(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第6284370号
(P6284370)
(45)発行日　平成30年2月28日(2018.2.28)　(24)登録日　平成30年2月9日(2018.2.9)

(51)Int.Cl.		F I		
C09K 11/06	(2006.01)	C09K	11/06	640
H01L 51/50	(2006.01)	C09K	11/06	655
C07D 401/14	(2006.01)	C09K	11/06	650
C07D 413/14	(2006.01)	H05B	33/14	B
		C07D	401/14	CSP

請求項の数 13　(全 51 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2014-6609(P2014-6609)
(22)出願日　平成26年1月17日(2014.1.17)
(65)公開番号　特開2015-134874(P2015-134874A)
(43)公開日　平成27年7月27日(2015.7.27)
審査請求日　平成28年12月19日(2016.12.19)

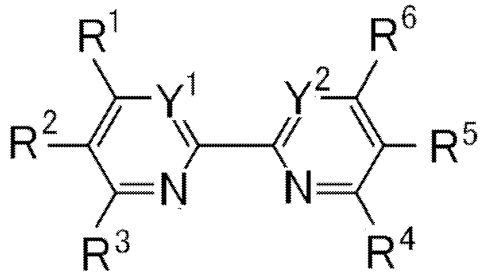
(73)特許権者　516003621
株式会社Ｋｙｕｌｕｘ
福岡県福岡市西区九大新町４番地１
(74)代理人　110000109
特許業務法人特許事務所サイクス
(72)発明者　桑原　博一
東京都北区志茂３－３１－１２　日本化薬株式会社　研究開発本部研究企画部内
(72)発明者　安達　千波矢
福岡県福岡市東区箱崎六丁目１０番１号
国立大学法人九州大学内

審査官　林　建二

最終頁に続く

(54)【発明の名称】発光材料、有機発光素子および化合物

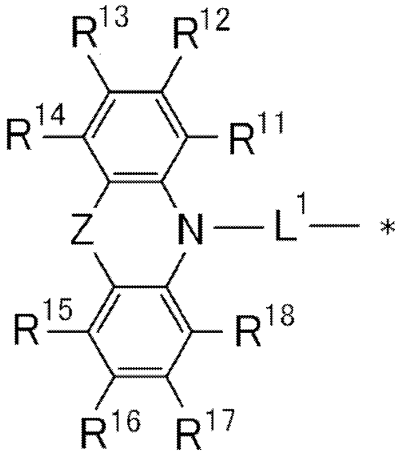
(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記一般式（１）で表される化合物からなる発光材料。
【化１】
一般式（１）



[一般式（１）において、Y^1およびY^2は各々独立にＮまたはＣ（R^7）を表し、R^1～R^7は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R^1およびR^2の少なくとも一方とR^5およびR^6の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２）で表される基を表す。]

【化２】

一般式（２）



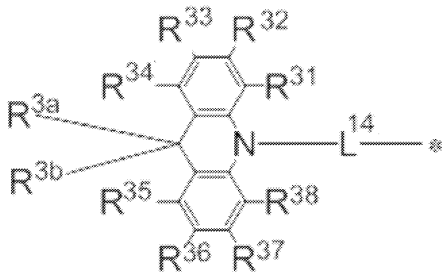
[一般式（２）において、Ｚは連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。Ｌ[1]は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。Ｒ[11]～Ｒ[18]は、各々独立に水素原子または置換基を表す。Ｒ[11]とＲ[12]、Ｒ[12]とＲ[13]、Ｒ[13]とＲ[14]、Ｒ[15]とＲ[16]、Ｒ[16]とＲ[17]、Ｒ[17]とＲ[18]はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

【請求項２】

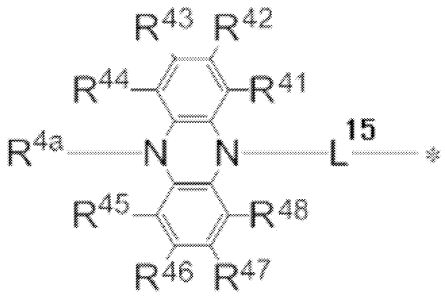
一般式（２）で表される基が、下記一般式（３）～（７）のいずれかで表される基であることを特徴とする請求項１に記載の発光材料。

【化３】

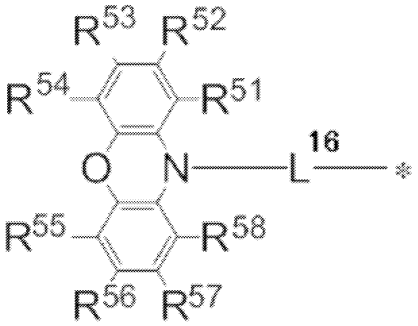
一般式（３）



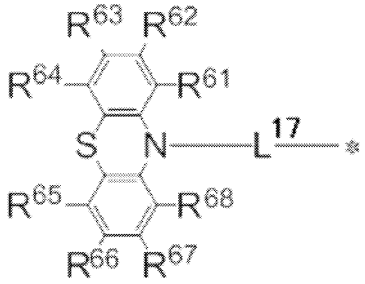
一般式（４）



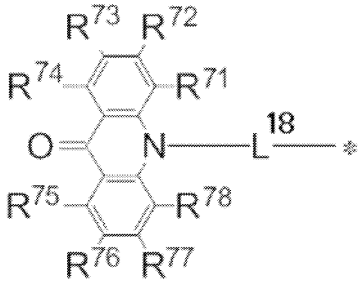
一般式（５）



一般式（６）



一般式（７）



［一般式（３）～（７）において、L^{14}～L^{18}は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。R^{31}～R^{38}、R^{3a}、R^{3b}、R^{41}～R^{48}、R^{4a}、R^{51}～R^{58}、R^{61}～R^{68}、R^{71}～R^{78}は、各々独立に水素原子または置換基を表す。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}、R^{71}とR^{72}、R^{72}とR^{73}、R^{73}とR^{74}、R^{75}とR^{76}、R^{76}とR^{77}、R^{77}とR^{78}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３】

一般式（１）のR^{2}およびR^{5}が各々独立に一般式（２）で表される基であることを特徴とする請求項１または２に記載の発光材料。

【請求項４】

一般式（１）のY^{1}およびY^{2}がともにＮであるか、ともにＣ（R^{7}）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（２）のL^{1}が単結合であることを特徴とする請求項１～４のいずれか１項に記載の発光材料。

【請求項６】

分子中に存在する一般式（２）で表される基が、すべて同一であることを特徴とする請求項１～５のいずれか１項に記載の発光材料。

【請求項７】

分子が回転対称構造を有してい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】

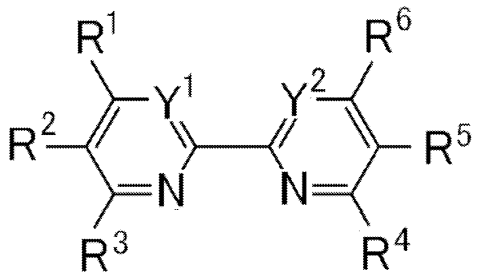
分子が線対称構造を有していることを特徴とする請求項１～６のいずれか１項に記載の発光材料。

【請求項９】

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】

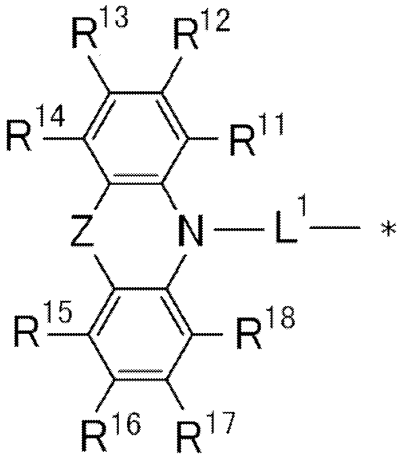
一般式（１）



[一般式（１）において、Y^1およびY^2は各々独立にＮまたはＣ（R^7）を表し、R^1～R^7は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R^1およびR^2の少なくとも一方とR^5およびR^6の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２）で表される基を表す。]

【化５】

一般式（２）



[一般式（２）において、Ｚは連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。L^1は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。R^{11}～R^{18}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^{15}とR^{16}、R^{16}とR^{17}、R^{17}とR^{18}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１０】

請求項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。

【請求項１１】

遅延蛍光を放射することを特徴とする請求項１０に記載の有機発光素子。

【請求項１２】

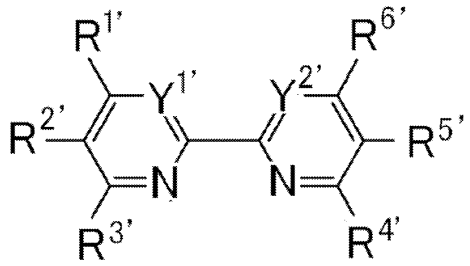
有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする請求項１０または１１に記載の有機発光素子。

【請求項１３】

下記一般式（１’）で表される化合物。

【化６】

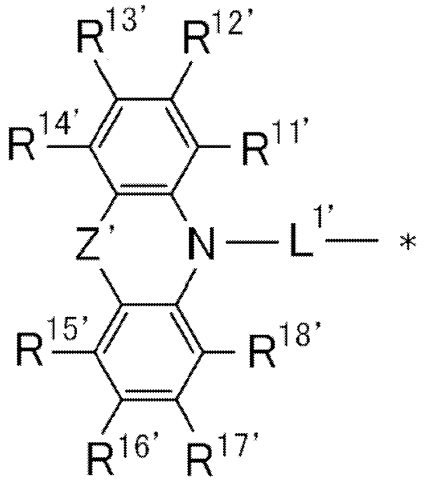
一般式（１’）



[一般式（１’）において、Ｙ^{1}’およびＹ^{2}’は各々独立にＮまたはＣ（Ｒ^{7}’）を表し、Ｒ^{1}’～Ｒ^{7}’は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、Ｒ^{1}’およびＲ^{2}’の少なくとも一方とＲ^{5}’およびＲ^{6}’の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２’）で表される基を表す。]

【化７】

一般式（２’）



[一般式（２’）において、Ｚ’は連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。Ｌ^{1}’は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。Ｒ^{11}’～Ｒ^{18}’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^{15}’とＲ^{16}’、Ｒ^{16}’とＲ^{17}’、Ｒ^{17}’とＲ^{18}’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。]

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、発光材料として有用な化合物およびそれを用いた有機発光素子に関する。

【背景技術】

【０００２】

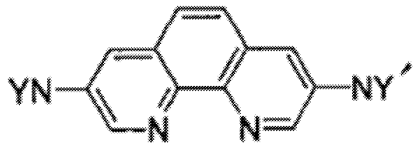
有機エレクトロルミネッセンス素子（有機ＥＬ素子）などの有機発光素子の発光効率を高める研究が盛んに行われている。特に、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する電子輸送材料、正孔輸送材料、発光材料などを新たに開発することにより、発光効率を高める工夫が種々なされてきている。その中には、ピリジン環を含む環状構造に３級アミノ基が結合した構造を有する化合物を利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関する研究も見受けられる。

【０００３】

特許文献１には、下記一般式で表される３級アミノ基ＮＹ、ＮＹ’を導入したフェナントロリン誘導体が提案されている。ここでは、フェノキサジニル基やフェノチアジニル基

等の三環構造を有する３級アミノ基を導入したフェナントロリン誘導体について発光特性を確認したことが記載されている。

【化１】



また、非特許文献１においても、フェノキサジニル基やフェノチアジニル基等の３級アミノ基を導入したフェナントロリン誘導体について可視領域での発光特性や電気化学特性を検討した結果が記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００４】

【特許文献１】特開２００４－３３１５８６号公報

【非特許文献】

【０００５】

【非特許文献１】Inorganica Chimica Acta 357 (2004) 4335-4340

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００６】

上記のように、特許文献１および非特許文献１には、フェノキサジニル基等の３級アミノ基を導入したフェナントロリン誘導体が可視領域で発光することが記載されている。しかしながら、本発明者らが、３級アミノ基を導入したフェナントロリン誘導体の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く、より優れた発光特性を有する発光材料を提供する必要があることが判明した。

そこで本発明者らは、ピリジン環と３級アミノ基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ビピリジン骨格に３級アミノ基を導入した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、フェナントロリン骨格を有する化合物については、特許文献１および非特許文献１において可視領域での発光特性が確認されている。しかし、これらの文献にはビピリジン骨格に３級アミノ基を導入した化合物については記載されていない。このため、ビピリジン骨格に３級アミノ基を導入した化合物の発光材料としての有用性は全く予測がつかない。

【０００７】

このような状況下において本発明者らは、ビピリジン骨格に３級アミノ基を導入した化合物の発光材料としての有用性についてさらに検討を進め、発光特性が優れた化合物を見出すことを目指して研究を重ねた。そして、発光材料として有用な化合物の一般式を導きだし、発光効率が高い有機発光素子の構成を一般化することを目的として鋭意検討を進めた。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

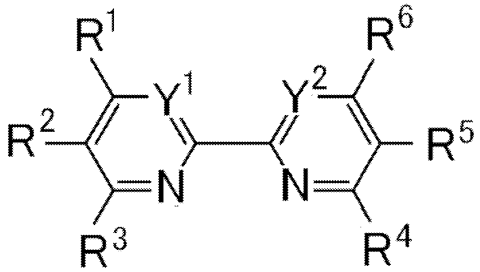
鋭意検討を進めた結果、本発明者らは、特定の構造を有するビピリジン誘導体が発光材料として優れた性質を有することを見出した。また、そのような化合物群の中に、遅延蛍光材料として有用なものがあることを見出し、発光効率が高い有機発光素子を安価に提供しうることを明らかにした。本発明者らは、これらの知見に基づいて、上記の課題を解決する手段として、以下の本発明を提供するに至った。

【０００９】

［１］　下記一般式（１）で表される化合物からなる発光材料。

【化２】

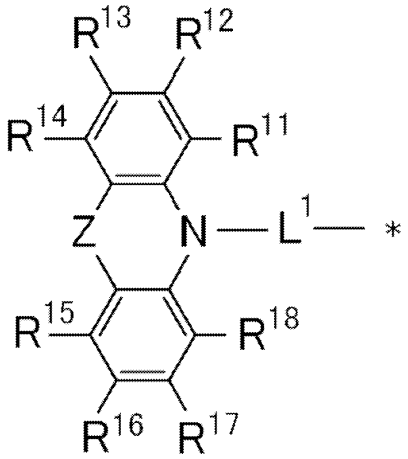
一般式（１）



[一般式（１）において、Y^1およびY^2は各々独立にＮまたはＣ（R^7）を表し、R^1～R^7は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R^1およびR^2の少なくとも一方とR^5およびR^6の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２）で表される基を表す。]

【化３】

一般式（２）

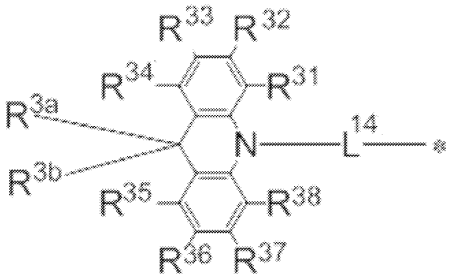


[一般式（２）において、Ｚは連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。L^1は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。R^{11}～R^{18}は、各々独立に水素原子または置換基を表す。R^{11}とR^{12}、R^{12}とR^{13}、R^{13}とR^{14}、R^{15}とR^{16}、R^{16}とR^{17}、R^{17}とR^{18}はそれぞれ互いに結合して環状構造を形成していてもよい。]

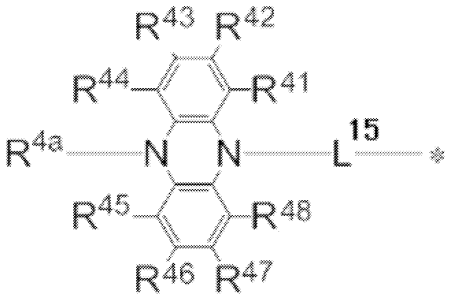
［２］　一般式（２）で表される基が、下記一般式（３）～（７）のいずれかで表される基であることを特徴とする［１］に記載の発光材料。

