

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6430370号
(P6430370)

(45) 発行日 平成30年11月28日(2018.11.28)

(24) 登録日 平成30年11月9日(2018.11.9)

(51) Int.Cl.		F I	
CO9K 11/06	(2006.01)	CO9K 11/06	620
CO7D 265/38	(2006.01)	CO9K 11/06	645
CO7D 209/88	(2006.01)	CO9K 11/06	650
HO1L 51/50	(2006.01)	CO9K 11/06	655
		CO7D 265/38	CSP

請求項の数 15 (全 91 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2015-511242 (P2015-511242)	(73) 特許権者	516003621 株式会社 Kyulux 福岡県福岡市西区九大新町4番地1
(86) (22) 出願日	平成26年4月7日(2014.4.7)	(74) 代理人	110000109 特許業務法人特許事務所サイクス
(86) 国際出願番号	PCT/JP2014/060051	(72) 発明者	イ セヨン 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内
(87) 国際公開番号	W02014/168101	(72) 発明者	安田 琢磨 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内
(87) 国際公開日	平成26年10月16日(2014.10.16)	(72) 発明者	安達 千波矢 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内
審査請求日	平成29年2月22日(2017.2.22)		
(31) 優先権主張番号	特願2013-82529 (P2013-82529)		
(32) 優先日	平成25年4月10日(2013.4.10)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		
(31) 優先権主張番号	特願2013-224160 (P2013-224160)		
(32) 優先日	平成25年10月29日(2013.10.29)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光材料、有機発光素子および化合物

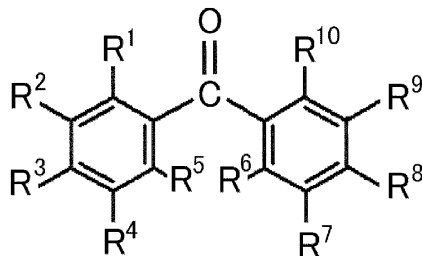
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(1)で表される化合物からなる発光材料。

【化1】

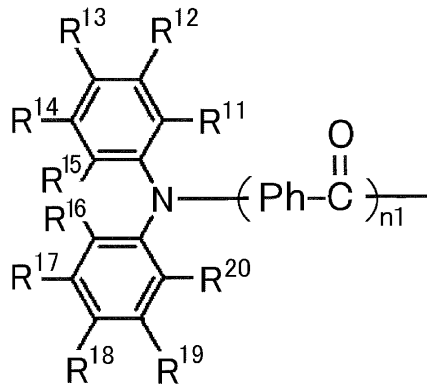
一般式(1)



[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^{10}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^{10}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)または下記一般式(7)で表される基である。 R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^4 と R^5 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。また、一般式(1)中に下記一般式(4)で表される基が含まれているとき、その基の数は2つ以上である。一般式(1)中に下記一般式(5)で表される基が含まれているとき、その基の数は2つ以上である。]

【化 2】

一般式 (2)

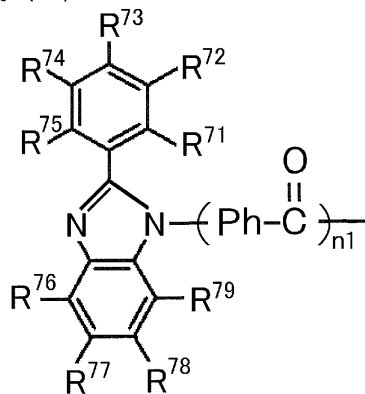


10

[一般式 (2) において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{15} と R^{16} は互いに結合して環状構造を形成しており、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成しているもよい。Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は 0 または 1 を表す。]

【化 3】

一般式 (7)



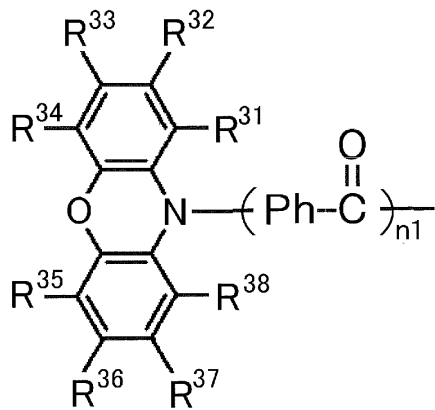
20

[一般式 (7) において、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成しているもよい。Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は 0 または 1 を表す。]

30

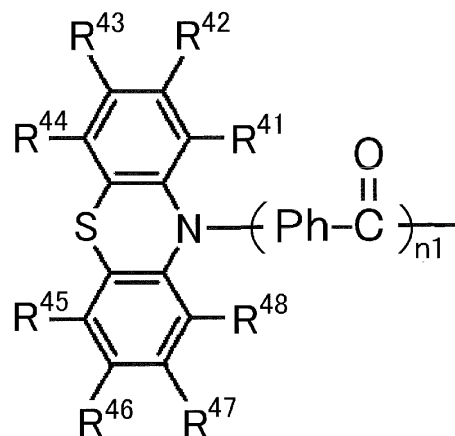
【化4】

一般式(4)



10

一般式(5)



20

[一般式(4)および(5)において、 $\text{R}^{31} \sim \text{R}^{38}$ 、 $\text{R}^{41} \sim \text{R}^{48}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。 $n1$ は0または1を表す。]

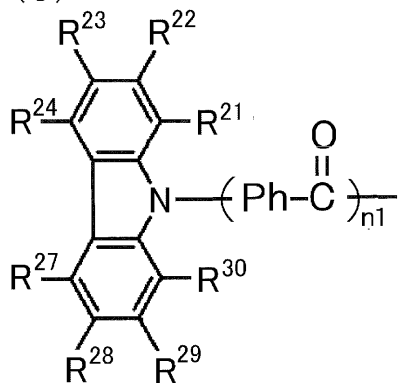
30

【請求項2】

前記一般式(2)で表される基が、下記一般式(3)~(6)、(8)のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項1に記載の発光材料。

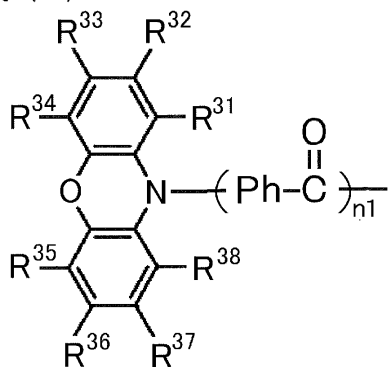
【化 5】

一般式 (3)



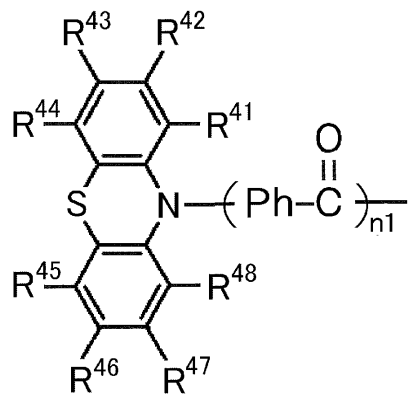
10

一般式 (4)



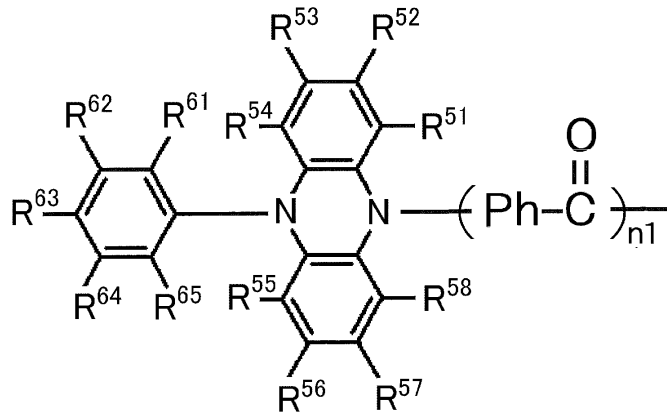
20

一般式 (5)



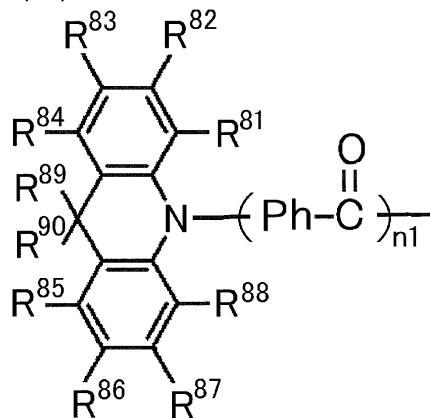
30

一般式 (6)



10

一般式 (8)



20

[一般式 (3) ~ (6)、(8) において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{64} と R^{65} 、 R^{54} と R^{61} 、 R^{55} と R^{65} 、 R^{81} と R^{82} 、 R^{82} と R^{83} 、 R^{83} と R^{84} 、 R^{85} と R^{86} 、 R^{86} と R^{87} 、 R^{87} と R^{88} 、 R^{89} と R^{90} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。n1 は 0 または 1 を表す。]

30

【請求項 3】

一般式 (1) の $R^1 \sim R^5$ のうちの少なくとも 1 つと、 $R^6 \sim R^{10}$ のうちの少なくとも 1 つが、前記一般式 (2) で表される基であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の発光材料。

【請求項 4】

一般式 (1) の R^3 と R^8 が、前記一般式 (2) で表される基であることを特徴とする請求項 3 に記載の発光材料。

40

【請求項 5】

前記一般式 (2) で表される基が、前記一般式 (4) で表される基であることを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 6】

前記一般式 (2) で表される基が、前記一般式 (3) で表される基であることを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 7】

前記一般式 (3) の $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{30}$ の少なくとも 1 つが置換基であることを特徴

50

とする請求項 6 に記載の発光材料。

【請求項 8】

前記置換基が、前記一般式 (3) ~ (8) のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項 7 に記載の発光材料。

【請求項 9】

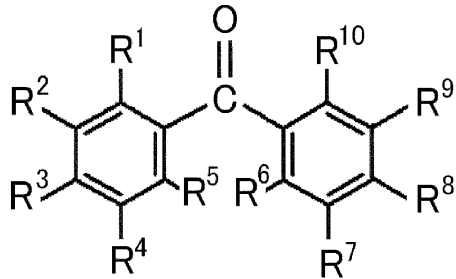
前記一般式 (3) の R^{23} および R^{28} の少なくとも 1 つが前記置換基であることを特徴とする請求項 8 に記載の発光材料。

【請求項 10】

下記一般式 (1) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

【化 6】

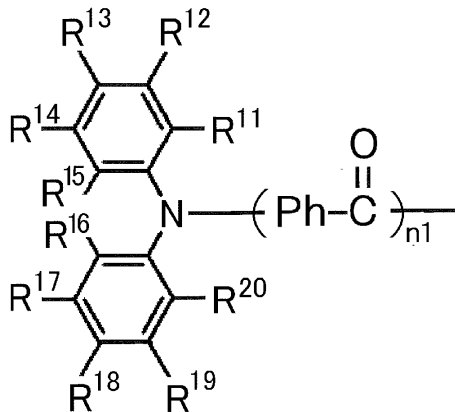
一般式 (1)



[一般式 (1) において、 $R^1 \sim R^{10}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^{10}$ の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 (2) または下記一般式 (7) で表される基である。 R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^4 と R^5 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。また、一般式 (1) 中に下記一般式 (4) で表される基が含まれているとき、その基の数は 2 つ以上である。一般式 (1) 中に下記一般式 (5) で表される基が含まれているとき、その基の数は 2 つ以上である。]

【化 7】

一般式 (2)



[一般式 (2) において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{15} と R^{16} は互いに結合して環状構造を形成しており、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は 0 または 1 を表す。]

10

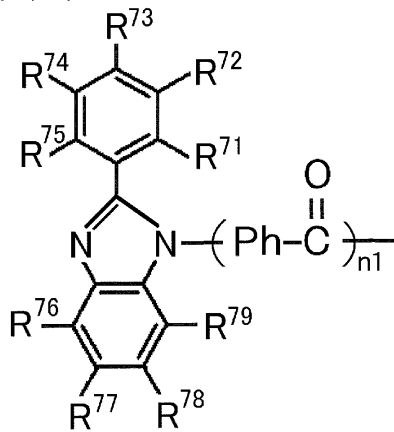
20

30

40

【化 8】

一般式 (7)

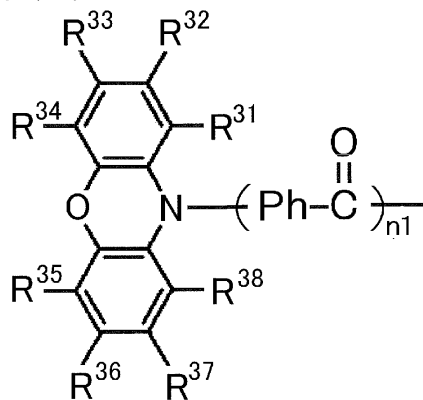


10

[一般式(7)において、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

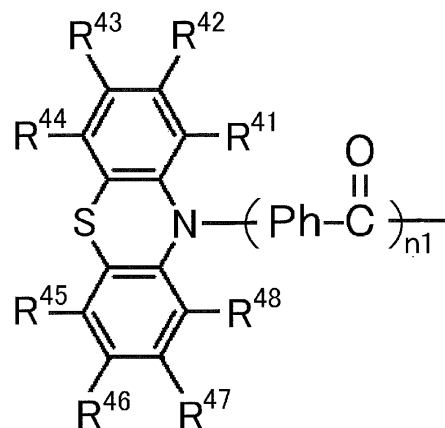
【化 9】

一般式 (4)



20

一般式 (5)



30

40

[一般式(4)および(5)において、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

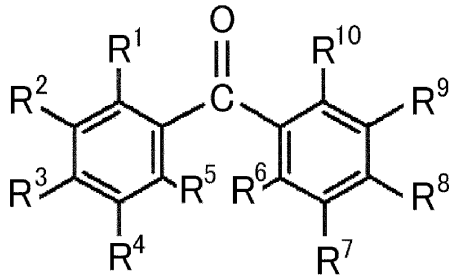
【請求項 11】

50

下記一般式(1)で表される化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化10】

一般式(1)

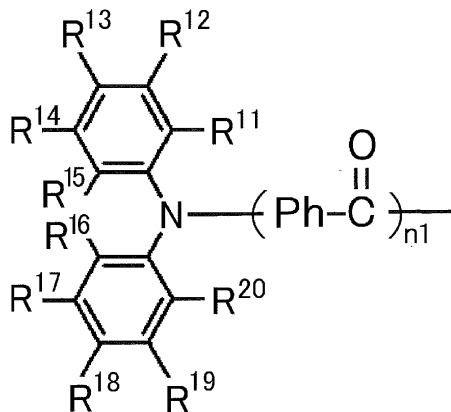


10

[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^{10}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^{10}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)または下記一般式(7)で表される基である。 R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^4 と R^5 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

【化11】

一般式(2)



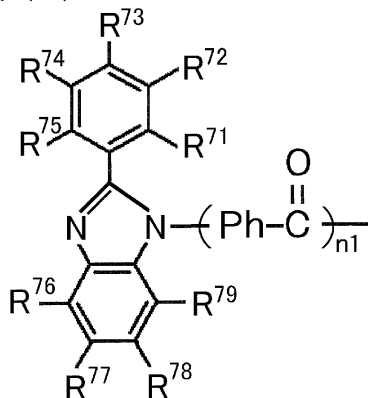
20

[一般式(2)において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{15} と R^{16} は互いに結合して環状構造を形成しており、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

30

【化12】

一般式(7)



40

[一般式(7)において、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

50

【請求項 1 2】

発光ピーク波長が異なる一般式(1)で表される発光材料を2種以上含むことを特徴とする請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 3】

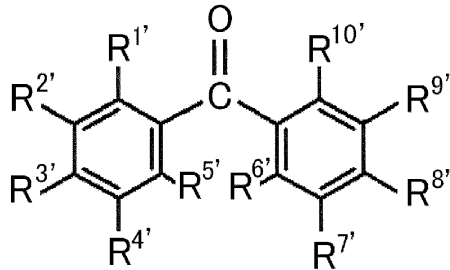
遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項11または12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 4】

下記一般式(1')で表される化合物。

【化 1 3】

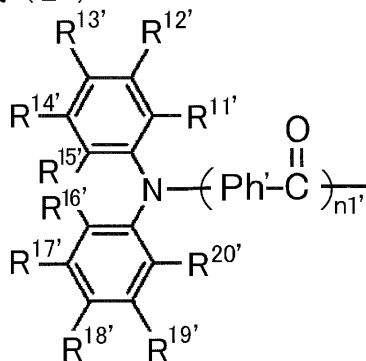
一般式(1')



[一般式(1')において、 $R^{1'}$ ~ $R^{10'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^{1'}$ ~ $R^{10'}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2')または下記一般式(7)で表される基である。 $R^{1'}$ と $R^{2'}$ 、 $R^{2'}$ と $R^{3'}$ 、 $R^{3'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{4'}$ と $R^{5'}$ 、 $R^{6'}$ と $R^{7'}$ 、 $R^{7'}$ と $R^{8'}$ 、 $R^{8'}$ と $R^{9'}$ 、 $R^{9'}$ と $R^{10'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。また、一般式(1')中に下記一般式(4)で表される基が含まれているとき、その基の数は2つ以上である。一般式(1')中に下記一般式(5)で表される基が含まれているとき、その基の数は2つ以上である。]

【化 1 4】

一般式(2')



[一般式(2')において、 $R^{11'}$ ~ $R^{20'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ は互いに結合して環状構造を形成しており、 $R^{11'}$ と $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$ と $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$ と $R^{14'}$ 、 $R^{17'}$ と $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$ と $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$ と $R^{20'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。ただし、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ が一緒になって単結合を形成するとき、 $R^{13'}$ と $R^{18'}$ は各々独立に水素原子または下記一般式(4) ~ (8)のいずれかで表される基であるが、少なくとも一方は前記一般式(4) ~ (8)のいずれかで表される基である。Ph' は置換または無置換のフェニレン基を表す。 $n_{1'}$ は0または1を表す。]

10

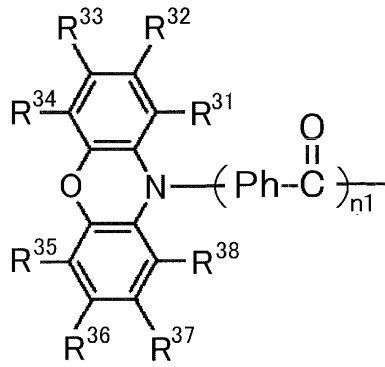
20

30

40

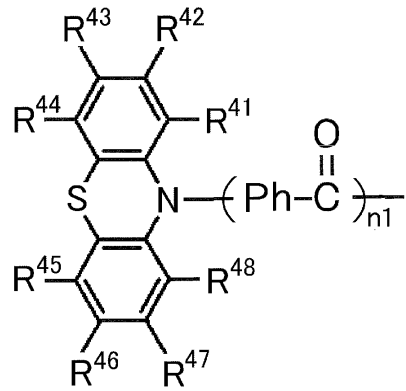
【化 1 5】

一般式 (4)



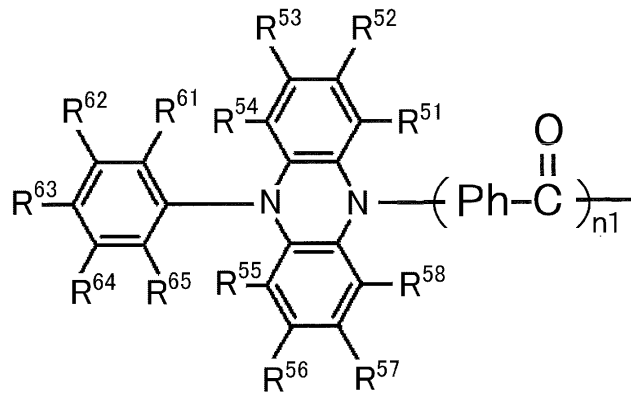
10

一般式 (5)



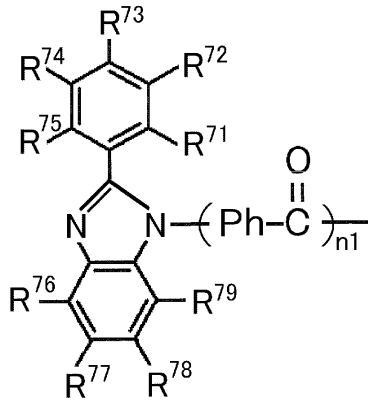
20

一般式 (6)



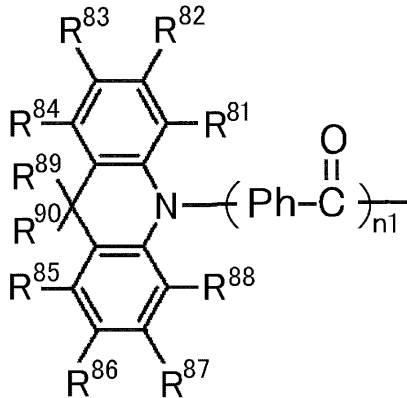
30

一般式 (7)



10

一般式 (8)



20

[一般式(4)~(8)において、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^{1'}$ ~ $R^{10'}$ の少なくとも1つが一般式(7)で表される基であるとき、該一般式(7)で表される基の $R^{71} \sim R^{75}$ は、水素原子である。 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{64} と R^{65} 、 R^{54} と R^{61} 、 R^{55} と R^{65} 、 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} 、 R^{81} と R^{82} 、 R^{82} と R^{83} 、 R^{83} と R^{84} 、 R^{85} と R^{86} 、 R^{86} と R^{87} 、 R^{87} と R^{88} 、 R^{89} と R^{90} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。n1は0または1を表す。]

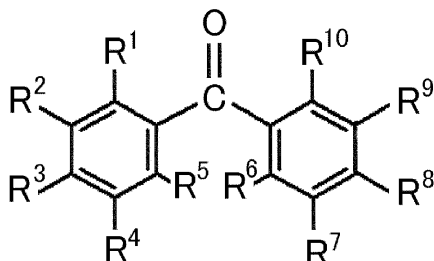
30

【請求項15】

下記一般式(1)で表される化合物の遅延蛍光体としての使用。

【化16】

一般式(1)



40

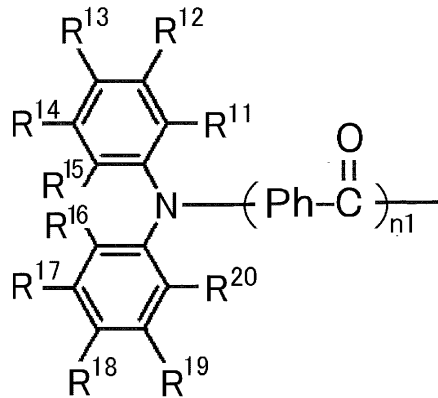
[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^{10}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^{10}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)または下記一般式(7)で表される基である。 R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^4 と R^5 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。また、一般式(

50

1) 中に下記一般式(4)で表される基が含まれているとき、その基の数は2つ以上である。一般式(1)中に下記一般式(5)で表される基が含まれているとき、その基の数は2つ以上である。]

【化17】

一般式(2)



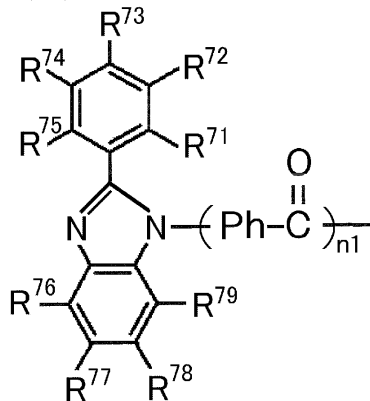
10

[一般式(2)において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{15} と R^{16} は互いに結合して環状構造を形成しており、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

20

【化18】

一般式(7)

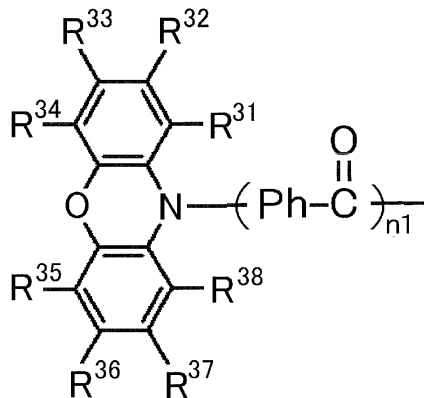


30

[一般式(7)において、 $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

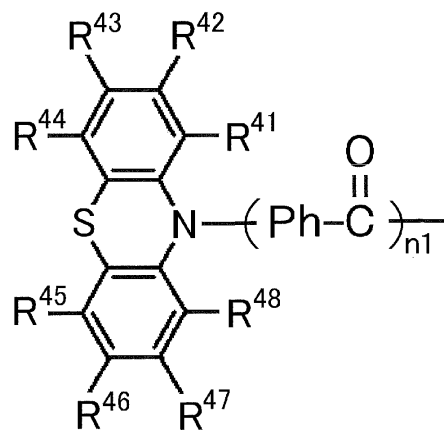
【化 19】

一般式 (4)



10

一般式 (5)



20

【一般式(4)および(5)において、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニル基を表す。 n_1 は0または1を表す。】

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光材料として有用な化合物とそれを用いた有機発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

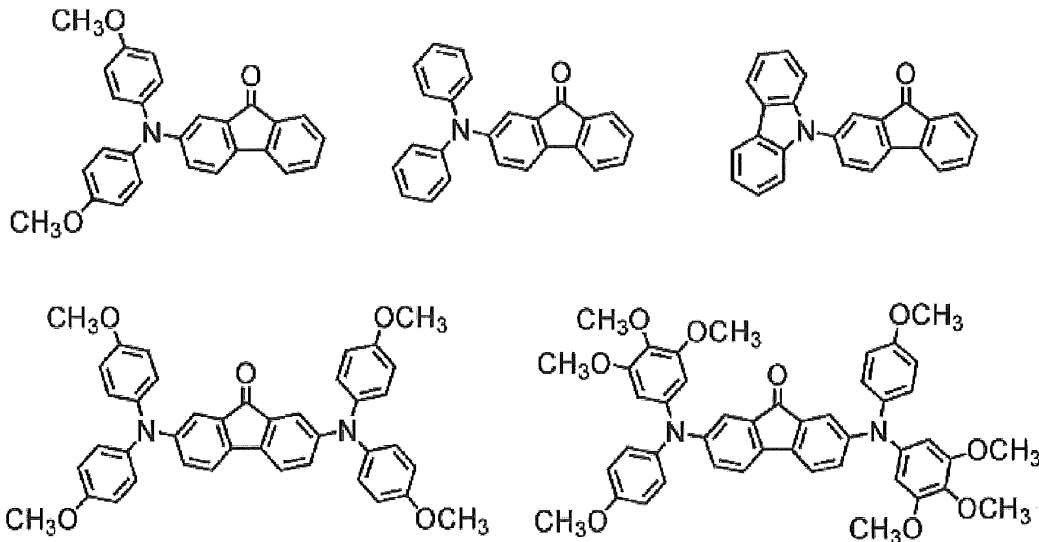
有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)などの有機発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する電子輸送材料、正孔輸送材料、発光材料などを新たに開発して組み合わせることにより、発光効率を高める工夫が種々なされてきている。その中には、フルオレノン誘導体を利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関する研究も見受けられる。

40

【0003】

非特許文献1には、フルオレノンの2位か7位の少なくとも一方にジアリールアミノ基を導入した化合物の溶液発光特性を検討した結果が記載されている。それによると、下記の構造を有するフルオレノン誘導体のヘキサンまたはアセトニトリル溶液に励起光を照射したところ可視領域に発光が認められたことが記載されている。しかしながら、特許文献1には、フルオレノン以外の類似骨格を有する化合物の発光特性については記載されていない。

【化1】



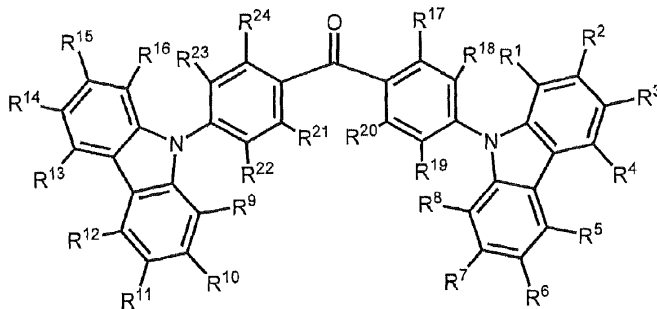
10

【0004】

一方、特許文献1には、下記の一般式で表される化合物を、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する一対の電極間に存在する発光層の中にホスト材料として用いた例や、正孔注入層の中に用いた例が記載されている。下記の一般式における $R^1 \sim R^{24}$ は、水素原子、ハロゲン原子、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、脂肪族複素環基、芳香族複素環基、シアノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、置換アミノ基、アシル基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基、アルキルスルホニル基、またはアリールスルホニル基を表すものと規定されている。しかしながら、特許文献1には、この一般式で表される化合物の発光特性については記載されていない。

