(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2018-100411
(P2018-100411A)
(43)公開日　平成30年6月28日(2018.6.28)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
C09K 11/06	(2006.01)	C09K	11/06	640	3K107
C07D 401/10	(2006.01)	C09K	11/06	690	4C063
C07D 251/24	(2006.01)	C07D	401/10		
C07D 403/10	(2006.01)	C07D	251/24		
H01L 51/50	(2006.01)	C07D	403/10		

審査請求 未請求　請求項の数 19　ＯＬ　（全 72 頁）　最終頁に続く

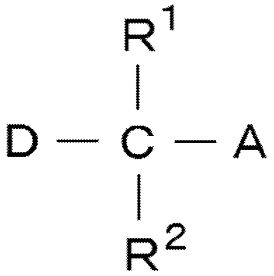
(21)出願番号　特願2017-244764(P2017-244764)
(22)出願日　平成29年12月21日(2017.12.21)
(31)優先権主張番号　特願2016-247496(P2016-247496)
(32)優先日　平成28年12月21日(2016.12.21)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(71)出願人　504145342
国立大学法人九州大学
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
(71)出願人　516003621
株式会社Ｋｙｕｌｕｘ
福岡県福岡市西区九大新町４番地１
(74)代理人　110000109
特許業務法人特許事務所サイクス
(72)発明者　耿　▲炎▼
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
国立大学法人九州大学内
(72)発明者　安達　千波矢
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
国立大学法人九州大学内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】発光材料、化合物および有機発光素子

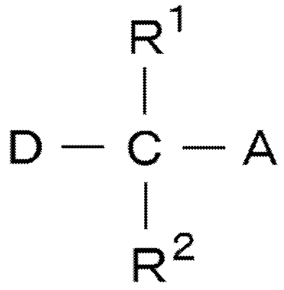
(57)【要約】
【課題】ドナー性基とアクセプター性基を有していて発光特性に優れた化合物を見出すこと。
【解決手段】　下記一般式で表される化合物からなる発光材料。R^1およびR^2はフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ_p値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ_p値が正である置換基を表す。



【選択図】なし

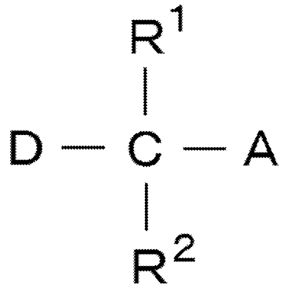
【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記一般式（１）で表される化合物からなる発光材料。
【化１】

一般式（１）



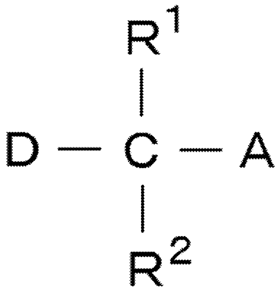
［一般式（１）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ$_p$値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ$_p$値が正である置換基を表す。］
【請求項２】
R^1およびR^2が各々独立にパーフルオロアルキル基である、請求項１に記載の発光材料。
【請求項３】
R^1およびR^2の炭素数が各々独立に１～３のいずれかである、請求項１または２に記載の発光材料。
【請求項４】
Ｄが、置換もしくは無置換のジアリールアミノ構造を含む、請求項１～３のいずれか１項に記載の発光材料。
【請求項５】
Ｄが、置換もしくは無置換のジアリールアミノ基で置換されたアリール基である、請求項４に記載の発光材料。
【請求項６】
Ａが、置換もしくは無置換のヘテロアリール基を含む、請求項１～５のいずれか１項に記載の発光材料。
【請求項７】
Ａが、置換もしくは無置換のヘテロアリール基で置換されたアリール基である、請求項６に記載の発光材料。
【請求項８】
下記一般式（１）で表される化合物からなるホスト材料。
【化２】

一般式（１）

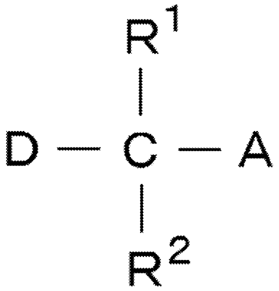


［一般式（１）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ$_p$値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ$_p$値が正である置換基を表す。］

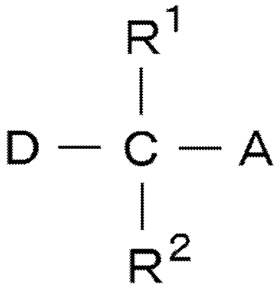
【請求項９】
下記一般式（１）で表される化合物からなる正孔阻止材料。
【化３】
一般式（1）



［一般式（１）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ_p値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ_p値が正である置換基を表す。］
【請求項１０】
下記一般式（１）で表される化合物からなる電子阻止材料。
【化４】
一般式（1）

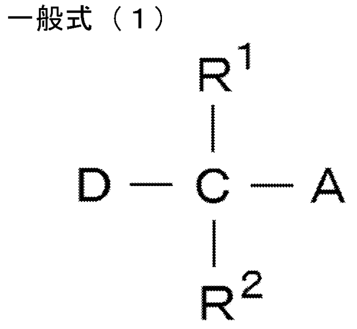


［一般式（１）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ_p値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ_p値が正である置換基を表す。］
【請求項１１】
下記一般式（１）で表される化合物。
【化５】
一般式（1）



［一般式（１）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ_p値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ_p値が正である置換基を表す。］
【請求項１２】
下記一般式（１）で表される構造を有する遅延蛍光体。

【化６】

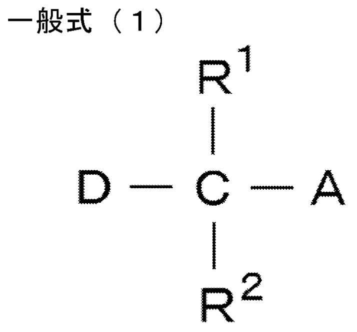


［一般式（１）において、Ｒ^{1}およびＲ^{2}は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ$_p$値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ$_p$値が正である置換基を表す。］

【請求項１３】

下記一般式（１）で表される化合物を含む有機発光素子。

【化７】



［一般式（１）において、Ｒ^{1}およびＲ^{2}は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ$_p$値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ$_p$値が正である置換基を表す。］

【請求項１４】

前記化合物を含む発光層を有する、請求項１３に記載の有機発光素子。

【請求項１５】

前記発光層における前記化合物の含有量が５０重量％未満であり、前記発光層に前記化合物の他にホスト材料を含む、請求項１４に記載の有機発光素子。

【請求項１６】

前記発光層における前記化合物の含有量が５０重量％以上であり、前記発光層に前記化合物の他に発光材料を含む、請求項１４に記載の有機発光素子。

【請求項１７】

陽極、発光層を含む複数の有機層、陰極を順に積層した構造を有しており、前記化合物を、発光層の陰極側に隣接する層に含む、請求項１３～１６のいずれか１項に記載の有機発光素子。

【請求項１８】

陽極、発光層を含む複数の有機層、陰極を順に積層した構造を有しており、前記化合物を、発光層の陽極側に隣接する層に含む、請求項１３～１６のいずれか１項に記載の有機発光素子。

【請求項１９】

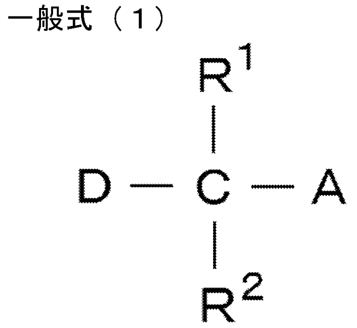
遅延蛍光を放射する、請求項１３～１８のいずれか１項に記載の有機発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】
本発明は、発光材料として有用な化合物とそれを用いた有機発光素子に関する。
【背景技術】
【０００２】
有機エレクトロルミネッセンス素子（有機ＥＬ素子）などの有機発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、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、高い発光効率が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】
本発明者らが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各種化合物について発光特性を評価したところ、確かに、ドナー性基またはアクセプター性基の一方のみでは得られない特有のエネルギー状態を実現しうるという共通の利点を有することが確認された。しかしながら、ドナー性基とアクセプター性基を連結する連結部分の構造によって発光特性は大きく異なり、単にドナー性基とアクセプター基を連結させるだけでは、必ずしも良好な発光材料は提供できないことが判明した。
そこで本発明者らは、ドナー性基とアクセプター性基を有していて発光特性に優れた化合物の一般式を導きだし、発光効率が高い有機発光素子の構成を一般化することを目的として鋭意検討を進めた。
【課題を解決するための手段】
【０００５】
鋭意検討を進めた結果、本発明者らはドナー性基とアクセプター性基を連結する連結基として、特定の構造を有する連結基を採用すれば、優れた発光特性がもたらされることを見いだした。そして、その特定の連結基で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が、遅延蛍光を放射しうる有用な化合物であることを見出した。さらに、そのような化合物を発光材料に用いることにより、発光効率が高い有機発光素子を提供できるとの知見を得るに至った。本発明は、このような知見に基づいて提案されたものであり、具体的に以下の構成を有する。
【０００６】
［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）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表し、Ｄはハメットのσ$_p$値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ$_p$値が正である置換基を表す。］

［２］　R^1およびR^2が各々独立にパーフルオロアルキル基である、［１］に記載の発光材料。

［３］　R^1およびR^2の炭素数が各々独立に１～３のいずれかである、［１］または［２］に記載の発光材料。

［４］　Ｄが、置換もしくは無置換のジアリールアミノ構造を含む、［１］～［３］のいずれか１項に記載の発光材料。

［５］　Ｄが、置換もしくは無置換のジアリールアミノ基で置換されたアリール基である、［４］に記載の発光材料。

［６］　Ａが、置換もしくは無置換のヘテロアリール基を含む、［１］～［５］のいずれか１項に記載の発光材料。

［７］　Ａが、置換もしくは無置換のヘテロアリール基で置換されたアリール基である、［６］に記載の発光材料。

【０００７】

［８］　前記一般式（１）で表される化合物からなるホスト材料。

［９］　前記一般式（１）で表される化合物からなる正孔阻止材料。

［１０］　前記一般式（１）で表される化合物からなる電子阻止材料。

［１１］　前記一般式（１）で表される化合物。

［１２］　前記一般式（１）で表される構造を有する遅延蛍光体。

【０００８】

［１３］　前記一般式（１）で表される化合物を含む有機発光素子。

［１４］　前記化合物を含む発光層を有する、［１３］に記載の有機発光素子。

［１５］　前記発光層における前記化合物の含有量が５０重量％未満であり、前記発光層に前記化合物の他にホスト材料を含む、［１４］に記載の有機発光素子。

［１６］　前記発光層における前記化合物の含有量が５０重量％以上であり、前記発光層に前記化合物の他に発光材料を含む、［１４］に記載の有機発光素子。

［１７］　陽極、発光層を含む複数の有機層、陰極を順に積層した構造を有しており、前記化合物を、発光層の陰極側に隣接する層に含む、［１３］～［１６］のいずれか１項に記載の有機発光素子。

［１８］　陽極、発光層を含む複数の有機層、陰極を順に積層した構造を有しており、前記化合物を、発光層の陽極側に隣接する層に含む、［１３］～［１６］のいずれか１項に記載の有機発光素子。

［１９］　遅延蛍光を放射する、［１３］～［１８］のいずれか１項に記載の有機発光素子。

【発明の効果】

【０００９】

本発明の化合物は、電子供与性基と電子求引性基を有しており、優れた発光特性を示す。このため、本発明の化合物は発光材料として有用である。また、本発明の化合物の中に

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

【図面の簡単な説明】

【００１０】

【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１のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光スペクトルおよび吸収スペクトルである。

【図３】化合物１のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光の過渡減衰曲線である。

【図４】化合物２のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光スペクトルおよび吸収スペクトルである。

【図５】化合物２のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光の過渡減衰曲線である。

【図６】化合物３のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光スペクトルおよび吸収スペクトルである。

【図７】化合物３のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光の過渡減衰曲線である。

【図８】化合物４のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光スペクトルおよび吸収スペクトルである。

【図９】化合物４のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液および単独膜の発光の過渡減衰曲線である。

【図１０】化合物５のトルエン溶液、クロロホルム溶液および単独膜の発光スペクトルである。

【図１１】化合物５のトルエン溶液およびクロロホルム溶液の発光の過渡減衰曲線と、化合物５のトルエン溶液およびクロロホルム溶液の脱気後における発光の過渡減衰曲線である。

【図１２】化合物６のトルエン溶液および単独膜の発光スペクトルである。

【図１３】化合物６のトルエン溶液の脱気前後における発光の過渡減衰曲線である。

【図１４】化合物６を用い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である。

【発明を実施するための形態】

【００１１】

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。

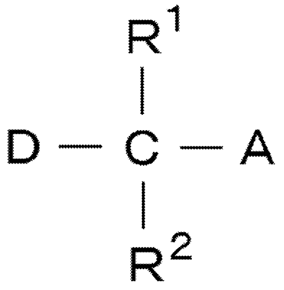
【００１２】

［一般式（１）で表される化合物］

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

【化２】

一般式（１）



【００１３】

一般式（１）において、R^1およびR^2は各々独立にフッ化アルキル基を表す。本発明における「フッ化アルキル基」とは、アルキル基の水素原子の少なくとも１つがフッ素原子で置換された構造を有する基のことを言う。R^1およびR^2が表すフッ化アルキル基は、アルキル基の全ての水素原子がフッ素原子で置換されたパーフルオロアルキル基であってもよいし、アルキル基の水素原子の一部だけがフッ素原子で置換された、部分フッ化アルキル基であってもよい。これらのうち、フッ化アルキル基はパーフルオロアルキル基であることが好ましい。フッ化アルキル基の炭素数は、１～２０のいずれかであることが好ましく、１～１０のいずれかであることがより好ましく、１～５のいずれかであることがさらに好ましく、１～３のいずれかであることが特に好ましい。フッ化アルキル基の炭素数が３以上であるとき、フッ化アルキル基は直鎖状であってもよいし、分枝状であってもよい。R^1およびR^2が表すフッ化アルキル基は、互いに同一であっても異なっていてもよい。R^1およびR^2が表すフッ化アルキル基が互いに異なる場合の例として、炭素原子やフッ素原子の数が異なる場合、直鎖状と分枝状とで異なる場合、分枝状のフッ化アルキル基において枝分かれの数や枝分かれの位置が異なる場合等を挙げることができる。

【００１４】

Ｄはハメットのσ_p値が負である置換基を表し、Ａはハメットのσ_p値が正である置換基を表す。

ここで、「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：

$$\log(k/k_0) = \rho\sigma_p$$

または

$$\log(K/K_0) = \rho\sigma_p$$

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。本発明における「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、Hansch,C.et.al.,Chem.Rev.,91,165-195(1991)のσ_p値に関する記載を参照することができる。ハメットのσ_p値が負である置換基は電子供与性（ドナー性）を示し、ハメットのσ_p値が正である置換基は電子求引性（アクセプター性）を示す傾向がある。以下の説明では、「ハメットのσ_p値が負である」ことを「電子供与性」と言い、「ハメットのσ_p値が正である」ことを「電子求引性」と言うことがある。

【００１５】

Ｄが表すハメットのσ_p値が負である置換基としては、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、珪素原子、およびリン原子からなる群より選択されるヘテロ原子で結合する電子供与性の置換基や、電子供与性を示すアリール基を採用することが好ましい。電子供与性を示すアリール基は、通常は置換アリール基であり、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、珪素原子

、およびリン原子からなる群より選択されるヘテロ原子で結合する電子供与性の置換基で置換されたアリール基であることが好ましい。

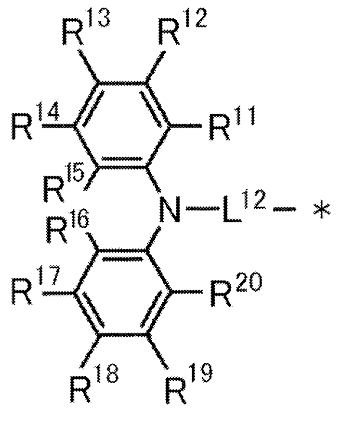
また、Dが表すハメットのσ_p値が負である置換基は、置換もしくは無置換のジアリールアミノ構造を含むことが好ましく、置換もしくは無置換のジアリールアミノ基で置換されたアリール基であることがより好ましい。ここで、「ジアリールアミノ構造」とは、ジアリールアミノ基と、ジアリールアミノ基のアリール基同士が単結合または連結基で連結して複素環を形成している複素芳香環構造の両方を意味することとする。ジアリールアミノ構造の各アリール基を構成する芳香環、および、ジアリールアミノ基で置換されたアリール基の各アリール基（ジアリールアミノ基の各アリール基とジアリールアミノ基で置換されているアリール基）を構成する芳香環は、単環であっても、２以上の芳香環が縮合した縮合環であっても、２以上の芳香環が連結した連結環であってもよい。２以上の芳香環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。ジアリールアミノ構造およびジアリールアミノ基で置換されたアリール基の各アリール基を構成する芳香環の炭素数は、６～２２であることが好ましく、６～１８であることがより好ましく、６～１４であることがさらに好ましく、６～１０であることがさらにより好ましい。各アリール基の具体例として、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基を挙げることができる。ジアリールアミノ構造およびジアリールアミノ基で置換されたアリール基が置換基を有する場合の置換基の説明と好ましい範囲については、下記のR^{11}～R^{20}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。ジアリールアミノ構造が上記の複素芳香環構造である場合のアリール基同士を連結する連結基の説明と好ましい範囲については、下記の一般式（２）のR^{15}とR^{16}が互いに結合して連結基を形成している場合の連結基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

【００１６】

Dが表すハメットのσ_p値が負である置換基は、下記の一般式（２）で表される電子供与性の基であることも好ましい。

【化３】

一般式（２）



【００１７】

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

R^{11}～R^{20}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、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１～２０のアリール置換アミノ基、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２～２０のアルキルアミド基、炭素数７～２１のアリールアミド基、炭素数３～２０のトリアルキルシリ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１～２０のアリール置換アミノ基、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である。

【００１８】

R^{11}とR^{12}、R^{12}とR^{13}、R^{13}とR^{14}、R^{14}とR^{15}、R^{15}とR^{16}、R^{16}とR^{17}、R^{17}とR^{18}、R^{18}とR^{19}、R^{19}とR^{20}は、互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は２環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、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（２）で表される基の中では、R^{15}とR^{16}が互いに結合していないもの、R^{15}とR^{16}が互いに単結合で結合しているもの、または、R^{15}とR^{16}が互いに結合して連結鎖長が１原子の連結基を形成しているものが好ましい。R^{15}とR^{16}が互いに結合して連結鎖長が１原子の連結基を形成している場合、R^{15}とR^{16}が互いに結合した結果として形成される環状構造は６員環となる。R^{15}とR^{16}が互いに結合して形成される連結基の具体例として、－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｎ（R^{91}）－または－Ｃ（R^{92}）（R^{93}）－で表される連結基が挙げられる。ここにおいて、R^{91}～R^{93}は各々独立に水素原子または置換基を表す。R^{91}がとりうる置換基としては、炭素数１～２０のアルキル基、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を例示することができる。R^{92}およびR^{93}がとりうる置換基としては、各々独立に、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１～２０のアルキル置換アミノ基、炭素数１～２０のアリール置換アミノ基、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２～２０のアルキルアミド基、炭素数７～２１のアリールアミド基、炭素数３～２０のトリアルキルシリル基等を例示することができる。

【００２０】

一般式(２)において、L^{12}は、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。＊は、一般式（１）における炭素原子（Ｃ）への結合位置を表す。L^{12}は、単結合、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い。

L^{12}が表すアリーレン基を構成する芳香環は、単環であっても、２以上の芳香環が縮合した縮合環であっても、２以上の芳香環が連結した連結環であってもよい。２以上の芳香環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。L^{12}が表すアリーレン基を構成する芳香環の炭素数は、６～２２であることが好ましく、６～１８であることがより好ましく、６～１４であることがさらに好ましく、６～１０であることがさらにより好ましい。アリーレン基の具体例として、フェニレン基、ナフタレンジイル基、ビフェニレン基を挙げることができる。また、L^{12}が表すヘテロアリーレン基を構成する複素環は、単環であっても、１以上の複素環と芳香環または複素環が縮合した縮合環であっても、１以上の複素環と芳香環または複素環が連結した連結環であってもよい。複素環の炭素数は５～２２であることが好ましく、５～１８であることがより好ましく、５～１４であることがさらに好ましく、５～１０である

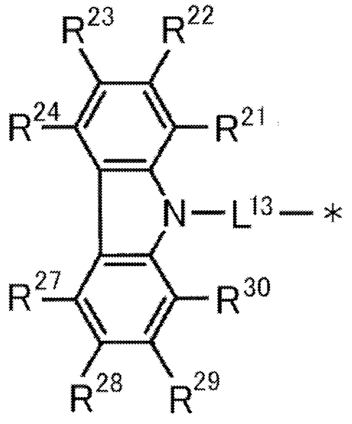
ことがさらにより好ましい。複素環を構成する複素原子は窒素原子であることが好ましい。複素環の具体例として、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、トリアゾール環、ベンゾトリアゾール環を挙げることができる。L^{12}が表すより好ましい基はフェニレン基である。L^{12}がフェニレン基であるとき、フェニレン基は１，２－フェニレン基、１，３－フェニレン基、１，４－フェニレン基のいずれであってもよいが、１，４－フェニレン基であることが好ましい。また、L^{12}は置換基により置換されていてもよい。L^{12}の置換基の数および置換位置は特に制限されない。L^{12}に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、上記のR^{11}～R^{20}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。

【００２１】

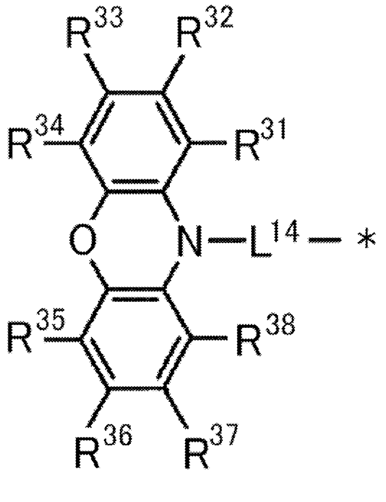
一般式（２）で表される基の好ましい例として、下記一般式（４）～（８）のいずれかで表される基を挙げることができる。

【化４】

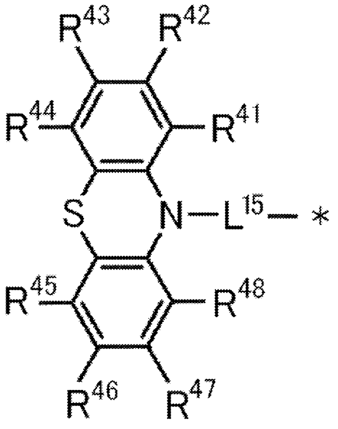
一般式（４）



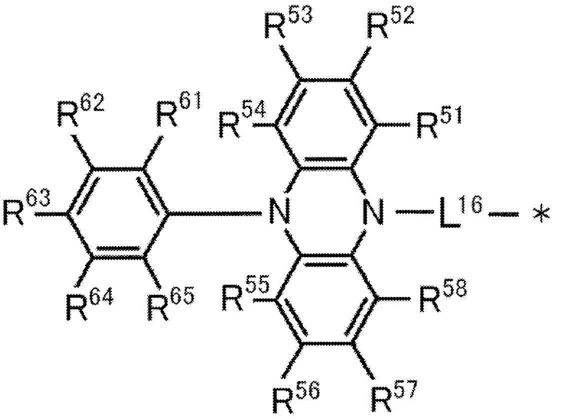
一般式（５）



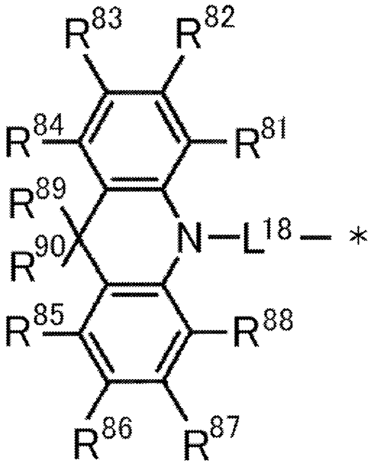
一般式（６）



一般式（７）



一般式（８）



【００２２】

一般式（４）～（８）において、R^{21}～R^{24}、R^{27}～R^{38}、R^{41}～R^{48}、R^{51}～R^{58}、R^{61}～R^{65}、R^{81}～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}～R^{20}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^{21}～R^{24}、R^{27}～R^{38}、R^{41}～R^{48}、R^{51}～R^{58}、R^{61}～R^{65}、R^{71}～R^{79}、R^{81}～R^{90}は、各々独立に上記一般式（４）～（８）のいずれかで表される基であることも好ましい。また、一般式（４）のR^{21}、R^{23}、R^{28}、R^{30}のうちの少なくとも２つは置換もしくは無置換のアルキル基であることが好ましく、R^{21}、R^{23}、R^{28}、R^{30}の全てが置換もしくは無置換のアルキル基であるか、R^{21}とR^{30}が置換もしくは

