

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6466913号
(P6466913)

(45) 発行日 平成31年2月6日 (2019.2.6)

(24) 登録日 平成31年1月18日 (2019.1.18)

(51) Int. Cl.

F I

C O 9 K 11/06 (2006.01)

C O 9 K 11/06 6 5 5

C O 7 D 513/14 (2006.01)

C O 7 D 513/14 C S P

H O 1 L 51/50 (2006.01)

H O 5 B 33/14 B

請求項の数 14 (全 54 頁)

(21) 出願番号 特願2016-507491 (P2016-507491)
 (86) (22) 出願日 平成27年3月6日 (2015.3.6)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2015/056622
 (87) 国際公開番号 W02015/137244
 (87) 国際公開日 平成27年9月17日 (2015.9.17)
 審査請求日 平成29年11月24日 (2017.11.24)
 (31) 優先権主張番号 特願2014-47353 (P2014-47353)
 (32) 優先日 平成26年3月11日 (2014.3.11)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 516003621
 株式会社 K y u l u x
 福岡県福岡市西区九大新町 4 番地 1
 (74) 代理人 110000109
 特許業務法人特許事務所サイクス
 (72) 発明者 佐藤 忠久
 新潟県長岡市上富岡町 1 6 0 3 - 1 国立
 大学法人長岡技術科学大学内
 (72) 発明者 リ ジェ
 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

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

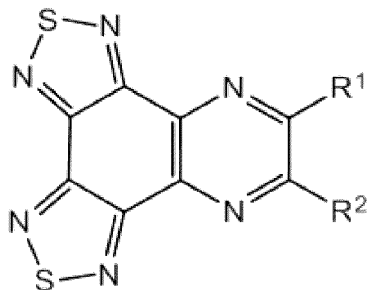
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式 (1) で表される化合物からなる発光材料。

【化 1】

一般式 (1)



〔一般式 (1) において、 R^1 および R^2 は各々独立に置換もしくは無置換の炭素環芳香族基、または置換もしくは無置換の複素環芳香族基を表し、 R^1 および R^2 の少なくとも一方は、N , N - ジアリールアミノ基が置換した炭素環芳香族基、または N , N - ジアリールアミノ基が置換した複素環芳香族基である。〕

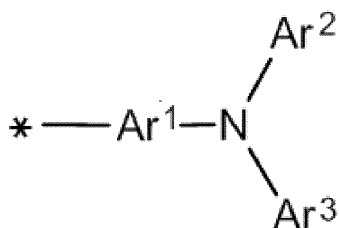
【請求項 2】

一般式 (1) の R^1 および R^2 の少なくとも一方が、下記一般式 (2) で表わされる基で

あることを特徴とする請求項 1 に記載の発光材料。

【化 2】

一般式 (2)



10

[一般式 (2) において、* は一般式 (1) におけるピラジン環への結合部位を表す。Ar¹ ~ Ar³ は各々独立に炭素数 4 ~ 10 の置換もしくは無置換の炭素環芳香族基または炭素数 4 ~ 10 の置換もしくは無置換の複素環芳香族基を表す。]

【請求項 3】

一般式 (2) の Ar¹ が、無置換のフェニレン基、無置換のナフチレン基または無置換のビフェニレン基であることを特徴とする請求項 2 に記載の発光材料。

【請求項 4】

一般式 (2) の Ar¹ が、無置換のフェニレン基であることを特徴とする請求項 2 または 3 に記載の発光材料。

20

【請求項 5】

一般式 (2) の Ar² および Ar³ が、各々独立に置換もしくは無置換のフェニル基または置換もしくは無置換のナフチル基であることを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 6】

一般式 (2) の Ar² および Ar³ 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 2 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 7】

一般式 (2) の Ar₂ および Ar₃ が、単結合または連結基を介して互いに結合していることを特徴とする請求項 2 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

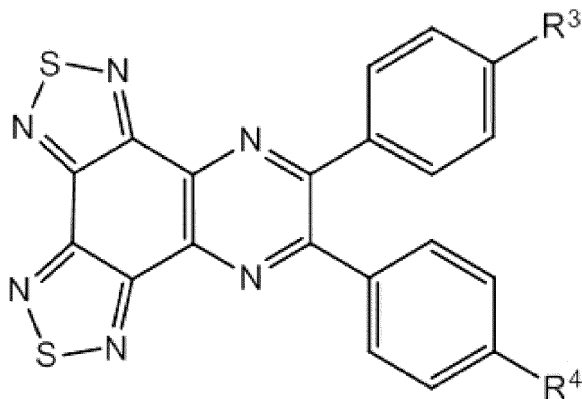
30

【請求項 8】

一般式 (1) で表される化合物が、下記一般式 (3) で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の発光材料。

【化 3】

一般式 (3)

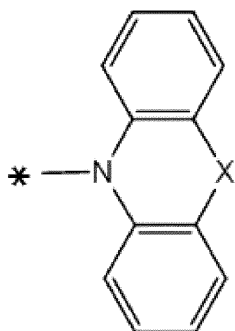


40

[一般式 (3) において、R³ および R⁴ は各々独立に水素原子または置換基を表し、R³ および R⁴ の少なくとも一方は、下記一般式 (4) で表される基である。]

【化 4】

一般式 (4)



10

[一般式 (4) において、* は一般式 (3) におけるベンゼン環への結合部位を表す。X は置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を表す。]

【請求項 9】

一般式 (4) の X が、メチル基で置換されたメチレン基または酸素原子であることを特徴とする請求項 8 に記載の発光材料。

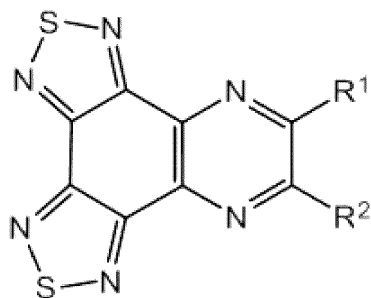
【請求項 10】

下記一般式 (1) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

20

【化 5】

一般式 (1)



30

[一般式 (1) において、 R^1 および R^2 は各々独立に置換もしくは無置換の炭素環芳香族基、または置換もしくは無置換の複素環芳香族基を表し、 R^1 および R^2 の少なくとも一方は、N, N - ジアリールアミノ基が置換した炭素環芳香族基、または N, N - ジアリールアミノ基が置換した複素環芳香族基である。]

【請求項 11】

請求項 1 ~ 9 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。

【請求項 12】

遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項 11 に記載の有機発光素子。

【請求項 13】

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 11 または 12 に記載の有機発光素子。

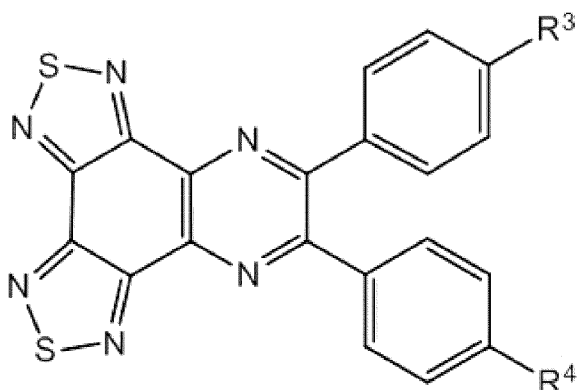
40

【請求項 14】

下記一般式 (3) で表される化合物。

【化 6】

一般式 (3)

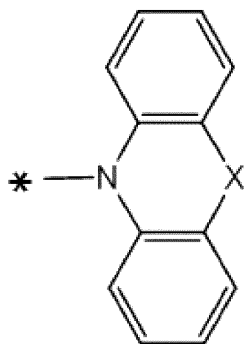


10

[一般式 (3) において、 R^3 および R^4 は各々独立に水素原子または置換基を表し、 R^3 および R^4 の少なくとも一方は、下記一般式 (4) で表される基である。]

【化 7】

一般式 (4)



20

[一般式 (4) において、* は一般式 (3) におけるベンゼン環への結合部位を表す。X は置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を表す。]

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光材料として有用な化合物とそれを用いた有機発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子 (有機 EL 素子) などの有機発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、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。一方、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物について、合成方法や光学的特性等を検討した結果が報告されており、その中には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物を有機エレクトロルミネッセンス素子の材料として用いることを言及した報告も見受けられる。

40

【0003】

非特許文献 1 には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物の合成方法が記載されている。しかし、非特許文献 1 には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子の発光材料として有用であることについては全く記載されていない。

【0004】

50

非特許文献 2 では、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物について、分光学的特性や電気化学的特性を検討した結果が記載され、この化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子のキャリア移動材料として有用であることにも言及している。しかし、非特許文献 2 には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物の発光材料としての有用性については全く記載されていない。また、同文献に具体的に例示されている化合物は、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格のピラジン環にフェニル基が置換した構造もしくは該フェニル基が縮合した構造に、アルキル基や置換フェニル基が置換したものであり、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格に置換したフェニル基またはフェニル基の縮合環に、アルキル基や置換フェニル基以外の置換基が置換した化合物は記載されていない。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0005】

【非特許文献 1】J. Heterocyclic Chem. 1975, 12, 829-833

【非特許文献 2】Chem. Lett. 2011, 40, 1252-1253

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

これに対して、本発明者らが、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物群について種々の検討を始めたところ、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する多数の化合物のうち、特定の構造を有する化合物群に発光材料として有用性がある可能性あることを初めて見出した。特に、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格のピラジン環にジアリールアミノアリアル基が置換した化合物群が注目に値する可能性を有することを見出した。

上記のように、非特許文献 1 には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物の合成方法が記載されているが、その化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子の材料として用いることについては記載されていない。一方、非特許文献 2 には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格を有する化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子のキャリア移動材料として有用であることが記載されている。しかし、非特許文献 2 に記載される化合物が、発光材料として機能しうるものであるか否かについては検討がなされていない。発光材料は、キャリア移動材料とは要求される性質や機能が異なるため、非特許文献 2 に記載される化合物の発光材料としての有用性は不明である。また、非特許文献 2 には、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格のピラジン環にジアリールアミノアリアル基が置換した化合物は記載されておらず、その発光材料としての有用性は予測がつかない。

【0007】

このような状況下において本発明者らは、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格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、ビスチアジアゾロキノキサリン骨格のピラジン環に特定の置換基が置換した化合物が発光材料として優れた性質を有することを確認した。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。

10

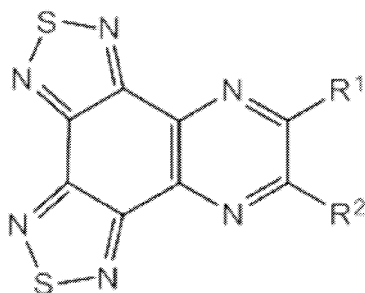
20

30

40

【化 1】

一般式 (1)



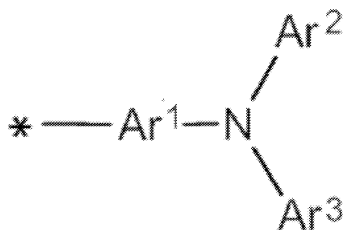
10

[一般式 (1) において、 R^1 および R^2 は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表し、 R^1 および R^2 の少なくとも一方は、N, N - ジアリールアミノ基が置換したアリール基である。]

[2] 一般式 (1) の R^1 および R^2 の少なくとも一方が、下記一般式 (2) で表わされる基であることを特徴とする [1] に記載の発光材料。

【化 2】

一般式 (2)



20

[一般式 (2) において、* は一般式 (1) におけるピラジン環への結合部位を表す。 $Ar^1 \sim Ar^3$ は各々独立に炭素数 4 ~ 10 の置換もしくは無置換の炭素環芳香族基または炭素数 4 ~ 10 の置換もしくは無置換の複素環芳香族基を表す。]

30

[3] 一般式 (2) の Ar^1 が、無置換のフェニレン基、無置換のナフチレン基または無置換のビフェニレン基であることを特徴とする [2] に記載の発光材料。

[4] 一般式 (2) の Ar^1 が、無置換のフェニレン基であることを特徴とする [2] または [3] に記載の発光材料。

[5] 一般式 (2) の Ar^2 および Ar^3 が、各々独立に置換もしくは無置換のフェニル基または置換もしくは無置換のナフチル基であることを特徴とする [2] ~ [4] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[6] 一般式 (2) の Ar^2 および Ar^3 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 [2] ~ [5] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

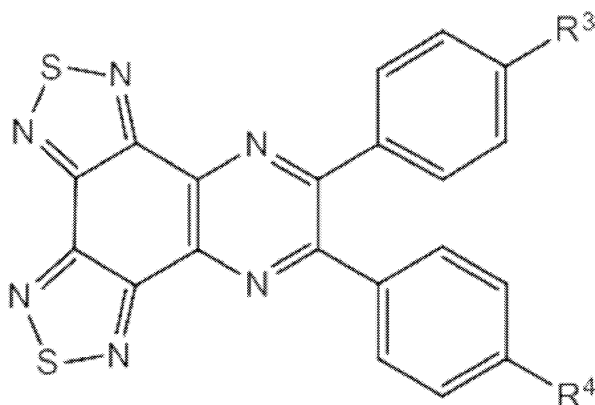
[7] 一般式 (2) の Ar^2 および Ar^3 が、単結合または連結基を介して互いに結合していることを特徴とする [2] ~ [6] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

40

[8] 一般式 (1) で表される化合物が、下記一般式 (3) で表される化合物であることを特徴とする [1] に記載の発光材料。

【化 3】

一般式 (3)

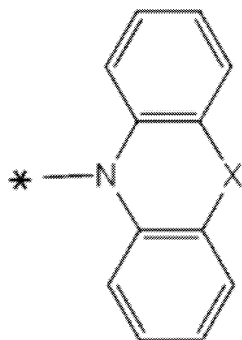


10

[一般式 (3) において、 R^3 および R^4 は各々独立に水素原子または置換基を表し、 R^3 および R^4 の少なくとも一方は、下記一般式 (4) で表される基である。]

【化 4】

一般式 (4)



20

[一般式 (4) において、* は一般式 (3) におけるベンゼン環への結合部位を表す。X は置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を表す。]

30

[9] 一般式 (4) の X が、酸素原子であることを特徴とする [8] に記載の発光材料。

[10] 前記一般式 (1) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

[11] [1] ~ [9] 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。

[12] 遅延蛍光を放射することを特徴とする [11] に記載の有機発光素子。

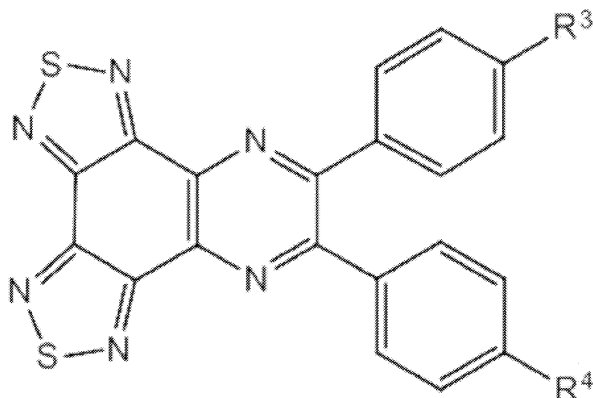
[13] 有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする [11] または [12] に記載の有機発光素子。

[14] 下記一般式 (3) で表される化合物。

40

【化 5】

一般式 (3)

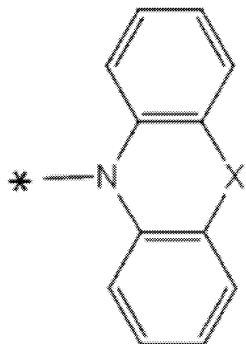


10

[一般式 (3) において、 R^3 および R^4 は各々独立に水素原子または置換基を表し、 R^3 および R^4 の少なくとも一方は、下記一般式 (4) で表される基である。]

【化 6】

一般式 (4)



20

[一般式 (4) において、* は一般式 (3) におけるベンゼン環への結合部位を表す。X は置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を表す。]

30

【発明の効果】

【0010】

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】

【0011】

【図 1】有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。

【図 2】実施例 1 の例示化合物 (1) のトルエン溶液の発光吸収スペクトルである。

40

【図 3】実施例 1 の例示化合物 (1) と C B P の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光吸収スペクトルである。

【図 4】実施例 1 の例示化合物 (1) と C B P 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 5】実施例 2 の例示化合物 (2) のトルエン溶液の発光吸収スペクトルである。

