

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005年4月28日 (28.04.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/039246 A1

(51) 国際特許分類: H05B 33/14, 33/22, C09K 11/06

野市 さくら町 1 番地 コニカミノルタ テクノロジー
センター株式会社内 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/014307

(22) 国際出願日: 2004年9月22日 (22.09.2004)

(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2003-339583 2003年9月30日 (30.09.2003) 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタホールディングス株式会社 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) [JP/JP]; 〒100-0005 東京都千代田区丸の内1丁目6番1号 Tokyo (JP).

(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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 植田 則子 (UEDA, Noriko) [JP/JP]; 〒192-8505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタ テクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 山田 岳俊 (YAMADA, Taketoshi) [JP/JP]; 〒192-8505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタ テクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 北 弘志 (KITA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒192-8505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタ テクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 福田 光弘 (FUKUDA, Mitsuhiro) [KR/JP]; 〒191-8511 東京都日

添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE, ILLUMINATING DEVICE, AND DISPLAY

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、表示装置

(57) Abstract: An organic electroluminescent device comprising at least a light-emitting layer and a hole-blocking layer adjacent to the light-emitting layer is characterized in that the light-emitting layer comprises a part having a specific structure and contains at least one compound having a molecular weight of not more than 1,700 and the hole-blocking layer contains at least one derivative selected from the group consisting of styryl derivatives, boron derivatives, carboline derivatives and derivatives wherein at least one carbon atom constituting the carboline skeleton of carboline derivatives is substituted by a nitrogen atom.

(57) 要約: 少なくとも発光層と該発光層に隣接する正孔阻止層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層が、特定の構造を持つ部分構造を有し、分子量が1700以下である化合物を少なくとも一種含有し、且つ、該正孔阻止層が、スチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、及び該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。



WO 2005/039246 A1

明細書

有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、表示装置

5 技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた照明装置、表示装置、有機エレクトロルミネッセンス素子の材料である化合物に関する。

背景技術

- 10 従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ELD）がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子とも略記する）が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は、平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。
- 15 一方、有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して発光する素子であり、数V～数10V程度の電
- 20 圧で発光が可能であり、更に、自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

将来の実用化に向けた有機EL素子の開発としては、更に低消費電力で効率よく、高輝度に発光する有機EL素子が望まれており、例えば、スチルベン誘導体、ジス

チリルアアリーレン誘導体、またはトリスチリルアアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーピングし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術（例えば、特許文献1参照。）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献2参照。）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献3参照。）等が知られている。

上記文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため、発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率(η_{ext})の限界は5%とされている。

一方、プリンストン大より、励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子の報告（例えば、非特許文献1参照。）がされて以来、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている（例えば、非特許文献2及び特許文献4参照。）。

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。

一方、有機EL素子の発光輝度と発光寿命の向上のために、発光層と陰極の間に、発光層からの正孔の移動を制限する正孔阻止層を設けることが提案されている。この正孔阻止層により、正孔を発光層中に効率よく蓄積することによって、電子との再結合確率を向上させ、発光の高効率化を達成することができる。正孔阻止材料としてフェナントロリン誘導体やトリアゾール誘導体の単独使用が有効であると報告されている（特許文献5及び特許文献6参照）。また、ある特定のアルミニウム

錯体を正孔ブロック層に使用して、長寿命な有機EL素子を実現している（特許文献7参照）。

このように正孔阻止層の導入により、燐光性化合物を使用した有機EL素子では緑色では内部量子効率としてほぼ100%、寿命についても2万時間が達成されている（非特許文献3参照）が、発光輝度については、まだ改善の余地が残っている。

また、青～青緑色のリン光性化合物をドーパントとして用いた場合、CBPのようなカルバゾール誘導体をホスト化合物として使用した例があるが、その外部取り出し量子効率が6%と、不十分な結果であり（非特許文献4参照）、改良の余地が残っている。青色に関しては、蛍光性化合物からの発光を利用したものであるが、カルバゾール誘導体の分子の真中のビアリアル部位に連結基を導入して、青色の色純度に優れ、長寿命な有機EL素子が作製されている（例えば、特許文献8参照）。さらに、前記化合物に加えて、特定の五配位の金属錯体を正孔阻止層に使用、リン光性化合物をドーパントとして使用した場合に、更なる長寿命化が達成されている（例えば、特許文献9参照）。

さらに、他にもカルバゾール誘導体を用いた有機EL素子が作製されている（例えば、特許文献10～21）。しかしながら、上記特許に記載のカルバゾール誘導体は、実用化に耐えうる発光効率と耐熱性を有するまでには至っていない。今後の実用化に向けた有機EL素子では、更に、低消費電力で効率よく高輝度に発光し、さらに長寿命である有機EL素子の開発が望まれている。

20 【特許文献1】

特許第3093796号明細書

【特許文献2】

特開昭63-264692号公報

【特許文献 3】

特開平 3 - 2 5 5 1 9 0 号公報

【特許文献 4】

米国特許第 6, 0 9 7, 1 4 7 号明細書

5 【特許文献 5】

特開平 8 - 1 0 9 3 7 3 号公報

【特許文献 6】

特開平 1 0 - 2 3 3 2 8 4 号公報

【特許文献 7】

10 特開 2 0 0 1 - 2 8 4 0 5 6 号公報

【特許文献 8】

特開 2 0 0 0 - 2 1 5 7 2 号公報

【特許文献 9】

特開 2 0 0 2 - 8 8 6 0 号公報

15 【特許文献 1 0】

特開 2 0 0 2 - 2 0 3 6 6 3 号公報

【特許文献 1 1】

特開平 8 - 3 5 4 7 号公報

【特許文献 1 2】

20 特開平 8 - 1 4 3 8 6 1 号公報

【特許文献 1 3】

特開平 8 - 1 4 3 8 6 2 号公報

【特許文献 1 4】

特開平9-249876号公報

【特許文献15】

特開平11-144866号公報

【特許文献16】

5 特開平11-144867号公報

【特許文献17】

特開平8-60144号公報

【特許文献18】

特開2002-8860号公報

10 【特許文献19】

特開2003-77674号公報

【特許文献20】

国際公開第03/50201号パンフレット

【特許文献21】

15 特開2003-231692号公報

【非特許文献1】

M. A. Baldo et al., nature、395巻、
151-154ページ(1998年)

【非特許文献2】

20 M. A. Baldo et al., nature、403巻、
17号、750-753ページ(2000年)

【非特許文献3】

第62回応用物理学会学術講演会予稿集12-a-M7、

パイオニア技術情報誌、第11巻、第1号

【非特許文献4】

第62回応用物理学会学術講演会予稿集12-a-M8

5 発明の開示

本発明の目的は、高い発光輝度と発光効率を示し、長寿命であり、且つ、高温保存条件時の耐熱性にも優れている有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた照明装置、表示装置を提供することである。

本発明の上記目的は、発光層と、それに隣接する正孔阻止層を有し、発光層、および、正孔阻止層にそれぞれ特定の化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子により達成される。

図面の簡単な説明

第1図は有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

15 第2図は表示部の模式図である。

第3図は画素の模式図である。

第4図はパッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

第5(a)図および第5(b)図は封止構造を有する有機EL素子の模式図である。

20 第6図は照明装置の概略図である。

第7図は照明装置の断面図である。

第8図は本発明の化合物のスペクトルのチャートである。

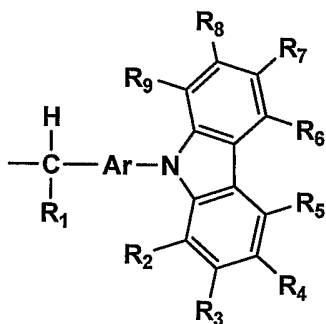
発明を実施するための最良の形態

本発明の上記目的は、下記の構成 1～21 により達成される。

(1) 少なくとも発光層と該発光層に隣接する正孔阻止層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

- 5 前記発光層が、下記一般式 (1) で表される部分構造を有し、分子量が 1700 以下である化合物を少なくとも一種含有し、且つ、該正孔阻止層が、スチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、及び該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有することを特徴とする
- 10 有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式 (1)



- [式中、Ar は、アリーレン基またはヘテロアリーレン基を表し、R₂～R₉は、水素原子または置換基を表す。但し、R₂～R₉で表される該置換基の各々が結合して
- 15 環を形成してもよい。R₁は、水素原子、アルキル基またはシクロアルキル基を表す。]

(2) 前記一般式 (1) 中の Ar がフェニル基であることを特徴とする前記 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

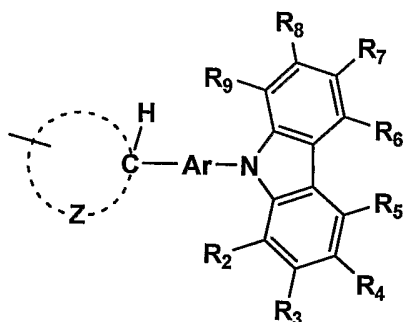
(3) 前記一般式 (1) 中の R₁が水素原子であることを特徴とする前記 1 また

20 は 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(4) 少なくとも発光層と該発光層に隣接する正孔阻止層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層が、下記一般式(1a)で表される部分構造を有し、分子量が1700以下である化合物を少なくとも一種含有し、且つ、該正孔阻止層が、スチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、及び該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1a)



[式中、Arは、アリーレン基またはヘテロアリーレン基を表し、R₂~R₉は、水素原子または置換基を表す。但し、R₂~R₉で表される該置換基の各々が結合して環を形成してもよい。Zは、3員~8員の飽和炭化水素環を形成する原子群を表す。]

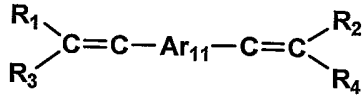
(5) 前記一般式(1a)中のArがフェニル基であることを特徴とする前記4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(6) 前記一般式(1a)中のZがシクロヘキサン環であることを特徴とする前記4または5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(7) 前記正孔阻止層が、下記一般式(2)~(10)で表される化合物群から選択される少なくとも一種を含有することを特徴とする前記1~6のいずれか1

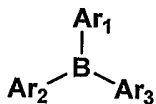
項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式 (2)



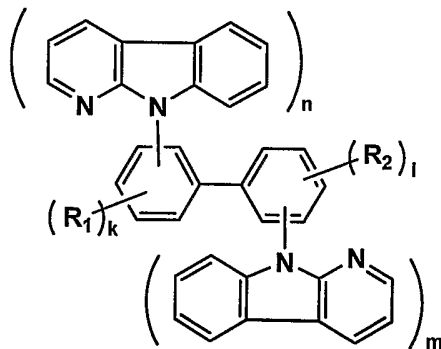
- 5 [式中、 R_1 、 R_2 は、各々独立にアルキル基、アルコキシル基、シアノ基またはアリール基を表し、 R_3 、 R_4 は、各々独立に複素環基またはアリール基を表す。 R_1 と R_3 または R_2 と R_4 は、互いに結合し環構造を形成してもよい。 Ar_{11} はアリーレン基を表す。]

一般式 (3)



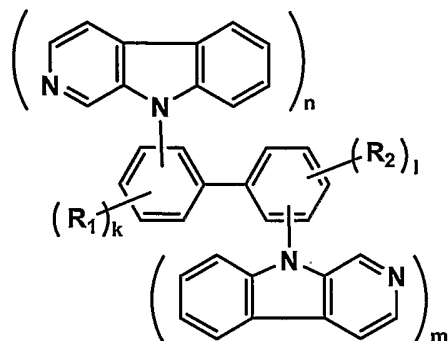
- 10 [式中、 $Ar_1 \sim Ar_3$ は、アリール基、または芳香族複素環基を表す。]

一般式 (4)



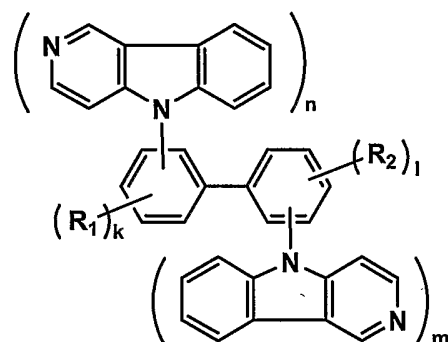
- 15 [式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

一般式 (5)



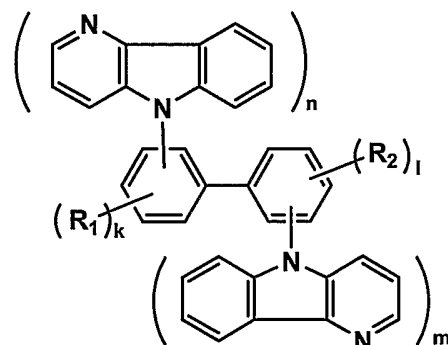
[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、
5 $l+m=5$ である。]

一般式 (6)



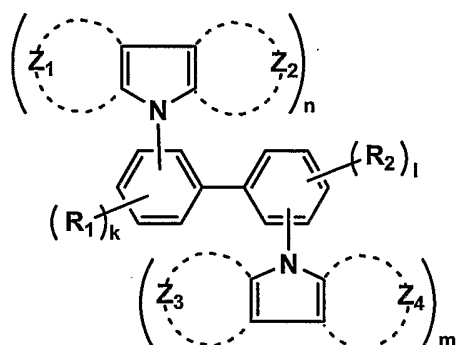
[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、
10 $l+m=5$ である。]

一般式 (7)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

一般式(8)

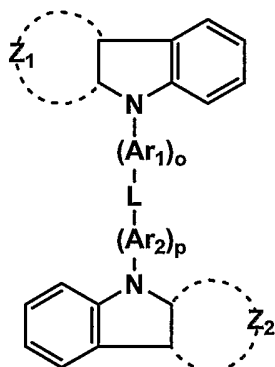


5

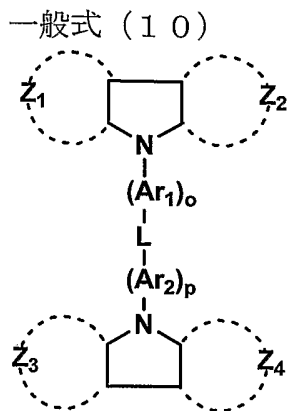
[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表す。]

10

一般式(9)



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]

(8) 少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が、前記一般式(1)で表される部分構造を有し、分子量が500以上1700以下である化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

10 (9) 前記一般式(1)中の Ar がフェニル基であることを特徴とする前記8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(10) 前記一般式(1)中の R_1 が水素原子であることを特徴とする前記8または9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15 (11) 構成層として正孔阻止層を有し、該正孔阻止層が、前記一般式(2)～(10)で表される化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする前記8～10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。

(12) 少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が、前記一般式(1a)で表される部分構造を有し、分子量が500以上1700以下である化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする有機エ

レクトロルミネッセンス素子。

(13) 前記一般式(1a)中のArがフェニル基であることを特徴とする前記12に記載の有機レクトロルミネッセンス素子。

(14) 前記一般式(1a)中のZがシクロヘキサン環であることを特徴とする前記12または13に記載の有機レクトロルミネッセンス素子。

(15) 構成層として正孔阻止層を有し、該正孔阻止層が、前記一般式(2)～(10)で表される化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする前記12～14のいずれか1項に記載の有機レクトロルミネッセンス素子。

(16) 前記発光層がリン光性化合物を含有することを特徴とする前記1～15のいずれか1項に記載の有機レクトロルミネッセンス素子。

(17) 前記リン光性化合物は、オスミウム、イリジウム、ロジウムまたは白金錯体系化合物であることを特徴とする前記16に記載の有機レクトロルミネッセンス素子。

(18) 白色に発光することを特徴とする前記1～17のいずれか1項に記載の有機レクトロルミネッセンス素子。

(19) 前記1～18のいずれか1項に記載の有機レクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

(20) 前記1～18のいずれか1項に記載の有機レクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

(21) 前記20に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備えたことを特徴とする表示装置。

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明者等は、鋭意検討の結果、前記一般式(1)または前記一般式(1a)で

表される部分構造を有し分子量が1700以下である化合物を発光層に含有し、且つ、該発光層に隣接する正孔阻止層にスチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、及び該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子は、高い発光輝度と高い発光効率を示し、かつ寿命を長くすることができることを見出した。

更に、前記一般式(1)または前記一般式(1a)で表される部分構造を有し、分子量が500以上1700以下である化合物を発光層に含有する有機エレクトロルミネッセンス素子は、高温下保存時の輝度特性の劣化が著しく改善されることを見出された。

《一般式(1)で表される部分構造を有する化合物》

前記一般式(1)において、 R_1 は、水素原子、アルキル基、またはシクロアルキル基を表す。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子という)の発光輝度向上、高い発光効率を得る観点からは、水素原子が最も好ましい。

一般式(1)において、 R_1 で表されるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロメチル基、トリフルオロメチルメチル基等が挙げられる。前記アルキル基はアリール基(例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基等)で置換されていても良く、また、隣接する炭素原子に結合している基と環を形成しても良い。

一般式(1)において、 R_1 で表されるシクロアルキル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。前記シクロアルキル基は、上記のアルキル基と同様にアリアル基で置換されていても良く、また、隣接する炭素原子に結合している基と環を形成しても良い。

5 一般式(1)において、 A_r で表されるアリーレン基としては、例えば、フェニレン基(例えば、*o*-フェニレン基、*m*-フェニレン基、*p*-フェニレン基等)、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基(例えば、[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジイル

10 基、3, 3'-ビフェニルジイル基、3, 6-ビフェニルジイル基等)、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等が挙げられる。また、前記アリーレン基は更に後述する、 $R_2 \sim R_9$ で表される置換基を有していてもよい。

15 一般式(1)において、 A_r で表されるヘテロアリーレン基としては、例えば、カルバゾール環、トリアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピラジン環、キノキサリン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環からなる群から導出される2価の基等が挙げられるが、また、前記ヘテロアリーレン基は更に後述する、 $R_2 \sim R_9$ で表される置換基を有して

20 いてもよい。

上記の中でも、 A_r で表される基として最も好ましいのはフェニレン基である。

一般式(1)において、 $R_2 \sim R_9$ は、各々独立に水素原子または置換基を表し、各々同一でも異なってもよい。また、 R_2 と R_3 、 R_3 と R_4 、 R_4 と R_5 、 R_6 と

R_7 、 R_7 と R_8 、 R_8 と R_9 はそれぞれ互いに結合して芳香族環を形成しても良い。

一般式(1)において、 $R_2 \sim R_9$ で表される置換基としては、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、
5 ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基等)、芳香族複素環基(例えば、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、ピ
10 ラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシル基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシル基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、
15 アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メ
20 チルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニ

ル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノ
スルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、
ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスル
ホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基 (例えば、アセチル基、
5 エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキ
シルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ド
デシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカ
ルボニル基等)、アシルオキシ基 (例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニル
オキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカ
10 ルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基 (例えば、メチル
カルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、
プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカル
ボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルア
ミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカ
15 ルボニルアミノ基等)、カルバモイル基 (例えば、アミノカルボニル基、メチルア
ミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、
ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミ
ノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボ
ニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジ
20 ルアミノカルボニル基等)、ウレイド基 (例えば、メチルウレイド基、エチルウレ
イド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、
ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミ
ノウレイド基等)、スルフィニル基 (例えば、メチルスルフィニル基、エチルスル

フィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチル
ヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナ
フチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基
(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シク
5 ロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル
基等)、アリールスルホニル基 (フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、
2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基 (例えば、アミノ基、エチルアミノ基、
ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシ
10 ルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルア
ミノ基等)、ハロゲン原子 (例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化
炭化水素基 (例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロ
エチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、
メルカプト基、シリル基 (例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル
基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)、等が挙げられる。
15 これらの置換基は、上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。また、
これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

《一般式 (1 a) で表される部分構造を有する化合物》

一般式 (1 a) において、A_r で定義されるアリーレン基またはヘテロアリーレ
ン基は、上記一般式 (1) の A_r で定義されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基
20 と各々同義である。

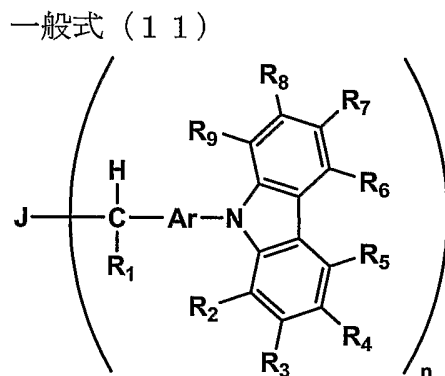
一般式 (1 a) において、R₂ ~ R₉ で各々表される置換基は、上記一般式 (1)
の R₂ ~ R₉ と同義である。

一般式 (1 a) において、Z により形成される 3 員 ~ 8 員の飽和炭化水素環とし

ては、例えば、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、シクロオクタン環等が挙げられる。前記の飽和炭化水素環は未置換でもよく、更に置換基を有していてもよい。また、前記置換基としては、上記一般式(1)の $R_2 \sim R_9$ で表される置換基等が挙げられる。

5 《一般式(11)で表される化合物》

本発明においては、前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物の中でも、好ましくは下記一般式(11)で表される化合物である。



10 一般式(11)において、 $R_1 \sim R_9$ は、前記一般式(1)の $R_1 \sim R_9$ と同義である。 n は1~6の整数を表す。 $n=1$ の場合、 J はアリール基(例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基等)を表し、好ましくは置換又は未置換の4-(N-カルバゾリル)フェニル基を表す。

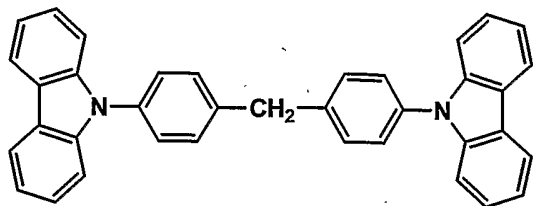
15 また、 $n=2 \sim 6$ である場合、 J は n 価の連結基を表し、直接結合、酸素原子、硫黄原子、置換基を有していてもよい脂肪族炭化水素基、置換基を有していてもよい脂肪族複素環基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基、置換基を有していてもよい芳香族複素環のいずれかから選ばれる。

