

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6493220号  
(P6493220)

(45) 発行日 平成31年4月3日(2019.4.3)

(24) 登録日 平成31年3月15日(2019.3.15)

(51) Int. Cl.

F 1

<b>C09K 11/06</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	645
<b>C07C 255/51</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	650
<b>C07D 209/86</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	655
<b>C07D 219/02</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K 11/06	620
<b>C07D 241/38</b>	<b>(2006.01)</b>	C07C 255/51	CSP

請求項の数 18 (全 81 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2015-550976 (P2015-550976)  
 (86) (22) 出願日 平成26年11月27日(2014.11.27)  
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2014/081321  
 (87) 国際公開番号 W02015/080183  
 (87) 国際公開日 平成27年6月4日(2015.6.4)  
 審査請求日 平成29年9月28日(2017.9.28)  
 (31) 優先権主張番号 特願2013-246520 (P2013-246520)  
 (32) 優先日 平成25年11月28日(2013.11.28)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)  
 (31) 優先権主張番号 特願2014-112563 (P2014-112563)  
 (32) 優先日 平成26年5月30日(2014.5.30)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(73) 特許権者 516003621  
 株式会社 K y u l u x  
 福岡県福岡市西区九大新町4番地1  
 (74) 代理人 110000109  
 特許業務法人特許事務所サイクス  
 (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  
 (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  
 (72) 発明者 近藤 良介  
 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

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

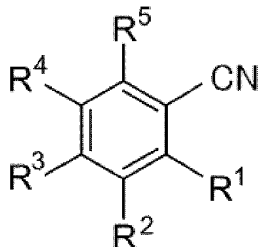
(57) 【特許請求の範囲】

【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】

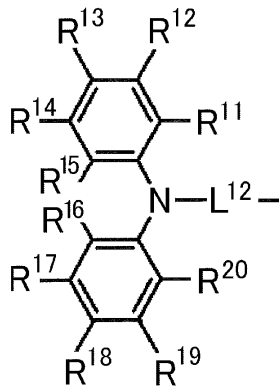
一般式(1)



[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^5$ の1つはシアノ基であり、 $R^1 \sim R^5$ の2~4つは下記一般式(2)で表される基であり、残りの $R^1 \sim R^5$ は水素原子または上記以外の置換基である。ただし、 $R^1 \sim R^5$ の2つが下記一般式(2)で表される基であるとき、 $R^1$ と $R^4$ が下記一般式(2)で表される基であるか、 $R^2$ と $R^3$ が下記一般式(2)で表される基である。]

## 【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。 $R^{11}$ 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。 $L^{12}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。

1

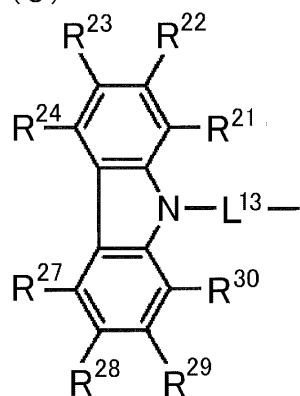
## 【請求項 2】

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。

20

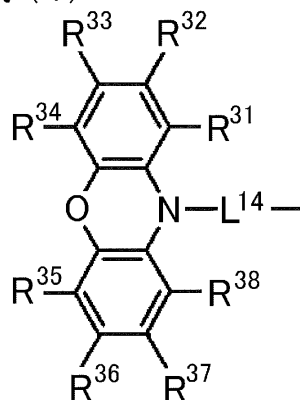
## 【化 3】

一般式 (3)



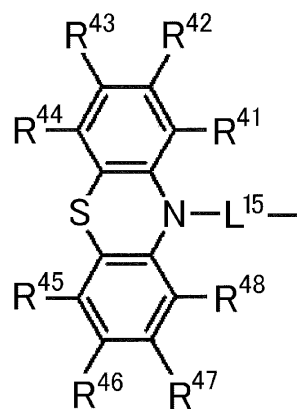
10

一般式 (4)



20

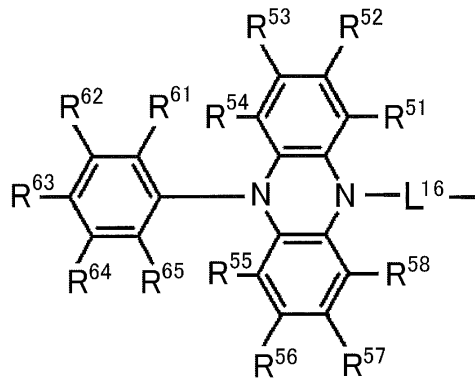
一般式 (5)



30

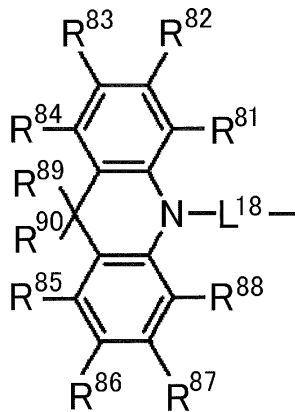
## 【化 4】

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。 $L^{13} \sim L^{16}$ 、 $L^{18}$  は、各々独立に置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

30

## 【請求項 3】

一般式 (1) の  $R^3$  が、シアノ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  $R^1$  と  $R^4$  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 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

40

## 【請求項 5】

前記一般式 (2) の  $L^{12}$  が、フェニレン基であることを特徴とする請求項 1 ~ 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 1 ~ 5 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  $L^{13}$  が、1,3-フェニレン基であることを特徴とする請求項 6 に

50

記載の発光材料。

【請求項 8】

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1～5のいずれか1項に記載の発光材料。

【請求項 9】

前記一般式(4)の $L^{14}$ が、1,4-フェニレン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】

前記一般式(2)で表される基が、前記一般式(8)で表される基であることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項に記載の発光材料。

10

【請求項 11】

前記一般式(8)の $L^{18}$ が、1,4-フェニレン基である請求項10に記載の発光材料。

【請求項 12】

前記一般式(1)の $R^1$ が下記条件Aを満たす基であり、 $R^2$ が置換もしくは無置換のアリール基であるか、

前記一般式(1)の $R^2$ が下記条件Aを満たす基であり、 $R^1$ および $R^3$ の少なくとも一方が置換もしくは無置換のアリール基であるか、

前記一般式(1)の $R^3$ が下記条件Aを満たす基であり、 $R^2$ および $R^4$ の少なくとも一方が置換もしくは無置換のアリール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。

20

<条件A> 一般式(2)で表される基であって、 $R^{15}$ と $R^{16}$ が互いに結合していない基であるか、一般式(3)で表される基であること。

【請求項 13】

前記一般式(1)の $R^1$ が一般式(4)、(5)、(6)または(8)で表される基であり、 $R^2$ が水素原子であるか、

前記一般式(1)の $R^2$ が一般式(4)、(5)、(6)または(8)で表される基であり、 $R^1$ および $R^3$ の少なくとも一方が水素原子であるか、

前記一般式(1)の $R^3$ が一般式(4)、(5)、(6)または(8)で表される基であり、 $R^2$ および $R^4$ の少なくとも一方が水素原子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。

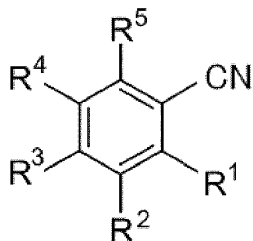
30

【請求項 14】

下記一般式(1)で表される化合物からなる遅延蛍光体。

【化 5】

一般式(1)

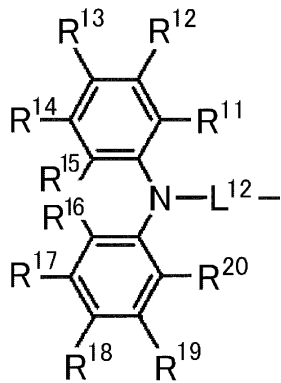


40

[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^5$ の1つはシアノ基であり、 $R^1 \sim R^5$ の2～4つは下記一般式(2)で表される基であり、残りの $R^1 \sim R^5$ は水素原子または上記以外の置換基である。ただし、 $R^1 \sim R^5$ の2つが下記一般式(2)で表される基であるとき、 $R^1$ と $R^4$ が下記一般式(2)で表される基であるか、 $R^2$ と $R^3$ が下記一般式(2)で表される基である。]

## 【化6】

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。 $L^{12}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。ただし、一般式(1)の $R^3$ がシアノ基であり、 $R^2$ および $R^5$ が水素原子であり、 $R^1$ および $R^4$ が一般式(2)で表される基であるとき、その一般式(2)が4-(9-カルバゾリル)フェニル基であることはない。]

## 【請求項15】

20

請求項1~13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。

## 【請求項16】

遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項15に記載の有機発光素子。

## 【請求項17】

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15または16に記載の有機発光素子。

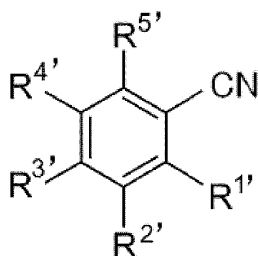
## 【請求項18】

下記一般式(1')で表される化合物。

## 【化7】

30

一般式(1')

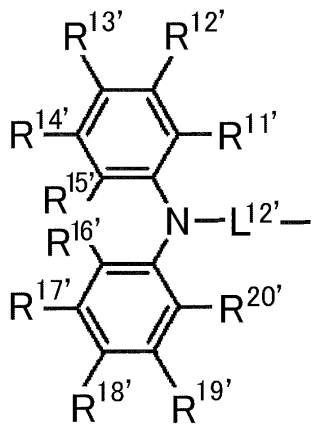


[一般式(1')において、 $R^{1'} \sim R^{5'}$ の1つはシアノ基であり、 $R^{1'} \sim R^{5'}$ の2~4つは下記一般式(2')で表される基であり、残りの $R^{1'} \sim R^{5'}$ は水素原子または上記以外の置換基である。ただし、 $R^{1'} \sim R^{5'}$ の2つが下記一般式(2')で表される基であるとき、 $R^{1'}$ と $R^{4'}$ が下記一般式(2')で表される基であるか、 $R^{2'}$ と $R^{3'}$ が下記一般式(2')で表される基である。]

40

## 【化 8】

一般式 (2')



10

[一般式(2')において、R<sup>11'</sup> ~ R<sup>20'</sup> は各々独立に水素原子または置換基を表す。R<sup>11'</sup> と R<sup>12'</sup>、R<sup>12'</sup> と R<sup>13'</sup>、R<sup>13'</sup> と R<sup>14'</sup>、R<sup>14'</sup> と R<sup>15'</sup>、R<sup>15'</sup> と R<sup>16'</sup>、R<sup>16'</sup> と R<sup>17'</sup>、R<sup>17'</sup> と R<sup>18'</sup>、R<sup>18'</sup> と R<sup>19'</sup>、R<sup>19'</sup> と R<sup>20'</sup> は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。L<sup>12'</sup> は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

【発明の詳細な説明】

20

【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、カルバゾリル基やカルバゾリルフェニル基のようなドナーが、シアノ基等で置換されたベンゼン環のようなアクセプターに結合した構造を有する化合物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。

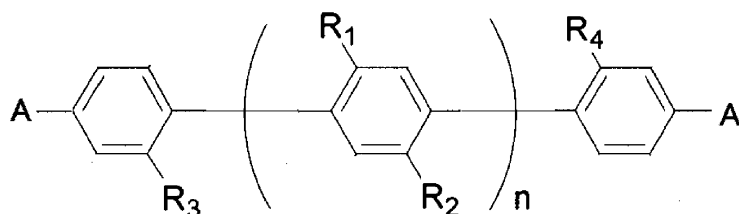
30

【0003】

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が記載されている。下記一般式におけるAは、N-カルバゾリル基またはベンゼン環とともにカルバゾールを形成するのに必要な原子群を表し、R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>は置換基を表し、R<sub>3</sub>およびR<sub>4</sub>は水素原子または置換基を表すものと規定され、R<sub>1</sub>~R<sub>4</sub>がとりうる置換基の一例としてシアノ基が例示されている。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。

40

【化 1】



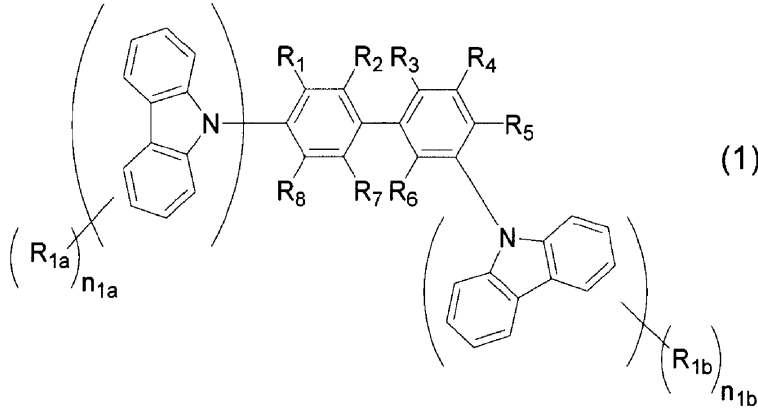
【0004】

一方、特許文献2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

50

ンス素子の発光層のホスト材料として用いた例が記載されている。一般式における  $R_1 \sim R_8$  は、水素原子、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基又は電子求引性基を表し、電子求引性基は、シアノ基、ニトロ基、ペルフルオロアルキル基又はハロゲン原子であると規定されている。また、 $R_{1a}$  及び  $R_{1b}$  は、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子又はアミノ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。

【化 2】



10

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献 1】特開 2004 - 273128 号公報

【特許文献 2】特開 2011 - 176258 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

上記のように、シアノ基等で置換されたベンゼン環にカルバゾリル基等が結合した構造を有する化合物については、特許文献 1、2 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等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、2 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、ホスト材料とは要求される性質や機能が異なるため、特許文献 1、2 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、2 には、ベンゼン環に 2 つ以上のシアノ基が置換した構造を有する化合物については記載されておらず、その発光材料としての有用性は予測がつかない。

30

【0007】

このような状況下において本発明者らは、カルバゾリル基等がベンゼン環に結合した構造を有する化合物群について置換基の種類や置換数等を変えて種々の検討を行ったところ、ベンゼン環に 2 つ以上のシアノ基が置換した構造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た。そして、さらに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。

40

【課題を解決するための手段】

【0008】

鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、2 つ以上のシアノ基で置換されたベンゼン環にカルバゾリル基等が結合した構造を有する化合物のうち、特定の構造を有するもの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

50

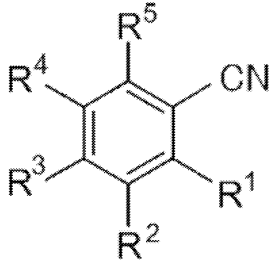
決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

【0009】

[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)

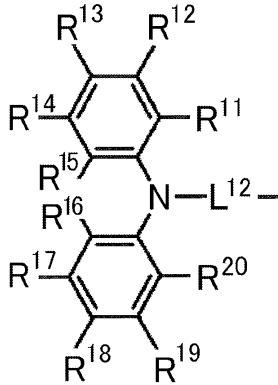


10

[一般式(1)において、 $R^1 \sim R^5$ の0~1つはシアノ基であり、 $R^1 \sim R^5$ の1~5つは下記一般式(2)または下記一般式(7)で表される基であり、残りの $R^1 \sim R^5$ は水素原子または上記以外の置換基である。]

【化4】

一般式(2)



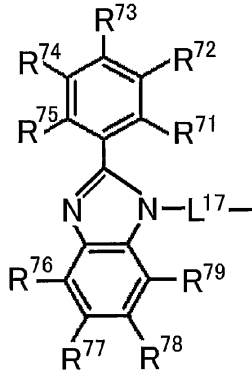
20

[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。 $R^{11}$ 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。 $L^{12}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

30

【化5】

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。 $L^{17}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

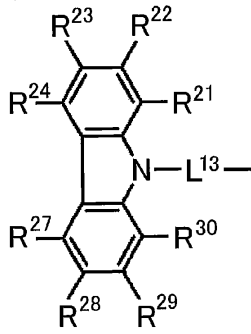
[2] 前記一般式(2)で表される基が、下記一般式(3)~(6)、(8)のいずれ

50

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。

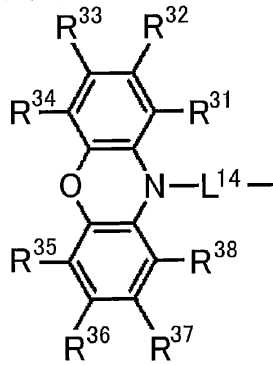
【化 6 - 1】

一般式 (3)



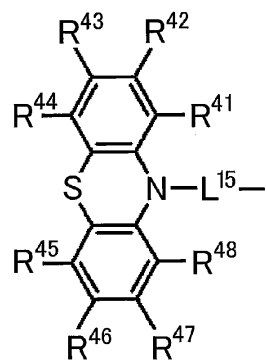
10

一般式 (4)



20

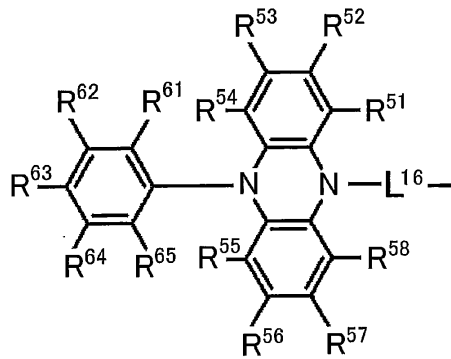
一般式 (5)



30

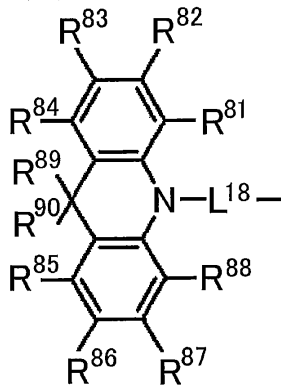
## 【化 6 - 2】

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。 $L^{13} \sim L^{16}$ 、 $L^{18}$  は、各々独立に置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

30

[ 3 ] 一般式 (1) の  $R^3$  が、シアノ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  $R^1$  と  $R^4$  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 ] ~ [ 3 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[ 5 ] 前記一般式 (2) の  $L^{12}$  が、フェニレン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。

40

[ 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 ] ~ [ 5 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[ 7 ] 前記一般式 (3) の  $L^{13}$  が、1, 3-フェニレン基であることを特徴とする [ 6 ] に記載の発光材料。

[ 8 ] 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 ] ~ [ 5 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[ 9 ] 前記一般式 (4) の  $L^{14}$  が、1, 4-フェニレン基であることを特徴とする [ 8 ] に記載の発光材料。

[ 10 ] 前記一般式 (2) で表される基が、前記一般式 (8) で表される基であることを特徴とする [ 1 ] ~ [ 5 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

50

[ 1 1 ] 前記一般式 ( 8 ) の  $L^{18}$  が、1, 4 - フェニレン基である [ 1 0 ] に記載の発光材料。

[ 1 2 ] 前記一般式 ( 1 ) の  $R^1$  が下記条件 A を満たす基であり、 $R^2$  が置換もしくは無置換のアリール基であるか、前記一般式 ( 1 ) の  $R^2$  が下記条件 A を満たす基であり、 $R^1$  および  $R^3$  の少なくとも一方が置換もしくは無置換のアリール基であるか、前記一般式 ( 1 ) の  $R^3$  が下記条件 A を満たす基であり、 $R^2$  および  $R^4$  の少なくとも一方が置換もしくは無置換のアリール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。

< 条件 A > 一般式 ( 2 ) で表される基であって、 $R^{15}$  と  $R^{16}$  が互いに結合していない基であるか、一般式 ( 3 ) で表される基であること。

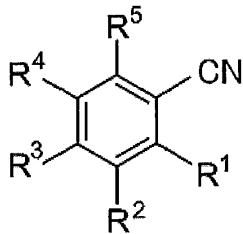
[ 1 3 ] 前記一般式 ( 1 ) の  $R^1$  が一般式 ( 4 )、( 5 )、( 6 ) または ( 8 ) で表される基であり、 $R^2$  が水素原子であるか、前記一般式 ( 1 ) の  $R^2$  が一般式 ( 4 )、( 5 )、( 6 ) または ( 8 ) で表される基であり、 $R^1$  および  $R^3$  の少なくとも一方が水素原子であるか、前記一般式 ( 1 ) の  $R^3$  が一般式 ( 4 )、( 5 )、( 6 ) または ( 8 ) で表される基であり、 $R^2$  および  $R^4$  の少なくとも一方が水素原子であることを特徴とする [ 1 ] または [ 2 ] に記載の発光材料。

【 0 0 1 0 】

[ 1 4 ] 下記一般式 ( 1 ) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

【 化 7 】

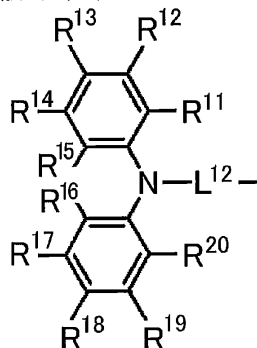
一般式 ( 1 )



[ 一般式 ( 1 ) において、 $R^1 \sim R^5$  の 0 ~ 1 つはシアノ基であり、 $R^1 \sim R^5$  の 1 ~ 5 つは下記一般式 ( 2 ) または下記一般式 ( 7 ) で表される基であり、残りの  $R^1 \sim R^5$  は水素原子または上記以外の置換基である。]

【 化 8 】

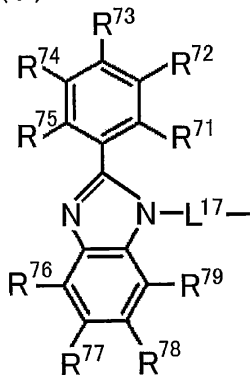
一般式 ( 2 )



[ 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。 $R^{11}$  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。 $L^{12}$  は置換もしくは無置換のアリール基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリール基を表す。ただし、一般式 ( 1 ) の  $R^3$  がシアノ基であり、 $R^2$  および  $R^5$  が水素原子であり、 $R^1$  および  $R^4$  が一般式 ( 2 ) で表される基であるとき、その一般式 ( 2 ) が 4 - ( 9 - カルバゾリル ) フェニル基であることはない。]

## 【化 9】

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。 $L^{17}$  は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

【0011】

[ 15 ] [ 1 ] ~ [ 3 ] 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。

[ 16 ] 遅延蛍光を放射することを特徴とする [ 15 ] に記載の有機発光素子。

20

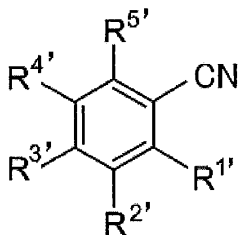
[ 17 ] 有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする [ 15 ] または [ 16 ] に記載の有機発光素子。

【0012】

[ 18 ] 下記一般式 (1') で表される化合物。

【化 10】

一般式 (1')

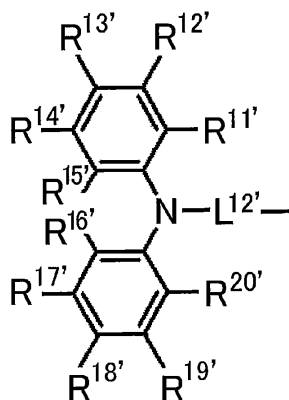


30

[ 一般式 (1') において、 $R^{1'} \sim R^{5'}$  の 0 ~ 1 つはシアノ基であり、 $R^{1'} \sim R^{5'}$  の 1 ~ 5 つは下記一般式 (2') または下記一般式 (7) で表される基であり、残りの  $R^{1'} \sim R^{5'}$  は水素原子または上記以外の置換基である。]

【化 11】

一般式 (2')



40

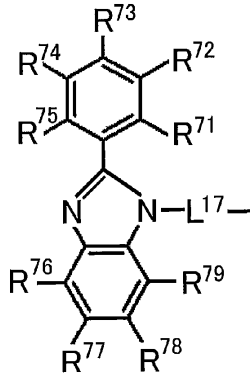
[ 一般式 (2') において、 $R^{11'} \sim R^{20'}$  は各々独立に水素原子または置換基を表す。

50

R<sup>11</sup>、とR<sup>12</sup>、R<sup>12</sup>、とR<sup>13</sup>、R<sup>13</sup>、とR<sup>14</sup>、R<sup>14</sup>、とR<sup>15</sup>、R<sup>15</sup>、とR<sup>16</sup>、R<sup>16</sup>、とR<sup>17</sup>、R<sup>17</sup>、とR<sup>18</sup>、R<sup>18</sup>、とR<sup>19</sup>、R<sup>19</sup>、とR<sup>20</sup>、は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。L<sup>12</sup>は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

