

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02012/086170

発行日 平成26年5月22日 (2014.5.22)

(43) 国際公開日 平成24年6月28日 (2012.6.28)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C07D 403/14 (2006.01)	C07D 403/14 C S P	3 K 1 0 7
C07D 405/14 (2006.01)	C07D 405/14	4 C 0 6 3
C07F 15/00 (2006.01)	C07F 15/00 E	4 H 0 3 9
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06 6 9 0	4 H 0 5 0
H01L 51/50 (2006.01)	C09K 11/06 6 6 0	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 81 頁) 最終頁に続く

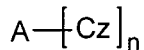
出願番号 特願2012-549629 (P2012-549629)	(71) 出願人 000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(21) 国際出願番号 PCT/JP2011/007071	
(22) 国際出願日 平成23年12月19日 (2011.12.19)	
(31) 優先権主張番号 特願2010-283490 (P2010-283490)	(74) 代理人 100086759 弁理士 渡辺 喜平
(32) 優先日 平成22年12月20日 (2010.12.20)	(74) 代理人 100112977 弁理士 田中 有子
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(74) 代理人 100141944 弁理士 佐藤 猛
	(72) 発明者 池田 潔 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
	(72) 発明者 伊藤 光則 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

最終頁に続く

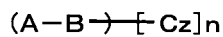
(54) 【発明の名称】 芳香族複素環誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

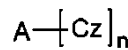
下記式(1)-1又は(1)-2で表される芳香族複素環誘導体。[式(1)-1又は(1)-2中、Aは、置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の含窒素複素環基であり、Bは、置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基であり、nは、2以上の整数であり、Czは、所定の構造を有する芳香族複素環基である。



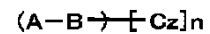
(1)-1



(1)-2

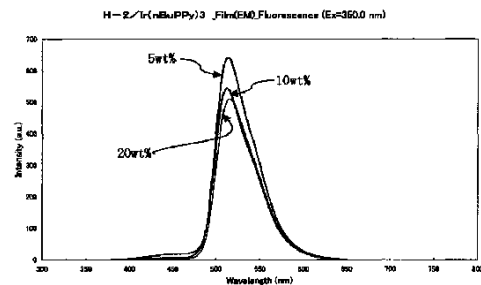


(1)-1



(1)-2

【図4】

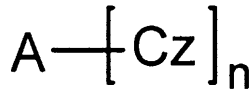


【特許請求の範囲】

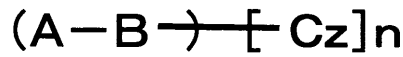
【請求項 1】

下記式(1) - 1又は(1) - 2で表される芳香族複素環誘導体。

【化 7 5】



(1)-1



(1)-2

10

[式(1) - 1又は(1) - 2中、

Aは、置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の含窒素複素環基であり、

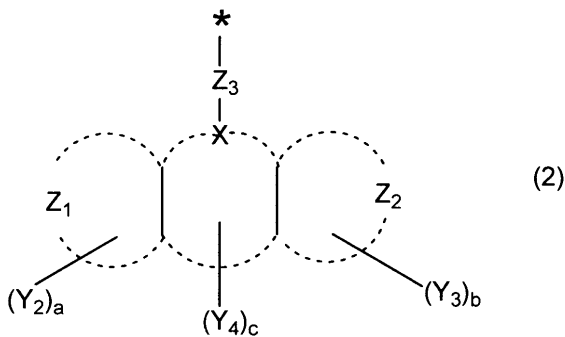
Bは、置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の芳香族複素環基であり、

nは、2以上の整数である。

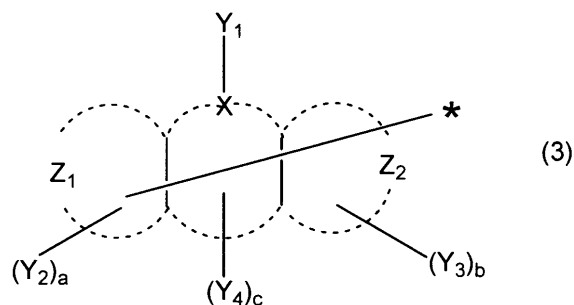
Czは、それぞれ独立に、下記式(2)又は(3)で表される芳香族複素環基である。式(1) - 1において、n個のCzは、それぞれ独立に、Aのいずれに結合してもよく、Aが置換基を有する場合、その置換基のいずれの位置に結合してもよい。式(1) - 2において、n個のCzは、それぞれ独立に、AまたはBのいずれに結合してもよく、AまたはBが置換基を有する場合、その置換基のいずれの位置に結合してもよい。

20

【化 7 6】



30



40

(式(2)又は(3)中、

*は、A又はBとの結合位置を示す。

Z₁及びZ₂は、互いに独立して、芳香族炭化水素環、芳香族複素環、又は脂肪族環を形成するのに必要な原子群であり、炭素原子、窒素原子、酸素原子及びイオウ原子からなる群から選ばれる原子から構成される。

Z₃は、単結合又は2価の連結基を示す。

Xは、式(2)においては窒素原子、式(3)においては窒素原子、酸素原子又はイオウ原子である。

Xを含んで構成される環は、X以外に炭素原子、窒素原子、酸素原子及びイオウ原子からなる群から選ばれる環を形成するのに必要な原子から構成される。

50

Z₁により形成される環は、芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環であり、形成される芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環と、Xを含んで構成される環は、各々の環を形成している2個の炭素原子を共有している。また、Z₂により形成される環は、芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環であり、Z₂により形成される芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環と、Xを含んで構成される環は、各々の環を形成している2個の炭素原子を共有している。

Y₁, Y₂, Y₃及びY₄は、互いに独立して、
水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキル基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルコキシ基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルキル基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルコキシ基

、
置換若しくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキルシリル基

、
置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールシリル基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基

からなる群から選ばれる。

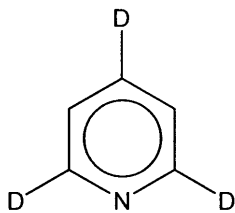
但し、式(3)において、Xが酸素原子又はイオウ原子である場合、Y₁は存在しない

a, b及びcは、互いに独立して、0又は1以上の整数である。

Y₂, Y₃及びY₄が2以上の場合、隣接するY₂, Y₃及びY₄は、それぞれ互いに結合して、置換若しくは無置換の飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。)

但し、以下の芳香族複素環誘導体は除かれる。

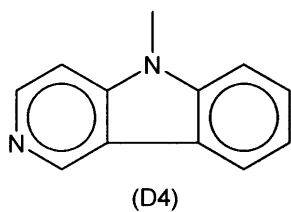
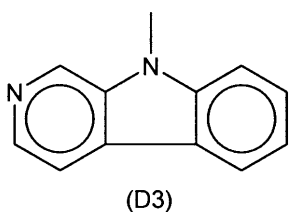
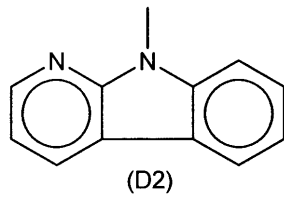
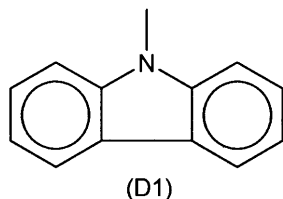
【化77】



30

(式中、Dは、互いに独立して下記基(D1)~(D4)

【化78】



40

のいずれかである。)]

【請求項2】

50

前記式(2)又は(3)で表される芳香族複素環基が、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換のアザカルバゾリル基、置換若しくは無置換のベンズカルバゾリル基、置換若しくは無置換のヒドロカルバゾリル基、置換若しくは無置換のアクリジニル基、置換若しくは無置換のインドリル基及び置換若しくは無置換のキサンテニル基からなる群から選択される請求項1に記載の芳香族複素環誘導体。

【請求項3】

前記式(2)又は(3)で表される芳香族複素環基における Y_2 及び Y_3 が、互いに独立して、置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基である請求項1又は2に記載の芳香族複素環誘導体。

【請求項4】

前記式(2)又は(3)で表される芳香族複素環基における Y_2 及び Y_3 が、互いに独立して、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換のN-フェニルカルバゾリル基及び置換若しくは無置換のジベンゾフラニル基からなる群から選択される請求項3に記載の芳香族複素環誘導体。

【請求項5】

nが2又は3である請求項1~4のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体。

【請求項6】

Aが、置換若しくは無置換のピリジン環、置換若しくは無置換のピリミジン環、置換若しくは無置換のトリアジン環、置換若しくは無置換のキノリン環、置換若しくは無置換のイソキノリン環、置換若しくは無置換のキノキサリン環又は置換若しくは無置換のキナゾリン環から誘導されるn個の基からなる群から選ばれる請求項1~5のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体。

【請求項7】

請求項1~6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項8】

請求項1~6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を溶媒に溶解してなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料溶液。

【請求項9】

陰極と陽極の間に発光層を含む複数の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも1層が請求項1~6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】

前記発光層が、請求項1~6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体をホスト材料として含む請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】

前記発光層が、燐光発光材料を含有する請求項9又は10に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】

前記燐光発光材料が、イリジウム(Ir)、オスmium(Os)及び白金(Pt)からなる群から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】

前記陰極と前記発光層の間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含む請求項9~12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】

前記陰極と前記発光層の間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が、請求項1~6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む請求項9~13のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項15】

10

20

30

40

50

前記陽極と前記発光層の間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む請求項 9 ~ 14 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 16】

前記陰極と前記有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されてなる請求項 9 ~ 15 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規な芳香族複素環誘導体、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれをを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

10

【背景技術】

【0002】

陽極と陰極との間に発光層を含む有機薄膜層を備え、発光層に注入された正孔と電子との再結合によって生じる励起子（エキシトン）エネルギーから発光を得る有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている（例えば、特許文献 1 ~ 8 参照）。

【0003】

このような有機エレクトロルミネッセンス素子は、自発光型素子としての利点を活かし、発光効率、画質、消費電力さらには薄型のデザイン性に優れた発光素子として期待されている。発光層を形成するにあたっては、ホストに、ドーパントとして発光材料をドーピングするドーピング法が知られている。

20

ドーピング法で形成した発光層では、ホストに注入された電荷から効率よく励起子を生成することができる。そして、生成された励起子の励起子エネルギーをドーパントに移動させ、ドーパントから高効率の発光を得ることができる。

【0004】

そして、近年では有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機 EL 素子とも言う）の性能向上を果たすべく、ドーピング法に関してもさらなる研究が行われており、好適なホスト材料の探索が続いている。このようなホスト材料が記載された発明として、例えば、特許文献 1 ~ 8 が挙げられる。特許文献 1 ~ 8 には、以下の化合物 I ~ V I I I に示すように、カルバゾール骨格と含窒素芳香族環を同一分子内に含む化合物及び複数のカルバゾール骨格を同一分子内に含む化合物が記載されている。

30

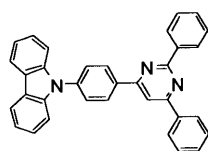
【0005】

特許文献 1 に記載の化合物 I、I I は、カルバゾール骨格がベンゼン環に結合した構造と、電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環構造とを有している。カルバゾール骨格は古くからポリビニルカルバゾールに代表されるように、正孔輸送性材料の主要骨格として知られている。また、電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環構造は反対に電子輸送能が高い構造として知られている。即ち、特許文献 1 に記載の化合物 I、I I は正孔輸送性骨格と電子輸送性骨格を組み合わせることにより、電荷輸送のバランスを取るよう考えられた材料である。

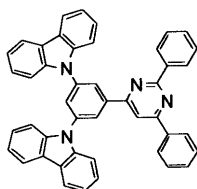
【0006】

40

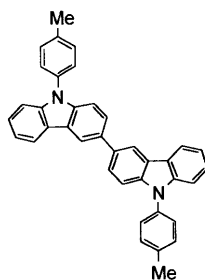
【化 1】



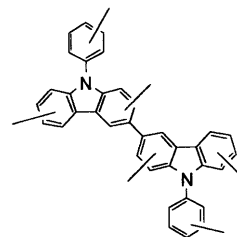
化合物 I



化合物 II

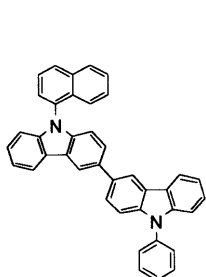


化合物 III

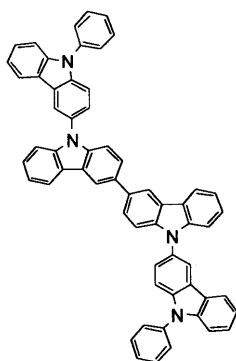


化合物 IV

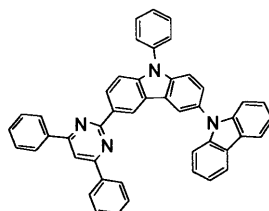
10



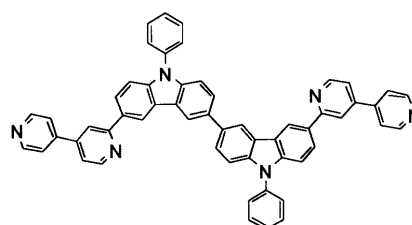
化合物 V



化合物 VI



化合物 VII



化合物 VIII

20

【0007】

しかしながら、化合物 I はカルバゾール骨格を 1 つしか有さず、正孔輸送性能が不足しているため、良好な発光特性が得られない。また、化合物 II はカルバゾリル基を 2 つ有しているが、ピリミジン環とベンゼン環（2 つの共役する芳香族環）の結合軸に対してカルバゾリル基が左右に折れた構造となっている。そのため、分子間におけるカルバゾール骨格部分の重なりが阻害され、正孔輸送能が十分でなく、電荷の再結合位置が陽極側に偏る傾向があり、良好な発光特性、寿命特性が得られないという懸念がある。

【0008】

30

そこで、分子間の重なりを大きくして十分な正孔輸送性能を発現するために、カルバゾール骨格を連結させる構造を分子内に組み込むことが考案されている。例えば、特許文献 2 - 5 に記載された化合物 III ~ VI は、2 つのカルバゾール骨格が連結された構造を有する。しかしながら、いずれも電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環構造を含まないため、正孔と電子のキャリアバランスの調整が困難となり、良好な発光特性が得られない。

【0009】

さらに、特許文献 6 に記載された化合物 VII は、電子欠乏性の含窒素ヘテロ芳香族環構造とカルバゾール連結構造を有する。しかし、2 つのカルバゾール骨格は 3 位の炭素と窒素で結合したものである。この構造では 2 つのカルバゾール骨格同士がねじれて平面性が崩れてしまうため、分子間の重なりが小さく、正孔輸送性能が十分でなくなり、良好な発光特性、寿命特性が得られないことが考えられる。

40

【0010】

特許文献 7 に記載された化合物 VIII は、含窒素芳香族複素環基であるピリジル基がカルバゾール骨格のベンゼン環に結合した構造を有する。該化合物は電子輸送層用材料として利用されているが、燐光ホスト用材料の性能に関する開示はない。しかしながら、該化合物は電子輸送性が高いことが考えられ、ホスト材料として用いた場合には発光層内のキャリアバランスが悪く、良好な発光特性を示さないことが考えられる。

【0011】

特許文献 8 においては、複素環とカルバゾール基の間に必ず連結基が必要なため、溶解性が乏しかったり、所望の物性の化合物が得られない場合がある。

50

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】WO2003-080760

【特許文献2】特許3139321号公報

【特許文献3】特許4357781号公報

【特許文献4】特開2003-151774号公報

【特許文献5】特開2008-135498号公報

【特許文献6】特開2009-21336号公報

【特許文献7】特開2008-214307号公報

【特許文献8】特開2010-040830号公報

【発明の概要】

【0013】

そこで本発明は、正孔輸送能力と電子輸送能力を併せ持ち、キャリアバランスに優れた、新規な芳香族複素環誘導体、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、及びそれを用いた長寿命の燐光発光性有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することを目的とする。特に、可溶性を有し、塗布プロセスに適した材料を提供することを目的とする。

【0014】

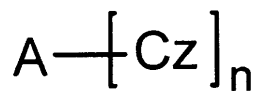
本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、2つ以上のカルバゾール誘導体残基と含窒素芳香族複素環基からなる芳香族複素環誘導体が有機EL素子の発光層内のキャリアバランスを最適化するために有効に働くことを見出し、発明を完成させたものである。

【0015】

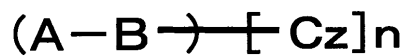
本発明によれば、以下の芳香族複素環誘導体、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料溶液及び有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。

1. 下記式(1)-1又は(1)-2で表される芳香族複素環誘導体。

【化2】



(1)-1



(1)-2

[式(1)-1又は(1)-2中、

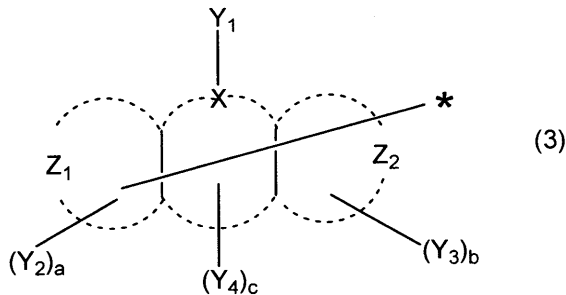
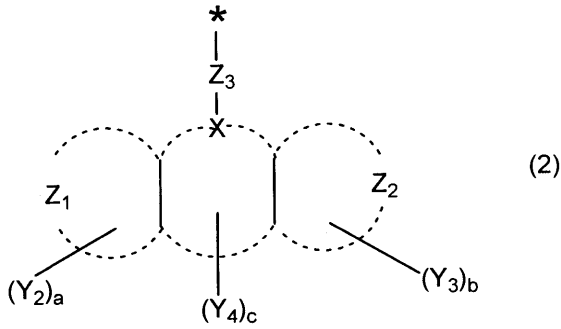
Aは、置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の含窒素複素環基であり、

Bは、置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基であり、

nは、2以上の整数である。

Czは、それぞれ独立に、下記式(2)又は(3)で表される芳香族複素環基である。式(1)-1において、n個のCzは、それぞれ独立に、Aのいずれに結合してもよく、Aが置換基を有する場合、その置換基のいずれの位置に結合してもよい。式(1)-2において、n個のCzは、それぞれ独立に、AまたはBのいずれに結合してもよく、AまたはBが置換基を有する場合、その置換基のいずれの位置に結合してもよい。

【化 3】



10

20

30

40

50

(式(2)又は(3)中、

*は、A又はBとの結合位置を示す。

Z₁及びZ₂は、互いに独立して、芳香族炭化水素環、芳香族複素環、又は脂肪族環を形成するのに必要な原子群であり、炭素原子、窒素原子、酸素原子及びイオウ原子からなる群から選ばれる原子から構成される。

Z₃は、単結合又は2価の連結基を示す。

Xは、式(2)においては窒素原子、式(3)においては窒素原子、酸素原子又はイオウ原子である。

Xを含んで構成される環は、X以外に炭素原子、窒素原子、酸素原子及びイオウ原子からなる群から選ばれる環を形成するのに必要な原子から構成される。

Z₁により形成される環は、芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環であり、形成される芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環と、Xを含んで構成される環は、各々の環を形成している2個の炭素原子を共有している。また、Z₂により形成される環は、芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環であり、Z₂により形成される芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環と、Xを含んで構成される環は、各々の環を形成している2個の炭素原子を共有している。

Y₁、Y₂、Y₃及びY₄は、互いに独立して、

水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキル基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルコキシ基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルキル基、

置換若しくは無置換の炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルコキシ基

、置換若しくは無置換の炭素数1~10の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキルシリル基

、置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30のアリールシリル基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基

からなる群から選ばれる。

但し、式(3)において、Xが酸素原子又はイオウ原子である場合、Y₁は存在しない

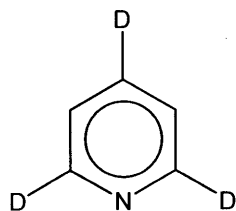
。

a, b 及び c は、互いに独立して、0 又は 1 以上の整数である。

Y₂、Y₃ 及び Y₄ が 2 以上の場合、隣接する Y₂、Y₃ 及び Y₄ は、それぞれ互いに結合して、置換若しくは無置換の飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

但し、以下の芳香族複素環誘導体は除かれる。

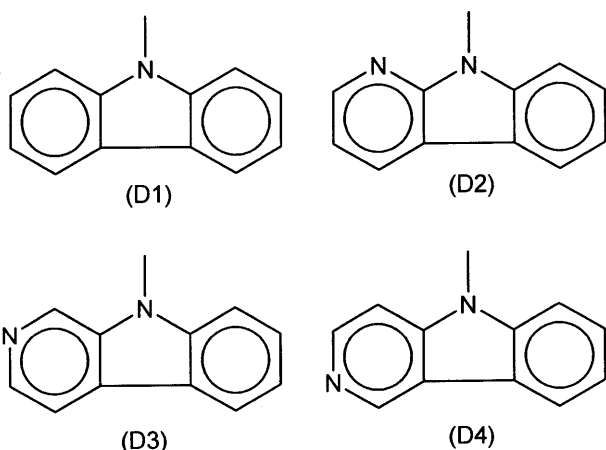
【化 4】



10

(式中、D は、互いに独立して下記基 (D1) ~ (D4))

【化 5】



20

のいずれかである。)]

2. 前記式 (2) 又は (3) で表される芳香族複素環基が、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換のアザカルバゾリル基、置換若しくは無置換のベンズカルバゾリル基、置換若しくは無置換のヒドロカルバゾリル基、置換若しくは無置換のアクリジニル基、置換若しくは無置換のインドリル基及び置換若しくは無置換のキサンテニル基からなる群から選択される 1 に記載の芳香族複素環誘導体。

30

3. 前記式 (2) 又は (3) で表される芳香族複素環基における Y₂ 及び Y₃ が、互いに独立して、置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 30 の芳香族複素環基である 1 又は 2 に記載の芳香族複素環誘導体。

4. 前記式 (2) 又は (3) で表される芳香族複素環基における Y₂ 及び Y₃ が、互いに独立して、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換の N-フェニルカルバゾリル基及び置換若しくは無置換のジベンゾフラニル基からなる群から選択される 3

40

5. n が 2 又は 3 である 1 ~ 4 のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体。

6. A が、置換若しくは無置換のピリジン環、置換若しくは無置換のピリミジン環、置換若しくは無置換のトリアジン環、置換若しくは無置換のキノリン環、置換若しくは無置換のイソキノリン環、置換若しくは無置換のキノキサリン環又は置換若しくは無置換のキナゾリン環から誘導される n 価の基からなる群から選ばれる 1 ~ 5 のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体。

7. 1 ~ 6 のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

8. 1 ~ 6 のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を溶媒に溶解してなる有機エレクトロ

50

ルミネッセンス素子用材料溶液。

9．陰極と陽極の間に発光層を含む複数の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうち少なくとも1層が1～6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

10．前記発光層が、1～6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体をホスト材料として含む9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

11．前記発光層が、燐光発光材料を含有する9又は10に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

12．前記燐光発光材料が、イリジウム(Ir)、オスmium(Os)及び白金(Pt)からなる群から選択される金属原子のオルトメタル化錯体である11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

13．前記陰極と前記発光層の間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含む9～12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

14．前記陰極と前記発光層の間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が、1～6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む9～13のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15．前記陽極と前記発光層の間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、1～6のいずれかに記載の芳香族複素環誘導体を含む9～14のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

16．前記陰極と前記有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されてなる9～15のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0016】

本発明によれば、発光効率が高く、長寿命である有機EL素子、及びそれを実現するための芳香族複素環誘導体と、それを用いた有機EL素子用材料を提供することができる。

また、可溶性の芳香族複素環誘導体については、蒸着による製膜が不可能な材料(例えば、分子量の大きな化合物、オリゴマー的な材料)についても、溶液を用いた製膜技術により、有機EL素子を作成することができる。

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】本発明の芳香族複素環誘導体H-2の薄膜の蛍光スペクトルを示すチャートである。

【図2】本発明の芳香族複素環誘導体H-3の薄膜の蛍光スペクトルを示すチャートである。

【図3】実施例5及び6で用いたドーパント(Ir(nBuPPy)₃)の蛍光スペクトル(塩化メチレン溶液中)を示すチャートである。

【図4】実施例5で製造した、ドーパント濃度が5, 10及び20wt%の薄膜の蛍光スペクトルを示すチャートである。

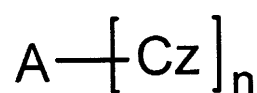
【図5】実施例6で製造した、ドーパント濃度が5, 10及び20wt%の薄膜の蛍光スペクトルを示すチャートである。

【発明を実施するための形態】

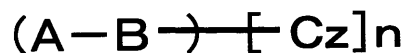
【0018】

I．下記式(1)-1又は(1)-2で表される芳香族複素環誘導体(以下、本発明の芳香族複素環誘導体という)について説明する。

【化6】



(1)-1



(1)-2

【式(1)-1又は(1)-2中、

10

20

30

40

50

Aは、置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の含窒素複素環基であり、

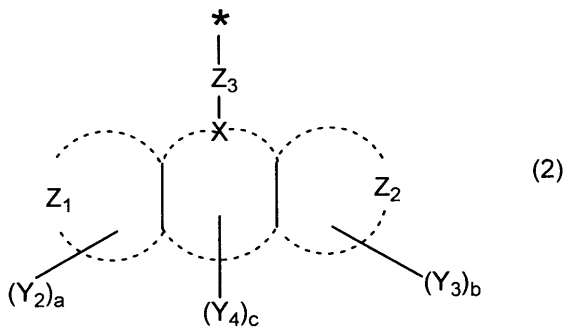
Bは、置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の芳香族複素環基であり、

nは、2以上の整数であり、2又は3であることが好ましく、2であることがより好ましい。

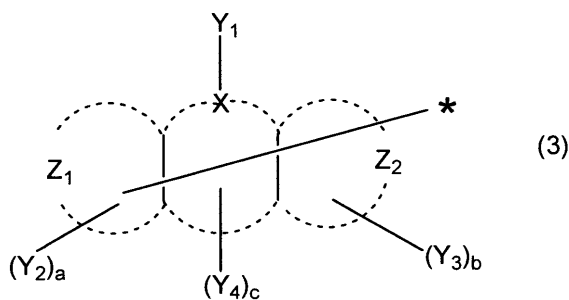
C_zは、それぞれ独立に、下記式(2)又は(3)で表される芳香族複素環基である。式(1)-1において、n個のC_zは、それぞれ独立に、Aのいずれに結合してもよく、Aが置換基を有する場合、その置換基のいずれの位置に結合してもよい。置換基を複数有する場合、n個のC_zは、それぞれ独立に、いずれの置換基に結合してもよい。この場合、これらの置換基のいずれの位置でもよい。式(1)-2において、n個のC_zは、それぞれ独立に、AまたはBのいずれに結合してもよい。その場合、AまたはBにおけるいずれの位置でもよい。また、AまたはBが置換基を有する場合、その置換基のいずれの位置に結合してもよい。AまたはBが置換基を複数有する場合、n個のC_zは、それぞれ独立に、いずれの置換基に結合してもよい。この場合、これらの置換基のいずれの位置でもよい。

10

【化7】



20



30

【0019】

式(2)又は(3)中、

*は、A又はBとの結合位置を示し、式(3)におけるA又はBとの結合位置は、Z₁を含む環、Xを含む環又はZ₂を含む環のいずれであってもよい。

尚、本明細書中において、芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基には、縮合芳香族炭化水素基及び縮合芳香族複素環基を含む。また、単環と縮合環が単結合で結合したものも含む。

40

【0020】

Z₃は、単結合又は2価の連結基を示す。2価の連結基としては、特に問わないが、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～25の芳香族炭化水素から誘導される基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数2～25芳香族複素化合物から誘導される基、さらにはそれらが単結合で結合した基が好ましい。特に好ましいものは、置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のピフェニル基、置換若しくは無置換のターフェニル基、置換若しくは無置換のナフチル基、置換若しくは無置換のフルオレニル基である。

Xは、式(2)においては窒素原子、式(3)においては窒素原子、酸素原子又はイオ

50

ウ原子である。

Xを含んで構成される環は、X以外に炭素原子、窒素原子、酸素原子及びイオウ原子からなる群から選ばれる、芳香族複素環を形成するのに必要な原子から構成される。

Z₁により形成される芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環と、Xを含んで構成される芳香族複素環は、各々の環を形成している2個の炭素原子を共有しており、また、Z₂により形成される芳香族炭化水素環、芳香族複素環又は脂肪族環と、Xを含んで構成される芳香族複素環は、各々の環を形成している2個の炭素原子を共有している。

