

(19) 日本国特許庁 (JP)

再 公 表 特 許 (A1)

(11) 国際公開番号

W02015/072537

発行日 平成29年3月16日 (2017.3.16)

(43) 国際公開日 平成27年5月21日 (2015.5.21)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06	3K107
C07F 5/02 (2006.01)	C09K 11/06 660	4H048
H01L 51/50 (2006.01)	C07F 5/02 CSPA	
	C07F 5/02 F	
	H05B 33/14 B	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 95 頁)		

出願番号	特願2015-547802 (P2015-547802)	(71) 出願人	516003621
(21) 国際出願番号	PCT/JP2014/080162		株式会社 K y u l u x
(22) 国際出願日	平成26年11月14日 (2014.11.14)		福岡県福岡市西区九大新町4番地1
(31) 優先権主張番号	特願2013-237824 (P2013-237824)	(74) 代理人	110000109
(32) 優先日	平成25年11月18日 (2013.11.18)		特許業務法人特許事務所サイクス
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	沼田 真樹
			福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号
			国立大学法人九州大学内
		(72) 発明者	安田 琢磨
			福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号
			国立大学法人九州大学内
		(72) 発明者	安達 千波矢
			福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号
			国立大学法人九州大学内

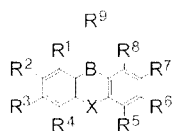
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光材料、有機発光素子および化合物

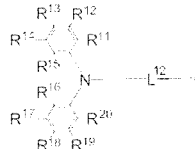
(57) 【要約】

下記一般式(1)で表される化合物は発光材料として有用である。R¹~R⁸は水素原子または置換基、R⁹は置換基を表すが、R¹~R⁸の少なくとも1つは下記一般式(2)等で表される基である。L¹²は単結合または二価の連結基を表し、*は一般式(1)におけるベンゼン環への結合部位を表す。R¹¹~R²⁰は水素原子または置換基を表す。

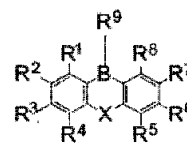
一般式(1)



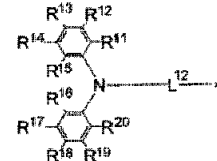
一般式(2)



(1)



(2)



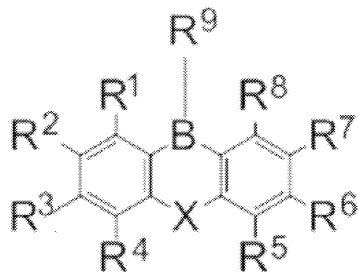
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式（１）で表される化合物からなる発光材料。

【化 1】

一般式（１）



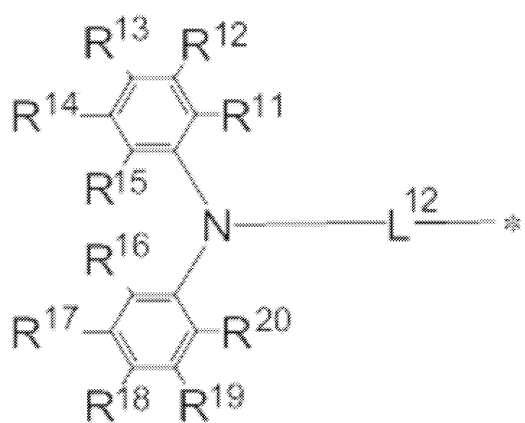
10

[一般式（１）において、Xは酸素原子または硫黄原子を表す。R¹～R⁸は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R¹～R⁸の少なくとも１つは、各々独立に下記一般式（２）～（７）のいずれかで表される基である。R¹とR²、R²とR³、R³とR⁴、R⁵とR⁶、R⁶とR⁷、R⁷とR⁸、R⁸とR⁹、R⁹とR¹は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。R⁹は置換基を表す。R⁹がホウ素原子と単結合を形成していない孤立電子対を有する原子を含むとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。]

20

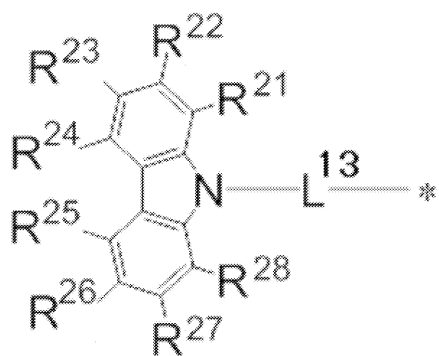
【化 2 - 1】

一般式 (2)



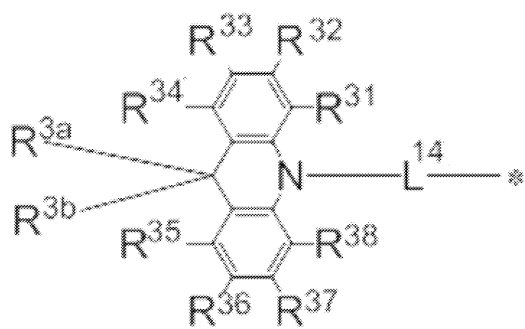
10

一般式 (3)



20

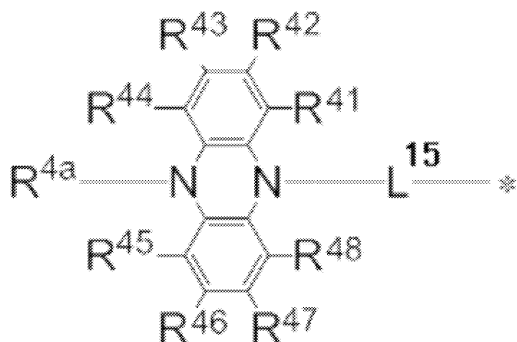
一般式 (4)



30

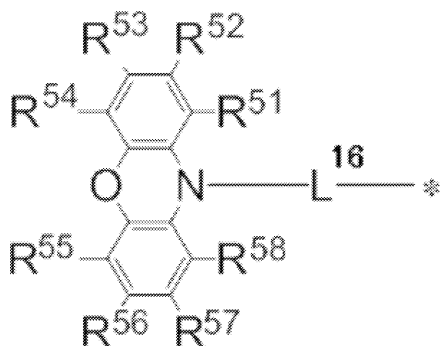
【化 2 - 2】

一般式 (5)



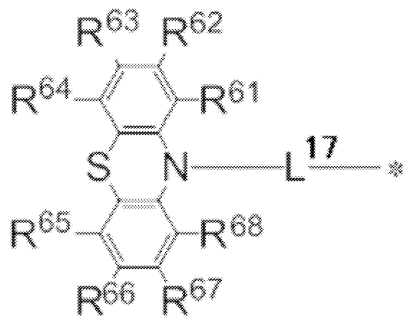
10

一般式 (6)



20

一般式 (7)



30

[一般式 (2) ~ (7) において、 $L^{12} \sim L^{17}$ は各々独立に単結合または二価の連結基を表し、* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 R^{3a} 、 R^{3b} 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 R^{4a} 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} 、 R^{16} と R^{17} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} 、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{3a} と R^{3b} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{65} と R^{66} 、 R^{66} と R^{67} 、 R^{67} と R^{68} はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

【請求項 2】

一般式 (1) の $R^1 \sim R^8$ の少なくとも 1 つが前記一般式 (3) ~ (7) のいずれかで表

50

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。

【請求項 3】

一般式 (1) の $R^1 \sim R^8$ の少なくとも 1 つが前記一般式 (3) で表される基である場合に、前記一般式 (3) の $R^{21} \sim R^{28}$ のうち少なくとも 1 つは置換基であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の発光材料。

【請求項 4】

一般式 (1) の R^2 、 R^3 、 R^6 、および R^7 の少なくとも 1 つが前記一般式 (2) ~ (7) のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 5】

一般式 (1) の R^3 および R^6 の少なくとも 1 つが前記一般式 (2) ~ (7) のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項 4 に記載の発光材料。

【請求項 6】

一般式 (1) の R^3 と R^6 が、各々独立に前記一般式 (2) ~ (7) のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項 5 に記載の発光材料。

【請求項 7】

前記一般式 (2) の $R^{11} \sim R^{20}$ の少なくとも 1 つ、前記一般式 (3) の $R^{21} \sim R^{28}$ の少なくとも 1 つ、前記一般式 (4) の $R^{31} \sim R^{38}$ の少なくとも 1 つと、 R^{3a} および R^{3b} の少なくとも 1 つ、前記一般式 (5) の $R^{41} \sim R^{48}$ の少なくとも 1 つ、前記一般式 (6) の $R^{51} \sim R^{58}$ の少なくとも 1 つ、および前記一般式 (7) の $R^{61} \sim R^{68}$ の少なくとも 1 つが置換基であることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 8】

前記一般式 (2) の R^{13} および R^{18} の少なくとも一方、前記一般式 (3) の R^{23} および R^{26} の少なくとも一方、前記一般式 (4) の R^{33} および R^{36} の少なくとも一方と、 R^{3a} および R^{3b} の少なくとも一方、前記一般式 (5) の R^{43} および R^{46} の少なくとも一方、前記一般式 (6) の R^{53} および R^{56} の少なくとも一方、並びに前記一般式 (7) の R^{63} および R^{66} の少なくとも一方が置換基であることを特徴とする請求項 7 に記載の発光材料。

【請求項 9】

前記一般式 (2) の R^{13} および R^{18} の少なくとも一方、前記一般式 (3) の R^{23} および R^{26} の少なくとも一方、前記一般式 (4) の R^{33} および R^{36} の少なくとも一方と、 R^{3a} および R^{3b} の少なくとも一方、前記一般式 (5) の R^{43} および R^{46} の少なくとも一方、前記一般式 (6) の R^{53} および R^{56} の少なくとも一方、並びに前記一般式 (7) の R^{63} および R^{66} の少なくとも一方が、前記一般式 (2) ~ (7) のいずれかで表される基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】

前記一般式 (2) ~ (7) の $L^{12} \sim L^{17}$ が、単結合であることを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 11】

一般式 (1) の X が、酸素原子であることを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 12】

一般式 (1) の R^9 が、下記一般式 (a) で表される基であることを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

10

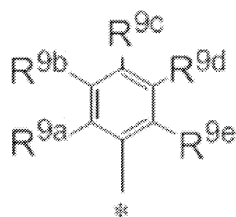
20

30

40

【化 3】

一般式 (a)



10

[式 (a) において、* は前記一般式 (1) におけるホウ素原子への結合部位を表す。R^{9a}、R^{9b}、R^{9c}、R^{9d}、R^{9e} は、各々独立に水素原子または置換基を表す。R^{9a} と R^{9b}、R^{9b} と R^{9c}、R^{9c} と R^{9d}、R^{9d} と R^{9e} はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

【請求項 13】

前記一般式 (a) の R^{9a} と R^{9e} が置換基であることを特徴とする請求項 12 に記載の発光材料。

【請求項 14】

一般式 (1) の R¹ ~ R⁸ の少なくとも 1 つが前記一般式 (4) で表される基であることを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

20

【請求項 15】

一般式 (1) の R³ と R⁶、または R² と R⁷ が、前記一般式 (4) で表される基であることを特徴とする請求項 1 ~ 4、7 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 16】

前記一般式 (4) の R^{3a} と R^{3b} が、置換基であることを特徴とする請求項 14 または 15 に記載の発光材料。

【請求項 17】

前記置換基が、炭素数 1 ~ 15 のアルキル基またはフェニル基であることを特徴とする請求項 14 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 18】

前記一般式 (4) の R^{3a} と R^{3b} が互いに結合して環状構造を形成していることを特徴とする請求項 14 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

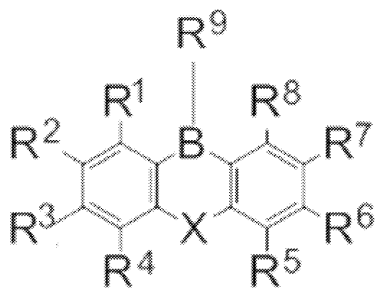
30

【請求項 19】

下記一般式 (1) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

【化 4】

一般式 (1)



40

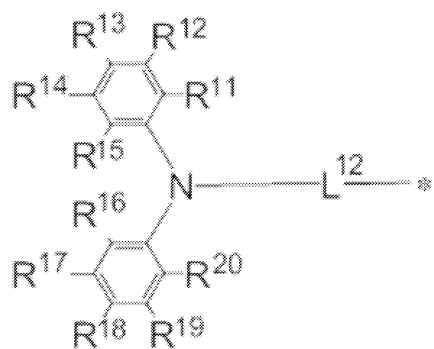
[一般式 (1) において、X は酸素原子または硫黄原子を表す。R¹ ~ R⁸ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R¹ ~ R⁸ の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 (2) ~ (7) のいずれかで表される基である。R¹ と R²、R² と R³、R³ と R⁴、R⁵ と R⁶、R⁶ と R⁷、R⁷ と R⁸、R⁸ と R⁹、R⁹ と R¹ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。R⁹ は置換基を表す。R⁹ がホウ素原子と単結合を形成していない孤立電子対

50

を有する原子を含むとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。]

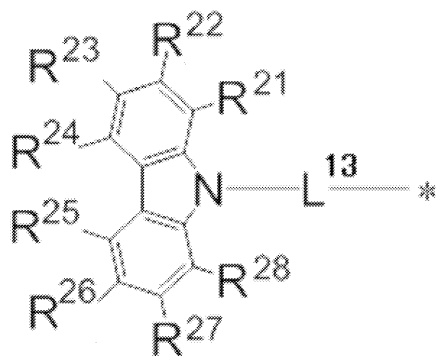
【化 5 - 1】

一般式（2）



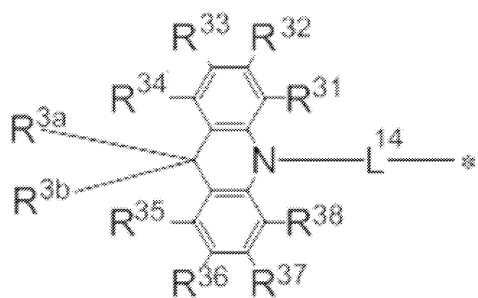
10

一般式（3）



20

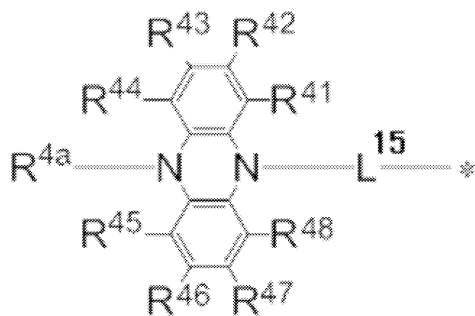
一般式（4）



30

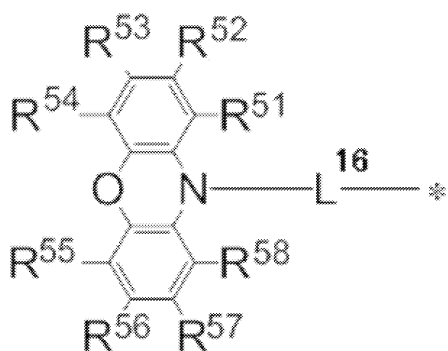
【化 5 - 2】

一般式 (5)



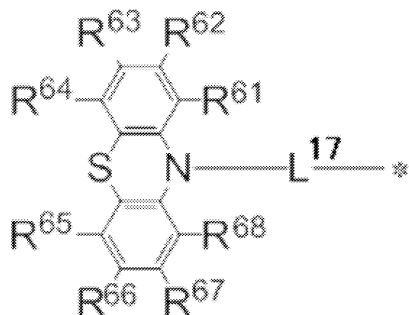
10

一般式 (6)



20

一般式 (7)



30

[一般式 (2) ~ (7) において、 $L^{12} \sim L^{17}$ は単結合または二価の連結基を表し、* は一般式 (1) におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 R^{3a} 、 R^{3b} 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 R^{4a} 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} 、 R^{16} と R^{17} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} 、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{3a} と R^{3b} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{65} と R^{66} 、 R^{66} と R^{67} 、 R^{67} と R^{68} はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

【請求項 20】

請求項 1 ~ 18 のいずれか 1 項に記載の発光材料を含むことを特徴とする有機発光素子

50

【請求項 21】

遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項 20 に記載の有機発光素子。

【請求項 22】

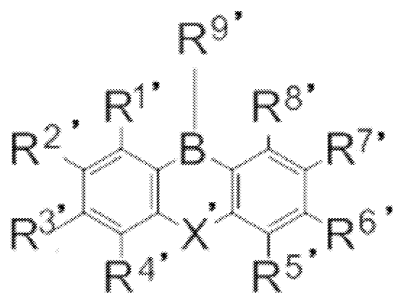
有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする請求項 20 または 21 に記載の有機発光素子。

【請求項 23】

下記一般式 (1') で表される化合物。

【化 6】

一般式 (1')



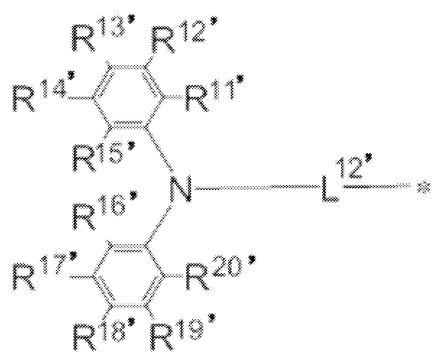
10

[一般式 (1') において、X' は酸素原子または硫黄原子を表す。R^{1'} ~ R^{8'} は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R^{1'} ~ R^{8'} の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 (2') ~ (7') のいずれかで表される基である。R^{1'} と R^{2'}、R^{2'} と R^{3'}、R^{3'} と R^{4'}、R^{5'} と R^{6'}、R^{6'} と R^{7'}、R^{7'} と R^{8'}、R^{8'} と R^{9'}、R^{9'} と R^{1'} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。R^{9'} は置換基を表す。R^{9'} がホウ素原子と単結合を形成していない孤立電子対を有する原子を含むとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。]

20

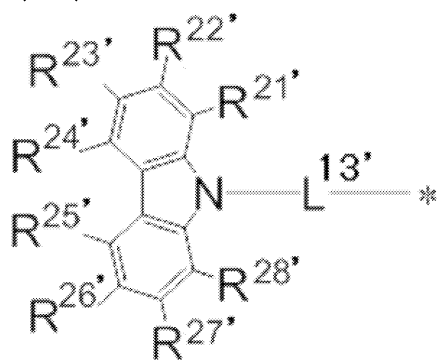
【化 7 - 1】

一般式 (2')



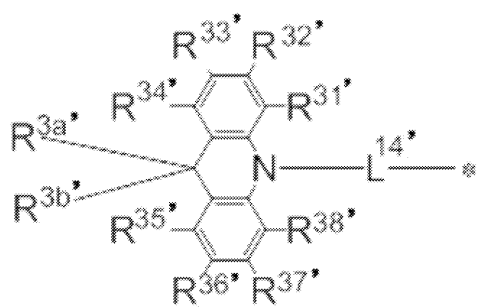
10

一般式 (3')



20

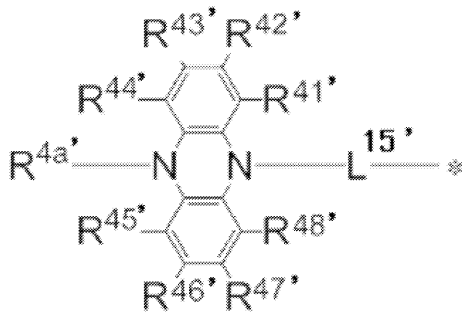
一般式 (4')



30

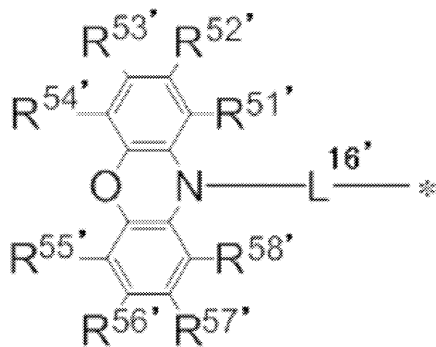
【化 7 - 2】

一般式 (5')



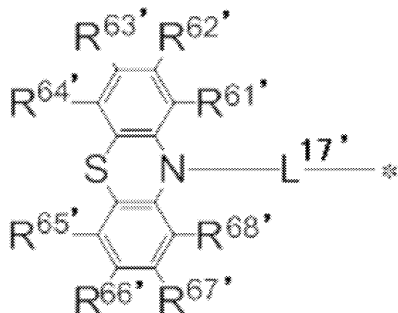
10

一般式 (6')



20

一般式 (7')



30

[一般式 (2') ~ (7') において、 $L^{12'}$ ~ $L^{17'}$ は各々独立に単結合または二価の連結基を表し、* は一般式 (1') におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11'}$ ~ $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ ~ $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ ~ $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ ~ $R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$ ~ $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ ~ $R^{68'}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$ と $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$ と $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$ と $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$ と $R^{15'}$ 、 $R^{16'}$ と $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$ と $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$ と $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$ と $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ と $R^{22'}$ 、 $R^{22'}$ と $R^{23'}$ 、 $R^{23'}$ と $R^{24'}$ 、 $R^{24'}$ と $R^{25'}$ 、 $R^{25'}$ と $R^{26'}$ 、 $R^{26'}$ と $R^{27'}$ 、 $R^{27'}$ と $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ と $R^{32'}$ 、 $R^{32'}$ と $R^{33'}$ 、 $R^{33'}$ と $R^{34'}$ 、 $R^{35'}$ と $R^{36'}$ 、 $R^{36'}$ と $R^{37'}$ 、 $R^{37'}$ と $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ と $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ と $R^{42'}$ 、 $R^{42'}$ と $R^{43'}$ 、 $R^{43'}$ と $R^{44'}$ 、 $R^{45'}$ と $R^{46'}$ 、 $R^{46'}$ と $R^{47'}$ 、 $R^{47'}$ と $R^{48'}$ 、 $R^{51'}$ と $R^{52'}$ 、 $R^{52'}$ と $R^{53'}$ 、 $R^{53'}$ と $R^{54'}$ 、 $R^{55'}$ と $R^{56'}$ 、 $R^{56'}$ と $R^{57'}$ 、 $R^{57'}$ と $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ と $R^{62'}$ 、 $R^{62'}$ と $R^{63'}$ 、 $R^{63'}$ と $R^{64'}$ 、 $R^{65'}$ と $R^{66'}$ 、 $R^{66'}$ と $R^{67'}$ 、 $R^{67'}$ と $R^{68'}$ はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

50

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。

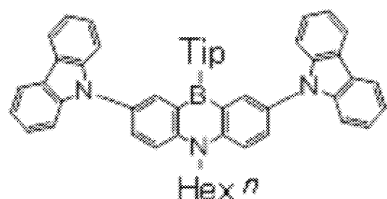
【 0 0 0 2 】

10

非特許文献 1 には、ホウ素原子と窒素原子を含むヘテロポリン環を有する化合物について発光特性を検討した結果が記載されている。それによると、下記の構造を有する化合物のシクロヘキサン溶液または固体膜に励起光を照射したところ可視領域に発光が認められたことが記載されている（ Hex^n は n - ヘキシル基を表し、 Tip は 2, 4, 6 - トリイソプロピルフェニル基を表す）。

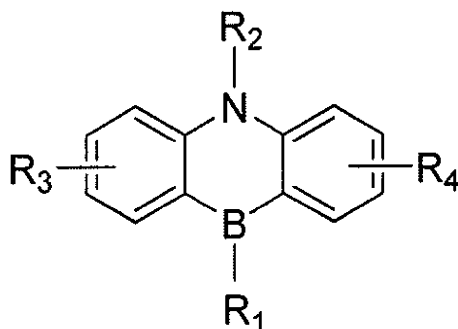
しかしながら、非特許文献 1 には、ヘテラポリン環のヘテロ原子を、酸素原子や硫黄原子などの窒素原子以外のヘテロ原子に変えた化合物については記載されていない。

20



また、特許文献 1 には、下記一般式で表されるヘテラポリン環を有する三環構造の化合物が開示されている。下記一般式における R_1 は 2 以上のアリール基またはヘテロアリール基を含む基であり、 R_3 、 R_4 は 1 ~ 5 つの置換基を表し、 $R_2 \sim R_4$ は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、ヘテロアリール基を表すものと規定されている。ここでは、下記一般式の R_1 が 2, 4, 6 - トリフェニルフェニル基、 R_2 がフェニル基、 R_3 、 R_4 が水素原子である化合物を、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する一対の電極間に存在する発光層の中にホスト材料として用いた例や、電子輸送層の中に用いた例が記載されている。しかしながら、特許文献 1 には、この一般式で表される化合物の発光特性については記載されておらず、ヘテラポリン環のヘテロ原子を、窒素原子以外のヘテロ原子に変えた化合物についても記載されていない。

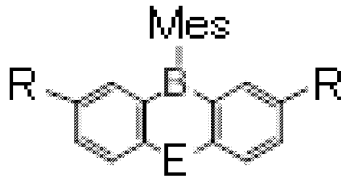
40



50

非特許文献 2 には、ホウ素原子と他のヘテロ原子を含むヘテラボリン環を有する化合物について発光特性を検討した結果が記載され、下記の構造を有する化合物のシクロヘキサン溶液に可視領域の発光が認められたことが記載されている。下記式における R は水素原子またはメチル基を表し、E は N - メチル基または硫黄原子を表し、Mes はメシチル基を表す。しかしながら、非特許文献 1 には、R がカルバゾリル基などの置換アミノ基である化合物については記載されていない。

【化 3】



10

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0006】

【非特許文献 1】Chem. Commun., 2007, 3204-3206

【非特許文献 2】Chem. Eur. J. 2007, 13, 8051-8060

【特許文献】

【0007】

20

【特許文献 1】W O 2 0 1 1 / 1 4 3 5 6 3 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

上記のように、非特許文献 1 には、ホウ素原子と窒素原子を含むヘテラボリン環（アザボリン環）を有する三環構造にカルバゾリル基を導入した化合物が可視領域で発光することが開示されている。しかしながら、本発明者らが、カルバゾリル基やメチル基等で置換したカルバゾリル基を、アザボリン環を有する三環構造に導入した化合物について発光特性を実際に評価したところ、発光特性は十分に満足しうるものではないことが判明した（後掲の比較例 1 ~ 3 参照）。

30

そこで本発明者らは、ヘテラボリン環を有する化合物群について種々の検討を始め、多数の類似骨格の中からホウ素原子と酸素原子または硫黄原子とを含むヘテラボリン環を有する化合物群に発光材料として有用性があることを初めて見出し、さらに検討を進めることにした。上記のように、ホウ素原子と硫黄原子を含むヘテラボリン環を有する三環構造の化合物については、非特許文献 2 に可視領域で発光が認められたことが記載されている。しかしながら、非特許文献 2 には、ヘテラボリン環を有する三環構造にカルバゾール基等の置換アミノ基が結合した化合物については記載されていない。このため、ホウ素原子と酸素原子または硫黄原子を含むヘテラボリン環を有する三環構造にカルバゾリル基等の置換アミノ基が結合した化合物の発光材料としての有用性は予測がつかない。

【0009】

40

このような状況下において本発明者らは、ホウ素原子と酸素原子または硫黄原子を含むヘテラボリン環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】

【0010】

鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、ホウ素原子と酸素原子または硫黄原子を含むヘテラボリン環を有する化合物のうち特定の構造を有するものが発光材料として優れた性質を有することを見出した。また、そのような化合物群の中に、遅延蛍光材料として有用な

50

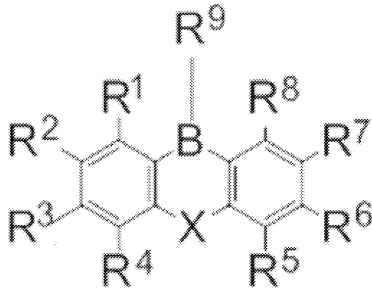
ものがあることを見出し、発光効率が高い有機発光素子を安価に提供しうることを明らかにした。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

【 0 0 1 1 】

[1] 下記一般式 (1) で表される化合物からなる発光材料。

【化 4 】

一般式 (1)



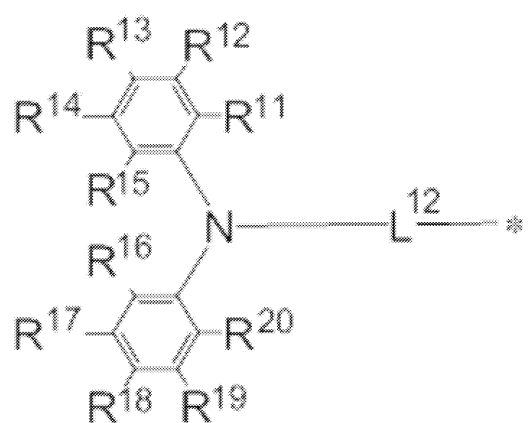
10

[一般式 (1) において、X は酸素原子または硫黄原子を表す。R¹ ~ R⁸ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R¹ ~ R⁸ の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 (2) ~ (7) のいずれかで表される基である。R¹ と R²、R² と R³、R³ と R⁴、R⁵ と R⁶、R⁶ と R⁷、R⁷ と R⁸、R⁸ と R⁹、R⁹ と R¹ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。R⁹ は置換基を表す。R⁹ がホウ素原子と単結合を形成していない孤立電子対を有する原子を含むとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。]

20

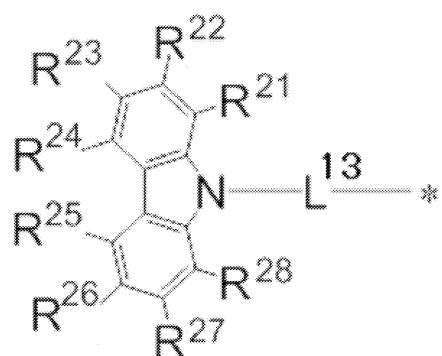
【化 5 - 1】

一般式 (2)



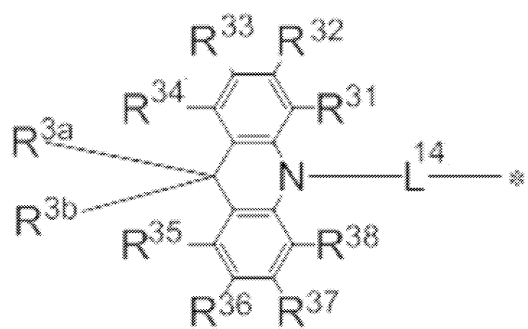
10

一般式 (3)



20

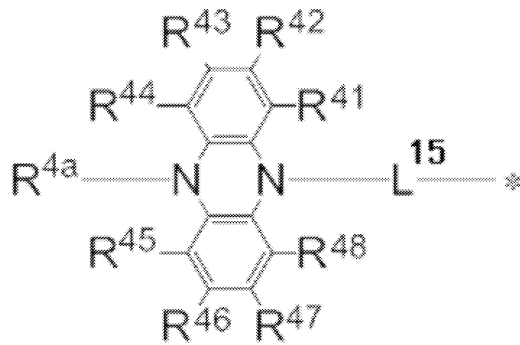
一般式 (4)



30

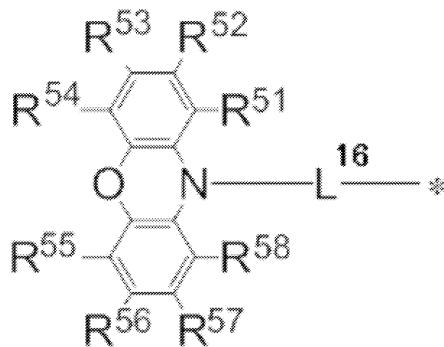
【化 5 - 2】

一般式 (5)



