

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6313742号  
(P6313742)

(45) 発行日 平成30年4月18日(2018.4.18)

(24) 登録日 平成30年3月30日(2018.3.30)

(51) Int.Cl.		F I			
<b>H01L 51/50</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B	33/14		B
<b>C09K 11/06</b>	<b>(2006.01)</b>	C09K	11/06	660	
		C09K	11/06	690	

請求項の数 9 (全 19 頁)

(21) 出願番号	特願2015-500331 (P2015-500331)	(73) 特許権者	504255685
(86) (22) 出願日	平成26年2月17日(2014.2.17)		国立大学法人京都工芸繊維大学
(86) 国際出願番号	PCT/JP2014/053642		京都府京都市左京区松ヶ崎橋上町1番地
(87) 国際公開番号	W02014/126241	(73) 特許権者	000000941
(87) 国際公開日	平成26年8月21日(2014.8.21)		株式会社カネカ
審査請求日	平成29年1月26日(2017.1.26)		大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号
(31) 優先権主張番号	特願2013-29363 (P2013-29363)	(74) 代理人	100152571
(32) 優先日	平成25年2月18日(2013.2.18)		弁理士 新宅 将人
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(74) 代理人	100141852
			弁理士 吉本 力
		(72) 発明者	清水 正毅
			日本国京都府京都市左京区松ヶ崎橋上町1番地 国立大学法人京都工芸繊維大学内

最終頁に続く

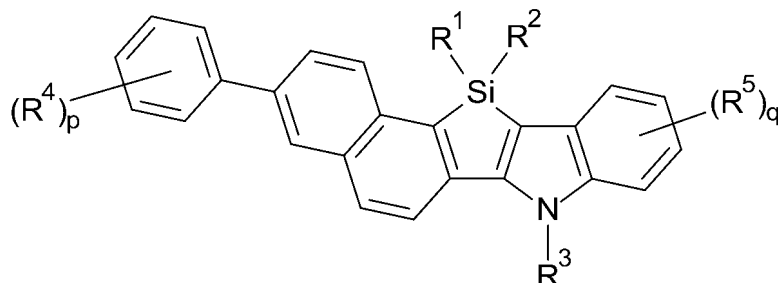
(54) 【発明の名称】 発光材料および有機EL素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記式(I)で表されるケイ素架橋インドール誘導体含有する発光材料:

【化1】



(I)

10

式(I)中、

R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>はそれぞれ独立に、炭素数1~6の低級アルキル基、アリール基、または不飽和複素環基を表し、R<sup>3</sup>は、炭素数1~6の低級アルキル基、アリール基、または不飽和複素環基を表し、R<sup>4</sup>は、ベンゼン環に結合した置換基であり、R<sup>5</sup>は、インドール環に結合した置換基であり、pは0~5の整数であり、qは0~4の整数であり、R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1~6の低級アル

20

キル基、炭素数 1 ~ 6 の低級アルコキシ基、炭素数 1 ~ 6 の低級アルキルチオ基、炭素数 1 ~ 6 のハロゲン置換低級アルキル基、炭素数 1 ~ 6 のハロゲン置換低級アルコキシ基、アミノ基、アリール基または不飽和複素環基を表し、

R<sup>4</sup> が複数存在する場合、複数の R<sup>4</sup> は、同一でも異なってもよく、複数の R<sup>4</sup> は互いに結合して環構造を形成してもよく、

R<sup>5</sup> が複数存在する場合、複数の R<sup>5</sup> は、同一でも異なってもよい。

【請求項 2】

前記式 (I) において、p が 0 または 1 である、請求項 1 に記載の発光材料。

【請求項 3】

前記式 (I) において、p が 1 であり、R<sup>4</sup> がベンゼン環のパラ位に結合している、請求項 1 に記載の発光材料。 10

【請求項 4】

前記 R<sup>4</sup> がメトキシ基である、請求項 3 に記載の発光材料。

【請求項 5】

前記式 (I) において、q が 0 である、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 6】

前記式 (I) において、R<sup>1</sup> および R<sup>2</sup> が同一の置換基である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の発光材料。

【請求項 7】

前記式 (I) において、R<sup>1</sup> および R<sup>2</sup> がいずれもイソプロピル基であり、R<sup>3</sup> がメチル基である、請求項 6 に記載の発光材料。 20

【請求項 8】

ホスト材料およびドーパント材料を含有し、

前記ドーパント材料が請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の発光材料であり、前記ホスト材料がアントラセン誘導体である、発光材料。

【請求項 9】

陽極および陰極からなる一対の電極の間に少なくとも発光層を備え、

前記発光層が、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の発光材料を有する有機 EL 素子。 30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光材料およびそれを用いた有機 EL 素子に関する。

【背景技術】

【0002】

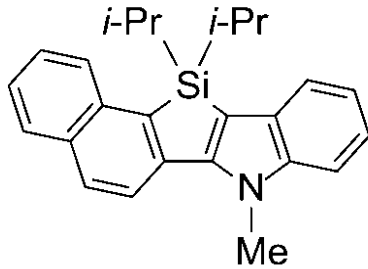
フラットディスプレイパネルや照明装置に用いられる発光素子として、有機 EL 素子が注目されている。有機 EL 素子は、発光層を構成する材料を適宜選択することにより、種々の波長の光を発光することができる。有機 EL 素子に用いられる有機発光材料としては、種々の共役化合物が検討されており、アントラセン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、フルオレン誘導体、ピレン誘導体等が青色発光材料として既に開発されている。 40

【0003】

最近、新規の青色発光材料としてケイ素架橋インドール誘導体が見出され、固体状態での発光効率に優れていることが報告されている (特許文献 1)。また、特許文献 2 では、ケイ素架橋インドール誘導体は、アントラセン誘導体等の発光ホスト材料と共に用いられた場合に、高発光効率、かつ長寿命の有機 EL 素子が得られることが報告されている。さらに、非特許文献 1 では、下記のケイ素架橋 2 - (2 - ナフチル) インドール化合物が、青色発光ドーパント材料あるいは発光ホスト材料として適用可能であることが報告されている。

【0004】

## 【化1】



## 【先行技術文献】

10

## 【特許文献】

## 【0005】

【特許文献1】WO2010/047335号国際公開パンフレット

【特許文献2】特開2012-87187号公報

## 【非特許文献】

## 【0006】

【非特許文献1】M. Shimizu 他 J. Mater. Chem. 2012年 第22巻 4337-4342頁

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

20

## 【0007】

上記のように、種々の青色発光材料が開発されているが、有機EL素子の発光効率の向上には課題が残されており、所望の発光波長や発光スペクトル形状を有し、高発光効率かつ発光寿命の長い材料の開発が求められている。有機発光材料は、置換基導入等による誘導体化によって、発光スペクトルの形状や発光波長等の発光特性を変化させることができる。一方、化合物の共役構造が変化すると、発光特性が大きく変化するため、その発光特性や発光寿命を予測することは困難である。

## 【0008】

上記現状に鑑み、本発明は、高い発光効率を示す新規の青色発光材料、および当該発光材料を用いた有機EL素子の提供を目的とする。

30

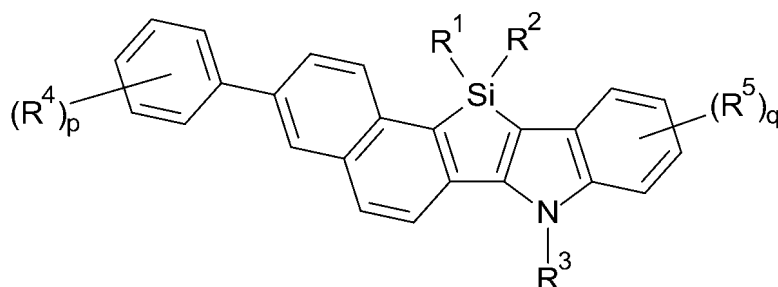
## 【課題を解決するための手段】

## 【0009】

本発明者らが検討の結果、ナフタレン環上にアリール基が導入されたケイ素架橋インドール誘導体が、発光効率に優れることを見出し、本発明に至った。すなわち、本発明は、下記式(I)で表されるケイ素架橋インドール誘導体を含有する発光材料に関する。