【図 6】実施例 2 の例示化合物 (2) と m C B P の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光吸収スペクトルである。

【図 7】実施例 2 の例示化合物 (2) のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。

【図 8】実施例 2 の例示化合物 (2) と m C B P 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。

50

【図 9】実施例 3 の例示化合物 (2) の有機エレクトロミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図 10】実施例 3 の例示化合物 (2) の有機エレクトロルミネッセンス素子の電圧 - 電流密度 - 輝度特性を示すグラフである。

【図 11】実施例 3 の例示化合物 (2) の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度 - 外部量子効率特性を示すグラフである。

【図 12】実施例 3 の例示化合物 (2) の有機エレクトロミネッセンス素子の電流密度 - 電力効率特性を示すグラフである。

【図 13】実施例 3 の例示化合物 (2) の有機エレクトロミネッセンス素子の電流密度 - 電流効率特性を示すグラフである。

10

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 2 】

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

【 0 0 1 3 】

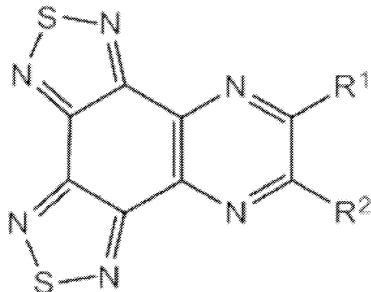
20

[一般式 (1) で表される化合物]

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

【化 7】

一般式 (1)



30

一般式 (1) において、 R^1 および R^2 は各々独立に置換もしくは無置換のアリール基を表し、 R^1 および R^2 の少なくとも一方は、N, N - ジアリールアミノ基が置換したアリール基である。N, N - ジアリールアミノ基が置換したアリール基は、 R^1 および R^2 の一方であってもよいし、 R^1 および R^2 の両方であってもよいが、 R^1 および R^2 の両方であることが好ましい。 R^1 および R^2 の両方がN, N - ジアリールアミノ基が置換したアリール基であるとき、それらのN, N - ジアリールアミノ基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。

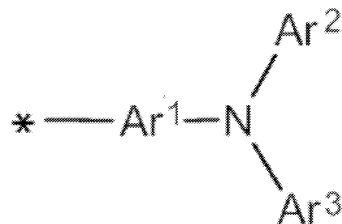
40

【 0 0 1 4 】

N, N - ジアリールアミノ基が置換したアリール基は、下記一般式 (2) で表される基であることが好ましい。

【化 8】

一般式 (2)



10

【0015】

一般式 (2) において、* は一般式 (1) におけるピラジン環への結合部位を表す。Ar¹ ~ Ar³ は各々独立に炭素数 4 ~ 10 の置換もしくは無置換の炭素環芳香族基または炭素数 4 ~ 10 の置換もしくは無置換の複素環芳香族基を表す。Ar¹ ~ Ar³ で表される芳香族基は互い同一であっても異なってもよいが、Ar² と Ar³ は互いに同一であることが好ましい。また、一般式 (1) で表される化合物中に一般式 (2) で表される基が複数存在する場合、複数の Ar¹ ~ Ar³ は互いに同一であっても異なってもよい。

Ar¹ ~ Ar³ のうち Ar¹ は無置換の炭素環芳香族基であることが好ましく、無置換のフェニレン基、無置換のナフチレン基または無置換のビフェニレン基であることがより好ましく、無置換のフェニレン基であることがさらに好ましい。

20

Ar² および Ar³ は各々独立に置換もしくは無置換の炭素環芳香族基であることが好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基または置換もしくは無置換のナフチル基であることがより好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基であることがさらに好ましい。Ar² と Ar³ は単結合で結合していてもよいし、連結基を介して連結していてもよい。連結基としては、置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を挙げることができる。このうちエチレン基およびビニレン基が複数の置換基で置換されているとき、隣り合う 2 つの置換基同士は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。隣り合う 2 つの置換基同士が互いに結合して形成する環状構造の説明と好ましい例については、X がエチレン基またはビニレン基であるときに 2 つの置換基同士が互いに結合して形成する環状構造の説明と好ましい例を参照することができる。

30

【0016】

R¹ および R² のうち的一方が N, N - ジアリールアミノ基が置換したアリール基であるとき、他方がとりうる置換もしくは無置換のアリール基としては、置換もしくは無置換の炭素環芳香族基または置換もしくは無置換の複素環芳香族基のいずれであってもよいが、置換もしくは無置換の炭素環芳香族基であることが好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基または置換もしくは無置換のビフェニル基であることがより好ましく、置換もしくは無置換のフェニル基であることがさらに好ましい。

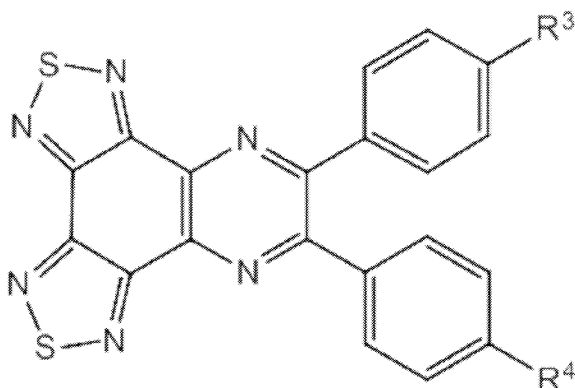
【0017】

一般式 (1) で表される化合物の好ましい例として、下記一般式 (3) で表される化合物を挙げることができる。

40

【化 9】

一般式 (3)



10

【0018】

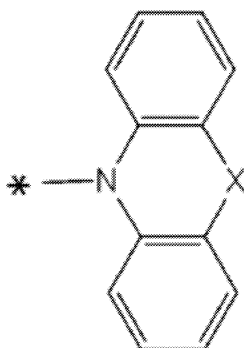
一般式 (3) において、 R^3 および R^4 は各々独立に水素原子または置換基を表し、 R^3 および R^4 の少なくとも一方は、下記一般式 (4) で表される基である。下記一般式 (4) で表される基は、 R^3 および R^4 のうち的一方であってもよいし、 R^3 および R^4 の両方であってもよいが、 R^3 および R^4 の両方であることが好ましい。 R^3 および R^4 の両方が下記一般式 (4) で表される基であるとき、2つの下記一般式 (4) で表される基は、互いに同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。

20

【0019】

【化 10】

一般式 (4)



30

【0020】

一般式 (4) において、* は一般式 (3) におけるベンゼン環への結合部位を表す。X は置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を表し、メチル基で置換されたメチレン基または酸素原子であることが好ましく、酸素原子であることがより好ましい。

40

【0021】

R^1 、 R^2 に置換しうる置換基、 R^3 、 R^4 がとりうる置換基、 $Ar^1 \sim Ar^3$ に置換しうる置換基、X に置換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 ~ 2

50

0 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。

10

【0022】

X が複数の置換基で置換されたエチレン基またはビニレン基であるとき、エチレン基またはビニレン基の、隣り合う 2 つの置換基同士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。

20

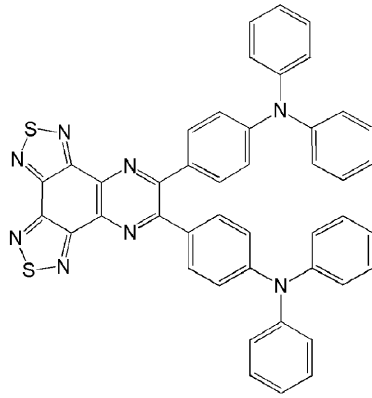
【0023】

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。

【0024】

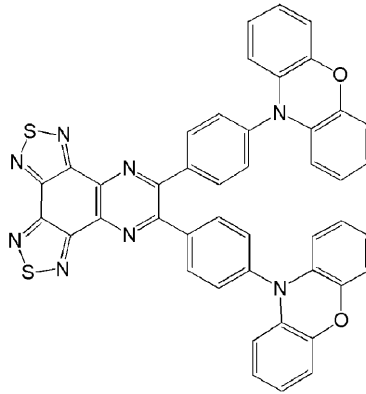
【化 1 1】

(1)



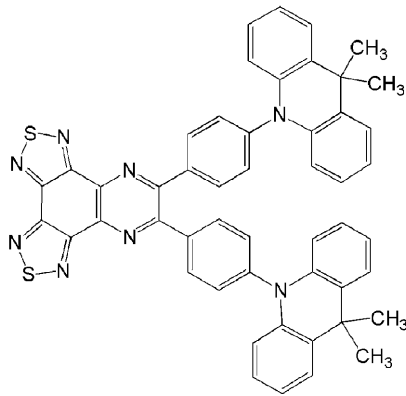
10

(2)



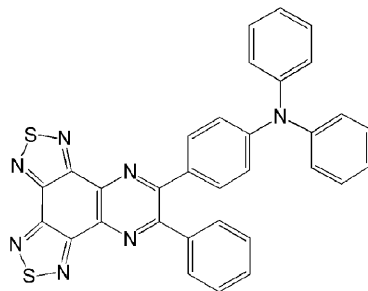
20

(3)



30

(4)

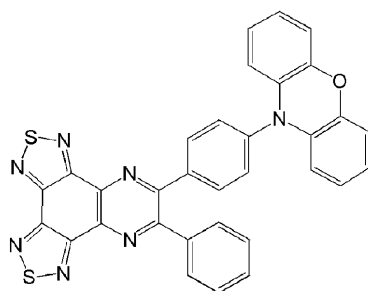


40

【 0 0 2 5】

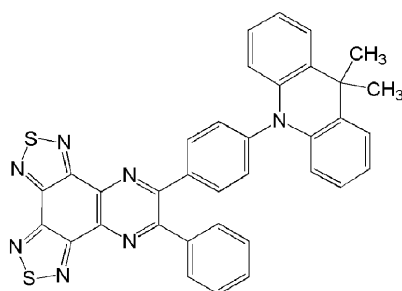
【化 1 2】

(5)



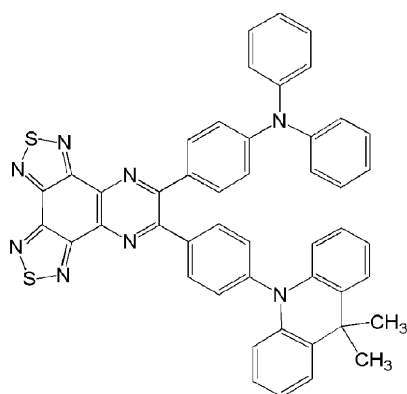
10

(6)



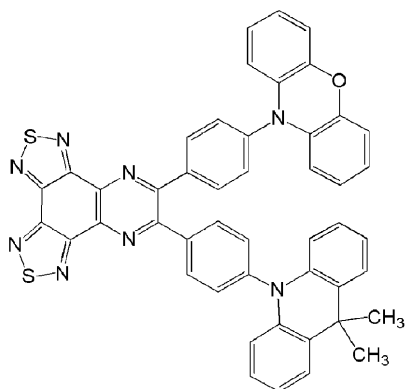
20

(7)



30

(8)

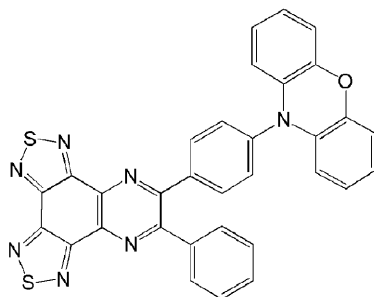


40

【 0 0 2 6】

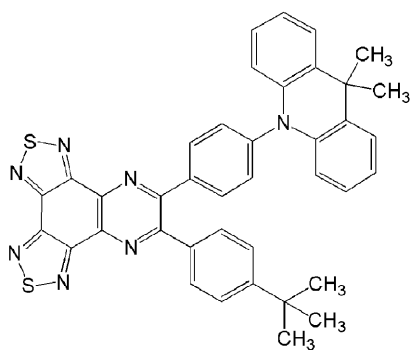
【化 1 3】

(9)



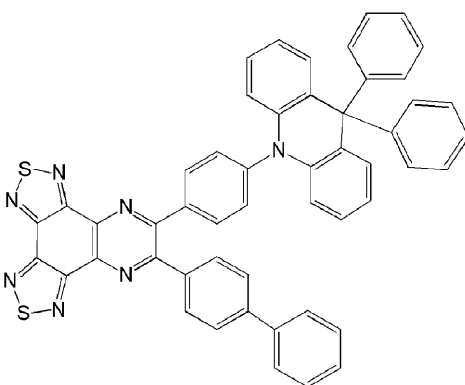
10

(10)



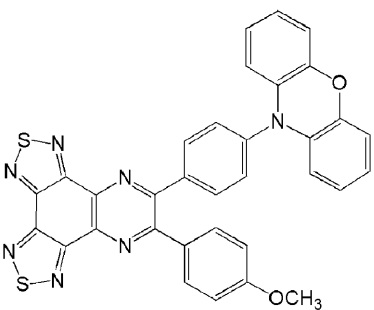
20

(11)



30

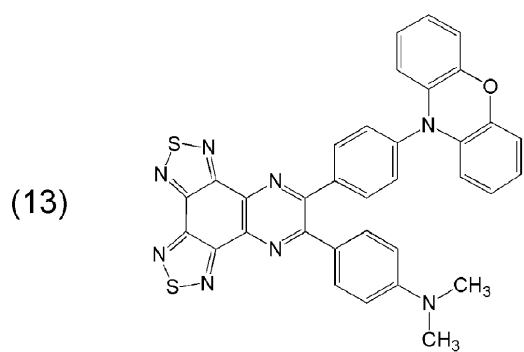
(12)



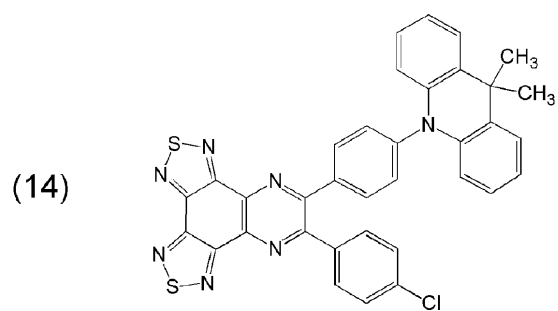
40

【 0 0 2 7】

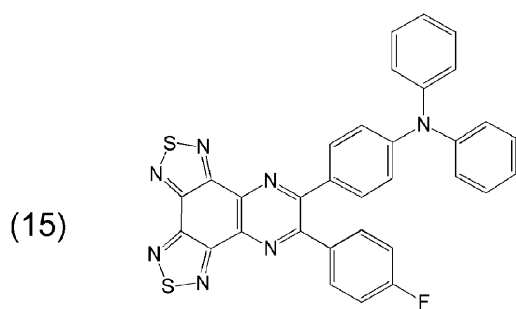
【化 1 4】



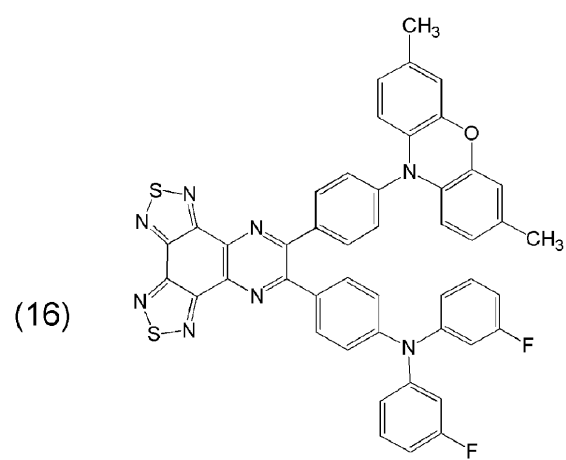
10



20



30

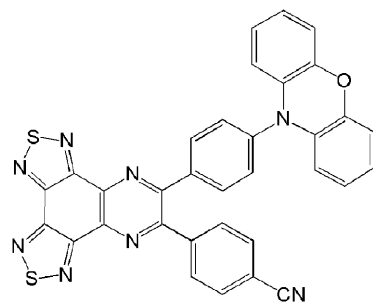


40

【 0 0 2 8】

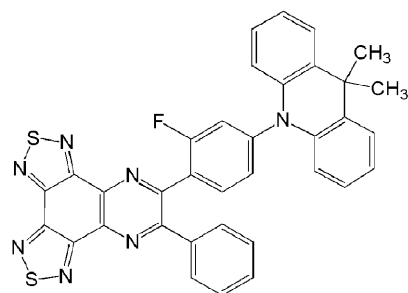
【化 1 5】

(17)