20

【化2】



30

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0005】

【非特許文献1】Phys.Chem.Chem.Phys., 2012, 14, 11961-11968

40

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開2010-147115号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

上記のように、非特許文献1にはフルオレノン骨格にジアリールアミノ基を導入した化合物が発光材料として用い得ることが記載されている。しかしながら、本発明者らがフルオレノン骨格にジアリールアミノ基を導入した化合物の発光特性を実際に評価したところ、発光特性は十分に満足しうるものではなく（後掲の比較例1参照）、より優れた発光特

50

性を有する発光材料を提供する必要があることが判明した。

そこで本発明者らは、フルオレノン骨格に類似する骨格を有する化合物群について種々の検討を始め、多数の類似骨格の中からベンゾフェノン骨格を有する化合物群に発光材料として有用性があることを初めて見出し、さらに検討を進めることにした。上記のように、ベンゾフェノン骨格を有する化合物については、特許文献1において有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層のホスト材料や正孔注入層の正孔輸送材料として有用であることが記載されている。しかしながら、特許文献1に記載される化合物が、発光材料として機能しうるものであるか否かについては検討がなされていない。発光材料は、ホスト材料や正孔輸送材料とは要求される性質や機能が異なるため、特許文献1の一般式で表される化合物の発光材料としての有用性は不明である。また、特許文献1には、ベンゾフェノンにカルバゾール-9-イル基以外の置換アミノ基が結合した化合物については記載されていない。このため、カルバゾール-9-イル基以外の置換アミノ基が置換したベンゾフェノン誘導体については合成すらなされていないものもあり、発光材料としての有用性は予測がつかない。

10

【0008】

このような状況下において本発明者らは、ベンゾフェノン誘導体の発光材料としての有用性についてさらに検討を進め、発光特性が優れた化合物を見出すことを目指して研究を重ねた。そして、発光材料として有用な化合物の一般式を導きだし、発光効率が高い有機発光素子の構成を一般化することを目的として鋭意検討を進めた。

【課題を解決するための手段】

20

【0009】

鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、特定の構造を有するベンゾフェノン誘導体が発光材料として優れた性質を有することを見出した。また、そのような化合物群の中に、遅延蛍光材料として有用なものがあることを見出し、発光効率が高い有機発光素子を安価に提供しうることを明らかにした。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

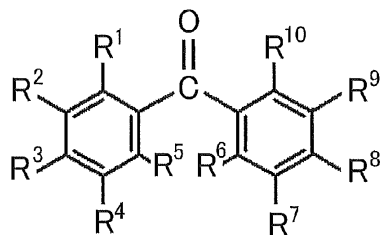
【0010】

[1] 下記一般式(1)で表される化合物からなる発光材料。

【化3】

一般式(1)

30

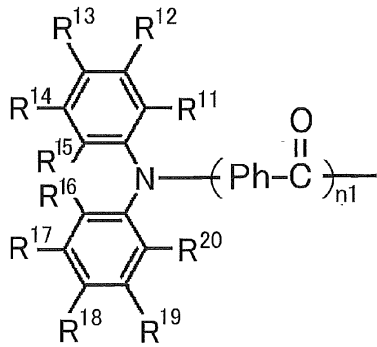


[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^{10}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^{10}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)で表される基である。 R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^4 と R^5 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

【化 4】

一般式 (2)



10

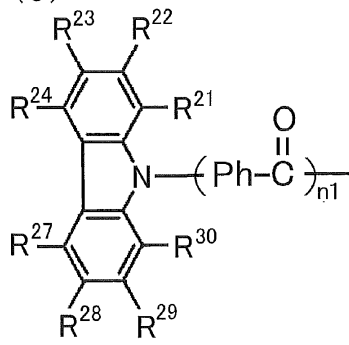
[一般式 (2) において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} 、 R^{15} と R^{16} 、 R^{16} と R^{17} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は 0 または 1 を表す。]

【 0 0 1 1 】

[2] 前記一般式 (2) で表される基が、下記一般式 (3) ~ (8) のいずれかで表される基であることを特徴とする [1] に記載の発光材料。

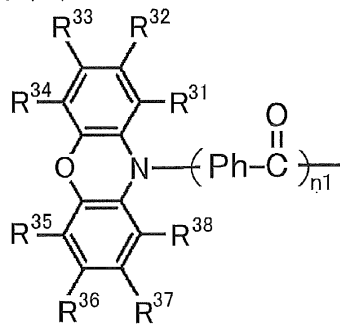
【化 5 - 1】

一般式 (3)



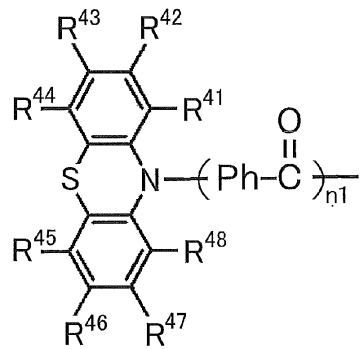
10

一般式 (4)



20

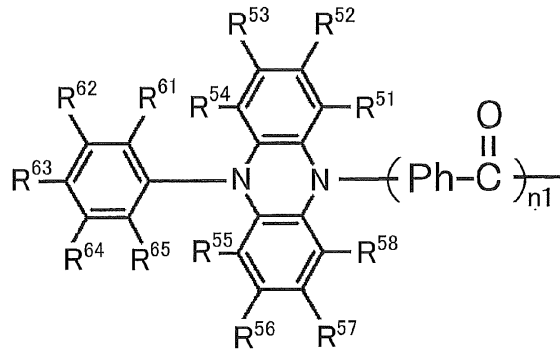
一般式 (5)



30

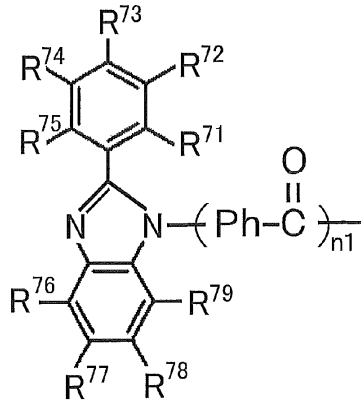
【化5-2】

一般式(6)



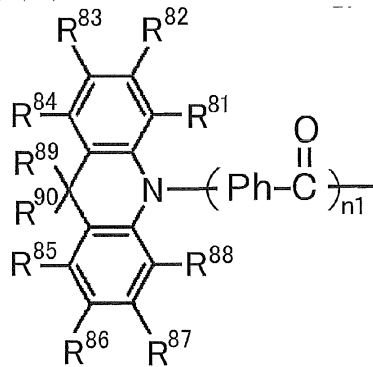
10

一般式(7)



20

一般式(8)



30

[一般式(3)~(8)において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{64} と R^{65} 、 R^{54} と R^{61} 、 R^{55} と R^{65} 、 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} 、 R^{81} と R^{82} 、 R^{82} と R^{83} 、 R^{83} と R^{84} 、 R^{85} と R^{86} 、 R^{86} と R^{87} 、 R^{87} と R^{88} 、 R^{89} と R^{90} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。Phは置換または無置換のフェニレン基を表す。 n_1 は0または1を表す。]

40

[3] 一般式(1)の $R^1 \sim R^5$ のうちの少なくとも1つと、 $R^6 \sim R^{10}$ のうちの少なくとも1つが、前記一般式(2)で表される基であることを特徴とする[1]または[2]に記載の発光材料。

[4] 一般式(1)の R^3 と R^8 が、前記一般式(2)で表される基であることを特徴とする[3]に記載の発光材料。

50

[5] 前記一般式(2)で表される基が、前記一般式(4)で表される基であることを特徴とする[1] ~ [4]のいずれか1項に記載の発光材料。

[6] 前記一般式(2)で表される基が、前記一般式(3)で表される基であることを特徴とする[1] ~ [4]のいずれか1項に記載の発光材料。

[7] 前記一般式(3)の $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{30}$ の少なくとも1つが置換基であることを特徴とする[6]に記載の発光材料。

[8] 前記置換基が、前記一般式(3) ~ (8)のいずれかで表される基であることを特徴とする[7]に記載の発光材料。

[9] 前記一般式(3)の R^{23} および R^{28} の少なくとも1つが前記置換基であることを特徴とする[8]に記載の発光材料。

10

[10] 前記一般式(1)で表される化合物からなる遅延蛍光体。

[11] [1] ~ [9]のいずれか1項に記載の発光材料を含むことを特徴とする有機発光素子。

[12]

発光ピーク波長が異なる一般式(1)で表される発光材料を2種以上含むことを特徴とする[11]に記載の有機発光素子。

[13]

遅延蛍光を放射することを特徴とする[11]または[12]に記載の有機発光素子。

[14]

有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする請求項[11] ~ [13]のいずれか1項に記載の有機発光素子。

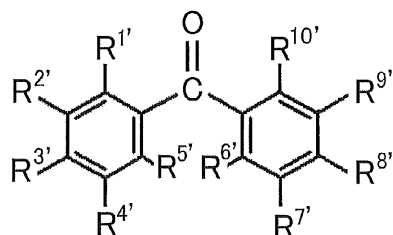
20

【 0 0 1 2 】

[15] 下記一般式(1')で表される化合物。

【化6】

一般式(1')

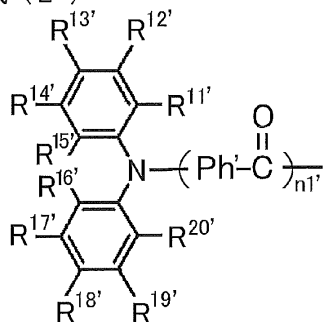


30

[一般式(1')において、 $R^{1'} \sim R^{10'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^{1'} \sim R^{10'}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2')で表される基である。 $R^{1'}$ と $R^{2'}$ 、 $R^{2'}$ と $R^{3'}$ 、 $R^{3'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{4'}$ と $R^{5'}$ 、 $R^{6'}$ と $R^{7'}$ 、 $R^{7'}$ と $R^{8'}$ 、 $R^{8'}$ と $R^{9'}$ 、 $R^{9'}$ と $R^{10'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

【化7】

一般式(2')



40

[一般式(2')において、 $R^{11'} \sim R^{20'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$ と $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$ と $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$ と $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$ と $R^{15'}$ 、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ 、

50

、 $R^{16'}$ と $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$ と $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$ と $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$ と $R^{20'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。ただし、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ が一緒になって単結合を形成するとき、 $R^{13'}$ と $R^{18'}$ は各々独立に水素原子または前記一般式(4)~(8)のいずれかで表される基であるが、少なくとも一方は前記一般式(4)~(8)のいずれかで表される基である。 Ph' は置換または無置換のフェニレン基を表す。 $n1'$ は0または1を表す。]

【発明の効果】

【0013】

本発明の化合物は、発光材料として有用である。また、本発明の化合物の中には遅延蛍光を放射するものが含まれている。本発明の化合物を発光材料として用いた有機発光素子は、高い発光効率を実現しうる。

10

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。

【図2】実施例1の化合物1の発光スペクトルである。

【図3】実施例1の化合物1の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図4】実施例1の化合物1の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図5】実施例1の化合物1の発光寿命スペクトルである。

20

【図6】実施例1の化合物1のサイクリックボルタンモグラムである。

【図7】実施例2の化合物2の発光スペクトルである。

【図8】実施例2の化合物2の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図9】実施例2の化合物2の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図10】実施例2の化合物2の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図11】実施例2の化合物2の発光寿命スペクトルである。

【図12】実施例2の化合物2のサイクリックボルタンモグラムである。

30

【図13】実施例3の化合物3の発光スペクトルである。

【図14】実施例3の化合物3の溶液の過渡減衰曲線である。

【図15】実施例3の化合物3の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図16】実施例3の化合物3の発光寿命スペクトルである。

【図17】実施例3の化合物3のサイクリックボルタンモグラムである。

【図18】実施例4、5の化合物17、18の発光スペクトルである。

【図19】実施例4の化合物17の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図20】実施例4の化合物17の発光寿命スペクトルである。

40

【図21】実施例4の化合物17のサイクリックボルタンモグラムである。

【図22】実施例5の化合物18の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図23】実施例5の化合物18の発光寿命スペクトルである。

【図24】実施例5の化合物18のサイクリックボルタンモグラムである。

【図25】比較例1の比較化合物Aの薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図26】実施例6の化合物1の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図27】実施例6の化合物1の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 -

50

発光強度特性を示すグラフである。

【図28】実施例6の化合物1の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度 - 外部量子効率特性を示すグラフである。

【図29】実施例7の化合物2の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図30】実施例7の化合物2の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 発光強度特性を示すグラフである。

【図31】実施例7の化合物2の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度 - 外部量子効率特性を示すグラフである。

【図32】実施例8の化合物3の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図33】実施例8の化合物3の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 発光強度特性を示すグラフである。

【図34】実施例8の化合物3の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度 - 外部量子効率特性を示すグラフである。

【図35】実施例9、10の化合物17、18の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図36】実施例9、10の化合物17、18の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 発光強度特性を示すグラフである。

【図37】実施例9、10の化合物17、18の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度 - 外部量子効率特性を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0015】

以下において、本発明の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施態様や具体例に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、本発明に用いられる化合物の分子内に存在する水素原子の同位体種は特に限定されず、例えば分子内の水素原子がすべて¹Hであってもよいし、一部または全部が²H（デュートリウムD）であってもよい。

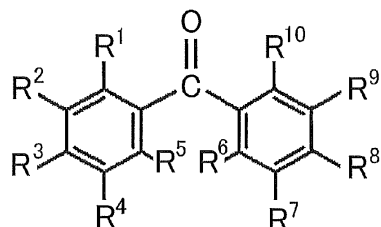
【0016】

[一般式(1)で表される化合物]

本発明の発光材料は、下記一般式(1)で表される化合物からなることを特徴とする。

【化8】

一般式(1)



【0017】

一般式(1)において、 $R^1 \sim R^{10}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^{10}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)で表される基である。下記一般式(2)で表される基は、 $R^1 \sim R^{10}$ のうちの1つのみであってもよいし、2つ以上であってもよい。

下記一般式(2)で表される基が $R^1 \sim R^{10}$ のうちの1つのみであるときは、 R^2 または R^3 が下記一般式(2)で表される基であることが好ましく、 R^3 が下記一般式(2)で表される基であることがより好ましい。

10

20

30

40

50

一方、 $R^1 \sim R^{10}$ のうち2つ以上が下記一般式(2)で表される基であるときは、下記一般式(2)で表される基は、 $R^1 \sim R^5$ の少なくとも1つと、 $R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも1つであることが好ましい。このとき、下記一般式(2)で表される基は、 $R^1 \sim R^5$ のうち1~4つ、 $R^6 \sim R^{10}$ のうち1~4つであることが好ましく、 $R^1 \sim R^5$ のうち1または2つ、 $R^6 \sim R^{10}$ のうち1または2つであることがより好ましい。 $R^1 \sim R^5$ のうち一般式(2)で表される基の数と、 $R^6 \sim R^{10}$ のうち一般式(2)で表される基の数は同じであっても異なってもよいが、同じであることが好ましい。 $R^1 \sim R^5$ のうちでは、 $R^2 \sim R^4$ の少なくとも1つが一般式(2)で表される基であることが好ましく、少なくとも R^3 が一般式(2)で表される基であることがより好ましい。また、 $R^6 \sim R^{10}$ のうちでは、 $R^7 \sim R^9$ の少なくとも1つが一般式(2)で表される基であることが好ましく、少なくとも R^8 が一般式(2)で表される基であることがより好ましい。好ましい化合物は、一般式(1)の R^3 と R^8 が一般式(2)で表される基である化合物、一般式(1)の R^2 と R^9 が一般式(2)で表される基である化合物、一般式(1)の R^2 、 R^4 、 R^7 、 R^9 が一般式(2)で表される基である化合物であり、さらに好ましい化合物は R^3 と R^8 が一般式(2)で表される基である化合物である。一般式(1)中に存在する複数の一般式(2)で表される基は、同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。また、一般式(1)で表される基は対称構造をとっていることも好ましい。すなわち、 R^1 と R^{10} 、 R^2 と R^9 、 R^3 と R^8 、 R^4 と R^7 、 R^5 と R^6 は、それぞれ同一であることが好ましい。

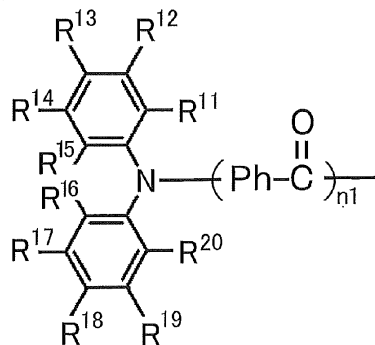
10

【0018】

20

【化9】

一般式(2)



30

【0019】

一般式(2)において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。置換基の数は特に制限されず、 $R^{11} \sim R^{20}$ のすべてが無置換(すなわち水素原子)であってもよい。 $R^{11} \sim R^{20}$ のうち2つ以上が置換基である場合、複数の置換基は互いに同一であっても異なってもよい。

$R^{11} \sim R^{20}$ がとりうる置換基と、 $R^1 \sim R^{10}$ がとりうる置換基として、例えばヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、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1~20のアルキルチオ基、炭素数1~20のアルキル置換アミノ基、炭素数2~20のアシル基、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2~10のアルケニル基、炭素数2~10のアルキニル基、炭素数2~10のアルコキシカルボニル基、炭素数1~10のアルキルスルホニル基、炭素数1~10のハロアルキル基、アミド基、炭素数2~10のアルキルアミド基、炭素数3~20のトリアルキルシリル基、炭素数4~20のトリアルキルシリルアルキル基、炭素数5~20のトリアルキルシリルアルケニル基、炭素数5~20のトリアルキルシリルアルキニル基およびニトロ基等が挙げられる。これらの具体例のうち、さらに置換基により置換可能なものは置換されていてもよい。より好ましい置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1~20の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数6~40の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数3~40の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、炭素数1~20のジアルキル置換アミノ基である。さらに好ましい置換基は

40

50

、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、炭素数 1 ~ 10 の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数 1 ~ 10 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 15 の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数 3 ~ 12 の置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。

【0020】

R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^4 と R^5 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} 、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} 、 R^{15} と R^{16} 、 R^{16} と R^{17} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は 2 環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、イミダゾリン環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、シクロヘキサジエン環、シクロヘキセン環、シクロペンタエン環、シクロヘプタトリエン環、シクロヘプタジエン環、シクロヘプタエン環などを挙げるができる。

10

【0021】

一般式(2)において、Ph は置換または無置換のフェニレン基を表す。フェニレン基は、1, 2 - フェニレン基、1, 3 - フェニレン基、1, 4 - フェニレン基のいずれであってもよい。より好ましいのは 1, 4 - フェニレン基である。フェニレン基の水素原子は置換基で置換されていてもよく、その場合の置換基としては、上記の $R^{11} \sim R^{20}$ がとりうる置換基と $R^1 \sim R^{10}$ がとりうる置換基として説明した置換基を挙げるができる。また、1, 2 - フェニレン基の 3 ~ 6 位置の隣あう水素原子どうし、1, 3 - フェニレン基の 4 ~ 6 位の隣あう水素原子どうし、1, 4 - フェニレン基の 2 位と 3 位の水素原子、5 位と 6 位の水素原子は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造の説明については、上記の R^1 と R^2 等が互いに結合して形成する環状構造として説明した環状構造を挙げるができる。

20

一般式(2)において、 n_1 は 0 または 1 を表す。

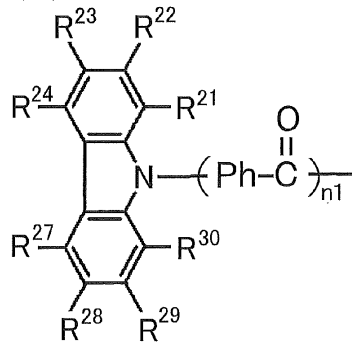
【0022】

一般式(2)で表される基は、下記一般式(3) ~ (8)のいずれかで表される基であることが好ましい。

30

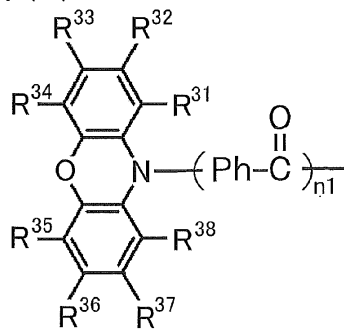
【化 1 0 - 1】

一般式 (3)



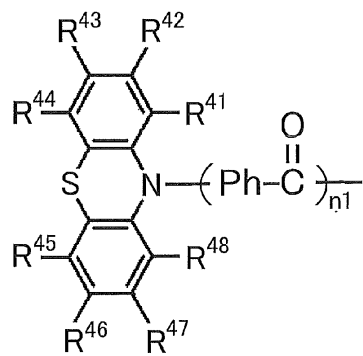
10

一般式 (4)



20

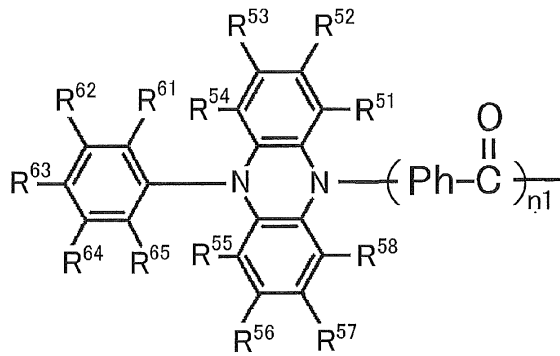
一般式 (5)



30

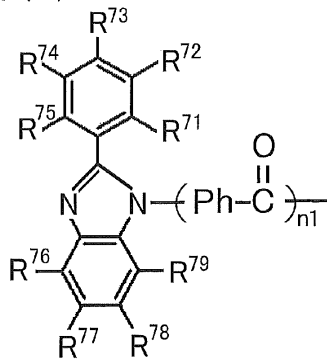
【化10-2】

一般式(6)



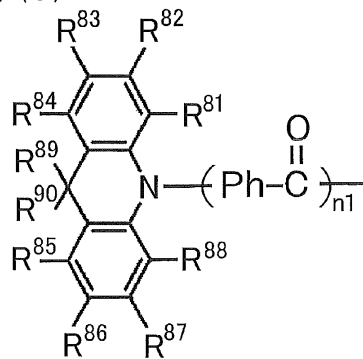
10

一般式(7)



20

一般式(8)



30

【0023】

一般式(3)~(8)において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。ここでいう置換基の説明と好ましい範囲については、上記の $R^1 \sim R^{10}$ がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。また、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に上記一般式(3)~(8)のいずれかで表される基であることも好ましい。また、 R^{89} および R^{90} は置換もしくは無置換のアルキル基であることが好ましく、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルキル基であることがより好ましい。一般式(3)~(8)における置換基の数は特に制限されない。すべてが無置換(すなわち水素原子)である場合も好ましい。また、一般式(3)~(8)のそれぞれにおいて置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。一般式(3)~(8)に置換基が存在している場合、その置換基は一般式(3)であれば $R^{22} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{29}$ のいずれかであることが好ましく、 R^{23} および R^{28} の少なくとも1つであることがより好ましく、一般式(4)であれば $R^{32} \sim R^{37}$ のいずれかであることが好ましく、一般式(5)であれば $R^{42} \sim R^{47}$ のいずれかであることが好ましく、一般式(6)であれば R^{52} 、 R^{53} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 $R^{62} \sim R^{64}$ のい

40

50

ずれかであることが好ましく、一般式(7)であれば $R^{72} \sim R^{74}$ 、 R^{77} 、 R^{78} のいずれかであることが好ましく、一般式(8)であれば $R^{82} \sim R^{87}$ 、 R^{89} 、 R^{90} のいずれかであることが好ましい。

【0024】

一般式(3)~(8)において、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{64} と R^{65} 、 R^{54} と R^{61} 、 R^{55} と R^{65} 、 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} 、 R^{81} と R^{82} 、 R^{82} と R^{83} 、 R^{83} と R^{84} 、 R^{85} と R^{86} 、 R^{86} と R^{87} 、 R^{87} と R^{88} 、 R^{89} と R^{90} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造の説明と好ましい例については、上記の一般式(1)において、 R^1 と R^2 等が互いに結合して形成する環状構造の説明と好ましい例を参照することができる。

10

【0025】

一般式(3)~(8)において、Phは置換または無置換のフェニレン基を表し、n1は0または1を表す。ここでいうPhの説明と好ましい位置異性体については、上記のPhの説明と好ましい位置異性体を参照することができる。

【0026】

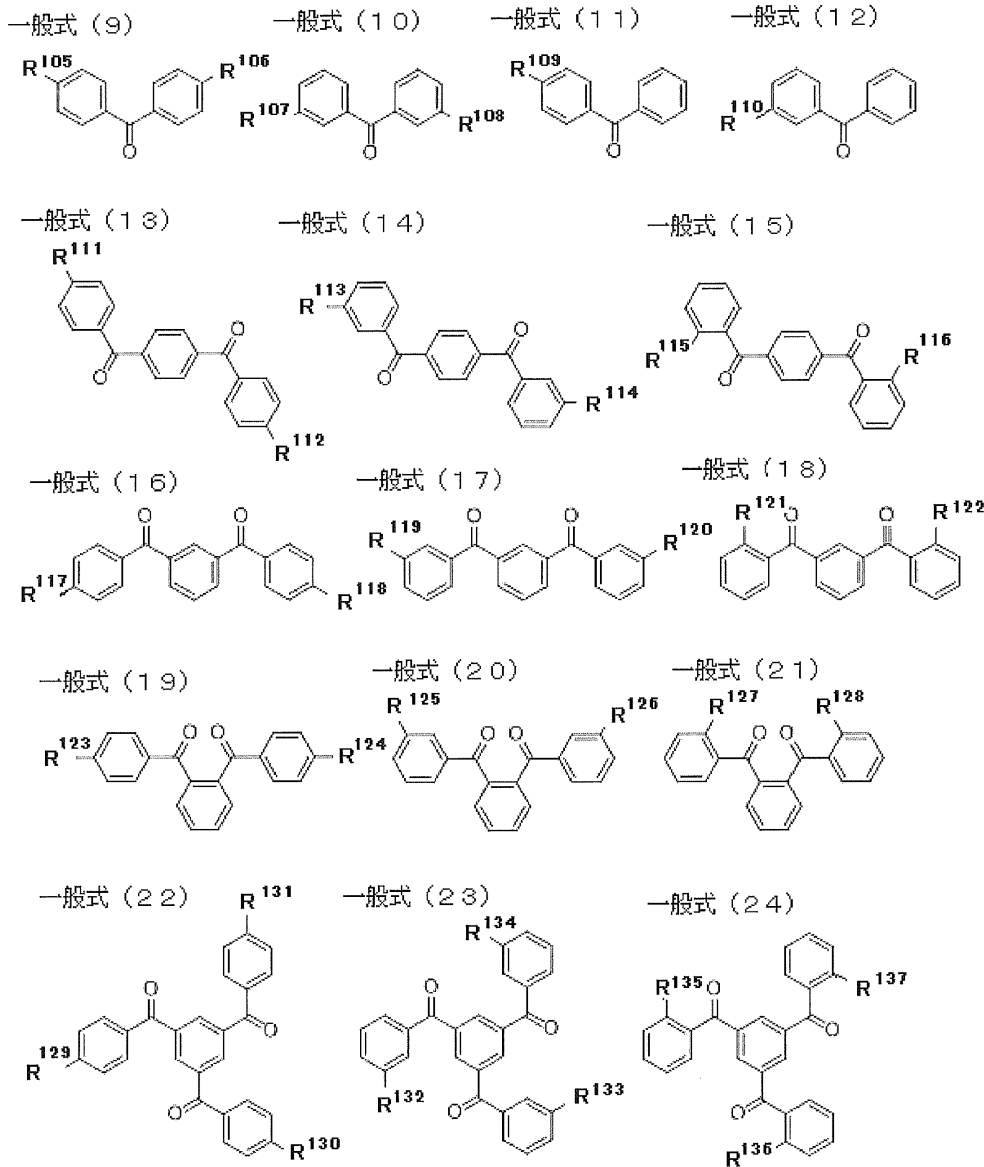
一般式(1)中に存在する一般式(2)で表される基は、すべてが一般式(3)~(8)のいずれか1つの一般式で表される基であることが好ましい。例えば、一般式(3)で表される基である場合や、すべてが一般式(4)で表される場合を好ましく例示することができる。

20

【0027】

また、一般式(1)で表される化合物は、一般式(9)~(24)で表される化合物であることが好ましく、一般式(9)、(13)、(16)、(19)で表される化合物であることがより好ましい。

