

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷

C07D403/14

H05B 33/14

//(C07D403/14, 209 : 82,

271 : 06, 271 : 06)



[12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 200410078016.0

[43] 公开日 2005 年 5 月 18 日

[11] 公开号 CN 1616458A

[22] 申请日 2004. 9. 16

[21] 申请号 200410078016.0

[30] 优先权

[32] 2003. 9. 22 [33] JP [31] 2003 - 330594

[32] 2004. 6. 28 [33] JP [31] 2004 - 190451

[71] 申请人 广濑工程股份有限公司

地址 日本东京都

[72] 发明人 仲矢忠雄 松本良二 石飞达郎

[74] 专利代理机构 北京集佳知识产权代理有限公司

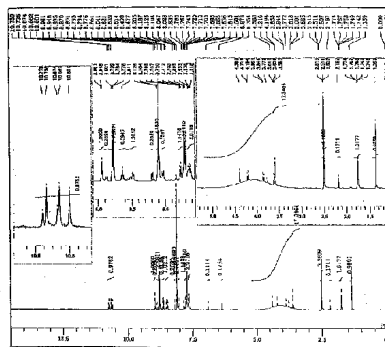
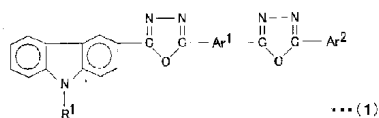
代理人 王学强

权利要求书 3 页 说明书 44 页 附图 42 页

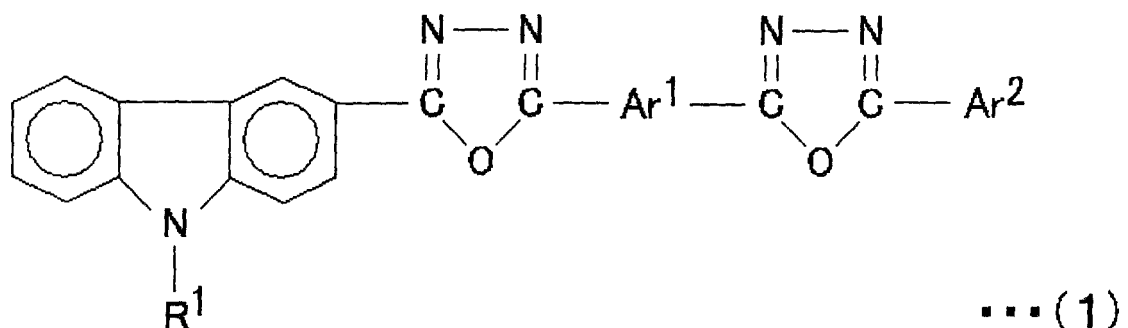
[54] 发明名称 发光化合物及发光元件

[57] 摘要

本发明的课题为提供可以发出白色光的、例如可以用于有机 EL 元件的、单一化合物的白色发光化合物、白色发光聚合物以及利用这些物质的白色发光元件。解决上述课题的本发明中的第一种方法,其特征为以具有上述分子式(1)表示的结构白色发光化合物。

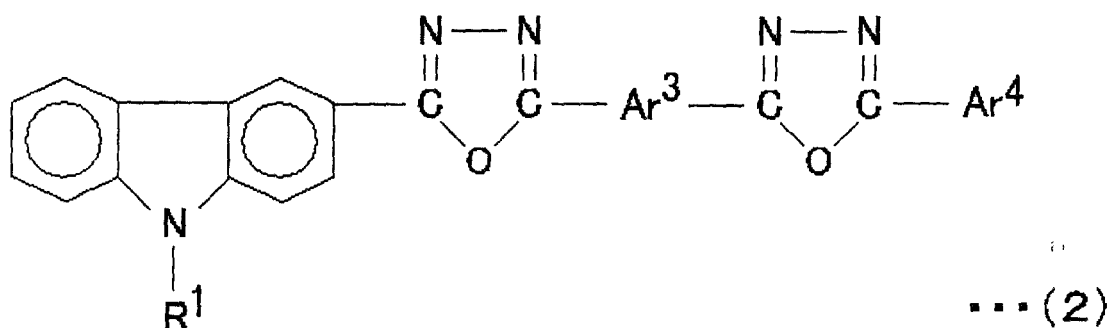


1.一种发光化合物，其特征为具有下述分子式（1）表示的结构：

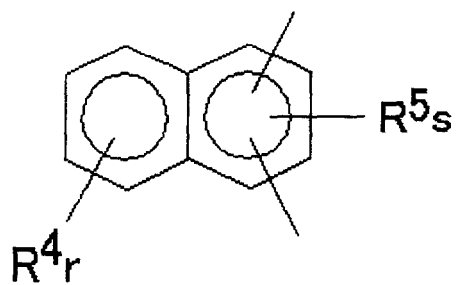


（分子式中， R^1 表示氢原子、乙烯基、芳基或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基， Ar^1 表示在芳香族碳氢化物的环中结合的氢原子解离了 2 个而生成的基， Ar^2 表示芳基。）

2.一种发光化合物，其特征为具有下述分子式（2）表示的结构：

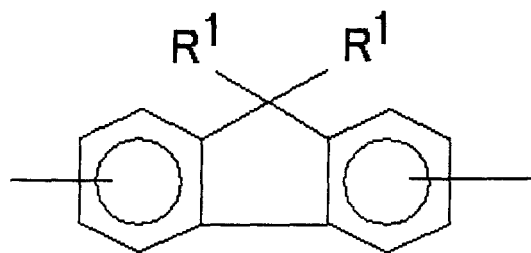


（分子式中， R^1 表示与上述申请专利范围第 1 项中的 R^1 相同的含义， Ar^3 表示下述分子式（2-1）或者（2-2）表示的置换基， Ar^4 表示下述分子式（2-3）或者（2-4）表示的芳基）



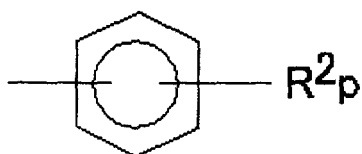
... (2-1)

(分子式中, R^4 及 R^5 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基, r 表示 1~4 的整数, s 表示 1 或者 2 的整数, 而且, R^4 及 R^5 既可以相同, 也可以不同, r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同; s 个 R^5 既可以相同, 也可以不同)



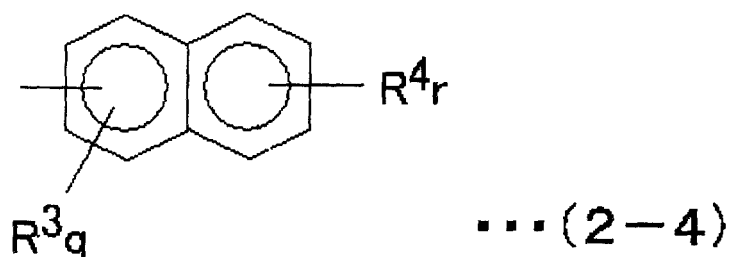
... (2-2)

(分子式中, R^1 表示与上述的 R^1 相同的含义, 两个 R^1 既可以相同, 也可以不同)



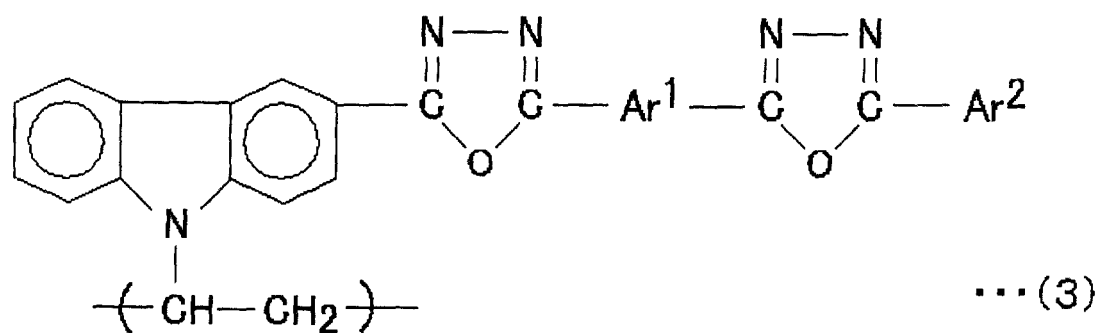
... (2-3)

(分子式中, R^2 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基, p 表示 1~5 的整数, 而且, p 个 R^2 既可以相同, 也可以不同)



(分子式中, R^3 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基, q 表示 1~3 的整数, R^4 及 r 表示与上述的 R^4 及 r 相同的含义, 而且, q 个 R^3 既可以相同, 也可以不同; r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同。)

3. 一种发光化合物, 其特征为具有下述分子式 (3) 表示的重复单元:



(分子式中, Ar^1 及 Ar^2 表示与上述权利要求 1 中的 Ar^1 及 Ar^2 相同的含义。)

4. 一种发光元件, 其特征为该发光元件由在一对电极之间, 设置了含有上述分子式 (1)、(2)、或者 (3) 表示的发光化合物的发光层构成的。

发光化合物及发光元件

技术领域

此发明为关于发光化合物及发光元件的发明，进一步详细说明为：关于发光化合物、以及利用该化合物的发光元件的发明，如果向该发光化合物施加电子能量，可以发出高亮度的光，且具有耐久性。

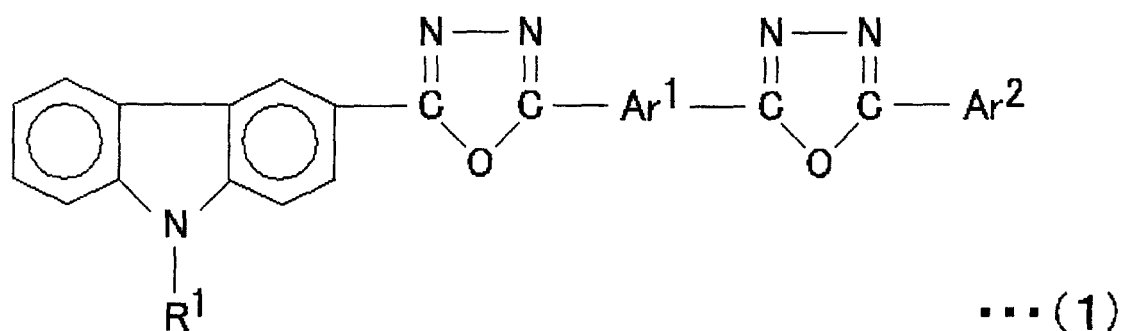
背景技术

以前，一直未找到通过施加能量可以发出高亮度的光的有机化合物。而且，也未发现在发出高亮度、高纯度的光的同时，具有牢固性的有机化合物。

发明内容

所以，本发明的目的在于提供发出高纯度颜色的高亮度的光、还具有耐久性的有机化合物。本发明的其他目的在于提供具有发出高纯度颜色的高亮度的光的同时，具有牢固性的发光元件。

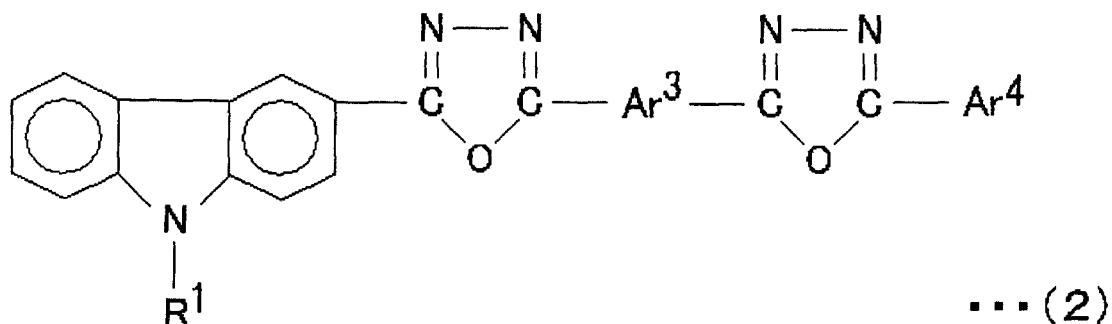
本发明中的解决上述课题的第一种方法为以具有下述分子式(1)表示的结构为特征的发光化合物。



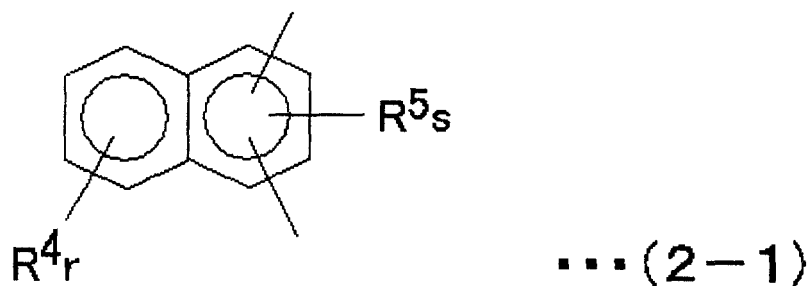
(分子式中， R^1 表示氢原子、乙烯基、芳基或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基， Ar^1 表示在芳香族碳氢化物的环中结合的氢原

子解离 2 个而生成的基, Ar^2 表示芳基。)

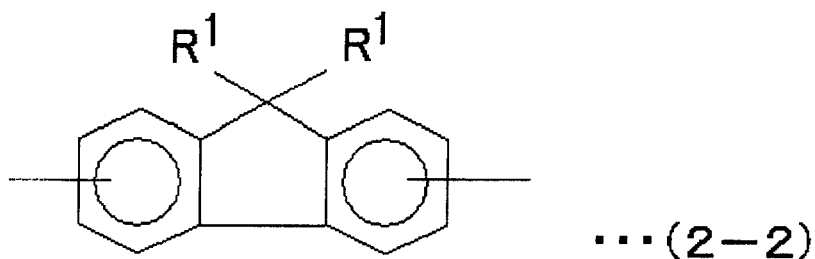
本发明中的解决上述课题的第二种方法为以具有下述分子式 (2) 表示的结构为特征的发光化合物。



(分子式中, R^1 表示与上述申请第 1 种方法中的 R^1 相同的含义, Ar^3 表示下述分子式 (2-1) 或者 (2-2) 表示的置换基, Ar^4 表示下述分子式 (2-3) 或者 (2-4) 表示的芳基。)



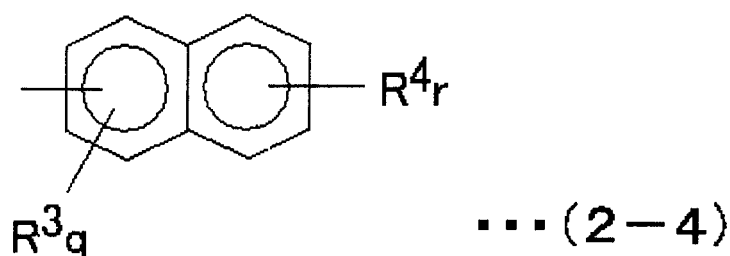
(分子式中, R^4 及 R^5 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基, r 表示 1~4 的整数, s 表示 1 或者 2 的整数。而且, R^4 及 R^5 既可以相同, 也可以不同。 r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同; s 个 R^5 既可以相同, 也可以不同。)



(分子式中, R^1 表示与上述的 R^1 相同的含义。两个 R^1 既可以相同, 也可以不同。)



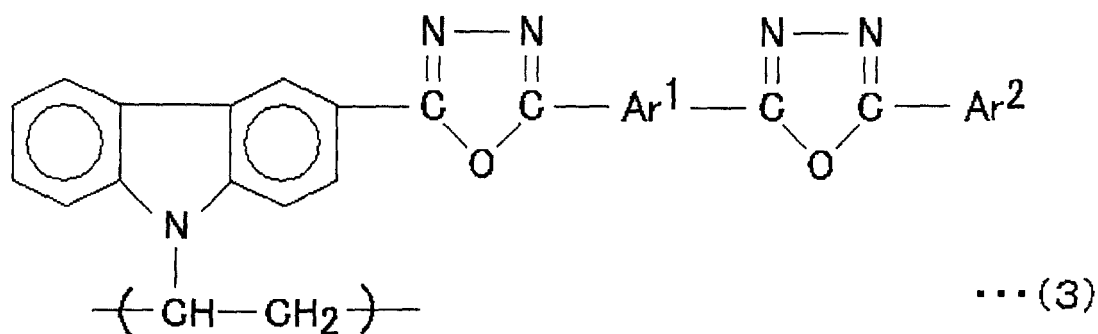
(分子式中, R^2 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基, p 表示 1~5 的整数。而且, p 个 R^2 既可以相同, 也可以不同。)



(分子式中, R^3 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基, q 表示 1~3 的整数。 R^4 及 r 表示与上述的 R^4 及 r 相同的含义。而且, q 个 R^3 既可以相同, 也可以不同; r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同。)

本发明中解决上述课题的第三种方法为以具有下述分子式 (3) 表示

的重复单元为特征的发光化合物，即发光聚合物。



(分子式中， Ar^1 及 Ar^2 表示与上述第一种方法中的 Ar^1 及 Ar^2 相同的含义。)

本发明中的解决上述课题的第四种方法为，以在一对电极之间，设置了含有上述分子式(1)、(2)或者(3)表示的发光化合物的发光层而构成为特征的发光元件。

利用本发明，可以提供具有高亮度、耐久性持久的优秀性能的发光化合物、及其简单的制造方法、以及具有高亮度、耐久性持久的优秀性能的发光元件。

附图说明

图1是表示作为与本发明相关的事例的发光元件的说明图。

图2是表示作为与本发明相关的其他事例的发光元件的说明图。

图3是表示作为与本发明相关的另外其他事例的发光元件的说明图。

图4是表示作为与本发明相关的除上述事例以外的发光元件的说明图。

图5是实施形态1中的分子式(6)表示的化合物的NMR光谱记录图。

图6是实施形态1中的分子式(6)表示的化合物的IR光谱记录图。

图7是实施形态1中的分子式(7)表示的化合物的NMR光谱记录图。

图8是实施形态1中的分子式(7)表示的化合物的IR光谱记录图。

图 9 是实施形态 1 中的分子式 (9) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 10 是实施形态 1 中的分子式 (9) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 11 是实施形态 1 中的分子式 (10) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 12 是实施形态 1 中的分子式 (10) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 13 是实施形态 1 中的分子式 (11) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 14 是实施形态 1 中的分子式 (11) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 15 是实施形态 1 中的分子式 (11) 表示的化合物的荧光光谱记录图。

图 16 是实施形态 2 中的分子式 (12) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图

图 17 是实施形态 2 中的分子式 (12) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 18 是实施形态 2 中的分子式 (14) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 19 是实施形态 2 中的分子式 (14) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 20 是实施形态 2 中的分子式 (15) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 21 是实施形态 2 中的分子式 (15) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 22 是实施形态 2 中的分子式 (16) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 23 是实施形态 2 中的分子式 (16) 表示的化合物的 IR 光谱记录

图。

图 24 是实施形态 2 中的分子式 (17) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 25 是实施形态 2 中的分子式 (17) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 26 是实施形态 2 中的分子式 (18) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 27 是实施形态 2 中的分子式 (18) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 28 是具有实施形态 2 中的分子式 (19) 表示的重复单元的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 29 是具有实施形态 2 中的分子式 (19) 表示的重复单元的化合物的 IR 光谱记录图。

图 30 是具有实施形态 2 中的分子式 (19) 表示的重复单元的化合物的荧光光谱记录图。

图 31 是实施形态 3 中的分子式 (20) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 32 是实施形态 3 中的分子式 (20) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 33 是实施形态 4 中的分子式 (23) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 34 是实施形态 4 中的分子式 (23) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 35 是实施形态 4 中的分子式 (24) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 36 是实施形态 4 中的分子式 (24) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 37 是实施形态 4 中的分子式 (25) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 38 是实施形态 4 中的分子式 (25) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 39 是实施形态 4 中的分子式 (26) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 40 是实施形态 4 中的分子式 (26) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 41 是实施形态 4 中的分子式 (27) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 42 是实施形态 4 中的分子式 (27) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 43 是实施形态 4 中的分子式 (28) 表示的化合物的 NMR 光谱记录图。

图 44 是实施形态 4 中的分子式 (28) 表示的化合物的 IR 光谱记录图。

图 45 是具有实施形态 4 中的分子式 (28) 表示的重复单元的化合物的荧光光谱记录图。

符号的说明

A、B、C、D: 发光元件

1: 基板

2: 透明电极

3、3a、3b: 发光层

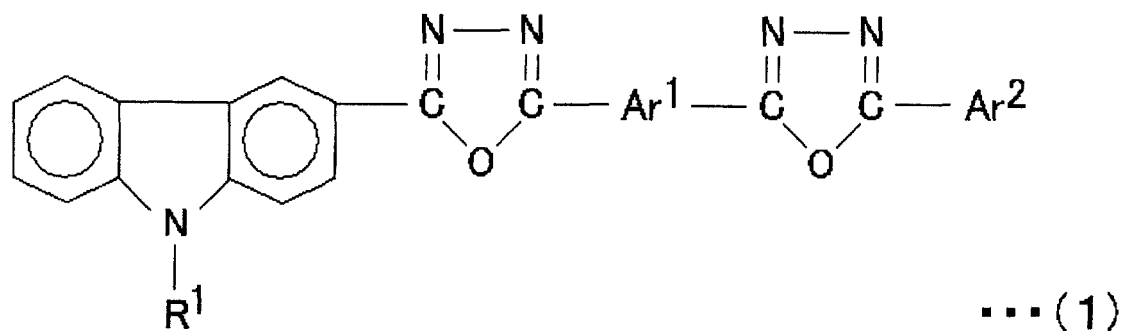
4: 电极层

5: 电洞传送层

6、8: 电子传送层

具体实施方式

与本发明相关的发光化合物的特征为具有下述分子式(1)表示的结构。



上述分子式(1)表示的化合物以 N-咔唑为基本骨架,在该 N-咔唑中的氮原子与 R^1 结合。而且,处于该 N-咔唑的第 3 位或者第 6 位的碳原子与具有噁二唑环的另一个碳原子结合。而且,具有该噁二唑环的其他的碳原子,在分子式(1)中,与在 Ar^1 表示的芳香族碳氢化物的环中结合的氢原子解离了 2 个生成的基所具有的碳原子结合。

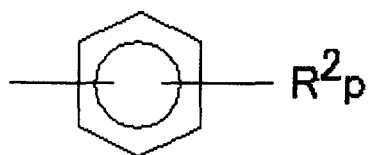
而且,上述 Ar^1 还与和上述的噁二唑环不同的噁二唑环结合。在该噁二唑环中,与 Ar^1 结合碳原子以外的碳原子与 Ar^2 结合。

上述 R^1 表示氢原子、乙烯基、碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基或者下述分子式(1-1)~(1-6)表示的芳基。

在上述碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基中,作为不用卤原子置换的碳原子数为 1~10 的烷基,可以列举的有:甲基、乙基、丙基、异丙基、n-丁基、异丁基、sec-丁基、tert-丁基、n-戊基、sec-戊基、tert-戊基、n-己基、n-庚基、辛基、壬基、癸基等物质,其中,还可以列举甲基、乙基、丙基、异丙基、n-丁基、异丁基、sec-丁基、tert-丁基、n-戊基、sec-戊基、tert-戊基等物质,其中,碳原子数为 1~5 的烷基较佳,特别是甲基、乙基或者丙基较佳。

作为上述的卤原子,可以列举的有:氟原子、氯原子或者溴原子。

在用上述碳原子数 1~10 的卤原子置换的烷基中, 作为用卤原子置换的碳原子数为 1~10 的烷基, 可以列举的有: 氟化甲基、二氟化甲基、三氟化甲基、氟化乙基、1,1-二氟化乙基、1,2-二氟化乙基、1,1,1-三氟化乙基、1,1,2-三氟化乙基、1,2,2-三氟化乙基、1,1,2,2-四氟化乙基、1,1,2,2,2-五氟化乙基、1-氟化丙基、2-氟化丙基、1,1-二氟化丙基、1,2-二氟化丙基、1,3-二氟化丙基、2,2-二氟化丙基、1,1,1-三氟化丙基、1,1,2-三氟化丙基、1,2,3-三氟化丙基、1,2,2-三氟化丙基、1,3,3-三氟化丙基、氯化甲基、二氯化甲基、三氯化甲基、氯化乙基、1,1-二氯化乙基、1,2-二氯化乙基、1,1,1-三氯化乙基、1,1,2-三氯化乙基、1,2,2-三氯化乙基、1,1,2,2-四氯化乙基、1,1,2,2,2-五氯化乙基、1-氯化丙基、2-氯化丙基、1,1-二氯化丙基、1,2-二氯化丙基、1,3-二氯化丙基、2,2-二氯化丙基、1,1,1-三氯化丙基、1,1,2-三氯化丙基、1,2,3-三氯化丙基、1,2,2-三氯化丙基、1,3,3-三氯化丙基、溴化甲基、二溴化甲基、三溴化甲基、溴化乙基、1,1-二溴化乙基、1,2-二溴化乙基、1,1,1-三溴化乙基、1,1,2-三溴化乙基、1,2,2-三溴化乙基、1,1,2,2-四溴化乙基、1,1,2,2,2-五溴化乙基、1-溴化丙基、2-溴化丙基、1,1-二溴化丙基、1,2-二溴化丙基、1,3-二溴化丙基、2,2-二溴化丙基、1,1,1-三溴化丙基、1,1,2-三溴化丙基、1,2,3-三溴化丙基、1,2,2-三溴化丙基、1,3,3-三溴化丙基等。



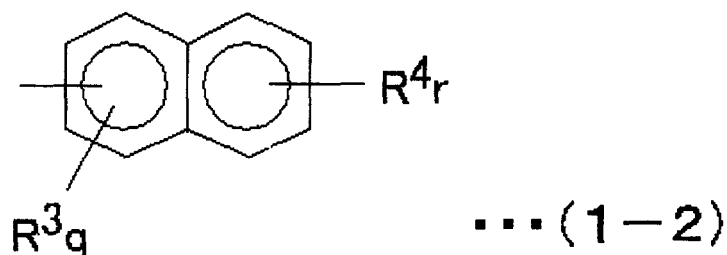
... (1-1)

上述分子式 (1-1) 表示的芳基的基本骨架为苯基, 具有 R^2 。

上述 R^2 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷

基，作为碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基，与关于上述 R^1 说明的碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基相同（参照化学式 (1-1) 及化学式 (1-1) 之后两段）。

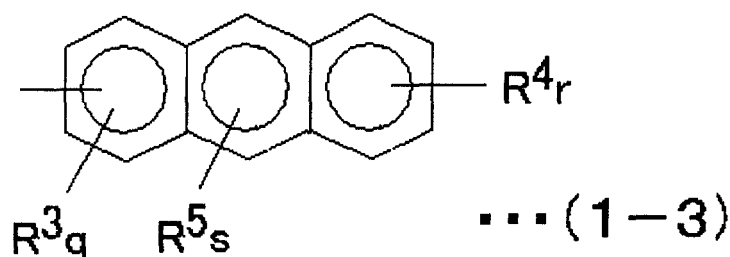
分子式中， p 表示 1~5 的整数。 P 个 R^2 既可以相同，也可以不同。



上述分子式 (1-2) 表示的芳基的基本骨架为萘基，具有 R^3 及 R^4 。

上述 R^3 及 R^4 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基。上述碳原子数为 1~10 的烷基如上所述。

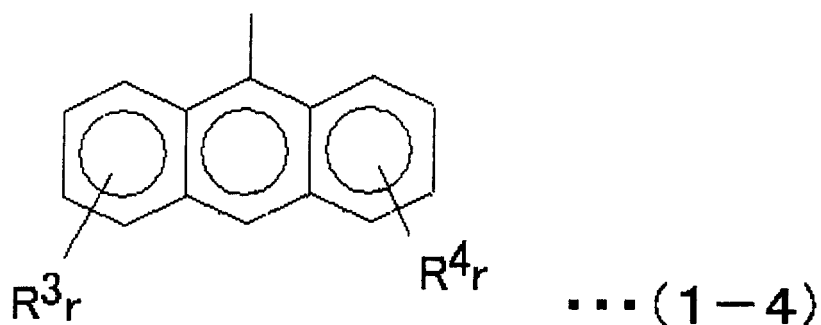
分子式中， q 表示 1~3 的整数， r 表示 1~4 的整数。而且，上述 R^3 及 R^4 既可以相同，也可以不同。 q 个 R^3 既可以相同，也可以不同； r 个 R^4 既可以相同，也可以不同。



上述分子式 (1-3) 表示的芳基的基本骨架为蒽中的第 1 位、第 2 位、第 3 位、第 4 位、第 5 位、第 6 位、第 7 位或者第 8 位的任何一个氢原子解离了一个的蒽基，具有 R^3 、 R^4 及 R^5 。

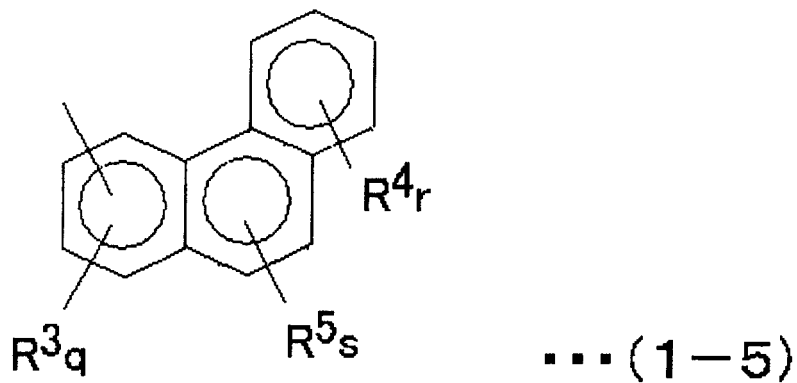
上述的 R^3 及 R^4 ，如上所述。 R^5 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的烷基。上述碳原子数为 1~10 的可以用卤原子置换的烷基如上所述。

分子式中， q 及 r 如上所述。 s 表示 1 或者 2 的整数。而且， R^3 、 R^4 及 R^5 既可以相同，也可以不同。 q 个 R^3 既可以相同，也可以不同； r 个 R^4 既可以相同，也可以不同； s 个 R^5 既可以相同，也可以不同。



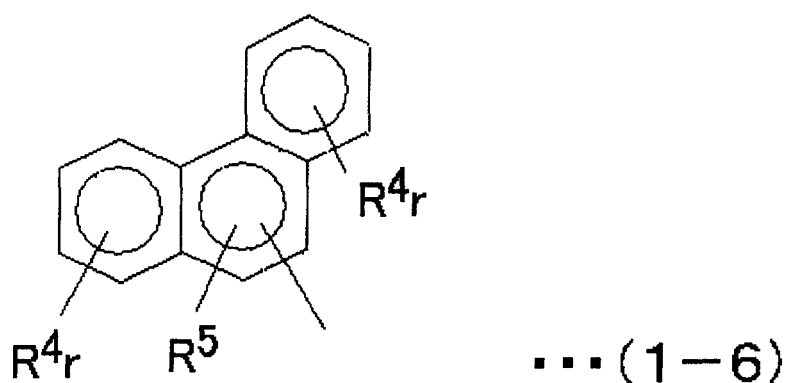
上述分子式 (1-4) 表示的芳基的主要骨架为蒽中的第 9 位或者第 10 位的氢原子解离的蒽基，具有 R^3 及 R^4 。

分子式中， R^3 、 R^4 及 r 如上所述。而且，上述 R^3 及 R^4 既可以相同，也可以不同； r 个 R^3 既可以相同，也可以不同； r 个 R^4 既可以相同，也可以不同。



上述分子式(1-5)表示的芳基的基本骨架为菲中第1位、第2位、第3位、第4位、第5位、第6位、第7位或者第8位的任何一个氢原子解离1个的基,具有 R^3 、 R^4 及 R^5 。

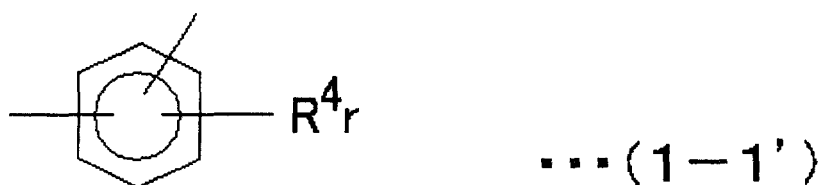
分子式中, R^3 、 R^4 、 R^5 、 q 、 r 及 s 如上所述。而且, R^3 、 R^4 及 R^5 既可以相同,也可以不同; q 个 R^3 既可以相同,也可以不同; r 个 R^4 既可以相同,也可以不同; s 个 R^5 既可以相同,也可以不同。