【0021】

Y₁、Y₂、Y₃及びY₄は、互いに独立して、
水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、

10

置換若しくは無置換の炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキル基、
置換若しくは無置換の炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルコキシ基、
置換若しくは無置換の炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルキル基、
置換若しくは無置換の炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルコキシ基

、
置換若しくは無置換の炭素数1～10の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキルシリル基

、
置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールシリル基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の芳香族複素環基からなる群から選ばれる

20

。これらのうち、好ましくは、置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の芳香族複素環基である。さらに好ましいものは、置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、置換若しくは無置換のターフェニル基、置換若しくは無置換のナフチル基、置換若しくは無置換のフルオレニル基、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換のジベンゾフラニル基、置換若しくは無置換のジベンゾチオフェニル基である。とりわけ、置換若しくは無置換のN-フェニル置換カルバゾリル基、置換若しくは無置換のカルバゾリル基が好ましい。

【0022】

30

但し、式(3)において、Xが酸素原子又はイオウ原子である場合、Y₁は存在しない。

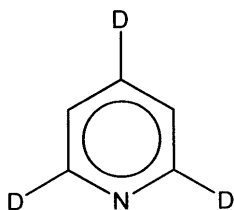
a、b及びcは、互いに独立して、0又は1以上の整数である。

Y₂、Y₃及びY₄が2以上の場合、隣接するY₂、Y₃及びY₄は、それぞれ互いに結合して、置換若しくは無置換の飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

【0023】

但し、以下の芳香族複素環誘導体は除かれる。

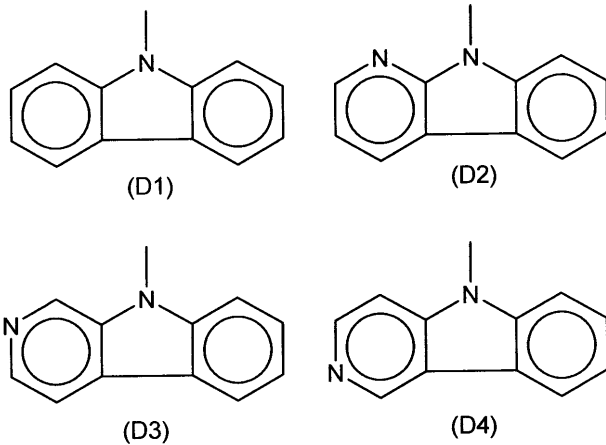
【化8】



40

式中、Dは、互いに独立して下記基(D1)～(D4)のいずれかである。

【化9】



10

【0024】

以下、各基の好ましい例について説明する。

(1) A：置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の含窒素複素環基

置換若しくは無置換の、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、インドール環、インダゾール環、ベンズイミダゾール環、キノリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、シンノリン環、キノキサリン環、キナゾリン環、イミダゾピリジン環等から選ばれる含窒素芳香族環から誘導されるn個の基が好ましい。さらには、置換若しくは無置換の、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、キノキサリン環、フタラジン環、又はキナゾリン環から誘導されるn個の基が好ましく、特に、置換若しくは無置換のピリミジン環又はトリアジン環から誘導されるn個の基が好ましい。

20

【0025】

置換若しくは無置換の、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、キノキサリン環、フタラジン環、又はキナゾリン環から誘導されるn個の基はそれぞれ、下記式で表されることがより好ましい。

30

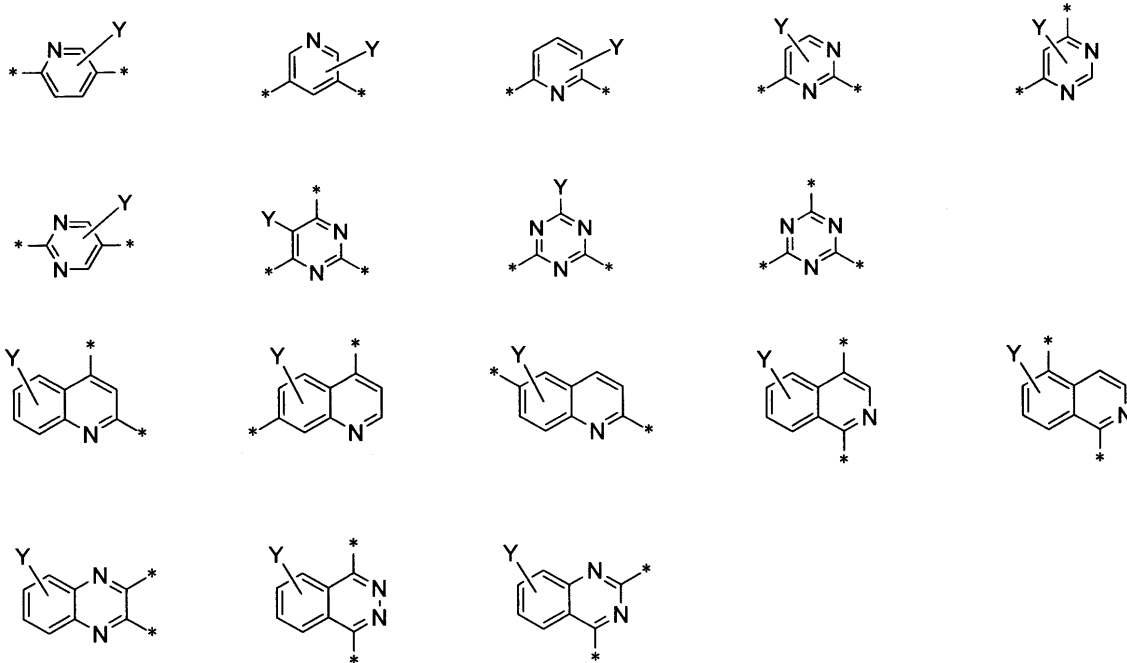
ここでYは置換基を表す。置換基の例は後述する。また、Yは複数であってもよく、Yが複数ある場合は、互いに同一でも異なってもよい。後述する置換基の例の中でもYとして好ましいのは、置換若しくは無置換の環形成炭素数6～30の芳香族炭化水素基、特に好ましいものは置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、置換若しくは無置換のターフェニル基、置換若しくは無置換のナフチル基、置換若しくは無置換のフルオレニル基であり、置換若しくは無置換の環形成炭素数2～30の芳香族複素環基、特に好ましいものは置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換のジベンゾフラニル基である。

尚、C_zがAと結合する場合、Aの基のいずれの位置でもよいが、以下の式において、*で示す位置が好ましい。

40

【0026】

【化 1 0】



10

【 0 0 2 7】

20

(2) B : 置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 30 の芳香族複素環基

環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基としては、例えば、ベンゼン、ナフタレン、ピフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレン、トリフェニレン、ペリレン、クリセン、フルオランテン、ベンゾフルオレン、ベンゾトリフェニレン、ベンゾクリセン、アントラセン等の芳香族炭化水素から誘導される基が挙げられ、ベンゼン、ナフタレン、ピフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレンから誘導される基が好ましい。

【 0 0 2 8】

30

環形成炭素数 2 ~ 30 の芳香族複素環基としては、例えば、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、チエニル基、及びピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、インドール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサソール環、ピペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環から形成される基等が挙げられ、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環から形成される基が好ましい。

40

尚、Cz が B と結合する場合、B の基のいずれの位置でもよい。

(3) Cz : 前記式 (2) 又は (3) で表される芳香族複素環基

具体的には、例えば、以下の i) ~ vii) の基が好ましく挙げられる。

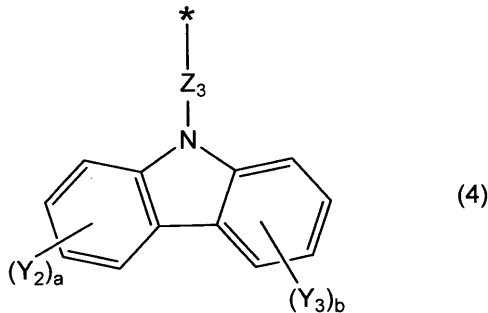
i) カルバゾリル誘導體基

下記式 (4) ~ (6) で表される基が好ましい。

尚、以下の式中、* は、A 又は B との結合位置を表す。

【 0 0 2 9】

【化 1 1】



10

【0030】

式(4)中、 Y_2 及び Y_3 は互いに独立して、水素原子、重水素原子、フッ素原子、シアノ基、

置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキル基、
置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルコキシ基、
置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルキル基、
置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルコキシ基

置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキルシリル基

20

置換若しくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリアルシリル基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、及び

置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基からなる群から選択される原子又は基を表す。

【0031】

中でも、 Y_2 及び Y_3 は、それぞれ独立に、置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 30 の芳香族複素環基が好ましく、具体的には、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換の N - フェニルカルバゾリル基又は置換若しくは無置換のジベンゾフランル基が好ましい。

これら Y_2 及び Y_3 が式(4)に結合する位置については、 Y_2 及び Y_3 におけるいずれの位置であってもよい。

30

【0032】

Z_3 は、単結合又は 2 価の連結基を示す。 Z_3 が 2 価の連結基である場合の具体例としては、

無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキレン基、

置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキレンオキシ基、

置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルキレン基、

置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルコキシレン基、

40

置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキルシリレン基、

置換若しくは無置換の炭素数 6 ~ 30 のアリアルシリレン基、

置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、及び

置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 ~ 10 の芳香族複素環基からなる群から選択される基が挙げられる。

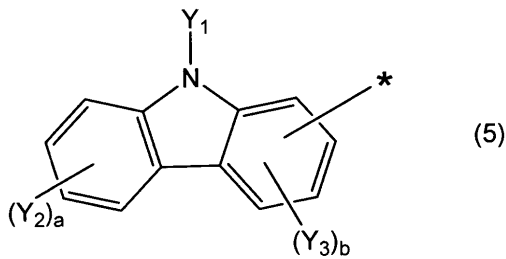
これらのうち、特に好ましいものは、置換若しくは無置換のフェニレン基、置換若しくは無置換のピフェニレン基、置換若しくは無置換のターフェニレン基、置換若しくは無置換のナフチレン基、置換若しくは無置換のフルオレニレン基である。

a 及び b は、互いに独立して、0 又は 1 以上の整数であるが、0 又は 1 が好ましい。

50

【 0 0 3 3 】

【 化 1 2 】



10

【 0 0 3 4 】

上記式(5)中、 Y_2 及び Y_3 は互いに独立して、式(4)に示した通りである。 Y_2 及び Y_3 は、置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基が好ましく、具体的には、置換若しくは無置換のカルbazolリル基、置換若しくは無置換のN-フェニルカルbazolリル基又は置換若しくは無置換のジベンゾフラニル基が好ましい。これら Y_2 及び Y_3 が式(5)に結合する位置については、 Y_2 及び Y_3 におけるいずれの位置であってもよい。

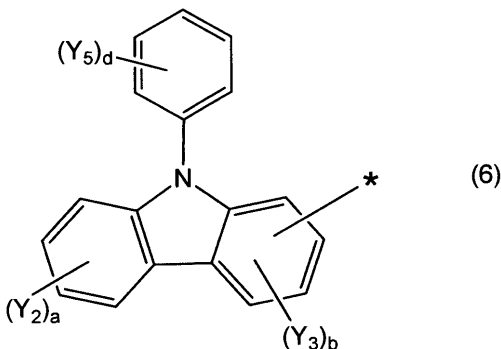
【 0 0 3 5 】

Y_1 は、式(4)に示した Y_2 及び Y_3 と同様である。 Y_1 は、置換若しくは無置換の環形成炭素数6~30の芳香族炭化水素基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2~10の芳香族複素環基が好ましい。 Y_1 が式(5)の窒素原子に結合する位置については、 Y_1 におけるいずれの位置であってもよい。

20

【 0 0 3 6 】

【 化 1 3 】



30

【 0 0 3 7 】

上記式(6)中、 Y_2 及び Y_3 は互いに独立して、式(4)に示した通りである。さらには、 Y_2 又は Y_3 は、置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基が好ましく、具体的には、置換若しくは無置換のカルbazolリル基、置換若しくは無置換のN-フェニルカルbazolリル基又は置換若しくは無置換のジベンゾフラニル基が好ましい。これら Y_2 及び Y_3 が式(6)に結合する位置については、 Y_2 及び Y_3 におけるいずれの位置であってもよい。

40

Y_5 は、式(4)に示した Y_2 及び Y_3 と同様である。 Y_5 が式(6)のフェニル基に結合する位置については、 Y_5 におけるいずれの位置であってもよい。

式(4)~(6)において、a及びbは、互いに独立して、0~4の整数であり、dは、0~5の整数である。

【 0 0 3 8 】

ii) アザカルbazolリル誘導体基

【化14】



【0039】

Aへの結合位置は、どこでもよい。即ち、いずれかの炭素原子でAと結合する場合、及び、いずれかの窒素原子でAと結合する場合のいずれであってもよい。

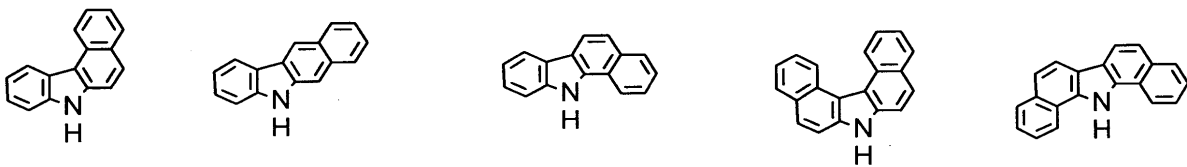
また、上記のアザカルバゾリル誘導体基は、いずれかの炭素原子又は窒素原子上に後述する置換基を有していてもよい。

10

【0040】

iii)ベンズカルバゾリル誘導体基

【化15】



Aへの結合位置は、どこでもよい。即ち、いずれかの炭素原子でAと結合する場合、及び、窒素原子でAと結合する場合のいずれであってもよい。

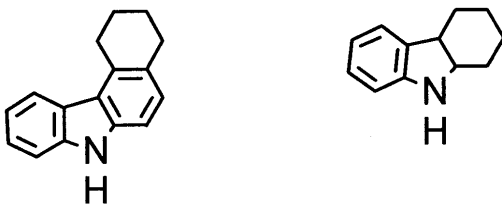
20

また、上記のベンズカルバゾリル誘導体基は、いずれかの炭素原子又は窒素原子上に後述する置換基を有していてもよい。

【0041】

iv)ヒドロカルバゾリル誘導体基

【化16】



30

【0042】

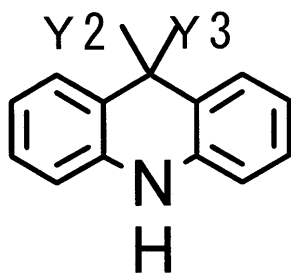
Aへの結合位置は、どこでもよい。即ち、いずれかの炭素原子でAと結合する場合、及び、窒素原子でAと結合する場合のいずれであってもよい。

また、上記のヒドロカルバゾリル誘導体基は、いずれかの炭素原子又は窒素原子上に後述する置換基を有していてもよい。

【0043】

v)アクリジニル誘導体基

【化17】



40

【0044】

Aへの結合位置は、どこでもよい。即ち、いずれかの炭素原子でAと結合する場合、及

50

び、窒素原子でAと結合する場合のいずれであってもよい。

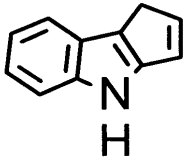
上記式中、 Y_2 及び Y_3 は互いに独立して、式(4)に示した通りである。

また、上記のヒドロカルボゾリル誘導体基は、いずれかの炭素原子又は窒素原子上に後述する置換基を有していてもよい。

【0045】

vi) インドリル基

【化18】



10

【0046】

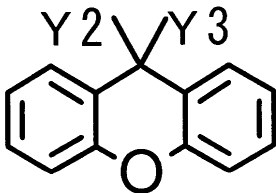
Aへの結合位置は、どこでもよい。即ち、いずれかの炭素原子でAと結合する場合、及び、窒素原子でAと結合する場合のいずれであってもよい。

また、上記のヒドロカルボゾリル誘導体基は、いずれかの炭素原子又は窒素原子上に後述する置換基を有していてもよい。

【0047】

vii) キサンテニル基

【化19】



20

【0048】

Aへの結合位置は、どこでもよい。即ち、いずれの炭素原子でAと結合してもよい。

上記式中、 Y_2 及び Y_3 は互いに独立して、式(4)に示した通りである。

また、上記のキサンテニル誘導体基は、いずれかの炭素原子上に後述する置換基を有していてもよい。

30

【0049】

(4) 上記i)~vii)に示した芳香族複素環基は、置換基として芳香族複素環基、特に、置換若しくは無置換の、カルボゾリル基又はジベンゾフラニル基を有することが好ましい。置換基が上記i)~vii)に示した芳香族複素環基に結合する位置は、置換基についてもまた上記i)~vii)に示した芳香族複素環基についても、特に限定されない。

【0050】

式(2)又は(3)で表される C_z は、置換若しくは無置換のカルボゾリル基、置換若しくは無置換のアザカルボゾリル基、置換若しくは無置換のベンズカルボゾリル基、置換若しくは無置換のヒドロカルボゾリル基、置換若しくは無置換のアクリジニル基、置換若しくは無置換のインドリル基及び置換若しくは無置換のキサンテニル基からなる群から選択されることが好ましい。

40

【0051】

式(2)又は(3)で表される C_z における Y_2 及び/又は Y_3 は、置換若しくは無置換の環形成炭素数2~30の芳香族複素環基であることが好ましい。

【0052】

(5) 各基の説明

前記炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状又は環状の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、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル

50

基、n - ノニル基、n - デシル基、n - ウンデシル基、n - ドデシル基、n - トリデシル基、n - テトラデシル基、n - ペンタデシル基、n - ヘキサデシル基、n - ヘプタデシル基、n - オクタデシル基、ネオペンチル基、1 - メチルペンチル基、2 - メチルペンチル基、1 - ペンチルヘキシル基、1 - ブチルペンチル基、1 - ヘプチルオクチル基、3 - メチルペンチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3, 5 - テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

【0053】

前記炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルコキシ基としては、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基が好ましく、具体的には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基等が挙げられる。

10

【0054】

前記炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルキル基としては、例えば、前記炭素数 1 ~ 20 のアルキル基が 1 以上のハロゲンで置換されたものが挙げられる。

【0055】

前記炭素数 1 ~ 20 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のハロアルコキシ基としては、例えば、前記炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基が 1 以上のハロゲンで置換されたものが挙げられる。

【0056】

前記炭素数 1 ~ 10 の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基、ジメチルエチルシリル基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチルプロピルシリル基、ジメチルブチルシリル基、ジメチルターシャリーブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基等が挙げられる。

20

【0057】

前記環形成炭素数 6 ~ 30 のアリールシリル基としては、例えば、フェニルジメチルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、ジフェニルターシャリーブチルシリル基、トリフェニルシリル基等が挙げられる。

【0058】

前記環形成炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基としては、例えば、ベンゼン、ナフタレン、ピフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレン、トリフェニレン、ペリレン、クリセン、フルオランテン、ベンゾフルオレン、ベンゾトリフェニレン、ベンゾクリセン、アントラセン等の芳香族炭化水素化合物から誘導される基等が挙げられる。特に、ベンゼン、ナフタレン、ピフェニル、ターフェニル、フルオレンから誘導される基が好ましい。

30

【0059】

前記環形成炭素原子数 2 ~ 30 の芳香族複素環基としては、例えば、ピロリル基、ピラジニル基、ピリジニル基、インドリル基、イソインドリル基、フリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、チエニル基、及びピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、インドール環、キノリン環、アクリジン環、ピロリジン環、ジオキサソール環、ペペリジン環、モルフォリン環、ピペラジン環、カルバゾール環、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、チアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラン環、ジベンゾフラン環等から形成される基等が挙げられる。特にカルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基が好ましい。とりわけ N - フェニルカルバゾリル基が好ましい。

40

【0060】

(6) 置換基の説明

本明細書において、「置換又は無置換の」という場合、又は「置換基」という場合にお

50

ける置換基としては、上記、「各基の説明」に記載した基が挙げられる。置換基が各基に結合する位置については問わない。即ち、各基のいずれの位置において、置換基のいずれの位置が結合してもよい。

【0061】

(7)式(1) - 1又は(1) - 2で表わされる芳香族複素環誘導体の好ましい例は以下の通りである。

【化20】

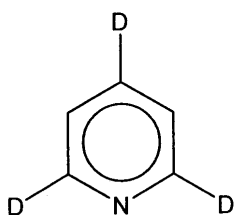


10

【0062】

(8)下記芳香族複素環誘導体は、上記式(1)に包含されるが、本発明の芳香族複素環誘導体からは除外される。

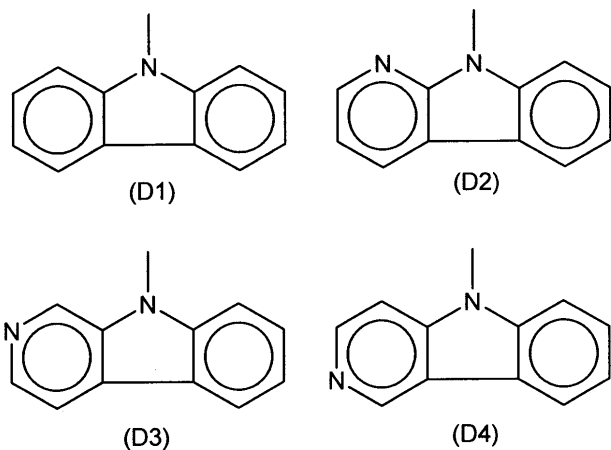
【化21】



20

式中、Dは、互いに独立して下記基(D1)~(D4)のいずれかである。

【化22】



30

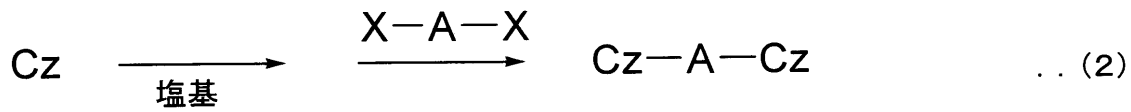
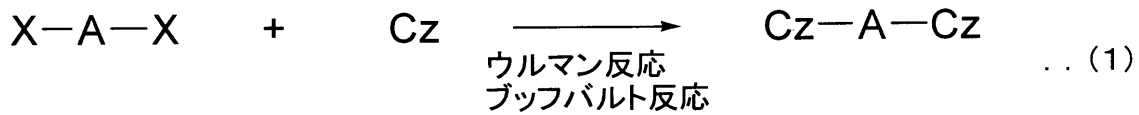
【0063】

(9)本発明の芳香族複素環誘導体の製造方法

本発明の芳香族複素環誘導体の製造方法は、特に限定されない。一般的に行われるハロゲン化合物とカルバゾールのウルマン反応やブッフバルト反応、さらには、カルバゾールの水素を水素化ナトリウム(NaH)や炭酸カリウムなどの塩基で引き抜き、塩を生成させてから、ハロゲン化合物を反応させる方法等を用いることができる。

40

【化23】



【0064】

10

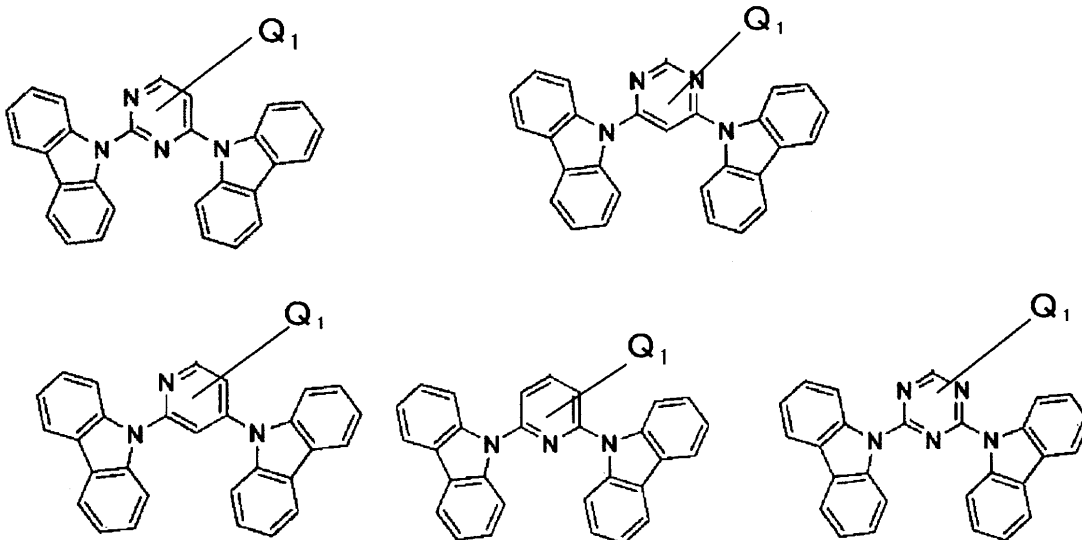
(10) また、本発明の芳香族複素環誘導体のうち、以下の化合物は好ましくない。

i) 式(1)で表わされる芳香族複素環誘導体のうち、以下の化合物

ここで Q_1 は、置換基を示す。特に、置換基(特にカルバゾリル基)を有するフェニル基、置換基を有するフルオレニル基、置換基(特にカルバゾリル基、フェニル基及び/又はピリジル基)を有するピリジル基又はカルバゾリル基である。

