

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年9月14日(14.09.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/155102 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) C07D 241/46 (2006.01)
C07D 209/08 (2006.01) C07D 265/38 (2006.01)
C07D 209/86 (2006.01) C07D 401/10 (2006.01)
C07D 219/02 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/009762
- (22) 国際出願日: 2017年3月10日(10.03.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-048057 2016年3月11日(11.03.2016) JP
- (71) 出願人: 国立大学法人九州大学(KYUSHU UNIVERSITY, NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION) [JP/JP]; 〒8128581 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 Fukuoka (JP). 保土谷化学工業株式会社 (HODOGAYA CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1040028 東京都中央区八重洲二丁目4番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: ▲土▼屋 陽一(TSUCHIYA Youichi); 〒8128581 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 Fukuoka (JP). 耿▲炎▼(GENG Yan); 〒8128581 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 Fukuoka (JP). 巫 軒偉(MO Hin Wai); 〒8128581 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 Fukuoka (JP). 安達 千波矢(ADACHI Chihaya); 〒8128581 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 Fukuoka (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人特許事務所サイクス(SIKS & CO.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目8番7号 京橋日殖ビル8階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))



WO 2017/155102 A1

(54) Title: LIGHT-EMITTING MATERIAL, ORGANIC LIGHT-EMITTING ELEMENT, AND COMPOUND

(54) 発明の名称: 発光材料、有機発光素子および化合物

(57) Abstract: Provided is a compound which comprises 2 or more donor groups having different structures and a linking group that links these donor groups, wherein the linking group is an aromatic group constituted from 1 or more benzene rings optionally substituted with an alkyl group or halogen group, and which exhibits good light emission characteristics.

(57) 要約: 2つ以上の構造が異なるドナー性基とこれらのドナー性基を連結する連結基からなる化合物であって、前記連結基がアルキル基またはハロゲン基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基である化合物は、良好な発光特性を有する。

明 細 書

発明の名称：発光材料、有機発光素子および化合物

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、発光材料となる有機化合物について、分子内での電荷移動やエネルギー状態に着目した分子構造の検討が精力的に進められた結果、高い発光効率を得られる幾つかの化合物群が見出されるに至っている。

例えば、そのような化合物群として、ドナー性基とアクセプター性基が連結した構造を有する化合物群が提案されている。こうした構造を有する化合物は、有機エレクトロルミネッセンス素子の各電極から供給されるキャリアの再結合エネルギーにより励起状態になると、ドナー性基からアクセプター性基に電子が移動する。その後、励起状態になった化合物は光を放射しつつ失活し、それと同時に、アクセプター性基に移動した電子がドナー性基に戻る。このように、この化合物群に含まれる化合物は、エネルギー状態に応じてドナー性基とアクセプター性基の間を電子が行き交う特徴を有し、そのドナー性基やアクセプター性基の化学構造や配置を変えることにより、各種エネルギー準位を制御することができる。これにより、発光効率を顕著に改善できるとされている（非特許文献1）。

先行技術文献

非特許文献

[0003] 非特許文献1：Nature 492, 234-238

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] これまで、種々の有機化合物が発光材料として提案されているが、上記のように、効率がよい発光を実現できる有機化合物は、ドナー性基とアクセプター性基を有する化合物であると考えられていた。このため、近年の発光材料の開発や分子設計では、もっぱらドナー性基とアクセプター性基を有することを前提として有用な化合物の探索が行われていた。

[0005] このような状況下において本発明者らは、ドナー性基を有するが、アクセプター性基を有しない化合物群の発光材料としての有用性について検討を進め、発光特性が優れた化合物を見出すことを目指して研究を重ねた。そして、発光材料として有用な化合物の構造に共通の特徴があることを導きだし、発光効率が高い有機発光素子の構成を一般化することを目的として鋭意検討を進めた。

課題を解決するための手段

[0006] 鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、互いに構造が異なる2つ以上のドナー性基が連結基を介して連結した構造を有する化合物であって、且つ、アクセプター基を持たない化合物が、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、そのような化合物を発光材料として用いることにより、発光効率が高い有機発光素子を提供しうることを明らかにした。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

[0007] [1] 2つ以上のドナー性基と1つ以上の連結基からなる化合物で構成される発光材料であって、

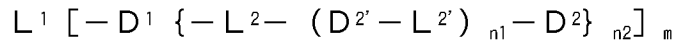
前記化合物は、互いに構造が異なるドナー性基を有しており、

前記連結基は、アルキル基またはハロゲン基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基である、発光材料。

[2] 前記化合物は、互いに構造が異なるドナー性基を有する、[1]に記載の発光材料。

[3] 前記化合物が下記一般式(1)で表される構造を有する、[1]または[2]に記載の発光材料。

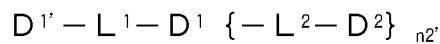
一般式 (1)



[一般式 (1) において、 L^1 、 L^2 、 $L^{2'}$ は各々独立に、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基を表す。 D^1 、 D^2 、 $D^{2'}$ は各々独立に、ドナー性基を表す。ただし、一般式 (1) で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。 m は2以上の整数を表す。 $n1$ は0以上の整数を表し、 $n2$ は0以上の整数を表す。 m が2以上であるとき、複数の D^1 、 L^2 、 $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ 、 D^2 、 $n1$ 、 $n2$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。 $n1$ が2以上であるとき、複数の $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。 $n2$ が2以上であるとき、複数の L^2 、 $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ 、 D^2 、 $n1$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。]

[4] 前記化合物が下記一般式 (2) で表される構造を有する、[1] または [2] に記載の発光材料。

一般式 (2)

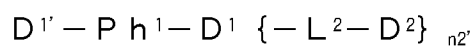


[一般式 (2) において、 L^1 および L^2 は各々独立に、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基を表す。 $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 は各々独立に、ドナー性基を表す。ただし、一般式 (2) で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。 $n2'$ は0または1を表す。]

[5] 前記 L^1 が、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよいフェニレン基またはビフェニレン基である、[3] または [4] に記載の発光材料。

[6] 前記化合物が下記一般式 (3) で表される構造を有する、[1] または [2] に記載の発光材料。

一般式 (3)



[一般式 (3) において、Ph¹はアルキル基またはハロゲン基で置換されていてもよいフェニレン基を表す。D^{1'}、D¹、D²は各々独立に、置換もしくは無置換のジアリールアミノ基以外のドナー性基を表す。ただし、一般式 (3) で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。n^{2'} は0または1を表す。]

[7] D^{1'}、D¹、D²が各々独立に芳香族多環構造を有する、[4] ~ [6] のいずれか1項に記載の発光材料。

[8] 前記芳香族多環構造は、芳香族多環縮合構造である、[7] に記載の発光材料。

[9] D^{1'}、D¹、D²が各々独立に水素原子、炭素原子、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2種以上の原子のみからなる基である、[4] ~ [8] のいずれか1項に記載の発光材料。

[10] D^{1'}、D¹、D²のうちの少なくとも1つが、水素原子と炭素原子のみからなる基であり、残りの少なくとも1つが、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基、もしくは、酸素原子および硫黄原子から選択される1種以上の原子と、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基である、[9] に記載の発光材料。

[11] D¹が窒素原子で連結基に結合する基であり、D^{1'}が炭素原子で連結基に結合する基である、[4] ~ [10] のいずれか1項に記載の発光材料。

[12] D²が炭素原子で連結基に結合する基である、[11] に記載の発光材料。

[13] D¹が炭素原子で連結基に結合する基であり、D^{1'}が窒素原子で連結基に結合する基である、[4] ~ [10] のいずれか1項に記載の発光材料。

[14] D²が窒素原子で連結基に結合する基である、[13] に記載の発光材料。

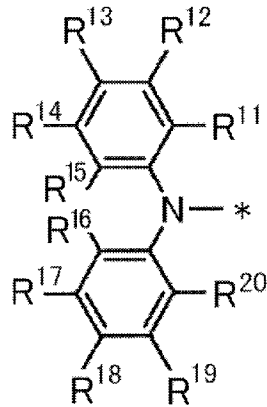
[0008] [15] 前記炭素原子で連結基に結合する基が、ベンゼン環の環骨格を構

成する炭素原子で連結基に結合する基である、[11]～[14]のいずれか1項に記載の発光材料。

[16] 前記窒素原子で連結基に結合する基が、下記一般式(4)または(5)で表される基である、[11]～[15]のいずれか1項に記載の発光材料。

[化1]

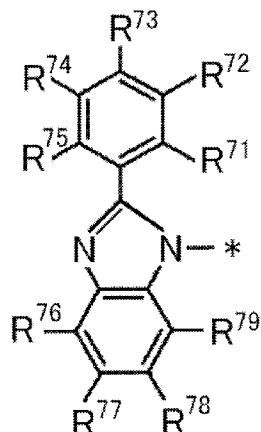
一般式(4)



[一般式(4)において、R¹¹～R²⁰は各々独立に水素原子または置換基を表す。R¹⁵とR¹⁶は互いに結合して環状構造を形成している。R¹¹とR¹²、R¹²とR¹³、R¹³とR¹⁴、R¹⁷とR¹⁸、R¹⁸とR¹⁹、R¹⁹とR²⁰は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。*は連結基との結合位置を表す。前記窒素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、R¹¹～R²⁰のいずれかにおいてさらに結合する。]

[化2]

一般式(5)



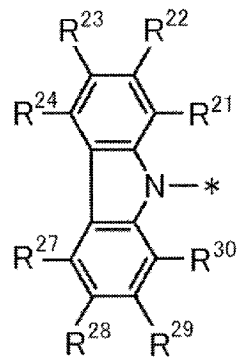
[一般式(5)において、 $R^{71} \sim R^{79}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。*は連結基との結合位置を表す。前記窒素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{71} \sim R^{79}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

[17]

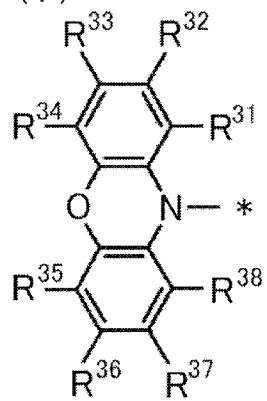
前記窒素原子で連結基に結合する基が、下記一般式(6)～(10)のいずれかで表される基である、[11]～[15]のいずれか1項に記載の発光材料。

[化3-1]

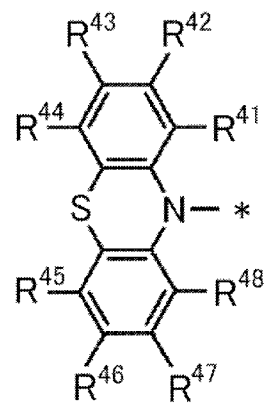
一般式 (6)



一般式 (7)

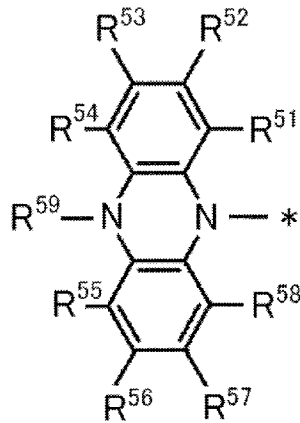


一般式 (8)

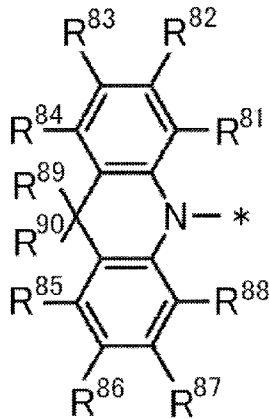


[化3-2]

一般式 (9)



一般式 (10)



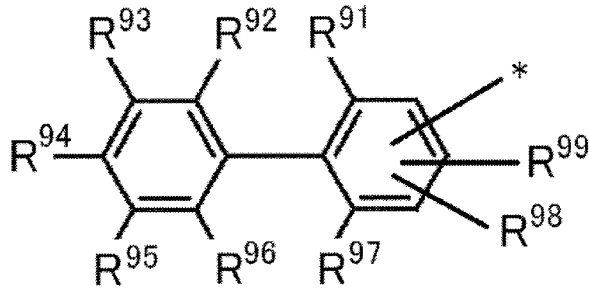
[一般式 (6) ~ (10) において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{59}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 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^{54} と R^{55} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{54} と R^{59} 、 R^{55} と R^{59} 、 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。 $*$ は連結基との結合位置を表す。前記窒素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{59}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

[18] 前記炭素原子で連結基に結合する基が、下記一般式 (11) で表

される基である、[11]～[17]のいずれか1項に記載の発光材料。

[化4]

一般式(11)



[一般式(11)において、 R^{91} ～ R^{99} は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{91} と R^{92} 、 R^{92} と R^{93} 、 R^{93} と R^{94} 、 R^{94} と R^{95} 、 R^{95} と R^{96} 、 R^{96} と R^{97} 、 R^{97} と R^{98} 、 R^{98} と R^{99} 、 R^{91} と R^{99} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 $*$ は連結基との結合位置を表す。前記炭素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 R^{91} ～ R^{99} のいずれかにおいてさらに結合する。]

[19] 前記化合物のHOMOとLUMOのエネルギー差が2.5～3.6 eVである、[1]～[18]のいずれか1項に記載の発光材料。

[20] 前記化合物のHOMOのエネルギー準位が-5.7 eV以上である、[1]～[19]のいずれか1項に記載の発光材料。

[21] 前記化合物のHOMOのエネルギー準位が-5.3 eV以上である、[1]～[19]のいずれか1項に記載の発光材料。

[22] 前記化合物の最低励起一重項エネルギー準位 E_{S1} と最低励起三重項エネルギー準位 E_{T1} の差 ΔE_{ST} が0.3 eV以下である、[1]～[21]のいずれか1項に記載の発光材料。

[0009] [23] 発光材料として、[1]～[22]のいずれか1項に記載の発光材料を発光層に含む有機発光素子。

[24] 上記一般式(3)で表される化合物。

発明の効果

[0010] 本発明の発光材料は、アクセプター性基を有しない化合物で構成されるものでありながら、効率よく発光することができる。

本発明の化合物は、発光材料として有用である。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

[0011] [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]化合物2の固体有機薄膜(実施例12)と、発光層に化合物2を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子(実施例14)の発光スペクトルである。

[図3]発光層に化合物2を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子(実施例14)の電流密度-外部量子効率特性を示すグラフである。

[図4]化合物11とDPEPOの固体有機薄膜(実施例13)と、発光層に化合物11とDPEPOを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子(実施例18)の発光スペクトルである。

[図5]発光層に化合物11とDPEPOを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子(実施例18)の電圧-電流密度-輝度特性を示すグラフである。

[図6]発光層に化合物11とDPEPOを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子(実施例18)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

[0012] 以下において、本発明の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施態様や具体例に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、本発明に用いられる化合物の分子内に存在する水素原子の同位体種は特に限定されず、例えば分子内の水素原子がすべて¹Hであってもよいし、一部または全部が²H(デューテリウムD)であってもよい。

[0013] [発光材料]

本発明の発光材料は、2つ以上のドナー性基と1つ以上の連結基からなる

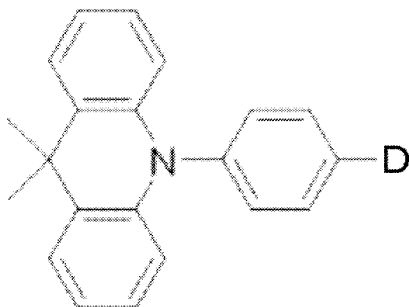
化合物（「本発明の化合物」という）で構成される発光材料である。本発明の化合物は、互いに構造が異なるドナー性基を有している。また連結基は、少なくとも2つのドナー性基を連結するものであって、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基である。

[0014] 本発明の化合物を構成する「ドナー性基」は、化合物の一部を構成する原子または原子団であって、その原子が保有する電子を、化合物の他の一部を構成する原子団に供与する機能を有するものをいう。本発明の化合物は、上記のようなドナー性基を分子中に2つ以上有する。化合物が有するドナー性基の数は、2以上であることが好ましく、2～4であることがより好ましく、2または3であることがさらに好ましい。

[0015] また、本発明の化合物は、互いに構造が異なるドナー性基を有する。すなわち、本発明の化合物が有する各ドナー性基は、該化合物が有する他のドナー性基の少なくとも1つと構造が異なる。本発明の化合物が有する各ドナー性基は、該化合物が有する他のドナー性基の全てと構造が異なってもよいし、他のドナー性基のうちの一部のみと構造が異なり、他の一部とは構造が同じであってもよい。

互いに構造が異なるドナー性基は、互いに電子供与性の強度が異なる。電子供与性の強度については、酸化還元電位を指標にすることができる。例えば、下記の構造を有していて、ドナー性基Dが異なる複数の化合物を合成して、それらの酸化還元電位を測定することにより、各ドナー性基Dの電子供与性の強度を比較することができる。本発明の化合物に存在する互いに構造が異なるドナー性基は、このようにして測定される酸化還元電位の差が0.01V以上であることが好ましく、0.05V以上であることがより好ましく、0.1V以上であることがさらに好ましく、0.2V以上であることがさらに好ましい。また、互いに構造が異なるドナー性基の酸化還元電位の差は、1.5V以下であることが好ましく、1.2V以下であることがより好ましく、1.0V以下であることがさらに好ましい。

[化5]



[0016] 本発明の化合物に存在するドナー性基は、いずれもハメットの σ_p 値が0未満であり、 -0.15 未満であることが好ましく、 -0.3 未満であることが好ましく、 -0.45 以下であることがより好ましく、 -0.6 以下であることがさらに好ましい。

本発明における「ハメットの σ_p 値」は、L. P. ハメットにより提唱されたものであり、パラ置換ベンゼン誘導体の反応速度または平衡に及ぼす置換基の影響を定量化したものである。具体的には、パラ置換ベンゼン誘導体における置換基と反応速度定数または平衡定数の間に成立する下記式：

[数1]

$$\log(k/k_0) = \rho\sigma_p \quad \text{または} \quad \log(K/K_0) = \rho\sigma_p$$

における置換基に特有な定数 (σ_p) である。上式において、 k は置換基を持たないベンゼン誘導体の速度定数、 k_0 は置換基で置換されたベンゼン誘導体の速度定数、 K は置換基を持たないベンゼン誘導体の平衡定数、 K_0 は置換基で置換されたベンゼン誘導体の平衡定数、 ρ は反応の種類と条件によって決まる反応定数を表す。ハメットの σ_p 値に関する説明と各置換基の数値については、J. A. Dean編 "Lange's Handbook of Chemistry 第13版"、1985年、3-132~3-137頁、McGraw-Hill を参照することができる。

[0017] ドナー性基の化学構造の好ましい範囲については、後述する一般式(1)の D^1 、 D^2 、 D^2' がとりうるドナー性基の好ましい範囲を参照することができる。

[0018] 本発明の化合物における連結基は、少なくとも2つのドナー性基を連結す

るものである。本発明の化合物は、こうした連結基とドナー性基からなっており、従来の発光材料において必須と考えられていた電子求引性が大きな基（アクセプター性基）を含まない点に特徴がある。本発明では、このような化合物を発光材料に採用することにより、発光材料として使用する化合物の範囲を拡大できるとともに、従来の発光材料では得られない特有の発光特性が得られることが期待され、利用価値が非常に高い発光材料を実現することができる。

本願において「アクセプター性基」という用語は、上記のドナー性基と上記の連結基のいずれにも属さない基である。また、本願における「ドナー性基」には、連結基を構成するベンゼン環に置換されるアルキル基とハロゲノ基は含まれない。

本発明の化合物は、分子内にハメットの σ_p^+ 値が0.3超である基を有さないものであり、分子内にハメットの σ_p^+ 値が0.2超である基を有さないものであることが好ましく、分子内にハメットの σ_p^+ 値が0.1超である基を有さないものであることがより好ましく、分子内にハメットの σ_p^+ 値が0.05超である基を有さないものであることがさらに好ましく、分子内にハメットの σ_p^+ 値が0超である基を有さないものであることがさらに好ましい。

連結基は、2つのドナー性基を連結するものであってもよいし、3つ以上のドナー性基を放射状に連結するものであってもよい。連結基が連結するドナー性基の数は、2～6であることが好ましく、2～4であることがより好ましく、2または3であることがさらに好ましく、2であることが特に好ましい。また、連結基は、ドナー性基とともに、ドナー性基と連結基が順次繰り返して結合した鎖状構造を形成していても構わない。

[0019] 連結基は、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基である。ここでいうアルキル基は、炭素数1～20のアルキル基であることが好ましく、炭素数1～6のアルキル基であることがより好ましい。具体的には、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基を例示

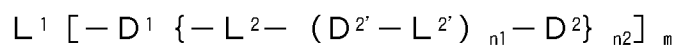
することができる。ハロゲノ基としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子からなる基を挙げることができる。ハロゲノ基とアルキル基では、アルキル基を採用する方が好ましい。また、ベンゼン環が置換されていない無置換体も採用することが可能である。

[0020] また、芳香族基を構成するベンゼン環は、1つだけであってもよいし、2つ以上であってもよい。2つ以上である場合は、ベンゼン環どうしが連結したものであってもよいし、縮合したものであってもよい。好ましいのはベンゼン環どうしが連結したものである。例えば、ビフェニレン構造を挙げることができる。また、好ましい芳香族基は、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよいベンゼン環からなる芳香族基であり、より好ましい芳香族基は、アルキル基で置換されていてもよいベンゼン環からなる芳香族基である。

[0021] 本発明の化合物は、上記のような連結基を分子中に1つ以上有する。本発明の化合物が有する連結基の数は、1～5であることが好ましく、1～3であることがより好ましく、1または2であることがさらに好ましい。

[0022] 本発明の発光材料を構成する化合物は、下記一般式(1)で表される構造を有することが好ましい。

一般式(1)



一般式(1)において、 L^1 、 L^2 、 $L^{2'}$ は各々独立に、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基を表す。ここで言う芳香族基は、1つ以上のベンゼン環から構成される芳香族化合物から D^1 、 D^2 、 $D^{2'}$ の結合位置に対応する水素原子を除去した構造を有する連結基である。

L^2 、 $L^{2'}$ の価数は2である。 L^1 の価数は m に等しく、2以上である。 L^1 の価数は2～6であることが好ましく、2～4であることがより好ましく、2または3であることがさらに好ましく、2であることが特に好ましい。

