸送層の成膜に続けて、第 2 正孔輸送材料として下記化合物 HT - 2

50

を蒸着し、膜厚 10 nm の第 2 正孔輸送層を成膜した。

さらに、この第 2 正孔輸送層上に、ホスト材料として前記実施例 11 で得た化合物 (11) と、燐光発光材料として下記化合物 RD-1 とを共蒸着し、膜厚 40 nm の燐光発光層を成膜した。発光層中に含まれる化合物 RD-1 の濃度は 5.0 質量% であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

そして、この発光層成膜に続けて下記化合物 ET-1 を膜厚 40 nm で成膜した。この化合物 ET-1 膜は第 1 電子輸送層として機能する。

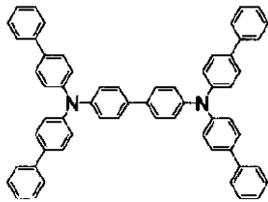
次に、LiF を電子注入性電極 (陰極) として成膜速度 0.01 nm/sec で成膜し、膜厚を 1 nm とした。この LiF 膜上に金属 Al を蒸着させ、金属陰極を膜厚 80 nm で形成し有機 EL 素子を作製した。

10

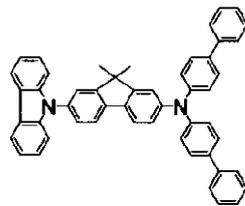
以下に、実施例および比較例で使用した化合物を示す。

【0271】

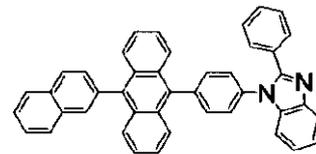
【化98】



HT-1

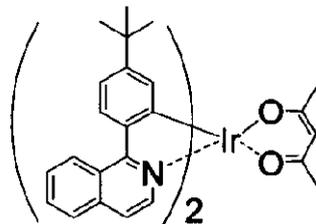


HT-2

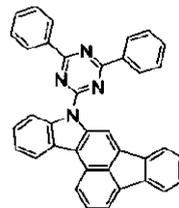


ET-1

20



RD-1



比較化合物1

30

【0272】

上述のようにして得られた有機 EL 素子について、下記のようにして発光特性を評価した。

(有機 EL 素子の発光特性評価)

得られた有機 EL 素子の室温及び DC 定電流駆動 (電流密度 10 mA/cm<sup>2</sup>) での外部量子効率を輝度計 (ミノルタ社製分光輝度放射計 CS-1000) を用いて測定した結果を表 1 に示す。

【0273】

実施例 20 ~ 26

実施例 19 において、発光層のホスト材料として化合物 (11) を用いる代わりに、表 1 に記載の化合物を用いて発光層を形成した以外は実施例 19 と同様にして有機 EL 素子を作製した。有機 EL 素子の外部量子効率の測定結果を表 1 に示す。

40

なお、表 1 中の、化合物 (4)、(5)、(6)、(13)、(14)、(15)、および (17) は、それぞれ実施例 4、5、6、13、14、15、および 17 で得た化合物である。

【0274】

比較例 1

実施例 19 において、発光層のホスト材料として化合物 (11) を用いる代わりに、上記の比較化合物 1 を用いて発光層を形成した以外は実施例 19 と同様にして有機 EL 素子を作製した。有機 EL 素子の外部量子効率の測定結果を表 1 に示す。

50

【 0 2 7 5 】

【 表 1 】

表1

	発光層 ホスト材料	電圧 (V)	外部量子効率 (%)
実施例19	化合物(11)	3.15	16.4
実施例20	化合物(4)	3.02	15.9
実施例21	化合物(5)	3.15	16.0
実施例22	化合物(6)	3.05	15.5
実施例23	化合物(13)	3.23	16.5
実施例24	化合物(14)	3.18	15.8
実施例25	化合物(15)	3.28	15.8
実施例26	化合物(17)	3.22	16.6
比較例1	比較化合物1	3.12	13.1

10

【 0 2 7 6 】

実施例19～26と比較例1との対比より、本発明の一実施態様の縮合フルオランテン化合物を用いた有機EL素子は、比較例1の有機EL素子と比較し、発光効率が優れていることが確認できる。

