

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2010年7月1日(01.07.2010)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2010/074087 A1

- (51) 国際特許分類:  
H01L 51/50 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)  
C07D 307/91 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/071337
- (22) 国際出願日: 2009年12月22日(22.12.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2008-334961 2008年12月26日(26.12.2008) JP  
PCT/JP2009/065613 2009年9月7日(07.09.2009) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)  
[JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 高嶋 頼由 (TAKASHIMA, Yoriyuki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 岩隈 俊裕 (IWAKUMA, Toshihiro) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 荻原

俊成 (OGIWARA, Toshinari) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 細川地潮 (HOSOKAWA, Chishio) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 伊藤光則 (ITO, Mitsunori) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).

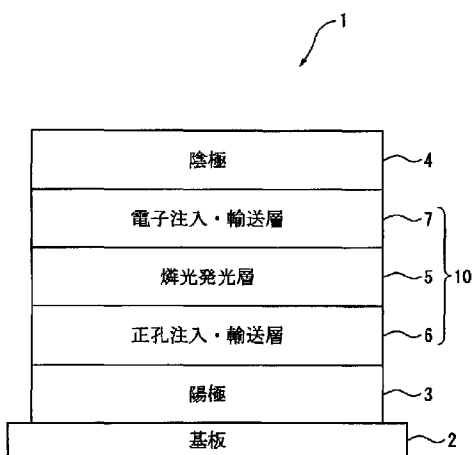
- (74) 代理人: 大谷 保, 外 (OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号ブリヂストン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, 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, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

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

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子

[図1]



- 4 CATHODE
- 7 ELECTRON INJECTION/TRANSPORT LAYER
- 5 PHOSPHORESCENT LAYER
- 6 HOLE INJECTION/TRANSPORT LAYER
- 3 ANODE
- 2 SUBSTRATE

(57) Abstract: Disclosed is an organic electroluminescent element which is characterized by comprising a cathode, an anode, and a monolayered or multilayered organic thin film layer, wherein the organic thin film layer comprises one or more light-emitting layers, and wherein at least one of the light-emitting layers comprises at least one phosphorescent material that can emit a phosphorescence and a host material that is a compound essentially having a structure composed of a fluorene, dibenzofuran or dibenzothiophene skeleton and a naphthalene ring bound to the skeleton. The organic electroluminescent element has a high efficiency, a long service life, and a phosphorescence-emitting properties. Also disclosed is a material for an organic electroluminescent element, which can be used for the above-mentioned organic electroluminescent element.

(57) 要約: 陰極と陽極との間に、1層又は複数層からなる有機薄膜層を備え、前記有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、前記発光層の少なくとも1つは、燐光発光を示す燐光発光材料を少なくとも1種と、フルオレン、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェン骨格にナフタレン環を結合した構造を必須とする化合物であるホスト材料とを含むことを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子により、高効率かつ長寿命な燐光発光性の有機エレクトロルミネッセンス素子、及びそれに用いる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供する。

WO 2010/074087 A1



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

CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

## 明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子

### 技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と略記する場合がある。）及び有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関する。特に、緑色に発光する発光層を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子及びこれに用いる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関する。

### 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EL素子が知られている。

このような有機EL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。有機EL素子の更なる改善点としては、例えば、発光効率が挙げられる。

この点、内部量子効率を高めるため、三重項励起子からの発光が得られる発光材料（燐光発光材料）の開発が進められ、最近では燐光発光を示す有機EL素子が報告されている。

このような燐光発光材料を用いて発光層（燐光発光層）を構成することにより75%以上、理論上100%近い値の内部量子効率を実現でき、高効率、低消費電力の有機EL素子が得られる。また、発光層を形成するにあたっては、ホスト材料に、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。

ドーピング法で形成した発光層では、ホスト材料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。

ここで、ホスト材料から燐光発光性の燐光ドーパントに分子間エネルギー移動を行うためには、ホスト材料の励起三重項エネルギー $E_g(T)$ が、燐光ドーパントの励起三重項エネルギー $E_g(S)$ よりも大きいことが必要である。

[0003] 励起三重項エネルギーが有効に大きい材料としては、CBP (4, 4'-bis(N-carbazolyl)biphenyl) が代表的に知られている (例えば、特許文献1参照)。

このCBPをホスト材料とすれば、所定の発光波長 (例えば、緑、赤) を示す燐光ドーパントへのエネルギー移動が可能であり、高効率の有機EL素子を得ることができる。

しかしながら、CBPをホスト材料として使用すると、燐光発光により発光効率は格段に向上する一方、寿命は非常に短く、実用に適さないという問題があった。

これは、CBPの分子構造上の酸化安定性が高くないため、正孔による分子の劣化が激しいためと考えられる。

また、特許文献2には、カルバゾール等の含窒素環を含有する縮合環誘導体を、赤色燐光を示す燐光発光層のホスト材料として用いた技術が開示されている。この技術により、発光効率及び寿命について改善されているが、実用化には十分でない場合もあった。

その一方、蛍光発光を示す蛍光ドーパント用のホスト材料 (蛍光ホスト) は種々知られており、蛍光ドーパントとの組み合わせで発光効率、寿命に優れた蛍光発光層を形成できるホスト材料が種々提案されている。

しかし、蛍光ホストでは、励起1重項エネルギー $E_g(S)$ は蛍光ドーパントよりも大きい、励起三重項エネルギー $E_g(T)$ は必ずしも大きくないため、単純には燐光発光層のホスト材料 (燐光ホスト) として転用できない。

[0004] 例えば、蛍光ホストとしてはアントラセン誘導体が良く知られている。

しかし、アントラセン誘導体は、励起三重項エネルギー  $E_g(T)$  が 1.9 eV 程度と比較的小さい。このため、500 nm から 720 nm の可視光領域の発光波長を有する燐光ドーパントに対するエネルギー移動が確保できない。また、励起された三重項エネルギーを発光層内に閉じ込めることができない。

したがって、アントラセン誘導体は燐光ホストとして不適切である。

また、ペリレン誘導体、ピレン誘導体及びナフタセン誘導体等も同様の理由で燐光ホストとして好ましくない。

また、燐光ホストとして芳香族炭化水素化合物を用いた例が知られている（特許文献 3）。ここでは、ベンゼン骨格を中心とし、置換基として 2 つの芳香族基がメタ位に結合した化合物を、燐光ホストとして用いている。

ただし、特許文献 3 の芳香族炭化水素化合物は、中心のベンゼン骨格に対し、左右対称に分子を伸張した 5 つの芳香族環を有する対称性の良い剛直な分子構造になっており、発光層が結晶化しやすいという懸念がある。

一方、特許文献 4～6 には、種々の芳香族炭化水素化合物を用いた有機 EL 素子が開示され、特許文献 7～9 は、種々のフルオレン化合物を用いた有機 EL 素子が開示されている。しかしながら、燐光ホストとしての有効性についてはなんら言及されていない。

また、特許文献 10～15 には、種々のフルオレン化合物を用いた燐光ホスト材料を用いる素子が記載され、特許文献 11, 13, 15 には、フルオレン環の両端に直接ベンゼン環が結合する特徴を有する 2 価のフルオレン化合物が開示され、特許文献 12 には、フルオレンの 9 位がアリール基である化合物が開示されている。しかしながら、これらの化合物を燐光ホスト材料として用いても発光効率、素子寿命は十分ではない。

また、特許文献 8、16 には、縮合多環式芳香族環とフルオレン環が直接結合している炭化水素化合物が開示されている。しかしながら、燐光発光性材料と組み合わせた有機電界発光素子に関して、何ら有効性が示されていない。

いだけでなく、縮合多環式芳香族環として、3重項のエネルギーレベルが小さく燐光素子の発光層に用いることは好ましくないペリレン環やピレン環も記載されており、燐光素子用の材料として、有効な材料の選択がなされていない。

さらに特許文献17には、2つ以上のフルオレン環と、ナフタレン環が必須である燐光発光素子に用いるホスト材料が公開されている。さらに特許文献18には、2価のフルオレンと、置換基を有するフェナントレン環及びベンゼン環又は他の縮合多環芳香族環が結合した材料が公開されている。

## 先行技術文献

### 特許文献

- [0005] 特許文献1：US 2002/182441号公報  
特許文献2：WO 2005/112519号公報  
特許文献3：特開2003-142267号公報  
特許文献4：WO 2007/046658号公報  
特許文献5：特開2005-197262号公報  
特許文献6：特開2004-75567号公報  
特許文献7：特開2007-314512号公報  
特許文献8：特開2004-043349号公報  
特許文献9：特開2007-314506号公報  
特許文献10：特開2004-083481号公報  
特許文献11：特開2006-124373号公報  
特許文献12：特開2007-016237号公報  
特許文献13：特開2007-302650号公報  
特許文献14：特開2007-332127号公報  
特許文献15：特開2008-222589号公報  
特許文献16：特開2004-042485号公報  
特許文献17：特開2009-108014号公報  
特許文献18：US 2008/100207号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0006] 上記のように、効率よく燐光発光材料にエネルギー移動を行うことができ、かつ、寿命が実用的に長いホスト材料が知られておらず、燐光発光材料を用いた素子の実用化が進展していなかった。

そこで、本発明の目的は、高効率かつ長寿命な燐光発光性の有機EL素子、及びそれに用いる有機EL素子用材料を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

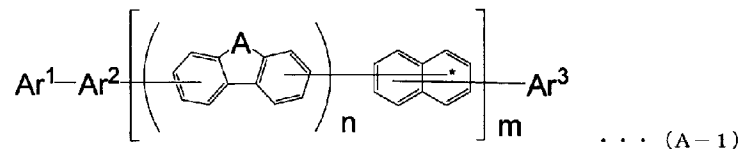
[0007] 本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、フルオレン、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェン骨格に縮合多環芳香族環を直列に2つ以上結合させることにより、また、フルオレン、ジベンゾフラン又はジベンゾチオフェン骨格に互いに異なる縮合多環芳香族環を含む基を共役長が伸びる位置で結合させることにより上記従来 material 群よりも、低電圧化及び、駆動寿命を改善し、飛躍的に素子寿命を向上させることに成功した。

[0008] すなわち、本発明は、

1. 下記式 (A-1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料

、

[化1]



(式中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>3</sup>は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフトレン環、置換もしくは無置換のクリセン環、置換もしくは無置換のフェナントレン環、置換もしくは無置換のベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のジベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のトリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾ[a]トリフェニレン環、置換もしくは無

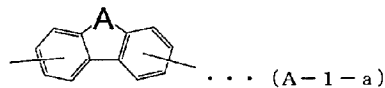
置換のベンゾクリセン環、置換もしくは無置換のフルオランテン環、置換もしくは無置換のベンゾ [b] フルオランテン環、及び、置換もしくは無置換のピセン環から選択される置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環残基を表す。

$Ar^2$ は、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、置換もしくは無置換のナフタレン環残基、又は置換もしくは無置換のフェナントレン環残基を表す。

Aは、O、S又は $CR^1R^2$ を示す。 $R^1$ 及び $R^2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7～24のアラルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～20のシリル基を表す。

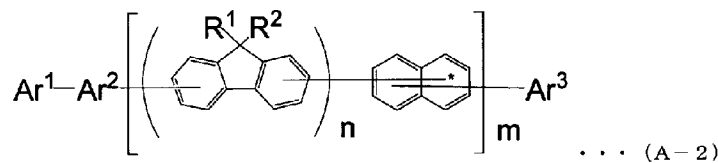
nは1～3の整数を示す。mは1又は2の整数を示す。nが2以上の場合、 $( )_n$ 内の下記式(A-1-a)は、同じであっても、異なっても良い。

[化2]



2. 下記式(A-2)で表される上記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

[化3]

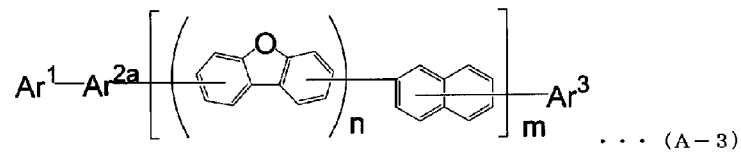


(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、n及びmは前記と同じである。)

3. 下記式(A-3)で表される上記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、



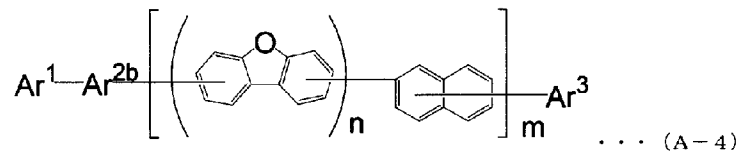
[化4]



(式中、 $\text{Ar}^1$ 、 $\text{Ar}^3$ 、 $n$ 及び $m$ は前記と同じであり、 $\text{Ar}^{2a}$ は置換もしくは無置換のベンゼン環又は置換もしくは無置換のフェナントレン環残基である。また、 $\text{Ar}^3$ はジベンゾフラン環残基に結合するナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。)

4. 下記式(A-4)で表される上記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

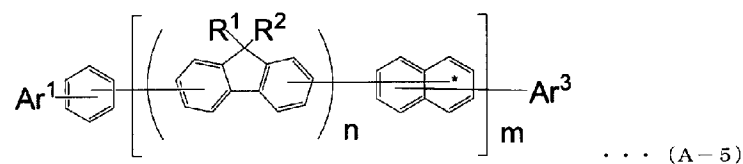
[化5]



(式中、 $\text{Ar}^1$ 、 $\text{Ar}^3$ 、 $n$ 及び $m$ は前記と同じであり、 $\text{Ar}^{2b}$ は置換もしくは無置換のナタフレン環残基である。 $\text{Ar}^{2b}$ が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合する場合は、 $\text{Ar}^1$ 又は $\text{Ar}^3$ のどちらか一方は、それぞれが結合するナフタレン環残基の6位又は7位において結合する。 $\text{Ar}^{2b}$ が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合しない場合は、 $\text{Ar}^3$ はナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。また、 $\text{Ar}^1$ 、 $\text{Ar}^3$ が共に水素である場合を除く。)

5. 下記式(A-5)で表される上記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

[化6]

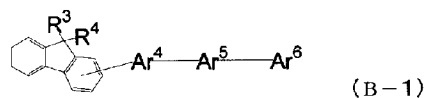


(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $n$ 及び $m$ は前記と同じである。)

6. 前記式(A-1)～(A-5)中、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、 $Ar^{2a}$ 、 $Ar^{2b}$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 及び/又は $R^2$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール基である上記1～4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用材料、

7. 下記式(B-1)で表わされる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

[化7]



(式中、 $R^3$ 及び $R^4$ は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、炭素数1～10のアルキル基、又は環形成炭素数6～12のアリール基を表し、 $Ar^4$ は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、 $Ar^5$ はベンゼン環又は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、 $Ar^6$ は水素原子(重水素原子を含む)、ベンゼン環又は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である。また、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い。

ただし、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ のいずれもアントラセン、ピレン、ペリレン、トリフェニレン、ナフタセン又はペンタセン骨格を有しない。さらに以下の(1)～(6)の場合をすべて満たすものである。

(1)  $Ar^4$ がナフタレン環、フェナントレン環、クリセン環、ベンゾアントラセン環、フルオランテン環のいずれかであり、かつ $Ar^5$ がフルオレン環の場合を除く。

(2)  $Ar^4$ がナフタレン環であり、 $Ar^5$ がベンゼン環であり、かつ $Ar^6$ がベンゼン環又は水素原子である場合を除く。

(3) (i)  $Ar^4$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、 $Ar^5$ が $\beta$ -ナ

フチル基であり、かつA r<sup>6</sup>が水素原子である場合を除く。

(ii) A r<sup>4</sup>がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、A r<sup>5</sup>がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、かつA r<sup>6</sup>がβ - ナフチル基である場合を除く。

(4) A r<sup>4</sup>がフルオレン環であり、かつA r<sup>5</sup>がベンゼン環、フルオレン環又はフルオランテン環のいずれかである場合を除く。

また、A r<sup>4</sup>がフルオレン環であり、かつA r<sup>6</sup>が水素原子又はβ - ナフチル基である場合を除く。

(5) A r<sup>4</sup>がフェナントレン環又はフルオランテン環であり、A r<sup>5</sup>がベンゼン環であり、かつA r<sup>6</sup>が水素原子である場合を除く。

(6) A r<sup>4</sup>がベンゼン環, ビフェニル環, ナフタレン環, ビナフタレン環, フルオレン環のいずれかであり、かつA r<sup>5</sup>がフルオランテン環の場合を除く。

8. A r<sup>4</sup>がナフタレン環であり、A r<sup>5</sup>がベンゼン環であり、かつA r<sup>6</sup>が環形成炭素数10~22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

9. A r<sup>4</sup>がナフタレン環であり、A r<sup>5</sup>がナフタレン環であり、かつA r<sup>6</sup>が環形成炭素数11~22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である(ただしA r<sup>4</sup>がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、A r<sup>5</sup>がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、かつA r<sup>6</sup>がβ - ナフチル基である場合を除く) 上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

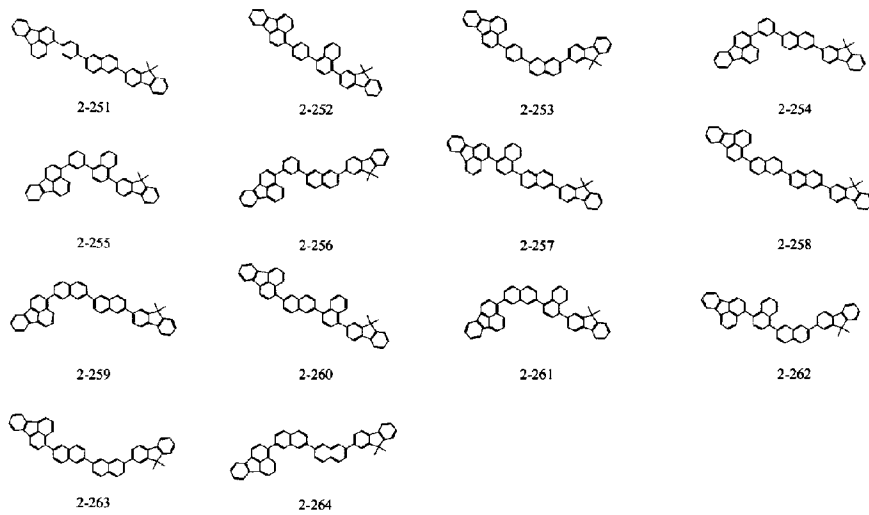
10. A r<sup>4</sup>がナフタレン環であり、A r<sup>5</sup>が環形成炭素数11~22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、かつA r<sup>6</sup>が水素原子(重水素原子を含む)である(ただし、以下の(1)~(3)のいずれかの場合を除く。(1) A r<sup>4</sup>がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、A r<sup>5</sup>がβ - ナフチル基であり、かつA r<sup>6</sup>が水素原子である場合、(2) A r<sup>4</sup>がナフタレン - 1, 4 - ジイル基もしくはナフタレン - 1, 5 - ジイル基であり、A r<sup>5</sup>がフルオランテン環であり、かつA r<sup>6</sup>が水素原子である場合、又は(3) A r<sup>4</sup>がナフタレン - 1,

4-ジイル基、ナフタレン-2, 6-ジイル基もしくはナフタレン-2, 8-ジイル基のいずれかであり、 $A r^5$ がフルオレン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合) 上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料

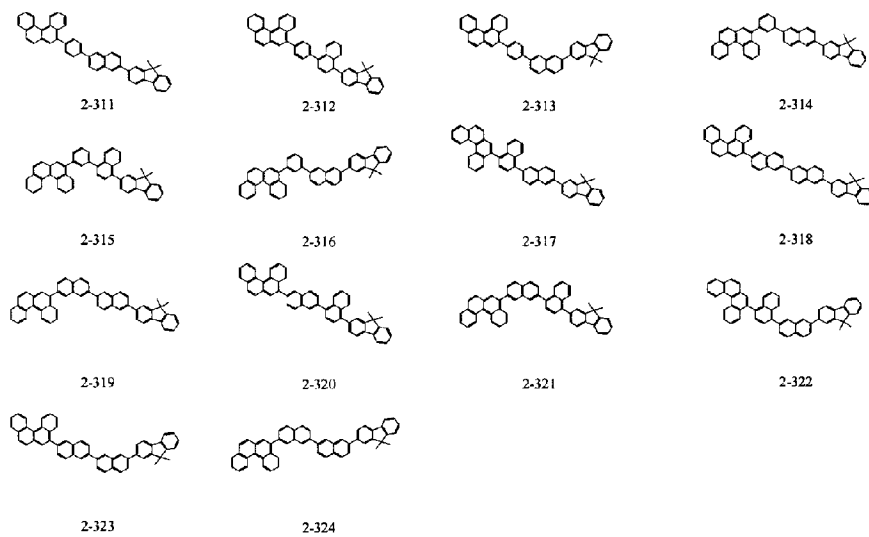
、

11. 以下に示す化合物を除く上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

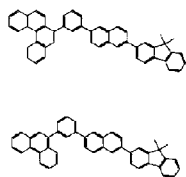
[化8]



[化9]

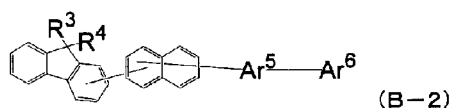


[化10]



12. 下記式 (B-2) で表わされる上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

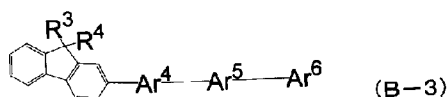
[化11]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

13. 下記式 (B-3) で表わされる上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

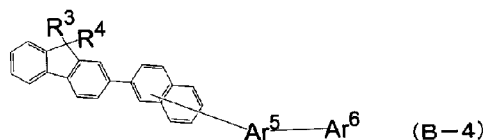
[化12]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

14. 下記式 (B-4) で表わされる上記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

[化13]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

15. 前記式 (B-1) の  $Ar^4 \sim Ar^6$  における環形成炭素数 10 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環が、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、

ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択され、 $A r^6$ が水素原子（重水素原子を含む）又は該環形成炭素数 10～22 の縮合多環芳香族炭化水素環残基を表す上記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

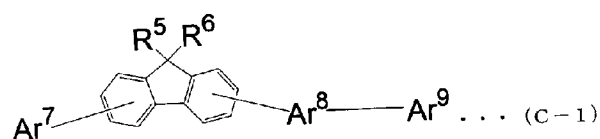
16. 前記式 (B-4) の  $A r^5$  及び  $A r^6$  における環形成炭素数 10～22 の縮合多環芳香族炭化水素環が、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択され、 $A r^6$ が水素原子（重水素原子を含む）又は該環形成炭素数 10～22 の縮合多環芳香族炭化水素環残基を表す上記 14 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

17. 前記式 (B-4) において、 $R^3$  及び  $R^4$  が、それぞれ独立に、炭素数 1～10 のアルキル基、又はフェニル基を表す上記 13 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

18. 前記式 (B-1) ～ (B-4) 中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $A r^4$ 、 $A r^5$  及び / 又は  $A r^6$  が、1 つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数 1～20 のアルキル基、炭素数 1～20 のハロアルキル基、環形成炭素数 5～18 のシクロアルキル基、炭素数 3～20 のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数 6～22 のアリール基である上記 7～17 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用材料、

19. 下記式 (C-1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

[化14]



(式中、 $A r^7$ ～ $A r^9$ は、それぞれ独立に、ベンゼン環、又はナフタレン環、

クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基を表す。A r<sup>9</sup>は水素原子（重水素原子を含む）であってもよい。

R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）、炭素数1～10のアルキル基又は環形成炭素数6～12のアリール基を表す。

また、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>、A r<sup>7</sup>、A r<sup>8</sup>及びA r<sup>9</sup>は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い。

ただし、以下の（1）～（4）の場合をすべて満たすものである。

（1）A r<sup>7</sup>がベンゼン環であり、かつA r<sup>8</sup>がベンゼン環又はフルオレン環の場合を除く。

（2）A r<sup>9</sup>が水素原子であり、かつA r<sup>7</sup>とA r<sup>8</sup>が同一の縮合芳香族炭化水素環残基である場合を除く。

（3）A r<sup>7</sup>とA r<sup>8</sup>—A r<sup>9</sup>が同じ構造の場合を除く。

（4）A r<sup>7</sup>がβ-ナフチル基又はナフタレン-2, 6-ジイル基であり、A r<sup>8</sup>がナフタレン-2, 6-ジイル基であり、かつA r<sup>9</sup>がβ-ナフチル基である場合を除く。）

20. A r<sup>7</sup>がナフタレン環であり、A r<sup>8</sup>がベンゼン環であり、かつA r<sup>9</sup>がナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基である上記19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

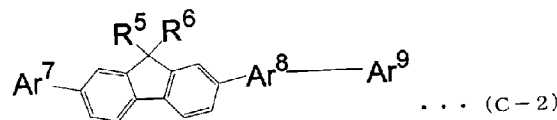
21. A r<sup>7</sup>がナフタレン環であり、A r<sup>8</sup>がナフタレン環であり、かつA r<sup>9</sup>がナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン

環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基である（ただし  $Ar^7$  が  $\beta$ -ナフチル基であり、 $Ar^8$  がナフタレン-2, 6-ジイル基であり、かつ  $Ar^9$  が  $\beta$ -ナフチル基である場合を除く）上記 19 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

22.  $Ar^7$  及び  $Ar^8$  が、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基であり、かつ  $Ar^9$  が水素原子（重水素原子を含む）である上記 19 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

23. 下記式（C-2）で表される上記 19 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

[化15]



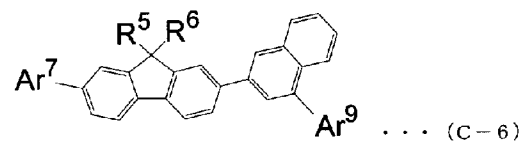
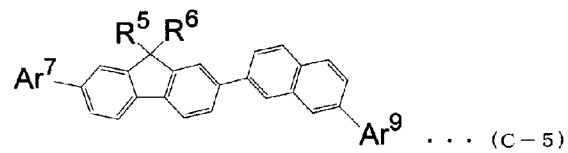
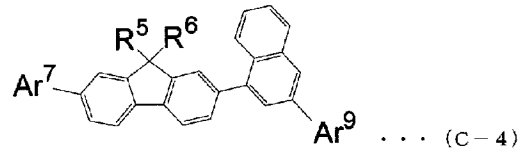
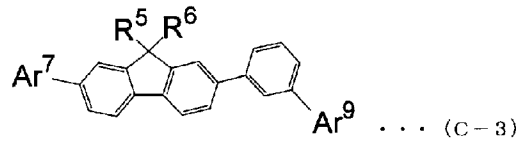
（式中、 $Ar^7$ 、 $Ar^8$ 、 $Ar^9$ 、 $R^5$  及び  $R^6$  は前記と同じである。）

24. 前記一般式（C-1）、（C-2）における  $R^5$ 、 $R^6$ 、 $Ar^7$ 、 $Ar^8$  及び  $Ar^9$  が 1 つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のハロアルキル基、環形成炭素数 5 ~ 18 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 20 のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数 6 ~ 22 のアリアル基である上記 19 ~ 23 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用材料、

25. 下記式（C-3）~（C-6）のいずれかで表される上記 23 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、



[化16]

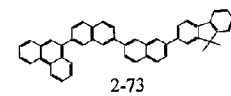
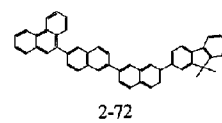
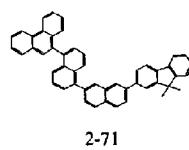
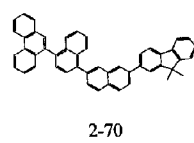
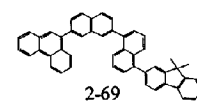
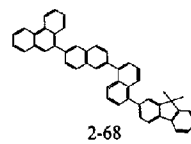
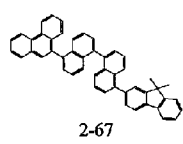
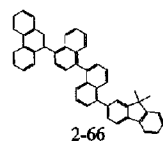
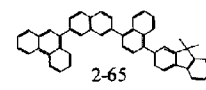
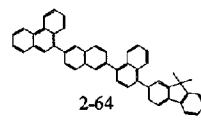
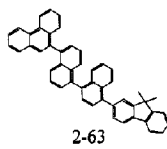
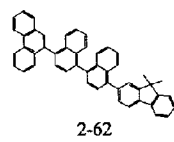
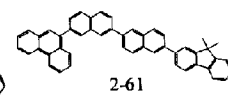
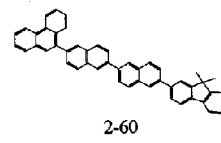
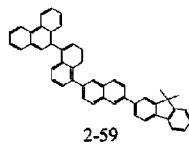
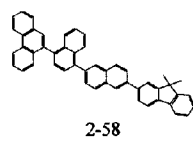
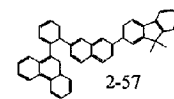
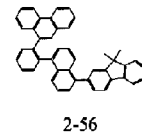
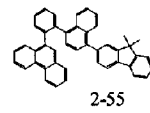
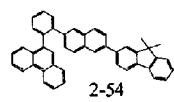
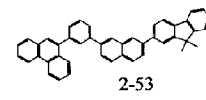
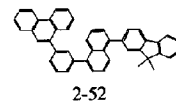
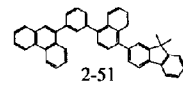
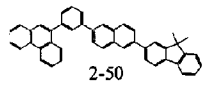
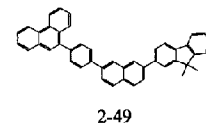
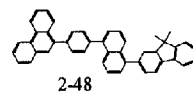
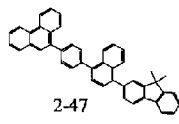
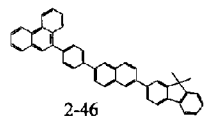


( $Ar^7$ 、 $Ar^9$ 、 $R^5$ 及び $R^6$ は前記と同じである。)

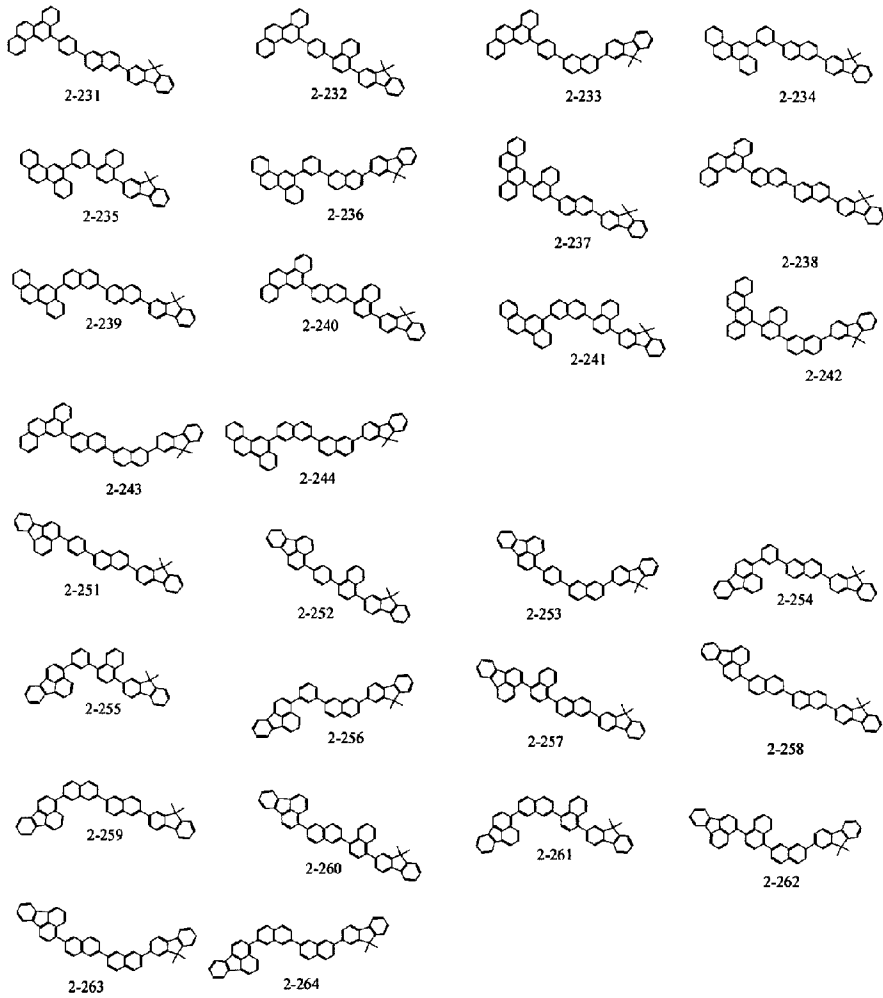
26. 前記式 (C-3) ~ (C-6) 中、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $Ar^7$ 及び/又は $Ar^9$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数1~20のアルキル基、炭素数1~20のハロアルキル基、環形成炭素数5~18のシクロアルキル基、炭素数3~20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子又は環形成炭素数6~22のアリール基である上記25のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

27. 下記式のいずれかで表わされる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、

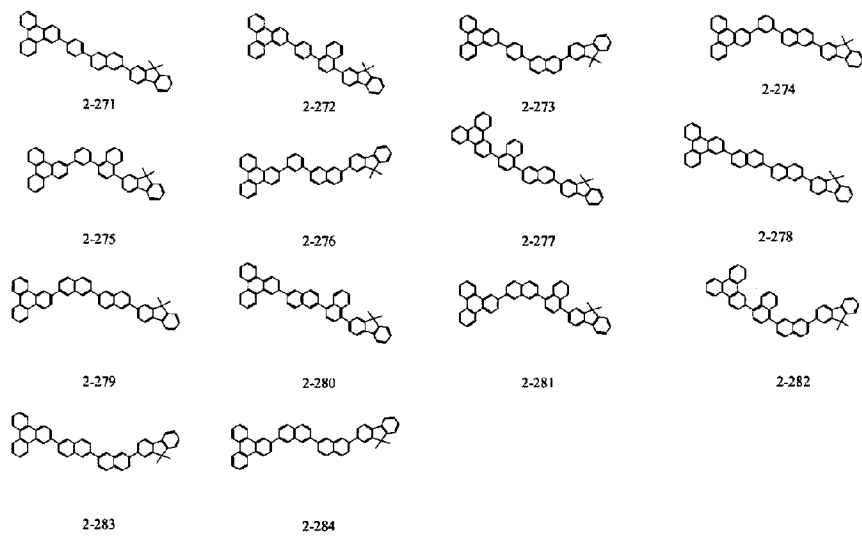
[化17]



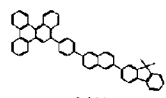
[化18]



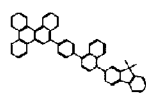
[化19]



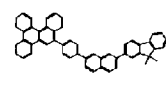
[化20]



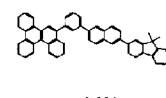
2-291



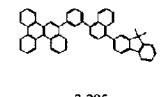
2-292



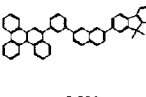
2-293



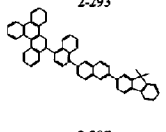
2-294



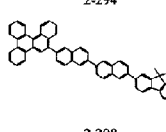
2-295



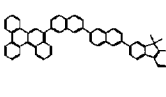
2-296



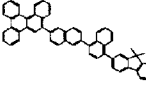
2-297



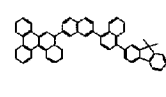
2-298



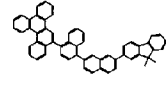
2-299



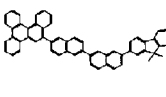
2-300



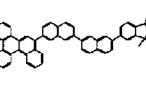
2-301



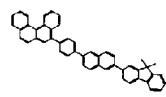
2-302



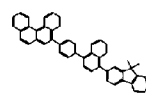
2-303



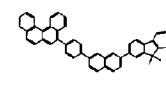
2-304



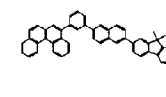
2-311



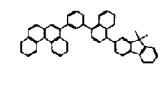
2-312



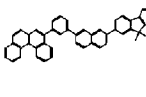
2-313



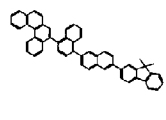
2-314



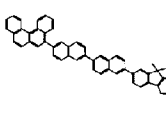
2-315



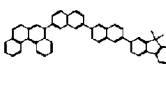
2-316



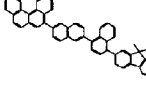
2-317



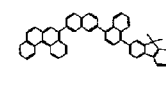
2-318



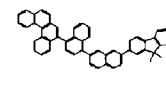
2-319



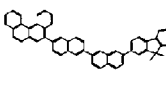
2-320



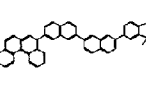
2-321



2-322

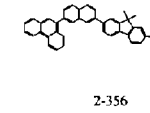
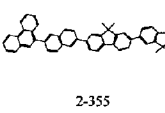
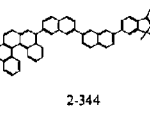
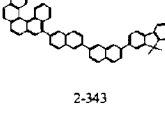
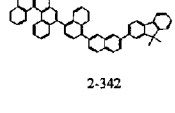
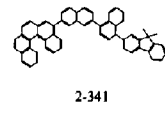
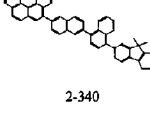
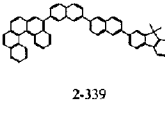
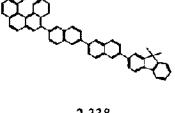
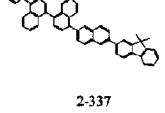
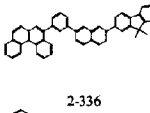
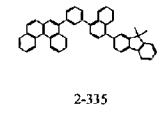
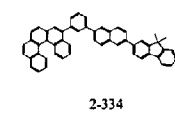
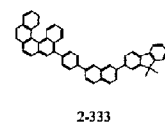
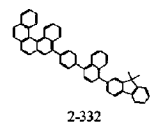
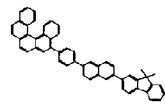


2-323

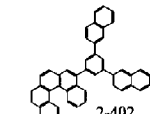
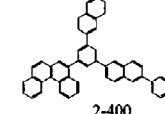
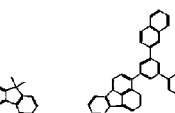
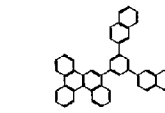
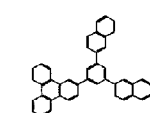
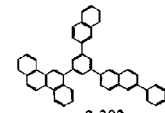
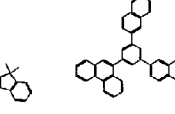
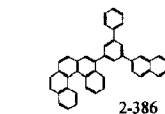
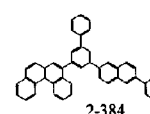
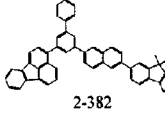
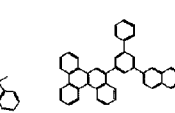
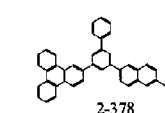
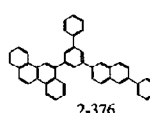
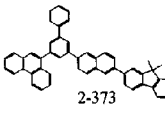


2-324

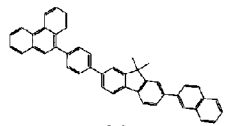
[化21]



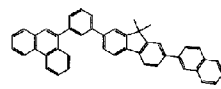
[化22]



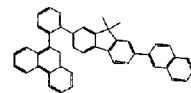
[化23]



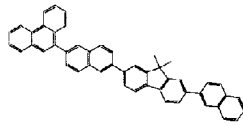
2-1



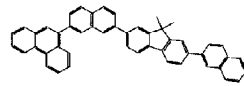
2-2



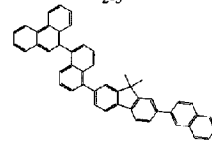
2-3



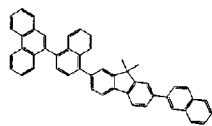
2-4



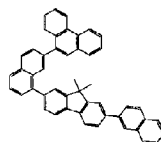
2-5



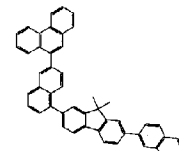
2-6



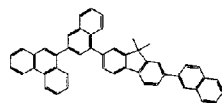
2-7



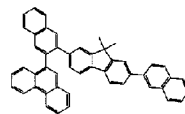
2-8



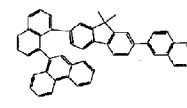
2-9



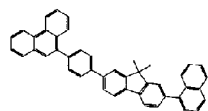
2-10



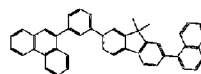
2-11



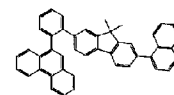
2-12



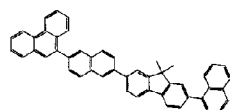
2-13



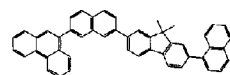
2-14



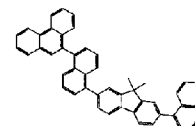
2-15



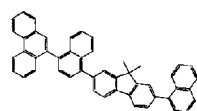
2-16



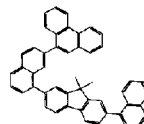
2-17



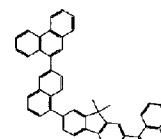
2-18



2-19

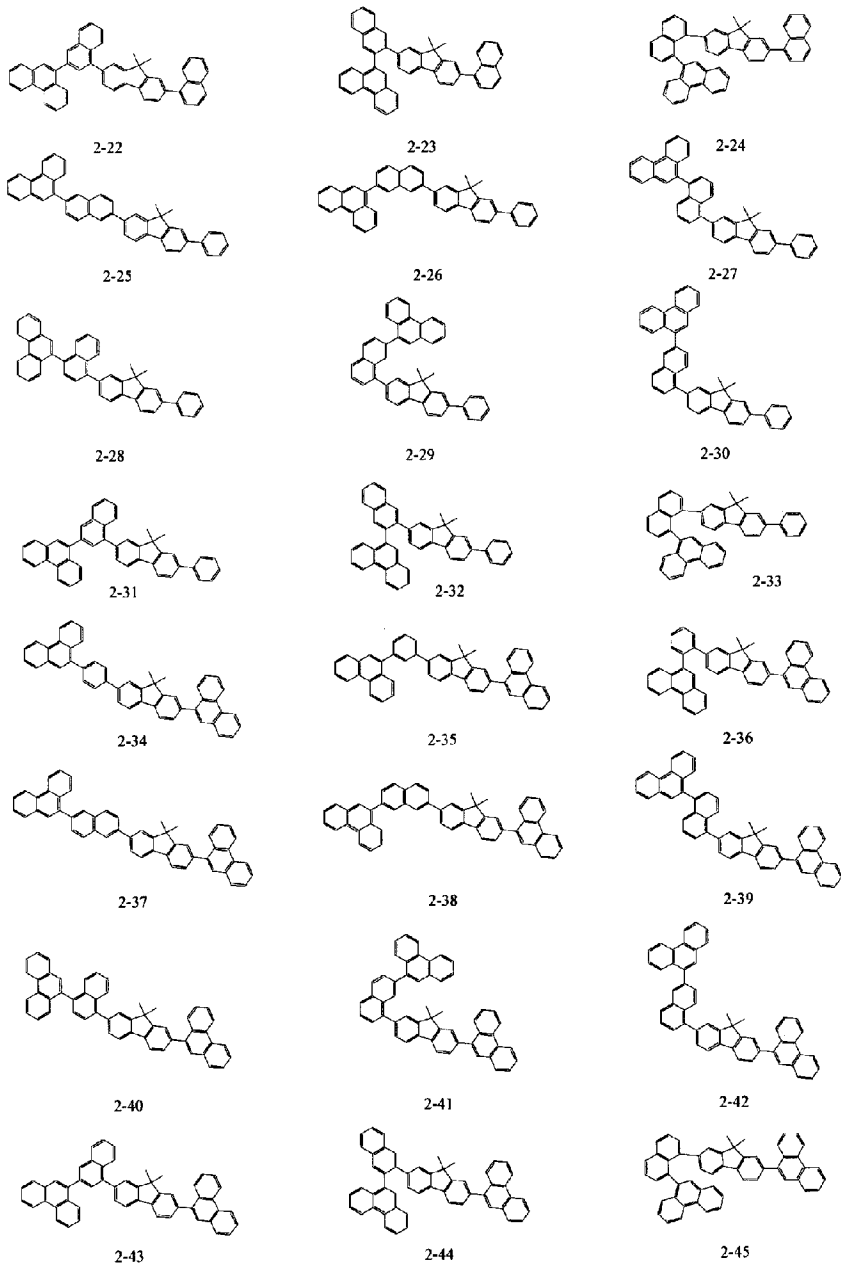


2-20

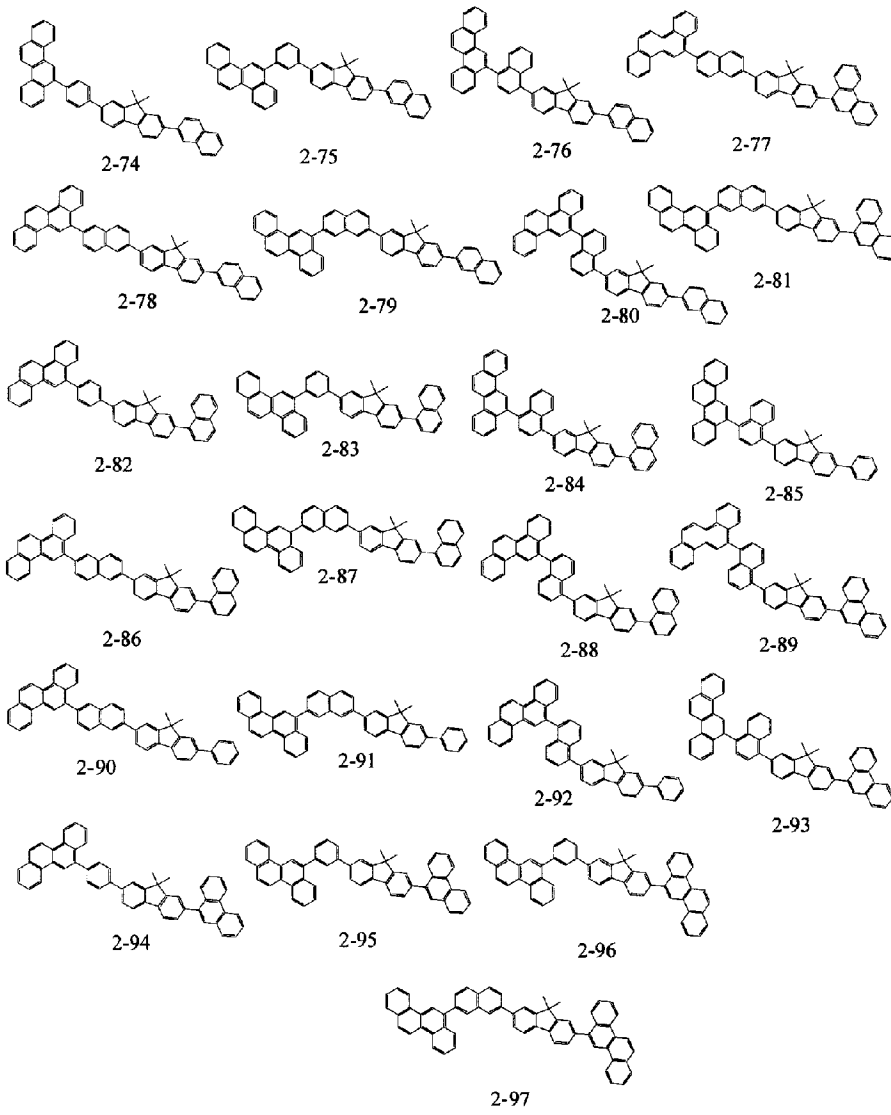


2-21

[化24]

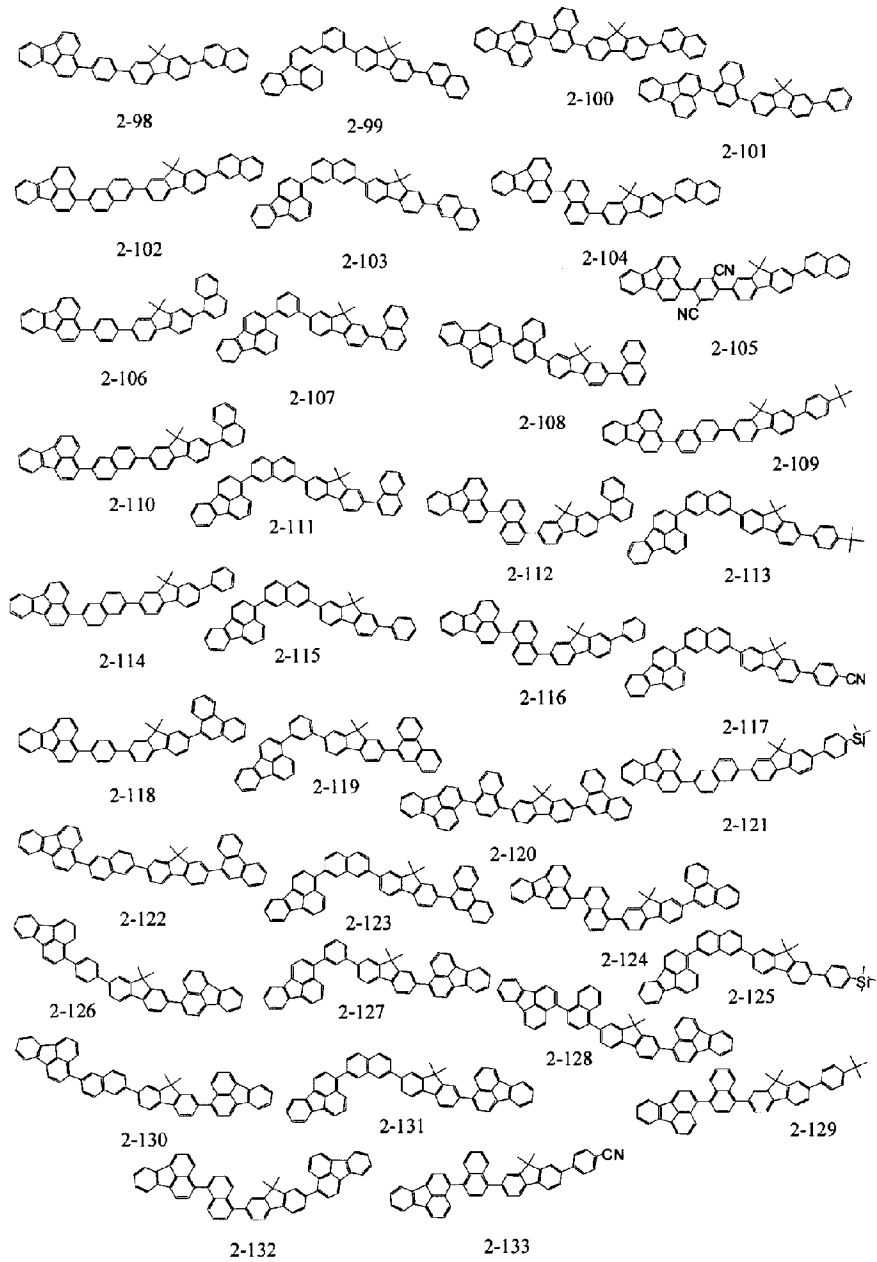


[化25]

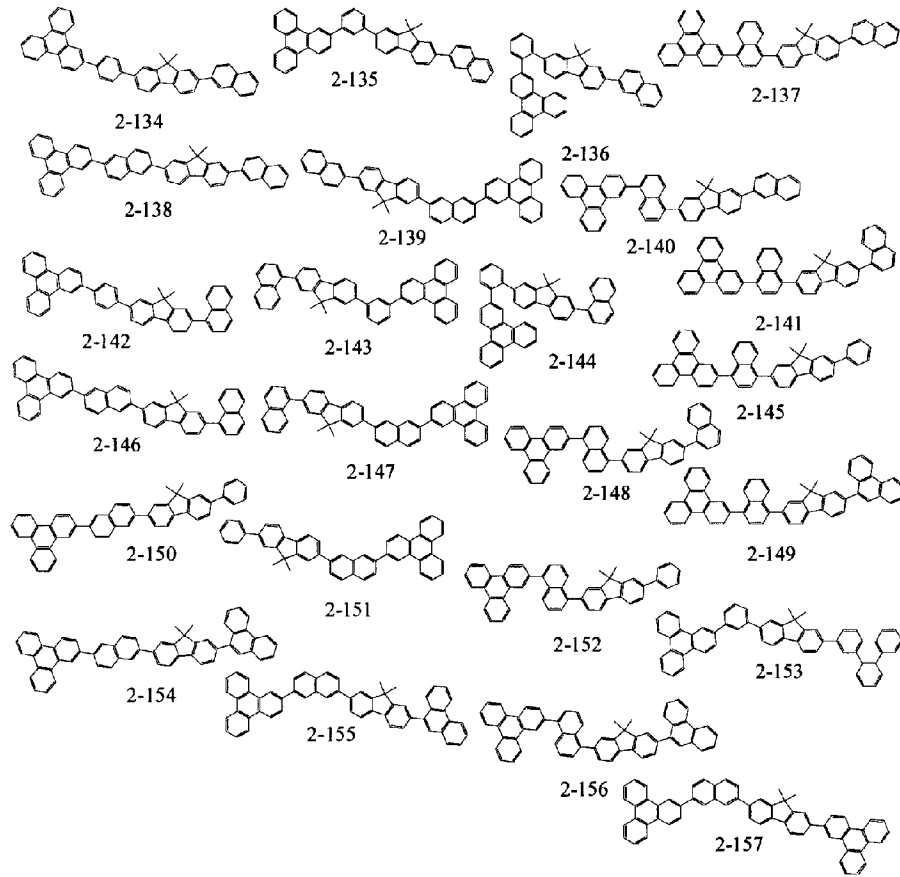




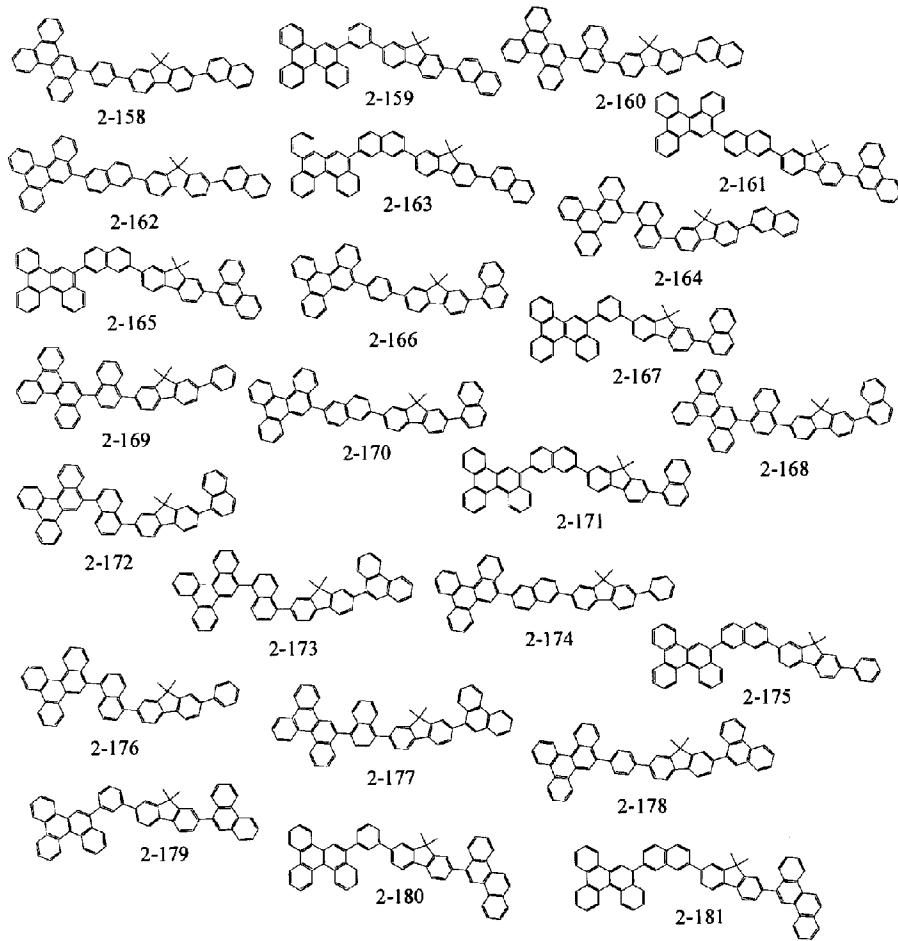
[化26]