一般式(11)に含まれる、複数の前記一般式(1)で表される部分構造は互い

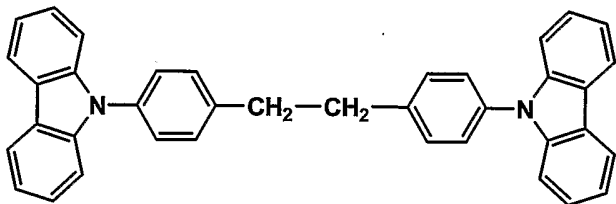
に異なっても同一でも良い。

以下に、本発明に係る化合物の具体例を示すが、これらに限定されない

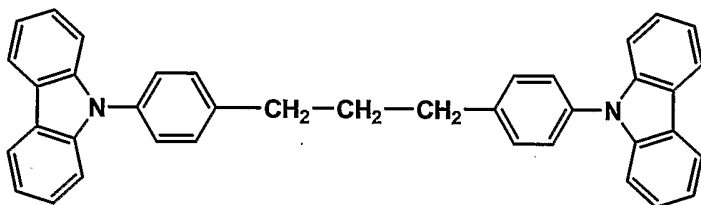
H-1



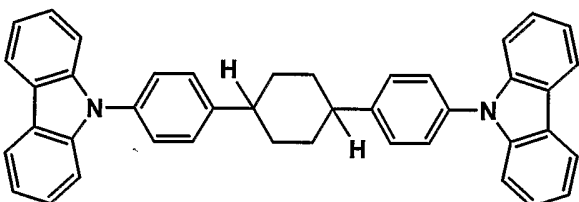
H-2



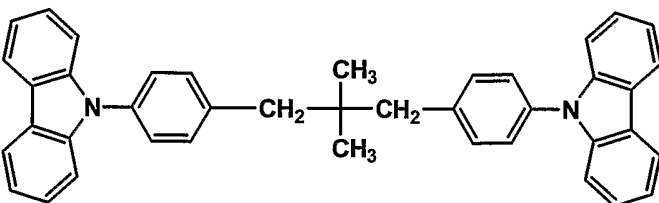
H-3



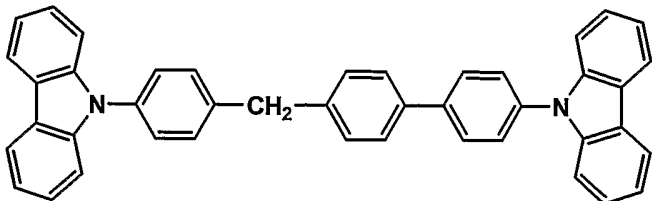
H-4



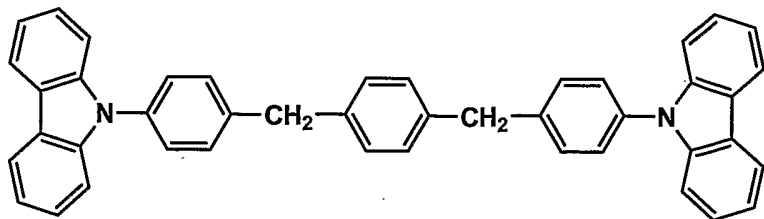
H-5



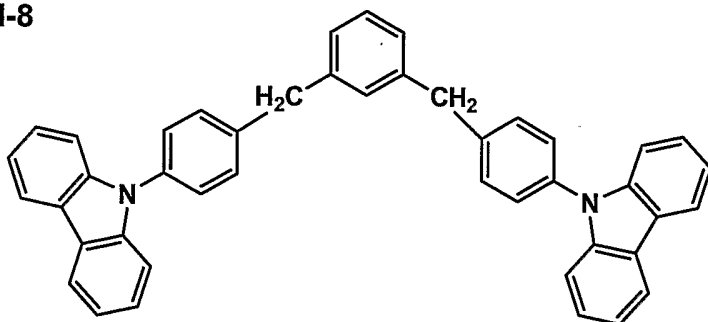
H-6



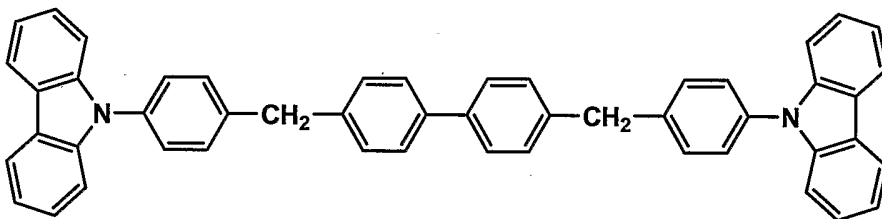
H-7



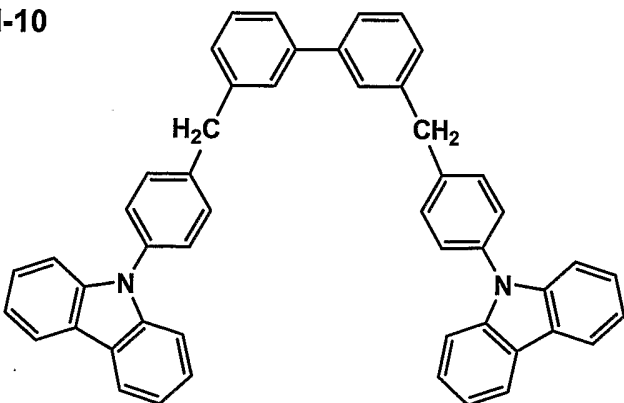
H-8



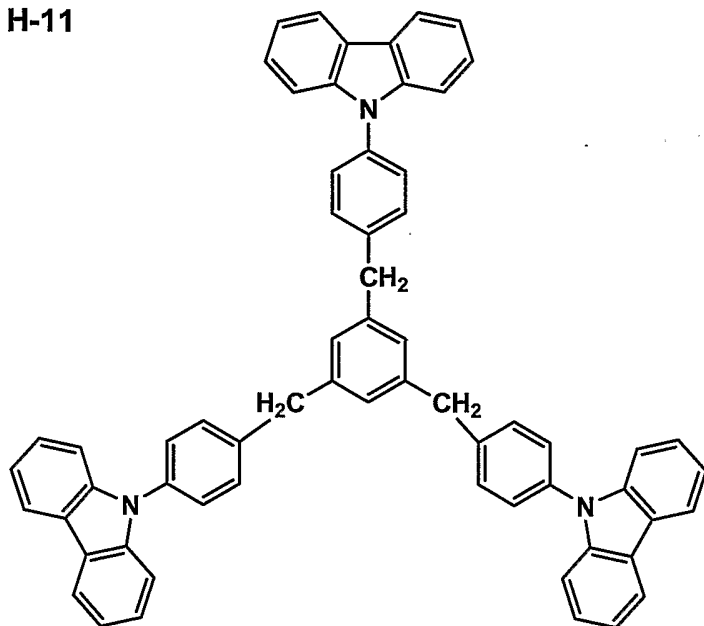
H-9



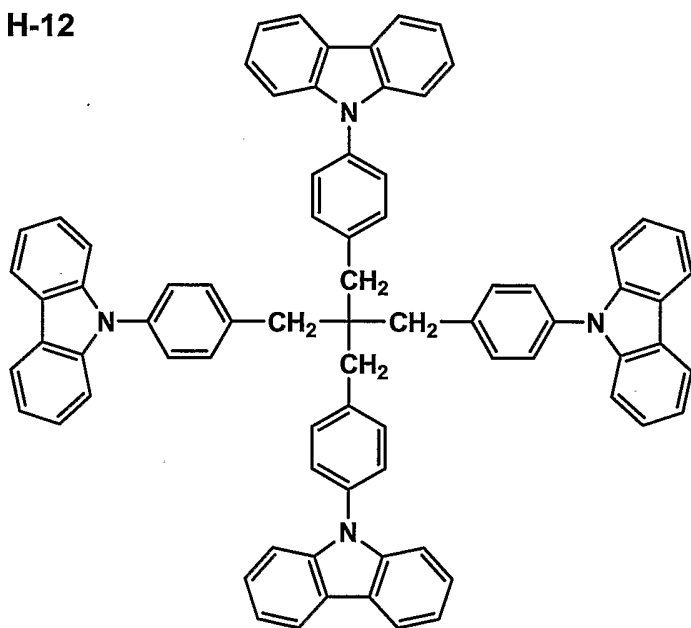
H-10



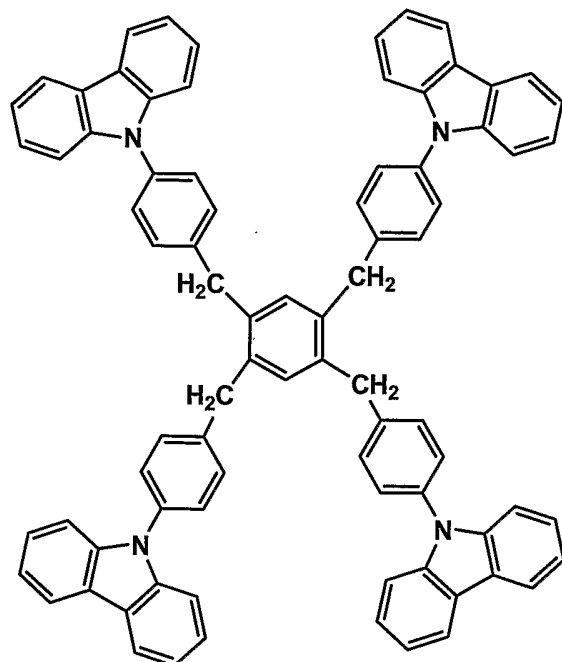
H-11



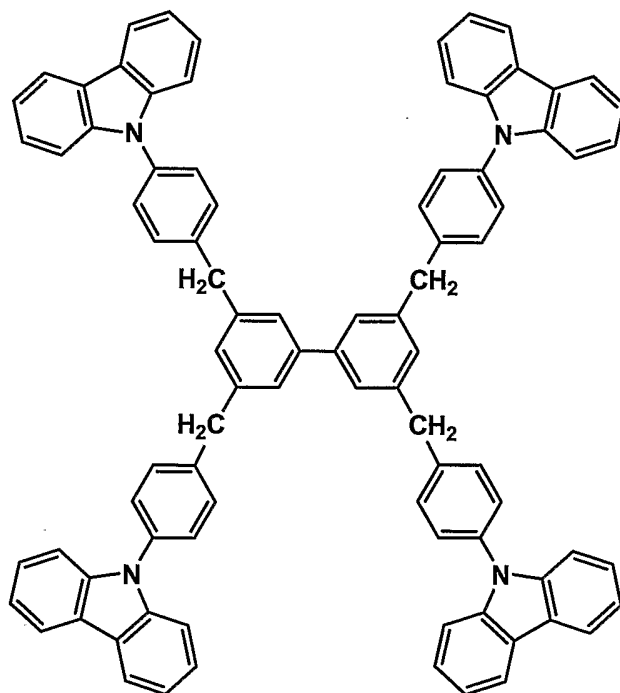
H-12



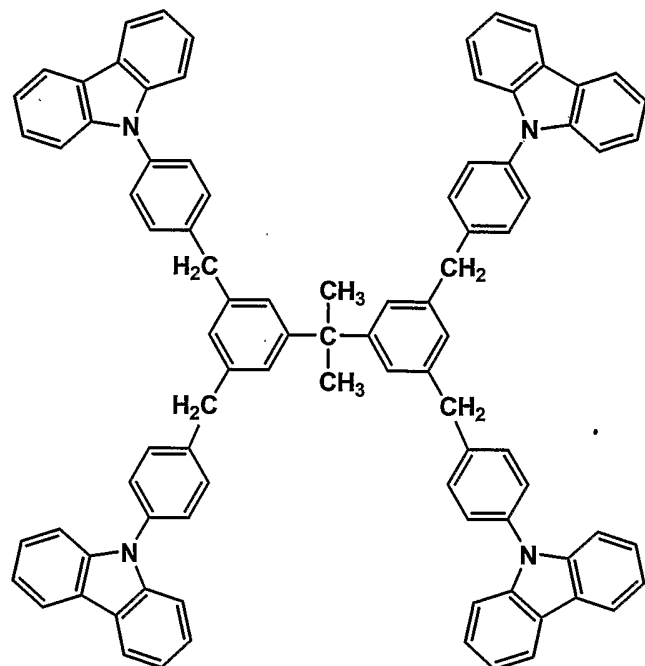
H-13



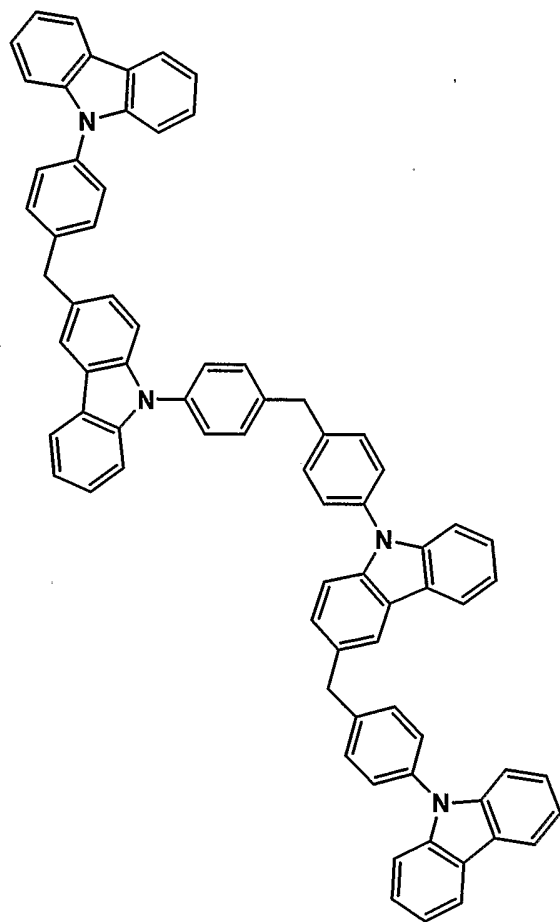
H-14



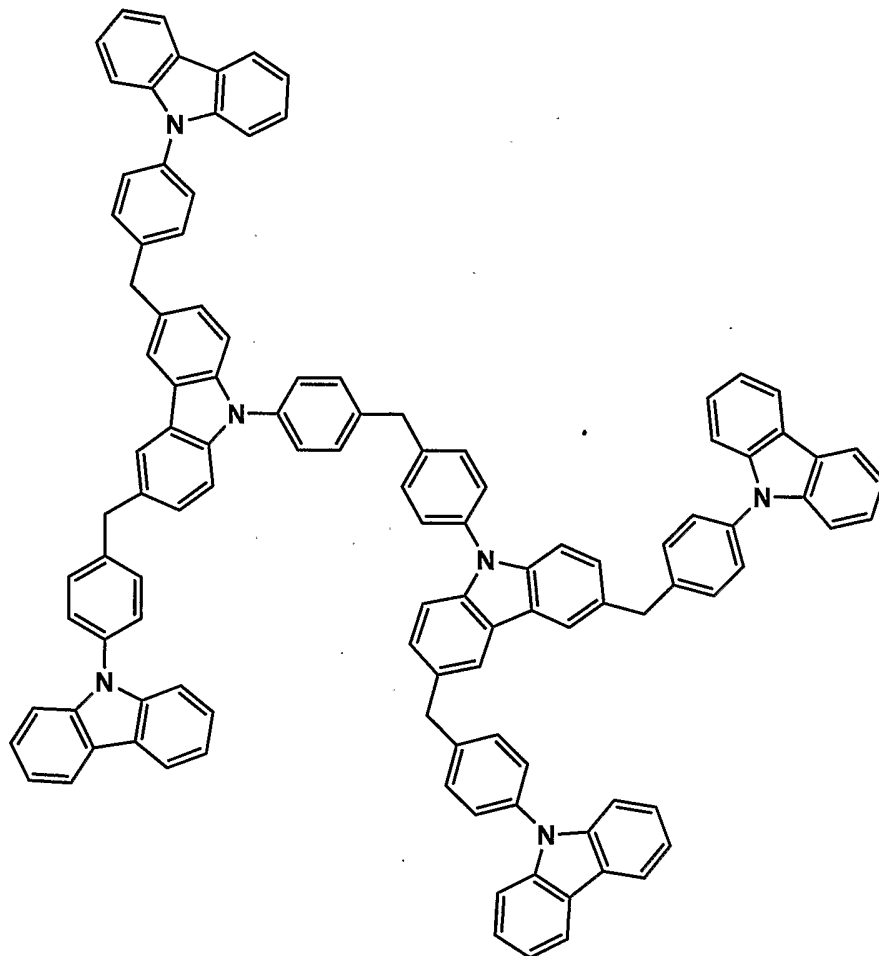
H-15



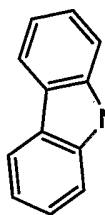
H-16



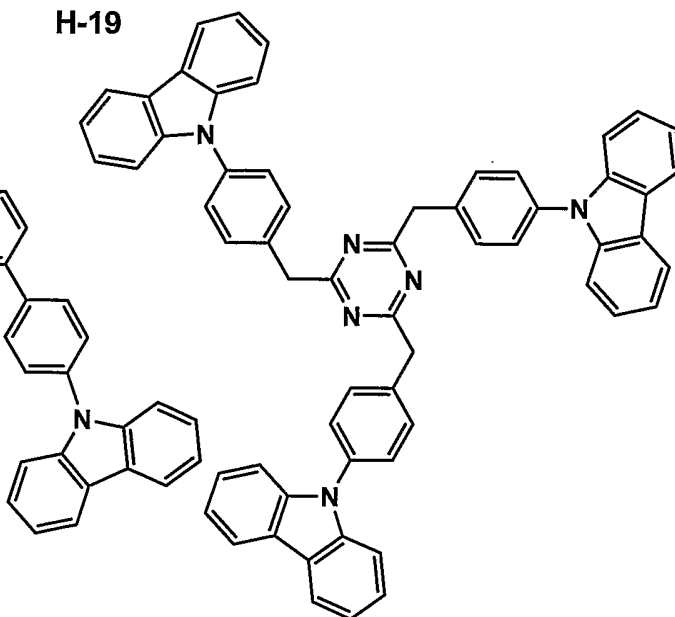
H-17



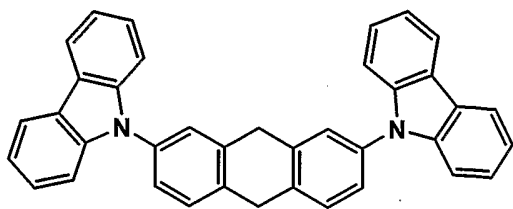
H-18



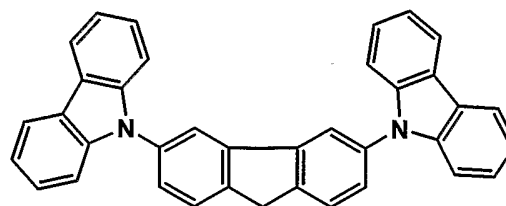
H-19



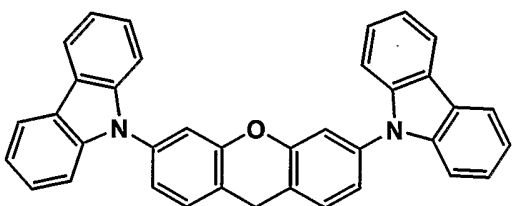
H-20



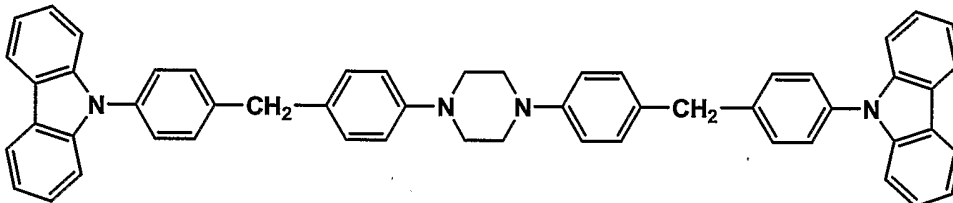
H-21



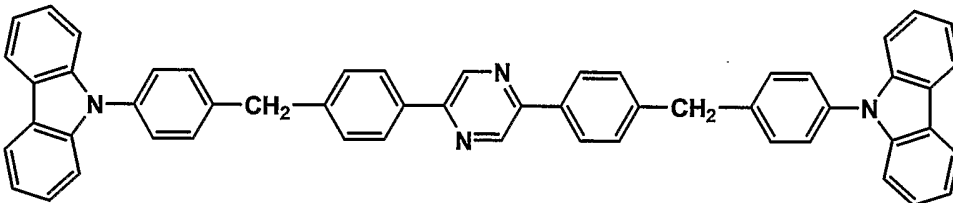
H-22



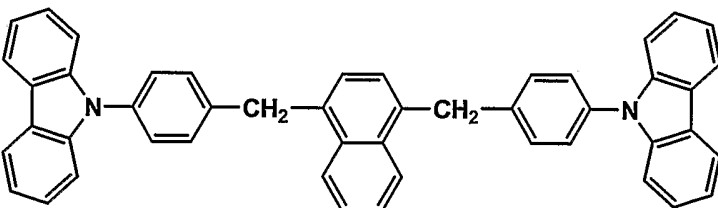
H-23



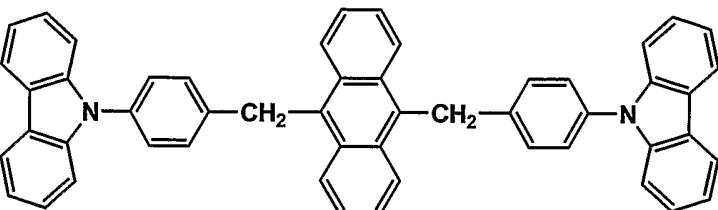
H-24



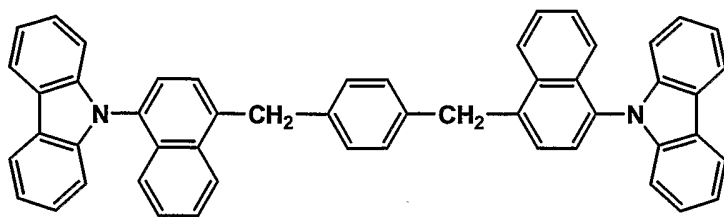
H-25



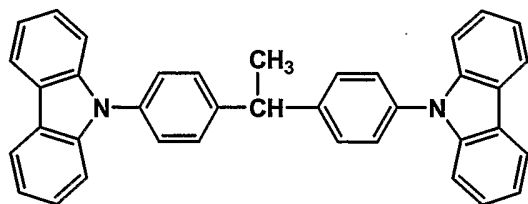
H-26



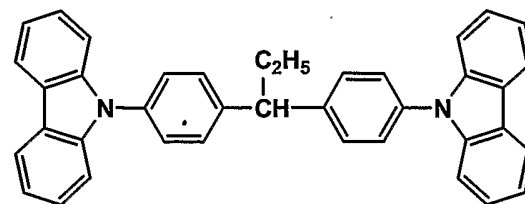
H-27



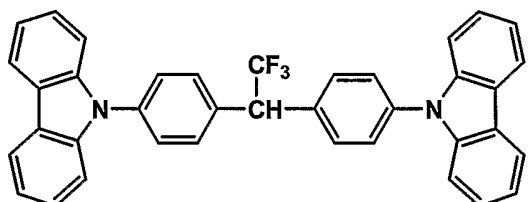
H-28



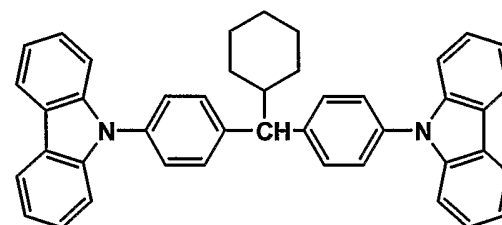
H-29



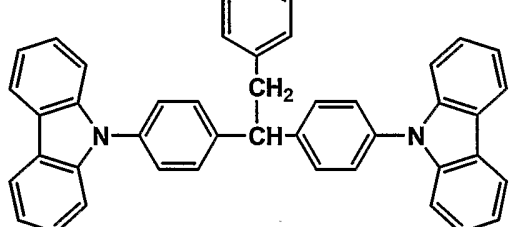
H-30



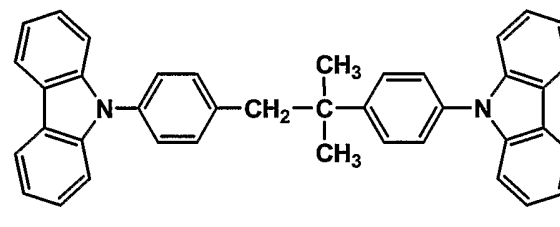
H-31



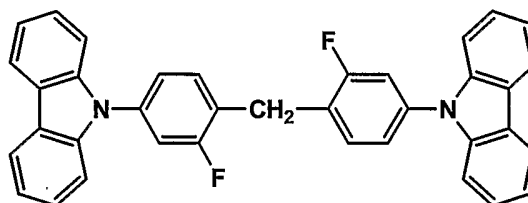
H-32



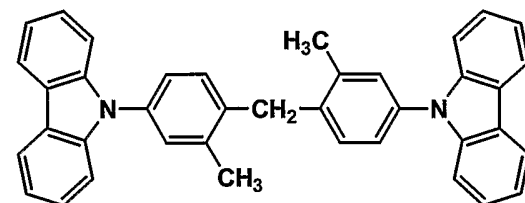
H-33



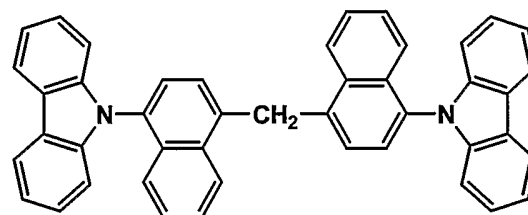
H-34



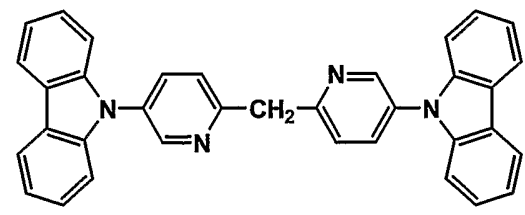
H-35



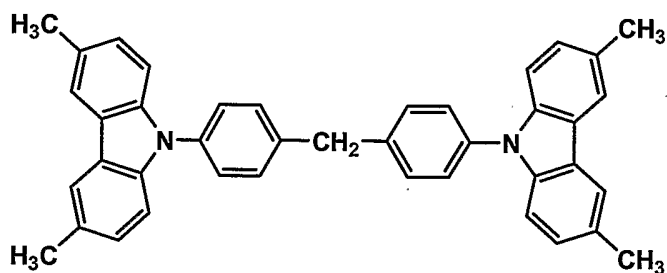
H-36



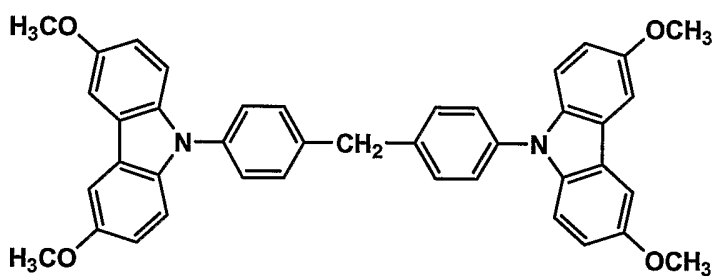
H-37



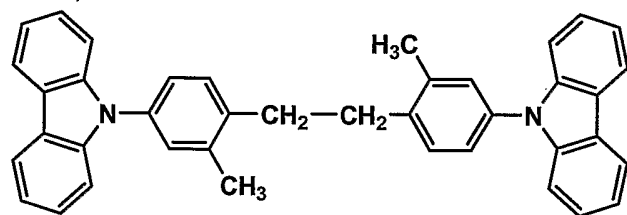
H-38



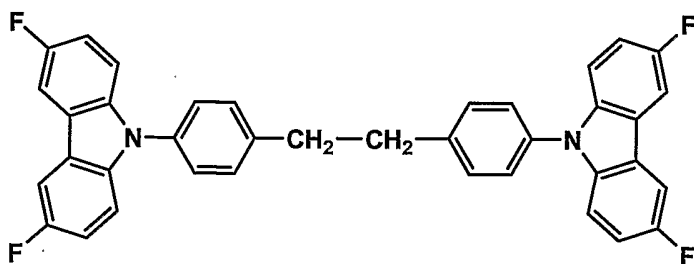
H-39



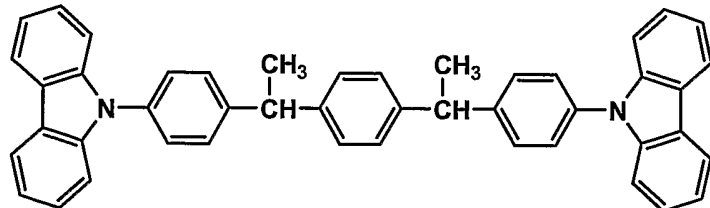
H-40



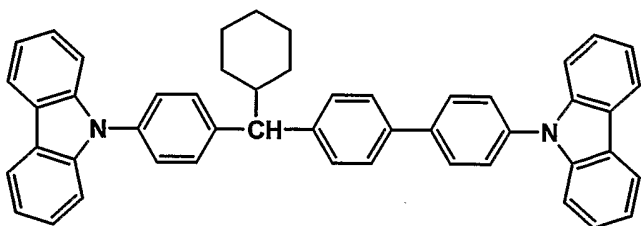
H-41



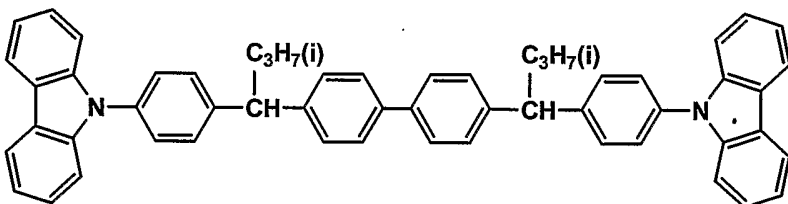
H-42



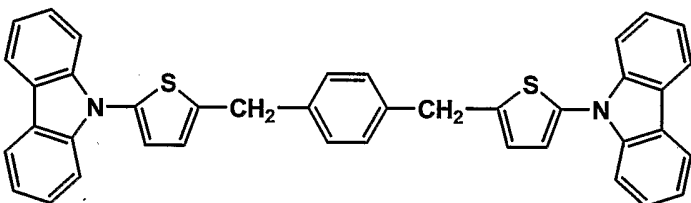
H-43



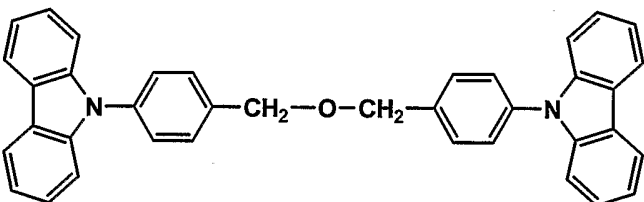
H-44



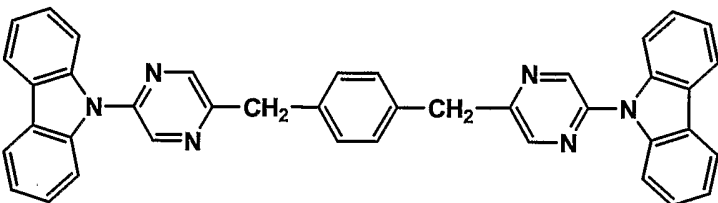
H-45



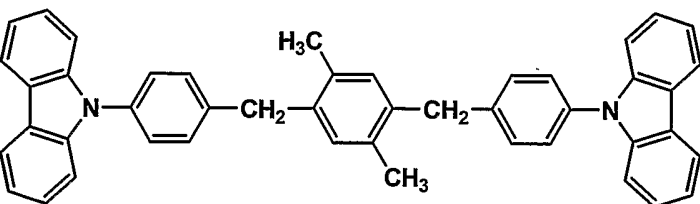
H-46



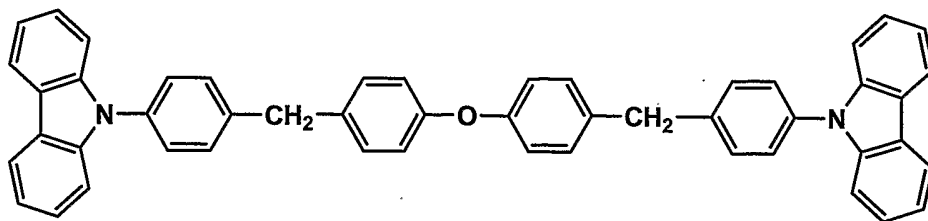
H-47



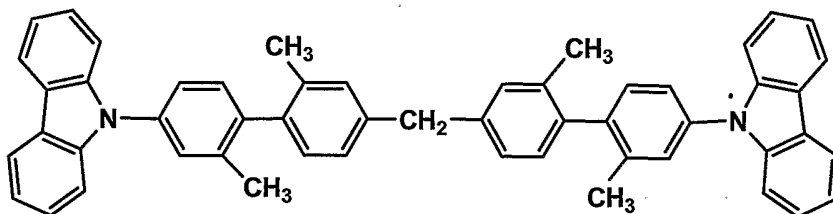
H-48



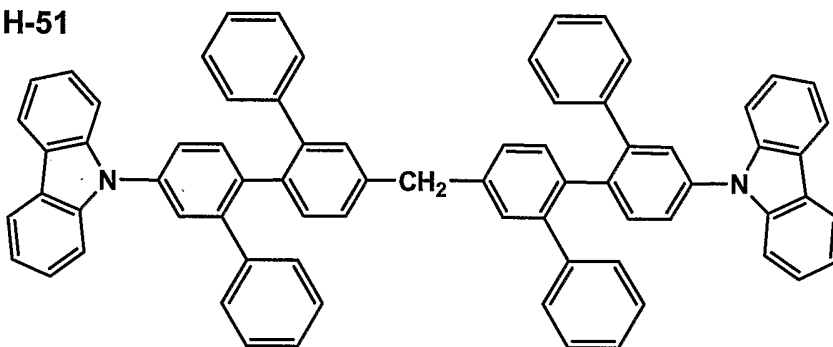
H-49



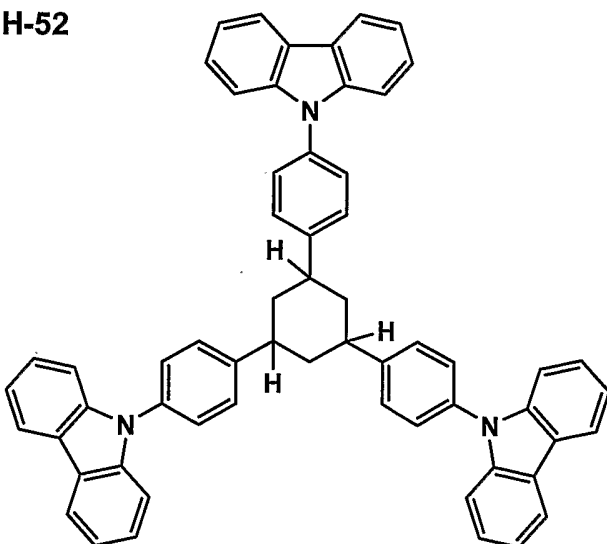
H-50



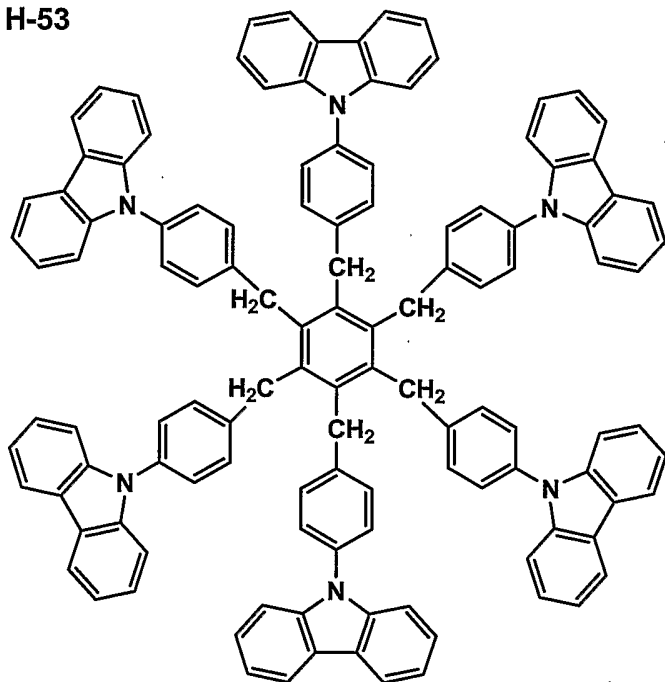
H-51



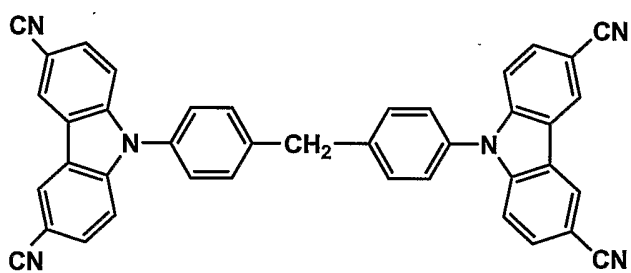
H-52



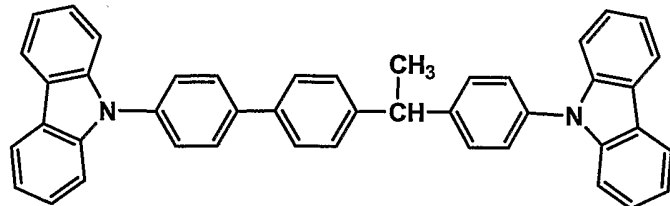
H-53



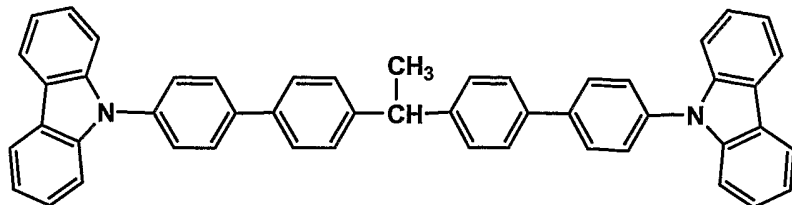
H-54



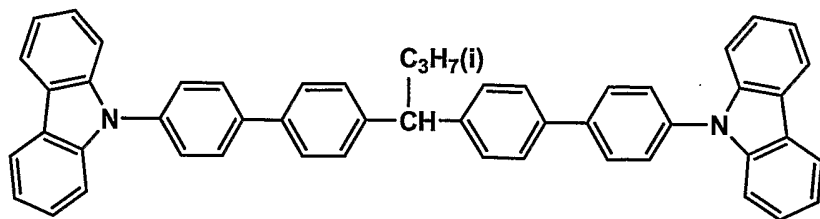
H-55



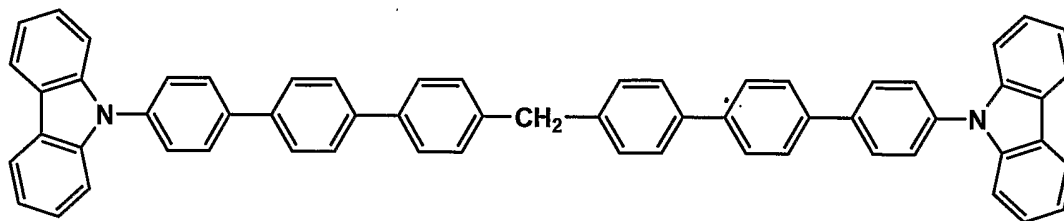
H-56



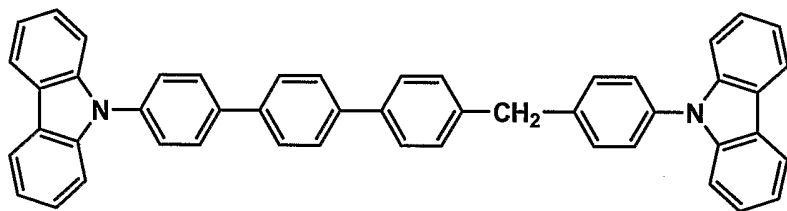
H-57



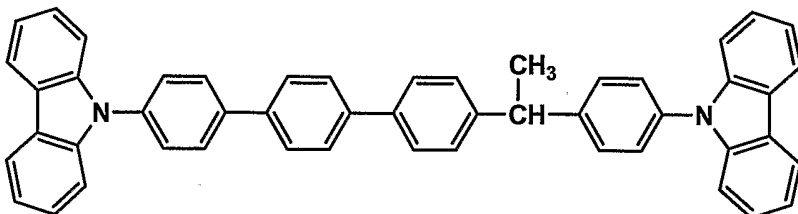
H-58



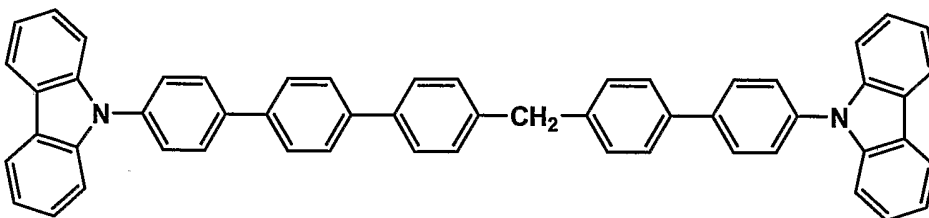
H-59

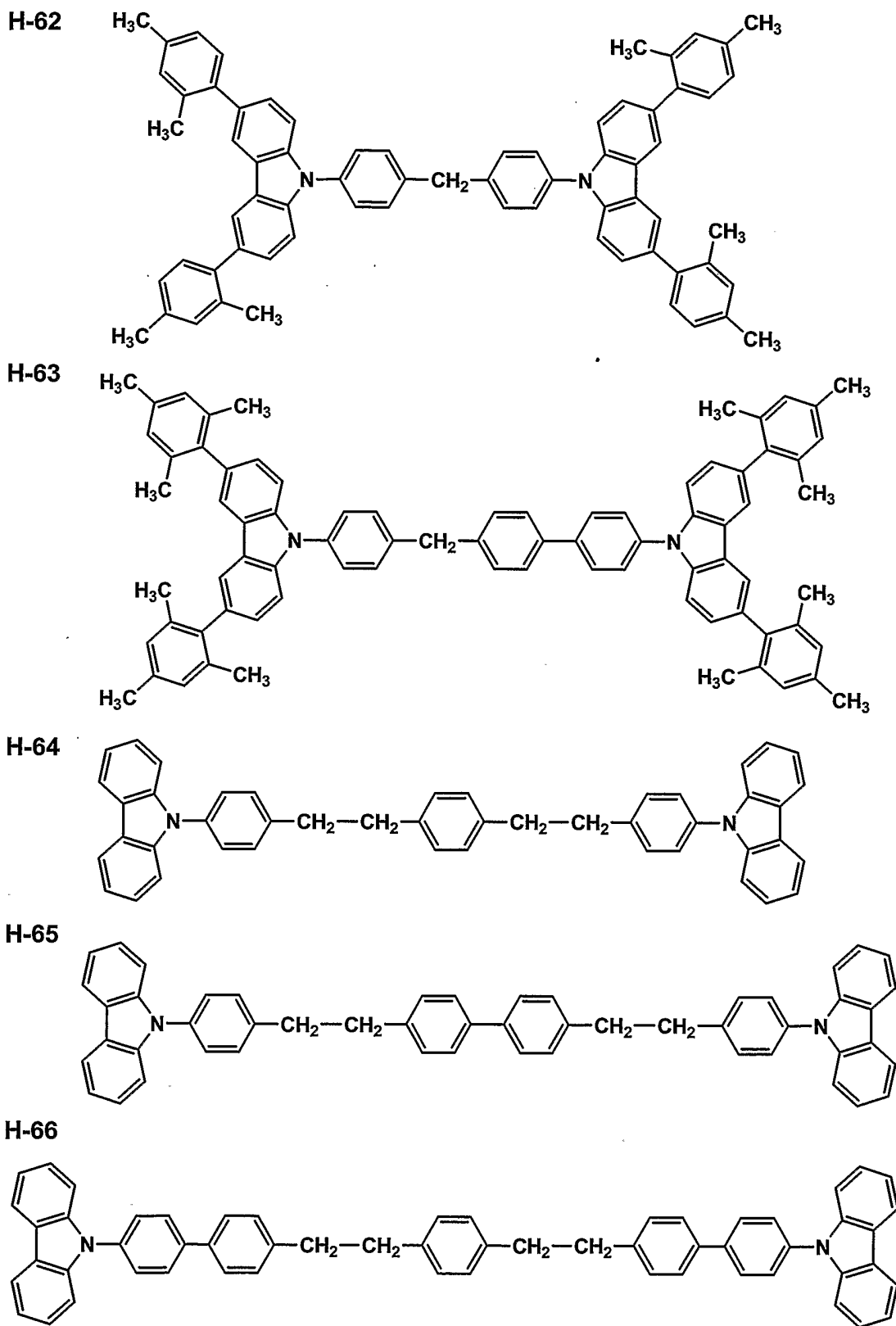


H-60



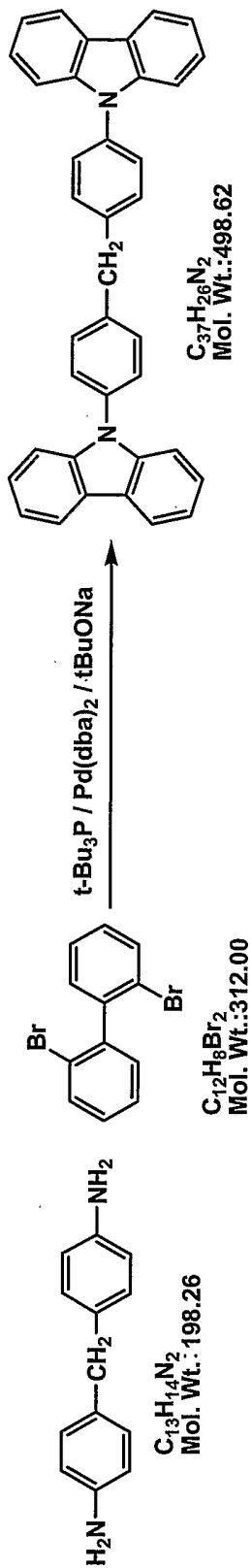
H-61





上記化合物の合成例の一例としてH-1の合成方法を記載する。

《H-1の合成》



4, 4'-ジアミノジフェニルメタン4.0g、2, 2'-ジブロモビフェニル13.0g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム0.7g、トリ-tert-ブチルホスフィン1.2ml、ナトリウム-tert-ブトキシド7.7gを無水トルエン70ml中に分散し、窒素雰囲気下、還流温度にて4時間攪拌した。

- 5 得られた反応混合物を放冷後トルエンと水を加えて有機層を分離し、有機層を希塩酸、水、飽和食塩水で洗浄した後に濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製を行い、化合物H-1の無色針状結晶1.7gを得た。構造は¹H-NMRスペクトルおよび質量分析スペクトルによって確認した。

化合物H-1のデータ：

10 形状 : 無色結晶

融点 : 200°C

質量スペクトル : MS (FAB) m/z 498 (M⁺)

¹H-NMR (400MHz, CDCl₃):

15 δ/ppm : 4.24 (s, 2H), 7.29 (td, J=6.5, 1.2Hz, 4H), 7.41 (td, J=7.8, 1.2Hz, 4H), 7.45 (d, J=6.5Hz, 4H), 7.51 (d, J=8.3Hz, 4H), 7.56 (d, J=8.3Hz, 4H), 8.15 (d, J=7.8Hz, 4H)

又、テトラヒドロフラン中で測定した化合物H-1の吸収、蛍光及び励起スペクトルのチャートを第8図に示す。

- 20 本発明に係る化合物の分子量は1700以下であるが、好ましくは500~1700である。これにより、これにより、長寿命で、高い発光輝度と高い発光効率を示し、且つ、高温下保存時の輝度特性の劣化を抑制することができる。

次に本発明の有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明は

これらに限定されない。

I : 陽極／発光層／陰極

II : 陽極／発光層／電子輸送層／陰極

III : 陽極／陽極バッファ層／発光層／陰極

5 IV : 陽極／陽極バッファ層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極

V : 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極

VI : 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極

VII : 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層
／陰極

10 VIII : 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層
／陰極バッファ層／陰極

《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチン
15 ンオキシド（ITO）、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ （IDIXO）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、
20 あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（100 μm 以上程度）、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましい。

さらに膜厚は材料にもよるが、通常10nm～1000nm、好ましくは10nm～200nmの範囲で選ばれる。

《陰極》

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属(電子注入性金属と