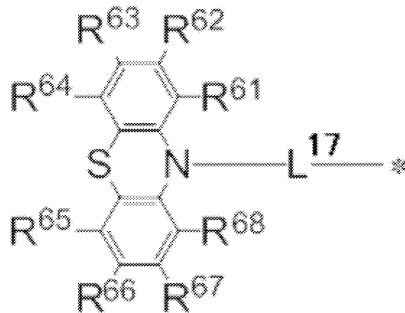
10

一般式 (6)



20

一般式 (7)



30

〔一般式(2)～(7)において、 $L^{12} \sim L^{17}$ は各々独立に単結合または二価の連結基を表し、*は一般式(1)におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11} \sim R^{20}$ 、 $R^{21} \sim R^{28}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、 R^{3a} 、 R^{3b} 、 $R^{41} \sim R^{48}$ 、 R^{4a} 、 $R^{51} \sim R^{58}$ 、 $R^{61} \sim R^{68}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} 、 R^{16} と R^{17} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} 、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{3a} と R^{3b} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{65} と R^{66} 、 R^{66} と R^{67} 、 R^{67} と R^{68} はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。〕

40

〔2〕 一般式(1)の $R^1 \sim R^8$ の少なくとも1つが前記一般式(3)～(7)のいずれかで表される基であることを特徴とする〔1〕に記載の発光材料。

〔3〕 一般式(1)の $R^1 \sim R^8$ の少なくとも1つが前記一般式(3)で表される基であ

50

る場合に、前記一般式(3)の $R^{21} \sim R^{28}$ のうち少なくとも1つは置換基であることを特徴とする[1]または[2]に記載の発光材料。

[4] 一般式(1)の R^2 、 R^3 、 R^6 、および R^7 の少なくとも1つが前記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることを特徴とする[1]~[3]のいずれか1項に記載の発光材料。

[5] 一般式(1)の R^3 および R^6 の少なくとも1つが前記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることを特徴とする[4]に記載の発光材料。

[6] 一般式(1)の R^3 と R^6 が、各々独立に前記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることを特徴とする[5]に記載の発光材料。

[7] 前記一般式(2)の $R^{11} \sim R^{20}$ の少なくとも1つ、前記一般式(3)の $R^{21} \sim R^{28}$ の少なくとも1つ、前記一般式(4)の $R^{31} \sim R^{38}$ の少なくとも1つと、 R^{3a} および R^{3b} の少なくとも1つ、前記一般式(5)の $R^{41} \sim R^{48}$ の少なくとも1つ、前記一般式(6)の $R^{51} \sim R^{58}$ の少なくとも1つ、および前記一般式(7)の $R^{61} \sim R^{68}$ の少なくとも1つが置換基であることを特徴とする[1]~[6]のいずれか1項に記載の発光材料。

[8] 前記一般式(2)の R^{13} および R^{18} の少なくとも一方、前記一般式(3)の R^{23} および R^{26} の少なくとも一方、前記一般式(4)の R^{33} および R^{36} の少なくとも一方と、 R^{3a} および R^{3b} の少なくとも一方、前記一般式(5)の R^{43} および R^{46} の少なくとも一方、前記一般式(6)の R^{53} および R^{56} の少なくとも一方、並びに前記一般式(7)の R^{63} および R^{66} の少なくとも一方が置換基であることを特徴とする[7]に記載の発光材料。

[9] 前記一般式(2)の R^{13} および R^{18} の少なくとも一方、前記一般式(3)の R^{23} および R^{26} の少なくとも一方、前記一般式(4)の R^{33} および R^{36} の少なくとも一方と、 R^{3a} および R^{3b} の少なくとも一方、前記一般式(5)の R^{43} および R^{46} の少なくとも一方、前記一般式(6)の R^{53} および R^{56} の少なくとも一方、並びに前記一般式(7)の R^{63} および R^{66} の少なくとも一方が、前記一般式(2)~(7)のいずれかで表される基であることを特徴とする[8]に記載の発光材料。

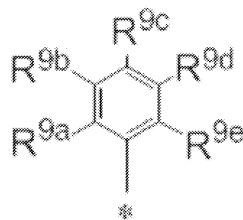
[10] 前記一般式(2)~(7)の $L^{12} \sim L^{17}$ が、単結合であることを特徴とする[1]~[9]のいずれか1項に記載の発光材料。

[11] 一般式(1)のXが、酸素原子であることを特徴とする[1]~[10]のいずれか1項に記載の発光材料。

[12] 一般式(1)の R^9 が、下記一般式(a)で表される基であることを特徴とする[1]~[11]のいずれか1項に記載の発光材料。

【化6】

一般式(a)



[式(a)において、*は前記一般式(1)におけるホウ素原子への結合部位を表す。 R^9a 、 R^9b 、 R^9c 、 R^9d 、 R^9e は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 R^9a と R^9b 、 R^9b と R^9c 、 R^9c と R^9d 、 R^9d と R^9e はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

[13] 前記一般式(a)の R^9a と R^9e が置換基であることを特徴とする[12]に記載の発光材料。

[14] 一般式(1)の $R^1 \sim R^8$ の少なくとも1つが前記一般式(4)で表される基であることを特徴とする[1]~[13]のいずれか1項に記載の発光材料。

[15] 一般式(1)の R^3 と R^6 、または R^2 と R^7 が、前記一般式(4)で表される基であることを特徴とする[1]~[4]、[7]~[14]のいずれか1項に記載の発光

10

20

30

40

50

材料。

[1 6] 前記一般式 (4) の R^{3a} と R^{3b} が、置換基であることを特徴とする [1 4] または [1 5] に記載の発光材料。

[1 7] 前記置換基が、炭素数 1 ~ 15 のアルキル基またはフェニル基であることを特徴とする [1 4] ~ [1 6] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[1 8] 前記一般式 (4) の R^{3a} と R^{3b} が互いに結合して環状構造を形成していることを特徴とする [1 4] ~ [1 6] のいずれか 1 項に記載の発光材料。

[1 9] 前記一般式 (1) で表される化合物からなる遅延蛍光体。

[2 0] [1] ~ [1 8] 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。

10

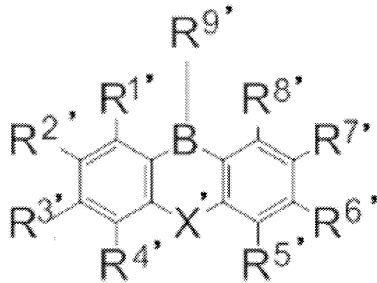
[2 1] 遅延蛍光を放射することを特徴とする [2 0] に記載の有機発光素子。

[2 2] 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 [2 0] または [2 1] に記載の有機発光素子。

[2 3] 下記一般式 (1') で表される化合物。

【化 7】

一般式 (1')



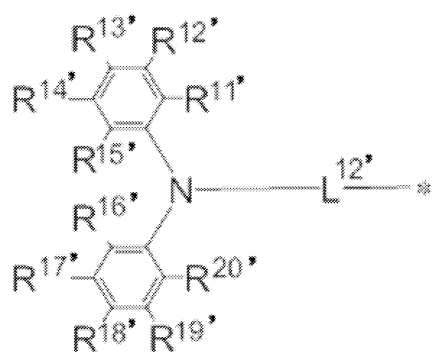
20

[一般式 (1') において、 X' は酸素原子または硫黄原子を表す。 $R^{1'}$ ~ $R^{8'}$ は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、 $R^{1'}$ ~ $R^{8'}$ の少なくとも 1 つは、各々独立に下記一般式 (2') ~ (7') のいずれかで表される基である。 $R^{1'}$ と $R^{2'}$ 、 $R^{2'}$ と $R^{3'}$ 、 $R^{3'}$ と $R^{4'}$ 、 $R^{5'}$ と $R^{6'}$ 、 $R^{6'}$ と $R^{7'}$ 、 $R^{7'}$ と $R^{8'}$ 、 $R^{8'}$ と $R^{9'}$ 、 $R^{9'}$ と $R^{1'}$ は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 $R^{9'}$ は置換基を表す。 $R^{9'}$ がホウ素原子と単結合を形成していない孤立電子対を有する原子を含むとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。]

30

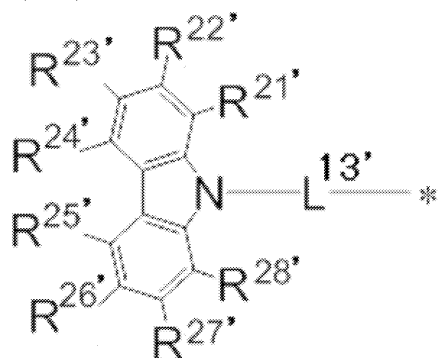
【化 8 - 1】

一般式 (2')



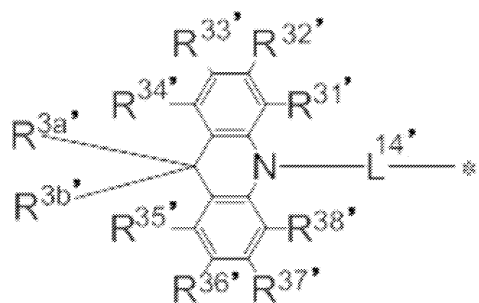
10

一般式 (3')



20

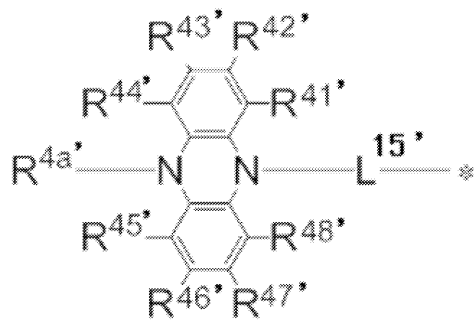
一般式 (4')



30

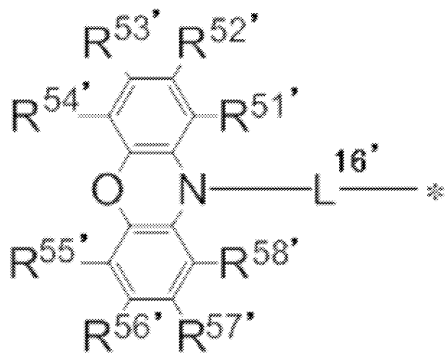
【化 8 - 2】

一般式 (5')



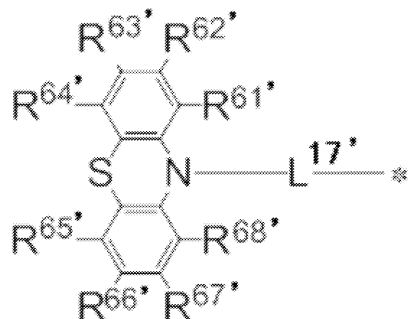
10

一般式 (6')



20

一般式 (7')



30

【一般式 (2') ~ (7') において、 $L^{12'}$ ~ $L^{17'}$ は各々独立に単結合または二価の連結基を表し、* は一般式 (1') におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11'}$ ~ $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ ~ $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ ~ $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ ~ $R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$ ~ $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ ~ $R^{68'}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$ と $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$ と $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$ と $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$ と $R^{15'}$ 、 $R^{16'}$ と $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$ と $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$ と $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$ と $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ と $R^{22'}$ 、 $R^{22'}$ と $R^{23'}$ 、 $R^{23'}$ と $R^{24'}$ 、 $R^{24'}$ と $R^{25'}$ 、 $R^{25'}$ と $R^{26'}$ 、 $R^{26'}$ と $R^{27'}$ 、 $R^{27'}$ と $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ と $R^{32'}$ 、 $R^{32'}$ と $R^{33'}$ 、 $R^{33'}$ と $R^{34'}$ 、 $R^{35'}$ と $R^{36'}$ 、 $R^{36'}$ と $R^{37'}$ 、 $R^{37'}$ と $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ と $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ と $R^{42'}$ 、 $R^{42'}$ と $R^{43'}$ 、 $R^{43'}$ と $R^{44'}$ 、 $R^{45'}$ と $R^{46'}$ 、 $R^{46'}$ と $R^{47'}$ 、 $R^{47'}$ と $R^{48'}$ 、 $R^{51'}$ と $R^{52'}$ 、 $R^{52'}$ と $R^{53'}$ 、 $R^{53'}$ と $R^{54'}$ 、 $R^{55'}$ と $R^{56'}$ 、 $R^{56'}$ と $R^{57'}$ 、 $R^{57'}$ と $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ と $R^{62'}$ 、 $R^{62'}$ と $R^{63'}$ 、 $R^{63'}$ と $R^{64'}$ 、 $R^{65'}$ と $R^{66'}$ 、 $R^{66'}$ と $R^{67'}$ 、 $R^{67'}$ と $R^{68'}$ はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。】

40

【発明の効果】

【0012】

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

50

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】

【0013】

【図1】有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。

【図2】実施例1の化合物5の溶液の発光スペクトルである。

【図3】実施例1の化合物5の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図4】実施例1の化合物5の溶液の過渡減衰曲線である。

【図5】実施例2の化合物6の溶液および薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

10

【図6】実施例2の化合物6の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図7】実施例2の化合物6の溶液の過渡減衰曲線である。

【図8】実施例3の化合物18の溶液の発光スペクトルである。

【図9】実施例3の化合物18の溶液の過渡減衰曲線である。

【図10】実施例4の化合物59の溶液の発光スペクトルである。

【図11】実施例5の化合物65の溶液の発光スペクトルである。

【図12】実施例6の化合物67の溶液の発光スペクトルである。

【図13】実施例7の化合物156の溶液の発光スペクトルである。

20

【図14】実施例7の化合物156の溶液の過渡減衰曲線である。

【図15】比較例1の比較化合物Aの溶液の発光スペクトルである。

【図16】比較例1の比較化合物Aの溶液の過渡減衰曲線である。

【図17】比較例2の比較化合物Bの溶液の発光スペクトルである。

【図18】比較例2の比較化合物Bの溶液の過渡減衰曲線である。

【図19】比較例3の比較化合物Cの溶液の発光スペクトルである。

【図20】比較例3の比較化合物Cの溶液の過渡減衰曲線である。

【図21】実施例11の化合物5の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図22】実施例11の化合物5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。

30

【図23】実施例12の化合物6の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルである。

【図24】実施例12の化合物6の有機エレクトロルミネッセンス素子の電流密度 - 外部量子効率特性を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0014】

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。

40

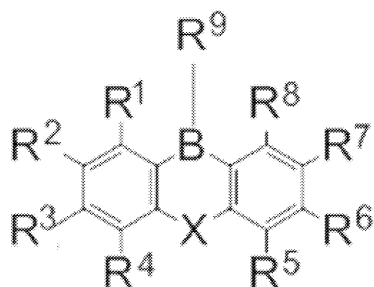
【0015】

[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 9】

一般式 (1)



10

【0016】

一般式 (1) において、X 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。

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

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

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

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

20

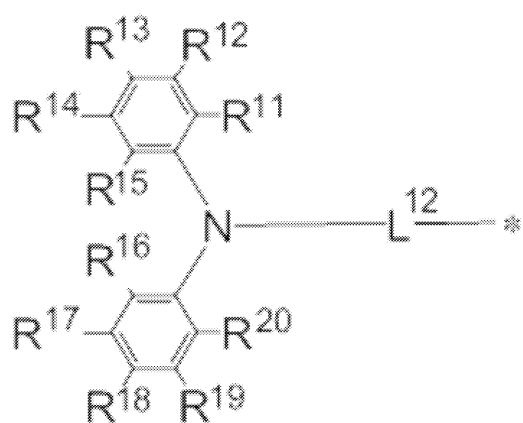
30

40

【0017】

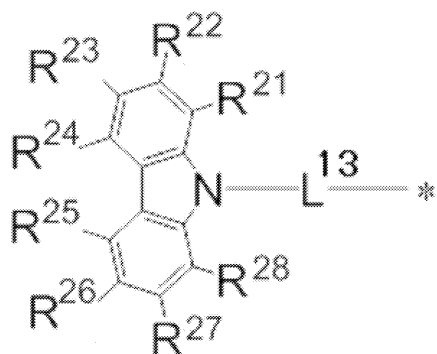
【化 1 0 - 1】

一般式 (2)



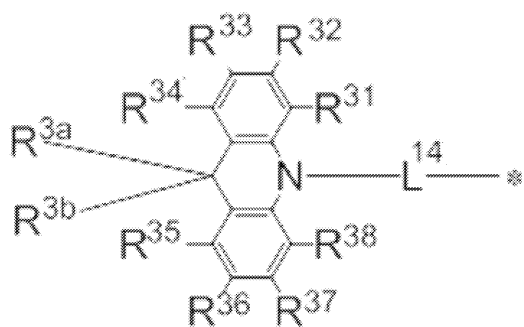
10

一般式 (3)



20

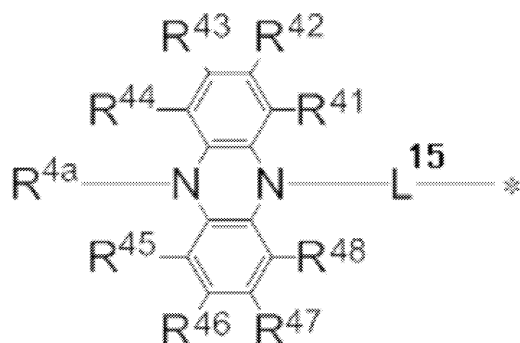
一般式 (4)



30

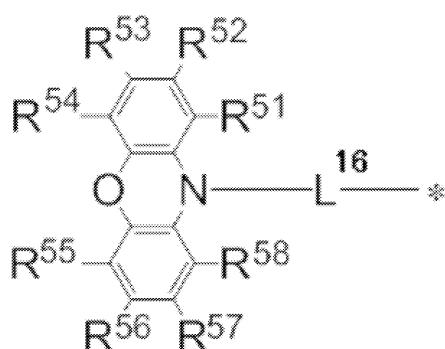
【化 1 0 - 2】

一般式 (5)



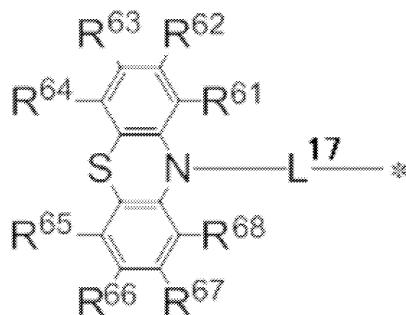
10

一般式 (6)



20

一般式 (7)



30

【0018】

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

L¹² ~ L¹⁷ は、各々独立に単結合または二価の連結基を表し、単結合であることが好ましい。L¹² ~ L¹⁷ が二価の連結基である場合、二価の連結基としては、炭素数 6 ~ 18 の芳香族炭化水素環基、環員数 6 ~ 18 の複素芳香族炭化水素環基などを挙げることができる。好ましい連結基は、フェニレン基、ビフェニレン基、フルオレニレン基、トリフェニレン基、チオフェニレン基であり、より好ましくい連結基はフェニレン基であり、さらに好ましい連結基は、1, 4 - フェニレン基である。これらの連結基は置換基が導入されていてもよい。連結基に導入しうる置換基の説明と好ましい範囲については、下記の R¹ ~ R⁸ 等がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

40

【0019】

一般式 (2) ~ (7) において、R¹¹ ~ R²⁰、R²¹ ~ R²⁸、R³¹ ~ R³⁸、R^{3a}、R^{3b}、R⁴¹ ~ R⁴⁸、R^{4a}、R⁵¹ ~ R⁵⁸、R⁶¹ ~ R⁶⁸ は、各々独立に水素原子または置換基を表す

50

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

【0020】

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

【0021】

R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 、 R^5 と R^6 、 R^6 と R^7 、 R^7 と R^8 、 R^8 と R^9 、 R^9 と R^{10} 、 R^{11} と R^{12} 、 R^{12} と R^{13} 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{14} と R^{15} 、 R^{16} と R^{17} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{18} と R^{19} 、 R^{19} と R^{20} 、 R^{21} と R^{22} 、 R^{22} と R^{23} 、 R^{23} と R^{24} 、 R^{24} と R^{25} 、 R^{25} と R^{26} 、 R^{26} と R^{27} 、 R^{27} と R^{28} 、 R^{31} と R^{32} 、 R^{32} と R^{33} 、 R^{33} と R^{34} 、 R^{35} と R^{36} 、 R^{36} と R^{37} 、 R^{37} と R^{38} 、 R^{3a} と R^{3b} 、 R^{41} と R^{42} 、 R^{42} と R^{43} 、 R^{43} と R^{44} 、 R^{45} と R^{46} 、 R^{46} と R^{47} 、 R^{47} と R^{48} 、 R^{51} と R^{52} 、 R^{52} と R^{53} 、 R^{53} と R^{54} 、 R^{55} と R^{56} 、 R^{56} と R^{57} 、 R^{57} と R^{58} 、 R^{61} と R^{62} 、 R^{62} と R^{63} 、 R^{63} と R^{64} 、 R^{65} と R^{66} 、 R^{66} と R^{67} 、 R^{67} と R^{68} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は2環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、イミダゾリン環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、シクロヘキサジエン環、シクロヘキセン環、シクロペンタエン環、シクロヘプタトリエン環、シクロヘプタジエン環、シクロヘプタエン環などを挙げることができる。

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

【0022】

また、 $R^1 \sim R^8$ は、例えば少なくとも1つとして一般式(3)～(7)のいずれかで表

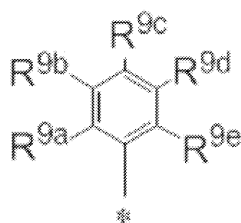
される基を選択してもよく、少なくとも1つとして一般式(4)~(7)のいずれかで表される基を選択してもよい。 $R^1 \sim R^8$ の少なくとも1つが一般式(4)で表される基であるとき、一般式(4)の R^{3a} および R^{3b} の少なくともいずれかが置換基であることが好ましく、 R^{3a} と R^{3b} がともに置換基であることがより好ましい。置換基としては、炭素数1~15のアルキル基、フェニル基であることが好ましく、炭素数1~15のアルキル基であることがより好ましい。また、 R^{3a} および R^{3b} は互いに結合して環状構造を形成していることも好ましい。この環状構造としては、フルオレン環、キサンテン環、チオキサンテン環等の三環構造であることが好ましい。

一般式(1)において、 R^9 は置換基を表す。 R^9 が表す置換基の説明と好ましい範囲については、

上記の $R^1 \sim R^8$ 等がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができる。このうち、 R^9 は下記一般式(8)で表される置換もしくは無置換のフェニル基であることが好ましい。

【化11】

一般式(8)



【0023】

一般式(8)において、*は一般式(1)におけるホウ素原子への結合部位を表す。 R^{9a} 、 R^{9b} 、 R^{9c} 、 R^{9d} 、 R^{9e} は、各々独立に水素原子または置換基を表す。置換基の数は特に制限されず、 R^{9a} 、 R^{9b} 、 R^{9c} 、 R^{9d} 、 R^{9e} のすべてが無置換(すなわち水素原子)であってもよいが、 R^{9a} 、 R^{9c} 、 R^{9e} の少なくともいずれかは置換基であることが好ましく、 R^{9a} と R^{9e} が置換基であることがより好ましい。一般式(8)において置換基が2つ以上ある場合、それらの置換基は同一であっても異なってもよい。 R^{9a} と R^{9b} 、 R^{9b} と R^{9c} 、 R^{9c} と R^{9d} 、 R^{9d} と R^{9e} はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。 R^{9a} 、 R^{9b} 、 R^{9c} 、 R^{9d} 、 R^{9e} がとりうる置換基の説明と好ましい範囲については、下記の $R^1 \sim R^8$ 等がとりうる置換基の説明と好ましい範囲を参照することができ、環状構造の説明と好ましい例については、上記の一般式(1)において、 R^1 と R^2 等が互いに結合して形成する環状構造の説明と好ましい例を参照することができる。

【0024】

ここで、 R^9 がホウ素原子と単結合を形成していない原子であって孤立電子対を有するものを含む置換基であるとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。ここでいうホウ素原子と単結合を形成していない原子であって孤立電子対を有するものとして、酸素原子や窒素原子を挙げることができる。また、該原子がホウ素原子と配位結合することによって形成される環状構造は、5~7員環であることが好ましく、5または6員環であることがより好ましい。具体的な化合物例として、下記の化合物177~186を参照することができる。これらの化合物では、ホウ素原子と単結合を形成していない酸素原子または窒素原子がホウ素原子と配位結合して5または6員環を形成している。