【化12】

一般式(7)



10

【一般式(7)において、R<sup>71</sup>~R<sup>79</sup>は各々独立に水素原子または置換基を表す。R<sup>71</sup>とR<sup>72</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>73</sup>、R<sup>73</sup>とR<sup>74</sup>、R<sup>74</sup>とR<sup>75</sup>、R<sup>76</sup>とR<sup>77</sup>、R<sup>77</sup>とR<sup>78</sup>、R<sup>78</sup>とR<sup>79</sup>は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。L<sup>17</sup>は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。]

20

【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。

【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のトルエン溶液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発光スペクトルである。

30

【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2の化合物2のトルエン溶液の発光スペクトルである。

【図6】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発光スペクトルである。

【図7】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8】実施例3の化合物3のトルエン溶液の発光スペクトルである。

【図9】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。

40

【図10】実施例4の化合物19のトルエン溶液、化合物19の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子、化合物19とmCBPの薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図11】実施例4の化合物19の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。

【図12】実施例4の化合物19のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

【図13】実施例4の化合物19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14】実施例4の化合物19とmCBPの薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過

50

渡減衰曲線である。

【図15】実施例5の化合物20のトルエン溶液、化合物20の薄膜型有機フォトルミネセンス素子、化合物20とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の発光スペクトルである。

【図16】実施例5の化合物20の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。

【図17】実施例5の化合物20のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

【図18】実施例5の化合物20の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図19】実施例5の化合物20とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。 10

【図20】実施例6の化合物30のトルエン溶液、化合物30の薄膜型有機フォトルミネセンス素子、化合物30とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の発光スペクトルである。

【図21】実施例6の化合物30の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。

【図22】実施例6の化合物30とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。

【図23】実施例6の化合物30のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

【図24】実施例6の化合物30の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。 20

【図25】実施例6の化合物30とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図26】実施例7の化合物31のトルエン溶液、化合物31の薄膜型有機フォトルミネセンス素子、化合物31とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の発光スペクトルである。

【図27】実施例7の化合物31の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。

【図28】実施例7の化合物31とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。 30

【図29】実施例7の化合物31のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

【図30】実施例7の化合物31の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図31】実施例7の化合物31とmCBPの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図32】実施例8の化合物32のトルエン溶液、化合物32の薄膜型有機フォトルミネセンス素子、化合物32とPPFの薄膜型有機フォトルミネ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32の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルである。 40

【図34】実施例8の化合物32のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

【図35】実施例8の化合物32の薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図36】実施例8の化合物32とPPFの薄膜型有機フォトルミネセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図37】実施例9の化合物1の有機エレクトロミネセンス素子の発光スペクトルである。

【図38】実施例9の化合物1の有機エレクトロルミネセンス素子の電圧 - 電流密度特性を示すグラフである。

【図39】実施例9の化合物1の有機エレクトロルミネセンス素子の電流密度 - 外部量 50

子効率特性を示すグラフである。

【図40】実施例10の化合物1の他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41】実施例10の化合物1の他の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図42】実施例10の化合物1の他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43】実施例11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44】実施例11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 - 電流密度特性を示すグラフである。 10

【図45】実施例11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46】実施例12の化合物2の他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47】実施例12の化合物2の他の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図48】実施例12の化合物2の他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49】実施例13の化合物19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。 20

【図50】実施例13の化合物19の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図51】実施例13の化合物19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52】実施例14の化合物20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53】実施例14の化合物20の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図54】実施例14の化合物20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。 30

【図55】実施例15の化合物21および実施例18の化合物32の各有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図56】実施例15の化合物21および実施例18の化合物32の各有機エレクトロルミネッセンス素子の輝度 - 外部量子効率 - 電力効率特性を示すグラフである。

【図57】実施例16の化合物30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58】実施例16の化合物30の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図59】実施例16の化合物30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。 40

【図60】実施例17の化合物31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61】実施例17の化合物31の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図62】実施例17の化合物31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63】実施例19の化合物32の他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64】実施例19の化合物32の他の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電 50

流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図 6 5】実施例 1 9 の化合物 3 2 の他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<sup>1</sup>Hであってもよいし、一部または全部が<sup>2</sup>H（デュートリウムD）であってもよい。

10

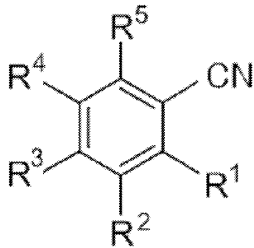
【0016】

〔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 1 3】

一般式（1）



20

【0017】

一般式（1）において、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>の0～1つはシアノ基であり、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>の1～5つは下記一般式（2）または下記一般式（7）で表される基であり、残りのR<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>は水素原子または上記以外の置換基である。

こうした一般式（1）で表される化合物は、アクセプターであるベンゼン環が水平配向しやすいために発光効率が向上するものと考えられる。

30

一般式（1）において、シアノ基は、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>に存在しなくてもよいし、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの1つのみであってもよいし、2～4つであってもよい。

シアノ基がR<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの1つのみであるときは、R<sup>2</sup>～R<sup>4</sup>のいずれかがシアノ基であることが好ましく、R<sup>3</sup>がシアノ基であることがより好ましい。

一方、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの2～4つがシアノ基であるときは、R<sup>2</sup>～R<sup>4</sup>の少なくとも2つがシアノ基であることが好ましい。例えば、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの2つがシアノ基であるときは、R<sup>2</sup>とR<sup>3</sup>がシアノ基であるか、R<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>がシアノ基であることが好ましい。また、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの3つがシアノ基であるときは、R<sup>2</sup>～R<sup>4</sup>がシアノ基であることが好ましい。また、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの4つがシアノ基であるときは、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>がシアノ基であるか、R<sup>2</sup>～R<sup>5</sup>がシアノ基であることが好ましい。

40

【0018】

R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>の1～5つは下記一般式（2）または（7）で表される基である。一般式（2）または（7）で表される基は、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの1つのみであってもよいし、2～5つであってもよい。

一般式（2）または（7）で表される基がR<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの1つのみであるときは、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>いずれかが一般式（2）または（7）で表される基であることが好ましく、R<sup>1</sup>またはR<sup>4</sup>が一般式（2）または（7）で表される基であることが好ましい。

一方、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの2～5つが一般式（2）または（7）で表される基であるときは、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>の少なくとも1つと、R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>の少なくとも1つが一般式（2）または（7）で表される基であることが好ましい。例えば、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>のうちの2つが一般式

50

(2) または (7) で表される基であるときは、 $R^1$  または  $R^2$  と、 $R^4$  または  $R^5$  が一般式 (2) または (7) で表される基であることが好ましく、 $R^1$  と  $R^4$  が一般式 (2) または (7) で表される基であることがより好ましい。また、 $R^1 \sim R^5$  のうちの 3 つが一般式 (2) または (7) で表される基であるときは、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  のうちの 3 つが一般式 (2) または (7) で表される基であることが好ましい。また、 $R^1 \sim R^5$  のうちの 4 つが一般式 (2) または (7) で表される基であるときは、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  が一般式 (2) または (7) で表される基であることが好ましい。

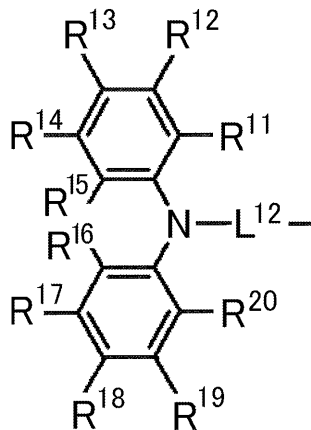
## 【0019】

好ましい化合物は、一般式 (1) の  $R^3$  がシアノ基であり、一般式 (1) の  $R^1$  または  $R^2$  と、 $R^4$  または  $R^5$  が一般式 (2) または (7) 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、一般式 (1) の  $R^3$  がシアノ基であり、一般式 (1) の  $R^1$  と  $R^4$  が一般式 (2) または (7) で表される化合物、一般式 (1) の  $R^3$  がシアノ基であり、一般式 (1) の  $R^2$  と  $R^5$  が一般式 (2) または (7) で表される化合物である。一般式 (1) 中に存在する複数の一般式 (2) または (7) 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  $R^4$ 、 $R^2$  と  $R^5$  は、それぞれ同一であり、 $R^3$  はシアノ基であることが好ましい。

## 【0020】

## 【化14】

一般式 (2)



## 【0021】

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。 $R^{11} \sim R^{20}$  のうちの 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、 $R^1 \sim R^5$  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

10

20

30

40

50

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、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。

【0022】

$R^{11}$ 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

【0023】

一般式(2)において、 $L^{12}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。 $L^{12}$ が表すアリーレン基を構成する芳香環は、単環であっても、2以上の芳香環が融合した融合環であってもよい。芳香環の炭素数は、6 ~ 22であることが好ましく、6 ~ 18であることがより好ましく、6 ~ 14であることがさらに好ましく、6 ~ 10であることがさらにより好ましい。アリーレン基の具体例として、フェニレン基、ナフタレンジイル基を挙げるができる。また、 $L^{12}$ が表すヘテロアリーレン基を構成する複素環は、単環であっても、1以上の複素環と芳香環または複素環が融合した融合環であってもよい。複素環の炭素数は5 ~ 22であることが好ましく、5 ~ 18であることがより好ましく、5 ~ 14であることがさらに好ましく、5 ~ 10であることがさらにより好ましい。複素環を構成する複素原子は窒素原子であることが好ましい。複素環の具体例として、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、トリアジン環、トリアゾール環、ベンゾトリアゾール環を挙げるができる。 $L^1$ が表すより好ましい基はフェニレン基である。 $L^{12}$ がフェニレン基であるとき、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。また、 $L^{12}$ は置換基により置換されていてもよい。 $L^{12}$ の置換基の数および置換位置は特に制限されないが、窒素原子の結合位置からみてオルト位に置換基が導入されていることが好ましい。 $L^{12}$ に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、上記の $R^1 \sim R^5$ 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。

20

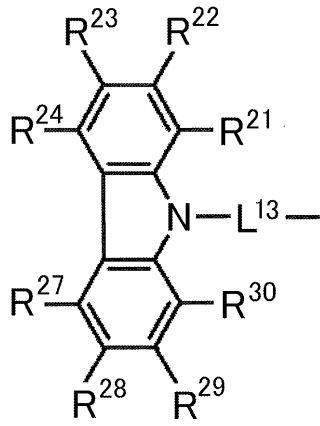
30

【0024】

一般式(2)で表される基は、下記一般式(3) ~ (6)、(8)のいずれかで表される基であることが好ましい。

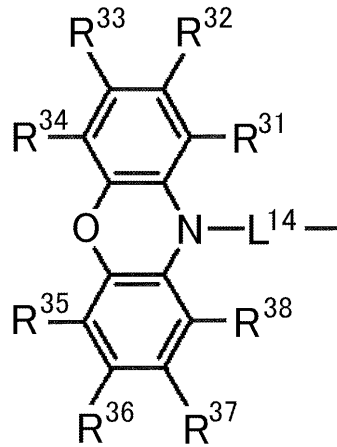
【化 1 5 - 1】

一般式 (3)



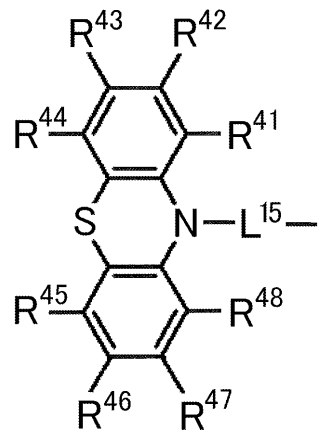
10

一般式 (4)



20

一般式 (5)

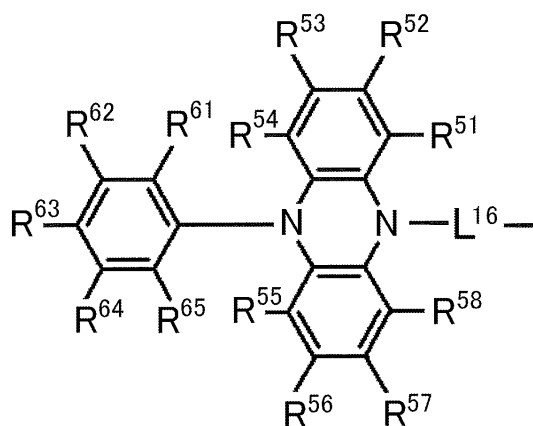


30

40

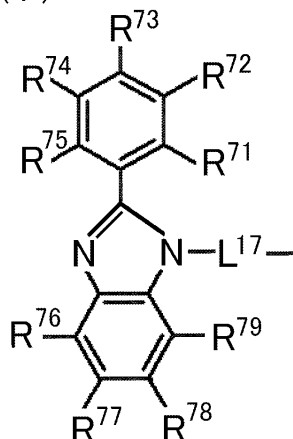
## 【化 15 - 2】

## 一般式 (6)



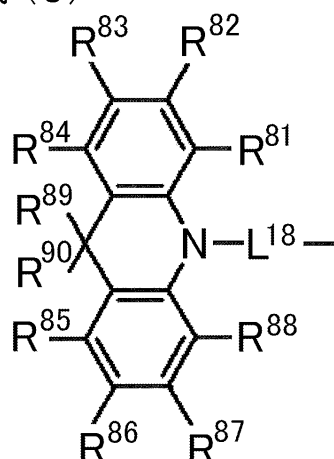
10

## 一般式 (7)



20

## 一般式 (8)



30

40

## 【0025】

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 $R^1 \sim R^5$ 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

50

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いてよい。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。

10

## 【0026】

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(2)において、 $R^{11}$ と $R^{12}$ 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。

20

## 【0027】

一般式(3)~(8)において、 $L^{13} \sim L^{18}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。 $L^{13} \sim L^{18}$ が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、 $L^{12}$ が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入し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、一般式(2)で表される基が一般式(3)で表される基であるとき、 $L^{13}$ は1,3-フェニレン基であることが好ましく、一般式(2)で表される基が一般式(4)で表される基であるとき、 $L^{14}$ は1,4-フェニレン基であることが好ましく、一般式(2)で表される基が一般式(8)で表される基であるとき、 $L^{18}$ は1,4-フェニレン基であることが好ましい。

30

## 【0028】

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、すべてが一般式(3)、(4)または(8)で表される基を好ましく例示することができる。すべてが一般式(3)の一態様である4-(9-カルバゾリル)フェニル基である場合は、1分子内に3つ以上存在することが好ましく、また、1分子内に2つ以下で存在する場合はアルキル基等で置換されていることが好ましい。一般式(1)で表される化合物のうち、特に好ましいものは下記(I)~(III)、(IV)~(VI)の化合物である。

40

(I) 一般式(1)の $R^1$ が下記条件Aを満たす基であり、 $R^2$ が置換もしくは無置換のアリーレン基である化合物

(II) 一般式(1)の $R^2$ が下記条件Aを満たす基であり、 $R^1$ および $R^3$ の少なくとも一方が置換もしくは無置換のアリーレン基である化合物

(III) 一般式(1)の $R^3$ が下記条件Aを満たす基であり、 $R^2$ および $R^4$ の少なくとも一方が置換もしくは無置換のアリーレン基である化合物

<条件A> 一般式(2)で表される基であって、 $R^{15}$ と $R^{16}$ が互いに結合していない基であるか、一般式(3)で表される基であること。

(IV) 一般式(1)の $R^1$ が一般式(4)、(5)、(6)または(8)で表される基であり、 $R^2$ が水素原子である化合物

50

(V) 一般式(1)の $R^2$ が一般式(4)、(5)、(6)または(8)で表される基であり、 $R^1$ および $R^3$ の少なくとも一方が水素原子である化合物

(VI) 一般式(1)の $R^3$ が一般式(4)、(5)、(6)または(8)で表される基であり、 $R^2$ および $R^4$ の少なくとも一方が水素原子である化合物

(II)の化合物における $R^1$ および $R^3$ は、いずれか一方のみが置換もしくは無置換のアリール基であってもよいし、その両方が置換もしくは無置換のアリール基であってもよいが、 $R^1$ および $R^3$ の両方が置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましい。(III)の化合物における $R^2$ および $R^4$ は、いずれか一方のみが置換もしくは無置換のアリール基であってもよいし、その両方が置換もしくは無置換のアリール基であってもよいが、 $R^2$ および $R^4$ の両方が置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましい。

10

(I)~(III)の化合物の置換もしくは無置換のアリール基を構成する芳香環の説明と好ましい範囲については、上記の一般式(2)の $L^{12}$ を構成する芳香環の説明と好ましい範囲を参照することができる。このうち、(I)~(III)の化合物の置換もしくは無置換のアリール基は、置換もしくは無置換のフェニル基であることが好ましく、無置換のフェニル基であることがより好ましい。アリール基に置換しうる置換基の説明と好ましい範囲については、上記の $R^1$ ~ $R^5$ 等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、置換もしくは無置換のアリール基は、上記条件Aを満たす基であっても構わない。