【化 1 1】



10

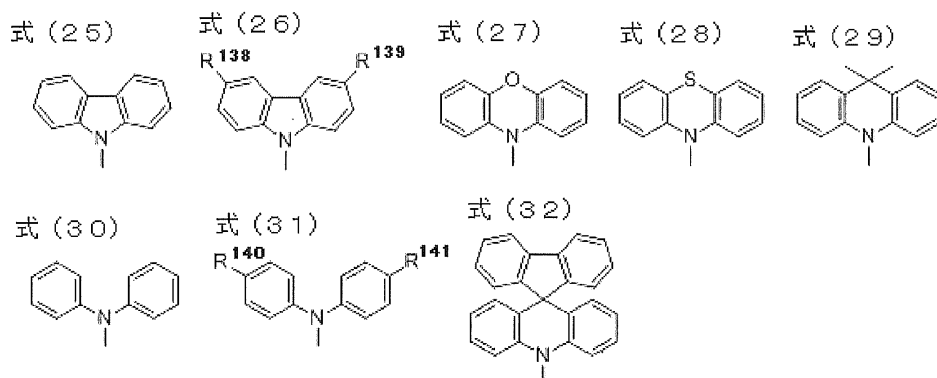
20

30

一般式 (9) ~ (24) において、 $R^{105} \sim R^{137}$ は各々独立に下記式 (25) ~ (32) で表される基であり、式 (27) で表される基であることが好ましい。また、一般式 (9)、(10)、(13) ~ (24) に存在する複数の R は同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。例えば、一般式 (9) の R^{105} と R^{106} は同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。

【 0 0 2 8 】

【化 1 2】



40

50

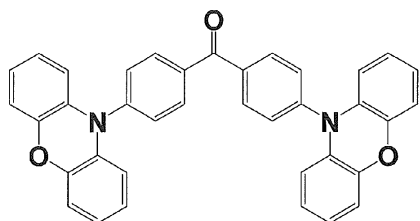
式(26)、(31)において、 $R^{138} \sim R^{141}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ここでいう置換基の説明と好ましい範囲については、上記の $R^1 \sim R^{10}$ がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

【0029】

以下において、一般式(1)で表される化合物の具体例を例示する。ただし、本発明において用いることができる一般式(1)で表される化合物はこれらの具体例によって限定的に解釈されるべきものではない。