## 【0010】

## 【化2】



(I)

40

## 【0011】

式(I)中、

$R^1 \sim R^3$  はそれぞれ独立に、炭素数1~6の低級アルキル基、アリール基または不飽和複素環基を表す。 $R^4$  は、ベンゼン環に結合した置換基であり、 $R^5$  は、インドール環に

50

結合した置換基である。pは0～5の整数であり、qは0～4の整数である。R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、アミノ基、アリール基、不飽和複素環基、炭素数1～6の低級アルキル基、炭素数1～6の低級アルコキシ基、炭素数1～6の低級アルキルチオ基または炭素数1～6のハロゲン置換低級アルキル基、炭素数1～6のハロゲン置換低級アルコキシ基、アミノ基、アリール基または不飽和複素環基を表す。R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>がそれぞれ複数存在する場合、複数のR<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>は、それぞれ同一でも異なってもよい。複数のR<sup>4</sup>は、互いに結合して環構造を形成してもよい。

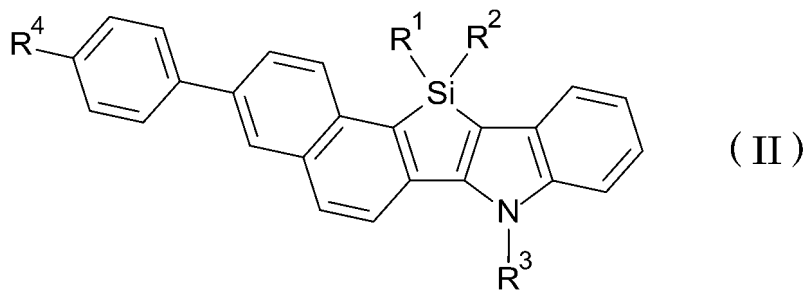
【0012】

特に、本発明の発光材料は、上記式(I)において、pが0または1であることが好ましく、q=0であることが好ましい。また、pが1である場合、置換基R<sup>4</sup>は、ベンゼン環のpara位に結合していることが好ましい(下記式(II))。R<sup>4</sup>は、例えばメトキシ基が好ましい。

10

【0013】

【化3】



20

【0014】

一実施形態において、本発明の発光材料は、ホスト材料およびドーパント材料を含有する。ドーパント材料は、上記式(I)または式(II)の化合物であることが好ましく、ホスト材料は、アントラセン誘導体であることが好ましい。上記化合物が、アントラセン誘導体ホストのドーパント材料として用いられることで、発光寿命の長い有機EL素子を作製することができる。

30

【0015】

さらに、本発明は、陽極および陰極からなる一対の電極の間に少なくとも発光層を備える有機EL素子に関する。本発明の有機EL素子は、発光層が、上記発光材料を有する。

【発明の効果】

【0016】

本発明の発光材料は、500nmよりも短波長の青色領域に発光極大波長を有する青色発光材料であり、高い発光効率を有する有機EL素子を作製可能である。

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】有機EL装置の層構成の一例を示す模式的断面図である。

40

【図2】図1の有機EL装置における有機EL素子の層構成の一例を示す模式的断面図である。

【発明を実施するための形態】

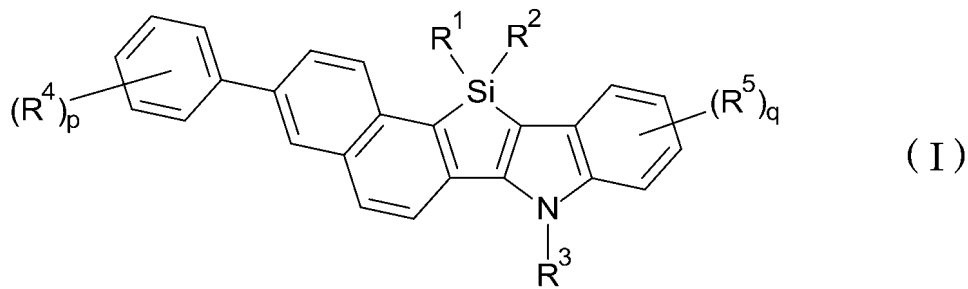
【0018】

[化合物の構造]

本発明の発光材料は、下記式(I)で表されるケイ素架橋2-(2-ナフチル)インドール誘導体を含有する。

【0019】

## 【化4】



10

## 【0020】

式(I)中、 $R^1$ および $R^2$ はそれぞれ独立に、炭素数1~6の低級アルキル基、アリール基または不飽和複素環基を表す。 $R^3$ は、炭素数1~6の低級アルキル基、アリール基または不飽和複素環基を表す。 $R^4$ は、ベンゼン環に結合した置換基であり、 $R^5$ は、インドール環に結合した置換基である。 $p$ は0~5の整数であり、 $q$ は0~4の整数である。 $R^4$ および $R^5$ はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1~6の低級アルキル基、炭素数1~6の低級アルコキシ基、炭素数1~6の低級アルキルチオ基、炭素数1~6のハロゲン置換低級アルキル基、アミノ基、アリール基または不飽和複素環基を表す。 $R^4$ および $R^5$ がそれぞれ複数存在する場合( $p$ および $q$ がそれぞれ2以上の場合)、複数の $R^4$ および $R^5$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよい。複数の $R^4$ は、互いに結合して環構造を形成してもよい。

20

## 【0021】

## [置換基の例]

< $R^1$ および $R^2$ >

式(I)において、 $R^1$ および $R^2$ は、炭素数1~6の低級アルキル基、アリール基、または不飽和複素環基を表す。

## 【0022】

前記低級アルキル基としては、炭素数1~6、好ましくは炭素数1~4の直鎖状または分岐を有するアルキル基が挙げられる。具体的には、メチル基、エチル基、 $n$ -プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、イソブチル基、 $tert$ -ブチル基、 $sec$ -ブチル基、 $n$ -ペンチル基、1-エチルプロピル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、 $n$ -ヘキシル基、1,2,2-トリメチルプロピル基、3,3-ジメチルブチル基、2-エチルブチル基、イソヘキシル基、3-メチルペンチル基、等が挙げられる。

30

## 【0023】

前記アリール基としては、例えば、フェニル基、ピフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。アリール基は、フェニル環又はナフタレン環上に、低級アルキル基、低級アルコキシ基、ハロゲン置換低級アルキル基、低級アルコキシカルボニル基、低級アルキルカルボニル基、アミノ基、アミノカルボニル基、ハロゲン原子等の置換基を、1または複数有するものであってもよい。

## 【0024】

前記アミノ基は、無置換アミノ基( $-NH_2$ )の他、1個または2個の置換基を有するものであってもよい。また、アミノ基が2個の置換基を有する場合、これらは同一でもよく、異なっていてもよい。アミノ基が置換基を有する場合、その置換基としては、前記例示の低級アルキル基やアリール基が好ましい。アミノ基の具体例としては、無置換アミノ基、メチルアミノ基、エチルアミノ基、 $n$ -プロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、 $n$ -ブチルアミノ基、 $tert$ -ブチルアミノ基、 $n$ -ペンチルアミノ基、 $n$ -ヘキシルアミノ基、アリールアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ- $n$ -プロピルアミノ基、ジ- $n$ -ブチルアミノ基、ジ- $n$ -ペンチルアミノ基、ジ- $n$ -ヘキシルアミノ基、 $N$ -メチル- $N$ -エチルアミノ基、 $N$ -エチル- $N$ - $n$ -プロピルアミノ基、 $N$ -メチル- $N$ - $n$ -ブチルアミノ基、 $N$ -メチル- $N$ - $n$ -ヘキシルアミノ基、ジアリール