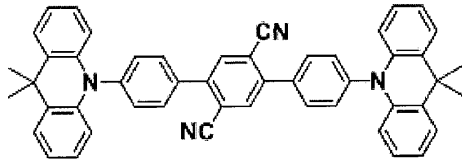
【0029】

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。

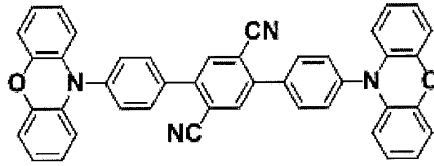
20

【0030】

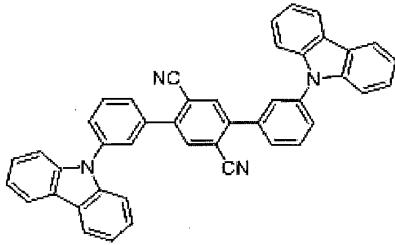
【化 1 6 - 1】



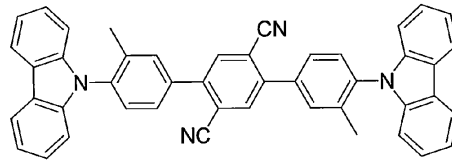
化合物 1



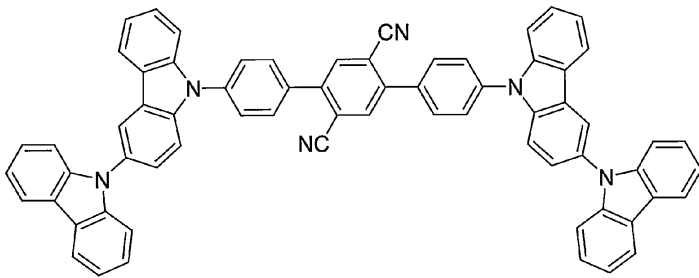
化合物 2



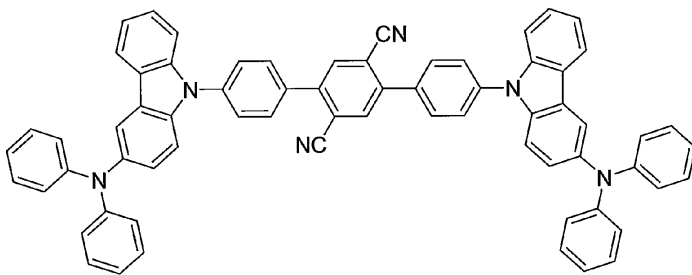
化合物 3



化合物 4



化合物 5



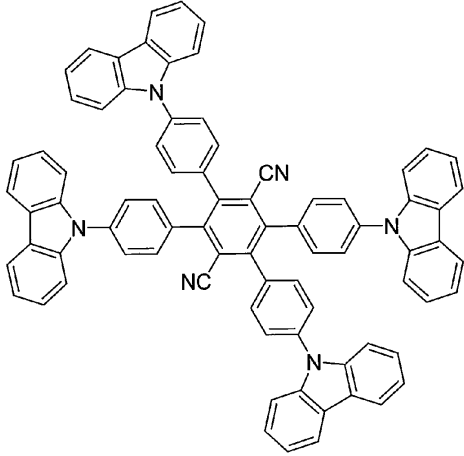
化合物 6

10

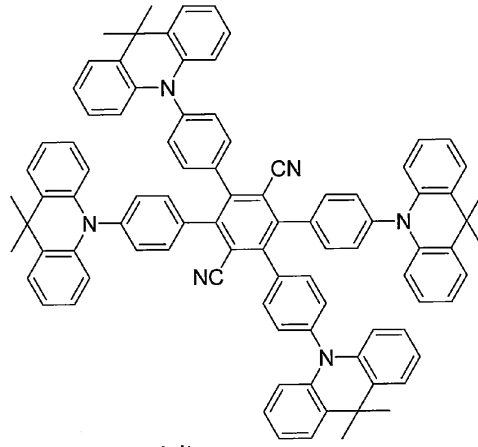
20

30

【化 1 6 - 2】

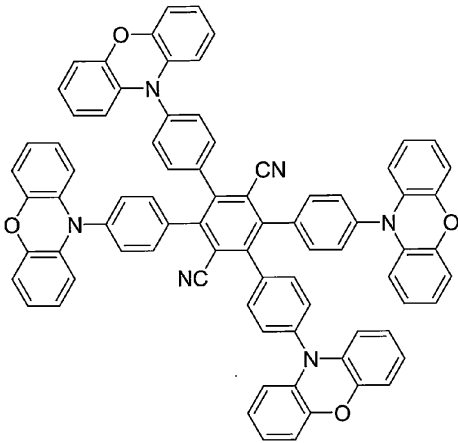


化合物 7

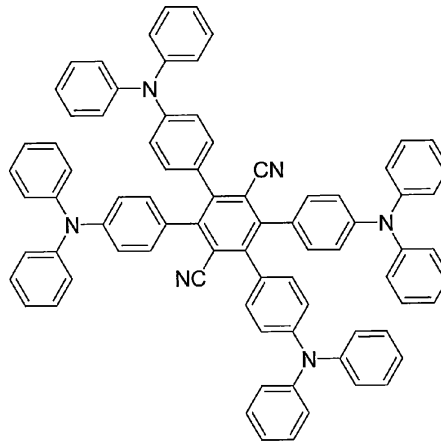


化合物 8

10

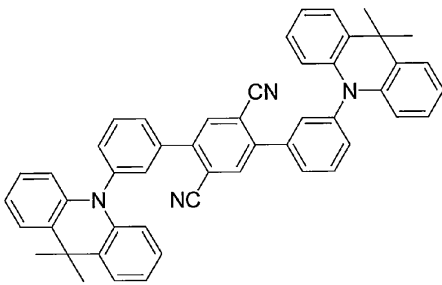


化合物 9

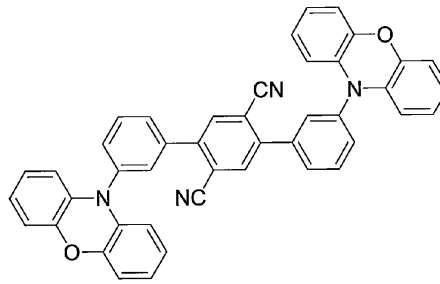


化合物 10

20



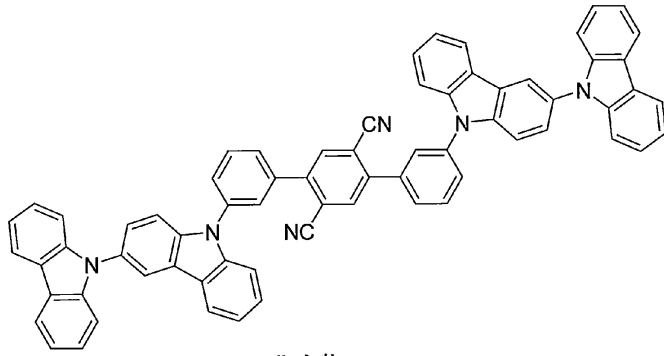
化合物 11



化合物 12

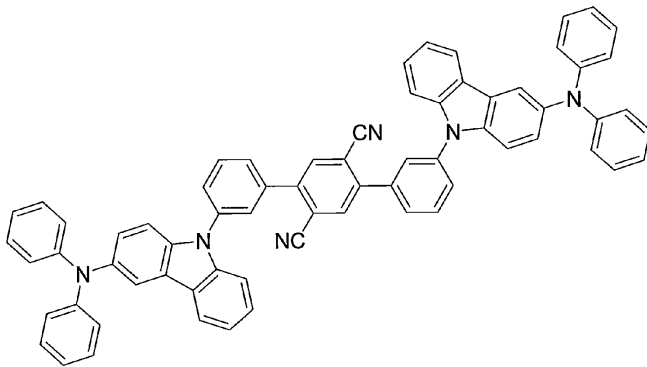
30

【化 1 6 - 3】



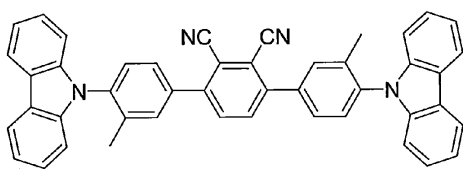
化合物 1 3

10

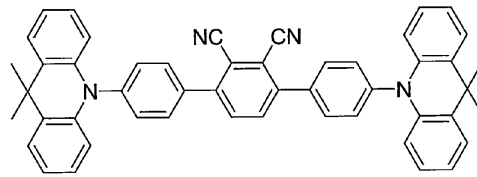


化合物 1 4

20

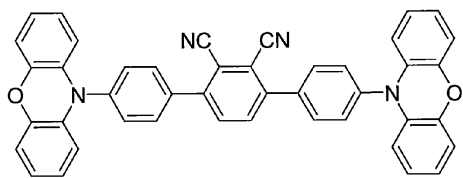


化合物 1 5

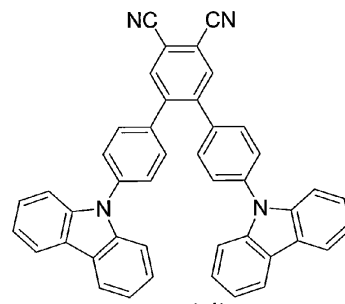


化合物 1 6

30

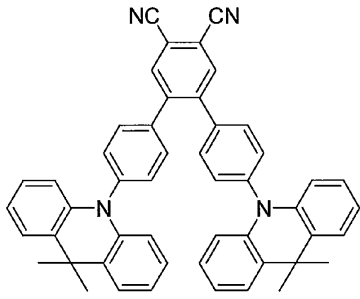


化合物 1 7

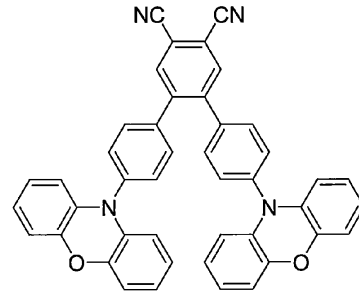


化合物 1 8

【化 1 6 - 4】

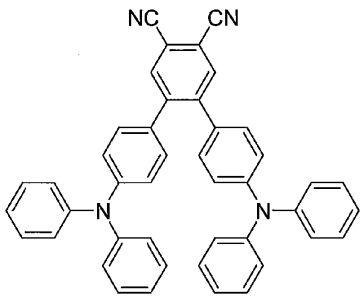


化合物 1 9

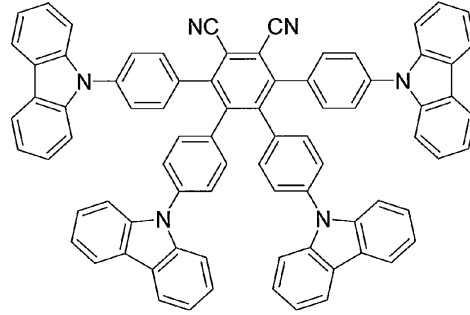


化合物 2 0

10

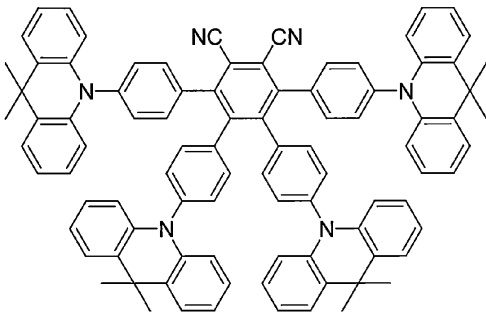


化合物 2 1

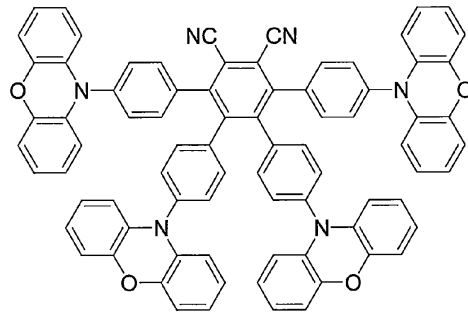


化合物 2 2

20

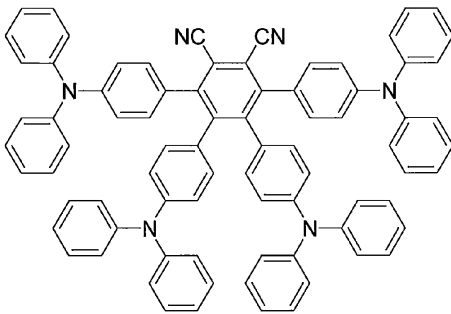


化合物 2 3

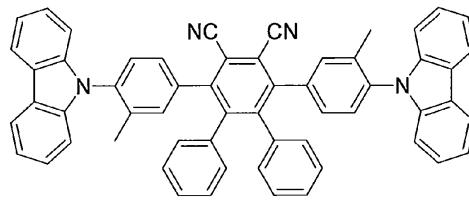


化合物 2 4

30



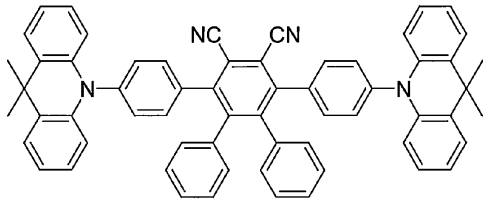
化合物 2 5



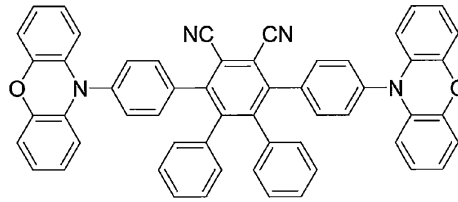
化合物 2 6

40

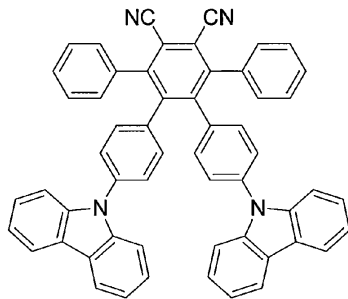
## 【化 1 6 - 5】



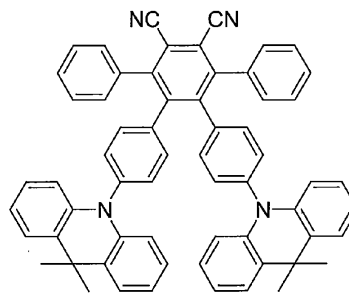
化合物 2 7



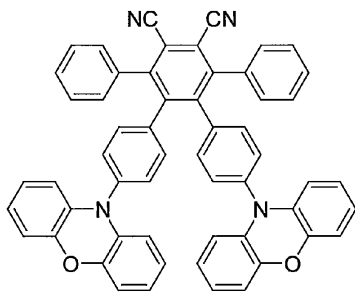
化合物 2 8



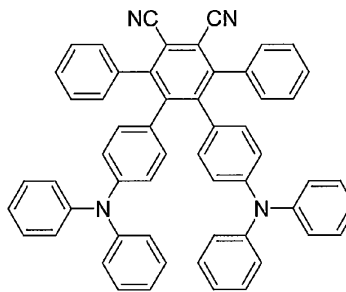
化合物 2 9



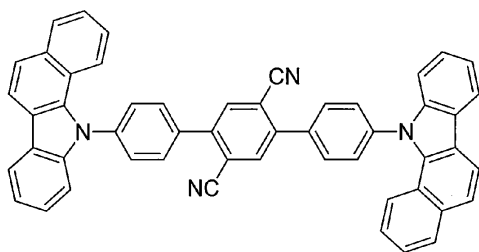
化合物 3 0



化合物 3 1



化合物 3 2



化合物 3 3

## 【 0 0 3 1】

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。

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。

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。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 3 2 】

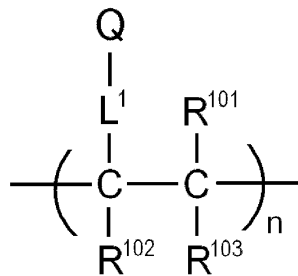
例えば、一般式(1)で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式(1)の $R^1 \sim R^5$ のいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いることが考えられる。あるいは、一般式(1)で表される構造を有する化合物どうしを反応させることにより、二量体や三量体を得て、それらを発光材料として用いることも考えられる。

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(9)または(10)で表される構造を含む重合体を挙げる事ができる。

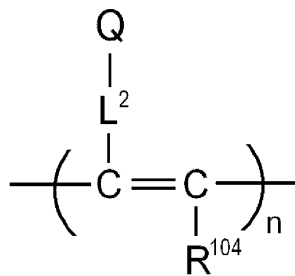
10

## 【化17】

一般式(9)



一般式(10)



20

## 【 0 0 3 3 】

一般式(9)または(10)において、Qは一般式(1)で表される構造を含む基を表し、 $L^1$ および $L^2$ 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 $-X^{11}-L^{11}-$ 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、 $X^{11}$ 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。 $L^{11}$ 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(9)または(10)において、 $R^{101}$ 、 $R^{102}$ 、 $R^{103}$ および $R^{104}$ 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。

30

$L^1$ および $L^2$ で表される連結基は、Qを構成する一般式(1)の構造の $R^1 \sim R^5$ のいずれか、一般式(2)の $R^{11} \sim R^{20}$ のいずれか、一般式(3)の構造の $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{30}$ のいずれか、一般式(4)の構造の $R^{31} \sim R^{38}$ のいずれか、一般式(5)の構造の $R^{41} \sim R^{48}$ のいずれか、一般式(6)の構造の $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{65}$ のいずれか、一般式(7)の構造の $R^{71} \sim R^{78}$ のいずれか、一般式(8)の構造の $R^{81} \sim R^{90}$ 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。

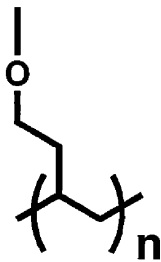
40

## 【 0 0 3 4 】

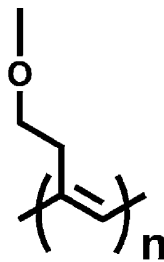
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式(11)~(14)で表される構造を挙げる事ができる。

## 【化18】

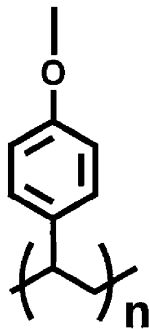
式(11)



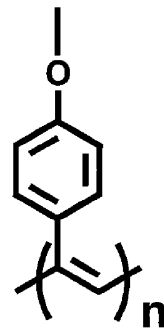
式(12)



式(13)



式(14)



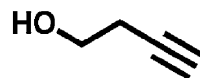
10

20

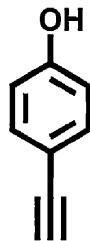
## 【0035】

これらの式(11)~(14)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<sup>1</sup>~R<sup>5</sup>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19】



30



40

## 【0036】

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、通常の共重合に用いられるモノマーから誘導されるものを挙げることができる。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ことができる。

50

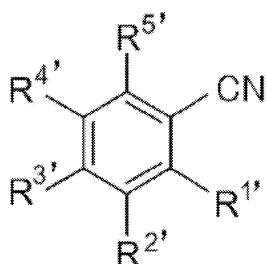
## 【 0 0 3 7 】

[ 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新規化合物である。

## 【 化 2 0 】

一般式 ( 1' )



10

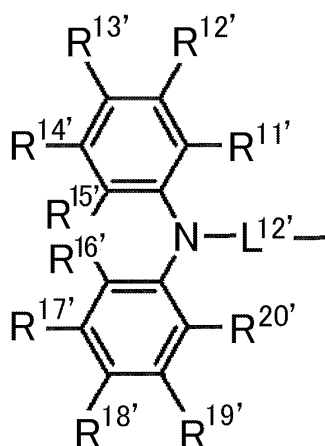
## 【 0 0 3 8 】

一般式 ( 1' ) において、R<sup>1'</sup> ~ R<sup>5'</sup> の 0 ~ 1 つはシアノ基であり、R<sup>1'</sup> ~ R<sup>5'</sup> の 1 ~ 5 つは下記一般式 ( 2' ) または下記一般式 ( 7 ) で表される基であり、残りの R<sup>1'</sup> ~ R<sup>5'</sup> は水素原子または上記以外の置換基である。

## 【 0 0 3 9 】

## 【 化 2 1 】

一般式 ( 2' )



20

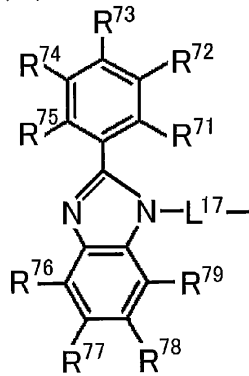
30

## 【 0 0 4 0 】

一般式 ( 2' ) において、R<sup>11'</sup> ~ R<sup>20'</sup> は各々独立に水素原子または置換基を表す。R<sup>11'</sup> と R<sup>12'</sup>、R<sup>12'</sup> と R<sup>13'</sup>、R<sup>13'</sup> と R<sup>14'</sup>、R<sup>14'</sup> と R<sup>15'</sup>、R<sup>15'</sup> と R<sup>16'</sup>、R<sup>16'</sup> と R<sup>17'</sup>、R<sup>17'</sup> と R<sup>18'</sup>、R<sup>18'</sup> と R<sup>19'</sup>、R<sup>19'</sup> と R<sup>20'</sup> は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。L<sup>12'</sup> は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。

## 【化22】

一般式(7)



10

## 【0041】

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。 $L^{17}$ は置換もしくは無置換のアリーレン基、または、置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。

一般式(1')における $R^{1'} \sim R^{5'}$ と $R^{11'} \sim R^{20'}$ 、 $L^{12'}$ 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。

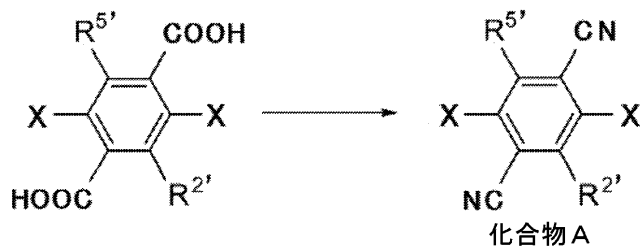
## 【0042】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

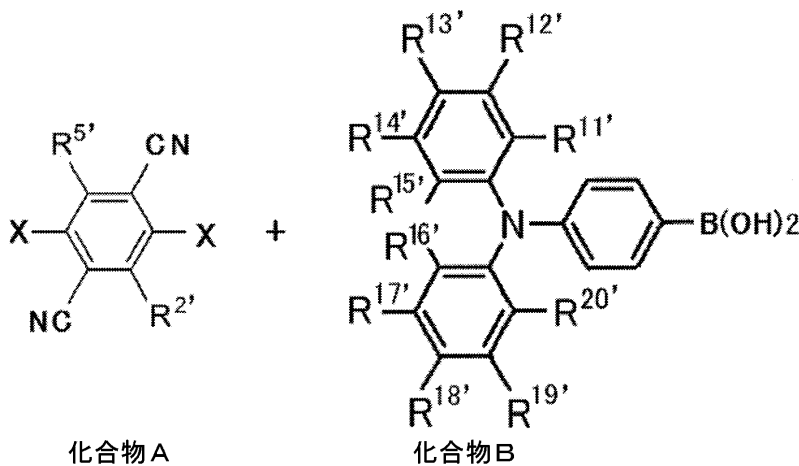
一般式(1')で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、一般式(1')の $R^{3'}$ がシアノ基であり、 $R^{1'}$ と $R^{4'}$ が一般式(2)で表される基であり、 $L^{12'}$ が1,4-フェニレン基である化合物は、下記のジカルボン酸のカルボキシル基を公知の方法によってシアノ基に転換して化合物Aを合成し、この化合物Aと化合物Bとを反応させることにより合成することが可能である。

20

## 【化23】



30



40

## 【0043】

上記の反応式における $R^{2'}$ 、 $R^{5'}$ 、 $R^{11'} \sim R^{20'}$ の説明については、一般式(1')

50

)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。

#### 【0044】

##### [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。

#### 【0045】

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)は通常の蛍光やりん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。

#### 【0046】

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。

10

20

30

40

50

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。

10

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。

【0047】

(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。

20

【0048】

(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(4 eV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)、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-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(100 μm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 / 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10~1000 nm、好ましくは10~200 nmの範囲で選ばれる。

30

【0049】

(陰極)

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV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(A<sub>1</sub>2O<sub>3</sub>)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(A<sub>1</sub>2O<sub>3</sub>)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 / 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~5 μm、好ましくは5

40

50

0 ~ 200 nm 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。

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。

#### 【0050】

##### (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。

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。

#### 【0051】

##### (注入層)

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。

#### 【0052】

##### (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。

#### 【0053】

##### (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。

【0054】

(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。

【0055】

(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、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。

【0056】

(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。

【0057】

(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

10

20

30

40

50

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。

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。

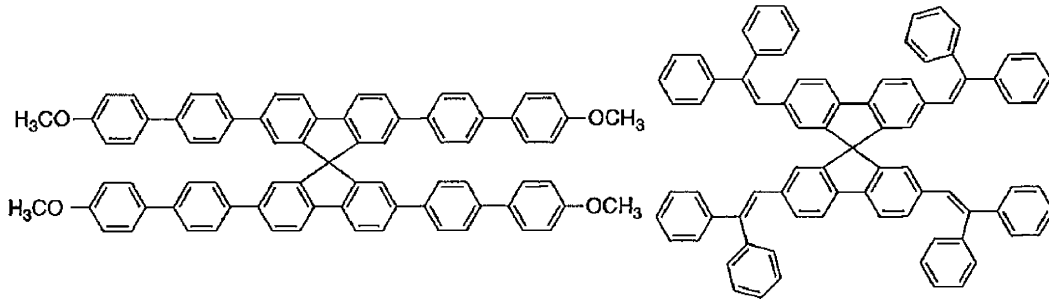
【0058】

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<sub>2</sub>~R<sub>7</sub>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。

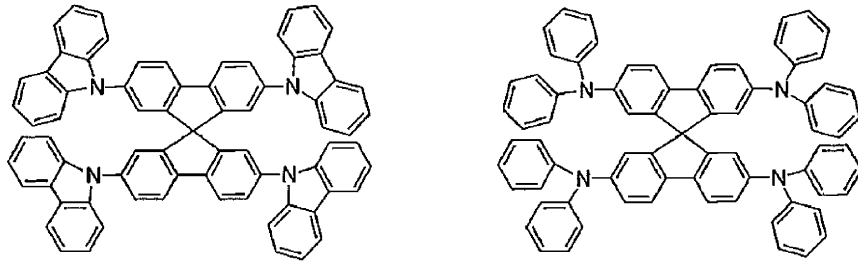
まず、発光層のホスト材料としても用いることができる好ましい化合物を挙げる。

【0059】

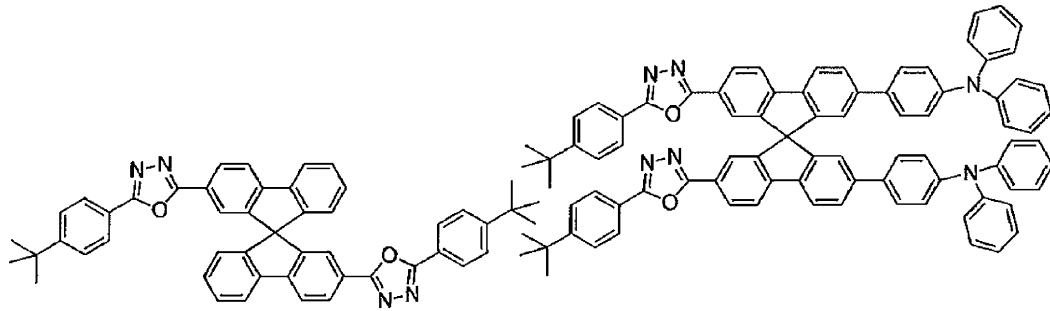
【化 2 4】



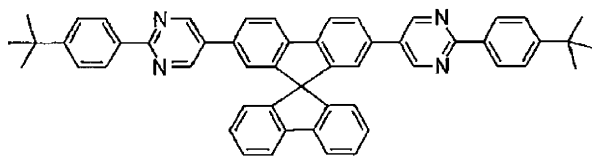
10



20

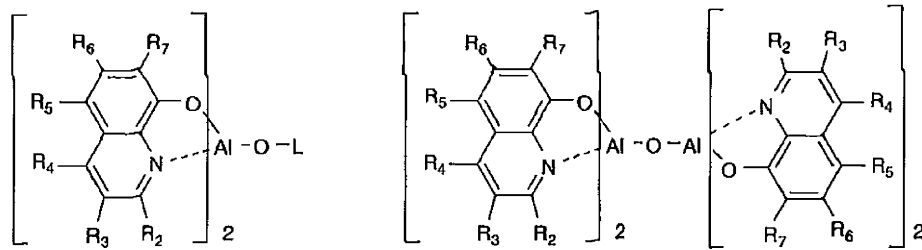
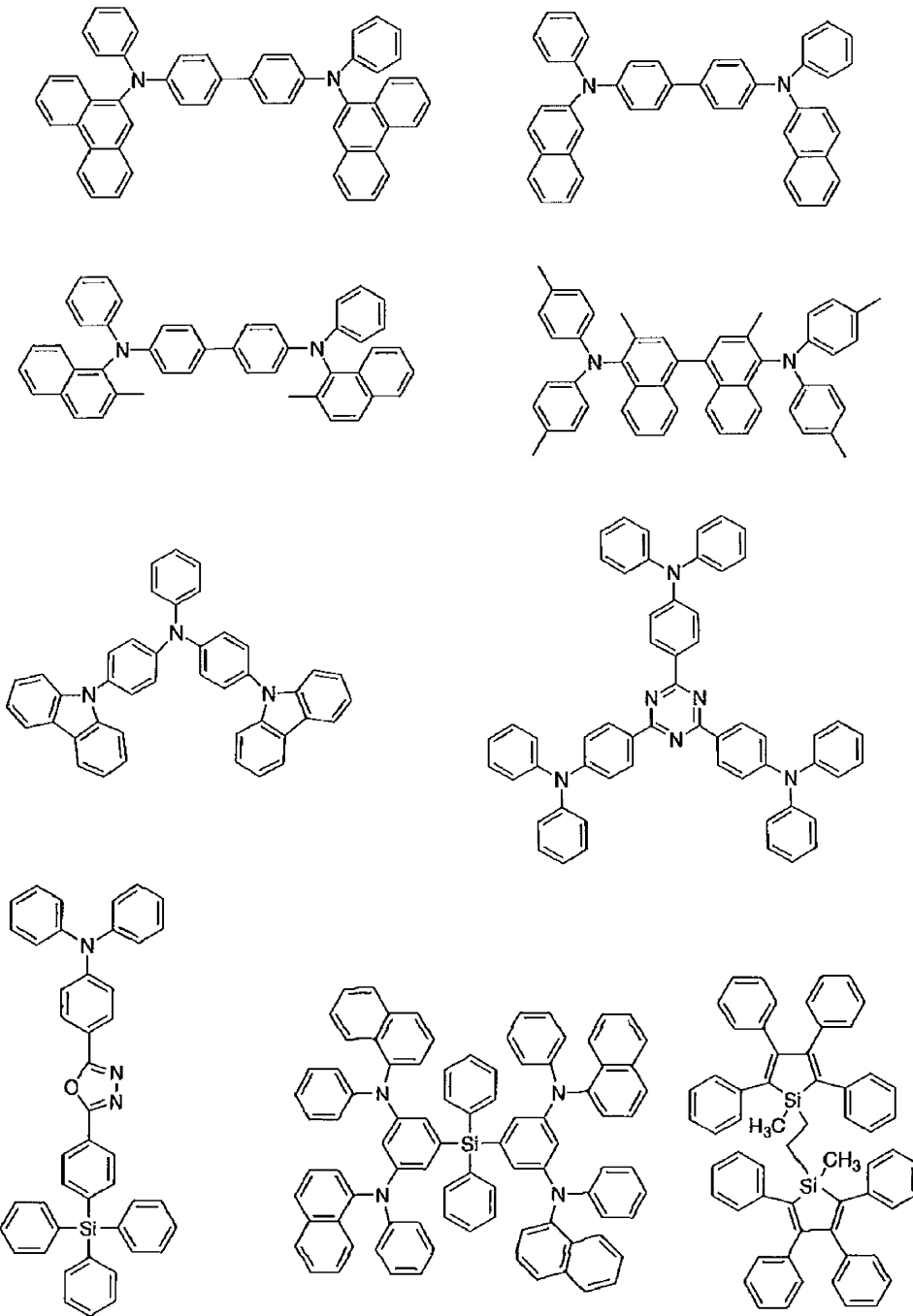


