

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002 - 338553

(P2002 - 338553A)

(43)公開日 平成14年11月27日(2002.11.27)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マコード (参考)
C 0 7 D243/08	501	C 0 7 D243/08	501 3 K 0 0 7
403/14		403/14	4 C 0 6 3
455/04		455/04	4 C 0 6 4
C 0 9 K 11/06	650	C 0 9 K 11/06	650
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 12数) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願2001 - 143744(P2001 - 143744)

(22)出願日 平成13年5月14日(2001.5.14)

(71)出願人 000002901

ダイセル化学工業株式会社

大阪府堺市鉄砲町1番地

(72)発明者 松岡 賢

奈良県天理市遠田町392

(72)発明者 白井 和子

大阪府堺市出島海岸通り2丁1 - 17

(72)発明者 北口 透

神奈川県横浜市戸塚区平戸3丁目20番1 - 40
1

(74)代理人 100090686

弁理士 鎌田 充生

最終頁に続く

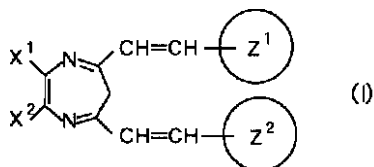
(54)【発明の名称】 窒素含有ヘテロ環化合物

(57)【要約】

【課題】 機能性材料として有用な窒素含有ヘテロ環化合物及びその製造方法、ならびにそれを用いた有機 E L 素子を提供する。

【解決手段】 窒素含有ヘテロ環化合物は、光照射又は電場の作用により発光又は変色可能であり、下記式(I)で表される。

【化 1】



介在させることにより有機 E L 素子を得ることができる。

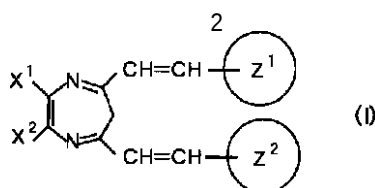
X¹及びX²は、シアノ基などの電子吸引性基を示し、環 Z¹及びZ²は、炭化水素環又は複素環(ヒドロキシル基、アルコキシ基、アミノ基、N - 置換アミノ基などの電子供与性基を有するベンゼン環、又はヘテロ原子として窒素原子を有する複素環とベンゼン環との縮合環など)を示す。前記化合物を含む有機層を一对の電極間に

1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記式(I)で表される窒素含有ヘテロ環化合物。

【化 1】



(式中、 X^1 及び X^2 は、同一又は異なって、電子吸引性を示し、環 Z^1 及び Z^2 は、同一又は異なって、炭化水素環又は複素環を示し、これらの環は置換基を有していてもよい。)

【請求項 2】 X^1 及び X^2 のうち、少なくとも一方がシアノ基である請求項 1 記載の窒素含有ヘテロ環化合物。

【請求項 3】 環 Z^1 及び Z^2 が、同一又は異なって、電子供与性基を有する芳香族性環、又はヘテロ原子として窒素原子を有する複素環と芳香族性炭化水素環との縮合環である請求項 1 記載の窒素含有ヘテロ環化合物。

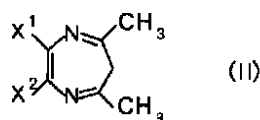
【請求項 4】 X^1 及び X^2 がシアノ基であり、環 Z^1 及び Z^2 が、同一又は異なって、ヒドロキシル基、アルコキシ基、アミノ基、N-置換アミノ基から選択された電子供与性基を有するベンゼン環、又はヘテロ原子として窒素原子を有する複素環とベンゼン環との縮合環である請求項 1 記載の窒素含有ヘテロ環化合物。

【請求項 5】 光照射又は電場の作用により発光可能である請求項 1 記載の窒素含有ヘテロ環化合物。

【請求項 6】 光照射により、蛍光を発する請求項 4 記載の窒素含有ヘテロ環化合物。

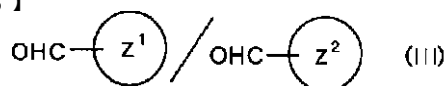
【請求項 7】 下記式(II)

【化 2】



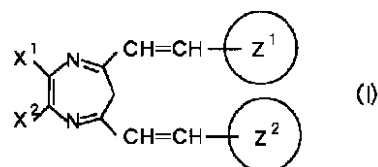
(式中、 X^1 及び X^2 は、同一又は異なって、電子吸引性を示す。)で表される化合物と、下記式(III)

【化 3】



(式中、環 Z^1 及び Z^2 は、同一又は異なって、炭化水素環又は複素環を示し、これらの環は置換基を有していてもよい)で表される化合物とを反応させて、下記式(I)で表される窒素含有ヘテロ環化合物を製造する方法。

【化 4】



(式中、 X^1 、 X^2 、 Z^1 、 Z^2 及びnは前記に同じ)

【請求項 8】 一对の電極間に有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が請求項 1 記載の式(I)で表される化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】 有機層が、式(I)で表される化合物で構成された発光層を有する請求項 8 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】 有機層が、(1)電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1種の機能を有する発光層で形成された単層構造、又は(2)電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1種の機能を有する層と発光層とで構成された積層構造を有する請求項 9 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 11】 有機層が、式(I)で表される化合物と、電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1種の機能を有する有機高分子とを含む請求項 8 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、機能性材料(特に有機エレクトロルミネッセンス素子用材料)として有用な新規な窒素含有ヘテロ環化合物及びその製造方法、ならびにそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、繊維などを染色又は着色する目的で多数の色素又は染料(例えば、アゾ系、アントラキノン系、フタロシアニン系色素など)が使用されている。このような色素は、染色又は着色するという用途以外に、色素分子が π 電子共役系結合を有するという特徴を活かして、いわゆる機能性色素として利用されている。このような機能性色素は、光吸収(色、多色性など)、光放射(蛍光など)、光導電性、熱や光による可逆変化(サーモクロミズム、フォトクロミズムなど)などの機能を有するため、機能性材料として種々の分野で利用されている。例えば、光照射により蛍光を発する機能性色素は、蛍光染料、蛍光顔料、蛍光探傷剤、蛍光白色染料などの蛍光材料として使用されている。また、フォトクロミズムを示す色素は、フォトクロミック写真、サングラスなどの調光材料などに使用されている。また、フォトクロミック化合物は、分子自身の構造変化により光着色や光退色を示すため、書き換え型の光記録材料などと