5 称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用
いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリ
ウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀
混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、
10 アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/ア
ルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸
化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安
定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシ
ウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸
15 化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウ
ム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法に
より、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、陰極としての
シート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は通常10nm～1000nm、好
ましくは50nm～200nmの範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、
有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば、発
20 光輝度が向上し好都合である。

次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層、正孔輸送層、
電子輸送層等について説明する。

《注入層：電子注入層、正孔注入層》

注入層は、必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日 エヌ・ディー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層（陽極バッファ層）と電子注入層（陰極バッファ層）とがある。

陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。なかでも、ポリジオキシチオフェン類を用いたものが好ましく、これにより、より一層高い発光輝度と発光効率を示し、かつさらに長寿命である有機EL素子とすることができる。また、陽極バッファ層は、陽極と発光層との間にあり、発光層とに隣接するように設けられていることが好ましい。これにより、より一層高い発光輝度と発光効率を示し、かつさらに長寿命である有機EL素子とすることができる。

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載され、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表され

るアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。

上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1 nm～100 nmの範囲が好ましい。

5 阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日 エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

10 《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

15 正孔阻止層は、正孔輸送層から移動してくる正孔を陰極に到達するのを阻止する役割と、陰極から注入された電子を効率よく発光層の方向に輸送することができる化合物により形成される。正孔阻止層を構成する材料に求められる物性としては、電子移動度が高く正孔移動度が低いこと、及び正孔を効率的に発光層内に閉じこめるために、発光層のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルの値を有するか、発光層のバンドギャップより大きいバンドギャップを有することが好ま
20 しい。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光層に隣接して正孔阻止層を設けることが好ましい。これにより、より一層発光輝度と発光効率を向上させることができる。

本発明においては、正孔阻止層が、スチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有することにより、より一層発光輝度と発光効率を向上させることができる。

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、正孔阻止層が、前記一般式(2)～(10)で表される化合物の少なくとも一種を含有することが好ましく、これにより、より一層発光輝度と発光効率を向上させることができる。

《一般式(2)で表される化合物》

10 一般式(2)で表される化合物について説明する。

一般式(2)において、 R_1 、 R_2 で表されるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロメチル基、トリフルオロメチル基
15 等が挙げられる。

一般式(2)において、 R_1 、 R_2 で表されるアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等が挙げられる。

一般式(2)において、 R_1 、 R_2 で表されるアリール基としては、例えば、フェ
20 ニル基、トリル基、キシリル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェ
ナントリル基等が挙げられる。

上記一般式(2)において、 R_1 、 R_2 で表されるアルキル基、アルコキシ基、アリール基は更に一般式(1)において、 R_2 ～ R_9 で表される置換基を有して

もよい。

一般式(2)において、 R_3 、 R_4 で表される複素環基としては、例えば、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、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、
5 フタラジニル基、ピロリジル基、イミダゾリジル基、キノキサリニル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等が挙げられる。

一般式(2)において、 R_3 、 R_4 で表されるアリール基は、一般式(2)において、 R_1 、 R_2 で表されるアリール基と同義である。

一般式(2)において、 Ar_{11} で表されるアリーレン基としては、一般式(1)
10 において、 Ar で表されるアリーレン基と同義である。

《一般式(3)で表される化合物》

一般式(3)で表される化合物について説明する。

一般式(3)において、 Ar_1 で表されるアリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナ
15 ントリル基等が挙げられる。

一般式(3)において、 Ar_1 で表される芳香族複素環基としては、例えば、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、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。

20 また、一般式(3)において、 Ar_1 で表されるアリール基、芳香族複素環基は、各々、更に、上記一般式(1)において、 $R_2 \sim R_9$ で表される置換基を有しているもよい。

《一般式(4)～(8)で表される化合物》

前記一般式(4)～(8)の各々で表される化合物について説明する。

前記一般式(4)～前記一般式(8)で各々表される化合物において、 R_1 、 R_2 で各々表される置換基としては、前記一般式(1)において、 R_2 ～ R_9 で表される置換基と同義である。

- 5 前記一般式(8)において、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 で各々表される、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環としては、例えば、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。また、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 で各々表される、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環は、更に前記一般式(1)において、 R_2 ～ R_9 で表される置換基を有してもよい。

10 《一般式(9)～(10)で表される化合物》

前記一般式(9)において、 Z_1 、 Z_2 で各々表される、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環としては、例えば、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。

- 前記一般式(9)において、 Ar_1 、 Ar_2 で各々表されるアリーレン基としては、
15 o -フェニレン基、 m -フェニレン基、 p -フェニレン基、ナフタレンジイル基、
アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレ
ンジイル基、ビフェニルジイル基(例えば、3, 3'-ビフェニルジイル基、3,
6-ビフェニルジイル基等)、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、
キルクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、
20 クチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等が挙げら
れる。また、前記アリーレン基は更に前記一般式(1)において、 R_2 ～ R_9 で表さ
れる置換基を有してもよい。