30



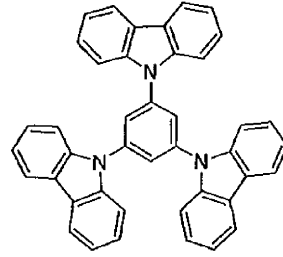
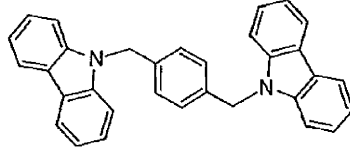
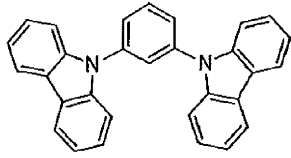
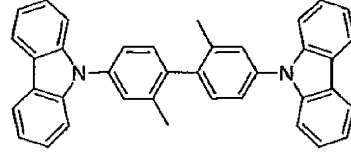
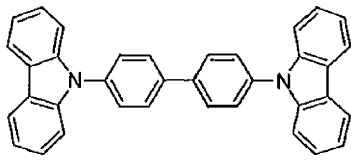
【 0 0 6 0 】

【化 2 5】

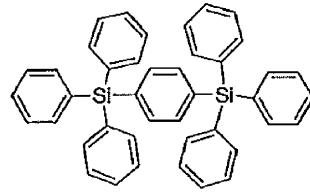


【 0 0 6 1】

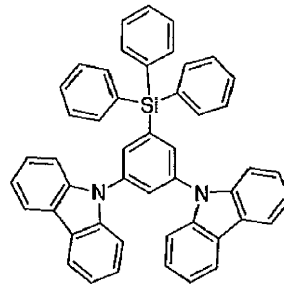
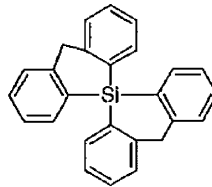
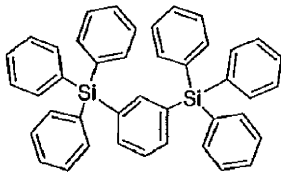
【化 2 6】



10



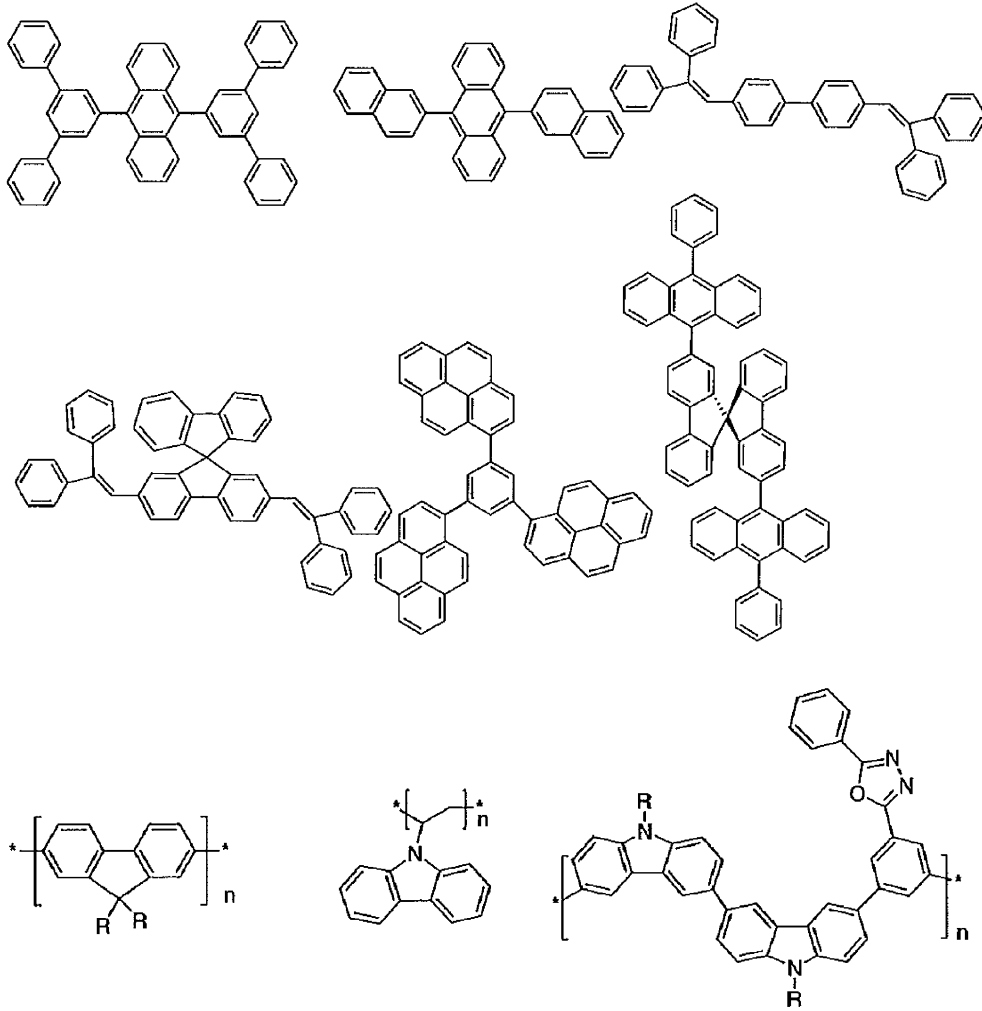
20



【 0 0 6 2】

30

【化 2 7】

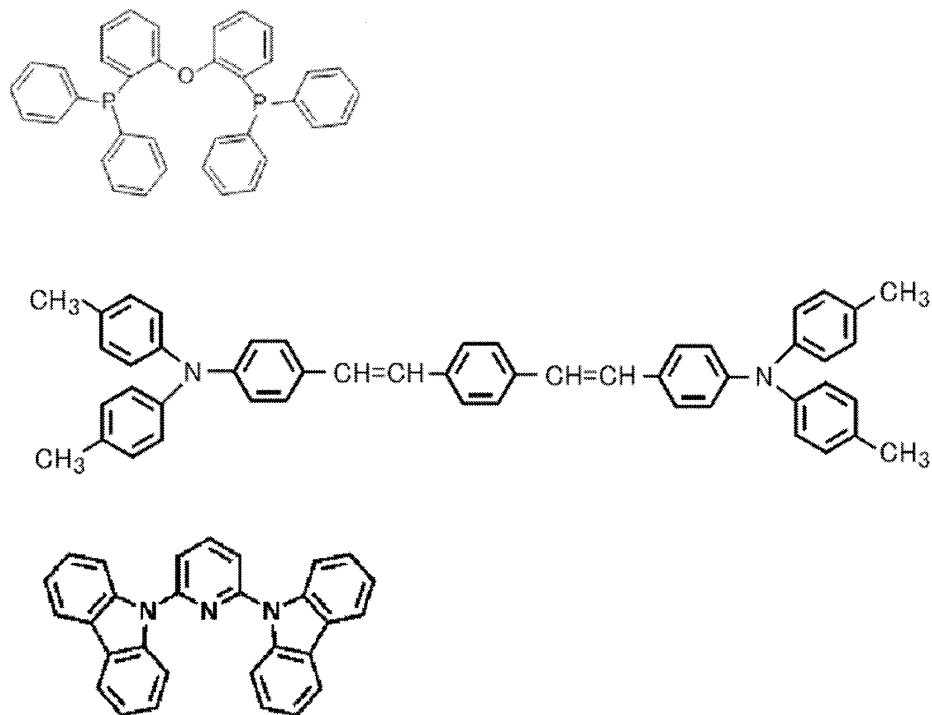


10

20

【 0 0 6 3】

【化 2 8】



30

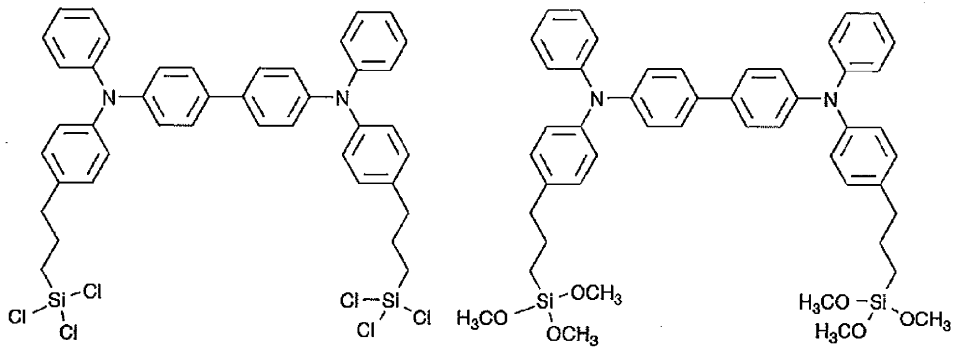
40

【 0 0 6 4】

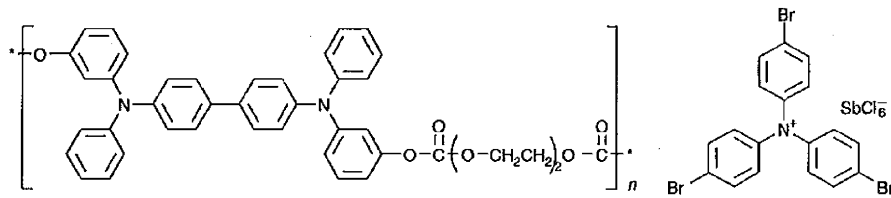
50

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。

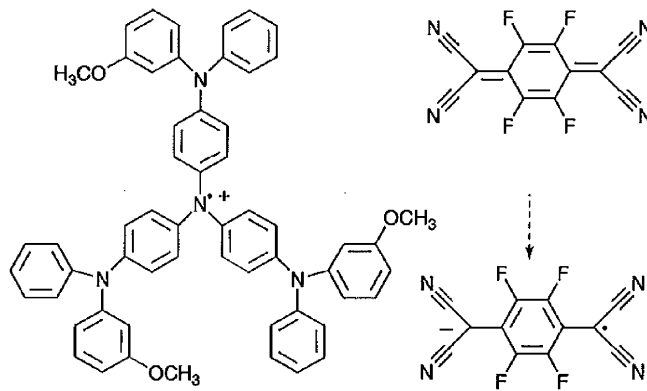
【化29】



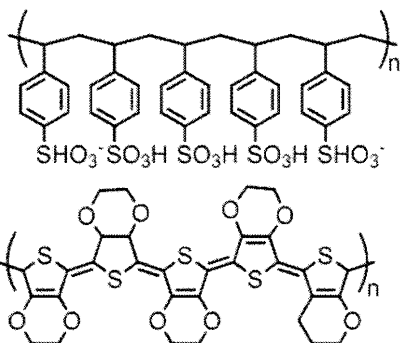
10



20



30

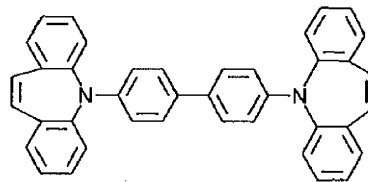
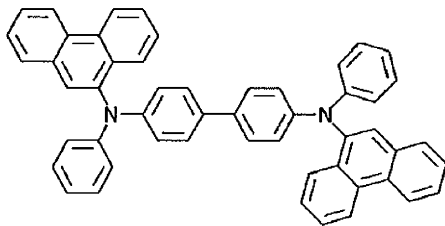
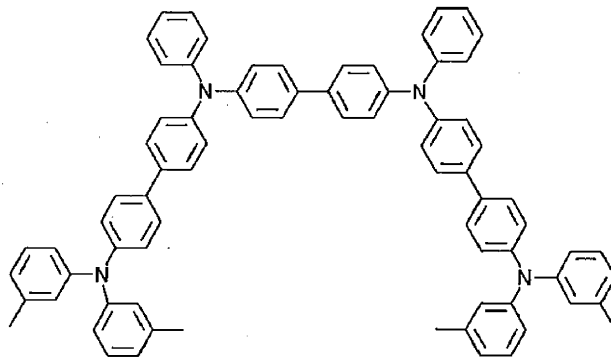
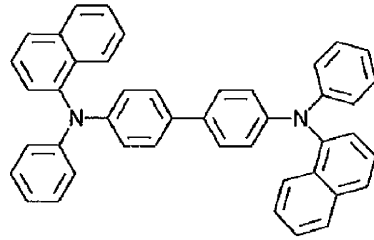
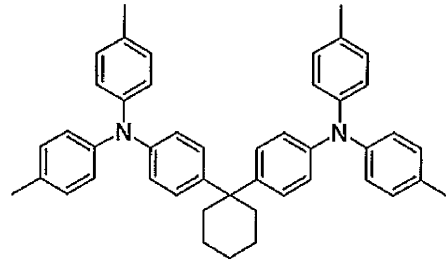


40

【0065】

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。

【化 3 0】



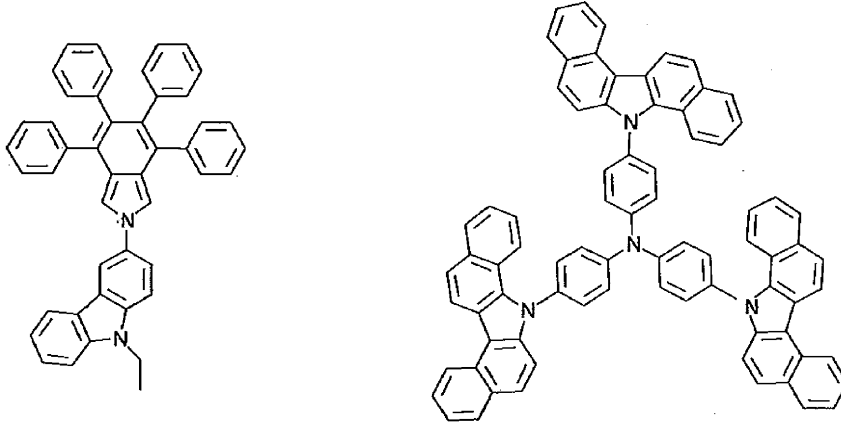
【 0 0 6 6】

10

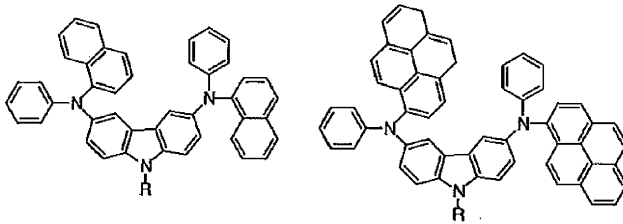
20

30

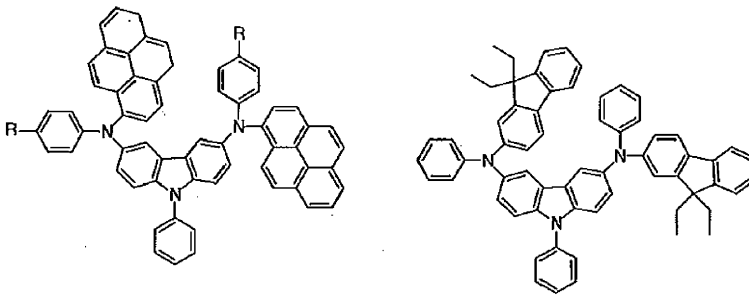
【化 3 1】



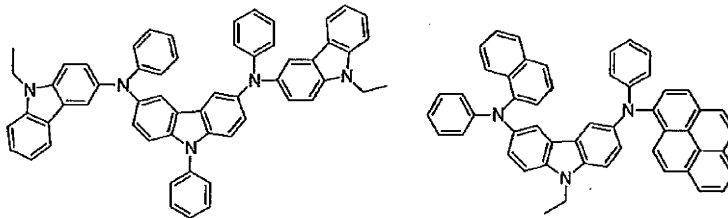
10



20



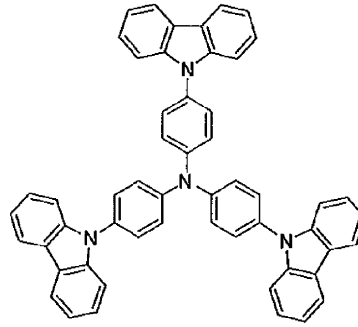
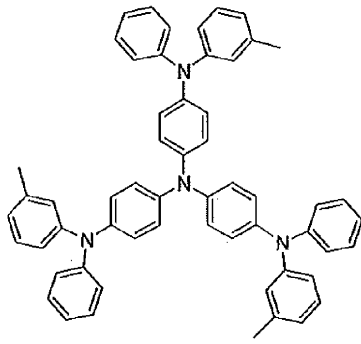
30



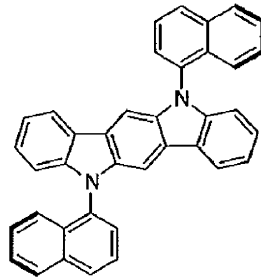
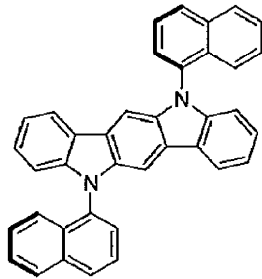
40

【 0 0 6 7 】

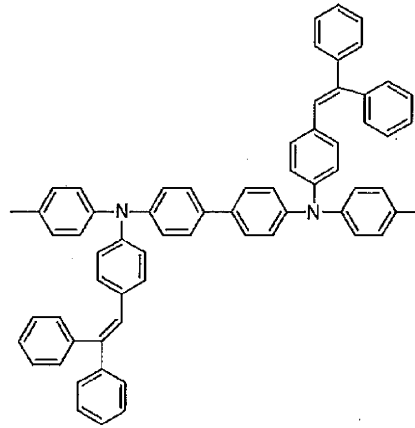
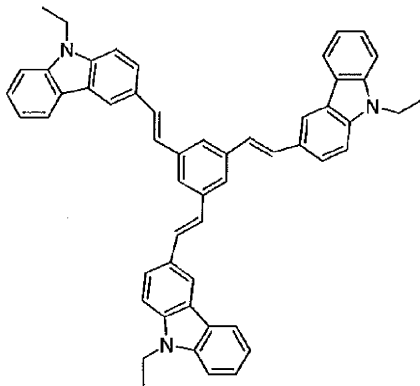
【化 3 2】



10



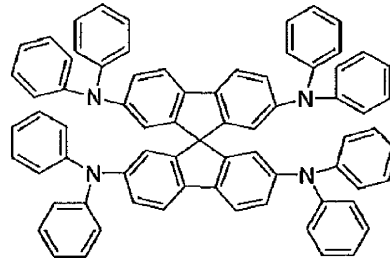
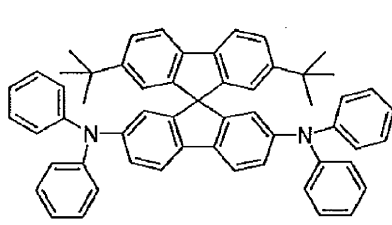
20



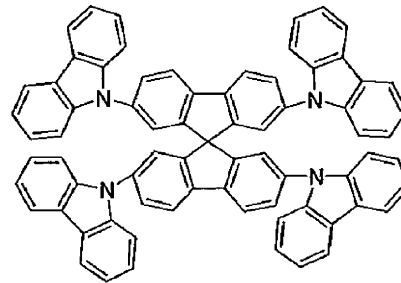
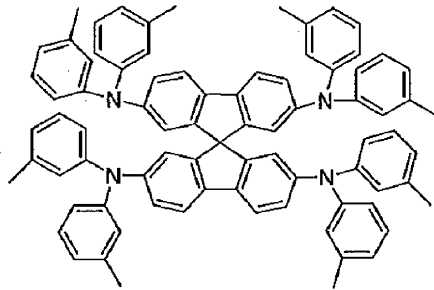
30

【 0 0 6 8 】

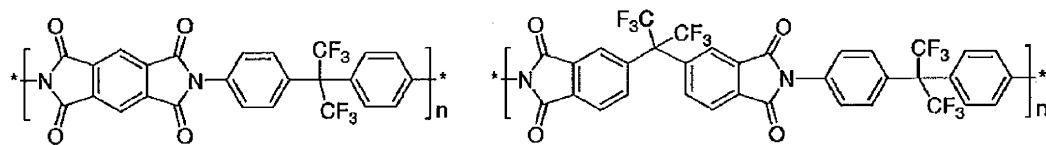
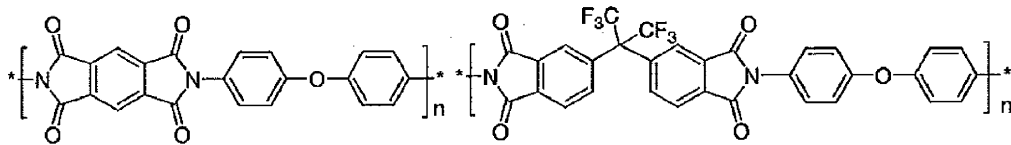
【化 3 3】



10



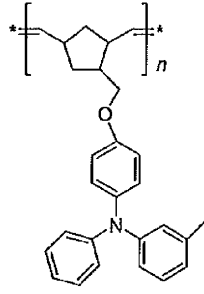
20



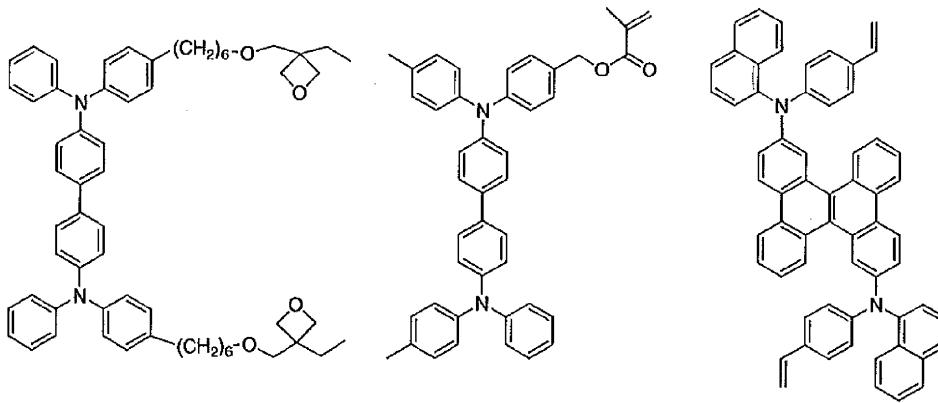
30

【 0 0 6 9 】

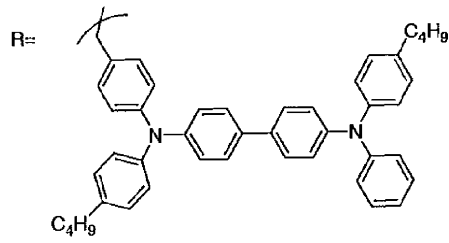
【化 3 4】



10



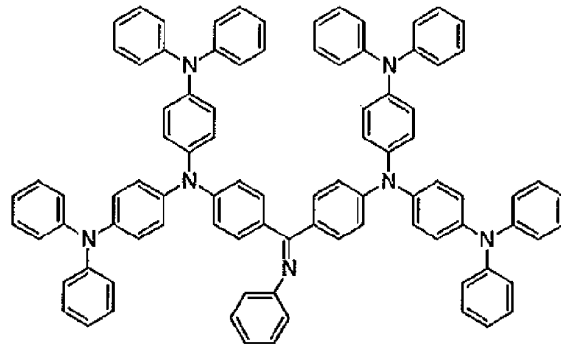
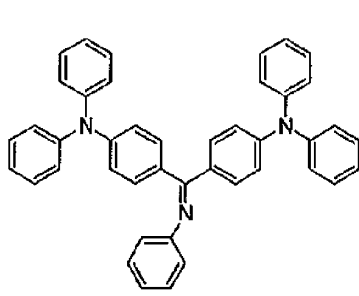
20