【0065】

【化24】



20

30

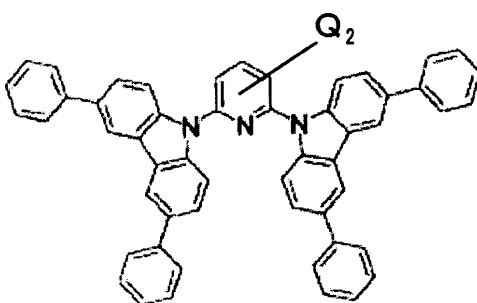
【0066】

ii) 式(1)で表わされる芳香族複素環誘導体

ここで Q_2 は、水素原子又は置換基を示す。特に、置換基(特にフェニル基)を有するピリミジル基である。

【0067】

【化25】

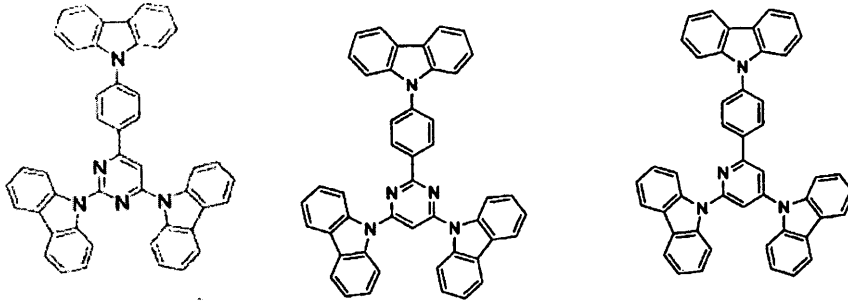


40

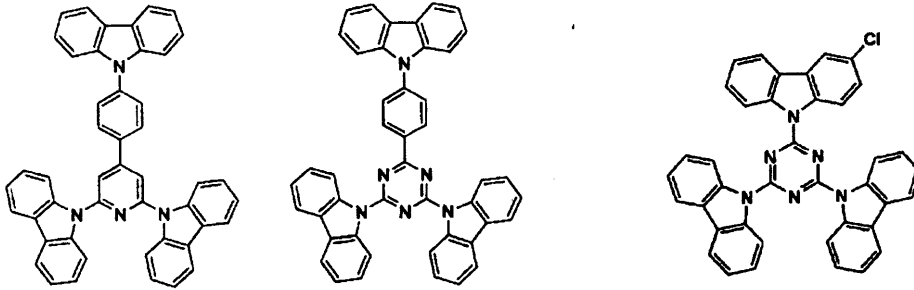
【0068】

iii) 好ましくない化合物は、具体的には、以下の化合物が挙げられる。

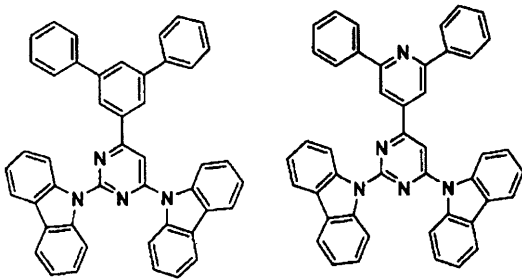
【化 2 6】



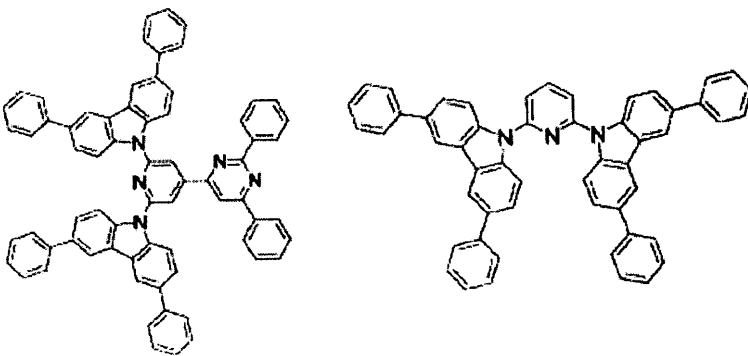
10



20



30



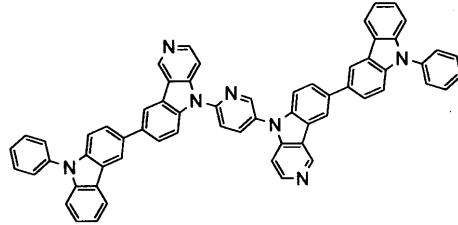
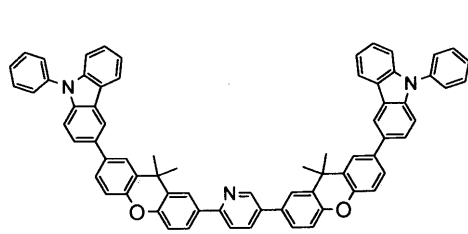
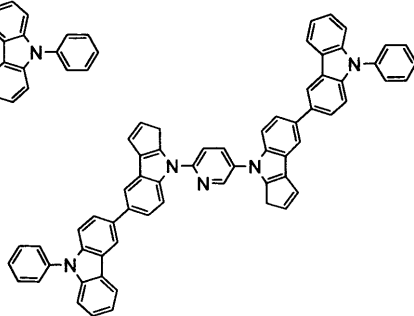
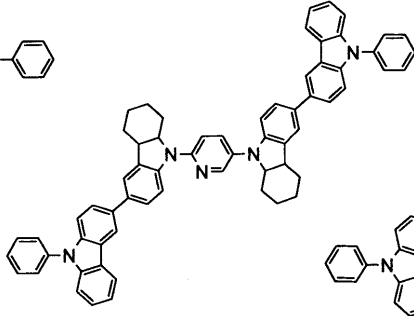
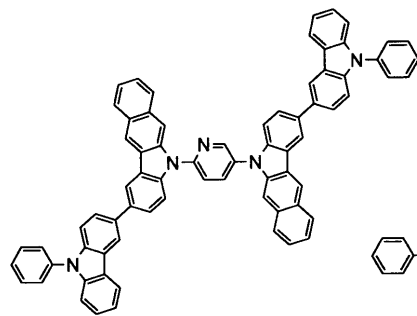
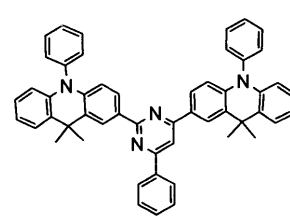
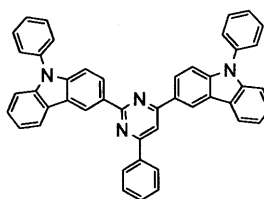
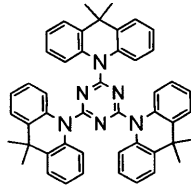
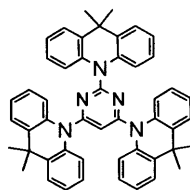
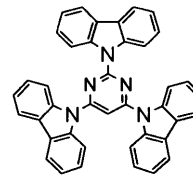
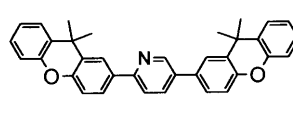
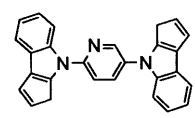
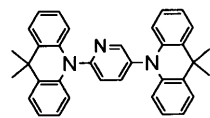
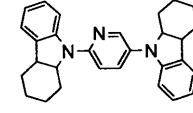
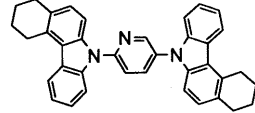
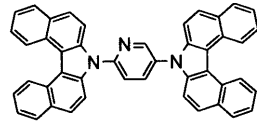
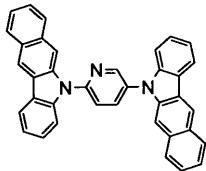
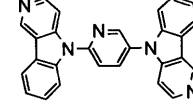
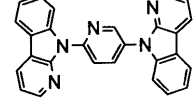
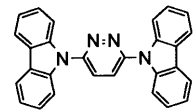
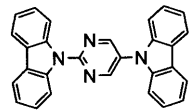
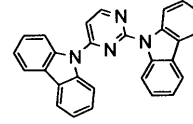
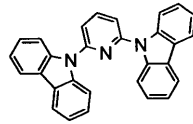
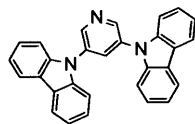
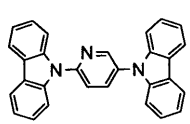
40

【 0 0 6 9 】

I I . 本発明の芳香族複素環誘導体の例示

以下に、本発明の芳香族複素環誘導体の具体例を示す。

【化 27】



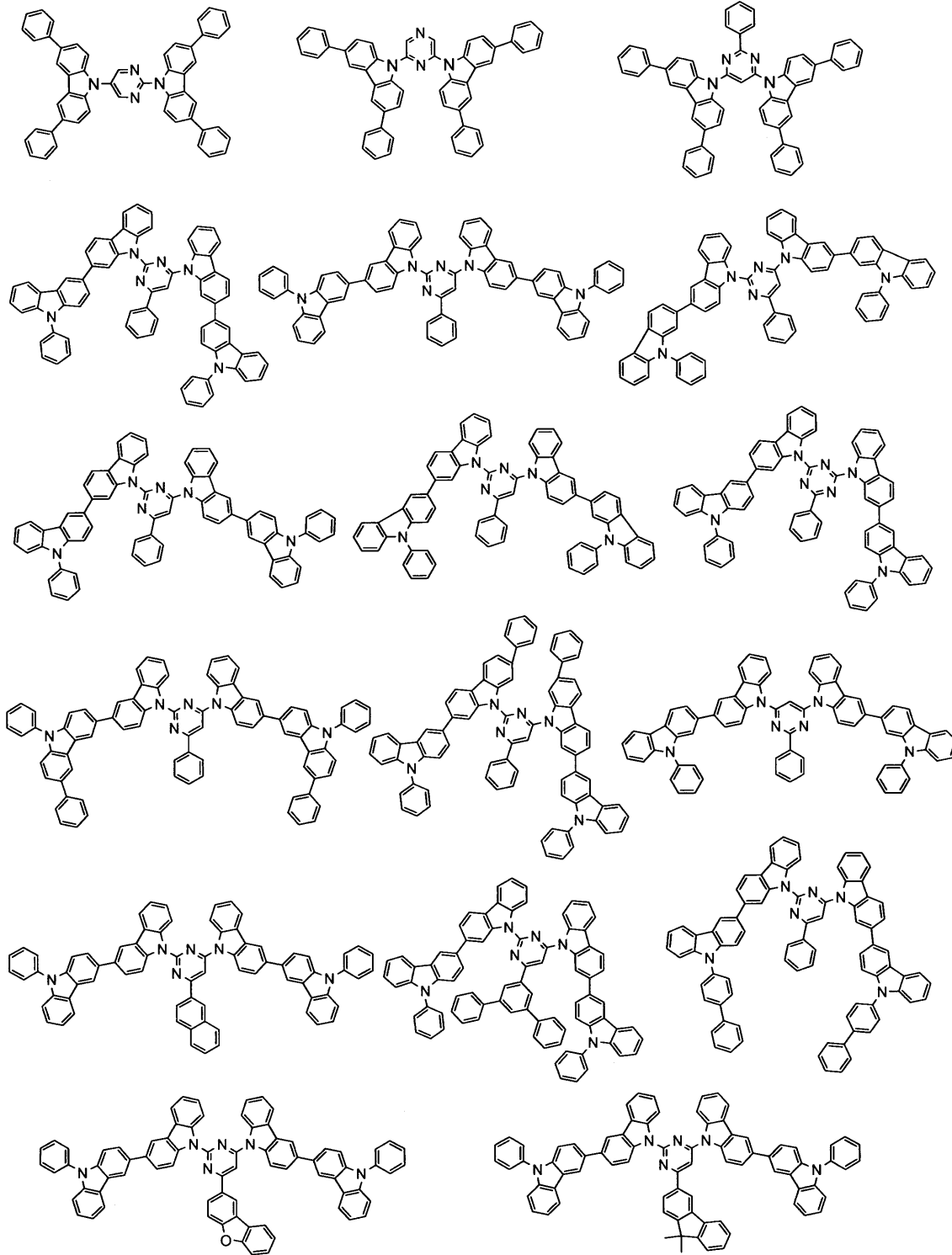
10

20

30

40

【化 2 8】



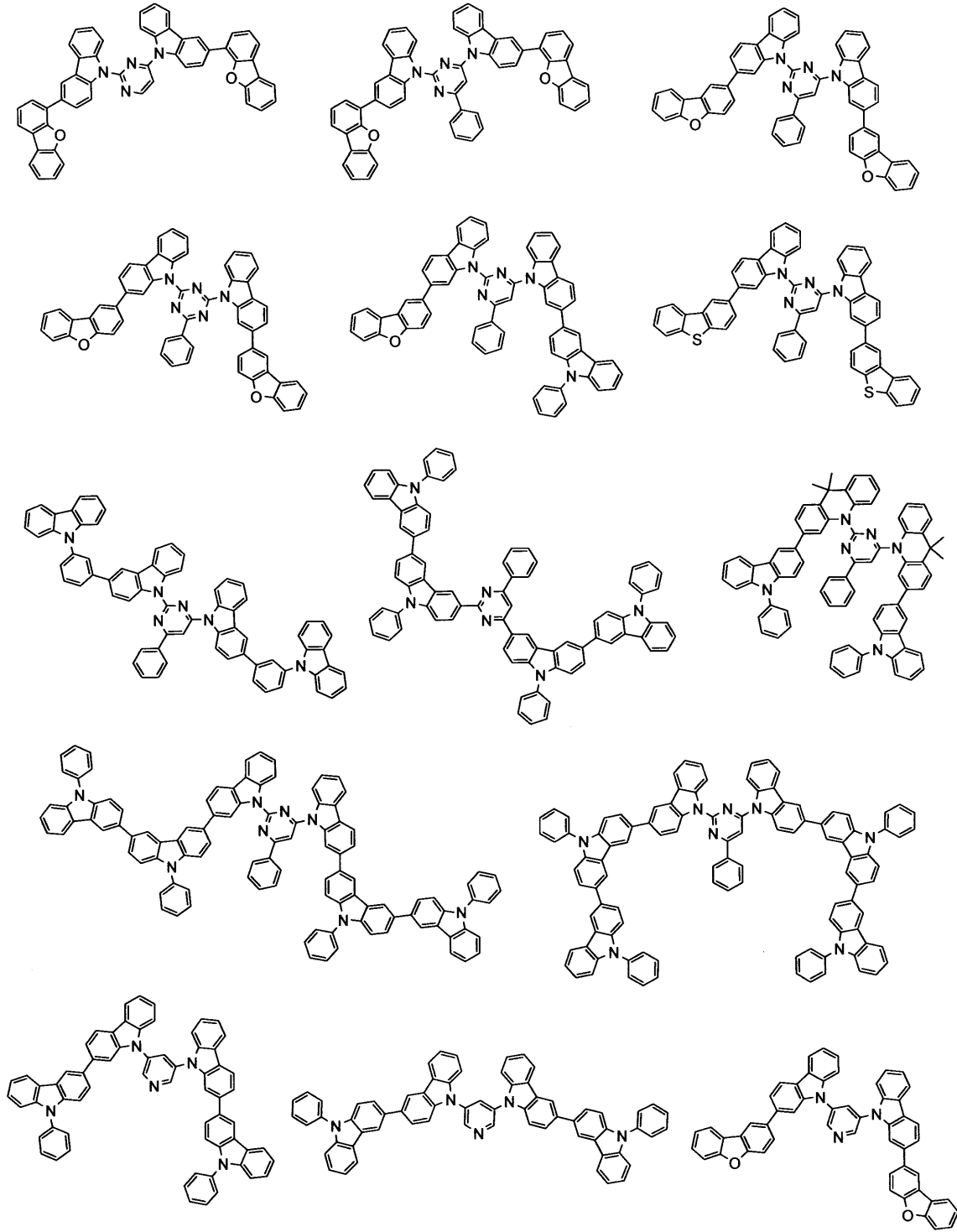
10

20

30

40

【化 29】



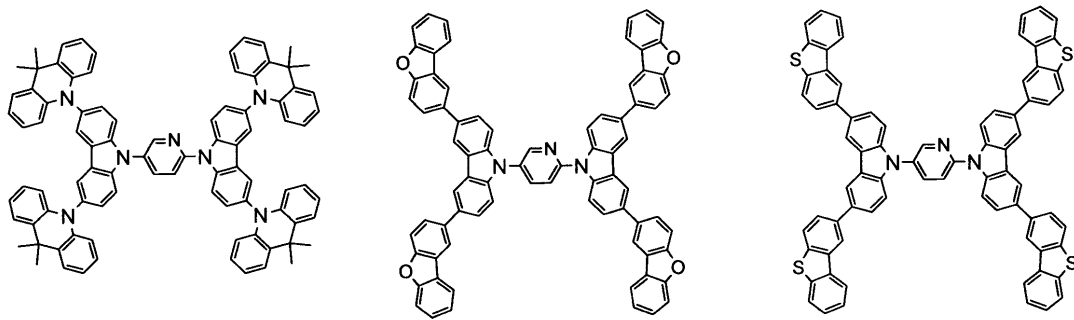
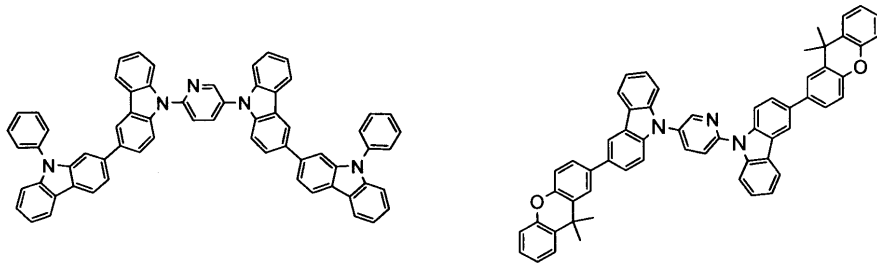
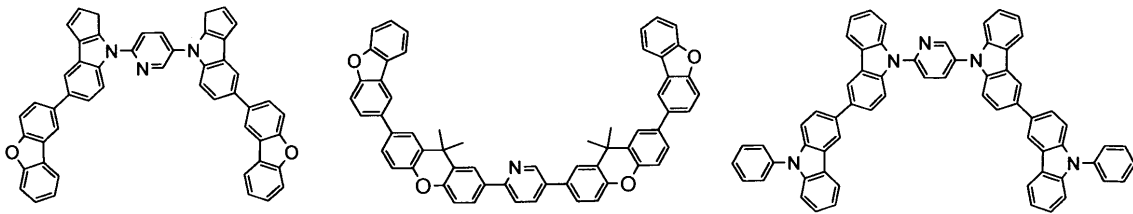
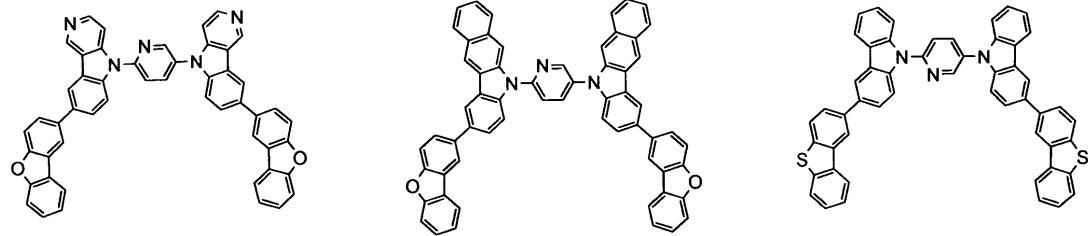
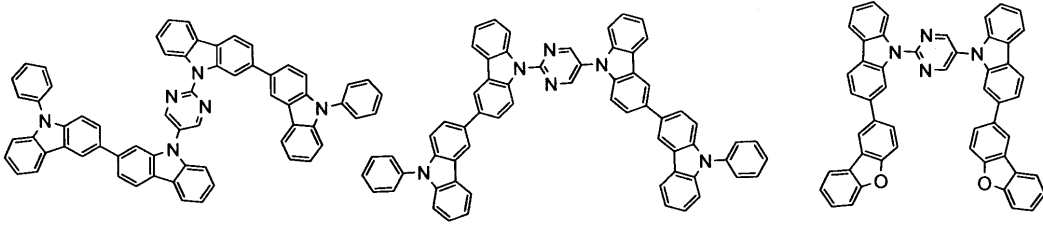
10

20

30

40

【化 3 0】



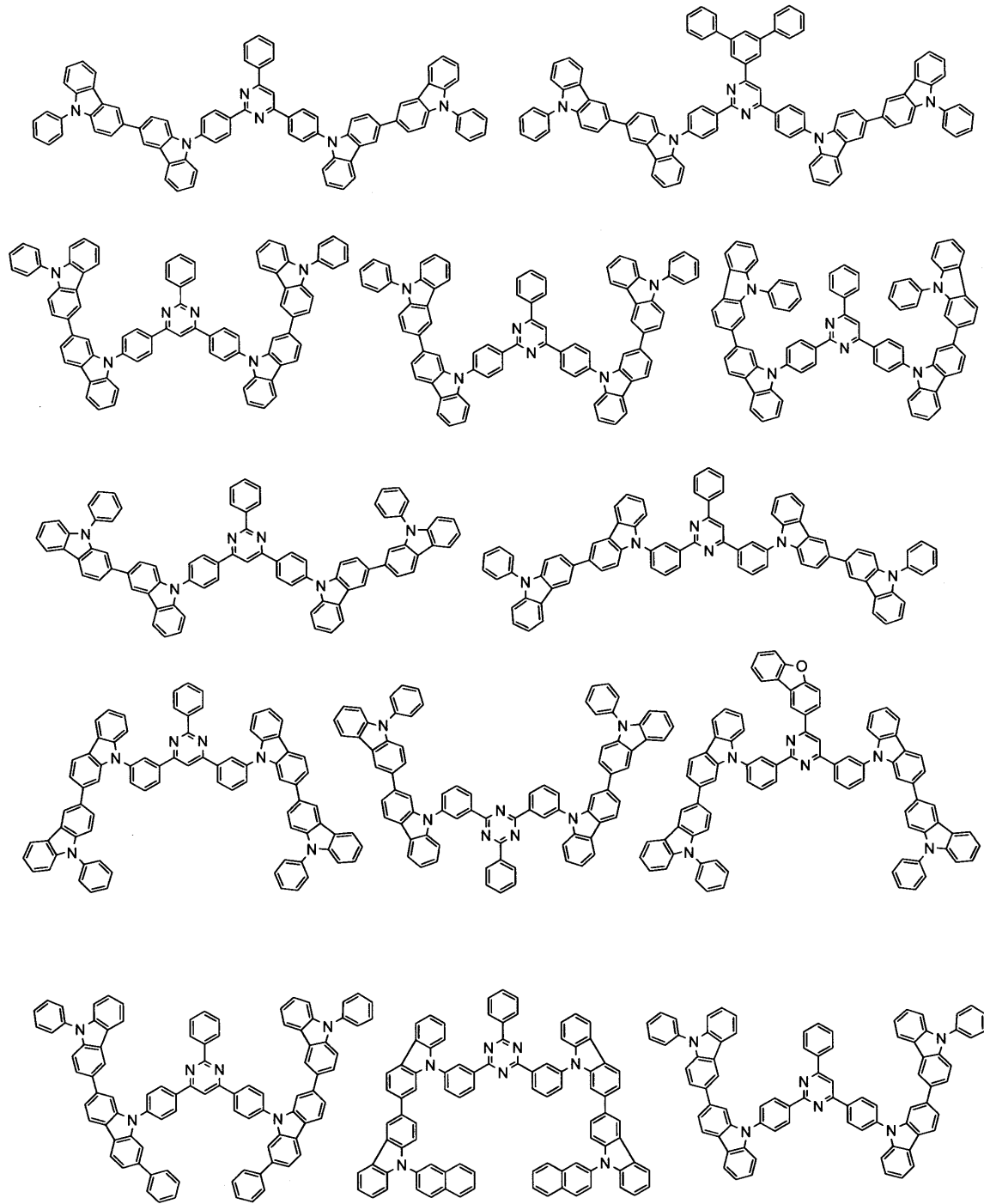
10

20

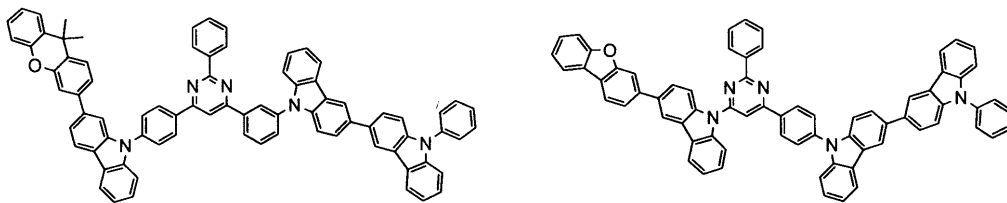
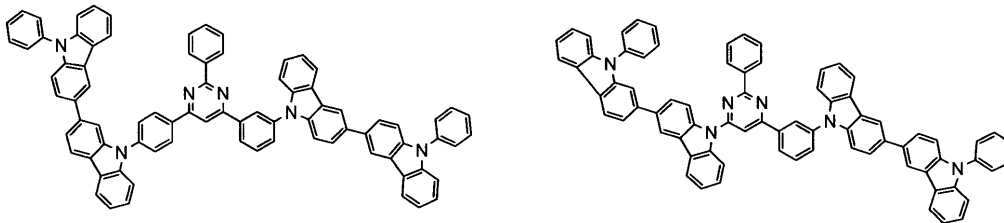
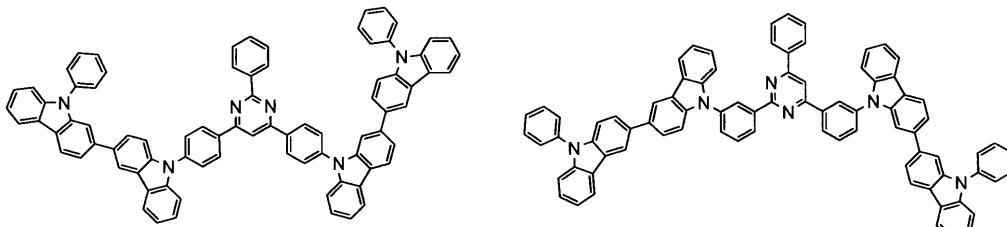
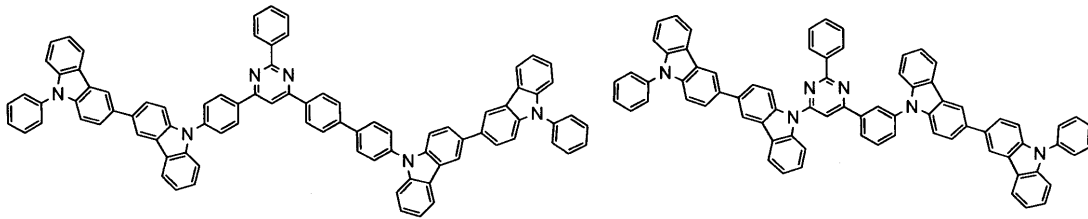
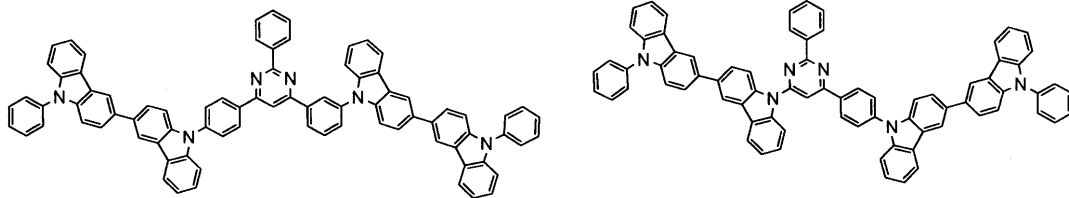
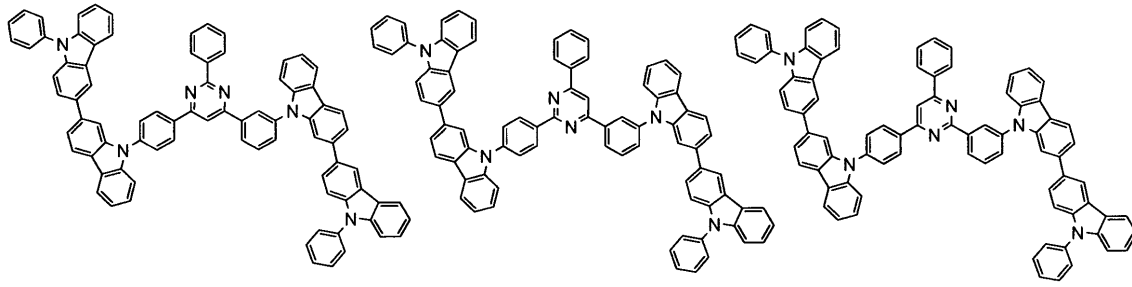
30