40

50

アミノ基、等が挙げられる。

【0025】

なお、アミノ基が水素結合を形成し得る場合、濃度消光を生じ、発光効率が低下する傾向がある。そのため、前記アミノ基は、2個の置換基を有するものが好ましく、中でもジアリールアミノ基が特に好ましい。

【0026】

前記不飽和複素環基の不飽和複素環としては、5～10員環、好ましくは5～6員環のものが挙げられる。具体的には、ピリジン環、ピロール環、オキサゾール環、イソキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、フラザン環、イミダゾール環、ピラゾール環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ジハイドロオキサゾール環、チオフエン環、フラン環、ピラゾール環、等が挙げられる。

10

【0027】

< R<sup>3</sup> >

式(I)において、R<sup>3</sup>は、水素原子、炭素数1～6の低級アルキル基、アリール基または不飽和複素環基を表す。低級アルキル基、アリール基および不飽和複素環基としては、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>の例として前記したものと同一の各置換基が挙げられる。中でも、R<sup>3</sup>としては、炭素数1～4の低級アルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。

【0028】

< R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup> >

式(I)において、R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、炭素数1～6の低級アルキル基、炭素数1～6の低級アルコキシ基、炭素数1～6の低級アルキルチオ基、炭素数1～6のハロゲン置換低級アルキル基、炭素数1～6のハロゲン置換低級アルコキシ基、アミノ基、アリール基または不飽和複素環基を表す。R<sup>4</sup>が複数存在する場合(pが2以上の場合)、複数のR<sup>4</sup>は、互いに結合して環構造を形成してもよい。

20

【0029】

低級アルキル基、アミノ基、アリール基または不飽和複素環基としては、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>の例として前記したものと同一の各置換基が挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素原子および塩素原子が挙げられる。

【0030】

低級アルコキシ基としては、直鎖状または分岐を有する炭素数1～6、好ましくは炭素数1～4の、直鎖状または分岐を有する低級アルコキシ基が挙げられる。具体的には、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、tert-ブトキシ基、sec-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、イソヘキシルオキシ基、3-メチルペンチルオキシ基、等が挙げられる。

30

【0031】

低級アルキルチオ基としては、炭素数1～6、好ましくは炭素数1～4の直鎖状または分岐を有するアルキルチオ基が挙げられる。具体的には、メチルチオ基、エチルチオ基、n-プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n-ブチルチオ基、tert-ブチルチオ基、n-ペンチルチオ基、n-ヘキシルチオ基等が挙げられる。

40

【0032】

ハロゲン置換アルキル基としては、1～7個、より好ましくは1～3個のハロゲン原子で置換された前記例示のアルキル基を挙げることができる。具体的には、フルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、プロモメチル基、ジプロモメチル基、ジクロロフルオロメチル基、2,2-ジフルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、ペンタフルオロエチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基、ヘプタフルオロプロピル基、2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル基、ヘプタフルオロイソプロピル基、3-クロロプロピル基、2-クロロプロピル基、3-プロモ

50

プロピル基、4,4,4-トリフルオロブチル基、4,4,4,3,3-ペンタフルオロブチル基、4-クロロブチル基、4-ブロモブチル基、2-クロロブチル基、5,5,5-トリフルオロペンチル基、5-クロロペンチル基、6,6,6-トリフルオロヘキシル基、6-クロロヘキシル基、ペルフルオロヘキシル基、等が挙げられる。

【0033】

ハロゲン置換アルコキシ基としては、1~7個、より好ましくは1~3個のハロゲン原子で置換された前記例示のアルコキシ基を挙げることができる。具体的には、前記例示のハロゲン置換アルキル基に酸素原子(-O-)が付加されたものが挙げられる。

【0034】

複数の $R^4$ が互いに結合して形成される環構造は、ベンゼン環に縮合した芳香族環であってもよく、脂肪族環であってもよい。また、複数の $R^4$ が互いに結合して形成される環構造は、複素環でもよい。

10

【0035】

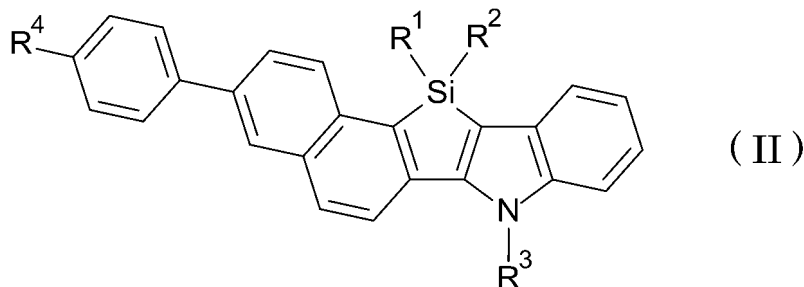
[好ましい化合物の例]

上記式(I)において、qは0であることが好ましい。すなわち、インドール環の炭素原子は、置換基を有していないことが好ましい。また、pは0または1であることが好ましい。p=1の場合、 $R^4$ はベンゼン環のパラ位に結合していることが好ましい。これらを総合すると、本発明の発光材料は、下記式(II)で表される化合物を含有することが好ましい。

【0036】

【化5】

20



30

【0037】

また、置換基 $R^4$ としては、前述のごとく、アルコキシ基、アルキル基、ハロゲン置換アルコキシ基、ハロゲン置換アルキル基、アミノ基、アルキルチオ基、アリール基、および不飽和複素環基が好ましい。中でも、高い青色発光効率を有する材料を得る観点から、 $R^4$ としてはアルコキシ基が好ましく、メトキシ基が特に好ましい。

【0038】

$R^1$ および $R^2$ は、いずれも低級アルキル基であることが好ましい。また、 $R^1$ および $R^2$ は同一の置換基であることが好ましい。特に、 $R^1$ および $R^2$ が、いずれもイソプロピル基であることが好ましい。