上述分子式(1-6)表示的芳基的基本骨架为菲中的第9位或者第10位的氢原子解离的基,具有 R^4 及 R^5 。

分子式中,上述 R^4 、 R^5 及 s 如上所述。而且, R^4 及 R^5 既可以相同,也可以不同; r 个 R^4 既可以相同,也可以不同。

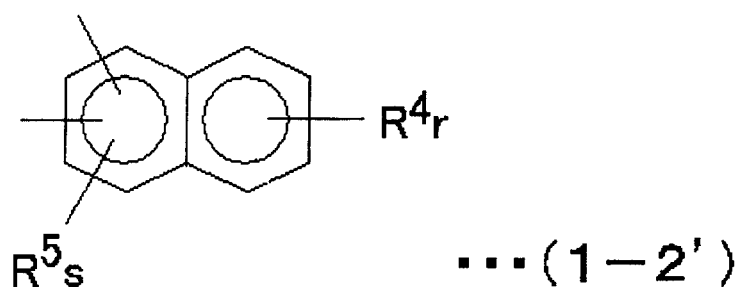
上述分子式(1)中的 Ar^1 表示下述分子式(1-1')~(1-10')表示的置换基。



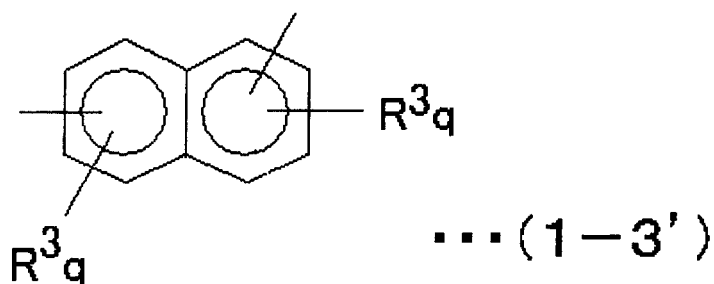
上述分子式(1-1')表示的置换基的基本骨架为在苯环中结合的氢

原子解离了 2 个的基，具有 R^4 。

分子式中， R^4 及 r 如上述所示。而且， r 个 R^4 既可以相同，也可以不同。

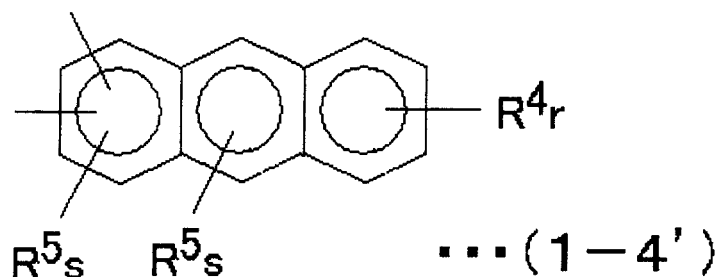


上述分子式 (1-2') 表示的置换基的基本骨架为在萘基的环中结合的氢原子中，第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位的氢原子的任何一个解离了 2 个的基，具有 R^4 及 R^5 。分子式中， R^4 、 R^5 、 r 及 s 如上述所示。而且， R^4 及 R^5 既可以相同，也可以不同； r 个 R^4 既可以相同，也可以不同； s 个 R^5 既可以相同，也可以不同。

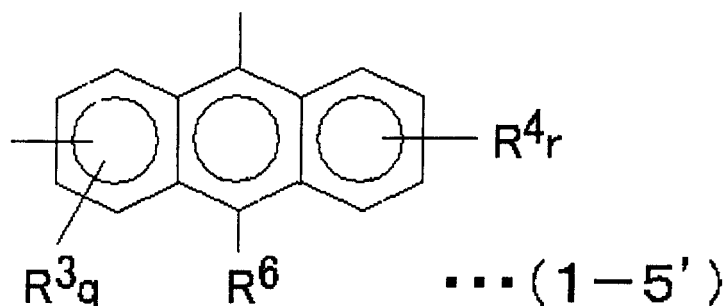


上述分子式 (1-3') 表示的置换基的基本骨架为，在萘基的环中结合的氢原子中，第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位的氢原子解离了 1 个，且第 5 位、第 6 位、第 7 位或者第 8 位的氢原子解离了 1 个的基，具有 R^3 。在分子式中， R^3 及 q 如上所述。而且，一方的 R^3 与另一方的 R^3 既可以相同，也可以不同； p 个 R^3 既可以相同，也可以不同； q 个

R^3 既可以相同, 也可以不同。



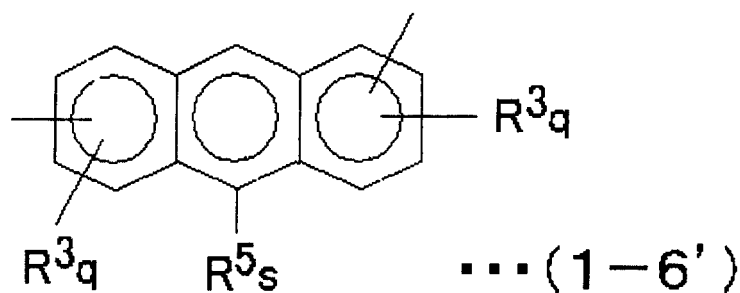
上述分子式 (1-4') 表示的置换基的基本骨架为, 在蒽基的环中结合的氢原子中, 第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的任何一个氢原子解离了 2 个的基, 具有 R^4 及 R^5 。在分子式中, R^4 、 R^5 、s 及 r 如上述所示。而且, R^4 、一方的 R^5 以及另一方的 R^5 既可以相同, 也可以不同; r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同; s 个 R^5 既可以相同, 也可以不同。



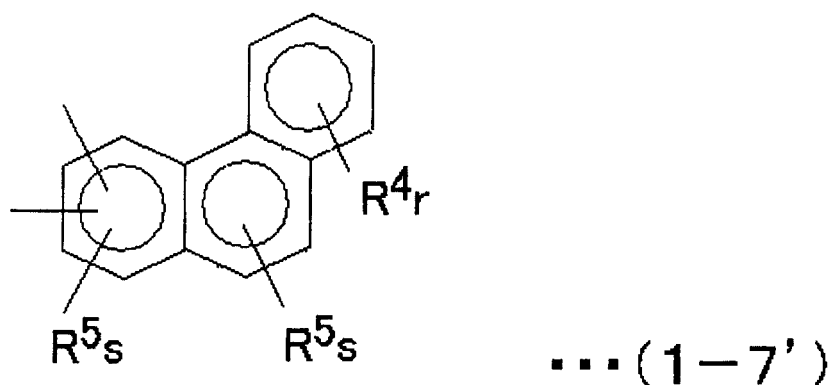
上述分子式 (1-5') 表示的置换基的基本骨架为, 在蒽基的环中结合的氢原子中, 第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的任何一个氢原子解离了 1 个, 而且, 第 9 位的氢原子解离了的基, 具有 R^3 、 R^4 及 R^6 。在分子式中, R^3 、 R^4 、q 及 r 如上述所示。而且, R^3 、 R^4 、以及 R^6 既可以相同, 也可以不同; q 个 R^3 既可以相同, 也可以不同; r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同。

而且, 在分子式中, R^6 表示氢原子或者碳原子数为 1~10 的烷基,

碳原子数为 1~10 的烷基，如上所述示。

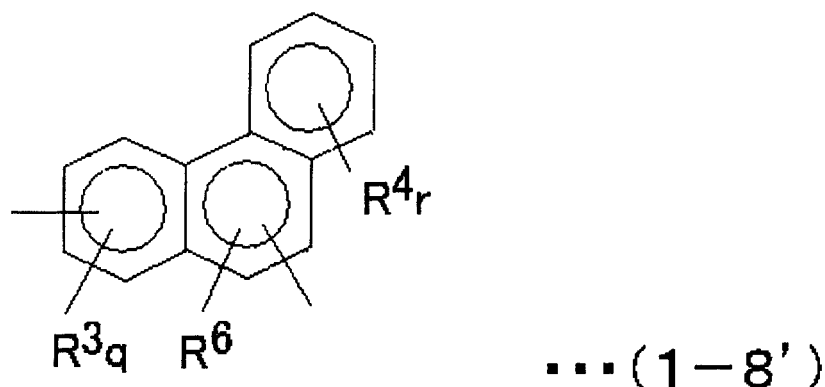


上述分子式 (1-6') 表示的置换基的基本骨架为，在蒽基的环中结合的氢原子中，第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的任何一个氢原子解离了 1 个，而且，第 5 位、第 6 位、第 7 位或者第 8 位的任何一个氢原子解离了 1 个的基，具有 R^3 及 R^5 。在分子式中， R^3 、 R^5 、 q 及 s 如上所述。而且，一方的 R^3 、另一方的 R^3 以及 R^5 既可以相同，也可以不同； q 个 R^3 既可以相同，也可以不同； s 个 R^5 既可以相同，也可以不同。

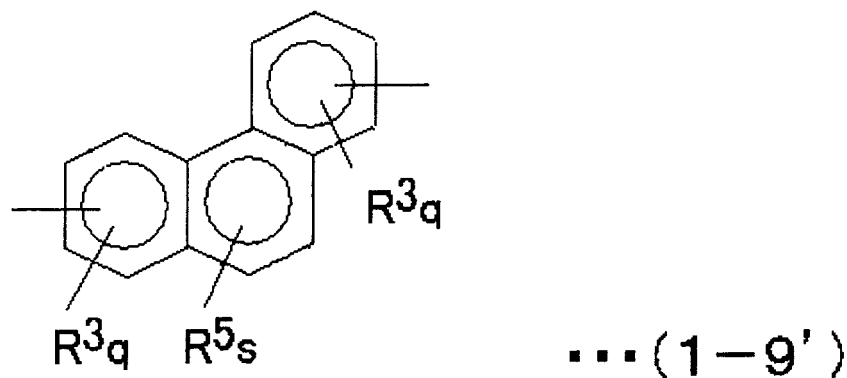


上述分子式 (1-7') 表示的置换基的基本骨架为，在菲基的环中结合的氢原子中，第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的任何一个氢原子解离了 2 个的基，具有 R^4 及 R^5 。在分子式中， R^4 、 R^5 、 r 及 s 如上所述。而且， R^4 、一方的 R^5 以及另一方的 R^5 既可以相同，也可以不同；

r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同; s 个 R^5 既可以相同, 也可以不同。

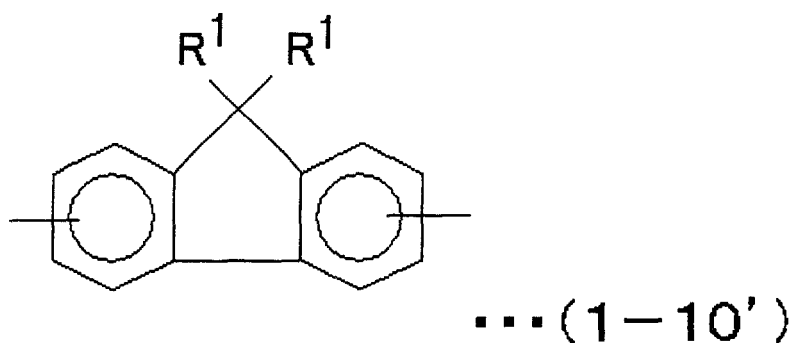


上述分子式 (1-8') 表示的置换基的基本骨架为, 在菲基的环中结合的氢原子中, 第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的任何一个氢原子解离了 1 个, 而且, 第 9 位或者第 10 位的氢原子解离的基, 具有 R^3 、 R^4 及 R^6 。在分子式中, R^3 、 R^4 、 R^6 、 q 及 r 如上所述。而且, R^3 、 R^4 以及 R^6 既可以相同, 也可以不同; q 个 R^3 既可以相同, 也可以不同; r 个 R^4 既可以相同, 也可以不同。



上述分子式 (1-9') 表示的置换基的基本骨架为, 在菲基的环中结合的氢原子中, 第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的氢原子解离了 1 个, 而且第 5 位、第 6 位、第 7 位或者第 8 位的氢原子解离了 1 个的基,

具有 R^3 及 R^5 。在分子式中, R^3 、 R^5 、 q 及 s 如上所述。而且, 一方的 R^3 、另一方的 R^3 以及 R^5 既可以相同, 也可以不同; q 个 R^3 既可以相同, 也可以不同; s 个 R^5 既可以相同, 也可以不同。

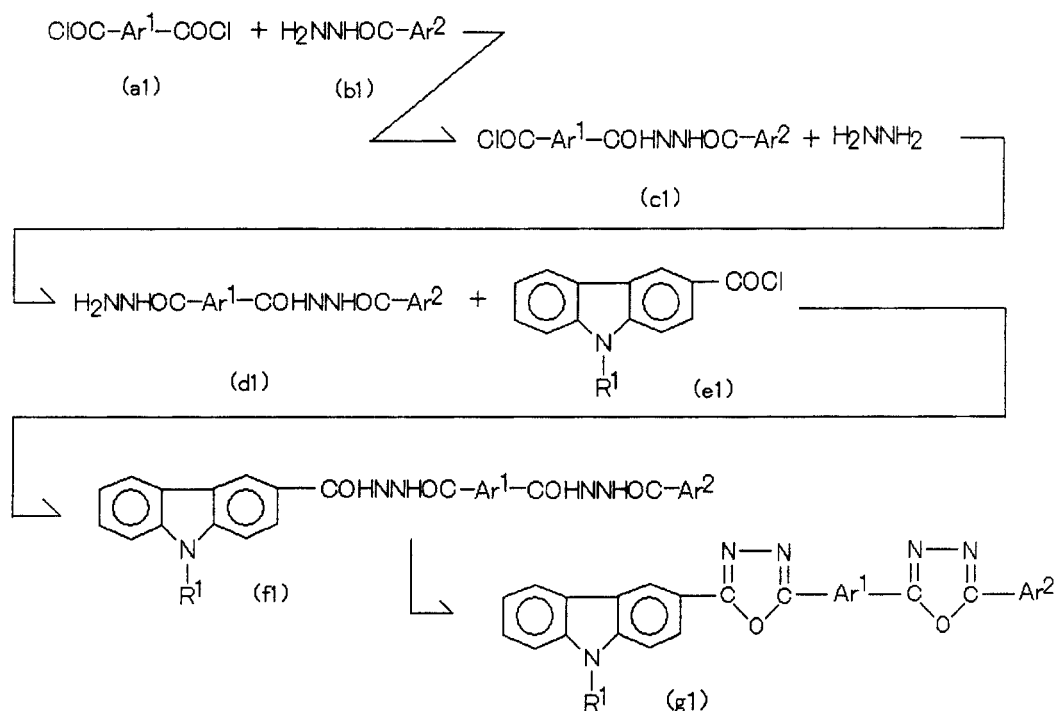


上述分子式 (1-10') 表示的置换基的基本骨架为, 芴基的第 1 位、第 2 位、第 3 位或者第 4 位中的氢原子解离了 1 个, 而且, 第 5 位、第 6 位、第 7 位或者第 8 位的氢原子解离的基, 同时, 第 9 位的碳原子具有两个 R^1 。 R^1 如上所述。而且, 一方的 R^1 以及另一方的 R^1 既可以相同, 也可以不同。

上述分子式 (1) 中的 Ar^2 表示上述分子式 (1-1) ~ (1-6) 表示的芳基。

上述分子式 (1) 表示的发光化合物可以通过下述的反应式制造。而且, 反应式 1 中记载的 R^1 、 Ar^1 及 Ar^2 如上所述。

反应式 1



通过把等量的酸氯氧化合物 (a1) 及肼化合物 (b1) 的混合物在溶剂中加热, 得到化合物 (c1)。

作为上述的溶剂, 可以列举的有: 无极性溶剂或者邻二氯苯、偏二氯苯、吡啶、二氧杂环己烷、N, N-二甲基甲酰胺以及四氢呋喃 (THF) 等极性溶剂。

上述的反应温度为 $50\sim 80^\circ\text{C}$ 较佳, 特别是 $60\sim 70^\circ\text{C}$ 更佳。

作为上述加热时间, 2~6 小时较佳, 特别是 3~4 小时更佳。

然后, 通过把得到的化合物 (c1) 与肼在溶剂中加热, 可以得到碳酰肼化合物 (d1)。

作为上述肼的使用量, 使用相对于化合物 (c1) 的过剩量, 例如最多 10 倍的量较佳。

作为上述的溶剂, 可以列举的有: 无极性溶剂或者邻二氯苯、偏二氯苯、吡啶、二氧杂环己烷、N, N-二甲基甲酰胺以及四氢呋喃 (THF) 等

极性溶剂。

上述的反应温度为 40~70℃ 较佳，特别是 50~60℃ 更佳。

作为上述的反应时间，至少 4 小时较佳，特别至少 2 小时更佳。

进一步通过把得到的碳酰肼化合物 (d1) 与咔唑衍生物 (e1) 在溶剂中加热，可以得到化合物 (f1)。

作为上述的溶剂，可以列举的有：无极性溶剂或者邻二氯苯、偏二氯苯、吡啶、二氧杂环己烷、N,N-二甲基甲酰胺以及四氢呋喃 (THF) 等极性溶剂。

上述的反应温度为 40~80℃ 较佳，特别是 60~70℃ 更佳。

作为上述的反应时间，2~8 小时较佳，特别 4~6 小时更佳。

把上述方法中得到的化合物 (f1) 在溶剂中加热，使其进行闭环反应，可以得到上述分子式 (1) 表示的发光化合物 (反应式 1 中的 (g1) 表示的化合物)。

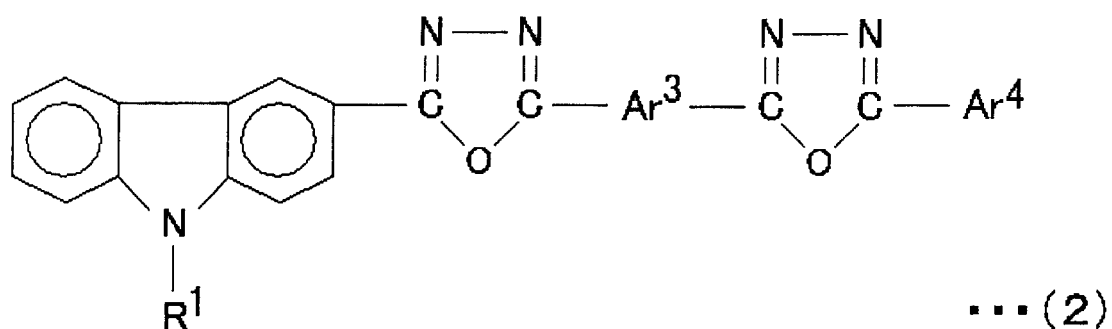
作为上述的溶剂，可以列举的有：无极性溶剂或者邻二氯苯、偏二氯苯、磷酰氯、吡啶、二氧杂环己烷、N,N-二甲基甲酰胺以及四氢呋喃 (THF) 等极性溶剂。

上述的反应温度为 100~130℃ 较佳，特别是 110~120℃ 更佳。

作为上述的反应时间，15~20 小时较佳，特别 17~19 小时更佳。

反应结束后，按照常规的方法进行精制操作及分离操作，可以得到分子式 (1) 表示的化合物。通过进行 IR 分析、NMR 分析及荧光分析，可以容易地确认得到的化合物。

与本发明相关的分子式 (1) 表示的发光化合物为具有下述分子式 (2) 表示的结构发光化合物较佳。

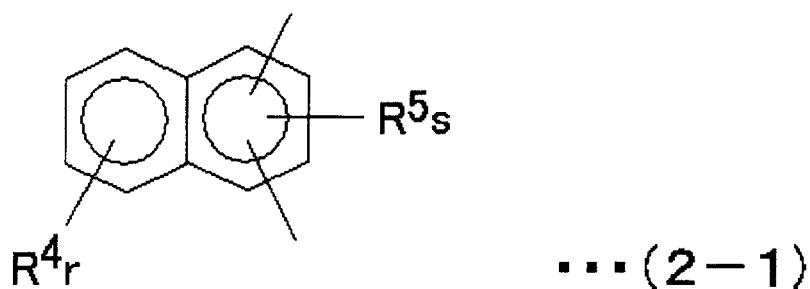


上述分子式(2)表示的化合物的基本骨架为 N-咔唑, 该 N-咔唑中的氮原子与 R^1 结合。而且, 该 N-咔唑的第 3 位或者第 6 位中的碳原子与噁二唑环所具有的一方的碳原子结合。此外, 噁二唑环所具有的另一方的碳原子, 在分子式(2)中, 与在 Ar^3 表示的结合在芳香族碳氢化物的环的氢原子中解离了 2 个而生成的基具有的碳原子结合。

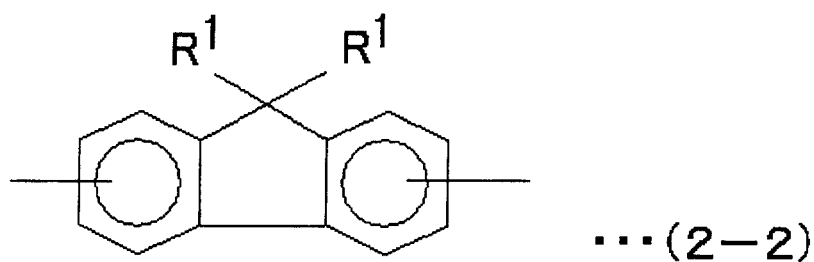
上述 Ar^3 还与和上述的噁二唑环不同的噁二唑结合。与该噁二唑环中的 Ar^3 结合的碳原子不同的其他的碳原子与 Ar^4 结合。

上述的 R^1 表示与分子式(1)中的 R^1 相同的含义。

而且, 上述的 Ar^3 表示下述分子式(2-1)或者(2-2)表示的置换基。



上述分子式(2-1)表示的置换基与上述分子式(1-2')表示的置换基相同。

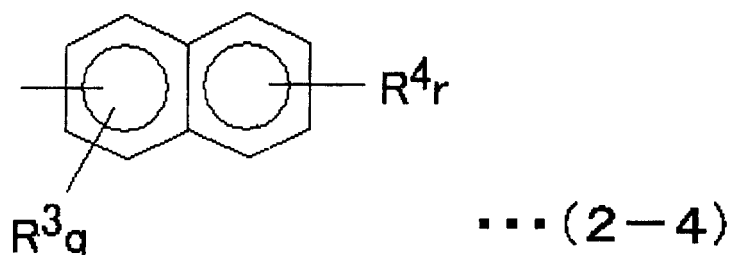


上述分子式 (2-2) 表示的置换基与上述分子式 (1-10') 表示的置换基相同。

上述的 Ar^4 表示下述分子式 (2-3) 或者 (2-4) 表示的芳基。



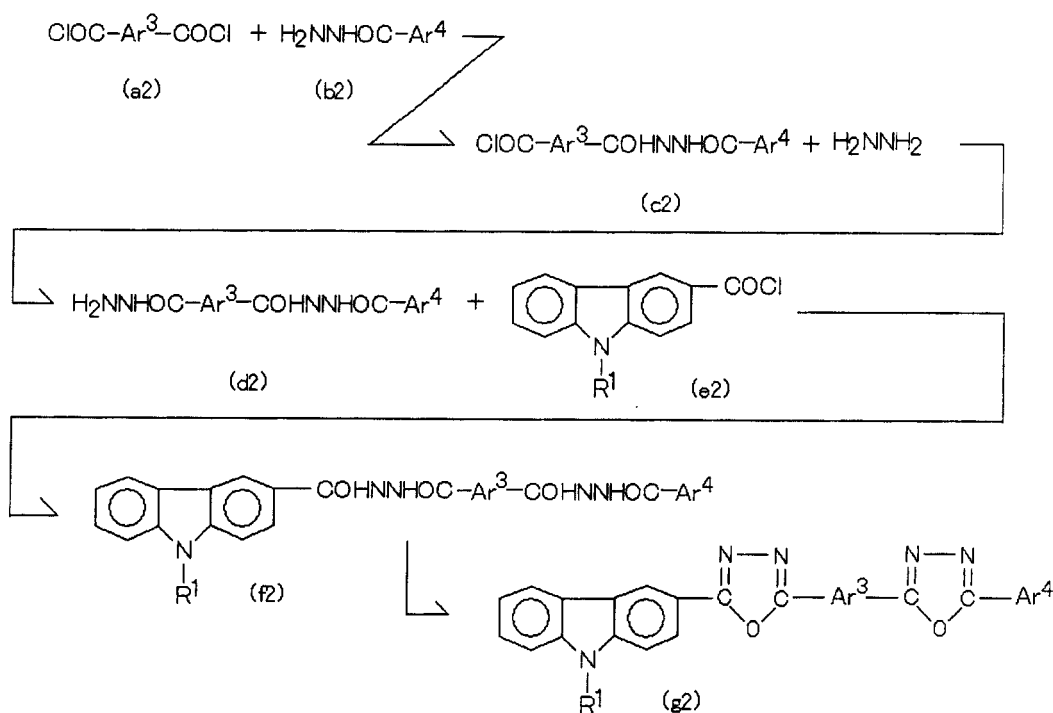
上述分子式 (2-3) 表示的置换基与上述分子式 (1-1) 表示的芳基相同。



上述分子式 (2-4) 表示的置换基与上述分子式 (1-2) 表示的芳基相同。

上述分子式 (2) 表示的发光化合物可以按照下述的反应式 2 制造。
而且, 反应式 2 中记载的 R^1 、 Ar^3 及 Ar^4 如上所述。

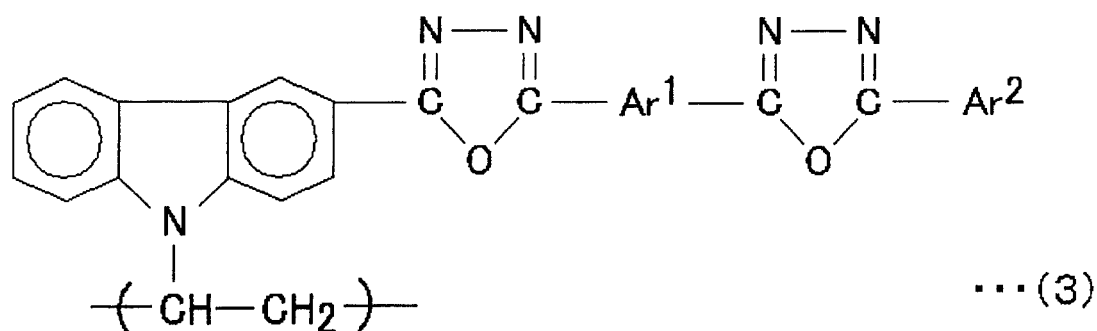
反应式 2



通过把等量的酸氯氧化物 (a2) 及肼化合物 (b2) 的混合物在溶剂中加热, 得到化合物 (c2)。而且, 此时的反应温度及加热时间等反应条件与制造分子式 (1) 表示的化合物时的反应条件相同。

而且, 从化合物 (c2) 合成为化合物 (g2) 的反应条件等, 与反应式 1 中的从化合物 (c1) 合成化合物 (g1) 时的反应条件相同。

本发明相关的发光化合物的特征为具有下述分子式 (3) 表示的重复单元。

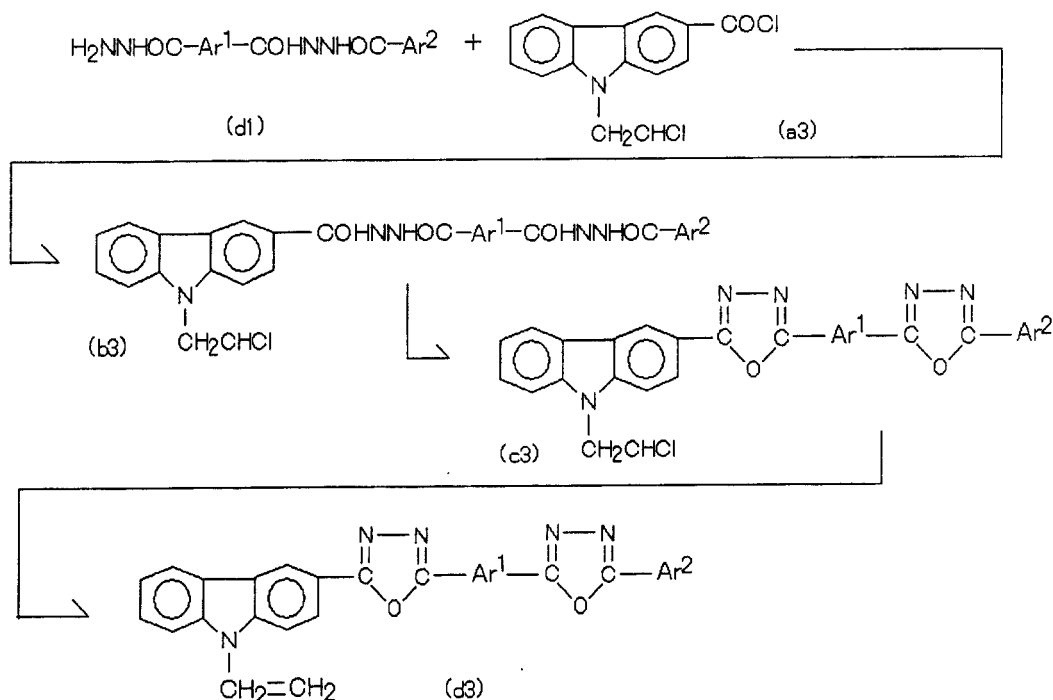


具有上述分子式(3)表示的重复单元的发光化合物具有与上述分子式(1)表示的发光化合物相似的结构,但是,与上述分子式(1)表示的发光化合物具有的N-乙烯咔唑的基本骨架不同,具有上述分子式(3)表示的重复单元的发光化合物的基本骨架为聚乙烯咔唑。

上述分子式(3)中的 Ar^1 及 Ar^2 表示与上述分子式(1)表示的发光化合物中的 Ar^1 及 Ar^2 相同的含义。

具有上述分子式(3)表示的重复单元的发光化合物可以按照下述的反应式3制造。而且,反应式3中记载的 Ar^1 及 Ar^2 如上所述。

反应式 3



利用碳酰肼化合物 (d1) 与咪唑衍生物 (a3) 制造上述分子式 (3) 表示的发光化合物的反应条件与制造 (g1) 或者 (g2) 表示发光化合物的反应条件相同。

通过把得到的化合物 (c3) 在溶剂中加热, 使其脱去氯化氢, 可以得到化合物 (d3)。

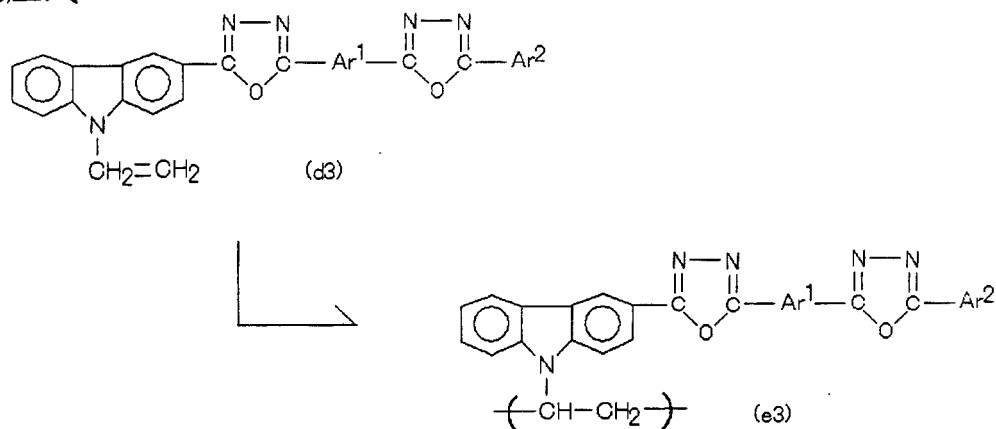
作为上述的溶剂, 可以列举的有: 甲醇及乙醇等无极性溶剂或者邻二氯苯、偏二氯苯、吡啶、二氧杂环己烷、N, N-二甲基甲酰胺以及四氢呋喃 (THF) 等极性溶剂。

上述的反应温度为 $80\sim 110^\circ\text{C}$ 较佳, 特别是 $90\sim 100^\circ\text{C}$ 更佳。

作为上述的反应时间, $2\sim 6$ 小时较佳, 特别 $3\sim 4$ 小时更佳。

而且, 在溶剂中添加化合物 (d3) 与聚合引发剂, 加热, 使其进行聚合反应, 按照下述的反应式 4, 可以得到与本发明相关的发光化合物 (具有反应式中的 (e3) 表示的重复单元的化合物)。

反应式 4



作为上述的溶剂，可以列举的有：无极性溶剂或者邻二氯苯、偏二氯苯、磷酰氯、吡啶、二氧杂环己烷、N,N-二甲基甲酰胺以及四氢呋喃（THF）等极性溶剂。

作为上述的聚和引发剂，可以使用众所周知的聚和引发剂，可以列举的有：偶氮二异丁腈或者过氧化苯甲酰基等。

上述的反应温度至少为 120℃ 较佳，特别是 130～150℃ 更佳。

作为上述的反应时间，40～55 小时较佳。

反应结束后，按照通常的方法进行精制操作及分离操作，可以得到分子式 (2) 表示的化合物。通过 IR 分析、NMR 分析及荧光分析，可以容易地确认得到的化合物。

与本发明相关的化合物可以单纯地通过加热的方法容易地制造。如此简单的发光化合物的制造方法是工业方面的制造方法。

以下，说明与本发明相关的发光元件。

通过向与本发明相关的发光化合物施加电磁波能量，可以整体上看到在 420～600nm 的区域内的可视部位发光，例如，具有如图 15 所示的荧光光谱，可以用于可以发光的有机 EL 元件。