40

【化 3 1】



【化 3 2】



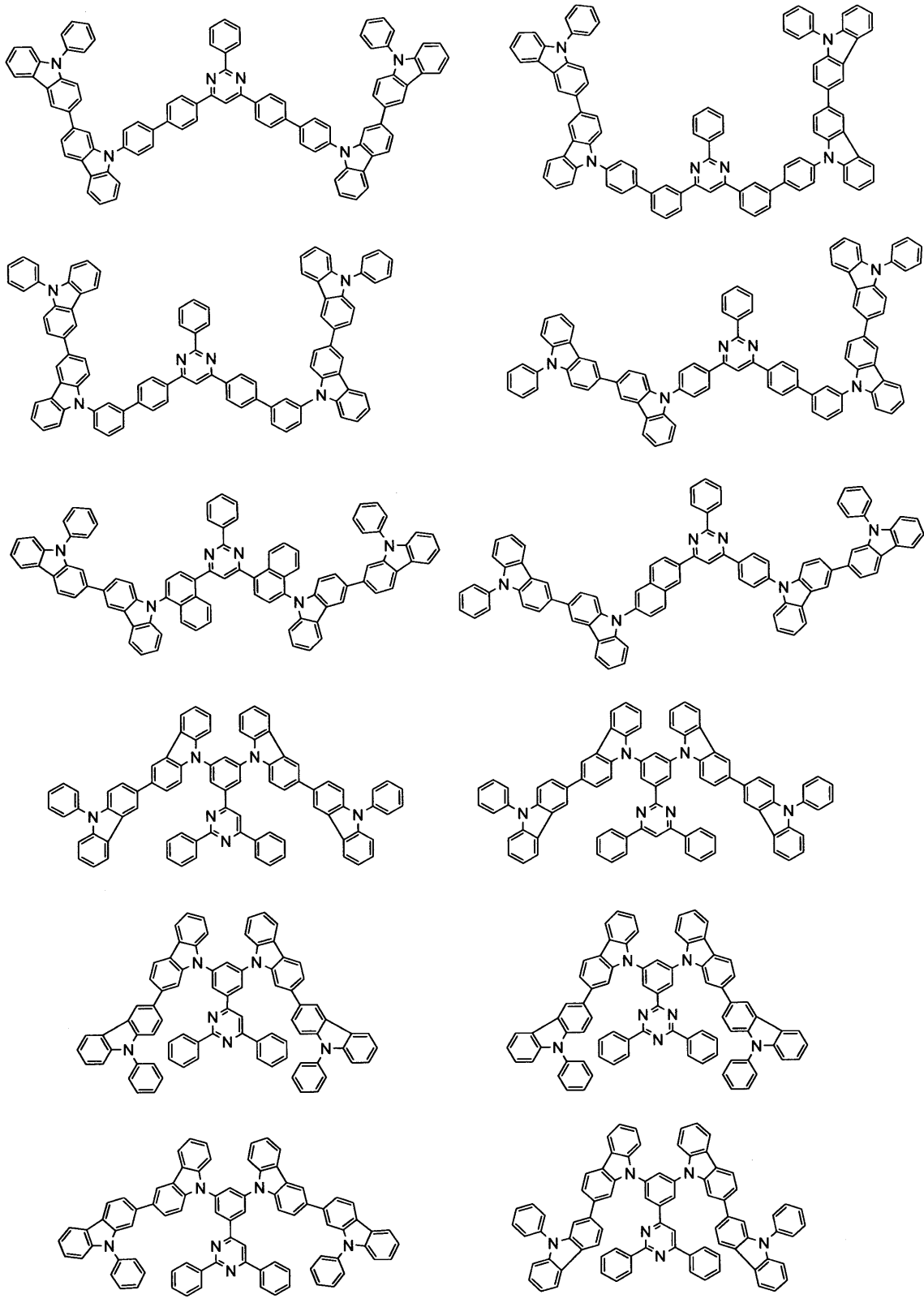
10

20

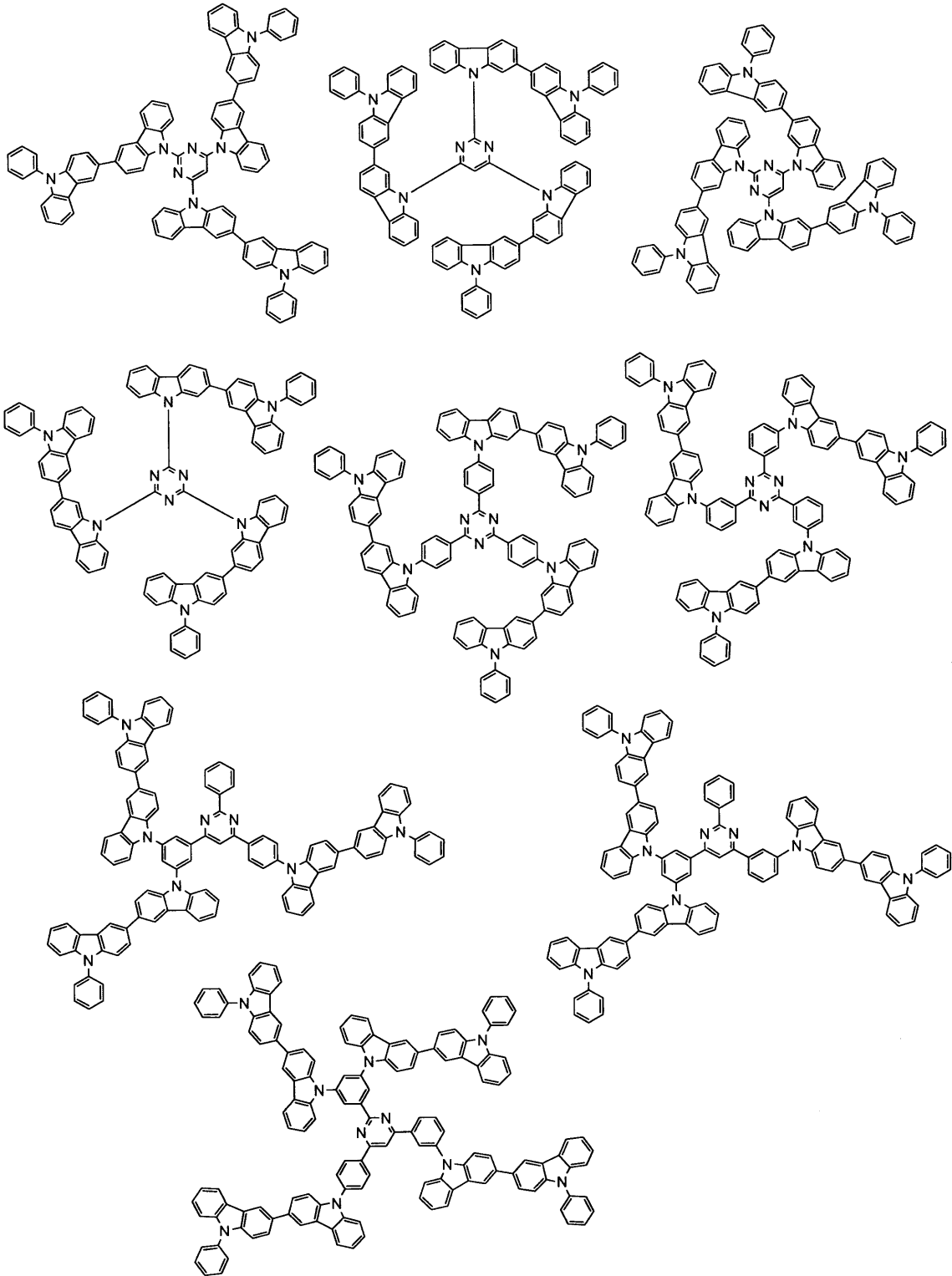
30

40

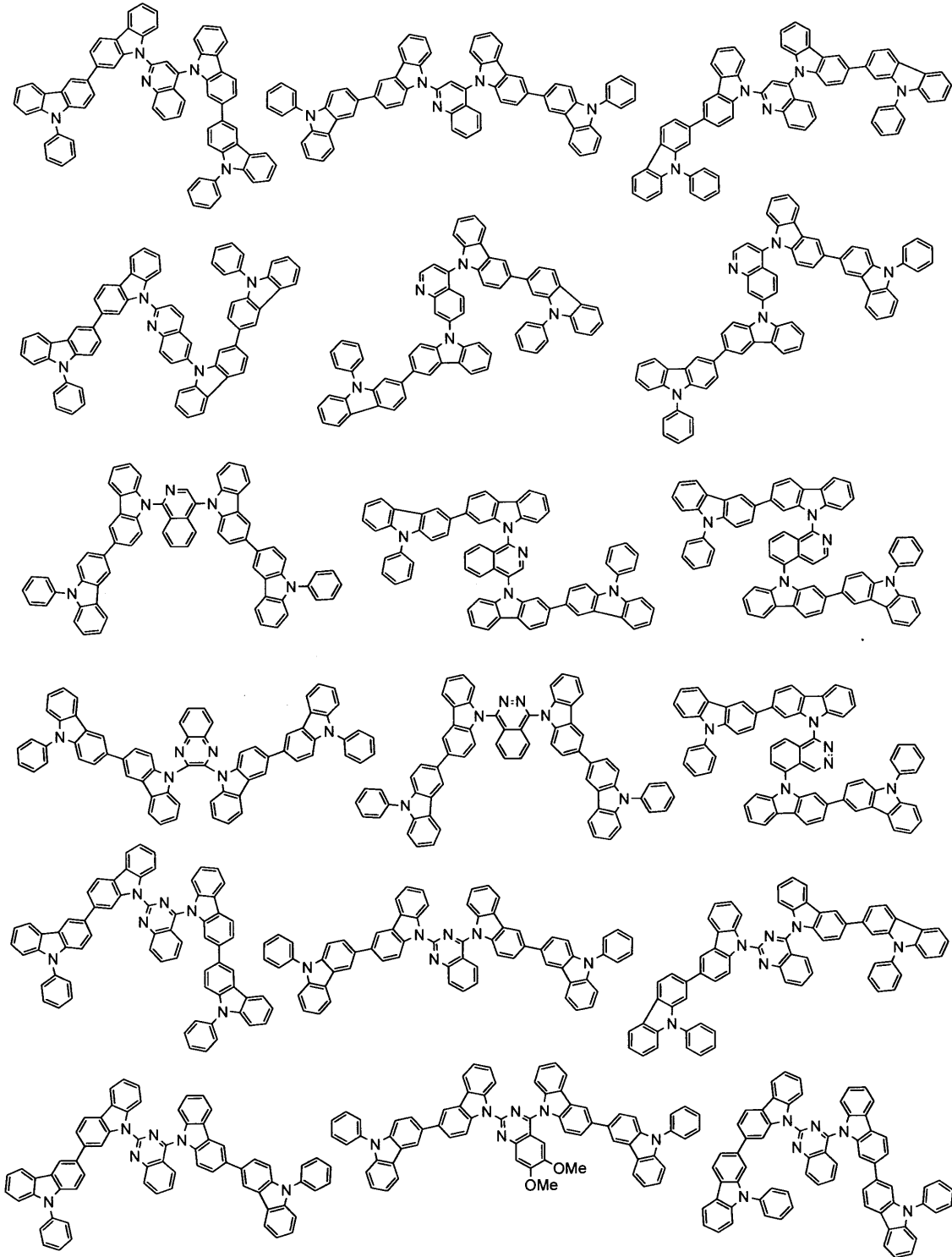
【化 3 3】



【化 3 4】



【化 3 5】



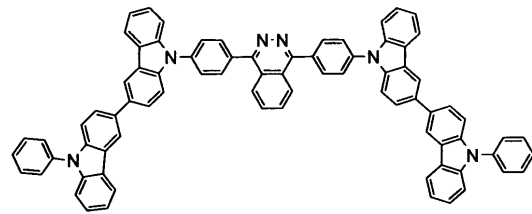
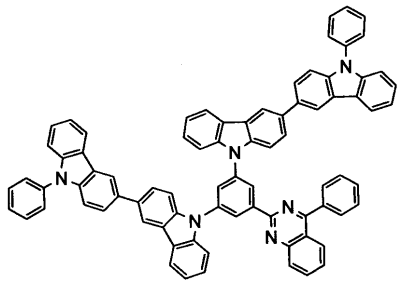
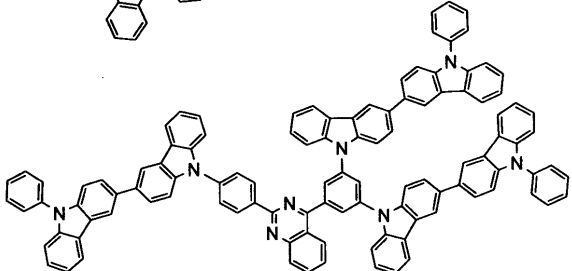
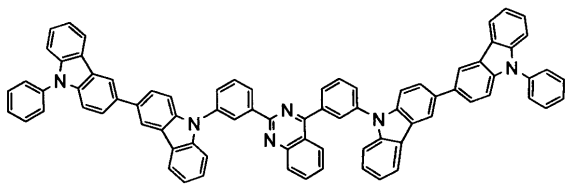
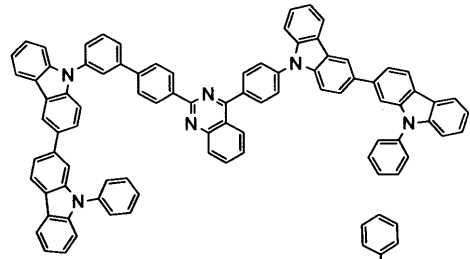
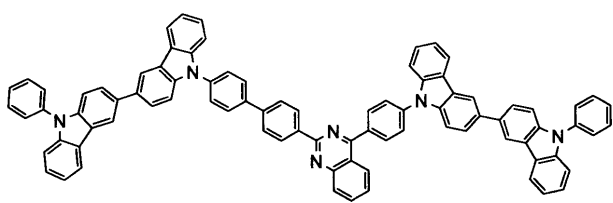
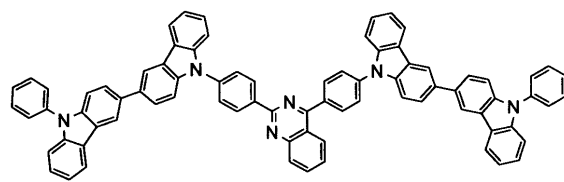
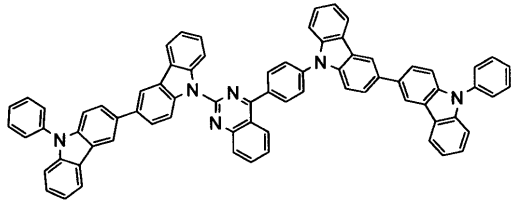
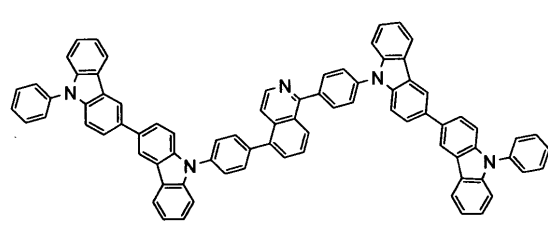
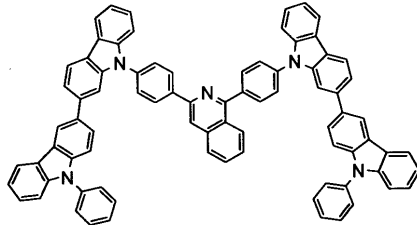
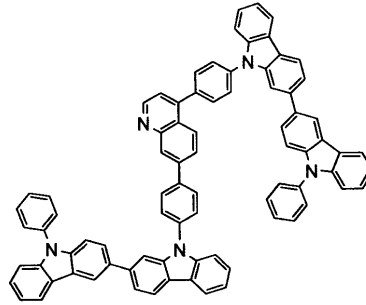
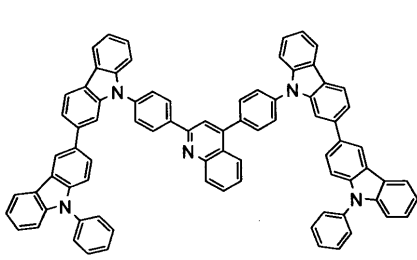
10

20

30

40

【化 3 6】



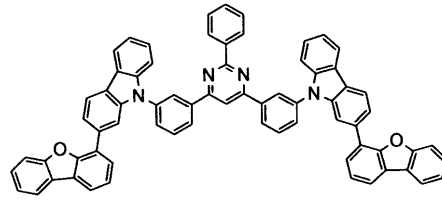
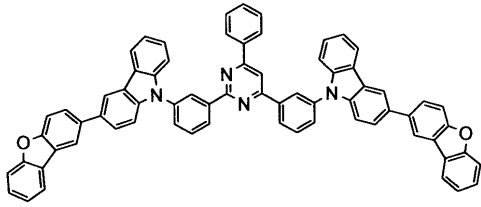
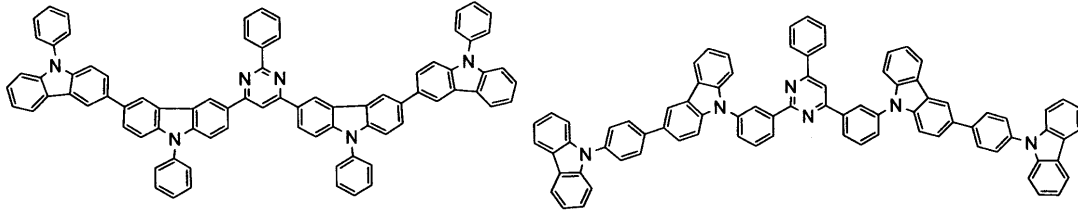
10

20

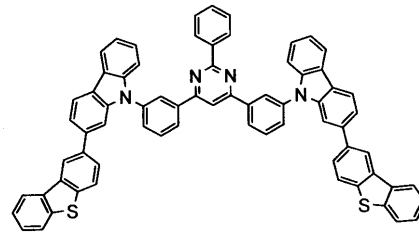
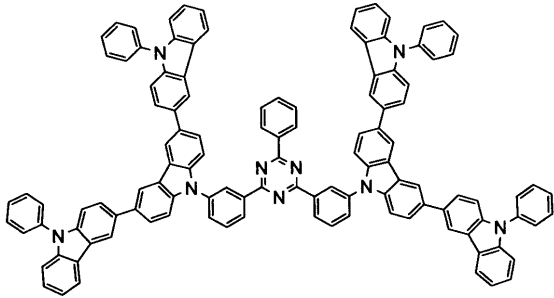
30

40

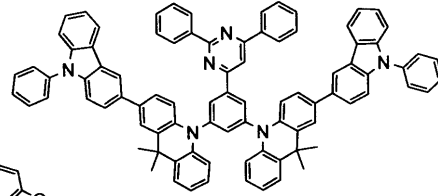
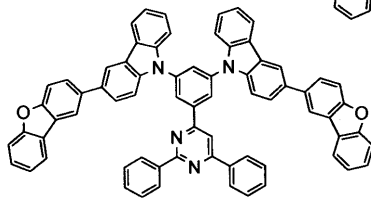
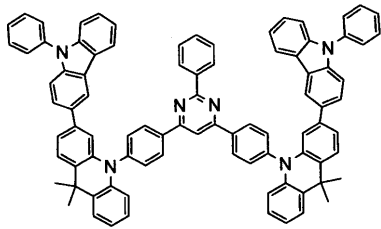
【化 3 7】



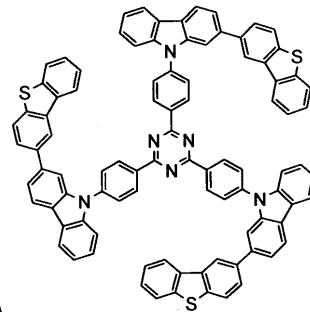
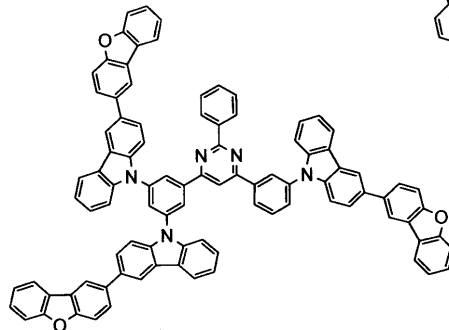
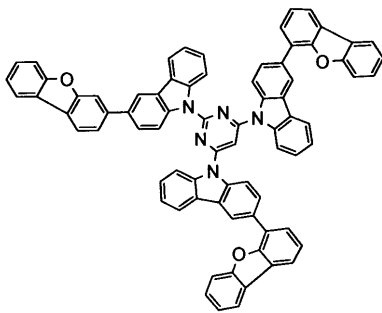
10



20

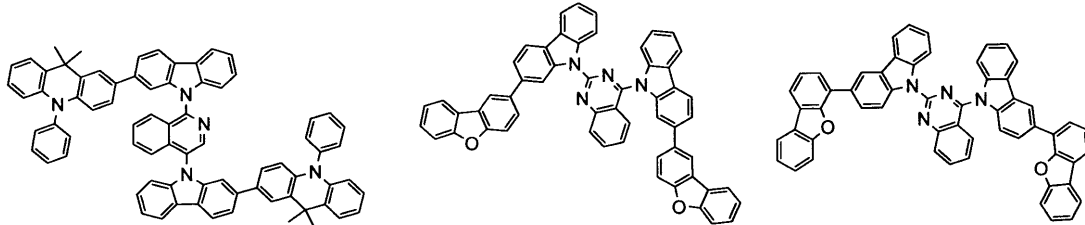
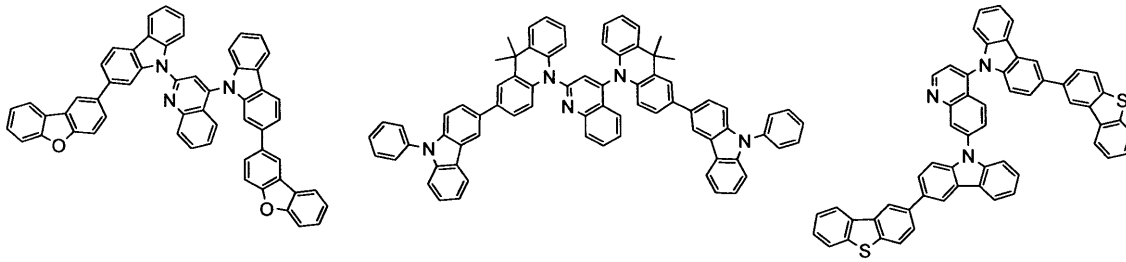


30

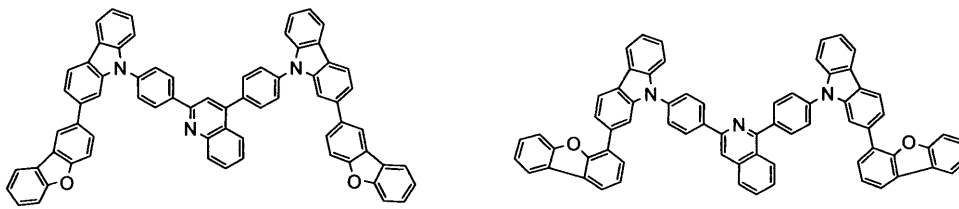


40

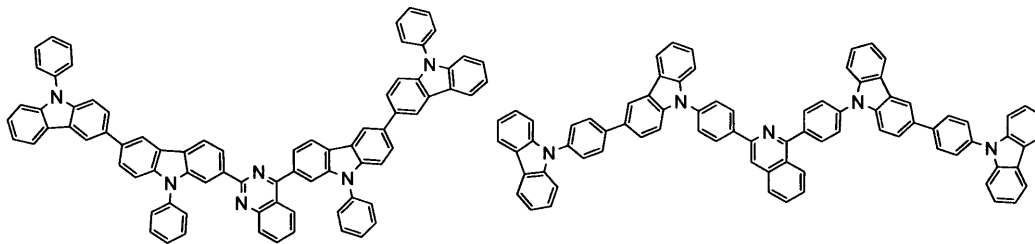
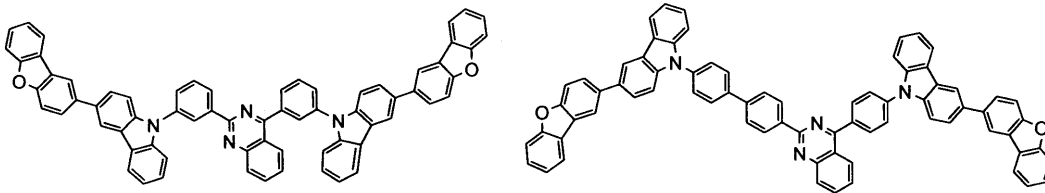
【化 3 8】



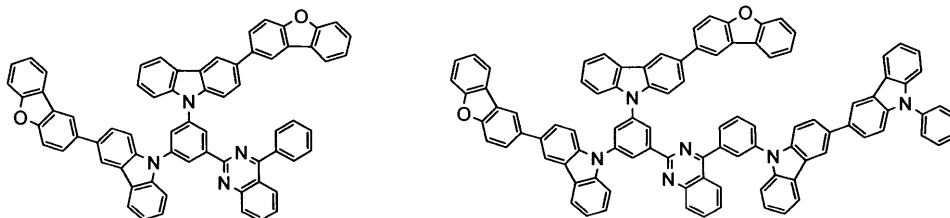
10



20

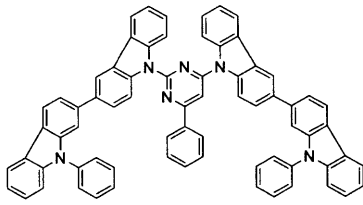


30

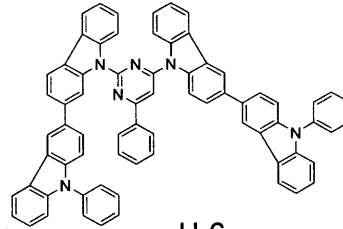


40

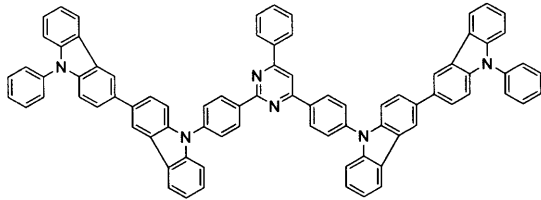
【化 3 9】



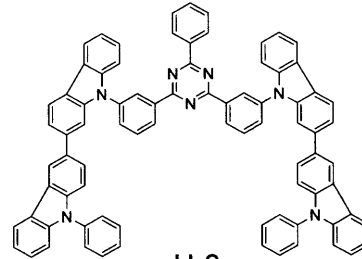
H-5



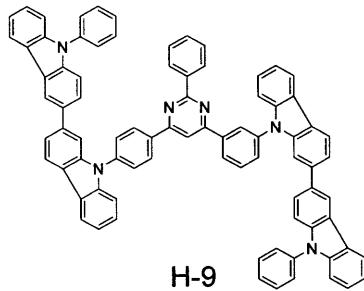
H-6



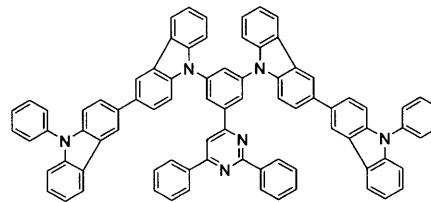
H-7



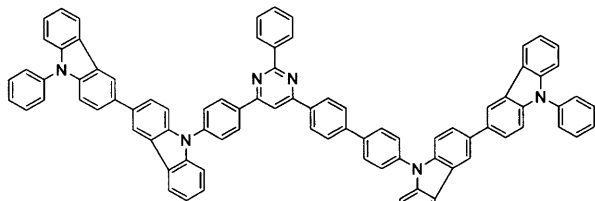
H-8



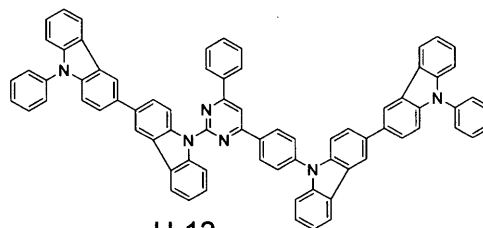
H-9



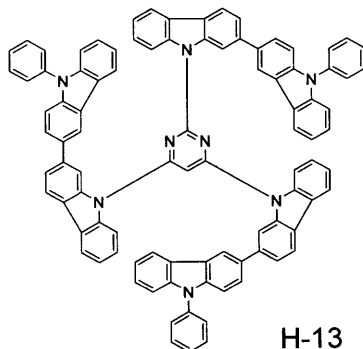
H-10



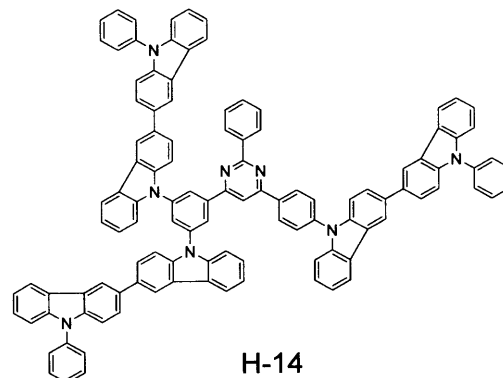
H-11



H-12



H-13



H-14

【 0 0 7 0 】

III . 本発明の有機EL素子用材料及び有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子用材料は、前述した本発明の芳香族複素環誘導体を含むことを特徴とする。

本発明の有機EL素子用材料溶液は、本発明の芳香族複素環誘導体を溶媒に溶解してなることを特徴とする。

10

20

30

40

50

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極の間に発光層を含む複数の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層のうちの少なくとも1層が本発明の芳香族複素環誘導体を含むことを特徴とする。

【0071】

本発明の芳香族複素環誘導体は、本発明の有機EL素子の有機薄膜層のうち、少なくとも一層に含有される。特に本発明の芳香族複素環誘導体は発光層におけるホスト材料又は電子輸送層、正孔輸送層に係る材料として用いた場合、素子の高発光効率、長寿命化が期待できる。

【0072】

<第1の実施形態>

多層型の有機EL素子の構造としては、例えば、

- (1) 陽極 / 正孔輸送層 (正孔注入層) / 発光層 / 陰極
- (2) 陽極 / 発光層 / 電子輸送層 (電子注入層) / 陰極
- (3) 陽極 / 正孔輸送層 (正孔注入層) / 発光層 / 電子輸送層 (電子注入層) / 陰極
- (4) 陽極 / 正孔輸送層 (正孔注入層) / 発光層 / 正孔障壁層 / 電子輸送層 (電子注入層) / 陰極