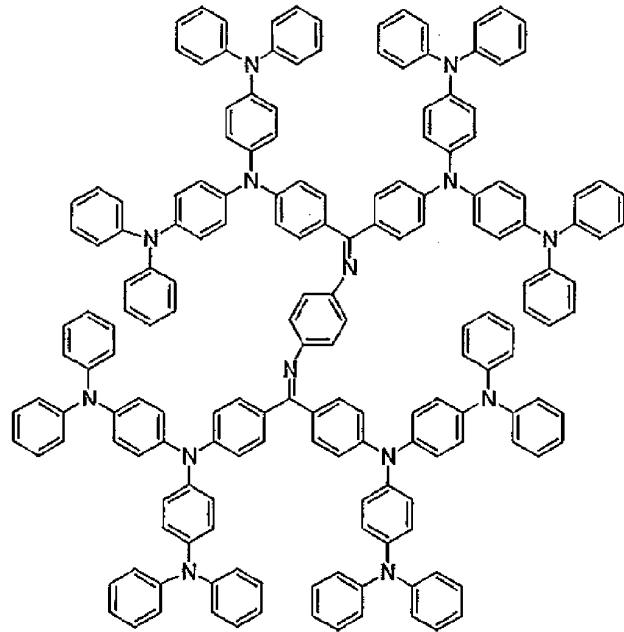
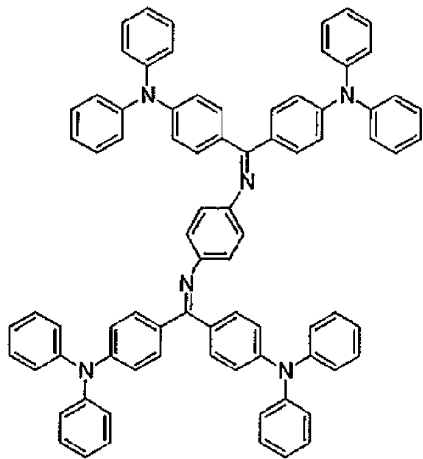
30

【 0 0 7 0 】

【化 3 5】

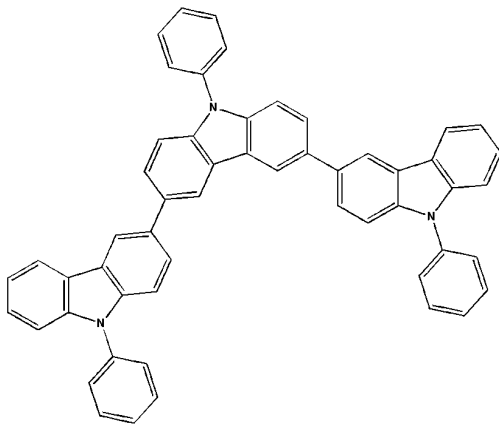


10



20

30



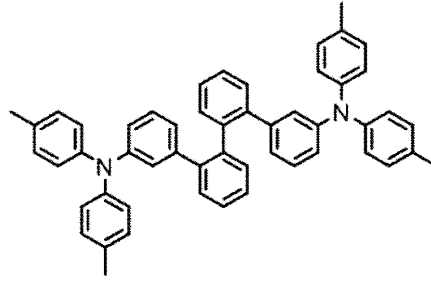
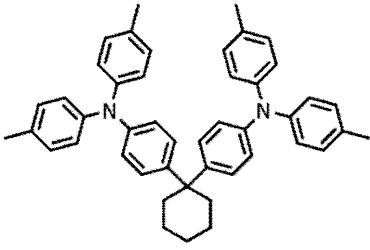
40

【0071】

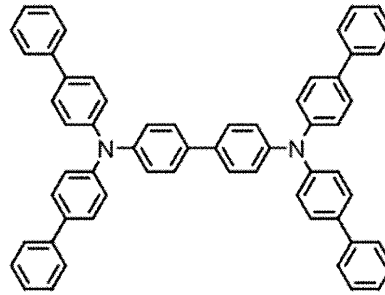
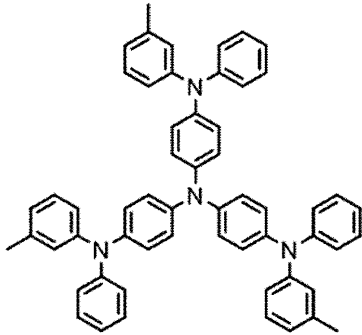
次に、電子阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【0072】

【化36】



10



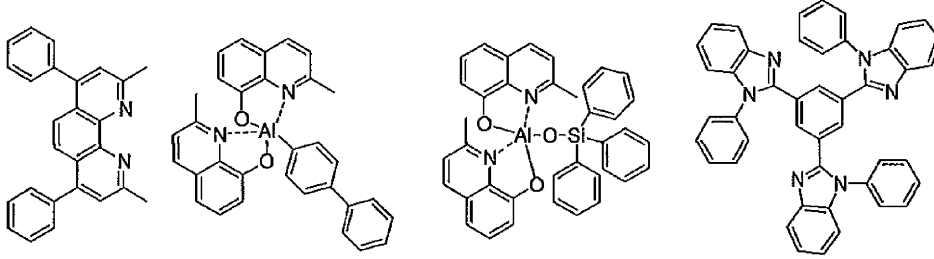
20

【0073】

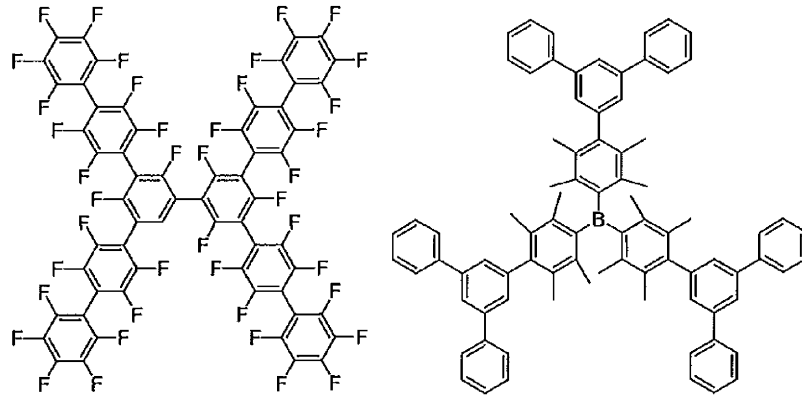
次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【0074】

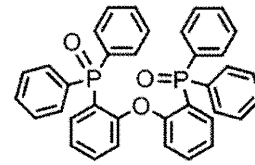
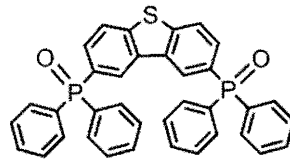
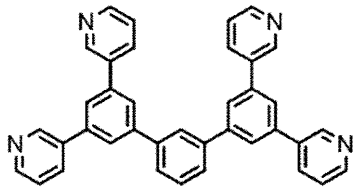
## 【化37】



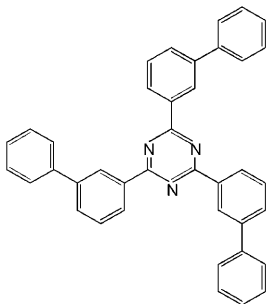
10



20



30



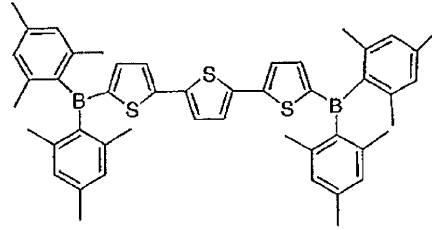
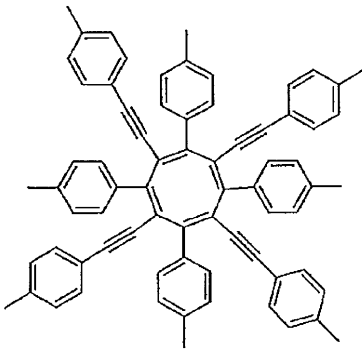
## 【0075】

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。

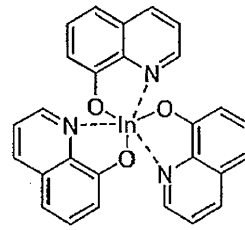
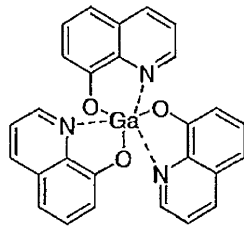
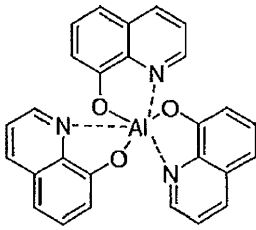
## 【0076】

40

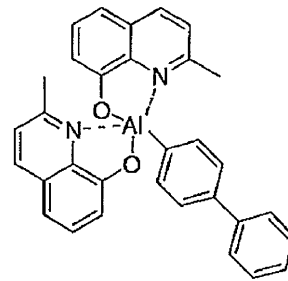
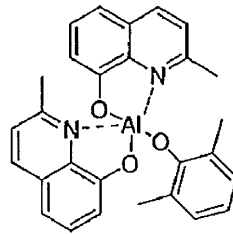
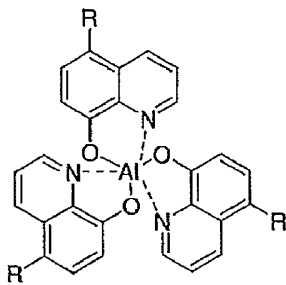
【化 3 8】



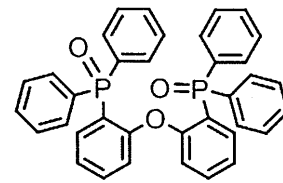
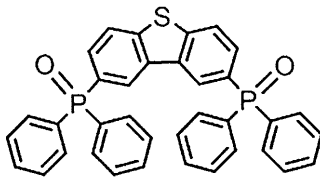
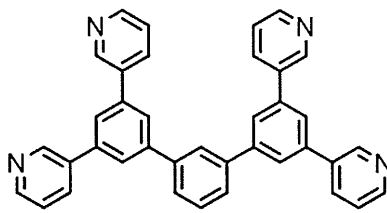
10



20

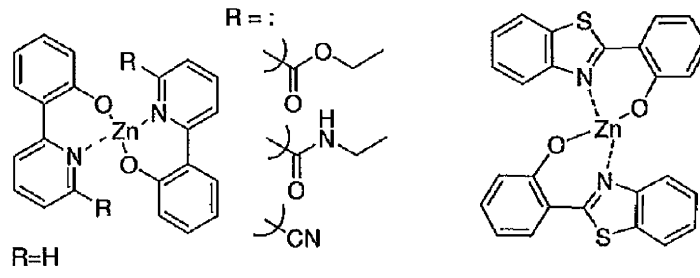


30

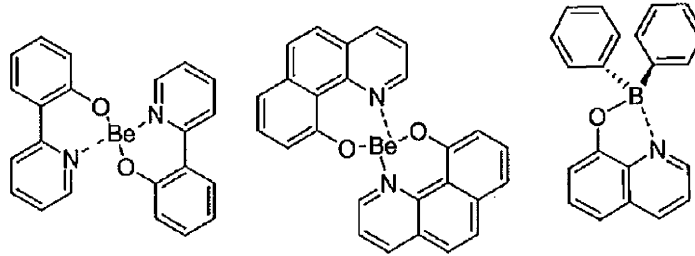


【 0 0 7 7 】

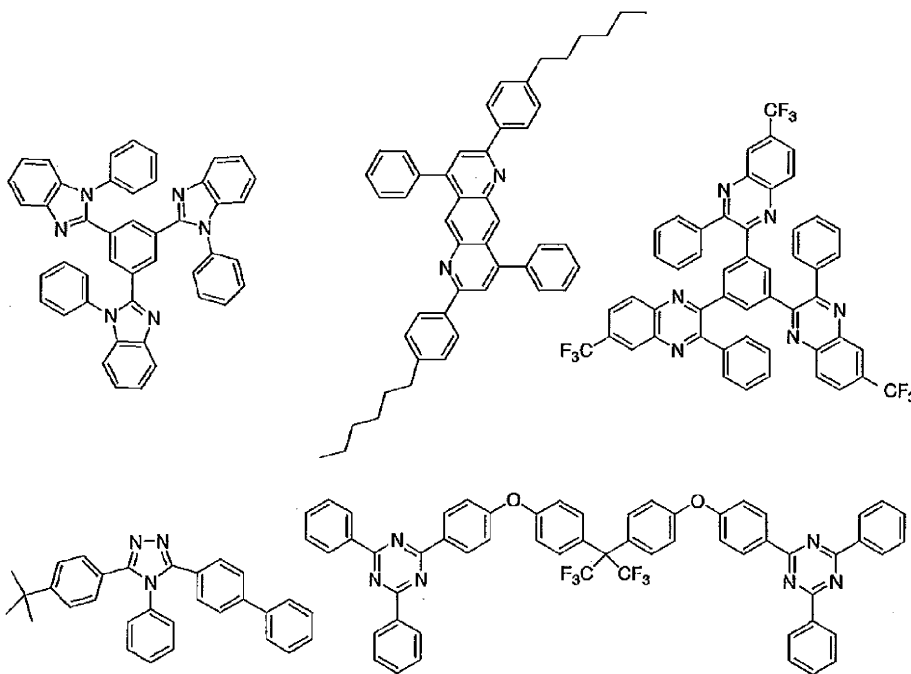
【化 3 9】



10



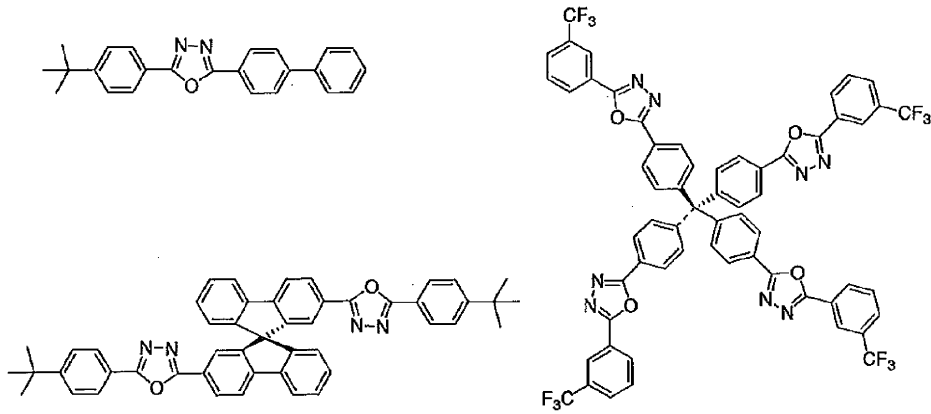
20



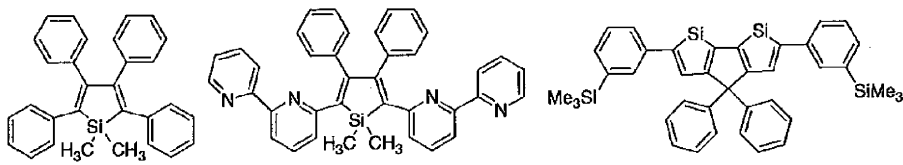
30

【 0 0 7 8 】

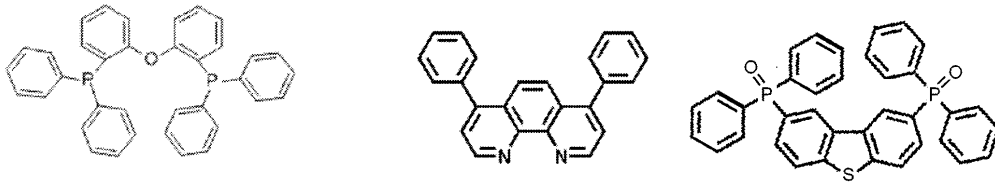
## 【化40】



10



20



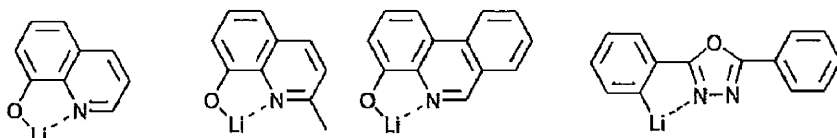
## 【0079】

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。

## 【0080】

30

## 【化41】

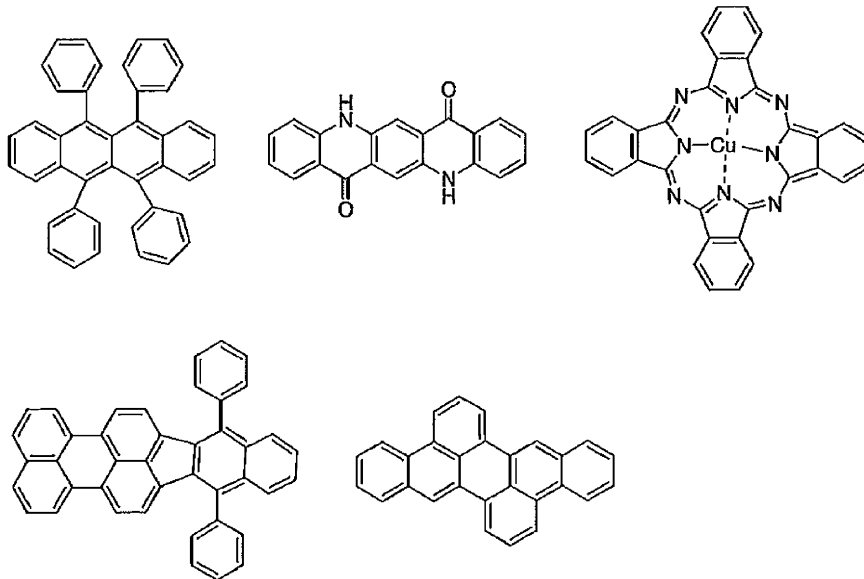


## 【0081】

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。

## 【0082】

## 【化 4 2】



10

## 【0083】

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。

## 【0084】

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】

40

## 【0085】

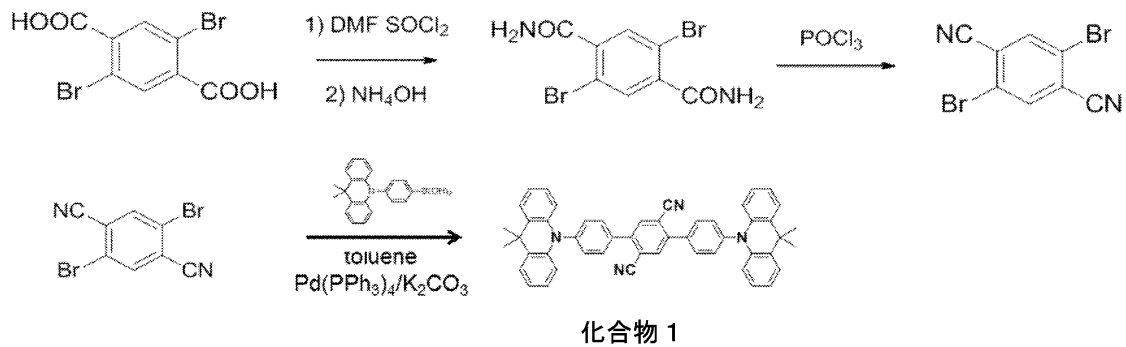
以下に合成例および実施例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。

## 【0086】

## [化合物の合成]

(合成例1) 化合物1の合成

## 【化43】



10

## 【0087】

2,5-ジブロモテレフタル酸(14.7g, 45.2mmol)、塩化チオニル(16.6g, 14.0mmol)、ジメチルホルムアミド(DMF)数滴を窒素雰囲気下の二口フラスコに入れ三時間加熱還流を行った。その後、トルエン(50mL)を加えて共沸させて塩化チオニルを取り除いた。残った析出物をジオキサン(20mL)に溶解させ、それを濃アンモニア水(60mL)に滴下して1時間攪拌した。析出物をろ過し、白色粉末(12.2g, 94%)を得た。

2,5-ジブロモベンゼン-1,4-ジアミド(12.2g, 37.9mmol)、塩化ホスホリル(40.0mL)を窒素雰囲気下のシュレンク管に入れ、135℃で8時間攪拌した。その後、混合物を氷にゆっくりと注ぎ、析出物をろ過した。ろ過した粉末を水で洗浄して、2,5-ジブロモベンゼン-1,4-ジニトリルの薄黄色粉末(9.7g, 90%)を得た。

20

2,5-ジブロモベンゼン-1,4-ジニトリル(0.35g, 1.2mmol)、4,5,5-テトラメチル-2-[4-(9-アクリジニル)フェニル]-1,3,2-ジオキサポロラン(1.1g, 2.6mmol)、脱水トルエン(30mL)を窒素雰囲気下のシュレンク管に入れ、そこにPd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub>(0.03g, 0.03mmol)とK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> aq (2M: 15mL)を加えて80℃で72時間攪拌した。室温に戻した後、析出物をろ過して水、ヘキサン、メタノールで洗浄して、化合物2の黄色粉末(0.50g, 83%)を得た。

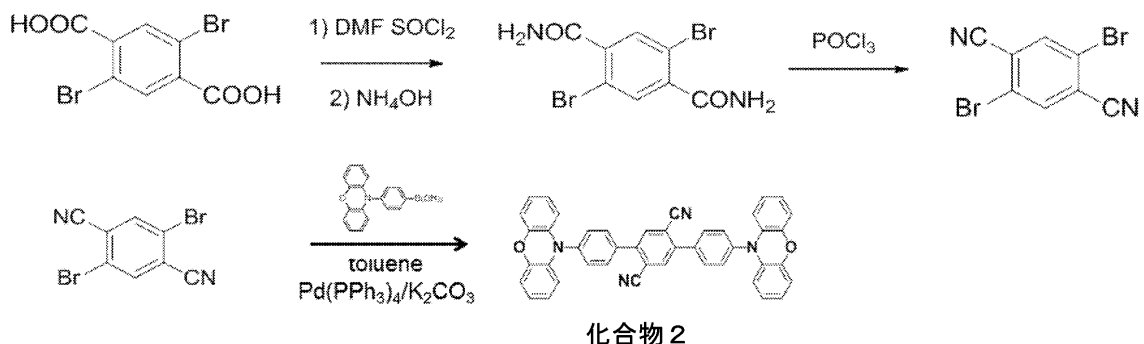
30

<sup>1</sup>H NMR (500 MHz, CDCl<sub>3</sub>): 8.13 (s, 2H), 7.91 (d, J = 8.0 Hz, 4H), 7.57 (d, J = 8.0 Hz, 2H), 7.49 (d, J = 7.7 Hz, 4H), 7.03 (t, J = 7.3 Hz, 2H), 6.97 (t, J = 7.5 Hz, 2H), 6.35 (d, J = 8.2 Hz, 4H), 1.72 (s, 12H),

## 【0088】

(合成例2) 化合物2の合成

## 【化44】



40

## 【0089】

合成例1と同じ方法により得た2,5-ジブロモベンゼン-1,4-ジニトリル(0.32g, 0.972mmol)、4,4,5,5-テトラメチル-2-[4-(10H-

50

フェノキサジン - 10 - イル)フェニル] - 1, 3, 2 - ジオキサボロラン (1.02 g, 2.6 mmol)、脱水トルエン (30 mL) を窒素雰囲気下のシュレンク管に入れ、そこに  $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$  (0.03 g, 0.03 mmol) と  $\text{K}_2\text{CO}_3$  aq (2 M: 15 mL) を加えて 80 ° で 72 時間攪拌した。室温に戻した後、析出物をろ過して水、ヘキサン、メタノールで洗浄して、化合物 1 の白色粉末 (0.76 g, 98%) を得た。