图 1 是表示作为单层型有机 EL 元件的发光元件的断面结构的说明图。如图 1 所示，该发光元件 A 是在形成了透明电极 2 的基板 1 上，把

含有发光材料的发光层 3 及电极层 4 依次按照顺序层叠形成的。在发光层 3 中包含与本发明相关的发光化合物。

在图 1 表示的发光元件中，如果其发光层 3 含有与本发明相关的发光化合物，且向透明电极 2 及电极层 4 通入电流，则该发光元件会发出符合其化学构造的颜色的光。而且，发光是下述的一种现象：如果向透明电极 2 与上述电极层 4 之间施加电场，则会从电极层 4 一侧注入电子，从透明电极 2 注入空穴，而且电子在发光层 3 中与空穴再次结合，能量的能级从传导带返回至价电子带时，能量作为光释放出来。

如果图 1 所示的发光元件 A 的整体形状设计成大面积的平面形状，例如安装在墙壁或者天花板上，那么会成为大面积的墙壁发光元件以及大面积的天花板发光元件等面状发光明装置。也就是说，此发光元件可以代替以往的荧光灯等线光源或者电灯泡等点光源，而作为面光源使用。特别是，可以利用此发光元件，把居住的室内、办公室内、车辆内部的墙面、天花板或者地面作为面光源发光乃至照明。而且，可以把此发光元件 A 作为计算机的显示画面、移动电话的显示画面、自动柜员机的数字显示画面等的背景灯使用。此外，此发光元件 A 可以作为直接照明或者间接照明等各种光源使用，而且，还可以用于可以夜间发光的可视性良好的广告装置、道路标识装置、以及发光揭示板、乃至汽车等车辆上的倒车灯等的光源使用。而且，由于此发光元件 A 在发光层上具有特定化学结构的发光化合物，使用寿命长。所以，利用此发光元件 A，可以成为一种发光寿命长的光源。

而且，可以把此发光元件 A 作为形成筒状的基板 1 与在此基板 1 的内面一侧把透明电极 2、发光层 3 以及电极层 4 按照先后顺序层叠而成的管状发光体。由于此发光元件 A 不使用水银，可以代替以往的使用水银的荧光灯，作为对于环境柔和的光源使用。

作为基板 1，只要在其表面能够形成透明电极 2，就可以采用众所周知的基板。作为此基板 1，可以列举的有：玻璃基板、塑料板、陶瓷、表

面形成绝缘涂料层等的、表面进行了绝缘加工的金属板等。

作为上述透明电极 2，只要是工作函数大且透明的、可以通过施加电压，作为阳极发挥作用，且可以向上述发光层 3 注入空穴的材料就可以使用。具体来说，透明电极 2 可以由 IT0、 In_2O_3 、 SnO_2 、 ZnO 、 CdO 等、以及这些物质的化合物等无机透明导电材料、以及聚苯胺等导电性高分子材料制成。

此透明电极 2 可以在上述基板 1 上，利用化学气相生长法、喷射高温分解、真空蒸镀法、电子射线蒸镀法、溅射法、离子射线溅射法、离子加速蒸镀法、离子电镀法、以及其他的方法制成。

当基板由不透明的材料制成时，在基板上制作的电极不需要是透明电极。

发光层 3 是含有本发明中分子式 (1)、(2) 或者 (3) 表示的发光化合物的层。此发光层 3 可以作为把与本发明相关的发光化合物在分子中分散制成的高分子膜制成，而且，可以作为把上述发光化合物在上述透明电极 2 上蒸镀制成的蒸镀膜制成。

作为上述高分子膜中的高分子，可以列举的有：含有聚乙烯吡啶、聚(3-亚烷基噻吩)、芳基胺的聚亚酰胺、聚茚、聚亚苯基亚乙烯基、聚- α -甲基苯乙烯、乙烯吡啶/ α -甲基乙烯共聚物等。其中，较佳的为聚乙烯吡啶。

上述高分子膜中的与本发明相关的发光化合物的含有量，通常为 0.01~2 重量%，较佳的为 0.05~0.5 重量%。

上述高分子膜的厚度，通常为 30~500nm，较佳的为 100~300nm。如果高分子膜的厚度过薄，有时会产生发光量不足的现象；如果高分子膜的厚度过厚，有时驱动电压会过高，不太理想，而且把其制作成面状体、管状体、弯曲体、环状体时的柔软性有时会有所欠缺。

上述高分子膜可以使用上述高分子与本发明相关的发光化合物在适当的溶剂中溶解形成的溶液，利用涂布法，例如旋转浇铸法、镀层法、

以及浸渍法等制成。

当上述发光层 3 为蒸镀膜时，其蒸镀膜的厚度会根据发光层中的层的结构而各不相同，一般来说，为 0.1~100nm。蒸镀膜的厚度过薄时，或者过厚时，有时也会产生与上述相同的问题。

可以利用具有与本发明相关的分子式 (3) 表示的重复单元的发光化合物制成发光层 3。使用该发光化合物，可以不进行上述的蒸镀操作而制成发光层 3。

上述电极层 4 可以采用工作函数小的物质，例如 MgAg、铝合金、金属钙等金属单体或者金属合金制成。合适的电极层 4 为铝与少量的锂的合金电极。此电极层 4 可以在例如包含基板 1 上形成的上述发光层 3 的表面上，利用蒸镀技术，很容易的制作而成。

无论采用涂布法及蒸镀法中的任何一个方法制作发光层，都希望在电极层与发光层之间，加入一层缓冲层。

作为可以制作上述缓冲层的材料，可以列举的有：氟化锂等碱性金属化合物、氟化镁等碱性土金属化合物、氧化铝等氧化物、4,4'-双咔唑双苯 (Cz-TPD)，而且，作为在 ITO 等阳极与有机层之间形成的缓冲层的材料，可以列举的有：m-MTDATA (4,4,4''-三(3-甲基苯基苯基氨基)三苯基胺)、酞花青、聚苯胺、聚噻吩衍生物、无机氧化物例如：氧化钼、氧化钨、氧化钒、氟化锂。通过适当地选择这些材料，这些缓冲层可以降低作为发光元件的有机 EL 元件的驱动电压，改善发光的量子效率，提高发光的亮度。

以下的图中表示了与本发明相关的发光元件的第 2 事例。图 2 是表示作为多层型有机 EL 元件的发光元件的断面的说明图。

如图 2 所示，此白色发光元件 B 在基板 1 的表面，由透明电极 2、空穴传送层 5、发光层 3a、3b、电子传送层 6 及电极层 4 按照先后顺序依次重叠在一起组成的。

关于基板 1、透明电极 2 以及电极层 4，与图 1 所示的白色发光元件

A 中的相同。

图 2 中所示的发光元件 2 中的发光层由发光层 3a 及发光层 3b 构成，发光层 3a 为此发明中的发光化合物的蒸镀膜。发光层 3b 为 DPVBi 层。此 DPVBi 层为具有晶核材料的功能的层。

作为上述空穴传送层 5 中包含的空穴传送物质，可以列举的有：三苯胺类化合物例如；N,N'-二苯基-N,N'-二(m-甲苯)-联苯胺(TPD)、以及 α -NPD 等、胺类化合物、芪类化合物、杂环类化合物、 π 电子类星形无线电脉冲正孔传送物质等。

作为上述电子传送层 6 中包含的电子传送物质，可以列举的有：2-(4-tert-丁基苯基)-5-(4-联苯)-1,3,4-噁二唑等噁二唑衍生物以及 2,5-双(1-萘基)-1,3,4-噁二唑、以及 2,5-双(5'-tert-甲基-2'-苯并噁唑基)噻吩等。而且，作为电子传送性物质，也可以适当地使用羟基喹啉氨配位化合物(ALq3)、苯并羟基喹啉铍配位化合物(Bebq2)等金属配位化合物类材料。

在图 2 中的发光元件 B 中，电子传送层 6 包含 ALq3。

各层的厚度与以前众所周知的多层型有机 EL 元件中的相同。

图 2 中所示的发光元件 B 与图 1 中所示的发光元件 A 具有相同的作用，发光。所以，图 2 中所示的发光元件 B 具有与图 1 中所示的发光元件 A 相同的用途。

图 3 表示的是与本发明相关的发光元件的第 3 事例。图 3 是表示作为多层型有机 EL 元件的发光元件的断面的说明图。

图 3 中所示的发光元件 C 在基板 1 的表面上，由透明电极 2、空穴传送层 5、发光层 3、电子传送层 8 以及电极层 4 按照先后顺序依次层叠。

此图 3 表示的发光元件 C 与上述发光元件 B 相同。

图 4 中表示的是发光元件其他的事例。此图 4 中表示的发光元件 D 由基板 1、电极 2、空穴传送层 5、发光层 3、以及电极层 4 按照先后顺序依次层叠而成。

除了上述图 1~4 表示的发光元件以外,可以列举的有:在基板上形成的透明电极的阳极与作为电极层的阴极之间,由含有空穴传送性物质的空穴传送层、与本发明中的含有发光化合物的电子传送性发光层重叠形成的双层有机低分子发光元件(例如:在阳极与阴极之间,由空穴传送层、与含有作为混入物色素的本发明中的发光化合物及晶核色素的发光层层叠而成的双层色素掺杂型发光元件)、在阳极与阴极之间,由含有空穴传送性物质的空穴传送层、与此发明中的发光化合物和电子传送性物质共同蒸镀形成的电子传送性发光层层叠而成的双层有机发光元件(例如:在阳极与阴极之间,由空穴传送层、与含有作为混入物色素的本发明中的发光化合物及晶核色素的电子传送性发光层层叠而成的双层色素掺杂型发光元件)、在阳极与阴极之间,由空穴传送层、与本发明相关的含有发光化合物的发光层、及电子传送层层叠而成的三层有机发光元件。

在此发光元件中的电子传送性发光层,通常的情况下,如果由 50~80%的聚乙烯咔唑(PVK)、电子传送性发光剂 5~40%、与本发明相关的白色发光化合物 0.01~20%(重量)形成,其可以发出高亮度的白色光。

而且,在上述发光层中,希望含有作为敏化剂的红荧烯,特别是含有红荧烯与 Alq3 较佳。

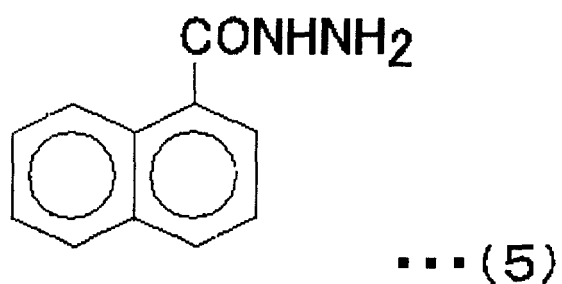
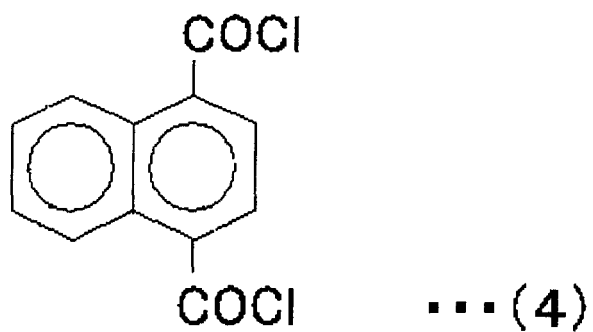
利用与本发明相关的发光化合物的发光元件,例如一般可以作为直流驱动型的有机 EL 元件使用,而且,也可以作为脉冲驱动型的有机 EL 元件及交流驱动型的有机 EL 元件使用。

[实施型态]

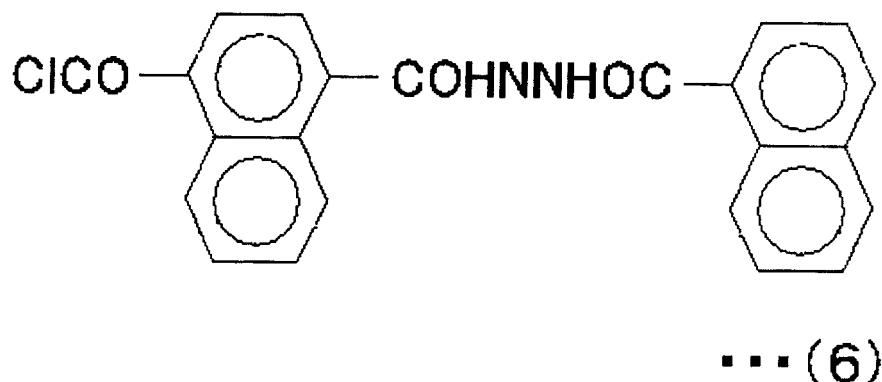
(实施型态 1) 发光化合物的合成

在 2L 的三口烧瓶中,加入下述分子式(4)表示的化合物 20g、下述分子式(5)表示的化合物 14.6g、吡啶 74ml 以及四氢呋喃 500ml。把此三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 70℃,使其进行 2.5 小时的反应。

反应结束后, 把该三口烧瓶中的溶液放置冷却, 浓缩后过滤, 干燥得到的固体物质, 得到 17g 的化合物。

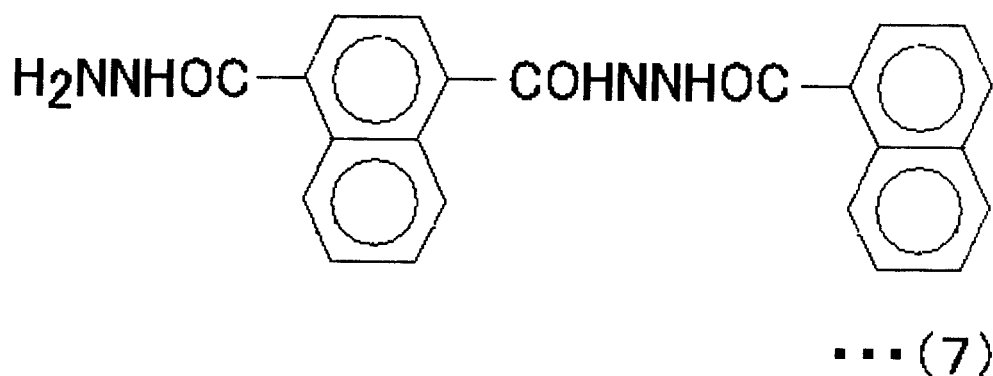


得到的结晶的 NMR 光谱记录图如图 5 所示, IR 光谱记录图如图 6 所示。据此, 得到的固体物质与具有以下分子式 (6) 表示的结构的化合物相同。



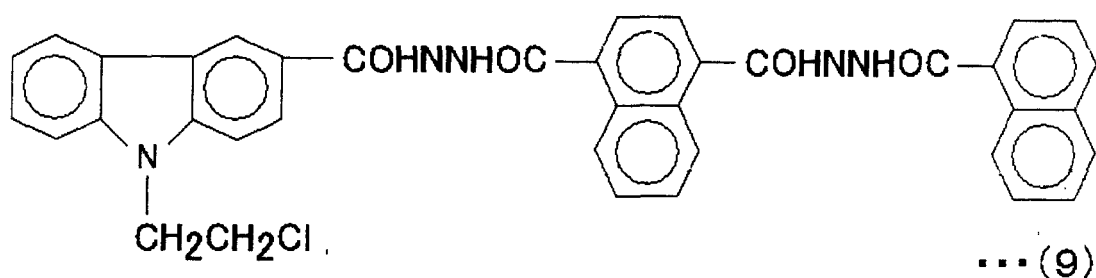
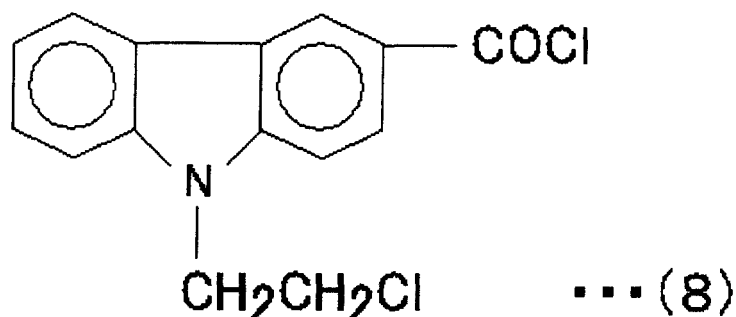
然后，在 2L 的三口烧瓶中，加入上述分子式 (6) 表示的化合物 17g、酰肼 13.4ml、吡啶 10ml 以及四氢呋喃 800ml，把此三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 55℃，使其反应 2 小时。反应结束后，将三口烧瓶中的溶液放置冷却，过滤得到过滤液。使用 700ml 的氯仿提取该过滤液后，用水洗涤此提取液，添加硫酸钠，去除水分后，过滤。浓缩后干燥凝固，得到 4.6g 固体状物质。

得到的结晶的 NMR 光谱记录图如图 7 所示，IR 光谱记录图如图 8 所示。据此，得到的结晶与具有以下分子式 (7) 表示结构的化合物相同。



然后，在 2L 的三口烧瓶中，加入上述分子式 (7) 表示化合物 4.6g、下述分子式 (8) 表示的化合物 3.27g、吡啶 1.5g、以及四氢呋喃 600ml。把此三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 60℃，使其反应 10 小时。反应结束后，把三口烧瓶内的溶液放置冷却，过滤得到过滤液。用水洗涤此过滤液后，再用甲醇洗涤，干燥凝固，得到 1.15g 的固体状物质。

[0180]得到的结晶的 NMR 光谱记录图如图 9 所示，IR 光谱图如图 10 所示。据此，得到的结晶与具有下述分子式 (9) 表示的结构的化合物相同。

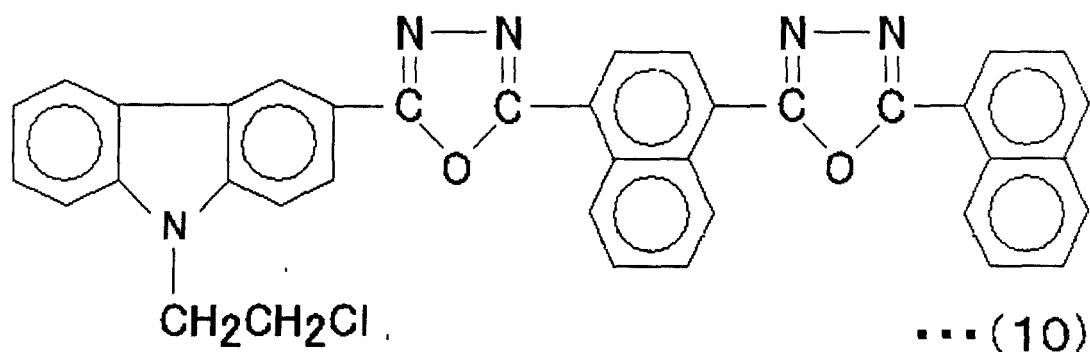


然后，在 500ml 的耐压烧瓶中，加入上述分子式 (9) 表示的化合物 1.15g、二氧杂环己烷 150ml、以及磷酰氯 75ml。把此耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 110℃，使其反应 15.5 小时。反应结束后，把溶液放置冷却，过滤，用水、甲醇依次洗涤得到的滤液，干燥凝固，得到 0.65g 的固体状物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 11 所示，IR 光谱记录图如图

12 所示。

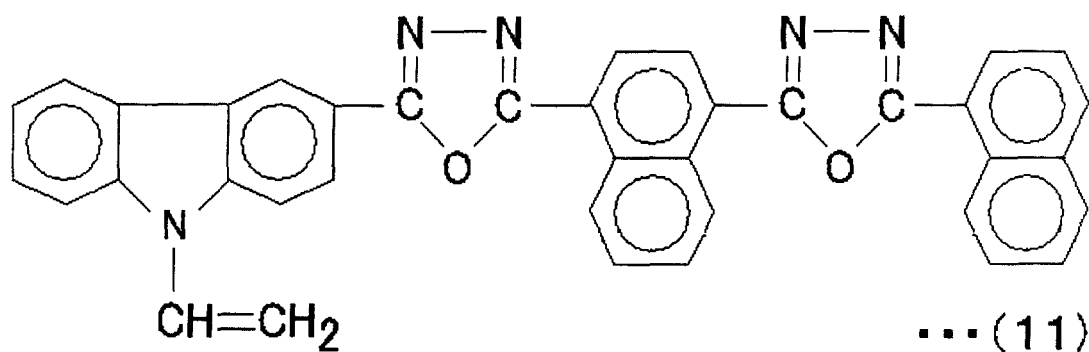
据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (10) 表示的结构化合物相同。



在 500ml 的耐压烧瓶中，加入上述分子式 (10) 表示的化合物 0.65g、氢氧化钾 0.7g、二氧杂环己烷 100ml、以及乙醇 50ml。把此耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 100°C ，使其反应 16.5 小时。反应结束后，把溶液放置冷却，浓缩，把得到的溶液过滤，用水、甲醇依次洗涤得到的滤液，干燥凝固，得到 0.15g 的固体状物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 13 所示，IR 光谱记录图如图 14 所示。

据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (11) 表示的结构化合物相同。



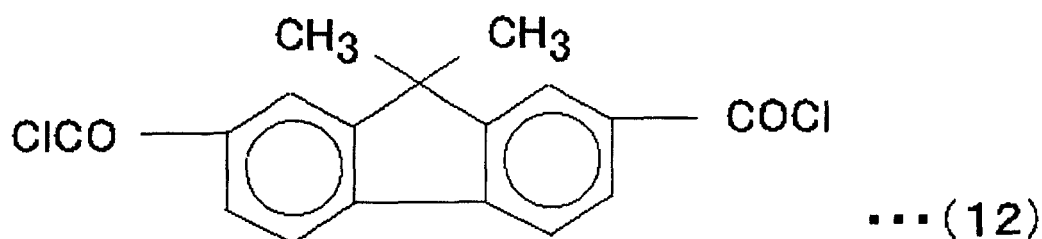
该化合物的荧光光谱如图 15 所示。如此可以得知：得到的化合物发出白色的光。

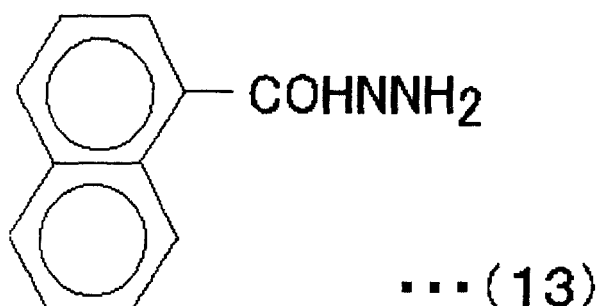
然后，在聚合管中加入上述分子式 (11) 表示的化合物 0.1g、AIBN 0.54mg、氯苯 50ml 以及 DMF 5ml。把该聚合管中的溶液在硅油浴器中加热至 145℃，使其反应 48 小时。反应结束后，浓缩聚合管中的溶液，放置冷却后，过滤，干燥得到的过滤物质，得到 0.1g 的固体状物质。

(实施型态 2) 发光化合物的合成

在 1L 的耐压烧瓶中，加入 9,9'-二甲基芴-2,7-二羧酸 15g、亚硫酸氯 200ml。把该耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 80℃，使其反应 3 小时。反应结束后，把该耐压烧瓶中的溶液冰镇冷却，馏去亚硫酸氯，得到固体状物质，使其干燥，得到 31g 的白色固体。

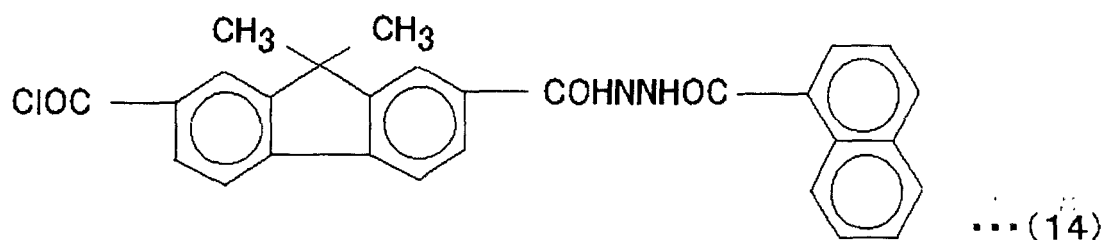
得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 16 所示，IR 光谱记录图如图 17 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (12) 表示的结构的酸氯氧化合物相同。





然后，在 500ml 的三口烧瓶中，加入上述分子式 (13) 表示的化合物 10g、吡啶 5g、以及四氢呋喃 300ml。一边把此三口烧瓶中的溶液冰镇冷却，一边把 500ml 的四氢呋喃中溶解了上述分子式 (12) 表示的固体的溶液全部滴定。滴定结束后，把该三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 60℃，使其反应 16 小时。反应结束后，把该三口烧瓶中的溶液冰镇冷却，过滤，用水洗涤，干燥，使得到的固体状物质干燥，得到 18.75g 的茶色的固体物质。

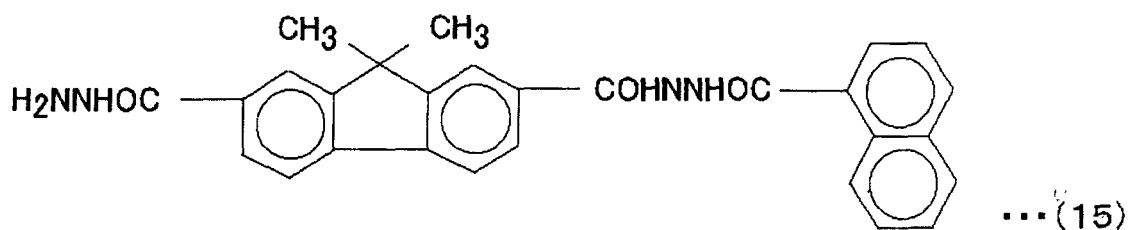
得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 18 所示，IR 光谱记录图如图 19 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (14) 表示的结构的酰肼化合物相同。



然后，在 500ml 的三口烧瓶中，加入上述分子式 (14) 表示的化合物 18.75g、吡啶 9.6ml、酰肼 13ml、以及四氢呋喃 700ml。把此三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 60℃，使其反应 12 小时。反应结束后，

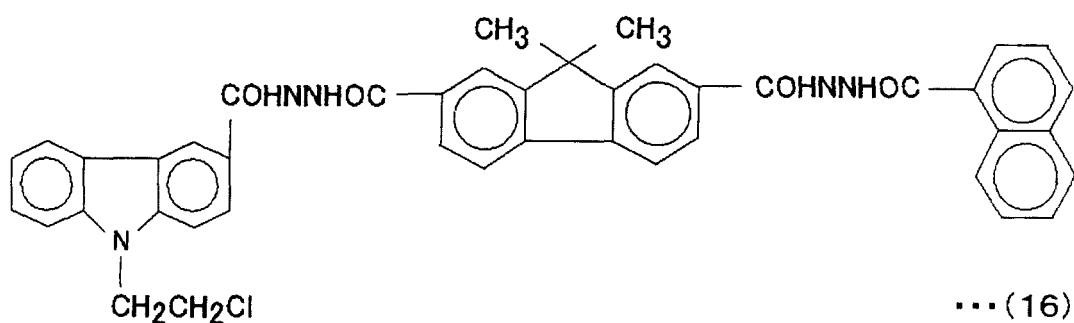
把该三口烧瓶中的溶液冰镇冷却，过滤，用水洗涤，干燥后，干燥得到的固体状物质，得到 4.42g 的茶色的固体物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 20 所示，IR 光谱记录图如图 21 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (15) 表示的结构的酰肼化合物相同。



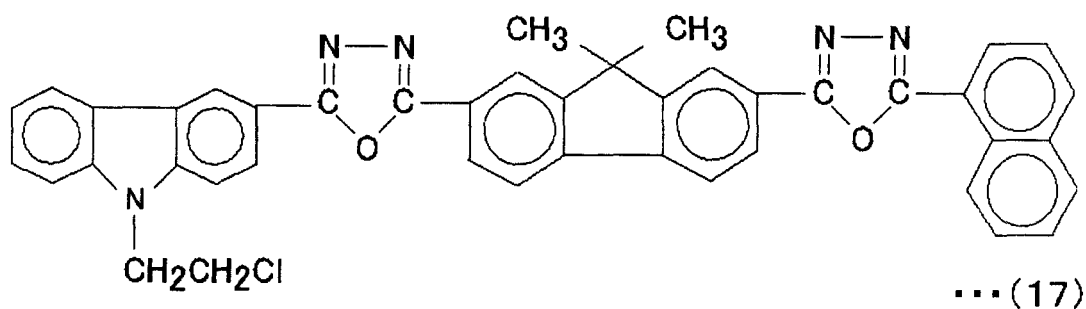
然后，在 500ml 的三口烧瓶中，加入上述分子式 (15) 表示的化合物 2.44g、吡啶 0.5g、以及四氢呋喃 100ml。一边把此三口烧瓶中的溶液冰镇冷却，一边把 100ml 的 THF 中溶解了 1.5g 的上述分子式 (8) 表示的化合物的溶液全部滴定。滴定结束后，把该三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 70℃，使其反应 1.5 小时。反应结束后，把该三口烧瓶中的溶液冰镇冷却，过滤，用水洗涤、干燥，再干燥得到的固体状物质，得到 1.27g 的黄色的固体物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 22 所示，IR 光谱记录图如图 23 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (16) 表示的结构的酰肼化合物相同。



在 500ml 的三口烧瓶中, 加入上述分子式 (16) 表示的化合物 1.27g、二氧杂环己烷 50ml、以及磷酰氯 30ml。把此三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 115℃, 使其反应 6 小时。反应结束后, 过滤, 得到固体状物质。用水、甲醇依次洗涤得到的滤液, 添加硫酸钠, 使其干燥, 得到 0.5g 的茶色的固体物质。

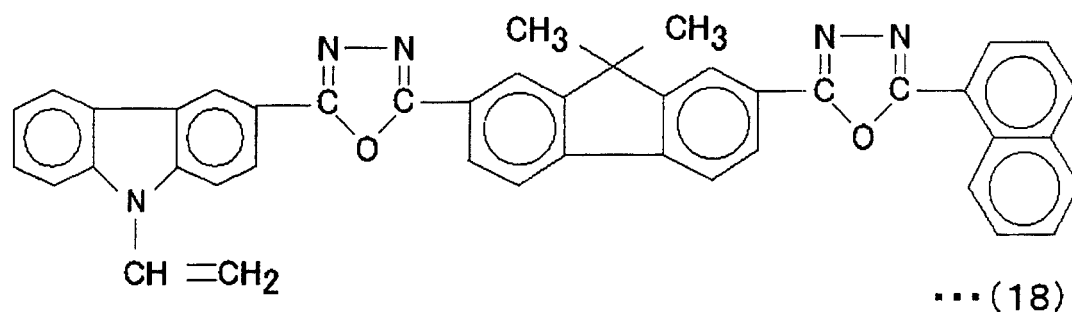
得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 24 所示, IR 光谱记录图如图 25 所示。据此, 得到的固体物质与具有以下分子式 (17) 表示的结构的化合物相同。



在 500ml 的耐压烧瓶中, 加入上述分子式 (17) 表示的化合物 0.36g、氢氧化钾 0.77g、以及二氧杂环己烷 100ml。把此耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 100℃, 使其反应 3 小时。反应结束后, 把该溶液浓缩, 利用 300ml 的氯仿提取。在该提取物中加入 50g 的无水硫酸钠将其脱水, 然后浓缩。浓缩后, 干燥得到的浓缩液, 得到 0.07g 的红褐色的固体物

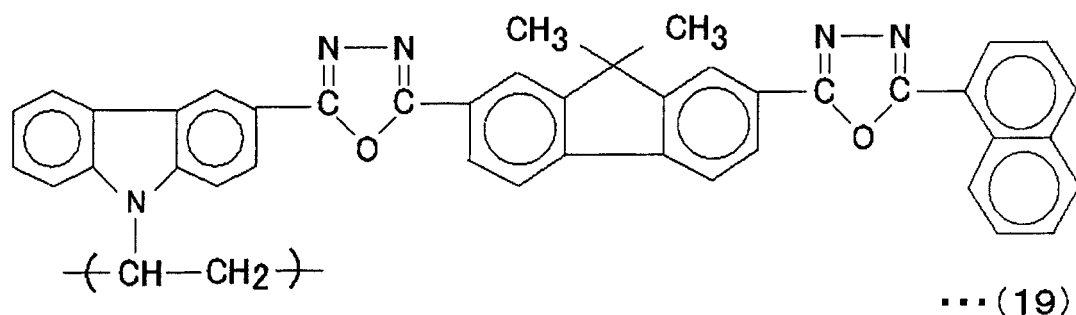
质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 26 所示, IR 光谱记录图如图 27 所示。据此, 得到的固体物质与具有以下分子式 (18) 表示的结构的乙烯化合物相同。