等の多層構成で積層したものが挙げられる。

【0073】

本発明の有機EL素子において、前記発光層が、本発明の芳香族複素環誘導体をホスト材料として含有すると好ましい。また、前記発光層が、ホスト材料と燐光発光材料からなり、該ホスト材料が本発明の芳香族複素環誘導体であると好ましい。

【0074】

また、本発明の芳香族複素環誘導体は、燐光発光材料と共に用いるホスト材料又は燐光発光材料と共に用いる電子輸送材料であってもよく、最低励起3重項エネルギーが2.2 ~ 3.2 eVであると好ましく、2.5 ~ 3.2 eVであるとより好ましい。「3重項エネルギー」とは、最低励起3重項状態と基底状態のエネルギー差をいう。

【0075】

燐光発光材料としては、燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、イリジウム (Ir)、オスミウム (Os)、ルテニウム (Ru) 又は白金 (Pt) を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、ルテニウム錯体、白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体がより好ましく、イリジウム、オスミウムOs及び白金Ptから選択される金属原子のオルトメタル化錯体が最も好ましい。イリジウム錯体、オスミウム錯体、ルテニウム錯体、白金錯体等の金属錯体の具体例を以下に示す。

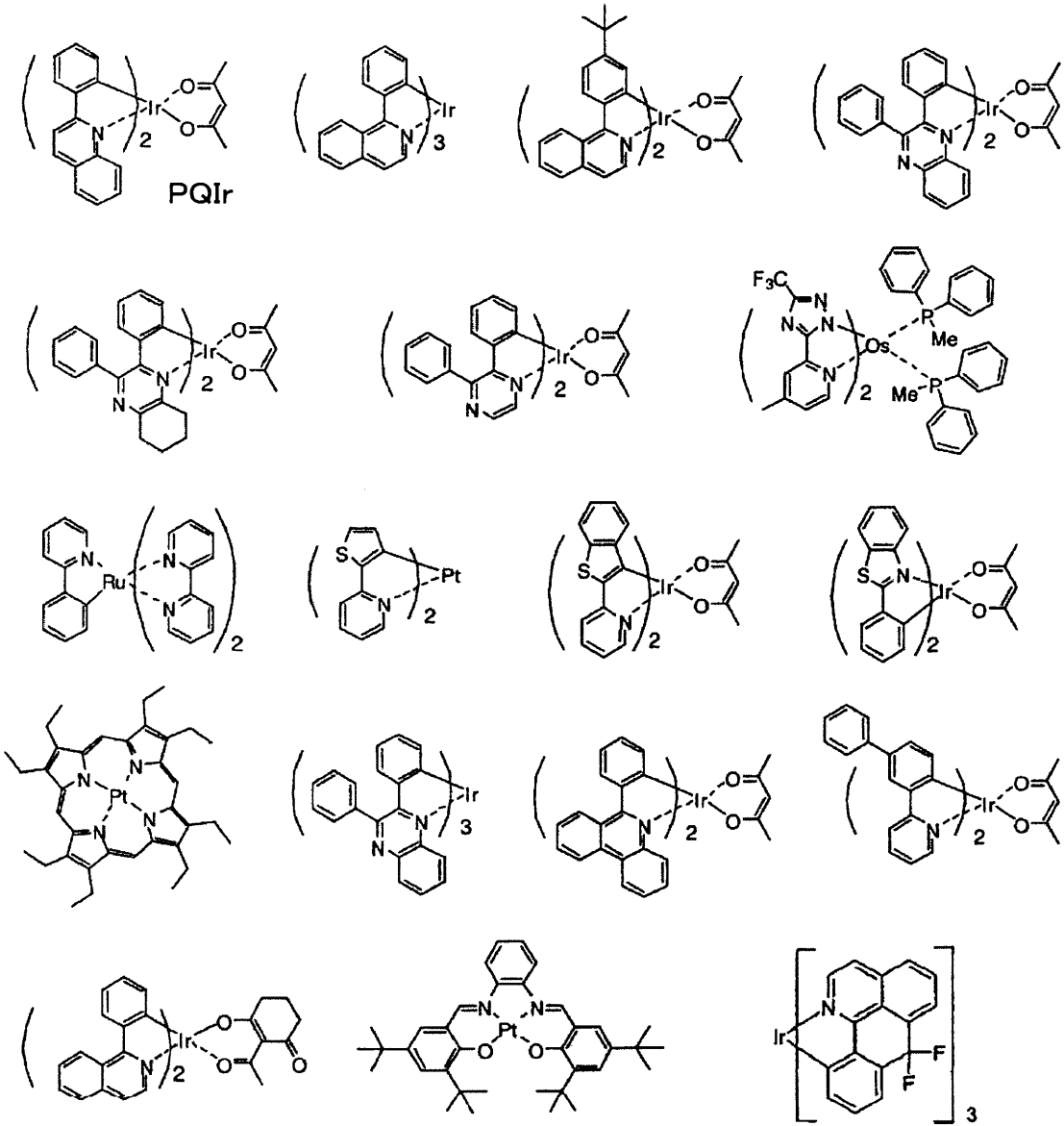
【0076】

10

20

30

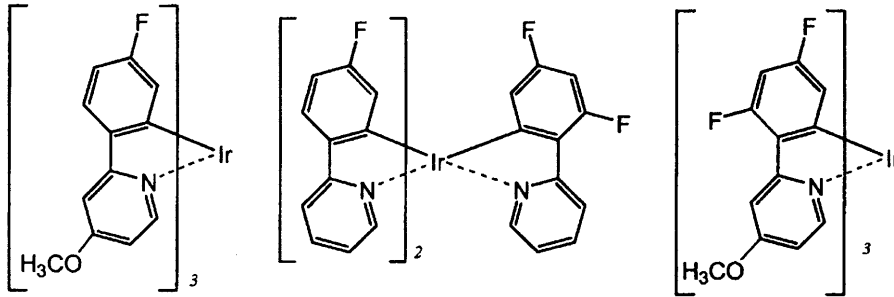
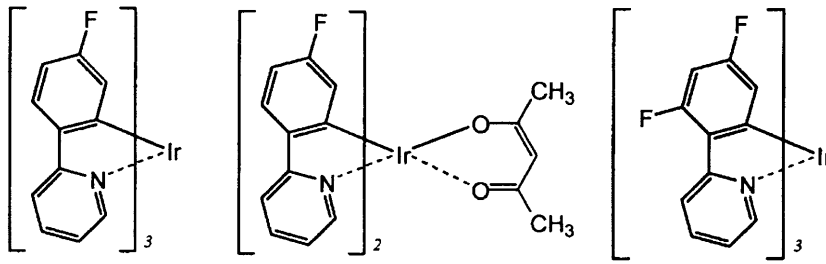
【化 4 0】



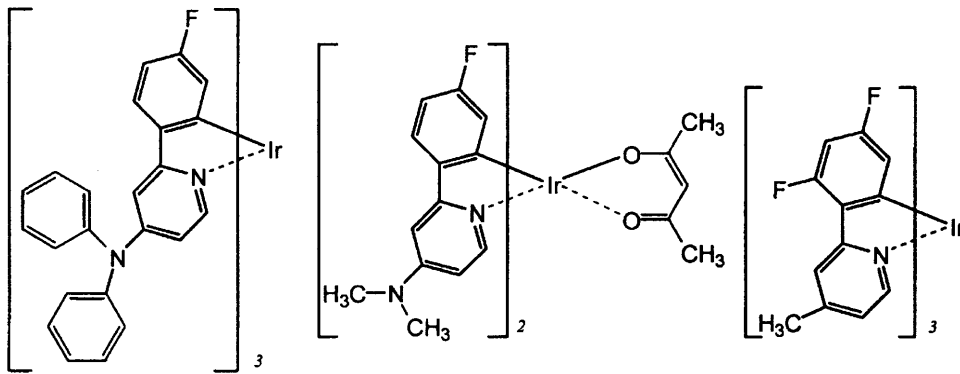
10

20

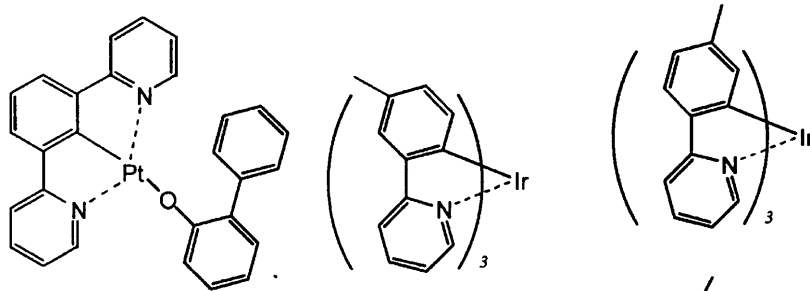
30



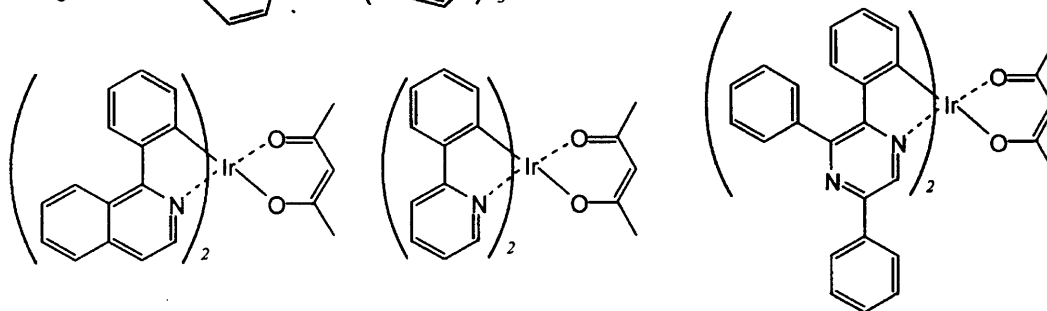
10



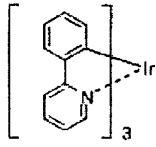
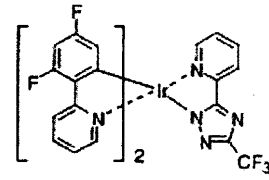
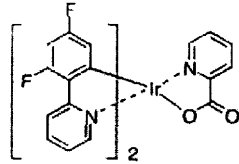
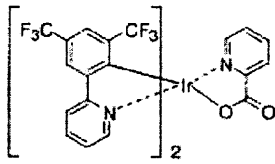
20



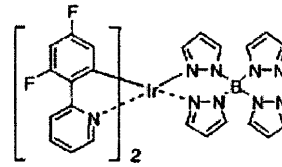
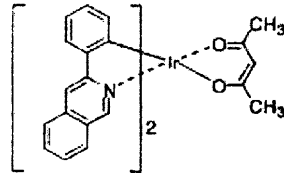
30



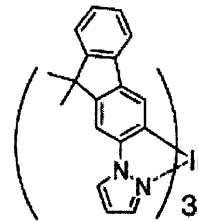
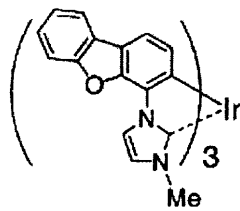
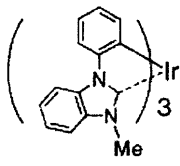
40



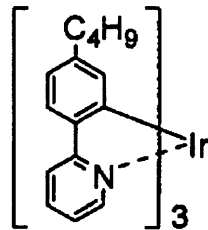
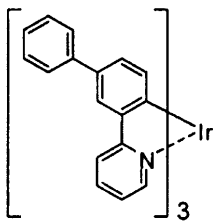
Ir(ppy)₃



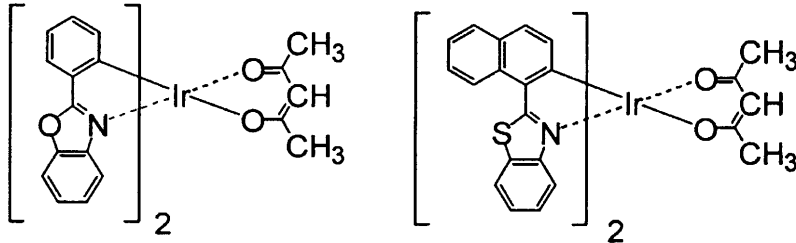
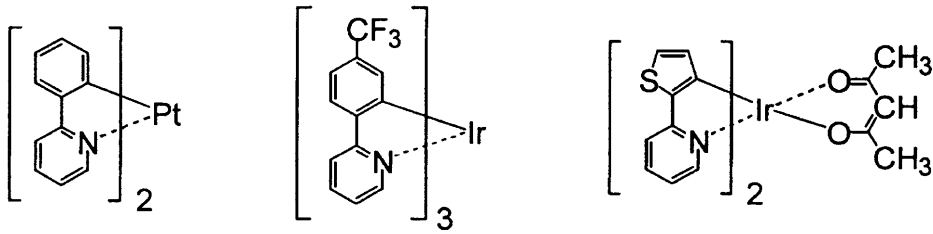
10



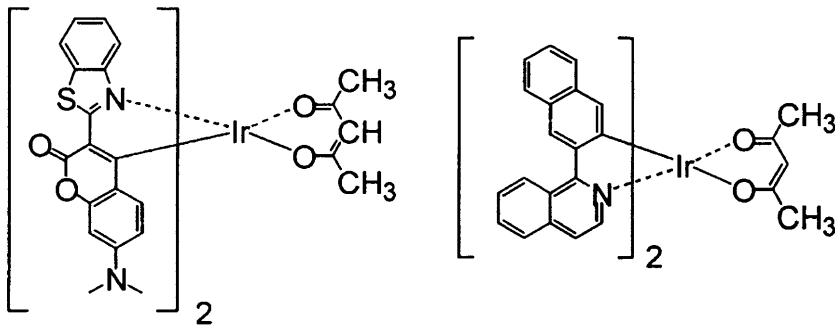
20



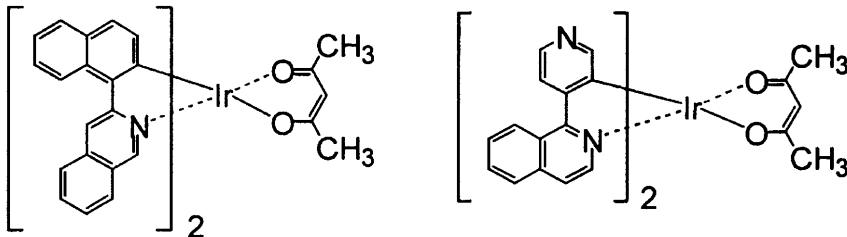
30



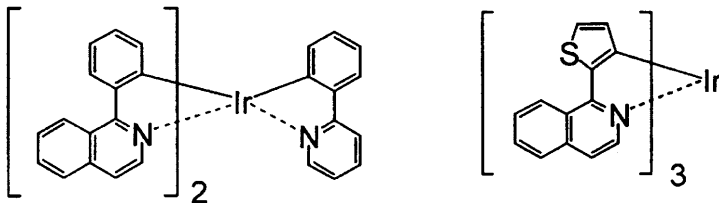
10



20



30



40

【0077】

また、本発明の有機EL素子は、前記発光層が、ホスト材料と燐光発光材料を含有し、かつ、発光波長の極大値が450nm以上720nm以下である金属錯体を含有すると好ましい。

【0078】

本発明の有機EL素子は、前記陰極と有機薄膜層（例えば電子注入層や発光層等）との界面領域に還元性ドーパントを有することが好ましい。還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金

50

属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれる少なくとも一種が挙げられる。

【0079】

アルカリ金属としては、仕事関数が2.9 eV以下である、Na（仕事関数：2.36 eV）、K（仕事関数：2.28 eV）、Rb（仕事関数：2.16 eV）、Cs（仕事関数：1.95 eV）等が好ましく挙げられる。これらのうち、より好ましくはK、Rb、Csであり、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

【0080】

アルカリ土類金属としては、仕事関数が2.9 eV以下である、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0～2.5 eV）、Ba（仕事関数：2.52 eV）等が好ましく挙げられる。

10

【0081】

希土類金属としては、仕事関数が2.9 eV以下である、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が好ましく挙げられる。

【0082】

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能なものである。

【0083】

アルカリ金属化合物としては、Li₂O、Cs₂O、K₂O等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、これらの中でも、LiF、Li₂O、NaFが好ましい。

20

【0084】

アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa_mSr_{1-m}O（0 < m < 1）、Ba_mCa_{1-m}O（0 < m < 1）等が挙げられ、これらの中でも、BaO、SrO、CaOが好ましい。

【0085】

希土類金属化合物としては、YbF₃、ScF₃、ScO₃、Y₂O₃、Ce₂O₃、GdF₃、TbF₃等が挙げられ、これらの中でも、YbF₃、ScF₃、TbF₃が好ましい。

【0086】

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

30

40

【0087】

還元性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成することが好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度は、モル比で、有機物：還元性ドーパント = 100 : 1～1 : 100が好ましく、5 : 1～1 : 5がより好ましい。

【0088】

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1～15 nmで形成する。

50

【 0 0 8 9 】

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み 0.05 ~ 1 nm で形成する。

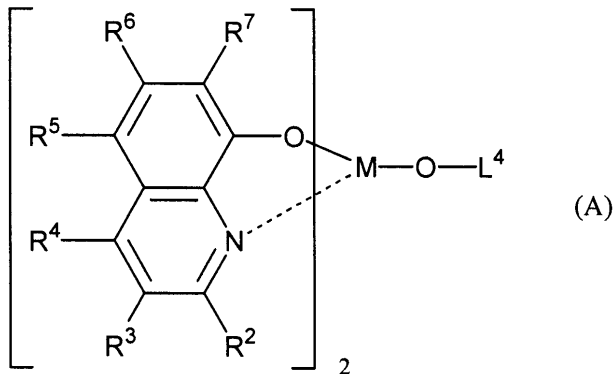
【 0 0 9 0 】

本発明の有機 EL 素子は、発光層と陰極との間に電子注入層を有する場合、該電子注入層に用いる電子輸送材料としては、分子内にヘテロ原子を 1 個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく、特に含窒素環誘導体が好ましい。

この含窒素環誘導体としては、例えば、下記式 (A) で表される含窒素環金属キレート錯体が好ましい。

【 0 0 9 1 】

【 化 4 1 】



【 0 0 9 2 】

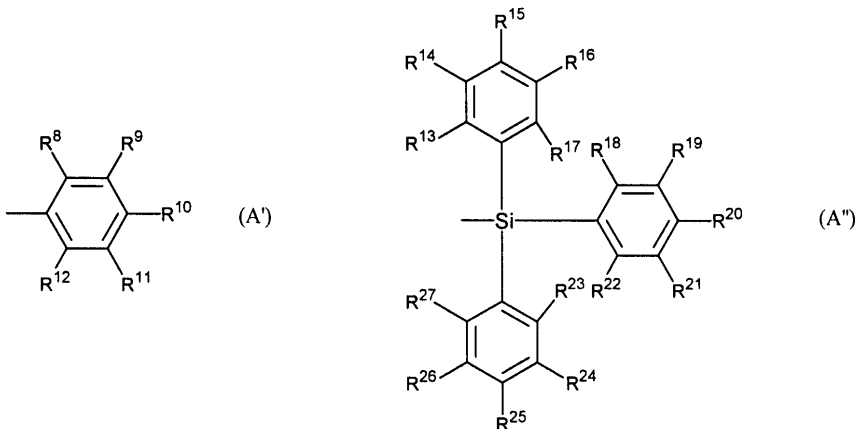
$R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、又は複素環基を表し、これらは置換されていてもよい。

M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、インジウムであることが好ましい。

式 (A) の L^4 は、下記式 (A') 又は (A'') で表される基である。

【 0 0 9 3 】

【 化 4 2 】



(式中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基を示し、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は置換若しくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基を示し、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。)

【 0 0 9 4 】

10

20

30

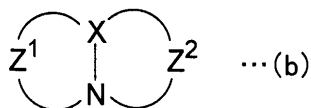
40

50

含窒素環誘導体としては、金属錯体でない含窒素化合物も挙げられる。例えば、(a) に示す骨格を含有する5員環若しくは6員環や、式(b)に示す構造のものが挙げられる。

【0095】

【化43】

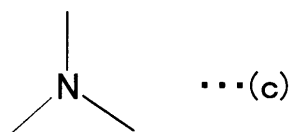


10

(式(b)中、Xは炭素原子若しくは窒素原子を表す。Z¹並びにZ²は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。)

【0096】

【化44】



20

【0097】

好ましくは、5員環若しくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物である。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記(a)と(b)若しくは(a)と(c)を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物である。

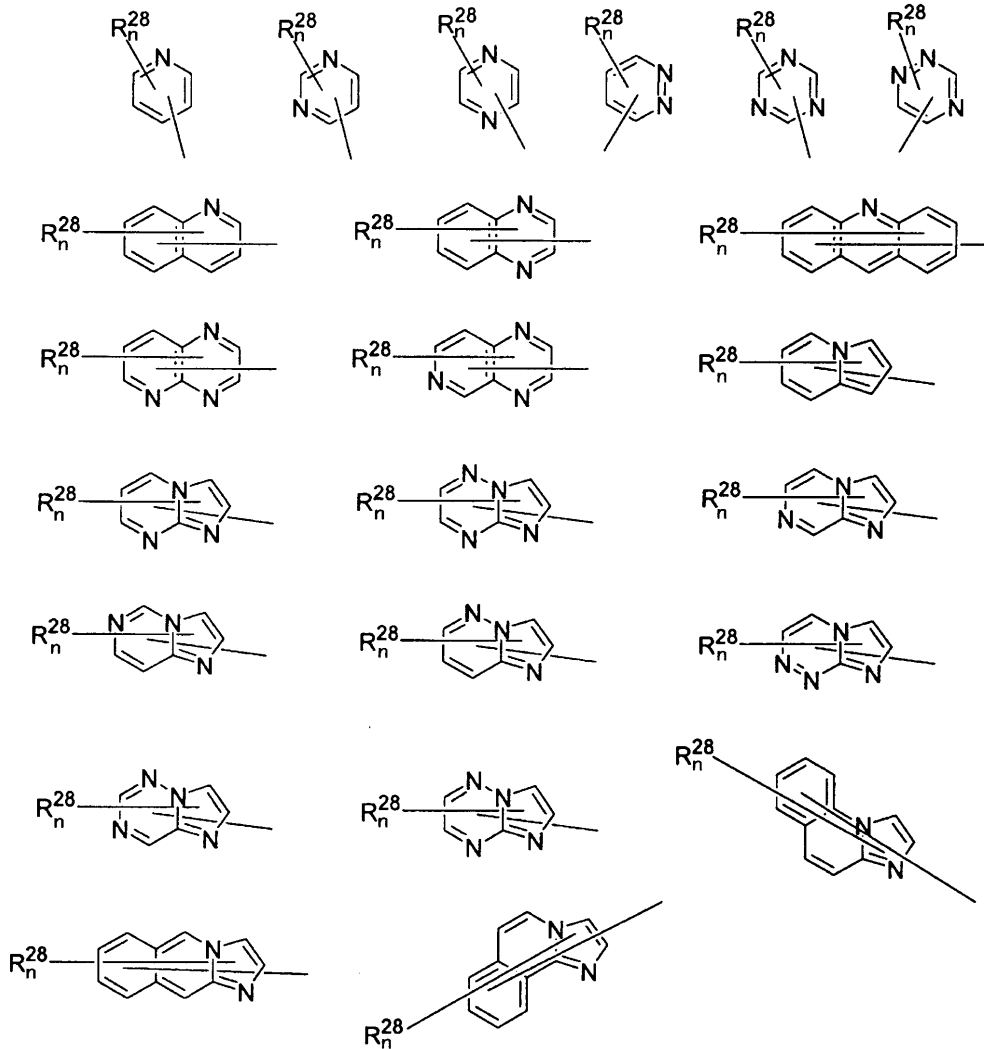
【0098】

含窒素複素環誘導体の含窒素基は、例えば、以下の一般式で表される含窒素複素環基から選択される。

30

【0099】

【化45】



10

20

30

(各式中、 R^{28} は、炭素数6～40のアリール基、炭素数3～40のヘテロアリール基、炭素数1～20のアルキル基又は炭素数1～20のアルコキシ基であり、 n は0～5の整数であり、 n が2以上の整数であるとき、複数の R^{28} は互いに同一又は異なってもよい。)

【0100】

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

【0101】

【化46】



40

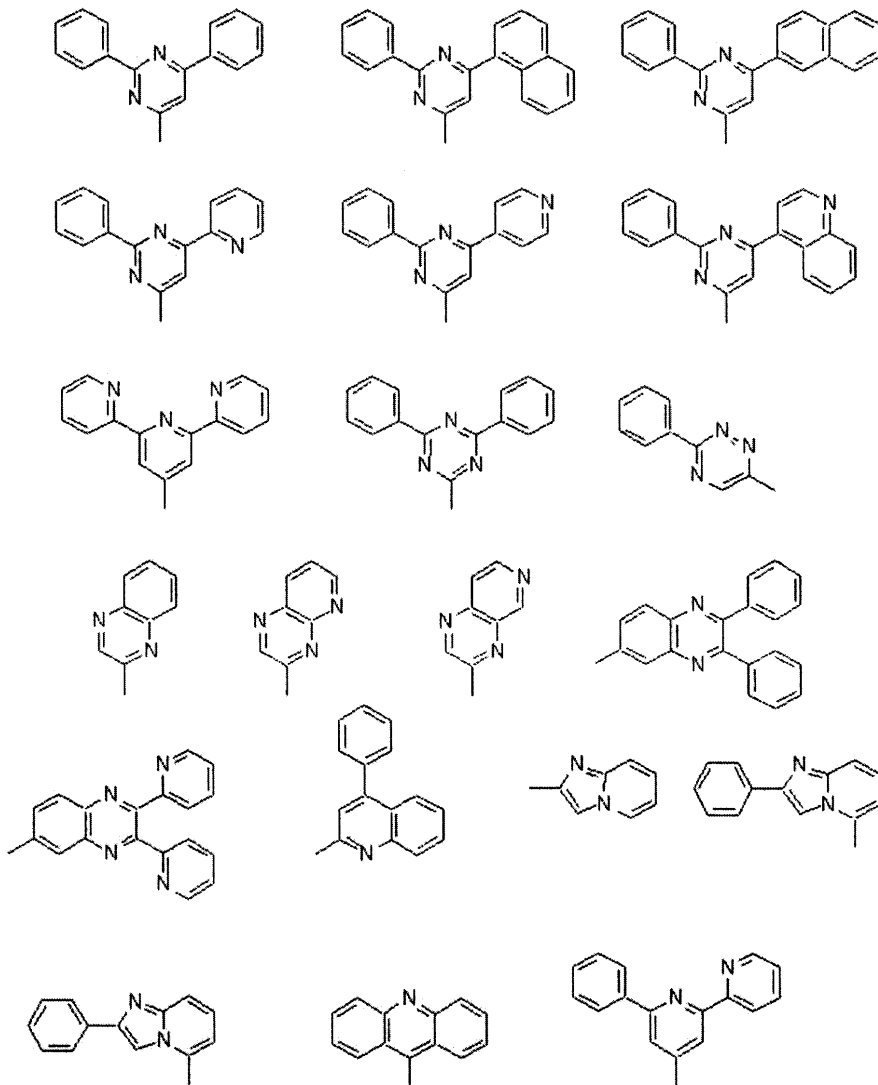
(式中、 HAr^a は、置換基を有していてもよい炭素数3～40の含窒素複素環であり、 L^6 は単結合、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリーレン基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリーレン基であり、 Ar^b は置換基を有していてもよい炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、 Ar^c は置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基である。)