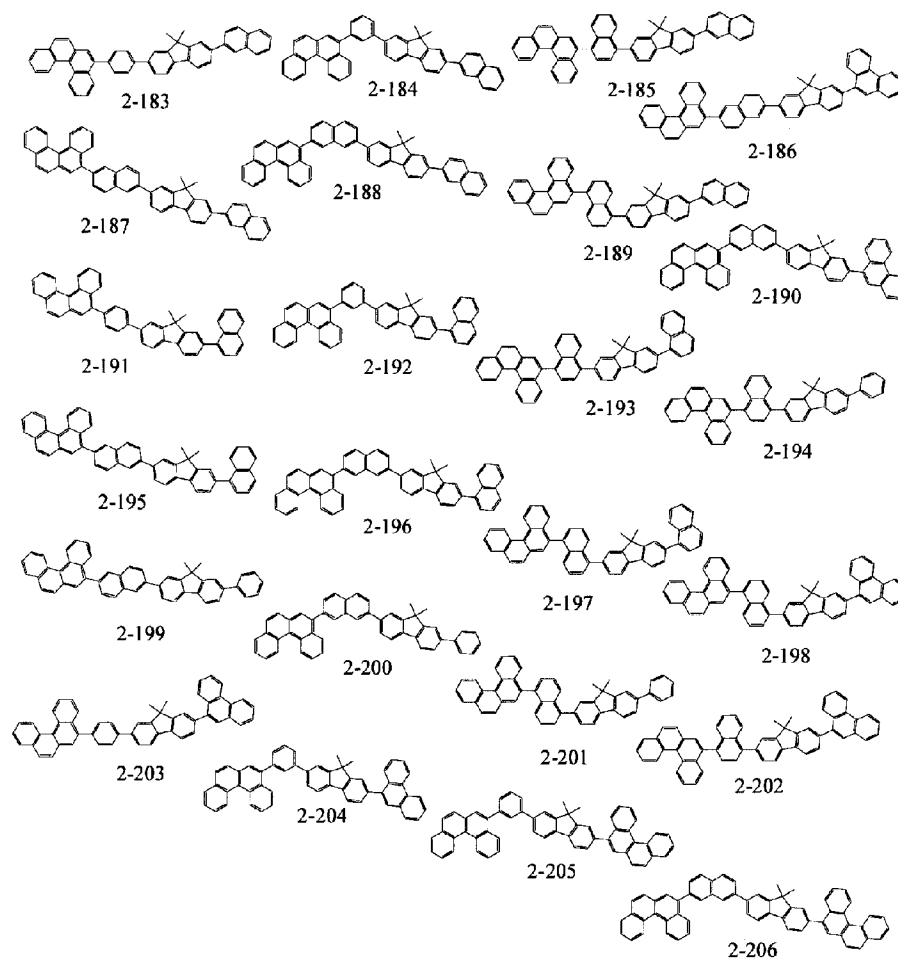
[化27]



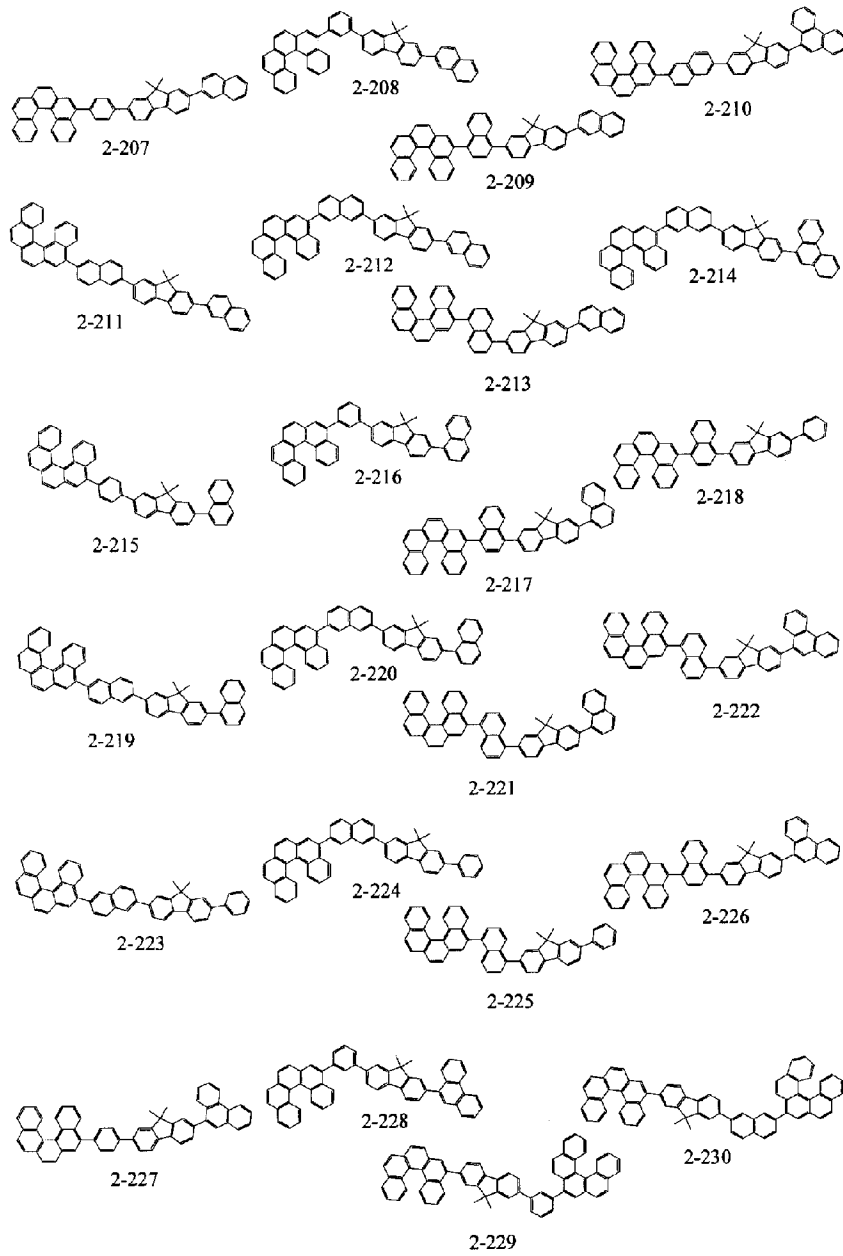
[化28]



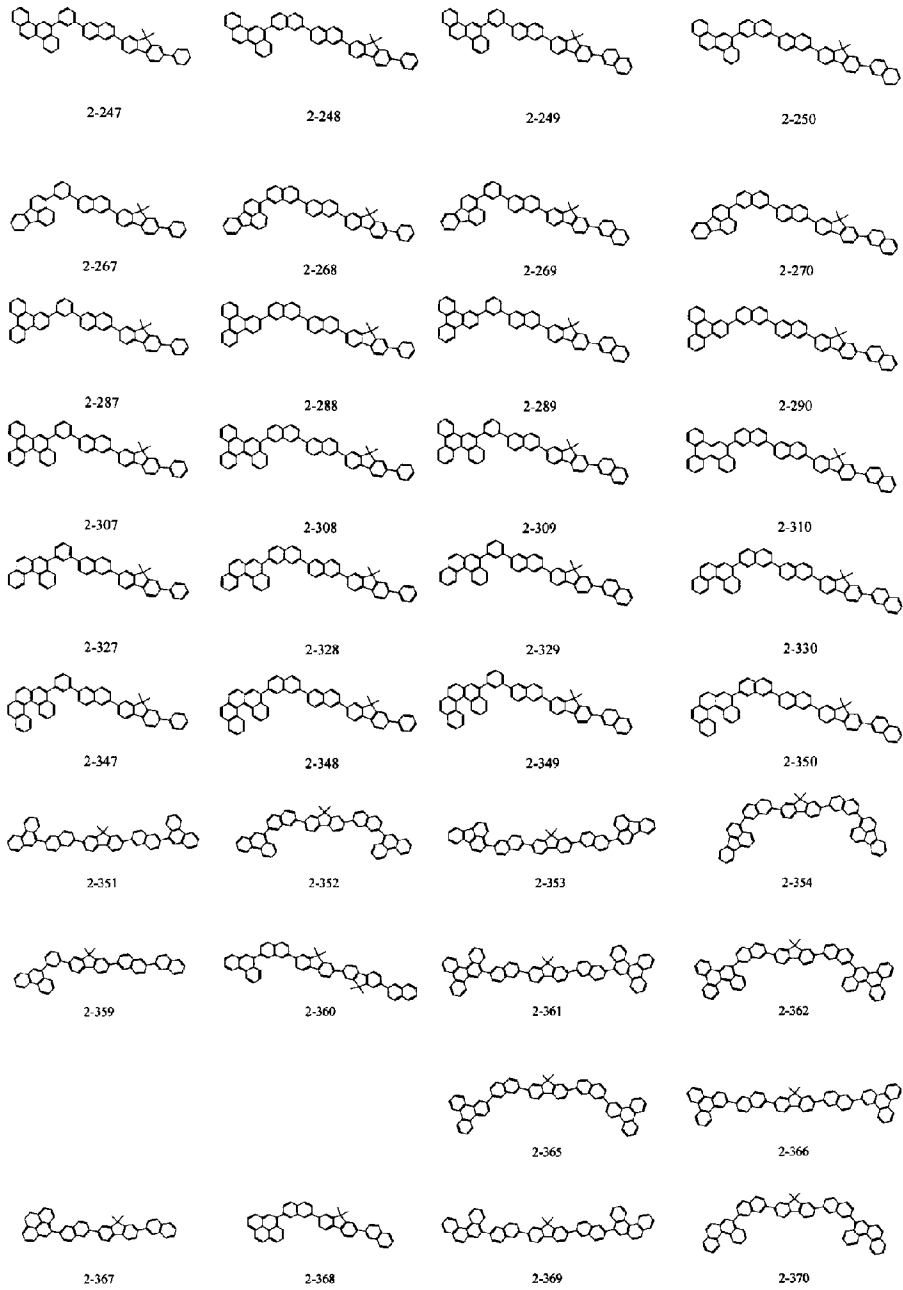
[化29]



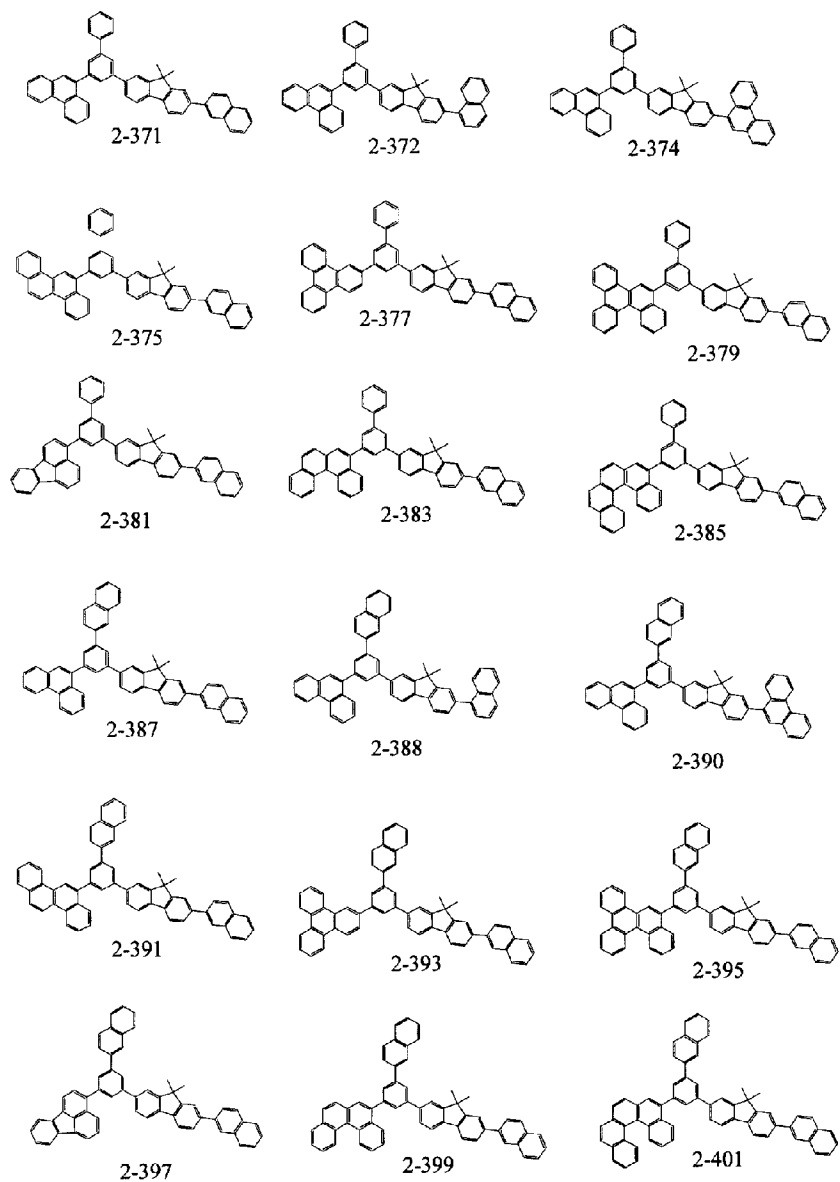
[化30]



[化31]

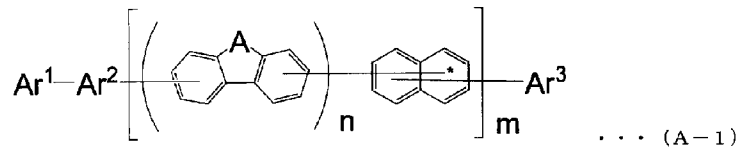


[化32]



28. 陰極と陽極との間に、1層又は複数層からなる有機薄膜層を備え、  
 前記有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、  
 前記発光層の少なくとも1つは、  
 燐光発光を示す燐光発光材料を少なくとも1種と、  
 下記式(A-1)で表されるホスト材料と、を含むことを特徴とした有機  
 エレクトロルミネッセンス素子、

[化33]



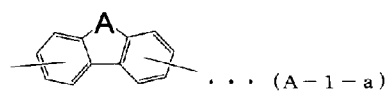
(式中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>3</sup>は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフタレン環、置換もしくは無置換のクリセン環、置換もしくは無置換のフェナントレン環、置換もしくは無置換のベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のジベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のトリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾ[a]トリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾクリセン環、置換もしくは無置換のフルオランテン環、置換もしくは無置換のベンゾ[b]フルオランテン環、及び、置換もしくは無置換のピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基を表す。

Ar<sup>2</sup>は、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフタレン環残基、置換もしくは無置換のフェナントレン環残基を表す。

Aは、O、S又はCR<sup>1</sup>R<sup>2</sup>を示す。R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数7～24のアラルキル基、炭素数3～20のシリル基を表す。

nは1～3の整数を示す。mは1又は2の整数を示す。nが2以上の場合、( )<sub>n</sub>内の下記式(A-1-a)は、同じであっても、異なっても良い。

[化34]

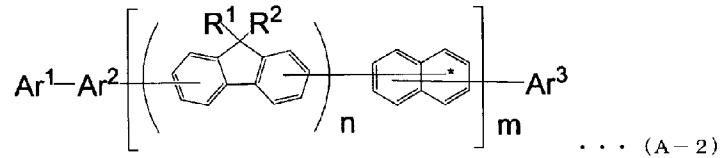


29. 上記28に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、式(



A-1) が下記式 (A-2) で表されることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子。

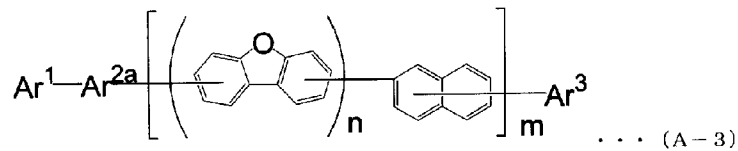
[化35]



(Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>、Ar<sup>3</sup>、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、n及びmは前記と同じである。)

30. 上記28に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、式 (A-1) が下記式 (A-3) で表されることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子、

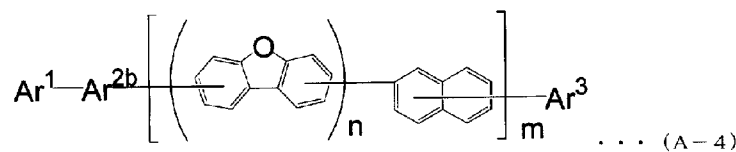
[化36]



(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>3</sup>、n及びmは前記と同じであり、Ar<sup>2a</sup>は置換もしくは無置換のベンゼン環又は置換もしくは無置換のフェナントレン環である。この場合、Ar<sup>3</sup>はジベンゾフラン環残基に結合するナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。)

31. 上記28に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、式 (A-1) が下記式 (A-4) で表されることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子、

[化37]



(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>3</sup>、n及びmは前記と同じであり、Ar<sup>2b</sup>は置換もしくは無置換のナタフレン環残基である。Ar<sup>2b</sup>が、その2位においてジベンゾフラ

ン環残基に結合する場合は、 $A r^1$ 又は $A r^3$ のどちらか一方は、それぞれが結合するナフタレン環残基の6位又は7位において結合する。 $A r^{2b}$ が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合しない場合は、 $A r^3$ はナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。また、 $A r^1$ 、 $A r^3$ が共に水素である場合を除く。)

32. 陰極と陽極との間に、1層又は複数層からなる有機薄膜層を備え、該有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、該有機薄膜層の少なくとも1層が、燐光発光材料の少なくとも1種と、上記1~23及び25~27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用材料とを含む有機エレクトロルミネッセンス素子、

33. 前記発光層の少なくとも1つが前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料と、前記燐光発光材料の少なくとも1種とを含む上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

34. 前記燐光発光材料が、金属錯体を含有し、該金属錯体が、 $I r$ 、 $P t$ 、 $O s$ 、 $A u$ 、 $C u$ 、 $R e$ 及び $R u$ から選択される金属原子と、配位子とを有する上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

35. 前記配位子が、錯体を形成する金属原子とオルトメタル結合を有する上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

36. 前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料の励起三重項エネルギーが、 $2.0 e V$ 以上 $2.8 e V$ 以下である上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

37. 前記燐光発光材料のうち少なくとも1種の、発光波長の極大値が $520 n m$ 以上 $720 n m$ 以下である上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

38. 前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

39. 前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層又は電

子注入層を有し、前記電子輸送層又は前記電子注入層が、含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する芳香族環又は含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する縮合芳香族環化合物を含む上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、

40. 前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層又は電子注入層を有し、前記電子輸送層又は前記電子注入層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、及び

41. 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いる上記32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子、  
を提供するものである。

### 発明の効果

[0009] 本発明によれば、前記式(A-1)～(A-5)、(B-1)～(B-4)、(C-1)～(C-6)等で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料、特に燐光ホストとして用いることにより、高効率かつ長寿命な燐光発光性の有機EL素子を提供することができる。

### 図面の簡単な説明

[0010] [図1]本発明の実施形態における有機EL素子の一例の概略構成を示す図である。

### 符号の説明

[0011] 1 有機EL素子  
2 基板  
3 陽極  
4 陰極  
5 燐光発光層  
6 正孔注入・輸送層  
7 電子注入・輸送層  
10 有機薄膜層

## 発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の実施形態について説明する。

(有機EL素子の構成)

まず、有機EL素子の素子構成について説明する。

有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極／発光層／陰極
- (2) 陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- (3) 陽極／発光層／電子注入・輸送層／陰極
- (4) 陽極／正孔注入層／発光層／電子注入・輸送層／陰極
- (5) 陽極／有機半導体層／発光層／陰極
- (6) 陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極
- (7) 陽極／有機半導体層／発光層／付着改善層／陰極
- (8) 陽極／正孔注入・輸送層／発光層／電子注入・輸送層／陰極
- (9) 陽極／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
- (10) 陽極／無機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
- (11) 陽極／有機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
- (12) 陽極／絶縁層／正孔注入・輸送層／発光層／絶縁層／陰極
- (13) 陽極／絶縁層／正孔注入・輸送層／発光層／電子注入・輸送層／陰極

などの構造を挙げることができる。

上記の中で(8)の構成が好ましく用いられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

[0013] 図1に、本発明の実施形態における有機EL素子の一例の概略構成を示す。

有機EL素子1は、透明な基板2と、陽極3と、陰極4と、陽極3と陰極4との間に配置された有機薄膜層10と、を有する。

有機薄膜層10は、ホスト材料としての燐光ホスト及び燐光発光材料としての燐光ドーパントを含む燐光発光層5を有するが、燐光発光層5と陽極3

との間に正孔注入・輸送層 6 等、燐光発光層 5 と陰極 4 との間に電子注入・輸送層 7 等を備えていてもよい。

また、燐光発光層 5 の陽極 3 側に電子障壁層を、燐光発光層 5 の陰極 4 側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。

これにより、電子や正孔を燐光発光層 5 に閉じ込めて、燐光発光層 5 における励起子の生成確率を高めることができる。

[0014] なお、本明細書において、蛍光ホスト及び燐光ホストの用語は、蛍光ドーパントと組み合わされたときには蛍光ホストと称し、燐光ドーパントと組み合わされたときには燐光ホストと称するものであり、分子構造のみから一義的に蛍光ホストや燐光ホストに限定的に区分されるものではない。

言い換えると、本明細書において、蛍光ホストとは、蛍光ドーパントを含有する蛍光発光層を構成する材料を意味し、蛍光材料のホストにしか利用できないものを意味しているわけではない。

同様に燐光ホストとは、燐光ドーパントを含有する燐光発光層を構成する材料を意味し、燐光発光材料のホストにしか利用できないものを意味しているわけではない。

[0015] また、本明細書中で「正孔注入・輸送層」は「正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくともいずれか一方」を意味し、「電子注入・輸送層」は「電子注入層及び電子輸送層のうちの少なくともいずれか一方」を意味する。

[0016] (透光性基板)

有機 EL 素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機 EL 素子を支持する基板であり、400~700 nm の可視領域の光の透過率が 50% 以上で平滑な基板が好ましい。

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。

ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。

またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテ

レフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。

[0017] (陽極及び陰極)

有機EL素子の陽極は、正孔を正孔注入層、正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。

陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (ITO)、酸化錫 (NES A)、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。

本実施形態のように、発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 $\Omega$ / $\square$ 以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10 nm~1  $\mu$ m、好ましくは10~200 nmの範囲で選択される。

[0018] 陰極としては、電子注入層、電子輸送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。

陰極も、陽極と同様に、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、陰極側から、発光を取り出す態様を採用することもできる。

[0019] (発光層)

有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。

すなわち、

- (1) 注入機能；電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能、
- (2) 輸送機能；注入した電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる機能、
- (3) 発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、
- がある。

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよい。

[0020] この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。

発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。

ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

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

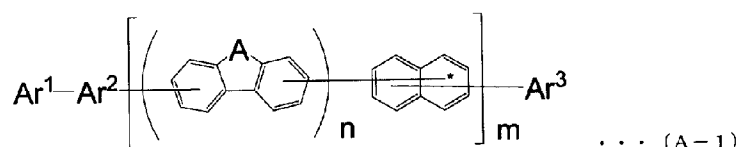
[0021] 本発明の有機EL素子は陰極と陽極との間に、1層又は複数層からなる有機薄膜層を備え、該有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、該有機薄膜層の少なくとも1層が、燐光発光材料の少なくとも1種と、後述の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料A～Cから選択される少なく

とも一種とを含む。また、発光層の少なくとも1つが本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料と、燐光発光材料の少なくとも1種とを含むことが好ましい。

[0022] (有機エレクトロルミネッセンス素子用材料A)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料Aは、下記式(A-1)で表され、下記式(A-2)～(A-5)で表されるものが好ましい。

[化38]



[0023] (式中、 $\text{Ar}^1$ 及び $\text{Ar}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフタレン環、置換もしくは無置換のクリセン環、置換もしくは無置換のフェナントレン環、置換もしくは無置換のベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のジベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のトリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾ[a]トリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾクリセン環、置換もしくは無置換のフルオランテン環、置換もしくは無置換のベンゾ[b]フルオランテン環、及び、置換もしくは無置換のピセン環から選択される置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環残基を表す。

$\text{Ar}^2$ は、置換もしくは無置換のベンゼン環、置換もしくは無置換のナフタレン環、又は置換もしくは無置換のフェナントレン環残基を表す。

Aは、O、S又は $\text{CR}^1\text{R}^2$ を示す。 $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7～24のアラルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～20のシリル基を表す。

nは1～3の整数を示す。mは1又は2の整数を示す。nが2以上の場合

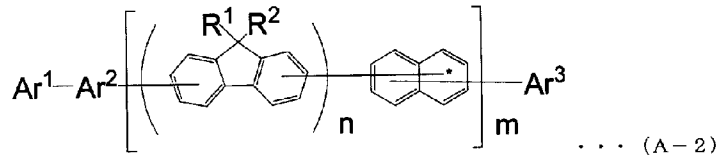


、 ( )<sub>n</sub>内の下記式 (A-1-a) は、同じであっても、異なっても良い。  
)

[0024] [化39]

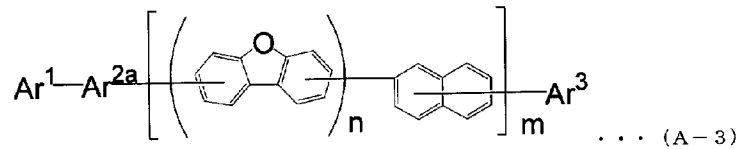


[0025] [化40]



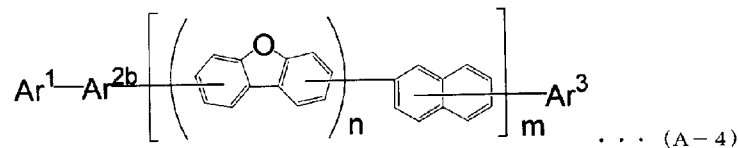
(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>、Ar<sup>3</sup>、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、n及びmは前記と同じである。)

[0026] [化41]



(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>3</sup>、n及びmは前記と同じであり、Ar<sup>2a</sup>は置換もしくは無置換のベンゼン環又は置換もしくは無置換のフェナントレン環残基である。また、Ar<sup>3</sup>はジベンゾフラン環残基に結合するナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。)

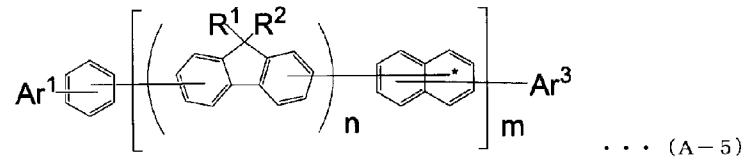
[0027] [化42]



(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>3</sup>、n及びmは前記と同じであり、Ar<sup>2b</sup>は置換もしくは無置換のナタフレン環残基である。Ar<sup>2b</sup>が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合する場合は、Ar<sup>1</sup>又はAr<sup>3</sup>のどちらか一方は、それぞれが結合するナフタレン環残基の6位又は7位において結合する。Ar<sup>2b</sup>が、その2

位においてジベンゾフラン環残基に結合しない場合は、 $Ar^3$ はナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。)

[0028] [化43]



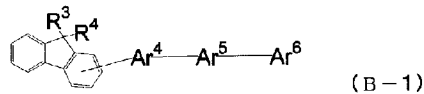
(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $n$ 及び $m$ は前記と同じである。)

[0029] 前記式(A-1)～(A-5)中、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、 $Ar^{2a}$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 及び/ $R^2$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール基であることが好ましい。

[0030] (有機エレクトロルミネッセンス素子用材料B)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料Bは、下記式(B-1)で表され、下記式(B-2)～(B-4)で表されるものが好ましい。

[0031] [化44]



[0032] (式中、 $R^3$ 及び $R^4$ は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、炭素数1～10のアルキル基、又は環形成炭素数6～12のアリール基を表し、 $Ar^4$ は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、 $Ar^5$ はベンゼン環又は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、 $Ar^6$ は水素原子(重水素原子を含む)、ベンゼン環又は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である。また、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い。

ただし、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ のいずれもアントラセン、ピレン、ペリレン、トリフェニレン、ナフタセン又はペンタセン骨格を有しない。さらに以下

の(1)～(6)の場合をすべて満たすものである。

(1)  $A r^4$ がナフタレン環, フェナントレン環, クリセン環, ベンゾアントラセン環, フルオランテン環のいずれかであり、かつ $A r^5$ がフルオレン環の場合を除く。

(2)  $A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ がベンゼン環であり、かつ $A r^6$ がベンゼン環又は水素原子である場合を除く。

(3) (i)  $A r^4$ がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、 $A r^5$ が $\beta$  - ナフチル基であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合を除く。

(ii)  $A r^4$ がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、 $A r^5$ がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、かつ $A r^6$ が $\beta$  - ナフチル基である場合を除く。

(4)  $A r^4$ がフルオレン環であり、かつ $A r^5$ がベンゼン環、フルオレン環又はフルオランテン環のいずれかである場合を除く。

また、 $A r^4$ がフルオレン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子又は $\beta$  - ナフチル基である場合を除く。

(5)  $A r^4$ がフェナントレン環又はフルオランテン環であり、 $A r^5$ がベンゼン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合を除く。

(6)  $A r^4$ がベンゼン環, ビフェニル環, ナフタレン環, ビナフタレン環, フルオレン環のいずれかであり、かつ $A r^5$ がフルオランテン環の場合を除く。

[0033]  $A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ がベンゼン環であり、かつ $A r^6$ が環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である場合が好ましい。さらに、この場合、 $A r^6$ がフェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、ジベンゾフェナントリル基、クリセニル基、フルオランテニル基、トリフェニレン基、ベンゾトリフェニレン基が好ましい。

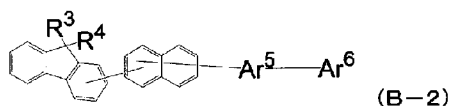
$A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ がナフタレン環であり、かつ $A r^6$ が環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である場合が好ましい。

ただし、この場合、 $A r^4$ がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、 $A r^5$ がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、かつ $A r^6$ が $\beta$  - ナフチル基である場合は除かれる。さらに、この場合、 $A r^6$ がフェナントリル基、ベンゾフェナントリル基、ジベンゾフェナントリル基、クリセニル基、フルオランテニル基、トリフェニレン基、ベンゾトリフェニレン基が好ましい。

$A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ が環形成炭素数 11 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、かつ $A r^6$ が水素原子（重水素原子を含む）である場合が好ましい。ただし、以下の（1）～（3）のいずれかの場合は除かれる。（1） $A r^4$ がナフタレン - 2, 6 - ジイル基であり、 $A r^5$ が $\beta$  - ナフチル基であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合、（2） $A r^4$ がナフタレン - 1, 4 - ジイル基もしくはナフタレン - 1, 5 - ジイル基であり、 $A r^5$ がフルオランテン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合、又は（3） $A r^4$ がナフタレン - 1, 4 - ジイル基、ナフタレン - 2, 6 - ジイル基もしくはナフタレン - 2, 8 - ジイル基のいずれかであり、 $A r^5$ がフルオレン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合である。さらに、この場合、 $A r^5$ がフェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、クリセン環、フルオランテン環、トリフェニレン環、ベンゾトリフェニレン環が好ましい。

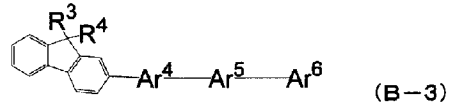
さらには、 $A r^4$ がフルオランテン環、フェナントレン環、クリセン環であり、 $A r^5$ が環形成炭素数 10 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環であり、かつ $A r^6$ が水素原子（重水素原子を含む）である場合が好ましい。さらに、この場合、 $A r^5$ がナフタレン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、クリセン環、フルオランテン環、トリフェニレン環、ベンゾトリフェニレン環が好ましい。

[0034] [化45]



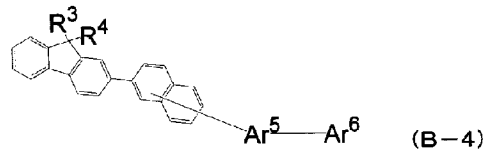
（式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $A r^5$ 及び $A r^6$ は前記と同じである。）

[0035] [化46]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

[0036] [化47]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

[0037] 前記式 (B-1) の  $Ar^4 \sim Ar^6$  における環形成炭素数 10 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環は、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択されることが好ましく、 $Ar^6$  は水素原子 (重水素原子を含む) 又は該環形成炭素数 10 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環残基を表すことが好ましい。

前記式 (B-4) の  $Ar^5$  及び  $Ar^6$  における環形成炭素数 10 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環は、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択されることが好ましく、 $Ar^6$  は水素原子 (重水素原子を含む) 又は該環形成炭素数 10 ~ 22 の縮合多環芳香族炭化水素環残基を表すことが好ましい。

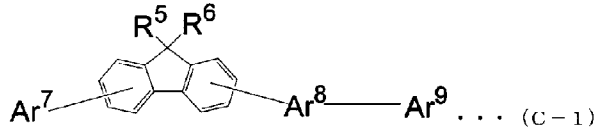
前記式 (B-4) において、 $R^3$  及び  $R^4$  は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、又はフェニル基を表すことが好ましい。

[0038] (有機エレクトロルミネッセンス素子用材料 C)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料 C は、下記式 (C-1)

)で表され、下記式(C-2)~(C-6)で表されるものが好ましい。この式、(C-1)~(C-6)は左右対象となる構造を含まないものである。

[化48]



[0039] (式中、A r<sup>7</sup>~A r<sup>9</sup>は、それぞれ独立に、ベンゼン環、又はナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ[a]トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ[b]フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基を表す。A r<sup>9</sup>は水素原子(重水素原子を含む)であってもよい。

R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、炭素数1~10のアルキル基又は環形成炭素数6~12のアリール基を表す。

また、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>、A r<sup>7</sup>、A r<sup>8</sup>及びA r<sup>9</sup>は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い。

ただし、以下の(1)~(4)の場合をすべて満たすものである。

(1) A r<sup>7</sup>がベンゼン環であり、かつA r<sup>8</sup>がベンゼン環又はフルオレン環の場合を除く。

(2) A r<sup>9</sup>が水素原子であり、かつA r<sup>7</sup>とA r<sup>8</sup>が同一の縮合芳香族炭化水素環残基である場合を除く。

(3) A r<sup>7</sup>とA r<sup>8</sup>-A r<sup>9</sup>が同じ構造の場合を除く。

(4) A r<sup>7</sup>がβ-ナフチル基又はナフタレン-2,6-ジイル基であり、A r<sup>8</sup>がナフタレン-2,6-ジイル基であり、かつA r<sup>9</sup>がβ-ナフチル基である場合を除く。)

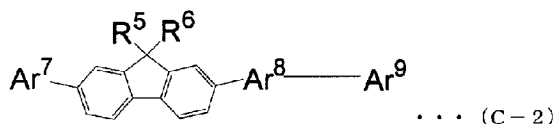
[0040] A r<sup>7</sup>がナフタレン環であり、A r<sup>8</sup>がベンゼン環であり、かつA r<sup>9</sup>がナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベン

ゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基である場合が好ましい。特に  $A r^9$  がクリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環である場合が好ましい。

$A r^7$  がナフタレン環であり、 $A r^8$  がナフタレン環であり、かつ  $A r^9$  がナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基である場合が好ましい。ただし  $A r^7$  が  $\beta$ -ナフチル基であり、 $A r^8$  がナフタレン-2, 6-ジイル基であり、かつ  $A r^9$  が  $\beta$ -ナフチル基である場合は除かれる。特に  $A r^9$  がフェナントレン環である場合が好ましい。

$A r^7$  及び  $A r^8$  が独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基であり、かつ  $A r^9$  が水素である場合が好ましい。特に  $A r^7$  及び  $A r^8$  が独立に、ベンゾフェナントレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、フルオランテン環である場合が好ましい。

[0041] [化49]

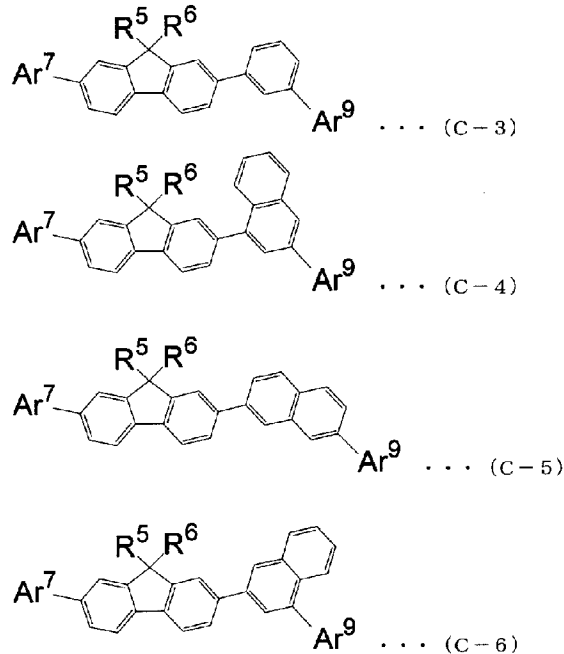


(式中、 $A r^7$ 、 $A r^8$ 、 $A r^9$ 、 $R^5$ 及び $R^6$ は前記と同じである。)

[0042] 前記一般式 (C-1)、(C-2) における  $R^5$ 、 $R^6$ 、 $A r^7$ 、 $A r^8$  及び／又は  $A r^9$  が 1 つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数 1~2

0のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール基であることが好ましい。

[0043] [化50]



( $Ar^7$ 、 $Ar^9$ 、 $R^5$ 及び $R^6$ は前記と同じである。)

[0044] 前記式 (C-1) ~ (C-6) 中、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $Ar^7$ 及び/又は $Ar^9$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子又は環形成炭素数6～22のアリール基であることが好ましい。

[0045] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料A～Cは、三重項エネルギーギャップ（励起三重項エネルギー）が大きいことから、燐光ドーパントに対してエネルギー移動させて燐光発光させることができる。

また、蛍光ホストとしてよく知られたアントラセン誘導体では赤色発光の燐光ドーパントにもホストとして不適であるが、本発明のホストでは三重項エネルギーギャップが大きいことから、有効に緑色の発光を示す燐光ドーパントを発光させることができる。



ただし、従来よく知られた燐光ホストであるCBPでは緑よりもさらに短波長の燐光ドーパントに対してもホストとして機能するが、本発明のホスト材料では、緑色の発光を示す燐光ドーパントまでしか発光させることができない。

また、本発明では、ホスト材料の骨格を窒素原子を含まない多環式縮合環を部分構造に持つことにより、分子の安定性を高くし素子寿命を長くすることができる。

このとき、骨格部の核原子数が少なすぎると分子の安定性が十分に高くない。一方、ホスト材料を構成する多環式縮合環の縮合する環数が多くなりすぎるとHOMO-LUMOギャップが狭くなって三重項エネルギーギャップが有用な発光波長に満たなくなる。この点、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料からなるホスト材料は、適度な核原子数を有するので、有用な発光波長を示し安定性も高い燐光発光層の燐光ホストとして好適に利用することができる。

[0046] 従来は、緑から赤色までの幅広い波長領域において燐光ドーパントに広く適用できる燐光ドーパントに対応するホスト材料を選定していたため、三重項エネルギーギャップが広いCBP等をホスト材料としていた。

しかしCBPでは確かに三重項エネルギーギャップ $E_g(T)$ は広いが、寿命が短いという問題があった。

この点、本発明では、青ほどワイドギャップな燐光ドーパントのホストには適用できないが、赤又は緑の燐光ドーパントに対してはホストとして機能する。さらには、CBPのように三重項エネルギーギャップが広すぎると、緑色燐光ドーパントに対してはエネルギーギャップの差が大きすぎて分子間エネルギー移動が効率的に行われないう問題があるが、本発明のホスト材料によれば、緑色燐光ドーパントに対してはエネルギーギャップが適合しているため、効率的にホストの励起子から燐光ドーパントにエネルギー移動させることができ、非常に高効率の燐光発光層を構成することができる。

このように、本発明によれば、高効率かつ長寿命の燐光発光層を構成する

ことができる。

[0047] ここで、有機EL素子を構成する材料の三重項エネルギーギャップ $E_g(T)$ は、燐光発光スペクトルに基づいて規定することが例として挙げられ、例えば、本発明にあっては以下のように規定することが例として挙げられる。

すなわち、各材料をEPA溶媒（容積比でジエチルエーテル：イソペンタン：エタノール=5：5：2）に $10\mu\text{mol/L}$ で溶解し、燐光測定用試料とする。

そして、燐光測定用試料を石英セルに入れ、77Kに冷却し、励起光を照射し、放射される燐光の波長を測定する。

得られた燐光スペクトルの短波長側の立ちあがりに対して接線を引き、この接線とベースラインとの交点の波長値をエネルギーに換算した値を三重項エネルギーギャップ $E_g(T)$ とする。

なお、測定には、例えば、市販の測定装置F-4500（日立製作所製）を用いることができる。

ただし、このような規定によらず、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で三重項エネルギーギャップとして定義できる値であればよい。

[0048] 前記式(A-1)～(A-5)、(B-1)～(B-4)及び(C-1)～(C-6)における $A_{r^1}\sim A_{r^9}$ 及び/又は $R^1\sim R^6$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、前記置換基は、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール基であることが好ましい。また、前記式(A-1)～(A-5)、(B-1)～(B-4)及び(C-1)～(C-6)におけるフルオレン環は、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール基を置換基として有していてもよい。

置換基が窒素原子を有さないので、より一層、ホスト材料の安定性を高くし素子寿命を長くすることができる。

なお、 $A r^1 \sim A r^9$ 及び/又は $R^1 \sim R^6$ が置換基として有するアリール基の数は、 $A r^1 \sim A r^9$ 及び/又は $R^1 \sim R^6$ それぞれについて、好ましくは2つ以下であり、1つ以下がより好ましい。

[0049] 前記炭素数1～20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-メチルペンチル基等が挙げられる。

[0050] 前記炭素数1～20のハロアルキル基としては、例えば、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基等が挙げられる。

[0051] 前記環形成炭素数5～18のシクロアルキル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、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、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。

[0052] 前記炭素数3～20のシリル基としては、例えば、アルキルシリル基、アリールシリル基、又は、アラルキルシリル基が好ましく、例としては、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、トリオクチルシリル基、トリイソブチルシリル基、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、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あげられる。

ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

[0053] 前記環形成炭素数6～22のアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、フルオランテニル基、9, 10-ジアルキルフルオレニル基、9, 10-ジアリールフルオレニル基、トリフェニレニル基、フェナントレニル基、ジベンゾフラニル基が好ましく、より好ましくは環形成炭素数6～18のフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、9, 10-ジメチルフルオレニル基、トリフェニレニル基、フェナントレニル基、ジベンゾフラニル基であり、さらにより好ましくは環形成炭素数6～14のフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、ジベンゾフラニル基である。

[0054] 本発明において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料の励起三重項エネルギーは、2.0 eV以上2.8 eV以下であることが好ましい。

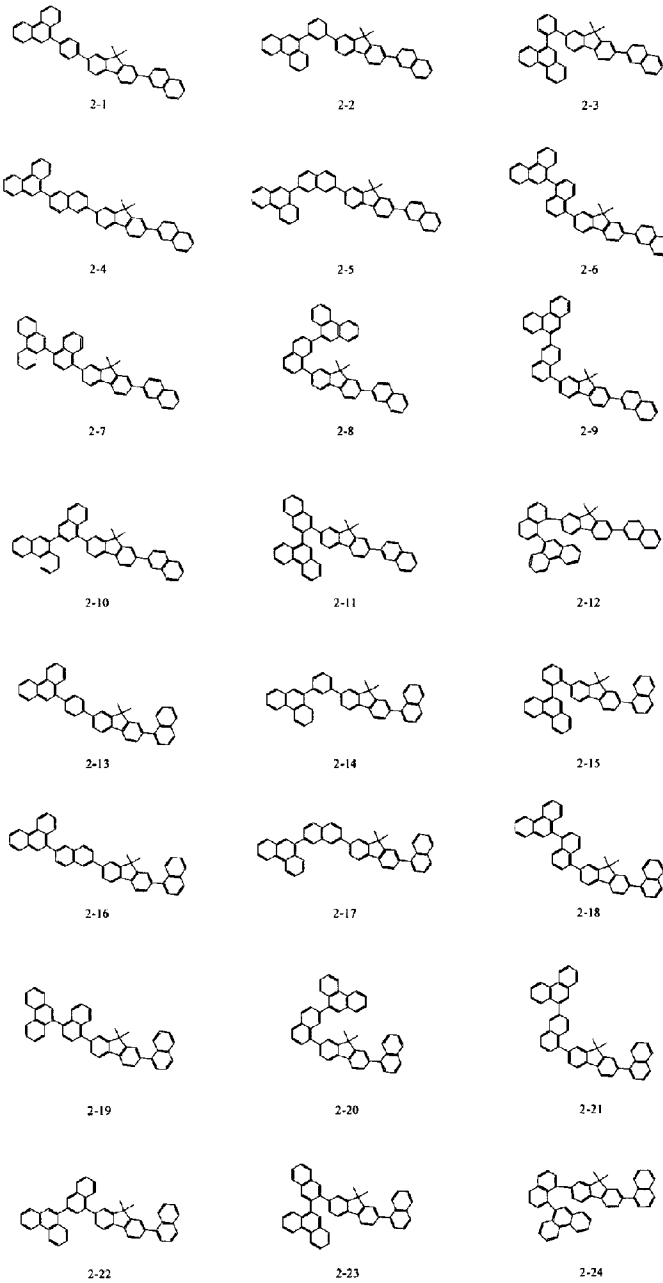
励起三重項エネルギーが2.0 eV以上であれば、500 nm以上720 nm以下で発光する燐光発光材料へのエネルギー移動が可能である。2.8 eV以下であれば、赤色燐光ドーパントに対してエネルギーギャップの差が大きすぎて発光が効率的に行われれないという問題を回避できる。

なお、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料の励起三重項エネルギーは、2.1 eV以上2.7 eV以下であることがより好ましい。

[0055] 前記式(A-1)～(A-5)で表される本発明の有機エレクトロルミネ

ツセス素子用材料としては、例えば、次の化合物が具体例として挙げられる。

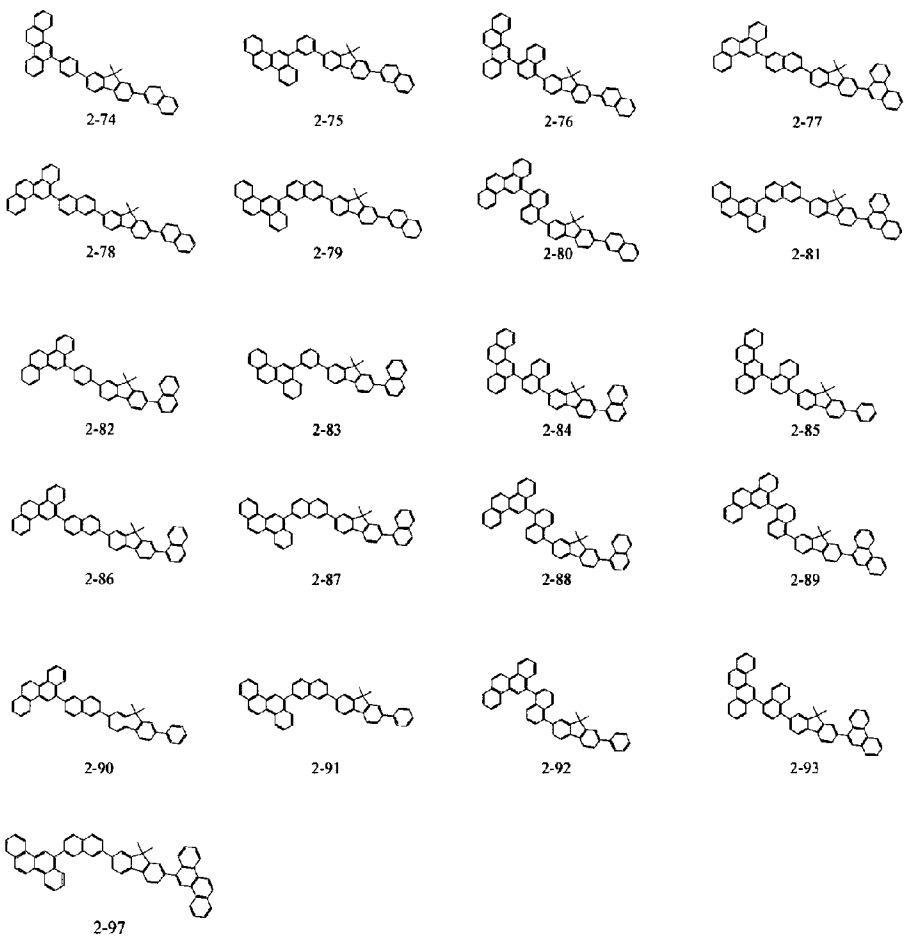
[化51]



[0056]

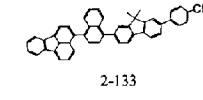
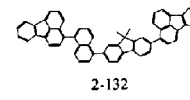
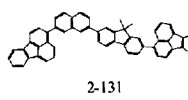
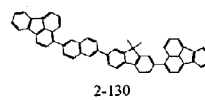
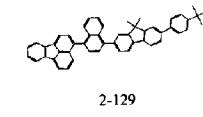
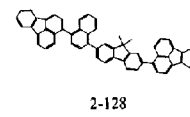
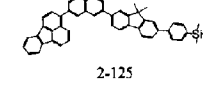
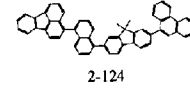
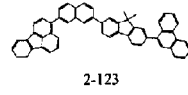
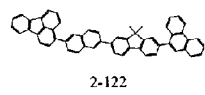
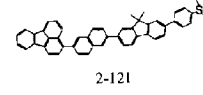
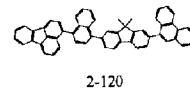
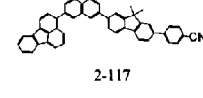
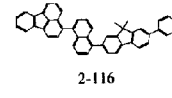
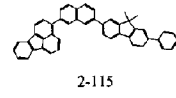
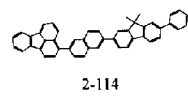
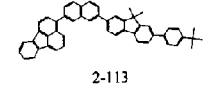
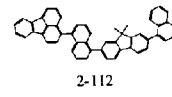
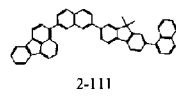
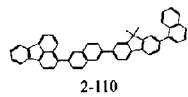
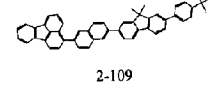
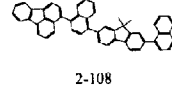
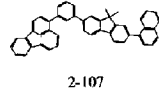
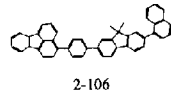
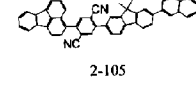
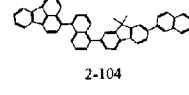
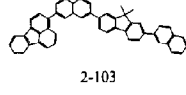
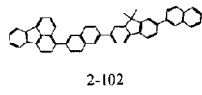
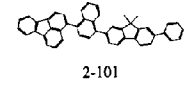
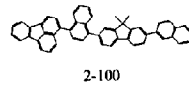
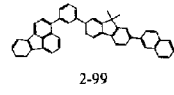
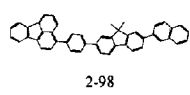


[化53]



[0058]

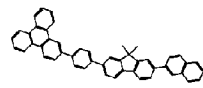
[化54]



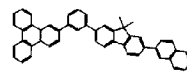
[0059]



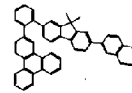
[化55]



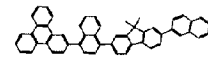
2-134



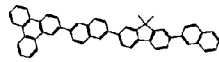
2-135



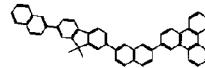
2-136



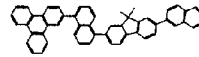
2-137



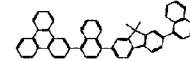
2-138



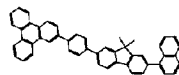
2-139



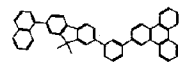
2-140



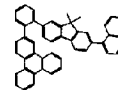
2-141



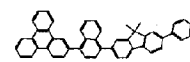
2-142



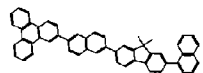
2-143



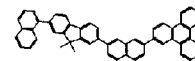
2-144



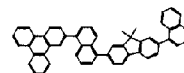
2-145



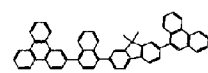
2-146



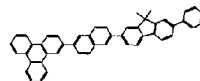
2-147



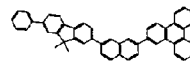
2-148



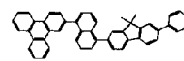
2-149



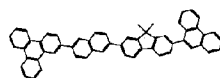
2-150



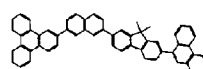
2-151



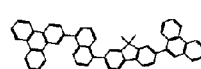
2-152



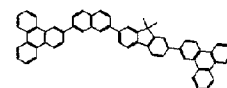
2-154



2-155



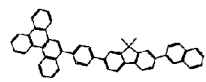
2-156



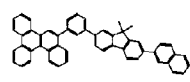
2-157

[0060]

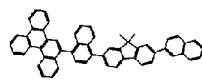
[化56]



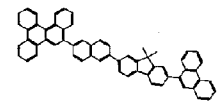
2-158



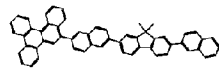
2-159



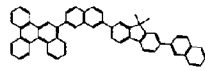
2-160



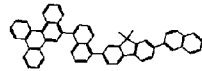
2-161



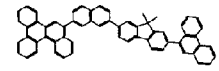
2-162



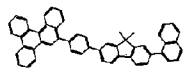
2-163



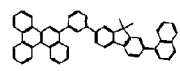
2-164



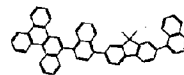
2-165



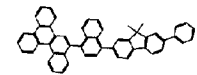
2-166



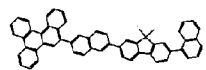
2-167



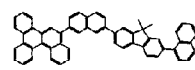
2-168



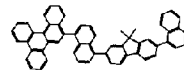
2-169



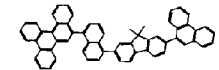
2-170



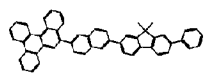
2-171



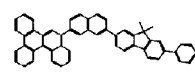
2-172



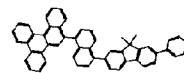
2-173



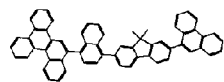
2-174



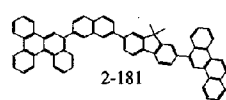
2-175



2-176



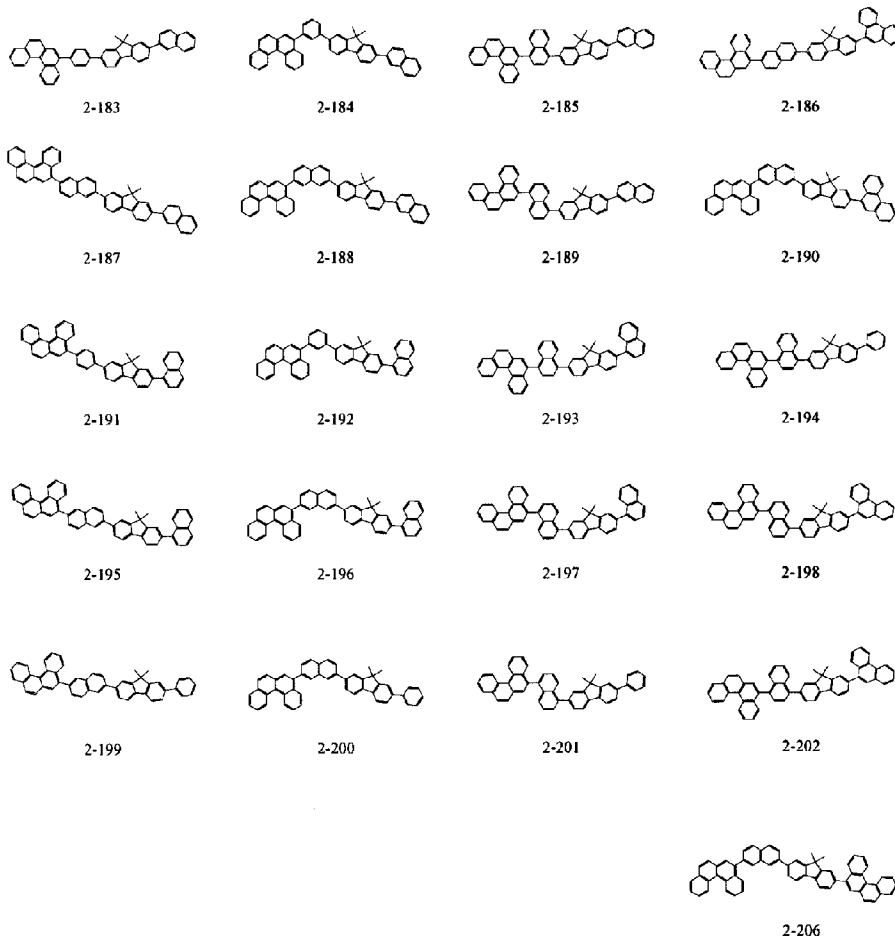
2-177



2-181

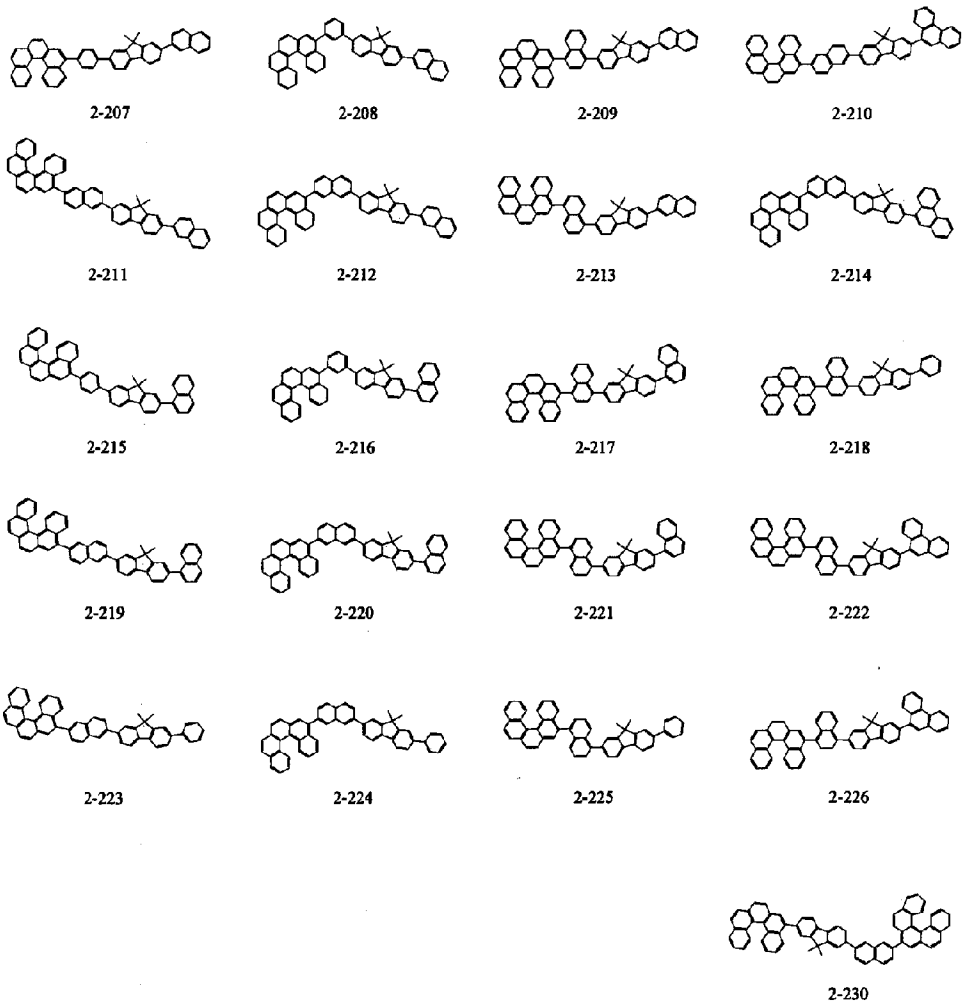
[0061]