40

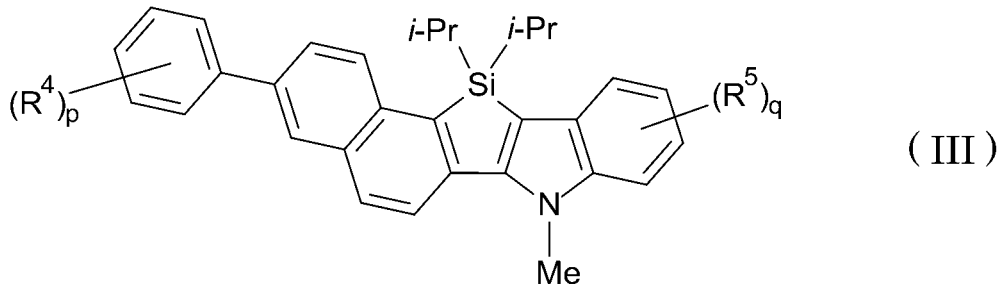
$R^3$ は低級アルキル基であることが好ましく、中でもメチル基が好ましい。

【0039】

以上を総合すると、本発明の発光材料は、下記式(III)で表される化合物を含有することが好ましく、中でも、下記式(IV)で表される化合物を含有することが好ましい。

【0040】

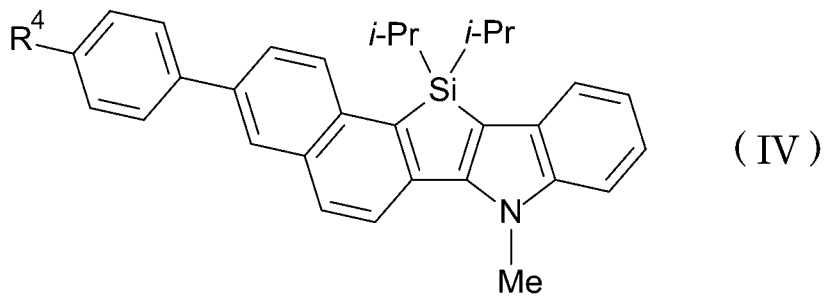
【化6】



10

【0041】

【化7】



20

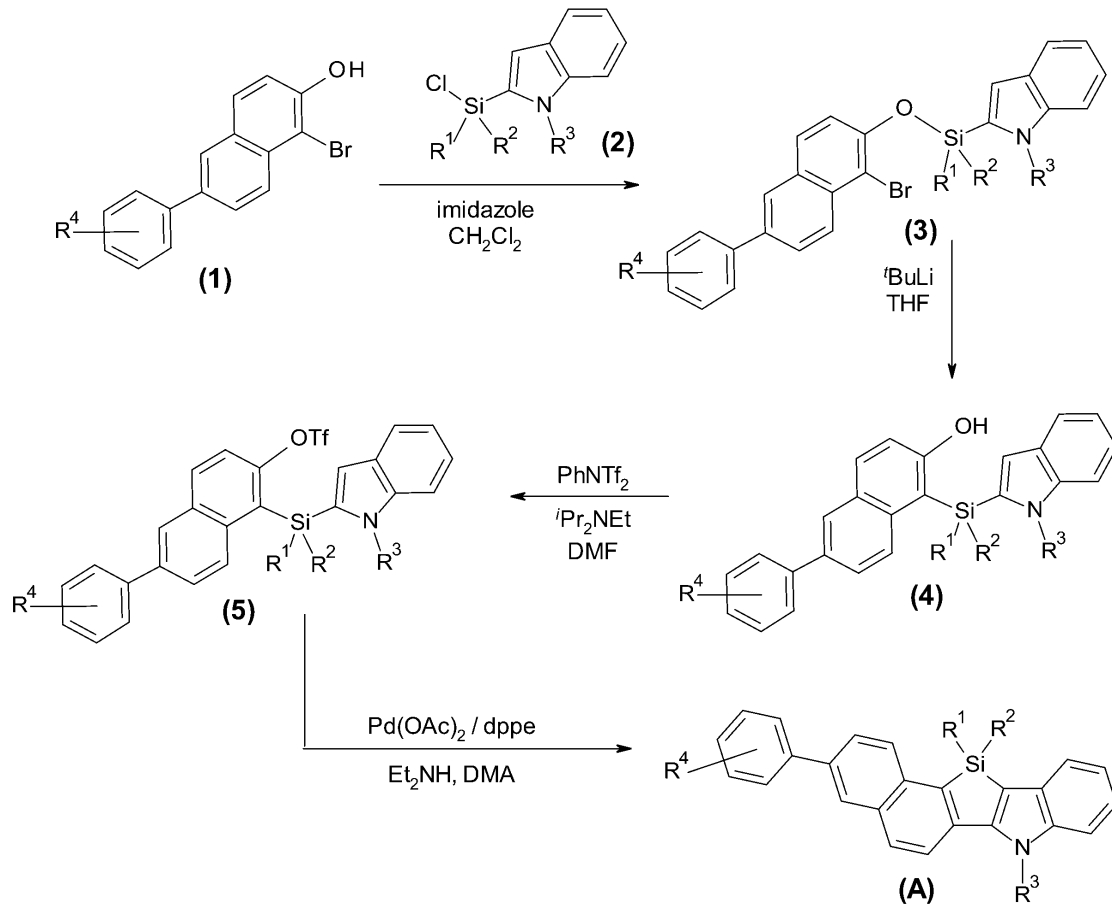
【0042】

【合成方法】

上記化合物の合成方法は特に限定されず、各種公知の反応を組み合わせ、目的の化合物を得ることができ、例えば、6-アリール-1-ブロモ-2-ナフトール(1)を出発原料として、下記scheme 1に示されるように、4段階で化合物(A)を合成することができる。

【0043】

## 【化 8】



10

20

scheme 1

## 【0044】

[発光材料としての使用例]

上記のケイ素架橋 2-(2-ナフチル)インドール誘導体は、単独で発光材料として用いることができる。また、上記ケイ素架橋 2-(2-ナフチル)インドール誘導体は、発光ドーパント材料、あるいは発光ホスト材料として、他の発光ドーパント材料や、発光ホスト材料と共に発光材料として用いることもできる。特に、上記ケイ素架橋 2-(2-ナフチル)インドール誘導体を発光ドーパント材料として用いることで、発光効率に優れ、かつより発光寿命の長い有機 EL 発光層を形成することができる。

30

## 【0045】

ケイ素架橋 2-(2-ナフチル)インドール誘導体が、発光ドーパント材料として用いられる場合、ホスト材料は特に限定されないが、アントラセン誘導体が好適に用いられる。アントラセン誘導体としては、発光材料として使用可能なものであれば特に限定されず、各種公知の化合物が用いられる。アントラセン誘導体の例としては、9,10-ジ(ナフト-2-イル)アントラセン(略称:ADN)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(ナフト-2-イル)アントラセン(略称:TBADN)、2-メチル-9,10-ビス(ナフタレン-2-イル)アントラセン(略称:MADN)、2,2'-ジ(9,10-ジフェニルアントラセン)(略称:TPBA)、4,4'-ジ(10-(ナフタレン-1-イル)アントラセン-9-イル)ピフェニル(略称:BUBH-3)、等が挙げられる。

40

## 【0046】

ドーパント材料として、ケイ素架橋 2-(2-ナフチル)インドール誘導体が用いられ、ホスト材料としてアントラセン誘導体を用いられる場合、アントラセン誘導体(ホスト化合物)に対するケイ素架橋 2-(2-ナフチル)インドール誘導体の添加割合は特に限

50

定されない。ケイ素架橋 2 - ( 2 - ナフチル ) インドール誘導体の含有量は、好ましくは、アントラセン誘導体 1 0 0 重量部に対して、1 ~ 5 0 重量部、より好ましくは 2 ~ 3 0 重量部、さらに好ましくは 2 . 5 ~ 2 5 重量部、特に好ましくは 3 ~ 2 0 重量部である。

#### 【 0 0 4 7 】

ケイ素架橋 2 - ( 2 - ナフチル ) インドール誘導体を、基板等の支持体上に成膜することで、有機発光層が形成され得る。ケイ素架橋 2 - ( 2 - ナフチル ) インドール誘導体がドーパントとして用いられる場合は、アントラセン誘導体等のホスト材料と共蒸着することにより、有機発光層が形成され得る。

#### 【 0 0 4 8 】

[有機 E L 素子]

上記の発光材料は、有機 E L 素子の発光層の材料として好適である。

図 1 は、有機 E L 装置の層構成の一例である。図 1 に示される有機 E L 装置は、透明基板 3 側から光が取り出される、「ボトムエミッション型」と称される構成である。有機 E L 装置 1 は、透明基板 3 上に、有機 E L 素子 2 を有し、有機 E L 素子は、封止部 7 によって封止されている。有機 E L 素子 2 は、透明電極層 ( 陽極 ) 4 および裏面電極層 ( 陰極 ) 6 からなる一対の電極間に、少なくとも 1 つの発光層を有する機能層 5 を備える。