【0025】

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。

【0026】

10

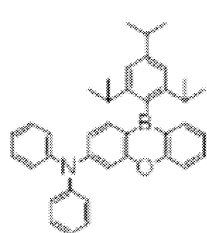
20

30

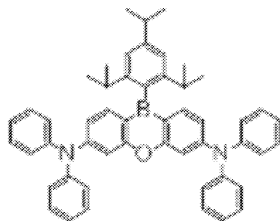
40

50

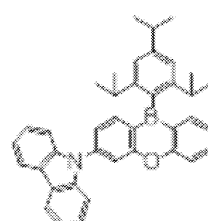
【化 1 2】



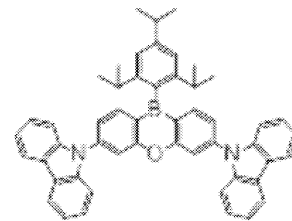
化合物 1



化合物 2

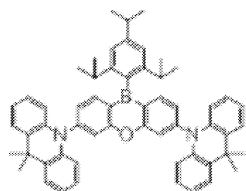


化合物 3

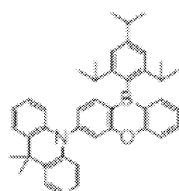


化合物 4

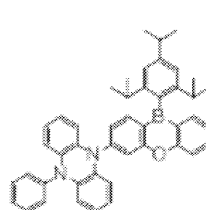
10



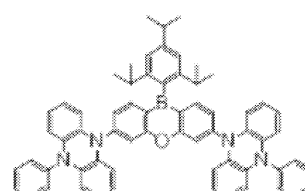
化合物 5



化合物 6

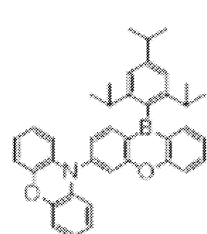


化合物 7

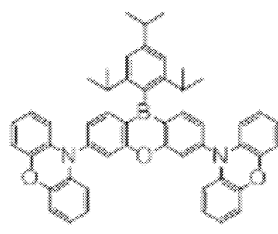


化合物 8

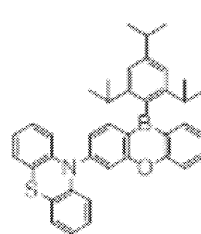
20



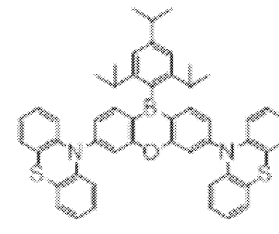
化合物 9



化合物 10

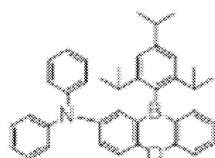


化合物 11

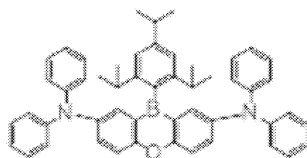


化合物 12

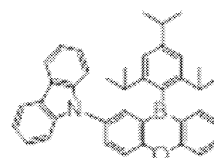
30



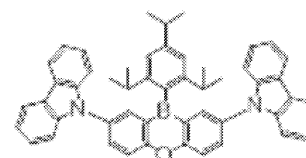
化合物 13



化合物 14

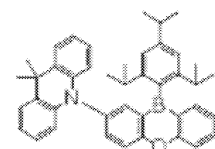


化合物 15

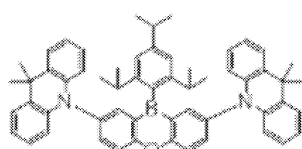


化合物 16

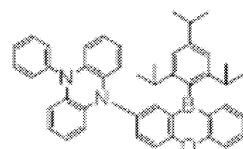
40



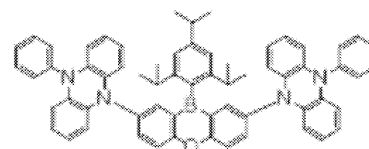
化合物 17



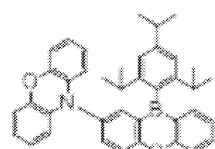
化合物 18



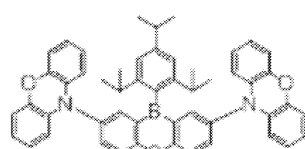
化合物 19



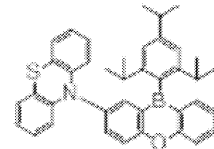
化合物 20



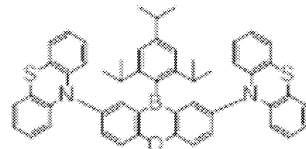
化合物 21



化合物 22



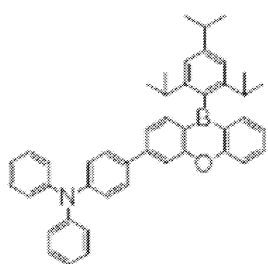
化合物 23



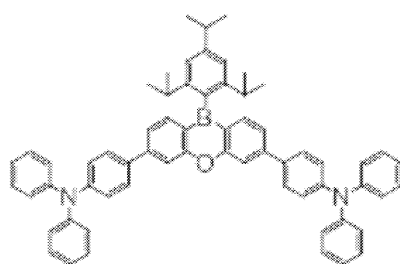
化合物 24

【 0 0 2 7 】

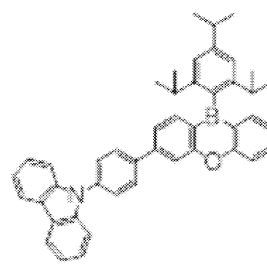
【化 1 3】



化合物 2 5

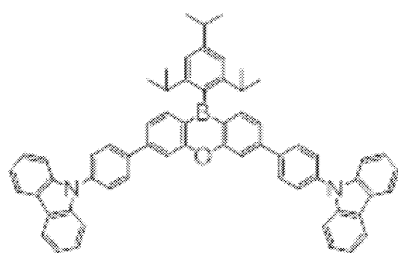


化合物 2 6

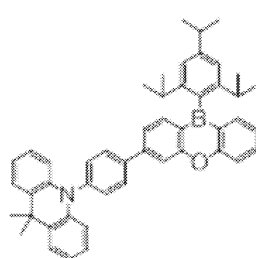


化合物 2 7

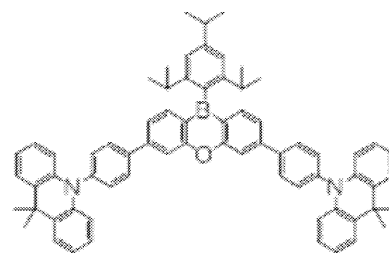
10



化合物 2 8

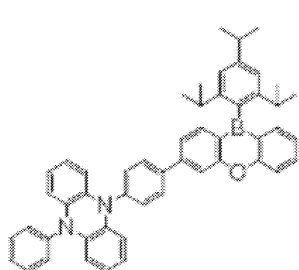


化合物 2 9

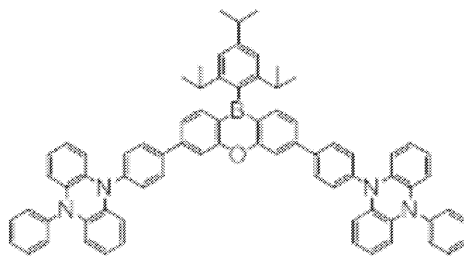


化合物 3 0

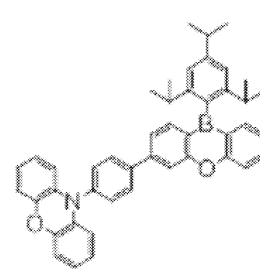
20



化合物 3 1

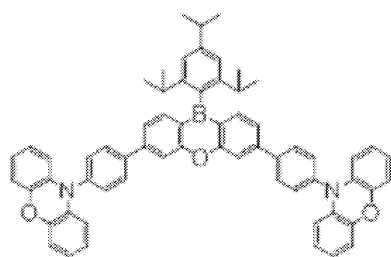


化合物 3 2

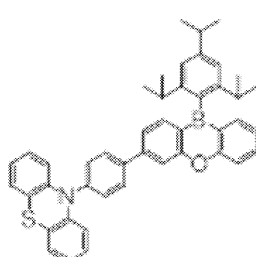


化合物 3 3

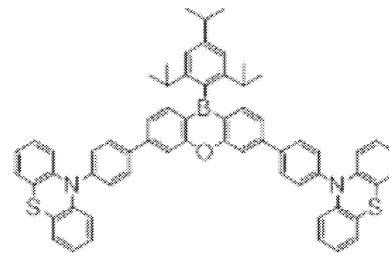
30



化合物 3 4



化合物 3 5

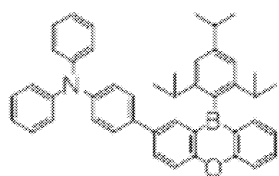


化合物 3 6

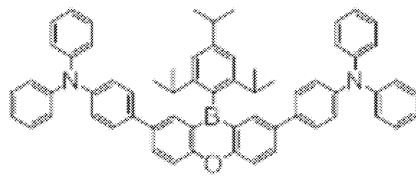
40

【 0 0 2 8】

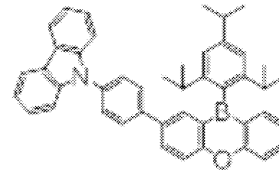
【化 1 4】



化合物 3 7

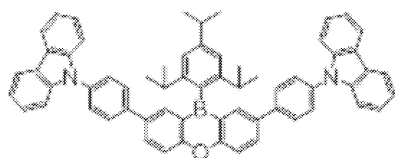


化合物 3 8

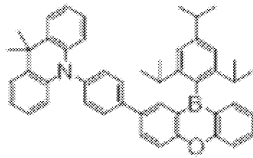


化合物 3 9

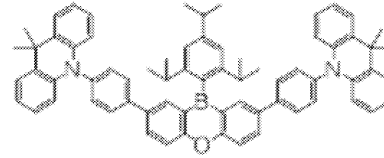
10



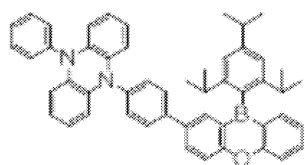
化合物 4 0



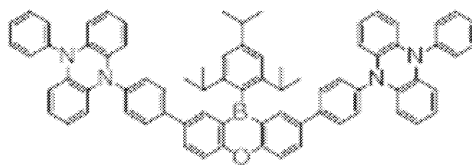
化合物 4 1



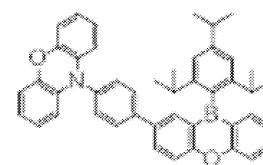
化合物 4 2



化合物 4 3

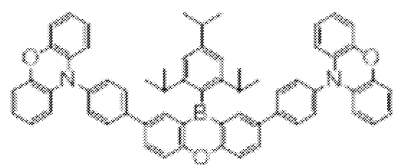


化合物 4 4

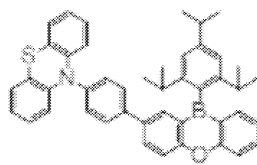


化合物 4 5

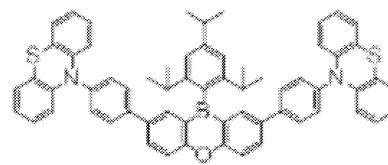
20



化合物 4 6

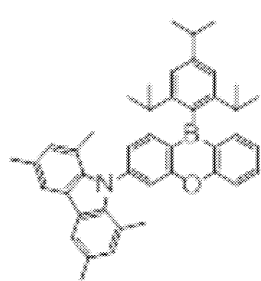


化合物 4 7

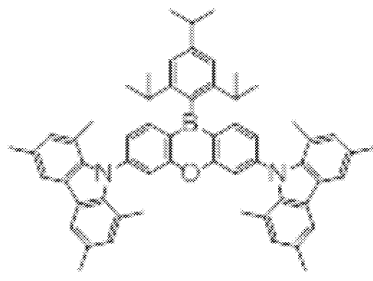


化合物 4 8

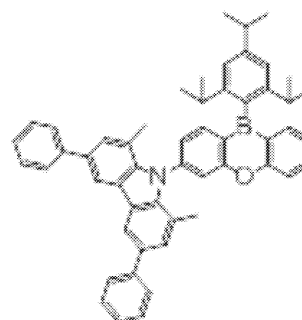
30



化合物 4 9



化合物 5 0

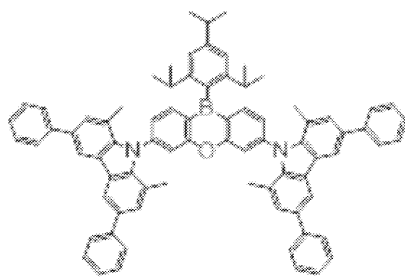


化合物 5 1

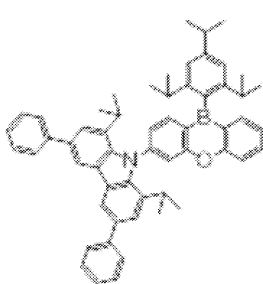
40

【 0 0 2 9 】

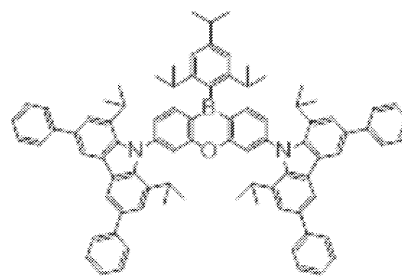
【化 1 5】



化合物 5 2

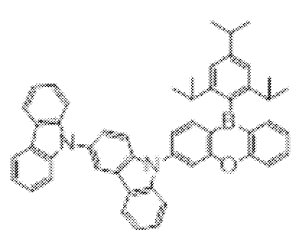


化合物 5 3

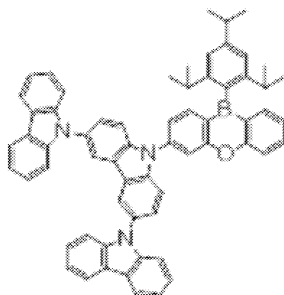


化合物 5 4

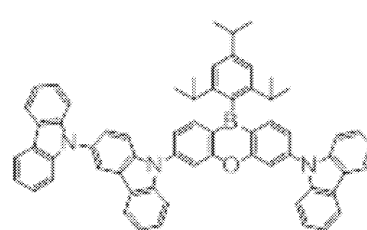
10



化合物 5 5

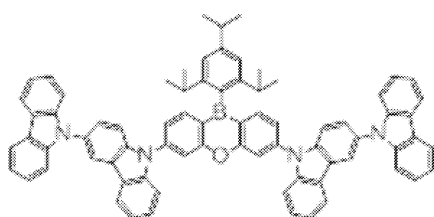


化合物 5 6

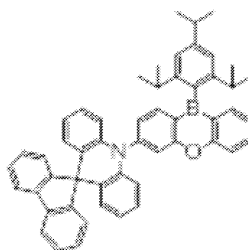


化合物 5 7

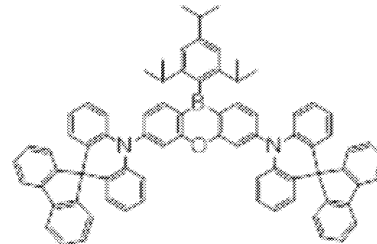
20



化合物 5 8

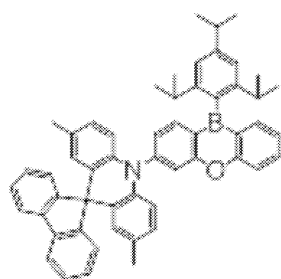


化合物 5 9

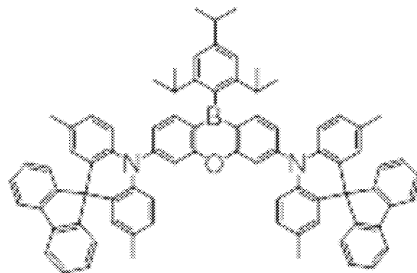


化合物 6 0

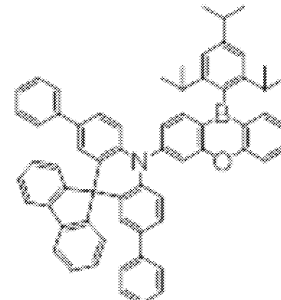
30



化合物 6 1



化合物 6 2

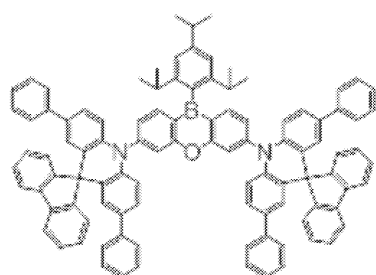


化合物 6 3

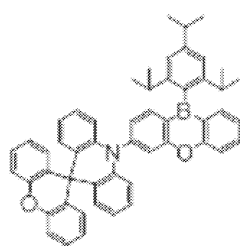
40

【 0 0 3 0 】

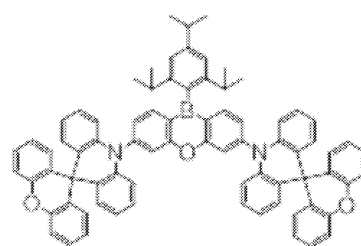
【化 1 6】



化合物 6 4

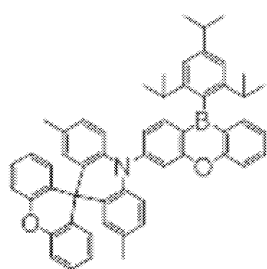


化合物 6 5

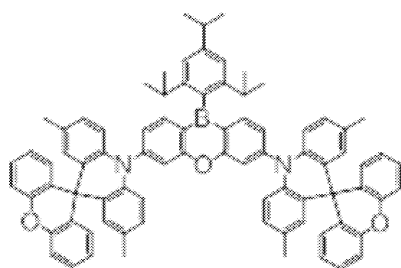


化合物 6 6

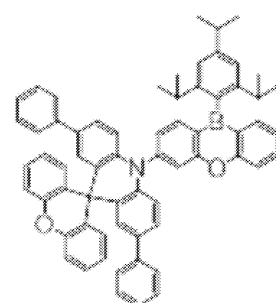
10



化合物 6 7

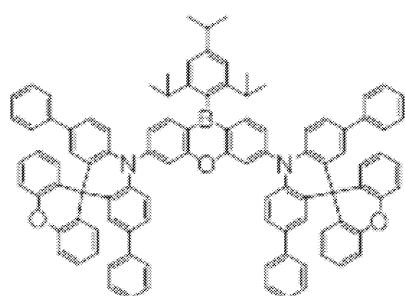


化合物 6 8

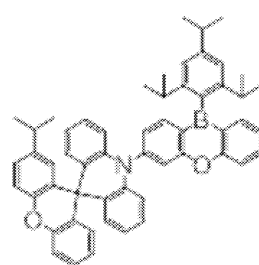


化合物 6 9

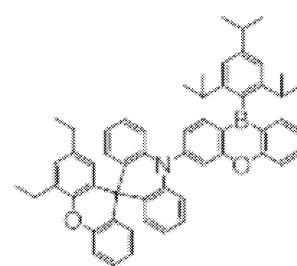
20



化合物 7 0

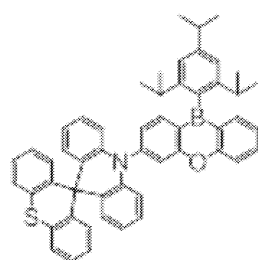


化合物 7 1

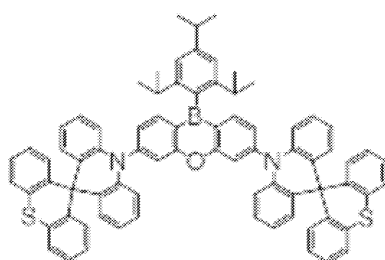


化合物 7 2

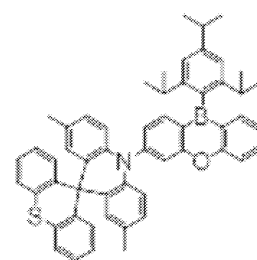
30



化合物 7 3



化合物 7 4

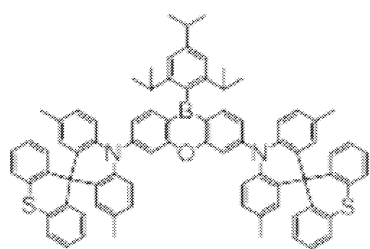


化合物 7 5

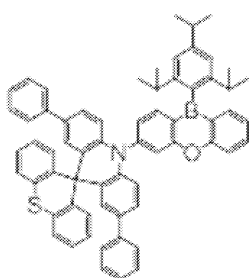
40

【 0 0 3 1】

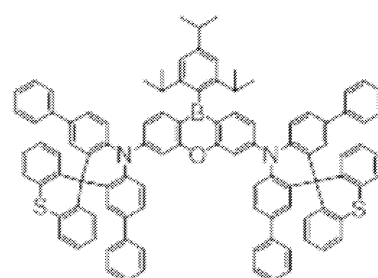
【化 1 7】



化合物 7 6

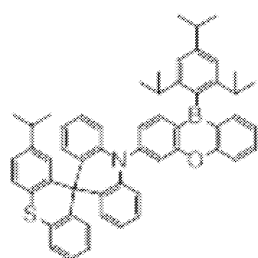


化合物 7 7

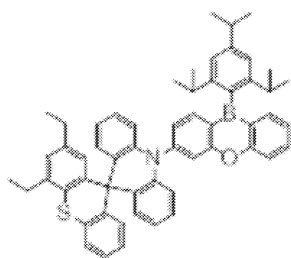


化合物 7 8

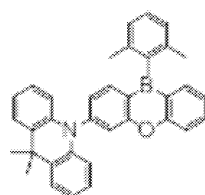
10



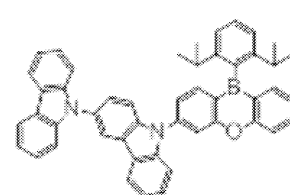
化合物 7 9



化合物 8 0

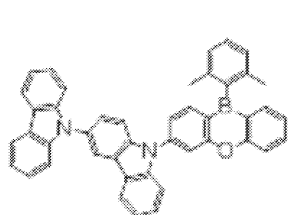


化合物 8 1

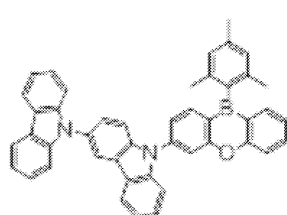


化合物 8 2

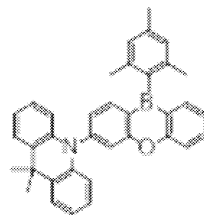
20



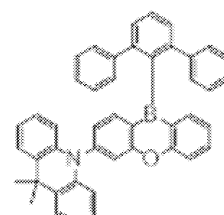
化合物 8 3



化合物 8 4

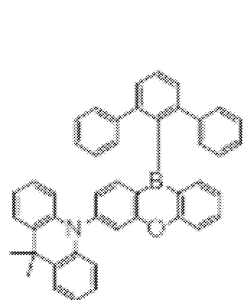


化合物 8 5

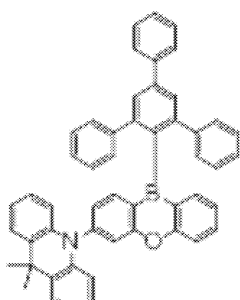


化合物 8 6

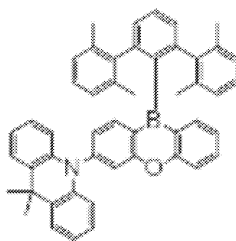
30



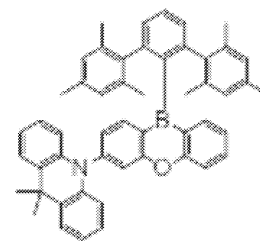
化合物 8 7



化合物 8 8



化合物 8 9

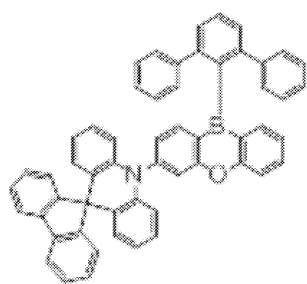


化合物 9 0

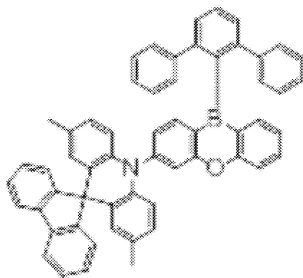
40

【 0 0 3 2 】

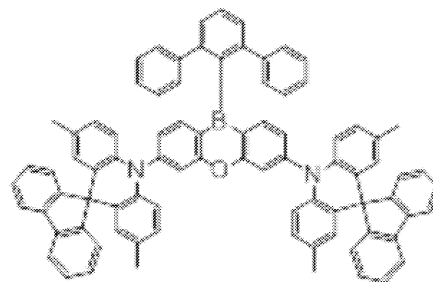
【化 1 8】



化合物 9 1

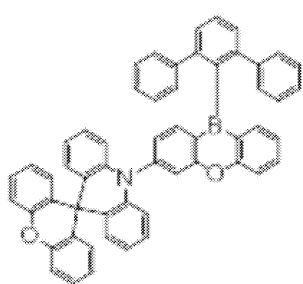


化合物 9 2

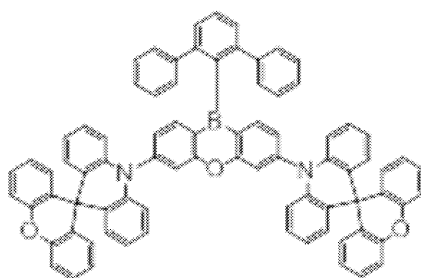


化合物 9 3

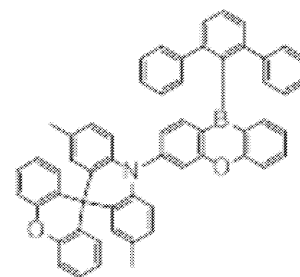
10



化合物 9 4

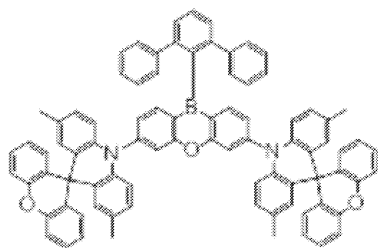


化合物 9 5

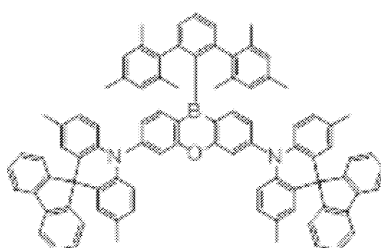


化合物 9 6

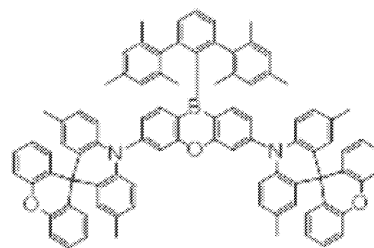
20



化合物 9 7

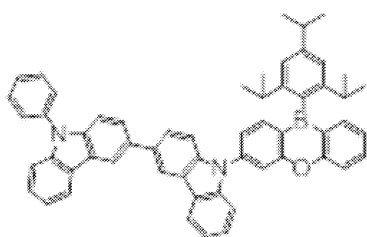


化合物 9 8

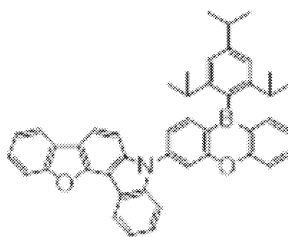


化合物 9 9

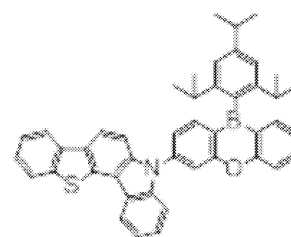
30



化合物 1 0 0



化合物 1 0 1

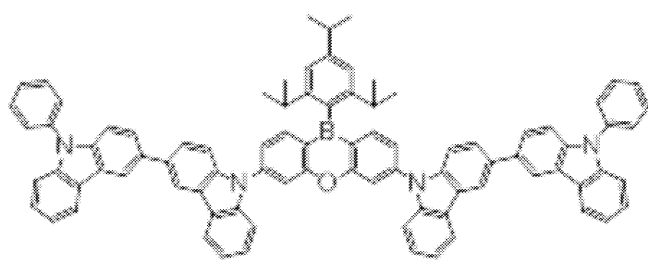


化合物 1 0 2

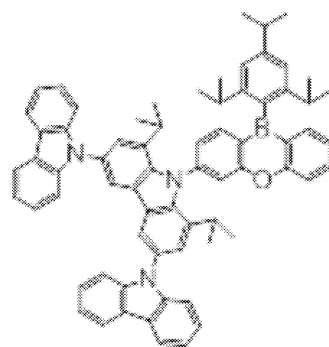
40

【 0 0 3 3】

【化 1 9】

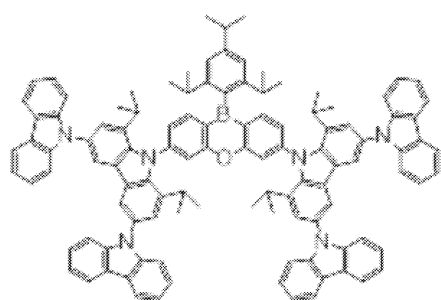


化合物 1 0 3

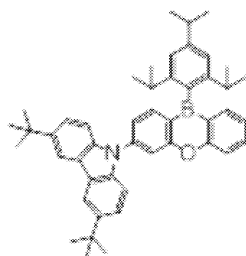


化合物 1 0 4

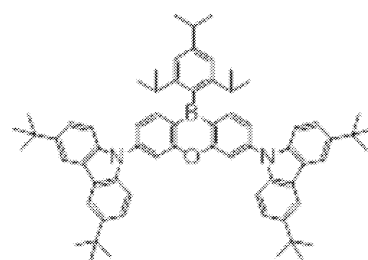
10



化合物 1 0 5

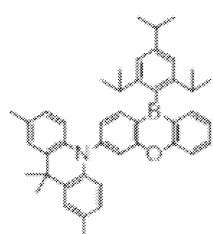


化合物 1 0 6

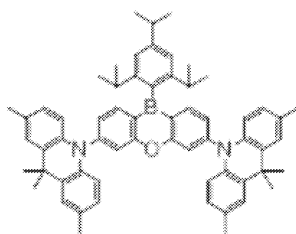


化合物 1 0 7

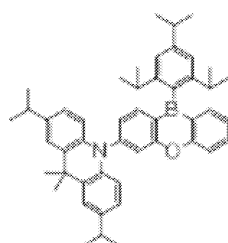
20



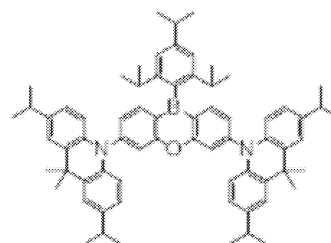
化合物 1 0 8



化合物 1 0 9

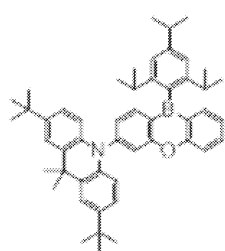


化合物 1 1 0

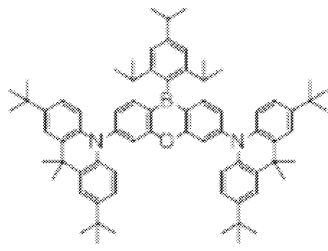


化合物 1 1 1

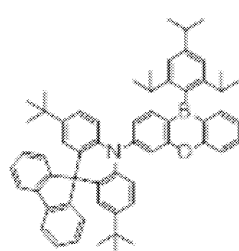
30



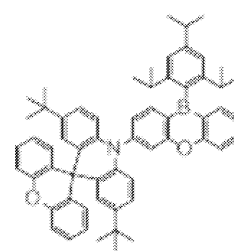
化合物 1 1 2



化合物 1 1 3



化合物 1 1 4

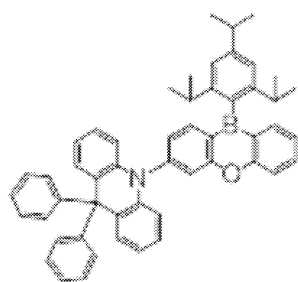


化合物 1 1 5

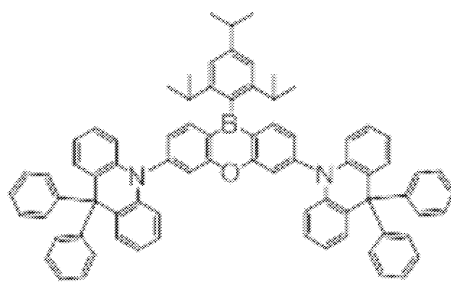
40

【 0 0 3 4 】

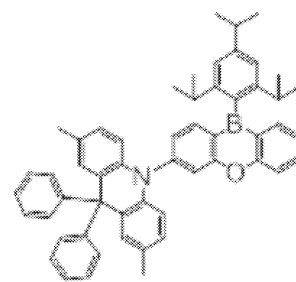
【化 2 0】



化合物 1 1 6

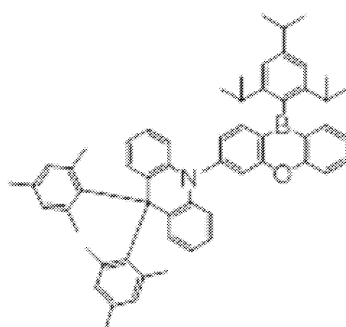


化合物 1 1 7

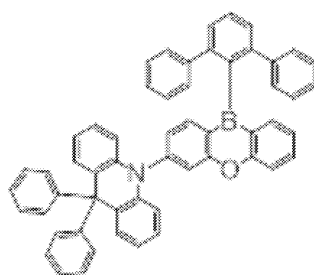


化合物 1 1 8

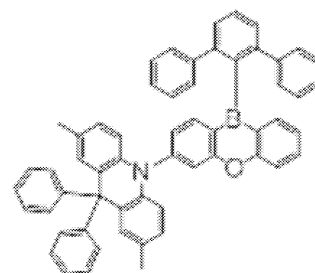
10



化合物 1 1 9

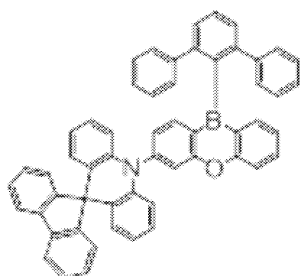


化合物 1 2 0

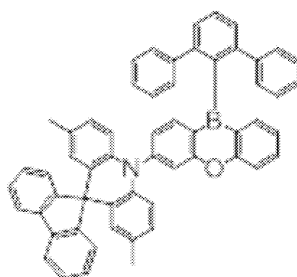


化合物 1 2 1

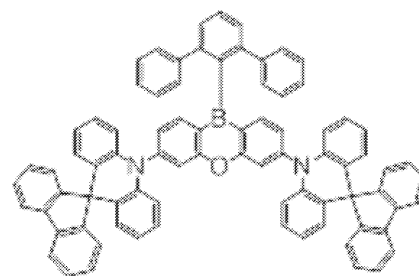
20



化合物 1 2 2

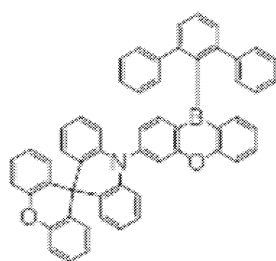


化合物 1 2 3

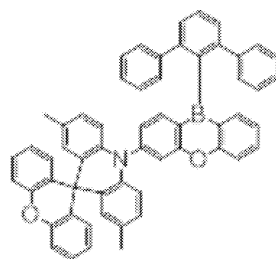


化合物 1 2 4

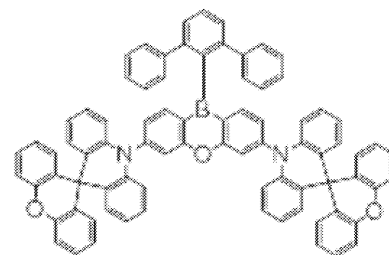
30



化合物 1 2 5



化合物 1 2 6

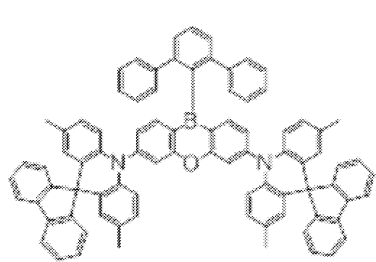


化合物 1 2 7

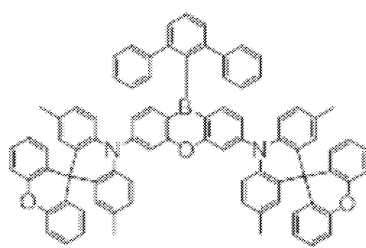
40

【 0 0 3 5】

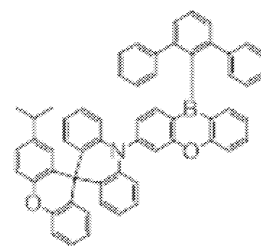
【化 2 1】



化合物 1 2 8

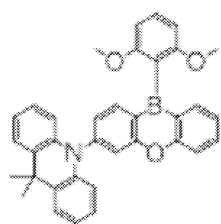


化合物 1 2 9

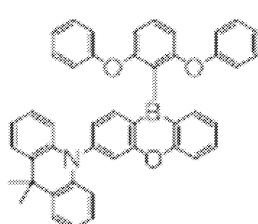


化合物 1 3 0

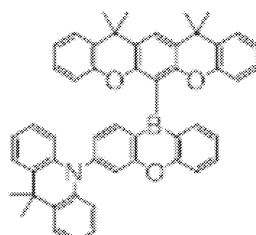
10



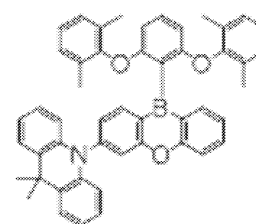
化合物 1 3 1



化合物 1 3 2

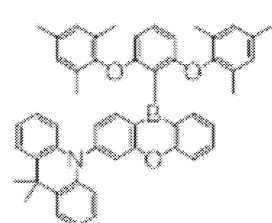


化合物 1 3 3

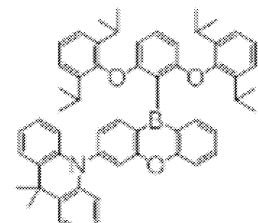


化合物 1 3 4

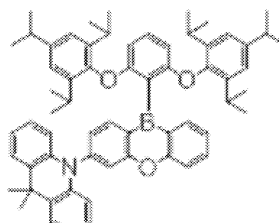
20



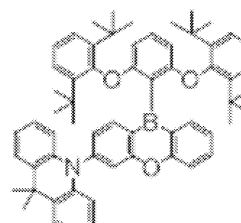
化合物 1 3 5



化合物 1 3 6

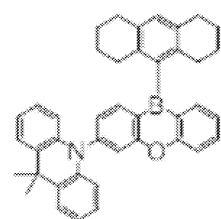


化合物 1 3 7

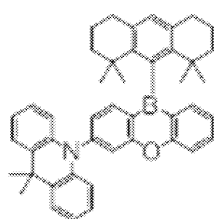


化合物 1 3 8

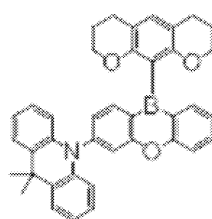
30



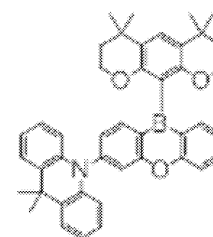
化合物 1 3 9



化合物 1 4 0

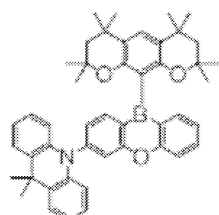


化合物 1 4 1

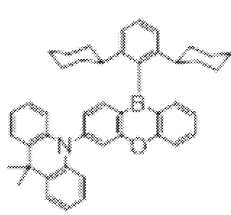


化合物 1 4 2

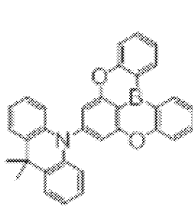
40



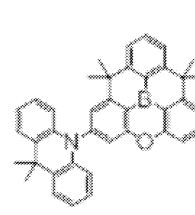
化合物 1 4 3



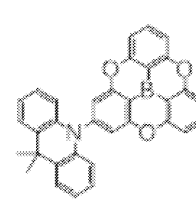
化合物 1 4 4



化合物 1 4 5



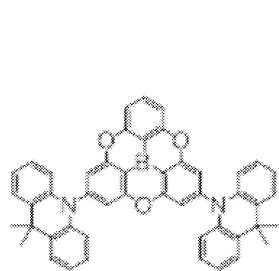
化合物 1 4 6



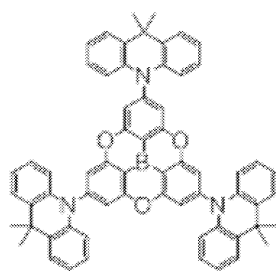
化合物 1 4 7

【 0 0 3 6】

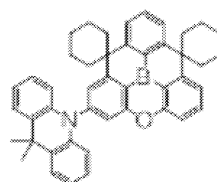
【化 2 2】



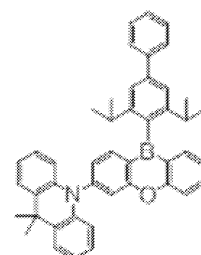
化合物 1 4 8



化合物 1 4 9

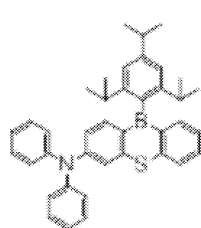


化合物 1 5 0

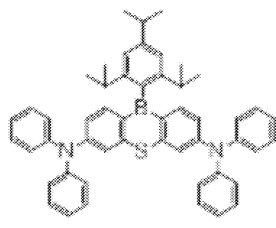


化合物 1 5 1

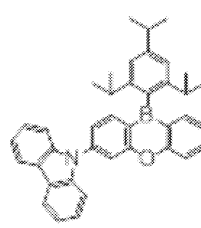
10



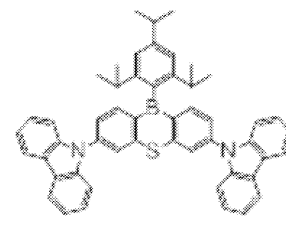
化合物 1 5 2



化合物 1 5 3

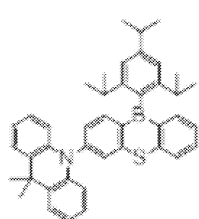


化合物 1 5 4

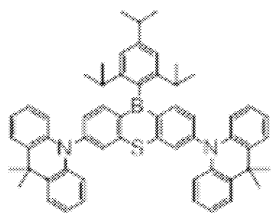


化合物 1 5 5

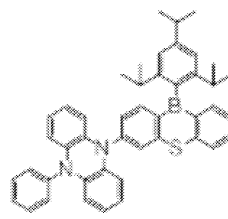
20



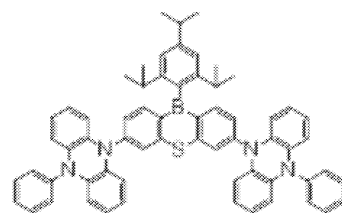
化合物 1 5 6



化合物 1 5 7

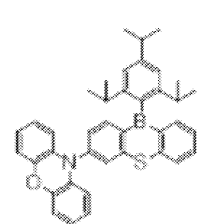


化合物 1 5 8

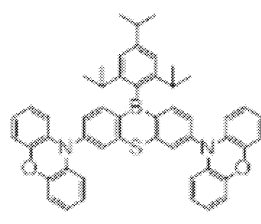


化合物 1 5 9

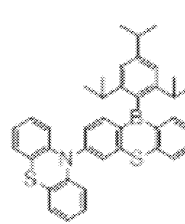
30



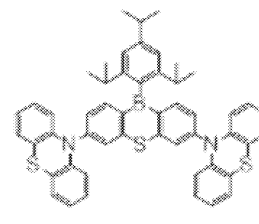
化合物 1 6 0



化合物 1 6 1

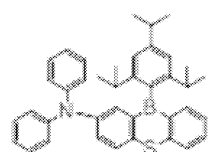


化合物 1 6 2

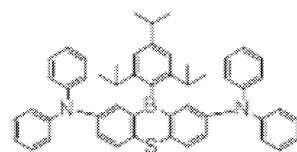


化合物 1 6 3

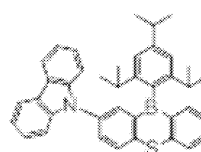
40



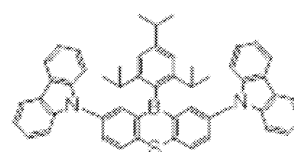
化合物 1 6 4



化合物 1 6 5



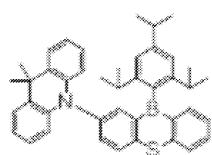
化合物 1 6 6



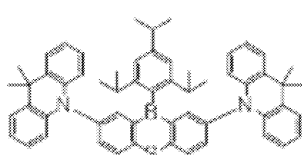
化合物 1 6 7

【 0 0 3 7】

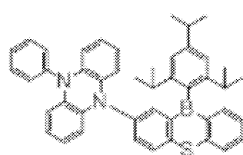
【化 2 3】



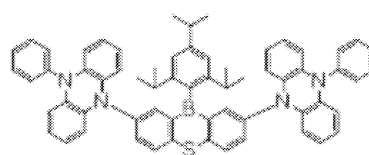
化合物 1 6 8



化合物 1 6 9

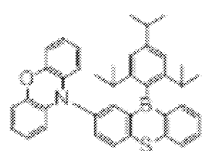


化合物 1 7 0

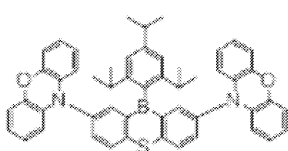


化合物 1 7 1

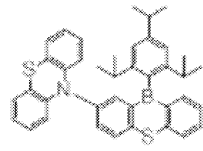
10



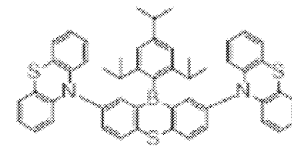
化合物 1 7 2



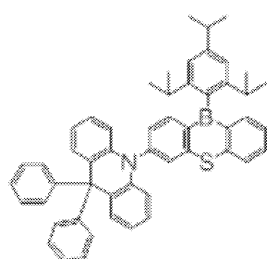
化合物 1 7 3



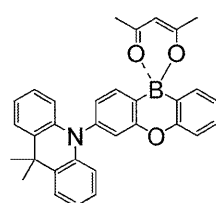
化合物 1 7 4



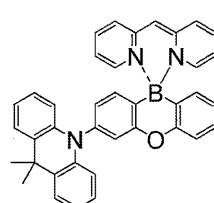
