

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年3月12日(12.03.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/050217 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) C07D 403/14 (2006.01)
C07D 401/14 (2006.01) C07D 409/14 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/034437

(22) 国際出願日: 2019年9月2日(02.09.2019)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2018-168361 2018年9月7日(07.09.2018) JP
特願 2019-061161 2019年3月27日(27.03.2019) JP

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

(72) 発明者: 吉田 圭(YOSHIDA, Kei); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 齊藤 雅俊(SAITO, Masatoshi); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 前田 竜志(MAEDA, Ryoji); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 中村 雅人(NAKAMURA, Masato); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 増田 哲也(MASUDA, Tetsuya); 〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人大谷特許事務所(OHTANI PATENT OFFICE); 〒1050001 東京

都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門E Sビル7階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

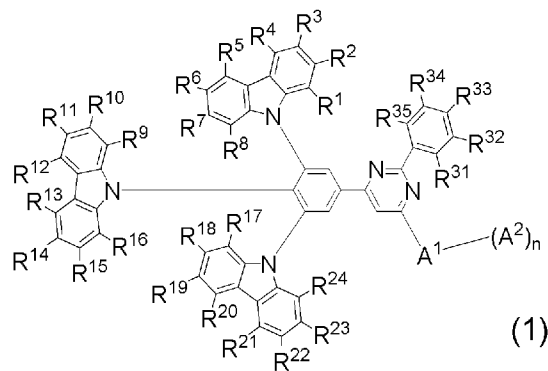
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM,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

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: COMPOUND, MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ELECTRONIC DEVICE

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



(1)

(57) Abstract: The compound represented by general formula (1), etc. (where R¹ to R²⁴, R³¹ to R³⁵, A¹, and A² are as defined in the specification, n is an integer from 0 to 3, n is an integer equal to or greater than 1 if A¹ is a benzene residue having a valency of n+1, and (A²)₀ is hydrogen if n is 0).

(57) 要約: 下記式(1)で表される化合物等。(R¹~R²⁴, R³¹~R³⁵, A¹, 及びA²は明細書で定義したとおりであり、nは0~3の整数であり、A¹がベンゼンのn+1価の残基である場合、nは1以上の整数である。nが0のとき、(A²)₀は水素である。)



WO 2020/050217 A1

明 細 書

発明の名称：

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

技術分野

[0001] 本発明は、化合物、それを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、電子機器に関する。

背景技術

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

[0003] 有機EL素子に使用する化合物を記載した文献として、特許文献1や特許文献2が挙げられる。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第2003/080760号

特許文献2：国際公開第2016/181846号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 従来、有機EL素子製造用の材料として多くの化合物が報告されているが、有機EL素子の特性をさらに向上させる化合物が依然として求められている。

[0006] 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EL素子の高性能化、より具体的には長寿命化を実現する化合物、有機EL素子の高性能化より具体的には長寿命化が実現された有機EL素子、そのような有機EL素子を含む電子機器を提供すること目的とする。

課題を解決するための手段

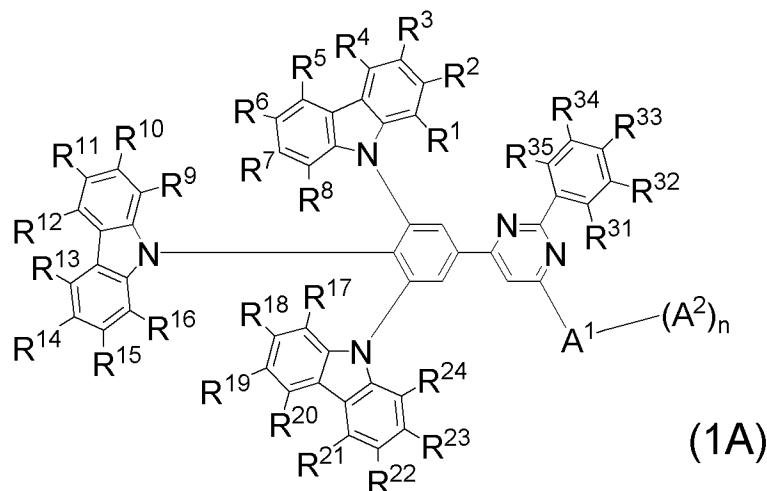
[0007] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、下記式(1)及び式(1A)で表される化合物は、高性能化された有機EL素子を実現し得ること、より具体的には、長寿命化を実現する有機EL素子を実現し得ることを見出し、本発明を完成した。

[0008] 一態様において、本発明は、陽極、陰極、及び該陽極と該陰極の間に配置された有機層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機層が、発光層、及び該発光層と該陰極の間に配置された第1の層を含み、

前記第1の層が下記式(1A)で表される化合物(以下、化合物(1A)と称することもある)を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

[0009] [化1]



[0010] (式中、

$R^1 \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは

は無置換の環形成原子数 5～30 のヘテロアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 5～50 のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組は、それぞれ独立に、互いに結合して、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～30 の複素環、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 5～50 の脂肪族炭化水素環を形成するか、又は、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} は互いに結合して環を形成せず、互いに結合して環を形成しない場合、 R^{31} ～ R^{35} は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリアル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～30 のヘテロアリアル基、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 5～50 のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

A^1 は、環形成炭素数 6～30 の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数 5～30 の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基であり、

A^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 6～30 のアリアル基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～30 のヘテロアリアル基、又はシアノ基であり、

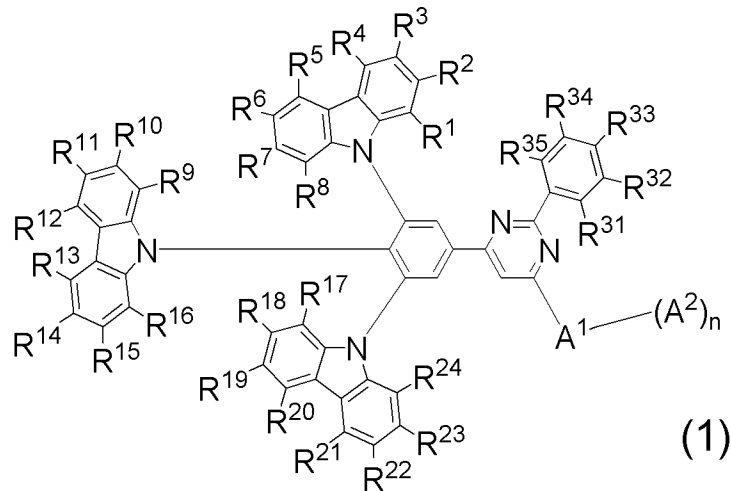
n は0～3の整数である。

n が0のとき、 $(A^2)_0$ は水素である。）

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

[0012]

[化2]



[0013] (式中、

$R^1 \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組は、それぞれ独立に、互いに結合して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環を形成するか、又は、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} は互いに結合して環を形成せず、互いに結合して環を形成しない場合、 $R^{31} \sim R^{35}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

A^1 は、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n + 1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もし

くは無置換の $n + 1$ 価の残基であり、

A^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 $6 \sim 30$ のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 $5 \sim 30$ のヘテロアリール基、又はシアノ基であり、

n は $0 \sim 3$ の整数であり、

A^1 がベンゼンの $n + 1$ 価の残基である場合、 n は 1 以上の整数である。

n が 0 のとき、 $(A^2)_0$ は水素である。）

[0014] さらに他の態様において、本発明は、前記化合物 (1) を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

[0015] さらに他の態様において、本発明は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を含む電子機器を提供する。

発明の効果

[0016] 化合物 (1) 又は化合物 (1A) は、高性能化された有機 EL 素子を実現する。より具体的には、長寿命化された有機 EL 素子を実現する。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本発明の実施形態に係る有機 EL 素子の層構成の一例を示す概略図である。

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

[図3]本発明の実施態様に係る有機 EL 素子の層構成のさらに他の例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

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

[0019] 本明細書において、「置換もしくは無置換の原子数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」

という表現における「原子数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の原子数を表すものであり、置換されている場合の置換基の原子数は含めない。

[0020] 本明細書において、「置換もしくは無置換の ZZ 基」という場合における「無置換 ZZ 基」とは、 ZZ 基の水素原子が置換基で置換されていないことを意味する。

[0021] 本明細書において、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわち、軽水素 (protium)、重水素 (deuterium)、及び三重水素 (tritium) を包含する。

[0022] 本明細書において、「環形成炭素数」とは、原子が環状に結合した構造の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子のうちの炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素には含まない。以下で記される「環形成炭素数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が6であり、ナフタレン環は環形成炭素数が10であり、ピリジン環は環形成炭素数5であり、フラン環は環形成炭素数4である。また、ベンゼン環やナフタレン環に置換基として例えばアルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、環形成炭素数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の炭素数は環形成炭素数に含めない。

[0023] 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

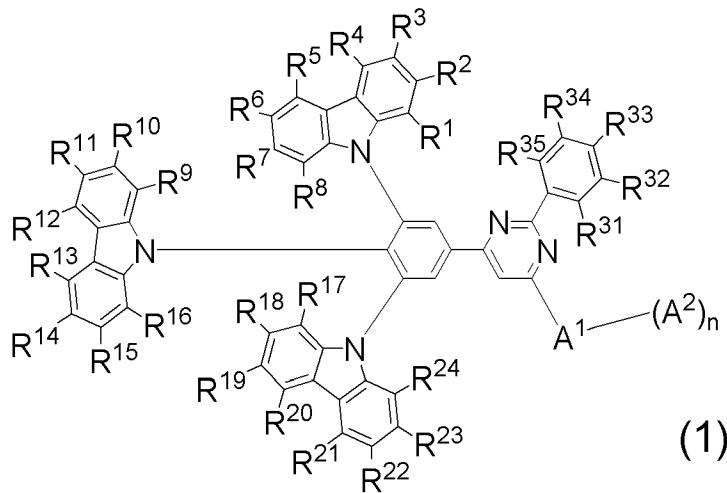
は6であり、キナゾリン環の環形成原子数は10であり、フラン環の環形成原子数は5である。ピリジン環やキナゾリン環の環形成炭素原子にそれぞれ結合している水素原子や置換基を構成する原子は、環形成原子数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロビフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の原子数は環形成原子数の数に含めない。

[0024] 本明細書中、好ましいとする態様（例えば、化合物、各種基、数値範囲等）は、他のあらゆる態様（例えば、化合物、各種基、数値範囲等）と任意に組み合わせることができ、また、好ましいとする態様（より好ましい態様、さらに好ましい態様、特に好ましい態様を含む。）の組み合わせはより好ましいと言える。

[0025] 1. 化合物

本発明の一態様に係る化合物（1）は式（1）で表される。

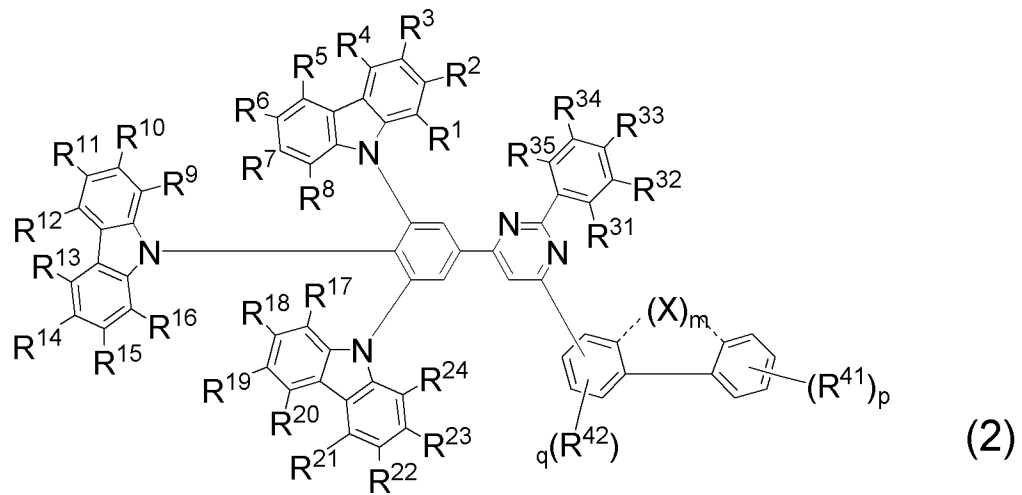
[0026] [化3]



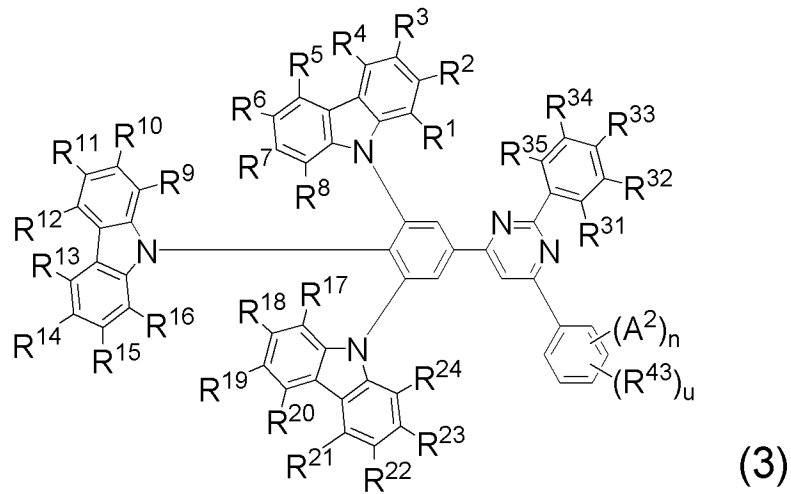
[0027] 当該一態様に係る化合物（1）は、好ましくは下記式（2）～（4）のいずれか、より好ましくは式（2）～（3）のいずれかで表される化合物である。

[0028]

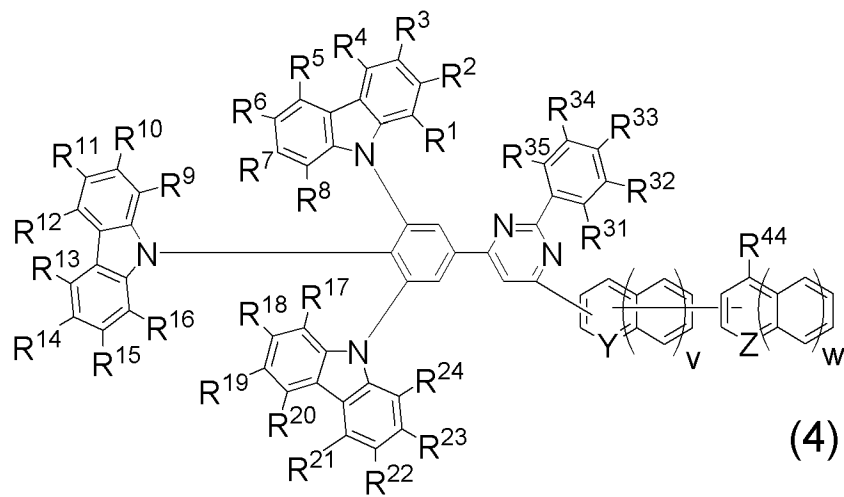
[化4]



[0029] [化5]

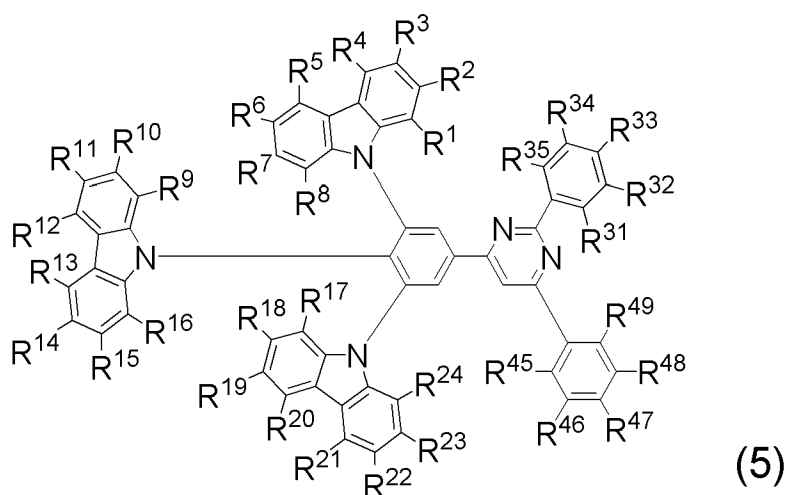


[0030] [化6]

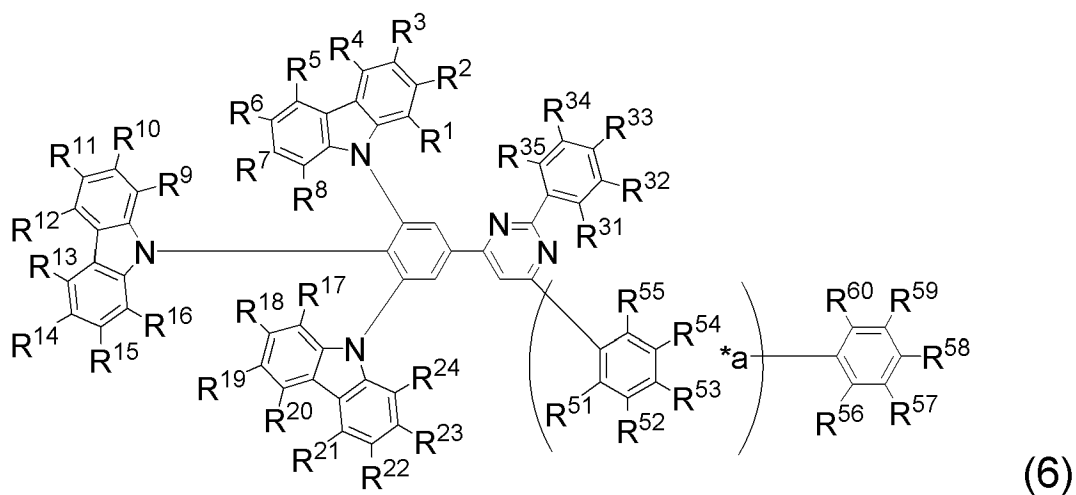


[0031] また、当該一態様に係る化合物（１）は、好ましくは下記式（５）～（１７）のいずれかで表される化合物であり、より好ましくは下記式（５）～（１０）のいずれかで表される化合物であり、さらに好ましくは下記式（６）～（８）のいずれかで表される化合物であり、よりさらに好ましくは下記式（６）～（７）のいずれかで表される化合物である。

[0032] [化7]

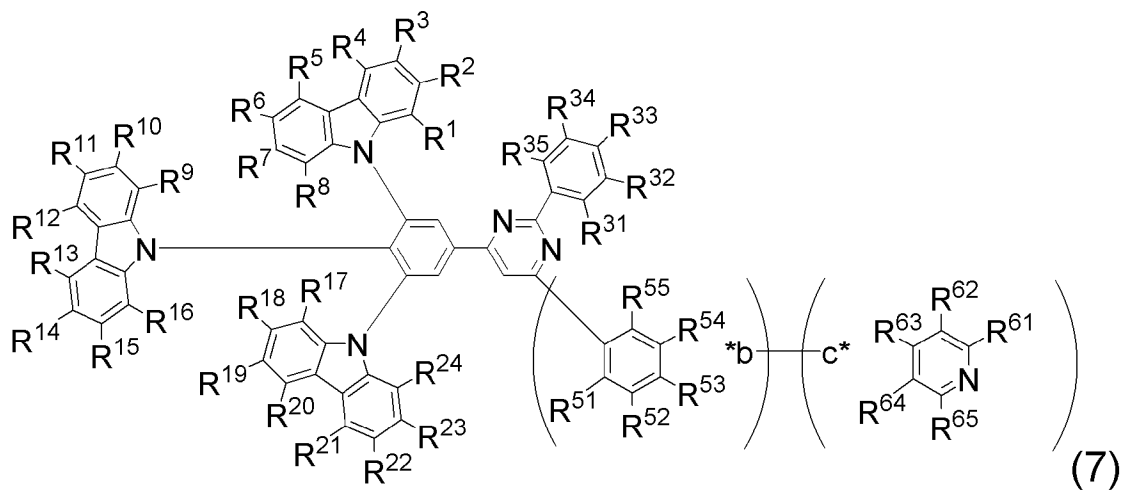


[0033] [化8]

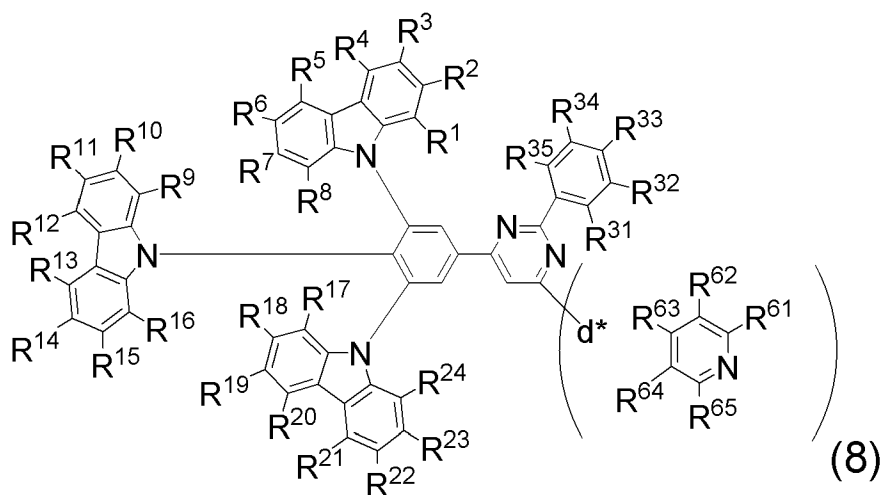


[0034]

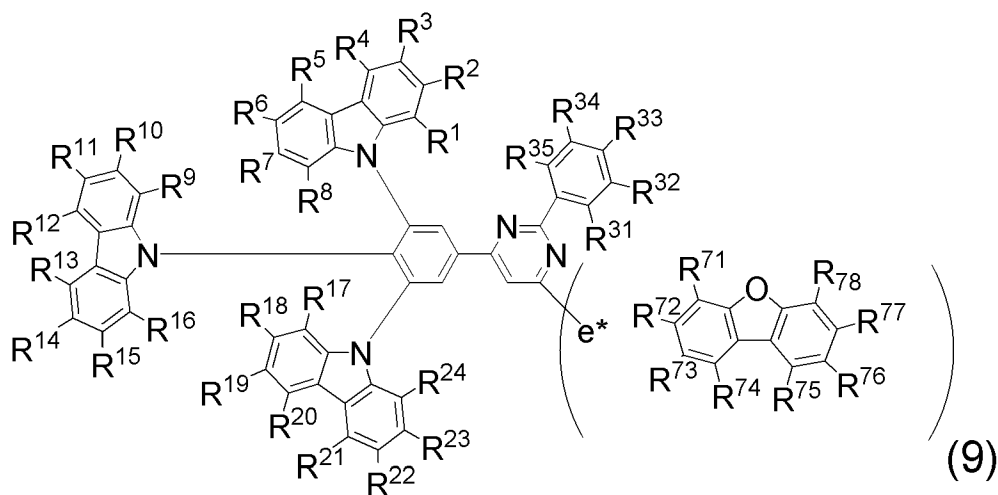
[化9]



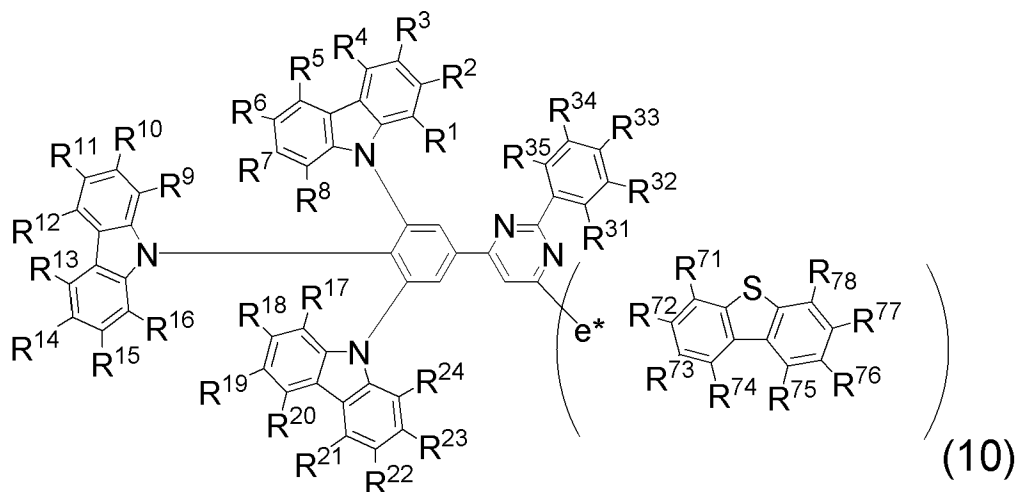
[0035] [化10]