#### 【 0 0 4 9 】

機能層 5 は、複数の有機化合物薄膜が積層されたものである。図 2 は、機能層 5 の層構成の一例である。図 2 に示される有機 E L 素子 2 において、機能層 5 は、正孔注入層 1 0、正孔輸送層 1 1、発光層 1 2、電子輸送層 1 5、および電子注入層 1 6 を有する。すなわち、有機 E L 素子 2 において、発光層 1 2 は、透明電極層 4 と裏面電極層 6 との間に位置している。

#### 【 0 0 5 0 】

(透明基板)

ボトムエミッション型の有機 E L 装置において、透明基板 3 は、透光性を有する材料からなるものであれば特に限定はない。図 1 に示すボトムエミッション方式の実施形態では、透明基板 3 側から光が取り出されるため、透明基板 3 は可視光域における透過率が 8 0 % 以上であることが好ましく、9 0 % 以上であることがより好ましく、9 5 % 以上であることがさらに好ましい。透明基板 3 としては、ガラス基板、フレキシブルな透明フィルム基板等を使用してもよい。なお、有機 E L 装置がトップエミッション方式を採用する場合、基板は不透明なものであってもよい。

#### 【 0 0 5 1 】

(透明電極)

透明基板 3 上には、透明電極層 ( 陽極 ) 4 が積層される。透明電極層 4 を構成する材料は特に限定されず、公知のものが使用できる。例えば、インジウム・スズ酸化物 ( I T O )、インジウム・亜鉛酸化物 ( I Z O )、酸化錫 ( S n O <sub>2</sub> )、酸化亜鉛 ( Z n O ) 等の材料からなるものが挙げられる。中でも、発光層 1 2 からの光の取出し効率や、電極のパターニングの容易性の観点からは、I T O あるいは I Z O が好ましく用いられる。

#### 【 0 0 5 2 】

透明電極層 4 には、必要に応じて、アルミニウム、ガリウム、ケイ素、ホウ素、ニオブ等の 1 種以上のドーパントがドーピングされていてもよい。透明電極層 4 の透過率は、可視光域における透過率が 7 0 % 以上であることが好ましく、8 0 % 以上であることがより好ましく、9 0 % 以上であることがさらに好ましい。透明電極層 4 は、例えば、スパッタ法や C V D 法等のドライプロセスによって透明基板 3 上に形成される。透明電極層 4 の膜厚は、光の透過性や電気伝導度を考慮して適宜選択すればよいが、例えば 8 0 ~ 3 0 0 n m であり、好ましくは 1 0 0 ~ 1 5 0 n m、より好ましくは 1 3 0 ~ 1 5 0 n m である。

#### 【 0 0 5 3 】

(裏面電極層)

透明電極層 4 上には、機能層 5 が形成され、その上に裏面電極層 ( 陰極 ) 6 が形成される。裏面電極層に用いられる材料としては、好ましくは仕事関数の小さい金属、または、

10

20

30

40

50

その合金や金属酸化物等が挙げられる。仕事関数の小さい金属としては、アルカリ金属ではLi等、アルカリ土類金属ではMg、Ca等が例示される。また、希土類金属等からなる金属単体、あるいは、これらの金属とAl、In、Ag等の合金等が用いられることもある。さらに、特開2001-102175号公報等に記載されているように、陰極に接する有機層として、アルカリ土類金属イオン、アルカリ金属イオンからなる群から選択される少なくとも1種を含む有機金属錯体化合物を用いることもできる。この場合、陰極として、当該錯体化合物中の金属イオンを真空中で金属に還元し得る金属、例えばAl、Zr、Ti、Si等もしくはこれらの金属を含有する合金を用いることが好ましい。

#### 【0054】

(機能層)

次に機能層5について説明する。機能層5は、少なくとも1層の発光層12を有する。機能層を構成する各層は、一般に、有機化合物、高分子化合物、遷移金属錯体等を含むアモルファス膜で構成される。機能層5は、一般に複数の層からなる積層構造を有している。図2では、機能層5は、正孔注入層10、正孔輸送層11、発光層12、電子輸送層15、および電子注入層16を有する。機能層5は、発光層12を有していればよく、正孔注入層10、正孔輸送層11、電子輸送層15、および電子注入層16は必要に応じて設けられる。

#### 【0055】

(発光層)

本発明の有機EL素子において、発光層12は、上記のケイ素架橋2-(2-ナフチル)インドール誘導体を含有する。また、前述のように、発光層12の発光材料は、ホスト材料としてアントラセン誘導体を含有することが好ましい。この場合、発光層12は、ホスト材料としてのアントラセン誘導体100重量部に対して、ドーパント材料としてのケイ素架橋2-(2-ナフチル)インドール誘導体を1~50重量部含有することが好ましい。ケイ素架橋2-(2-ナフチル)インドール誘導体の含有量は、より好ましくは2~30重量部、さらに好ましくは2.5~25重量部、特に好ましくは3~20重量部である。発光層を構成する材料として、上記発光材料を用いることで、発光効率に優れた青色発光層が得られる。

#### 【0056】

発光層の形成方法は特に限定されず、真空蒸着法や転写法等のドライプロセスの他、コーティング法や印刷法等のウェットプロセスを採用することができる。特に、本発明の発光材料は良好な製膜性を示すことから、真空蒸着法が好適に用いられる。真空蒸着法においては、ホスト材料とドーパント材料を共蒸着し、その際の蒸着速度を制御することにより、所望の蒸着比(ドーパ濃度)を実現することができる。

#### 【0057】

(正孔注入層および正孔輸送層)

図2に示すように、機能層5は、発光層12と陽極4との間に、正孔注入層10や、正孔輸送層11を有していてもよい。また、図示されていないが、正孔輸送層11と発光層12との間に、さらに電子阻止層等を有していてもよい。

#### 【0058】

正孔注入層10を構成する材料としては、酸化モリブデン、酸化バナジウム、酸化ルテニウム、酸化マンガン等の金属酸化物や、2,3,5,6-テトラフルオロ-7,7,8,8-テトラシアノ-キノジメタン(略称:F4-TCNQ)が挙げられる。さらに、三酸化モリブデンとN,N-ビス(ナフタレン-1-イル)-N,N'-ビス(フェニル)-ベンジジン(略称:NPB)との混合層を正孔注入層10として採用することができる。

#### 【0059】

(正孔輸送層)

正孔輸送層を構成する材料としては、アリールアミン系化合物、イミダゾール系化合物、オキサジアゾール系化合物、オキサゾール系化合物、トリアゾール系化合物、カルコン

10

20

30

40

50

系化合物、スチリルアントラセン系化合物、スチルベン系化合物、テトラアリアルエテン系化合物、トリアリアルアミン系化合物、トリアリアルエテン系化合物、トリアリアルメタン系化合物、フタロシアニン系化合物、フルオレノン系化合物、ヒドラジン系化合物、カルバゾール系化合物、N-ビニルカルバゾール系化合物、ピラゾリン系化合物、ピラゾロン系化合物、フェニルアントラセン系化合物、フェニレンジアミン系化合物、ポリアリアルアルカン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリフェニレンビニレン系化合物等が挙げられる。

#### 【0060】

特に、アリアルアミン化合物を含有する正孔輸送層は、アリアルアミン化合物がラジカルカチオン化し易いため、正孔輸送層から発光層への正孔輸送効率を効果的に上昇させることができる。正孔輸送層材料を構成し得るアリアルアミン化合物の中でも、トリアリアルアミン誘導体が好ましく、特に4,4'-ビス[N-(2-ナフチル)-N-フェニル-アミノ]ピフェニル(「NPD」、または「NPB」と称される場合がある)が特に好ましい。

10

#### 【0061】

(電子輸送層および電子注入層)