化合物 1 7 5



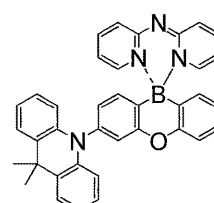
化合物 1 7 6



化合物 1 7 7

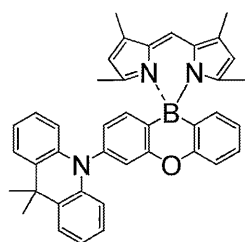


化合物 1 7 8

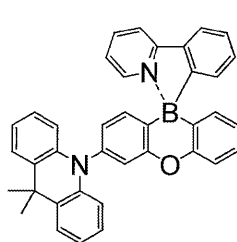


化合物 1 7 9

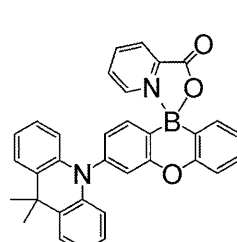
20



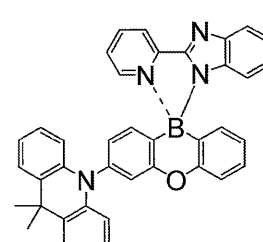
化合物 1 8 0



化合物 1 8 1

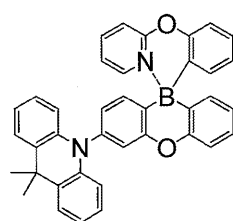


化合物 1 8 2

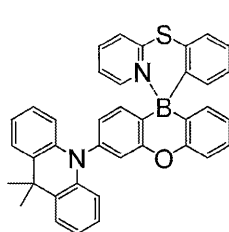


化合物 1 8 3

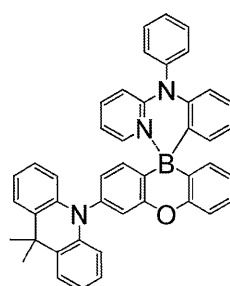
30



化合物 1 8 4



化合物 1 8 5

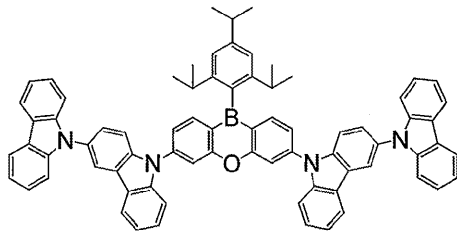


化合物 1 8 6

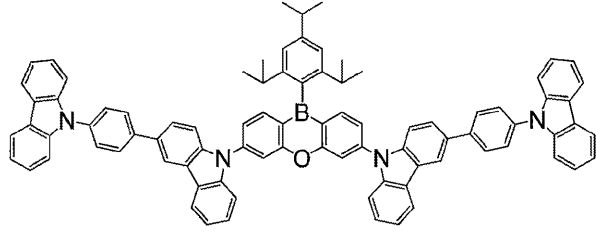
40

【 0 0 3 8 】

【化 2 4】

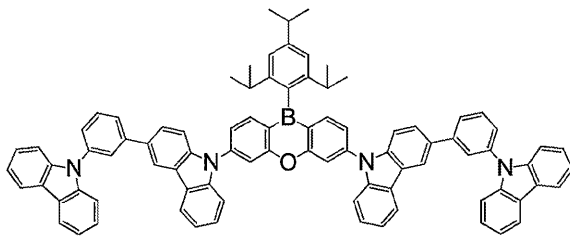


化合物 187

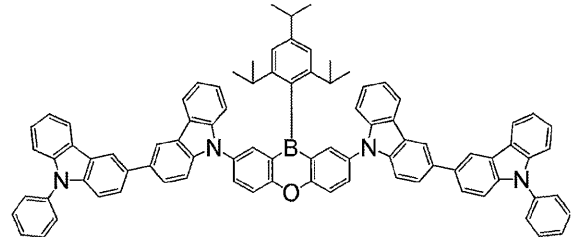


化合物 188

10

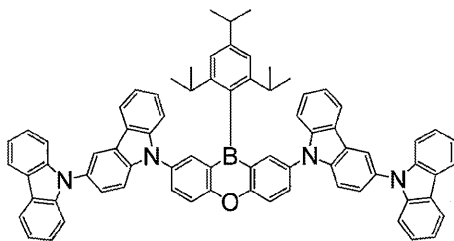


化合物 189

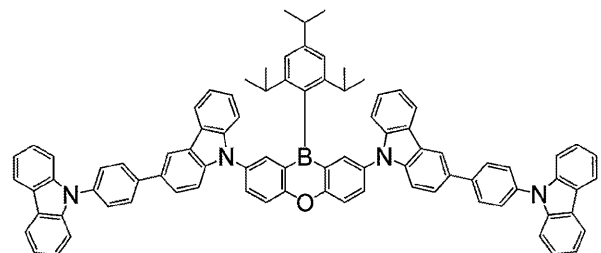


化合物 190

20

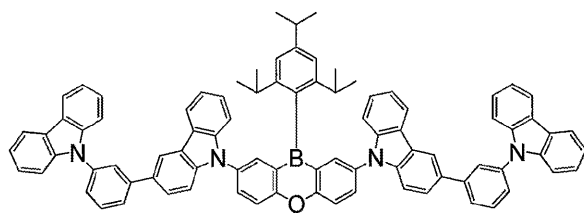


化合物 191



化合物 192

30



化合物 193

40

【0039】

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

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

【0040】

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

50

材料として用いることも考えられる。

例えば、一般式(1)で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式(1)の $R^1 \sim R^9$ 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。

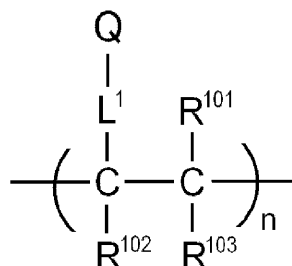
【0041】

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

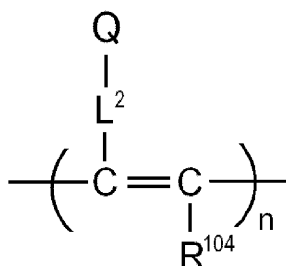
10

【化25】

一般式(9)



一般式(10)



20

【0042】

一般式(9)または(10)において、Qは一般式(1)で表される構造を含む基を表し、 L^1 および L^2 は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは0~20であり、より好ましくは1~15であり、さらに好ましくは2~10である。連結基は $-X^{11}-L^{11}-$ で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、 X^{11} は酸素原子または硫黄原子を表し、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(9)または(10)において、 R^{101} 、 R^{102} 、 R^{103} および R^{104} は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数1~6の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数1~3の無置換のアルキル基、炭素数1~3の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数1~3の無置換のアルキル基、炭素数1~3の無置換のアルコキシ基である。

L^1 および L^2 で表される連結基は、Qを構成する一般式(1)の構造の $R^1 \sim R^8$ のいずれか、一般式(2)の $R^{11} \sim R^{20}$ のいずれか、一般式(3)の構造の $R^{21} \sim R^{28}$ のいずれか、一般式(4)の構造の $R^{31} \sim R^{38}$ のいずれか、一般式(5)の構造の $R^{41} \sim R^{48}$ のいずれか、一般式(6)の構造の $R^{51} \sim R^{58}$ のいずれか、一般式(7)の構造の $R^{61} \sim R^{68}$ のいずれかに結合することができる。1つのQに対して連結基が2つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

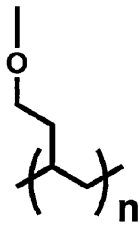
40

【0043】

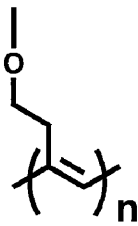
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式(11)~(14)で表される構造を挙げるができる。

【化 2 6】

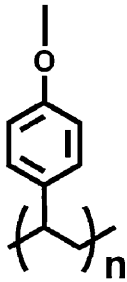
式(11)



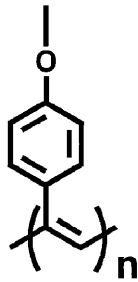
式(12)



式(13)



式(14)



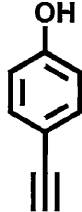
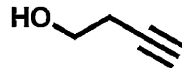
10

【 0 0 4 4】

20

これらの式(11)～(14)を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式(1)の構造のR¹～R⁹のいずれかにヒドロキシ基を導入しておき、それをリンカーとして下記化合物を反応させて重合性基を導入し、その重合性基を重合させることにより合成することができる。

【化 2 7】



30

【 0 0 4 5】

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

40

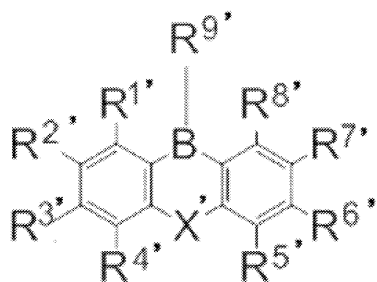
【 0 0 4 6】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

一般式(1)で表される化合物は新規化合物である。

【化 28】

一般式 (1')



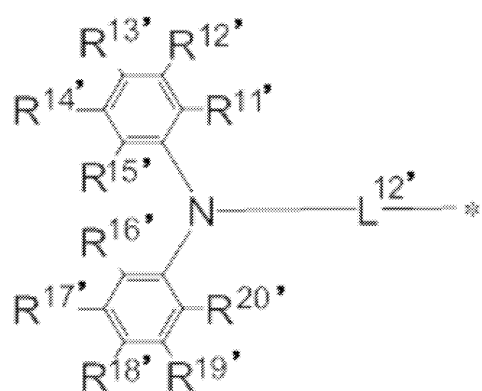
10

【0047】

一般式 (1') において、X' は酸素原子または硫黄原子を表す。R^{1'} ~ R^{8'} は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R^{1'} ~ R^{8'} の少なくとも1つは、各々独立に下記一般式 (2') ~ (7') で表される基である。R^{1'} と R^{2'}、R^{2'} と R^{3'}、R^{3'} と R^{4'}、R^{5'} と R^{6'}、R^{6'} と R^{7'}、R^{7'} と R^{8'}、R^{8'} と R^{9'}、R^{9'} と R^{1'} は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。R^{9'} は置換基を表す。R^{9'} がホウ素原子と単結合を形成していない孤立電子対を有する原子を含むとき、該原子はホウ素原子と配位結合して環状構造を形成していてもよい。

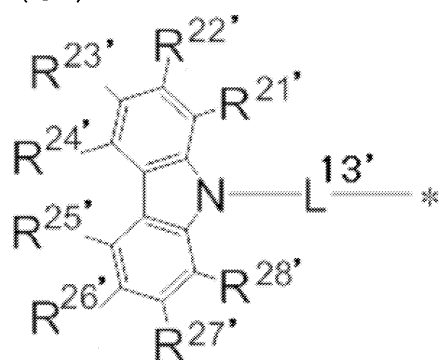
【化 2 9 - 1】

一般式 (2')



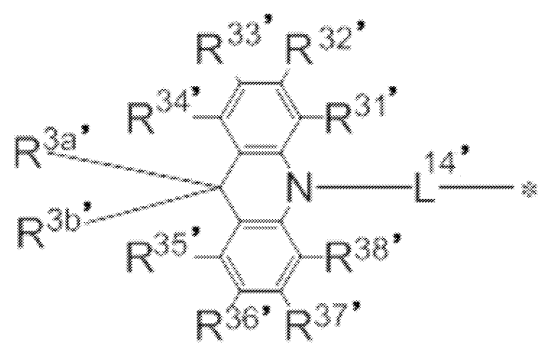
10

一般式 (3')



20

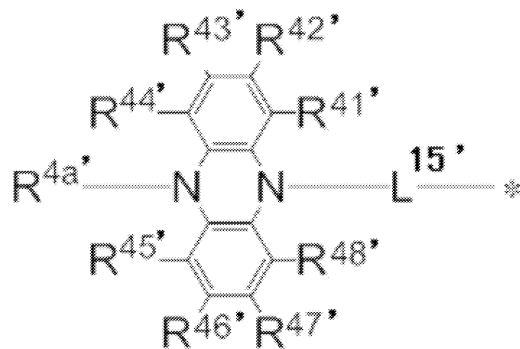
一般式 (4')



30

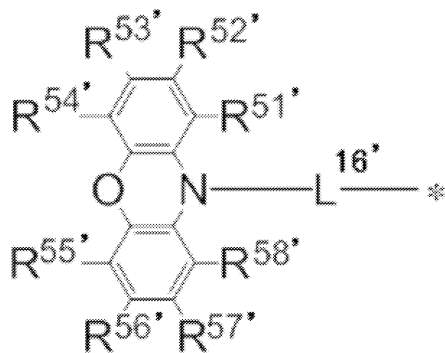
【化 2 9 - 2】

一般式 (5')



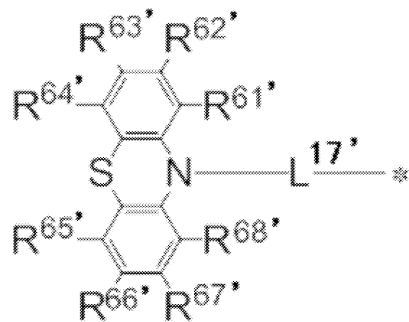
10

一般式 (6')



20

一般式 (7')



30

【0048】

一般式 (2') ~ (7') において、 $L^{12'}$ ~ $L^{17'}$ は各々独立に単結合または二価の連結基を表し、* は一般式 (1') におけるベンゼン環への結合部位を表す。 $R^{11'}$ ~ $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ ~ $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ ~ $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ ~ $R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$ ~ $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ ~ $R^{68'}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。 $R^{11'}$ と $R^{12'}$ 、 $R^{12'}$ と $R^{13'}$ 、 $R^{13'}$ と $R^{14'}$ 、 $R^{14'}$ と $R^{15'}$ 、 $R^{15'}$ と $R^{16'}$ 、 $R^{16'}$ と $R^{17'}$ 、 $R^{17'}$ と $R^{18'}$ 、 $R^{18'}$ と $R^{19'}$ 、 $R^{19'}$ と $R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ と $R^{22'}$ 、 $R^{22'}$ と $R^{23'}$ 、 $R^{23'}$ と $R^{24'}$ 、 $R^{24'}$ と $R^{25'}$ 、 $R^{25'}$ と $R^{26'}$ 、 $R^{26'}$ と $R^{27'}$ 、 $R^{27'}$ と $R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ と $R^{32'}$ 、 $R^{32'}$ と $R^{33'}$ 、 $R^{33'}$ と $R^{34'}$ 、 $R^{34'}$ と $R^{35'}$ 、 $R^{35'}$ と $R^{36'}$ 、 $R^{36'}$ と $R^{37'}$ 、 $R^{37'}$ と $R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ と $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ と $R^{42'}$ 、 $R^{42'}$ と $R^{43'}$ 、 $R^{43'}$ と $R^{44'}$ 、 $R^{44'}$ と $R^{45'}$ 、 $R^{45'}$ と $R^{46'}$ 、 $R^{46'}$ と $R^{47'}$ 、 $R^{47'}$ と $R^{48'}$ 、 $R^{51'}$ と $R^{52'}$ 、 $R^{52'}$ と $R^{53'}$ 、 $R^{53'}$ と $R^{54'}$ 、 $R^{54'}$ と $R^{55'}$ 、 $R^{55'}$ と $R^{56'}$ 、 $R^{56'}$ と $R^{57'}$ 、 $R^{57'}$ と $R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ と $R^{62'}$ 、 $R^{62'}$ と $R^{63'}$ 、 $R^{63'}$ と $R^{64'}$ 、 $R^{64'}$ と $R^{65'}$ 、 $R^{65'}$ と $R^{66'}$ 、 $R^{66'}$ と $R^{67'}$ 、 $R^{67'}$ と $R^{68'}$ はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。

40

一般式 (1') における $R^{1'}$ ~ $R^{8'}$ と、一般式 (2') ~ (7') における $R^{11'}$ ~

50

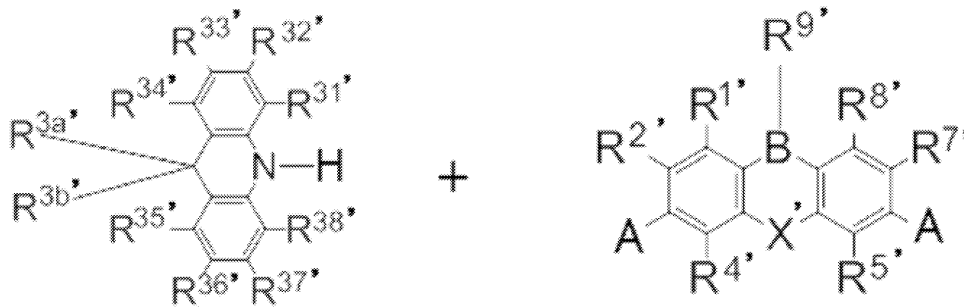
$R^{20'}$ 、 $R^{21'}$ 、 $\sim R^{28'}$ 、 $R^{31'}$ 、 $\sim R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ 、 $R^{41'}$ 、 $\sim R^{48'}$ 、 $R^{4a'}$ 、 $R^{51'}$ 、 $\sim R^{58'}$ 、 $R^{61'}$ 、 $\sim R^{68'}$ の説明と好ましい範囲については、一般式(1)で表される化合物の説明を参照することができる。

【0049】

[一般式(1')で表される化合物の合成方法]

一般式(1')で表される化合物は、既知の反応を組み合わせることによって合成することができる。例えば、一般式(1')の $R^{3'}$ と $R^{6'}$ が一般式(4')で表される基である化合物は、以下の2つの化合物を反応させることにより合成することが可能である。

【化30】



【0050】

上記の反応式における $R^{1'}$ 、 $R^{2'}$ 、 $R^{4'}$ 、 $R^{5'}$ 、 $R^{7'}$ 、 $\sim R^{9'}$ 、 $R^{31'}$ 、 $\sim R^{38'}$ 、 $R^{3a'}$ 、 $R^{3b'}$ の説明については、一般式(1')における対応する記載を参照することができる。Aはハロゲン原子を表し、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を挙げることができる。塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましい。

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。上記の反応の詳細については、後述の合成例を参考にすることができる。また、一般式(1')で表される化合物は、その他の公知の合成反応を組み合わせることによっても合成することができる。

【0051】

[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。

【0052】

有機エレクトロルミネッセンス素子においては、正負の両電極より発光材料にキャリアを注入し、励起状態の発光材料を生成し、発光させる。通常、キャリア注入型の有機エレクトロルミネッセンス素子の場合、生成した励起子のうち、励起一重項状態に励起されるのは25%であり、残り75%は励起三重項状態に励起される。従って、励起三重項状態からの発光であるリン光を利用するほうが、エネルギーの利用効率が高い。しかしながら、励起三重項状態は寿命が長いため、励起状態の飽和や励起三重項状態の励起子との相互作用によるエネルギーの失活が起こり、一般にリン光の量子収率が高くないことが多い。一方、遅延蛍光材料は、項間交差等により励起三重項状態へとエネルギーが遷移した後、三重項-三重項消滅あるいは熱エネルギーの吸収により、励起一重項状態に逆項間交差され蛍光を放射する。有機エレクトロルミネッセンス素子においては、なかでも熱エネルギーの吸収による熱活性化型の遅延蛍光材料が特に有用であると考えられる。有機エレクト

10

20

30

40

50

ロルミネッセンス素子に遅延蛍光材料を利用した場合、励起一重項状態の励起子は通常通り蛍光を放射する。一方、励起三重項状態の励起子は、デバイスが発する熱を吸収して励起一重項へ項間交差され蛍光を放射する。このとき、励起一重項からの発光であるため蛍光と同波長での発光でありながら、励起三重項状態から励起一重項状態への逆項間交差により、生じる光の寿命（発光寿命）は通常の蛍光やりん光よりも長くなるため、これらよりも遅延した蛍光として観察される。これを遅延蛍光として定義できる。このような熱活性化型の励起子移動機構を用いれば、キャリア注入後に熱エネルギーの吸収を経ることにより、通常は25%しか生成しなかった励起一重項状態の化合物の比率を25%以上に引き上げることが可能となる。100未満の低い温度でも強い蛍光および遅延蛍光を発する化合物を用いれば、デバイスの熱で十分に励起三重項状態から励起一重項状態への項間交差が生じて遅延蛍光を放射するため、発光効率を飛躍的に向上させることができる。

10

【0053】

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。

20

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

30

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

【0054】

(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。

【0055】

(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 eV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、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ (IDIXO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100 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

50

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10~1000nm、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

【0056】

(陰極)

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

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

【0057】

(発光層)

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

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

発光層におけるホスト材料としては、正孔輸送能、電子輸送能を有し、かつ発光の長波

長化を防ぎ、なおかつ高いガラス転移温度を有する有機化合物であることが好ましい。

【0058】

(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。

【0059】

(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。

10

【0060】

(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。

20

【0061】

(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。

【0062】

(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。

30

【0063】

(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

40

50

は例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、ポリアリーラルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーラルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフ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。

【0064】

(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。

【0065】

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。

【0066】

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、 $R_1 \sim R_{10}$ は、各々独立に水素原子または置換基を表す。nは3~5の整数を表す。

【0067】

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。

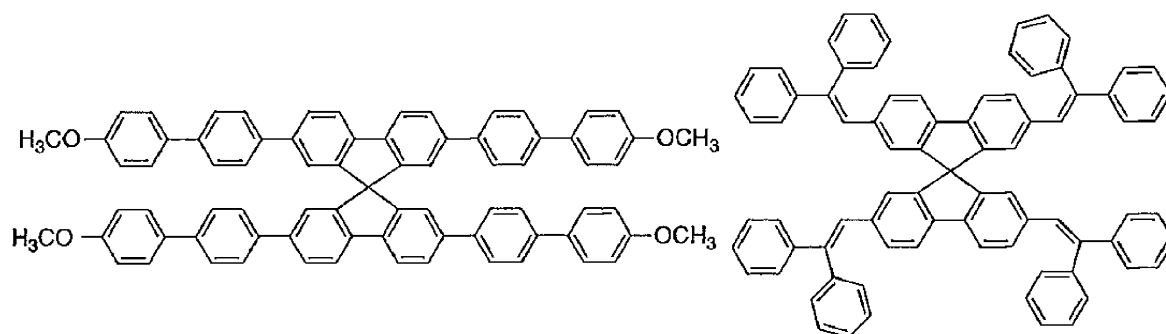
【0068】

10

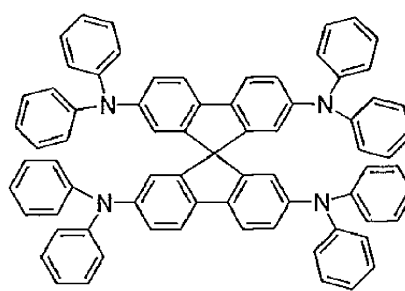
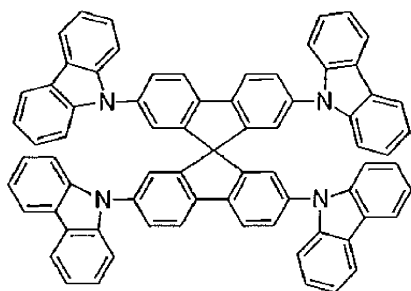
20