HAr^a は、例えば、下記の群から選択される。

50

【 0 1 0 2 】

【 化 4 7 】



【 0 1 0 3 】

L⁶ は、例えば、下記の群から選択される。

【 化 4 8 】



【 0 1 0 4 】

Ar^c は、例えば、下記の群から選択される。

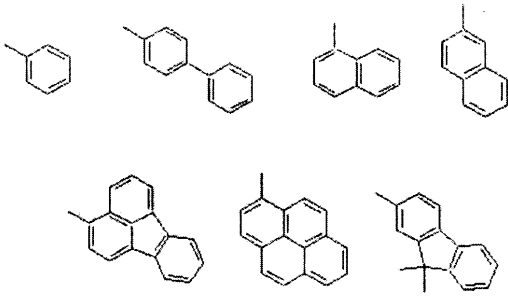
10

20

30

40

【化 4 9】

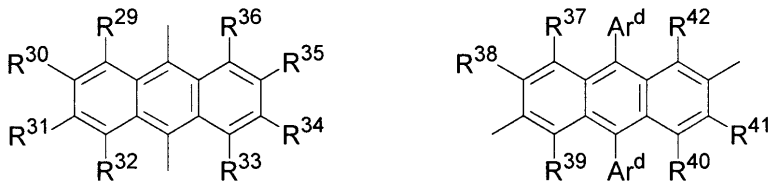


10

【0105】

Ar^b は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。

【化 5 0】



20

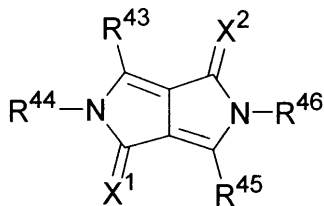
(式中、R²⁹ ~ R⁴² は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 40 のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 のアリール基又は炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基であり、Ar^d は、置換基を有していてもよい炭素数 6 ~ 40 のアリール基又は炭素数 3 ~ 40 のヘテロアリール基である。)

また、上記式で表される Ar^b において、R²⁹ ~ R³⁶ は、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体が好ましい。

【0106】

この他、下記の化合物(特開平 9 - 3448 号公報参照)も好適に用いられる。

【化 5 1】



30

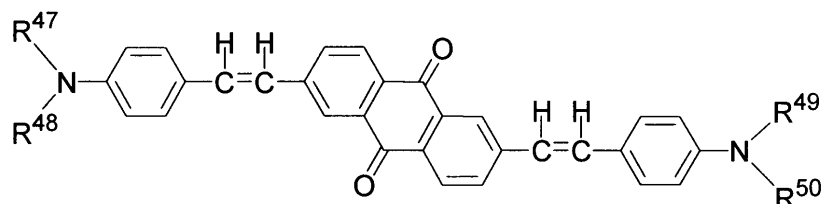
(式中、R⁴³ ~ R⁴⁶ は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは未置換の脂肪族基、置換若しくは未置換の脂肪族式環基、置換若しくは未置換の炭素環式芳香族環基、置換若しくは未置換の複素環基を表し、X¹、X² は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子若しくはジシアノメチレン基を表す。)

40

【0107】

また、下記の化合物(特開 2000 - 173774 号公報参照)も好適に用いられる。

【化52】



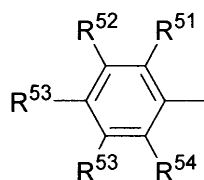
【0108】

式中、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 及び R^{50} は互いに同一の又は異なる基であって、下記式で表わされるアリール基である。

10

【0109】

【化53】



(式中、 R^{51} 、 R^{52} 、 R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、或いはそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基又はアルキルアミノ基である。)

20

さらに、該含窒素複素環基若しくは含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

【0110】

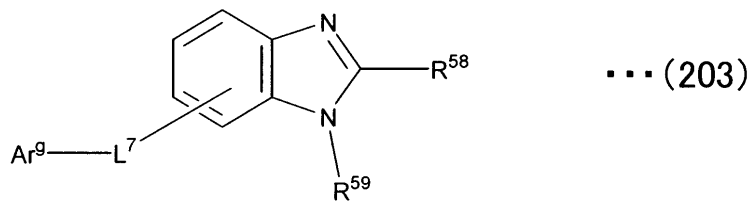
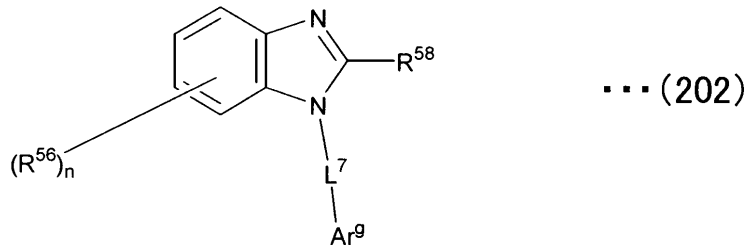
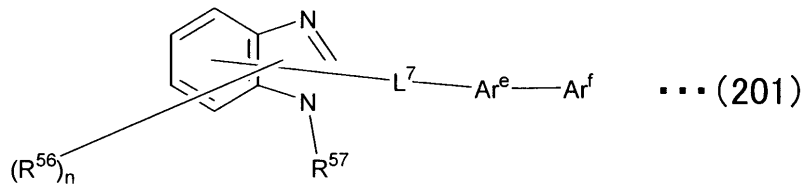
また、電子輸送層は、含窒素複素環誘導体、特に含窒素5員環誘導体を含むことが好ましい。該含窒素5員環としては、例えばイミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素5員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環が挙げられる。

30

具体的には、下記一般式(201)~(203)で表される含窒素複素環誘導体の少なくともいずれか1つを含むことが好ましい。

【0111】

【化54】



10

20

【0112】

式(201)~(203)中、 R^{56} は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基で、 n は0~4の整数であり、 R^{57} は、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は炭素数1~20のアルコキシ基であり、 R^{58} 及び R^{59} は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基であり、 L^7 は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、 Ar^e は、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基であり、 Ar^f は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基である。

30

40

【0113】

Ar^g は、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基、又は $-Ar^e-Ar^f$ で表される基(Ar^e 及び Ar^f は、それぞれ前記と同じ)である。

【0114】

電子注入層及び電子輸送層を構成する化合物としては、本発明の芳香族複素環誘導体の他、電子欠乏性含窒素5員環又は電子欠乏性含窒素6員環骨格と、置換若しくは無置換のインドール骨格、置換若しくは無置換のカルバゾール骨格、置換若しくは無置換のアザカ

50

ルバゾール骨格を組み合わせた構造を有する化合物等も挙げられる。また、好適な電子欠乏性含窒素5員環又は電子欠乏性含窒素6員環骨格としては、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、トリアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、キノキサリン、ピロール骨格及び、それらがお互いに縮合したベンズイミダゾール、イミダゾピリジン等の分子骨格が挙げられる。これらの組み合わせの中でも、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン骨格と、カルバゾール、インドール、アザカルバゾール、キノキサリン骨格が好ましく挙げられる。前述の骨格は置換されていてもよいし、無置換でもよい。

【0115】

電子注入層及び電子輸送層は、前記材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。これらの層の材料は、電子欠乏性含窒素ヘテロ環基を有していることが好ましい。

10

【0116】

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

【0117】

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び $CaSe$ が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば LiF 、 NaF 、 KF 、 $LiCl$ 、 KCl 及び $NaCl$ 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

20

【0118】

また、半導体としては、例えば Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Sb 及び Zn からなる群から選択される少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等が挙げられ、これらは一種を単独で使用してもよいし、二種以上を組み合わせて使用してもよい。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。尚、このような無機化合物としては、例えばアルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

30

また、本発明における電子注入層には、前述の還元性ドーパントを好ましく含有させることができる。

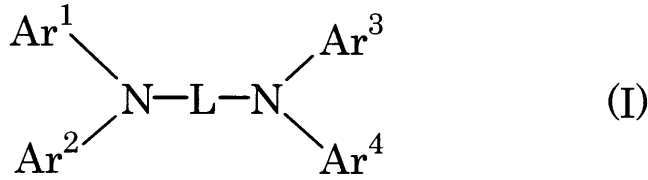
40

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

【0119】

正孔注入層又は正孔輸送層（正孔注入輸送層も含む）には芳香族アミン化合物、例えば、一般式(I)で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

【化 5 5】



【 0 1 2 0】

一般式 (I) において、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基又は置換若しくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基を表す。

10

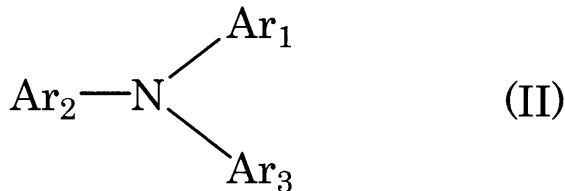
L は連結基である。具体的には置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基、置換若しくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリーレン基、又は、2 個以上のアリーレン基若しくはヘテロアリーレン基を単結合、エーテル結合、チオエーテル結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 20 のアルケニレン基、アミノ基で結合して得られる 2 価の基である。

【 0 1 2 1】

また、下記一般式 (II) の芳香族アミンも正孔注入層又は正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

【化 5 6】

20



【 0 1 2 2】

一般式 (II) において、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_3$ の定義は前記一般式 (I) の $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ の定義と同様である。

本発明の芳香族複素環誘導体は、正孔及び電子を輸送する化合物であるため、正孔注入層又は輸送層、電子注入層又は輸送層にも用いることができる。

30

【 0 1 2 3】

本発明において、有機 EL 素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4 . 5 e V 以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (ITO)、酸化錫 (NES A)、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム - インジウム合金、マグネシウム - アルミニウム合金、アルミニウム - リチウム合金、アルミニウム - スカンジウム - リチウム合金、マグネシウム - 銀合金等が使用できる。

40

【 0 1 2 4】

本発明の有機 EL 素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピニング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機 EL 素子に用いる、本発明の芳香族複素環誘導体を含む有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法 (MBE 法)、あるいは本発明の芳香族複素環誘導体を溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピニング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

【 0 1 2 5】

本発明の有機 EL 素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪

50

くなるため、通常は数 nm から 1 μm の範囲が好ましい。

本発明の芳香族複素環誘導体を含む層（特に発光層）を形成する方法としては、例えば、本発明の芳香族複素環誘導体及び必要に応じてドーパント等のその他の材料からなる溶液を成膜する方法が好ましい。

【0126】

成膜方法としては、公知の塗布法を有効に利用することができ、例えばスピコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、スリットコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェット法、ノズルプリンティング法等が挙げられる。パターン形成をする場合には、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェット印刷法が好ましい。これらの方法による成膜は、当業者に周知の条件により行うことができる。

成膜後は、真空下に加熱（上限 250 ）乾燥して、溶媒を除去すればよく、光や 250 を超える高温加熱による重合反応は不要である。従って、光や 250 を超える高温加熱による素子の性能劣化の抑制が可能である。

【0127】

成膜用溶液は、少なくとも 1 種類の本発明の芳香族複素環誘導体を含むのであればよく、また他の正孔輸送材料、電子輸送材料、発光材料、アクセプター材料、溶媒、安定剤等の添加剤を含んでもよい。

成膜用溶液は、粘度及び/又は表面張力を調節するための添加剤、例えば、増粘剤（高分子量化合物、本発明の高分子量化合物の貧溶媒等）、粘度降下剤（低分子量化合物等）、界面活性剤等を含むであってもよい。また、保存安定性を改善するために、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等、有機 EL 素子の性能に影響しない酸化防止剤を含むであってもよい。

上記成膜用溶液中の芳香族複素環誘導体の含有量は、成膜用溶液全体に対して 0.1 ~ 15 質量% が好ましく、0.5 ~ 10 質量% がより好ましい。

【0128】

増粘剤として使用可能な高分子量化合物としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂及びそれらの共重合体、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂が挙げられる。

【0129】

成膜用溶液の溶媒としては、例えばクロロホルム、塩化メチレン、1,2-ジクロロエタン、1,1,2-トリクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等の塩素系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジオキソラン、アニソール等のエーテル系溶媒；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒；シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、n-ペンタン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン、n-ノナン、n-デカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、ベンゾフェノン、アセトフェノン等のケトン系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート、安息香酸メチル、酢酸フェニル等のエステル系溶媒；エチレングリコール、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジメトキシエタン、プロピレングリコール、ジエトキシメタン、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、グリセリン、1,2-ヘキサジオール等の多価アルコール及びその誘導体；メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、シクロヘキサノール等のアルコール系溶媒；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶媒；N-メチル-2-ピロリドン、N,N-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒が挙げられる。また、これらの溶媒は、1種を単独で又は2種以上を併用することができる。

【0130】

これらの溶媒のうち、溶解性、成膜の均一性及び粘度特性等の観点から、芳香族炭化水素系溶媒、エーテル系溶媒、脂肪族炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、ケトン系溶媒が好ましく、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、トリメチルベンゼン、*n*-プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン、*n*-ブチルベンゼン、イソブチルベンゼン、5-ブチルベンゼン、*n*-ヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン、1-メチルナフタレン、テトラリン、1,3-ジオキサン、1,4-ジオキサン、1,3-ジオキサラン、アニソール、エトキシベンゼン、シクロヘキサン、ピシクロヘキシル、シクロヘキセニルシクロヘキサノン、*n*-ヘプチルシクロヘキサノン、*n*-ヘキシルシクロヘキサノン、デカリン、安息香酸メチル、シクロヘキサノン、2-プロピルシクロヘキサノン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2-オクタノン、2-ノナノン、2-デカノン、ジシクロヘキシルケトン、アセトフェノン、ベンゾフェノンがより好ましい。

10

【0131】

<第2の実施形態>

本実施形態の有機EL素子は、発光層又は発光層を含むユニットを少なくとも2つ有するタンデム素子構成を有する。

このような有機EL素子では、例えば、2つのユニット間に電荷発生層(CGLとも呼ぶ)を介在させ、ユニット毎に電子輸送帯域を設けることができる。

【0132】

このようなタンデム素子構成の具体的な構成の例を以下に示す。

(11)陽極/正孔注入・輸送層/燐光発光層/電荷発生層/蛍光発光層/電子注入・輸送層/陰極

20

(12)陽極/正孔注入・輸送層/蛍光発光層/電子注入・輸送層/電荷発生層/燐光発光層/陰極

【0133】

これらのような有機EL素子において、燐光発光層には本発明の芳香族複素環誘導体及び第1実施形態で説明した燐光発光材料を用いることができる。これにより、有機EL素子の発光効率、及び素子寿命をさらに向上させることができる。また、陽極、正孔注入・輸送層、電子注入・輸送層、陰極には第1実施形態で説明した材料を用いることができる。また、蛍光発光層の材料としては、公知の材料を用いることができる。そして、電荷発生層の材料としては、公知の材料を用いることができる。

30

【0134】

<第3の実施形態>

本実施形態の有機EL素子は、複数の発光層を備え、複数の発光層のいずれか2つの発光層の間に電荷障壁層を有する。本実施形態にかかる好適な有機EL素子の構成として、特許第4134280号公報、米国公開特許公報US2007/0273270A1、国際公開公報W02008/023623A1に記載されているような構成が挙げられる。

【0135】

具体的には、陽極、第1発光層、電荷障壁層、第2発光層及び陰極がこの順に積層された構成において、第2発光層と陰極の間に三重項励起子の拡散を防止するための電荷障壁層を有する電子輸送帯域を有する構成が挙げられる。ここで電荷障壁層とは隣接する発光層との間でHOMO準位、LUMO準位のエネルギー障壁を設けることにより、発光層へのキャリア注入を調整し、発光層に注入される電子と正孔のキャリアバランスを調整する目的を有する層である。

40

【0136】

このような構成の具体的な例を以下に示す。

(21)陽極/正孔注入・輸送層/第1発光層/電荷障壁層/第2発光層/電子注入・輸送層/陰極

(22)陽極/正孔注入・輸送層/第1発光層/電荷障壁層/第2発光層/第3発光層/電子注入・輸送層/陰極

【0137】

50

これらの第1発光層、第2発光層、及び第3発光層のうちの少なくともいずれかに本発明の芳香族複素環誘導体及び第1実施形態で説明した燐光発光材料を用いることができる。これにより、有機EL素子の発光効率、及び素子寿命を向上させることができる。

【0138】

また、例えば、第1発光層を赤色に発光させ、第2の発光層を緑色に発光させ、第3の発光層を青色に発光させることにより、素子全体として白色に発光させることができる。このような有機EL素子は、照明やバックライト等の面光源として好適に利用できる。

【0139】

尚、陽極、正孔注入・輸送層、電子注入・輸送層、陰極には第1実施形態で説明した材料を用いることができる。

10

また、電荷障壁層の材料としては、公知の材料を用いることができる。

【実施例】

【0140】

以下、実施例を示して本発明をさらに具体的に記載するが、本発明は、これらの実施例によって何ら限定されるものではない。

【0141】

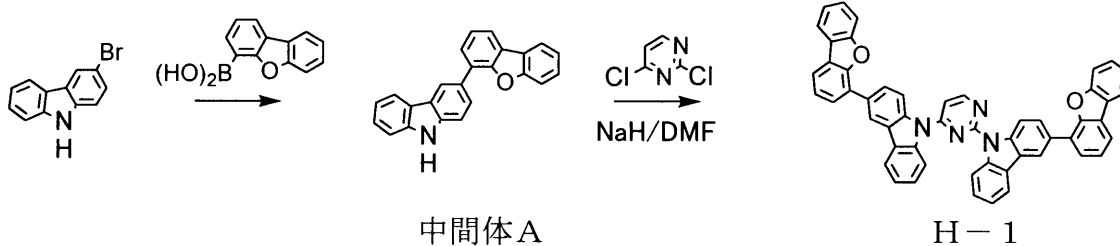
<蒸着により作製した有機EL素子の実施例>

実施例1

(1) 化合物H-1の合成

【化57】

20



【0142】

アルゴン雰囲気下、ジベンゾフラン-4-ボロン酸4.66g(22.0mmol)、3-ブromo-9H-カルバゾール4.92g(20.0mmol)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム(0)0.035g(0.6mmol)、1,2-ジメトキシエタン120mL及び2M炭酸水素ナトリウム水溶液60mLの混合物を8時間加熱還流撹拌した。反応混合物を室温まで冷却し、トルエン/イオン交換水で抽出し、トルエン層を濃縮し、得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーにて精製し、薄黄色固体の中間体A6.00g(収率90%)を得た。

30

次に、アルゴン雰囲気下、中間体A4.40g(13.2mmol)、55wt%NaH(in oil)0.691g(約15.8mmol)を脱水ジメチルホルムアミド(DMF)30mLに溶解した。次に、脱水DMF30mLに2,4-ジクロロピリミジン0.596g(4.00mmol)を溶解し、ゆっくりと滴下し、3時間撹拌、反応した。反応終了後、反応液にイオン交換水を添加し、析出物をろ取し、酢酸エチルにて加熱、洗浄を行い白色粉末H-1、2.22g(収率75%)を得た。

40

【0143】

得られた化合物について、HPLC(High Performance Liquid Chromatography)、FD-MS(Field Desorption Ionization-Mass Spectrometry)の分析結果を以下に示す。

HPLC: 純度99.9%

FD-MS: calcd for C₅₂H₃₀N₄O₂ = 743
found m/z = 743 (M⁺, 100)

50

【0144】

(2) 有機EL素子の作製

25mm×75mm×1.1mmのITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)に、イソプロピルアルコール中にて5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV(Ultraviolet)オゾン洗浄を施した。

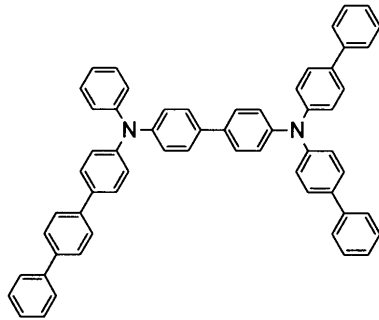
このようにして洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして、化合物Aを厚さ40nmで蒸着し、正孔注入層を得た。次いで、この膜上に、化合物Bを厚さ20nmで蒸着し、正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、燐光用ホスト材料である化合物H-1と燐光用ドーパントであるIr(Ph-ppy)₃とを厚さ40nmで共蒸着し、燐光発光層を得た。Ir(Ph-ppy)₃の濃度は、10質量%であった。

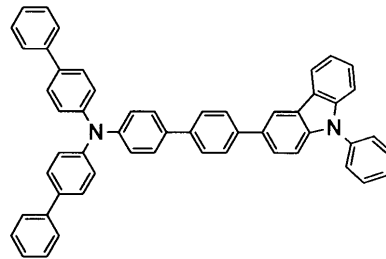
続いて、この燐光発光層上に、厚さ30nmの化合物C、厚さ1nmのLiF、厚さ80nmの金属Alを順次積層し、陰極を得た。尚、電子注入性電極であるLiFについては、1/minの速度で形成した。

【0145】

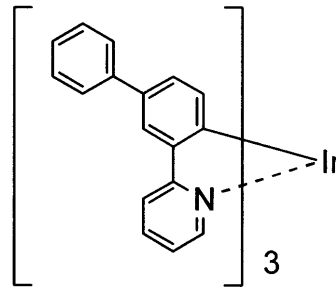
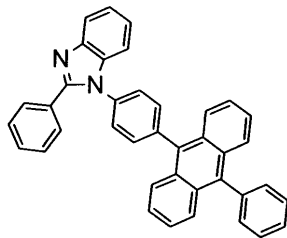
【化58】



化合物A



化合物B



【0146】

(3) 有機EL素子の評価方法

作製した有機EL素子を、直流電流駆動により発光させ、電流密度1mA/cm²における電圧(V)及び発光効率(cd/A)、並びに輝度が90%まで減少する寿命(LT₉₀、初期輝度5200cd/m²)を測定した。測定結果を表1に示す。

【0147】

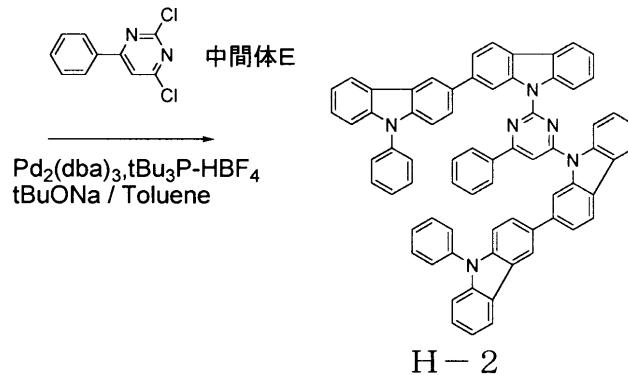
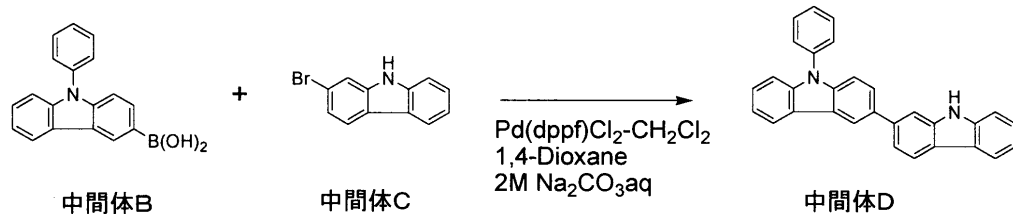
実施例2～実施例6及び比較例1～4

実施例1において、燐光用ホスト材料を化合物H-1から下記に示す化合物H-2～H-6及び化合物D～Gに変更した以外は、実施例1と同様にして、実施例2～6及び比較例1～4の有機EL素子を作製し評価した。結果を表1に示す。

【0148】

(化合物H-2の合成)

【化59】



10

20

【0149】

アルゴン雰囲気下、中間体B (2.41 g、8.4 mmol)、中間体C (1.71 g、7.0 mmol)、ジクロロ(ジフェニルホスフィノフェロセン)パラジウム-塩化メチレン錯体 (0.057 g、0.07 mmol)、1,4-ジオキサン (21 mL)、2 M炭酸ナトリウム水溶液 (10.5 mL)を順次加えて4時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、析出した固体を濾取し、1,4-ジオキサン及び水で洗浄し、減圧乾燥した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体D (2.29 g、収率81%)を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体D (2.04 g、5.0 mmol)、中間体E (0.56 g、2.5 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.092 g、0.10 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロホウ酸塩 (0.116 g、0.40 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.67 g、7.0 mmol)、無水トルエン (25 mL)を順次加えて8時間加熱還流した。

30

【0150】

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-2 (2.18 g、収率88%)を得た。

HPLC：純度99.9%

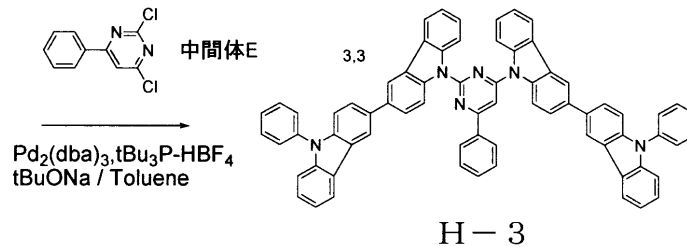
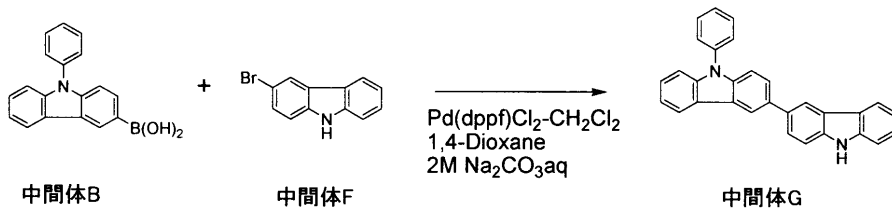
FD-MS：calcd for C₇₀H₄₄N₆ = 969、
found m/z = 969 (M⁺, 100)

40

【0151】

(化合物H-3の合成)

【化60】



10

【0152】

アルゴン雰囲気下、中間体B (2.41 g、8.4 mmol)、中間体F (1.71 g、7.0 mmol)、ジクロロ(ジフェニルホスフィノフェロセン)パラジウム-塩化メチレン錯体(0.057 g、0.07 mmol)、1,4-ジオキサン(21 mL)、2 M炭酸ナトリウム水溶液(10.5 mL)を順次加えて4時間加熱還流した。

20

室温まで反応液を冷却した後、析出した固体を濾取し、1,4-ジオキサン及び水で洗浄し、減圧乾燥した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体G(2.49 g、収率86%)を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体G(2.04 g、5.0 mmol)、中間体E(0.56 g、2.5 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0.092 g、0.10 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩(0.116 g、0.40 mmol)、t-ブチキシナトリウム(0.67 g、7.0 mmol)、無水トルエン(25 mL)を順次加えて8時間加熱還流した。

30

【0153】

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-3(1.95 g、収率81%)を得た。

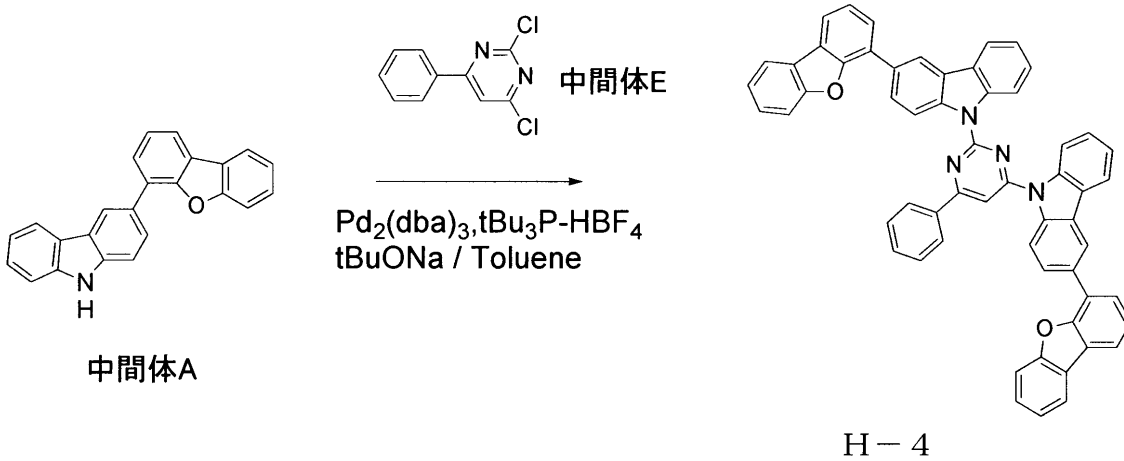
HPLC: 純度99.9%

FD-MS: calcd for C₇₀H₄₄N₆ = 969、
found m/z = 969 (M⁺, 100)

【0154】

(化合物H-4の合成)

【化 6 1】



10

【0155】

アルゴン雰囲気下、中間体A (1.67 g、5.0 mmol)、中間体E (0.56 g、2.5 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0.092 g、0.10 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩(0.116 g、0.40 mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.67 g、7.0 mmol)、無水トルエン(25 mL)を順次加えて8時間加熱還流した。