無置換のアルキル基であるか、R^{23}とR^{28}が置換もしくは無置換のアルキル基であることがより好ましく、その置換もしく無置換のアルキル基は炭素数１～６の置換もしくは無置換のアルキル基であることがより好ましい。一般式（８）のR^{89}およびR^{90}は置換もしくは無置換のアルキル基であることが好ましく、炭素数１～６の置換もしくは無置換のアルキル基であることがより好ましい。一般式（４）～（８）における置換基の数は特に制限されない。すべてが無置換（すなわち水素原子）である場合も好ましい。また、一般式（４）～（８）のそれぞれにおいて置換基が２つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なっていてもよい。一般式（４）～（８）に置換基が存在している場合、その置換基は一般式（４）であればR^{22}～R^{24}、R^{27}～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（５）であればR^{32}～R^{37}のいずれかであることが好ましく、一般式（６）であればR^{42}～R^{47}のいずれかであることが好ましく、一般式（７）であればR^{52}、R^{53}、R^{56}、R^{57}、R^{62}～R^{64}のいずれかであることが好ましく、一般式（８）であればR^{82}～R^{87}、R^{89}、R^{90}のいずれかであることが好ましい。

【００２３】

一般式（４）～（８）において、R^{21}とR^{22}、R^{22}とR^{23}、R^{23}とR^{24}、R^{27}とR^{28}、R^{28}とR^{29}、R^{29}とR^{30}、R^{31}とR^{32}、R^{32}とR^{33}、R^{33}とR^{34}、R^{35}とR^{36}、R^{36}とR^{37}、R^{37}とR^{38}、R^{41}とR^{42}、R^{42}とR^{43}、R^{43}とR^{44}、R^{45}とR^{46}、R^{46}とR^{47}、R^{47}とR^{48}、R^{51}とR^{52}、R^{52}とR^{53}、R^{53}とR^{54}、R^{55}とR^{56}、R^{56}とR^{57}、R^{57}とR^{58}、R^{61}とR^{62}、R^{62}とR^{63}、R^{63}とR^{64}、R^{64}とR^{65}、R^{54}とR^{61}、R^{55}とR^{65}、R^{81}とR^{82}、R^{82}とR^{83}、R^{83}とR^{84}、R^{85}とR^{86}、R^{86}とR^{87}、R^{87}とR^{88}、R^{89}とR^{90}は、互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造の説明と好ましい例については、上記の一般式（２）において、R^{11}とR^{12}等が互いに結合して形成する環状構造の説明と好ましい例を参照することができる。

【００２４】

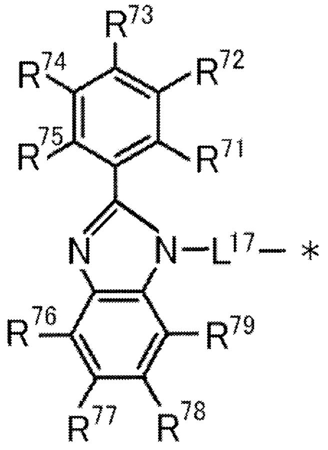
一般式（４）～（８）において、L^{13}～L^{16}、L^{18}は、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。＊は、一般式（１）における炭素原子（Ｃ）への結合位置を表す。L^{13}～L^{16}、L^{18}が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、L^{12}が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。L^{13}～L^{16}、L^{18}は、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましい。

【００２５】

Ｄが表すハメットのσ_p値が負である置換基は、例えば下記の一般式（３）で表される電子供与性の基であることも好ましい。

【化５】

一般式（３）



【００２６】

一般式（３）において、R^{71}～R^{79}は、各々独立に水素原子または置換基を表す。R^{71}とR^{72}、R^{72}とR^{73}、R^{73}とR^{74}、R^{74}とR^{75}、R^{76}とR^{77}、R^{77}とR^{78}、R^{78}とR^{79}は、互いに結合して環状構造を形成していてもよい。L^{17}は、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。＊は、一般式（１）における炭素原子（Ｃ）への結合位置を表す。

【００２７】

R^{71}～R^{79}がとりうる置換基の説明と好ましい範囲については、上記のR^{11}～R^{20}がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。また、R^{71}～R^{79}は、各々独立に上記一般式（４）～（８）のいずれかで表される基であることも好ましい。置換基が存在している場合は、その置換位置は、R^{72}～R^{74}、R^{77}、R^{78}のいずれかであることが好ましい。

L^{17}が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、L^{12}が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

【００２８】

Ａが表すハメットのσ_p値が正である置換基は、置換もしくは無置換のヘテロアリール基を含むことが好ましく、置換もしくは無置換のヘテロアリール基で置換されたアリール基であることがより好ましい。Ａが置換もしくは無置換のヘテロアリール基を含む場合、そのヘテロアリール基が含む芳香族ヘテロ環はπ電子欠如系の芳香族ヘテロ環であることが好ましい。ヘテロアリール基が含むヘテロ原子として、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、硼素原子を挙げることができ、ヘテロアリール基は、少なくとも１つの窒素原子を環員として含むことが好ましい。そのようなヘテロアリール基として、窒素原子を環員として含む５員環または６員環からなる基、または窒素原子を環員として含む５員環または６員環にベンゼン環が縮環した構造を有する基を挙げることができ、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環から水素原子を１つ除いた１価の基、または、これらの芳香族ヘテロ環同士が縮環した構造を有する基、これらの芳香族ヘテロ環にベンゼン環が縮環した構造を有する基であることが好ましい。また、ヘテロアリール基が置換基を有する場合の置換基として、例えば炭素数１～２０のアルキル基、炭素数６～４０のアリール基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数５～４０のヘテロアリール基等を挙げることができる。これらの置換基のうち置換基により置換可能なものは置換されていてもよい。

Ａが置換もしくは無置換のヘテロアリール基で置換されたアリール基である場合、そのアリール基（ヘテロアリール基で置換されているアリール基）を構成する芳香環は、単環

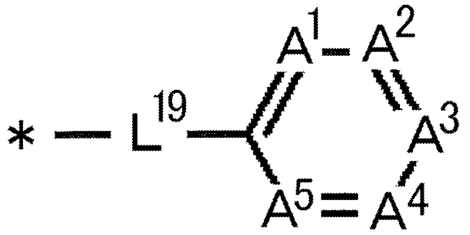
であっても、２以上の芳香環が縮合した縮合環であっても、２以上の芳香環が連結した連結環であってもよい。２以上の芳香環が連結している場合は、直鎖状に連結したものであってもよいし、分枝状に連結したものであってもよい。このアリール基を構成する芳香環の炭素数は、６～２２であることが好ましく、６～１８であることがより好ましく、６～１４であることがさらに好ましく、６～１０であることがさらにより好ましい。このアリール基の具体例として、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基を挙げることができる。このアリール基が上記のヘテロアリール基の他に置換基を有する場合の置換基の説明と好ましい範囲については、上記のL^{12}が表す基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

【００２９】

Ａが表すハメットのσ_p値が正である置換基は、下記一般式（９）で表される基であることが好ましい。

【化６】

一般式（９）



【００３０】

一般式（９）において、A^1～A^5は各々独立にＮまたはＣ（R^{19}）を表し、R^{19}は水素原子または置換基を表す。A^1～A^5の少なくとも１つはＮであることが好ましく、１～３つがＮであることがより好ましく、３つがＮであることがさらに好ましい。一般式（９）で表される基がR^{19}を複数有するとき、複数のR^{19}は互いに同一であっても異なっていてもよい。R^{19}がとりうる置換基として、例えば炭素数１～２０のアルキル基、炭素数６～４０のアリール基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数５～４０のヘテロアリール基等を挙げることができ、炭素数６～４０のアリール基であることが好ましい。これらの置換基のうち置換基により置換可能なものは置換されていてもよい。

一般式（９）において、L^{19}は、単結合、置換もしくは無置換のアリーレン基、または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基を表す。＊は、一般式（１）における炭素原子（Ｃ）への結合位置を表す。L^{19}が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、L^{12}が表すアリーレン基またはヘテロアリーレン基、これらの基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。L^{19}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、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く、無置換のフェニレン基であることがさらに好ましい。L^{19}が置換もしくは無置換のフェニレン基であるとき、フェニレン基は１，２－フェニレン基、１，３－フェニレン基、１，４－フェニレン基のいずれであってもよいが、１，４－フェニレン基であることが好ましい。

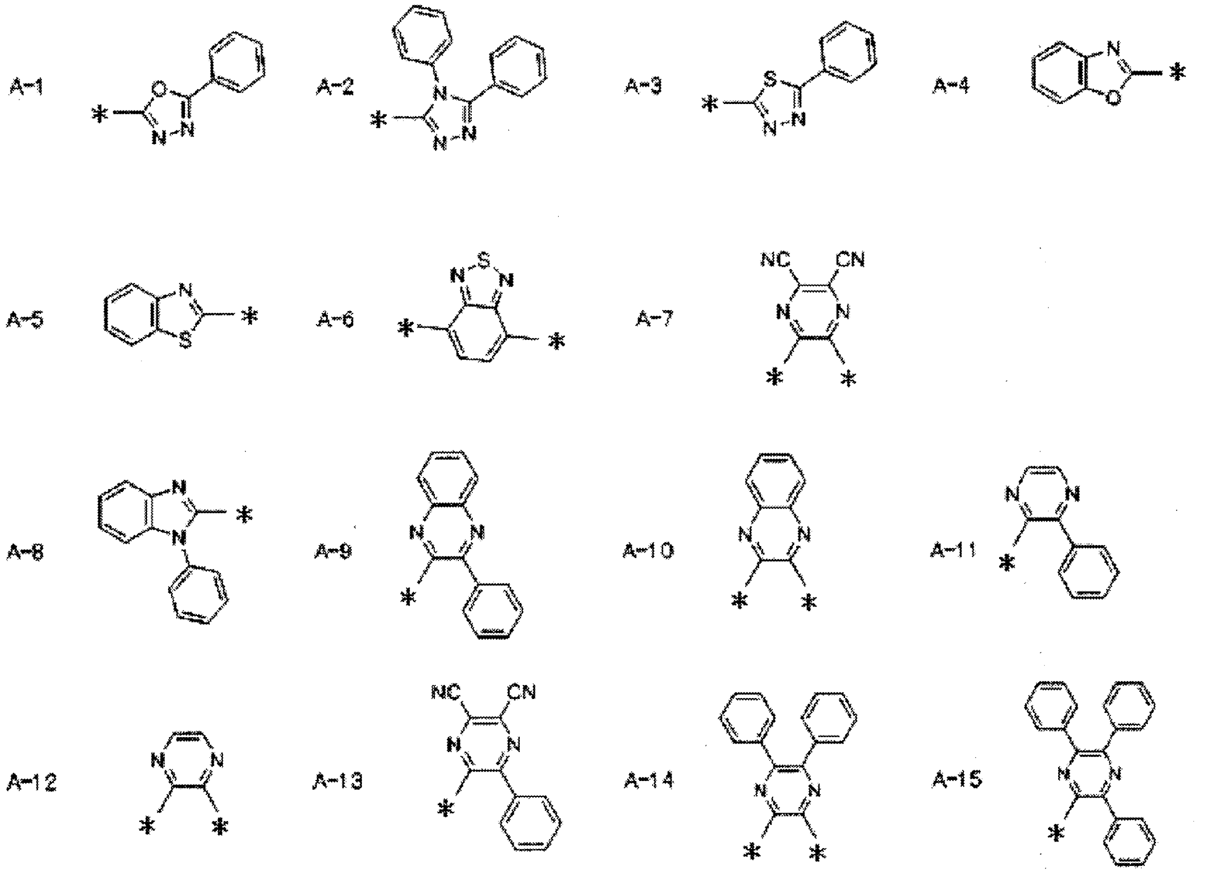
【００３１】

以下において、Ａが含む置換基の具体例（Ａ－１～Ａ－７７）を例示する。ただし、本発明において、Ａが表すハメットのσ_p値が正である置換基は、これらの置換基を含むものによって限定的に解釈されるべきものではない。Ａが表すハメットのσ_p値が正である置換基は、Ａ－１～Ａ－７７のいずれかで表される置換基であってもよいし、Ａ－１～Ａ－７７のいずれかで表される置換基と、その置換基を一般式（１）の炭素原子（Ｃ）へ連結する連結基とから構成されたものであってもよい。下記式において、＊は、一般式（１）の炭素原子（Ｃ）への結合位置、または、一般式（１）の炭素原子（Ｃ）に結合している連結基への結合位置を表す。＊が複数存在する場合は、複数の＊のうちの１つが一般式（１）の炭素原子（Ｃ）への結合位置、または、一般式（１）の炭素原子（Ｃ）に結合し

ている連結基への結合位置を表す。それ以外の残りの＊は、水素原子または置換基を表す。置換基としては、R^{11}～R^{20}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が、一般式（１）のＤ－Ｃ（R^{1}）（R^{2}）－の条件を満たす置換基や一般式（１）のＤの条件を満たす置換基であることも好ましく、その中では一般式（１）のＤ－Ｃ（R^{1}）（R^{2}）－の条件を満たす置換基であることがより好ましい。Ａ－１～Ａ－７７のいずれかで表される置換基の＊が炭素原子（Ｃ）へ直接結合する場合には、Ａが表すハメットのσ_p値が正である置換基は、これらの置換基から構成され、Ａ－１～Ａ－７７のいずれかで表される置換基の＊が炭素原子（Ｃ）に結合している連結基へ結合する場合には、Ａが表すハメットのσ_p値が正である置換基は、これらの置換基と連結基で構成される。炭素原子（Ｃ）に連結基が結合している場合の連結基は、置換もしくは無置換のアリーレン基または置換もしくは無置換のヘテロアリーレン基である。

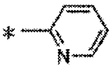
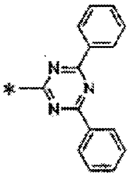
【００３２】

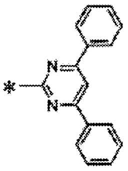
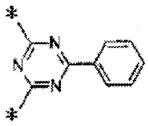
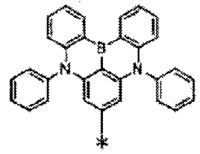
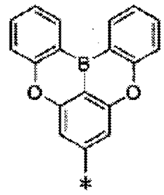
【化７】

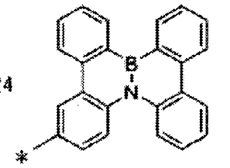
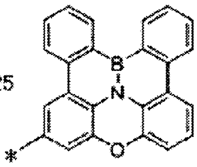
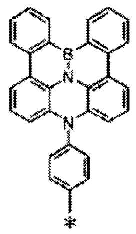
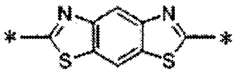


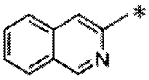
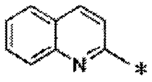
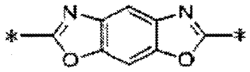
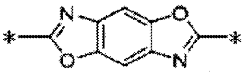
【００３３】

【化８】

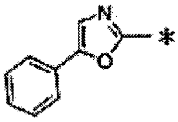
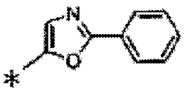
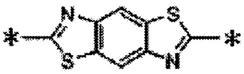
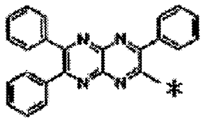
A-16 
A-17
A-18
A-19 

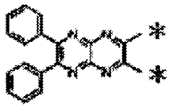
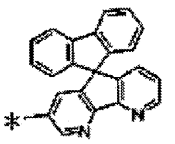
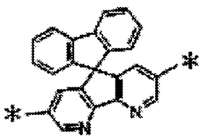
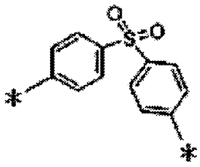
A-20 
A-21 
A-22 
A-23 

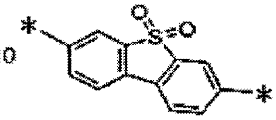
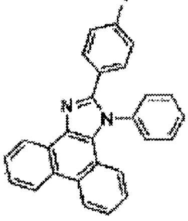
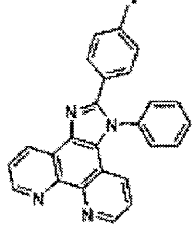
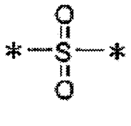
A-24 
A-25 
A-26 
A-27 

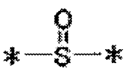
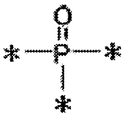
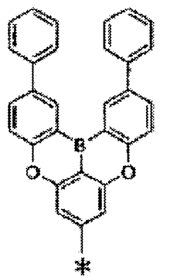
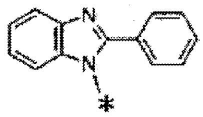
A-28 
A-29 
A-30 
A-31 

【００３４】
【化９】

A-32 
A-33 
A-34 
A-35 

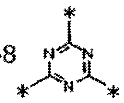
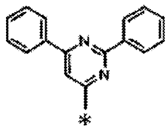
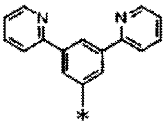
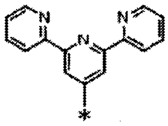
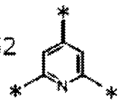
A-36 
A-37 
A-38 
A-39 

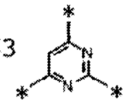
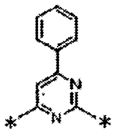
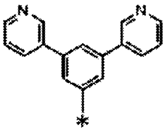
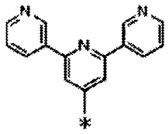
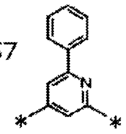
A-40 
A-41 
A-42 
A-43 

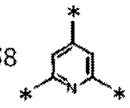
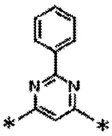
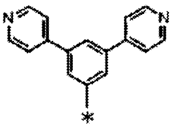
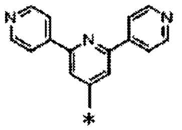
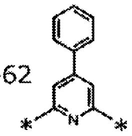
A-44 
A-45 
A-46 
A-47 

【００３５】

【化１０】

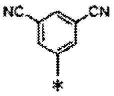
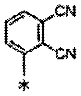
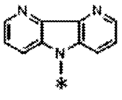
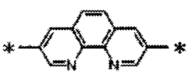
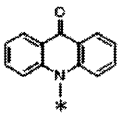
A-48 
A-49 
A-50 
A-51 
A-52 

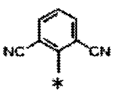
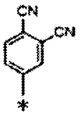
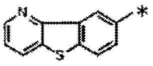
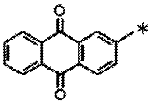
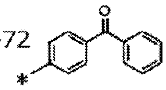
A-53 
A-54 
A-55 
A-56 
A-57 

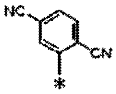
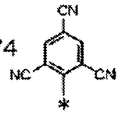
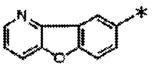
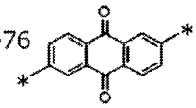
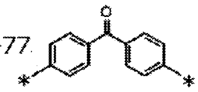
A-58 
A-59 
A-60 
A-61 
A-62 