在聚合管中加入上述分子式 (18) 表示的乙烯化合物 0.07g、邻二氯苯 5ml 以及 DMF 5ml。把该耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 145℃, 使其反应 50 小时。反应结束后, 浓缩, 过滤, 然后把得到的浓缩液干燥凝固, 得到 0.051g 的灰白色固体物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 28 所示, IR 光谱记录图如图 29 所示。据此, 得到的固体物质与具有以下分子式 (19) 表示的重复单元的化合物相同。



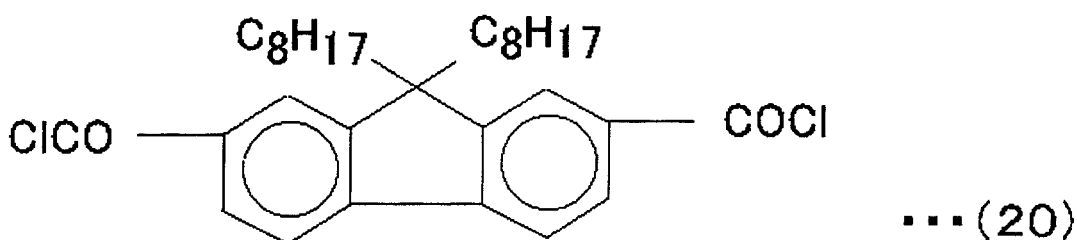
具有上述分子式 (19) 表示的重复单元的化合物的荧光光谱记录图

如图 30 所示。据此，可以得知得到的化合物发出白色的光。

（实施型态 3）发光化合物的合成

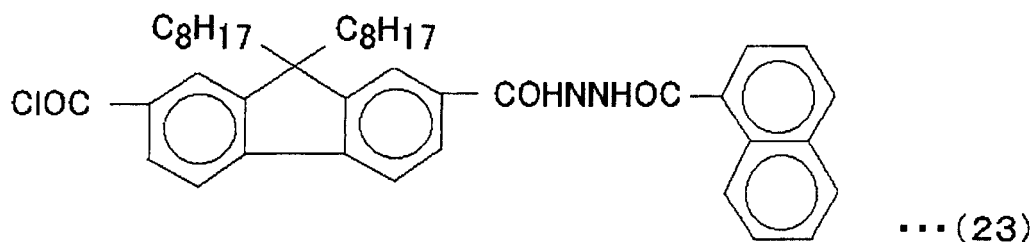
在 2L 的三口烧瓶中，加入 9,9'-二甲基芴-2,7-二羧酸 9g、亚硫酰氯 450ml、吡啶 3g 以及亚硫酰氯 150ml。把该三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热，使其反应 7 小时。反应结束后，把该耐压烧瓶中的溶液放置冷却，浓缩后过滤，得到 9.15g 的浅粉色的结晶。

得到的结晶的 NMR 光谱记录图如图 31 所示，IR 光谱记录图如图 32 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (20) 表示的结构的化合物相同。



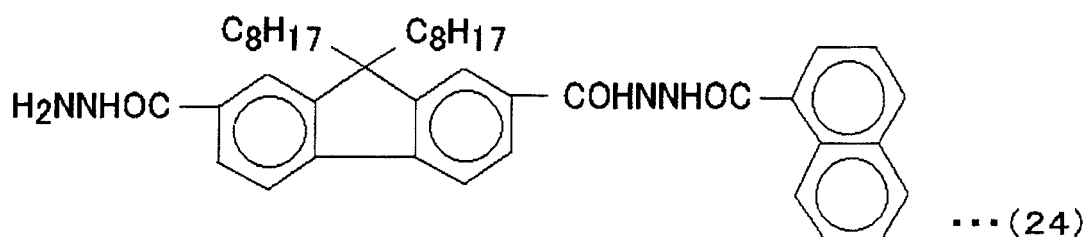
在 2L 的三口烧瓶中，加入上述分子式 (20) 表示的酸氯氧化合物 9.15g、上述分子式 (13) 表示的化合物 3.31g、吡啶 1.69g、以及四氢呋喃 300ml。把该三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 70℃，使其反应 1.5 小时。反应结束后，把该三口烧瓶中的溶液放置冷却，浓缩后过滤，得到 12g 的固体物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 33 所示，IR 光谱记录图如图 34 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (23) 表示的结构的化合物相同。



然后, 在 1L 的三口烧瓶中, 加入上述分子式 (23) 表示的化合物 12g、吡啶 4.27g、胼 5.8ml 以及四氢呋喃 400ml。把该三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 70℃, 使其反应 4.5 小时。反应结束后, 把该三口烧瓶中的溶液用氯仿提取。利用蒸发器蒸馏提取的物质, 然后用真空泵干燥, 得到 9.37g 的茶色的粉末。

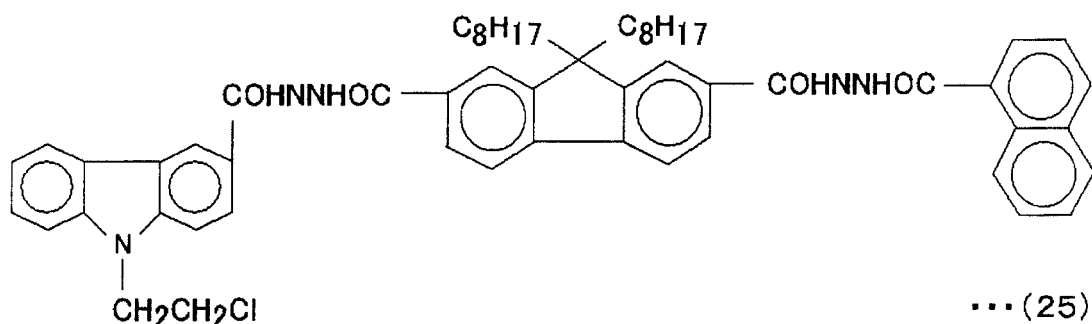
得到的粉末的 NMR 光谱记录图如图 35 所示, IR 光谱记录图如图 36 所示。据此, 得到的粉末与具有以下分子式 (24) 表示的结构的酰肼化合物相同。



然后, 在 1L 的三口烧瓶中, 加入上述分子式 (23) 表示的酰肼化合物 4.9g、上述分子式 (8) 表示的化合物 2.1g、吡啶 0.7g、以及四氢呋喃 290ml。把此三口烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 110℃, 使其反应 2 小时。反应结束后, 把该三口烧瓶中的溶液倒入冰水中, 用布氏 (Nutsche) 吸滤漏斗过滤后, 洗涤得到的固体物质, 使其干燥后, 得到 5g 的固体物质。

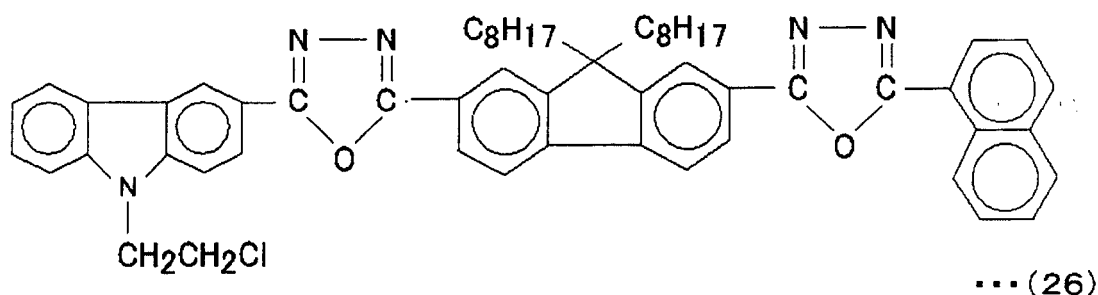
得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 37 所示, IR 光谱记录图如图 38 所示。据此, 得到的固体物质与具有以下分子式 (25) 表示的结构的

酰肼化合物相同。



然后，在 500ml 的耐压烧瓶中，加入上述分子式 (25) 表示的化合物 5g、二氧杂环己烷 200ml、以及磷酰氯 100ml。把该耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 110℃，使其反应 14.5 小时。反应结束后，把该三口烧瓶中的溶液倒入冰水中，用布氏吸滤漏斗过滤，洗涤得到的固体物质、干燥，得到 4.26g 的固体物质。

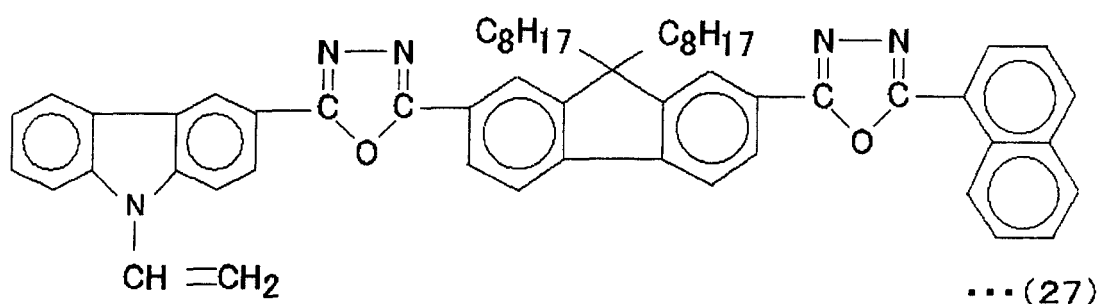
得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 39 所示，IR 光谱记录图如图 40 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (26) 表示的结构化合物相同。



在 500ml 的耐压烧瓶中，加入上述分子式 (26) 表示的化合物 0.34g、氢氧化钾 0.7g、乙醇 50ml、以及二氧杂环己烷 100ml。把此耐压烧瓶中的溶液在硅油浴器中加热至 100℃，使其反应 4 小时。反应结束后，把该

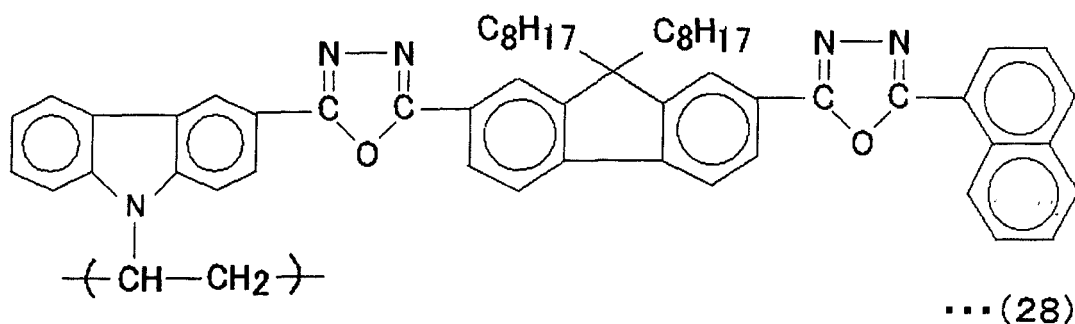
溶液浓缩，冰镇冷却后，在用布氏吸滤漏斗过滤的该提取物中加入 50g 的无水硫酸钠进行脱水，然后进行浓缩，把过滤后得到固体状物质用甲醇洗涤后，使其干燥，得到 0.23g 的白色的粉末。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 41 所示，IR 光谱记录图如图 42 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (27) 表示的结构的乙烯化合物相同。



在 300ml 的耐压烧瓶中，加入上述分子式 (27) 表示的乙烯化合物 0.2g、氯苯 10ml、以及 2 重量%的六氯化钨/氯苯溶液 50 μ m。把此耐压烧瓶中的溶液在振动器中振动 15 小时。振动结束后，过滤，从得到的过滤液中馏去溶剂，使其干燥，得到 0.1g 的淡黄色的固体物质。

得到的固体物质的 NMR 光谱记录图如图 43 所示，IR 光谱记录图如图 44 所示。据此，得到的固体物质与具有以下分子式 (28) 表示的重复单元的化合物相同。