【化４】

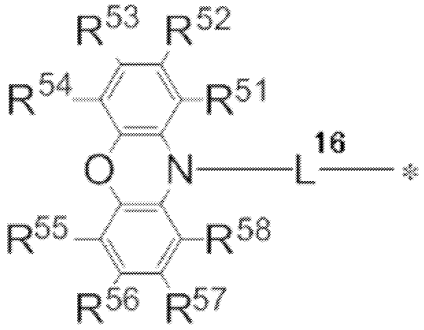
一般式（３）



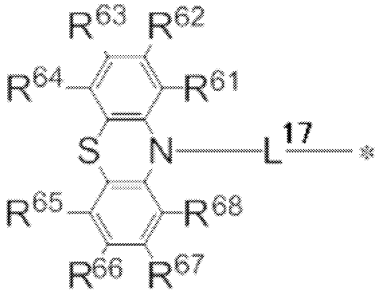
一般式（４）



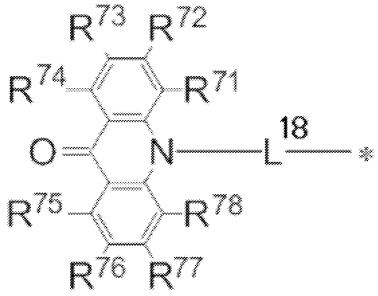
一般式（５）



一般式（６）



一般式（７）



［一般式（３）～（７）において、L^{14}～L^{18}は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。R^{31}～R^{38}、R^{3a}、R^{3b}、R^{41}～R^{48}、R^{4a}、R^{51}～R^{58}、R^{61}～R^{68}、R^{71}～R^{78}は、各々独立に水素原子または置換基を表す。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}、R^{71}とR^{72}、R^{72}とR^{73}、R^{73}とR^{74}、R^{75}とR^{76}、R^{76}とR^{77}、R^{77}とR^{78}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。］

［３］　一般式（１）のR^{2}およびR^{5}が各々独立に一般式（２）で表される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Y^{1}およびY^{2}がともにＮであるか、ともにＣ（R^{7}）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（２）のL^{1}が単結合であることを特徴とする［１］～［４］のいずれか１項に記載の発光材料。

［６］　分子中に存在する一般式（２）で表される基が、すべて同一であることを特徴とする［１］～［５］のいずれか１項に記載の発光材料。

［７］　分子が回転対称構造を有してい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］　分子が線対称構造を有してい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。

［９］　上記一般式（１）で表される化合物からなる遅延蛍光体。

［１０］　［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。

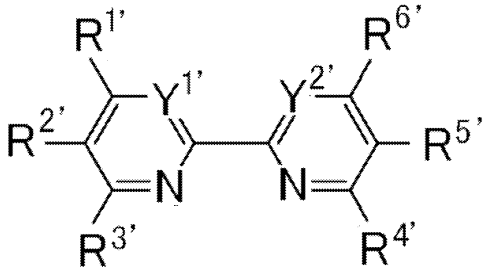
［１１］　遅延蛍光を放射することを特徴とする［１０］に記載の有機発光素子。

［１２］　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［１０］または［１１］に記載の有機発光素子。

【００１０】

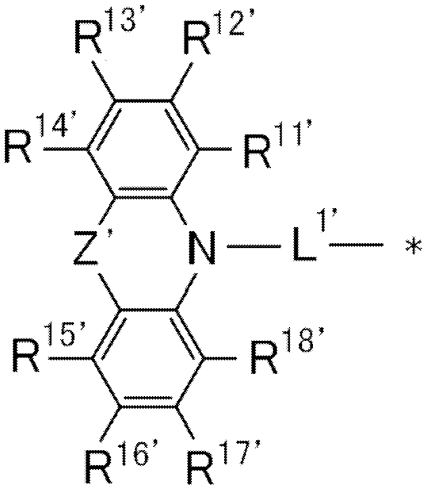
［１３］　下記一般式（１’）で表される化合物。

【化５】
一般式（１’）



[一般式（１’）において、Ｙ^{1}’およびＹ^{2}’は各々独立にＮまたはＣ（Ｒ^{7}’）を表し、Ｒ^{1}’～Ｒ^{7}’は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、Ｒ^{1}’およびＲ^{2}’の少なくとも一方とＲ^{5}’およびＲ^{6}’の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２’）で表される基を表す。]

【化６】
一般式（２’）



[一般式（２’）において、Ｚ’は連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。Ｌ^{1}’は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。Ｒ^{11}’～Ｒ^{18}’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^{15}’とＲ^{16}’、Ｒ^{16}’とＲ^{17}’、Ｒ^{17}’とＲ^{18}’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。]

【発明の効果】

【００１１】

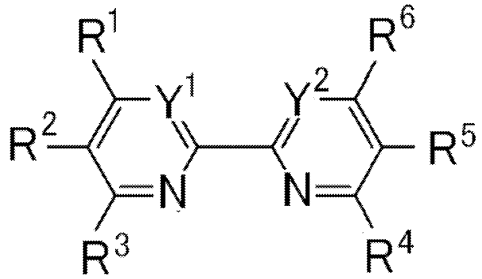
本発明の化合物は、発光材料として有用である。また、本発明の化合物の中には遅延蛍光を放射するものが含まれている。本発明の化合物を発光材料として用いた有機発光素子は、高い発光効率を実現しうる。

【図面の簡単な説明】

【００１２】

【図１】有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成例を示す概略断面図である。
【図２】実施例１の化合物１のトルエン溶液の発光スペクトルである。
【図３】実施例１の化合物１のトルエン溶液の過渡減衰曲線である。
【図４】実施例２の化合物４の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクトルである。
【図５】実施例２の化合物４の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。
【図６】比較例１の比較化合物１の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光スペクト

ルである。
【図７】比較例１の比較化合物１の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の過渡減衰曲線である。
【図８】実施例３の化合物１の有機エレクトロルミネセンス素子の発光スペクトルである。
【図９】実施例３の化合物１の有機エレクトロルミネセンス素子の電圧－電流密度特性を示すグラフである。
【図１０】実施例３の化合物１の有機エレクトロルミネ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】
【００１３】
以下において、本発明の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施態様や具体例に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、本発明に用いられる化合物の分子内に存在する水素原子の同位体種は特に限定されず、例えば分子内の水素原子がすべて^{1}Hであってもよいし、一部または全部が^{2}H（デューテリウムＤ）であってもよい。
【００１４】
［一般式（１）で表される化合物］
本発明の発光材料は、下記一般式（１）で表される化合物からなることを特徴とする。
【化７】
一般式（１）



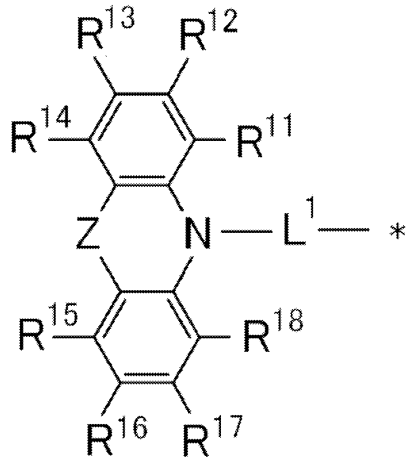
【００１５】
一般式（１）において、Y^1およびY^2は各々独立にＮまたはＣ（R^7）を表す。ここで、Y^1およびY^2は、いずれか一方がＮであり、他方がＣ（R^7）であってもよいし、Y^1およびY^2がともにＮであるか、ともにＣ（R^7）であってもよいが、Y^1およびY^2がともにＮであるか、ともにＣ（R^7）であることが好ましく、Y^1およびY^2がともにＣ（R^7）であることがより好ましい。
R^1～R^7は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、R^1およびR^2の少なくとも一方とR^5およびR^6の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２）で表される基である。R^1およびR^2のうち下記一般式（２）で表される基は、R^1およびR^2のいずれか一方であってもよいし、R^1およびR^2の両方であってもよいが、R^1およびR^2のいずれか一方であることが好ましい。R^5およびR^6のうち下記一般式（２）で表される基は、R^5およびR^6のいずれか一方であってもよいし、R^5およびR^6の両方であってもよいが、R^5およびR^6のいずれか一方であることが好ましい。R^1およびR^2のうち一般式（２）で表される基の数と、R^5およびR^6のうち一般式（２）で表される基の数は同じであっても異なっていてもよいが、同じであることが好ましい。好ましい化合物は、一般式（１）のR^1とR^6が一般式（２）で表される基である化合物、一般式（１）のR^2とR^5が一般式（２）で表される基である化合物であり、より好ましい化合物は、一般式（１）のR^2とR^5が一般式（２）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）で表される基は、同一であっても異なっていてもよいが、同一であることが好まし

い。また、一般式（１）で表される化合物は回転対称構造をとっていることも好ましい。すなわち、Y^1とY^2がともにNであり、R^1とR^4、R^2とR^5、R^3とR^6は、それぞれ同一であることが好ましい。また、一般式（１）で表される化合物は線対称構造をとっていることも好ましい。すなわち、Y^1とY^2、R^1とR^6、R^2とR^5、R^3とR^4は、それぞれ同一であることが好ましい。

【００１６】

【化８】

一般式（２）



【００１７】

一般式(２)において、Ｚは連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。連結基は、連結鎖長が１原子である２価の連結基であれば特に制限されない。好ましい連結基はベンゼン環のＣに連結される原子がＣ、Ｎ、Ｏ、Ｓである連結基であり、より好ましい連結基はＣ（R^{3a}）（R^{3b}）、Ｃ＝Ｏ、Ｎ（R^{4a}）、Ｏ、Ｓである。ここで、R^{3a}、R^{3b}、R^{4a}は、下記一般式（３）におけるR^{3a}、R^{3b}、下記一般式（４）におけるR^{4a}とそれぞれ同義である。

L^1は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、単結合であることが好ましい。＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。L^1がアリーレン基であるとき、アリーレン基としては炭素数６～１８のアリーレン基であることが好ましい。炭素数６～１８のアリーレン基としては、フェニレン基、ビフェニレン基、フルオレニレン基、トリフェニレニレン基等を挙げることができ、より好ましい連結基はフェニレン基であり、さらに好ましい連結基は１，４－フェニレン基である。アリーレン基が置換基を有するときの置換基の説明と好ましい範囲については、下記のR^1～R^7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。

【００１８】

一般式（２）において、R^{11}～R^{18}は各々独立に水素原子または置換基を表す。置換基の数は特に制限されず、R^{11}～R^{18}のすべてが無置換（すなわち水素原子）であってもよい。R^{11}～R^{18}のうちの２つ以上が置換基である場合、複数の置換基は互いに同一であっても異なっていてもよい。

【００１９】

R^{11}～R^{18}がとりうる置換基と、R^1～R^7がとりうる置換基として、例えばヒドロキシ基、ハロゲン原子、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。

【００２０】

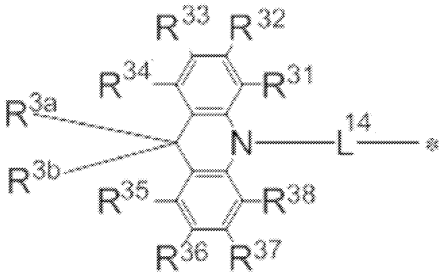
R^{11}とR^{12}、R^{12}とR^{13}、R^{13}とR^{14}、R^{15}とR^{16}、R^{16}とR^{17}、R^{17}とR^{18}は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造は芳香環であっても脂肪環であってもよく、またヘテロ原子を含むものであってもよく、さらに環状構造は２環以上の縮合環であってもよい。ここでいうヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群より選択されるものであることが好ましい。形成される環状構造の例として、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、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。

【００２１】

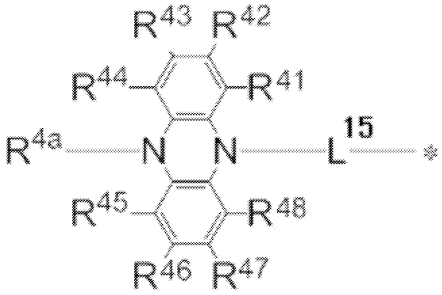
一般式（２）で表される基は、下記一般式（３）～（７）のいずれかで表される基であることが好ましい。

【化９】

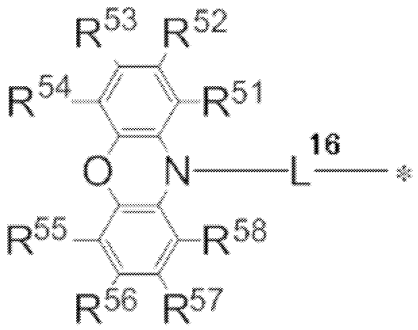
一般式（３）



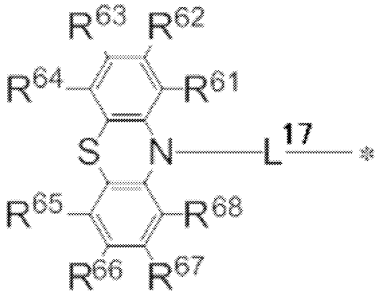
一般式（４）



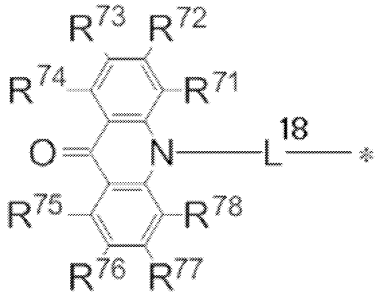
一般式（５）



一般式（６）



一般式（７）



【００２２】

一般式（３）～（７）において、L^{14}～L^{18}は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。L^{14}～L^{18}がアリーレン基であるときのアリーレン基の説明と好ましい範囲については、L^{1}がアリーレン基であるときのアリーレン基の説明と好ましい範囲を参照することができる。

R^{31}～R^{38}、R^{3a}、R^{3b}、R^{41}～R^{48}、R^{4a}、R^{51}～R^{58}、R^{61}～R^{68}、R^{71}～R^{78}は、各々独立に水素原子または置換基を表す。ここでいう置換基の説明と好ましい範囲については、上記のR^{1}～R^{7}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。また、R^{31}～R^{38}、R^{3a}、R^{3b}、R^{41}～R^{48}、R^{4a}、R^{51}～R^{58}、R^{61}～R^{68}、R^{71}～R^{78}は、各々独立に上記一般式（３）～（７）のいずれかで表される基であることも好ましい。一般式（３）～（７）における置換基の数は特に制限されない。すべてが無置換（すなわち水素原子）である場合も好ましい。また、R^{3a}およびR^{3b}は置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基であることが好ましく、炭素数１～６の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数６～１８の置換もしくはアリール基であることがより好ましい。また、一般式（３）～（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いてもよい。一般式（３）～（７）に置換基が存在している場合、その置換基は一般式（３）であればR^{32}～R^{37}、R^{3a}、R^{3b}のいずれかであることが好ましく、R^{3a}およびR^{3b}の少なくとも１つであることがより好ましく、一般式（４）であればR^{42}～R^{47}、R^{4a}いずれかであることが好ましく、一般式（５）であればR^{52}～R^{57}のいずれかであることが好ましく、一般式（６）であればR^{62}～R^{67}のいずれかであることが好ましく、一般式（７）であればR^{72}～R^{77}のいずれかであることが好ましい。

【００２３】

一般式（３）～（７）において、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}、R^{71}とR^{72}、R^{72}とR^{73}、R^{73}とR^{74}、R^{75}とR^{76}、R^{76}とR^{77}、R^{77}とR^{78}は互いに結合して環状構造を形成していてもよい。環状構造の説明と好ましい例については、上記の一般式（２）において、R^{11}とR^{12}等が互いに結合して形成する環状構造の

説明と好ましい例を参照することができる。

【００２４】

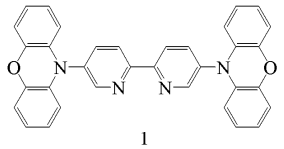
一般式（１）中に存在する一般式（２）で表される基は、すべてが一般式（３）～（７）のいずれか１つの一般式で表される基であることが好ましい。例えば、すべてが一般式（５）で表される基である場合を好ましく例示することができる。