しても利用されている。このような記録材料は、解像度が高く、着色反応に現像処理を必要としない。

【0003】前記機能性色素のうち、特に、電場の作用により発光する色素は、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、単に有機EL素子という場合がある）の発光中心化合物として有用である。

【0004】従来、有機エレクトロルミネッセンス素子は、電子輸送機能、ホール輸送機能、そして発光中心機能を有する化合物によって構成されている。その構造としては、1つの層が上記機能を全て備えた単層タイプ、異なる層が各機能を備えている多層タイプなどが報告されている。その発光原理は、一対の電極から注入された電子とホールが発光層内で再結合して励起子を生成し、それが発光層を構成する発光中心化合物を励起することに基づくと考えられている。

【0005】このような有機EL素子では、発光層を構成する発光中心化合物を適宜選択することによって発光色を選択できる。例えば、特開平8-73443号公報には、フェニル基を有するピラジン基が二価の芳香族基に結合したピラジン二量体が開示されており、有機層に前記ピラジン誘導体を含む有機EL素子が開示されている。しかし、前記ピラジン二量体の発光色は比較的波長の短い青色発光である。従って、発光波長が制限され、用途が大きく制限される。

【0006】なお、第3回有機フォトクロミズム国際シンポジウム（平成11年11月14日～18日、主催：第3回有機フォトクロミズム国際シンポジウム組織委員会、共催：社団法人日本化学会）では、特定の蛍光アゼピン染料とその分光特性について報告されている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明の目的は、光照射又は電場の作用により発光可能であり、有機EL素子用材料などの機能性材料として有用な化合物、その製造方法及びそれを用いた有機EL素子を提供することにある。

【0008】本発明の他の目的は、発光波長を広い範囲でコントロールでき、長波長域の発光（例えば、黄色～赤色域の発光）も可能な化合物及びそれを用いた有機EL素子を提供することにある。

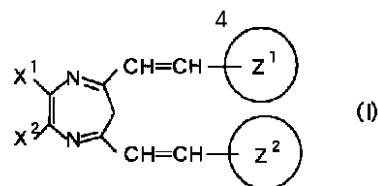
【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記課題を達成するため鋭意検討の結果、ヘテロ原子として窒素原子を含む特定のヘテロ環化合物が、光照射又は電場の作用により発光し、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料などの機能性材料として有用であることを見だし、本発明を完成した。

【0010】すなわち、本発明の窒素含有ヘテロ環化合物は、下記式(I)で表される。

【0011】

【化5】



*【0012】（式中、 X^1 及び X^2 は、同一又は異なって、電子吸引性基を示し、環 Z^1 及び Z^2 は、同一又は異なって、炭化水素環又は複素環を示し、これらの環は置換基を有していてもよい。）

X^1 及び X^2 のうち、少なくとも一方がシアノ基であってもよい。環 Z^1 及び Z^2 は、同一又は異なって、電子供与性基を有する芳香族性環、又はヘテロ原子として窒素原子を有する複素環と芳香族性炭化水素環との縮合環であってもよい。前記化合物は、光照射又は電場の作用により発光可能であり、蛍光を生成してもよい。

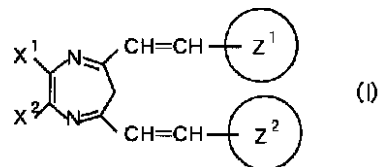
【0013】本発明には、前記式(I)で表される化合物を製造する方法も含まれる。さらに、本発明には、一対の電極間に、前記式(I)で表される化合物を含む有機層（例えば、発光層）を有する有機エレクトロルミネッセンス素子も含まれる。この有機EL素子の有機層は、（1）電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1種の機能を有する発光層で形成された単層構造、又は（2）電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1種の機能を有する層と発光層とで構成された積層構造であってもよい。また、有機層は、前記式(I)で表される化合物と、電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1種の機能を有する有機高分子とで構成してもよい。

30 【0014】

【発明の実施の形態】本発明の化合物（以下、窒素含有ヘテロ環化合物という場合がある）は、下記式(I)で表される。

【0015】

【化6】



【0016】（式中、 X^1 及び X^2 は、同一又は異なって、電子吸引性基を示し、環 Z^1 及び Z^2 は、同一又は異なって、炭化水素環又は複素環を示し、これらの環は置換基を有していてもよい。）

X^1 及び X^2 で表される電子吸引性基としては、シアノ基、カルボニル基、アシル基、カルボキシ基などが挙げられる。電子吸引性基としては、シアノ基が好ましい。 X^1 及び X^2 は、通常、少なくとも一方がシアノ基であり、双方がシアノ基であるのが好ましい。このような

X^1 及び X^2 を有する窒素含有ヘテロ環（例えば、ジシアノアゼピン環など）は、分子内電荷移動の発色系として機能するようである。

【0017】環 Z^1 及び Z^2 で表される炭化水素環は、非芳香族性炭化水素環（例えば、シクロヘキサン、シクロオクタンなどの C_{3-20} シクロアルカン類、シクロヘキセンなどの C_{3-20} シクロアルケン類）であってもよいが、通常、芳香族性炭化水素環である。芳香族性炭化水素環は、少なくともベンゼン環を含む場合が多く、ベンゼン環、縮合多環式芳香族性炭化水素環（ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ファナレン環など）などが挙げられる。好ましい炭化水素環としては、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナレン環などが挙げられる。

【0018】環 Z^1 及び Z^2 で表される複素環には、窒素原子、酸素原子及び硫黄原子から選択された少なくとも 1 種のヘテロ原子を含む複素環が含まれ、単環式複素環に限らず、複数の複素環が縮合した縮合複素環、複素環と炭化水素環（非芳香族性炭化水素環又は芳香族性炭化水素環）とが縮合（オルソ縮合、オルソアンドペリ縮合など）した縮合複素環であってもよい。複素環は非芳香族性であってもよいが、通常、芳香族性である。