20

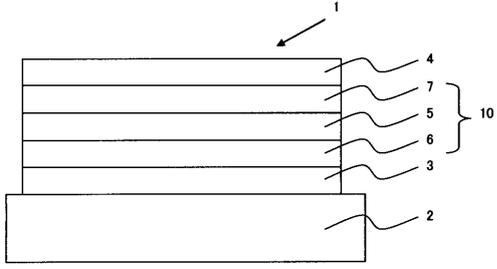
【 符号の説明 】

【 0 2 7 7 】

- 1 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 2 基板
- 3 陽極
- 4 陰極
- 5 発光層
- 6 陽極側有機薄膜層
- 7 陰極側有機薄膜層
- 10 発光ユニット

30

【 図 1 】



## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2014/064545
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> C07D209/80(2006.01)i, C07D403/04(2006.01)i, C07D403/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C07D209/80, C07D403/04, C07D403/10, C09K11/06, H01L51/50  Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2014 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014  Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) Caplus/REGISTRY (STN), JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	TAGMATARCHIS, N. et al., J. Org. Chem., 2001, Vol.66, No.24, p.8026-9, Figure 1	1-3 4-28
A	WO 2011/081429 A2 (DOOSAN CORP.), 07 July 2011 (07.07.2011), each claim; examples & KR 10-2011-0077831 A	1-28
A	KR 10-2012-0020816 A (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.), 08 March 2012 (08.03.2012), each claim; examples (Family: none)	1-28
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See parent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 02 July, 2014 (02.07.14)		Date of mailing of the international search report 15 July, 2014 (15.07.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/064545

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2011/037429 A2 (DUKSAN HIGH METAL CO., LTD.), 31 March 2011 (31.03.2011), each claim; examples & KR 10-2011-0034103 A & KR 10-2011-0044587 A	1-28
A	WO 2013/073874 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.), 23 May 2013 (23.05.2013), each claim; examples & KR 10-2013-0055198 A & TW 201329201 A	1-28
A	WO 2013/032278 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.), 07 March 2013 (07.03.2013), each claim; examples & KR 10-2013-0025087 A & TW 201326359 A	1-28
A	WO 2012/036482 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.), 22 March 2012 (22.03.2012), each claim; examples & KR 10-2012-0030009 A & CN 103221406 A & TW 201224110 A & JP 2013-539750 A & EP 2616462 A1	1-28

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 6 4 5 4 5									
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07D209/80(2006.01)i, C07D403/04(2006.01)i, C07D403/10(2006.01)i, C09K11/06(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. C07D209/80, C07D403/04, C07D403/10, C09K11/06, 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 border="0"> <tr> <td>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>1971-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2014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	1971-2014年	日本国実用新案登録公報	1996-2014年	日本国登録実用新案公報	1994-2014年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2014年										
日本国実用新案登録公報	1996-2014年										
日本国登録実用新案公報	1994-2014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), JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)											
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									
X A	TAGMATARCHIS, N. et al., J. Org. Chem., 2001, Vol.66, No.24, p.8026-9, Figure 1	1-3 4-28									
A	WO 2011/081429 A2 (DOOSAN CORPORATION) 2011.07.07, 各請求項及び実施例 & KR 10-2011-0077831 A	1-28									
A	KR 10-2012-0020816 A (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 2012.03.08, 各請求項及び実施例 (ファミリーなし)	1-28									
<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 「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 「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 「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) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であ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 「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 「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 「&」 同一パテントファミリー文献									
国際調査を完了した日 02.07.2014		国際調査報告の発送日 15.07.2014									
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) 清水 紀子 電話番号 03-3581-1101 内線 3492	4 P 4669								

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2014/064545

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
A	WO 2011/037429 A2 (DUKSAN HIGH METAL CO., LTD.) 2011.03.31, 各請求項及び実施例 & KR 10-2011-0034103 A & KR 10-2011-0044587 A	1-28
A	WO 2013/073874 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 2013.05.23, 各請求項及び実施例 & KR 10-2013-0055198 A & TW 201329201 A	1-28
A	WO 2013/032278 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 2013.03.07, 各請求項及び実施例 & KR 10-2013-0025087 A & TW 201326359 A	1-28
A	WO 2012/036482 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 2012.03.22, 各請求項及び実施例 & KR 10-2012-0030009 A & CN 103221406 A & TW 201224110 A & JP 2013-539750 A & EP 2616462 A1	1-28

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
	H 0 5 B 33/22	D
	C 0 9 K 11/06	6 9 0
	C 0 9 K 11/06	6 6 0

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(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), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, 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

(72) 発明者 羽毛田 匡

千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB08 CC04 DD53 DD59 DD64 DD66 DD67  
 DD68 DD69 DD71 DD74 DD78  
 4C063 AA01 BB02 BB06 CC29 CC31 CC43 DD08 EE10  
 4C204 CB25 EB01 FB08 FB16 GB13

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。