(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
2015 年 5 月 21 日(21.05.2015)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2015/072470 A1

(51) 国際特許分類:
C09K 11/06 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C07D 403/14 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2014/079914

(22) 国際出願日: 2014 年 11 月 12 日(12.11.2014)

(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 2013-234434 2013 年 11 月 12 日(12.11.2013) 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).

(72) 発明者: 田中 啓之(TANAKA Hiroyuki); 〒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). 野田 大貴(NODA Hiroki); 〒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). 志津 功將(SHIZU Katsuyuki); 〒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). 種田 将嗣(TANEDA Masatsugu); 〒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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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).

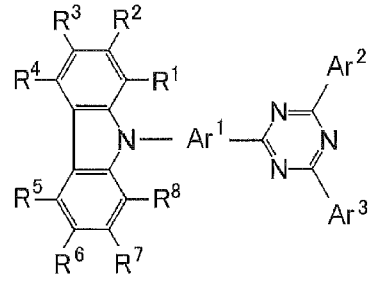
添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: LIGHT-EMITTING MATERIAL, AND LONG-PERSISTENT PHOSPHOR AND ORGANIC LIGHT-EMITTING ELEMENT EACH PRODUCED USING SAME

(54) 発明の名称 : 発光材料、並びに、これを用いた遅延蛍光体および有機発光素子

一般式（１）



(57) **Abstract**: A light-emitting material comprising a compound represented by general formula (1) can have excellent external quantum efficiency when used in an organic light-emitting element. R^1 to R^8 independently represent a hydrogen atom or a substituent, wherein at least one of R^1 to R^8 represents a substituted or an unsubstituted carbazolyl group; and Ar^1 to Ar^3 independently represent a substituted or an unsubstituted aromatic or heteroaromatic ring.

(57) 要約: 一般式（１）で表される化合物からなる発光材料は、有機発光素子に用いた際に優れた外部量子効率を達成できる。Ｒ[1]～Ｒ[8]は水素原子または置換基を表すが、Ｒ[1]～Ｒ[8]の少なくとも１つは置換もしくは無置換のカルバゾリル基であり、Ａｒ[1]～Ａｒ[3]は置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。

WO 2015/072470 A1

明　細　書

発明の名称 ：

発光材料、並びに、これを用いた遅延蛍光体および有機発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、有用な発光材料を用いた遅延蛍光体および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、トリアジン環とカルバゾール環とを含む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。

[0003] 例えば特許文献１および特許文献２には、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、リン光材料と共にカルバゾール環を含む化合物をリン光発光材料のホスト材料用いることが開示されている。前記文献中には、カルバゾール環を含む化合物として更にトリアジン環を含む化合物が例示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開ＷＯ２０１１／１３２６８３号公報

特許文献2：国際公開ＷＯ２０１２／０７７９０２号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] このように、特許文献１および２にはトリアジン環とカルバゾール環とを含む化合物を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として用いることが記載されている。しかしながら、特許文献１および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具体的に記載されていない。発光材料とホスト材料は機能が異なることから、特許文献１および２に記載される化合物の発光材料としての有用性は不明である。

[0006] このような状況下において本発明者らは、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、発光材料又は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。

そこで本発明は、有機発光素子に用いた際に優れた外部量子効率を達成できる発光材料、並びにこれを用いた遅延蛍光体及び有機発光素子を提供することを目的とする。

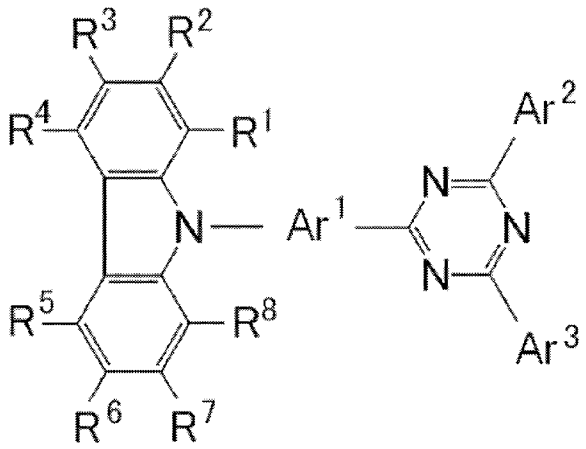
課題を解決するための手段

[0007] 鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、特定の構造を有する化合物群が発光材料として優れた性質を有することを見出した。また、そのような化合物群の中に、遅延蛍光材料として有用なものがあることを見出し、発光効率が高い有機発光素子を安価に提供しうることを明らかにした。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

[0008] ［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）



（上式において、R^1～R^8は各々独立に水素原子または置換基を表すが、R^1～R^8の少なくとも１つは置換もしくは無置換のカルバゾリル基である。Ａｒ^1～Ａｒ^{3}は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。）

［２］前記一般式（１）のR^3およびR^6の少なくとも一つが置換もしくは無置換のカルバゾリル基である［１］の発光材料。

［３］前記カルバゾリル基が、１－カルバゾリル基、２－カルバゾリル基、３－カルバゾリル基または４－カルバゾリル基である［１］または［２］に記載の発光材料。

［４］前記カルバゾリル基が、カルバゾール環構造中の窒素原子に置換基を有する［１］～［３］のいずれか一つの発光材料。。

［５］前記一般式（１）のＡｒ^1、Ａｒ^{2}およびＡｒ^{3}の少なくとも一つが、ベンゼン環またはナフタレン環である［１］～［４］のいずれか一つの発光材料。

[0009] ［６］前記一般式（１）のＡｒ^1、Ａｒ^{2}およびＡｒ^{3}が同一の芳香環または複素芳香環である［１］～［５］のいずれか一つの発光材料。

［７］前記一般式（１）のＡｒ^1、Ａｒ^{2}およびＡｒ^{3}がベンゼン環である［１］～［６］のいずれか一つの発光材料。

[0010] ［８］［１］～［７］のいずれか一つの記載の化合物からなる遅延蛍光体。

［９］［８］に記載の発光材料を含む発光層を基板上に有することを特徴とする有機発光素子。

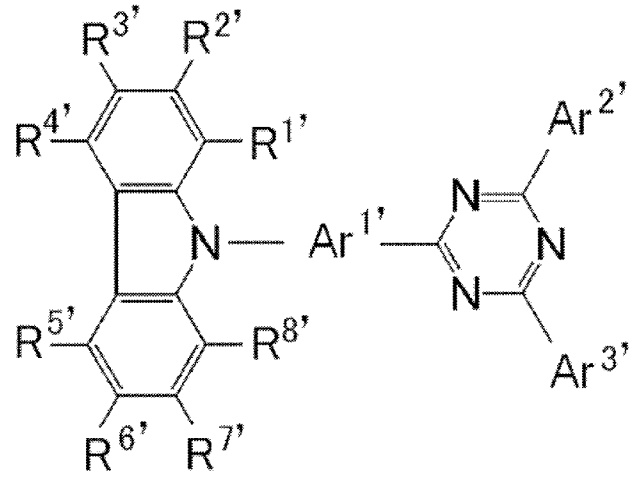
［１０］遅延蛍光を放射することを特徴とする［９］に記載の有機発光素子。

［１１］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［９］または［１０］に記載の有機発光素子。

［１２］下記一般式（1’）で表される化合物。

[化2]

一般式（１’）



（上式において、Ｒ$^{1'}$～Ｒ$^{8'}$は各々独立に水素原子または置換基を表すが、Ｒ$^{1'}$～Ｒ$^{8'}$の少なくとも１つは置換もしくは無置換の１－カルバゾリル基、置換もしくは無置換の２－カルバゾリル基、置換もしくは無置換の３－カルバゾリル基、または置換もしくは無置換の４－カルバゾリル基である。ただし、これらのカルバゾリル基の９位は無置換である。Ａｒ$^{1'}$～Ａｒ$^{3'}$は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。）

［１３］前記一般式（１’）のＲ$^{1'}$～Ｒ$^{8'}$の少なくとも１つが置換もしくは無置換の３－カルバゾリル基であることを特徴とする［１２］に記載の化合物。

発明の効果

[0011] 本発明における化合物は、発光材料として有用である。また、本発明における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。本発明における化合物を発光材料または遅延蛍光体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

[0012] [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のトルエン溶液の発光スペクトルである。

[図3]実施例１のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

[図4]実施例２のトルエン溶液の発光スペクトルである。

[図5]比較例１のトルエン溶液の発光スペクトルである。

[図6]比較例１のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

[図7]実施例３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8]実施例３の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

[図9]実施例４の有機エレクトロミネッセンス素子の発光スペクトルである。

[図10]実施例４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

[0013] 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^{1}Ｈであってもよいし、一部または全部が^{2}Ｈ（デューテリウムＤ）であってもよい。

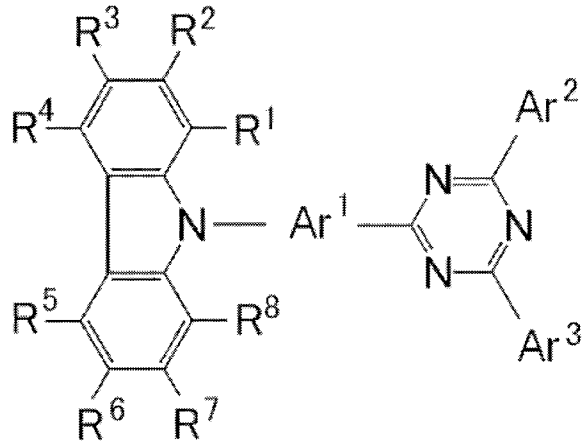
[0014] ［一般式（１）で表される化合物］

本発明における化合物は、下記一般式（１）で表される構造を有する。

[0015]

[化3]

一般式（１）



[0016] 一般式（１）において、Ｒ[1]～Ｒ[8]は各々独立に水素原子または置換基を表すが、Ｒ[1]～Ｒ[8]の少なくとも１つは置換もしくは無置換のカルバゾリル基である。Ａｒ[1]～Ａｒ[3]は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。

[0017] 一般式（１）で表される化合物は、Ｒ[1]～Ｒ[8]を含んで構成されるカルバゾール環部と、Ａｒ[1]を介して当該カルバゾール環部と結合するＡｒ[1]～Ａｒ[3]を含んで構成されるトリアジン環部とで構成される。

Ｒ[1]～Ｒ[8]を含んで構成されるカルバゾール環部において、当該Ｒ[1]～Ｒ[8]で表される置換基としては、例えばヒドロキシ基、ハロゲン原子、炭素数１～２０のアルキル基、炭素数１～２０のアルコキシ基、炭素数１～２０のアルキルチオ基、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１～１０のハロアルキル基、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、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である。さらに好ましい置換基は、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。

[0018] R^1とR^2、R^2とR^3、R^3とR^4、R^4とR^5、R^5とR^6、R^6とR^7、R^7とR^8、各々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ことができる。

[0019] 一般式（１）中、R^1～R^8の少なくとも１つは置換もしくは無置換のカルバゾリル基である。一般式（１）で表される化合物は、R^1～R^8の二以上がカルバゾリル基であってもよい。R^1～R^8として一般式（１）で表される化合物に結合しているカルバゾリル基の数は、１～６であることが好ましく、１～４であることがより好ましく、例えば１または２を選択することができる。一般式（１）においてR^1～R^8のいずれの部位がカルバゾリル基であってもよいが、R^3およびR^6の少なくとも一つがカルバゾリル基であることが好ましい。前記カルバゾリル基上において一般式（１）で表される化合物と結合する部位は特に限定はないが、前記カルバゾリル基としては、カルバゾール環の１～４位の位置で一般式（１）と結合する１－カルバゾリル基、２－カルバゾリル基、３－カルバゾリル基または４－カルバゾリル基であることが好ましく、中でもカルバゾール環の３位の位置で一般式（１）と結合する３－カル

バゾリル基であることがより好ましい。尚、カルバゾール環の６位の位置で一般式（１）で表される化合物と結合する６－カルバゾリル基は前記３－カルバゾリル基と同じとみなす。

[0020] 一般式（１）におけるR^1～R^8として結合するカルバゾリル基は置換基で置換されていてもよい。置換基の数は特に制限されず、置換基は存在していなくてもよい。また、２つ以上の置換基が存在するときは、それらの置換基は互いに同一であっても異なっていてもよい。前記置換基としては、上述のR^1～R^8で表される置換基と同様の例が挙げられ、好ましい例も同様であるが、例えば、フェニル基、または、２，４，６－トリフェニル－１，３，５－トリアジン環を有する基およびヘキサヒドロ－１，３，５－トリフェニル－１，３，５－トリアジン環を有する基等のトリフェニルトリアジン環を有する基であってもよい。前記カルバゾリル基の置換基の結合されている部位は特に限定はないが、置換基を有する場合、前記カルバゾリル基はカルバゾール環構造中の窒素原子に置換基を有することが好ましい。

[0021] 一般式（１）において、Ar^1～Ar^3を含んで構成されるトリアジン環部において、Ar^1、Ar^2およびAr^3は置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。前記芳香環または複素芳香環は、単環であっても縮合環であってもよい。前記芳香環または複素芳香環の、環構成炭素数は６～２０であることが好ましく、６～１２であることがより好ましく、６～１０であることがさらに好ましい。Ar^1、Ar^2およびAr^3で表される芳香環または複素芳香環は、同一の前記芳香環または複素芳香環であってもよいし、異なる芳香環または複素芳香環であってもよい。また、Ar^1、Ar^2およびAr^3は、置換基で置換されていてもよい。置換基の数は特に制限されず、置換基は存在していなくてもよい。また、２つ以上の置換基が存在するときは、それらの置換基は互いに同一であっても異なっていてもよい。

一般式（１）において、Ar^1、Ar^2およびAr^3は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環、置換もしくは無置換の複素芳香環、またはこれらのいずれか２つが連結した連結基を表す。前記２つが連結した連結基には、２つの同

じ芳香環が結合した基、２つの互いに異なる芳香環が結合した基、２つの同じ複素芳香環が結合した基、２つの互いに異なる複素芳香環が結合した基、芳香環と複素芳香環が結合した基が含まれる。

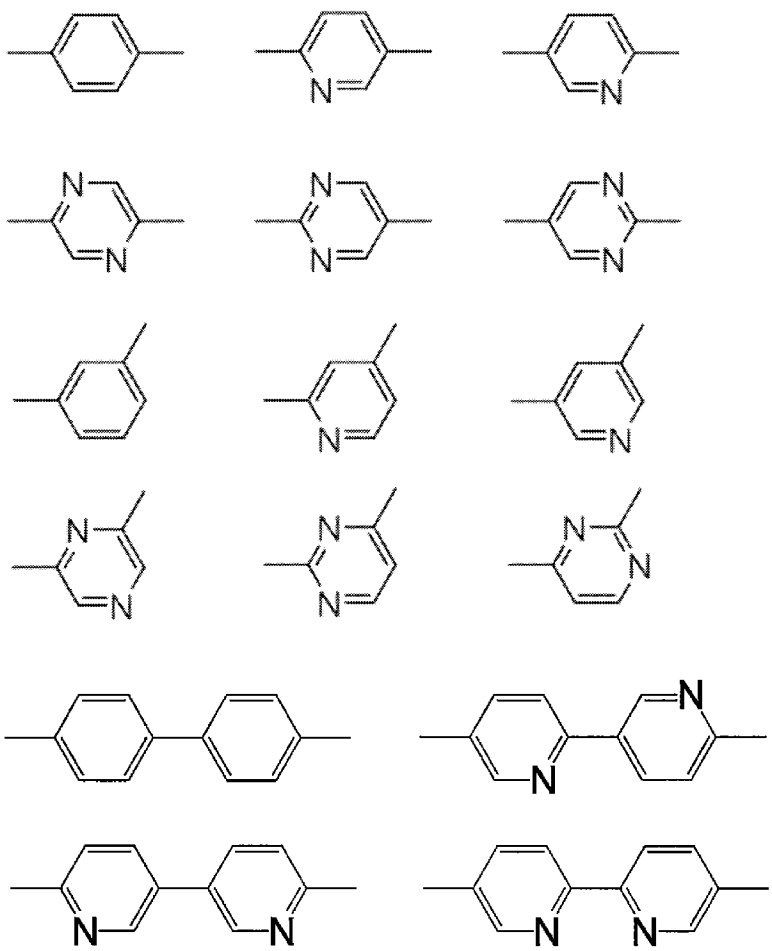
[0022] Ar^1、Ar^2およびAr^3がとりうる芳香環は、上述の通り、単環の芳香環であっても、縮合環の芳香環であってもよい。前記芳香環としては、ベンゼン環、ナフタレン環が好ましく、ベンゼン環がより好ましい。具体例として、１，２－フェニレン基、１，３－フェニレン基、１，４－フェニレン基、１，２－ナフチレン基、１，３－ナフチレン基、１，４－ナフチレン基、１，５－ナフチレン基、１，８－ナフチレン基を挙げることができ、１，４－フェニレン基、１，４－ナフチレン基が好ましい。Ar^1、Ar^2およびAr^3がとりうる複素芳香環も、単環の複素芳香環であっても、縮合環の複素芳香環であってもよい。前記複素芳香環としては、環骨格構成原子として窒素原子を含むものが好ましく、窒素原子の数は１～４個が好ましく、１～３個がより好ましい。縮合環の複素芳香環にはベンゼン環とヘテロ環の縮合環も含まれる。複素芳香環を構成する環構造の例として、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ことができ、ピリジン環が好ましい。

[0023] Ar^1、Ar^2およびAr^3がとりうる芳香環および複素芳香環の連結位置は特に限定はなく、例えばAr^1の場合、その連結位置はオルト、メタ、パラのいずれでもあってもよい。

以下にAr^1の具体例（群１）を挙げる。群１に記載される各構造中の水素原子は置換基で置換されていてもよい。

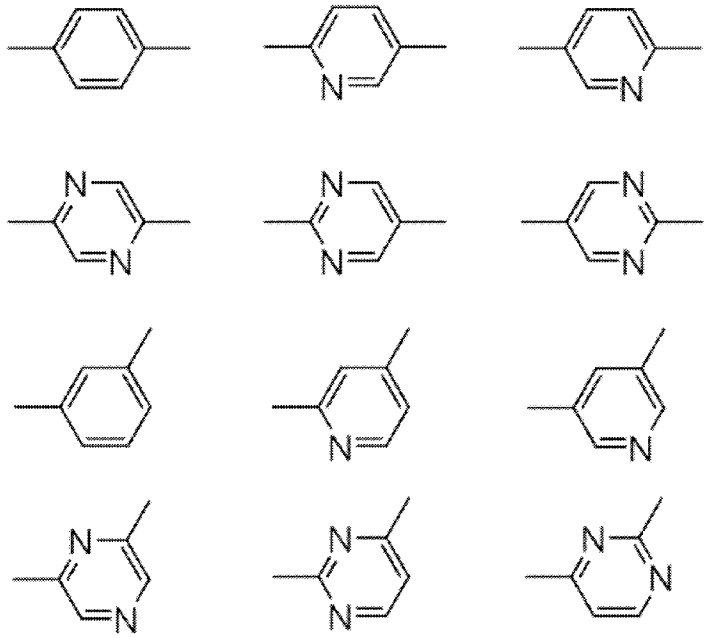
[化4]

（群１）



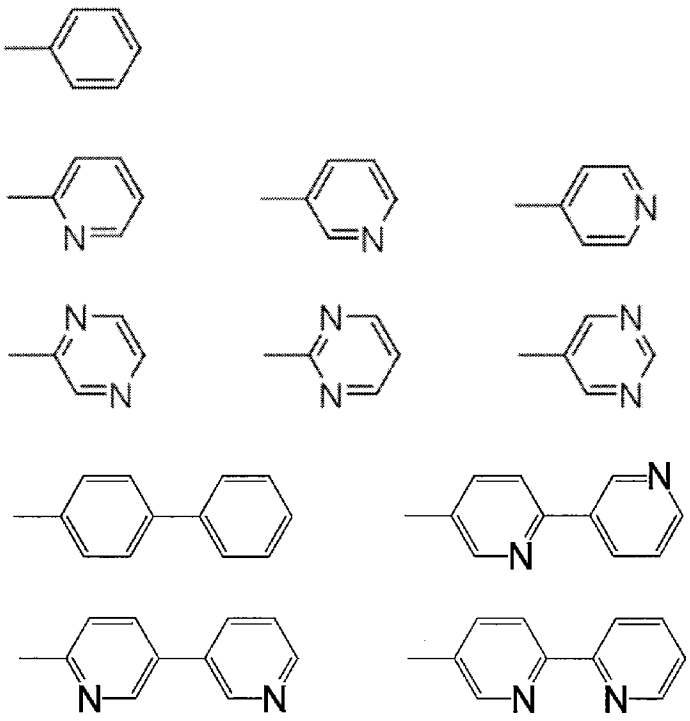
[0024] 上記群１の中でも好ましいのは、下記の群である。

[化5]



[0025] 以下にＡｒ^{2}およびＡｒ^{2}の具体例（群２）を挙げる。群２に記載される各構造中の水素原子は置換基で置換されていてもよい。

[0026] [化6]



[0027] 前記芳香環または複素芳香環が置換基を有する場合、当該置換基としては、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１２～４０のジアリールアミノ基、炭素数１２～４０の置換もしくは無置換のカルバゾリル基、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１２～４０の置換もしくは無置換のジアリールアミノ基、炭素数１２～４０の置換もしくは無置換のカルバゾリル基である。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１～１０の置換もしくは無置換のジアルキルアミノ基、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。