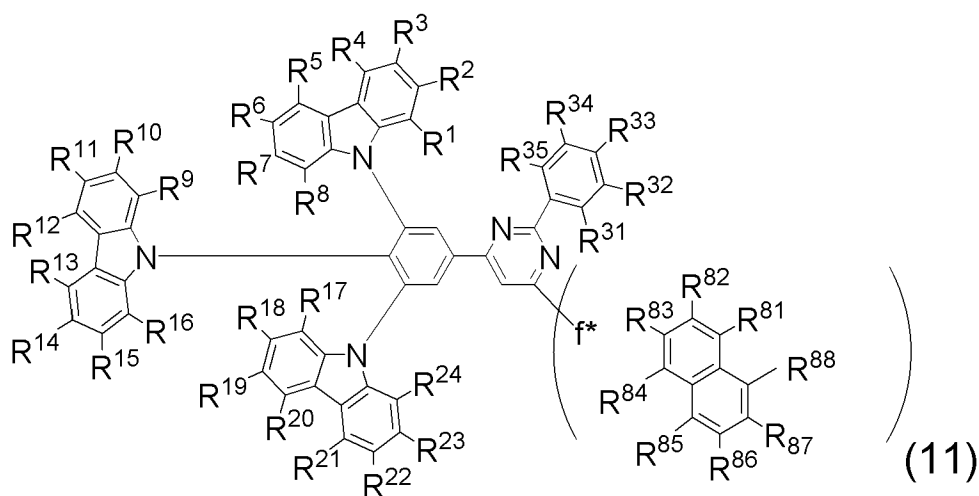
[0036] [化11]



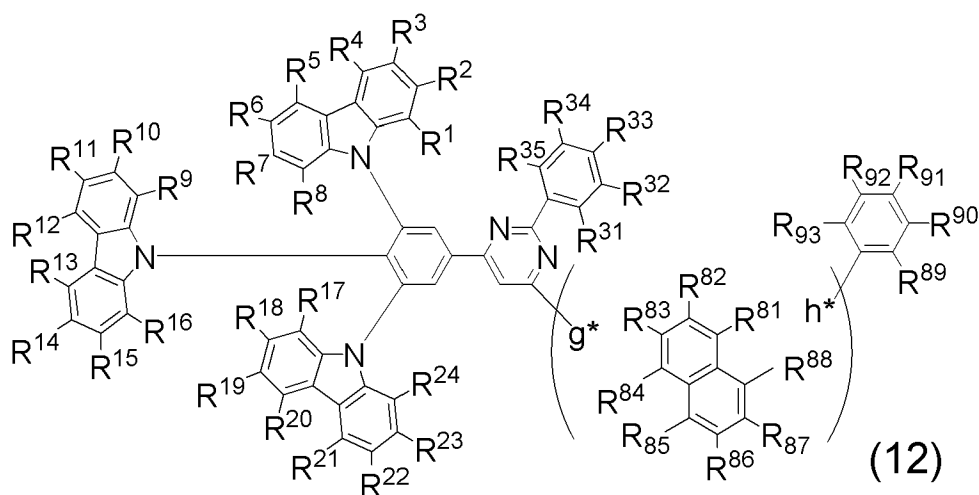
[0037] [化12]



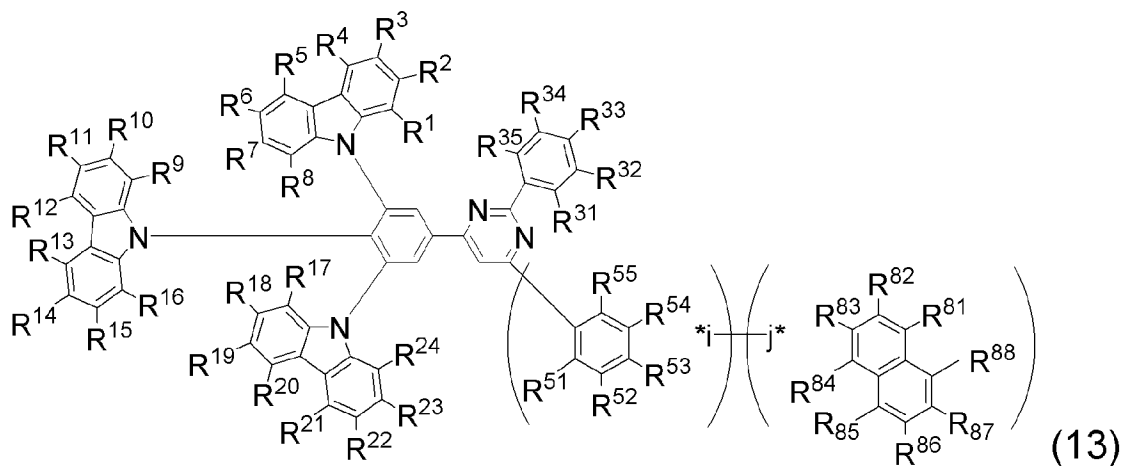
[0038] [化13]



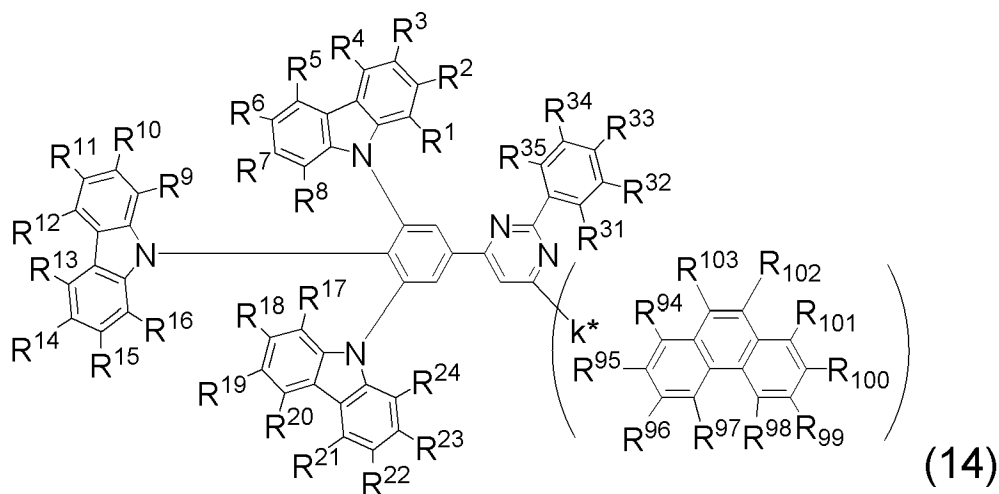
[0039] [化14]



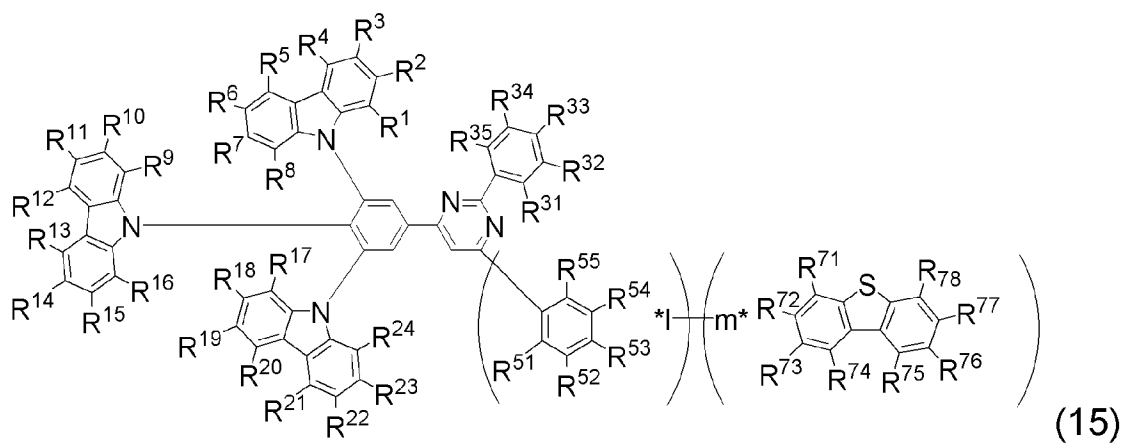
[0040] [化15]



[0041] [化16]

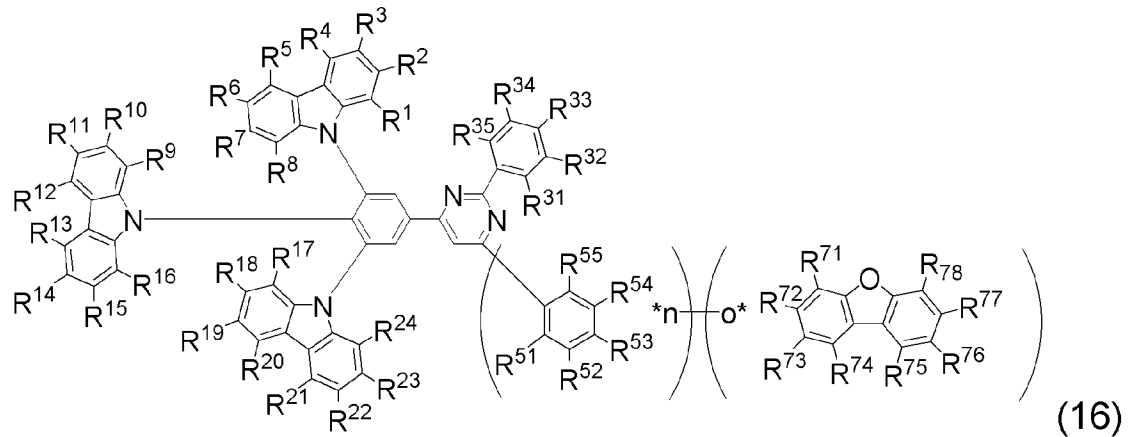


[0042] [化17]

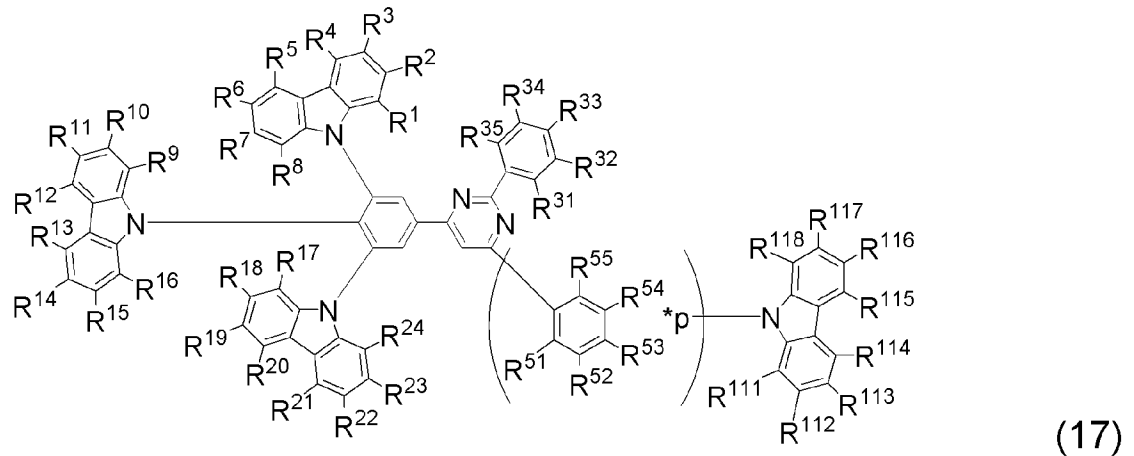


[0043]

[化18]



[0044] [化19]



[0045] 次に、式（１）～式（１７）の各記号を説明する。

なお、本明細書に記載の環形成炭素数 6～30 のアリール基、環形成炭素数 6～30 の芳香族炭化水素環、環形成炭素数 6～30 の芳香族炭化水素；
 環形成原子数 5～30 のヘテロアリール基、環形成原子数 5～30 の芳香族複素環化合物、環形成原子数 5～30 の複素環；
 炭素数 1～50 のアルキル基；
 環形成炭素数 5～50 のシクロアルキル基、環形成炭素数 5～50 の脂肪族炭化水素環；

「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基；

は、特に断らない限り、以下の意味を有する。

[0046] すなわち、本明細書に記載の環形成炭素数 6～30 のアリール基は、例え

ば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ビフェニレニル基、ナフチル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フェナレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾクリセニル基、フルオレニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、又は、ベンゾトリフェニレニル基である。

好ましくは、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、フルオレニル基、トリフェニレニル基、ピレニル基、フルオランテニル基、又は、ベンゾトリフェニレニル基であり、より好ましくは、フェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、フェナントリル基、又は、トリフェニレニル基である。

該ナフチル基は1-ナフチル基及び2-ナフチル基を含む。

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

該トリフェニレニル基は、好ましくは2-トリフェニレニル基である。

[0047] 環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環は、好ましくはベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレン、アントラセン、ベンゾアントラセン、フェナントレン、ベンゾフェナントレン、フェナレン、ピセン、ペンタフェン、ピレン、クリセン、ベンゾクリセン、フルオレン、フルオランテン、ペリレン、又はトリフェニルであり、より好ましくはベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、又はフェナントレンである。

環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素は、上記環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環と同様である。

[0048] 環形成原子数5～30のヘテロアリアル基において、該環形成ヘテロ原子は、例えば、窒素原子、硫黄原子及び酸素原子から選択される。該ヘテロアリアル基の自由結合手は環形成炭素原子上に存在するか、又は、物理的に可能な場合には、環形成窒素原子上に存在する。

該環形成原子数5～30のヘテロアリアル基は、例えば、ピロリル基、フ

リル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、インダゾリル基、ベンゾイソキサゾリル基、ベンゾイソチアゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基、キサンテニル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ナフトベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基（ベンゾチエニル基、以下同様）、イソベンゾチオフェニル基（イソベンゾチエニル基、以下同様）、ナフトベンゾチオフェニル基（ナフトベンゾチエニル基、以下同様）、ジベンゾチオフェニル基（ジベンゾチエニル基、以下同様）、又はカルバゾリル基である。

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

[0049] 環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物は、好ましくはピロール、フラン、チオフェン、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イソオキサゾール、イソチアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール、テトラゾール、インドール、イソインドール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ベンゾチオフェン、イソベンゾチオフェン、インドリジン、キノリジン、キノリン、イソキノリン、シンノリン、フタラジニン、キナゾリン

、キノキサリン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、インダゾール、ベンズイソキサゾール、ベンズイソチアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、フェナントリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、キサンテン、又はベンゾニトリルであり、より好ましくはピリジン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、又はベンゾニトリルである。

環形成原子数5～30の複素環は、好ましくは、上記環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物からベンゼン環を除いた構造である。詳しくは後述する。

[0050] 炭素数1～50のアルキル基は、好ましくは1～18のアルキル基、より好ましくは1～8のアルキル基である。前記炭素数1～50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（異性体基を含む）、ヘキシル基（異性体基を含む）、ヘプチル基（異性体基を含む）、オクチル基（異性体基を含む）、ノニル基（異性体基を含む）、デシル基（異性体基を含む）、ウンデシル基（異性体基を含む）、及びドデシル基（異性体基を含む）などが挙げられる。これらの中でも、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*-ブチル基及びペンチル基（異性体基を含む）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*-ブチル基及び*t*-ブチル基がより好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基及び*t*-ブチル基が特に好ましい。

[0051] 環形成炭素数5～50のシクロアルキル基は、例えば、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る。これらの中でも、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環は、例えば、シクロペンテン環

、シクロペンタジエン環、シクロヘキセン環、シクロヘキサジエン環、又は、前記環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環を部分的に水素化して得られる脂肪族環である。

[0052] 「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基は、特に断らない限り、ハロゲン原子；シアノ基；ニトロ基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基；環形成炭素数3～30、好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6のシクロアルキル基；環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基；炭素数7～36、好ましくは7～26、より好ましくは7～20のアラルキル基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルコキシ基；環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリールオキシ基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のアルキル基及び環形成炭素数6～30、好ましくは6～25、より好ましくは6～18のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8ハロアルキル基；炭素数1～30、好ましくは1～18、より好ましくは1～8のハロアルコキシ基；及び、環形成原子数5～30、好ましくは5～24、より好ましくは5～13のヘテロアリール基からなる群より選ばれる。

前記任意の置換基は、好ましくは、炭素数1～30のアルキル基、環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、環形成炭素数6～30のアリール基、炭素数1～30のアルキル基及び環形成炭素数6～30のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ、ジ又はトリ置換シリル基、及び、環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれ；より好ましくは、炭素数1～30のアルキル基、環形成炭素数6～30のアリール基、及び、環形成原子数5～30のヘテロアリール基からなる群から選ばれ；更に好ましくは炭素数1～30のアルキル基又は環形成炭素数6～30のアリール基であり、特に好ましくは炭素数1～30のアルキル基である。

[0053] $R^1 \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基である。 $R^1 \sim R^{24}$ は、好ましくは水素原子である。

ここで、環形成炭素数6～30のアリール基、環形成原子数5～30のヘテロアリール基、炭素数1～50のアルキル基、環形成炭素数5～50のシクロアルキル基、及び「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基の詳細は、前述したとおりである。

[0054] R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組は、それぞれ独立に、互いに結合して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環を形成するか、又は、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} は互いに結合して環を形成せず、互いに結合して環を形成しない場合、 $R^{31} \sim R^{35}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基である。 $R^{31} \sim R^{35}$ は、好ましくは水素原子である。

ここで、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環、環形成原子数5～30の複素環、環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環、環形成炭素数6～30のアリール基、環形成原子数5～30のヘテロアリール基、炭素数1～50のアルキル基、環形成炭素数5～50のシクロアルキル基、及び「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基の詳細は、前述したとおりである。

また、環形成原子数5～30の複素環は、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組と、これら R^{31} ～ R^{35} が結合された式(1)～(17)におけるベンゼン環とによって、前記芳香族複素環化合物と同様の構造を構成することが好ましい。

[0055] A^1 は、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基であり、好ましくは環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の無置換の $n+1$ 価の残基である。

ここで、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素、環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物、及び「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基の詳細は、前述したとおりである。

[0056] A^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6～30のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、又はシアノ基であり、好ましくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、又はシアノ基であり、より好ましくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基である。

ここで、環形成炭素数6～30のアリール基、環形成原子数5～30のヘテロアリール基、及び「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基の詳細は、前述したとおりである。

[0057] n は0～3の整数であり、好ましくは0又は1であり、より好ましくは1である。

なお、 A^1 がベンゼンの $n+1$ 価の残基である場合、 n は1以上の整数である。 n が0のとき、 $(A^2)_0$ は水素である。

[0058] 前記式(1)～式(17)において、好ましくは R^1 ～ R^{24} 及び R^{31} ～ R^{35} は水素原子であり、 A^1 は、形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の無置

換の $n + 1$ 価の残基であり、 A^2 は無置換の環形成炭素数 $6 \sim 30$ のアリール基又は無置換の環形成原子数 $5 \sim 30$ のヘテロアリール基である。

[0059] 前記式 (2) において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

$R^{41} \sim R^{42}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

m は 0 又は 1 であり、好ましくは 0 である。

m が 0 のとき X は存在せず、2つのベンゼン環は架橋されない。

m が 1 のとき X は O 又は S である。

p は 0 \sim 5 の整数であり、好ましくは 0 又は 1 であり、より好ましくは 0 である。

q は 0 \sim 4 の整数であり、好ましくは 0 又は 1 であり、より好ましくは 0 である。

[0060] 前記式 (3) において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

A^2 及び n は、前記と同じである。

R^{43} は、前記 R^1 と同じである。

u は、0 \sim (5 - n) の整数であり、好ましくは 0 又は 1 であり、より好ましくは 0 である。

[0061] 前記式 (4) において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

R^{44} は、水素原子又はシアノ基であり、好ましくは水素原子である。

Y は CH 又は N であり、好ましくは CH である。

Z は CH 又は N であり、好ましくは CH である。

v 及び w は、それぞれ独立に 0 又は 1 であり、好ましくは v 及び w の少なくとも 1 つが 0、他方が 0 又は 1 であり、より好ましくはそれぞれ 0 である

。

[0062] 前記式 (5) において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

$R^{45} \sim R^{49}$ は、前記 R^1 と同じである。

[0063] 前記式(6)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

$R^{51} \sim R^{55}$ のうちの1つは a^* と結合する単結合であり、 a^* と結合しない $R^{51} \sim R^{55}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

$R^{56} \sim R^{60}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0064] 前記式(7)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

$R^{51} \sim R^{55}$ のうちの1つは b^* と結合する単結合であり、 b^* と結合しない $R^{51} \sim R^{55}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

$R^{61} \sim R^{65}$ のうちの1つは c^* と結合する単結合であり、 c^* と結合しない $R^{61} \sim R^{65}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0065] 前記式(8)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

$R^{61} \sim R^{65}$ のうちの1つは d^* と結合する単結合であり、 d^* と結合しない $R^{61} \sim R^{65}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0066] 前記式(9)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである

。

$R^{71} \sim R^{78}$ のうちの1つは e^* と結合する単結合であり、 e^* と結合しない $R^{71} \sim R^{78}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0067] 前記式(10)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{71} \sim R^{78}$ のうちの1つは e^* と結合する単結合であり、 e^* と結合しない $R^{71} \sim R^{78}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0068] 前記式(11)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{81} \sim R^{88}$ のうちの1つは f^* と結合する単結合であり、 f^* と結合しない $R^{81} \sim R^{88}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0069] 前記式(12)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{81} \sim R^{88}$ のうちの1つは g^* と結合する単結合であり、 $R^{81} \sim R^{88}$ のうちの1つは h^* と結合する単結合であり、 g^* 及び h^* と結合しない $R^{81} \sim R^{88}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

$R^{89} \sim R^{93}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0070] 前記式(13)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{51} \sim R^{55}$ のうちの1つは i^* と結合する単結合であり、 i^* と結合しない $R^{51} \sim R^{55}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

$R^{81} \sim R^{88}$ のうちの1つは j^* と結合する単結合であり、 j^* と結合しない $R^{81} \sim R^{88}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0071] 前記式(14)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{94} \sim R^{103}$ のうちの1つは k^* と結合する単結合であり、 k^* と結合しない $R^{94} \sim R^{103}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0072] 前記式(15)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{51} \sim R^{55}$ のうちの1つは l^* と結合する単結合であり、 l^* と結合しない $R^{51} \sim R^{55}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

$R^{71} \sim R^{78}$ のうちの1つは m^* と結合する単結合であり、 m^* と結合しない $R^{71} \sim R^{78}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0073] 前記式(16)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{51} \sim R^{55}$ のうちの1つは n^* と結合する単結合であり、 n^* と結合しない $R^{51} \sim R^{55}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

$R^{71} \sim R^{78}$ のうちの1つは o^* と結合する単結合であり、 o^* と結合しない $R^{71} \sim R^{78}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

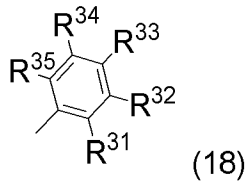
[0074] 前記式(17)において、 $R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じである。

$R^{51} \sim R^{55}$ のうちの一つは p^* と結合する単結合であり、 p^* と結合しない $R^{51} \sim R^{55}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

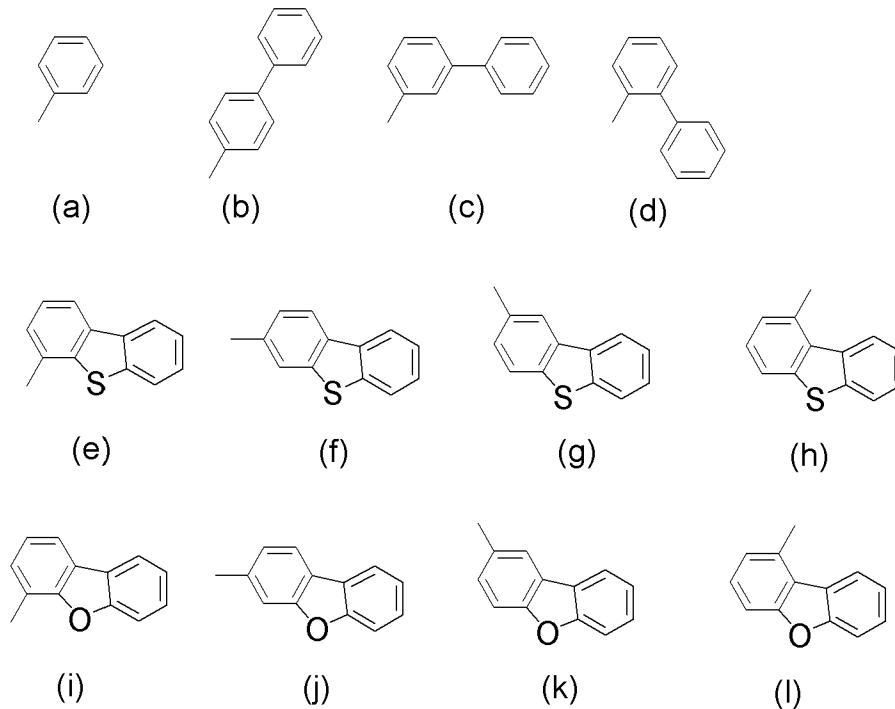
$R^{111} \sim R^{118}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じである。

[0075] 式(1)～式(17)において、下記式(18)で表される基は、好ましくは下記式(a)～(l)で表され、より好ましくは式(a)、(b)、(e)、又は(i)で表され、さらに好ましくは式(a)、(b)、又は(e)で表され、よりさらに好ましくは式(a)で表される。