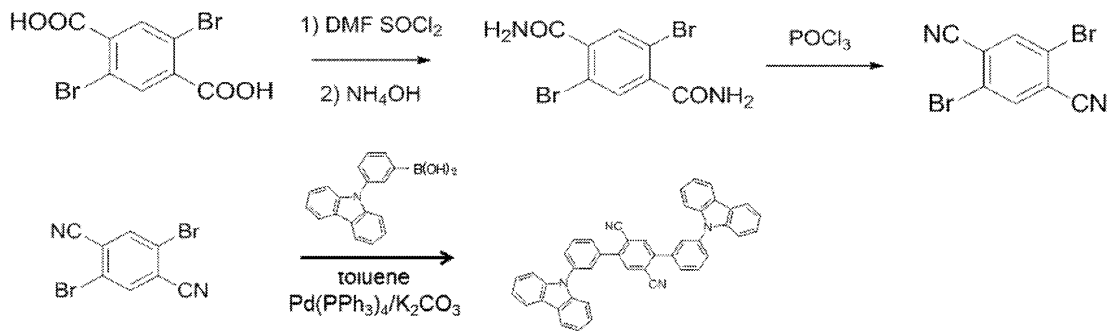
$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 8.07(s, 2H), 7.87(d,  $J = 8.85$  Hz, 4H), 7.58(d,  $J = 8.25$  Hz, 4H), 6.75-6.64(m, 12H), 7.87(dd,  $J_1 = 19.6$  Hz,  $J_2 = 1.25$  Hz, 4H)

【0090】

(合成例 3) 化合物 3 の合成

10

【化 4 5】



化合物 3

20

【0091】

合成例 1 と同じ方法により得た 2, 5 - ジブロモベンゼン - 1, 4 - ジニトリル (0.278 g, 0.972 mmol)、3 - (9 - カルバゾリル)フェニルボロン酸 (0.640 g, 2.23 mmol)、脱水トルエン (30 mL) を窒素雰囲気下のシュレンク管に入れ、そこに  $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$  (0.06 g, 0.05 mmol) と  $\text{K}_2\text{CO}_3$  aq (2 M: 15 mL) を加えて 80 ° で 72 時間攪拌した。室温に戻した後、析出物をろ過して水、ヘキサン、メタノールで洗浄して、化合物 3 の白色粉末 (0.57 g, 93%) を得た。

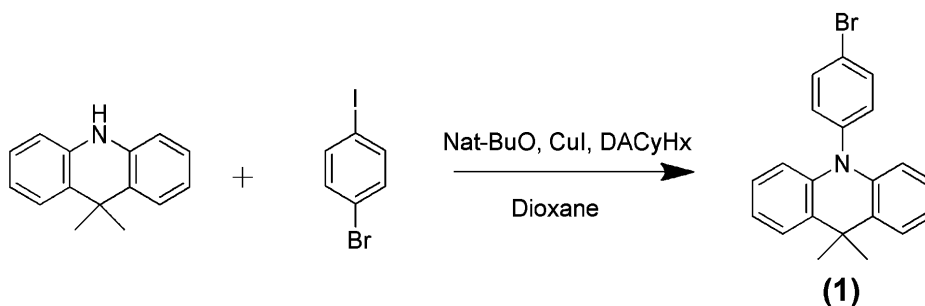
30

$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 8.17 (d,  $J = 7.5$  Hz, 4H), 8.03 (s, 2H), 7.83-7.77 (m, 6H), 7.68 (d,  $J = 7.3$  Hz, 2H), 7.55 (d,  $J = 8.1$  Hz, 4H), 7.45 (t,  $J = 7.2$  Hz, 4H) 7.32 (t,  $J = 7.35$  Hz, 4H)

【0092】

(合成例 4) 化合物 19 の合成

【化 4 6】



(1)

40

【0093】

1, 4 - ジオキササン 100 mL を窒素置換したフラスコに入れ、そこに 9, 9 - ジメチル - 9, 10 - ジヒドロアクリダイン (10 g, 47.8 mmol)、1 - ブロモ - 4 - ヨードベンゼン (14.9 g, 52.58 mmol)、ヨウ化銅 (0.18 g, 0.96 mmol)、ターシャリープトキシナトリウム (9.2 g, 95.6 mmol)、1, 2 - ジアミノシクロヘキサン (0.55 g, 4.78 mmol) を加えた。反応溶液を昇温し

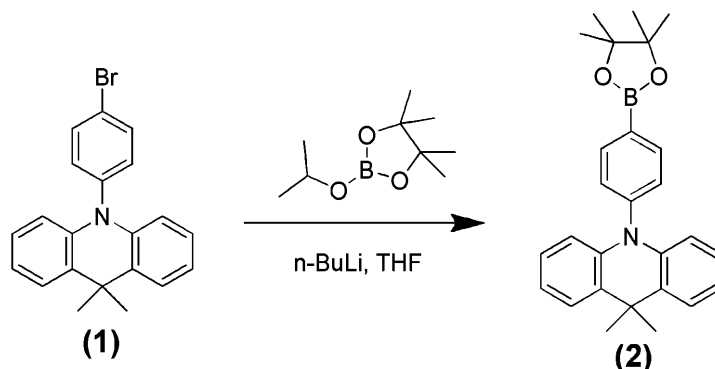
50

、6時間還流した。その後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体(1)の白色固体(15.5g, 89%)を得た。

$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 7.75 (d,  $J = 8.5$  Hz, 2H), 7.45 (dd,  $J = 9.5$  Hz, 2 Hz, 2H), 7.22 (d,  $J = 8.5$  Hz, 2H), 6.95 (m, 4H), 6.24 (dd,  $J = 9.5$  Hz, 1.5 Hz, 2H), 1.54 (s, 6H).

【0094】

【化47】



10

【0095】

中間体(1)(10g, 27.4 mmol)とテトラヒドロフラン100mlを窒素置換したフラスコに加え、 $-78^\circ\text{C}$ で攪拌した。 $n$ -ブチルリチウム(1.6M, 19.9 ml, 31.8 mmol)を加えたテトラヒドロフラン200mlを30分かけて滴下した。滴下後、2-イソプロポキシ-4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン(5.62g, 30.14 mmol)を20分間かけて滴下し、室温で2時間攪拌した。その後、反応溶液に水100mlを加え、30分後にクロロホルムを加え抽出を行った。得られた有機層に硫酸マグネシウムを加え乾燥し、吸引ろ過によりろ液を得た。その後、メタノールを用いて再結晶を行い、中間体(2)の白色固体(8.1g, 73%)を得た。

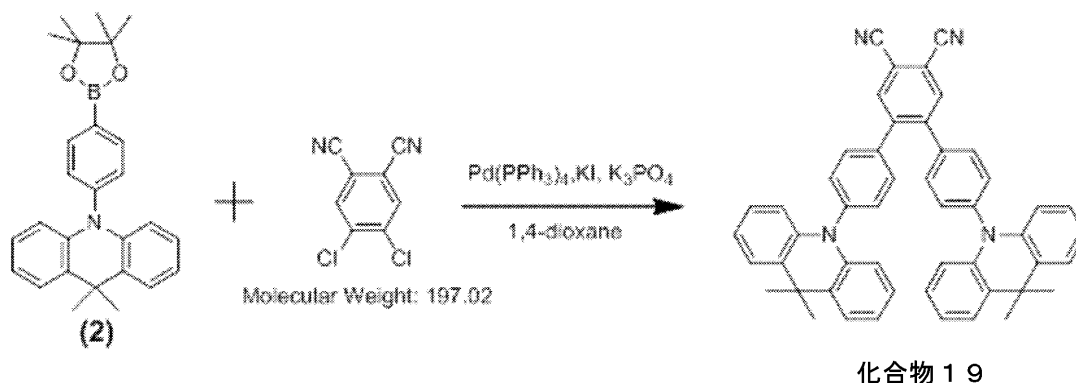
20

$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 8.06 (d,  $J = 8.0$  Hz, 2H), 7.44 (dd,  $J = 9.0$  Hz, 1.5 Hz, 2H), 7.34 (d,  $J = 8.0$  Hz, 2H), 6.96-6.89 (m, 4H), 6.24 (dd,  $J = 9.5$  Hz, 1.5 Hz, 2H), 1.69 (s, 6H), 1.40 (s, 12H).

30

【0096】

【化48】



40

【0097】

4,5-ジクロロフタロニトリル(1g, 5 mmol)、中間体(2)(4.17g, 10 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.059g, 0.05 mmol)、ヨウ化カリウム(1.69g, 10 mmol)、リン酸カリウム(4.31g, 20 mmol)を窒素置換したフラスコに加え、1,4-ジオキサランで溶解し、48時間還流した。その後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた

50

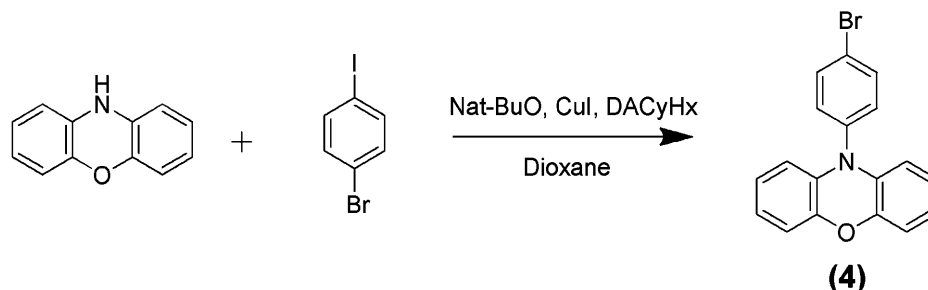
。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物 19 の黄色固体 ( 1 g , 34 % ) を得た。

$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 7.99 (s, 1H), 7.94 (s, 1H), 7.69 (dd,  $J = 8.5$  Hz, 1.5 Hz, 4H), 7.49 (td,  $J = 17.5$  Hz, 1.5 Hz, 2H), 7.05-6.95 (m, 8H), 6.30 (dd,  $J = 9.5$  Hz, 1.5 Hz, 4H), 1.53 (s, 6H).

【 0 0 9 8 】

( 合成例 5 ) 化合物 20 の合成

【 化 4 9 】



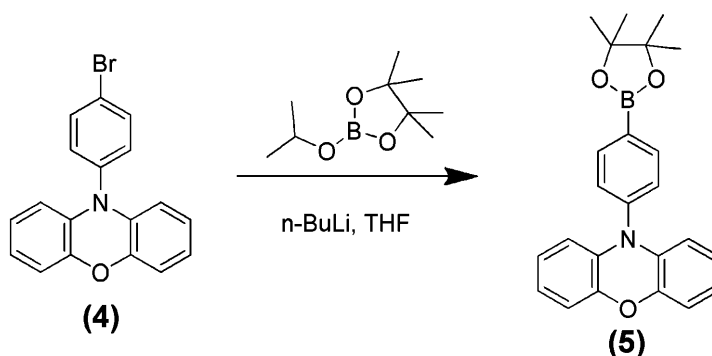
【 0 0 9 9 】

1,4-ジオキササン 100 ml を窒素置換したフラスコに入れ、そこに 10 H - フェノキサジン ( 10 g , 54.5 mmol )、1 - ブロモ - 4 - ヨードベンゼン ( 17 g , 60 mmol )、ヨウ化銅 ( 0.21 g , 1.09 mmol )、ターシャリープトキシナトリウム ( 10.5 g , 109 mmol )、1,2-ジアミノシクロヘキサン ( 0.62 g , 5.45 mmol ) を加えた。反応溶液を昇温し、6 時間還流した。その後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体 ( 4 ) の白色固体 ( 15 g , 81 % ) を得た。

$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 7.72 (d,  $J = 9$  Hz, 2H), 7.23 (d,  $J = 8.5$  Hz, 2H), 6.74-6.57 (m, 6H), 5.91 (dd,  $J = 9$  Hz, 1.5 Hz, 2H).

【 0 1 0 0 】

【 化 5 0 】



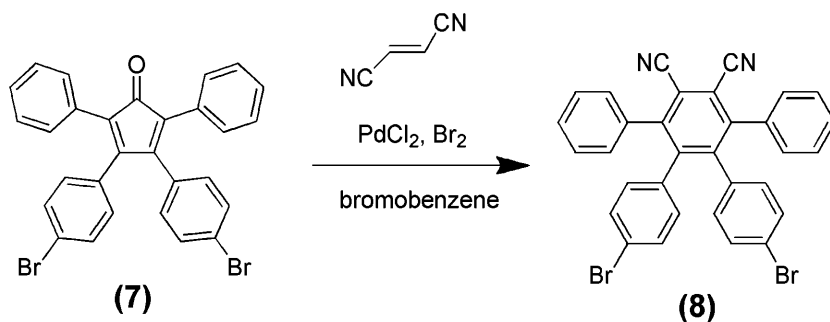
【 0 1 0 1 】

中間体 ( 4 ) ( 10 g , 30.0 mmol ) とテトラヒドロフラン 100 ml を窒素置換したフラスコに加え、 $-78^\circ\text{C}$  で攪拌した。n - ブチルリチウム ( 1.6 M , 19.9 ml , 31.8 mmol ) を加えたテトラヒドロフラン 200 ml を滴下した。その後、2 - イソプロポキシ - 4,4,5,5 - テトラメチル - 1,3,2 - ジオキサボロラン ( 5.62 g , 30.14 mmol ) を 20 分間かけて滴下し、反応溶液を室温で 2 時間攪拌した。その後、反応溶液に水 100 ml を加え、30 分後にクロロホルムを加え抽出を行った。得られた有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過によりろ液を得た。その後、メタノールを用いて再結晶を行い、中間体 ( 5 ) の白色固体 ( 7.6 g , 67 % ) を得た。

$^1\text{H NMR}$  (500 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ): 8.02 (d,  $J = 8.5$  Hz, 2H), 7.35 (d,  $J = 8.5$  Hz, 2H), 6.68 (dd,  $J = 8.5$  Hz, 1.5 Hz, 2H), 6.63 (td,  $J = 8$  Hz, 1.5 Hz, 4H), 6.56 (td,  $J = 8$



【化53】



10

【0107】

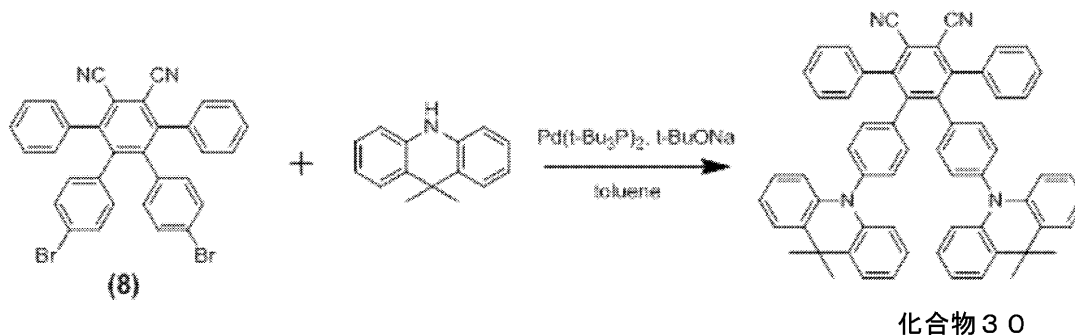
中間体(7)(1.9g, 35.0mmol)、フタロニトリル(2.73g, 35.0mmol)、パラジウムクロライド(II)(0.06g, 0.35mmol)を窒素置換したフラスコに加え、ブロモベンゼン150mlで溶解し、2時間還流した。その後、反応溶液を冷やし、ブロモベンゼン50mlに溶解したブロミン(6.15g, 38.5mmol)をゆっくり加え、5時間還流した。その後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体(8)の白色固体(13.4g, 64%)を得た。

<sup>1</sup>H NMR (500 MHz, CDCl<sub>3</sub>): 7.44 (d, J = 8.5 Hz, 2H), 7.29 (dd, J = 7.0 Hz, 1.0 Hz, 4H), 7.15 (d, J = 8.5 Hz, 2H), 7.12-7.09 (m, 4H), 6.99 (d, J = 8.5 Hz, 2H), 6.57 (dd, J = 8.5 Hz, 2.0 Hz, 2H).

20

【0108】

【化54】



30

【0109】

中間体(8)(1.5g, 2.5mmol)、9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリダン(1.06g, 5.1mmol)、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)(0.013g, 0.025mmol)、ナトリウムターシャリーブトキシド(1.0g, 10mmol)、トルエン30mlを窒素置換したフラスコに加えた。6時間還流した後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物30の黄色固体(1.1g, 51%)を得た。

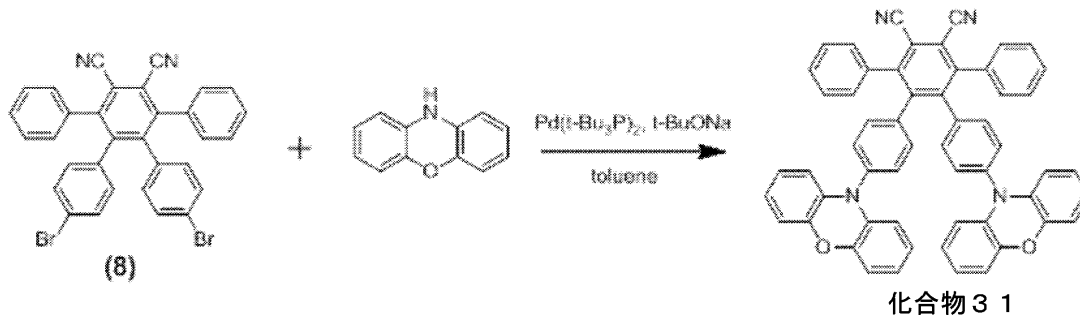
<sup>1</sup>H NMR (500 MHz, CDCl<sub>3</sub>): 7.39-7.38 (m, 12H), 7.30 (dd, J = 8 Hz, 2.0 Hz, 2H), 7.11 (dd, J = 8.35 Hz, 1.5 Hz, 4H), 7.03 (dd, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 4H), 6.83 (td, J = 16.0 Hz, 1.0 Hz, 4H), 6.71 (td, J = 17.0 Hz, 1.5 Hz, 4H), 5.85 (d, J = 8.5 Hz, 1.0 Hz, 4H), 1.53 (s, 12H).

40

【0110】

(合成例7) 化合物31の合成

## 【化55】



10

## 【0111】

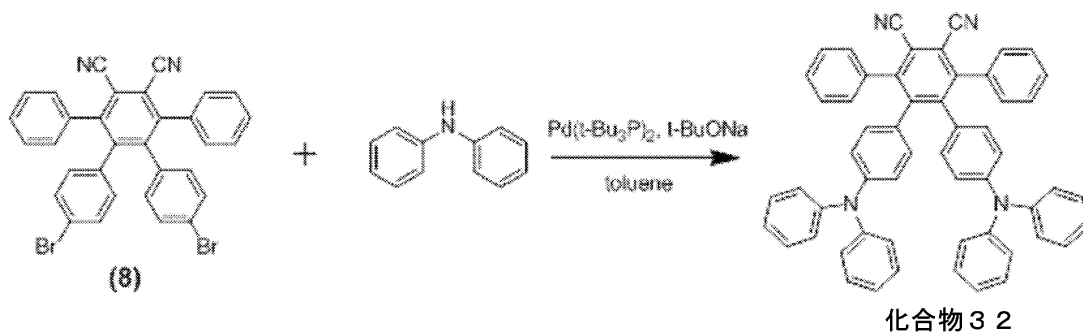
合成例6と同じ方法により得た中間体(8)(1.5g, 2.5mmol)、10H-フェノキサジン(0.93g, 5.1mmol)、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)(0.013g, 0.025mmol)、ナトリウムターシャリーブトキシド(1.0g, 10mmol)、トルエン30mlを窒素置換したフラスコに加えた。6時間還流した後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物31の橙色固体(0.9g, 44%)を得た。

## 【0112】

(合成例8) 化合物32の合成

20

## 【化56】



30

## 【0113】

合成例6と同じ方法により得た中間体(8)(1.5g, 2.5mmol)、ジフェニルアミン(0.86g, 5.1mmol)、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)(0.013g, 0.025mmol)、ナトリウムターシャリーブトキシド(1.0g, 10mmol)、トルエン30mlを窒素置換したフラスコに加えた。6時間還流した後、温度を下げ、セライトを用いて不純物を取り除いた。得られたる液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、化合物32の黄色固体(1.65g, 85%)を得た。

<sup>1</sup>H NMR (500 MHz, CDCl<sub>3</sub>): 7.33 (dd, J = 10.5 Hz, 2.0 Hz, 6H), 7.20-7.17 (m, 12H), 7.33 (td, J = 15.0 Hz, 1.0 Hz, 4H), 6.90 (dd, J = 7.5 Hz, 1.0 Hz, 8H), 6.69 (dd, J = 8.5 Hz, 1.0 Hz, 4H), 6.57 (dd, J = 8.5 Hz, 1.0 Hz, 4H).

40

## 【0114】

[素子の作製と評価]

以下において、有機フォトルミネッセンス素子と有機エレクトロルミネッセンス素子を作製して評価した。

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옵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。

50

## 【 0 1 1 5 】

また、各材料の一重項エネルギー ( $E_{S1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T1}$ ) の差 ( $E_{ST}$ ) は、一重項エネルギー ( $E_{S1}$ ) と三重項エネルギーを以下の方法で算出し、 $E_{ST} = E_{S1} - E_{T1}$  により求めた。

( 1 ) 一重項エネルギー  $E_{S1}$ 

測定対象化合物と m C P とを、測定対象化合物が濃度 6 重量% となるように共蒸着することで S i 基板上に厚さ 1 0 0 n m の試料を作製した。常温 ( 3 0 0 K ) でこの試料の蛍光スペクトルを測定した。励起光入射直後から入射後 1 0 0 ナノ秒までの発光を積算することで、縦軸を燐光強度、横軸を波長の蛍光スペクトルを得た。蛍光スペクトルは、縦軸を発光強度、横軸を波長とした。この発光スペクトルの短波側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値  $edge [ n m ]$  を求めた。この波長値を次に示す換算式でエネルギー値に換算した値を  $E_{S1}$  とした。

$$\text{換算式: } E_{S1} [ e V ] = 1239.85 / edge$$

蛍光スペクトルの測定には、励起光源に窒素レーザー (Lasertechnik Berlin社製、M N L 2 0 0 ) を検出器には、ストリークカメラ (浜松ホトニクス社製、C 4 3 3 4 ) を用いた。

( 2 ) 三重項エネルギー  $E_{T1}$ 

一重項エネルギー  $E_{S1}$  と同じ試料を 5 [ K ] に冷却し、励起光 ( 3 3 7 n m ) を燐光測定用試料に照射し、ストリークカメラを用いて、燐光強度を測定した。励起光入射後 1 ミリ秒から入射後 1 0 ミリ秒の発光を積算することで、縦軸を発光強度、横軸を波長の燐光スペクトルを得た。この燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値  $edge [ n m ]$  を求めた。この波長値を次に示す換算式でエネルギー値に換算した値を  $E_{T1}$  とした。

$$\text{換算式: } E_{T1} [ e V ] = 1239.85 / edge$$

燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線は以下のように引いた。燐光スペクトルの短波長側から、スペクトルの極大値のうち、最も短波長側の極大値までスペクトル曲線上を移動する際に、長波長側に向けて曲線上の各点における接線を考える。この接線は、曲線が立ち上がるにつれ (つまり縦軸が増加するにつれ)、傾きが増加する。この傾きの値が極大値をとる点において引いた接線を、当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とした。

なお、スペクトルの最大ピーク強度の 1 0 % 以下のピーク強度をもつ極大点は、上述の最も短波長側の極大値には含めず、最も短波長側の極大値に最も近い、傾きの値が極大値をとる点において引いた接線を当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とした。

$E_{ST}$  は 0 . 2 0 e V 未満であることが好ましく、0 . 1 1 e V 未満であることがより好ましく、0 . 0 5 e V 未満であることがさらに好ましく、0 . 0 1 e V であることがさらにより好ましい。

## 【 0 1 1 6 】

( 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

A r 雰囲気グローブボックス中で化合物 1 のトルエン溶液 (濃度  $1 0^{-4} m o l / L$ ) を調製した。

また、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度  $1 0^{-4} P a$  以下の条件にて化合物 1 と P z C z 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 1 0 0 n m 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。

化合物 1 のトルエン溶液について、3 0 0 n m 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 2 に、化合物 1 と P z C z の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、2 9 0 n m 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 3 に示す。

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 1 0 0 %、化合物 1 と P z C z の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 8 4 % であった。蛍光スペクトルとリン光スペクトルから求めた一重項励起状態と三重項励起状態とのエネルギー