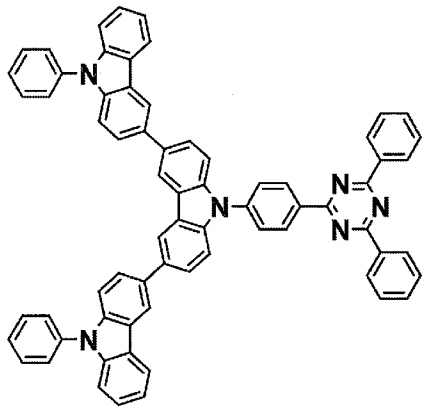
[0028] 尚、本明細書でいうアルキル基は、直鎖状、分枝状、環状のいずれであってもよく、より好ましくは炭素数１～６であり、具体例としてメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、tert－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、イソプロピル基を挙げることができる。アルコキシ基は、直鎖状、分枝状、環状のいずれであってもよく、より好ましくは炭素数１～６であり、具体例としてメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、tert－ブト

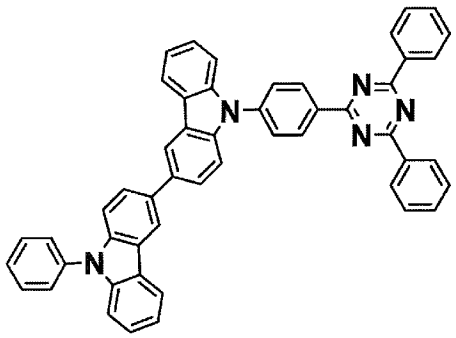
キシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、イソプロピポキシ基を挙げることができる。アリール基は、単環でも融合環でもよく、具体例としてフェニル基、ナフチル基を挙げることができる。ヘテロアリール基も、単環でも融合環でもよく、具体例としてピリジル基、ピリダジル基、ピリミジル基、トリアジル基、トリアゾリル基、ベンゾトリアゾリル基を挙げることができる。トリアルキルシリル基もしくはジアリールアミノ基などアルキル基もしくはアリール基を複数有する場合、２つのアルキル基もしくはアリール基は、互いに同一であっても異なっていてもよいが、同一であることが好ましい。一つの基がアルキル基を複数有する場合、当該アルキル基は、各々独立に直鎖状、分枝状、環状のいずれであってもよく、より好ましくは炭素数１～６であり、具体例としてメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、イソプロピル基を挙げることができる。

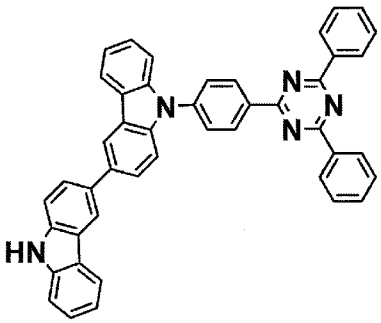
[0029] 以下において、一般式（１）で表される化合物の具体例を例示する。ただし、本発明において用いることができる一般式（１）で表される化合物はこれらの具体例によって限定的に解釈されるべきものではない。

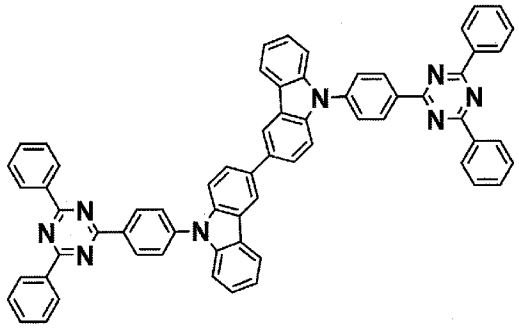
[0030]

[化7]

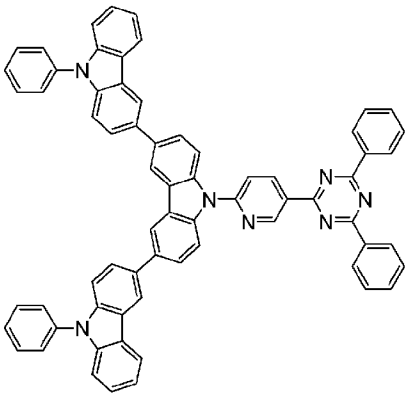


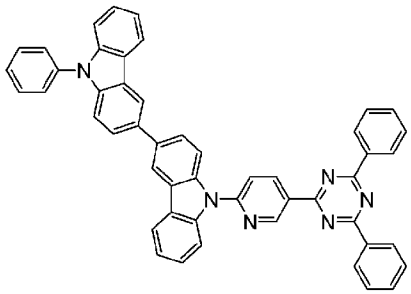


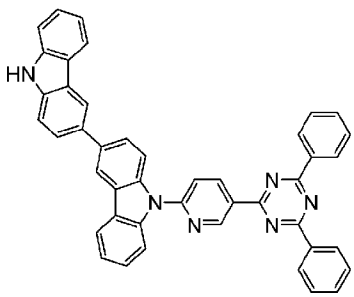


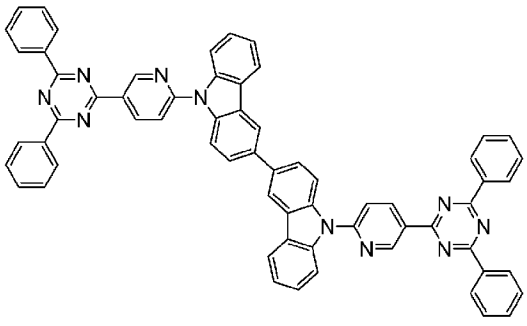


[0031] [化8]

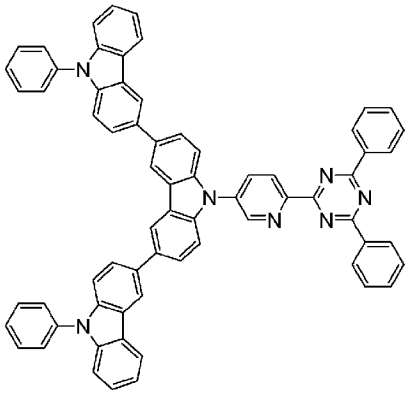


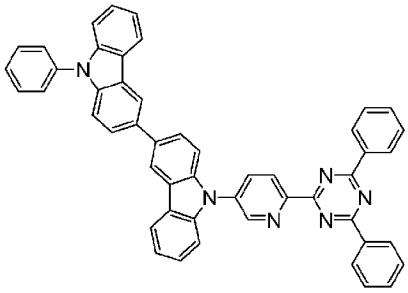


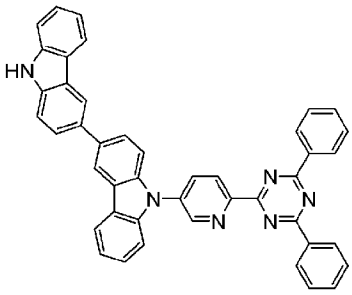


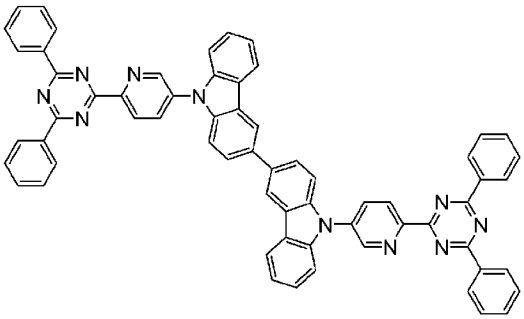


[0032] [化9]

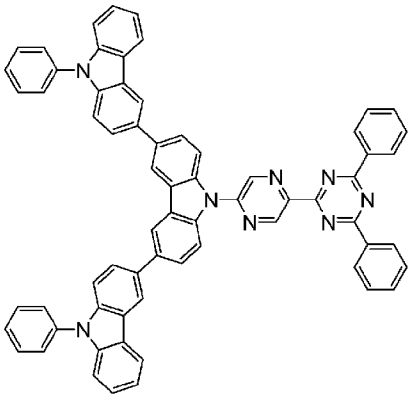


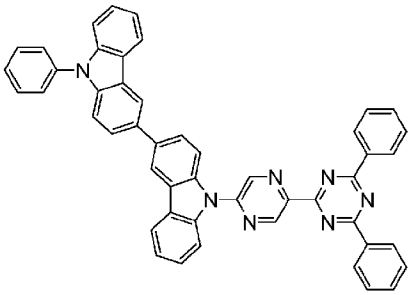


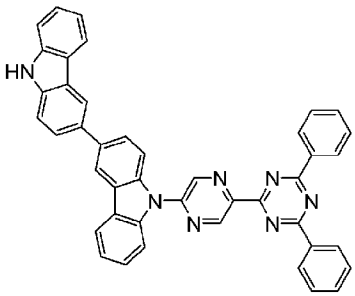


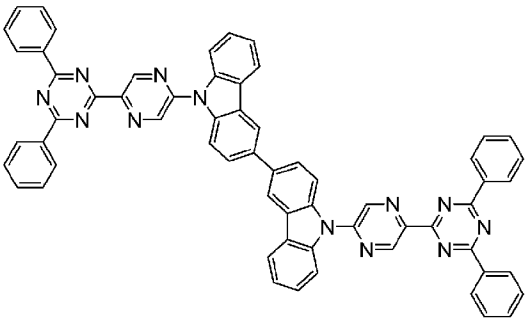


[0033] [化10]



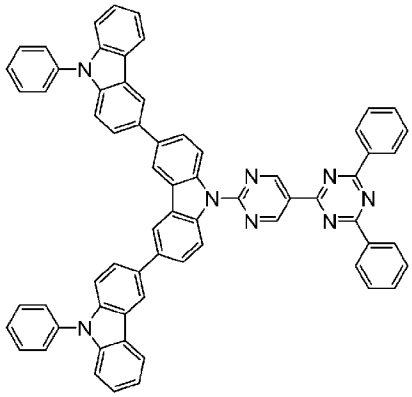


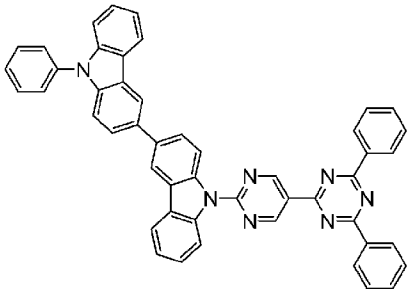


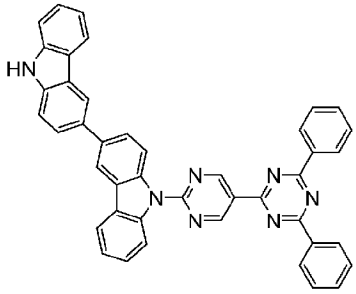


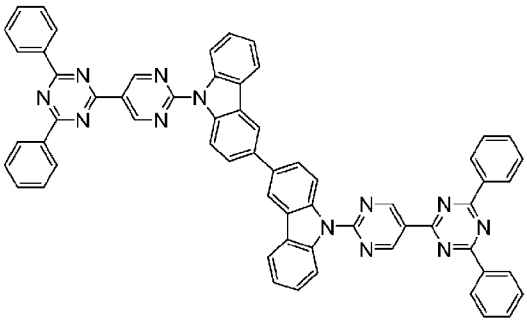
[0034]

[化11]

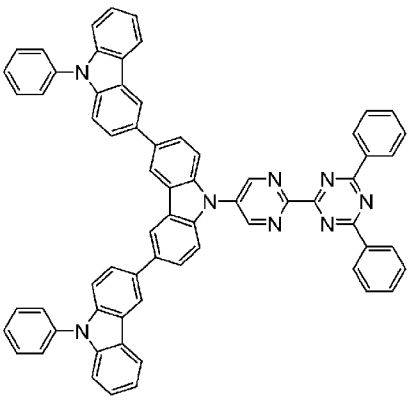


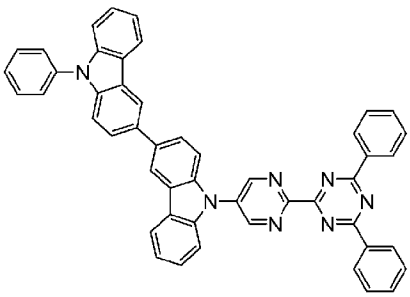


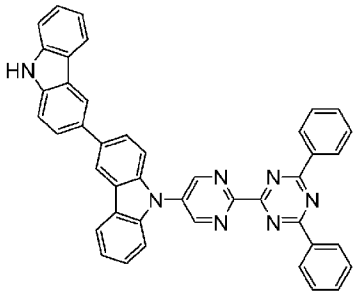


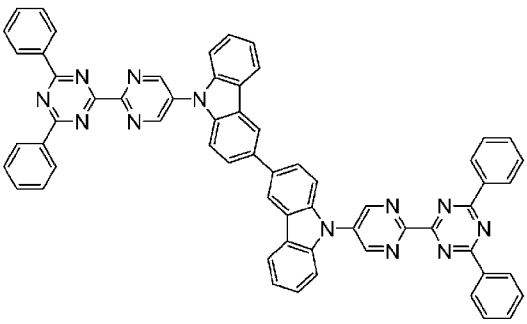


[0035] [化12]



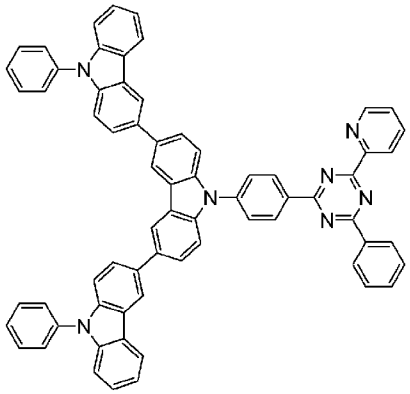


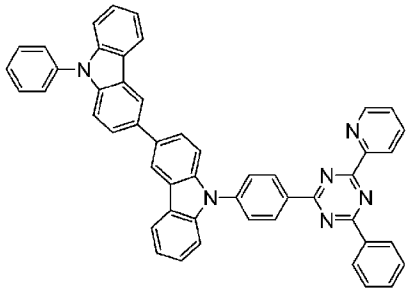


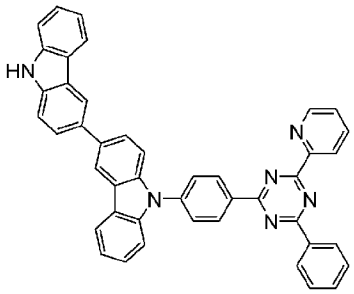


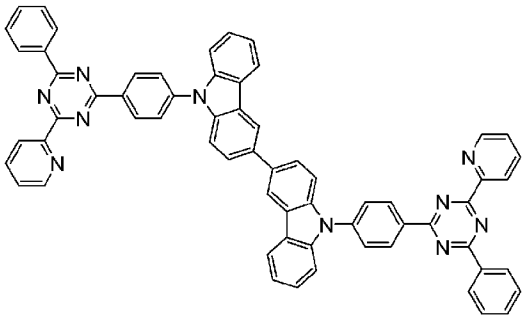
[0036]

[化13]

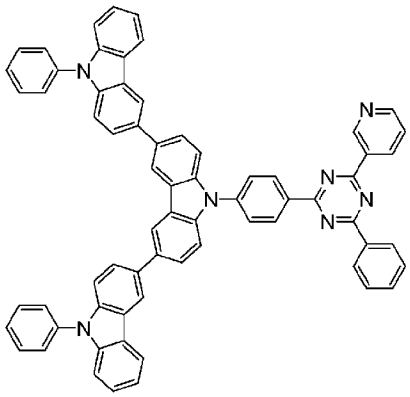


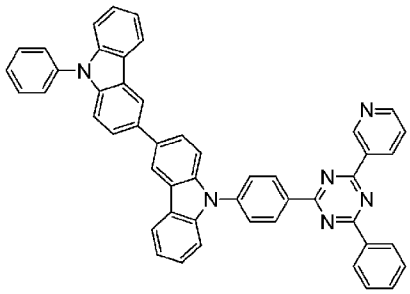


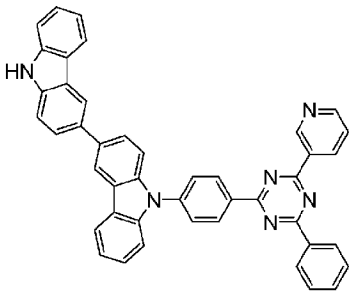


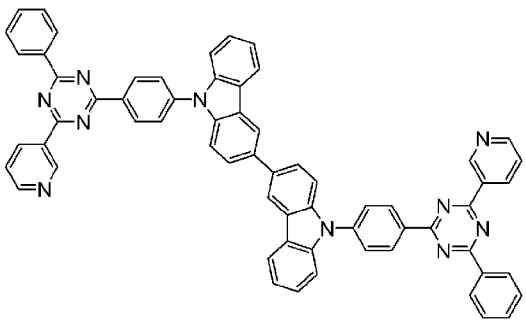


[0037] [化14]



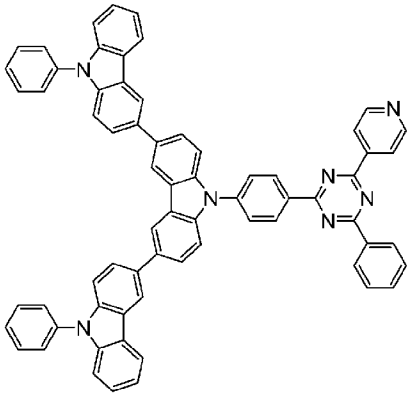


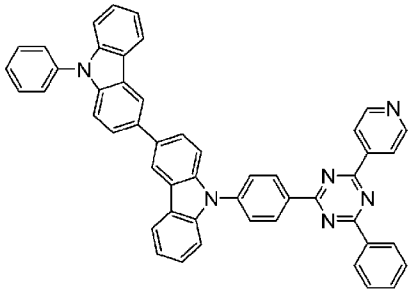


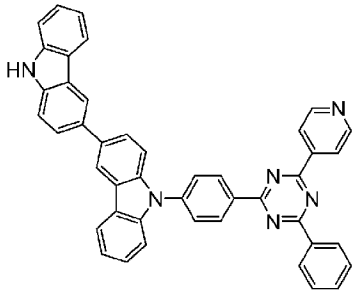


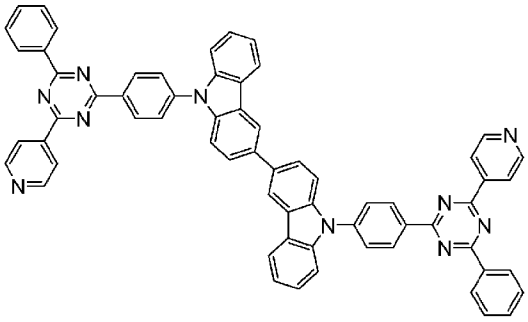
[0038]

[化15]

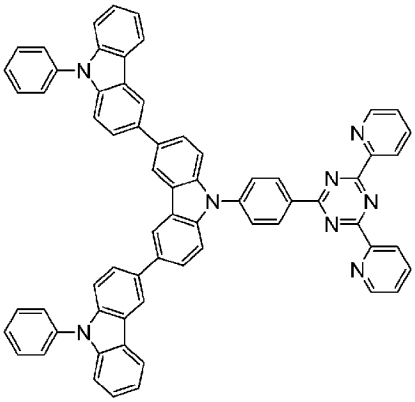


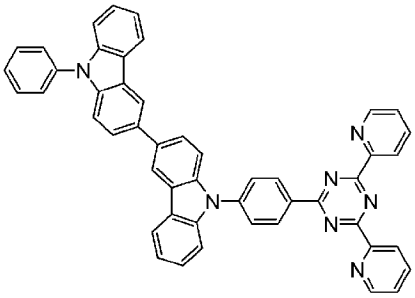


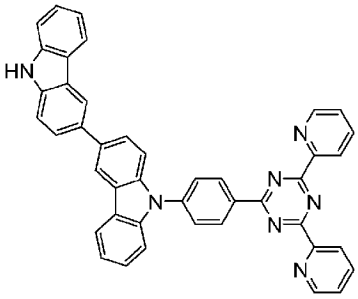


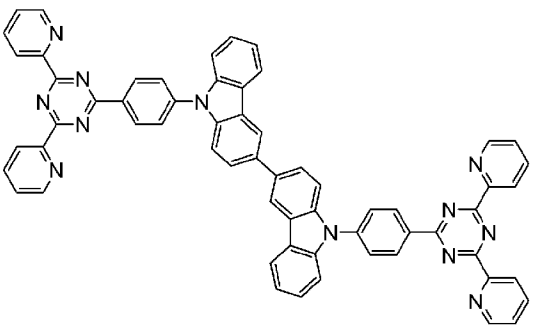


[0039] [化16]



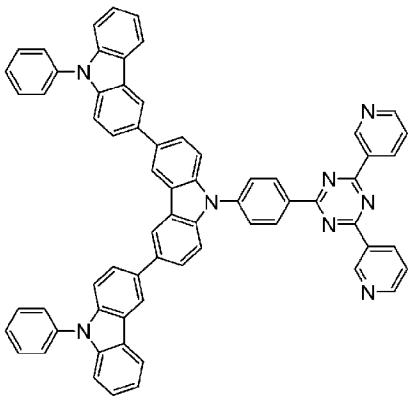


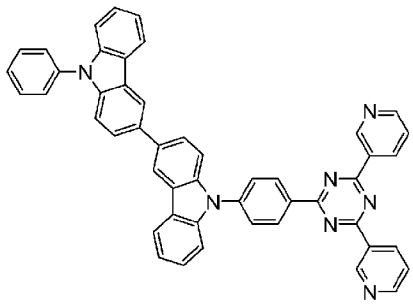


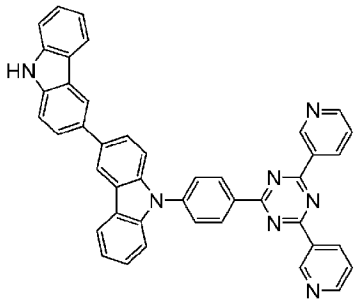


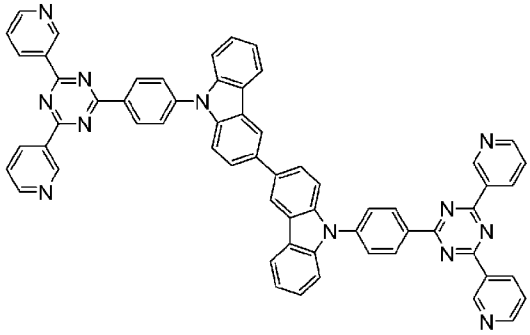
[0040]