【0019】ヘテロ原子として窒素原子を有する複素環としては、ピロール環、イミダゾール環、ピリジン環、ピラジン環などの 5 員又は 6 員単環式複素環、インドール環、インドリン環、キノリン環、イソキノリン環、キノキサリン環、キナゾリン環、カルバゾール環、フェナントリジン環、アクリジン環、フェナジン環などの 5 員又は 6 員複素環が炭化水素環（ベンゼン環など）に縮合した縮合複素環などが例示でき、縮合複素環においてヘテロ原子としての窒素原子は縮合位置に位置していてもよい。ヘテロ原子として酸素原子を有する複素環としては、フラン環などの 5 員又は 6 員単環式複素環、イソベンゾフラン環、クロメン環などの 5 員又は 6 員複素環が炭化水素環（ベンゼン環など）に縮合した縮合複素環などが例示できる。ヘテロ原子として硫黄原子を有する複素環には、チオフェン環などの 5 員又は 6 員単環式複素環、チアントレン環などの 5 員又は 6 員複素環が炭化水素環（ベンゼン環など）に縮合した縮合複素環などが含まれる。また、異種のヘテロ原子を有する複素環としては、モルホリン環、イソチアゾール環、イソオキサゾール環などの 5 員又は 6 員単環式複素環、フェノキサチン環などの 5 員又は 6 員複素環が炭化水素環（ベンゼン環など）に縮合した縮合複素環などが挙げられる。

【0020】好ましい複素環には、芳香族性複素環、例えば、ヘテロ原子として窒素原子を有する 5 員又は 6 員複素環（ピロール環、ピリジン環など）、ヘテロ原子として少なくとも窒素原子を有する 5 員又は 6 員複素環と芳香族炭化水素環（特にベンゼン環又はナフタレン環）とが縮合した芳香族性複素環（カルバゾール環など）、

縮合位置にヘテロ原子としての窒素原子を有する複素環（ピペリジノピペラジン環など）と芳香族炭化水素環（特にベンゼン環又はナフタレン環）とが縮合（オルソアンドペリ縮合）した芳香族性複素環などが含まれる。

【0021】なお、環 Z^1 及び Z^2 は、隣接する $C=C$ 結合と共役系を形成するため、通常、芳香族環が隣接する $C=C$ 結合との結合手を有している。また、多環式環において、芳香族環が隣接する $C=C$ 結合との結合手を有していれば、他の環は非芳香族性環又は芳香族性環のいずれであってもよく、環の一部が水素添加されていてもよい。環の一部が水素添加された炭化水素環としては、1,2-ジヒドロナフタレン環などの水素添加ナフタレン環、2,3-ジヒドロフェナレン環、2,3,3a,4,5,6-ヘキサヒドロフェナレン環などの水素添加ナフタレン環などが挙げられる。また、環の一部が水素添加された複素環としては、ユロリジン環、9-ホルミルユロリジン環などが挙げられる。

【0022】環 Z^1 及び Z^2 は、種々の置換基、例えば、例えば、アルキル基（メチル、エチル基などの C_{1-6} アルキル基など）；シクロアルキル基（ C_{3-10} シクロアルキル基など）；アリール基（フェニル基などの C_{6-18} アリール基など）；アラルキル基（ベンジル、ジフェニルメチル基などの C_{6-12} アリール- C_{1-4} アルキル基など）；ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）；ヒドロキシル基；アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、イソブトキシ、s-ブトキシ、t-ブトキシ基などの C_{1-6} アルコキシ基など）；メルカプト基；前記アルコキシ基に対応するアルキルチオ基；ヒドロキシアルキル基（ヒドロキシメチル基などのヒドロキシ C_{1-6} アルキル基など）；カルボニル基；カルボキシル基；アルコキシカルボニル基（エトキシカルボニル基などの C_{1-4} アルコキシカルボニル基など）；アシル基（ C_{1-6} アルキル-カルボニル基、 C_{6-12} アリール-カルボニル基など）；アシルオキシ基（アセチルオキシ基などの C_{1-6} アシルオキシ基など）；シアノ基；アミノ基；N-置換アミノ基（メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、ジブチルアミノ基などのモノ又はジ C_{1-6} アルキルアミノ基、フェニルアミノ基などのモノ又はジ C_{6-18} アリールアミノ基、アセトアミド基などの C_{1-6} アシルアミノ基など）；ニトロ基；スルホニル基などを有していてもよい。

【0023】好ましい置換基には、例えば、 C_{1-4} アルキル基、 C_{6-12} アリール基、ヒドロキシル基、 C_{1-4} アルコキシ基、 C_{1-4} アシルオキシ基、アミノ基、N-置換アミノ基（モノ又はジ C_{1-6} アルキルアミノ基、モノ又はジ C_{6-18} アリールアミノ基、 C_{1-4} アシルアミノ基など）などが含まれる。特に、置換基は、電子供与性の置換基、例えば、ヒドロキシル基、アルコキシ基（ C_{1-4} アルコキシ基など）、アミノ基、N-置換アミノ基

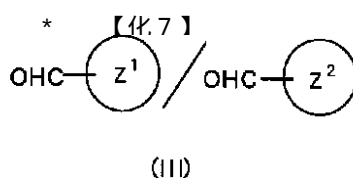
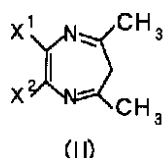
(モノ又はジC₁₋₄アルキルアミノ基など)などが好ましい。

【0024】なお、環Z¹及びZ²に対する置換基の位置は、特に制限されず、例えば、ベンゼン環に対しては、o - , m - 又はp - のいずれであってもよく、通常、o - 及び/又はp - 位である。また、前記環Z¹及びZ²は、複数の置換基を有していてもよい。

【0025】好ましい環Z¹及びZ²は、電子供与性基を有する芳香族性環、ヘテロ原子として窒素原子を有する複素環(5又は6員複素環)と芳香族性炭化水素環(特にベンゼン環)との縮合環であり、ヘテロ原子としての窒素原子にはC₁₋₆アルキル基が置換していてもよい。このような環Z¹及びZ²としては、例えば、置換基を有するベンゼン環(例えば、ヒドロキシル基、C₁₋₄アルコキシ基、アミノ基及びモノ又はジC₁₋₄アルキル置換アミノ基から選択された少なくとも1種の置換基で置換されたベンゼン環など)、ヘテロ原子としての窒素原子にC₁₋₆アルキル基が置換していてもよいN - 置換複素環[例えば、N - C₁₋₄アルキル基などが置換していてもよいカルバゾール環など]、ヘテロ原子として窒素原子を縮合位置に有する縮合複素環とベンゼン環とがオルソアンドペリ縮合した縮合複素環(コロリジン環など)などが挙げられる。

【0026】式(I)において、置換基の組み合わせとしては、下記の組み合わせが例示できる。

【0027】X¹: シアノ基



【0030】(式中、X¹、X²、環Z¹、および環Z²は、前記に同じ)