[化57]



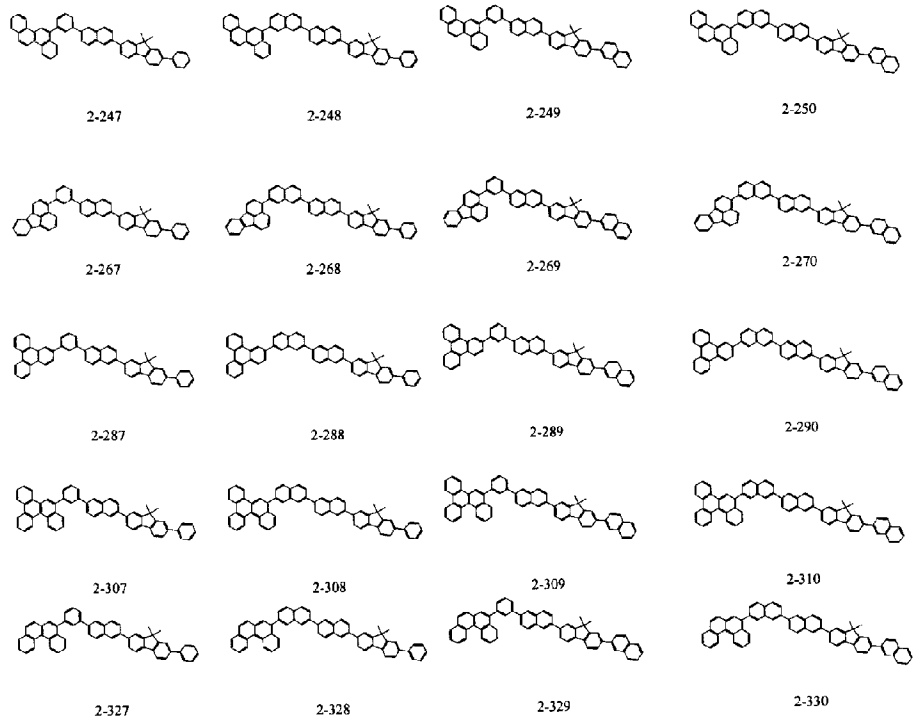
[0062]

[化58]

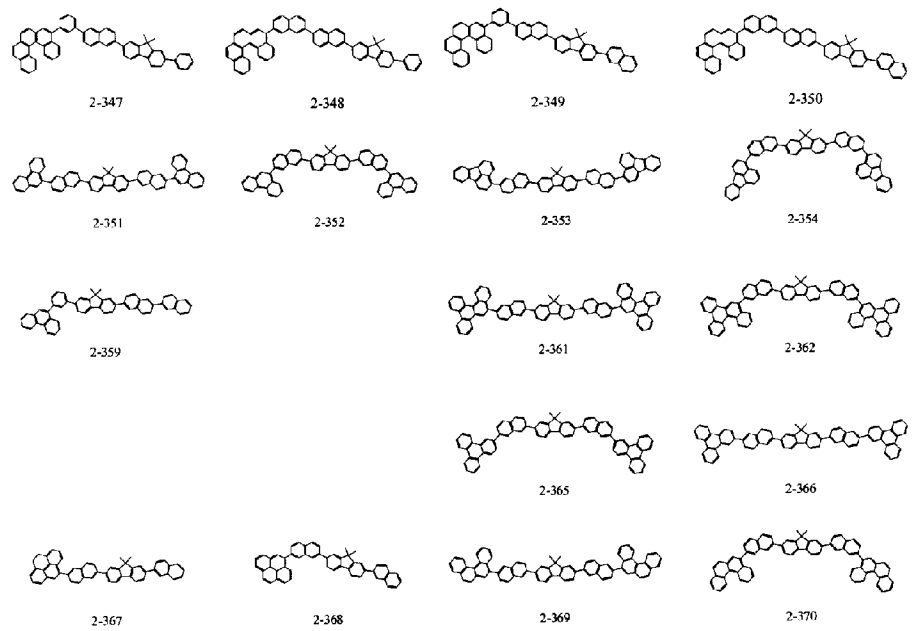


[0063]

[化59]

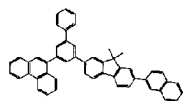


[0064] [化60]

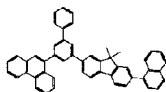


[0065]

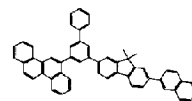
[化61]



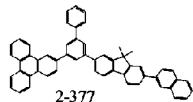
2-371



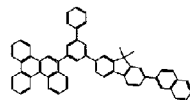
2-372



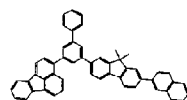
2-375



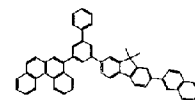
2-377



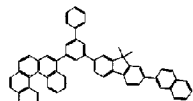
2-379



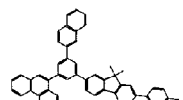
2-381



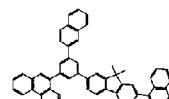
2-383



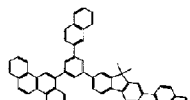
2-385



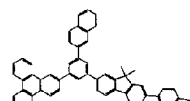
2-387



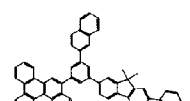
2-388



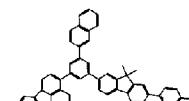
2-391



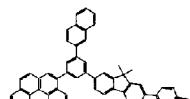
2-393



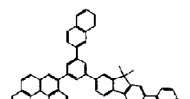
2-395



2-397



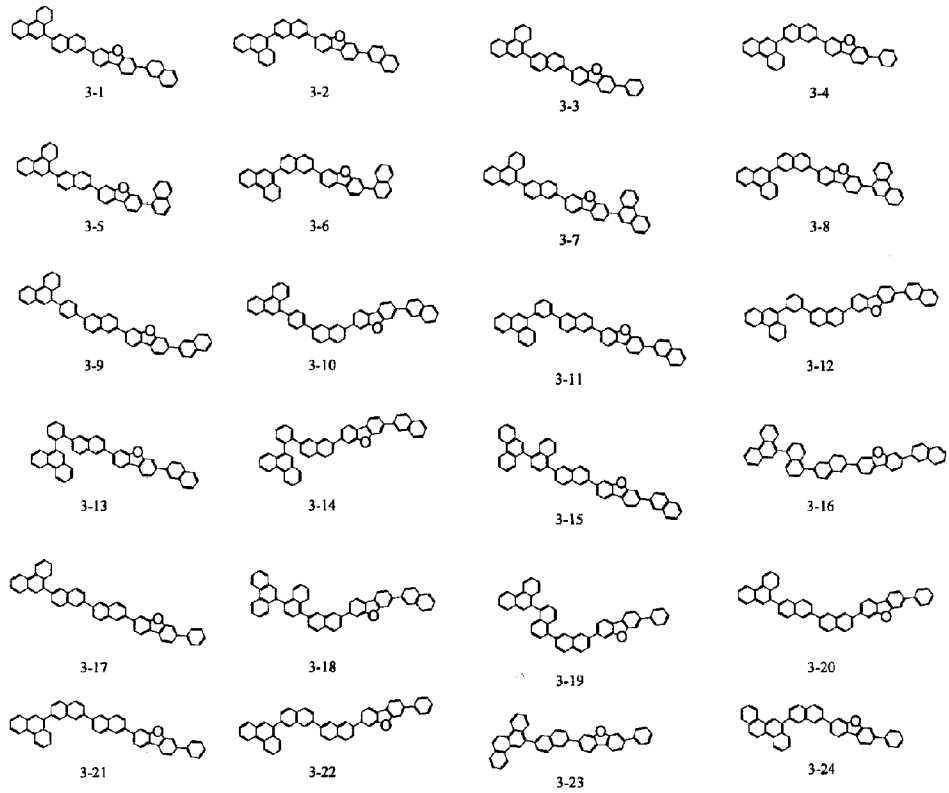
2-399



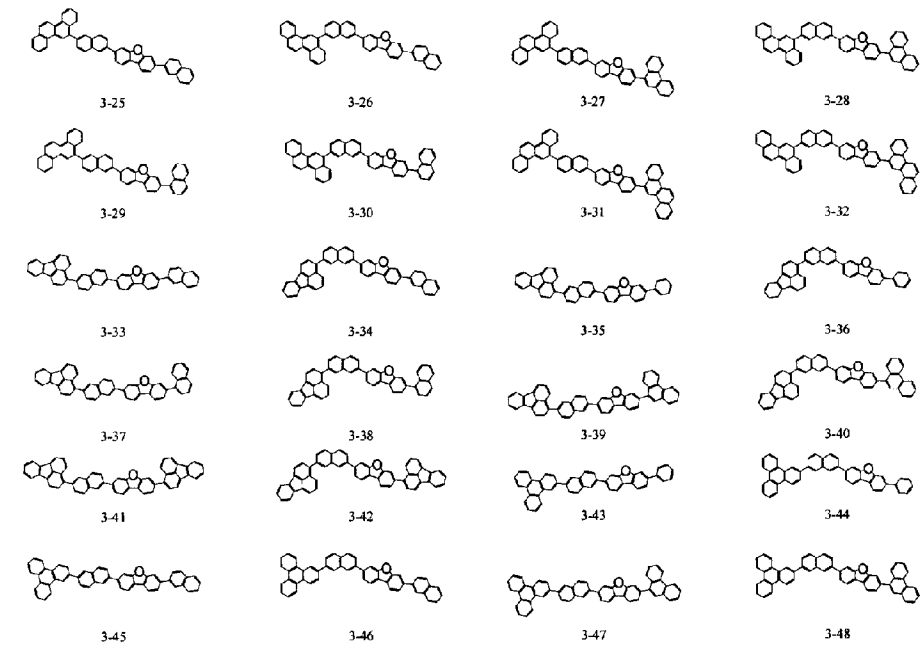
2-401

[0066]

[化62]

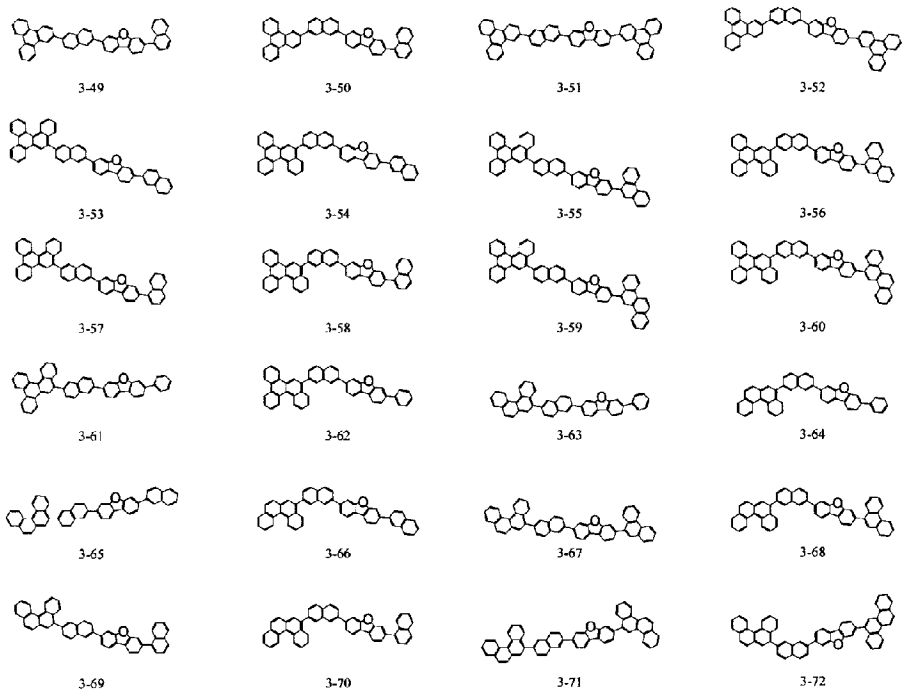


[0067] [化63]

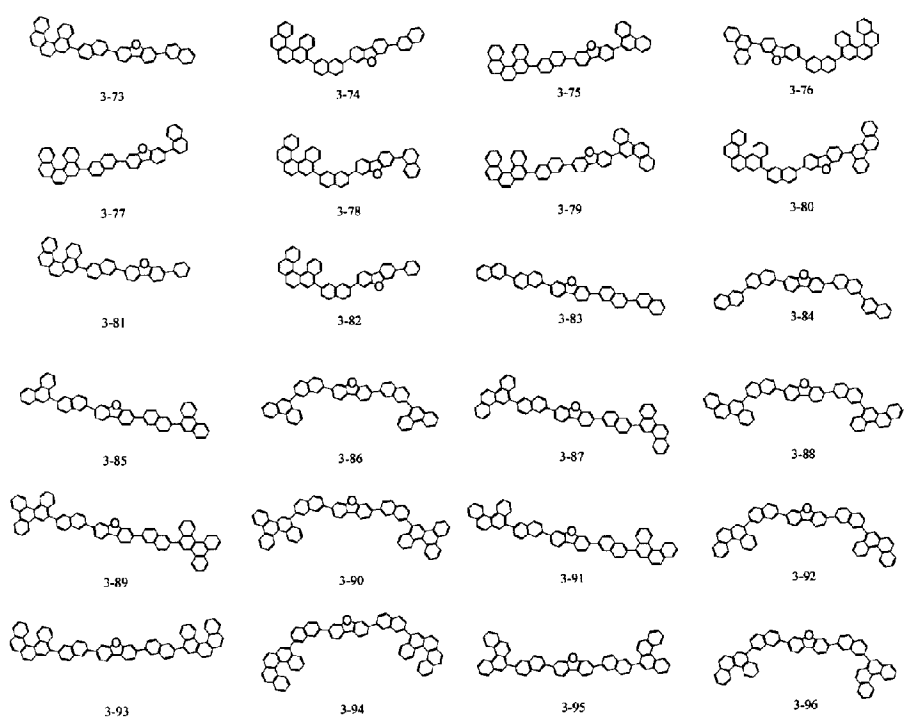


[0068]

[化64]



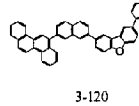
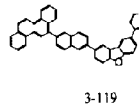
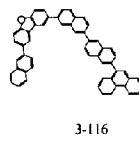
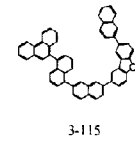
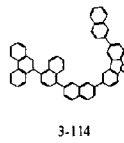
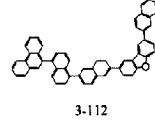
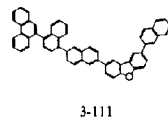
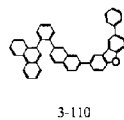
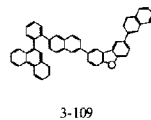
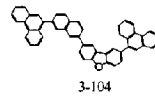
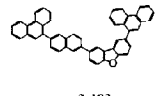
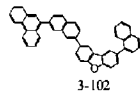
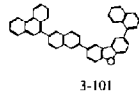
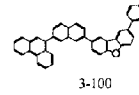
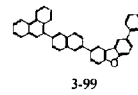
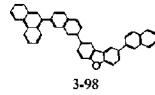
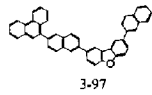
[0069] [化65]



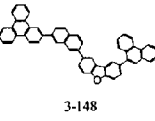
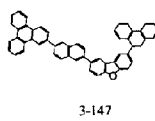
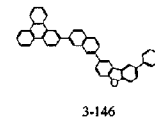
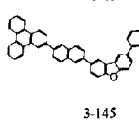
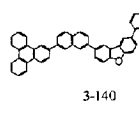
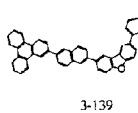
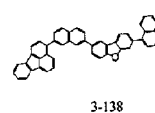
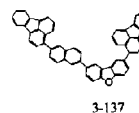
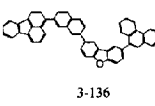
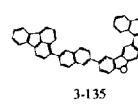
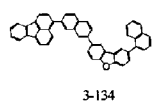
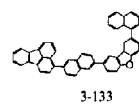
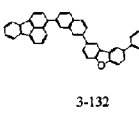
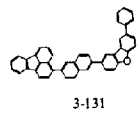
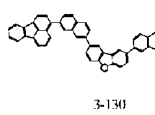
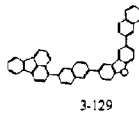
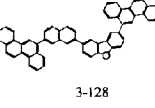
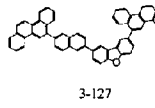
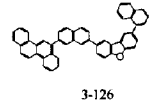
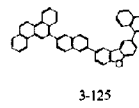
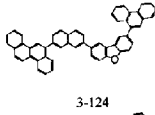
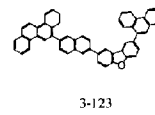
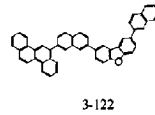
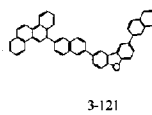
[0070]



[化66]

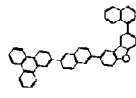


[0071] [化67]

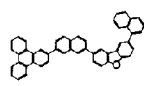


[0072]

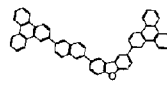
[化68]



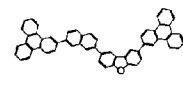
3-149



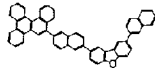
3-150



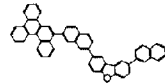
3-151



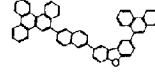
3-152



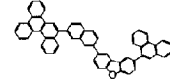
3-153



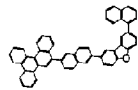
3-154



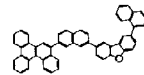
3-155



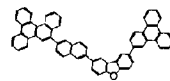
3-156



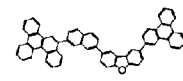
3-157



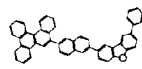
3-158



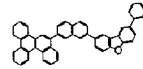
3-159



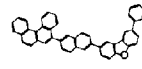
3-160



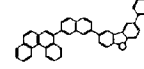
3-161



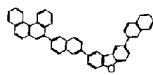
3-162



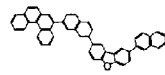
3-163



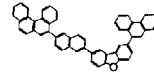
3-164



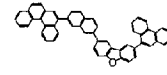
3-165



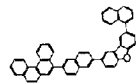
3-166



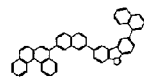
3-167



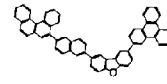
3-168



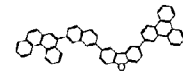
3-169



3-170



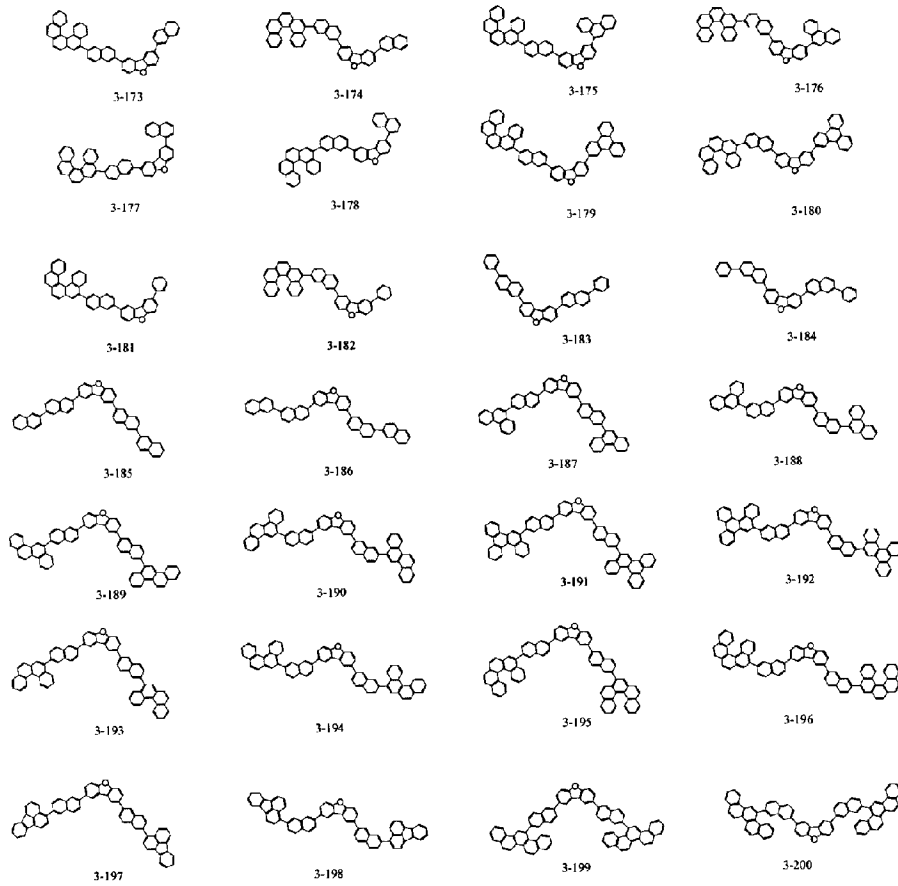
3-171



3-172

[0073]

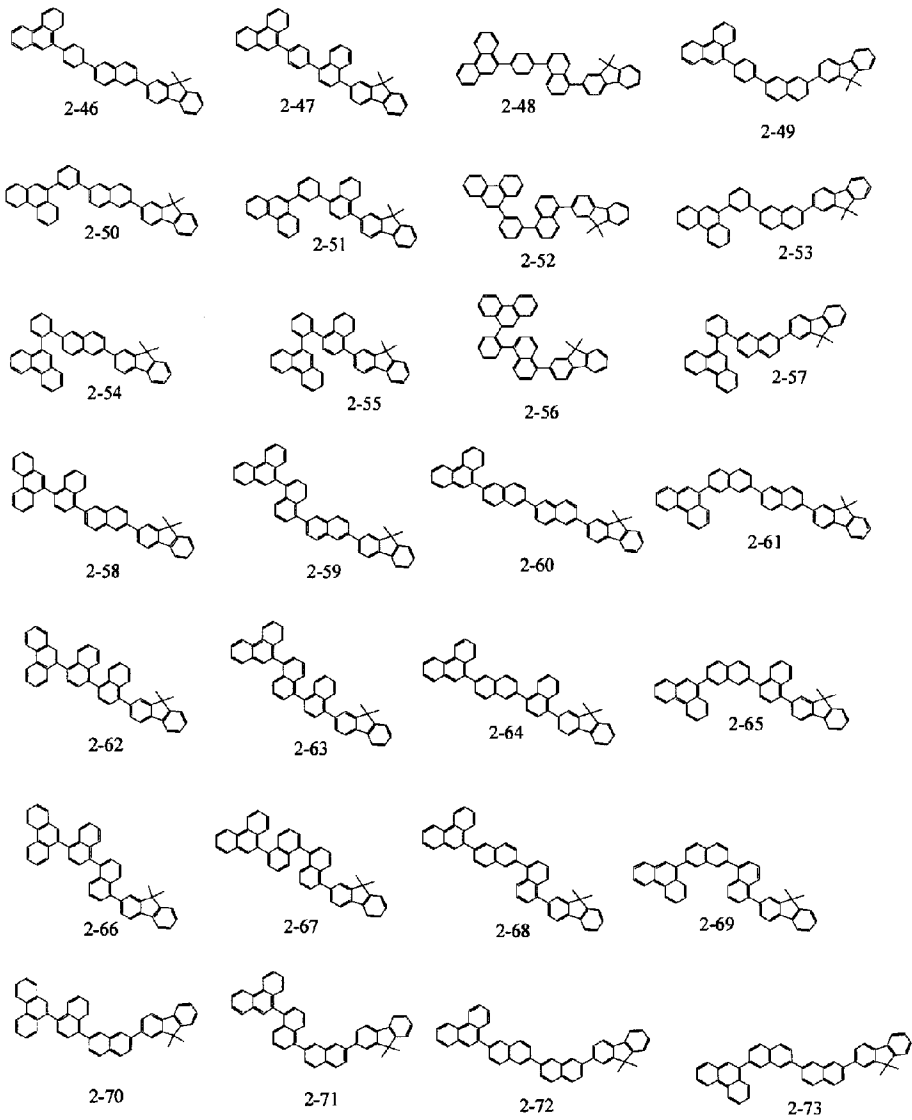
[化69]



[0074] 前記式 (B-1) ~ (B-4) で表される本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料としては、例えば、次の化合物が具体例として挙げられる。

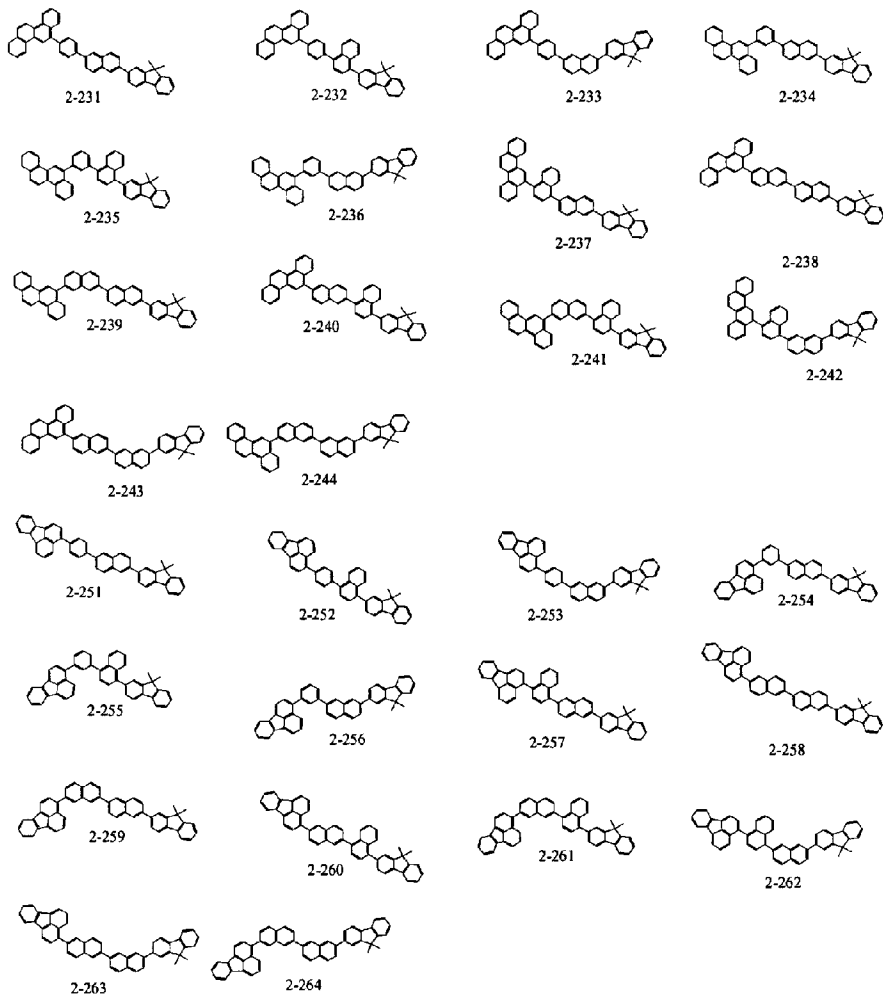
[0075]

[化70]

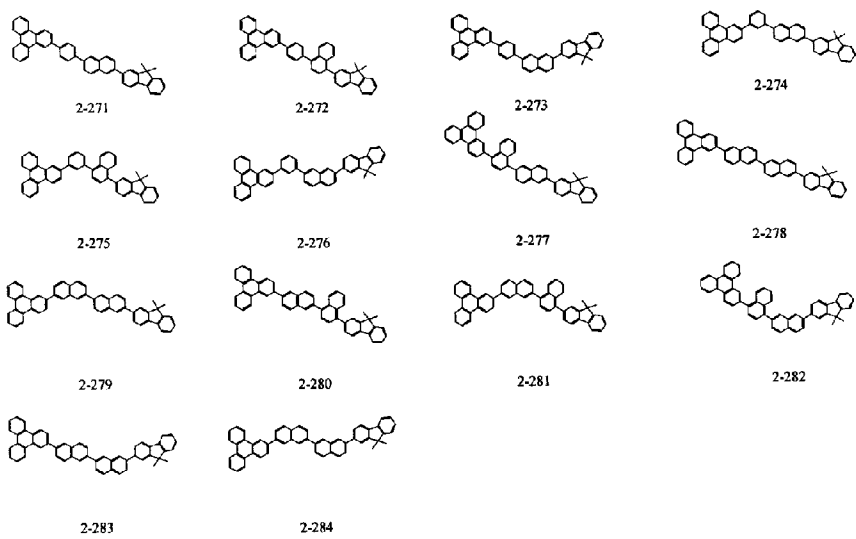


[0076]

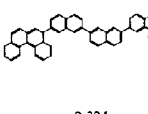
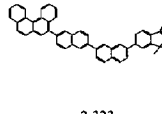
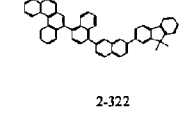
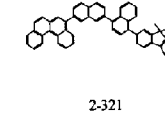
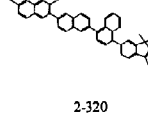
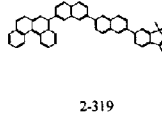
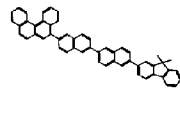
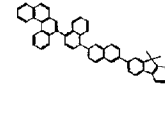
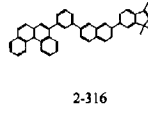
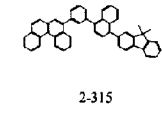
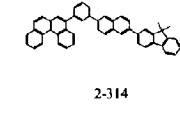
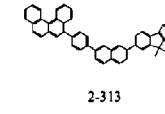
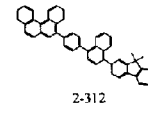
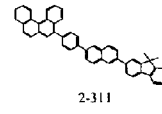
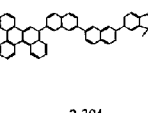
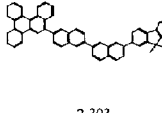
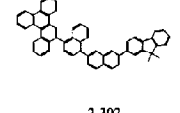
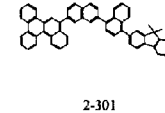
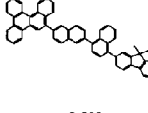
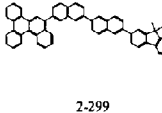
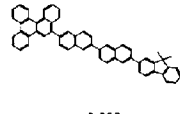
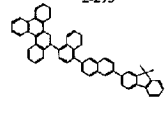
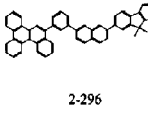
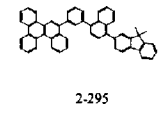
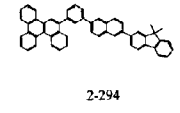
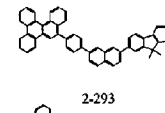
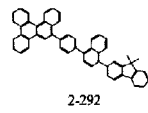
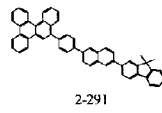
[化71]



[0077] [化72]

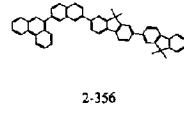
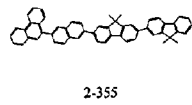
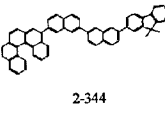
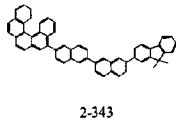
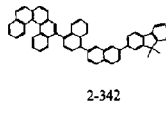
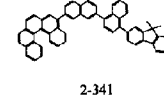
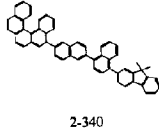
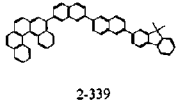
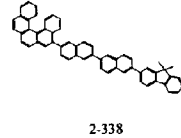
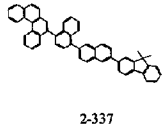
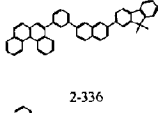
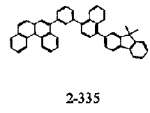
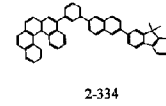
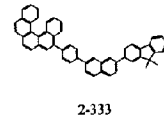
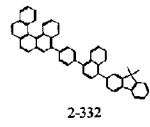
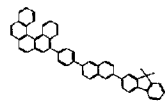


[0078] [化73]

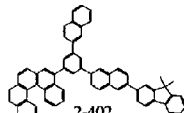
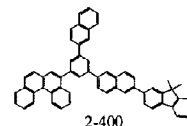
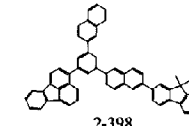
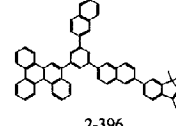
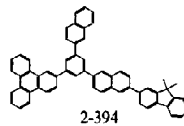
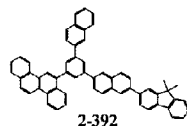
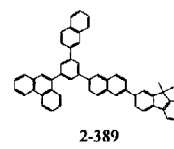
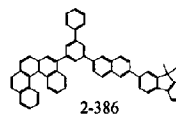
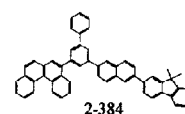
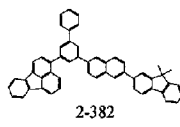
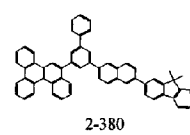
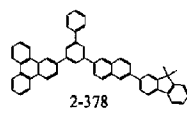
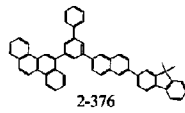
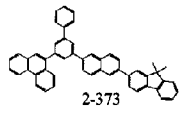


[0079]

[化74]

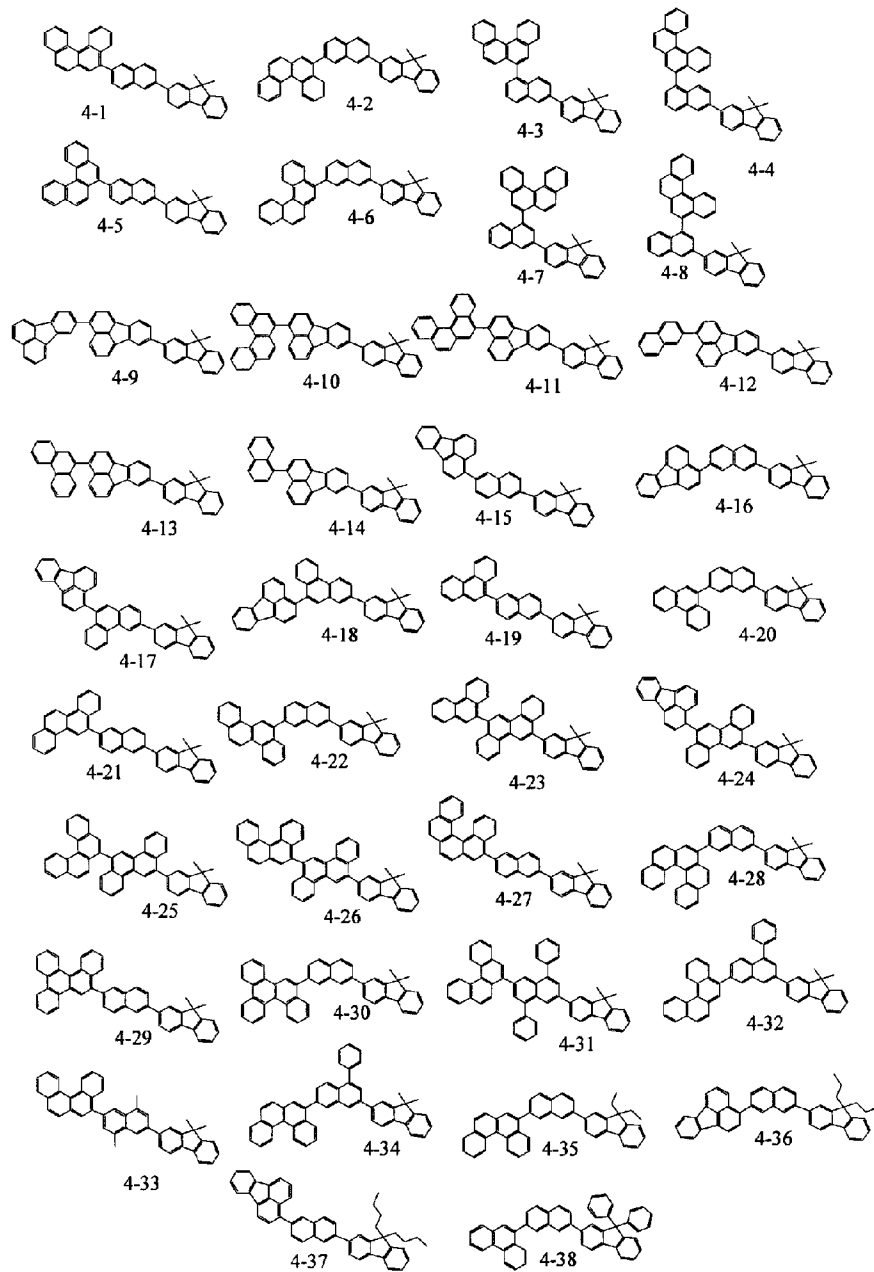


[0080] [化75]



[0081]

[化76]

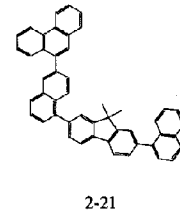
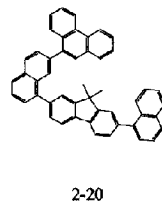
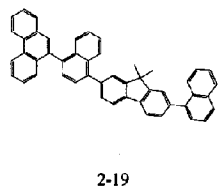
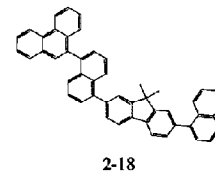
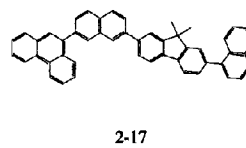
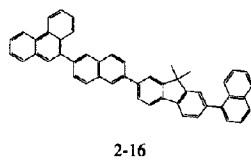
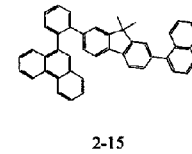
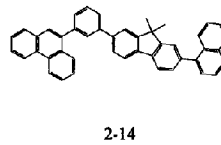
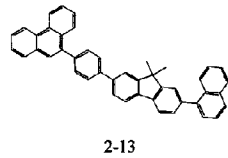
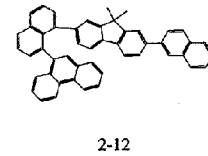
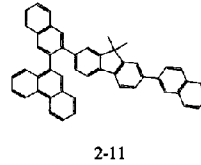
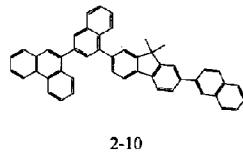
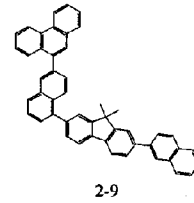
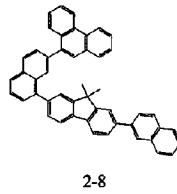
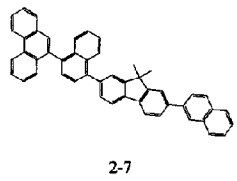
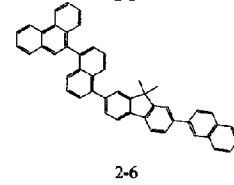
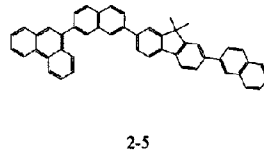
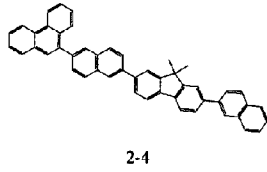
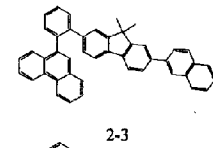
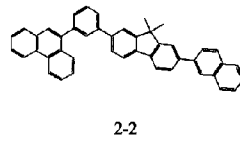
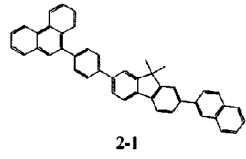


[0082] 前記式 (C-1) ~ (C-6) で表される本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料としては、例えば、次の化合物が具体例として挙げられる。

[0083]

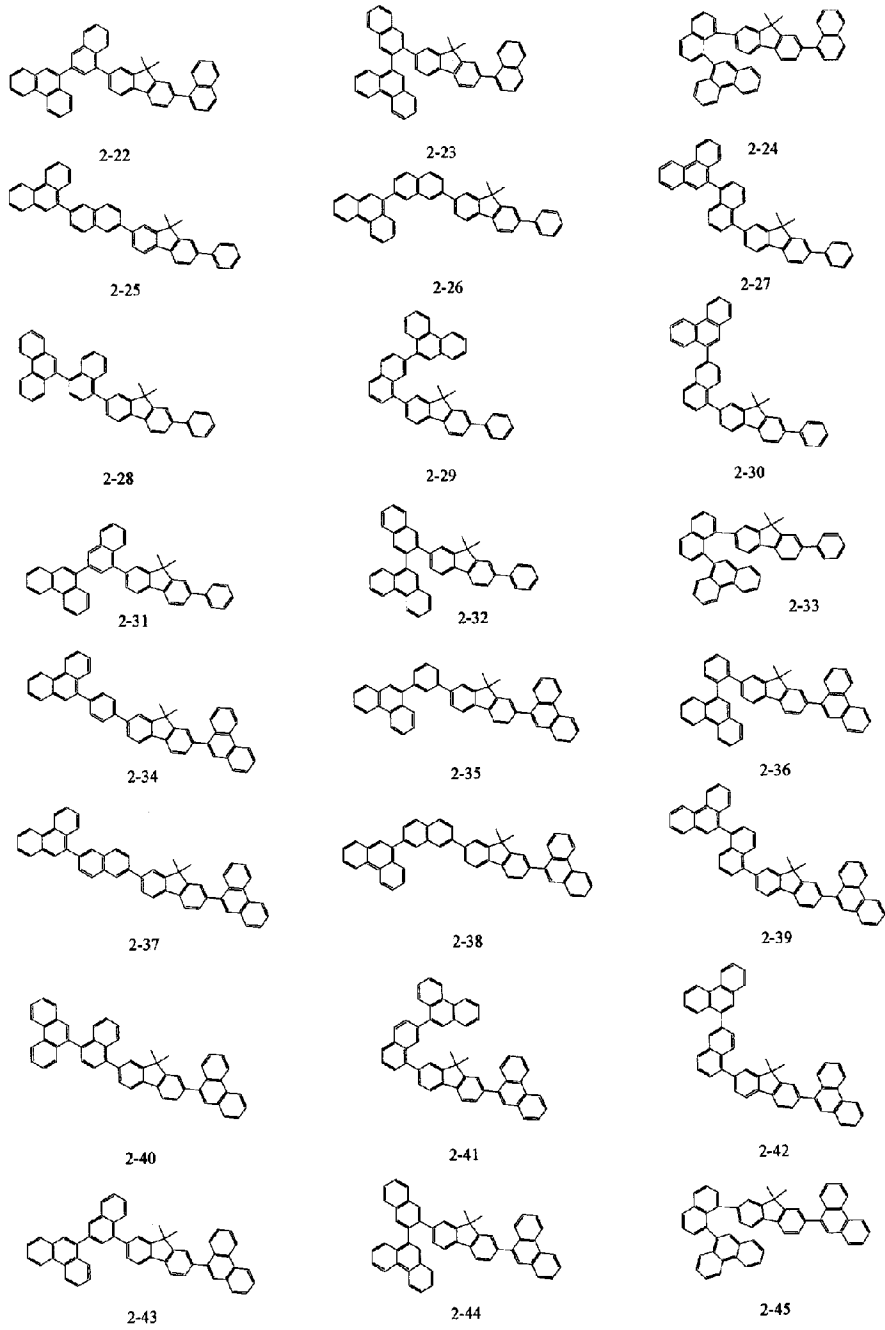


[化77]



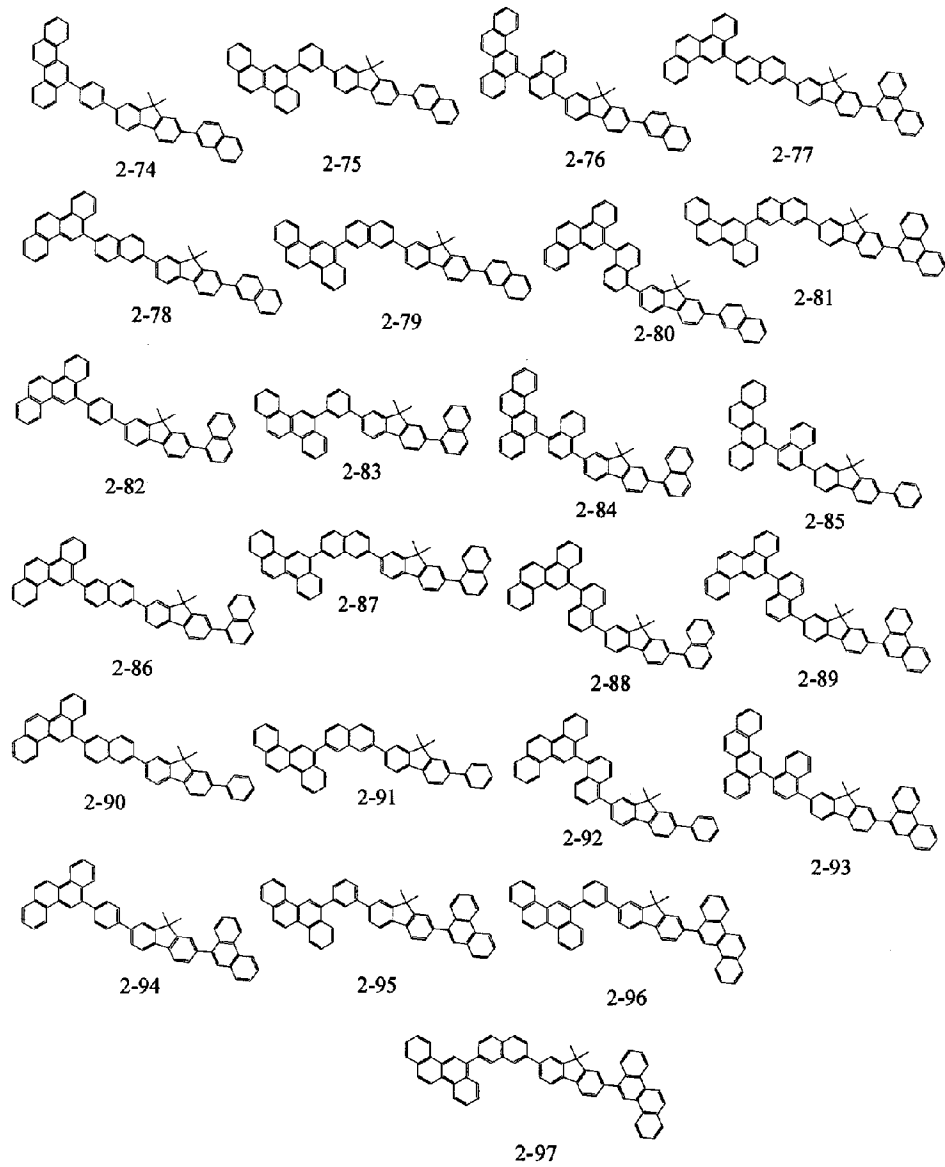
[0084]

[化78]



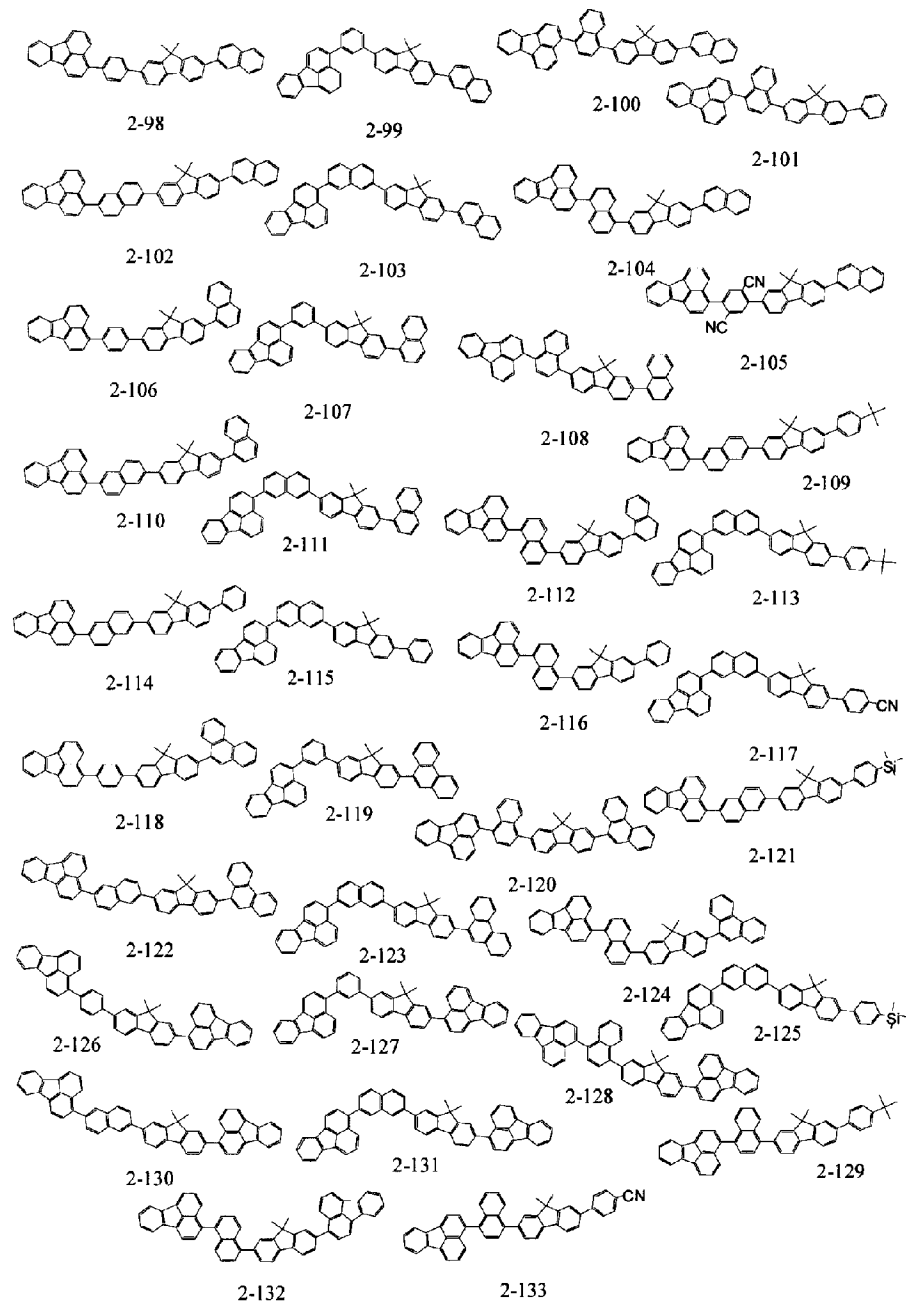
[0085]

[化79]



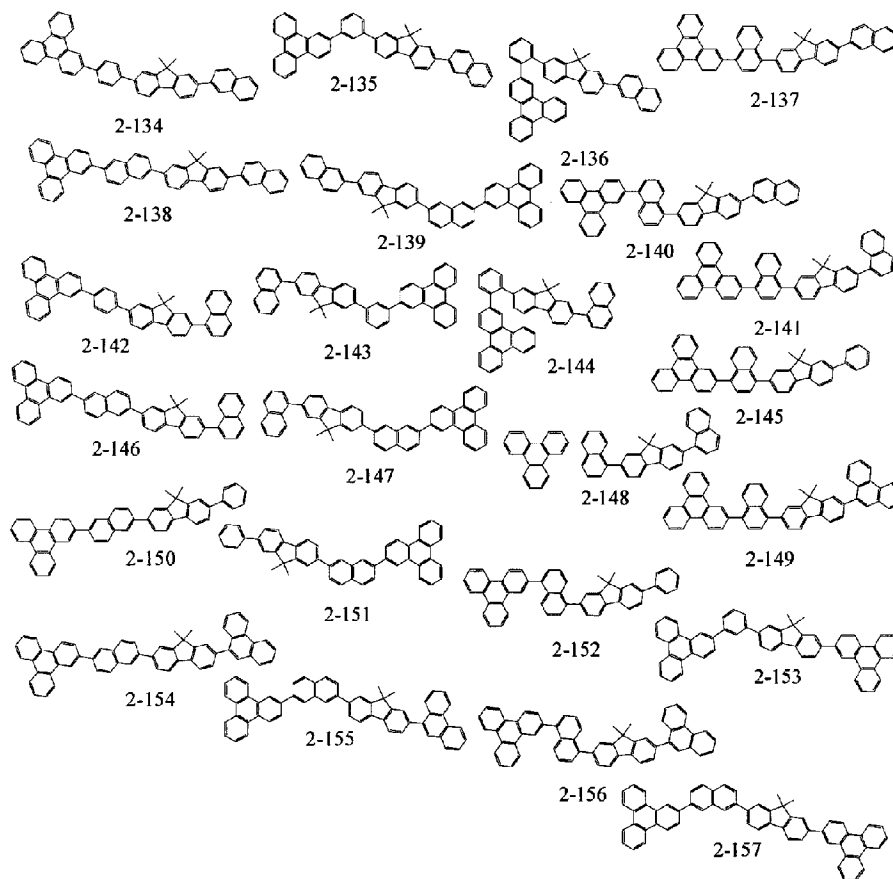
[0086]

[化80]