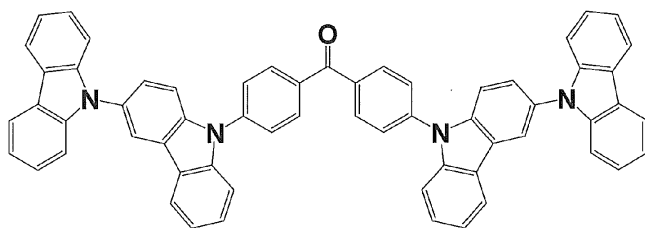
【0030】

【化13】



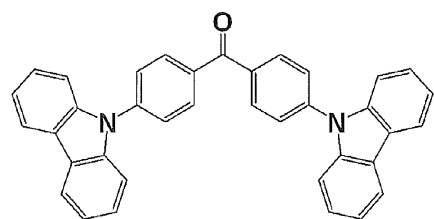
化合物1

10

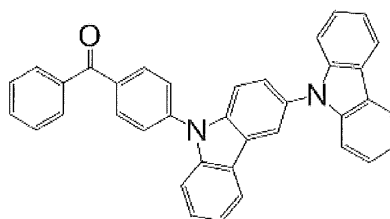


化合物2

20

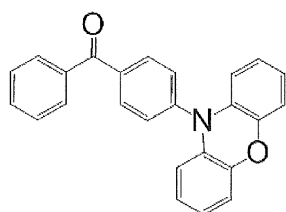


化合物3



化合物4

30

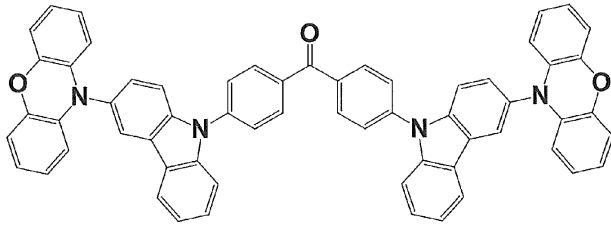


化合物5

40

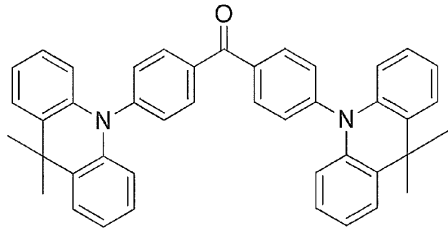
【0031】

【化 1 4】

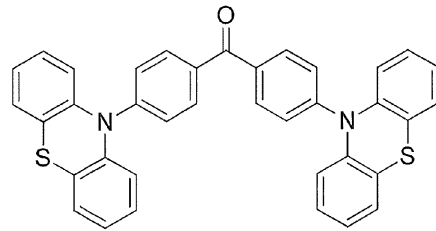


化合物 6

10

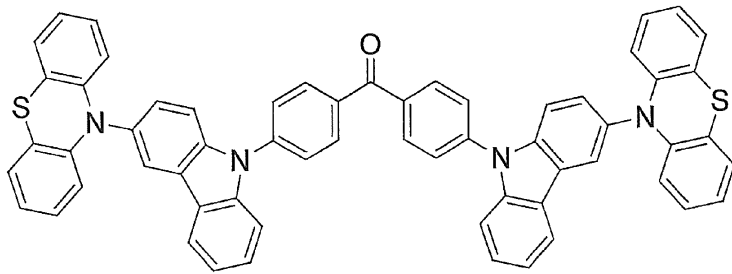


化合物 7



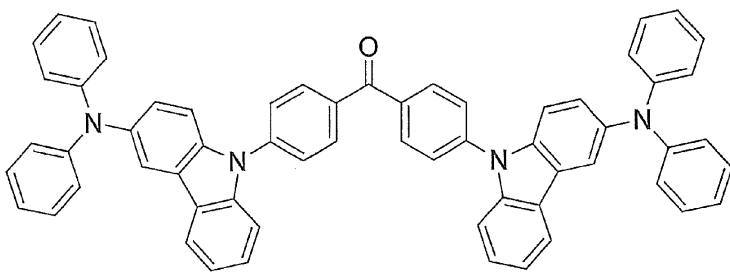
化合物 8

20



化合物 9

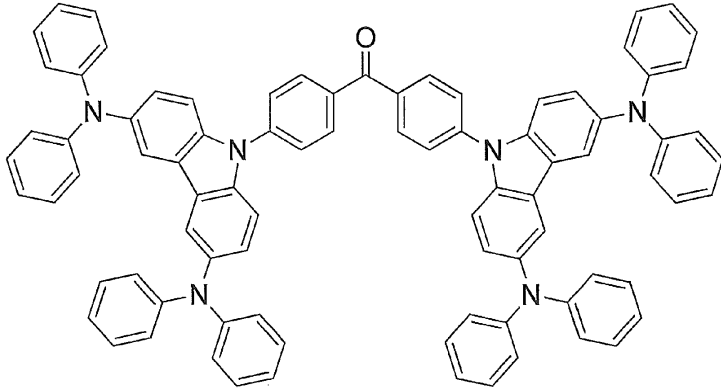
30



化合物 10

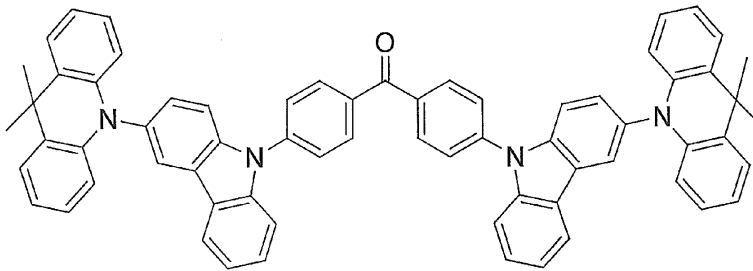
【 0 0 3 2 】

【化 1 5】



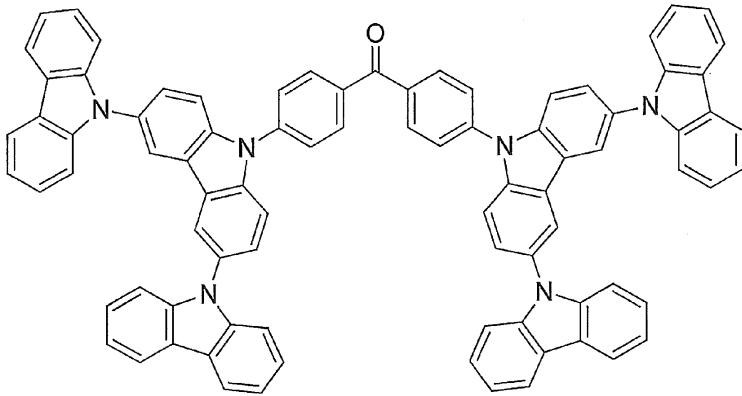
化合物 1 1

10



化合物 1 2

20

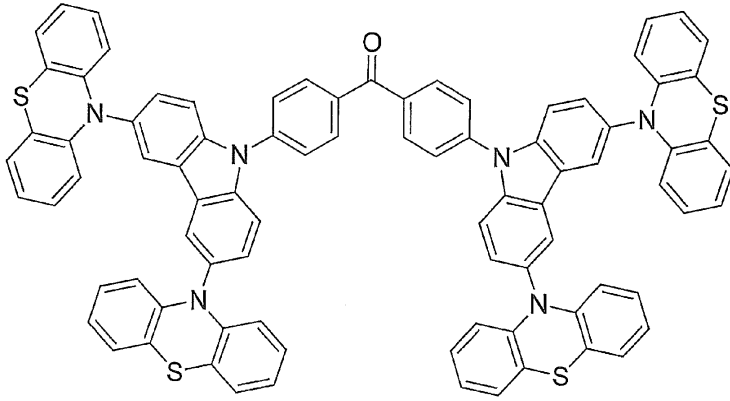


化合物 1 3

30

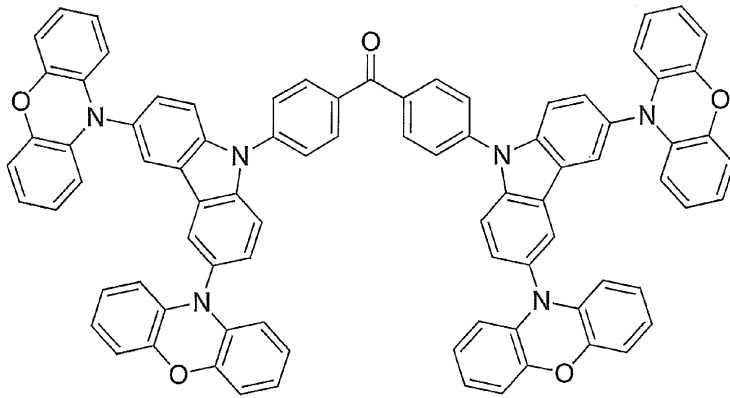
【 0 0 3 3 】

【化 1 6】



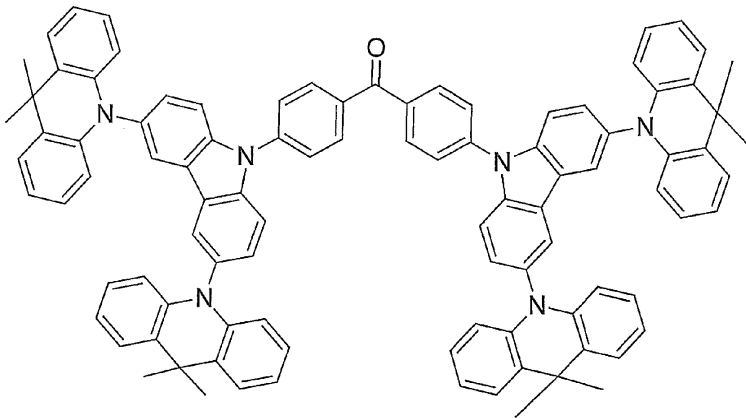
化合物 1 4

10



化合物 1 5

20

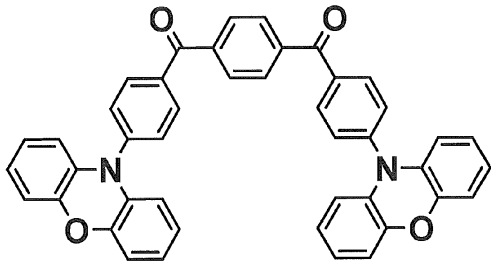


化合物 1 6

30

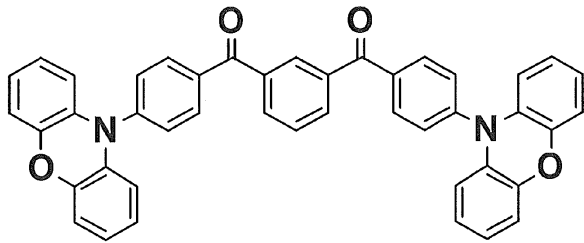
【 0 0 3 4 】

【化 1 7】



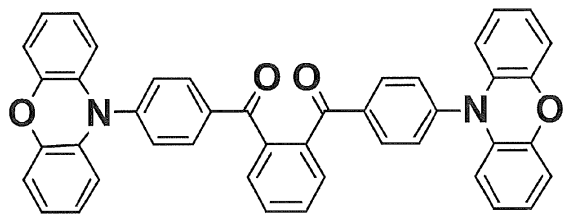
化合物 1 7

10



化合物 1 8

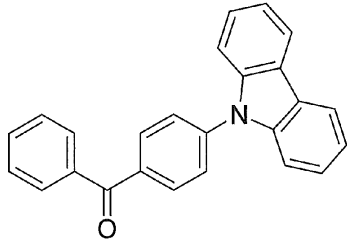
20



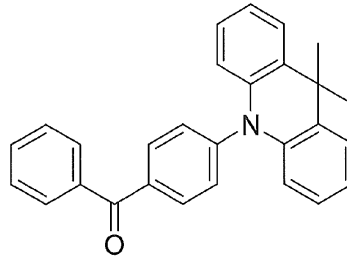
化合物 1 9

【 0 0 3 5 】

【化 1 8】

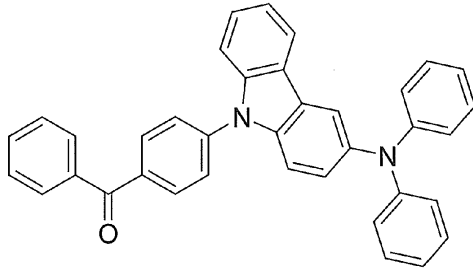


化合物 2 0

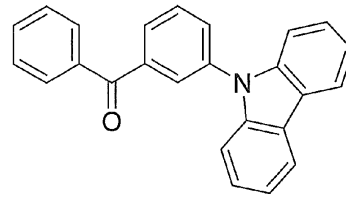


化合物 2 1

10

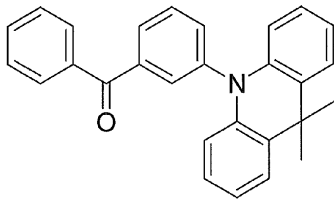


化合物 2 2

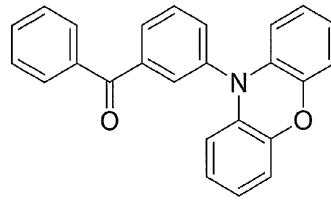


化合物 2 3

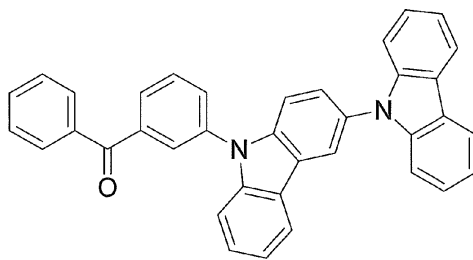
20



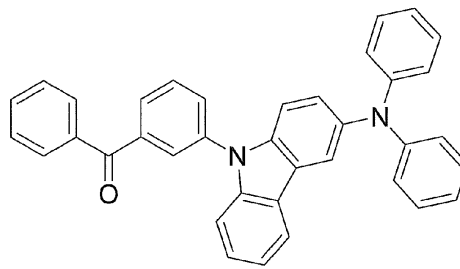
化合物 2 4



化合物 2 5



化合物 2 6

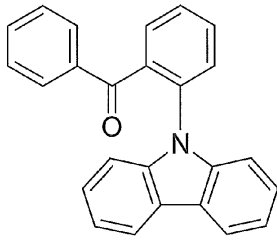


化合物 2 7

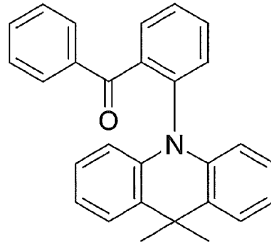
30

【 0 0 3 6 】

【化 1 9】

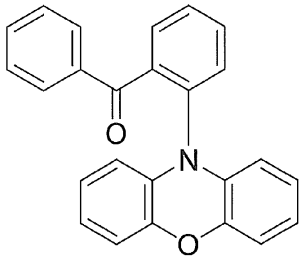


化合物 2 8

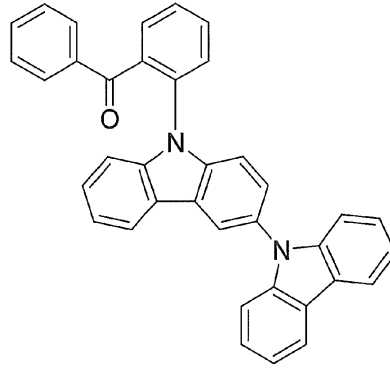


化合物 2 9

10

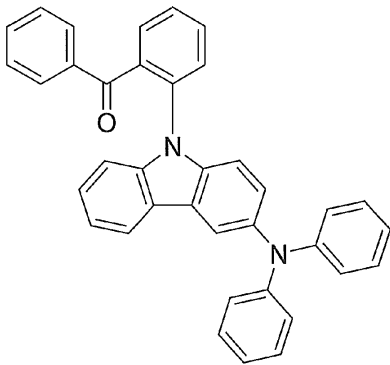


化合物 3 0

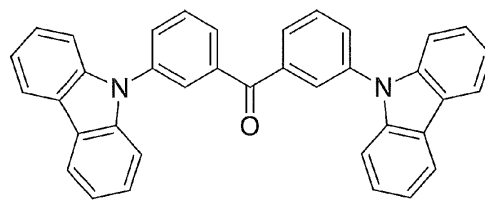


化合物 3 1

20



化合物 3 2

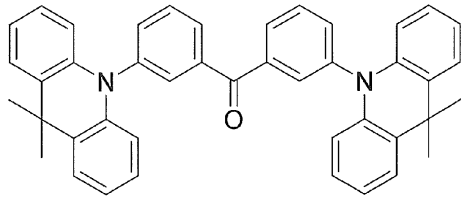


化合物 3 3

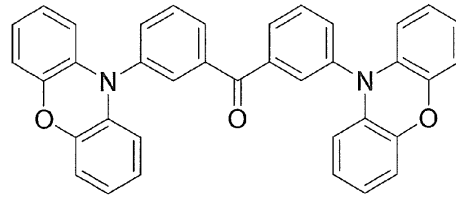
30

【 0 0 3 7 】

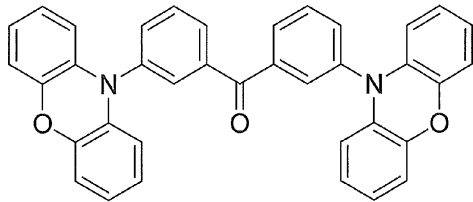
【化 2 0】



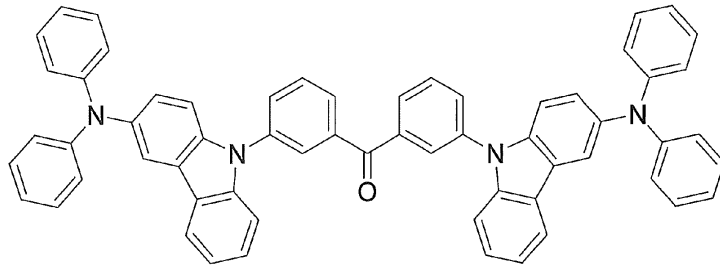
化合物 3 4



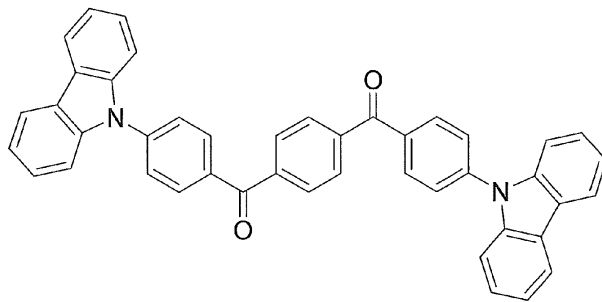
化合物 3 5



化合物 3 6



化合物 3 7



化合物 3 8

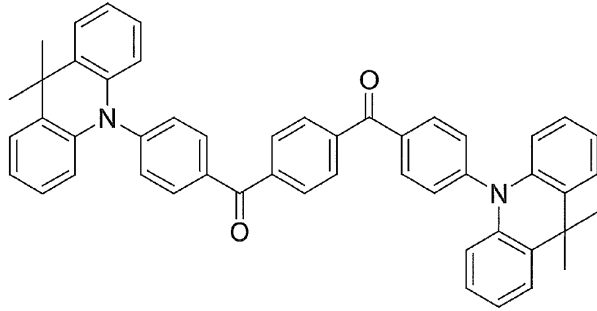
【 0 0 3 8】

10

20

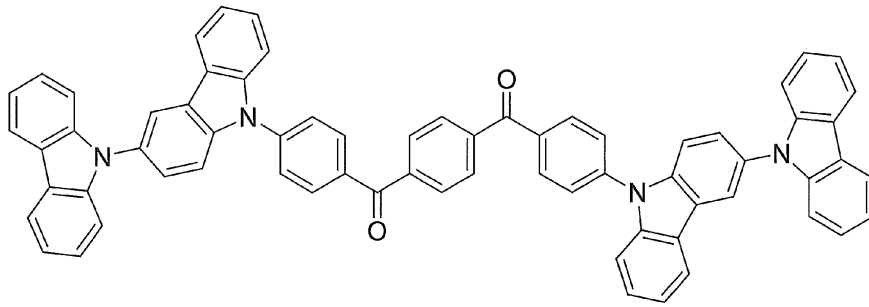
30

【化 2 1】



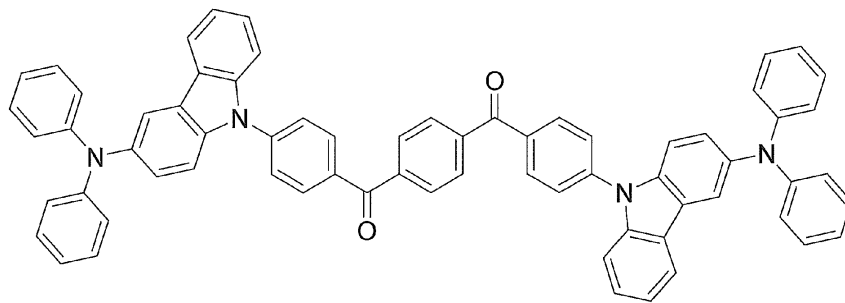
化合物 3 9

10



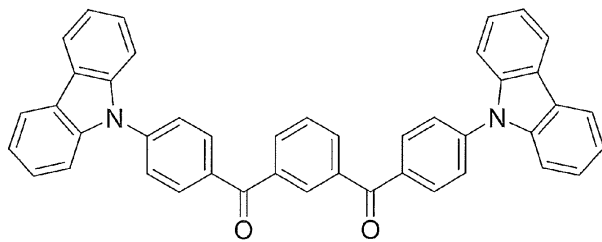
化合物 4 0

20



化合物 4 1

30

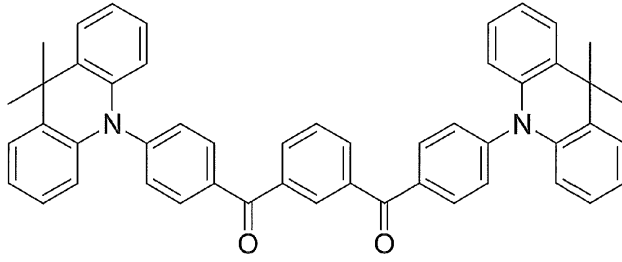


化合物 4 2

40

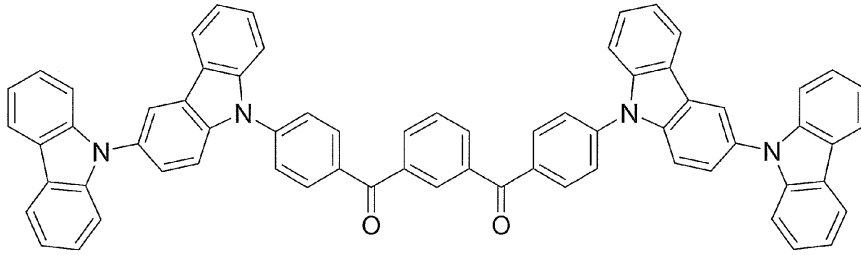
【 0 0 3 9 】

【化 2 2】



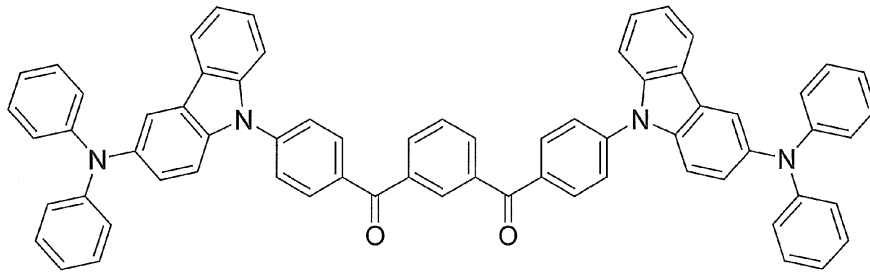
化合物 4 3

10



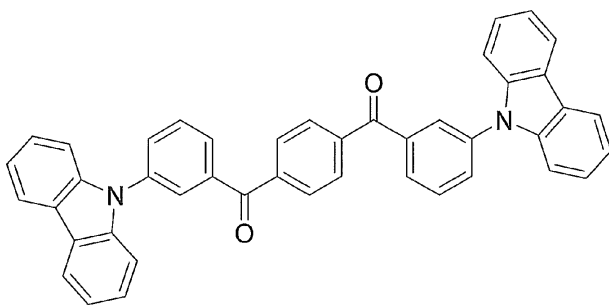
化合物 4 4

20



化合物 4 5

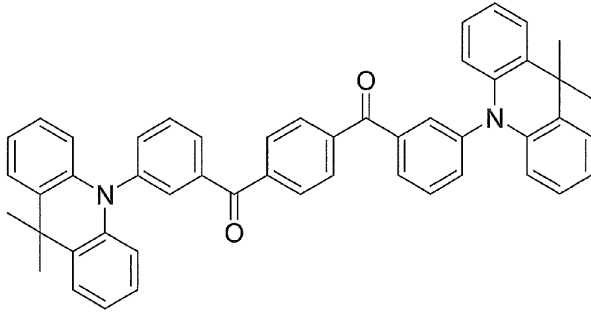
30



化合物 4 6

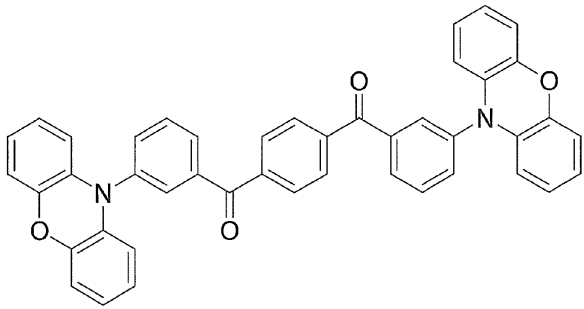
【 0 0 4 0 】

【化 2 3】



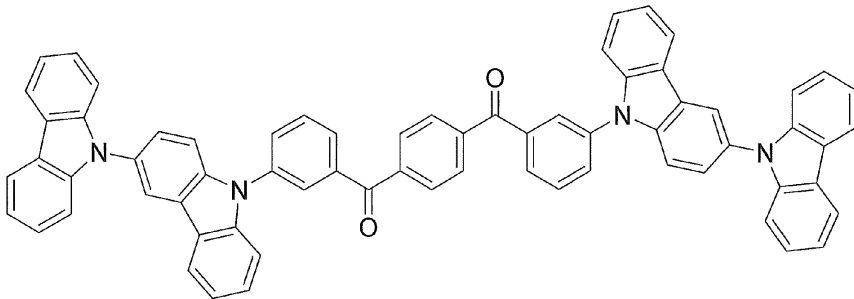
化合物 4 7

10



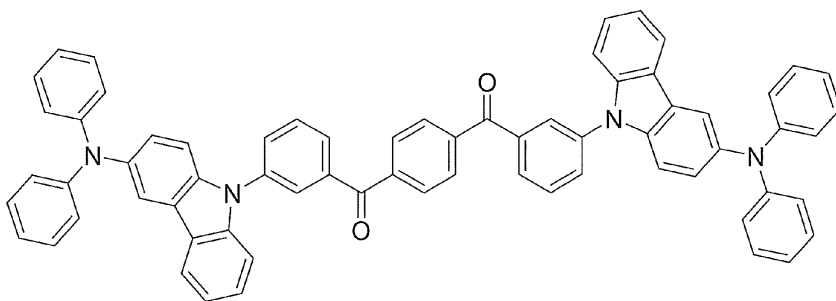
化合物 4 8

20



化合物 4 9

30

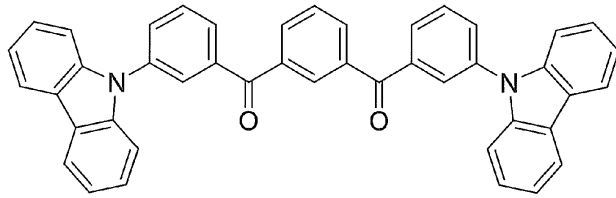


化合物 5 0

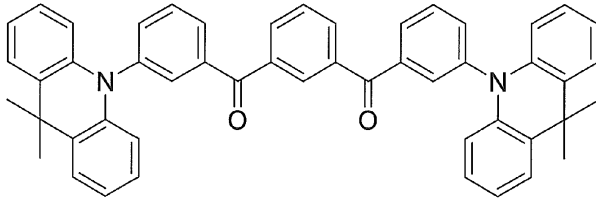
40

【 0 0 4 1】

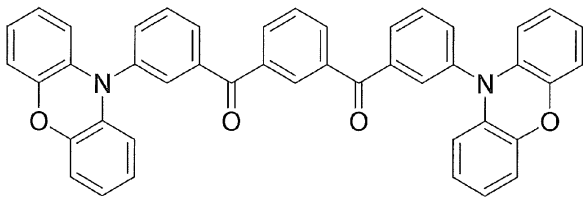
【化 2 4】



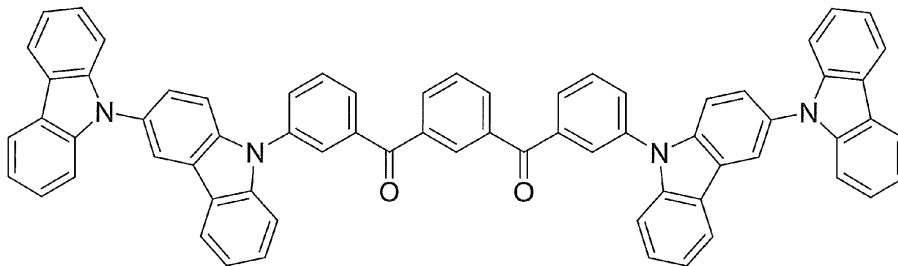
化合物 5 1



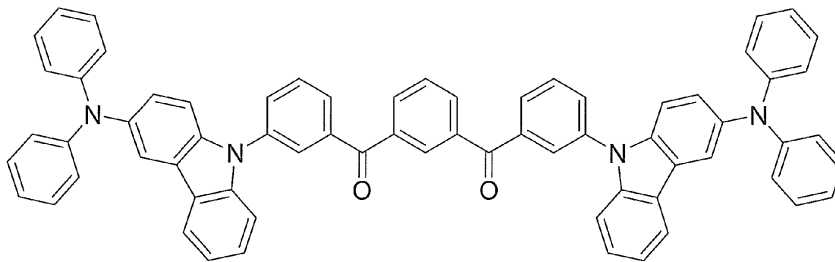
化合物 5 2



化合物 5 3



化合物 5 4



化合物 5 5

【 0 0 4 2】

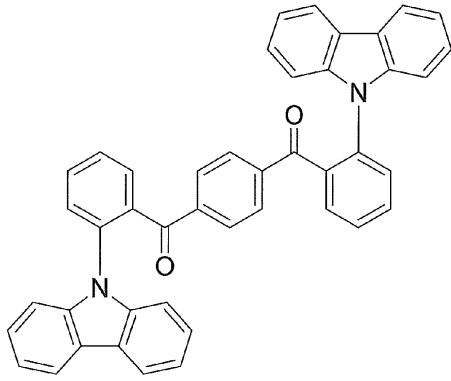
10

20

30

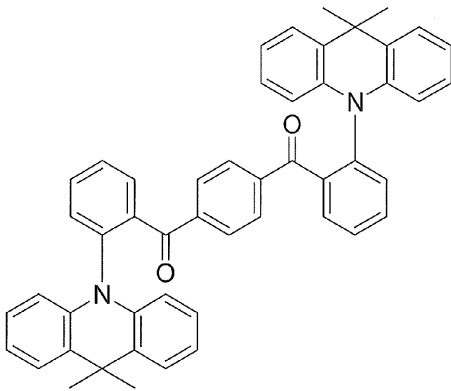
40

【化 2 5】



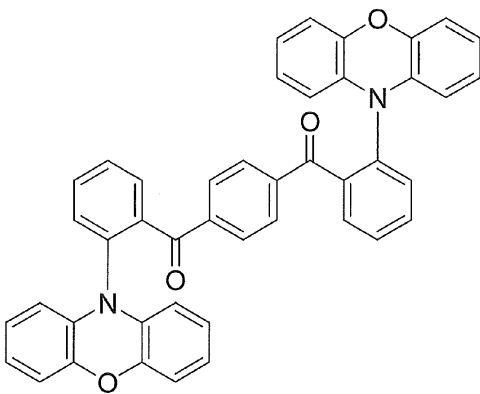
化合物 5 6

10



化合物 5 7

20

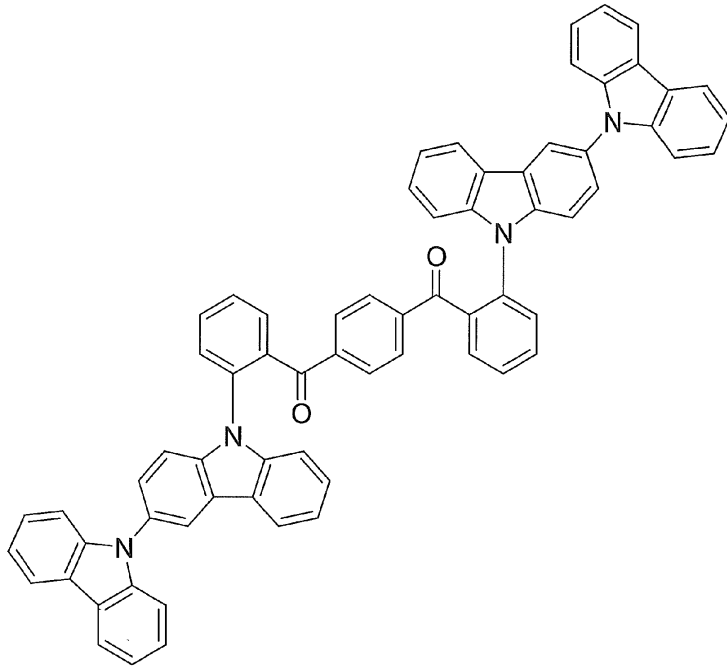


化合物 5 8

30

【 0 0 4 3 】

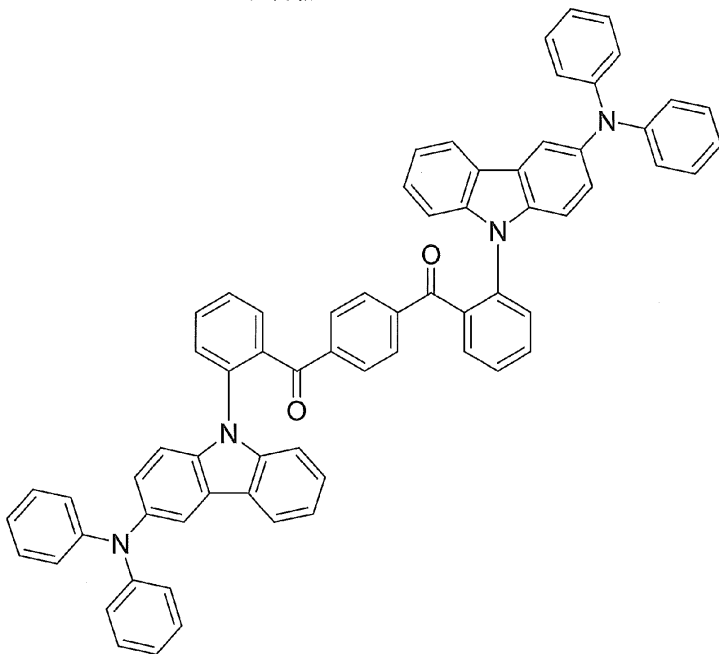
【化 2 6】



化合物 5 9

10

20

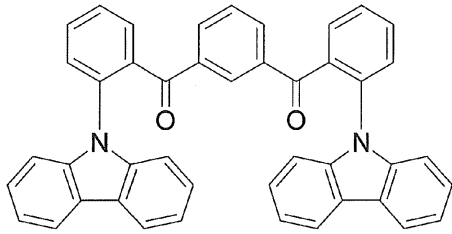


化合物 6 0

30

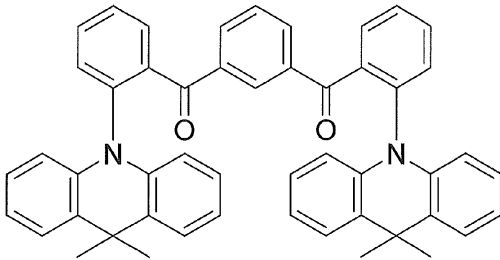
【 0 0 4 4 】

【化 2 7】

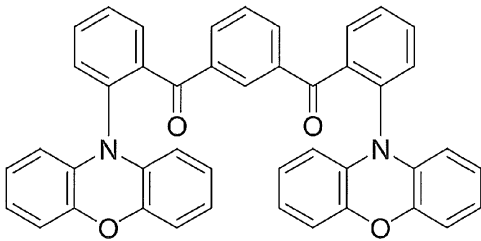


化合物 6 1

10

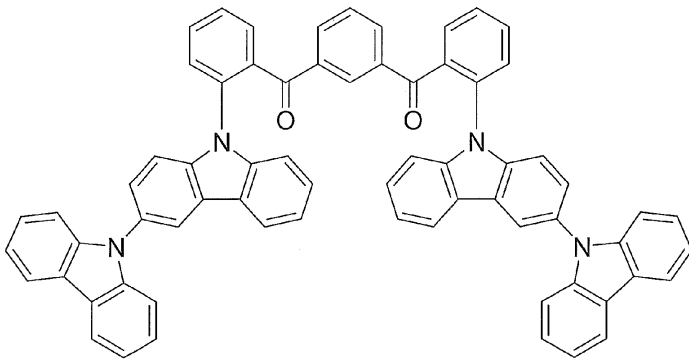


化合物 6 2



化合物 6 3

20

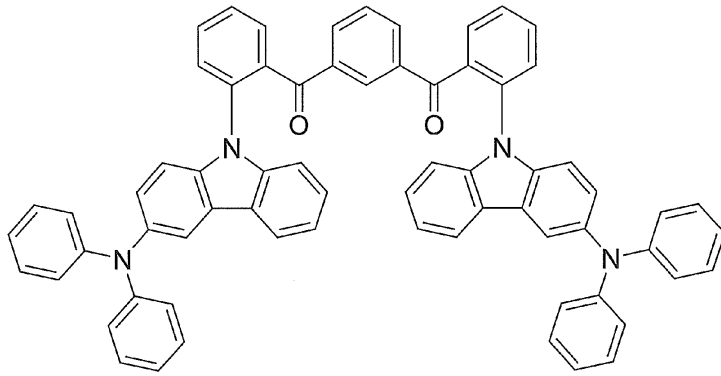


化合物 6 4

30

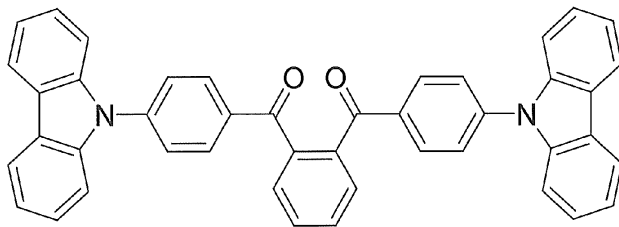
【 0 0 4 5 】

【化 2 8】



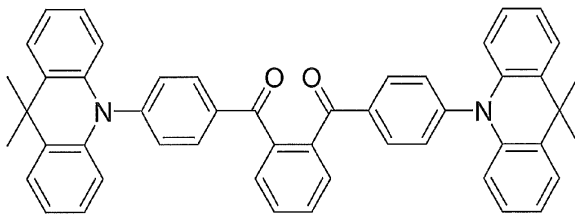
化合物 6 5

10

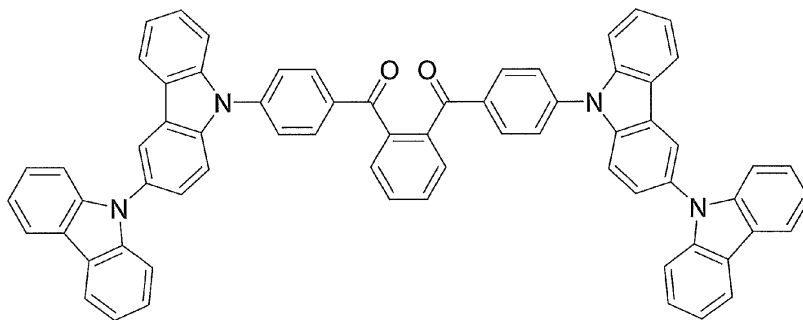


化合物 6 6

20



化合物 6 7

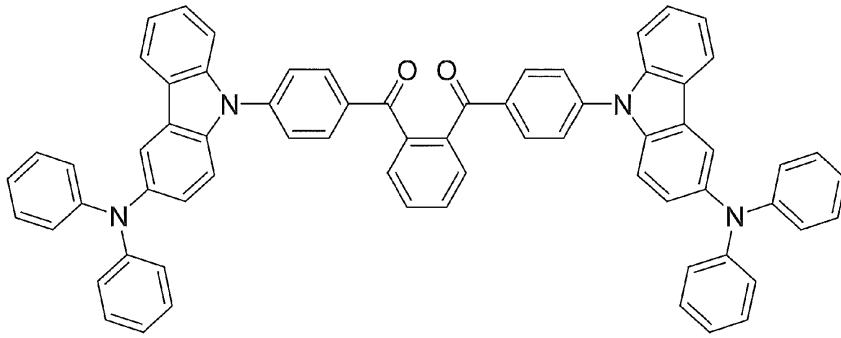


化合物 6 8

30

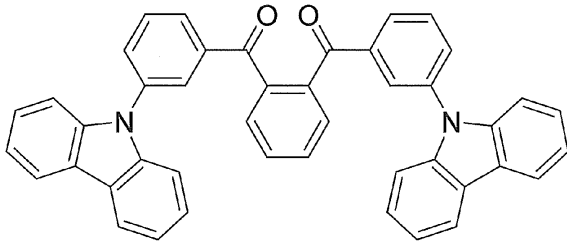
【 0 0 4 6 】

【化 2 9】



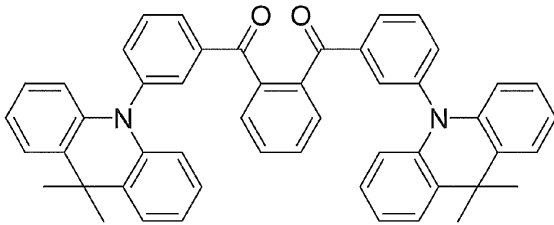
化合物 6 9

10

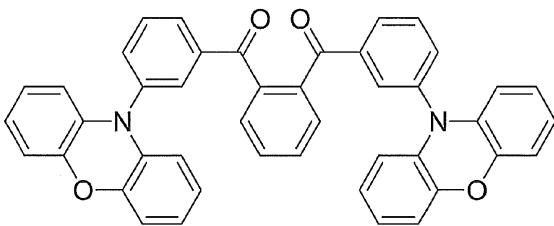


化合物 7 0

20



化合物 7 1

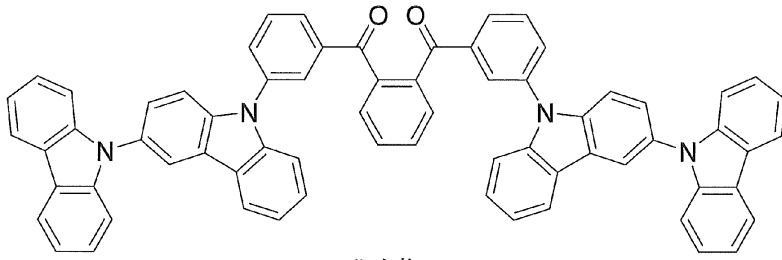


化合物 7 2

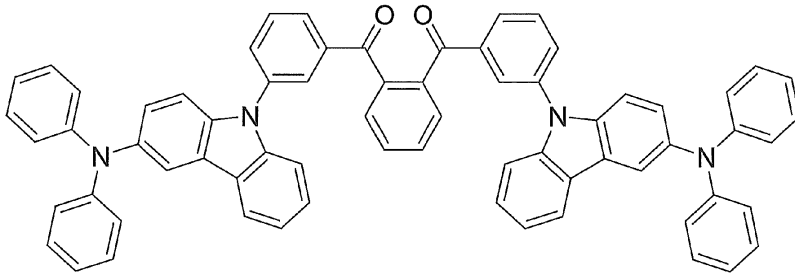
30

【 0 0 4 7 】

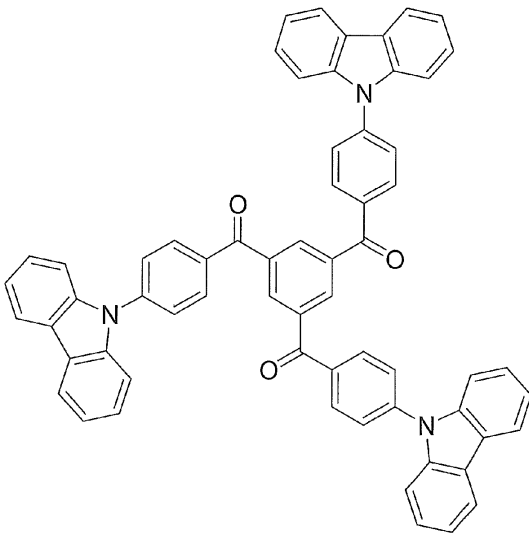
【化 3 0】



化合物 7 3



化合物 7 4



化合物 7 5

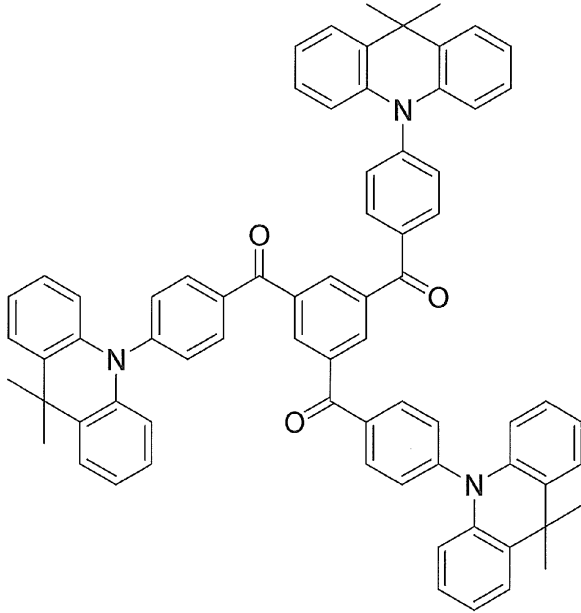
【 0 0 4 8 】

10

20

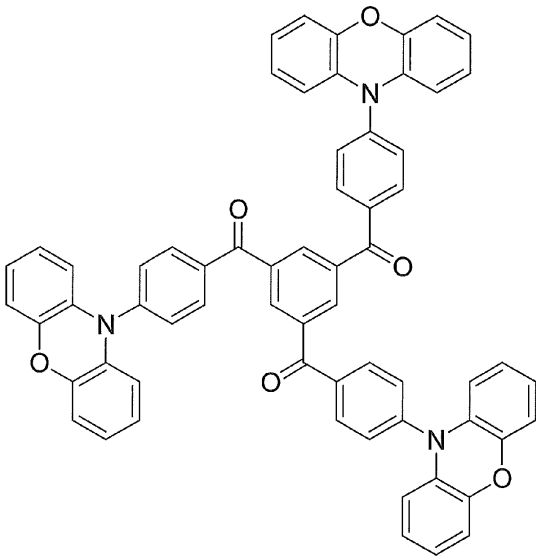
30

【化 3 1】



10

化合物 7 6



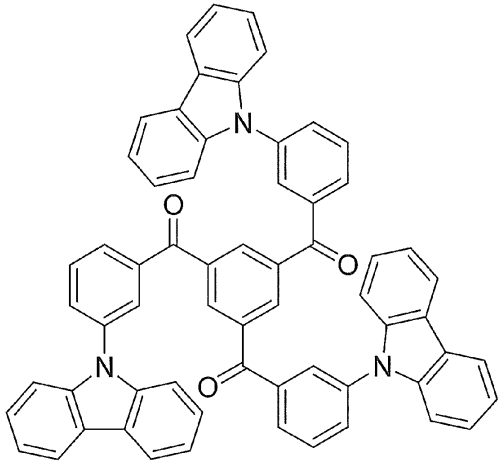
20

30

化合物 7 7

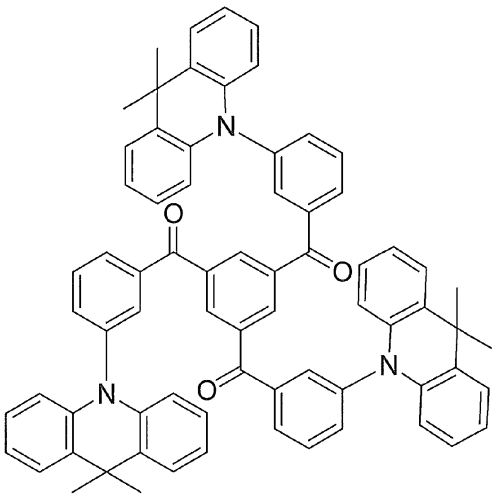
【 0 0 4 9 】

【化 3 2】



10

化合物 7 8



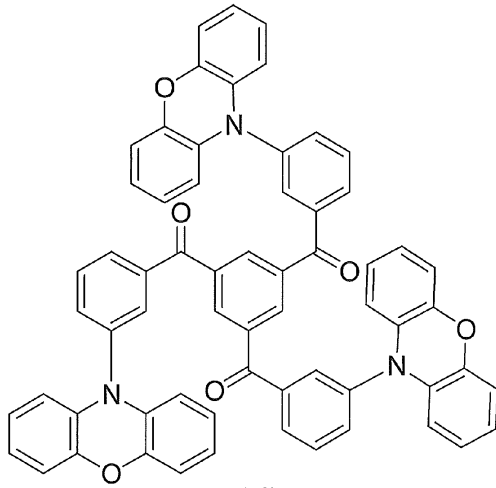
20

化合物 7 9

30

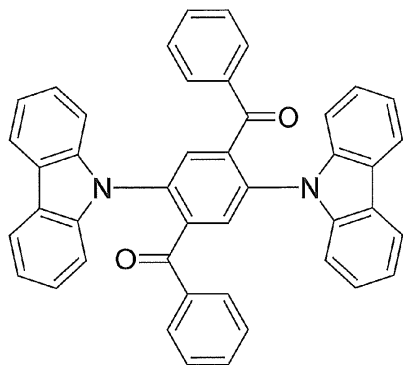
【 0 0 5 0 】

【化 3 3】



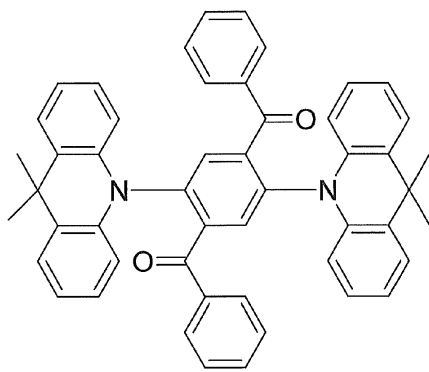
化合物 8 0

10



化合物 8 1

20

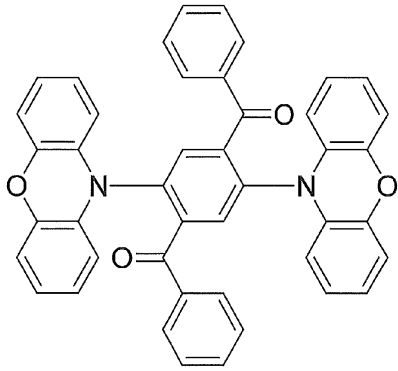


化合物 8 2

30

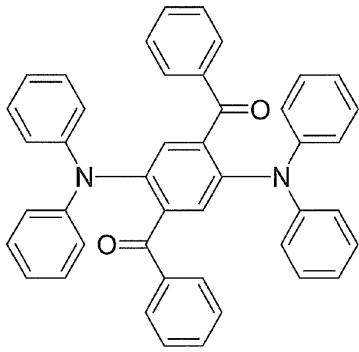
【 0 0 5 1】

【化 3 4】



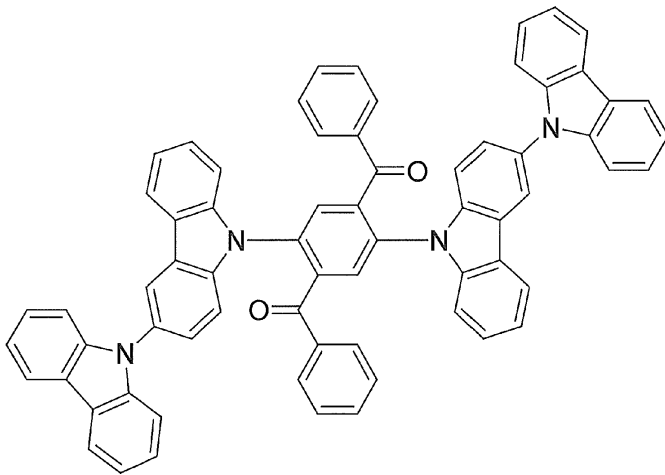
化合物 8 3

10



化合物 8 4

20

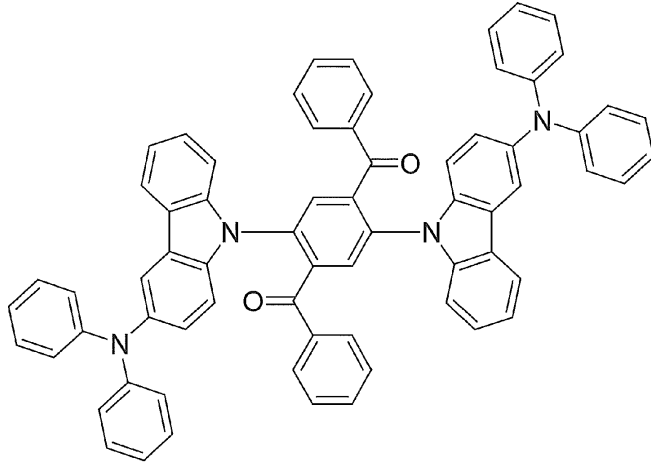


化合物 8 5

30

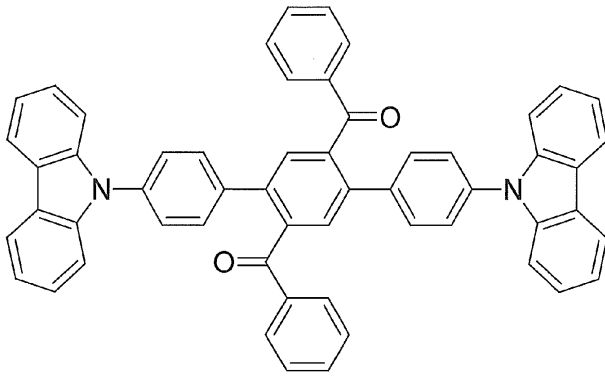
【 0 0 5 2 】

【化 3 5】



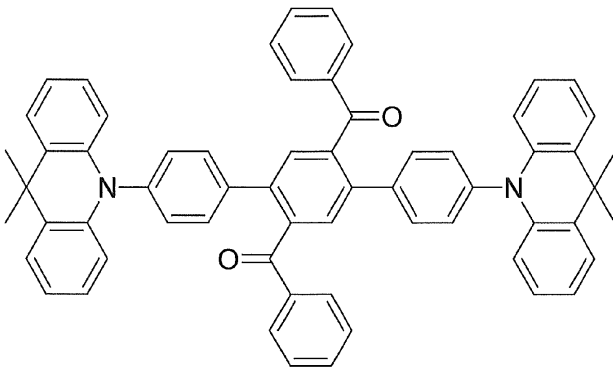
化合物 8 6

10



化合物 8 7

20



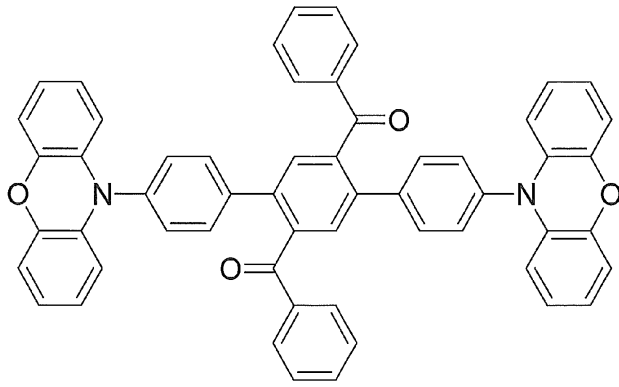
化合物 8 8

30

【 0 0 5 3 】

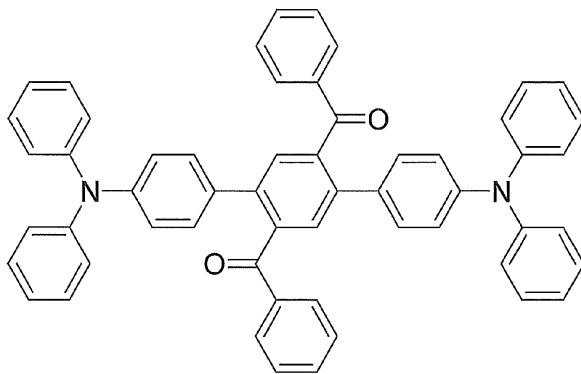
40

【化 3 6】



化合物 8 9

10



化合物 9 0

20

【 0 0 5 4】

一般式(1)で表される化合物の分子量は、例えば一般式(1)で表される化合物を含む有機層を蒸着法により製膜して利用することを意図する場合には、1500以下であることが好ましく、1200以下であることがより好ましく、1000以下であることがさらに好ましく、800以下であることがさらに好ましい。分子量の下限値は、一般式(1)で表される最小化合物の分子量である。