[化17]

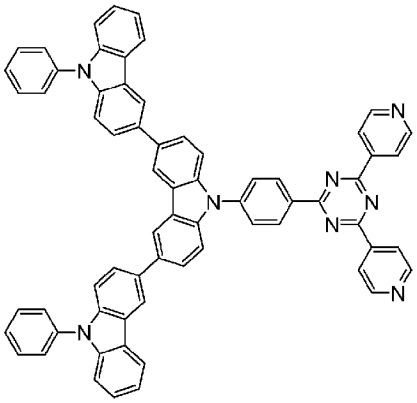


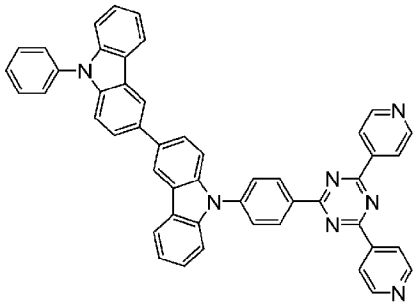


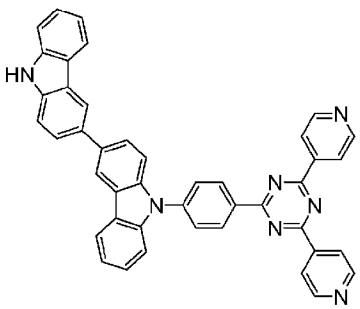


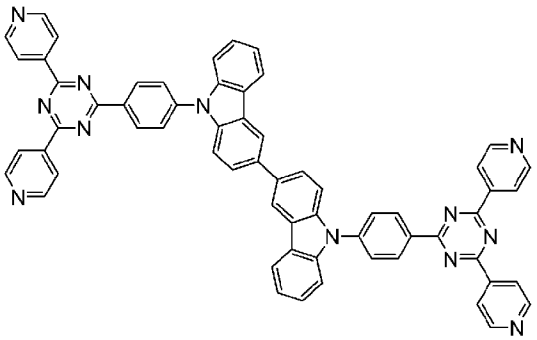


[0041] [化18]

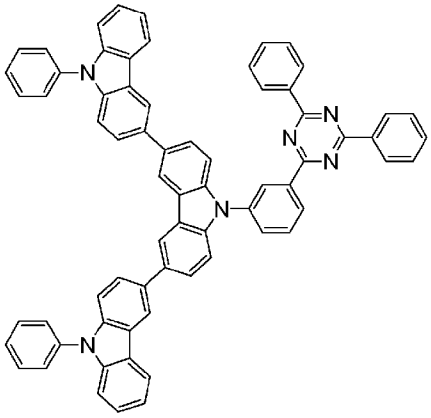


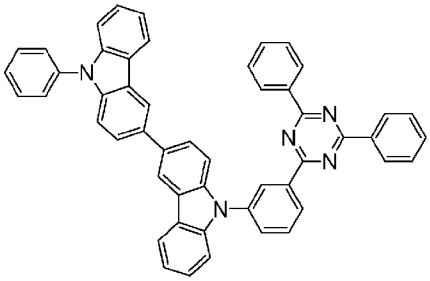


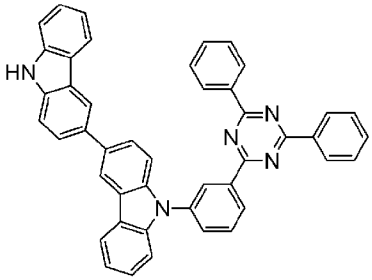


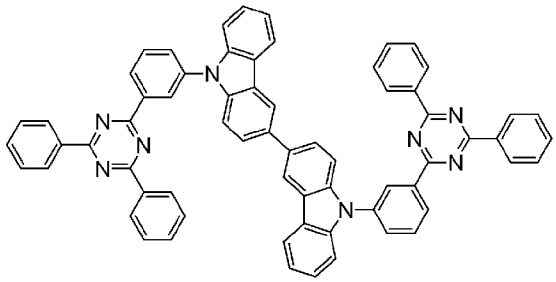


[0042] [化19]

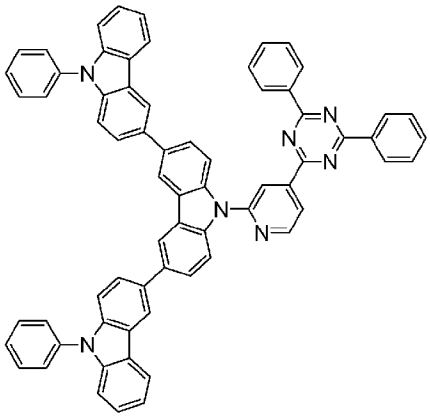


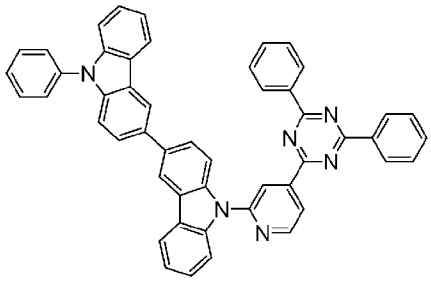


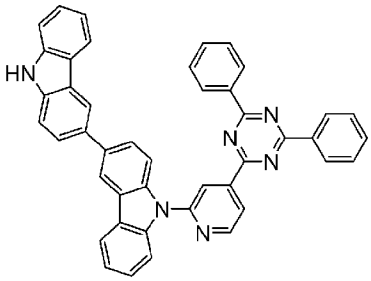


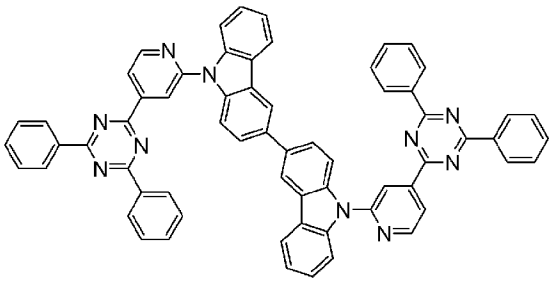


[0043] [化20]

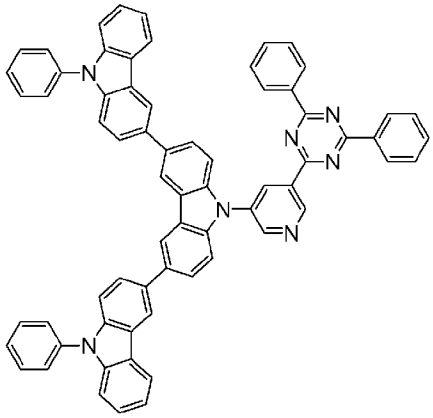


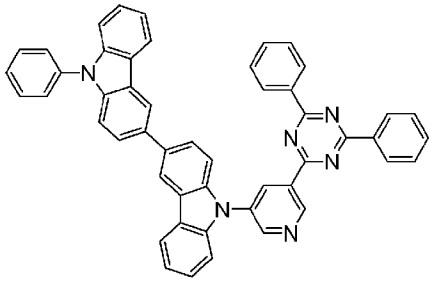


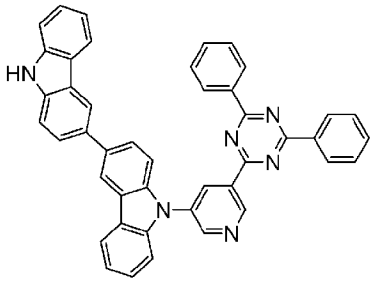


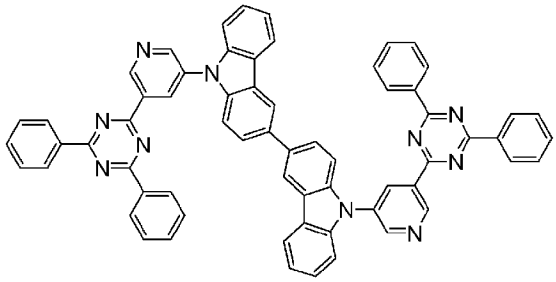


[0044] [化21]

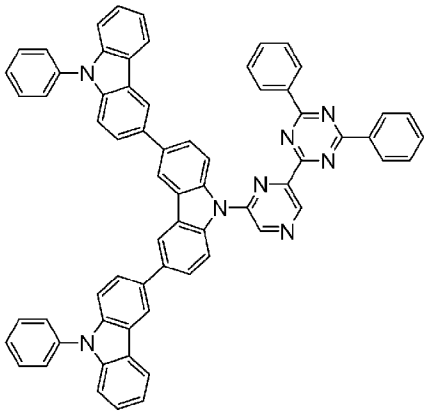


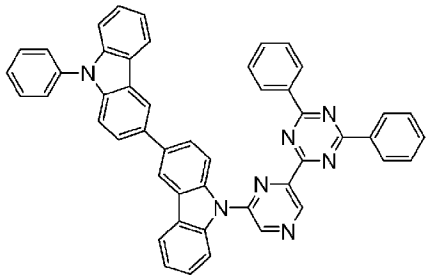


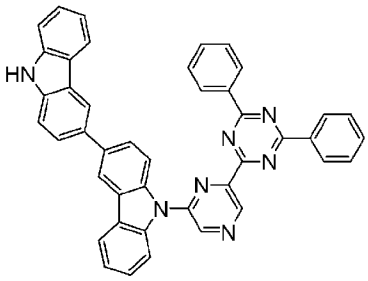


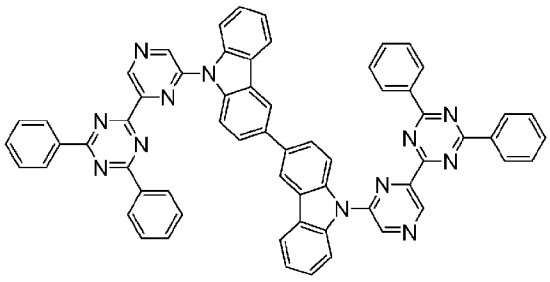


[0045] [化22]

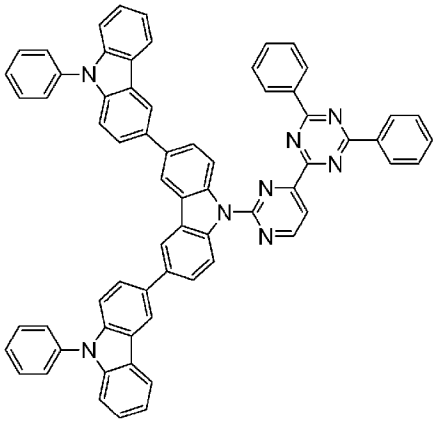


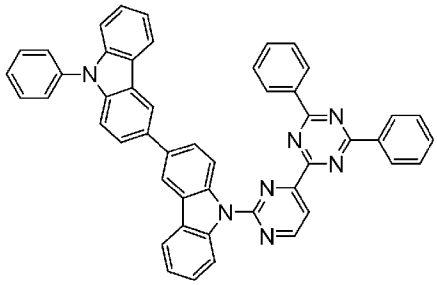


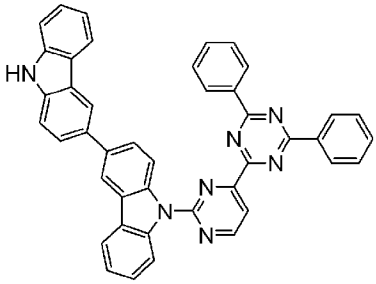


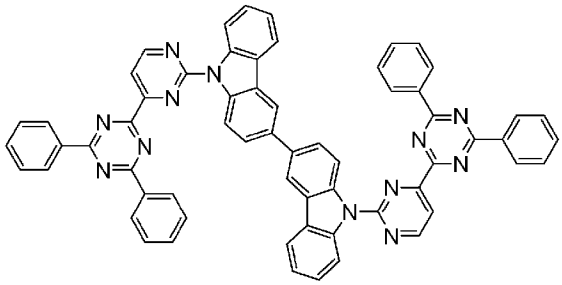


[0046] [化23]

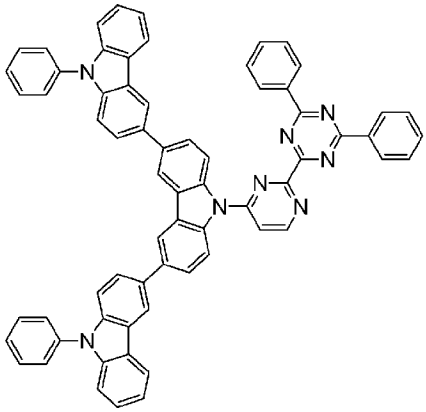


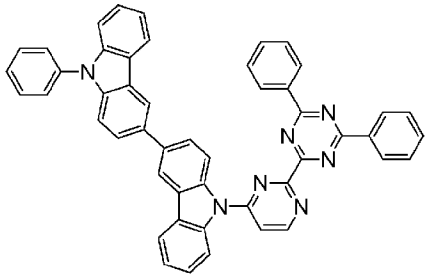


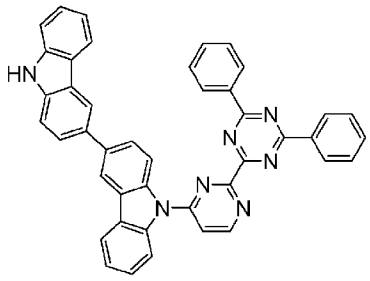


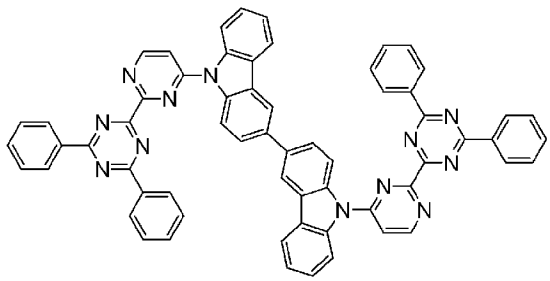


[0047] [化24]

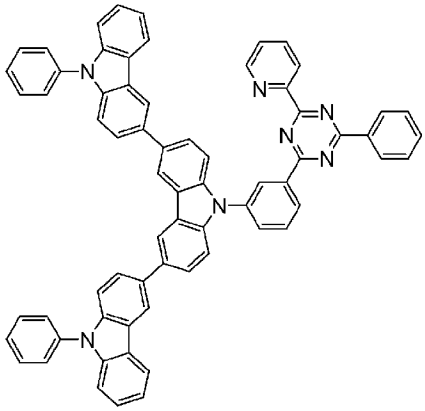


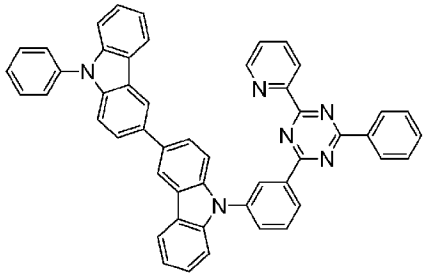


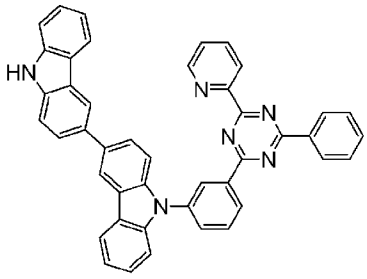


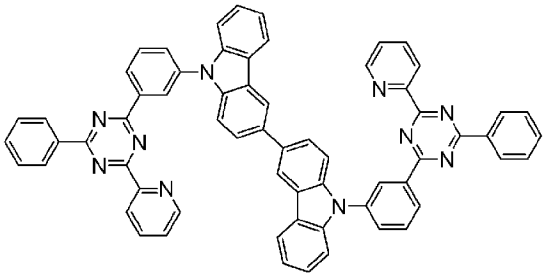


[0048] [化25]

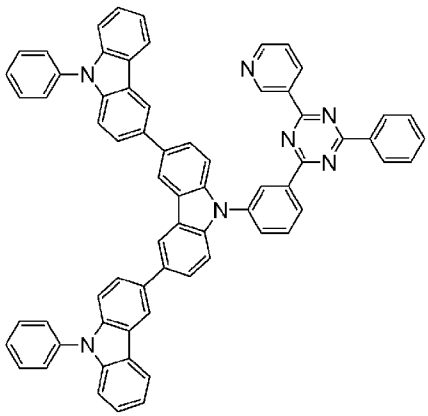


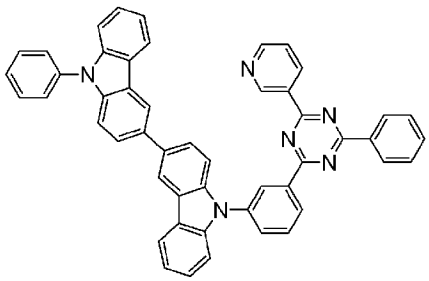


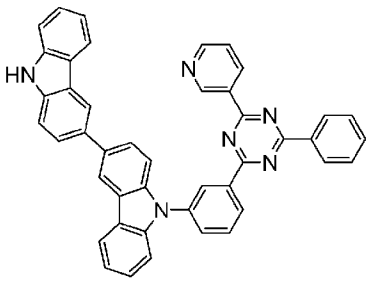


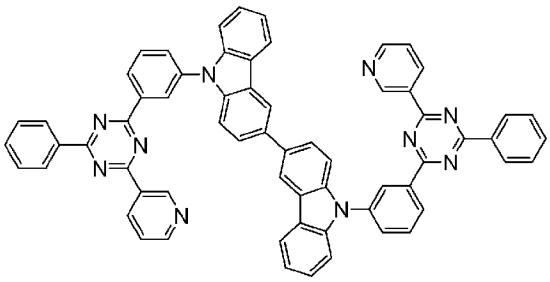


[0049] [化26]



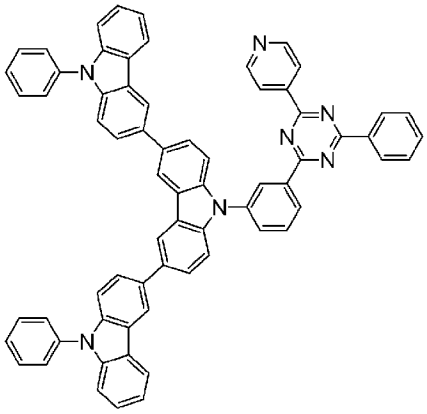


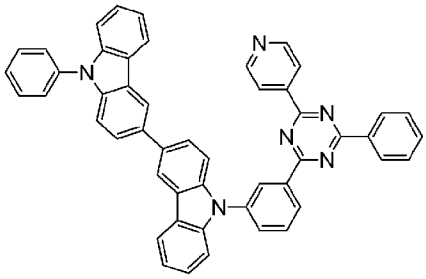


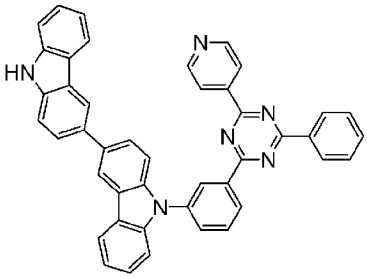


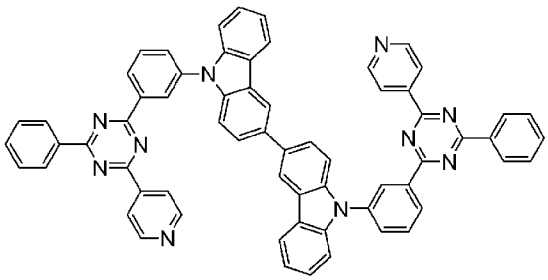
[0050]

[化27]

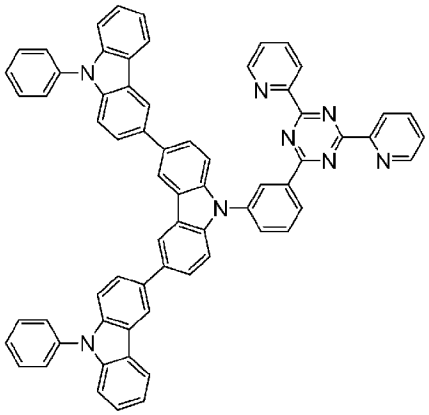


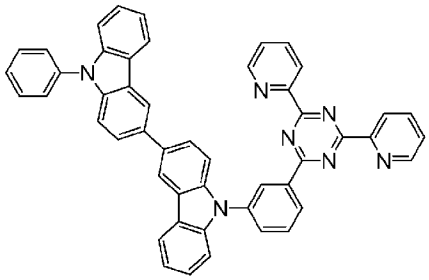


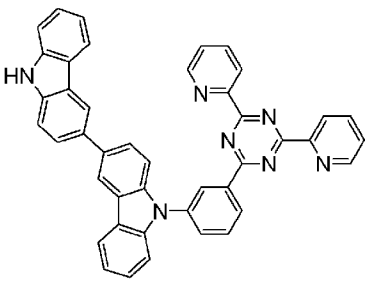


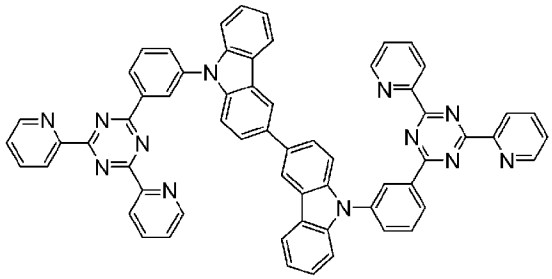


[0051] [化28]