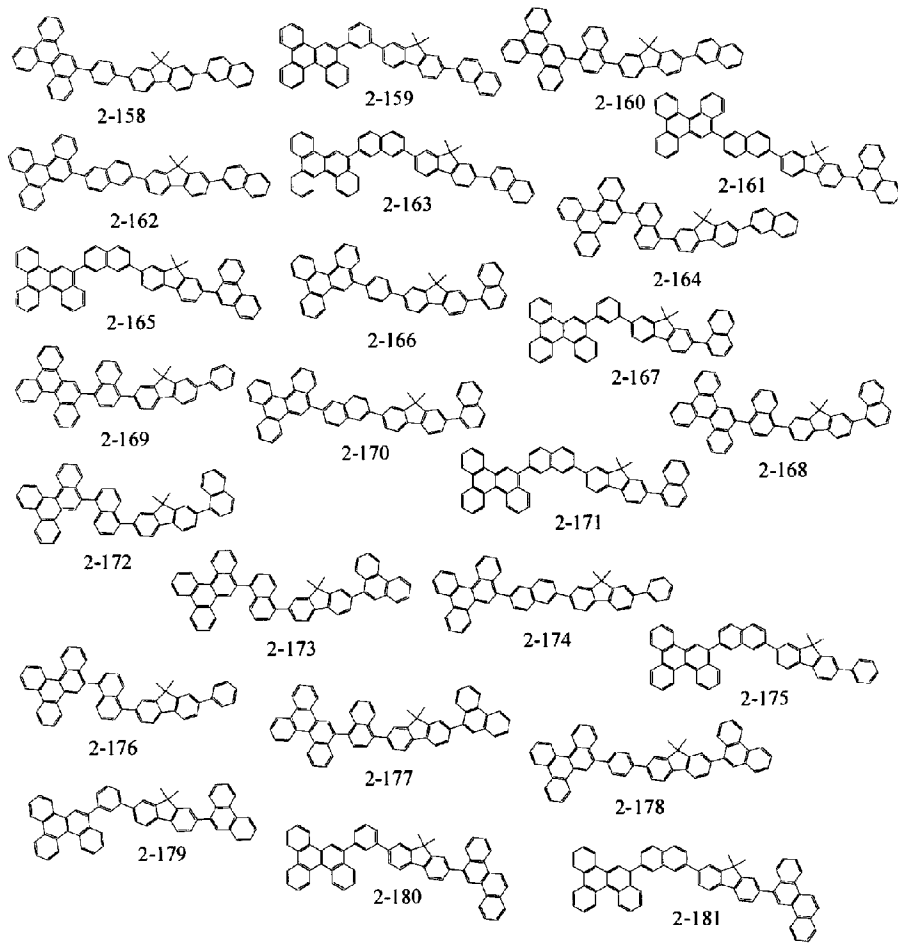
[0087]

[化81]



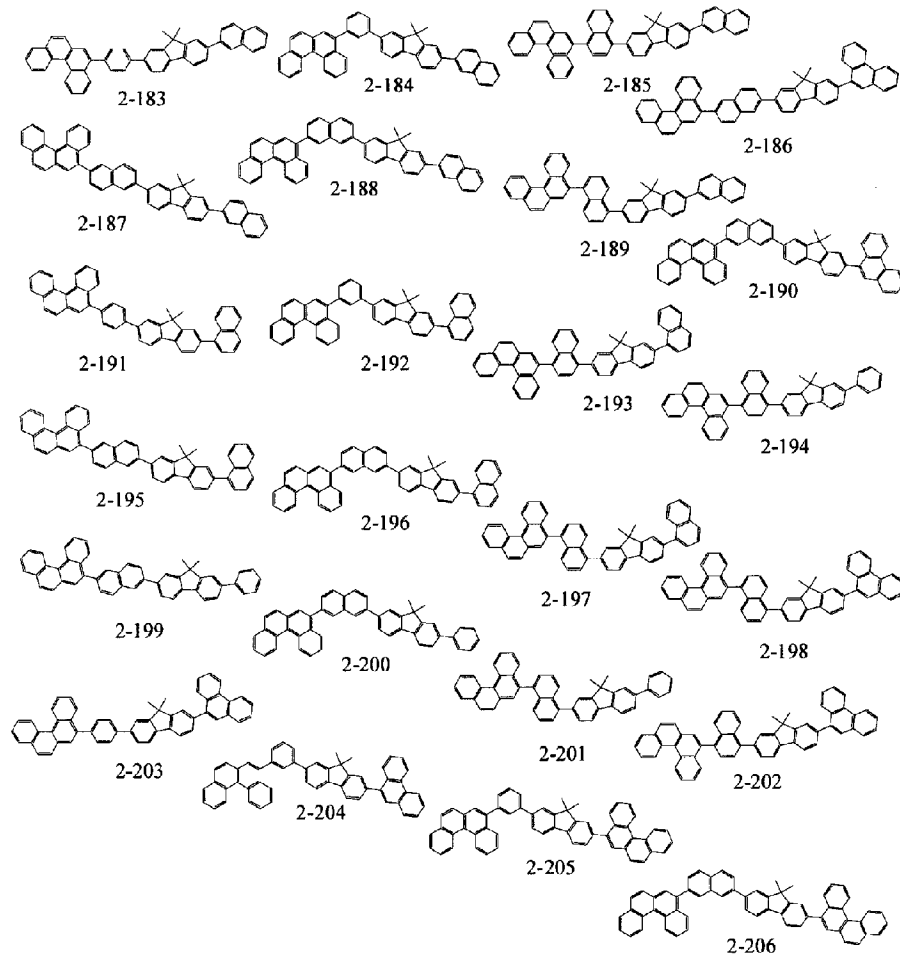
[0088]

[化82]



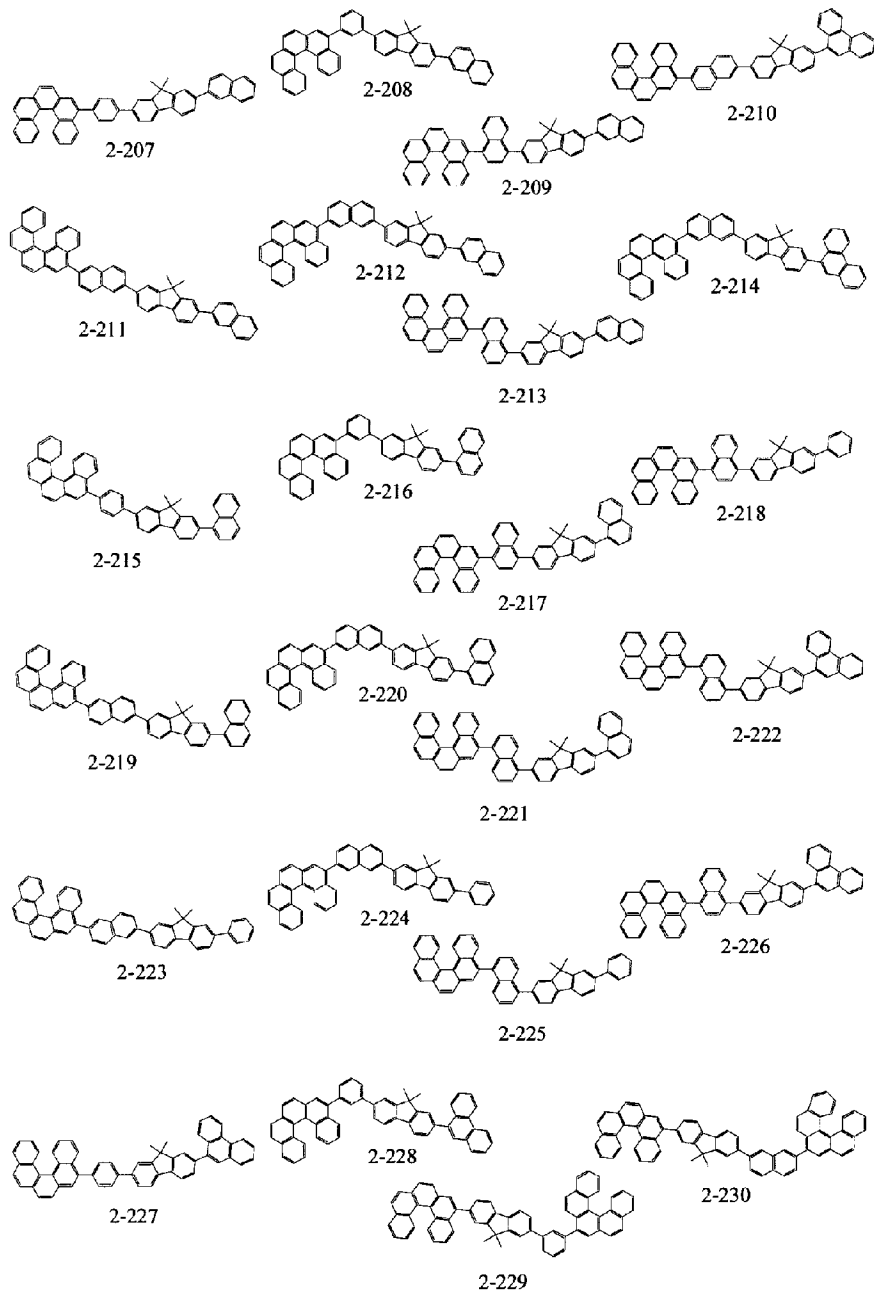
[0089]

[化83]



[0090]

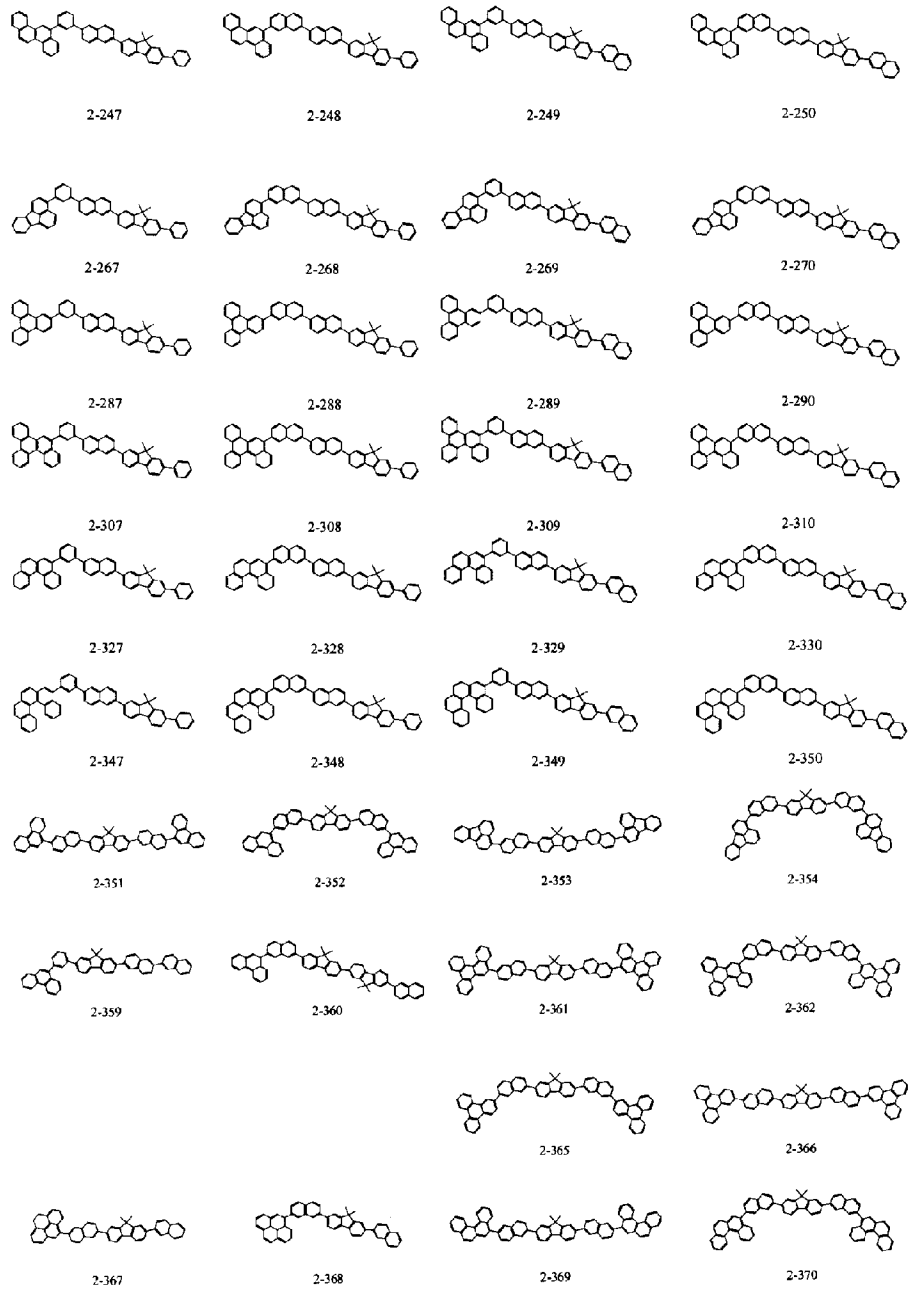
[化84]



[0091]

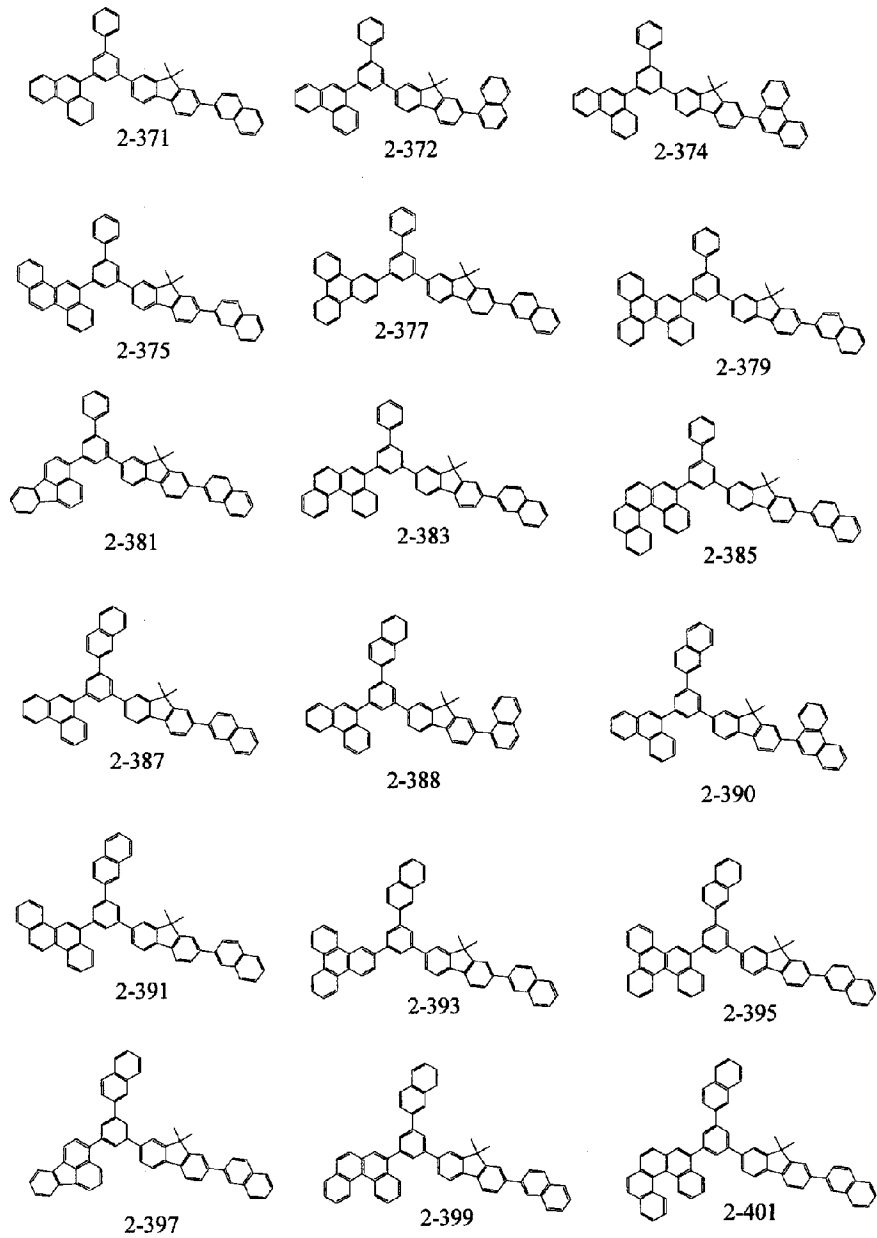


[化85]



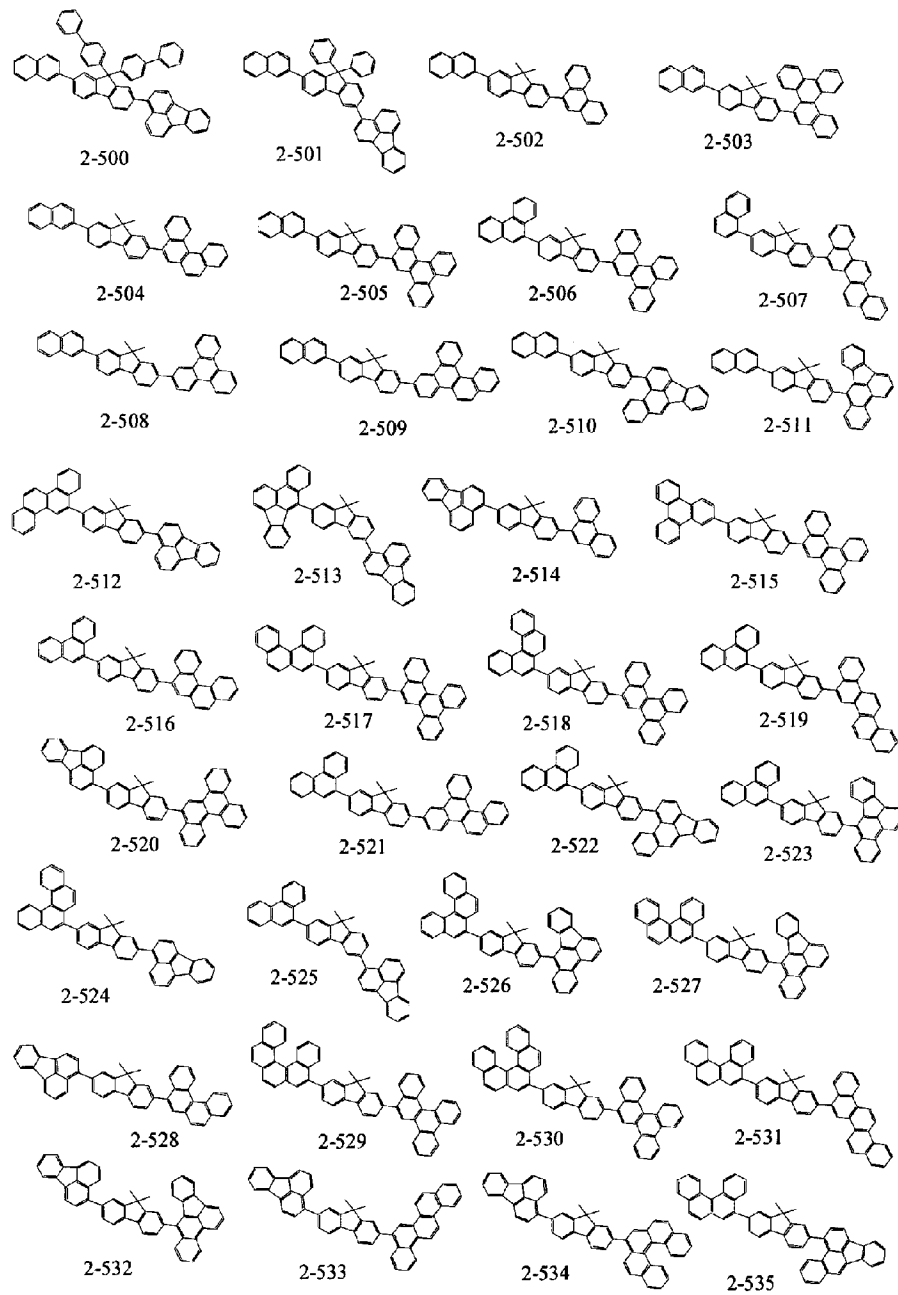
[0092]

[化86]



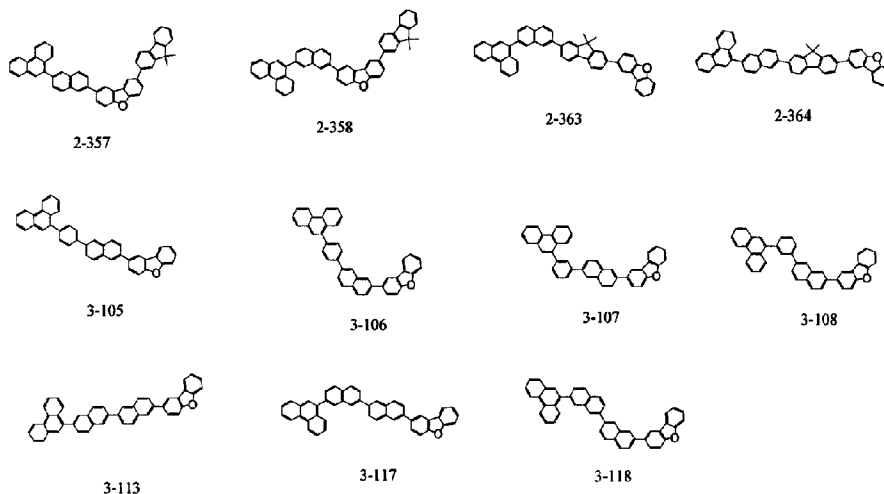
[0093]

[化87]

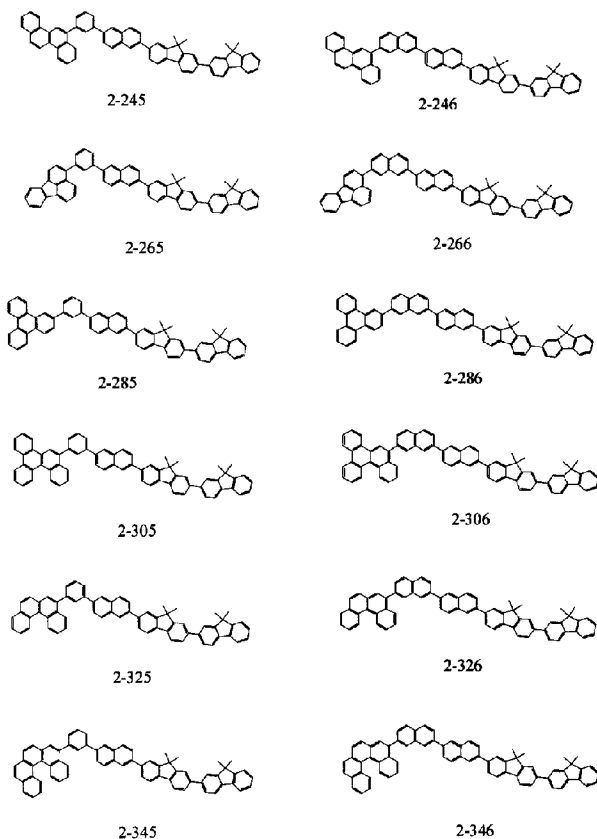


[0094] 前記式 (A-1) ~ (A-5)、(B-1) ~ (B-4) 及び (C-1) ~ (C-6) で表されるもの以外に、下記式で表わされる化合物もまた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として用いることができる。

[化88]



[0095] [化89]



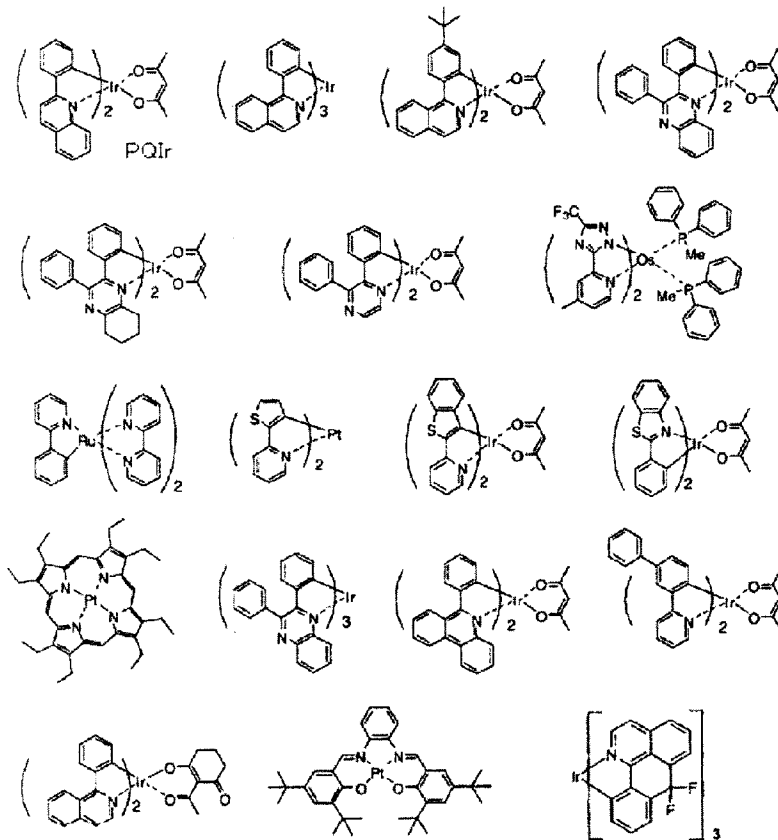
[0096] 本発明において、前記燐光発光材料は、金属錯体を含むし、前記金属錯体は、Ir, Pt, Os, Au, Cu, Re及びRuから選択される金属原子と、配位子と、を有することが好ましい。特に、前記配位子は、オルトメタ

ル結合を有することが好ましい。

燐光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、イリジウム (Ir)、オスミウム (Os) 及び白金 (Pt) から選ばれる金属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、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、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。

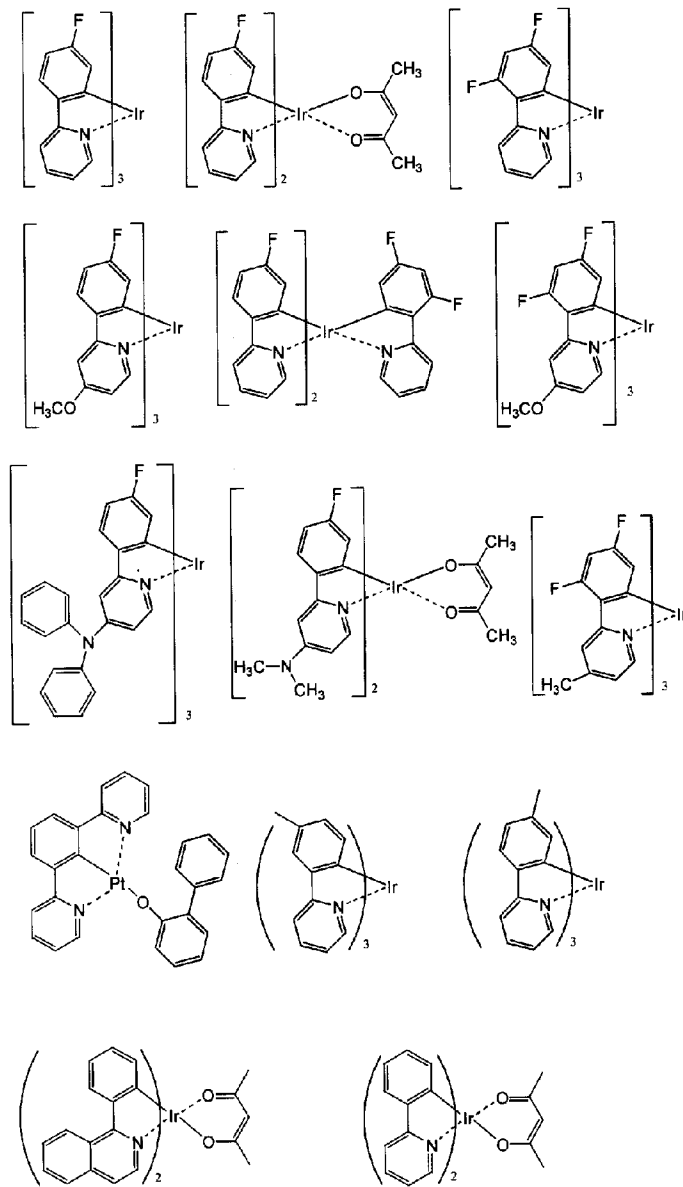
好ましい金属錯体の具体例を、以下に示す。

[0097] [化90]



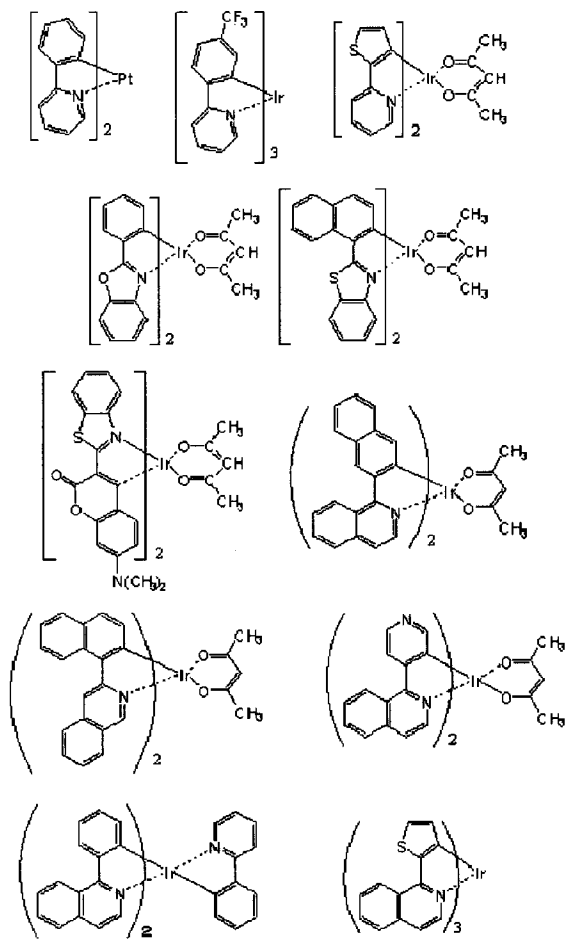
[0098]

[化91]



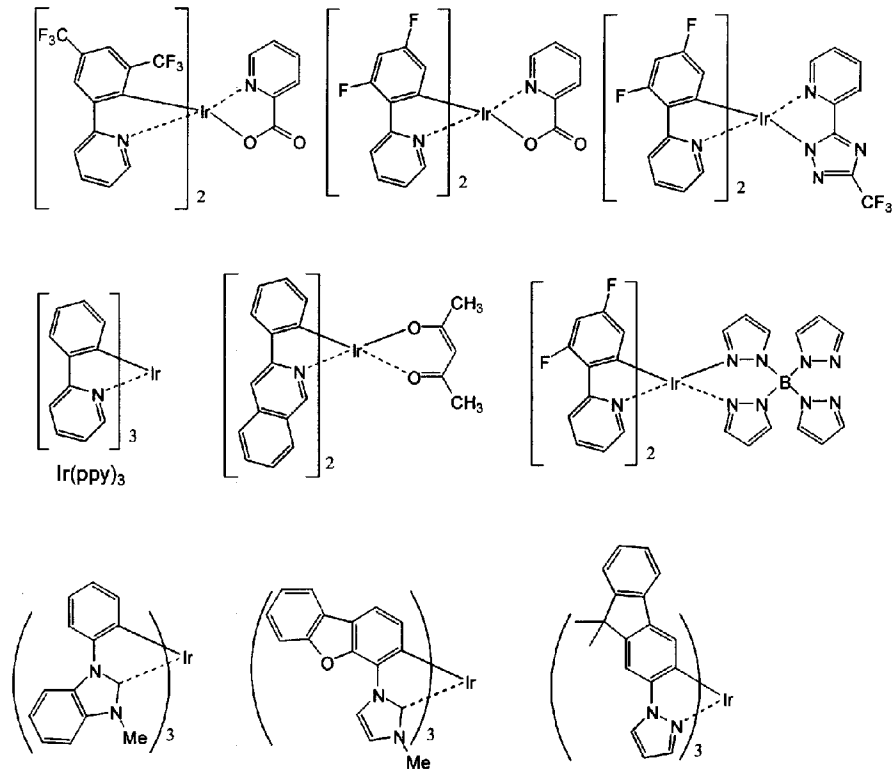
[0099]

[化92]



[0100]

[化93]



[0101] 本発明では、前記発光層に含まれる前記燐光発光材料のうち少なくとも1種は、発光波長の極大値が500nm以上720nm以下であることが好ましい。

このような発光波長の燐光発光材料（燐光ドーパント）を、本発明で用いる特定のホスト材料にドープして発光層を構成することにより、高効率な有機EL素子とできる。

[0102] 本発明の有機EL素子は、正孔輸送層（正孔注入層）を有し、該正孔輸送層（正孔注入層）が本発明の有機EL素子用材料を含有しても好ましく、本発明の有機EL素子が電子輸送層及び正孔障壁層のうち少なくともいずれか一方を有し、該電子輸送層及び正孔障壁層のうち少なくともいずれか一方が、本発明の有機EL素子用材料を含有しても好ましい。

[0103] 本発明の有機EL素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントを有することも好ましい。

このような構成によれば、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命



化が図られる。

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

[0104] アルカリ金属としては、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）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくはK、Rb、Cs、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

アルカリ土類金属としては、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0~2.5 eV）、Ba（仕事関数：2.52 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

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である。

[0105] アルカリ金属化合物としては、Li<sub>2</sub>O、Cs<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、Li<sub>2</sub>O、NaFが好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>O（0<x<1）、Ba<sub>x</sub>Ca<sub>1-x</sub>O（0<x<1）等が挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。

希土類金属化合物としては、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、ScO<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GdF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>等が挙げられ、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>が好ましい。

[0106] アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希

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

[0107] 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と好ましい。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、好ましくは5：1～1：5である。

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。

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。

また、本発明の有機EL素子における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント＝5：1～1：5であると好ましく、2：1～1：2であるとさらに好ましい。

[0108] 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し、前記電子注入層は、含窒素環誘導体を主成分として含有することが好ましい。ここで、電子注入層は電子輸送層として機能する層であってもよい。

なお、「主成分として」とは、電子注入層が50質量%以上の含窒素環誘

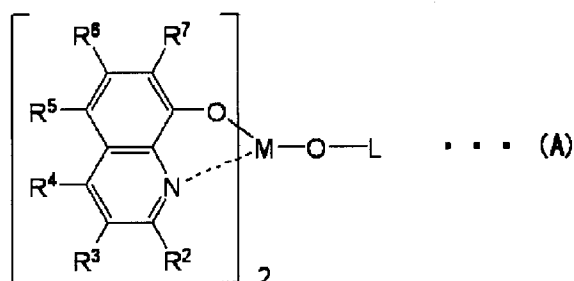
導体を含有していることを意味する。

電子注入層又は電子輸送層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きい。電子注入層はエネルギーレベルの急な変化を緩和する等、エネルギーレベルを調整するために設ける。

電子注入層に用いる電子輸送性材料としては、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用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。また、含窒素環誘導体としては、含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する芳香族環、又は含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する縮合芳香族環化合物が好ましい。

[0109] 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。

[化94]



[0110]  $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）、ハロゲン原子、オキシ基、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、複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

ハロゲン原子としては、例えば、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。また、置換されていてもよいアミノ基の例としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基が挙げられる。

炭素数1～40の炭化水素基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基等が挙げられる。

[0111] 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、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1, 2-ジニトロエチル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

[0112] これらの中でも好ましくは、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、1-ペンチルヘキシル基、又は、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基である。

[0113] アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられ、好ましくは、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基等が挙げられる。

[0114] シクロアルキル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、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、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、及び、3, 5-テトラメチルシクロヘキシル基が好ましい。

アルコキシ基は-OYと表される基である。Yの具体例としては、前記アルキル基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。

[0115] 非縮合アリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル-2-イル基、ビフェニル-3-イル基、ビフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*

ーターフェニルー2ーイル基、oートリル基、mートリル基、pートリル基、pーtーブチルフェニル基、pー(2ーフェニルプロピル)フェニル基、4'ーメチルビフェニルイル基、4"ーtーブチルーpーターフェニルー4ーイル基、oークメニル基、mークメニル基、pークメニル基、2,3ーキシリル基、3,4ーキシリル基、2,5ーキシリル基、メシチル基、及び、mークウォーターフェニル基等が挙げられる。

[0116] これらの中でも好ましくは、フェニル基、ビフェニルー2ーイル基、ビフェニルー3ーイル基、ビフェニルー4ーイル基、mーターフェニルー4ーイル基、mーターフェニルー3ーイル基、mーターフェニルー2ーイル基、pートリル基、3,4ーキシリル基、mークウォーターフェニルー2ーイル基である。

縮合アリール基としては、例えば、1ーナフチル基、2ーナフチル基が挙げられる。

[0117] 複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは環形成炭素数1~20、より好ましくは環形成炭素数1~12、さらに好ましくは環形成炭素数2~10の複素環基であり、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つのヘテロ原子を含む芳香族複素環基である。この複素環基の例としては、例えば、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等から誘導される基が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリ

ジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、及び、キノリンから誘導される基であり、さらに好ましくはキノリニル基である。

[0118] アラルキル基としては、例えば、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、 $\alpha$ -ナフチルメチル基、1- $\alpha$ -ナフチルエチル基、2- $\alpha$ -ナフチルエチル基、1- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、 $\beta$ -ナフチルメチル基、1- $\beta$ -ナフチルエチル基、2- $\beta$ -ナフチルエチル基、1- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

[0119] これらの中でも好ましくは、ベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基である。

[0120] アリールオキシ基は、 $-OY'$ と表され、 $Y'$ の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-

ーピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

[0121] アリールオキシ基のうちヘテロアリールオキシ基は、-OZ' と表され、Z' の例としては2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8



ーフェナンスリジニル基、9ーフェナンスリジニル基、10ーフェナンスリジニル基、1ーアクリジニル基、2ーアクリジニル基、3ーアクリジニル基、4ーアクリジニル基、9ーアクリジニル基、1, 7ーフェナンスロリンー2ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー3ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー4ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー5ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー6ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー8ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー9ーイル基、1, 7ーフェナンスロリンー10ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー2ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー3ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー4ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー5ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー6ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー7ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー9ーイル基、1, 8ーフェナンスロリンー10ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー2ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー3ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー4ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー5ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー6ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー7ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー8ーイル基、1, 9ーフェナンスロリンー10ーイル基、1, 10ーフェナンスロリンー2ーイル基、1, 10ーフェナンスロリンー3ーイル基、1, 10ーフェナンスロリンー4ーイル基、1, 10ーフェナンスロリンー5ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー1ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー3ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー4ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー5ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー6ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー7ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー8ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー10ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー1ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー3ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー4ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー5ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー6ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー7ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー9ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー10ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー1ーイル基

、2、7-フェナンスロリン-3-イル基、2、7-フェナンスロリン-4-イル基、2、7-フェナンスロリン-5-イル基、2、7-フェナンスロリン-6-イル基、2、7-フェナンスロリン-8-イル基、2、7-フェナンスロリン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

[0122] アルコキシカルボニル基は $-COOY'$ と表され、 $Y'$ の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。アルキルアミノ基及びアラルキルアミノ基は $-NQ^1Q^2$ と表される。 $Q^1$ 及び $Q^2$ の具体例としては、それぞれ独立に、前記アルキル基、前記アラルキル基で説明したものと同様のものが挙げられ、好ましい例も同様である。 $Q^1$ 及び $Q^2$ の一方は水素原子（重水素原子を含む）であってもよい。

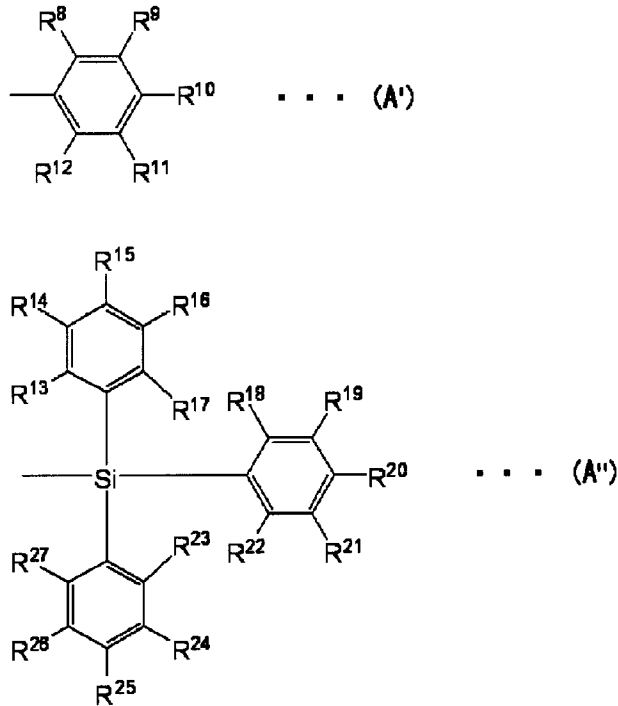
アリールアミノ基は $-NAr^1Ar^2$ と表され、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ の具体例としては、それぞれ独立に前記非縮合アリール基及び縮合アリールで説明した基と同様である。 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ の一方は水素原子（重水素原子を含む）であつ

てもよい。

[0123] Mは、アルミニウム（Al）、ガリウム（Ga）又はインジウム（In）であり、Inであると好ましい。

上記式（A）のLは、下記式（A'）又は（A''）で表される基である。

[化95]



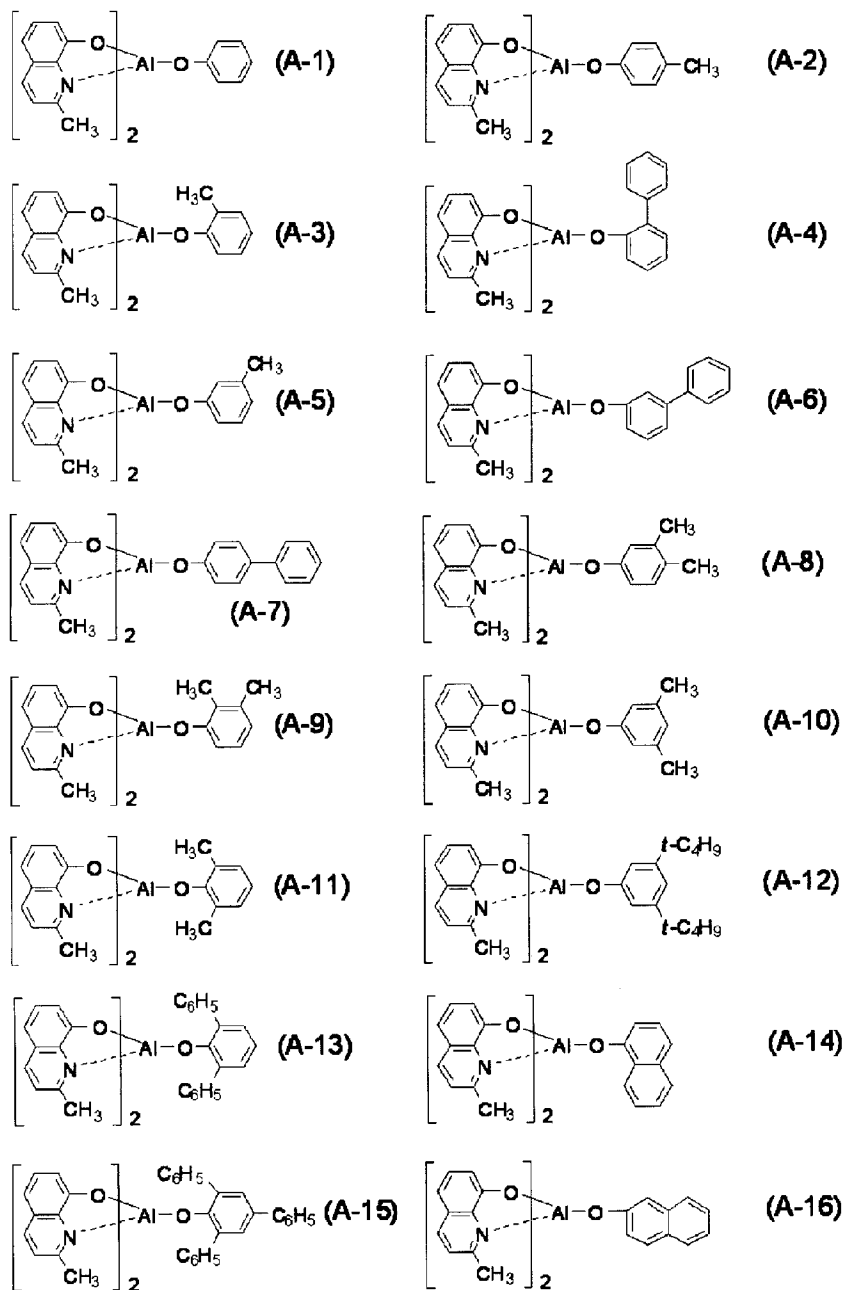
[0124] 前記式中、R<sup>8</sup>～R<sup>12</sup>は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、R<sup>13</sup>～R<sup>27</sup>は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

前記式（A'）及び式（A''）のR<sup>8</sup>～R<sup>12</sup>及びR<sup>13</sup>～R<sup>27</sup>が示す炭素数1～40の炭化水素基としては、R<sup>2</sup>～R<sup>7</sup>の具体例と同様のものが挙げられる。

また、R<sup>8</sup>～R<sup>12</sup>及びR<sup>13</sup>～R<sup>27</sup>の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の2価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる

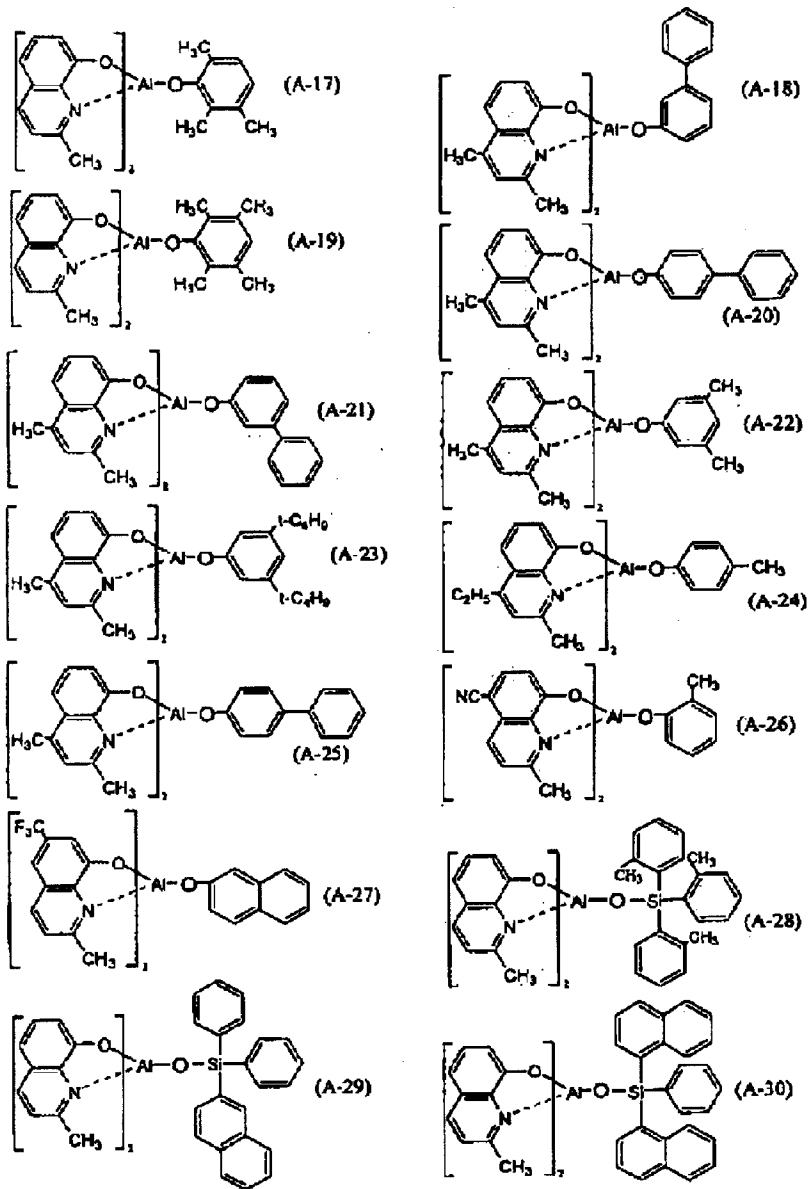
[0125] 前記式 (A) で表される含窒素環金属キレート錯体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

[化96]



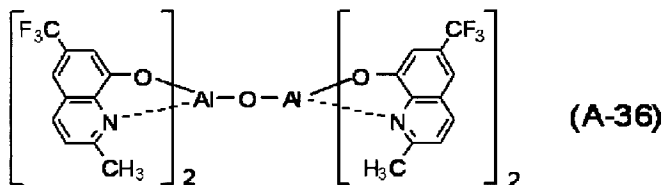
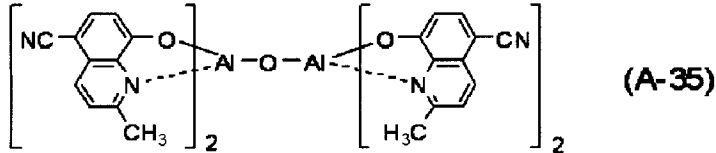
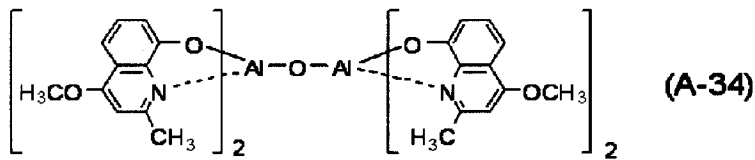
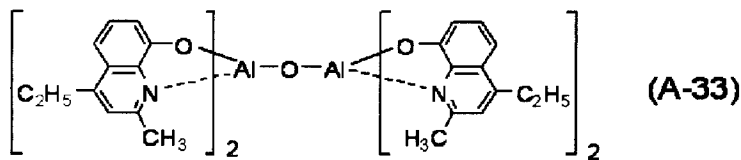
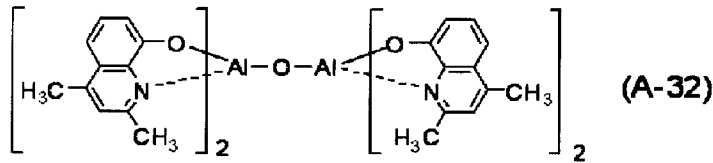
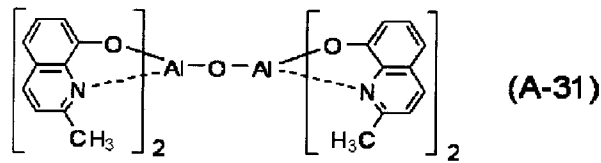
[0126]

[化97]



[0127]

[化98]

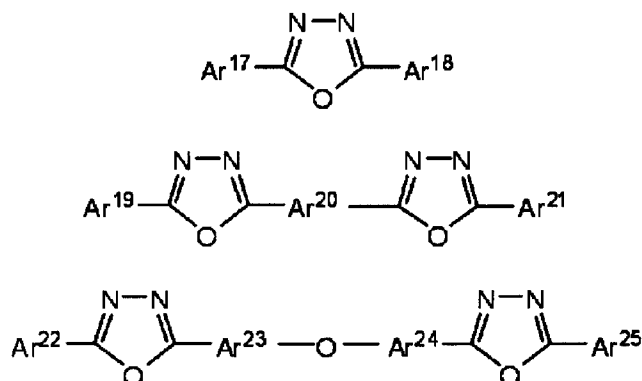


[0128] 本発明では、電子注入層や電子輸送層は、含窒素複素環誘導体を含むことが好ましい。

電子注入層又は電子輸送層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きい。電子注入層はエネルギーレベルの急な変化を緩和する等、エネルギーレベルを調整するために設ける。電子注入層又は電子輸送層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環誘導体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキ

シン（一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウムを用いることができる。そして、オキサジアゾール誘導体としては、下記のもの挙げることができる。

[0129] [化99]

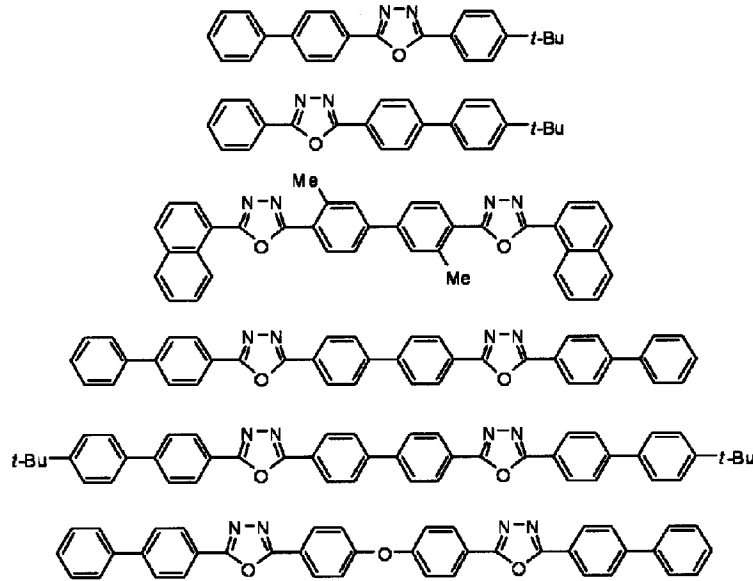


[0130] 前記式中、 $Ar^{17}$ 、 $Ar^{18}$ 、 $Ar^{19}$ 、 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ 及び $Ar^{25}$ は、それぞれ置換基を有する若しくは有しないアリール基を示し、 $Ar^{17}$ と $Ar^{18}$ 、 $Ar^{19}$ と $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ と $Ar^{25}$ は、たがいに同一でも異なってもよい。 $Ar^{20}$ 、 $Ar^{23}$ 及び $Ar^{24}$ は、それぞれ置換基を有する若しくは有しないアリーレン基を示し、 $Ar^{23}$ と $Ar^{24}$ は、たがいに同一でも異なってもよい。

また、アリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のもの挙げることができる。

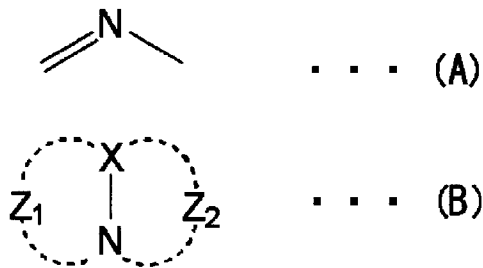
[0131]

[化100]



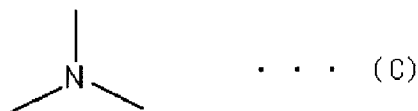
[0132] 含窒素複素環誘導体としては、以下の一般式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、(A) に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、(B) に示す構造のものが挙げられる。

[化101]



[0133] 前記 (B) 中、X は炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z<sub>1</sub> ならびに Z<sub>2</sub> は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

[化102]



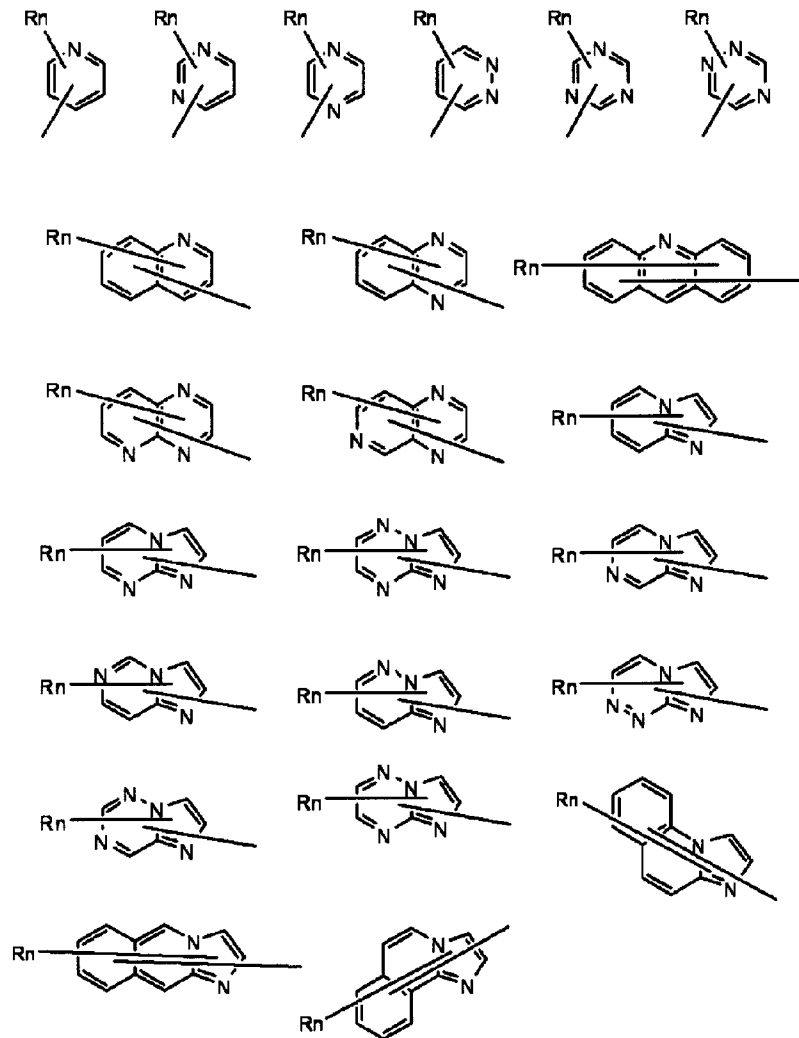
[0134] 好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有