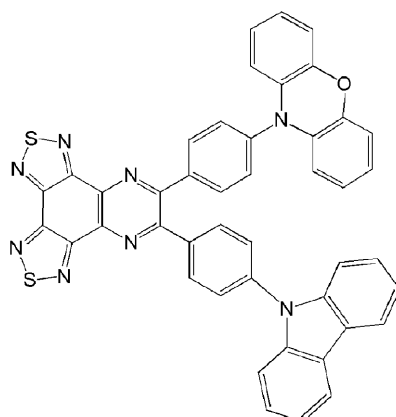
10

(18)



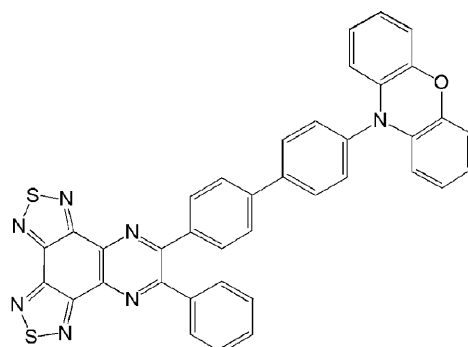
20

(19)



30

(20)

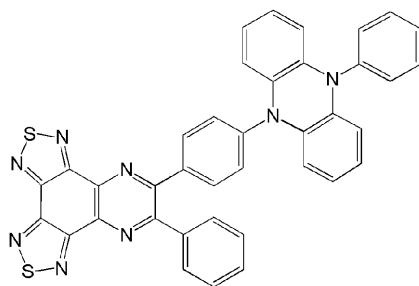


40

【 0 0 2 9】

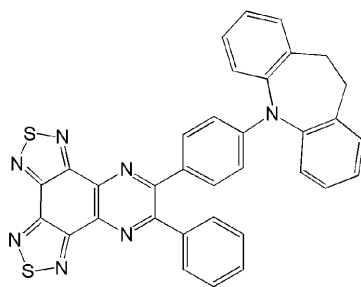
【化 1 6 - 1】

(21)



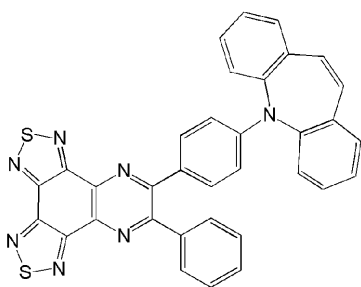
10

(22)



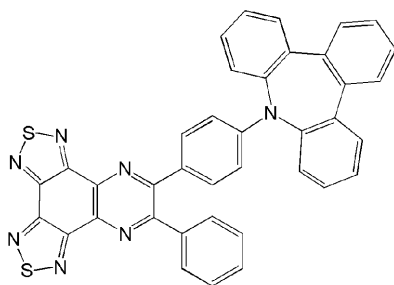
20

(23)



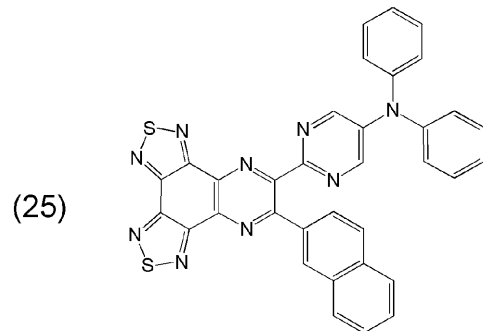
30

(24)

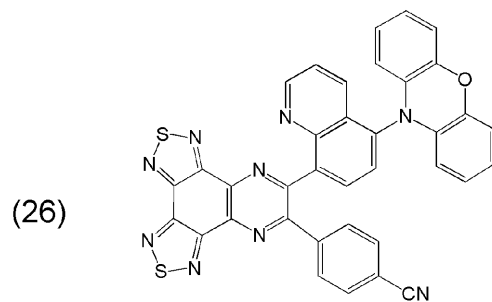


40

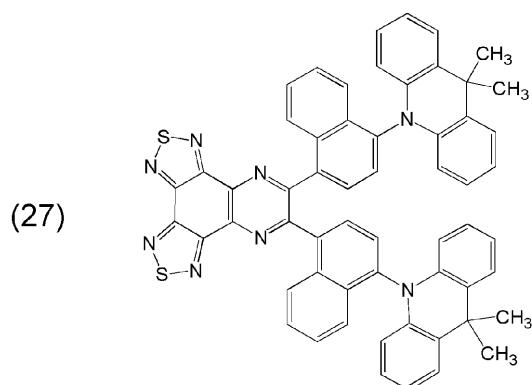
【化 1 6 - 2】



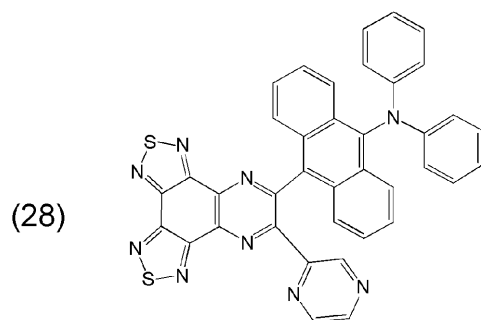
10



20



30



40

【 0 0 3 0】

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。

50

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。

【0031】

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

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

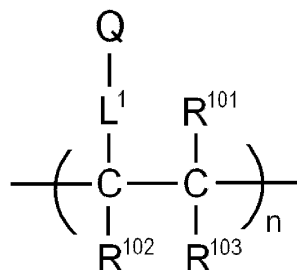
10

【0032】

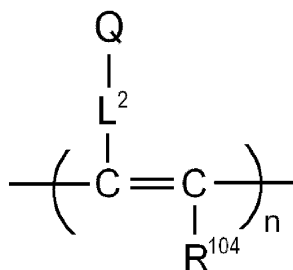
一般式(1)で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式(5)または(6)で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

【化17】

一般式(5)



一般式(6)



20

【0033】

一般式(5)または(6)において、Qは一般式(1)で表される構造を含む基を表し、 L^1 および L^2 は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは0~20であり、より好ましくは1~15であり、さらに好ましくは2~10である。連結基は $-X^{11}-L^{11}-$ で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、 X^{11} は酸素原子または硫黄原子を表し、酸素原子であることが好ましい。 L^{11} は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数1~10の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

30

一般式(5)または(6)において、 R^{101} 、 R^{102} 、 R^{103} および R^{104} は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数1~3の無置換のアルキル基、炭素数1~3の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数1~3の無置換のアルキル基、炭素数1~3の無置換のアルコキシ基である。

40

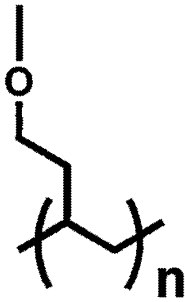
L^1 および L^2 で表される連結基は、Qを構成する一般式(1)の構造の R^1 、 R^2 のいずれか、一般式(2)の $Ar^1 \sim Ar^3$ のいずれか、一般式(3)の構造の R^3 、 R^4 のいずれか、または一般式(4)の構造のXに結合することができる。1つのQに対して連結基が2つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

【0034】

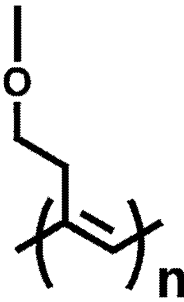
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式(7)~(10)で表される構造を挙げることができる。

【化 18】

式(7)

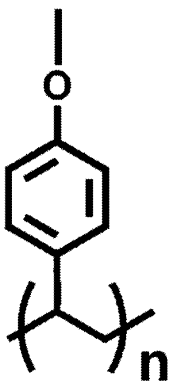


式(8)

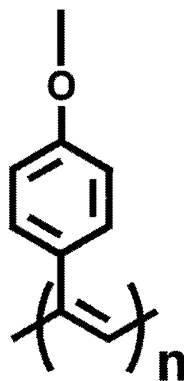


10

式(9)



式(10)



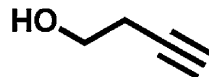
20

【0035】

これらの式(7)～(10)を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式(1)の構造の R^1 、 R^2 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。

30

【化 19】



40

【0036】

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

50

るモノマーから誘導されるものを挙げることができる。例えば、エチレン、スチレンなどのエチレン性不飽和結合を有するモノマーから誘導される繰り返し単位を挙げることができる。

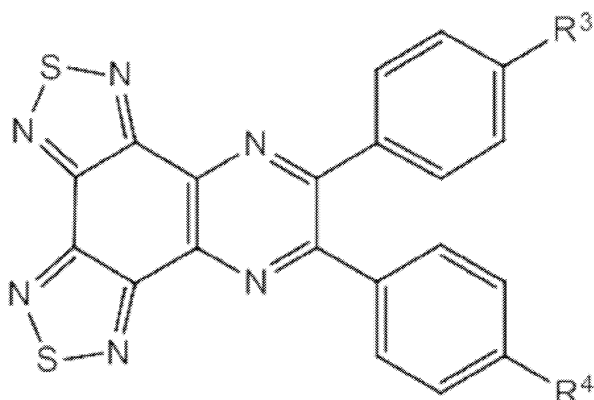
【 0 0 3 7 】

[一般式 (3) で表される化合物]

一般式 (1) で表される化合物のうち、下記一般式 (3) で表される化合物は新規化合物である。

【 化 2 0 】

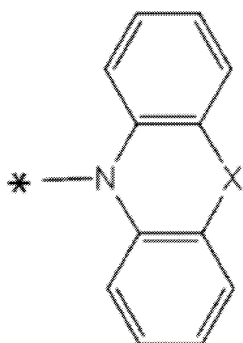
一般式 (3)



一般式 (3) において、 R^3 および R^4 は各々独立に水素原子または置換基を表し、 R^3 および R^4 の少なくとも一方は、下記一般式 (4) で表される基である。

【 化 2 1 】

一般式 (4)



一般式 (4) において、* は一般式 (3) におけるベンゼン環への結合部位を表す。X は置換もしくは無置換のメチレン基、置換もしくは無置換のエチレン基、置換もしくは無置換のビニレン基、置換もしくは無置換のイミノ基、酸素原子または硫黄原子を表す。

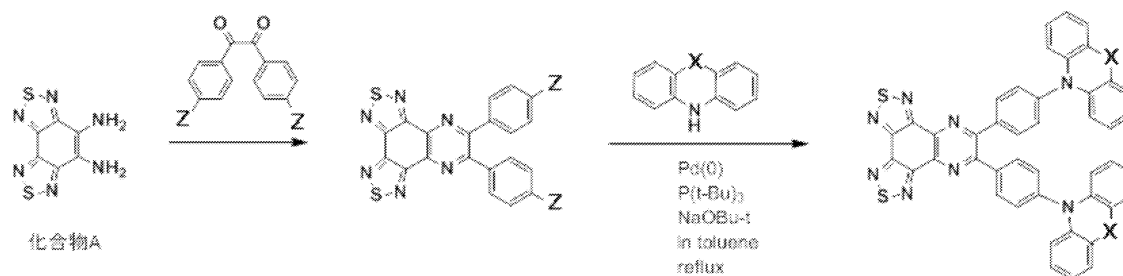
一般式 (3) における R^3 、 R^4 および一般式 (4) における X の説明と好ましい範囲については、上記の一般式 (1) で表される化合物の好ましい例として例示した一般 (3) で表される化合物の説明を参照することができる。

【 0 0 3 8 】

[一般式 (3) で表される化合物の合成方法]

一般式 (3) で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、一般式 (3) の R^3 と R^4 が一般式 (4) で表される基である化合物は、化合物 A (4,5-Diamino-bisbenzo [1,2,5]thiadiazole) を出発原料として以下の反応により合成することが可能である。

【化 2 2】

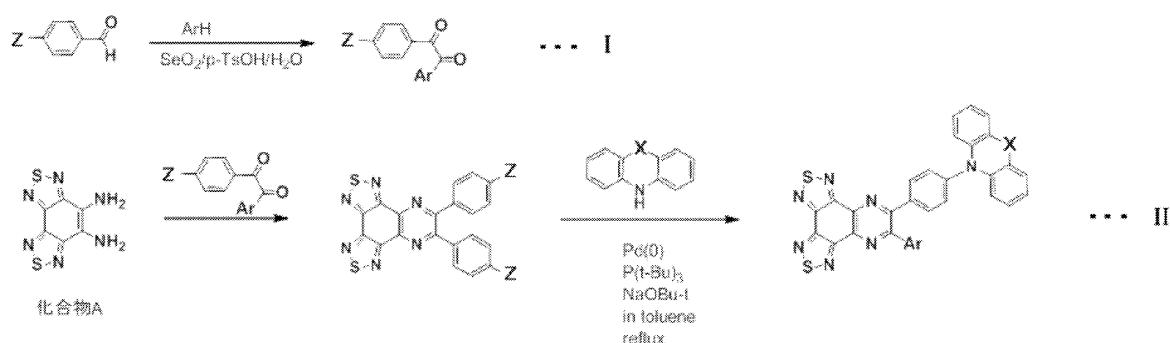


【 0 0 3 9 】

10

また、一般式(3)の R^3 が一般式(4)で表される基であり、 R^4 が水素原子である化合物は、化合物A(4,5-Diamino-bisbenzo [1,2,5]thiadiazole)と下記反応Iによって得られた化合物を出発原料として以下の反応IIにより合成することが可能である。

【化 2 3】



20

【 0 0 4 0 】

上記の反応式におけるXの説明については、一般式(3)における対応する記載を参照することができる。Z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、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましい。Arはフェニル基を表す。

上記の反応は、公知の反応を応用したものであり、公知の反応条件を適宜選択して用いることができる。また、出発原料である化合物Aは、A. P. Komin, M.Carmack, J. Heterocyclic Chem. 1975, 12, 829-833に記載の方法により合成することができる。上記の反応の詳細については、後述の合成例を参考にすることができる。また、一般式(3)で表される化合物は、その他の公知の合成反応を組み合わせることによっても合成することができる。

30

【 0 0 4 1 】

〔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

【 0 0 4 2 】

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。

【0043】

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

有機フォトルミネッセンス素子は、基板上に少なくとも発光層を形成した構造を有する。また、有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも陽極、陰極、および陽極と陰極の間に有機層を形成した構造を有する。有機層は、少なくとも発光層を含むものであり、発光層のみからなるものであってもよいし、発光層の他に1層以上の有機層を有するものであってもよい。そのような他の有機層として、正孔輸送層、正孔注入層、電子阻止層、正孔阻止層、電子注入層、電子輸送層、励起子阻止層などを挙げることができる。正孔輸送層は正孔注入機能を有した正孔注入輸送層でもよく、電子輸送層は電子注入機能を有した電子注入輸送層でもよい。具体的な有機エレクトロルミネッセンス素子の構造例を図1に示す。図1において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を表わす。

以下において、有機エレクトロルミネッセンス素子の各部材および各層について説明する。なお、基板と発光層の説明は有機フォトルミネッセンス素子の基板と発光層にも該当する。

【0044】

(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。

【0045】

(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 e V

以上) 金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 In_2O_3 - 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 μm 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 $\Omega/\square$ 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。

【0046】

(陰極)

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下) 金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが用いられる。このような電極材料の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性および酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~5 μm 、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。

【0047】

(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

10

20

30

40

50

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。

【0048】

10

(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。

【0049】

(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。

20

【0050】

(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。

30

【0051】

(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。

【0052】

(励起子阻止層)

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は発光層に隣接して陽極側、陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。すなわち、励起子阻止層を陽極側に有する場合、正孔輸送層と発光層の間に、発光層に隣接して該層を挿入することができ、陰極側に挿入する場合、発光層と陰極との間に、発光層に隣接して該層を挿入することができる。また、陽極と、発光層の陽極側に隣接する励起子阻止層との間には、正孔注入層や電子阻止層などを有することができ、陰極と、発光層の陰極側に隣接する励起子阻止層との間には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層などを有することができ、阻止層を配置する場合、阻止層として用いる材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーの少なくともいず

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。

【0053】

(正孔輸送層)

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

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。使用できる公知の正孔輸送材料としては例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物およびスチリルアミン化合物を用いることが好ましく、芳香族第3級アミン化合物を用いることがより好ましい。

【0054】

(電子輸送層)