具有上述分子式（28）表示的重复单元的化合物的荧光光谱记录图如图 45 所示。据此，可以得知得到的化合物发出白色的光。

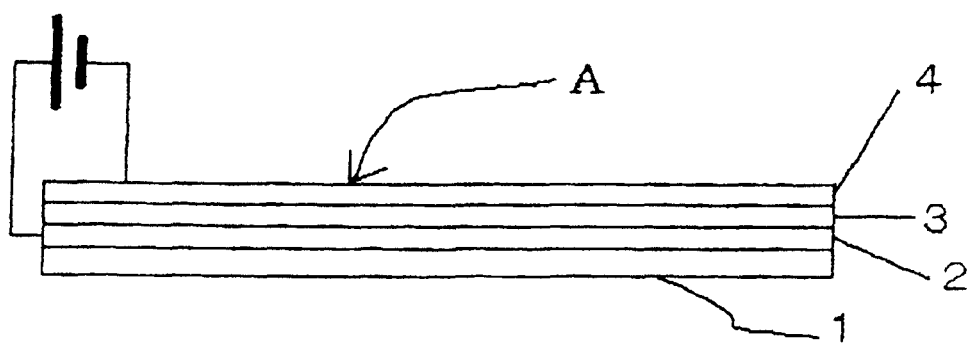


图 1

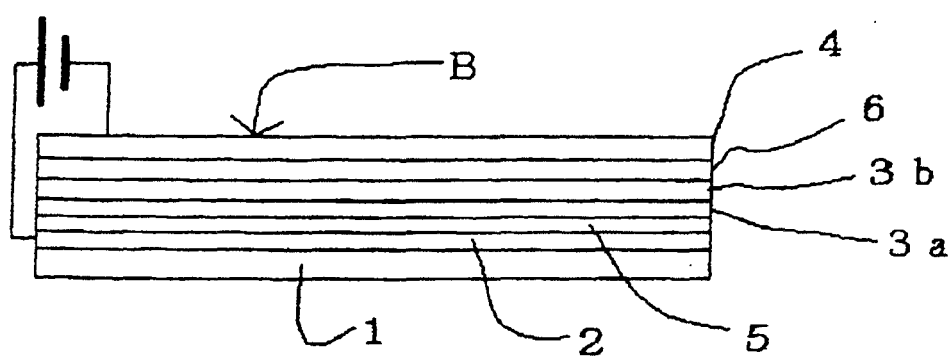


图 2

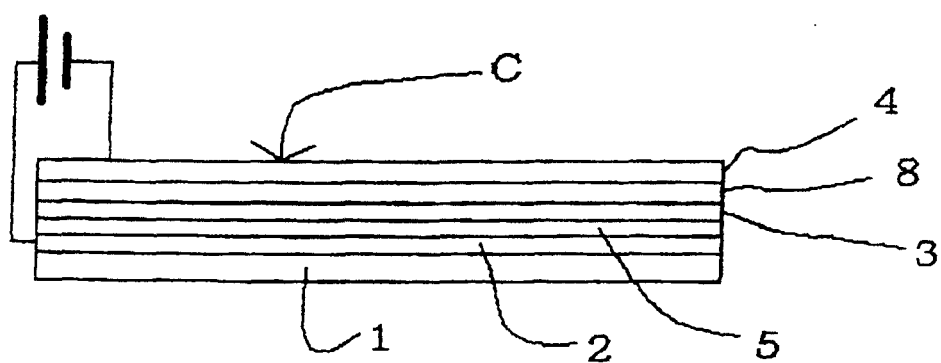


图 3

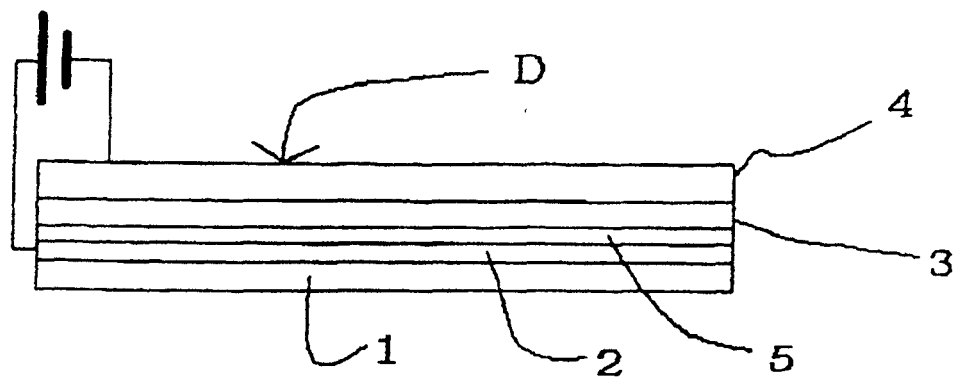


图 4

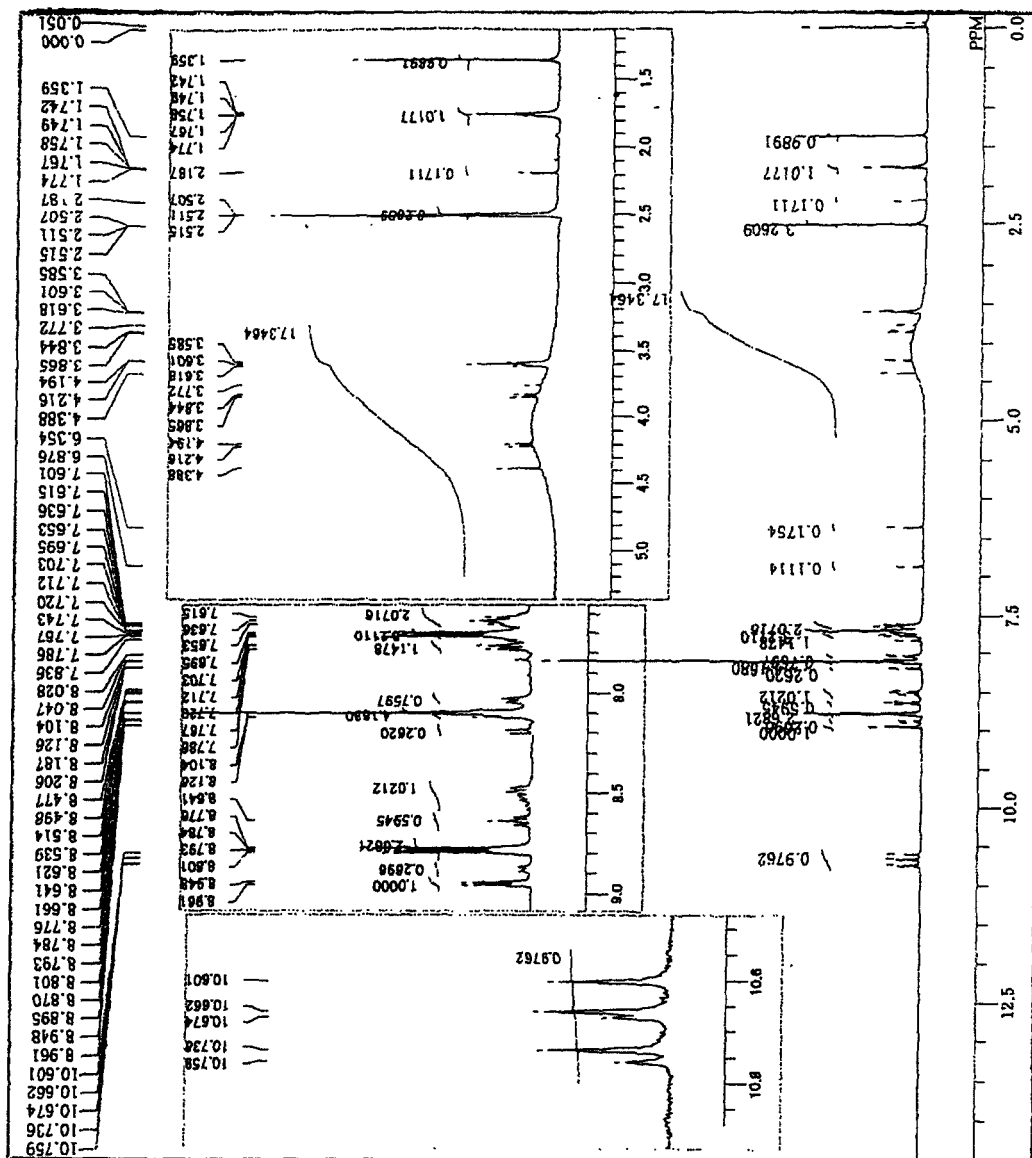


图 5

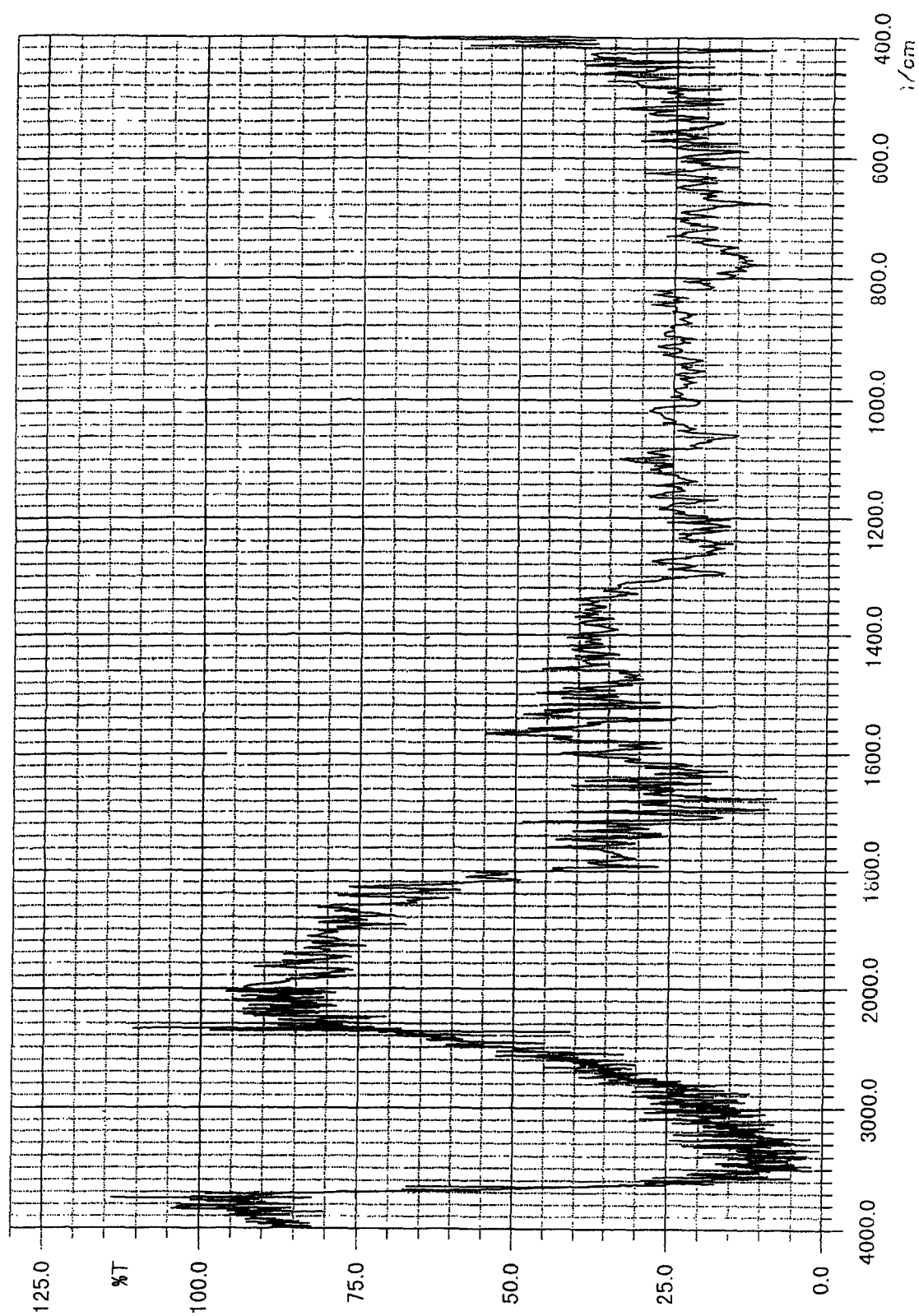


图 6

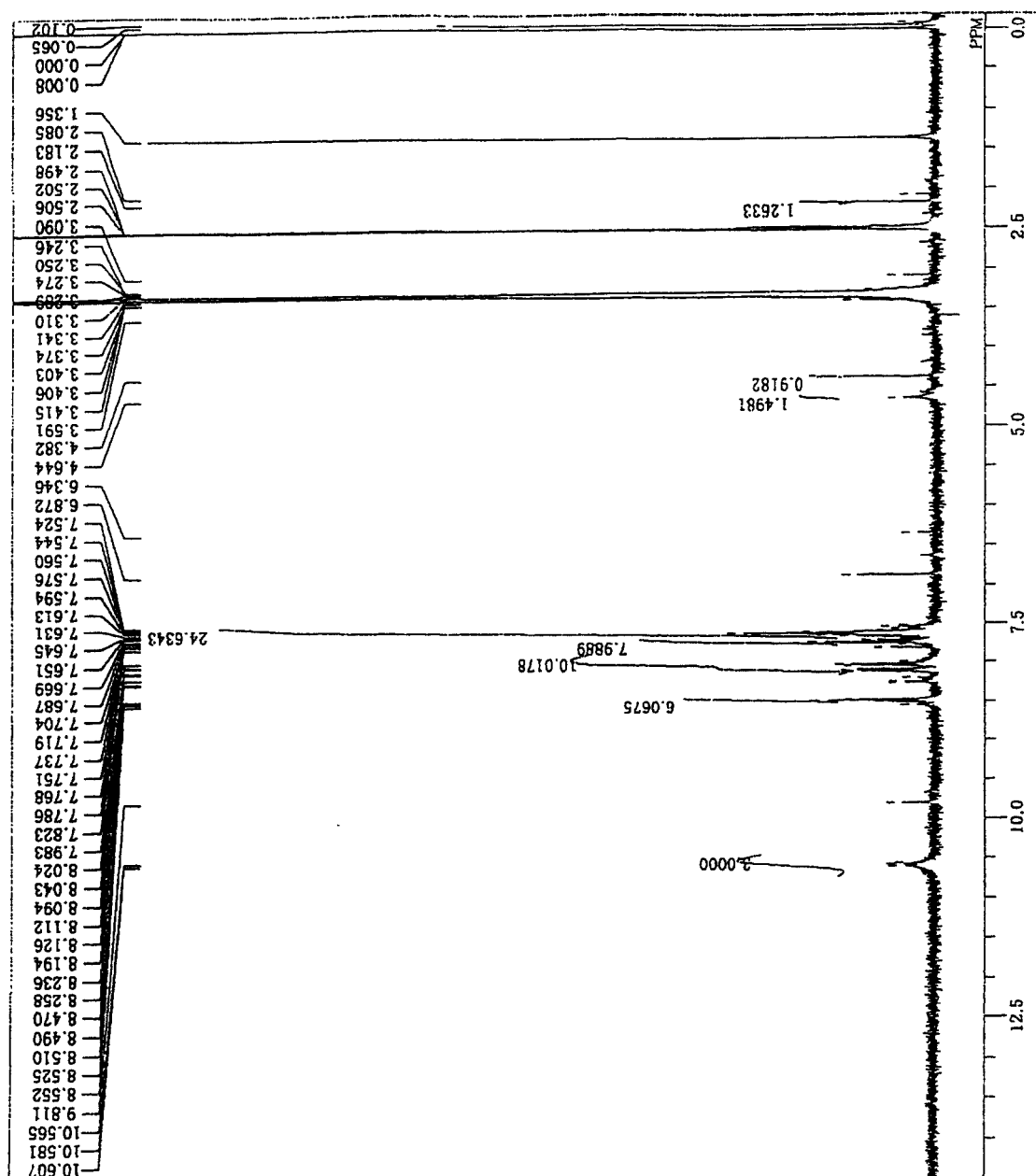


图 7

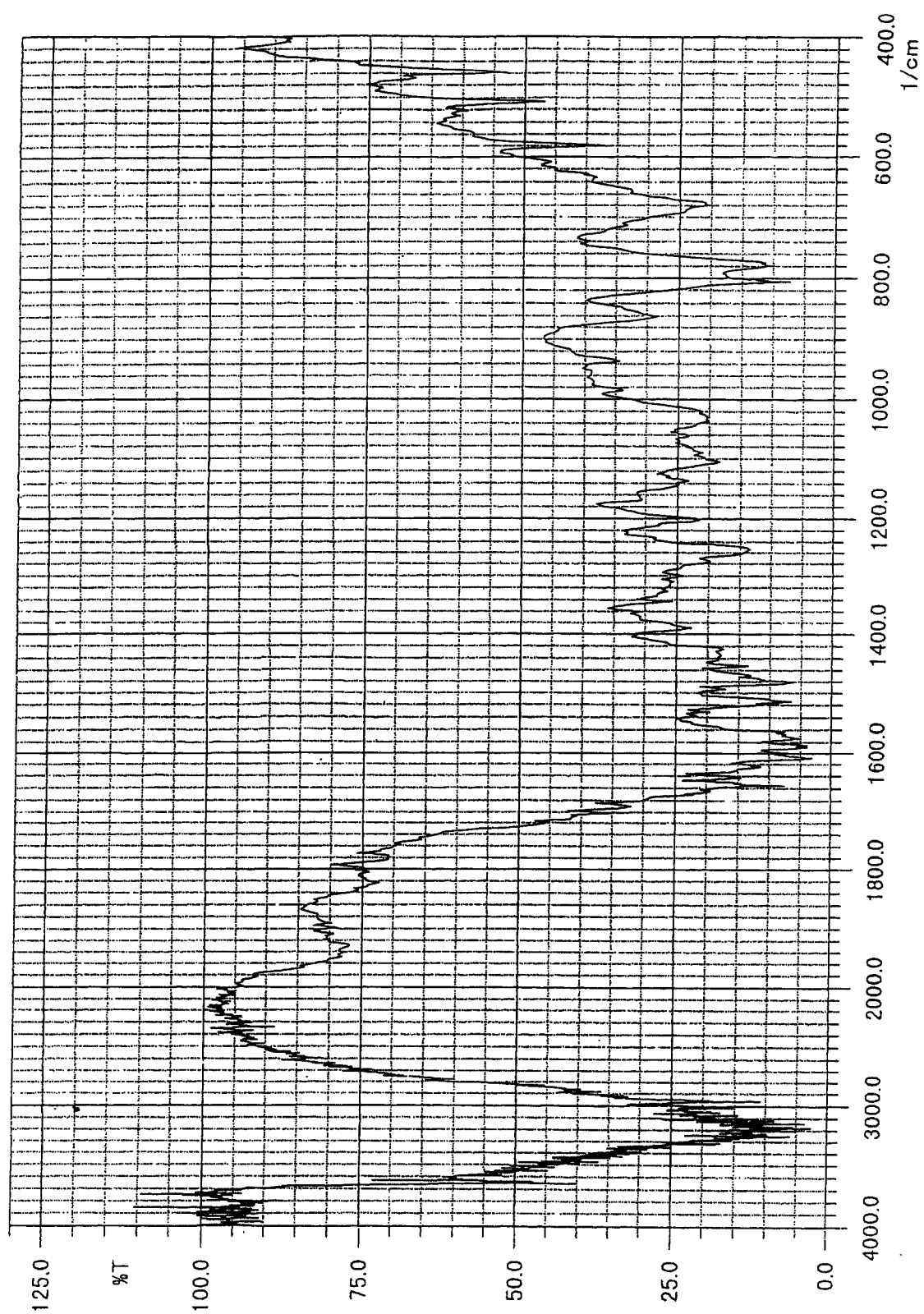


图 8

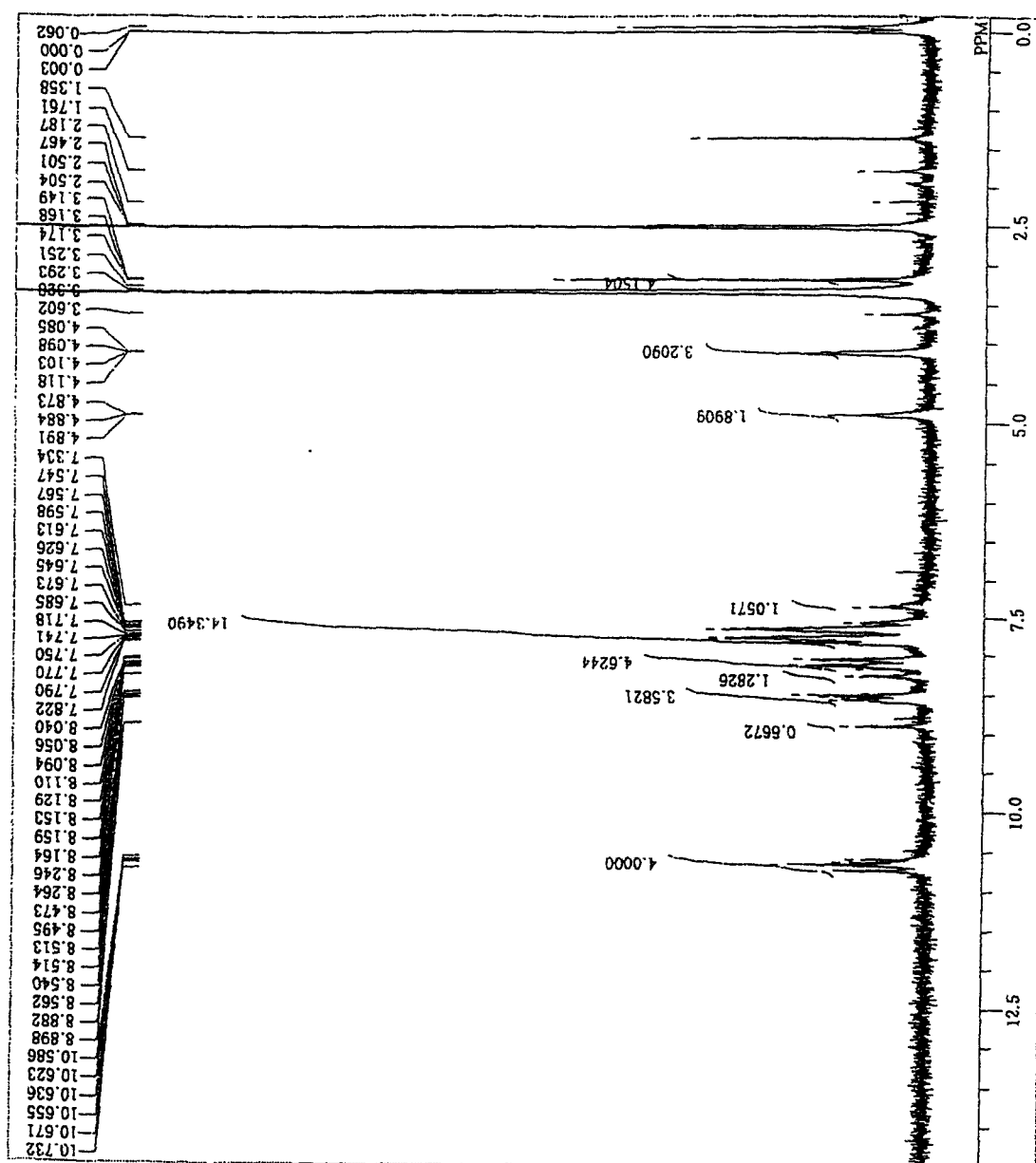


图 9

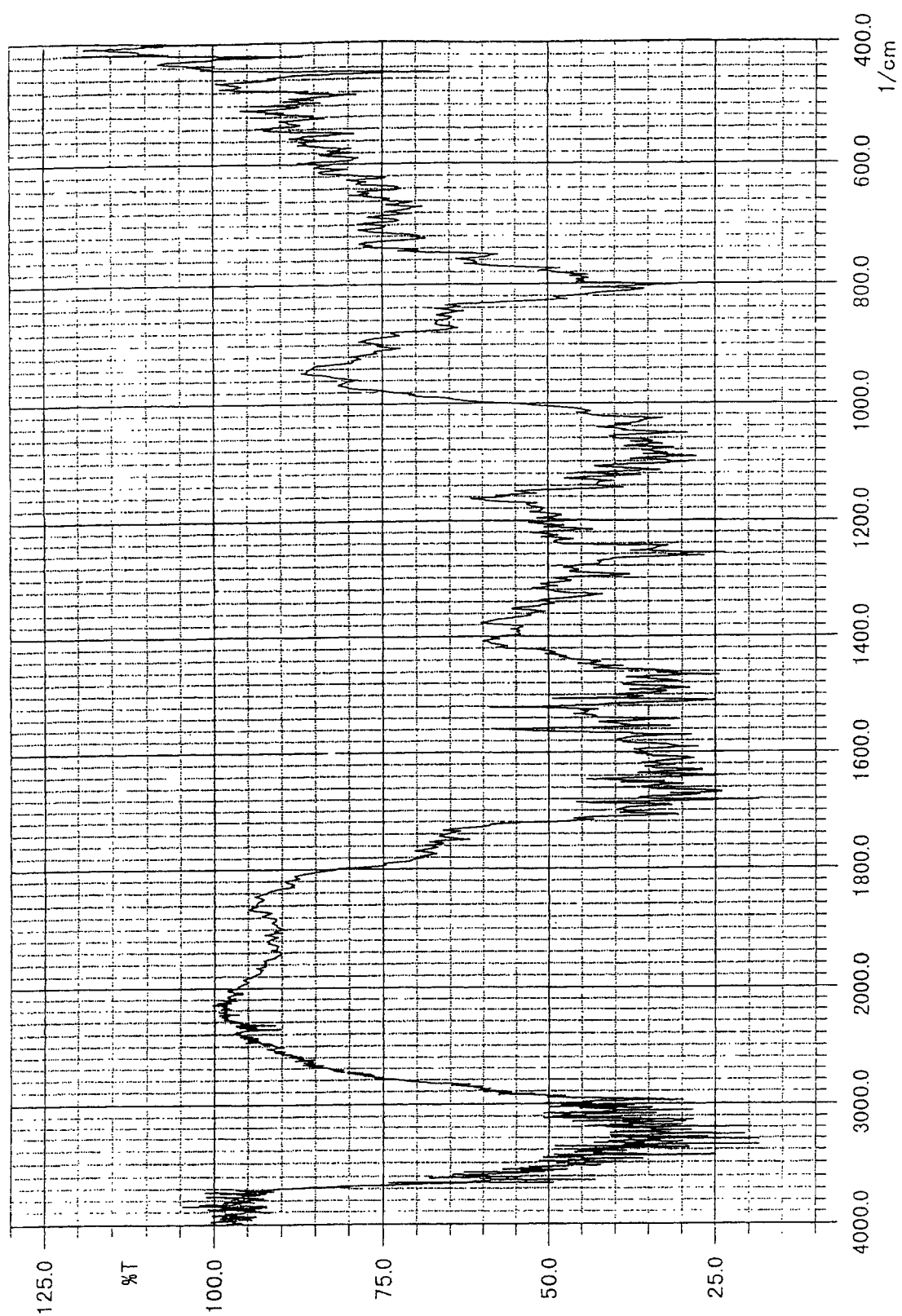


图 10

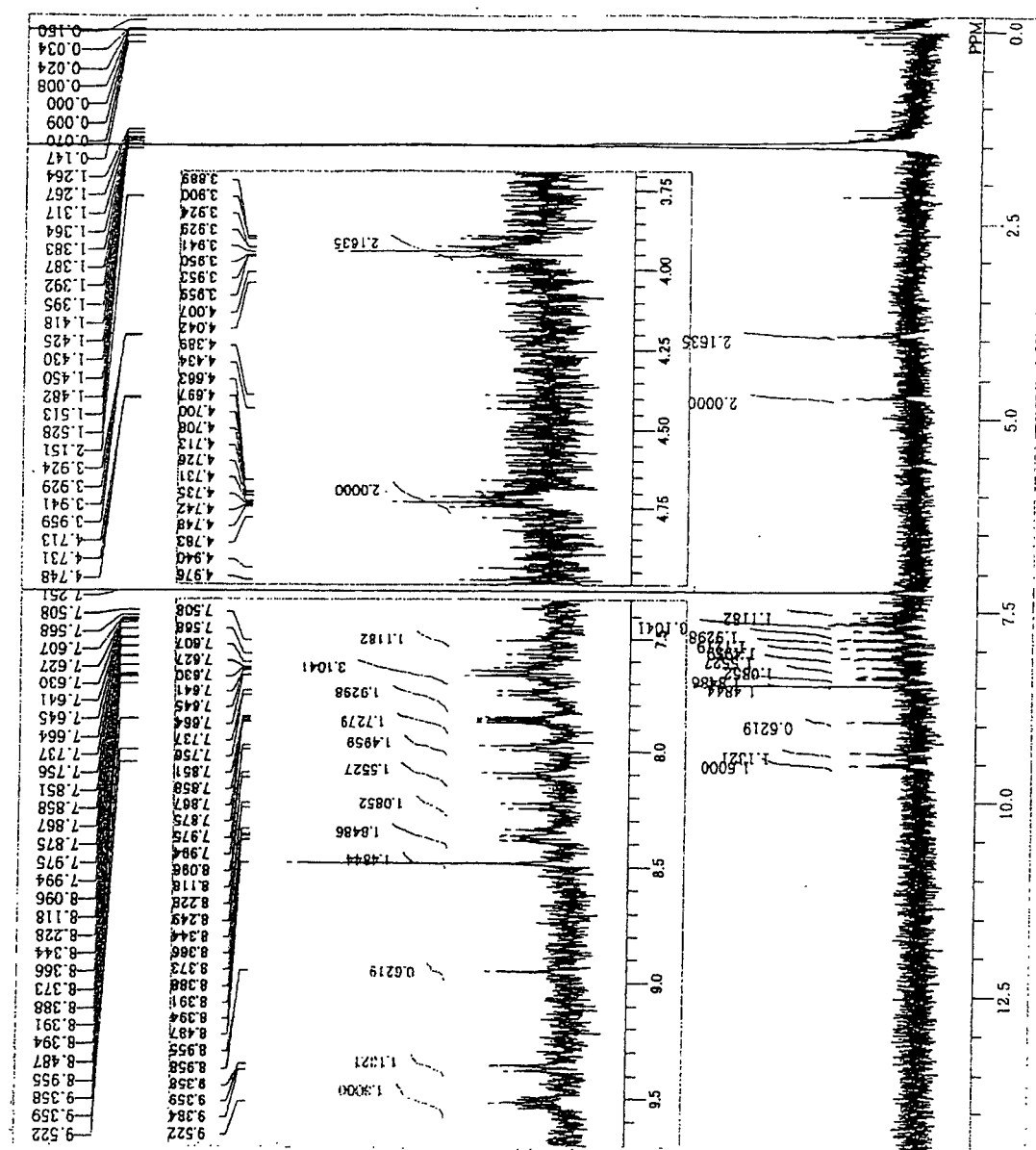


图 11

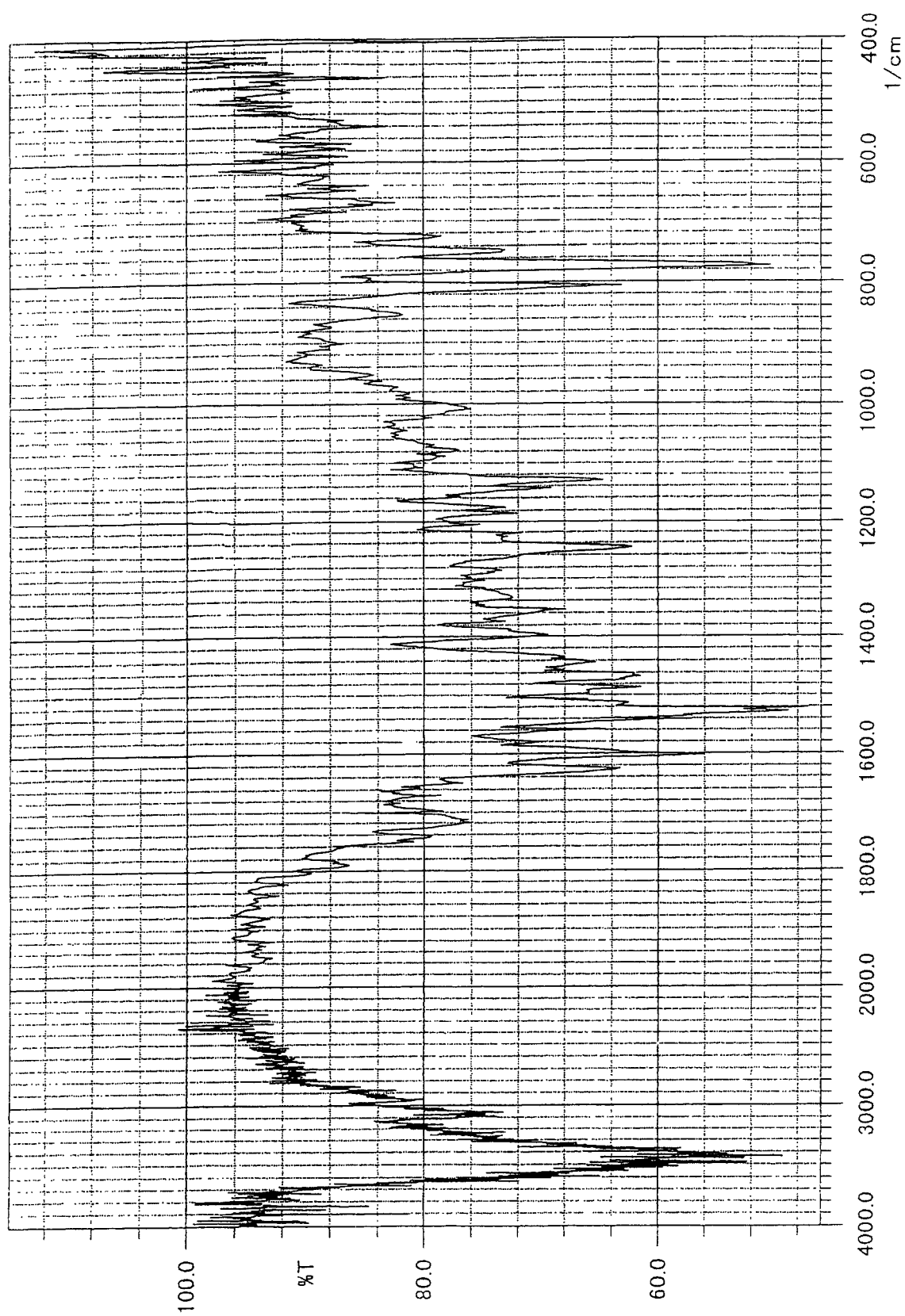


图 12

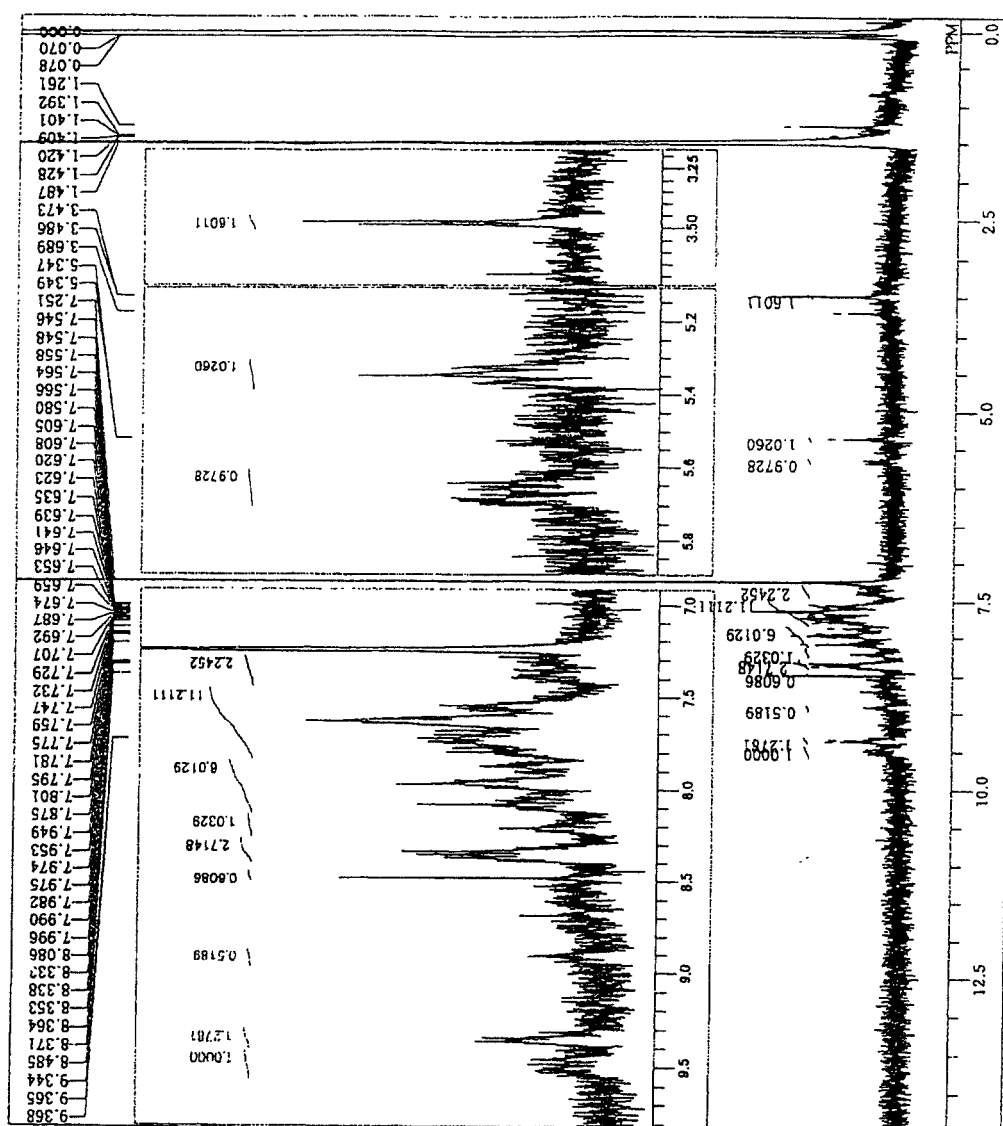


图 13

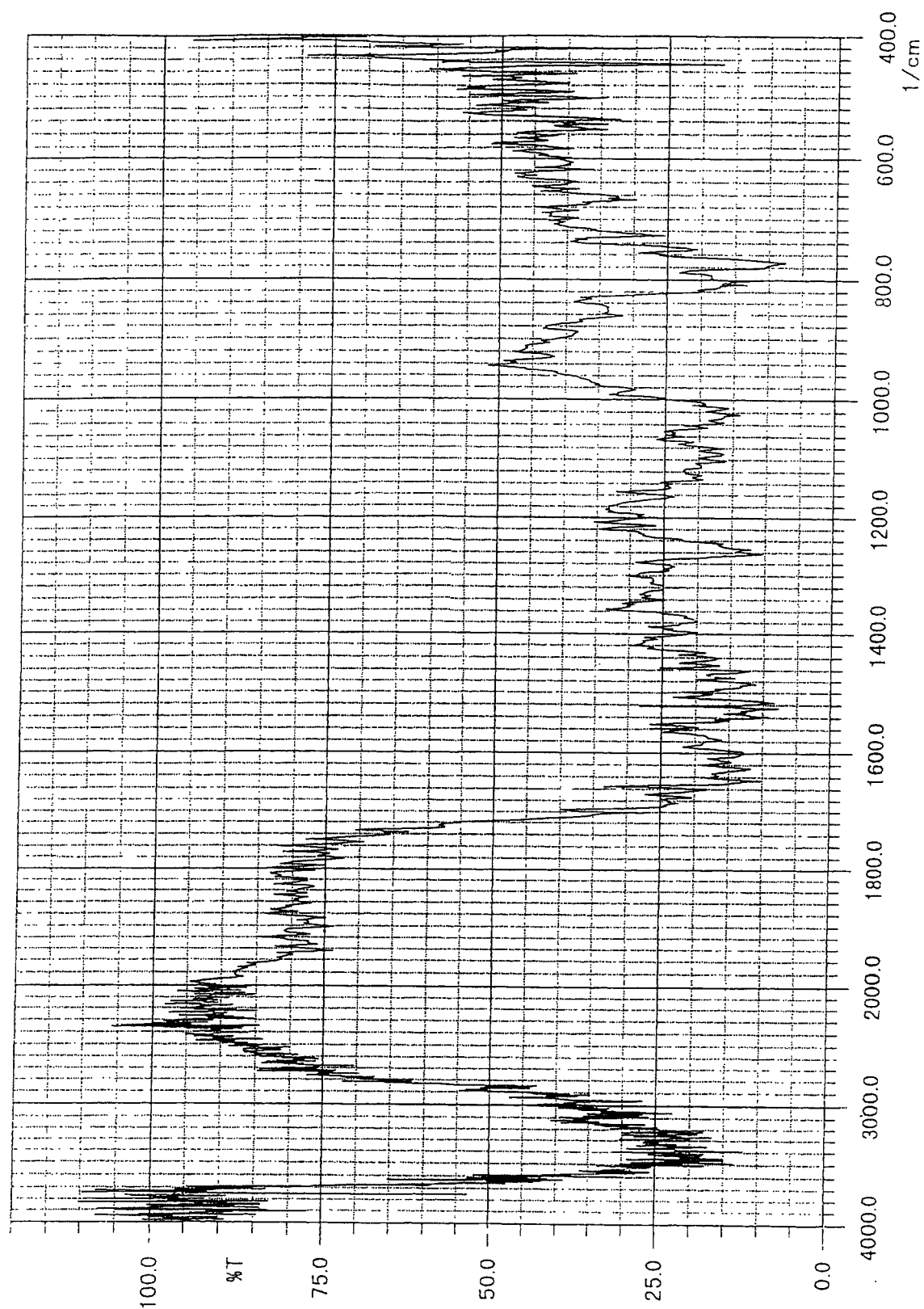