機化合物。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）もしくは（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。

含窒素有機化合物の含窒素基は、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。

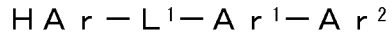
[化103]



[0135] 前記各式中、R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は互いに同一又は異なってもよい。

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

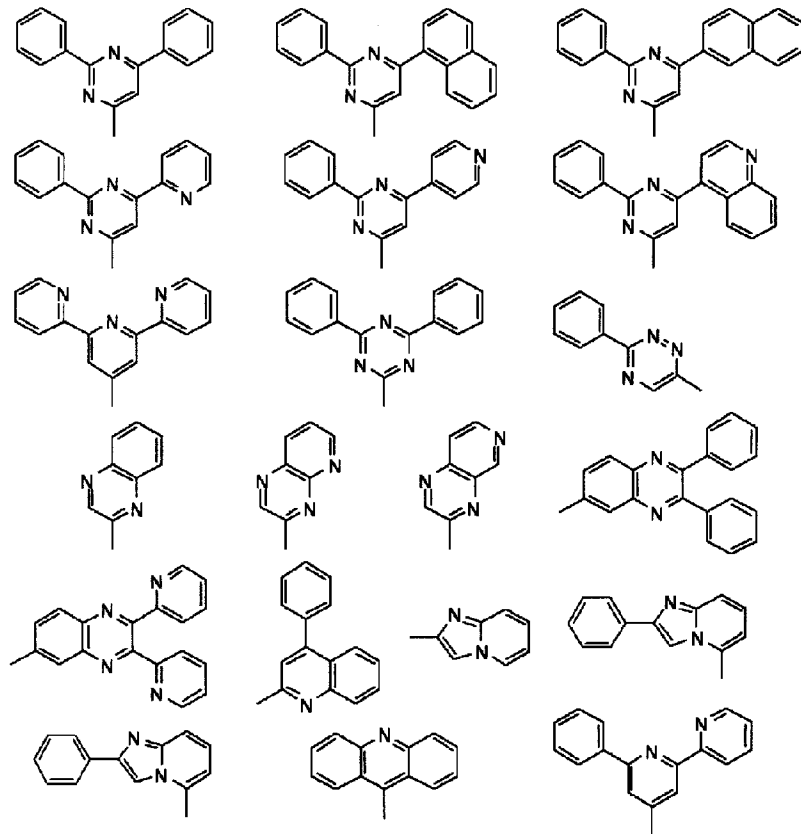
誘導体が挙げられる。



[0136] 前記式中、H A r は、置換基を有していても良い炭素数 3 ~ 40 の含窒素複素環であり、L<sup>1</sup> 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、A r<sup>1</sup> は置換基を有していても良い炭素数 6 ~ 40 の 2 価の芳香族炭化水素基であり、A r<sup>2</sup> は置換基を有していても良い炭素数 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。

H A r は、例えば、下記の群から選択される。

[0137] [化104]

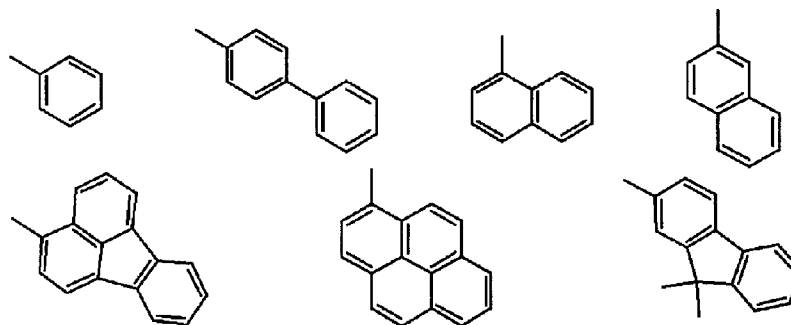


[0138] L<sup>1</sup> は、例えば、下記の群から選択される。

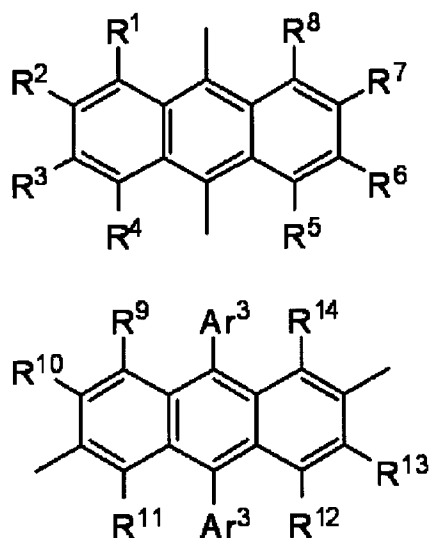
[化105]

[0139] Ar<sup>2</sup>は、例えば、下記の群から選択される。

[化106]

[0140] Ar<sup>1</sup>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107]



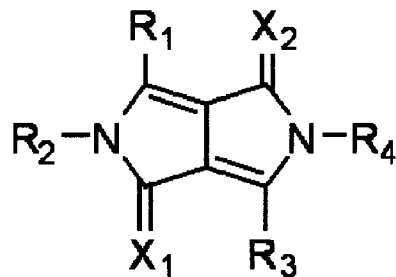
[0141] 前記式中、R<sup>1</sup>~R<sup>14</sup>は、それぞれ独立して、水素原子（重水素原子を含む）、ハロゲン原子、炭素数1~20のアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数6~40のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数6~40のアリール基又は炭素数3~40のヘテロアリール基であり、Ar<sup>3</sup>は、置換基を有してもよい炭素数6~40のアリール基又は炭素数3

～40のヘテロアリール基である。

また、上記式で表されるアリールにおいて、 $R^1 \sim R^8$ は、いずれも水素原子（重水素原子を含む）である含窒素複素環誘導体。

[0142] 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。

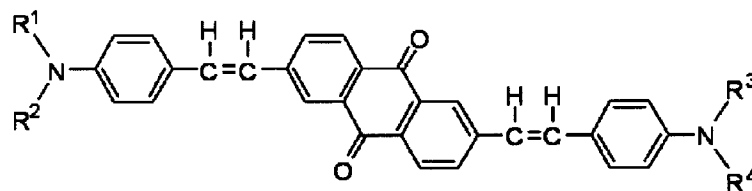
[化108]



[0143] 前記式中、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）、置換もしくは未置換の脂肪族基、置換もしくは未置換の脂肪族式環基、置換もしくは未置換の炭素環式芳香族環基、置換もしくは未置換の複素環基を表し、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子もしくはジシアノメチレン基を表す。

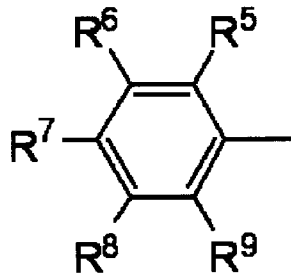
[0144] また、下記の化合物（特開2000-173774号公報参照）も好適に用いられる。

[化109]



[0145] 前記式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 及び $R^4$ 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。

[化110]

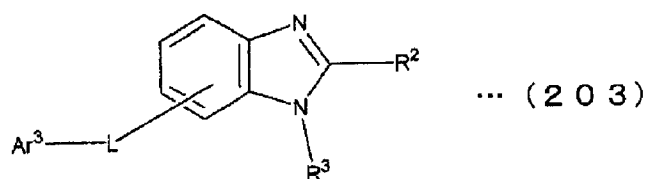
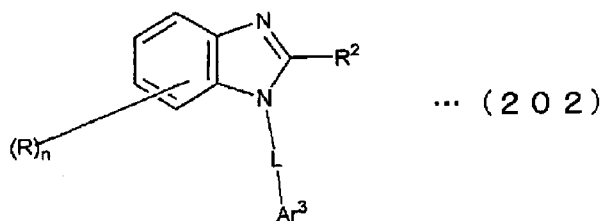
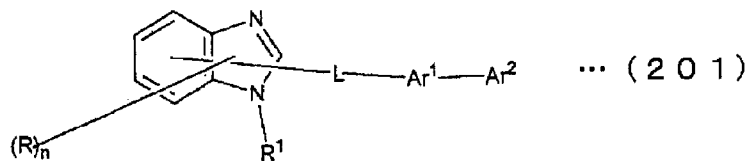


[0146] 前記式中、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>、R<sup>7</sup>、R<sup>8</sup>及びR<sup>9</sup>は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子（重水素原子を含む）、或いはそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基又はアルキルアミノ基である。

さらに、該含窒素複素環基も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。

[0147] また、電子輸送層は、下記式（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つを含有することが好ましい。

[化111]



[0148] 前記式（201）～（203）中、Rは、水素原子（重水素原子を含む）

、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、 $R^1$ 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、 $R^2$ 及び $R^3$ は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）、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、 $L$ 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、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、 $A r^1$ 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、 $A r^2$ 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。

$A r^3$ 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 $-A r^1-A r^2$ で表される基（ $A r^1$ 及び $A r^2$ は、それぞれ前記と同じ）である。

[0149] なお、前記式（201）～（203）において、 $R$ は、水素原子（重水素原子を含む）、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。

[0150] 前記炭素数6~60のアリール基としては、炭素数6~40のアリール基が好ましく、炭素数6~20のアリール基がさらに好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、クリセニル基、ピレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、トリル基、*t*-ブチルフェニル基、(2-フェニルプロピル)フェニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、スピロビフルオレンからなる1価の基、パーフルオロフェニル基、パーフルオロナフチル基、パーフルオロアントリル基、パーフルオロビフェニル基、9-フェニルアントラセンからなる1価の基、9-(1'-ナフチル)アントラセンからなる1価の基、9-(2'-ナフチル)アントラセンからなる1価の基、6-フェニルクリセンからなる1価の基、9-[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]アントラセンからなる1価の基等が挙げられ、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、9-(10-フェニル)アントリル基、9-[10-(1'-ナフチル)]アントリル基、9-[10-(2'-ナフチル)]アントリル基等が好ましい。

[0151] 炭素数1~20のアルキル基としては、炭素数1~6のアルキル基が好ましく、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等の他、トリフルオロメチル基等のハロアルキル基が挙げられ、炭素数が3以上のものは直鎖状、環状又は分岐を有するものでもよい。

炭素数1~20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、炭素数が3以上のものは直鎖状、環状又は分岐を有するものでもよい。

[0152] Rの示す各基の置換基としては、ハロゲン原子、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、置換基を有していてもよい炭素数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等が挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

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のアリール基としては、前記と同様のものが挙げられる。

[0153] 炭素数6～40のアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ビフェニルオキシ基等が挙げられる。

炭素数3～40のヘテロアリール基としては、例えば、ピローリル基、フリル基、チエニル基、シローリル基、ピリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフリル基、イミダゾリル基、ピリミジル基、カルバゾリル基、セレノフェニル基、オキサジアゾリル基、トリアゾーリル基等が挙げられる。

nは0～4の整数であり、0～2であると好ましい。

[0154] 前記式(201)において、R<sup>1</sup>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る。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記Rについて説明したものと同様である。

[0155] 前記式(202)及び(203)において、R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、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。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記Rについて説明したものと同様である。

[0156] 前記式(201)～(203)において、Lは、置換基を有していてもよ

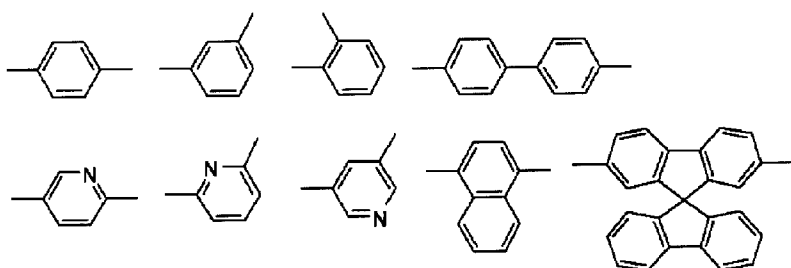


い炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基である。

炭素数6～60のアリーレン基としては、炭素数6～40のアリーレン基が好ましく、炭素数6～20のアリーレン基がさらに好ましく、具体的には、前記Rについて説明したアリール基から水素原子（重水素原子を含む）1個を除去して形成される2価の基が挙げられる。Lの示す各基の置換基としては、前記Rについて説明したものと同様である。

[0157] また、Lは、下記からなる群から選択される基であると好ましい。

[化112]

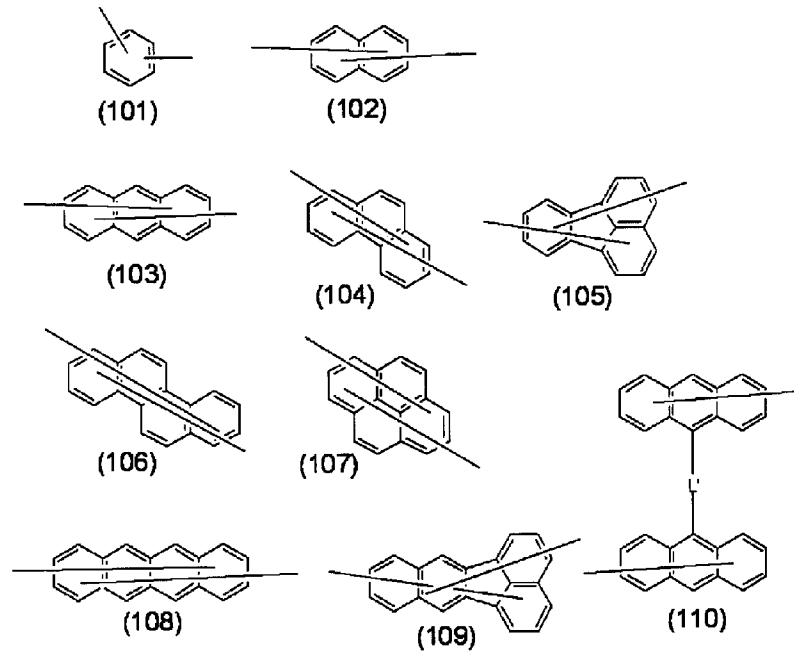


[0158] 前記式（201）において、Ar<sup>1</sup>は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基である。Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>3</sup>の示す各基の置換基としては、それぞれ前記Rについて説明したものと同様である。

また、Ar<sup>1</sup>は、下記式（101）～（110）で表される縮合環基から選択されるいずれかの基であると好ましい。

[0159]

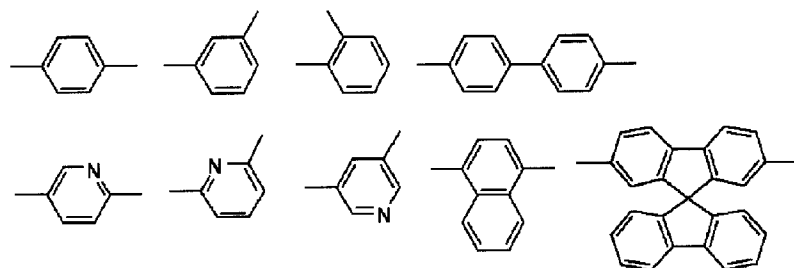
[化113]



[0160] 前記式(101)～(110)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、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、置換基を有していてもよい炭素数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からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

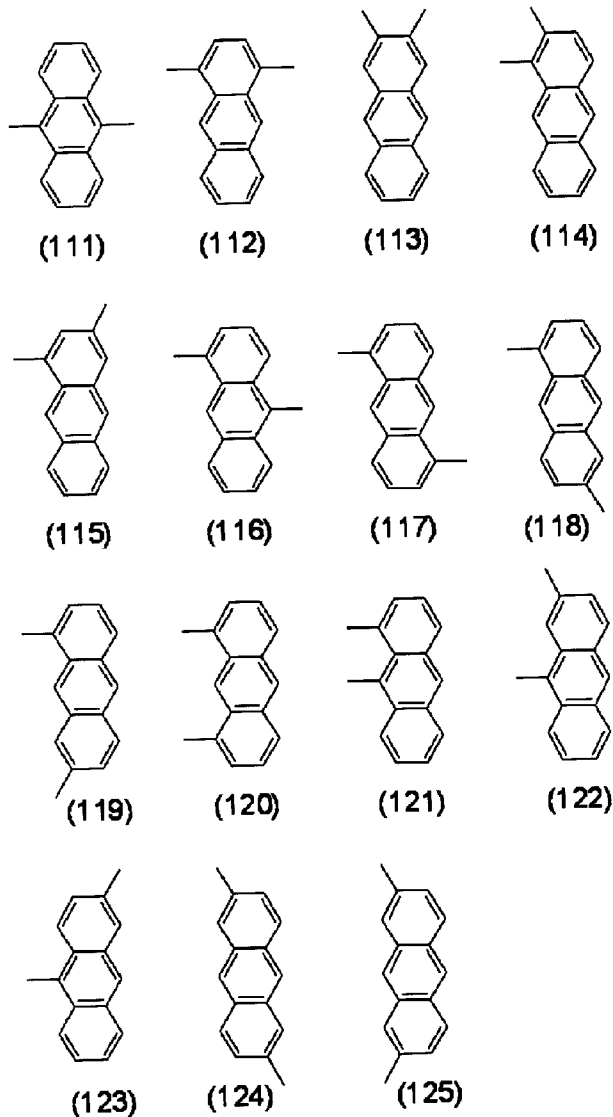
前記式(110)において、L'は、単結合、又は下記からなる群から選択される基である。

[0161] [化114]



[0162] Ar<sup>1</sup>の示す前記式(103)が、下記式(111)～(125)で表される縮合環基であると好ましい。

[化115]



[0163] 前記式(111)～(125)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、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、置換基を有していてもよい炭素数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からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、

前記と同様のものが挙げられる。

- [0164] 前記式(201)において、 $A r^2$ 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。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記Rについて説明したものと同様である。

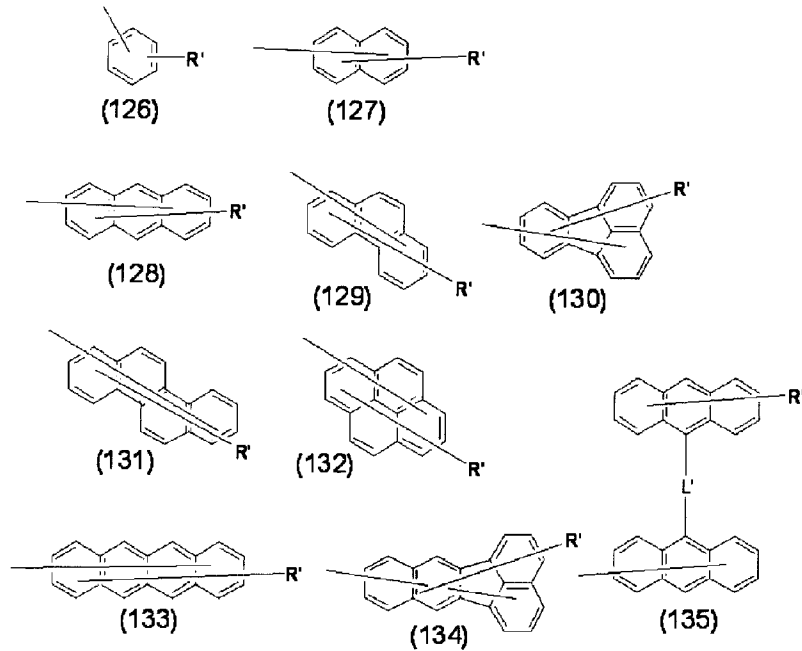
- [0165] 前記式(202)及び(203)において、 $A r^3$ は、置換基を有していてもよい炭素数6～60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、又は $-A r^1-A r^2$ で表される基( $A r^1$ 及び $A r^2$ は、それぞれ前記と同じ)である。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び置換基としては、前記Rについて説明したものと同様である。

また、 $A r^3$ は、下記式(126)～(135)で表される縮合環基から選択されるいずれかの基であると好ましい。

- [0166]

[化116]



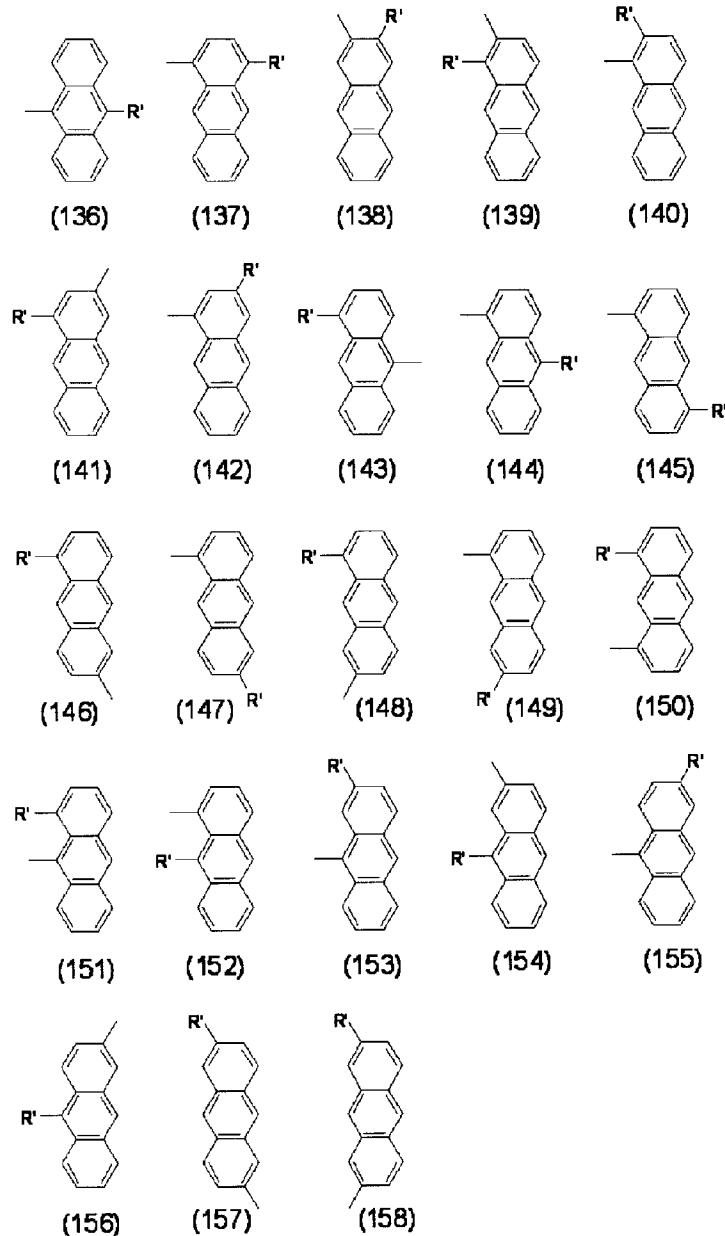
[0167] 前記式(126)～(135)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

前記式(135)において、 $L'$ は、前記と同じである。

前記式(126)～(135)において、 $R'$ は、水素原子(重水素原子を含む)、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。これら各基の具体例としては、前記と同様のものが挙げられる。

$A r^3$ の示す一般式(128)が、下記式(136)～(158)で表される縮合環基であると好ましい。

[0168] [化117]

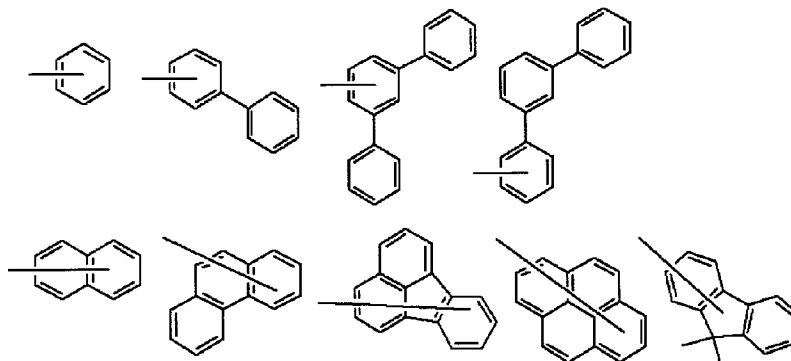


[0169] 前記式(136)～(158)中、それぞれの縮合環は、ハロゲン原子、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～20のアルコキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基からなる結合基が結合していてもよく、該結合基が複数ある場合は、該結合基は互いに同一でも異なってもよい。これら各基の具体例としては、

前記と同様のものが挙げられる。R' は、前記と同じである。

また、Ar<sup>2</sup>及びAr<sup>3</sup>は、それぞれ独立に、下記からなる群から選択される基であると好ましい。

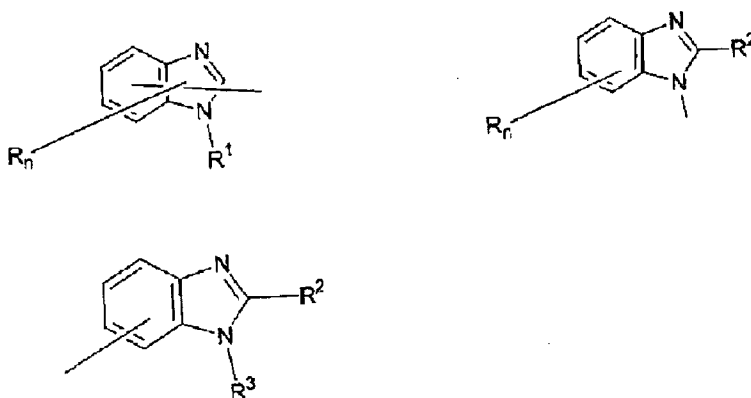
[0170] [化118]



[0171] 本発明の前記式(201)～(203)で示される含窒素複素環誘導体の具体例を下記に示すが、本発明はこれらの例示化合物に限定されるものではない。

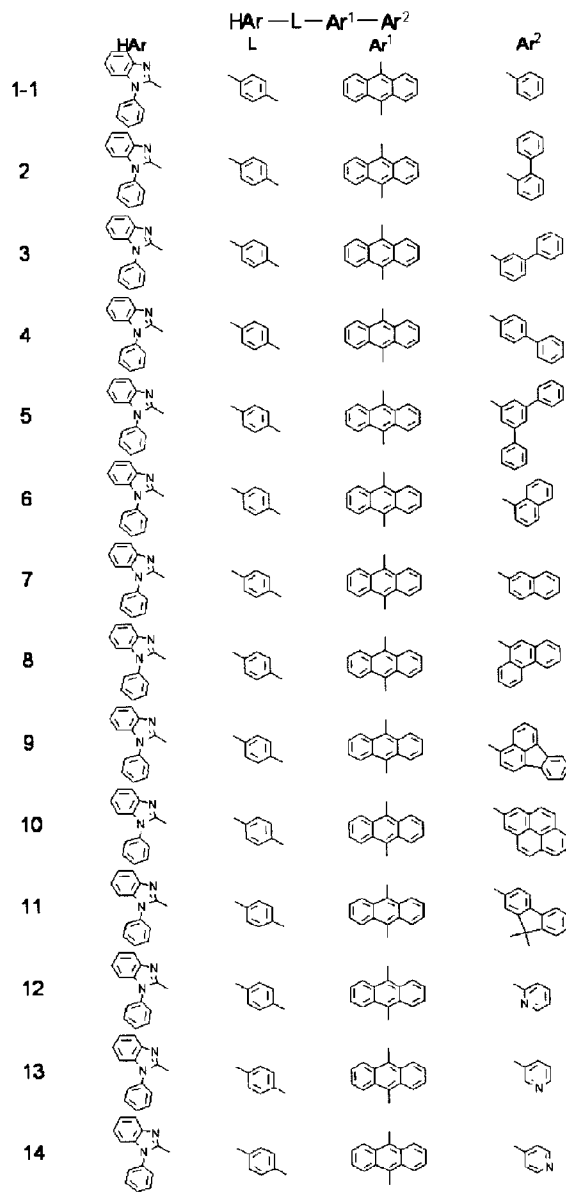
なお、下記表において、Harは、前記式(201)～(203)における、下記構造を示す。

[0172] [化119]



[0173]

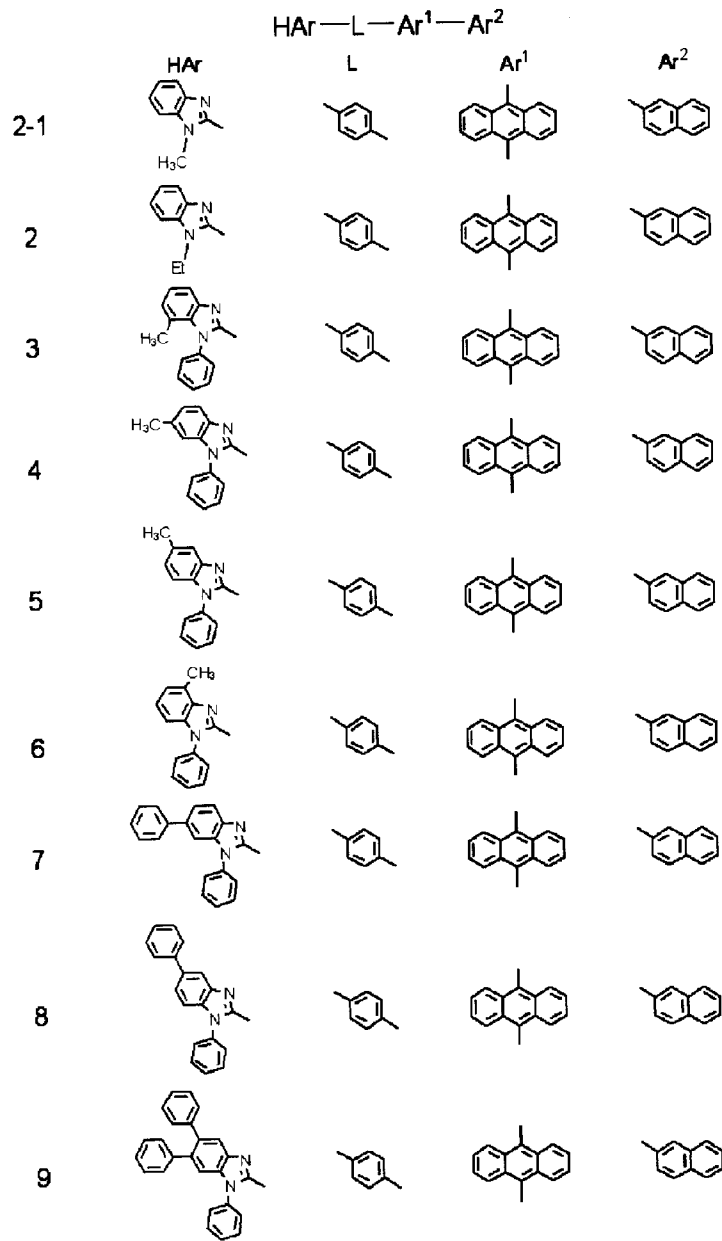
[化120]



[0174]

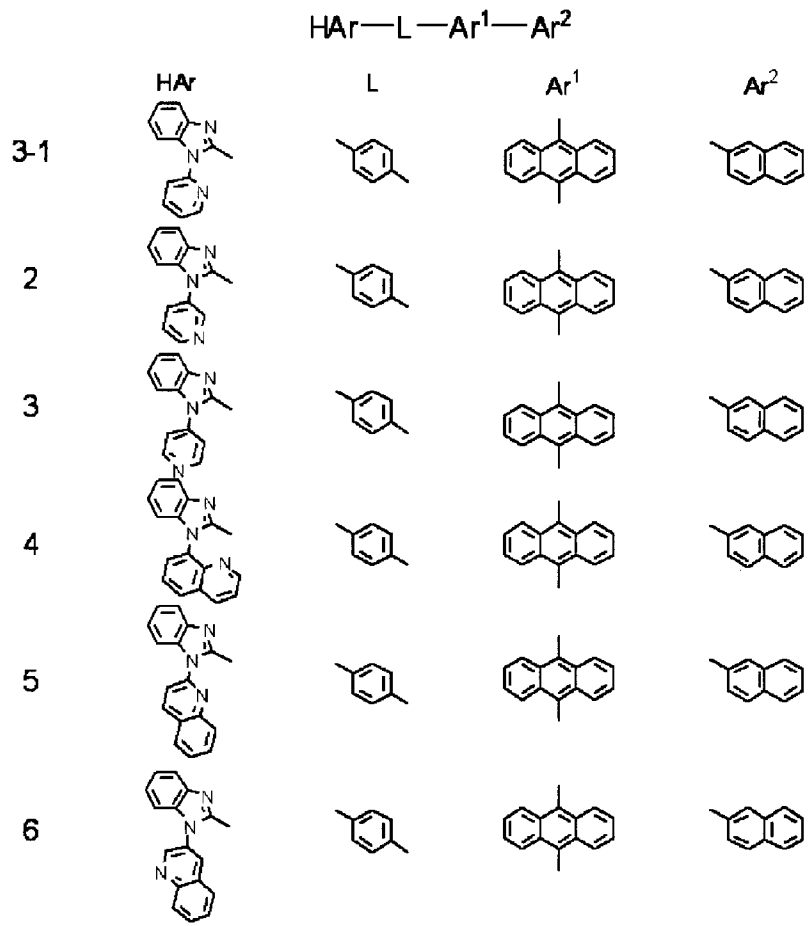


[化121]



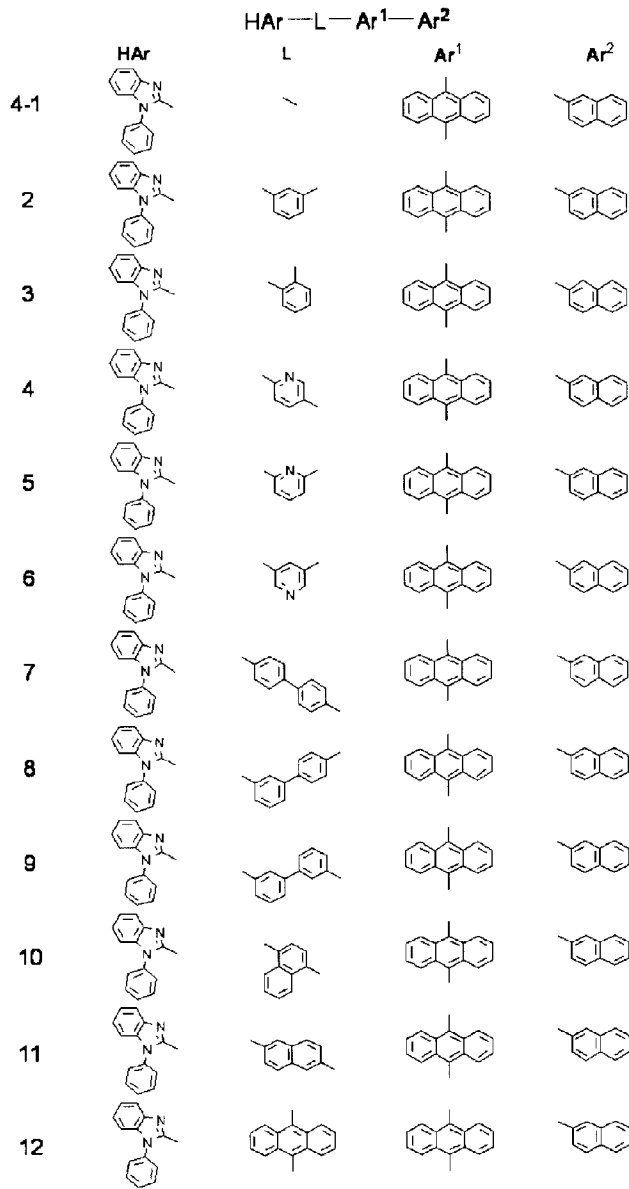
[0175]

[化122]



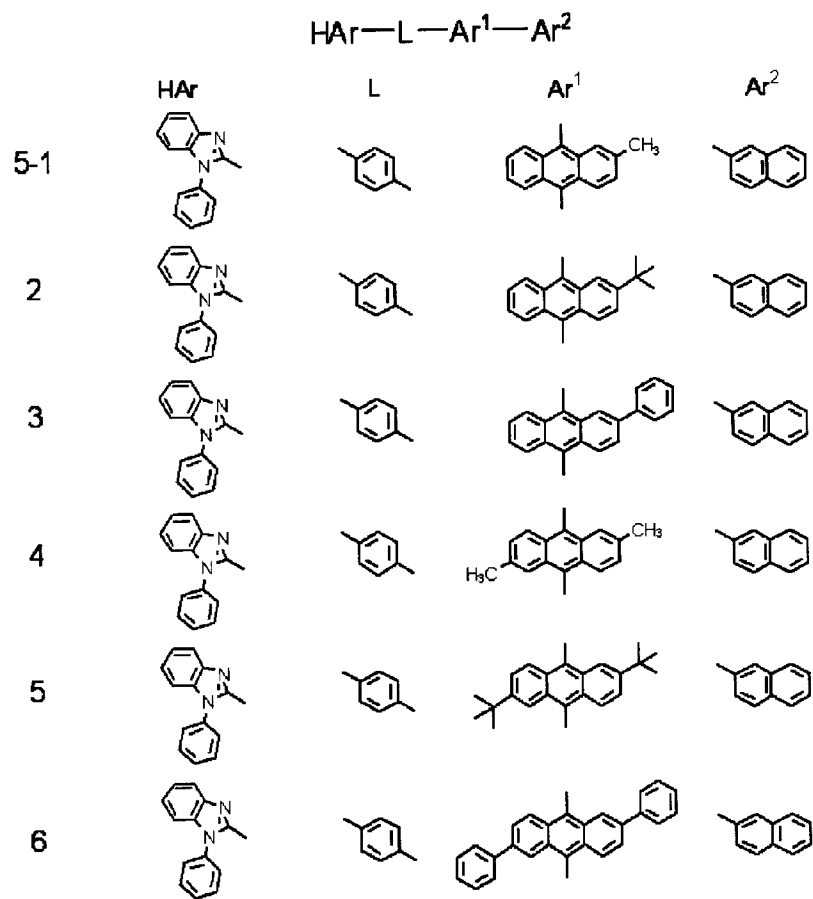
[0176]

[化123]



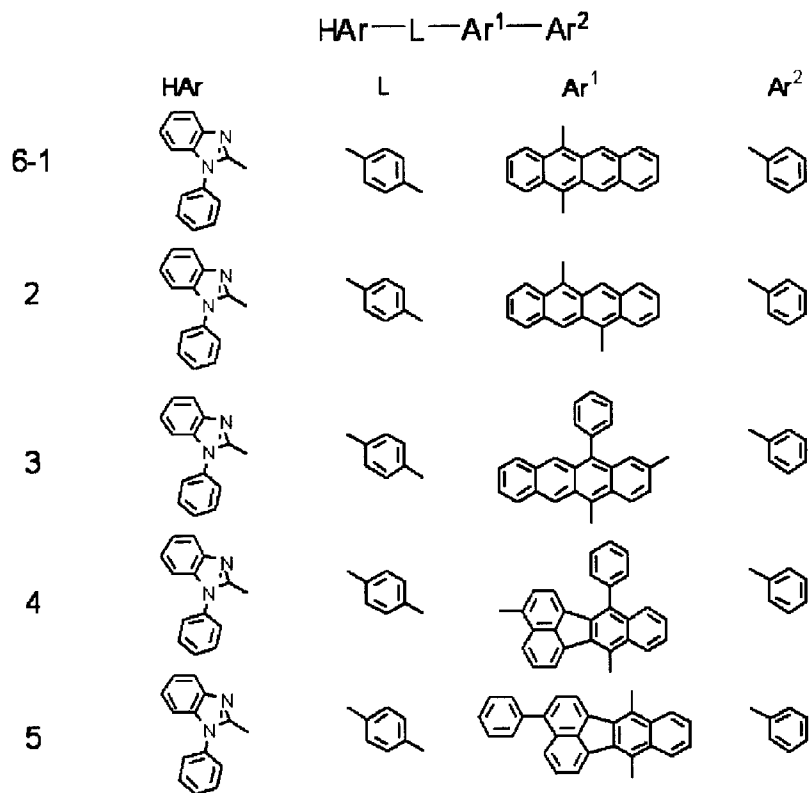
[0177]

[化124]



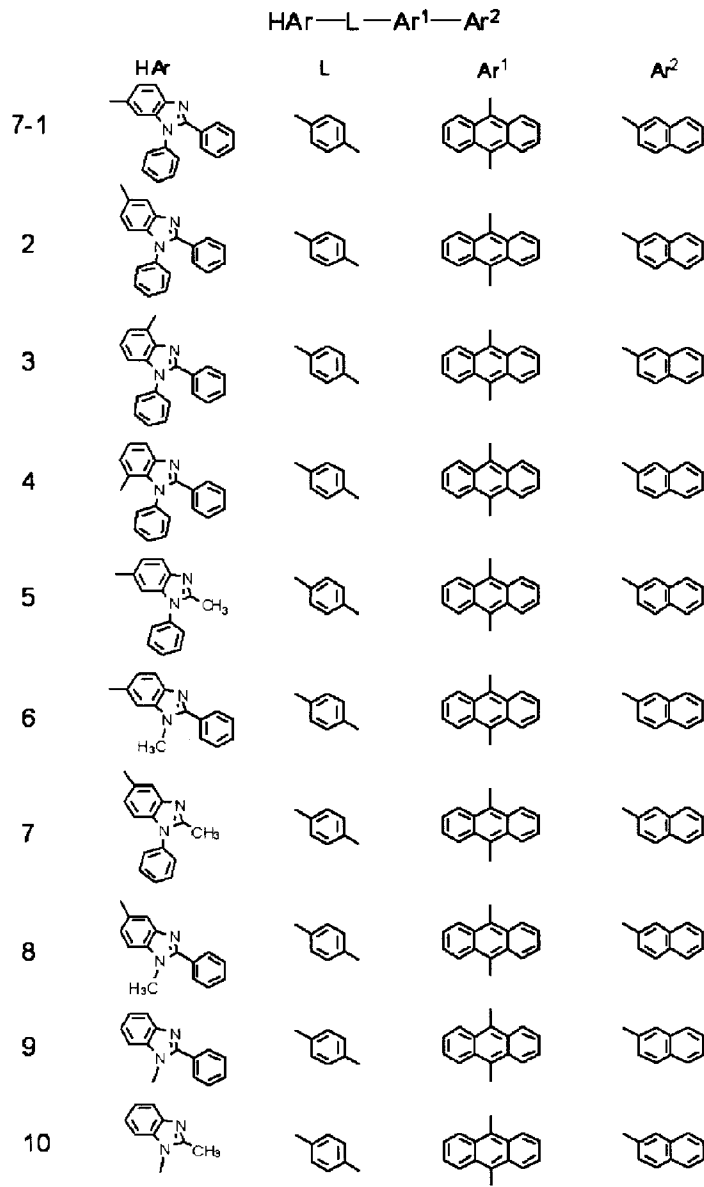
[0178]

[化125]



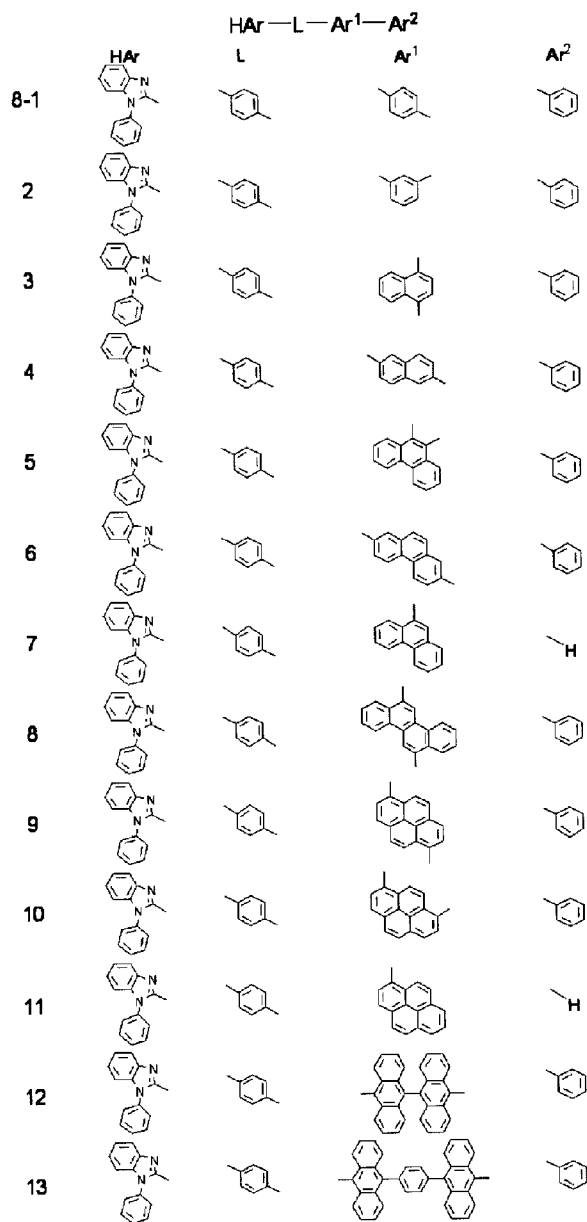
[0179]

[化126]



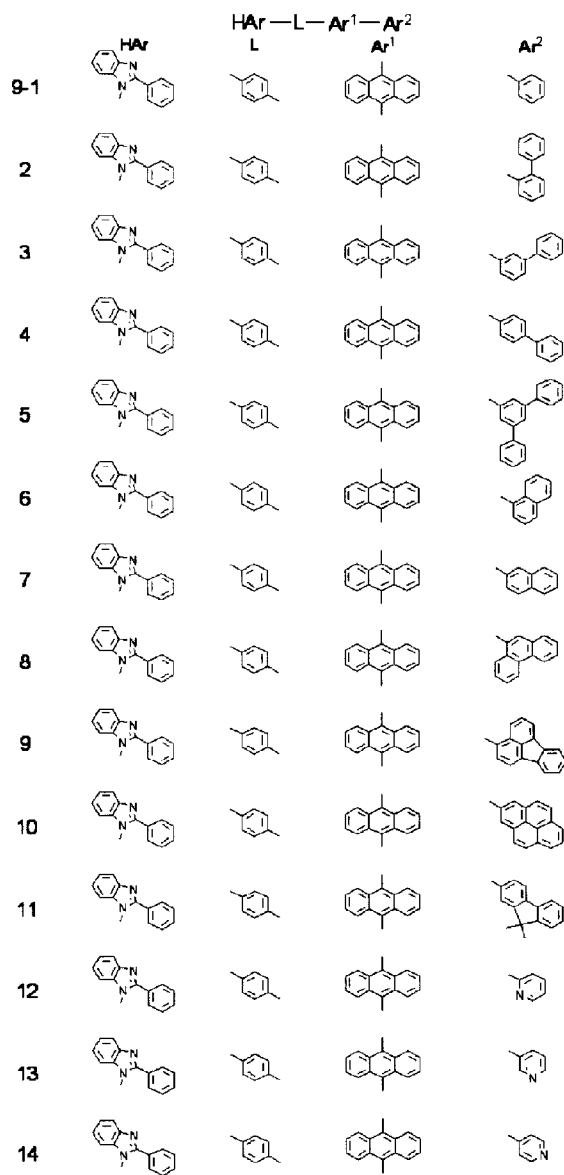
[0180]

[化127]



[0181]

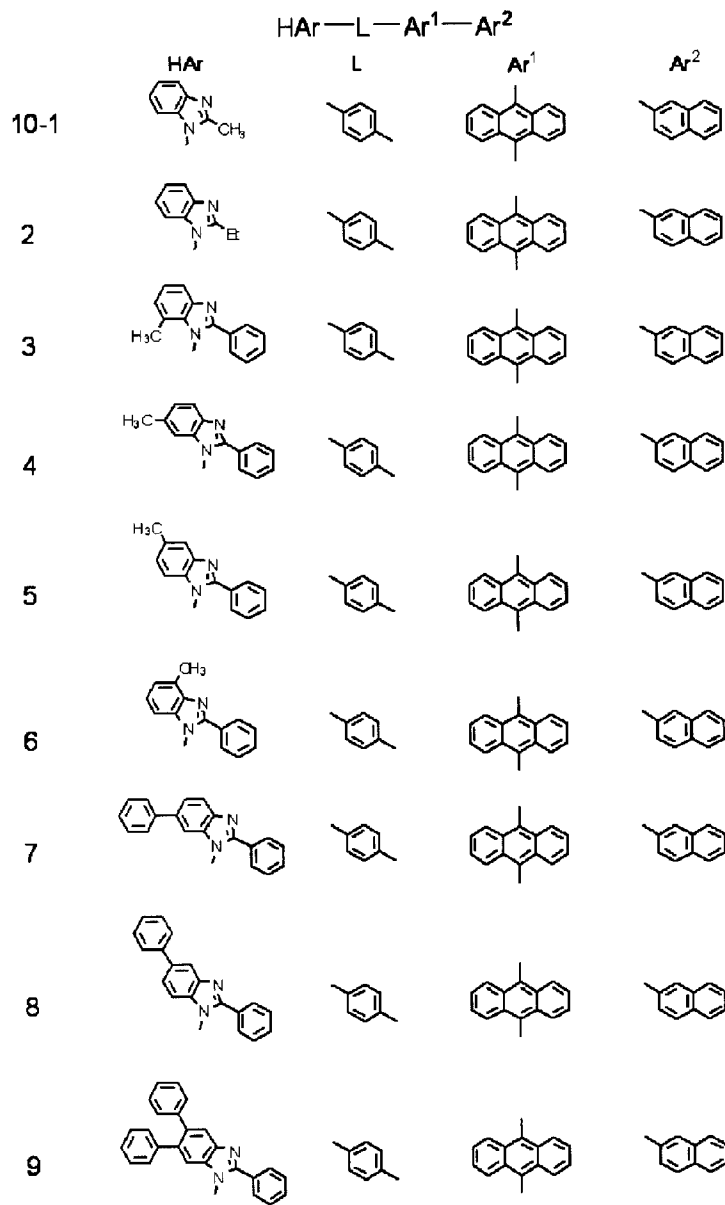
[化128]



[0182]

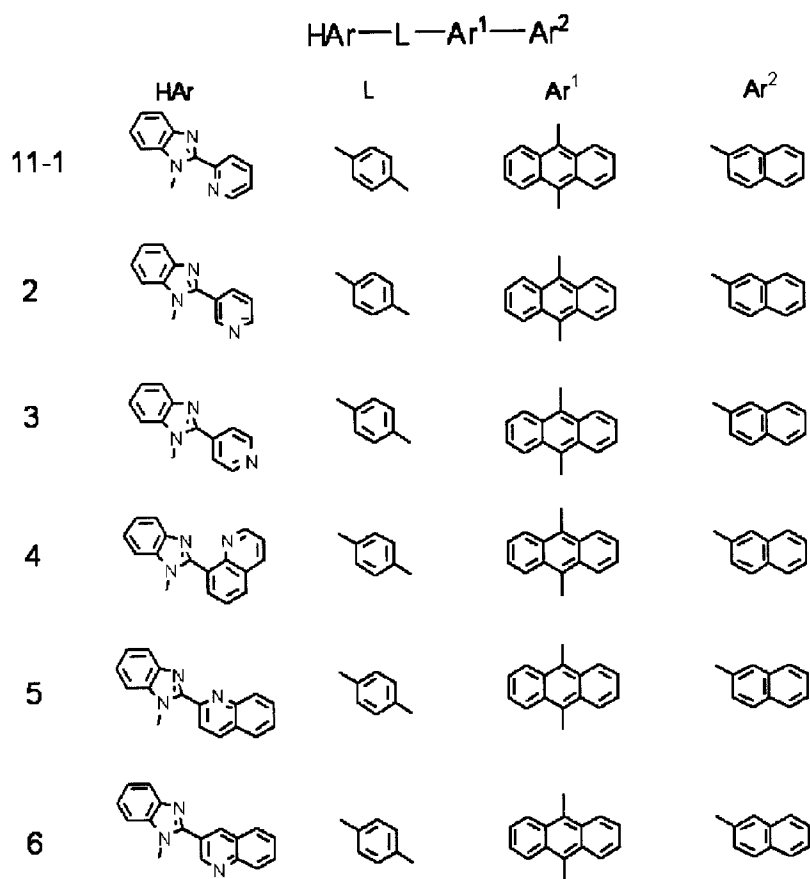


[化129]



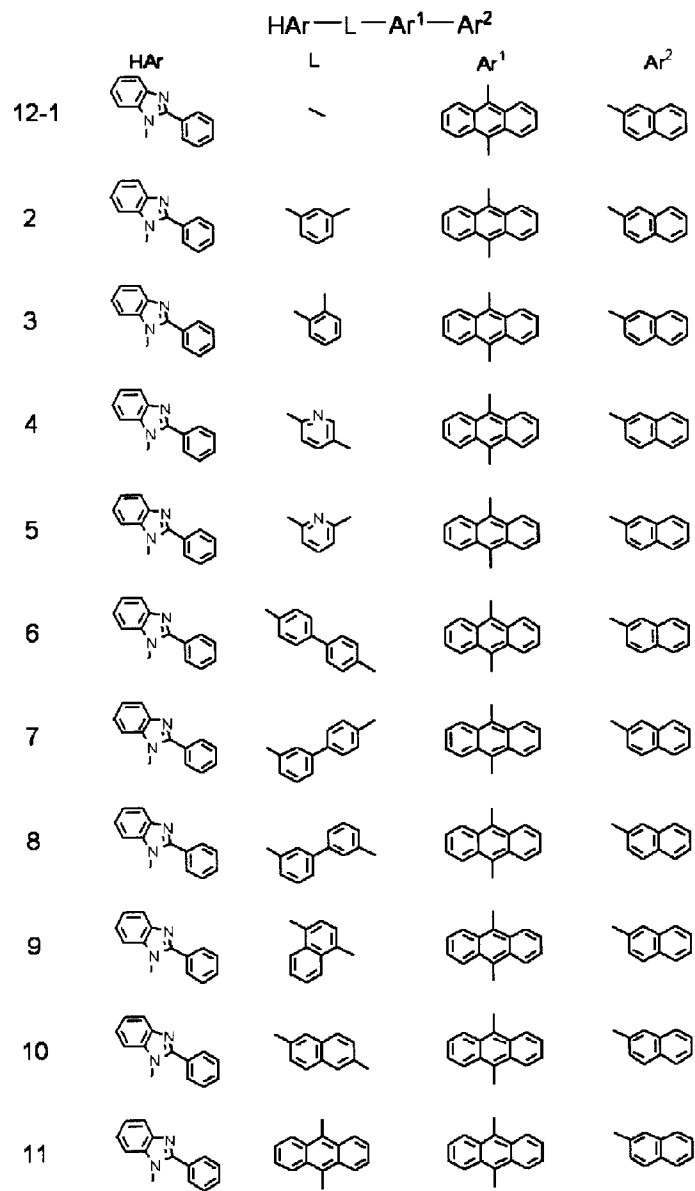
[0183]

[化130]



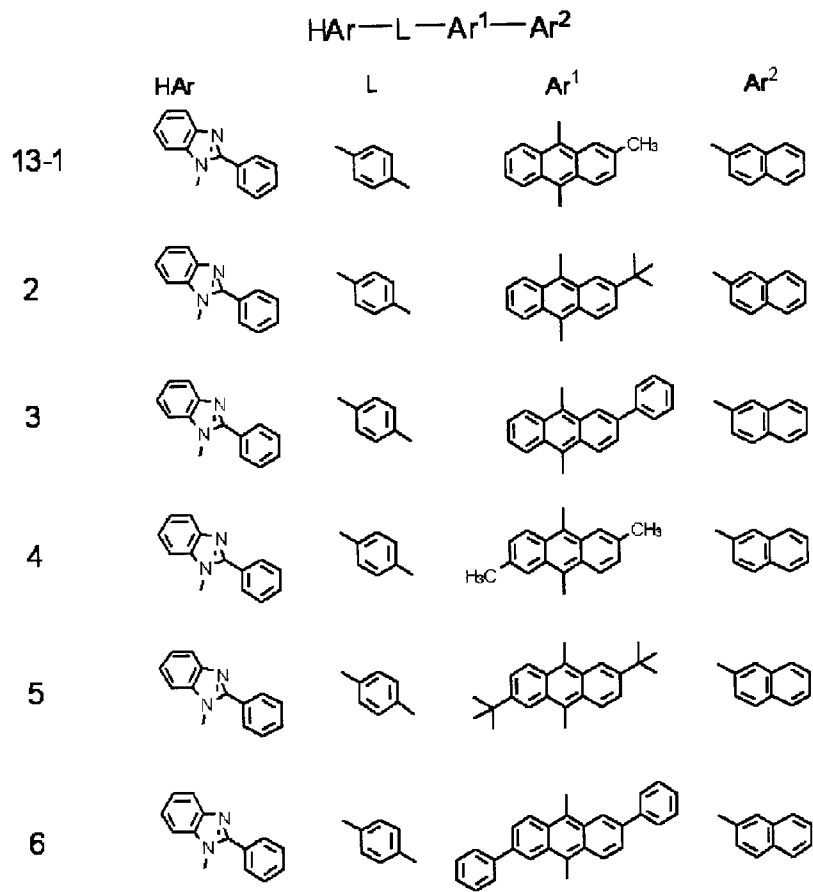
[0184]