【００２５】

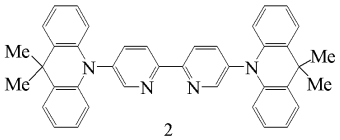
以下において、一般式（１）で表される化合物の具体例を例示する。ただし、本発明において用いることができる一般式（１）で表される化合物はこれらの具体例によって限定的に解釈されるべきものではない。なお、下記式において、Ｍｅはメチル基を表す。

【００２６】

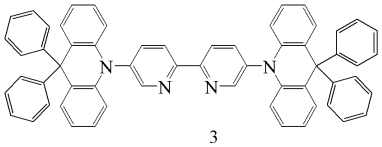
【化１０】



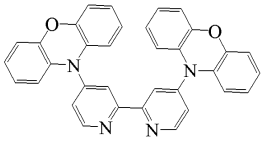
1



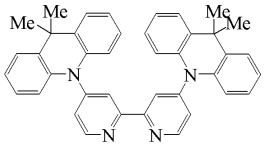
2



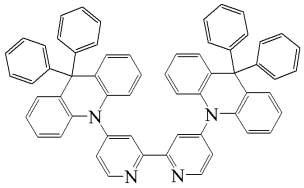
3



4



5



6

【００２７】

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より好ましい。分子量の下限値は、一般式（１）で表される最小化合物の分子量である。

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

【００２８】

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

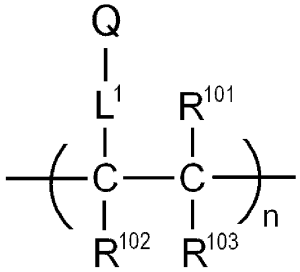
例えば、一般式（１）で表される構造中にあらかじめ重合性基を存在させておいて、その重合性基を重合させることによって得られる重合体を、発光材料として用いることが考えられる。具体的には、一般式（１）のR^1～R^7のいずれかに重合性官能基を含むモノマーを用意して、これを単独で重合させるか、他のモノマーとともに共重合させることにより、繰り返し単位を有する重合体を得て、その重合体を発光材料として用いることが考えられる。あるいは、一般式（１）で表される構造を有する化合物どうしを反応させることにより、二量体や三量体を得て、それらを発光材料として用いることも考えられる。

【００２９】

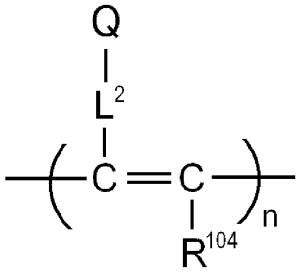
一般式（１）で表される構造を含む繰り返し単位を有する重合体の例として、下記一般式（８）または（９）で表される構造を含む重合体を挙げることができる。

【化１１】

一般式（８）



一般式（９）



【００３０】

一般式（８）または（９）において、Ｑは一般式（１）で表される構造を含む基を表し、L^1およびL^2は連結基を表す。連結基の炭素数は、好ましくは０～２０であり、より好ましくは１～１５であり、さらに好ましくは２～１０である。連結基は－X^{11}－L^{11}－で表される構造を有するものであることが好ましい。ここで、X^{11}は酸素原子または硫黄原子を表し、酸素原子であることが好ましい。L^{11}は連結基を表し、置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のアリーレン基であることが好ましく、炭素数１～１０の置換もしくは無置換のアルキレン基、または置換もしくは無置換のフェニレン基であることがより好ましい。

一般式（８）または（９）において、R^{101}、R^{102}、R^{103}およびR^{104}は、各々独立に置換基を表す。好ましくは、炭素数１～６の置換もしくは無置換のアルキル基、炭素数１～６の置換もしくは無置換のアルコキシ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは炭素数１～３の無置換のアルキル基、炭素数１～３の無置換のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子であり、さらに好ましくは炭素数１～３の無置換のアルキル基、炭素数１～３の無置換のアルコキシ基である。

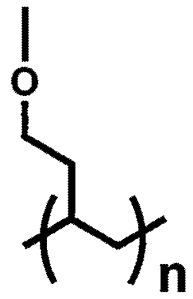
L^1およびL^2で表される連結基は、Ｑを構成する一般式（１）の構造のR^1～R^7のいずれか、一般式（２）の構造のR^{11}～R^{18}のいずれか、一般式（３）の構造のR^{31}～R^{38}、R^{3a}、R^{3b}のいずれか、一般式（４）の構造のR^{41}～R^{48}、R^{4a}のいずれか、一般式（５）の構造のR^{51}～R^{58}のいずれか、一般式（６）の構造のR^{61}～R^{68}のいずれか、一般式（７）の構造のR^{71}～R^{78}のいずれかに結合することができる。１つのＱに対して連結基が２つ以上連結して架橋構造や網目構造を形成していてもよい。

【００３１】

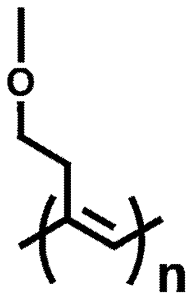
繰り返し単位の具体的な構造例として、下記式（１０）～（１３）で表される構造を挙げることができる。

【化１２】

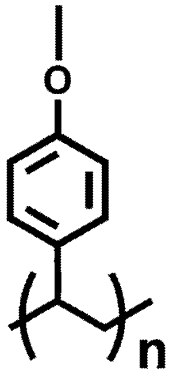
式（10）



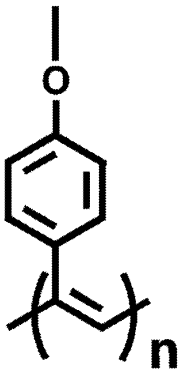
式（11）



式（12）



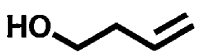
式（13）

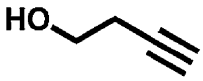


【００３２】

これらの式（１０）～（１３）を含む繰り返し単位を有する重合体は、一般式（１）の構造のR^1～R^7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１３】





【００３３】

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。

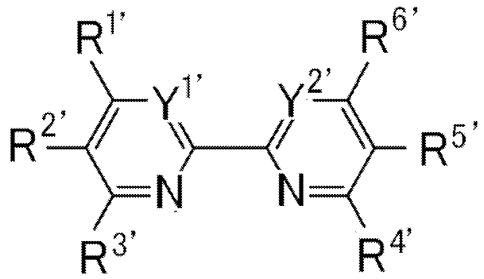
【００３４】

［一般式（１’）で表される化合物］

一般式（１’）で表される化合物は新規化合物である。

【化１４】

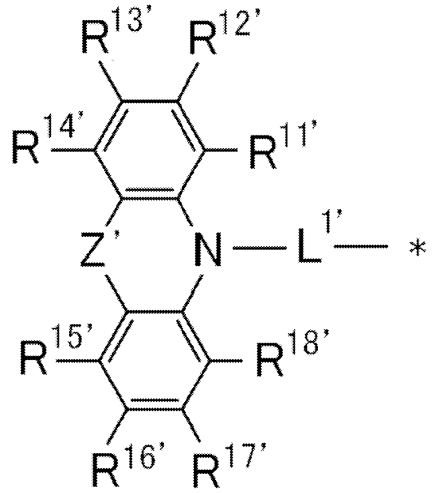
一般式（1’）



一般式（１’）において、$Y^{1'}$および$Y^{2'}$は各々独立にNまたはC（$R^{7'}$）を表し、$R^{1'}$～$R^{7'}$は各々独立に水素原子または置換基を表す。ただし、$R^{1'}$および$R^{2'}$の少なくとも一方と$R^{5'}$および$R^{6'}$の少なくとも一方は、各々独立に下記一般式（２’）で表される基を表す。

【化１５】

一般式（2’）



一般式（２’）において、Z’は連結鎖長が１原子である２価の連結基を表す。$L^{1'}$は単結合、または置換もしくは無置換のアリーレン基を表し、＊は一般式（１）における複素環への結合部位を表す。$R^{11'}$～$R^{18'}$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$R^{14'}$、$R^{15'}$と$R^{16'}$、$R^{16'}$と$R^{17'}$、$R^{17'}$と$R^{18'}$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。

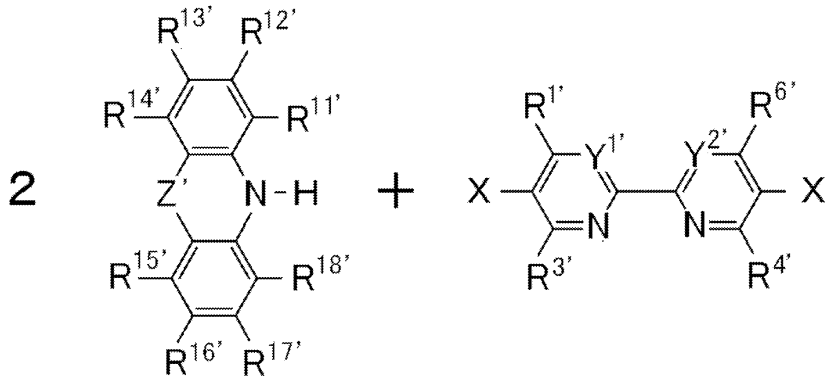
一般式（１’）における$Y^{1'}$、$Y^{2'}$ $R^{1'}$～$R^{7'}$とZ’、$L^{1'}$、と$R^{11'}$～$R^{18'}$の説明と好ましい範囲については、一般式（１）で表される化合物の説明を参照することができる。

【００３５】

［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$R^{2'}$と$R^{5'}$が一般式（２’）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１６】



【００３６】

上記の反応式における$R^{1'}$、$R^{3'}$、$R^{4'}$、$R^{6'}$、$R^{11'}$～$R^{18'}$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。Ｘはハロゲン原子を表し、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を挙げることができ、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が好ましい。

上記の反応は、ウルマン（Ullmann）反応やブッフバルド－ハートウィッグ（Buchwald-Hartwig）反応などの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。

また、中間体のビピリジンのジブロモ体およびアミン誘導体は、市販品として入手してもよいし、合成品を使用してもよい。ビピリジンのジブロモ体は、例えばTetrahedron Letters, 36(36), 6471-4; 1995に記載の方法により合成することができ、アミン誘導体は、Journal of Organic Chemistry, 76(9), 2976-2993; 2011に記載の方法により合成することができる。

【００３７】

［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のようになる。

【００３８】

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

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

【００３９】

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

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

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

【００４０】

（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。

【００４１】

（陽極）

有機エレクトロルミネッセンス素子における陽極としては、仕事関数の大きい（４ｅＶ以上）金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極材料とするものが好ましく用いられる。このような電極材料の具体例としてはＡｕ等の金属、ＣｕＩ、インジウムチンオキシド（ＩＴＯ）、SnO_2、ＺｎＯ等の導電性透明材料が挙げられる。また、ＩＤＩＸＯ（In_2O_3－ＺｎＯ）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（１００μｍ以上程度）、上記電極材料の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性

化合物のように塗布可能な材料を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を１０％より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω／□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常１０～１０００ｎｍ、好ましくは１０～２００ｎｍの範囲で選ばれる。

【００４２】

（陰極）

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

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

【００４３】

（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。

【００４４】

（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。

【００４５】

（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。

【００４６】

（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。

【００４７】

（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。

【００４８】

（励起子阻止層）

励起子阻止層とは、発光層内で正孔と電子が再結合することにより生じた励起子が電荷輸送層に拡散することを阻止するための層であり、本層の挿入により励起子を効率的に発光層内に閉じ込めることが可能となり、素子の発光効率を向上させることができる。励起子阻止層は発光層に隣接して陽極側、陰極側のいずれにも挿入することができ、両方同時に挿入することも可能である。すなわち、励起子阻止層を陽極側に有する場合、正孔輸送層と発光層の間に、発光層に隣接して該層を挿入することができ、陰極側に挿入する場合、発光層と陰極との間に、発光層に隣接して該層を挿入することができる。また、陽極と、発光層の陽極側に隣接する励起子阻止層との間には、正孔注入層や電子阻止層などを有することができ、陰極と、発光層の陰極側に隣接する励起子阻止層との間には、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層などを有することができる。阻止層を配置する場合、阻止層として用いる材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーの少なくともいずれか一方は、発光材料の励起一重項エネルギーおよび励起三重項エネルギーよりも高いことが好ましい。

【００４９】

（正孔輸送層）

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

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。使用できる公知の正孔輸送材料として

は例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられるが、ポルフィリン化合物、芳香族第３級アミン化合物およびスチリルアミン化合物を用いることが好ましく、芳香族第３級アミン化合物を用いることがより好ましい。

【００５０】

（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。

【００５１】

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いてもよい。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。

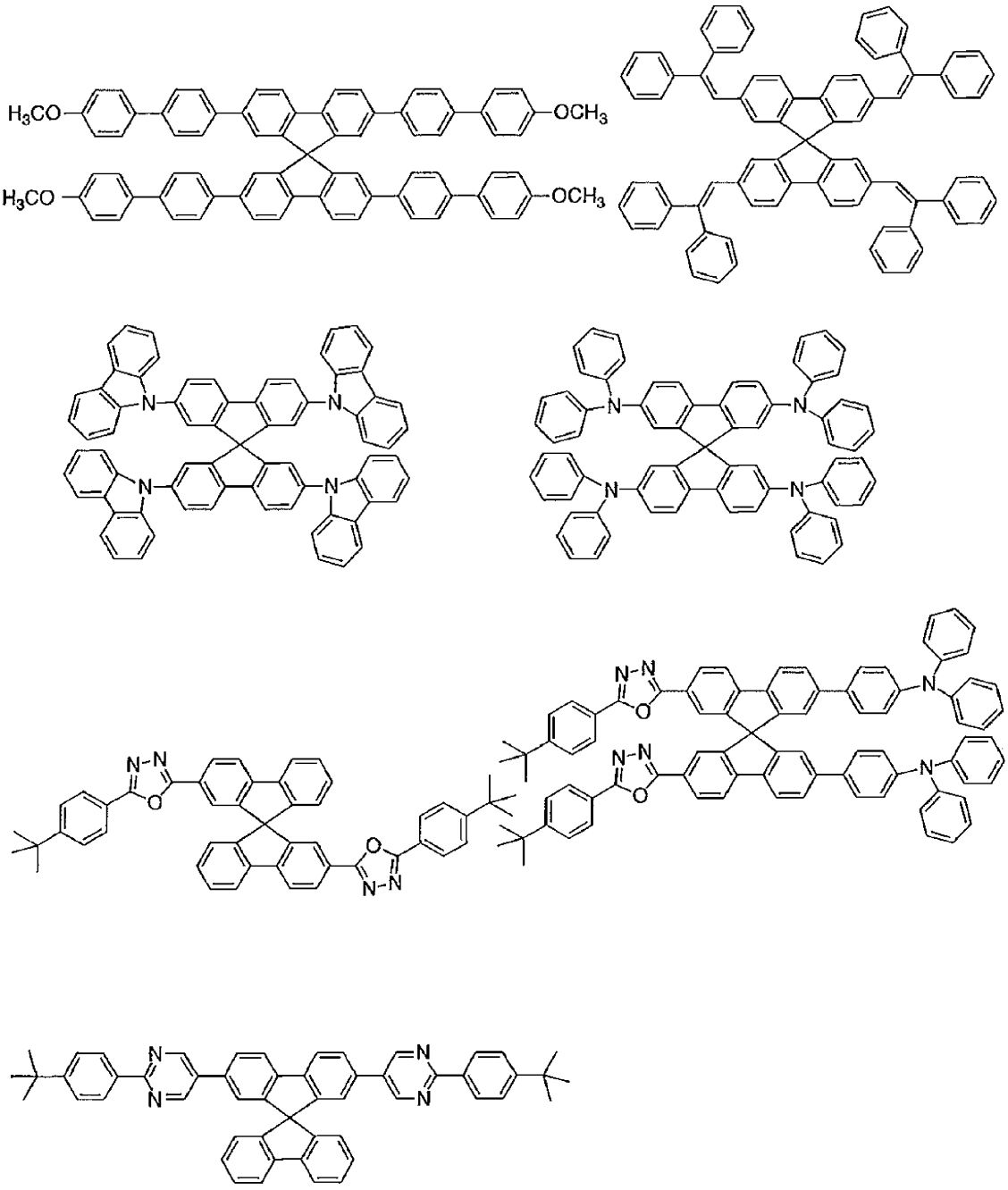
【００５２】

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～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。

