

(19) 日本国特許庁(JP)

## 再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02015/080182

発行日 平成29年3月16日(2017.3.16)

(43) 国際公開日 平成27年6月4日(2015.6.4)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
<b>C09K 11/06 (2006.01)</b>	C09K 11/06 630	3K107
<b>C07F 9/6571 (2006.01)</b>	C07F 9/6571 CSP	4C063
<b>C07F 7/08 (2006.01)</b>	C07F 7/08 S	4H049
<b>C07F 7/30 (2006.01)</b>	C07F 7/30 Z	4H050
<b>C07D 411/04 (2006.01)</b>	C07D 411/04	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 91 頁) 最終頁に続く

出願番号 特願2015-550975 (P2015-550975)	(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
(21) 国際出願番号 PCT/JP2014/081320	
(22) 国際出願日 平成26年11月27日(2014.11.27)	
(31) 優先権主張番号 特願2013-246519 (P2013-246519)	(74) 代理人 110000109 特許業務法人特許事務所サイクス
(32) 優先日 平成25年11月28日(2013.11.28)	
(33) 優先権主張国 日本国(JP)	(72) 発明者 イ セヨン 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内
	(72) 発明者 安田 琢磨 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内
	(72) 発明者 沼田 真樹 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内

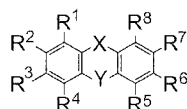
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光材料、有機発光素子および化合物

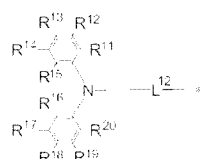
## (57) 【要約】

一般式(1)で表される化合物は発光材料として有用である。XはSO<sub>2</sub>、P(=O)(Ar<sup>1</sup>)、Ge(Ar<sup>2</sup>)(Ar<sup>3</sup>)、Si(Ar<sup>4</sup>)(Ar<sup>5</sup>)またはSn(Ar<sup>6</sup>)(Ar<sup>7</sup>)を表し、Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>7</sup>は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。YはO、S、SO<sub>2</sub>、N(R<sup>71</sup>)、C(R<sup>72</sup>)(R<sup>73</sup>)を表す。R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>、R<sup>71</sup>~R<sup>73</sup>は各々独立に水素原子または置換基を表すが、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>の少なくとも1つは下記一般式(2)等で表される基である。L<sup>12</sup>は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、\*は一般式(1)におけるベンゼン環への結合部位を表す。R<sup>11</sup>~R<sup>20</sup>は水素原子または置換基を表す。

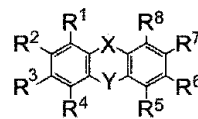
一般式(1)



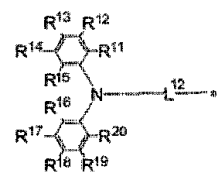
一般式(2)



(1)



(2)



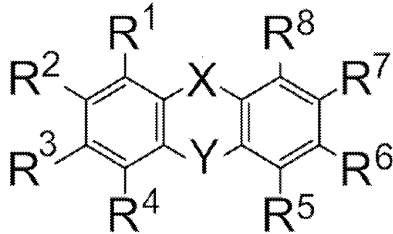
## 【特許請求の範囲】

## 【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)



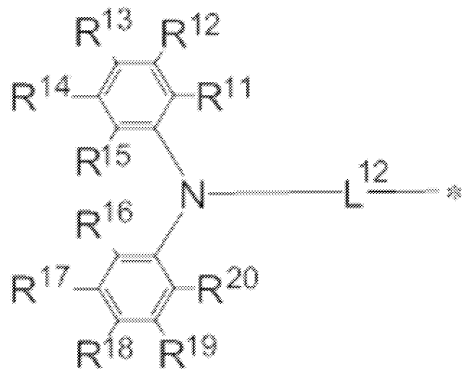
10

[一般式(1)において、XはSO<sub>2</sub>、P(=O)(Ar<sup>1</sup>)、Ge(Ar<sup>2</sup>)(Ar<sup>3</sup>)、Si(Ar<sup>4</sup>)(Ar<sup>5</sup>)またはSn(Ar<sup>6</sup>)(Ar<sup>7</sup>)を表し、Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>7</sup>は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。YはO、S、SO<sub>2</sub>、N(R<sup>71</sup>)、C(R<sup>72</sup>)(R<sup>73</sup>)を表す。R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>、R<sup>71</sup>~R<sup>73</sup>は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)~(7)で表される基である。R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>、R<sup>2</sup>とR<sup>3</sup>、R<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>とR<sup>6</sup>、R<sup>6</sup>とR<sup>7</sup>、R<sup>7</sup>とR<sup>8</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>73</sup>、R<sup>71</sup>とR<sup>4</sup>、R<sup>71</sup>とR<sup>5</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>4</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>5</sup>、R<sup>73</sup>とR<sup>5</sup>は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

20

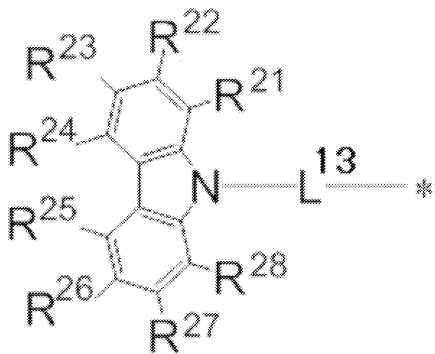
【化 2 - 1】

一般式 (2)



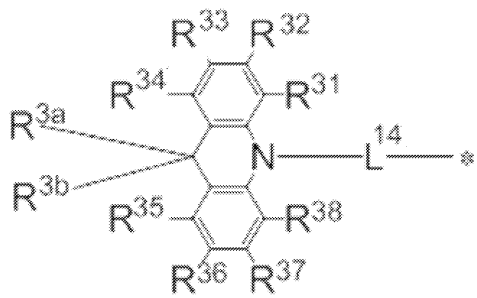
10

一般式 (3)



20

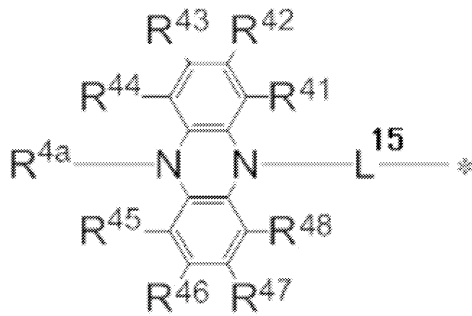
一般式 (4)



30

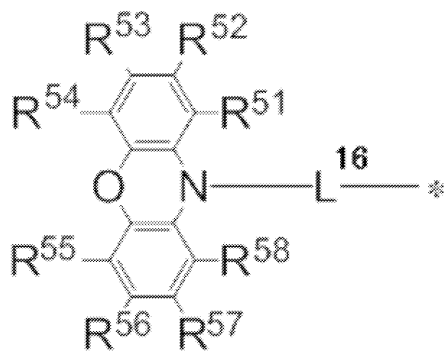
## 【化 2 - 2】

## 一般式 (5)



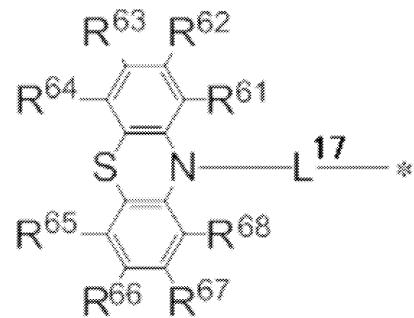
10

## 一般式 (6)



20

## 一般式 (7)



30

[ 一般式 (2) ~ (7) において、 $L^{12} \sim L^{17}$  は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、\* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$  は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11}$  と  $R^{12}$ 、 $R^{12}$  と  $R^{13}$ 、 $R^{13}$  と  $R^{14}$ 、 $R^{14}$  と  $R^{15}$ 、 $R^{16}$  と  $R^{17}$ 、 $R^{17}$  と  $R^{18}$ 、 $R^{18}$  と  $R^{19}$ 、 $R^{19}$  と  $R^{20}$ 、 $R^{21}$  と  $R^{22}$ 、 $R^{22}$  と  $R^{23}$ 、 $R^{23}$  と  $R^{24}$ 、 $R^{24}$  と  $R^{25}$ 、 $R^{25}$  と  $R^{26}$ 、 $R^{26}$  と  $R^{27}$ 、 $R^{27}$  と  $R^{28}$ 、 $R^{31}$  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  $R^{38}$ 、 $R^{3a}$  と  $R^{3b}$ 、 $R^{41}$  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  $R^{64}$ 、 $R^{65}$  と  $R^{66}$ 、 $R^{66}$  と  $R^{67}$ 、 $R^{67}$  と  $R^{68}$  はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

## 【請求項 2】

一般式 (1) の X が、 $SO_2$ 、 $P(=O)(Ar^1)$ 、 $Ge(Ar^2)(Ar^3)$  または  $Si(Ar^4)(Ar^5)$  であることを特徴とする請求項 1 に記載の発光材料。

## 【請求項 3】

50

一般式(1)の $Ar^1 \sim Ar^5$ が、各々独立に置換もしくは無置換のフェニル基であることを特徴とする請求項1または2に記載の発光材料。

【請求項4】

一般式(1)の $Y$ が、 $O$ であることを特徴とする請求項1~3のいずれか1項に記載の発光材料。

【請求項5】

一般式(1)の $R^3$ および $R^6$ の少なくともいずれかが置換基であることを特徴とする請求項1~4のいずれか1項に記載の発光材料。

【請求項6】

一般式(1)の $R^3$ および $R^6$ がともに置換基であることを特徴とする請求項5に記載の発光材料。 10

【請求項7】

前記置換基が、前記一般式(4)で表される基であることを特徴とする請求項5または6に記載の発光材料。

【請求項8】

前記一般式(4)の $R^{3a}$ と $R^{3b}$ が、置換基であることを特徴とする請求項7に記載の発光材料。

【請求項9】

前記置換基が、炭素数1~15のアルキル基であることを特徴とする請求項8に記載の発光材料。 20

【請求項10】

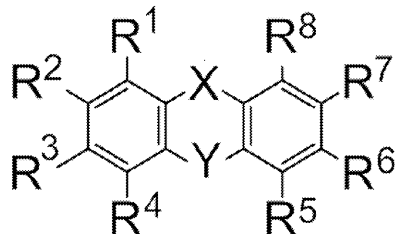
一般式(2)~(7)の $L^{12} \sim L^{17}$ が、単結合であることを特徴とする請求項1~9のいずれか1項に記載の発光材料。

【請求項11】

下記一般式(1)で表される化合物からなる遅延蛍光体。

【化3】

一般式(1)



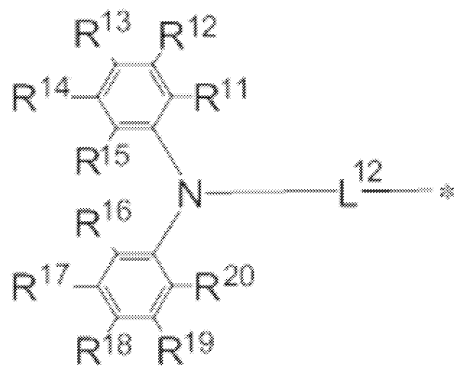
30

[一般式(1)において、 $X$ は $SO_2$ 、 $P(=O)(Ar^1)$ 、 $Ge(Ar^2)(Ar^3)$ 、 $Si(Ar^4)(Ar^5)$ または $Sn(Ar^6)(Ar^7)$ を表し、 $Ar^1 \sim Ar^7$ は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。 $Y$ は $O$ 、 $S$ 、 $SO_2$ 、 $N(R^{71})$ 、 $C(R^{72})(R^{73})$ を表す。 $R^1 \sim R^8$ 、 $R^{71} \sim R^{73}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^1 \sim R^8$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)~(7)で表される基である。 $R^1$ と $R^2$ 、 $R^2$ と $R^3$ 、 $R^3$ と $R^4$ 、 $R^5$ と $R^6$ 、 $R^6$ と $R^7$ 、 $R^7$ と $R^8$ 、 $R^{72}$ と $R^{73}$ 、 $R^{71}$ と $R^4$ 、 $R^{71}$ と $R^5$ 、 $R^{72}$ と $R^4$ 、 $R^{72}$ と $R^5$ 、 $R^{73}$ と $R^5$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

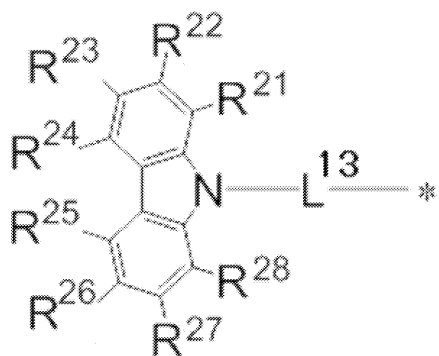
## 【化 4 - 1】

## 一般式 (2)



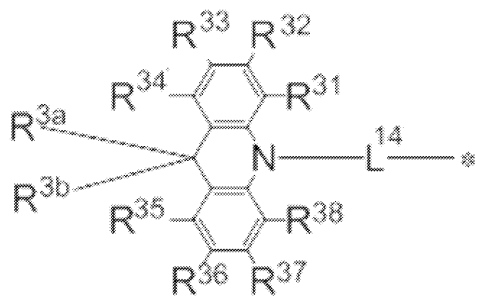
10

## 一般式 (3)



20

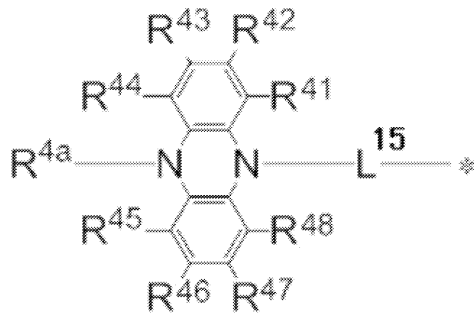
## 一般式 (4)



30

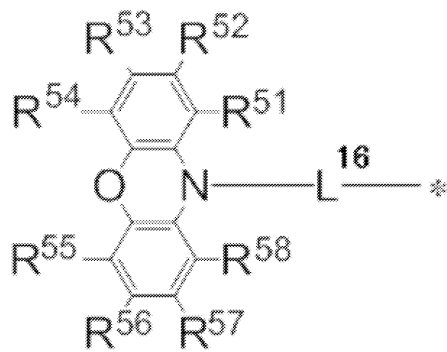
## 【化 4 - 2】

## 一般式 (5)



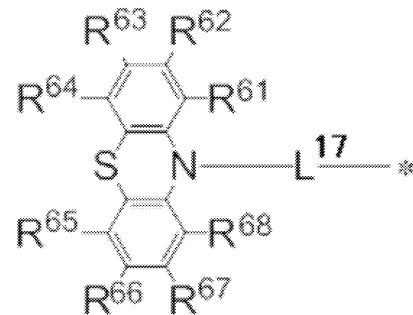
10

## 一般式 (6)



20

## 一般式 (7)



30

[ 一般式 (2) ~ (7) において、 $L^{12} \sim L^{17}$  は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、\* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$  は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11}$ と $R^{12}$ 、 $R^{12}$ と $R^{13}$ 、 $R^{13}$ と $R^{14}$ 、 $R^{14}$ と $R^{15}$ 、 $R^{16}$ と $R^{17}$ 、 $R^{17}$ と $R^{18}$ 、 $R^{18}$ と $R^{19}$ 、 $R^{19}$ と $R^{20}$ 、 $R^{21}$ と $R^{22}$ 、 $R^{22}$ と $R^{23}$ 、 $R^{23}$ と $R^{24}$ 、 $R^{24}$ と $R^{25}$ 、 $R^{25}$ と $R^{26}$ 、 $R^{26}$ と $R^{27}$ 、 $R^{27}$ と $R^{28}$ 、 $R^{31}$ 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 $R^{38}$ 、 $R^{3a}$ と $R^{3b}$ 、 $R^{41}$ 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 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ と $R^{66}$ 、 $R^{66}$ と $R^{67}$ 、 $R^{67}$ と $R^{68}$  はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

## 【請求項 12】

請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の発光材料を含むことを特徴とする有機発光素子

50

## 【請求項 13】

遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項 12 に記載の有機発光素子。

## 【請求項 14】

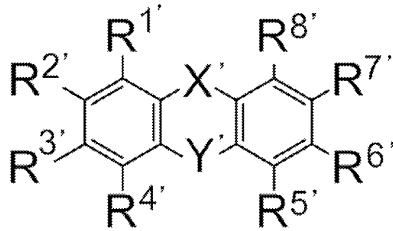
有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする請求項 12 または 13 に記載の有機発光素子。

## 【請求項 15】

下記一般式 (1') で表される化合物。

## 【化 5】

一般式 (1')



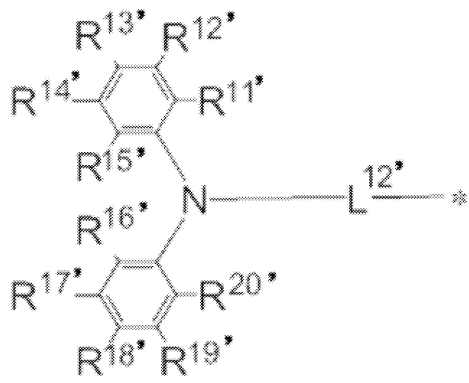
10

[一般式 (1') において、X' は SO<sub>2</sub>、P (=O) (Ar<sup>1'</sup>)、Ge (Ar<sup>2'</sup>) (Ar<sup>3'</sup>)、Si (Ar<sup>4'</sup>) (Ar<sup>5'</sup>) または Sn (Ar<sup>6'</sup>) (Ar<sup>7'</sup>) を表し、Ar<sup>1'</sup> ~ Ar<sup>7'</sup> は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。Y' は O、S、SO<sub>2</sub>、N (R<sup>71'</sup>)、C (R<sup>72'</sup>) (R<sup>73'</sup>) を表す。R<sup>1'</sup> ~ R<sup>8'</sup>、R<sup>71'</sup> ~ R<sup>73'</sup> は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R<sup>1'</sup> ~ R<sup>8'</sup> の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 (2') ~ (7') で表される基である。R<sup>1'</sup> と R<sup>2'</sup>、R<sup>2'</sup> と R<sup>3'</sup>、R<sup>3'</sup> と R<sup>4'</sup>、R<sup>5'</sup> と R<sup>6'</sup>、R<sup>6'</sup> と R<sup>7'</sup>、R<sup>7'</sup> と R<sup>8'</sup>、R<sup>72'</sup> と R<sup>73'</sup>、R<sup>71'</sup> と R<sup>4'</sup>、R<sup>71'</sup> と R<sup>5'</sup>、R<sup>72'</sup> と R<sup>4'</sup>、R<sup>72'</sup> と R<sup>5'</sup>、R<sup>73'</sup> と R<sup>5'</sup> は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

20

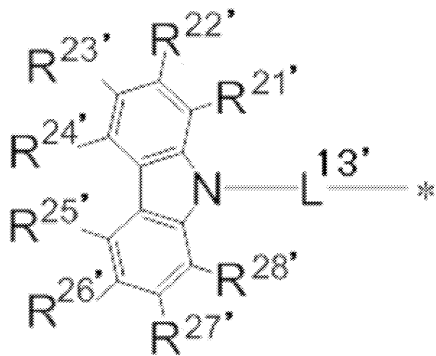
【化 6 - 1】

一般式 (2')



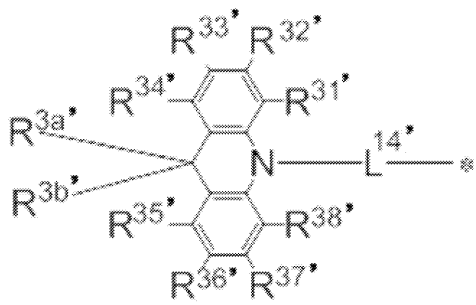
10

一般式 (3')



20

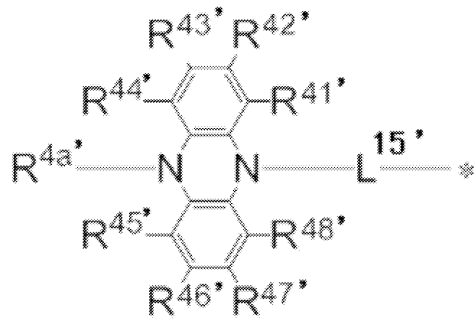
一般式 (4')



30

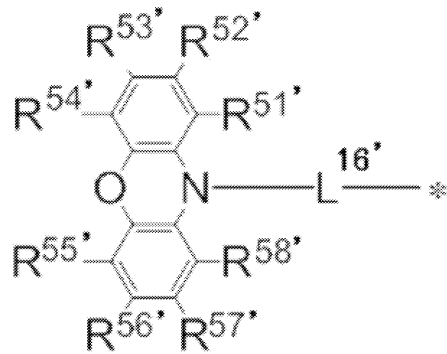
## 【化 6 - 2】

## 一般式 (5')



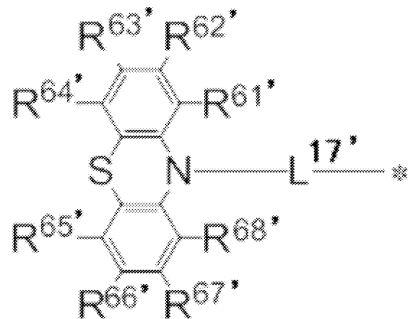
10

## 一般式 (6')



20

## 一般式 (7')



30

[ 一般式 (2') ~ (7') において、 $L^{12'}$  ~  $L^{17'}$  は単結合、または置換もしくはは無置換のアリーレン基を表し、\* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11'}$  ~  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  ~  $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$  ~  $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$  ~  $R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$  ~  $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$  ~  $R^{68'}$  は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$  と  $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$  と  $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$  と  $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$  と  $R^{15'}$ 、 $R^{16'}$  と  $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$  と  $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$  と  $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$  と  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  と  $R^{22'}$ 、 $R^{22'}$  と  $R^{23'}$ 、 $R^{23'}$  と  $R^{24'}$ 、 $R^{24'}$  と  $R^{25'}$ 、 $R^{25'}$  と  $R^{26'}$ 、 $R^{26'}$  と  $R^{27'}$ 、 $R^{27'}$  と  $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$  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  $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$  と  $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$  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  $R^{64'}$ 、 $R^{65'}$  と  $R^{66'}$ 、 $R^{66'}$  と  $R^{67'}$ 、 $R^{67'}$  と  $R^{68'}$  はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

50

## 【 0 0 0 1 】

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 】

## 【 0 0 0 2 】

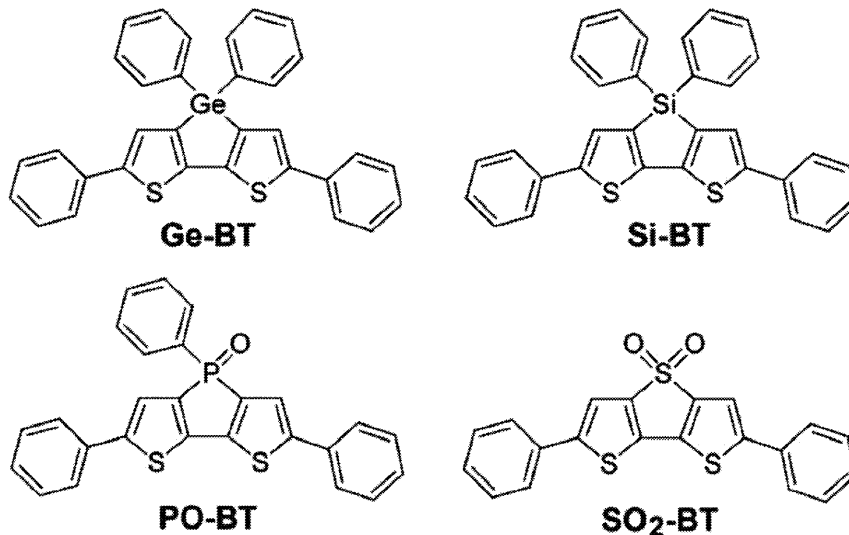
有機エレクトロルミネッセンス素子（有機 EL 素子）などの有機発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する電子輸送材料、正孔輸送材料、発光材料などを新たに開発して組み合わせることにより、発光効率を高める工夫が種々なされてきている（特許文献 1～4 参照）。

## 【 0 0 0 3 】

また、非特許文献 1 には、Ge、Si 等を含むメタロール環に 2 つのチオフェン環が縮合した環状構造（ジチエノメタロール環）を有する化合物の溶液および薄膜の発光特性と、この化合物を発光材料に用いた有機発光素子の EL 特性を検討した結果が記載されている。それによると、下記の構造を有する化合物のジクロロメタン溶液および薄膜に励起光を照射したところ可視領域に発光が認められたことが記載されている。また、これらの化合物を発光材料に用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は 3.4～6.1% の外部量子効率を得られたことが記載されている。

10

## 【 化 1 】



20

30

## 【 先行技術文献 】

## 【 特許文献 】

## 【 0 0 0 4 】

【 特許文献 1 】 特開 2 0 0 0 - 3 0 2 7 5 6 号 公 報

【 特許文献 2 】 特開 2 0 1 2 - 1 3 8 5 8 5 号 公 報

【 特許文献 3 】 特開 2 0 1 3 - 7 5 8 9 0 号 公 報

【 特許文献 4 】 W O 2 0 1 2 / 0 9 9 2 1 9 号 公 報

## 【 非特許文献 】

40

## 【 0 0 0 5 】

【 非特許文献 1 】 J. Mater. Chem., 2012, 22, 16810-16816

## 【 発明の概要 】

## 【 発明が解決しようとする課題 】

## 【 0 0 0 6 】

上記のように、非特許文献 1 には、Ge、Si 等のジチエノメタロール環にフェニル基が結合した構造を有する化合物が発光材料として用い得ることが記載されている。しかしながら、本発明者らが、ジチエノメタロール環にフェニル基が結合した構造を有する化合物について発光特性を実際に評価したところ、これらの化合物は遅延蛍光を放射せず、発光効率になお改善の余地があることが判明した。しかしながら、非特許文献 1 には改善の

50

方向性について特に記載がなされていないため、どのような構造を有する化合物を合成すれば、発光効率が優れたものとなるのかという点について示唆を得ることができない。なかでも、非特許文献 1 には、ヘテロ環に 2 つのベンゼン環が縮合した環状構造や、この環状構造にカルbazolリル基等の置換アミノ基が結合した化合物について何も記載されていないため、そのような構造を有する化合物の発光材料としての有用性はまったく予測がつかない。

【0007】

このような状況下において本発明者らは、Ge、Si 等を含むヘテロ環に 2 つのベンゼン環が縮合した環状構造を有する化合物の発光材料としての有用性についてさらに検討を進め、発光特性が優れた化合物を見出すことを目指して研究を重ねた。そして、発光材料として有用な化合物の一般式を導きだし、発光効率が高い有機発光素子の構成を一般化することを目的として鋭意検討を進めた。

【課題を解決するための手段】

【0008】

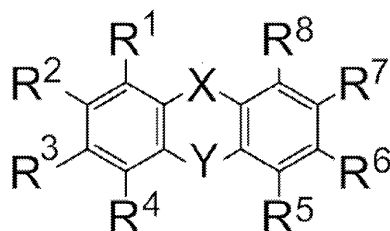
鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、Ge、Si 等を含むヘテロ環に 2 つのベンゼン環が縮合した環状構造を有する化合物のうち特定の構造を有するものが発光材料として優れた性質を有することを見出した。また、そのような化合物群の中に、遅延蛍光材料として有用なものがあることを見出し、発光効率が高い有機発光素子を安価に提供しうることを明らかにした。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

【0009】

[1] 下記一般式(1)で表される化合物からなる発光材料。

【化2】

一般式(1)



[一般式(1)において、XはSO<sub>2</sub>、P(=O)(Ar<sup>1</sup>)、Ge(Ar<sup>2</sup>)(Ar<sup>3</sup>)、Si(Ar<sup>4</sup>)(Ar<sup>5</sup>)またはSn(Ar<sup>6</sup>)(Ar<sup>7</sup>)を表し、Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>7</sup>は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。YはO、S、SO<sub>2</sub>、N(R<sup>71</sup>)、C(R<sup>72</sup>)(R<sup>73</sup>)を表す。R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>、R<sup>71</sup>~R<sup>73</sup>は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)~(7)で表される基である。R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>、R<sup>2</sup>とR<sup>3</sup>、R<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>とR<sup>6</sup>、R<sup>6</sup>とR<sup>7</sup>、R<sup>7</sup>とR<sup>8</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>73</sup>、R<sup>71</sup>とR<sup>4</sup>、R<sup>71</sup>とR<sup>5</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>4</sup>、R<sup>72</sup>とR<sup>5</sup>、R<sup>73</sup>とR<sup>5</sup>は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

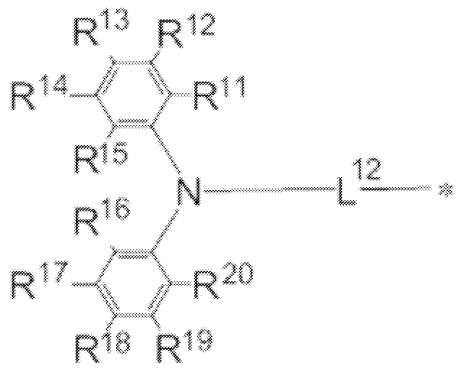
10

20

30

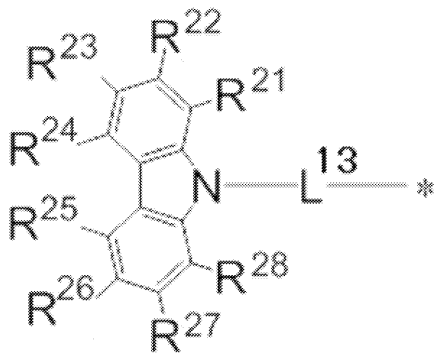
## 【化 3 - 1】

一般式 (2)



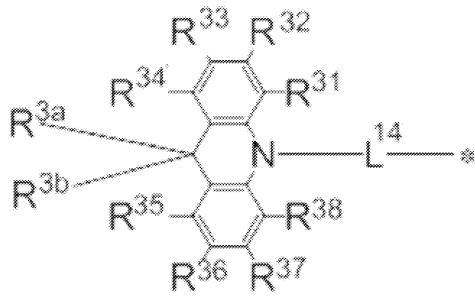
10

一般式 (3)



20

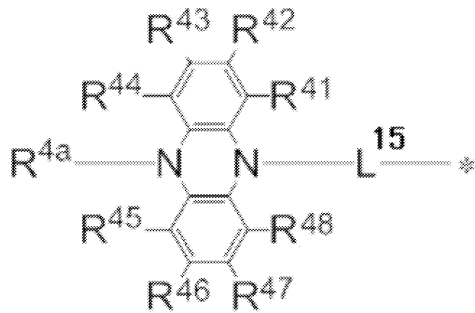
一般式 (4)



30

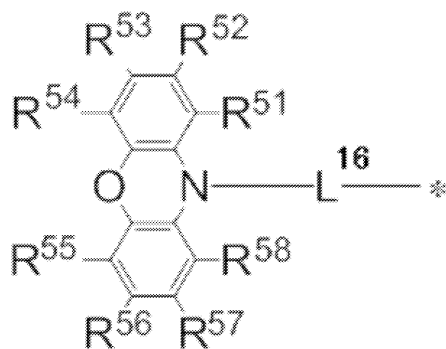
## 【化 3 - 2】

## 一般式 (5)



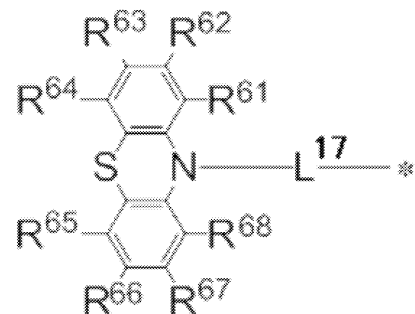
10

## 一般式 (6)



20

## 一般式 (7)



30

[ 一般式 ( 2 ) ~ ( 7 ) において、 $L^{12} \sim L^{17}$  は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、\* は一般式 ( 1 ) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$  は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11}$  と  $R^{12}$ 、 $R^{12}$  と  $R^{13}$ 、 $R^{13}$  と  $R^{14}$ 、 $R^{14}$  と  $R^{15}$ 、 $R^{16}$  と  $R^{17}$ 、 $R^{17}$  と  $R^{18}$ 、 $R^{18}$  と  $R^{19}$ 、 $R^{19}$  と  $R^{20}$ 、 $R^{21}$  と  $R^{22}$ 、 $R^{22}$  と  $R^{23}$ 、 $R^{23}$  と  $R^{24}$ 、 $R^{24}$  と  $R^{25}$ 、 $R^{25}$  と  $R^{26}$ 、 $R^{26}$  と  $R^{27}$ 、 $R^{27}$  と  $R^{28}$ 、 $R^{31}$  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  $R^{38}$ 、 $R^{3a}$  と  $R^{3b}$ 、 $R^{41}$  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  $R^{64}$ 、 $R^{65}$  と  $R^{66}$ 、 $R^{66}$  と  $R^{67}$ 、 $R^{67}$  と  $R^{68}$  はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