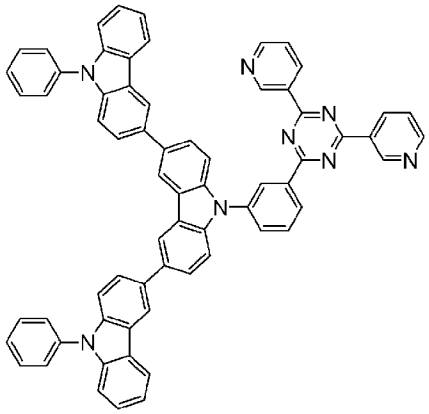
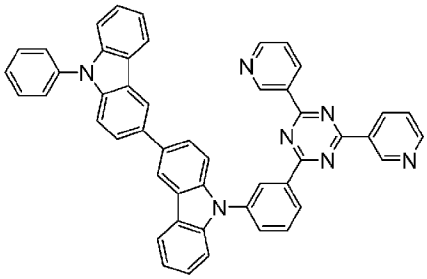
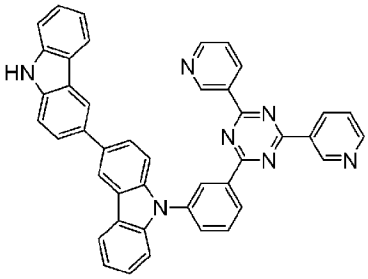
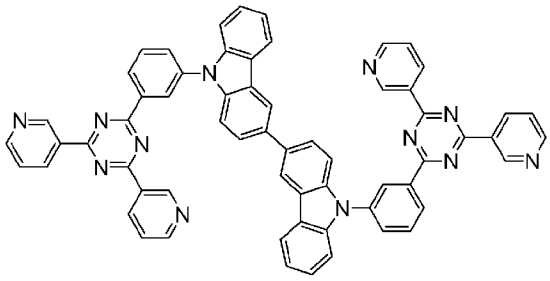




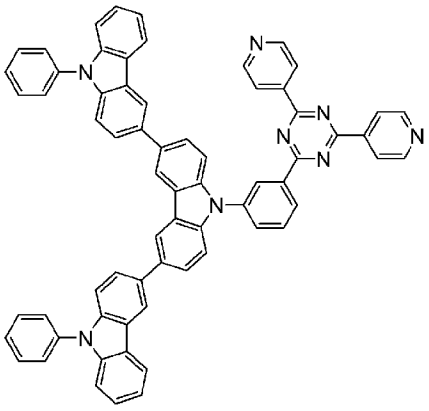
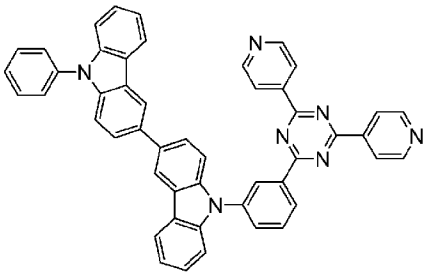
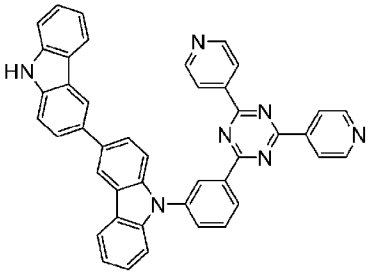
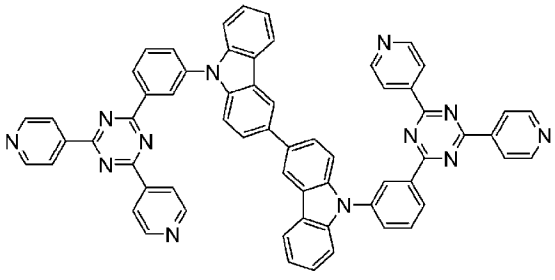


[0052]

[化29]

[0053] [化30]

[0054] 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より好ましい。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。

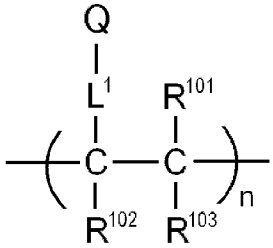
[0055] 本発明を応用して、分子内に一般式（１）で表される構造を複数個含む化合物を、発光材料として用いることも考えられる。

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Ａｒ[1]、Ａｒ[2]、Ａｒ[3]、Ｒ[1]～Ｒ[8]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。

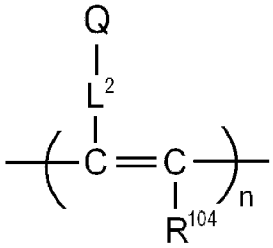
[0056] 一般式（１）で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式（２）または（３）で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

[0057] [化31]

一般式（２）



一般式（３）



[0058] 一般式（２）および（３）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（２）および（３）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。

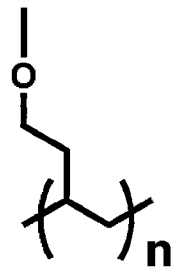
Ｌ[1]およびＬ[2]で表される連結基は、Ｑを構成する一般式（１）の構造のＡｒ[1]、Ａｒ[2]、Ａｒ[3]、Ｒ[1]～Ｒ[8]のいずれかに結合することができる。１つのＱに対して連結基が２つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

[0059] 繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式（４）～（７）で表される構造を挙げることができる。

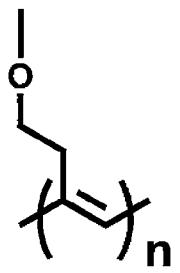
[0060]

[化32]

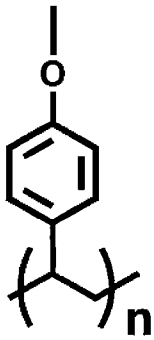
式（4）



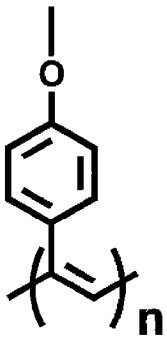
式（5）



式（6）

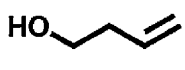


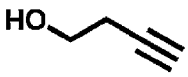
式（7）



[0061] これらの式（４）～（７）を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式（１）のＡｒ[1]、Ａｒ[2]、Ａｒ[3]、Ｒ[1]～Ｒ[8]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。

[0062] [化33]





[0063] 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

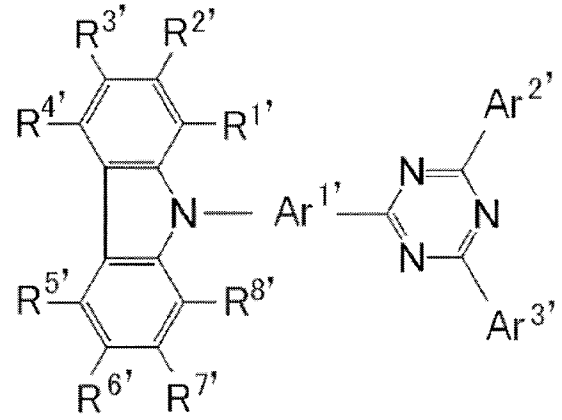
れ以外の構造を有する繰り返し単位を含む重合体であってもよい。また、重合体の中に含まれる一般式（１）で表される構造を有する繰り返し単位は、単一種であってもよいし、２種以上であってもよい。一般式（１）で表される構造を有さない繰り返し単位としては、通常の共重合に用いられるモノマーから誘導されるものを挙げることができる。例えば、エチレン、スチレンなどのエチレン性不飽和結合を有するモノマーから誘導される繰り返し単位を挙げることができる。

[0064] ［一般式（１’）で表される化合物］

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

[化34]

一般式（１’）



[0065] 一般式（１’）において、$R^{1'}$～$R^{8'}$は各々独立に水素原子または置換基を表すが、$R^{1'}$～$R^{8'}$の少なくとも１つは置換もしくは無置換の１－カルバゾリル基、置換もしくは無置換の２－カルバゾリル基、置換もしくは無置換の３－カルバゾリル基、または置換もしくは無置換の４－カルバゾリル基である。ただし、これらのカルバゾリル基の９位は無置換である。$Ar^{1'}$～$Ar^{3'}$は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。

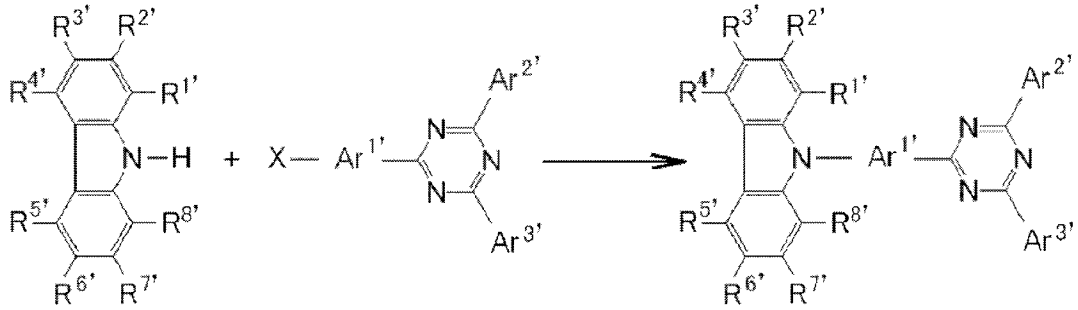
一般式（１’）における$R^{1'}$～$R^{8'}$がとりうる置換基と、カルバゾリル基がとりうる置換基については、一般式（１）におけるR^{1}～R^{8}とカルバゾリル基がとりうる置換基の説明と好ましい範囲をそれぞれ参照することができる。

また、一般式（１’）における$Ar^{1'}$～$Ar^{3'}$の説明と好ましい範囲については、一般式（１）におけるAr^{1}～Ar^{3}の説明と好ましい範囲を参照することができる。

一般式（１’）の$R^{1'}$～$R^{8'}$の少なくとも１つは、置換もしくは無置換の３－カルバゾリル基であることが好ましい。

[0066] 一般式（１’）で表される化合物は、既知の合成反応を組み合わせることによって合成することが可能である。例えば、以下の反応により一般式（１’）の化合物を合成することが可能である。ここで、Ｘはハロゲン原子を表し、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましく、例えば臭素原子を採用することができる。反応条件の詳細については、後述の合成例を参照することができる。

[0067] [化35]



[0068] 一般式（１’）で表される化合物を包含する一般式（１）で表される化合物も、既知の方法を適宜組み合わせることによって合成することができ、上述の公知文献（国際公開ＷＯ２０１１／１３２６８３号公報、国際公開ＷＯ２０１２／０７７９０２号公報）に記載の方法等を適宜応用することによって合成することもできる。

[0069] ［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のようになる。

[0070] 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、デバイスの熱で充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。

[0071] 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。

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。

[0072]（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。

[0073]（陽極）

有機エレクトロルミネッセンス素子における陽極としては、仕事関数の大きい（４ｅＶ以上）金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはＡｕ等の金属、ＣｕＩ、インジウムチンオキシド（ＩＴＯ）、SnO_2、ＺｎＯ等の導電性透明材料が挙げられる。また、ＩＤＩＸＯ（In_2O_3－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ー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（１００μｍ以上程度）、上記電極材料の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な材料を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を１０％より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω／□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常１０～１０００ｎｍ、好ましくは１０～２００ｎｍの範囲で選ばれる。

[0074]（陰極）

一方、陰極としては、仕事関数の小さい（４ｅＶ以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが用いられる。このような電極材料の具体例としては、ナトリウ

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

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。

[0075]（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）で表される本発明における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における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。

[0076]（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。

[0077]（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。

[0078] （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。

[0079] （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。

[0080] （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。

[0081] （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。

[0082] （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。

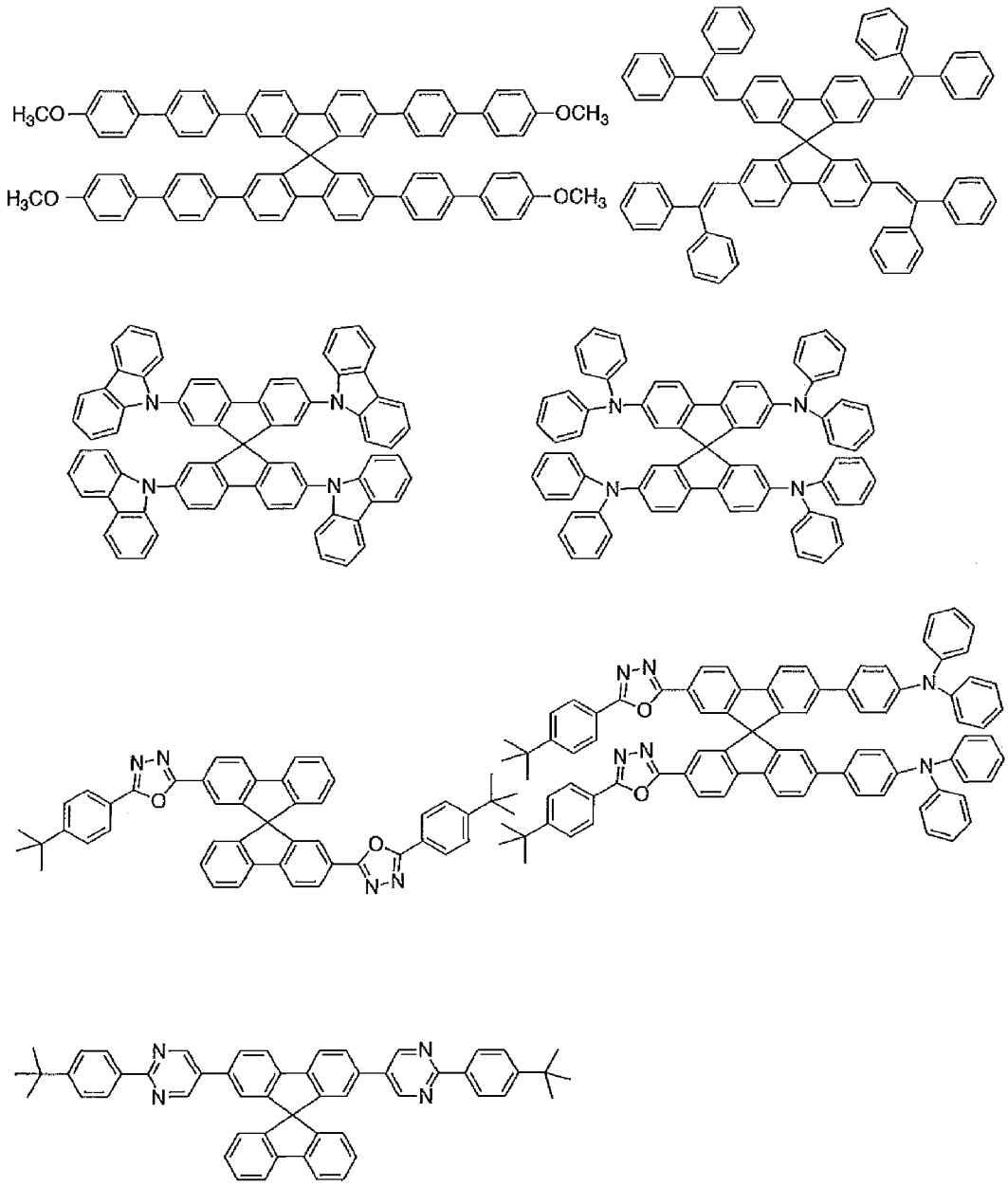
[0083] 有機エレクトロルミネッセンス素子を作製する際には、一般式（１）で表される化合物を発光層に用いるだけでなく、発光層以外の層にも用いてもよい。その際、発光層に用いる一般式（１）で表される化合物と、発光層以外の層に用いる一般式（１）で表される化合物は、同一であっても異なっていてもよい。例えば、上記の注入層、阻止層、正孔阻止層、電子阻止層、励起子阻止層、正孔輸送層、電子輸送層などにも一般式（１）で表される化合物を用いてもよい。これらの層の製膜方法は特に限定されず、ドライプロセス、ウェットプロセスのどちらで作製してもよい。

[0084] 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’、$Ｒ_{1}$～$Ｒ_{10}$は、各々独立に水素原子または置換基を表す。なお、以下の例示化合物の構造式におけるＲ、$Ｒ_{1}$～$Ｒ_{10}$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。

[0085] 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。

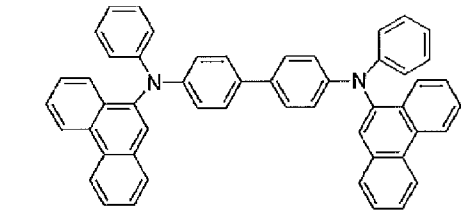
[0086]

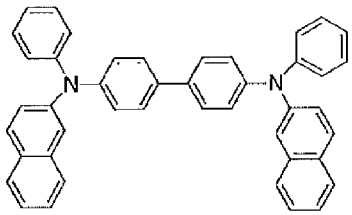
[化36]

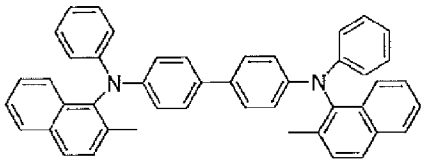


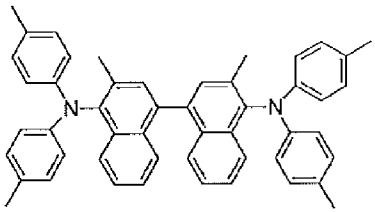
[0087]

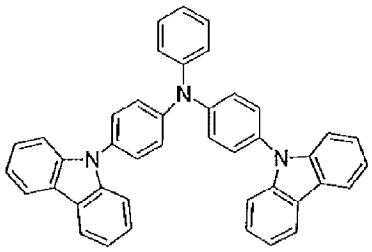
[化37]