【００５３】

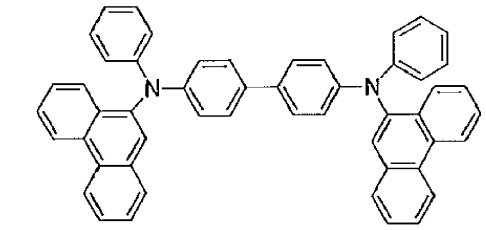
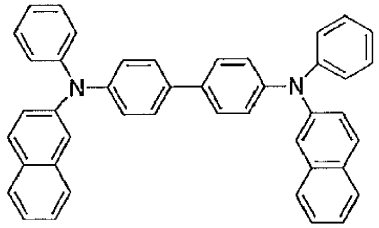
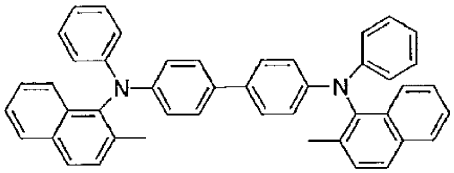
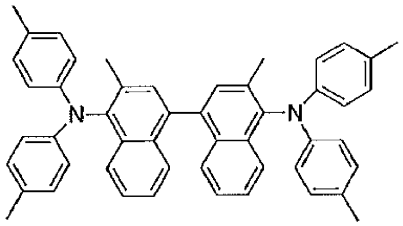
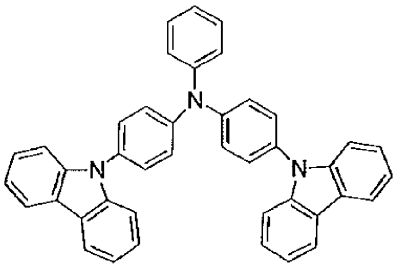
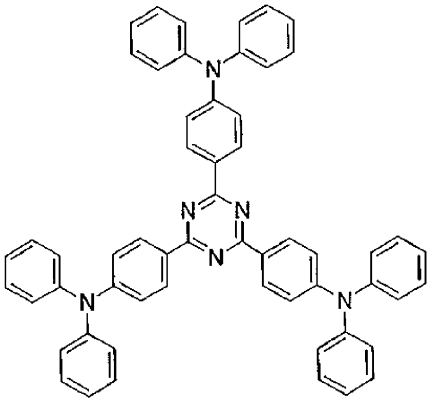
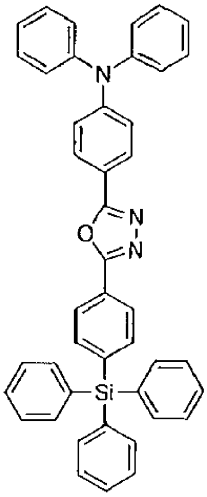
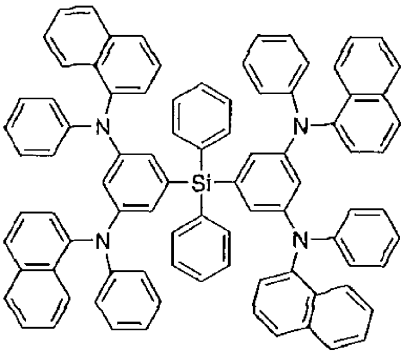
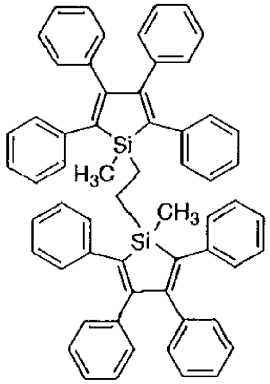
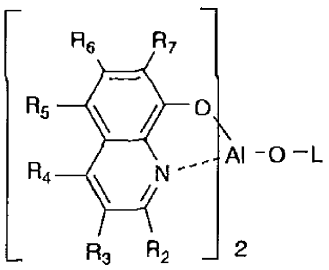
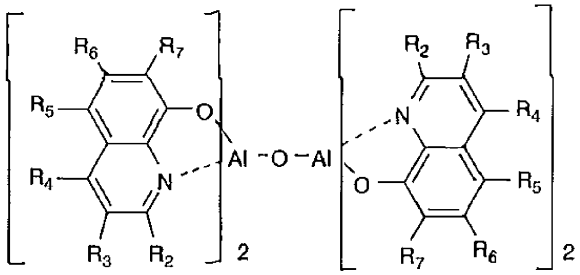
まず、発光層のホスト材料としても用いることができる好ましい化合物を挙げる。