[化131]



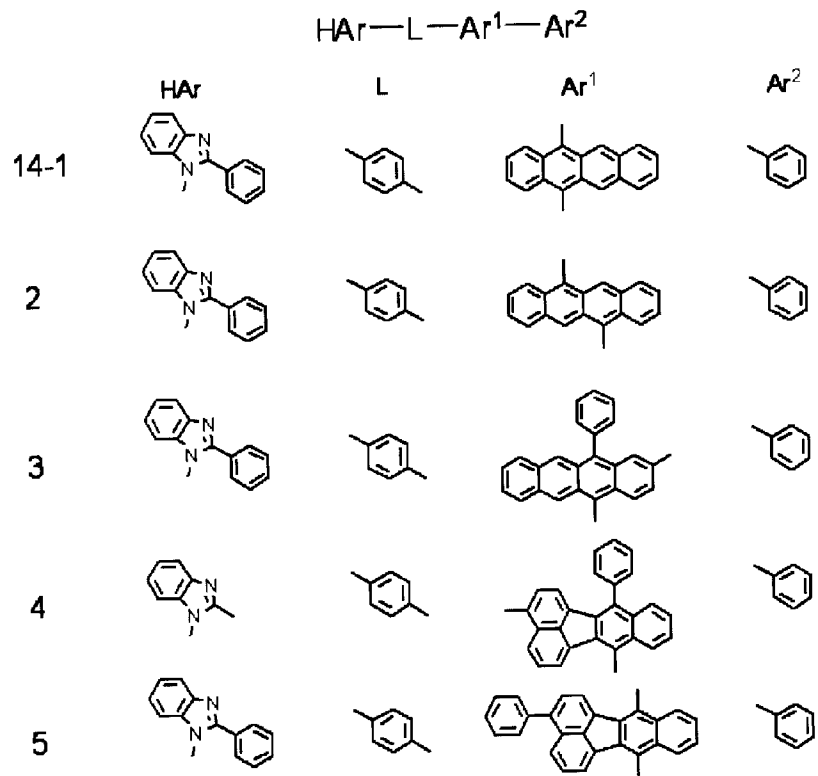
[0185]

[化132]



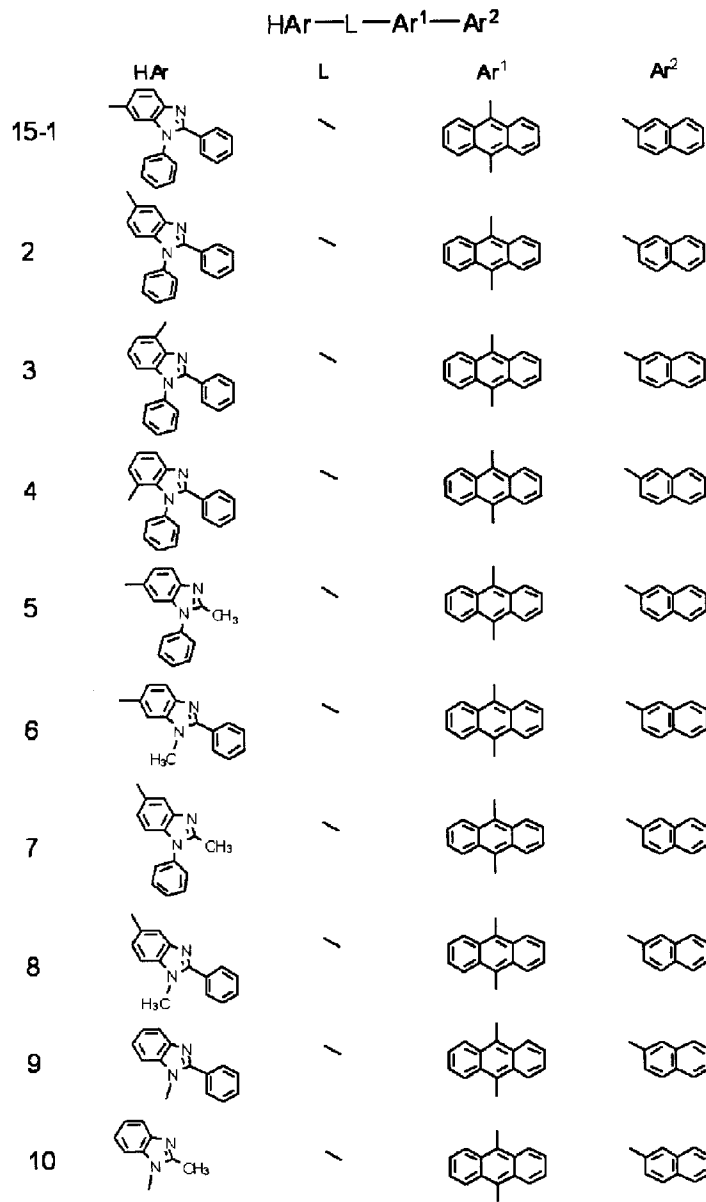
[0186]

[化133]



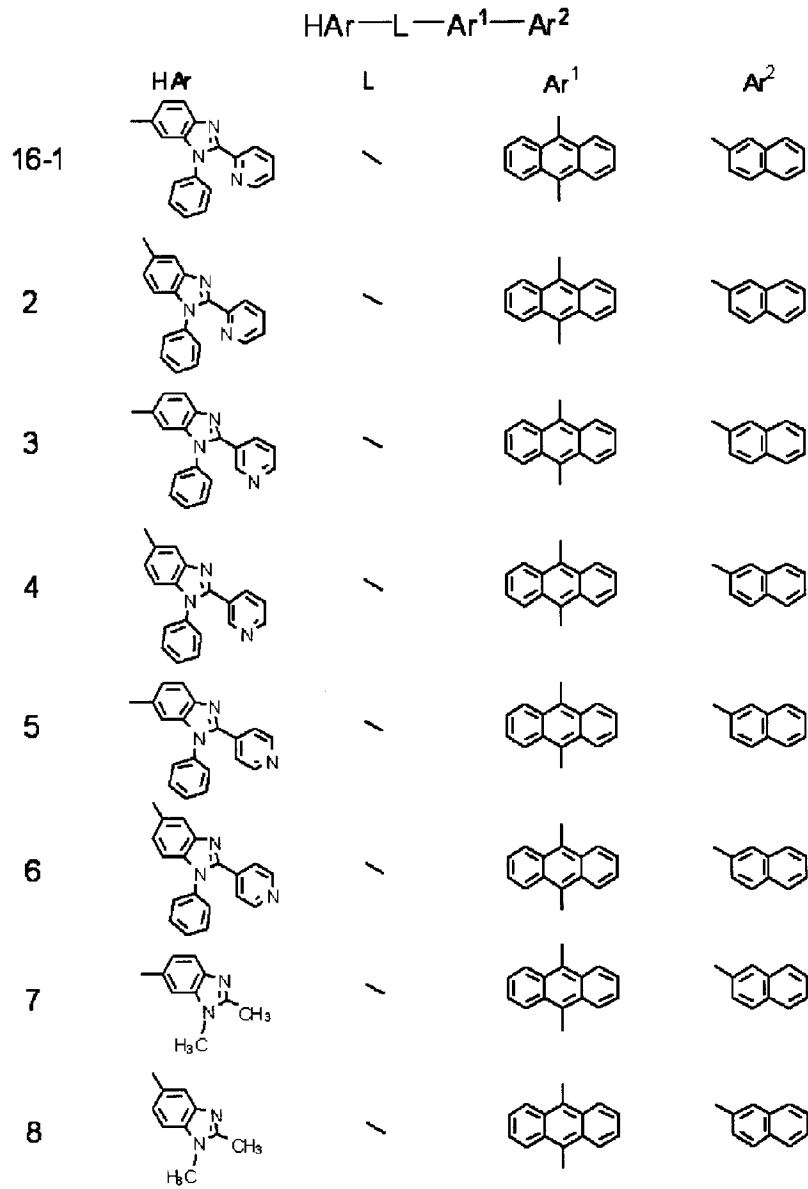
[0187]

[化134]



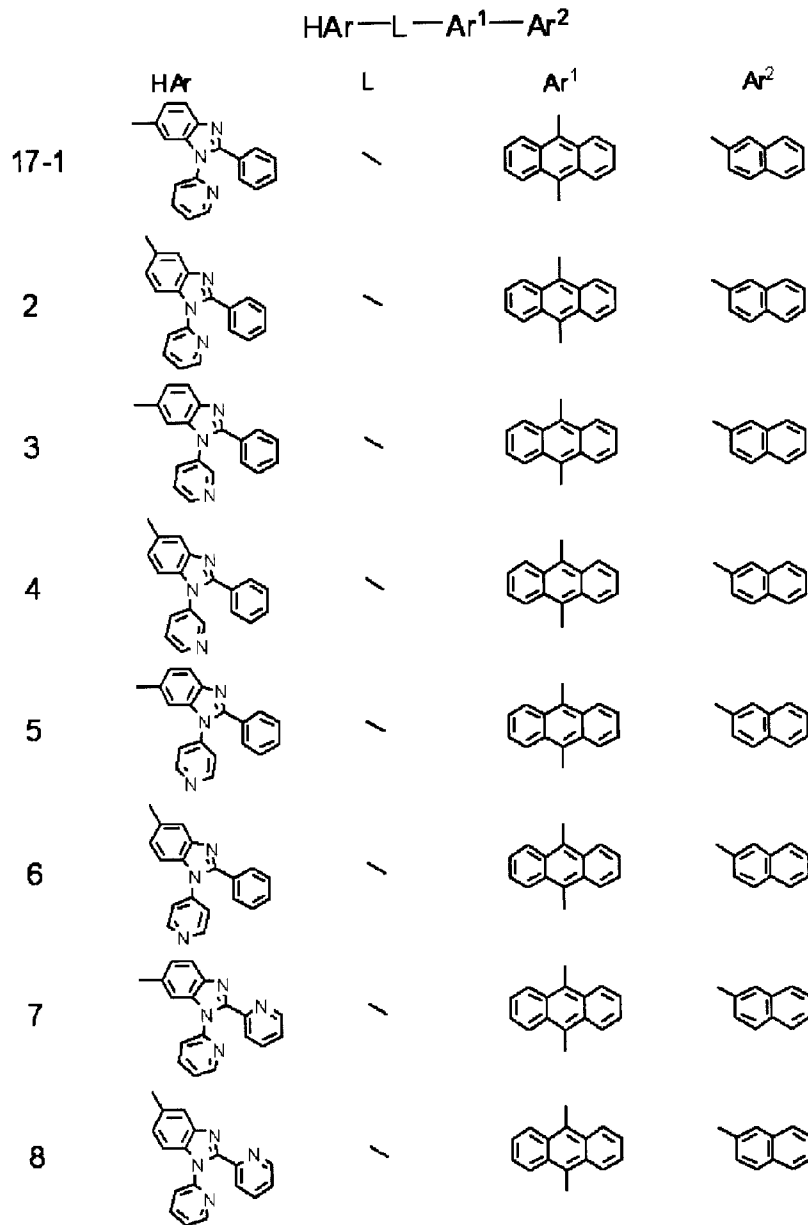
[0188]

[化135]



[0189]

[化136]



[0190] 以上の具体例のうち、特に、(1-1)、(1-5)、(1-7)、(2-1)、(3-1)、(4-2)、(4-6)、(7-2)、(7-7)、(7-8)、(7-9)、(9-1)、(9-7)が好ましい。

[0191] なお、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。

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。

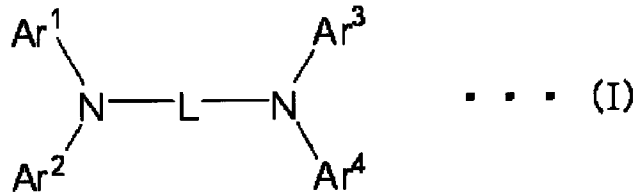
このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{Na}_2\text{Se}$ 及び $\text{Na}_2\text{O}$ 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、 $\text{CaO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BeO}$ 、 $\text{BaS}$ 及び $\text{CaSe}$ 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、 $\text{LiF}$ 、 $\text{NaF}$ 、 $\text{KF}$ 、 $\text{LiCl}$ 、 $\text{KCl}$ 及び $\text{NaCl}$ 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、 $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{SrF}_2$ 、 $\text{MgF}_2$ 及び $\text{BeF}_2$ 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。

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

このような絶縁体又は半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、 $0.1\text{ nm} \sim 15\text{ nm}$ 程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の還元性ドーパントを含有していても好ましい。

[0192] 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、下記一般式（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137]



[0193] 前記一般式（I）において、Ar<sup>1</sup>～Ar<sup>4</sup>は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のヘテロアリール基、又は、それらアリール基とヘテロアリール基を結合させた基を表す。

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

[0194] 置換もしくは無置換の核原子数5～50のヘテロアリール基としては、例

例えば、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンス

スロリン-5-イル基、1、8-フェナンスロリン-6-イル基、1、8-フェナンスロリン-7-イル基、1、8-フェナンスロリン-9-イル基、1、8-フェナンスロリン-10-イル基、1、9-フェナンスロリン-2-イル基、1、9-フェナンスロリン-3-イル基、1、9-フェナンスロリン-4-イル基、1、9-フェナンスロリン-5-イル基、1、9-フェナンスロリン-6-イル基、1、9-フェナンスロリン-7-イル基、1、9-フェナンスロリン-8-イル基、1、9-フェナンスロリン-10-イル基、1、10-フェナンスロリン-2-イル基、1、10-フェナンスロリン-3-イル基、1、10-フェナンスロリン-4-イル基、1、10-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フェナンスロリン-3-イル基、2、9-フェナンスロリン-4-イル基、2、9-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-6-イル基、2、9-フェナンスロリン-7-イル基、2、9-フェナンスロリン-8-イル基、2、9-フェナンスロリン-10-イル基、2、8-フェナンスロリン-1-イル基、2、8-フェナンスロリン-3-イル基、2、8-フェナンスロリン-4-イル基、2、8-フェナンスロリン-5-イル基、2、8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イル基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基、2、7-フェナンスロリン-1-イル基、2、7-フェナンスロリン-3-イル基、2、7-フェナンスロリン-4-イル基、2、7-フェナンスロリン-5-イル基、2、7-フェナンスロリン-6-イル基、2、7-フェナンスロリン-8-イル基、2、7-フェナンスロリン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、

2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。好ましくはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

[0195] Lは連結基である。具体的には置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリーレン基、置換もしくは無置換の核原子数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も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。環形成炭素数6~50のアリーレン基としては、例えば、1,4-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,4-ナフチレン基、2,6-ナフチレン基、1,5-ナフチレン基、9,10-アントラニレン基、9,10-フェナントレニレン基、3,6-フェナントレニレン基、1,6-ピレニレン基、2,7-ピレニレン基、6,12-クリセニレン基、4,4'-ビフェニレン基、3,3'-ビフェニレン基、2,2'-ビフェニレン基、2,7-フルオレニレン基等が挙げられる。核原子数5~50のアリーレン基としては、例えば、2,5-チオフェニレン基、2,5-シローリレン基、2,5-オキサジアゾーリレン基等が挙げられる。好ましくは1,4-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,3-フェニレン基

、1, 4-ナフチレン基、9, 10-アントラニレン基、6, 12-クリセニレン基、4, 4'-ビフェニレン基、3, 3'-ビフェニレン基、2, 2'-ビフェニレン基、2, 7-フルオレニレン基である。

[0196] Lが2個以上のアリーレン基又はヘテロアリーレン基からなる連結基である場合、隣り合うアリーレン基又はヘテロアリーレン基は2価の基を介して互いに結合して新たな環を形成してもよい。環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

[0197] Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>4</sup>及びLの置換基としては、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7~50のアラルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリールオキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数2~50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基又は置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン基、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基等である。

[0198] 置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3

ービフェニルイル基、4ービフェニルイル基、pーターフェニルー4ーイル基、pーターフェニルー3ーイル基、pーターフェニルー2ーイル基、mーターフェニルー4ーイル基、mーターフェニルー3ーイル基、mーターフェニルー2ーイル基、oートリル基、mートリル基、pートリル基、pーtーブチルフェニル基、pー(2ーフェニルプロピル)フェニル基、3ーメチルー2ーナフチル基、4ーメチルー1ーナフチル基、4ーメチルー1ーアントリル基、4'ーメチルビフェニルイル基、4''ーtーブチルーpーターフェニルー4ーイル基、フルオランテニル基、フルオレニル基等が挙げられる。

[0199] 置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリアル基の例としては、1ーピロリル基、2ーピロリル基、3ーピロリル基、ピラジニル基、2ーピリジニル基、3ーピリジニル基、4ーピリジニル基、1ーインドリル基、2ーインドリル基、3ーインドリル基、4ーインドリル基、5ーインドリル基、6ーインドリル基、7ーインドリル基、1ーイソインドリル基、2ーイソインドリル基、3ーイソインドリル基、4ーイソインドリル基、5ーイソインドリル基、6ーイソインドリル基、7ーイソインドリル基、2ーフリル基、3ーフリル基、2ーベンゾフラニル基、3ーベンゾフラニル基、4ーベンゾフラニル基、5ーベンゾフラニル基、6ーベンゾフラニル基、7ーベンゾフラニル基、1ーイソベンゾフラニル基、3ーイソベンゾフラニル基、4ーイソベンゾフラニル基、5ーイソベンゾフラニル基、6ーイソベンゾフラニル基、7ーイソベンゾフラニル基、キノリル基、3ーキノリル基、4ーキノリル基、5ーキノリル基、6ーキノリル基、7ーキノリル基、8ーキノリル基、1ーイソキノリル基、3ーイソキノリル基、4ーイソキノリル基、5ーイソキノリル基、6ーイソキノリル基、7ーイソキノリル基、8ーイソキノリル基、2ーキノキサリニル基、5ーキノキサリニル基、6ーキノキサリニル基、1ーカルバゾリル基、2ーカルバゾリル基、3ーカルバゾリル基、4ーカルバゾリル基、9ーカルバゾリル基、1ーフェナンスリジニル基、2ーフェナンスリジニル基、3ーフェナンスリジニル基、4ーフェナンスリジニル基、6ーフェナンスリジニル基、7ーフェナンスリジニル基、8ーフェ

ナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2,



7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

[0200] 置換又は無置換の炭素数1~50のアルキル基の例としては、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-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1

、 2-ジクロロエチル基、 1, 3-ジクロロイソプロピル基、 2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、 1, 2, 3-トリクロロプロピル基、 ブロモメチル基、 1-ブロモエチル基、 2-ブロモエチル基、 2-ブロモイソブチル基、 1, 2-ジブロモエチル基、 1, 3-ジブロモイソプロピル基、 2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、 1, 2, 3-トリブロモプロピル基、 ヨードメチル基、 1-ヨードエチル基、 2-ヨードエチル基、 2-ヨードイソブチル基、 1, 2-ジヨードエチル基、 1, 3-ジヨードイソプロピル基、 2, 3-ジヨード-t-ブチル基、 1, 2, 3-トリヨードプロピル基、 アミノメチル基、 1-アミノエチル基、 2-アミノエチル基、 2-アミノイソブチル基、 1, 2-ジアミノエチル基、 1, 3-ジアミノイソプロピル基、 2, 3-ジアミノ-t-ブチル基、 1, 2, 3-トリアミノプロピル基、 シアノメチル基、 1-シアノエチル基、 2-シアノエチル基、 2-シアノイソブチル基、 1, 2-ジシアノエチル基、 1, 3-ジシアノイソプロピル基、 2, 3-ジシアノ-t-ブチル基、 1, 2, 3-トリアミノプロピル基、 ニトロメチル基、 1-ニトロエチル基、 2-ニトロエチル基、 2-ニトロイソブチル基、 1, 2-ジニトロエチル基、 1, 3-ジニトロイソプロピル基、 2, 3-ジニトロ-t-ブチル基、 1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

[0201] 置換もしくは無置換の環形成炭素数 3~50 のシクロアルキル基の例としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられる。

[0202] 置換又は無置換の炭素数 1~50 のアルコキシ基は、-OY で表される基である。Y の例としては、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-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒ

ドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

[0203] 置換又は無置換の炭素数7~50のアラルキル基の例としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 $\alpha$ -ナフチルメチル基、1- $\alpha$ -ナフチルエチル基、2- $\alpha$ -ナフチルエチル基、1- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、 $\beta$ -ナフチルメチル基、1- $\beta$ -ナフチルエチル基、2- $\beta$ -ナフチルエチル基、1- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、*p*-メチルベンジル基、*m*-メチルベンジル基、*o*-メチルベンジル基、*p*-クロロベンジル基、

m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

[0204] 置換又は無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基は、-OY'と表され、Y'の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

[0205] 置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリールオキシ基は、-OZ'と表され、Z'の例としては2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソイン

ドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-

イル基、1、9-フェナンスロリン-6-イル基、1、9-フェナンスロリン-7-イル基、1、9-フェナンスロリン-8-イル基、1、9-フェナンスロリン-10-イル基、1、10-フェナンスロリン-2-イル基、1、10-フェナンスロリン-3-イル基、1、10-フェナンスロリン-4-イル基、1、10-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フェナンスロリン-3-イル基、2、9-フェナンスロリン-4-イル基、2、9-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-6-イル基、2、9-フェナンスロリン-7-イル基、2、9-フェナンスロリン-8-イル基、2、9-フェナンスロリン-10-イル基、2、8-フェナンスロリン-1-イル基、2、8-フェナンスロリン-3-イル基、2、8-フェナンスロリン-4-イル基、2、8-フェナンスロリン-5-イル基、2、8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イル基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基、2、7-フェナンスロリン-1-イル基、2、7-フェナンスロリン-3-イル基、2、7-フェナンスロリン-4-イル基、2、7-フェナンスロリン-5-イル基、2、7-フェナンスロリン-6-イル基、2、7-フェナンスロリン-8-イル基、2、7-フェナンスロリン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロ

ールー4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

[0206] 置換又は無置換の環形成炭素数6~50のアリールチオ基は、-S Y''と表され、Y''の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

[0207] 置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリールチオ基は、-S Z''と表され、Z''の例としては2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフ

ラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-



イル基、1、10-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フェナンスロリン-3-イル基、2、9-フェナンスロリン-4-イル基、2、9-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-6-イル基、2、9-フェナンスロリン-7-イル基、2、9-フェナンスロリン-8-イル基、2、9-フェナンスロリン-10-イル基、2、8-フェナンスロリン-1-イル基、2、8-フェナンスロリン-3-イル基、2、8-フェナンスロリン-4-イル基、2、8-フェナンスロリン-5-イル基、2、8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イル基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基、2、7-フェナンスロリン-1-イル基、2、7-フェナンスロリン-3-イル基、2、7-フェナンスロリン-4-イル基、2、7-フェナンスロリン-5-イル基、2、7-フェナンスロリン-6-イル基、2、7-フェナンスロリン-8-イル基、2、7-フェナンスロリン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-イン

ドリル基、4-*t*-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

[0208] 置換又は無置換の炭素数2~50のアルコキシカルボニル基は-COOZと表され、Zの例としてはメチル基、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*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

[0209] 前記置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基又は置換も

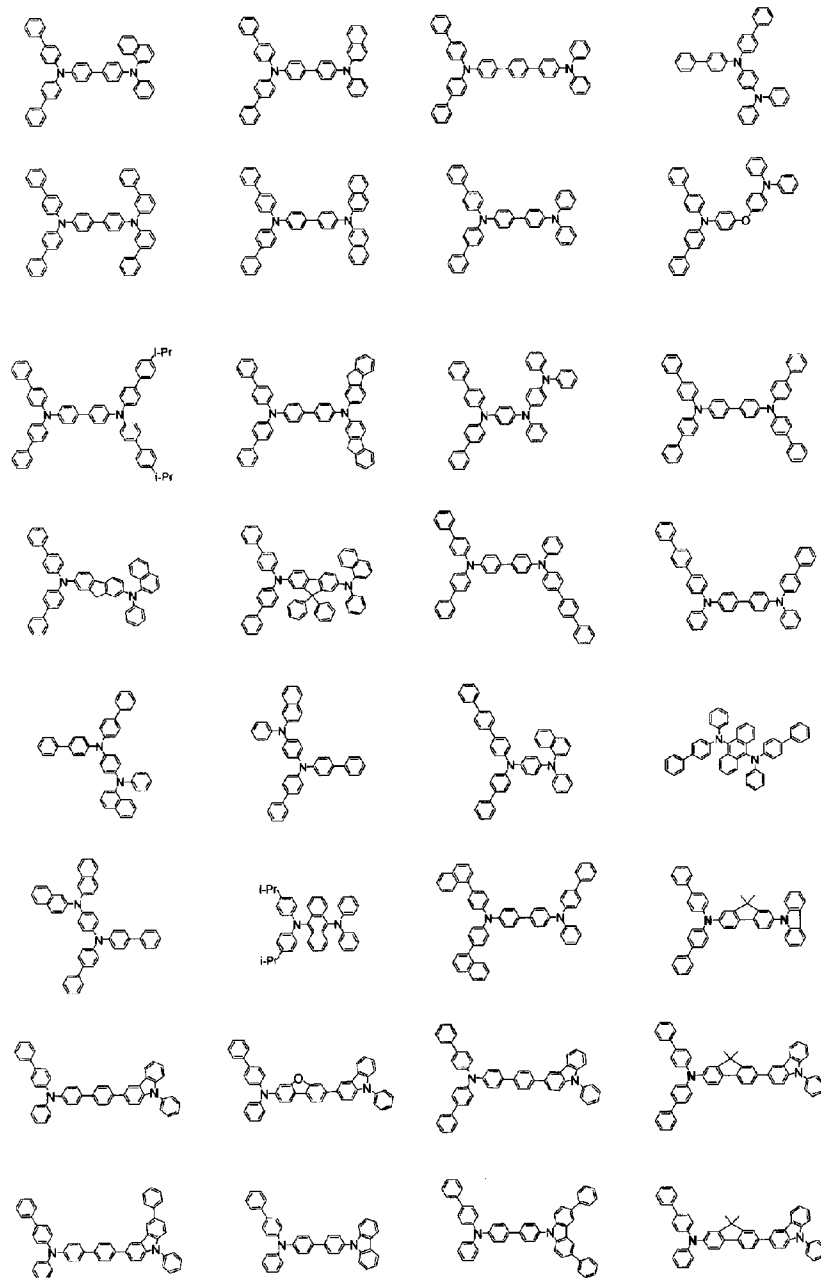
しくは無置換の核原子数5～50のヘテロアリアル基で置換されたアミノ基は-NPQと表わされ、P、Qの例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサ

リニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンス

ロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

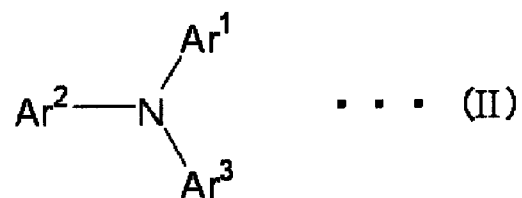
[0210] 前記一般式 (I) の化合物の具体例を以下に記すが、これらに限定されるものではない。

[化138]



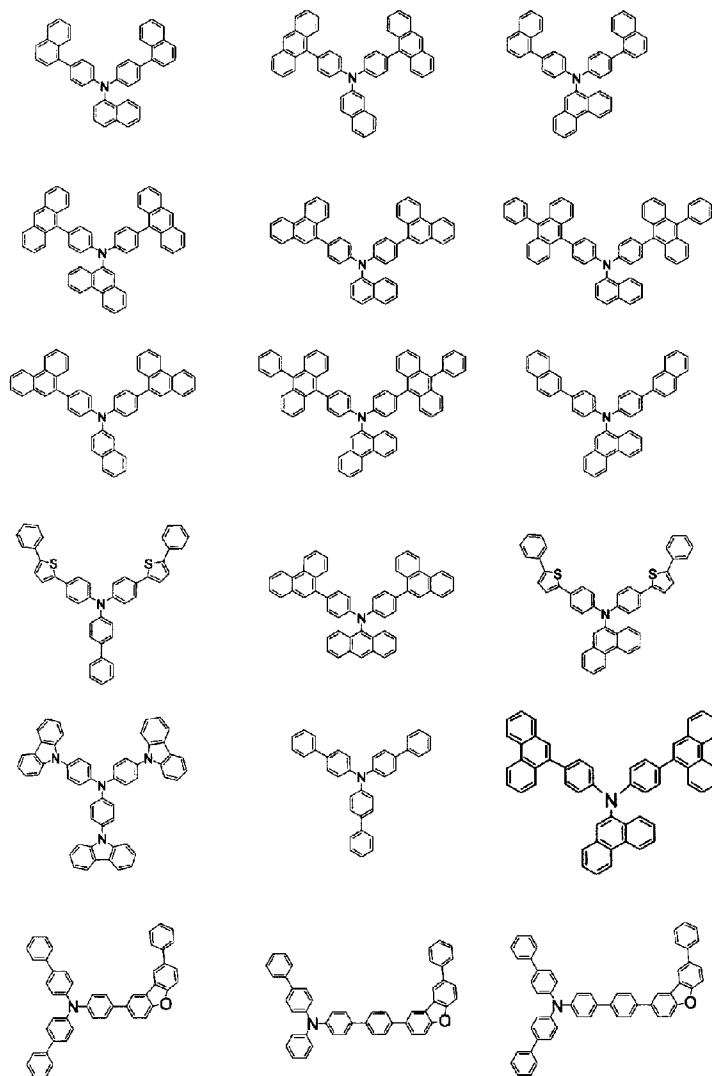
[0211] また、下記一般式 ( I I ) の芳香族アミンも正孔注入層又は正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

[化139]



[0212] 前記一般式 (I I) において、 $A_{r1} \sim A_{r3}$  の定義は前記一般式 (I) の  $A_{r1} \sim A_{r4}$  の定義と同様である。以下に一般式 (I I) の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

[化140]



[0213] なお、本発明は、上記の説明に限られるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲での変更は本発明に含まれる。

例えば次のような変更も本発明の好適な変形例である。

本発明では、前記発光層が電荷注入補助材を含有していることも好ましい

。

エネルギーギャップが広いホスト材料を用いて発光層を形成した場合、ホ

スト材料のイオン化ポテンシャル（ $I_p$ ）と正孔注入・輸送層等の  $I_p$  との差が大きくなり、発光層への正孔の注入が困難となり、十分な輝度を得るための駆動電圧が上昇するおそれがある。

[0214] このような場合、発光層に、正孔注入・輸送性の電荷注入補助剤を含有させることで、発光層への正孔注入を容易にし、駆動電圧を低下させることができる。

電荷注入補助剤としては、例えば、一般的な正孔注入・輸送材料等が利用できる。

具体例としては、トリアゾール誘導体（米国特許 3, 112, 197 号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許 3, 189, 447 号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭 37-16096 号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許 3, 615, 402 号明細書、同第 3, 820, 989 号明細書、同第 3, 542, 544 号明細書、特公昭 45-555 号公報、同 51-10983 号公報、特開昭 51-93224 号公報、同 55-17105 号公報、同 56-4148 号公報、同 55-108667 号公報、同 55-156953 号公報、同 56-36656 号公報等参照）、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体（米国特許第 3, 180, 729 号明細書、同第 4, 278, 746 号明細書、特開昭 55-88064 号公報、同 55-88065 号公報、同 49-105537 号公報、同 55-51086 号公報、同 56-80051 号公報、同 56-88141 号公報、同 57-45545 号公報、同 54-112637 号公報、同 55-74546 号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第 3, 615, 404 号明細書、特公昭 51-10105 号公報、同 46-3712 号公報、同 47-25336 号公報、特開昭 54-53435 号公報、同 54-110536 号公報、同 54-119925 号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第 3, 567, 450 号明細書、同第 3, 180, 703 号明細書、同第 3, 240, 597 号明細書、同第 3, 658, 520 号明細書、同第 4, 232, 103 号明細書、同第 4, 175, 9



61号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3, 526, 501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3, 257, 203号明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4, 950, 950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げるができる。

[0215] 正孔注入性の材料としては上記のものを挙げるができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-295695号公報等に開示のもの)、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295

695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物が好ましい。

[0216] また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニル(以下NPDと略記する)、また特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"-トリス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下MTDATAと略記する)等を挙げることができる。

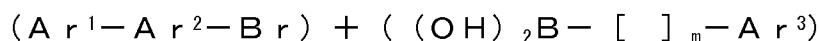
また、特許公報第3614405号、3571977号又は米国特許4,780,536に記載されているヘキサザトリフェニレン誘導体等も正孔注入性の材料として好適に用いることができる。

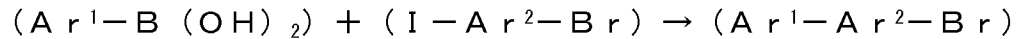
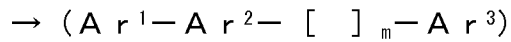
また、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入材料として使用することができる。

[0217] 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、スピコーティ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素子に用いる有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、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。

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くなるため、通常は数nmから1 $\mu$ mの範囲が好ましい。

本発明の化合物群においては、鈴木-宮浦クロスカップリング反応等を用いて合成することができる。例えば、以下の化学反応式に示すように合成される。なお、一般式(1)~(4)を、Ar<sup>1</sup>-Ar<sup>2</sup>-[ ]<sub>m</sub>-Ar<sup>3</sup>と略す。



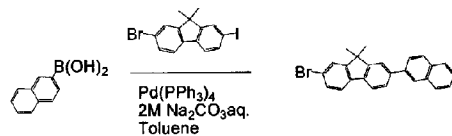


## 実施例

[0218] 次に、合成実施例を用いて本発明の材料の製造方法を説明するが、本発明はこれら内容に何ら限定されるものではない。

(合成参考例 1-1) 2-ブロモ-9, 9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの合成

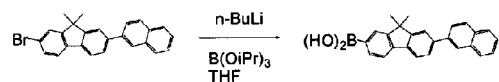
[化141]



[0219] アルゴン雰囲気下、2-ナフタレンボロン酸 13.91 g (80.9 mmol)、2-ブロモ-7-ヨード-9, 9-ジメチルフルオレン 30.0 g (80.9 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 4.67 g (4.0 mmol)、トルエン 200 ml、ジメトキシエタン 200 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 122.36 gを加え、加熱還流下、8時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、2-ブロモ-9, 9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン 21.3 g (収率 76.1%)を得た。

[0220] (合成参考例 1-2) 9, 9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸の合成

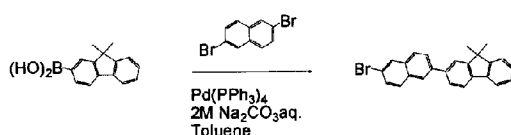
[化142]



[0221] アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン6.00g(15.0mmol)、脱水THF 150mlの混合液を-60℃に冷却し、攪拌しながら、1.55M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液11.6ml(18.0mmol)を滴下した。さらに、反応混合物を-70℃にて、2時間攪拌した。反応溶液を再び、-70℃に冷却し、ホウ酸トリイソプロピル8.48g(45.1mmol)を滴下した。反応混合物を室温に昇温し、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物を氷浴上で冷却し、6N-塩酸水溶液を加え、室温にて1時間攪拌した。反応混合物にジクロロメタンを加え、分液し、有機相を水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸3.50g(収率64%)を得た。

[0222] (合成参考例2-1) 2-(6-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレンの合成

[化143]

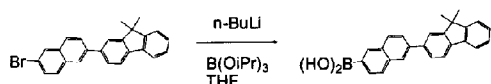


[0223] アルゴン雰囲気下、9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イルボロン酸16.65g(69.9mmol)、2,6-ジブロモナフタレン20.00g(69.9mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)4.04g(3.50mmol)、トルエン200ml、ジメトキシエタン200ml、2M炭酸ナトリウム水溶液106gを加え、85℃にて、8時間攪拌を行い、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られた褐色のオイル状物質をシリカゲルカラムクロ

マトグラフィーにより精製し、2-(6-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン11.84g (収率42.4%)を得た。

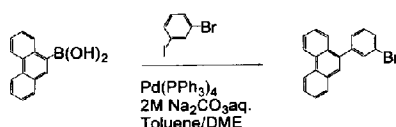
[0224] (合成参考例2-2) 6-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸の合成

[化144]



[0225] アルゴン雰囲気下、2-(6-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン12.00g (30.1mmol)、脱水THF 120mlの混合液を-70°Cに冷却し、攪拌しながら、1.55M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液23.3ml (36.0mmol)を滴下した。さらに、反応混合物を-70°Cにて、2時間攪拌した。反応溶液を再び、-70°Cに冷却し、ホウ酸トリスプロピル17.0g (90.2mmol)を滴下した。反応混合物を室温に昇温し、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物を氷浴上で冷却し、6N-塩酸水溶液を加え、室温にて1時間攪拌した。反応混合物にジクロロメタンを加え、分液し、有機相を水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、6-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸6.25g (収率57%)を得た。

[0226] (合成参考例3-1) 9-(3-ブロモフェニル)フェナントレンの合成  
[化145]

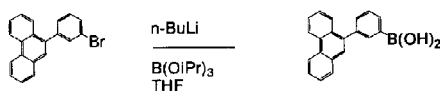


[0227] アルゴン雰囲気下、9-フェナントレンボロン酸31.4g (141mmol)、3-ブロモヨードベンゼン 40.0g (141mmol)、テト

ラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）3.30 g（2.83 mmol）、トルエン200 ml、ジメトキシエタン50 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 212 mlを加え、加熱還流下、4時間攪拌した。反応終了後、反応混合物にトルエンを加え、水洗した。有機相を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。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、9-（3-ブロモフェニル）フェナントレン34.7 g（収率74%）を得た。

[0228]（合成参考例3-2）3-（9-フェナントレニル）フェニルボロン酸の合成

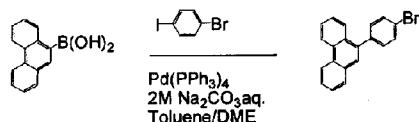
[化146]



[0229] アルゴン雰囲気下、9-（3-ブロモフェニル）フェナントレン15.45 g（46.4 mmol）、脱水THF 150 mlの混合液を-60℃に冷却し、攪拌しながら、1.55M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液35.9 ml（55.6 mmol）を滴下した。さらに、反応混合物を-60℃にて、2時間攪拌した。反応溶液を再び、-60℃に冷却し、ホウ酸トリイソプロピル26.2 g（139 mmol）を滴下した。反応混合物を室温に昇温し、1時間攪拌し、一晩放置した。減圧下溶媒を留去し、反応混合物を濃縮した。0℃に冷却し、塩酸水溶液を加え、室温にて1時間攪拌した。反応後、反応混合物にジクロロメタンを加え、水相を除去した。有機相を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製することで、3-（9-フェナントレニル）フェニルボロン酸13.4 g（収率67%）を得た。

[0230]（合成参考例4-1）9-（4-ブロモフェニル）フェナントレンの合成

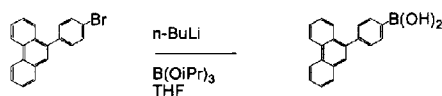
[化147]



[0231] アルゴン雰囲気下、9-フェナントレンボロン酸 39.25 g (177 mmol)、4-ブロモヨードベンゼン 50.0 g (177 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 4.10 g (3.54 mmol)、トルエン 400 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 265 mlを加え、加熱還流下、24時間攪拌した。反応終了後、濾過し、水相を除去した。有機相を水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。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、9-(4-ブロモフェニル)フェナントレン 42.6 g (収率72%)を得た。

[0232] (合成参考例4-2) 4-(9-フェナントレニル)フェニルボロン酸の合成

[化148]

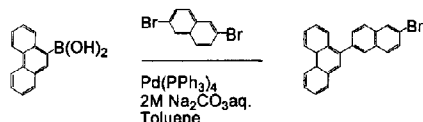


[0233] アルゴン雰囲気下、9-(4-ブロモフェニル)フェナントレン 21.3 g (63.9 mmol)、脱水THF 200 mlの混合液を-60℃に冷却し、攪拌しながら、1.56M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 49.2 ml (76.7 mmol)を滴下した。さらに、反応混合物を-60℃にて、2時間攪拌した。反応溶液を再び、-60℃に冷却し、ホウ酸トリイソプロピル 36.1 g (192 mmol)を滴下した。反応混合物を室温に昇温し、17時間攪拌した。反応混合物を0℃に冷却し、塩酸水溶液を加え、室温にて1時間攪拌した。反応後、反応混合物にトルエンを加え、水相を除去した。有機相を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、溶媒を減圧下留去した。残渣をトルエン、ヘキサンにて再結晶化することで、4-(9-フェナン

トレニル) フェニルボロン酸 13.8 g (収率 72%) を得た。

[0234] (合成参考例 5-1) 6-ブロモ-2-(9-フェナントレニル) ナフタレンの合成

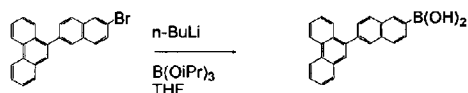
[化149]



[0235] アルゴン雰囲気下、9-フェナントレンボロン酸 15.53 g (69.9 mmol)、2,6-ジブロモナフタレン 20.00 g (69.9 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 1.62 g (1.40 mmol)、ジメトキシエタン 150 ml、トルエン 150 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 106 g を加え、バス温 85°C にて、7 時間攪拌した。反応混合物に水を加え、トルエンで抽出した。濾液を水洗し、有機相を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。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、6-ブロモ-2-(9-フェナントレニル) ナフタレン 11.6 g (収率 43%) を得た。

[0236] (合成参考例 5-2) 2-(9-フェナントレニル) ナフタレン-6-ボロン酸の合成

[化150]



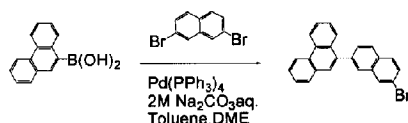
[0237] アルゴン雰囲気下、6-ブロモ-2-(9-フェナントレニル) ナフタレン 9.80 g (25.6 mmol)、脱水トルエン 100 ml、脱水ジエチルエーテル 100 ml の混合液を -10°C に冷却し、攪拌しながら、1.56 M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 19.7 ml (30.7 mmol) を滴下した。さらに、反応混合物を -10°C で 4 時間攪拌した。反応混合物を -60°C に冷却し、ホウ酸トリスプロピル 14.4 g (76.7 m



mol) を滴下した。反応混合物を昇温し、室温にて16時間攪拌した。反応混合物に、塩酸水溶液を加え、室温にて一晩攪拌した。反応後、反応混合物を分液し、有機相を水洗し、スラリー状になるまで溶媒を減圧下留去した。残渣にヘキサンを加え、固体を濾取し、THF、ヘキサンで再結晶化することで、2-(9-フェナントレニル)ナフタレン-6-ボロン酸5.20g (収率58%)を得た。

[0238] (合成参考例6-1) 7-ブロモ-2-(9-フェナントレニル)ナフタレンの合成

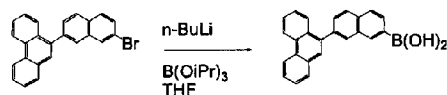
[化151]



[0239] アルゴン雰囲気下、9-フェナントレンボロン酸18.64g (83.9mmol)、2,7-ジブロモナフタレン30.00g (104.9mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)4.85g (4.2mmol)、ジメトキシエタン200ml、トルエン200ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液106gを加え、バス温85℃にて、7時間攪拌した。反応混合物に水を加え、トルエンで抽出した。濾液を水洗し、有機相を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。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、7-ブロモ-2-(9-フェナントレニル)ナフタレン12.46g (収率31.0%)を得た。

[0240] (合成参考例6-2) 2-(9-フェナントレニル)ナフタレン-7-ボロン酸の合成

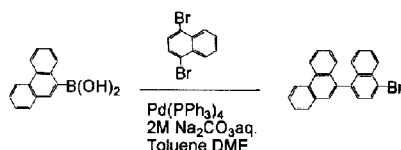
[化152]



[0241] アルゴン雰囲気下、7-ブロモ-2-(9-フェナントレニル)ナフタレン12.27g(32.01mmol)、脱水THF 130mlの混合液を-70°Cに冷却し、攪拌しながら、1.56M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液24.8ml(38.4mmol)を滴下した。さらに、反応混合物を-70°Cで4時間攪拌した。反応混合物に、-60°C以下を保ちながら、ホウ酸トリイソプロピル18.06g(96.04mmol)を滴下し、1時間攪拌した。反応混合物を昇温し、室温にて3時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物を氷浴上で冷却し、20°C以下に保つように、6N-塩酸水溶液100mlを加え、室温にて30分攪拌した。ジクロロメタンを加え、分液後、有機相を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を留去し、2-(9-フェナントレニル)ナフタレン-7-ボロン酸9.50g(収率85%)を得た。

[0242] (合成参考例7-1) 4-ブロモ-2-(9-フェナントレニル)ナフタレンの合成

[化153]

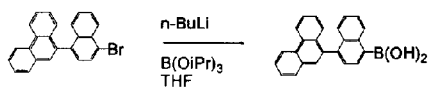


[0243] アルゴン雰囲気下、9-フェナントレンボロン酸19.41g(87.4mmol)、1,4-ジブロモナフタレン25.00g(87.4mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)2.02g(1.70mmol)、ジメトキシエタン50ml、トルエン200ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液132gを加え、バス温85°Cにて、6時間攪拌した。反応混合物に水を加え、トルエンで抽出し、水洗後、有機相を硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、4-ブロモ-2-(9-フェナントレニル)ナフタレン16.02g(収率55.0%)を得た。

[0244] (合成参考例7-2) 2-(9-フェナントレニル)ナフタレン-4-ボロ

## ン酸の合成

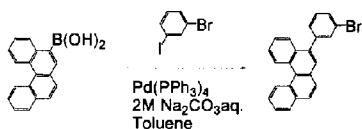
[化154]



- [0245] アルゴン雰囲気下、4-ブロモ-2-(9-フェナントレニル)ナフタレン 16.00 g (41.74 mmol)、脱水THF 160 mlの混合液を-70°Cに冷却し、攪拌しながら、1.56 M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 32.2 ml (38.4 mmol)を滴下した。さらに、反応混合物を-70°Cで3時間攪拌した。反応混合物に、-60°C以下を保ちながら、ホウ酸トリイソプロピル 18.06 g (96.04 mmol)を滴下し、1時間攪拌した。反応混合物を昇温し、室温にて3時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物を氷浴上で冷却し、20°C以下に保つように、濃塩酸水溶液 50 mlを加え、室温にて一時間攪拌した。反応混合物に、ジクロロメタンを加え、分液後、有機相を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を留去し、トルエンを加え、再結晶化し、2-(9-フェナントレニル)ナフタレン-4-ボロン酸 5.40 g (収率 37%)を得た。

- [0246] (合成参考例 8-1) 5-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[c]フェナントレニルの合成

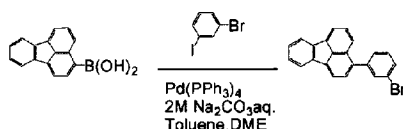
[化155]



- [0247] アルゴン雰囲気下、5-ベンゾ[c]フェナントレンボロン酸 6.32 g (22.3 mmol)、3-ブロモヨードベンゼン 5.07 g (18.6 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 1.29 g (1.12 mmol)、トルエン 80 ml、ジメトキシエタン 80 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 33.8 gを加え、加熱還流下、8時間攪拌した。反応終了後、反応混合物に水を加え、トルエンで抽出し、水洗した

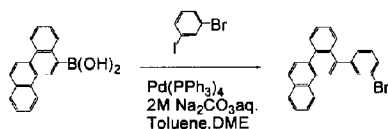
。有機相を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、5-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[c]フェナントレン4.53 g (収率56.8%)を得た。

[0248] (合成参考例9-1) 3-(3-ブロモフェニル)フルオランテンの合成  
[化156]



[0249] アルゴン雰囲気下、3-フルオランテンボロン酸18.18 g (81.3 mmol)、3-ブロモヨードベンゼン 22.99 g (81.3 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 4.70 g (4.10 mmol)、トルエン80 ml、ジメトキシエタン80 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 123 gを加え、加熱還流下、8時間攪拌した。反応終了後、反応混合物に水を加え、室温にて1時間攪拌し、メタノールを加えた。固体を濾取し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、3-(3-ブロモフェニル)フルオランテン20.43 g (収率70.4%)を得た。

[0250] (合成参考例10-1) 6-(3-ブロモフェニル)クリセンの合成  
[化157]

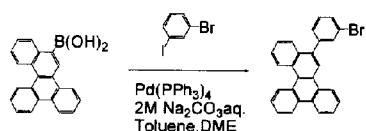


[0251] アルゴン雰囲気下、6-クリセンボロン酸5.00 g (18.37 mmol)、3-ブロモヨードベンゼン 5.20 g (18.37 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 1.06 g (0.92 mmol)、トルエン30 ml、ジメトキシエタン30 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 27.6 gを加え、加熱還流下、8時間攪拌し、一晩放置

した。反応混合物に水を加え、室温にて1時間攪拌し、メタノールを加えた。固体を濾取し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、6-(3-ブロモフェニル)クリセン2.00g(収率28.4%)を得た。

[0252] (合成参考例11-1) 10-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[g]クリセンの合成

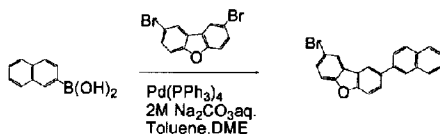
[化158]



[0253] アルゴン雰囲気下、10-ベンゾ[g]クリセンボロン酸5.00g(15.52mmol)、3-ブロモヨードベンゼン4.39g(15.52mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)0.90g(0.78mmol)、トルエン30ml、ジメトキシエタン30ml、2M炭酸ナトリウム水溶液23.28gを加え、加熱還流下、8時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温にて1時間攪拌し、メタノールを加えた。固体を濾取し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、10-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[g]クリセン2.30g(収率34.2%)を得た。

[0254] (合成参考例12-1) 2-ブロモ-8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフランの合成

[化159]

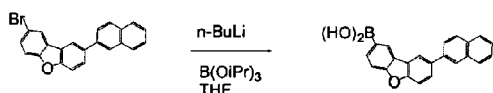


[0255] アルゴン雰囲気下、2-ナフタレンボロン酸13.19g(76.7mmol)、2,8-ジブロモジベンゾフラン25.00g(76.7mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)4.43g(3.80mmol)、ジメトキシエタン300ml、2M-炭酸ナトリウム

水溶液 116 g を加え、バス温 85°C にて、7 時間攪拌した。反応混合物に水を加え、トルエンで抽出した。濾液を水洗し、有機相を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、溶媒を減圧下留去した。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、2-ブロモ-8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン 13.50 g (収率 44%) を得た。

[0256] (合成参考例 12-2) 8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン-2-イルボロン酸の合成

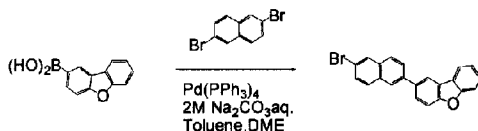
[化160]



[0257] アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン 7.47 g (20.0 mmol)、脱水 THF 75 ml の混合液を -60°C に冷却し、攪拌しながら、1.55 M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 15.5 ml (24.0 mmol) を滴下した。さらに、反応混合物を -70°C にて、2 時間攪拌した。反応溶液を再び、-70°C に冷却し、ホウ酸トリイソプロピル 11.29 g (60.0 mmol) を滴下した。反応混合物を室温に昇温し、1 時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物を氷浴上で冷却し、6 N-塩酸水溶液を加え、室温にて 1 時間攪拌した。反応混合物にジクロロメタンを加え、分液し、有機相を水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン-2-イルボロン酸 3.65 g (収率 54%) を得た。

[0258] (合成参考例 13-1) 2-ブロモ-8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフランの合成

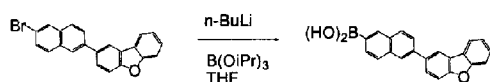
[化161]



[0259] アルゴン雰囲気下、2-ジベンゾフランボロン酸 18.53 g (87.4 mmol)、2,6-ジブロモナフタレン 25.00 g (87.4 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 5.05 g (4.40 mmol)、ジメトキシエタン 300 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 132 g を加え、バス温 85°C にて、7 時間攪拌した。反応混合物に水を加え、トルエンで抽出した。濾液を水洗し、有機相を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、溶媒を減圧下留去した。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、2-(6-ブロモナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン 13.20 g (収率 38%) を得た。

[0260] (合成参考例 13-2) 6-(ジベンゾフラン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸の合成

[化162]

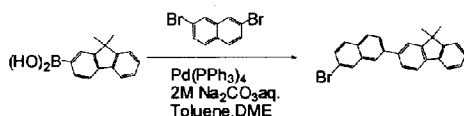


[0261] アルゴン雰囲気下、2-(6-ブロモナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン 7.47 g (20.0 mmol)、脱水 THF 75 ml の混合液を -60°C に冷却し、攪拌しながら、1.55M n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 15.5 ml (24.0 mmol) を滴下した。さらに、反応混合物を -70°C にて、2 時間攪拌した。反応溶液を再び、-70°C に冷却し、ホウ酸トリイソプロピル 11.29 g (60.0 mmol) を滴下した。反応混合物を室温に昇温し、1 時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物を氷浴上で冷却し、6N-塩酸水溶液を加え、室温にて 1 時間攪拌した。反応混合物にジクロロメタンを加え、分液し、有機相を水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、6-(ジベンゾフラン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸 4.20 g (収率 62%) を得た。

[0262] (合成参考例 14-1) 2-(7-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9

ージメチルー9H-フルオレンの合成

[化163]

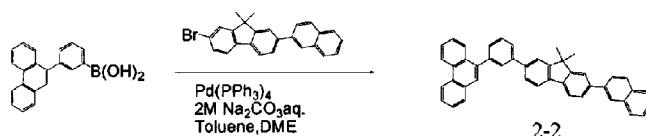


- [0263] アルゴン雰囲気下、9,9-ジメチルー9H-フルオレン-2-イルボロン酸 16.65 g (69.9 mmol)、2,7-ジブロモナフタレン 20.00 g (69.9 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 4.04 g (3.50 mmol)、トルエン 200 ml、ジメトキシエタン 200 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 106 g を加え、85℃にて、9時間攪拌を行い、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られた褐色のオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、2-(7-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9-ジメチルー9H-フルオレン 13.4 g (収率 48%) を得た。

[0264] <発明 A>

(合成実施例 A-1) 化合物 2-2 の合成

[化164]



- [0265] アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-9,9-ジメチルー7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン 3.30 g (8.26 mmol)、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸 2.46 g (8.26 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.38 g (0.33 mmol)、トルエン 90 ml、ジメトキシエタン 30 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 12.5 g を加え、85℃にて、8時間攪拌し

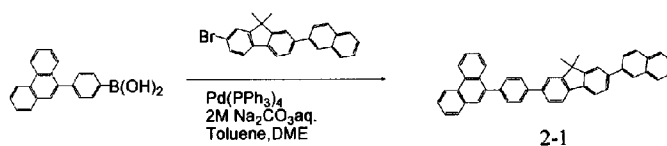


た。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られたオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物2-2を3.40g（収率72%）得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量572.25に対し、 $m/e = 572$ であった。

[0266]（合成実施例A-2）化合物2-1の合成

[化165]

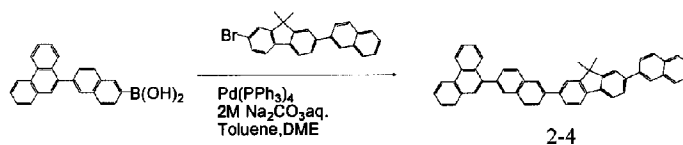


[0267] 化合物2-2の合成において、3-（フェナントレン-9-イル）フェニルボロン酸の代わりに、4-（フェナントレン-9-イル）フェニルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量572.25に対し、 $m/e = 572$ であった。

[0268]（合成実施例A-3）化合物2-4の合成

[化166]

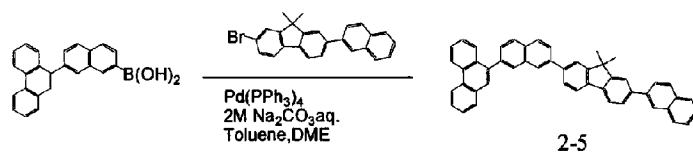


[0269] 化合物2-2の合成において、3-（フェナントレン-9-イル）フェニルボロン酸の代わりに、6-（フェナントレン-9-イル）ナフタレン-2-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量622.27に対し、 $m/e = 622$ であった。