30

一般式(1)で表される化合物は、分子量にかかわらず塗布法で成膜してもよい。塗布法を用いれば、分子量が比較的大きな化合物であっても成膜することが可能である。

【 0 0 5 5】

本発明を応用して、分子内に一般式(1)で表される構造を複数個含む化合物を、発光材料として用いることも考えられる。

例えば、一般式(1)で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式(1)の $R^1 \sim R^{10}$ のいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いることが考えられる。あるいは、一般式(1)で表される構造を有する化合物どうしを反応させることにより、二量体や三量体を得て、それらを発光材料として用いることも考えられる。

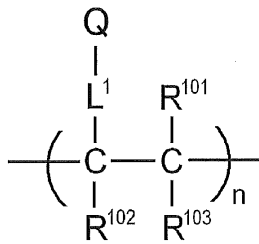
40

【 0 0 5 6】

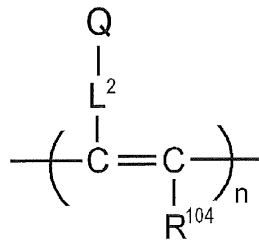
一般式(1)で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式(33)または(34)で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

【化 3 7】

一般式 (33)



一般式 (34)



【0057】

10

一般式(33)または(34)において、Qは一般式(1)で表される構造を含む基を表し、L¹およびL²は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは0~20であり、より好ましくは1~15であり、さらに好ましくは2~10である。連結基は-X¹¹-L¹¹-で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、X¹¹は酸素原子または硫黄原子を表し、酸素原子であることが好ましい。L¹¹は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数1~10の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

一般式(33)または(34)において、R¹⁰¹、R¹⁰²、R¹⁰³およびR¹⁰⁴は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数1~3の無置換のアルキル基、炭素数1~3の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数1~3の無置換のアルキル基、炭素数1~3の無置換のアルコキシ基である。

20

L¹およびL²で表される連結基は、Qを構成する一般式(1)の構造のR¹~R¹⁰のいずれか、一般式(2)のR¹¹~R²⁰のいずれか、一般式(3)の構造のR²¹~R²⁴、R²⁷~R³⁰のいずれか、一般式(4)の構造のR³¹~R³⁸のいずれか、一般式(5)の構造のR⁴¹~R⁴⁸のいずれか、一般式(6)の構造のR⁵¹~R⁵⁸、R⁶¹~R⁶⁵のいずれか、一般式(7)の構造のR⁷¹~R⁷⁸のいずれか、一般式(8)の構造のR⁸¹~R⁹⁰のいずれかに結合することができる。1つのQに対して連結基が2つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

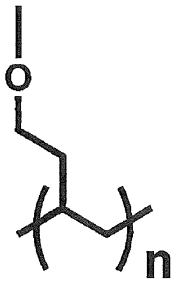
30

【0058】

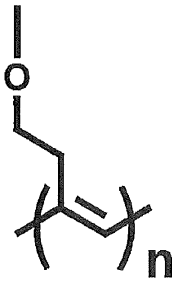
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式(35)~(38)で表される構造を挙げるができる。

【化38】

式(35)

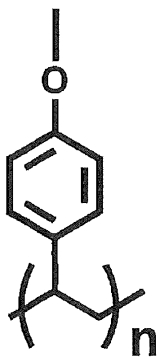


式(36)

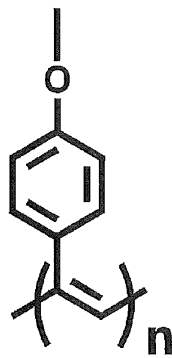


10

式(37)



式(38)

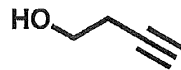


20

【0059】

これらの式(35)~(38)を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式(1)の構造の $R^1 \sim R^{10}$ のいずれかにヒドロキシ基を導入しておき、それをリンカーとして下記化合物を反応させて重合性基を導入し、その重合性基を重合させることにより合成することができる。

【化39】



30

40

【0060】

分子内に一般式(1)で表される構造を含む重合体は、一般式(1)で表される構造を有する繰り返し単位のみからなる重合体であってもよいし、それ以外の構造を有する繰り返し単位を含む重合体であってもよい。また、重合体の中に含まれる一般式(1)で表される構造を有する繰り返し単位は、単一種であってもよいし、2種以上であってもよい。一般式(1)で表される構造を有さない繰り返し単位としては、通常のコモonomerから誘導されるものを挙げるができる。例えば、エチレン、スチレンなどのエチレン性不飽和結合を有するモノマーから誘導される繰り返し単位を挙げるができる。

50

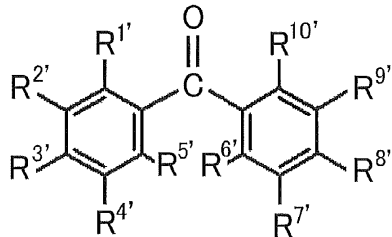
【0061】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

一般式(1)で表される化合物のうち、下記一般式(1')で表される化合物は新規化合物である。

【化40】

一般式(1')



10

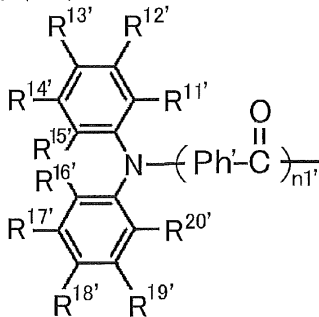
【0062】

一般式(1')において、 $R^{1'} \sim R^{10'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^{1'} \sim R^{10'}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2')で表される基である。

【0063】

【化41】

一般式(2')



20

【0064】

一般式(2')において、 $R^{11'} \sim R^{20'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{1'}$ と $R^{2'}$ 、 $R^{2'}$ と $R^{3'}$ 、 $R^{3'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{4'}$ と $R^{5'}$ 、 $R^{6'}$ と $R^{7'}$ 、 $R^{7'}$ と $R^{8'}$ 、 $R^{8'}$ と $R^{9'}$ 、 $R^{9'}$ と $R^{10'}$ 、 $R^{11'}$ と $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$ と $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$ と $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$ と $R^{15'}$ 、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ 、 $R^{16'}$ と $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$ と $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$ と $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$ と $R^{20'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。ただし、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ が一緒になって単結合を形成するとき、 $R^{13'}$ と $R^{18'}$ は各々独立に水素原子または上記一般式(4)~(8)のいずれかで表される基である。

30

一般式(2')において、Ph' は置換または無置換のフェニレン基を表し、 n_1 は0または1を表す。ただし、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ が一緒になって単結合を形成するとき、 $R^{13'}$ と $R^{18'}$ は各々独立に水素原子または一般式(4)~(8)のいずれかで表される基であるが、少なくとも一方は一般式(4)~(8)のいずれかで表される基である。

40

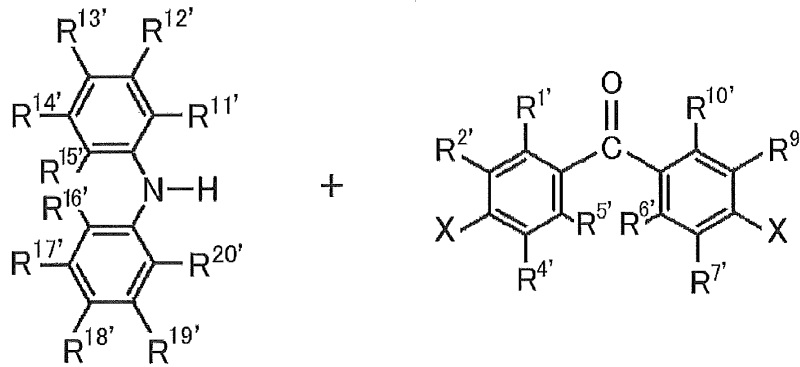
一般式(1')における $R^{1'} \sim R^{10'}$ と $R^{11'} \sim R^{20'}$ 、Ph' の説明と好ましい範囲については、一般式(1)で表される化合物の説明を参照することができる。

【0065】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

一般式(1')で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、一般式(1')の $R^{3'}$ と $R^{8'}$ が一般式(2)で表される基である化合物は、以下の2つの化合物を反応させることにより合成することが可能である。

【化42】



10

【0066】

上記の反応式における $R^{1'}$ 、 $R^{2'}$ 、 $R^{4'}$ 、 $\sim R^{7'}$ 、 $R^{9'}$ 、 $\sim R^{20'}$ の説明については、一般式(1')における対応する記載を参照することができる。Xはハロゲン原子を表し、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を挙げることができ、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましい。

上記の反応は、公知の反応を応用したものであり、公知の反応条件を適宜選択して用いることができる。上記の反応の詳細については、後述の合成例を参考にすることができる。また、一般式(1')で表される化合物は、その他の公知の合成反応を組み合わせることによっても合成することができる。

20

【0067】

[有機発光素子]

本発明の一般式(1)で表される化合物は、有機発光素子の発光材料として有用である。このため、本発明の一般式(1)で表される化合物は、有機発光素子の発光層に発光材料として効果的に用いることができる。一般式(1)で表される化合物の中には、遅延蛍光を放射する遅延蛍光材料(遅延蛍光体)が含まれている。すなわち本発明は、一般式(1)で表される構造を有する遅延蛍光体の発明と、一般式(1)で表される化合物を遅延蛍光体として使用する発明と、一般式(1)で表される化合物を用いて遅延蛍光を発光させる方法の発明も提供する。そのような化合物を発光材料として用いた有機発光素子は、遅延蛍光を放射し、発光効率が高いという特徴を有する。その原理を、有機エレクトロルミネッセンス素子を例にとって説明すると以下ようになる。

30

【0068】

有機エレクトロルミネッセンス素子においては、正負の両電極より発光材料にキャリアを注入し、励起状態の発光材料を生成し、発光させる。通常、キャリア注入型の有機エレクトロルミネッセンス素子の場合、生成した励起子のうち、励起一重項状態に励起されるのは25%であり、残り75%は励起三重項状態に励起される。従って、励起三重項状態からの発光であるリン光を利用するほうが、エネルギーの利用効率が高い。しかしながら、励起三重項状態は寿命が長いため、励起状態の飽和や励起三重項状態の励起子との相互作用によるエネルギーの失活が起こり、一般にリン光の量子収率が高くないことが多い。一方、遅延蛍光材料は、項間交差等により励起三重項状態へとエネルギーが遷移した後、三重項-三重項消滅あるいは熱エネルギーの吸収により、励起一重項状態に逆項間交差され蛍光を放射する。有機エレクトロルミネッセンス素子においては、なかでも熱エネルギーの吸収による熱活性化型の遅延蛍光材料が特に有用であると考えられる。有機エレクトロルミネッセンス素子に遅延蛍光材料を利用した場合、励起一重項状態の励起子は通常通り蛍光を放射する。一方、励起三重項状態の励起子は、デバイスが発する熱を吸収して励起一重項へ項間交差され蛍光を放射する。このとき、励起一重項からの発光であるため蛍光と同波長での発光でありながら、励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差により、生じる光の寿命(発光寿命)は通常の蛍光やリン光よりも長くなるため、これらよりも遅延した蛍光として観察される。これを遅延蛍光として定義できる。このような熱活性化型の励起子移動機構を用いれば、キャリア注入後に熱エネルギーの吸収を経ることに

40

50

より、通常は25%しか生成しなかった励起一重項状態の化合物の比率を25%以上に引き上げることが可能となる。100未満の低い温度でも強い蛍光および遅延蛍光を発する化合物を用いれば、デバイスの熱で十分に励起三重項状態から励起一重項状態への項間交差が生じて遅延蛍光を放射するため、発光効率を飛躍的に向上させることができる。

【0069】

本発明の一般式(1)で表される化合物を発光層の発光材料として用いることにより、有機フォトルミネッセンス素子(有機PL素子)や有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)などの優れた有機発光素子を提供することができる。このとき、本発明の一般式(1)で表される化合物は、いわゆるアシストドーパントとして、発光層に含まれる他の発光材料の発光をアシストする機能を有するものであってもよい。すなわち、発光層に含まれる本発明の一般式(1)で表される化合物は、発光層に含まれるホスト材料の最低励起一重項エネルギー準位と発光層に含まれる他の発光材料の最低励起一重項エネルギー準位との間の最低励起一重項エネルギー準位を有するものであってもよい。また、発光層には、本発明の一般式(1)で表される化合物を2種以上用いてもよい。例えば、発光ピーク波長が互いに異なる2種以上の一般式(1)で表される化合物を用いてもよい。このとき、互いに発光色が異なる化合物を組み合わせる用いることが好ましい。例えば色の三原色に対応する光を発光する各化合物を組み合わせる用いることができる。

10

有機フォトルミネッセンス素子は、基板上に少なくとも発光層を形成した構造を有する。また、有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも陽極、陰極、および陽極と陰極の間に有機層を形成した構造を有する。有機層は、少なくとも発光層を含むものであり、発光層のみからなるものであってもよいし、発光層の他に1層以上の有機層を有するものであってもよい。そのような他の有機層として、正孔輸送層、正孔注入層、電子阻止層、正孔阻止層、電子注入層、電子輸送層、励起子阻止層などを挙げることができる。正孔輸送層は正孔注入機能を有した正孔注入輸送層でもよく、電子輸送層は電子注入機能を有した電子注入輸送層でもよい。具体的な有機エレクトロルミネッセンス素子の構造例を図1に示す。図1において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を表わす。

20

以下において、有機エレクトロルミネッセンス素子の各部材および各層について説明する。なお、基板と発光層の説明は有機フォトルミネッセンス素子の基板と発光層にも該当する。

30

【0070】

(基板)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、基板に支持されていることが好ましい。この基板については、特に制限はなく、従来から有機エレクトロルミネッセンス素子に慣用されているものであればよく、例えば、ガラス、透明プラスチック、石英、シリコンなどからなるものを用いることができる。

【0071】

(陽極)

有機エレクトロルミネッセンス素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキド(ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In₂O₃-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100μm以上程度)、上記電極材料の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な材料を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω以下が好ましい。

40

50

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

【0072】

(陰極)

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが用いられる。このような電極材料の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性および酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百Ω以下が好ましく、膜厚は通常10nm～5μm、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

10

20

また、陽極の説明で挙げた導電性透明材料を陰極に用いることで、透明または半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

【0073】

(発光層)

発光層は、陽極および陰極のそれぞれから注入された正孔および電子が再結合することにより励起子が生成した後、発光する層であり、発光材料を単独で発光層に使用しても良いが、好ましくは発光材料とホスト材料を含む。発光材料としては、一般式(1)で表される本発明の化合物群から選ばれる1種または2種以上を用いることができる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子および有機フォトルミネッセンス素子が高い発光効率を発現するためには、発光材料に生成した一重項励起子および三重項励起子を、発光材料中に閉じ込めることが重要である。従って、発光層中に発光材料に加えてホスト材料を用いることが好ましい。ホスト材料としては、励起一重項エネルギー、励起三重項エネルギーの少なくとも何れか一方が本発明の発光材料よりも高い値を有する有機化合物を用いることができる。その結果、本発明の発光材料に生成した一重項励起子および三重項励起子を、本発明の発光材料の分子中に閉じ込めることが可能となり、その発光効率を十分に引き出すことが可能となる。もっとも、一重項励起子および三重項励起子を十分に閉じ込めることができなくても、高い発光効率を得ることが可能な場合もあるため、高い発光効率を実現しうるホスト材料であれば特に制約なく本発明に用いることができる。本発明の有機発光素子または有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光は発光層に含まれる本発明の発光材料から生じる。この発光は蛍光発光および遅延蛍光発光の両方を含む。但し、発光の一部或いは部分的にホスト材料からの発光があってもかまわない。

30

40

ホスト材料を用いる場合、発光材料である本発明の化合物が発光層中に含有される量は0.1重量%以上であることが好ましく、1重量%以上であることがより好ましく、また、50重量%以下であることが好ましく、20重量%以下であることがより好ましく、10重量%以下であることがさらに好ましい。

発光層におけるホスト材料としては、正孔輸送能、電子輸送能を有し、かつ発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高いガラス転移温度を有する有機化合物であることが好ましい。

【0074】

(注入層)

50

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、正孔注入層と電子注入層があり、陽極と発光層または正孔輸送層の間、および陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。注入層は必要に応じて設けることができる。

【0075】

(阻止層)

阻止層は、発光層中に存在する電荷(電子もしくは正孔)および/または励起子の発光層外への拡散を阻止することができる層である。電子阻止層は、発光層および正孔輸送層の間に配置されることができ、電子が正孔輸送層の方に向かって発光層を通過することを阻止する。同様に、正孔阻止層は発光層および電子輸送層の間に配置されることができ、正孔が電子輸送層の方に向かって発光層を通過することを阻止する。阻止層はまた、励起子が発光層の外側に拡散することを阻止するために用いることができる。すなわち電子阻止層、正孔阻止層はそれぞれ励起子阻止層としての機能も兼ね備えることができる。本明細書でいう電子阻止層または励起子阻止層は、一つの層で電子阻止層および励起子阻止層の機能を有する層を含む意味で使用される。

10

【0076】

(正孔阻止層)

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有する。正孔阻止層は電子を輸送しつつ、正孔が電子輸送層へ到達することを阻止する役割があり、これにより発光層中での電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。正孔阻止層の材料としては、後述する電子輸送層の材料を必要に応じて用いることができる。

20

【0077】

(電子阻止層)

電子阻止層とは、広い意味では正孔を輸送する機能を有する。電子阻止層は正孔を輸送しつつ、電子が正孔輸送層へ到達することを阻止する役割があり、これにより発光層中での電子と正孔が再結合する確率を向上させることができる。

【0078】

(励起子阻止層)

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は発光層に隣接して陽極側、陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。すなわち、励起子阻止層を陽極側に有する場合、正孔輸送層と発光層の間に、発光層に隣接して該層を挿入することができ、陰極側に挿入する場合、発光層と陰極との間に、発光層に隣接して該層を挿入することができる。また、陽極と、発光層の陽極側に隣接する励起子阻止層との間には、正孔注入層や電子阻止層などを有することができる。陰極と、発光層の陰極側に隣接する励起子阻止層との間には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層などを有することができる。阻止層を配置する場合、阻止層として用いる材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーの少なくともいずれか一方は、発光材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーよりも高いことが好ましい。

30

40

【0079】

(正孔輸送層)

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。使用できる公知の正孔輸送材料としては例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、ア

50

ミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物およびスチリルアミン化合物を用いることが好ましく、芳香族第3級アミン化合物を用いることがより好ましい。

【0080】

(電子輸送層)

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる場合もある)としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。使用できる電子輸送層としては例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタンおよびアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

10

【0081】

有機エレクトロルミネッセンス素子を作製する際には、一般式(1)で表される化合物を発光層に用いるだけでなく、発光層以外の層にも用いてもよい。その際、発光層に用いる一般式(1)で表される化合物と、発光層以外の層に用いる一般式(1)で表される化合物は、同一であっても異なってもよい。例えば、上記の注入層、阻止層、正孔阻止層、電子阻止層、励起子阻止層、正孔輸送層、電子輸送層などにも一般式(1)で表される化合物を用いてもよい。これらの層の製膜方法は特に限定されず、ドライプロセス、ウェットプロセスのどちらで作製してもよい。

20

【0082】

以下に、有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることができる好ましい材料を具体的に例示する。ただし、本発明において用いることができる材料は、以下の例示化合物によって限定的に解釈されることはない。また、特定の機能を有する材料として例示した化合物であっても、その他の機能を有する材料として転用することも可能である。なお、以下の例示化合物の構造式における R 、 $R_2 \sim R_7$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 n は3~5の整数を表す。

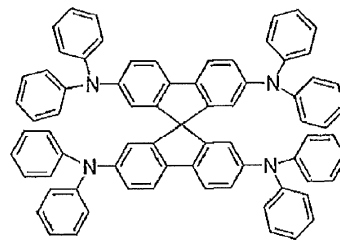
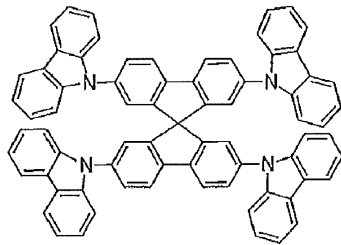
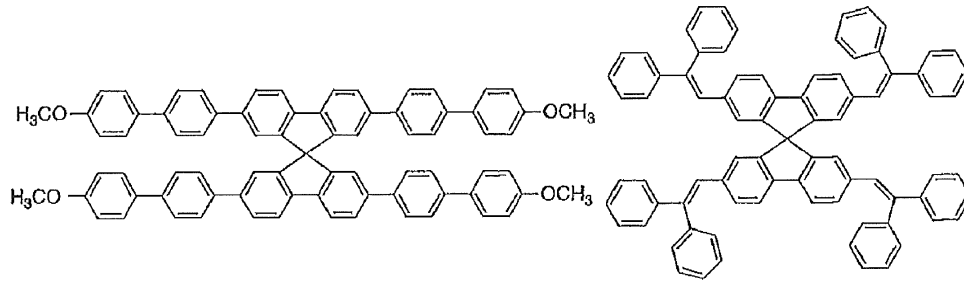
30

【0083】

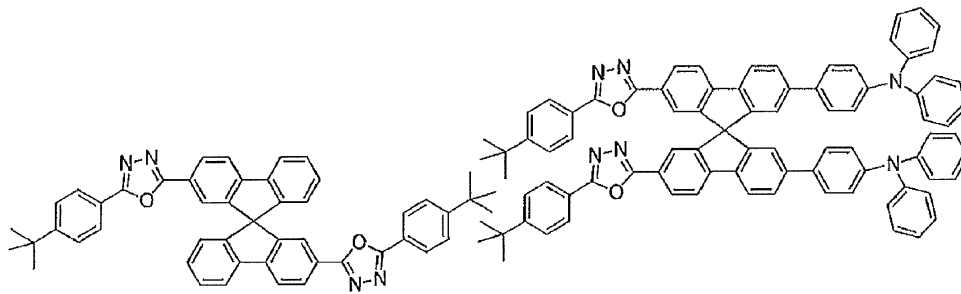
まず、発光層のホスト材料としても用いることができる好ましい化合物を挙げる。

【0084】

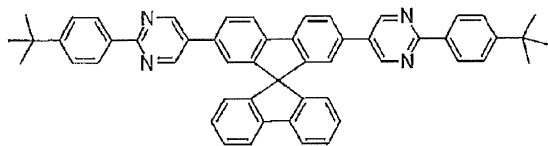
【化 4 3】



10



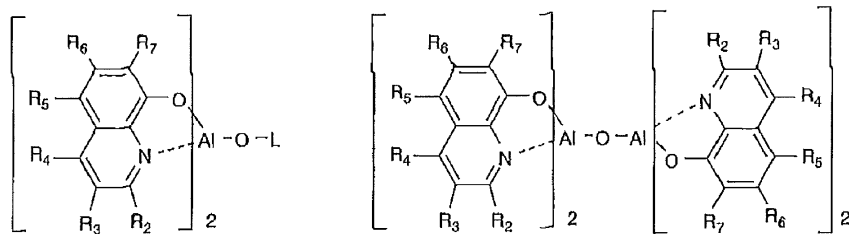
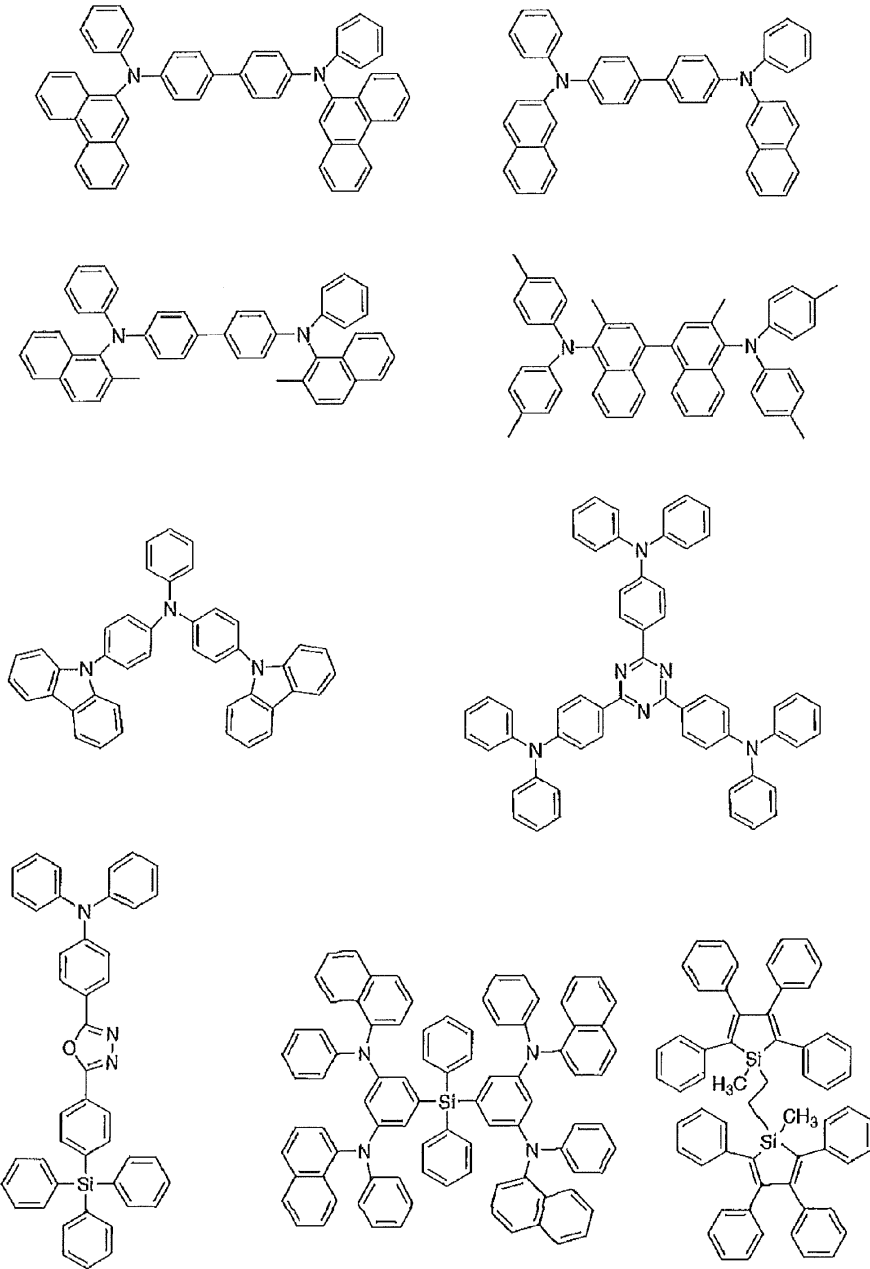
20