[0023] D^1 、 D^2 、 $D^{2'}$ は各々独立に、ドナー性基を表す。ただし、一般式(1)で

表される化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。

D¹、D²、D^{2'}は、芳香環を有することが好ましく、芳香族多環構造を有することがより好ましい。芳香族多環構造は、芳香族炭化水素基を構成する多環構造であってもよいし、ヘテロ芳香族基を構成する多環構造であってもよい、芳香族多環構造における「多環構造」は、多環縮合構造であってもよいし、複数の芳香環が単結合で連結した環集合構造であってもよいが、多環縮合構造であることが好ましい。芳香族多環構造の炭素数は8~40であることが好ましく、12~20であることがより好ましい。ヘテロ芳香族基を構成する多環構造のヘテロ原子として、窒素原子、酸素原子、硫黄原子を挙げることができ、ヘテロ芳香族基を構成する多環構造は少なくとも1つの窒素原子を含むことが好ましい。

[0024] D¹、D²、D^{2'}は、水素原子、炭素原子、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2種以上の原子のみからなる基であることも好ましい。2種以上の原子の組み合わせとしては、水素原子と炭素原子からなる2元系の組み合わせ、水素原子、炭素原子および窒素原子からなる3元系の組み合わせ、水素原子、炭素原子、窒素原子および酸素原子からなる4元系の組み合わせ、水素原子、炭素原子、窒素原子および硫黄原子からなる4元系の組み合わせ、水素原子、炭素原子、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる5元系の組み合わせ等を挙げることができ、水素原子と炭素原子からなる2元系の組み合わせ、水素原子、炭素原子および窒素原子からなる3元系の組み合わせ、水素原子、炭素原子、窒素原子および酸素原子からなる4元系の組み合わせであることがより好ましい。これらの原子のみからなる基は、直鎖状、分枝状、環状のいずれの形態であってもよいが、環状構造を形成していることが好ましく、芳香環を形成していることがより好ましく、芳香族多環構造を形成していることがさらに好ましい。水素原子、炭素原子、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2種以上の原子のみからなる基の炭素数は、8~40であることが好ましく、12~

24であることがより好ましい。

[0025] 一般式(1)で表される構造を有する化合物の、分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。互いに異なる構造を有するドナー性基の説明については、上記の「互いに構造が異なるドナー性基」についての説明を参照することができる。また、ドナー性基の少なくとも2つが互いに異なる構造を有する態様の好ましい例として、下記のことを挙げるができる。

すなわち、 D^1 、 D^2 、 D^2 の少なくとも1つが、水素原子と炭素原子のみからなる基であり、残りの少なくとも1つが、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基、もしくは、酸素原子および硫黄原子から選択される1種以上の原子と、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基であることが好ましい。

また、 D^1 、 D^2 、 D^2 の少なくとも1つが、芳香族炭化水素環からなるドナー性基であり、残りの少なくとも1つが、窒素原子を含むヘテロ芳香環からなるドナー性基であることも好ましい。

さらに、 D^1 、 D^2 、 D^2 の少なくとも1つが、窒素原子で連結基に結合する基であり、残りの少なくとも1つが、炭素原子で連結基に結合する基であることも好ましい。

窒素原子で連結基に結合する基は、下記一般式(4)～(10)で表される基であることが好ましく、炭素原子で連結基に結合する基は、ベンゼン環の環骨格を構成する炭素原子で連結基に結合する基であることが好ましく、下記一般式(11)で表される基であることがより好ましい。

[0026] m は2以上の整数を表し、2～6であることが好ましく、2～4であることがより好ましく、2または3であることがさらに好ましく、2であることが特に好ましい。

n_1 は0以上の整数を表し、0～4であることが好ましく、0または1であることがより好ましく、0であることがさらに好ましい。

n_2 は0以上の整数を表し、0～5であることが好ましく、0～3である

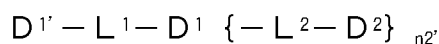
ことがより好ましく、0～2であることがさらに好ましく、0または1であることが特に好ましい。

一般式(1)で表される構造において、例えば n_1 が2である場合、 $-(D^{2'}-L^{2'})_{n_1}-$ で表される部分構造は $-D^{2'}-L^{2'}-D^{2'}-L^{2'}-$ で表される鎖状構造になり、この鎖状構造の末端の $L^{2'}$ が D^2 に結合した構造になる。このとき、2つの $L^{2'}$ は同一であっても異なってもよく、また、2つの $D^{2'}$ も同一であっても異なってもよい。また、例えば、 n_2 が3であり、且つ、 n_1 が0である場合、 $-D^1\{-L^2-(D^{2'}-L^{2'})_{n_1}-D^2\}_{n_2}$ で表される部分構造は、 $-D^1\{-L^2-D^2\}_3$ で表される構造、すなわち、 D^1 から4つの結合手が放射状に伸び、そのうちの3つの結合手に $-L^2-D^2$ がそれぞれ結合し、残りの結合手が L^1 に結合した構造になる。このときも、3つの $-L^2-D^2$ は同一であっても異なってもよい。

m が2以上であるとき、複数の D^1 、 L^2 、 $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ 、 D^2 、 n_1 、 n_2 は各々互いに同一であっても異なってもよい。 n_1 が2以上であるとき、複数の $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。 n_2 が2以上であるとき、複数の L^2 、 D^2 、 $L^{2'}$ 、 D^2 、 n_1 は各々互いに同一であっても異なってもよい。

[0027] 本発明の発光材料を構成する化合物は、下記一般式(2)で表される構造を有することがより好ましい。

一般式(2)



一般式(2)において、 L^1 および L^2 は各々独立に、アルキル基またはハロゲン基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基である。 L^1 および L^2 の説明と好ましい範囲、具体例については、上記の本発明の化合物の連結基や一般式(1)の L^1 および L^2 についての説明と好ましい範囲、具体例を参照することができる。

[0028] $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 は各々独立に、ドナー性基を表す。ただし、一般式(2)で表される構造を有する化合物の、分子内に存在するドナー性基の少なくとも

2つは、互いに異なる構造を有する。D^{1'}、D¹、D²の説明と好ましい範囲については、上記の一般式(1)のD¹およびD²についての説明と好ましい範囲を参照することができる。また、「ドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する」ことについての説明は、上記の一般式(1)の説明の対応する記載を参照することができる。

[0029] n 2' は0または1を表し、0であることが好ましい。

一般式(2)で表される構造において、n 2' が0であるとき、D^{1'}とD¹は互いに異なる構造を有するドナー性基である。一方、n 2' が1であるときは、D¹、D¹、D²は、その全てが他の2つのドナー性基と異なる構造を有するドナー性基であってもよいし、D^{1'}、D¹、D²のうち2つが同じ構造のドナー性基であり、残りの1つが、これらドナー性基と異なる構造を有するドナー性基であってもよい。これらのうち、D^{1'}とD²が同じ構造のドナー性基であり、D¹が、D^{1'}とD²と異なる構造を有するドナー性基であることが好ましい。

また、n 2' が0であるとき、D^{1'}およびD¹のいずれか一方は、水素原子と炭素原子のみからなる基であり、他方は、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基、もしくは、酸素原子および硫黄原子から選択される1種以上の原子と、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基であることも好ましい。一方、n 2' が1であるとき、D^{1'}、D¹、D²の少なくとも1つは、水素原子と炭素原子のみからなる基であり、残りの少なくとも1つは、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基、もしくは、酸素原子および硫黄原子から選択される1種以上の原子と、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基であることも好ましい。

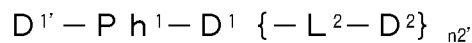
さらに、n 2' が0であるとき、D^{1'}およびD¹のいずれか一方は、窒素原子で連結基に結合する基であり、他方は、炭素原子で連結基に結合する基であることが好ましい。一方、n 2' が1であるとき、D¹が窒素原子で連結基に結合する基であり、D^{1'}が炭素原子で連結基に結合する基であることが好ましく、さらに、D²が炭素原子で連結基に結合する基であることがより好ましい。

。あるいは、D¹が炭素原子で連結基に結合する基であり、D¹が窒素原子で連結基に結合する基であることが好ましく、さらに、D²が窒素原子で連結基に結合する基であることがより好ましい。これらのうちでは、D¹が炭素原子で連結基に結合する基であり、D¹およびD²が窒素原子で連結基に結合する基であることが好ましい。

窒素原子で連結基に結合する基は、下記一般式(4)～(10)で表される基であることが好ましく、炭素原子で連結基に結合する基は、ベンゼン環の環骨格を構成する炭素原子で連結基に結合する基であることが好ましく、下記一般式(11)で表される基であることがより好ましい。

[0030] 本発明の発光材料を構成する化合物は、下記一般式(3)で表される構造を有することがさらに好ましい。

一般式(3)



一般式(3)において、Ph¹はアルキル基またはハロゲン基で置換されていてもよいフェニレン基を表す。D^{1'}、D¹、D²は各々独立に、置換もしくは無置換のジアリールアミノ基以外のドナー性基を表す。ただし、一般式(1)で表される分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。n2'は0または1を表す。

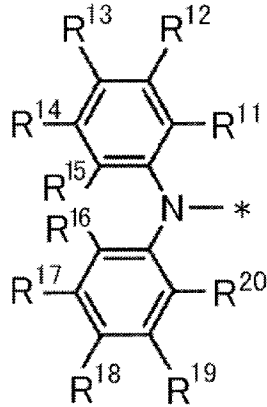
一般式(3)のL²、D^{1'}、D¹、D²、n2'は、一般式(2)のL²、D^{1'}、D¹、D²、n2'と同義であり、その説明と好ましい範囲、具体例については、一般式(2)で表される構造についての説明の対応する記載を参照することができる。

Ph¹におけるフェニレン基は、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もよいが、1,3-フェニレン基、1,4-フェニレン基であることが好ましく、1,4-フェニレン基であることがより好ましい。フェニレン基および連結基に置換してもよいアルキル基とハロゲン基については、上記の連結基に関する説明の対応する記載を参照することができる。

[0031] 一般式 (1) の D^1 、 D^2 、 D^2' 一般式 (2) および (3) の D^1 、 D^1 、 D^2 が窒素原子で連結基に連結する基であるとき、下記一般式 (4) または (5) で表される基であることが好ましい。

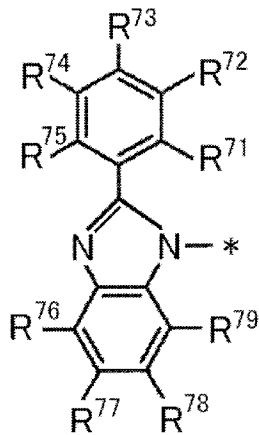
[0032] [化6]

一般式 (4)



[0033] [化7]

一般式 (5)



[0034] 一般式 (4) および (5) において、 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{15} と R^{16} は互いに結合して環状構造を形成している。 R^{15} と R^{16} の結合は、 R^{15} が結合している炭素原子と R^{16} が結合している炭素原子の間に単結合を形成するものであってもよいし、 R^{15} が結合している炭素原子と R^{16} が結合している炭素原子の間に 2 価の連結基を形成する結合であってもよい。2 価の連結基としては、アルキレン基、イミノ基 ($-NH-$)、オキシ基 ($-O-$)、チオ基 ($-S-$)、およびこれらの基の 2 種以上を組み合わせた 2 価の連結基等を挙げることができる。これらの連結基のう

ち置換基をとりうるものは置換基で置換されていてもよい。置換基の説明と好ましい範囲については、下記の $R^{11} \sim R^{14}$ 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。 $R^{11} \sim R^{14}$ 、 $R^{17} \sim R^{20}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ のうちの置換基の数は特に制限されず、 $R^{11} \sim R^{14}$ 、 $R^{17} \sim R^{20}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ のすべてが無置換（すなわち水素原子）であってもよい。 $R^{11} \sim R^{14}$ 、 $R^{17} \sim R^{20}$ のうちの2つ以上が置換基である場合および $R^{71} \sim R^{79}$ のうちの2つ以上が置換基である場合、それぞれ複数の置換基は互いに同一であっても異なってもよい。一般式（5）に置換基が存在している場合、その置換基は $R^{72} \sim R^{74}$ 、 R^{77} 、 R^{78} のいずれかであることが好ましい。

$R^{11} \sim R^{14}$ 、 $R^{17} \sim R^{20}$ 、 $R^{71} \sim R^{79}$ がとりうる置換基として、例えばヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数1～20のアルキルチオ基、炭素数1～20のアルキル置換アミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数6～40のアリール基、炭素数3～40のヘテロアリール基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数2～10のアルコキシカルボニル基、炭素数1～10のアルキルスルホニル基、炭素数1～10のハロアルキル基、アミド基、炭素数2～10のアルキルアミド基、炭素数3～20のトリアルキルシリル基、炭素数4～20のトリアルキルシリルアルキル基、炭素数5～20のトリアルキルシリルアルケニル基、炭素数5～20のトリアルキルシリルアルキニル基およびニトロ基等が挙げられる。これらの具体例のうち、さらに置換基により置換可能なものは置換されていてもよい。より好ましい置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数6～40の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数3～40の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、炭素数1～20のジアルキル置換アミノ基である。さらに好ましい置換基は、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アル基である。

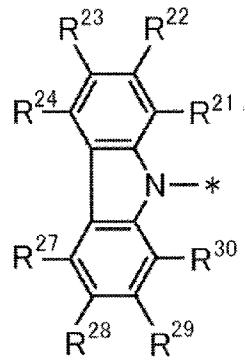
[0035] R¹¹とR¹²、R¹²とR¹³、R¹³とR¹⁴、R¹⁷とR¹⁸、R¹⁸とR¹⁹、R¹⁹とR²⁰、R⁷¹とR⁷²、R⁷²とR⁷³、R⁷³とR⁷⁴、R⁷⁴とR⁷⁵、R⁷⁶とR⁷⁷、R⁷⁷とR⁷⁸、R⁷⁸とR⁷⁹は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は2環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、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。

[0036] *は連結基との結合位置を表す。一般式(4)および一般式(5)で表される基は2価であってもよい。その場合、一般式(4)で表される基では、R¹¹～R²⁰のいずれかにおいてさらに結合し、一般式(5)で表される基では、R⁷¹～R⁷⁹のいずれかにおいてさらに結合する。

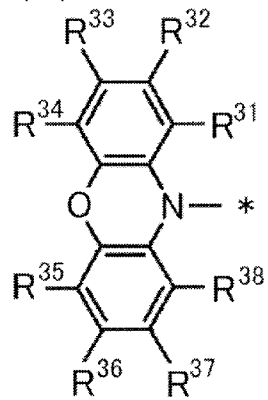
[0037] 窒素原子で連結基に連結する基は、下記一般式(6)～(10)のいずれかで表される基であることがより好ましい。

[化8-1]

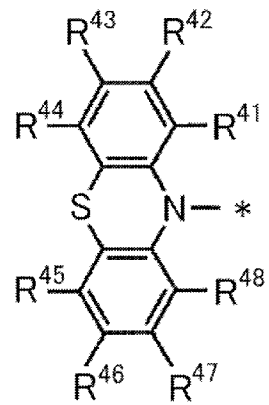
一般式 (6)



一般式 (7)

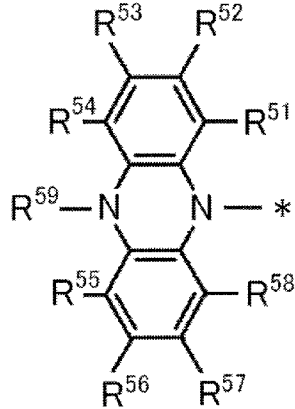


一般式 (8)

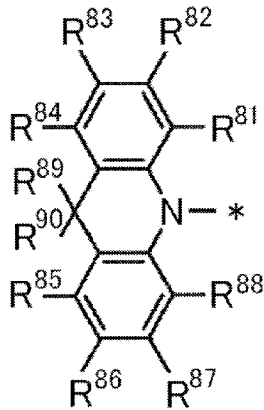


[化8-2]

一般式 (9)



一般式 (10)



[0038] 一般式 (6) ~ (10) において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{59}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ 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 $R^{11} \sim R^{14}$ 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。一般式 (6) ~ (10) における置換基の数は特に制限されない。 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{59}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ と上記の $R^{71} \sim R^{79}$ は、各々独立に上記一般式 (5) ~ (10) のいずれかで表される基であることも好ましい。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 (6) ~ (10) のそれぞれにおいて置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。

また、一般式 (6) ~ (10) に置換基が存在している場合、その置換基は一般式 (6) 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(7)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(8)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(9)であれば $R^{52} \sim R^{57}$ 、 R^{59} のいずれかであることが好ましく、一般式(10)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く、 R^{89} および R^{90} であることが好ましい。 R^{89} および R^{90} が表す置換基は、炭素数6~40の置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基であることがより好ましい。また、 R^{89} および R^{90} が表す置換基は同一であることが好ましい。

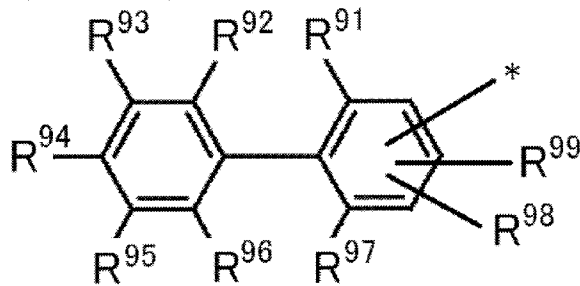
[0039] 一般式(6)~(10)において、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} 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^{54} と R^{59} 、 R^{55} と R^{59} 、 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(4)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。

[0040] *は連結基との結合位置を表す。一般式(6)~一般式(10)で表される基は2価であってもよい。その場合、一般式(6)で表される基では、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{30}$ のいずれかにおいてさらに結合し、一般式(7)で表される基では、 $R^{31} \sim R^{38}$ のいずれかにおいてさらに結合し、一般式(8)で表される基では、 $R^{41} \sim R^{48}$ のいずれかにおいてさらに結合し、一般式(9)で表される基では、 $R^{51} \sim R^{59}$ のいずれかにおいてさらに結合し、一般式(10)で表される基では、 $R^{81} \sim R^{90}$ のいずれかにおいてさらに結合する。

[0041] 一般式(1)の D^1 、 D^2 、 D^2' 一般式(2)および(3)の $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 が炭素原子で連結基に連結する基であるとき、下記一般式(11)で表される基であることが好ましい。

[化9]

一般式 (11)



[一般式 (11) において、 $R^{91} \sim R^{99}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{91} と R^{92} 、 R^{92} と R^{93} 、 R^{93} と R^{94} 、 R^{94} と R^{95} 、 R^{95} と R^{96} 、 R^{96} と R^{97} 、 R^{97} と R^{98} 、 R^{98} と R^{99} 、 R^{91} と R^{99} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 $*$ は連結基との結合位置を表す。前記炭素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{91} \sim R^{99}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

[0042] 一般式 (11) において、 $R^{91} \sim R^{99}$ 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 $R^{11} \sim R^{14}$ 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。一般式 (11) における置換基の数は特に制限されない。 $R^{91} \sim R^{99}$ は、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 (11) において置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。

また、一般式 (11) に置換基が存在している場合、その置換基は $R^{93} \sim R^{96}$ のいずれかであることが好ましい。

[0043] 一般式 (11) において、 R^{91} と R^{92} 、 R^{92} と R^{93} 、 R^{93} と R^{94} 、 R^{94} と R^{95} 、 R^{95} と R^{96} 、 R^{96} と R^{97} 、 R^{97} と R^{98} 、 R^{98} と R^{99} 、 R^{91} と R^{99} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。特に、 R^{91} と R^{92} が互いに結合して環状構造を形成していることが好ましい。環状構造の説明と好ましい例については、上記の一般式 (4) 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。 R^{91} と R^{92} が互いに結合して環状構造を形成する場合、 R^{91} と R^{92} は、 R^{91} が結合している炭素原子と R^{92} が結合し

ている炭素原子との間に連結基を形成するように結合することが好ましく、アルキレン基を形成するように結合することがより好ましい。アルキレン基の炭素数は、1～3であることが好ましく、1または2であることがより好ましく、1であることがさらに好ましい。アルキレン基は置換基で置換されていてもよい。置換基の説明と好ましい範囲については、上記の R^{11} ～ R^{14} 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。これらのうち、アルキレン基の置換基は、炭素数1～20のアルキル基であることが好ましく、炭素数1～10のアルキル基であることがより好ましく、炭素数1～5のアルキル基であることがさらに好ましい。

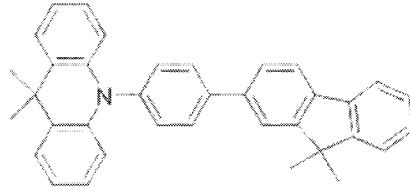
*は、連結基との結合位置を表す。*の位置は、他方のベンゼン環 (R^{92} ～ R^{96} で置換基等が定義されるベンゼン環) の結合位置に対するパラ位であってもよいし、メタ位であってもよいが、パラ位であることが好ましい。 R^{98} および R^{99} は、一方のベンゼン環 (R^{91} 、 R^{97} ～ R^{99} で置換基等が定義されるベンゼン環) の R^{91} 、 R^{97} および*の結合位置を除いた残りの位置に結合する。*の位置が、他方のベンゼン環の結合位置に対するパラ位である場合には、 R^{98} および R^{99} は、いずれもメタ位に結合し、*の位置が、他方のベンゼン環の結合位置に対するメタ位である場合には、 R^{91} および R^{97} の一方はパラ位に結合し、他方は*の位置と線対称位置にあるメタ位に結合する。

また、一般式(11)で表される基は、 R^{91} ～ R^{99} のいずれかにおいて、さらに、*で結合している連結基とは異なる連結基に結合して2価の基になっていてもよい。 R^{91} ～ R^{99} のうち、連結基との結合位置になるのは、 R^{93} ～ R^{95} であることが好ましく、 R^{94} であることがより好ましい。