图 14

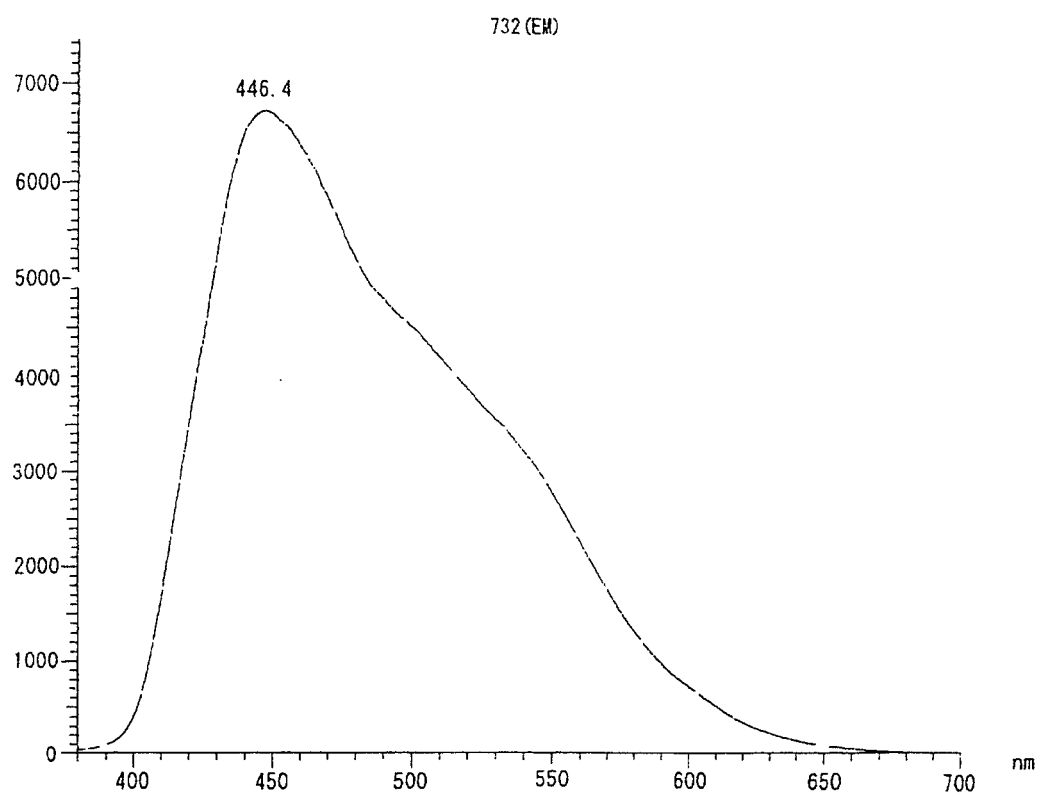


图 15

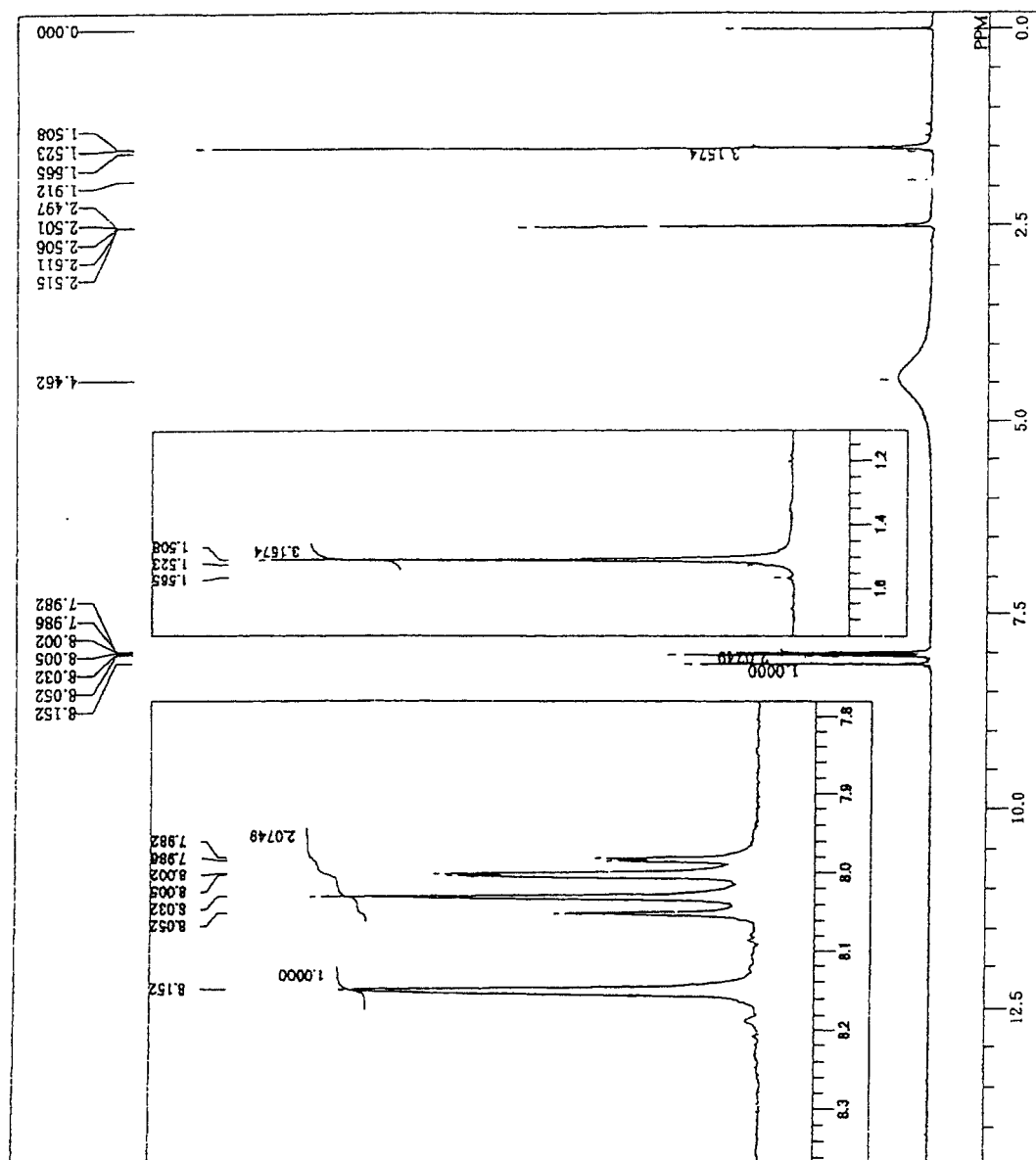


图 16

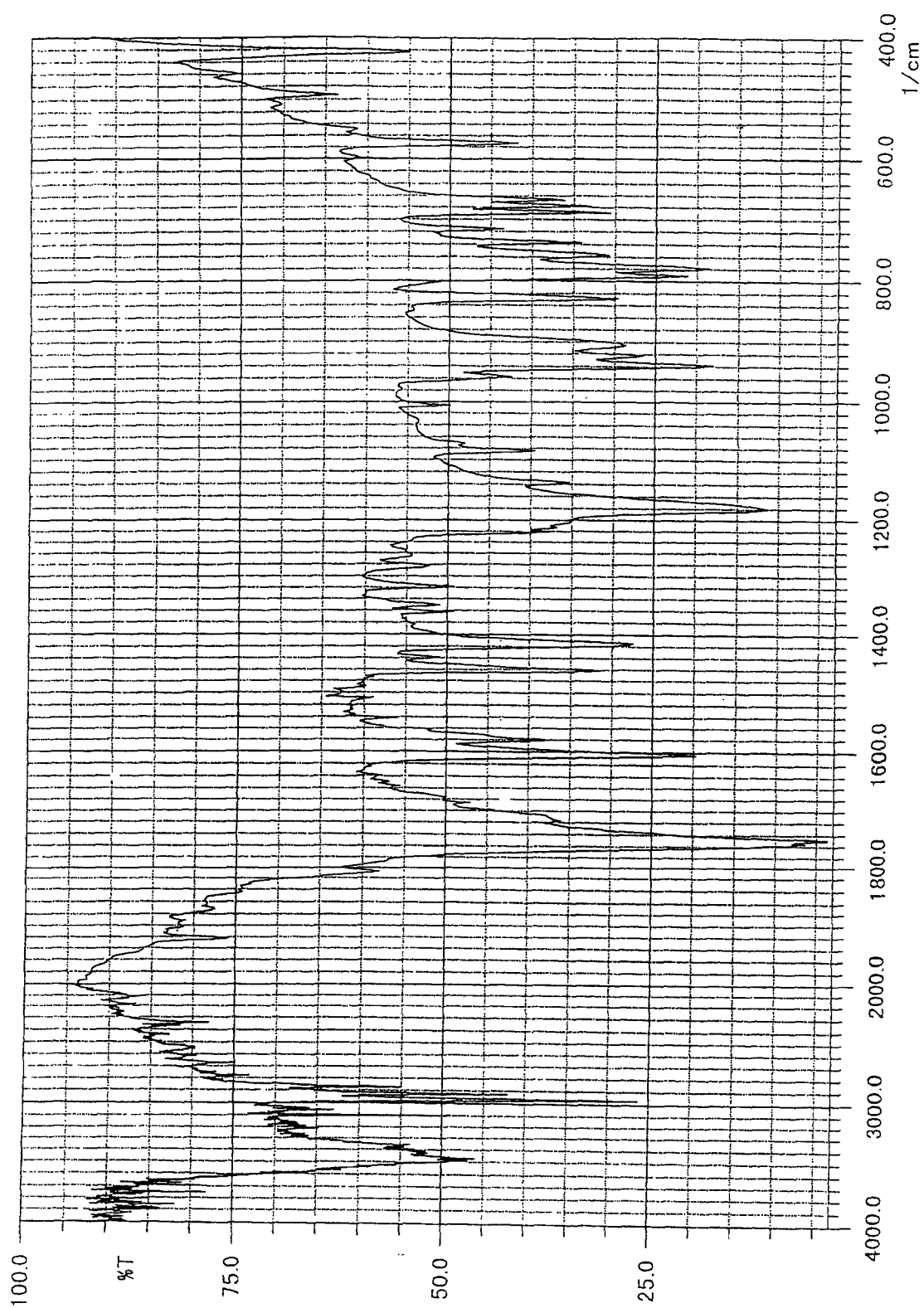


图 17

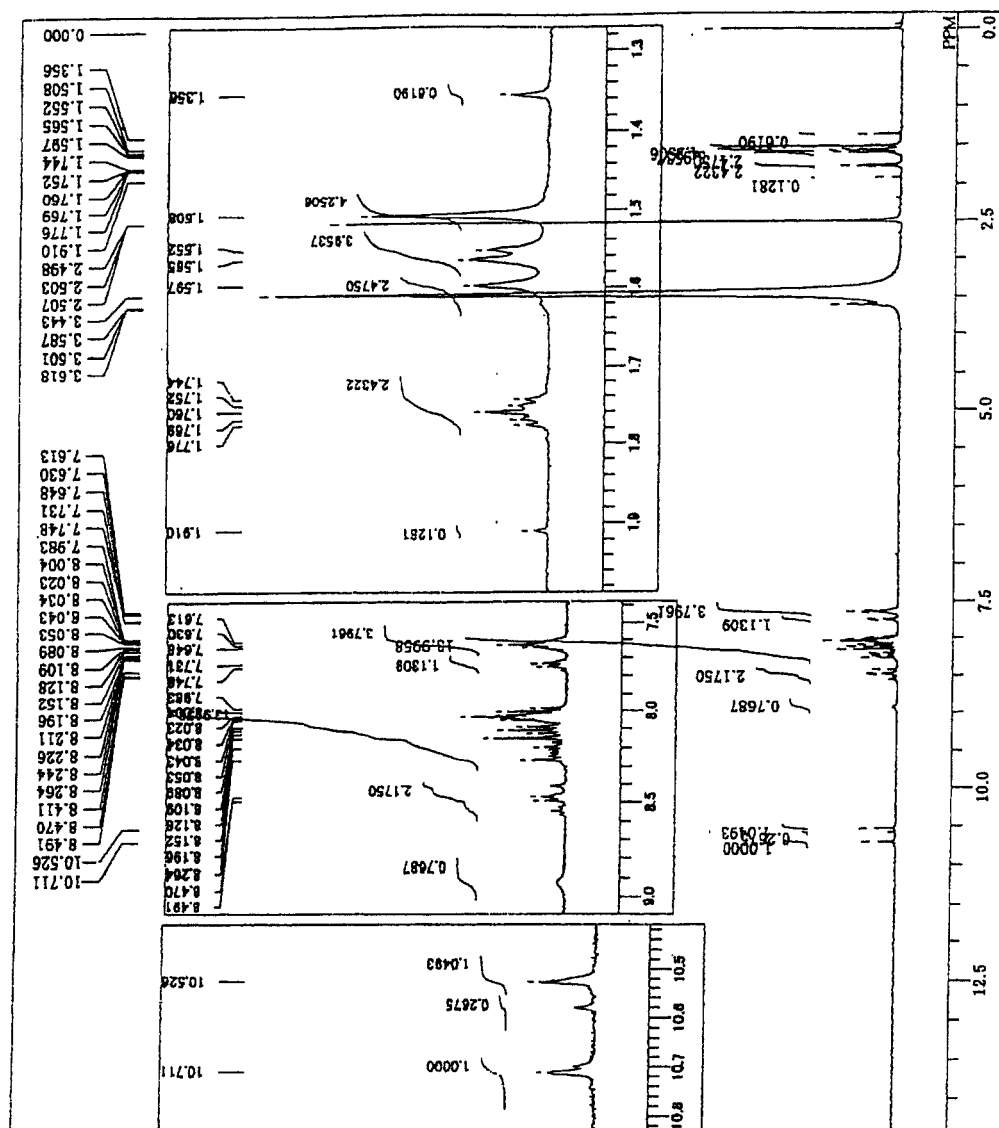


图 18

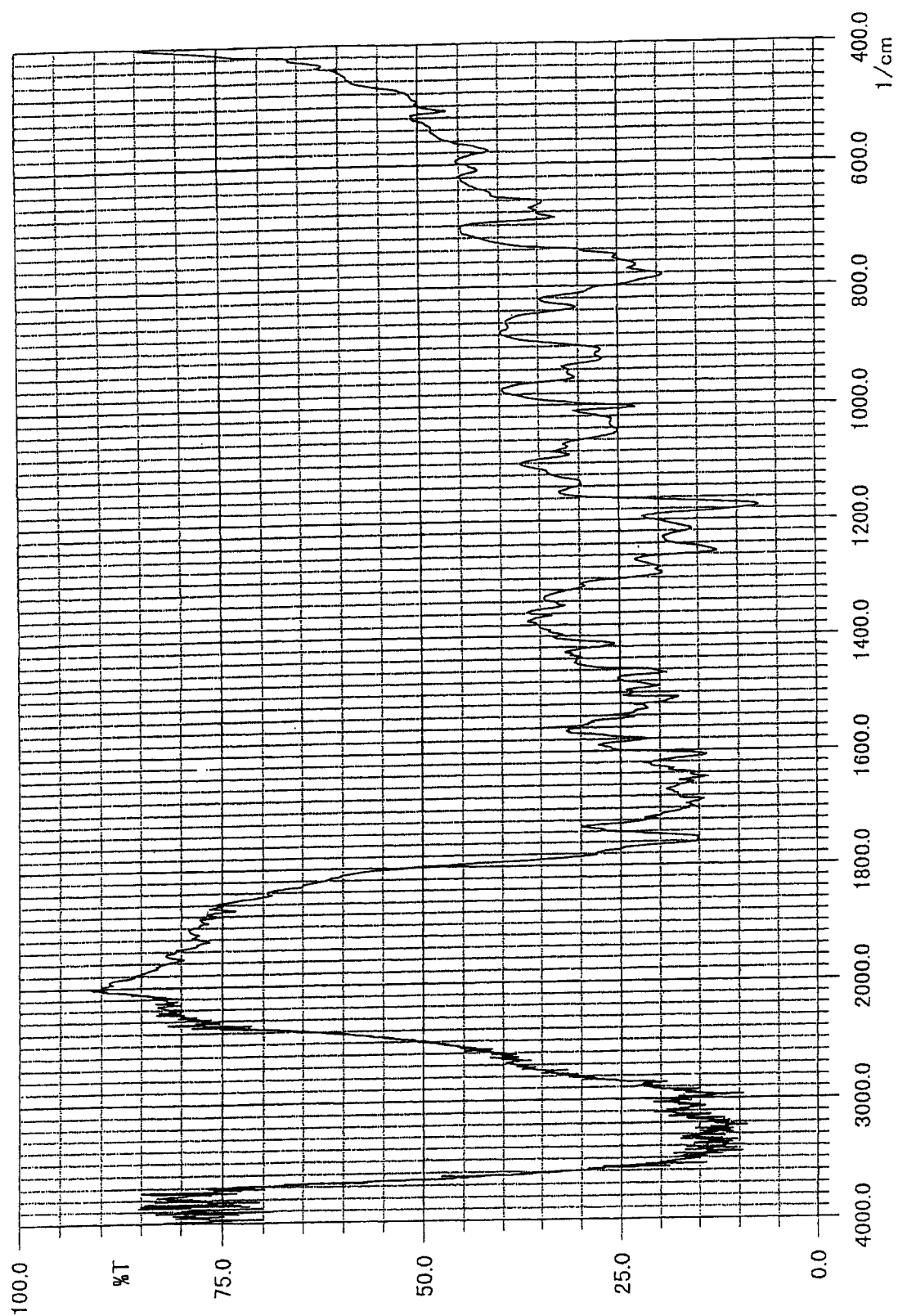


图 19

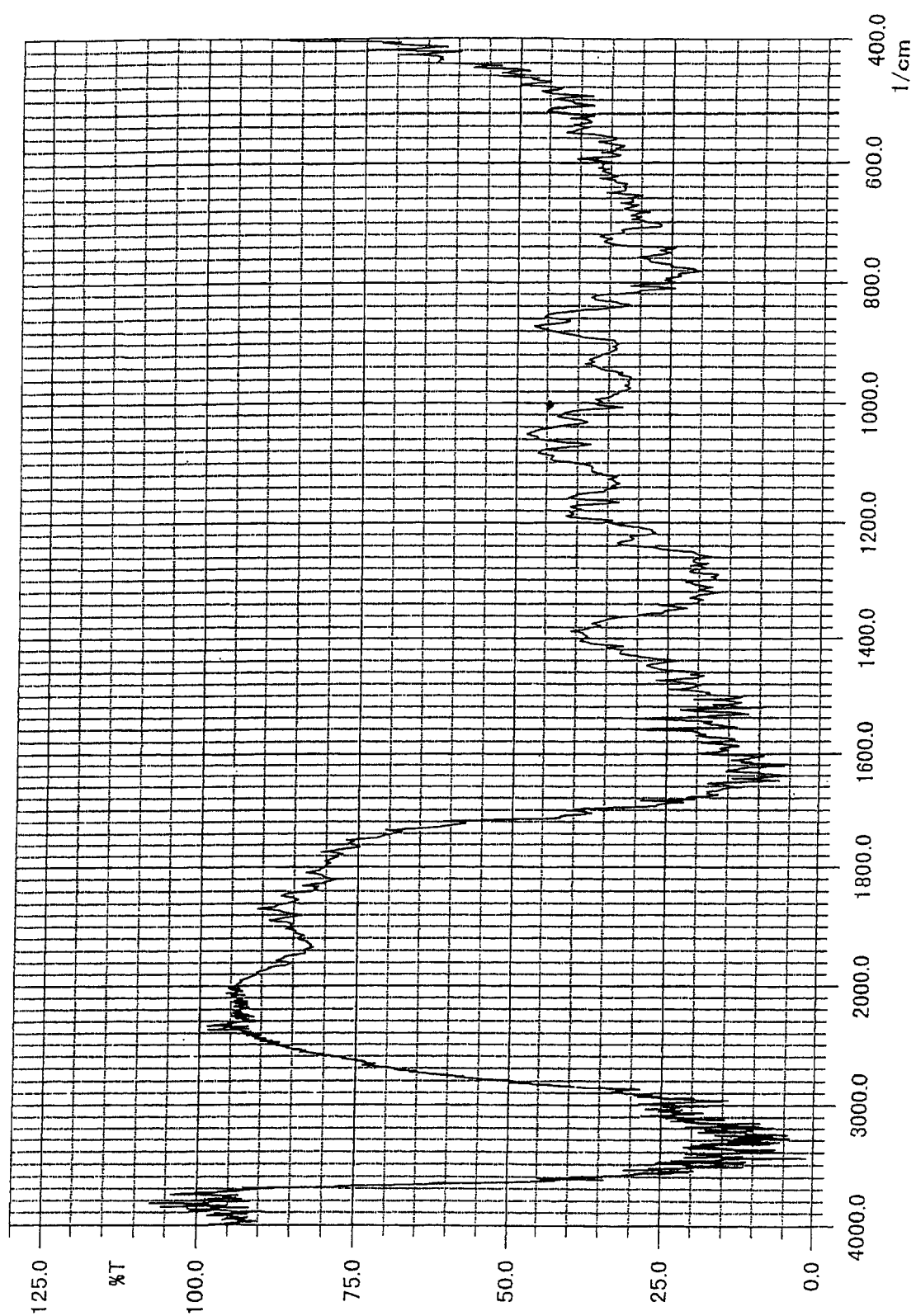


图 21

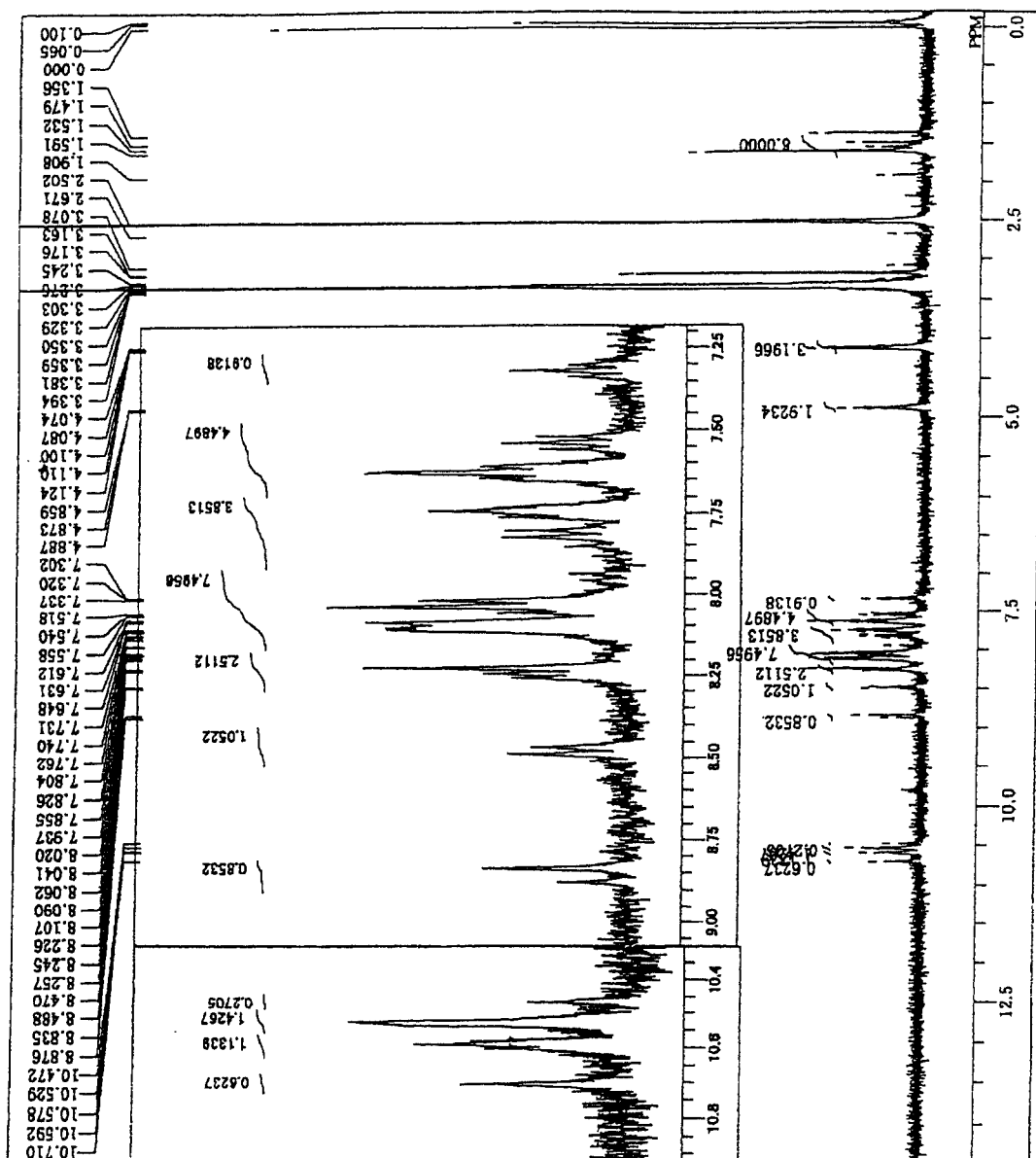


图 22

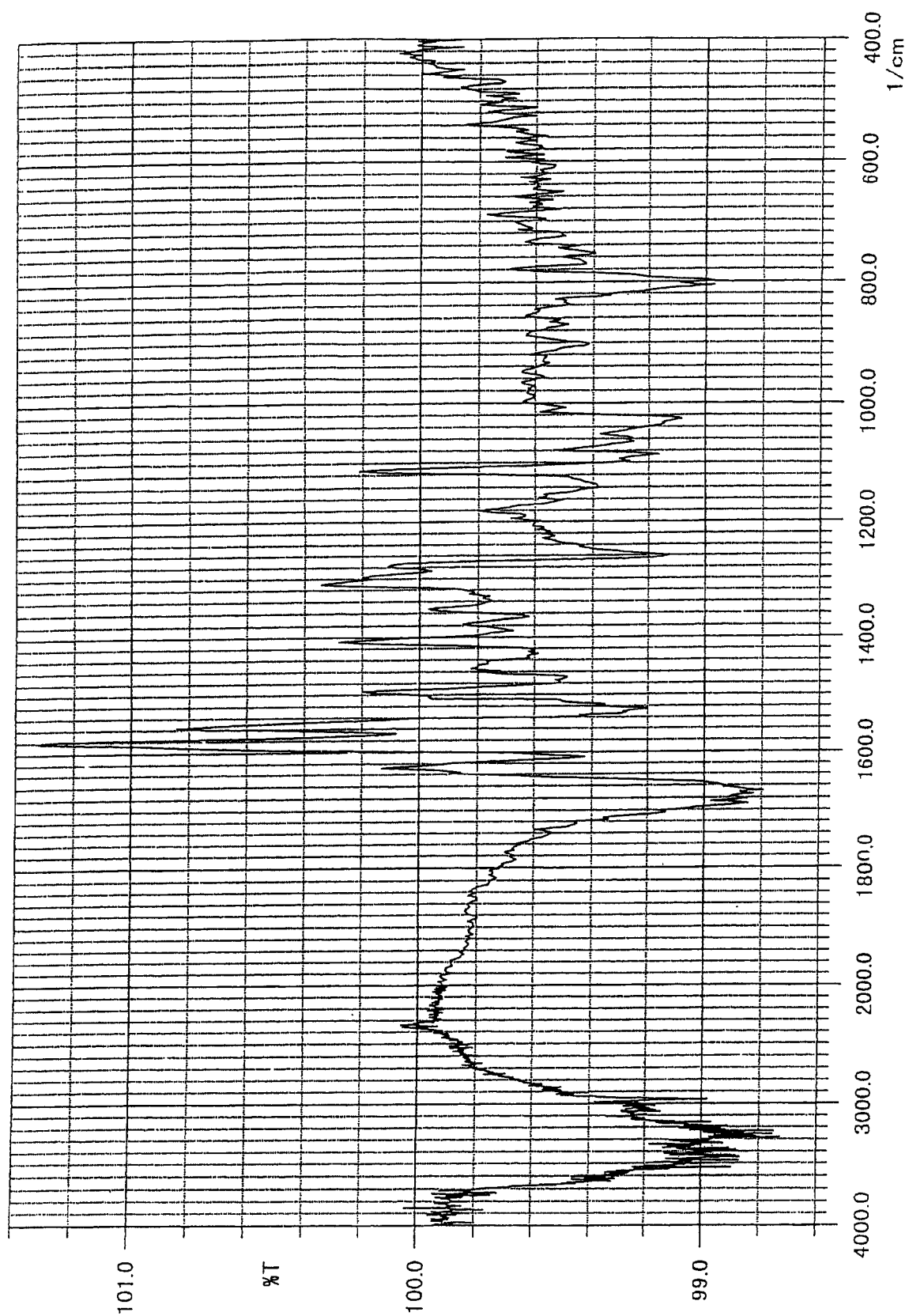


图 23

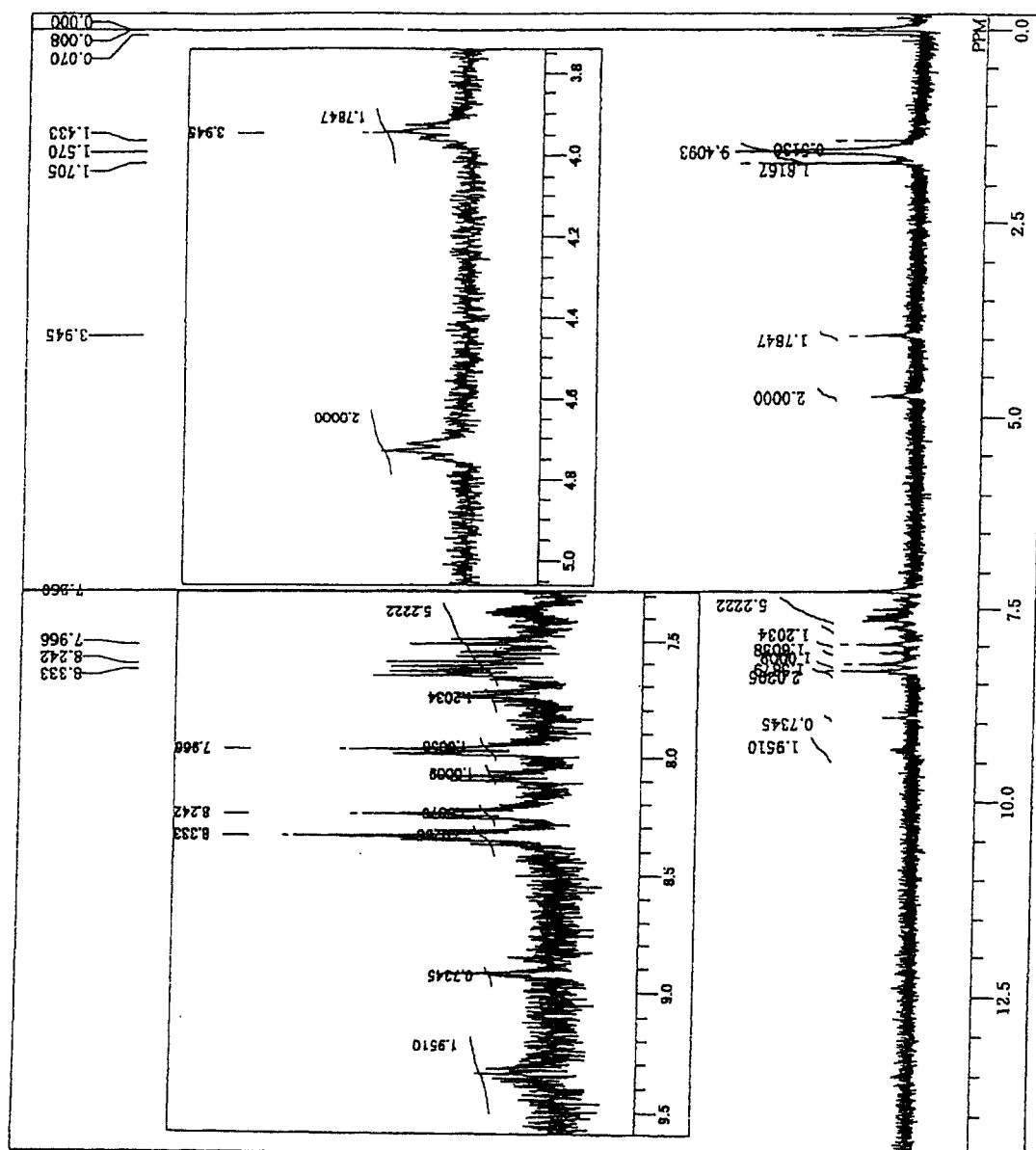


图 24

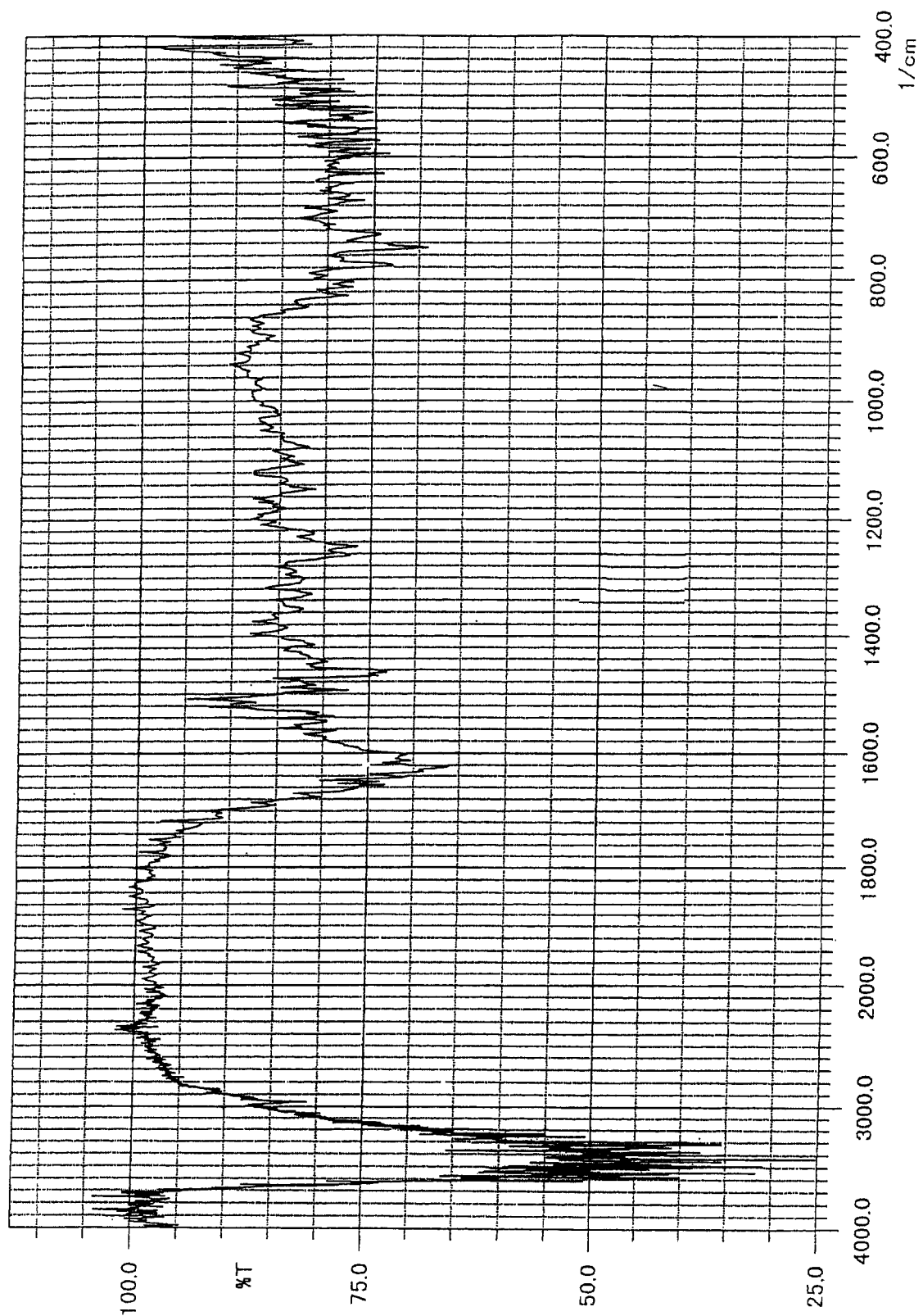


图 25

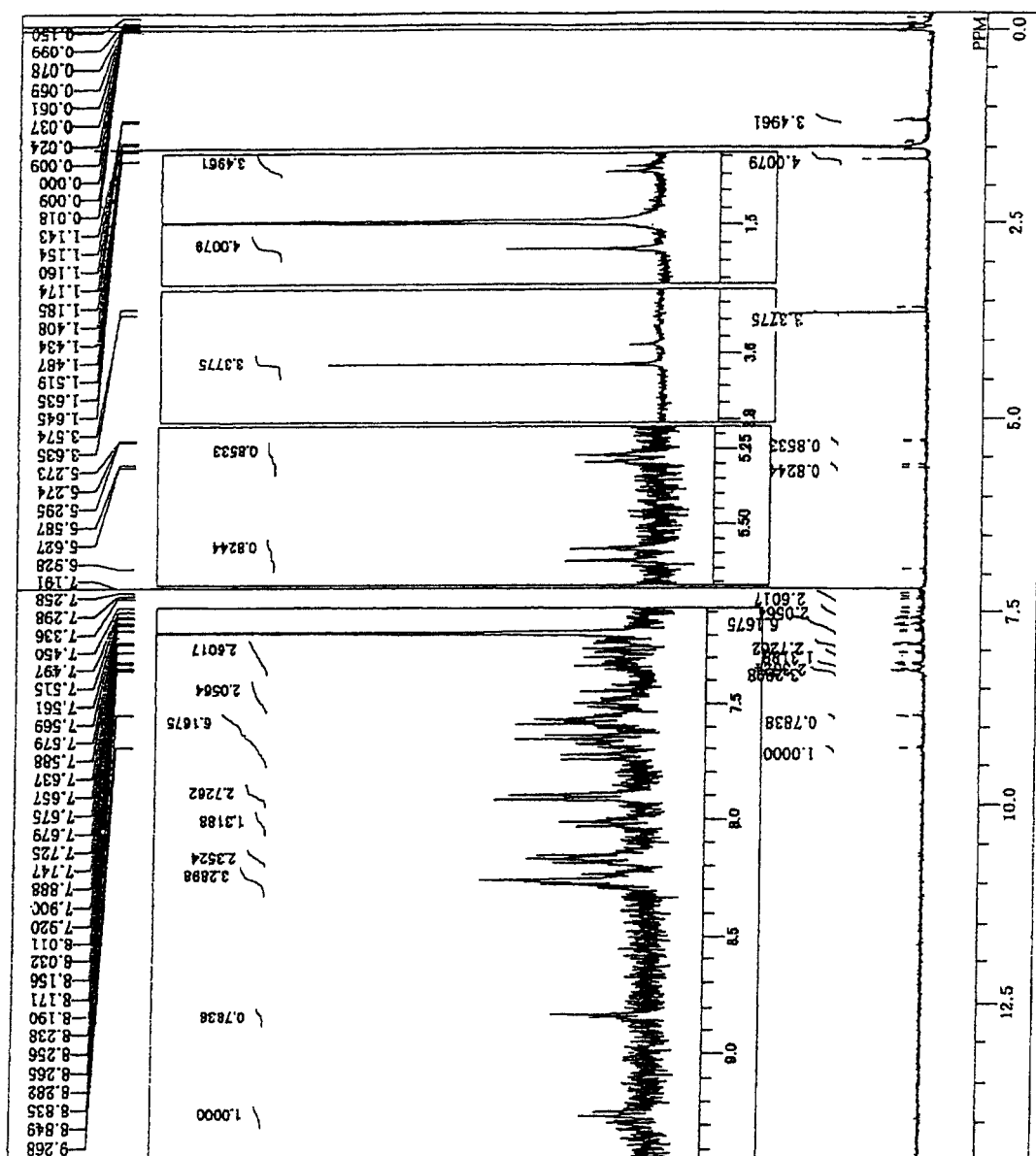


图 26

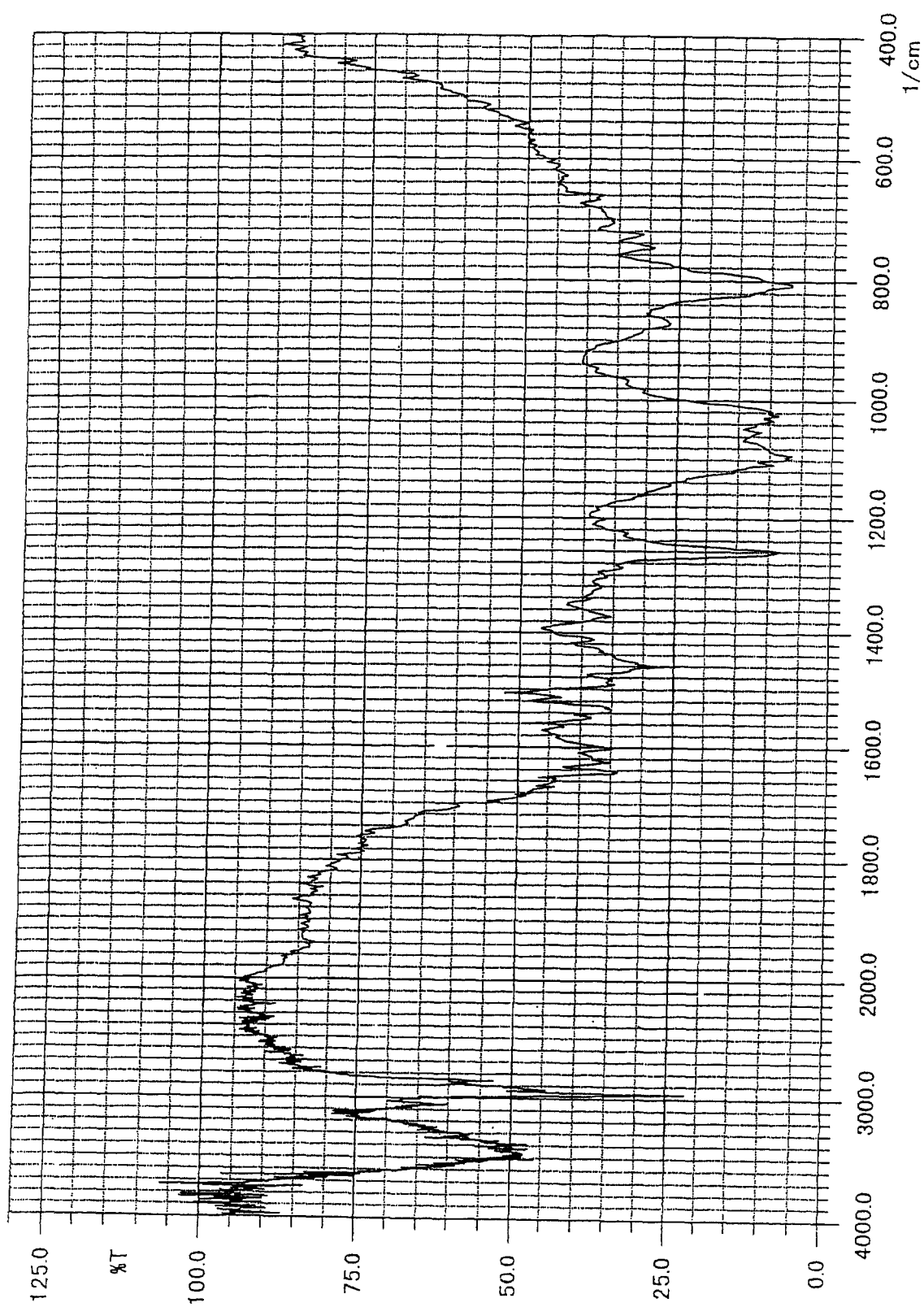


图 27

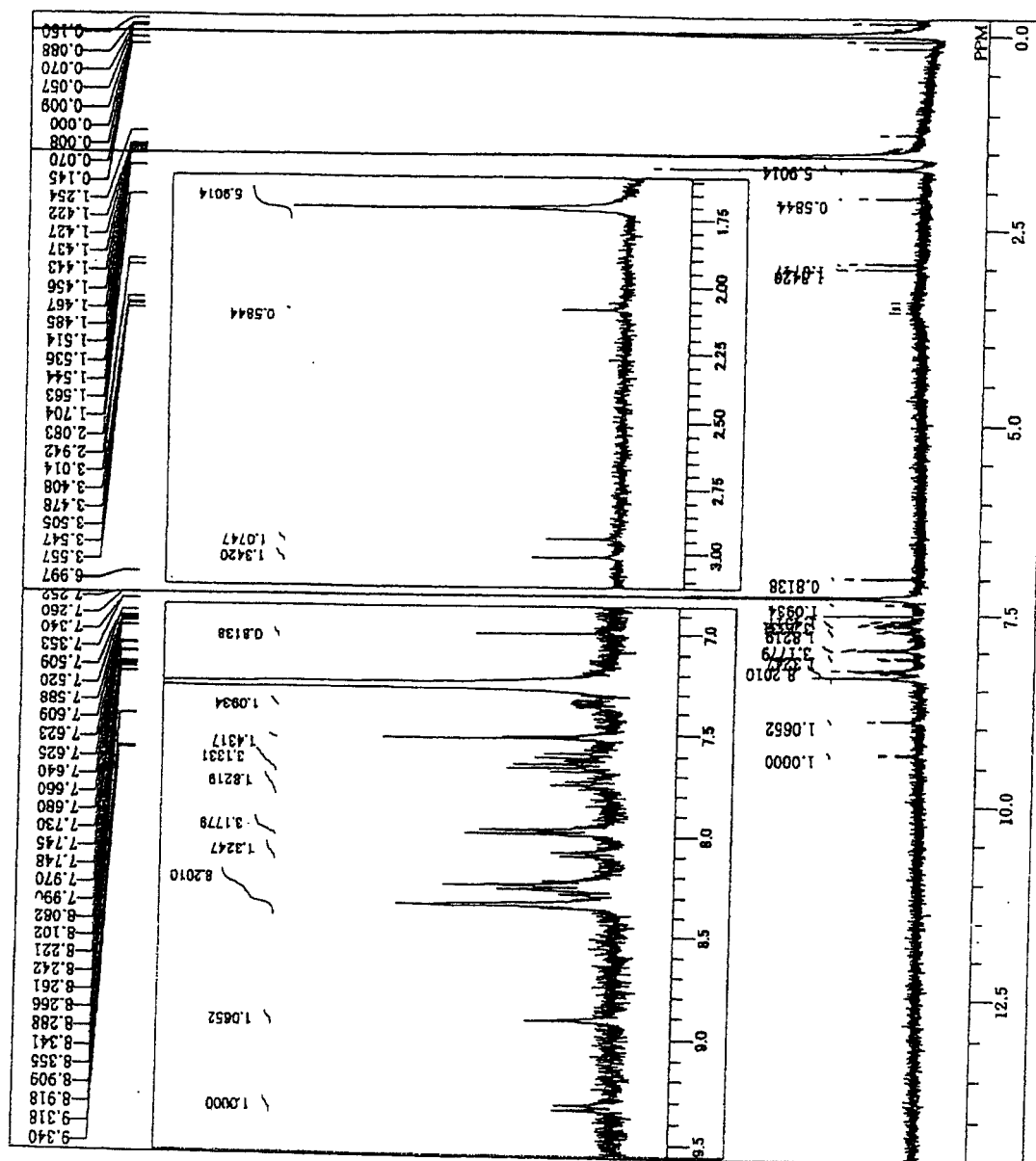


图 28

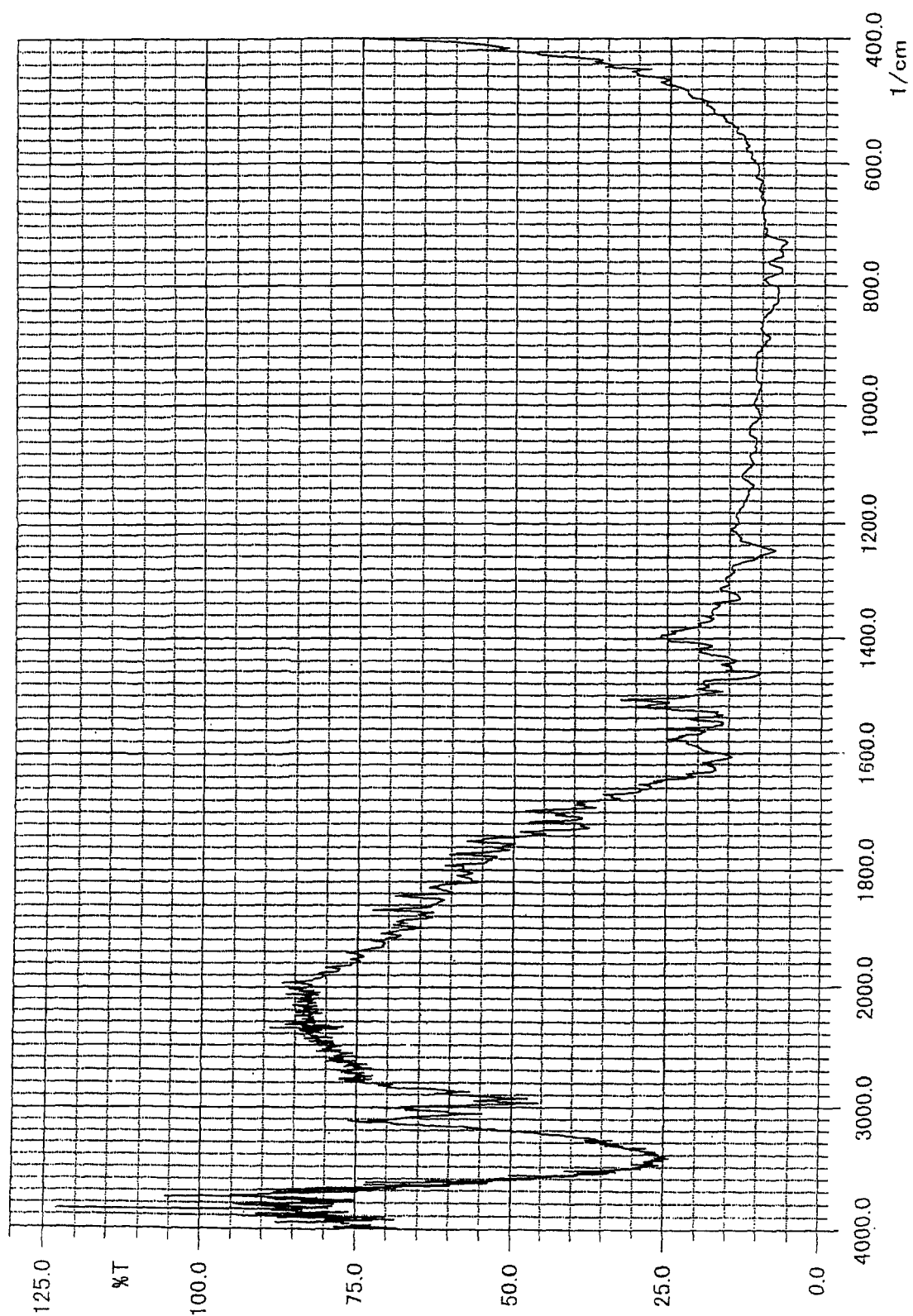


图 29