[ 2 ] 一般式 ( 1 ) の X が、 $SO_2$ 、 $P(=O)(Ar^1)$ 、 $Ge(Ar^2)(Ar^3)$  または  $Si(Ar^4)(Ar^5)$  であることを特徴とする [ 1 ] に記載の発光材料。

[ 3 ] 一般式 ( 1 ) の  $Ar^1 \sim Ar^5$  が、各々独立に置換もしくは無置換のフェニル基であることを特徴とする [ 1 ] または [ 2 ] に記載の発光材料。

50

[ 4 ] 一般式 ( 1 ) の Y が、Oであることを特徴とする [ 1 ] ~ [ 3 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[ 5 ] 一般式 ( 1 ) の R<sup>3</sup>および R<sup>6</sup>の少なくともいずれかが置換基であることを特徴とする [ 1 ] ~ [ 4 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[ 6 ] 一般式 ( 1 ) の R<sup>3</sup>および R<sup>6</sup>がともに置換基であることを特徴とする [ 5 ] に記載の発光材料。

[ 7 ] 前記置換基が、前記一般式 ( 4 ) で表される基であることを特徴とする [ 5 ] または [ 6 ] に記載の発光材料。

[ 8 ] 前記一般式 ( 4 ) の R<sup>3a</sup>と R<sup>3b</sup>が、置換基であることを特徴とする [ 7 ] に記載の発光材料。

[ 9 ] 前記置換基が、炭素数 1 ~ 15 のアルキル基であることを特徴とする [ 8 ] に記載の発光材料。

[ 10 ] 一般式 ( 2 ) ~ ( 7 ) の L<sup>12</sup> ~ L<sup>17</sup>が、単結合であることを特徴とする [ 1 ] ~ [ 9 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[ 11 ] 前記一般式 ( 1 ) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

[ 12 ] [ 1 ] ~ [ 10 ] のいずれか 1 項に記載の発光材料を含むことを特徴とする有機発光素子。

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

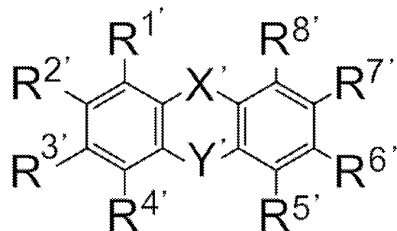
[ 14 ] 有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする [ 12 ] または [ 13 ] に記載の有機発光素子。

【 0 0 1 0 】

[ 15 ] 下記一般式 ( 1' ) で表される化合物。

【化 4】

一般式 ( 1' )



[一般式 ( 1' ) において、X' は SO<sub>2</sub>、P (=O) (Ar<sup>1'</sup>)、Ge (Ar<sup>2'</sup>) (Ar<sup>3'</sup>)、Si (Ar<sup>4'</sup>) (Ar<sup>5'</sup>) または Sn (Ar<sup>6'</sup>) (Ar<sup>7'</sup>) を表し、Ar<sup>1'</sup> ~ Ar<sup>7'</sup> は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。Y' は O、S、SO<sub>2</sub>、N (R<sup>71'</sup>)、C (R<sup>72'</sup>) (R<sup>73'</sup>) を表す。R<sup>1'</sup> ~ R<sup>8'</sup>、R<sup>71'</sup> ~ R<sup>73'</sup> は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R<sup>1'</sup> ~ R<sup>8'</sup> の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 ( 2' ) ~ ( 7' ) で表される基である。R<sup>1'</sup> と R<sup>2'</sup>、R<sup>2'</sup> と R<sup>3'</sup>、R<sup>3'</sup> と R<sup>4'</sup>、R<sup>5'</sup> と R<sup>6'</sup>、R<sup>6'</sup> と R<sup>7'</sup>、R<sup>7'</sup> と R<sup>8'</sup>、R<sup>72'</sup> と R<sup>73'</sup>、R<sup>71'</sup> と R<sup>4'</sup>、R<sup>71'</sup> と R<sup>5'</sup>、R<sup>72'</sup> と R<sup>4'</sup>、R<sup>72'</sup> と R<sup>5'</sup>、R<sup>73'</sup> と R<sup>5'</sup> は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

10

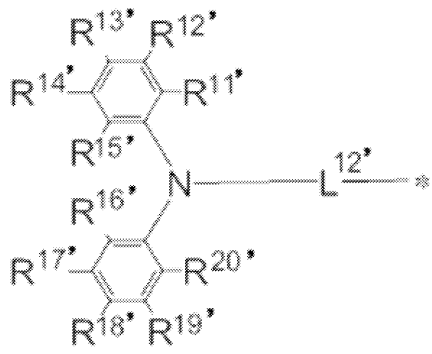
20

30

40

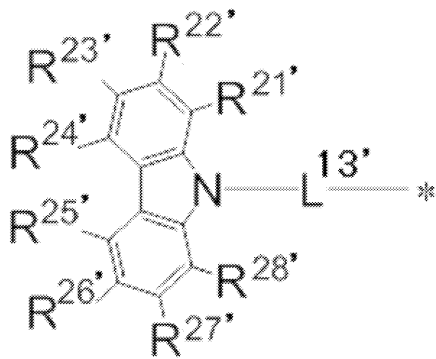
【化 5 - 1】

一般式 (2')



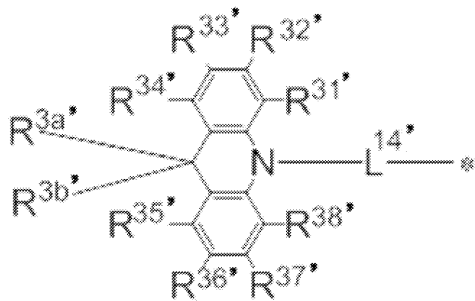
10

一般式 (3')



20

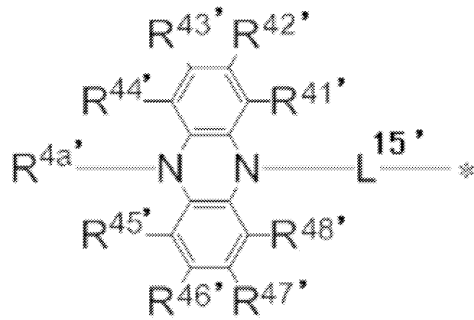
一般式 (4')



30

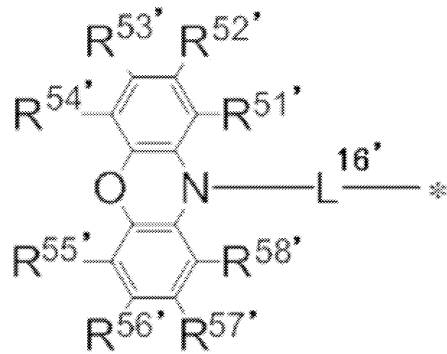
## 【化 5 - 2】

## 一般式 (5')



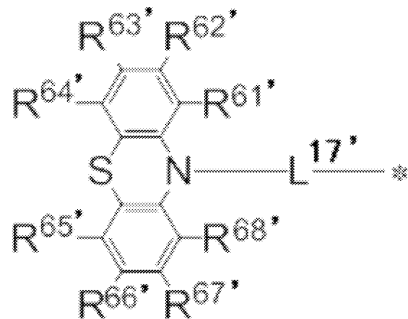
10

## 一般式 (6')



20

## 一般式 (7')



30

[ 一般式 (2') ~ (7') において、 $L^{12'}$  ~  $L^{17'}$  は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、\* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11'}$  ~  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  ~  $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$  ~  $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$  ~  $R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$  ~  $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$  ~  $R^{68'}$  は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$  と  $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$  と  $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$  と  $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$  と  $R^{15'}$ 、 $R^{16'}$  と  $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$  と  $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$  と  $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$  と  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  と  $R^{22'}$ 、 $R^{22'}$  と  $R^{23'}$ 、 $R^{23'}$  と  $R^{24'}$ 、 $R^{24'}$  と  $R^{25'}$ 、 $R^{25'}$  と  $R^{26'}$ 、 $R^{26'}$  と  $R^{27'}$ 、 $R^{27'}$  と  $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$  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  $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$  と  $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$  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  $R^{64'}$ 、 $R^{65'}$  と  $R^{66'}$ 、 $R^{66'}$  と  $R^{67'}$ 、 $R^{67'}$  と  $R^{68'}$  はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

## 【発明の効果】

【0011】

50

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】

【0012】

【図1】有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。

【図2】実施例1の化合物1の溶液の発光スペクトルである。

【図3】実施例1の化合物1の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図4】実施例1の化合物1の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を示すグラフである。

【図5】実施例1の化合物1の溶液の過渡減衰曲線である。

【図6】実施例1の化合物1の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図7】実施例2の化合物2の溶液の発光スペクトルである。

【図8】実施例2の化合物2の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図9】実施例2の化合物2の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を示すグラフである。

【図10】実施例2の化合物2の溶液の過渡減衰曲線である。

【図11】実施例2の化合物2の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。

【図12】実施例3の化合物4の溶液の発光スペクトルである。

【図13】実施例3の化合物4の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図14】実施例3の化合物4の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を示すグラフである。

【図15】実施例3の化合物4の溶液の過渡減衰曲線である。

【図16】実施例4の化合物5の溶液の発光スペクトルである。

【図17】実施例4の化合物5の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図18】実施例4の化合物5の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を示すグラフである。

【図19】実施例4の化合物5の溶液の過渡減衰曲線である。

【図20】比較例1の比較化合物の溶液の発光スペクトルである。

【図21】比較例1の比較化合物の溶液の過渡減衰曲線である。

【発明を実施するための形態】

【0013】

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

【0014】

[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。

10

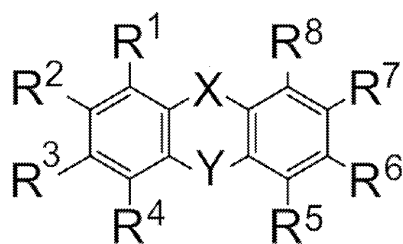
20

30

40

## 【化6】

一般式(1)



## 【0015】

10

一般式(1)において、XはSO<sub>2</sub>、P(=O)(Ar<sup>1</sup>)、Ge(Ar<sup>2</sup>)(Ar<sup>3</sup>)、Si(Ar<sup>4</sup>)(Ar<sup>5</sup>)またはSn(Ar<sup>6</sup>)(Ar<sup>7</sup>)を表し、SO<sub>2</sub>、P(=O)(Ar<sup>1</sup>)、Ge(Ar<sup>2</sup>)(Ar<sup>3</sup>)、Si(Ar<sup>4</sup>)(Ar<sup>5</sup>)であることが好ましい。Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>7</sup>は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。Ar<sup>2</sup>とAr<sup>3</sup>、Ar<sup>4</sup>とAr<sup>5</sup>、Ar<sup>6</sup>とAr<sup>7</sup>は互いに同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。アリール基としては、フェニル基、ピフェニル基、ナフチル基などを挙げることができる。好ましいアリール基は、フェニル基である。アリール基には置換基が導入されていてもよい。アリール基に導入する置換基の説明と好ましい範囲については、下記のR<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>等がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

YはO、S、SO<sub>2</sub>、N(R<sup>71</sup>)、C(R<sup>72</sup>)(R<sup>73</sup>)を表し、Oであることが好ましい。

20

一般式(1)において、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>、R<sup>71</sup>~R<sup>73</sup>は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である。

## 【0016】

下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基は、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>のうちの一つのみであってもよいし、2つ以上であってもよい。

下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基がR<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>のうちの一つのみであるときは、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>6</sup>およびR<sup>7</sup>のいずれか1つが下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることが好ましく、R<sup>3</sup>またはR<sup>6</sup>が下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることがより好ましい。

30

一方、R<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>のうち2つ以上が下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であるときは、下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基は、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>の少なくとも1つと、R<sup>5</sup>~R<sup>8</sup>の少なくとも1つであることが好ましい。このとき、下記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基は、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>のうち1~3つ、R<sup>5</sup>~R<sup>8</sup>のうち1~3つであることが好ましく、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>のうち1または2つ、R<sup>5</sup>~R<sup>8</sup>のうち1または2つであることがより好ましい。R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>のうち一般式(2)~(7)のいずれかで表される基の数と、R<sup>5</sup>~R<sup>8</sup>のうち一般式(2)~(7)のいずれかで表される基の数は同じであっても異なってもよいが、同じであることが好ましい。R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>のうちでは、R<sup>2</sup>またはR<sup>3</sup>の少なくとも1つが一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることが好ましく、少なくともR<sup>3</sup>が一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることがより好ましい。また、R<sup>5</sup>~R<sup>8</sup>のうちでは、R<sup>6</sup>またはR<sup>7</sup>の少なくとも1つが一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることが好ましく、少なくともR<sup>6</sup>が一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることがより好ましい。好ましい化合物は、一般式(1)のR<sup>3</sup>とR<sup>6</sup>が一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物、一般式(1)のR<sup>2</sup>とR<sup>7</sup>が一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物、一般式(1)のR<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>6</sup>、R<sup>7</sup>が一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物であり、さらに好ましい化合物はR<sup>3</sup>とR<sup>6</sup>が一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物である。一般式(1)中に存在する複数の一般式(2)~(7)のいずれかで表される基は、同一であっても異なってもよいが、同一であることが

40

50

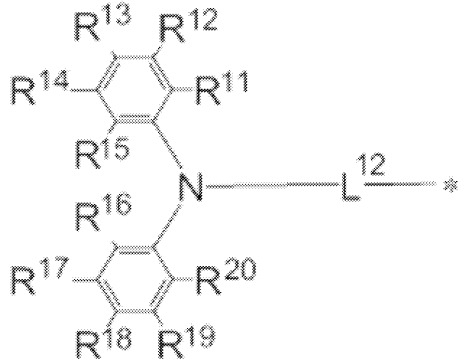
好ましい。

また、一般式(1)で表される化合物は対称構造をとっていることも好ましい。すなわち、 $R^1$ と $R^8$ 、 $R^2$ と $R^7$ 、 $R^3$ と $R^6$ 、 $R^4$ と $R^5$ 、 $R^{72}$ と $R^{73}$ 、 $Ar^2$ と $Ar^3$ 、 $Ar^4$ と $Ar^5$ 、 $Ar^6$ と $Ar^7$ は、それぞれ同一であることが好ましい。

【0017】

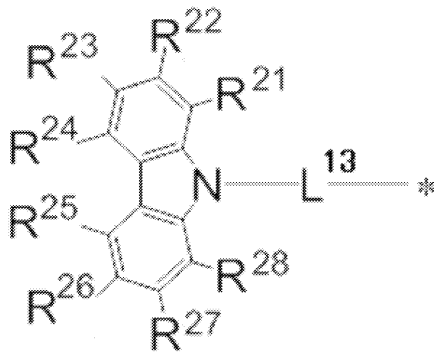
【化7-1】

一般式(2)



10

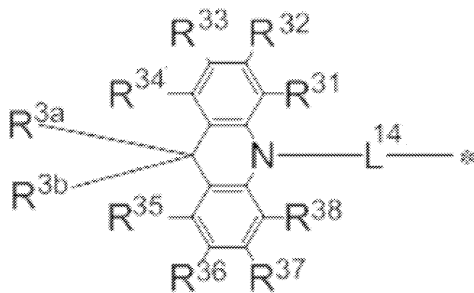
一般式(3)



20

30

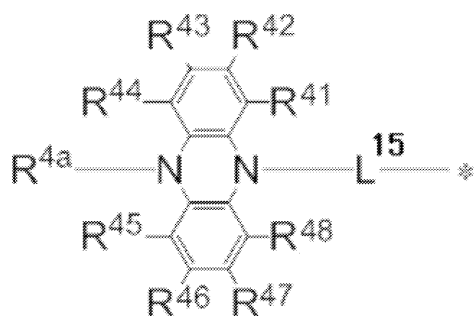
一般式(4)



40

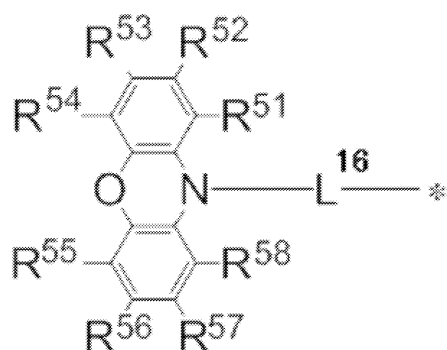
## 【化 7 - 2】

## 一般式 (5)



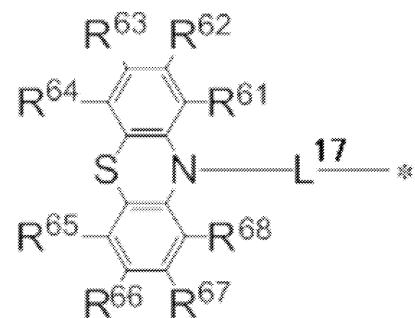
10

## 一般式 (6)



20

## 一般式 (7)



30

## 【0018】

一般式 (2) ~ (7) において、\* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。

L<sup>12</sup> ~ L<sup>17</sup> は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、単結合であることが好ましい。L<sup>12</sup> ~ L<sup>17</sup> がアリーレン基である場合、アリーレン基としては、炭素数 6 ~ 18 の芳香族炭化水素環基であることが好ましい。好ましいアリーレン基は、フェニレン基、ピフェニレン基、フルオレニレン基、トリフェニレニレン基であり、より好ましい連結基はフェニレン基であり、さらに好ましい連結基は 1, 4 - フェニレン基である。これらの連結基は置換基が導入されていてもよい。連結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、下記の R<sup>1</sup> ~ R<sup>8</sup> 等がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

40

## 【0019】

一般式 (2) ~ (7) において、R<sup>11</sup> ~ R<sup>20</sup>、R<sup>21</sup> ~ R<sup>28</sup>、R<sup>31</sup> ~ R<sup>38</sup>、R<sup>3a</sup>、R<sup>3b</sup>、R<sup>41</sup> ~ R<sup>48</sup>、R<sup>4a</sup>、R<sup>51</sup> ~ R<sup>58</sup>、R<sup>61</sup> ~ R<sup>68</sup> は、各々独立に水素原子または置換基を表す

50

。置換基の数は特に制限されず、 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ のすべてが無置換（すなわち水素原子）であってもよい。また、例えば $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ および $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ のそれぞれの組の少なくとも1つが置換基である場合は、 $R^{13}$ および $R^{18}$ 、 $R^{23}$ および $R^{26}$ 、 $R^{33}$ および $R^{36}$ 、 $R^{3a}$ および $R^{3b}$ 、 $R^{43}$ および $R^{46}$ 、 $R^{53}$ および $R^{56}$ 、 $R^{63}$ および $R^{66}$ のそれぞれの組の少なくとも1つが置換基であることが好ましい。一般式(2)～(7)のそれぞれにおいて置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。

【0020】

$R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ がとりうる置換基と、 $R^1 \sim R^8$ 、 $R^{71} \sim R^{73}$ がとりうる置換基と、 $Ar^1 \sim Ar^7$ に導入しうる置換基と、 $L^{12} \sim L^{17}$ に導入しうる置換基として、例えばヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数1～20のアルキルチオ基、炭素数1～20のアルキル置換アミノ基、炭素数2～20のアシル基、炭素数6～40のアリール基、炭素数3～40のヘテロアリール基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数2～10のアルコキシカルボニル基、炭素数1～10のアルキルスルホニル基、炭素数1～10のハロアルキル基、アミド基、炭素数2～10のアルキルアミド基、炭素数3～20のトリアルキルシリル基、炭素数4～20のトリアルキルシリルアルキル基、炭素数5～20のトリアルキルシリルアルケニル基、炭素数5～20のトリアルキルシリルアルキニル基およびニトロ基等が挙げられる。これらの具体例のうち、さらに置換基により置換可能なものは置換されていてもよい。より好ましい置換基は、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1～20の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数6～40の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数3～40の置換もしくは無置換のヘテロアリール基、炭素数1～20のジアルキル置換アミノ基である。さらに好ましい置換基は、フッ素原子、塩素原子、シアノ基、炭素数1～10の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1～10の置換もしくは無置換のアルコキシ基、炭素数6～15の置換もしくは無置換のアリール基、炭素数3～12の置換もしくは無置換のヘテロアリール基である。

【0021】

$R^1$ と $R^2$ 、 $R^2$ と $R^3$ 、 $R^3$ と $R^4$ 、 $R^5$ と $R^6$ 、 $R^6$ と $R^7$ 、 $R^7$ と $R^8$ 、 $R^{72}$ と $R^{73}$ 、 $R^{71}$ と $R^4$ 、 $R^{71}$ と $R^5$ 、 $R^{72}$ と $R^4$ 、 $R^{72}$ と $R^5$ 、 $R^{73}$ と $R^5$ 、 $R^{11}$ と $R^{12}$ 、 $R^{12}$ と $R^{13}$ 、 $R^{13}$ と $R^{14}$ 、 $R^{14}$ と $R^{15}$ 、 $R^{16}$ と $R^{17}$ 、 $R^{17}$ と $R^{18}$ 、 $R^{18}$ と $R^{19}$ 、 $R^{19}$ と $R^{20}$ 、 $R^{21}$ と $R^{22}$ 、 $R^{22}$ と $R^{23}$ 、 $R^{23}$ と $R^{24}$ 、 $R^{24}$ と $R^{25}$ 、 $R^{25}$ と $R^{26}$ 、 $R^{26}$ と $R^{27}$ 、 $R^{27}$ と $R^{28}$ 、 $R^{31}$ 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 $R^{38}$ 、 $R^{3a}$ と $R^{3b}$ 、 $R^{41}$ 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 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ と $R^{66}$ 、 $R^{66}$ と $R^{67}$ 、 $R^{67}$ と $R^{68}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は2環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、イミダゾリン環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、シクロヘキサジエン環、シクロヘキセン環、シクロペンタエン環、シクロヘプタトリエン環、シクロヘプタジエン環、シクロヘプタエン環などを挙げることができる。

$R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ は、各々独立に上記一般式(2)～(7)のいずれかで表される基であることも好ましい。

【0022】

10

20

30

40

50

また、 $R^1 \sim R^8$ は、少なくとも1つが一般式(4)で表される基であることが好ましく、 $R^3$ および $R^6$ の少なくともいずれかが一般式(4)で表される基であることがより好ましく、 $R^3$ または $R^6$ が一般式(4)で表される基であることがさらに好ましい。 $R^1 \sim R^8$ の少なくとも1つが一般式(4)で表される基であるとき、一般式(4)の $R^{3a}$ および $R^{3b}$ の少なくともいずれかは置換基であることが好ましく、 $R^{3a}$ と $R^{3b}$ が置換基であることがより好ましい。置換基としては、炭素数1~15のアルキル基であることが好ましい。

【0023】

以上のような一般式(1)で表される化合物では、一般式(2)~(7)のいずれかで表される基はアクセプター部位(A)にエネルギーを供与するドナー部位(D)として機能し、ヘテロ環に2つのベンゼン環が縮合した三環構造はドナーからのエネルギーを受容するアクセプター部位(A)として機能する。一般式(1)には、上記のようにドナー部位Dとアクセプター部位Aが1つずつ結合したD-A型構造を有する化合物や、2つのドナー部位Dが1つのアクセプター部位Aに結合したD-A-D型構造や $(D)_2$ -A型構造やD-D-A型構造が含まれる。ここで、D-A型構造を有する化合物は、具体的には上記の一般式(1)の $R^1 \sim R^8$ のいずれか1つが一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物である。D-A-D型構造の化合物は、一般式(1)の $R^1 \sim R^4$ のいずれか1つと、 $R^5 \sim R^8$ のいずれか1つが一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物であり、 $(D)_2$ -A型構造を有する化合物は、 $R^1 \sim R^4$ のいずれか2つ、または $R^5 \sim R^8$ のいずれか2つが一般式(2)~(7)のいずれかで表される基である化合物である。D-D-A型構造を有する化合物は、 $R^1 \sim R^8$ のいずれか1つが一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であり、さらにこの $R^1 \sim R^8$ となる一般式(2)~(7)のいずれかで表される基の $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 $R^{3a}$ 、 $R^{3b}$ 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 $R^{4a}$ 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ のいずれか1つが、一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であるような化合物である。さらに、一般式(1)で表される化合物は、 $(D)_2$ -A型構造、D-D-A型構造のアクセプター部位Aの、ドナー部位Dが結合していない側のベンゼン環にドナー部位Dが結合した構造( $(D)_2$ -A-D型構造、D-D-A-D型構造等)であってもよいし、末端側のドナー部位Dにさらにドナー部位Dが結合した構造( $(D-D)_2$ -A型構造、D-D-D-A型構造等)であってもよい。

また、一般式(1)で表される化合物は、-(D-A)<sub>n</sub>-型構造、-(D-D-A)<sub>n</sub>-型構造、-(D-D-D-A)<sub>n</sub>-型構造のように繰り返し単位を有する鎖状オリゴマーまたは鎖状ポリマーも含まれる。ここで、隣り合う繰り返し単位同士は、一般式(1)の $R^1 \sim R^8$ の位置に、一般式(2)~(7)で表される基の結合可能な箇所が結合することによって連結される。この結合は、単結合であってもよいし、二価の連結基を介した結合であってもよい。

これらの一般式(1)で表される化合物において、複数のDは互いに同一であっても異なってもよい。また、これらの鎖状オリゴマーまたは鎖状ポリマーにおいて複数のDおよび複数のAは互いに同一であっても異なってもよい。