【化１７】



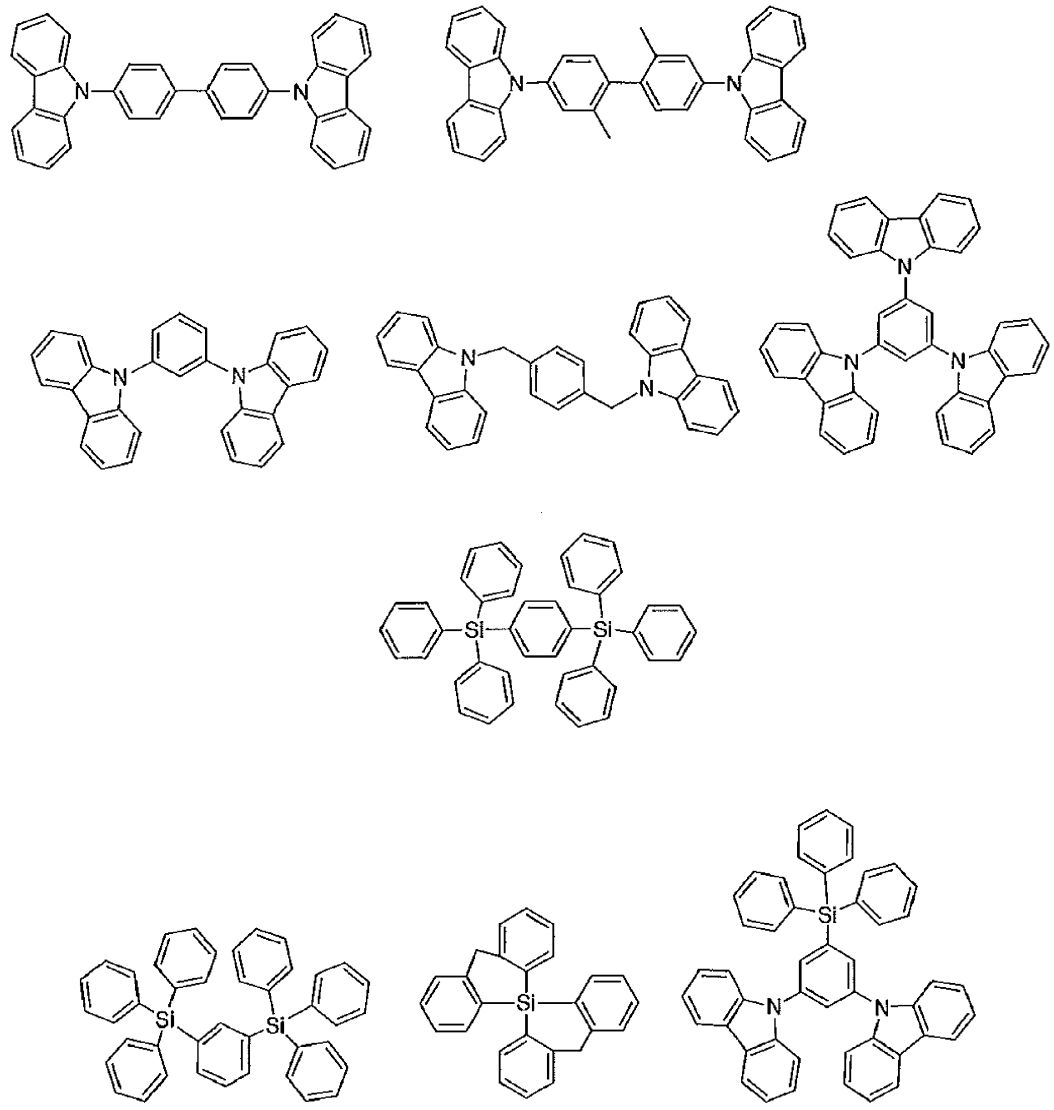
【００５４】

【化１８】

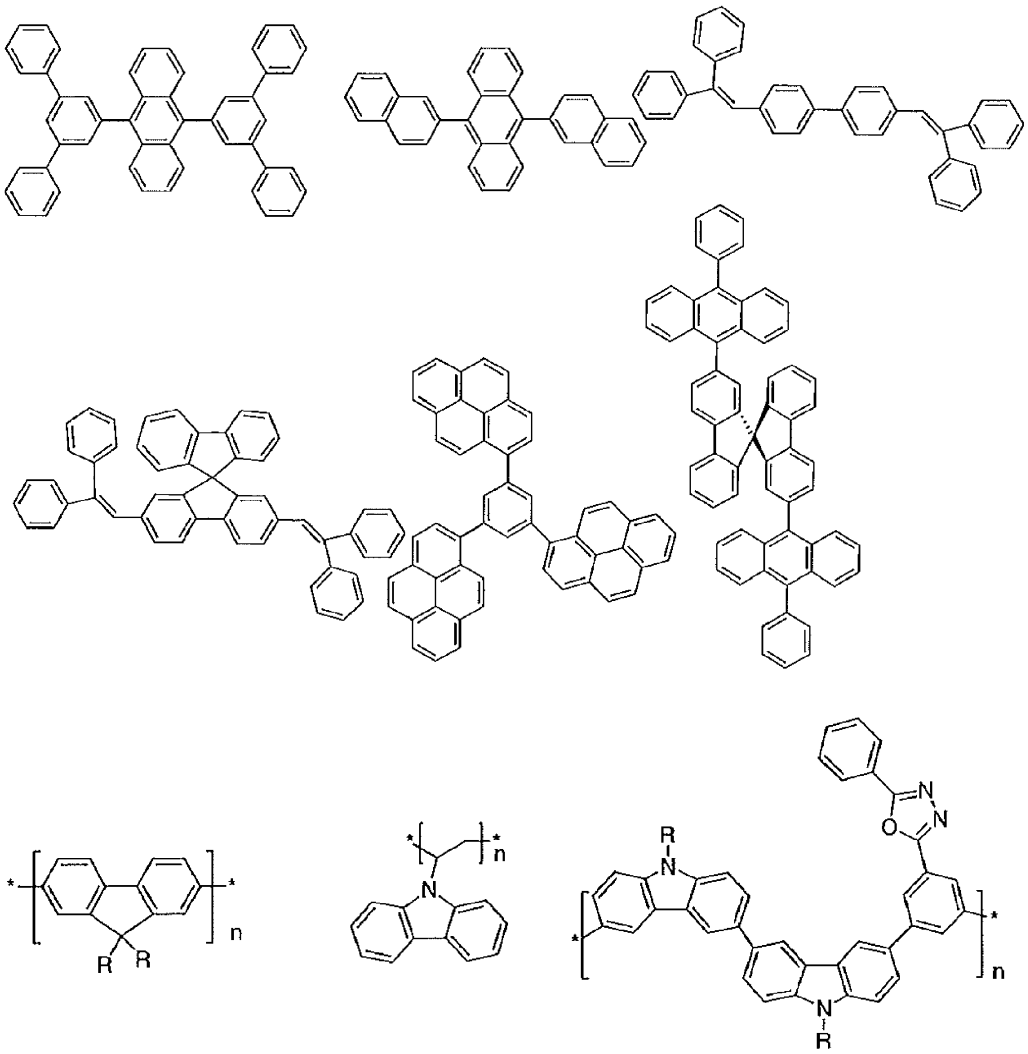
【００５５】

【化１９】



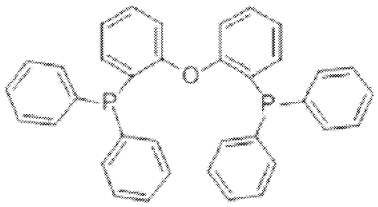
【００５６】

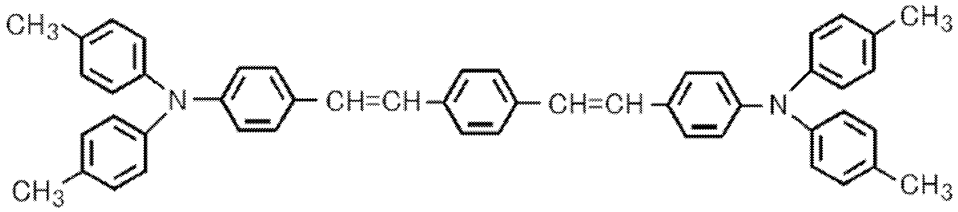
【化２０】

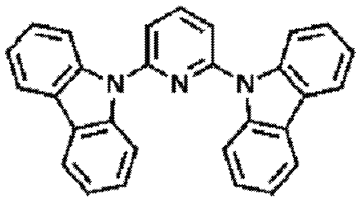


【００５７】

【化２１】

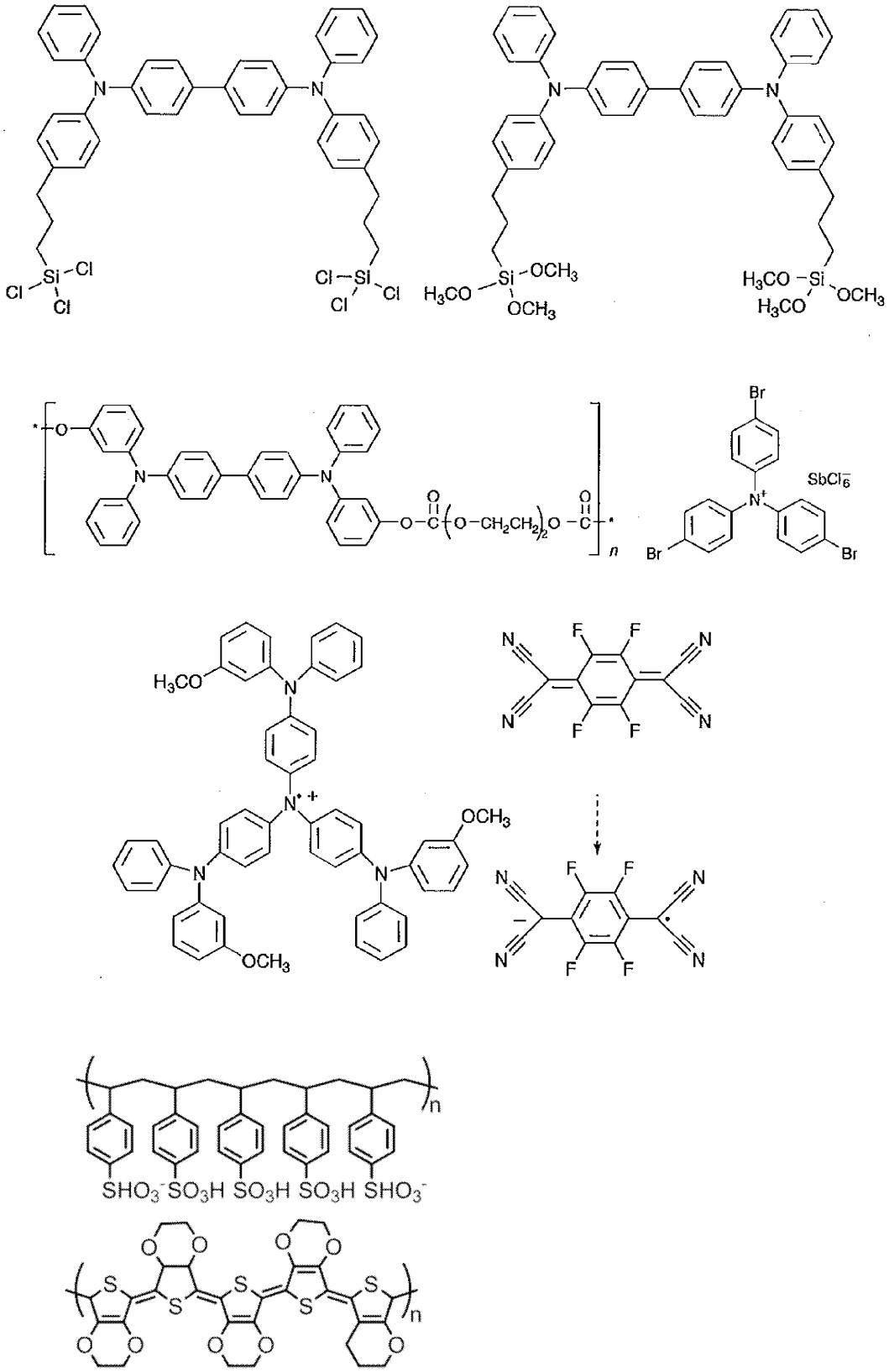






【００５８】
次に、正孔注入材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。
【００５９】

【化２２】

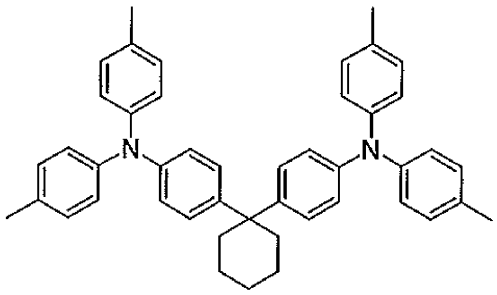


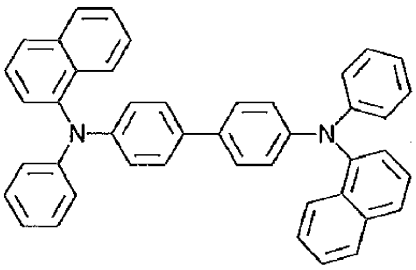
【００６０】

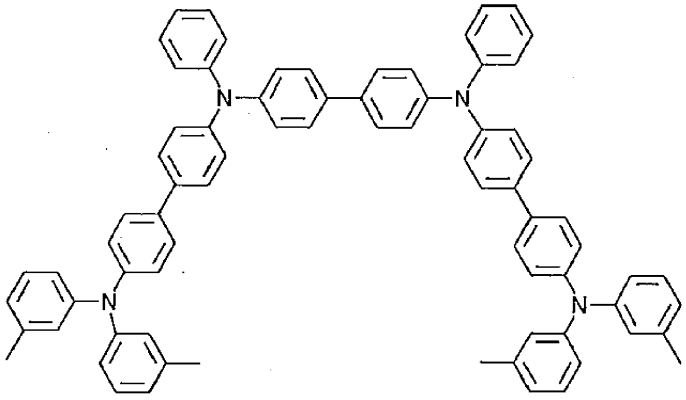
次に、正孔輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