式(II)で表される化合物(それらの構造異性体を含む)を、式(III)で表される化合物(アルデヒド類)と反応させることにより、式(I)の化合物を得ることができる。式(II)において窒素含有ヘテロ環のC=C二重結合がエナミンとして作用するためか、式(II)の化合物と、アルデヒド類とを効率よく反応させることができる。

【0031】式(III)で表される代表的な化合物としては、前記環Z¹及びZ²に対応するアルデヒド類、例えば、環Z¹およびZ²がベンゼン環であるアルデヒド類(ベンズアルデヒド、ハロベンズアルデヒド、アミノベンズアルデヒド、N - 置換アミノベンズアルデヒド、フェノールアルデヒド、C₁₋₄アルコキシベンズアルデヒドなど); 環Z¹及びZ²が縮合多環式炭化水素環であるアルデヒド類(ナフタレンカルバルデヒド、フェナレンカルバルデヒドなど); 環Z¹及びZ²がヘテロ原子として窒素原子を含む5員又は6員の複素環、又は複素環と

*X²: シアノ基

Z¹及びZ²: 未置換又は置換基(ヒドロキシル基、アルコキシ基(特にC₁₋₄アルコキシ基)、アミノ基及びN - 置換アミノ基から選択された少なくとも1種)を有する芳香族炭化水素環(特にベンゼン環)又は縮合多環式炭化水素環、又はヘテロ原子として窒素原子を含む複素環(特に5又は6員複素環)と芳香族炭化水素環(特にベンゼン環)とが縮合した多環式縮合複素環

式(I)で表される代表的な化合物(ジアゼピン環化合物)としては、2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス(フェニル)ピニル - 1 - イル) - 6H - 1, 4 - ジアゼピン; 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス(ヒドロキシフェニル)ピニル - 1 - イル) - 6H - 1, 4 - ジアゼピン; 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス(C₁₋₄アルコキシフェニル)ピニル - 1 - イル) - 6H - 1, 4 - ジアゼピン; 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス(モノ又はジC₁₋₄アルキルアミノフェニル)ピニル - 1 - イル) - 6H - 1, 4 - ジアゼピン; 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス(カルバゾリル)ピニル - 1 - イル) - 6H - 1, 4 - ジアゼピン; 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス(コロリジニル)ピニル - 1 - イル) - 6H - 1, 4 - ジアゼピンなどが挙げられる。

【0028】[製造方法] 本発明の化合物は、例えば、下記反応式(1)に従って調製できる。

【0029】

炭化水素環との縮合複素環であるアルデヒド類(9 - アルキル - 3 - ホルミルカルバゾールなど)などが挙げられる。式(III)で表される化合物の使用量は、式(II)の化合物1モルに対して、1 ~ 3モル、好ましくは1 ~ 1.5モル程度である。

【0032】前記反応は、反応に不活性な溶媒、例えば、脂肪族炭化水素類(ヘキサンなど)、脂環族炭化水素類(シクロヘキサンなど)、芳香族炭化水素類(ベンゼン、トルエンなど)、ハロゲン化炭化水素類(クロロホルムなど)、アルコール類(メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノールなど)、エステル類(酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸イソブチル)、エーテル類(ジオキサン、ジエチルエーテル、テトラヒドロフランなど)、アミド類(ホルムアミド、アセトアミド、ジメチルホルムアミド(DMF)、ジメチルアセトアミドなど)、ニトリル類(アセトニトリル、ベンゾニトリルなど)、スルホキシド類(ジメチルスルホキシド)などの存在下で行うことができる。また、必要により、触媒(例えば、ピリジン、ピペリジンなどの塩基触

媒など)を使用してもよい。触媒の使用量は、前記式(I)の化合物1モルに対して、0.001~1モル程度の範囲から選択できる。

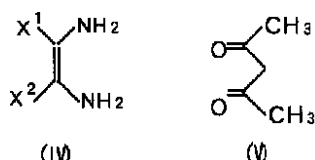
【0033】反応温度は、溶媒を用いる場合、0~還流温度の範囲から選択でき、例えば、50~120、好ましくは60~100程度である。反応は常圧、減圧又は加圧下で行なうことができる。反応は、不活性ガス(例えば、窒素、アルゴン、ヘリウムなど)の雰囲気下で行ってもよい。

【0034】上記反応により生成した化合物(I)は、反応終了後、慣用の方法、例えば、濾過、濃縮、蒸留、抽出、晶析、再結晶、カラムクロマトグラフィーなどの分離手段や、これらを組合せた分離手段により容易に分離精製できる。

【0035】なお、式(II)で表される化合物は、下記反応式(2)により調製してもよい。

【0036】

【化8】



【0037】(式中、 X^1 、 X^2 、及びnは、前記に同じ)

式(IV)で表される化合物と式(V)で表される化合物とを反応(脱水縮合)させることにより、式(II)で表される化合物を得ることができる。

【0038】式(IV)で表される代表的な化合物としては、ジアミン類[例えば、1,2-ジシアノ-1,2-ジアミノエテン(ジアミノマレオニトリル)、1-シアノ-2-(ジメチルアミノ)-1,2-ジアミノエテン、1,2-ジシアノ-2-(ベンジルアミノ)-1-アミノエテンなど]などが挙げられる。

【0039】式(V)で表される代表的な化合物としては、アルカンジケトン化合物[例えば、アセチルアセトン(ペンタン-2,4-ジオン)が挙げられる。

【0040】式(V)の化合物の使用量は、通常、式(I)の化合物1モルに対して、1~3モル、好ましくは1~2モル(例えば、1~1.5モル)程度である。

【0041】前記縮合反応は、触媒の存在下又は非存在下で行ってもよい。触媒としては、慣用の触媒、例えば、酸触媒(例えば、硫酸、リン酸、塩酸などの無機酸、酢酸、スルホン酸、p-トルエンスルホン酸などの有機酸)、塩基触媒(例えば、アルカリ又はアルカリ土類金属の水酸化物又は酸化物など)などが挙げられる。触媒の使用量は、前記式(IV)の化合物1モルに対して、0.001~1モル程度の範囲から選択できる。また、五酸化リンなどの脱水剤を使用してもよい。

【0042】なお、縮合反応は、反応に不活性な溶媒中

で行ってもよい。溶媒としては、前記例示の溶媒(トルエンなど)が使用できる。また、溶媒を用いる場合、反応温度は0~還流温度の範囲から選択でき、例えば、50~120、好ましくは60~100程度である。反応は常圧、減圧又は加圧下で行なうことができる。反応は、不活性ガス(例えば、窒素、アルゴン、ヘリウムなど)の雰囲気下で行ってもよい。上記縮合反応により生成した化合物は、反応終了後、前記例示の分離手段などにより容易に分離精製できる。