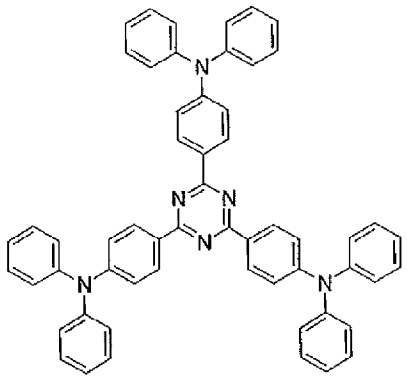


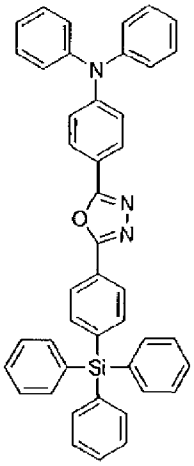


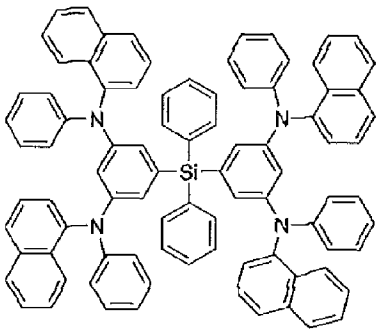


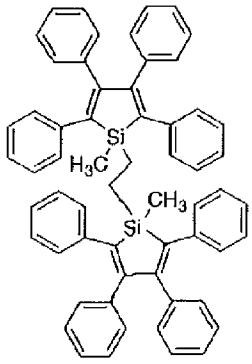


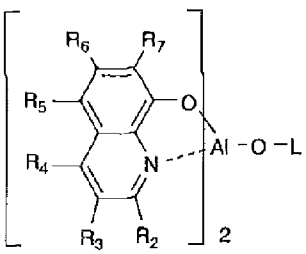


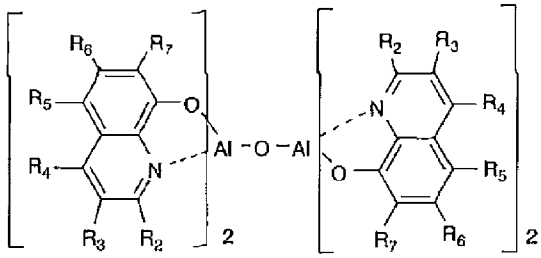




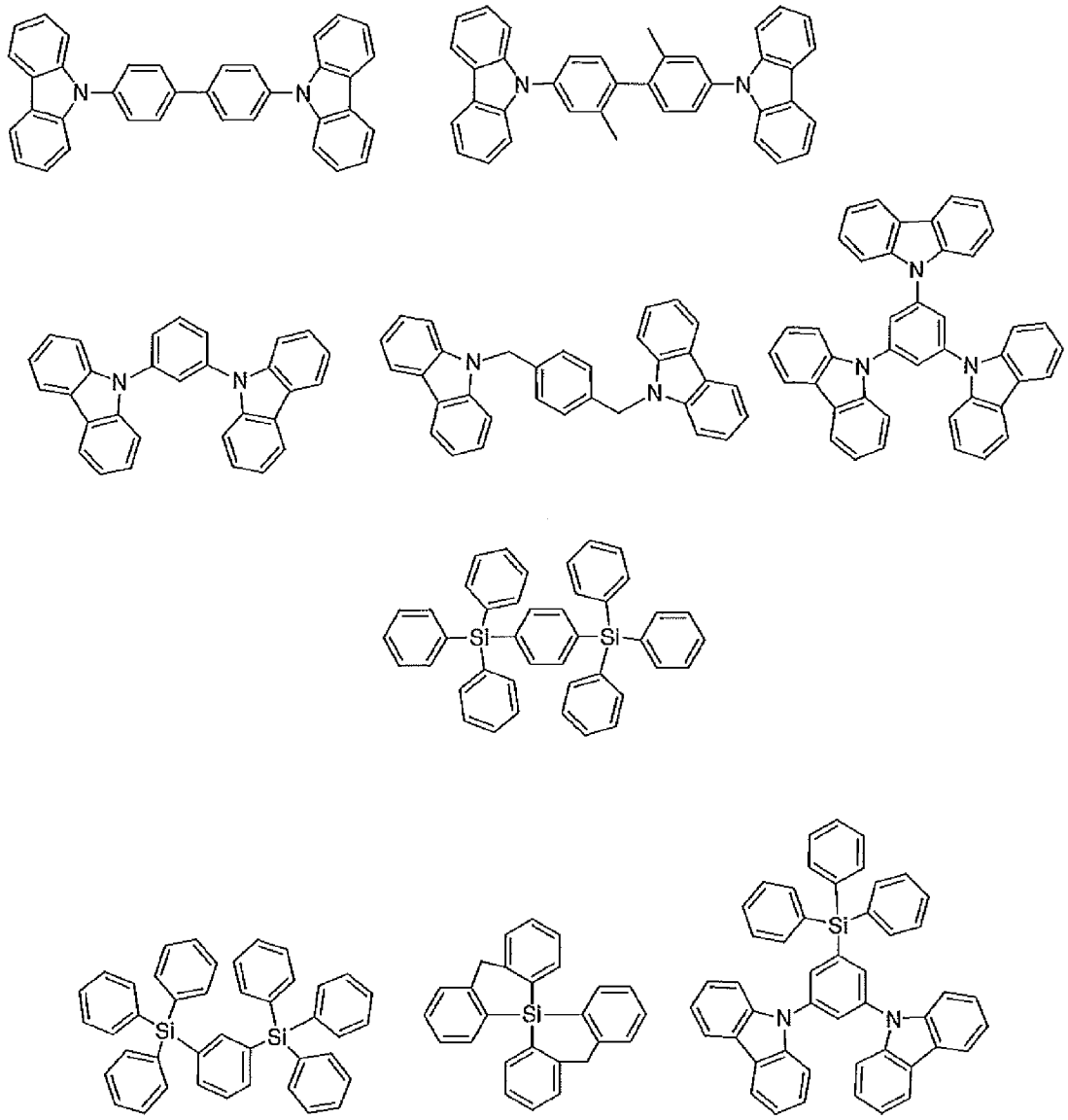






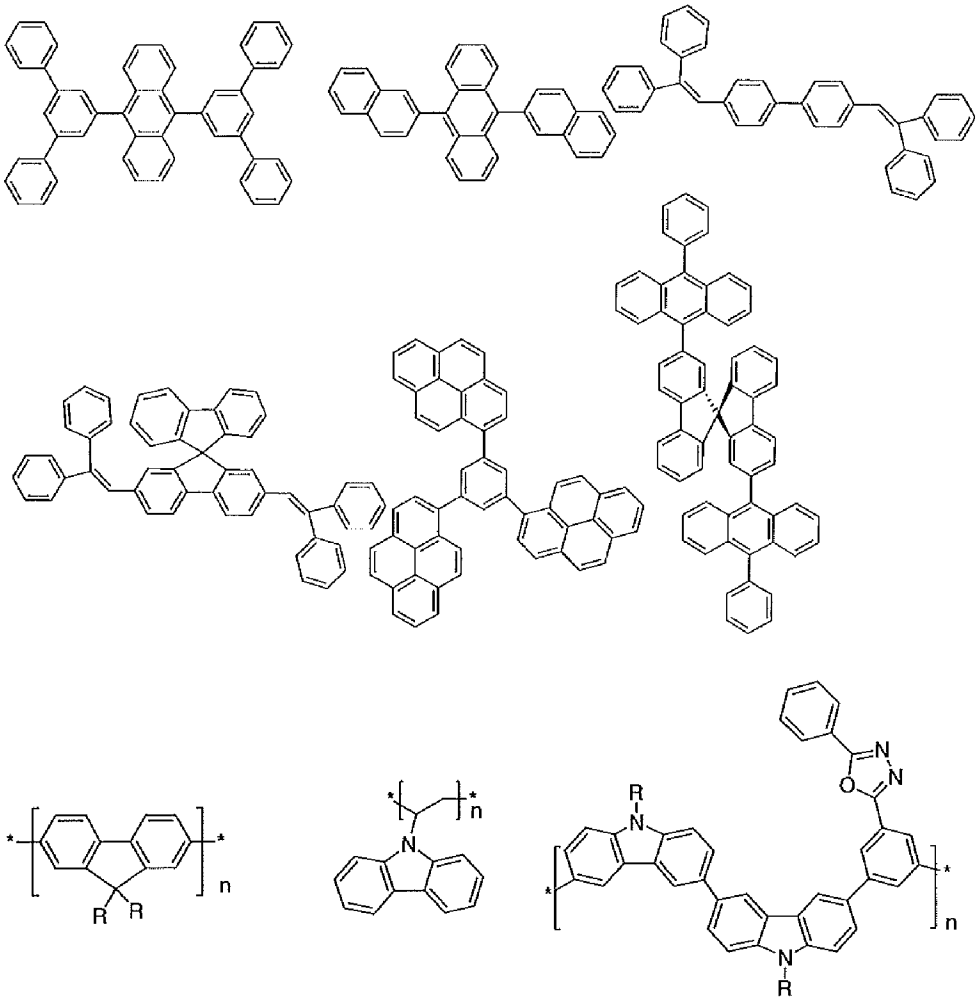


[0088] [化38]



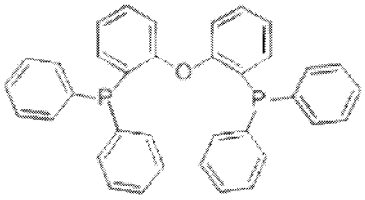
[0089]

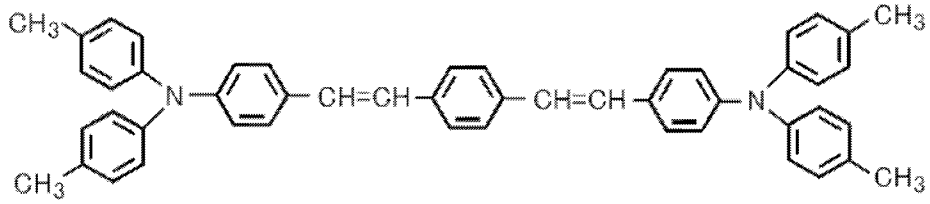
[化39]

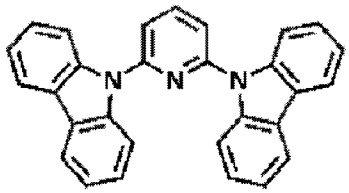


[0090]

[化40]



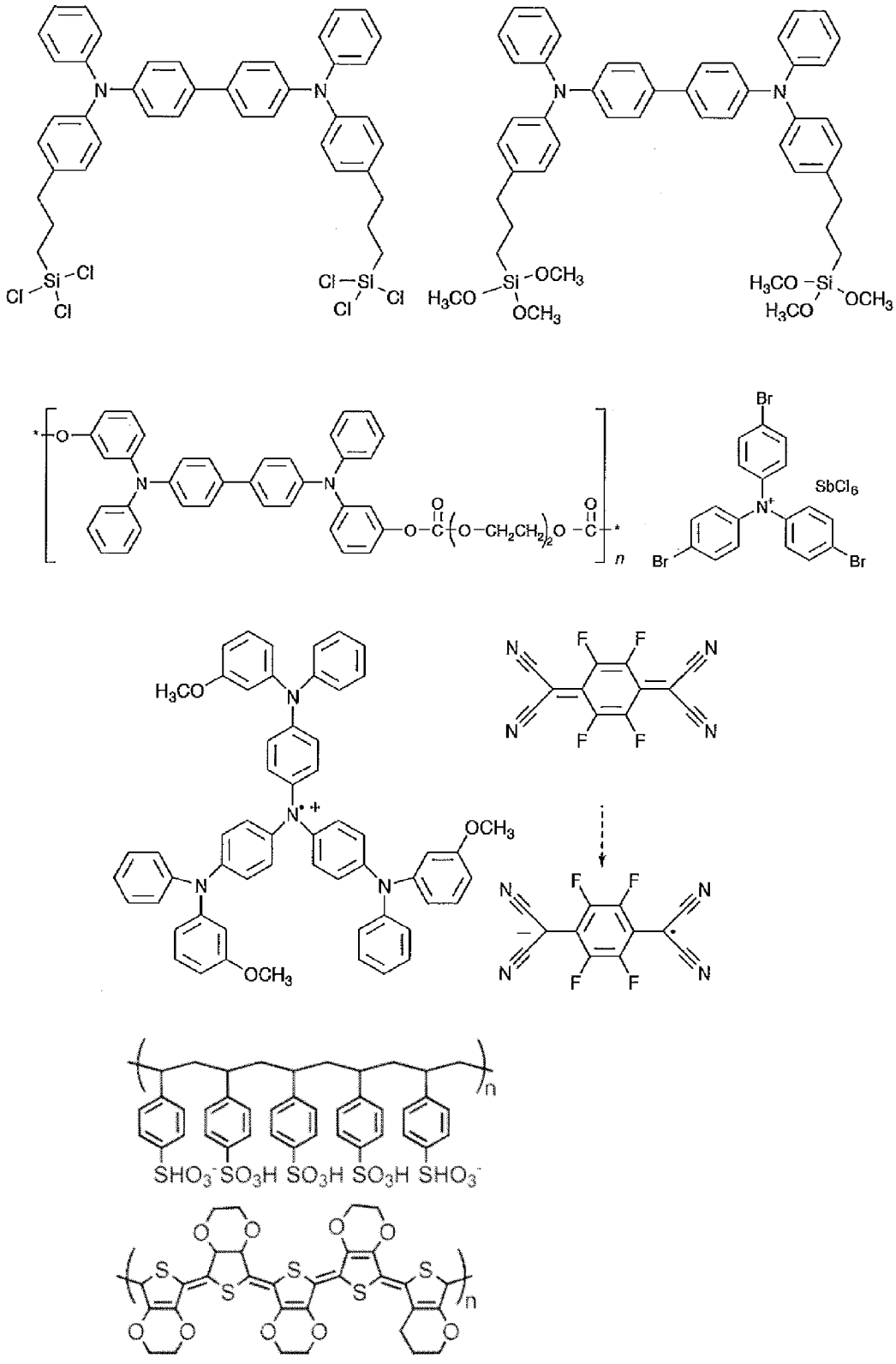




[0091] 次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

[0092]

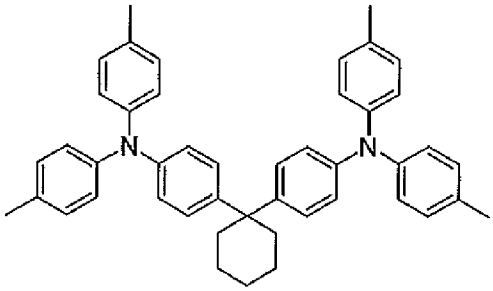
[化41]

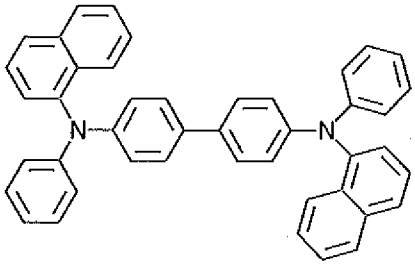


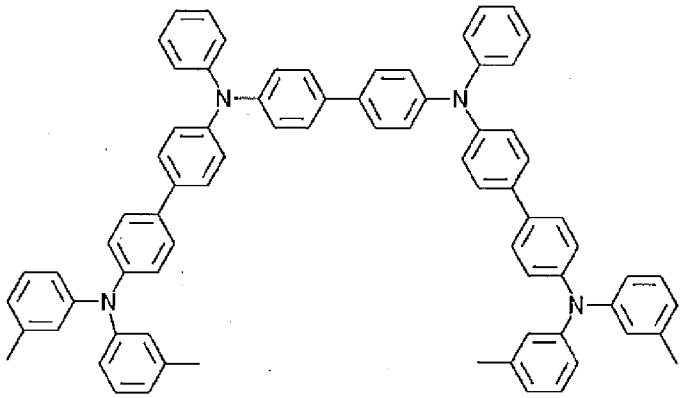
[0093] 次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる

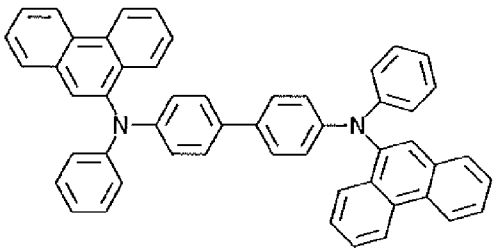
。

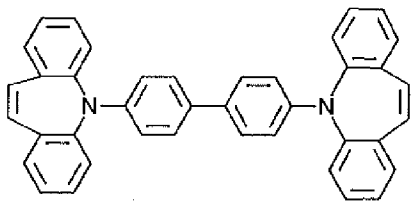
[0094] [化42]





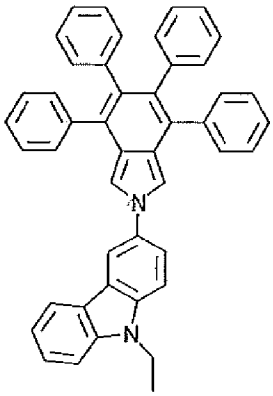


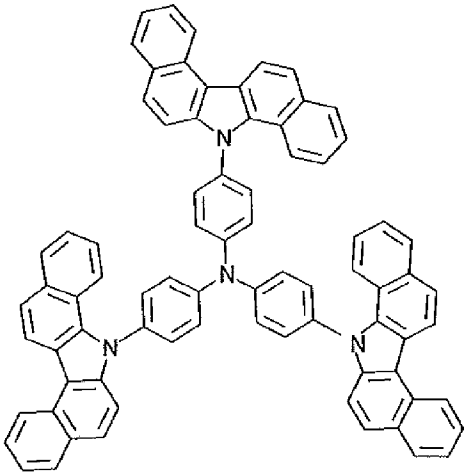


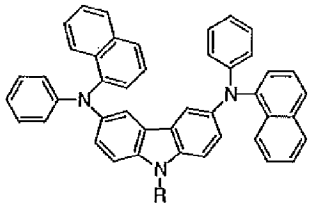


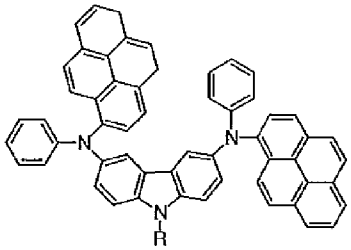
[0095]

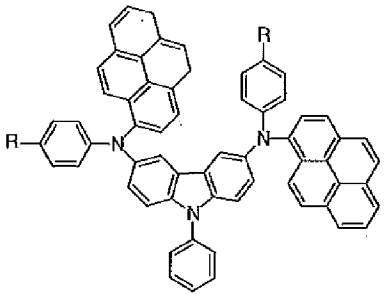
[化43]

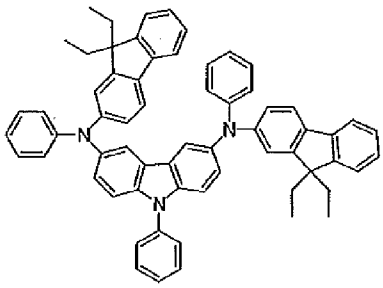


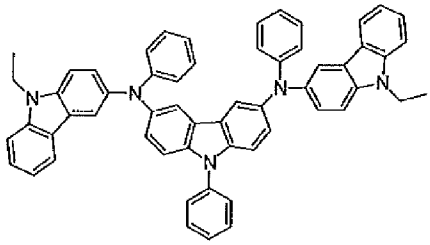


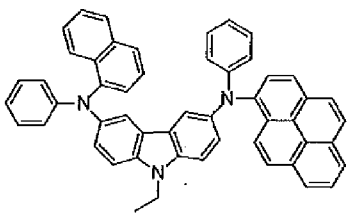






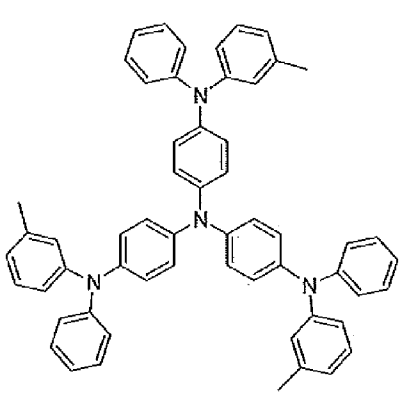


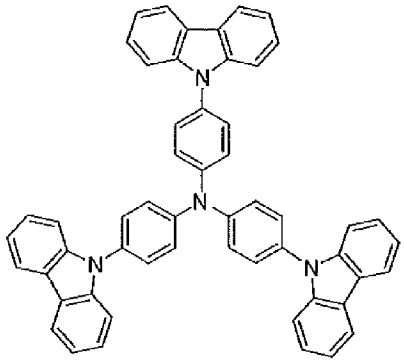


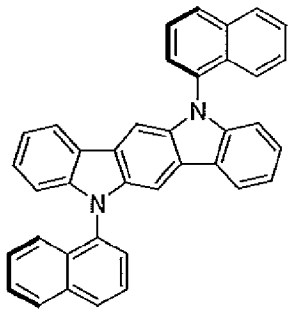


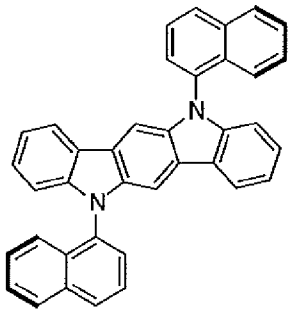
[0096]

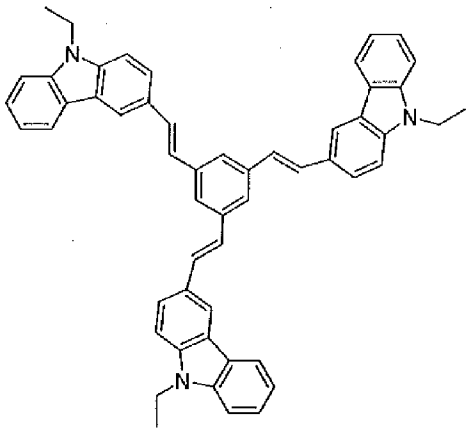
[化44]

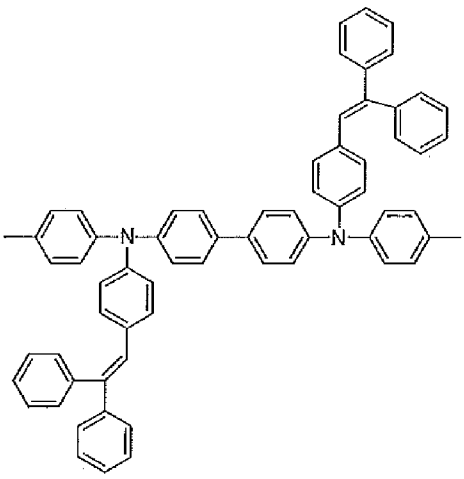






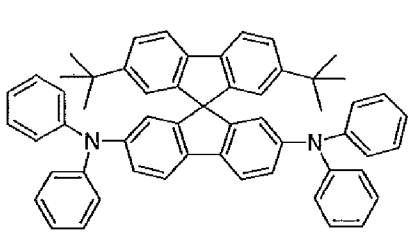


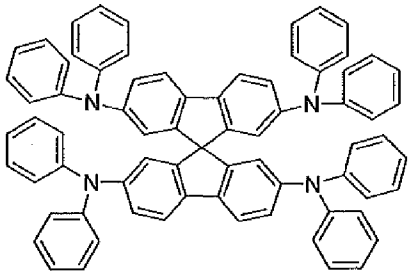


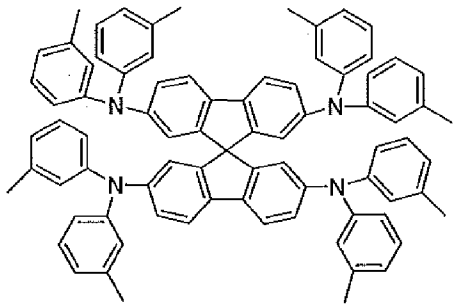


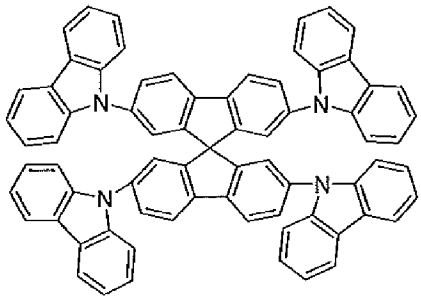
[0097]

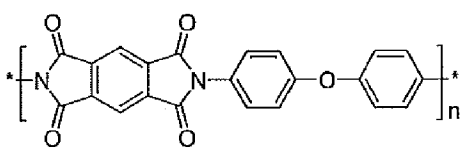
[化45]