30

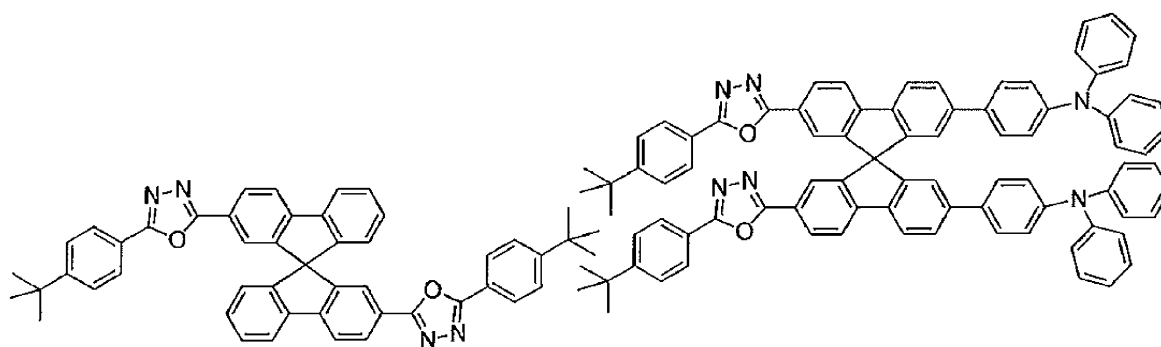
【化 3 1】



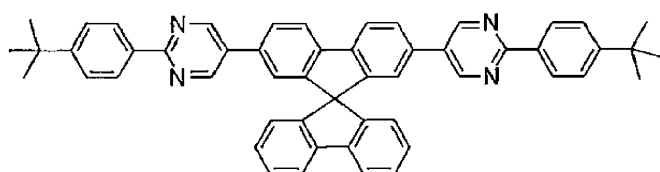
10



20

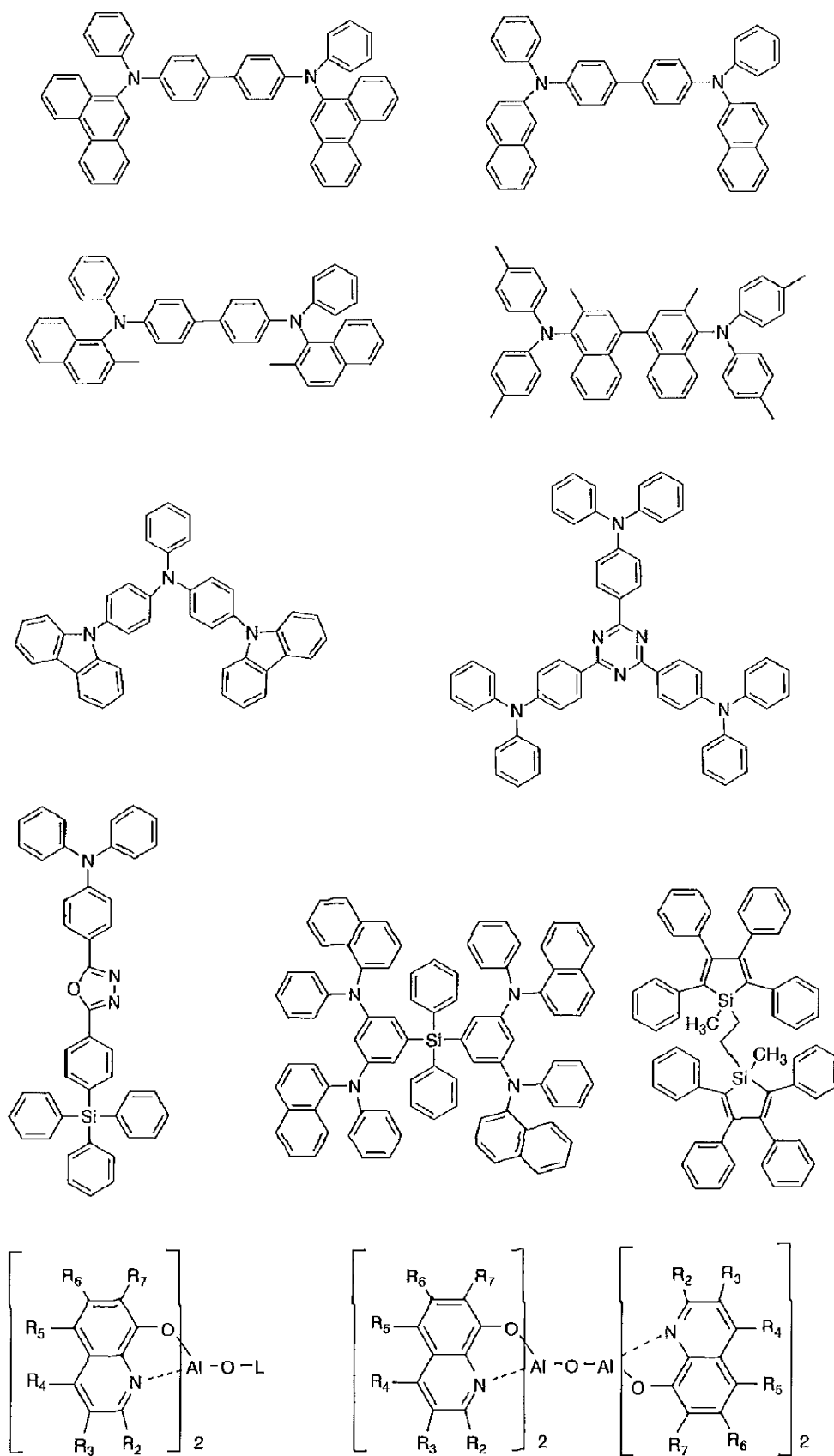


30



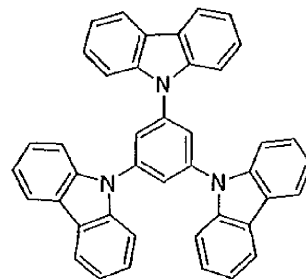
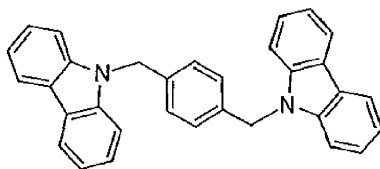
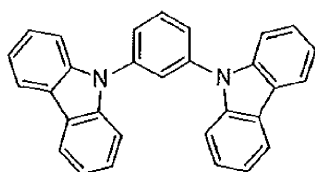
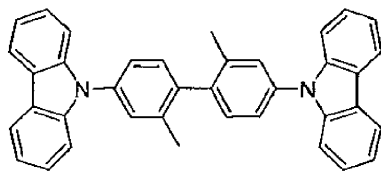
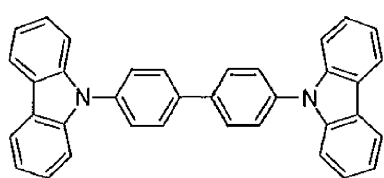
【 0 0 6 9 】

【化 3 2】

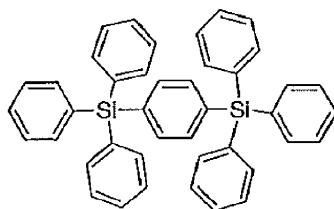


【 0 0 7 0 】

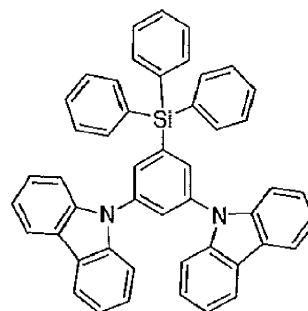
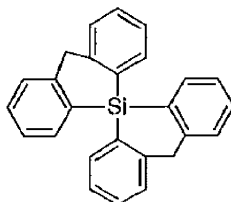
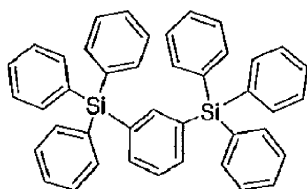
【化 3 3】



10



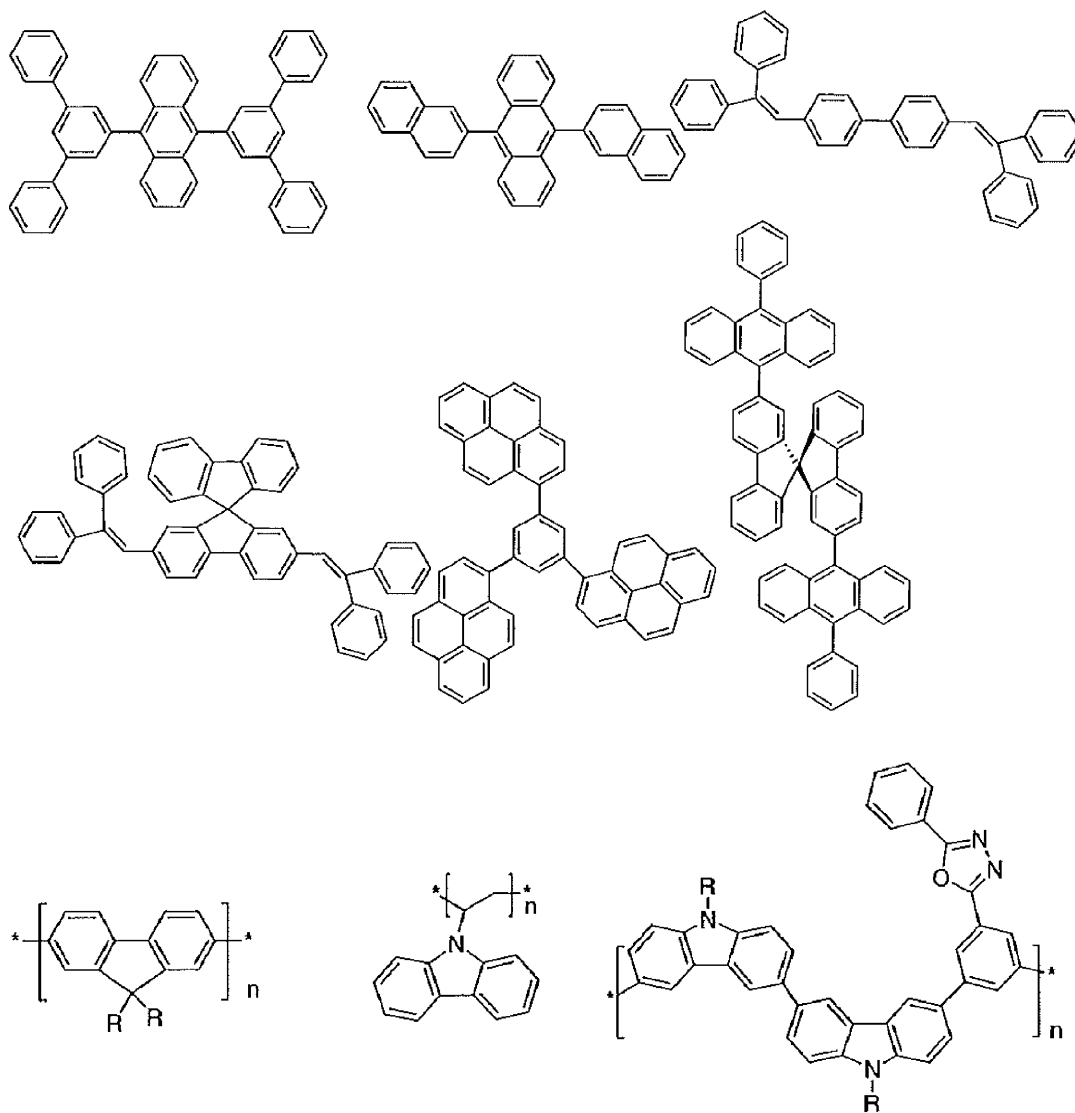
20



30

【 0 0 7 1 】

【化 3 4】



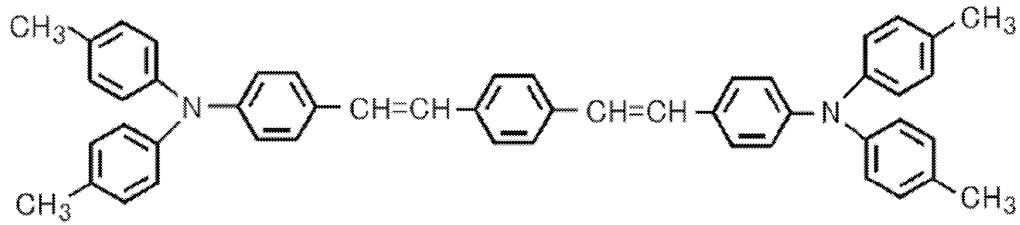
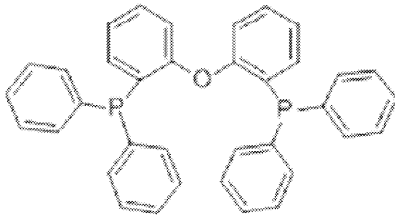
10

20

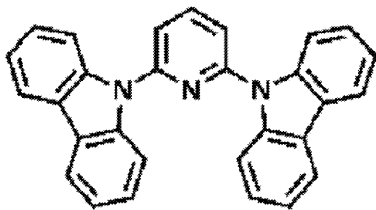
30

【 0 0 7 2】

【化 3 5】



10



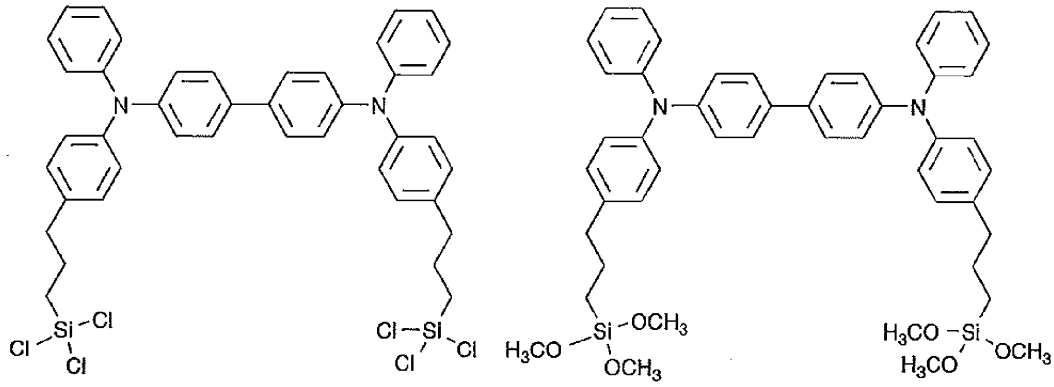
20

【 0 0 7 3 】

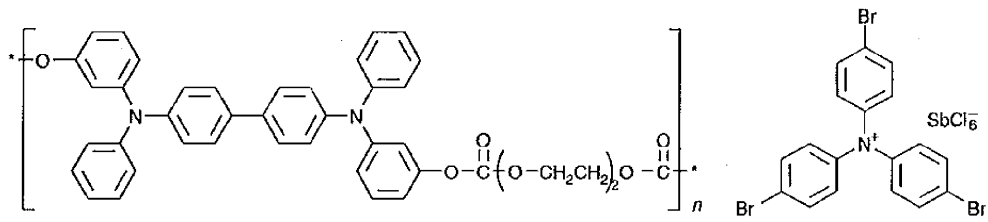
次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 7 4 】

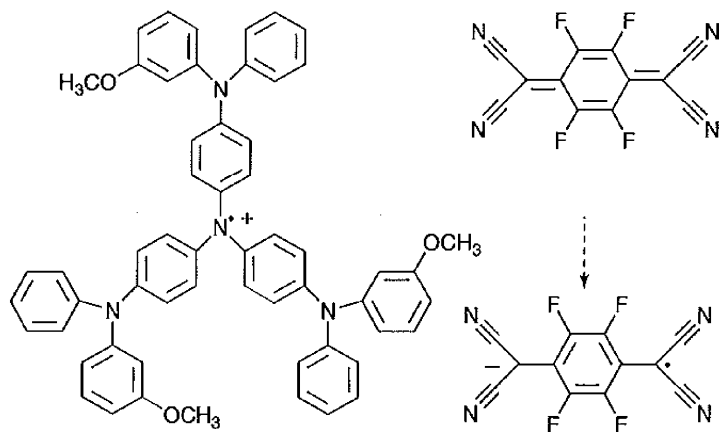
【化 3 6】



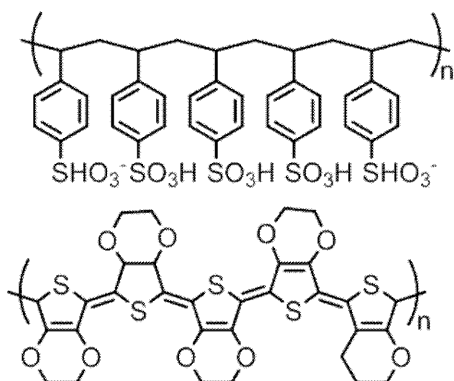
10



20



30



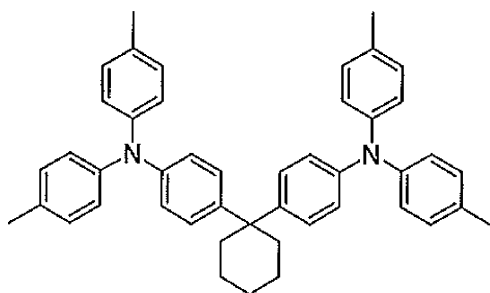
40

【 0 0 7 5】

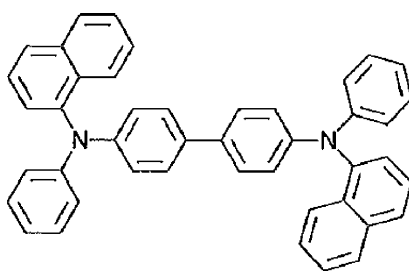
次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 7 6】

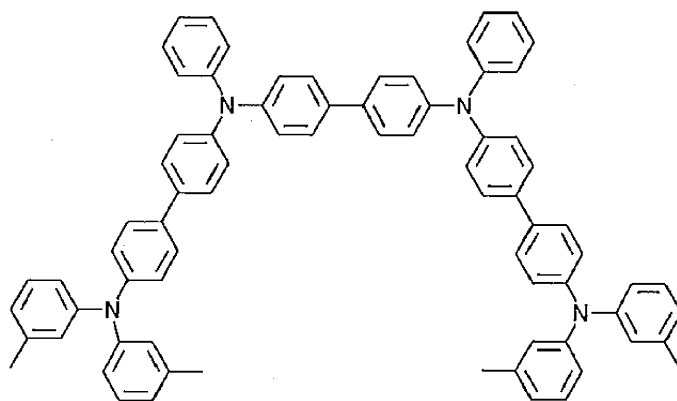
【化 3 7】



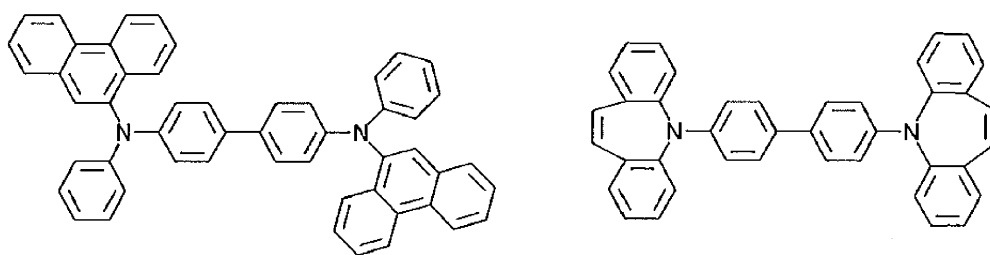
10



20

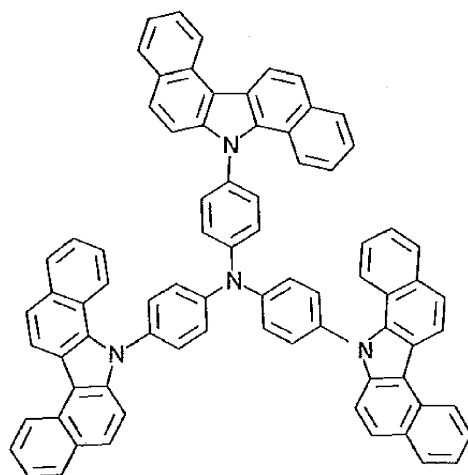
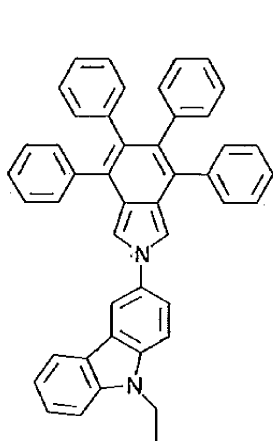


30

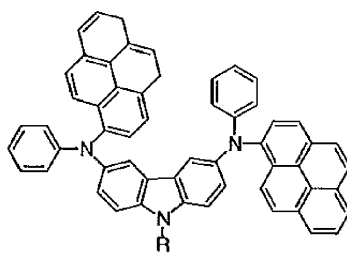
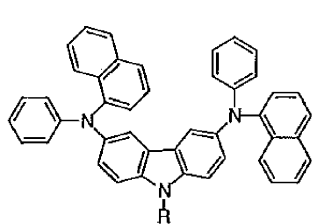


【 0 0 7 7 】

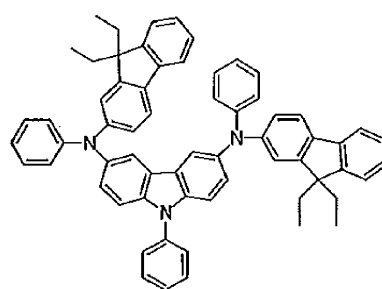
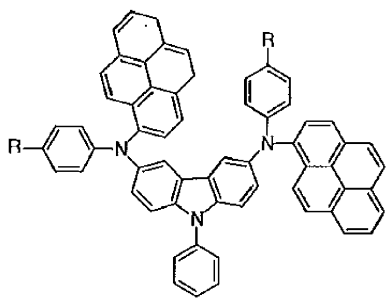
【化 3 8】



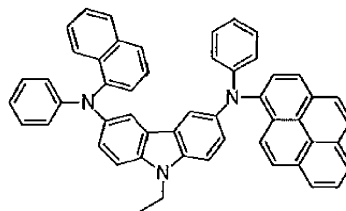
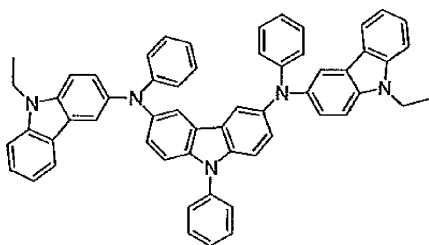
10



20



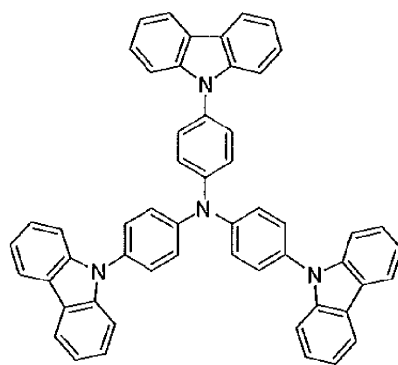
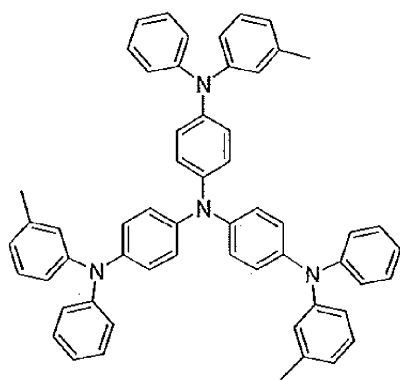
30



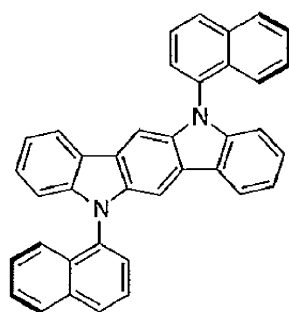
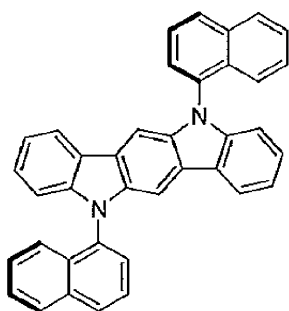
40

【 0 0 7 8 】

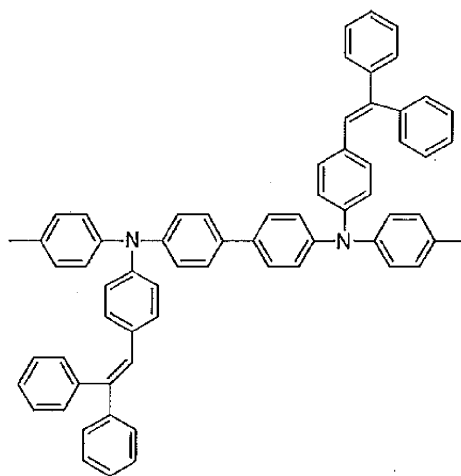
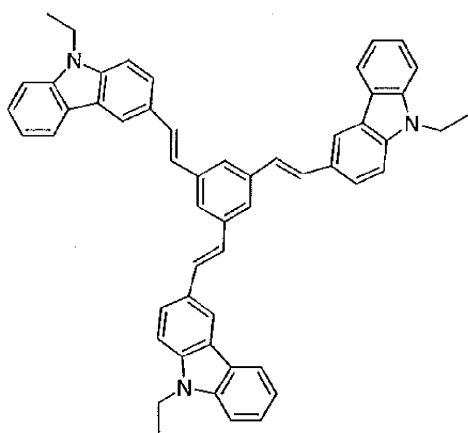
【化 3 9】



10



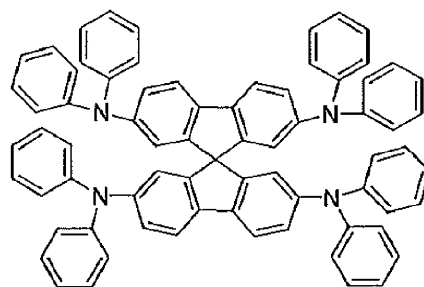
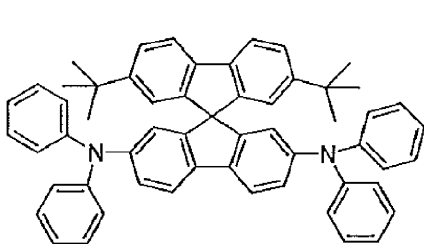
20



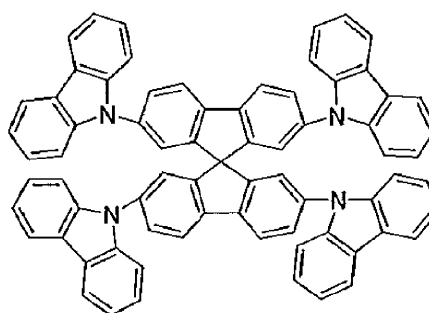
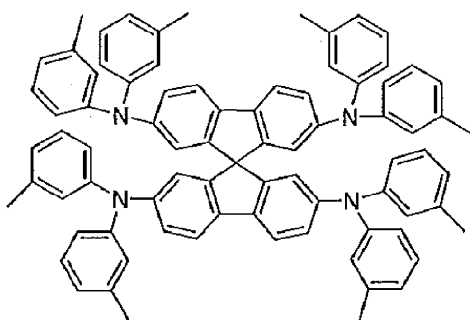
30

【 0 0 7 9 】

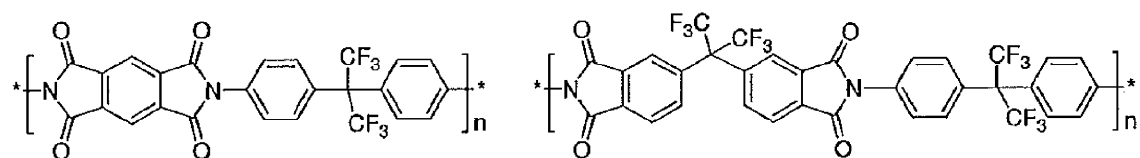
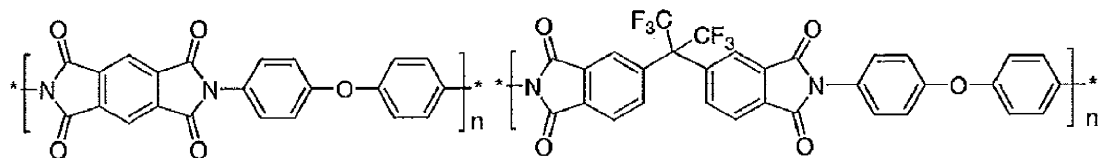
【化 4 0】