【0024】

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。

【0025】

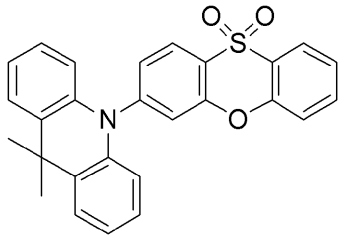
10

20

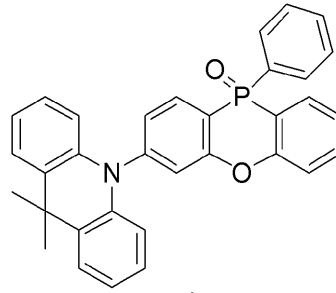
30

40

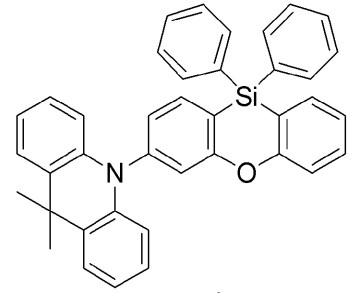
【化 8】



化合物 1

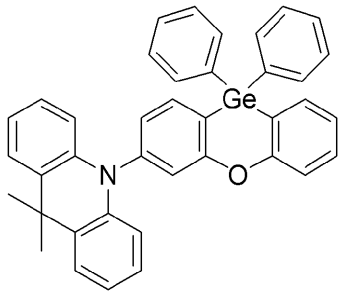


化合物 2

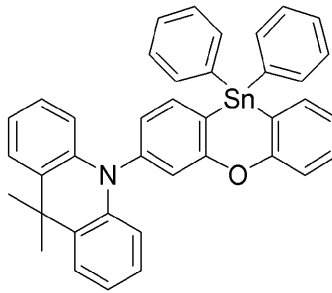


化合物 3

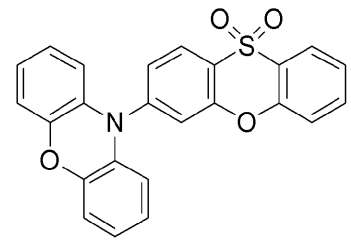
10



化合物 4

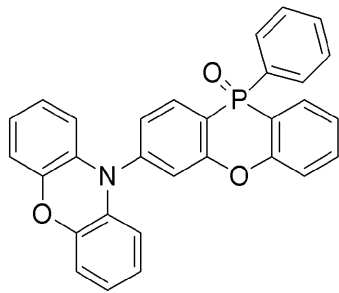


化合物 5

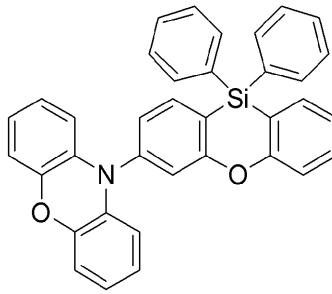


化合物 6

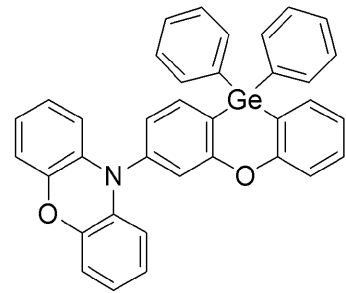
20



化合物 7

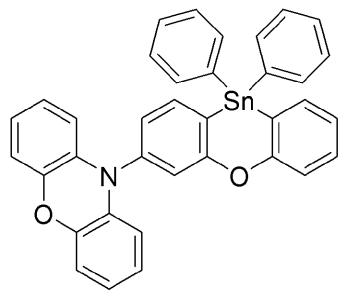


化合物 8

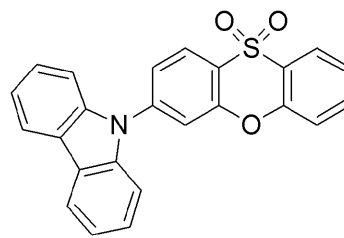


化合物 9

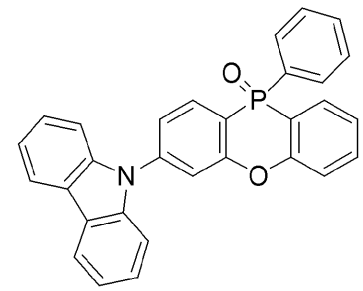
30



化合物 10



化合物 11

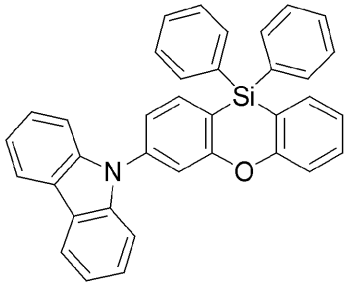


化合物 12

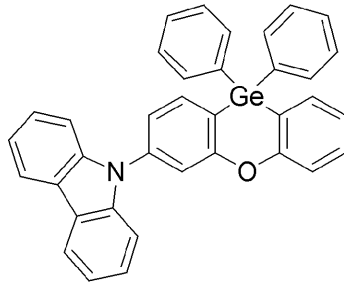
40

【 0 0 2 6 】

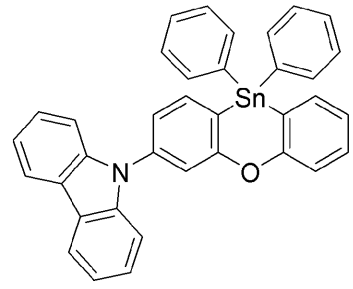
【化9】



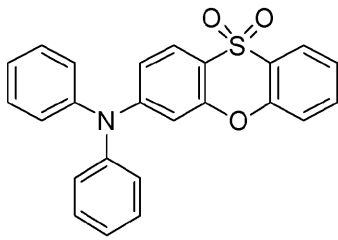
化合物 13



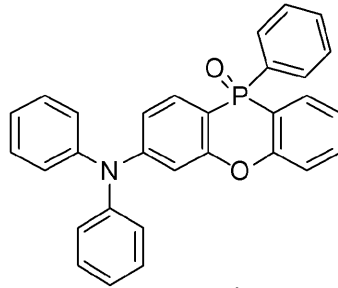
化合物 14



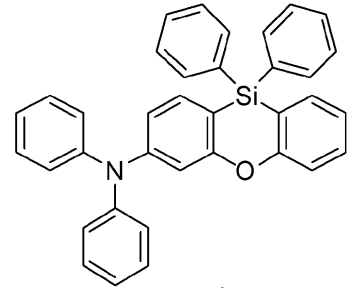
化合物 15



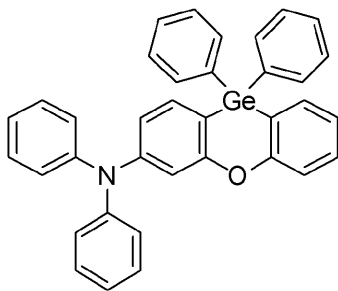
化合物 16



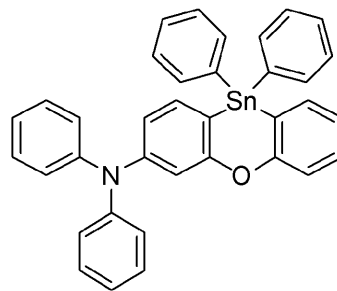
化合物 17



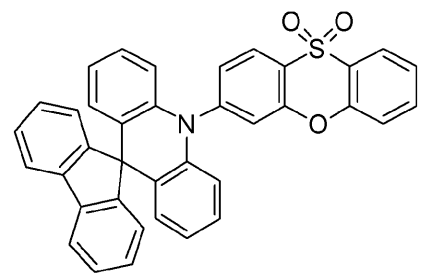
化合物 18



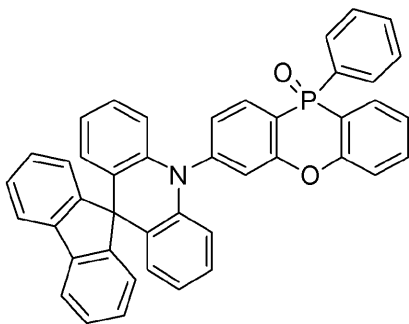
化合物 19



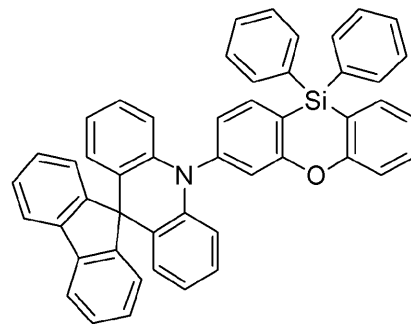
化合物 20



化合物 21



化合物 22



化合物 23

【0027】

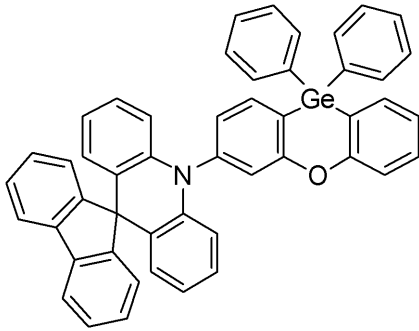
10

20

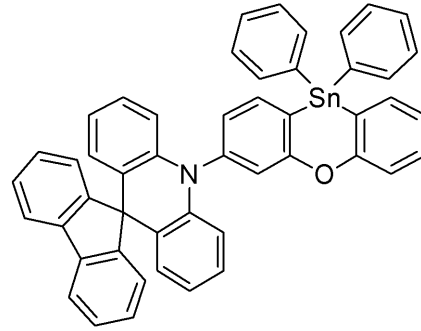
30

40

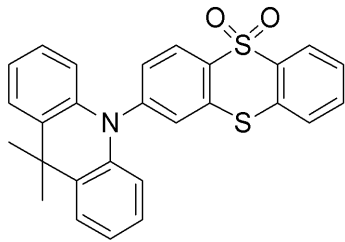
【化 1 0】



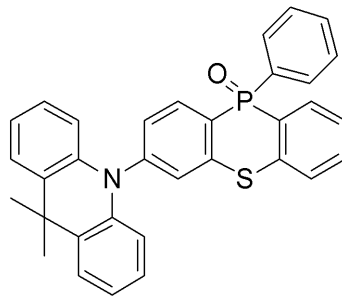
化合物 2 4



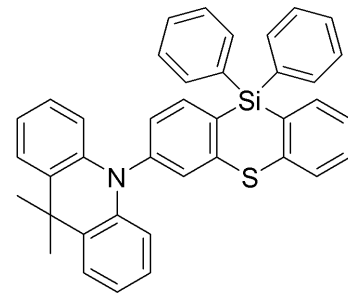
化合物 2 5



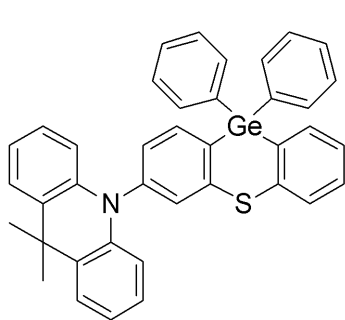
化合物 2 6



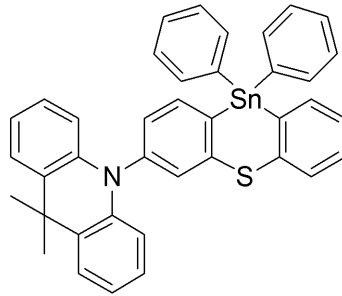
化合物 2 7



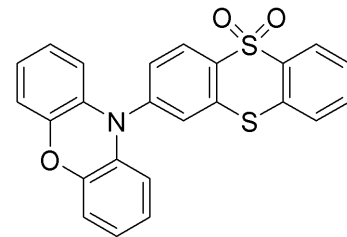
化合物 2 8



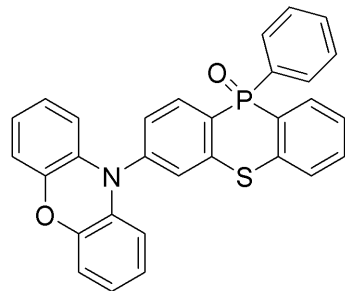
化合物 2 9



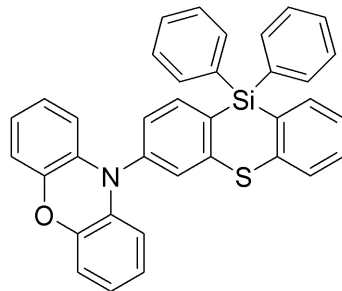
化合物 3 0



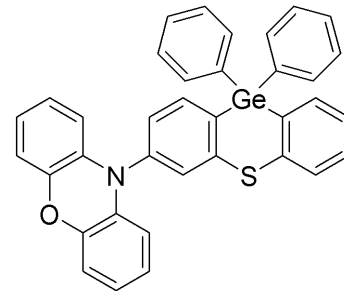
化合物 3 1



化合物 3 2



化合物 3 3



化合物 3 4

【 0 0 2 8 】

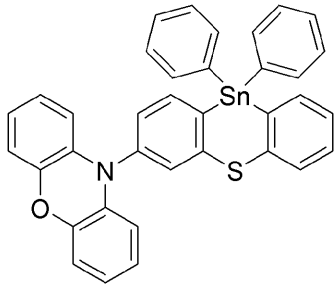
10

20

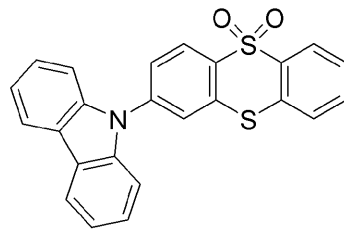
30

40

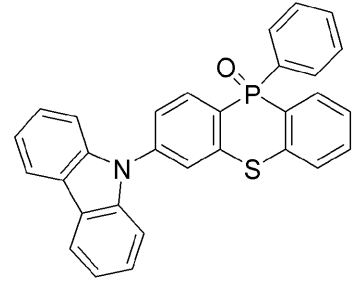
## 【化 1 1】



化合物 3 5

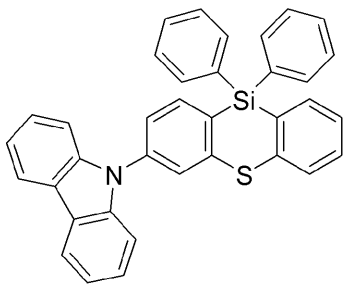


化合物 3 6

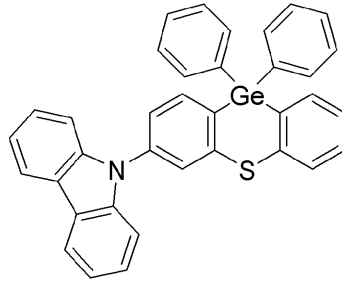


化合物 3 7

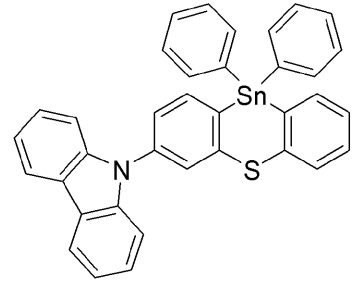
10



化合物 3 8

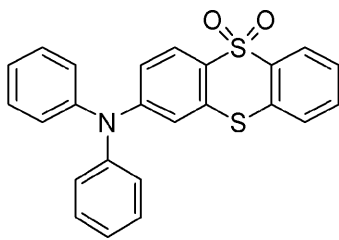


化合物 3 9

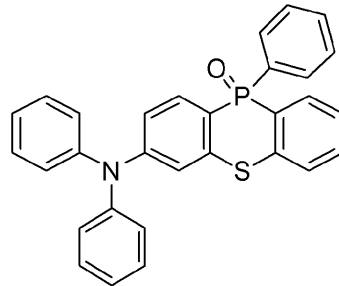


化合物 4 0

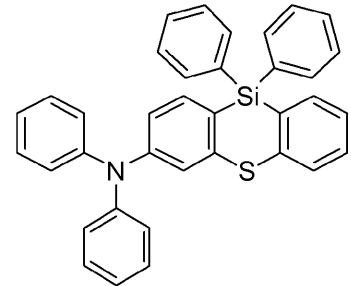
20



化合物 4 1

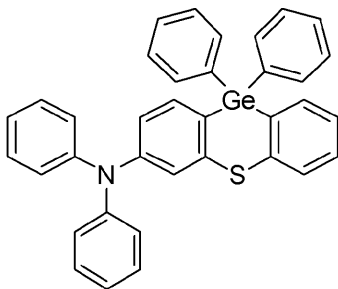


化合物 4 2

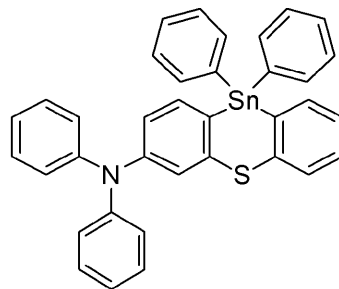


化合物 4 3

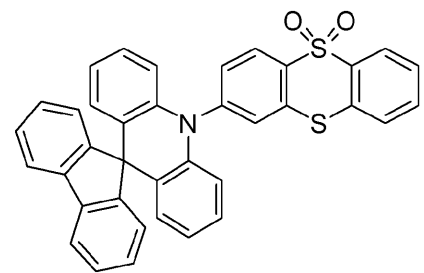
30



化合物 4 4



化合物 4 5

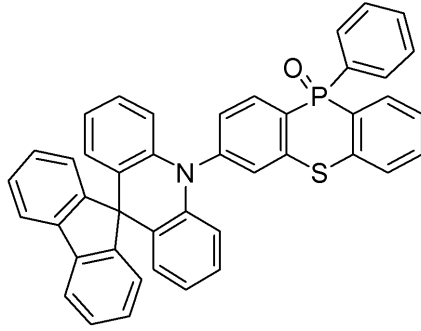


化合物 4 6

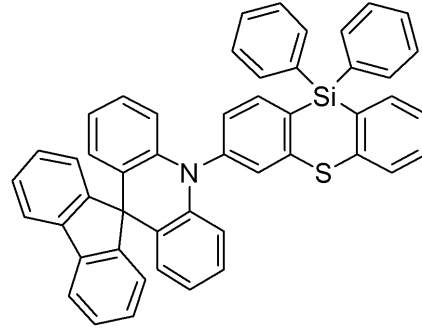
40

## 【 0 0 2 9 】

【化 1 2】

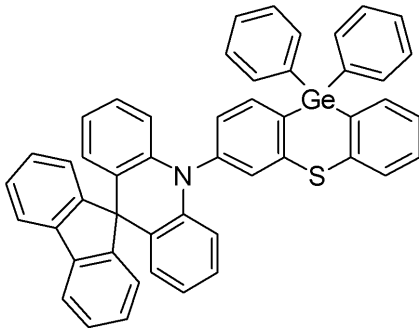


化合物 4 7

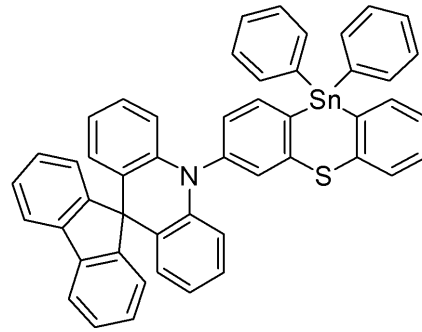


化合物 4 8

10

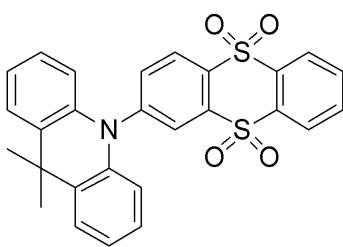


化合物 4 9

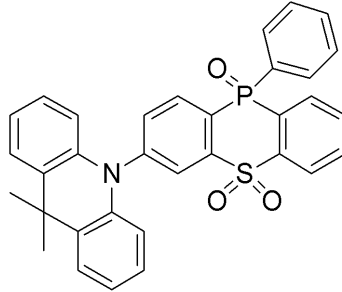


化合物 5 0

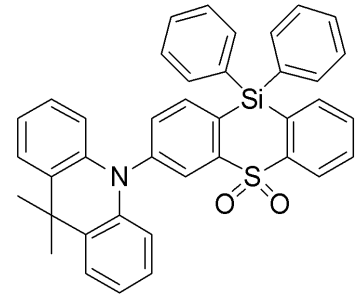
20



化合物 5 1

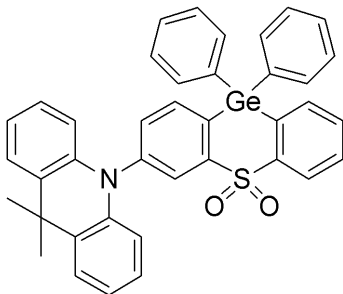


化合物 5 2

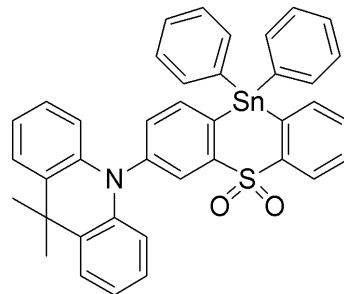


化合物 5 3

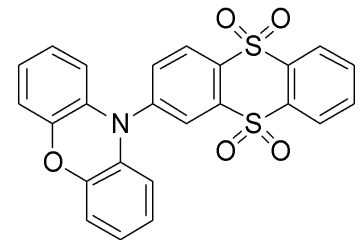
30



化合物 5 4



化合物 5 5

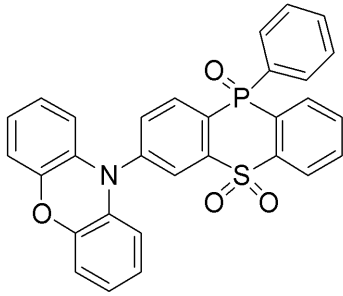


化合物 5 6

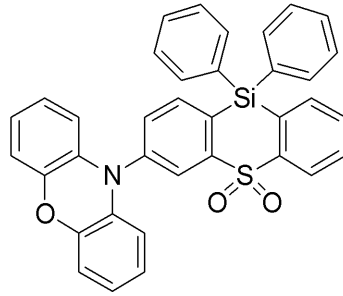
40

【 0 0 3 0 】

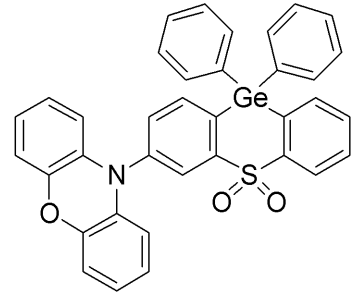
## 【化 1 3】



化合物 5 7

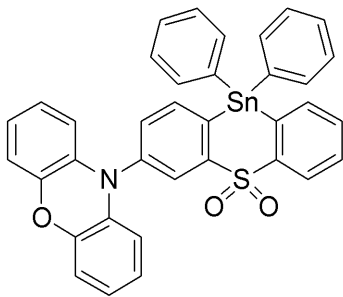


化合物 5 8

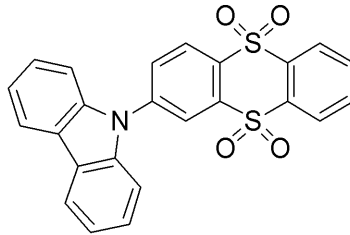


化合物 5 9

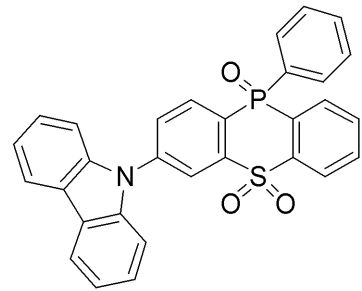
10



化合物 6 0

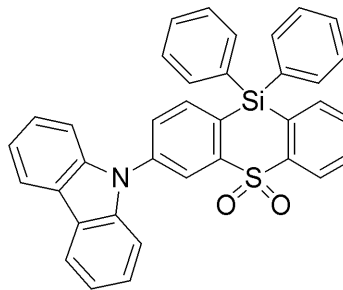


化合物 6 1

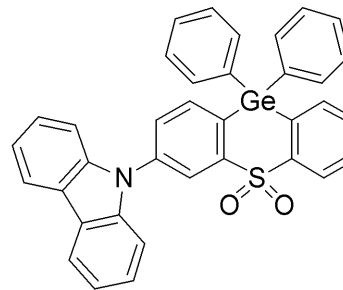


化合物 6 2

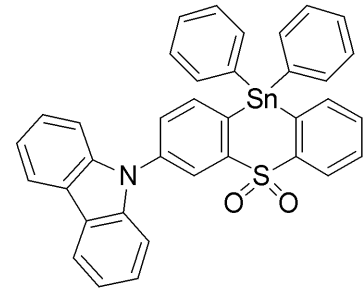
20



化合物 6 3

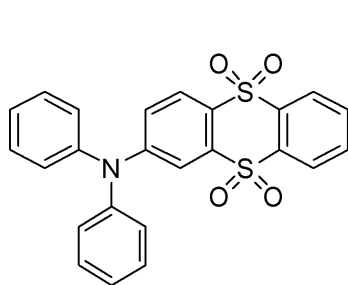


化合物 6 4

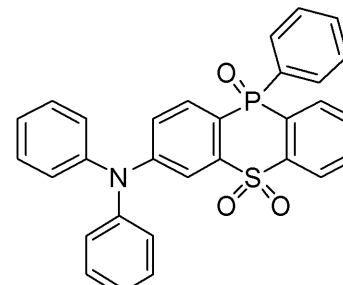


化合物 6 5

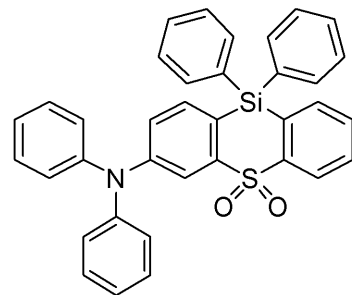
30



化合物 6 6



化合物 6 7

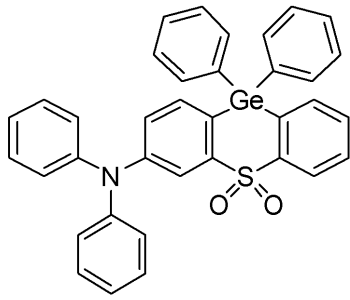


化合物 6 8

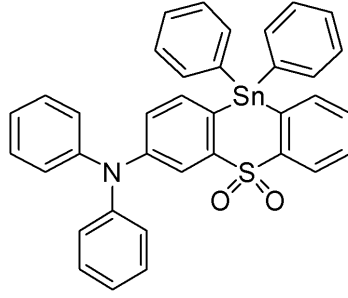
40

## 【 0 0 3 1】

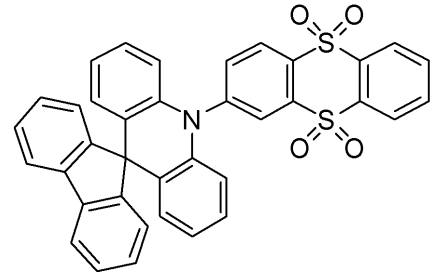
【化 1 4】



化合物 6 9

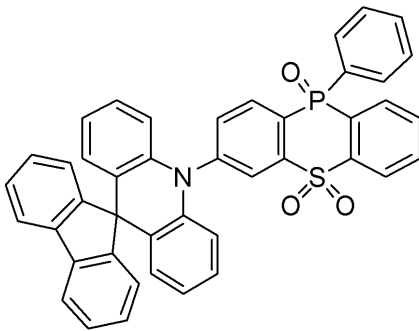


化合物 7 0

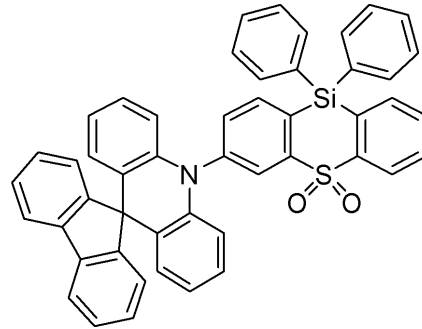


化合物 7 1

10

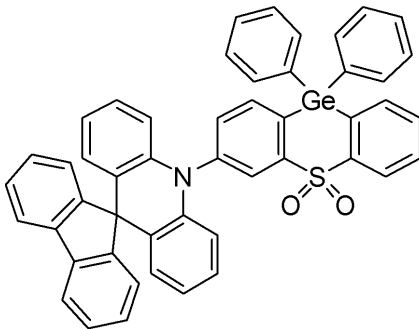


化合物 7 2

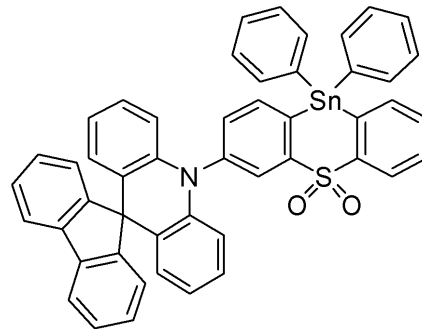


化合物 7 3

20

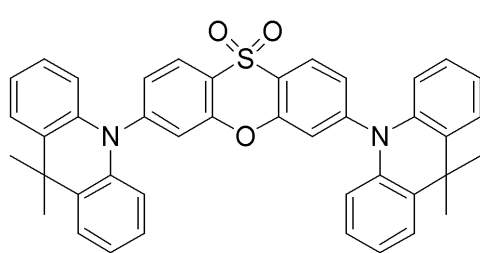


化合物 7 4

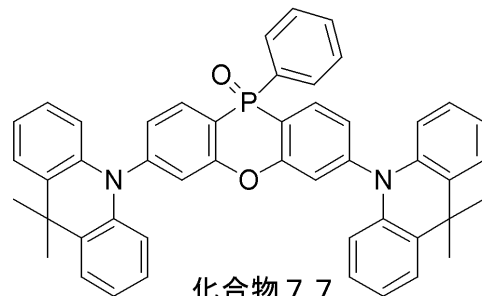


化合物 7 5

30



化合物 7 6

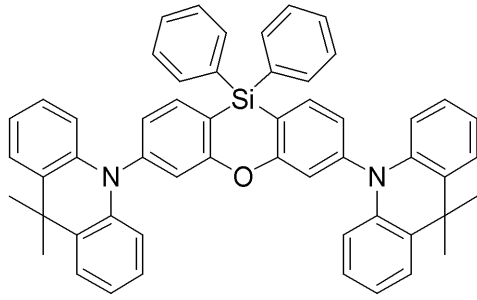


化合物 7 7

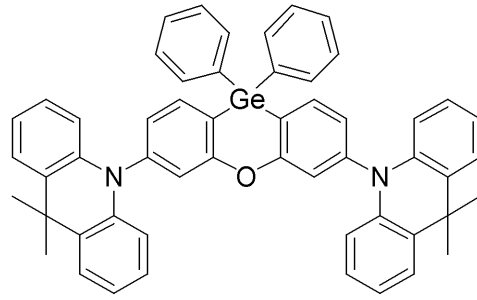
40

【 0 0 3 2 】

【化 1 5】

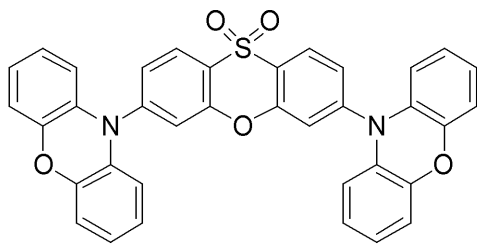


化合物 7 8

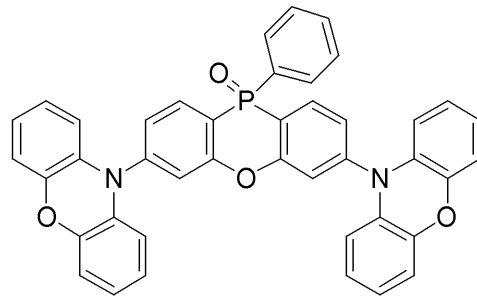


化合物 7 9

10

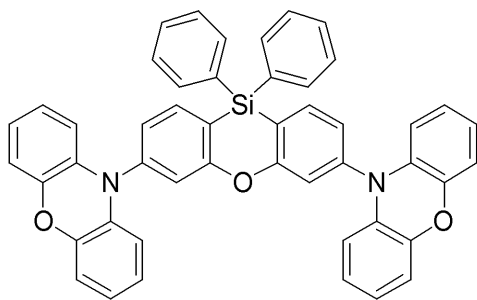


化合物 8 0

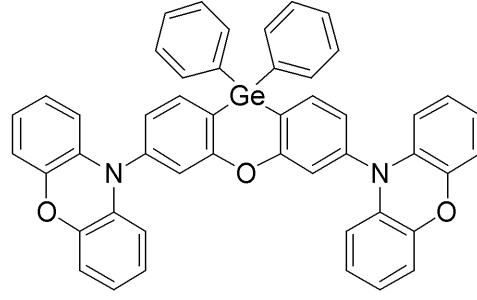


化合物 8 1

20

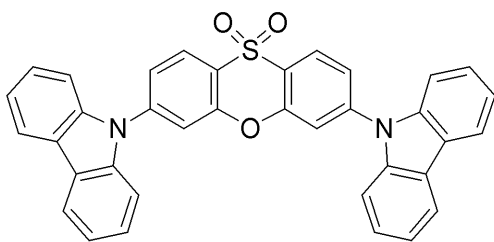


化合物 8 2

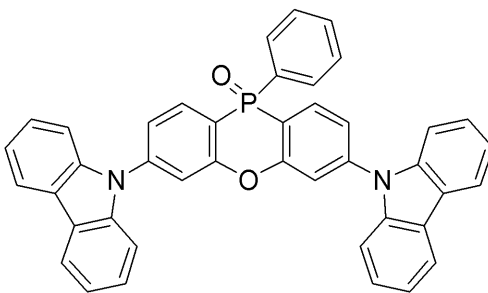


化合物 8 3

30



化合物 8 4

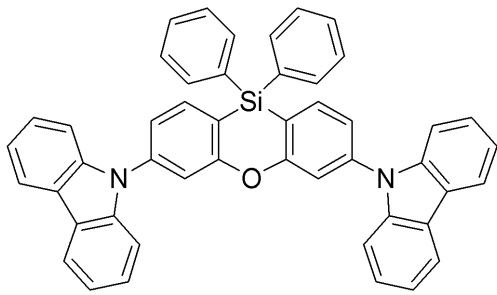


化合物 8 5

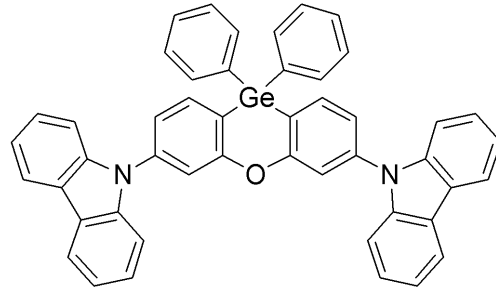
40

【 0 0 3 3 】

【化 1 6】

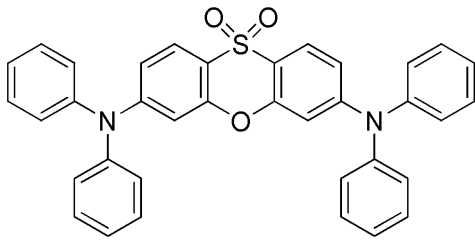


化合物 8 6

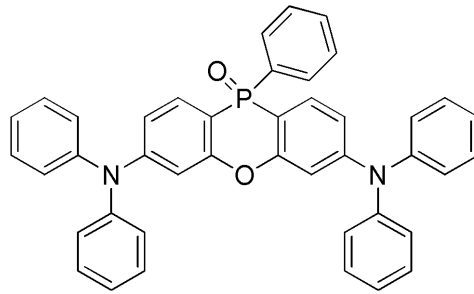


化合物 8 7

10

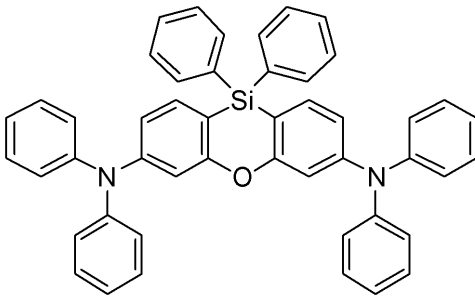


化合物 8 8

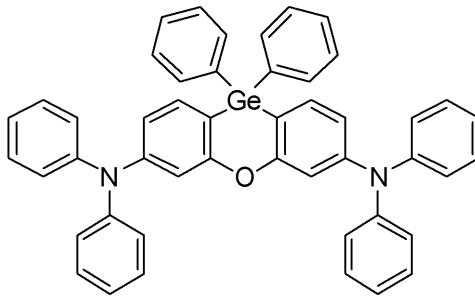


化合物 8 9

20

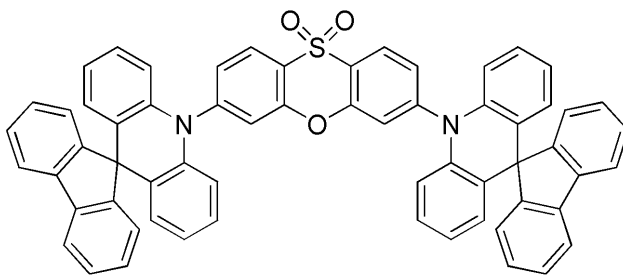


化合物 9 0



化合物 9 1

30

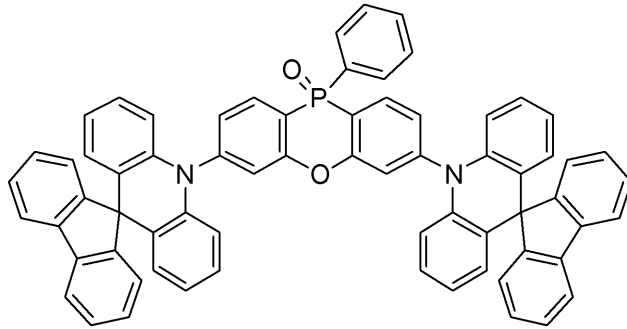


化合物 9 2

40

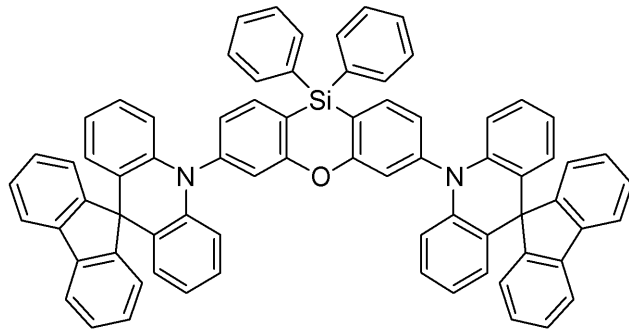
【 0 0 3 4 】

【化 1 7】



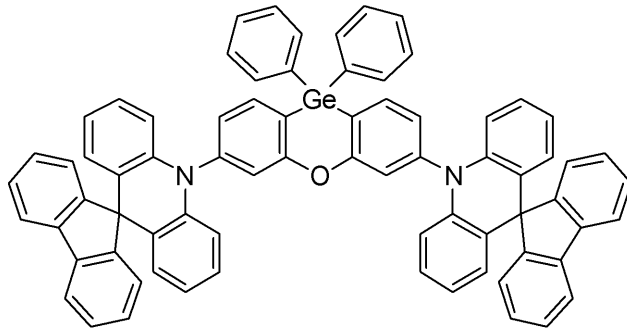
化合物 9 3

10



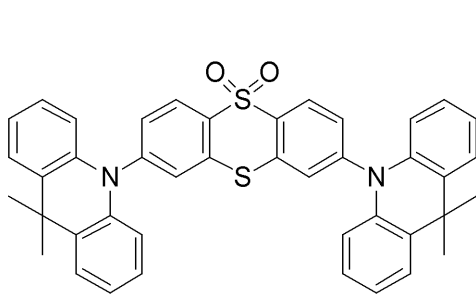
化合物 9 4

20

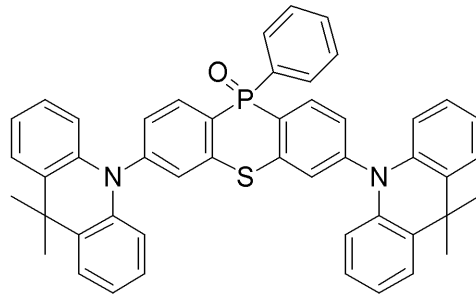


化合物 9 5

30



化合物 9 6



化合物 9 7

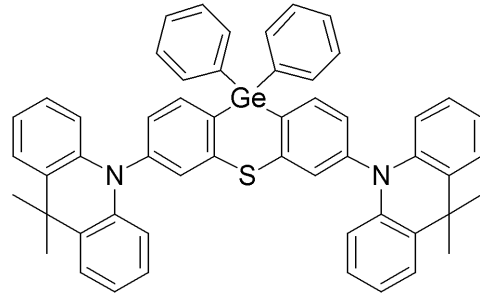
40

【 0 0 3 5 】

【化 1 8】

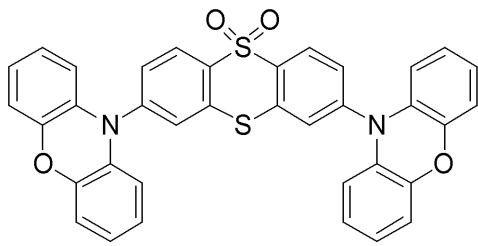


化合物 9 8

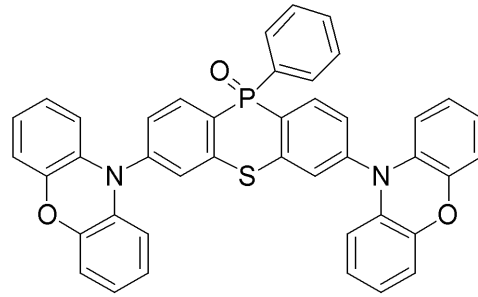


化合物 9 9

10

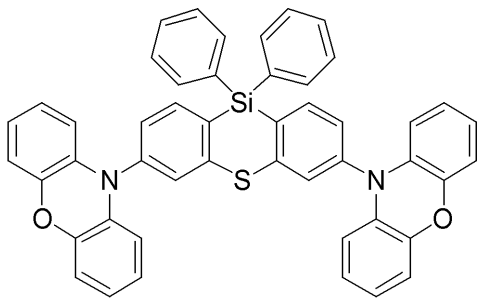


化合物 1 0 0

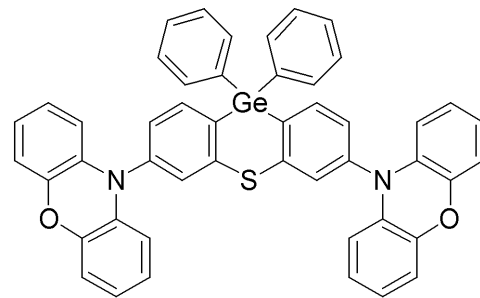


化合物 1 0 1

20

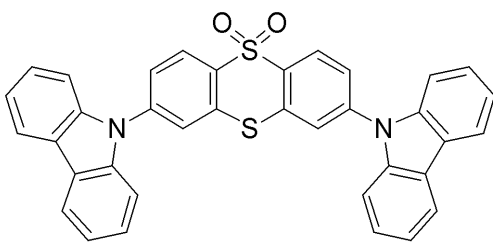


化合物 1 0 2

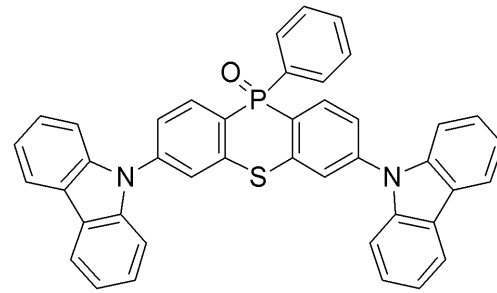


化合物 1 0 3

30



化合物 1 0 4

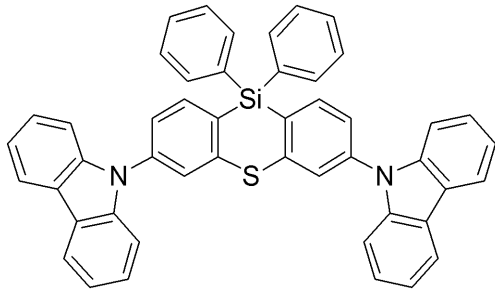


化合物 1 0 5

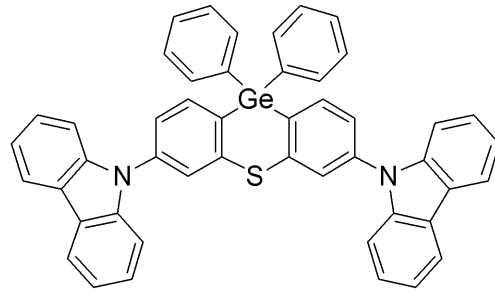
40

【 0 0 3 6 】

【化 1 9】

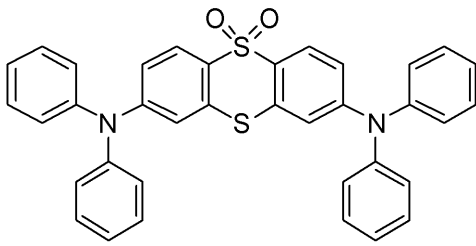


化合物 1 0 6

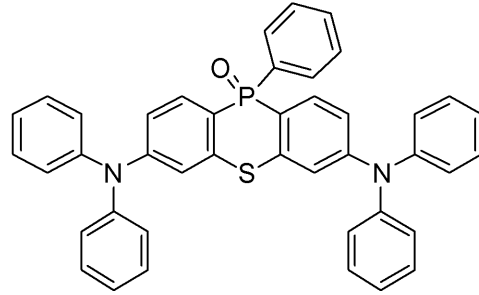


化合物 1 0 7

10

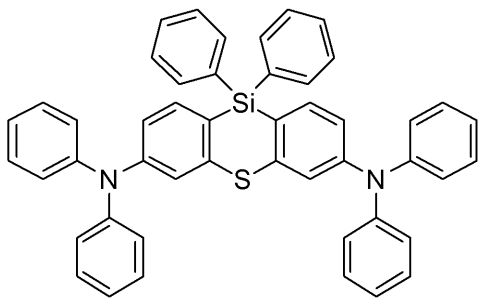


化合物 1 0 8

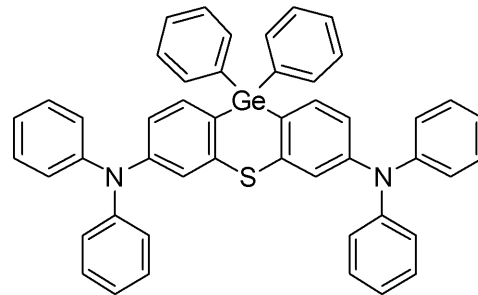


化合物 1 0 9

20

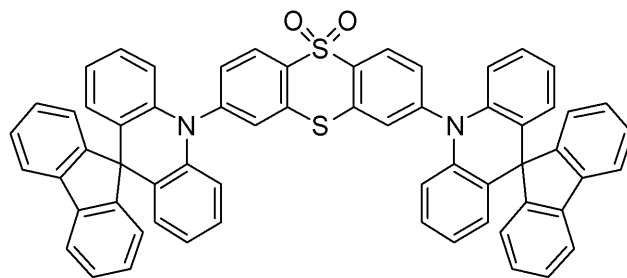


化合物 1 1 0



化合物 1 1 1

30

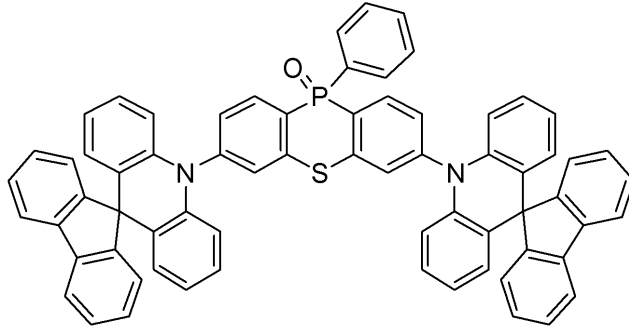


化合物 1 1 2

40

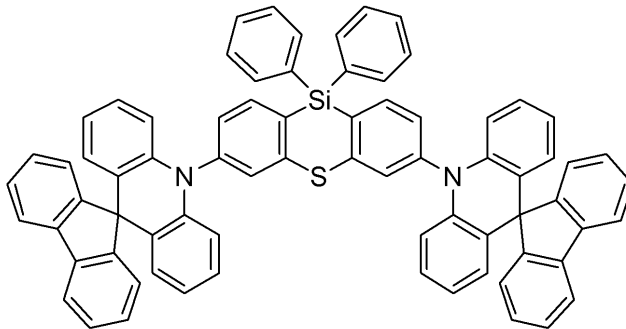
【 0 0 3 7 】

【化 2 0】



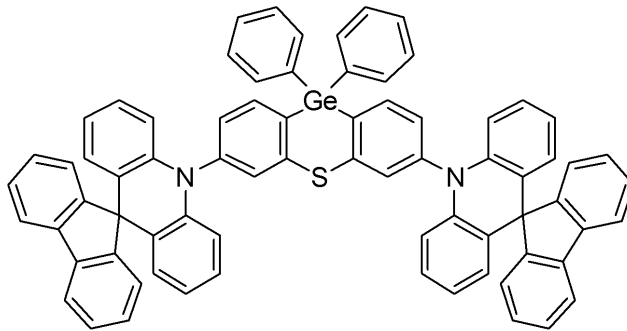
化合物 1 1 3

10



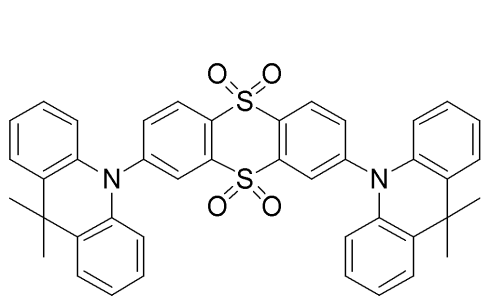
化合物 1 1 4

20

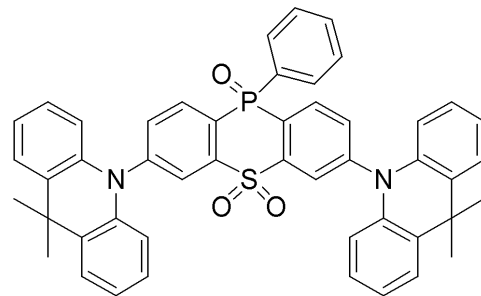


化合物 1 1 5

30



化合物 1 1 6

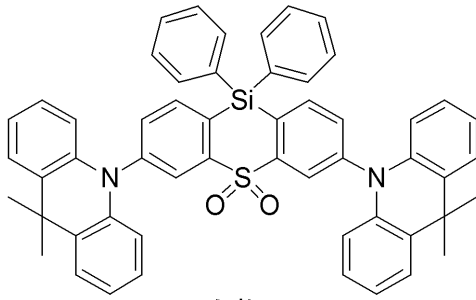


化合物 1 1 7

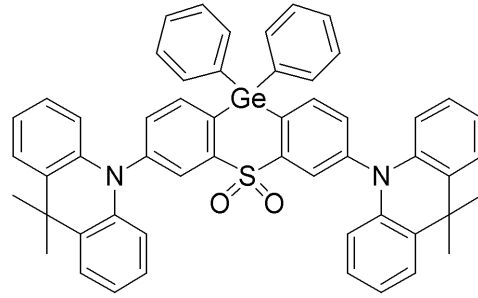
40

【 0 0 3 8 】

【化 2 1】

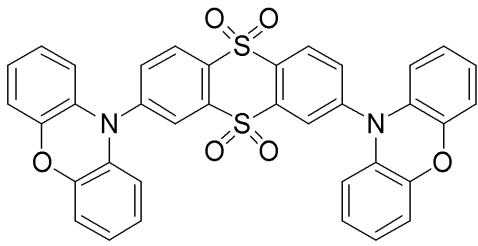