【0043】本発明の化合物の特色は、前記式(I)で表される特定の構造を有することにより、外部エネルギーの付与(光照射や電場の作用)により発光可能である点にある。光照射としては、窒素含有ヘテロ環化合物式(I)を励起できる波長を有していれば、特に制限されず、例えば紫外線(400nm以下)、可視光線(360~860nm(特に、400~760nm)程度)、特に可視光線などが使用できる。また、発光波長は、置換基の種類、置換部位などにより、広い範囲の波長域(例えば、400~700nm(紫色~赤色)程度の範囲)で変化する。さらに、本発明の窒素含有ヘテロ環化合物(I)は、置換基の種類や置換部位によって異なるが、紫色~赤色(特に、黄色~赤色)を呈するとともに、大きなモル吸光係数を有する。このような発色は、分子内の窒素含有ヘテロ環が強い電子吸引性基(アクセプター)、環 Z^1 及び Z^2 が電子供与性基として働く分子内電荷移動型の発色系であるためのようである。

【0044】式(I)の化合物は、溶液中、光(特に、可視光)照射により蛍光を発する。蛍光波長は、前記波長域で変化し、特に、本発明の化合物では、窒素含有ヘテロ環が非平面構造であるにもかかわらず、このヘテロ環が強い電子吸引性基として働くためか、比較的長波長域(500~700nm程度、好ましくは530~700nm程度：黄色~赤色)に蛍光を有する場合が多いようである。

【0045】また、本発明の化合物では、電場の作用(キャリアの注入)により、発光可能である。発光波長は、前記波長域で選択可能である。さらに、本発明の化合物では、比較的長波長域(500~700nm程度、好ましくは550~700nm程度：黄色~赤色)においても発光可能である。そのため、本発明の化合物は、有機EL素子の発光中心化合物としても有用である。

【0046】また、式(I)の化合物は、溶液中だけでなく、固体(例えば、化合物を蒸着させた薄膜)においても同様の特性(光照射又は電場の作用による発光など)を示す。そのため、液体としてだけでなく、固体(例えば、フィルム、粉末、粒子など)としても使用可能であり、その用途は制限されない。

【0047】本発明の化合物は、光照射又は電場の作用により発光可能であるため、機能性材料として種々の分野で利用可能である。例えば、蛍光材料(蛍光顔料、蛍

光探傷剤、蛍光白色染料、特に、蛍光染料などの蛍光材料)などとしてだけでなく、ディスプレイ材料(例えば、エレクトロルミネッセンス材料などの発光素子材料)などとしても有用である。

【0048】[有機エレクトロルミネッセンス素子]本発明の有機EL素子は、一対の電極と、この電極間に介在する有機層とで構成されており、前記有機層は、少なくとも前記式(1)で表される化合物を含んでいる。特に、前記式(1)の化合物を含む層は、発光領域を形成し、発光層を構成する。発光層は、皮膜形成可能な式(1)の化合物を単独で使用してもよく、皮膜形成可能又は非皮膜形成性の式(1)の化合物と皮膜形成能を有するバインダーとで構成してもよい。バインダーとしては、通常、皮膜形成能を有する樹脂(熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂)が使用できる。

【0049】熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、ポリブテンなどのオレフィン系樹脂；ポリスチレン、ゴム変性ポリスチレン(HIPS)、アクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体などのスチレン系樹脂；アクリル系樹脂[(メタ)アクリル系単量体(例えば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレートなどの C_{1-6} アルキル(メタ)アクリレート、ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレートなどのヒドロキシ C_{2-4} アルキル(メタ)アクリレート、グリシジル(メタ)アクリレート、(メタ)アクリル酸、(メタ)アクリロニトリルなど)の単独または共重合体、前記(メタ)アクリレート系単量体と共重合性単量体(例えば、スチレンなどの芳香族ビニル単量体など)との共重合体(メチルメタクリレート-スチレン共重合体など)]；ポリビニルアルコール、エチレン-ビニルアルコール共重合体などのビニルアルコール系重合体、ポリ塩化ビニル、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニリデン、ポリ酢酸ビニル、エチレン-酢酸ビニル共重合体などのビニル系樹脂；6-ナイロン、6,6-ナイロン、6,10-ナイロン、6,12-ナイロンなどのポリアミド系樹脂；ポリエステル樹脂[例えば、ポリアルキレンテレフタレート(ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなど)、ポリアルキレンナフタレートなどのアルキレンアリレート系樹脂又はアルキレンアリレートコポリエステル樹脂]；フッ素系樹脂；ポリカーボネート；ポリアセタール；ポリフェニレンエーテル；ポリフェニレンスルフィド；ポリエーテルスルホン；ポリエーテルケトン；熱可塑性ポリイミド；熱可塑性ポリウレタン；ノルボルネン系ポリマーなどが挙げられる。

【0050】熱硬化性樹脂としては、フェノール樹脂、アミノ樹脂(尿素樹脂、メラミン樹脂など)、熱硬化性

アクリル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ジアリルフタレート樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0051】これらのバインダーは、単独でまたは二種以上組合わせて使用してもよい。式(1)の化合物の含有量は、バインダー100重量部に対して、0.01~10重量部、好ましくは0.05~5重量部、さらに好ましくは0.1~3重量部程度である。

【0052】また、発光層には、必要により他の発光中心化合物を含有させてもよい。他の発光中心化合物としては、有機EL素子用の発光中心化合物としての機能を有し、レーザー光を吸収し得る化合物、特に電子及び/又はホール(正孔)によって励起されて発光する化合物が使用できる。発光中心形成化合物としては、例えば、2,5-ビス(5-tert-ブチル-2-ベンゾオキサゾイル)-チオフェンなどのビス(C_{1-6} アルキル-ベンゾオキサゾイル)チオフェン、ナイルレッド、クマリン6、クマリン7などのクマリン類、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノステリル)-4H-ピランなどの4-(ジシアノ C_{1-4} アルキレン)-2- C_{1-4} アルキル-6-(p-ジ C_{1-4} アルキルアミノステリル)-4H-ピラン、キナクリドンなどの酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選択された少なくとも1種のヘテロ原子を含む複素環化合物；ルブレン、ペリレンなどの縮合多環式炭化水素；1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン(TPB)などのテトラ C_{6-12} アリール-1,3-ブタジエン；1,4-ビス(2-(4-エチルフェニル)エチニル)ベンゼンなどのビス(2-(4- C_{1-4} アルキルフェニル) C_{2-4} アルキニル)ベンゼン；4,4'-ビス(2,2'-ジフェニルビニル)ビフェニルなどのビス(2,2'-ジ C_{6-12} アリールビニル)ビフェニルなどが挙げられる。特に、これらの中でナイルレッド、クマリン6が好ましい。これらの発光中心化合物は、単独で又は2種以上組み合わせ使用できる。