[0076] [化20]



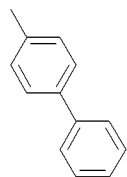
[0077] [化21]



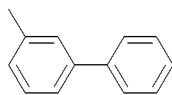
[0078] 式(1)～式(17)において、 $-A^1-(A^2)_n$ で表される基は、好ましくは下記式(m)～(x)で表され、より好ましくは式(m)、(n)、(

o)、(p)、(q)又は(r)で表され、さらに好ましくは式(m)又は(q)で表される。

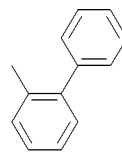
[0079] [化22]



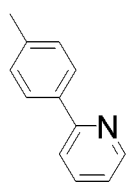
(m)



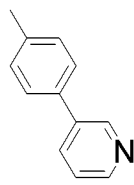
(n)



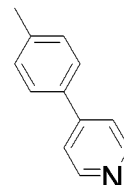
(o)



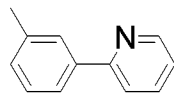
(p)



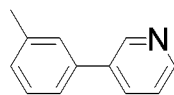
(q)



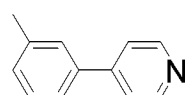
(r)



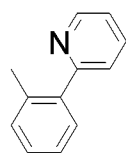
(s)



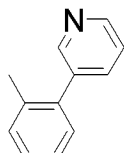
(t)



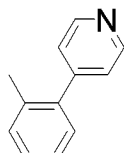
(u)



(v)



(w)



(x)

[0080] 式(1)～式(17)で表される化合物中の水素原子のうち少なくとも1つは重水素原子であってもよい。

$R^1 \sim R^{24}$ の少なくとも1つが重水素原子であってもよい。

$R^1 \sim R^{24}$ の水素原子は、すべて重水素原子であってもよい。また、 $R^1 \sim R^{24}$ のすべてが重水素原子であってもよい。

A^1 で表される基が水素原子を有し、かつ当該水素原子のうち少なくとも1つは重水素原子であってもよい。

n は0であり、 A^1 で表される基は無置換であり、 A^1 で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子であってもよい。

n は1であり、 A^1 で表される基が水素原子を有し、かつ当該水素原子のうち少なくとも1つは重水素原子であり、 A^2 で表される基が水素原子を有し、かつ当該水素原子のうち少なくとも1つは重水素原子であってもよい。

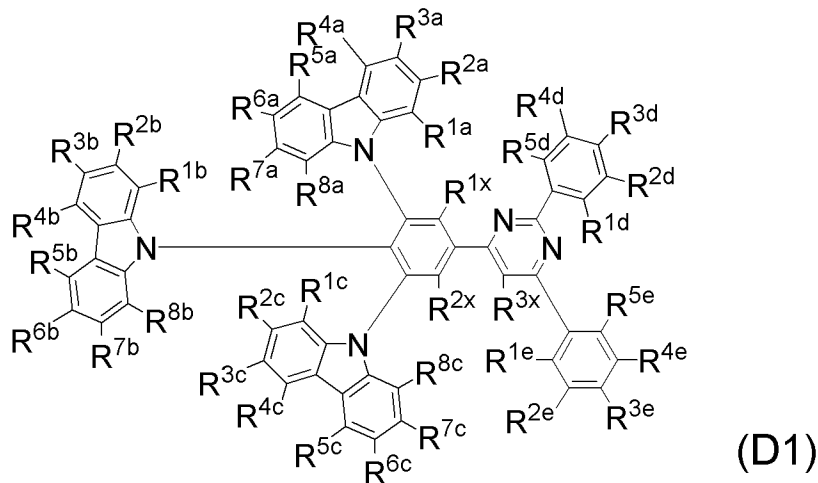
n は1であり、 A^1 で表される基は無置換であり、 A^1 で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子であり、 A^2 で表される基は無置換であり、 A^2 で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子であってもよい。

$R^{31} \sim R^{35}$ の少なくとも1つが重水素原子であってもよい。

$R^{31} \sim R^{35}$ のすべてが重水素原子であってもよい。

[0081] 本発明に係る化合物は、下記式 (D1) ~ (D6) で表される化合物であってもよい。

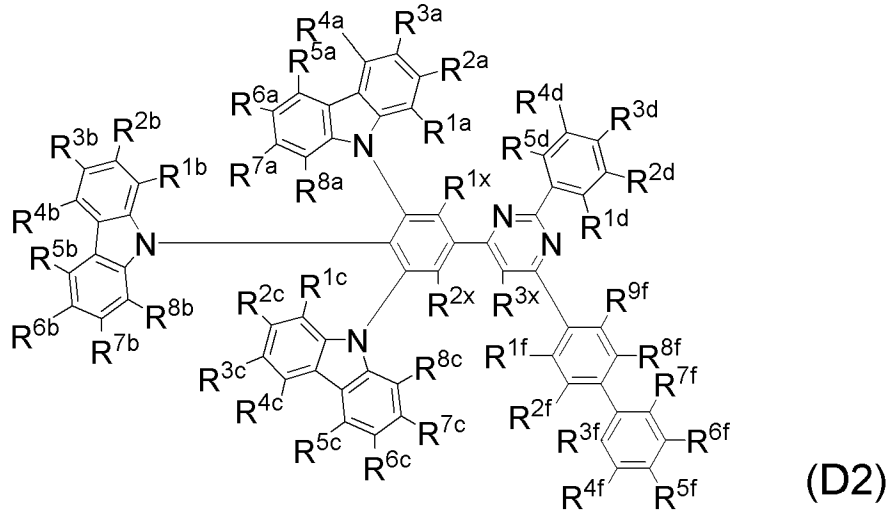
[0082] [化23]



[0083] 式 (D1) 中、 $R^{1a} \sim R^{8a}$ 、 $R^{1b} \sim R^{8b}$ 、 $R^{1c} \sim R^{8c}$ 、 $R^{1d} \sim R^{5d}$ 、 $R^{1x} \sim R^{3x}$ 、及び $R^{1e} \sim R^{5e}$ は水素原子であり、かつ当該水素原子のうちの1個以上37個以下が重水素原子である。

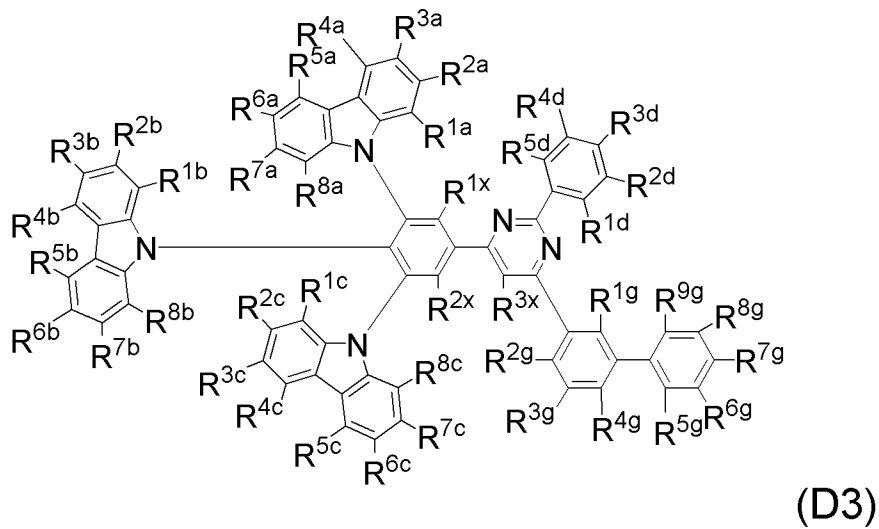
[0084]

[化24]



[0085] 式 (D2) 中、 $R^{1a} \sim R^{8a}$ 、 $R^{1b} \sim R^{8b}$ 、 $R^{1c} \sim R^{8c}$ 、 $R^{1d} \sim R^{5d}$ 、 $R^{1x} \sim R^{3x}$ 、及び $R^{1f} \sim R^{9f}$ は水素原子であり、かつ当該水素原子のうちの1個以上4個以下が重水素原子である。

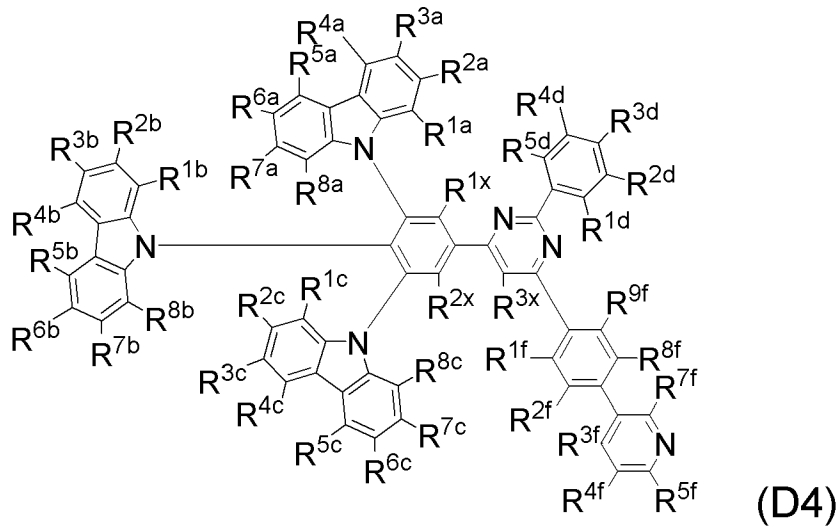
[0086] [化25]



[0087] 式 (D3) 中、 $R^{1a} \sim R^{8a}$ 、 $R^{1b} \sim R^{8b}$ 、 $R^{1c} \sim R^{8c}$ 、 $R^{1d} \sim R^{5d}$ 、 $R^{1x} \sim R^{3x}$ 、及び $R^{1g} \sim R^{9g}$ は水素原子であり、かつ当該水素原子のうちの1個以上4個以下が重水素原子である。

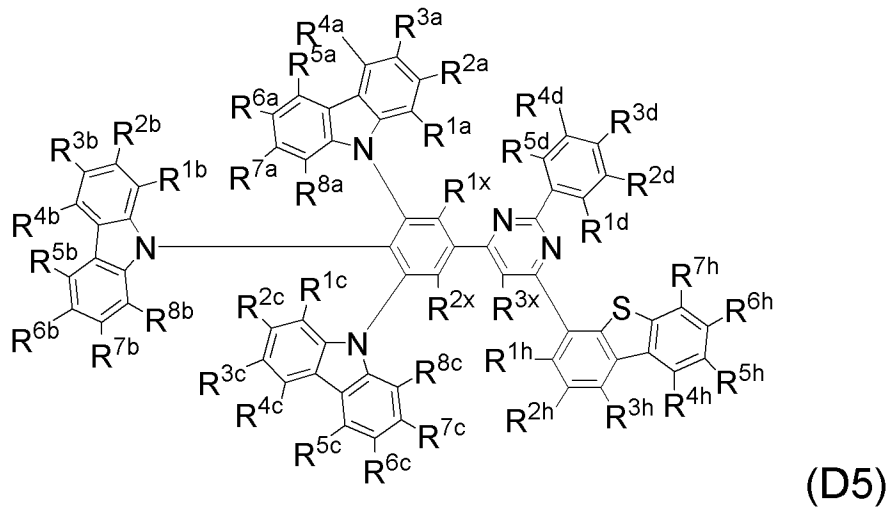
[0088]

[化26]



[0089] 式 (D4) 中、R^{1a}~R^{8a}、R^{1b}~R^{8b}、R^{1c}~R^{8c}、R^{1d}~R^{5d}、R^{1x}~R^{3x}、R^{1f}~R^{5f}、及びR^{7f}~R^{9f}は水素原子であり、かつ当該水素原子のうち1個以上40個以下が重水素原子である。

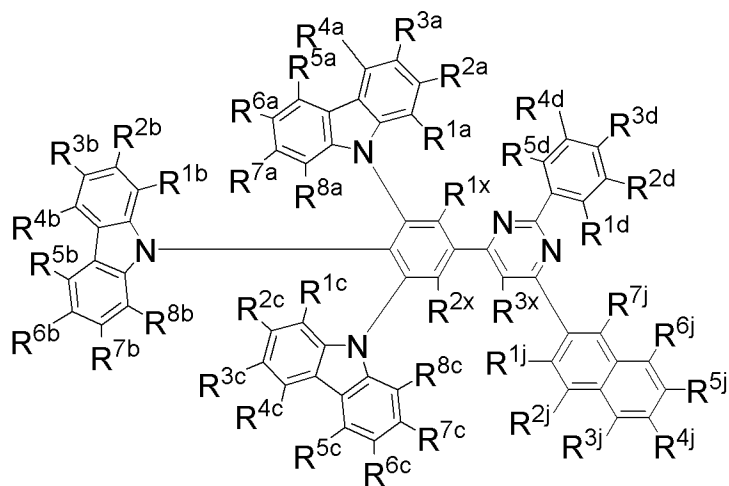
[0090] [化27]



[0091] 式 (D5) 中、R^{1a}~R^{8a}、R^{1b}~R^{8b}、R^{1c}~R^{8c}、R^{1d}~R^{5d}、R^{1x}~R^{3x}、及びR^{1h}~R^{7h}は水素原子であり、かつ当該水素原子のうち1個以上39個以下が重水素原子である。

[0092]

[化28]



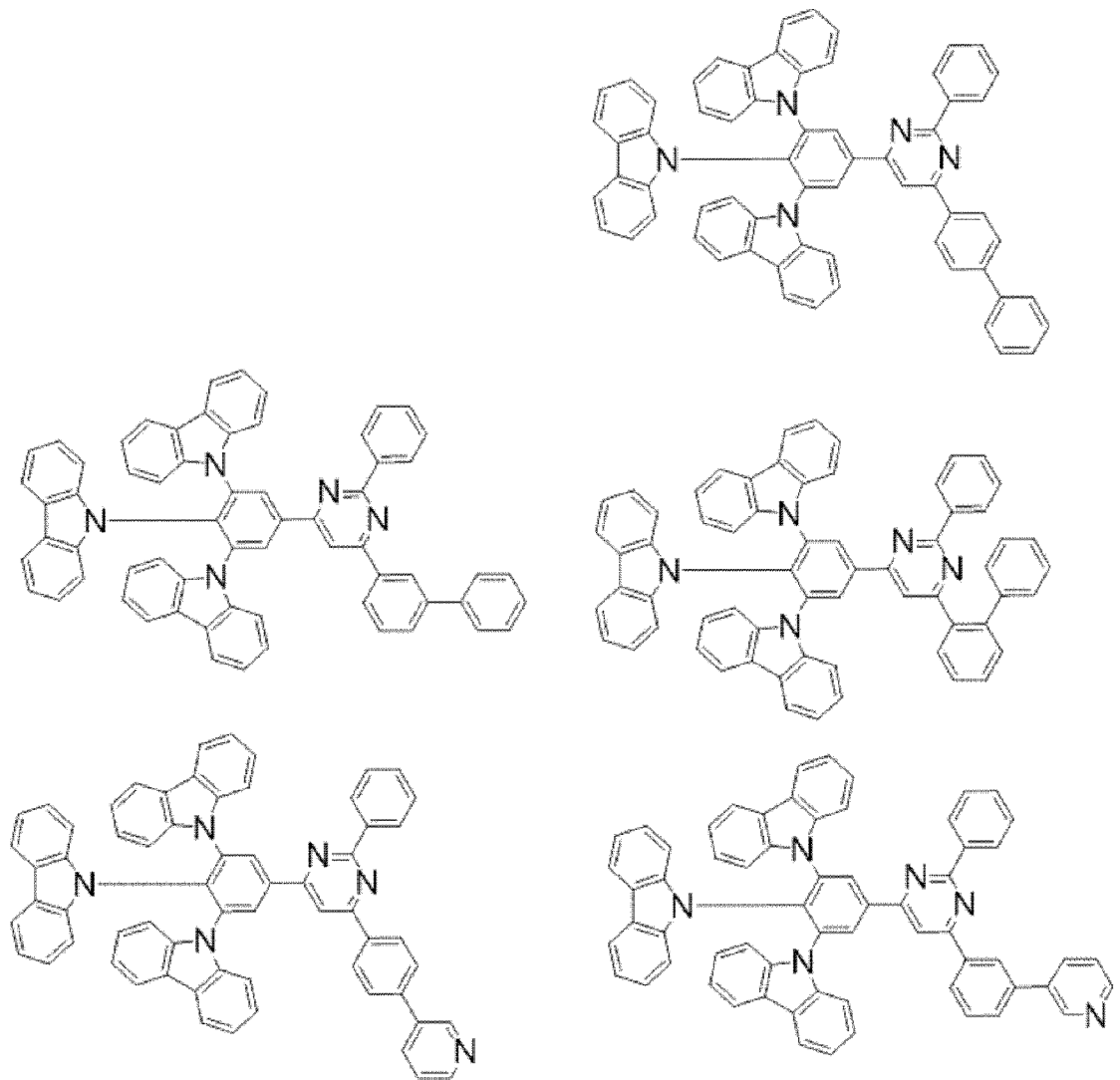
(D6)

[0093] 式 (D6) 中、R^{1a}~R^{8a}、R^{1b}~R^{8b}、R^{1c}~R^{8c}、R^{1d}~R^{5d}、R^{1x}~R^{3x}、及びR^{1j}~R^{7j}は水素原子であり、かつ当該水素原子のうちの1個以上39個以下が重水素原子である。

[0094] 本発明に係る化合物の具体例 (具体例化合物) を以下に挙げるが、特にこれらに制限されるものではない。

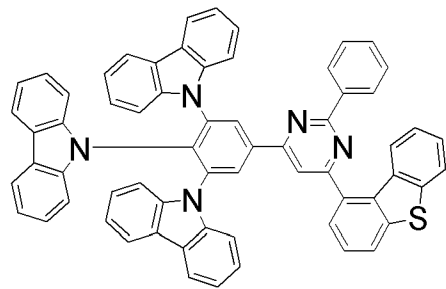
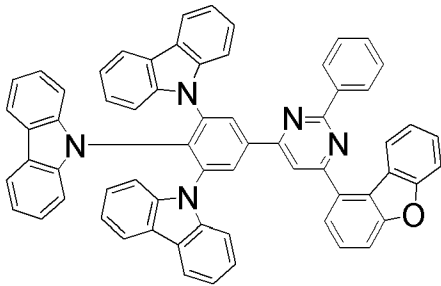
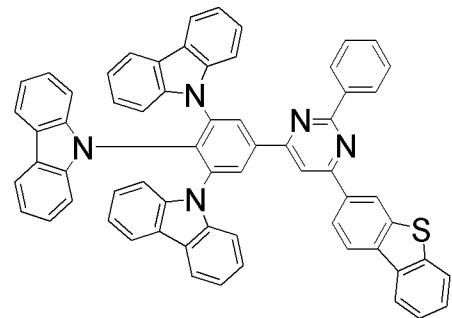
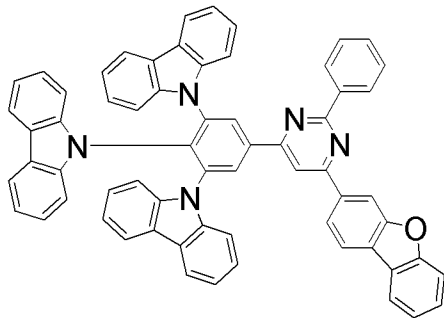
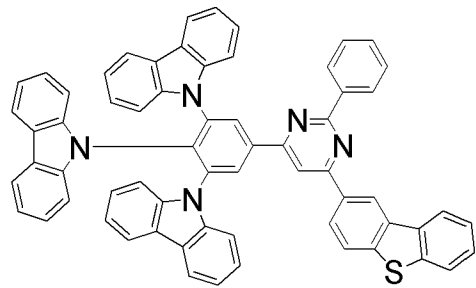
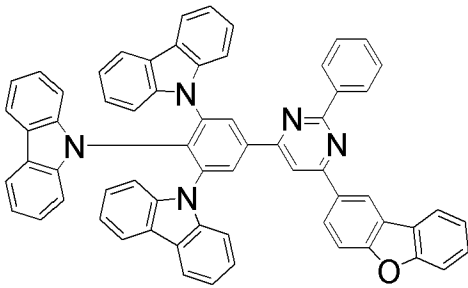
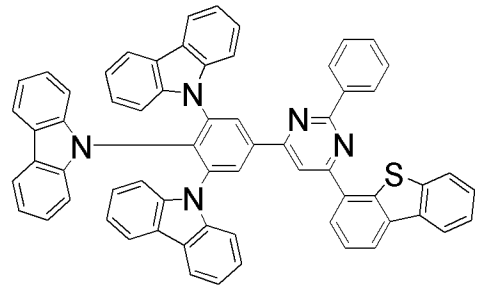
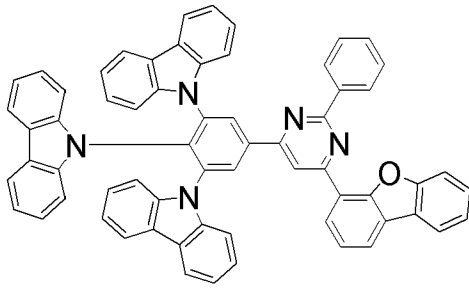
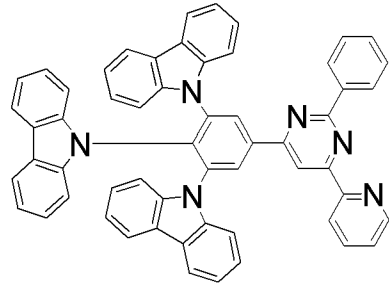
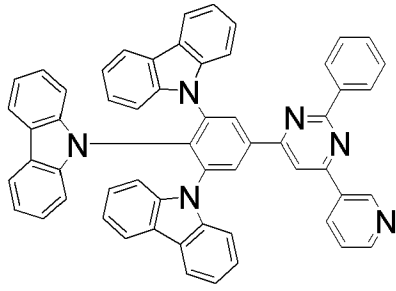
[0095]

[化29]



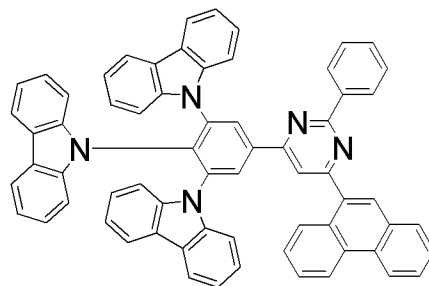
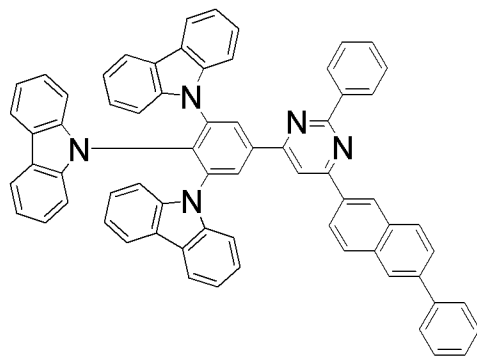
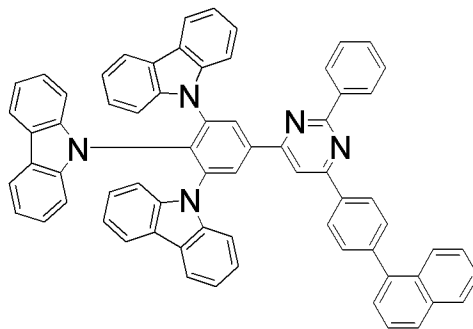
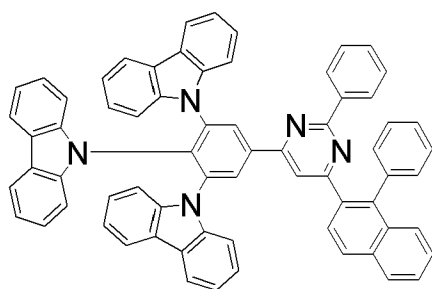
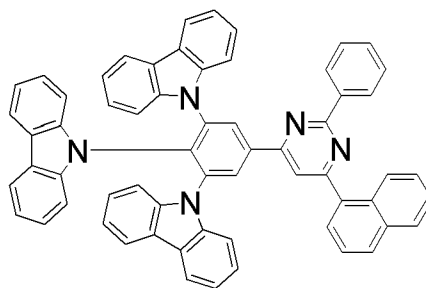
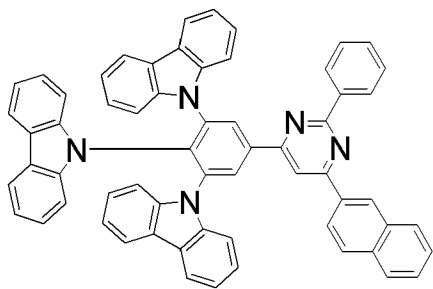
[0096]

[化30]