前記一般式(9)において、 Ar_1 、 Ar_2 で各々表される2価の芳香族複素環基

は、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、カルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子が更に窒素原子で置換されている環等から導出される2価の基等が挙げられる。更に、前記芳香族複素環基は、前記一般式(1)における $R_2 - R_9$ で表される置換基を有してもよい。

前記一般式(9)において、Lで表される2価の連結基としては、前記一般式(10)において、 L_1 で表される2価の連結基と同義であるが、好ましくはアルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ 等のカルコゲン原子を含む2価の基であり、もっとも好ましくはアルキレン基である。

前記一般式(10)において、 Ar_1 、 Ar_2 で、各々表されるアリーレン基は、前記一般式(9)において、 Ar_1 、 Ar_2 で各々表されるアリーレン基と同義である。

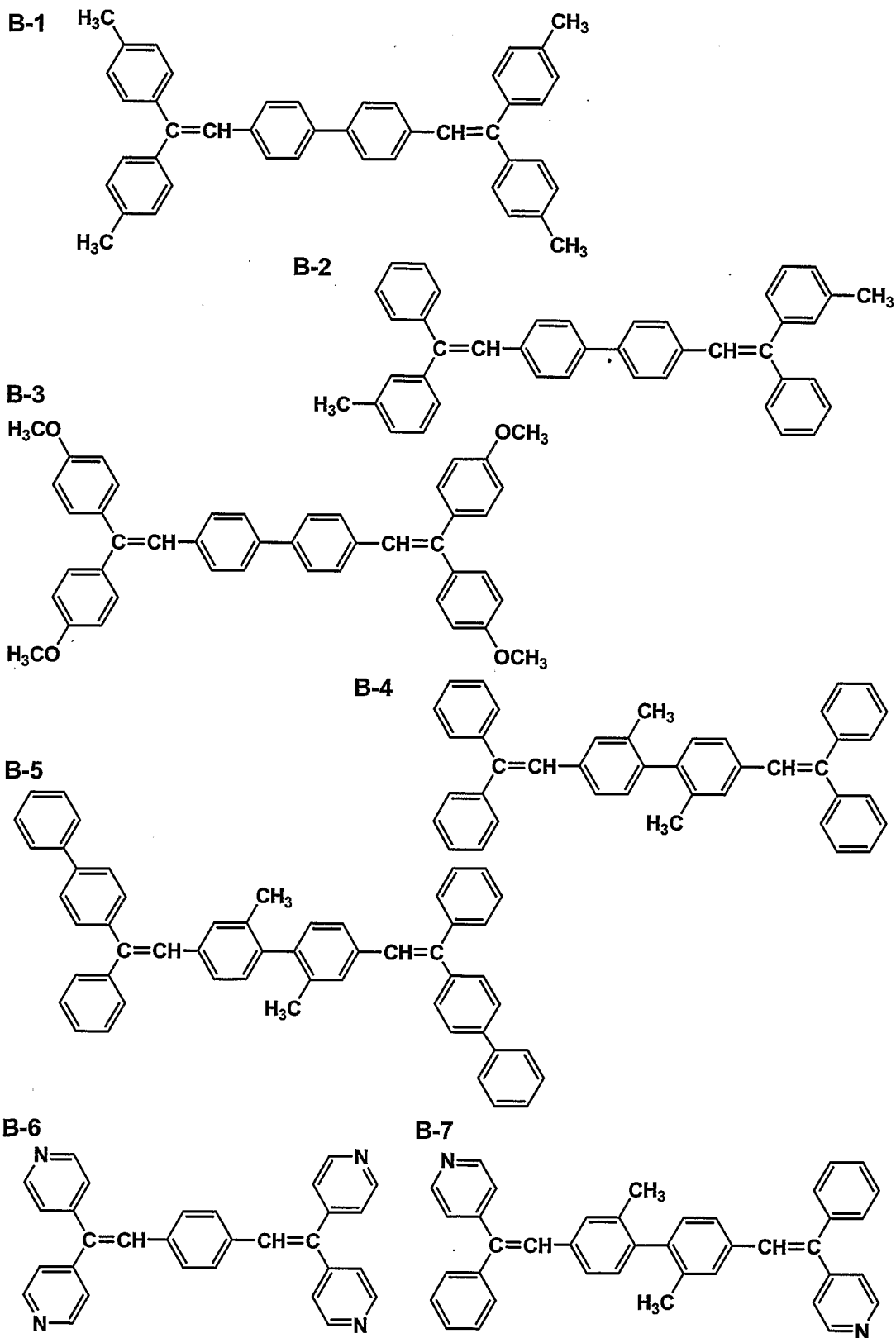
前記一般式(10)において、 Ar_1 、 Ar_2 で各々表される芳香族複素環基は、前記一般式(9)において、 Ar_1 、 Ar_2 で各々表される2価の芳香族複素環基と同義である。

前記一般式(10)において、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 で各々表される、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環としては、例えば、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。

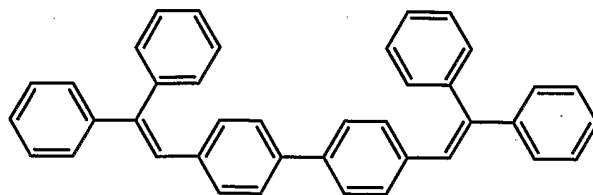
前記一般式(10)において、Lで表される2価の連結基としては、前記一般式(10)において、 L_1 で表される2価の連結基と同義であるが、好ましくはアル

キレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ 等のカルコゲン原子を含む2価の基であり、もっとも好ましくはアルキレン基である。

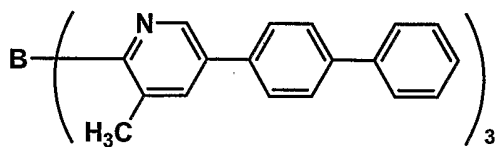
以下に、本発明に係る、前記一般式(2)～(10)で表される化合物の具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。



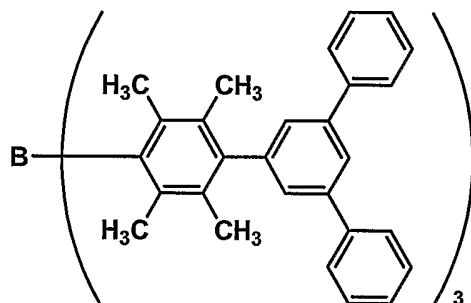
B-8



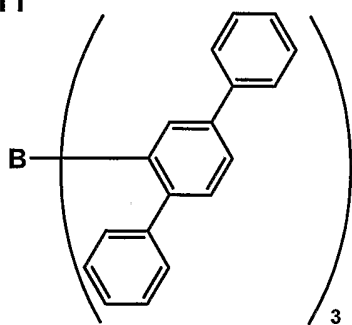
B-9



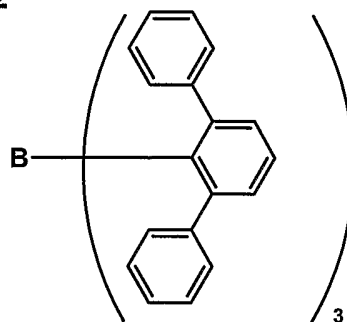
B-10



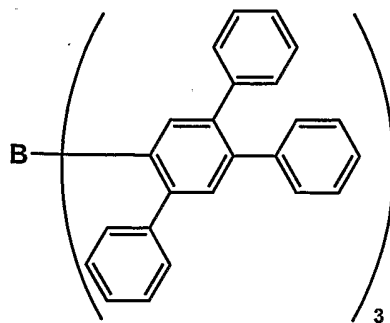
B-11

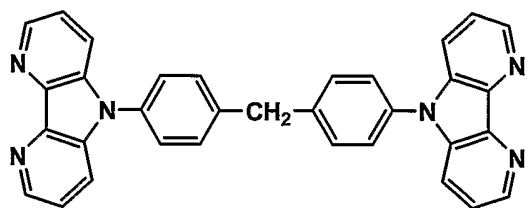
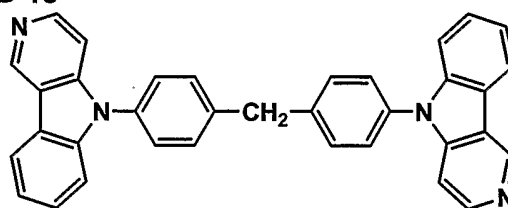
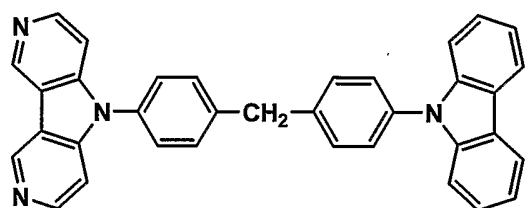
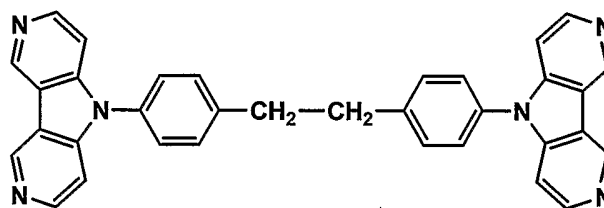
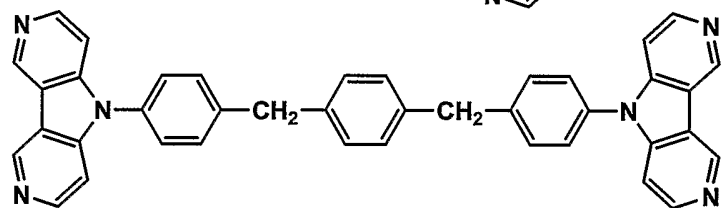
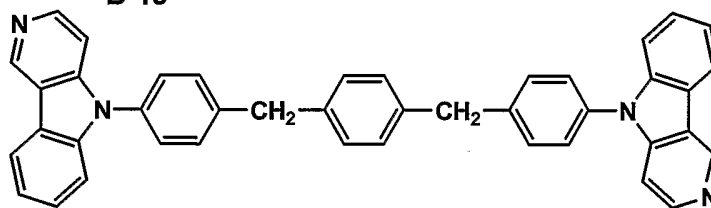
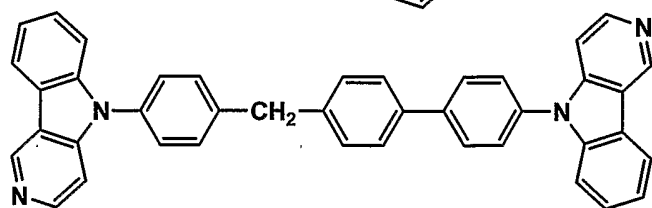
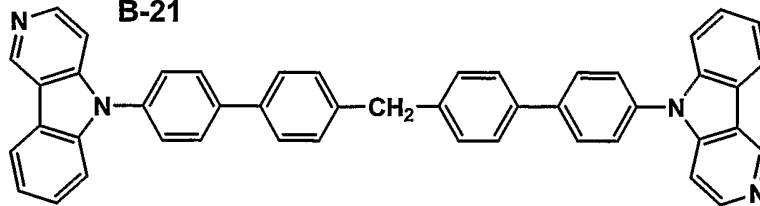