【0053】これらの発光中心化合物の含有量は、前記式(1)の化合物の発光効率に影響を及ぼさない範囲で選択され、バインダー100重量部に対して、0.01~10重量部、0.05~5重量部、さらに好ましくは0.1~3重量部程度である。式(1)の化合物と他の発光中心化合物との割合は、前者/後者(重量比)=40/60~100/0、好ましくは50/50~95/5、さらに好ましくは60/40~90/10程度である。

【0054】式(1)の化合物を含む発光層には、必要により、電子輸送機能及び/又はホール輸送機能を付与してもよい。このような機能を付与するためには、(1)発光層に前記機能を有する有機高分子又は化合物を添加してもよく、(2)前記機能を有する層を積層させてもよい。(1)の場合には、単層構造の有機EL素子を形成で

きる。

【0055】前記電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1つの機能を有する有機高分子としては、例えば、主鎖又は側鎖にホール輸送機能基及び電子輸送機能基から選択された少なくとも1種の機能基を有するビニル系重合体、例えば、ポリフェニレンビニレン類[例えば、ポリフェニレンビニレン、ポリ(2,5-ジメトキシフェニレンビニレン)、ポリナフタレンビニレンなどの置換基(C_{1-10} アルコキシ基など)を有していてもよい C_{6-12} アリーレンビニレンの単独又は共重合体];ポリフェニレン類(特に、ポリパラフェニレン類)[例えば、ポリパラフェニレン、ポリ(2,5-ジメトキシパラフェニレンなどの置換基(C_{1-10} アルコキシ基など)を有していてもよいフェニレンの単独又は共重合体];ポリチオフェン類[ポリ(3-アルキルチオフェン)などのポリ C_{1-20} アルキルチオフェン類、ポリ(3-シクロヘキシルチオフェン)などのポリ C_{3-20} シクロアルキルチオフェン類、ポリ(3-(4-n-ヘキシルフェニル)チオフェン)などの置換基(C_{1-10} アルキル基)を有していてもよい C_{6-20} アリールチオフェン類の単独又は共重合体];ポリ C_{1-20} アルキルフルオレンなどのポリフルオレン類;ポリ-N-ビニルカルバゾール(PVK)、ポリ-4-N,N-ジフェニルアミノスチレン、ポリ(N-(p-ジフェニルアミノ)フェニルメタクリルアミド)、ポリ(N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミノメタクリルアミド)(PTPDMA)、ポリ-4-(5-ナフチル-1,3,4-オキサジアゾール)スチレンなどの主鎖又は側鎖にホール輸送機能基及び電子輸送機能基から選択された少なくとも1種の機能基を有するビニル系重合体;ポリメチルフェニルシランなどのポリ C_{1-4} アルキルフェニルシラン;芳香族アミン誘導体を側鎖または主鎖に有する重合体;またはこれらの共重合体などが挙げられる。

【0056】これらの有機高分子は単独で又は二種以上組み合わせ使用してもよい。特に、N-ビニルカルバゾールを主成分(例えば、50~100重量%)とする単独又は共重合体(例えば、(メタ)アクリル系単量体、スチレン系単量体、ビニルエステル系単量体などの共重合性単量体との共重合体)、芳香族アミン誘導体などが好ましい。

【0057】PVKは、非晶質で、耐熱性に優れている(ガラス転移温度 T_g :224)。上記PVKの重合度は、特に制限されないが、例えば、100~1000、好ましくは200~800程度である。

【0058】前記(I)の化合物と前記有機高分子とで発光層を構成する場合、式(I)の化合物の含有量は、前記有機高分子100重量部に対して、0.01~10重量部、好ましくは0.05~5重量部、さらに好ましくは0.1~3重量部程度である。

【0059】なお、式(I)の化合物と前記有機高分子とで構成された発光層には、必要に応じて、電子輸送機能又はホール輸送機能を有する化合物を含有させてもよい。

【0060】電子輸送機能を有する化合物としては、例えば、オキサジアゾール誘導体[例えば、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール(BND)、1,3-ビス[5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]ベンゼン(BPOB)、1,3,5-トリス[5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]ベンゼン(TPOB)、1,3,5-トリス[5-(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール]ベンゼン(TNOB)などの置換基を有していてもよい C_{6-20} アリール基を有するオキサジアゾール誘導体];ジフェノキノン類[例えば、3,5,3',5'-テトラキス-tert-ブチルジフェノキノンなどの置換基(C_{1-10} アルキル基など)を有していてもよいジフェノキノン類;1,2,3,4,5-ペンタフェニル-1,3-シクロペンタジエン(PCP);トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)錯体、ビス(ベンゾキノリノラト)ベリリウム錯体、トリス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリノラト)ベリリウム錯体などのキノリン酸錯体が挙げられる。特に、PBDが好ましい。

【0061】ホール輸送機能を有する化合物としては、例えば、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(TPD)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(NPD)、1,1-ビス[(ジ-4-トリルアミノ)フェニル]シクロヘキサン、N,N,N',N'-テトラ(3-メチルフェニル)-1,3-ジアミノベンゼン(PDA)、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(m-MTDATA)、4,4',4''-トリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(1-TNATA)、4,4',4''-トリス(2-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(2-TNATA)、4,4',4''-トリ(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(TCTA)、1,3,5-トリス[4-(3-メチルフェニルフェニルアミノ)フェニル]ベンゼン(m-MTDAPB)、トリフェニルアミンなどの芳香族第3級アミン類;フタロシアニン類などが挙げられる。

【0062】前記電子輸送機能又はホール輸送機能を有する化合物は、単独で又は二種以上組み合わせ使用してもよい。

【0063】電子及び/又はホール輸送機能を有する化

合物の含有量は、バインダー（及び／又は前記有機高分子）100重量部に対して、10～200重量部、好ましくは30～150重量部、さらに好ましくは50～130重量部程度である。