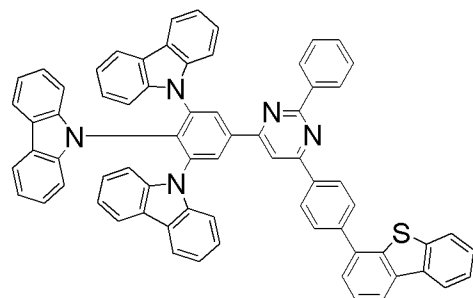
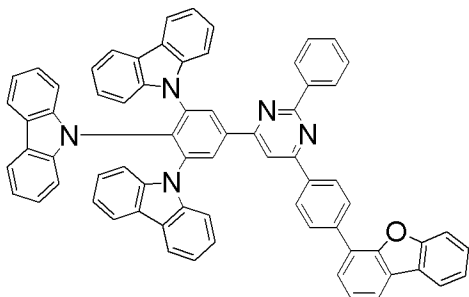
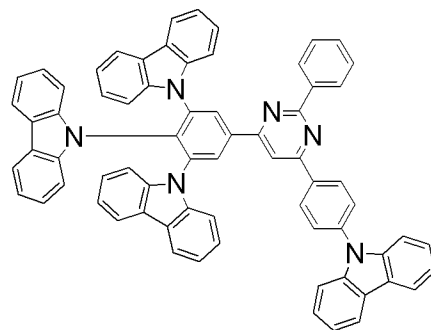
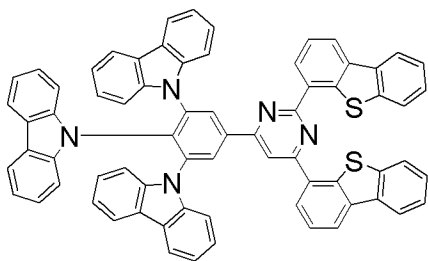
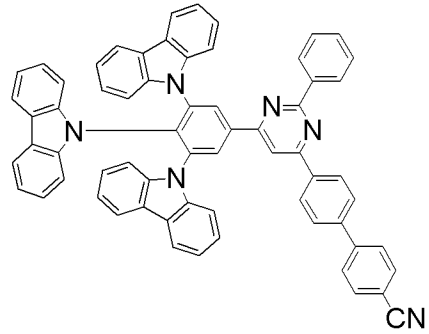
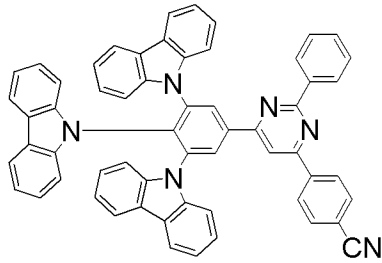
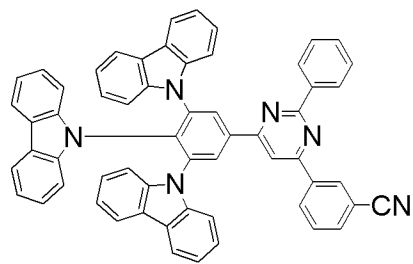
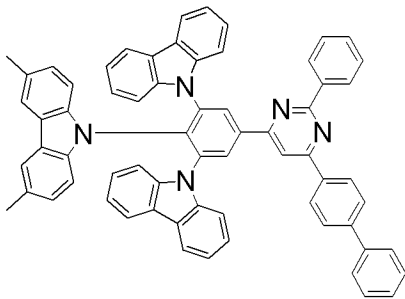
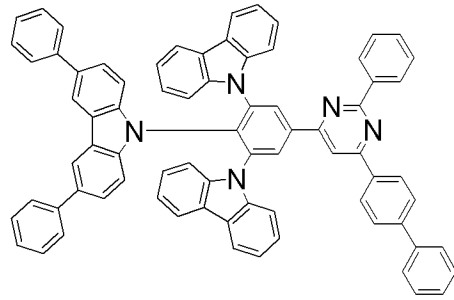
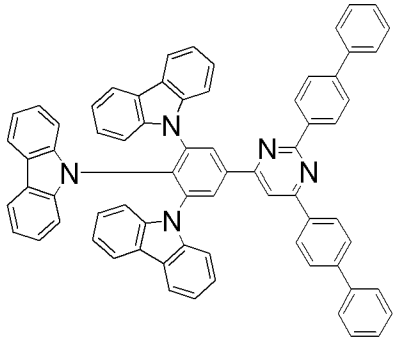
[0097]

[化31]

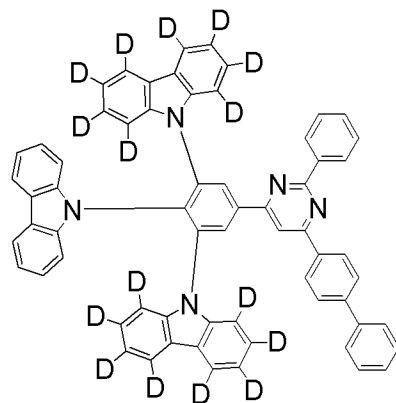
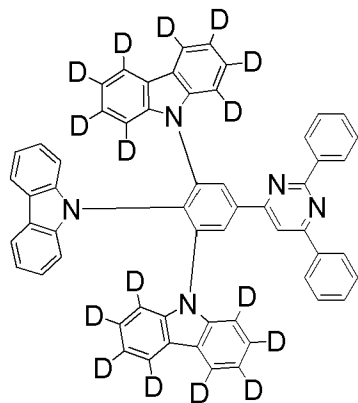
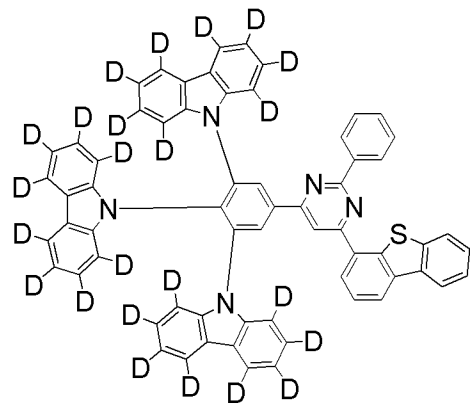
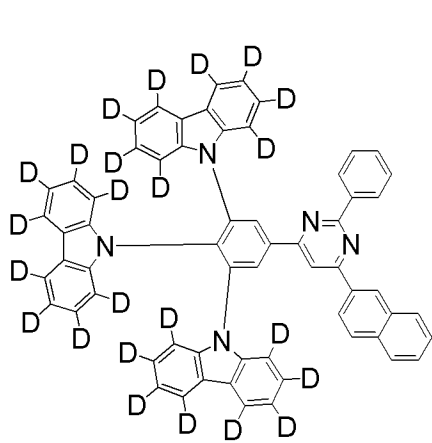
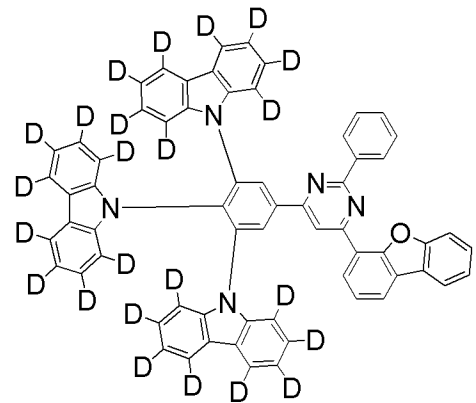
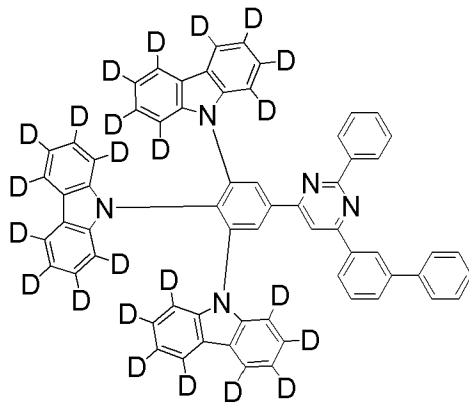
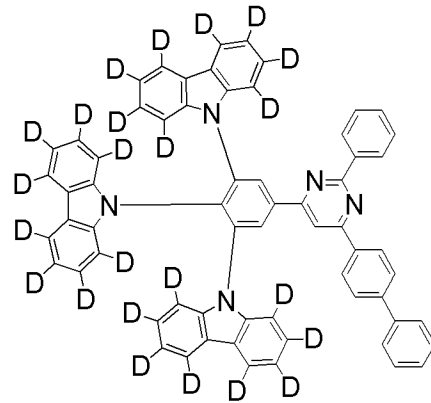
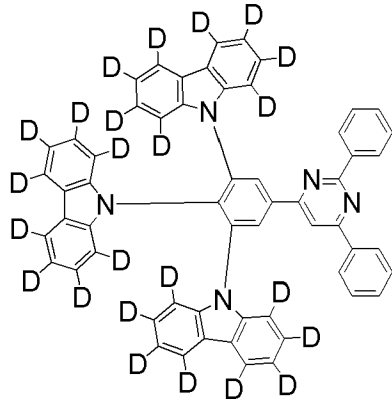


[0098]

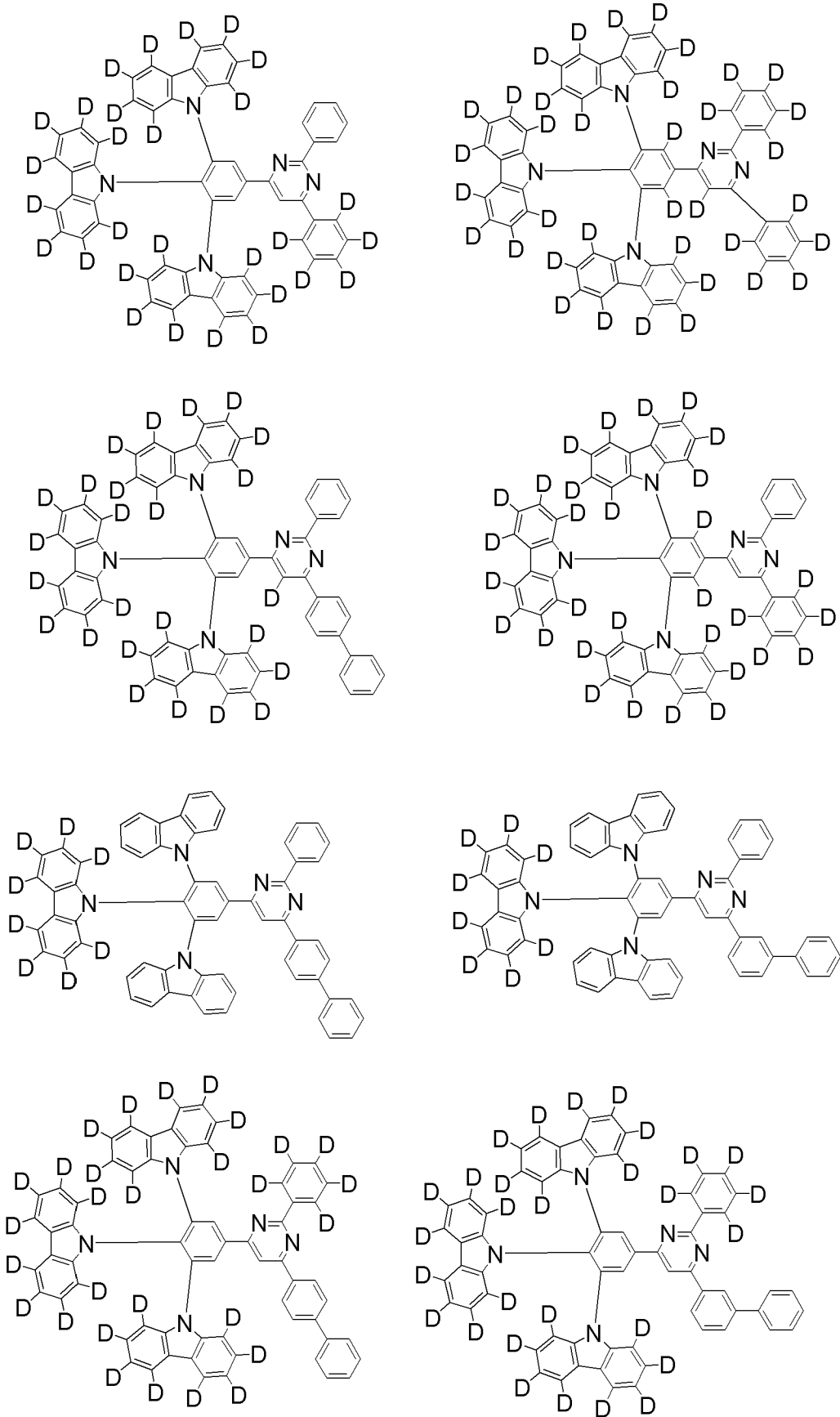
[化32]



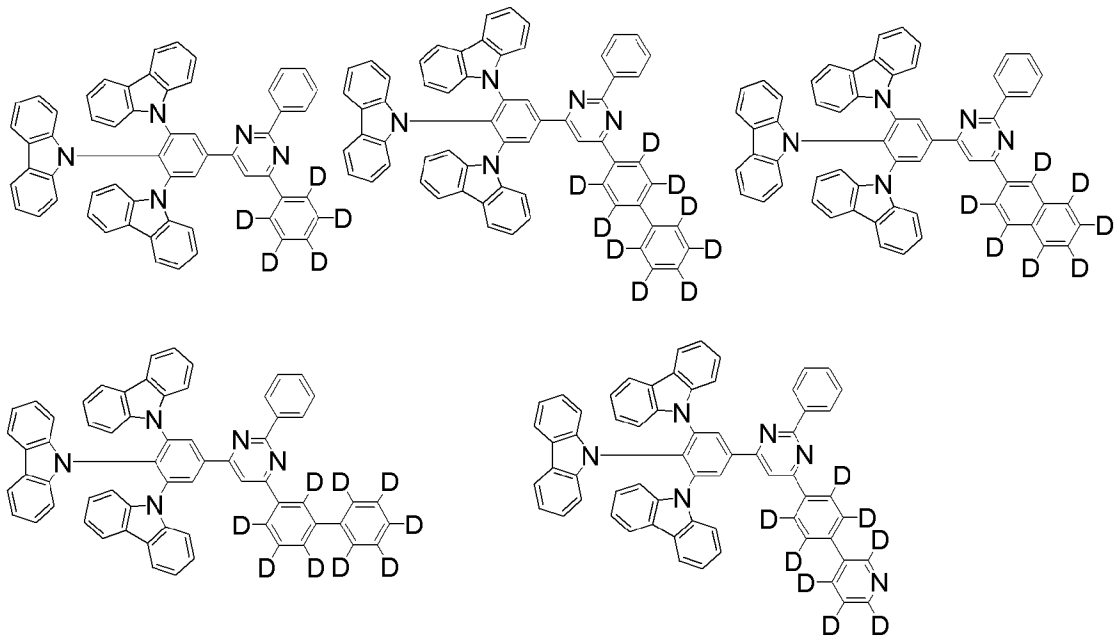
[0099] [化33]



[0100] [化34]

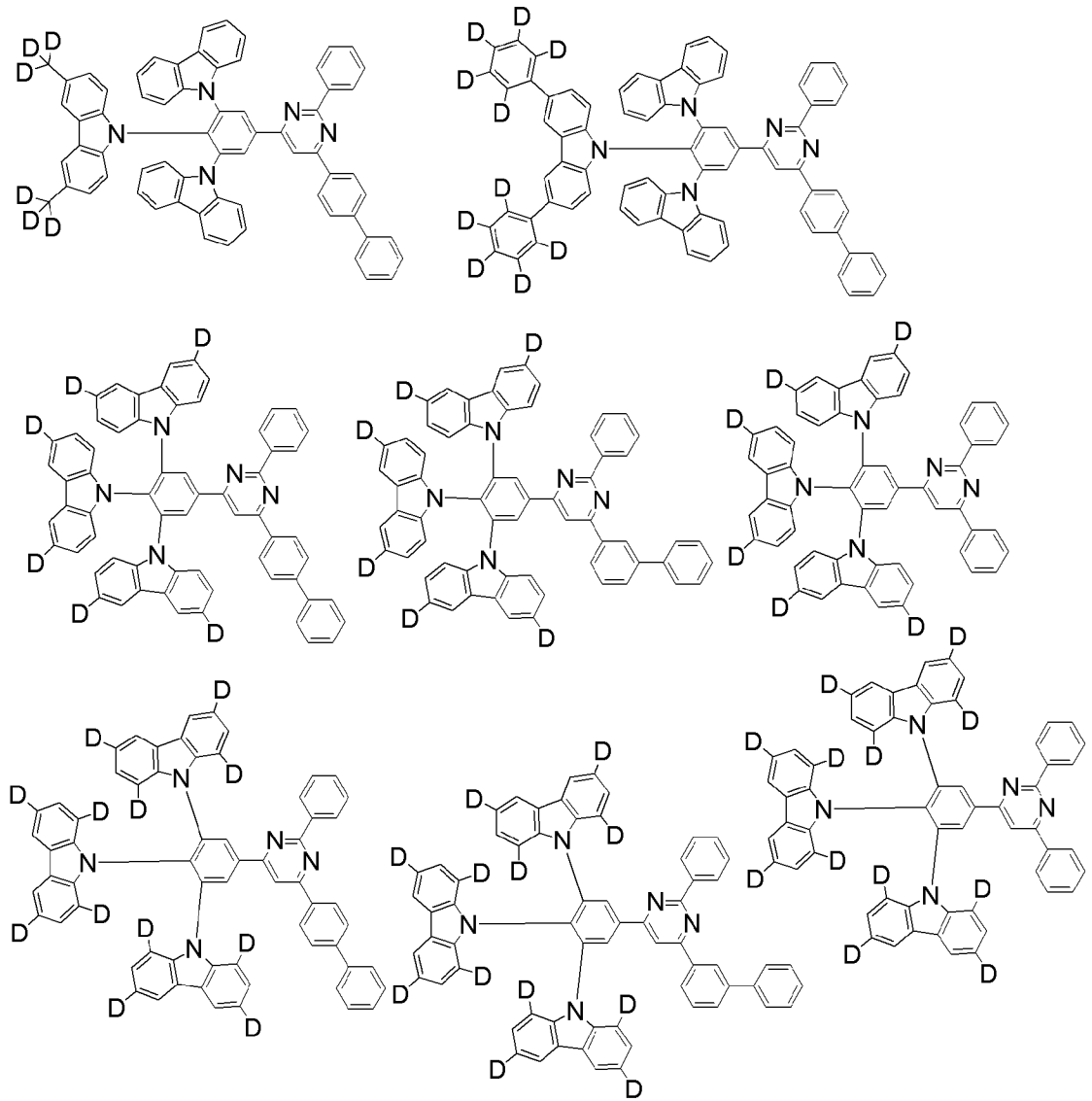


[0101] [化35]



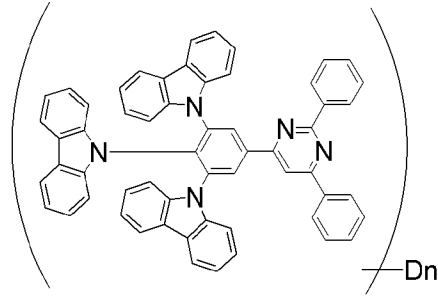
[0102]

[化36]

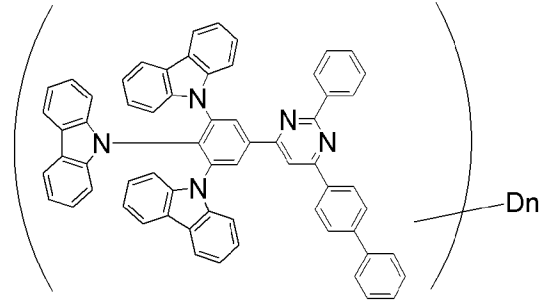


[0103]

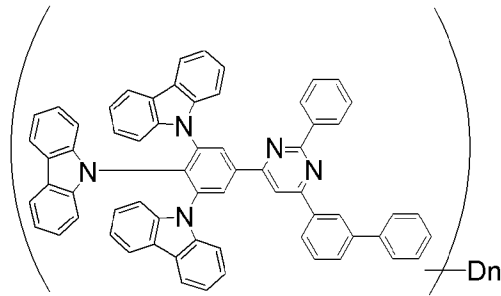
[化37]



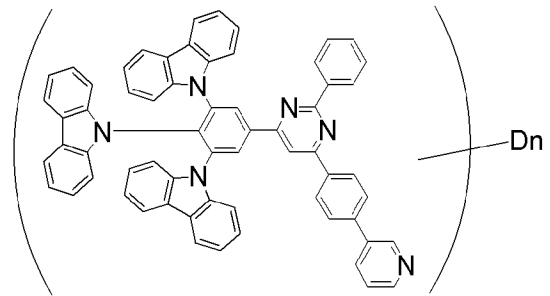
nは該化合物が含む重水素原子の個数であり1から37の整数を表す。



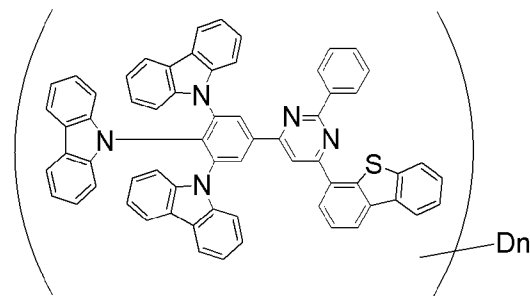
nは該化合物が含む重水素原子の個数であり1から41の整数を表す。



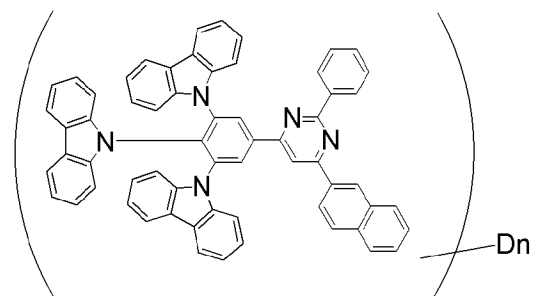
nは該化合物が含む重水素原子の個数であり1から41の整数を表す。



nは該化合物が含む重水素原子の個数であり1から40の整数を表す。



nは該化合物が含む重水素原子の個数であり1から39の整数を表す。



nは該化合物が含む重水素原子の個数であり1から39の整数を表す。

[0104] 化合物（1）の製造方法は特に制限されず、当業者であれば以下の実施例に記載する方法により、あるいは、該方法を公知の合成方法を参考にして変更した方法により容易に製造することができる。

[0105] 2. 有機EL素子用材料

本発明の有機EL素子用材料は、化合物（1）を含む。本発明の有機EL

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

[0106] ３．有機ＥＬ素子

次に、本発明の有機ＥＬ素子について説明する。

３－１．第一態様に係る有機ＥＬ素子

本発明の第一態様に係る有機ＥＬ素子は、陰極、陽極、及び、陰極と陽極の間に有機層を含む。該有機層は発光層を含み、該有機層の少なくとも一層が前述の式（１）で表される化合物（１）を含む。

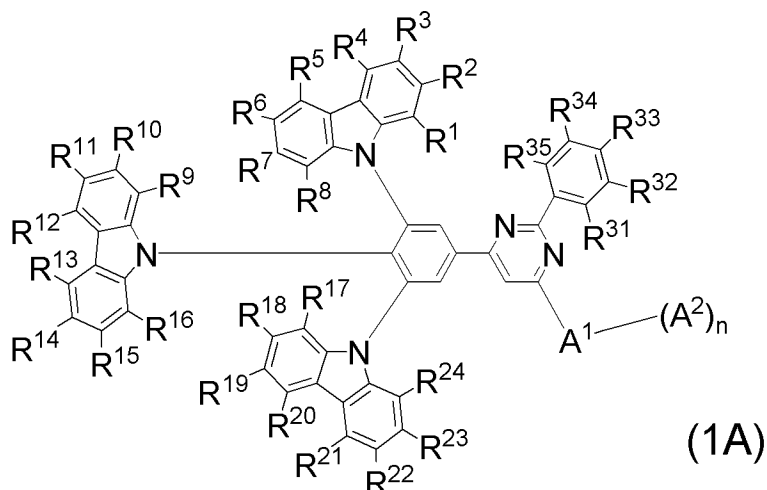
化合物（１）が含まれる有機層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる正孔輸送帯域（正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、励起子阻止層等）、発光層、スペース層、陰極と発光層との間に設けられる電子輸送帯域（電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等）等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。化合物（１）は、好ましくは蛍光又は燐光ＥＬ素子の電子輸送帯域又は発光層の材料、より好ましくは電子輸送帯域の材料、さらに好ましくは電子輸送層又は正孔阻止層の材料として用いられる。

[0107] ３－２．第二態様に係る有機ＥＬ素子

また、本発明の第二態様に係る有機ＥＬ素子は、陽極、陰極、及び当該陽極と当該陰極の間に配置された有機層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であって、当該有機層が、発光層、及び当該発光層と当該陰極の間に配置された第１の層を含み、当該第１の層が下記式（１Ａ）で表される化合物（１Ａ）を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子である。

[0108]

[化38]



[0109] 式中、

$R^1 \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組は、それぞれ独立に、互いに結合して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環を形成するか、又は、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} は互いに結合して環を形成せず、互いに結合して環を形成しない場合、 $R^{31} \sim R^{35}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