B-12

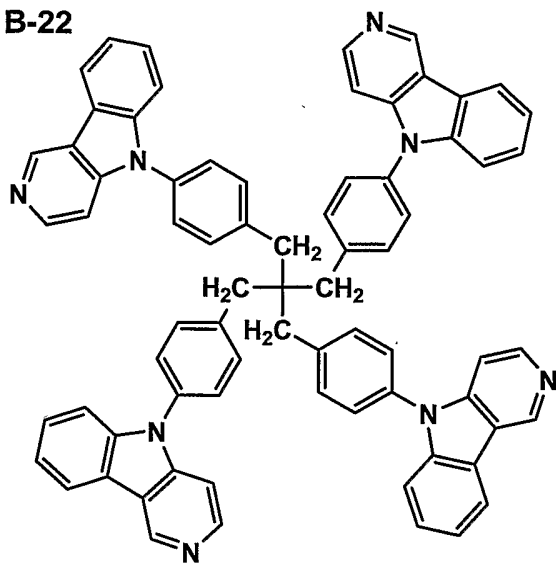


B-13

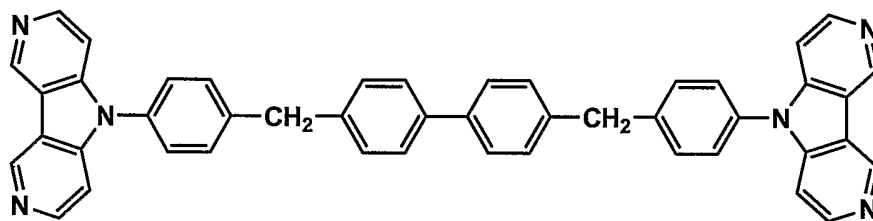


B-14**B-15****B-16****B-17****B-18****B-19****B-20****B-21**

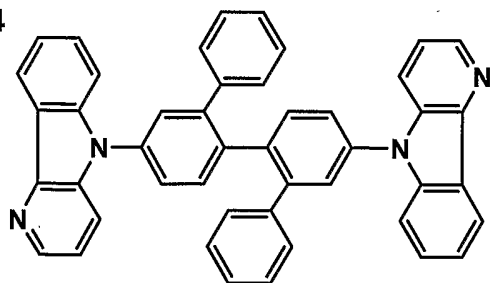
B-22



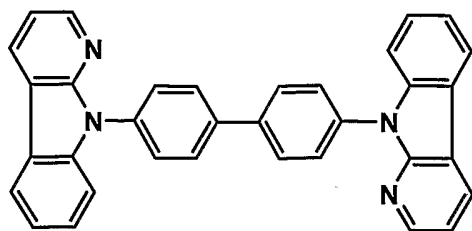
B-23



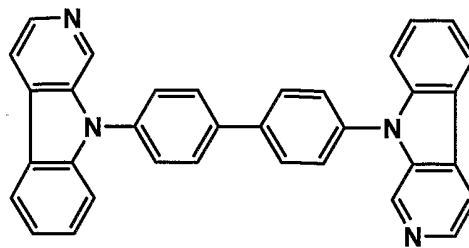
B-24



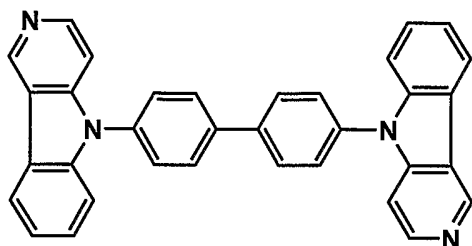
B-25



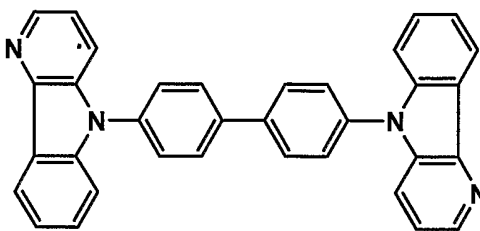
B-26



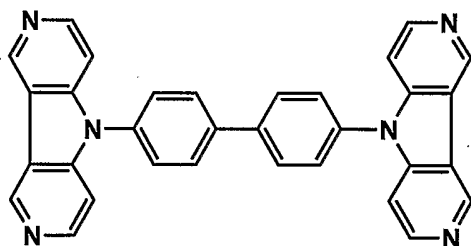
B-27



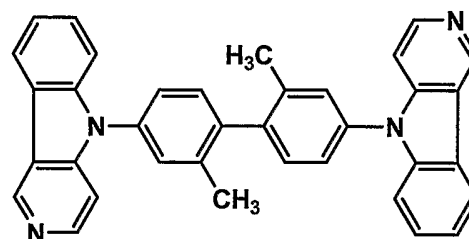
B-28



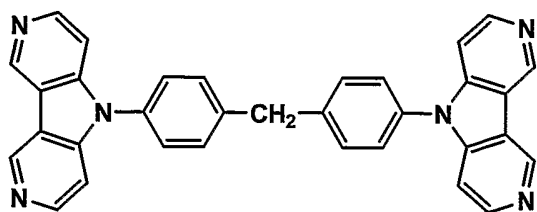
B-29



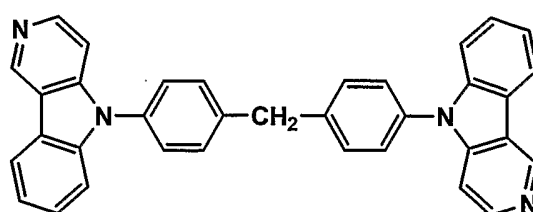
B-30



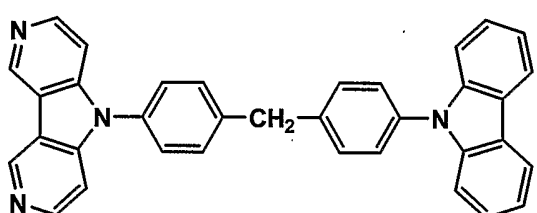
105



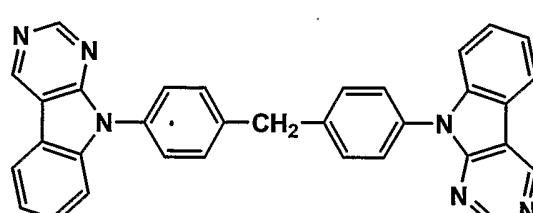
106



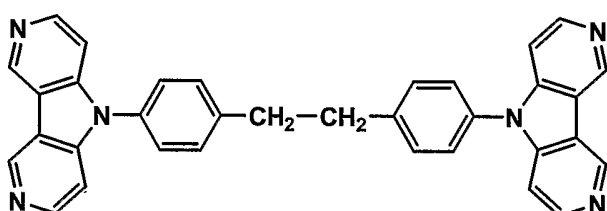
107



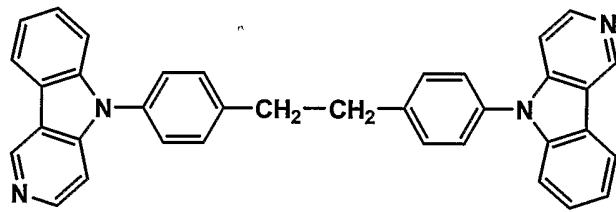
108



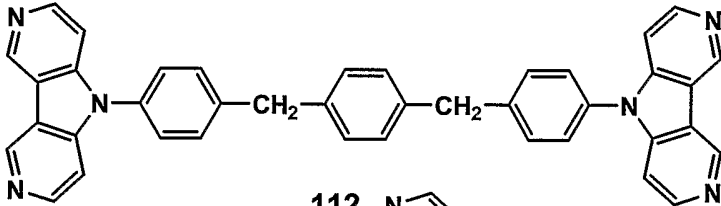
109



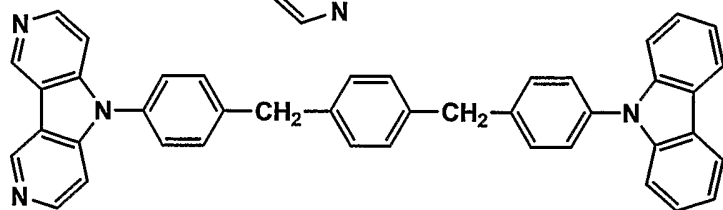
110



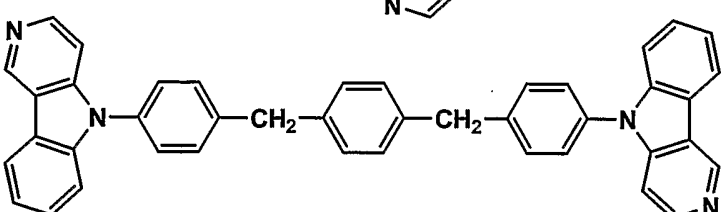
111



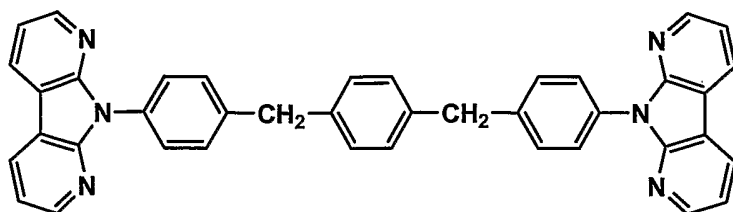
112



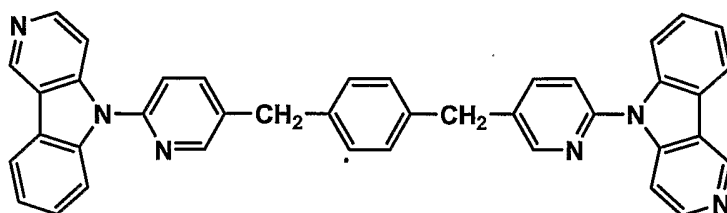
113



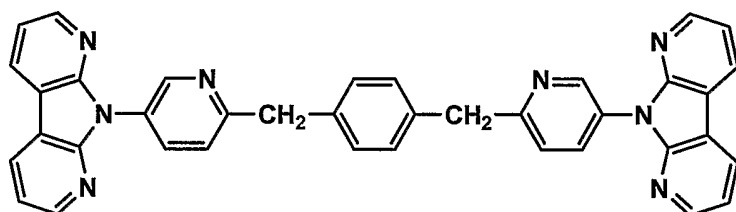
114



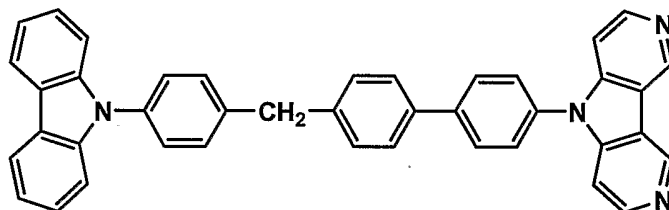
115



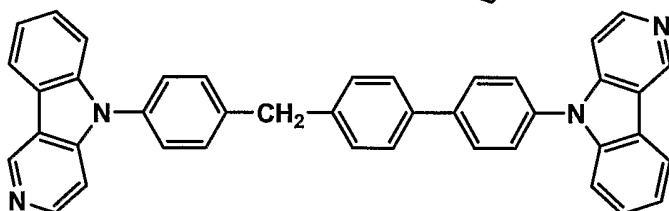
116



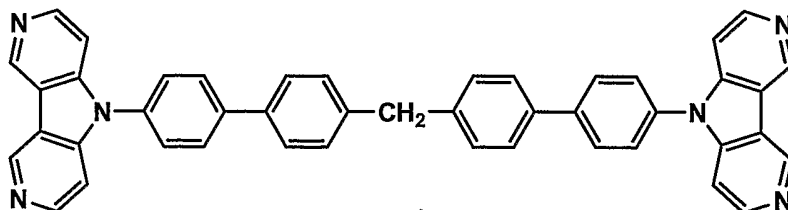
117



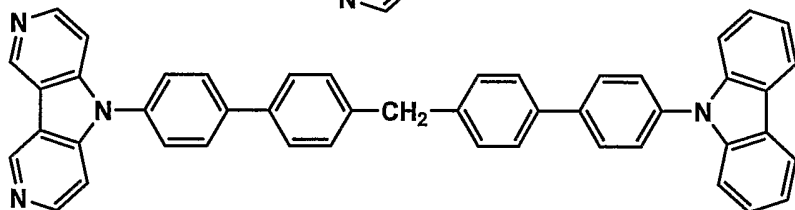
118



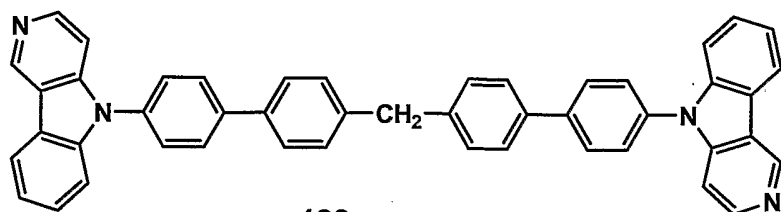
119



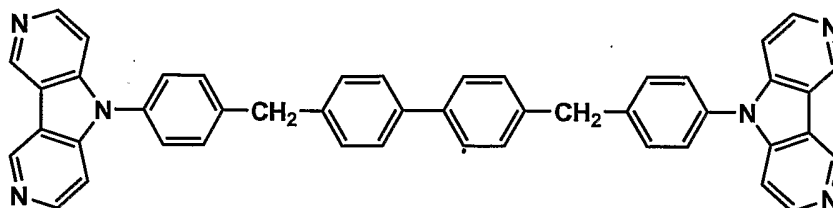
120



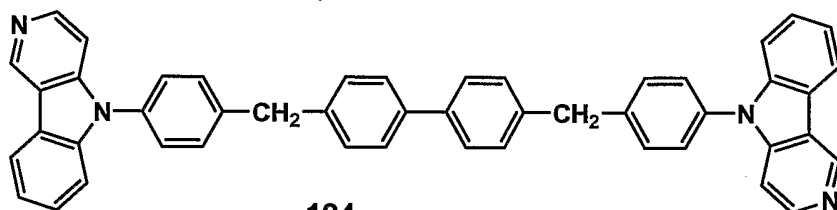
121



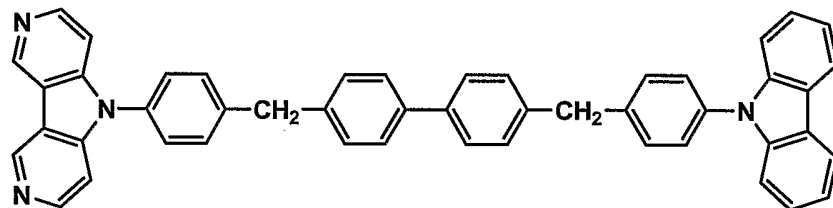
122



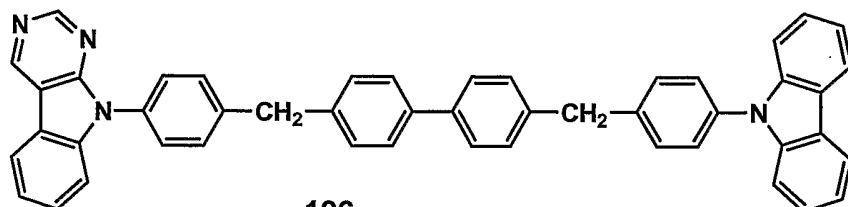
123



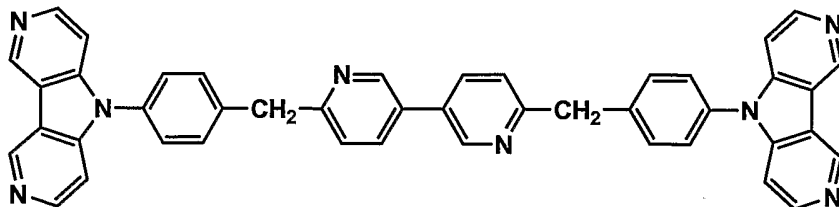
124



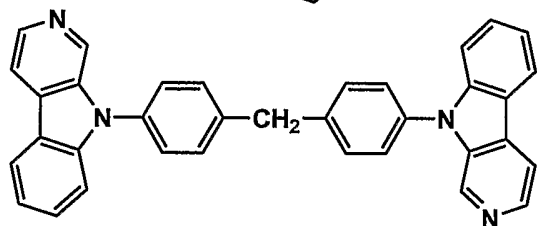
125



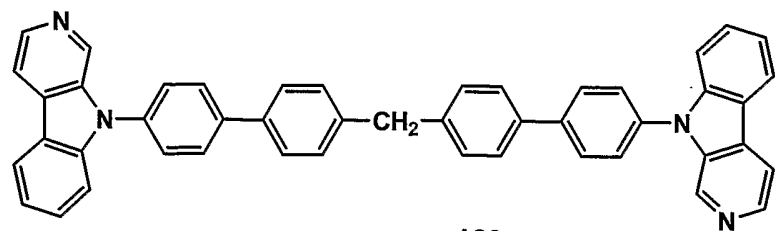
126



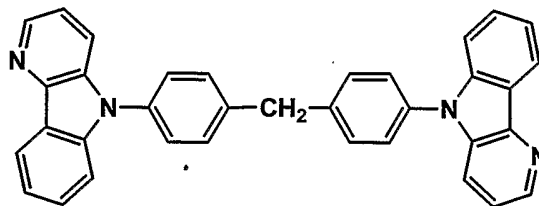
127



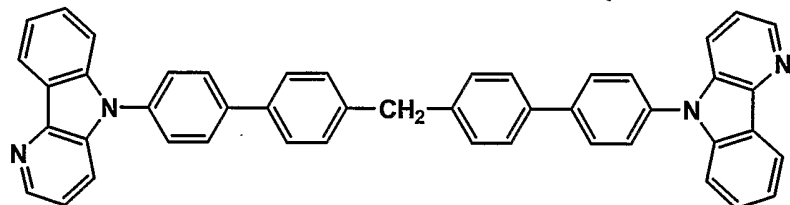
128



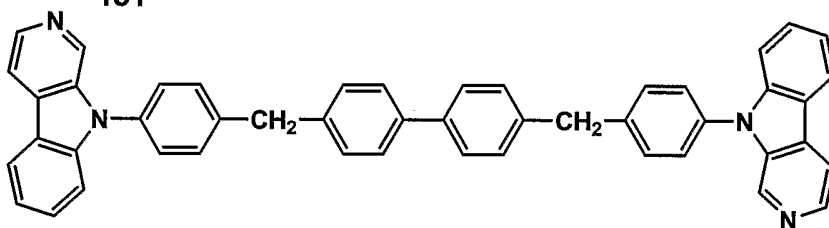
129



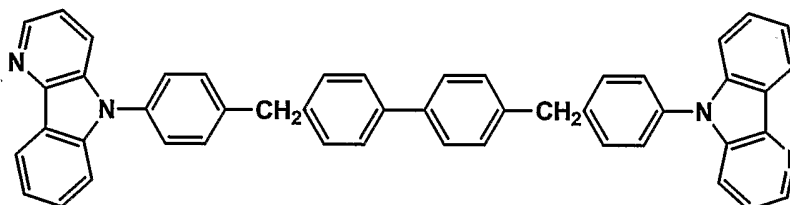
130



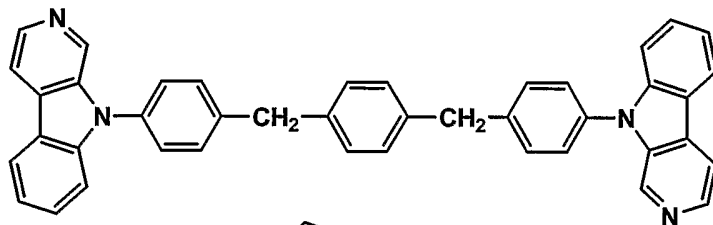
131



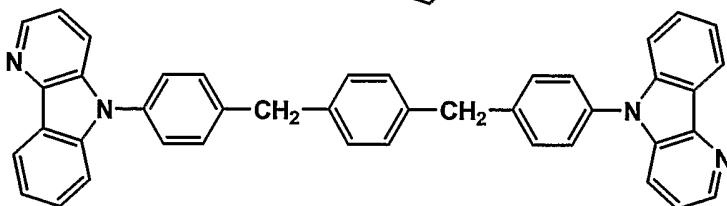
132



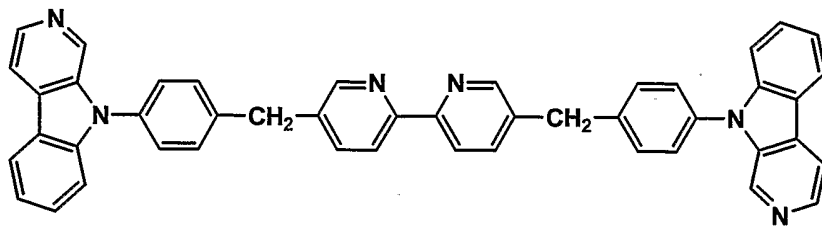
133



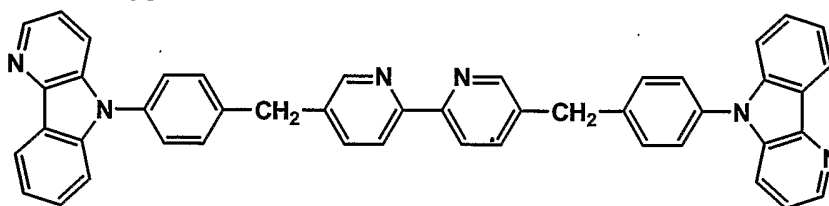
134



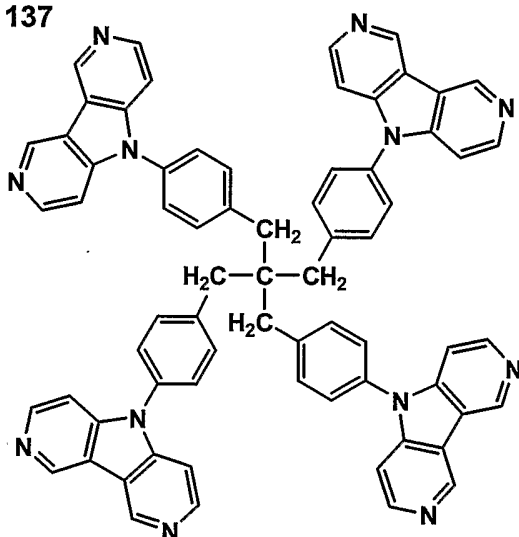
135



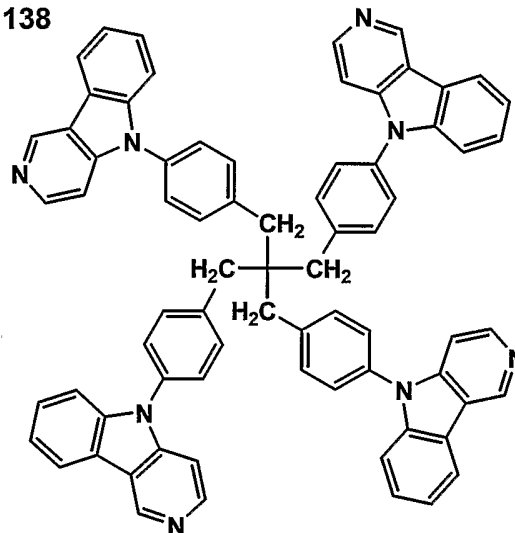
136



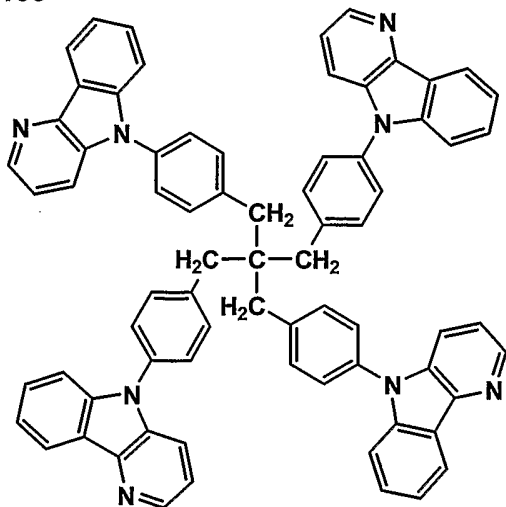
137



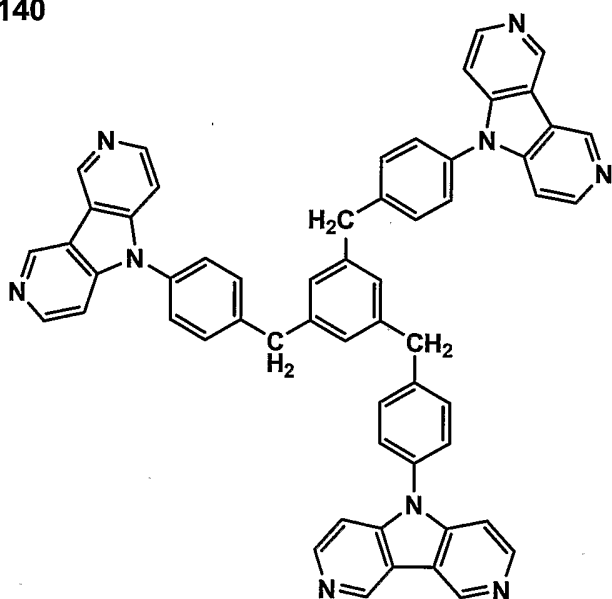
138



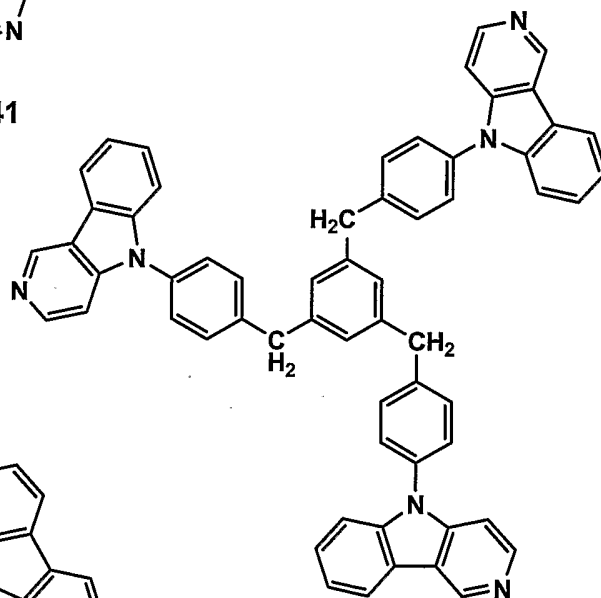
139



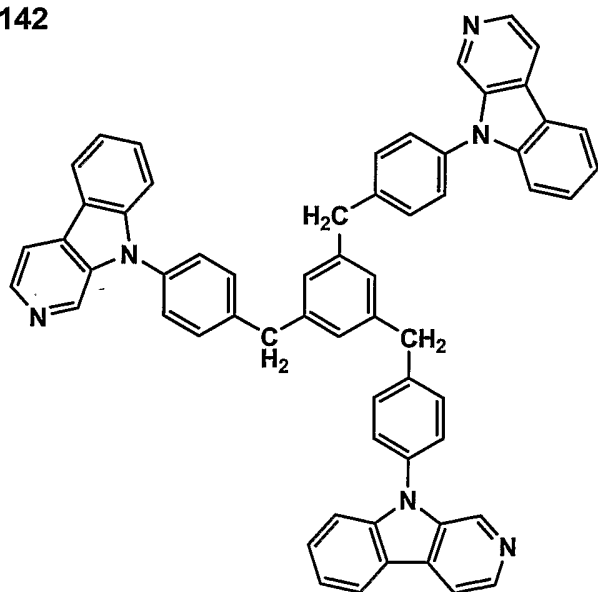
140



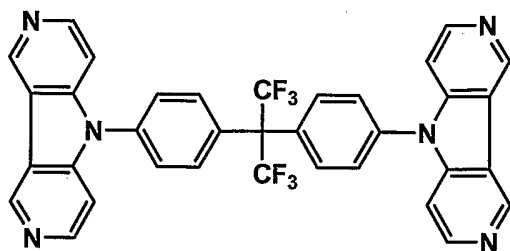
141



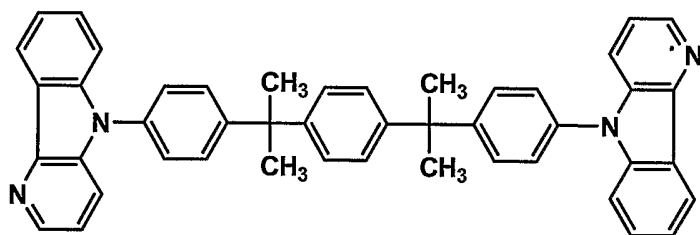
142



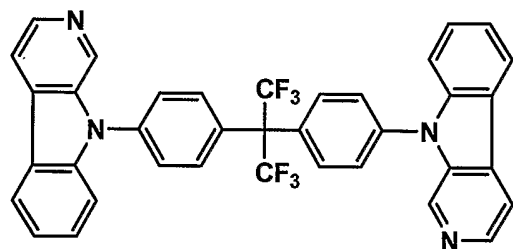
143



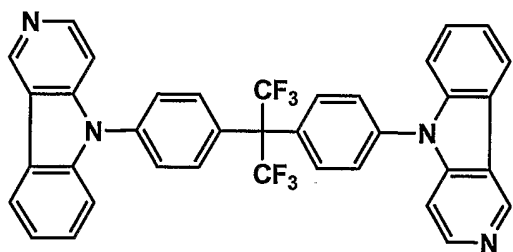
144



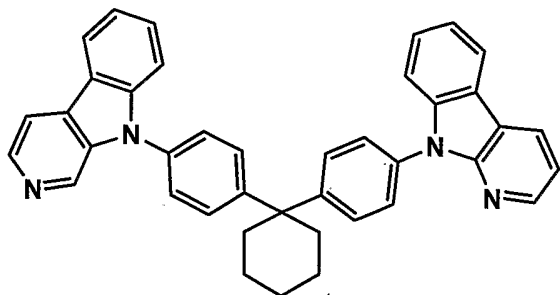
145



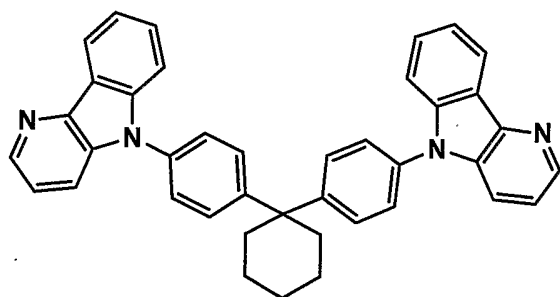
146



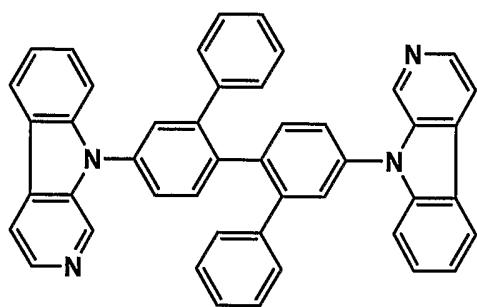
147



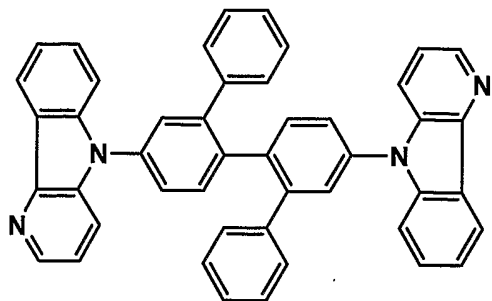
148



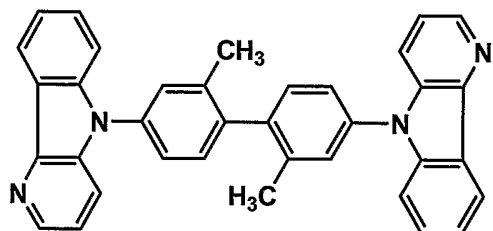
149



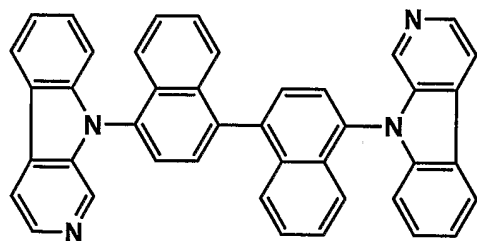
150



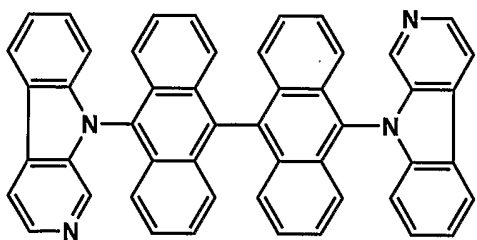
151



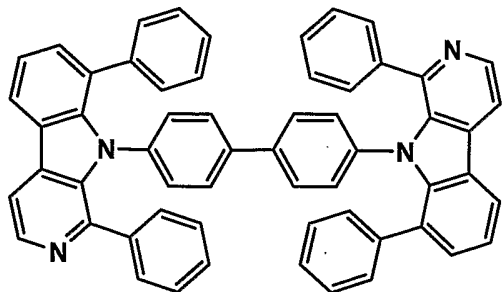
152



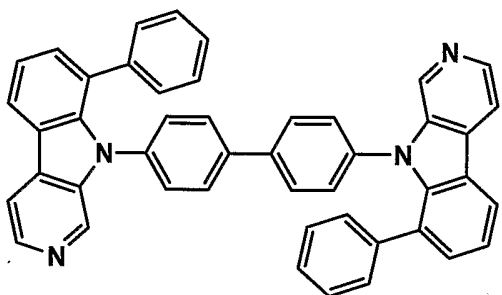
153



154

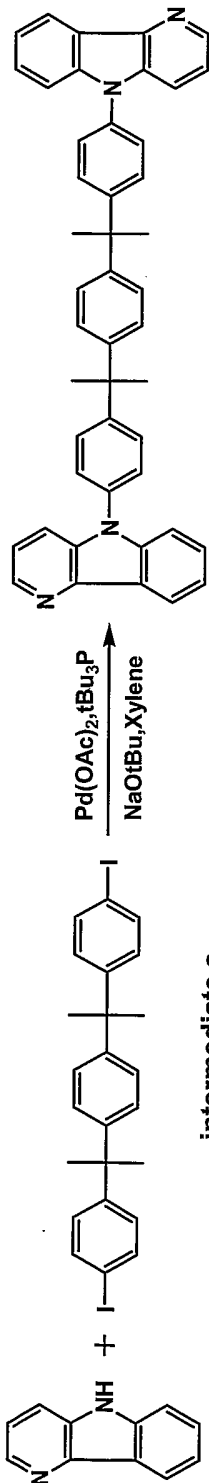


155



以下に、本発明に係る、一般式(2)～(10)の化合物の合成例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

《例示化合物 1 4 4 の合成》



酢酸パラジウム0.16g、トリ-tert-ブチルホスフィン0.58gを無水トルエン10mlに溶解し、水素化ホウ素ナトリウム25mgを添加し、室温で

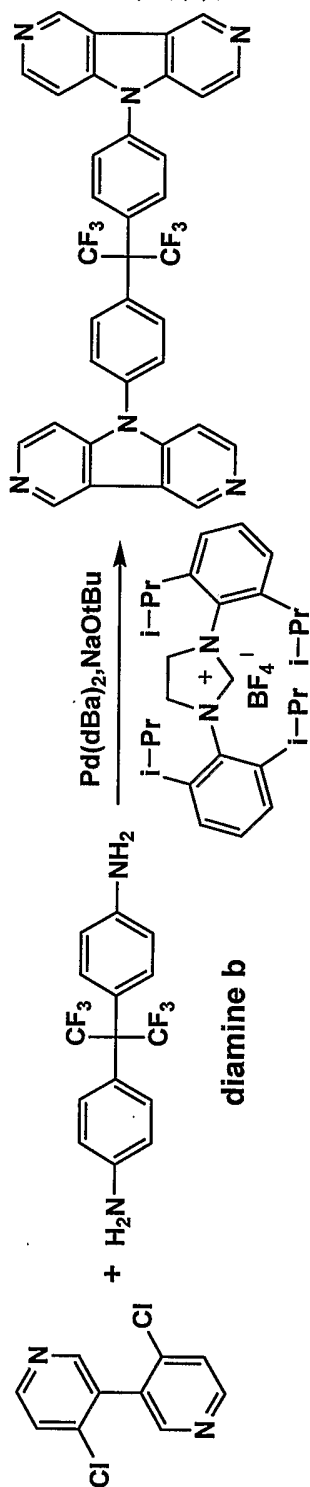
10分間攪拌した後、 δ -カルボリン2.00g、中間体a 3.20g、ナトリウム-tert-ブトキシド1.37gを加えて無水キシレン50ml中に分散し、窒素雰囲気下、還流温度にて10時間攪拌した。放冷後クロロホルムと水を加えて有機層を分離し、有機層を、水、飽和食塩水で洗浄した後減圧下に濃縮し、得られた残渣を酢酸から再結晶して例示化合物144の無色結晶1.5gを得た。

例示化合物144の構造は、 $^1\text{H-NMR}$ スペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物144のスペクトルデータは以下の通りである。

MS (FAB) m/z : 647 (M^{+1})

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CDCl_3) δ / ppm 1.80 (s, 12H)、
10 7.27 (s, 4H)、7.34 (dd, $J=4.9\text{Hz}$, $J=8.3\text{Hz}$, 2H)、
7.3-7.4 (m, 2H)、7.4-7.5 (m, 12H)、7.76 (dd, $J=1.3\text{Hz}$, $J=8.3\text{Hz}$, 2H)、
8.45 (d, $J=7.8\text{Hz}$, 2H)、
8.63 (dd, $J=1.3\text{Hz}$, $J=4.9\text{Hz}$, 2H)

《例示化合物 1 4 3 の合成》



4, 4' -ジクロロ-3, 3' -ビピリジル 0. 8 5 g、ジアミン b 0. 5 9 g、
ジベンジリデンアセトンパラジウム 4 4 m g、イミダゾリウム塩 3 6 m g、ナトリ

ウム-tert-ブトキシド1.09gをジメトキシエタン5mlに添加し、80°Cで24時間加温攪拌した。放冷後クロロホルムと水を加えて有機層を分離し、有機層を、水、飽和食塩水で洗浄した後減圧下に濃縮し、得られた残渣を酢酸エチルから再結晶して例示化合物143の無色結晶0.3gを得た。

- 5 例示化合物143の構造は、¹H-NMRスペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物143のスペクトルデータを下記に示す。

MS (FAB) m/z 639 (M⁺)

¹H-NMR (400MHz, CDCl₃): δ/ppm 7.46 (d, J=5.7Hz, 4H)、7.6-7.7 (m, 4H)、7.8-7.9 (m, 4H)、8.67 (d, J=5.7Hz, 4H)、9.51 (s, 4H)