20

【0156】

室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-4 (1.72 g、収率84%)を得た。

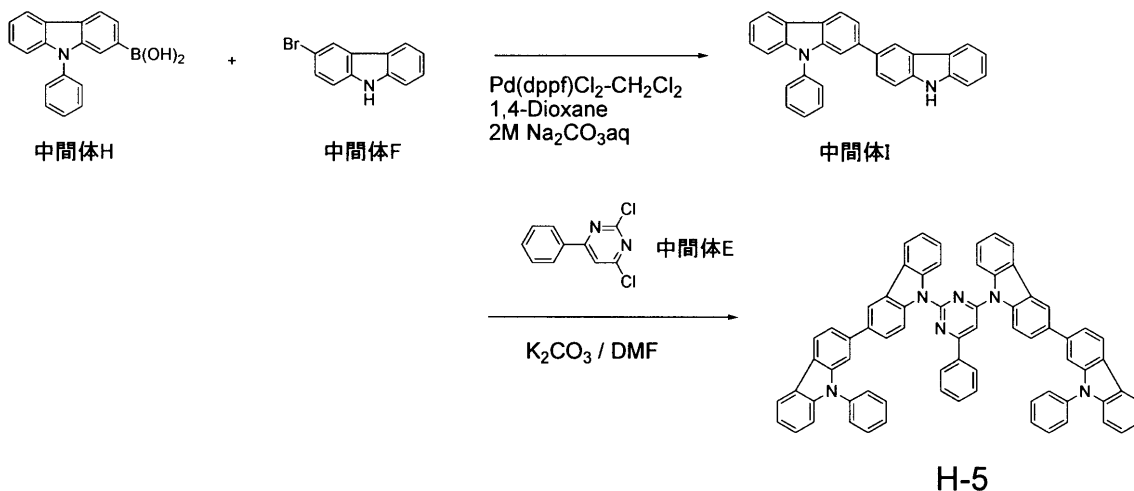
HPLC: 純度99.9%

FD-MS: calcd for $\text{C}_{70}\text{H}_{44}\text{N}_6 = 819$ 、
found $m/z = 819 (\text{M}^+, 100)$

【0157】

(化合物H-5の合成)

【化 6 2】



30

40

【0158】

アルゴン雰囲気下、中間体H (3.16 g、11 mmol)、中間体F (2.46 g、10 mmol)、ジクロロ(ジフェニルホスフィノフェロセン)パラジウム-塩化メチレン錯体(0.081 g、0.1 mmol)、1,4-ジオキサン(30 mL)、2M炭酸ナトリウム水溶液(15 mL)を順次加えて4時間加熱還流した。

室温まで反応液を冷却した後、析出した固体を濾取し、1,4-ジオキサン及び水で洗

50

浄し、減圧乾燥した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体 I (3.27 g, 収率 80%) を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体 I (3.35 g, 8.2 mmol)、中間体 E (0.90 g, 4.0 mmol)、炭酸カリウム (1.16 g, 8.4 mmol) を無水ジメチルホルムアミド (60 mL) に加え、120 に加熱して16時間攪拌した。

【0159】

室温まで反応液を冷却した後、トルエンを加えて希釈し、飽和塩化アンモニウム水で洗浄したのち有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-5 (2.10 g, 収率 54%) を得た。

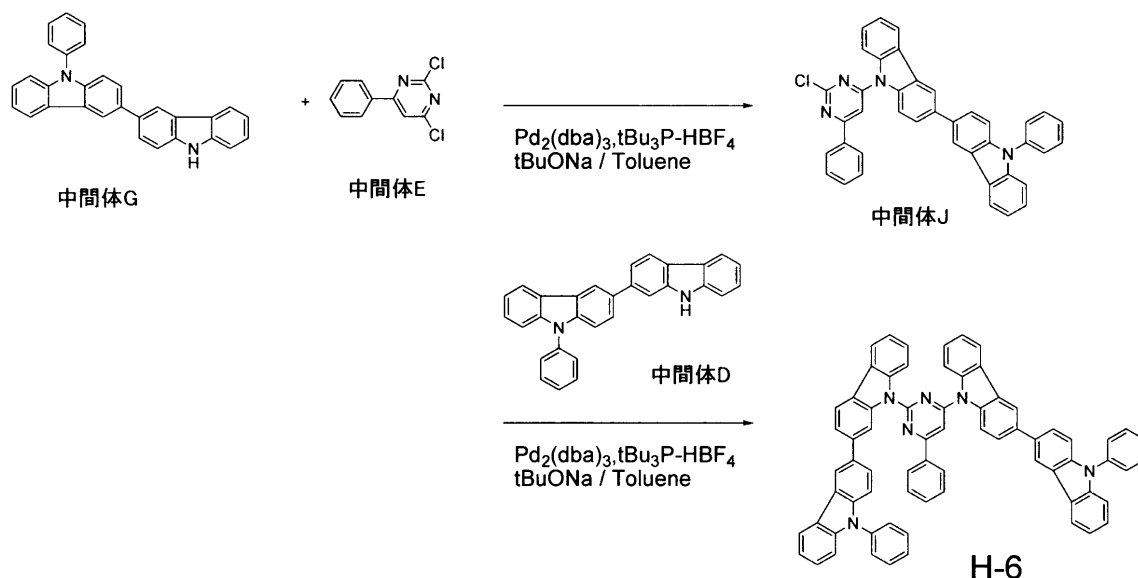
HPLC: 純度 99.7%

FD-MS: calcd for C70H44N6 = 969,
found m/z = 969 (M+, 100)

【0160】

(化合物 H-6 の合成)

【化63】



【0161】

アルゴン雰囲気下、中間体 G (12.25 g, 30 mmol)、中間体 E (6.75 g, 30 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.275 g, 0.30 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.348 g, 1.20 mmol)、t-ブトキシナトリウム (4.04 g, 42 mmol)、無水トルエン (150 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。室温まで反応液を冷却した後、有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、塩化メチレンで洗浄したのち減圧乾燥し、中間体 J (8.46 g, 収率 47%) を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体 J (1.79 g, 3.0 mmol)、中間体 D (1.29 g, 3.15 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.027 g, 0.03 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.035 g, 0.12 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.43 g, 4.5 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて16時間加熱還流した。

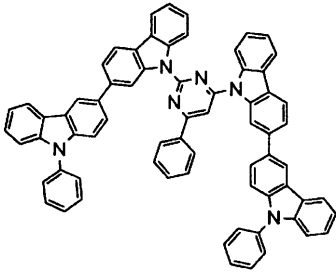
【0162】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-6 (2.41 g, 収率 83%) を得た。

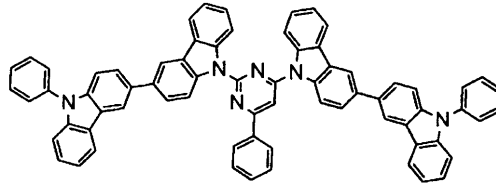
HPLC: 純度 99.3%

FD - MS : calcd for C₇₀H₄₄N₆ = 969、
found m/z = 969 (M⁺, 100)

【化64】

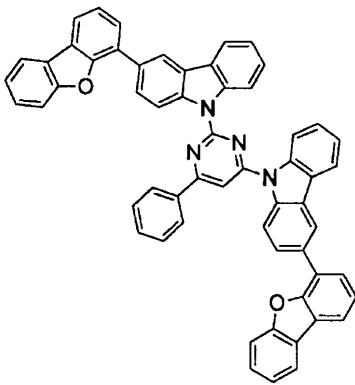


H-2

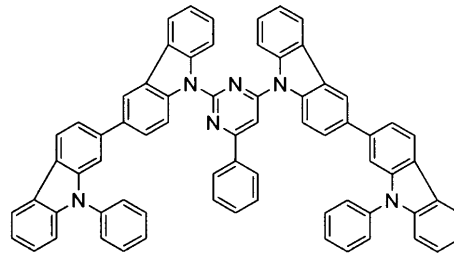


H-3

10

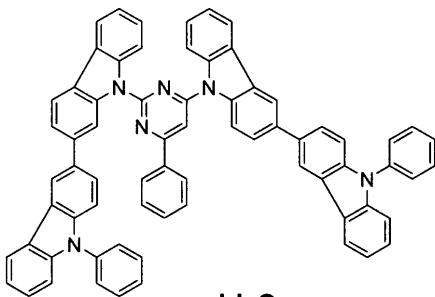


H-4



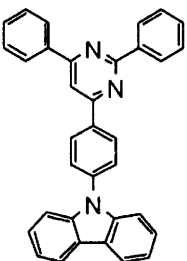
H-5

20

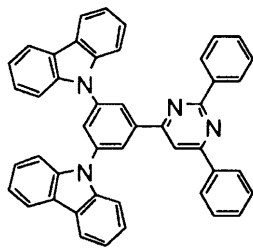


H-6

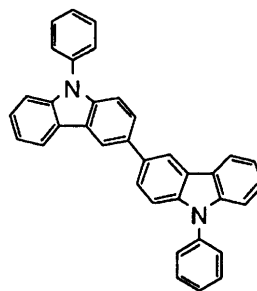
30



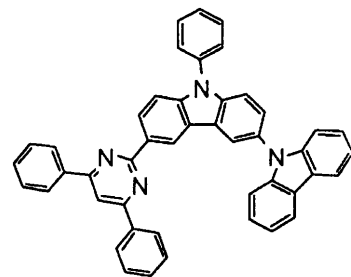
化合物 D



化合物 E



化合物 F



化合物 G

40

【0163】

50

【表 1】

	ホスト材料	電圧 (V) @1mA/cm ²	発光効率 (cd/A) @1mA/cm ²	寿命 LT90 (hrs)
実施例1	化合物H-1	3.0	72	220
実施例2	化合物H-2	3.1	68	190
実施例3	化合物H-3	3.3	62	170
実施例4	化合物H-4	3.2	68	180
実施例5	化合物H-5	3.1	65	170
実施例6	化合物H-6	3.0	63	165
比較例1	化合物D	3.3	49	60
比較例2	化合物E	3.4	47	85
比較例3	化合物F	4.9	38	20
比較例4	化合物G	3.9	42	67

10

【 0 1 6 4 】

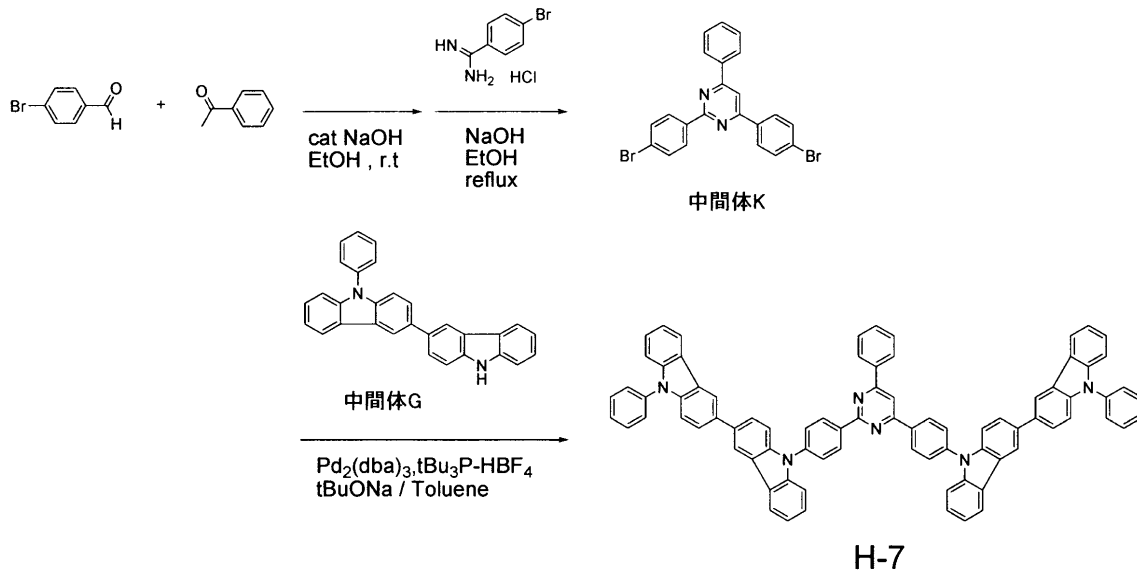
< 有機 EL 素子用材料溶液を用いて作製した有機 EL 素子の実施例 >

20

実施例 7

(化合物 H - 7 の合成)

【化 6 5】



30

【 0 1 6 5 】

40

4 - プロモベンズアルデヒド (7 . 4 0 g 、 4 0 m m o l) 、 アセトフェノン (4 . 8 1 、 4 0 m m o l) をエタノール (8 0 m L) に溶解し、水酸化ナトリウム (0 . 1 6 g 、 4 m m o l) を加え、室温で 8 時間攪拌した。その後、4 - プロモベンズアミジン塩酸塩 (7 . 0 7 g 、 3 0 m m o l) 、水酸化ナトリウム (1 . 6 0 g 、 4 0 m m o l) を加えエタノール (4 0 m L) を追加し、加熱還流下 8 時間反応させた。生成した白色粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでエタノールで洗浄し、さらに水、エタノールで洗浄したのち真空乾燥し、目的とする中間体 K (8 . 8 5 g 、 収率 9 5 %) を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体 G (2 . 5 7 g 、 6 . 3 m m o l) 、中間体 K (1 . 4 0 g 、 3 . 0 m m o l) 、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (0 . 0 5 5 g 、 0 . 0 6 m m o l) 、トリ - t - ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0 . 0 7

50

0 g、0.24 mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.87 g、9.0 mmol)、無水トルエン(60 mL)を順次加えて12時間加熱還流した。

【0166】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-7(2.76 g, 収率82%)を得た。

HPLC: 純度99.4%

FD-MS: calcd for $C_{82}H_{52}N_6 = 1121$,
found $m/z = 1121 (M^+, 100)$

【0167】

(PEDOT: PSS塗布基板の作成)

PEDOT: PSS水分散液(H. C. Starck社製Clevious AI4083)と水、イソプロピルアルコールを、5:3:2の比率で混合しPEDOT: PSS分散液を調製した。電極配線パターンを形成した25 mm x 25 mm x 0.7 mmのITO基板(ジオマテック社製)を、イソプロピルアルコール中にて5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV(Ultraviolet)オゾン洗浄を施した後、スピンコート法により膜厚が40 nmになるように、先のPEDOT: PSS分散液を塗布成膜した。塗布成膜後、取り出し電極部分を水でふき取り、その後、大気中、200 °Cで30分間焼成し、PEDOT: PSS塗布基板を作成した。

10

【0168】

(有機EL素子用材料溶液の調製と有機EL発光層の成膜)

溶媒として蒸留精製した脱水トルエンを用い、ホストとしてH-1、ドーパントとしてIr(nBuPPy)₃を、ホストに対して20重量%になるように添加し、90 °Cの加熱攪拌により、総固形分比が2.5 wt%の溶液を調製した。次いで、本溶液を用い、先のPEDOT: PSS塗布基板上にスピンコート法(500 rpm x 3秒、次いで3000 rpm x 60秒)により有機EL発光層を成膜した。有機EL発光層を成膜した後、取り出し電極部分をトルエンでふき取り、その後、100 °Cで30分間ホットプレート上にて加熱乾燥した。溶液の調製、及び、有機EL発光層の成膜は、全てグローブボックス中、窒素雰囲気下で実施した。

20

【0169】

(有機EL素子の作成)

有機EL発光層を成膜した基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、電子輸送材料として化合物Cを、蒸着速度1 nm/秒で20 nm成膜した。その後、フッ化リチウム(LiF)を、蒸着速度0.1 nm/秒で1 nm成膜し、アルミニウム(Al)を3 nm/秒で150 nm成膜した。

30

【0170】

(有機EL素子の評価方法)

上記で作製した有機EL素子を、直流電流駆動により発光させ、電流密度1 mA/cm²における電圧(V)及び発光効率(cd/A)、並びに輝度が90%まで減少する寿命(LT90、初期輝度5200 cd/m²)を測定した。測定結果を表2に示す。

40

【0171】

実施例8~実施例20

実施例7において、燐光用ホスト材料を、化合物H-1から化合物H-2~H14に変更した以外は、実施例7と同様にして、実施例8~20の有機EL素子を作製し評価した。化合物H-8~H-14については、合成法を以下に示す。また結果を表2に示す。

【0172】

比較例5~8

化合物D~化合物Gについて、実施例7に記載の有機EL素子用材料溶液の調製と有機EL発光層の形成と同様の方法により、溶液の調製と成膜を試みた。その結果、溶解せずに白濁した状態となる、または、一時的に溶解したとしてもすぐに材料の析出が生じる、

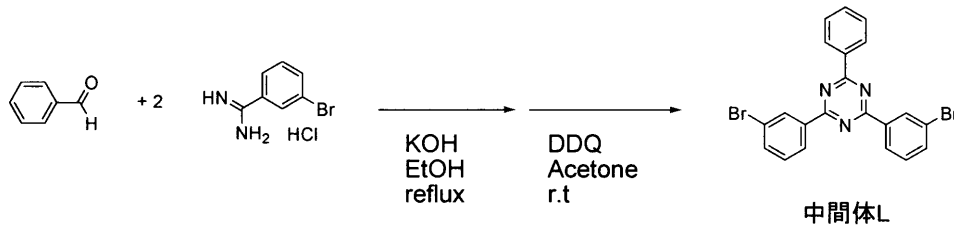
50

または、成膜時に微結晶が形成し均一な膜が形成できない、などにより、均一な発光が得られる有機EL発光層が得られなかった。

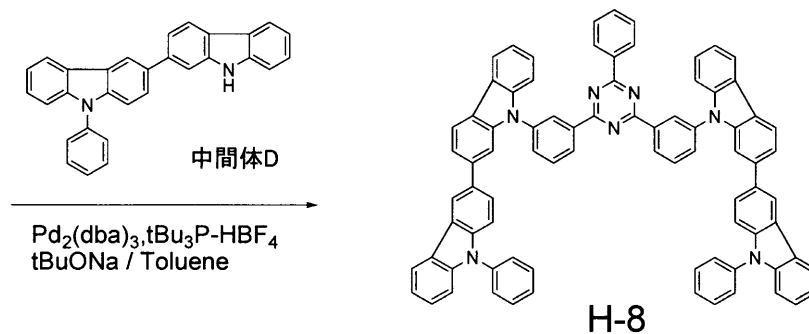
【0173】

(化合物H-8の合成)

【化66】



10



20

【0174】

ベンズアルデヒド (2.12 g、20 mmol)、3-ブロモベンズアミジン塩酸塩 (9.42 g、40 mmol) をエタノール (120 mL) に溶解し、水酸化カリウム (4.48 g、80 mmol) を加え、加熱還流下8時間反応させた。エタノールを減圧下留去し、残渣を塩化メチレンに溶解し、飽和塩化アンモニウム水で洗浄したのち有機層を分離し、有機溶媒を減圧下留去した。

残渣をアセトン100 mLに溶解し、室温で攪拌しながらDDQ (2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノン) (4.54 g、20 mmol) を少しずつ添加し、その後さらに1時間攪拌した。不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、目的とする中間体L (5.79 g、収率62%) を得た。

30

アルゴン雰囲気下、中間体D (2.57 g、6.3 mmol)、中間体L (1.40 g、3.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.055 g、0.06 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.070 g、0.24 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.87 g、9.0 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて16時間加熱還流した。

【0175】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-8 (3.00 g、収率89%) を得た。

40

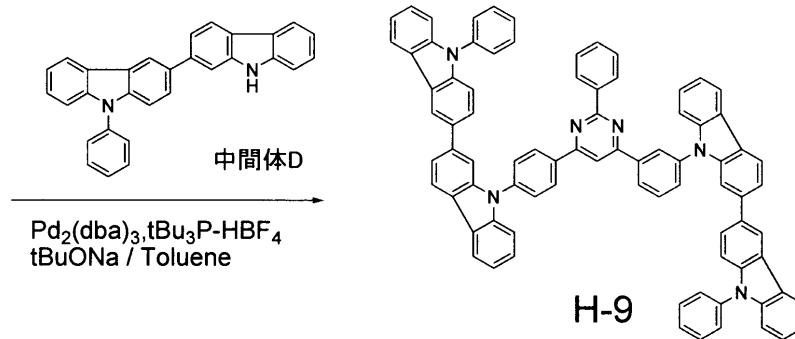
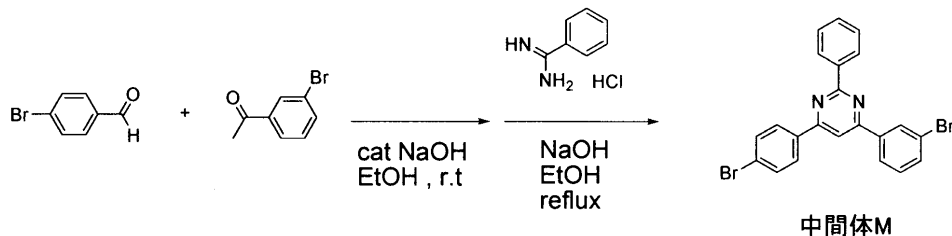
HPLC: 純度99.2%

FD-MS: calcd for C₈₂H₅₁N₇ = 1122、
found m/z = 1122 (M⁺, 100)

【0176】

(化合物H-9の合成)

【化67】



10

【0177】

20

4-プロモベンズアルデヒド (7.40 g、40 mmol)、3'-プロモアセトフェノン (7.96 g、40 mmol) をエタノール (80 mL) に溶解し、水酸化ナトリウム (0.16 g、4 mmol) を加え、室温で8時間攪拌した。その後、ベンズアミジン塩酸塩 (4.70 g、30 mmol)、水酸化ナトリウム (1.60 g、40 mmol) を加えエタノール (40 mL) を追加し、加熱還流下8時間反応させた。生成した白色粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでエタノールで洗浄し、さらに水、エタノールで洗浄したのち真空乾燥し、目的とする中間体M (6.75 g、収率72%) を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体D (2.57 g、6.3 mmol)、中間体M (1.40 g、3.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.055 g、0.06 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.070 g、0.24 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.87 g、9.0 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて16時間加熱還流した。

30

【0178】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-9 (2.90 g、収率86%) を得た。

HPLC: 純度99.6%

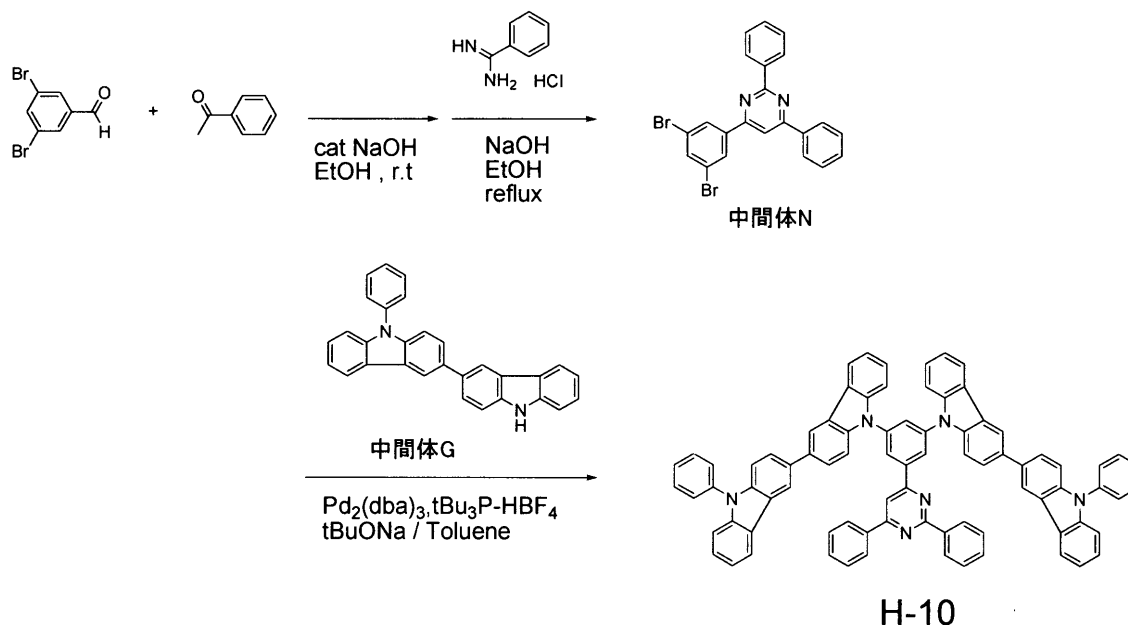
FD-MS: calcd for C₈₂H₅₂N₆ = 1121、
found m/z = 1121 (M⁺, 100)

【0179】

40

(化合物H-10の合成)

【化68】



10

【0180】

3,5-ジブロモベンズアルデヒド (10.56 g、40 mmol)、アセトフェノン (4.81 g、40 mmol) をエタノール (80 mL) に溶解し、水酸化ナトリウム (0.16 g、4 mmol) を加え、室温で8時間攪拌した。その後、ベンズアミジン塩酸塩 (4.70 g、30 mmol)、水酸化ナトリウム (1.60 g、40 mmol) を加えエタノール (40 mL) を追加し、加熱還流下8時間反応させた。生成した白色粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでエタノールで洗浄し、さらに水、エタノールで洗浄したのち真空乾燥し、目的とする中間体N (5.20 g、収率56%) を得た。

20

アルゴン雰囲気下、中間体G (2.57 g、6.3 mmol)、中間体N (1.40 g、3.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.055 g、0.06 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボorate (0.070 g、0.24 mmol)、t-ブチキシナトリウム (0.87 g、9.0 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて16時間加熱還流した。

30

【0181】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-10 (2.70 g、収率80%) を得た。

HPLC: 純度 99.2%

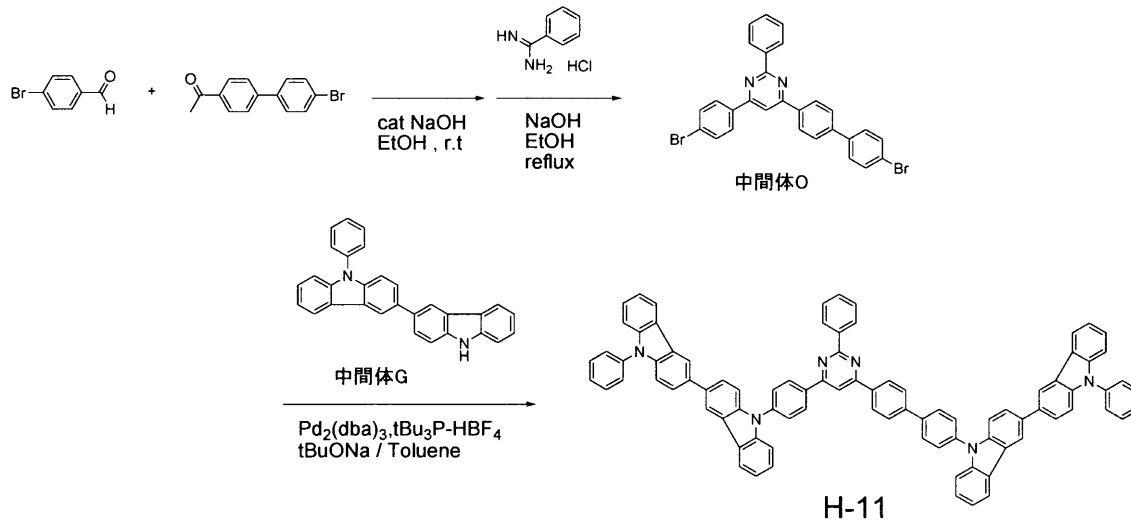
FD-MS: calcd for $C_{82}H_{52}N_6 = 1121$ 、
found $m/z = 1121 (M^+, 100)$

【0182】

(化合物H-11の合成)

40

【化69】



10

【0183】

4-ブロモベンズアルデヒド (7.40 g, 40 mmol)、4-アセチル-4'-プロモビフェニル (11.01 g, 40 mmol) をエタノール (80 mL) に溶解し、水酸化ナトリウム (0.16 g, 4 mmol) を加え、室温で8時間攪拌した。その後、ベンズアミジン塩酸塩 (4.70 g, 30 mmol)、水酸化ナトリウム (1.60 g, 40 mmol) を加えエタノール (40 mL) を追加し、加熱還流下8時間反応させた。生成した白色粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでエタノールで洗浄し、さらに水、エタノールで洗浄した。再度エタノール 200 mL を添加し、1時間加熱還流したのち濾取し、真空乾燥して目的とする中間体 O (9.32 g, 収率 86%) を得た。

20

アルゴン雰囲気下、中間体 G (2.40 g, 5.88 mmol)、中間体 O (1.52 g, 2.80 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.055 g, 0.06 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.070 g, 0.24 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.87 g, 9.0 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて16時間加熱還流した。