【0064】なお、発光層が電子輸送機能およびホール輸送機能のうち、いずれかの機能を具備していない場合や、各機能を向上させる場合には、その機能を有する層を、従来の方法（例えば、蒸着法や溶液塗布法など）により積層させてもよい。これらの層は、低分子化合物であっても、高分子化合物であってもよい。

【0065】有機層を構成する各層の厚みは、特に制限されず、それぞれ1nm～1μm、好ましくは5～800nm、さらに好ましくは10～500nm、特に15～300nm程度である。

【0066】有機EL素子の陽極としては、慣用の方法（真空蒸着法など）により形成された透明電極（例えば、インジウム-スズ-酸化物（ITO）電極）などが使用され、陰極としては、仕事関数の小さい高導電性金属（例えば、マグネシウム、リチウム、アルミニウム又は銀など）が使用される。陰極としてマグネシウムを使用する場合には、有機EL素子用フィルムとの接着性を向上させるために、少量（例えば、1～10重量%）の銀と共蒸着させてもよい。

【0067】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法としては、特に制限されず、慣用の方法により製造できる。例えば、透明な基板上に前記透明電極（ITO電極など）の皮膜を形成させ、このITO電極上に、式(1)の化合物を含む塗布液を慣用の方法（例えば、スピンコーティング法、キャスト法など）などにより塗布又は流延し、有機層（発光層など）を形成する。さらにこの有機層上に蒸着法などにより陰極を形成させることにより製造できる。また、必要により、電子輸送及び／又はホール輸送機能を有する層を、蒸着、塗布などの慣用の方法により、陽極又は発光層上に積層させてもよい。

【0068】なお、基板としては、例えば、発光中心化合物からの発光を透過可能な程度に透明な基板（例えば、ソーダガラス、無アルカリガラス、石英ガラスなどのガラス板など、あるいはポリエステル、ポリスルホン、ポリエーテルスルホンなどの高分子シートまたはフィルムなど）が挙げられる。フレキシブルな有機EL素子を作製する場合には、高分子フィルムが好ましい。

【0069】有機EL素子全体（有機層及び電極など）の厚みは、特に制限されないが、50nm～10μm、好ましくは100nm～8μm、さらに好ましくは300nm～5μm程度である。

【0070】本発明によれば、有機EL素子の有機層（特に発光層）として特定の構造の窒素含有ヘテロ環化合物を使用するので、発光波長を制御可能である。さらに、本発明によれば、前記窒素含有ヘテロ環化合物のヘ

テロ環部位が非平面構造を有するにもかかわらず、比較的長波長域（530～700nm程度：黄色～赤色）の発光が可能であるとともに、高い輝度を示す高耐久性に優れた有機EL素子を得ることができる。

【0071】

【発明の効果】本発明の化合物では、特定の窒素含有ヘテロ環を有するので、光照射又は電場の作用により発光可能である。そのため、蛍光材料、ディスプレイ材料などの機能性材料として有用である。特に、電場の作用で発光する化合物は、有機EL素子の発光中心化合物として有用であるとともに、広範囲の波長域において発光が可能であるため、有機EL素子の発光波長をコントロールできる。

【0072】

【実施例】以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。なお、実施例における分析方法は次の通りである。

【0073】¹H-NMRスペクトル及び¹³C-NMRスペクトルは、ジューテロクロロホルム又はジューテロジメチルスルホキシド中、内部標準としてテトラメチルシランを用いて、Varian Unity-plus 300NMR分光計により測定した。マススペクトルは、GCMS-QP5000分光計（島津製作所（株）製）を用いて測定した。融点は、補正することなくYamamoto製の融点装置（MP-21）により測定した。

【0074】UV/可視スペクトル及び蛍光スペクトルは、試料をクロロホルム中に、 1.5×10^{-5} mol/Lの割合で溶解させて、それぞれ、U-2010分光計（日立（株）製）及びF-4500蛍光分光計（日立（株）製）を用いて測定した。

【0075】実施例1

触媒量の酢酸の存在下、ジアミノマレオニトリル0.07モルと、アセチルアセトン0.07モルとを含む系に、五酸化リン7gを添加し、溶媒（エタノール）400ml中、環流温度で15時間反応させて、2,3-ジシアノ-5,7-ジメチル-6H-1,4-ジアゼピンを生成させた。得られたジアゼピン化合物10ミリモルに対して、4-メトキシベンズアルデヒド10ミリモルを用い、溶媒（ベンゼン）中、ピペリジンの存在下で反応させ、目的化合物2,3-ジシアノ-5,7-ビス（2-（4-メトキシフェニル）エチニル）-6H-1,4-ジアゼピン（化合物1）を得た。

【0076】融点：259～260

NMR（CDCl₃）7.54（2H, dd, J = 15.9, 3, 2CH）, 7.49（4H, dd, J = 8.7, ph）, 6.76（2H, dd, J = 15.9, 3, 2CH）, 6.93（4H, dd, J = 8.7, 2.4, ph）, 3.85（6H, s, 2CH₃）
NMR（d₆-DMSO）8.05（2H, d, J = 1

6.5, 2CH), 7.75 (4H, d, J = 7.2, ph), 7.00 (4H, d, J = 7.2, ph), 7.00 (2H, d, J = 16.5, 2CH), 5.35 (1H, broad, CH) 3.81 (6H, s, 2CH₃), 2.05 (1H, broad, CH)

マスペクトル (m/e): 408 (M+)

吸収スペクトル (uv) のピーク波長: λ_{max} 434 nm (ε_{max} 24200)

蛍光スペクトルのピーク波長: F_{max} 542 nm

元素分析 (C₂₅H₂₀N₄O₂):

計算値: C = 73.51%; H = 4.94%; N = 13.72%

測定値: C = 74.00%; H = 5.12%; N = 13.72%

実施例 2

4 - メトキシベンズアルデヒドに代えて、4 - ジメチルアミノベンズアルデヒドを用いる以外、実施例 1 と同様にして、目的化合物 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス (2 - (4 - ジメチルアミノフェニル) エテニル) - 6 H - 1, 4 - ジアゼピン (化合物 2) を得た。

【0077】融点: 260 - 262

マスペクトル (m/e): 434 (M+)

吸収スペクトル (uv) のピーク波長: λ_{max} 523 nm (ε_{max} 31000)