【００３６】

【化１１】

A-63 
A-64 
A-65 
A-66 
A-67 

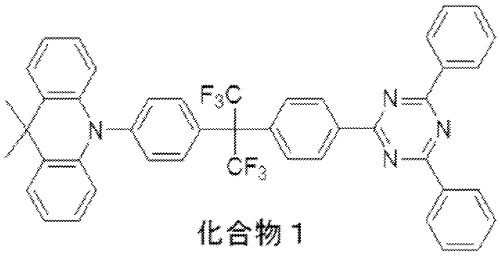
A-68 
A-69 
A-70 
A-71 
A-72 

A-73 
A-74 
A-75 
A-76 
A-77 

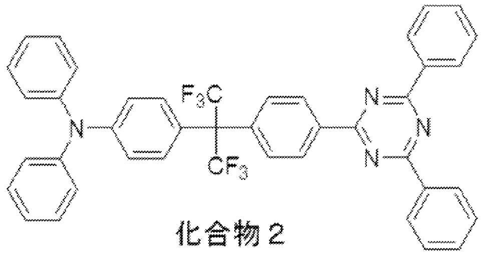
【００３７】

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。

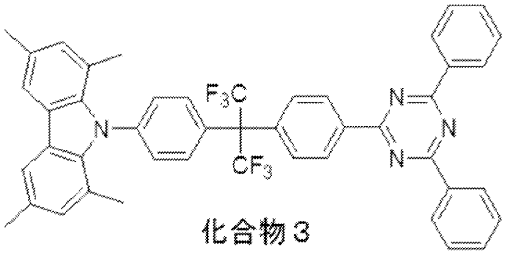
【化１２】



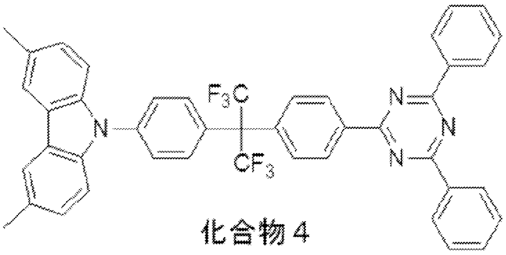
化合物１



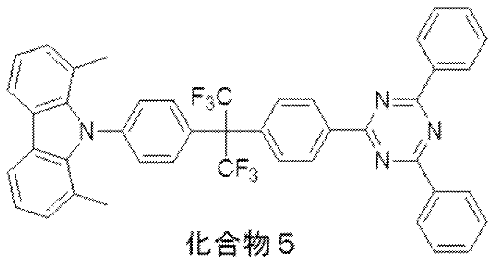
化合物２



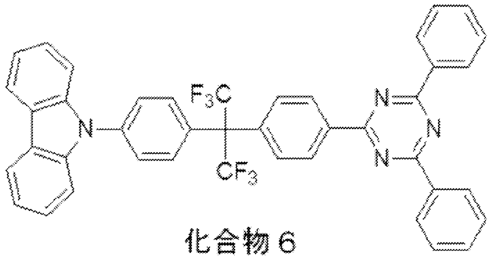
化合物３



化合物４



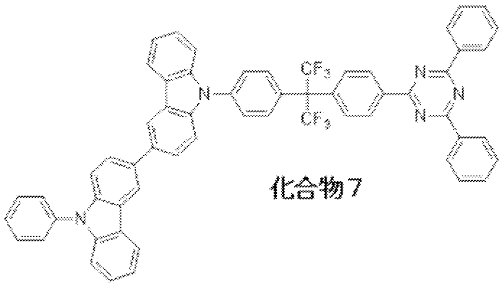
化合物５



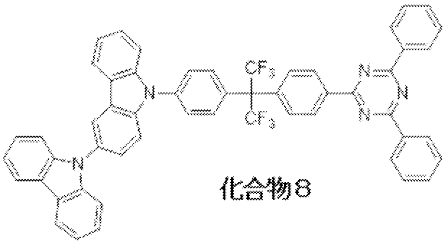
化合物６

【００３８】

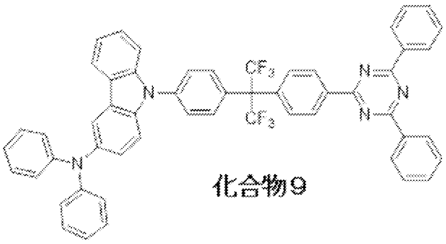
【化１３】



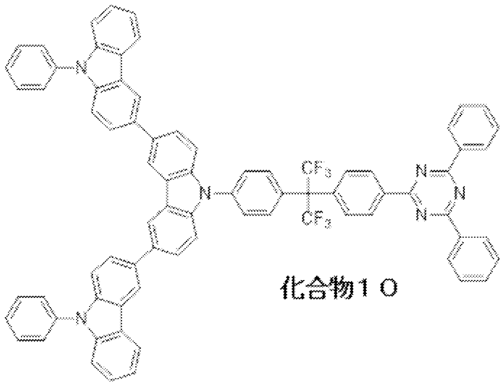
化合物7



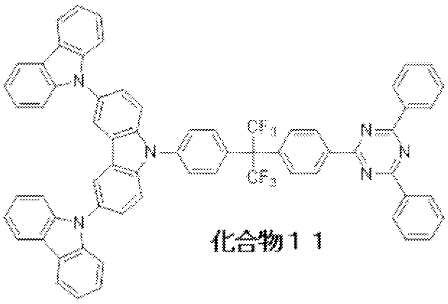
化合物8



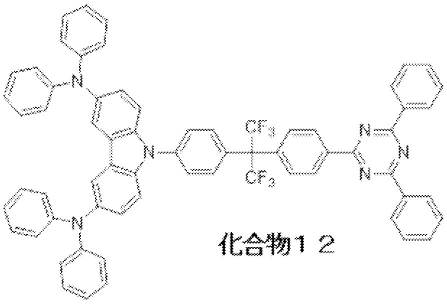
化合物9



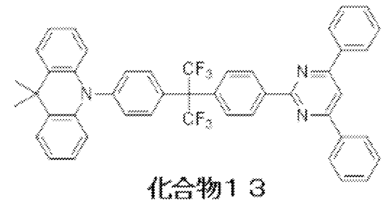
化合物１０



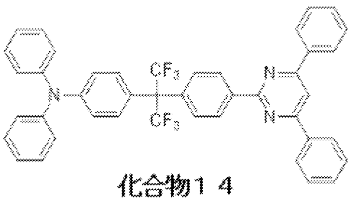
化合物１１



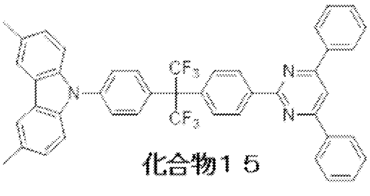
化合物１２



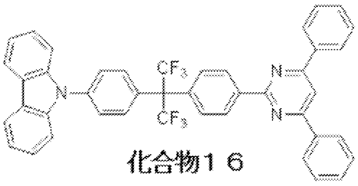
化合物１３



化合物１４



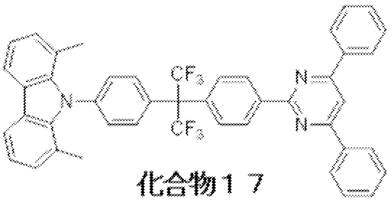
化合物１５



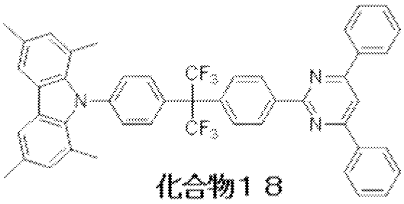
化合物１６

【００３９】

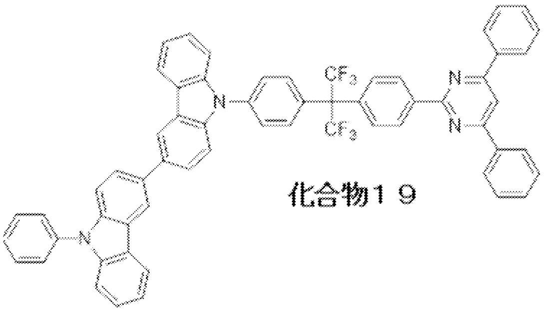
【化１４】



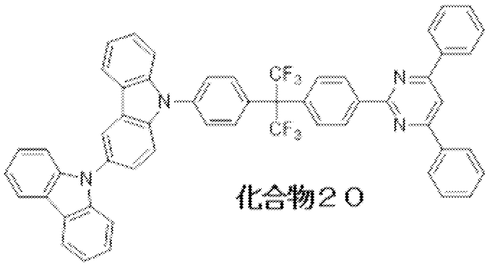
化合物１７



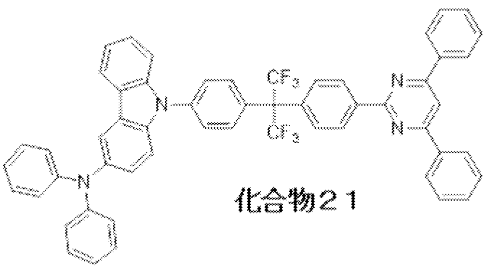
化合物１８



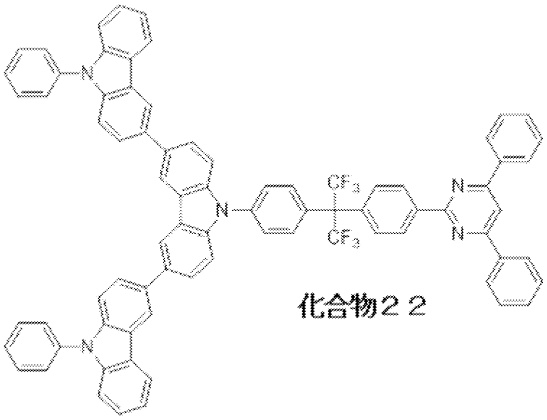
化合物１９



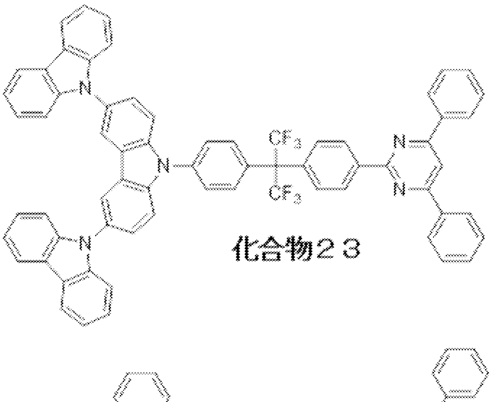
化合物２０



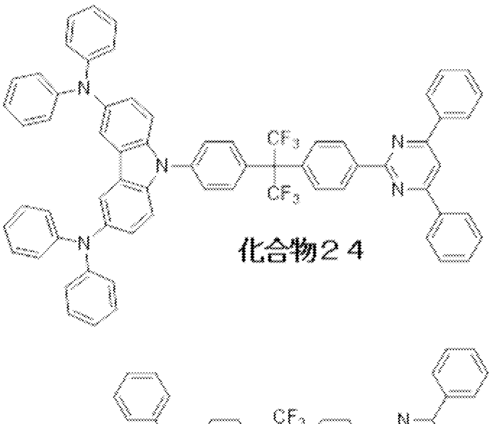
化合物２１



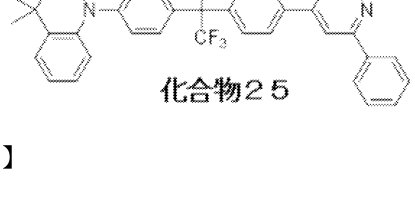
化合物２２



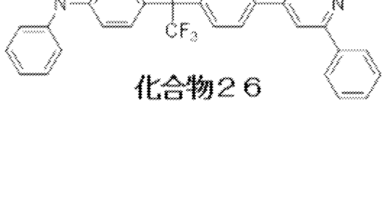
化合物２３



化合物２４



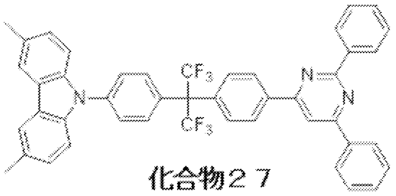
化合物２５



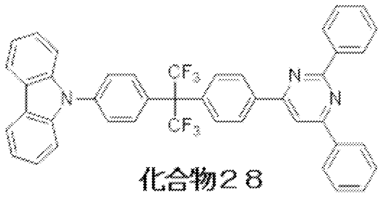
化合物２６

【００４０】

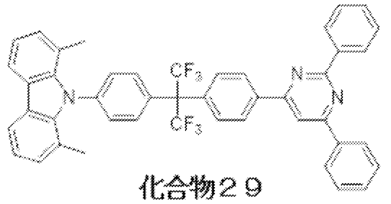
【化１５】



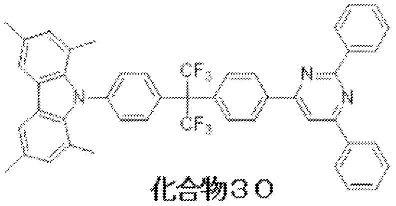
化合物２７



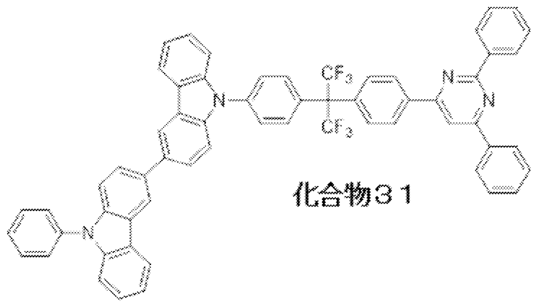
化合物２８



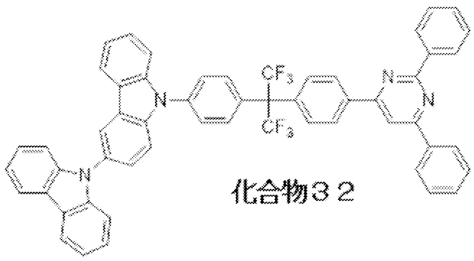
化合物２９



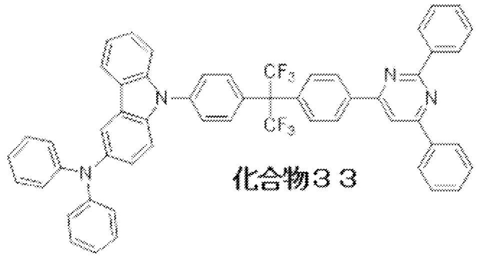
化合物３０



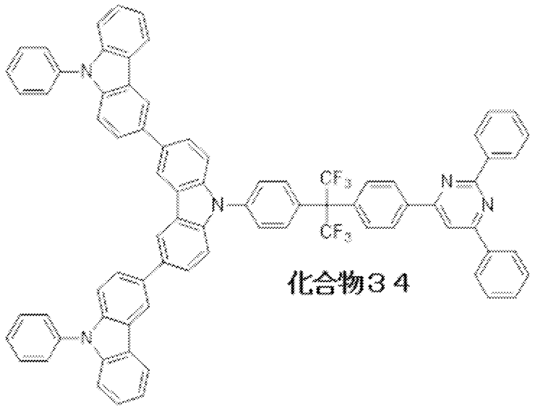
化合物３１



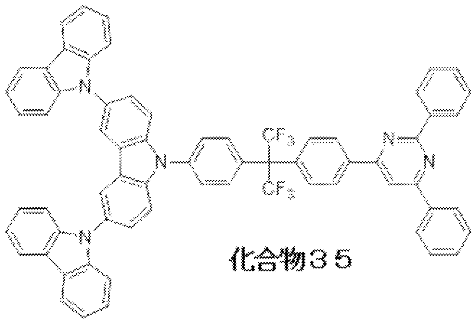
化合物３２



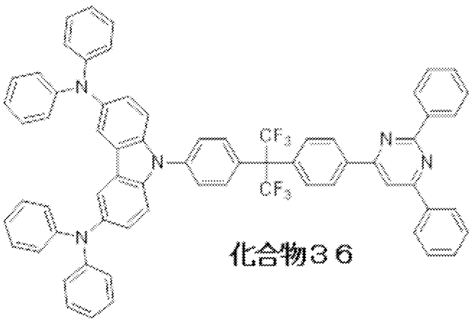
化合物３３



化合物３４



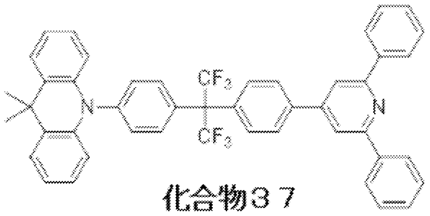
化合物３５



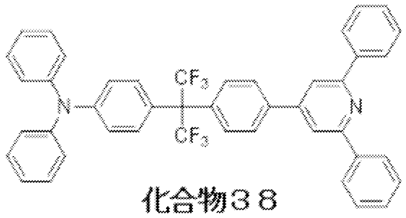
化合物３６

【００４１】

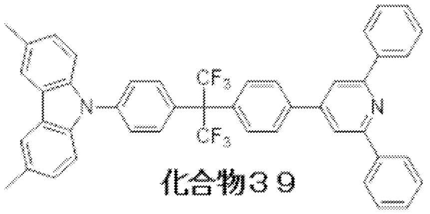
【化１６】



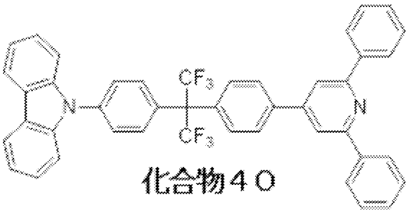
化合物３７



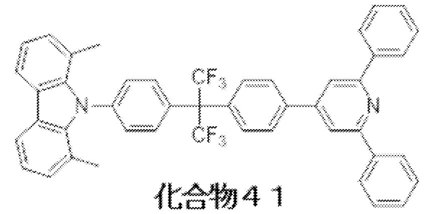
化合物３８



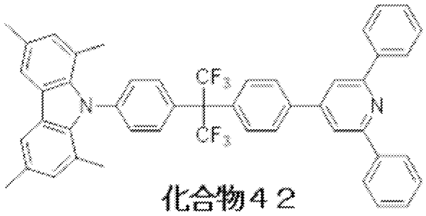
化合物３９



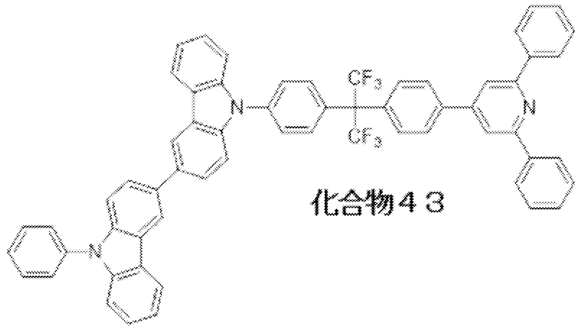
化合物４０



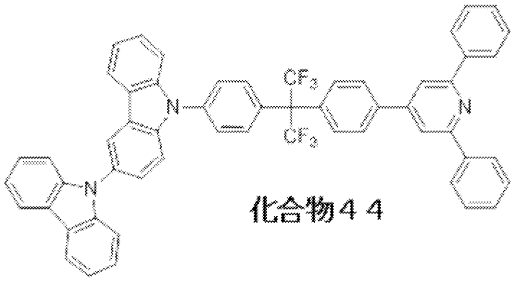
化合物４１



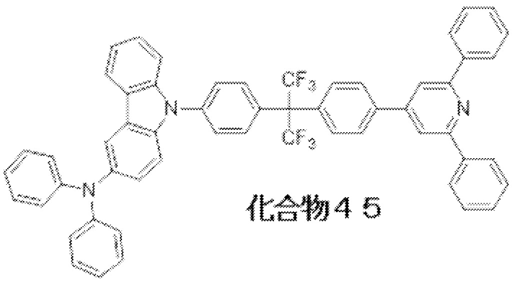
化合物４２



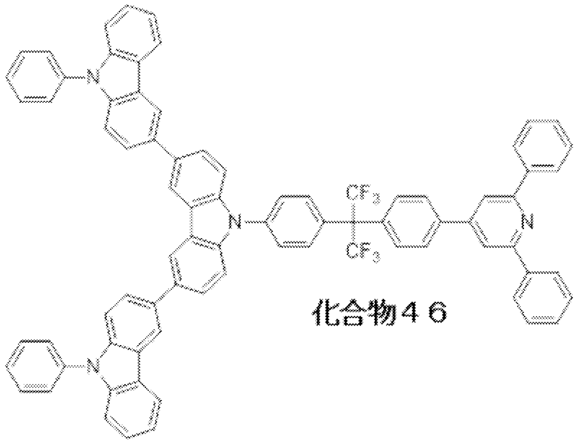
化合物４３



化合物４４



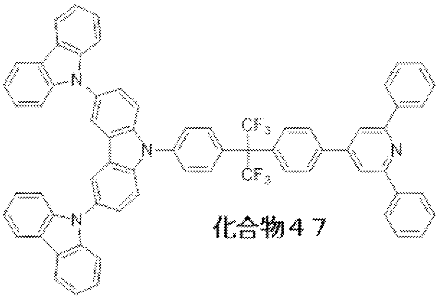
化合物４５



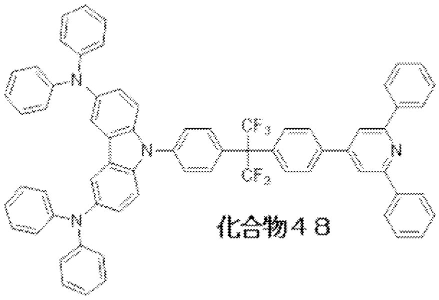
化合物４６

【００４２】

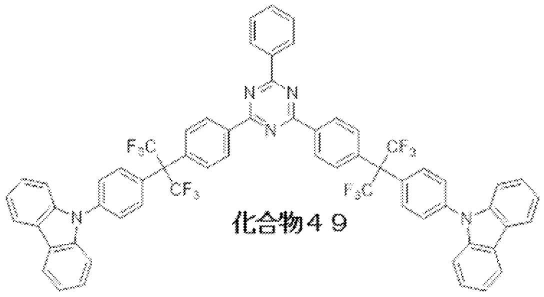
【化１７】



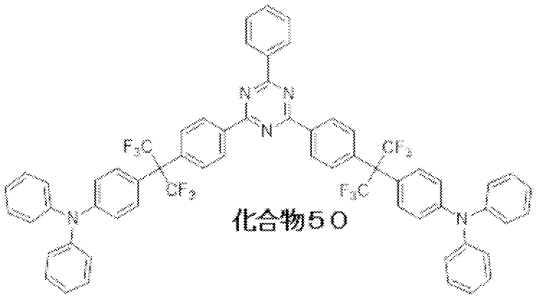
化合物４７



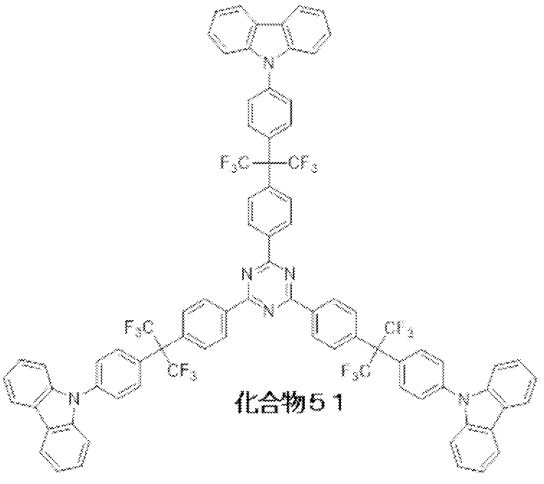
化合物４８



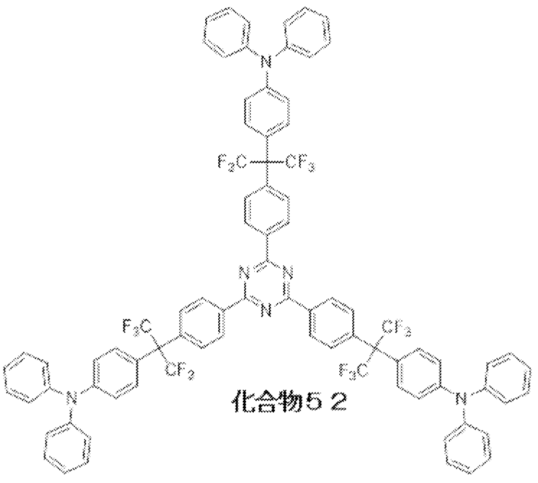
化合物４９



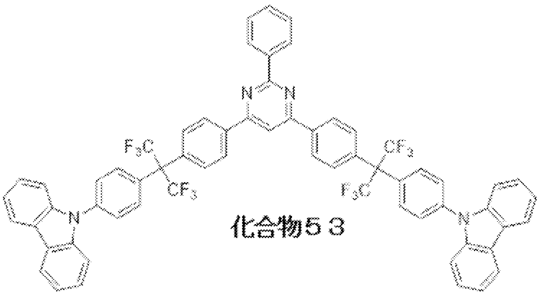
化合物５０



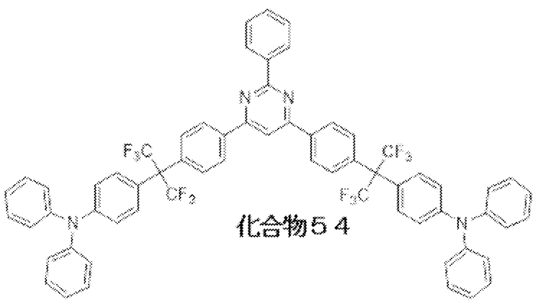
化合物５１



化合物５２



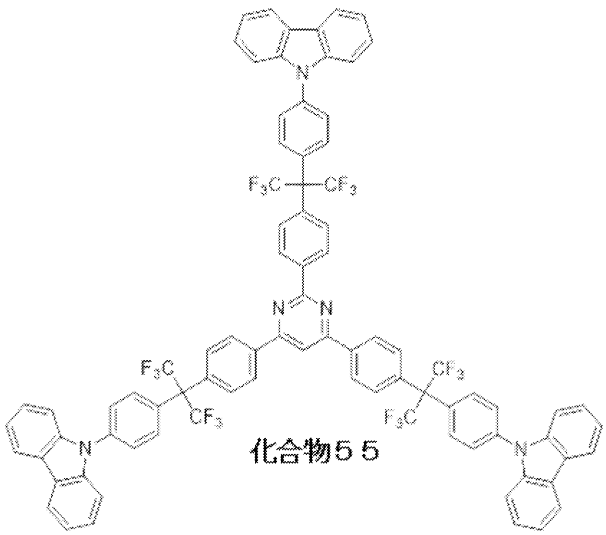
化合物５３



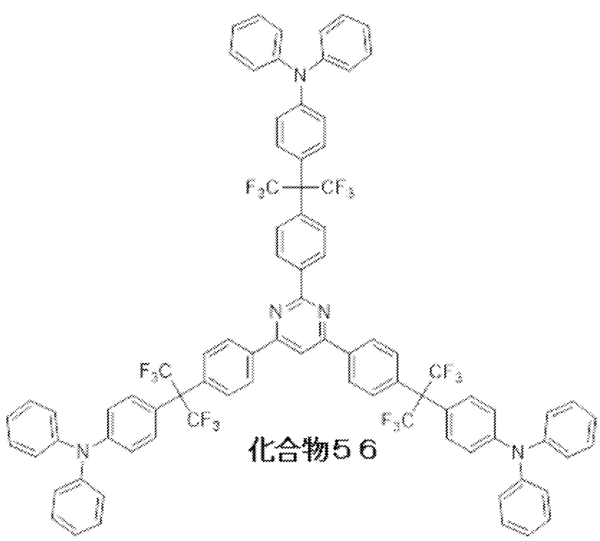
化合物５４

【００４３】

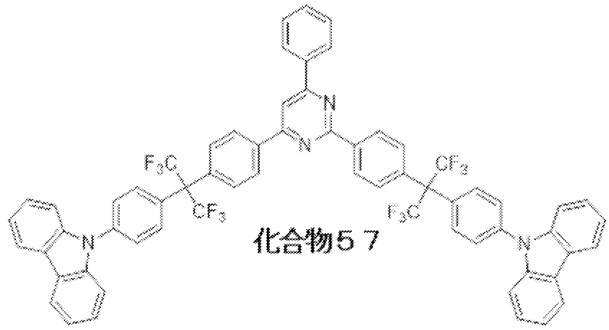
【化１８】



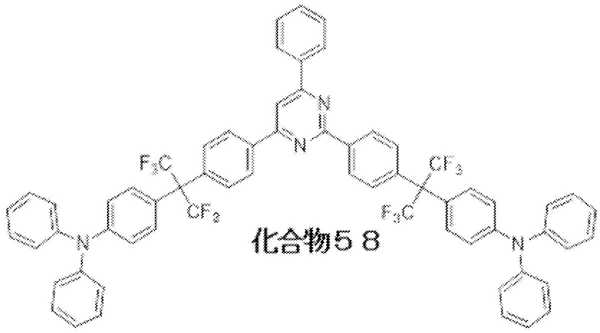
化合物５５



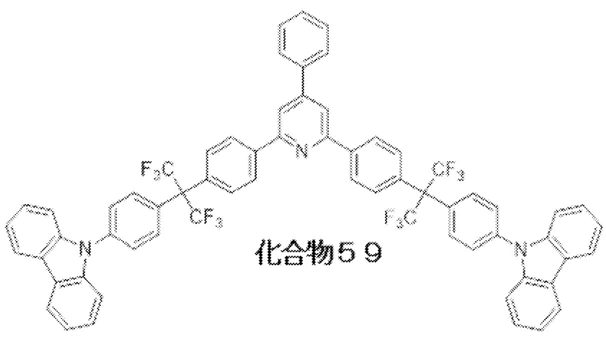
化合物５６



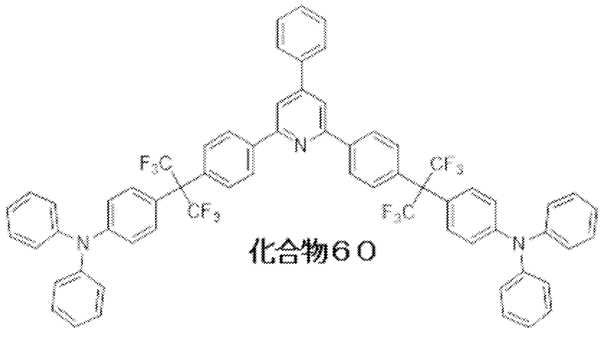
化合物５７



化合物５８



化合物５９



化合物６０

【００４４】

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、９００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。

【００４５】

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

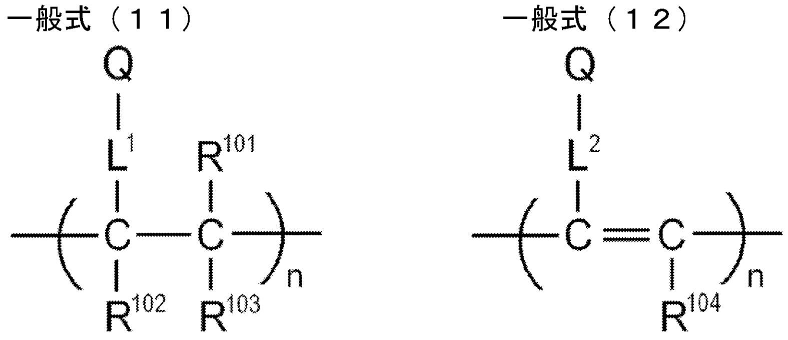
例えば、一般式（１）で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式（１）のＲ^1、Ｒ^2、Ｄ、Ａのいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いる

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。

【００４６】

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（１１）または（１２）で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

【化１９】



【００４７】

一般式（１１）または（１２）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（１１）または（１２）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。

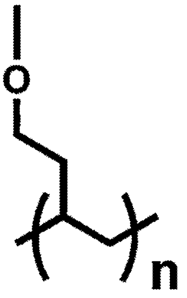
$Ｌ^1$および$Ｌ^2$で表される連結基は、Ｑを構成する一般式（１）の構造の$Ｒ^1$、$Ｒ^2$、Ｄ、Ａのいずれかに結合することができる。１つのＱに対して連結基が２つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

【００４８】

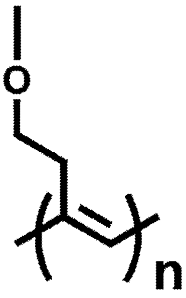
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式（１３）～（１６）で表される構造を挙げることができる。