図2に示すように、機能層5は、発光層12と陰極6との間に、電子注入層16や電子輸送層15を有していてもよい。また、図示されていないが、電子輸送層15と発光層12との間に、さらに正孔阻止層等を有していてもよい。正孔阻止層を構成する材料としては、例えば、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(通称:パトクプロイン、BCP)等が挙げられる。

20

#### 【0062】

電子輸送層15を構成する材料としては、トリス(8-ヒドロキシ-キノリナト)アルミニウム(略称:Alq<sub>3</sub>)、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン、1,3-ビス[2-(2,2'-ピピリジン-6-イル)-1,3,4-オキサジアゾ-5-イル]ベンゼン(Bpy-OXD)、4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(Bphen)、2,2',2''-(1,3,5-ベンジントリイル)-トリス(1-フェニル-1-H-ベンゾイミダゾール)(TPBi)、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert-ブチフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)、ビス(2-メチル1-8-キノリノラト)-4-(フェニルフェノラト)アルミニウム(BAlq)、3-(4-ピフェニル)-4-フェニル-5-tert-ブチルフェニル-1,2,4-トリアゾール(TAZ)、等が挙げられる。

30

#### 【0063】

電子注入層16を構成する材料としては、Li等のアルカリ金属; Mg、Ca等のアルカリ土類金属; 1種以上の前記金属を含む合金; 前記金属の酸化物、ハロゲン化物、および炭酸化物; ならびにこれらの混合物が挙げられる。具体的には、8-ヒドロキシキノリノラト(リチウム)(Li<sub>q</sub>)、フッ化リチウム(LiF)、等が挙げられる。

#### 【0064】

図2に示す有機EL素子2は、透明基板3上に形成された透明電極層4上に、真空蒸着法等の手法により、正孔注入層10、正孔輸送層11、発光層12、電子輸送層15、電子注入層16、および裏面電極層6を順次積層することにより製造することができる。このようにして製造された有機EL素子2は、封止部7によって封止され、有機EL装置1となる。

40

#### 【0065】

なお、図2では、機能層5が5つの層からなる構成について説明したが、本発明は当該実施形態に限定されるものではない。例えば、正孔注入層10、正孔輸送層11、電子輸送層15、電子注入層16の一部または全部が省略された構成でもよい。また、前述のごとく、発光層12の前後に正孔阻止層や電子阻止層が設けられていてもよい。

#### 【0066】

機能層5を構成する各層の成膜方法については特に制限はなく、真空蒸着法やコーティ

50

ング法、印刷法等の適宜の方法によって形成することができる。

【実施例】

【0067】

以下に、化合物の合成例および有機EL素子の作製例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれらの例に限定されるものではない。

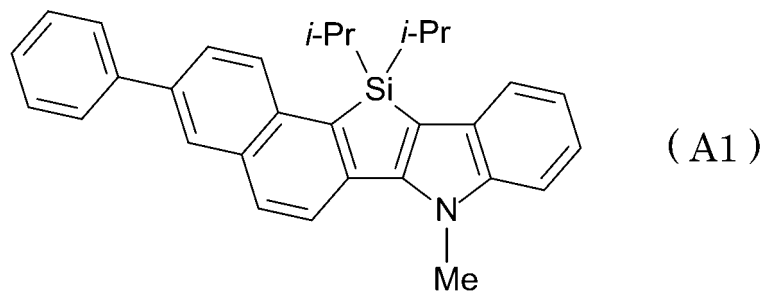
【0068】

[実施例1] 化合物A1の合成

本実施例では、6-フェニル-1-ブロモ-2-ナフトール(1)を出発原料として、上記scheme 1により、4段階で化合物A1を合成した。なお、scheme 1は、出発原料が異なること以外は、Efficient blue electroluminescence of silylene-bridged 2-(2-naphthyl)indole (M. Shimizu 他 J. Mater. Chem. 2012年 第22巻 4337-4342頁)に記載の合成スキームと同様である。

【0069】

【化9】



【0070】

得られた化合物A1の融点は250、熱分解温度は306であった(熱重量分析(TGA)による質量減少が5%となる温度を、熱分解温度とした)。

化合物A1について、<sup>1</sup>H-NMRを測定したところ、次の結果が得られた。

<sup>1</sup>H-NMR(400MHz, CDCl<sub>3</sub>): (ppm) = 0.92(d, J = 7.6 Hz, 6H), 1.39(d, J = 7.6 Hz, 6H), 1.63(heptet, J = 7.6 Hz, 6H), 7.17(ddd, J = 7.4, 1.2 Hz, 1H), 7.24(ddd, J = 8.0, 1.2 Hz, 1H), 7.36~7.42(m, 2H), 7.50(dd, J = 7.6 Hz, 2H), 7.65(d, J = 8.0 Hz, 1H), 7.73~7.79(m, 3H), 7.88(d, J = 8.8 Hz, 1H), 7.95(d, J = 8.4 Hz, 1H), 8.03~8.08(m, 2H)。

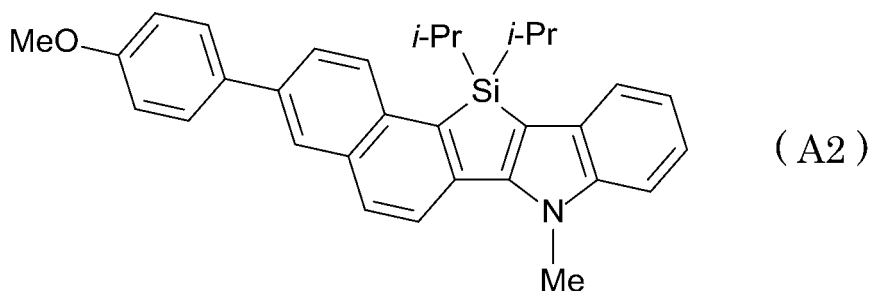
【0071】

[実施例2] 化合物A2の合成

出発原料として、6-(4-メトキシフェニル)-1-ブロモ-2-ナフトールを用いた以外は、上記実施例1と同様にして、化合物A2を合成した。

【0072】

【化10】



10

20

30

40

50

## 【0073】

得られた化合物A2の融点は256、熱分解温度は321であった。

化合物A2について、<sup>1</sup>H-NMRを測定したところ、次の結果が得られた。

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, 300MHz): (ppm) = 0.91 (d, 6H, J = 7.2 Hz), 1.28 (d, 6H, J = 7.2 Hz), 1.55 (heptet, 2H, J = 7.2, 7.2 Hz), 3.89 (s, 3H), 4.23 (s, 3H), 7.40 (d, 2H, J = 9.0 Hz), 7.18 (d, 2H, J = 8.1 Hz), 7.40 (d, 1H, J = 8.7 Hz), 7.64 (d, 1H, J = 7.8 Hz), 7.69 (d, 2H, J = 9.0 Hz), 7.73 (d, 1H, J = 6.9 Hz), 7.85 (d, 1H, J = 8.7 Hz), 7.93 (d, 1H, J = 9.0 Hz), 7.99 (s, 1H), 8.05 (d, 1H, J = 8.4 Hz)。