A^1 は、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もし

くは無置換の $n + 1$ 価の残基であり、

A^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 $6 \sim 30$ のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 $5 \sim 30$ のヘテロアリール基、又はシアノ基であり、

n は $0 \sim 3$ の整数である。 n が 0 のとき、 $(A^2)_0$ は水素である。

[0110] すなわち、第二態様に係る有機 EL 素子は、第一態様に係る有機 EL 素子と比べて、下記の相違点 1 及び相違点 2 を有する点において相違している。

相違点 1 :

第一態様における化合物 (1) は、「 A^1 がベンゼンの $n + 1$ 価の残基である場合、 n は 1 以上の整数である。」との限定が有るのに対して、第二態様における化合物 (1A) は、当該限定が無い。

相違点 2 :

第一態様では、有機層の少なくとも一層が化合物 (1) を含むのに対して、第二態様では、有機層のうち、発光層と陰極の間に配置された第 1 の層が化合物 (1A) を含む。

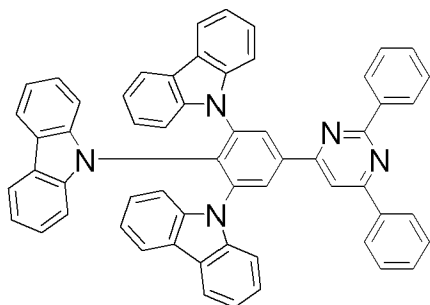
[0111] すなわち、上記相違点 1 として、第二態様における化合物 (1A) は、 A^1 がベンゼンの $n + 1$ 価の残基である場合、 n は 1 以上の整数であってもよく、 n は 0 であってもよい。ただし、 A^1 がベンゼンの $n + 1$ 価の残基である場合、 n は 1 以上の整数であることが好ましい。

[0112] 第二態様における化合物 (1A) は、好ましくは前記「1. 化合物」に記載した化合物 (1) と同様である。

また、第二態様における化合物 (1A) の具体例は、好ましくは前記「1. 化合物」に具体例として挙げた化合物 (具体例化合物) 及び下記式 (19) で表される化合物であるが、より好ましくは前記「1. 化合物」に挙げた化合物である。

[0113]

[化39]



(19)

[0114] 上記相違点2として、第二態様に係る有機EL素子は、第1の層が上記化合物(1A)を含む。化合物(1A)は、第1の層の他に、他の層に含まれていてもよく他の層に含まれていなくてもよいが、化合物(1A)は第1の層のみに含まれているのが好ましい。

第1の層は、発光層に隣接している層であることが好ましい。

有機層の例としては、陽極と発光層との間に設けられる正孔輸送帯域(正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、励起子阻止層等)、発光層、スペース層、陰極と発光層との間に設けられる電子輸送帯域(電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等)等が挙げられるが、第二態様に係る有機EL素子にあつては、化合物(1A)が、有機層のうち発光層と陰極の間に配置された第1の層に含まれる。化合物(1A)は、好ましくは蛍光又は燐光EL素子の電子輸送帯域、さらに好ましくは電子輸送層又は正孔阻止層の材料として用いられる。

[0115] 3-3. 第一態様及び第二態様に係る有機EL素子

本発明の第一態様及び第二態様に係る有機EL素子は、蛍光又は燐光発光型の単色発光素子であっても、蛍光/燐光ハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよく、中でも、蛍光発光型の素子であることが好ましい。ここで、「発光ユニット」とは、有機層を含み、そのうちの少なくとも一層が発光層であり、注入された正孔と電子が再結合することにより発光する最小単位をいう。

[0116] 例えば、シンプル型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素

子構成を挙げることができる。

(1) 陽極／発光ユニット／陰極

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

(a) (正孔注入層／) 正孔輸送層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

(b) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

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

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

(e) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

(f) (正孔注入層／) 正孔輸送層／第1 燐光発光層／第2 燐光発光層／スペース層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

(g) (正孔注入層／) 正孔輸送層／第1 燐光発光層／スペース層／第2 燐光発光層／スペース層／蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

(h) (正孔注入層／) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／第1 蛍光発光層／第2 蛍光発光層 (／電子輸送層／電子注入層)

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

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

(k) (正孔注入層／) 正孔輸送層／励起子阻止層／蛍光発光層 (／電子輸

送層／電子注入層)

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

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

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

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

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

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

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

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

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

[0117] 上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光ユニット(f)において、(正孔注入層／) 正孔輸送層／第1燐光発光層(赤色発光)／第2燐光発光層(緑色発光)／スペース層／蛍光発光層(青色発光)／電子輸送層といった層構成等が挙げられる。

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

発光効率を向上させることができる。

[0118] タンデム型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(2) 陽極／第1発光ユニット／中間層／第2発光ユニット／陰極

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

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

[0119] 図1は、本発明の実施形態に係る有機EL素子の層構成の一例を示す概略図である。本例の有機EL素子1は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット10とを有する。発光ユニット10は、発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔輸送帯域6（正孔注入層、正孔輸送層等）、発光層5と陰極4との間に電子輸送帯域7（電子注入層、電子輸送層等）を有する。

[0120] 図2は、本発明の実施形態に係る有機EL素子の層構成の他の例を示す概略図である。本例の有機EL素子11は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット20とを有する。発光ユニット20は、発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔輸送帯域6、発光層5と陰極4との間に電子輸送帯域7を有する。また、発光層5の陰極4側に、発光層5に隣接して正孔阻止層8を設けている。これにより、正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における励起子の生成効率をより高めることができる。なお、正孔阻止層8は電子輸送帯域7の一部とみることがもできる。発光層5の陽極3側に電子阻止層（図示せず）を設けて、電子を発光層5に閉じ込めて発光層5における励起子の生成効率をさらに高めるようにしてもよい。

[0121] 図3は、本発明の実施形態に係る有機EL素子の層構成のさらに他の例を示す概略図である。本例の有機EL素子12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30とを有する。発光ユニット20は、発光層5を有する。陽極3と発光層5の間に配置された正孔輸送帯域は、第1正孔輸送層6a及び第2正孔輸送層6bから形成されている。また、発光層5と陰極4の間に配置された電子輸送帯域は、第1電子輸送層7a及び第2電子輸送層7bから形成されている。有機EL素子12において、単層の電子輸送層と複数層からなる正孔輸送層の組み合わせとしてもよいし、単層の正孔輸送層と複数層からなる電子輸送層の組み合わせとしてもよい。また、有機EL素子12に、正孔阻止層や電子阻止層を設けてもよい。

[0122] なお、本願明細書において、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形成する材料を意味し、蛍光発光層を形成する材料として利用できないことを意味しているわけではない。蛍光ホストについても同様である。

[0123] 以下、有機EL素子を構成する各層及び各部材について説明する。

基板

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

[0124] 陽極

基板上に形成される陽極には、仕事関数の大きい（具体的には4.0eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム-酸化スズ（ITO）

Indium Tin Oxide)、珪素もしくは酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ、酸化インジウム-酸化亜鉛、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、グラフェン等が挙げられる。その他、金 (Au)、白金 (Pt)、ニッケル (Ni)、タングステン (W)、クロム (Cr)、モリブデン (Mo)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、銅 (Cu)、パラジウム (Pd)、チタン (Ti)、又は前記金属の窒化物 (例えば、窒化チタン) 等が挙げられる。

[0125] これらの材料は、通常、スパッタリング法により成膜される。例えば、酸化インジウム-酸化亜鉛は、酸化インジウムに対し1~10wt%の酸化亜鉛を加えたターゲットを、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウムは、酸化インジウムに対し酸化タングステンを0.5~5wt%、酸化亜鉛を0.1~1wt%含有したターゲットを用いることにより、スパッタリング法で形成することができる。その他、真空蒸着法、塗布法、インクジェット法、スピコート法などにより作製してもよい。

[0126] 陽極に接して形成される正孔注入層は、陽極の仕事関数に関係なく正孔注入が容易である材料を用いて形成されるため、電極材料として一般的に使用される材料 (例えば、金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物、元素周期表の第1族又は第2族に属する元素) を用いることができる。

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

[0127] 正孔注入層

正孔注入層は、正孔注入性の高い材料（正孔注入性材料）を含む層である。正孔注入性材料を単独で又は複数組み合わせることで正孔注入層に用いることができる。

[0128] 正孔注入性材料としては、モリブデン酸化物、チタン酸化物、バナジウム酸化物、レニウム酸化物、ルテニウム酸化物、クロム酸化物、ジルコニウム酸化物、ハフニウム酸化物、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。

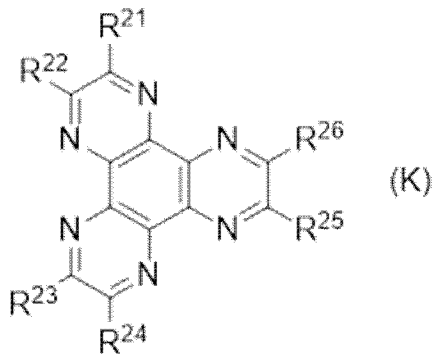
[0129] 低分子の有機化合物である4, 4', 4''-トリス(N, N-ジフェニルアミノ)トリフェニルアミン(略称:TDATA)、4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(略称:MTDATA)、4, 4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:DPAB)、4, 4'-ビス(N-{4-[N'-(3-メチルフェニル)-N'-フェニルアミノ]フェニル}-N-フェニルアミノ)ビフェニル(略称:DNTPD)、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ベンゼン(略称:DPA3B)、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称:PCzPCA1)、3, 6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称:PCzPCA2)、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称:PCzPCN1)等の芳香族アミン化合物等も正孔注入層材料として挙げられる。

[0130] 高分子化合物(オリゴマー、 dendrimer、ポリマー等)を用いることもできる。例えば、ポリ(N-ビニルカルバゾール)(略称:PVK)、ポリ(4-ビニルトリフェニルアミン)(略称:PVTPA)、ポリ[N-(4-{N'-[4-(4-ジフェニルアミノ)フェニル]フェニル}-N'-フェニルアミノ)フェニル]メタクリルアミド(略称:PTPDMA)、ポ

リ [N, N' -ビス (4 -ブチルフェニル) -N, N' -ビス (フェニル) ベンジジン] (略称: Poly-TPD) などの高分子化合物が挙げられる。また、ポリ (3, 4 -エチレンジオキシチオフェン) /ポリ (スチレンスルホン酸) (PEDOT/PSS)、ポリアニリン/ポリ (スチレンスルホン酸) (PAni/PSS) 等の酸を添加した高分子化合物を用いることもできる。

[0131] さらに、下記式 (K) で表されるヘキサアザトリフェニレン (HAT) 化合物などのアクセプター材料を他の化合物と組み合わせて用いることも好ましい。

[0132] [化40]



[0133] (上記式 (K) において、 $R^{21} \sim R^{26}$ は、それぞれ独立にシアノ基、 $-CO-NH_2$ 、カルボキシ基、又は $-COOR^{27}$ (R^{27} は炭素数 1 ~ 20 のアルキル基又は炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基を表す) を表す。また、 R^{21} 及び R^{22} 、 R^{23} 及び R^{24} 、及び R^{25} 及び R^{26} から選ばれる隣接する 2 つが互いに結合して $-CO-O-CO-$ で示される基を形成してもよい。)

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

[0134] 正孔輸送層

正孔輸送層は、正孔輸送性の高い材料 (正孔輸送性材料) を含む層である。正孔輸送材料を単独又は複数組み合わせて用いることができる。正孔輸送性材料としては、例えば、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、アン

トラセン誘導体等を使用する事ができる。

芳香族アミン化合物としては、例えば、4, 4' -ビス [N - (1 -ナフチル) -N -フェニルアミノ] ビフェニル (略称: NPB) やN, N' -ビス (3 -メチルフェニル) -N, N' -ジフェニル - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン (略称: TPD)、4 -フェニル -4' - (9 -フェニルフルオレン -9 -イル) トリフェニルアミン (略称: BAFAP)、4, 4' -ビス [N - (9, 9 -ジメチルフルオレン -2 -イル) -N -フェニルアミノ] ビフェニル (略称: DFDPBi)、4, 4', 4'' -トリス (N, N -ジフェニルアミノ) トリフェニルアミン (略称: TDATA)、4, 4', 4'' -トリス [N - (3 -メチルフェニル) -N -フェニルアミノ] トリフェニルアミン (略称: MTDATA)、及び、4, 4' -ビス [N - (スピロ -9, 9' -ビフルオレン -2 -イル) -N -フェニルアミノ] ビフェニル (略称: BSPB) が挙げられる。これらの芳香族アミン化合物は、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する。

[0135] カルバゾール誘導体としては、例えば、4, 4' -ジ (9 -カルバゾリル) ビフェニル (略称: CBP)、9 - [4 - (9 -カルバゾリル) フェニル] -10 -フェニルアントラセン (略称: CzPA)、及び、9 -フェニル -3 - [4 - (10 -フェニル -9 -アントリル) フェニル] -9H -カルバゾール (略称: PCzPA) が挙げられる。

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

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

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

[0136] 正孔輸送層は、単層構造でもよく、2以上の層を含む多層構造でもよい。例えば、正孔輸送層は第1正孔輸送層（陽極側）と第2正孔輸送層（陰極側）を含む2層構造であってもよい。

[0137] 発光層のドーパント材料

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

[0138] 発光層に用いることができる青色系の蛍光発光材料として、ピレン誘導体、スチリルアミン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、フルオレン誘導体、ジアミン誘導体、トリアリールアミン誘導体等が使用できる。具体的には、N, N' -ビス [4 - (9H-カルバゾール-9-イル) フェニル] -N, N' -ジフェニルスチルベン-4, 4' -ジアミン（略称：YGA2S）、4 - (9H-カルバゾール-9-イル) -4' - (10-フェニル-9-アントリル) トリフェニルアミン（略称：YGAPA）、4 - (10-フェニル-9-アントリル) -4' - (9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル) トリフェニルアミン（略称：PCBAPA）などが挙げられる。

[0139] 発光層に用いることができる緑色系の蛍光発光材料として、芳香族アミン誘導体等を使用できる。具体的には、N - (9, 10-ジフェニル-2-アントリル) -N, 9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：2PCAPA）、N - [9, 10-ビス (1, 1' -ビフェニル-2-イル) -2-アントリル] -N, 9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：2PCABPhA）、N - (9, 10-ジフェニル-2-アントリル) -N, N', N' -トリフェニル-1, 4-フェニレンジアミン（略称：2DPAPA）、N - [9, 10-ビス (1, 1' -ビフェニル-2-イル) -2-アントリル] -N, N', N' -トリフェニル-1, 4-

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

[0140] 発光層に用いることができる赤色系の蛍光発光材料として、テトラセン誘導体、ジアミン誘導体等が使用できる。具体的には、N,N,N',N'-テトラキス(4-メチルフェニル)テトラセン-5,11-ジアミン（略称：p-mPhTD）、7,14-ジフェニル-N,N,N',N'-テトラキス(4-メチルフェニル)アセナフト[1,2-a]フルオランテン-3,10-ジアミン（略称：p-mPhAFD）などが挙げられる。

[0141] 発光層に用いることができる青色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体が使用される。具体的には、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C2']イリジウム(III)テトラキス(1-ピラゾリル)ボラート（略称：Flr6）、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C2']イリジウム(III)ピコリナート（略称：Flrpic）、ビス[2-(3',5'-ビストリフルオロメチルフェニル)ピリジナト-N,C2']イリジウム(III)ピコリナート（略称：Ir(CF3ppy)2(pic)）、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C2']イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Flracac）などが挙げられる。

[0142] 発光層に用いることができる緑色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体等が使用される。トリス(2-フェニルピリジナト-N,C2')イリジウム(III)（略称：Ir(ppy)3）、ビス(2-フェニルピリジナト-N,C2')イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(ppy)2(acac)）、ビス(1,2-ジフェニル-1H-ベンゾイミダゾラト)イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(p

b i) 2 (a c a c)) 、ビス (ベンゾ [h] キノリナト) イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称 : I r (b z q) 2 (a c a c)) など
が挙げられる。

[0143] 発光層に用いることができる赤色系の燐光発光材料として、イリジウム錯体、白金錯体、テルビウム錯体、ユーロピウム錯体等の金属錯体を使用される。具体的には、ビス [2 - (2' -ベンゾ [4, 5 - α] チエニル) ピリジナト - N, C 3'] イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称 : I r (b t p) 2 (a c a c)) 、ビス (1 -フェニルイソキノリナト - N, C 2') イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称 : I r (p i q) 2 (a c a c)) 、 (アセチルアセトナート) ビス [2, 3 -ビス (4 -フルオロフェニル) キノキサリナト] イリジウム (I I I) (略称 : I r (F d p q) 2 (a c a c)) 、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18 -オクタエチル - 2 1 H, 2 3 H -ポルフィリン白金 (I I) (略称 : P t O E P) 等の有機金属錯体が挙げられる。

[0144] また、トリス (アセチルアセトナート) (モノフェナントロリン) テルビウム (I I I) (略称 : T b (a c a c) 3 (P h e n)) 、トリス (1, 3 -ジフェニル - 1, 3 -プロパンジオナト) (モノフェナントロリン) ユーロピウム (I I I) (略称 : E u (D B M) 3 (P h e n)) 、トリス [1 - (2 -テノイル) - 3, 3, 3 -トリフルオロアセトナト] (モノフェナントロリン) ユーロピウム (I I I) (略称 : E u (T T A) 3 (P h e n)) 等の希土類金属錯体は、希土類金属イオンからの発光 (異なる多重度の電子遷移) であるため、燐光発光材料として用いることができる。

[0145] 発光層のホスト材料

発光層は、上述したドーパント材料を他の材料 (ホスト材料) に分散させた構成としてもよい。ホスト材料としては、ドーパント材料よりも最低空軌道準位 (L U M O 準位) が高く、最高占有軌道準位 (H O M O 準位) が低い材料を用いることが好ましい。

[0146] ホスト材料としては、例えば

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

[0147] 例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III) (略称: Alq)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) (略称: Almq3)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(II) (略称: BeBq2)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) (略称: BAAlq)、ビス(8-キノリノラト)亜鉛(II) (略称: Znq)、ビス[2-(2-ベンゾオキサゾリル)フェノラト]亜鉛(II) (略称: ZnPB0)、ビス[2-(2-ベンゾチアゾリル)フェノラト]亜鉛(II) (略称: ZnBTZ)などの金属錯体；

2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール (略称: PBD)、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン (略称: OXD-7)、3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール (略称: TAZ)、2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリイル)トリス(1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール) (略称: TPBI)、バソフェナントロリン (略称: BPhen)、バソキュプロイン (略称: BCP)などの複素環化合物；

9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール (略称: CzPA)、3,6-ジフェニル-9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール (略称: DPC

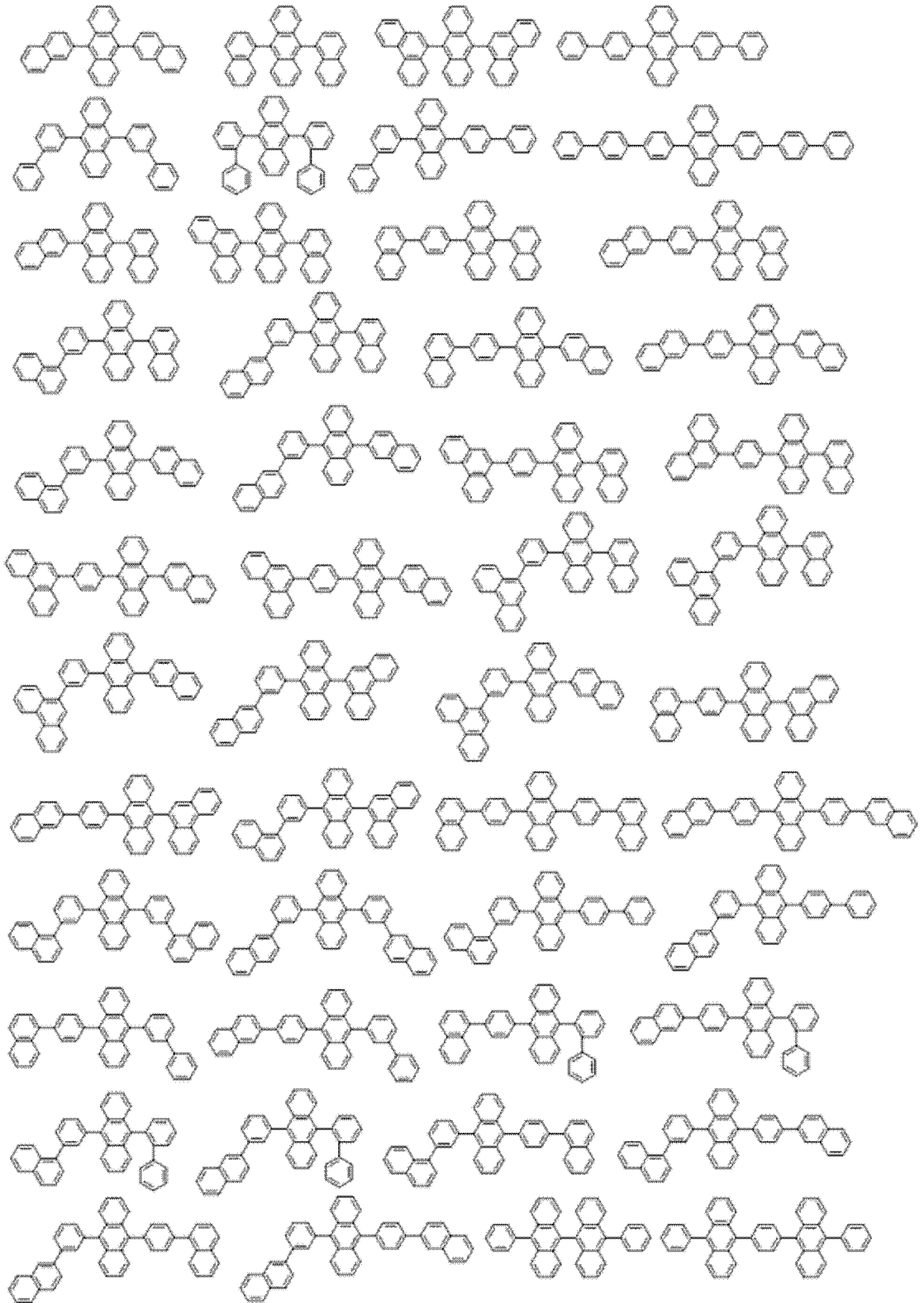
zPA)、9,10-ビス(3,5-ジフェニルフェニル)アントラセン(略称:DPPA)、9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-BuDNA)、9,9'-ビアントリル(略称:BANT)、9,9'-(スチルベン-3,3'-ジイル)ジフェナントレン(略称:DPNS)、9,9'-(スチルベン-4,4'-ジイル)ジフェナントレン(略称:DPNS2)、3,3',3''-(ベンゼン-1,3,5-トリイル)トリピレン(略称:TPB3)、9,10-ジフェニルアントラセン(略称:DPAnt h)、6,12-ジメトキシ-5,11-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

N,N-ジフェニル-9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:CzA1PA)、4-(10-フェニル-9-アントリル)トリフェニルアミン(略称:DPhPA)、N,9-ジフェニル-N-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:PCAPA)、N,9-ジフェニル-N-{4-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]フェニル}-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:PCAPBA)、N-(9,10-ジフェニル-2-アントリル)-N,9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:2PCAPA)、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:NPB又は α -NPD)、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(略称:TPD)、4,4'-ビス[N-(9,9-ジメチルフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:DFLDPBi)、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:BSPB)などの芳香族アミン化合物を用いることができる。ホスト材料は複数種用いてもよい。