【化２０】

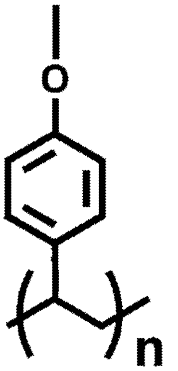
式(13)



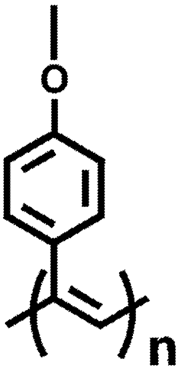
式(14)



式(15)



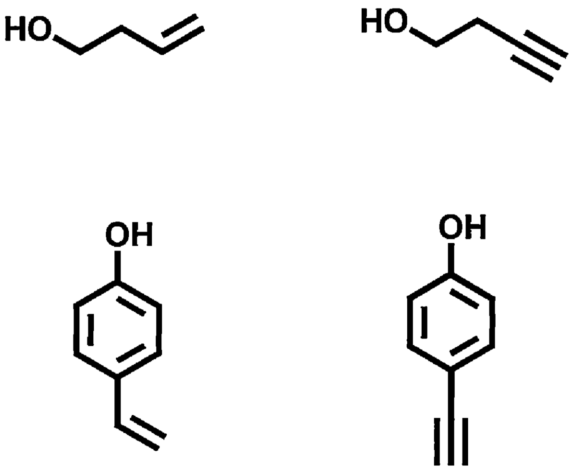
式(16)



【００４９】

これらの式（１３）～（１６）を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式（１）の構造のＲ[1]、Ｒ[2]、Ｄ、Ａ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２１】



【００５０】

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。

【００５１】

［一般式（１）で表される化合物の合成方法］

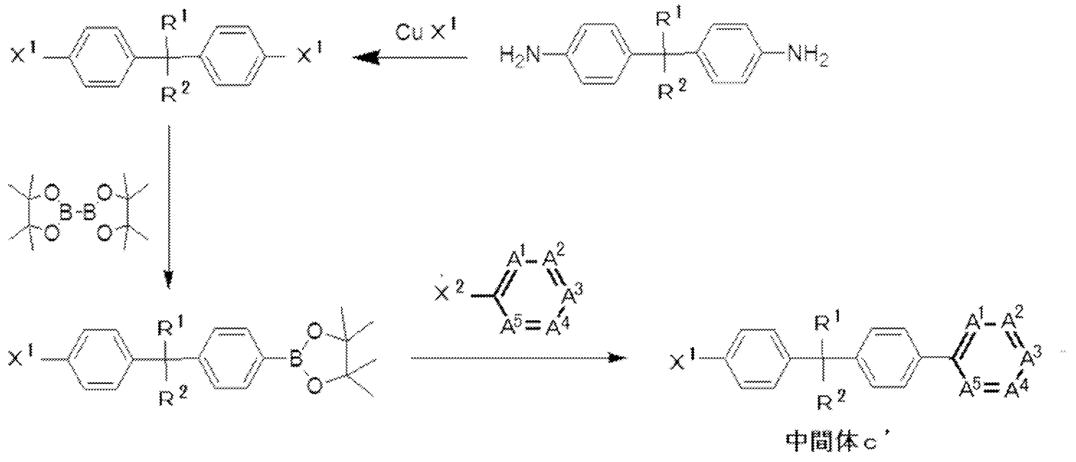
一般式（１）で表される化合物は、新規化合物である。

一般式（１）で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、一般式（１）のＤが一般式（２）で表される基であってＬ^{12}がフェニレン基であり、Ａが一般式（９）で表される基であってＬ^{19}がフェニレン基である化合物は、下記の反応スキーム１により中間体ｃ’を合成し、反応式（１）で示すように、この中間体ｃ’と一般式（２）の部分構造（Ｌ^{12}に結合している基）に対応する前駆体とを、カップリング反応を応用して結合させることにより合成することが可能である。

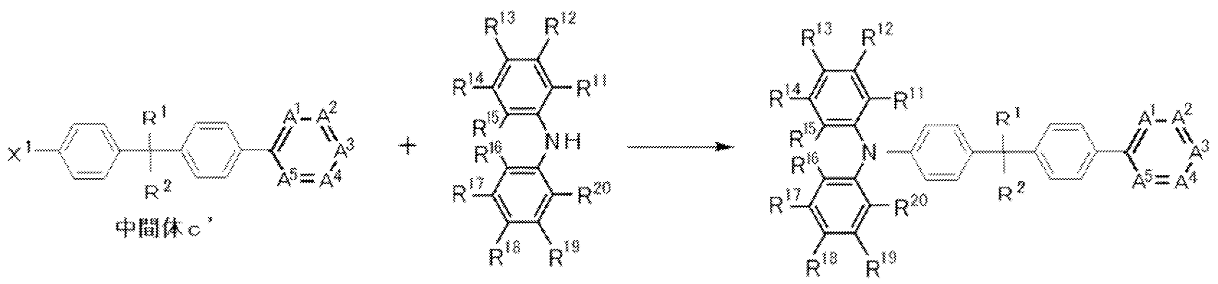
【００５２】

【化２２】

（反応スキーム１）



（反応式１）



【００５３】

上記の反応スキーム１および反応式１において、Ｒ^1、Ｒ^{2}の説明については、一般式（１）における対応する説明を参照することができ、Ｒ^{11}～Ｒ^{20}の説明については、一般式（２）における対応する説明を参照することができ、Ａ^1～Ａ^{5}の説明については、一般式（９）における対応する説明を参照することができる。Ｘ^1、Ｘ^{2}は各々独立に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、Ｘ^{1}は臭素原子であることが好ましく、Ｘ^{2}は塩素原子であることが好ましい。

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（１）で表される化合物は、その他の公知の合成反応を組み

合わせることによっても合成することができる。

【００５４】

［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。また、本発明の一般式（１）で表される化合物は、ホストまたはアシストドーパントとして用いてもよい。さらに、本発明の一般式（１）で表される化合物は、発光層以外の層に用いてもよい。例えば、発光層の陰極側に隣接する層に用いてもよいし、発光層の陽極側に隣接する層に用いてもよい。発光層の陰極側に隣接する層に用いたときは、本発明の一般式（１）で表される化合物は正孔阻止材料として機能させることが可能であり、また、発光層の陽極側に隣接する層に用いたときは、本発明の一般式（１）で表される化合物は電子阻止材料として機能させることが可能である。

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。

【００５５】

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。

【００５６】

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。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。

【００５７】

（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。

【００５８】

（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。

【００５９】

（陰極）

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

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。

【００６０】

（発光層）

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

一般式（１）で表される化合物を発光材料として用いる場合、発光層における一般式（１）で表される化合物の含有量は、５０重量％未満とすることが好ましい。さらに、一般式（１）で表される化合物の含有量の上限値は３０重量％未満とすることが好ましく、また、含有量の上限値は例えば２０重量％未満、１０重量％未満、５重量％未満、３重量％未満、１重量％未満、０．５重量％未満とすることもできる。下限値は０．００１重量％以上とすることが好ましく、例えば０．０１重量％超、０．１重量％超、０．５重量％超、１重量％超とすることもできる。

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。

【００６１】

また、発光層の他の態様として、発光材料とホスト材料を含み、さらに一般式（１）で表される化合物をアシストドーパントとして含む態様を挙げることができる。アシストドーパントとしては、一般式（１）で表され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。アシストドーパントとして用いる一般式（１）で表される化合物は、発光材料よりも最低励起一重項エネルギー準位が高く、且つ、ホスト材料よりも最低励起一重項エネルギー準位が低いことが好ましい。これにより、ホスト材料で生じた励起一重項エネルギーがアシストドーパントおよび発光材料へ容易に移動し、アシストドーパントで生じた励起一重項エネルギー、および、ホスト材料からアシストドーパントへ移動した励起一重項エネルギーが発光材料へ容易に移動する。その結果、励起一重項状態の発光材料が効率よく生成されて高い発光効率を得ることができる。さらに、アシストドーパントとして用いる一般式（１）で表される化合物は、ホスト材料よりも最低励起三重項エネルギー準位が低く、且つ、最低励起一重項エネルギー準位と最低励起三重項エネルギー準位の差ΔE_{ST}が０．３ｅＶ以下であることが好ましく、０．２ｅＶ以下であることがより好ましく、０．１ｅＶ以下であることがさらに好ましい。これにより、ホスト材料で生じた励起三重項エネルギーがアシストドーパントに容易に移動して該アシストドーパントが励起三重項状態に遷移し、さらに、励起三重項状態になったアシストドーパントで逆項間交差が容易に生じて励起一重項状態に遷移しうる。このアシストドーパントの励起一重項エネルギーが発光材料に移動する結果、励起一重項状態の発光材料が一層効率よく生成

され、極めて高い発光効率を得ることができる。言い換えれば、ホスト材料やアシストドーパントで生じた励起三重項エネルギーを発光材料の発光に有効に利用することができる。

この態様で用いる発光材料には、公知のものを採用することができ、蛍光発光材料を用いることが好ましく、遅延蛍光体を用いてもよい。ホスト材料の説明については、一般式（１）で表される化合物を発光材料に用いる態様のホスト材料についての説明を参照することができる。

一般式（１）で表される化合物をアシストドーパントとして用いる場合、発光層における一般式（１）で表される化合物の含有量は、ホスト材料の含有量よりも少なく、発光材料の含有量よりも多いこと、すなわち、「発光材料の含有量＜アシストドーパントの含有量＜ホスト材料の含有量」の関係を満たすことが好ましい。具体的には、この態様での発光層における一般式（１）で表される化合物の含有量は、５０重量％未満とすることが好ましい。さらに、一般式（１）で表される化合物の含有量の上限値は４０重量％未満とすることが好ましく、また、含有量の上限値は例えば３０重量％未満、２０重量％未満、１０重量％未満とすることもできる。下限値は０．１重量％以上とすることが好ましく、例えば１重量％超、３重量％超とすることもできる。

また、発光層の他の態様として、発光層が一般式（１）で表される化合物をホスト材料として含み、一般式（１）で表される化合物の他に発光材料も含む態様を挙げることができる。このとき用いる発光材料には公知のものを採用することができ、蛍光発光材料を用いることが好ましく、遅延蛍光体を用いてもよい。一般式（１）で表される化合物をホスト材料として用いる場合、発光層における一般式（１）で表される化合物の含有量は、５０重量％以上であることが好ましく、例えば７５重量％以上にすることもできる。

【００６２】

（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。

【００６３】

（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。

【００６４】

（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。また、一般式（１）で表される化合物を正孔阻止層に用いることもできる。この場合、発光層のホスト材料としても一般式（１）で表される化合物を採用することが可能であり、同じ構造を有する一般式（１）で表される化合物を採用することも可能である。

【００６５】

（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。電子素子層には、一般式（１）で表される化合物を用いることができる。この場合、発光層のホスト材料としても一般式（１）で表される化合物を採用することが可能であり、同じ構造を有する一般式（１）で表される化合物を採用することも可能である。また、さらに正孔阻止層にも一般式（１）で表される化合物を用いることが可能であり、電子素子層や発光層に用いたのと同じ構造を有する一般式（１）で表される化合物を採用することも可能である。

【００６６】

（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。

【００６７】

（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。

【００６８】

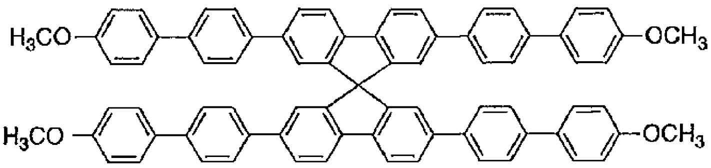
（電子輸送層）

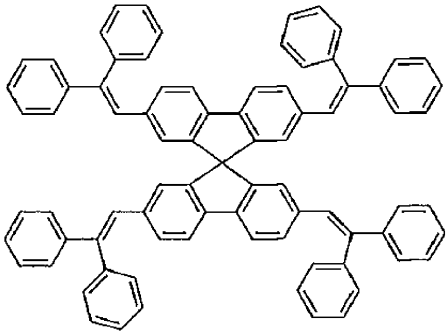
電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

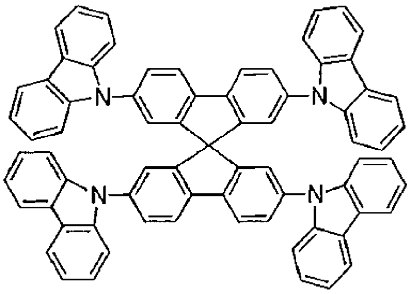
電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる場合もある）としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。使用できる電子輸送層としては例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタンおよびアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。さらにこれら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

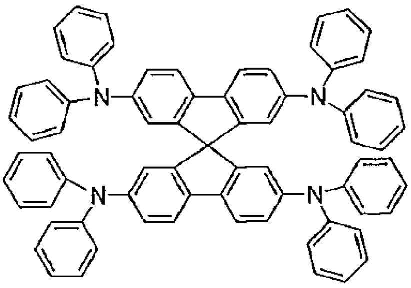
【００６９】
有機エレクトロルミネッセンス素子を作製する際には、一般式（１）で表される化合物を１層の有機層（例えば、電子輸送層）に用いるだけでなく、複数の有機層にも用いてもよい。その際、各有機層に用いる一般式（１）で表される化合物は、互いに同一であっても異なっていてもよい。例えば、電子輸送層や発光層の他に、上記の注入層、阻止層、正孔阻止層、電子阻止層、励起子阻止層、正孔輸送層などにも一般式（１）で表される化合物を用いてもよい。これらの層の製膜方法は特に限定されず、ドライプロセス、ウェットプロセスのどちらで作製してもよい。
【００７０】
以下に、有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることができ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。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。
【００７１】
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。
【００７２】