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

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

【0055】

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。

【0056】

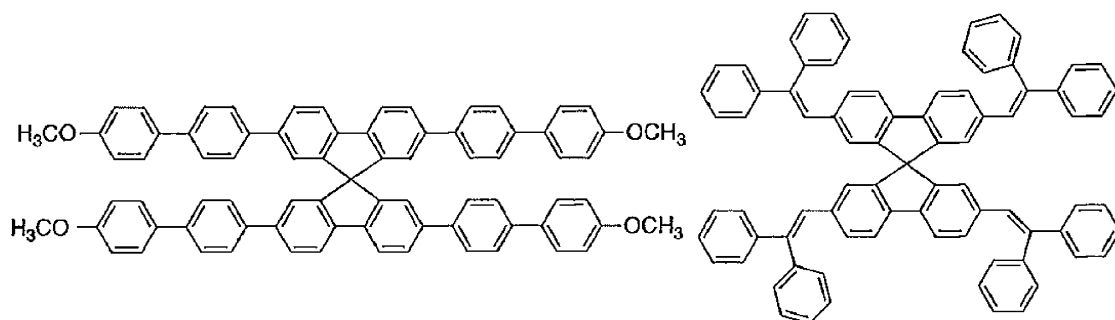
以下に、有機エレクトロルミネッセンス素子に用いることができる好ましい材料を具体的に例示する。ただし、本発明において用いることができる材料は、以下の例示化合物によって限定的に解釈されることはない。また、特定の機能を有する材料として例示した化合物であっても、その他の機能を有する材料として転用することも可能である。なお、以下の例示化合物の構造式におけるR、 $R_1 \sim R_7$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。nは3~5の整数を表す。

【0057】

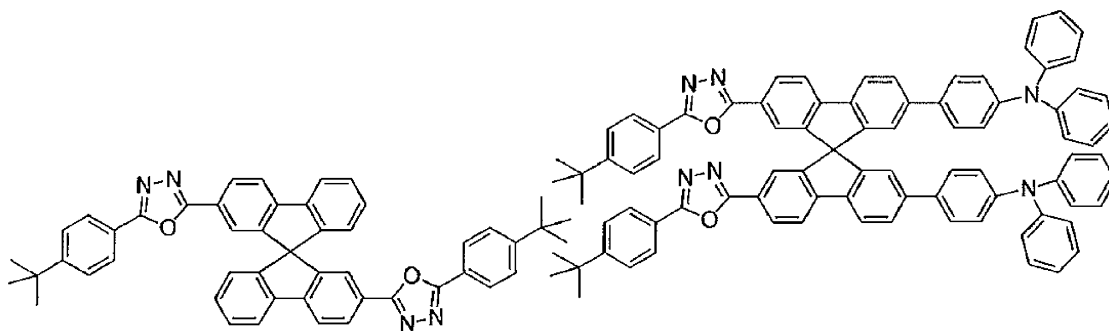
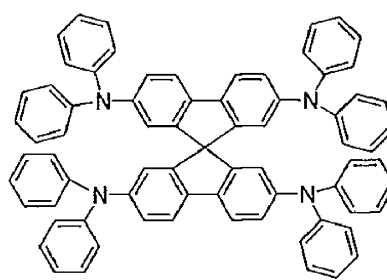
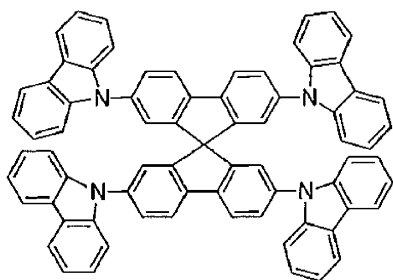
まず、発光層のホスト材料としても用いることができる好ましい化合物を挙げる。

【0058】

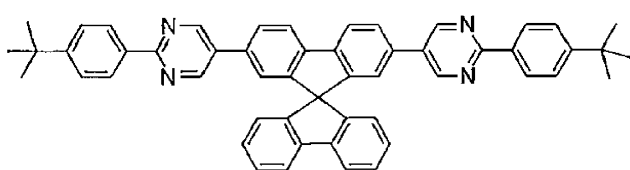
【化 2 4】



10



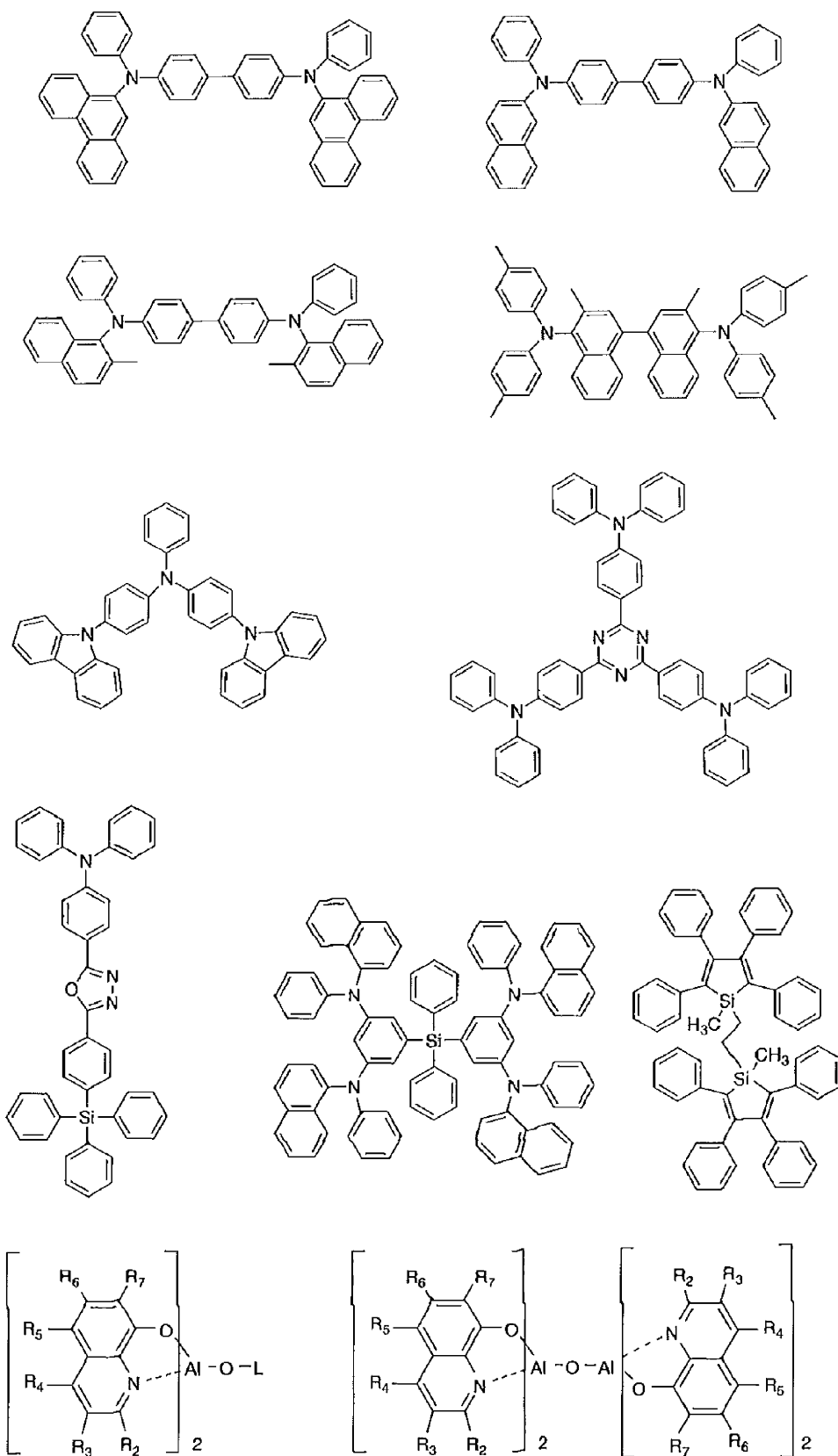
20



30

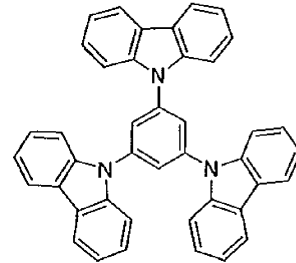
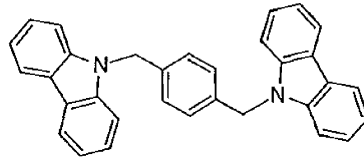
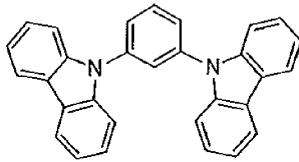
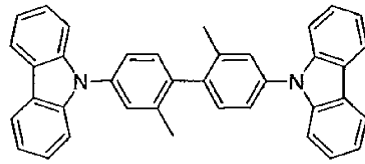
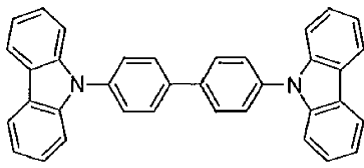
【 0 0 5 9】

【化 2 5】

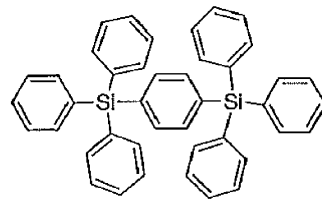


【 0 0 6 0 】

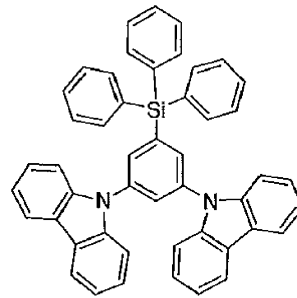
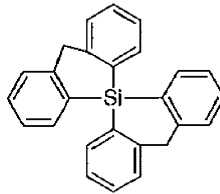
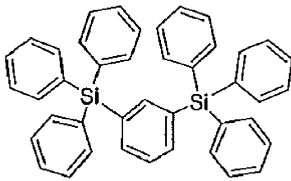
【化 2 6】



10



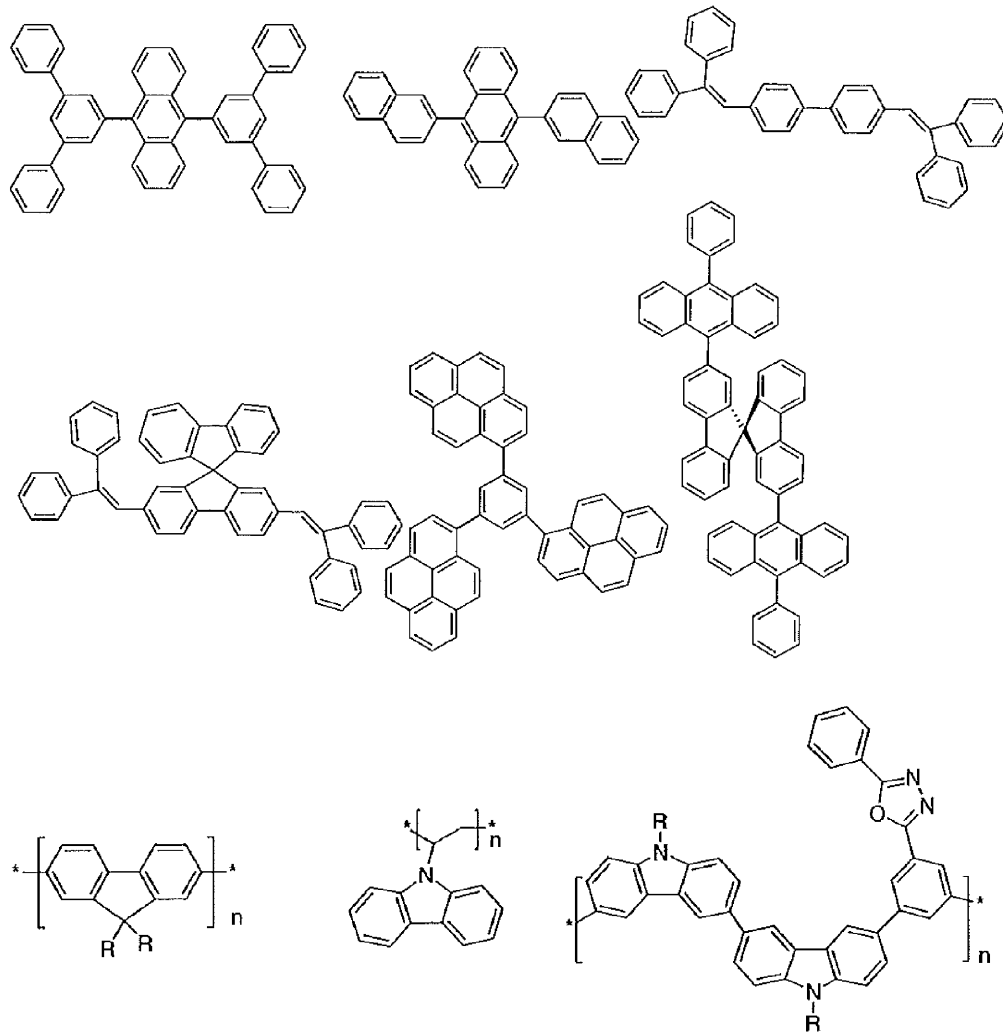
20



30

【 0 0 6 1】

【化 2 7】



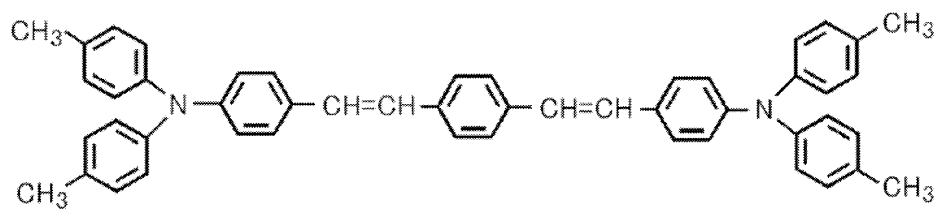
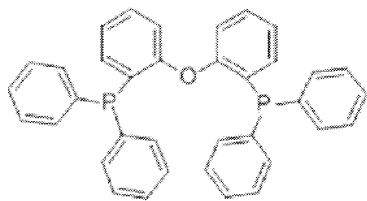
10

20

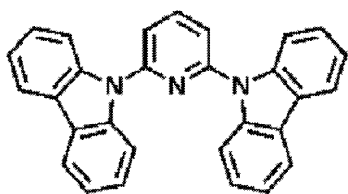
【 0 0 6 2 】

30

【化 2 8】



10



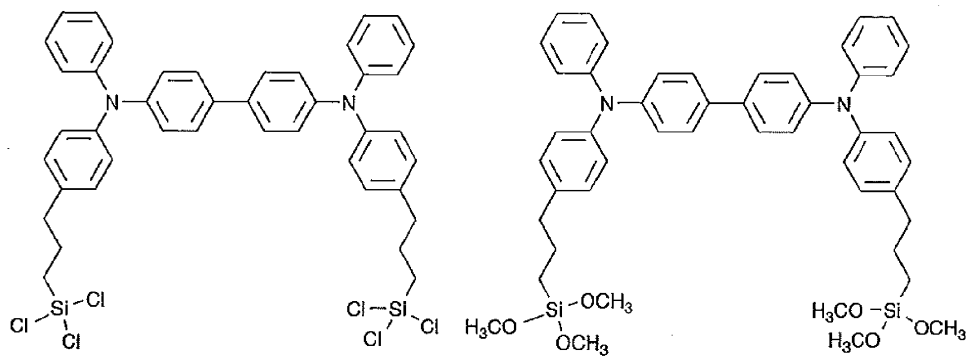
20

【 0 0 6 3】

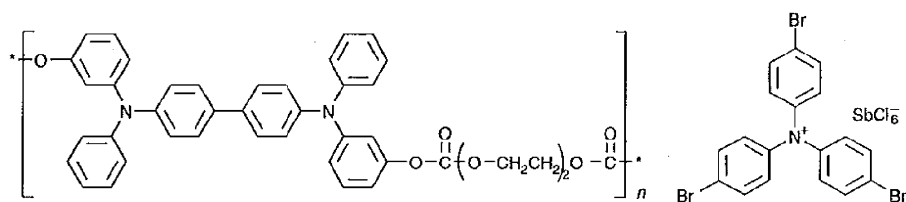
次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 6 4】