[0148] 特に、青色蛍光素子の場合には、下記のアントラセン化合物をホスト材料

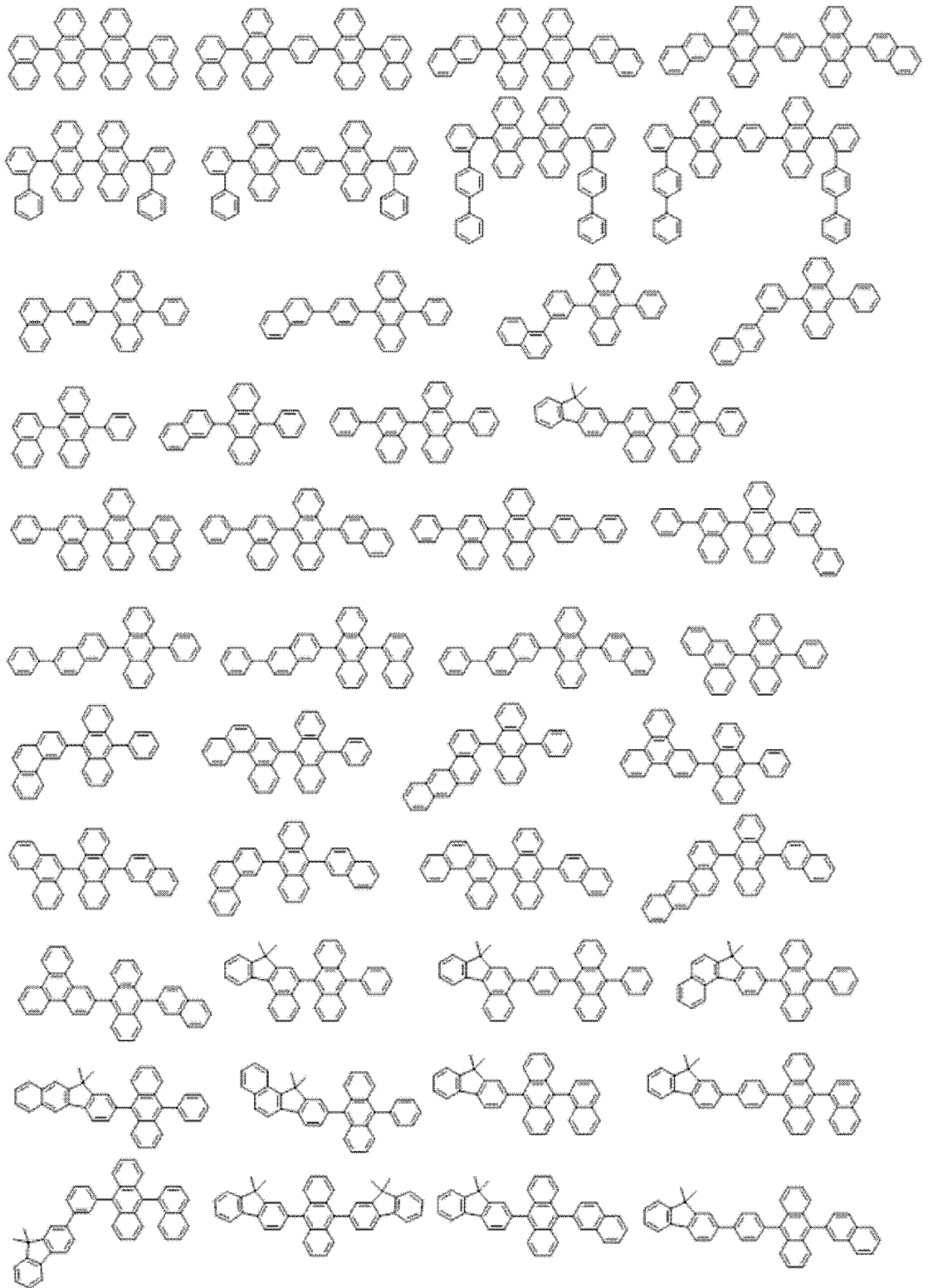
として用いることが好ましい。

[0149] [化41]



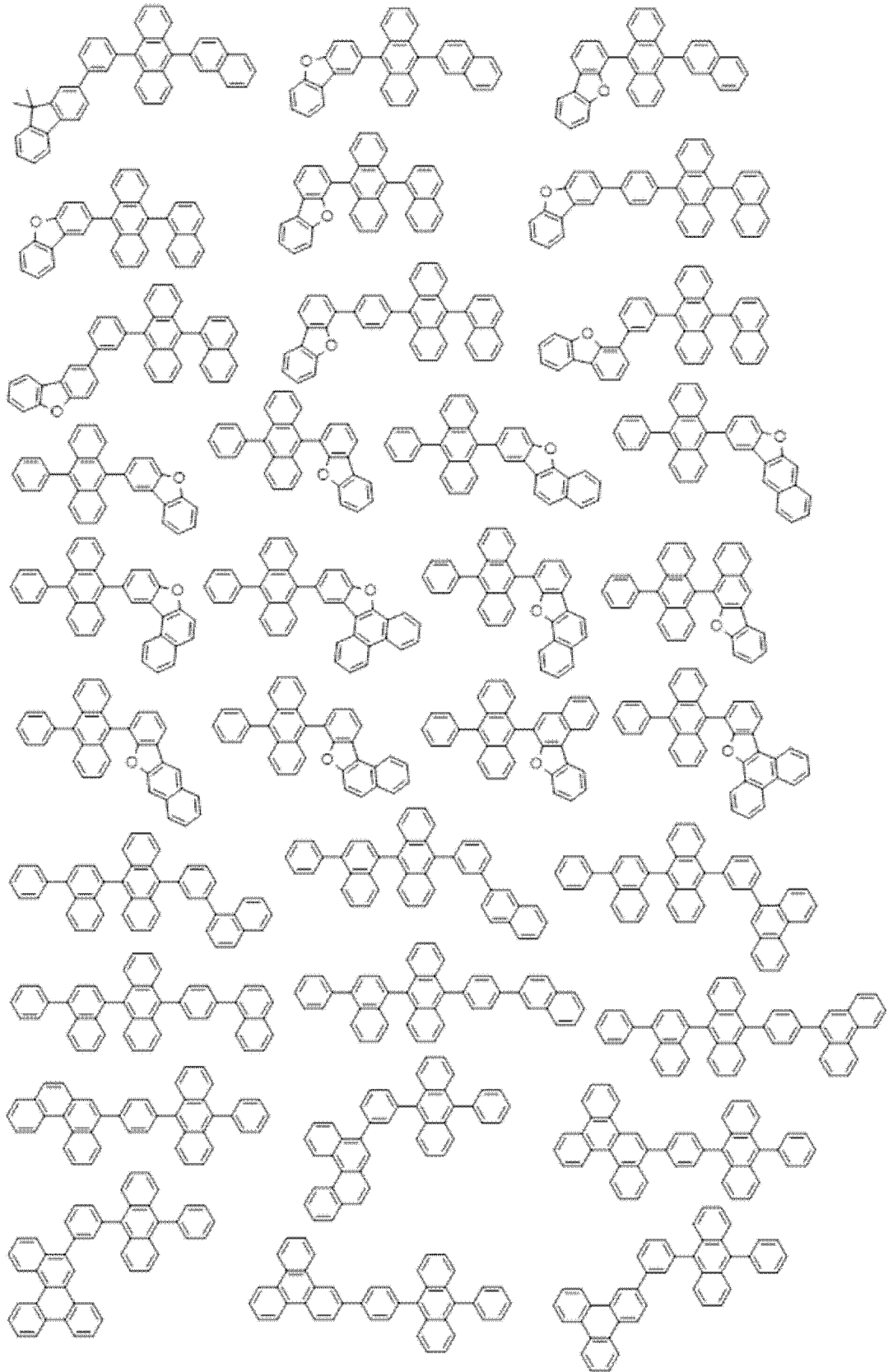
[0150]

[化42]



[0151]

[化43]



[0152] 電子輸送帯域は、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等から構成される。これらのいずれかの層に上記化合物（１）を含むことが好ましく、電子輸送層及び正孔阻止層の少なくとも一方に上記化合物（１）を含むことがより好ましい。また、電子輸送帯域のいずれかの層、特に電子輸送層は、好ましくは、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属を含有する有機錯体、アルカリ土類金属を含有する有機錯体、及び希土類金属を含有する有機錯体からなる群から選択される１以上を含有する。

[0153] 電子輸送層

電子輸送層は電子輸送性の高い材料（電子輸送性材料）を含む層である。電子輸送層には、化合物（１）や、化合物（１）と他の電子輸送性材料とを組み合わせ用いることができる。他の電子輸送性材料としては、例えば、

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

[0154] 金属錯体としては、例えば、トリス（８－キノリノラト）アルミニウム（ Alq_3 ）（略称： Alq_3 ）、トリス（４－メチル－８－キノリノラト）アルミニウム（略称： $Almq_3$ ）、ビス（１０－ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（略称： $BeBq_2$ ）、ビス（２－メチル－８－キノリノラト）（４－フェニルフェノラト）アルミニウム（ $BAAlq_3$ ）（略称： $BAAlq_3$ ）、ビス（８－キノリノラト）亜鉛（ Znq_2 ）（略称： Znq_2 ）、ビス〔２－（２－ベンゾオキサゾリル）フェノラト〕亜鉛（ $ZnPBO$ ）（略称： $ZnPBO$ ）、ビス〔２－（２－ベンゾチアゾリル）フェノラト〕亜鉛（ $ZnBTZ$ ）（略称： $ZnBTZ$ ）が挙げられる。

[0155] 複素芳香族化合物としては、例えば、２－（４－ビフェニル）－５－（

4-tert-ブチルフェニル) - 1, 3, 4-オキサジアゾール (略称: PBD)、1, 3-ビス [5-(tert-ブチルフェニル) - 1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル] ベンゼン (略称: OXD-7)、3-(4-tert-ブチルフェニル) - 4-フェニル-5-(4-ビフェニリル) - 1, 2, 4-トリアゾール (略称: TAZ)、3-(4-tert-ブチルフェニル) - 4-(4-エチルフェニル) - 5-(4-ビフェニリル) - 1, 2, 4-トリアゾール (略称: p-EtTAZ)、バソフェナントロリン (略称: BPhen)、バソキュプロイン (略称: BCP)、4, 4'-ビス (5-メチルベンゾオキサゾール-2-イル) スチルベン (略称: BzOs) が挙げられる。

[0156] 高分子化合物としては、例えば、ポリ [(9, 9-ジヘキシルフルオレン-2, 7-ジイル) -co-(ピリジン-3, 5-ジイル)] (略称: PF-Py)、ポリ [(9, 9-ジオクチルフルオレン-2, 7-ジイル) -co-(2, 2'-ビピリジン-6, 6'-ジイル)] (略称: PF-BPy) が挙げられる。

[0157] 上記材料は、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する材料である。なお、正孔輸送性よりも電子輸送性の高い材料であれば、上記以外の材料を電子輸送層に用いてもよい。

[0158] 電子輸送層は、単層でもよく、2以上の層を含む多層でもよい。例えば、電子輸送層は第1電子輸送層 (陽極側) と第2電子輸送層 (陰極側) を含む層であってもよい。第1電子輸送層を正孔阻止層と呼ぶ場合がある。2以上の電子輸送層は、それぞれ前記電子輸送性材料により形成される。

[0159] 2層構造の電子輸送層において、化合物(1)を第1電子輸送層と第2電子輸送層の一方に含んでもよいし、双方に含んでもよい。

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

[0160] 電子注入層

電子注入層は、電子注入性の高い材料を含む層である。電子注入層には、リチウム (Li)、セシウム (Cs)、カルシウム (Ca)、フッ化リチウム (LiF)、フッ化セシウム (CsF)、フッ化カルシウム (CaF₂)、リチウム酸化物 (LiO_x) 等のアルカリ金属、アルカリ土類金属、又はそれらの化合物を用いることができる。その他、電子輸送性を有する材料にアルカリ金属、アルカリ土類金属、又はそれらの化合物を含有させたもの、具体的にはAlq中にマグネシウム (Mg) を含有させたもの等を用いてもよい。なお、この場合には、陰極からの電子注入をより効率よく行うことができる。

あるいは、電子注入層に、有機化合物と電子供与体 (ドナー) とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、有機化合物が電子供与体から電子を受け取るため、電子注入性及び電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、受け取った電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体的には、例えば上述した電子輸送層を構成する材料 (金属錯体や複素芳香族化合物等) を用いることができる。電子供与体としては、有機化合物に対し電子供与性を示す材料であればよい。具体的には、アルカリ金属、アルカリ土類金属及び希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラチアフルバレン (略称: TTF) 等の有機化合物を用いることもできる。電子注入層に上記化合物 (1) が含まれていてもよい。

[0161] 陰極

陰極には、仕事関数の小さい (具体的には 3.8 eV 以下) 金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物などを用いることが好ましい。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の第1族又は第2族に属する

元素、すなわちリチウム (Li) やセシウム (Cs) 等のアルカリ金属、及びマグネシウム (Mg)、カルシウム (Ca)、ストロンチウム (Sr) 等のアルカリ土類金属、及びこれらを含む合金 (例えば、MgAg、AlLi)、ユーロピウム (Eu)、イッテルビウム (Yb) 等の希土類金属及びこれらを含む合金等が挙げられる。

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

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

[0162] 絶縁層

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

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

[0163] 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。なお、ここでいう「キャリア」とは、物質中の電荷担体の意味である。

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

[0164] 阻止層

電子阻止層、正孔阻止層、励起子阻止層などの阻止層を発光層に隣接して設けてもよい。電子阻止層とは発光層から正孔輸送層へ電子が漏れることを防ぐ層であり、正孔阻止層とは発光層から電子輸送層へ正孔が漏れることを防ぐ層である。励起子阻止層は発光層で生成した励起子が周辺の層へ拡散することを防止し、励起子を発光層内に閉じ込める機能を有する。上述したように、正孔阻止層に上記化合物(1)を含んでいることが好ましい。

[0165] 前記有機EL素子の各層は従来公知の蒸着法、塗布法等により形成することができる。例えば、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)などの蒸着法、あるいは、層を形成する化合物の溶液を用いた、ディッピング法、スピニング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

[0166] 各層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い駆動電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常5 nm~10 μmであり、10 nm~0.2 μmがより好ましい。

[0167] 前記有機EL素子は、有機ELパネルモジュール等の表示部品、テレビ、携帯電話、パーソナルコンピュータ等の表示装置、及び、照明、車両用灯具の発光装置等の電子機器に使用できる。

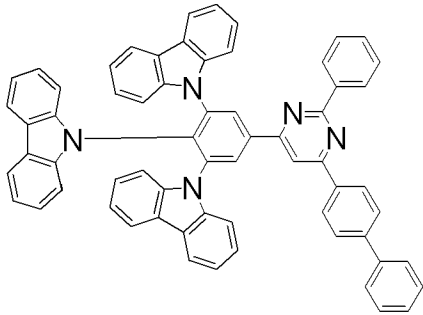
実施例

[0168] 以下、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

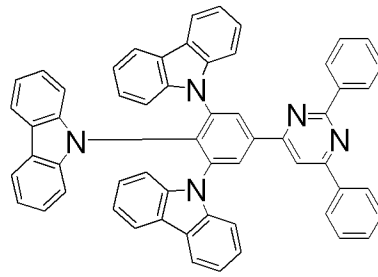
[0169] 下記実施例において化合物（1 A）又は化合物（1）として用いた化合物 ET-1、ET-2、ET-3、ET-4、ET-5、ET-6、ET-7、及びET-8は、以下のとおりである。

[0170]

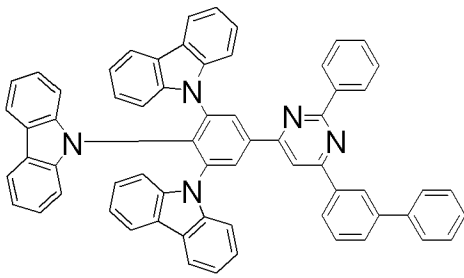
[化44]



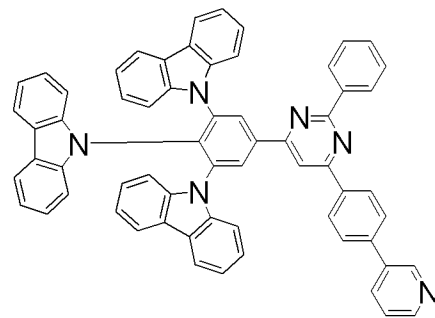
ET-1



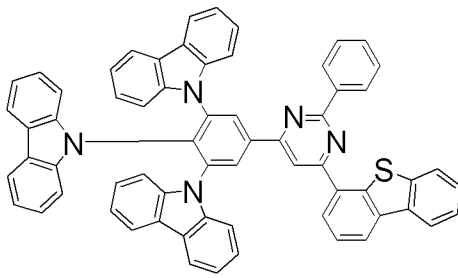
ET-2



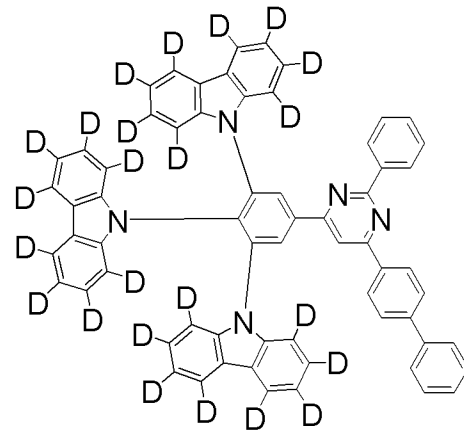
ET-3



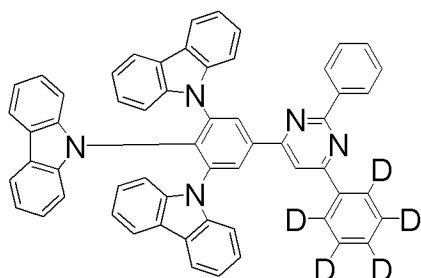
ET-4



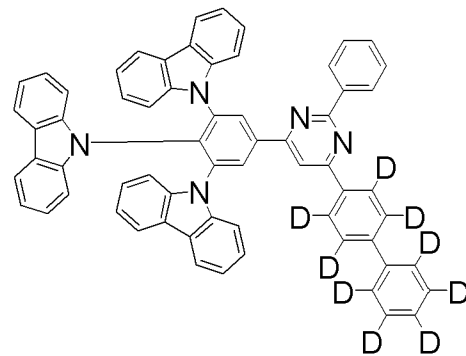
ET-5



ET-6



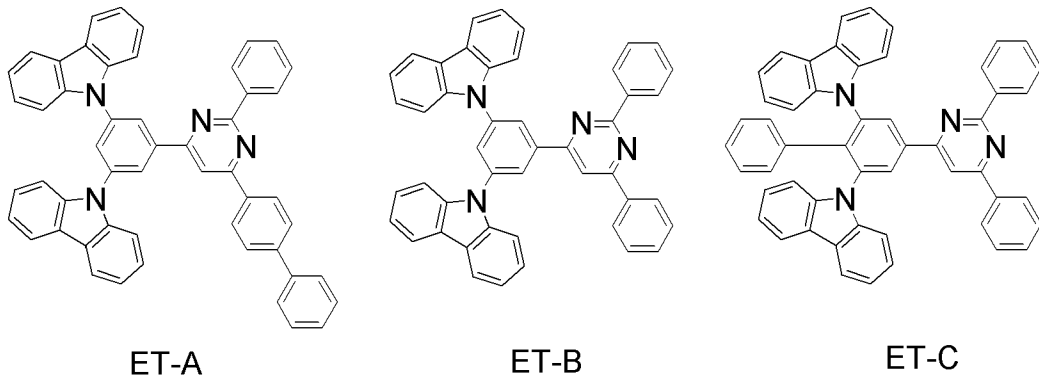
ET-7



ET-8

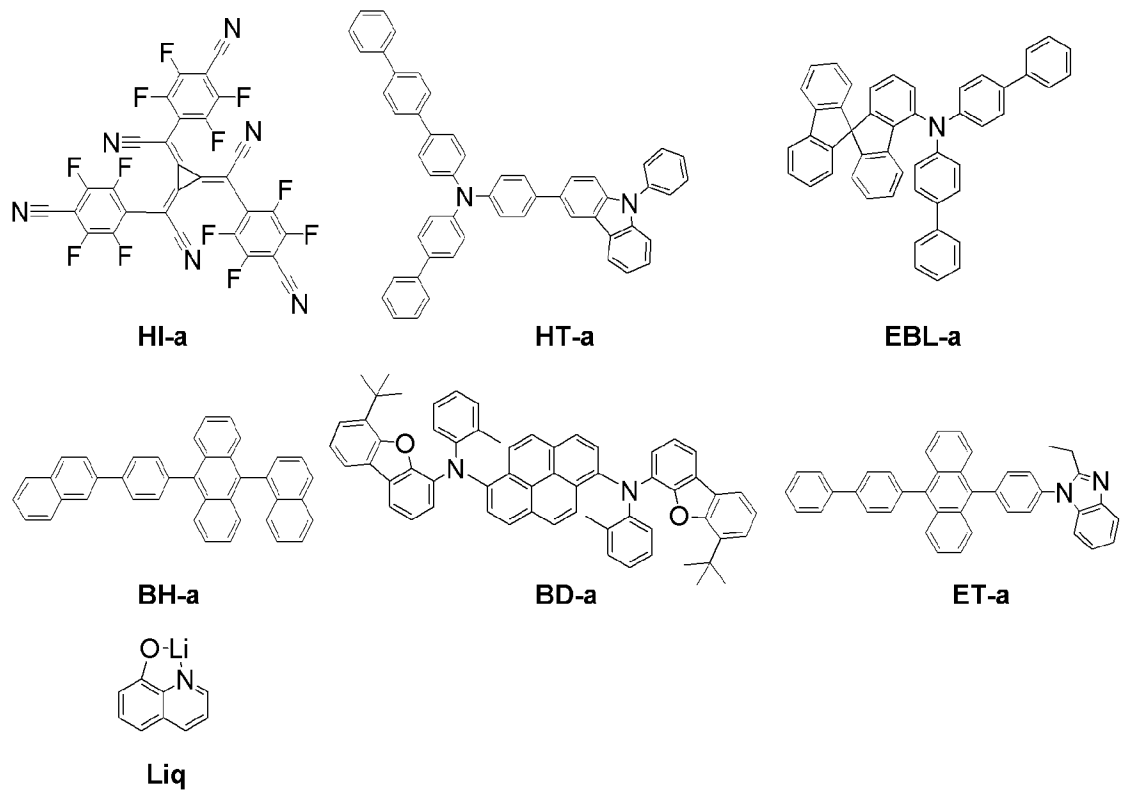
[0171] 下記比較例において、化合物（1A）又は化合物（1）に代えて用いた化合物ET-A、ET-B、及びET-Cは、以下のとおりである。

[0172] [化45]



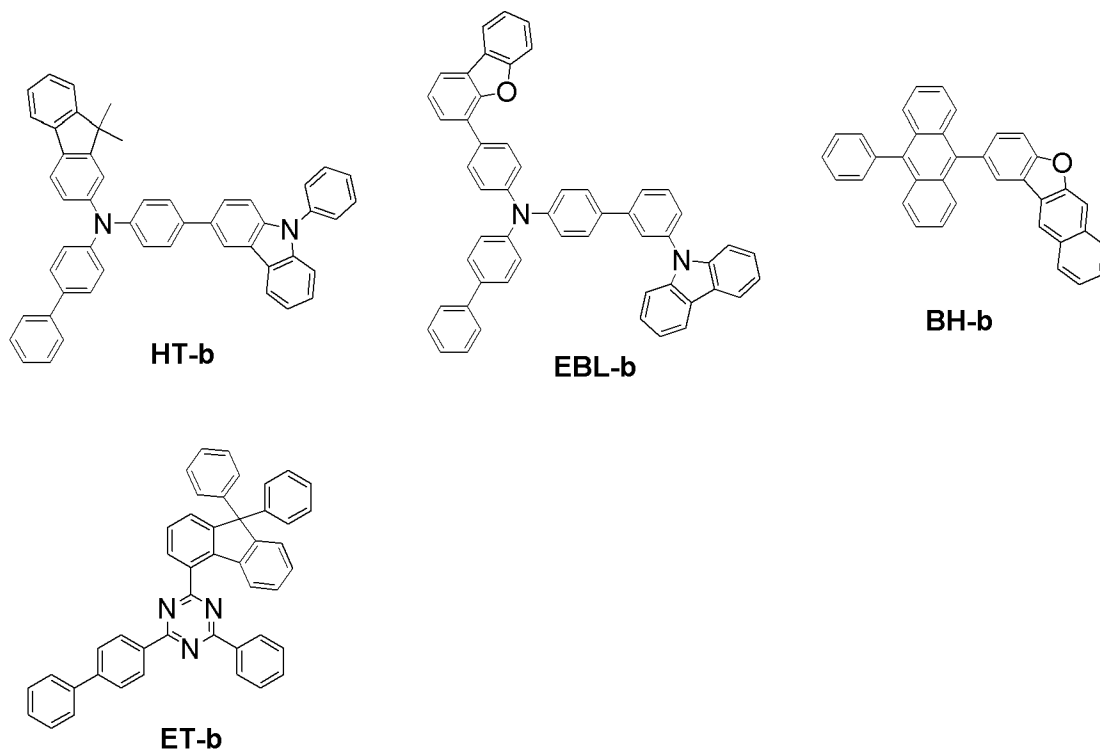
[0173] 下記実施例及び比較例で用いた他の化合物は、以下のとおりである。

[0174] [化46]

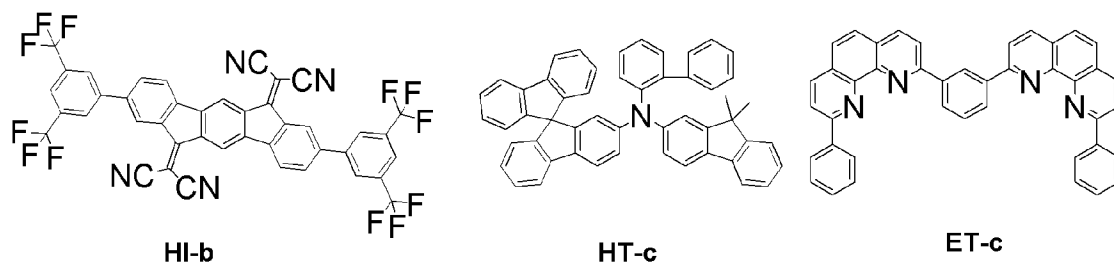


[0175]

[化47]



[0176] [化48]