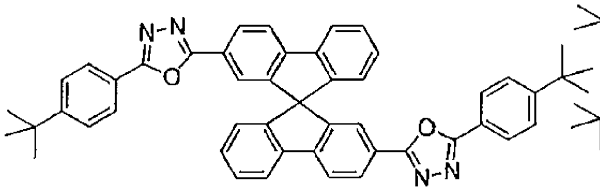
【化２３】

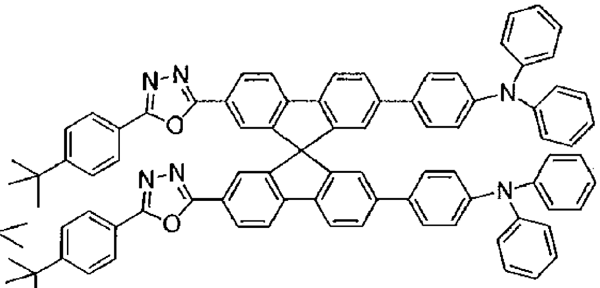


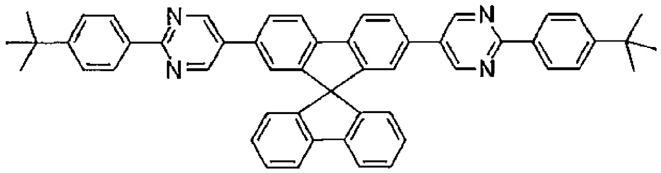






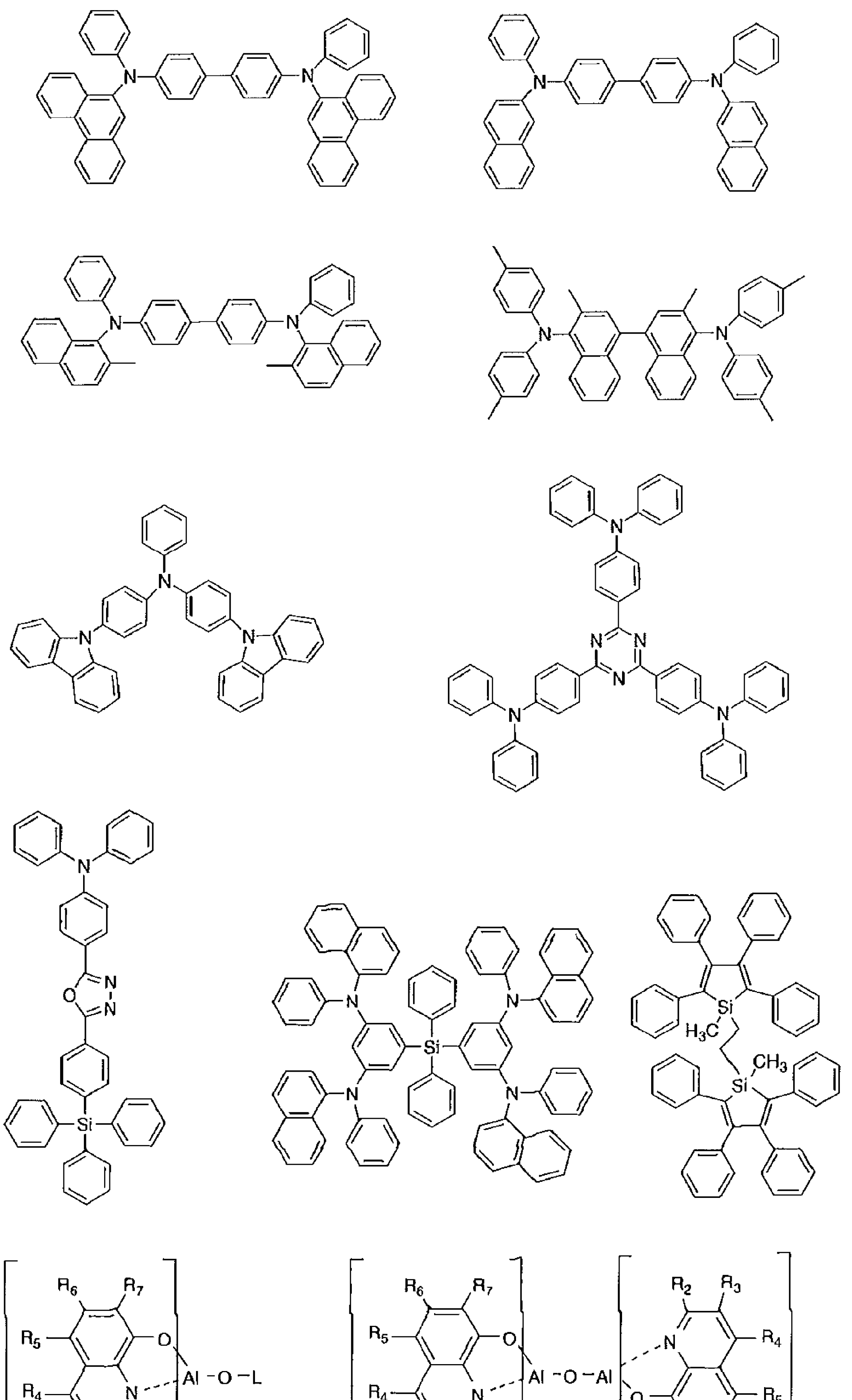






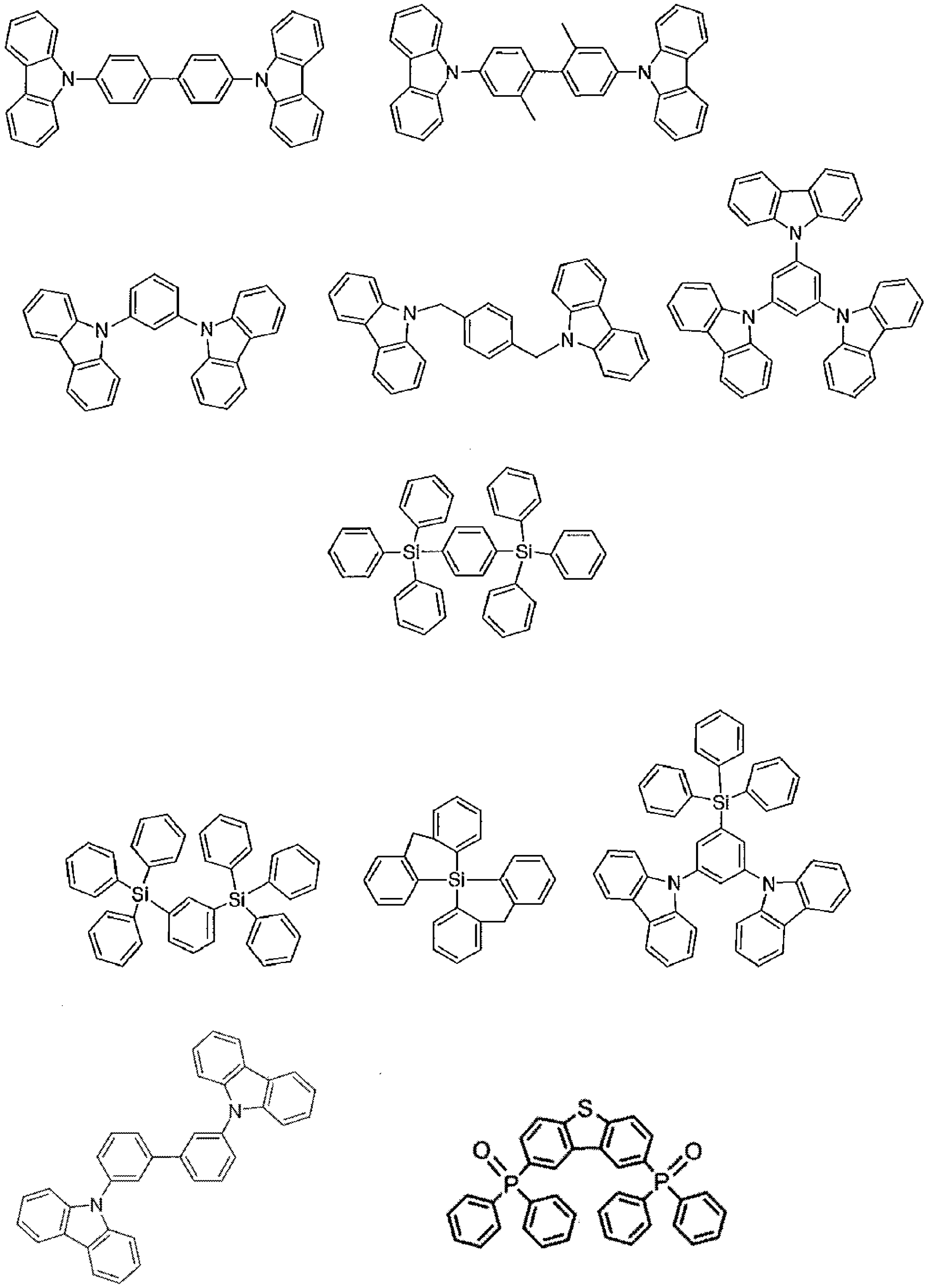
【００７３】

【化２４】



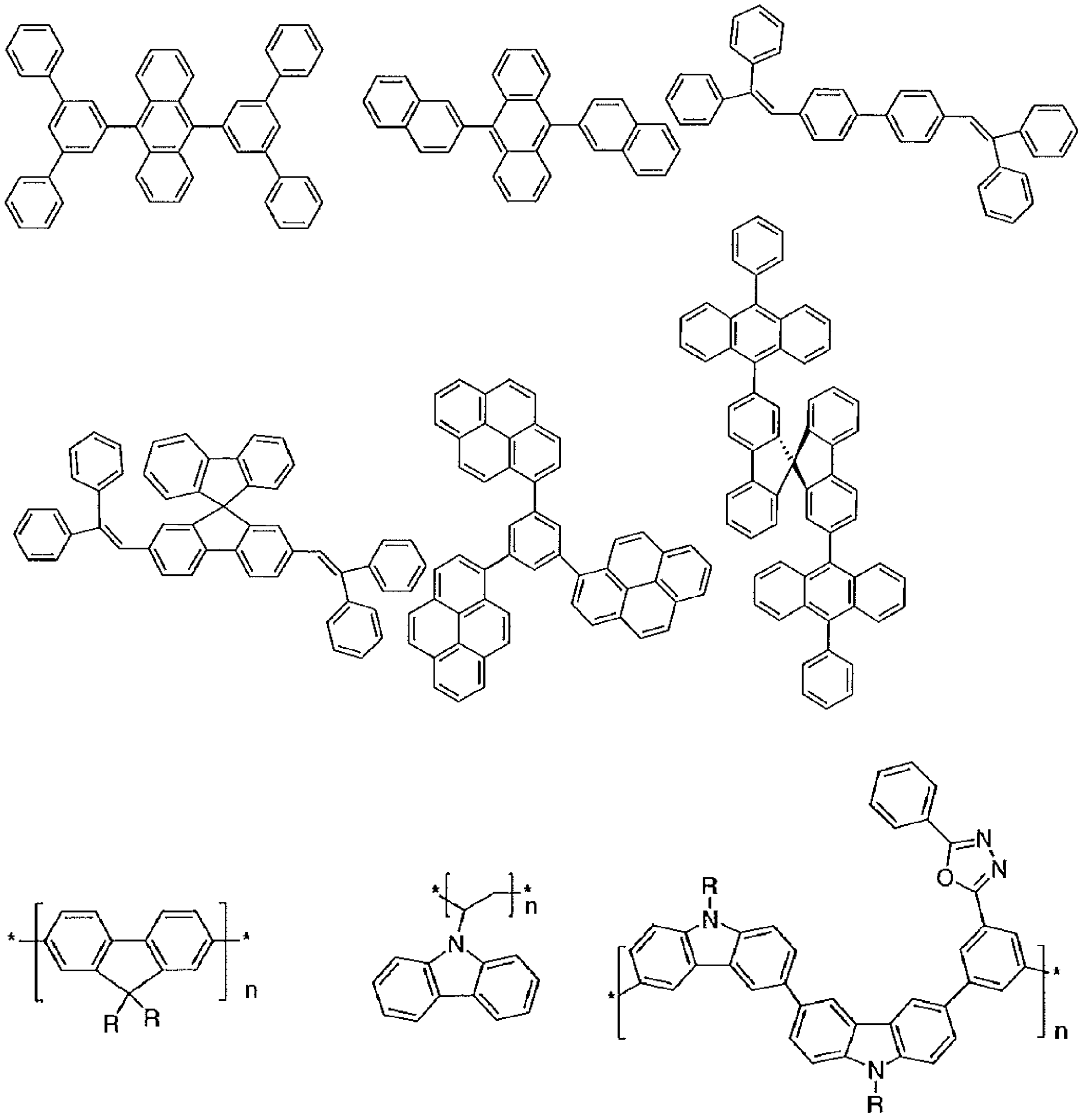
【００７４】

【化２５】



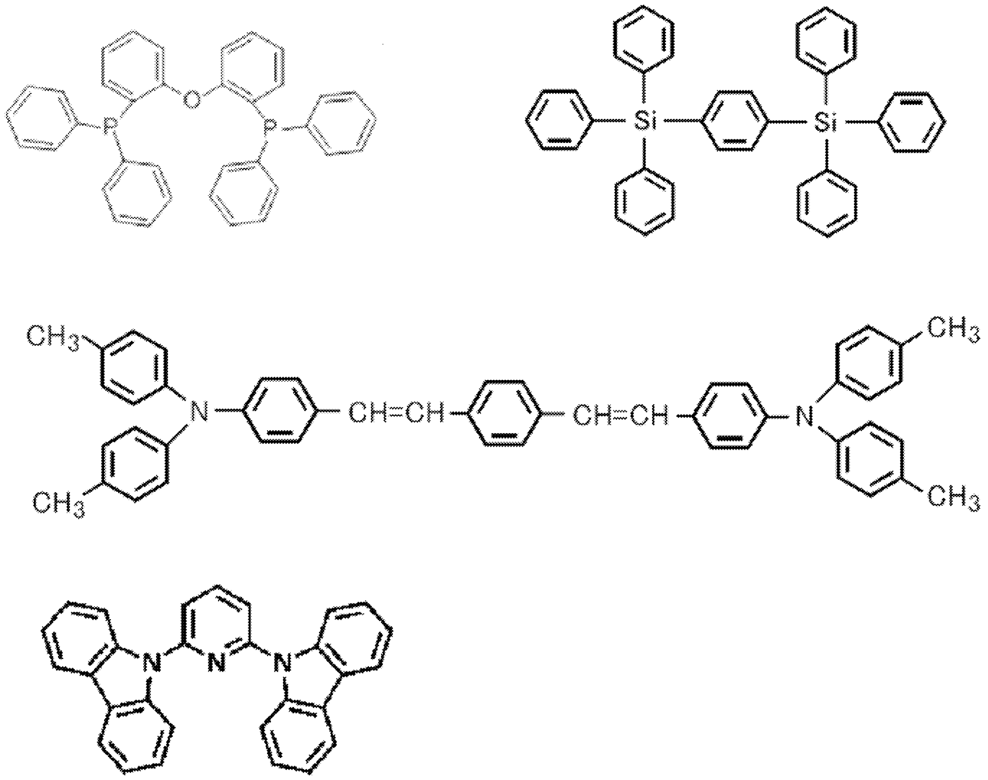
【００７５】

【化２６】



【００７６】

【化２７】

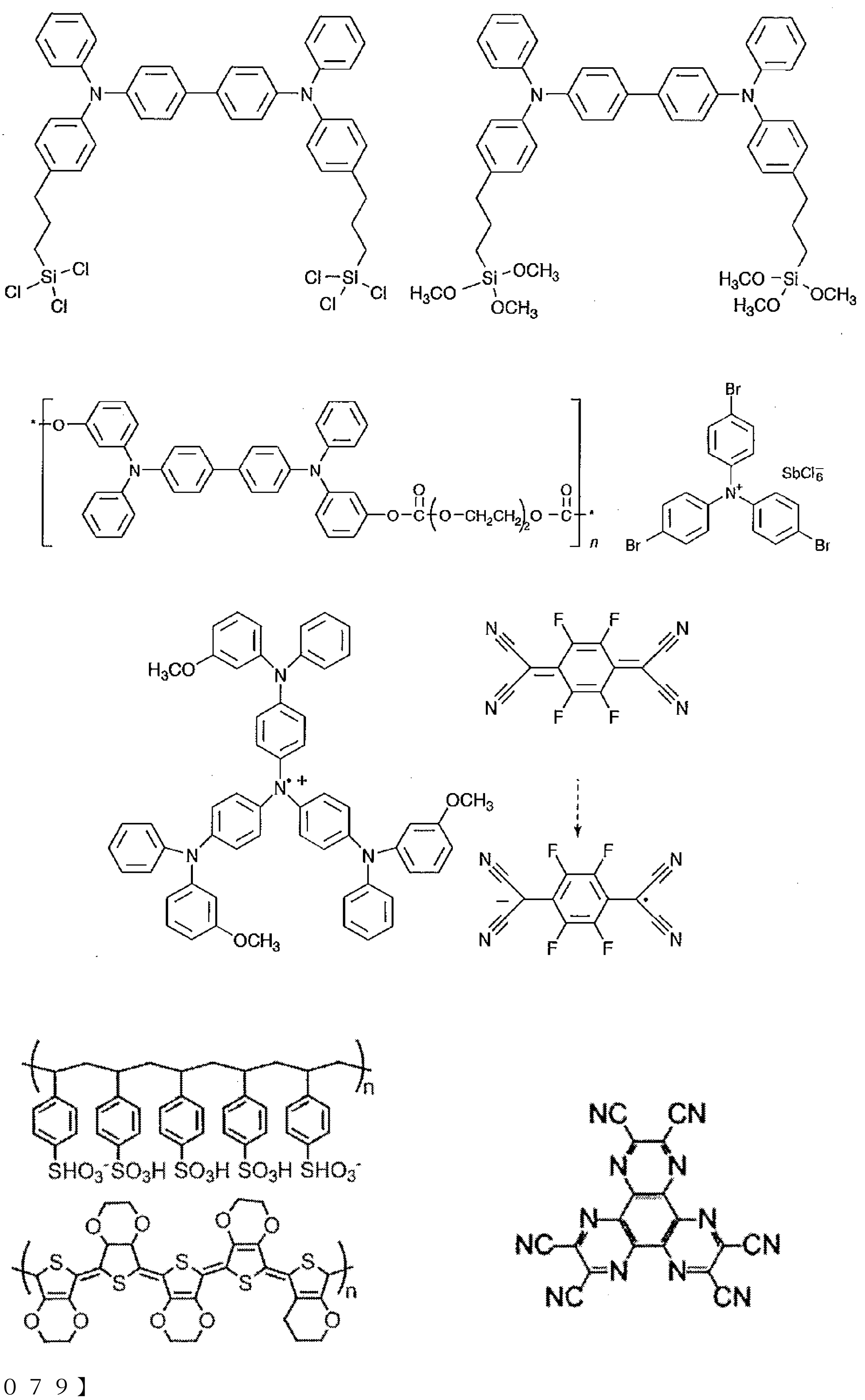


【００７７】

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。

【００７８】

【化２８】

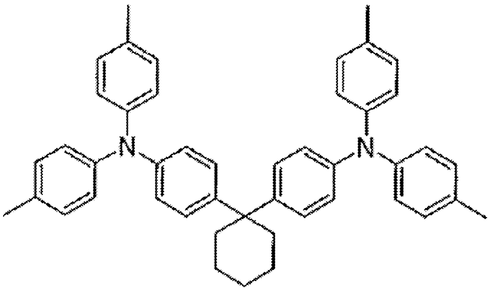


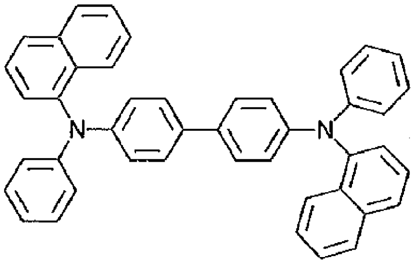
【００７９】

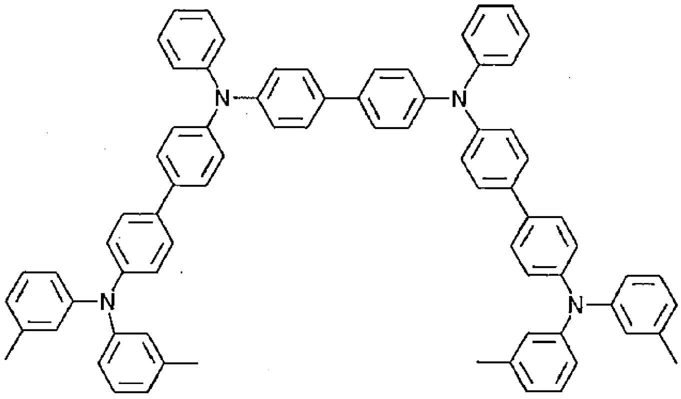
次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