10



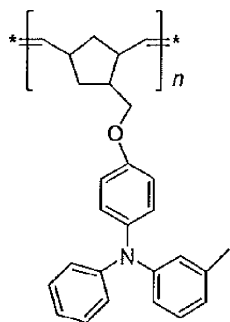
20



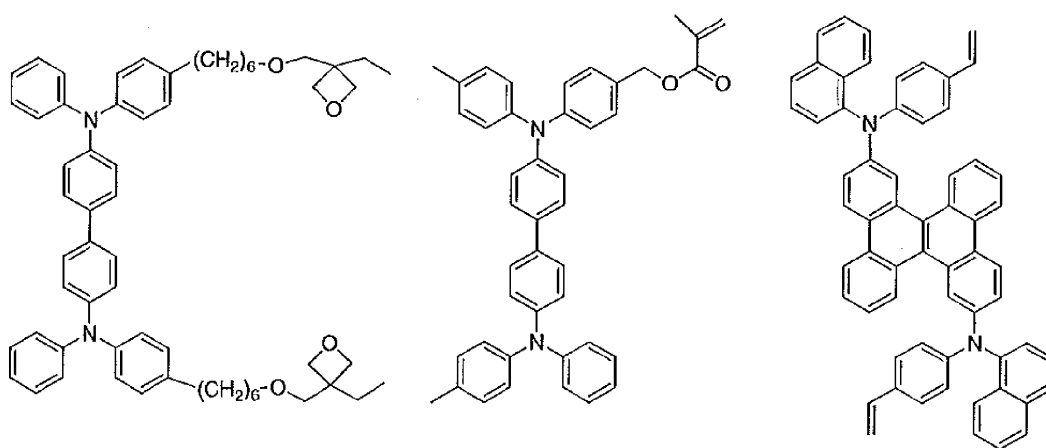
30

【 0 0 8 0】

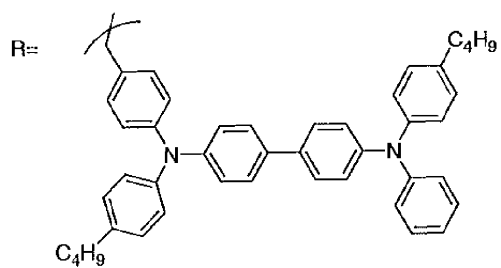
【化 4 1】



10



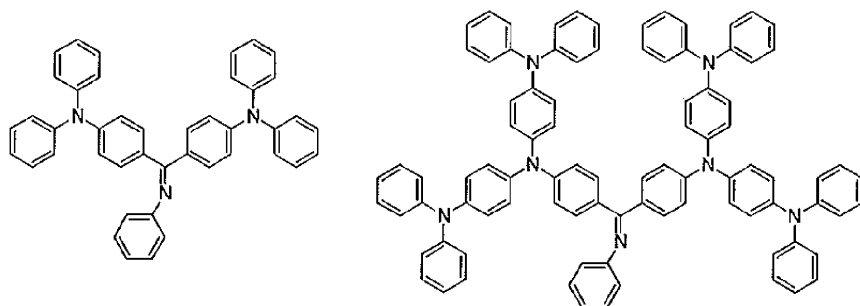
20



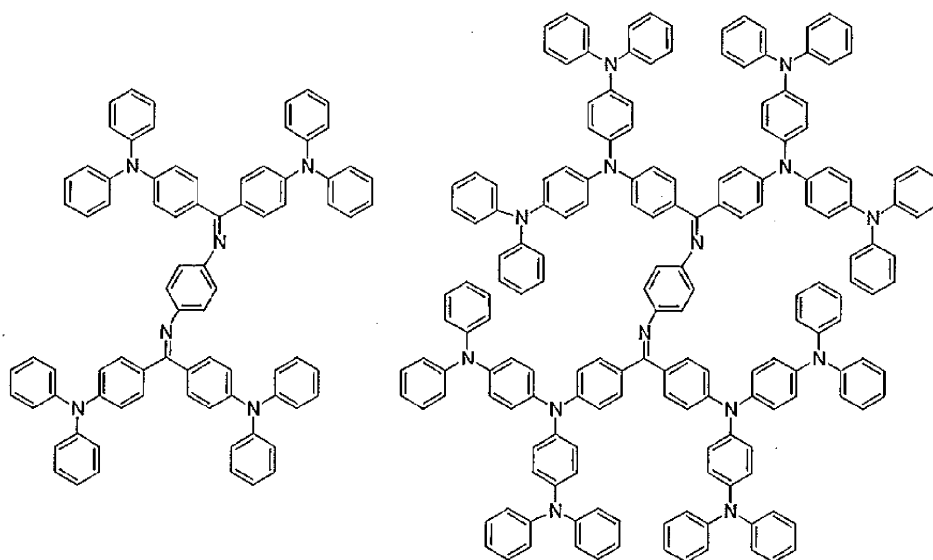
30

【 0 0 8 1 】

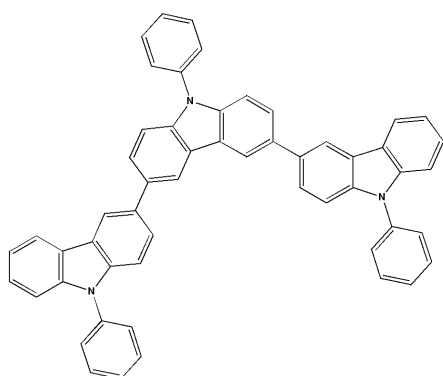
【化 4 2】



10



20



30

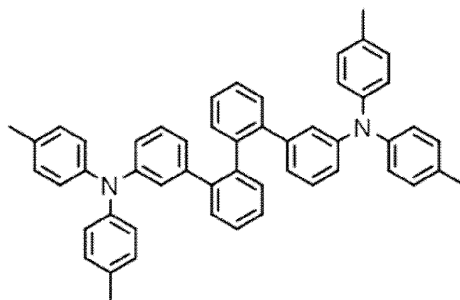
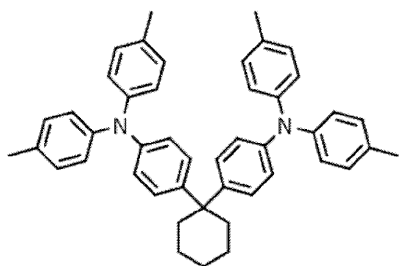
【 0 0 8 2 】

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。

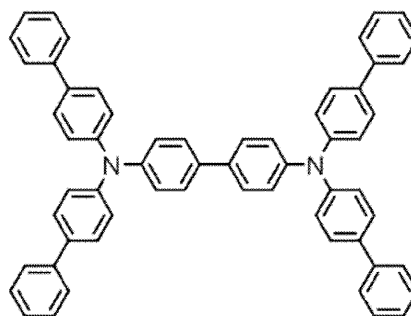
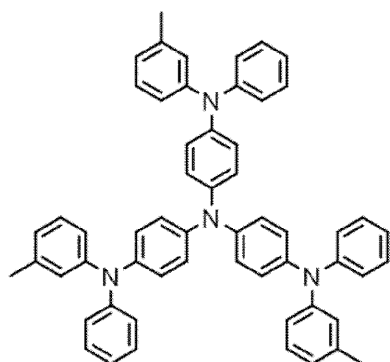
【 0 0 8 3 】

40

【化 4 3】



10



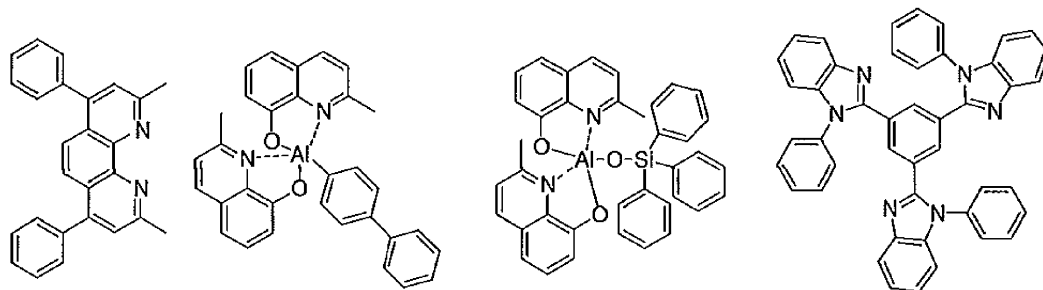
20

【 0 0 8 4 】

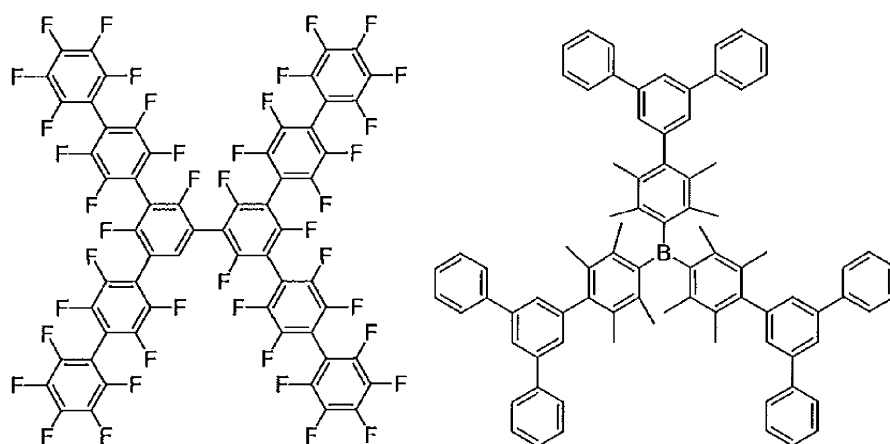
次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 8 5 】

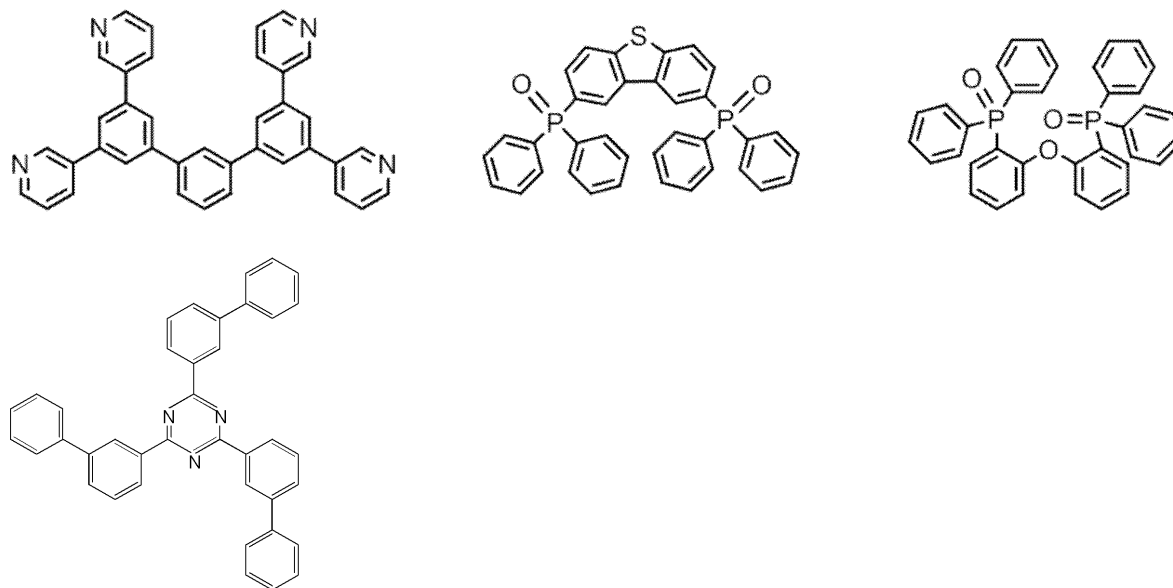
【化 4 4】



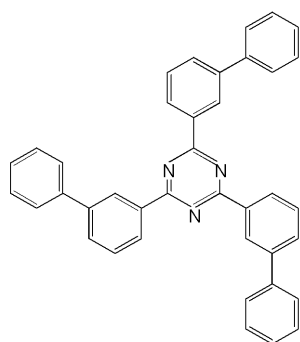
10



20



30



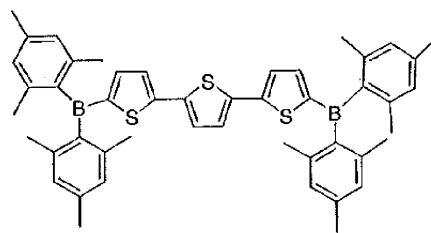
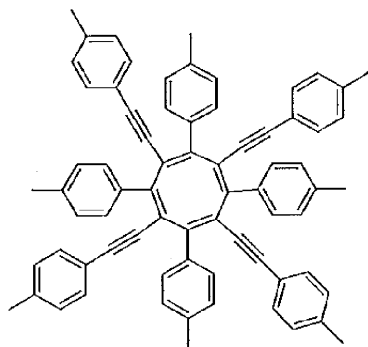
40

【 0 0 8 6】

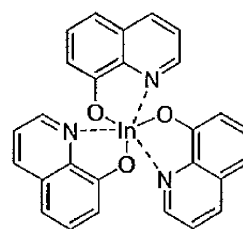
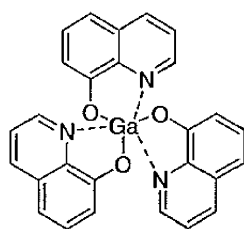
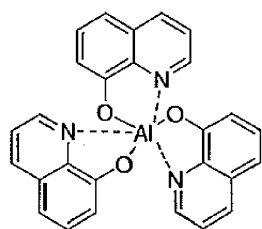
次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

【 0 0 8 7】

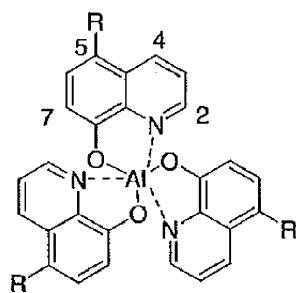
【化 4 5】



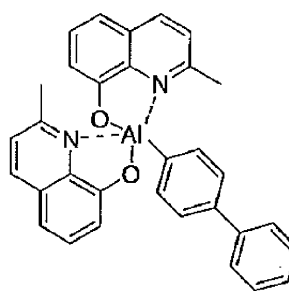
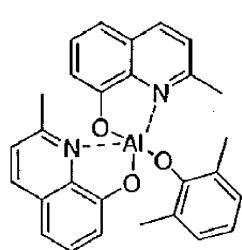
10



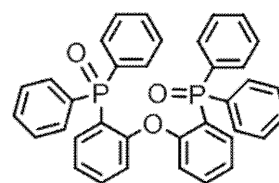
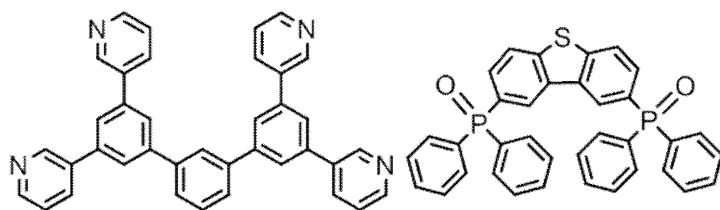
20



30

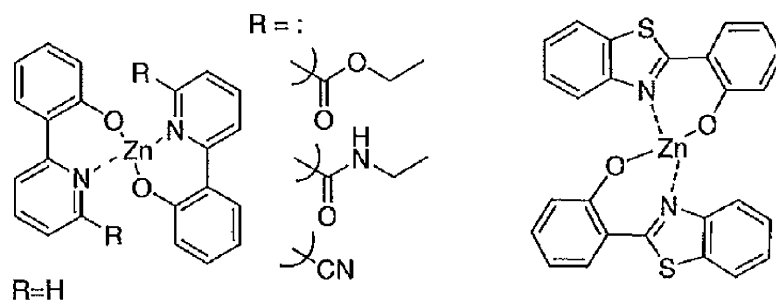


40

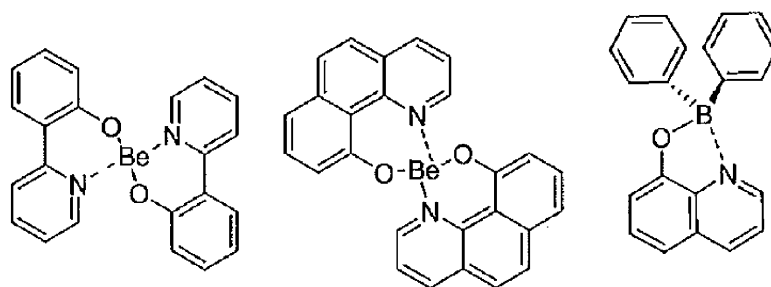


【 0 0 8 8 】

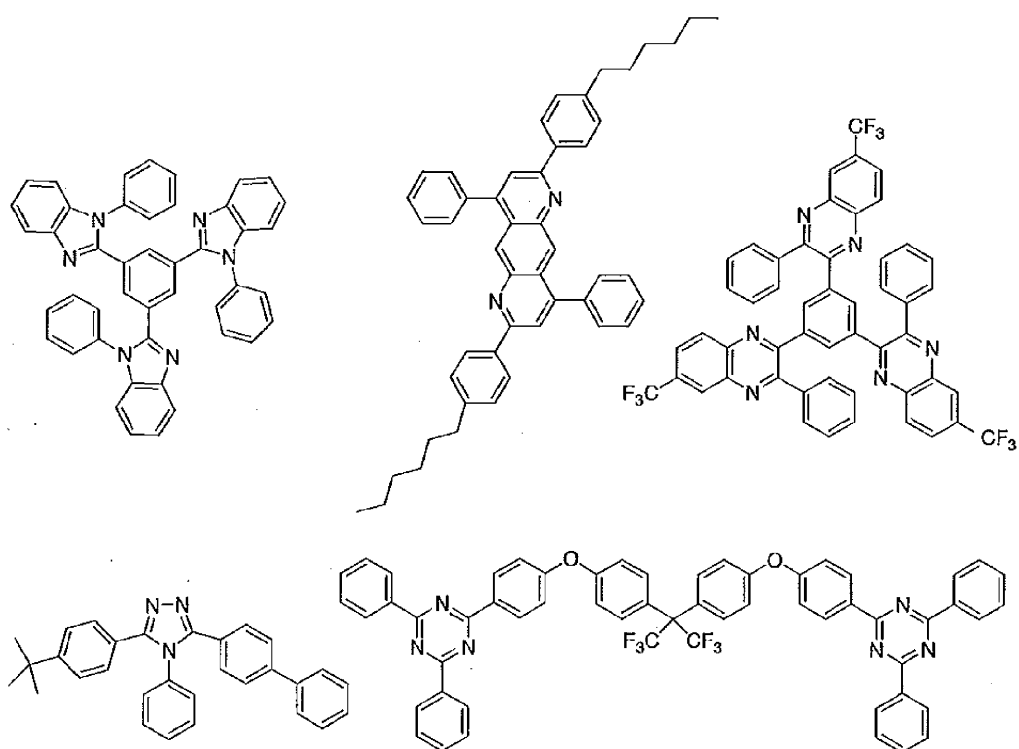
【化 4 6】



10



20

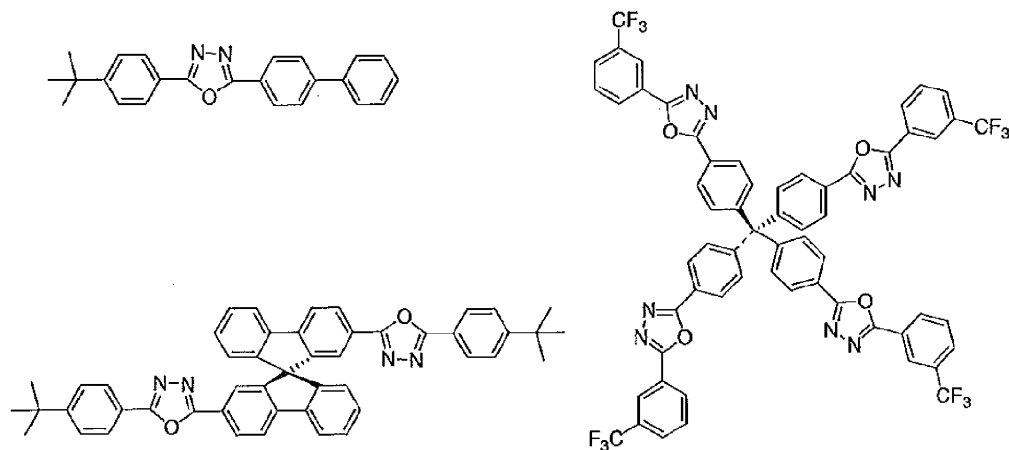


30

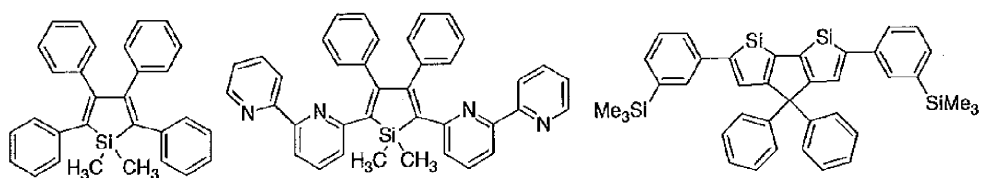
40

【 0 0 8 9 】

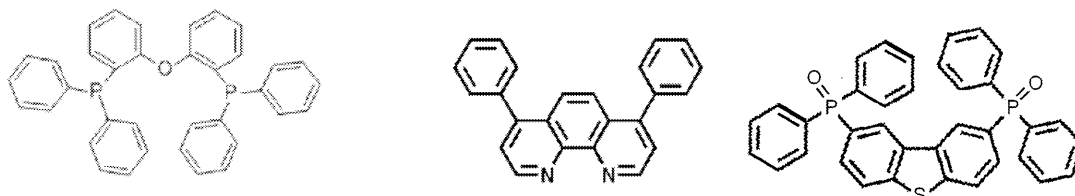
【化 4 7】



10



20



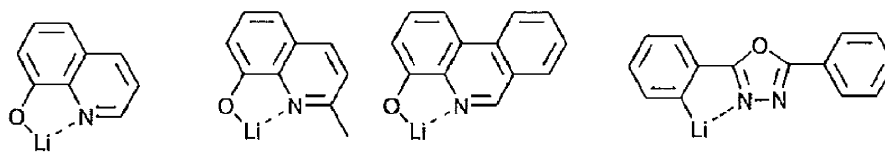
30

【 0 0 9 0】

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 9 1】

【化 4 8】



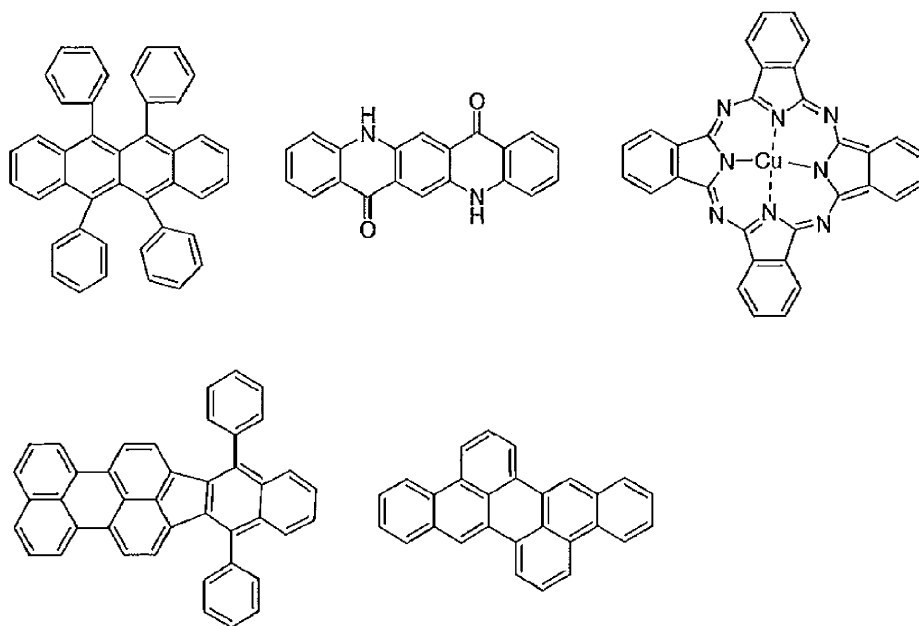
【 0 0 9 2】

40

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。

【 0 0 9 3】

【化 4 9】



10

【0094】

20

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

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

30

【0095】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。本発明によれば、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有させることにより、発光効率が大きく改善された有機発光素子が得られる。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子などの有機発光素子は、さらに様々な用途へ応用することが可能である。例えば、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いて、有機エレクトロルミネッセンス表示装置を製造することが可能であり、詳細については、時任静士、安達千波矢、村田英幸共著「有機ELディスプレイ」(オーム社)を参照することができる。また、特に本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、需要が大きい有機エ

40

【実施例】

【0096】

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。

【0097】

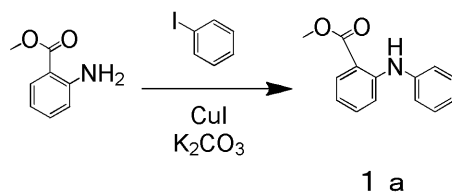
[中間体の合成]

実施例の各化合物を合成するための中間体を以下のようにして合成した。

50

(中間体 1 a の合成)

【化 5 0】



【0098】

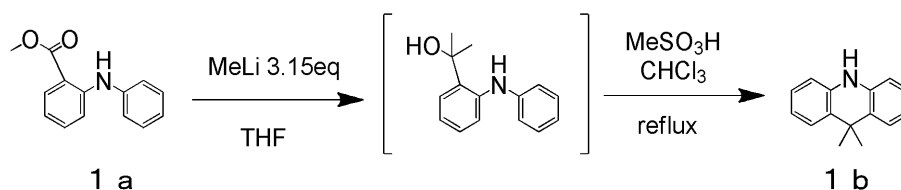
アントラニル酸メチル (349 . 2 g , 2310 mmol)、ヨードベンゼン (428 . 4 g , 2100 mmol)、炭酸カリウム (348 . 3 g , 2520 mmol)、ヨウ化銅 (20 . 0 g , 105 mmol) を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、180 で加熱撹拌した。

反応終了後、この混合物を室温まで冷却し、ヘキサン 500 ml で希釈し、セライトを用いて濾過した。得られたろ液を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 8 : 2 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製し、得られたフラクションを真空乾燥した。これにより、目的物の淡黄色オイル状液体 (中間体 1 a) を収量 427 . 5 g、収率 90 % で得た。

【0099】

(中間体 1b の合成)

【化 5 1】



【0100】

中間体 1 a (109 . 08 g , 480 mmol)、脱水テトラヒドロフラン 960 ml を三口フラスコに入れ、-40 に冷却した。この溶液に、メタンガスの発生に注意しつつ、メチルリチウムの 3 . 0 M ジエトキメタン溶液 (504 ml , 1512 mmol) を 30 分かけて滴下した。その後、この混合物を 0 で 1 時間撹拌し、次いで室温で一晩撹拌した。その後、0 に冷却した混合物に、慎重にメタノールを滴下して残存メチルリチウムを失活させた。

この混合物を濃縮した後、ジクロロメタンで希釈して溶液を得た。この溶液を、分液ロートを用いて水洗し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。その後、溶液を濾過した後、濃縮し、真空乾燥 (60 、6 h) を行ってオイル状液体を得た。このオイル状液体を三口フラスコに入れ、クロロホルム 960 ml、メタンスルホン酸 62 . 3 ml を加えて、窒素雰囲気下、3 時間還流させた。

この混合物を室温まで冷却した後、炭酸水素ナトリウム水溶液を用いて慎重に中和し、分液ロートを用いてクロロホルムによる抽出を行った。得られた抽出物を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 1 : 1 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを濃縮して得た濃縮物をトルエンとヘキサンの混合溶媒 (1 : 5 ml / g) で再結晶した。これにより、目的物の中間体 1 b を収量 47 . 9 g、収率 48 % で得た。

【0101】

(中間体 2 a の合成)

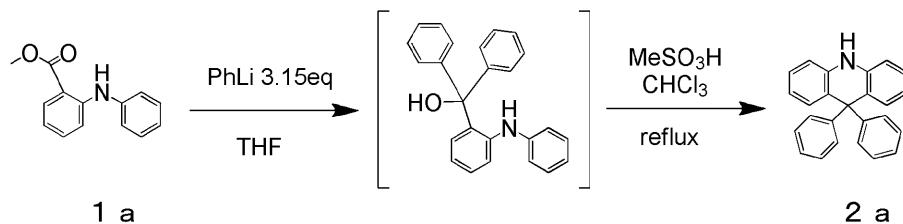
10

20

30

40

【化 5 2】



【0102】

中間体 1 a (38.18 g , 168 mmol)、脱水テトラヒドロフラン 336 ml を三口フラスコに入れて 0 に冷却し、この溶液にフェニルリチウムの 1.06 M シクロヘキサン - ジエチルエーテル溶液 (500 ml , 529 mmol) を 30 分かけて滴下した。その後、この混合物を 0 で 2 時間攪拌し、次いで室温で一晩攪拌した。その後、0

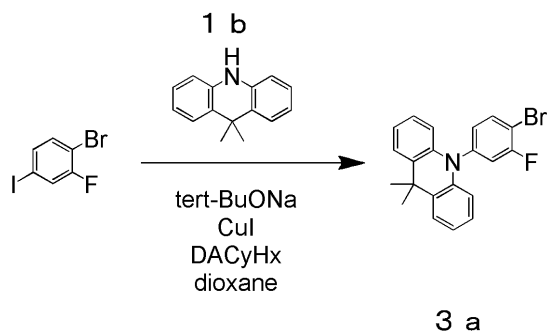
に冷却した混合物に、慎重にメタノールを滴下して残存フェニルリチウムを失活させた。この混合物を濃縮した後、ジクロロメタンで希釈して溶液を得た。この溶液を、分液ロートで水洗し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。その後、溶液を濾過した後、濃縮し、真空乾燥 (60 、 6 h) を行ってオイル状物質を得た。このオイル状物質を三口フラスコに入れ、クロロホルム 672 ml、メタンスルホン酸 21.8 ml を加えて、窒素雰囲気下、3 時間還流させた。

この混合物を室温まで冷却した後、炭酸水素ナトリウム水溶液を用いて慎重に中和し、分液ロートを用いてジクロロメタンによる抽出を行った。この抽出物を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物をトルエンとヘキサンの混合溶媒 (5 : 10 ml / g) で再結晶した。これにより、目的物の中間体 2 a を収量 27.9 g、収率 50 % で得た。

【0103】

(中間体 3 a の合成)

【化 5 3】



【0104】

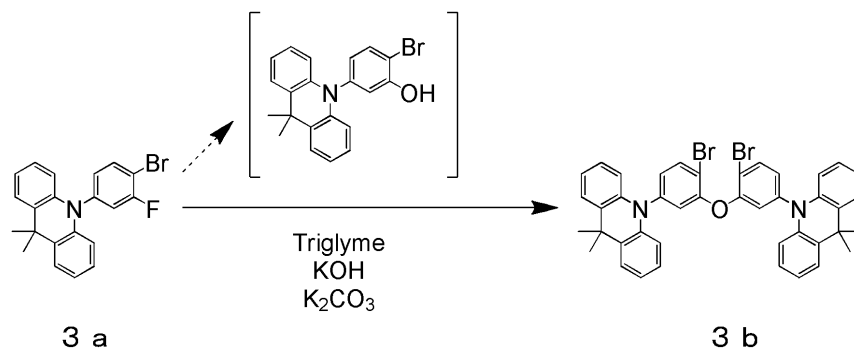
1 - ブロモ - 2 - フルオロ - 4 - ヨードベンゼン (25.3 g , 84 mmol)、中間体 1 b (17.58 g , 84 mmol)、ナトリウム - tert - ブトキシド (12.11 g , 126 mmol)、ヨウ化銅 (0.32 g , 1.68 mmol)、trans - 1, 2 - ジアミノシクロヘキサン (1.01 ml , 8.4 mmol)、1, 4 - ジオキサン 84 ml を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、24 時間還流させた。

反応終了後、この混合物をトルエン 200 ml で希釈し、セライトで濾過した。得られたる液をシリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン : トルエン = 6 : 4 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを濃縮して得た濃縮物をヘキサン (5 ml / g , 5) で再結晶した。これにより、目的物の中間体 3 a を収量 19.68 g、収率 61 % で得た。

【0105】

(中間体 3 b の合成)

【化 5 4】



10

【0106】

中間体 3 a (7 . 6 5 g , 2 0 m m o l) 、水酸化カリウム (1 . 1 2 g , 2 0 m m o l) 、炭酸カリウム (2 . 7 6 g , 2 0 m m o l) 、トリエチレングリコールジメチルエーテル 5 m l を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、190 で48時間加熱撹拌した。反応終了後、この混合物を室温まで冷却した後、トルエン 200 m l を加えて希釈し、さらに水 200 m l を加えて超音波処理を10分行った。

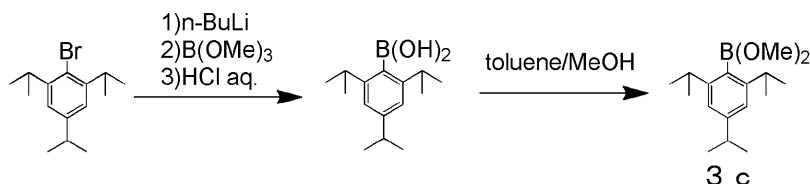
この混合物を、セライトを用いて濾過し、ろ液を回収した。このろ液を分液ロートに移し、水洗を2回行い、有機相を回収した。得られた有機相を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：トルエン = 6 : 4 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製し、さらに得られたフラクションを濃縮して得た濃縮物をヘキサンで再結晶した。これにより、目的物の中間体 3 b を収量 4 . 1 6 g 、収率 5 6 % で得た。