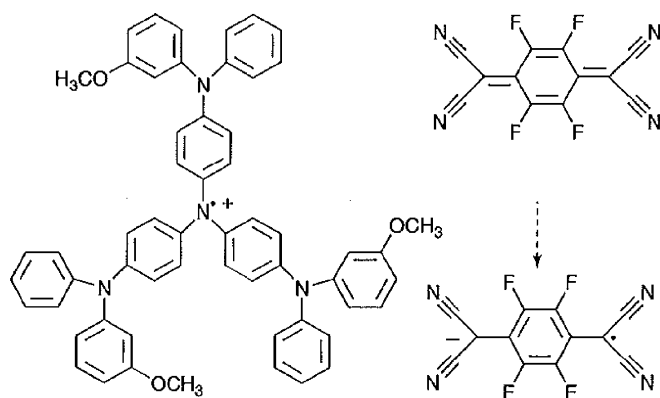
【化 2 9】



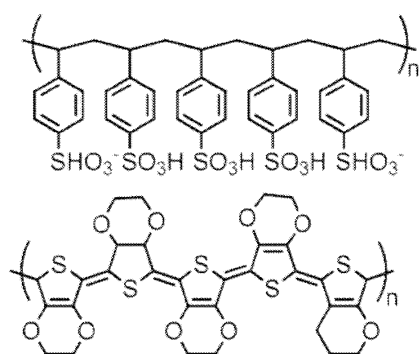
10



20



30



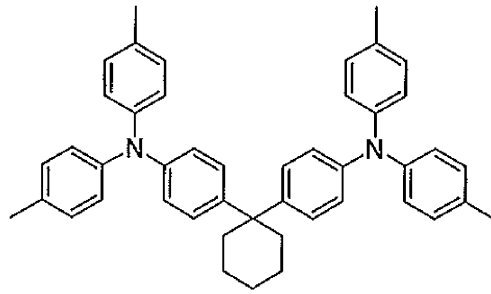
40

【 0 0 6 5 】

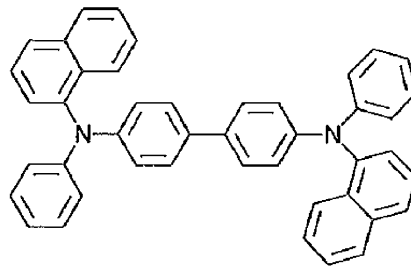
次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 6 6 】

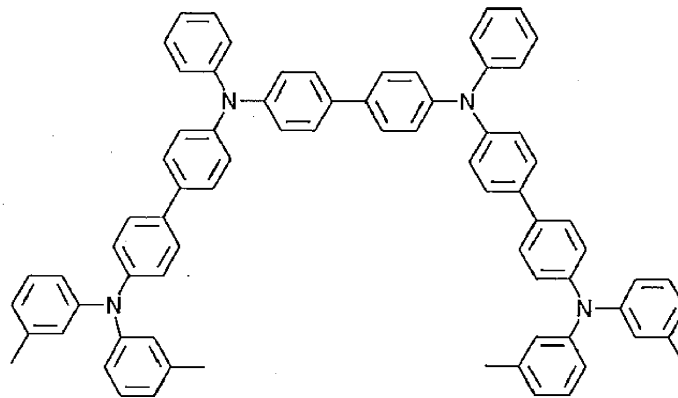
【化 3 0】



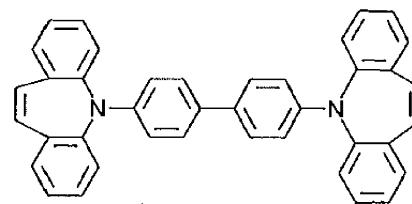
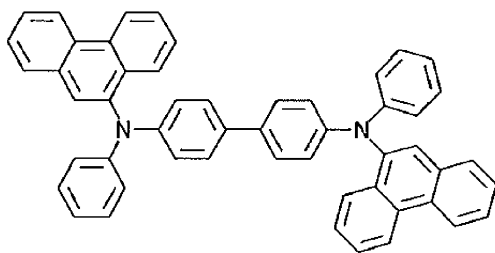
10



20

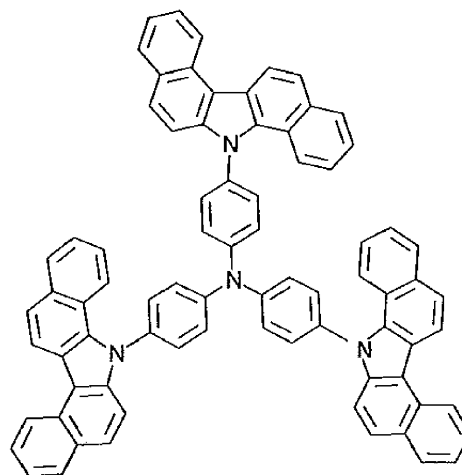
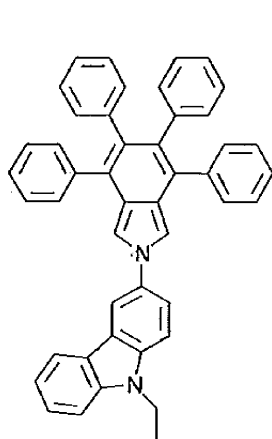


30

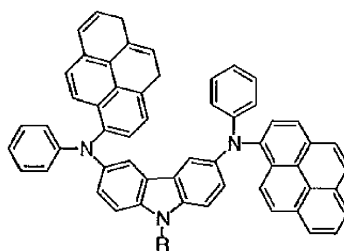
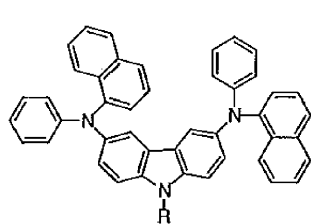


【 0 0 6 7】

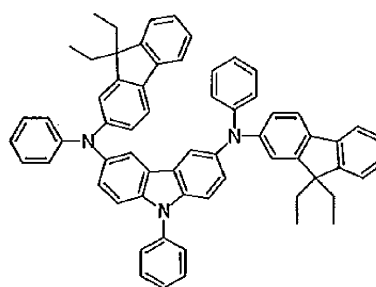
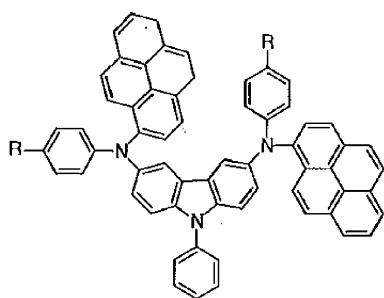
【化 3 1】



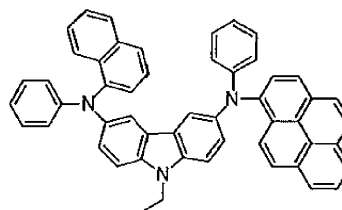
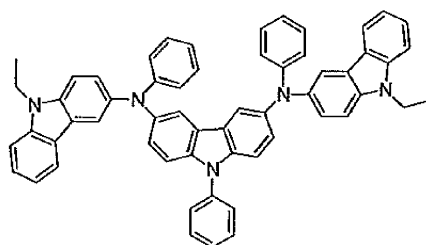
10



20



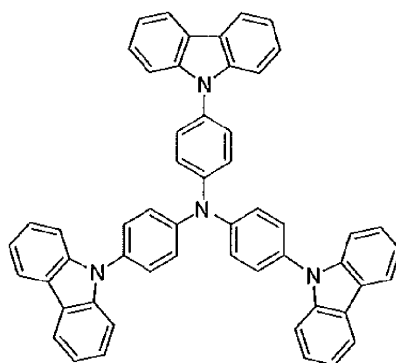
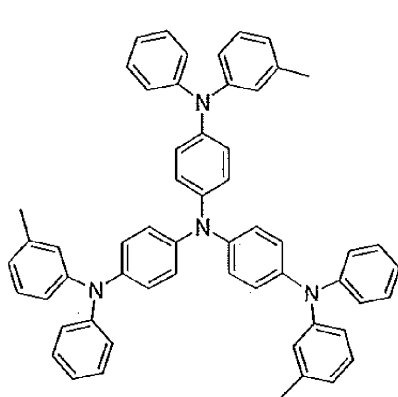
30



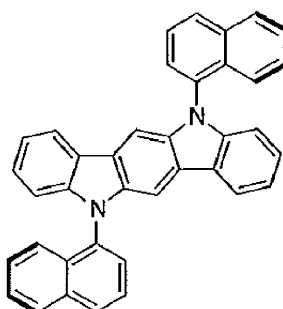
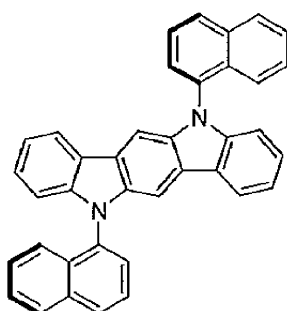
40

【 0 0 6 8 】

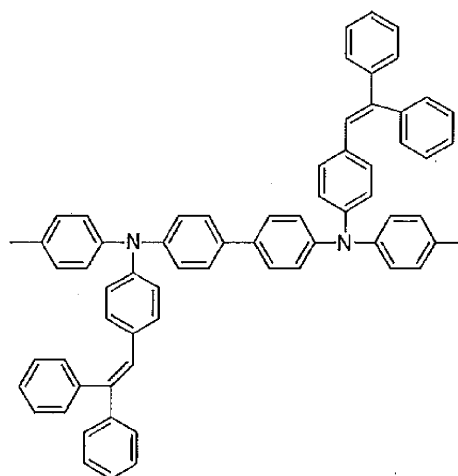
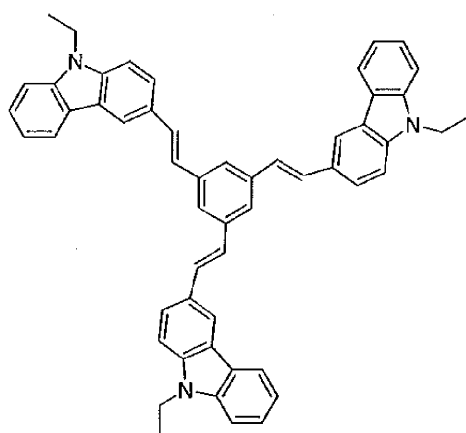
【化 3 2】



10



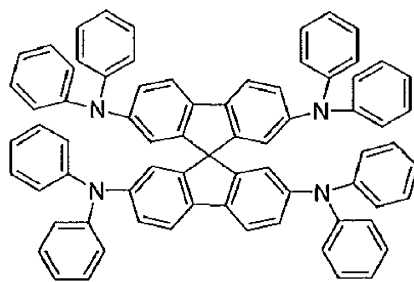
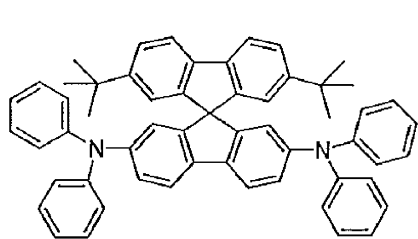
20



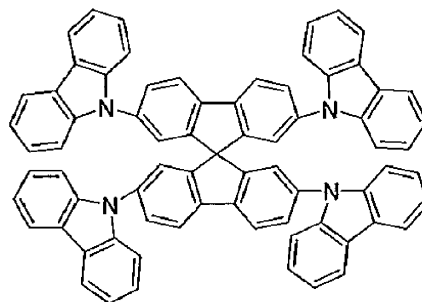
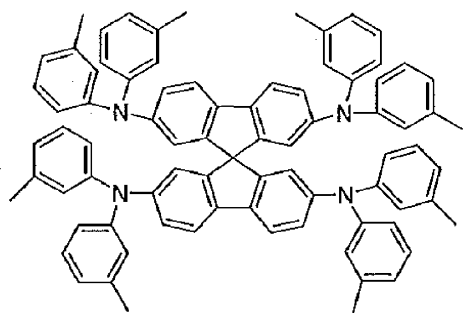
30

【 0 0 6 9 】

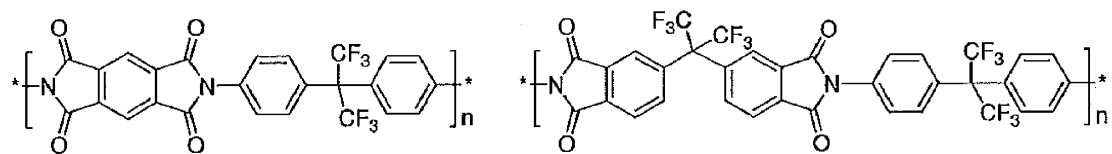
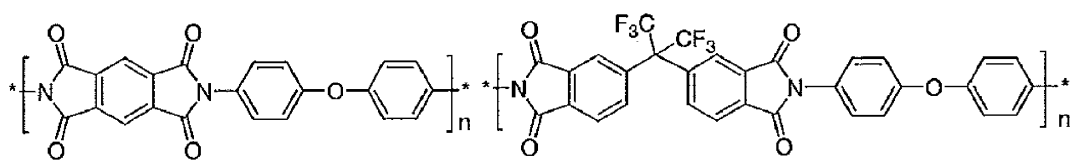
【化 3 3】