化合物 1 1 8

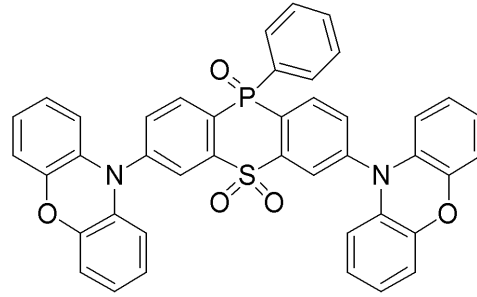


化合物 1 1 9

10

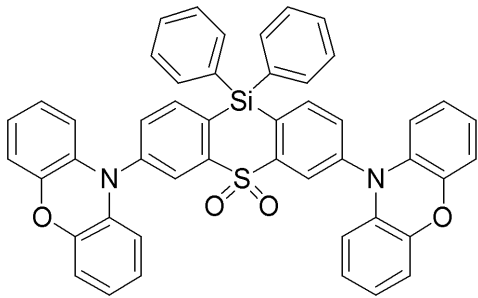


化合物 1 2 0

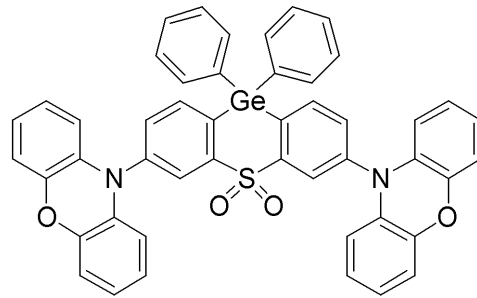


化合物 1 2 1

20

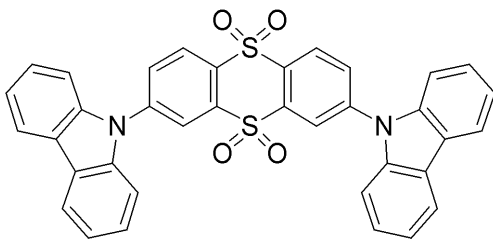


化合物 1 2 2

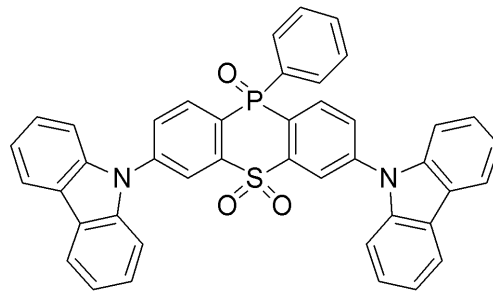


化合物 1 2 3

30



化合物 1 2 4

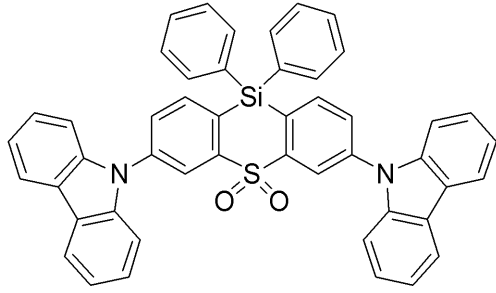


化合物 1 2 5

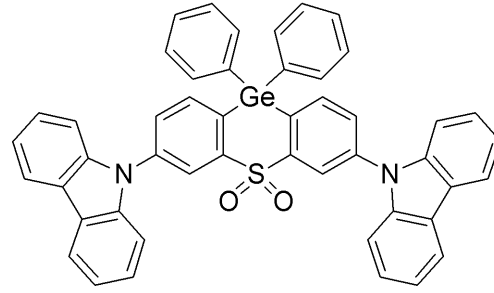
40

【 0 0 3 9 】

【化 2 2】

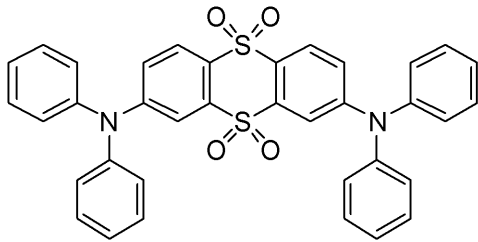


化合物 1 2 6

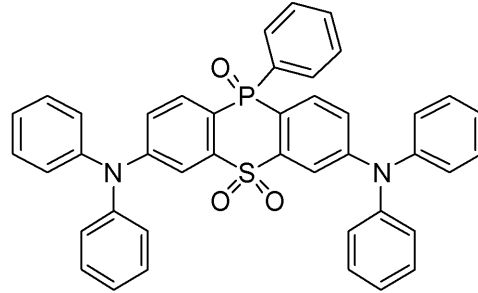


化合物 1 2 7

10

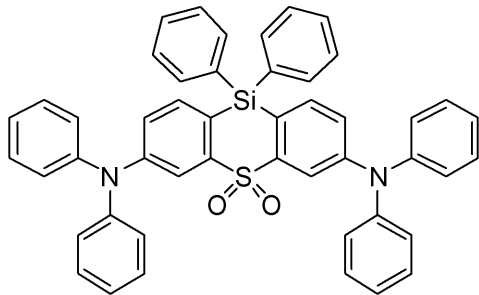


化合物 1 2 8

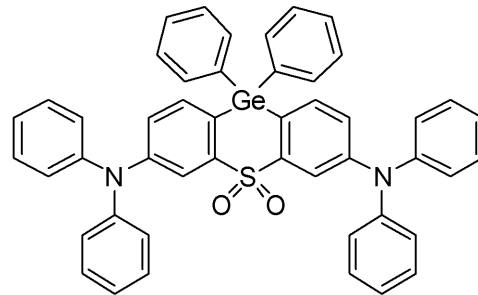


化合物 1 2 9

20

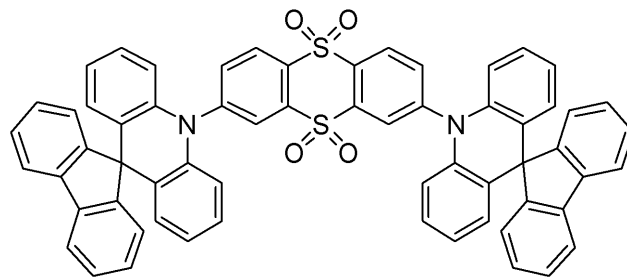


化合物 1 3 0



化合物 1 3 1

30

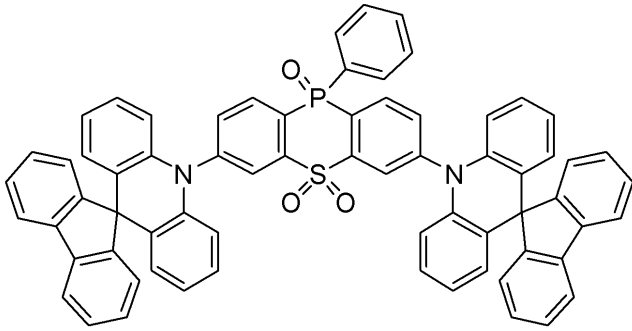


化合物 1 3 2

40

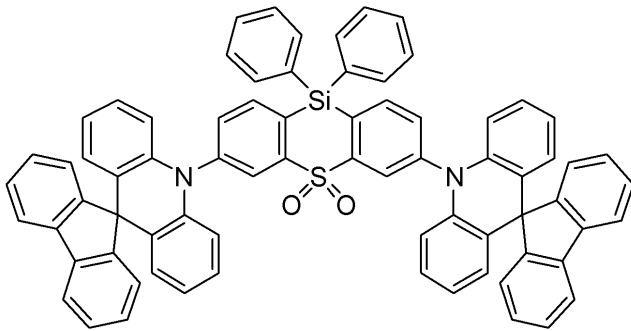
【 0 0 4 0 】

【化 2 3】



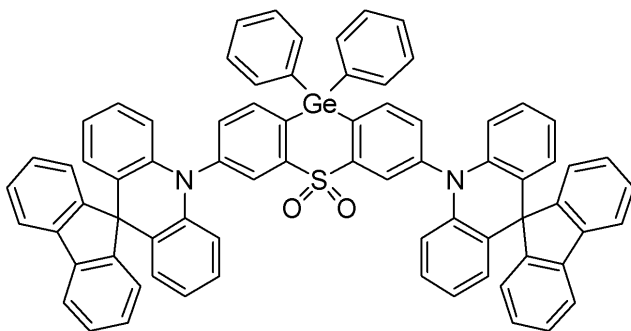
化合物 1 3 3

10



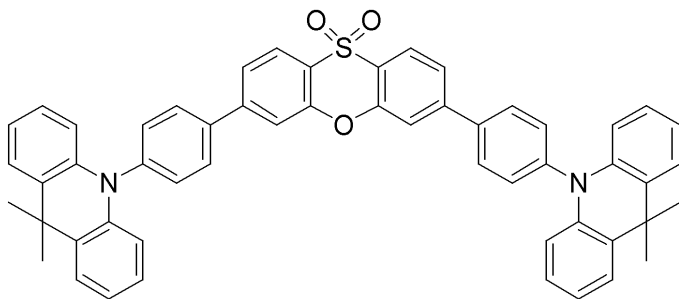
化合物 1 3 4

20



化合物 1 3 5

30

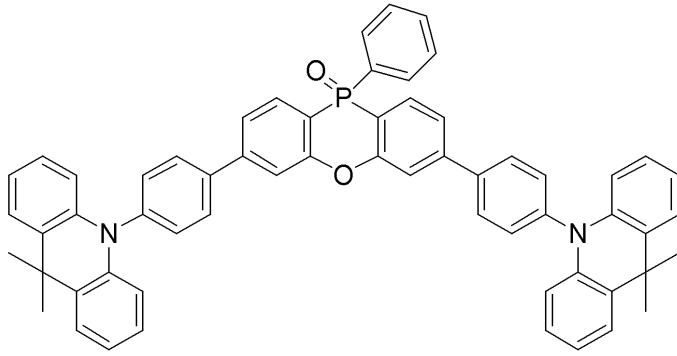


化合物 1 3 6

40

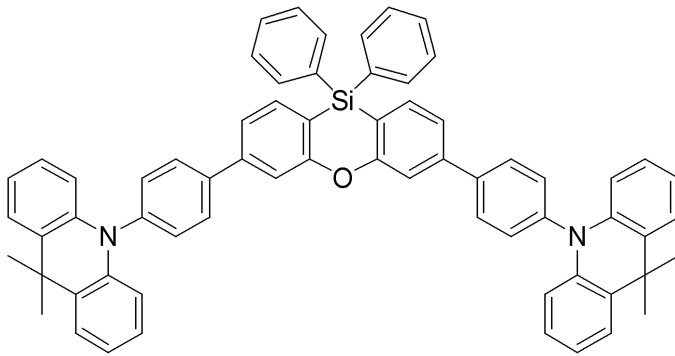
【 0 0 4 1 】

【化 2 4】



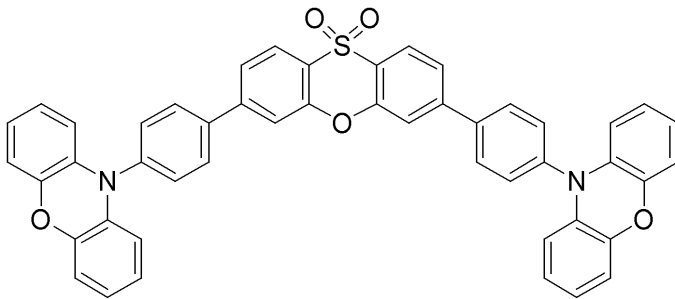
10

化合物 1 3 7



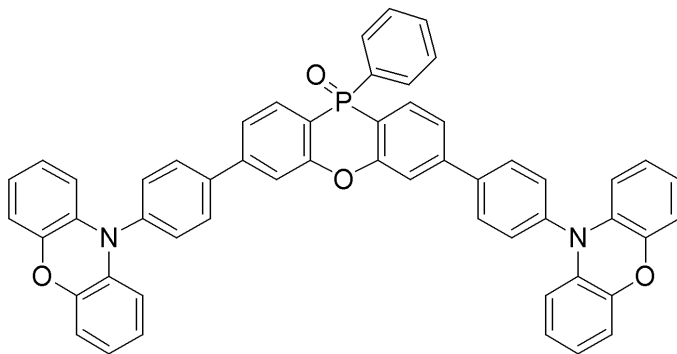
20

化合物 1 3 8



30

化合物 1 3 9

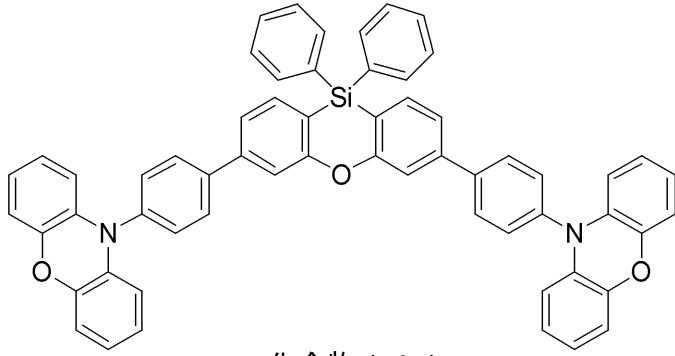


40

化合物 1 4 0

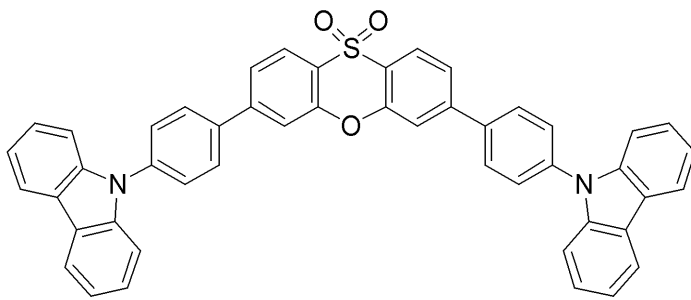
【 0 0 4 2】

【化 2 5】



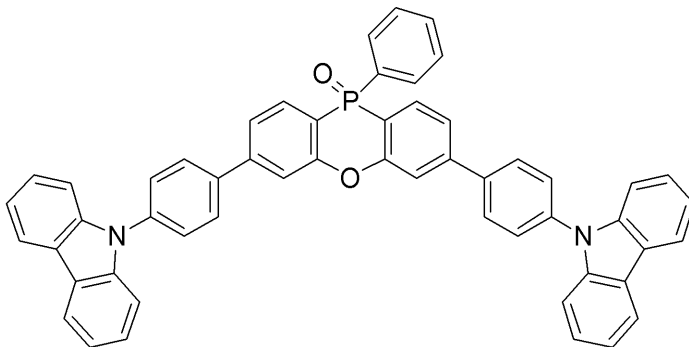
化合物 1 4 1

10



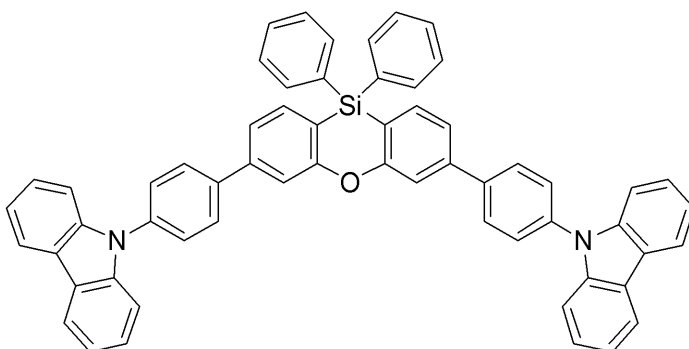
化合物 1 4 2

20



化合物 1 4 3

30

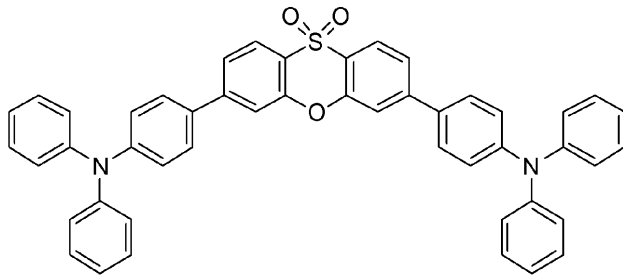


化合物 1 4 4

40

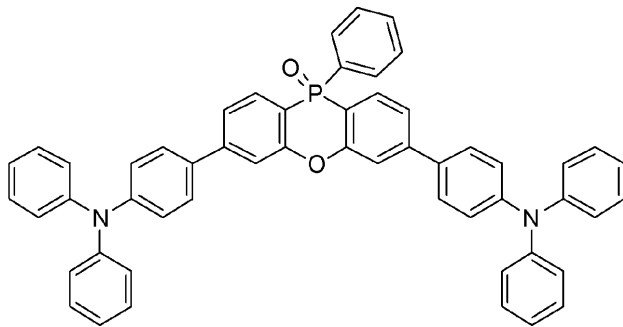
【 0 0 4 3 】

【化 2 6】



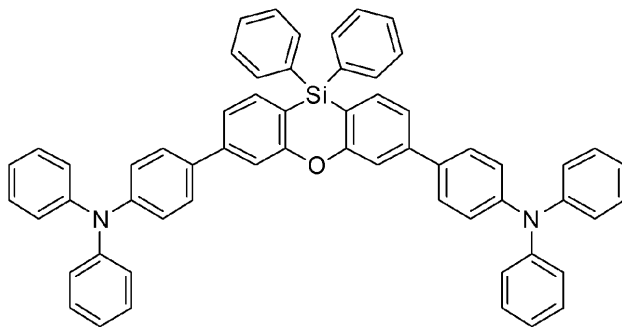
化合物 1 4 5

10



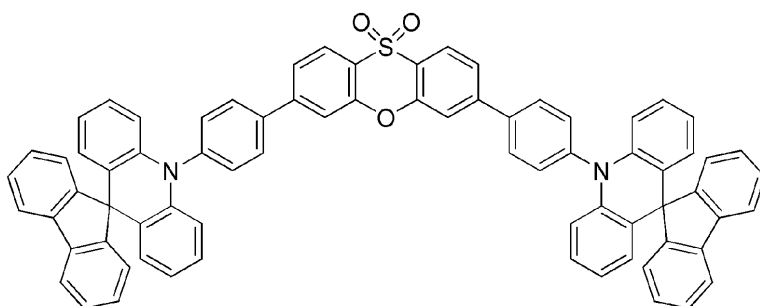
化合物 1 4 6

20



化合物 1 4 7

30

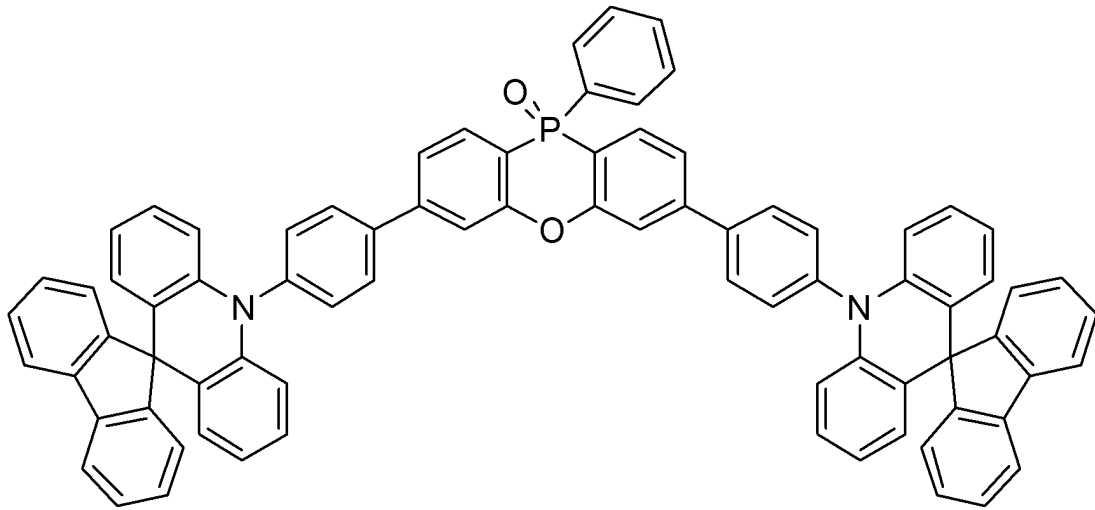


化合物 1 4 8

40

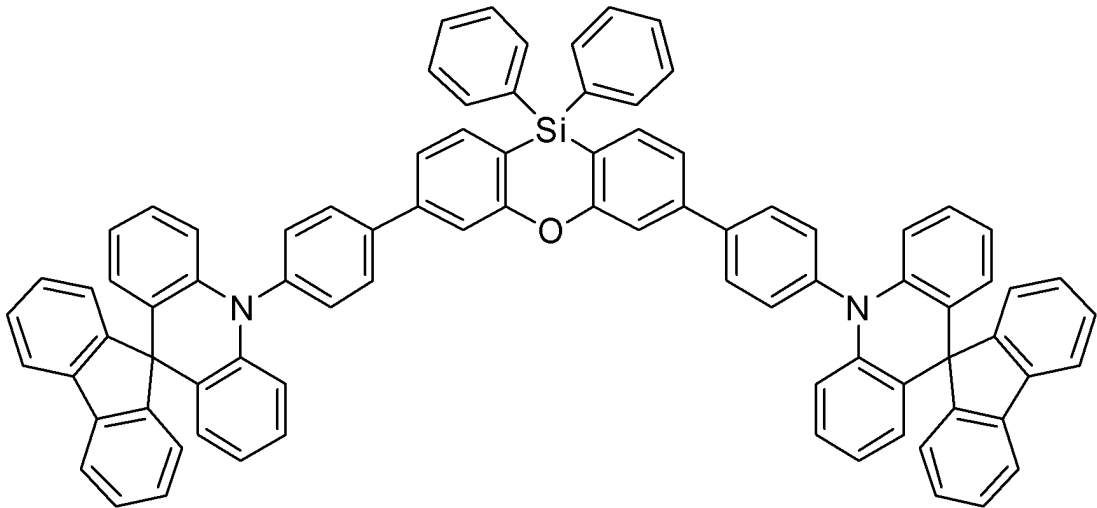
【 0 0 4 4 】

【化 2 7】



10

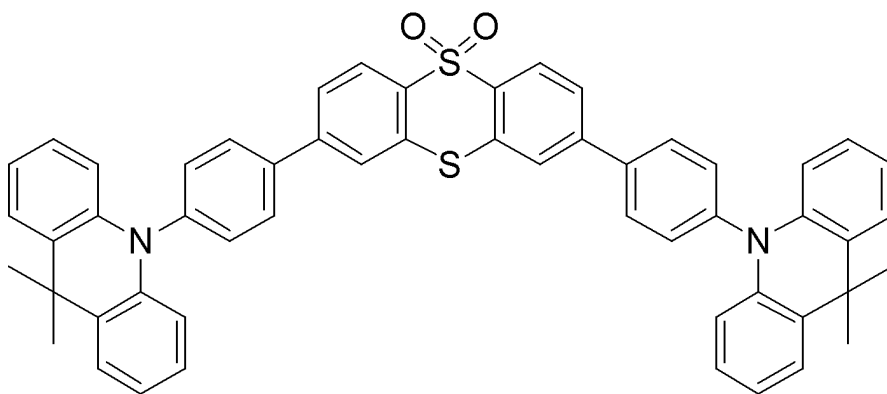
化合物 1 4 9



20

30

化合物 1 5 0



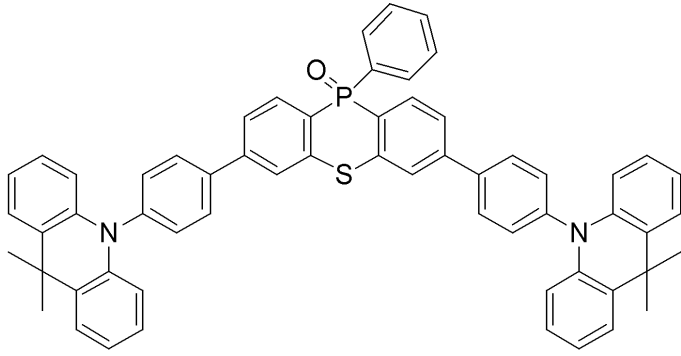
40

化合物 1 5 1

【 0 0 4 5】

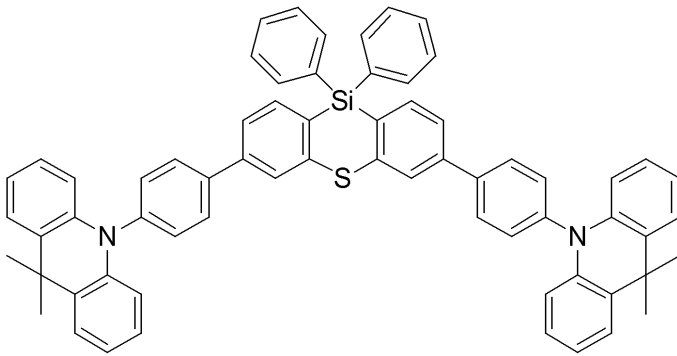
50

【化 2 8】



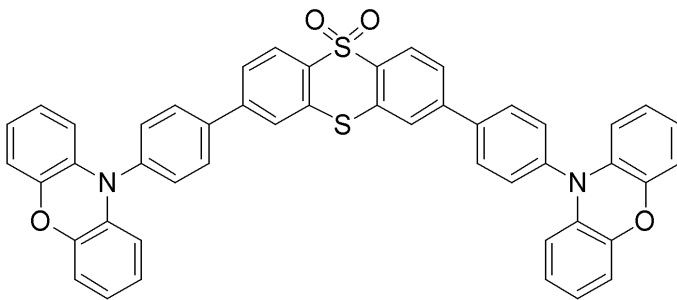
化合物 1 5 2

10



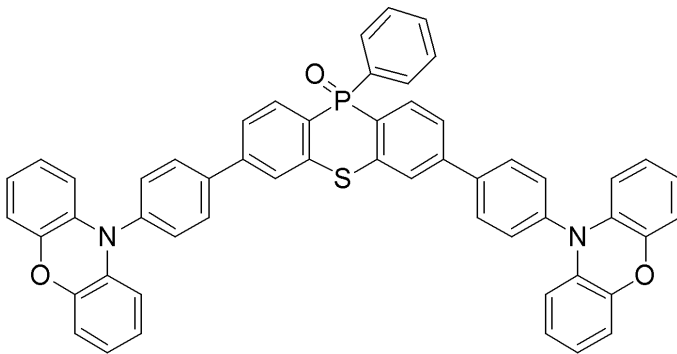
化合物 1 5 3

20



化合物 1 5 4

30

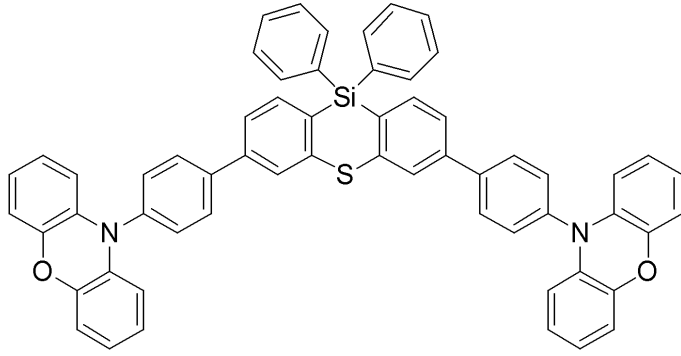


化合物 1 5 5

40

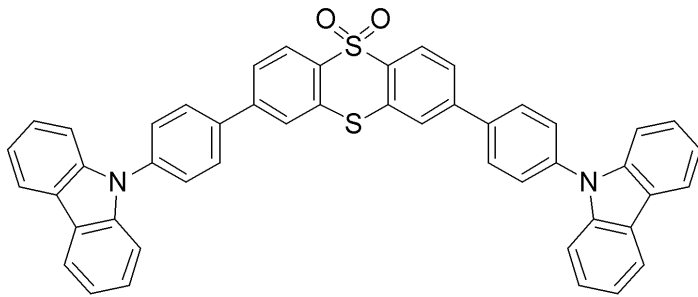
【 0 0 4 6 】

【化 2 9】



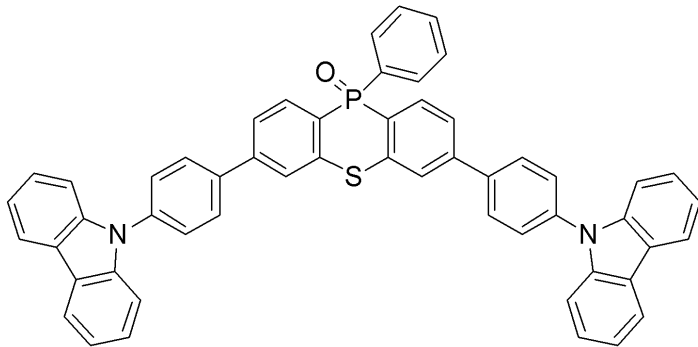
化合物 1 5 6

10



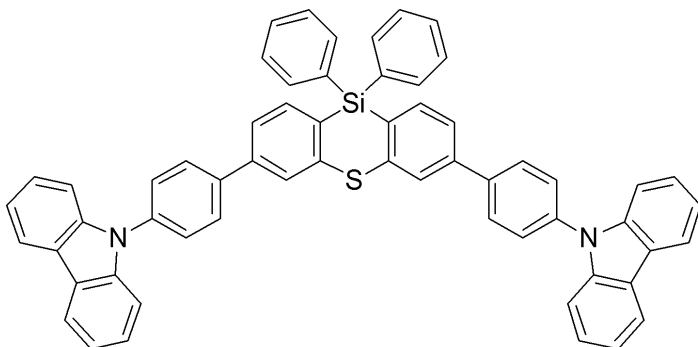
化合物 1 5 7

20



化合物 1 5 8

30

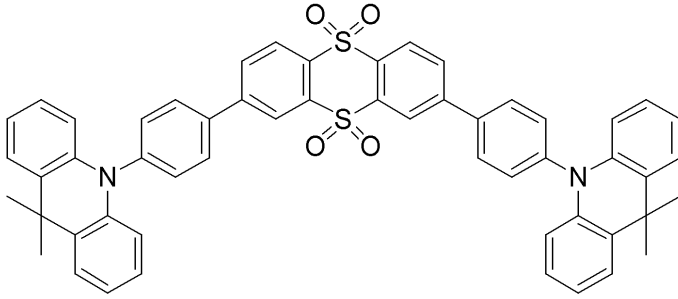


化合物 1 5 9

40

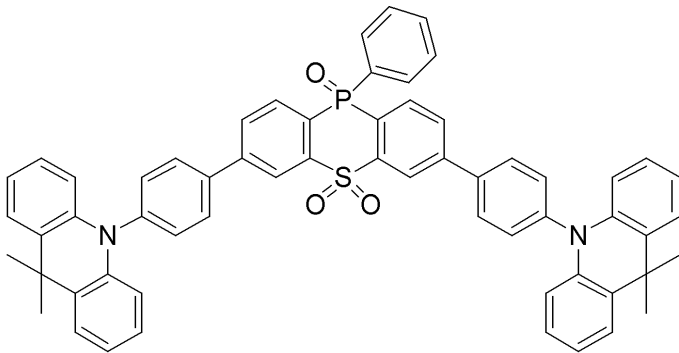
【 0 0 4 7 】

【化 3 0】



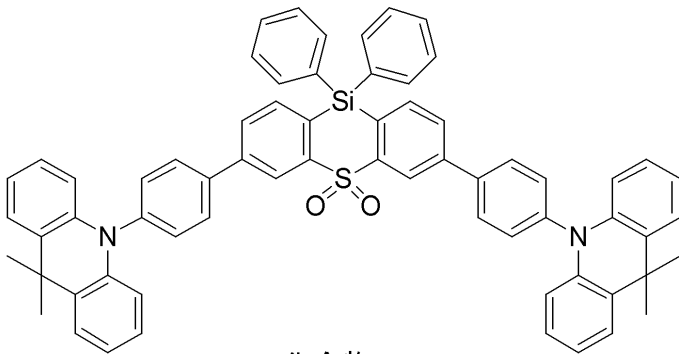
化合物 1 6 0

10



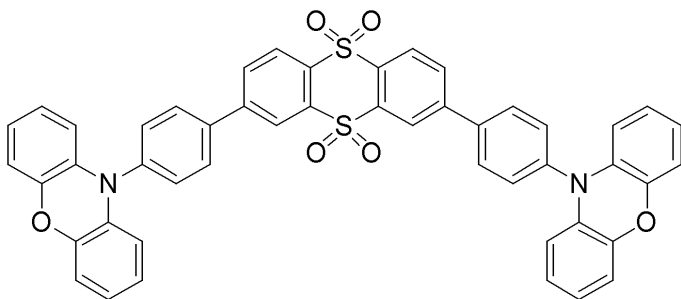
化合物 1 6 1

20



化合物 1 6 2

30

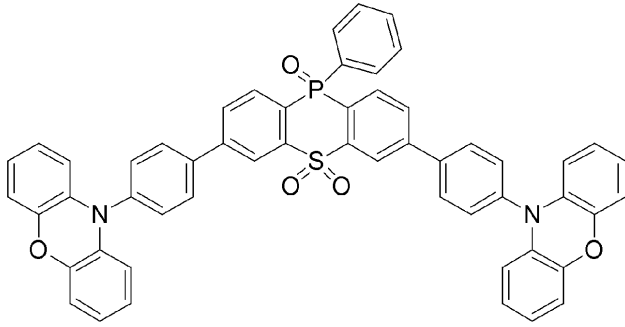


化合物 1 6 3

40

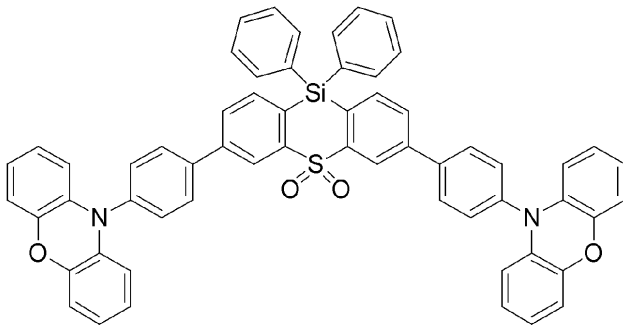
【 0 0 4 8 】

【化 3 1】



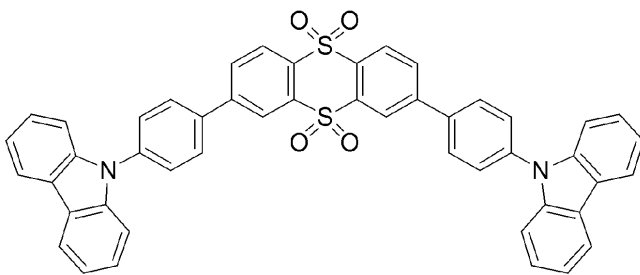
化合物 1 6 4

10



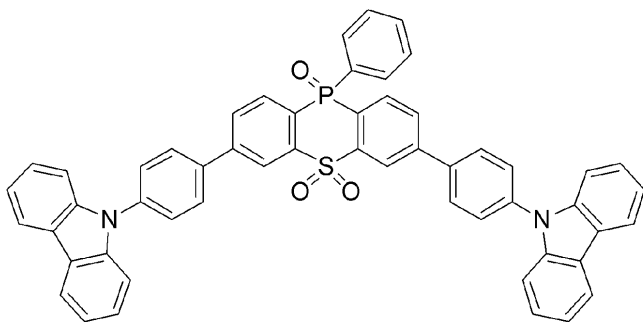
化合物 1 6 5

20



化合物 1 6 6

30

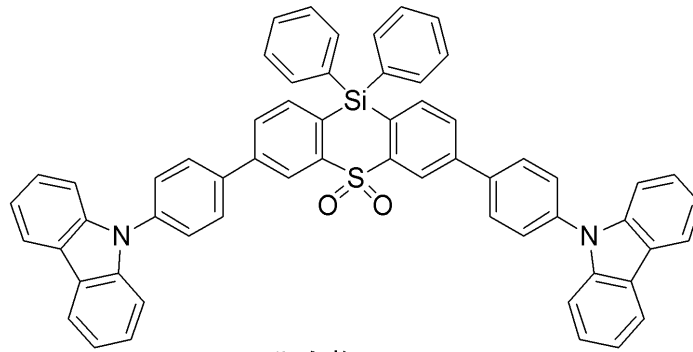


化合物 1 6 7

40

【 0 0 4 9 】

## 【化 3 2】



化合物 168

10

## 【0050】

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

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

20

## 【0051】

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

例えば、一般式(1)で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式(1)の $R^1 \sim R^8$ 、 $Ar^1 \sim Ar^7$ 、 $R^{71} \sim R^{73}$ のいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いることが考えられる。あるいは、一般式(1)で表される構造を有する化合物どうしを反応させることにより、二量体や三量体を得て、それらを発光材料として用いることも考えられる。

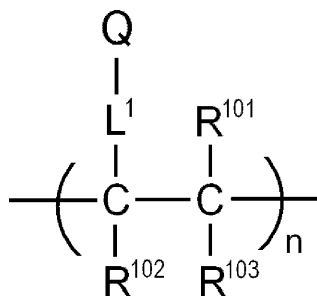
30

## 【0052】

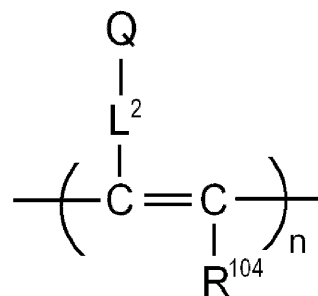
一般式(1)で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式(9)または(10)で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

## 【化 3 3】

一般式(9)



一般式(10)



40

## 【0053】

一般式(9)または(10)において、Qは一般式(1)で表される構造を含む基を表し、 $L^1$ および $L^2$ は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは0~20であり、より好ましくは1~15であり、さらに好ましくは2~10である。連結基は $-X^{11}-L^{11}-$ で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、 $X^{11}$ は酸素原子または硫黄

50

原子を表し、酸素原子であることが好ましい。L<sup>11</sup>は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数1~10の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

一般式(9)または(10)において、R<sup>101</sup>、R<sup>102</sup>、R<sup>103</sup>およびR<sup>104</sup>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。

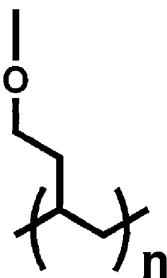
L<sup>1</sup>およびL<sup>2</sup>で表される連結基は、Qを構成する一般式(1)の構造のR<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>、Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>7</sup>、R<sup>71</sup>~R<sup>73</sup>のいずれか、一般式(2)のR<sup>11</sup>~R<sup>20</sup>のいずれか、一般式(3)の構造のR<sup>21</sup>~R<sup>28</sup>のいずれか、一般式(4)の構造のR<sup>31</sup>~R<sup>38</sup>、R<sup>3a</sup>、R<sup>3b</sup>のいずれか、一般式(5)の構造のR<sup>41</sup>~R<sup>48</sup>、R<sup>4a</sup>のいずれか、一般式(6)の構造のR<sup>51</sup>~R<sup>58</sup>のいずれか、一般式(7)の構造のR<sup>61</sup>~R<sup>68</sup>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。

【0054】

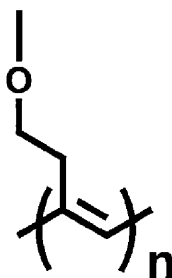
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式(11)~(14)で表される構造を挙げるができる。

【化34】

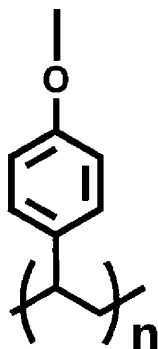
式(11)



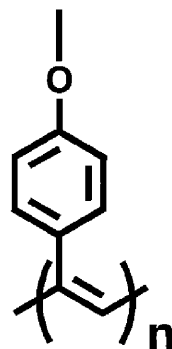
式(12)



式(13)



式(14)



【0055】

これらの式(11)~(14)を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式(1)の構造のR<sup>1</sup>~R<sup>8</sup>のいずれかにヒドロキシ基を導入しておき、それをリンカーとして下記化合物を反応させて重合性基を導入し、その重合性基を重合させることにより合成することができる。

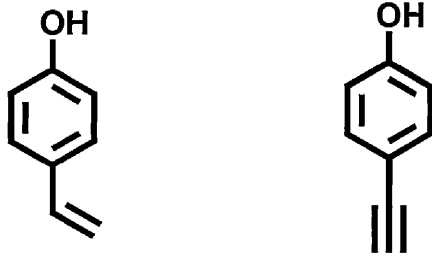
10

20

30

40

## 【化 3 5】



10

## 【0056】

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

20

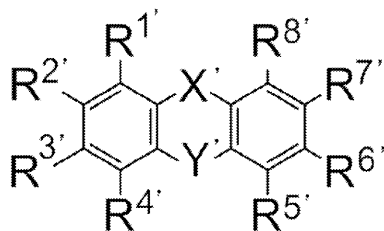
## 【0057】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

一般式(1)で表される化合物は新規化合物である。

## 【化 3 6】

一般式(1')



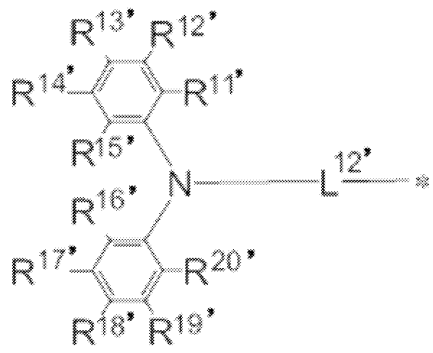
30

[一般式(1')において、 $X'$ は $SO_2$ 、 $P(=O)(Ar^{1'})$ 、 $Ge(Ar^{2'})(Ar^{3'})$ 、 $Si(Ar^{4'})(Ar^{5'})$ または $Sn(Ar^{6'})(Ar^{7'})$ を表し、 $Ar^{1'}$  ~  $Ar^{7'}$ は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表す。 $Y'$ はO、S、 $SO_2$ 、 $N(R^{71'})$ 、 $C(R^{72'})(R^{73'})$ を表す。 $R^{1'}$  ~  $R^{8'}$ 、 $R^{71'}$  ~  $R^{73'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^{1'}$  ~  $R^{8'}$ の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式(2') ~ (7')で表される基である。 $R^{1'}$ と $R^{2'}$ 、 $R^{2'}$ と $R^{3'}$ 、 $R^{3'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{5'}$ と $R^{6'}$ 、 $R^{6'}$ と $R^{7'}$ 、 $R^{7'}$ と $R^{8'}$ 、 $R^{72'}$ と $R^{73'}$ 、 $R^{71'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{71'}$ と $R^{5'}$ 、 $R^{72'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{72'}$ と $R^{5'}$ 、 $R^{73'}$ と $R^{5'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

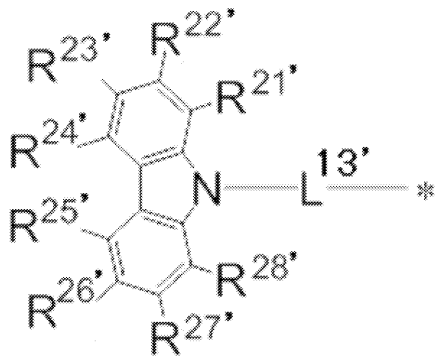
【化 3 7 - 1】

一般式 (2')



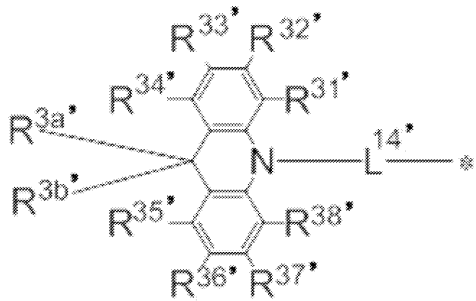