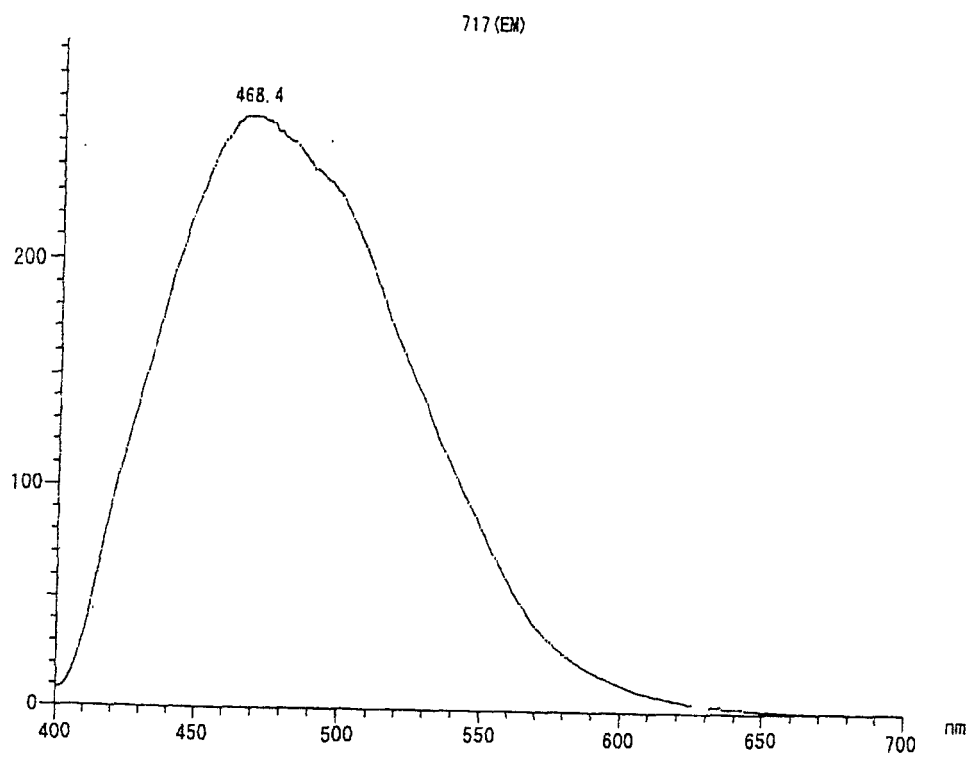


图 30

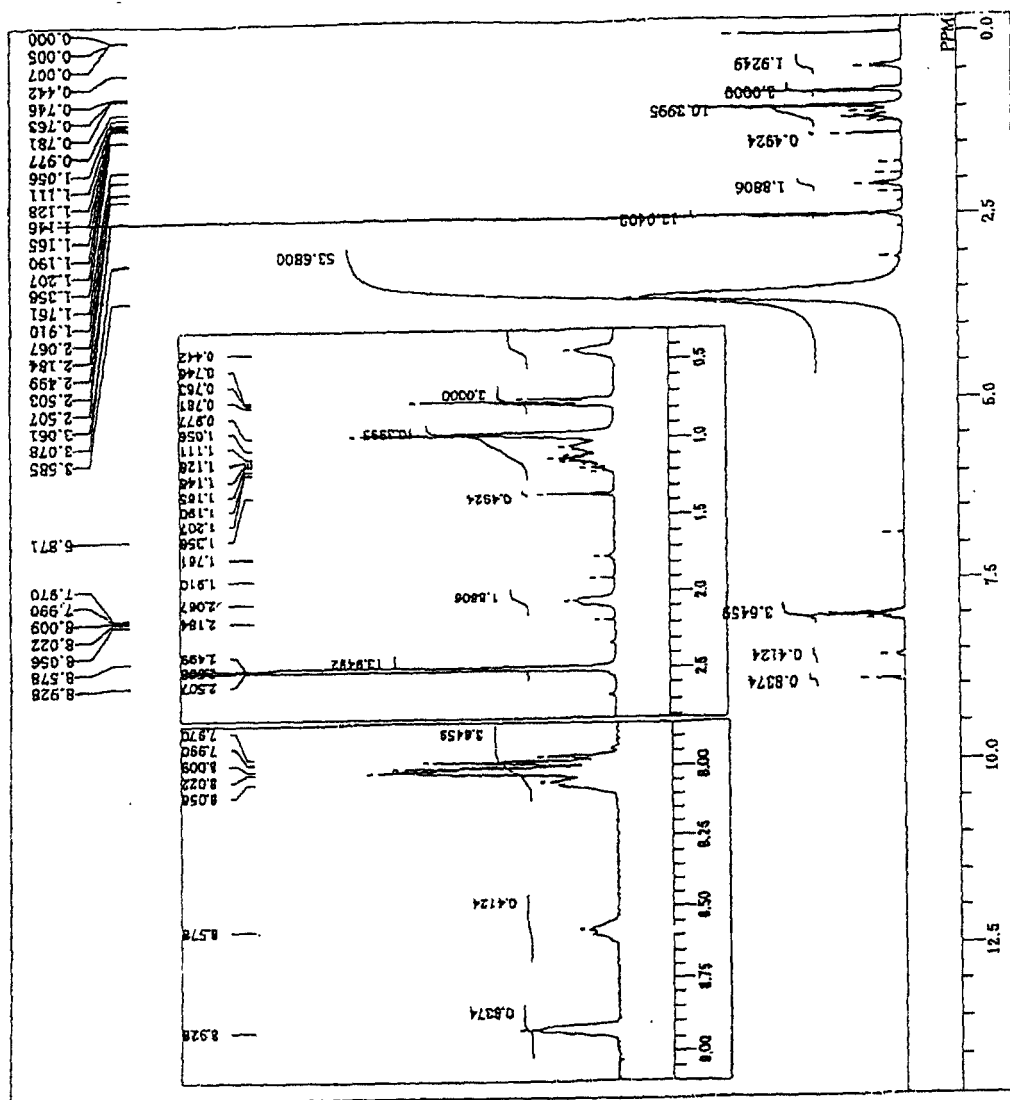


图 31

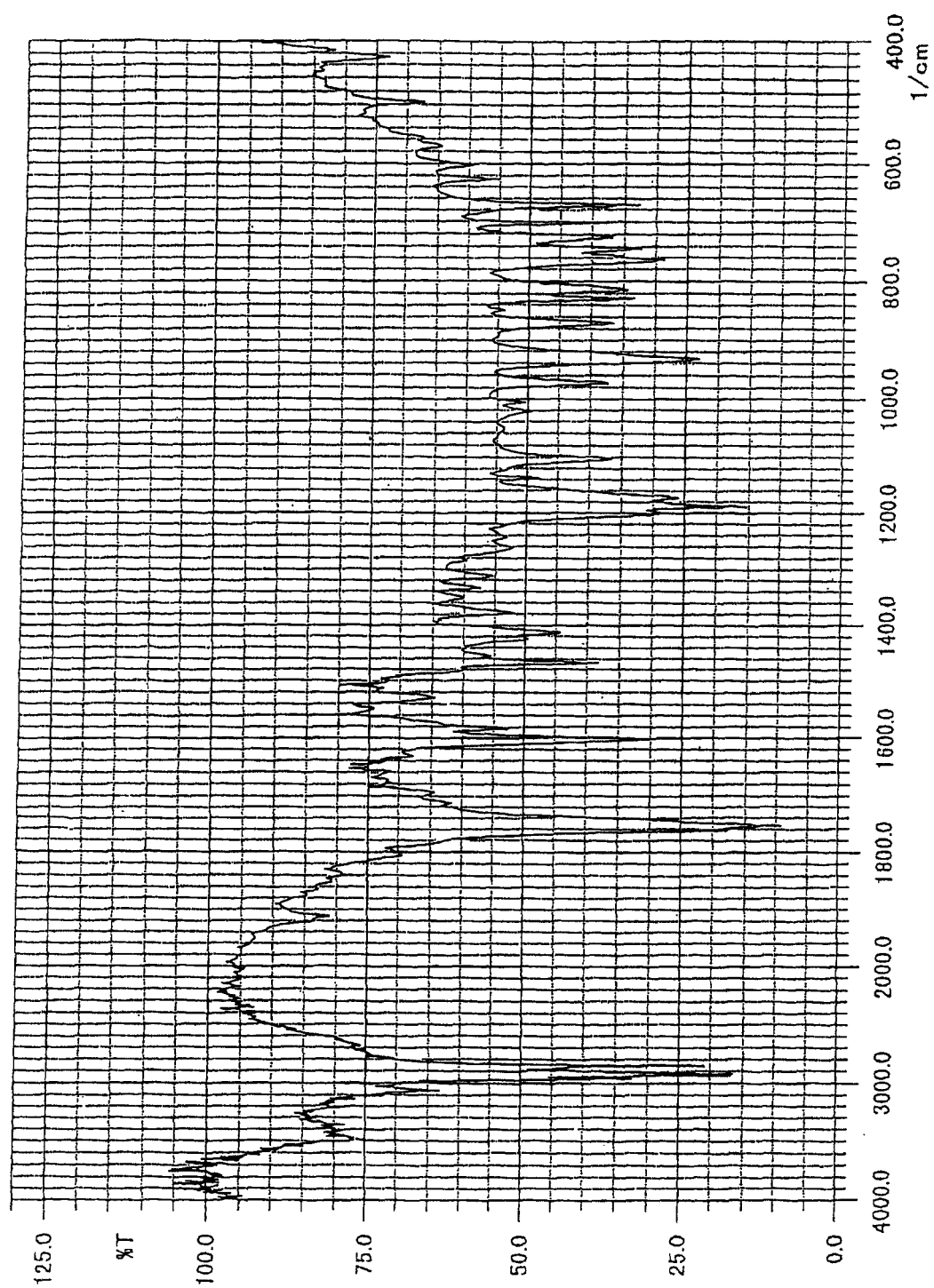


图 32

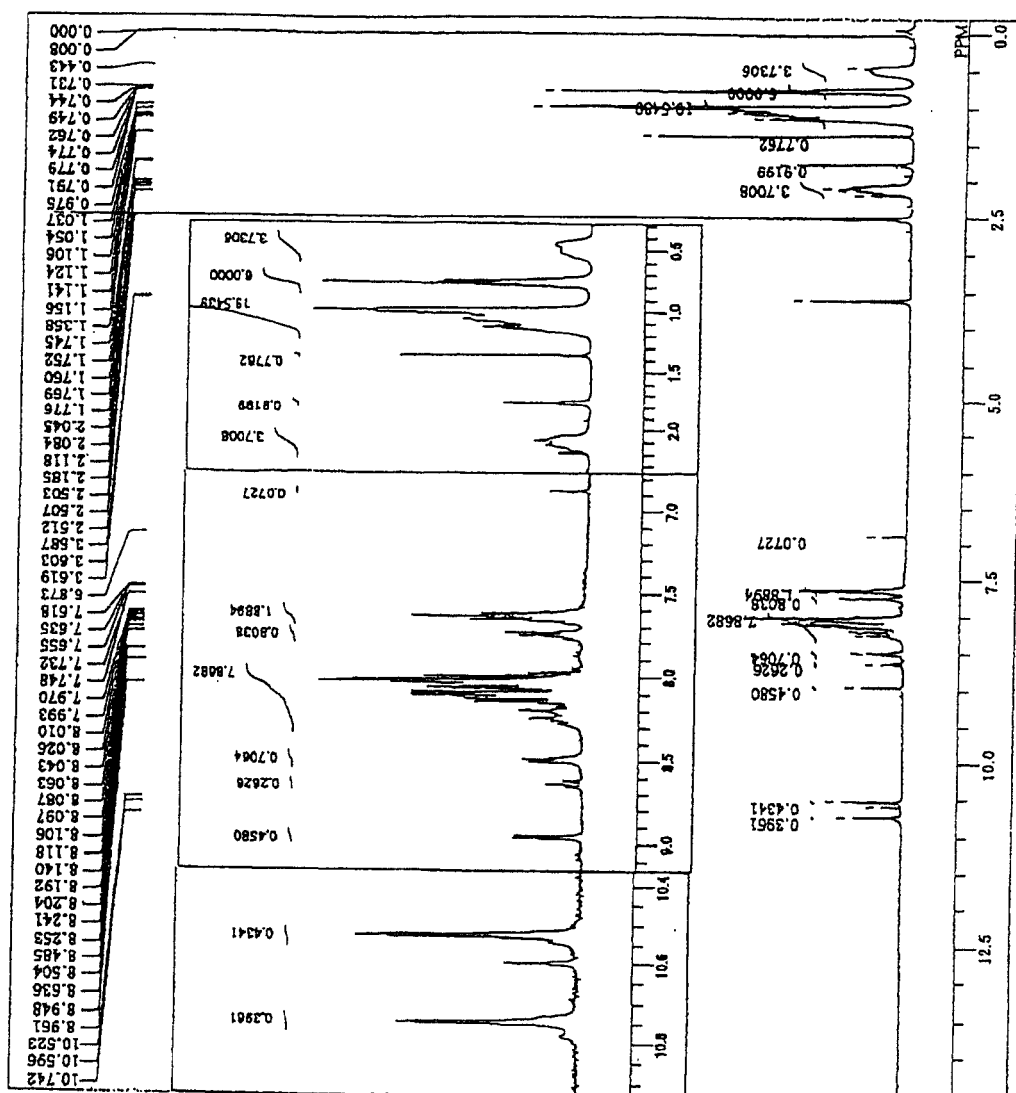


图 33

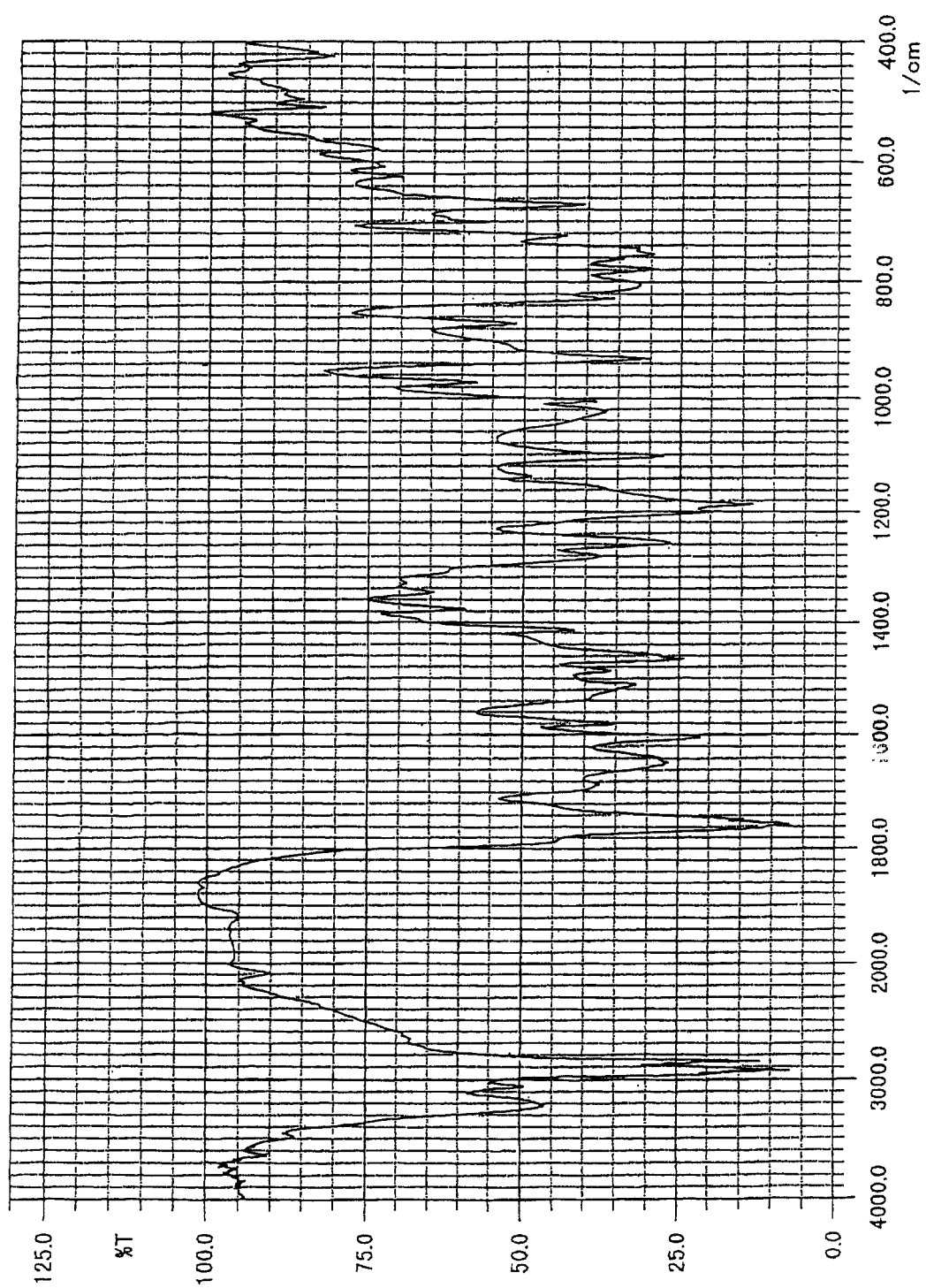


图 34

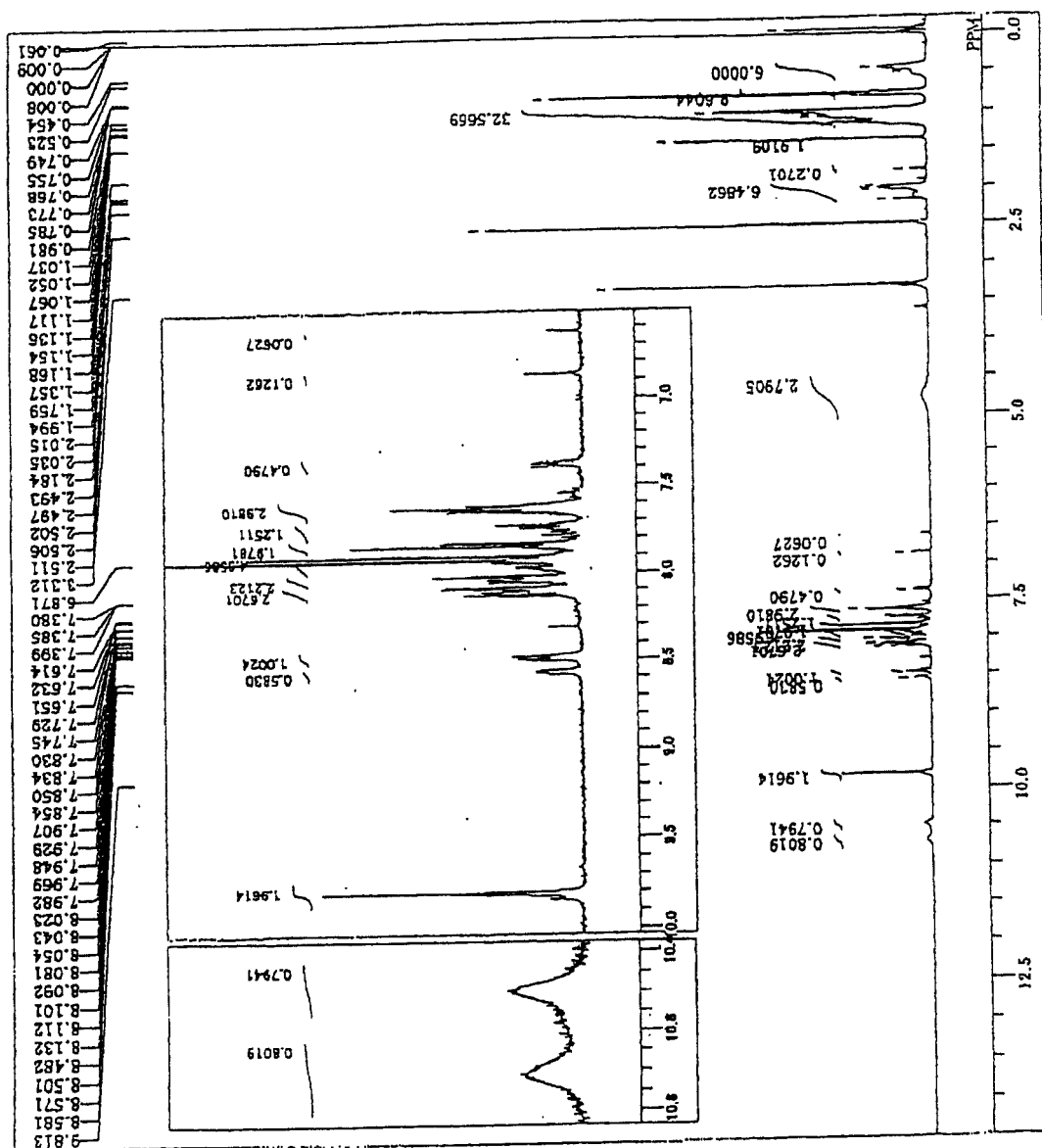


图 35

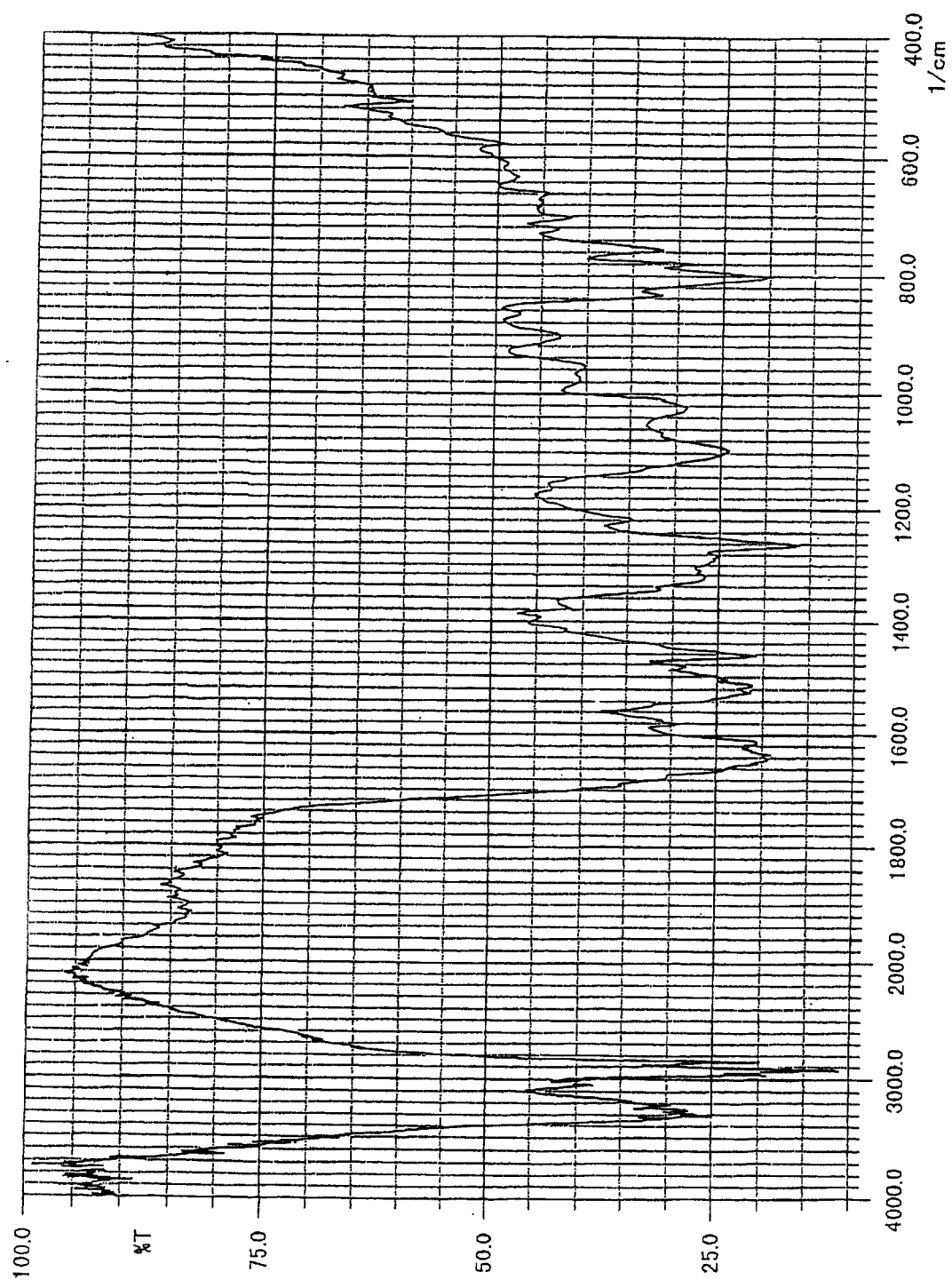


图 36

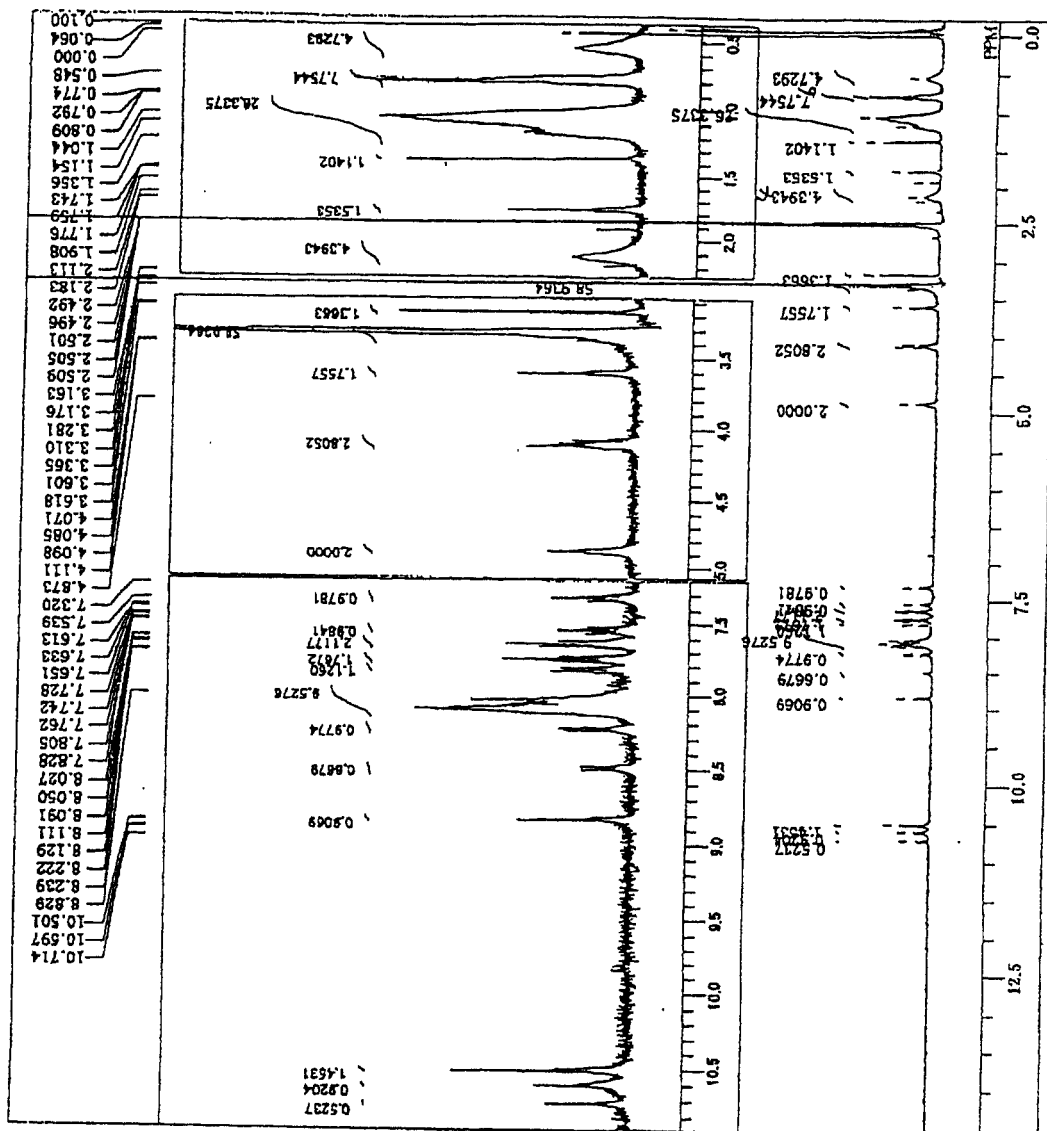


图 37

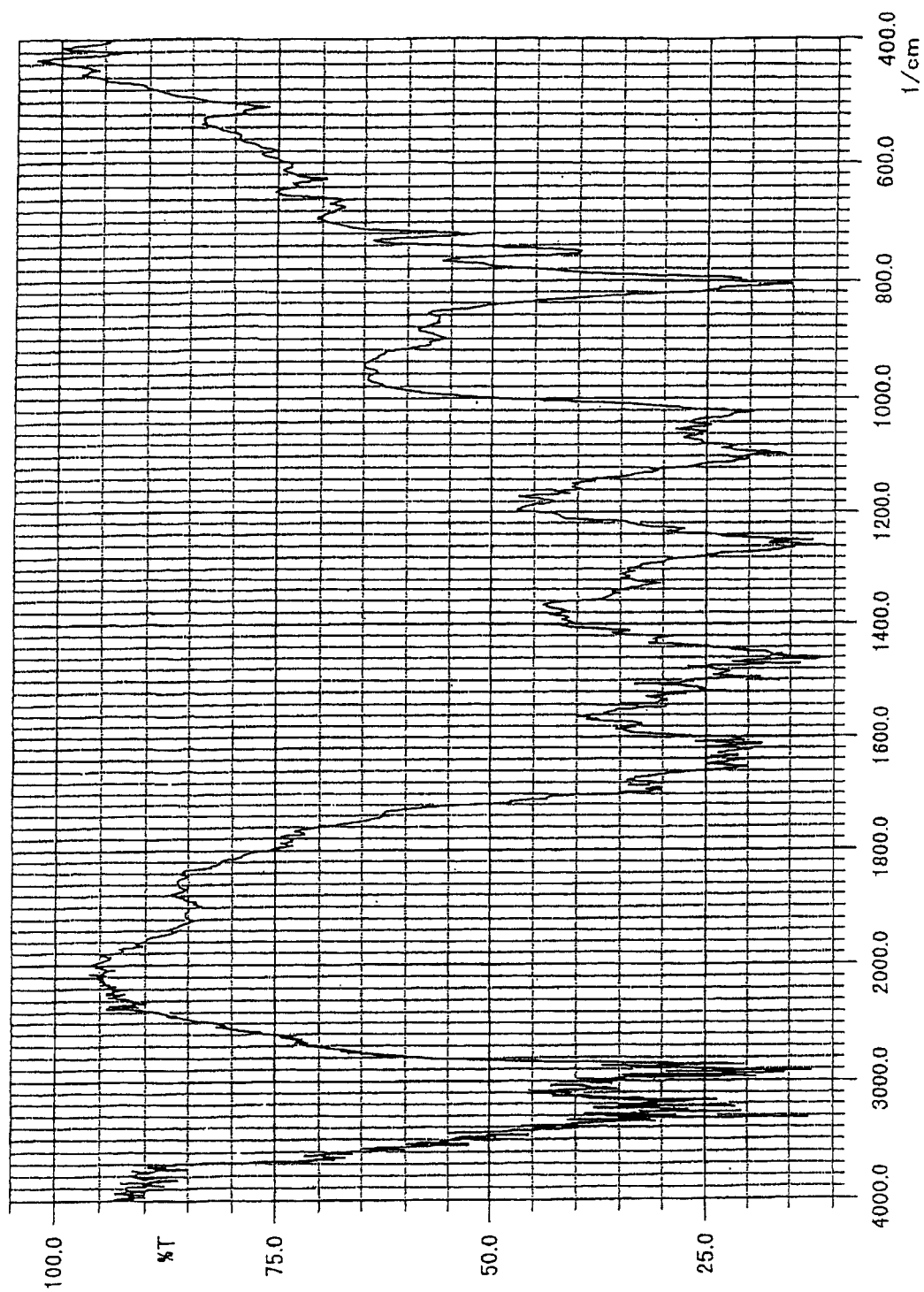


图 38

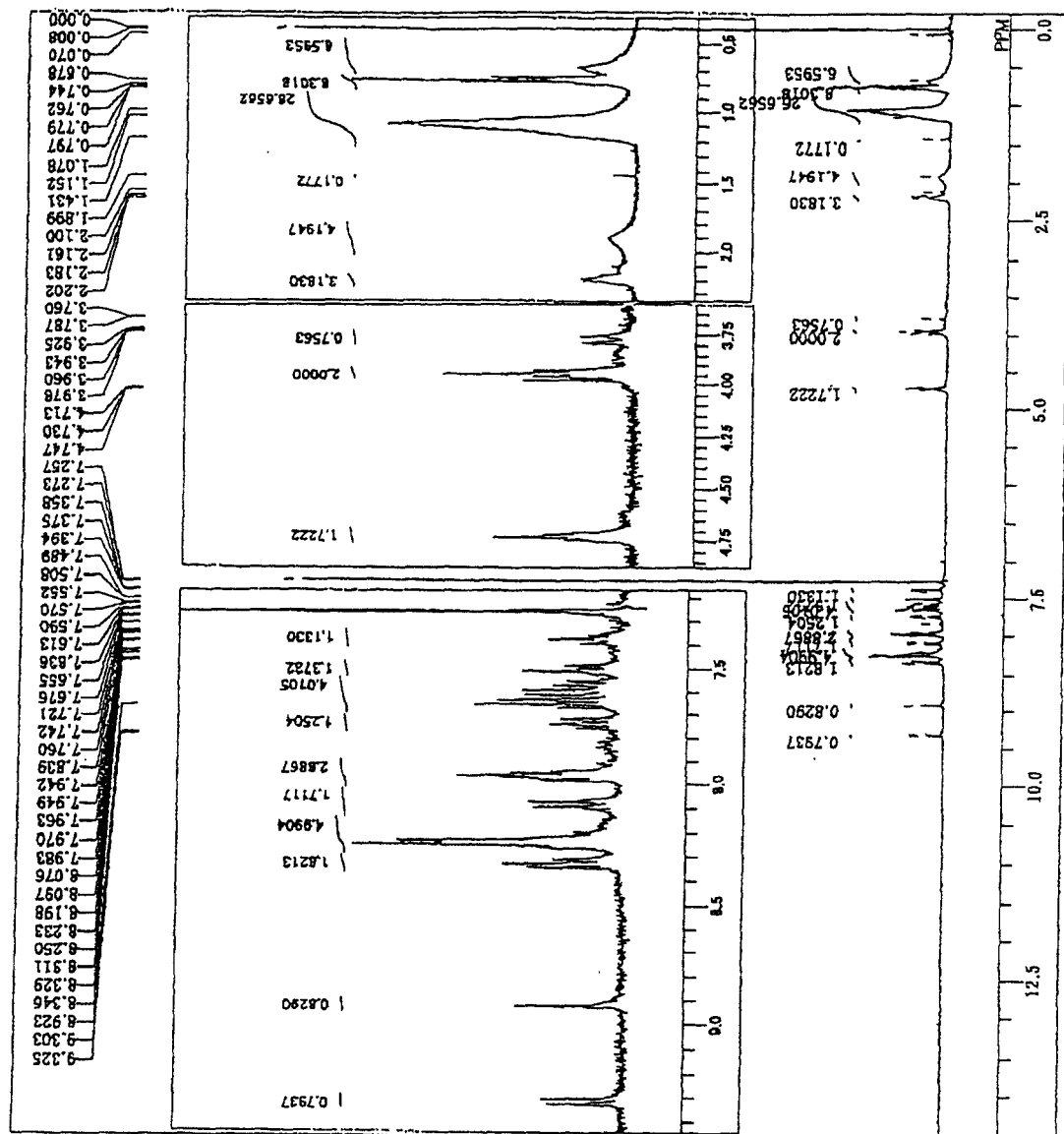


图 39

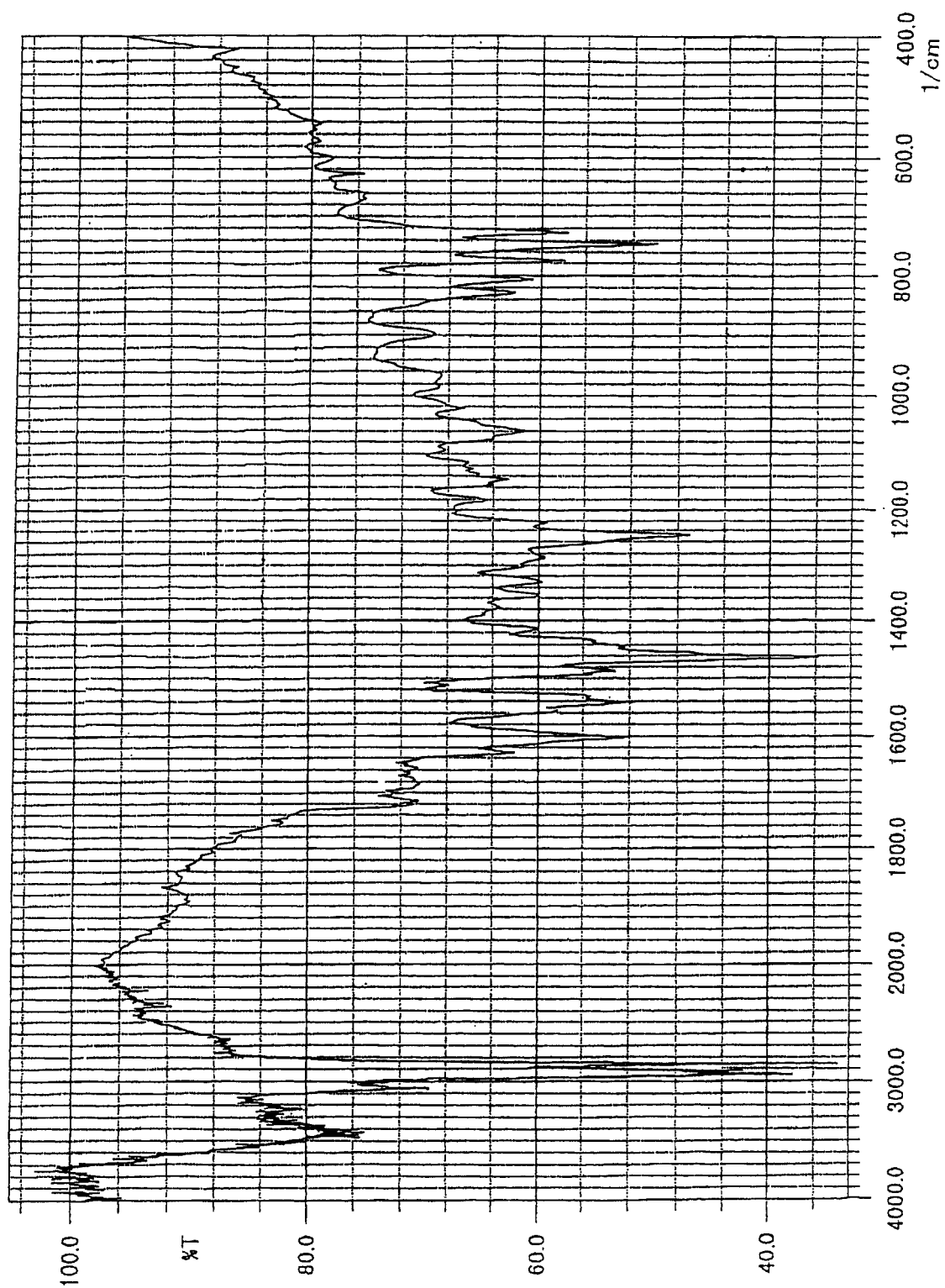


图 40

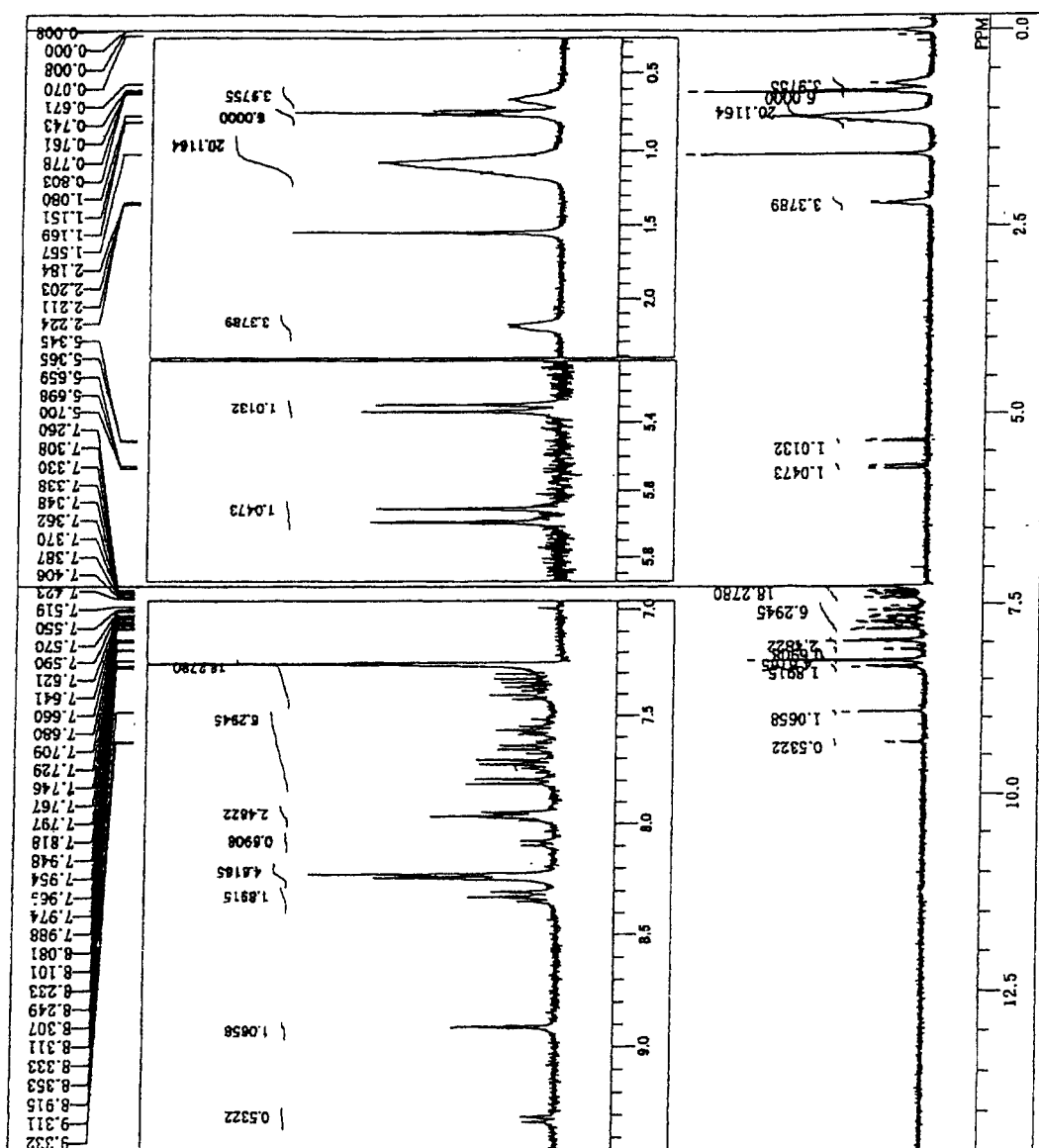


图 41

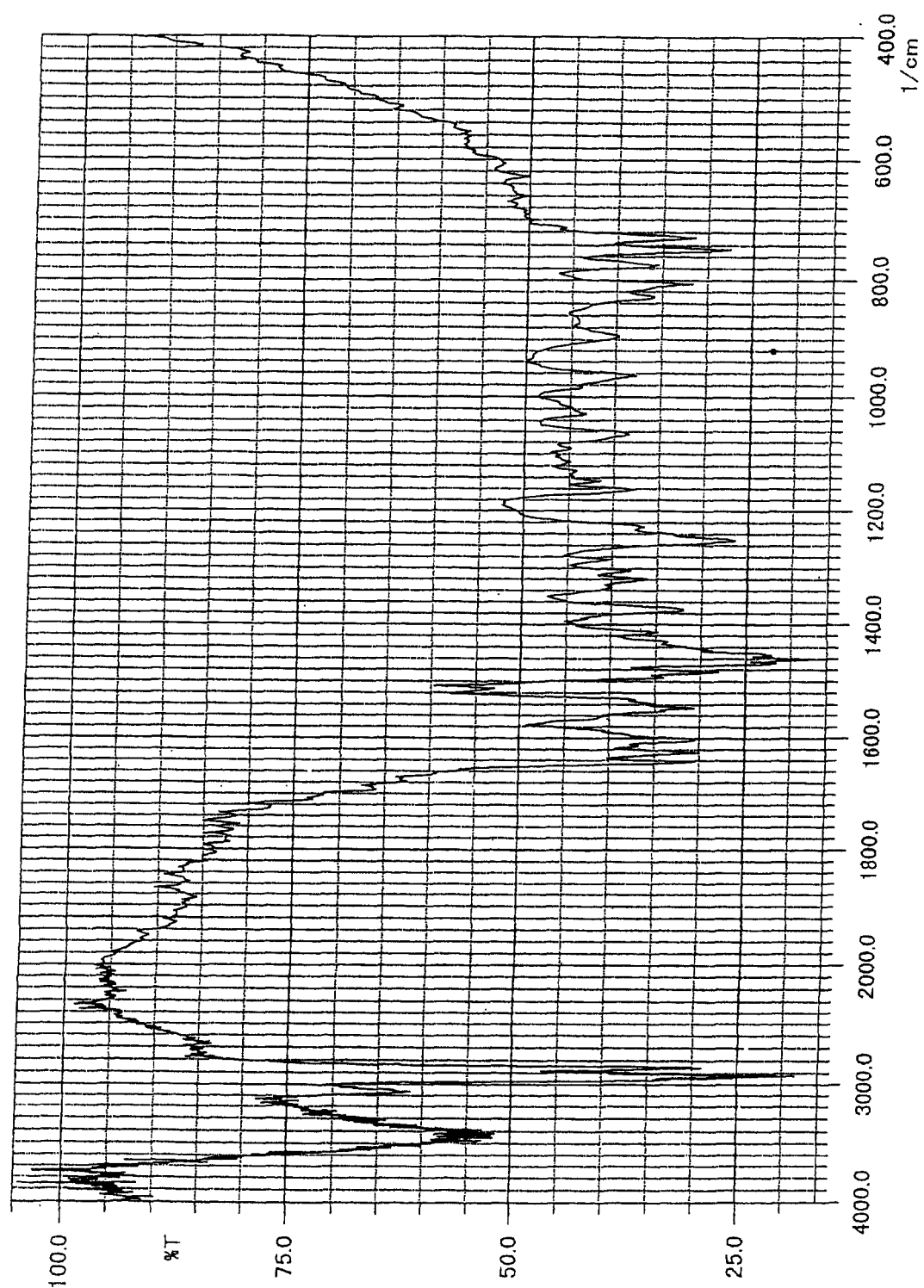


图 42

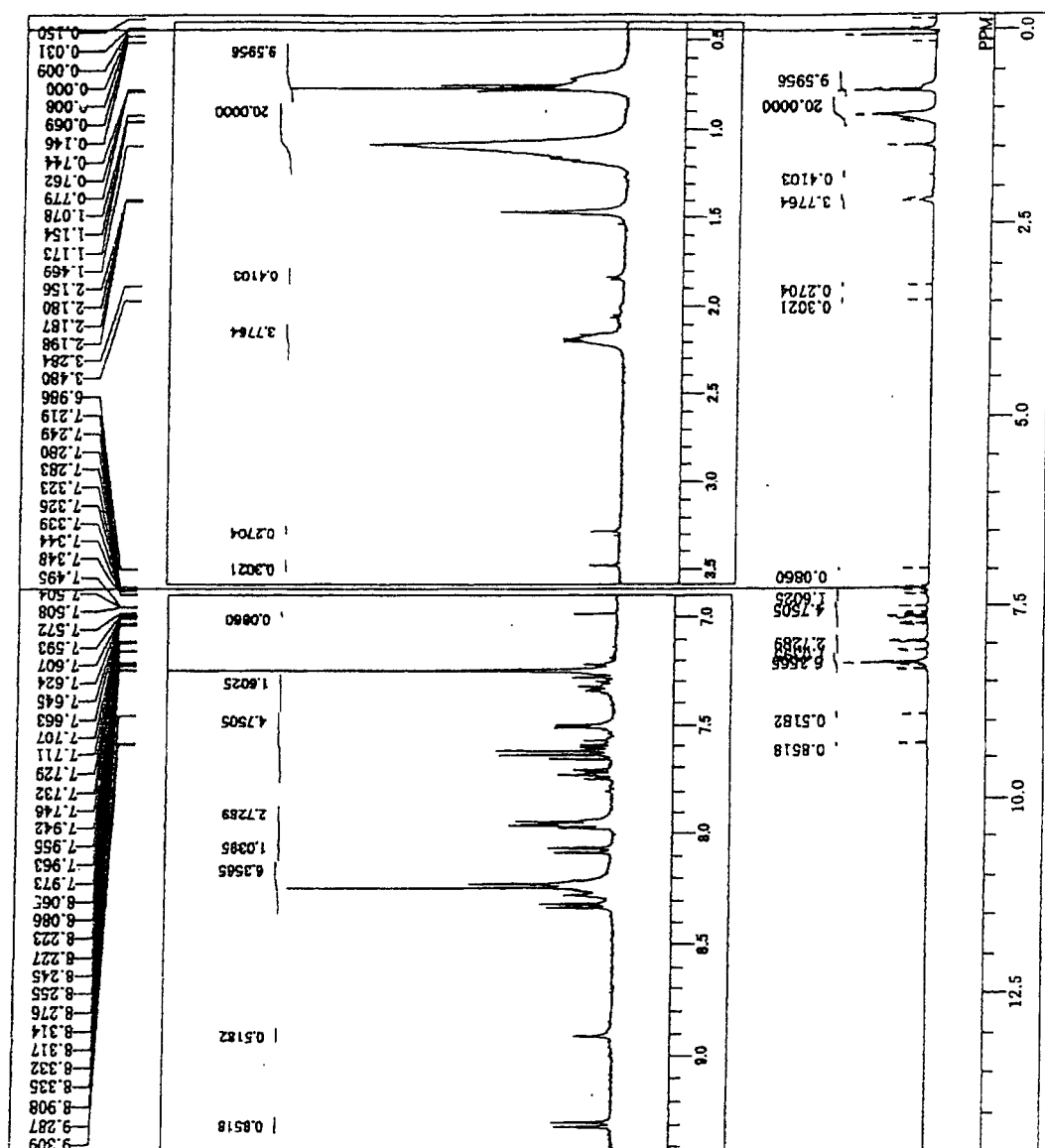


图 43

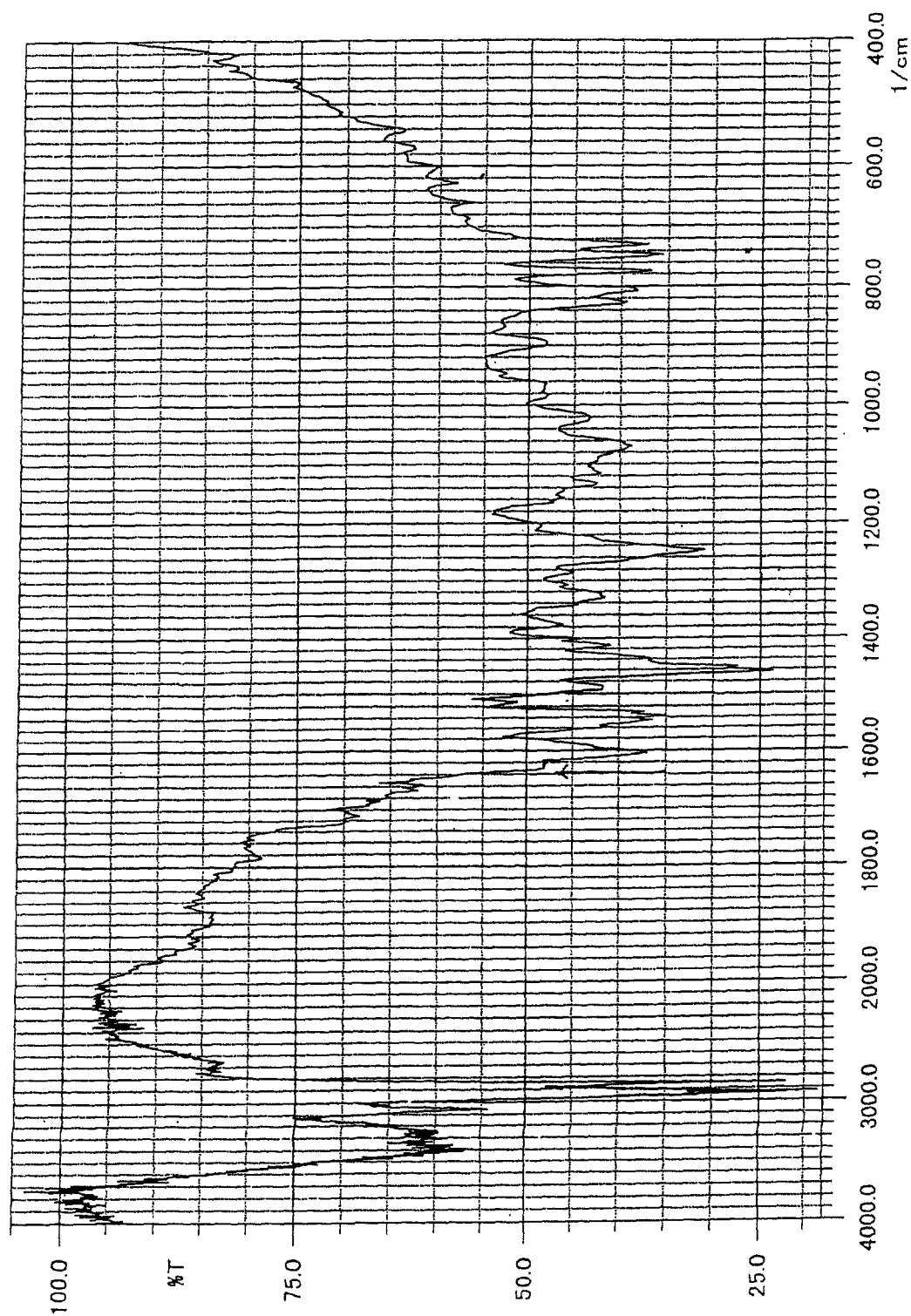