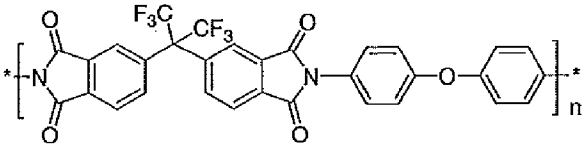


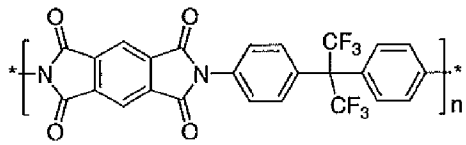


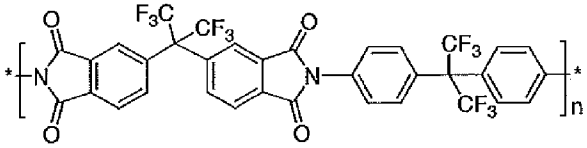






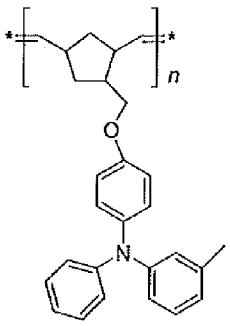


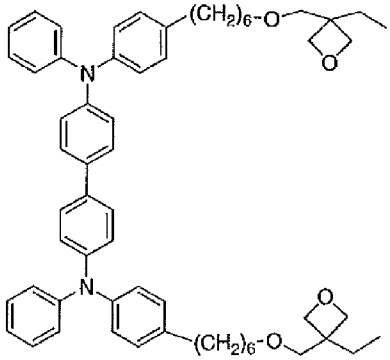


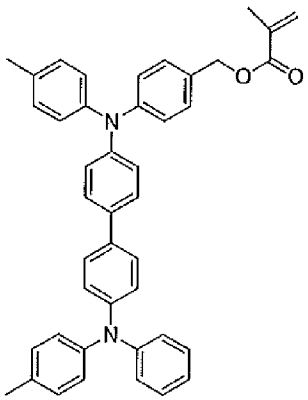


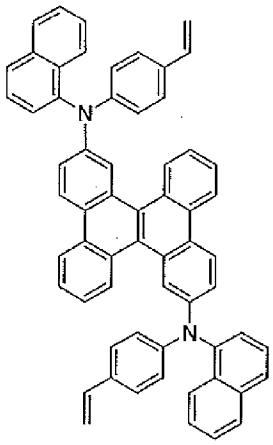
[0098]

[化46]

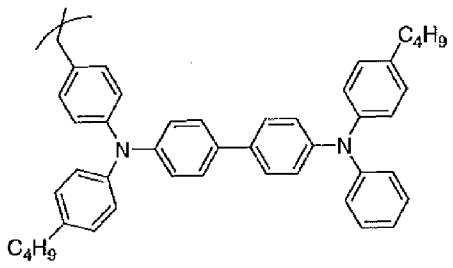






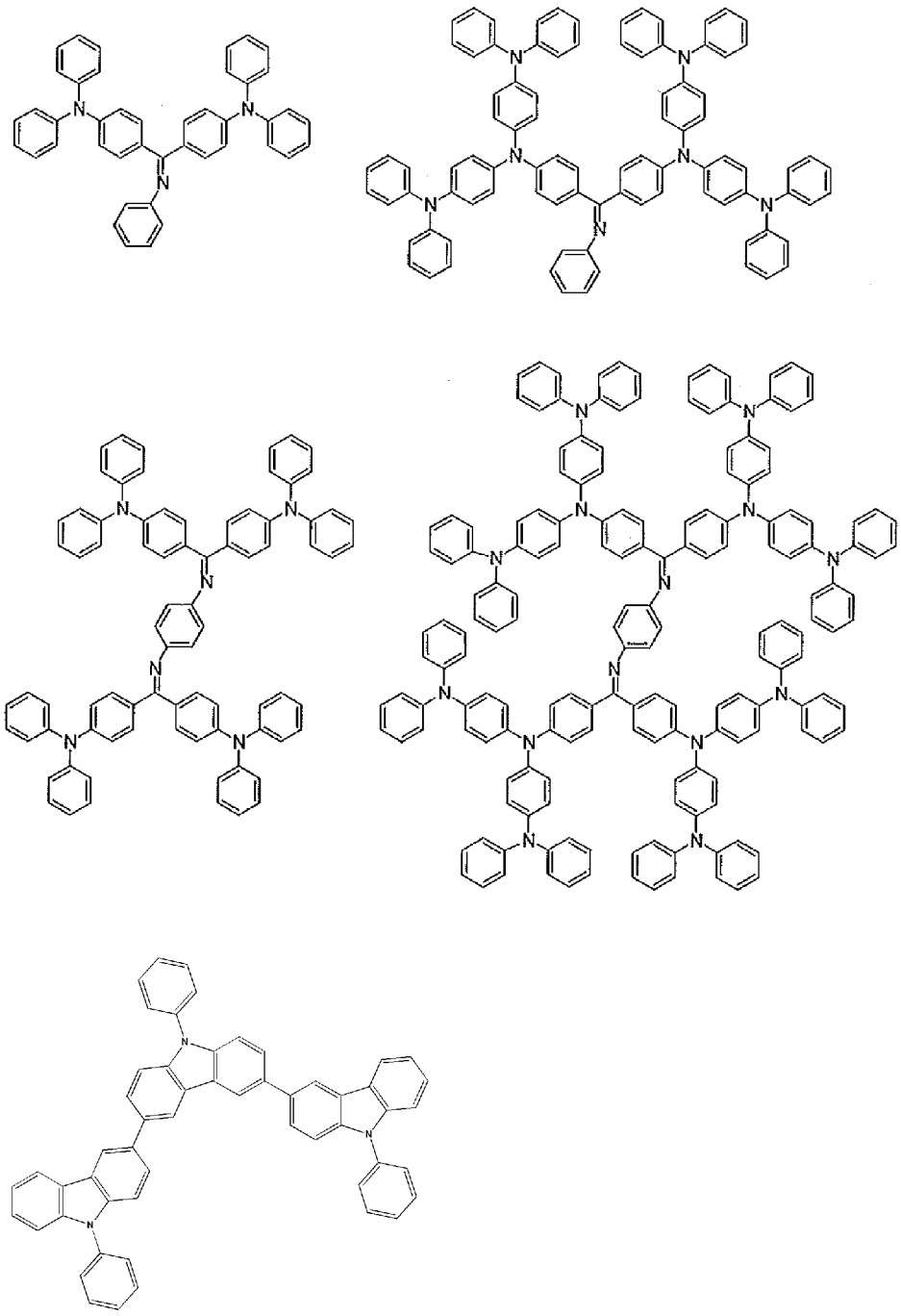


R=



[0099]

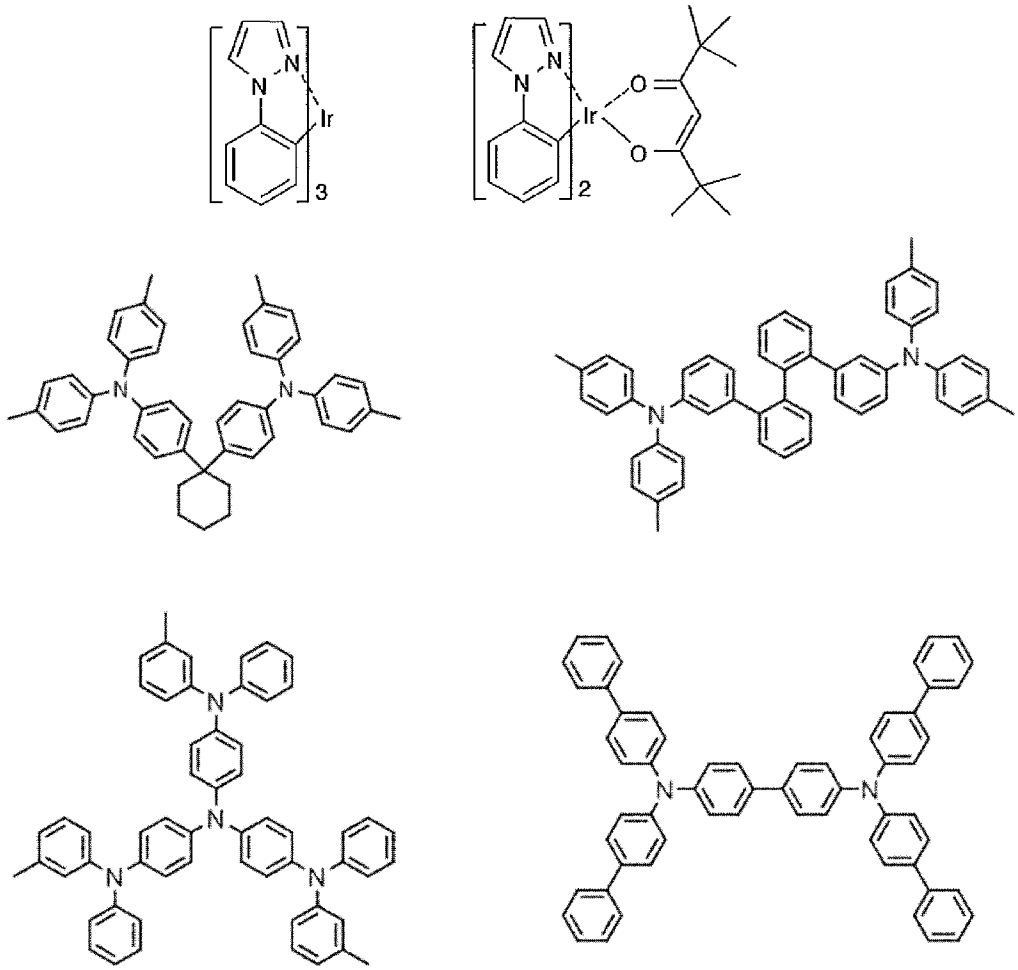
[化47]



[0100] 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。

[0101]

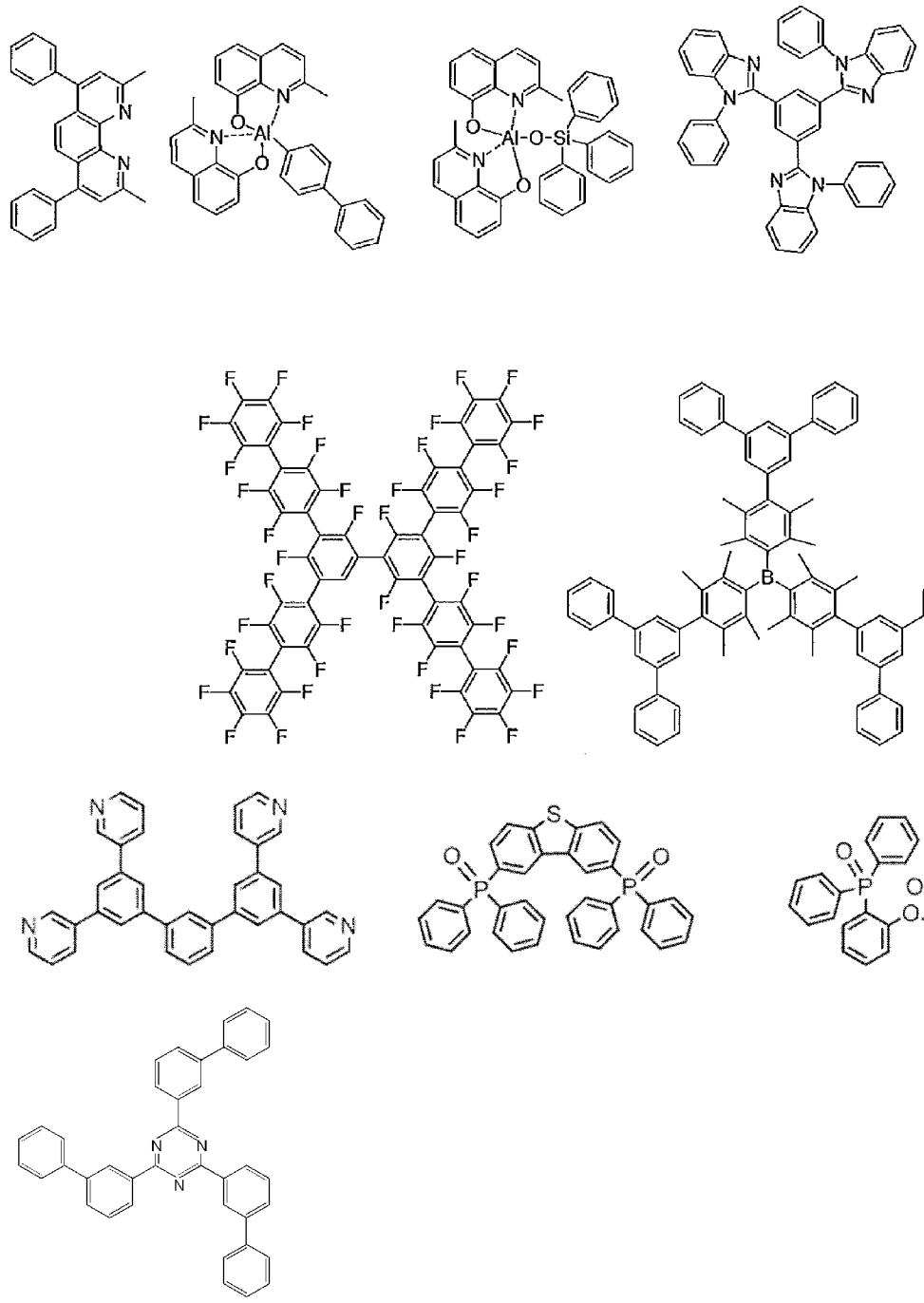
[化48]



[0102] 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。

[0103]

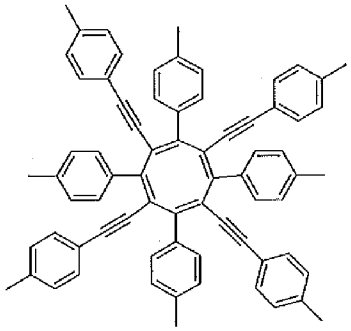
[化49]

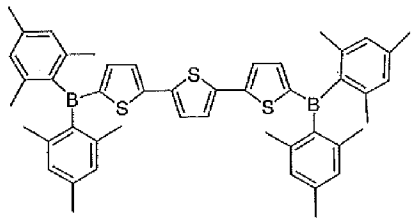


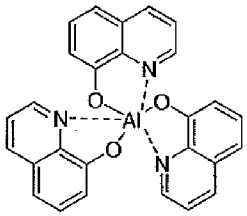
[0104] 次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

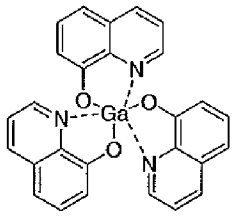
[0105]

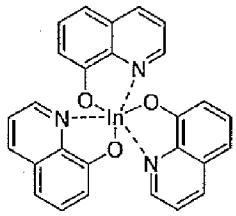
[化50]

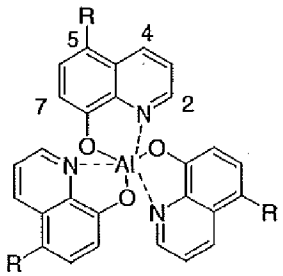


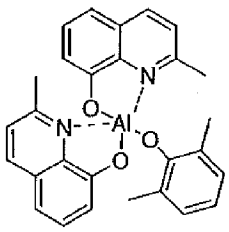


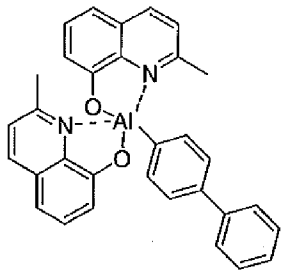


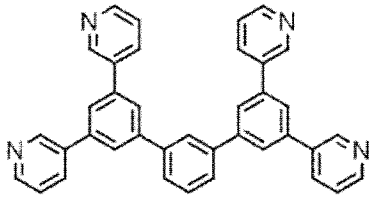


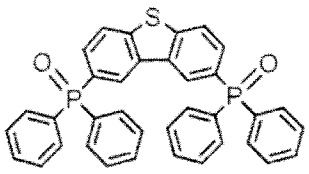


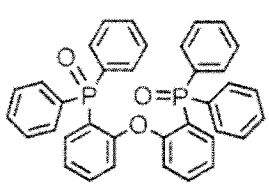






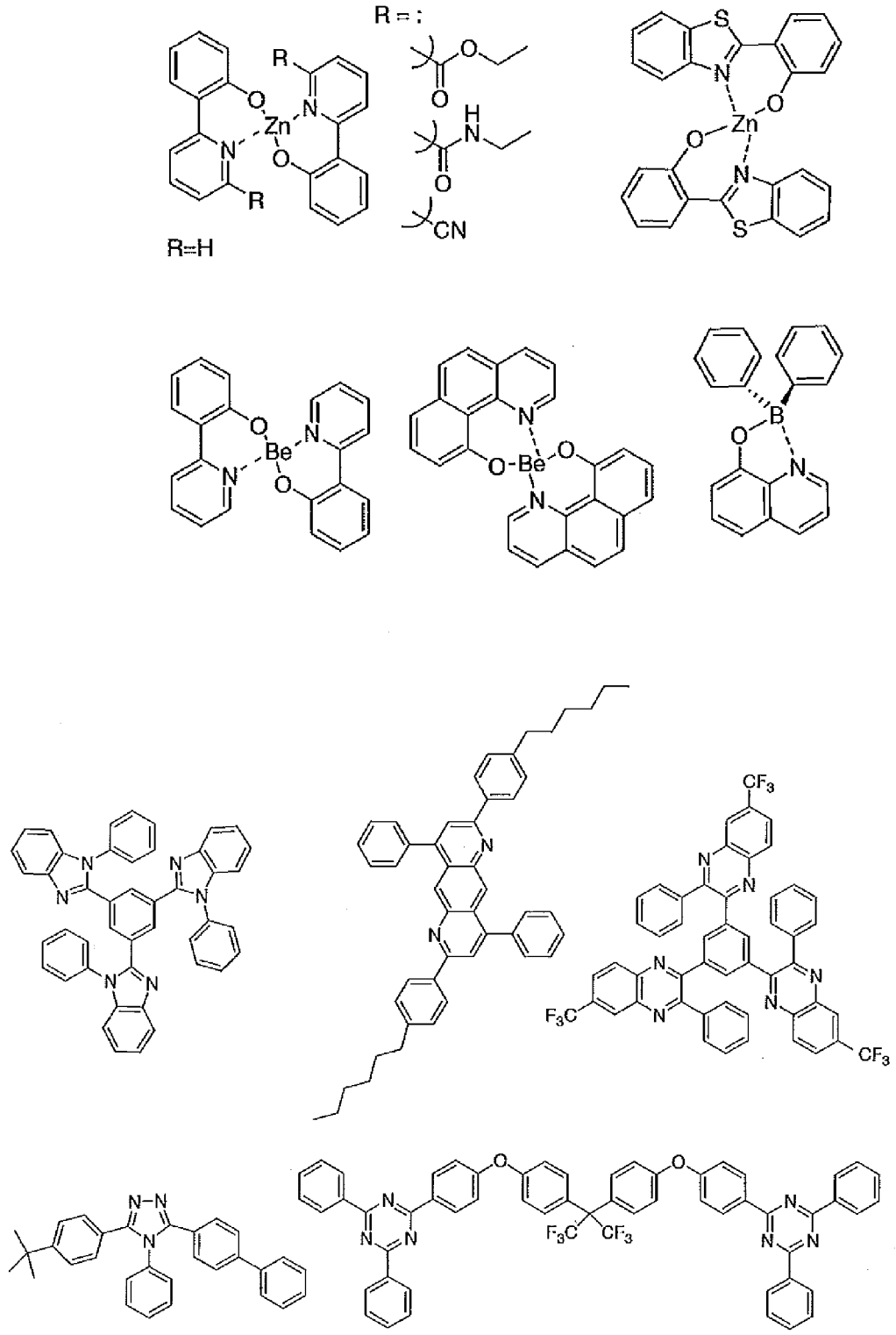






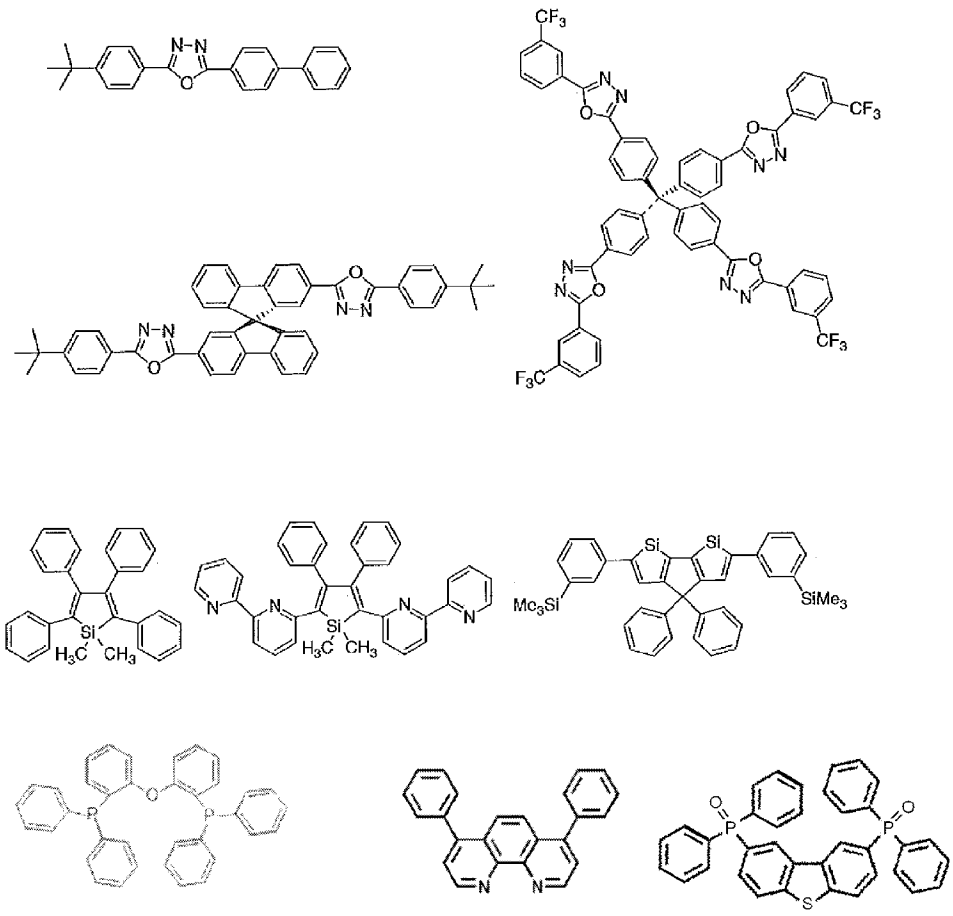
[0106]