10

一般式 (3')



20

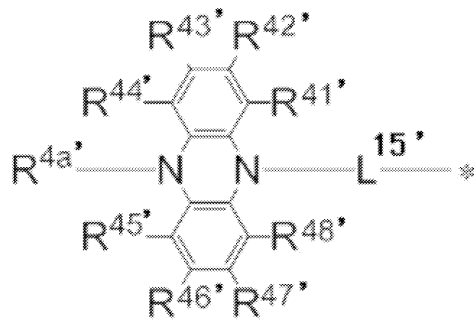
一般式 (4')



30

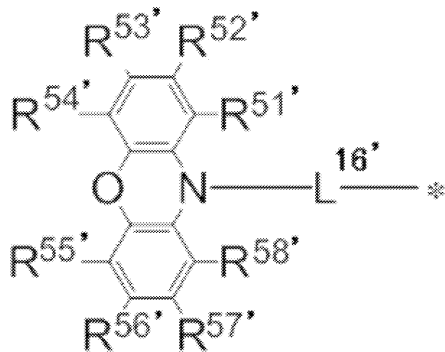
## 【化 3 7 - 2】

## 一般式 (5')



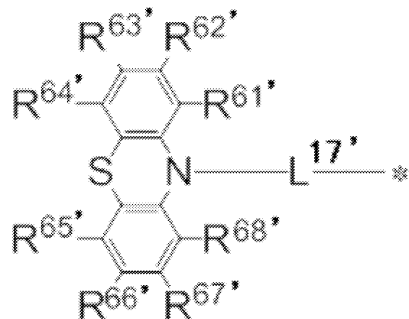
10

## 一般式 (6')



20

## 一般式 (7')



30

[ 一般式 (2') ~ (7') において、 $L^{12'}$  ~  $L^{17'}$  は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、\* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11'}$  ~  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  ~  $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$  ~  $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$  ~  $R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$  ~  $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$  ~  $R^{68'}$  は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$  と  $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$  と  $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$  と  $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$  と  $R^{15'}$ 、 $R^{16'}$  と  $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$  と  $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$  と  $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$  と  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  と  $R^{22'}$ 、 $R^{22'}$  と  $R^{23'}$ 、 $R^{23'}$  と  $R^{24'}$ 、 $R^{24'}$  と  $R^{25'}$ 、 $R^{25'}$  と  $R^{26'}$ 、 $R^{26'}$  と  $R^{27'}$ 、 $R^{27'}$  と  $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$  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  $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$  と  $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$  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  $R^{64'}$ 、 $R^{65'}$  と  $R^{66'}$ 、 $R^{66'}$  と  $R^{67'}$ 、 $R^{67'}$  と  $R^{68'}$  はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

一般式 (1') における  $X'$ 、 $Ar^{1'}$  ~  $Ar^{7'}$ 、 $Y'$ 、 $R^{1'}$  ~  $R^{8'}$ 、 $R^{71'}$  ~  $R^{73'}$ 、一般式 (2') ~ (7') における  $L^{12'}$  ~  $L^{17'}$ 、\*、 $R^{11'}$  ~  $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$  ~  $R$

50

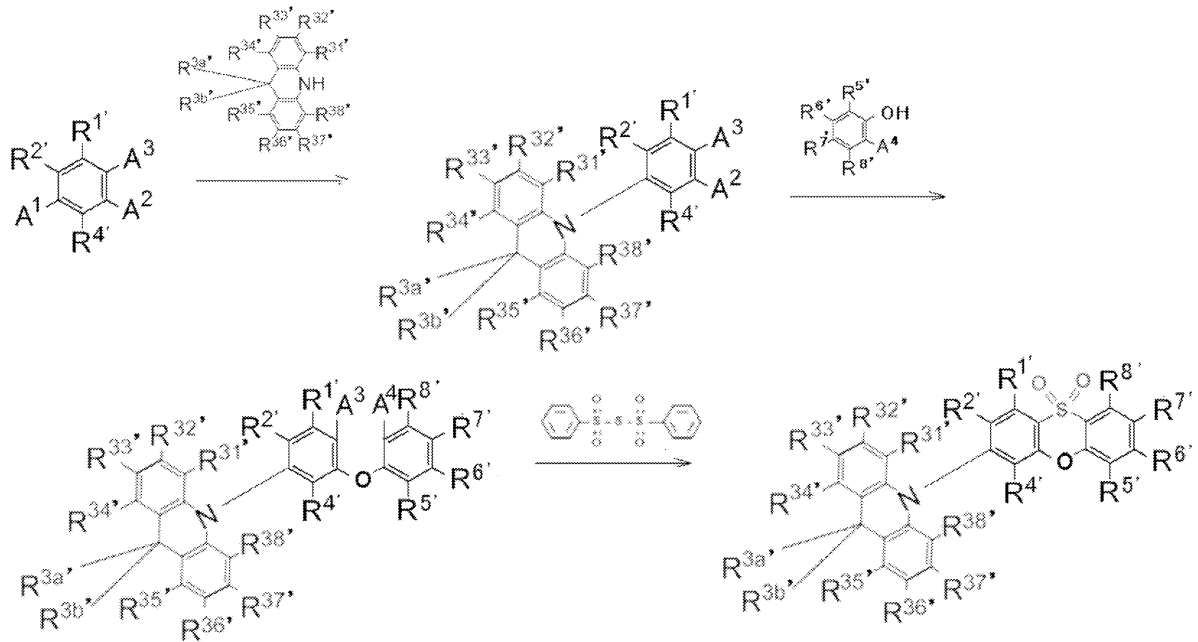
28', R<sup>31'</sup>, ~ R<sup>38'</sup>, R<sup>3a'</sup>, R<sup>3b'</sup>, R<sup>41'</sup>, ~ R<sup>48'</sup>, R<sup>4a'</sup>, R<sup>51'</sup>, ~ R<sup>58'</sup>, R<sup>61'</sup>, ~ R<sup>68'</sup> の説明と好ましい範囲については、一般式(1)で表される化合物の説明を参照することができる。

【0058】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

一般式(1')で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、一般式(1')のX'がSO<sub>2</sub>、Y'がO、R<sup>3'</sup>が一般式(4')で表される基である化合物は、以下の反応経路により合成することが可能である。

【化38】



10

20

【0059】

上記の反応式におけるR<sup>1'</sup>、R<sup>2'</sup>、R<sup>4'</sup>、R<sup>5'</sup> ~ R<sup>8'</sup>、R<sup>31'</sup> ~ R<sup>38'</sup>、R<sup>3a'</sup>、R<sup>3b'</sup>の説明については、一般式(1')における対応する記載を参照することができる。A<sup>1</sup> ~ A<sup>4</sup>はハロゲン原子を表し、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を挙げることができる。塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましい。

30

上記の反応は、公知の反応等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。

【0060】

[有機発光素子]

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

40

【0061】

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

50

のは25%であり、残り75%は励起三重項状態に励起される。従って、励起三重項状態からの発光であるリン光を利用するほうが、エネルギーの利用効率が高い。しかしながら、励起三重項状態は寿命が長いため、励起状態の飽和や励起三重項状態の励起子との相互作用によるエネルギーの失活が起こり、一般にリン光の量子収率が高くないことが多い。一方、遅延蛍光材料は、項間交差等により励起三重項状態へとエネルギーが遷移した後、三重項-三重項消滅あるいは熱エネルギーの吸収により、励起一重項状態に逆項間交差され蛍光を放射する。有機エレクトロルミネッセンス素子においては、なかでも熱エネルギーの吸収による熱活性化型の遅延蛍光材料が特に有用であると考えられる。有機エレクトロルミネッセンス素子に遅延蛍光材料を利用した場合、励起一重項状態の励起子は通常通り蛍光を放射する。一方、励起三重項状態の励起子は、デバイスが発する熱を吸収して励起一重項へ項間交差され蛍光を放射する。このとき、励起一重項からの発光であるため蛍光と同波長での発光でありながら、励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差により、生じる光の寿命(発光寿命)は通常の蛍光やりん光よりも長くなるため、これらよりも遅延した蛍光として観察される。これを遅延蛍光として定義できる。このような熱活性化型の励起子移動機構を用いれば、キャリア注入後に熱エネルギーの吸収を経ることにより、通常は25%しか生成しなかった励起一重項状態の化合物の比率を25%以上に引き上げることが可能となる。100未満の低い温度でも強い蛍光および遅延蛍光を発する化合物を用いれば、デバイスの熱で十分に励起三重項状態から励起一重項状態への項間交差が生じて遅延蛍光を放射するため、発光効率を飛躍的に向上させることができる。

10

20

#### 【0062】

本発明の一般式(1)で表される化合物を発光層の発光材料として用いることにより、有機フォトルミネッセンス素子(有機PL素子)や有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)などの優れた有機発光素子を提供することができる。このとき、本発明の一般式(1)で表される化合物は、いわゆるアシストドーパントとして、発光層に含まれる他の発光材料の発光をアシストする機能を有するものであってもよい。すなわち、発光層に含まれる本発明の一般式(1)で表される化合物は、発光層に含まれるホスト材料の最低励起一重項エネルギー準位と発光層に含まれる他の発光材料の最低励起一重項エネルギー準位との間の最低励起一重項エネルギー準位を有するものであってもよい。

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。

30

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。

40

#### 【0063】

(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。

#### 【0064】

(陽極)

有機エレクトロルミネッセンス素子における陽極としては、仕事関数の大きい( $4\text{ e V}$

50

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

10

20

30

40

50

#### 【0065】

##### (陰極)

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが用いられる。このような電極材料の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )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( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )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 / 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~5  $\mu\text{m}$ 、好ましくは50~200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

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

#### 【0066】

##### (発光層)

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

機発光素子または有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光は発光層に含まれる本発明の発光材料から生じる。この発光は蛍光発光および遅延蛍光発光の両方を含む。但し、発光の一部或いは部分的にホスト材料からの発光があってもかまわない。

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

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

#### 【0067】

(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。

#### 【0068】

(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。

#### 【0069】

(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。

#### 【0070】

(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。

#### 【0071】

(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、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、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

10

20

30

40

50

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。

【0072】

(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、ポリアリーラルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーラルアミン誘導体、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、特にチオフエ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。

10

【0073】

(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。

20

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。

30

【0074】

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

【0075】

以下に、有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることができる好ましい材料を具体的に例示する。ただし、本発明において用いることができる材料は、以下の例示化合物によって限定的に解釈されることはない。また、特定の機能を有する材料として例示した化合物であっても、その他の機能を有する材料として転用することも可能である。なお、以下の例示化合物の構造式におけるR、R<sub>1</sub>~R<sub>10</sub>は、各々独立に水素原子または置換基を表す。nは3~5の整数を表す。