30

【0184】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-11 (2.75 g, 収率 82%) を得た。

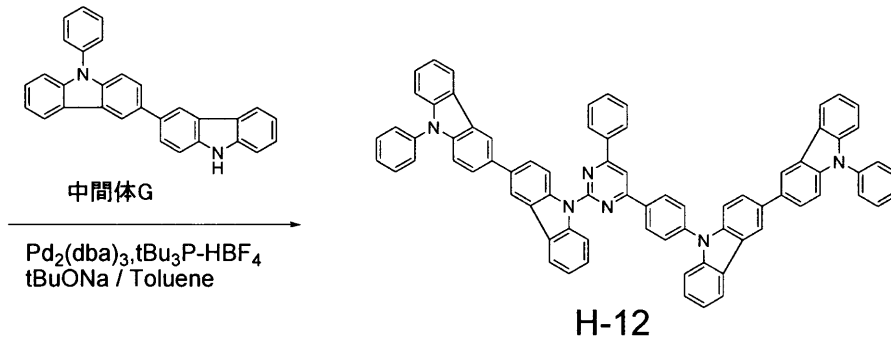
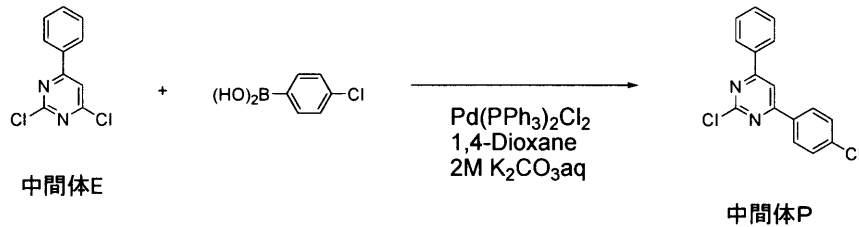
HPLC: 純度 99.7%

FD-MS: calcd for $\text{C}_{88}\text{H}_{56}\text{N}_6 = 1197$ 、
found $m/z = 1197$ (M^+ , 100)

【0185】

(化合物 H-12 の合成)

【化70】



10

【0186】

アルゴン雰囲気下、中間体E (4.50 g、20 mmol)、4-クロロフェニルボロン酸 (3.13 g、20 mmol)、ジクロロ(ピストリフェニルホスフィン)パラジウム錯体 (0.351 g、0.5 mmol)、1,4-ジオキサン (80 mL)、2 M 炭酸カリウム水溶液 (40 mL) を順次加えて8時間加熱還流した。

20

室温まで反応液を冷却した後、トルエンを加えて希釈し、水で洗浄し、減圧乾燥した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、中間体P (4.03 g、収率67%)を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体G (2.57 g、6.3 mmol)、中間体P (0.90 g、3.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.055 g、0.06 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.070 g、0.24 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.87 g、9.0 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて10時間加熱還流した。

30

【0187】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-12 (2.67 g、収率85%)を得た。

HPLC: 純度99.3%

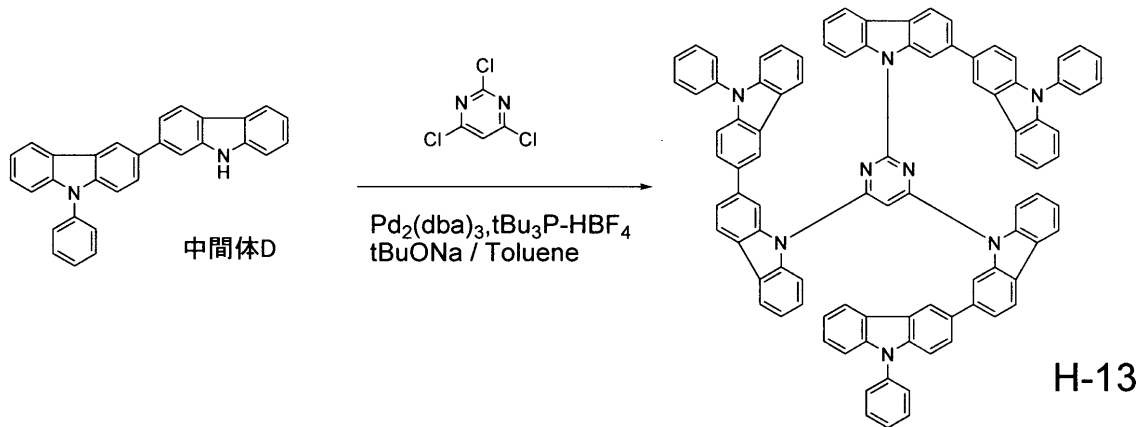
FD-MS: calcd for C₇₆H₄₈N₆ = 1045、
found m/z = 1045 (M⁺, 100)

【0188】

(化合物H-13の合成)

40

【化 7 1】



10

【0189】

アルゴン雰囲気下、中間体 D (2.57 g、6.3 mmol)、2,4,6-トリクロロピリミジン (0.367 g、2.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム (0.055 g、0.06 mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩 (0.070 g、0.24 mmol)、t-ブトキシナトリウム (0.87 g、9.0 mmol)、無水トルエン (60 mL) を順次加えて 16 時間加熱還流した。

20

【0190】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-13 (1.95 g、収率 75%) を得た。

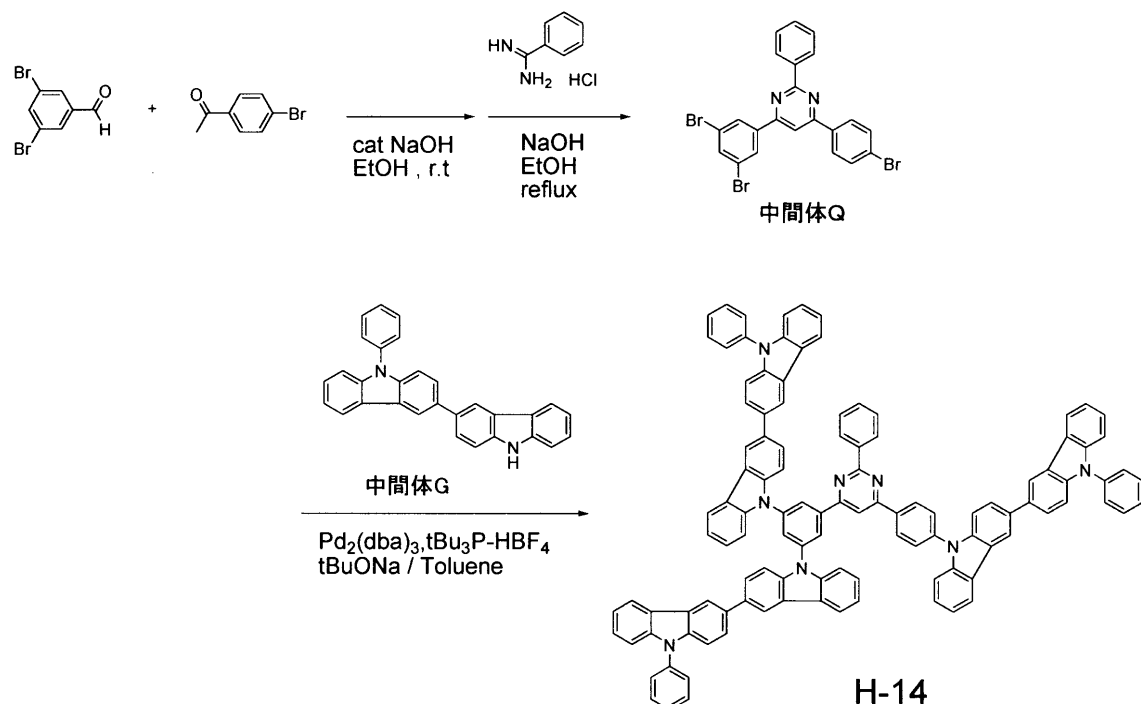
HPLC: 純度 99.0%

FD-MS: calcd for $\text{C}_{94}\text{H}_{58}\text{N}_8 = 1299$ 、
found $m/z = 1299$ (M^+ , 100)

【0191】

(化合物 H-14 の合成)

【化 7 2】



30

40

50

【0192】

3,5-ジブロモベンズアルデヒド(10.56g、40mmol)、4'-プロモアセトフェノン(7.96g、40mmol)をエタノール(160mL)に溶解し、水酸化ナトリウム(0.16g、4mmol)を加え、室温で8時間攪拌した。その後、ベンズアミジン塩酸塩(4.70g、30mmol)、水酸化ナトリウム(1.60g、40mmol)を加えエタノール(80mL)を追加し、加熱還流下8時間反応させた。生成した白色粉末を濾取し、液の着色が無くなるまでエタノールで洗浄し、さらに水、エタノールで洗浄したのち真空乾燥し、目的とする中間体Q(9.38g、収率86%)を得た。

アルゴン雰囲気下、中間体G(2.57g、6.3mmol)、中間体Q(1.09g、2.0mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0.055g、0.06mmol)、トリ-t-ブチルホスホニウムテトラフルオロボロ酸塩(0.070g、0.24mmol)、t-ブトキシナトリウム(0.87g、9.0mmol)、無水トルエン(60mL)を順次加えて16時間加熱還流した。

10

【0193】

室温まで反応液を冷却した後、不溶物を濾過して除き、有機溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、H-14(1.95g、収率75%)を得た。

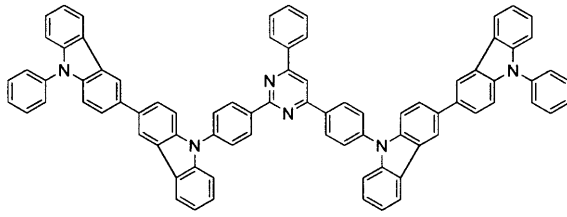
HPLC: 純度99.4%

FD-MS: calcd for $C_{11}H_{7}O_{2}N_{8}$ = 1528、
found m/z = 1528 (M^+ , 100)

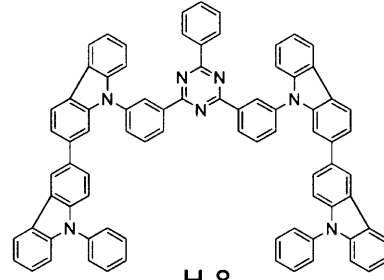
20

【0194】

【化 7 3】

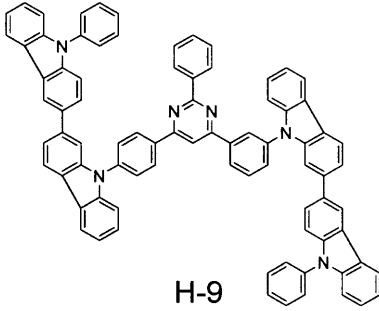


H-7

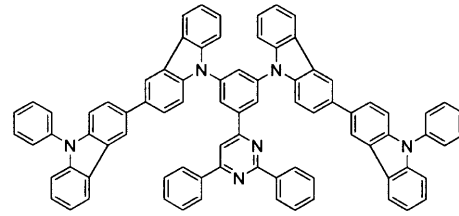


H-8

10

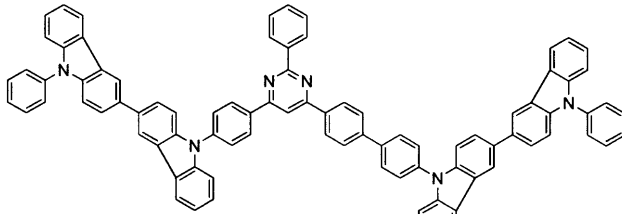


H-9

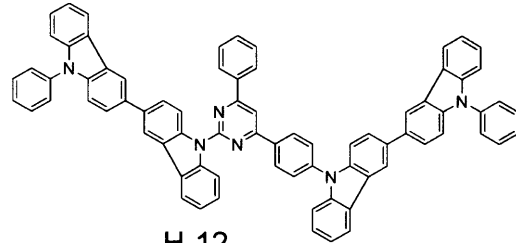


H-10

20

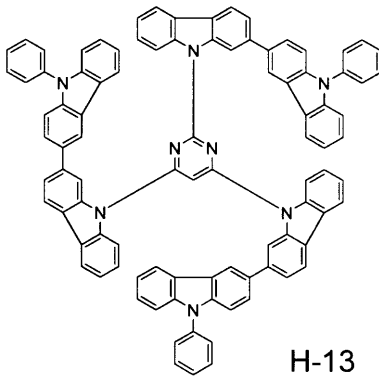


H-11

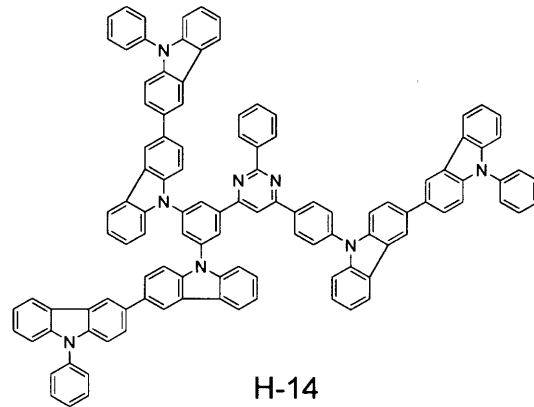


H-12

30



H-13



H-14

【 0 1 9 5 】

40

【表 2】

	ホスト材料	電圧 (V) @1mA/cm ²	発光効率 (cd/A) @1mA/cm ²	寿命 LT90 (hrs)
実施例7	化合物H-1	5.0	45	105
実施例8	化合物H-2	5.1	40	95
実施例9	化合物H-3	5.2	45	120
実施例10	化合物H-4	5.7	42	132
実施例11	化合物H-5	5.3	46	106
実施例12	化合物H-6	5.3	42	112
実施例13	化合物H-7	5.0	47	155
実施例14	化合物H-8	5.3	39	98
実施例15	化合物H-9	5.3	40	107
実施例16	化合物H-10	5.1	49	170
実施例17	化合物H-11	5.0	38	122
実施例18	化合物H-12	5.1	42	133
実施例19	化合物H-13	4.8	42	100
実施例20	化合物H-14	4.7	43	98

10

20

30

40

【0196】

<有機EL素子用材料溶液を用いて作製した薄膜の蛍光スペクトル測定>

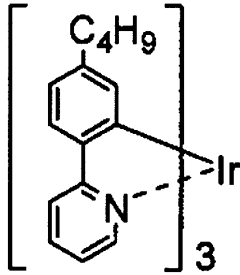
実施例 2 1

溶媒として脱水1,4-ジオキサンを用い、ホストとしてH-2を1wt%、ドーパントとしてIr(nBuPPy)₃を、ホストに対して5、10、20重量%になるように添加して各濃度の溶液を調製した。次いで、石英基盤(25×25×1mm)上にスピコート(500rpm×3秒、次いで3000rpm×60秒)し、風乾の後、100℃で30分間ホットプレート上で加熱乾燥した。操作は、全てグローブボックス中、窒素雰囲気下で実施した。

次に、得られた薄膜を350nmの励起光を用いて、蛍光スペクトル及び量子収率を測定した。結果を表3に示す。また、図1に、ホストとして用いたH-2のみを用いて作製した薄膜の蛍光スペクトルを示し、図3に、ドーパントとして用いたIr(nBuPPy)₃のみを用いて作製した薄膜の蛍光スペクトルを示す(蛍光スペクトルピーク波長513nm、半値幅58nm、蛍光量子収率:0.21)。さらに、図4に、ホストとしてH-2を用い、ドーパントとして上記各濃度のIr(nBuPPy)₃を添加して作製した薄膜の蛍光スペクトルを示す。

【0197】

【化 7 4】

Ir (nBuPPy)₃

10

【0198】

実施例 2 2

ホストを H - 3 に変更した以外は、実施例 5 と同様に溶液を調製し、薄膜を作製し、蛍光スペクトル及び量子収率を測定した。結果を表 3 に示す。また、図 2 に、ホストとして用いた H - 3 のみを用いて作製した薄膜の蛍光スペクトルを示す。さらに、図 5 に、ホストとして H - 3 を用い、ドープメントとして上記各濃度の Ir (nBuPPy)₃ を添加して作製した薄膜の蛍光スペクトルを示す。

【0199】

【表 3】

20

	ホスト	ドープメント濃度 (wt%)	蛍光スペクトル ピーク(半値幅) (nm)	蛍光量子 収率
実施例 21	H-2	5	513(51)	0.52
		10	514(50)	0.50
		20	516(52)	0.38
実施例 22	H-3	5	512(50)	0.60
		10	514(50)	0.52
		20	516(52)	0.36

30

【0200】

薄膜の蛍光スペクトルの比較から明らかなように、ホストとドープメントを混合して製膜した薄膜のスペクトルはドープメントに起因するものであり、ホストからドープメントへのエネルギー移動が適切に行われていることが示されている。

よって、本発明で開発されたホスト材料は、溶液を使用する塗布等に適用する材料として有用であることが示された。

【産業上の利用可能性】

【0201】

本発明の芳香族複素環誘導体は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として有用である。

40

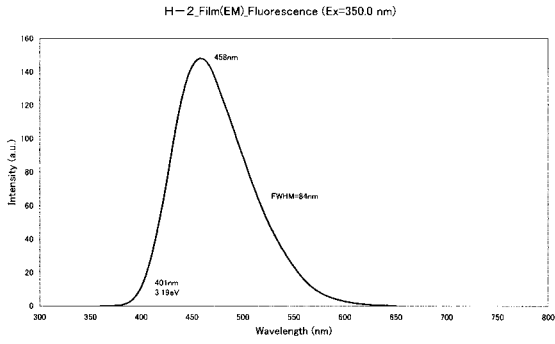
また、可溶性を有し、塗布プロセスに適した本発明の芳香族複素環誘導体は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料溶液として有用である。

【0202】

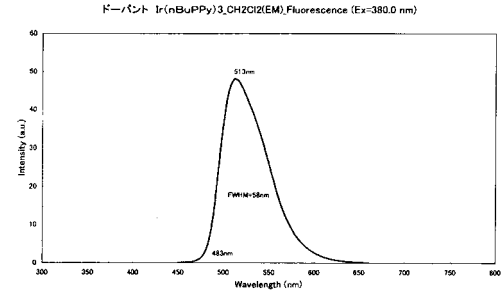
上記に本発明の実施形態及び/又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び/又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

この明細書に記載の文献の内容を全てここに援用する。

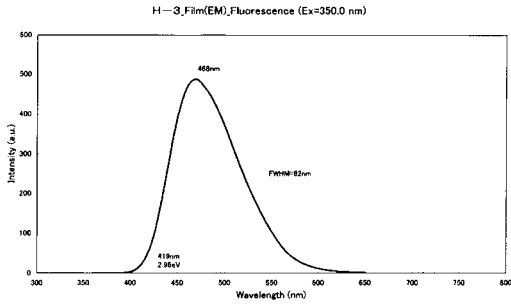
【 図 1 】



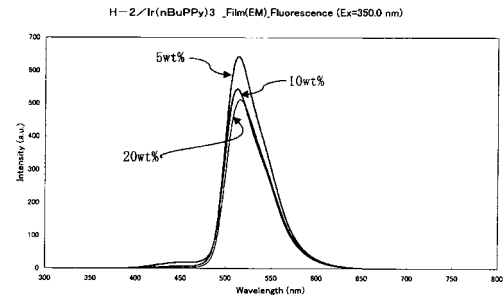
【 図 3 】



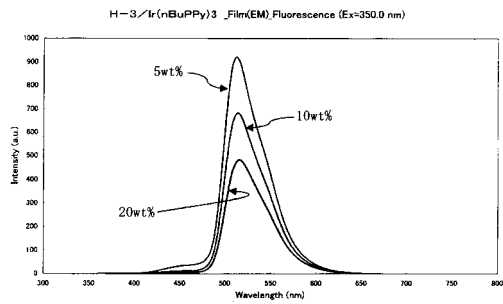
【 図 2 】



【 図 4 】



【 図 5 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/007071

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C07D403/14(2006.01)i, C07D405/14(2006.01)i, C07F15/00(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C07D403/14, C07D405/14, C07F15/00, C09K11/06, H01L51/50		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2012 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CA/REGISTRY (STN), JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDream I)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 4474493 B1 (Fujifilm Corp.), 02 June 2010 (02.06.2010), compounds 8, 24, 40, 51, 52, 54, 61, 64, 65, 81 & WO 2011/013843 A1	1-16
X	WO 2008/123189 A1 (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 16 October 2008 (16.10.2008), compounds 5 to 8, 10, 14, 21 to 24, 26, 30, 37, 39, 41 & US 2010/0044695 A1 & EP 2138486 A1 & CN 101641340 A & KR 10-2010-0015581 A	1-16
X	JP 2006-76901 A (Canon Inc.), 23 March 2006 (23.03.2006), paragraphs [0040] to [0043] & US 2006/0051616 A1	1-16
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents:		
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T"
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date	"X"
"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)	"Y"
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&"
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	
Date of the actual completion of the international search 03 February, 2012 (03.02.12)		Date of mailing of the international search report 14 February, 2012 (14.02.12)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/007071

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2010-238880 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 21 October 2010 (21.10.2010), compounds 3 to 8 (Family: none)	1-16
X	WO 2009/031855 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.), 12 March 2009 (12.03.2009), chemical formulae 8 to 37 & US 2010/0163857 A1 & KR 10-2009-0024998 A & CN 101784635 A	1-16
X	WO 2010/126270 A1 (Dow Advanced Display Materials, Ltd.), 04 November 2010 (04.11.2010), compound 34 & KR 10-2010-0118690 A	1-16
X	WO 2009/104708 A1 (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 27 August 2009 (27.08.2009), paragraphs [0099] to [0102] & US 2010/0327738 A1 & EP 2246370 A1 & KR 10-2010-0114545 A	1-16
X	WO 2009/064661 A1 (NITTO DENKO CORP.), 22 May 2009 (22.05.2009), example 7 & JP 2011-504525 A & US 2009/0179552 A1	1-16
X	WO 2005/076669 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 August 2005 (18.08.2005), page 39 & US 2007/0257600 A1 & EP 1718121 A1 & KR 10-2006-0114001 A & CN 1918947 A	1-16
X	JP 2010-212676 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 24 September 2010 (24.09.2010), compound C2 (Family: none)	1-16
X	JP 2007-77033 A (JSR Corp.), 29 March 2007 (29.03.2007), paragraphs [0034] to [0035] (Family: none)	1-16
X	JP 2006-131796 A (JSR Corp.), 25 May 2006 (25.05.2006), paragraphs [0035] to [0037] (Family: none)	1-16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/007071

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KR 10-2010-0077675 A (CHEIL INDUSTRIES INC.), 08 July 2010 (08.07.2010), compounds 10 to 13, 23, 24, 33, 41, 43, 44, 54, 55, 66 (Family: none)	1-16
X	KR 10-2010-0075079 A (CHEIL INDUSTRIES INC.), 02 July 2010 (02.07.2010), compounds 7, 8, 27, 50 (Family: none)	1-16
X	ROTHMANN, M.M. et al, Donor-Substituted 1,3,5- Triazines as Host Materials for Blue Phosphorescent Organic Light-Emitting Diodes, Chemistry of Materials, 2010, Vol.22, No.7, p.2403-2410, Scheme 1, 2	1-16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/007071

<Claims 1-16>

Although the inventions of claims 1-16 are defined to include a very large number of compounds, only a few compounds among the claimed compounds are disclosed within the meaning of PCT Article 5. Consequently, the inventions of claims 1-16 are not fully supported within the meaning of PCT Article 6.

This international search report therefore covers those disclosed and supported by the description, namely (1) modes wherein ring A is a pyrimidine ring or a triazine ring, Cz is a carbazolyl group, and an N atom of the carbazolyl group and ring A are directly bonded with each other, and (2) modes wherein ring A is a pyrimidine ring or a triazine ring, Cz is a carbazolyl group, and an N atom of the carbazolyl group is bonded to ring A via a phenylene group.

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 0 7 0 7 1	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07D403/14(2006.01)i, C07D405/14(2006.01)i, C07F15/00(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07D403/14, C07D405/14, C07F15/00, C09K11/06, H01L51/50			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2012年 日本国実用新案登録公報 1996-2012年 日本国登録実用新案公報 1994-2012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) CA/REGISTRY (STN) JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamII)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	
X	JP 4474493 B1 (富士フイルム株式会社) 2010.06.02, 化合物 8, 24, 40, 51, 52, 54, 61, 64, 65, 81 & WO 2011/013843 A1	1-16	
X	WO 2008/123189 A1 (新日鐵化学株式会社) 2008.10.16, 化合物 5-8, 10, 14, 21-24, 26, 30, 37, 39, 41 & US 2010/0044695 A1 & EP 2138486 A1 & CN 101641340 A & KR 10-2010-0015581 A	1-16	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了した日 03.02.2012		国際調査報告の発送日 14.02.2012	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 深谷 良範	4 P 3852
		電話番号 03-3581-1101	内線 3492

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 0 7 0 7 1
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2006-76901 A (キヤノン株式会社) 2006.03.23, [0040]-[0043] & US 2006/0051616 A1	1-16
X	JP 2010-238880 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2010.10.21, 化合物 3-8 (ファミリーなし)	1-16
X	WO 2009/031855 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2009.03.12, Chemical Formula 8-37 & US 2010/0163857 A1 & KR 10-2009-0024998 A & CN 101784635 A	1-16
X	WO 2010/126270 A1 (Dow Advanced Display Materials, Ltd.) 2010.11.04, Compound 34 & KR 10-2010-0118690 A	1-16
X	WO 2009/104708 A1 (昭和電工株式会社) 2009.08.27, [0099]-[0102] & US 2010/0327738 A1 & EP 2246370 A1 & KR 10-2010-0114545 A	1-16
X	WO 2009/064661 A1 (NITTO DENKO CORPORATION) 2009.05.22, Example 7 & JP 2011-504525 A & US 2009/0179552 A1	1-16
X	WO 2005/076669 A1 (出光興産株式会社) 2005.08.18, p. 39 & US 2007/0257600 A1 & EP 1718121 A1 & KR 10-2006-0114001 A & CN 1918947 A	1-16
X	JP 2010-212676 A (三菱化学株式会社) 2010.09.24, 化合物 C2 (ファミリーなし)	1-16
X	JP 2007-77033 A (J S R 株式会社) 2007.03.29, [0034]-[0035] (ファミリーなし)	1-16

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 0 7 0 7 1
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2006-131796 A (J S R 株式会社) 2006. 05. 25, [0035]-[0037] (ファミリーなし)	1-16
X	KR 10-2010-0077675 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2010. 07. 08, Compound 10-13, 23, 24, 33, 41, 43, 44, 54, 55, 66 (ファミリーなし)	1-16
X	KR 10-2010-0075079 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2010. 07. 02, Compound 7, 8, 27, 50 (ファミリーなし)	1-16
X	ROTHMANN, M. M. et al, Donor-Substituted 1,3,5-Triazines as Host Materials for Blue Phosphorescent Organic Light-Emitting Diodes, Chemistry of Materials, 2010, Vol. 22, No. 7, p. 2403-2410, Scheme 1,2	1-16

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2011/007071

○請求項1-16

請求項1-16に係る発明は、非常に多数の化合物を包含するものとして特定されている。しかしながら、PCT第5条の意味において開示されているのは、クレームされた化合物のごくわずかな部分に過ぎず、PCT第6条の意味で十分に裏付けられているとはいえない。

したがって、調査は、明細書に開示され、裏付けられている部分、すなわち、(1) Aがピリミジン環又はトリアジン環であって、C_zがカルバゾリル基であって、かつ、該カルバゾリル基のN原子がAと直接結合している態様、及び、(2) Aがピリミジン環又はトリアジン環であって、C_zがカルバゾリル基であって、かつ、該カルバゾリル基のN原子がフェニレン基を介してAと結合している態様、について行った。

フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
C 0 7 B 61/00 (2006.01)	H 0 5 B 33/14	B
	H 0 5 B 33/22	B
	H 0 5 B 33/22	D
	C 0 7 B 61/00	3 0 0

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, T J, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, R O, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, H U, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI , NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 CC04 CC21 CC45 DD53 DD59 DD64
DD67 DD68 DD69 DD70 DD71 DD74 DD76 DD78 DD80 DD86
DD87
4C063 AA05 BB01 BB02 CC29 CC76 DD08 EE10
4H039 CA42 CD10 CD20
4H050 AA03 AB92

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