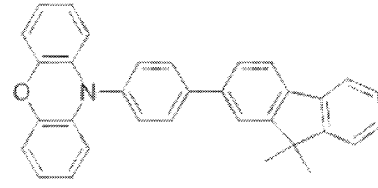
[0044] 以下において、本発明の発光材料を構成する化合物の具体例を例示する。ただし、本発明において発光材料に用いることができる化合物は、これらの具体例によって限定的に解釈されるべきものではない。

[0045]

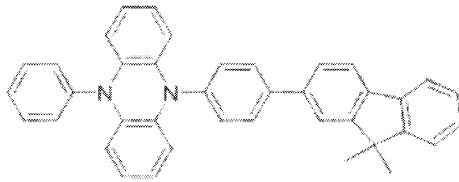
[化10]



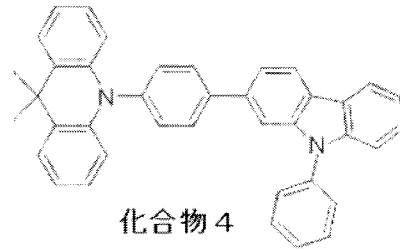
化合物 1



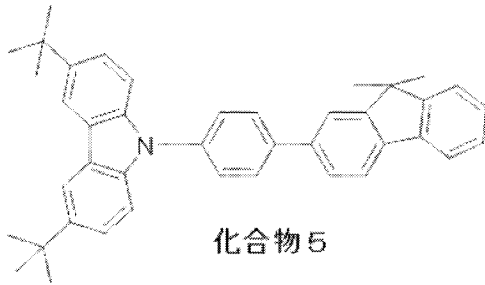
化合物 2



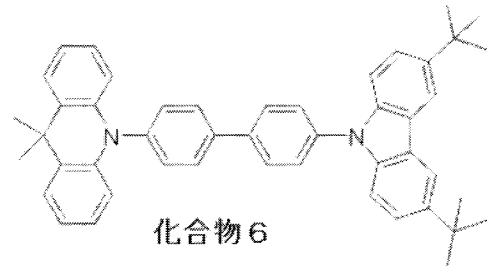
化合物 3



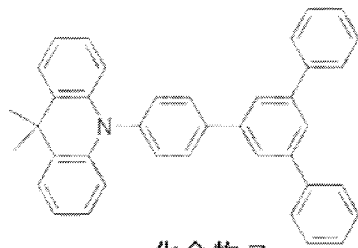
化合物 4



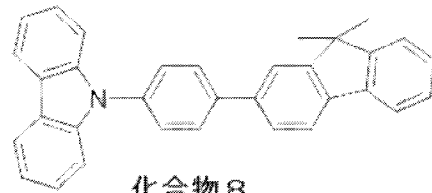
化合物 5



化合物 6



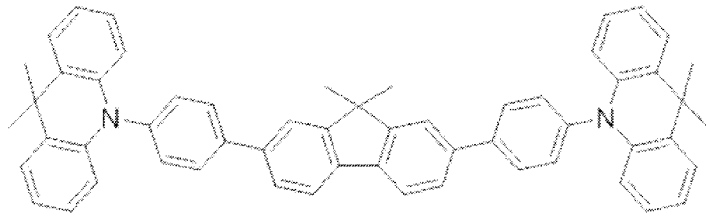
化合物 7



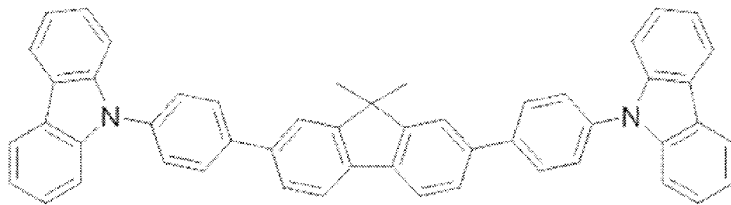
化合物 8

[0046]

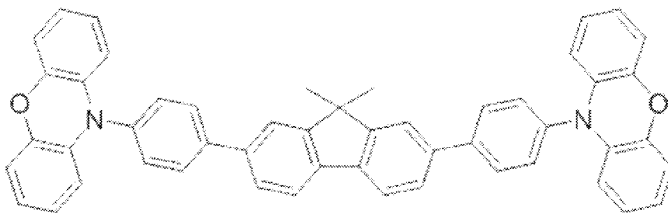
[化11-1]



化合物 9

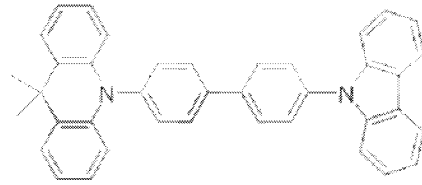


化合物 10

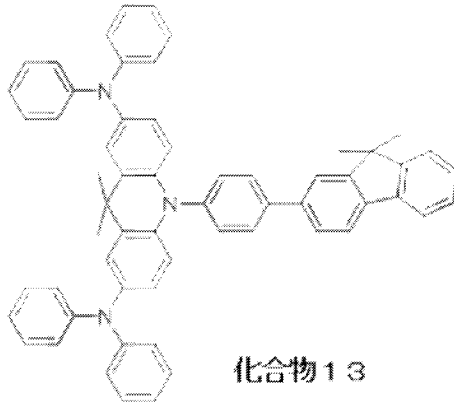


化合物 11

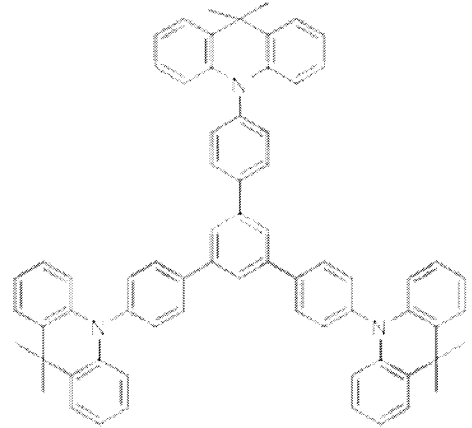
[化11-2]



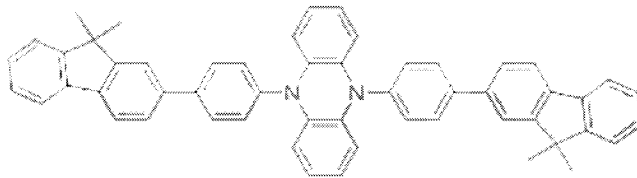
化合物12



化合物13



化合物14



化合物15

[0047] 本発明の発光材料を構成する化合物の分子量は、例えば、その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より好ましい。

発光材料を構成する化合物は、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。

[0048] 本発明の発光材料を構成する化合物のHOMOとLUMOのエネルギー差は、2.5～3.6 eVであることが好ましく、2.5～3.4 eVである

ことがより好ましく、2.8～3.1 eVであることがさらに好ましい。化合物のHOMOのエネルギー準位は-5.7 eV以上であることが好ましく、-5.3 eV以上であることがより好ましい。

さらに、本発明の発光材料を構成する化合物の最低励起一重項エネルギー準位 E_{S1} と最低励起三重項エネルギー準位 E_{T1} の差 ΔE_{ST} は0.3 eV以下であることが好ましく、0.2 eV以下であることがより好ましく、0.1 eV以下であることがさらに好ましい。

発光材料を構成する化合物が、上記のエネルギー条件を満たすことにより、より高い発光効率を実現することができる。

化合物のHOMOおよびLUMOの各エネルギー準位を求める方法については、実施例の欄に記載の方法を参照することができる。

なお、本明細書中では、HOMOのエネルギー準位を「HOMO準位」、LUMOのエネルギー準位を「LUMO準位」と表記することがある。

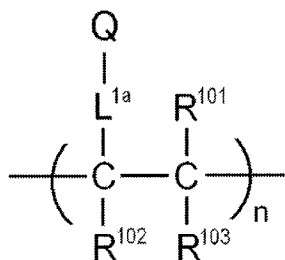
[0049] 本発明を応用して、分子内に一般式(1)で表される構造を複数個含む化合物を、発光材料として用いることも考えられる。

例えば、一般式(1)で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式(1)の L^1 、 L^2 、 L^2 、 D^1 、 D^2 、 D^2 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カップリングさせることにより、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。

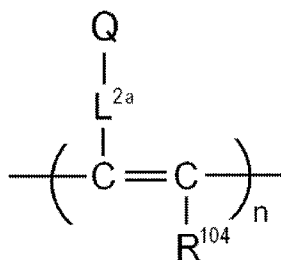
[0050] 一般式(1)で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式(10)または(11)で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

[化12]

一般式 (10)



一般式 (11)



[0051] 一般式 (10) または (11) 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^{1a} および L^{2a} は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは 0~20 であり、より好ましくは 1~15 であり、さらに好ましくは 2~10 である。連結基は -X¹¹-L¹¹- で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、X¹¹ は酸素原子または硫黄原子を表し、酸素原子であることが好ましい。L¹¹ は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数 1~10 の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

一般式 (10) または (11) において、R¹⁰¹、R¹⁰²、R¹⁰³ および R¹⁰⁴ は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数 1~6 の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数 1~6 の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数 1~3 の無置換のアルキル基、炭素数 1~3 の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数 1~3 の無置換のアルキル基、炭素数 1~3 の無置換のアルコキシ基である。

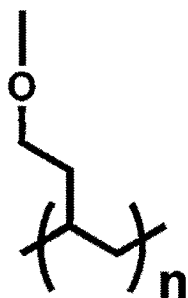
L^{1a} および L^{2a} で表される連結基は、Q を構成する一般式 (1) の構造の L¹、L²、L^{2'}、D¹、D²、D^{2'} のいずれか、一般式 (2) の L¹、L²、D^{1'}、D¹、D² のいずれか、一般式 (3) の構造の Ph¹、L²、D^{1'}、D¹、D² のいずれかに結合することができる。1 つの Q に対して連結基が 2 つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

[0052] 繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式 (12) ~ (15) で表さ

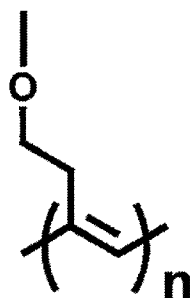
れる構造を挙げることができる。

[化13]

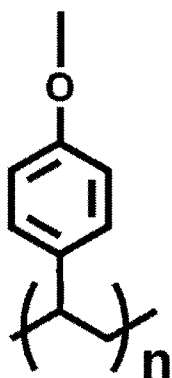
式(12)



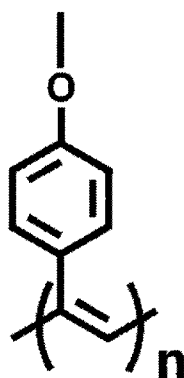
式(13)



式(14)

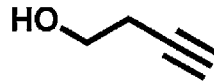


式(15)



[0053] これらの式(12)～(15)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L¹、L²、L^{2'}、D¹、D²、D^{2'}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14]

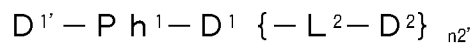


[0054] 分子内に一般式（１）で表される構造を含む重合体は、一般式（１）で表される構造を有する繰り返し単位のみからなる重合体であってもよいし、それ以外の構造を有する繰り返し単位を含む重合体であってもよい。また、重合体の中に含まれる一般式（１）で表される構造を有する繰り返し単位は、単一種であってもよいし、２種以上であってもよい。一般式（１）で表される構造を有さない繰り返し単位としては、通常の共重合に用いられるモノマーから誘導されるものを挙げるができる。例えば、エチレン、スチレンなどのエチレン性不飽和結合を有するモノマーから誘導される繰り返し単位を挙げるができる。

[0055] [一般式（３）で表される化合物]

一般式（３）で表される化合物は新規化合物である。

一般式（３）



一般式（３）において、 $P h^1$ はアルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよいフェニレン基を表す。 $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 は各々独立に、置換もしくはは無置換のジアリールアミノ基以外のドナー性基を表す。ただし、一般式（１）で表される分子内に存在するドナー性基の少なくとも２つは、互いに異なる構造を有する。 $n^{2'}$ は０または１を表す。

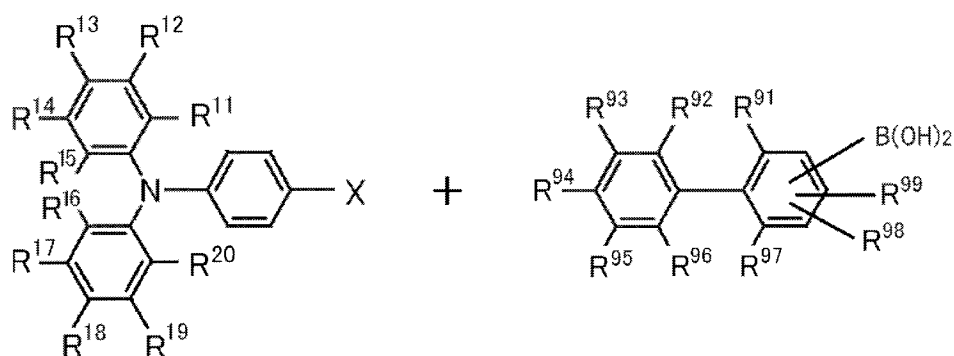
本発明の一般式（３）で表される化合物は、有機発光素子の発光材料とし

て有用である。このため、本発明の一般式（3）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。

[0056] [一般式（3）で表される化合物の合成方法]

一般式（3）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（3）のD¹が一般式（4）で表される基であり、D¹が一般式（11）で表される基であり、Ph¹が1,4-フェニレン基であり、n²が0である化合物は、以下の2つの化合物を反応させることにより合成することが可能である。

[化15]



[0057] 上記の反応式におけるR¹¹～R²⁰、R⁹¹～R⁹⁹の説明については、一般式（4）、一般式（11）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る。塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましい。

上記の反応は、公知のカップリング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（3）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。

[0058] [有機発光素子]

本発明の発光材料は、有機発光素子の発光層に効果的に用いることができる。

本発明の発光材料の中には、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。発光層に用いる発光材料は、遅延蛍光を放射するものであっても、放射しないものであっても構わないが、放射するものであることが好ましい。遅延蛍光を放射する発光材料を発光層に用いることにより、高い発光効率を得ることができる。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のようなになる。

[0059] 有機エレクトロルミネッセンス素子においては、正負の両電極より発光材料にキャリアを注入し、励起状態の発光材料を生成し、発光させる。通常、キャリア注入型の有機エレクトロルミネッセンス素子の場合、生成した励起子のうち、励起一重項状態に励起されるのは25%であり、残り75%は励起三重項状態に励起される。従って、励起三重項状態からの発光であるリン光を利用するほうが、エネルギーの利用効率が高い。しかしながら、励起三重項状態は寿命が長いため、励起状態の飽和や励起三重項状態の励起子との相互作用によるエネルギーの失活が起こり、一般にリン光の量子収率が高くないことが多い。一方、遅延蛍光材料は、項間交差等により励起三重項状態へとエネルギーが遷移した後、三重項-三重項消滅あるいは熱エネルギーの吸収により、励起一重項状態に逆項間交差され蛍光を放射する。有機エレクトロルミネッセンス素子においては、なかでも熱エネルギーの吸収による熱活性化型の遅延蛍光材料が特に有用であると考えられる。有機エレクトロルミネッセンス素子に遅延蛍光材料を利用した場合、励起一重項状態の励起子は通常通り蛍光を放射する。一方、励起三重項状態の励起子は、デバイスが発する熱を吸収して励起一重項へ項間交差され蛍光を放射する。このとき、励起一重項からの発光であるため蛍光と同波長での発光でありながら、励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差により、生じる光の寿命(発光寿命)は通常の蛍光やリン光よりも長くなるため、これらよりも遅延した蛍光として観察される。これを遅延蛍光として定義できる。このような熱活性化型の励起子移動機構を用いれば、キャリア注入後に熱エネルギーの吸収を経ることにより、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。

[0060] 本発明の発光材料を発光層に用いることにより、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。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。

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。

[0061] (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。

[0062] (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シド（ITO）、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ （IDIXO）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極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（ $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上程度）、上記電極材料の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な材料を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を 10% より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常 $10\sim 1000\text{ nm}$ 、好ましくは $10\sim 200\text{ nm}$ の範囲で選ばれる。

[0063] （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（ Al_2O_3 ）混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性および酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム

等が好適である。陰極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω /□以下が好ましく、膜厚は通常10nm~5 μ m、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

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。

[0064] (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。ここで、発光材料は、本発明で規定する化合物で構成されたもの（本発明の発光材料）であり、本発明で規定する化合物の1種類で構成されていてもよいし、本発明で規定する化合物を2種類以上含むものであってもよい。

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、遅延ではない通常の蛍光発光（単に「、蛍光発光」という）のみであってもよいし、蛍光発光および遅延蛍光発光の両方を含むものであってもよい。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。

[0065] (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。

[0066] (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。

[0067] (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。

[0068] (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。

[0069] (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。

[0070] (正孔輸送層)

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

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

[0071] (電子輸送層)

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

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

用いることもできる。

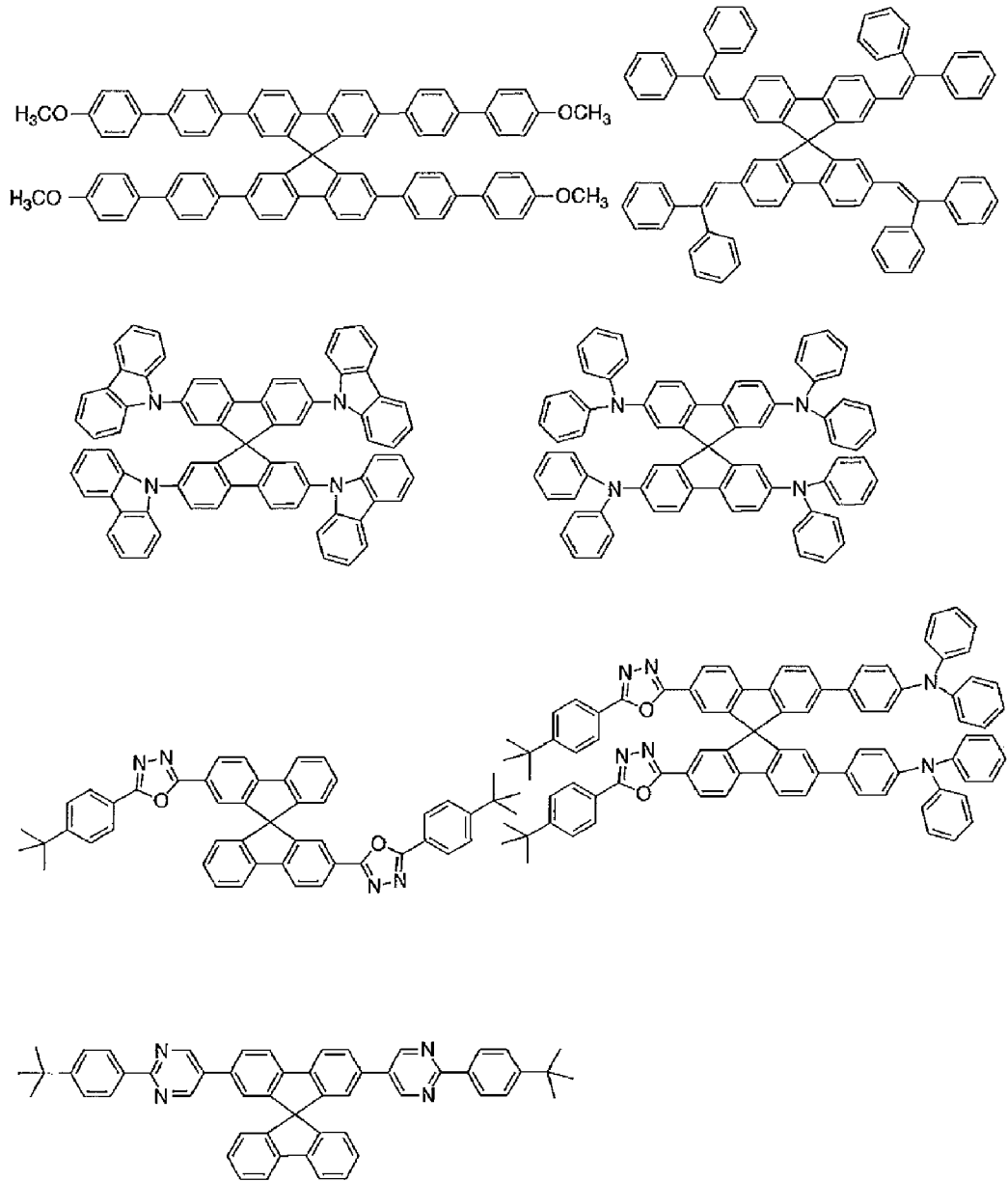
[0072] 有機エレクトロルミネッセンス素子を作製する際には、一般式(1)で表される化合物を発光層に用いるだけでなく、発光層以外の層にも用いてもよい。その際、発光層に用いる一般式(1)で表される化合物と、発光層以外の層に用いる一般式(1)で表される化合物は、同一であっても異なってもよい。例えば、上記の注入層、阻止層、正孔阻止層、電子阻止層、励起子阻止層、正孔輸送層、電子輸送層などにも一般式(1)で表される化合物を用いてもよい。これらの層の製膜方法は特に限定されず、ドライプロセス、ウェットプロセスのどちらで作製してもよい。

[0073] 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'、R₁~R₁₀は、各々独立に水素原子または置換基を表す。Xは環骨格を形成する炭素原子または複素原子を表し、nは3~5の整数を表し、Yは置換基を表し、mは0以上の整数を表す。

[0074] 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。

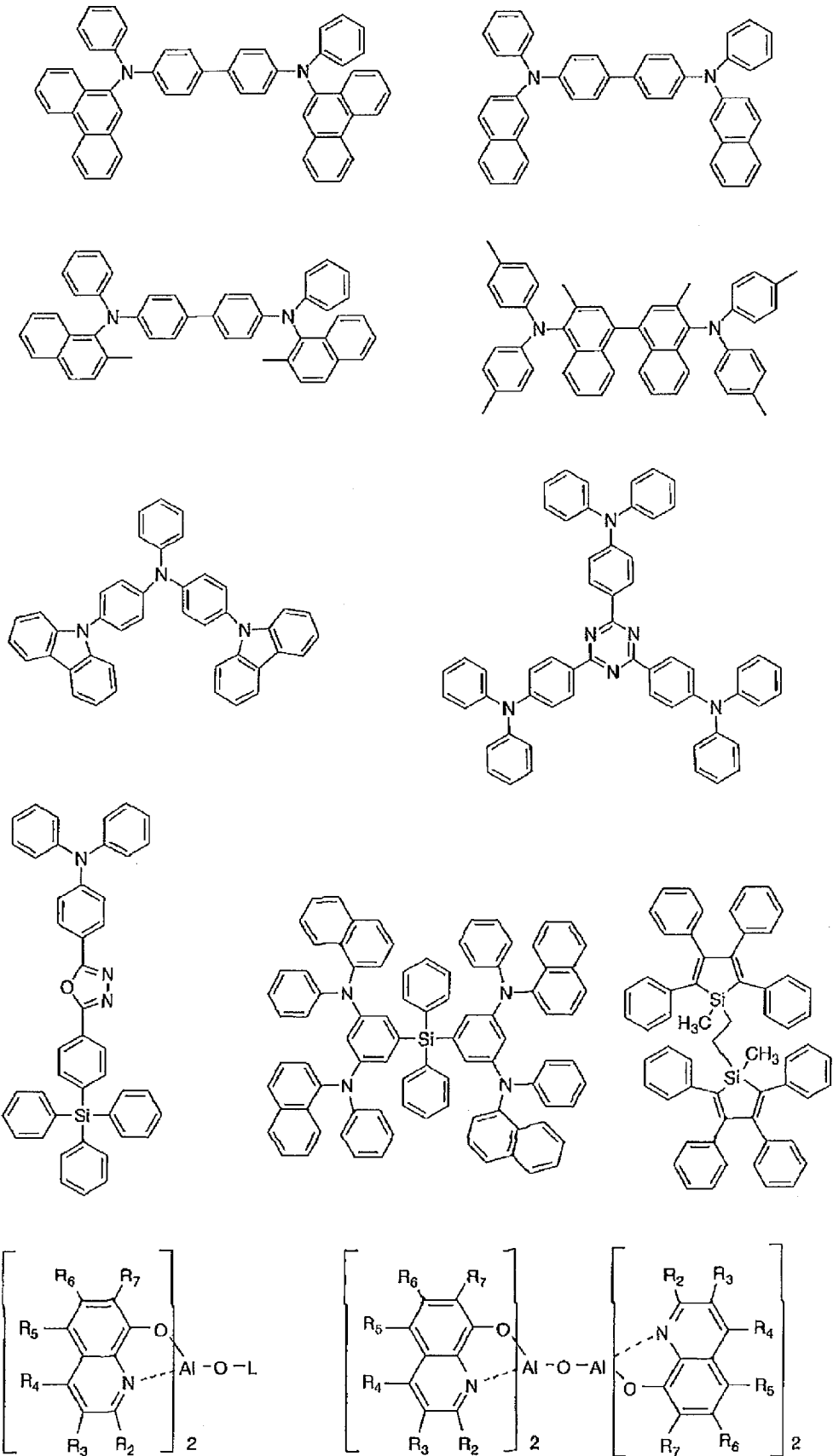
[0075]

[化16]

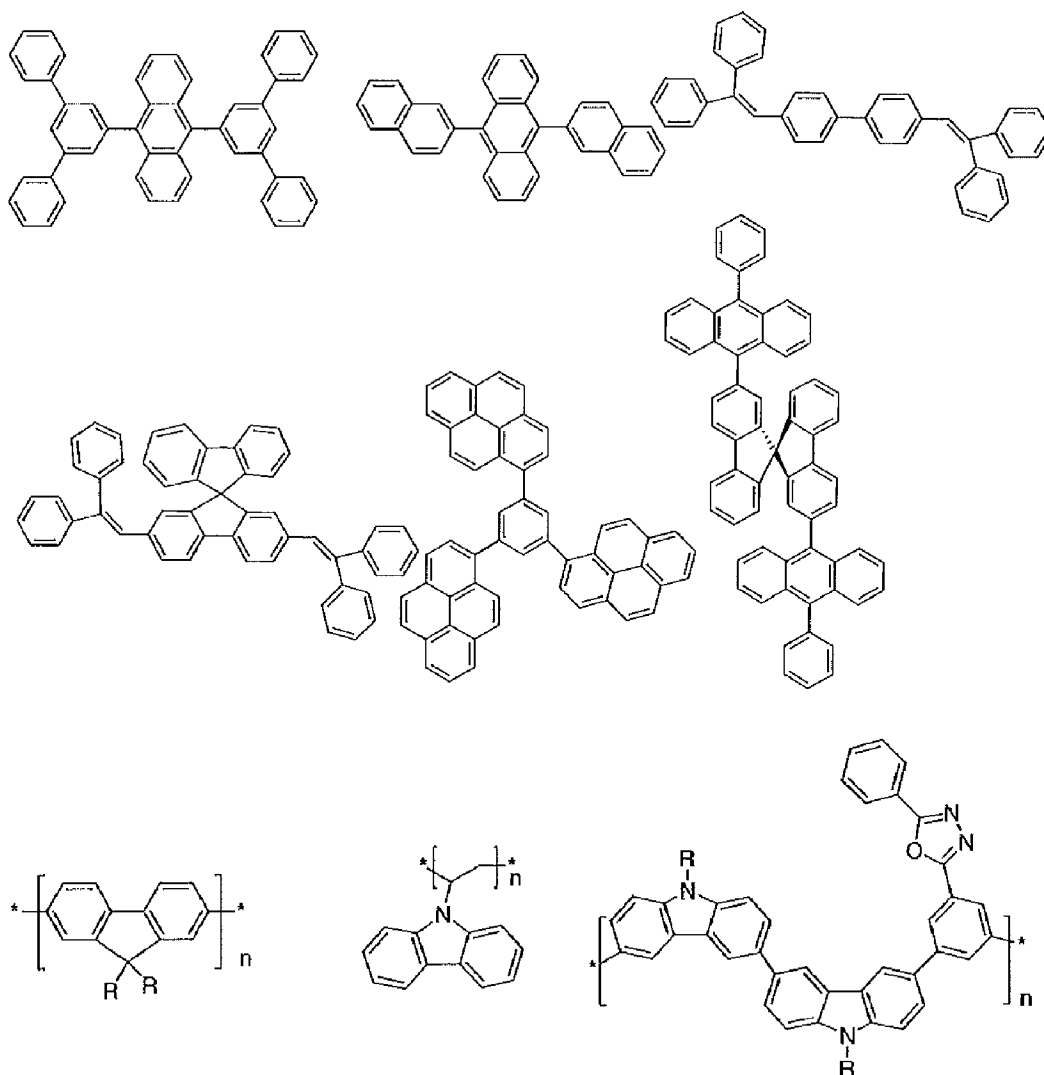


[0076]

[化17]

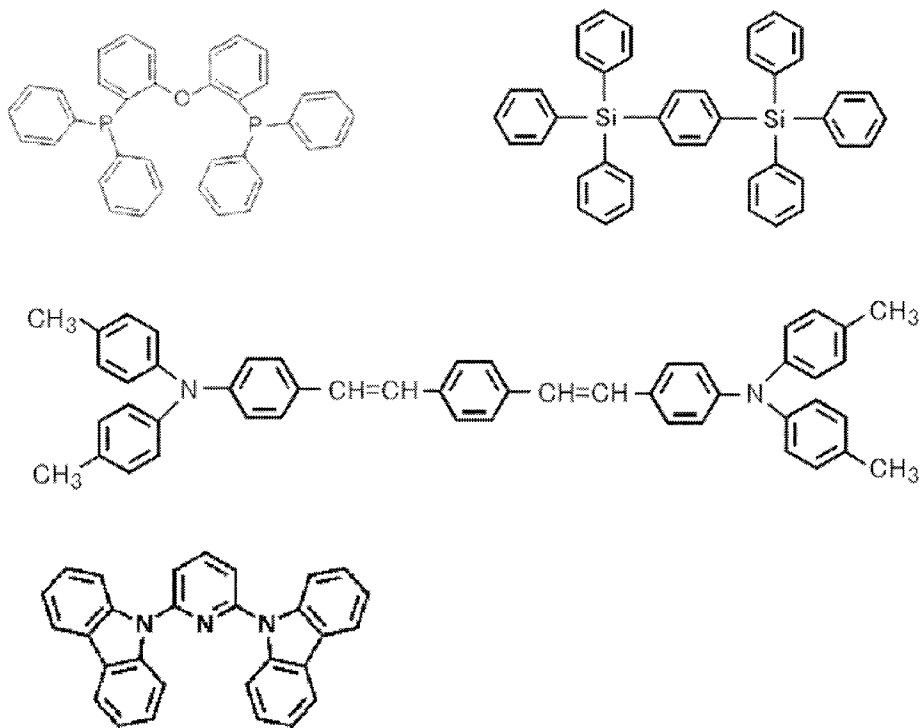


[化19]



[0079]

[化20]

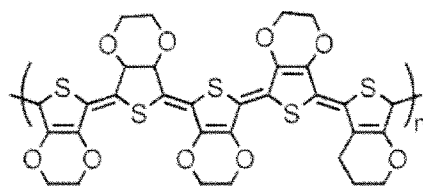
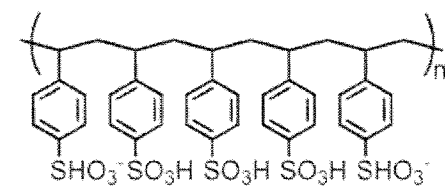
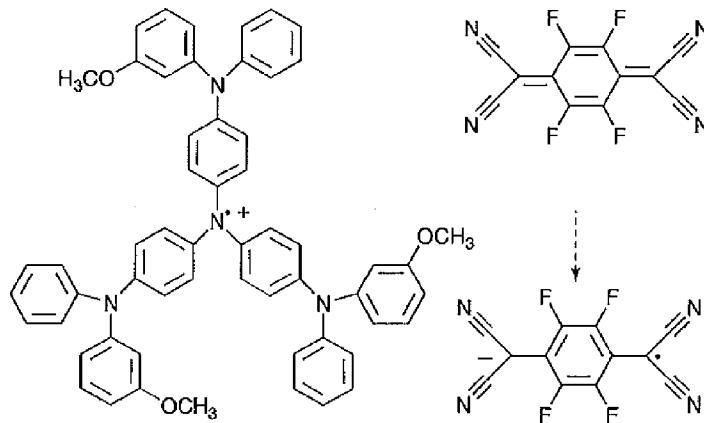
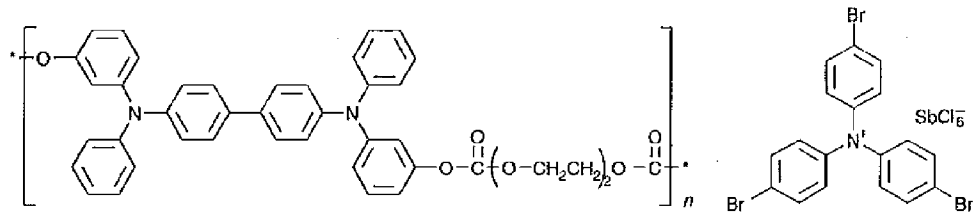
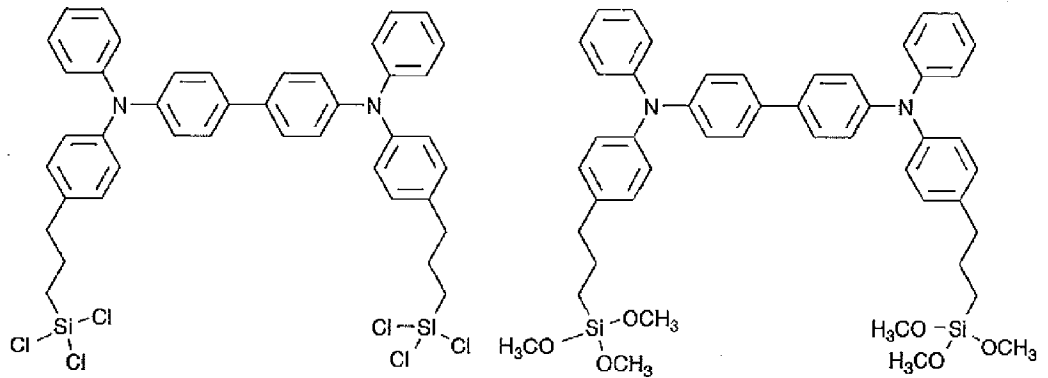


[0080] 次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

。

[0081]

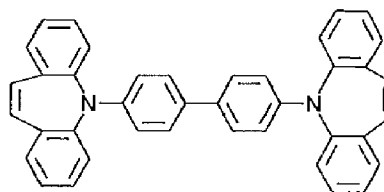
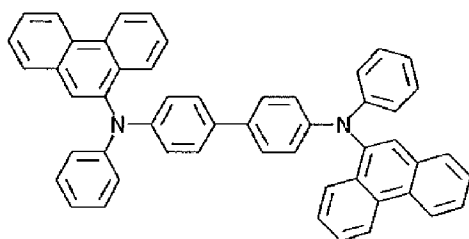
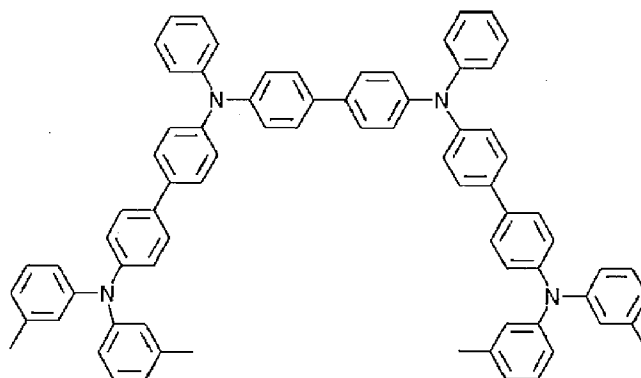
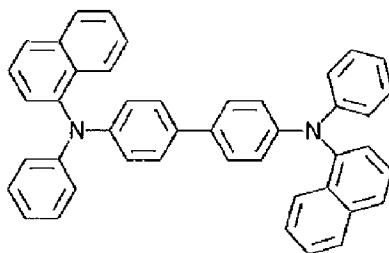
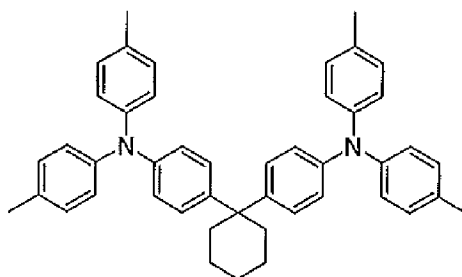
[化21]



[0082] 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

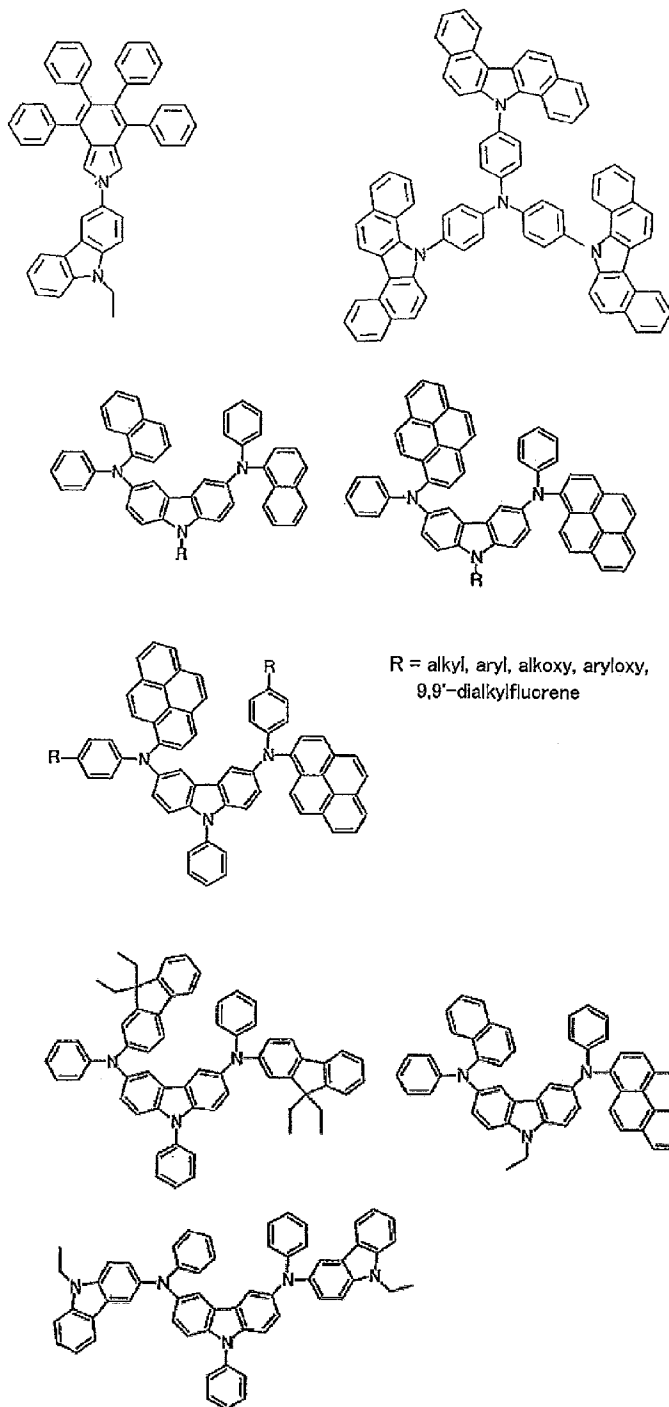
o

[0083] [化22]



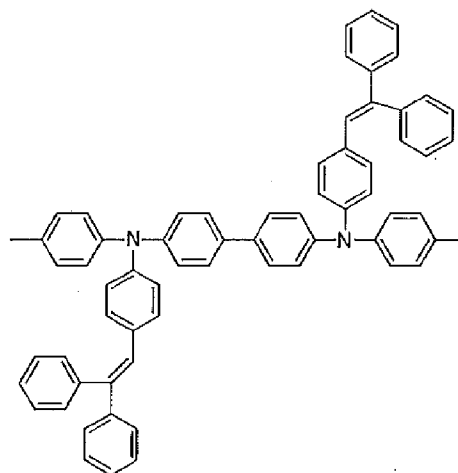
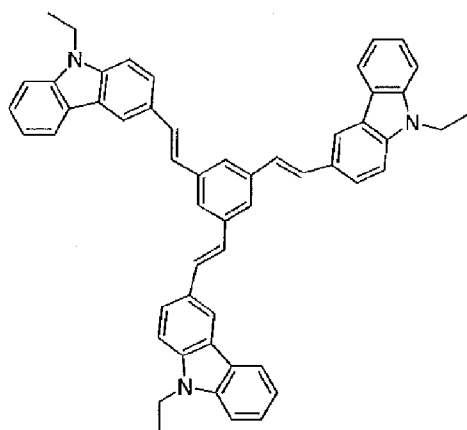
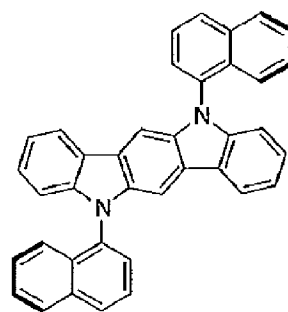
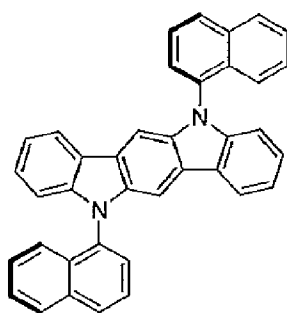
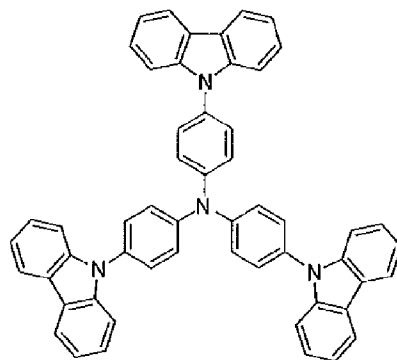
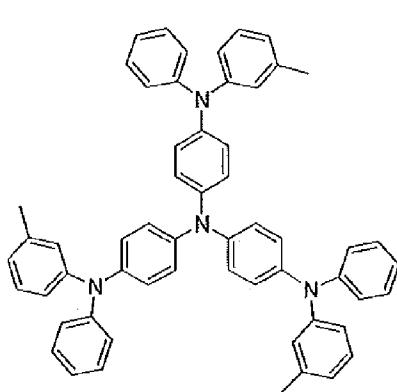
[0084]

[化23]