## [0270] (合成実施例 A-4) 化合物 2-5 の合成

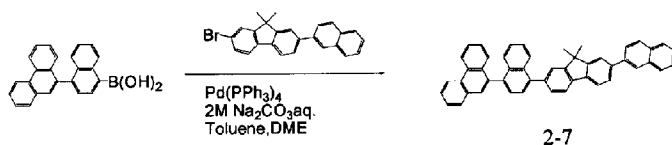
[化167]



[0271] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、7-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。  
 マススペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

## [0272] (合成実施例 A-5) 化合物 2-7 の合成

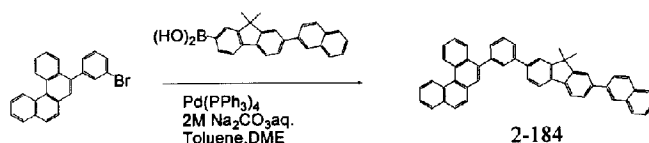
[化168]



[0273] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、4-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-1-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。  
 マススペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

## [0274] (合成実施例 A-6) 化合物 2-184 の合成

[化169]



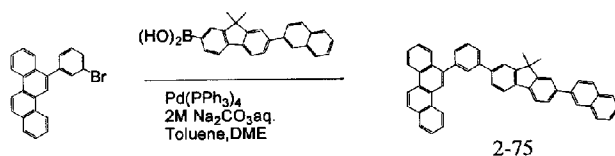
[0275] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメ

チルー 7 - (ナフタレン - 2 - イル) - 9 H - フルオレンの代わりに、5 - (3 - ブロモフェニル) ベンゾ [c] フェナントレンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0276] (合成実施例 A - 7) 化合物 2 - 75 の合成

[化170]

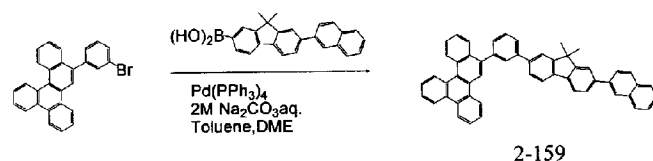


[0277] 化合物 2 - 2 の合成において、3 - (フェナントレン - 9 - イル) フェニルボロン酸の代わりに、9, 9 - ジメチルー 7 - (ナフタレン - 2 - イル) - 9 H - フルオレン - 2 - イルボロン酸を用い、2 - ブロモ - 9, 9 - ジメチルー 7 - (ナフタレン - 2 - イル) - 9 H - フルオレンの代わりに、6 - (3 - ブロモフェニル) クリセンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0278] (合成実施例 A - 8) 化合物 2 - 159 の合成

[化171]

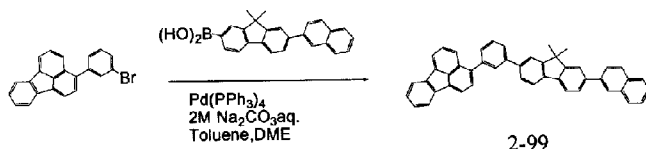


[0279] 化合物 2 - 2 の合成において、3 - (フェナントレン - 9 - イル) フェニルボロン酸の代わりに、9, 9 - ジメチルー 7 - (ナフタレン - 2 - イル) - 9 H - フルオレン - 2 - イルボロン酸を用い、2 - ブロモ - 9, 9 - ジメチルー 7 - (ナフタレン - 2 - イル) - 9 H - フルオレンの代わりに、10 - (3 - ブロモフェニル) ベンゾ [g] クリセンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 672.28 に対し、 $m/e = 672$  であった。

[0280] (合成実施例 A-9) 化合物 2-99 の合成

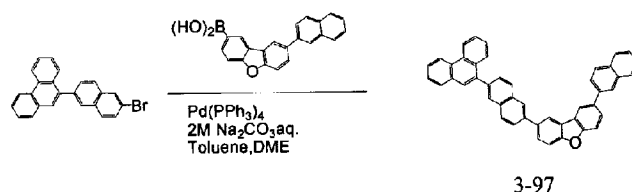
[化172]



[0281] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブromo-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、3-(3-ブromoフェニル)フルオランテンを用いて同様の方法で合成した。マスペクトラム分析の結果、分子量 596.25 に対し、 $m/e = 596$  であった。

[0282] (合成実施例 A-10) 化合物 3-97 の合成

[化173]



[0283] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、8-(ナフタレン-2-イル)ジベンゾフラン-2-イルボロン酸を用い、2-ブromo-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、6-ブromo-2-(9-フェナントレニル)ナフタレンを用いて同様の方法で合成した。マスペクトラム分析の結果、分子量 596.21 に対し、 $m/e = 596$  であった。

[0284] なお、上記合成例において、マスペクトラム分析はFD-MS (フィー

ルドディソープシオンマス分析)により行った。FD-MS (フィールドディソープシオンマス分析)の測定に用いた装置及び測定条件を以下に示す。

装置 : JSM-700 (日本電子社製)

条件 : 加速電圧 8 kV

スキャンレンジ  $m/z = 50 \sim 3000$

エミッタ種 : カーボン

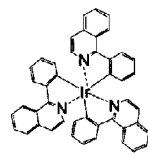
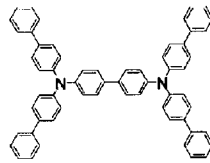
エミッタ電流 : 0 mA  $\rightarrow$  2 mA/分  $\rightarrow$  40 mA (10分保持)

[0285] 次に、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容に何ら制限されるものではない。

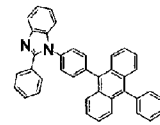
前記合成実施例にて得られた化合物の他に、実施例及び比較例で使用した化合物の構造を以下に示す。

[0286]

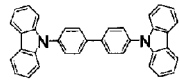
[化174]

Ir(piq)<sub>3</sub>

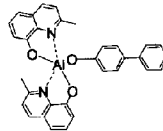
HT1



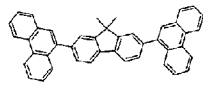
ET1



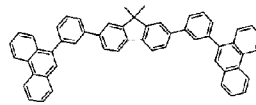
CBP



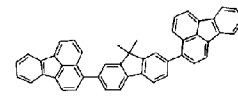
BAlq



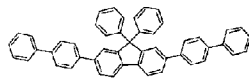
A-A



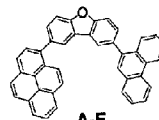
A-B



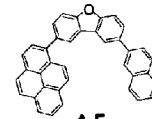
A-C



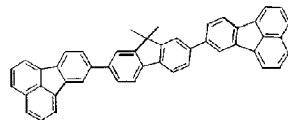
A-D



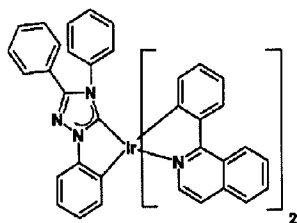
A-E



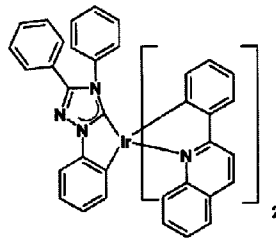
A-F



A-G



Complex A



Complex B

[0287] [実施例 A-1]

(有機 EL 素子の作製)

25 mm × 75 mm × 0.7 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (旭硝子製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されて

いる側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚50nmのHT1を成膜した。該HT1膜は正孔注入輸送層として機能する。さらに、該正孔注入輸送層の成膜に続けて、この膜上に膜厚40nmの新規ホスト化合物2-2、および燐光発光性のドーパントとしてIr(piq)<sub>3</sub>を10質量%になるよう抵抗加熱により共蒸着膜成膜した。該膜は、発光層（燐光発光層）として機能する。該発光層成膜に続けて、膜厚40nmでET1を成膜した。該膜は電子輸送層として機能する。この後、LiFを電子注入性電極（陰極）として成膜速度1Å/minで膜厚0.5nm形成した。このLiF層上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚150nm形成し有機EL素子を形成した。

[0288] [実施例A-2~A-10、比較例A-1~A-9]

実施例A-1の新規ホスト化合物2-2に変えて、下記の表1に示すホスト化合物を用いた以外は、実施例A-1と同様にして有機EL素子を形成した。

[実施例A-11]

ドーパントである錯体をComplex Aに替えた以外は、実施例A-6と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[実施例A-12]

Complex AをComplex Bに替えた以外は、実施例A-11と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[比較例A-10]

ホスト化合物を2-184からCBPに替えた以外は、実施例A-11と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[比較例A-11]

ホスト化合物を2-184からBAIqに替えた以外は、実施例A-12と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[0289] [有機EL素子の発光性能評価]

上記の実施例A-1~A-12、比較例A-1~A-11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  $10 \text{ mA/cm}^2$  における電圧、発光効率および輝度半減寿命（初期輝度  $5000 \text{ cd/m}^2$ ）を測定した。これらの評価の結果を表1に示す。

[0290] [表1]

表1

実施例	ドーパント	ホスト化合物	電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	室温輝度半減寿命 (時間)
実施例 A-1	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-2	4.7	8.2	4,800
実施例 A-2	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-1	4.7	8.2	4,500
実施例 A-3	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-4	4.6	8.1	4,000
実施例 A-4	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-5	4.5	7.8	3,800
実施例 A-5	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-7	4.4	8.0	3,400
実施例 A-6	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-184	4.6	8.0	4,000
実施例 A-7	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-75	4.4	7.8	3,800
実施例 A-8	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-159	4.3	8.0	3,700
実施例 A-9	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	2-99	4.8	7.6	4,200
実施例 A-10	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	3-97	4.1	7.5	3,500
比較例 A-1	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	CBP	5.4	6.3	500
比較例 A-2	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	BAIq	5.3	7.0	1,000
比較例 A-3	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-A	4.8	7.0	450
比較例 A-4	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-B	5.2	7.1	1,200
比較例 A-5	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-C	4.8	7.2	200
比較例 A-6	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-D	5.2	7.1	380
比較例 A-7	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-E	5.4	3.8	40
比較例 A-8	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-F	5.5	3.8	20
比較例 A-9	$\text{Ir}(\text{piq})_3$	化合物 A-G	5.1	6.5	310
実施例 A-11	Complex A	2-184	4.5	8.2	3100
実施例 A-12	Complex B	2-184	4.7	7.8	2800
比較例 A-10	Complex A	CBP	5.8	4.2	800
比較例 A-11	Complex B	BAIq	5.1	5.0	1300

[0291] 表1から明らかなように、発光効率について、本発明のホスト材料を用いて構成した実施例 A-1～実施例 A-10 の有機 EL 素子は、発光効率が高く、寿命が格段に長いことが示された。一方、比較例 A-1～2 では電圧が高く寿命が短い。比較例 A-3、A-5 では電圧は同等であるが、寿命は著しく短い。比較例 A-4、A-6、A-9 では電圧が高く寿命が短い。比較



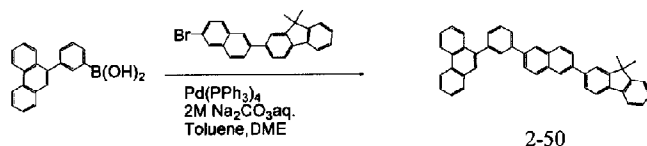
例 A-7~8 では、電圧が高く、効率と寿命が著しく短い。実施例 A-11, 12 は比較例 A-10, 11 に比べて電圧が低く、効率が高く、寿命が長い。

本発明の組合せの特徴は、ホスト材料の三重項エネルギーギャップとドープアントの三重項エネルギーギャップが適切であるため発光効率が向上することと、フルオレン環残基にナフタレン環残基を結合させ、共役系が伸びる位置で結合させ、より低電圧化したことと、ホスト材料に含窒素環、窒素原子等が置換されていないため、発光材料が正孔、電子に対し高い耐性を持っており、これにより、従来知られていた組合せよりも長寿命化することである。

[0292] <発明 B>

(合成実施例 B-1) 化合物 2-50 の合成

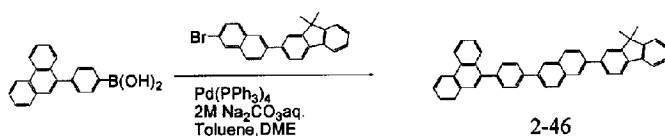
[化175]



[0293] アルゴン雰囲気下、2-(6-ブロモナフタレー-2-イル)-9,9-ジメチルー9H-フルオレン 3.30 g (8.26 mmol)、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸 2.46 g (8.26 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.38 g (0.33 mmol)、トルエン 90 ml、ジメトキシエタン 30 ml、2M 炭酸ナトリウム水溶液 12.5 g を加え、85℃にて、8時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。残渣をトルエン、ヘキサンで晶析化し、化合物 2-50 を 3.86 g (収率 82%) 得た。マスマスペクトラム分析の結果、分子量 572.25 に対し、 $m/e = 572$  であった。

## [0294] (合成実施例 B-2) 化合物 2-46 の合成

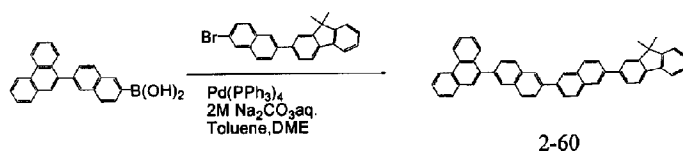
[化176]



[0295] 化合物 2-50 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、4-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。  
 マススペクトラム分析の結果、分子量 572.25 に対し、 $m/e = 572$  であった。

## [0296] (合成実施例 B-3) 化合物 2-60 の合成

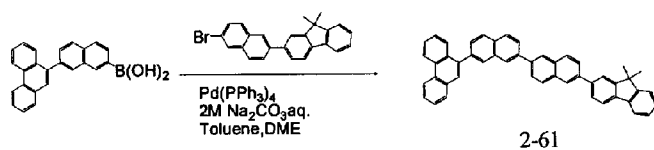
[化177]



[0297] 化合物 2-50 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、6-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。  
 マススペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

## [0298] (合成実施例 B-4) 化合物 2-61 の合成

[化178]



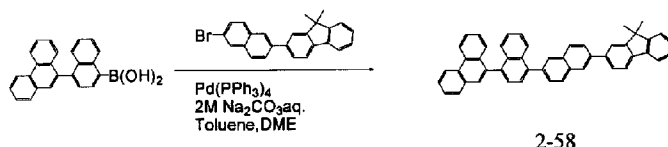
[0299] 化合物 2-50 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、7-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-

2-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0300] (合成実施例 B-5) 化合物 2-58 の合成

[化179]

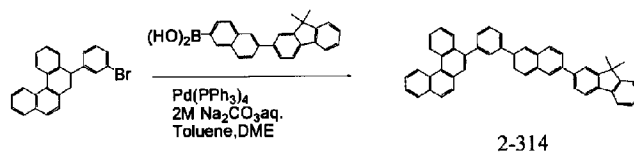


[0301] 化合物 2-50 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、4-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-1-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0302] (合成実施例 B-6) 化合物 2-314 の合成

[化180]

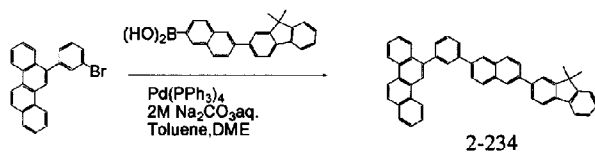


[0303] 化合物 2-50 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、6-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、5-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[c]フェナントレンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0304] (合成実施例 B-7) 化合物 2-234 の合成

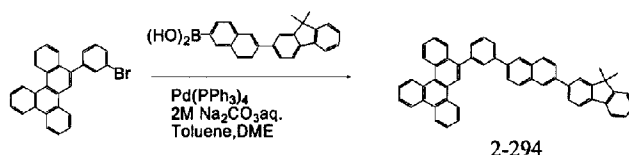
[化181]



[0305] 化合物 2-50 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、6-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、6-(3-ブロモフェニル)クリセンを用いて同様の方法で合成した。マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0306] (合成実施例 B-8) 化合物 2-294 の合成

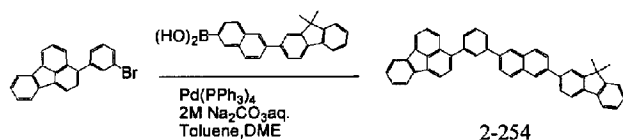
[化182]



[0307] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、6-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、10-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[g]クリセンを用いて同様の方法で合成した。マスペクトラム分析の結果、分子量 672.28 に対し、 $m/e = 672$  であった。

[0308] (合成実施例 B-9) 化合物 2-254 の合成

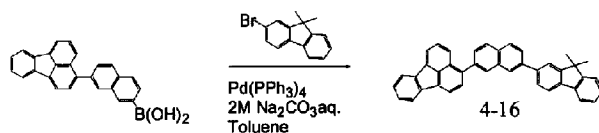
[化183]



[0309] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、6-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、3-(3-ブロモフェニル)フルオランテンを用いて同様の方法で合成した。マスペクトラム分析の結果、分子量 596.25 に対し、 $m/e = 596$  であった。

[0310] (合成実施例 B-10) 化合物 4-16 の合成

[化184]

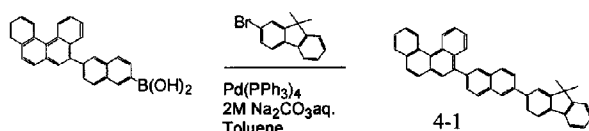


[0311] アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-9,9-ジメチル-9H-フルオレン 2.26 g (8.26 mmol)、7-(フルオランテン-3-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸 3.07 g (8.26 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.38 g (0.33 mmol)、トルエン 90 ml、ジメトキシエタン 30 ml、2M 炭酸ナトリウム水溶液 12.5 g を加え、85℃にて、10時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。残渣をトルエン、ヘキサンで晶析化し、化合物 2-16 を 2.42 g (収率 56%) 得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量 520.66 に対し、 $m/e = 520$  であった。

[0312] (合成実施例 B-11) 化合物 4-1 の合成

[化185]

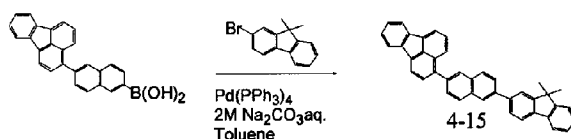


[0313] 化合物 4-16 の合成において、7-(フルオランテン-3-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸の代わりに6-(ベンゾ[c]フェナントレン-5-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用いた以外は同様の方法及び同様のモル数で試薬を添加して反応させ、同様な精製を経て、化合物 4-1 を 3.24 g (収率 71%) 得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量 546.70 に対し、 $m/e = 546$  であった。

[0314] (合成実施例 B-12) 化合物 4-15 の合成

[化186]



[0315] 化合物 4-16 の合成において、7-(フルオランテン-3-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸の代わりに6-(フルオランテン-3-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用いた以外は同様の方法及び同様のモル数で試薬を添加して反応させ、同様な精製を経て、化合物 4-15 を 2.88 g (収率 67%) 得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量 520.66 に対し、 $m/e = 520$  であった。

[0316] なお、上記合成例において、マスペクトラム分析はFD-MS (フィールドドディソープションマス分析) により行った。FD-MS (フィールドド

イソープシヨンマス分析)の測定に用いた装置及び測定条件を以下に示す。

装置：JSM-700 (日本電子社製)

条件：加速電圧 8 kV

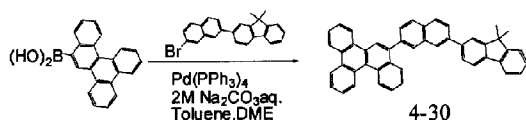
スキャンレンジ  $m/z = 50 \sim 3000$

エミッタ種：カーボン

エミッタ電流：0 mA → 2 mA/分 → 40 mA (10分保持)

[0317] (合成実施例B-13) 化合物4-30の合成

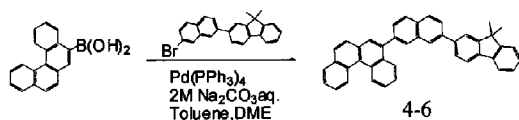
[化187]



[0318] アルゴン雰囲気下、2-(7-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン3.6 g (9.0 mmol), 10-ベンゾ [g] クリセンボロン酸2.9 g (9.0 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 526 mg (0.45 mmol)、トルエン40 ml、ジメトキシエタン40 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 13.5 gを加え、加熱還流下、8時間攪拌した。反応終了後、反応混合物に水を加え、トルエンで抽出し、水洗した。有機相を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。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、再結晶後、4-30を2.2 g (収率40%)得た。

[0319] (合成実施例B-14) 化合物4-6の合成

[化188]



[0320] アルゴン雰囲気下、2-(7-ブロモナフタレン-2-イル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン3.6 g (9.0 mmol), 5-ベンゾ [c] フェナントレンボロン酸2.55 g (9.0 mmol)、テトラキス(ト

リフェニルホスフィン) パラジウム (0) 526 mg (0.45 mmol)、トルエン40 ml、ジメトキシエタン40 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 13.5 gを加え、加熱還流下、8時間攪拌した。反応終了後、反応混合物に水を加え、トルエンで抽出し、水洗した。有機相を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。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、再結晶後、4-6を2.8 g (収率57%) 得た。

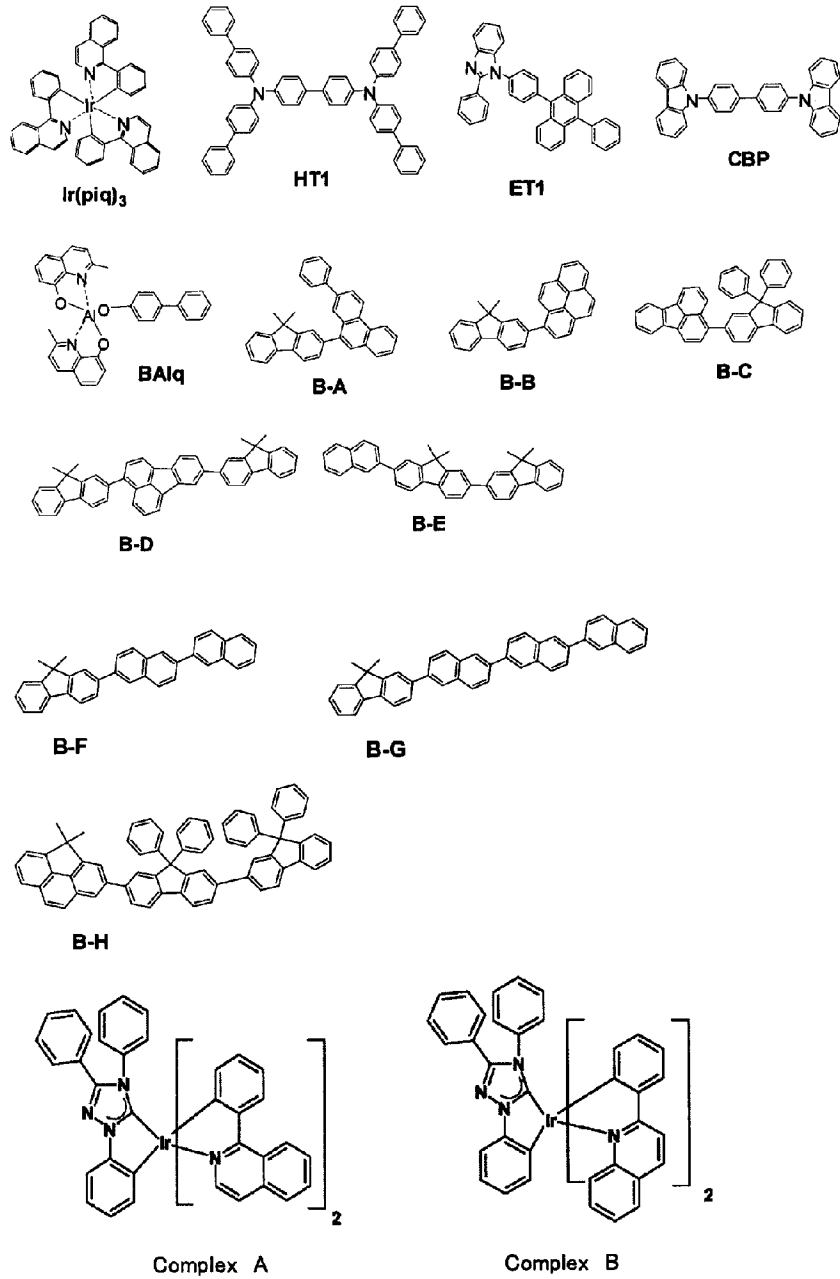
[0321] 次に、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容に何ら制限されるものではない。

前記合成実施例にて得られた化合物の他に、実施例及び比較例で使用した化合物の構造を以下に示す。

[0322]



[化189]



[0323] [実施例 B-1]

(有機 EL 素子の作製)

25 mm × 75 mm × 0.7 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板 (旭硝子製) をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されて

いる側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚50nmのHT1を成膜した。該HT1膜は正孔注入輸送層として機能する。さらに、該正孔注入輸送層の成膜に続けて、この膜上に膜厚40nmの新規ホスト化合物2-2、および燐光発光性のドーパントとしてIr(piq)<sub>3</sub>を10質量%になるよう抵抗加熱により共蒸着膜成膜した。該膜は、発光層（燐光発光層）として機能する。該発光層成膜に続けて、膜厚40nmでET1を成膜した。該膜は電子輸送層として機能する。この後、LiFを電子注入性電極（陰極）として成膜速度1Å/minで膜厚0.5nm形成した。このLiF層上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚150nm形成し有機EL素子を形成した。

[0324] [実施例B-2~B-14、比較例B-1~B-10]

実施例B-1の新規ホスト化合物2-2に変えて、下記の表2に示すホスト化合物を用いた以外は、実施例B-1と同様にして有機EL素子を形成した。

[実施例B-15]

ドーパントである錯体をComplex Aに替えた以外は、実施例B-13と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[実施例B-16]

Complex AをComplex Bに替えた以外は、実施例B-13と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[比較例B-11]

ホスト化合物を4-30からCBPに替えた以外は、実施例B-15と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[比較例B-12]

ホスト化合物を4-30からBAIqに替えた以外は、実施例B-16と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[0325] [有機EL素子の発光性能評価]

上記の実施例B-1~B-16、比較例B-1~B-12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  $10 \text{ mA/cm}^2$  における電圧、発光効率および輝度半減寿命（初期輝度  $5000 \text{ cd/m}^2$ ）を測定した。これらの評価の結果を表2に示す。

[0326] [表2]

表2

実施例	ドーパント	ホスト化合物	電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	室温輝度半減寿命 (時間)
実施例B-1	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-50	4.8	8.0	4,700
実施例B-2	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-46	4.8	7.6	4,200
実施例B-3	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-60	4.3	7.4	3,400
実施例B-4	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-61	4.5	8.1	4,100
実施例B-5	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-58	4.4	7.4	3,700
実施例B-6	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-314	4.7	8.2	4,500
実施例B-7	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-234	4.3	7.5	3,400
実施例B-8	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-294	4.3	7.5	4,000
実施例B-9	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-254	4.3	8.3	4,700
実施例B-10	Ir(piq) <sub>3</sub>	4-16	4.4	8.3	4,200
実施例B-11	Ir(piq) <sub>3</sub>	4-1	4.3	8.6	4,800
実施例B-12	Ir(piq) <sub>3</sub>	4-15	4.3	7.7	3,900
実施例B-13	Ir(piq) <sub>3</sub>	4-30	4.4	7.9	3,900
実施例B-14	Ir(piq) <sub>3</sub>	4-6	4.4	8.1	4,300
比較例B-1	Ir(piq) <sub>3</sub>	CBP	5.4	6.3	500
比較例B-2	Ir(piq) <sub>3</sub>	BAIq	5.3	7.0	1,000
比較例B-3	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-A	5.0	7.0	1,200
比較例B-4	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-B	5.4	1.3	測定不能
比較例B-5	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-C	5.1	7.2	1,900
比較例B-6	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-D	4.8	6.8	1400
比較例B-7	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-E	4.8	4.9	400
比較例B-8	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-F	4.6	7.0	170
比較例B-9	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-G	4.6	7.2	280
比較例B-10	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物B-H	4.9	4.1	250
実施例B-15	Complex A	4-30	4.3	7.4	2700
実施例B-16	Complex B	4-30	4.4	7.6	2900
比較例B-11	Complex A	CBP	5.8	4.2	800
比較例B-12	Complex B	BAIq	5.1	5.0	1300

[0327] 表2から明らかなように、発光効率について、本発明のホスト材料を用いて構成した実施例B-1～実施例B-14の有機EL素子は、発光効率が高く、寿命が格段に長いことが示された。一方、比較例B-1～B-3では、

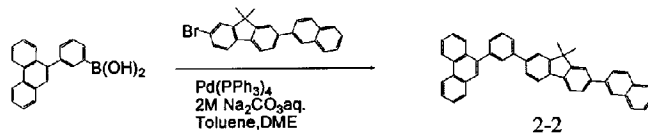
電圧が高く、寿命が短い。比較例 B-4 は効率が低く、寿命が極端に短い。B-5 は電圧が高く寿命が短い。B-6 では電圧は低下しているものの、実施例と比較して寿命が短い。また、比較例 B-7 では発光効率が低く寿命も著しく短い。比較例 8~10 では寿命が著しく短い。実施例 B-15, 16 は比較例 B-11, 12 に比べて電圧が低く、効率が高く、寿命が長い。

本発明の組合せの特徴は、ホスト材料の三重項エネルギーギャップとドープアントの三重項エネルギーギャップが適切であるため発光効率が向上することと、フルオレン環残基に特定の縮合多環芳香族残基を結合させることにより、素子がより低電圧化したことと、ホスト材料に含窒素環、窒素原子等が置換されていないため、発光材料が正孔、電子に対し高い耐性を持っており、これにより、従来知られていた組合せよりも長寿命化することである。

[0328] <発明 C>

(合成実施例 C-1) 化合物 2-2 の合成

[化190]



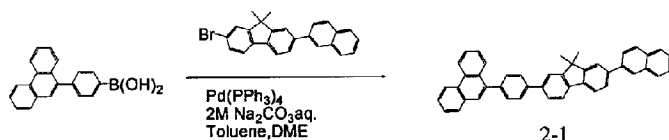
[0329] アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン 3.30 g (8.26 mmol)、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸 2.46 g (8.26 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.38 g (0.33 mmol)、トルエン 90 ml、ジメトキシエタン 30 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 12.5 g を加え、85℃にて、8時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られたオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物 2-2 を 3.40 g (収率

72%) 得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量 572.25 に対し、 $m/e = 572$  であった。

[0330] (合成実施例 C-2) 化合物 2-1 の合成

[化191]

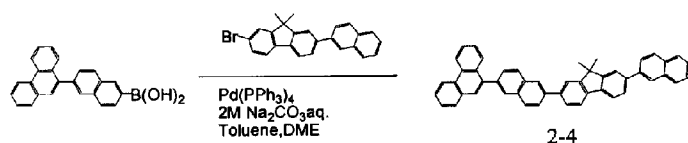


[0331] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、4-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 572.25 に対し、 $m/e = 572$  であった。

[0332] (合成実施例 C-3) 化合物 2-4 の合成

[化192]

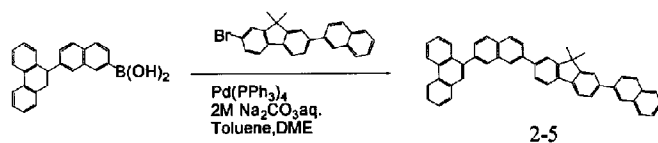


[0333] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、6-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0334] (合成実施例 C-4) 化合物 2-5 の合成

[化193]

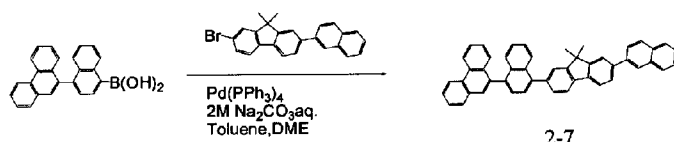


[0335] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、7-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-2-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0336] (合成実施例 C-5) 化合物 2-7 の合成

[化194]

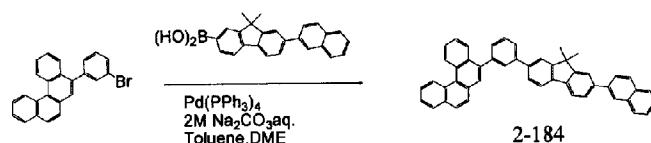


[0337] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、4-(フェナントレン-9-イル)ナフタレン-1-イルボロン酸を用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

[0338] (合成実施例 C-6) 化合物 2-184 の合成

[化195]

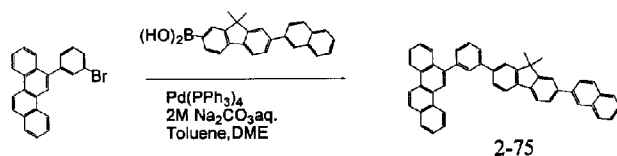


[0339] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブromo-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、5-(3-ブromoフェニル)ベンゾ[c]フェナントレンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

## [0340] (合成実施例 C-7) 化合物 2-75 の合成

[化196]

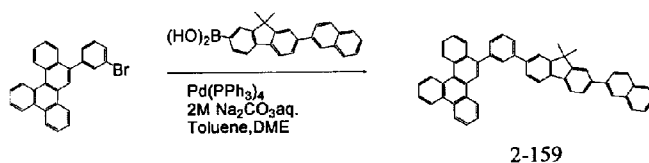


[0341] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、6-(3-ブロモフェニル)クリセンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 622.27 に対し、 $m/e = 622$  であった。

## [0342] (合成実施例 C-8) 化合物 2-159 の合成

[化197]

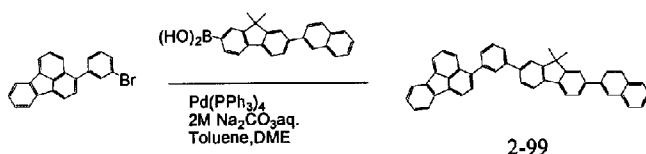


[0343] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブロモ-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、10-(3-ブロモフェニル)ベンゾ[g]クリセンを用いて同様の方法で合成した。

マスペクトラム分析の結果、分子量 672.28 に対し、 $m/e = 672$  であった。

## [0344] (合成実施例 C-9) 化合物 2-99 の合成

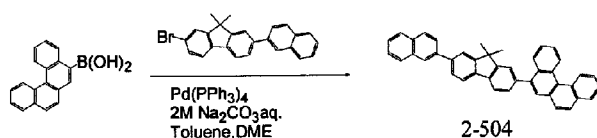
[化198]



[0345] 化合物 2-2 の合成において、3-(フェナントレン-9-イル)フェニルボロン酸の代わりに、9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン-2-イルボロン酸を用い、2-ブromo-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレンの代わりに、3-(3-ブromoフェニル)フルオランテンを用いて同様の方法で合成した。マスペクトラム分析の結果、分子量 596.25 に対し、 $m/e = 596$  であった。

[0346] (合成実施例 C-10) 化合物 2-504 の合成

[化199]



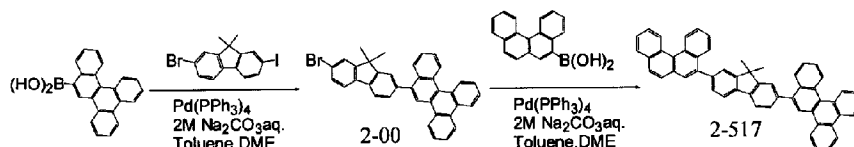
[0347] アルゴン雰囲気下、2-ブromo-9,9-ジメチル-7-(ナフタレン-2-イル)-9H-フルオレン 3.30 g (8.26 mmol)、5-ベンゾ [c] フェナントレンボロン酸 2.25 g (8.26 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.38 g (0.33 mmol)、トルエン 90 ml、ジメトキシエタン 30 ml、2M 炭酸ナトリウム水溶液 12.5 g を加え、85°C にて、9 時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1 時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られたオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物 2-504 を 3.11 g (収率 69%) 得た。



マスマスペクトラム分析の結果、分子量 546.7 に対し、 $m/e = 546$  であった。

[0348] (合成実施例 C-11) 化合物 2-517 の合成

[化200]



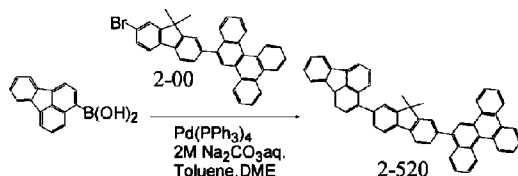
[0349] アルゴン雰囲気下、10-ベンゾ [g] クリセンボロン酸 5.00 g (15.52 mmol)、2-ブromo-7-ヨード-9,9-ジメチルフルオレン 5.76 g (15.52 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.90 g (0.768 mmol)、トルエン 40 ml、ジメトキシエタン 40 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 23.5 g を加え、加熱還流下、10時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体 2-00 を 6.23 g (収率 73%) を得た。

ついで、アルゴン雰囲気下、中間体 2-00 3.0 g (5.46 mmol)、5-ベンゾ [c] フェナントレンボロン酸 1.49 g (5.46 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.25 g (0.22 mmol)、トルエン 50 ml、ジメトキシエタン 20 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 8.3 g を加え、85°Cにて、9時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られたオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物 2-517 を 2.02 g (収率 53%) 得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量 696.87 に対し、 $m/e = 696$  であった。

[0350] (合成実施例 C-12) 化合物 2-520 の合成

[化201]

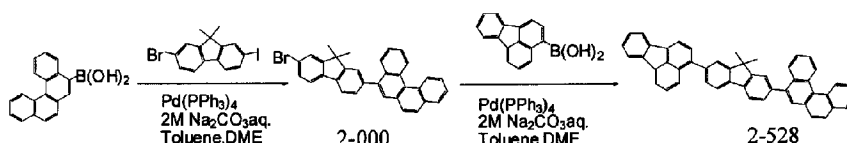


[0351] アルゴン雰囲気下、上記中間体 2-00 3.0 g (5.46 mmol)、3-フルオランテニルボロン酸 1.34 g (5.46 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.25 g (0.22 mmol)、トルエン 50 ml、ジメトキシエタン 20 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 8.3 g を加え、85℃にて、9時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られたオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物 2-520 を 1.83 g (収率 50%) 得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量 670.84 に対し、 $m/e = 670$  であった。

[0352] (合成実施例 C-13) 化合物 2-528 の合成

[化202]



[0353] アルゴン雰囲気下、5-ベンゾ [c] フェナントレンボロン酸 2.11 g (7.76 mmol)、2-ブromo-7-ヨード-9,9-ジメチルフル

オレン2. 88 g (7. 76 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0. 45 g (0. 39 mmol)、トルエン20 ml、ジメトキシエタン 20 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 12. 0 gを加え、加熱還流下、10時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体2-000を2. 65 g (収率68%)を得た。

ついで、アルゴン雰囲気下、中間体2-000 2. 50 g (5. 00 mmol)、5-ベンゾ[c]フェナントレンボロン酸 1. 36 g (5. 00 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0. 23 g (0. 20 mmol)、トルエン50 ml、ジメトキシエタン20 ml、2M炭酸ナトリウム水溶液 8. 0 gを加え、85°Cにて、10時間攪拌した。反応混合物を室温に戻し、水を加え、1時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に水を加え、室温で一時間攪拌した。濾過後、トルエンで抽出し、有機相を水で洗浄し、次いで飽和食塩水で洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥させた後、トルエンを減圧下留去した。得られたオイル状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物2-528を2. 11 g (収率68%)得た。

マスペクトラム分析の結果、分子量620. 78に対し、 $m/e=620$ であった。

[0354] なお、上記合成例において、マスペクトラム分析はFD-MS(フィールドディソープションマス分析)により行った。FD-MS(フィールドディソープションマス分析)の測定に用いた装置及び測定条件を以下に示す。

装置: JSM-700 (日本電子社製)

条件: 加速電圧 8 kV

スキャンレンジ  $m/z=50\sim3000$

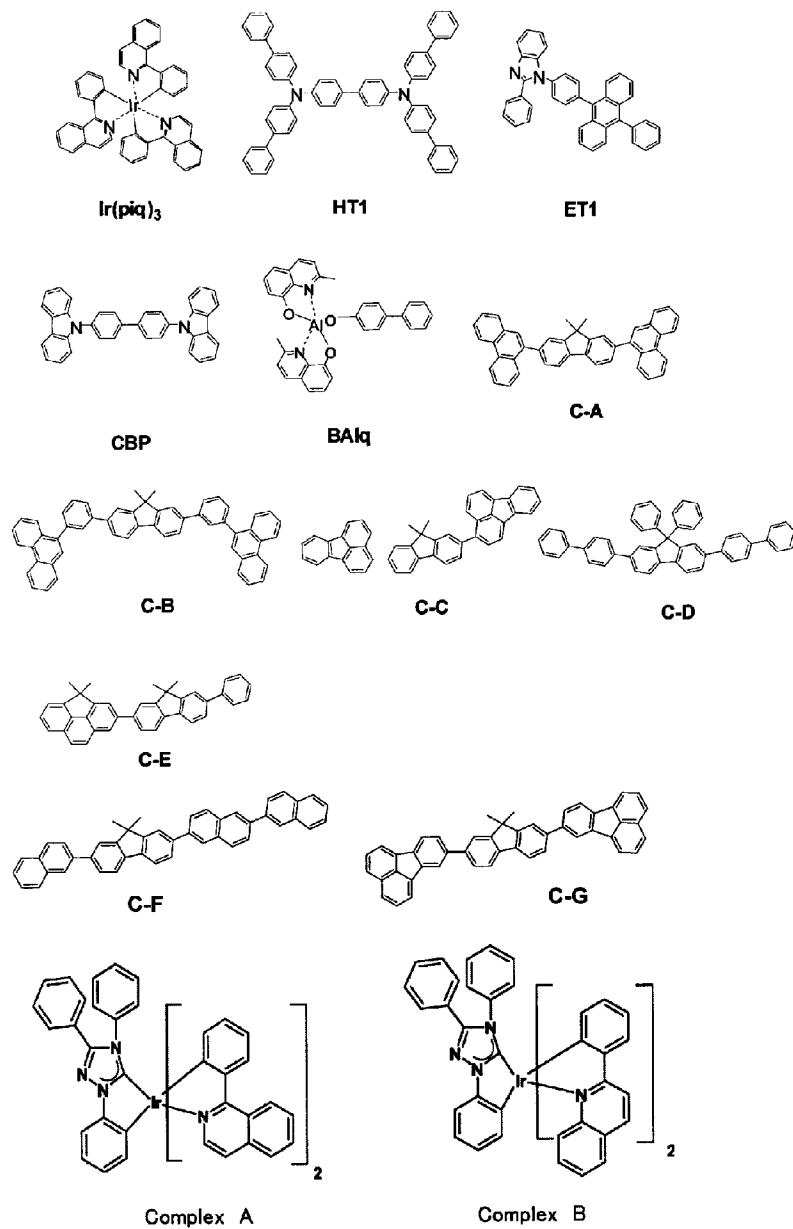
エミッタ種: カーボン

エミッタ電流：0 mA → 2 mA / 分 → 40 mA（10分保持）

[0355] 次に、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容に何ら制限されるものではない。

前記合成実施例にて得られた化合物の他に、実施例及び比較例で使用した化合物の構造を以下に示す。

[0356] [化203]



[0357] [実施例 C-1]

(有機 EL 素子の作製)

25mm×75mm×0.7mm厚のITO透明電極付きガラス基板（旭硝子製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚50nmのHT1を成膜した。該HT1膜は正孔注入輸送層として機能する。さらに、該正孔注入輸送層の成膜に続けて、この膜上に膜厚40nmの新規ホスト化合物2-2、および燐光発光性のドーパントとしてIr(piq)<sub>3</sub>を10質量%になるよう抵抗加熱により共蒸着膜成膜した。該膜は、発光層（燐光発光層）として機能する。該発光層成膜に続けて、膜厚40nmでET1を成膜した。該膜は電子輸送層として機能する。この後、LiFを電子注入性電極（陰極）として成膜速度1Å/minで膜厚0.5nm形成した。このLiF層上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚150nm形成し有機EL素子を形成した。

[0358] [実施例C-2~C-13、比較例C-1~C-9]

実施例1の新規ホスト化合物2-2に変えて、下記の表3に示すホスト化合物を用いた以外は、実施例C-1と同様にして有機EL素子を形成した。

[実施例C-14]

ドーパントである錯体をComplex Aに替えた以外は、実施例C-8と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[実施例C-15]

Complex AをComplex Bに替えた以外は、実施例C-14と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[比較例C-10]

ホスト化合物を2-159からCBPに替えた以外は、実施例C-14と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[比較例C-11]

ホスト化合物を2-159からBAIqに替えた以外は、実施例C-15

と同じ作製方法で有機EL素子を作製した。

[0359] [有機EL素子の発光性能評価]

上記の実施例C-1~C-15、比較例C-1~C-11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10mA/cm<sup>2</sup>における電圧、発光効率および輝度半減寿命（初期輝度5000cd/m<sup>2</sup>）を測定した。これらの評価の結果を表1に示す。

[0360] [表3]

表3

実施例	ドーパント	ホスト化合物	電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	室温輝度半減寿命 (時間)
実施例C-1	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-2	4.7	8.2	4,800
実施例C-2	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-1	4.7	8.2	4,500
実施例C-3	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-4	4.6	8.1	4,000
実施例C-4	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-5	4.5	7.8	3,800
実施例C-5	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-7	4.4	8.0	3,400
実施例C-6	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-184	4.6	8.0	4,000
実施例C-7	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-75	4.4	7.8	3,800
実施例C-8	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-159	4.3	8.0	3,700
実施例C-9	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-99	4.8	7.6	4,200
実施例C-10	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-504	4.5	7.9	3,300
実施例C-11	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-517	4.4	8.5	3,800
実施例C-12	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-520	4.3	8.3	4,000
実施例C-13	Ir(piq) <sub>3</sub>	2-528	4.3	8.3	4,100
比較例C-1	Ir(piq) <sub>3</sub>	CBP	5.4	6.3	500
比較例C-2	Ir(piq) <sub>3</sub>	BAIq	5.3	7.0	1,000
比較例C-3	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-A	4.8	7.0	450
比較例C-4	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-B	5.2	7.1	1,200
比較例C-5	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-C	4.8	7.2	200
比較例C-6	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-D	5.2	7.1	380
比較例C-7	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-E	5.1	5.9	800
比較例C-8	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-F	4.8	7.4	170
比較例C-9	Ir(piq) <sub>3</sub>	化合物C-G	5.1	6.5	310
実施例C-14	Complex A	2-159	4.4	7.7	2500
実施例C-15	Complex B	2-159	4.4	7.5	2900
比較例C-10	Complex A	CBP	5.8	4.2	800
比較例C-11	Complex B	BAIq	5.1	5.0	1300

[0361] 表3から明らかなように、発光効率について、本発明のホスト材料を用いて構成した実施例C-1~実施例C-13の有機EL素子は、発光効率が高

く、寿命が格段に長いことが示された。一方、比較例 C-1~2 では電圧が高く寿命が短い。比較例 C-3、C-5、C-8 では電圧は同等であるが、寿命は著しく短い。比較例 C-4、C-7 では電圧が高く寿命が短い。比較例 C-6、C-9 では、電圧が高く、寿命が著しく短い。実施例 C-14、15 は比較例 C-10、11 に比べて電圧が低く、効率がよく、寿命が長い。

本発明の組合せの特徴は、ホスト材料の三重項エネルギーギャップとドープメントの三重項エネルギーギャップが適切であるため発光効率が向上することと、2価のフルオレン環残基に特定の縮合多環芳香族基を結合させることにより、より低電圧化したことと、ホスト材料に含窒素環、窒素原子等が置換されていないため、発光材料が正孔、電子に対し高い耐性を持っており、これにより、従来知られていた組合せよりも長寿命化することである。

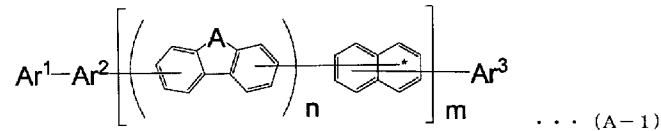
#### 産業上の利用可能性

[0362] 本発明は、高効率かつ長寿命な燐光発光性の有機 EL 素子、及び高効率かつ長寿命な燐光発光性の有機 EL 素子を与える有機 EL 素子用材料を提供する。

## 請求の範囲

[請求項1] 下記式（A-1）で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[化1]



（式中、 $Ar^1$ 及び $Ar^3$ は、それぞれ独立に、水素原子（重水素原子を含む）、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフタレン環、置換もしくは無置換のクリセン環、置換もしくは無置換のフェナントレン環、置換もしくは無置換のベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のジベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のトリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾ [a] トリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾクリセン環、置換もしくは無置換のフルオランテン環、置換もしくは無置換のベンゾ [b] フルオランテン環、及び、置換もしくは無置換のピセン環から選択される置換もしくは無置換の縮合芳香族炭化水素環残基を表す。

$Ar^2$ は、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、置換もしくは無置換のナフタレン環残基、又は置換もしくは無置換のフェナントレン環残基を表す。

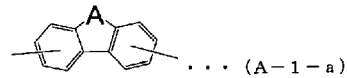
Aは、O、S又は $CR^1R^2$ を示す。 $R^1$ 及び $R^2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数7～24のアラルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～20のシリル基を表す。

nは1～3の整数を示す。mは1又は2の整数を示す。nが2以上の場合、 $( )_n$ 内の下記式（A-1-a）は、同じであっても、異



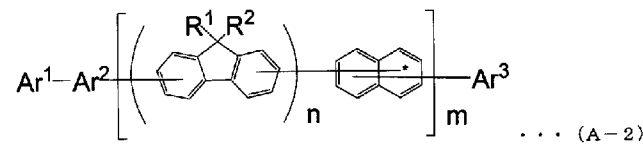
なっても良い。)

[化2]



[請求項2] 下記式 (A-2) で表される請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

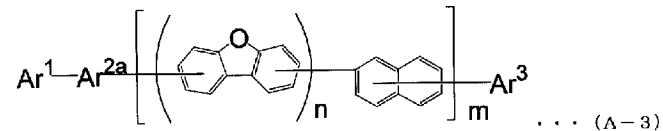
[化3]



(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $n$  及び  $m$  は前記と同じである。)

[請求項3] 下記式 (A-3) で表される請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

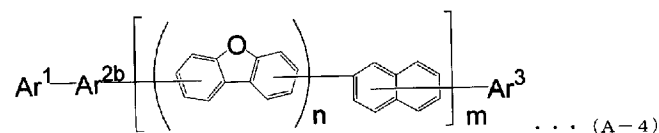
[化4]



(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^3$ 、 $n$  及び  $m$  は前記と同じであり、 $Ar^{2a}$  は置換もしくは無置換のベンゼン環又は置換もしくは無置換のフェナントレン環残基である。また、 $Ar^3$  はジベンゾフラン環残基に結合するナフタレン環残基の 6 位又は 7 位に結合する。)

[請求項4] 下記式 (A-4) で表される請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

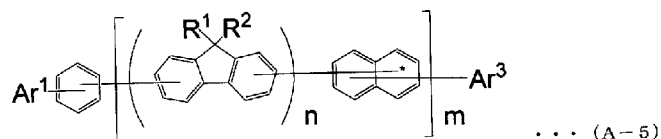
[化5]



(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^3$ 、 $n$ 及び $m$ は前記と同じであり、 $Ar^{2b}$ は置換もしくは無置換のナタフレン環残基である。 $Ar^{2b}$ が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合する場合は、 $Ar^1$ 又は $Ar^3$ のどちらか一方は、それぞれが結合するナフタレン環残基の6位又は7位において結合する。 $Ar^{2b}$ が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合しない場合は、 $Ar^3$ はナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。また、 $Ar^1$ 、 $Ar^3$ が共に水素である場合を除く。)

[請求項5] 下記式(A-5)で表される請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[化6]

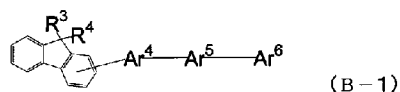


(式中、 $Ar^1$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $n$ 及び $m$ は前記と同じである。)

[請求項6] 前記式(A-1)～(A-5)中、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、 $Ar^{2a}$ 、 $Ar^{2b}$ 、 $Ar^3$ 、 $R^1$ 及び/又は $R^2$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール基である請求項1～4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用材料。

[請求項7] 下記式(B-1)で表わされる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[化7]



(式中、 $R^3$ 及び $R^4$ は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、炭素数1～10のアルキル基、又は環形成炭素数6～12のア

リール基を表し、 $A r^4$ は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、 $A r^5$ はベンゼン環又は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、 $A r^6$ は水素原子（重水素原子を含む）、ベンゼン環又は環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である。また、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $A r^4$ 、 $A r^5$ 及び $A r^6$ は、それぞれ独立に、置換基を有しても良い。

ただし、 $A r^4$ 、 $A r^5$ 及び $A r^6$ のいずれもアントラセン、ピレン、ペリレン、トリフェニレン、ナフタセン又はペンタセン骨格を有しない。さらに以下の(1)～(6)の場合をすべて満たすものである。

(1)  $A r^4$ がナフタレン環、フェナントレン環、クリセン環、ベンゾアントラセン環、フルオランテン環のいずれかであり、かつ $A r^5$ がフルオレン環の場合を除く。

(2)  $A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ がベンゼン環であり、かつ $A r^6$ がベンゼン環又は水素原子である場合を除く。

(3) (i)  $A r^4$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、 $A r^5$ が $\beta$ -ナフチル基であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合を除く。

(ii)  $A r^4$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、 $A r^5$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、かつ $A r^6$ が $\beta$ -ナフチル基である場合を除く。

(4)  $A r^4$ がフルオレン環であり、かつ $A r^5$ がベンゼン環、フルオレン環又はフルオランテン環のいずれかである場合を除く。

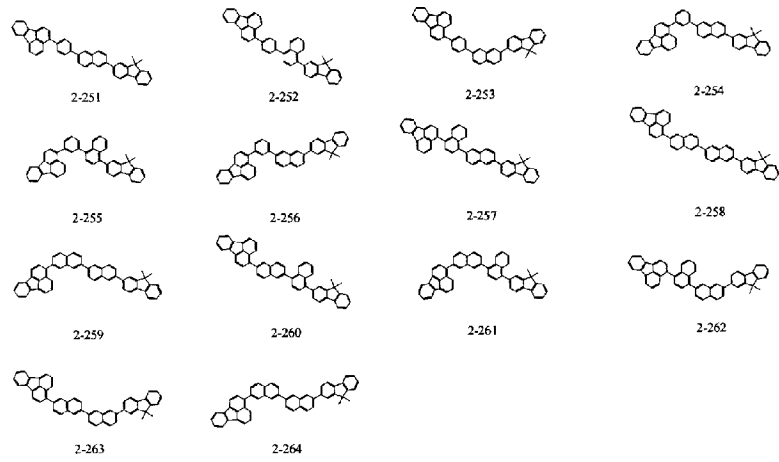
また、 $A r^4$ がフルオレン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子又は $\beta$ -ナフチル基である場合を除く。

(5)  $A r^4$ がフェナントレン環又はフルオランテン環であり、 $A r^5$ がベンゼン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合を除く。

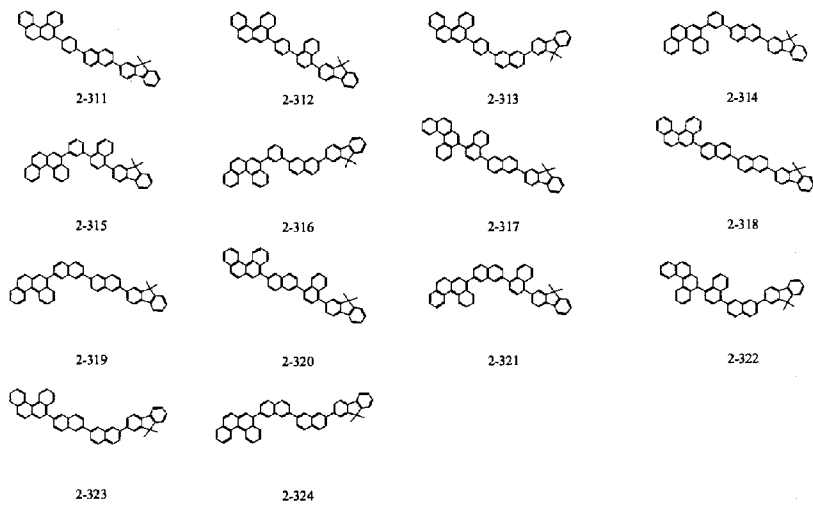
(6)  $A r^4$ がベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、ビナフタレン環、フルオレン環のいずれかであり、かつ $A r^5$ がフルオランテン環の場合を除く。 )