30

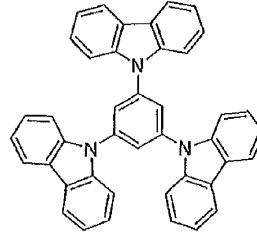
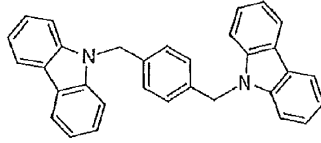
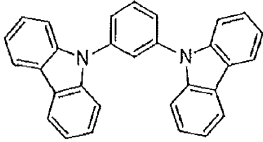
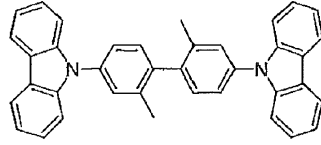
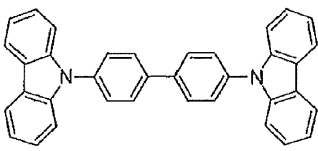
【 0 0 8 5 】

【化 4 4】

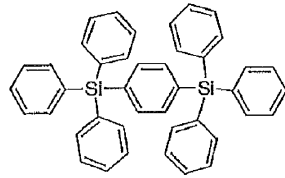


【 0 0 8 6 】

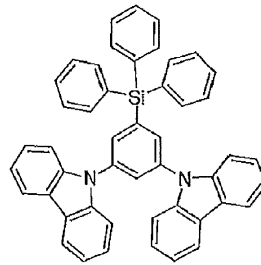
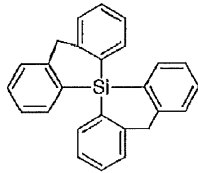
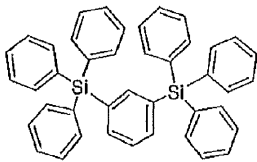
【化 4 5】



10

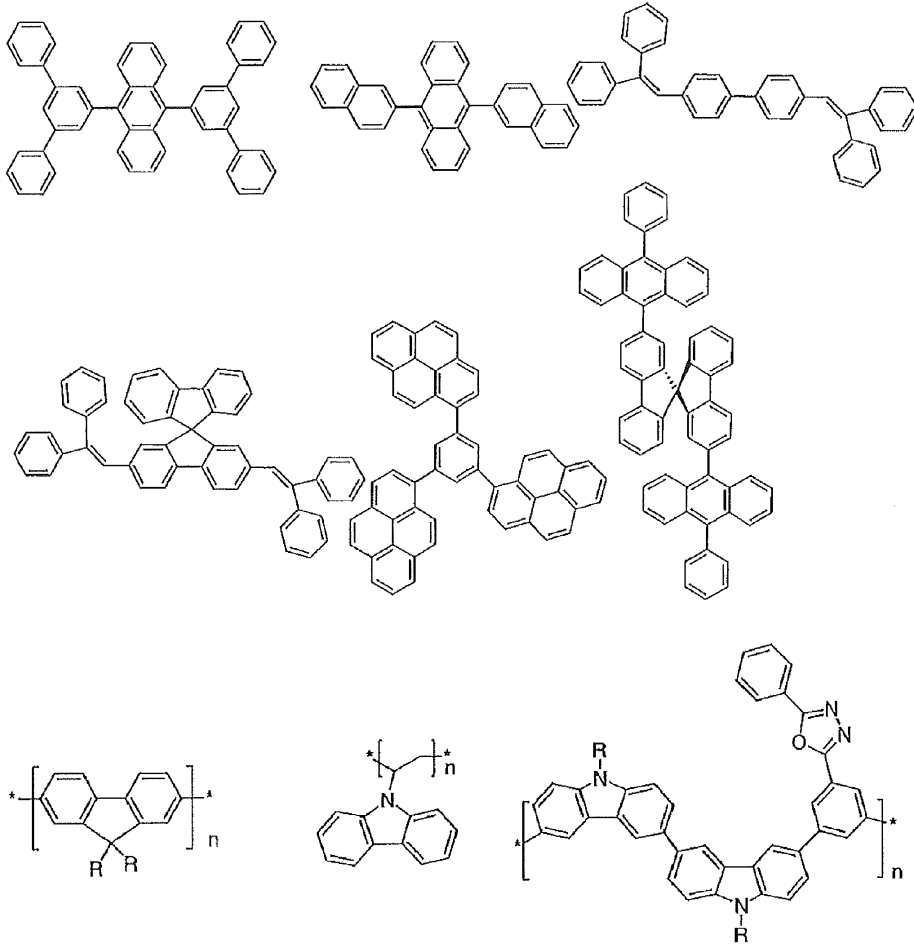


20



【 0 0 8 7】

【化46】

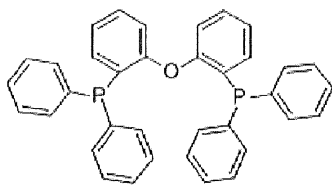


10

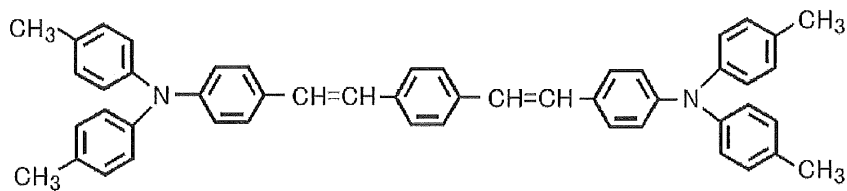
20

【0088】

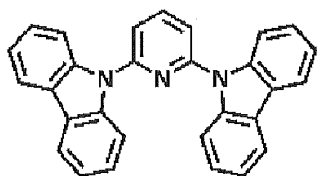
【化47】



30



40

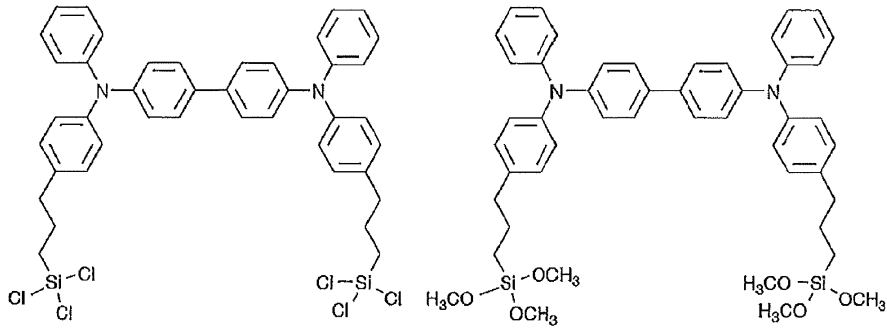


【0089】

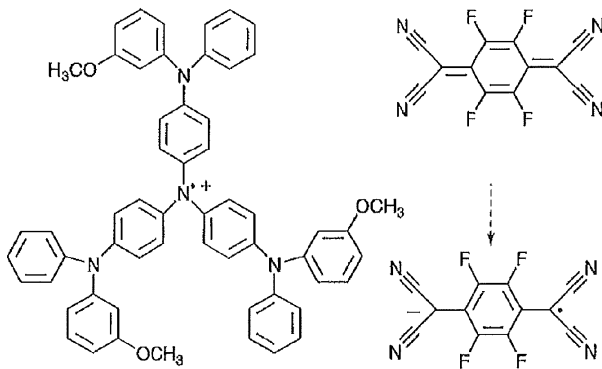
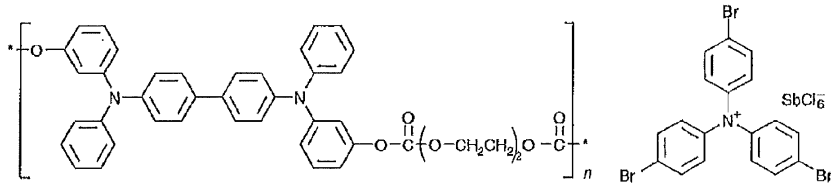
次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【0090】

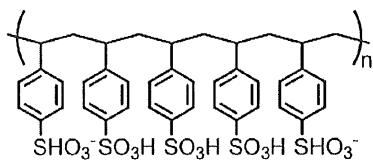
【化48】



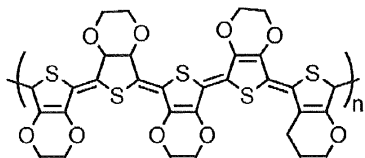
10



20



30



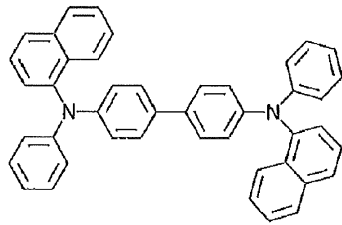
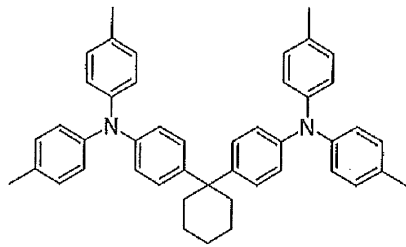
【0091】

次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

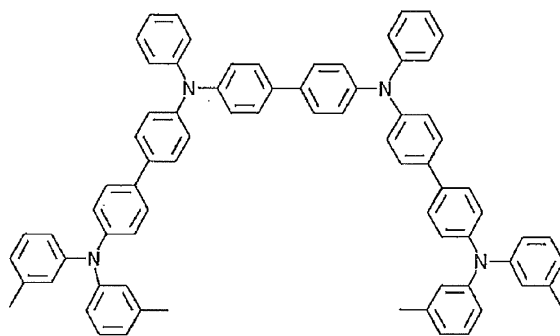
40

【0092】

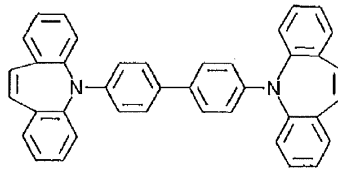
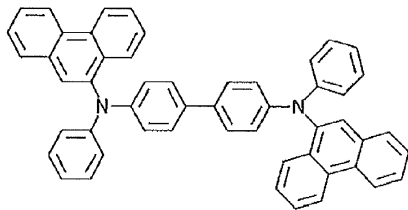
【化 4 9】



10



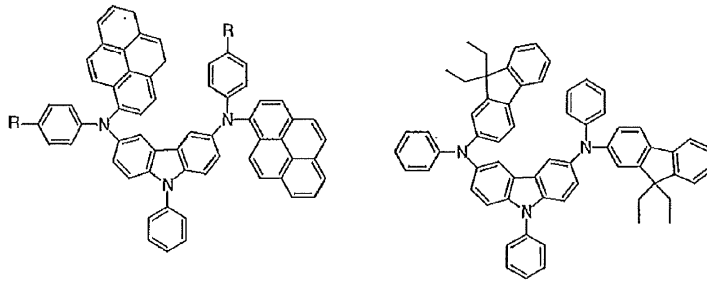
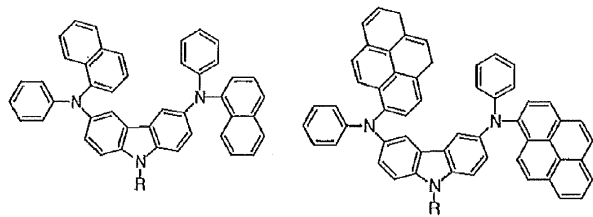
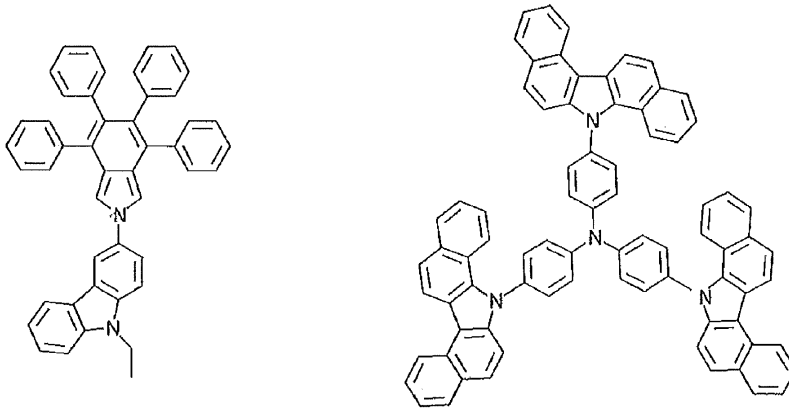
20



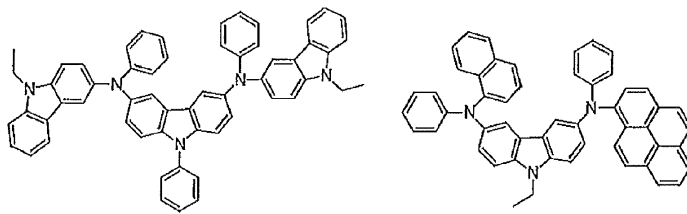
30

【 0 0 9 3】

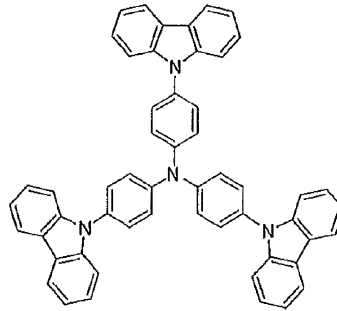
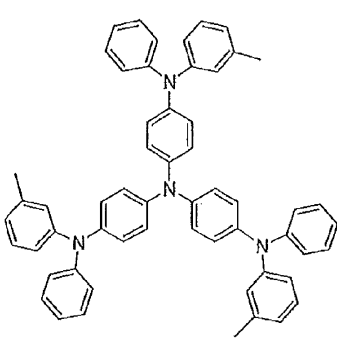
【化50】



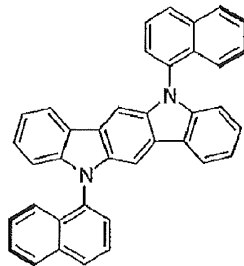
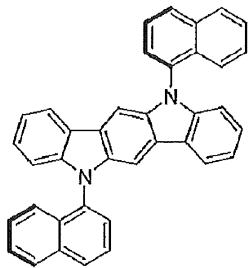
【0094】



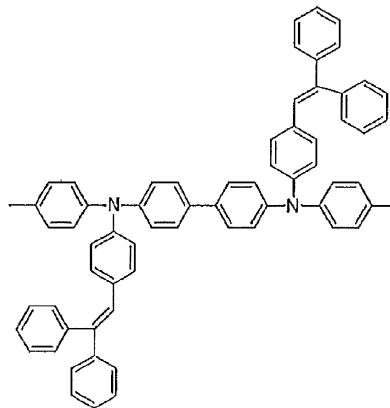
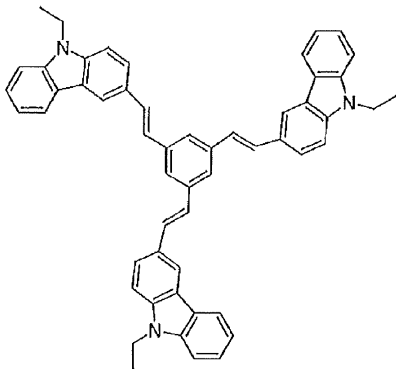
【化 5 1】



10



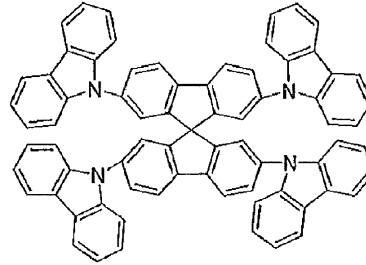
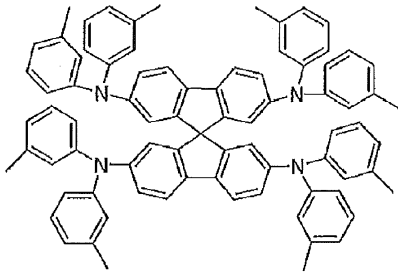
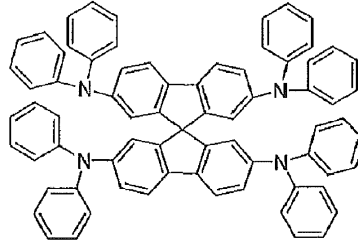
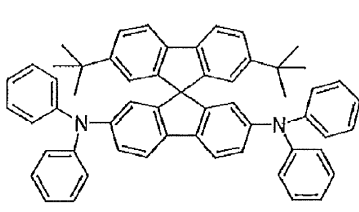
20



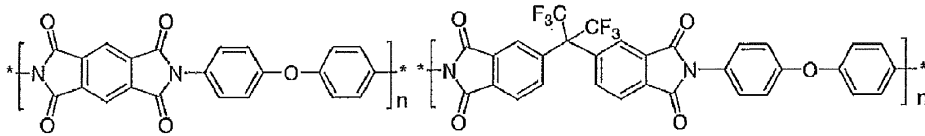
30

【 0 0 9 5 】

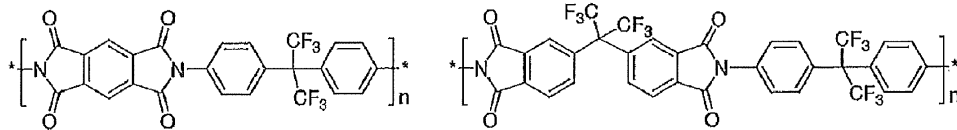
【化 5 2】



10



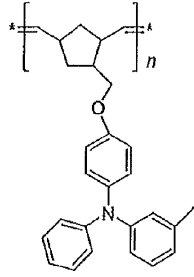
20



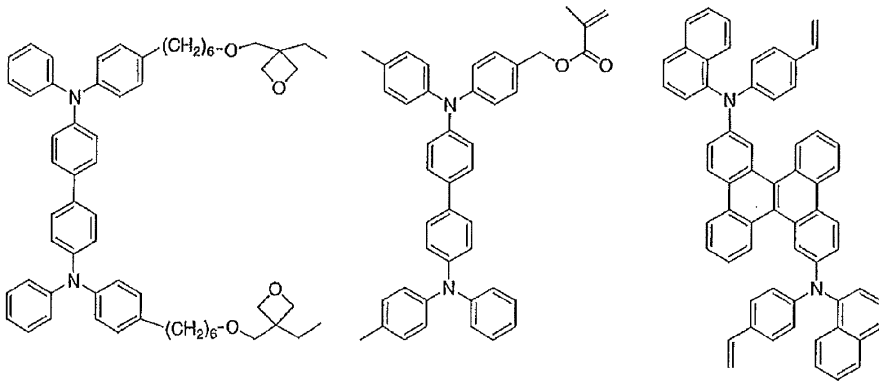
【 0 0 9 6 】

30

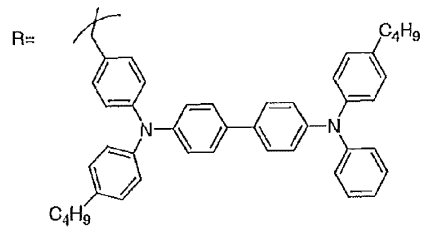
【化 5 3】



10



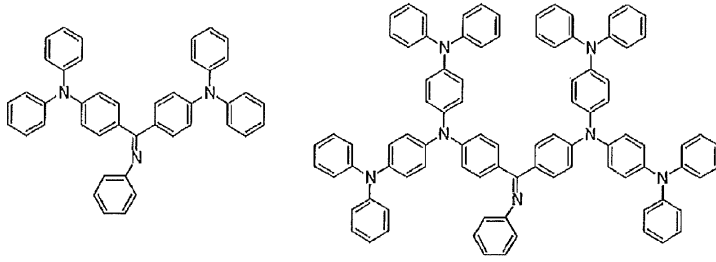
20



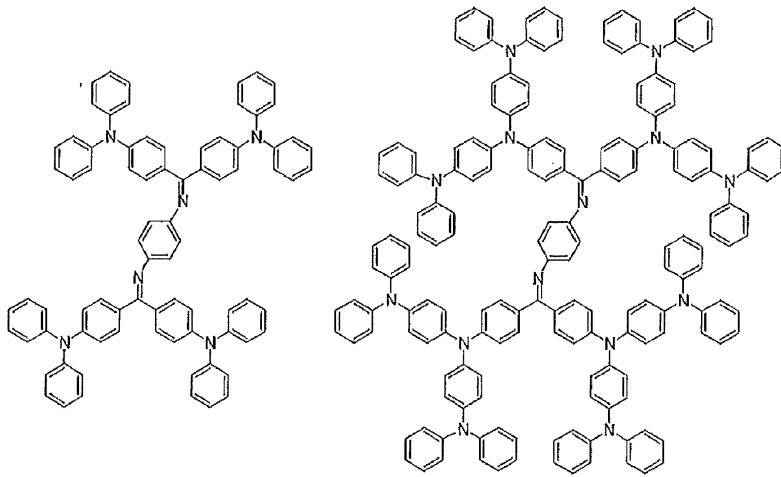
30

【 0 0 9 7 】

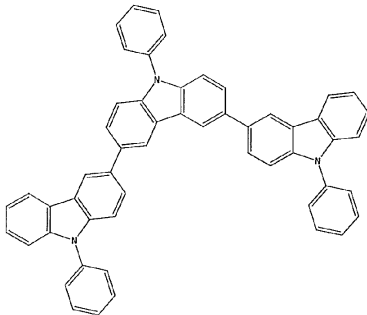
【化54】



10



20



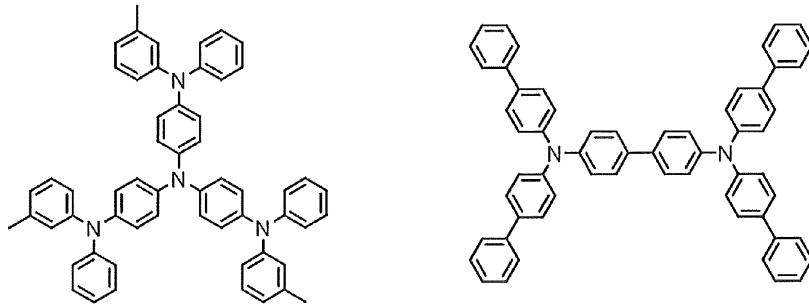
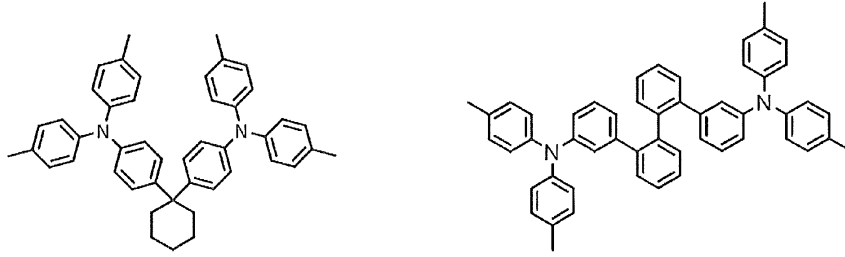
30

【0098】

次に、電子阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【0099】

【化55】



10

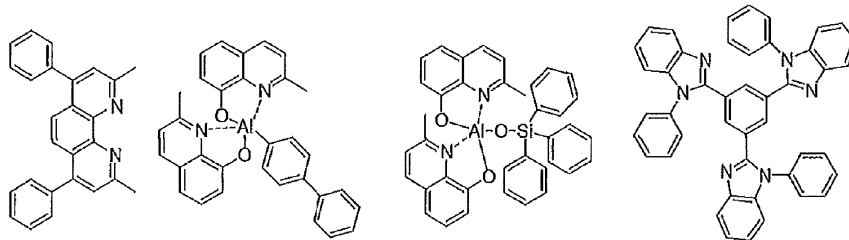
【0100】

次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

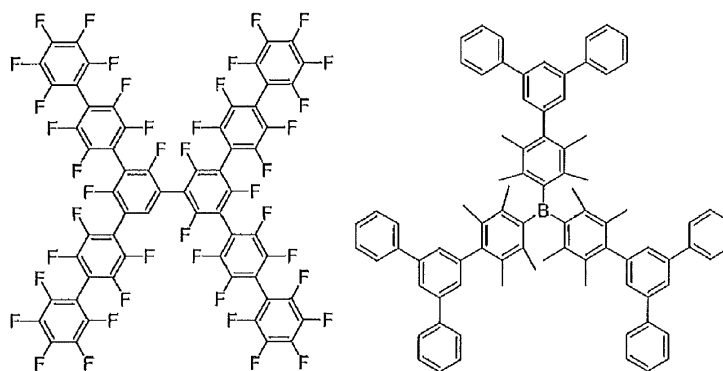
20

【0101】

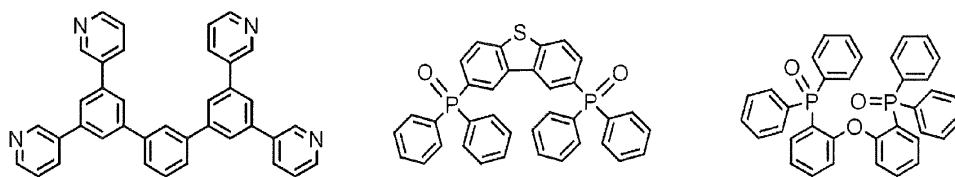
【化56】



30



40



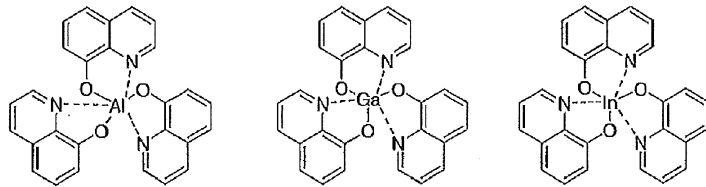
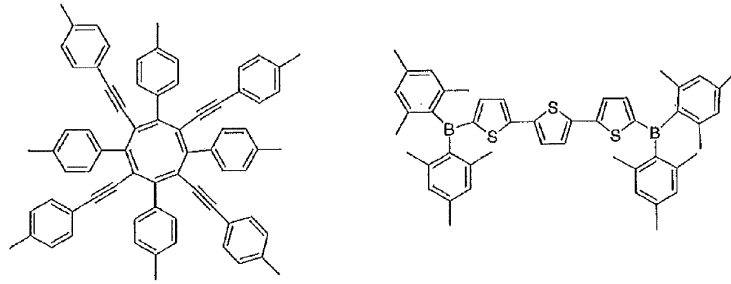
【0102】

次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

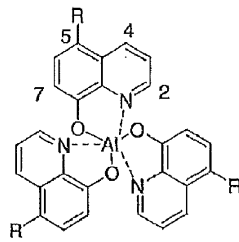
【0103】

50

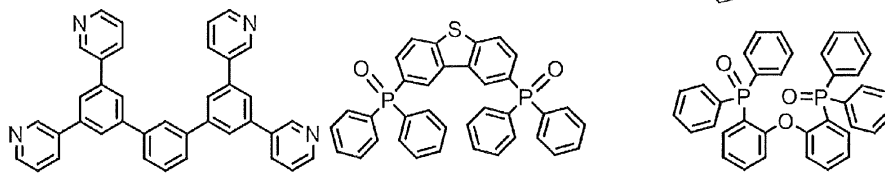
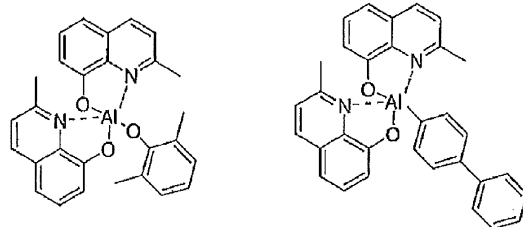
【化 5 7】