10

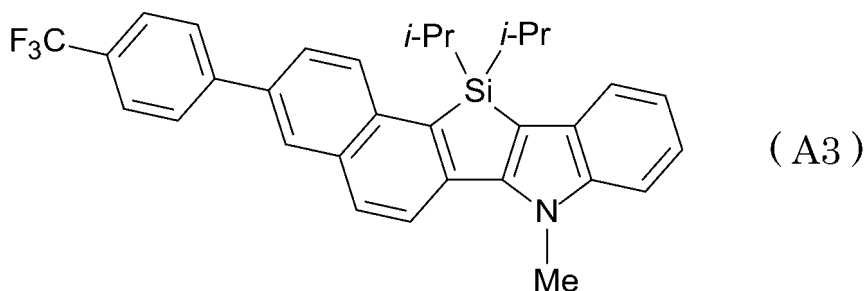
## 【0074】

[実施例3] 化合物A3の合成

出発原料として、6-(4-トリフルオロメチルフェニル)-1-ブロモ-2-ナフトールを用いた以外は、上記実施例1と同様にして、化合物A3を合成した。

## 【0075】

## 【化11】



20

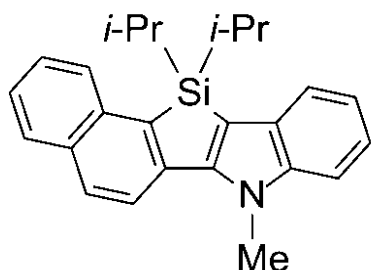
## 【0076】

[比較例1]

出発原料として、1-ブロモ-2-ナフトールを用いた以外は、上記実施例1と同様にして、下記の化合物(熱分解温度: 244)を得た。

30

## 【化12】



40

## 【0077】

[化合物の発光特性の評価]

上記実施例および比較例で得られたそれぞれの化合物の微結晶を試料として、絶対PL量子収率測定装置(浜松ホトニクス社製 型番: C9920-02)を用いて、室温(25)での微結晶の発光量子収率および発光極大波長を測定した。また、各化合物をPMMMA中に分散したフィルムでの発光量子収率および発光極大波長を測定した。結果を表1に示す。

## 【0078】

【表 1】

	微結晶		PMMAフィルム	
	発光極大波長 (nm)	量子収率	発光極大波長 (nm)	量子収率
実施例1	504	0.61	468	0.70
実施例2	489	0.85	469	0.80
実施例3	477	0.50	478	0.67
比較例1	476	0.70	459	0.69

10

## 【0079】

[実施例4] 化合物A1を用いた有機EL素子の作製

パターンニングされたITO電極(膜厚150nm)を有するガラス基板上に、以下の手順で、2mm×2mmの発光領域を有するボトムエミッション型評価素子を作製した。

## 【0080】

ITO電極(陽極)上に、三酸化モリブデン(MoO<sub>3</sub>)を蒸着し、正孔注入層(膜厚0.8nm)を形成した。正孔注入層の上に、N,N'-ビス(ナフタレン-1-イル)-N,N'-ビス(フェニル)-ベンジジン(NPB)を真空蒸着し、正孔輸送層(膜厚60nm)を形成した。

20

## 【0081】

次に、正孔輸送層の上に、上記実施例1で得られた化合物A1を真空蒸着して、発光層(膜厚20nm)を形成した。

## 【0082】

発光層の上に、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(BCP)を真空蒸着し、正孔阻止層(膜厚10nm)を形成した。次に、正孔阻止層上に、トリス(8-ヒドロキシ-キノリナト)アルミニウム(Alq<sub>3</sub>)を真空蒸着し、電子輸送層(膜厚30nm)を形成した。電子輸送層の上に、LiFを真空蒸着し、電子注入層(膜厚1nm)を形成した。電子注入層の上に、陰極として、アルミニウムを100nmの膜厚で成膜した。

30

## 【0083】

陰極を形成後、不活性下のグローボックスに、蒸着成膜後の有機EL素子を移動し、ガラスキャップに2液性硬化樹脂を塗布し、基板とキャップを貼り合わせた。樹脂の硬化完了後、貼り合わせた基板を大気圧下に取り出し、電流を通電して、電流-電圧-輝度(I-V-L)特性および発光強度スペクトルを測定した。

## 【0084】

[実施例5] 化合物A1を用いた有機EL素子の作製

発光層の材料として、化合物A1に代えて、上記実施例2で得られた化合物A2を真空蒸着して、発光層(膜厚20nm)を形成した。それ以外は、上記実施例4と同様にして、有機EL素子を作製し、大気圧下で、I-V-L特性および発光強度スペクトルを測定した。

40

## 【0085】

[比較例2]

パターンニングされたITO電極(膜厚150nm)を有するガラス基板上に、以下の手順で、2mm×2mmの発光領域を有するボトムエミッション型評価素子を作製した。

## 【0086】

ITO電極(陽極)上に、MoO<sub>3</sub>とNPBとを共蒸着し、正孔注入層(膜厚60nm)を形成した。正孔注入層の上に、NPBを真空蒸着し、正孔輸送層(膜厚20nm)を

50

形成した。

【 0 0 8 7 】

次に、正孔輸送層の上に、上記比較例 1 で得られた化合物を真空蒸着して、発光層（膜厚 5 nm）を形成した。

【 0 0 8 8 】

発光層の上に、電子輸送材料（メルク社製 E T M - 0 3 3）を真空蒸着し、電子輸送層（60 nm）を形成した。次に、電子輸送層の上に、LiFを真空蒸着し、電子注入層（膜厚 1 nm）を形成した。電子注入層上に、陰極として、アルミニウムを 100 nm の膜厚で成膜した。その後は、上記実施例 4 と同様に、基板とキャップの貼り合わせおよび硬化を行った後、大気圧下で I - V - L 特性および発光強度スペクトルを測定した。

10

【 0 0 8 9 】

[ 実施例 6 ] 化合物 A 1 をドーパント材料として用いた有機 E L 素子の作製

化合物 A 1 と 2 - メチル - 9 , 1 0 - ビス ( ナフタレン - 2 - イル ) アントラセン ( M A D N ) とを、10 : 90 の重量比で共蒸着して、発光層（膜厚 20 nm）を形成した。それ以外は、上記実施例 4 と同様にして有機 E L 素子を作製し、大気圧下で I - V - L 特性および発光強度スペクトルを測定した。

【 0 0 9 0 】

[ 実施例 7 ] 化合物 A 2 をドーパント材料として用いた有機 E L 素子の作製

化合物 A 2 と M A D N とを、10 : 90 の重量比で共蒸着して、発光層（膜厚 20 nm）を形成した。それ以外は、上記実施例 4 と同様にして有機 E L 素子を作製し、大気圧下

20

【 0 0 9 1 】

[ 比較例 3 ]

上記比較例 1 で得られた化合物と M A D N とを、7 : 93 の重量比で共蒸着して、発光層（膜厚 20 nm）を形成した。その上に、電子輸送材料（メルク社製 E T M - 0 3 3）を真空蒸着し、電子輸送層（40 nm）を形成した。それ以外は、上記比較例 2 と同様にして有機 E L 素子を作製し、大気圧下で I - V - L 特性および発光強度スペクトルを測定した。

【 0 0 9 2 】

[ 有機 E L 素子の評価結果 ]

30

上記実施例 4 ~ 7 および比較例 2 , 3 で作成した有機 E L 素子の、発光極大波長、最大電流発光効率、および最大電力発光効率を、表 2 に示す。

【 0 0 9 3 】

【 表 2 】

	発光極大波長 (nm)	最大電流 発光効率 (cd/A)	最大電力 発光効率 (lm/W)
実施例4	484	6.9	6.3
実施例5	482	7.0	6.5
比較例2	471	3.9	4.1
実施例6	477	6.5	5.7
実施例7	478	6.7	5.8
比較例3	458	4.4	4.2

40

【 0 0 9 4 】

以上の結果から、実施例 1 の化合物 A 1 を発光材料として用いた有機 E L 素子および実

50

施例 2 の化合物 A 2 を発光材料として用いた有機 E L 素子は、化合物 A 1 および化合物 A 2 が単独で用いられた場合（実施例 4 および実施例 5）、ならびに化合物 A 1 および A 2 がドーパント材料としてアントラセン誘導体と共に用いられた場合（実施例 6 および実施例 7）のいずれにおいても、比較例よりも高発光効率であることが示された。