20

【0107】

(中間体 3 c の合成)

【化 5 5】



30

【0108】

2 - ブロモ - 1 , 3 , 5 - トリイソプロピルベンゼン (4 3 . 9 g , 1 5 5 m m o l) 、脱水テトラヒドロフラン 1 5 5 m l を三口フラスコに入れ、- 7 8 に冷却した。この溶液に n - ブチルリチウムの 1 . 6 0 M ヘキサン溶液 (1 0 6 . 6 m l , 1 7 0 . 5 m m o l) をシリンジで加え、- 7 8 で10分撹拌した後、トリメトキシボラン (3 4 . 5 m l , 3 1 0 m m o l) を2分かけて滴下した。その後、この混合物を - 7 8 で30分撹拌した後、室温で一晩撹拌した。

この混合物をエバポレータで半分程度に濃縮し、1 N 塩酸水溶液 300 m l を加え、室温で4時間撹拌した。得られた溶液を分液ロートに入れ、ジクロロメタンによる抽出を行った。抽出物を、2回水洗した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、濾過、濃縮した。この濃縮物を、モレキュラーシーブスの中に仕込んだソックスレー抽出器を取り付けた三口フラスコに入れ、トルエン 200 m l 、メタノール 30 m l を加えて12時間還流させた。反応終了後、混合物を室温まで冷却し、エバポレータで濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 8 : 2 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションの溶媒を真空乾燥で除去し、目的物の無色オイル状物質 (中間体 3 c) を収量 3 1 . 8 8 g 、収率 7 4 % で得た。

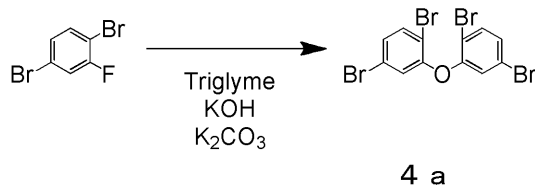
40

【0109】

(中間体 4 a の合成)

50

【化 5 6】



【0 1 1 0】

1, 4 - ジブロモ - 2 - フルオロベンゼン (50 . 78 g , 200 mmol)、水酸化カリウム (6 . 73 g , 120 mmol)、炭酸カリウム (27 . 64 g , 200 mmol)、トリエチレングリコールジメチルエーテル 20 ml を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、180 で96時間加熱撹拌した。反応終了後、混合物を室温まで冷却し、トルエン 500 ml を加えて希釈し、さらに水 500 ml を加えて超音波処理を10分行った。

10

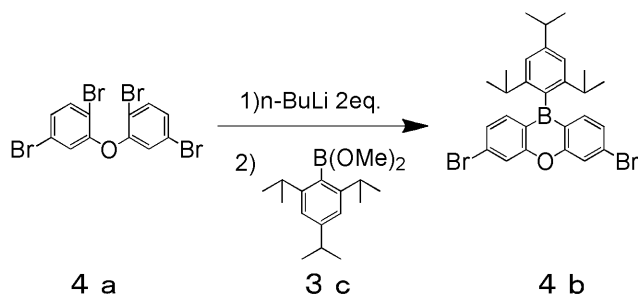
この混合物を、セライトを用いて濾過し、ろ液を回収した。このろ液を分液ロートに移し、水洗を2回行い、有機相を回収した。得られた有機相を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 7 : 3 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製し、得られたフラクションの濃縮物をヘキサンで再結晶した。これにより、目的物の中間体 4 a を収量 8 . 51 g、収率 18 % で得た。

20

【0 1 1 1】

(中間体 4 b の合成)

【化 5 7】



30

【0 1 1 2】

中間体 4 a (2 . 91 g , 6 mmol)、脱水ジエチルエーテル 60 ml を三口フラスコに入れて懸濁させ、0 に冷却した。この溶液に n - ブチルリチウムの 1 . 58 M ヘキサン溶液 (7 . 6 ml , 12 mmol) をシリンジで加え、0 で10分撹拌した後、中間体 3 c (1 . 66 g , 6 mmol) をジエチルエーテル 6 ml に溶解した溶液を2分かけて滴下した。その後、この混合物を0 で30分撹拌した後、室温で一晩撹拌した。

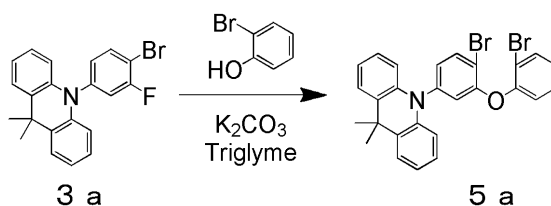
この混合物をエバポレータで濃縮し、得られた濃縮物をジクロロメタン 100 ml で希釈して溶液を得た。得られた溶液をシリカゲルパッドで濾過し、ろ液を濃縮した。濃縮によって析出した試料をヘキサンでリンスしてろ取し、真空乾燥 (50 、8時間) した。これにより、目的物の中間体 4 b を収量 1 . 58 g、収率 49 % で得た。

40

【0 1 1 3】

(中間体 5 a の合成)

【化 5 8】



50

【0114】

中間体 3 a (7 . 6 5 g , 2 0 m m o l)、2 - ブロモフェノール (1 3 . 8 4 g , 8 0 m m o l)、炭酸カリウム (1 1 . 0 6 g , 8 0 m m o l)、トリエチレングリコールジメチルエーテル 1 0 m l を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、1 9 0 ° で 7 2 時間加熱撹拌した。反応終了後、混合物を室温まで冷却した後、トルエン 2 0 0 m l を加えて希釈し、さらに水 2 0 0 m l を加えて超音波処理を 1 0 分行った。

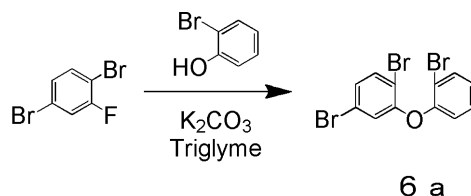
この混合物を、セライトを用いて濾過し、ろ液を回収した。このろ液を分液ロートに移し、水洗を 2 回行い、有機相を回収した。得られた有機相を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：トルエン = 6 : 4 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製し、得られたフラクションを濃縮して白色固体を得た。この白色固体をヘキサンでリンスした後、真空乾燥して目的物の中間体 5 a を収量 9 . 4 0 g、収率 8 8 % で得た。

10

【0115】

(中間体 6 a の合成)

【化 5 9】



20

【0116】

2 , 5 - ジブロモフルオロベンゼン (2 5 . 3 9 g , 1 0 0 m m o l)、2 - ブロモフェノール (2 5 . 9 5 g , 1 5 0 m m o l)、炭酸カリウム (2 7 . 6 4 g , 2 0 0 m m o l)、トリエチレングリコールジメチルエーテル 1 0 m l を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、1 9 0 ° で 7 2 時間加熱撹拌した。反応終了後、この混合物を室温まで冷却した後、トルエン 2 0 0 m l を加えて希釈し、さらに水 2 0 0 m l を加えて超音波処理を 1 0 分行った。

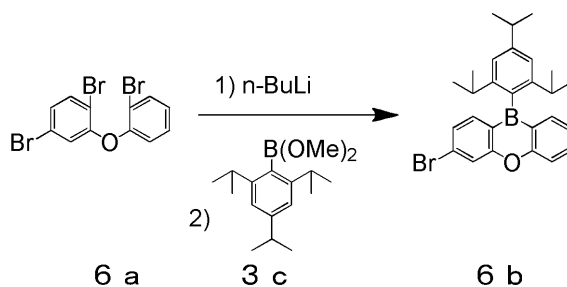
この混合物を、セライトを用いて濾過し、ろ液を回収した。このろ液を分液ロートに移し、水洗を 2 回行い、有機相を回収した。得られた有機相を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 9 : 1 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製し、濃縮した。これにより、目的物の白色固体 (中間体 6 a) を収量 5 0 . 5 3 g、収率 8 9 % で得た。

30

【0117】

(中間体 6 b の合成)

【化 6 0】



40

【0118】

中間体 6 a (3 2 . 5 5 g , 8 0 m m o l)、脱水ジエチルエーテル 4 0 0 m l を三口フラスコに入れて溶解させ、0 ° に冷却した。この溶液に n - ブチルリチウムの 1 . 6 0 M ヘキサン溶液 (1 0 2 . 5 m l , 1 6 4 m m o l) をシリンジで加え、0 ° で 1 0 分撹拌した。その後、この混合物に、中間体 3 c (2 2 . 1 0 g , 8 0 m m o l) をジエチル

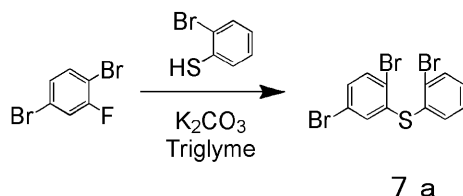
50

エーテル 40 ml に溶解した溶液を 5 分かけて滴下し、0 で 30 分撹拌した後、室温で一晩撹拌した。

この混合物をエバポレータで濃縮し、トルエン 500 ml で希釈して溶液を得た。この溶液を、分液ロートで 2 回水洗し、無水硫酸マグネシウムで乾燥、濾過した後、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 9 : 1 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを、ヘキサンを用いて 5 で再結晶した。これにより、目的物の中間体 6 b を収量 16.51 g、収率 45 % で得た。

(中間体 7 a の合成)

【化 6 1】



10

【0119】

2, 5 - ジブロモフルオロベンゼン (15.23 g, 60 mmol)、2 - ブロモベンゼンチオール (9.45 g, 50 mmol)、炭酸カリウム (13.82 g, 100 mmol)、トリエチレングリコールジメチルエーテル 10 ml を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、180 で 24 時間加熱撹拌した。反応終了後、この混合物を室温まで冷却した後、トルエン 100 ml を加えて希釈し、さらに水 100 ml を加えて超音波処理を 10 分行った。

20

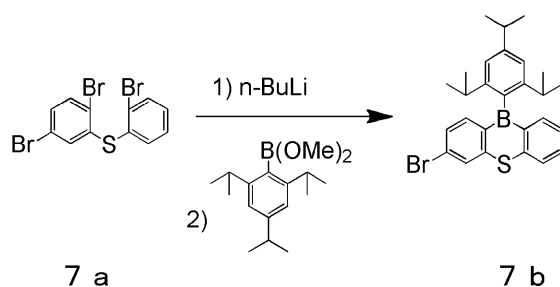
この混合物を、セライトを用いて濾過し、ろ液を回収した。このろ液を分液ロートに移し、水洗を 2 回行い、有機相を回収した。得られた有機相を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、濾過、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサンを展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを濃縮、真空乾燥して目的物の無色オイル状物質 (中間体 7 a) を収量 14.01 g、収率 66 % で得た。

【0120】

(中間体 7 b の合成)

30

【化 6 2】



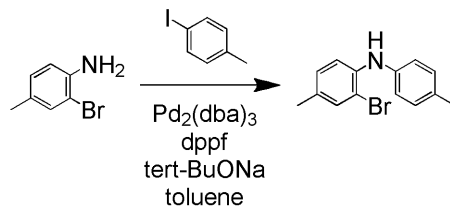
40

中間体 6 a の代わりに中間体 7 a を用い、各原料の量をモル換算で 0.41 倍にした以外は中間体 6 b の合成方法と同様にして中間体 7 b を合成した。得られた中間体 7 b は収量 2.49 g、収率 16 % であった。

【0121】

(中間体 8 a の合成)

【化 6 3】



8 a

【 0 1 2 2 】

10

2 - ブロモ - 4 - メチルアニリン (50 . 23 g , 270 mmol)、4 - ヨードトルエン (64 . 75 g , 297 mmol)、ナトリウム - tert - ブトキシド (38 . 92 g , 405 mmol)、酢酸パラジウム (606 mg , 2 . 7 mmol)、1 , 1' - ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン (1 . 50 g , 2 . 7 mmol)、脱水トルエン 540 ml を三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下で 8 時間還流撹拌した。

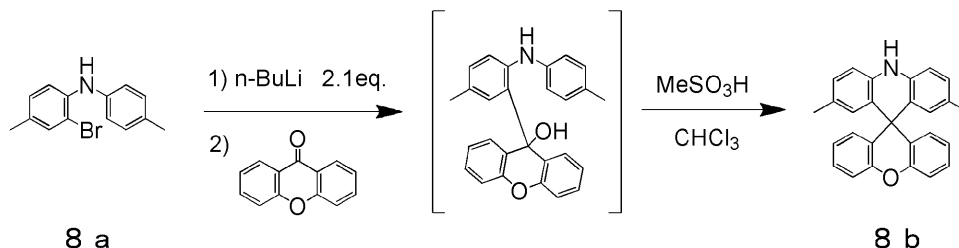
反応終了後、混合物を室温まで冷却した後、トルエン 500 ml を加えて希釈し、得られた溶液を、セライトを用いて濾過し濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：ジクロロメタン = 9 : 1 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを濃縮し、真空乾燥して目的物の無色オイル状液体 (中間体 8 a) を収量 54 . 85 g、収率 74 % で得た。

20

【 0 1 2 3 】

(中間体 8 b の合成)

【化 6 4】



8 a

8 b

30

【 0 1 2 4 】

中間体 8 a (16 . 57 g , 60 mmol)、脱水テトラヒドロフラン 240 ml を三口フラスコに入れて - 78 ° に冷却し、この溶液に n - ブチルリチウムの 2 . 65 M ヘキサン溶液 (47 . 5 ml , 126 mmol) をシリンジで加えた。その後、反応溶液を 0 ° で 50 分撹拌した。その後、この反応溶液に、キサントンの粉末 (12 . 95 g , 66 mmol) を加え、0 ° で 30 分撹拌した後、室温で 2 時間撹拌した。

反応終了後、反応溶液に少量の水を加えて失活させ、分液ロートを用いてジクロロメタンによる抽出を行った。得られた抽出物を、無水硫酸マグネシウムで乾燥、濾過した後、濃縮して反応粗物を得た。

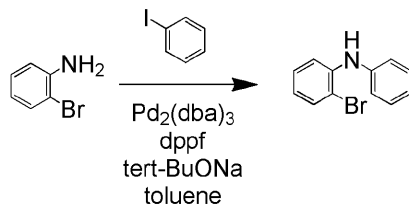
40

この反応粗物を三口フラスコに入れ、クロロホルム 600 ml、メタンスルホン酸 3 . 9 ml を加えて、窒素雰囲気下、3 時間還流させた。この混合物を、室温まで冷却した後、分液ロートを用いて水洗した。水洗した混合物を、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮して析出物を得た。この析出物をエタノールで再結晶して目的物の中間体 8 b を収量 10 . 2 g、収率 45 % で得た。

【 0 1 2 5 】

(中間体 9 a の合成)

【化 6 5】



9 a

原料として 2 - ブロモアニリン (50 . 06 g , 291 mmol) と 4 - ヨードベンゼン (62 . 43 g , 306 mmol) を用いた以外は、中間体 8 a の合成方法と同様にし

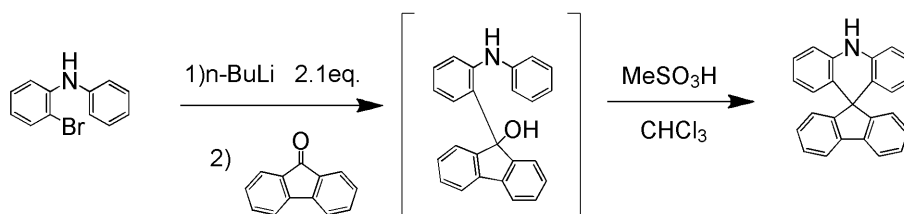
10

て中間体 9 a を合成した。得られた中間体 9 a は、収量 71 . 38 g、収率 99 % であった。

【 0 1 2 6】

(中間体 9 b の合成)

【化 6 6】



9 a

9 b

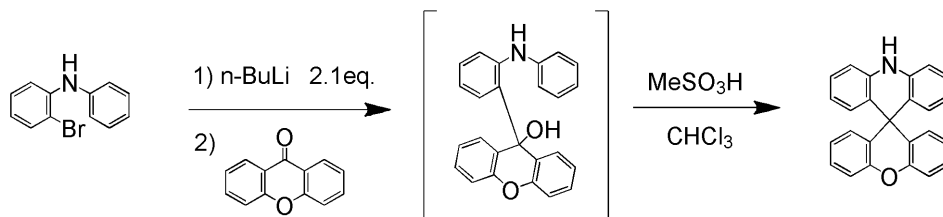
20

原料として中間体 9 a (24 . 81 g , 100 mmol)、フルオレノン (19 . 82 g , 110 mmol) を用いた以外は中間体 8 b の合成方法と同様にして中間体 9 b を合成した。得られた中間体 9 b は、収量 13 . 74 g、収率 41 % であった。

【 0 1 2 7】

(中間体 10 a の合成)

【化 6 7】



9 a

10 b

30

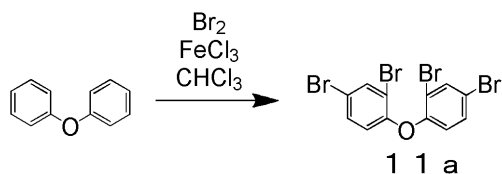
原料として中間体 9 a (12 . 9 g , 52 mmol) を用い、フルオレノンの代わりにキサントン (11 . 22 g , 57 . 2 mmol) を用いた以外は、中間体 9 b の合成方法と同様にして中間体 10 a を合成した。得られた中間体 10 a は、収量 13 . 45 g、収率 74 % であった。

40

【 0 1 2 8】

(中間体 11 a の合成)

【化 6 8】



【 0 1 2 9】

ジフェニルエーテル (17.02 g, 100 mmol)、FeCl₃ (0.81 g, 5 mmol)、ニトロベンゼン 100 ml を三口フラスコに入れ、0 に冷却した後、この混合物に臭素 (21.5 ml, 420 mmol) を 15 分かけて滴下した。この混合物を、0 で 30 分撹拌した後、室温で 1 時間撹拌し、さらに 120 で 24 時間加熱撹拌した。反応終了後、この混合物を室温まで冷却し、ジクロロメタン 200 ml で希釈した。得られた溶液を分液ロートで水洗した後、チオ硫酸ナトリウム / 水酸化ナトリウム水溶液で残存臭素を失活させた。この溶液を無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、シリカゲルパッドで濾過し、濃縮した。得られた濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサンを展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションの濃縮物をヘキサンで再結晶した。これにより、目的物の中間体 11a を収量 38.29 g、収率 79% で得た。

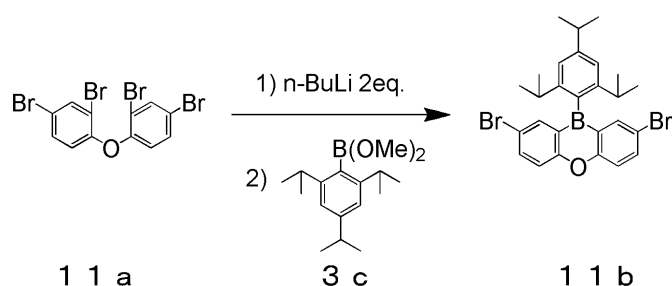
10

【 0 1 3 0】

(中間体 11b の合成)

20

【化 6 9】



30

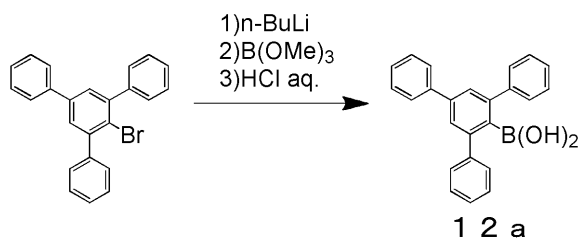
【 0 1 3 1】

原料として中間体 11a (14.57 g, 30 mmol) を用いた以外は、後述する化合物 5 の合成方法 A と同様にして中間体 11b を合成した。得られた中間体 11b は、収量 6.27 g、収率 39% であった。

【 0 1 3 2】

(中間体 12a の合成)

【化 7 0】



40

【 0 1 3 3】

2, 4, 6 - トリフェニルプロモベンゼン (25.5 g, 66 mmol)、脱水テトラヒドロフラン 264 ml を三口フラスコに入れ、- 80 に冷却し、この溶液に n - ブチルリチウムの 1.60 M ヘキサン溶液 (45.4 ml, 72.6 mmol) をシリンジで加えた。その後、反応溶液を - 80 で 15 分撹拌し、その後、トリメトキシボラン (14.7 ml, 132 mmol) をシリンジで加え、室温で一晩撹拌した。この反応溶液に、少量の水を加えて反応系を失活させた後、1 N 塩酸水溶液 400 ml を加え、一晩撹拌

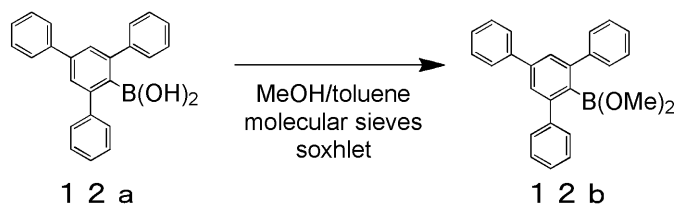
50

した。この反応溶液を、分液ロートを用いてジクロロメタンで抽出し、水洗した。水洗した反応溶液を、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、濾過、濃縮した。この濃縮物を、シリカゲルクロマトグラフィーにより、ジクロロメタン：酢酸エチル＝４：１の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを濃縮して得た濃縮物にヘキサン２００ｍｌを加えて析出物を得た。得られた析出物を、ろ取、真空乾燥（５０℃、６時間）して目的物の中間体１２ａを収量１５．９ｇ、収率６９％で得た。

【０１３４】

（中間体１２ｂの合成）

【化７１】



10

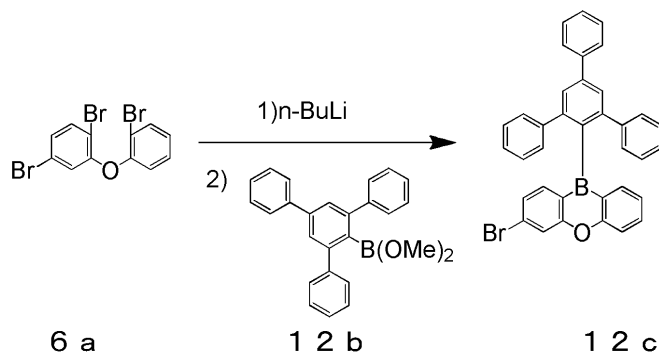
中間体１２ａ（１５．７６ｇ，４５ｍｍｏｌ）を、モレキュラーシーブスの中に仕込んだソックスレー抽出器を取り付けた三口フラスコに入れ、トルエン２００ｍｌ、メタノール３０ｍｌを加えて１２時間還流させた。反応終了後、この混合物を室温まで冷却した後、エバポレータで濃縮し、さらに真空乾燥した。これにより、目的物の無色オイル状物質（中間体１２ｂ）を得た。

20

【０１３５】

（中間体１２ｃの合成）

【化７２】



30

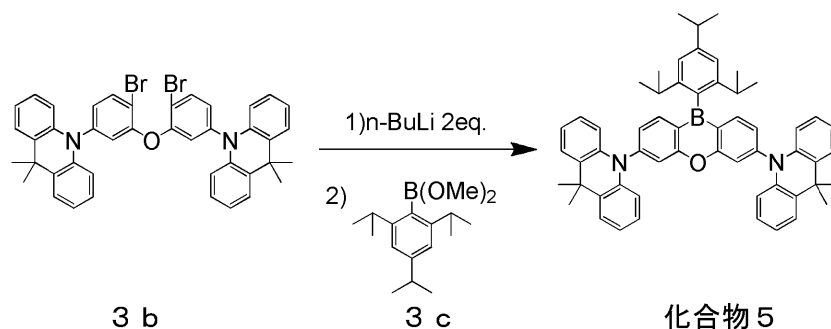
原料として中間体６ａ（１０．７４ｇ，２６．４ｍｍｏｌ）、中間体１２ｂ（１０．０ｇ，２６．４ｍｍｏｌ）を用いた以外は、中間体６ｂの合成方法と同様にして中間体１２ｃを合成した。得られた中間体１２ｃは、収量３．５３ｇ、収率２４％であった。

【０１３６】

〔化合物の合成例〕

（合成例１） 化合物５の合成（合成方法Ａ）

【化７３】



40

50

10

20

30

40

50

50



50

50

50

50

50

50



中間体 3 b の代わりに中間体 5 a を用い、原料の量をモル換算で 2 . 3 3 倍に変更した

【 0 1 4 1 】

【化 7 6】



【 0 1 4 2 】

20

【化 7 7】



【 0 1 4 3 】

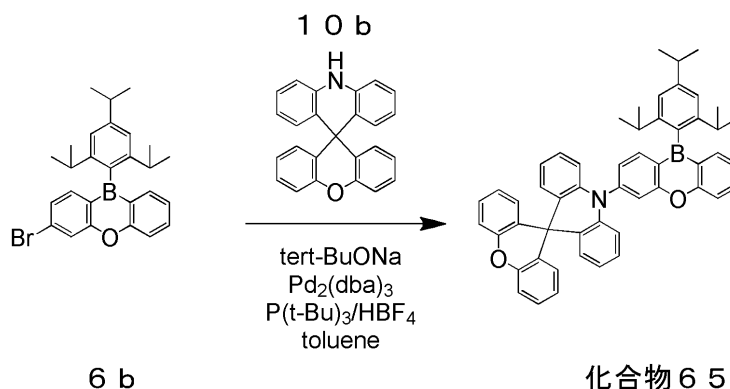
反応終了後、混合物を室温まで冷却した後、トルエン 50 ml を加えて希釈して溶液を得た。この溶液を、セライトを用いて濾過し、濃縮した。この濃縮物をシリカゲルクロマトグラフィーにより、ヘキサン：トルエン = 8：2 の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。得られたフラクションを濃縮して得た濃縮物を、酢酸エチル：ヘキサン (v/v) = 2：8 の混合溶媒に 10 ml/g で溶解して再結晶し、真空乾燥 (50℃、6 時間) した。これにより、目的物の化合物 59 を収量 3.17 g、収率 89% で得た。

【 0 1 4 4 】

(合成例 6) 化合物 6 5 の合成

40

【化 7 8】



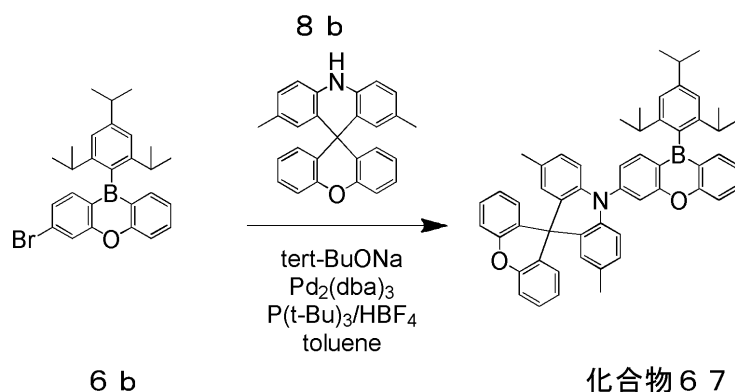
10

原料として中間体 6 b (2 . 3 1 g , 5 m m o l) 、中間体 1 0 b (1 . 9 1 g , 5 . 5 m m o l) を用いた以外は、化合物 5 9 の合成方法と同様にして化合物 6 5 を合成した。得られた化合物 6 5 は、収量 3 . 3 7 g , 収率 9 3 % であった。

【 0 1 4 5】

(合成例 7) 化合物 6 7 の合成

【化 7 9】



20

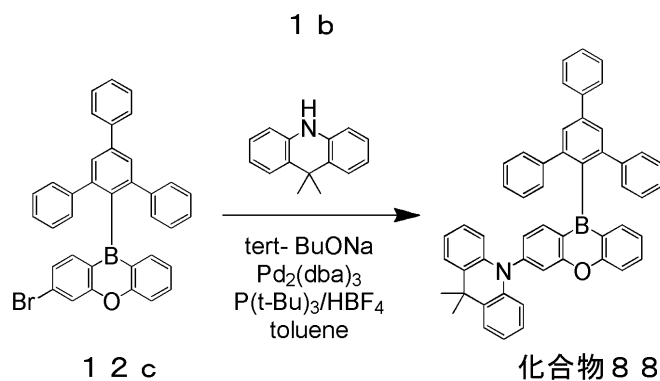
原料として中間体 6 b (3 . 6 9 g , 8 m m o l) 、中間体 8 b (3 . 3 0 g , 8 . 8 m m o l) を用いた以外は、化合物 5 9 の合成方法と同様にして化合物 6 7 を合成した。得られた化合物 6 7 は、収量 4 . 6 6 g 、収率 7 7 % であった。

30

【 0 1 4 6】

(合成例 8) 化合物 8 8 の合成

【化 8 0】



40

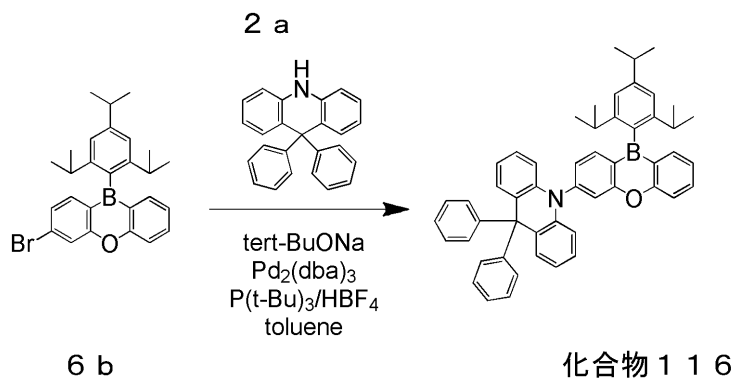
原料として中間体 1 2 c (5 6 3 m g , 1 m m o l) 、中間体 1 b (3 1 9 m g , 1 . 1 m m o l) を用いた以外は、化合物 5 9 の合成方法と同様にして化合物 8 8 を合成した。得られた化合物 8 8 は、収量 0 . 4 9 g 、収率 7 1 % であった。

【 0 1 4 7】

(合成例 9) 化合物 1 1 6 の合成

50

【化 8 1】



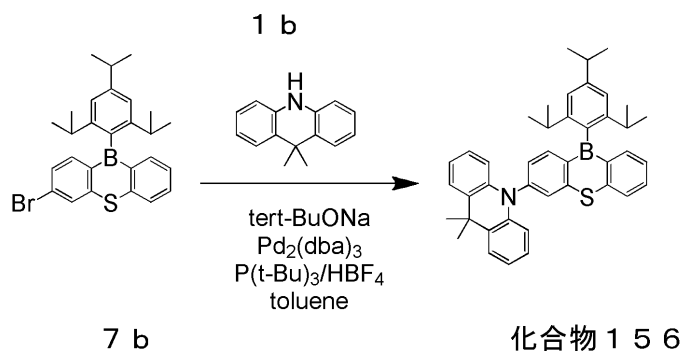
10

原料として中間体 6 b (2 . 7 7 g , 6 m m o l)、中間体 2 a (2 . 4 0 g , 7 . 2 m m o l) を用いた以外は、化合物 5 9 の合成方法と同様にして化合物 1 1 6 を合成した。得られた化合物 1 1 6 は、収量 3 . 5 6 g、収率 8 3 % であった。