[0177] <有機EL素子の作製>

有機EL素子を以下のように作製して、各素子のEL素子性能を評価した。

。

EL素子性能の評価方法は次のとおりである。

[0178] 95%寿命 (LT95) 評価

実施例及び比較例で作製した有機EL素子について、電流密度が50 mA/cm²となるように有機EL素子に電圧を印加し、95%寿命 (LT95) の評価を行った。ここでLT95とは、定電流駆動時において、輝度が初期輝度の95%に低下するまでの時間 (hr) をいう。

90%寿命 (LT90) 評価

実施例及び比較例で作製した有機EL素子について、電流密度が 50 mA/cm^2 となるように有機EL素子に電圧を印加し、90%寿命 (LT90) の評価を行った。ここでLT90とは、定電流駆動時において、輝度が初期輝度の90%に低下するまでの時間 (hr) をいう。

[0179] 実施例1

25mm×75mm×1.1mm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分間行った。ITO透明電極の厚さは130nmとした。

洗浄後のITO透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まずITO透明電極を覆うようにして上記化合物HT-aと上記化合物HI-aとを共蒸着して膜厚10nmの正孔注入層を形成した。化合物HI-aの正孔注入層中の濃度は3.0質量%であった。

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

次に、この第1正孔輸送層上に、上記化合物EBL-a (第2正孔輸送層材料) を蒸着して膜厚5nmの第2正孔輸送層を形成した。

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

次に、この発光層の上に、化合物ET-1 (第1電子輸送層材料) を蒸着して膜厚5nmの第1電子輸送層を形成した。

次に、この第1電子輸送層の上に、上記化合物ET-a (第2電子輸送層材料) を蒸着して膜厚20nmの第2電子輸送層を形成した。

次に、この第2電子輸送層上に、LiFを蒸着して膜厚1nmのLiF膜を形成した。

そして、このLiF膜上に金属Alを蒸着して膜厚80nmの金属Al陰

極を形成した。

このようにして、有機EL素子を得た。

実施例1の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

[0180] IT0(130)/HT-a:HI-a=97:3(10)/HT-a(80)/EBL-a(5)/BH-a:BD-a=96:4(25)/化合物ET-1(5)/ET-a(20)/LiF(1)/Al(80)

[0181] なお、“/”は、層と層との境界を示す。括弧内の数字は、膜厚（単位：nm）を示す。また、割合は、質量基準である。下記実施例及び下記比較例の対応する記載についても同様である。

有機EL素子について、上記95%寿命（LT95）評価を行った。その結果を表1に示す。

[0182] 実施例2～8及び比較例1～3

実施例2～8及び比較例1～3の有機EL素子は、実施例1における化合物ET-1（第1電子輸送層材料）を表1に記載の化合物及び比較化合物に置き換えたこと以外は実施例1と同様にして作製した。

各有機EL素子について、上記95%寿命（LT95）評価を行った。その結果を表1に示す。

[0183] [表1]

表1

	ET	LT95(hr)
実施例1	ET-1	330
実施例2	ET-2	264
実施例3	ET-3	315
実施例4	ET-4	340
実施例5	ET-5	320
実施例6	ET-6	330
実施例7	ET-7	260
実施例8	ET-8	325
比較例1	ET-A	169
比較例2	ET-B	54
比較例3	ET-C	51

[0184] 実施例9

25mm×75mm×1.1mm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分間行った。ITO透明電極の厚さは130nmとした。

洗浄後のITO透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まずITO透明電極を覆うようにして上記化合物HT-bと上記化合物HI-aとを共蒸着して膜厚10nmの正孔注入層を形成した。化合物HI-aの正孔注入層中の濃度は3.0質量%であった。

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

次に、この第1正孔輸送層上に、上記化合物EBL-b（第2正孔輸送層材料）を蒸着して膜厚5nmの第2正孔輸送層を形成した。

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

次に、この発光層の上に、化合物ET-1（第1電子輸送層材料）を蒸着して膜厚5nmの第1電子輸送層を形成した。

次に、この第1電子輸送層の上に、上記化合物ET-b（第2電子輸送層材料）及びLiqを共蒸着して膜厚20nmの第2電子輸送層を形成した。Liqの第2電子輸送層材料中の濃度は50.0質量%であった。

次に、この第2電子輸送層上に、LiFを蒸着して膜厚1nmのLiF膜を形成した。

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

このようにして、有機EL素子を得た。

実施例9の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

[0185] ITO(130)/HT-b:HI-a=97:3(10)/HT-b(80)/EBL-b(5)/BH-b:BD-a=96:4(25)/ET-1(5)/ET-b:Liq=50:50(20)/LiF(1)/Al(80)

[0186] 有機EL素子について、上記95%寿命(LT95)評価を行った。その結果を表2に示す。

[0187] 実施例 10～11 及び比較例 4～6

実施例 10～11 及び比較例 4～6 の有機 EL 素子は、実施例 9 における化合物 ET-1（第 1 電子輸送層材料）を表 2 に記載の化合物及び比較化合物に置き換えたこと以外は実施例 9 と同様にして作製した。

各有機 EL 素子について、上記 95% 寿命（LT95）評価を行った。その結果を表 2 に示す。

[0188] [表2]

表2

	ET	LT95(hr)
実施例9	ET-1	235
実施例10	ET-2	211
実施例11	ET-5	230
比較例4	ET-A	150
比較例5	ET-B	95
比較例6	ET-C	61

[0189] 実施例 12

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

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

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

次に、この第 1 正孔輸送層上に、上記化合物 EBL-a（第 2 正孔輸送層材料）を蒸着して膜厚 10 nm の第 2 正孔輸送層を形成した。

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

次に、この発光層の上に、化合物 ET-1（第 1 電子輸送層材料）を蒸着

して膜厚10nmの第1電子輸送層を形成した。

次に、この第1電子輸送層の上に、上記化合物ET-c（第2電子輸送層材料）及びLiを共蒸着して膜厚15nmの第2電子輸送層を形成した。Liの第2電子輸送層材料中の濃度は4.0質量%であった。

そして、この第2電子輸送層上に金属Alを蒸着して膜厚80nmの金属Al陰極を形成した。

このようにして、有機EL素子を得た。

実施例12の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

[0190] IT0(130)/HI-b(5)/HT-c(80)/EBL-a(10)/BH-a:BD-a=96:4(25)/ET-1(10)/ET-c:Li=96:4(15)/Al(80)

[0191] 有機EL素子について、上記90%寿命(LT90)評価を行った。その結果を表3に示す。

[0192] 比較例7

比較例7の有機EL素子は、実施例5における化合物ET-1（第1電子輸送層材料）を表2に記載の化合物及び比較化合物に置き換えたこと以外は実施例12と同様にして作製した。

有機EL素子について、上記90%寿命(LT90)評価を行った。その結果を表3に示す。

[0193] [表3]

表3

	ET	LT90(hr)
実施例12	ET-1	753
比較例7	ET-A	401

[0194] 表1～3の結果から明らかなように、本発明の式(1A)の化合物ET-1～ET-8のいずれかを含む有機EL素子は、高寿命を示す。特に、本発明の式(1)にも該当する化合物ET-1、ET-3～ET-6、又はET-8を含む有機EL素子は、化合物ET-2又はET-7を含む有機EL素子と比べて、さらなる高寿命を示す。

一方、比較化合物ET-A、ET-B、及びET-Cのいずれかを含む有

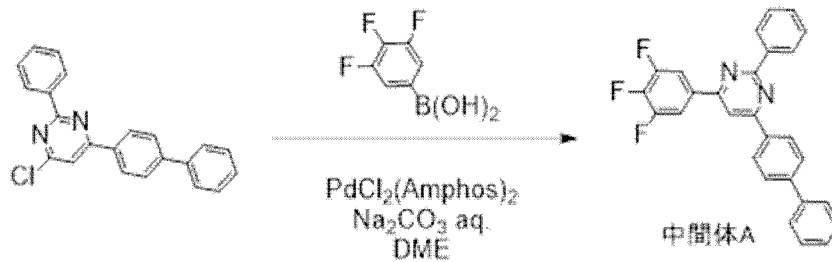
機EL素子は、寿命が不十分である。

実施例と比較例の比較から、式(1A)、(1)～(17)に共通の母骨格、すなわち、1つのベンゼン環の特定の4個の環内炭素原子に対して、3個のカルバゾール骨格の9位と、ベンゼン環骨格で2位が置換された1個のピリミジン骨格の4位とが結合されており、かつ当該ピリミジン骨格の6位が特定の構造によって置換されてなる母骨格を有する化合物は、高寿命を示すことが分かる。

[0195] 合成例1 化合物ET-1の合成

(1-1) 中間体Aの合成

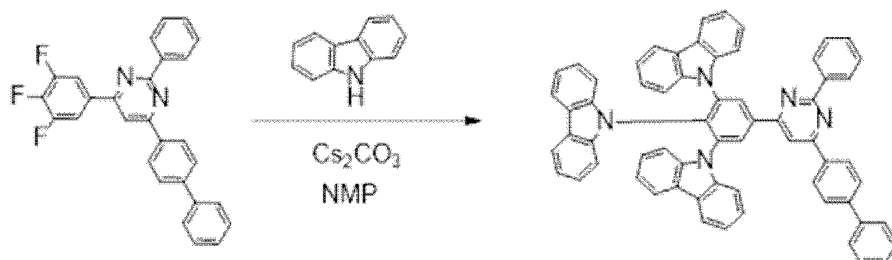
[0196] [化49]



[0197] 4-([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-6-クロロ-2-フェニルピリミジン 7.5 g、3,4,5-トリフルオロフェニルボロン酸 4.6 g、PdCl₂(Amphos)₂ 0.45 g、1,2-ジメトキシエタン (DME) 220 mL、2M炭酸ナトリウム水溶液 33 mL をフラスコに入れ、アルゴンガスで置換した後、還流条件下で7時間加熱攪拌した。室温に戻してから析出した固体を濾集し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体A 9.2 g (収率96%) を白色固体として得た。

[0198] (1-2) 化合物ET-1の合成

[0199] [化50]

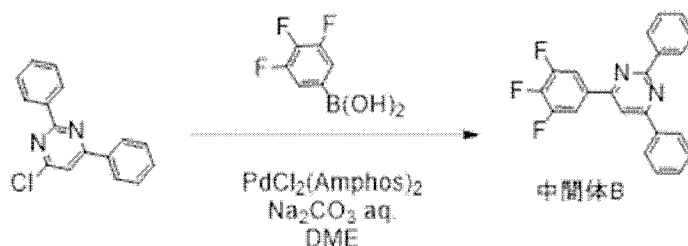


[0200] 中間体A 3.0 g、カルバゾール5.7 g、炭酸セシウム13.4 g、N-メチルピロリドン（NMP）35 mLをフラスコに入れ、アルゴンガスで置換した後、155℃で2日間加熱攪拌した。室温に戻してから、メタノールを反応液に加えて析出した固体を濾集した。固体を水、アセトンで洗浄した後、トルエンでの再結晶による精製を繰り返し、化合物ET-1を4.7 g（収率78%）、白色固体として得た。マスペクトル分析の結果、 $m/e = 880$ であり、目的物であることを確認した。

[0201] 合成例2 化合物ET-2の合成

(2-1) 中間体Bの合成

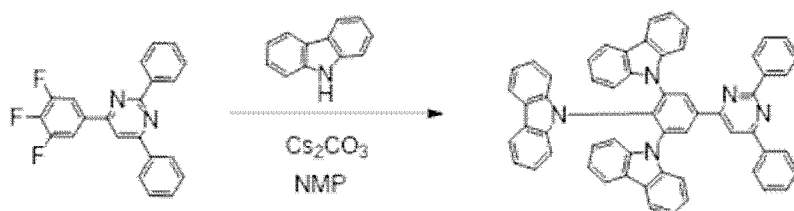
[0202] [化51]



[0203] 4-クロロ-2,6-ジフェニルピリミジン4.1 g、3,4,5-トリフルオロフェニルボロン酸3.0 g、PdCl₂(Amphos)₂0.55 g、1,2-ジメトキシエタン（DME）150 mL、2M炭酸ナトリウム水溶液25 mLをフラスコに入れ、アルゴンガスで置換した後、還流条件下で7時間加熱攪拌した。室温に戻してから析出した固体を濾集し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体B 5.1 g（収率90%）を白色固体として得た。

[0204] (2-2) 化合物ET-2の合成

[0205] [化52]



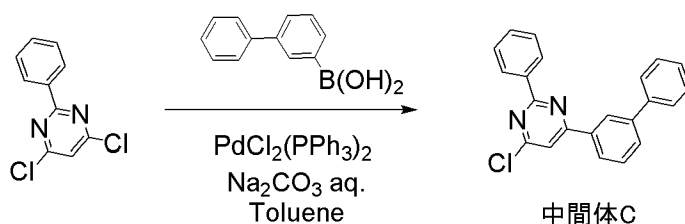
[0206] 中間体B 3 g、カルバゾール6.9 g、炭酸セシウム16.2 g、N-メ

チルピロリドン（NMP）80 mLをフラスコに入れ、アルゴンガスで置換した後、155℃で2日間加熱攪拌した。室温に戻してから、メタノールを反応液に加えて析出した固体を濾集した。固体を水、アセトンで洗浄した後、トルエンでの再結晶による精製を繰り返し、化合物ET-2を5.7 g（収率86%）、白色固体として得た。マスペクトル分析の結果、 $m/e = 803$ であり、目的物であることを確認した。

[0207] 合成例3 化合物ET-3の合成

(3-1) 中間体Cの合成

[0208] [化53]



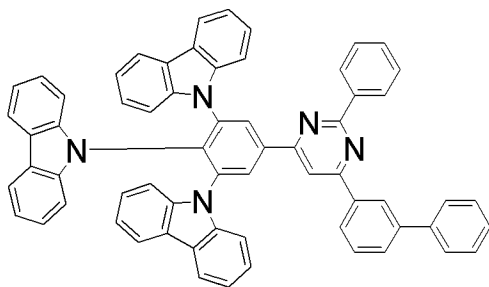
[0209] 4,6-ジクロロ-2-フェニルピリミジン5.0 g、*m*-ビフェニルボロン酸4.4 g、 $\text{PdCl}_2(\text{PPh}_3)_2$ 0.16 g、トルエン200 mL、2 M炭酸ナトリウム水溶液25 mLをフラスコに入れ、アルゴンガスで置換した後、還流条件下で7時間加熱攪拌した。室温に戻してから析出した固体を濾集し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体C 4.7 g（収率61%）を白色固体として得た。

続いて、合成例1と同様の手順で化合物ET-3を合成した。

マスペクトル分析の結果、 $m/e = 880$ であり、目的物であることを確認した。

[0210]

[化54]

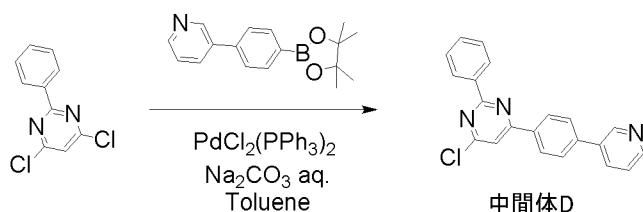


ET-3

[0211] 合成例4 化合物ET-4の合成

(4-1) 中間体Dの合成

[0212] [化55]



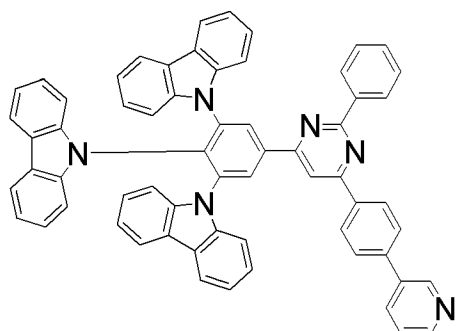
[0213] 4,6-ジクロロ-2-フェニルピリミジン5.0g、2-(4-(3-pyridyl)phenyl)-4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolane6.3g、PdCl₂(PPh₃)₂0.16g、トルエン200mL、2M炭酸ナトリウム水溶液25mLをフラスコに入れ、アルゴンガスで置換した後、還流条件下で7時間加熱攪拌した。室温に戻してから析出した固体を濾集し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、中間体D5.3g(収率69%)を白色固体として得た。

続いて、合成例1と同様の手順で化合物ET-4を合成した。

マスペクトル分析の結果、m/e=881であり、目的物であることを確認した。

[0214]

[化56]

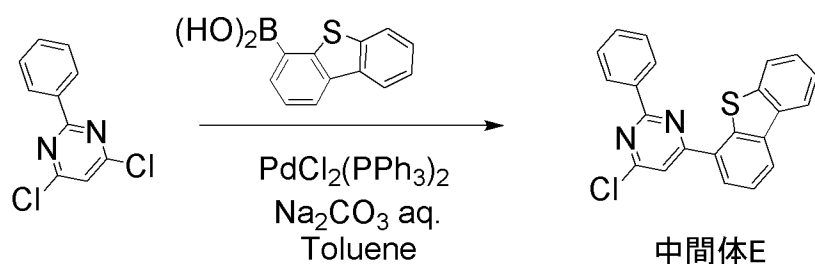


ET-4

[0215] 合成例5 化合物ET-5の合成

(5-1) 中間体Eの合成

[0216] [化57]

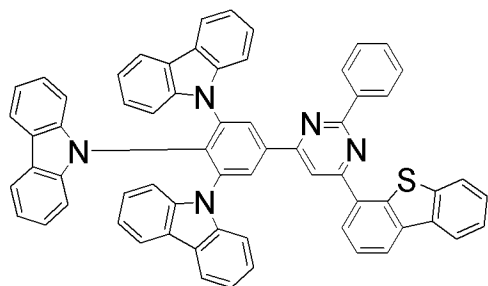


[0217] 合成例3の(3-1)と同様の手順で中間体Eを合成した。

続いて、合成例1と同様の手順で化合物ET-5を合成した。

マスペクトル分析の結果、 $m/e = 910$ であり、目的物であることを確認した。

[0218] [化58]



ET-5

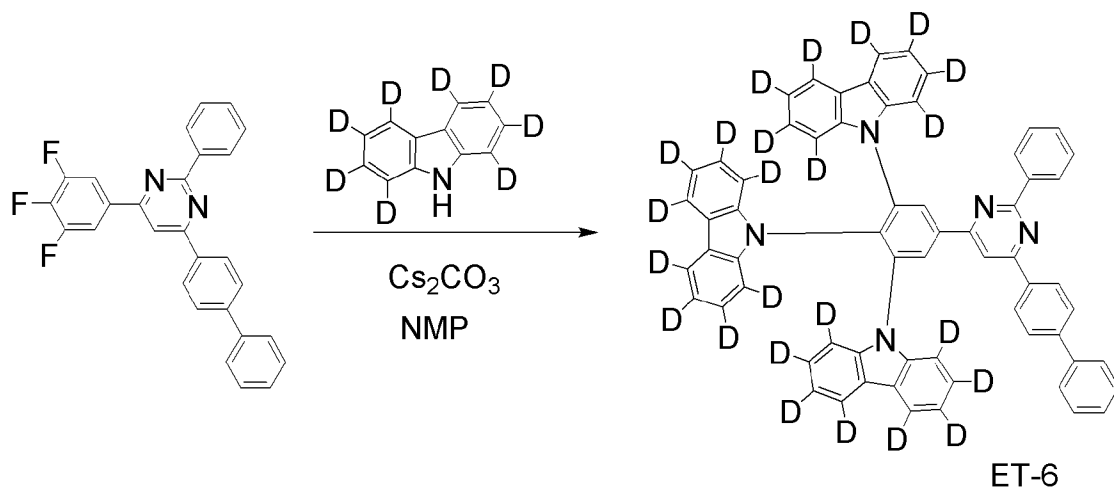
[0219] 合成例6 化合物ET-6の合成

合成例1の(1-2)について、カルバゾールの代わりにカルバゾール-

d 8 を用いて、同様の手順で化合物 ET-6 を合成した。

マスペクトル分析の結果、 $m/e = 904$ であり、目的物であることを確認した。

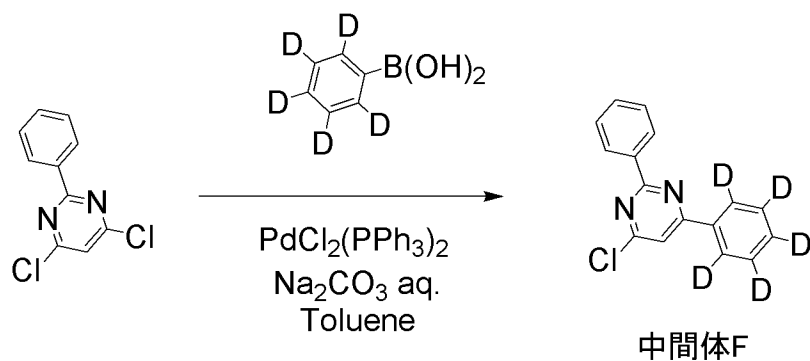
[0220] [化59]



[0221] 合成例 7 化合物 ET-7 の合成

(7-1) 中間体 F の合成

[0222] [化60]



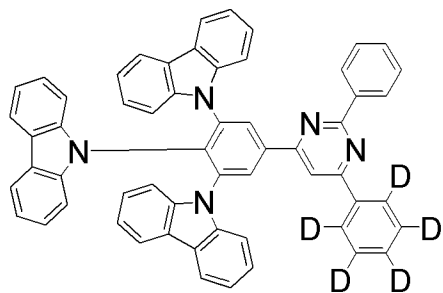
[0223] 合成例 3 の (3-1) と同様の手順で中間体 F を合成した。

続いて、合成例 1 と同様の手順で化合物 ET-7 を合成した。

マスペクトル分析の結果、 $m/e = 809$ であり、目的物であることを確認した。

[0224]

[化61]

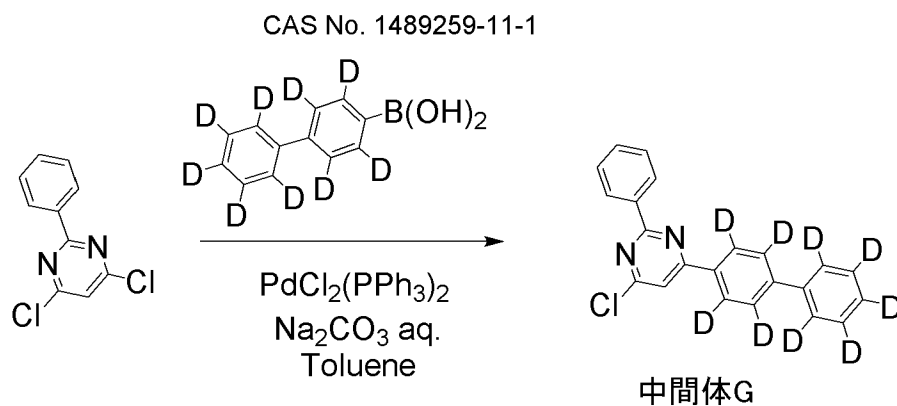


ET-7

[0225] 合成例 8 化合物 ET-8 の合成

(8-1) 中間体 G の合成

[0226] [化62]



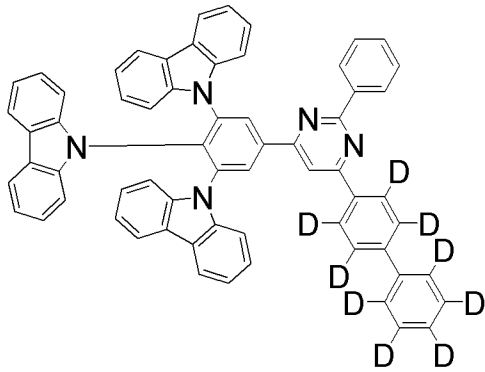
[0227] 合成例 3 の (3-1) と同様の手順で中間体 G を合成した。

続いて、合成例 1 と同様の手順で化合物 ET-8 を合成した。

マスペクトル分析の結果、 $m/e = 889$ であり、目的物であることを確認した。

[0228]

[化63]



ET-8

符号の説明

- [0229] 1、11、12 有機EL素子
- 2 基板
- 3 陽極
- 4 陰極
- 5 発光層
- 6 正孔輸送帯域（正孔輸送層）
- 6a 第1正孔輸送層
- 6b 第2正孔輸送層
- 7 電子輸送帯域（電子輸送層）
- 7a 第1電子輸送層
- 7b 第2電子輸送層
- 8 正孔阻止層
- 10、20、30 発光ユニット

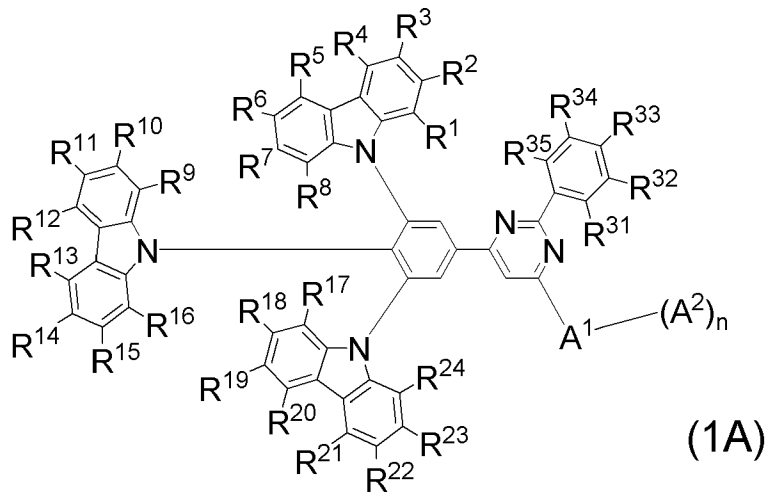
請求の範囲

[請求項1] 陽極、陰極、及び該陽極と該陰極の間に配置された有機層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機層が、発光層、及び該発光層と該陰極の間に配置された第1の層を含み、