- [請求項8]  $A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ がベンゼン環であり、かつ $A r^6$ が環形成炭素数10～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。
- [請求項9]  $A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ がナフタレン環であり、かつ $A r^6$ が環形成炭素数11～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基である（ただし $A r^4$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、 $A r^5$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、かつ $A r^6$ が $\beta$ -ナフチル基である場合を除く）請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。
- [請求項10]  $A r^4$ がナフタレン環であり、 $A r^5$ が環形成炭素数11～22の縮合多環芳香族炭化水素環残基であり、かつ $A r^6$ が水素原子（重水素原子を含む）である（ただし、以下の（1）～（3）のいずれかの場合を除く。（1） $A r^4$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、 $A r^5$ が $\beta$ -ナフチル基であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合、（2） $A r^4$ がナフタレン-1,4-ジイル基もしくはナフタレン-1,5-ジイル基であり、 $A r^5$ がフルオランテン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合、又は（3） $A r^4$ がナフタレン-1,4-ジイル基、ナフタレン-2,6-ジイル基もしくはナフタレン-2,8-ジイル基のいずれかであり、 $A r^5$ がフルオレン環であり、かつ $A r^6$ が水素原子である場合）請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。
- [請求項11] 以下に示す化合物を除く請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

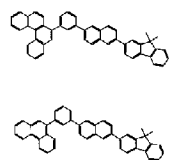
[化8]



[化9]



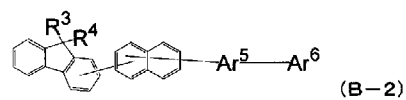
[化10]



[請求項12]

下記式（B-2）で表わされる請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

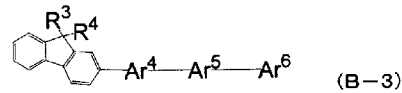
[化11]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

[請求項13] 下記式 (B-3) で表わされる請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

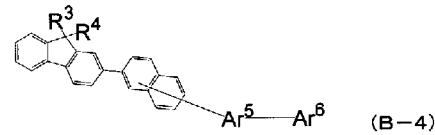
[化12]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

[請求項14] 下記式 (B-4) で表わされる請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[化13]



(式中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^5$ 及び $Ar^6$ は前記と同じである。)

[請求項15] 前記式 (B-1) の $Ar^4$ ~ $Ar^6$ における環形成炭素数10~22の縮合多環芳香族炭化水素環が、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、ベンゾ[a]トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ[b]フルオランテン環及びピセン環から選択され、 $Ar^6$ が水素原子(重水素原子を含む)又は該環形成炭素数10~22の縮合多環芳香族炭化水素環残基を表す請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項16] 前記式 (B-4) の $Ar^5$ 及び $Ar^6$ における環形成炭素数10~22の縮合多環芳香族炭化水素環が、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、ベンゾ[a]トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ[b]フルオランテン環及びピセン環から選択され、 $Ar^6$ が水素原子(重水素原子を含む)又は該環形成

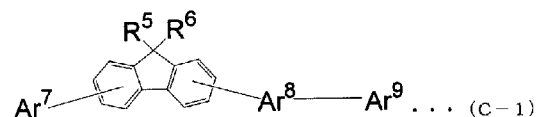
炭素数 10～22 の縮合多環芳香族炭化水素環残基を表す請求項 14 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項17] 前記式 (B-4) において、 $R^3$  及び  $R^4$  が、それぞれ独立に、炭素数 1～10 のアルキル基、又はフェニル基を表す請求項 14 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項18] 前記式 (B-1) ～ (B-4) 中、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $Ar^4$ 、 $Ar^5$  及び / 又は  $Ar^6$  が、1 つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数 1～20 のアルキル基、炭素数 1～20 のハロアルキル基、環形成炭素数 5～18 のシクロアルキル基、炭素数 3～20 のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数 6～22 のアリール基である請求項 7～17 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用材料。

[請求項19] 下記式 (C-1) で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[化14]



(式中、 $Ar^7 \sim Ar^9$  は、それぞれ独立に、ベンゼン環、又はナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基を表す。 $Ar^9$  は水素原子 (重水素原子を含む) であってもよい。

$R^5$  及び  $R^6$  は、それぞれ独立に、水素原子 (重水素原子を含む)、炭素数 1～10 のアルキル基又は環形成炭素数 6～12 のアリール基を表す。

また、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $Ar^7$ 、 $Ar^8$  及び  $Ar^9$  は、それぞれ独立に、置換

基を有しても良い。

ただし、以下の(1)～(4)の場合をすべて満たすものである。

(1)  $A r^7$ がベンゼン環であり、かつ $A r^8$ がベンゼン環又はフルオレン環の場合を除く。

(2)  $A r^9$ が水素原子であり、かつ $A r^7$ と $A r^8$ が同一の縮合芳香族炭化水素環残基である場合を除く。

(3)  $A r^7$ と $A r^8-A r^9$ が同じ構造の場合を除く。

(4)  $A r^7$ が $\beta$ -ナフチル基又はナフタレン-2,6-ジイル基であり、 $A r^8$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、かつ $A r^9$ が $\beta$ -ナフチル基である場合を除く。)

[請求項20]

$A r^7$ がナフタレン環であり、 $A r^8$ がベンゼン環であり、かつ $A r^9$ がナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ[a]トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ[b]フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基である請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項21]

$A r^7$ がナフタレン環であり、 $A r^8$ がナフタレン環であり、かつ $A r^9$ がナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレン環、トリフェニレン環、ベンゾ[a]トリフェニレン環、ベンゾクリセン環、フルオランテン環、ベンゾ[b]フルオランテン環及びピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基である(ただし $A r^7$ が $\beta$ -ナフチル基であり、 $A r^8$ がナフタレン-2,6-ジイル基であり、かつ $A r^9$ が $\beta$ -ナフチル基である場合を除く)請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項22]

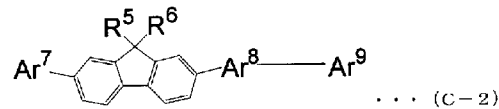
$A r^7$ 及び $A r^8$ が、それぞれ独立に、ナフタレン環、クリセン環、フェナントレン環、ベンゾフェナントレン環、ジベンゾフェナントレ



ン環、トリフェニレン環、ベンゾ [a] トリフェニレン環、ベンゾク  
リセン環、フルオランテン環、ベンゾ [b] フルオランテン環及びピ  
セン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基であり、かつ  $Ar^9$   
が水素原子（重水素原子を含む）である請求項 19 に記載の有機エレ  
クトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項23] 下記式（C-2）で表される請求項 19 に記載の有機エレクトロル  
ミネッセンス素子用材料。

[化15]

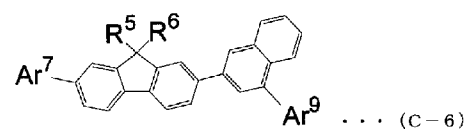
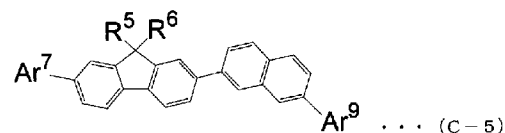
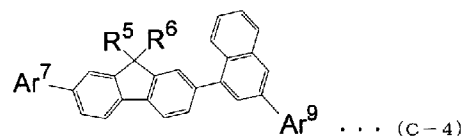
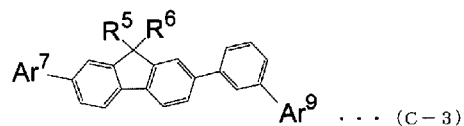


（式中、 $Ar^7$ 、 $Ar^8$ 、 $Ar^9$ 、 $R^5$ 及び $R^6$ は前記と同じである。）

[請求項24] 前記一般式（C-1）、（C-2）における $R^5$ 、 $R^6$ 、 $Ar^7$ 、 $Ar^8$   
及び／又は $Ar^9$ が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は  
、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、  
環形成炭素数5～18のシクロアルキル基、炭素数3～20のシリル  
基、シアノ基、ハロゲン原子、又は環形成炭素数6～22のアリール  
基である請求項19～23のいずれかに記載の有機エレクトロルミネ  
ッセンス素子用材料。

[請求項25] 下記式（C-3）～（C-6）のいずれかで表される請求項23に  
記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[化16]



(Ar<sup>7</sup>、Ar<sup>9</sup>、R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は前記と同じである。)

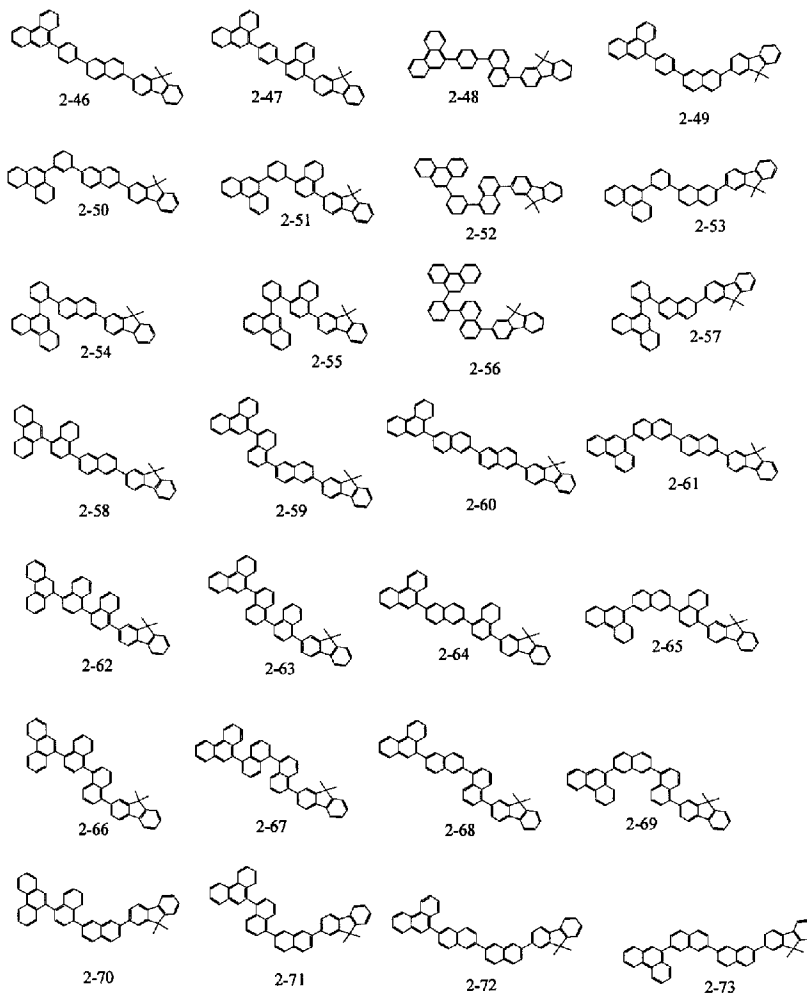
[請求項26]

前記式 (C-3) ~ (C-6) 中、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>、Ar<sup>7</sup>及び/又はAr<sup>9</sup>が1つ又は複数の置換基を有する場合、該置換基は、炭素数1~20のアルキル基、炭素数1~20のハロアルキル基、環形成炭素数5~18のシクロアルキル基、炭素数3~20のシリル基、シアノ基、ハロゲン原子又は環形成炭素数6~22のアリール基である請求項25に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

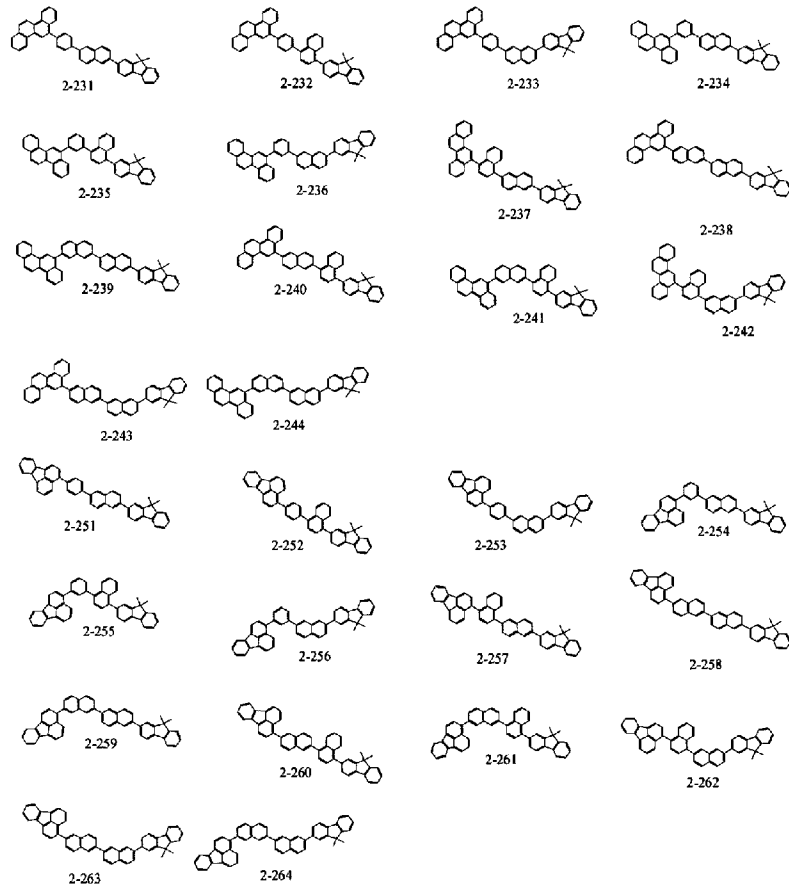
[請求項27]

下記式のいずれかで表わされる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

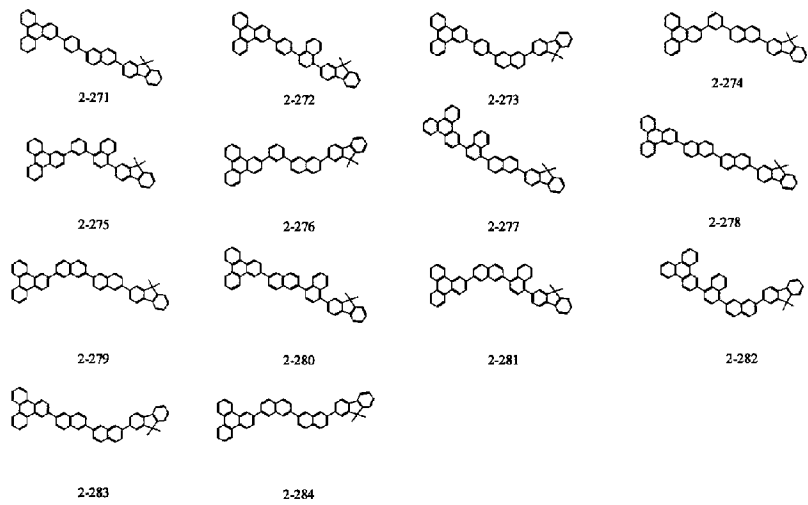
[化17]



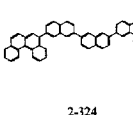
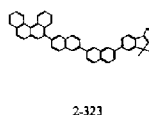
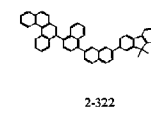
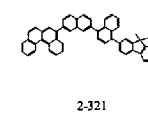
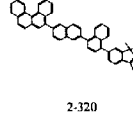
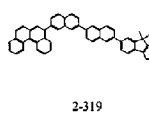
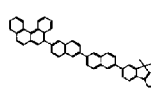
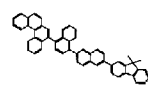
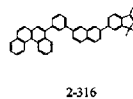
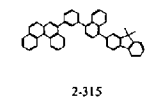
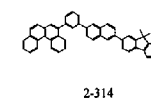
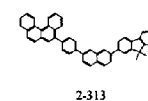
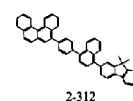
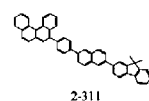
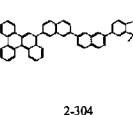
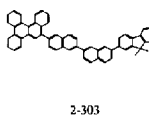
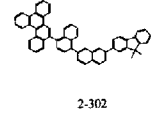
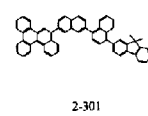
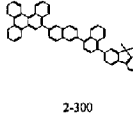
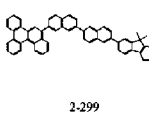
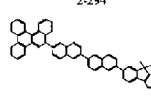
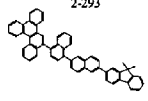
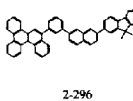
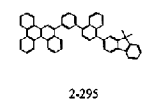
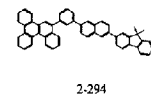
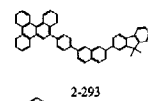
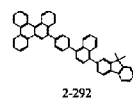
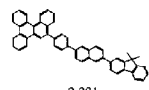
[化18]



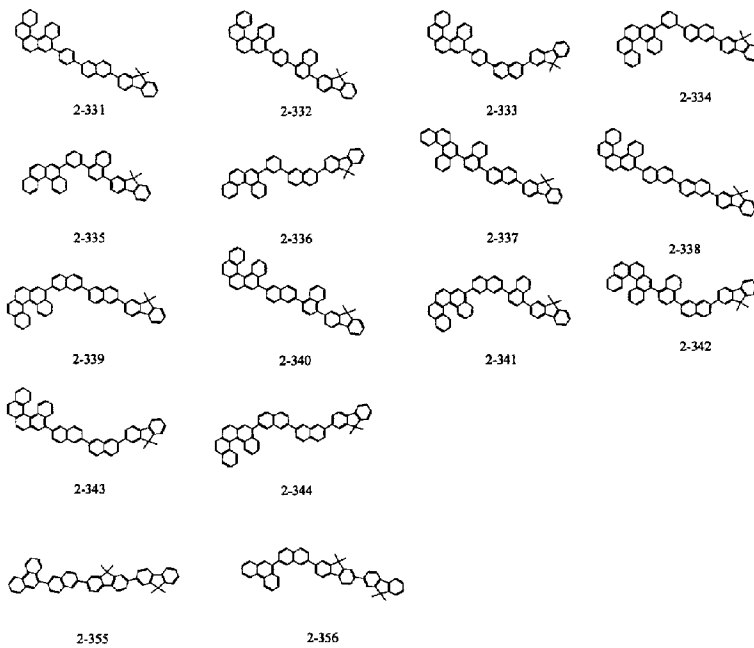
[化19]



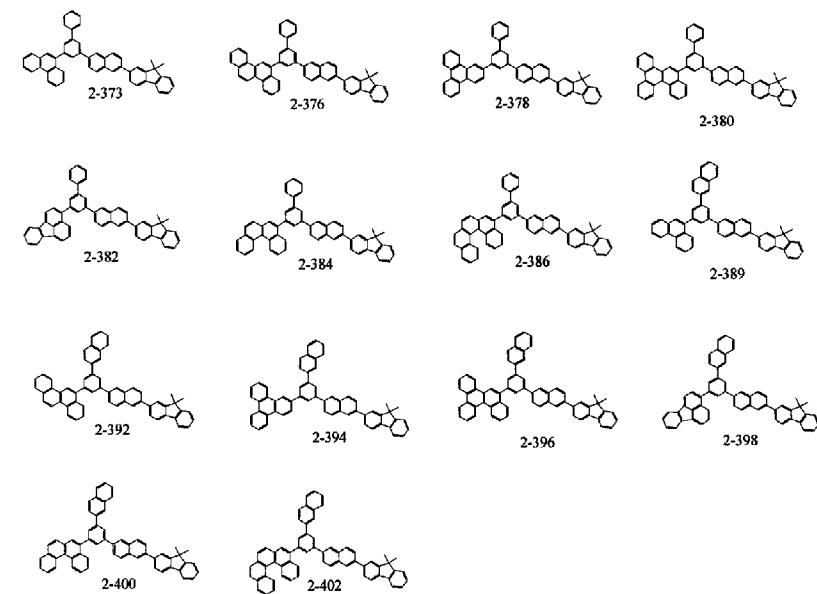
[化20]



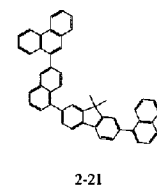
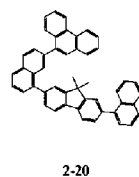
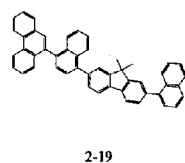
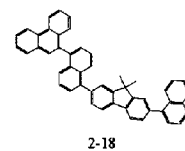
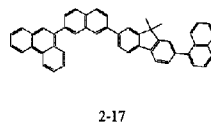
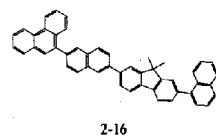
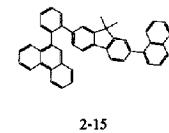
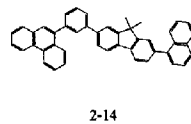
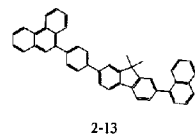
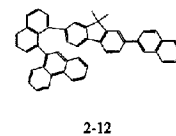
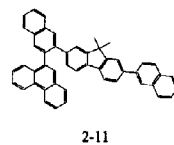
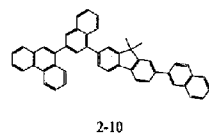
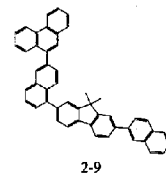
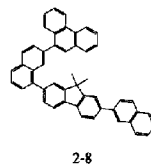
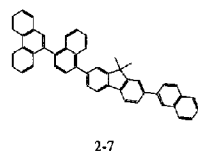
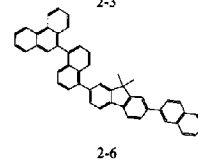
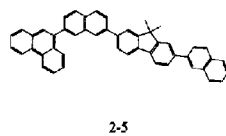
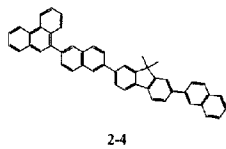
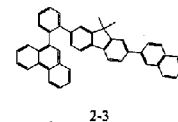
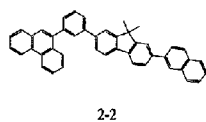
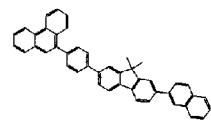
[化21]



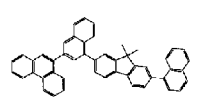
[化22]



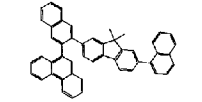
[化23]



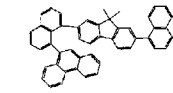
[化24]



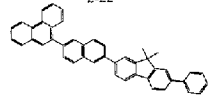
2-22



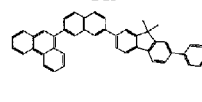
2-23



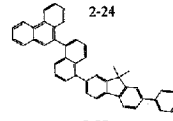
2-24



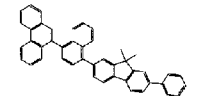
2-25



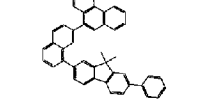
2-26



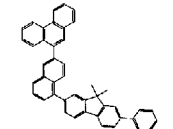
2-27



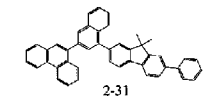
2-28



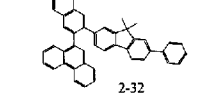
2-29



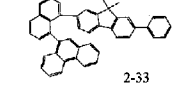
2-30



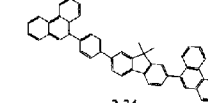
2-31



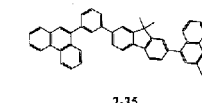
2-32



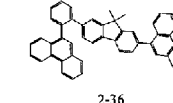
2-33



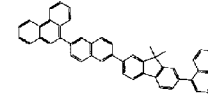
2-34



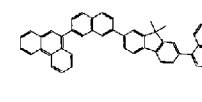
2-35



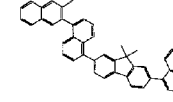
2-36



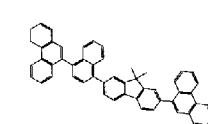
2-37



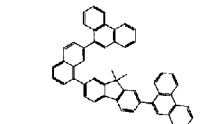
2-38



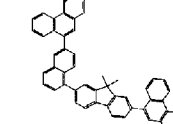
2-39



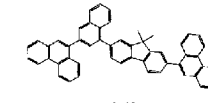
2-40



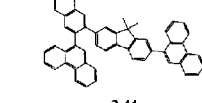
2-41



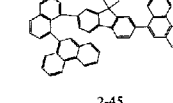
2-42



2-43



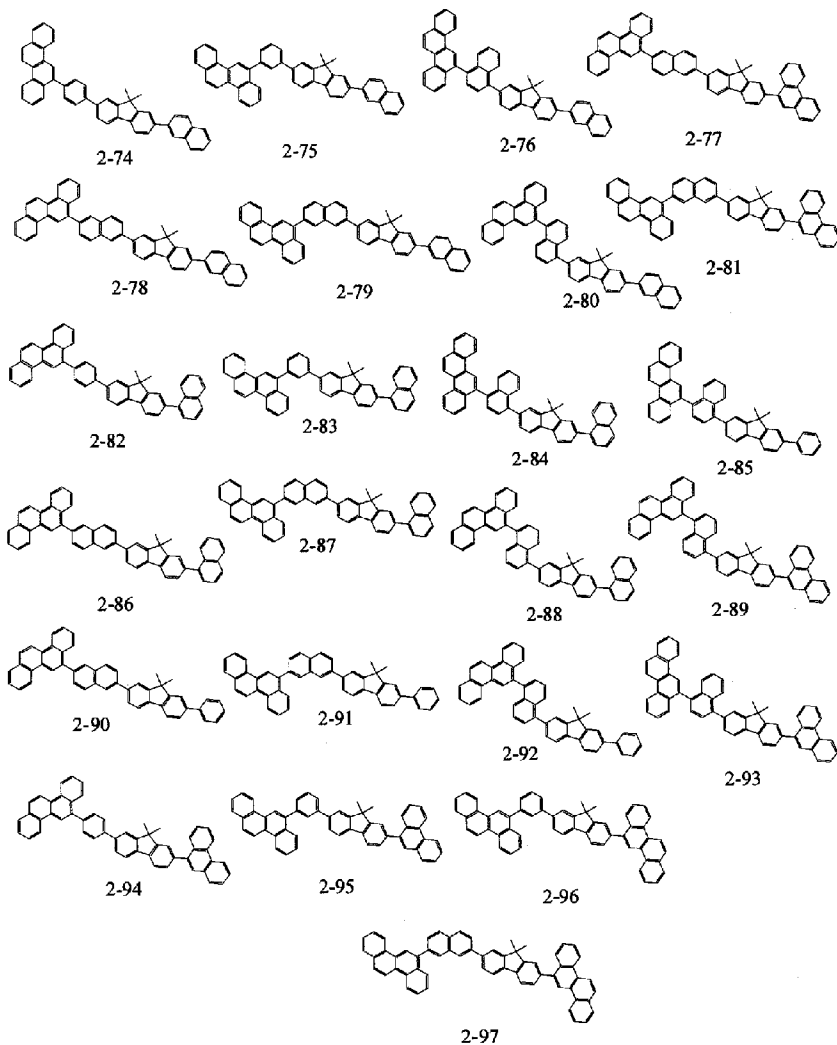
2-44



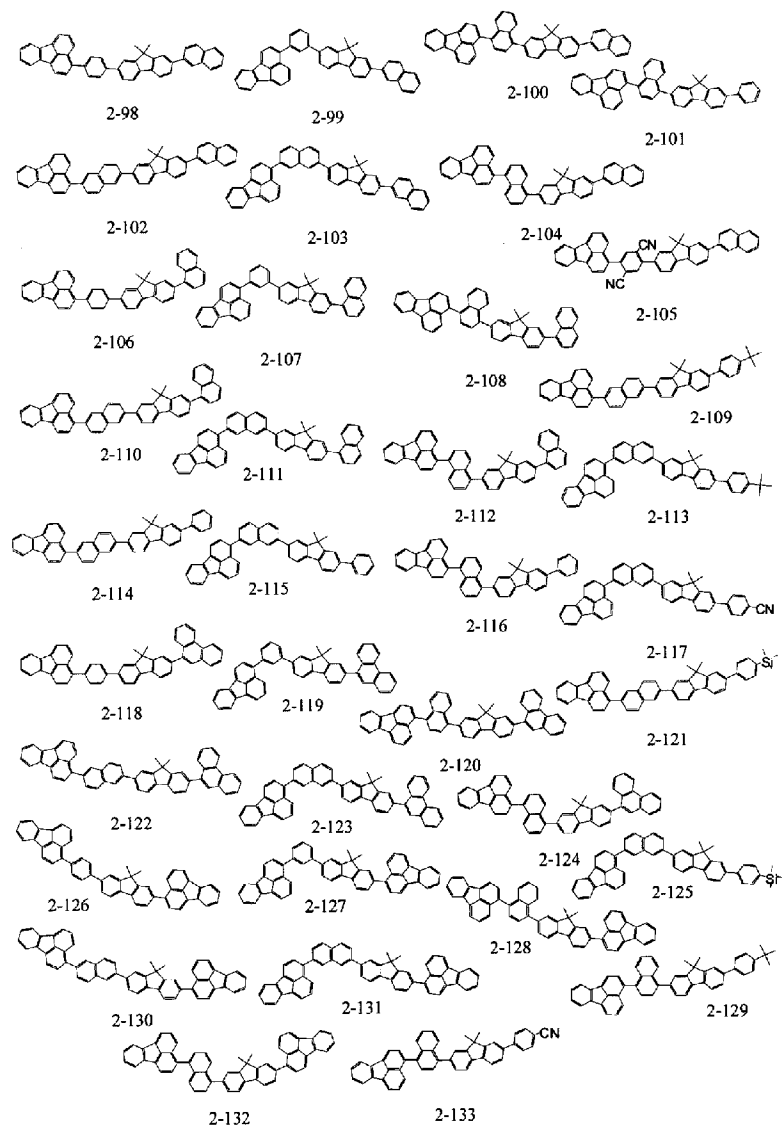
2-45



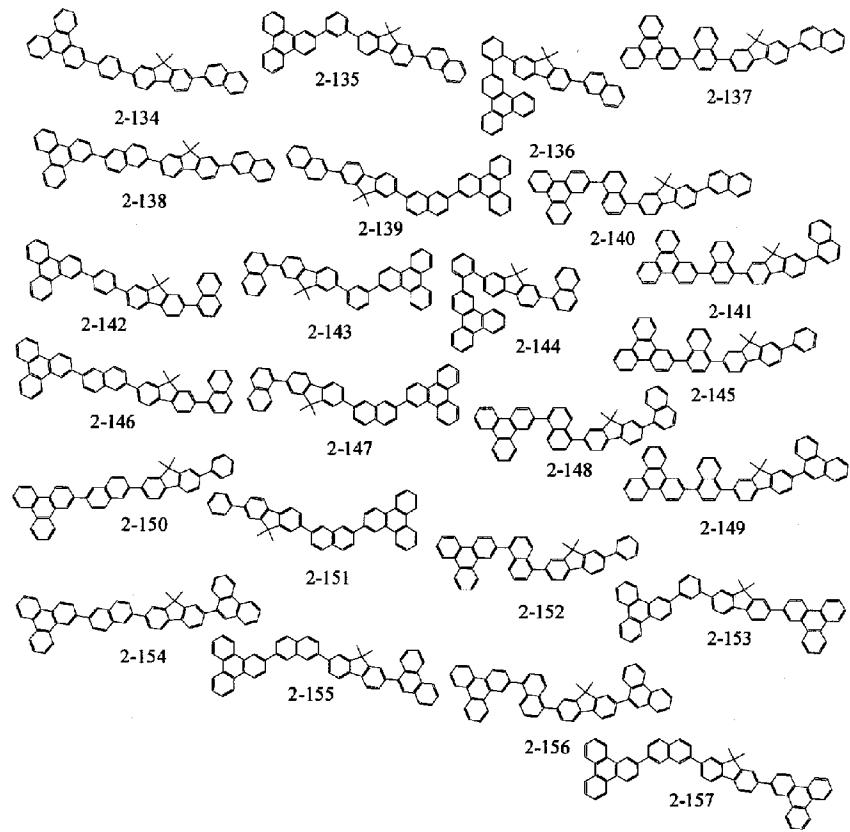
[化25]



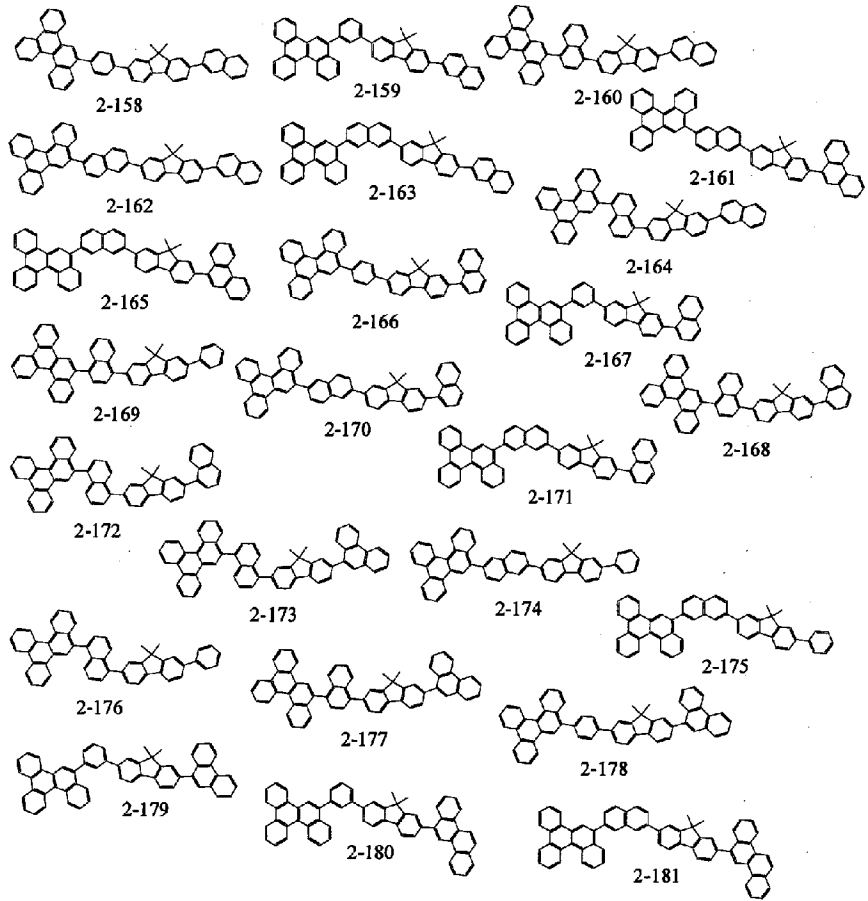
[化26]



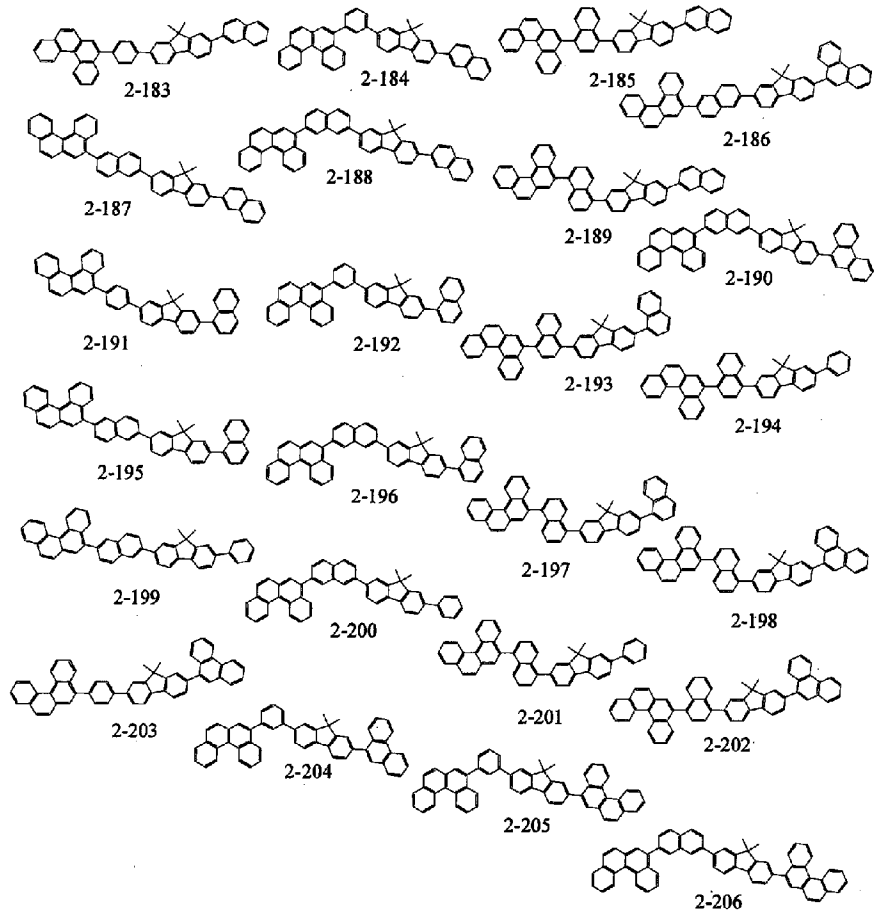
[化27]



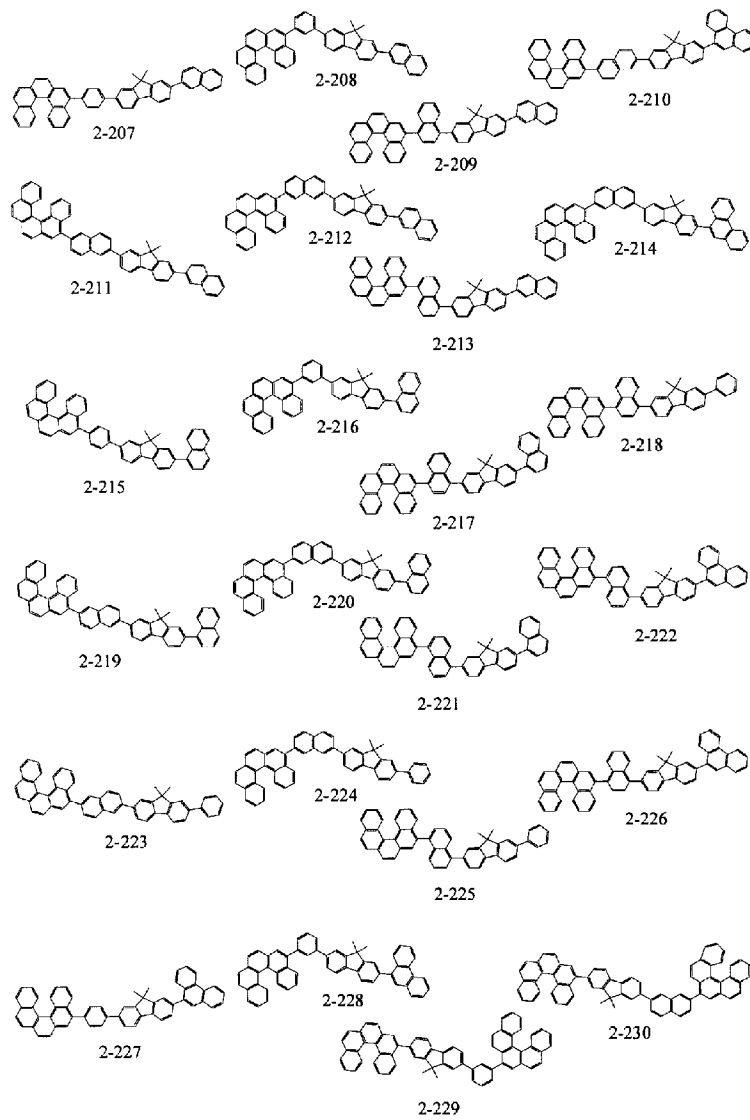
[化28]



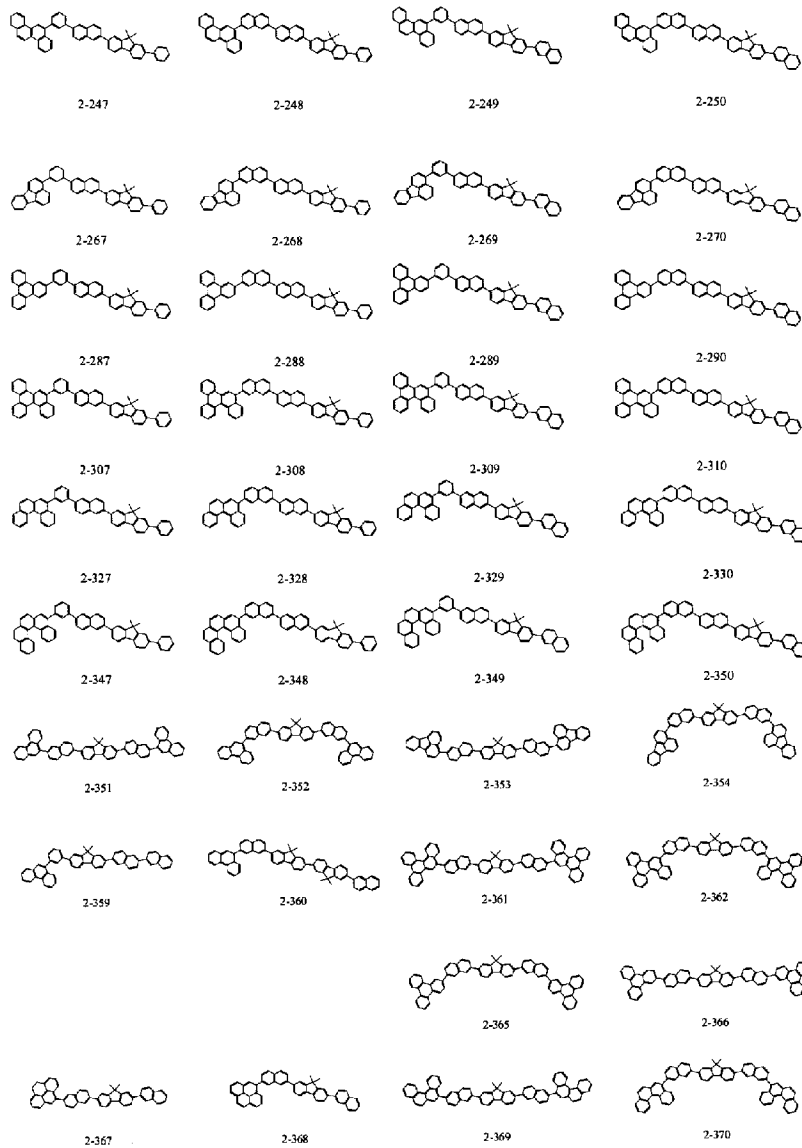
[化29]



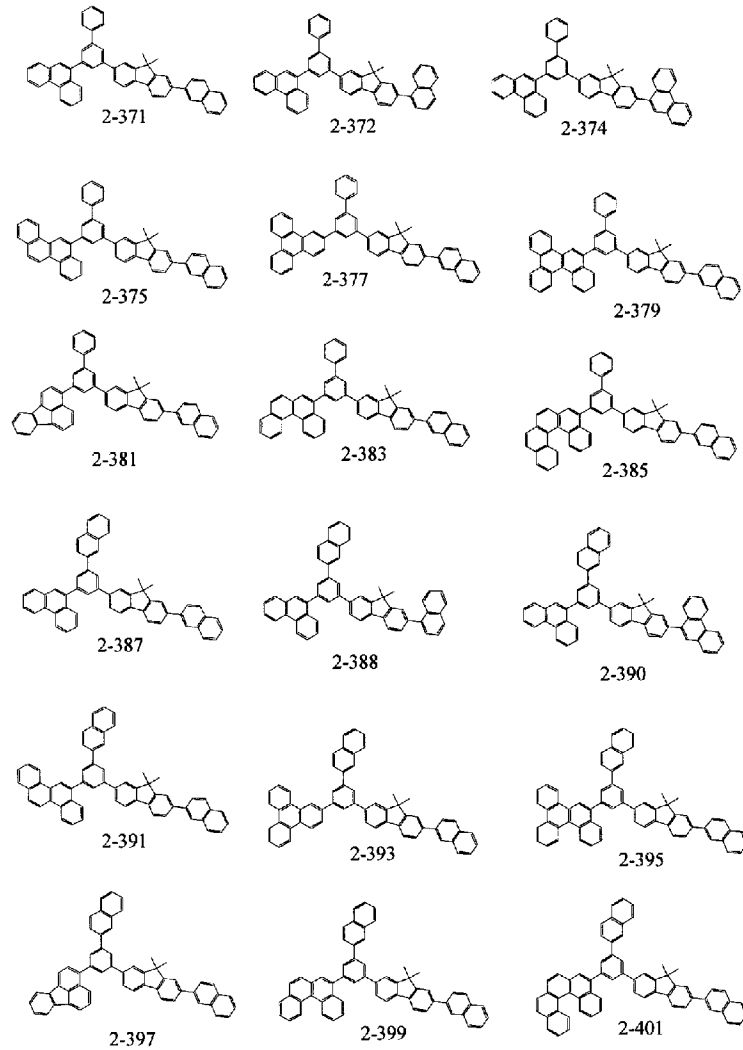
[化30]



[化31]



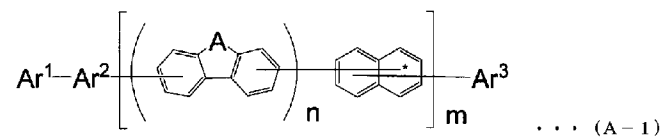
[化32]



[請求項28]

陰極と陽極との間に、1層又は複数層からなる有機薄膜層を備え、  
 前記有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、  
 前記発光層の少なくとも1つは、  
 燐光発光を示す燐光発光材料を少なくとも1種と、  
 下記式（A-1）で表されるホスト材料と、を含むことを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化33]





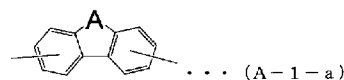
(式中、 $A r^1$ 及び $A r^3$ は、それぞれ独立に、水素原子(重水素原子を含む)、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフタレン環、置換もしくは無置換のクリセン環、置換もしくは無置換のフェナントレン環、置換もしくは無置換のベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のジベンゾフェナントレン環、置換もしくは無置換のトリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾ[a]トリフェニレン環、置換もしくは無置換のベンゾクリセン環、置換もしくは無置換のフルオランテン環、置換もしくは無置換のベンゾ[b]フルオランテン環、及び、置換もしくは無置換のピセン環から選択される縮合芳香族炭化水素環残基を表す。

$A r^2$ は、置換もしくは無置換のベンゼン環残基、又は、置換もしくは無置換のナフタレン環残基、置換もしくは無置換のフェナントレン環残基を表す。

Aは、O、S又は $CR^1R^2$ を示す。 $R^1$ 及び $R^2$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、炭素数3~20のシリル基を表す。

nは1~3の整数を示す。mは1又は2の整数を示す。nが2以上の場合、 $( )_n$ 内の下記式(A-1-a)は、同じであっても、異なっても良い。) )

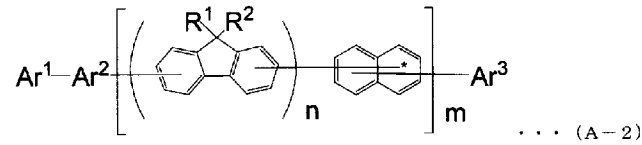
[化34]



[請求項29]

請求項28に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、式(A-1)が下記式(A-2)で表されることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化35]

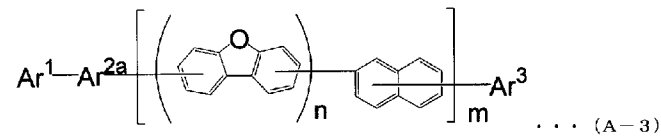


(Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>、Ar<sup>3</sup>、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、n及びmは前記と同じである。)

[請求項30]

請求項28に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、式(A-1)が下記式(A-3)で表されることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化36]

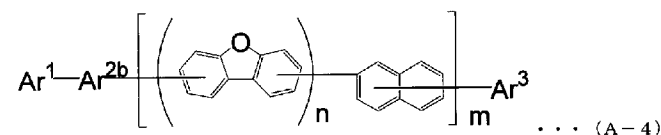


(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>3</sup>、n及びmは前記と同じであり、Ar<sup>2a</sup>は置換もしくは無置換のベンゼン環又は置換もしくは無置換のフェナントレン環である。この場合、Ar<sup>3</sup>はジベンゾフラン環残基に結合するナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。)

[請求項31]

請求項28に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、式(A-1)が下記式(A-4)で表されることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化37]



(式中、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>3</sup>、n及びmは前記と同じであり、Ar<sup>2b</sup>は置換もしくは無置換のナタフレン環残基である。Ar<sup>2b</sup>が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合する場合は、Ar<sup>1</sup>又はAr<sup>3</sup>のどちらか一方は、それぞれが結合するナフタレン環残基の6位又は7位に

において結合する。A r<sup>2b</sup>が、その2位においてジベンゾフラン環残基に結合しない場合は、A r<sup>3</sup>はナフタレン環残基の6位又は7位に結合する。また、A r<sup>1</sup>、A r<sup>3</sup>が共に水素である場合を除く。)

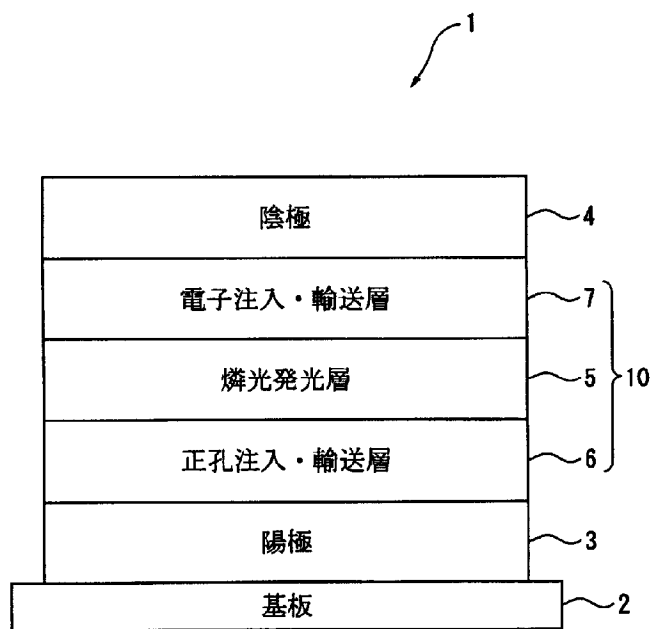
- [請求項32] 陰極と陽極との間に、1層又は複数層からなる有機薄膜層を備え、該有機薄膜層は、少なくとも1つの発光層を有し、該有機薄膜層の少なくとも1層が、燐光発光材料の少なくとも1種と、請求項1～23及び25～27のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料とを含む有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項33] 前記発光層の少なくとも1つが前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料と、前記燐光発光材料の少なくとも1種とを含む請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項34] 前記燐光発光材料が、金属錯体を含有し、該金属錯体が、I r, P t, O s, A u, C u, R e及びR uから選択される金属原子と、配位子とを有する請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項35] 前記配位子が、錯体を形成する金属原子とオルトメタル結合を有する請求項34に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項36] 前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料の励起三重項エネルギーが、2.0 eV以上2.8 eV以下である請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項37] 前記燐光発光材料のうち少なくとも1種の、発光波長の極大値が520 nm以上720 nm以下である請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項38] 前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項39] 前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層又は電子注入層を有し、前記電子輸送層又は前記電子注入層が、含窒素6

員環もしくは5員環骨格を有する芳香族環又は含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する縮合芳香族環化合物を含む請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項40] 前記有機薄膜層が、前記陰極と前記発光層との間に電子輸送層又は電子注入層を有し、前記電子輸送層又は前記電子注入層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項41] 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いる請求項32に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/071337

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L51/50(2006.01) i, C07D307/91(2006.01) i, C09K11/06(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) H01L51/50, C07D307/91, C09K11/06														
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched														
<table border="0"> <tr> <td>Jitsuyo Shinan Koho</td> <td>1922-1996</td> <td>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</td> <td>1996-2010</td> </tr> <tr> <td>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</td> <td>1971-2010</td> <td>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</td> <td>1994-2010</td> </tr> </table>			Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010	Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010				
Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010											
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010											
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)														
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT														
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
X	JP 2004-43349 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 12 February 2004 (12.02.2004), exemplified compounds [B-6], [B-7], [B-10], [B-12], [B-16], [B-17], [B-18], [B-22], [B-27], [B-30]; paragraphs [0081], [0083], [0084] (Family: none)	1, 2, 6, 28, 29, 32-41												
A	WO 2008/143416 A1 (GRACEL DISPLAY INC.), 27 November 2008 (27.11.2008), claims 1 to 11 & EP 2061858 A & KR 10-0857023 B1	1-41												
A	US 2008/0100207 A1 (Park et al.), 01 May 2008 (01.05.2008), entire text; all drawings & KR 10-2008-0039057 A	1-41												
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.														
<table border="0"> <tr> <td>* Special categories of cited documents:</td> <td>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</td> </tr> <tr> <td>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</td> <td>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</td> </tr> <tr> <td>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</td> <td>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</td> </tr> <tr> <td>"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)</td> <td>"&amp;" document member of the same patent family</td> </tr> <tr> <td>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</td> <td></td> </tr> <tr> <td>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</td> <td></td> </tr> </table>			* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention	"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone	"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art	"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family	"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	
* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention													
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone													
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art													
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family													
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means														
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed														
Date of the actual completion of the international search 10 March, 2010 (10.03.10)	Date of mailing of the international search report 23 March, 2010 (23.03.10)													
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer													
Facsimile No.	Telephone No.													

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/071337

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-302650 A (Canon Inc.), 22 November 2007 (22.11.2007), entire text; all drawings & JP 2009-179636 A & JP 2009-179637 A & JP 2009-215308 A & US 2009/0200919 A & EP 1885670 A & WO 2007/072889 A1 & KR 10-2008-0081322 A & CN 101218196 A	1-41
P,X	JP 2009-84256 A (Canon Inc.), 23 April 2009 (23.04.2009), entire text; all drawings & US 2009/0091252 A1 & EP 2045231 A1 & CN 101402545 A & KR 10-2009-0034741 A	1, 2, 6, 28, 29, 32-41
E,A	JP 2009-249378 A (Gracel Display Inc.), 29 October 2009 (29.10.2009), entire text; all drawings & EP 2108689 A & KR 10-0910150 B1 & CN 101560136 A	1-41
P,A	JP 2009-149638 A (Gracel Display Inc.), 09 July 2009 (09.07.2009), entire text; all drawings & US 2009/0153039 A & EP 2067766 A1 & KR 10-2009-0051647 A & CN 101531599 A	1-41

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2009/071337

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

There is no any novel constitution with respect to the invention-defining matter common to all claims 1, 7, 19, 27 and 28 as independent claims. It is not recognized that there is a technical relationship involving one or more same or corresponding "special technical feature" among the inventions in those claims.

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07D307/91(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50, C07D307/91, C09K11/06		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2010年 日本国実用新案登録公報 1996-2010年 日本国登録実用新案公報 1994-2010年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2004-43349 A (三井化学株式会社) 2004.02.12, 例示化合物 [B-6], [B-7], [B-10], [B-12], [B-16], [B-17], [B-18], [B-22], [B-27] , [B-30]、段落【0081】、【0083】、【0084】(ファミリーなし)	1, 2, 6, 28, 29, 32-41
A	WO 2008/143416 A1 (GRACEL DISPLAY INC.) 2008.11.27, 【Claim1】 - 【Claim11】 & EP 2061858 A & KR 10-0857023 B1	1-41
<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 10.03.2010	国際調査報告の発送日 23.03.2010	
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) 濱野 隆 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 9108

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	US 2008/0100207 A1 (Park et al.) 2008.05.01, 全文全図 & KR 10-2008-0039057 A	1-41
A	JP 2007-302650 A (キヤノン株式会社) 2007.11.22, 全文全図 & JP 2009-179636 A & JP 2009-179637 A & JP 2009-215308 A & US 2009/0200919 A & EP 1885670 A & WO 2007/072889 A1 & KR 10-2008-0081322 A & CN 101218196 A	1-41
P, X	JP 2009-84256 A (キヤノン株式会社) 2009.04.23, 全文全図 & US 2009/0091252 A1 & EP 2045231 A1 & CN 101402545 A & KR 10-2009-0034741 A	1, 2, 6, 28, 29, 32-41
E, A	JP 2009-249378 A (グラセル・ディスプレイ・インコーポレーテッド) 2009.10.29, 全文全図 & EP 2108689 A & KR 10-0910150 B1 & CN 101560136 A	1-41
P, A	JP 2009-149638 A (グラセル・ディスプレイ・インコーポレーテッド) 2009.07.09, 全文全図 & US 2009/0153039 A & EP 2067766 A1 & KR 10-2009-0051647 A & CN 101531599 A	1-41

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条 (2) (a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求項 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
  
2.  請求項 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
  
3.  請求項 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときの国際調査機関は認めた。

独立形式請求項である1、7、19、27及び28のすべてに共通する発明特定事項に新規な構成は存在せず、これら請求項に係る発明の間に一以上の同一又は対応する「特別な技術的特徴」を含む技術的な関係は認められない。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。