《例示化合物145の合成》

例示化合物143の合成において、4,4'-ジクロロ-3,3'-ビピリジルの一方のピリジン環をベンゼンに変更した、3-(2-クロロフェニル)-4-クロロピリジンを用いた以外は同様にして、例示化合物145を合成した。

- 15 例示化合物145の構造は、¹H-NMRスペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物145のスペクトルデータを下記に示す。

MS (FAB) m/z 637 (M⁺)

¹H-NMR (400MHz, CDCl₃) δ/ppm 7.3-7.4 (m, 2H)、7.6-7.7 (m, 4H)、7.7-7.8 (m, 4H) 7.8-7.9 (m, 4H)、8.06 (d, J=5.3Hz, 2H)、8.23 (d, J=7.8Hz, 2H)、8.56 (d, J=5.3Hz, 2H)、8.96 (s, 2H)

尚、上記の合成例以外に、これらの有機EL素子用材料のカルボリン誘導体、該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素

原子で置換されている誘導体やその類縁体は、J. Chem. Soc., Perkin Trans. 1, 1505-1510 (1999)、Pol. J. Chem., 54, 1585 (1980)、(Tetrahedron Lett. 41 (2000), 481-484) に記載される合成法に従って合成することができる。合成されたアザカルバゾール環やその類縁体への、芳香環、複素環、アルキル基などの、コア、連結基の導入は、ウルマンカップリング、Pd触媒を用いたカップリング、スズキカップリングなど公知の方法を用いることができる。

その他の化合物例として、特開2003-31367号公報、同2003-31368号公報等に記載の例示化合物が挙げられる。

10 一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

《発光層》

本発明に係る発光層は、発光材料を含有し、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

本発明においては、発光層に発光材料と上述した前記一般式(1)で表される部分構造を有し分子量が1700以下である化合物(ホスト化合物)を含有している。これにより、高い発光輝度と高い発光効率を示し、かつ長寿命としている。

20 本発明において発光材料としてはリン光性化合物を用いることが好ましい。これにより、高い発光輝度と発光効率を得ることができる。リン光性化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、室温(25℃)にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物である。リ

ン光量子収率は好ましくは0.1以上である。

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられるリン光性化合物は、任意の溶媒の
5 何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されればよい。

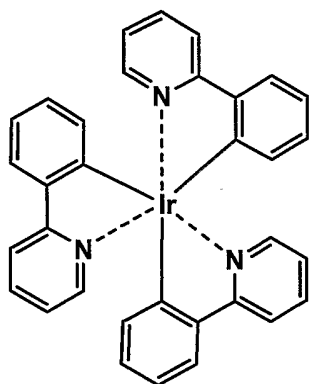
リン光性化合物の発光は、原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送される宿主化合物上でキャリアの再結合が起こって宿主化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップ
10 プとなり、リン光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーは宿主化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

リン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜
15 選択して用いることができる。

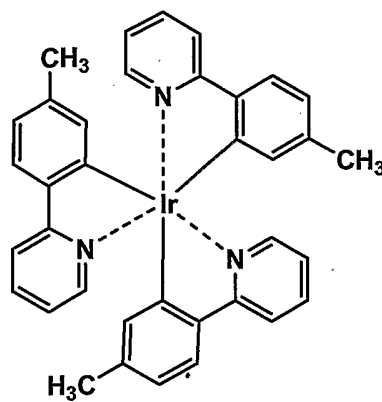
本発明においては、リン光性化合物は、オスミウム、イリジウム、ロジウムまたは白金錯体系化合物であることが好ましく、これにより、より一層発光輝度と発光効率を向上させることができる。

以下に、本発明で用いられるリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、
20 1704~1711(2001)に記載の方法等により合成できる。

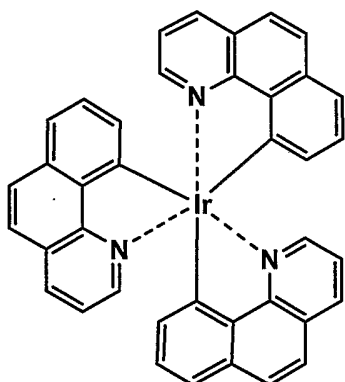
Ir-1



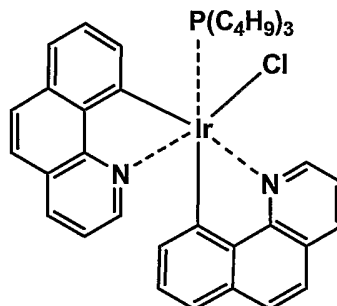
Ir-2



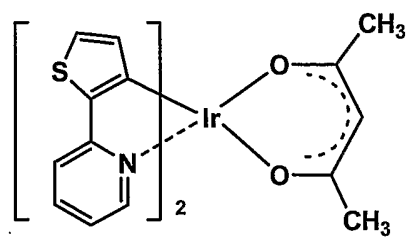
Ir-3



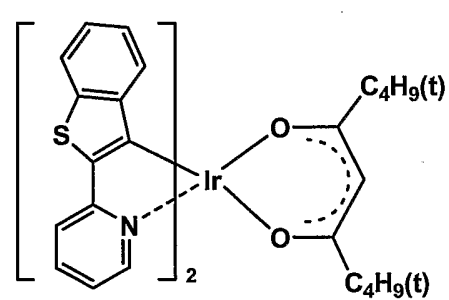
Ir-4



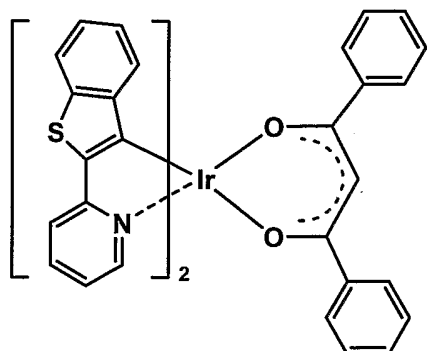
Ir-5



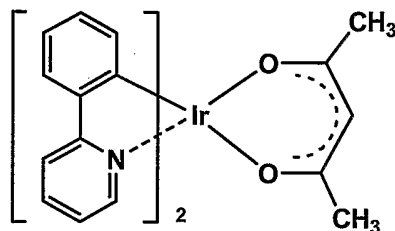
Ir-6



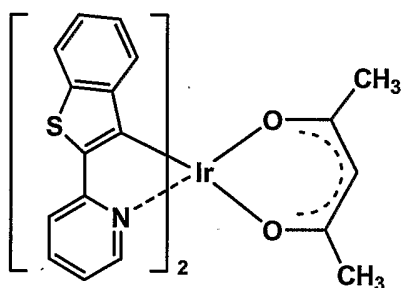
Ir-7



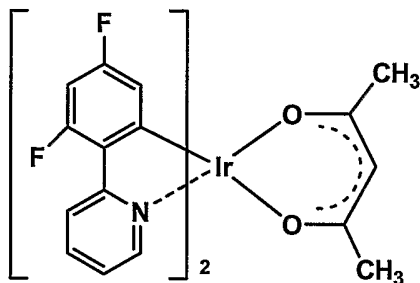
Ir-8



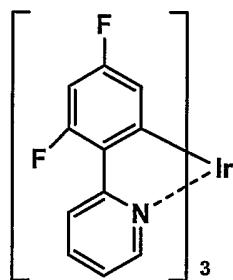
Ir-9



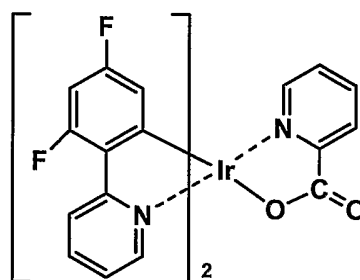
Ir-10



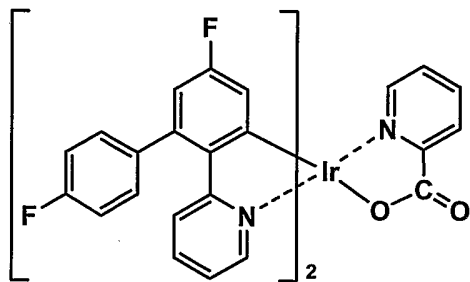
Ir-11



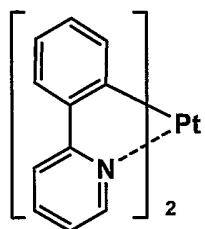
Ir-12



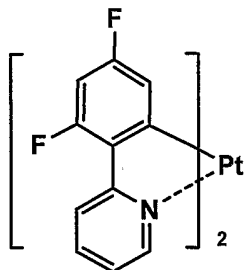
Ir-13



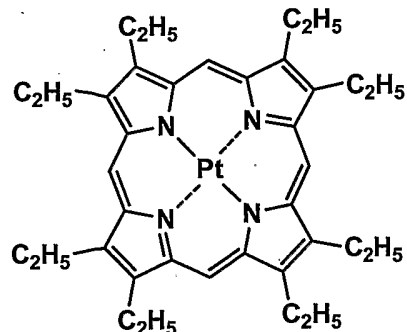
Pt-1



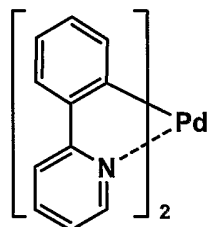
Pt-2



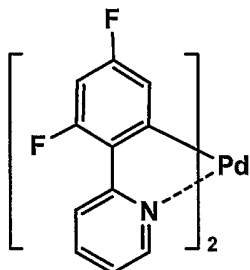
Pt-3



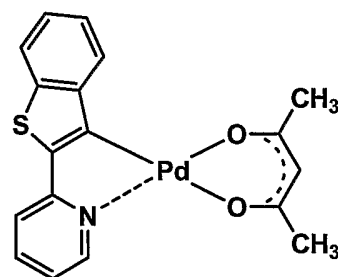
Pd-1



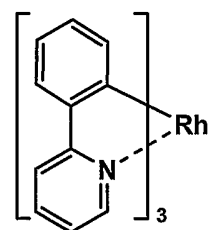
Pd-2



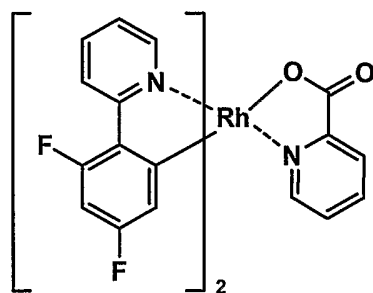
Pd-3



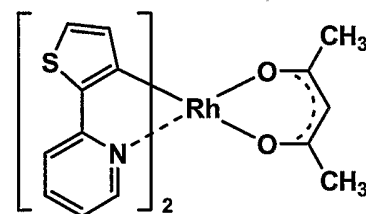
Rh-1



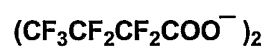
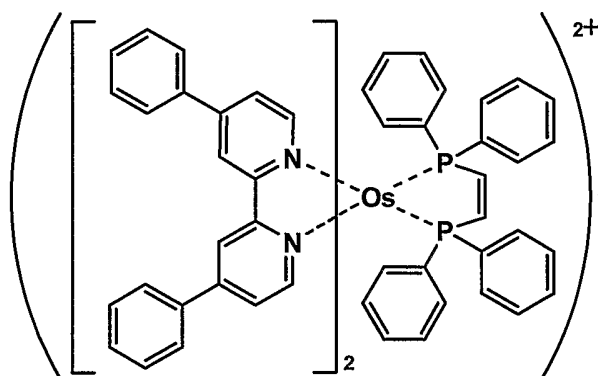
Rh-2

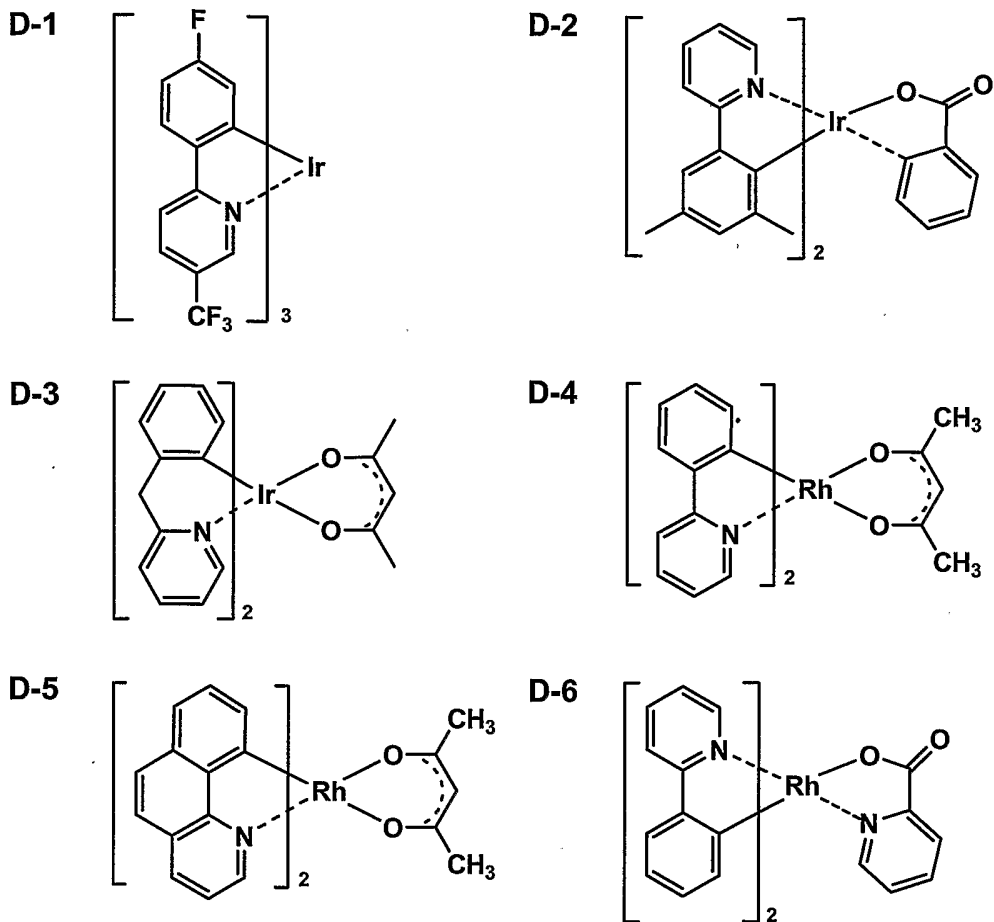


Rh-3



A-1





本発明においては、リン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができるが、リン光性化合物のリン光発光波長が380～480 nmにリン光発光の極大波長を有することが好ましい。この

5 ような青色リン光発光の有機EL素子や、白色リン光発光の有機EL素子で、より高い発光輝度を示し、かつ、より半減寿命の長い有機エレクトロルミネッセンス素子とすることができる。

また、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。リン光性化合物の種類、ドー

10 プ量を調整することで白色発光が可能であり、照明装置、バックライトへの応用も

できる。

また、発光層には、前記一般式(1)で表される部分構造を有し分子量が1700以下であるホスト化合物の他に、公知のホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種もちいることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。これらの公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が挙げられる。

10 特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789
15 号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27
20 048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等。

また、発光層は、ホスト化合物としてさらに蛍光極大波長を有するホスト化合物を含有していてもよい。この場合、他のホスト化合物とリン光性化合物から蛍光性化合物へのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光極大波長を有する他のホスト化合物からの発光も得られる。蛍光極大波長を有するホスト化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光極大波長を有するホスト化合物としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素等が挙げられる。蛍光量子収率は、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することができる。

本明細書の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」(日本色彩学会編、東京大学出版会、1985)の108頁の第4図、16において、分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができるが、好ましくはスピコート法である。発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm~5 μ m、好ましくは5nm~200nmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらのリン光性化合物やホスト化合物が1種または2種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層、電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

- 5 正孔輸送材料としては、特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

正孔輸送材料は、正孔の注入もしくは輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、
10 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、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、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、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリ
15 ゴマー等が挙げられる。

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N,
20 N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル) - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン (TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル) プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル) シクロヘキサン; N,

N, N', N' -テトラ-p-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル; 1, 1-
ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン; ビス
(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-p-
トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ
5 (4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル; N, N, N', N'
-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4'-ビス(ジ
フェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(p-トリル)アミン;
4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチルル]
スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン;
10 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカ
ルバゾール、さらには、米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている
2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、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(NPD)、特開平4-30868
8号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型
15 に連結された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(MTDATA)等が挙げられる。

更に、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖
とした高分子材料を用いることもできる。

また、p型-Si, p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料
20 として使用することができる。

また、本発明においては正孔輸送層の正孔輸送材料は415nm以下に蛍光極大
波長を有することが好ましい。すなわち、正孔輸送材料は、正孔輸送能を有しつ
かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高Tgである化合物が好ましい。

この正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5～5000nm程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。本発明に用いられる電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

10 従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、この電子輸送層に用いられる材料（以下、電子輸送材料という）の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキソド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチア

15 アジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

さらに、電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

更に、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウム(A1q)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブロモ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)など、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiCなどの無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

電子輸送層に用いられる好ましい化合物は、415nm以下に蛍光極大波長を有することが好ましい。すなわち、電子輸送層に用いられる化合物は、電子輸送能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高Tgである化合物が好ましい。

この電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5~5000nm程度である。この電子輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

《基体(基板、基材、支持体等ともいう)》

本発明の有機EL素子に用いることができる基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好

ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN)、ポリエーテルスルホン (PES)、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート (PC)、セルローストリアセテート (TAC)、セルロースアセテートプロピオネート (CAP) 等からなるフィルム等が挙げられる。

樹脂フィルムの表面には、無機物もしくは有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%以上である。ここに、外部取り出し量子効率 (%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数 × 100 である。

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用してもよい。

本発明の多色表示装置は少なくとも2種類の異なる発光極大波長を有する有機EL素子からなるが、有機EL素子を作製する好適な例を説明する。

《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極/陽極バッファ層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる層を、1 μ

m以下、好ましくは10nm～200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に素子材料である陽極バッファ層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層の有機化合物薄膜を形成させる。

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如くスピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にポート加熱温度50～450℃、真空度 10^{-6} Pa～ 10^{-2} Pa、蒸着速度0.01nm
10 nm～50nm/秒、基板温度-50℃～300℃、膜厚0.1nm～5μmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1μm以下好ましくは50nm～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極
15 まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

本発明の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共通として、一面に蒸着法、キャスト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で
20 層を形成することができる。

また作製順序を逆にして、各層を作製することも可能である。

このようにして得られた表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として電圧2～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また、

逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が+、陰極が-の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

本発明の表示装置は、本発明の有機EL素子を用いており、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることでフルカラーの表示が可能となる。

表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス（パッシブマトリックス）方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

本発明の照明装置は、本発明の有機EL素子を用いており、家庭用照明、車内照明、時計のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。また、液晶表示装置等のバックライトとしても用いることができる。

また、本発明に係る有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。

このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザ発振をさせることにより、上記用途に使用してもよい。

本発明の有機EL素子は、前述したように照明用や露光光源のような1種のラン

プとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。

- 5 または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を3種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。または、一色の発光色、例えば白色発光をカラーフィルターを用いてBGRにし、フルカラー化することも可能である。さらに、有機ELの発光色を色変換フィルターを用いて他色に変換しフルカラー化することも可能であるが、その場合、有機EL発光の λ_{max} は480
- 10 nm以下であることが好ましい。

本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づき以下に説明する。

- 第1図は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。
- 15

ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

- 制御部Bは、表示部Aと電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部A
- 20
- に表示する。

第2図は、表示部Aの模式図である。

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画

素 3 等とを有する。表示部 A の主要な部材の説明を以下に行う。第 2 図においては、画素 3 の発光した光が、白矢印方向（下方向）へ取り出される場合を示している。

5 配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 は、各々導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している（詳細は図示せず）。

画素 3 は、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

10 次に、画素の発光プロセスを説明する。

第 3 図は、画素の模式図である。

画素は、有機 EL 素子 10、スイッチングトランジスタ 11、駆動トランジスタ 12、コンデンサ 13 等を備えている。複数の画素に有機 EL 素子 10 として、赤色、緑色、青色発光の有機 EL 素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

15 第 3 図において、制御部 B からデータ線 6 を介してスイッチングトランジスタ 11 のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部 B から走査線 5 を介してスイッチングトランジスタ 11 のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ 11 の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ 13 と駆動トランジスタ 12 のゲートに伝達される。

20 画像データ信号の伝達により、コンデンサ 13 が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ 12 の駆動がオンする。駆動トランジスタ 12 は、ドレインが電源ライン 7 に接続され、ソースが有機 EL 素子 10 の電極に

接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。

制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動が
5 オフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

10 すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走
20 査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

第4図は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。第4図において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に

設けられている。

順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。

5 【実施例】

実施例1

《有機EL素子1-1~1-29の作製及び評価》

陽極としてガラス上に、ITOを150nm成膜した基板（NHテクノグラス社製：NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をisopropylアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

この透明支持基板を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、5つのモリブデン製抵抗加熱ポートに、 α -NPD、CBP、Ir-1、BC、Alq₃をそれぞれ入れ真空蒸着装置に取付けた。

次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、 α -NPDを透明支持基板に膜厚20nmの厚さになるように蒸着し、正孔注入/輸送層を設けた。さらに、CBPの入った前記加熱ポートとIr-1の入ったポートをそれぞれ独立に通電してCBPとIr-1の蒸着速度が100:7になるように調節し、膜厚30nmの厚さになるように蒸着して発光層を設けた。

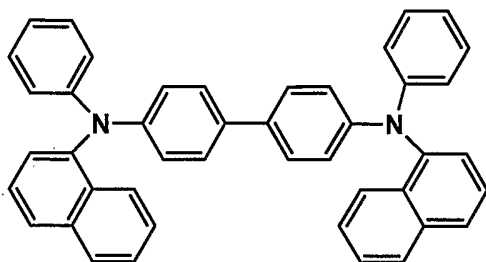
次いで、BCを蒸着して、厚さ10nmの正孔阻止層を設けた。更に、Alq₃を蒸着し膜厚40nmの電子輸送層を設けた。

次に、真空槽を開け、電子注入層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクを設置し、次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧し、フッ化リチウム0.5nm

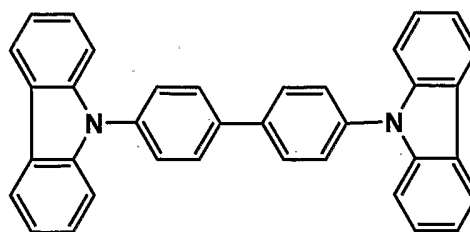
及びアルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成して有機 EL 素子 1-1 を作製した。

上記の有機 EL 素子 1-1 の作製において、発光層に用いた CBP を、表 1 に記載の化合物に変更した以外は、有機 EL 素子 1-1 と同様の方法で、有機 EL 素子
5 1-2 ~ 1-29 を作製した。

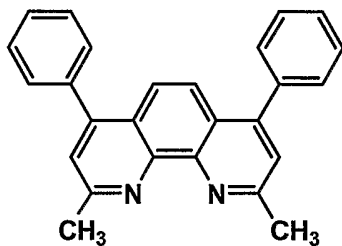
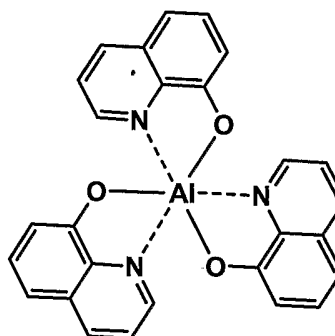
作製した有機 EL 素子 1-1 ~ 1-29 はそれぞれ大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度 99.999% 以上の高純度窒素ガスで置換したグローブボックス）へ移し、第 5 図の (a)、(b) に示したような封止構造とした。なお、捕水剤である酸化バリウム 25 は、アルドリッチ社製の高純度酸化
10 バリウム粉末を、粘着剤付きのフッ素樹脂系半透過膜（マイクロテックス S-NTF8031Q 日東電工製）でガラス製封止缶 24 に貼り付けたものを予め準備して使用した。封止缶と有機 EL 素子の接着には紫外線硬化型の接着剤 27 を用い、紫外線ランプを照射することで両者を接着し封止した封止構造を有する素子を作製した。図において 21 は透明電極を設けたガラス基板、22 が前記正孔注入／輸
15 送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、陰極バッファ層等からなる有機 EL 層、23 は陰極を示す。