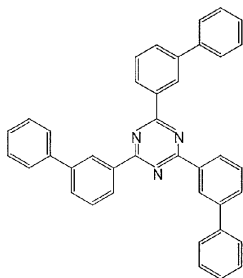
10



20



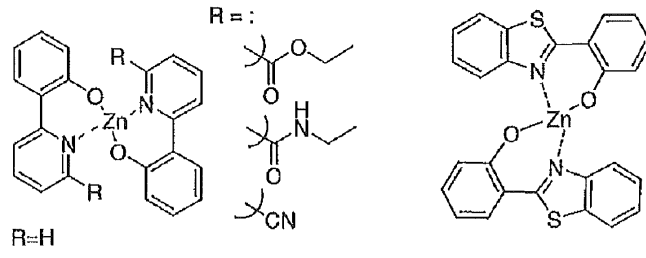
30



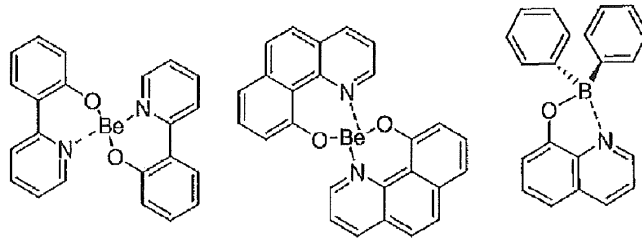
40

【 0 1 0 4】

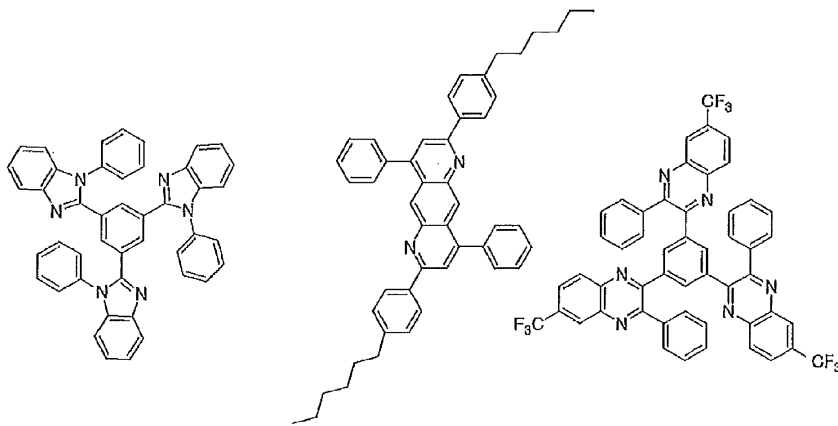
【化 5 8】



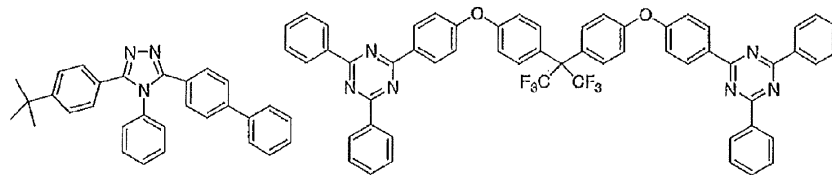
10



20

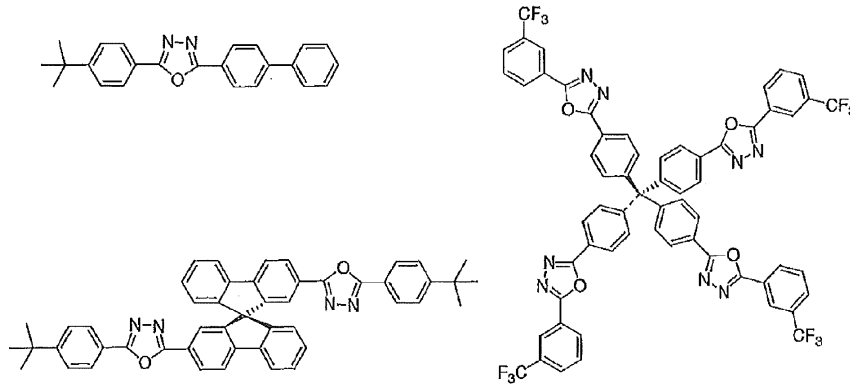


30

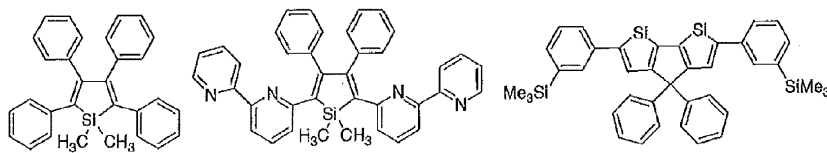


【 0 1 0 5 】

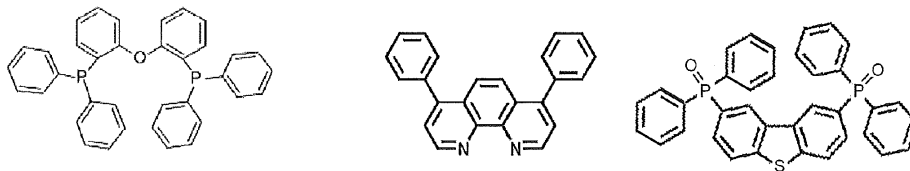
【化59】



10



20

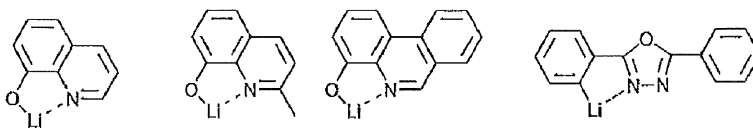


【0106】

次に、電子注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【0107】

【化60】



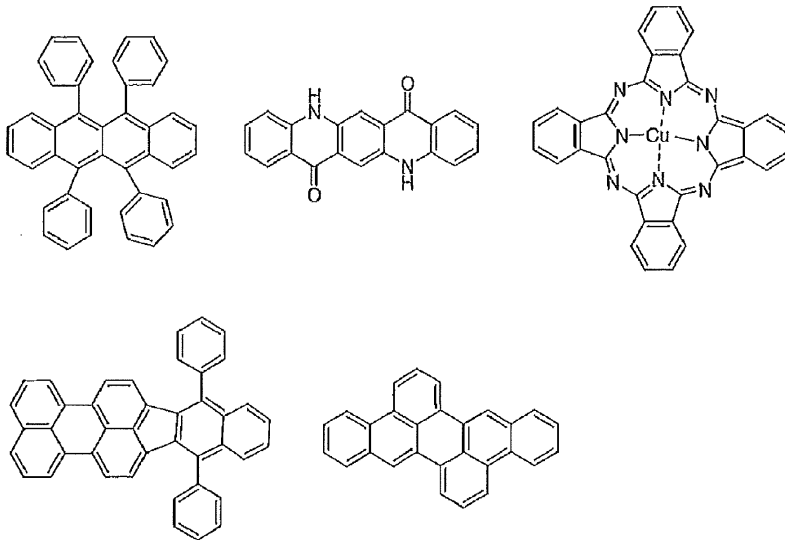
30

【0108】

さらに添加可能な材料として好ましい化合物例を挙げる。例えば、安定化材料として添加すること等が考えられる。

【0109】

【化 6 1】



10

【 0 1 1 0】

上述の方法により作製された有機エレクトロルミネッセンス素子は、得られた素子の陽極と陰極の間に電界を印加することにより発光する。このとき、励起一重項エネルギーによる発光であれば、そのエネルギーレベルに応じた波長の光が、蛍光発光および遅延蛍光発光として確認される。また、励起三重項エネルギーによる発光であれば、そのエネルギーレベルに応じた波長が、りん光として確認される。通常の蛍光は、遅延蛍光発光よりも蛍光寿命が短いため、発光寿命は蛍光と遅延蛍光で区別できる。

20

一方、りん光については、本発明の化合物のような通常の有機化合物では、励起三重項エネルギーは不安定で熱等に変換され、寿命が短く直ちに失活するため、室温では殆ど観測できない。通常の有機化合物の励起三重項エネルギーを測定するためには、極低温の条件での発光を観測することにより測定可能である。

【 0 1 1 1】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極が X - Y マトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。本発明によれば、発光層に一般式 (1) で表される化合物を含有させることにより、発光効率が大きく改善された有機発光素子が得られる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子などの有機発光素子は、さらに様々な用途へ応用することが可能である。例えば、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いて、有機エレクトロルミネッセンス表示装置を製造することが可能であり、詳細については、時任静士、安達千波矢、村田英幸共著「有機 EL ディスプレイ」(オーム社)を参照することができる。また、特に本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、需要が大きい有機エレクトロルミネッセンス照明やバックライトに応用することもできる。

30

【実施例】

【 0 1 1 2】

以下に合成例および実施例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。なお、発光特性の評価は、ソースメータ(ケースレー社製: 2400 シリーズ)、半導体パラメータ・アナライザ(アジレント・テクノロジー社製: E5273A)、光パワーメータ測定装置(ニューポート社製: 1930C)、光学分光器(オーシャンオプティクス社製: USB2000)、分光放射計(トプコン社製: SR-3)およびストリークカメラ(浜松ホトニクス(株)製 C4334 型)を用いて行った。

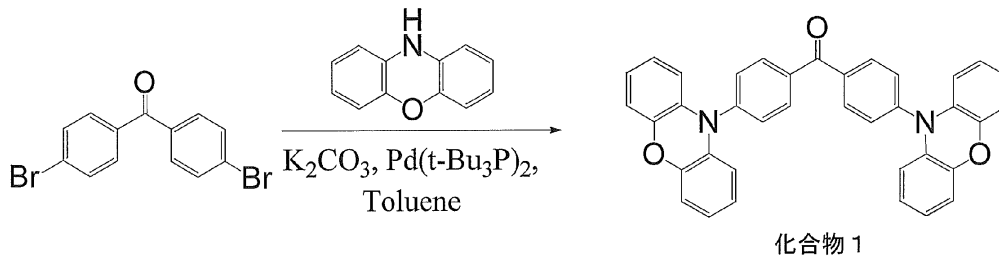
40

【 0 1 1 3】

(合成例 1) 化合物 1 の合成

50

【化62】



【0114】

10

4、4'-ジブロモベンゾフェノン(1.02g, 3.00mmol)と10H-フェノキサジン(1.20g, 6.6mmol)を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、トルエン50mLを加えて10分間攪拌した。攪拌後、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)(0.15g, 0.30mmol)と炭酸カリウム(1.04g, 7.50mmol)を加え、120℃で24時間攪拌した後、水を加えてさらに30分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、4、4'-ビス(10H-フェノキサジン)ベンゾフェノンを収量1.42g、収率88.7%で得た。

化合物の同定は¹H-NMRおよび元素分析によって行った。

20

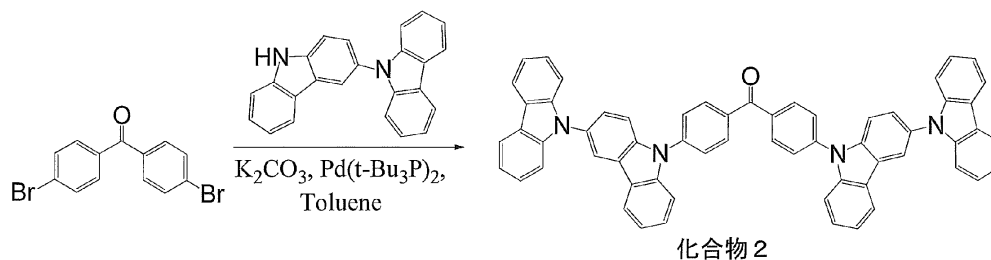
¹H-NMR(500MHz, CDCl₃, TMS,) : 8.10(d, J = 8.5Hz, 4H), 7.54(d, J = 8.5Hz, 4H), 6.75-6.69(m, 8H), 6.65(td, J = 8.0, 2.0Hz, 4H), 6.02(dd, J = 8.0, 1.5Hz, 4H) .

元素分析: Anal. Calcd for C₃₇H₂₄N₂: C 81.60%, H 4.44%, N 5.14%; found: C 81.69%, H 4.41%, N 5.11% .

【0115】

(合成例2) 化合物2の合成

【化63】



30

【0116】

4、4'-ジブロモベンゾフェノン(1.02g, 3.00mmol)と3,9'-ビ-9H-カルバゾール(2.19g, 6.60mmol)を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、トルエン50mLを加えて10分間攪拌した。攪拌後、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)(0.15g, 0.30mmol)と炭酸カリウム(1.04g, 7.50mmol)を加え、120℃で24時間攪拌した後、水を加えてさらに30分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、4、4'-ビス[3-(9-カルバゾール)-9-カルバゾール]ベンゾフェノンを収量2.21g、収率89.1%で得た。

40

化合物の同定は¹H-NMRおよび元素分析により行った。

¹H-NMR(500MHz, CDCl₃, TMS,) : 8.35(d, J = 2.0Hz, 50

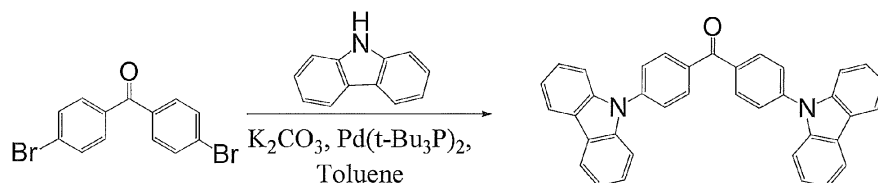
2 H), 8.28 (d, $J = 8.5$ Hz, 4 H), 8.22 (d, $J = 8.0$ Hz, 4 H), 8.17 (d, $J = 7.5$ Hz, 2 H), 7.93 (d, $J = 8.5$ Hz, 4 H), 7.78 (d, $J = 8.5$ Hz, 2 H), 7.66 - 7.63 (m, 4 H), 7.56 (t, $J = 8.5$ Hz, 2 H), 7.47 - 7.43 (m, 8 H), 7.41 (t, $J = 8.0$ Hz, 2 H), 7.35 - 7.32 (m, 4 H).

元素分析: Anal. Calcd for $C_{61}H_{38}N_4$: C 86.91%, H 4.54%, N 6.65%; found: C 86.72%, H 4.40%, N 6.53%.

【0117】

(合成例3) 化合物3の合成

【化64】



化合物3

10

【0118】

4、4'-ジブロモベンゾフェノン(1.02 g, 3.00 mmol)と9H-カルバゾール(1.10 g, 6.6 mmol)を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、トルエン50 mLを加えて10分間攪拌した。攪拌後、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)(0.15 g, 0.30 mmol)と炭酸カリウム(1.04 g, 7.50 mmol)を加え、120 で24時間攪拌した後、水を加えてさらに30分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、4、4'-ビス(9H-カルバゾール)ベンゾフェノンを収量1.38 g、収率90.0%で得た。

化合物の同定は¹H-NMRおよび元素分析により行った。

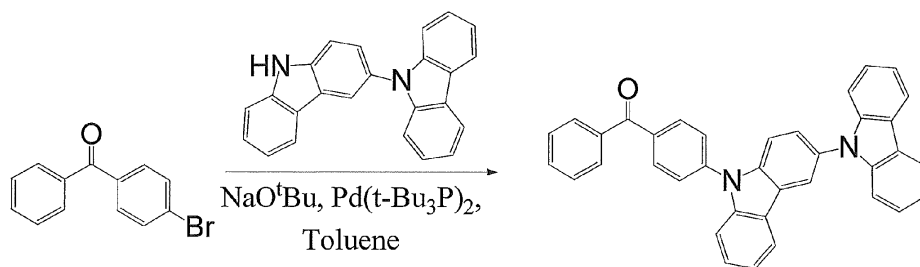
¹H-NMR(500 MHz, CDCl₃, TMS,): 8.19 - 8.17 (m, 8 H), 7.81 (d, $J = 8.5$ Hz, 4 H), 7.57 (d, $J = 8.5$ Hz, 4 H), 7.46 (td, $J = 7.5$ Hz, 1.0 Hz, 4 H), 7.34 (td, $J = 7.5$ Hz, 1.0 Hz, 4 H).

元素分析: Anal. Calcd for $C_{37}H_{24}N_2$: C 86.69%, H 4.72%, N 5.46%; found: C 86.61%, H 4.66%, N 5.43%.

【0119】

(合成例4) 化合物4の合成

【化65】



化合物4

40

【0120】

4-プロモベンゾフェノン(2.00 g, 7.66 mmol)、9-(9H-カルバゾール-3-イル)-9H-カルバゾール(2.55 g, 7.66 mmol)、ビス(トリ-tert-ブチル)ホスフィンパラジウム(0)(0.397 g, 0.766 mmol)、

50

ナトリウム tert - ブトキシド (1 . 4 7 2 g , 1 5 . 3 m m o l) を 1 0 0 m L 三つ口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物へ、トルエン 3 0 m L を加えた。この混合物をダイヤフラムポンプを用いて、減圧脱気した後、窒素置換した。この混合物を窒素雰囲気下、1 0 0 で 5 時間攪拌した。所定時間経過後、この混合物へクロロホルムを加えて攪拌した。攪拌後、この混合物をセライト、フロリジル、アルミナを通して吸引る過してろ液を得た。得られたろ液を分液ロートに移し、水、飽和食塩水で洗浄した。洗浄後、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物を吸引る過してろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより、精製した。カラムクロマトグラフィーはまず、クロロホルム：ヘキサン = 1 : 4 の混合溶媒を展開溶媒として用い、次いでクロロホルム：ヘキサン = 1 : 1 の混合溶媒を展開溶媒として用いることにより行った。得られたフラクションを濃縮して得た固体をアセトンとイソプロパノールの混合溶媒で再結晶したところ、目的物の淡黄色粉末状固体を収量 2 . 0 1 g 、収率 5 1 . 1 % で得た。

10

化合物の同定は¹H - NMRおよび元素分析により行った。

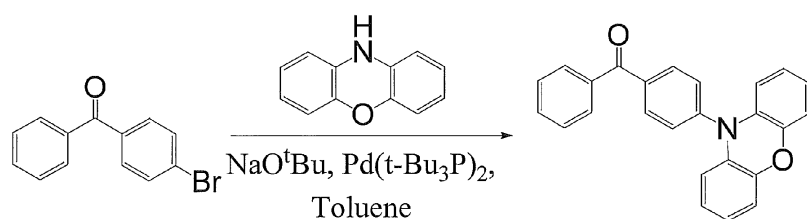
¹H - NMR (5 0 0 M H z , C D C l ₃ , T M S ,) : 8 . 3 0 (d , J = 2 . 0 H z , 1 H) , 8 . 1 9 (d , J = 7 . 5 H z , 2 H) , 8 . 1 3 (d d , J = 8 . 5 , 1 . 5 H z , 3 H) , 7 . 9 3 (d d , J = 8 . 0 , 1 . 0 H z , 2 H) , 7 . 8 2 (d d , J = 8 . 5 , 1 . 5 H z , 2 H) , 7 . 7 1 (d , J = 8 . 5 , 1 H) , 7 . 6 6 (t , J = 7 . 5 , 1 H) , 7 . 6 0 - 7 . 5 5 (m , 4 H) , 7 . 5 1 (t d , J = 7 . 0 , 1 . 0 H z , 1 H) , 7 . 4 4 - 7 . 3 9 (m , 4 H) , 7 . 3 1 (t , J = 8 . 0 H z , 2 H)

20

【 0 1 2 1 】

(合成例 5) 化合物 5 の合成

【 化 6 6 】



化合物 5

30

【 0 1 2 2 】

4 - プロモベンゾフェノン (2 . 0 0 g , 7 . 6 6 m m o l) 、 1 0 H - フェノキサジン (1 . 4 0 g , 7 . 6 6 m m o l) 、 ビス (トリ - tert - ブチル) ホスフィンパラジウム (0) 0 . 3 9 7 g (0 . 7 6 6 m m o l) 、 ナトリウム tert - ブトキシド 1 . 4 7 2 g (1 5 . 3 m m o l) を 1 0 0 m L 三つ口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物へ、トルエン 3 0 m L を加えた。この混合物をダイヤフラムポンプを用いて、減圧脱気した後、窒素置換した。この混合物を窒素雰囲気下、1 0 0 で 5 時間攪拌した。所定時間経過後、この混合物へクロロホルムを加えて攪拌した。攪拌後、この混合物をセライト、フロリジル、アルミナを通して吸引る過してろ液を得た。得られたろ液を分液ロートに移し、水、飽和食塩水で洗浄した。洗浄後、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物を吸引る過してろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより、精製した。カラムクロマトグラフィーはまず、クロロホルム：ヘキサン = 1 : 4 の混合溶媒を展開溶媒として用い、次いでクロロホルム：ヘキサン = 1 : 1 の混合溶媒を展開溶媒として用いることにより行った。得られたフラクションを濃縮して得た固体をアセトンとイソプロパノールの混合溶媒で再結晶したところ、目的物の淡黄色粉末状固体を収量 1 . 9 8 g 、収率 7 1 . 2 % で得た。

40

化合物の同定は¹H - NMRおよび元素分析により行った。

¹H - NMR (5 0 0 M H z , C D C l ₃ , T M S ,) : 8 . 0 4 (d d , J = 8 . 5 , 1 . 5 H z , 2 H) , 7 . 8 8 (d d , J = 8 . 5 H z , 1 . 5 H z , 2 H) , 7 . 6 4

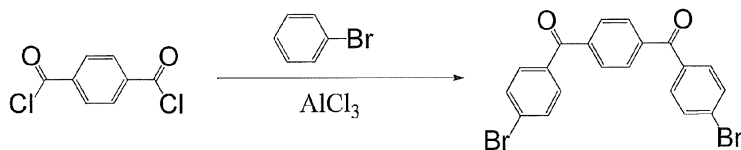
50

(t , J = 7 . 5 , 1 H) , 7 . 5 4 (t , J = 8 . 0 H z , 2 H) , 7 . 4 9 (d d , J = 8 . 5 , 2 . 0 H z , 2 H) , 6 . 7 4 - 6 . 6 7 (m , 4 H) , 6 . 6 3 (t d , J = 8 . 0 , 2 . 0 H z , 2 H) , 6 . 0 0 (d d , J = 7 . 5 , 1 . 5 H z , 2 H)

【 0 1 2 3 】

(合成例 6) 化合物 1 7 の合成

【 化 6 7 】



10

【 0 1 2 4 】

イソフタル酸ジクロリド (2 . 6 0 g , 2 . 0 0 m m o l) とプロモベンゼン (1 0 m l) を三口フラスコに入れた後、塩化アルミニウム (2 . 0 3 g , 1 . 0 m m o l) をゆっくり加えて室温で 9 時間攪拌した。その後 9 0 まで温度を上げて 2 時間攪拌し、冷たいメタノールを加えて、析出した白い有機物を吸引ろ過して得た。得られた有機物をクロロホルムで再結晶を行い精製し、1,4-ビス(4-プロモベンゾイル)ベンゼンを収量 3 . 3 3 g、収率 7 5 . 0 % で得た。

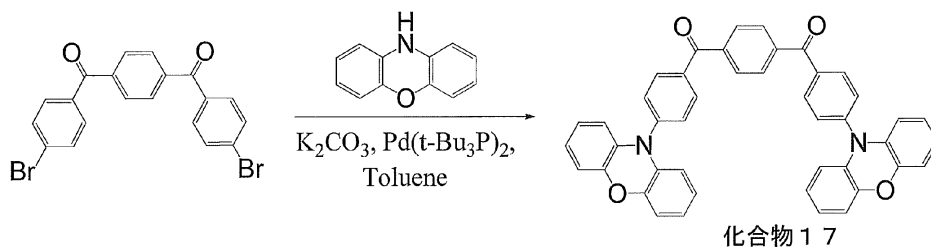
化合物の同定は¹H-NMRより行った。

¹H-NMR (5 0 0 M H z , C D C l ₃ , T M S ,) : 7 . 8 7 (s , 4 H) , 7 . 7 1 (d , J = 8 . 5 H z , 4 H) , 7 . 6 7 (d , J = 8 . 5 H z , 4 H) .

20

【 0 1 2 5 】

【 化 6 8 】



化合物 1 7

30

【 0 1 2 6 】

1,3-ビス{4-(10H-フェノキサジン-10-イル)ベンゾイル}ベンゼンの合成法で、1,3-ビス(4-プロモベンゾイル)ベンゼンの代わりに1,4-ビス(4-プロモベンゾイル)ベンゼンを用いて合成を行い、1,4-ビス[4-(10-フェノキサジン-10-イル)ベンゾイル]ベンゼンを収量 1 . 2 0 g、収率 8 4 . 0 % で得た。

化合物の同定は¹H-NMRおよび元素分析により行った。

¹H-NMR (5 0 0 M H z , C D C l ₃ , T M S ,) : 8 . 0 9 (d , J = 7 . 0 H z , 1 H) , 8 . 0 1 (s , 1 H) , 7 . 5 4 (d , J = 8 . 5 H z , 1 H) , 6 . 7 5 - 6 . 6 9 (m , 2 H) , 6 . 6 4 (t d , J = 7 . 5 H z , 1 . 5 H z , 1 H) , 6 . 0 2 (d d , J = 7 . 5 H z , 1 . 0 H z , 1 H) .

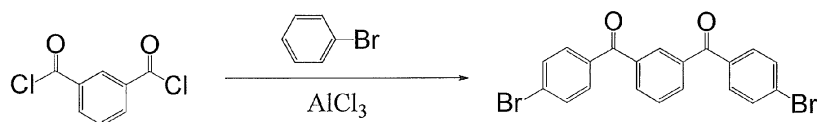
40

元素分析: Anal. Calcd for C₄₄H₂₈N₂: C 8 1 . 4 7 % , H 4 . 3 5 % , N 4 . 3 2 % ; found : C 8 1 . 4 5 % , H 4 . 2 0 % , N 1 2 . 0 4 % .

【 0 1 2 7 】

(合成例 7) 化合物 1 8 の合成

【 化 6 9 】



50

【0128】

イソフタロイルクロリド (2.60 g, 2.00 mmol) とプロモベンゼン (10 ml) を三口フラスコに入れた後、塩化アルミニウム (2.03 g, 1.0 mmol) をゆっくり加えて室温で9時間攪拌した。その後90℃まで温度を上げて2時間攪拌し、冷たいメタノールを加えて、析出した白い有機物を吸引ろ過して得た。得られた有機物をクロロホルムで再結晶を行い精製し、1,3-ビス(4-プロモベンゾイル)ベンゼンを収量3.97 g、収率89.0%で得た。

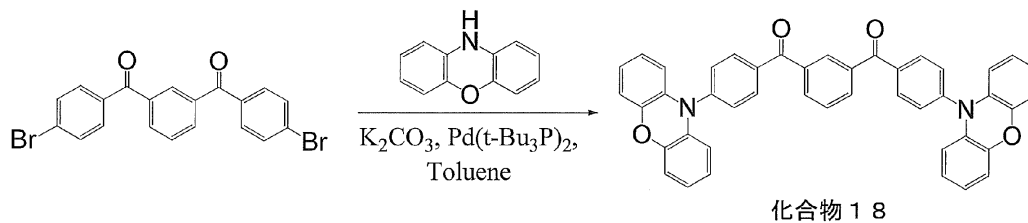
化合物の同定は¹H-NMRより行った。

¹H-NMR (500 MHz, CDCl₃, TMS,) : 8.13 (s, 1H), 8.00 (dd, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 7.70 - 7.64 (m, 9H).

10

【0129】

【化70】



化合物1の合成法で、4,4'-ジプロモベンゾフェノンの代わりに1,3-ビス(4-プロモベンゾイル)ベンゼンを用いて、合成を行い、1,3-ビス[4-(10-フェノキサジン-10-イル)ベンゾイル]ベンゼンを収量1.40 g、収率96.0%で得た。

20

化合物の同定は¹H-NMRおよび元素分析により行った。

¹H-NMR (500 MHz, CDCl₃, TMS,) : 8.37 (t, 1H), 8.12 - 8.08 (m, 6H), 7.72 (t, 1H), 7.53 (d, J = 8.5 Hz, 4H), 6.74 - 6.68 (m, 8H), 6.64 - 6.61 (m, 4H), 6.01 (dd, J = 8.5 Hz, 1.5 Hz, 4H).

元素分析: Anal. Calcd for C₄₄H₃₈N₂: C 81.47%, H 4.35%, N 4.32%; found: C 81.47%, H 4.27%, N 4.29%.