【 0 0 9 5 】

なお、上記実施例 4、5 と比較例 2 では、発光層の膜厚等の素子構成の一部が異なっている。しかしながら、化合物 A 1 からなる膜および化合物 A 2 からなる膜の P L 蛍光量子効率、いずれも膜厚 5 nm ~ 20 nm の範囲で略一定であるため、実施例 4、5 と比較例 2 の素子の発光効率の差は、発光層の膜厚の相違によるものではなく、材料の特性の相違に起因するものであるといえる。また、実施例 6、7 と比較例 3 では、発光層中のドーパント材料の共蒸着比が異なっているが、化合物 A 1 および化合物 A 2 と M A D N との共蒸着比（重量比）が 1 : 99 ~ 10 : 90 の範囲では、膜の蛍光量子収率が略一定であることから、実施例 6、7 と比較例 3 の発光特性の差は、共蒸着比の相違によるものではなく、発光材料の特性の相違に起因するものであるといえる。

10

【 0 0 9 6 】

[ 発光寿命の評価 ]

実施例 4 ~ 7 で作成した有機 E L 素子を、室温下 10 mA / cm<sup>2</sup> の一定駆動電流密度で連続点灯し、輝度が初期値の半分となるまでの時間（発光寿命）を測定した。実施例 4 の素子の発光時間は 5 . 2 時間、実施例 5 の素子の発光時間は 4 . 8 時間であった。これに対して、実施例 6 の素子の発光寿命 280 時間、実施例 7 の素子の発光寿命は 320 時間であり、化合物 A 1 および化合物 A 2 を発光層のドーパント材料として用いた場合に、有機 E L 素子の発光寿命が大幅に改善されることが確認された。これらの結果から、アントラセン誘導体ホストのドーパント材料として、ナフタレン環上にアリール基が導入されたケイ素架橋インドール誘導体を用いられることで、高発光効率かつ長寿命の青色発光材料が得られることが分かる。

20

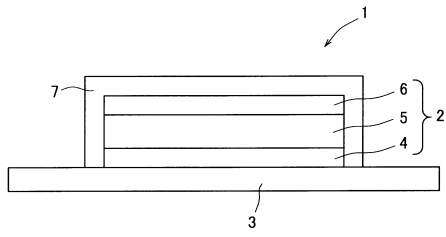
【 符号の説明 】

【 0 0 9 7 】

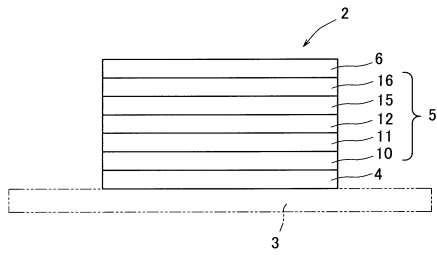
- 2 有機 E L 素子
- 4 透明電極層（陽極）
- 5 機能層
- 6 裏面電極層（陰極）
- 1 2 発光層

30

【図1】



【図2】



## フロントページの続き

- (72)発明者 稲本 裕介  
日本国京都府京都市左京区松ヶ崎橋上町1番地 国立大学法人京都工芸繊維大学内
- (72)発明者 井上 健二  
日本国大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号 株式会社カネカ内
- (72)発明者 大塚 岳夫  
日本国大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号 株式会社カネカ内
- (72)発明者 日高 昌也  
日本国大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号 株式会社カネカ内

審査官 中村 博之

- (56)参考文献 国際公開第2010/047335(WO, A1)  
国際公開第2011/132866(WO, A1)  
特開2012-087187(JP, A)  
Masaki Shimizu 他, Efficient blue electroluminescence of silylene-bridged 2-(2-naphthyl)indole, Journal of Materials Chemistry, 2012年 3月14日, Volume 22, Number 10, Pages 4337-4342  
Kenji Mochida 他, Palladium-Catalyzed Intramolecular Coupling of 2-[(2-Pyrrolyl)silyl]aryl Triflates through 1,2-Silic, Journal of the American Chemical Society, 2009年, Volume 131, Number 24, Pages 8350-8351  
Masaki Shimizu 他, Highly Efficient Blue Fluorescence from 3,2'-Silylene-Bridged 2-Phenylindoles in the Solid State, THE JOURNAL OF PHYSICAL CHEMISTRY, 2011年, Volume 115, Number 22, Pages 11265-11274

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 51/50

C09K 11/06

CAplus/REGISTRY(STN)

专利名称(译)	发光材料和有机EL元件		
公开(公告)号	<a href="#">JP6313742B2</a>	公开(公告)日	2018-04-18
申请号	JP2015500331	申请日	2014-02-17
[标]申请(专利权)人(译)	钟渊化学工业株式会社		
申请(专利权)人(译)	科技的国立大学法人京都研究所 Kaneka公司		
当前申请(专利权)人(译)	科技的国立大学法人京都研究所 Kaneka公司		
[标]发明人	清水正毅 稻本裕介 井上健二 大塚岳夫 日高昌也		
发明人	清水 正毅 稻本 裕介 井上 健二 大塚 岳夫 日高 昌也		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06		
CPC分类号	C09K11/06 C09K2211/1096 H01L51/0072 H01L51/0094 H01L51/5012		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.660 C09K11/06.690		
代理人(译)	Shintaku正人 吉本勉		
审查员(译)	中村浩之		
优先权	2013029363 2013-02-18 JP		
其他公开文献	JPWO2014126241A1		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

本发明的发光材料含有由下式(1)表示的硅桥吡啉衍生物。在式(1)中，R1和R2各自独立地表示具有1至6个碳原子的低级烷基，芳基，氨基或不饱和杂环它代表了一群。R3表示氢原子，具有1至6个碳原子的低级烷基，芳基或不饱和杂环基。R4是与苯环键合的取代基，并且R5是与吡啉环键合的取代基。R4和R5各自独立地表示卤素原子，氰基，具有1至6个碳原子的低级烷基，具有1至6个碳原子的低级烷氧基，具有1至6个碳原子的低级烷硫基，具有1至6个碳原子的卤素取代的低级烷基，具有1至6个碳原子的卤素取代的低级烷氧基，氨基，芳基或不饱和杂环基。多个R4可以相互结合形成环结构。 &lt;img id="000018"he="45"wi="148"file="2014126241.tif"img-format="tif"img-content="drawing"/>

(5) Int. Cl.	F I	
<b>H O I L</b> 51/50 (2006. 01)	H O 5 B	33/14 B
<b>C O 9 K</b> 11/06 (2006. 01)	C O 9 K	11/06 6 6 0
	C O 9 K	11/06 6 9 0

請求項の数 9 (全 19 頁)

(21) 出願番号	特願2015-500331 (P2015-500331)	(73) 特許権者	504255685
(86) (22) 出願日	平成26年2月17日(2014. 2. 17)		国立大学法人京都工芸繊維大学
(86) 国際出願番号	PCT/JP2014/053642		京都府京都市左京区松ヶ崎横上町 1 番地
(87) 国際公開番号	W02014/126241	(73) 特許権者	000000941
(87) 国際公開日	平成26年8月21日(2014. 8. 21)		株式会社カネカ
審査請求日	平成28年1月26日(2017. 1. 26)		大阪府大阪市北区中之島二丁目3番 1 8 号
(31) 優先権主張番号	特願2013-29363 (P2013-29363)	(74) 代理人	100152571
(32) 優先日	平成25年2月18日(2013. 2. 18)		弁理士 新宅 将人
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(74) 代理人	100141852
			弁理士 吉本 力
		(72) 発明者	清水 正毅
			日本国京都府京都市左京区松ヶ崎横上町 1 番地 国立大学法人京都工芸繊維大学内

最終頁に続く