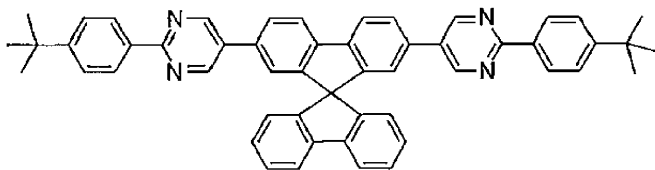
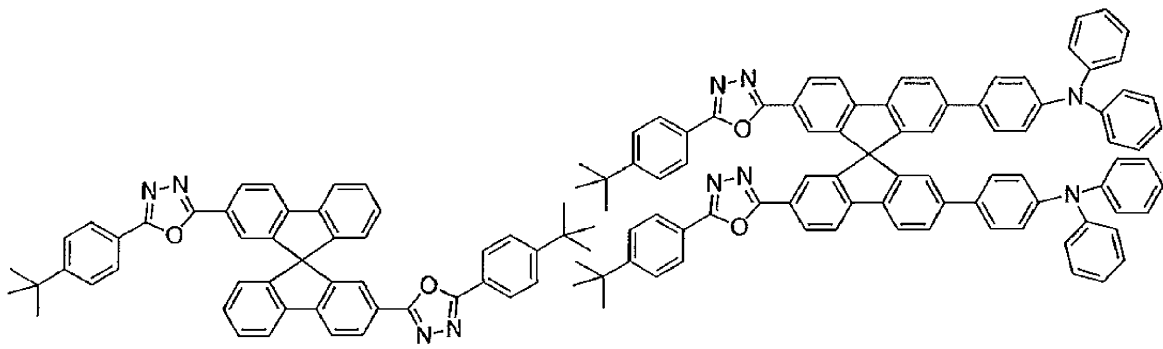
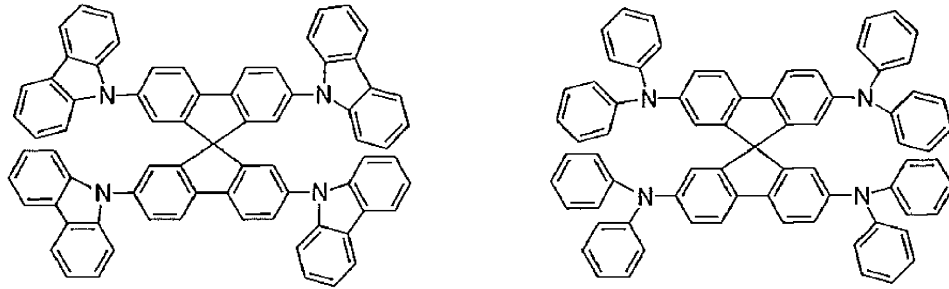
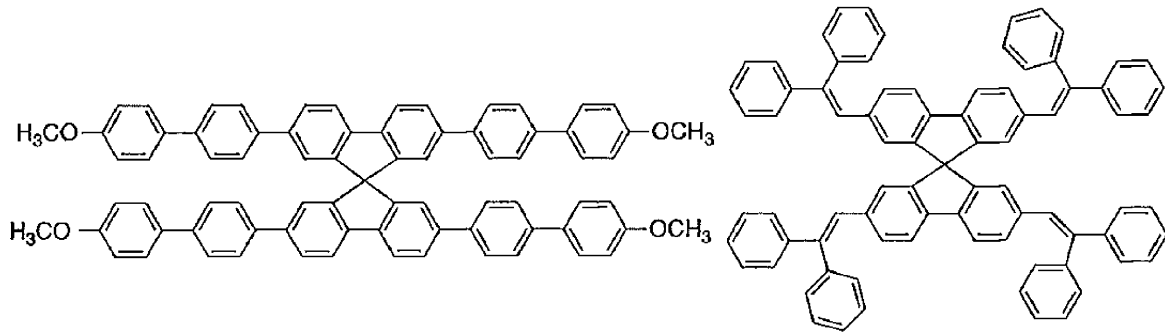
40

【0076】

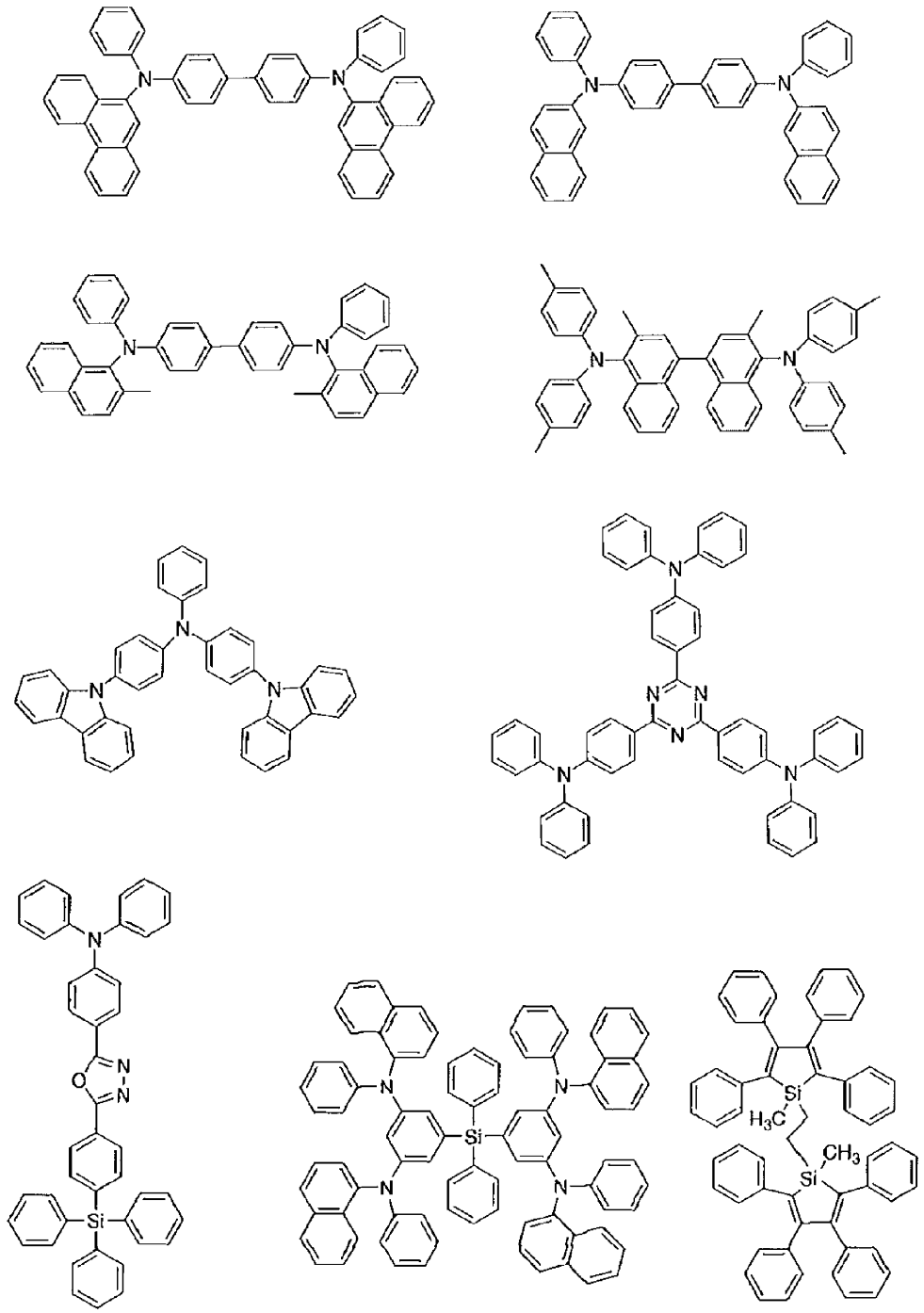
まず、発光層のホスト材料としても用いることができる好ましい化合物を挙げる。

【0077】

【化 3 9】



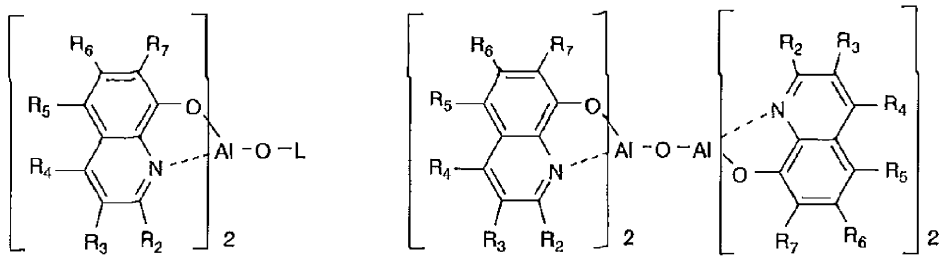
【化 4 0】



10

20

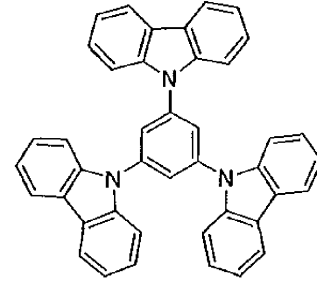
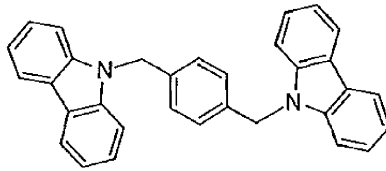
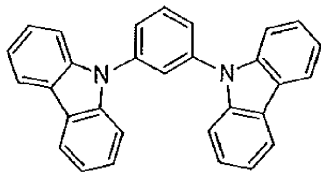
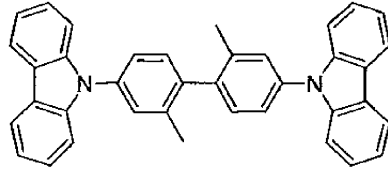
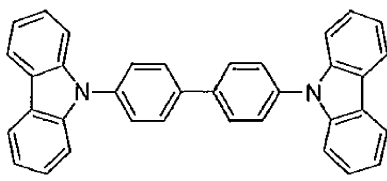
30



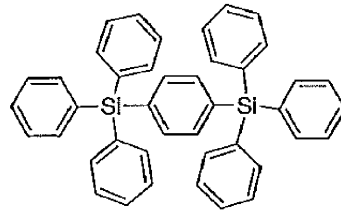
40

【 0 0 7 9】

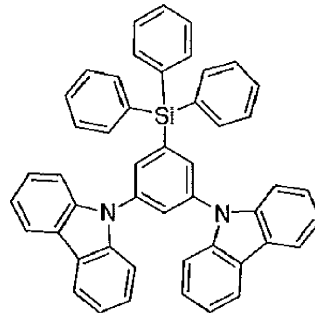
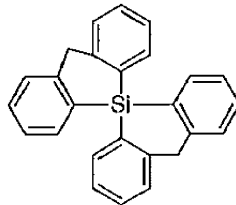
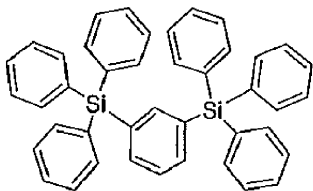
【化 4 1】



10



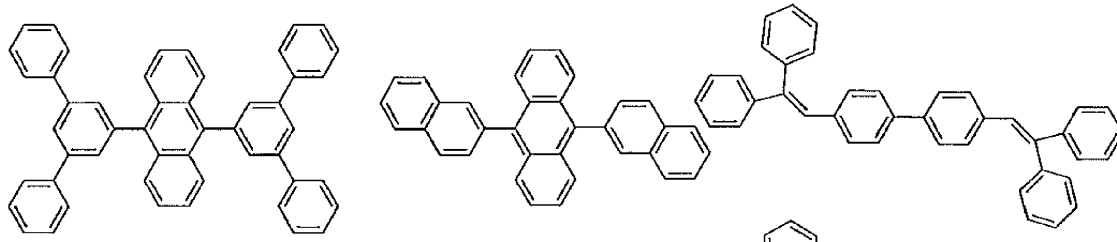
20



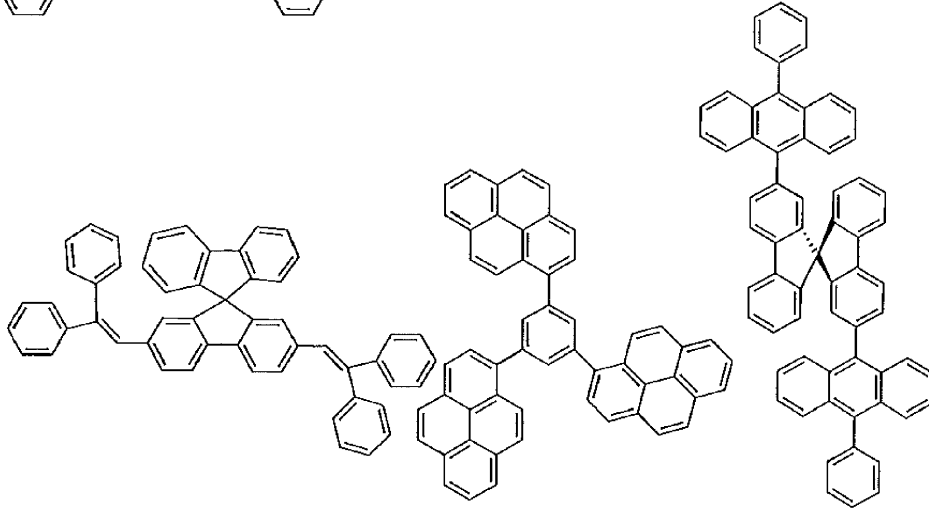
30

【 0 0 8 0 】

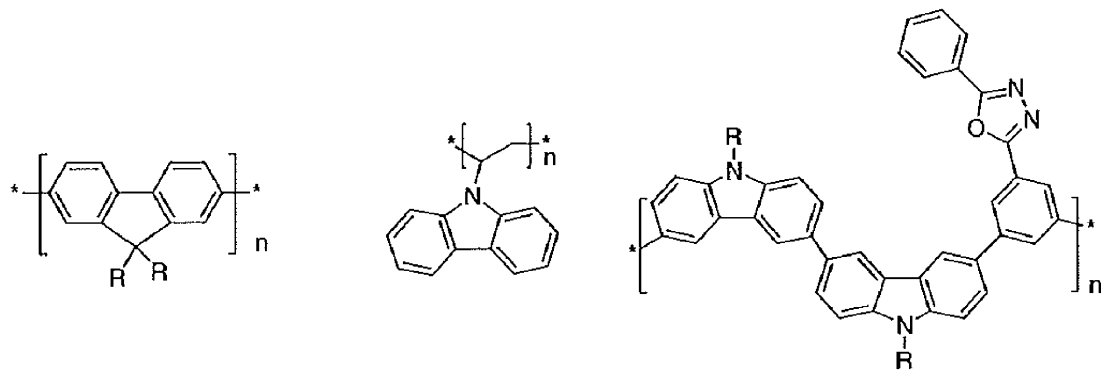
【化 4 2】



10



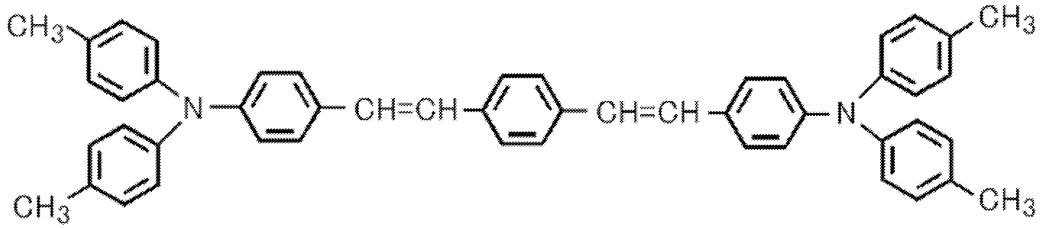
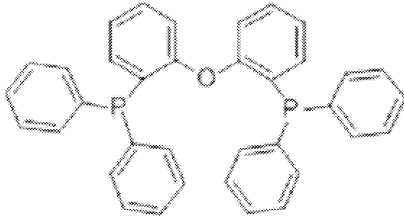
20



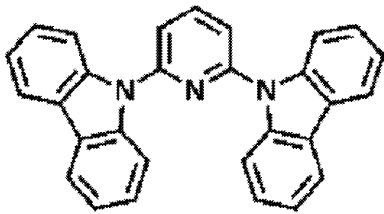
30

【 0 0 8 1】

## 【化 4 3】



10



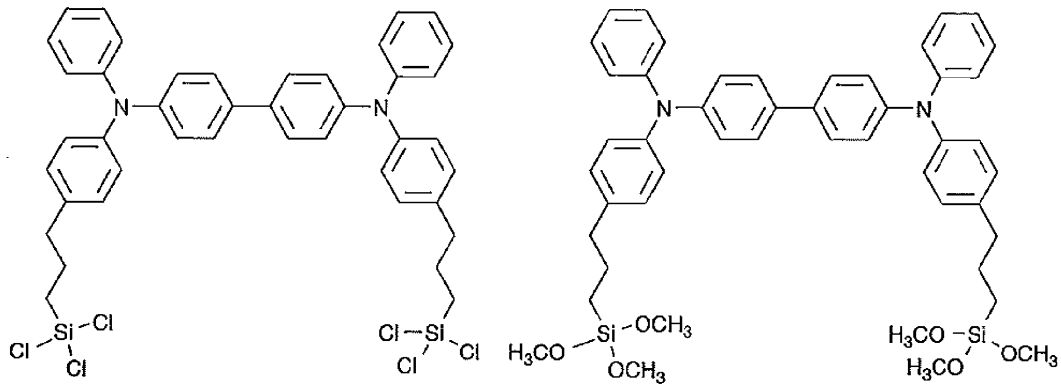
20

## 【 0 0 8 2】

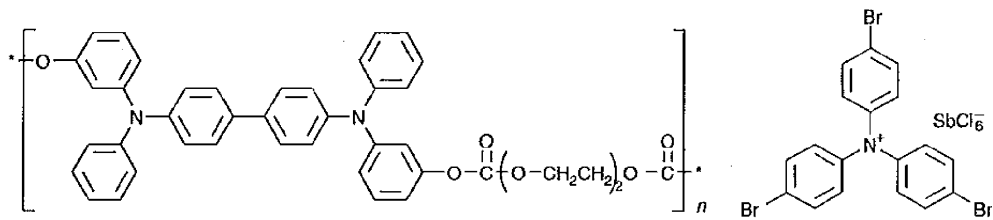
次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

## 【 0 0 8 3】

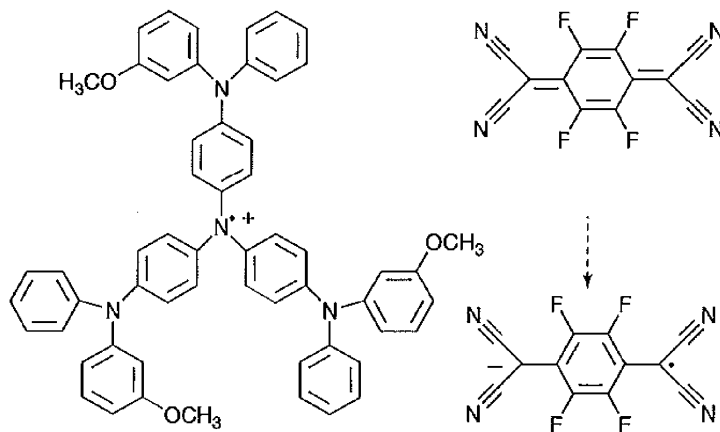
【化 4 4】



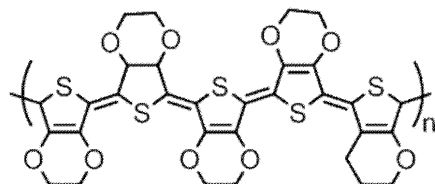
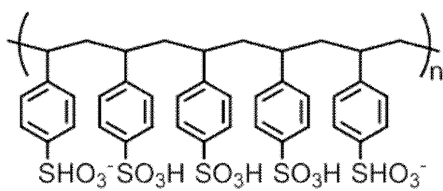
10



20



30



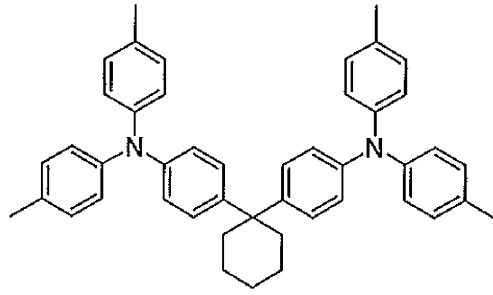
40

【 0 0 8 4】

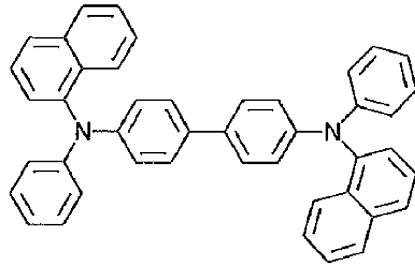
次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 8 5】

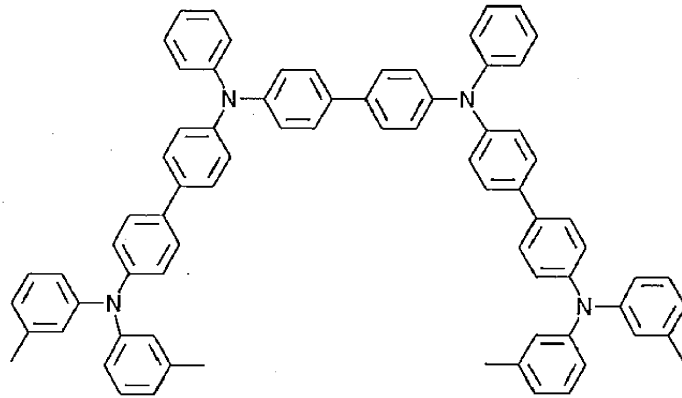
【化 4 5】



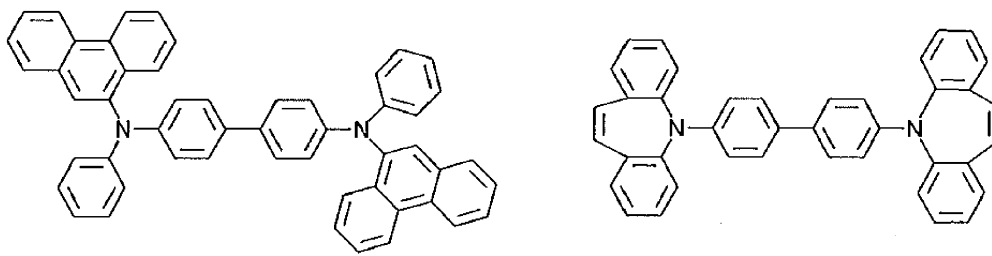
10



20

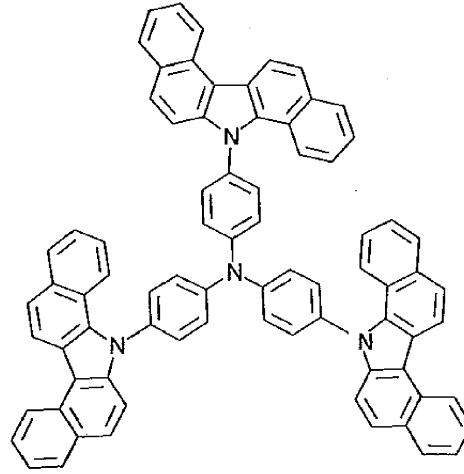
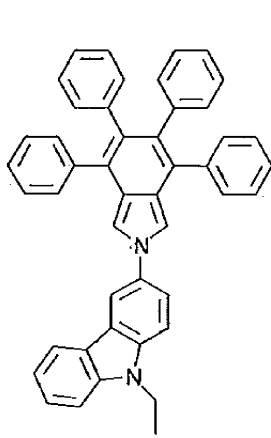


30

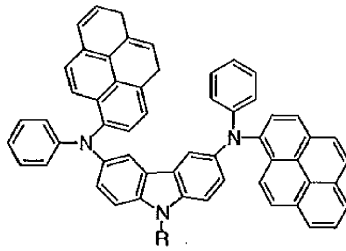
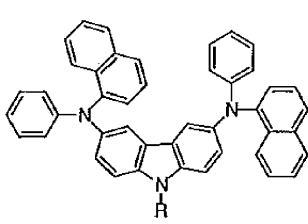


【 0 0 8 6 】

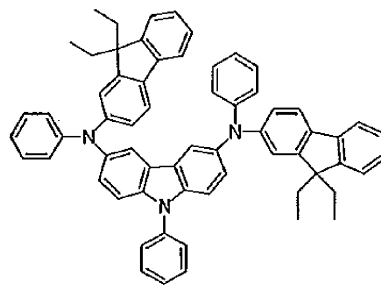
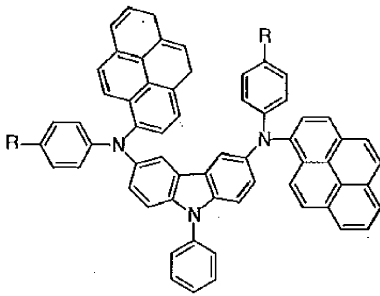
【化 4 6】



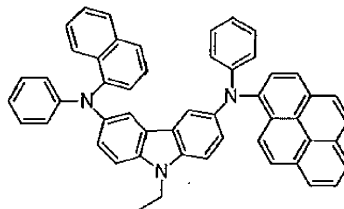
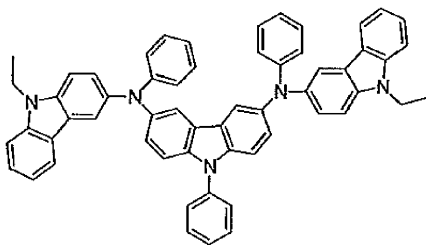
10



20



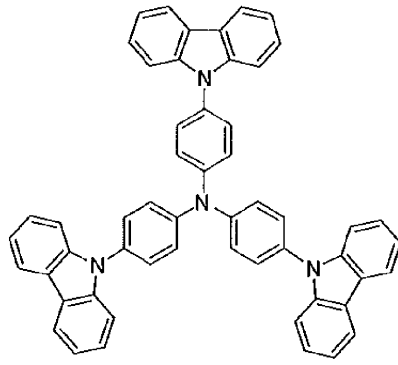
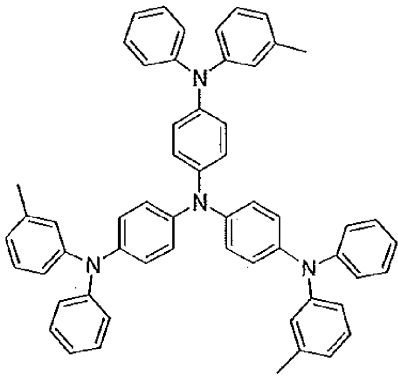
30



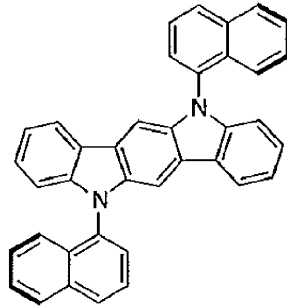
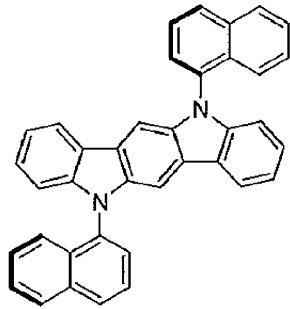
40

【 0 0 8 7 】

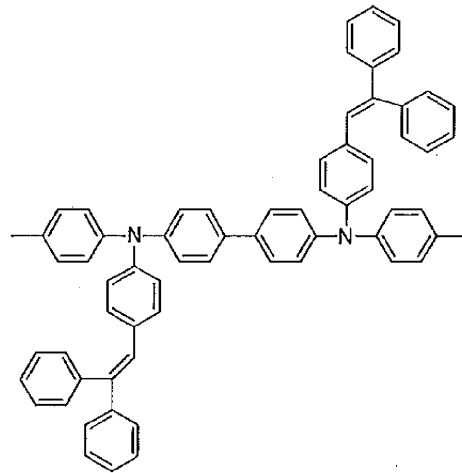
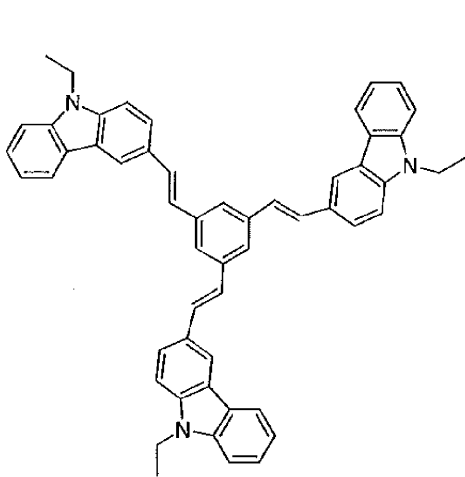
【化 4 7】



10



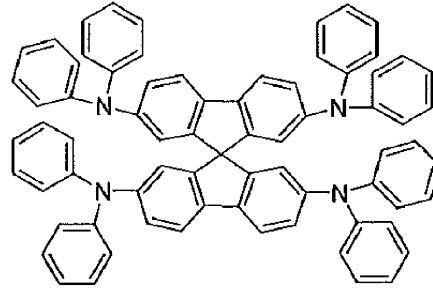
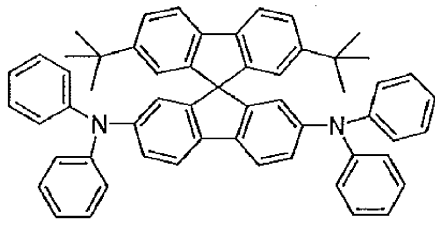
20



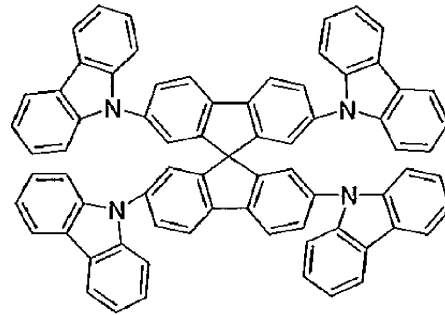
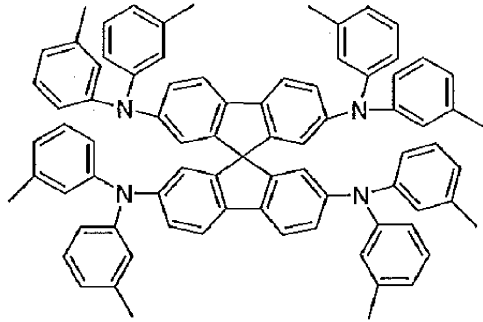
30

【 0 0 8 8 】

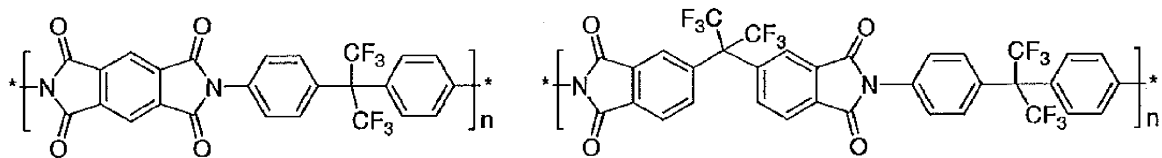
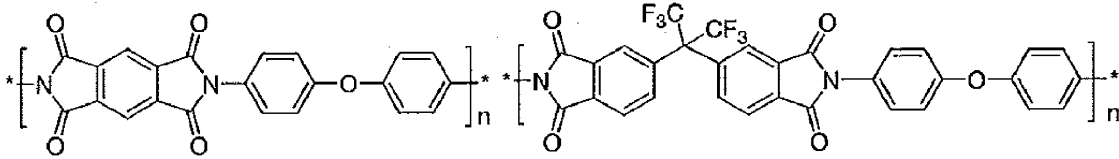
【化 4 8】



10



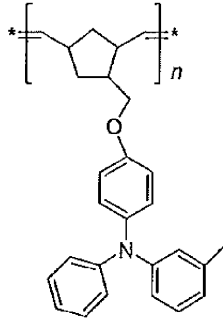
20



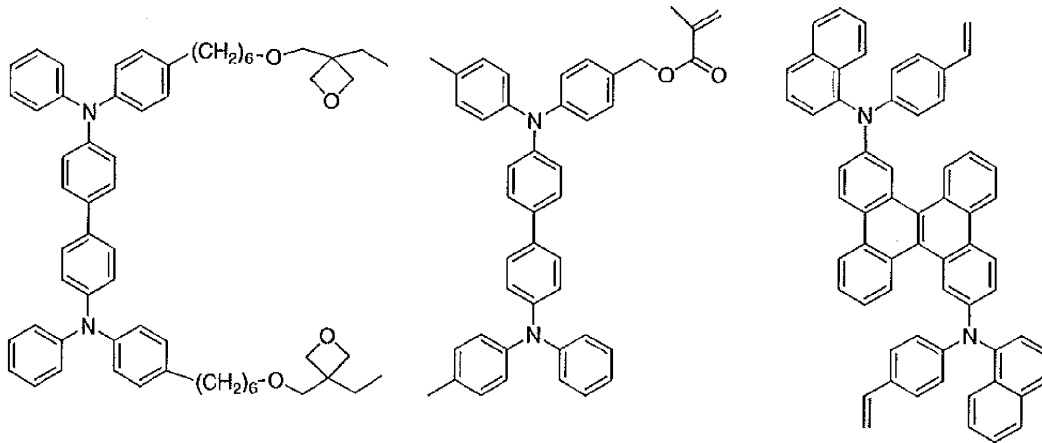
30

【 0 0 8 9 】

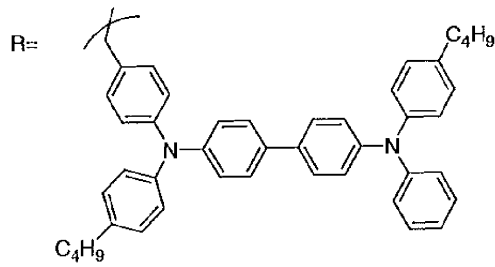
【化 4 9】



10



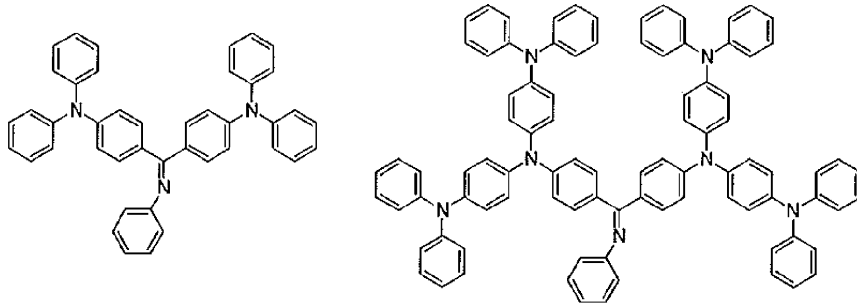
20



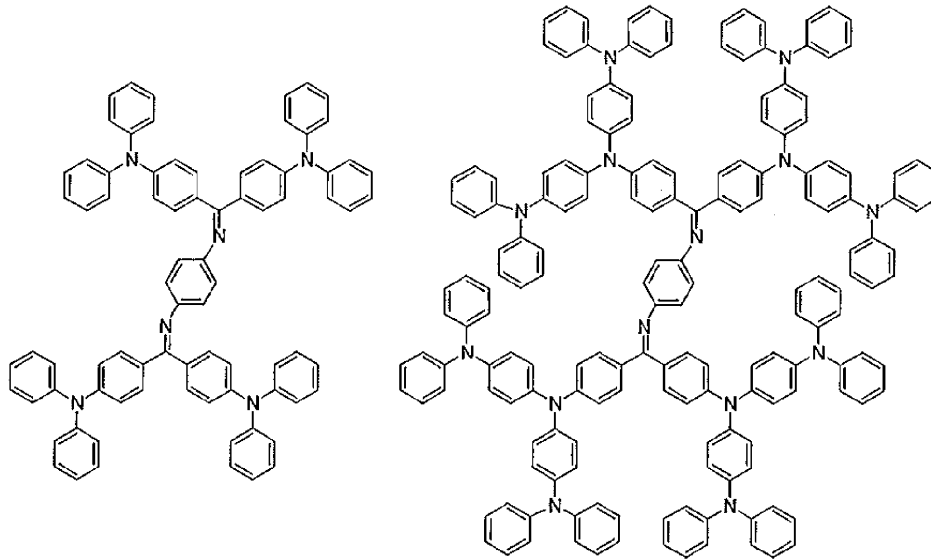
30

【 0 0 9 0 】

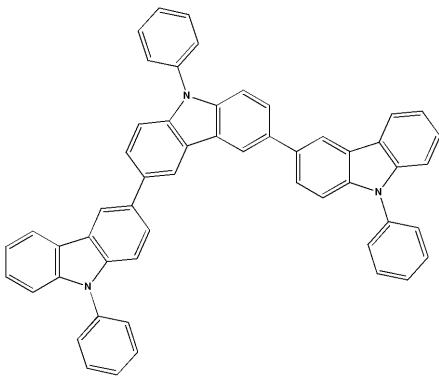
## 【化50】



10



20



30

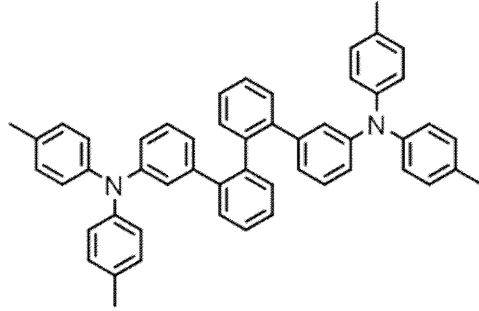
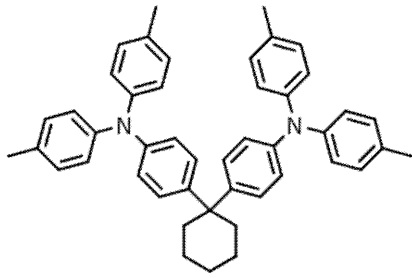
## 【0091】

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。

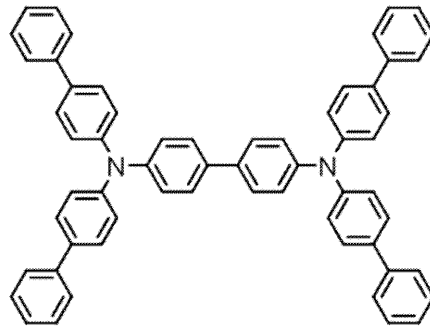
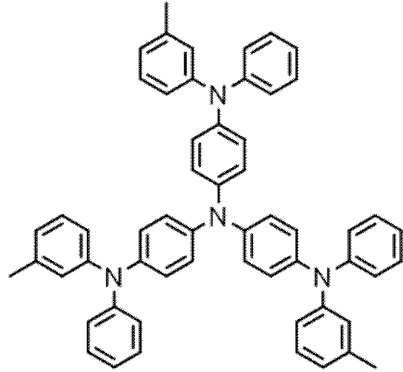
## 【0092】

40

【化 5 1】



10



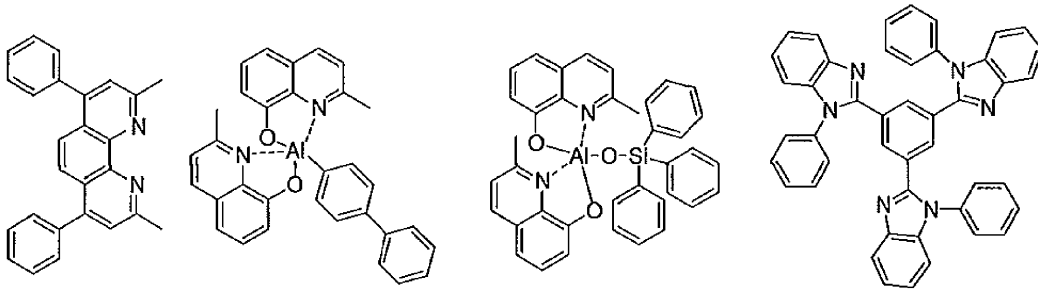
20

【 0 0 9 3 】

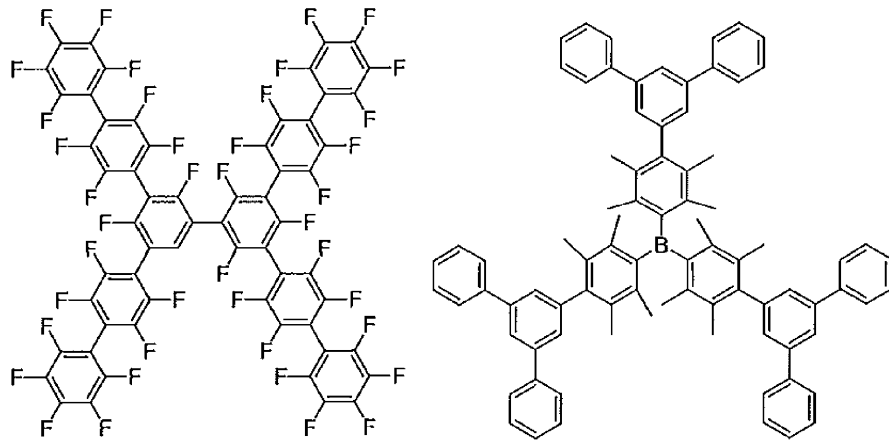
次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 9 4 】

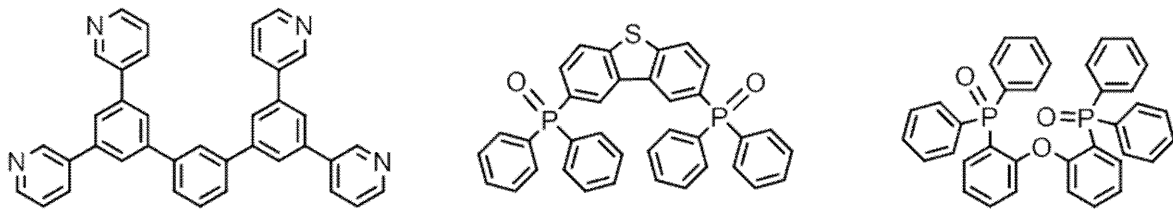
## 【化 5 2】



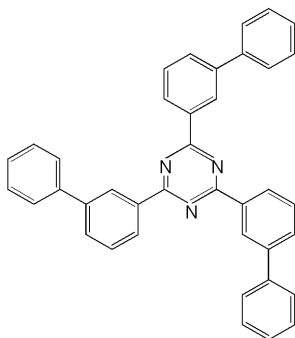
10



20



30



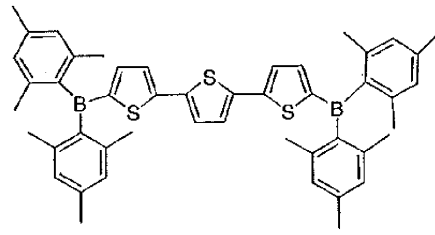
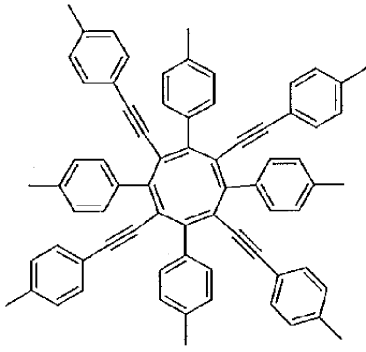
40

## 【0095】

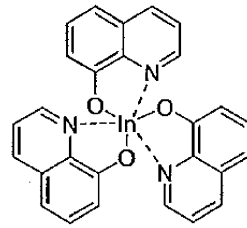
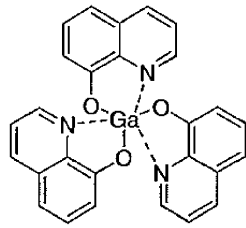
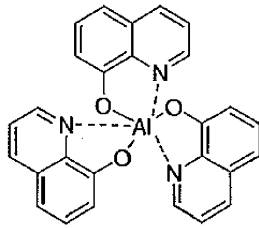
次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

## 【0096】

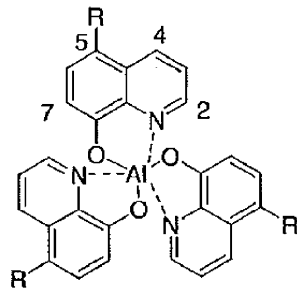
【化 5 3】



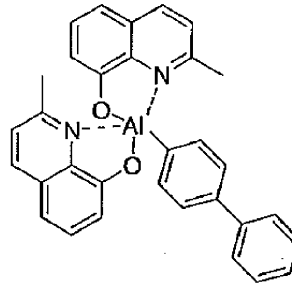
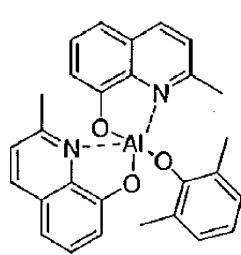
10



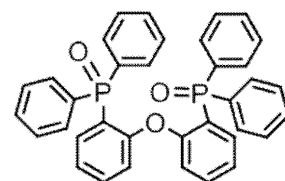
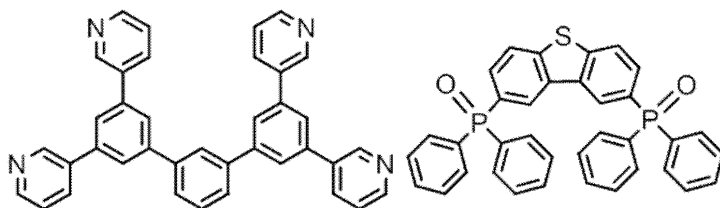
20



30

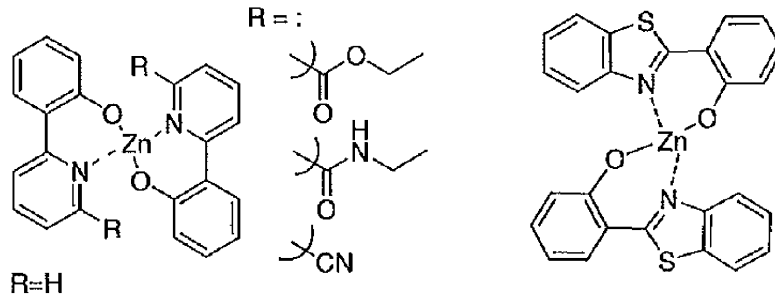


40

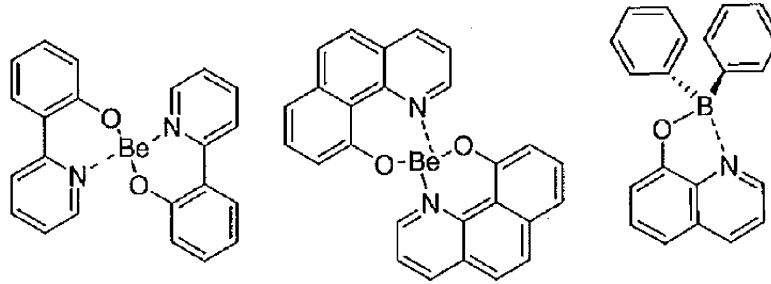


【 0 0 9 7 】

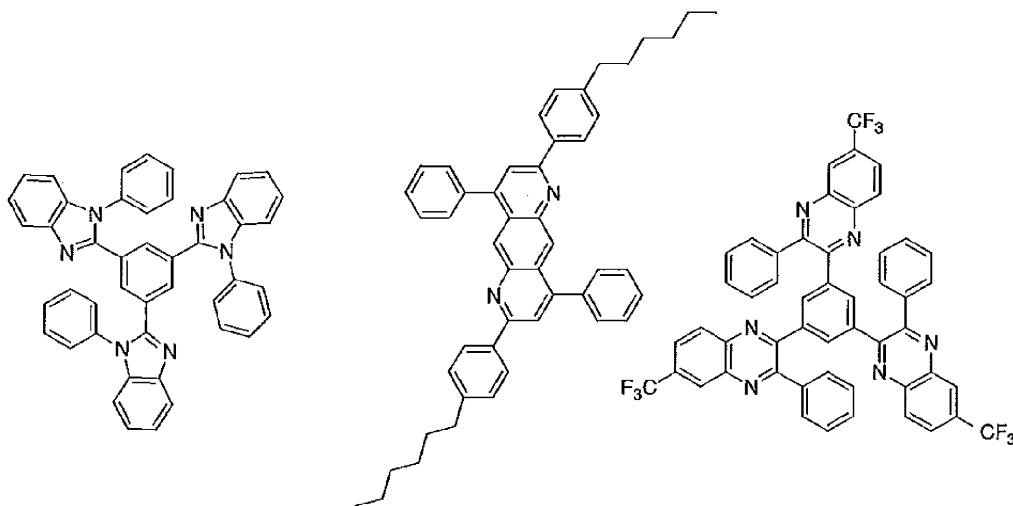
【化 5 4】



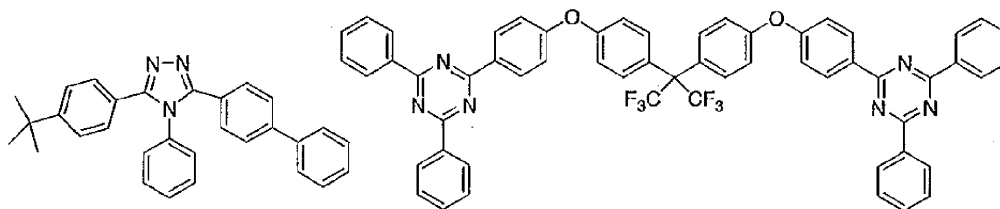
10



20



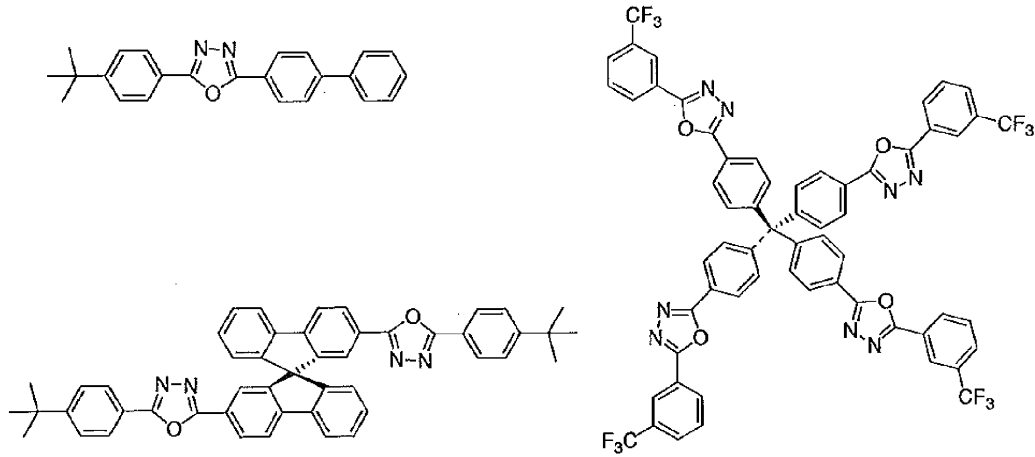
30



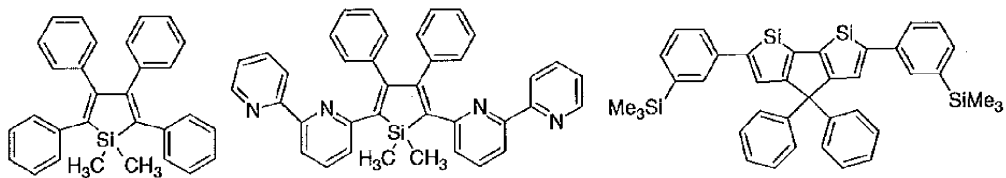
40

【 0 0 9 8 】

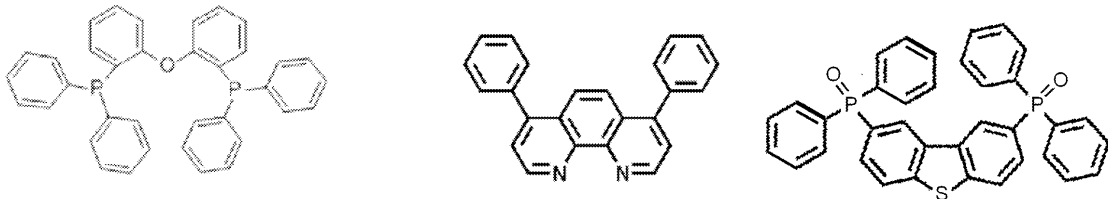
## 【化55】



10



20



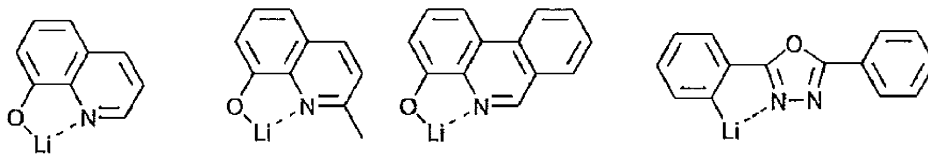
30

## 【0099】

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。

## 【0100】

## 【化56】



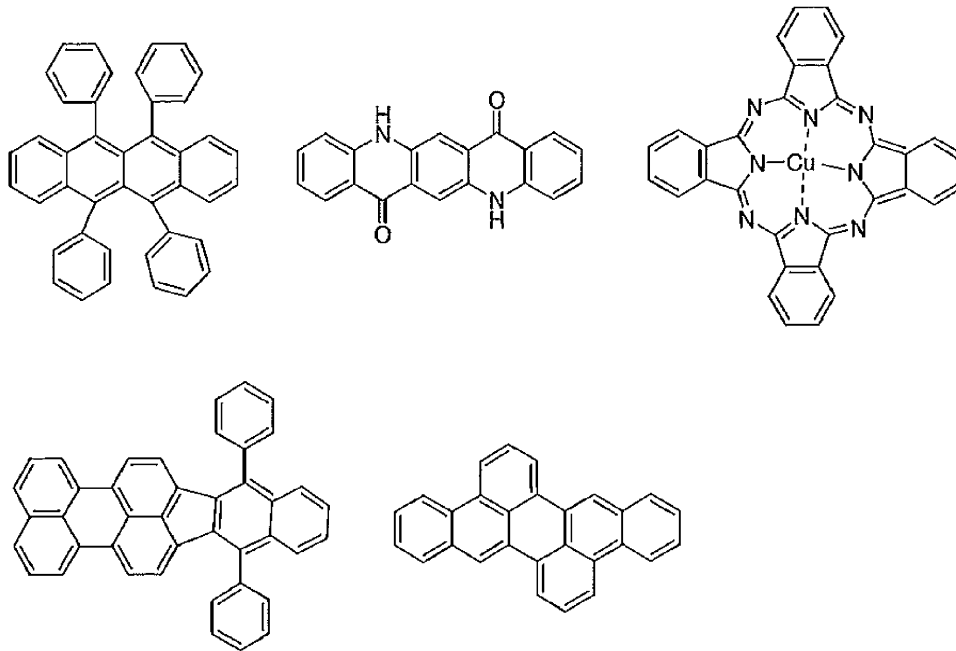
## 【0101】

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。

## 【0102】

40

## 【化 5 7】



10

## 【 0 1 0 3】

20

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

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

30

## 【 0 1 0 4】

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

40

## 【実施例】

## 【 0 1 0 5】

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。

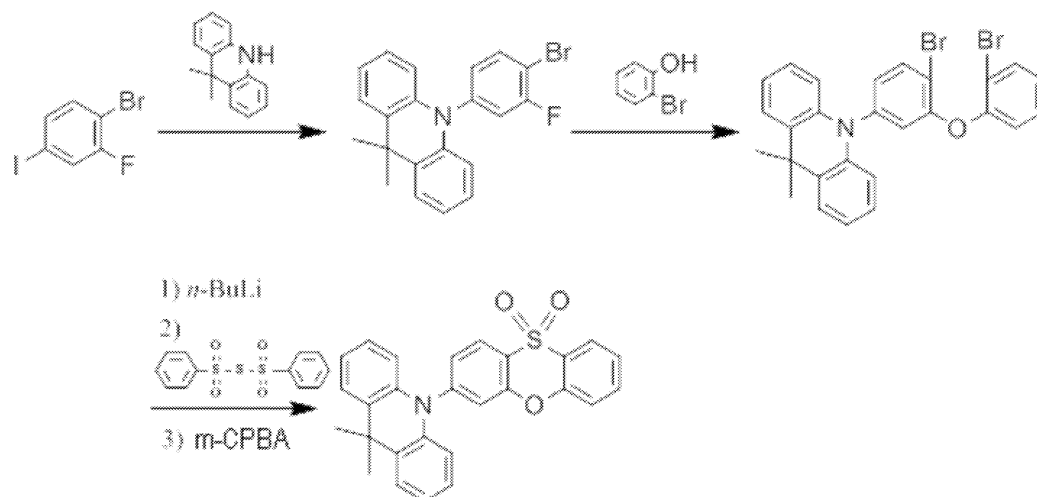
## 【 0 1 0 6】

## [化合物の合成]

(合成例 1) 化合物 1 の合成

50

## 【化58】



化合物1

10

## 【0107】

1. 1-ブロモ-2-フルオロ-4-アイオドベンゼン(24.1g, 0.08mol)と9H-アクリダン(16.7g, 0.08mol)とt-ブトキシド(11.5g, 0.12mol)とヨウ化銅(I)(0.3g 1.6mmol),を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、

trans-1,2-シクロヘキサンジアミン(0.96ml, 1.8mmol)と1,4-ジオキサン80mlを加え、120で24時間攪拌した後、水を加えてさらに30分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーにより精製し、10-(4-ブロモ-3-フルオロペニル)-9,9'-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリダン(収量22.02g)を得た(収率72.0%)。化合物の同定は<sup>1</sup>H-NMRより行った。

<sup>1</sup>H-NMR(500MHz, CDCl<sub>3</sub>, TMS, ) : 7.81(t, J = 8.5 Hz, 1H), 7.46(dd, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 7.16(dd, J = 9.0 Hz, 2.5 Hz, 1H), 7.06(dd, J = 8.5 Hz, 2.5 Hz, 1H), 7.02-6.94(m, 4H), 6.27(dd, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 2H), 1.67(s, 6H)。

## 【0108】

2. 10-(4-ブロモ-3-フルオロペニル)-9,9'-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリダン(19.11g, 0.06mol)と2-ブロモペニル(13.0g, 0.075mol)と炭酸カリウム(16.6g, 0.12mol)とトリエチレングリコールジメチルエーテル10mlを三口フラスコに入れ190で48時間攪拌した後、水を加えてさらに30分攪拌した。その後、この混合物にトルエンを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーにより精製し10-(4-ブロモ-3-(2-ブロモペニル)ペニル)-9,9'-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリダン(収量29.2g)を得た(収率91.0%)。化合物の同定は<sup>1</sup>H-NMRより行った。

<sup>1</sup>H-NMR(500MHz, CDCl<sub>3</sub>, TMS, ) : 7.89(d, J = 8.5 Hz, 1H), 7.59(dd, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.42(dd, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 7.28(td, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.01-6.97(m, 5H), 6.92(td, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 6.71(s, 1H), 6.28(dd, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 2H), 1.63(s, 6H)。

## 【0109】

50

10 - (4 - ブロモ - 3 - (2 - ブロモペノッシ) ペニル) - 9、9' ジメチル - 9、10 - ジヒドロアクリダン (1.61 g, 3.0 mmol) を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、テトラヒドロフラン (50 mL) を加えて10分間攪拌した。攪拌後、この溶液を -78 に冷却して20分攪拌した。攪拌後、n - ブチルリチウムヘキサン溶液 (3.75 mL, 6.0 mmol) をシリンジにより加え、-78 で時間攪拌した後、この溶液に硫化ビスフェニルスルホニル (0.99 g, 3.2 mmol) を加えた。この混合物を室温で24時間攪拌した後、水を加えてさらに30分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーすることにより精製し、精製した化合物を窒素置換した三口フラスコに入れ、ジクロロメタン 50 mL を加えた後、m - クロロ過安息香酸 (1.03 g, 6.0 mmol) を加えて、この混合物を室温で48時間攪拌した。その後、亜硫酸水素ナトリウム水溶液を加えてさらに30分攪拌して、混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーすることにより精製し、化合物 1 (0.68 g, 1.6 mmol) を得た (収率 51.7%)。化合物の同定は<sup>1</sup>H - NMR より行った。

10

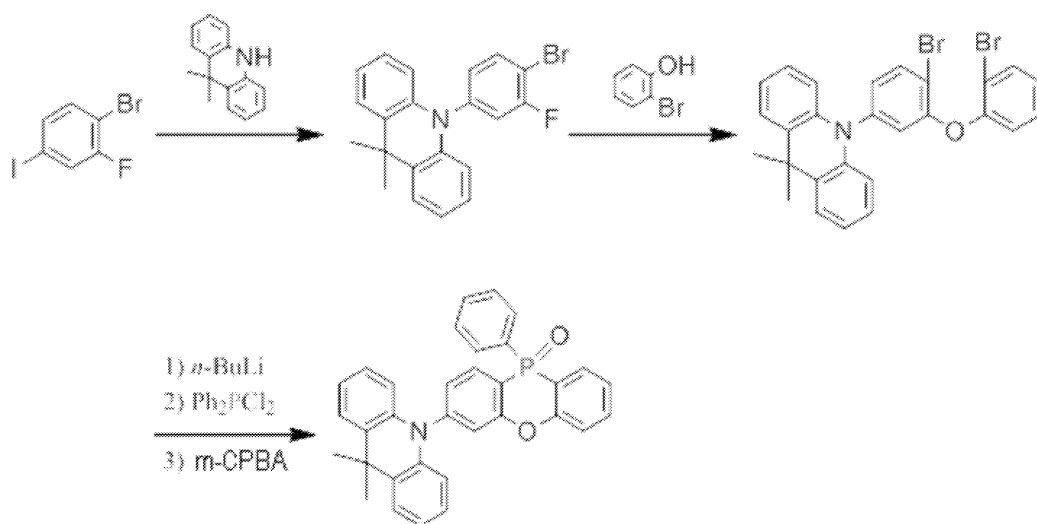
<sup>1</sup>H - NMR (500 MHz, CDCl<sub>3</sub>, TMS, ) : 8.24 (dd, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 1H), 8.11 (dd, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.67 (td, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.49 (dd, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 7.45 (t, J = 7.0 Hz, 1H), 7.42 - 7.38 (m, 3H), 7.09 - 7.02 (m, 4H), 6.50 (dd, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 2H), 1.67 (s, 6H) .

20

【0110】

(合成例2) 化合物2の合成

【化59】



30

化合物2

40

【0111】

合成例1で得た10 - (4 - ブロモ - 3 - (2 - ブロモペノッシ) ペニル) - 9、9' ジメチル - 9、10 - ジヒドロアクリダン (1.61 g, 3.0 mmol) を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、テトラヒドロフラン (50 mL) を加えて10分間攪拌した。攪拌後、この溶液を -78 に冷却して20分攪拌した。攪拌後、n - ブチルリチウムヘキサン溶液 (3.75 mL, 6.0 mmol) をシリンジにより加え、-78 で時間攪拌した後、この溶液にジクロロジフェニルシラン (0.41 mL, 3.3 mmol) を加えた。この混合物を室温で24時間攪拌した後、水を加えてさらに30分

50

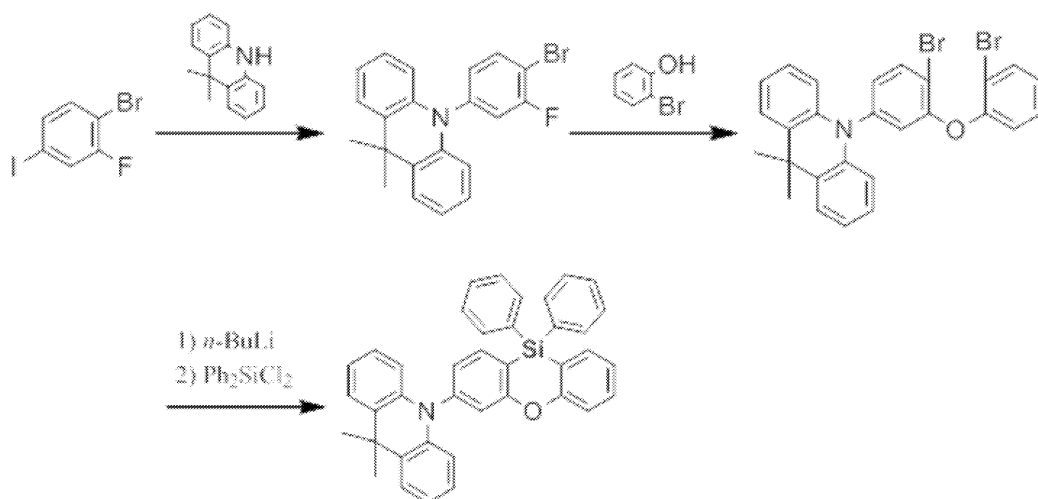
攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーすることにより精製し、精製した化合物を窒素置換した三口フラスコに入れ、ジクロロメタン 50 mL を加えた後、*m*-クロロ過安息香酸 (0.52 g, 3.0 mmol) を加えて、この混合物を室温で 48 時間攪拌した。その後、亜硫酸水素ナトリウム水溶液を加えてさらに 30 分攪拌して、混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーすることにより精製し化合物 2 (0.93 g, 1.9 mmol) を得た (収率 62.1%)。化合物の同定は<sup>1</sup>H-NMR より行った。

<sup>1</sup>H-NMR (500 MHz, DMSO, TMS, ) : 7.94 - 7.89 (m, 1H), 7.76 (td, J = 8.5 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.70 (td, J = 8.0 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.67 - 7.49 (m, 9H), 7.40 (t, J = 7.5 Hz, 1H), 7.34 (d, J = 8.0 Hz, 1H), 7.05 (td, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 6.98 (td, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 2H), 6.40 (dd, J = 8.0 Hz, 1.0 Hz, 2H), 1.62 (s, 6H) .

【0112】

(合成例 3) 化合物 3 の合成

【化 60】



化合物 3

【0113】

合成例 1 で得た 10-(4-ブromo-3-(2-ブromoペノッシ)ペニル)-9,9'-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリダン (1.61 g, 3.0 mmol) を三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、テトラヒドロフラン (50 mL) を加えて 10 分間攪拌した。攪拌後、この溶液を -78 に冷却して 20 分攪拌した。攪拌後、*n*-ブチルリチウムヘキサン溶液 (3.75 mL, 6.0 mmol) をシリンジにより加え、-78 で 時間攪拌した後、この溶液にジクロロジフェニルシラン (0.69 mL, 3.3 mmol) を加えた。この混合物を室温で 24 時間攪拌した後、水を加えてさらに 30 分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーすることにより精製し、化合物 3 (1.15 g, 2.1 mmol) を得た (収率 69.2%)。化合物の同定は<sup>1</sup>H-NMR より行った。

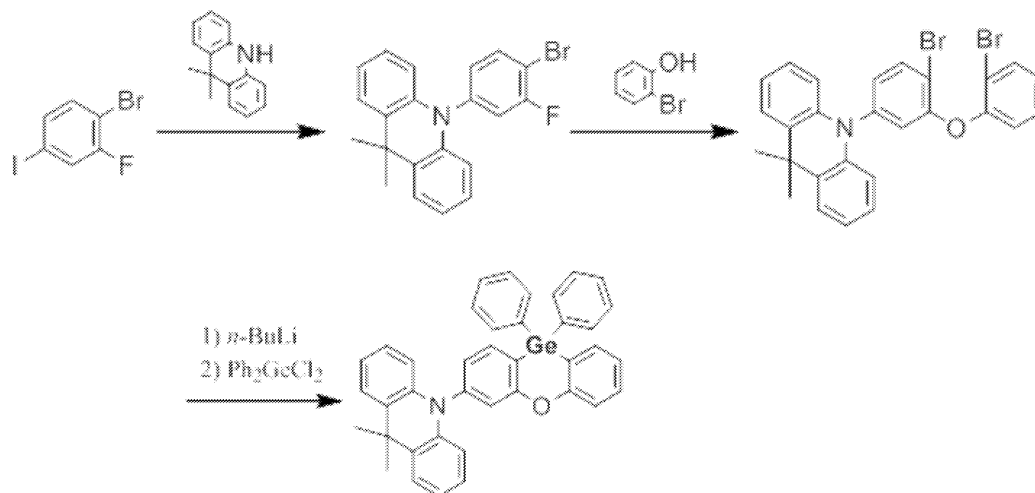
<sup>1</sup>H-NMR (500 MHz, CDCl<sub>3</sub>, TMS, ) : 7.82 (d, J = 7.5 Hz, 1H), 7.65 (dd, J = 7.5 Hz, 1.5 Hz, 4H), 7.61 (dd, J = 7.0 Hz, 1.5 Hz, 1H), 7.5 - 7.40 (m, 9H), 7.28 (s, 1H), 7.24 (d, J = 8.5 Hz, 1H), 7.17 (td, J = 7.5 Hz, 1.0

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

【 0 1 1 4 】

( 合成例 4 ) 化合物 4 の合成

【 化 6 1 】



化合物 4

10

20

【 0 1 1 5 】

合成例 1 で得た 10 - ( 4 - プロモ - 3 - ( 2 - プロモペノッシ ) ペニル ) - 9 , 9 ' ジメチル - 9 , 10 - ジヒドロアクリダン ( 1 . 6 1 g , 3 . 0 m m o l ) を三つ口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換し、テトラヒドロフラン ( 5 0 m L ) を加えて 1 0 分間攪拌した。攪拌後、この溶液を - 7 8 に冷却して 2 0 分攪拌した。攪拌後、*n*-ブチルリチウムヘキサン溶液 ( 3 . 7 5 m L , 6 . 0 m m o l ) をシリンジにより加え、- 7 8 で 時間攪拌した後、この溶液にジフェニルジクロロゲルマン ( 0 . 8 m l , 3 . 3 m m o l ) を加えた。この混合物を室温で 2 4 時間攪拌した後、水を加えてさらに 3 0 分攪拌した。その後、この混合物にクロロホルムを加えて抽出した。有機層と水層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥し、吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をカラムクロマトグラフィーすることにより精製し、化合物 4 ( 1 . 3 0 g , 2 . 1 m m o l ) を得た ( 収率 7 2 . 1 % ) 。化合物の同定は <sup>1</sup>H - NMR より行った。

30

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

40

【 0 1 1 6 】

[ 素子の作製と評価 ]

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

発光特性の評価は、ハイパフォーマンス紫外可視近赤外分光光度計 ( パーキンエルマー社製 : L a m b d a 9 5 0 ) 、蛍光分光光度計 ( 堀場製作所社製 : F l u o r o M a x - 4 ) 、絶対 P L 量子収率測定装置 ( 浜松ホトニクス社製 : C 1 1 3 4 7 ) 、ソースメータ ( ケースレー社製 : 2 4 0 0 シリーズ ) 、半導体パラメータ・アナライザ ( アジレント・

50

テクノロジー社製：E 5 2 7 3 A)、光パワーメータ測定装置(ニューポート社製：1 9 3 0 C)、光学分光器(オーシャン옵ティクス社製：U S B 2 0 0 0)、分光放射計(トプコン社製：S R - 3)およびストリークカメラ(浜松ホトニクス(株)製C 4 3 3 4型)を用いて行った。

#### 【0117】

また、各材料の一重項エネルギー( $E_{S_1}$ )と三重項エネルギー( $E_{T_1}$ )の差( $E_{ST}$ )は、一重項エネルギー( $E_{S_1}$ )と三重項エネルギーを以下の方法で算出し、 $E_{ST} = E_{S_1} - E_{T_1}$ により求めた。

##### (1) 一重項エネルギー $E_{S_1}$

測定対象化合物とmCPとを、測定対象化合物が濃度6重量%となるように共蒸着することでSi基板上に厚さ100nmの試料を作製した。常温(300K)でこの試料の蛍光スペクトルを測定した。励起光入射直後から入射後100ナノ秒までの発光を積算することで、縦軸を発光強度、横軸を波長の蛍光スペクトルを得た。蛍光スペクトルは、縦軸を発光、横軸を波長とした。この蛍光スペクトルの短波側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値  $edge [nm]$  を求めた。この波長値を次に示す換算式でエネルギー値に換算した値を  $E_{S_1}$  とした。

$$\text{換算式： } E_{S_1} [eV] = 1239.85 / edge$$

発光スペクトルの測定には、励起光源に窒素レーザー(Lasertechnik Berlin社製、MNL200)を検出器には、ストリークカメラ(浜松ホトニクス社製、C4334)を用いた。

##### (2) 三重項エネルギー $E_{T_1}$

一重項エネルギー  $E_{S_1}$  と同じ試料を5[K]に冷却し、励起光(337nm)を燐光測定用試料に照射し、ストリークカメラを用いて、燐光強度を測定した。励起光入射後1ミリ秒から入射後10ミリ秒の発光を積算することで、縦軸を発光強度、横軸を波長の燐光スペクトルを得た。この燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値  $edge [nm]$  を求めた。この波長値を次に示す換算式でエネルギー値に換算した値を  $E_{T_1}$  とした。

$$\text{換算式： } E_{T_1} [eV] = 1239.85 / edge$$

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

なお、スペクトルの最大ピーク強度の10%以下のピーク強度をもつ極大点は、上述の最も短波長側の極大値には含めず、最も短波長側の極大値に最も近い、傾きの値が極大値をとる点において引いた接線を当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とした。

#### 【0118】

##### (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雰囲気グローブボックス中で化合物1のトルエン溶液(濃度 $10^{-4} mol/L$ )を調製した。

また、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 $10^{-4} Pa$ 以下の条件にて化合物1の薄膜を60nmの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

化合物1のトルエン溶液について295nm励起光による発光スペクトルを測定した結果を図2に示し、化合物1の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について285nm励起光による発光スペクトルを測定した結果を図3に示す。

フォトルミネッセンス量子効率、空気バブリングしたトルエン溶液で21.3%、窒素バブリングしたトルエン溶液で47.7%、化合物1の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で100%であった。

10

20

30

40

50

また、化合物 1 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を図 4 に示す。図 4 から、一重項励起状態のエネルギー  $S_1$  は  $3.02 \text{ eV}$ 、三重項励起状態のエネルギー  $T_1$  は  $2.96 \text{ eV}$  であり、 $E_{S_T}$  は  $0.06 \text{ eV}$  であった。

また、化合物 1 のトルエン溶液の過渡減衰曲線（励起光波長： $280 \text{ nm}$ ）を図 5 に示す。この過渡減衰曲線は、化合物に励起光を当てて発光強度が失活してゆく過程を測定した発光寿命測定結果を示すものである。通常の一成分の発光（蛍光もしくはリン光）では発光強度は単一指数関数的に減衰する。これは、グラフの縦軸がセミ log である場合には、直線的に減衰することを意味している。図 5 に示す化合物 1 の過渡減衰曲線では、観測初期にこのような直線的成分（蛍光）が観測されているが、数  $\mu$  秒以降には直線性から外れる成分が現れている。これは遅延成分の発光であり、初期の成分と加算される信号は、長時間側に裾をひくゆるい曲線になる。このように発光寿命を測定することによって、化合物 1 は蛍光成分のほかに遅延成分を含む発光体であることが確認された。

さらに、化合物 1 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の  $300 \text{ K}$ 、 $250 \text{ K}$ 、 $200 \text{ K}$ 、 $150 \text{ K}$ 、 $100 \text{ K}$ 、 $50 \text{ K}$ 、 $5 \text{ K}$  の各温度における過渡減衰曲線（励起光波長： $355 \text{ nm}$ ）を図 6 に示す。図 6 より、温度上昇に伴って遅延蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。

#### 【0119】

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

化合物 1 のかわりに化合物 2 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 2 のトルエン溶液および化合物 2 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を作製した。

化合物 2 のトルエン溶液について  $295 \text{ nm}$  励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 7 に示し、化合物 2 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について  $285 \text{ nm}$  励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 8 に示す。

フォトルミネッセンス量子効率、空気パブリングしたトルエン溶液で  $20.0\%$ 、窒素パブリングしたトルエン溶液で  $37.3\%$ 、化合物 2 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で  $33.5\%$  であった。

また、化合物 2 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を図 9 に示す。図 9 から、一重項励起状態のエネルギー  $S_1$  は  $3.11 \text{ eV}$ 、三重項励起状態のエネルギー  $T_1$  は  $3.08 \text{ eV}$  であり、 $E_{S_T}$  は  $0.03 \text{ eV}$  であった。

また、化合物 2 のトルエン溶液の過渡減衰曲線（励起光波長： $280 \text{ nm}$ ）を図 10 に示す。さらに、化合物 2 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の  $300 \text{ K}$ 、 $250 \text{ K}$ 、 $200 \text{ K}$ 、 $150 \text{ K}$ 、 $100 \text{ K}$ 、 $50 \text{ K}$ 、 $5 \text{ K}$  の各温度における過渡減衰曲線（励起光波長： $355 \text{ nm}$ ）を図 11 に示す。図 11 より、温度上昇に伴って遅延蛍光成分が増加する熱活性型の遅延蛍光であることが確認された。

#### 【0120】

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

化合物 1 のかわりに化合物 3 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 3 のトルエン溶液および化合物 3 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を作製した。

化合物 3 のトルエン溶液について  $295 \text{ nm}$  励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 12 に示し、化合物 3 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について  $290 \text{ nm}$  励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 13 に示す。

フォトルミネッセンス量子効率、空気パブリングしたトルエン溶液で  $9.3\%$ 、窒素パブリングしたトルエン溶液で  $12.6\%$ 、化合物 3 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で  $6.4\%$  であった。

また、化合物 3 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を図 14 に示す。図 14 から、一重項励起状態のエネルギー  $S_1$  は  $3.49 \text{ eV}$ 、三重項励起状態のエネルギー  $T_1$  は  $3.42 \text{ eV}$  であり、 $E_{S_T}$  は  $0.07 \text{ eV}$  であった。

10

20

30

40

50

また、化合物 3 のトルエン溶液の過渡減衰曲線（励起光波長：280 nm）を図 15 に示す。図 15 より、化合物 3 の遅延蛍光の放射を確認することができた。

【0121】

（実施例 4） 化合物 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 のかわりに化合物 4 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 4 のトルエン溶液および化合物 4 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子を作製した。

化合物 4 のトルエン溶液について 295 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 16 に示し、化合物 4 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子について 290 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 17 に示す。

フォトルミネッセンス量子効率、空気パブリングしたトルエン溶液で 7.8%、窒素パブリングしたトルエン溶液で 9.8%、化合物 4 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 9.5% であった。

また、化合物 4 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルの温度依存特性を図 18 に示す。図 18 から、一重項励起状態のエネルギー  $S_1$  は 3.46 eV、三重項励起状態のエネルギー  $T_1$  は 3.40 eV であり、 $E_{S_T}$  は 0.06 eV であった。

また、化合物 4 のトルエン溶液の過渡減衰曲線（励起光波長：280 nm）を図 19 に示す。図 19 より、化合物 4 の遅延蛍光の放射を確認することができた。

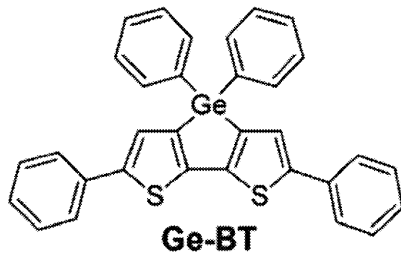
【0122】

（比較例 1） 比較化合物を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

Ar 雰囲気グローブボックス中で下記の比較化合物 Ge-BT のジクロロメタン溶液（濃度  $10^{-4}$  mol/L）を調製した。

比較化合物のジクロロメタン溶液について 295 nm 励起光による発光スペクトルを測定した結果を図 20 に示す。また、比較化合物のジクロロメタン溶液の過渡減衰曲線（励起光波長：280 nm）を図 21 に示す。図 21 より、比較化合物の遅延蛍光の放射は確認することができなかった。

【化 6 2】



【産業上の利用可能性】

【0123】

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

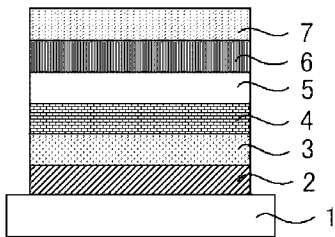
【符号の説明】

【0124】

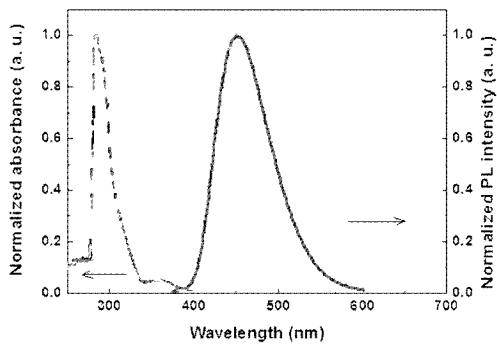
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層

7 陰極

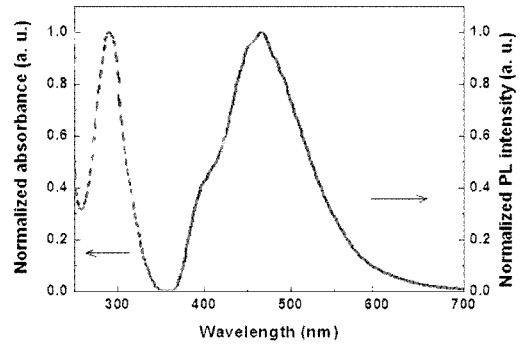
【 図 1 】



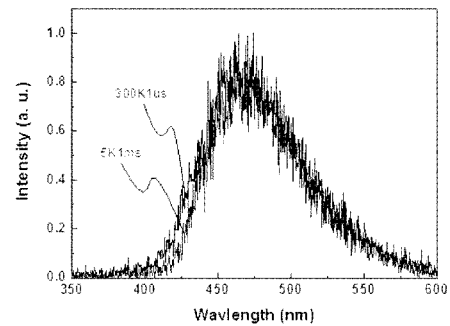
【 図 2 】



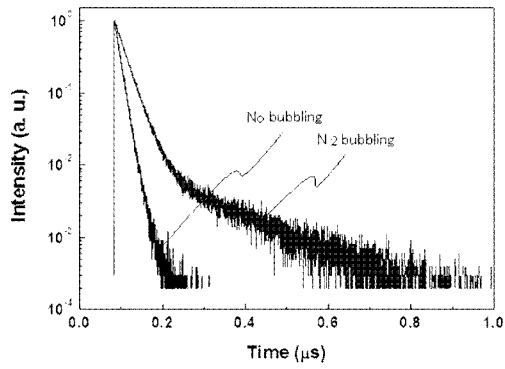
【 図 3 】



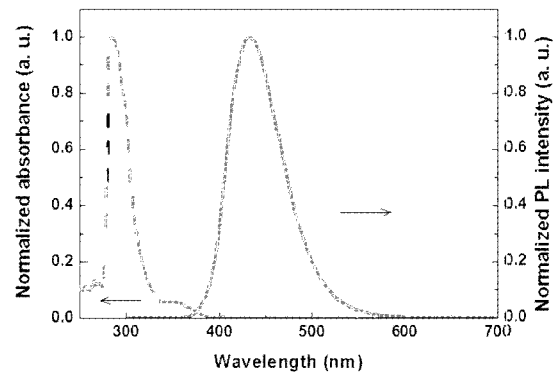
【 図 4 】



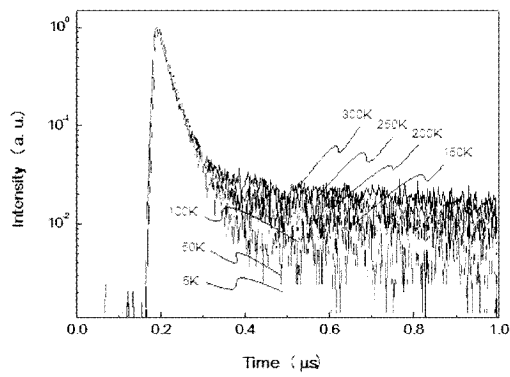
【 5 】



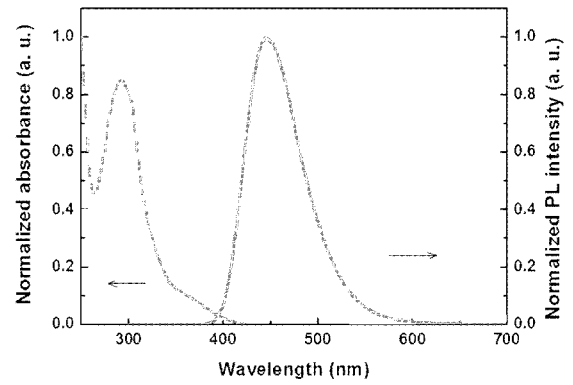
【 7 】



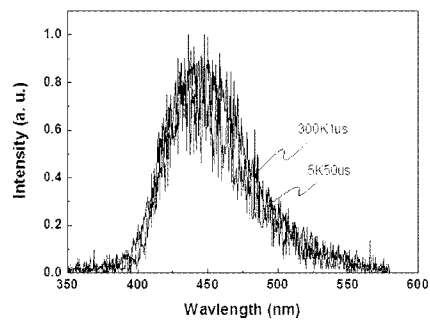
【 6 】



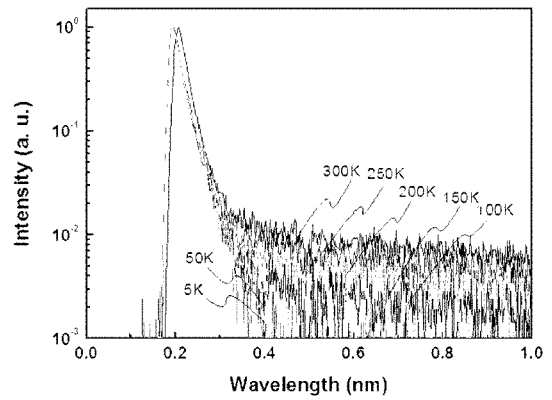
【 8 】



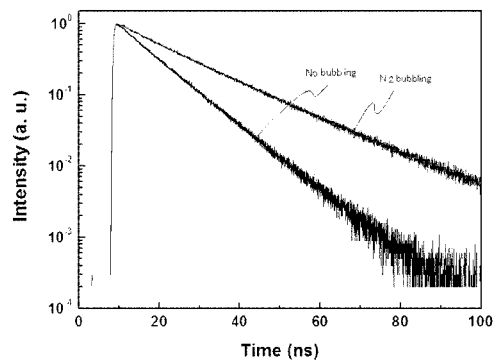
【 9 】



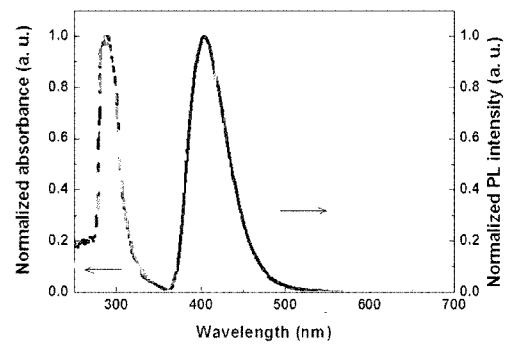
【 11 】



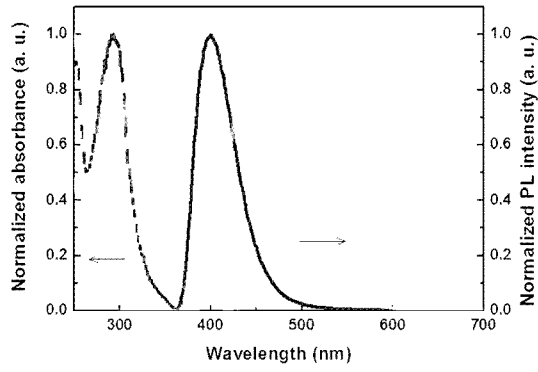
【 10 】



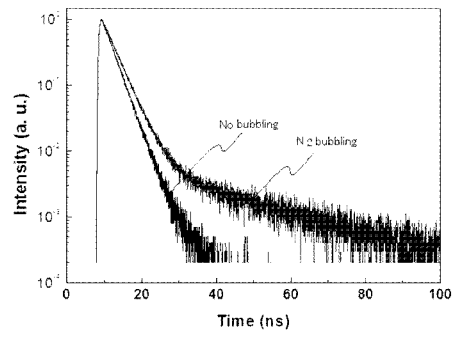
【 12 】



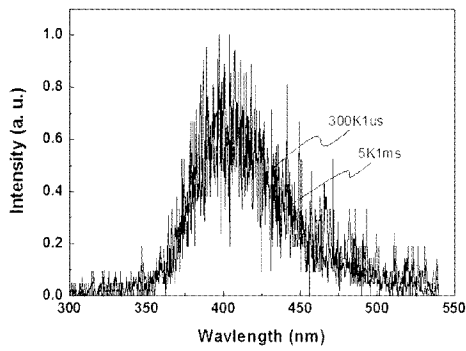
【 図 1 3 】



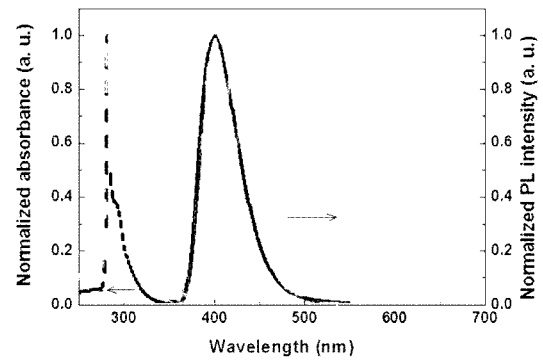
【 図 1 5 】



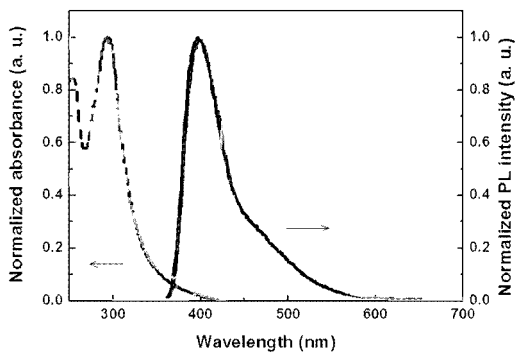
【 図 1 4 】



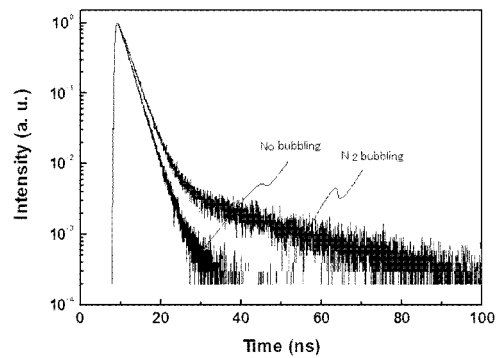
【 図 1 6 】



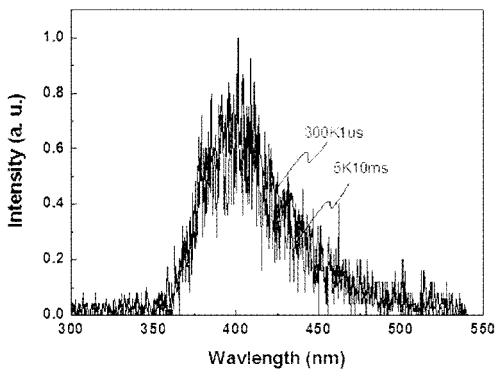
【 図 1 7 】



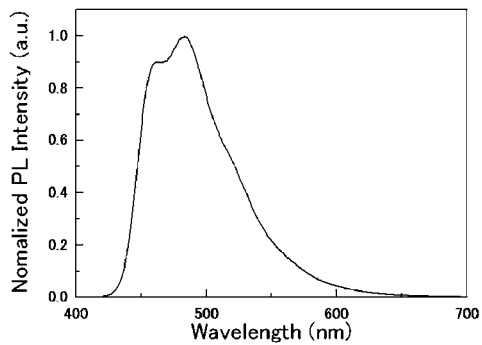
【 図 1 9 】



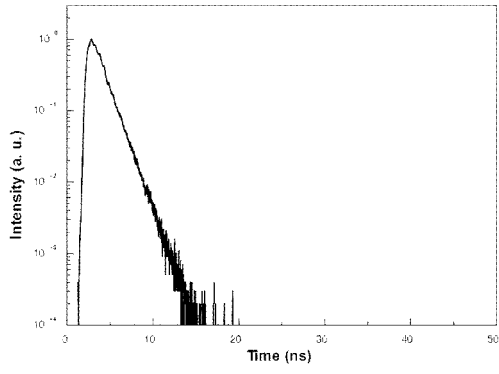
【 図 1 8 】



【 図 2 0 】



【 図 2 1 】



## 【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2014/081320
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> C09K11/06(2006.01)i, C07D411/04(2006.01)i, C07F7/10(2006.01)i, C07F7/30(2006.01)i, C07F9/53(2006.01)i  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C09K11/06, C07D411/04, C07F7/10, C07F7/30, C07F9/53  Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2015 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2015 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2015  Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 7-109449 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 25 April 1995 (25.04.1995), claims; examples 1, 4, 5; compounds (1), (2), (23), (26) (Family: none)	1-6, 10-15 7-9
X A	JP 2006-083167 A (Chemipro Kasei Kaisha, Ltd.), 30 March 2006 (30.03.2006), claims; synthesis examples 1 to 7 (Family: none)	15 1-14
P,X P,A	WO 2014/071836 A1 (Technical Institute of Physics and Chemistry, CAS), 15 May 2014 (15.05.2014), claims; example 46(compound 46) & CN 103804346 A & CN 104003974 A	15 1-14
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 04 February 2015 (04.02.15)		Date of mailing of the international search report 17 February 2015 (17.02.15)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2014/081320

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2012-138585 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 19 July 2012 (19.07.2012), claims; examples 1 to 6 & JP 5157442 B2 & US 2009/0066226 A1 & GB 2439030 A & WO 2006/114966 A1	1-15
A	JP 2013-075890 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 25 April 2013 (25.04.2013), claims; examples 1 to 12 (Family: none)	1-15
A	JP 2010-525017 A (BASF SE), 22 July 2010 (22.07.2010), claims; examples & US 2010/0187980 A1 & EP 2150556 A1 & WO 2008/132085 A1 & DE 502008002309 D & CN 101687893 A & KR 10-2010-0017417 A & AT 495181 T	1-15

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 8 1 3 2 0	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C09K11/06(2006.01)i, C07D411/04(2006.01)i, C07F7/10(2006.01)i, C07F7/30(2006.01)i, C07F9/53(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C09K11/06, C07D411/04, C07F7/10, C07F7/30, C07F9/53			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2015年 日本国実用新案登録公報 1996-2015年 日本国登録実用新案公報 1994-2015年			
国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAplus/REGISTRY (STN)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	
X A	JP 7-109449 A (東洋インキ製造株式会社) 1995.04.25, 特許請求の 範囲、実施例1、4、5及び化合物(1)、(2)、(23)、(26) (フ ァミリーなし)	1-6, 10-15 7-9	
X A	JP 2006-083167 A (ケミプロ化成株式会社) 2006.03.30, 特許請求 の範囲及び合成例1-7 (ファミリーなし)	15 1-14	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献	
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの		「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの		「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)		「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献	
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願			
国際調査を完了した日 04.02.2015		国際調査報告の発送日 17.02.2015	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 内藤 康彰	4 V 4 8 6 4
		電話番号 03-3581-1101 内線 3483	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 8 1 3 2 0
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
PX PA	WO 2014/071836 A1 (中国科学院理化技術研究所) 2014.05.15, 特許請求の範囲及び実施例46 (化合物46) & CN 103804346 A & CN 104003974 A	15 1-14
A	JP 2012-138585 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2012.07.19, 特許請求の範囲及び実施例1-6 & JP 5157442 B2 & US 2009/0066226 A1 & GB 2439030 A & WO 2006/114966 A1	1-15
A	JP 2013-075890 A (出光興産株式会社) 2013.04.25, 特許請求の範囲及び実施例1-12 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2010-525017 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ) 2010.07.22, 特許請求の範囲及び実施例 & US 2010/0187980 A1 & EP 2150556 A1 & WO 2008/132085 A1 & DE 502008002309 D & CN 101687893 A & KR 10-2010-0017417 A & AT 495181 T	1-15

## フロントページの続き

(51) Int. Cl. F I テーマコード (参考)  
**H 0 1 L 51/50 (2006.01) H 0 5 B 33/14 B**

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(72) 発明者 パク インソブ  
 福岡県福岡市東区箱崎六丁目 1 0 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 1 0 番 1 号 国立大学法人九州大学内

F ターム (参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 CC04 CC45 DD53 DD59 DD66  
 4C063 AA01 BB02 CC87 DD16 EE10  
 4H049 VN01 VN02 VP01 VQ88 VR24 VU29  
 4H050 AA01 AA03 AB92

(注) この公表は、国際事務局 (W I P O) により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願 (日本語実用新案登録出願) の国際公開の効果は、特許法第 1 8 4 条の 1 0 第 1 項 (実用新案法第 4 8 条の 1 3 第 2 項) により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

专利名称(译)	发光材料，有机发光元件和化合物		
公开(公告)号	<a href="#">JPWO2015080182A1</a>	公开(公告)日	2017-03-16
申请号	JP2015550975	申请日	2014-11-27
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社KYULUX		
申请(专利权)人(译)	株式会社KYULUX		
[标]发明人	イセヨン 安田琢麿 沼田真樹 パクインソブ 安達千波矢		
发明人	イセヨン 安田琢麿 沼田真樹 パクインソブ 安達千波矢		
IPC分类号	C09K11/06 C07F9/6571 C07F7/08 C07F7/30 C07D411/04 H01L51/50		
CPC分类号	C07D411/04 C07F3/003 C07F5/003 C07F5/02 C07F5/069 C07F7/0805 C07F7/0807 C07F7/0812 C07F7/0816 C07F7/12 C07F7/1804 C07F7/2208 C07F7/30 C07F9/65685 C07F19/00 C09K11/06 C09K2211/188		
FI分类号	C09K11/06.630 C07F9/6571.CSP C07F7/08.S C07F7/30.Z C07D411/04 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/CC04 3K107/CC45 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD66 4C063/AA01 4C063/BB02 4C063/CC87 4C063/DD16 4C063/EE10 4H049/VN01 4H049/VN02 4H049/VP01 4H049/VQ88 4H049/VR24 4H049/VU29 4H050/AA01 4H050/AA03 4H050/AB92		
优先权	2013246519 2013-11-28 JP		
其他公开文献	JP6530318B2 JPWO2015080182A5		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

通式(1)表示的化合物可用作发光材料。X是SO<sub>2</sub>，P(=O)(Ar<sub>1</sub>)，Ge(Ar<sub>2</sub>)(Ar<sub>3</sub>>)，Si(Ar<sub>4</sub>)(Ar<sub>5</sub>)或Sn(Ar<sub>6</sub>)(Ar<sub>7</sub>)。Ar<sub>1</sub>至Ar<sub>7</sub>分别独立地表示取代或未取代的芳基。Y是O，S，SO<sub>2</sub>，N(R<sub>71</sub>)，C(R<sub>72</sub>)(R<sub>73</sub>>)。R<sub>1</sub>至R<sub>8</sub>和R<sub>71</sub>至R<sub>73</sub>各自独立地表示氢原子或取代基。但是，R<sub>1</sub>至R<sub>8</sub>中的至少一个是由以下通式(2)等表示的基团。L<sub>12</sub>表示单键或取代或未取代的亚芳基，\*表示通式(1)中与苯环的键合部位。R<sub>11</sub>至R<sub>20</sub>表示氢原子或取代基。