10



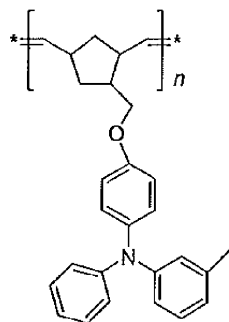
20



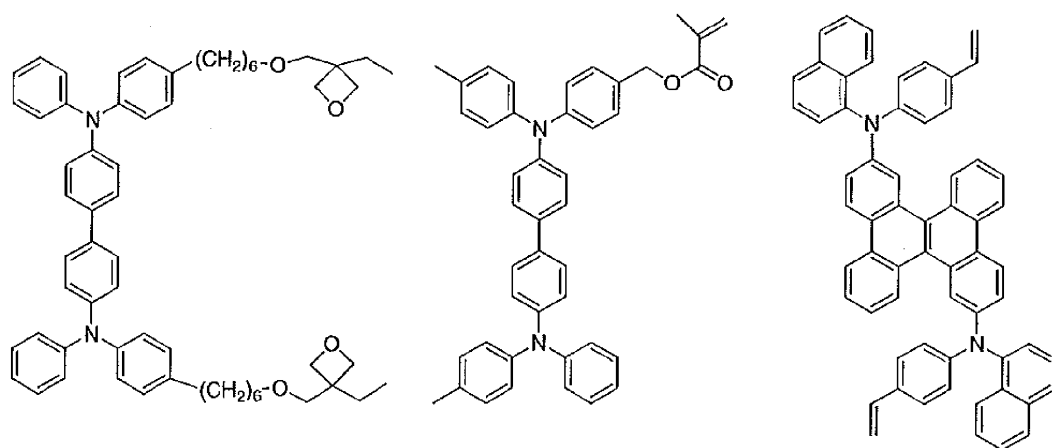
30

【 0 0 7 0 】

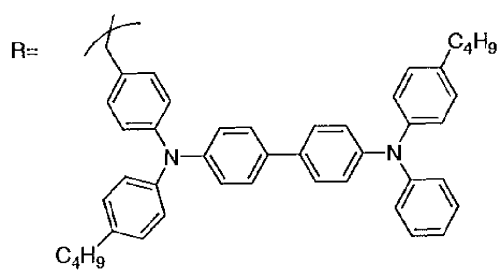
【化 3 4】



10



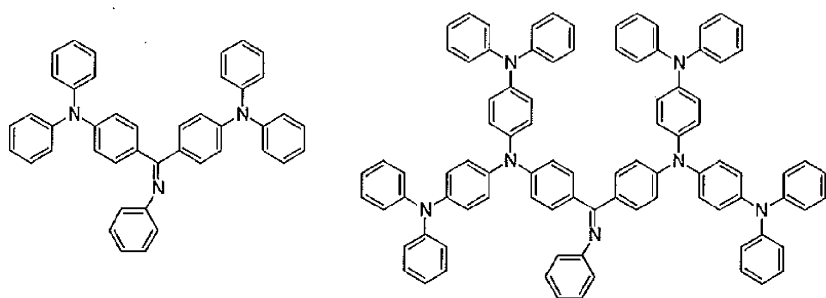
20



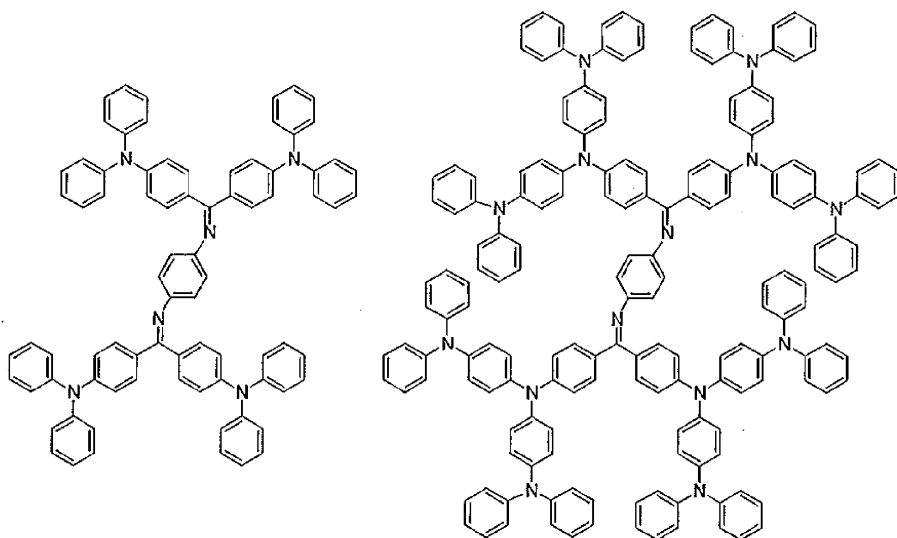
30

【 0 0 7 1 】

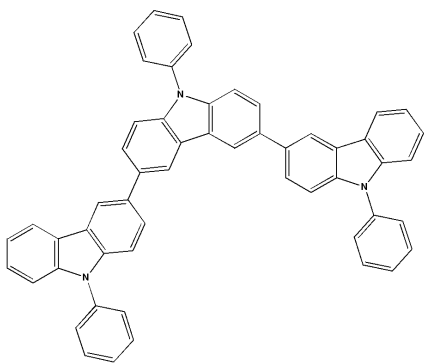
【化 3 5】



10



20



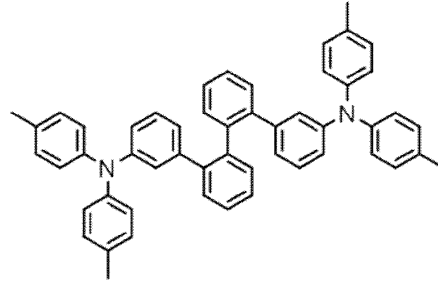
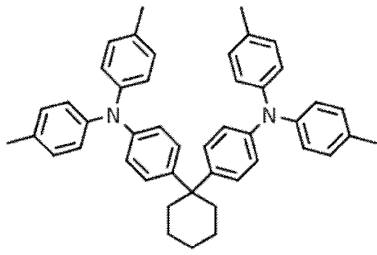
30

【 0 0 7 2 】

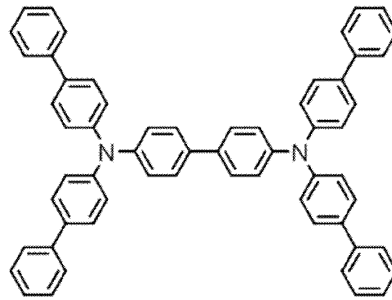
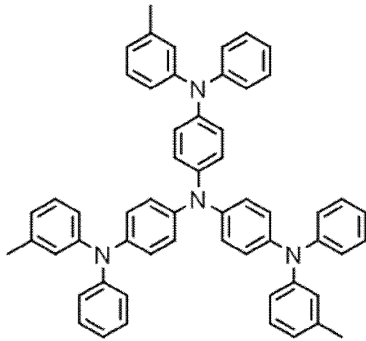
次に、電子阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 7 3 】

【化 3 6】



10



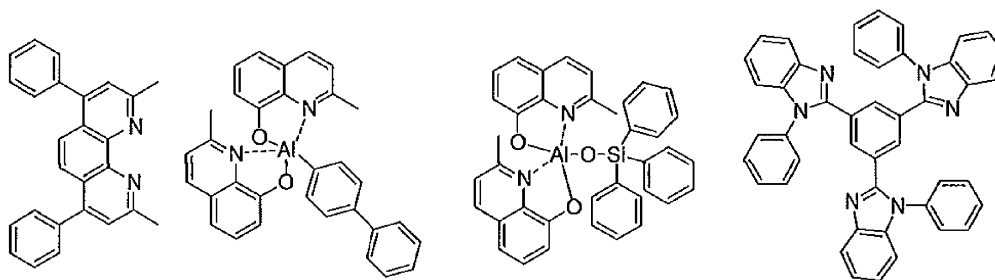
20

【 0 0 7 4 】

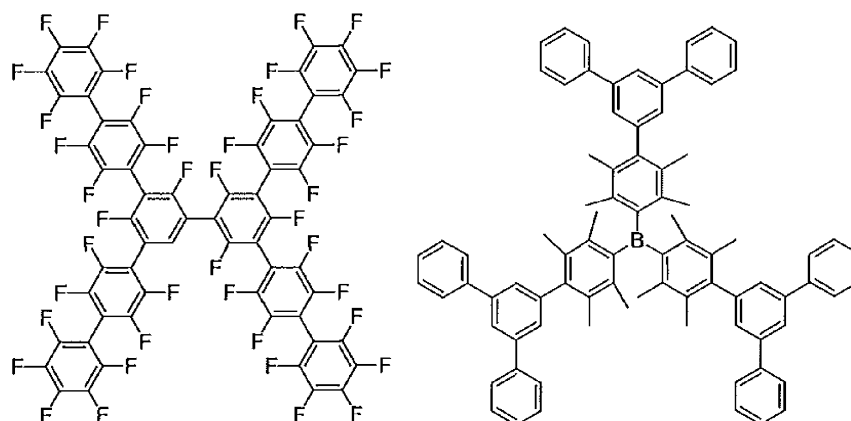
次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 7 5 】

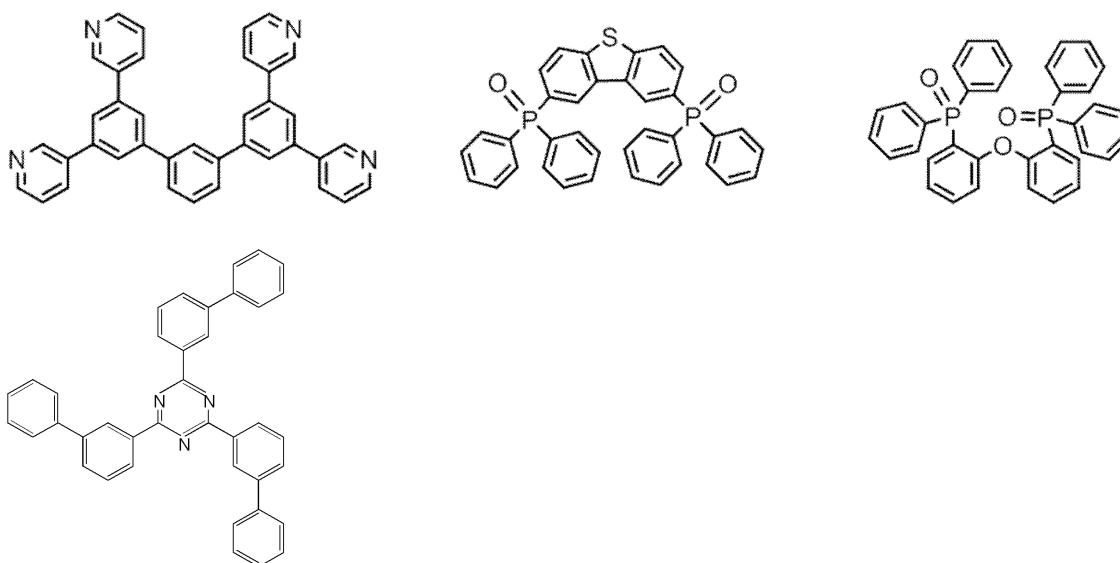
【化 3 7】



10



20



30

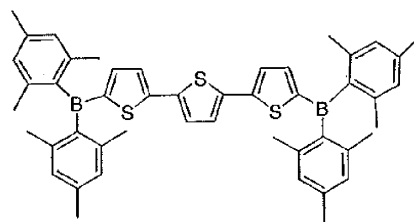
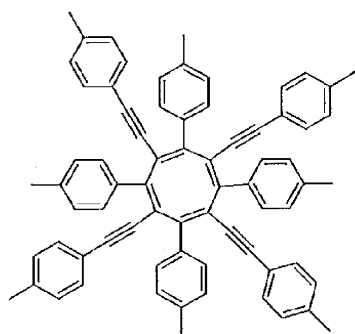
【 0 0 7 6】

40

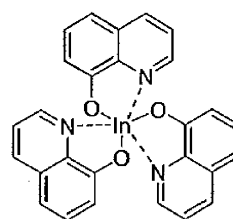
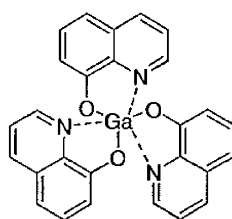
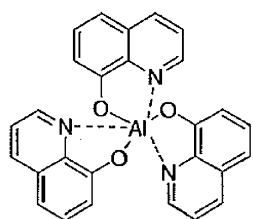
次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 7 7】

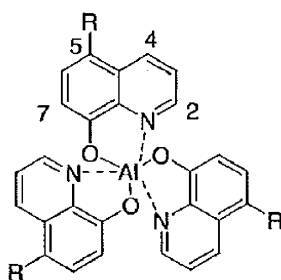
【化 3 8】



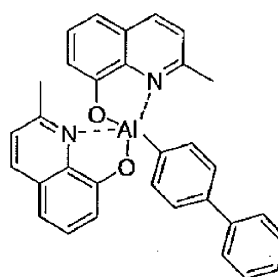
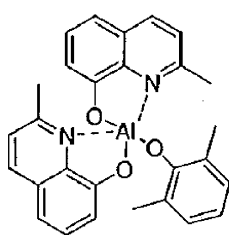
10



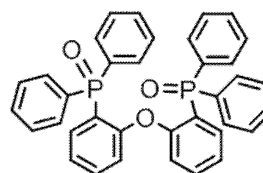
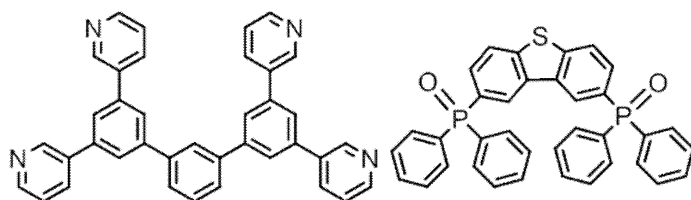
20



30

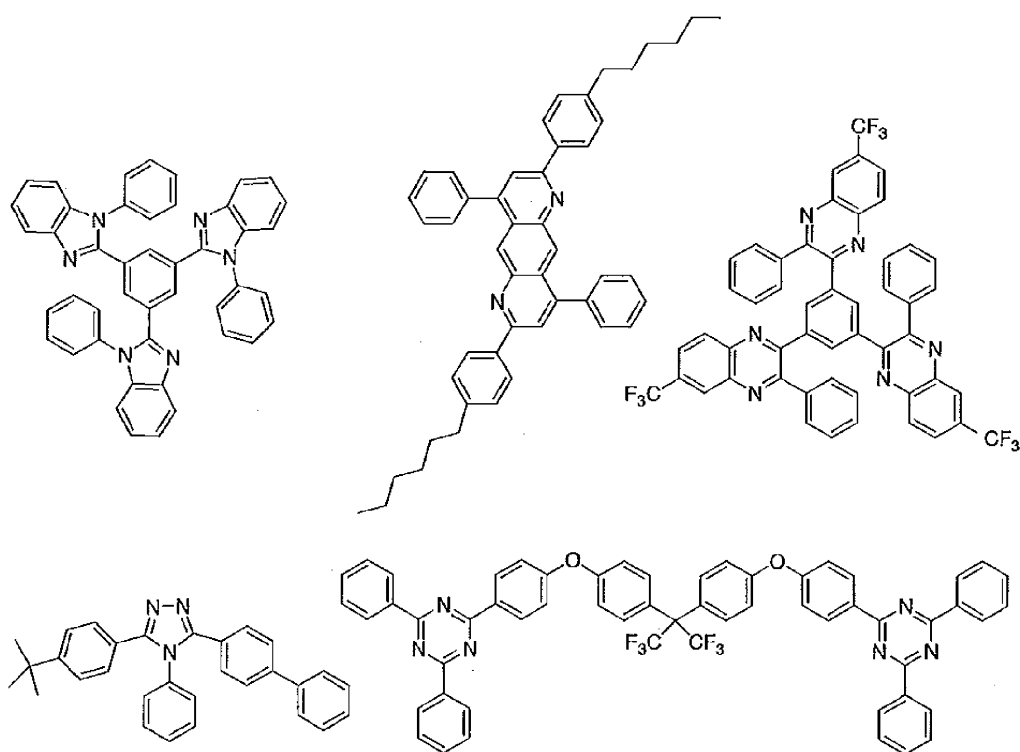
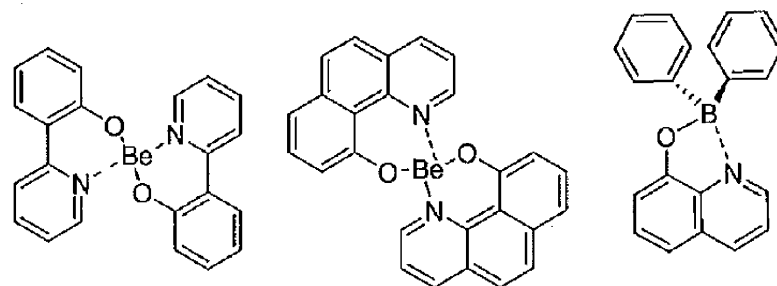
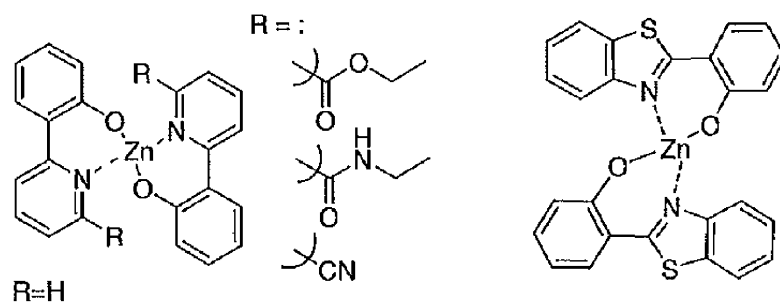