前記第1の層が下記式(1A)で表される化合物を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]



(式中、

$R^1 \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組は、それぞれ独立に、互いに結合して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環を形成するか、又は、 R^{31} と R^3

2、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} は互いに結合して環を形成せず、互いに結合して環を形成しない場合、 R^{31} ～ R^{35} は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

A^1 は、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基であり、

A^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6～30のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、又はシアノ基であり、

n は0～3の整数である。

n が0のとき、 $(A^2)_0$ は水素である。）

[請求項2] 前記式(1A)において、 A^1 がベンゼンの $n+1$ 価の残基である場合、 n は1以上の整数である、請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項3] A^1 が表す環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基において、該環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレン、アントラセン、ベンゾアントラセン、フェナントレン、ベンゾフェナントレン、フェナレン、ピセン、ペンタフェン、ピレン、クリセン、ベンゾクリセン、フルオレン、フルオランテン、ペリレン、又はトリフェニルであり、

A^1 が表す環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基において、該環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物が、ピロール、フラン、チオフェン、ピリジン、ピ

リダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イソオキサゾール、イソチアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール、テトラゾール、インドール、イソインドール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ベンゾチオフェン、イソベンゾチオフェン、インドリジン、キノリジン、キノリン、イソキノリン、シンノリン、フタラジニン、キナゾリン、キノキサリン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、インダゾール、ベンズイソキサゾール、ベンズイソチアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、フェナントリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、キサンテン、又はベンゾニトリルである、請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項4]

A¹が表す環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換のn+1価の残基において、該環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素が、ベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、又はフェナントレン、であり、

A¹が表す環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換のn+1価の残基において、該環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物が、ピリジン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、又はベンゾニトリルである、請求項1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項5]

A²が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、環形成炭素数6～30のアリール基が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレン、アントラセン、ベンゾアントラセン、フェナントレン、ベンゾフェナントレン、フェナレン、ピセン、ペンタフェン、ピレン、クリセン、ベンゾクリセン、フルオレン、フルオランテン、ペリレン、又はトリフェニルの1価の残基であり、

A²が表す置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基において、環形成原子数5～30のヘテロアリール基が、ピロール、フラン、チオフェン、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イソオキサゾール、イソチアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール、テトラゾール、インドール、イソインドール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ベンゾチオフェン、イソベンゾチオフェン、インドリジン、キノリジン、キノリン、イソキノリン、シンノリン、フタラジニン、キナゾリン、キノキサリン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、インダゾール、ベンズイソキサゾール、ベンズイソチアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、フェナントリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、キサnten、又はベンズニトリルの1価の残基である、請求項1～4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項6]

A²が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、環形成炭素数6～30のアリール基が、ベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、又はフェナントレンの1価の残基であり、

A²が表す置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基において、環形成原子数5～30のヘテロアリール基が、ピリジン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、又はベンズニトリルの1価の残基である、請求項1～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項7]

R¹～R²⁴及びR³¹～R³⁵が置換基である場合の置換基が、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、又は置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基であり、

R¹～R²⁴、R³¹～R³⁵、A¹、及びA²において、「置換もしくは

は無置換」というときの任意の置換基は、それぞれ独立に、無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は無置換の炭素数1～50のアルキル基である、請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項8]

$R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は水素原子であり、

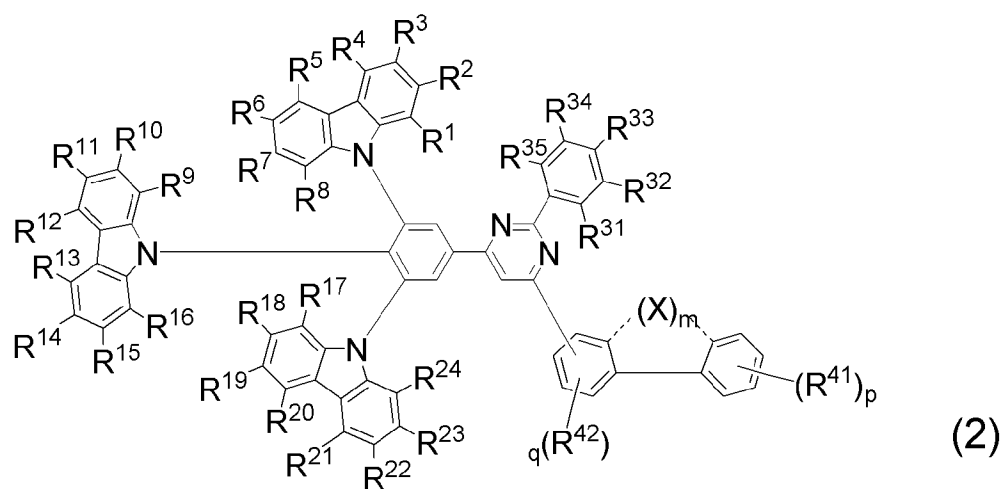
A^1 は、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の無置換の $n+1$ 価の残基であり、

A^2 は、無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、又は無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基である、請求項1～7のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項9]

前記式(1A)で表される化合物が、下記式(2)で表される化合物である、請求項1～8のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化2]



(式中、

$R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じであり、

$R^{41} \sim R^{42}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じであり、

m は0又は1であり、

m が0のとき X は存在せず、2つのベンゼン環は架橋されず、

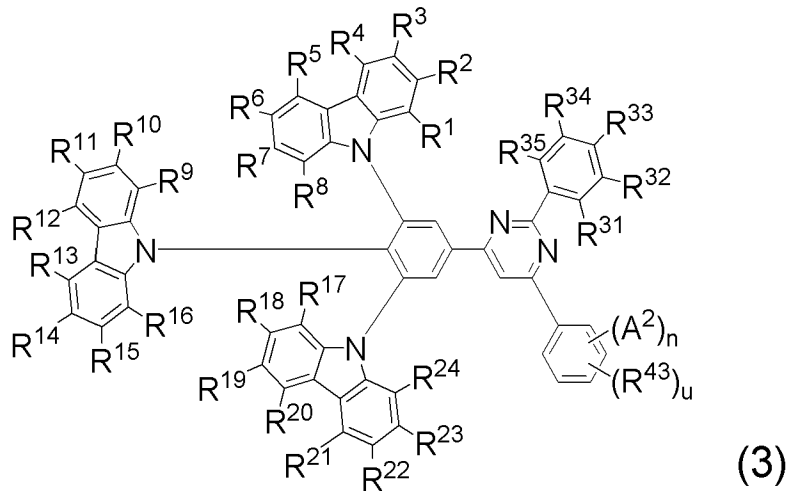
mが1のときXはO又はSであり、

pは0～5の整数であり、

qは0～4の整数である。）

[請求項10] 前記式(1A)で表される化合物が、下記式(3)で表される化合物である、請求項1～8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化3]



(式中、

$R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じであり、

A^2 及びnは、前記と同じであり、

R^{43} は、前記 R^1 と同じであり、

uは、 $0 \sim (5 - n)$ の整数である。)

[請求項11] 前記式(1A)で表される化合物において、化合物中の水素原子のうち少なくとも1つは重水素原子である、請求項1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項12] $R^1 \sim R^{24}$ のすべてが重水素原子である、請求項1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項13] nは0であり、

A^1 で表される基は無置換であり、

A^1 で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子である、

請求項 1 ~ 1 2 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項14]

n は 1 であり、

A^1 で表される基は無置換であり、

A^1 で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子であり、

A^2 で表される基は無置換であり、

A^2 で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子である、

請求項 1 ~ 1 2 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

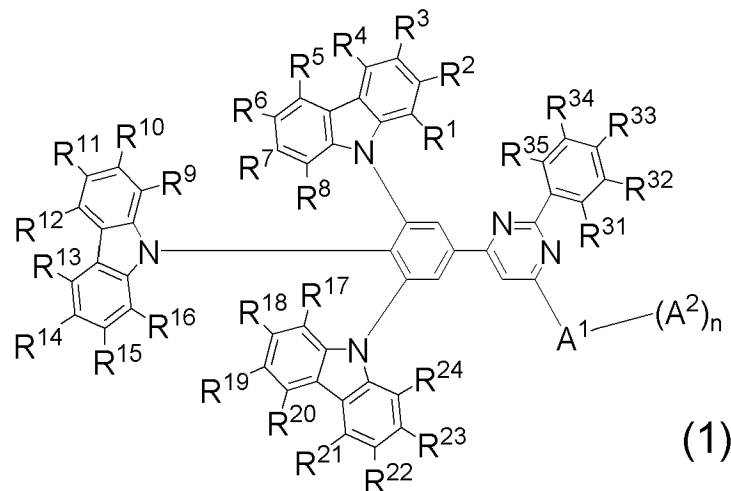
[請求項15]

前記第 1 の層が、前記発光層に隣接している、請求項 1 ~ 1 4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項16]

下記式 (1) で表される化合物。

[化4]



(式中、

$R^1 \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 のヘテロアリール基、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 5 ~ 50 のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} の少なくとも1組は、それぞれ独立に、互いに結合して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素環、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数5～50の脂肪族炭化水素環を形成するか、又は、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、及び R^{34} と R^{35} は互いに結合して環を形成せず、互いに結合して環を形成しない場合、 R^{31} ～ R^{35} は、それぞれ独立に、水素原子、または置換基であり、当該置換基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、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、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5～50のシクロアルキル基、又はシアノ基であり、

A^1 は、環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基、又は環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の $n+1$ 価の残基であり、

A^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6～30のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、又はシアノ基であり、

n は0～3の整数であり、

A^1 がベンゼンの $n+1$ 価の残基である場合、 n は1以上の整数である。

n が0のとき、 $(A^2)_0$ は水素である。）

[請求項17]

A^1 が表す環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の1価もしくは2価の残基において、該環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレン、アントラセン、ベンゾアントラセン、フェナントレン、ベンゾフェナントレン、フェナレン、ピセン、ペンタフェン、ピレン、クリセン、ベンゾクリセン、フルオレン、フルオランテン、ペリレン、又

はトリフェニルであり、

A¹が表す環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の1価もしくは2価の残基において、該環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物が、ピロール、フラン、チオフェン、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イソオキサゾール、イソチアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール、テトラゾール、インドール、イソインドール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ベンゾチオフェン、イソベンゾチオフェン、インドリジン、キノリジン、キノリン、イソキノリン、シンノリン、フタラジニン、キナゾリン、キノキサリン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、インダゾール、ベンズイソキサゾール、ベンズイソチアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、フェナントリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、キサントレン、又はベンゾニトリルである、請求項16に記載の化合物。

[請求項18]

A¹が表す環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素の置換もしくは無置換の1価もしくは2価の残基において、該環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素が、ベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、又はフェナントレンであり、

A¹が表す環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物の置換もしくは無置換の1価もしくは2価の残基において、該環形成原子数5～30の芳香族複素環化合物が、ピリジン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、又はベンゾニトリルである、請求項16又は17に記載の化合物。

[請求項19]

A²が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、環形成炭素数6～30のアリール基が、ベンゼン、ビフェニル、ターフェニル、ナフタレン、アントラセン、ベンゾアントラ

セン、フェナントレン、ベンゾフェナントレン、フェナレン、ピセン、ペンタフェン、ピレン、クリセン、ベンゾクリセン、フルオレン、フルオランテン、ペリレン、又はトリフェニルの1価の残基であり、

A²が表す置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基において、環形成原子数5～30のヘテロアリール基が、ピロール、フラン、チオフェン、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イソオキサゾール、イソチアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール、テトラゾール、インドール、イソインドール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ベンゾチオフェン、イソベンゾチオフェン、インドリジン、キノリジン、キノリン、イソキノリン、シンノリン、フタラジニン、キナゾリン、キノキサリン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、インダゾール、ベンズイソキサゾール、ベンズイソチアゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、フェナントリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン、キサントレン、又はベンズニトリルの1価の残基である、請求項16～18のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項20]

A²が表す置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基において、環形成炭素数6～30のアリール基が、ベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、又はフェナントレンの1価の残基であり、

A²が表す置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基において、環形成原子数5～30のヘテロアリール基が、ピリジン、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、カルバゾール、又はベンズニトリルの1価の残基である、請求項16～19のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項21]

R¹～R²⁴及びR³¹～R³⁵が置換基である場合の置換基が、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

、又は置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキル基であり、
 $R^1 \sim R^{24}$ 、 $R^{31} \sim R^{35}$ 、 A^1 、及び A^2 において、「置換もしくは無置換」というときの任意の置換基は、それぞれ独立に、無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は無置換の炭素数 1～50 のアルキル基である、請求項 16～20 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項22]

$R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は水素原子であり、

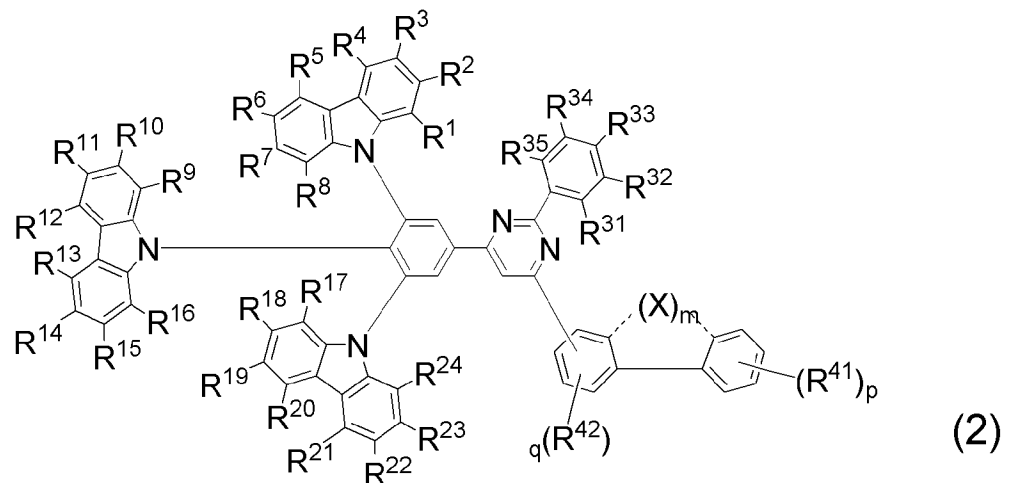
A^1 は、環形成炭素数 6～30 の芳香族炭化水素の無置換の $n + 1$ 価の残基、又は環形成原子数 5～30 の芳香族複素環化合物の無置換の $n + 1$ 価の残基であり、

A^2 は、無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、又は無置換の環形成原子数 5～30 のヘテロアリール基である、請求項 16～21 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[請求項23]

前記式 (1) で表される化合物が、下記式 (2) で表される化合物である、請求項 16～22 のいずれか 1 項に記載の化合物。

[化5]



(式中、

$R^1 \sim R^{24}$ 及び $R^{31} \sim R^{35}$ は、前記と同じであり、

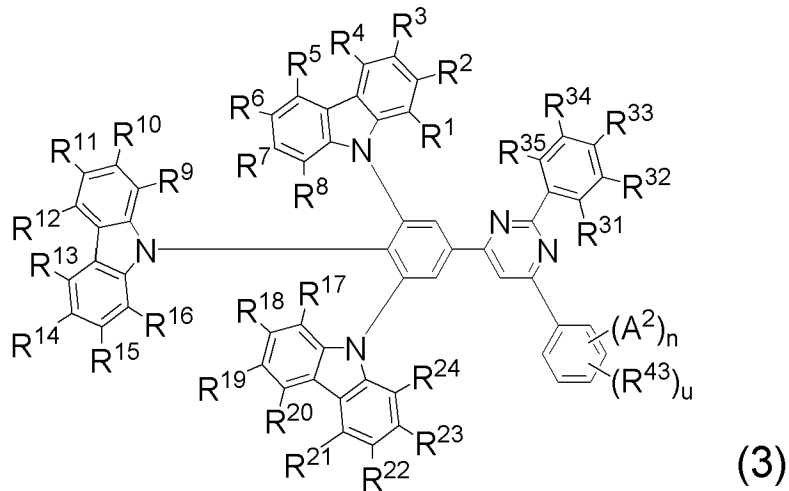
$R^{41} \sim R^{42}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 と同じであり、

m は 0 又は 1 であり、

mが0のときXは存在せず、2つのベンゼン環は架橋されず、
 mが1のときXはO又はSであり、
 pは0～5の整数であり、
 qは0～4の整数である。)

[請求項24] 前記式(1)で表される化合物が、下記式(3)で表される化合物である、請求項16～22のいずれか1項に記載の化合物。

[化6]



(式中、

R¹～R²⁴及びR³¹～R³⁵は、前記と同じであり、

A²及びnは、前記と同じであり、

R⁴³は、前記R¹と同じであり、

uは、0～(5-n)の整数である。)

[請求項25] 前記式(1)で表される化合物において、化合物中の水素原子のうち少なくとも1つは重水素原子である、請求項16～24のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項26] R¹～R²⁴のすべてが重水素原子である、請求項16～25のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項27] nは0であり、

A¹で表される基は無置換であり、

A¹で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子である、

請求項16～26のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項28]

nは1であり、

A¹で表される基は無置換であり、

A¹で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子であり、

A²で表される基は無置換であり、

A²で表される基が有する水素原子は、すべて重水素原子である、

請求項16～26のいずれか1項に記載の化合物。

[請求項29]

請求項16～28のいずれか1項に記載の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項30]

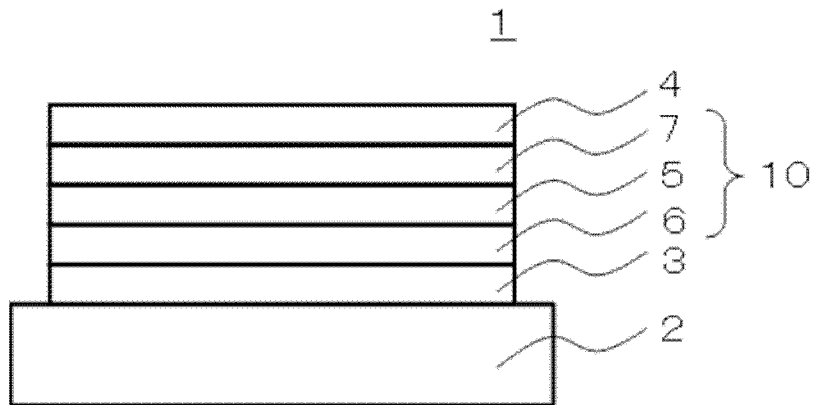
陽極、陰極、及び該陽極と該陰極の間に配置された有機層を有し、該有機層が発光層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

該有機層の少なくとも1層が請求項16～28のいずれか1項に記載の化合物を含む、有機エレクトロルミネッセンス素子。

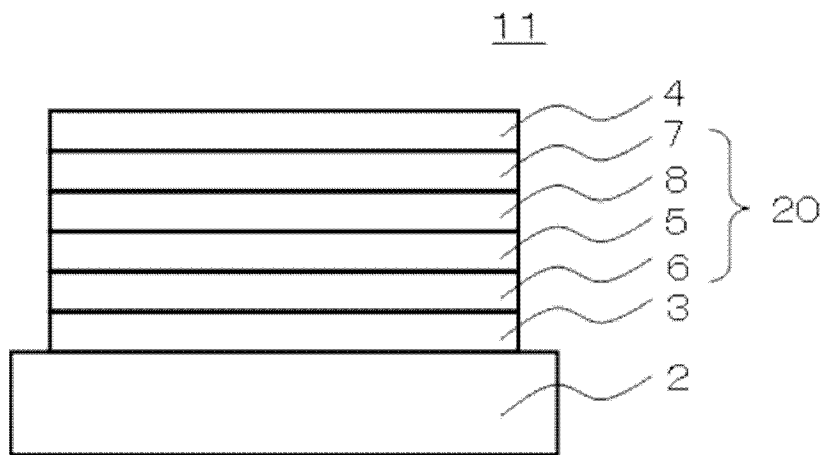
[請求項31]

請求項1～15及び30のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を含む電子機器。

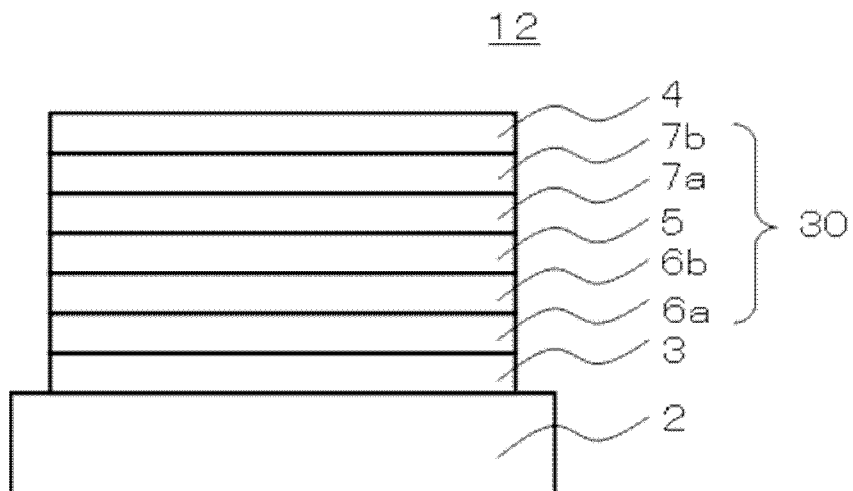
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/034437

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 Int.Cl. H01L51/50 (2006.01) i, C07D401/14 (2006.01) i,
 C07D403/14 (2006.01) i, C07D409/14 (2006.01) i
 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
 Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
 Int.Cl. H01L51/50, C07D401/14, C07D403/14, C07D409/14

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2016/181846 A1 (KONICA MINOLTA, INC.) 17 November 2016, claim 1, paragraphs [0100], [0104]-[0105], [0128], [0194]-[0195], [0305], [0336]-[0337] & US 2018/0170914 A1, claim 1, paragraphs [0202], [0204], [0307]-[0321], [0572]-[0575], [0634] & CN 107531628 A & KR 10-2017-0128517 A	1-10, 15-24, 29-31 11-14, 25-28
A	JP 2014-216576 A (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 17 November 2014, entire text, all drawings (Family: none)	1-31

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

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 08 November 2019 (08.11.2019)	Date of mailing of the international search report 19 November 2019 (19.11.2019)
--------------------------------------------------------------------------------------------	-------------------------------------------------------------------------------------

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/034437

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2011-71474 A (FUJIFILM CORP.) 07 April 2011, entire text, all drawings & US 2012/0126221 A1, entire text, all drawings & WO 2011/013681 A1 & TW 201109317 A & KR 10-1178084 B1	1-31
A	JP 2011-49511 A (FUJIFILM CORP.) 10 March 2011, entire text, all drawings & US 2012/0126691 A1, entire text, all drawings & WO 2011/013859 A1 & TW 201111476 A & KR 10-1154911 B1	1-31
A	JP 2012-19172 A (FUJIFILM CORP.) 26 January 2012, entire text, all drawings & WO 2012/005360 A1 & KR 10-2013-0043665 A	1-31
A	JP 2018-35129 A (YAMAGATA UNIV.) 08 March 2018, entire text, all drawings (Family: none)	1-31

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07D401/14(2006.01)i, C07D403/14(2006.01)i, C07D409/14(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. H01L51/50, C07D401/14, C07D403/14, C07D409/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY (STN)

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	WO 2016/181846 A1（コニカミノルタ株式会社）2016.11.17, [請求項1], 段落[0100], [0104]-[0105], [0128], [0194]-[0195], [0305], [0336]-[0337]	1-10, 15-24, 29-31
A	& US 2018/0170914 A1, 請求項1, 段落[0202], [0204], [0307]-[0321], [0572]-[0575], [0634] & CN 107531628 A & KR 10-2017-0128517 A	11-14, 25-28
A	JP 2014-216576 A（出光興産株式会社）2014.11.17, 全文, 全図 （ファミリーなし）	1-31

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「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

08.11.2019

国際調査報告の発送日

19.11.2019

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

小久保 州洋

20

1169

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

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	JP 2011-71474 A (富士フイルム株式会社) 2011.04.07, 全文, 全図 & US 2012/0126221 A1, 全文, 全図 & WO 2011/013681 A1 & TW 201109317 A & KR 10-1178084 B1	1-31
A	JP 2011-49511 A (富士フイルム株式会社) 2011.03.10, 全文, 全図 & US 2012/0126691 A1, 全文, 全図 & WO 2011/013859 A1 & TW 201111476 A & KR 10-1154911 B1	1-31
A	JP 2012-19172 A (富士フイルム株式会社) 2012.01.26, 全文, 全図 & WO 2012/005360 A1 & KR 10-2013-0043665 A	1-31
A	JP 2018-35129 A (国立大学法人山形大学) 2018.03.08, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-31