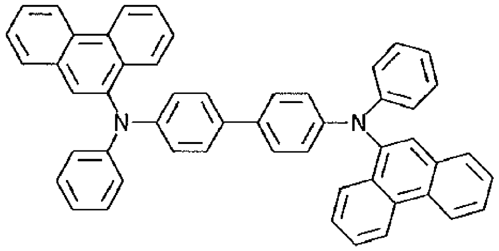
【００８０】

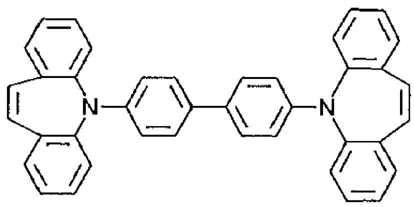
【化２９】





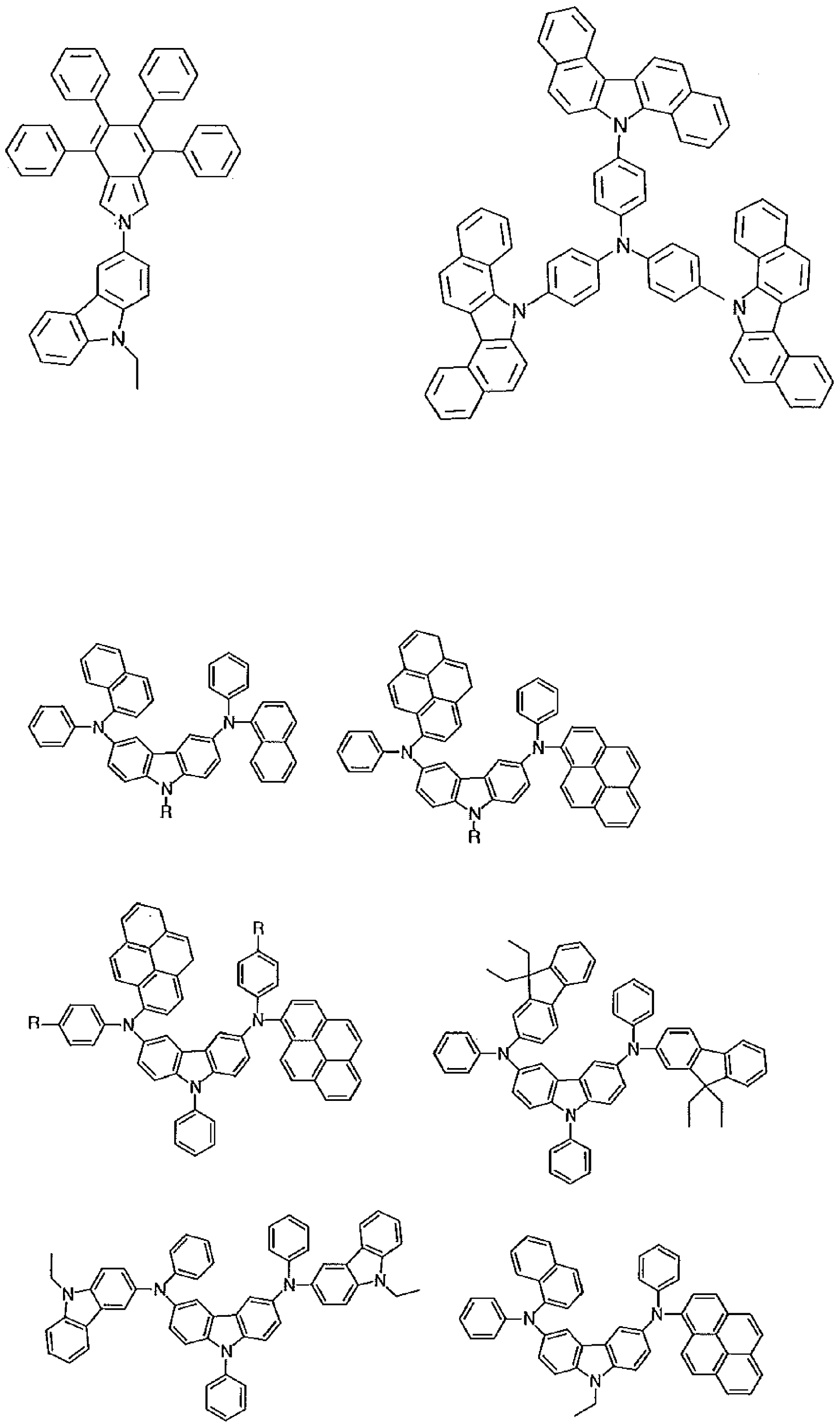






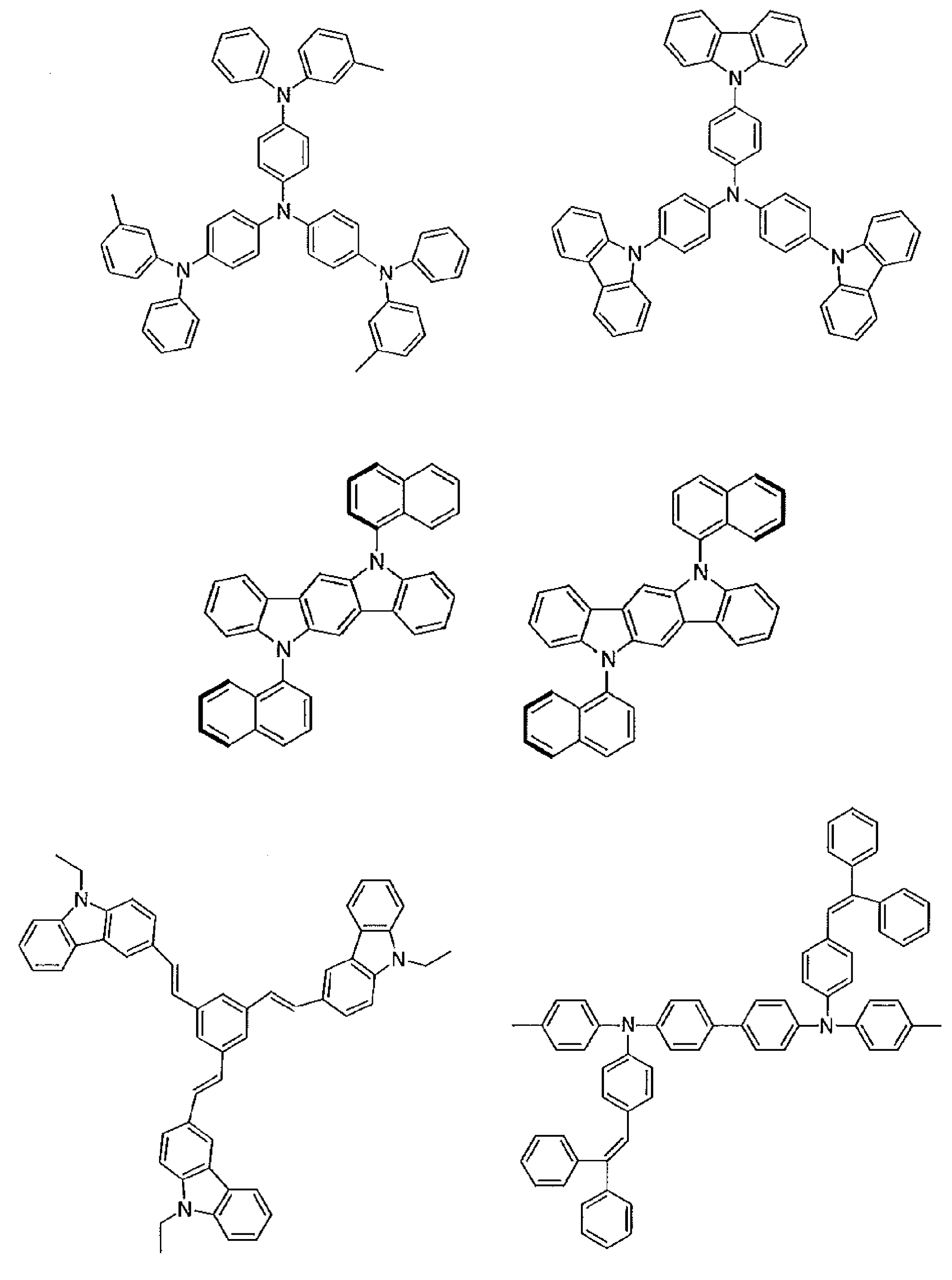
【００８１】

【化３０】



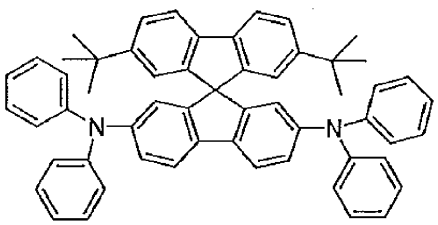
【００８２】

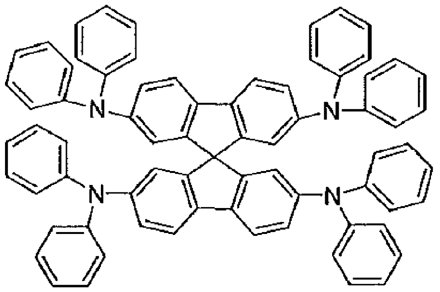
【化３１】

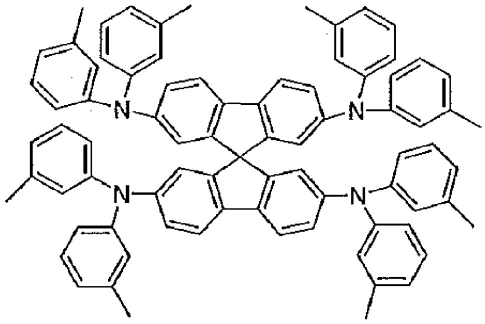


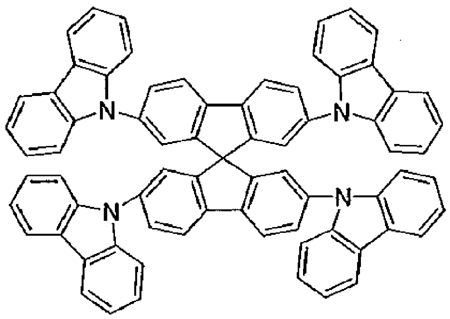
【００８３】

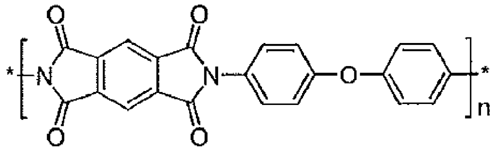
【化３２】

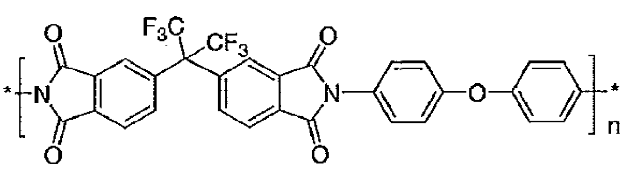


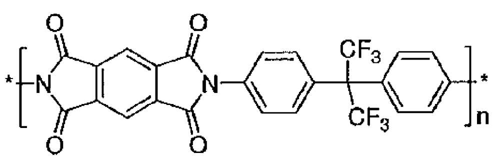


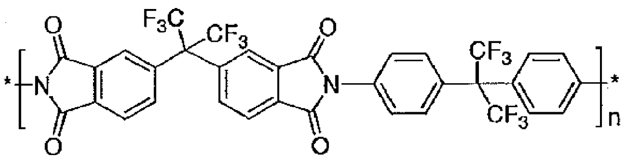


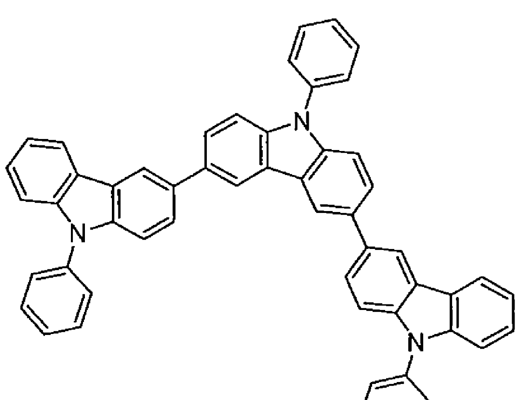






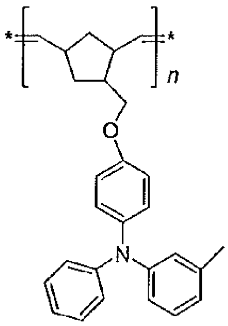


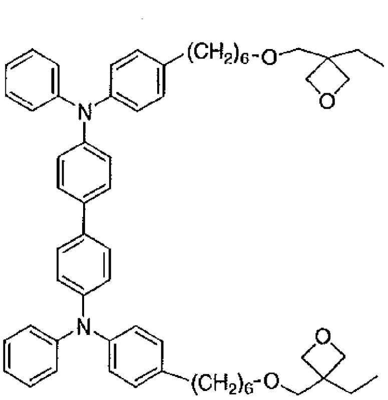


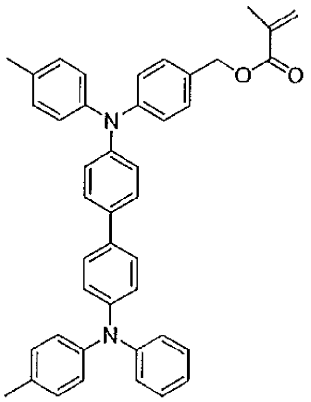


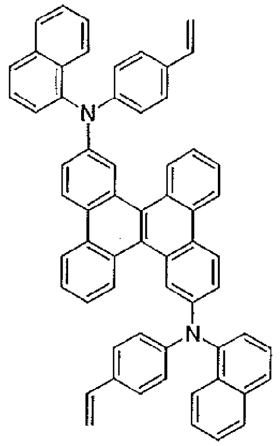
【００８４】

【化３３】

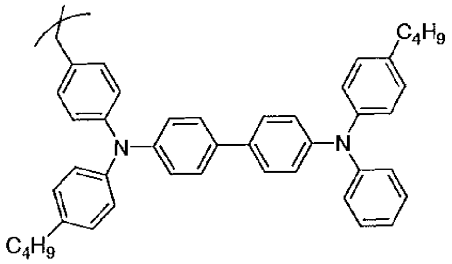






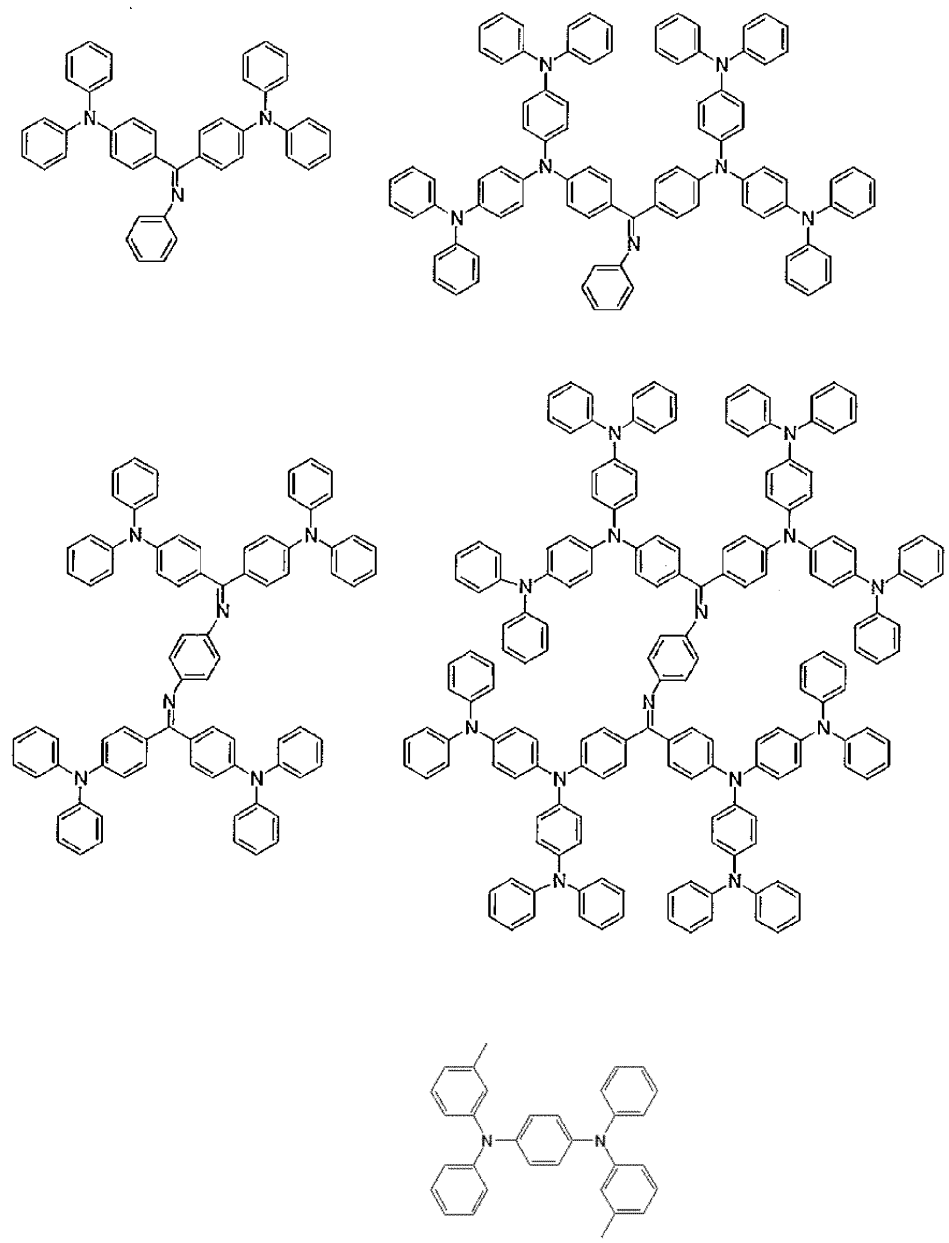


R=



【００８５】

【化３４】

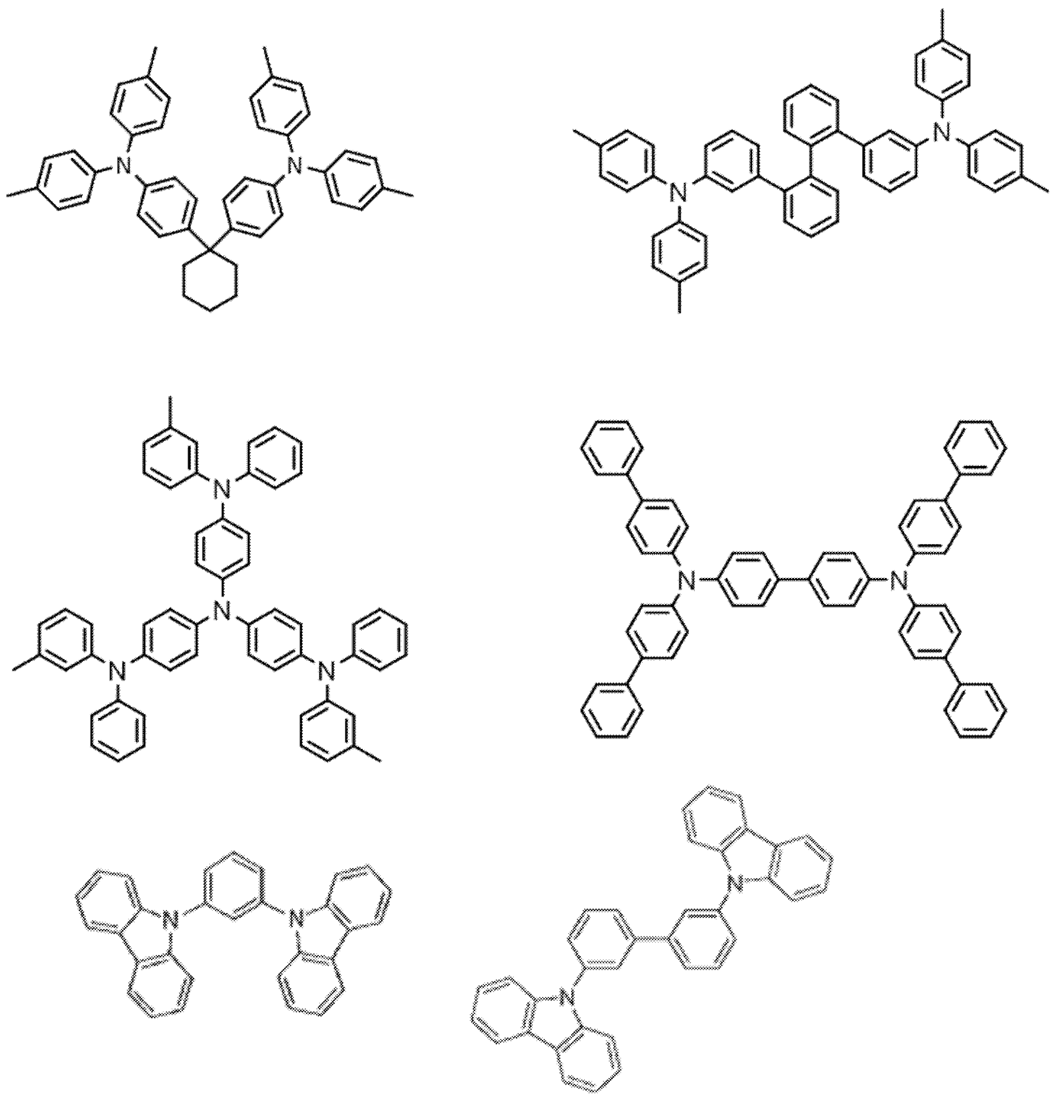


【００８６】

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。

【００８７】

【化３５】

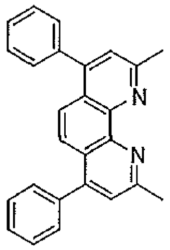
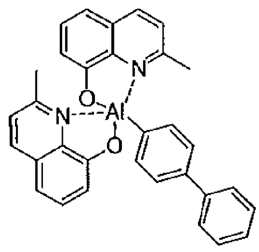
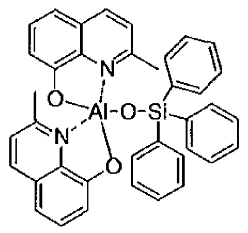
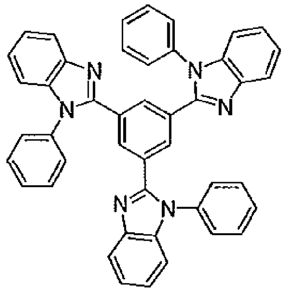
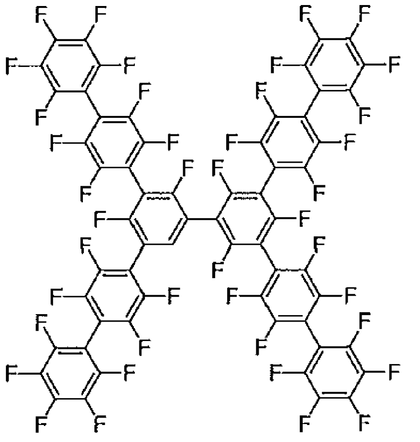
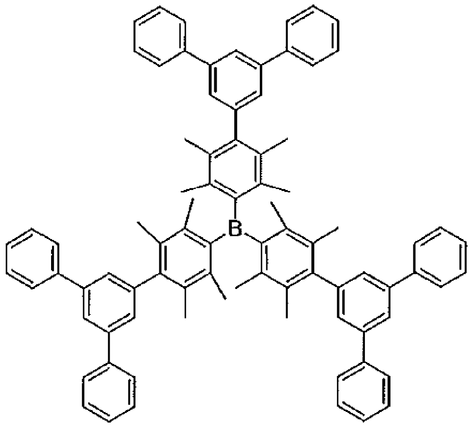
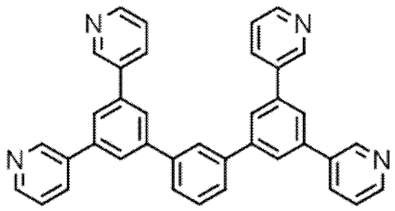
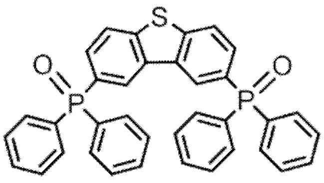
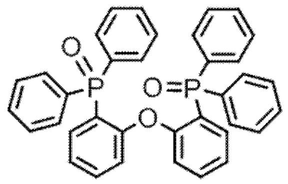
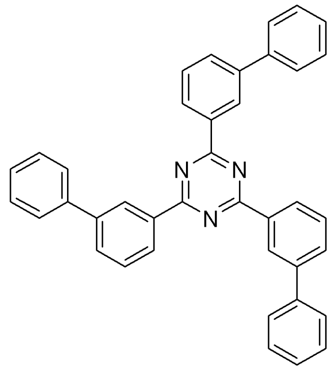
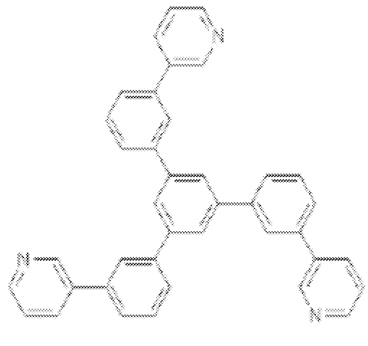


【００８８】

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。

【００８９】

【化３６】

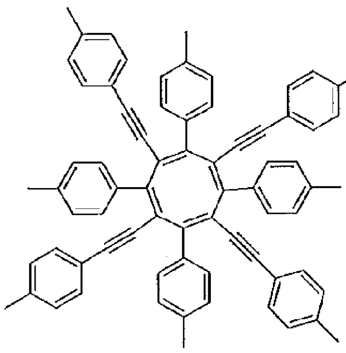












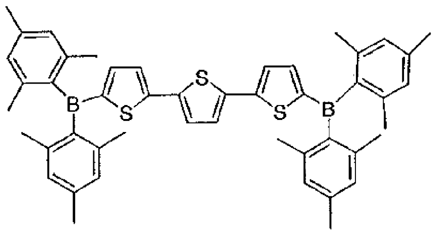
【００９０】

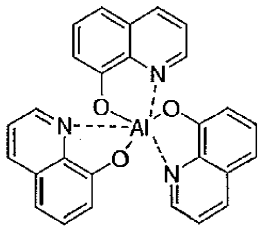
次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

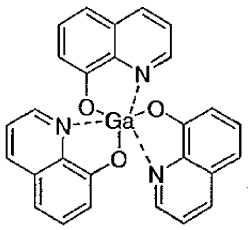
【００９１】

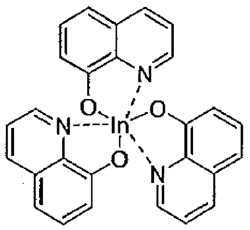
【化３７】

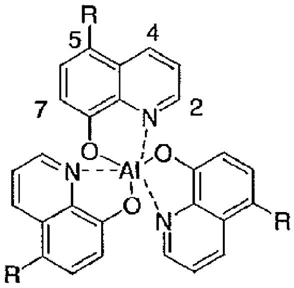


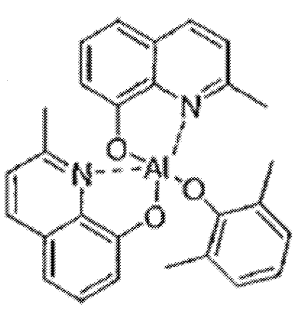


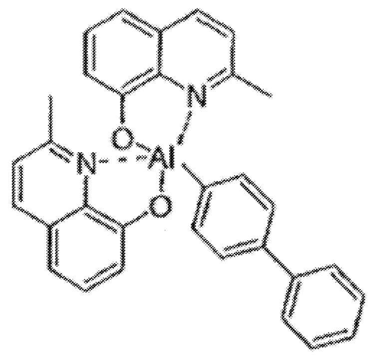


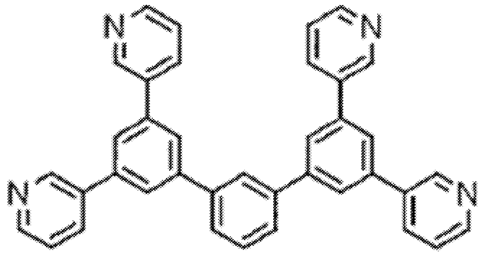


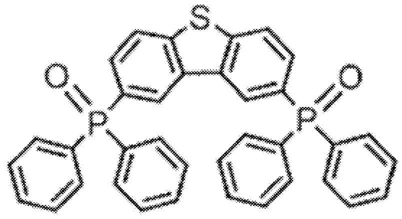


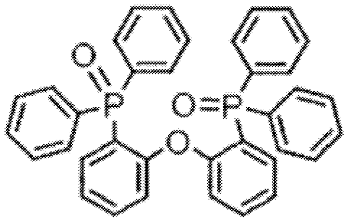


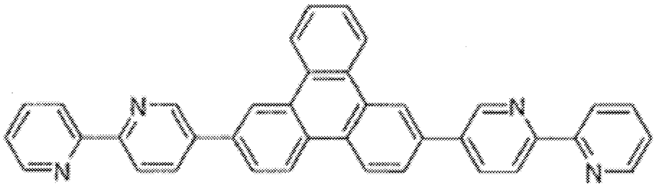


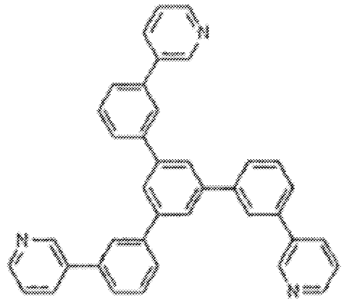






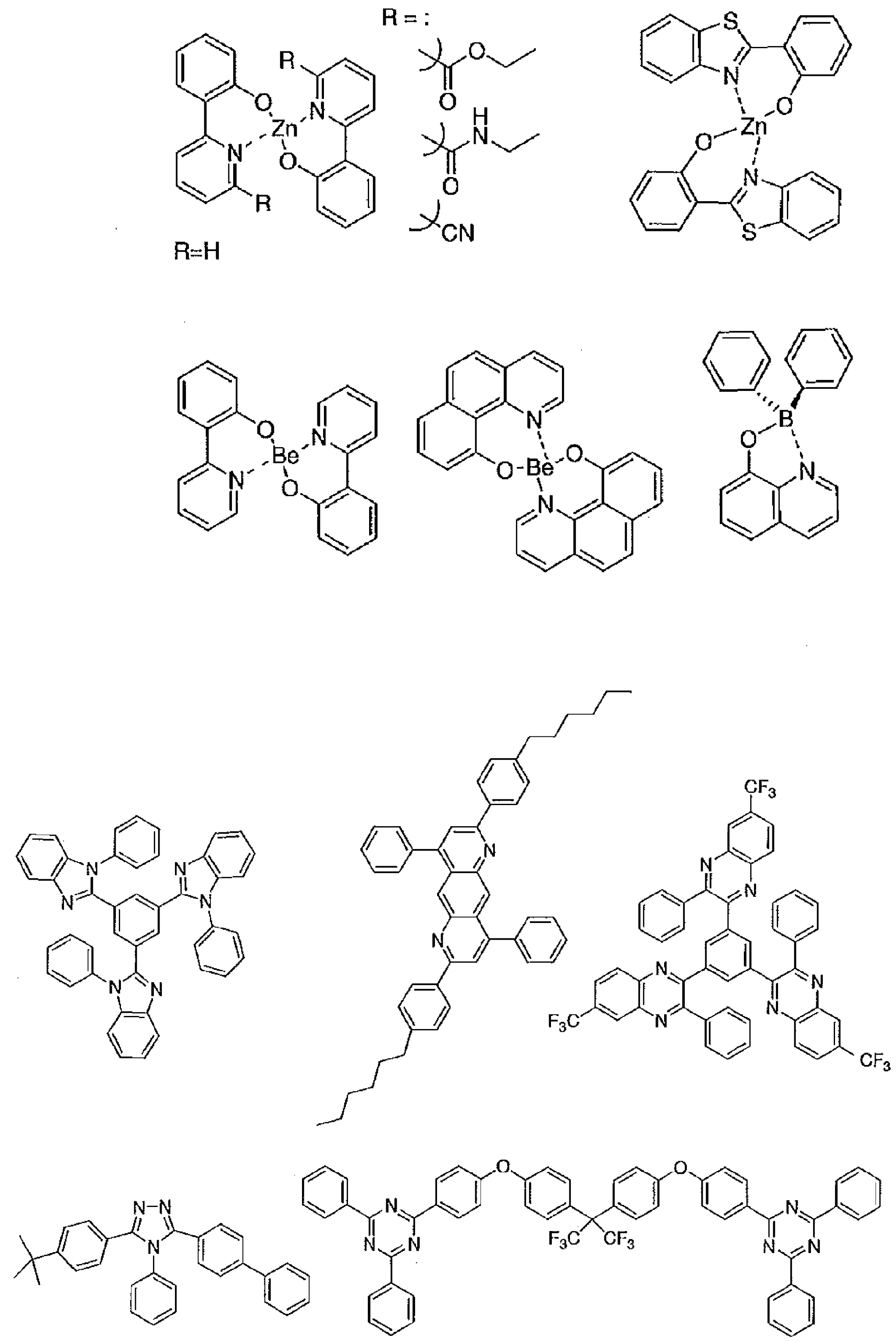






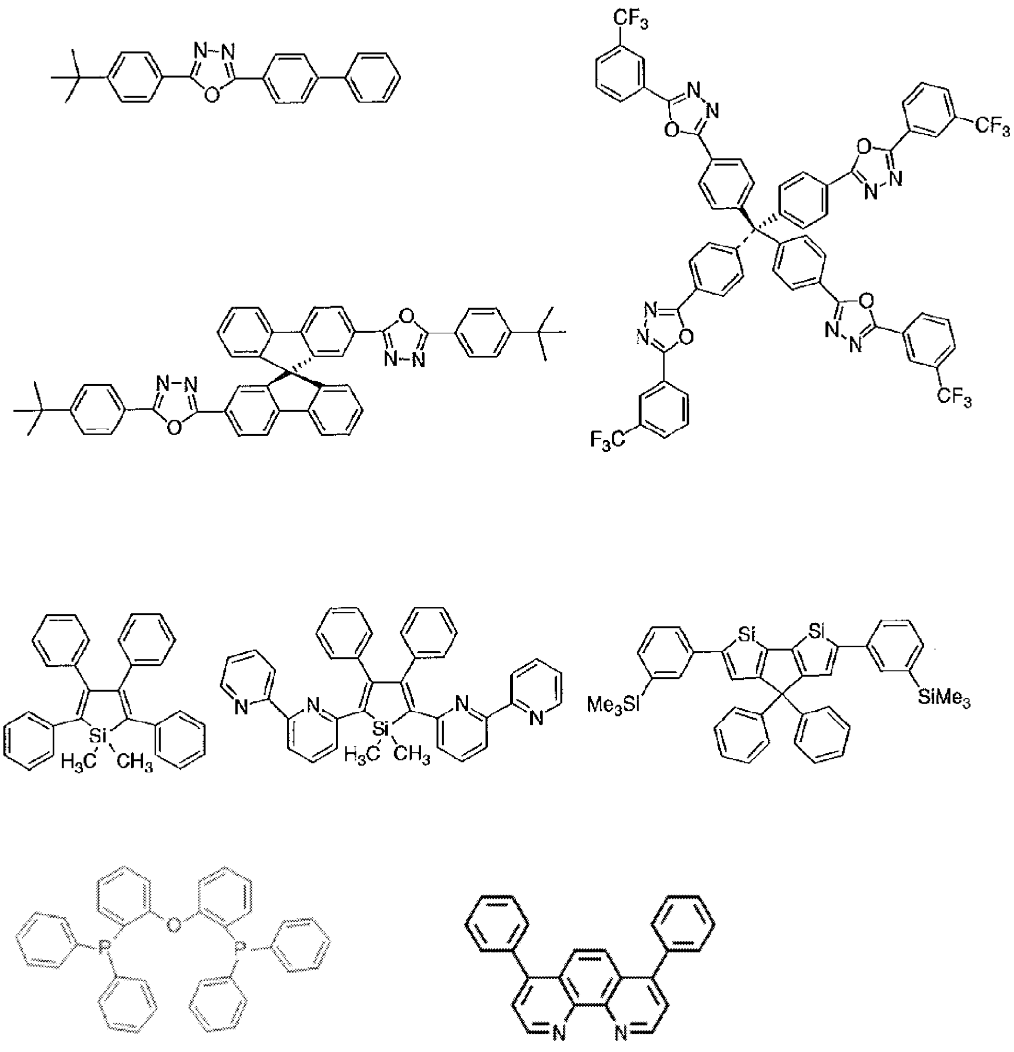
【００９２】

【化３８】



【００９３】

【化３９】

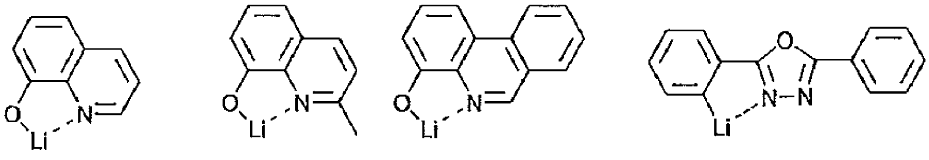


【００９４】

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。

【００９５】

【化４０】



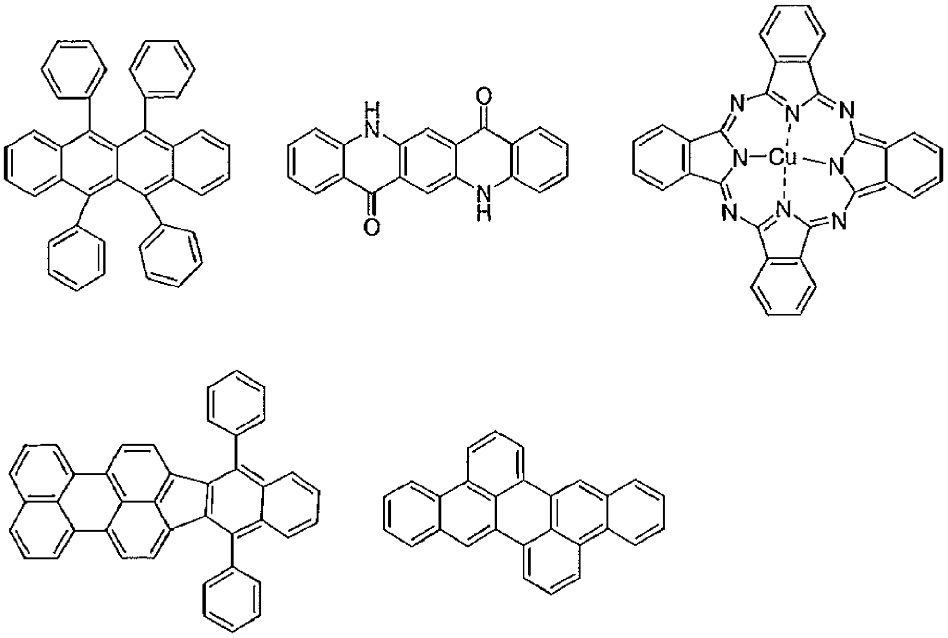
LiF

【００９６】

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。

【００９７】

【化４１】



【００９８】

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あり、熱失活の速度定数が大きく、発光の速度定数が小さいことから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。

【００９９】

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】

【０１００】

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、紫外線吸収スペクトルの測定はＬＡＭＢＤＡ９５０－ＰＫＡ（パーキンエルマー社製）を用いて行い、発光スペクトルの測定はＦｌｕｏｒｏｍａｘ－４（ホリバ・ジョバンイボン社製）を用いて行い、過渡減衰曲線の測定はＱｕａｎｔａｕｒｕｓ－ｔａｕ（浜松ホトニクス社製）を用いて行い、フォトルミネッセンス量子効率（ＰＬ量子効