10

20

30

40

50

差  $E_{st}$  は  $0.002 \text{ eV}$  であった。

また、化合物 1 と PzCz の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 4 K、50 K、100 K、150 K、200 K、250 K、300 K における過渡減衰曲線を図 4 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 4 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  $\mu$  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。300 K における即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は  $25 \text{ ns}$ 、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は  $117 \mu\text{s}$  であった。また、図 4 より化合物 1 は熱活性型遅延蛍光材料（TADF）であることが確認された。

10

#### 【0117】

（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 と同じ方法により化合物 2 のトルエン溶液および薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。ただし、薄膜を形成する際、PzCz は使用せずに CBP を使用し、化合物 2 の濃度を 3 重量%に変更した。

20

化合物 2 のトルエン溶液について、300 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 5 に、化合物 2 と PzCz の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、290 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 6 に示す。

フォトルミネッセンス量子効率、バブリングしたトルエン溶液で 30%、化合物 2 と CBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 68% であった。蛍光スペクトルとリン光スペクトルから求めた一重項励起状態と三重項励起状態とのエネルギー差  $E_{st}$  は  $0.101 \text{ eV}$  であった。

また、化合物 2 と CBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 4 K、50 K、100 K、150 K、200 K、250 K、300 K における過渡減衰曲線を図 7 に示す。300 K における即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は  $22 \text{ ns}$ 、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は  $763 \text{ ns}$  であった。また、図 7 より化合物 2 は熱活性型遅延蛍光材料（TADF）であることが確認された。

30

#### 【0118】

（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 と同じ方法により化合物 3 のトルエン溶液および薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。ただし、薄膜を形成する際、PzCz は使用せずに DPEPO を使用し、化合物 3 の濃度を 3 重量%に変更した。

化合物 3 のトルエン溶液について、475 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 8 に示す。

40

フォトルミネッセンス量子効率は、バブリングなしのトルエン溶液で 10%、窒素バブリングしたトルエン溶液で 38%、化合物 3 と DPEPO の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 38% であった。蛍光スペクトルとリン光スペクトルから求めた一重項励起状態と三重項励起状態とのエネルギー差  $E_{st}$  は  $0.032 \text{ eV}$  であった。

化合物 3 と DPEPO の薄膜の過渡減衰曲線を図 9 に示す。即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は  $27 \text{ ns}$ 、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は  $196 \mu\text{s}$  であった。

（実施例 4） 化合物 19 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 19 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 19 のトルエン溶液および薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。ただし、薄膜を形成する際、PzCz は使用せずに mCBP を使用した。

50

また、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 19 のみからなる薄膜を 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。

化合物 19 のトルエン溶液、化合物 19 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子、化合物 19 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、350 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 10 に示す。

380 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率、パブリックなしのトルエン溶液で 13.8%、窒素パブリックしたトルエン溶液で 58.9% であり、化合物 19 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子については、大気下に置いた場合で 31.3%、窒素雰囲気下に置いた場合で 31.6% であった。また、335 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率は、化合物 19 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で 77.7%、窒素雰囲気下に置いた場合で 86.0% であった。

化合物 19 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図 11 に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は 2.65 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は 2.60 eV であり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{ST}$  は 0.05 eV であった。

トルエン溶液の 340 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 12 に示す。即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は 54.5 ns、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は 22.9  $\mu$ s であった。

また、化合物 19 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 13 に示し、化合物 19 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の

337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 14 に示す。なお、過渡減衰曲線は、5 K、50 K、100 K、150 K、200 K、250 K、300 K のそれぞれの条件で測定した。図 14 から求めた 300 K における遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は 37.9 ms であった。

図 12 ~ 図 14 より、化合物 19 のトルエン溶液および有機フォトルミネッセンス素子について遅延蛍光の放射が確認され、特に、図 14 より、化合物 19 は熱活性型の遅延蛍光材料 (TADF) であることが確認された。

#### 【0119】

(実施例 5) 化合物 20 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 19 のかわりに化合物 20 を用いた点を変更して、実施例 4 と同じ方法により化合物 20 のトルエン溶液、化合物 20 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子および化合物 20 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。

化合物 20 のトルエン溶液、化合物 20 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子、化合物 20 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、350 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 15 に示す。

355 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率は、パブリックなしのトルエン溶液で 16.1%、窒素パブリックしたトルエン溶液で 42.4% であった。また、375 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率は、化合物 20 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で 18.8%、窒素雰囲気下に置いた場合で 20.8% であり、化合物 20 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で 64.5%、窒素雰囲気下に置いた場合で 77.2% であった。

化合物 20 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図 16 に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は 2.38 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は 2.34 eV であり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{ST}$  は 0.04 eV であった。

トルエン溶液の 340 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 17 に示す。即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は 46.4 ns、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は 3.36  $\mu$ s であった。

10

20

30

40

50

また、化合物 20 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 18 に示し、化合物 20 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の

337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 19 に示す。なお、過渡減衰曲線は、5 K、50 K、100 K、150 K、200 K、250 K、300 K のそれぞれの条件で測定した。図 19 から求めた 300 K における遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は 202  $\mu$ s であった。

図 17 ~ 図 19 より、化合物 20 のトルエン溶液および有機フォトルミネッセンス素子について遅延蛍光の放射が確認され、特に、図 19 より、化合物 20 は熱活性型の遅延蛍光材料 (TADF) であることが確認された。

#### 【0120】

(実施例 6) 化合物 30 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 19 のかわりに化合物 30 を用いた点を変更して、実施例 4 と同じ方法により化合物 30 のトルエン溶液、化合物 30 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子および化合物 30 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。

化合物 30 のトルエン溶液、化合物 30 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子、化合物 30 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、350 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 20 に示す。

330 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率<sub>0</sub>は、パブリックなしのトルエン溶液で 13.1%、窒素パブリックしたトルエン溶液で 28.4% であり、化合物 30 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で 21.5%、窒素雰囲気下に置いた場合で 24.1% であり、化合物 30 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で 59.1%、窒素雰囲気下に置いた場合で 62.8% であった。

化合物 30 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図 21 に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は 3.10 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は 2.95 eV であり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{S_1} - E_{T_1}$  は 0.15 eV であった。また、化合物 30 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図 22 に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は 2.99 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は 2.82 eV であり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{S_1} - E_{T_1}$  は 0.17 eV であった。

トルエン溶液の 340 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 23 に示す。即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は 26.4 ns、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は 1.57  $\mu$ s であった。

また、化合物 30 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の 337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 24 に示し、化合物 30 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の

337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図 25 に示す。なお、過渡減衰曲線は 300 K で測定した。図 25 から求めた 300 K における遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は 20.8  $\mu$ s であった。

図 23 ~ 図 25 より、化合物 30 のトルエン溶液および有機フォトルミネッセンス素子について遅延蛍光の放射が確認された。

#### 【0121】

(実施例 7) 化合物 31 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 19 のかわりに化合物 31 を用いた点を変更して、実施例 4 と同じ方法により化合物 31 のトルエン溶液、化合物 31 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子および化合物 31 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。

化合物 31 のトルエン溶液、化合物 31 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子、化合物 31 と mCBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、350 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 26 に示す。

355 nm 励起光による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13.4%、窒素バブリングしたトルエン溶液で42.5%であり、化合物31の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で13.2%、窒素雰囲気下に置いた場合で13.5%であり、化合物31とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で65.9%、窒素雰囲気下に置いた場合で68.9%であった。

化合物31の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図27に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は3.00 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は2.73 eVであり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{ST}$  は0.27 eVであった。また、化合物31とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図28に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は2.95 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は2.80 eVであり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{ST}$  は0.15 eVであった。

10

トルエン溶液の340 nm 励起光による過渡減衰曲線を図29に示す。即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は28.9 ns、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は2.84  $\mu$ sであった。

また、化合物31の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図30に示し、化合物31とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の

337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図31に示す。なお、過渡減衰曲線は300 Kで測定した。図31から求めた300 Kにおける遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は18.3  $\mu$ sであった。

20

図29～図31より、化合物31のトルエン溶液および有機フォトルミネッセンス素子について遅延蛍光の放射が確認された。

#### 【0122】

(実施例8) 化合物32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19のかわりに化合物32を用い、mCBPのかわりにPPFを用いた点を変更して、実施例4と同じ方法により化合物32のトルエン溶液、化合物32の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子および化合物32とPPFの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を得た。

30

化合物32のトルエン溶液、化合物32の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子、化合物32とPPFの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、350 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図32に示す。

335 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率は、バブリングなしのトルエン溶液で73.4%、窒素バブリングしたトルエン溶液で96.5%であり、化合物32の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で68.1%、窒素雰囲気下に置いた場合で71.7%であった。また、310 nm 励起光によるフォトルミネッセンス量子効率は、化合物32とPPFの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について、大気下に置いた場合で87.3%、窒素雰囲気下に置いた場合で95.6%であった。

40

化合物32の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の337 nm 励起光による蛍光スペクトルおよび燐光スペクトルを図33に示す。一重項エネルギー  $E_{S_1}$  は2.70 eV、三重項エネルギー  $E_{T_1}$  は2.63 eVであり、一重項エネルギー ( $E_{S_1}$ ) と三重項エネルギー ( $E_{T_1}$ ) の差  $E_{ST}$  は0.07 eVであった。

トルエン溶液の340 nm 励起光による過渡減衰曲線を図34に示す。即時蛍光成分の発光寿命  $\tau_1$  は8.69 ns、遅延蛍光成分の発光寿命  $\tau_2$  は93.09 nsであった。

また、化合物32の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図35に示し、化合物32とPPFの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の

337 nm 励起光による過渡減衰曲線を図36に示す。なお、過渡減衰曲線は300 Kで

50

測定した。図36から求めた300Kにおける即時蛍光成分の発光寿命 $\tau_1$ は9.39 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 $\tau_2$ は150 nsであった。

図34~図36より、化合物32のトルエン溶液および有機フォトルミネセンス素子について遅延蛍光の放射が確認された。

#### 【0123】

(実施例9) 化合物1を用いた有機エレクトロルミネ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(ITO)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 $5.0 \times 10^{-4}$  Paで積層した。まず、ITO上に-NPDを35 nmの厚さに形成した後、mCPを10 nmの厚さに形成した。次に、化合物1とPzCzを異なる蒸着源から共蒸着し、15 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3.0重量%とした。次に、PPTを40 nmの厚さに形成し、さらにフッ化リチウム(LiF)を0.8 nm真空蒸着し、次いでアルミニウム(Al)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センス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネセンス素子の発光スペクトルを図37に示し、電圧-電流密度特性を図38に示し、電流密度-外部量子効率特性を図39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センス素子は13.4%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センス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。したがって、化合物1を用いた本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、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。

#### 【0124】

(実施例10) 化合物1を用いた他の有機エレクトロルミネ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(ITO)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 $5.0 \times 10^{-4}$  Paで積層した。まず、ITO上に-NPDを25 nmの厚さに形成した後、Tris-PCzを10 nmの厚さに形成した。次に、化合物1とmCBPを異なる蒸着源から共蒸着し、15 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、PPTを10 nmの厚さに形成した後、TPBiを40 nmの厚さに形成した。さらにフッ化リチウム(LiF)を0.8 nm真空蒸着し、次いでアルミニウム(Al)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センス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネセンス素子の発光スペクトルを図40に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図41に示し、電流密度-外部量子効率特性を図42に示し、測定された素子特性を表1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センス素子は21.3%の高い外部量子効率を達成した。

#### 【0125】

(実施例11) 化合物2を用いた有機エレクトロルミネ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(ITO)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 $5.0 \times 10^{-4}$  Paで積層した。まず、ITO上に-NPDを35 nmの厚さに形成した。次に、化合物2とCBPを異なる蒸着源から共蒸着し、15 nm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、PPTを10 nmの厚さに形成し、TPBiを40 nmの厚さに形成し、さらにフッ化リチウム(LiF)を0.8 nm真空蒸着し、次いでアルミニウム(Al)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センス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネセンス素子の発光スペクトルを図43に示し、電圧-電流密度特性を図44に示し、電流密度-外部量子効率特性を図45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センス素子は19.9%の高い外部量子効

率を達成した。

【0126】

(実施例12) 化合物2を用いた他の有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価  
膜厚100nmのインジウム・スズ酸化物(ITO)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 $5.0 \times 10^{-4}$ Paで積層した。まず、ITO  
上に-NPDを35nmの厚さに形成した。次に、化合物2とCBPを異なる蒸着源  
から共蒸着し、15nm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、PPTを10nmの厚さに形成した後、TPBiを40nm  
の厚さに形成した。さらにフッ化リチウム(LiF)を0.8nm真空蒸着し、次いでアル  
ミニウム(Al)を80nm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。

10

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46に示し、電圧-  
電流密度-輝度特性を図47に示し、電流密度-外部量子効率特性を図48に示し、測定  
された素子特性を表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23.1%の高い外部量子効率を達成した。

【0127】

(実施例13) 化合物19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110nmのインジウム・スズ酸化物(ITO)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 $5.0 \times 10^{-4}$ Paで積層した。まず、ITO  
上に-NPDを40nmの厚さに形成した後、mCPを10nmの厚さに形成した。  
次に、化合物19とmCBPを異なる蒸着源から共蒸着し、20nmの厚さの層を形成し  
て発光層とした。この時、化合物19の濃度は6.0重量%とした。次に、PPFを10  
nmの厚さに形成し、その上に、TPBiを30nmの厚さに形成した。さらにフッ化リ  
チウム(LiF)を0.8nm真空蒸着し、次いでアルミニウム(Al)を80nm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。

20

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の $10\text{mA}/\text{cm}^2$ での発光スペクトルを  
図49に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図50に示し、電流密度-外部量子効率特性  
を図51に示す。化合物19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18.09%の高い外部量子効率を達成した。

【0128】

(実施例14) 化合物20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  
発光層を形成する際、化合物19のかわりに化合物20を用いたこと以外は、実施例1  
3と同様にして有機エレクトロルミネッセンス素子を製造した。

30

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の $10\text{mA}/\text{cm}^2$ での発光スペクトルを  
図52に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図53に示し、電流密度-外部量子効率特性  
を図54に示す。化合物20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14.25%の高い外部量子効率を達成した。

【0129】

(実施例15) 化合物21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100nmのインジウム・スズ酸化物(ITO)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 $5.0 \times 10^{-4}$ Paで積層した。まず、ITO  
上にTAPCを40nmの厚さに形成した後、mCBPを15nmの厚さに形成した。  
次に、化合物21とmCBPとBmPyPhBを異なる蒸着源から共蒸着し、30nmの  
厚さの層を形成して発光層とした。この時、化合物21の濃度は6.0重量%とした。次  
に、BmPyPhBを50nmの厚さに形成した。さらにフッ化リチウム(LiF)を0  
.8nm真空蒸着し、次いでアルミニウム(Al)を80nm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。

40

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧-電流密度-輝度特性を図55に示  
し、輝度-外部量子効率-電力効率特性を図56に示し、測定された素子特性を表2に示  
す。化合物21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の外部量子効

50

率は6.3%であった。

【0130】

(実施例16) 化合物30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  
発光層を形成する際、化合物19のかわりに化合物30を用いたこと以外は、実施例13と同様にして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10 mA/cm<sup>2</sup>での発光スペクトルを図57に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図58に示し、電流密度-外部量子効率特性を図59に示す。化合物30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12.51%の高い外部量子効率を達成した。

【0131】

(実施例17) 化合物31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  
発光層を形成する際、化合物19のかわりに化合物31を用いたこと以外は、実施例13と同様にして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10 mA/cm<sup>2</sup>での発光スペクトルを図60に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図61に示し、電流密度-外部量子効率特性を図62に示す。化合物31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14.04%の高い外部量子効率を達成した。

【0132】

(実施例18) 化合物32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21の代わりに化合物32を用いて発光層を形成したこと以外は、実施例15と同様にして有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧-電流密度-輝度特性を図55に示し、輝度-外部量子効率-電力効率特性を図56に示し、測定された素子特性を表2に示す。化合物32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30.6%の高い外部量子効率を達成した。また、この化合物32について、過渡減衰曲線を測定したところ、熱活性型遅延蛍光体であることが確認された。

【0133】

(実施例19) 化合物32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  
発光層を形成する際、化合物19のかわりに化合物32を用い、mCBPのかわりにPPFを用いたこと以外は、実施例13と同様にして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10 mA/cm<sup>2</sup>での発光スペクトルを図63に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図64に示し、電流密度-外部量子効率特性を図65に示す。化合物32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29.64%の高い外部量子効率を達成した。

【0134】

【表1】

	オン電圧 V <sub>on</sub> (V)	最大輝度 L <sub>max</sub> (cd/m <sup>2</sup> )	外部量子効率 EQE (%)
実施例10	4.0	17400	21.3
実施例12	3.8	38000	23.1

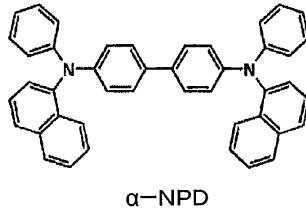
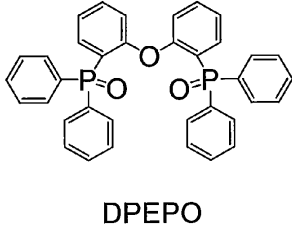
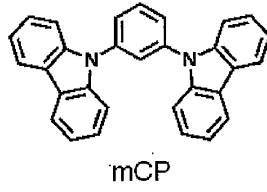
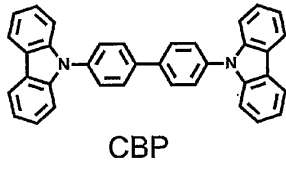
【0135】

【表2】

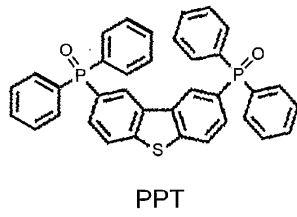
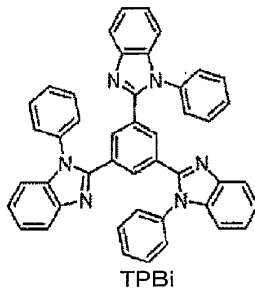
	発光波長 λ <sub>EL</sub> (nm)	オン電圧 V <sub>on</sub> (V)	最大輝度 L <sub>max</sub> (cd/m <sup>2</sup> )	外部量子効率 EQE (%)	最大電力効率 Max PE (lm/W)
実施例15	511	5.3	41800	6.3	10.1
実施例18	505	3.1	82200	30.6	92.6

【0136】

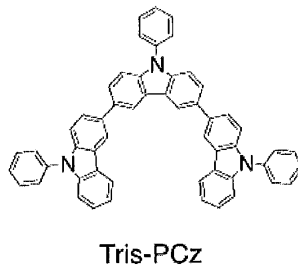
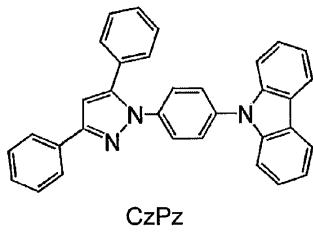
【化 5 7 - 1】



10

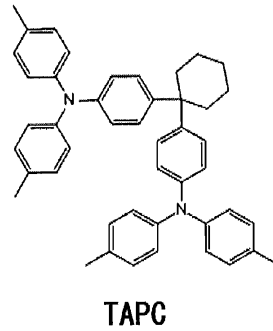
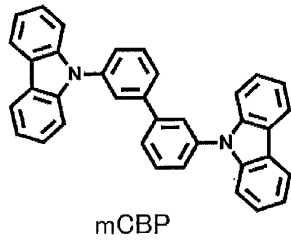


20

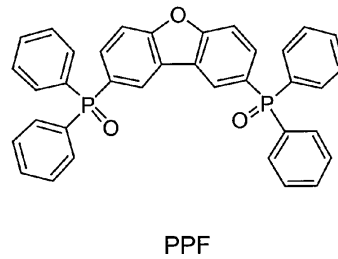
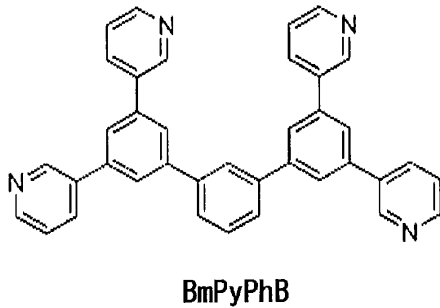


30

## 【化57-2】



10



20

## 【産業上の利用可能性】

## 【0137】

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。

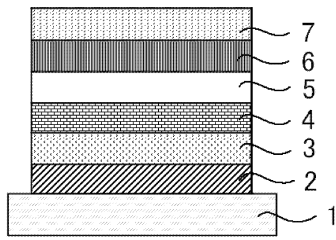
## 【符号の説明】

## 【0138】

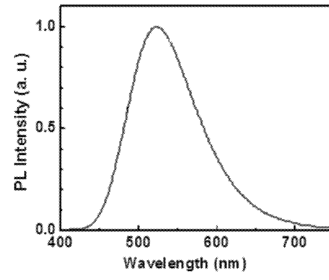
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 陰極