【 0 1 4 8 】

(合成例 1 0) 化合物 1 5 6 の合成

【化 8 2】



20

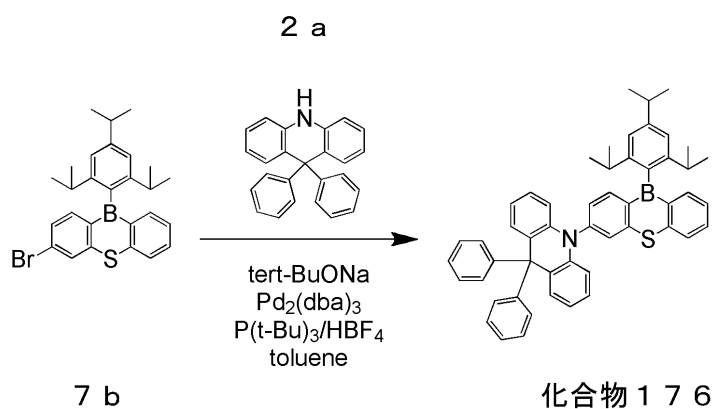
原料として中間体 7 b (3 m m o l)、中間体 1 b (3 . 6 m m o l) を用いた以外は、化合物 5 9 の合成方法と同様にして化合物 1 5 6 を合成した。得られた化合物 1 5 6 は、収量 1 . 3 6 g、収率 7 5 % であった。

30

【 0 1 4 9 】

(合成例 1 1) 化合物 1 7 6 の合成

【化 8 3】



40

原料として中間体 7 b (2 . 1 6 m m o l)、中間体 2 a (2 . 5 9 m m o l) を用いた以外は、化合物 5 9 の合成方法と同様にして化合物 1 7 6 を合成した。得られた化合物 1 7 6 は、収量 0 . 8 5 g、収率 5 4 % であった。

【 0 1 5 0 】

[素子の作製と評価]

50

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

発光特性の評価は、ソースメータ（ケースレー社製：2400シリーズ）、半導体パラメータ・アナライザ（アジレント・テクノロジー社製：E5273A）、光パワーメータ測定装置（ニューポート社製：1930C）、光学分光器（オーシャン옵ティクス社製：USB2000）、分光放射計（トプコン社製：SR-3）およびストリークカメラ（浜松ホトニクス（株）製C4334型）を用いて行った。

【0151】

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

（1）一重項エネルギー E_{S1}

測定対象化合物とmCPとを、測定対象化合物が濃度6重量%となるように共蒸着することでSi基板上に厚さ100nmの試料を作製した。常温（300K）でこの試料の蛍光スペクトルを測定した。励起光入射直後から入射後100ナノ秒までの発光を積算することで、縦軸を発光強度、横軸を波長の蛍光スペクトルを得た。蛍光スペクトルは、縦軸を発光、横軸を波長とした。この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、MNL200）を検出器には、ストリークカメラ（浜松ホトニクス社製、C4334）を用いた。

（2）三重項エネルギー E_{T1}

一重項エネルギー E_{S1} と同じ試料を5[K]に冷却し、励起光（337nm）を燐光測定用試料に照射し、ストリークカメラを用いて、燐光強度を測定した。励起光入射後1ミリ秒から入射後10ミリ秒の発光を積算することで、縦軸を発光強度、横軸を波長の燐光スペクトルを得た。この燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値 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。

【0152】

（実施例1）化合物5を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

大気下にて化合物5のトルエン溶液（濃度 10^{-5}mol/L ）およびヘキサン溶液（濃度 10^{-5}mol/L ）を調製し、窒素で15分間のバブリングによる脱酸素処理を行った後、発光特性測定に用いた。

また、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 10^{-4}Pa 以下の条件にて化合物5の薄膜を100nmの厚さで形成して有機フォトルミネッセンス素子とした。

化合物5のトルエン溶液およびヘキサン溶液について発光スペクトルを測定した結果を図2に示し、化合物5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発光スペク

トルを測定した結果を図 3 に示す。

フォトルミネッセンス量子収率 ϕ は、トルエン溶液で 0.97、ヘキサン溶液で 0.54、化合物 5 の薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 0.83 であった。蛍光スペクトルとリン光スペクトルから求めた一重項励起状態と三重項励起状態とのエネルギー差 ΔE_{ST} は 0.05 eV であった。

また、化合物 5 のトルエン溶液およびヘキサン溶液の過渡減衰曲線を図 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光強度が失活してゆく過程を測定した発光寿命測定結果を示すものである。通常の一成分の発光（蛍光もしくはリン光）では発光強度は単一指数関数的に減衰する。これは、グラフの縦軸がセミ log である場合には、直線的に減衰することを意味している。図 4 に示す化合物 5 の過渡減衰曲線では、観測初期にこのような直線的成分（蛍光）が観測されているが、数 μ 秒以降には直線性から外れる成分が現れている。これは遅延成分の発光であり、初期の成分と加算される信号は、長時間側に裾をひくゆるい曲線になる。このように発光寿命を測定することによって、化合物 5 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。トルエン溶液中の即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 35 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 1.35 μ s であり、ヘキサン溶液中の即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 21 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 2.09 μ s であった。

【0153】

（実施例 2） 化合物 6 を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 5 のかわりに化合物 6 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 6 のトルエン溶液およびヘキサン溶液、化合物 6 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。

また、石英基板上に真空蒸着法にて、真空度 10^{-4} Pa 以下の条件にて化合物 6 と mCP とを異なる蒸着源から蒸着し、化合物 6 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。

化合物 6 のトルエン溶液およびヘキサン溶液、化合物 6 と mCP 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発光スペクトルを測定した結果を図 5 に示し、化合物 6 のみ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発光スペクトルを測定した結果を図 6 に示す。

フォトルミネッセンス量子収率 ϕ は、トルエン溶液で 1.00、ヘキサン溶液で 0.54、化合物 6 のみの薄膜を有する有機フォトルミネッセンス素子で 0.88 であった。蛍光スペクトルとリン光スペクトルから求めた一重項励起状態と三重項励起状態とのエネルギー差 ΔE_{ST} は 0.08 eV であった。

また、化合物 6 のトルエン溶液およびヘキサン溶液の過渡減衰曲線を図 7 に示す。トルエン溶液中の即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 33 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 1.60 μ s であり、ヘキサン溶液中の即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 20 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 1.29 μ s であった。

【0154】

（実施例 3） 化合物 18 を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 5 のかわりに化合物 18 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 18 のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図 8 に示し、過渡減衰曲線を図 9 に示す。化合物 18 のトルエン溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 0.81 であった。また、即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 89.3 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 39.5 μ s であった。

【0155】

（実施例 4） 化合物 59 を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 5 のかわりに化合物 59 を用いた点を変更して、実施例 1 と同じ方法により化合物 59 のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図 10 に示す。化合物 59 のトルエン

溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 0.76 であった。また、即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 27.7 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 4.02 μ s であった。

【0156】

(実施例5) 化合物65を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物5のかわりに化合物65を用いた点を変更して、実施例1と同じ方法により化合物65のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図11に示す。化合物65のトルエン溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 0.56 であった。また、即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 25.9 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 2.06 μ s であった。

【0157】

(実施例6) 化合物67を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物5のかわりに化合物67を用いた点を変更して、実施例1と同じ方法により化合物67のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図12に示す。化合物67のトルエン溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 1.00 であった。また、即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 35 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 2.33 μ s であった。

【0158】

(実施例7) 化合物156を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物5のかわりに化合物156を用いた点を変更して、実施例1と同じ方法により化合物156のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図13に示し、過渡減衰曲線を図14に示す。化合物156のトルエン溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 1.00 であった。また、即時蛍光成分の発光寿命 τ_1 は 3.2 ns、遅延蛍光成分の発光寿命 τ_2 は 1.61 μ s であった。

【0159】

(実施例8～10)

化合物5のかわりに化合物88、116、176を用いた点を変更して、実施例1と同じ方法によりトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルおよび過渡減衰曲線から求めたフォトルミネッセンス量子収率 ϕ および発光寿命を表1に示す。表1に示すように、化合物88、116、176のトルエン溶液は、いずれも十分なフォトルミネッセンス量子収率 ϕ が得られ、また遅延蛍光を確認することができた。

【0160】

【表1】

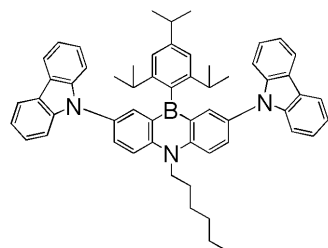
	トルエン溶液での発光特性			
	発光波長 $\lambda_{\max}$ (nm)	PL 量子収率	発光寿命	
			即時蛍光成分(ns)	遅延蛍光成分(μ s)
化合物5	487	0.97	35	1.35
化合物6	475	1.00	33	1.6
化合物18	492	0.81	89.3	39.5
化合物59	456	0.76	27.7	4.02
化合物65	451	0.56	25.9	2.06
化合物67	475	1.00	35	2.33
化合物88	469	0.88	35.7	3.63
化合物116	452	0.78	27	2.8
化合物156	484	1.00	3.2	1.61
化合物176	469	0.73	0.97	3.43

【0161】

(比較例 1) 比較化合物 A を用いた有機フォトルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 1 のかわりに下記の構造を有する比較化合物 A を用いて、実施例 1 と同じ方法により比較化合物 A のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図 15 に示し、過渡減衰曲線を図 16 に示す。発光寿命は 16.0 ns であり、遅延蛍光は認められなかった。

【化 8 4】



比較化合物 A

10

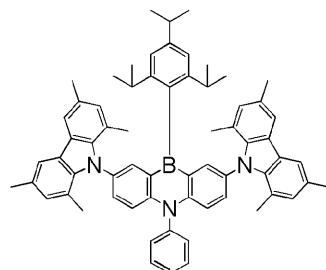
【0162】

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

化合物 1 のかわりに下記の構造を有する比較化合物 B を用いて、実施例 1 と同じ方法により比較化合物 A のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図 17 に示し、過渡減衰曲線を図 18 に示す。比較化合物 B のトルエン溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 0.27 であった。また、発光寿命は 8.1 ns であり、遅延蛍光は認められなかった。

20

【化 8 5】



比較化合物 B

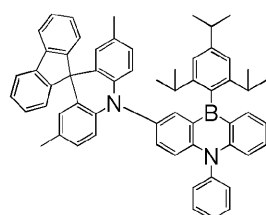
30

【0163】

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

化合物 1 のかわりに下記の構造を有する比較化合物 C を用いて、実施例 1 と同じ方法により比較化合物 C のトルエン溶液を調製した。このトルエン溶液について発光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された発光スペクトルを図 19 に示し、過渡減衰曲線を図 20 に示す。比較化合物 C のトルエン溶液のフォトルミネッセンス量子収率 ϕ は 0.26 であった。また、発光寿命は 12.7 ns であり、遅延蛍光は認められなかった。

【化 8 6】



比較化合物 C

40

【0164】

(実施例 11) 化合物 5 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

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 5.0×10^{-4} Pa 以下で積層した。まず、ITO 上に α -NPD を 30 nm の厚さに形成し、この上に、mCP を 10 nm の厚さに形成した。次に、化合物 5 と (Cz)₂DBF 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、化合物 5 の濃度は 6.0 重量% とした。次に、PPT を 10 nm の厚さに形成し、この上に、TPBi を 40 nm の厚さに形成した。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。

作製した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 21 に示し、電流密度 - 外部量子効率特性を図 22 に示す。化合物 5 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 15.3 % の高い外部量子効率を達成した。仮に発光量子効率が 100 % の蛍光材料を用いてバランスの取れた理想的な有機エレクトロルミネッセンス素子を試作したとすると、光取り出し効率が 20 ~ 30 % であれば、蛍光発光の外部量子効率は 5 ~ 7.5 % となる。この値が一般に、蛍光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。したがって、化合物 5 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。

【0165】

(実施例 12) 化合物 6 を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の作製と評価

化合物 5 のかわりに化合物 6 を用いて、実施例 4 と同じ方法により有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

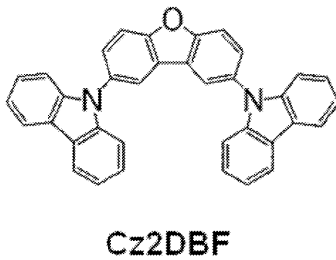
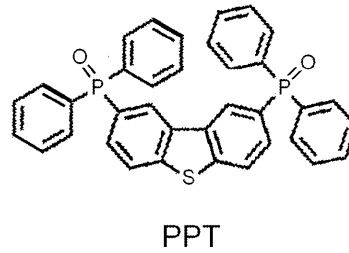
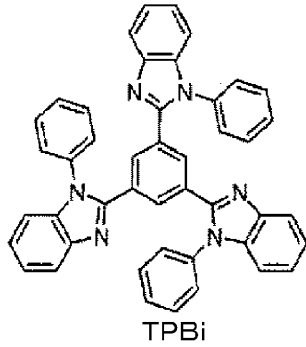
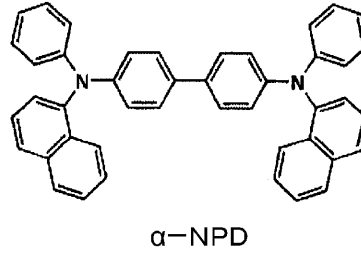
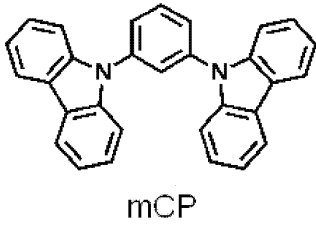
作製した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図 23 に示し、電流密度 - 外部量子効率特性を図 24 に示す。化合物 5 を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は 8.9 % の高い外部量子効率を達成した。

【0166】

10

20

【化 8 7】



10

20

【産業上の利用可能性】

【0167】

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。

30

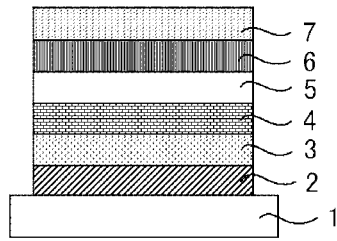
【符号の説明】

【0168】

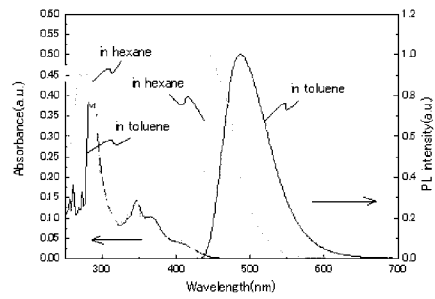
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 陰極

40

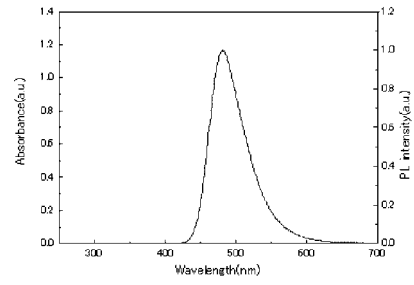
【 図 1 】



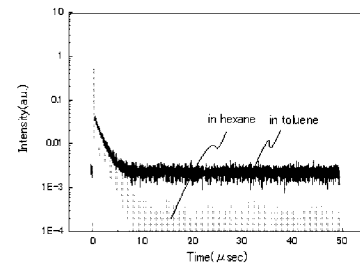
【 図 2 】



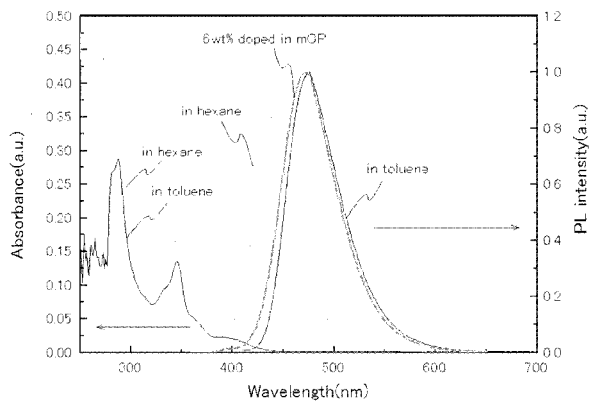
【 図 3 】



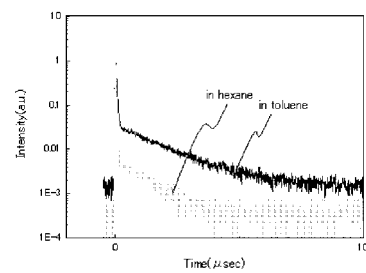
【 図 4 】



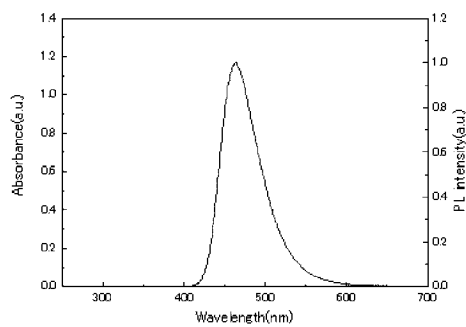
【 図 5 】



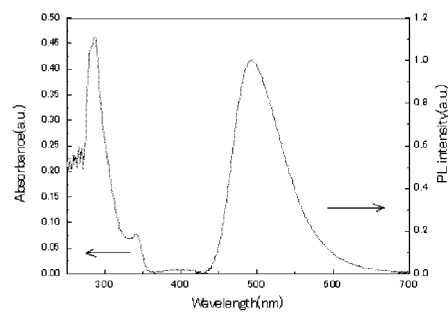
【 図 7 】



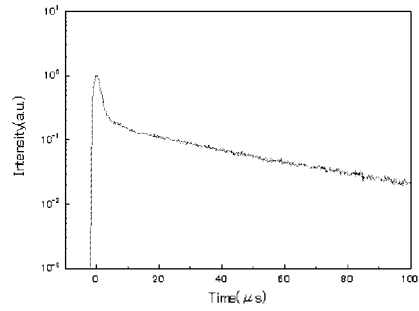
【 図 6 】



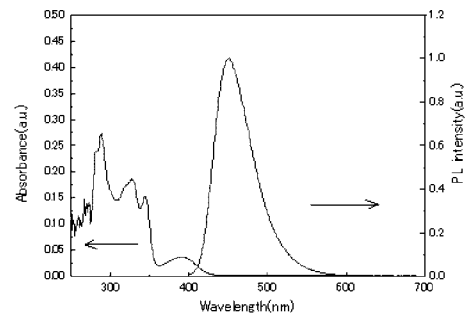
【 図 8 】



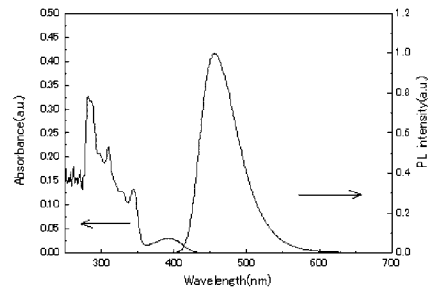
【図 9】



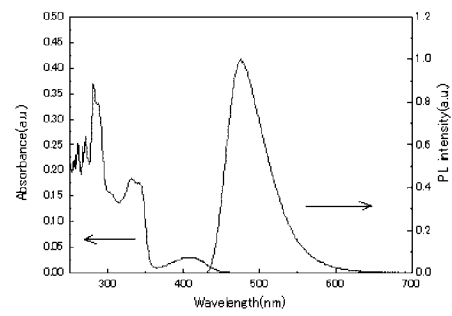
【図 1 1】



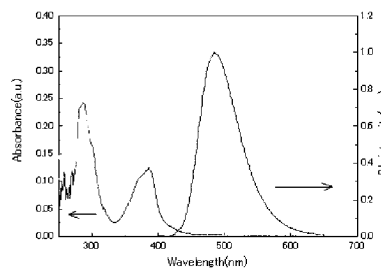
【図 1 0】



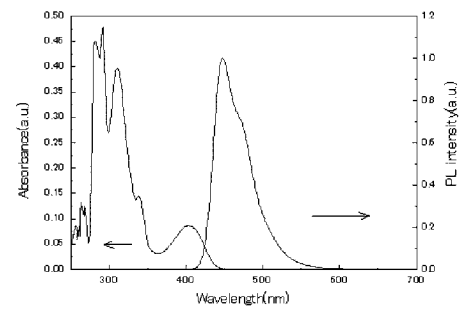
【図 1 2】



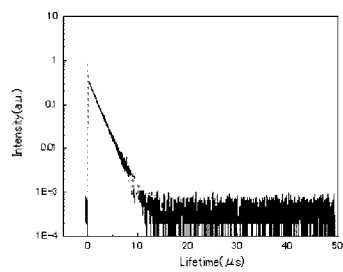
【図 1 3】



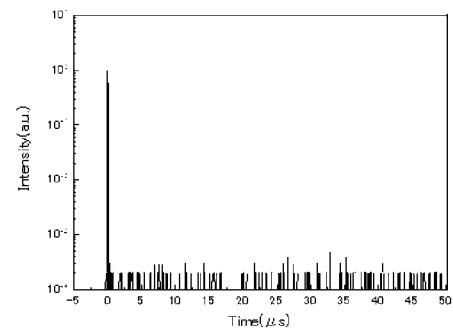
【図 1 5】



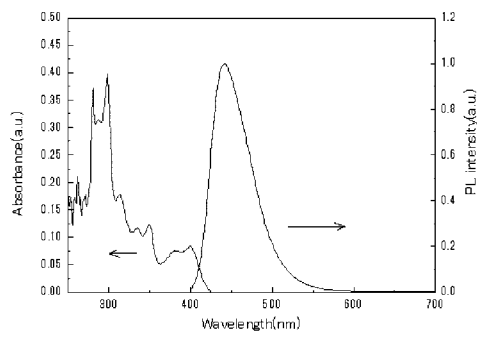
【図 1 4】



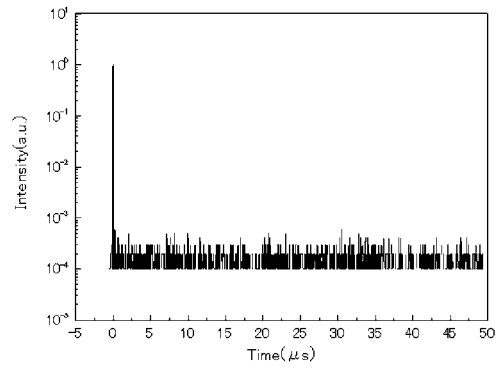
【図 1 6】



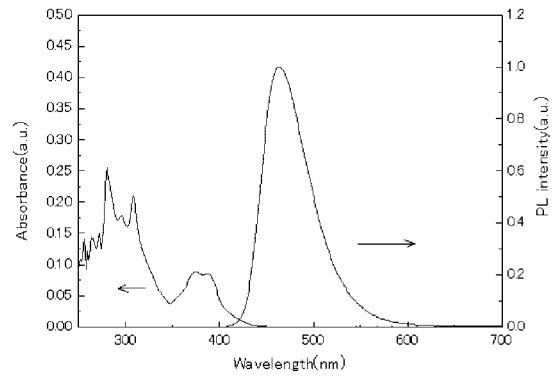
【 図 1 7 】



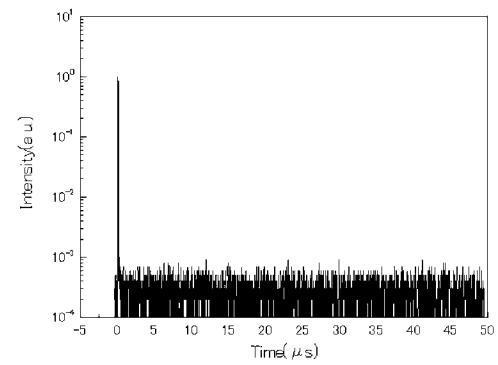
【 図 1 8 】



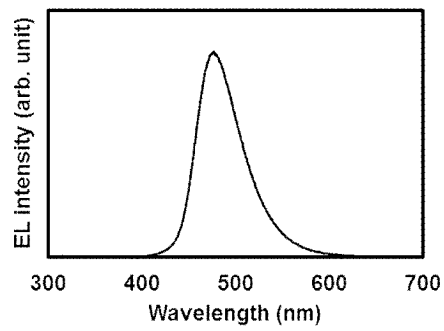
【 図 1 9 】



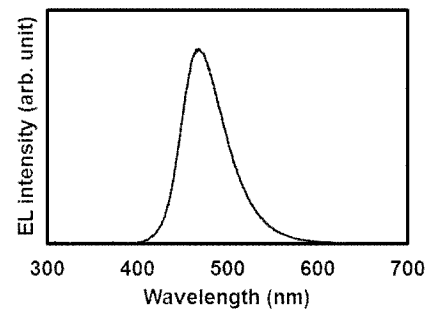
【 図 2 0 】



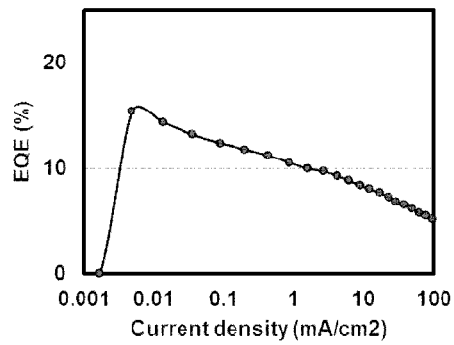
【 図 2 1 】



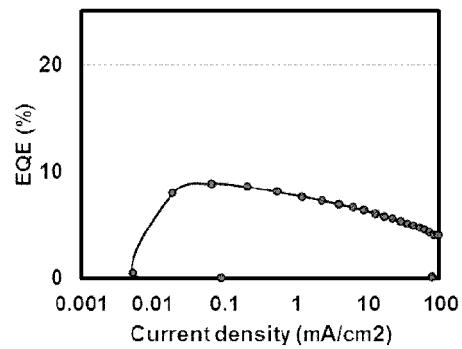
【 図 2 3 】



【 図 2 2 】



【 図 2 4 】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2014/080162
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C09K11/06(2006.01)i, C07F5/02(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C09K11/06, C07F5/02, H01L51/50 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2015 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2015 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2015 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAPLUS/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	T. Agou, et al., Development of a general route to periphery-functionalized azaborines and ladder-type azaborines by using common intermediates, Chemical Communications, 2007.07.05, Issue 30, Pages 3204-3206	1-23
A	JP 2013-526548 A (Universal Display Corp.), 24 June 2013 (24.06.2013), claims; examples 1 to 5 & US 2011/0278556 A1 & US 2011/0279019 A1 & WO 2011/143563 A2 & DE 112011101663 T & TW 201213338 A & CN 102971332 A & KR 10-2013-0109006 A	1-23
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 02 February 2015 (02.02.15)		Date of mailing of the international search report 10 February 2015 (10.02.15)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/080162

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	J. Kobayashi, et al., Synthesis of Dibenzochalcogenaborins and Systematic Comparisons of Their Optical Properties by Changing a Bridging Chalcogen Atom, Chemistry - An Asian Journal, 2008.11.19, Vol.4, Pages 42-49	1-23
A	P. Chen, et al., π -Expanded Borazine: An Ambipolar Conjugated B- π -N Macrocyclic, Angewandte Chemie International Edition, 2012.07.05, Vol. 51, Pages 7994-7998	1-23
A	A. K. C. Mengel, et al., A Triarylamine-Triarylborane Dyad with a Photochromic Dithienylethene Bridge, The Journal of Organic Chemistry, 2012.07.16, Vol. 77, Pages 6545-6552	1-23

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 8 0 1 6 2									
A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. C09K11/06 (2006.01)i, C07F5/02 (2006.01)i, H01L51/50 (2006.01)i											
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. C09K11/06, C07F5/02, H01L51/50											
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2015年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2015年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2015年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2015年	日本国実用新案登録公報	1996-2015年	日本国登録実用新案公報	1994-2015年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2015年										
日本国実用新案登録公報	1996-2015年										
日本国登録実用新案公報	1994-2015年										
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CPlus/REGISTRY (STN)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
A	T. Agou, et al., Development of a general route to periphery-functionalized azaborines and ladder-type azaborines by using common intermediates, Chemical Communications, 2007.07.05, Issue 30, Pages 3204-3206	1-23									
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。											
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献											
国際調査を完了した日 02.02.2015		国際調査報告の発送日 10.02.2015									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官（権限のある職員） 内藤 康彰 電話番号 03-3581-1101 内線 3483									

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 8 0 1 6 2
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2013-526548 A (ユニバーサル ディスプレイ コーポレイション) 2013.06.24, 特許請求の範囲及び実施例 1-5 & US 2011/0278556 A1 & US 2011/0279019 A1 & WO 2011/143563 A2 & DE 112011101663 T & TW 201213338 A & CN 102971332 A & KR 10-2013-0109006 A	1-23
A	J. Kobayashi, et al., Synthesis of Dibenzochalcogenaborins and Systematic Comparisons of Their Optical Properties by Changing a Bridging Chalcogen Atom, Chemistry - An Asian Journal, 2008.11.19, Vol.4, Pages 42-49	1-23
A	P. Chen, et al., π -Expanded Borazine: An Ambipolar Conjugated B- π -N Macrocyclic, Angewandte Chemie International Edition, 2012.07.05, Vol. 51, Pages 7994-7998	1-23
A	A. K. C. Mengel, et al., A Triarylamine-Triarylborane Dyad with a Photochromic Dithienylethene Bridge, The Journal of Organic Chemistry, 2012.07.16, Vol. 77, Pages 6545-6552	1-23

フロントページの続き

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

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC04 DD53 DD59 DD66 DD69
4H048 AA01 AA03 AB92 VA22 VA32 VA42 VA77 VB10

(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

专利名称(译)	发光材料，有机发光元件和化合物		
公开(公告)号	JPWO2015072537A1	公开(公告)日	2017-03-16
申请号	JP2015547802	申请日	2014-11-14
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社KYULUX		
申请(专利权)人(译)	株式会社KYULUX		
[标]发明人	沼田真樹 安田琢磨 安達千波矢		
发明人	沼田 真樹 安田 琢磨 安達 千波矢		
IPC分类号	C09K11/06 C07F5/02 H01L51/50		
CPC分类号	H01L51/0059 C07F5/027 C09K11/06 H01L51/0072 H01L51/0079 H01L51/5012		
FI分类号	C09K11/06 C09K11/06.660 C07F5/02.CSP.A C07F5/02.F H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC04 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD66 3K107/DD69 4H048/AA01 4H048/AA03 4H048/AB92 4H048/VA22 4H048/VA32 4H048/VA42 4H048/VA77 4H048/VB10		
优先权	2013237824 2013-11-18 JP		
其他公开文献	JPWO2015072537A5 JP6392240B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

由以下通式(1)表示的化合物可用作发光材料。R¹至R⁸表示氢原子或取代基，R⁹表示取代基，R¹至R⁸中的至少一个是由以下通式(2)等表示的基团。L¹²表示单键或二价连接基团，*表示通式(1)中与苯环的键合部位。R¹¹至R²⁰表示氢原子或取代基。