α -NPD

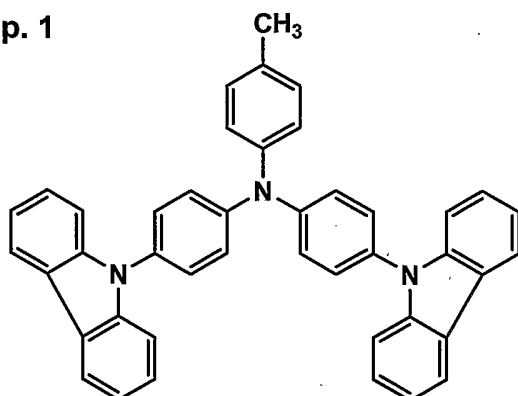
CBP



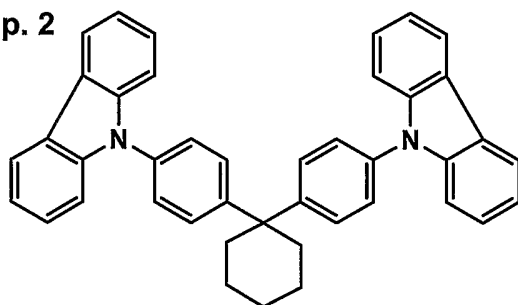
BC

Alq₃

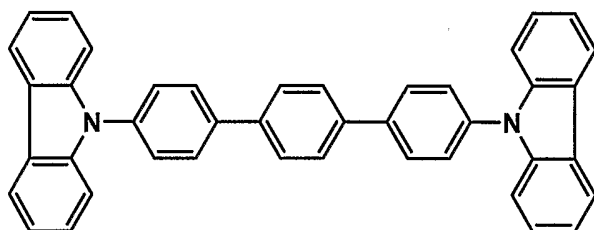
Comp. 1



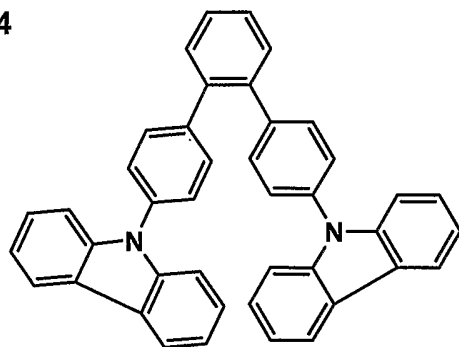
Comp. 2



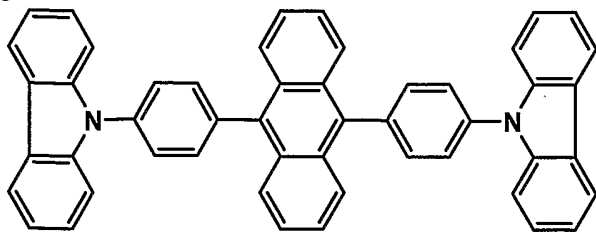
Comp. 3



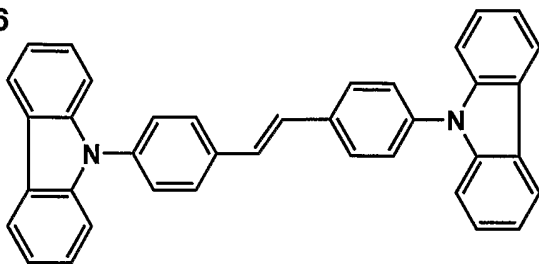
Comp. 4



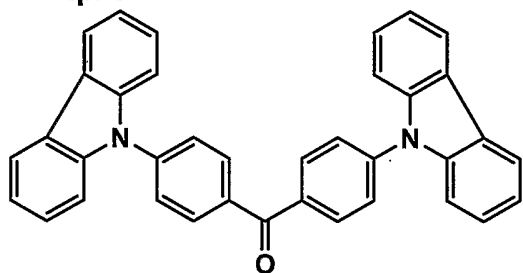
Comp. 5



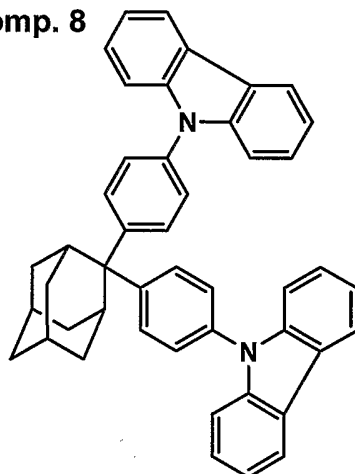
Comp. 6



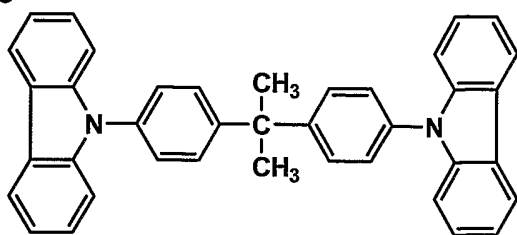
Comp. 7



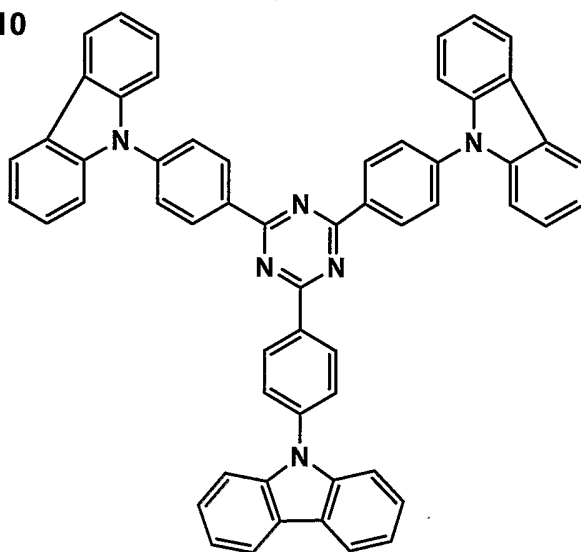
Comp. 8



Comp. 9



Comp. 10



得られた有機EL素子1-1~1-29の各々について下記のような評価を行った。

《発光輝度》

- 5 作製した有機EL素子について、温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5 mA/cm²の電流を供給した時の発光輝度(L) [cd/m²]を測定した。ここで、発光輝度の測定などは、CS-1000 (ミノルタ製)を用いた。

《外部取りだし量子効率》

- 10 作製した有機EL素子について、23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5 mA/cm²定電流を印加した時の外部取り出し量子効率(%)を測定した。なお測定には同様に分光放射輝度計CS-1000 (ミノルタ製)を用いた。

《半減寿命》

23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5 mA/cm²の一定電流で駆動したときに、輝度が発光開始直後の輝度（初期輝度）の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間（ $\tau_{0.5}$ ）として寿命の指標とした。なお測定には分光放射輝度計CS-1000（ミノルタ製）を用いた。

5 《耐熱性》

作製した有機EL素子について、23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5 mA/cm²の電流を供給した時の輝度（L）を測定し、これを初期の輝度（L₀）とした。次いでその素子を85度の恒温槽で500時間保存した。その後、23度になるまで放置した後その500時間経過後の輝度（L₅₀₀）を測定し、次式より、

10 輝度減少率を求めた。

$$\text{輝度減少率 (\%)} = \left[\frac{(L_0) - (L_{500})}{(L_0)} \right] \times 100$$

評価結果を表1に記載するにあたり、発光輝度、外部取り出し量子効率、発光寿命は、有機EL素子1-1の各特性値を100とした時の相対値で表した。得られた結果を表1に示す。

表 1

有機 EL 素子 No.	発光層		発光輝度	外部 取りだし 量子効率	半減 寿命	輝度 減少率	備 考
	ホスト 化合物	分子量					
1-1	CBP	456.6	100	100	100	100	比較例
1-2	比較 1	589.7	78	71	104	220	比較例
1-3	比較 2	566.7	72	62	101	140	比較例
1-4	比較 3	560.7	82	75	102	96	比較例
1-5	比較 4	560.7	88	77	60	112	比較例
1-6	比較 5	660.8	52	68	101	84	比較例
1-7	比較 6	510.6	66	65	70	124	比較例
1-8	比較 7	512.6	62	66	74	168	比較例
1-9	比較 8	619.8	85	88	98	60	比較例
1-10	比較 9	526.7	84	92	55	64	比較例
1-11	比較 10	805.0	81	79	98	76	比較例
1-12	H-1	498.6	113	109	130	88	比較例
1-13	H-6	574.7	122	113	123	24	本発明
1-14	H-7	590.8	119	110	124	32	本発明
1-15	H-11	844.1	118	111	138	16	本発明
1-16	H-13	1099.4	121	112	139	12	本発明
1-17	H-14	1175.5	123	109	120	16	本発明
1-18	H-15	1217.6	117	106	107	8	本発明
1-19	H-17	1515.9	118	107	106	12	本発明
1-20	H-18	648.8	120	112	102	20	本発明
1-21	H-20	510.6	118	109	124	24	本発明
1-22	H-25	638.8	119	109	123	12	本発明
1-23	H-28	512.7	121	108	138	24	本発明
1-24	H-35	526.7	119	111	122	40	本発明
1-25	H-49	680.8	124	112	120	44	本発明
1-26	H-51	955.2	121	115	119	4	本発明
1-27	H-53	1610.8	115	107	120	12	本発明
1-28	H-55	588.8	118	113	140	20	本発明
1-29	H-56	664.8	123	112	122	8	本発明

表 1 から、比較に比べて本発明の有機 EL 素子は、発光輝度、外部取り出し量子効率、発光寿命のいずれにおいても優れていることがあきらかである。また、耐熱性試験より、高温保存下での輝度特性も優れていることがわかった。

更に、リン光性化合物である Ir-1 を Ir-12 に替えた以外は同様にして有機 EL 素子 1-1B ~ 1-29B を、また、Ir-1 を Ir-9 に替えた以外は同様にして有機 EL 素子 1-1R ~ 1-29R を作製した。この各有機 EL 素子においても、上記 Ir-1 を使用した時と同様の効果が得られた。なお、Ir-12 を
5 用いた素子からは青色の発光が、Ir-9 を用いた素子からは赤色の発光が得られた。

実施例 2

《有機 EL 素子 2-1 ~ 2-14 の作製及び評価》

実施例 1 に記載の有機 EL 素子 1-1 の作製において、発光層に用いた CBP と
10 正孔阻止層に用いた BC を、表 2 に記載の化合物に変更した以外は同様にして、有機 EL 素子 2-1 ~ 2-14 を作製した。

得られた有機 EL 素子 2-1 ~ 2-14 の各々について、実施例 1 と同様にして、発光輝度、輝度の半減する時間の評価を行い、得られた結果を表 2 に示す。

なお、表 2 に記載の各評価結果は、有機 EL 素子 2-1 の発光輝度、外部取り出
15 し量子効率、半減寿命をそれぞれ 100 とした時の相対値で表した。

表 2

有機EL素子 No.	発光層		正孔 阻止層 化合物	発光輝度	外部 取りだし 量子効率	半減 寿命	備 考
	ホスト 化合物	分子量					
2-1	CBP	456.6	BC	100	100	100	比較例
2-2	CBP	456.6	B-1	106	104	111	比較例
2-3	H-1	498.6	BC	113	109	113	比較例
2-4	H-1	498.6	B-1	117	116	141	本発明
2-5	H-1	498.6	B-7	119	120	138	本発明
2-6	H-1	498.6	B-8	117	114	140	本発明
2-7	H-1	498.6	B-9	121	117	146	本発明
2-8	H-1	498.6	B-10	123	118	145	本発明
2-9	H-1	498.6	B-10	121	115	142	本発明
2-10	H-13	1099.4	B-10	122	116	141	本発明
2-11	H-25	638.8	B-10	120	111	132	本発明
2-12	H-43	655.9	B-10	122	121	135	本発明
2-13	H-9	664.8	B-14	120	119	147	本発明
2-14	H-62	914.2	B-29	119	120	145	本発明

表 2 より、比較化合物を用いた有機EL素子 2-1 ~ 2-3 と比べて、本発明に係る化合物を用いた有機EL素子 2-4 ~ 2-14 は、発光輝度、外部取り出し効率及び半減寿命のいずれにおいても優れていることが明らかである。

- 5 更に、リン光性化合物である Ir-1 を Ir-12 に替えた以外は同様にして有機EL素子 2-1B ~ 2-12B を、また、Ir-1 を Ir-9 に替えた以外は同様にして有機EL素子 2-1R ~ 2-12R を作製した。この各有機EL素子においても、本発明の有機EL素子は、上記 Ir-1 を使用した時と同様の効果が得られた。なお、Ir-12 を用いた素子からは青色の発光が、Ir-9 を用いた素子
- 10 からは赤色の発光が得られた。

実施例 3

《フルカラー表示装置》

(青色発光有機EL素子)

実施例 1 で作製した有機 EL 素子 1-13B を用いた。

(緑色発光有機 EL 素子)

実施例 1 で作製した有機 EL 素子 1-13 を用いた。

(赤色発光有機 EL 素子)

5 実施例 1 で作製した有機 EL 素子 1-13R を用いた。

上記の赤色、緑色及び青色発光有機 EL 素子を、同一基板上に並置し、第 1 図に記載の形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製し、第 2 図には、作製した前記表示装置の表示部 A の模式図のみを示した。即ち、同一基板上に、複数の走査線 5 及びデータ線 6 を含む配線部と、並置した複数の画素 3 (発
10 光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等) とを有し、配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 はそれぞれ導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している (詳細は図示せず)。前記複数の画素 3 は、それぞれの発光色に対応した有機 EL 素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクテ
15 イブマトリクス方式で駆動されており、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。この様に各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置を作製した。

該フルカラー表示装置を駆動することにより、発光効率が高い発光寿命の長いフルカラー動画表示が得られることを確認することができた。
20

実施例 4 : (照明装置の実施例、白色の有機 EL 素子使用)

実施例 2 で作製した有機 EL 素子 2-9 において、発光層に用いた Ir-1 を、Ir-1、Ir-9、Ir-12 の混合物に変更した以外は有機 EL 素子 1-9 と

同様の方法で作製した有機EL素子2-9Wを用いた。有機EL素子2-9Wの非発光面をガラスケースで覆い、照明装置とした。照明装置は、発光効率が高く発光寿命の長い白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。第6図は照明装置の概略図で、第7図は照明装置の断面図である。有機EL素子101をガラスカバー102で覆い、電源線（陽極）103と、電源線（陰極）104で接続している。105は陰極で106は有機EL層である。なおガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

産業上の利用可能性

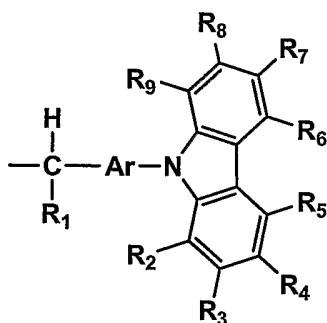
- 10 本発明によって、高い発光輝度と発光効率を示し、かつ長寿命である有機エレクトロルミネセンス素子及びそれを用いた表示装置、照明装置、また、高温保存下での輝度特性の劣化が抑えられた有機エレクトロルミネセンス素子及び該素子を用いた表示装置、照明装置を提供することが出来た。

請求の範囲

1. 少なくとも発光層と該発光層に隣接する正孔阻止層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

- 5 前記発光層が、下記一般式(1)で表される部分構造を有し、分子量が1700以下である化合物を少なくとも一種含有し、且つ、該正孔阻止層が、スチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、及び該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有することを特徴とする
- 10 有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1)



- [式中、Arは、アリーレン基またはヘテロアリーレン基を表し、R₂~R₉は、水素原子または置換基を表す。但し、R₂~R₉で表される該置換基の各々が結合して
- 15 環を形成してもよい。R₁は、水素原子、アルキル基またはシクロアルキル基を表す。]

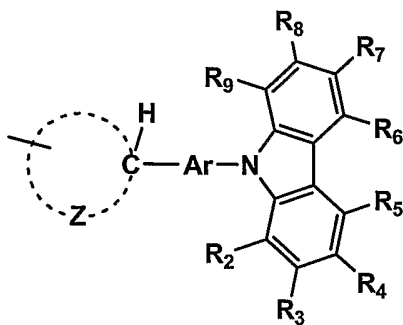
2. 前記一般式(1)中のArがフェニル基であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 前記一般式(1)中の R_1 が水素原子であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

4. 少なくとも発光層と該発光層に隣接する正孔阻止層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層が、下記一般式(1a)で表される部分構造を有し、分子量が1700以下である化合物を少なくとも一種含有し、且つ、該正孔阻止層が、スチリル誘導体、ボロン誘導体、カルボリン誘導体、及び該カルボリン誘導体のカルボリン骨格を形成する少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されている誘導体からなる誘導体群から選択される少なくとも一種の誘導体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1a)



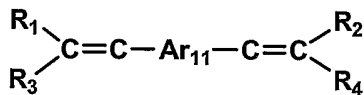
[式中、Arは、アリーレン基またはヘテロアリーレン基を表し、 $R_2 \sim R_9$ は、水素原子または置換基を表す。但し、 $R_2 \sim R_9$ で表される該置換基の各々が結合して環を形成してもよい。Zは、3員～8員の飽和炭化水素環を形成する原子群を表す。]

5. 前記一般式(1a)中のArがフェニル基であることを特徴とする請求の範囲第4項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. 前記一般式(1a)中のZがシクロヘキサン環であることを特徴とする請求の範囲第4項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

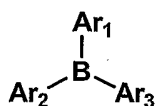
- 5 7. 前記正孔阻止層が、下記一般式(2)～(10)で表される化合物群から選択される少なくとも一種を含有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(2)



- 10 [式中、 R_1 、 R_2 は、各々独立にアルキル基、アルコキシ基、シアノ基またはアリール基を表し、 R_3 、 R_4 は、各々独立に複素環基またはアリール基を表す。 R_1 と R_3 または R_2 と R_4 は、互いに結合し環構造を形成してもよい。 Ar_{11} はアリーレン基を表す。]

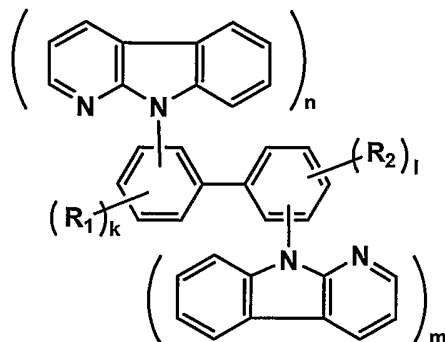
一般式(3)



15

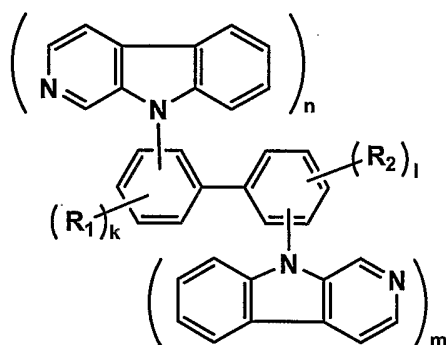
[式中、 $Ar_1 \sim Ar_3$ は、アリール基、または芳香族複素環基を表す。]

一般式(4)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

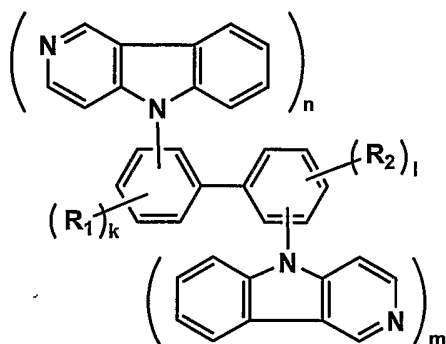
一般式(5)



5

[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

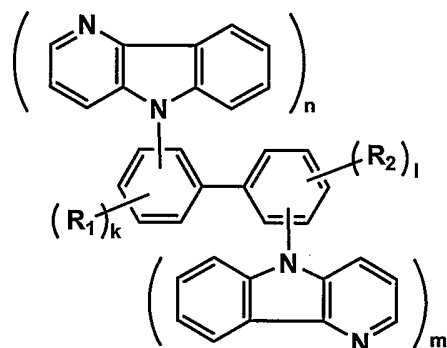
一般式(6)



10

[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

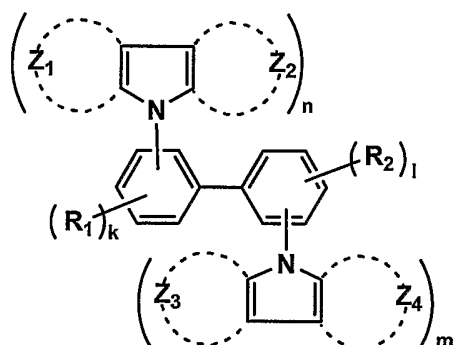
一般式 (7)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、

5 $l+m=5$ である。]

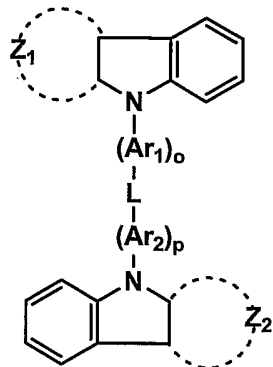
一般式 (8)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、

10 $l+m=5$ である。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表す。]

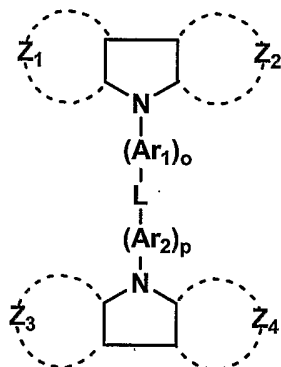
一般式 (9)



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 は、各々窒素原子を少なくとも一つ

5 含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]

一般式 (10)



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少な

10 くとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]

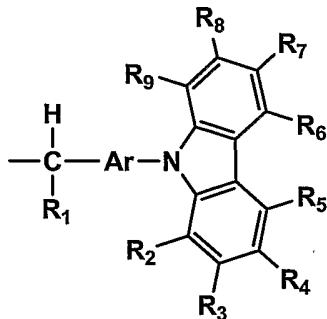
8. 少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

該発光層が、下記一般式(1)で表される部分構造を有し、分子量が500以上

1700以下である化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする有機エレ

15 クトロルミネッセンス素子。

一般式 (1)



[式中、Ar は、アリーレン基またはヘテロアリーレン基を表し、R₂~R₉は、水素原子または置換基を表す。但し、R₂~R₉で表される該置換基の各々が結合して環を形成してもよい。R₁は、水素原子、アルキル基またはシクロアルキル基を表す。]

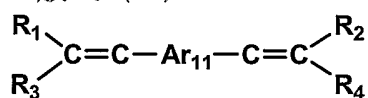
9. 前記一般式 (1) 中の Ar がフェニル基であることを特徴とする請求の範囲第 8 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

10. 前記一般式 (1) 中の R₁ が水素原子であることを特徴とする請求の範囲第 8 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

11. 構成層として正孔阻止層を有し、該正孔阻止層が、下記一般式 (2) ~ (10) で表される化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする請求の範囲第 8 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

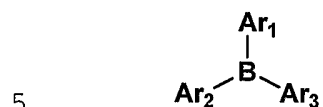
一般式 (2)



[式中、R₁、R₂は、各々独立にアルキル基、アルコキシル基、シアノ基またはア

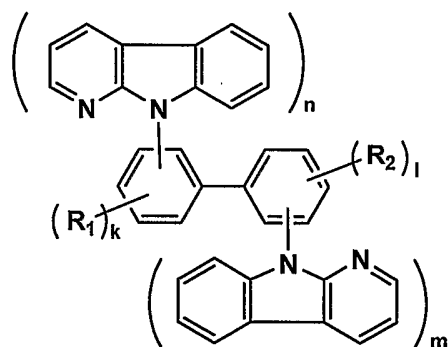
リール基を表し、 R_3 、 R_4 は、各々独立に複素環基またはアリール基を表す。 R_1 と R_3 または R_2 と R_4 は、互いに結合し環構造を形成してもよい。 Ar_{11} はアリーレン基を表す。]

一般式 (3)



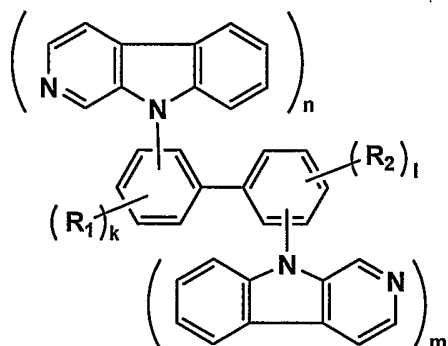
[式中、 $Ar_1 \sim Ar_3$ は、アリール基、または芳香族複素環基を表す。]

一般式 (4)



10 [式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

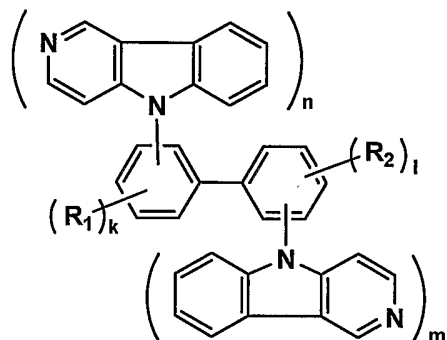
一般式 (5)



15 [式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、

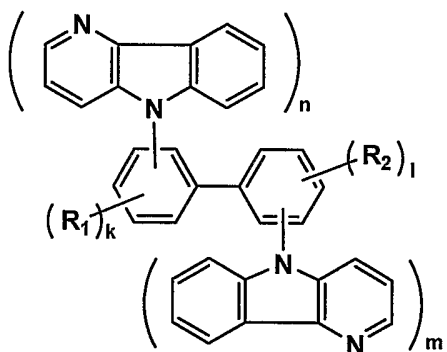
1 + m = 5 である。]

一般式 (6)



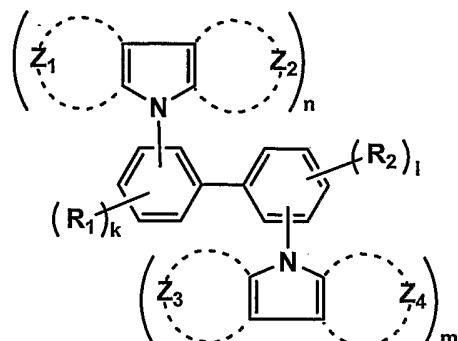
[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～5
2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n + k = 5$ 、且つ、
1 + m = 5 である。]