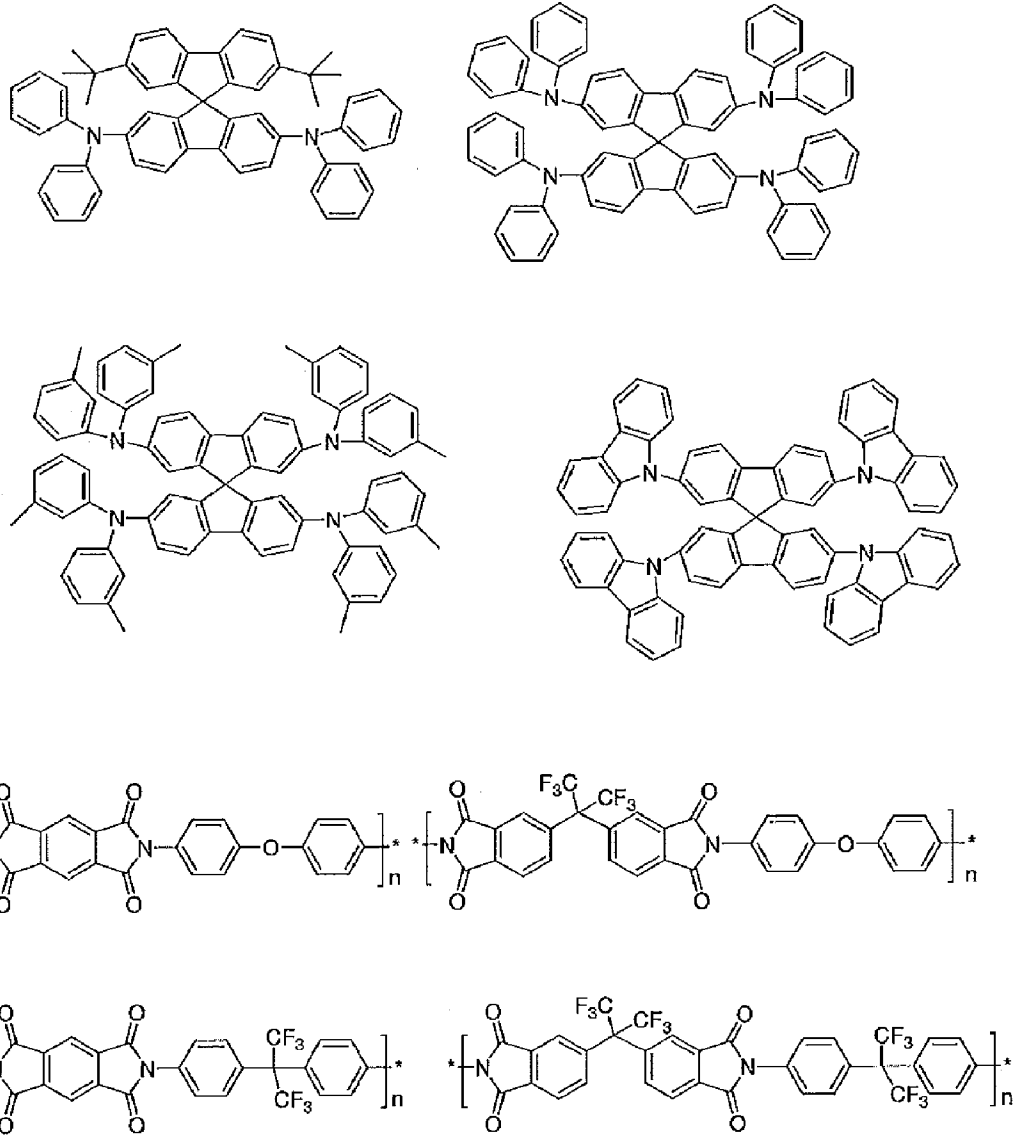
[0085]

[化24]



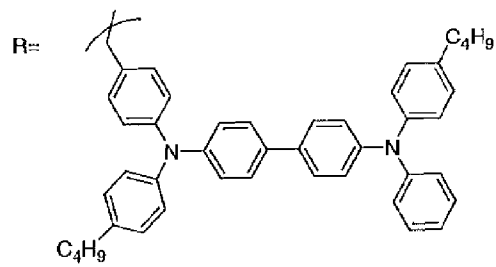
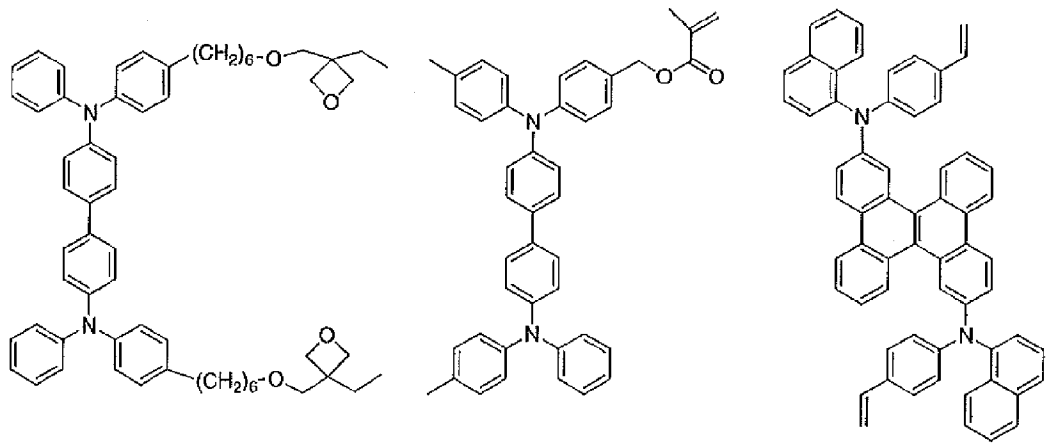
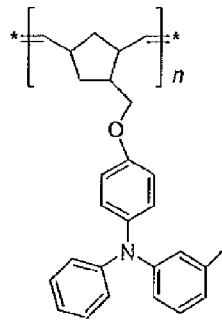
[0086]

[化25]



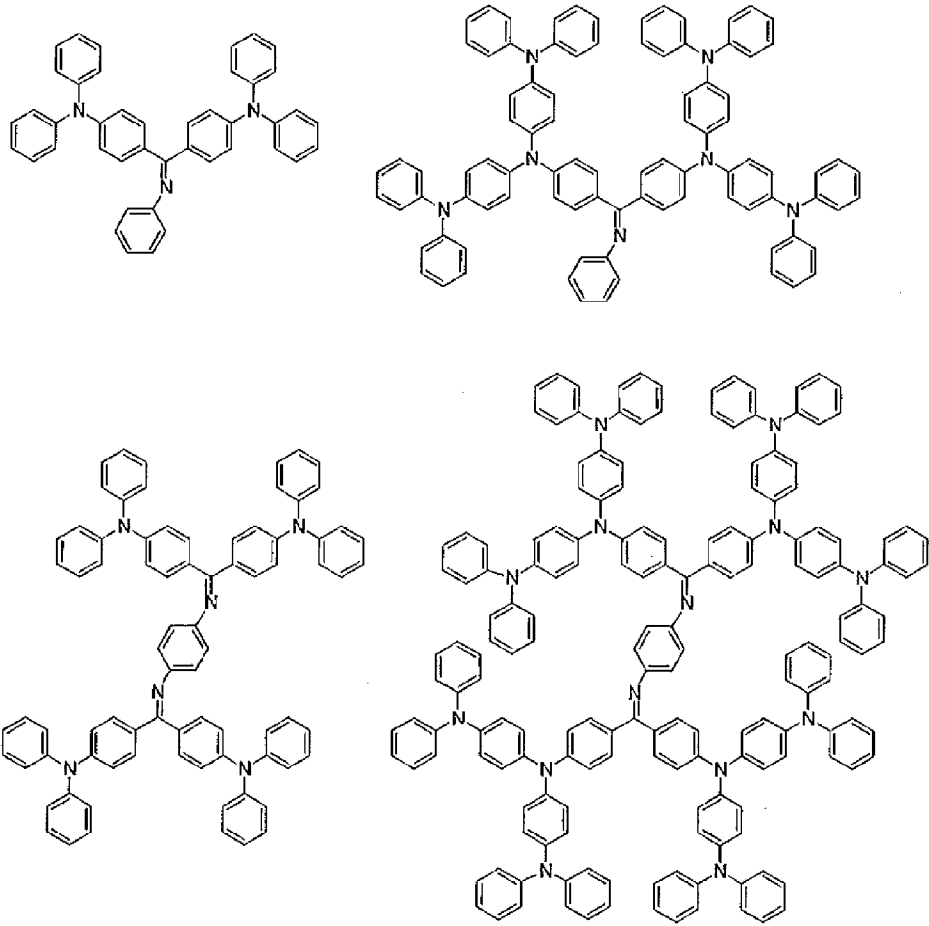
[0087]

[化26]



[0088]

[化27]

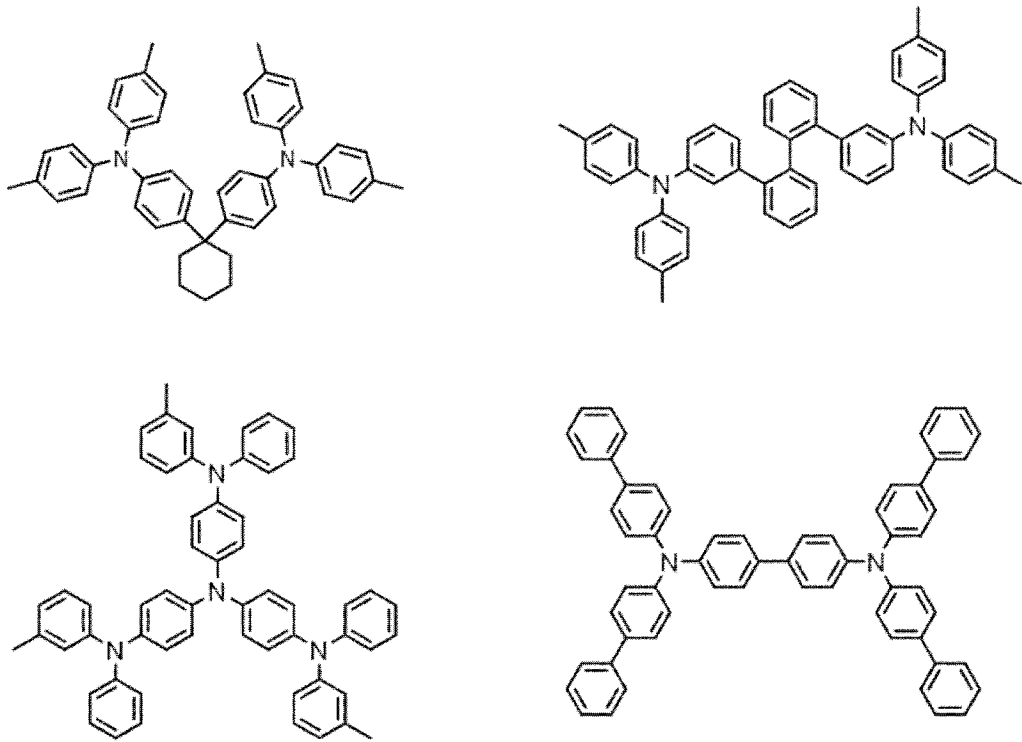


[0089] 次に、電子阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

。

[0090]

[化28]

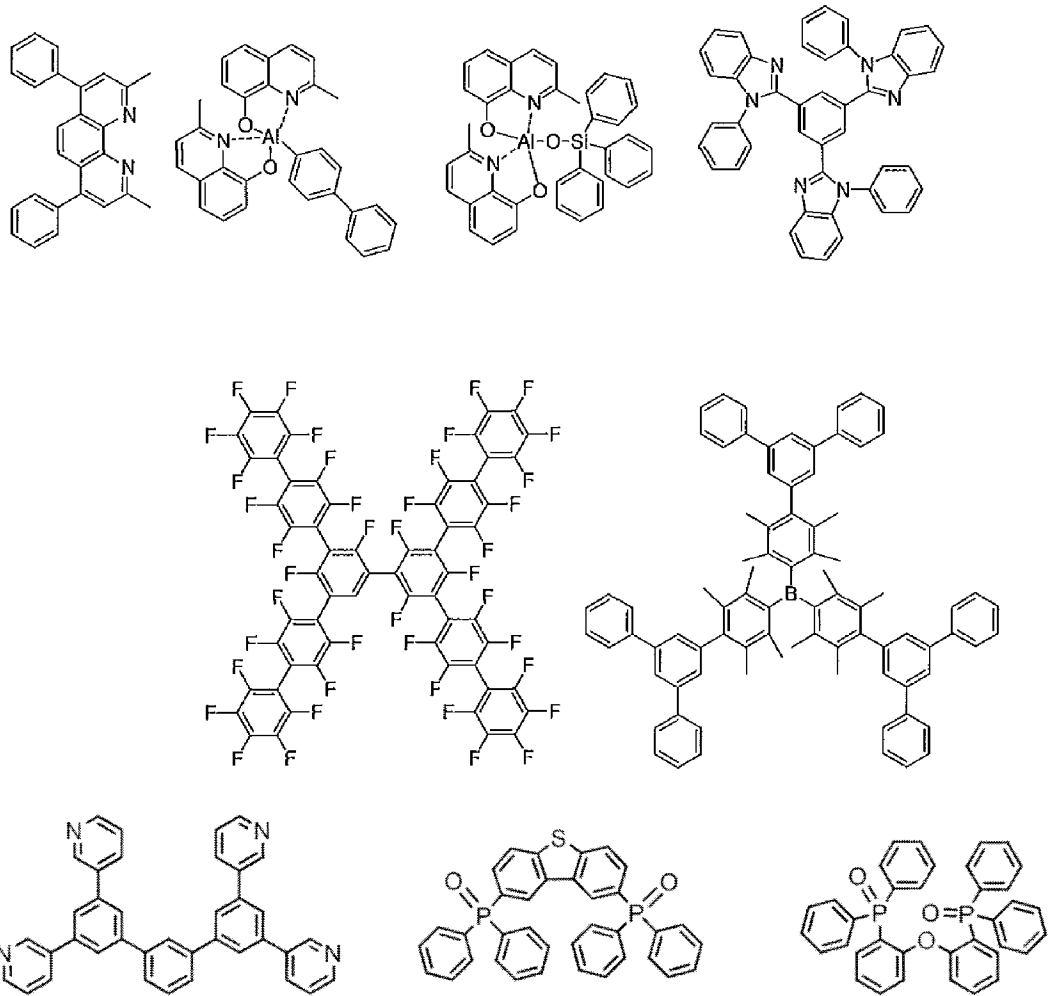


[0091] 次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

。

[0092]

[化29]

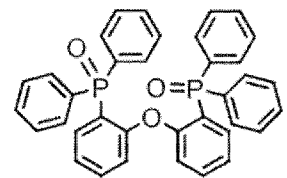
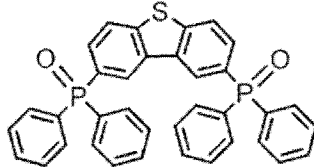
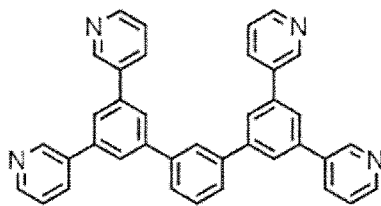
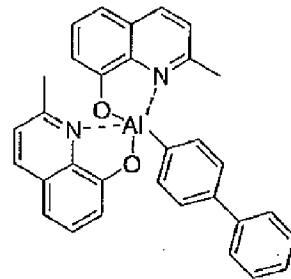
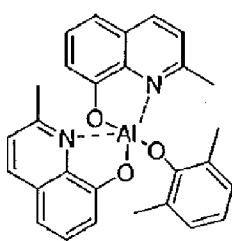
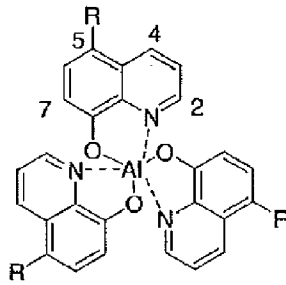
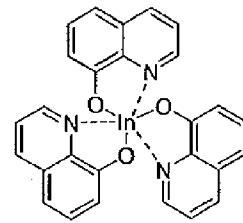
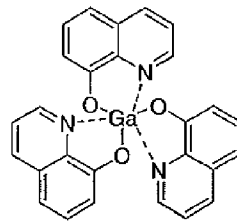
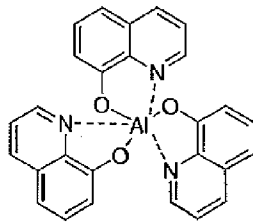
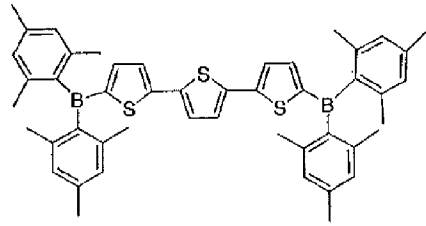
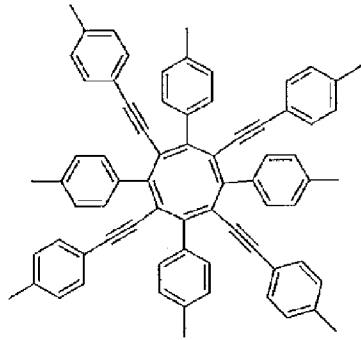


[0093] 次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

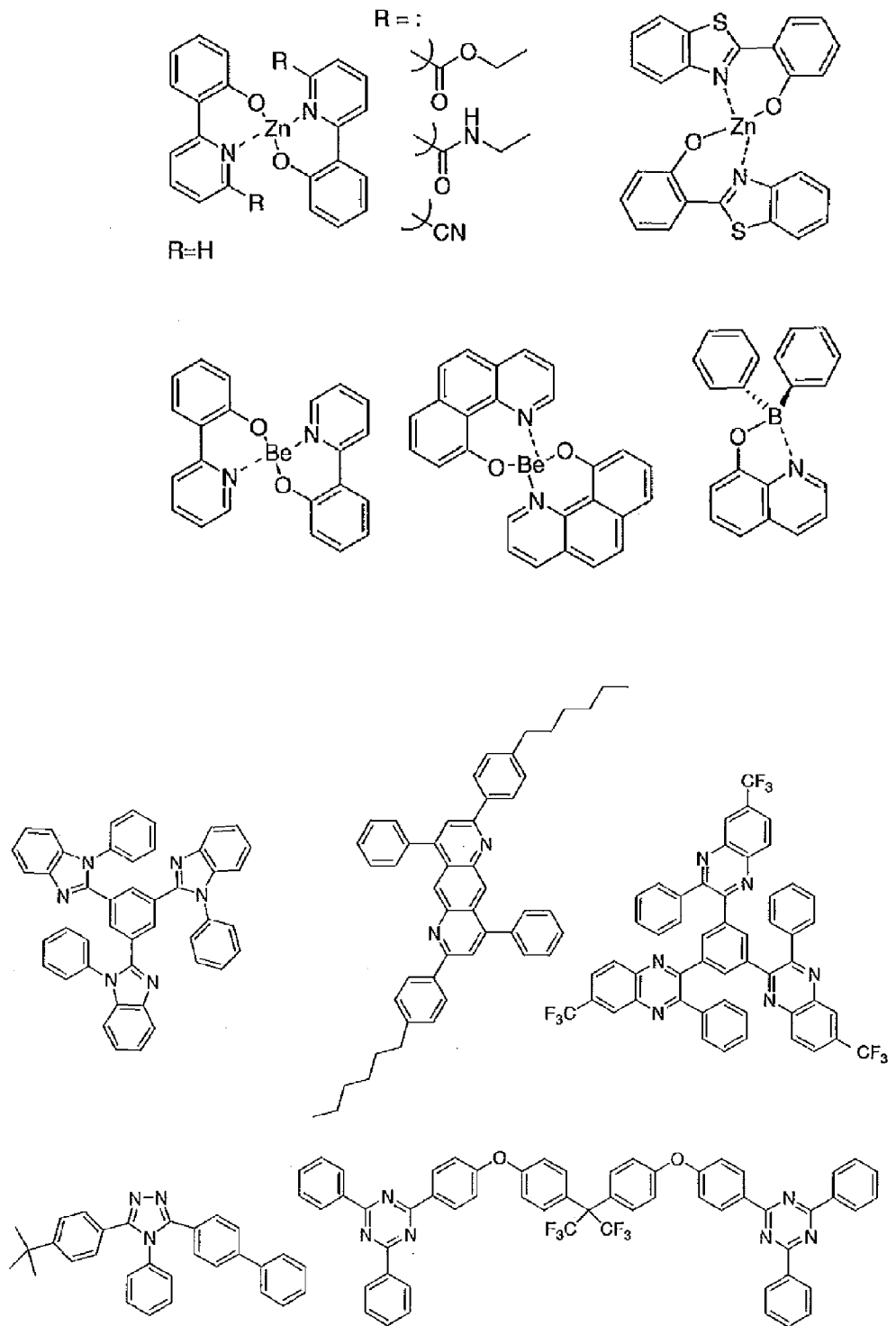
。

[0094]

[化30]

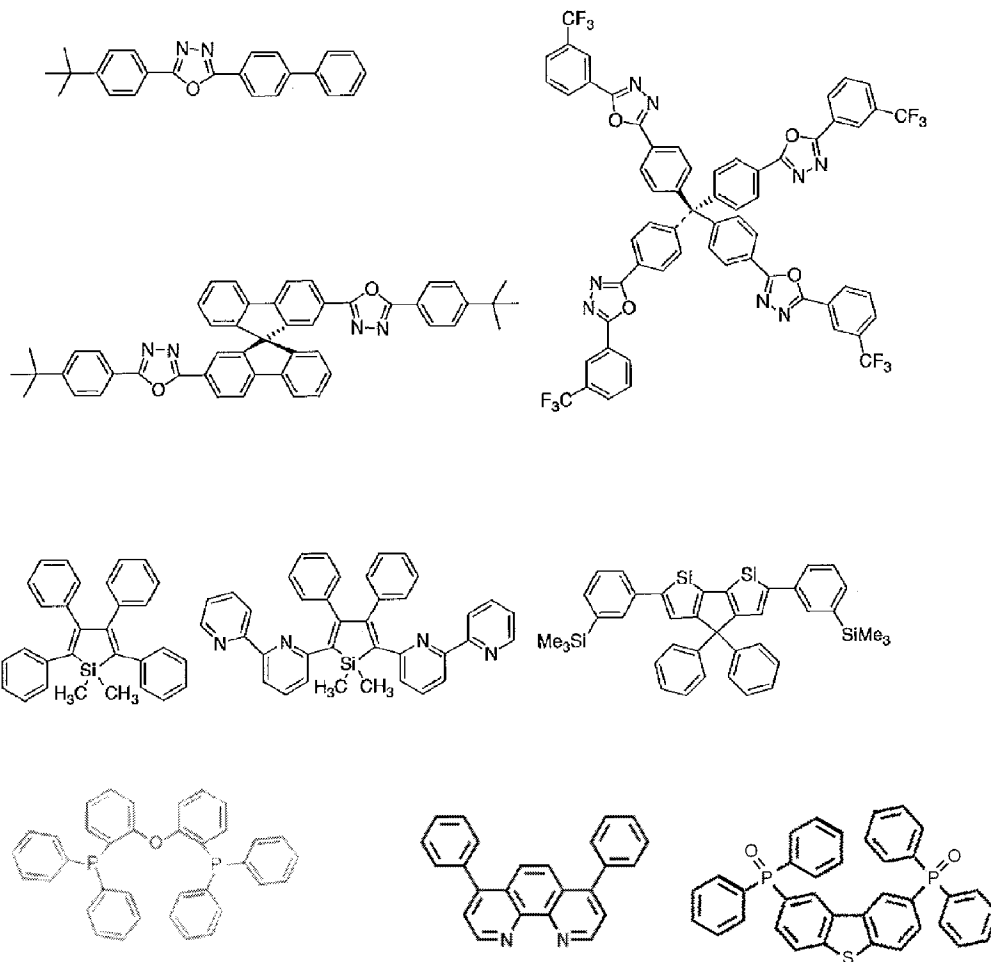


[0095] [化31]



[0096]

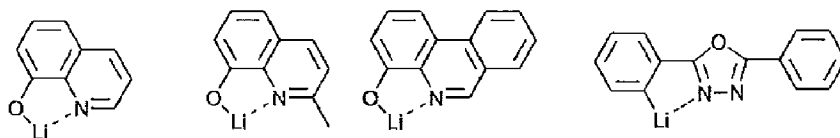
[化32]



[0097] 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

。

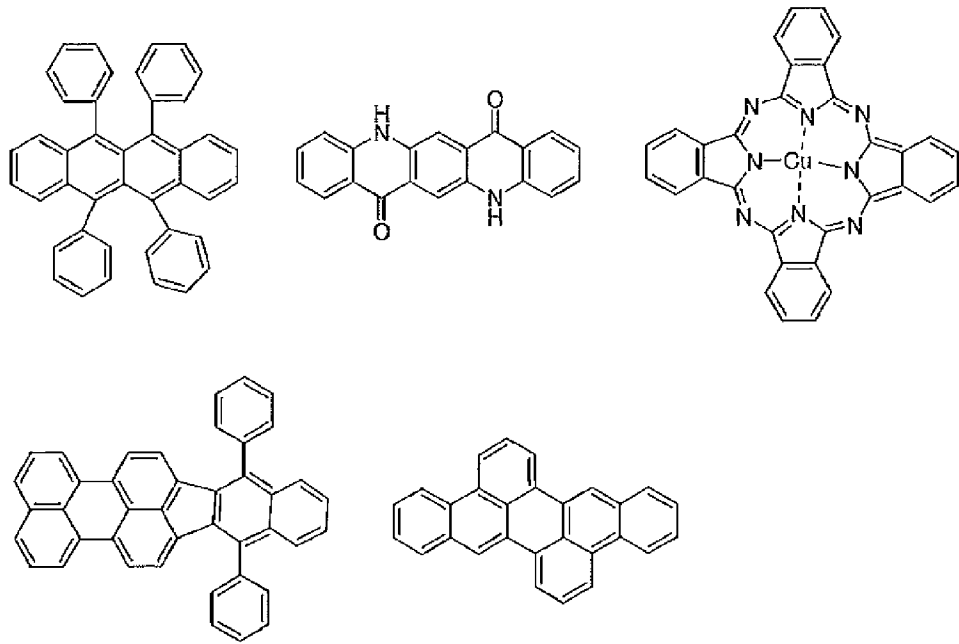
[0098] [化33]



[0099] 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。

[0100]

[化34]



[0101] 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。

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。

[0102] 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、特定の構造を有する化合物を発光層に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。

実施例

[0103] 以下に合成例および実施例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。なお、発光特性の評価は、ソースメータ（ケースレー社製：2400シリーズ）、半導体パラメータ・アナライザ（アジレント・テクノロジー社製：E5273A）、光パワーメータ測定装置（ニューポート社製：1930C）、光学分光器（オーシャン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

[0104] [HOMOのエネルギー準位とLUMOのエネルギー準位の測定]

実施例および比較例で用いた化合物のHOMOとLUMOの各エネルギー準位は、以下の方法により求めた。

HOMOのエネルギー準位は、各化合物の酸化電位（第1酸化波の半波電位）をジクロロメタン中で測定し、Org. Electronics, 2005, 6, 11-20において提供される下記式を用いて求めた。

$$\text{HOMO (eV)} = -1.4 E_{1/2} (\text{vs. Fc/Fc}^+) - 4.6$$

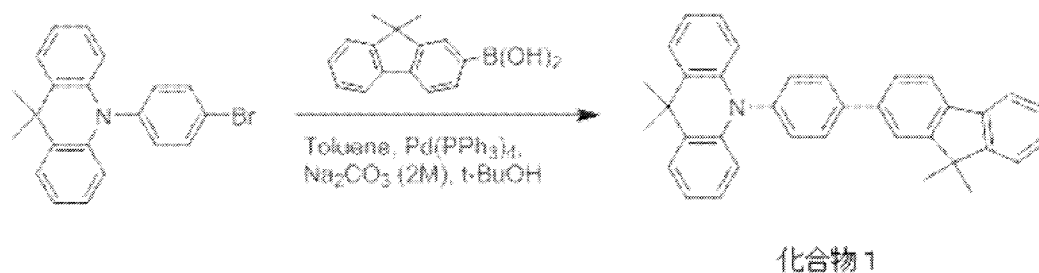
上記式中、 $E_{1/2} (\text{vs. Fc/Fc}^+)$ はフェロセン電極を基準にした第1酸化波の半波電位である。

LUMOのエネルギー準位は、吸収スペクトルからHOMOのエネルギー準位とLUMOのエネルギー準位のエネルギーギャップ E_{gap} を決定し、HOMOのエネルギー準位の測定値とエネルギーギャップ E_{gap} の差を計算することにより求めた。エネルギーギャップ E_{gap} は、吸収スペクトルの短波長側の立ち上がりの接線と横軸の交点での波長値から決定した。

[0105] (合成例1) 化合物1の合成

化合物1を下記の反応により合成した。

[化35]



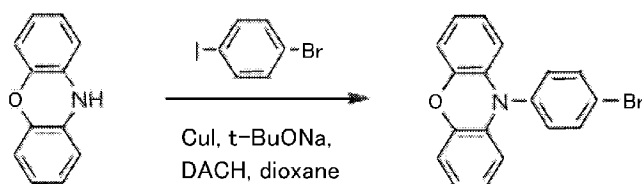
[0106] 4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼン(1.1g, 3mmol)、9,9-ジメチル-2-フルオレンボロン酸(850mg, 3.6mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(170mg, 0.15mmol)、トルエン60mL、t-ブタノール15mLおよび炭酸ナトリウム水溶液(2M, 20mL)を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100℃で24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。そのろ液から溶媒を除去し、得られた残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン(1：3)の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮したところ、目的の化合物1の白色固形物を収量1.1g、収率77%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500MHz, CDCl_3) : $\delta = 7.92$ (d, $J = 8.4$ Hz, 2H), 7.85 (d, $J = 7.9$ Hz, 1H), 7.82–7.75 (m, 2H), 7.69 (dd, $J = 7.8, 1.6$ Hz, 1H), 7.49–7.47 (m, 3H), 7.43 (d, $J = 8.4$ Hz, 2H), 7.37 (pd, $J = 7.4, 1.4$ Hz, 2H), 7.05–6.98 (m, 2H), 6.98–6.91 (m, 2H), 6.40 (dd, $J = 8.2, 1.2$ Hz, 2H), 1.73 (s, 6H), 1.59 (s, 6H). $^{13}\text{C-NMR}$ (125MHz, CDCl_3) : $\delta = 154.4, 153.9, 141.4, 140.9, 140.2, 139.4, 138.9, 138.8, 131.6, 130.0, 129.5, 127.4, 127.1, 126.4, 126.3, 125.3, 122.7, 121.4, 120.5, 120.4, 120.2, 114.1, 47.0, 36.0, 31.3, 27.3$; APCI-MSm/z : 477M⁺; Anal. calcd for $\text{C}_{36}\text{H}_{31}\text{N}$: C, 90.53; H, 6.54; N, 2.93. Found : C, 90.54; H, 6.53; N, 2.97.

[0107] (合成例2) 化合物2の合成

まず、中間体aを下記の反応により合成した。

[化36]



中間体a

フェノキサジン (3.67 g, 20 mmol)、4-ヨードブロモベンゼン (5.66 g, 20 mmol)、ヨウ化銅 (110 mg, 0.6 mmol)、ナトリウムtert-ブトキシド (2.95 g, 30 mmol)、1,2-ジアミノシクロヘキサン0.20 mLおよび1,4-ジオキサン50 mLを容器に入れ、容器内を窒素で置換した後、容器内の混合物を、100

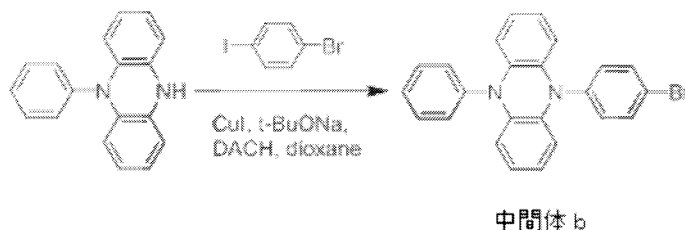
減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100℃で24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル60mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水60mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン=1：4の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物2の白色固形物を収量1.85g、収率68%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500MHz, CDCl_3) : δ = 7.88 (d, J = 7.6 Hz, 2H), 7.83 (d, J = 7.8 Hz, 1H), 7.80–7.76 (m, 1H), 7.71 (d, J = 1.3 Hz, 1H), 7.64 (dd, J = 7.8, 1.7 Hz, 1H), 7.49–7.46 (m, 1H), 7.43 (d, J = 8.0 Hz, 2H), 7.39–7.33 (m, 2H), 6.81–6.55 (m, 6H), 6.03 (s, 2H), 1.57 (s, 6H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125MHz, CDCl_3) : δ = 154.4, 153.9, 144.0, 141.8, 139.2, 139.0, 138.7, 137.9, 134.4, 131.1, 129.7, 127.5, 127.1, 126.2, 123.3, 122.7, 121.4, 121.3, 120.4, 120.2, 115.4, 113.3, 47.0, 27.2; APCL-MSm/z : 451M⁺; Anal. calcd for $\text{C}_{33}\text{H}_{25}\text{NO}$: C, 87.77; H, 5.58; N, 3.10. Found : C, 87.82; H, 5.58; N, 3.12.

[0109] (合成例3) 化合物3の合成

まず、中間体bを下記の反応により合成した。

[化38]



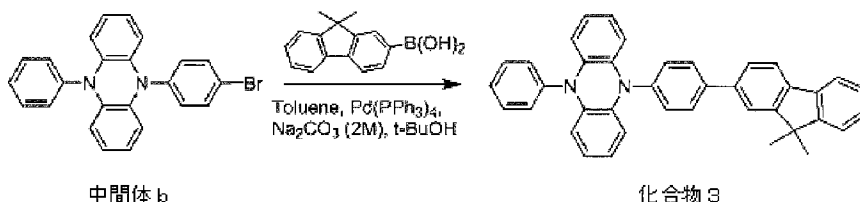
[0110] 5-フェニル-5, 10-ジヒドロフェナジン (20 mmol, トルエン溶液として30 mL)、4-ヨードブロモベンゼン (5.66 g, 20 mmol)、ヨウ化銅 (110 mg, 0.6 mmol)、ナトリウム tert-ブトキシド (2.95 g, 30 mmol)、1, 2-ジアミノシクロヘキサン 0.20 mL および 1, 4-ジオキサン 50 mL を容器に入れ、容器内を窒素で置換した後、容器内の混合物を 100°C で 24 時間攪拌した。攪拌後、反応液を室温まで冷却し、水 50 mL を加えたところ、水層と有機層の 2 層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル 30 mL を用いて 3 回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水 30 mL で 2 回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン = 110 の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、中間体 b の黄色固形物を収量 1.65 g、収率 20% で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500 MHz, Pyridine- D_5) δ = 7.79 (d, J = 8.6 Hz, 2H), 7.63 (t, J = 7.8 Hz, 2H), 7.51–7.45 (m, 1H), 7.42 (dd, J = 8.3, 1.1 Hz, 2H), 7.27 (d, J = 8.6 Hz, 2H), 6.47–6.40 (m, 4H), 5.83 (dd, J = 7.6, 1.6 Hz, 2H), 5.78 (dd, J = 7.6, 1.6 Hz, 2H); $^{13}\text{C-NMR}$ (126 MHz, Pyridine- D_5) δ = 137.4, 137.0, 135.4, 134.0, 132.2, 131.8, 129.0, 122.1, 121.9, 113.6, 113.5. APCI-MS m/z : 412 M^+ , 414 M^+ ; Anal. c

calcd for $C_{24}H_{17}BrN_2$: C, 69.74; H, 4.15; N, 6.78. Found: C, 69.94; H, 4.21; N, 6.72.

[0111] 次に、化合物3を下記の反応により合成した。

[化39]



[0112] 中間体B [4-(5-フェニル-5,10-ジヒドロフェナジン)ブロモベンゼン] (1.65 g, 4 mmol)、9,9-ジメチル-2-フルオレンボロン酸 (1.14 g, 4.8 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (230 mg, 0.2 mmol)、トルエン 80 mL、t-ブタノール 15 mL および炭酸ナトリウム水溶液 (2M, 30 mL) を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を 100°C で 24 時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の 2 層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル 50 mL を用いて 3 回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水 50 mL で 2 回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン = 1：4 の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物3の黄色固形物を収量 0.82 g、収率 39% で得た。

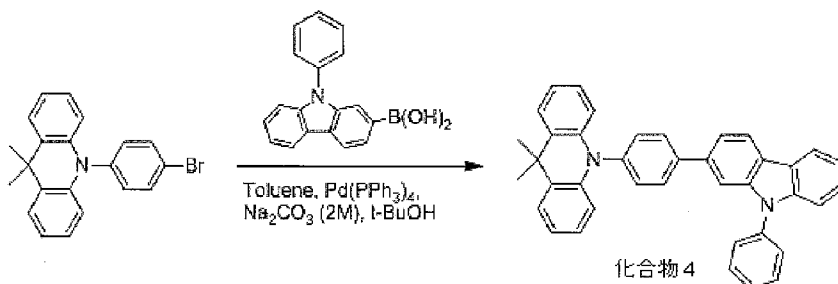
^1H-NMR (500 MHz, Pyridine- D_5): δ = 8.05 (dd, J = 10.9, 4.3 Hz, 4H), 7.98–7.94 (m, 1H), 7.88 (dd, J = 7.8, 1.7 Hz, 1H), 7.65 (t, J = 7.8 Hz, 2H), 7.60–7.57 (m, 1H), 7.56–7.52 (m, 2H), 7.52–7.41 (m, 5H), 6.49–6.42 (

m, 4 H), 5.98 (dd, J=7.6, 1.6 Hz, 2 H), 5.87 (dd, J=7.6, 1.6 Hz, 2 H), 1.63 (s, 6 H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125 MHz, Pyridine- D_5) δ =155.4, 154.8, 142.0, 141.1, 140.1, 140.0, 139.8, 139.5, 137.5, 137.5, 132.3, 132.2, 131.9, 130.8, 129.0, 128.5, 128.1, 127.1, 122.4, 121.9, 121.5, 121.1, 113.6, 113.6, 47.7, 27.6. APCI-MS m/z : 526 M^+ ; Anal. calcd for $\text{C}_{39}\text{H}_{30}\text{N}_2$: C, 88.94; H, 5.74; N, 5.32. Found: C, 89.19; H, 5.74; N, 5.31

[0113] (合成例4) 化合物4の合成

化合物4を下記反応により合成した。

[化40]



[0114] 4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼン (1.1 g, 3 mmol)、9-フェニルカルバゾール-3-ボロン酸 (1 g, 3.6 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (170 mg, 0.15 mmol)、トルエン60 mL、*t*-ブタノール15 mLおよび炭酸ナトリウム水溶液(2M, 20 mL)を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100°Cで24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30 mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30 mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過し

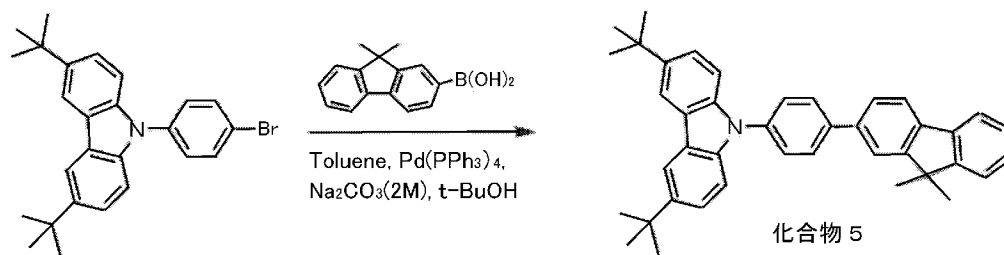
た。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン＝1：4の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物4の白色固形物を収量1.15g、収率72%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500MHz, CDCl_3) : δ = 8.47 (d, J = 1.5 Hz, 1H)、8.23 (d, J = 7.7 Hz, 1H)、7.97 (d, J = 8.4 Hz, 2H)、7.76 (dd, J = 8.5, 1.8 Hz, 1H)、7.69–7.59 (m, 4H)、7.54–7.50 (m, 2H)、7.50–7.47 (m, 2H)、7.46–7.43 (m, 4H)、7.36–7.31 (m, 1H)、7.02 (ddd, J = 8.4, 7.2, 1.6 Hz, 2H)、6.95 (td, J = 7.6, 1.2 Hz, 2H)、6.43 (dd, J = 8.2, 1.1 Hz, 2H)、1.73 (s, 6H)。 $^{13}\text{C-NMR}$ (125MHz, CDCl_3) : δ = 141.9, 141.4, 141.0, 140.6, 139.6, 137.6, 132.5, 131.6, 130.00, 129.9, 129.6, 127.6, 127.1, 126.4, 126.3, 125.4, 125.2, 124.0, 123.4, 120.5, 120.4, 120.2, 118.9, 114.1, 110.2, 110.0, 36.0, 31.3; APCI-MS m/z : 526 M^+ ; Anal. calcd for $\text{C}_{39}\text{H}_{30}\text{N}_2$: C, 88.94; H, 5.74; N, 5.32. Found : C, 88.97; H, 5.72; N, 5.37.

[0115] (合成例5) 化合物5の合成

化合物5を下記反応により合成した。

[化41]



[0116] 4-(3,6-ジ-tert-ブチルカルバゾール)ブロモベンゼン(870mg, 2mmol)、9,9-ジメチル-2-フルオレンボロン酸(570mg, 2.4mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(116mg, 0.1mmol)、トルエン60mL、t-ブタノール15mLおよび炭酸ナトリウム水溶液(2M, 20mL)を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100℃で24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン=1：5の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物5の白色固形物を収量790mg、収率72%で得た。

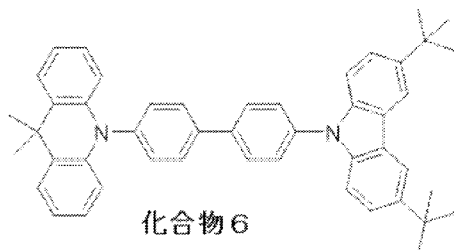
$^1\text{H-NMR}$ (500MHz, CDCl_3) : δ = 8.16 (d, J = 1.8 Hz, 2H), 7.89–7.86 (m, 2H), 7.84 (d, J = 7.7 Hz, 1H), 7.80–7.77 (m, 1H), 7.75 (d, J = 1.3 Hz, 1H), 7.68 (dd, J = 7.8, 1.7 Hz, 1H), 7.67–7.63 (m, 2H), 7.49 (ddd, J = 7.3, 4.2, 1.9 Hz, 3H), 7.45–7.41 (m, 2H), 7.40–7.32 (m, 2H), 1.58 (s, 6H), 1.48 (s, 18H) ; $^{13}\text{C-NMR}$ (125MHz, CDCl_3) : δ = 154.4, 153.9, 142.9, 140.2, 139.5, 139.2, 138.78, 138.76, 137.2, 128.4, 127.6, 127.4, 127.09, 127.05, 127.0, 126.2, 123.6, 123.4, 122.7, 122.6, 121.4, 121.3, 120.4, 120.1, 120.0, 116.3, 109.3, 47.0, 34.8, 32.0, 27.3 ; APCL-MSm/z : 547M⁺ ; Anal. calcd

for $C_{41}H_{41}N$: C, 89.90; H, 7.54; N, 2.56. Found: C, 90.01; H, 7.49; N, 2.52.

[0117] (合成例6) 化合物6の合成

化合物6を下記の手順で合成した。

[化42]



[0118] 4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼン(728mg, 2mmol)、3,6-ジ-tert-ブチル-9-(4-(4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル)フェニル)-9H-カルバゾール(1.15g, 2.4mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(116mg, 0.1mmol)、トルエン60mL、t-ブタノール15mLおよび炭酸ナトリウム水溶液(2M, 20mL)を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100℃で24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン=1：5の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物6の白色固形物を収量0.79g、収率62%で得た。

3,6-ジ-tert-ブチル-9-(4-(4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル)フェニル)-9H-カルバ

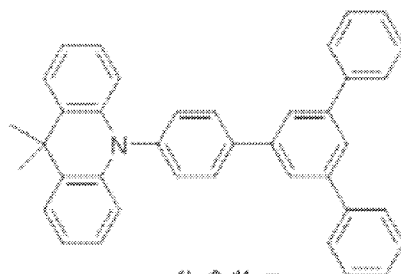
ゾールは、Lai, W.-Y.; He, Q.-Y.; Chen, D.-Y.; Huang, W. Chem. Lett. 2008, 37, 986に記載された方法で合成した。

$^1\text{H-NMR}$ (500MHz, CDCl_3) : δ = 8.17 (d, J = 1.6 Hz, 2H), 7.95 (d, J = 8.4 Hz, 2H), 7.91 (d, J = 8.5 Hz, 2H), 7.70 (d, J = 8.5 Hz, 2H), 7.53–7.42 (m, 8H), 7.04–6.99 (m, 2H), 6.95 (td, J = 7.5, 1.3 Hz, 2H), 6.36 (dd, J = 8.2, 1.2 Hz, 2H), 1.72 (s, 6H), 1.49 (s, 18H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125MHz, CDCl_3) : δ = 143.0, 141.0, 140.7, 140.2, 139.2, 138.7, 137.8, 131.8, 130.1, 129.5, 128.5, 127.0, 126.4, 125.3, 123.7, 123.5, 120.6, 116.3, 114.1, 109.2, 36.0, 34.8, 32.0, 31.3; APCL-MS m/z : 638 M^+ ; Anal. calcd for $\text{C}_{47}\text{H}_{46}\text{N}_2$: C, 88.36; H, 7.26; N, 4.38. Found: C, 88.42; H, 7.23; N, 4.39

[0119] (合成例7) 化合物7の合成

化合物7を下記の手順で合成した。

[化43]



化合物7

[0120] 4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼン (1.1g, 3mmol)、3,5-ビフェニルベンゼンボロン酸 (987mg, 3.6mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (170mg, 0.15mmol)、トルエン60mL、

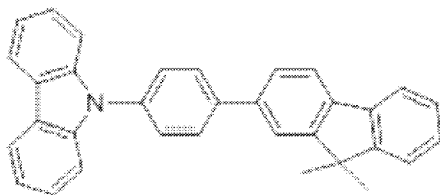
t-ブタノール15 mLおよび炭酸ナトリウム水溶液(2 M, 20 mL)を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100°Cで24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30 mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30 mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン:ヘキサン=1:5の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物7の白色固形物を収量1.1 g、収率70%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500 MHz, CDCl_3): δ = 7.99–7.93 (m, 2 H), 7.90 (d, J = 1.7 Hz, 2 H), 7.86 (t, J = 1.6 Hz, 1 H), 7.78–7.73 (m, 4 H), 7.55–7.37 (m, 10 H), 7.04–6.98 (m, 2 H), 6.95 (td, J = 7.5, 1.3 Hz, 2 H), 6.39 (dd, J = 8.2, 1.2 Hz, 2 H), 1.72 (s, 6 H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125 MHz, CDCl_3): δ = 142.5, 141.4, 141.0, 141.1, 141.0, 140.6, 131.7, 130.0, 129.7, 128.9, 127.7, 127.4, 126.4, 125.5, 125.3, 125.2, 120.6, 114.1, 36.0, 31.3; APCI-MS m/z : 513 M^+ ; Anal. calcd for $\text{C}_{39}\text{H}_{31}\text{N}$: C, 91.19; H, 6.08; N, 2.73. Found: C, 91.23; H, 6.00; N, 2.63.

[0121] (合成例8) 化合物8の合成

化合物8を下記の手順で合成した。

[化44]



化合物8

[0122] 4-(カルバゾール-9-イル)ブロモベンゼン (967 mg, 3 mmol), 9,9-ジメチル-2-フルオレンボロン酸 (786 mg, 3.3 mmol), テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (170 mg, 0.15 mmol)、炭酸カリウム (6.91 g)、テトラヒドロフラン100 mLおよび水50 mLを容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を80°Cで24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30 mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30 mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン=1：3の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物8の白色固形物を収量941 mg、収率72%で得た。

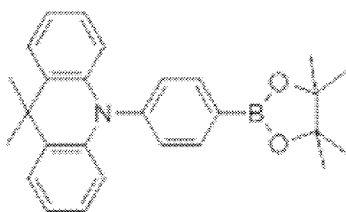
$^1\text{H-NMR}$ (500 MHz, CDCl_3) : δ = 8.18 (d, J = 7.8 Hz, 2H), 7.93–7.87 (m, 2H), 7.85 (d, J = 7.8 Hz, 1H), 7.79 (d, J = 6.9 Hz, 1H), 7.75 (s, 1H), 7.68 (dd, J = 11.6, 5.0 Hz, 3H), 7.50 (t, J = 7.6 Hz, 3H), 7.44 (t, J = 7.6 Hz, 2H), 7.41–7.34 (m, 2H) 7.32 (t, J = 7.4 Hz, 2H), 1.59 (s, 6H) ; $^{13}\text{C-NMR}$ (125 MHz, CDCl_3) : δ = 140.9, 140.8, 140.7, 140.1, 139.3, 137.3, 131.9, 130.1, 129.5, 128.6, 128.5, 127.5,

127.4, 126.4, 126.0, 125.3, 123.5, 120.6, 120.4, 120.1, 114.1, 109.8, 36.0, 31.3; APCI-MSm/z: 435M⁺; Anal. calcd for C₃₃H₂₅N: C, 91.00; H, 5.79; N, 3.22; Found: C, 91.09; H, 5.77; N, 3.24.

[0123] (合成例9) 化合物9の合成

まず、中間体cを下記の手順で合成した。

[化45]



中間体c

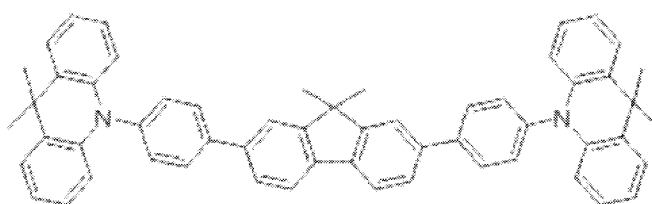
[0124] 4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼン(1.46g, 4mmol)、ビス(ピナコレート)ジボラン(1.52g, 6mmol)、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム(II)(90mg, 0.12mmol)、酢酸カリウム(1.18g)および1,4-ジオキサン50mLを容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を80℃で24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却し、水50mLを加えたところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン：ヘキサン=1：1の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、中間体cの白色固形物を収量1.56g、収率95%で得た。

¹H-NMR (500MHz, CDCl₃): δ=8.06 (d, J=8.2H

z, 2H), 7.45 (dd, J=7.5, 1.8 Hz, 2H), 7.34 (d, J=8.2 Hz, 2H), 6.98–6.87 (m, 4H), 6.25 (dd, J=7.9, 1.5 Hz, 2H), 1.69 (s, 6H), 1.40 (s, 12H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125 MHz, CDCl_3): δ = 144.1, 140.9, 137.5, 130.8, 130.1, 126.5, 125.4, 120.7, 114.2, 84.3, 83.7, 36.1, 31.5, 25.2, 25.1; APCL-MS m/z : 411 M⁺.

[0125] 次に、化合物9を下記の手順で合成した。

[化46]



化合物9

9, 9-ジメチル-10-(4-(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル)フェニル)-9, 10-ジヒドロアクリジン (2.05 g, 5 mmol)、ジ-2, 7-ブロモ-9, 9-ジメチルフルオレン (704 mg, 2 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (232 mg, 0.2 mmol)、炭酸カリウム (6.91 g)、テトラヒドロフラン150 mLおよび水70 mLを容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を80°Cで24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却し、析出した沈殿物をろ過により回収した。得られた粗精製物を昇華法で精製することにより、目的の化合物9の白色固体を収量852 mg、収率56%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500 MHz, CDCl_3): δ = 7.97–7.91 (m, 4H), 7.90 (d, J=7.8 Hz, 2H), 7.80 (d, J=1.3 Hz, 2H), 7.73 (dd, J=7.8, 1.6 Hz, 2H), 7.4

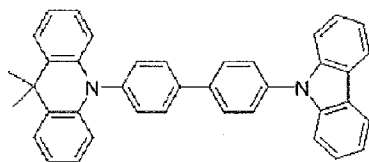
8 (dd, $J=7.7, 1.5$ Hz, 4H), 7.44 (d, $J=8.3$ Hz, 4H), 7.04–6.97 (m, 4H), 6.95 (td, $J=7.5, 1.2$ Hz, 4H), 6.40 (dd, $J=8.2, 1.1$ Hz, 4H), 1.72 (s, 12H), 1.67 (s, 6H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125 MHz, CDCl_3): $\delta=154.9, 141.53, 141.1, 140.4, 139.7, 138.6, 131.8, 130.2, 129.7, 126.6, 126.5, 125.4, 121.7, 120.8, 120.7, 114.3, 47.4, 36.2, 31.5, 27.5$; APCI-MS m/z : 760 M^+ ; Anal. calcd for $\text{C}_{57}\text{H}_{48}\text{N}_2$: C, 89.96; H, 6.36; N, 3.68. Found: C, 89.87; H, 6.33; N, 3.73.

[0126] なお、出発物質である4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼンは、J. Am. Chem. Soc. 2014, 136, 18070-18081に記載された方法で合成し、4-(3,6-ジ-tert-ブチルカルバゾール)ブロモベンゼンは、W. Chem. Lett. 2008, 37, 986に記載された方法で合成し、5-フェニル-5,10-ジヒドロフェナジンは、J. Org. Chem. 70, 10073-10081 (2005)に記載された方法で合成した。

[0127] (合成例10) 化合物12の合成

次に、化合物12を下記の手順で合成した。

[化47]



化合物12

[0128] 4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)ブロモベンゼン (1.1 g, 3 mmol)、4-(カルバゾール-9-イル)ベンゼンボロン酸 (1.03 g, 3.6 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (170 mg, 0.15 mmol)、トルエン60

mL、*t*-ブタノール15 mLおよび炭酸ナトリウム水溶液(2 M, 20 mL)を容器に入れ、容器内を減圧脱気した後、窒素で置換した。この容器を油浴に入れ、容器内の混合物を100°Cで24時間加熱した。加熱後、反応液を室温まで冷却したところ、水層と有機層の2層に分離した。このうち、水層を採取し、酢酸エチル30 mLを用いて3回抽出を行った。得られた有機層を、飽和食塩水30 mLで2回洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、ろ過した。得られたろ液から溶媒を除去し、残った残留物を、ジクロロメタン:ヘキサン=1:3の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィにより精製した。得られたフラクションを濃縮することにより、目的の化合物12の白色固形物を収量1.03 g、収率65%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (500 MHz, CDCl_3): δ = 8.19 (d, J = 7.8 Hz, 2H), 7.99–7.89 (m, 4H), 7.74–7.69 (m, 2H), 7.53–7.44 (m, 8H), 7.37–7.28 (m, 2H), 7.09–7.00 (m, 2H), 6.96 (td, J = 7.5, 1.3 Hz, 2H), 6.40 (dd, J = 8.2, 1.2 Hz, 2H), 1.73 (s, 6H); $^{13}\text{C-NMR}$ (125 MHz, CDCl_3): δ 154.6, 154.1, 141.1, 140.9, 139.5, 139.0, 138.9, 136.9, 128.7, 127.6, 127.5, 127.3, 126.3, 126.1, 123.6, 122.8, 121.6, 120.6, 120.5, 120.3, 120.1, 110.0, 47.2, 27.4; APCI-MS m/z : 526 M^+ ; Anal. calcd for $\text{C}_{39}\text{H}_{30}\text{N}_2$: C, 88.94; H, 5.74; N, 5.32. Found: C, 89.01; H, 5.68; N, 5.39

[0129] また、化合物10、11も上記の各合成例を応用して合成した。

[0130] (実施例1~11) 化合物1~11を用いた溶液の作製と評価

化合物1~11のトルエン溶液(濃度 10^{-5}mol/L)を調製し、窒素ガス置換を行った。

調製した各化合物の溶液について、吸収スペクトル、340 nm励起光による発光スペクトルを得た。各溶液の吸収スペクトルの最大吸収波長、発光スペクトルの最小発光波長を表1に示す。また、HOMO準位とLUMO準位もあわせて表1に示す。

[0131] [表1]

実施例 No.	化合物 No.	最大吸収波長 (nm)	最小発光波長 (nm)	HOMO 準位 (eV)	LUMO 準位 (eV)
実施例1	化合物1	292	412	-5.3	-2.0
実施例2	化合物2	313	448	-5.0	-2.0
実施例3	化合物3	372	522	-4.6	-1.9
実施例4	化合物4	340	397	-5.3	-1.8
実施例5	化合物5	319	360	-5.6	-2.2
実施例6	化合物6	334	399	-5.3	-1.9
実施例7	化合物7	258 ^b	411	-5.3	-1.9
実施例8	化合物8	321	367	-5.7	-2.3
実施例9	化合物9	326	397	-5.1	-1.8
実施例10	化合物10	342	386	-5.6	-2.2
実施例11	化合物11	329	457	-5.0	-2.0

[0132] 表1に示すように、化合物1～11の全ての溶液で発光を観測することができた。

[0133] (実施例12) 化合物2を用いた固体有機薄膜の作製と評価

石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 2×10^{-4} Paの条件にて化合物2の薄膜を250 nmの厚さで形成して固体有機薄膜とした。

作製した化合物2の薄膜について、最大発光波長およびフォトルミネッセンス量子効率を表3に示す。

[0134] (実施例13) 化合物11を用いた固体有機薄膜の作製と評価

石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 2×10^{-4} Paの条件にて化合物11の薄膜を200 nmの厚さで形成して固体有機薄膜とした。

これとは別に、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 2×10^{-4} Paの条件にて化合物11とPPTまたはDPEPOを異なる蒸着源から共蒸着し、化合物11の濃度が8重量%である薄膜を200 nmの厚さで形成して固体有

機薄膜とした。

作製した各薄膜について、最大発光波長およびフォトルミネッセンス量子収率（PL量子収率）を測定した結果を表2に示す。

[0135] [表2]

実施例No.	薄膜の組成	最大発光波長	PL量子収率
		(nm)	PLQY(%)
実施例12	化合物2=100重量%	442	12.1
実施例13	化合物11=100重量%	466	19.1
	化合物11:PPT=8重量%:92重量%	459	20.1
	化合物11:DPEPO=8重量%:92重量%	459	21.4

[0136] (実施例14) 化合物2を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

膜厚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 2×10^{-4} Paで積層した。まず、ITO上に α -NPDを40nmの厚さに形成し、その上に、mCPを10nmの厚さに形成した。次に、化合物2を25nmの厚さに蒸着して発光層を形成し、その上に、TPBiを40nmの厚さに形成した。さらにフッ化リチウム（LiF）を1nmの厚さに形成し、次いでアルミニウム（Al）を100nm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。また、これとは別に、上記と同様の製造工程で、同じ層構成を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を3個作製して、合計4個の有機エレクトロルミネッセンス素子を得た。各有機エレクトロルミネッセンス素子を素子14-1~14-4とする。

製造した素子14-2の発光スペクトル（EL）を図2に示し、素子14-1~14-4の電流密度-外部量子効率特性を図3に示す。また、代表として、素子14-2の素子特性を表3に示す。なお、図2には、参考のため、実施例12で作製した固体有機薄膜の発光スペクトル（PL）を併せて示す。

[0137] (実施例15) 化合物11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 [1]

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に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 2×10^{-4} Paで積層した。まず、ITO上にTAPCを40nmの厚さに形成した。次に、化合物11を20nmの厚さに蒸着して発光層を形成した。続いて、DPEPOを10nmの厚さに形成し、その上に、TPBiを厚さ40nmに形成した。さらに、フッ化リチウム（LiF）を1nmの厚さに形成し、次いでアルミニウム（Al）を100nmの厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の素子特性を表3に示す。

[0138]（実施例16）化合物11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 [2]

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に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 2×10^{-4} Paで積層した。まず、ITO上にTAPCを40nmの厚さに形成した。次に、化合物11とPPT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11の濃度は8重量%とした。続いて、PPTを10nmの厚さに形成し、その上に、TPBiを厚さ40nmに形成した。さらに、フッ化リチウム（LiF）を1nmの厚さに形成し、次いでアルミニウム（Al）を100nmの厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の素子特性を表3に示す。

[0139]（実施例17）化合物11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 [3]

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に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 2×10^{-4} Paで積層した。まず、ITO上にTAPCを40nmの厚さに形成した。次に、化合物11とDPEPO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11の濃度は8重量%とした。続いて、DPEPOを10nmの厚さに形成し、その上に、TPBiを40nmの厚さに形成した。さらに、フッ化リチウム(LiF)を1nmの厚さに形成し、次いでアルミニウム(Al)を100nmの厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の素子特性を表3に示す。

[0140] (実施例18) 化合物11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 [4]

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 2×10^{-4} Paで積層した。まず、ITO上にTAPCを40nmの厚さに形成した。次に、化合物11とDPEPO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11の濃度は8重量%とした。続いて、DPEPOからTPBiに漸次的に変化させた層を10nmの厚さに形成した。さらに、TPBiを40nmの厚さに形成した後、フッ化リチウム(LiF)を1nmの厚さに形成し、次いでアルミニウム(Al)を100nmの厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図4に示し、電圧-電流密度-輝度特性を図5に示し、電流密度-外部量子効率特性を図6に示す。また、この有機エレクトロルミネッセンス素子の素子特性を表3に示す。なお、図4には、参考のため、実施例13で作製した固体有機薄膜のうち、薄膜の組成が化合物11:DPEPO=8重量%:92重量%の固体有機薄膜の発光スペクトル(PL)を併せて示す。

[0141]

[表3]

実施例No.	発光層の組成	最大外部量子効率 EQEmax(%)	内部量子収率 X(%)	オン電圧 Von(V)	最大発光波長 (nm)
実施例14	化合物2=100重量%	1.026	42.3	5.5	448
実施例15	化合物11=100重量%	1.15	30.1	3.7	470
実施例16	化合物11:PPT=8重量%:92重量%	1.53	38.1	3.9	462
実施例17	化合物11:DPEPO=8重量%:92重量%	1.65	39	3.7	461
実施例18	化合物11:DPEPO=8重量%:92重量%	2.03	47	3.4	463

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

- [0145]
- 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

請求の範囲

[請求項1] 2つ以上のドナー性基と1つ以上の連結基からなる化合物で構成される発光材料であって、

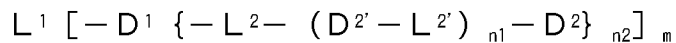
前記化合物は、互いに構造が異なるドナー性基を有しており、

前記連結基は、少なくとも2つのドナー性基を連結するものであって、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基である、発光材料。

[請求項2] 前記化合物は、互いに構造が異なるドナー性基を有する、請求項1に記載の発光材料。

[請求項3] 前記化合物が下記一般式(1)で表される構造を有する、請求項1または2に記載の発光材料。

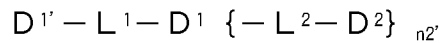
一般式(1)



[一般式(1)において、 L^1 、 L^2 、 $L^{2'}$ は各々独立に、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基を表す。 D^1 、 D^2 、 $D^{2'}$ は各々独立に、ドナー性基を表す。ただし、一般式(1)で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。 m は2以上の整数を表す。 $n1$ は0以上の整数を表し、 $n2$ は0以上の整数を表す。 m が2以上であるとき、複数の D^1 、 L^2 、 $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ 、 D^2 、 $n1$ 、 $n2$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。 $n1$ が2以上であるとき、複数の $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。 $n2$ が2以上であるとき、複数の L^2 、 $D^{2'}$ 、 $L^{2'}$ 、 D^2 、 $n1$ は各々互いに同一であっても異なってもよい。]

[請求項4] 前記化合物が下記一般式(2)で表される構造を有する、請求項1または2に記載の発光材料。

一般式(2)

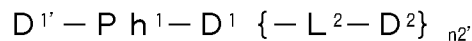


[一般式(2)において、 L^1 および L^2 は各々独立に、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよい1つ以上のベンゼン環で構成される芳香族基を表す。 $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 は各々独立に、ドナー性基を表す。ただし、一般式(2)で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。 $n^{2'}$ は0または1を表す。]

[請求項5] 前記 L^1 が、アルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよいフェニレン基またはビフェニレン基である、請求項3または4に記載の発光材料。

[請求項6] 前記化合物が下記一般式(3)で表される構造を有する、請求項1または2に記載の発光材料。

一般式(3)



[一般式(3)において、 Ph^1 はアルキル基またはハロゲノ基で置換されていてもよいフェニレン基を表す。 $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 は各々独立に、置換もしくは無置換のジアリアルアミノ基以外のドナー性基を表す。ただし、一般式(3)で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。 $n^{2'}$ は0または1を表す。]

[請求項7] $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 が各々独立に芳香族多環構造を有する、請求項4～6のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項8] 前記芳香族多環構造は、芳香族多環縮合構造である、請求項7に記載の発光材料。

[請求項9] $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 が各々独立に水素原子、炭素原子、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2種以上の原子のみからなる基である、請求項4～8のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項10] $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 のうちの少なくとも1つが、水素原子と炭素原子の

みからなる基であり、残りの少なくとも1つが、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基、もしくは、酸素原子および硫黄原子から選択される1種以上の原子と、水素原子と炭素原子と窒素原子のみからなる基である、請求項9に記載の発光材料。

[請求項11] D¹が窒素原子で連結基に結合する基であり、D^{1'}が炭素原子で連結基に結合する基である、請求項4～10のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項12] D²が炭素原子で連結基に結合する基である、請求項11に記載の発光材料。

[請求項13] D¹が炭素原子で連結基に結合する基であり、D^{1'}が窒素原子で連結基に結合する基である、請求項4～10のいずれか1項に記載の発光材料。

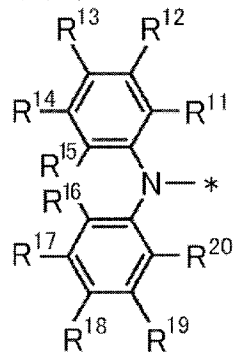
[請求項14] D²が窒素原子で連結基に結合する基である、請求項13に記載の発光材料。

[請求項15] 前記炭素原子で連結基に結合する基が、ベンゼン環の環骨格を構成する炭素原子で連結基に結合する基である、請求項11～14のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項16] 前記窒素原子で連結基に結合する基が、下記一般式(4)または(5)で表される基である、請求項11～15のいずれか1項に記載の発光材料。

[化1]

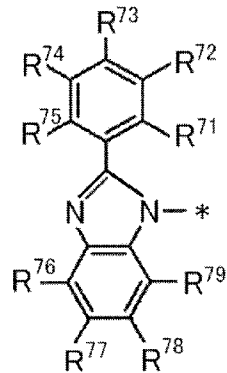
一般式(4)



[一般式(4)において、 $R^{11} \sim R^{20}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{15} と R^{16} は互いに結合して環状構造を形成している。 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。*は連結基との結合位置を表す。前記窒素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{11} \sim R^{20}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

[化2]

一般式(5)

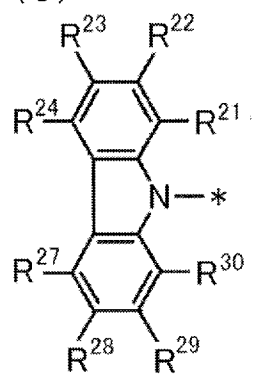


[一般式(5)において、 $R^{71} \sim R^{79}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{71} と R^{72} 、 R^{72} と R^{73} 、 R^{73} と R^{74} 、 R^{74} と R^{75} 、 R^{76} と R^{77} 、 R^{77} と R^{78} 、 R^{78} と R^{79} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。*は連結基との結合位置を表す。前記窒素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{71} \sim R^{79}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

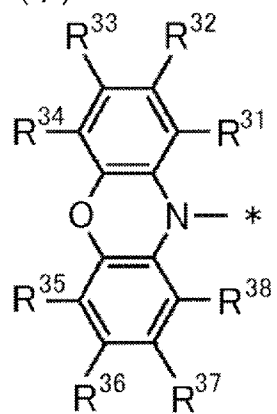
[請求項17] 前記窒素原子で連結基に結合する基が、下記一般式(6)～(10)のいずれかで表される基である、請求項11～15のいずれか1項に記載の発光材料。

[化3-1]

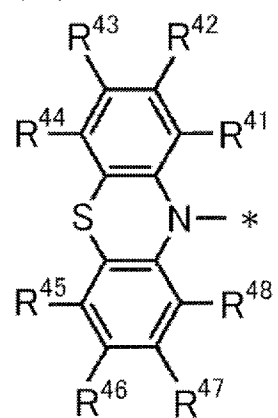
一般式 (6)



一般式 (7)

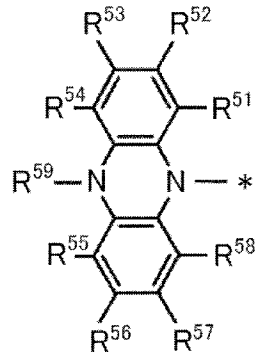


一般式 (8)

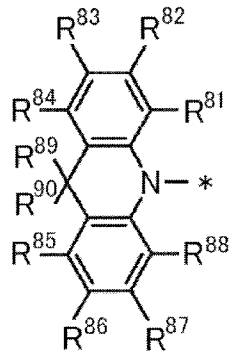


[化3-2]

一般式 (9)



一般式 (10)

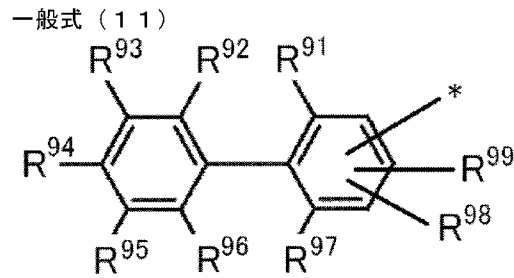


[一般式 (6) ~ (10) において、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{59}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{28} と R^{29} 、 R^{29} と R^{30} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 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^{54} と R^{59} 、 R^{55} と R^{59} 、 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。*は連結基との結合位置を表す。前記窒素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{21} \sim R^{24}$ 、 $R^{27} \sim R^{38}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{59}$ 、 $R^{81} \sim R^{90}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

[請求項18]

前記炭素原子で連結基に結合する基が、下記一般式 (11) で表される基である、請求項 11 ~ 17 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[化4]



[一般式 (11) において、 $R^{91} \sim R^{99}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{91} と R^{92} 、 R^{92} と R^{93} 、 R^{93} と R^{94} 、 R^{94} と R^{95} 、 R^{95} と R^{96} 、 R^{96} と R^{97} 、 R^{97} と R^{98} 、 R^{98} と R^{99} 、 R^{91} と R^{99} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 $*$ は連結基との結合位置を表す。前記炭素原子で連結基に結合する基が2価である場合は、 $R^{91} \sim R^{99}$ のいずれかにおいてさらに結合する。]

[請求項19] 前記化合物のHOMOとLUMOのエネルギー差が2.5～3.6 eVである、請求項1～18のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項20] 前記化合物のHOMOのエネルギー準位が-5.7 eV以上である、請求項1～19のいずれか1項に記載の発光材料。

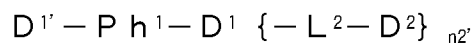
[請求項21] 前記化合物のHOMOのエネルギー準位が-5.3 eV以上である、請求項1～19のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項22] 前記化合物の最低励起一重項エネルギー準位 E_{S1} と最低励起三重項エネルギー準位 E_{T1} の差 ΔE_{ST} が0.3 eV以下である、請求項1～21のいずれか1項に記載の発光材料。

[請求項23] 発光材料として、請求項1～22のいずれか1項に記載の発光材料を発光層に含む有機発光素子。

[請求項24] 下記一般式(3)で表される化合物。

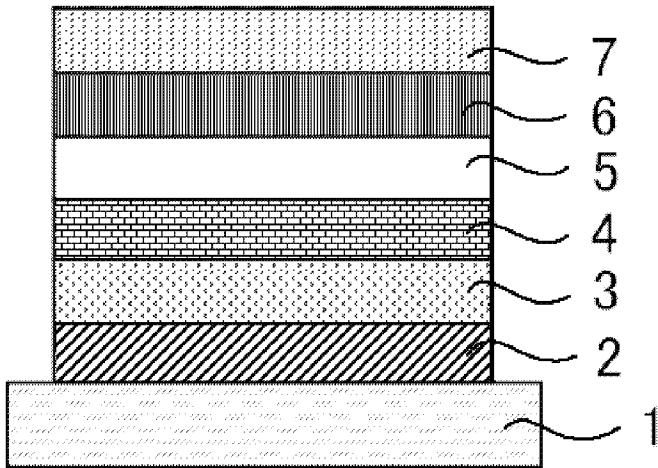
一般式 (3)



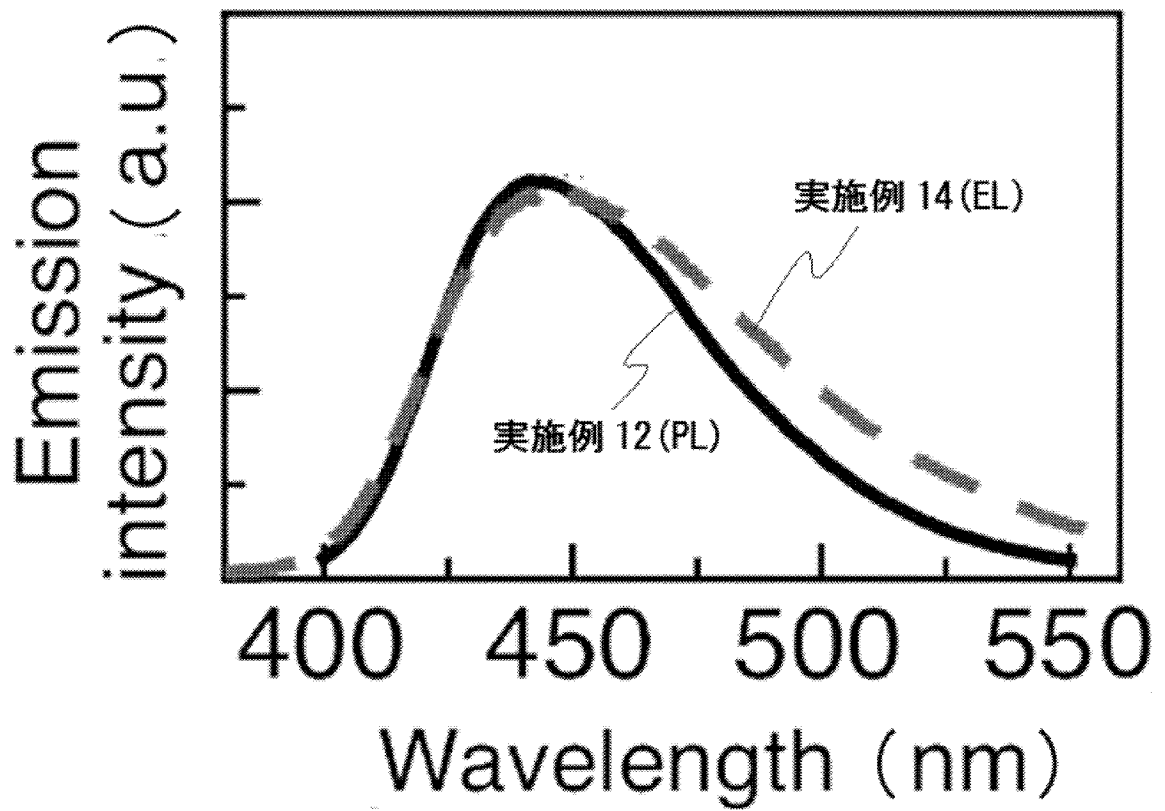
[一般式 (3) において、 Ph^1 はアルキル基またはハロゲン基で置換されていてもよいフェニレン基を表す。 $D^{1'}$ 、 D^1 、 D^2 は各々独立

に、置換もしくは無置換のジアリアルアミノ基以外のドナー性基を表す。ただし、一般式(3)で表される構造を有する化合物の分子内に存在するドナー性基の少なくとも2つは、互いに異なる構造を有する。n 2' は0または1を表す。]

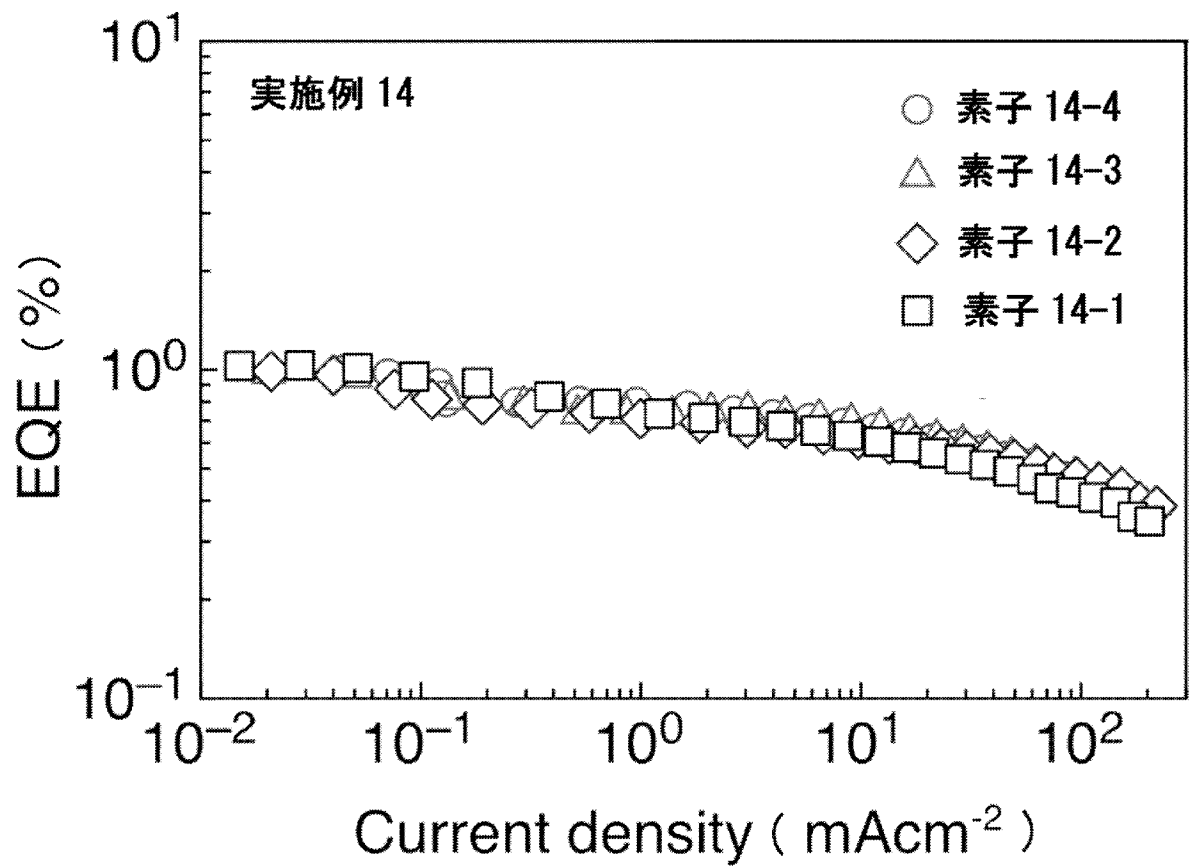
[図1]



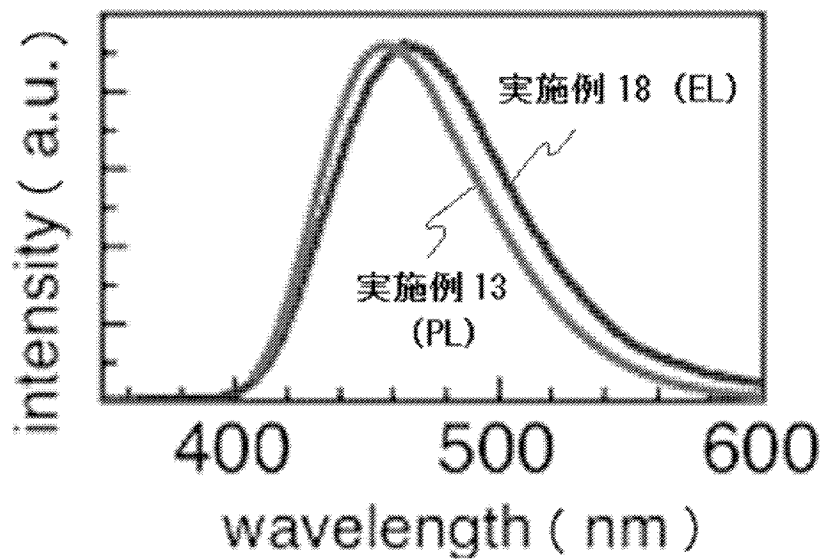
[図2]



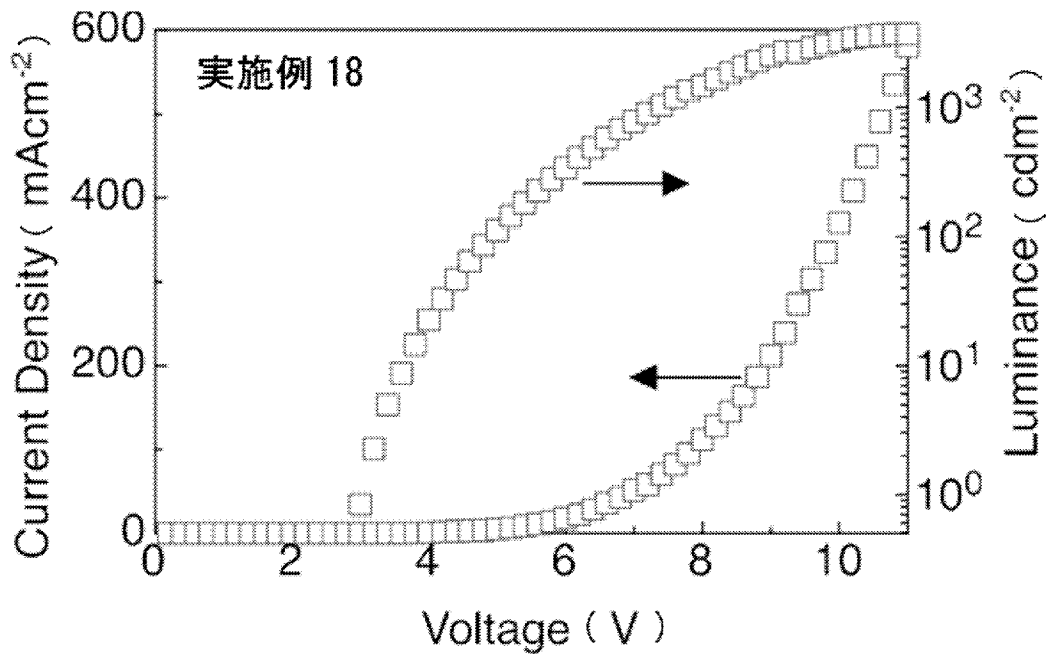
[図3]



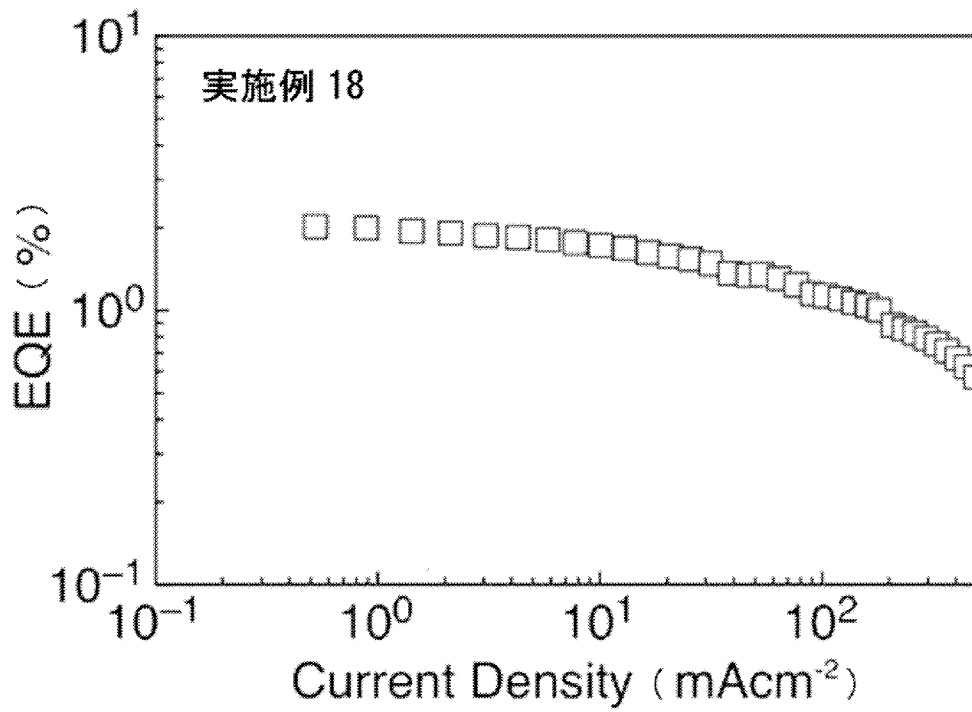
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/009762

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 H01L51/50(2006.01)i, C07D209/08(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)i,
 C07D219/02(2006.01)i, C07D241/46(2006.01)i, C07D265/38(2006.01)i,
 C07D401/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i
 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
 Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
 H01L51/50, C07D209/08, C07D209/86, C07D219/02, C07D241/46, C07D265/38,
 C07D401/10, C09K11/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
 Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2017
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2013-521238 A (Merck Patent GmbH), 10 June 2013 (10.06.2013), claims; paragraphs [0053], [0086], [0103] & US 2012/0319052 A1 claims; paragraph [0063], no.13, 25, 69, 88 to 89; paragraphs [0100], [0117] & WO 2011/107186 A2 & DE 102010009903 A & KR 10-2011-0099643 A & TW 201141847 A & CN 102782894 A	1-9, 11, 13, 15-17, 23-24 10, 12, 14, 18-22

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 22 May 2017 (22.05.17)	Date of mailing of the international search report 30 May 2017 (30.05.17)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/009762

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2004-091350 A (Canon Inc.), 25 March 2004 (25.03.2004), claims; paragraphs [0030] to [0031], [0048] to [0050], [0059], [0065], [0079], [0131] to [0138], [0149] to [0151], [0163] to [0166] & US 2006/0166034 A1 paragraphs [0035] to [0036], [0053],[0061], [0065], [0069], [0092] to [0098], [0108] to [0110], [0119] to [0122] & EP 2527318 A1 & AU 2003253443 A & WO 2004/020387 A1	1-11,13, 15-18,23-24 12,14,19-22
X A	JP 11-224779 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 17 August 1999 (17.08.1999), claims; paragraphs [0043], [0097] to [0098] (Family: none)	1-10,13-24 11-12
X A	KR 10-2014-0020208 A (DONGJIN SEMICHEM CO., LTD.), 18 February 2014 (18.02.2014), claims; paragraphs [0007], [0017], [0051], [0159] (Family: none)	1-11,13, 15-24 12,14
X A	KR 10-2010-0132109 A (ELM CO., LTD.), 17 December 2010 (17.12.2010), paragraph [47] (Family: none)	24 1-23

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07D209/08(2006.01)i, C07D209/86(2006.01)i, C07D219/02(2006.01)i, C07D241/46(2006.01)i, C07D265/38(2006.01)i, C07D401/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50, C07D209/08, C07D209/86, C07D219/02, C07D241/46, C07D265/38, C07D401/10, C09K11/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2013-521238 A (メルク パテント ゲーエムベーハー) 2013.06.10, [特許請求の範囲], 段落[0053], [0086], [0103]	1-9, 11, 13, 15-17, 23-24
A	& US 2012/0319052 A1 Claims, [0063]Nos. 13, 25, 69, 88-89, [0100], [0117] & WO 2011/107186 A2 & DE 102010009903 A & KR 10-2011-0099643 A & TW 201141847 A & CN 102782894 A	10, 12, 14, 18-22
X	JP 2004-091350 A (キヤノン株式会社) 2004.03.25,	1-11, 13,

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 22.05.2017	国際調査報告の発送日 30.05.2017
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 横川 美穂 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	[特許請求の範囲], 段落[0030]-[0031], [0048]-[0050], [0059], [0065], [0079], [0131]-[0138], [0149]-[0151], [0163]-[0166] & US 2006/0166034 A1 [0035]-[0036], [0053], [0061], [0065], [0069], [0092]-[0098], [0108]-[0110], [0119]-[0122] & EP 2527318 A1 & AU 2003253443 A & WO 2004/020387 A1	15-18, 23-24 12, 14, 19-22
X A	JP 11-224779 A (三井化学株式会社) 1999. 08. 17, [特許請求の範囲], 段落[0043], [0097]-[0098] (ファミリーなし)	1-10, 13-24 11-12
X A	KR 10-2014-0020208 A (DONGJIN SEMICHEM CO., LTD.) 2014. 02. 18, [特許請求の範囲], 段落[0007], [0017], [0051], [0159] (ファミリーなし)	1-11, 13, 15-24 12, 14
X A	KR 10-2010-0132109 A (ELM CO., LTD.) 2010. 12. 17, 段落[47] (ファミリーなし)	24 1-23