图 44

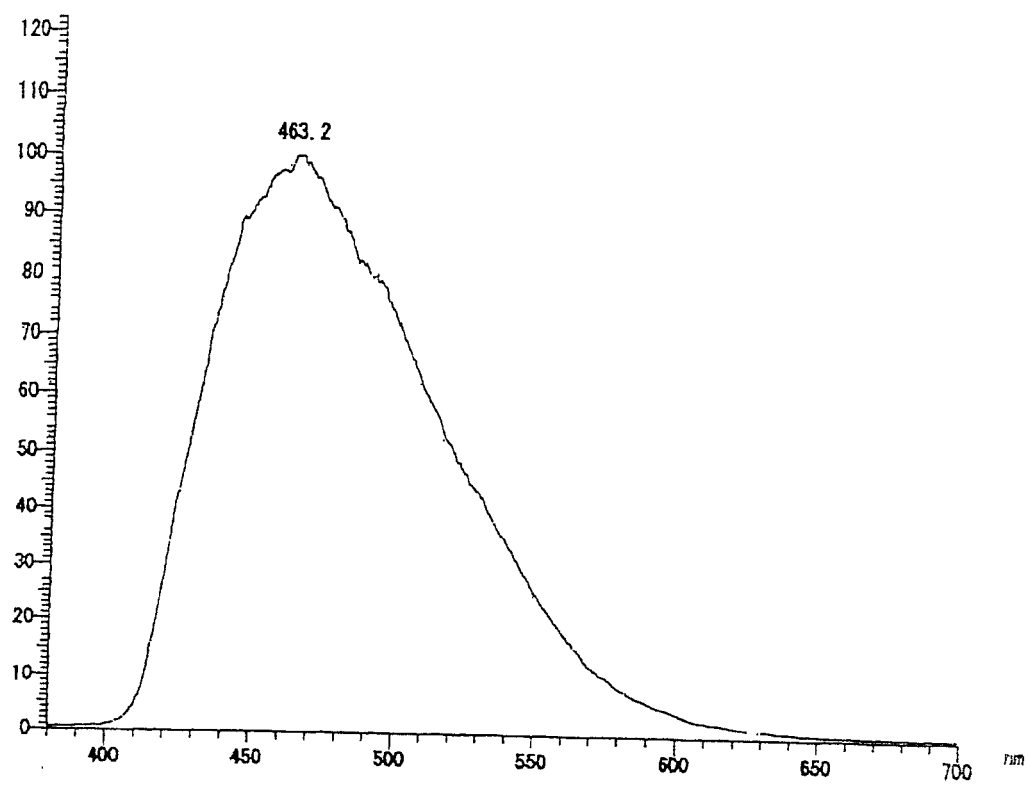


图 45

专利名称(译)	发光化合物及发光元件		
公开(公告)号	CN1616458A	公开(公告)日	2005-05-18
申请号	CN200410078016.0	申请日	2004-09-16
[标]申请(专利权)人(译)	广濑工程股份有限公司		
申请(专利权)人(译)	广濑工程股份有限公司		
当前申请(专利权)人(译)	广濑工程股份有限公司		
[标]发明人	仲矢忠雄 松本良二 石飞达郎		
发明人	仲矢忠雄 松本良二 石飞达郎		
IPC分类号	H01L51/50 C07D413/14 C08F26/12 C09K11/06 H01L51/00 H01L51/30 H05B33/14 C07D403/14		
CPC分类号	H01L51/0042 C07D413/14 C08F26/12 C09K11/06 C09K2211/1475 H01L51/007 H01L51/5012 H01L51/5036 H01L51/5092 H05B33/14 Y02B20/181		
代理人(译)	王学强		
优先权	2003330594 2003-09-22 JP 2004190451 2004-06-28 JP		
外部链接	Espacenet SIPO		

摘要(译)

本发明的课题为提供可以发出白色光的、例如可以用于有机EL元件的、单一化合物的白色发光化合物、白色发光聚合物以及利用这些物质的白色发光元件。解决上述课题的本发明中的第一种方法，其特征为以具有上述分子式(1)表示的结构的白色发光化合物。