30

【0130】

(実施例1) 化合物1を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

Ar雰囲気のグローブボックス中で化合物1のトルエン溶液(濃度10⁻⁴ mol/L)を調製した。

また、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度10⁻⁴ Pa以下の条件にて化合物1の薄膜を50 nmの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

これとは別に、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度10⁻⁴ Pa以下の条件にて化合物1とCBPまたはmCPとを異なる蒸着源から蒸着し、化合物1の濃度が6.0重量%である薄膜を100 nmの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

これらの化合物1を用いたサンプルについて、290 nm励起光による発光スペクトルを測定した結果を図2に示す。

40

フォトルミネッセンス量子効率、バブリングなしのトルエン溶液で28.0%、窒素バブリングしたトルエン溶液で43.7%、化合物1のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で38.0%、化合物1とCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で60.2%、化合物1とmCPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で70.2%であった。

また、トルエン溶液と化合物1のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線を図3に示す。この過渡減衰曲線は、化合物に励起光を当てて発光強度が失活してゆく過程を測定した発光寿命測定結果を示すものである。通常の一成分の発光(蛍光もしくはリン光)では発光強度は単一指数関数的に減衰する。これは、グラフの縦軸がセ

50

ミ log である場合には、直線的に減衰することを意味している。図 3 に示す化合物 1 の過渡減衰曲線では、観測初期にこのような直線的成分（蛍光）が観測されているが、数 μ 秒以降には直線性から外れる成分が現れている。これは遅延成分の発光であり、初期の成分と加算される信号は、長時間側に裾をひくゆるい曲線になる。このように発光寿命を測定することによって、化合物 1 は蛍光成分のほかに遅延成分を含む発光体であることが確認された。

さらに、化合物 1 と mCP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の、300 K、250 K、200 K、150 K、100 K、50 K、5 K の各温度における過渡減衰曲線を図 4 に示し、300 K における発光寿命スペクトルを図 5 に示す。図 4 より、温度上昇に伴って遅延蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。また、即時蛍光成分の発光寿命は 0.06 μ s、遅延蛍光成分の発光寿命は 3.7 μ s であった。

10

また、過塩素酸テトラブチルアンモニウム（TBAP）の塩化メチレン溶液（0.1 mol/L 濃度）中における化合物 1 のサイクリックボルタンモグラムを図 6 に示す。図 6 より、化合物 1 は酸化還元特性が良好であり、良好なデバイス寿命を実現しうるものであることが確認された。

【0131】

（実施例 2） 化合物 2 を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 1 のかわりに化合物 2 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により図 7 に示す発光スペクトルを得た。ただし、CBP は使用せずに DPPEO を使用した。

20

フォトルミネッセンス量子効率、バブリングなしのトルエン溶液で 15.2%、窒素バブリングしたトルエン溶液で 38.3%、化合物 2 のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 16.1%、化合物 1 と mCP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 16.5%、化合物 2 と DPPEO の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子は大気下で 57.2%、窒素雰囲気下で 72.7% であった。

また、トルエン溶液と化合物 2 のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線を図 8 に示す。さらに、化合物 2 と DPPEO の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の、350 K、250 K、150 K、77 K の各温度における過渡減衰曲線を図 9 に示し、300 K、250 K、200 K、150 K、100 K、50 K、5 K の各温度における過渡減衰曲線を図 10 に示す。また、300 K における発光寿命スペクトルを図 11 に示す。図 9、10 より、温度上昇に伴って遅延蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。また、即時蛍光成分の発光寿命は 0.009 ms、遅延蛍光成分の発光寿命は 0.45 ms であった。

30

また、過塩素酸テトラブチルアンモニウム（TBAP）の塩化メチレン溶液（0.1 mol/L 濃度）中における化合物 1 のサイクリックボルタンモグラムを図 12 に示す。図 12 より、化合物 2 は酸化還元特性が良好であり、良好なデバイス寿命を実現しうるものであることが確認された。

【0132】

（実施例 3） 化合物 3 を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 1 のかわりに化合物 3 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により図 13 に示す発光スペクトルを得た。ただし、溶媒としてトルエンを使用せずにクロロホルムを使用し、ホスト材料として CBP や mCP を使用せずに DPPEO を使用した。

40

フォトルミネッセンス量子効率は、バブリングなしのクロロホルム溶液で 15.6%、窒素バブリングしたクロロホルム溶液で 21.2%、化合物 3 のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 24.4%、化合物 3 と DPPEO の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 55.0% であった。

化合物 3 の塩化メチレン溶液の過渡減衰曲線を図 14 に示す。さらに、化合物 3 と DPPEO の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の、300 K、250 K、200 K、150 K、100 K、50 K、5 K の各温度における過渡減衰曲線を図 15 に示し、300 K における発光寿命スペクトルを図 16 に示す。図 15 より、温度上昇に伴って遅延

50

蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。また、即時蛍光成分の発光寿命は0.02ms、遅延蛍光成分の発光寿命は0.5msであった。

また、過塩素酸テトラブチルアンモニウム(TBAP)の塩化メチレン溶液(0.1mol/L濃度)中における化合物3のサイクリックボルタンモグラムを図17に示す。図17より、化合物3は酸化還元特性が良好であり、良好なデバイス寿命を実現しうるものであることが確認された。

【0133】

(実施例4) 化合物17を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

Ar雰囲気グローブボックス中で化合物17のシクロヘキサン溶液(濃度 10^{-4} mol/L)を調製した。このシクロヘキサン溶液について、290nm励起光による発光スペクトルを測定した結果を図18に示す。なお、図18には、同様の条件で測定した化合物1~3、18の各シクロヘキサン溶液(濃度 10^{-4} mol/L)の発光スペクトルの測定結果も併せて示した。図18中、PL1~PL3、PL17、PL18はそれぞれ化合物1~3、17、18のシクロヘキサン溶液の発光スペクトルであり、UV1~UV3、UV17、UV18はそれぞれ化合物1~3、17、18のシクロヘキサン溶液の吸収スペクトルである。

また、化合物1のかわりに化合物17を用いた点を変更して、実施例1と同じ方法によりトルエン溶液および有機フォトルミネッセンス素子を作製した。ただし、ホスト材料としてCBPやmCPを使用せずにmCBPを使用した。そして、これらサンプルについて発光スペクトルを測定した。

フォトルミネッセンス量子効率、窒素バブリングしたトルエン溶液で9.1%、化合物17のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で1.8%、化合物17とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で35.9%であった。

化合物17とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の、300K、250K、200K、150K、100K、50K、5Kの各温度における過渡減衰曲線を図19に示し、300Kにおける発光寿命スペクトルを図20に示す。図19より、温度上昇に伴って遅延蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。また、即時蛍光成分の発光寿命は0.03 μ s、遅延蛍光成分の発光寿命は0.6 μ sであった。

また、過塩素酸テトラブチルアンモニウム(TBAP)の塩化メチレン溶液(0.1mol/L濃度)中における化合物17のサイクリックボルタンモグラムを図21に示す。図21より、化合物17は酸化還元特性が良好であり、良好なデバイス寿命を実現しうるものであることが確認された。

【0134】

(実施例5) 化合物18を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

Ar雰囲気グローブボックス中で化合物18のシクロヘキサン溶液(濃度 10^{-4} mol/L)を調製した。このシクロヘキサン溶液について、290nm励起光による発光スペクトルを測定した結果を上記の図18に示す。

また、化合物1のかわりに化合物18を用いた点を変更して、実施例1と同じ方法によりトルエン溶液および有機フォトルミネッセンス素子を作製した。ただし、ホスト材料としてCBPやmCPを使用せずにmCBPを使用した。そして、これらサンプルについて発光スペクトルを測定した。

フォトルミネッセンス量子効率、窒素バブリングしたトルエン溶液で36.0%、化合物18のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で28.5%、化合物18とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で71.3%であった。

化合物18とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の、300K、250K、200K、150K、100K、50K、5Kの各温度における過渡減衰曲線を図22に示し、300Kにおける発光寿命スペクトルを図23に示す。図22より、温度上昇に伴って遅延蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。また、即時蛍光成分の発光寿命は0.02 μ s、遅延蛍光成分の発光寿命は0.5 μ sであつ

10

20

30

40

50

た。

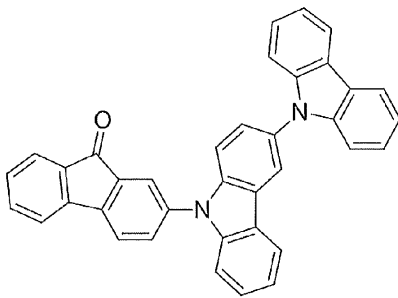
また、過塩素酸テトラブチルアンモニウム (T B A P) の塩化メチレン溶液 (0.1 mol/L 濃度) 中における化合物 17 のサイクリックボルタンモグラムの図 24 に示す。図 24 より、化合物 18 は酸化還元特性が良好であり、良好なデバイス寿命を実現しうるものであることが確認された。

【0135】

(比較例 1) 比較化合物 A を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 1 のかわりに下記の構造を有する比較化合物 A を用いて、比較化合物 A のみからなる薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を作製して発光試験を行ったが、遅延蛍光は認められなかった。また、D P E P O と化合物 3 (濃度 6 重量%) を共蒸着した有機フォトルミネッセンス素子について、300 K と 5 K の各温度で測定した過渡減衰曲線を図 25 に示す。比較化合物 A は熱活性型の蛍光材料ではないことが確認された。さらにこの有機フォトルミネッセンス素子のフォトルミネッセンス量子効率を測定したところ 9.4% と低かった。

【化 71】



比較化合物 A

【0136】

(実施例 6) 化合物 1 を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

膜厚 100 nm のインジウム・スズ酸化物 (I T O) からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 5.0×10^{-4} Pa で積層した。まず、I T O 上に - N P D を 40 nm の厚さに形成した。次に、化合物 1 と m C P を異なる蒸着源から共蒸着し、20 nm の厚さの層を形成して発光層とした。この時、化合物 1 の濃度は 6.0 重量% とした。次に、T P B i を 40 nm の厚さに形成し、さらにフッ化リチウム (L i F) を 0.8 nm 真空蒸着し、次いでアルミニウム (A l) を 80 nm の厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 26 に示し、電圧 - 電流密度 - 発光強度特性を図 27 に示し、電流密度 - 外部量子効率特性を図 28 に示す。化合物 1 を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は 10.7% の高い外部量子効率を達成した。仮に発光量子効率が 100% の蛍光材料を用いてバランスの取れた理想的な有機エレクトロルミネッセンス素子を試作したとすると、光取り出し効率が 20 ~ 30% であれば、蛍光発光の外部量子効率は 5 ~ 7.5% となる。この値が一般に、蛍光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。化合物 1 を用いた本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、理論限界値を超える高い外部量子効率を実現している点で極めて優れている。

また、m C P のかわりに m C B P を使用し、T P B i のかわりに P P T を用いて、同様に有機エレクトロルミネッセンス素子を製造して特性を評価したところ、外部量子効率は 10.2% であった。

【0137】

(実施例 7) 化合物 2 を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

膜厚 100 nm のインジウム・スズ酸化物 (I T O) からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 5.0×10^{-4} Pa で積層した。まず、I T

O上に - N P D を 3 5 n m の厚さに形成し、m C P を 5 n m の厚さに形成した。次に、化合物 2 と D P E P O を異なる蒸着源から共蒸着し、2 0 n m の厚さの層を形成して発光層とした。この時、化合物 2 の濃度は 6 . 0 重量%とした。次に、D P E P O を 1 0 n m の厚さに形成し、T P B i を 3 0 n m の厚さに形成し、さらにフッ化リチウム (L i F) を 0 . 8 n m 真空蒸着し、次いでアルミニウム (A l) を 8 0 n m の厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 2 9 に示し、電圧 - 電流密度特性を図 3 0 に示し、電流密度 - 外部量子効率 - 発光強度特性を図 3 1 に示す。化合物 2 を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は 1 4 . 3 % の高い外部量子効率を達成した。この値は、遅延蛍光を示さない通常の蛍光材料を発光材料として用いた場合の外部量子効率の理論限界値 (7 . 5 %) を大幅に上回っている。

10

【 0 1 3 8 】

(実施例 8) 化合物 3 を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 2 のかわりに化合物 3 を用いて、実施例 5 と同じ方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を製造した。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 3 2 に示し、電圧 - 電流密度特性を図 3 3 に示し、電流密度 - 外部量子効率 - 発光強度特性を図 3 4 に示す。化合物 3 を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は 8 . 1 % の高い外部量子効率を達成した。この値は、遅延蛍光を示さない通常の蛍光材料を発光材料として用いた場合の外部量子効率の理論限界値 (7 . 5 %) を上回っている。

20

【 0 1 3 9 】

(実施例 9) 化合物 1 7 を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 1 のかわりに化合物 1 7 を用いて、実施例 6 と同じ方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を製造した。ただし、発光層を形成する際、m C P を使用せずに m C B P を使用した。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 3 5 に示し、電圧 - 電流密度 - 発光強度特性を図 3 6 に示し、電流密度 - 外部量子効率特性を図 3 7 に示す。なお、図 3 6 において、白抜き記号で表す特性は電圧 - 発光強度特性であり、黒塗り記号で表す特性は電圧 - 電流密度特性である。化合物 1 7 を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は 6 . 9 % の高い外部量子効率を達成した。なお、図 3 5 ~ 3 7

30

【 0 1 4 0 】

(実施例 1 0) 化合物 1 8 を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

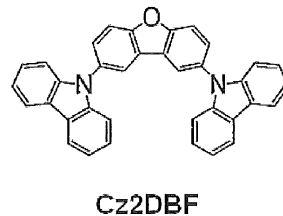
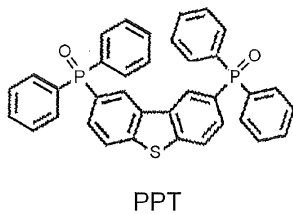
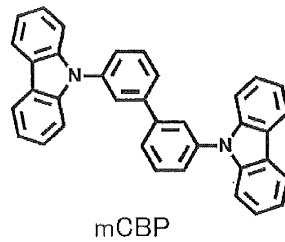
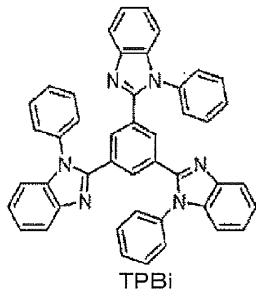
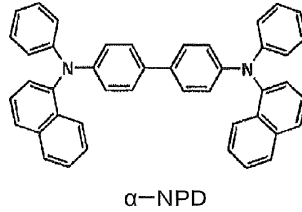
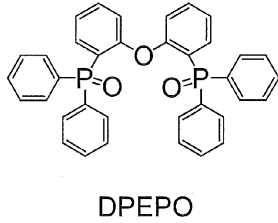
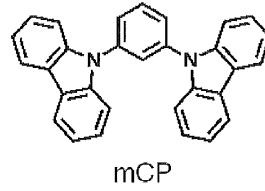
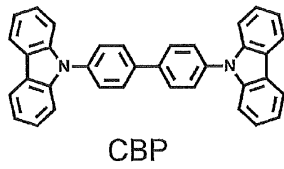
化合物 1 のかわりに化合物 1 8 を用いて、実施例 6 と同じ方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を製造した。ただし、発光層を形成する際、m C P を使用せずに化合物 1 8 のみの薄膜を形成した。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを上記の図 3 5 に示し、電圧 - 電流密度 - 発光強度特性を上記の図 3 6 に示し、電流密度 - 外部量子効率特性を上記の図 3 7 に示す。化合物 1 8 を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子から発光が認められた。

40

【 0 1 4 1 】

【化72】



10

20

30

【産業上の利用可能性】

【0142】

本発明の化合物は発光材料として有用である。このため本発明の化合物は、有機エレクトロルミネッセンス素子などの有機発光素子用の発光材料として効果的に用いられる。本発明の化合物の中には、遅延蛍光が放射するものも含まれているため、発光効率が高い有機発光素子を提供することも可能である。このため、本発明は産業上の利用可能性が高い。

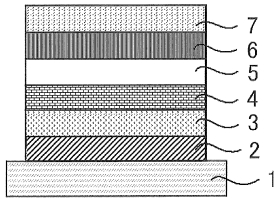
【符号の説明】

【0143】

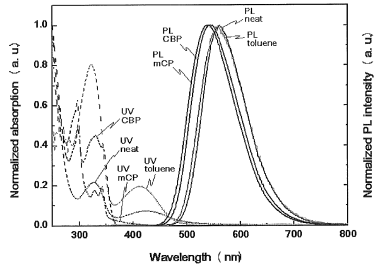
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 陰極

40

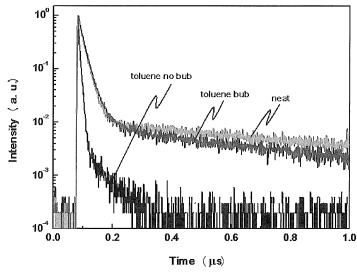
【 1 】



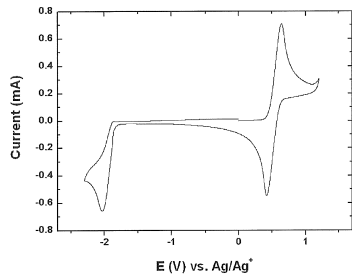
【 2 】



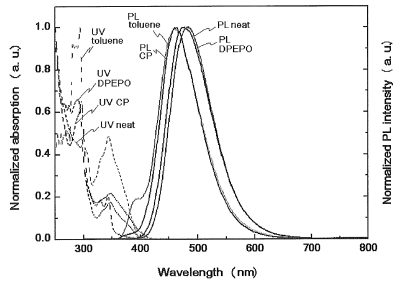
【 3 】



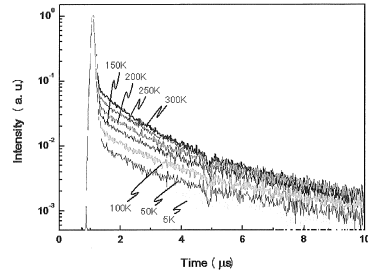
【 6 】



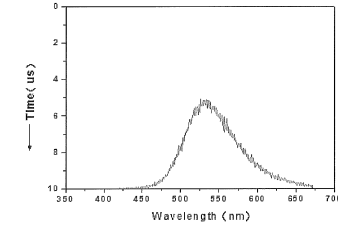
【 7 】



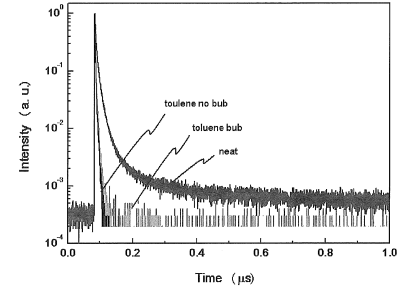
【 4 】



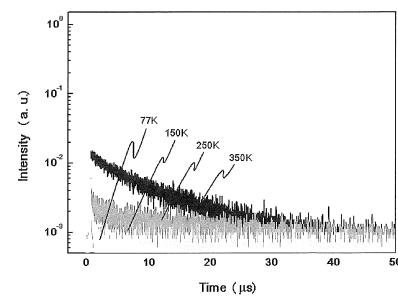
【 5 】



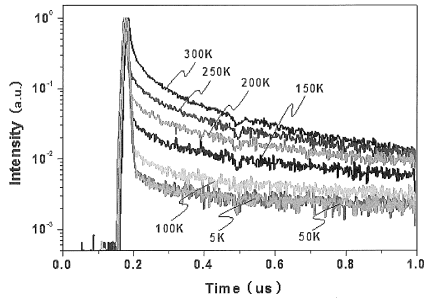
【 8 】



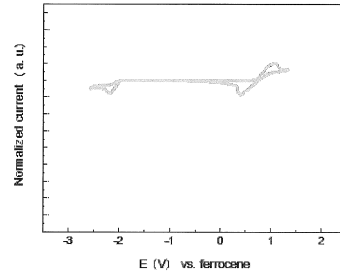
【 9 】



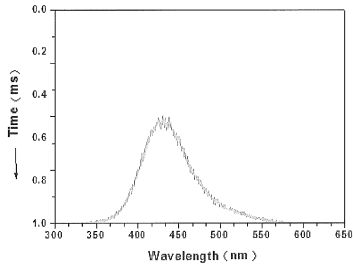
【 1 0 】



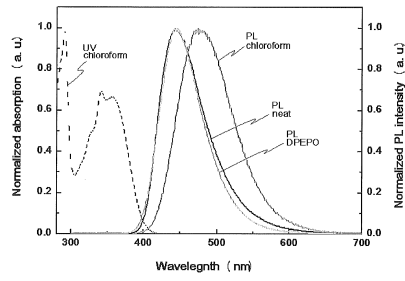
【 1 2 】



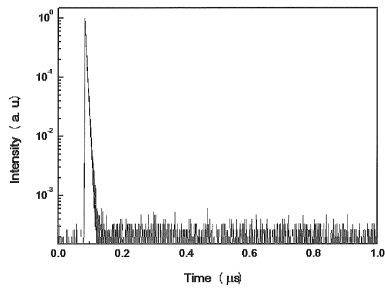
【 1 1 】



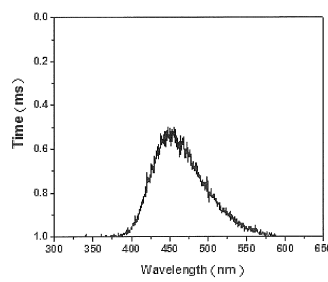
【 1 3 】



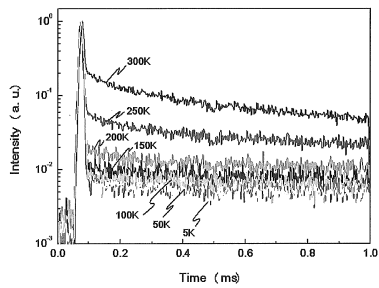
【 1 4 】



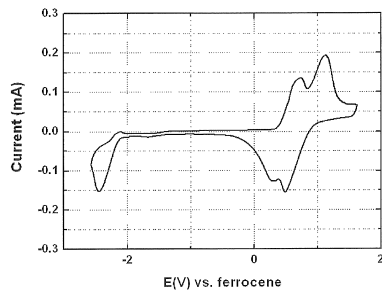
【 1 6 】



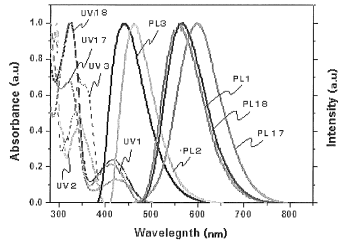
【 1 5 】



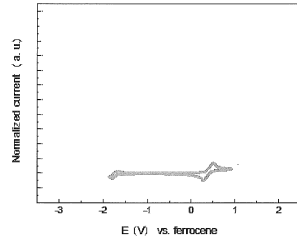
【 1 7 】



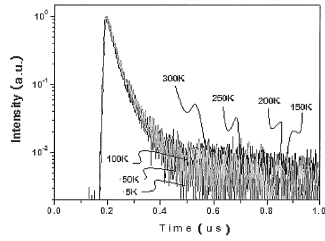
【 18 】



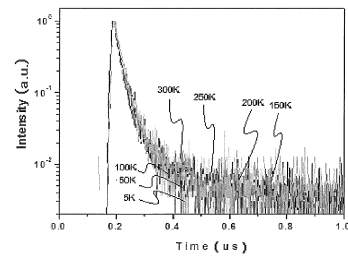
【 21 】



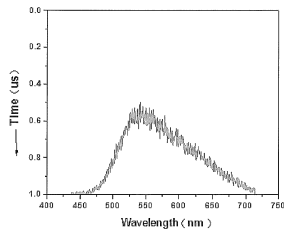
【 19 】



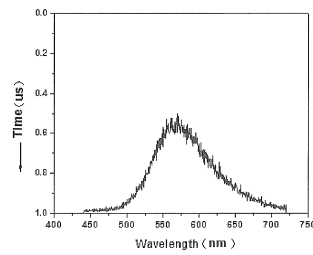
【 22 】



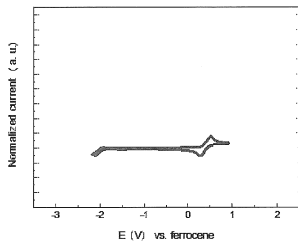
【 20 】



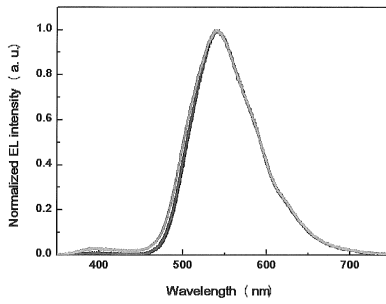
【 23 】



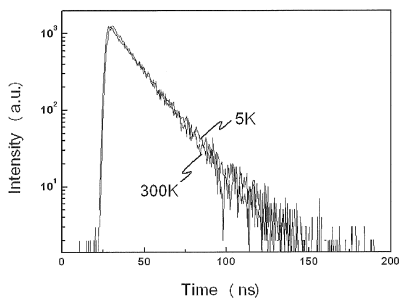
【 24 】



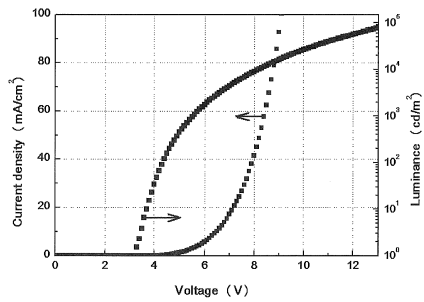
【 26 】



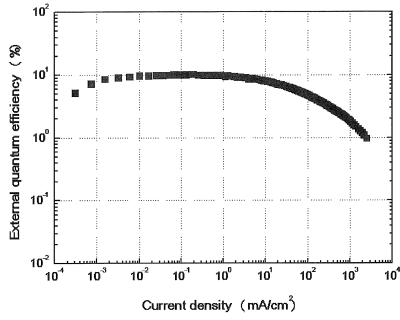
【 25 】



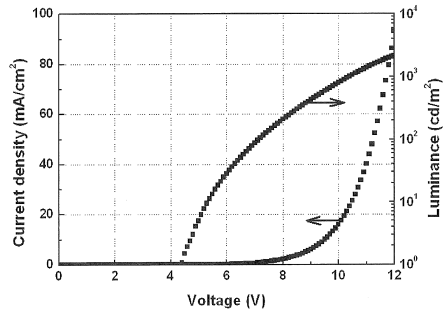
【 27 】



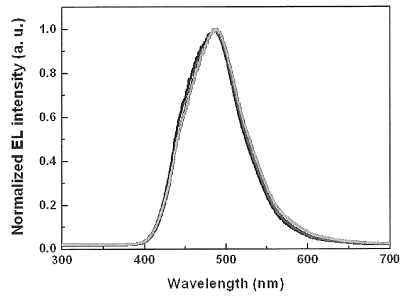
【 28 】



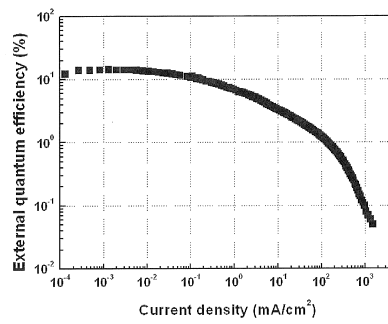
【 30 】



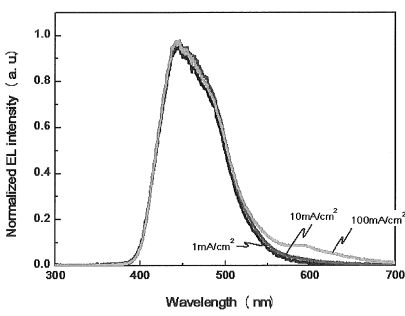
【 29 】



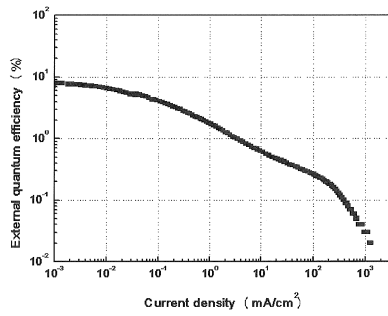
【 31 】



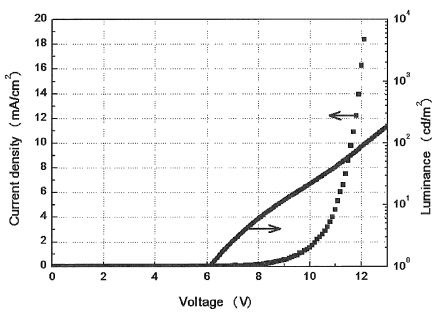
【 32 】



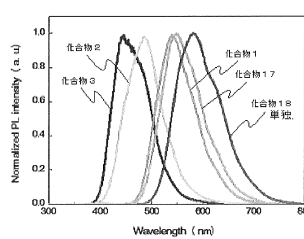
【 34 】



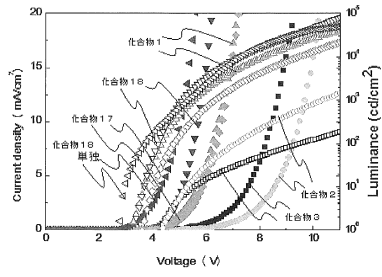
【 33 】



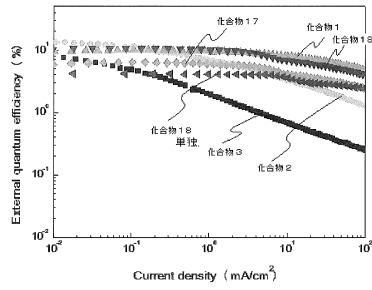
【 35 】



【 36 】



【 37 】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
C 0 7 D 209/88
H 0 5 B 33/14 B

審査官 佐藤 貴浩

- (56)参考文献 特開2006-253445(JP,A)
米国特許出願公開第2009/0131623(US,A1)
特開2010-147115(JP,A)
特開2003-267976(JP,A)
M.Malinska, et al., Differences in electron densities of phenoxazine and phenothiazine derivatives - charge density studies, RSC Advances, 英国, The Royal Society of Chemistry, 2012年 3月28日, Vol.2, Pages 4318-4328
M. Shimizu, et al., Twisting strategy applied to N,N-diorganoquinacridones leads to organic chromophores exhibiting effi, Tetrahedron Letters, NL, Elsevier B.V., 2011年 5月25日, Vol. 52, Pages 4084-4089
B. D. Koepnick, et al., Effect of Substitution on the Optical Properties and HOMO - LUMO Gap of Oligomeric Paraphenylenes, The Journal of Physical Chemistry A, 米国, American Chemical Society, 2010年11月19日, Vol. 114, Pages 13228-13233
S. Reineke, et al., Highly efficient, dual state emission from an organic semiconductor, Applied Physics Letters, 米国, American Institute of Physics, 2013年 8月26日, Vol. 103, Pages 093302-1-4
K.Albrecht, et al., The Synthesis and Properties of Carbazole-Phenylazomethine Double Layer-Type Dendrimers, Macromolecules, 米国, American Chemical Society, 2008年 5月 9日, Vol. 41, Pages 3798-3800

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C 0 9 K 1 1 / 0 6
C 0 7 D 2 0 9 / 8 8
C 0 7 D 2 6 5 / 3 8
H 0 1 L 5 1 / 5 0
CAplus/REGISTRY(STN)