30

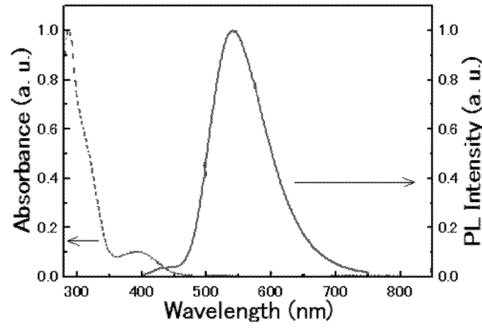
【 図 1 】



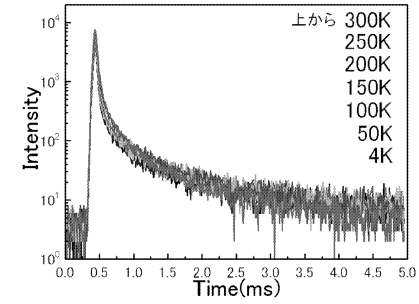
【 図 3 】



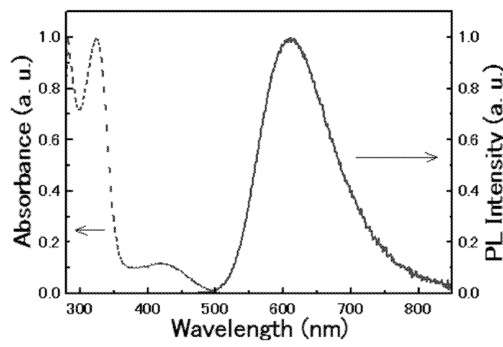
【 図 2 】



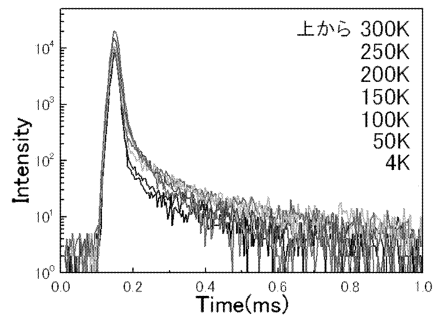
【 図 4 】



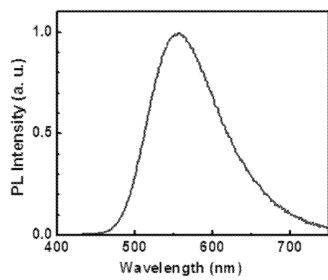
【 図 5 】



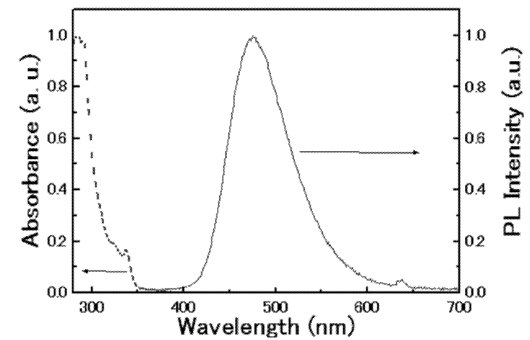
【 図 7 】



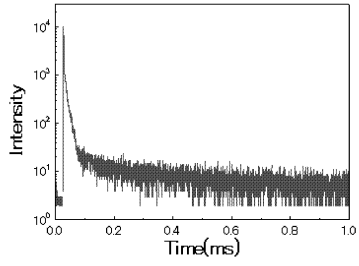
【 図 6 】



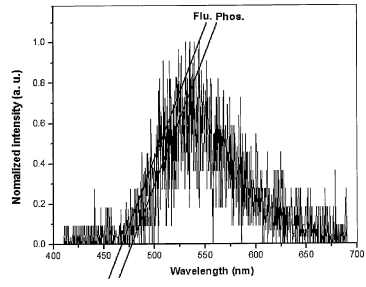
【 図 8 】



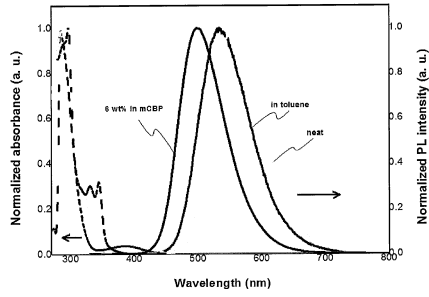
【 9 】



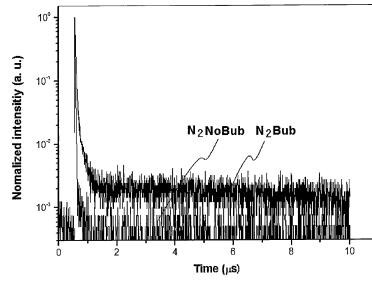
【 1 1 】



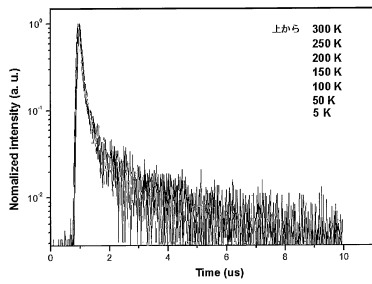
【 1 0 】



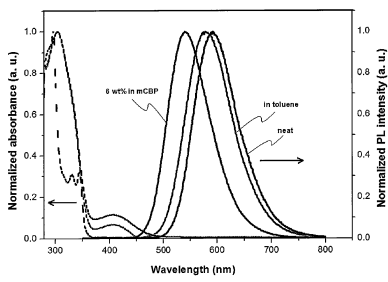
【 1 2 】



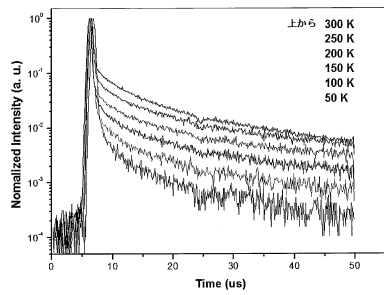
【 1 3 】



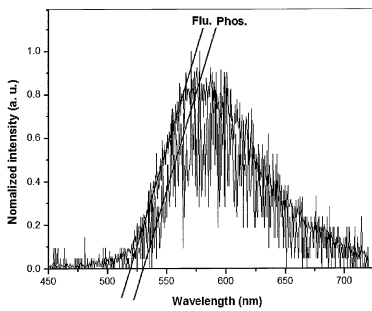
【 1 5 】



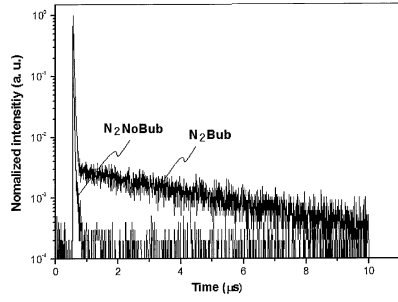
【 1 4 】



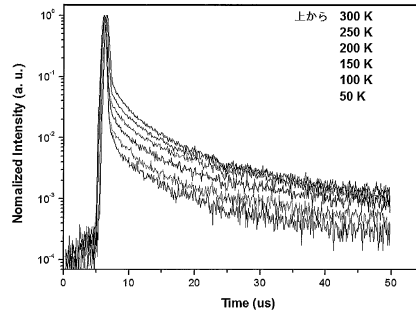
【 1 6 】



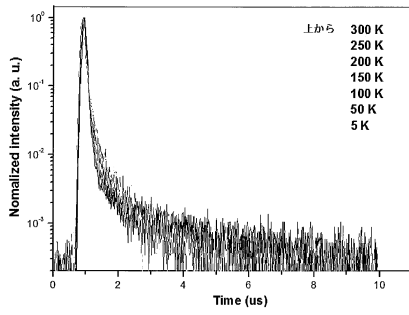
【 17 】



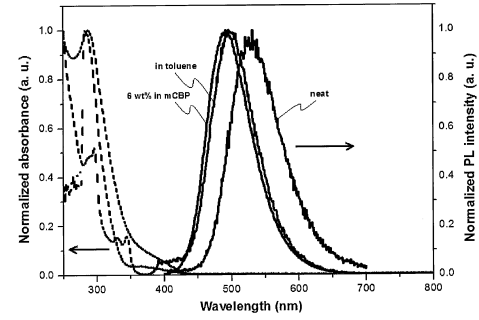
【 19 】



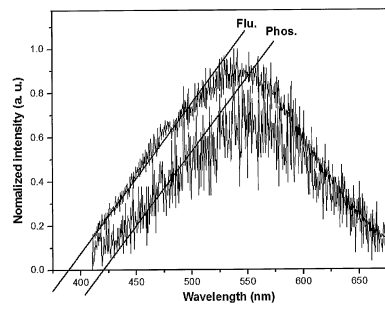
【 18 】



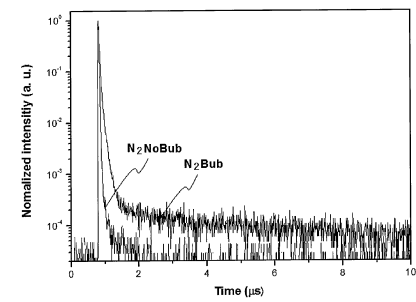
【 20 】



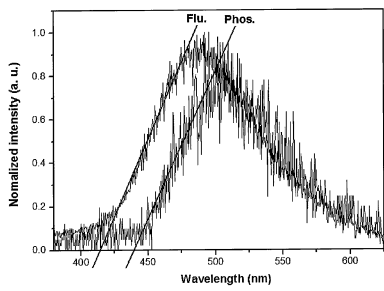
【 21 】



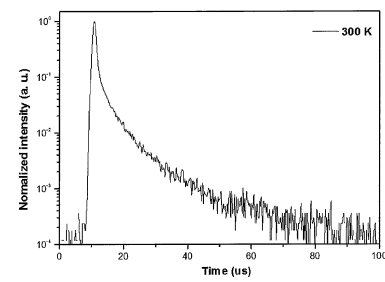
【 23 】



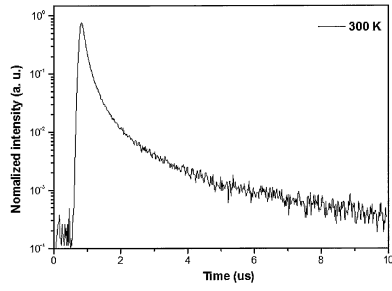
【 22 】



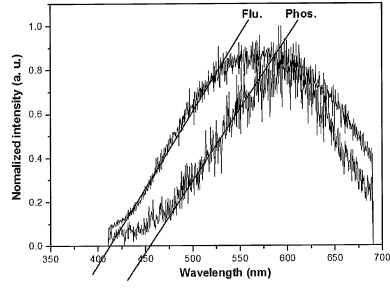
【 24 】



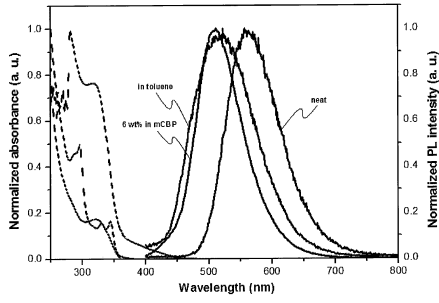
【 2 5 】



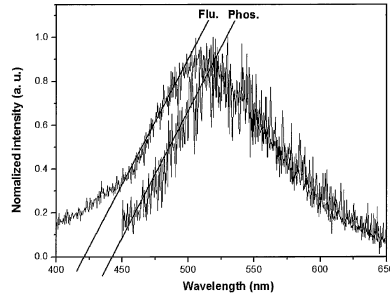
【 2 7 】



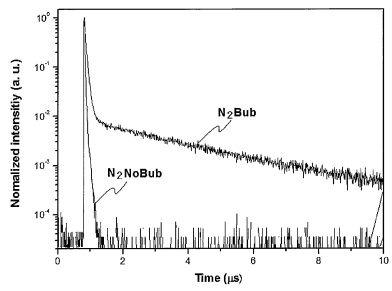
【 2 6 】



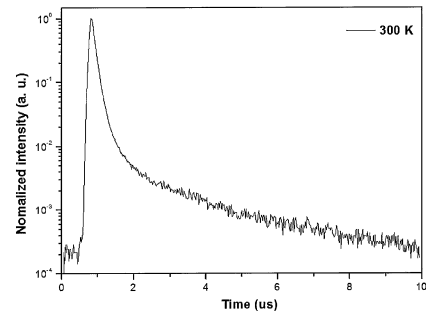
【 2 8 】



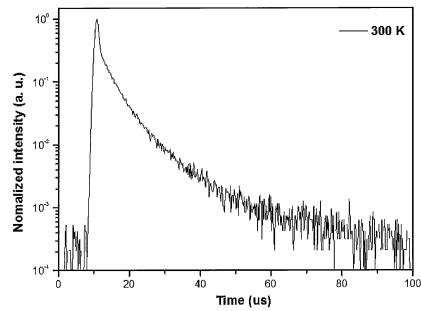
【 2 9 】



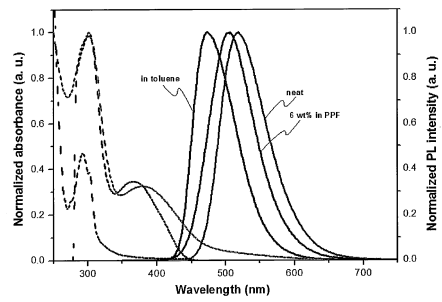
【 3 1 】



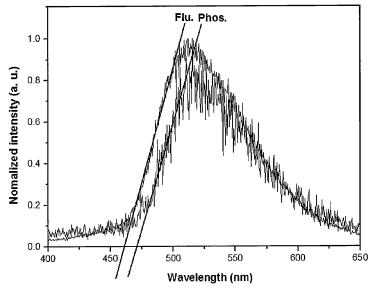
【 3 0 】



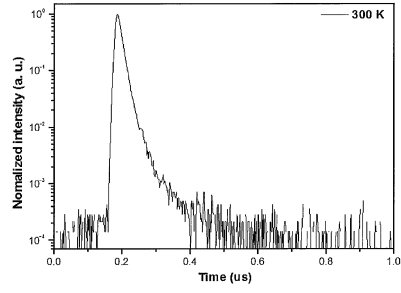
【 3 2 】



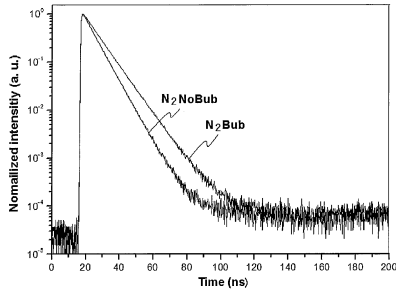
【 3 3 】



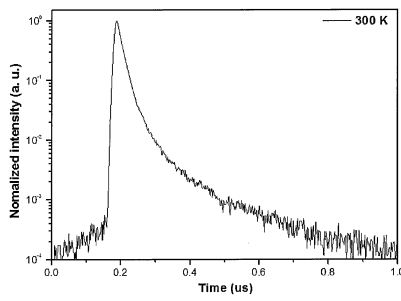
【 3 5 】



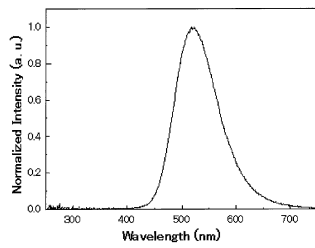
【 3 4 】



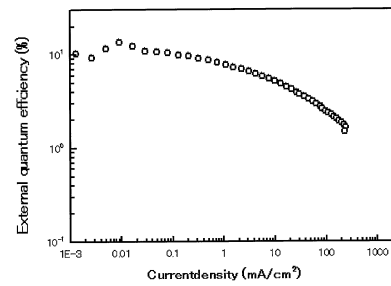
【 3 6 】



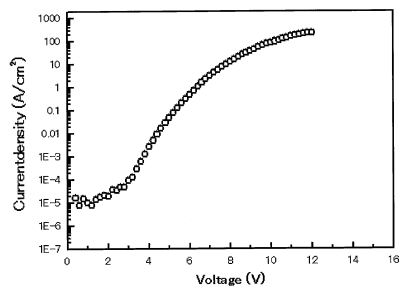
【 3 7 】



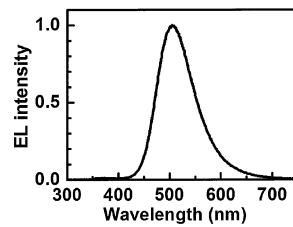
【 3 9 】



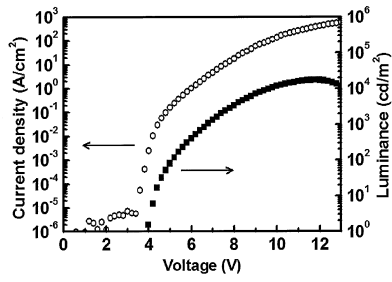
【 3 8 】



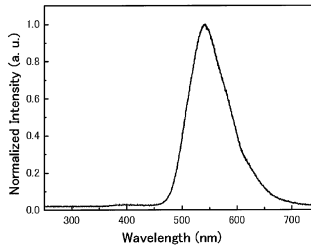
【 4 0 】



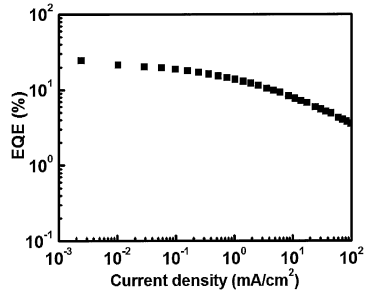
【 4 1 】



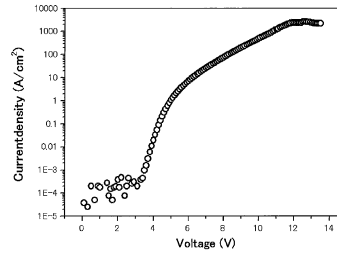
【 4 3 】



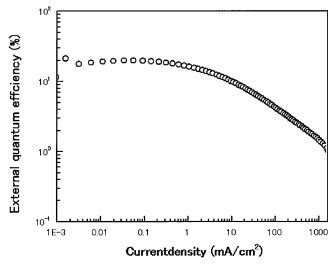
【 4 2 】



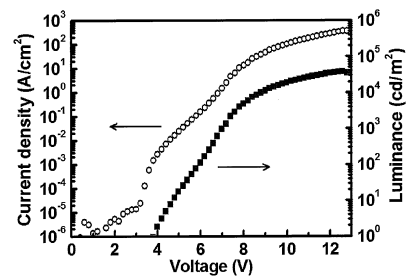
【 4 4 】



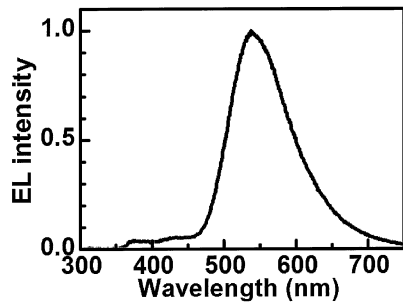
【 4 5 】



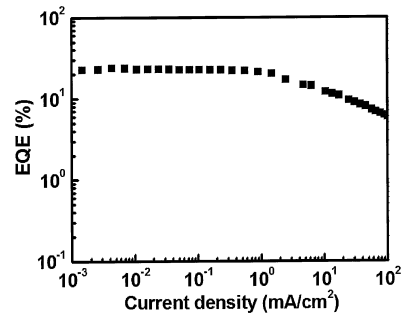
【 4 7 】



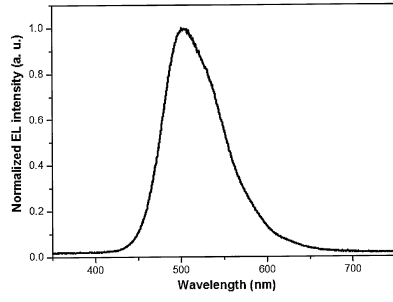
【 4 6 】



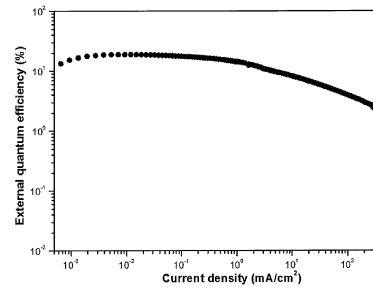
【 4 8 】



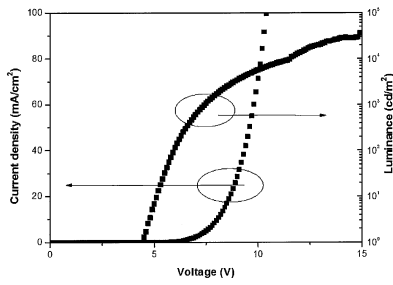
【 49 】



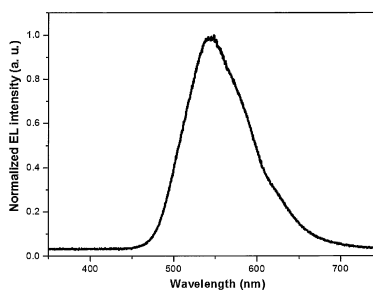
【 51 】



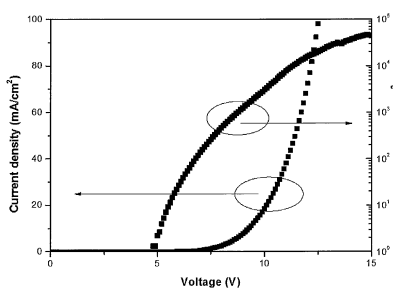
【 50 】



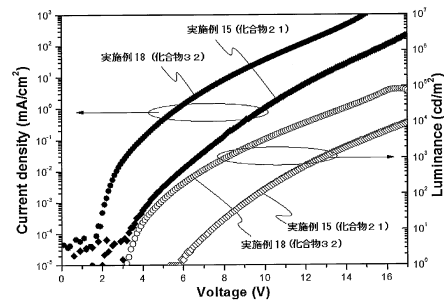
【 52 】



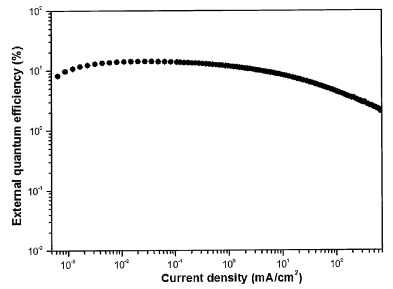
【 53 】



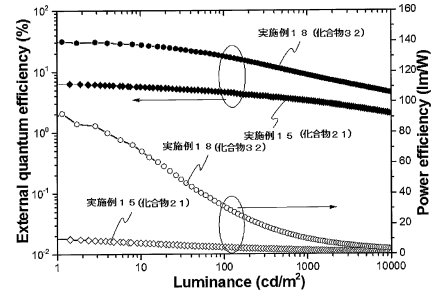
【 55 】



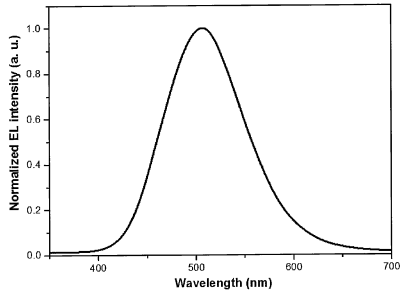
【 54 】



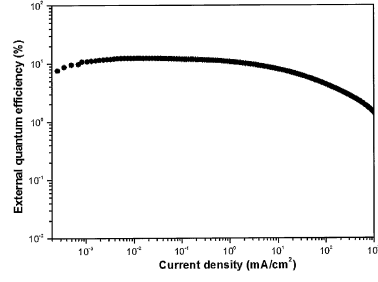
【 56 】



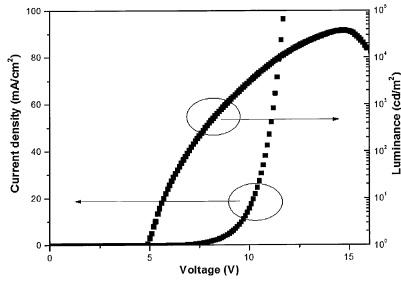
【 57 】



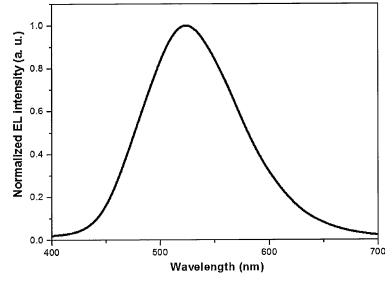
【 59 】



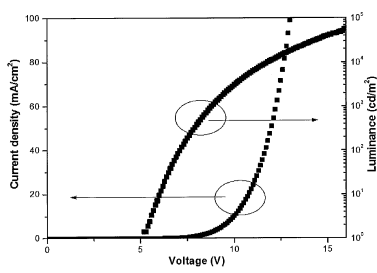
【 58 】



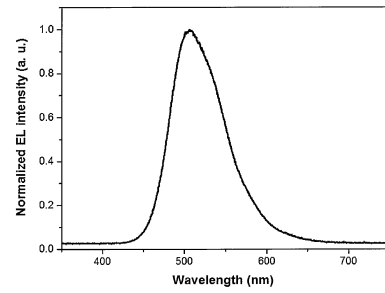
【 60 】



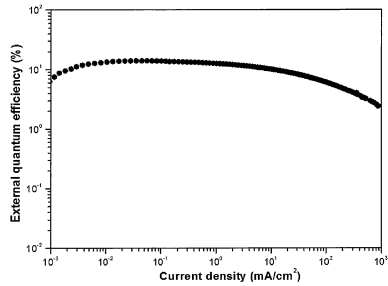
【 61 】



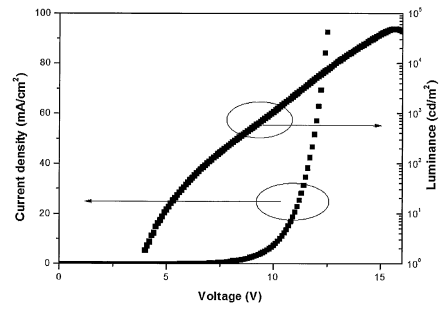
【 63 】



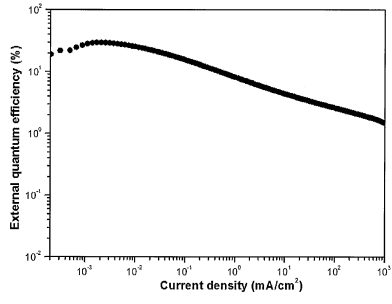
【 62 】



【 64 】



【 6 5 】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
<i>C 0 7 D 265/38</i>	<i>(2006.01)</i>	C 0 7 D	209/86
<i>C 0 7 D 279/18</i>	<i>(2006.01)</i>	C 0 7 D	219/02
<i>H 0 1 L 51/50</i>	<i>(2006.01)</i>	C 0 7 D	241/38
		C 0 7 D	265/38
		C 0 7 D	279/18
		H 0 5 B	33/14
			B

(72)発明者 沼田 真樹  
 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

(72)発明者 キム ジュンヤン  
 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

(72)発明者 パク インソブ  
 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

審査官 安川 聡

(56)参考文献 特開2007-266598(JP,A)  
 国際公開第2012/078005(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 9 K 1 1 / 0 0 - 1 1 / 8 9  
 C 0 7 C 1 / 0 0 - 4 0 9 / 4 4  
 C 0 7 D 2 0 9 / 0 0 - 2 0 9 / 9 6  
 C 0 7 D 2 1 7 / 0 0 - 2 2 7 / 1 2  
 C 0 7 D 2 6 1 / 0 0 - 2 7 3 / 0 8  
 H 0 1 L 5 1 / 0 0 - 5 1 / 5 6  
 C A p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )