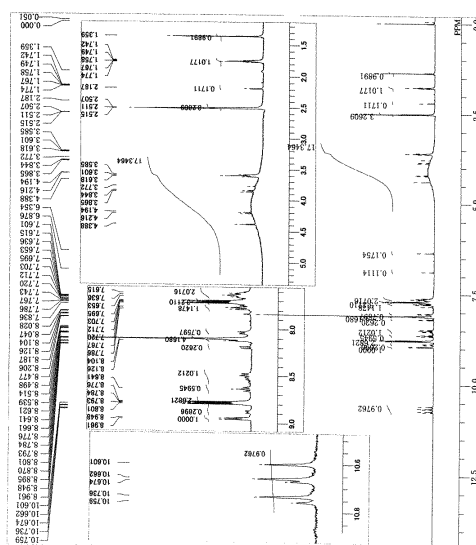


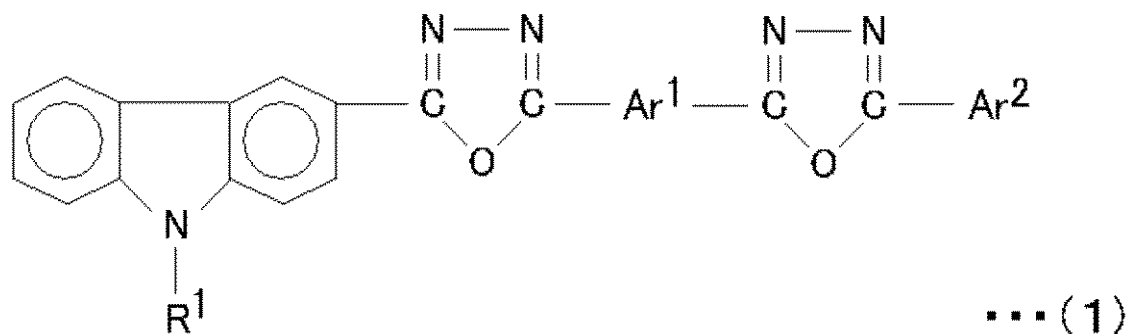


【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の式（１）で示される構造を有することを特徴とする発光化合物。

【化 1】



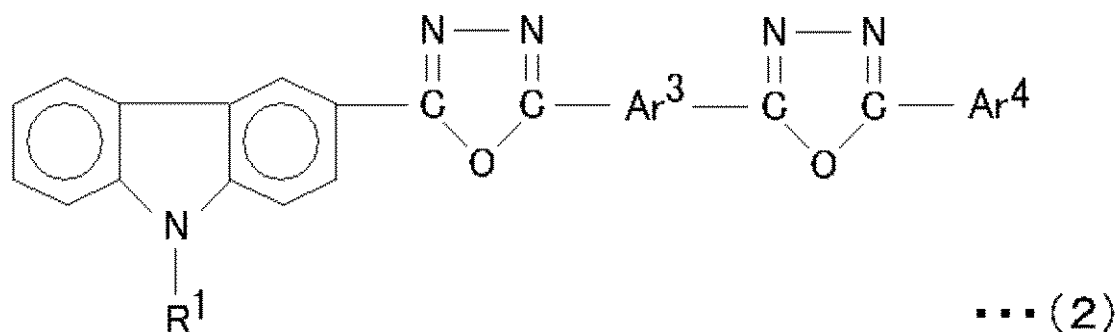
10

（ただし、式中、 R^1 は、水素原子、ビニル基、アリール基または炭素数 1 ～ 10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 Ar^1 は、芳香族炭化水素の環に結合する水素原子が 2 個脱離して生ずる基を示し、 Ar^2 は、アリール基を示す。）

【請求項 2】

以下の式（２）で示される構造を有することを特徴とする発光化合物。

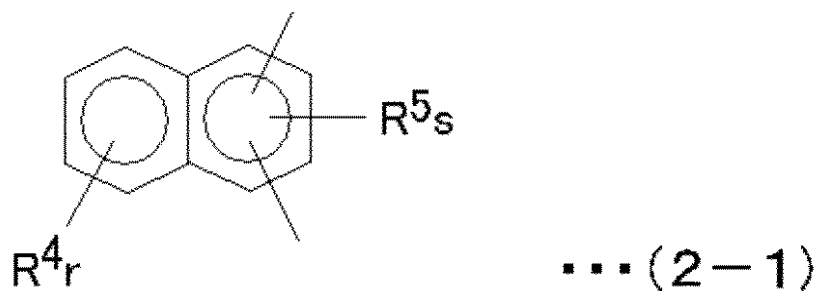
【化 2】



20

（ただし、式中、 R^1 は、前記請求項 1 におけるのと同様の意味を示し、 Ar^3 は、以下の式（２－１）または（２－２）で表される置換基を示し、 Ar^4 は、以下の式（２－３）または（２－４）で表されるアリール基を示す。）

【化 3】

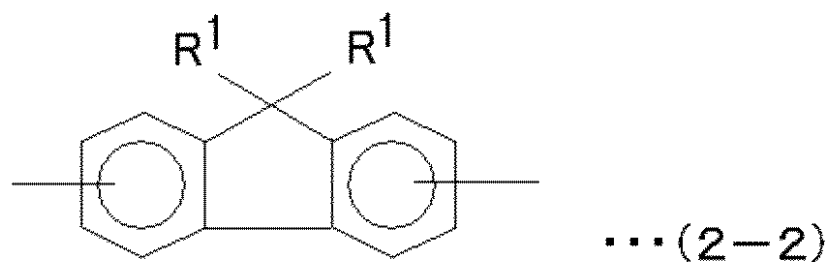


30

40

（ただし、式中、 R^4 および R^5 は、水素原子または炭素数 1 ～ 10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 r は、1 ～ 4 の整数を示し、 s は、1 または 2 の整数を示す。なお、 R^4 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。また、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。）

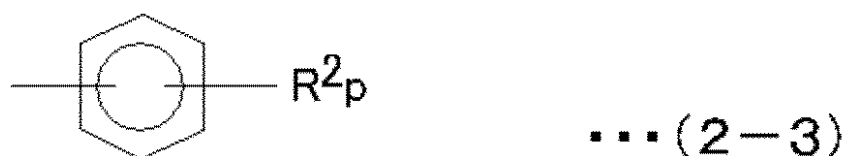
【化 4】



(ただし、式中、 R^1 は、前記と同様の意味を示す。なお、二つの R^1 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

10

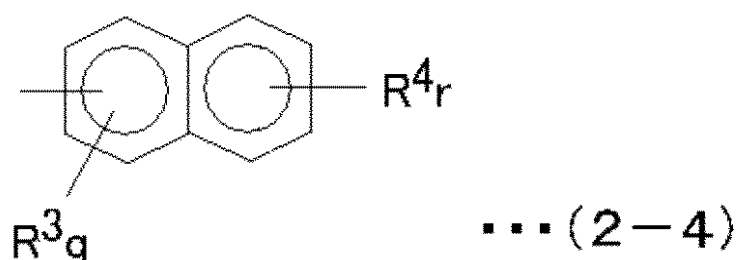
【化 5】



(ただし、式中、 R^2 は、水素原子または炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 p は、1～5 の整数を示す。また、 p 個の R^2 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

20

【化 6】



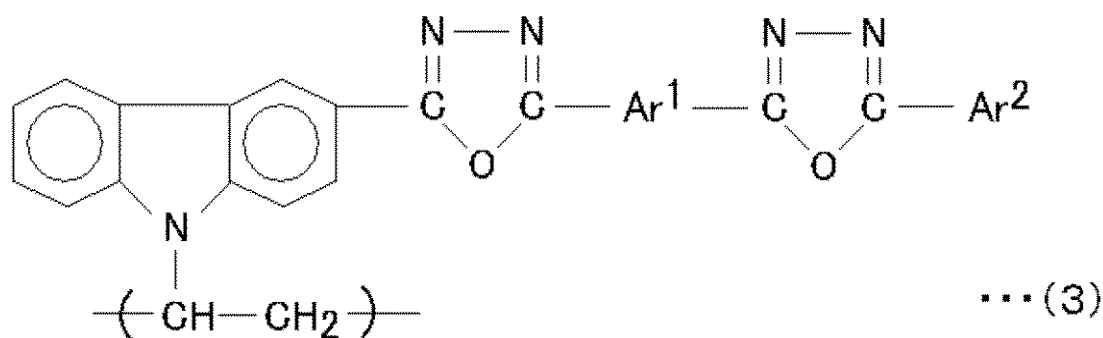
30

(ただし、式中、 R^3 は、水素原子または炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 q は、1～3 の整数を示す。 R^4 および r は、前記と同様の意味を示す。また、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

【請求項 3】

以下の式 (3) で示される繰り返し単位を有することを特徴とする発光化合物。

【化 7】



40

(ただし、式中、 Ar^1 および Ar^2 は前記請求項 1 におけるのと同様の意味を示す。)

【請求項 4】

50

一対の電極間に、前記式（１）、（２）、又は（３）で示される発光化合物を含有する発光層を設けてなることを特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

この発明は、発光化合物、及び発光素子に関し、更に詳しくは、電気的エネルギーを加えると高輝度で発光可能な、耐久性のある発光化合物、及びそれを利用した発光素子に関する。

【背景技術】

10

【０００２】

従来、エネルギーの付与により高輝度で発光する有機化合物は見あたらない。しかも、高輝度で高純度で発光する上に堅牢性のある有機化合物はなおさら見あたらなかった。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【０００３】

この発明の目的は、高純度の色に高輝度で発光する、耐久性のある有機化合物を提供することを目的とする。この発明の他の目的は、高純度の色に高輝度で発光する耐久性のある発光素子を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

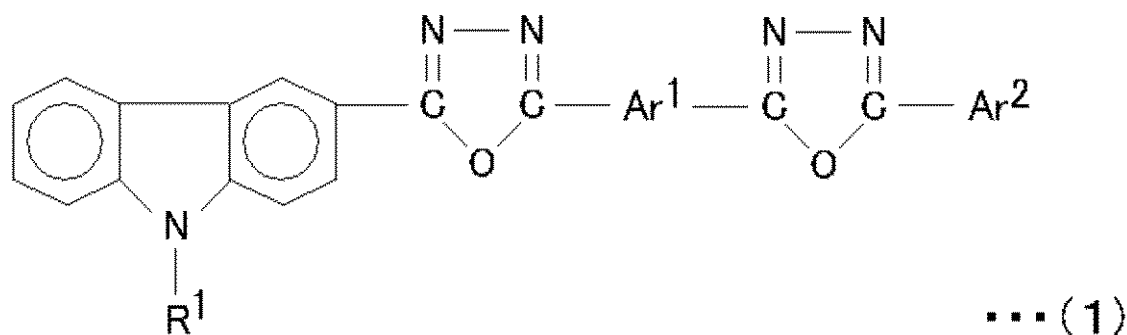
20

【０００４】

前記課題を解決するためのこの発明の第一の手段は、以下の式（１）で示される構造を有することを特徴とする発光化合物である。

【０００５】

【化１】



30

【０００６】

（ただし、式中、 R^1 は、水素原子、ビニル基、アリール基または炭素数１～１０のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 Ar^1 は、芳香族炭化水素の環に結合する水素原子が２個脱離して生ずる基を示し、 Ar^2 は、アリール基を示す。）

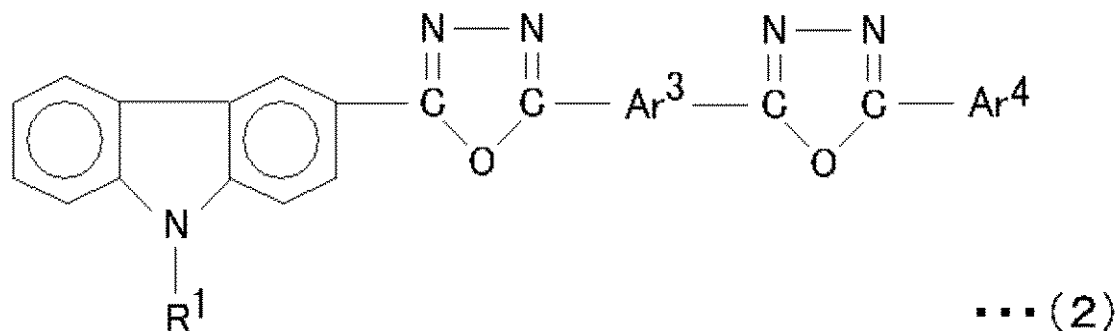
【０００７】

40

前記課題を解決するためのこの発明の第二の手段は、以下の式（２）で示される構造を有することを特徴とする発光化合物である。

【０００８】

【化 2】



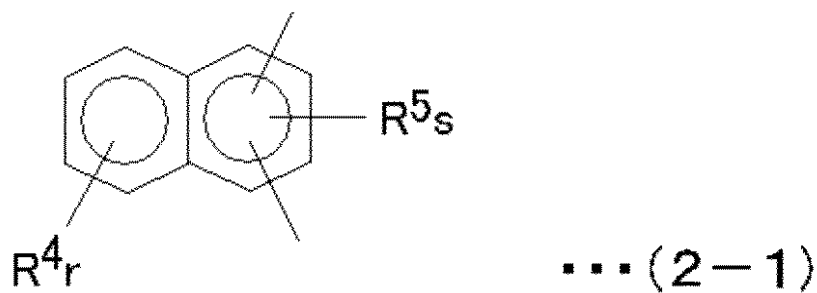
10

【0009】

(ただし、式中、 R^1 は、前記第一の手段におけるのと同様の意味を示し、 Ar^3 は、以下の式(2-1)または(2-2)で表される置換基を示し、 Ar^4 は、以下の式(2-3)または(2-4)で表されるアリール基を示す。)

【0010】

【化 3】



20

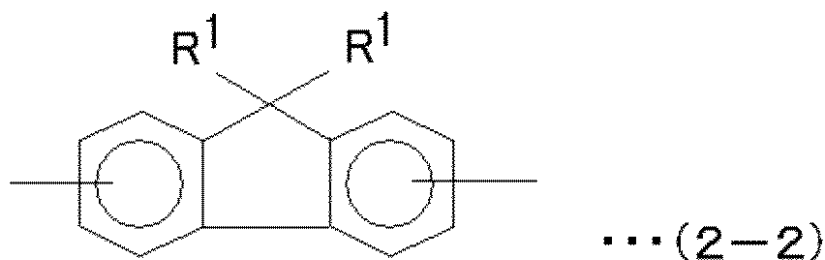
【0011】

(ただし、式中、 R^4 および R^5 は、水素原子または炭素数 1 ~ 10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 r は、1 ~ 4 の整数を示し、 s は、1 または 2 の整数を示す。なお、 R^4 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。また、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

30

【0012】

【化 4】



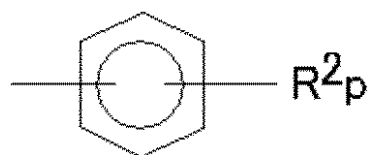
40

【0013】

(ただし、式中、 R^1 は、前記と同様の意味を示す。なお、二つの R^1 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

【0014】

【化 5】



... (2-3)

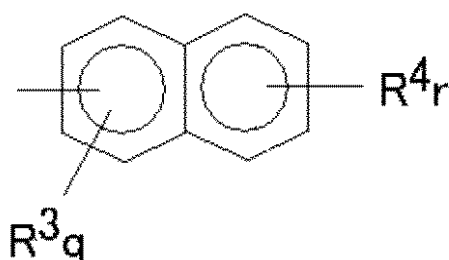
【0015】

(ただし、式中、 R^2 は、水素原子または炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 p は、1～5 の整数を示す。また、 p 個の R^2 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

10

【0016】

【化 6】



... (2-4)

20

【0017】

(ただし、式中、 R^3 は、水素原子または炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、 q は、1～3 の整数を示す。 R^4 および r は、前記と同様の意味を示す。また、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。)

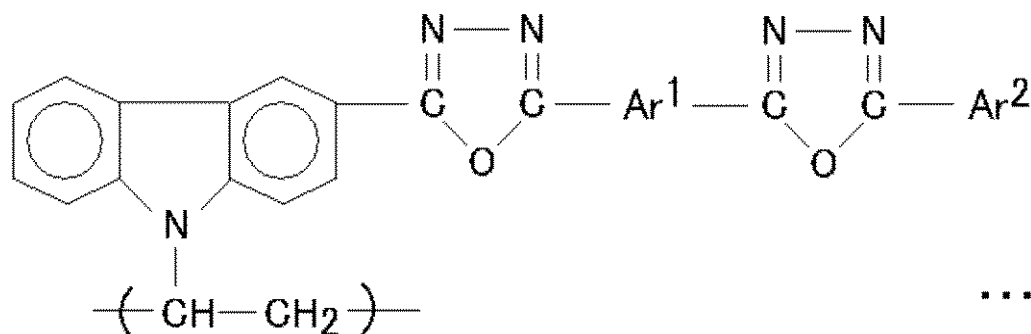
【0018】

前記課題を解決するためのこの発明の第三の手段は、以下の式 (3) で示される繰り返し単位を有することを特徴とする発光化合物すなわち発光ポリマーである。

30

【0019】

【化 7】



... (3)

40

【0020】

(ただし、式中、 Ar^1 および Ar^2 は前記第一の手段におけるのと同様の意味を示す。)

【0021】

前記課題を解決するためのこの発明の第四の手段は、一対の電極間に、前記式 (1)、(2)、又は (3) で示される発光化合物を含有する発光層を設けてなることを特徴とする発光素子である。

【発明の効果】

50

【0022】

この発明によると、高輝度、耐久性の大きい優れた性能を有する発光化合物、その簡単な製造方法、並びに高輝度、耐久性の大きい優れた性能を有する発光素子を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

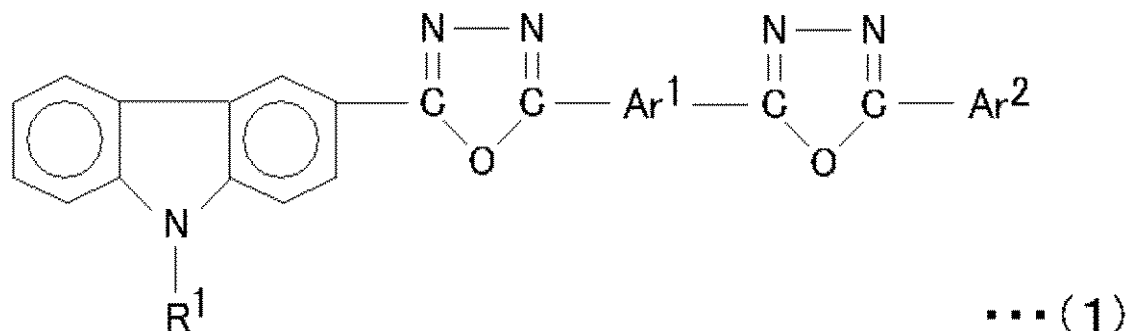
【0023】

本発明に係る発光化合物は、以下の式(1)で示される構造を有することを特徴とする。

【0024】

【化8】

10



20

【0025】

前記式(1)で示される化合物は、N-カルバゾールを基本骨格とし、該N-カルバゾールにおける、窒素原子が、 R^1 と結合する。また、このN-カルバゾールの3位または6位にある炭素原子が、オキサジアゾール環が有する一方の炭素原子と結合する。さらに、このオキサジアゾール環が有する他方の炭素原子は、式(1)中において、 Ar^1 で示される芳香族炭化水素の環に結合する水素原子が2個脱離して生じる基が有する炭素原子と結合する。

【0026】

さらに、前記 Ar^1 は、前記オキサジアゾール環とは異なるオキサジアゾール環とも結合する。また、このオキサジアゾール環において、 Ar^1 と結合する炭素原子と別の炭素原子が、 Ar^2 と結合する。

30

【0027】

前記 R^1 は、水素原子、ビニル基、炭素数1～10のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基または下記式(1-1)～(1-6)で示されるアリール基を示す。

【0028】

前記炭素数1～10のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基のうち、ハロゲン原子が置換していない炭素数1～10のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、sec-ペンチル基、tert-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等を挙げることができ、なかでも、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、sec-ペンチル基、tert-ペンチル基等を挙げることができ、なかでも、炭素数1～5のアルキル基が好ましく、特に、メチル基、エチル基またはプロピル基が好ましい。

40

【0029】

また、前記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子または臭素原子等を挙げることができる。

【0030】

前記炭素数1～10のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基のうち、ハロゲン原子が置換している炭素数1～10のアルキル基としては、例えば、フルオロメチル基、

50

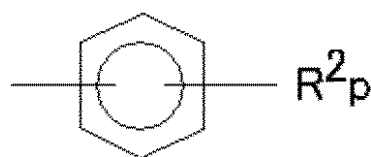
ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、フルオロエチル基、1,1-ジフルオロエチル基、1,2-ジフルオロエチル基、1,1,1-トリフルオロエチル基、1,1,2-トリフルオロエチル基、1,2,2-トリフルオロエチル基、1,1,2,2-テトラフルオロエチル基、1,1,2,2,2-ペンタフルオロエチル基、1-フルオロプロピル基、2-フルオロプロピル基、1,1-ジフルオロプロピル基、1,2-ジフルオロプロピル基、1,3-ジフルオロプロピル基、2,2-ジフルオロプロピル基、1,1,1-トリフルオロプロピル基、1,1,2-トリフルオロプロピル基、1,2,3-トリフルオロプロピル基、1,2,2-トリフルオロプロピル基、1,3,3-トリフルオロプロピル基、クロロメチル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、クロロエチル基、1,1-ジクロロエチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,1,1-トリクロロエチル基、1,1,2-トリクロロエチル基、1,2,2-トリクロロエチル基、1,1,2,2-テトラクロロエチル基、1,1,2,2,2-ペンタクロロエチル基、1-クロロプロピル基、2-クロロプロピル基、1,1-ジクロロプロピル基、1,2-ジクロロプロピル基、1,3-ジクロロプロピル基、2,2-ジクロロプロピル基、1,1,1-トリクロロプロピル基、1,1,2-トリクロロプロピル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、1,2,2-トリクロロプロピル基、1,3,3-トリクロロプロピル基、ジブロモメチル基、ジブロモメチル基、トリブロモメチル基、ブロモエチル基、1,1-ジブロモエチル基、1,2-ジブロモエチル基、1,1,1-トリブロモエチル基、1,1,2-トリブロモエチル基、1,2,2-トリブロモエチル基、1,1,2,2-テトラブロモエチル基、1,1,2,2,2-ペンタブロモエチル基、1-ブロモプロピル基、2-ブロモプロピル基、1,1-ジブロモプロピル基、1,2-ジブロモプロピル基、1,3-ジブロモプロピル基、2,2-ジブロモプロピル基、1,1,1-トリブロモプロピル基、1,1,2-トリブロモプロピル基、1,2,3-トリブロモプロピル基、1,2,2-トリブロモプロピル基、1,3,3-トリブロモプロピル基等を挙げることができる。

10

20

【0031】

【化9】



... (1-1)

【0032】

30

前記式 (1-1) で示されるアリール基は、フェニル基を基本骨格とし、 R^2 を有する。

【0033】

前記 R^2 は、水素原子または炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基を示し、炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基としては、前記 R^1 に関して説明した炭素数 1～10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基と同様である ([0031]～[0033] 参照)。

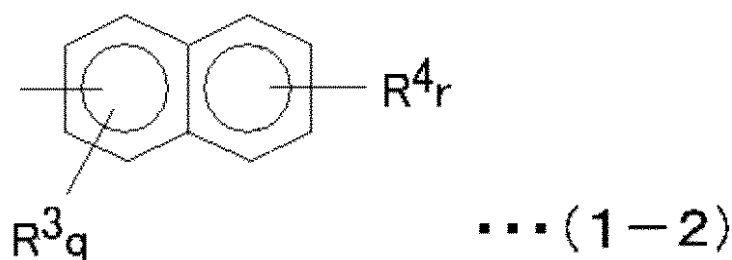
【0034】

式中、 p は、1～5 の整数を示す。なお、 p 個の R^2 は、互いに同一であっても相違していてもよい。

40

【0035】

【化 1 0】



10

【0 0 3 6】

前記式 (1-2) で示されるアリール基は、ナフチル基を基本骨格とし、 R^3 および R^4 を有する。

【0 0 3 7】

前記 R^3 および R^4 は、水素原子または炭素数 1 ~ 10 のハロゲン原子を置換していてもよいアルキル基を示す。前記炭素数 1 ~ 10 のハロゲン原子を置換していてもよいアルキル基は、前述のとおりである。

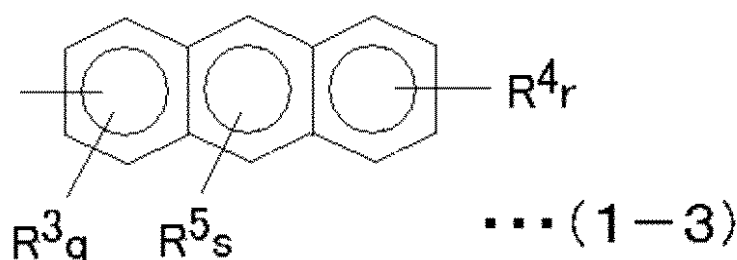
【0 0 3 8】

式中、 q は、1 ~ 3 の整数を示し、 r は、1 ~ 4 の整数を示す。なお、前記 R^3 および R^4 は、互いに同一であっても相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても相違していてもよい。

20

【0 0 3 9】

【化 1 1】



30

【0 0 4 0】

前記式 (1-3) で示されるアリール基は、アントラセン中の 1 位、2 位、3 位、4 位、5 位、6 位、7 位または 8 位の何れかの水素原子が 1 個脱離したアントリル基を基本骨格とし、 R^3 、 R^4 および R^5 を有する。

【0 0 4 1】

前記 R^3 および R^4 は、前述のとおりであり、 R^5 は、水素原子または炭素数 1 ~ 10 のアルキル基を示す。前記炭素数 1 ~ 10 のハロゲン原子が置換していてもよいアルキル基は、前述のとおりである。

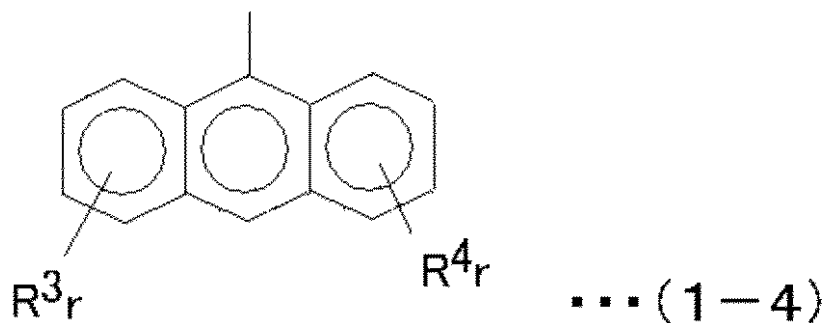
40

【0 0 4 2】

式中、 q および r は、前述のとおりであり、 s は、1 または 2 の整数を示す。なお、 R^3 、 R^4 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

【0 0 4 3】

【化 1 2】



10

【0 0 4 4】

前記式 (1-4) で示されるアリール基は、アントラセン中の 9 位または 10 位の水素原子が脱離したアントリル基を基本骨格とし、 R^3 および R^4 を有する。

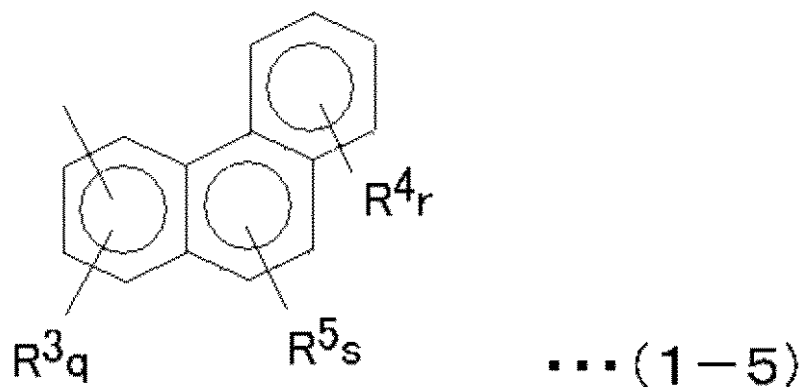
【0 0 4 5】

式中、 R^3 、 R^4 および r は、前述のとおりである。なお、前記 R^3 および R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

【0 0 4 6】

【化 1 3】

20



30

【0 0 4 7】

前記式 (1-5) で示されるアリール基は、フェナントレン中の 1 位、2 位、3 位、4 位、5 位、6 位、7 位または 8 位の何れか水素原子が 1 個脱離した基を基本骨格とし、 R^3 、 R^4 および R^5 を有する。

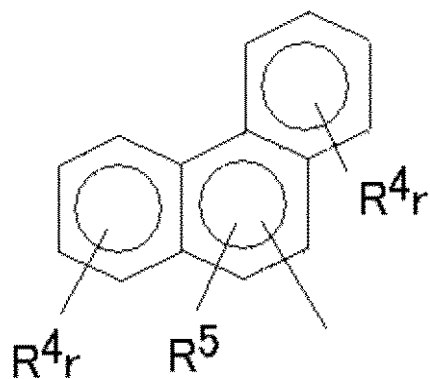
【0 0 4 8】

式中、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 q 、 r および s は、前述のとおりである。なお、 R^3 、 R^4 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

40

【0 0 4 9】

【化 1 4】



... (1-6)

10

【0050】

前記式 (1-6) で示されるアリール基は、フェナントレン中の 9 位または 10 位の水素原子が脱離した基を基本骨格とし、 R^4 および R^5 を有する。

【0051】

式中、前記 R^4 、 R^5 および s は、前述のとおりである。なお、 R^4 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

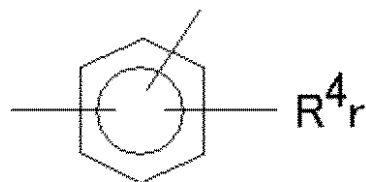
20

【0052】

前記式 (1) における Ar^1 は、以下の式 (1-1') ~ (1-10') で示される置換基を示す。

【0053】

【化 1 5】



... (1-1')

30

【0054】

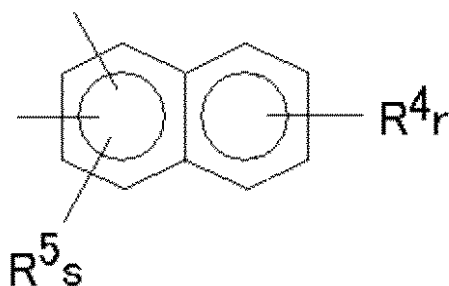
前記式 (1-1') で示される置換基は、ベンゼンの環に結合する水素原子が 2 個脱離した基を基本骨格とし、 R^4 を有する。

【0055】

式中、 R^4 および r は、前述のとおりである。なお、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

【0056】

【化 1 6】



... (1-2')

40

【0057】

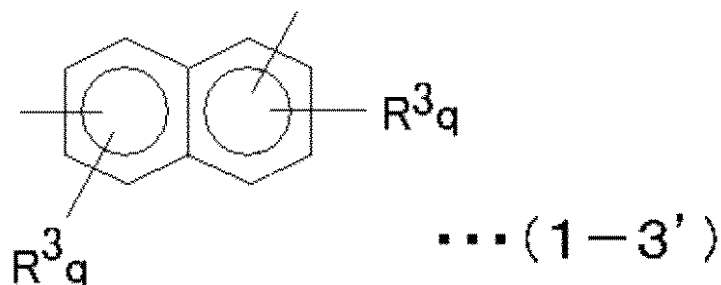
前記式 (1-2') で示される置換基は、ナフタレンの環に結合する水素原子のうち、

50

1 位、2 位、3 位または 4 位の水素原子の何れかの水素原子が 2 個脱離した基を基本骨格とし、 R^4 および R^5 を有する。式中、 R^4 、 R^5 、 r および s は、前述のとおりである。なお、 R^4 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

【0058】

【化17】



10

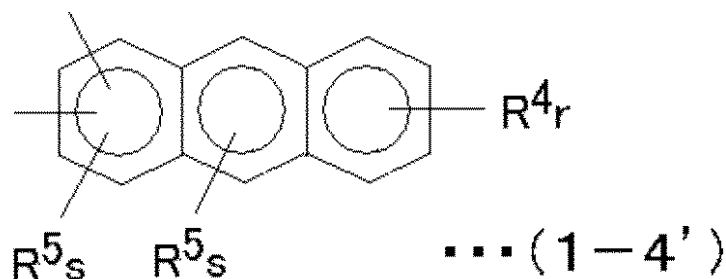
【0059】

前記式 (1-3') で示される置換基は、ナフタレンの環に結合する水素原子のうち、1 位、2 位、3 位または 4 位の水素原子が 1 個脱離し、かつ、5 位、6 位、7 位または 8 位の水素原子が 1 個脱離した基を基本骨格とし、 R^3 を有する。式中、 R^3 および q は、

20

【0060】

【化18】



30

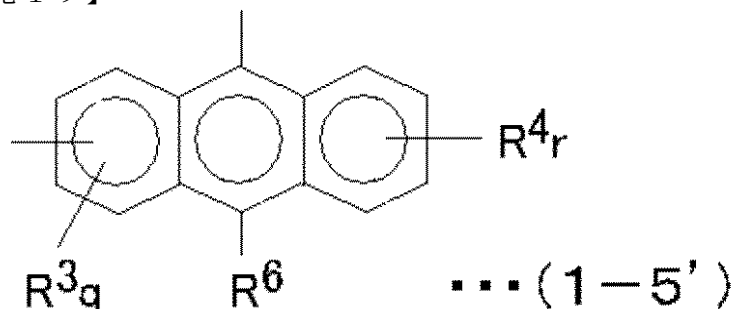
【0061】

前記式 (1-4') で示される置換基は、アントラセンの環に結合する水素原子のうち、1 位、2 位、3 位または 4 位の何れかの水素原子が 2 個脱離した基を基本骨格とし、 R^4 および R^5 を有する。式中、 R^4 、 R^5 、 s および r は、前述のとおりである。なお、 R^4 、一方の R^5 および他方の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一で

40

【0062】

【化 19】



10

【0063】

前記式 (1-5') で示される置換基は、アントラセンの環に結合する水素原子のうち、1位、2位、3位または4位の何れかの水素原子が1個脱離し、かつ、9位の水素原子が脱離した基を基本骨格とし、 R^3 、 R^4 および R^6 を有する。式中、 R^3 、 R^4 、 q および r は、前述のとおりである。なお、 R^3 、 R^4 および R^6 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

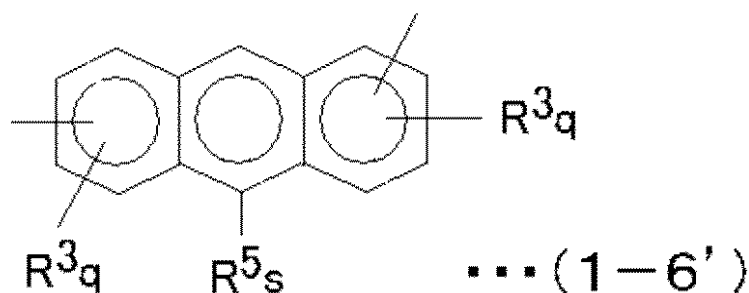
【0064】

また、式中、 R^6 は、水素原子または炭素数1～10のアルキル基を示し、炭素数1～10のアルキル基は、前述のとおりである。

20

【0065】

【化 20】



30

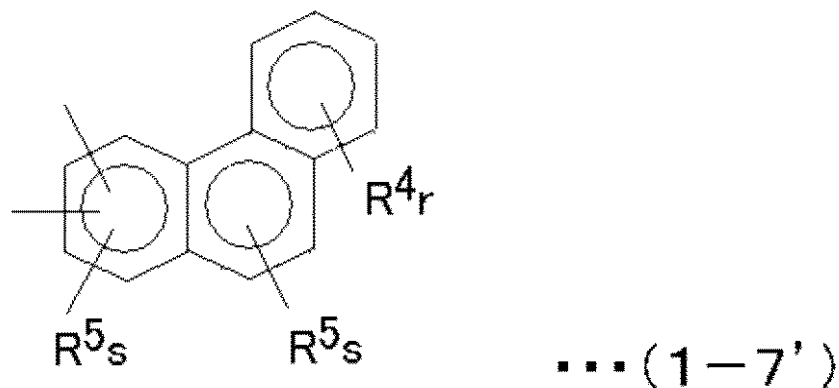
【0066】

前記式 (1-6') で示される置換基は、アントラセンの環に結合する水素原子のうち、1位、2位、3位または4位の何れかの水素原子1個脱離し、かつ、5位、6位、7位または8位の何れかの水素原子が1個脱離した基を基本骨格とし、 R^3 および R^5 を有する。式中、 R^3 、 R^5 、 q および s は、前述のとおりである。なお、一方の R^3 、他方の R^3 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

【0067】

40

【化 2 1】



10

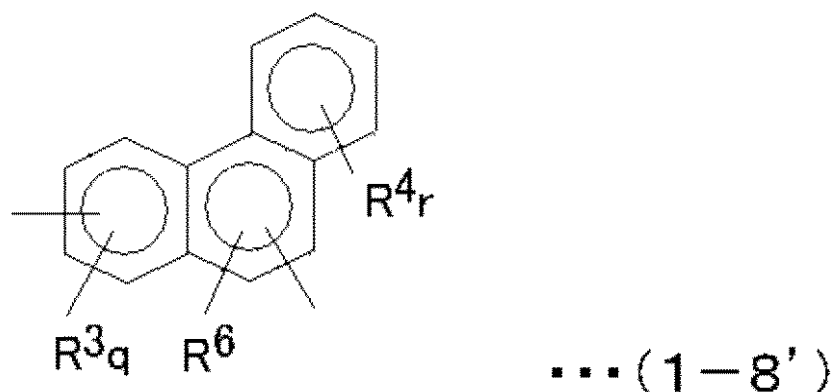
【0068】

前記式（1-7'）で示される置換基は、フェナントレンの環に結合する水素原子のうち、1位、2位、3位または4位の何れかの水素原子が2個脱離した基を基本骨格とし、 R^4 および R^5 を有する。式中、 R^4 、 R^5 、 r および s は、前述のとおりである。なお、 R^4 、一方の R^5 および他方の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

20

【0069】

【化 2 2】



30

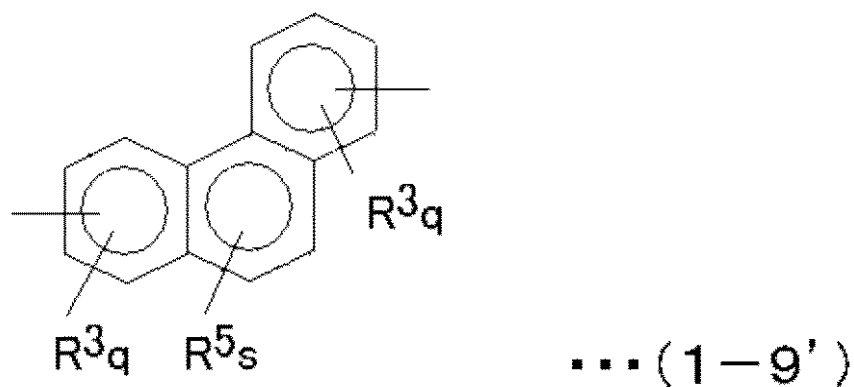
【0070】

前記式（1-8'）で示される置換基は、フェナントレンの環に結合する水素原子のうち、1位、2位、3位または4位の水素原子が1個脱離し、かつ、9位または10位の水素原子が脱離した基を基本骨格とし、 R^3 、 R^4 および R^6 を有する。式中、 R^3 、 R^4 、 R^6 、 q および r は、前述のとおりである。なお、 R^3 、 R^4 および R^6 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 r 個の R^4 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

40

【0071】

【化 2 3】



10

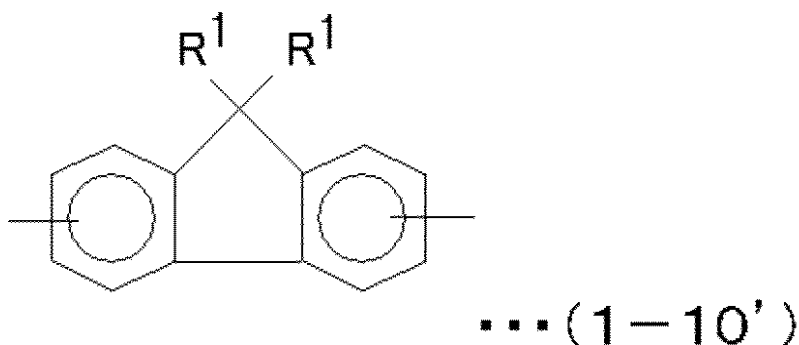
【0072】

前記式(1-9')で示される置換基は、フェナントレンの環に結合する水素原子のうち、1位、2位、3位または4位の水素原子が1個脱離し、かつ、5位、6位、7位または8位の水素原子が1個脱離した基を基本骨格とし、 R^3 および R^5 を有する。式中、 R^3 、 R^5 、 q および s は、前述のとおりである。なお、一方の R^3 、他方の R^3 および R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 q 個の R^3 は、互いに同一であっても、相違していてもよく、 s 個の R^5 は、互いに同一であっても、相違していてもよい。

20

【0073】

【化 2 4】



30

【0074】

前記式(1-10')で示される置換基は、フルオレンの1位、2位、3位または4位の水素原子が1個脱離し、かつ、5位、6位、7位または8位の水素原子が脱離した基を基本骨格とし、さらに、9位の炭素原子が二つの R^1 を有する。 R^1 は、前述のとおりである。なお、一方の R^1 は、他方の R^1 と同一であっても相違してもよい。

【0075】

前記式(1)における Ar^2 は、前記式(1-1)～(1-6)で示されるアリール基を示す。

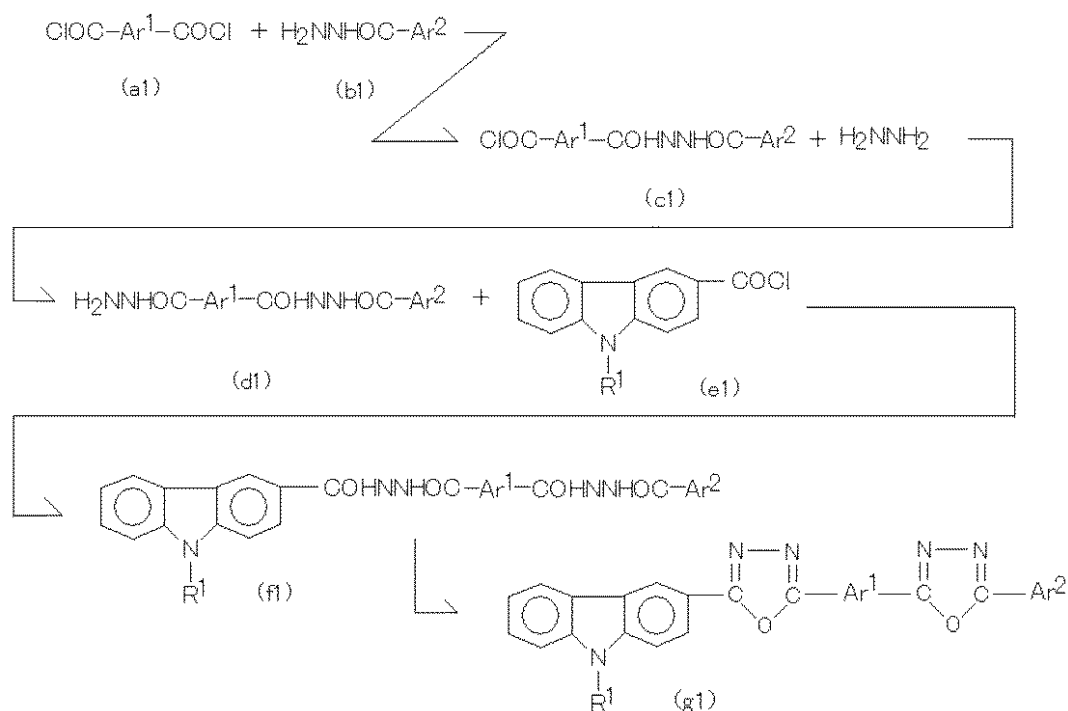
40

【0076】

前記式(1)で示される発光化合物は、以下の反応式1にしたがって、製造されることができる。なお、反応式1に記載された R^1 、 Ar^1 および Ar^2 は、前述のとおりである。

【0077】

【化 2 5】
反応式1



10

20

【0078】

酸クロリド化合物 (a1) およびヒドラジン化合物 (b1) の等量混合物を、溶媒中で加熱することにより、化合物 (c1) を得る。

【0079】

前記溶媒としては、無極性溶媒またはオルソジクロロベンゼン、メタジクロロベンゼン、ピリジン、ジオキサン、N, N-ジメチルホルムアミドおよびテトラヒドロフラン (THF) 等の極性溶媒を挙げることができる。

30

【0080】

前記反応温度は、50～80℃であるのが好ましく、特に、60～70℃であるのが好ましい。

【0081】

前記加熱時間としては、2～6時間が好ましく、特に、3～4時間であるのが好ましい。

【0082】

次に、得られた化合物 (c1) とヒドラジンとを溶媒中で加熱することにより、カルボヒドラジド化合物 (d1) を得ることができる。

【0083】

前記ヒドラジンの使用量としては、化合物 (c1) の量に対して過剰量、例えば多くとも10倍であるのが好ましい。

40

【0084】

前記溶媒としては、無極性溶媒またはオルソジクロロベンゼン、メタジクロロベンゼン、ピリジン、ジオキサン、N, N-ジメチルホルムアミドおよびテトラヒドロフラン (THF) 等の極性溶媒を挙げることができる。

【0085】

前記反応温度は、40～70℃であるのが好ましく、特に、50～60℃であるのが好ましい。

【0086】

50

前記加熱時間としては、少なくとも４時間が好ましく、特に、少なくとも２時間であるのが好ましい。

【００８７】

さらに、得られたカルボヒドラジド化合物（d 1）とカルバゾール誘導体（e 1）とを溶媒中で加熱することにより、化合物（f 1）を得ることができる。

【００８８】

前記溶媒としては、無極性溶媒またはオルソジクロロベンゼン、メタジクロロベンゼン、ピリジン、ジオキサン、N，N－ジメチルホルムアミドおよびテトラヒドロフラン（THF）等の極性溶媒を挙げることができる。

【００８９】

前記反応温度は、４０～８０℃であるのが好ましく、特に、６０～７０℃であるのが好ましい。

【００９０】

前記加熱時間としては、２～８時間が好ましく、特に、４～６時間であるのが好ましい。

【００９１】

以上のようにして得られた化合物（f 1）を溶媒中で加熱することにより、閉環反応させ、前記式（１）で示される発光化合物（反応式１における（g 1）で示される化合物）を得ることができる。

【００９２】

前記溶媒としては、無極性溶媒またはオルソジクロロベンゼン、メタジクロロベンゼン、塩化ホスホリル、ピリジン、ジオキサン、N，N－ジメチルホルムアミドおよびテトラヒドロフラン（THF）等の極性溶媒を挙げることができる。

【００９３】

前記反応温度は、１００～１３０℃であるのが好ましく、特に、１１０～１２０℃であるのが好ましい。

【００９４】

前記加熱時間としては、１５～２０時間であるが好ましく、特に、１７～１９時間であるのが好ましい。

【００９５】

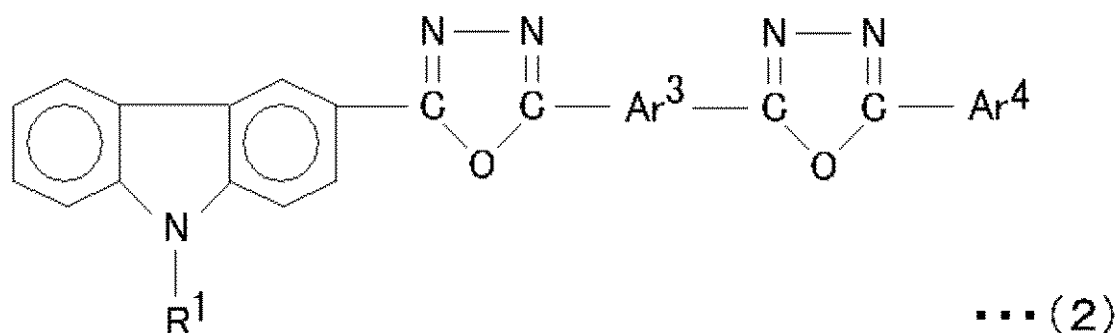
反応の終了後には、常法に従って精製操作及び分離操作をすることにより式（１）で示される化合物を得ることができる。得られた化合物はIR分析、NMR分析および蛍光分析で容易に確認することができる。

【００９６】

本発明に係る式（１）で示される発光化合物は、以下の式（２）で示される構造を有する発光化合物が好ましい。

【００９７】

【化２６】



【００９８】

前記式（２）で示される化合物は、N-カルバゾールを基本骨格とし、該N-カルバゾール

ルにおける窒素原子が、 R^1 と結合する。また、この N-カルバゾールの 3 位または 6 位にある炭素原子が、オキサジアゾール環が有する一方の炭素原子と結合する。さらに、このオキサジアゾール環が有する他方の炭素原子は、式 (2) において、 Ar^3 で示される芳香族炭化水素の環に結合する水素原子が 2 個脱離して生ずる基が有する炭素原子と結合する。

【0099】

さらに、前記 Ar^3 は、前記オキサジアゾール環とは異なるオキサジアゾール環とも結合する。このオキサジアゾール環における Ar^3 と結合する炭素原子と別の炭素原子が、 Ar^4 と結合する。

【0100】

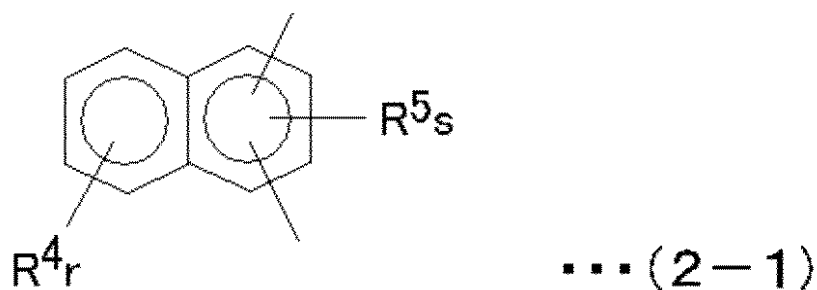
前記 R^1 は、式 (1) における R^1 と同様の意味を示す。

【0101】

また、前記 Ar^3 は、以下の式 (2-1) または (2-2) で示される置換基を示す。

【0102】

【化27】

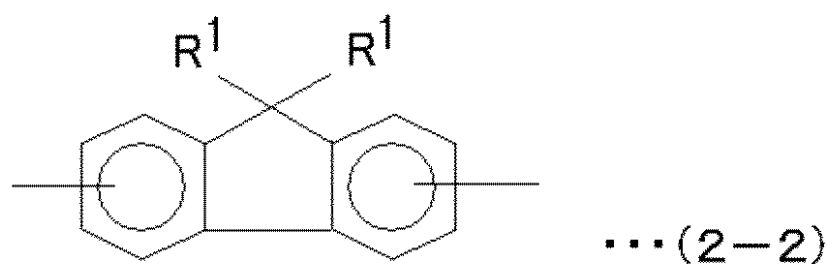


【0103】

前記式 (2-1) で示される置換基は、前記式 (1-2') で示される置換基と同じである。

【0104】

【化28】



【0105】

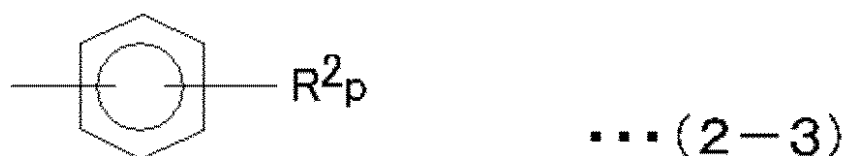
前記式 (2-2) で示される置換基は、前記式 (1-10') で示される置換基と同じである。

【0106】

前記 Ar^4 は、以下の式 (2-3) または (2-4) で示されるアリール基を示す。

【0107】

【化29】



10

20

30

40

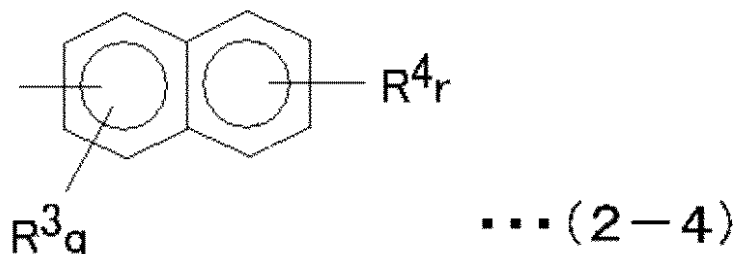
50

【0108】

前記式(2-3)で示される置換基は、前記式(1-1)で示されるアリール基と同じである。

【0109】

【化30】



10

【0110】

前記式(2-4)で示される置換基は、前記式(1-2)で示されるアリール基と同じである。

【0111】

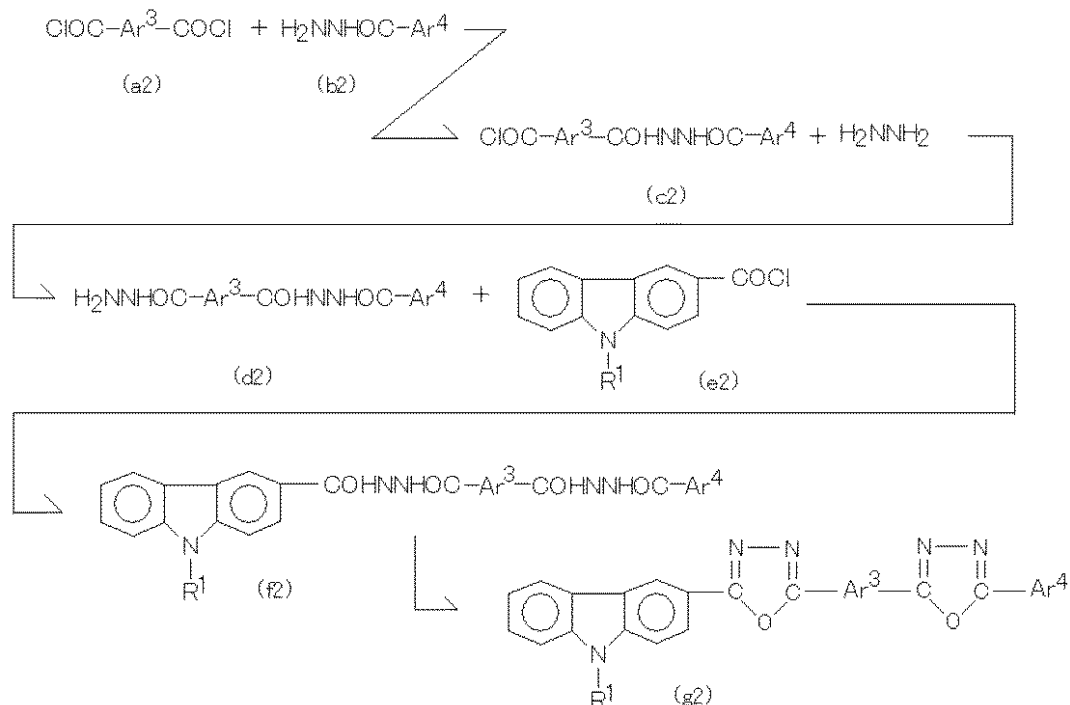
前記式(2)で示される発光化合物は、以下の反応式2にしたがって、製造されることができる。なお、反応式2に記載された R^1 、 Ar^3 および Ar^4 は、前述のとおりである。

20

【0112】

【化31】

反応式2



30

40

【0113】

酸クロリド化合物(a2)およびヒドラジン化合物(b2)の等量混合物を、溶媒中で加熱することにより、化合物(c2)を得る。なお、このときの反応温度および加熱時間等の反応条件は、式(1)で示される発光化合物を製造するときの反応条件と同じである。

50

【0114】

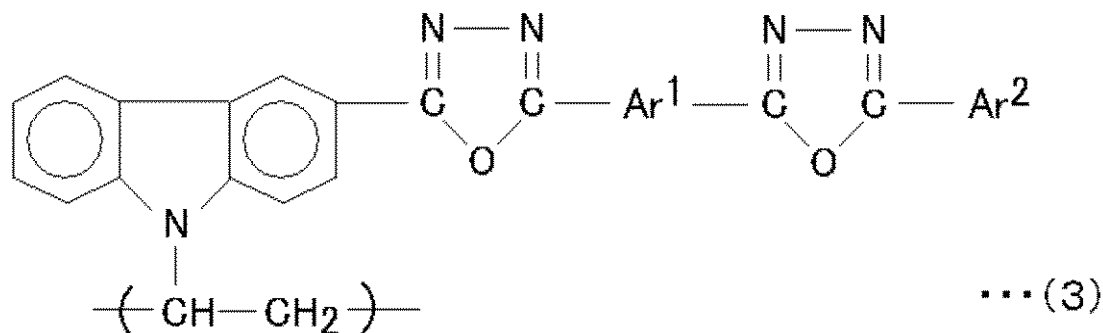
また、化合物(c2)から化合物(g2)を合成する反応条件等は、反応式1における化合物(c1)から化合物(g1)を合成するときの反応条件と同じでかる。

【0115】

本発明に係る発光化合物は、以下の式(3)で示される繰り返し単位を有することを特徴とする。

【0116】

【化32】



【0117】

前記式(3)で示される繰り返し単位を有する発光化合物は、前記式(1)で示される発光化合物と似た構造を有するが、前記式(1)で示される発光化合物は、N-ビニルカルバゾール基本骨格とするのに対し、前記式(3)で示される繰り返し単位を有する発光化合物は、ポリビニルカルバゾールを基本骨格とする点で異なる。

20

【0118】

前記式(3)におけるAr¹およびAr²は、前記式(1)で示される発光化合物におけるのと同じの意味を示す。

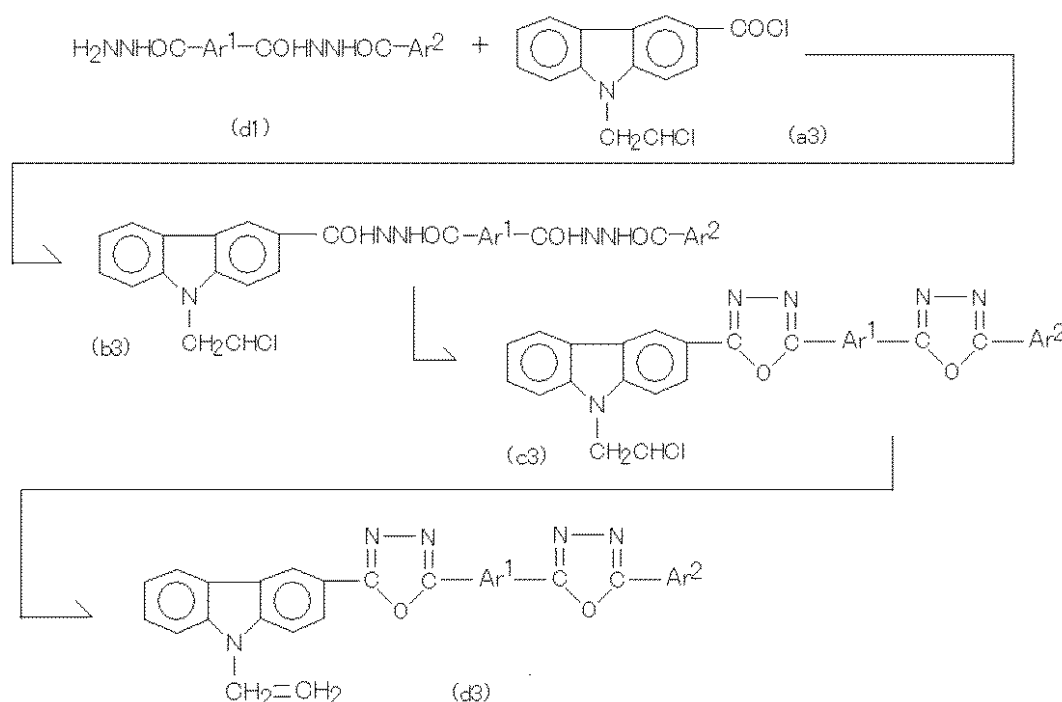
【0119】

前記式(3)で示される繰り返し単位を有する発光化合物は、以下の反応式3にしたがって、製造されることができる。なお、反応式3に記載されたAr¹およびAr²は、前述のとおりである。

30

【0120】

【化 3 3】
反応式3



10

20

【0 1 2 1】

カルボヒドラジド化合物 (d 1) とカルバゾール誘導体 (a 3) とから、前記式 (3) で示される発光化合物を製造する反応条件等は、(g 1) または (g 2) で示される発光化合物を製造する反応条件等と同様である。

【0 1 2 2】

得られた化合物 (c 3) を溶媒中で加熱することにより、脱塩化水素させて、化合物 (d 3) を得ることができる。

30

【0 1 2 3】

前記溶媒としては、メタノールおよびエタノール等の無極性溶媒またはオルトジクロロベンゼン、メタジクロロベンゼン、ピリジン、ジオキサン、N, N-ジメチルホルムアミドおよびテトラヒドロフラン (THF) 等の極性溶媒を挙げることができる。

【0 1 2 4】

前記反応温度は、80～110℃であるのが好ましく、特に、90～100℃であるのが好ましい。

【0 1 2 5】

前記加熱時間としては、2～6時間が好ましく、特に、3～4時間であるのが好ましい。

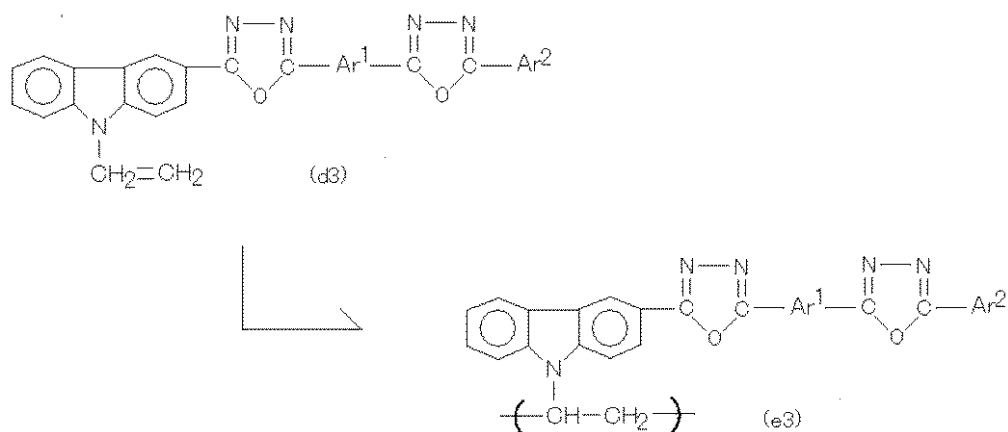
40

【0 1 2 6】

さらに、溶媒に、化合物 (d 3) と重合開始剤とを添加して、加熱し、重合反応させることにより、以下の反応式 4 にしたがって、本発明に係る発光化合物 (反応式 4 における (e 3) で示される繰り返し単位を有する化合物) を得ることができる。

【0 1 2 7】

【化 3 4】
反応式4



10

【0 1 2 8】

前記溶媒としては、無極性溶媒またはオルトジクロロベンゼン、メタジクロロベンゼン、塩化ホスホリル、ピリジン、ジオキサン、N，N－ジメチルホルムアミドおよびテトラヒドロフラン（THF）等の極性溶媒を挙げることができる。

【0 1 2 9】

前記重合開始剤としては、公知の重合開始剤が用いられ、例えば、アゾビスイソブチロニトリルまたは過酸化ベンゾイル等を挙げることができる。

20

【0 1 3 0】

前記反応温度は、少なくとも 120℃であるのが好ましく、特に、130～150℃であるのが好ましい。

【0 1 3 1】

前記加熱時間としては、40～55時間であるのが好ましい。

【0 1 3 2】

反応の終了後には、常法に従って精製操作及び分離操作をすることにより式（2）で示される化合物を得ることができる。得られた化合物はIR分析、NMR分析および蛍光分析で容易に確認することができる。

30

【0 1 3 3】

この発明に係る発光化合物は、単に加熱するだけで容易に製造されることができる。このような簡便な発光化合物の製造方法は、工業的な製造方法である。

【0 1 3 4】

次にこの発明に係る発光素子について説明する。

【0 1 3 5】

この発明に係る発光化合物は、電磁波エネルギーを与えることにより、全体として420～600nmの領域にわたる可視部発光が見られ、例えば図15に示されるような蛍光スペクトルを有し、発光可能な有機EL素子に利用することができる。

40

【0 1 3 6】

図1は、一層型有機EL素子でもある発光素子の断面構造を示す説明図である。図1に示されるように、この発光素子Aは、透明電極2を形成した基板1上に、発光材料を含有する発光層3及び電極層4をこの順に積層して成る。発光層3に本発明に係る発光化合物が含有されている。

【0 1 3 7】

図1に示される発光素子は、その発光層3にこの発明に係る発光化合物を含有していると、透明電極2及び電極層4に電流を通電すると、その化学構造に応じた色に発光する。また、発光は、前記透明電極2と前記電極層4との間に電界が印加されると、電極層4側から電子が注入され、透明電極2から正孔が注入され、更に電子が発光層3において正孔

50

と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0138】

図1に示される発光素子Aは、その全体形状を大面積の平面形状にすると、例えば壁面、あるいは天井に装着して、大面積壁面発光素子、及び大面積天井面発光素子等の面状発光照明装置とすることができる。つまり、この発光素子は、従来の蛍光灯のような線光源あるいは電球と言った点光源に代えて面光源として利用されることができる。特に、居住のための室内、事務用の室内、車両室内等の壁面、天井面、あるいは床面をこの発光素子により面光源として発光ないし照明することができる。さらに、この発光素子Aをコンピュータにおける表示画面、携帯電話における表示画面、金銭登録機における数字表示画面等のバックライトに使用することができる。その他、この発光素子Aは、直接照明、間接照明等の様々の光源として使用されることができ、また、夜間に発光させることができ、視認性が良好である広告装置、道路標識装置、及び発光掲示板、更には自動車等の車両における後退灯等の光源に使用されることもできる。しかも、この発光素子Aは、特定の化学構造を有する発光化合物を発光層に有するので、発光寿命が長い。したがって、この発光素子Aにより発光が長寿命である光源とすることができる。

10

【0139】

また、この発光素子Aを、筒状に形成された基板1と、その基板1の内面側に透明電極2、発光層3及び電極層4をこの順に積層してなる管状発光体とすることができる。この発光素子Aは、水銀を使用していないので、従来の水銀を使用する蛍光灯に代替して環境に優しい光源とすることができる。

20

【0140】

基板1としては、透明電極2をその表面に形成することができる限り、公知の基板を採用することができる。この基板1として、例えばガラス基板、プラスチックシート、セラミック、表面に絶縁塗料層を形成する等の、表面を絶縁性に加工してなる金属板等を挙げることができる。

【0141】

前記透明電極2としては、仕事関数が大きくて透明であり、電圧を印加することにより陽極として作用して前記発光層3にホールを注入することができる限り様々の素材を採用することができる。具体的には、透明電極2は、ITO、 In_2O_3 、 SnO_2 、 ZnO 、 CdO 等、及びそれらの化合物等の無機透明導電材料、及びポリアニリン等の導電性高分子材料等で形成することができる。

30

【0142】

この透明電極2は、前記基板1上に、化学気相成長法、スプレーパイロリシス、真空蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタ法、イオンビームスパッタ法、イオンプレーティング法、イオンアシスト蒸着法、その他の方法により形成されることができる。

【0143】

なお、基板が不透明部材で形成されるときには、基板上に形成される電極は透明電極である必要はない。

【0144】

発光層3は、この発明における式(1)、(2)又は(3)で示される発光化合物等を含有する層である。この発光層3は、この発明に係る発光化合物等を高分子中に分散してなる高分子膜として形成することができ、また、この発明に係る発光化合物を前記透明電極2上に蒸着してなる蒸着膜として形成することができる。

40

【0145】

前記高分子膜における高分子としては、ポリビニルカルバゾール、ポリ(3-アルキレンチオフェン)、アリールアミンを含有するポリイミド、ポリフルオレイン、ポリフェニレンビニレン、ポリ- α -メチルスチレン、ビニルカルバゾール/ α -メチルスチレン共重合体等を挙げることができる。これらの中でも好ましいのは、ポリビニルカルバゾールである。

50

【0146】

前記高分子膜中におけるこの発明に係る発光化合物等の含有量は、通常、0.01～2重量%、好ましくは0.05～0.5重量%である。

【0147】

前記高分子膜の厚みは、通常30～500nm、好ましくは100～300nmである。高分子膜の厚みが薄すぎると発光光量が不足することがあり、高分子膜の厚みが大きすぎると、駆動電圧が高くなりすぎて好ましくないことがあり、また、面状体、管状体、湾曲体、環状体とするときの柔軟性に欠けることがある。

【0148】

前記高分子膜は、前記高分子とこの発明に係る発光化合物等とを適宜の溶媒に溶解してなる溶液を用いて、塗布法例えばスピンキャスト法、コート法、及びディップ法等により形成することができる。

【0149】

前記発光層3が蒸着膜であるとき、その蒸着膜の厚みは、発光層における層構成等により相違するが、一般的には0.1～100nmである。蒸着膜の厚みが小さすぎるとき、あるいは大きすぎるときには、前述したのと同様の問題を生じることがある。

【0150】

発光層3は、この発明に係る式(3)で示される繰り返し単位を有する発光化合物で形成することができる。この発光化合物を用いると、前記した蒸着操作なしに発光層3を形成することができる。

【0151】

前記電極層4は、仕事関数の小さな物質が採用され、例えば、MgAg、アルミニウム合金、金属カルシウム等の、金属単体又は金属の合金で形成されることができる。好適な電極層4はアルミニウムと少量のリチウムとの合金電極である。この電極層4は、例えば基板1の上に形成された前記発光層3を含む表面に、蒸着技術により、容易に形成することができる。

【0152】

塗布法及び蒸着法のいずれを採用して発光層を形成するにしても、電極層と発光層との間に、バッファ層を介装するのが好ましい。

【0153】

前記バッファ層を形成することのできる材料として、例えば、フッ化リチウム等のアルカリ金属化合物、フッ化マグネシウム等のアルカリ土類金属化合物、酸化アルミニウム等の酸化物、4,4'-ビスカルバゾールビフェニル(Cz-TPD)を挙げることができる。また、例えばITO等の陽極と有機層との間に形成されるバッファ層を形成する材料として、例えばm-MTDATA(4,4',4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)、フタロシアニン、ポリアニリン、ポリチオフェン誘導体、無機酸化物例えば酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム、フッ化リチウムを挙げることができる。これらのバッファ層は、その材料を適切に選択することにより、発光素子である有機EL素子の駆動電圧を低下させることができ、発光の量子効率を改善することができ、発光輝度の向上を達成することができる。

【0154】

次にこの発明に係る発光素子の第2の例を図に示す。図2は多層型有機EL素子である発光素子の断面を示す説明図である。

【0155】

図2に示すように、この発光素子Bは、基板1の表面に、透明電極2、ホール輸送層5、発光層3a, 3b、電子輸送層6及び電極層4をこの順に積層してなる。

【0156】

基板1、透明電極2、及び電極層4については、図1に示された発光素子Aにおけるのと、同様である。

【0157】

10

20

30

40

50

図 2 に示される発光素子 B における発光層は発光層 3 a 及び発光層 3 b よりなり、発光層 3 a はこの発明における発光化合物の蒸着膜である。発光層 3 b は、D P V B i 層である。この D P V B i 層は、ホスト材料的な機能を有する層である。

【0158】

前記ホール輸送層 5 に含まれるホール輸送物質としては、トリフェニルアミン系化合物例えば N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(TPD)、及び α -NPD 等、ヒドラゾン系化合物、スチルベン系化合物、複素環系化合物、 π 電子系スターバースト正孔輸送物質等を挙げることができる。

【0159】

前記電子輸送層 6 に含まれる電子輸送物質としては、前記電子輸送性物質としては、例えば、2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール等のオキサジアゾール誘導体及び 2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、並びに 2, 5-ビス(5'-tert-ブチル-2'-ベンゾキサゾリル)チオフェン等を挙げることができる。また、電子輸送性物質として、例えばキノリノールアルミ錯体(A1q3)、ベンゾキノリノールベリリウム錯体(Bebq2)等の金属錯体系材料を好適に使用することもできる。

10

【0160】

図 2 における発光素子 B では、電子輸送層 6 は A1q3 を含有する。

【0161】

各層の厚みは、従来から公知の多層型有機 EL 素子におけるのと同様である。

20

【0162】

図 2 に示される発光素子 B は、図 1 に示される発光素子 A と同様に作用し、発光する。したがって、図 2 に示される発光素子 B は、図 1 に示される発光素子 A と同様の用途を有する。

【0163】

図 3 に、この発明に係る発光素子の第 3 の例を示す。図 3 は、多層型有機 EL 素子である発光素子の断面を示す説明図である。

【0164】

図 3 に示される発光素子 C は、基板 1 の表面に、透明電極 2、ホール輸送層 5、発光層 3、電子輸送層 8 及び電極層 4 をこの順に積層してなる。

30

【0165】

この図 3 に示す発光素子 C は前記発光素子 B と同様である。

【0166】

図 4 に発光素子の他の例を示す。この図 4 に示す発光素子 D は、基板 1、電極 2、ホール輸送層 5、発光層 3 及び電極層 4 をこの順に積層してなる。

【0167】

前記図 1 ~ 4 に示される発光素子の外に、基板上に形成された透明電極である陽極と電極層である陰極との間に、ホール輸送性物質を含有するホール輸送層と、この発明に係る発光化合物含有の電子輸送性発光層とを積層して成る二層型有機低分子発光素子(例えば、陽極と陰極との間に、ホール輸送層と、ゲスト色素としてこの発明に係る発光化合物及びホスト色素を含有する発光層とを積層して成る二層型色素ドープ型発光素子)、陽極と陰極との間に、ホール輸送性物質を含有するホール輸送層と、この発明に係る発光化合物と電子輸送性物質とを共蒸着してなる電子輸送性発光層とを積層して成る二層型有機発光素子(例えば、陽極と陰極との間に、ホール輸送層と、ゲスト色素としてこの発明に係る発光化合物及びホスト色素とを含有する電子輸送性発光層とを積層して成る二層型色素ドープ型有機発光素子)、陽極と陰極との間に、ホール輸送層、この発明に係る発光化合物含有の発光層及び電子輸送層を積層して成る三層型有機発光素子を挙げることができる。

40

【0168】

この発光素子における電子輸送性発光層は、通常の場合、50 ~ 80 % のポリビニルカルバゾール(PVK)と、電子輸送性発光剤 5 ~ 40 % と、この発明に係る白色発光化合

50

物 0.01～20%（重量）とで形成されていると、白色発光が高輝度で起こる。

【0169】

また、前記発光層中には、増感剤としてルブレンが含有されているのが好ましく、特に、ルブレンと Alq3 とが含有されているのが好ましい。

【0170】

この発明に係る発光化合物を利用した発光素子は、例えば一般に直流駆動型の有機 EL 素子として使用することができ、また、パルス駆動型の有機 EL 素子及び交流駆動型の有機 EL 素子としても使用することができる。

【実施例】

【0171】

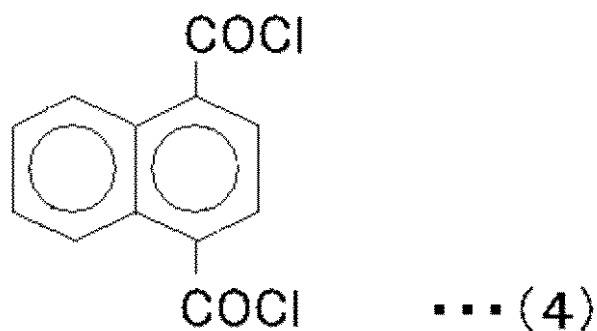
10

（実施例 1）発光化合物の合成

2 L 三口フラスコに、以下の式（4）で示される化合物 20 g、以下の式（5）で示される化合物 14.6 g、ピリジン 7.4 ml およびテトラヒドロフラン 500 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 70℃ に加熱し、2.5 時間反応させた。反応終了後、三口フラスコ内の溶液を放冷し、濃縮した後、濾過して得られた固形物を乾燥させ、化合物 17 g を得た。

【0172】

【化 35】

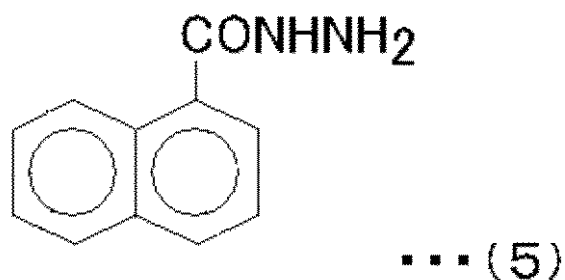


20

【0173】

【化 36】

30



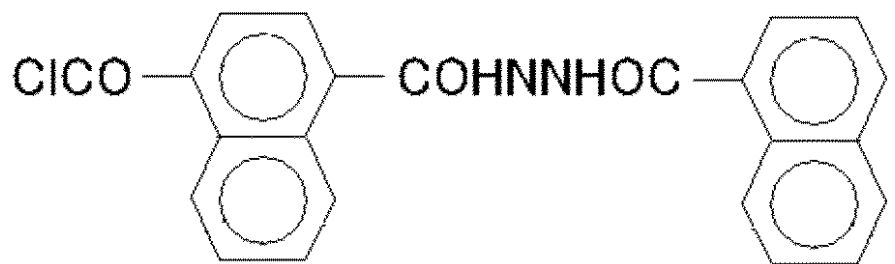
【0174】

得られた固形物の NMR スペクトルチャートを図 5 に、IR スペクトルチャートを図 6 に示す。これらより、得られた固形物は、以下の式（6）で示される構造を有する化合物であると同定した。

40

【0175】

【化 3 7】



... (6)

10

【0 1 7 6】

次いで、2 L三口フラスコに、前記式 (6) で示される化合物 1.7 g、ヒドラジド 1.3.4 ml、ピリジン 10 ml およびテトラヒドロフラン 800 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 55℃ に加熱し、2 時間反応させた。反応終了後、三口フラスコ内の溶液を放冷し、濾過して濾過液を得た。この濾過液を 700 ml のクロロホルムで抽出し、得られた抽出液を水洗した後、硫酸ナトリウムを添加して、水分を除去した。ついで、濾過し、濃縮した後、乾固して、固形物 4.6 g を得た。

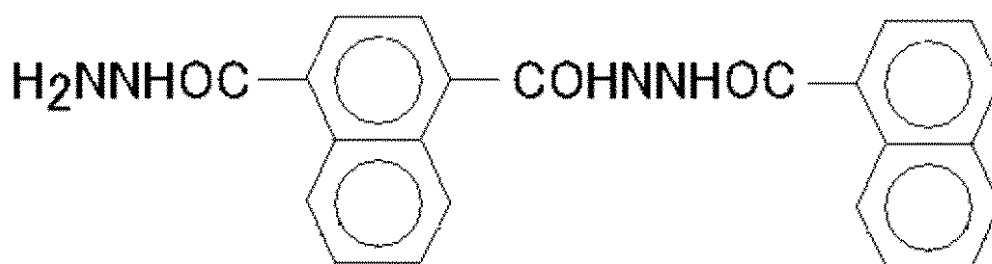
20

【0 1 7 7】

得られた固形物の NMR スペクトルチャートを図 7 に、IR スペクトルチャートを図 8 に示す。これらより、得られた固形物は、以下の式 (7) で示される構造を有する化合物であると同定した。

【0 1 7 8】

【化 3 8】



... (7)

30

40

【0 1 7 9】

次いで、2 L三口フラスコに、前記式 (7) で示される化合物 4.6 g、以下の式 (8) で示される化合物 3.27 g、ピリジン 1.5 g およびテトラヒドロフラン 600 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 60℃ に加熱し、10 時間反応させた。反応終了後、三口フラスコ内の溶液を放冷し、濾過して濾過液を得た。この濾過液を水洗後、さらにメタノールで洗浄した後、乾固して、固形物 1.15 g を得た。

【0 1 8 0】

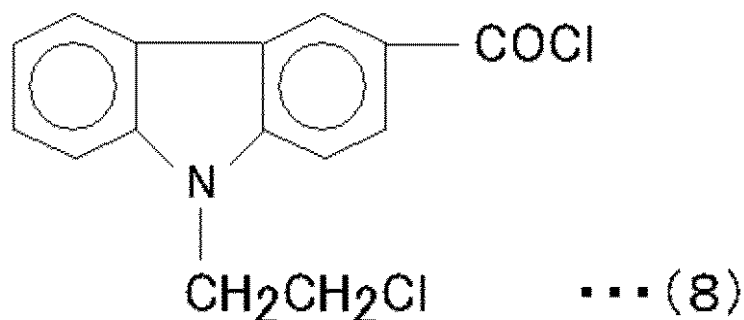
得られた固形物の NMR スペクトルチャートを図 9 に、IR スペクトルチャートを図 10 に示す。これらより、得られた固形物は、以下の式 (9) で示される構造を有する化合物

50

物であると同定した。

【0181】

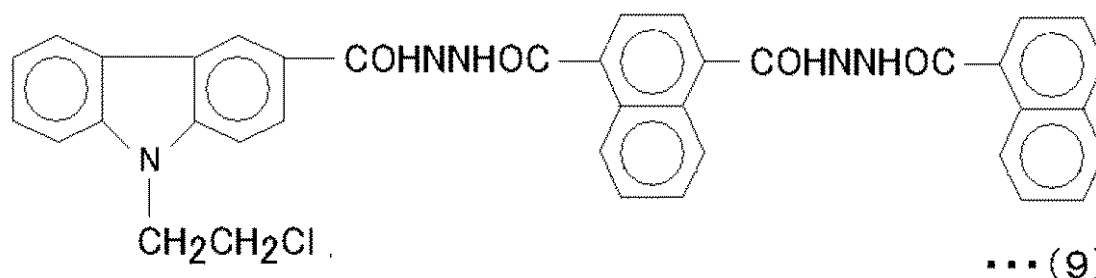
【化39】



10

【0182】

【化40】



20

【0183】

次いで、500mlナスフラスコに、前記式(9)で示される化合物1.15g、ジオキサン150mlおよび塩化ホスホリル75mlを入れた。このナスフラスコ内の溶液を、シリコンオイルバスで110℃に加熱し、15.5時間反応させた。反応終了後、溶液を放冷し、濾過して得られた濾過液を水洗し、メタノール洗浄した後、乾固して、固形物0.65gを得た。

30

【0184】

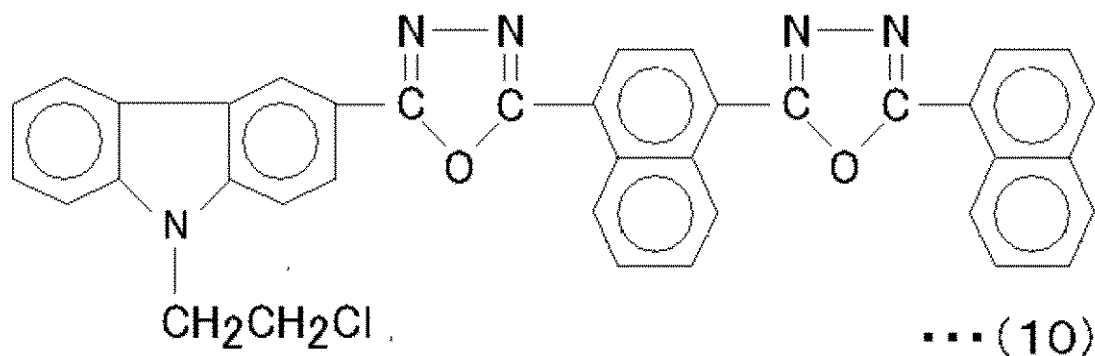
得られた固形物のNMRスペクトルチャートを図11に、IRスペクトルチャートを図12に示す。

【0185】

これらより、得られた固形物は、以下の式(10)で示される構造を有する化合物であると同定した。

【0186】

【化41】



40

50

【0187】

500mlナスフラスコに、前記式(10)で示される化合物0.65g、水酸化カリウム0.7g、ジオキサン100mlおよびエタノール50mlを入れた。このナスフラスコ内の溶液を、シリコンオイルバス100℃に加熱し、16.5時間反応させた。反応終了後、溶液を放冷し、濃縮した。得られた濃縮液を濾過して得られた濾過液を水洗し、メタノール洗浄した後、乾固して、固形物0.15gを得た。

【0188】

得られた固形物のNMRスペクトルチャートを図13に、IRスペクトルチャートを図14に示す。

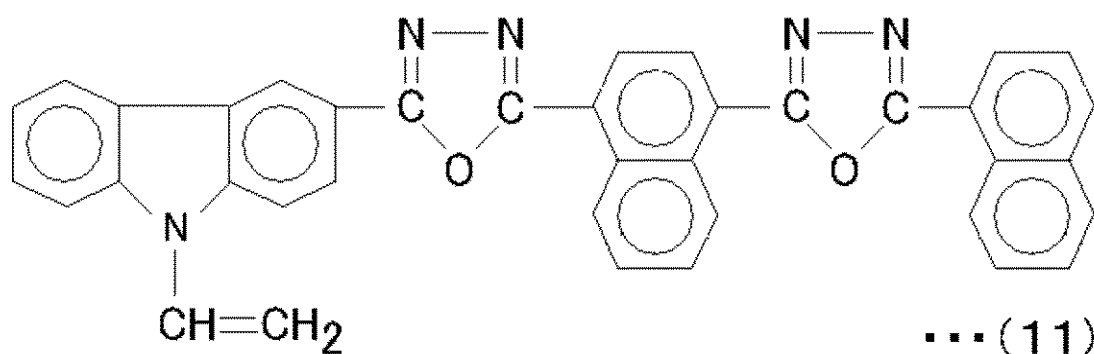
【0189】

これらより、得られた固形物は、以下の式(11)で示される構造を有する化合物であると同定した。

10

【0190】

【化42】



20

【0191】

さらに、この化合物の蛍光スペクトルを図15に示す。これより得られた化合物は白色発光を示すことが分かった。

【0192】

次いで、重合管に前記式(11)で示される化合物0.1g、AIBN0.54mg、クロロベンゼン50mlおよびDMF5mlを入れた。この重合管内の溶液を、シリコンオイルバスで145℃に加熱し、48時間反応させた。反応終了後、重合管内の溶液を濃縮し、放冷した後、濾過して得られた濾過物を乾燥させて、固形物0.1gを得た。

30

【0193】

(実施例2) 発光化合物の合成

1Lナスフラスコに、9,9'-ジメチルフルオレン-2,7-ジカルボン酸15g、塩化チオニル200mlを入れた。このナスフラスコ内の溶液を、シリコンオイルバスで80℃に加熱し、3時間反応させた。反応終了後、このナスフラスコ内の溶液を氷冷し、塩化チオニルを留去して得られた固形状物を乾燥させ、白色の固体31gを得た。

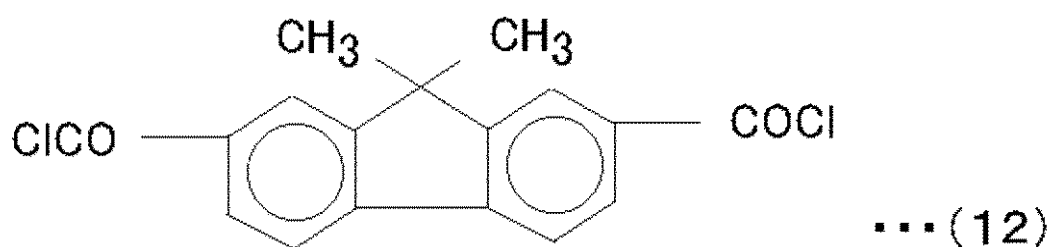
【0194】

得られた固体のNMRスペクトルチャートを図16に、IRスペクトルチャートを図17に示す。これより、得られた固体は、以下の式(12)で表される構造を有する酸クロリド化合物であると同定した。

40

【0195】

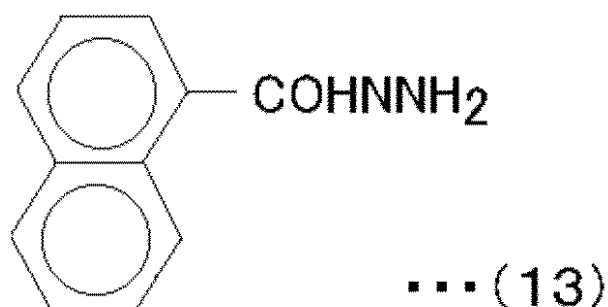
【化 4 3】



【0 1 9 6】

10

【化 4 4】



20

【0 1 9 7】

次いで、500 ml三口フラスコに、前記式(13)で示される化合物10 g、ピリジン5 gおよびテトラヒドロフラン300 mlを入れた。この三口フラスコ内の溶液を氷冷しながら、テトラヒドロフラン500 mlに前記式(12)で示される固体を溶解させた溶液を、全量、滴下した。滴下した後、この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで60℃に加熱し、16時間反応させた。反応終了後、この三口フラスコ内の溶液を氷冷した後、この溶液を濾過、水洗、乾燥させて得られた固形状物を乾燥させ、茶色の固体18.75 gを得た。

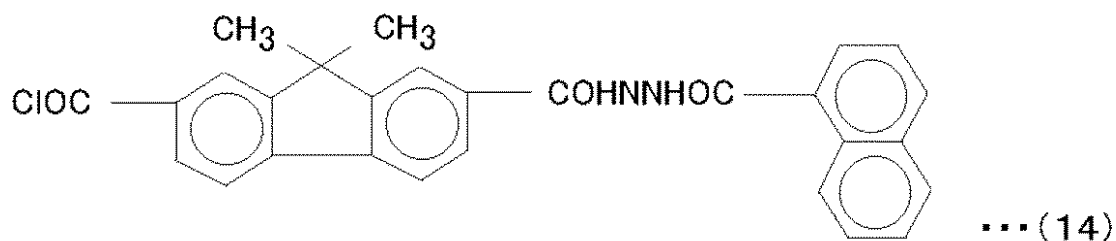
30

【0 1 9 8】

得られた固体のNMRスペクトルチャートを図18に、IRスペクトルチャートを図19に示す。これより、得られた固体は、以下の式(14)で表される構造を有するヒドラジド化合物であると同定した。

【0 1 9 9】

【化 4 5】



40

【0 2 0 0】

次いで、500 ml三口フラスコに、前記式(14)で示される化合物18.75 g、ピリジン9.6 ml、ヒドラジン13 mlおよびテトラヒドロフラン700 mlを入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで60℃に加熱し、12時間反応させた。反応終了後、この三口フラスコ内の溶液を氷冷した後、この溶液を濾過、水洗、乾燥させて得られた固形状物を乾燥させ、茶色の固体4.42 gを得た。

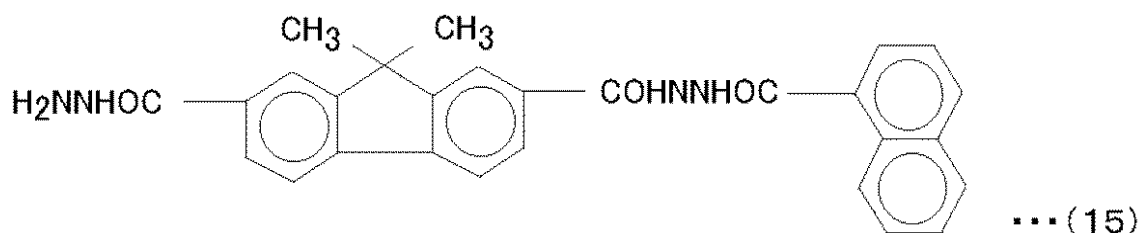
【0 2 0 1】

50

得られた固体のNMRスペクトルチャートを図20に、IRスペクトルチャートを図21に示す。これより、得られた固体は、以下の式(15)で表される構造を有するヒドラジド化合物であると同定した

【0202】

【化46】



10

【0203】

次いで、500ml三口フラスコに、前記式(15)で示される化合物2.44g、ピリジン0.5gおよびテトラヒドロフラン100mlを入れた。この三口フラスコ内の溶液を氷冷しながら、THF100mlに実施例1における式(8)で示される化合物1.5gを溶解させた溶液を、全量、滴下した。滴下した後、この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで70℃に加熱し、1.5時間反応させた。反応終了後、この三口フラスコ内の溶液を氷冷した後、この溶液を濾過、水洗、乾燥させて得られた固形状物を乾燥させ、黄色の固体1.27gを得た。

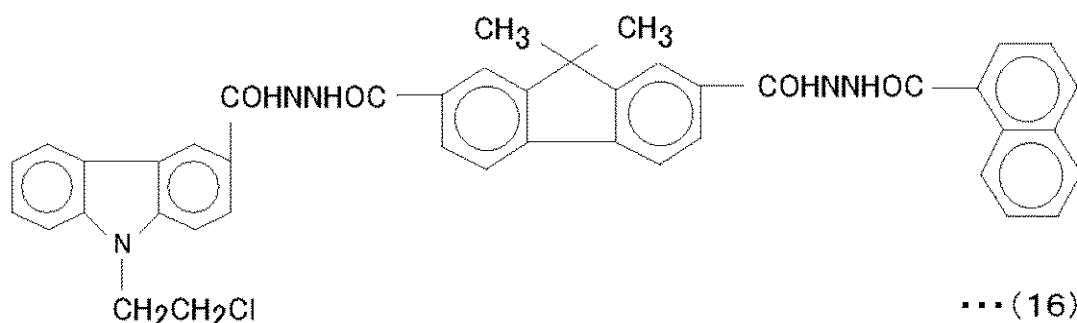
20

【0204】

得られた固体のNMRスペクトルチャートを図22に、IRスペクトルチャートを図23に示す。これより、得られた固体は、以下の式(16)で表される構造を有するヒドラジド化合物であると同定した。

【0205】

【化47】



30

【0206】

500ml三口フラスコに、前記式(16)で示される化合物1.27g、ジオキサン50mlおよび塩化ホスホリル30mlを入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで115℃に加熱し、6時間反応させた。反応終了後、濾過して、固形物を得た。この濾過液を水洗、メタノール洗浄した後、硫酸ナトリウムを添加し、乾燥させ、茶色の固体0.5gを得た。

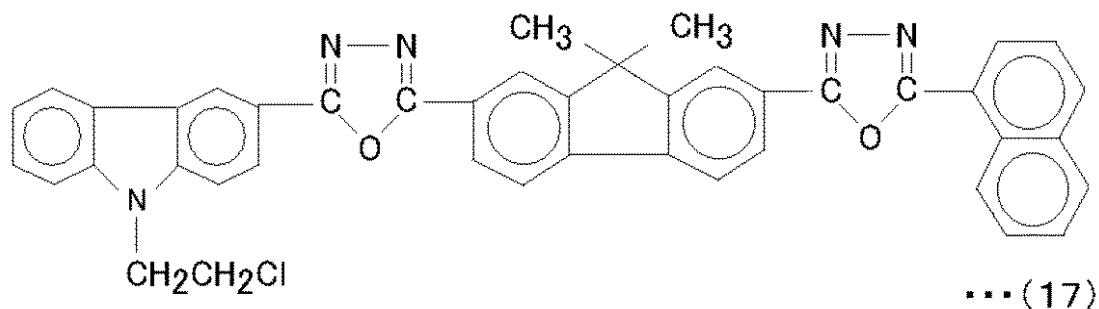
40

【0207】

得られた固体のNMRスペクトルチャートを図24に、IRスペクトルチャートを図25に示す。これより、得られた固体は、以下の式(17)で示される化合物であると同定した。

【0208】

【化 4 8】



10

【0 2 0 9】

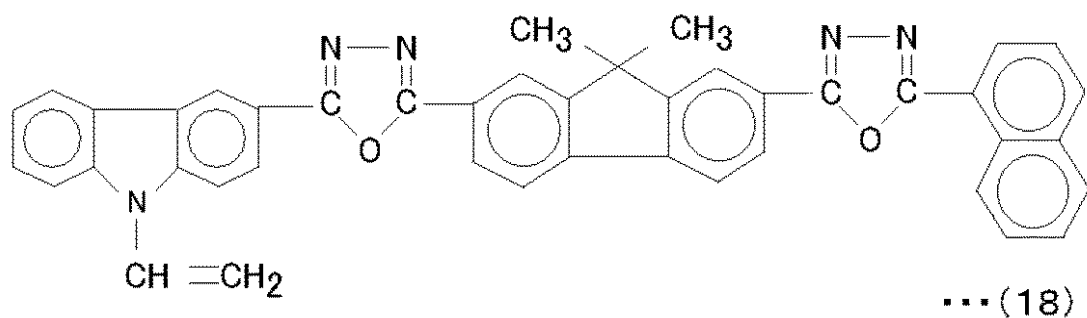
500 ml ナスフラスコに、前記式 (17) で示される化合物 0.36 g、水酸化カリウム 0.77 g およびジオキサン 100 ml を入れた。このナスフラスコ内の溶液を、シリコンオイルバスで 100℃ に加熱し、3 時間反応させた。反応終了後、この溶液を濃縮し、クロロホルム 300 ml を用いて抽出した。この抽出物に、無水硫酸ナトリウム 50 g を加えて脱水し、その後、濃縮した。濃縮後、得られた濃縮液を乾固して、赤茶色の固体 0.07 g を得た。

得られた固体の NMR スペクトルチャートを図 26 に、IR スペクトルチャートを図 27 に示す。これより、得られた固体は、以下の式 (18) で表される構造を有するビニル化合物であると同定した。

20

【0 2 1 0】

【化 4 9】



30

【0 2 1 1】

重合管に、前記式 (18) で示されるビニル化合物 0.07 g、オルトジクロロベンゼン 5 ml および DMF 5 ml を入れた。このナスフラスコ内の溶液を、シリコンオイルバスで 145℃ に加熱し、50 時間反応させた。反応終了後、濃縮し、濾過した後、得られた濃縮液を乾固させ、灰白色の固体 0.051 g を得た。

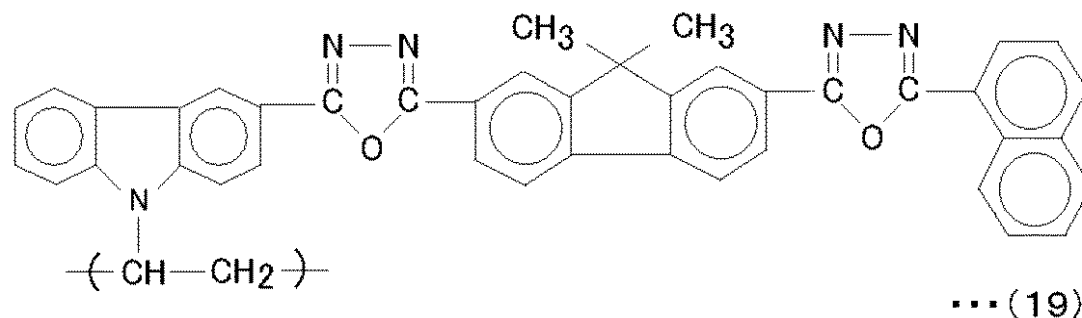
【0 2 1 2】

得られた固体の NMR スペクトルチャートを図 28 に、IR スペクトルチャートを図 29 に示す。これより、得られた固体は、以下の式 (19) で示される繰り返し単位を有する化合物であると同定した。

40

【0 2 1 3】

【化 5 0】



10

【0 2 1 4】

さらに前記式（19）で示される繰り返し単位を有する化合物の蛍光スペクトルチャートを図30に示す。これより、得られた化合物は、白色光を発することがわかった。

【0 2 1 5】

（実施例3）発光化合物の合成

2 L三口フラスコに、9, 9'-ジオクチルフルオレン-2, 7-ジカルボン酸 9 g、ジオキサン 450 ml、ピリジン 3 g および塩化チオニル 150 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで加熱し、7 時間反応させた。反応終了後、三口フラスコ内の溶液を放冷し、濃縮した後濾過して、薄桃色の結晶 9.15 g を得た。

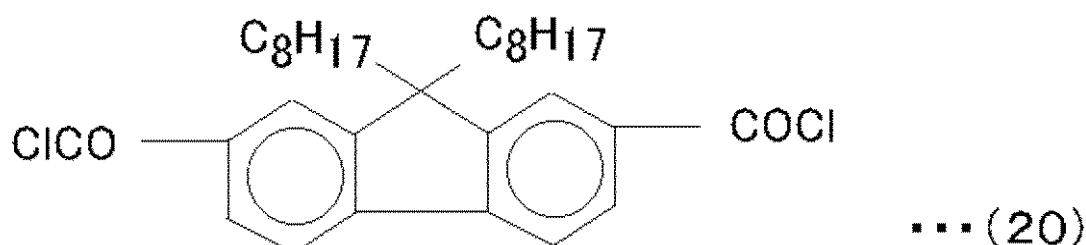
20

【0 2 1 6】

得られた結晶の NMR スペクトルチャートを図31に、IR スペクトルチャートを図32に示す。これらより、得られた結晶は、以下の式（20）で示される構造を有する化合物であると同定した。

【0 2 1 7】

【化 5 1】



30

2 L三口フラスコに、前記式（20）で示される酸クロリド化合物 9.15 g、前記式（13）で示される化合物 3.31 g、ピリジン 1.69 g およびテトラヒドロフラン 300 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 70 °C に加熱し、1.5 時間反応させた。反応終了後、三口フラスコ内の溶液を放冷し、濃縮した後濾過して、固体 12 g を得た。

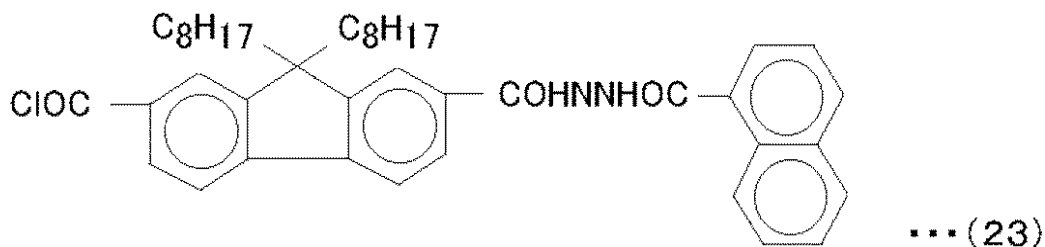
【0 2 1 8】

得られた固体の NMR スペクトルチャートを図33に、IR スペクトルチャートを図34に示す。これらより、得られた固体は、以下の式（23）で示される構造を有する化合物であると同定した。

【0 2 1 9】

40

【化 5 2】



【0 2 2 0】

10

次いで、1 L三口フラスコに、前記式 (23) で示される化合物 12 g、ピリジン 4.27 ml、ヒドラジン 5.8 ml およびテトラヒドロフラン 400 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 70℃ に加熱し、4.5 時間反応させた。反応終了後、この三口フラスコ内の溶液をクロロホルムで抽出した。抽出物をエバポレータで蒸留した後、真空ポンプで乾燥させ、茶色の粉末 9.37 g を得た。

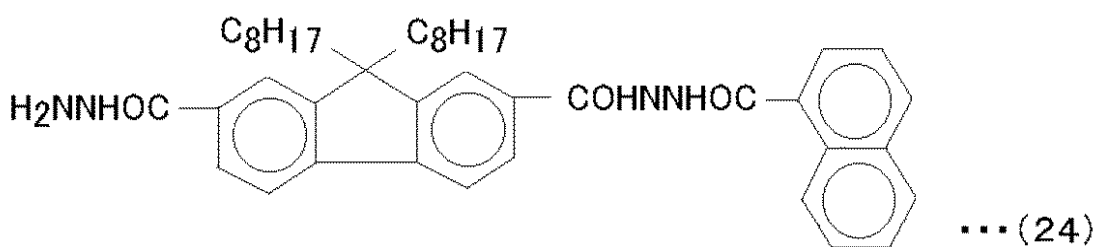
【0 2 2 1】

得られた粉末の NMR スペクトルチャートを図 35 に、IR スペクトルチャートを図 36 に示す。これより、得られた粉末は、以下の式 (24) で表される構造を有するヒドラジド化合物であると同定した。

【0 2 2 2】

20

【化 5 3】



【0 2 2 3】

30

次いで、1 L三口フラスコに、前記式 (23) で示されるヒドラジド化合物 4.9 g、前記式 (8) で示される化合物 2.1 g、ピリジン 0.7 g およびテトラヒドロフラン 290 ml を入れた。この三口フラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 110℃ に加熱し、2 時間反応させた。反応終了後、この三口フラスコ内の溶液を氷水に投入し、ヌッチェで濾過した後、得られた固形分を洗浄し、乾燥させ、固体 5 g を得た。

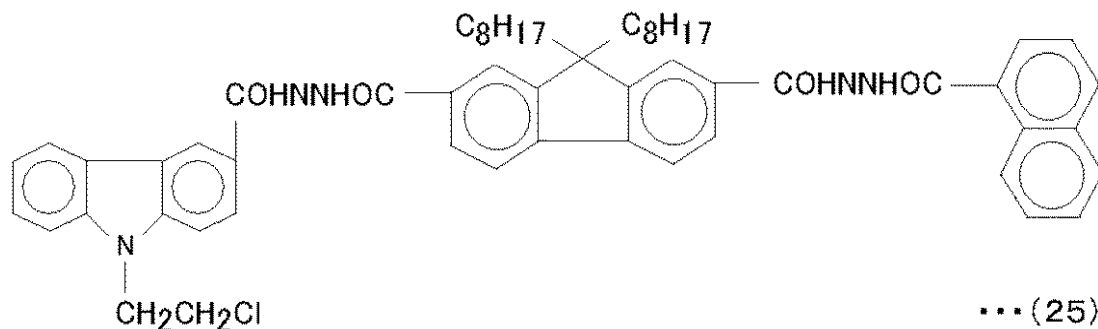
【0 2 2 4】

得られた固体の NMR スペクトルチャートを図 37 に、IR スペクトルチャートを図 38 に示す。これより、得られた固体は、以下の式 (25) で表される構造を有するヒドラジド化合物であると同定した。

【0 2 2 5】

40

【化 5 4】



10

【0 2 2 6】

次いで、500 ml ナスフラスコに、前記式 (25) で示される化合物 5 g、ジオキサン 200 ml および塩化ホスホリル 100 ml を入れた。このナスフラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 110 °C に加熱し、14.5 時間反応させた。反応終了後、このナスフラスコ内の溶液を氷水に投入し、スッチェで濾過した後、得られた固形分を洗浄し、乾燥させ、固体 4.26 g を得た。

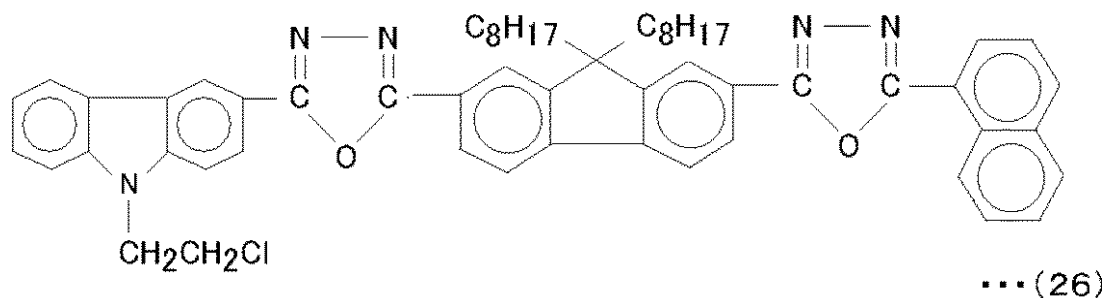
【0 2 2 7】

得られた固体の NMR スペクトルチャートを図 39 に、IR スペクトルチャートを図 40 に示す。これより、得られた固体は、以下の式 (26) で表される構造を有する化合物

20

【0 2 2 8】

【化 5 5】



30

【0 2 2 9】

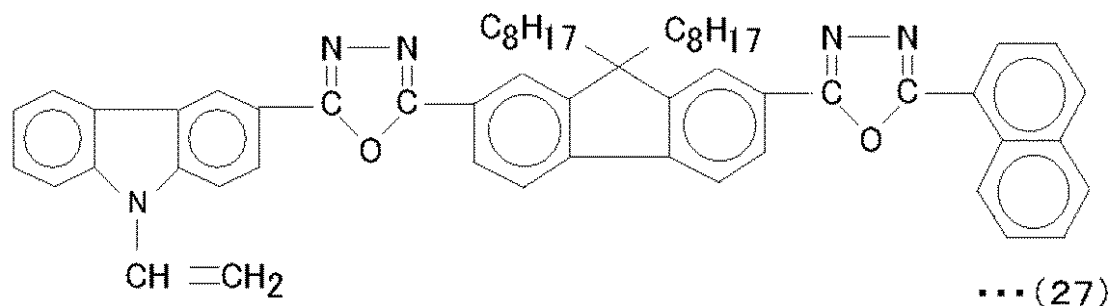
500 ml ナスフラスコに、前記式 (26) で示される化合物 0.34 g、水酸化カリウム 0.7 g、エタノール 50 ml およびジオキサン 100 ml を入れた。このナスフラスコ内の溶液を、シリコンオイルバスで 100 °C に加熱し、4 時間反応させた。反応終了後、この溶液を濃縮し、氷冷後、スッチェで濾過したこの抽出物に、無水硫酸ナトリウム 50 g を加えて脱水し、その後、濃縮した。濾過して得られた固形物をメタノールで洗浄した後、乾燥させて、白色粉末 0.23 g を得た。

得られた固体の NMR スペクトルチャートを図 41 に、IR スペクトルチャートを図 42 に示す。これより、得られた固体は、以下の式 (27) で表される構造を有するビニル化合物であると同定した。

40

【0 2 3 0】

【化 5 6】



10

【0 2 3 1】

300ml ナスフラスコに、前記式(27)で示されるビニル化合物0.2g、クロロベンゼン10mlおよび2重量%六塩化タングステン/クロロベンゼン溶液50μmを入れた。このナスフラスコ内の溶液を、振動器で15時間振動させた。振動終了後、濾過し、得られた濾過液から溶媒を留去、乾燥させて、薄黄色の固体0.1gを得た。

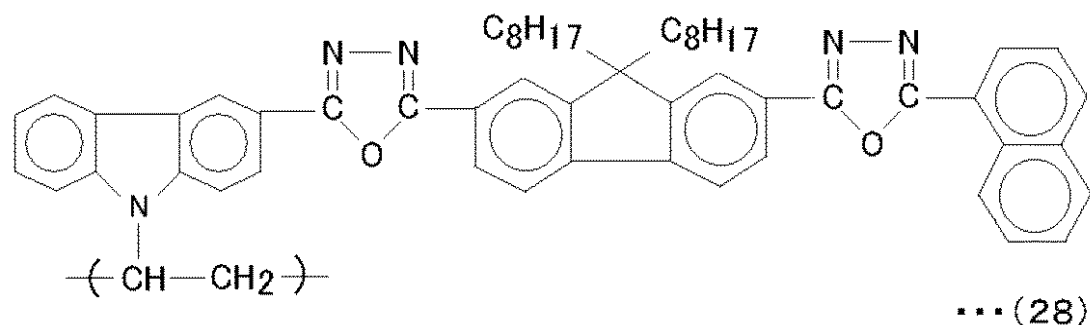
【0 2 3 2】

得られた固体のNMRスペクトルチャートを図43に、IRスペクトルチャートを図44に示す。これより、得られた固体は、以下の式(28)で示される繰り返し単位を有する化合物であると同定した。

【0 2 3 3】

20

【化 5 7】



30

【0 2 3 4】

さらに前記式(28)で示される繰り返し単位を有する化合物の蛍光スペクトルチャートを図45に示す。これより、得られた化合物は、白色光を発することがわかった。

【図面の簡単な説明】

【0 2 3 5】

【図1】図1は、この発明に係る一例としての発光素子を示す説明図である。

【図2】図2は、この発明に係る他の例としての発光素子を示す説明図である。

【図3】図3は、この発明に係るその他の例としての発光素子を示す説明図である。

【図4】図4は、この発明に係る更に他の例としての発光素子を示す説明図である。

【図5】図5は、実施例1における式(6)で示される化合物のNMRスペクトルチャート図である。 40

【図6】図6は、実施例1における式(6)で示される化合物のIRスペクトルチャート図である。

【図7】図7は、実施例1における式(7)で示される化合物のNMRスペクトルチャート図である。

【図8】図8は、実施例1における式(7)で示される化合物のIRスペクトルチャート図である。

【図9】図9は、実施例1における式(9)で示される化合物のNMRスペクトルチャート図である。

【図10】図10は、実施例1における式(9)で示される化合物のIRスペクトルチャ 50

ート図である。

【図 1 1】図 1 1 は、実施例 1 における式 (1 0) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 1 2】図 1 2 は、実施例 1 における式 (1 0) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 1 3】図 1 3 は、実施例 1 における式 (1 1) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 1 4】図 1 4 は、実施例 1 における式 (1 1) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 1 5】図 1 5 は、実施例 1 における式 (1 1) で示される化合物の蛍光スペクトルチャート図である。 10

【図 1 6】図 1 6 は、実施例 2 における式 (1 2) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 1 7】図 1 7 は、実施例 2 における式 (1 2) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 1 8】図 1 8 は、実施例 2 における式 (1 4) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 1 9】図 1 9 は、実施例 2 における式 (1 4) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 2 0】図 2 0 は、実施例 2 における式 (1 5) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。 20

【図 2 1】図 2 1 は、実施例 2 における式 (1 5) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 2 2】図 2 2 は、実施例 2 における式 (1 6) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 2 3】図 2 3 は、実施例 2 における式 (1 6) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 2 4】図 2 4 は、実施例 2 における式 (1 7) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 2 5】図 2 5 は、実施例 2 における式 (1 7) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。 30

【図 2 6】図 2 6 は、実施例 2 における式 (1 8) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 2 7】図 2 7 は、実施例 2 における式 (1 8) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 2 8】図 2 8 は、実施例 2 における式 (1 9) で示される繰り返し単位を有する化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 2 9】図 2 9 は、実施例 2 における式 (1 9) で示される繰り返し単位を有する化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 3 0】図 3 0 は、実施例 2 における式 (1 9) で示されるポ繰り返し単位を有する化合物の蛍光スペクトルチャート図である。 40

【図 3 1】図 3 1 は、実施例 3 における式 (2 0) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 3 2】図 3 2 は、実施例 3 における式 (2 0) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 3 3】図 3 3 は、実施例 4 における式 (2 3) で示される化合物の NMR スペクトルチャート図である。

【図 3 4】図 3 4 は、実施例 4 における式 (2 3) で示される化合物の IR スペクトルチャート図である。

【図 3 5】図 3 5 は、実施例 4 における式 (2 4) で示される化合物の NMR スペクトル 50

チャート図である。

【図 3 6】図 3 6 は、実施例 4 における式 (2 4) で示される化合物の I R スペクトルチャート図である。

【図 3 7】図 3 7 は、実施例 4 における式 (2 5) で示される化合物の N M R スペクトルチャート図である。

【図 3 8】図 3 8 は、実施例 4 における式 (2 5) で示される化合物の I R スペクトルチャート図である。

【図 3 9】図 3 9 は、実施例 4 における式 (2 6) で示される化合物の N M R スペクトルチャート図である。

【図 4 0】図 4 0 は、実施例 4 における式 (2 6) で示される化合物の I R スペクトルチャート図である。 10

【図 4 1】図 4 1 は、実施例 4 における式 (2 7) で示される化合物の N M R スペクトルチャート図である。

【図 4 2】図 4 2 は、実施例 4 における式 (2 7) で示される化合物の I R スペクトルチャート図である。

【図 4 3】図 4 3 は、実施例 4 における式 (2 8) で示される化合物の N M R スペクトルチャート図である。

【図 4 4】図 4 4 は、実施例 4 における式 (2 8) で示される化合物の I R スペクトルチャート図である。

【図 4 5】図 4 5 は、実施例 4 における式 (2 8) で示されるポ線り返し単位を有する化合物の蛍光スペクトルチャート図である。 20

【符号の説明】

【0 2 3 6】

A, B, C 発光素子

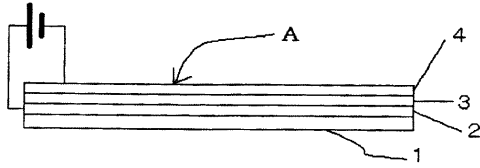
1 基板

2 透明電極

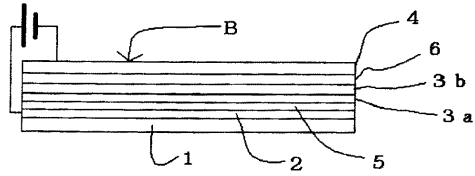
3 発光層

4 電極層

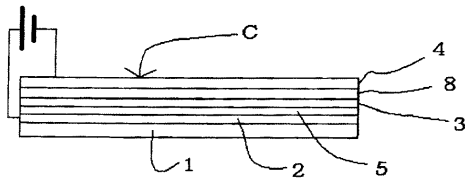
【図 1】



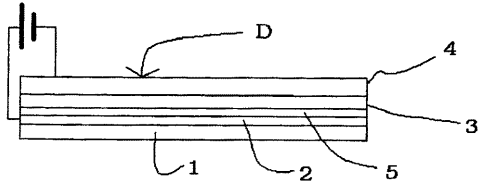
【図 2】



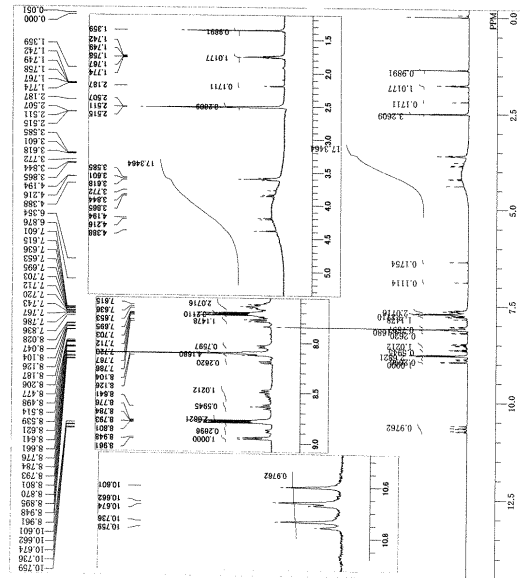
【図 3】



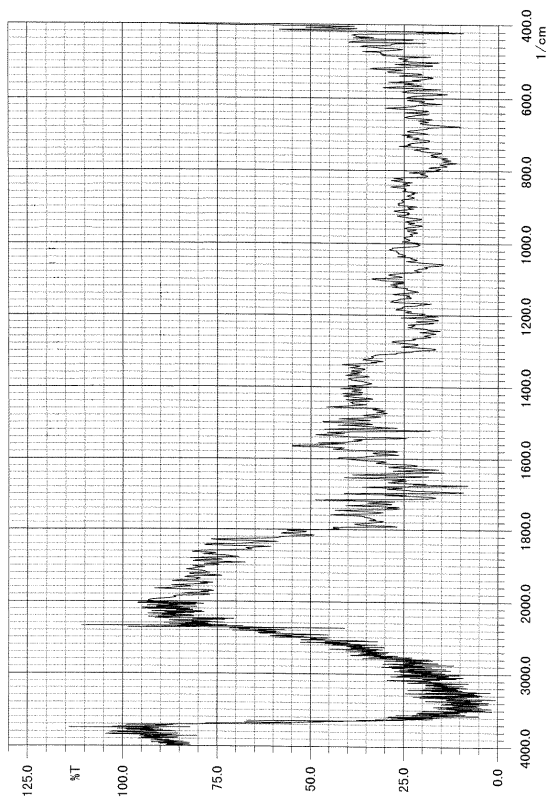
【図 4】



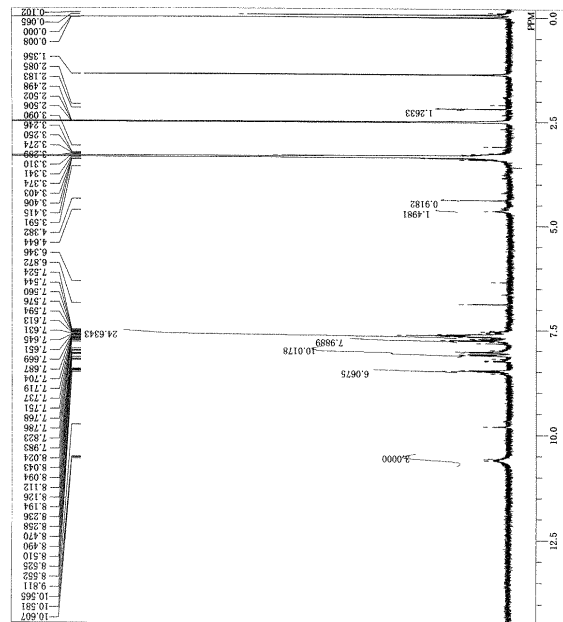
【図 5】



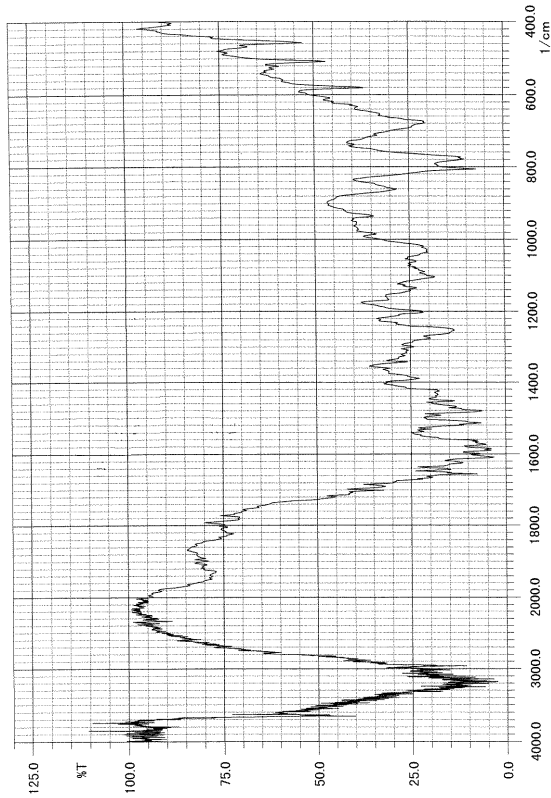
【図 6】



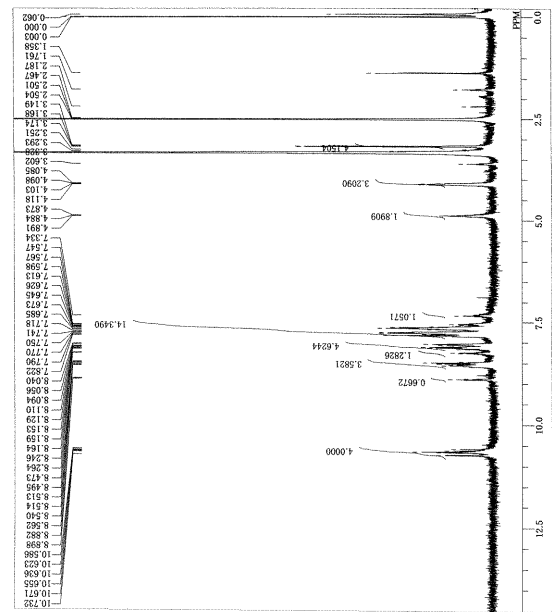
【図 7】



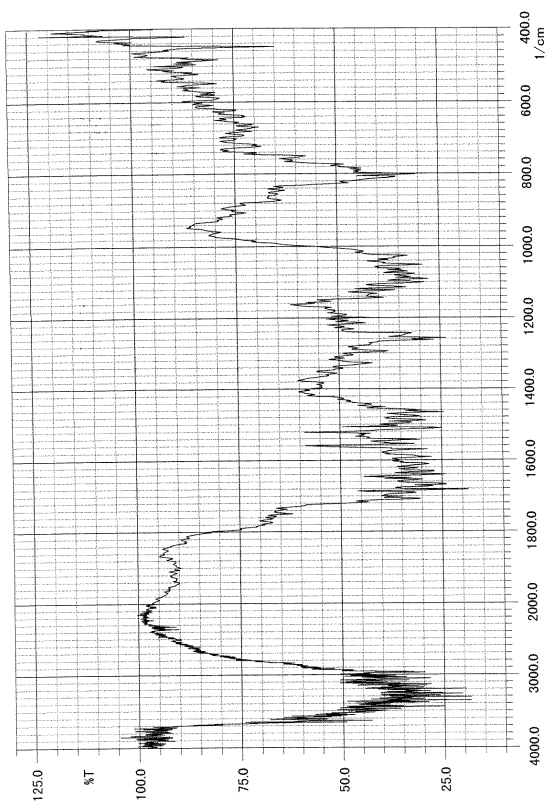
【図 8】



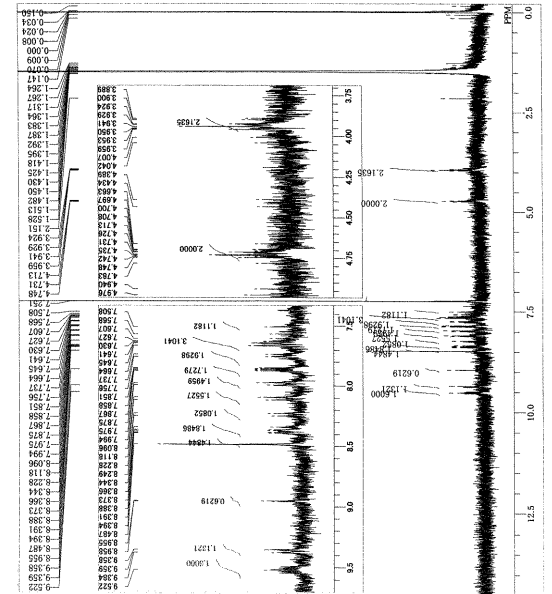
【図 9】



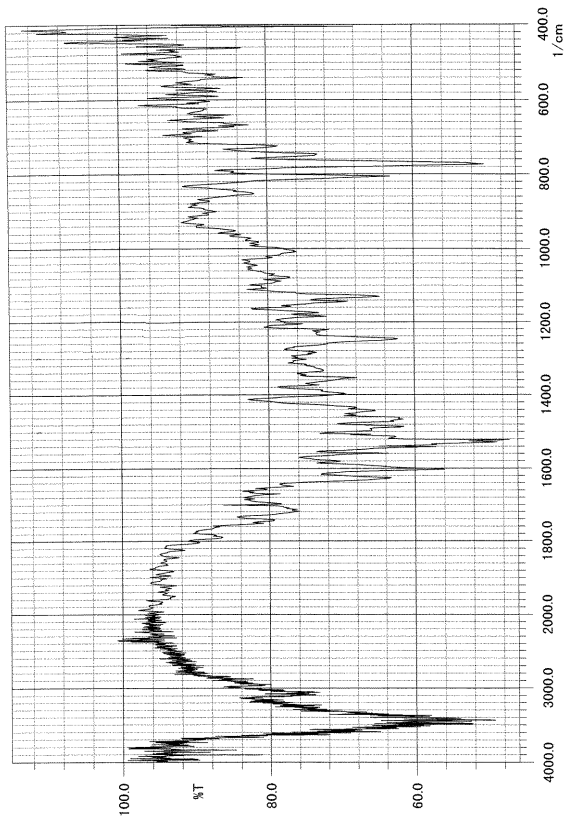
【図 10】



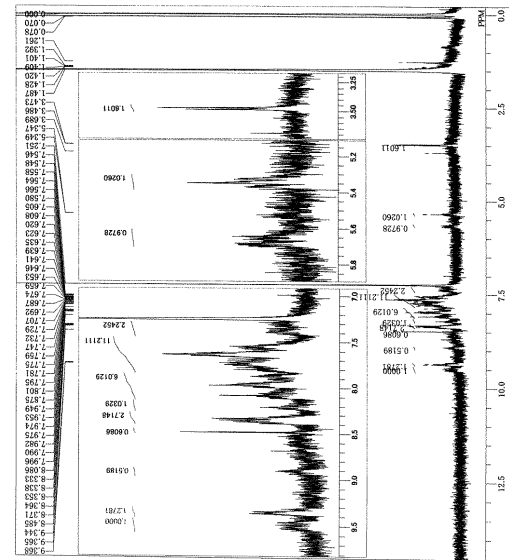
【図 11】



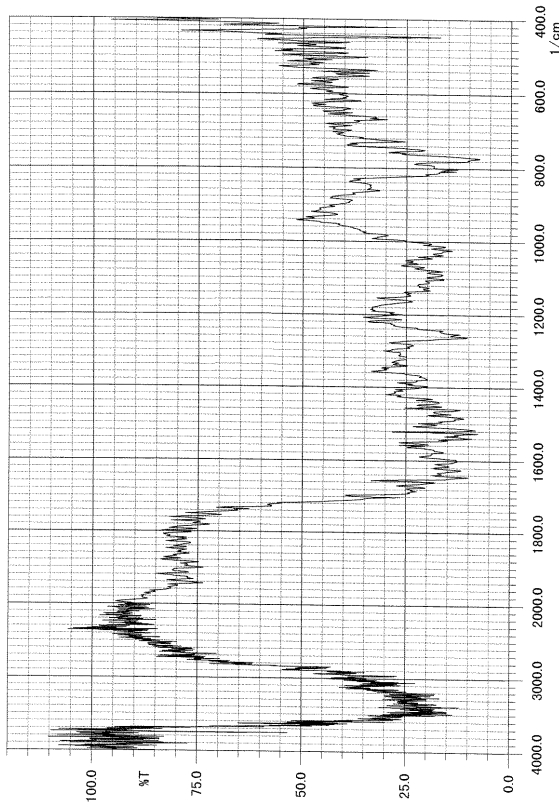
【図 1 2】



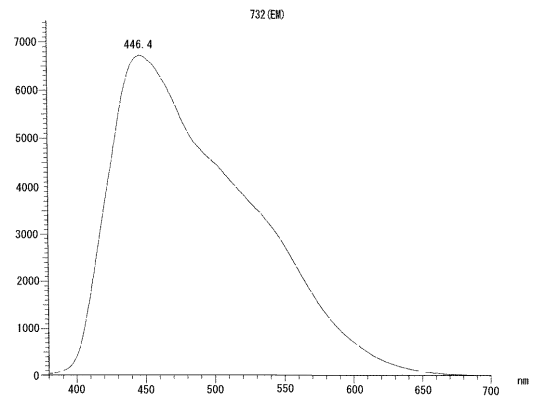
【図 1 3】



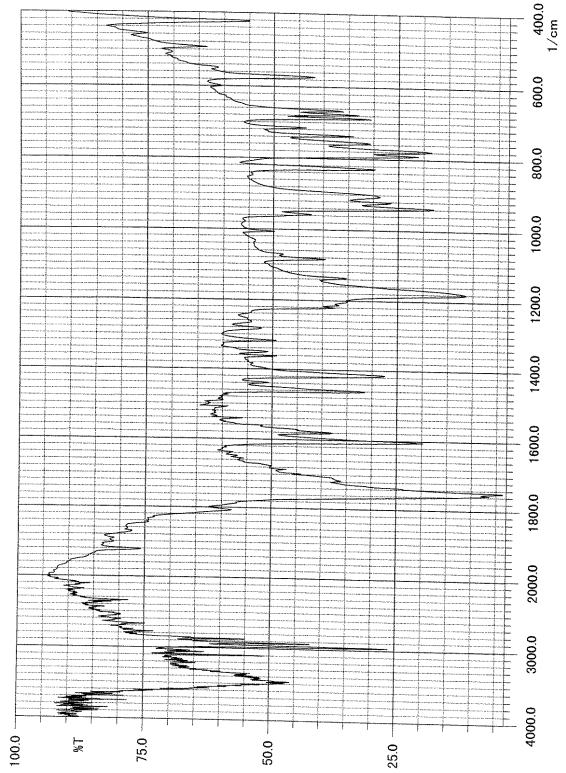
【図 1 4】



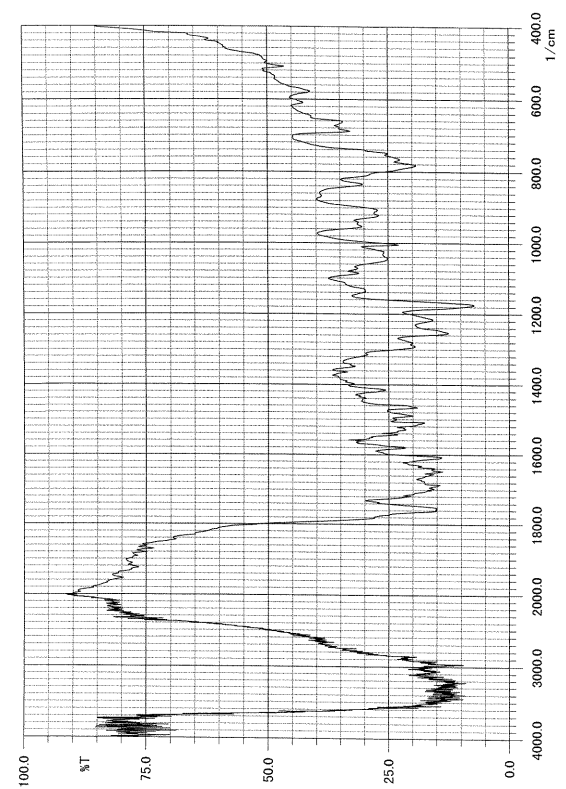
【図 1 5】



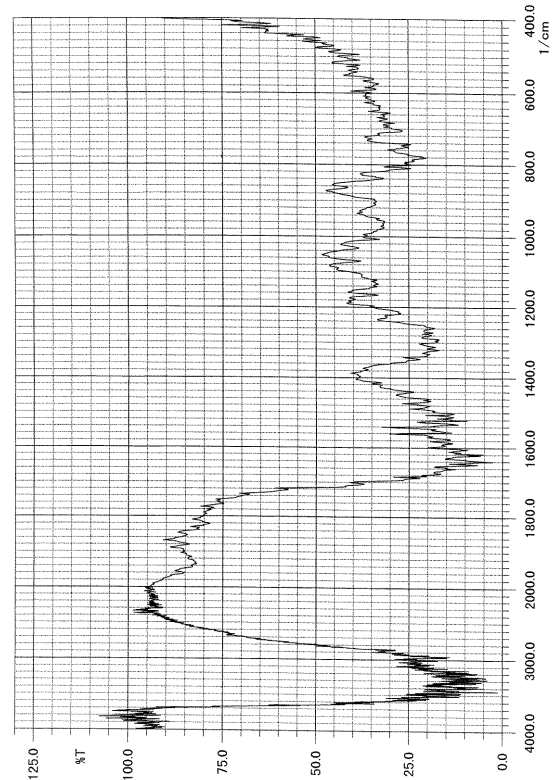
【図 17】



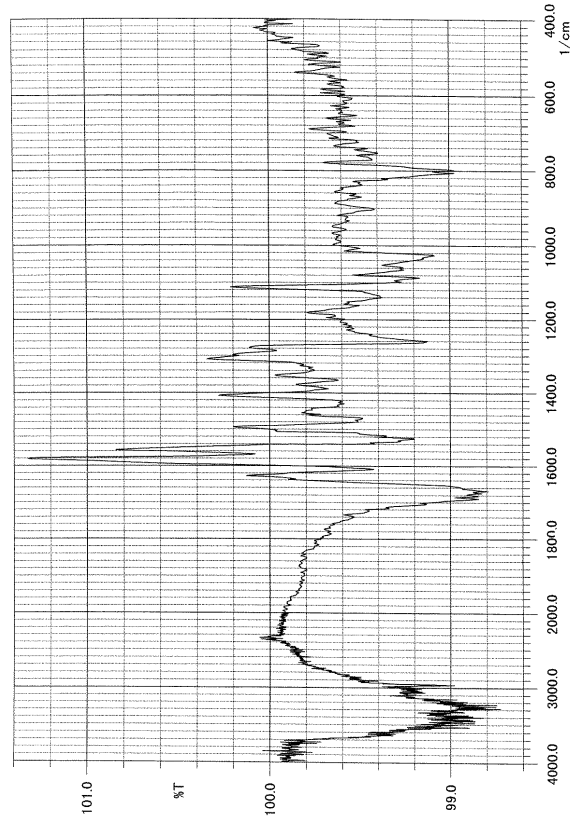
【 図 1 9 】



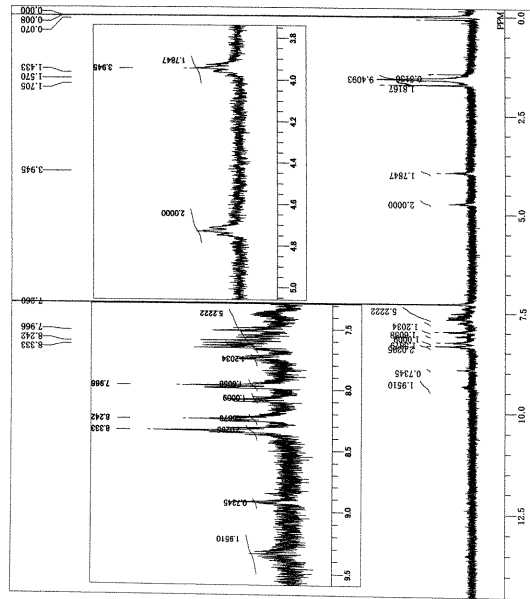
【 図 2 1 】



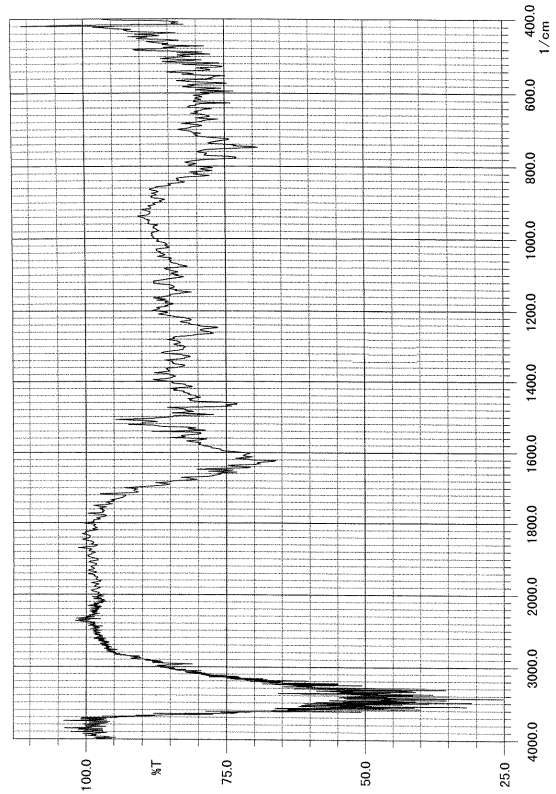
【图 2 3】



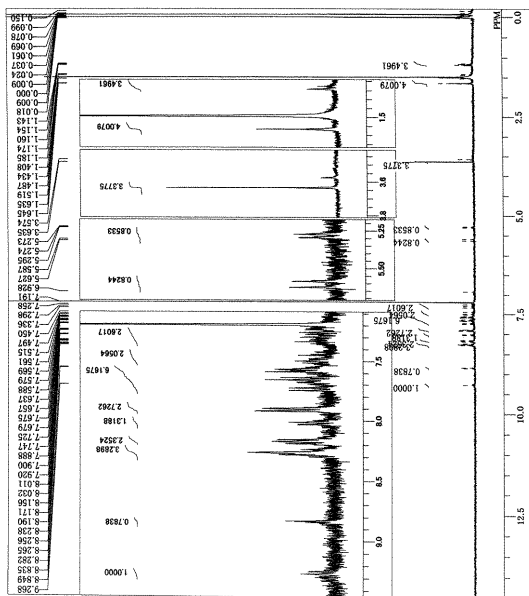
【図 2 4】



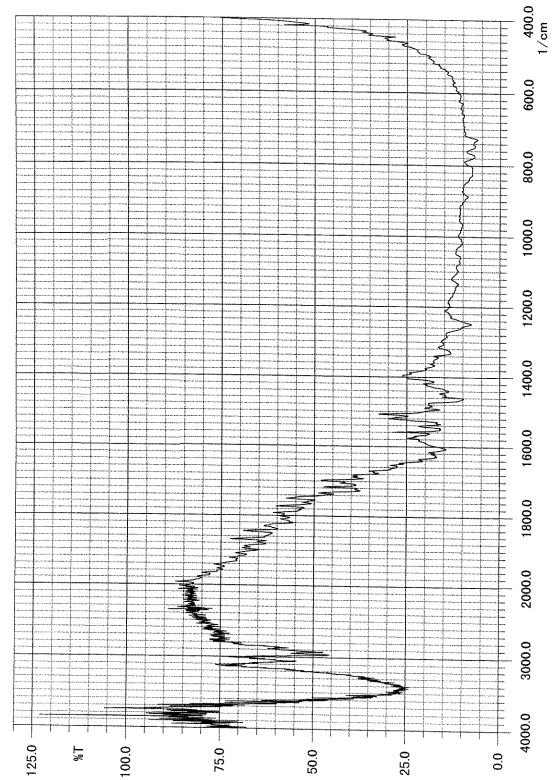
【図 2 5】



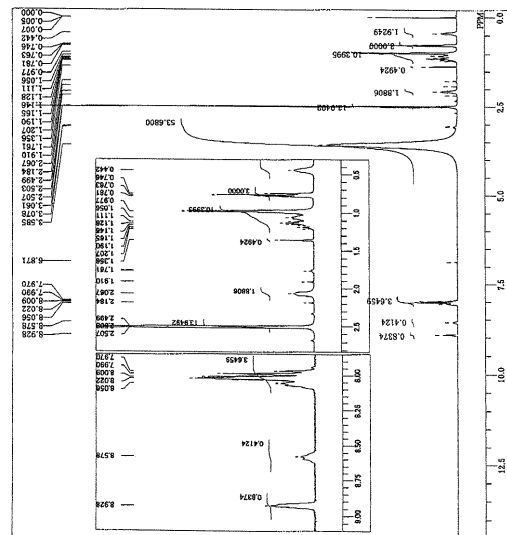
【図 2 6】



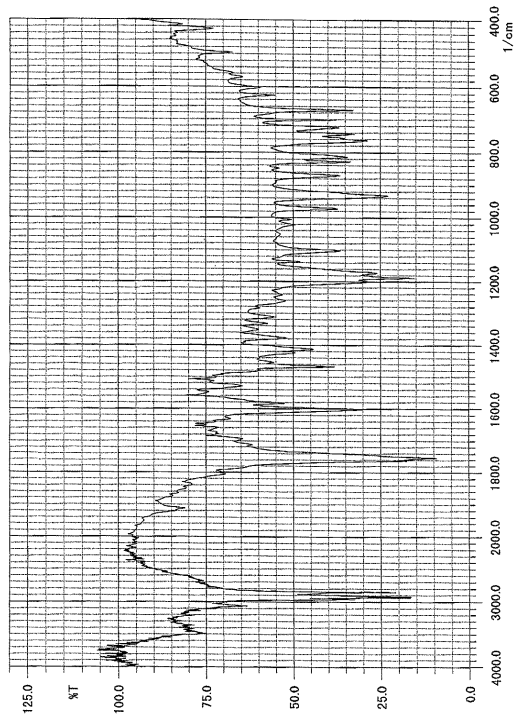
【 図 2 9 】



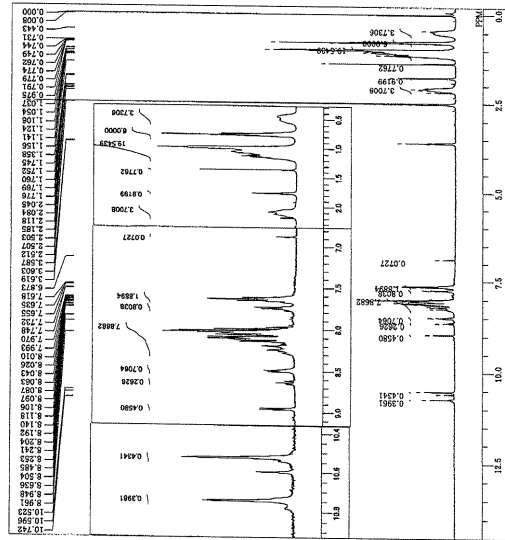
【 図 3 1 】



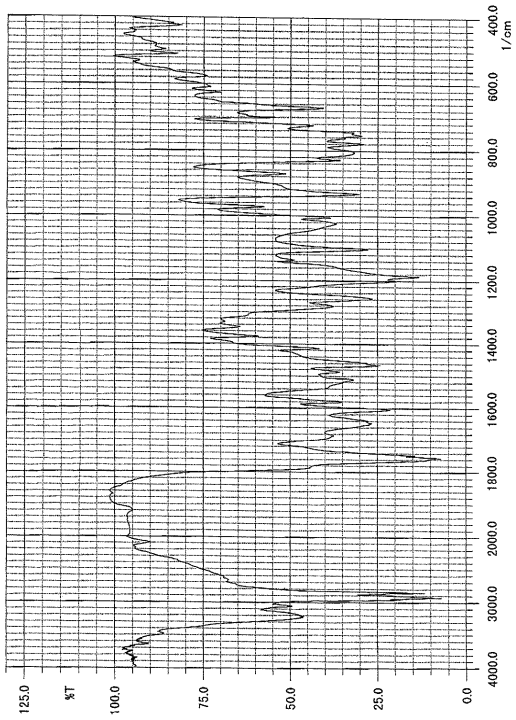
【図 3 2】



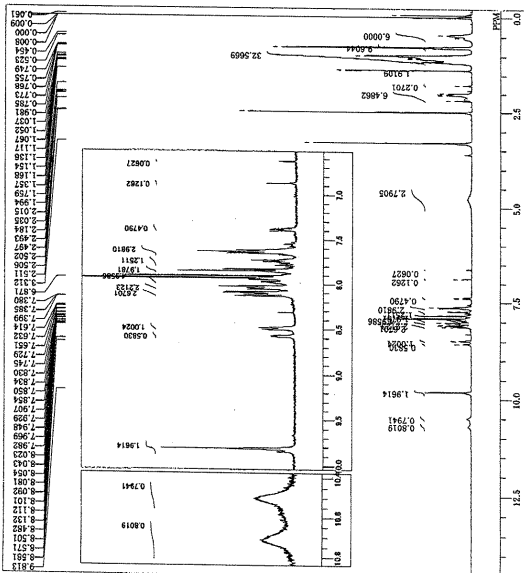
【図 3 3】



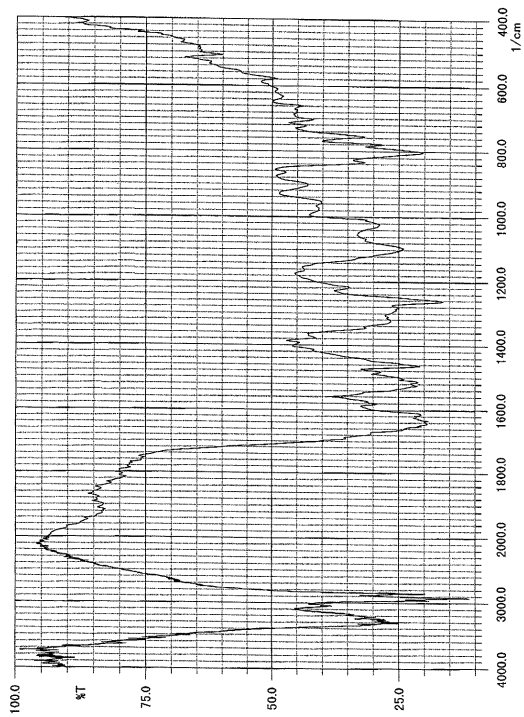
【図 3 4】



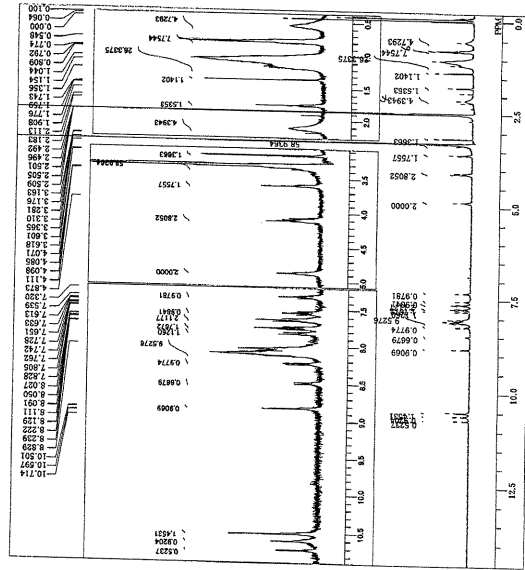
【図 3 5】



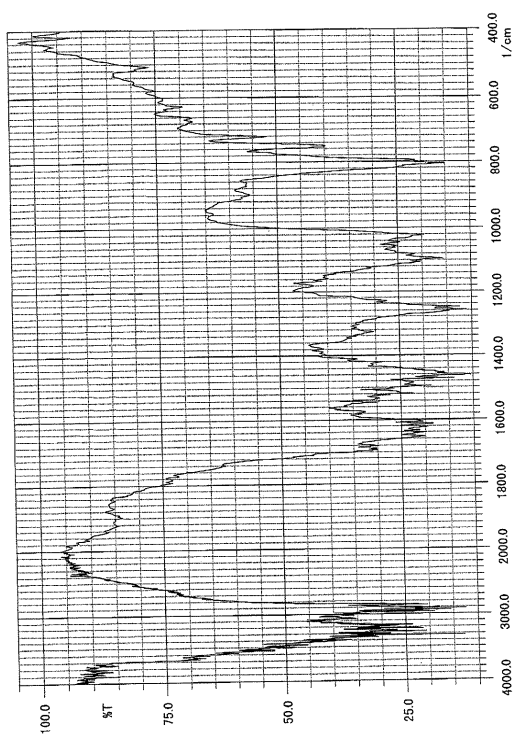
【図 3 6】



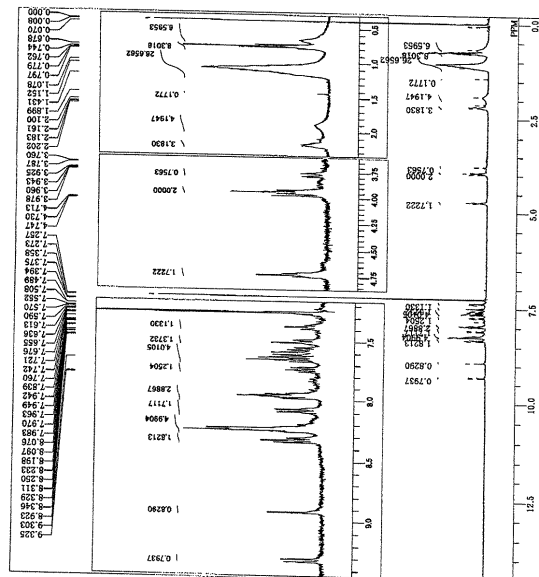
【図 3 7】



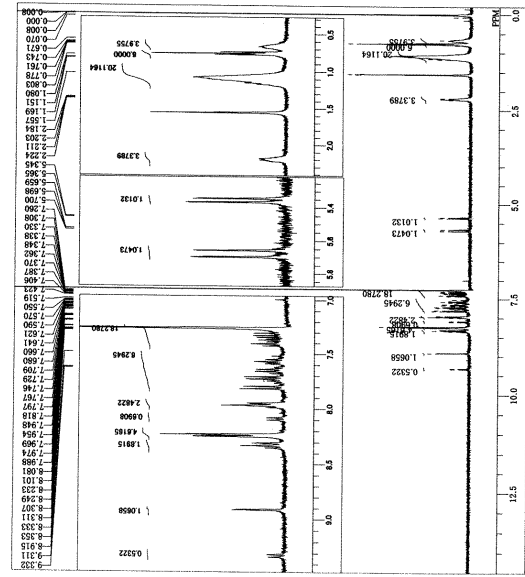
【図 3 8】



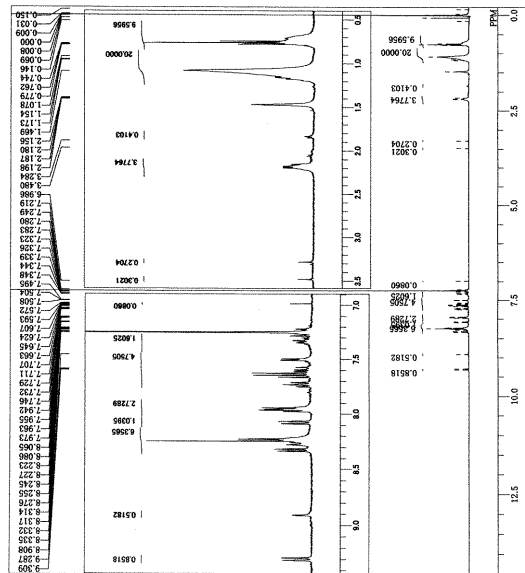
【図 3 9】



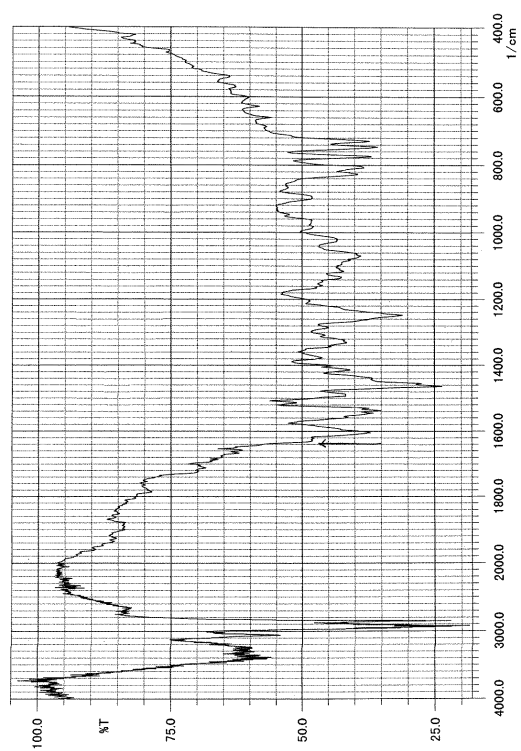
【図 4 1】



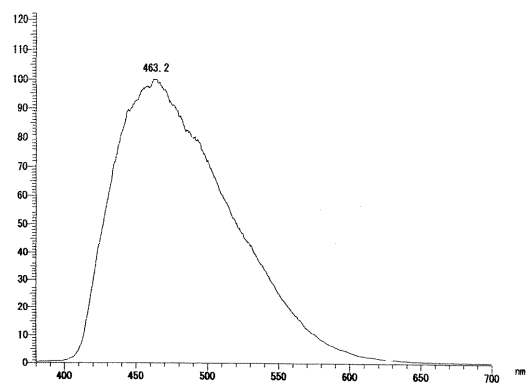
【图 4 3】



【図 4 4】



【図 4 5】



专利名称(译)	发光化合物和发光元件		
公开(公告)号	JP2005120071A	公开(公告)日	2005-05-12
申请号	JP2004190451	申请日	2004-06-28
申请(专利权)人(译)	广濑工程有限公司		
[标]发明人	仲矢忠雄 松本良二 石飛達郎		
发明人	仲矢 忠雄 松本 良二 石飛 達郎		
IPC分类号	H01L51/50 C07D413/14 C08F26/12 C09K11/06 H01L51/00 H01L51/30 H05B33/14		
CPC分类号	H01L51/0042 C07D413/14 C08F26/12 C09K11/06 C09K2211/1475 H01L51/007 H01L51/5012 H01L51/5036 H01L51/5092 H05B33/14 Y02B20/181		
FI分类号	C07D413/14 C09K11/06.655 C09K11/06.680 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB04 3K007/AB11 3K007/DB03 4C063/AA03 4C063/BB06 4C063/CC58 4C063/DD08 4C063/EE10 3K107/AA01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/CC02 3K107/CC09 3K107/CC21 3K107/DD59 3K107/DD63		
优先权	2003330594 2003-09-22 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明的目的是提供白色发光化合物，作为单一化合物的白色发光聚合物，其可以发射白色的光，例如，其可以用于有机EL元件，以及使用它们的白色发光元件。。 解决方案：用于解决上述问题的本发明的第一种方法是白色发光化合物，其特征在于具有由下式（1）表示的结构。 嵌入图片 点域5