一般式 (7)



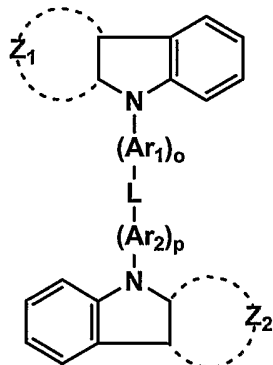
[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～10
2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n + k = 5$ 、且つ、
1 + m = 5 である。]

一般式 (8)

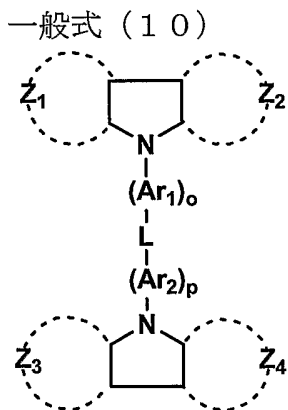


[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表す。]

一般式 (9)



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]



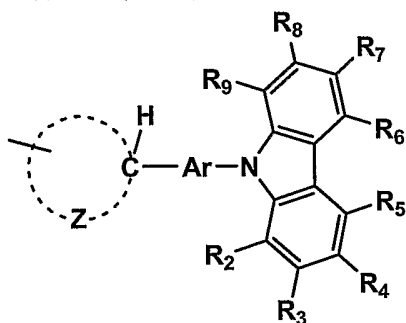
[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]

12. 少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が、下記一般式(1a)で表される部分構造を有し、分子量が500以上

1700以下である化合物を少なくとも一種含有することを特徴とする有機エ

10 レクトロルミネッセンス素子。

一般式 (1a)



[式中、 Ar は、アリーレン基またはヘテロアリーレン基を表し、 $R_2 \sim R_9$ は、水素原子または置換基を表す。但し、 $R_2 \sim R_9$ で表される該置換基の各々が結合して

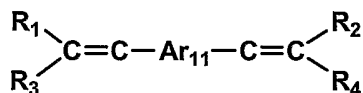
15 環を形成してもよい。 Z は、3員～8員の飽和炭化水素環を形成する原子群を表す。]

13. 前記一般式(1a)中のArがフェニル基であることを特徴とする請求の範囲第12項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

5 14. 前記一般式(1a)中のZがシクロヘキサン環であることを特徴とする請求の範囲第12項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

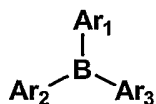
15. 構成層として正孔阻止層を有し、該正孔阻止層が、下記一般式(2)～(10)で表される化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする請求の範囲第12項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(2)



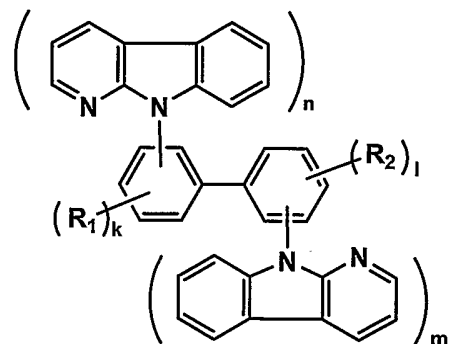
[式中、R₁、R₂は、各々独立にアルキル基、アルコキシ基、シアノ基またはアリール基を表し、R₃、R₄は、各々独立に複素環基またはアリール基を表す。R₁とR₃またはR₂とR₄は、互いに結合し環構造を形成してもよい。Ar₁₁はアリーレン基を表す。]

一般式(3)



20 [式中、Ar₁～Ar₃は、アリール基、または芳香族複素環基を表す。]

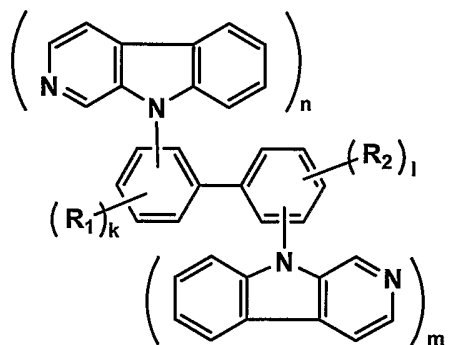
一般式 (4)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、

5 $l+m=5$ である。]

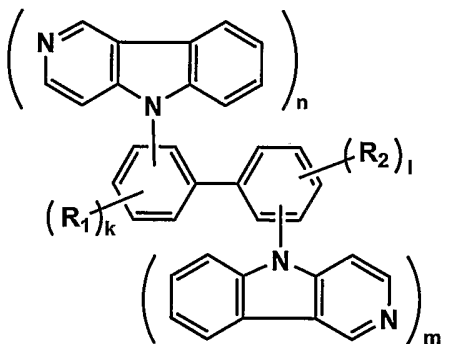
一般式 (5)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、

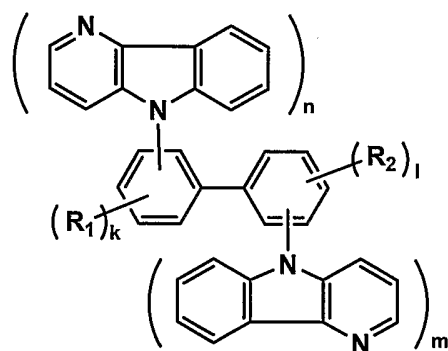
10 $l+m=5$ である。]

一般式 (6)



[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

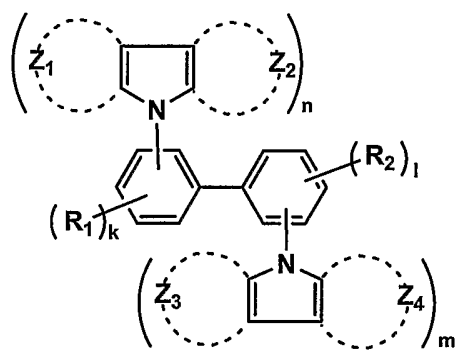
一般式(7)



5

[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。]

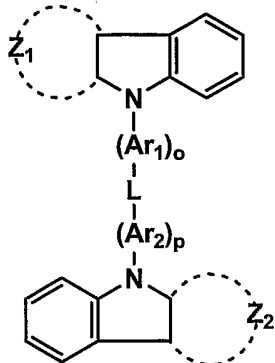
一般式(8)



10

[式中、 R_1 、 R_2 は各々独立に水素原子または置換基を表す。 n 、 m は、各々1～2の整数を表し、 k 、 l は、各々3～4の整数を表す。但し、 $n+k=5$ 、且つ、 $l+m=5$ である。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表す。]

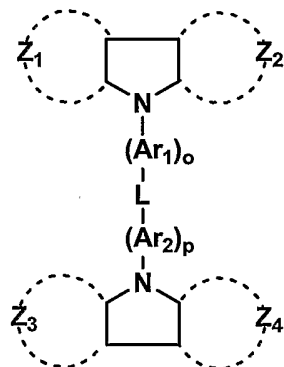
一般式 (9)



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 は、各々窒素原子を少なくとも一つ

5 含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]

一般式 (10)



[式中、 o 、 p は、各々1～3の整数を表し、 Ar_1 、 Ar_2 は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 は、各々窒素原子を少な

10 くとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、 L は、2価の連結基を表す。]

16. 前記発光層がリン光性化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15 17. 前記リン光性化合物は、オスミウム、イリジウム、ロジウムまたは白金錯

体系化合物であることを特徴とする請求の範囲第16項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

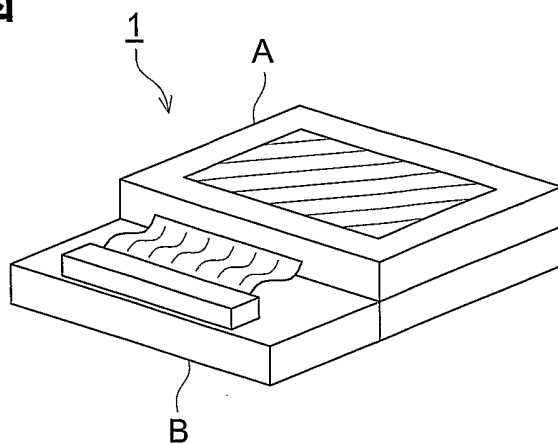
18. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクト
5 ロルミネッセンス素子。

19. 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたこ
とを特徴とする表示装置。

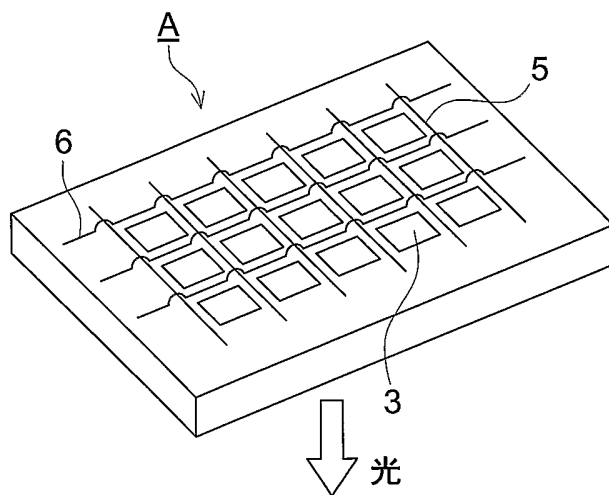
10 20. 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたこ
とを特徴とする照明装置。

21. 請求の範囲第20項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備
えたことを特徴とする表示装置。

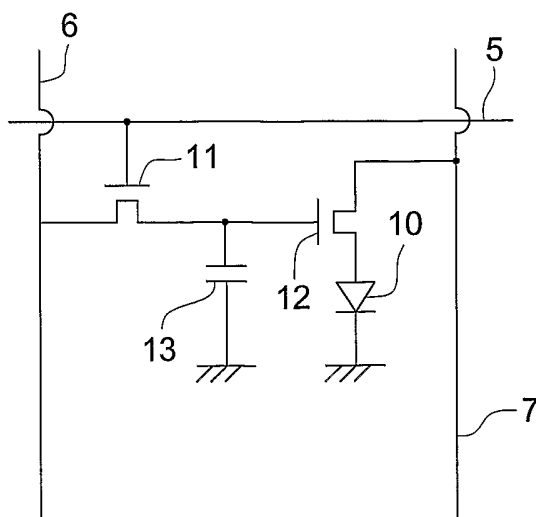
第 1 図



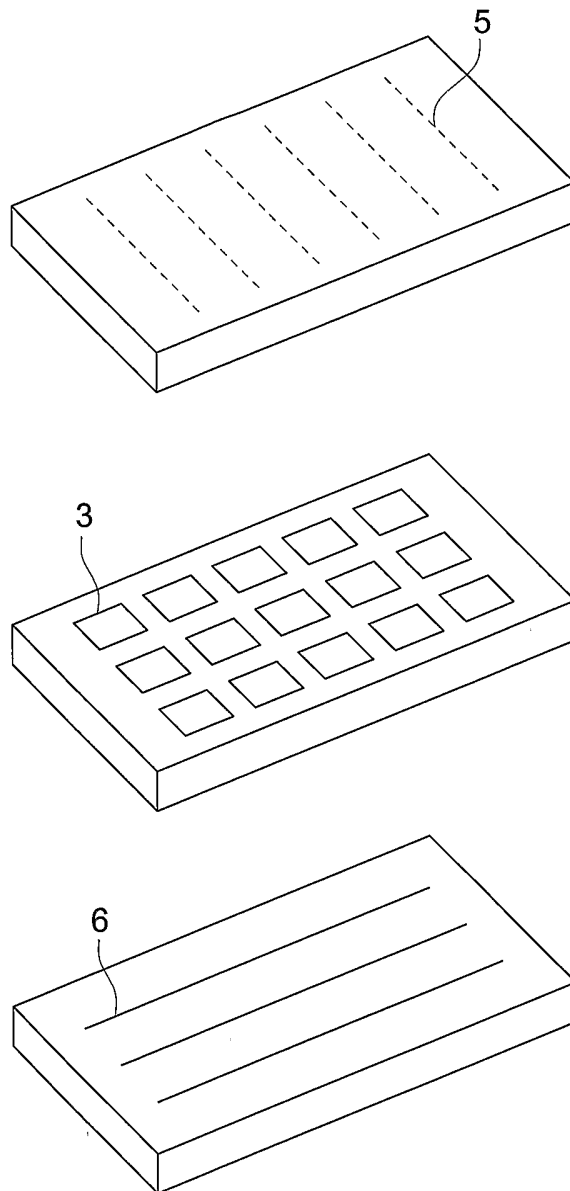
第 2 図



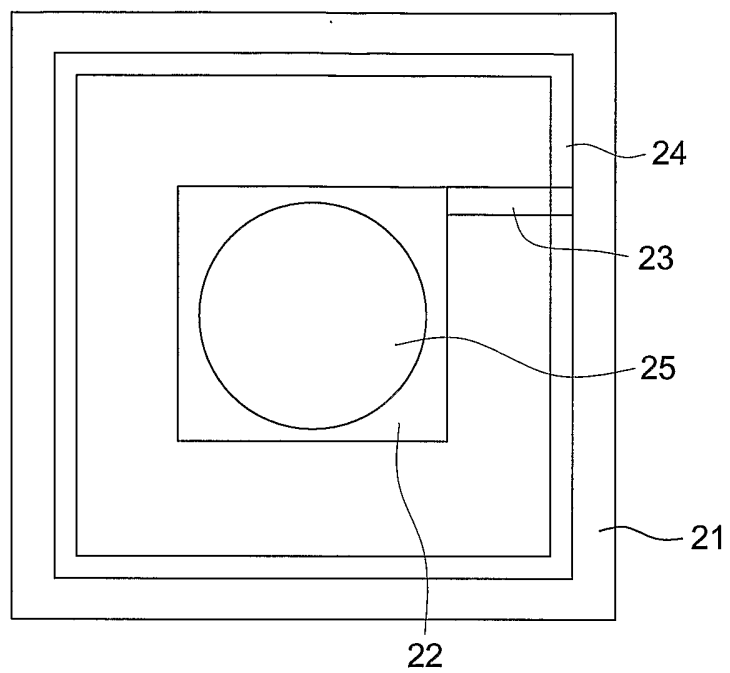
第 3 図



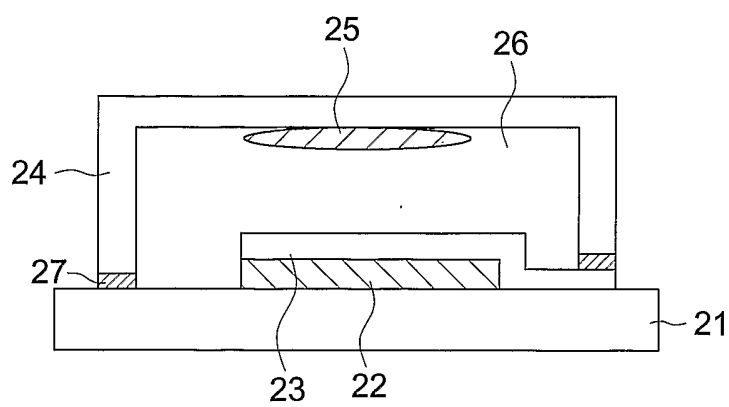
第 4 図



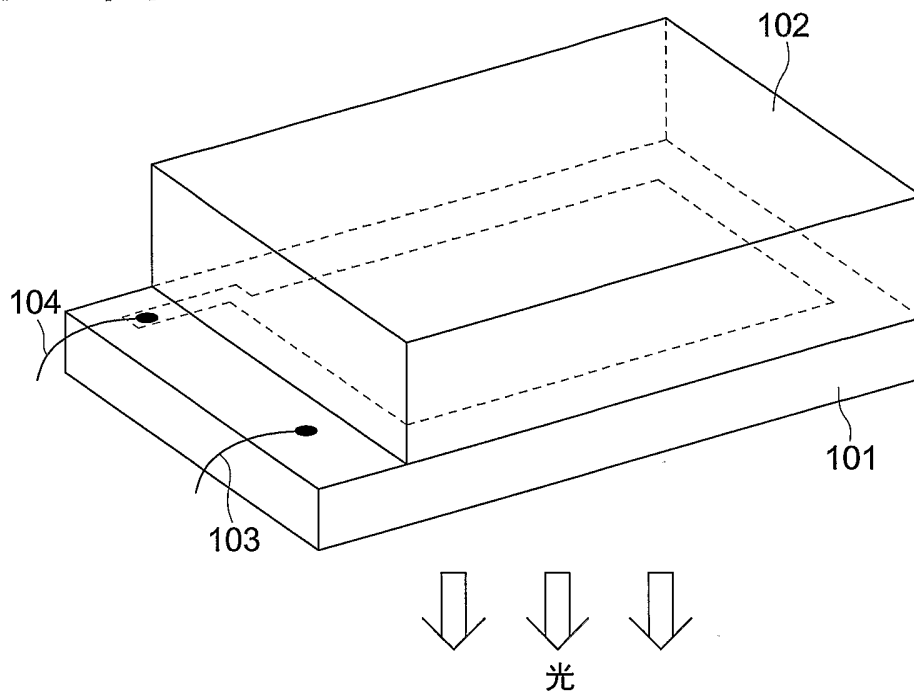
第 5 (a) 図



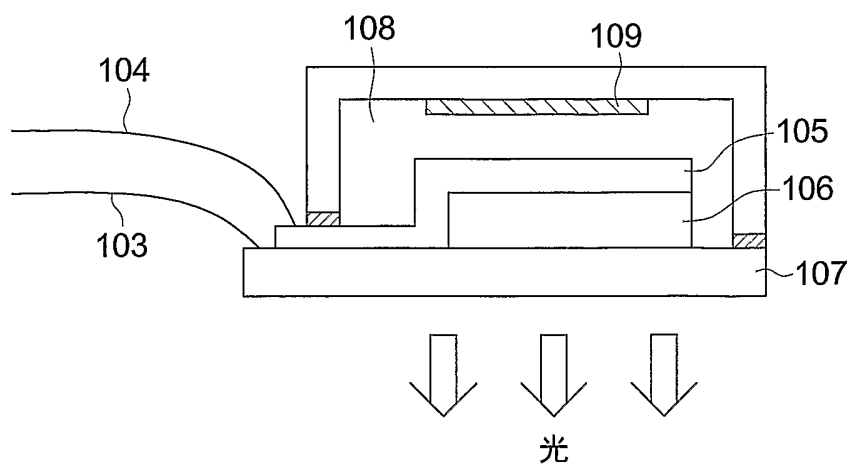
第 5 (b) 図



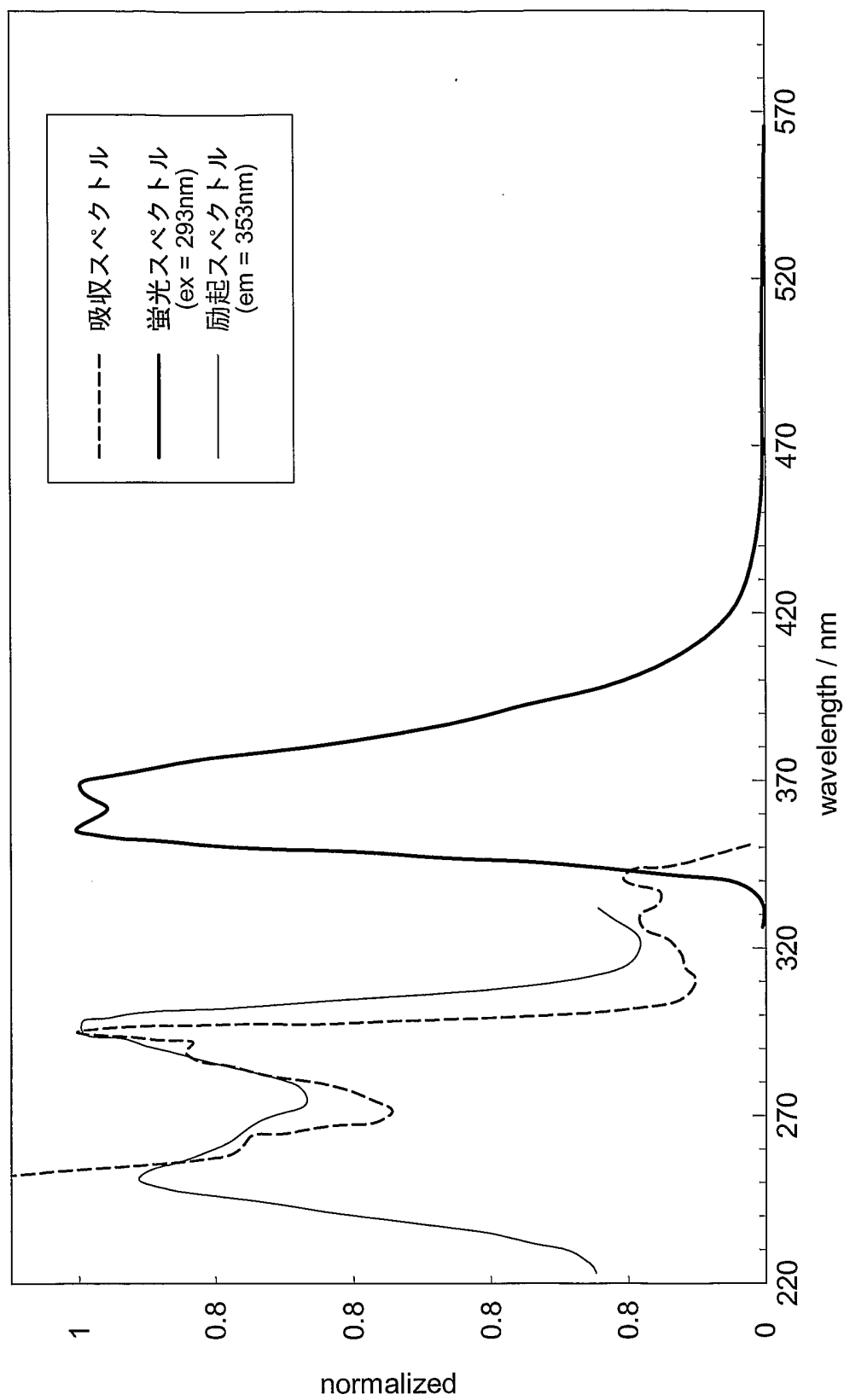
第 6 図



第 7 図



第 8 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014307

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H05B33/14, H05B33/22, C09K11/06

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.Cl⁷ H05B33/00, H05B33/28, C09K11/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, Y	WO 2004/053019 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 24 June, 2004 (24.06.04), Compounds (114) (115) (117) (Family: none)	1-7, 11, 15-21
P, Y P, A	JP 2003-335754 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 28 November, 2003 (28.11.03), Page 17, compound (H-24); Par. No. [0056] (Family: none)	1-7, 12-21 8-11
A	JP 08-88083 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 02 April, 1996 (02.04.96), Table 10, compound (1-16) (Family: none)	1-21

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
18 February, 2005 (18.02.05)

Date of mailing of the international search report
08 March, 2005 (08.03.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014307

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, Y	JP 2004-311414 A (Konica Minolta Holdings Kabushiki Kaisha), 04 November, 2004 (04.11.04), Table 1; examples (1-18) to (1-20) (Family: none)	1-21
E, Y	JP 2004-352655 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 December, 2004 (16.12.04), Page 19, (A43), (A49) (Family: none)	1-21
E, A	JP 2004-273389 A (Konica Minolta Holdings Kabushiki Kaisha), 30 September, 2004 (30.09.04), Claim 1; Par. No. [0039]; page 8, compound (8) (Family: none)	1-21
A	WO 2000/40586 A1 (Chisso Corp.), 13 July, 2000 (13.07.00), Compound (1) (Family: none)	1-7, 11, 15-21

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 H05B33/14, H05B33/22, C09K11/06

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. C17 H05B33/00-H05B33/28, C09K11/06

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 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年
 日本国実用新案登録公報 1996-2004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)

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 請求の範囲の番号
P, Y	WO 2004/053019 A1 (出光興産株式会社) 2004. 06. 24, 化合物 (114) (115)、及び117 (ファミリーなし)	1-7, 11, 15-21
P, Y P, A	JP 2003-335754 A (富士写真フイルム株式会社) 2003. 11. 28 第17頁化合物 (H-24) 及び段落【0056】 (ファミリーなし)	1-7, 12-21 8-11

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 18. 02. 2005

国際調査報告の発送日 08. 3. 2005

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員) 2V 9314
 里村 利光
 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 請求の範囲の番号
A	JP 08-88083 A (三菱化学株式会社) 1996. 04. 02, 表10の化合物 (1-16) (ファミリーなし)	1-21
E, Y	JP 2004-311414 A (コニカミノルタホールディング ス株式会社) 2004. 11. 04, 表1実施例 (1-18) ~ (1-20) (ファミリーなし)	1-21
E, Y	JP 2004-352655 A (出光興産株式会社) 2004. 12. 16, 第19頁 (A43) 及び (A49) (ファミリーなし)	1-21
E, A	JP 2004-273389 A (コニカミノルタホールディング ス株式会社) 2004. 09. 30, 請求項1, 段落【0039】、第8頁化合 物 (8) (ファミリーなし)	1-21
A	WO 2000/40586 A1 (チッソ株式会社) 2000. 07. 13, 化合物 (1) (ファミリーなし)	1-7, 11, 15-21