40



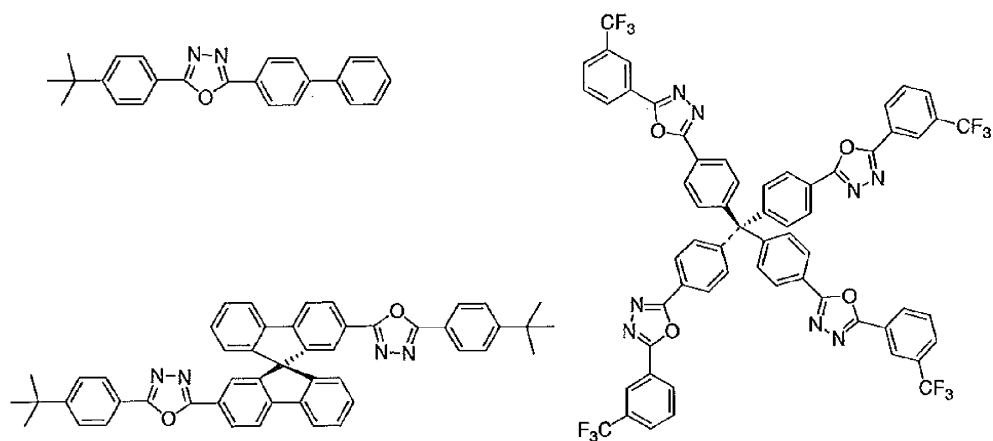
【 0 0 7 8】

【化 3 9】

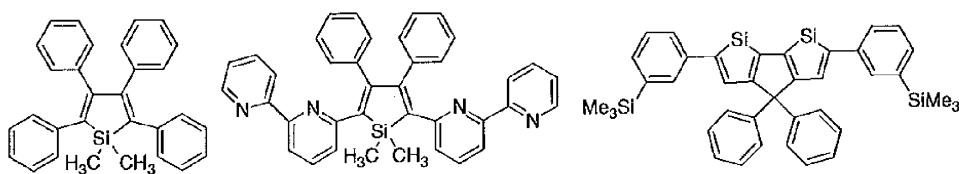


【 0 0 7 9 】

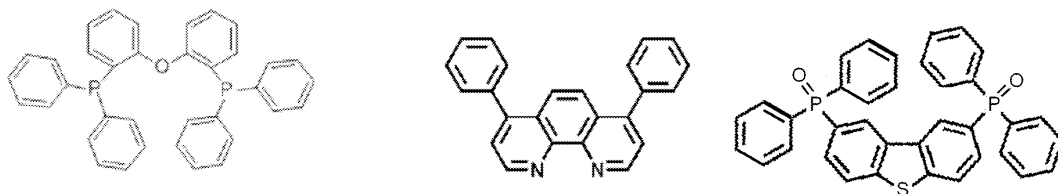
【化 4 0】



10



20



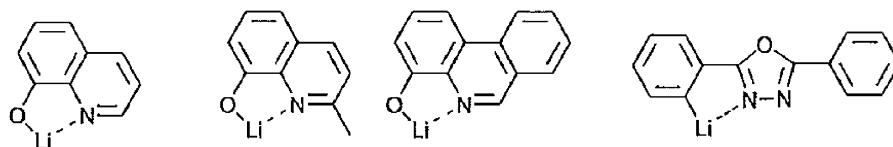
【 0 0 8 0】

30

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。

【 0 0 8 1】

【化 4 1】



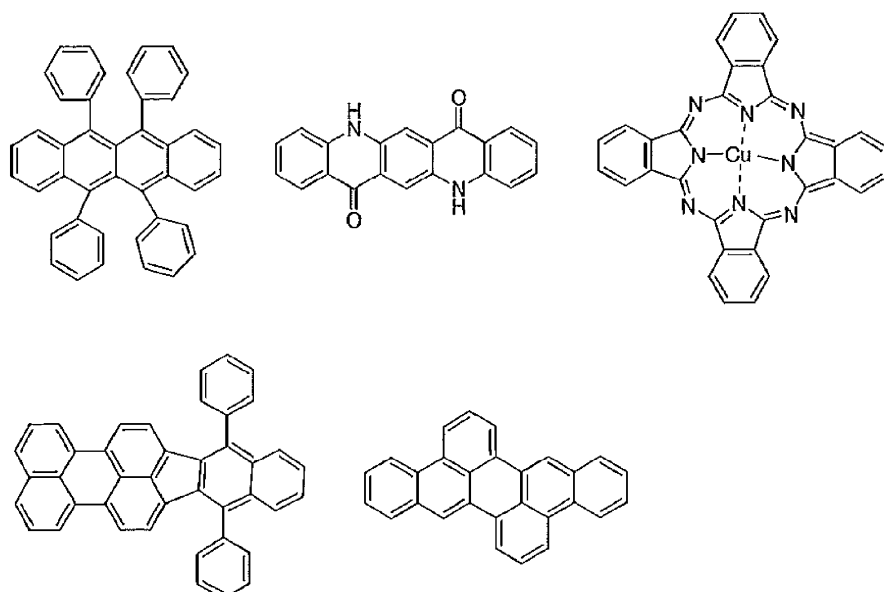
【 0 0 8 2】

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。

40

【 0 0 8 3】

【化 4 2】



10

【 0 0 8 4 】

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。

20

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。

【 0 0 8 5 】

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 E L ディスプレイ」(オーム社)を参照することができる。また、特に本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、需要が大きい有機エレクトロルミネッセンス照明やバックライトに応用することもできる。

30

【実施例】

40

【 0 0 8 6 】

以下に合成例および実施例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。以下に示す材料、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。なお、発光特性の評価は、ソースメータ(ケースレー社製: 2400 シリーズ)、半導体パラメータ・アナライザ(アジレント・テクノロジー社製: E5273A)、光パワーメータ測定装置(ニューポート社製: 1930C)、光学分光器(オーシャン光学社製: USB2000)、分光放射計(トプコン社製: SR-3)およびストリークカメラ(浜松ホトニクス(株)製 C4334 型)を用いて行った。

【 0 0 8 7 】

50

また、各材料の一重項エネルギー (E_{S1}) と三重項エネルギー (E_{T1}) の差 (ΔE_{ST}) は、一重項エネルギー (E_{S1}) と三重項エネルギーを以下の方法で算出し、 $\Delta E_{ST} = E_{S1} - E_{T1}$ により求めた。

(1) 一重項エネルギー E_{S1}

測定対象化合物と mCBP 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 100 nm の試料を作製した。常温 (300 K) 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 λ_{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_{S1} とした。

$$\text{換算式: } E_{S1} [\text{eV}] = 1239.85 / \lambda_{edge}$$

蛍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、MNL 200) を検出器には、ストリークカメラ (浜松ホトニクス社製、C4334) を用いた。

(2) 三重項エネルギー E_{T1}

一重項エネルギー E_{S1} と同じ試料を 5 [K] に冷却し、励起光 (337 nm) 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 λ_{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_{T1} とした。

$$\text{換算式: } E_{T1} [\text{eV}] = 1239.85 / \lambda_{edge}$$

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。

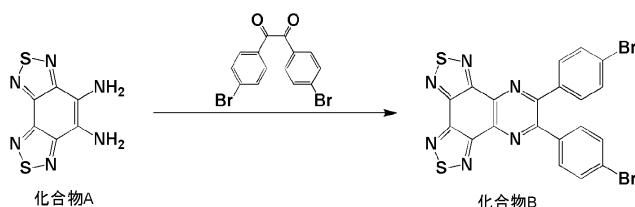
なお、スペクトルの最大ピーク強度の 10 % 以下のピーク強度をもつ極大点は、上述の最も短波長側の極大値には含めず、最も短波長側の極大値に最も近い、傾きの値が極大値をとる点において引いた接線を当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とした。

【0088】

[合成例 1] 例示化合物 (1) の合成

(1) 化合物 B の合成工程

【化 43】



化合物 A (4,5-Diamino-bisbenzo [1,2,5]thiadiazole) は、既知の方法 (A. P. Komin, M. Carmack, J. Heterocyclic Chem. 1975, 12, 829-833) で合成した。

化合物 A (1.00 g, 4.46 mmol) と 4,4'-Dibromobenzil (2.13 g, 5.79 mmol, 1.3 eq) と $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H}$ (120 mL) を窒素置換した 500 mL 三口フラスコに加え、60 時間加熱還流を行った。反応終了後、反応液から溶媒を減圧除去し、得られた固体をカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフィーによる精製は、塩化メチレン：ヘキサン = 1 : 2 の混合溶媒を展開溶媒に用いて 4-4'

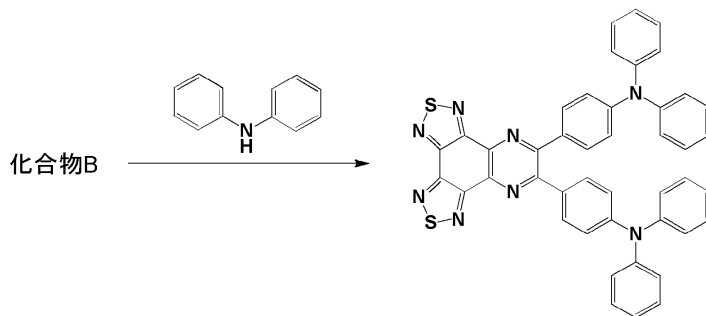
-Dibromobenzilを十分に溶出させた後、塩化メチレンのみを展開溶媒に用いて化合物Bを溶出させることで行った。以上の工程により、化合物Bを収量663mg、収率26%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , 400 MHz) δ 7.59 (d, $J = 8.53 \text{ Hz}$, 4H), 7.56 (d, $J = 8.53 \text{ Hz}$, 4H).

【0089】

(2) 例示化合物(1)の合成工程

【化44】



例示化合物(1)

$\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ (Tris(dibenzylidenacetone)dipalladium(o)) (500mg, 0.54mmol, 0.10eq)を窒素置換した1L三口フラスコに加えた。一方、化合物B (3.00g, 5.39mmol)、Diphenylamine (4.55g, 26.9mmol, 5.0eq)、 $\text{Na}(\text{OtBu})$ (Sodium tert-butoxide) (7.76g, 80.8mmol, 15eq)およびトルエン350mLを別の容器に加えて均一な溶液に調製し、この溶液を1L三口フラスコの中に加えた。この混合物に、 $\text{P}(\text{t-Bu})_3$ (Tri-tert-butylphosphine)のトルエン溶液 (1.0mol/L)を0.54mL (0.54mmol, 0.10eq)加えた後、40℃に昇温して2時間加熱撹拌を行った。反応終了後、反応溶液を1L分液ロートに移し、水250mLと塩化メチレン300mLを加えて撹拌した後、有機層を回収した。水層を塩化メチレン200mLで7回洗浄した後、洗浄液と有機層をひとつに合わせて硫酸マグネシウムで脱水し、減圧濃縮した。得られた固体をカラムクロマトグラフィーで精製した。カラムクロマトグラフィーによる精製は、塩化メチレン：ヘキサン = 1：4の混合溶媒を展開溶媒に用いて過剰のDiphenylamineを十分に溶出させた後、塩化メチレンのみを展開溶媒に用いて例示化合物(1)を溶出させることで行った。溶出した粗例示化合物(1)を、沸騰させたテトラヒドロフランとエタノールの混合溶媒に溶かした後、室温まで冷却することにより例示化合物(1)を析出させた。以上の工程により、例示化合物(1)を収量1.66g、収率42%で得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , 400 MHz) δ 7.65 (d, $J = 8.28 \text{ Hz}$, 4H), 7.30 (t, $J = 7.80 \text{ Hz}$, 8H), 7.15 (d, $J = 7.80 \text{ Hz}$, 8H), 7.10 (t, $J = 7.53 \text{ Hz}$, 4H), 7.05 (d, $J = 8.28 \text{ Hz}$, 4H).

UV吸収 (塩化メチレン) : 441nm ($\epsilon = 1.9 \times 10^4$)

UV蛍光 (塩化メチレン) : 578nm

【0090】

(合成例2) 例示化合物(2)の合成

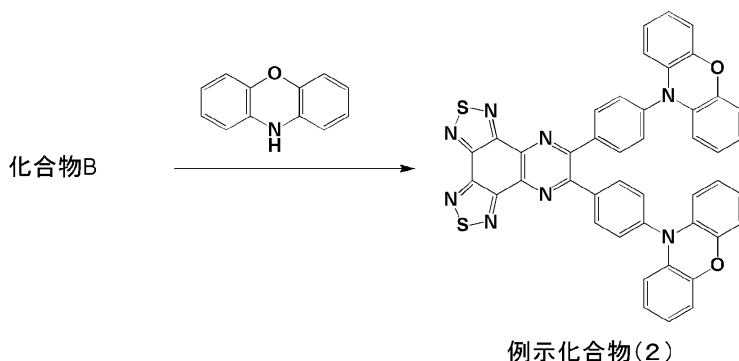
10

20

30

40

【化 4 5】



10

$\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ (449 mg, 0.49 mmol, 0.10 eq) を窒素置換した 1 L 三口フラスコに加えた。一方、化合物 B (2.72 g, 4.89 mmol)、Phenoxazine (1.97 g, 10.8 mmol, 2.2 eq)、 $\text{Na}(\text{OtBu})$ (1.12 g, 11.7 mmol, 2.4 eq)、トルエン 300 mL を別の容器に加えて均一な溶液に調製し、この溶液を 1 L 三口フラスコの中に加えた。この混合物に、 $\text{P}(\text{t-Bu})_3$ のトルエン溶液 (1.0 mol/L) を 0.98 mL (0.98 mmol, 0.20 eq) 加えた後、90 に昇温して 18 時間加熱撹拌を行った。反応終了後、反応溶液を 1 L 分液ロートに移し、水 300 mL と塩化メチレン 300 mL を加えて撹拌した後、有機層を回収した。水層を塩化メチレン 200 mL で 4 回洗浄した後、洗浄液と有機層をひとつにあわせて硫酸ナトリウムで脱水し、減圧濃縮した。得られた固体をカラムクロマトグラフィーで精製した。カラムクロマトグラフィーによる精製は、酢酸エチル：ヘキサン = 1 : 2 の混合溶媒を展開溶媒に用いて過剰の Phenoxazine を十分に溶出させた後、塩化メチレンのみを展開溶媒に用いて例示化合物 (2) を溶出させることで行った。以上の工程により、例示化合物 (2) を収量 1.61 g、収率 43 % で得た。

20

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , 400 MHz) δ 7.96 (d, $J = 8.53 \text{ Hz}$, 4H), 7.46 (d, $J = 8.53 \text{ Hz}$, 4H), 6.71 (dd, $J = 7.80 \text{ Hz}$, $J = 1.46 \text{ Hz}$, 4H), 6.66 (td, $J = 7.80 \text{ Hz}$, $J = 1.22 \text{ Hz}$, 4H), 6.56 (td, $J = 7.80 \text{ Hz}$, $J = 1.46 \text{ Hz}$, 4H), 5.98 (dd, $J = 7.80 \text{ Hz}$, $J = 1.22 \text{ Hz}$, 4H)。

30

UV 吸収 (トルエン) : 430 nm ($\epsilon = 5.6 \times 10^3$)

UV 蛍光 (トルエン) : 573 nm

【0091】

(実施例 1) 例示化合物 (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例示化合物 (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 $3 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 以下の条件にて例示化合物 (1) と CBP とを異なる蒸着源から蒸着し、例示化合物 (1) の濃度が 6.0 重量 % である薄膜を 100 nm の厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

これらの例示化合物 (1) を用いたサンプルについて、330 nm 励起光による発光スペクトルと吸収スペクトルを測定した。例示化合物 (1) のトルエン溶液の発光吸収スペクトルを図 2 に示し、例示化合物 (1) と CBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の発光吸収スペクトルを図 3 に示す。例示化合物 (1) のトルエン溶液の発光波長 λ_{max} は 515 nm であり、フォトルミネッセンス量子効率は、バブリングなしの場合で 12.9 %、窒素バブリングした場合で 19.5 % であった。例示化合物 (1) と CBP の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子の発光波長 λ_{max} は 521 nm であり、フォトルミネッセンス量子効率は、大気下で 20.5 %、窒素気流下で 38.1 % であった。

40

例示化合物 (1) と CBP 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過渡減衰曲線を測定した結果を図 4 に示す。この過渡減衰曲線は、化合物に励起光を当てて発

50

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。本実施例の過渡減衰曲線では、観測初期にこのような直線的成分（蛍光）が観測されているが、数 μ 秒以降には直線性から外れる成分が現れている。これは遅延成分の発光であり、初期の成分と加算される信号は、長時間側に裾をひくゆるい曲線になる。このように発光寿命を測定することによって、例示化合物（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。

例示化合物（１）の分子軌道法計算（Gaussian09使用、PBE0/6-31(d)およびTD-PBE0/6-31(d)条件）によると、基底状態の安定構造で計算した励起一重項状態（ S_1 ）と励起三重項状態（ T_1 ）でのエネルギー差 ΔE_{st} 値は0.437 eVであり、 $S_0 \rightarrow S_1$ 遷移についての頻度因子 f 値は0.09であった。 ΔE_{st} 値は熱活性化の起き易さの尺度として用い、この値が小さいほど熱活性化遅延蛍光がおきやすい可能性があると考えた。また f 値は、 S_0 （基底状態）から S_1 （励起一重項状態）への遷移の起きやすさであるが、今回の計算では発光の起き易さ（蛍光強度）の尺度として f 値を用い、この値が大きいほど強い蛍光を示す可能性があると考えた。

【0092】

（実施例２） 例示化合物（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

例示化合物（１）のかわりに例示化合物（２）を用いること以外は、実施例１と同様にして例示化合物（２）のトルエン溶液を調製した。また、例示化合物（１）のかわりに例示化合物（２）を用い、CBPのかわりにmCBPを用いること以外は、実施例１と同様にして例示化合物（２）とmCBP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。