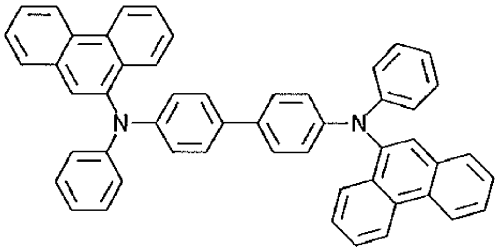
【００６１】

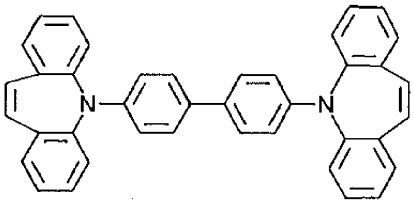
【化２３】





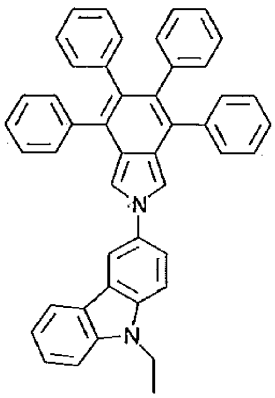


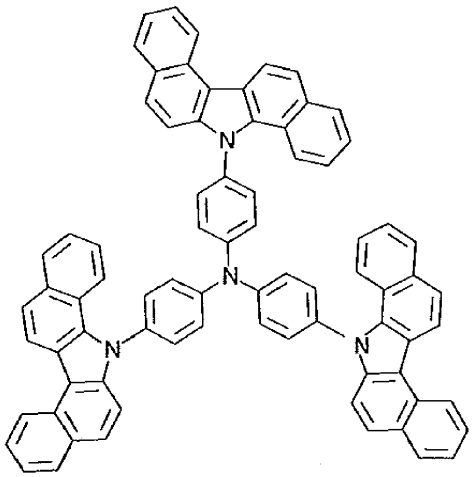


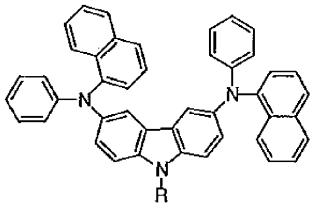


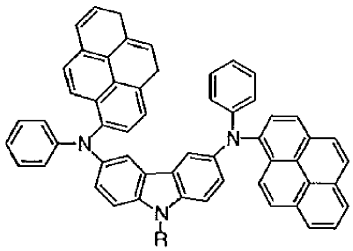
【００６２】

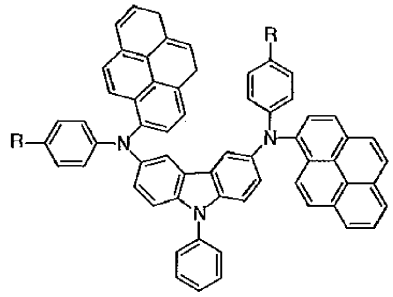
【化２４】

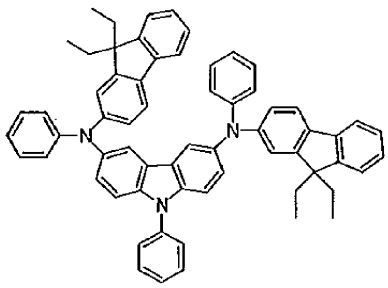


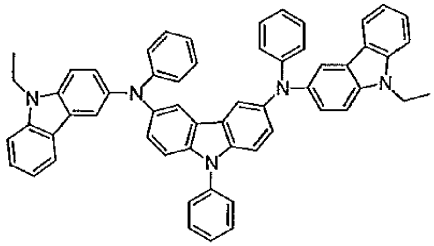


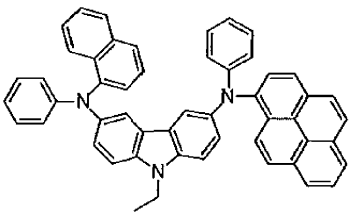






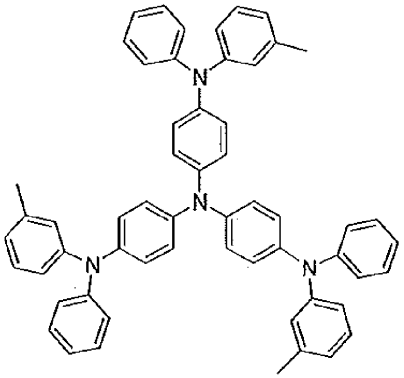


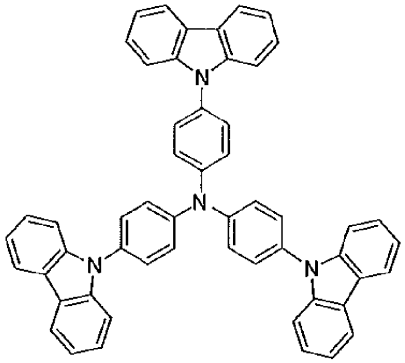


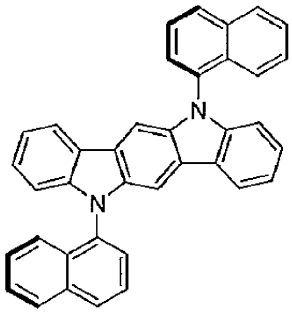


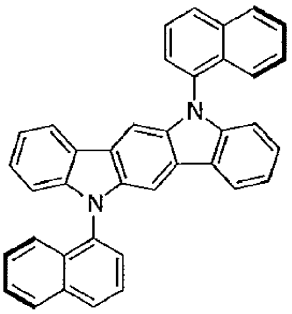
【００６３】

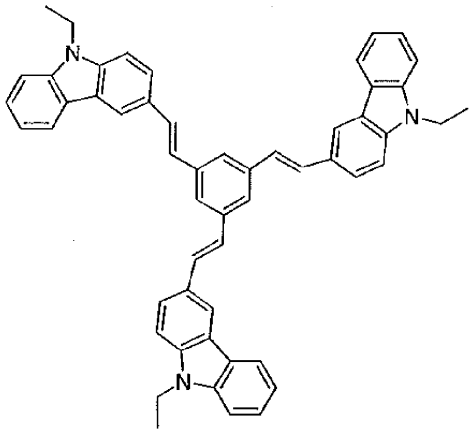
【化２５】

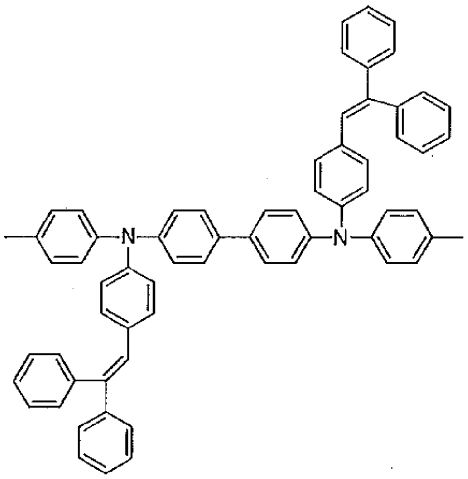






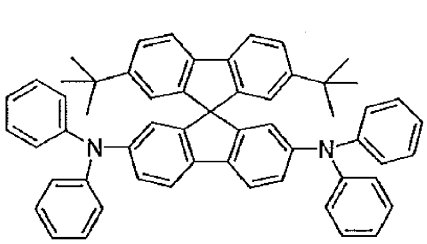


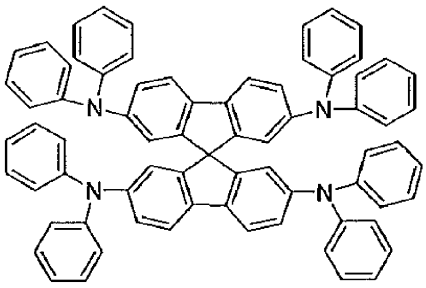


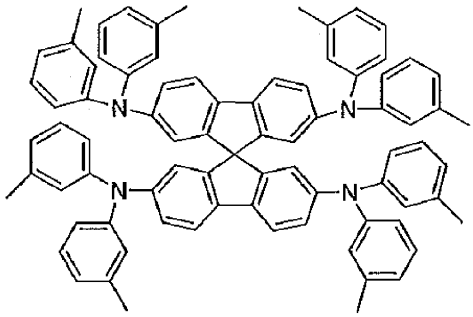


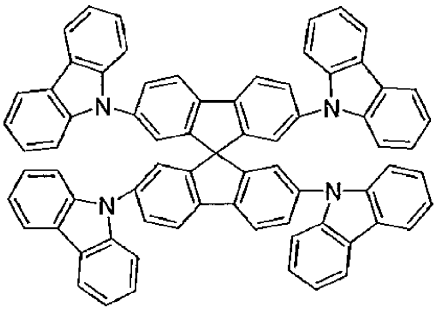
【００６４】

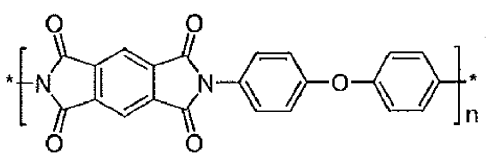
【化２６】

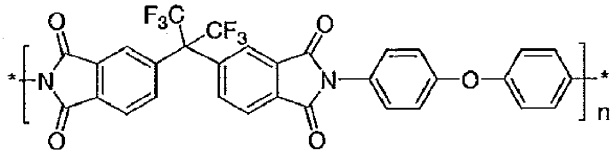


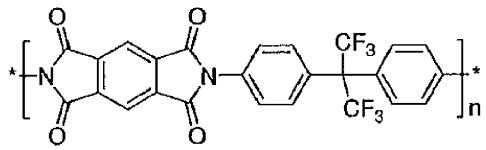


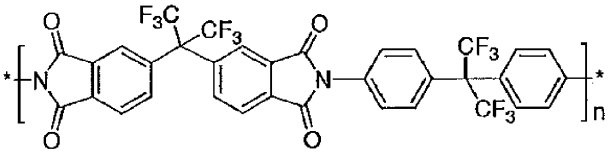






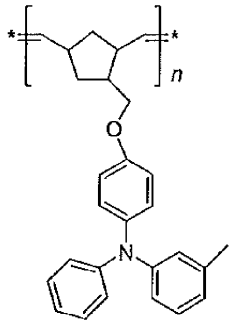


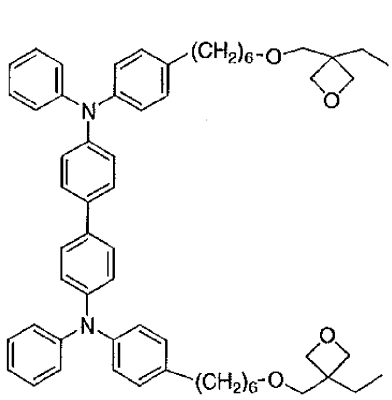


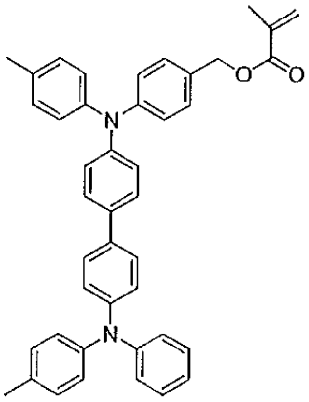


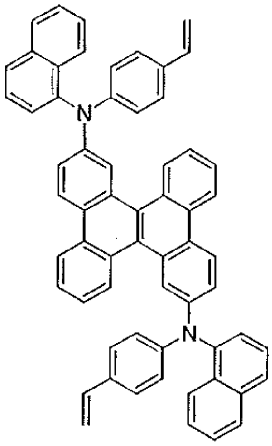
【００６５】

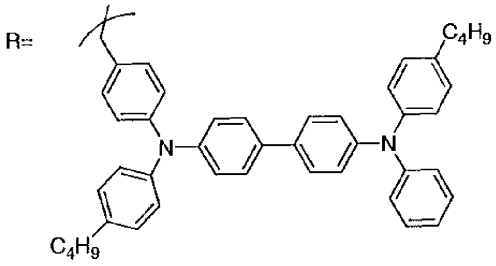
【化２７】





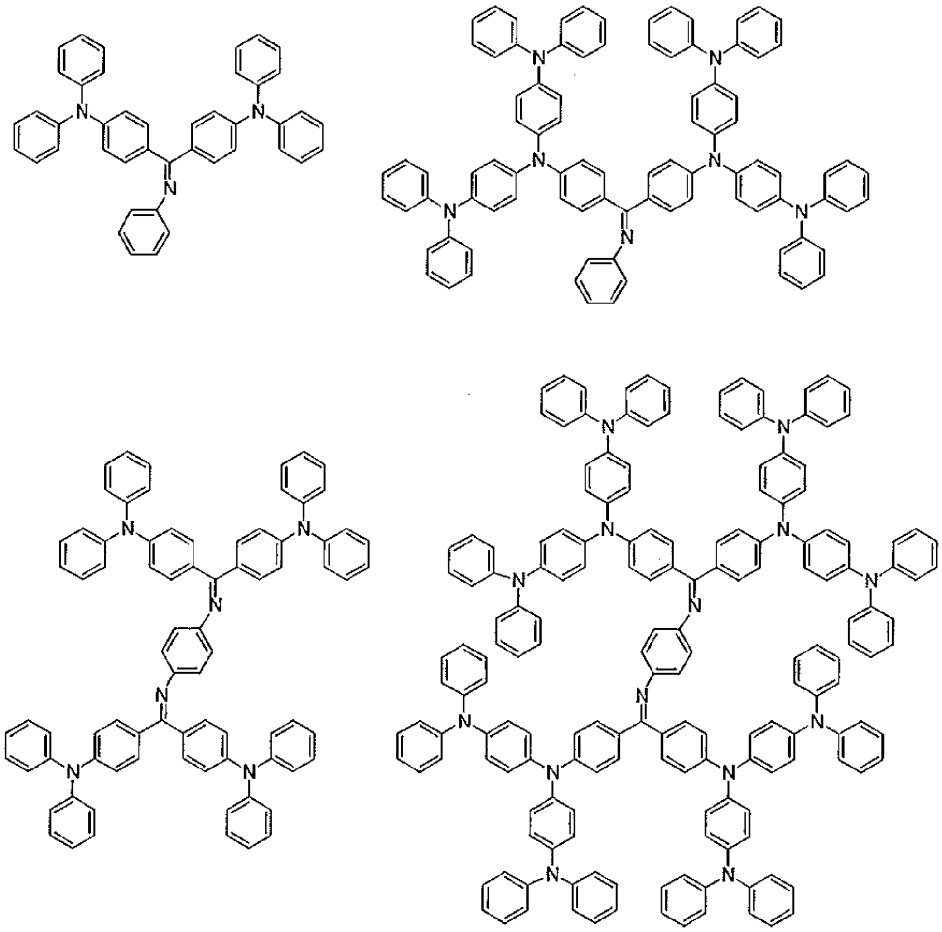






【００６６】

【化２８】

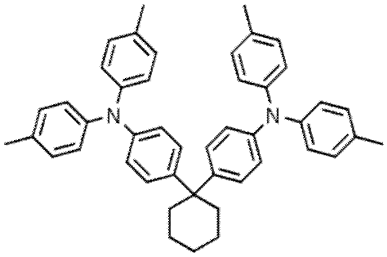


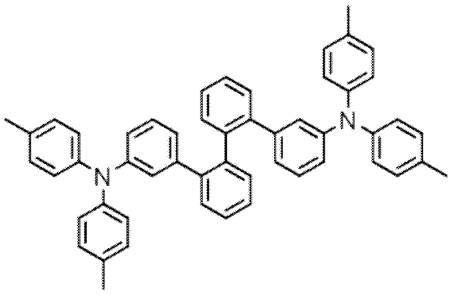
【００６７】

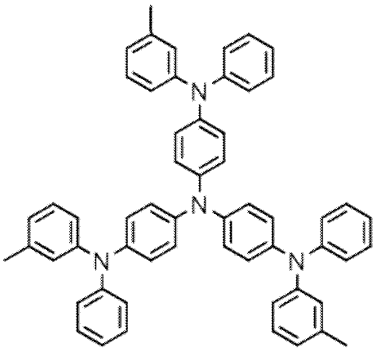
次に、電子阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

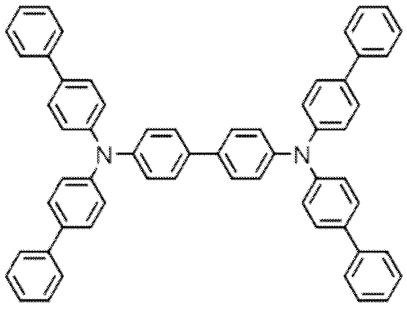
【００６８】

【化２９】







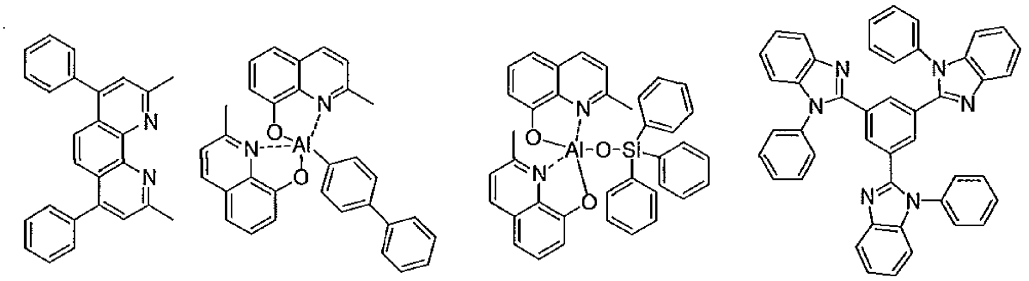


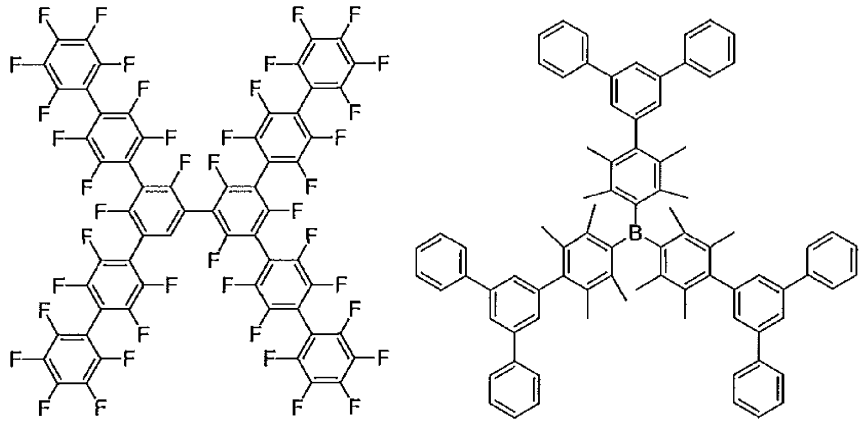
【００６９】

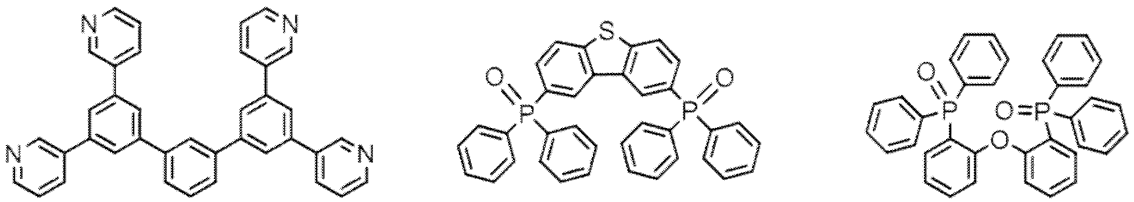
次に、正孔阻止材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

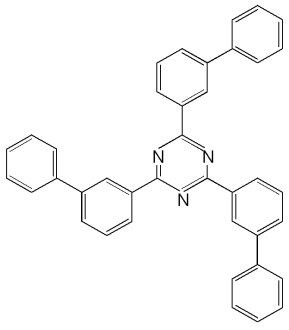
【００７０】

【化３０】







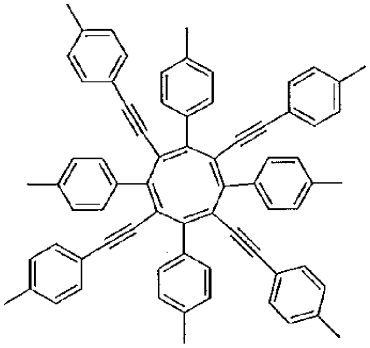


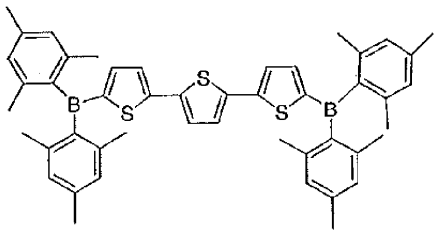
【００７１】

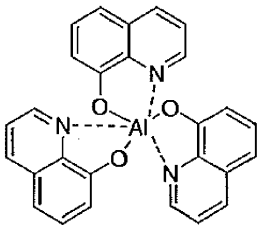
次に、電子輸送材料として用いることができる好ましい化合物例を挙げる。

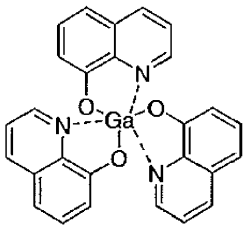
【００７２】

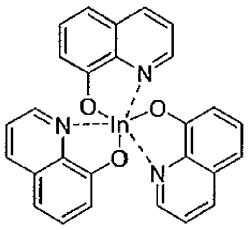
【化３１】

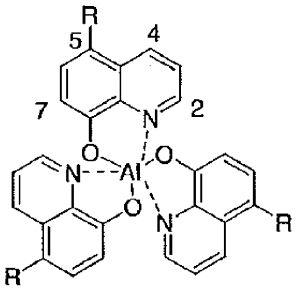


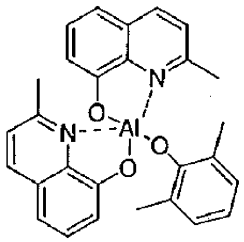


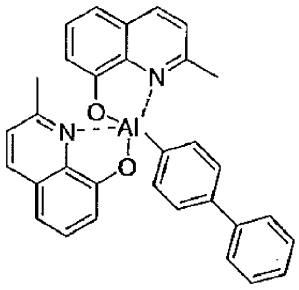


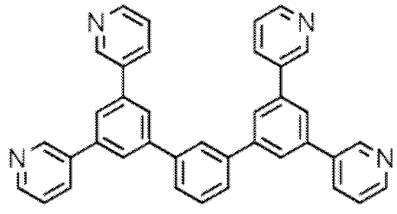


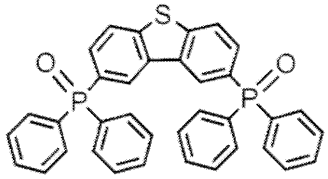


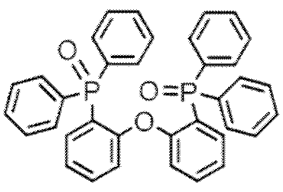






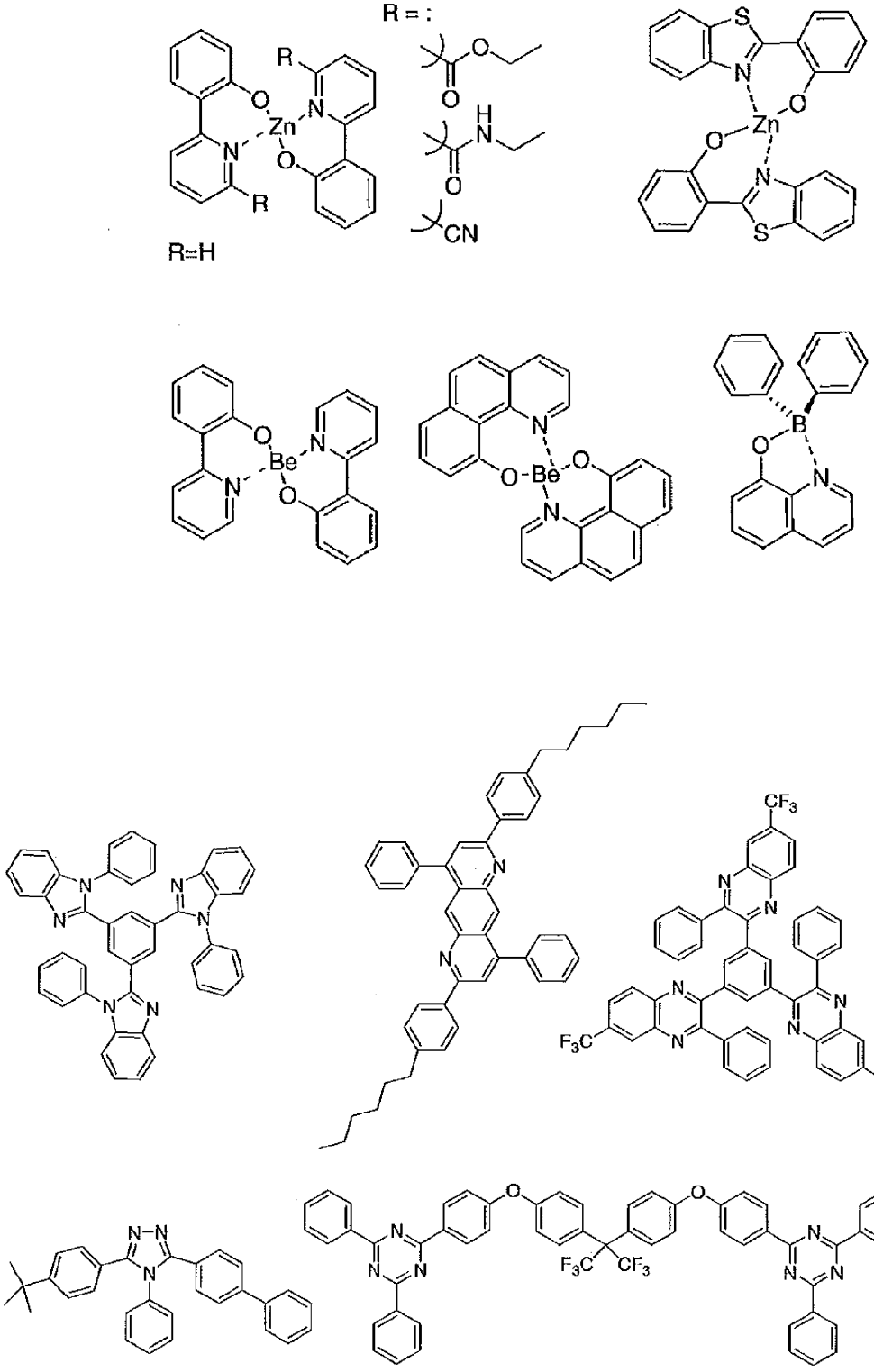






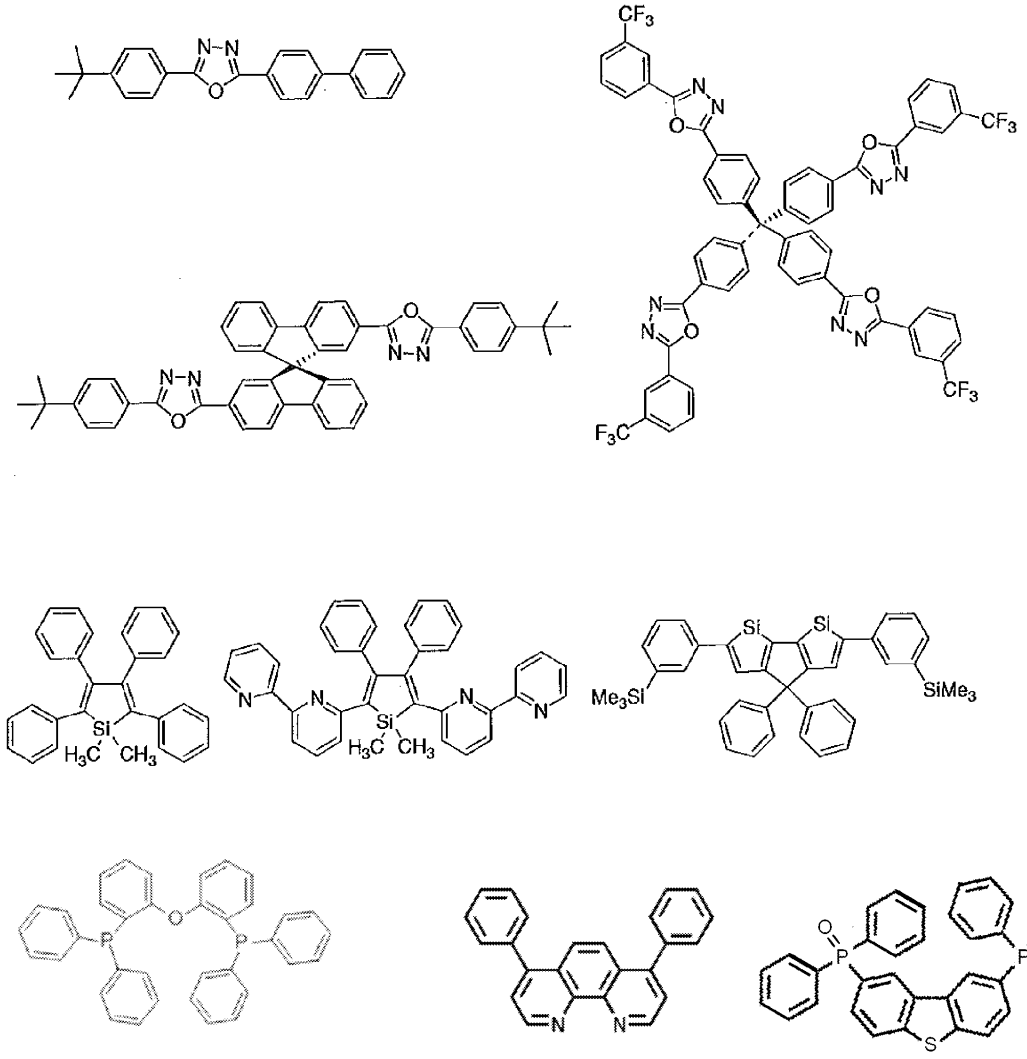
【００７３】

【化３２】



【００７４】

【化３３】

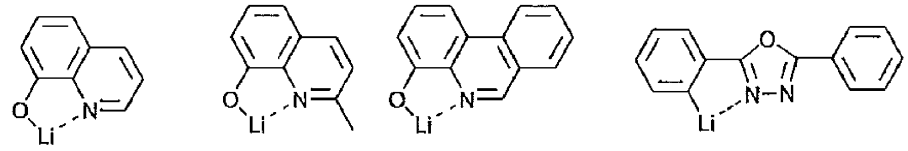


【００７５】

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。

【００７６】

【化３４】

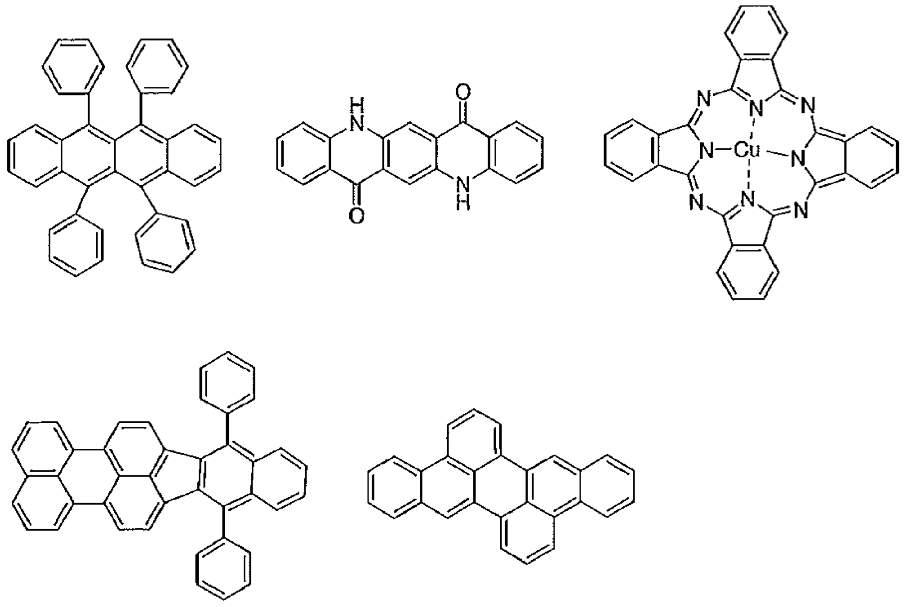


【００７７】

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。

【００７８】

【化３５】



【００７９】

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。

【００８０】

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

【実施例】

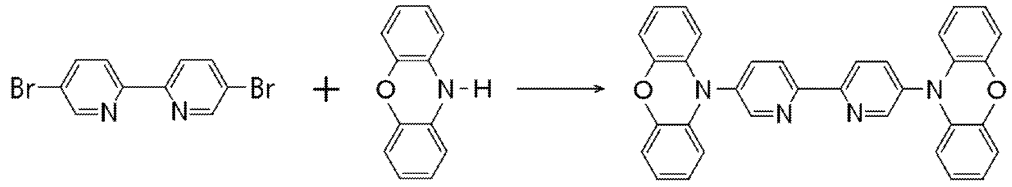
【００８１】

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。

【００８２】

（合成例１）　化合物１の合成

【化３６】



化合物１

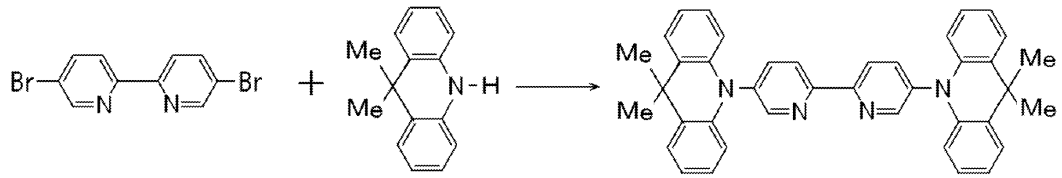
４，４’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）と、フェノキサジン（４．４０ｇ，２４ｍｍｏｌ）と、ビス（ジベンジリデンアセトン）パラジウム（Ｐｄ（ｄｂａ）$_2$：０．４６ｇ，０．８ｍｍｏｌ）と、ナトリウムｔｅｒｔ－ブトキシ（ＮａＯｔ－Ｂｕ：２．８８ｇ，３０ｍｍｏｌ）と、トリ（ｔｅｒｔ－ブチル）ホスホニウム　テトラフルオロボレート（ｔＢｕ$_3$Ｐ・ＨＢＦ$_4$：０．１１６ｇ，０．４ｍｍｏｌ）を脱水トルエン５０ｍｌに加え、内温を１００℃に保ちながら２４時間加熱した。放冷した反応液に、水２００ｍｌを加え、分液した。このうち有機層を濃縮し、濃縮物をＳｉＯ$_2$カラムクロマトグラフィーにより、クロロホルム：ヘキサン＝１：１の混合溶媒を展開溶媒に用いて精製した。これにより、化合物１を収量３．１０ｇ、収率６０％で得た。更に、この化合物１の精製物を３２０℃、１Ｐａ以下の条件で昇華精製した。

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）ｄ８．９－８．５（２Ｈ），７．８－７．５（２Ｈ）、７．４－６．８（１８Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝５１８（Ｍ＋）

【００８３】

（合成例２）　化合物２の合成

【化３７】



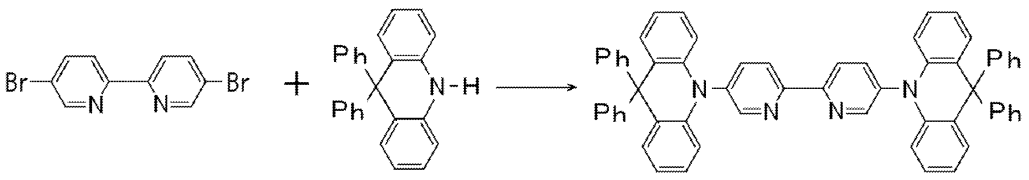
化合物２

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）ｄ８．９－８．６（２Ｈ），７．９－７．５（２Ｈ）、７．４－６．５（１８Ｈ）、１．５－１．９（１２Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝５７０（Ｍ＋）、５５５（Ｍ$^+$－１５）

【００８４】

（合成例３）　化合物３の合成

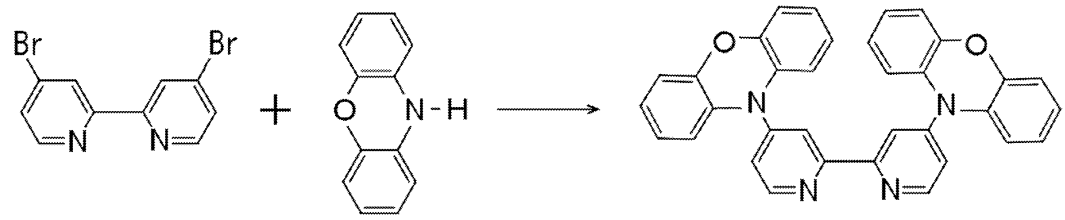
【化３８】



化合物３

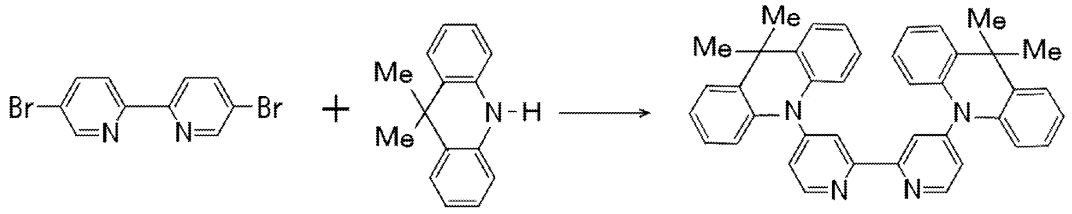
４，４’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）とフェノキサジン（４．４０ｇ，２４ｍｍｏｌ）の代わりに、４，４’－ジブロモビピリジン（１．５７ｇ，５ｍｍｏｌ）とジフェニルアクリダン（４．００ｇ，１２ｍｍｏｌ）を用いる以外は、合成例１と同様の合成工程およびカラムクロマトグラフィーによる精製を行い、化合物３を収量２．２５ｇ，収率５５％で得た。その後、化合物３の精製物を３２０℃、１Ｐａ以下の条

件で昇華精製した。
^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）ｄ８．９－８．６（２Ｈ），７．９－７．５（２Ｈ）、７．４－６．５（３８Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝８１９（Ｍ＋）
【００８５】
（合成例４）　化合物４の合成
【化３９】



化合物４

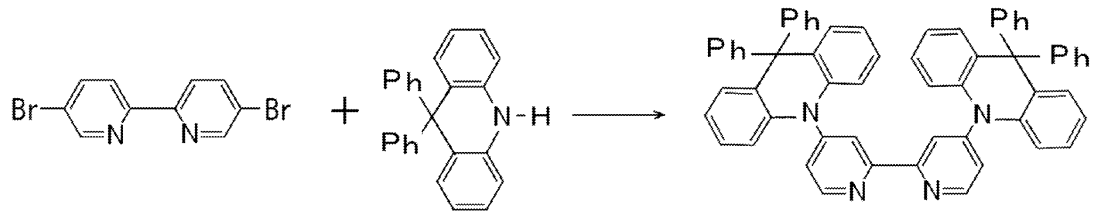
４，４’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）の代わりに、５，５’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）を用いる以外は、合成例１と同様の合成工程およびカラムクロマトグラフィーによる精製を行い、化合物４を収量２．３３ｇ、収率４５％で得た。その後、化合物４の精製物を３２０℃、１Ｐａ以下の条件で昇華精製した。
^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）ｄ８．６－８．１（２Ｈ），８．０－７．６（２Ｈ）、７．４－６．５（１８Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝５１８（Ｍ＋）
【００８６】
（合成例５）　化合物５の合成
【化４０】



化合物５

４，４’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）とフェノキサジン（４．４０ｇ，２４ｍｍｏｌ）の代わりに、５，５’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）とジメチルアクリダン（５．０２ｇ，２４ｍｍｏｌ）を用いる以外は、合成例１と同様の合成工程およびカラムクロマトグラフィーによる精製を行い、化合物５を収量１．７１ｇ、収率３０％で得た。その後、化合物５の精製物を３２０℃、１Ｐａ以下の条件で昇華精製した。
^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）ｄ８．６－８．１（２Ｈ），８．０－７．６（２Ｈ）、７．４－６．５（１８Ｈ）、１．５－１．９（１２Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝５７０（Ｍ＋）、５５５（M^+－１５）
【００８７】
（合成例６）　化合物６の合成

【化４１】



化合物６

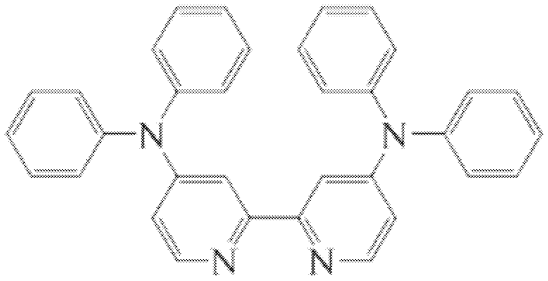
４，４’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）とフェノキサジン（４．４０ｇ，２４ｍｍｏｌ）の代わりに、５，５’－ジブロモビピリジン（１．５７ｇ，５ｍｍｏｌ）とジフェニルアクリダン（４．００ｇ，１２ｍｍｏｌ）を用いる以外は、合成例１と同様の合成工程およびカラムクロマトグラフィーによる精製を行い、化合物６を収量１．９７ｇ、収率４８％で得た。その後、化合物６の精製物を３２０℃、１Ｐａ以下の条件で昇華精製した。

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）ｄ８．６－８．１（２Ｈ），８．０－７．５（２Ｈ）、７．４－６．５（３８Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝８１９（Ｍ＋）

【００８８】

（比較合成例１）　比較化合物１の合成

【化４２】



比較化合物１

４，４’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）とフェノキサジン（４．４０ｇ，２４ｍｍｏｌ）の代わりに、５，５’－ジブロモビピリジン（３．１４ｇ，１０ｍｍｏｌ）とジフェニルアミン（４．０６ｇ，２４ｍｍｏｌ）を用いる以外は、合成例１と同様の合成工程およびカラムクロマトグラフィーによる精製を行い、比較化合物１を収量４．９１ｇ、収率８０％で得た。その後、比較化合物１の精製物を３２０℃、１Ｐａ以下の条件で昇華精製した。

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（６００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）ｄ８．５－８．１（２Ｈ），８．０－７．６（２Ｈ）、７．４－６．５（２２Ｈ）；ＭＳ（７０ｅＶ，ＥＩ）ｍ／ｚ＝４９０（Ｍ＋）

【００８９】

（実施例１）　化合物１のトルエン溶液の調製と評価

Ａｒ雰囲気のグローブボックス中で化合物１のトルエン溶液（濃度１０$^{-5}$ｍｏｌ／Ｌ）を調製した。

化合物１のトルエン溶液について、３３７ｎｍ励起光による発光スペクトルを測定し、さらに空気中および窒素バブリングによる窒素置換後にフォトルミネッセンス量子効率を測定した。測定した発光スペクトルは、蛍光スペクトル（ＰＬ）とりん光スペクトル（ｐｈｏｓ）である。これらスペクトルを図２に併せて示す。フォトルミネッセンス量子効率は、空気中で１８％、窒素置換後で８８％であった。

また、化合物１のトルエン溶液について、空気中および窒素置換後に過渡減衰曲線を測定した。測定された過渡減衰曲線を図３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３に示す化合物１の過渡減衰曲線では、観測初期にこのような直線的成分（蛍光）が観測されているが、数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１は蛍光成分のほかに遅延成分を含む発光体であることが確認された。即時蛍光の発光寿命τ_1は、空気中で０．００６３６ｎｓ、窒素置換後で０．０１９２μｓであった。遅延蛍光の発光寿命τ_2は、窒素置換後で２．５４μｓであった。

【００９０】

（実施例２）　化合物４の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の調製と評価

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４とｍＣＰとを異なる蒸着源から蒸着し、化合物４の濃度が６．０重量％である薄膜を１００ｎｍの厚さで形成して薄膜型有機フォトルミネッセンス素子とした。

化合物４の有機フォトルミネッセンス素子について、３３７ｎｍ励起光による蛍光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された蛍光スペクトルを図４に示し、過渡減衰曲線を図５に示す。フォトルミネッセンス量子効率は、空気中で４７％、窒素置換後で５０％であった。また、化合物４の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光寿命は、即時蛍光τ_1が５９．６ｎｓ、遅延蛍光τ_2が２．８８μｓであった。

【００９１】

（比較例１）　比較化合物１の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の調製と評価

化合物４のかわりに比較化合物１を用いる以外は、実施例２と同様にして薄膜型有機フォトルミネッセンス素子を作製した。

比較化合物１の有機フォトルミネッセンス素子について、３３７ｎｍ励起光による蛍光スペクトルおよび過渡減衰曲線を測定した。測定された蛍光スペクトルを図６に示し、過渡減衰曲線を図７に示す。蛍光スペクトルでは、４２２ｎｍの他に５５０ｎｍにもピークが認められた。フォトルミネッセンス量子効率は、空気中で１８％、窒素置換後で１９％であった。比較化合物１の薄膜型有機フォトルミネッセンス素子の発光寿命は即時蛍光τ_1が３．０６ｎｓであり、遅延蛍光は観測されなかった。

【００９２】

（実施例３）　化合物１の有機エレクトロルミネセンス素子の調製と評価

膜厚１００ｎｍのインジウム・スズ酸化物（ＩＴＯ）からなる陽極が形成されたガラス基板上に、各薄膜を真空蒸着法にて、真空度10^{-3}Ｐａ以下で積層した。まず、ＩＴＯ上にＨＡＴ－ＣＮを１０ｎｍの厚さに形成し、Ｔｒｉｓ－ＰＣｚを３０ｎｍの厚さに形成した。次に、化合物１とｍＣＢＰを異なる蒸着源から共蒸着し、３０ｎｍの厚さの層を形成して発光層とした。この時、化合物１の濃度は６．０重量％とした。次に、Ｔ２Ｔを１０ｎｍの厚さに形成し、Ｂｐｙ－ＴＰ２を４０ｎｍの厚さに形成し、さらにフッ化リチウム（ＬｉＦ）を０．８ｎｍ真空蒸着し、次いでアルミニウム（Ａｌ）を１００ｎｍの厚さに蒸着することにより陰極を形成し、有機エレクトロルミネッセンス素子とした。

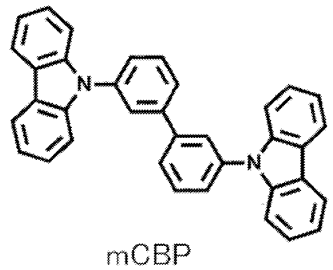
製造した有機エレクトロルミネッセンス素子の発光スペクトルを図８に示し、電圧－電流密度特性を図９に示し、電流密度－外部量子効率特性を図１０に示す。化合物１を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は１２．７％の高い外部量子効率を達成した。仮に発光量子効率が１００％の蛍光材料を用いてバランスの取れた理想的な有機エレクトロルミネッセンス素子を試作したとすると、光取り出し効率が２０～３０％であれば、蛍光発光の外部量子効率は５～７．５％となる。この値が一般に、蛍光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率の理論限界値とされている。化合物１を用いた本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、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。

【００９３】

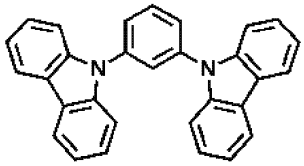
上記の実施例で用いた化合物は、いずれも遅延蛍光を放射する遅延蛍光体であった。一

般式（１）で表される化合物は、いずれも発光量子効率が高くて、発光材料として優れた特性を示す。これに対して、比較化合物１は、実施例の化合物に比べて発光量子効率が低く、遅延蛍光も観測されなかった。これは、ドナー部であるアミノ基で、ベンゼン環同士の間に橋かけ構造がなく、環が形成されていないことに起因するものと推測される。

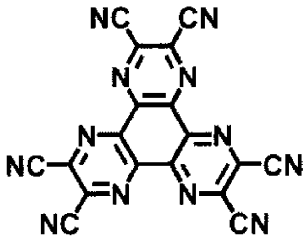
【化４３】



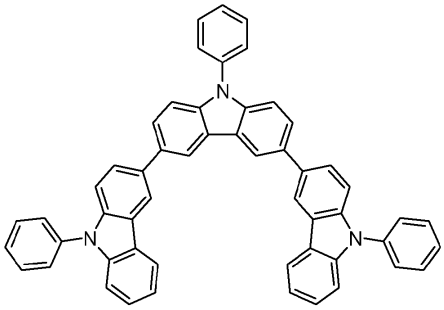
mCBP



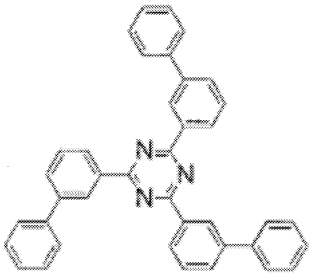
mCP



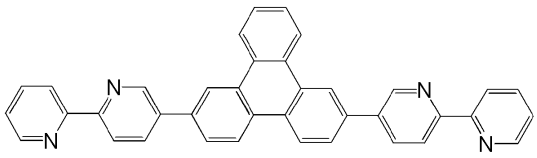
HATCN



TrisPCz



T2T



BpyTP2

【産業上の利用可能性】

【００９４】

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

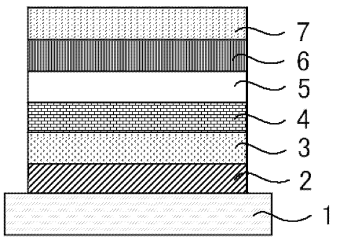
【符号の説明】

【００９５】

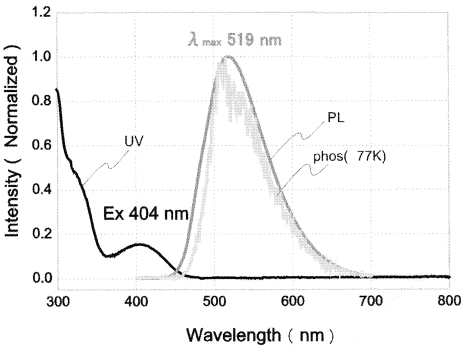
１　基板
２　陽極
３　正孔注入層
４　正孔輸送層

5　発光層
6　電子輸送層
7　陰極

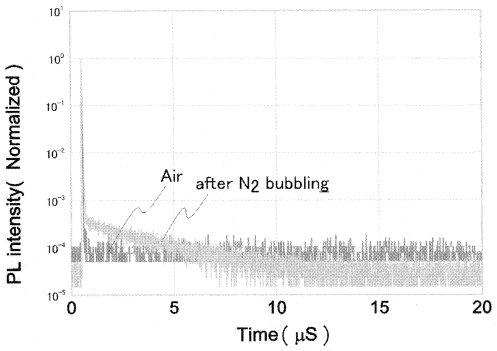
【図１】



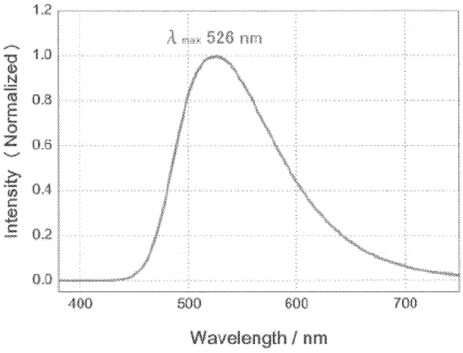
【図２】



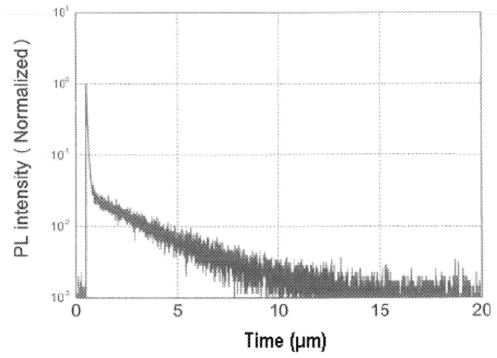
【図３】



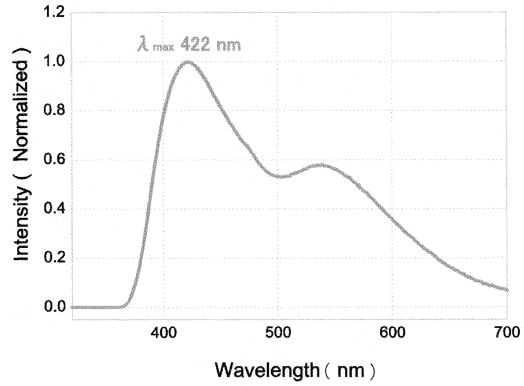
【図４】



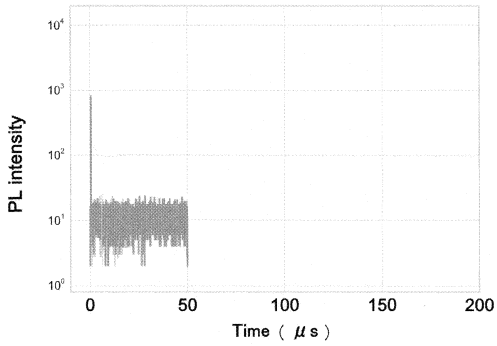
【図５】



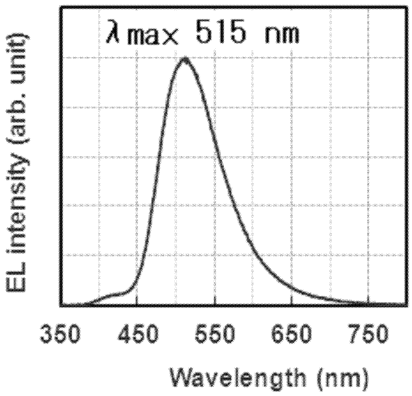
【図６】



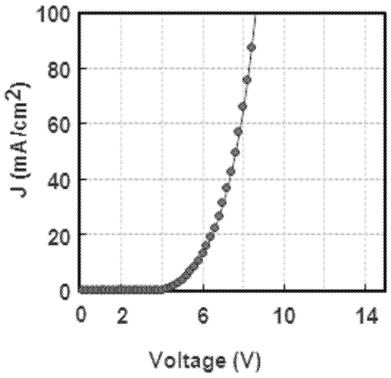
【図７】



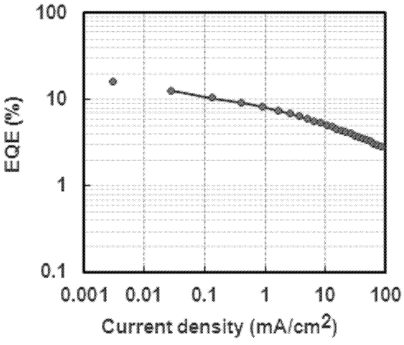
【図８】



【図９】



【図１０】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.　　FI
　　C07D 413/14

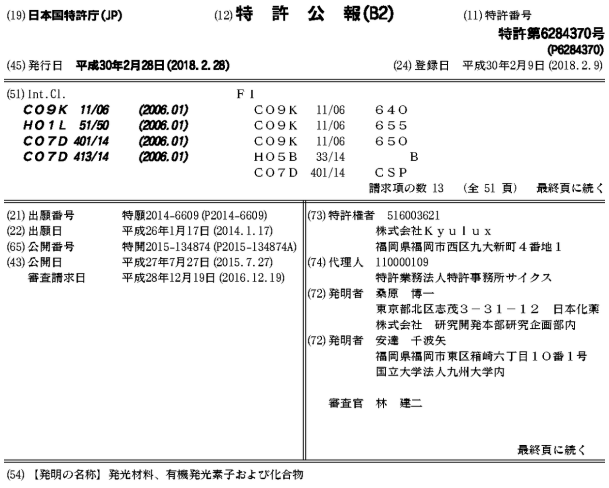
(56)参考文献　国際公開第２０１２／１４９９９９（WO，A1）
国際公開第２０１１／０７１２５５（WO，A1）
特開２００９－１７０８１５（JP，A）
特許第４０６０８０２（JP，B2）
特開２００９－１３０９７（JP，A）
国際公開第２０１２／０３７２６９（WO，A1）
米国特許出願公開第２０１２／０２４７５６１（US，A1）
米国特許出願公開第２０１２／０２３１５４７（US，A1）
特開２００７－１１９４８１（JP，A）
G. Valchanov, et al., Tuning the optical absorption of potential blue emitters, Organic Electronics, ２０１３年　8月　2日, Volume 14, Issue 11, Pages 2727-2736
D. Hanss and O. S. Wenger, Variation of charge transfer kinetics in structurally closely related dyads with rhenium photosensit, Inorganica Chimica Acta, ２００９年　2月　8日, Volume 362, Issue 10, Pages 3415-3420
L. D. Ciana, et al., Synthesis of Side-Chain Derivatives of 2,2'-Bipyridine, The Journal of Organic Chemistry, １９８９年　3月　1日, Volume 54, Issue 7, Pages 1731-1735

(58)調査した分野(Int.Cl.，DB名)
　　C09K　11／06
　　H01L　27／32
　　H05B　33／00－33／28
　　C07D　401／14
　　C07D　413／14
　　CAplus／REGISTRY（STN）
　　JSTPlus／JMEDPlus／JST7580（JDreamIII）

专利名称(译)	发光材料，有机发光元件和化合物		
公开(公告)号	JP6284370B2	公开(公告)日	2018-02-28
申请号	JP2014006609	申请日	2014-01-17
[标]申请(专利权)人(译)	日本化药有限公司 国立大学法人九州大学		
申请(专利权)人(译)	日本化药有限公司 国立大学法人九州大学		
当前申请(专利权)人(译)	株式会社KYULUX		
[标]发明人	桑原博一 安達千波矢		
发明人	桑原 博一 安達 千波矢		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50 C07D401/14 C07D413/14		
CPC分类号	H01L51/0067 C07D401/14 C07D413/14 C09K11/06 C09K2211/1007 C09K2211/1029 C09K2211/1033 C09K2211/1074 C09K2211/1077 H01L51/0071 H01L51/0072 H01L51/5012		
FI分类号	C09K11/06.640 C09K11/06.655 C09K11/06.650 H05B33/14.B C07D401/14.CSP C07D413/14 C07D401/14 C09K11/06.645		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC45 3K107/DD66 4C063/AA05 4C063/BB02 4C063/CC16 4C063/CC54 4C063/DD12 4C063/EE10		
审查员(译)	林健治		
其他公开文献	JP2015134874A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

（经修改）要解决的问题：提供具有高发光效率并且可用作发光材料的化合物。具有叔氨基的发光材料引入由通式（1）表示的联吡啶骨架中。[Y 1 和Y 2 独立地代表N或C（R 7 ）和R 1 并且R 2 中的至少一个和R 5 和R 6 中的至少一个是由通式（2）表示的基团L 1 是单键或取代或未取代的亚芳基]【选择图】无



(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号 特許第6284370号 (P6284370)

(45)発行日 平成30年2月28日(2018.2.28)　(24)登録日 平成30年2月9日(2018.2.9)

(51)Int.Cl.　F I
C09K 11/06 (2006.01)　C09K 11/06 640
H01L 51/50 (2006.01)　C09K 11/06 655
C07D 401/14 (2006.01)　C09K 11/06 650
C07D 413/14 (2006.01)　H05B 33/14 B
C07D 401/14 CSP

請求項の数 13 (全 51 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2014-6609(P2014-6609)
(22)出願日 平成26年1月17日(2014.1.17)
(65)公開番号 特開2015-134874(P2015-134874A)
(43)公開日 平成27年7月27日(2015.7.27)
審査請求日 平成28年12月19日(2016.12.19)

(73)特許権者 516003621
株式会社Ｋｙｕｌｕｘ
福岡県福岡市西区九大新町４番地１
(74)代理人 110000109
特許業務法人特許事務所サイクス
(72)発明者 桑原　博一
東京都北区志茂３－３１－１２　日本化薬株式会社　研究開発本部研究企画部内
(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

審査官 林　建二

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