率）の測定はＱｕａｎｔａｕｒｕｓ－ＱＹ（浜松ホトニクス社製）用いて行った。また、本実施例では、発光寿命が０．０５μｓ以上の蛍光を遅延蛍光として判定した。

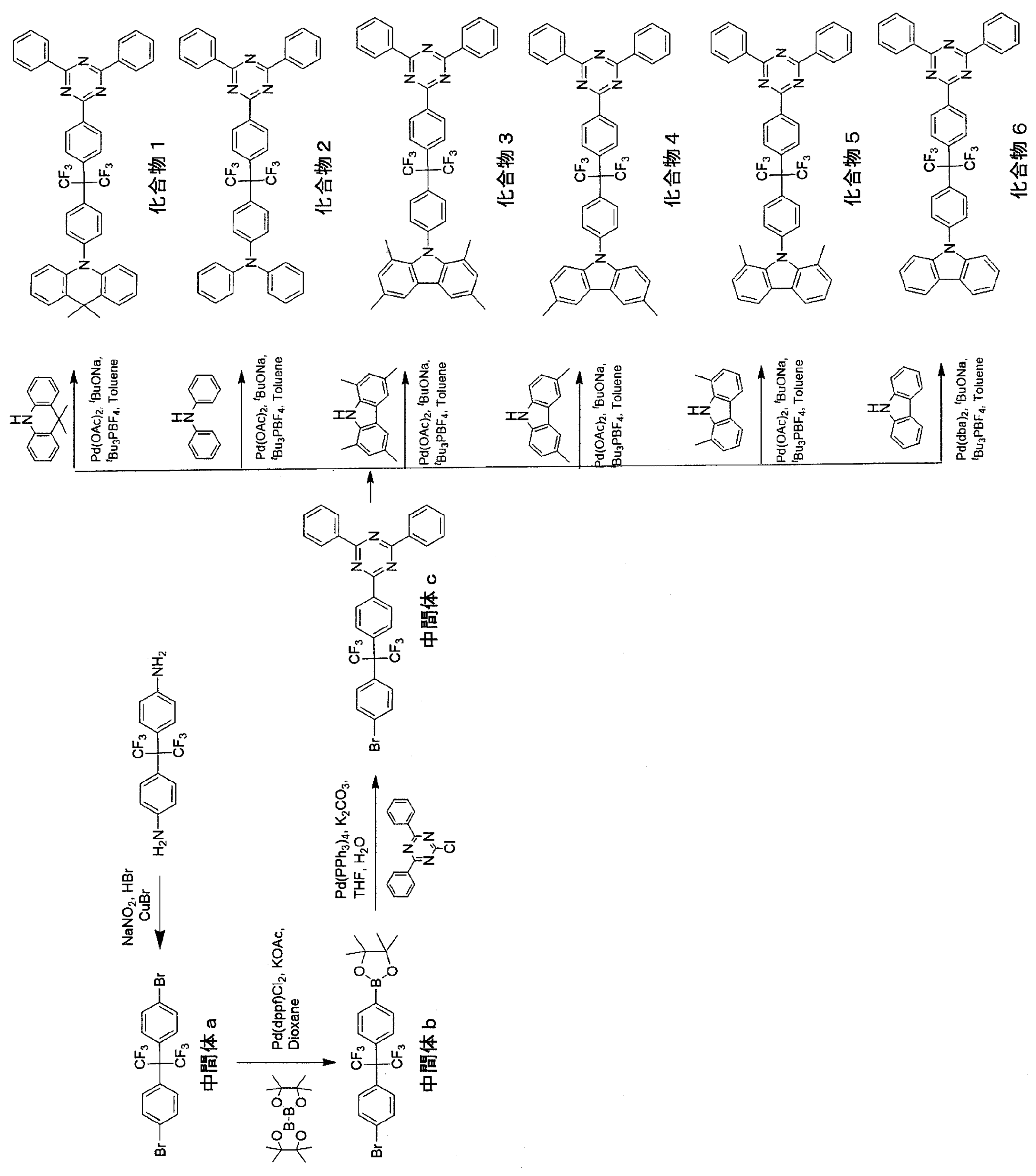
【０１０１】

［１］化合物の合成

本実施例では、化合物１～６を下記反応スキームに従って合成した。

【０１０２】

【化４２】



【０１０３】

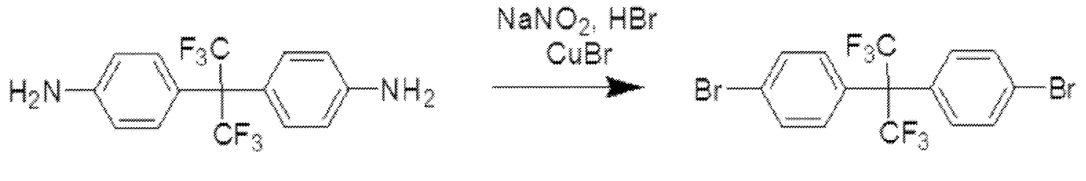
具体的な合成手順を以下に示す。

（合成例１）　化合物１の合成

まず、中間体ａを下記反応により合成した。

【０１０４】

【化４３】



【０１０５】

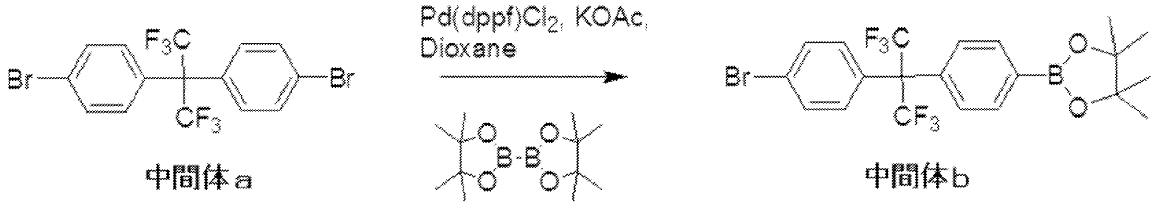
２，２－ビス（４－アミノフェニル）ヘキサフルオロプロパン（３．３４ｇ）と臭化水素酸（２０ｍＬ）を１００ｍＬの丸底フラスコに入れて氷浴中に置いた。この混合物に、亜硝酸ナトリウムの水溶液（$NaNO_2$１．７２ｇ／水１０ｍＬ）を滴下し、攪拌してスラリーを得た。このスラリーを、氷浴中で２０分間攪拌した後、臭化銅（Ｉ）の臭化水素酸溶液（ＣｕＢｒ７．１６ｇ／ＨＢｒ２０ｍＬ）に攪拌しながら滴下し、さらに、室温で１．５時間攪拌した。この反応液に水１００ｍＬを加え、生じた沈殿物を濾過により回収して粗生成物を得た。この粗生成物を、ヘキサンを溶離液に用いてカラムクロマトグラフィーにより精製し、真空乾燥して白色固体の２，２－ビス（４－ブロモフェニル）ヘキサフルオロプロパン（中間体ａ）を収量３．４ｇ、収率７３．６％で得た。

【０１０６】

次に、中間体ｂを下記反応により合成した。

【０１０７】

【化４４】



【０１０８】

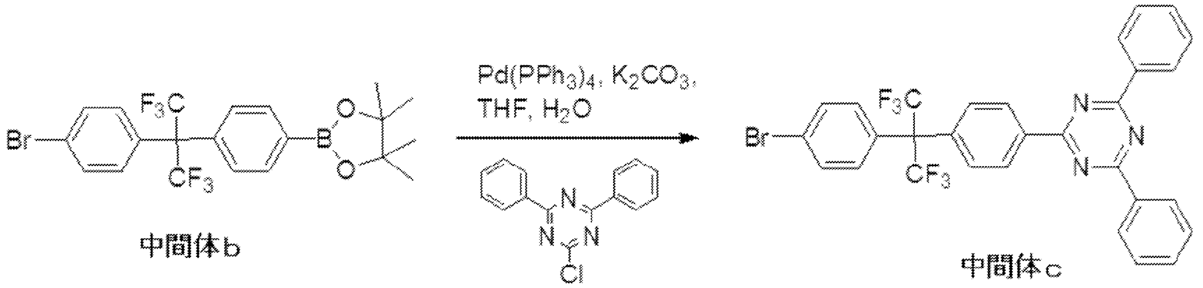
２，２－ビス（４－ブロモフェニル）ヘキサフルオロプロパン（２．３１ｇ、５ｍｍｏｌ）、ビス（ピナコラト）ジボロン（１．２７ｇ、５ｍｍｏｌ）、［１，１’－ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン］ジクロロパラジウム（ＩＩ）（１１０ｍｇ、０．１５ｍｍｏｌ）、酢酸カリウム（１．５ｇ）、１，４－ジオキサン（５０ｍＬ）を容器に入れ、容器内を窒素ガスで置換した後、８０℃の湯浴中で２４時間加熱した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、ジクロロメタン：ヘキサン＝１：２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ーにより精製し、真空乾燥して白色固体の２－（４－ブロモフェニル）－２－｛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｝－ヘキサフルオロプロパン（中間体ｂ）を収量２．２ｇ、収率８６．４％で得た。

【０１０９】

次に中間体ｃを下記反応により合成した。

【０１１０】

【化４５】

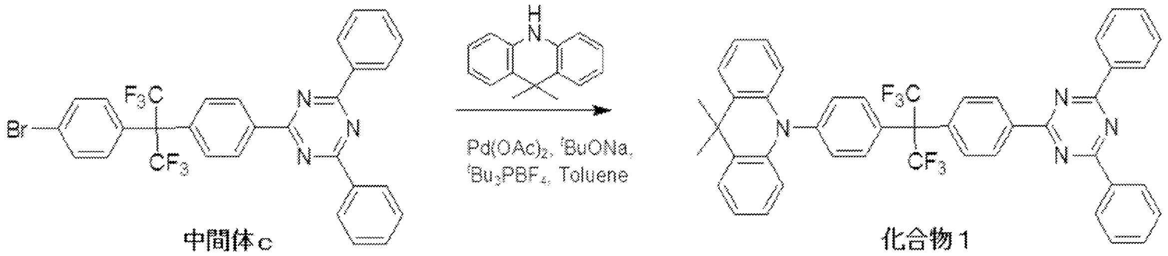


【０１１１】
２－（４－ブロモフェニル）－２－｛４－（４，４，５，５－テトラメチル－１，３，２－ジオキサボロラン－２－イル）フェニル｝－ヘキサフルオロプロパン（２．０４ｇ、４ｍｍｏｌ）、２－クロロ－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．２９ｇ、４．８ｍｍｏｌ）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（２３４ｍｇ、０．２ｍｍｏｌ）、テトラヒドロフラン（５０ｍＬ）、炭酸カリウム水溶液（１Ｍ、２０ｍＬ）を容器に入れ、容器内を窒素ガスで置換した後、６０℃の湯浴中で１６時間加熱した。この反応液を室温に冷却したところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、ジクロロメタン：ヘキサン＝１：１０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ーにより精製し、真空乾燥して白色固体の２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（中間体ｃ）を収量１．８ｇ、収率７３．２％で得た。

【０１１２】
次に、化合物１を下記反応により合成した。

【０１１３】

【化４６】

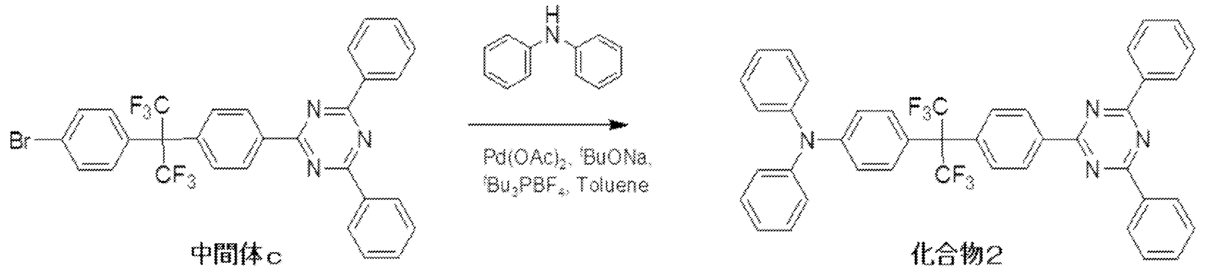


【０１１４】
２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．８５ｇ、３ｍｍｏｌ）、９，９－ジメチル－９，１０－ジヒドロアクリジン（７５３ｍｇ、３．６ｍｍｏｌ）、酢酸パラジウム（ＩＩ）（３４ｍｇ、０．１５ｍｍｏ）、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシド（１．７３ｇ、１８ｍｍｏｌ）、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウムテトラフルオロボラート（１３１ｍｇ、０．４５ｍｍｏｌ）、トルエン（３０ｍＬ）を容器に入れ、窒素雰囲気下、１１０℃で１６時間撹拌した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、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ーにより精

製し、真空乾燥して白色固体の化合物１を収量１．７２ｇ、収率７７．２％で得た。
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝８．８４（ｄ，Ｊ＝８．８Ｈｚ，２Ｈ），８．８２－８．７４（ｍ，４Ｈ），７．７２（ｄｄ，Ｊ＝１３．２，８．５Ｈｚ，４Ｈ），７．６７－７．５５（ｍ，６Ｈ），７．４８（ｄｄ，Ｊ＝７．７，１．５Ｈｚ，２Ｈ），７．４４－７．３８（ｍ，２Ｈ），７．０９－７．０１（ｍ，２Ｈ），６．９７（ｔｄ，Ｊ＝７．５，１．２Ｈｚ，２Ｈ），６．３０（ｄｄ，Ｊ＝８．２，１．０Ｈｚ，２Ｈ），１．６９（ｓ，６Ｈ）；^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝１７２．１，１７１．０，１４２．４，１４０．７，１３７．４，１３６．２，１３３．３，１３２．９，１３１．４，１３０．７，１３０．５，１２９．２，１２９．０，１２８．９，１２６．６，１２５．４，１２１．１，１１４．１，３６．２，３１．２；ＡＰＣＩ－ＭＳ　ｍ／ｚ：７４２Ｍ$^{+}$；Anal.calcd forＣ$_{45}$Ｈ$_{32}$Ｆ$_{6}$Ｎ$_{4}$：Ｃ，７２．７７；Ｈ，４．３４；Ｎ，７．５４；Found：Ｃ，７２．７０；Ｈ，４．３２；Ｎ，７．５９．

【０１１５】
（合成例２）　化合物２の合成

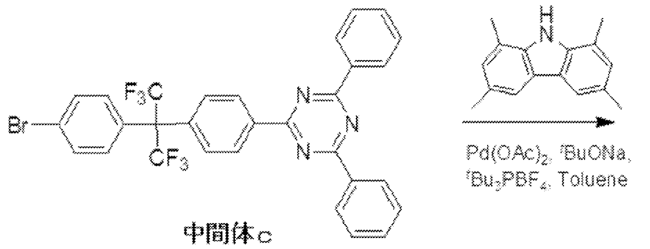
【化４７】



【０１１６】
　２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．８５ｇ、３ｍｍｏｌ）、ジフェニルアミン（６０９ｍｇ、３．６ｍｍｏｌ）、酢酸パラジウム（ＩＩ）（３４ｍｇ、０．１５ｍｍｏｌ）、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシド（１．７３ｇ、１８ｍｍｏｌ）、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウムテトラフルオロボラート（１３１ｍｇ、０．４５ｍｍｏｌ）、トルエン（３０ｍＬ）を容器に入れ、窒素雰囲気下、１１０℃で１６時間攪拌した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタンを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、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ーにより精製し、真空乾燥して白色固体の化合物２を収量１．６５ｇ、収率７８．３％で得た。
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝８．８３－８．７４（ｍ，６Ｈ），７．６８（ｄ，Ｊ＝８．４Ｈｚ，２Ｈ），７．６５－７．５６（ｍ，６Ｈ），７．３０（ｄｄ，Ｊ＝８．４，７．４Ｈｚ，４Ｈ），７．２２（ｄ，Ｊ＝８．７Ｈｚ，２Ｈ），７．１６（ｄｄ，Ｊ＝８．５，１．０Ｈｚ，４Ｈ），７．１１－７．０５（ｍ，２Ｈ），７．０３－６．９７（ｍ，２Ｈ）；^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝１７２．０，１７１．１，１４８．５，１４７．１，１３７．９，１３７．０，１３６．２，１３２．８，１３１．０，１３０．７，１２９．６，１２９．２，１２８．９，１２８．８，１２５．６，１２５．４，１２４．１，１２０．９；ＡＰＣＩ－ＭＳ　ｍ／ｚ：７０２Ｍ$^{+}$；Anal. calcd for Ｃ$_{42}$Ｈ$_{28}$Ｆ$_{6}$Ｎ$_{4}$：Ｃ，７１．７９；Ｈ，４．０２；Ｎ，７．９７；Found：Ｃ，７１．６５；Ｈ，３．９０；Ｎ，８．００．

【０１１７】
（合成例３）　化合物３の合成

【化４８】



【０１１８】

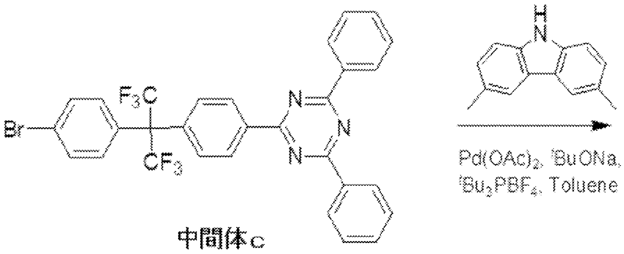
２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．８５ｇ、３ｍｍｏｌ）、１，３，６，８－テトラメチル－９Ｈ－カルバゾール（８０４ｍｇ、３．６ｍｍｏｌ）、酢酸パラジウム（ＩＩ）（３４ｍｇ、０．１５ｍｍｏｌ）、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシド（１．７３ｇ、１８ｍｍｏｌ）、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウムテトラフルオロボラート（１３１ｍｇ、０．４５ｍｍｏｌ）、トルエン（３０ｍＬ）を容器に入れ、窒素雰囲気下、１１０℃で１６時間撹拌した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタンを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、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ーにより精製し、真空乾燥して白色固体の化合物３を収量１．８６ｇ、収率８１．９％で得た。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝８．８１（ｄｄ，Ｊ＝７．３，５．２Ｈｚ，２Ｈ），８．８０－８．７６（ｍ，４Ｈ），７．７３（ｄ，Ｊ＝１０．６Ｈｚ，２Ｈ），７．７０－７．６５（ｍ，２Ｈ），７．６５－７．５６（ｍ，６Ｈ），７．５３（ｓ，４Ｈ），６．９４（ｓ，２Ｈ），２．４８（ｓ，６Ｈ），１．９４（ｓ，６Ｈ）；^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝１７２．１，１７０．９，１４３．７，１３９．６，１３７．４，１３７．３，１３６．１，１３３．９，１３２．９，１３１．３，１３０．６，１３０．５，１３０．４，１２９．５，１２９．２，１２９．０，１２８．９，１２４．５，１２１．２，１１８．０，２１．３，１９．５；ＡＰＣＩ－ＭＳ ｍ／ｚ：７５６Ｍ$^{+}$； Anal. calcd for $C_{46}H_{34}F_{6}N_{4}$：Ｃ，７３．０１；Ｈ，４．５３；Ｎ，７．４０； Found：Ｃ，７２．９７；Ｈ，４．４７；Ｎ，７．４１．

【０１１９】

（合成例４）　化合物４の合成

【化４９】



【０１２０】

２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝、フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．８５ｇ、３ｍｍｏｌ）、３，６－ジメチル－９Ｈ－カルバゾール（７０３ｍｇ、３．６ｍｍｏｌ）、酢酸パラジウム（ＩＩ）（３４ｍｇ、０．１５　ｍｍｏｌ）、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシド（１．７３ｇ、１８ｍｍｏｌ）、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウ

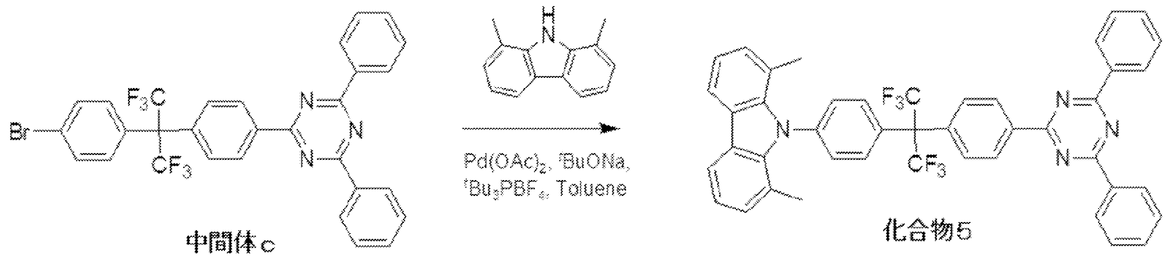
ムテトラフルオロボラート（１３１ｍｇ、０．４５ｍｍｏｌ）、トルエン（３０ｍＬ）を容器に入れ、窒素雰囲気下、１１０℃で１６時間攪拌した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタンを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、ジクロロメタン：ヘキサン＝１：３の混合溶媒を溶離液に用いてシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、真空乾燥して白色固体の化合物４を収量１．６２ｇ、収率７４．１％で得た。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝８．８４（ｄ，Ｊ＝８．７Ｈｚ，２Ｈ），８．８１－８．７３（ｍ，４Ｈ），７．９０（ｓ，２Ｈ），７．７４（ｄ，Ｊ＝８．４Ｈｚ，２Ｈ），７．６２（ｄｄｄ，Ｊ＝２１．７，１０．８，６．０Ｈｚ，１０Ｈ），７．４１（ｄ，Ｊ＝８．３　Ｈｚ，２Ｈ），７．２４（ｄｄ，Ｊ＝８．４，１．４Ｈｚ，２Ｈ），２．５５（ｓ，６Ｈ）；^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝１７２．０，１７１．０，１３９．３，１３８．９，１３７．５，１３７．３，１３６．２，１３２．９，１３１．９，１３１．５，１３０．７，１２９．８，１２９．２，１２９．０，１２８．９，１２７．４，１２６．２，１２６．１，１２３．９，１２０．５，１０９．６，２１．５；ＡＰＣＩ－ＭＳ　ｍ／ｚ：７２８Ｍ$^{+}$；Anal. calcd for $C_{44}H_{30}F_{6}N_{4}$：Ｃ，７２．５２；Ｈ，４．１５；Ｎ，７．６９；Found：Ｃ，７２．２８；Ｈ，４．１３；Ｎ，７．２６．

【０１２１】

（合成例５）　化合物５の合成

【化５０】



【０１２２】

２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝、フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．８５ｇ、３ｍｍｏｌ）、１，８－ジメチル－９Ｈ－カルバゾール（７０３ｍｇ、３．６ｍｍｏｌ）、酢酸パラジウム（ＩＩ）（３４ｍｇ、０．１５ｍｍｏｌ）、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシド（１．７３ｇ、１８ｍｍｏｌ）、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウムテトラフルオロボラート（１３１ｍｇ、０．４５ｍｍｏｌ）、トルエン（３０ｍＬ）を容器に入れ、窒素雰囲気下、１１０℃で１６時間攪拌した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタンを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、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ーにより精製し、真空乾燥して白色固体の化合物５を収量１．５２ｇ、収率６９．５％で得た。

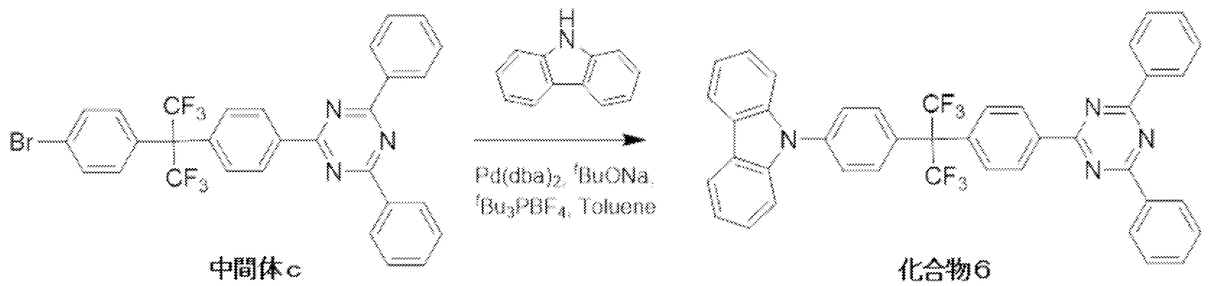
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝８．８３（ｄ，Ｊ＝８．８Ｈｚ，２Ｈ），８．８１－８．７６（ｍ，４Ｈ），８．００（ｄ，Ｊ＝７．１Ｈｚ，２Ｈ），７．６８（ｄ，Ｊ＝８．４Ｈｚ，２Ｈ），７．６６－７．５４（ｍ，１０Ｈ），７．１８（ｔ，Ｊ＝７．４Ｈｚ，２Ｈ），７．１３（ｄ，Ｊ＝７．０Ｈｚ，２Ｈ），１．９９（ｓ，６Ｈ）；^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ＝１７２．１，１７０．９，１４３．４，１４０．８，１３７．４，１３７．３，１３６．１，１３４．２，１３２．９，１３

１．５，１３０．６，１３０．４，１２９．３，１２９．２，１２９．０，１２８．９，１２４．３，１２１．５，１２０．３，１１８．３，１９．６；ＡＰＣＩ－ＭＳ　ｍ／ｚ：７２８Ｍ$^{+}$； Anal. calcd for $C_{44}H_{30}F_{6}N_{4}$：Ｃ，７２．５２；Ｈ，４．１５；Ｎ，７．６９；Found：Ｃ，７２．２９；Ｈ，４．１２；Ｎ，７．５６．

【０１２３】

（合成例６）　化合物６の合成

【化５１】



【０１２４】

２－［４－｛２－（４－ブロモフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン－２－イル｝、フェニル］－４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン（１．８５ｇ、３ｍｍｏｌ）、カルバゾール（６０２ｍｇ、３．６ｍｍｏｌ）、ビス（ジベンジリデンアセトン）パラジウム（０）（８６ｍｇ、０．１５ｍｍｏｌ）、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシド（１．７３ｇ、１８ｍｍｏｌ）、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウムテトラフルオロボラート（１３１ｍｇ、０．４５ｍｍｏｌ）、トルエン（３０ｍＬ）を容器に入れ、窒素雰囲気下、１１０℃で１６時間攪拌した。この反応液を室温に冷却した後、水５０ｍＬを加えたところ、水層と有機層に分離した。水層にジクロロメタン５０ｍＬを加えて抽出を行い、さらに、有機層を回収して残った水層にジクロロメタンを加えて抽出を行う操作を２回繰り返した。回収した有機層に硫酸ナトリウムを加えて乾燥し、濾過した後、溶剤を揮発除去した。得られた沈殿物を、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ーにより精製し、真空乾燥して白色固体の化合物６を収量１．５２ｇ、収率７２．４％で得た。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，$CDCl_{3}$）δ＝８．８５（ｄ，Ｊ＝８．８Ｈｚ，２Ｈ），８．８１－８．７４（ｍ，４Ｈ），８．１６（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，２Ｈ），７．７４（ｄ，Ｊ＝８．２Ｈｚ，２Ｈ），７．７１－７．５５（ｍ，１０Ｈ），７．５３（ｄ，Ｊ＝８．２Ｈｚ，２Ｈ），７．４９－７．４２（ｍ，２Ｈ），７．３３（ｔ，Ｊ＝７．４Ｈｚ，２Ｈ）；^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，$CDCl_{3}$）δ＝１７２．０，１７１．０，１４０．６，１３８．９，１３７．４，１３７．３，１３６．１，１３２．９，１３２．１，１３２．０，１３０．７，１２９．２，１２９．０，１２８．９，１２６．６，１２６．３，１２３．８，１２０．６，１０９．９；ＡＰＣＩ－ＭＳ　ｍ／ｚ：７００　Ｍ$^{+}$； Anal. calcd for $C_{42}H_{26}F_{6}N_{4}$：Ｃ，７２．００；Ｈ，３．７４；Ｎ，８．００．；Found：Ｃ，７１．８９；Ｈ，３．７２；Ｎ，７．８６．