例示化合物（２）のトルエン溶液について、430 nm励起光による発光スペクトルと吸収スペクトルを測定した結果を図５に示し、例示化合物（２）とmCBP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、342 nm励起光による発光スペクトルと吸収スペクトルを測定した結果を図６に示す。例示化合物（２）のトルエン溶液の発光波長 λ_{max} は634 nmであり、フォトルミネッセンス量子効率、バブリングなしの場合で6.1%、窒素バブリングした場合で12.5%であった。また、例示化合物（２）とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子発光波長 λ_{max} は585 nmであり、フォトルミネッセンス量子効率は、大気下で56.0%、窒素気流下で62.8%であった。

また、例示化合物（２）のトルエン溶液について、405 nm励起光による過渡減衰曲線を測定した結果を図７に示し、例示化合物（２）とmCBP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、340 nm励起光による過渡減衰曲線を図８に示す。図７および図８を見ると、いずれのサンプルも、窒素存在下の方が大気下よりも過渡減衰曲線が後方にシフトしている。これは大気下では励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差が阻害されている一方、窒素存在下では、この逆項間交差が生じているからと推測される。このことから、例示化合物（２）のトルエン溶液、例示化合物２とmCBPの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子が遅延蛍光を放射するものであることを確認することができた。また、例示化合物（２）の分子軌道法計算（実施例１参照）によると、励起一重項状態と励起三重項状態でのエネルギー差 ΔE_{st} 値は0.0567 eVであり、 f 値は0.0339であった。 ΔE_{st} 値は例示化合物（１）より小さい値を示し、これは熱活性化遅延蛍光には有利であることを期待させたが、 f 値は例示化合物（１）より小さいので結果はどうなるか興味が持たれた。実際には化合物（２）は強い遅延蛍光を示したので ΔE_{st} 値が小さいことが強い熱活性化遅延蛍光を発現するのに重要であることがわかった。

【0093】

（実施例３） 例示化合物（２）を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

10

20

30

40

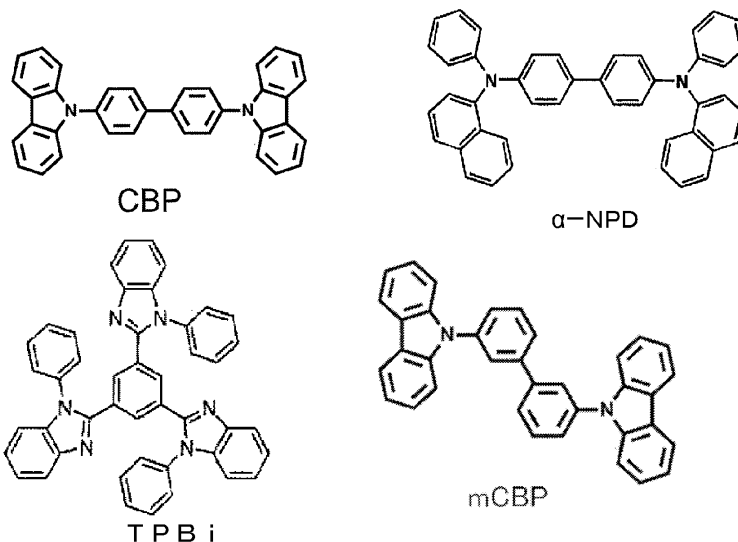
50

膜厚 100 nm のインジウム・スズ酸化物 (ITO) からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度 3×10^{-4} Pa で積層した。まず、ITO 上に α -NPD を 35 nm の厚さに形成した。次に、例示化合物 (2) と mCBP を異なる蒸着源から共蒸着し、15 nm の厚さの層を形成して発光層とした。この時、例示化合物 (2) の濃度は 6.0 重量% とした。次に、TPBi を 65 nm の厚さに形成し、さらにフッ化リチウム (LiF) を 0.8 nm 真空蒸着し、次いでアルミニウム (Al) を 100 nm の厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

製造した有機エレクトロルミネッセンス素子について、 $1\text{ mA} / \text{cm}^2$ 、 $10\text{ mA} / \text{cm}^2$ 、 $100\text{ mA} / \text{cm}^2$ で測定した発光スペクトルを図9に示し、電圧 - 電流密度特性を図10に示す。また、電流密度 - 外部量子効率特性を図11に示し、電流密度 - 電力効率特性を図12に示し、電流密度 - 電流効率特性を図13に示す。例示化合物(2)を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は、 $0.07\text{ mA} / \text{cm}^2$ での外部量子効率が9.14%であり、高い発光効率を得ることができた。仮に発光量子効率が100%の蛍光材料を用いてバランスの取れた理想的な有機エレクトロルミネッセンス素子を試作したとすると、光取り出し効率が20~30%であれば、蛍光発光の外部量子効率は5~7.5%となる。この値が一般に、蛍光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。例示化合物(2)を用いた本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、理論限界値を超える高い外部量子効率を実現している点で極めて優れている。本実施例の有機エレクトロルミネッセンス素子は、 $0.003\text{ mA} / \text{cm}^2$ での電力効率が10.01m/Wであり、 $0.008\text{ mA} / \text{cm}^2$ での電流効率が10.1cd/Aであり、高い電力効率と高い電流効率を得ることができた。

【 0 0 9 4 】

【化 4 6】



【産業上の利用可能性】

【 0 0 9 5 】

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。

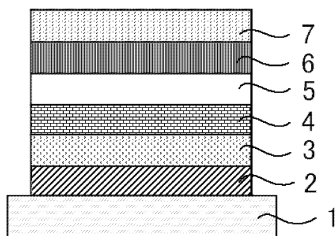
【符号の説明】

【 0 0 9 6 】

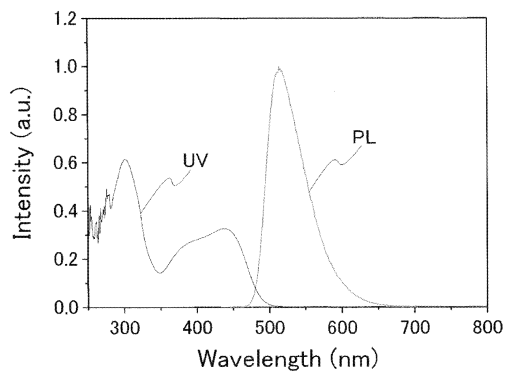
- 1 基板
2 陽極

- 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

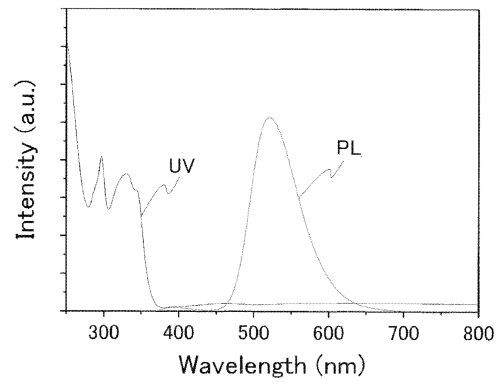
【図 1】



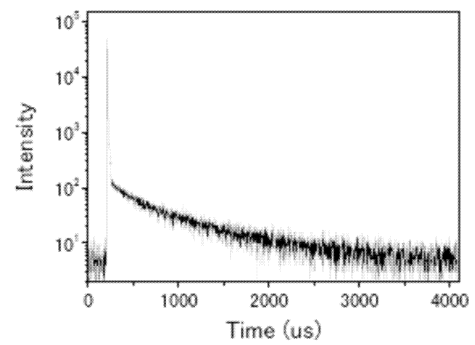
【図 2】



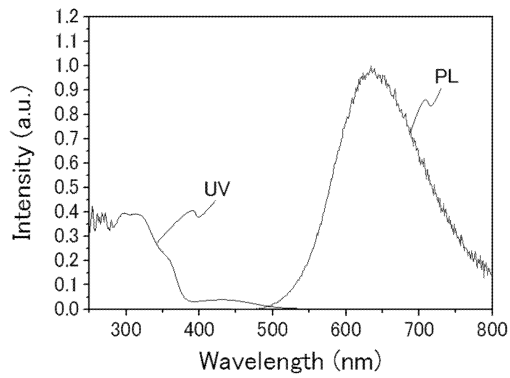
【図 3】



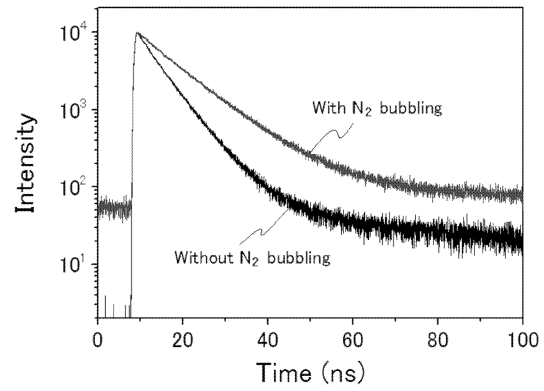
【図 4】



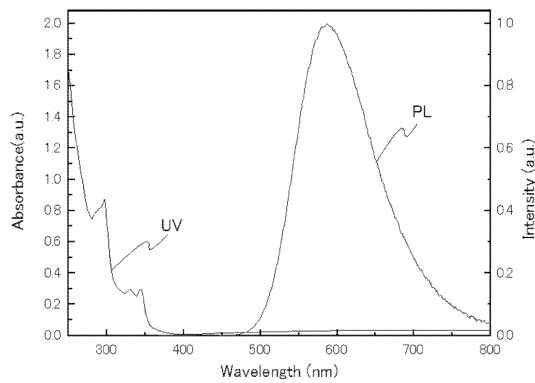
【図 5】



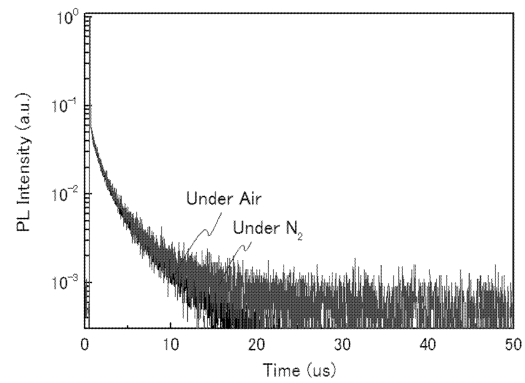
【図 7】



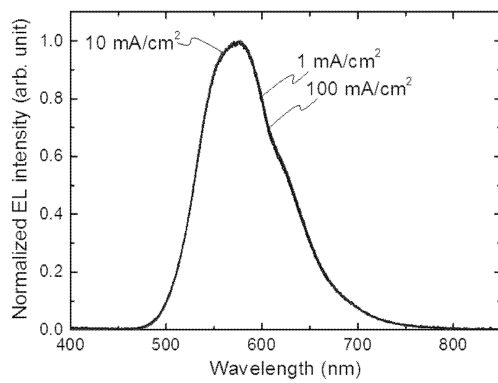
【図 6】



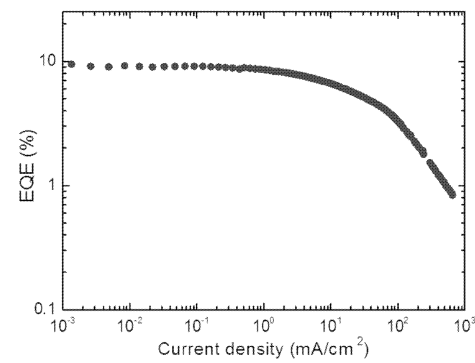
【図 8】



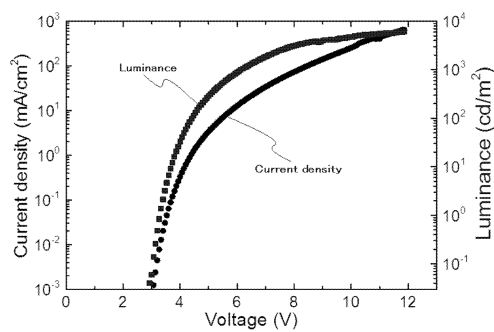
【図 9】



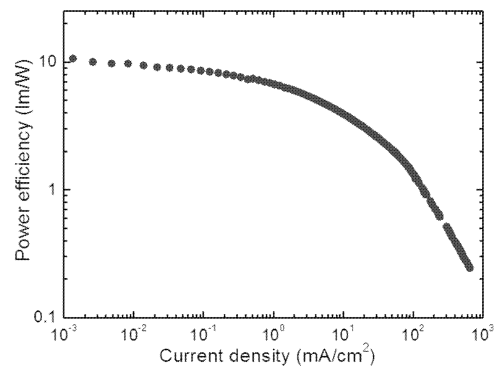
【図 11】



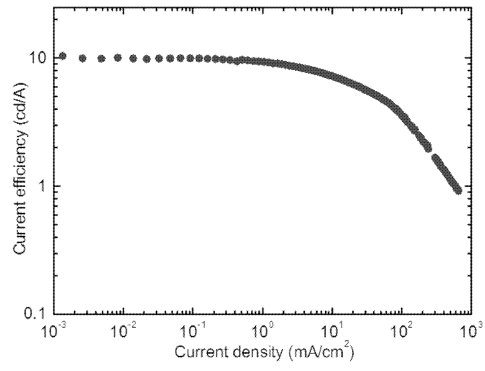
【図 10】



【図 12】



【図 13】



フロントページの続き

審査官 安川 聡

(56)参考文献 特開 2 0 1 4 - 0 0 9 2 2 4 (J P , A)

特開 2 0 0 3 - 1 2 3 9 7 9 (J P , A)

T. Ishi-i, et al., Chemistry Letters, 2 0 1 1 年 1 0 月 1 5 日, Vol. 40, Pages 1252-1253

(58)調査した分野(Int.Cl., D B 名)

C 0 9 K 1 1 / 0 6

C 0 7 D 5 1 3 / 1 4

H 0 1 L 5 1 / 5 0

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)

专利名称(译)	发光材料，有机发光元件和化合物		
公开(公告)号	JP6466913B2	公开(公告)日	2019-02-06
申请号	JP2016507491	申请日	2015-03-06
[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		
当前申请(专利权)人(译)	株式会社KYULUX		
[标]发明人	佐藤忠久 リジエ 安達千波矢		
发明人	佐藤 忠久 リ ジエ 安達 千波矢		
IPC分类号	C09K11/06 C07D513/14 H01L51/50		
CPC分类号	C07D513/14 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1033 C09K2211/1081 H01L51/0059 H01L51/0061 H01L51/0071 H01L51/5012 H05B33/14		
FI分类号	C09K11/06.655 C07D513/14.CSP H05B33/14.B		
审查员(译)	安川聡		
优先权	2014047353 2014-03-11 JP		
其他公开文献	JPWO2015137244A1		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

由通式 (1) 表示的化合物可用作发光材料。 R 1 和 R 2 且 R 2 独立地表示取代或未取代的芳基， sup>是被 N， N-二芳基氨基取代的芳基。

(19) 日本国特許庁 (JP)	(12) 特 許 公 報 (B2)	(11) 特許番号 特許第6466913号 (P6466913)
(45) 発行日 平成31年2月6日 (2019. 2. 6)	(24) 登録日 平成31年1月18日 (2019. 1. 18)	
(51) Int. Cl. C09K 11/06 (2006.01) C07D 513/14 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)	F I C09K 11/06 655 C07D 513/14 CSP H05B 33/14 B	
請求項の数 14 (全 54 頁)		
(21) 出願番号 特願2016-507491 (P2016-507491) (86) (22) 出願日 平成27年3月6日 (2015. 3. 6) (86) 国際出願番号 PCT/JP2015/056622 (87) 国際公開番号 W02015/137244 (87) 国際公開日 平成27年9月17日 (2015. 9. 17) (87) 審査請求日 平成29年11月24日 (2017. 11. 24) (31) 優先権主張番号 特願2014-47353 (P2014-47353) (32) 優先日 平成26年3月11日 (2014. 3. 11) (33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(73) 特許権者 516003621 株式会社 Ky u l u x 福岡県福岡市西区九大新町 4 番地 1 110000109 (74) 代理人 特許業務法人特許事務所サイクス (72) 発明者 佐藤 忠久 新潟県長岡市上富岡町 1 G O 3 - 1 国立 大学法人民間技術科学大学内 (72) 発明者 リ ジエ 福岡県福岡市東区箱崎六丁目 1 O 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 O 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		