[化51]



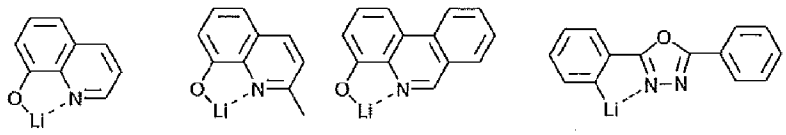
[0107]

[化52]



[0108] 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。

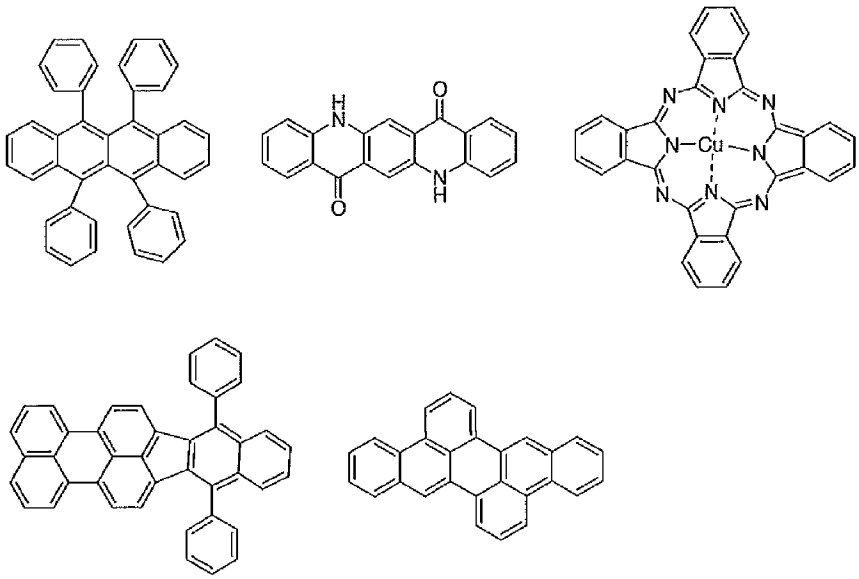
[0109] [化53]



[0110] 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。

[0111]

[化54]



[0112] 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、本発明における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。

[0113] 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。

実施例

[0114] 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。

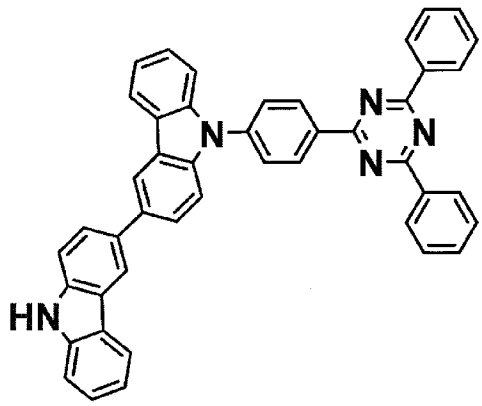
[0115] （合成例１） 化合物３の合成

窒素置換した２つ口ナス型フラスコに、２－（４－ヨードフェニル）－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．７４ｇ，４．０ｍｍｏｌ）、９Ｈ，９Ｈ’－［３，３’］ビカルバゾイル（６６５ｇ，２．０ｍｍｏｌ）、炭酸カリウム（１．１１ｇ，８．０ｍｍｏｌ）、銅粉末（２５ｍｇ，０．４ｍｍｏｌ）、およびニトロベンゼン１５ｍｌを加え，１７０℃で２４時間加熱・還流した。室温まで放冷し，クロロホルム５０ｍｌと水５０ｍｌを加え、分離した有機層を抽出した。クロロホルムによる抽出を３回繰り返した。クロロホルムを減圧・加熱下留去し、クロロホルム：ヘキサン＝１：１の混合溶媒を用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィーによる単離・精製を行った。白黄色固体として化合物３を得た（７０３ｍｇ，収率：５５％）。

[0116]

[化55]

化合物３



[0117] ［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（オーシャンオプティクス社製：ＵＳＢ２０００）、分光放射計（トプコン社製：ＳＲ－３）およびストリークカメラ（浜松ホトニクス（株）製Ｃ４３３４型）を用いて行った。

[0118] 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（ΔE_{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、$\Delta E_{ST}=E_{S1}-E_{T1}$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ｍＣＰ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Ｓｉ基板上に厚さ１００ｎｍの試料を作製した。常温（３００Ｋ）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１００ナノ秒までの発光を積算することで、縦軸を発光強度、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、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 λedge［ｎｍ］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。

換算式：E_{S1}［ｅＶ］＝１２３９．８５／λedge

発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、ＭＮＬ２００）を検出器には、ストリークカメラ（浜松ホトニクス社製、Ｃ４３３４）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（３３７ｎｍ）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１０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λedge［ｎｍ］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。

換算式：E_{T1}［ｅＶ］＝１２３９．８５／λedge

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１０％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。

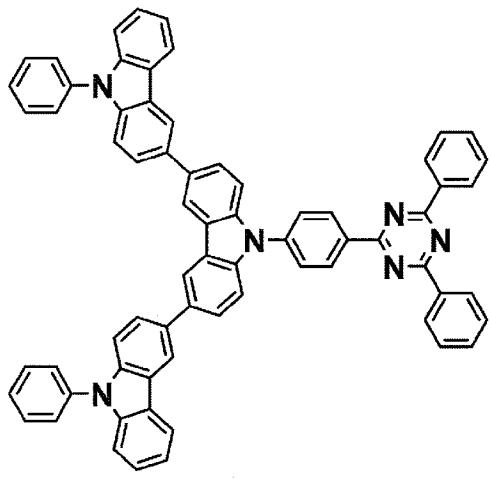
[0119] （実施例１） 有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価（溶液）

下記化合物１のトルエン溶液（濃度10^{-5}ｍｏｌ／Ｌ）を調製して、窒素をバブリングしながら３００Ｋで紫外光を照射したところ、図２に示すように

ピーク波長が４６５ｎｍの蛍光が観測された。化合物１のトルエン溶液中でのフォトルミネッセンス量子効率を絶対ＰＬ量子収率測定装置（浜松ホトニクス（株）製Ｑｕａｎｔａｕｒｕｓ－ＱＹ）により３００Ｋで測定したところ、窒素バブル前が５８．６％で窒素バブル後が７１．２％となり、約１３％の増加が見られた。図３に窒素バブル後の過渡減衰曲線を示す。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３に示す化合物１の過渡減衰曲線では、観測初期にこのような直線的成分（蛍光）が観測されているが、数μ秒以降には直線性から外れる成分が現れている。これは遅延成分の発光であり、初期の成分と加算される信号は、長時間側に裾をひくゆるい曲線になる。このように発光寿命を測定することによって、化合物１は蛍光成分のほかに遅延成分を含む発光体であることが確認された。

[0120] [化56]

化合物１



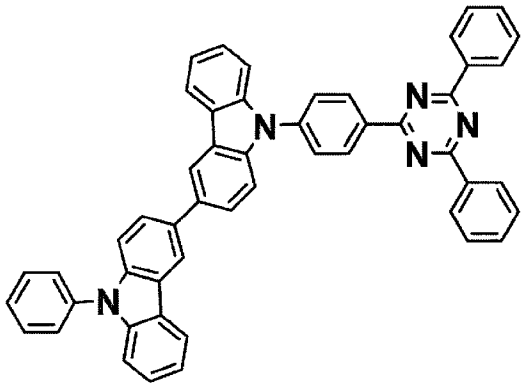
[0121] （実施例２） 有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価（溶液）

下記化合物２のトルエン溶液（濃度１０$^{-5}$ｍｏｌ／Ｌ）を調製して、窒素をバブリングしながら３００Ｋで紫外光を照射したところ、図４に示すように

ピーク波長が４５９ｎｍの蛍光が観測された。化合物１のトルエン溶液中でのフォトルミネッセンス量子効率を絶対ＰＬ量子収率測定装置（浜松ホトニクス（株）製Ｑｕａｎｔａｕｒｕｓ－ＱＹ）により３００Ｋで測定したところ、窒素バブル前が５９．６％で窒素バブル後が７９．７％となり、約２０％の増加が見られた。また、実施例１の測定法により遅延蛍光が観測された（τ_1＝０．００７μｓ、τ_2＝０．１７０μｓ）。ΔE_{ST}は０．１６ｅＶであった。

[0122] [化57]

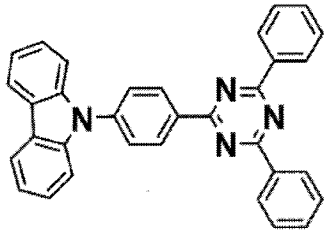
化合物２



[0123] （比較例１）　有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価（溶液）

下記比較化合物１のトルエン溶液（濃度２．０×10^{-5}ｍｏｌ／Ｌ）を調製して、窒素をバブリングしながら３００Ｋで紫外光を照射したところ、図５に示すようにピーク波長が４５９ｎｍの蛍光が観測された。また、窒素をバブリングしながら測定した過渡減衰曲線を図６に示す。遅延蛍光は観測されなかった。

[0124] [化58]



[0125] （実施例３）　薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価（薄膜）

シリコン基板上に真空蒸着法にて、真空度５．０×１０$^{-4}$Ｐａの条件にて化合物２とＤＰＥＰＯとを異なる蒸着源から蒸着し、化合物２の濃度が６．０重量％である薄膜を０．３ｎｍ／秒にて１００ｎｍの厚さで形成して薄膜型有機フォトルミネッセンス素子とした。実施例１と同じ測定装置を用いて得た発光スペクトルを図７に示す。また、３００Ｋ、２５０Ｋ、２００Ｋ、１５０Ｋ、１００Ｋ、５０Ｋ、１５Ｋにおいて小型蛍光寿命測定装置（浜松ホトニクス（株）製Ｑｕａｎｔａｕｒｕｓ－ｔａｕ）による測定を行って、図８に示す過渡減衰曲線を得た。図８より、温度低下に伴って遅延蛍光成分が減少する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。フォトルミネッセンス量子効率は窒素流通下で３００Ｋにて９５．６％であった。

[0126]（実施例４）　有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

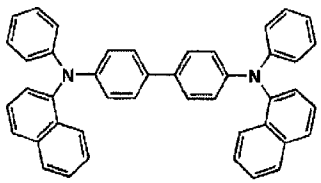
本実施例において前記化合物２と下記ＤＰＥＰＯとからなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を作製して、特性を評価した。

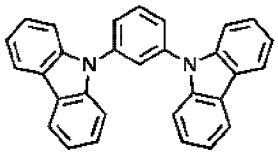
膜厚１００ｎｍのインジウム・スズ酸化物（ＩＴＯ）からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度５．０×１０$^{-4}$Ｐａで積層した。まず、ＩＴＯ上にα－ＮＰＤを３０ｎｍの厚さに形成した。更に、α－ＮＰＤ膜上にｍＣＰを１０ｎｍの厚さで形成した。次に、化合物２とＤＰＥＰＯとを異なる蒸着源から共蒸着し、１５ｎｍの厚さの層を形成して発光層とした。この時、化合物１の濃度は６．０重量％とした。次にＤＰＥＰＯを１０ｎｍの厚さで形成、さらに、ＴＰＢｉを４０ｎｍの厚さに形成した。次に、フッ化リチウム（ＬｉＦ）を０．８ｎｍ真空蒸着し、次いでアルミニウム（Ａｌ）を１００ｎｍの厚さに蒸着す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。

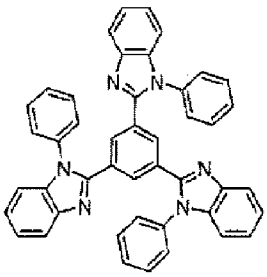
製造した有機エレクトロルミネッセンス素子を、半導体パラメータ・アナライザ（アジレント・テクノロジー社製：Ｅ５２７３Ａ）、光パワーメータ測定装置（ニューポート社製：１９３０Ｃ）、および光学分光器（オーシャンオプティクス社製：ＵＳＢ２０００）を用いて測定した。図９に、エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）スペクトルを示す（ピーク波長：４８９ｎｍ）

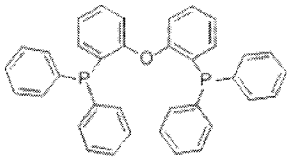
。電流密度－外部量子効率特性を図１０に示す。化合物２を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は９．３％の高い外部量子効率を達成した。仮に発光量子効率が１００％の蛍光材料を用いてバランスの取れた理想的な有機エレクトロルミネッセンス素子を試作したとすると、光取り出し効率が２０～３０％であれば、蛍光発光の外部量子効率は５～７．５％となる。この値が一般に、蛍光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。化合物２を用いた本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、理論限界値を超える高い外部量子効率を実現している点で極めて優れている。

[0127] [化59]


α−NPD


mCP


TPBi


DPEPO

産業上の利用可能性

[0128] 本発明における化合物は発光材料として有用である。このため本発明における化合物は、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。本発明における化合物の中には、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

[0129] 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

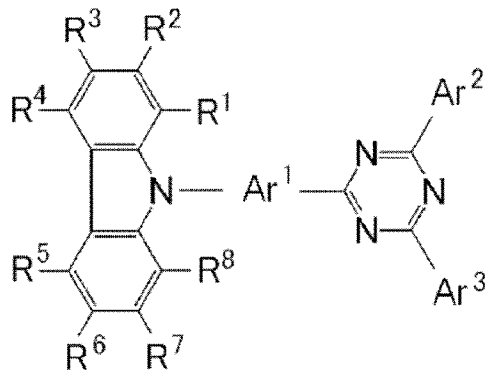
7 陰極

請求の範囲

[請求項1] 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）



（上式において、Ｒ[1]～Ｒ[8]は各々独立に水素原子または置換基を表すが、Ｒ[1]～Ｒ[8]の少なくとも１つは置換もしくは無置換のカルバゾリル基である。Ａｒ[1]～Ａｒ[3]は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。）

[請求項2] 前記一般式（１）のＲ[3]およびＲ[6]の少なくとも一つが置換もしくは無置換のカルバゾリル基である請求項１に記載の発光材料。

[請求項3] 前記カルバゾリル基が、１－カルバゾリル基、２－カルバゾリル基、３－カルバゾリル基または４－カルバゾリル基である請求項１または２に記載の発光材料。

[請求項4] 前記カルバゾリル基が、カルバゾール環構造中の窒素原子に置換基を有する請求項１～３のいずれか１項に記載の発光材料。。

[請求項5] 前記一般式（１）のＡｒ[1]、Ａｒ[2]およびＡｒ[3]の少なくとも一つが、ベンゼン環またはナフタレン環である請求項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（１）のＡｒ[1]、Ａｒ[2]およびＡｒ[3]が同一の芳香環または複素芳香環である請求項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（１）のＡｒ[1]、Ａｒ[2]およびＡｒ[3]がベンゼン環である請求項１～６のいずれか１項に記載の発光材料。

[請求項8] 請求項１～７のいずれか１項に記載の化合物からなる遅延蛍光体。

[請求項9] 請求項８に記載の発光材料を含む発光層を基板上に有することを特徴とする有機発光素子。

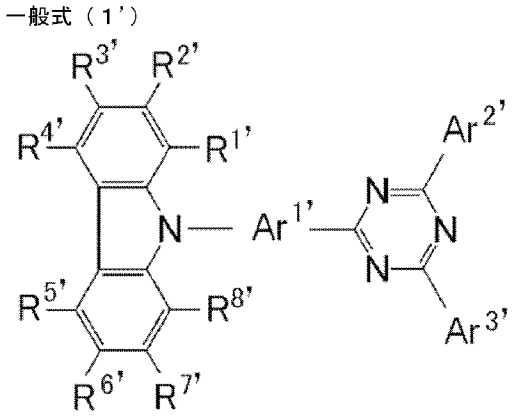
[請求項10] 遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項９に記載の有機発光素子。

[請求項11] 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９または１０に記載の有機発光素子。

[請求項12] 下記一般式（１’）で表される化合物。

[化2]

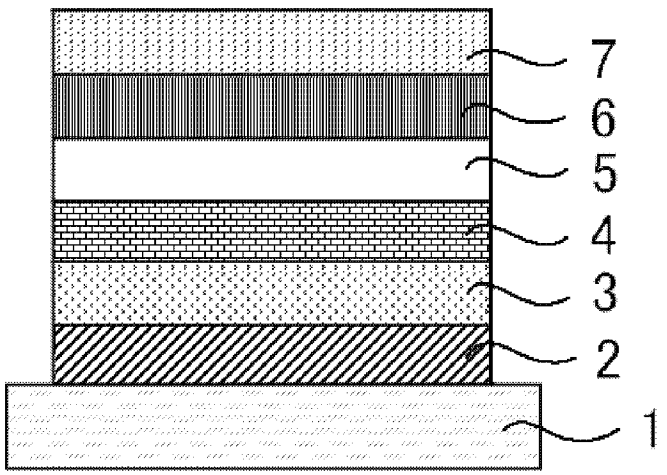
一般式（１’）



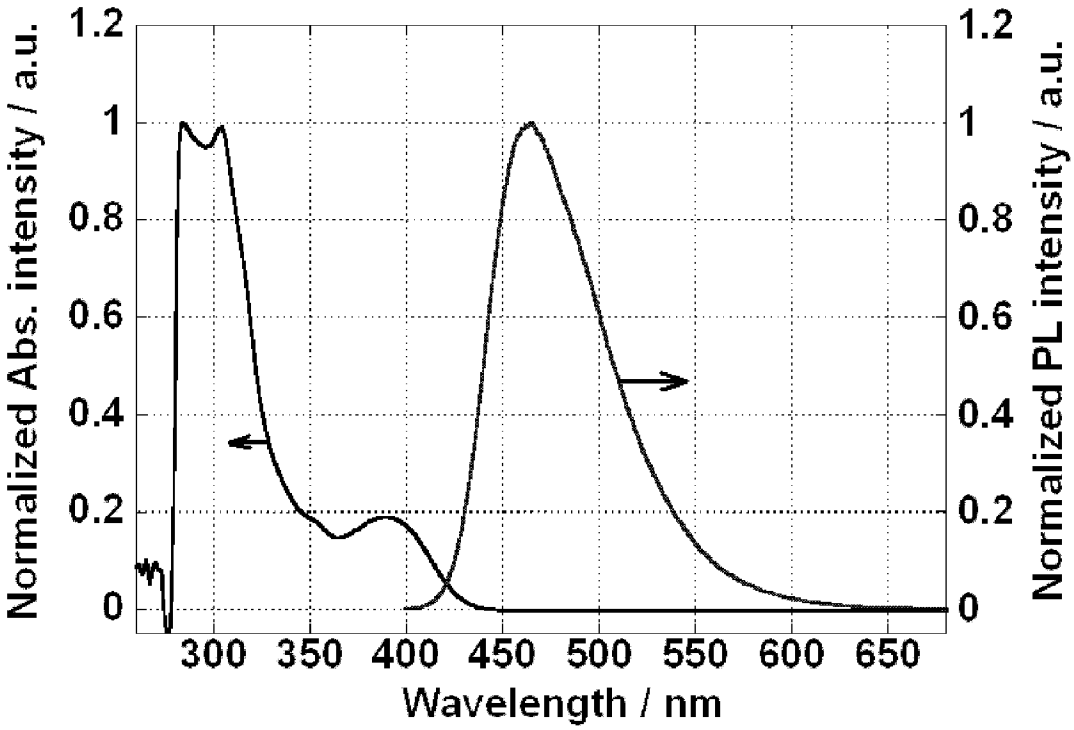
（上式において、$R^{1'}$～$R^{8'}$は各々独立に水素原子または置換基を表すが、$R^{1'}$～$R^{8'}$の少なくとも１つは置換もしくは無置換の１－カルバゾリル基、置換もしくは無置換の２－カルバゾリル基、置換もしくは無置換の３－カルバゾリル基、または置換もしくは無置換の４－カルバゾリル基である。ただし、これらのカルバゾリル基の９位は無置換である。$Ar^{1'}$～$Ar^{3'}$は各々独立に置換もしくは無置換の芳香環または複素芳香環を表す。）

[請求項13] 前記一般式（１’）の$R^{1'}$～$R^{8'}$の少なくとも１つが置換もしくは無置換の３－カルバゾリル基であることを特徴とする請求項１２に記載の化合物。

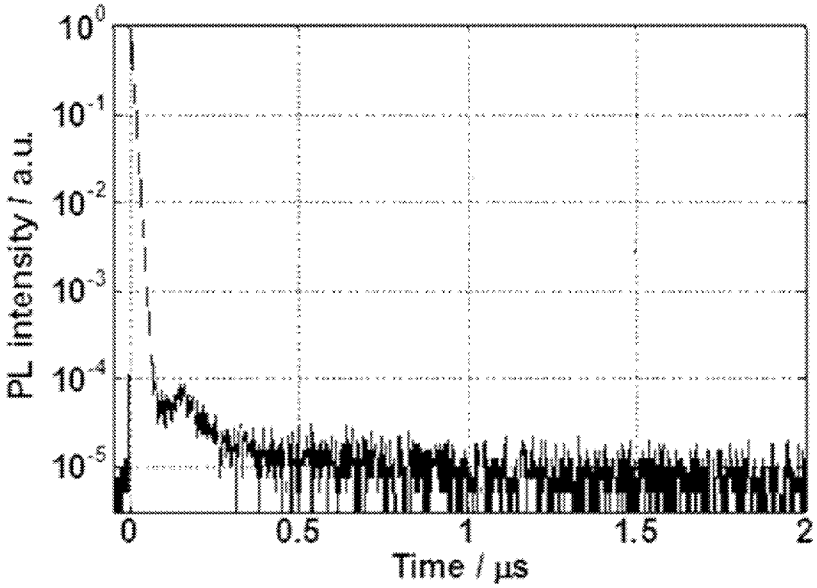
[図1]


7
6
5
4
3
2
1

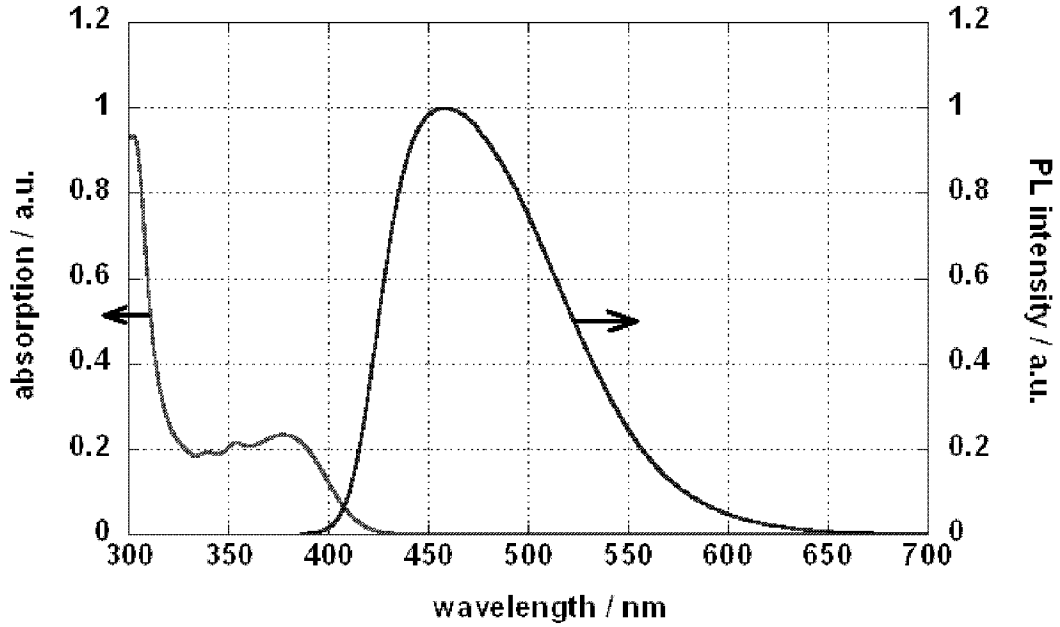
[図2]


Normalized Abs. intensity / a.u.
Normalized PL intensity / a.u.
Wavelength / nm
0
0.2
0.4
0.6
0.8
1
1.2
300
350
400
450
500
550
600
650

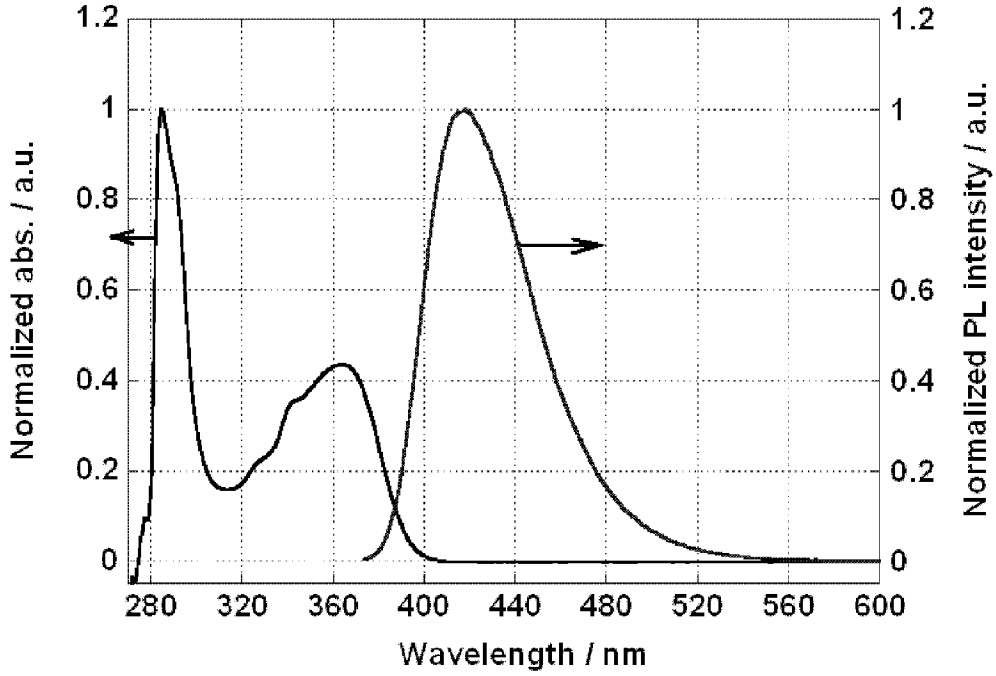
[図3]


PL intensity / a.u.
Time / μs

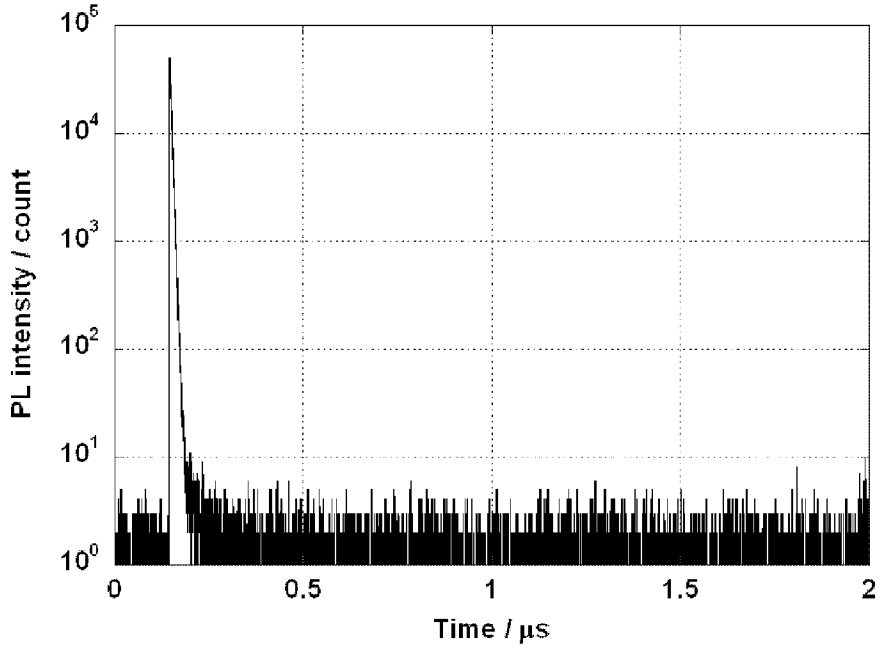
[図4]


absorption / a.u.
PL intensity / a.u.
wavelength / nm

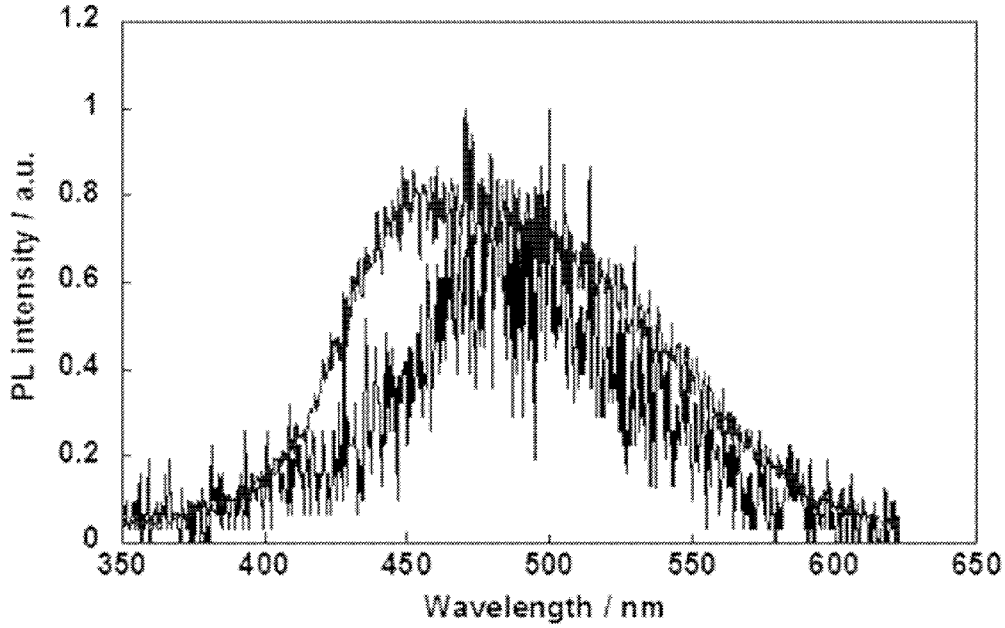
[図5]


Normalized abs. / a.u.
Normalized PL intensity / a.u.
Wavelength / nm
1.2
1
0.8
0.6
0.4
0.2
0
280
320
360
400
440
480
520
560
600

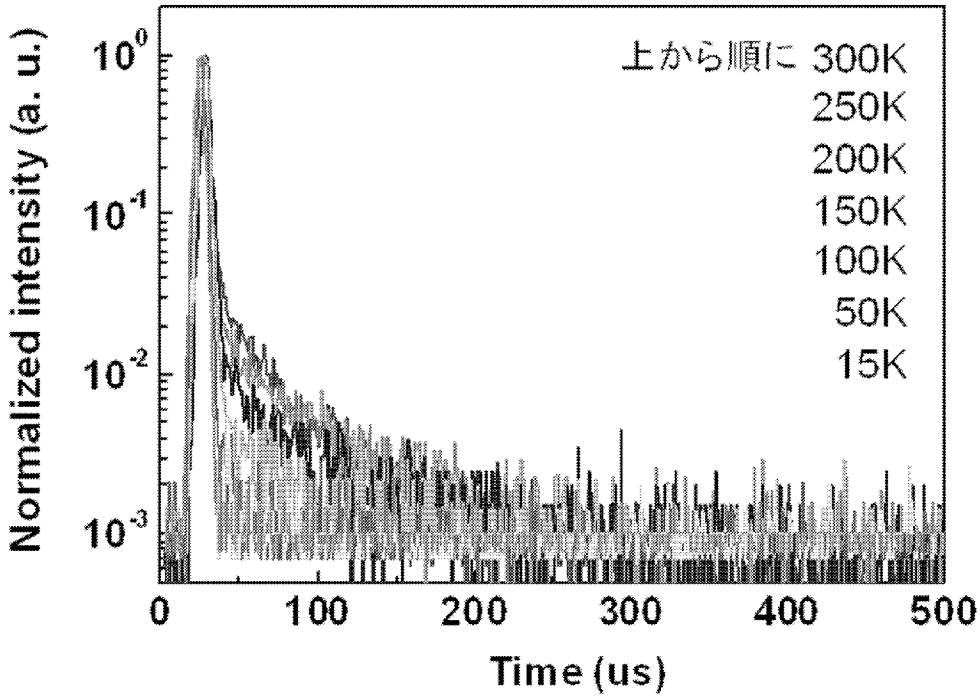
[図6]


PL intensity / count
Time / μs
10^5
10^4
10^3
10^2
10^1
10^0
0
0.5
1
1.5
2

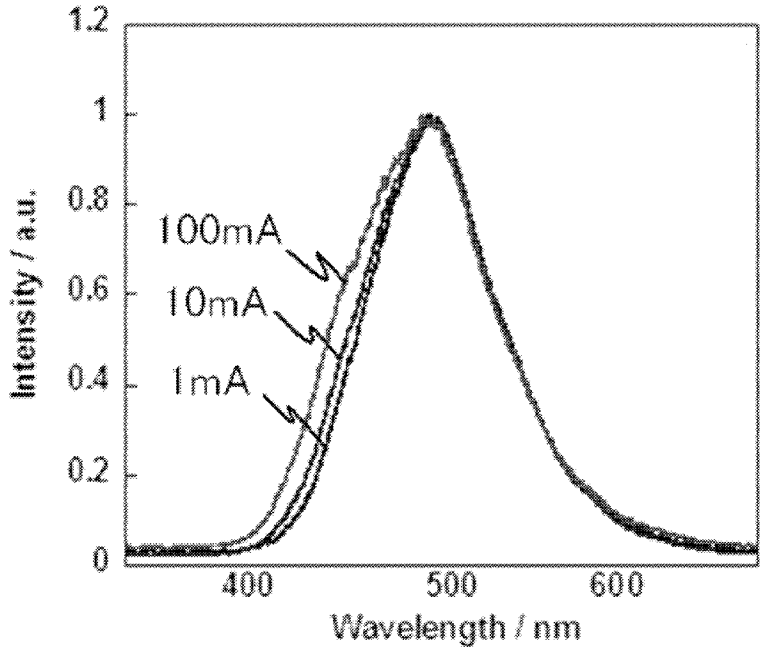
[図7]


PL intensity / a.u.
Wavelength / nm
0
0.2
0.4
0.6
0.8
1
1.2
350
400
450
500
550
600
650

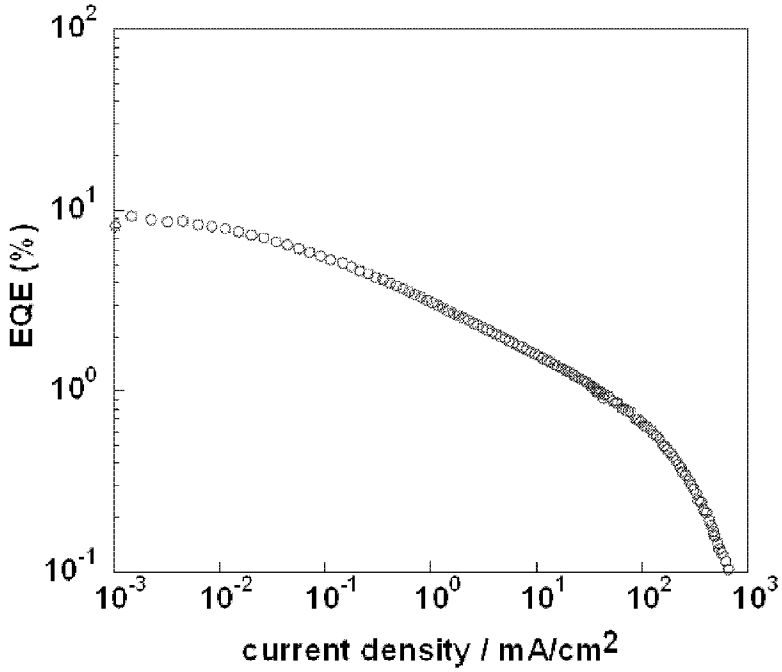
[図8]


Normalized intensity (a. u.)
Time (us)
上から順に 300K
250K
200K
150K
100K
50K
15K
10^{0}
10^{-1}
10^{-2}
10^{-3}
0
100
200
300
400
500

[図9]


1.2
1
0.8
0.6
0.4
0.2
0
Intensity / a.u.
100mA
10mA
1mA
400
500
600
Wavelength / nm

[図10]


10^2
10^1
10^0
10^{-1}
EQE (%)
10^{-3}
10^{-2}
10^{-1}
10^0
10^1
10^2
10^3
current density / mA/cm^2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/079914

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C09K11/06(2006.01)i, *C07D403/14*(2006.01)i, *H01L51/50*(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C09K11/06, C07D403/14, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2013/081088 A1 (Kyushu University), 06 June 2013 (06.06.2013), claims; examples 1 to 7 & CN 103959502 A	1-13
A	S. Y. Lee, et al., High-efficiency organic light-emitting diodes utilizing thermally activated delayed fluorescence from triazine-based donor-acceptor hybrid molecules, Applied Physics Letters, 2012.08.30, Vol. 101, 093306-1-4	1-13

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

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"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)
"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
"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
"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
"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
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 12 December 2014 (12.12.14)	Date of mailing of the international search report 22 December 2014 (22.12.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/079914

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2011/132684 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 27 October 2011 (27.10.2011), claims; examples 4 to 5(compounds 4 to 5) & JP 5074627 B2 & US 2011/0278555 A1 & EP 2415769 A1 & CN 102421772 A & KR 10-2012-0127746 A & TW 201141989 A	1-13
A	WO 2012/157211 A1 (Sony Corp.), 22 November 2012 (22.11.2012), claims; examples 23 to 30(compounds 21 to 22) & US 2014/0159023 A1 & EP 2709183 A1 & CN 103534833 A & KR 10-2014-0034183 A & TW 201249961 A	1-13
A	WO 2012/099241 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 26 July 2012 (26.07.2012), claims; example 7(compound SL-4) & US 2013/0292664 A1 & EP 2667688 A1 & CN 103329621 A & KR 10-2014-0032975 A	1-13
P,X	WO 2014/115743 A1 (Kyushu University), 31 July 2014 (31.07.2014), claims; examples 1 to 3(compounds 1 to 4, 27 to 29) & JP 2014-141571 A & JP 2014-141572 A	1-2,4-11
P,X	WO 2014/157619 A1 (Kyushu University), 02 October 2014 (02.10.2014), claims; examples 6 to 8(compound SHT02) (Family: none)	1-2,4-11
P,X	JP 2014-105209 A (Universal Display Corp.), 09 June 2014 (09.06.2014), claims; compounds 118, 694, 3446, 3510 & US 2014/0145149 A1 & KR 10-2014-0067910 A	1-5,8-11
P,X	WO 2014/092083 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 19 June 2014 (19.06.2014), claims; examples 1, 4 to 7(test compound 1; measured compounds 1 to 3, 9, 14 to 15; compound 4) (Family: none)	1-11
P,X	WO 2014/104315 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 03 July 2014 (03.07.2014), claims; examples 1 to 7(compounds H1, H4) (Family: none)	1-11

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１４／０７９９１４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K11/06(2006.01)i, C07D403/14(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K11/06, C07D403/14, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１４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
A	WO 2013/081088 A1 (国立大学法人九州大学) 2013.06.06, 請求の範囲及び実施例１－７ & CN 103959502 A	1-13
A	S. Y. Lee, et al., High-efficiency organic light-emitting diodes utilizing thermally activated delayed fluorescence from triazine-based donor-acceptor hybrid molecules, Applied Physics Letters, 2012.08.30, Vol. 101, 093306-1-4	1-13

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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１２．１２．２０１４	２２．１２．２０１４

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　４Ｖ　４８６４
内藤　康彰
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８３

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	WO 2011/132684 A1（出光興産株式会社）2011.10.27，請求の範囲及び実施例４－５（化合物４－５） & JP 5074627 B2 & US 2011/0278555 A1 & EP 2415769 A1 & CN 102421772 A & KR 10-2012-0127746 A & TW 201141989 A	1-13
A	WO 2012/157211 A1（ソニー株式会社）2012.11.22，請求の範囲及び実施例２３－３０（化合物２１－２２） & US 2014/0159023 A1 & EP 2709183 A1 & CN 103534833 A & KR 10-2014-0034183 A & TW 201249961 A	1-13
A	WO 2012/099241 A1（出光興産株式会社）2012.07.26，請求の範囲及び実施例７（化合物ＳＬ－４） & US 2013/0292664 A1 & EP 2667688 A1 & CN 103329621 A & KR 10-2014-0032975 A	1-13
P，X	WO 2014/115743 A1（国立大学法人九州大学）2014.07.31，請求の範囲及び実施例１－３（化合物１－４及び２７－２９） & JP 2014-141571 A & JP 2014-141572 A	1-2，4-11
P，X	WO 2014/157619 A1（国立大学法人九州大学）2014.10.02，請求の範囲及び実施例６－８（化合物ＳＨＴ０２）（ファミリーなし）	1-2，4-11
P，X	JP 2014-105209 A（ユニバーサル　ディスプレイ　コーポレイション）2014.06.09，特許請求の範囲及び化合物１１８、６９４、３４４６、３５１０ & US 2014/0145149 A1 & KR 10-2014-0067910 A	1-5，8-11
P，X	WO 2014/092083 A1（出光興産株式会社）2014.06.19，請求の範囲及び実施例１、４－７（実施化合物１、測定化合物１－３、９、１４－１５、化合物４）（ファミリーなし）	1-11
P，X	WO 2014/104315 A1（出光興産株式会社）2014.07.03，請求の範囲及び実施例１－７（化合物Ｈ１及びＨ４）（ファミリーなし）	1-11