【０１２５】

［２］有機発光素子の作製と評価

（実施例１）　化合物１を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

Ａｒ雰囲気のグローブボックス中で化合物１をトルエン、クロロホルムまたはシクロヘキサンに溶解して溶液を調製した。各溶液における化合物１の濃度は２×１０$^{-5}$ｍｏｌ／Ｌとした。

また、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度５×１０$^{-4}$Ｐａ以下の条件で化合物１の薄膜（単独膜）を５０ｎｍの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

これとは別に、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度５×１０$^{-4}$Ｐａ以下の条件で化合物１とＰＰＴとを異なる蒸着源から蒸着し、化合物１の濃度が１０質量％である薄膜（ドープ膜）を５０ｎｍの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

化合物１の各溶液および単独膜について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光スペクトルと吸収スペクトルを図２に示し、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光の過渡減衰曲線を図３に示す。図２に示された各溶液および単独膜それぞれの２つのスペクトルは、短波長側に極大を有するスペクトルが吸収スペクトルであり、長波長側に極大を有するスペクトルが発光スペクトルである。下記の図４、６、８、１０、１２においても同様である。また、化合物１の各溶液、単独膜およびドープ膜について測定したフォトルミネッセンス量子効率（ＰＬ量子効率）と、化合物１の各溶液、単独膜およびドープ膜を脱気した後に測定したフォトルミネッセンス量子効率（ＰＬ量子効率）を表１に示す。

【０１２６】

（実施例２～４）　化合物２～４を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物１の代わりに、化合物２～４を用いること以外は、実施例１と同様にして化合物２～４のトルエン溶液、クロロホルム溶液、シクロヘキサン溶液、単独膜およびドープ膜を作製した。

化合物２の各溶液および単独膜について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光スペクトルと吸収スペクトルを図４に示し、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光の過渡減衰曲線を図５に示す。化合物２の各溶液、単独膜およびドープ膜について測定したフォトルミネッセンス量子効率と、化合物２の各溶液、単独膜およびドープ膜を脱気した後に測定したフォトルミネッセンス量子効率を表２に示す。

化合物３の各溶液および単独膜について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光スペクトルと吸収スペクトルを図６に示し、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光の過渡減衰曲線を図７に示す。化合物３の各溶液、単独膜およびドープ膜について測定したフォトルミネッセンス量子効率と、化合物３の各溶液、単独膜およびドープ膜を脱気した後に測定したフォトルミネッセンス量子効率を表３に示す。

化合物４の各溶液および単独膜について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光スペクトルと吸収スペクトルを図８に示し、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光の過渡減衰曲線を図９に示す。化合物４の各溶液、単独膜およびドープ膜について測定したフォトルミネッセンス量子効率と、化合物４の各溶液、単独膜およびドープ膜を脱気した後に測定したフォトルミネッセンス量子効率を表４に示す。

【０１２７】

（実施例５）　化合物５を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物１の代わりに、化合物５を用いること以外は、実施例１と同様にして化合物５のトルエン溶液、クロロホルム溶液、単独膜およびドープ膜を作製した。

化合物５の各溶液および単独膜について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光スペクトルと吸収スペクトルを図１０に示す。化合物５のトルエン溶液およびクロロホルム溶液について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光の過渡減衰曲線と、これらの溶液に脱気を行った後に測定した発光の過度減衰曲線を図１１に示す。化合物５の各溶液、単独膜およびドープ膜について測定したフォトルミネッセンス量子効率と、化合物５の各溶液、単独膜およびドープ膜を脱気した後に測定したフォトルミネッセンス量子効率を表５に示す。

【０１２８】

（実施例６）　化合物６を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物１の代わりに、化合物６を用いること以外は、実施例１と同様にして化合物６のトルエン溶液および単独膜を作製した。

化合物６のトルエン溶液および単独膜について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光スペクトルと吸収スペクトルを図１２に示す。化合物６のトルエン溶液について、３４０ｎｍ励起光を用いて測定した発光の過渡減衰曲線と、このトルエン溶液に脱気を行った後に測定した発光の過度減衰曲線を図１３に示す。化合物６のトルエン溶液および単独膜について測定したフォトルミネッセンス量子効率と、化合物６のトルエン溶液および単独膜を脱気した後に測定したフォトルミネッセンス量子効率を表６に示す。

【０１２９】

【表１】

	化合物1				
	トルエン溶液	クロロホルム溶液	シクロヘキサン溶液	単独膜	ドープ膜
PL量子効率	2%	2%	1%	38%	46%
PL量子効率（脱気後）	72%	13%	10%	74%	78%

【０１３０】

【表２】

	化合物2				
	トルエン溶液	クロロホルム溶液	シクロヘキサン溶液	単独膜	ドープ膜
PL量子効率	10%	12%	1%	30%	45%
PL量子効率(脱気後)	20%	53%	2%	50%	62%

【０１３１】

【表３】

	化合物3				
	トルエン溶液	クロロホルム溶液	シクロヘキサン溶液	単独膜	ドープ膜
PL量子効率	2%	2%	1%	34%	36%
PL量子効率(脱気後)	36%	23%	8%	41%	60%

【０１３２】

【表４】

	化合物4				
	トルエン溶液	クロロホルム溶液	シクロヘキサン溶液	単独膜	ドープ膜
PL量子効率	10%	4%	5%	10%	23%
PL量子効率（脱気後）	20%	5%	6%	11%	26%

【０１３３】

【表５】

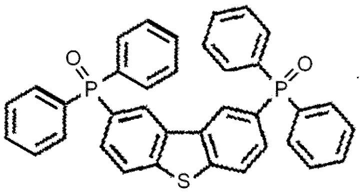
	化合物５			
	トルエン溶液	クロロホルム溶液	単独膜	ドープ膜
PL量子効率	１％	１％	６％	２２％
PL量子効率（脱気後）	６％	４％	８％	２４％

【０１３４】
【表６】

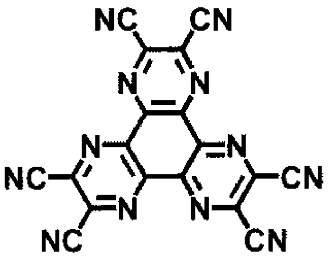
	化合物６	
	トルエン溶液	単独膜
PL量子効率	１％	４％
PL量子効率（脱気後）	２％	４％

【０１３５】
図３、５、７、１１、１３で示されているように、いずれの化合物についても裾の長い過渡減衰曲線を観測することができた。このことから、化合物１～６は、遅延蛍光を放射しうる化合物であることを確認することができた。また、表１～６に示した脱気後のＰＬ量子効率から、化合物１～６は優れた発光効率を有することがわかった。なお、脱気していない各溶液、単独膜およびドープ膜でＰＬ量子効率が低いのは、溶存酸素により励起三重項状態が消光され、逆項間交差を介する励起一重項状態の生成が減少したためであると推測される。
【０１３６】
（実施例７～８）　化合物６を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価
膜厚１００ｎｍのインジウム・スズ酸化物（ＩＴＯ）からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度５×１０$^{-5}$Ｐａで積層した。まず、ＩＴＯ上にＨＡＴ－ＣＮを１０ｎｍの厚さに蒸着してホール注入層を形成した。次に、ＴｒｉｓＰＣｚを２５ｎｍの厚さに蒸着してホール輸送層を形成し、その上に、ｍＣＢＰまたは化合物６を５ｍｎの厚さに蒸着して電子阻止層を形成した。次に、４ＣｚＩＰＮと化合物６を異なる蒸着源から共蒸着し、３０ｎｍの厚さの層を形成して発光層とした。この時、４ＣｚＩＰＮの濃度は２０重量％とした。次に、化合物６を１０ｎｍの厚さに蒸着してホール阻止層を形成し、その上に、電子輸送材料とＬｉｑを異なる蒸着源から重量比７：３で４０ｎｍの厚さに共蒸着して電子輸送層を形成した。次いで、Ｌｉｑとアルミニウム（Ａｌ）を異なる蒸着源から重量比２：１００で１００ｎｍの厚さに共蒸着して陰極を形成することにより、実施例７（電子阻止層がｍＣＢＰ）および実施例８（電子阻止層が化合物６）の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。
製造した各素子の発光スペクトルは図１４に示すように重なっていた。実施例７の素子の最大外部量子効率は１４％であった。
【０１３７】

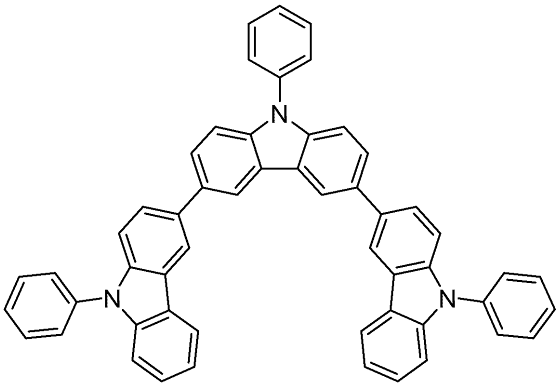
【化５２】



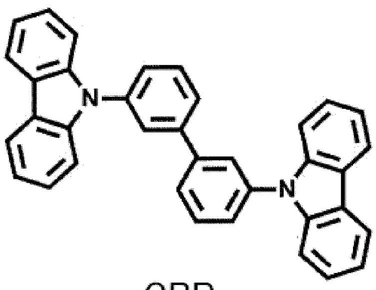
PPT



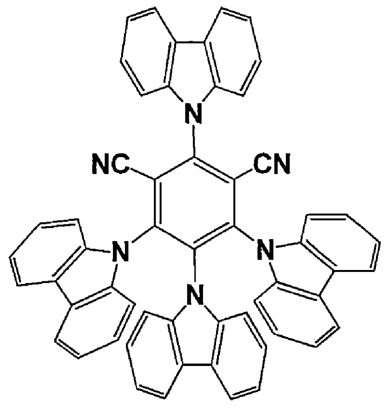
HATCN



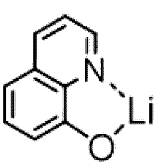
TrisPCz



mCBP



4CzIPN



Liq

【産業上の利用可能性】

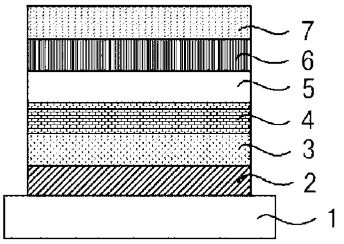
【０１３８】

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

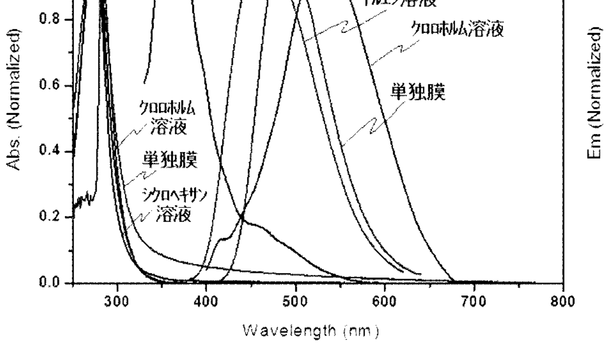
【符号の説明】

【０１３９】
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

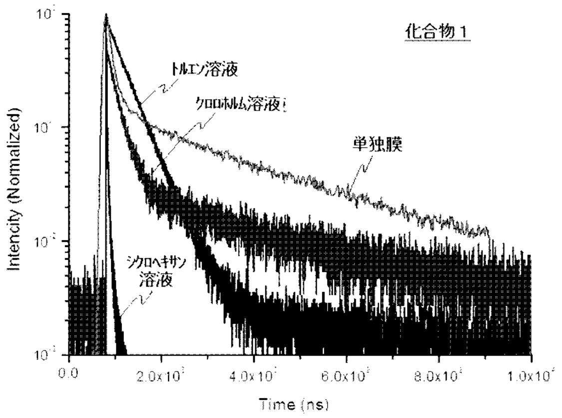
【図１】



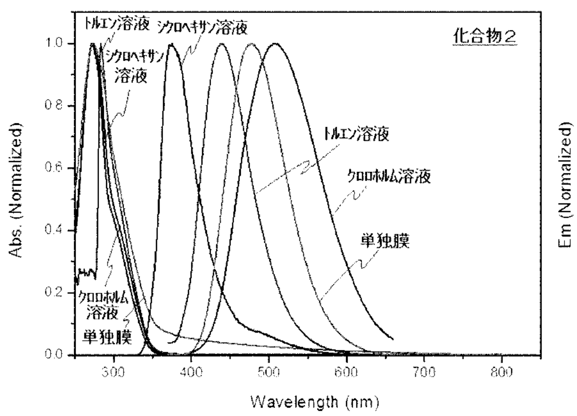
【図２】



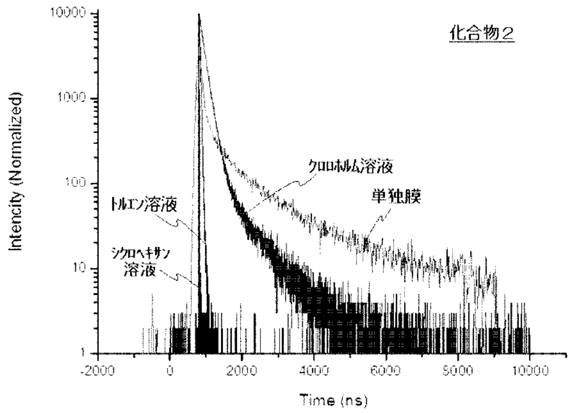
【図３】



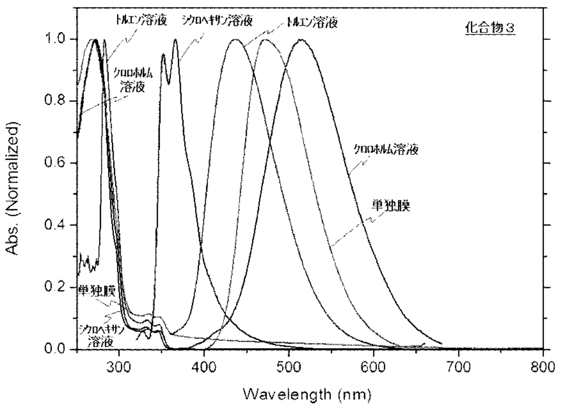
【図４】


化合物２
トルエン溶液
シクロヘキサン溶液
クロロホルム溶液
単独膜
Abs. (Normalized)
Em (Normalized)
Wavelength (nm)

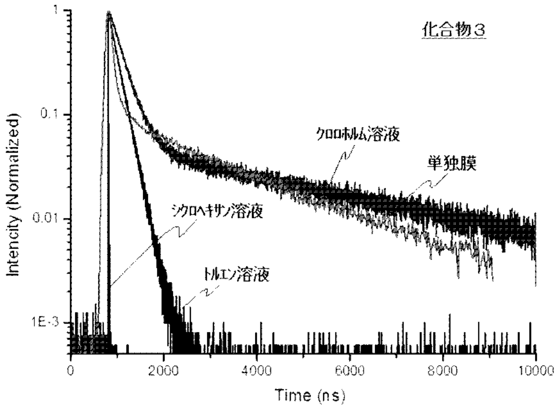
【図５】


化合物２
クロロホルム溶液
単独膜
トルエン溶液
シクロヘキサン溶液
Intencity (Normalized)
Time (ns)

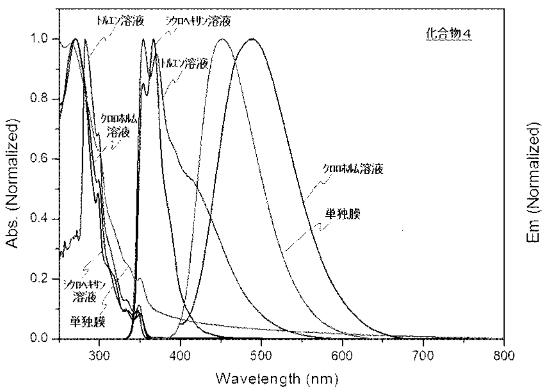
【図６】


化合物３
トルエン溶液
シクロヘキサン溶液
クロロホルム溶液
単独膜
Abs. (Normalized)
Em (Normalized)
Wavelength (nm)

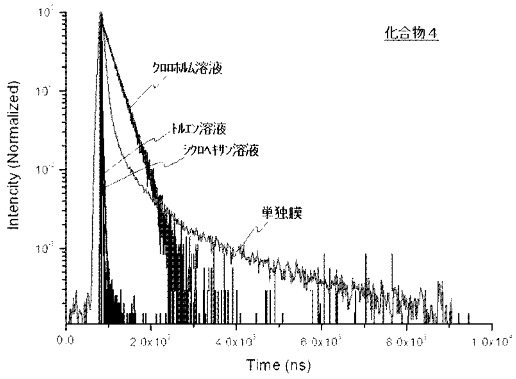
【図７】


化合物３
クロロホルム溶液
単独膜
シクロヘキサン溶液
トルエン溶液
Intencity (Normalized)
Time (ns)

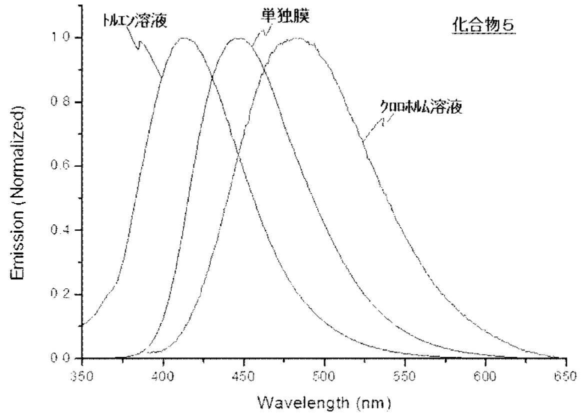
【図８】



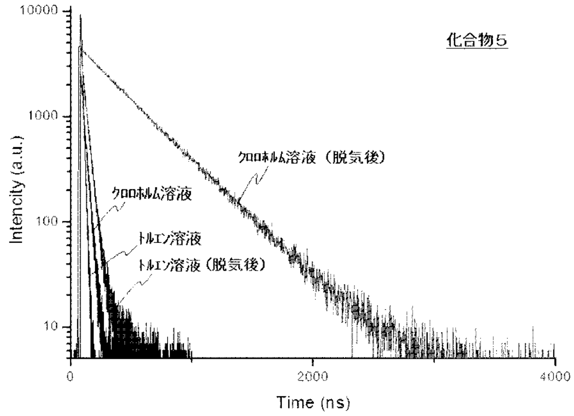
【図９】



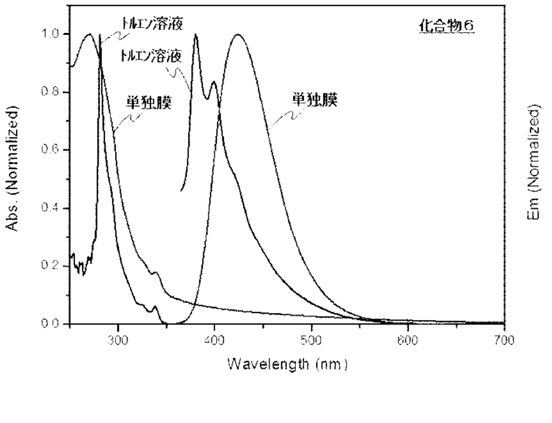
【図１０】



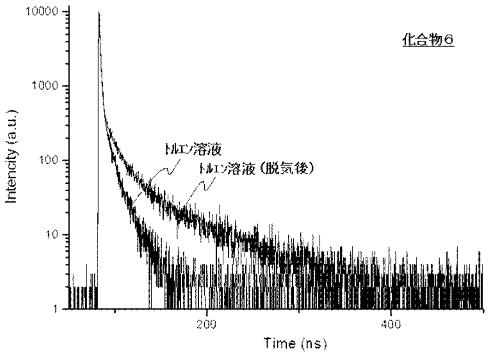
【図１１】



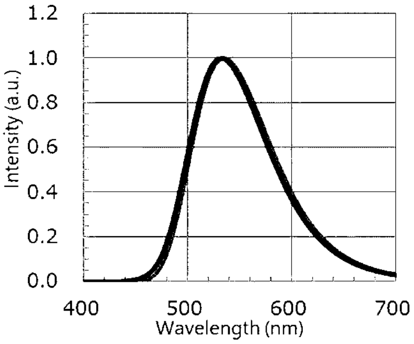
【図１２】



【図１３】


10000
1000
100
10
1
Intencity (a.u.)
化合物６
トルエン溶液
トルエン溶液（脱気後）
200
400
Time (ns)

【図１４】


1.2
1.0
0.8
0.6
0.4
0.2
0.0
Intensity (a.u.)
400
500
600
700
Wavelength (nm)

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	ＦＩ			テーマコード（参考）
	Ｈ０５Ｂ	33/14	Ｂ	
	Ｈ０５Ｂ	33/22	Ｂ	
	Ｈ０５Ｂ	33/22	Ｄ	

(72)発明者　中野谷　一
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号　国立大学法人九州大学内
(72)発明者　能塚　直人
福岡県福岡市西区九大新町４番地１　株式会社Ｋｙｕｌｕｘ内
(72)発明者　那須　圭朗
福岡県福岡市西区九大新町４番地１　株式会社Ｋｙｕｌｕｘ内

Ｆターム(参考) 3K107 AA01　BB01　BB02　CC04　DD53　DD59　DD66　DD68　DD69　DD71
DD74　DD78　FF14
4C063 AA01　BB06　CC43　DD08　DD16　EE10

patsnap

专利名称(译)	发光材料，化合物和有机发光器件		
公开(公告)号	JP2018100411A	公开(公告)日	2018-06-28
申请号	JP2017244764	申请日	2017-12-21
[标]申请(专利权)人(译)	国立大学法人九州大学 株式会社KYULUX		
申请(专利权)人(译)	国立大学法人九州大学 株式会社KYULUX		
[标]发明人	安達千波矢 中野谷一 能塚直人 那須圭朗		
发明人	耿 ▲炎▼ 安達 千波矢 中野谷 一 能塚 直人 那須 圭朗		
IPC分类号	C09K11/06 C07D401/10 C07D251/24 C07D403/10 H01L51/50		
CPC分类号	C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1059 C07D251/16 C07D251/24 C07D401/10 C07D403/10 H01L51/50 C09K11/02 C09K2211/1018 C09K2211/1022 H01L51/0061 H01L51/0067 H01L51/0072 H01L51/5012 H01L51/5016 H01L51/5096		
FI分类号	C09K11/06.640 C09K11/06.690 C07D401/10 C07D251/24 C07D403/10 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC04 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD66 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78 3K107/FF14 4C063/AA01 4C063/BB06 4C063/CC43 4C063/DD08 4C063/DD16 4C063/EE10		
优先权	2016247496 2016-12-21 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

寻找具有供体基团和受体基团且发光特性优异的化合物。 包含由以下通式表示的化合物的发光材料。 R1和R2表示氟代烷基，D表示Hammettσp值为负的取代基，A表示Hammettσ p 值为正的取代基。 代表 [选择图] 无

(19) 日本国特許庁(JP)　(12) 公 開 特 許 公 報(A)　(11) 特許出願公開番号

特開2018-100411

(P2018-100411A)

(43) 公開日　平成30年6月28日(2018.6.28)

(51) Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
C09K 11/06	(2006.01)	C09K	11/06	640	3K107
C07D 401/10	(2006.01)	C09K	11/06	690	4C063
C07D 251/24	(2006.01)	C07D	401/10		
C07D 403/10	(2006.01)	C07D	251/24		
H01L 51/50	(2006.01)	C07D	403/10		

審査請求 未請求　請求項の数 19　ＯＬ　（全 72 頁）　最終頁に続く

(21) 出願番号　特願2017-244764 (P2017-244764)
(22) 出願日　平成29年12月21日 (2017.12.21)
(31) 優先権主張番号　特願2016-247496 (P2016-247496)
(32) 優先日　平成28年12月21日 (2016.12.21)
(33) 優先権主張国　日本国 (JP)

(71) 出願人　504145342
国立大学法人九州大学
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
(71) 出願人　516003621
株式会社Ｋｙｕｌｕｘ
福岡県福岡市西区九大新町４番地１
(74) 代理人　110000109
特許業務法人特許事務所サイクス
(72) 発明者　耿　▲炎▼
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
国立大学法人九州大学内
(72) 発明者　安達　千波矢
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
国立大学法人九州大学内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】発光材料、化合物および有機発光素子