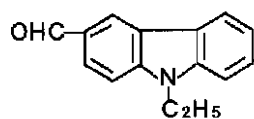
蛍光スペクトルのピーク波長: F_{max} 643 nm

元素分析 (C₂₇H₂₆N₆):

計算値: C = 74.63%; H = 6.03%; N = 19.34%

測定値: C = 73.92%; H = 6.07%; N = 18.93%

実施例 3



【0080】融点 254 - 256

マスペクトル (m/e): 582 (M+)

吸収スペクトル (uv) のピーク波長: λ_{max} 475 nm (ε_{max} 28000)

蛍光スペクトルのピーク波長: F_{max} 605 nm

元素分析 (C₃₉H₃₀N₆):

計算値: C, 80.39%; H, 5.19%; N, 14.42%

測定値: C, 78.54%; H, 5.28%; N, 13.7

*4 - メトキシベンズアルデヒドに代えて、4 - ジエチルアミノベンズアルデヒドを用いる以外、実施例 1 と同様にして、目的化合物 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス (2 - (4 - ジエチルアミノフェニル) エテニル) - 6 H - 1, 4 - ジアゼピン (化合物 3) を得た。

【0078】融点: 209 - 211

NMR (d₆-DMSO) 7.93 (2H, d, J = 16, 2CH), 7.81 (4H, d, J = 9, ph), 6.79 (2H, d, J = 16, 2CH), 6.68

(4H, d, J = 9, ph), 3.40 (8H, q, J = 7, 4CH₂), 2.09 (1H, s, CH), 1.09 (12H, t, J = 7, 4CH₃)

マスペクトル (m/e) 490 (M+);

吸収スペクトル (uv) のピーク波長: λ_{max} 539 nm (ε_{max} 33400)

蛍光スペクトルのピーク波長: F_{max} 653 nm

元素分析 (C₃₁H₃₄N₆):

計算値: C = 75.89%; H = 6.98%; N = 17.13%

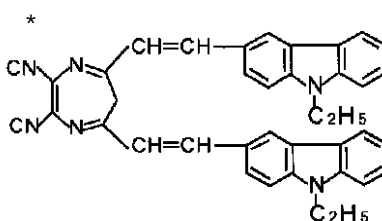
測定値: C = 76.34%; H = 7.30%; N = 17.12%

実施例 4

4 - メトキシベンズアルデヒドに代えて、下記式で表される N - エチル - 3 - カルバゾリルアルデヒドを用いる以外、実施例 1 と同様にして、下記式で表される目的化合物 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス (2 - (N - エチル - 3 - カルバゾリル) エテニル) - 6 H - 1, 4 - ジアゼピン (化合物 4) を得た。

【0079】

30 【化 9】



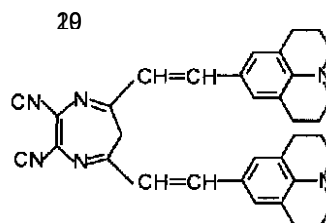
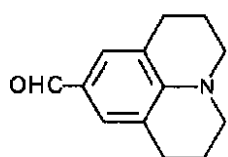
4%

実施例 5

4 - メトキシベンズアルデヒドに代えて、下記式で表されるアルデヒドを用いる以外、実施例 1 と同様にして、下記式で表される目的化合物 2, 3 - ジシアノ - 5, 7 - ビス (クロリジン - 9 - イル) エテニル) - 6 H - 1, 4 - ジアゼピン (化合物 5) を得た。

【0081】

【化 10】



【0082】融点：>300

マスペクトル(m/e)：538(M⁺)

吸収スペクトル(uv)のピーク波長：λ_{max} 569 nm
(ε_{max} 30600)

蛍光スペクトルのピーク波長：F_{max} 682 nm

元素分析(C₃₅H₃₄N₆)：

計算値：C. 78.04；H. 6.36；N. 15.6*

*0%

測定値：C, 77.36；H, 6.47；N, 14.99%

実施例で得られた化合物の吸収スペクトル及び蛍光スペクトルの測定結果を表1に示す。

【0083】

【表1】

表1

	n	環Z ¹ 及びZ ²	λ _{max} (nm)	ε _{max}	F _{max} (nm)	F _{max} - λ _{max} (nm)
実施例	1	メトキシフェニル	433		543	110
	2	ジメチルアミノフェニル	523	31000	643	120
	3	ジエチルアミノフェニル	539	33400	653	114
	4	N-エチルカルバゾール				
	5	9-フロリジン	569	30600	682	113
	6	ジエチルアミノフェニル				
比較例	1	— ジエチルアミノフェニル	493	42400	591	98

【0084】実施例5〔有機エレクトロルミネッセンス素子〕

ポリメチルメタクリレート(PMMA：アルドリッチ社製)150mgと、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD：アルドリッチ社製)100mg、実施例2で得られた化合物(4)2mg、およびN,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジン(TPD：東京化成社製)50mgを1,2-ジクロロエタン20mlに溶解し、塗布液を調整した。ガラス基板上にインジウム-スズ-酸化物(ITO)皮膜を形成させ、前記塗布液をスピンコーティング法より、このITO皮膜上に厚み100nmの有機層を形成させた。次いで、前記有機層上に、厚み100nmのAl/Li電極(高純度化学(株)製、Li含有量1重量%)を真空蒸着法により作製し、有機エレクトロルミネッセンス素*

子を得た。

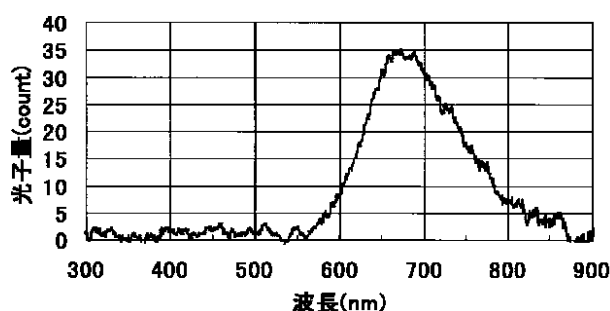
【0085】得られた有機エレクトロルミネッセンス素子のITO電極を陽極、Al/Li電極を陰極とし、大気中で両電極間に直流電場を印加して発光させた(印加電圧20V)。図1に示すように、発光スペクトルのピーク波長は673nm(浜松ホニクス(株)製、マルチチャンネル検出器PMA-11により測定)であった。発光輝度を、輝度計(ミノルタ(株)製、輝度計LS-110)により測定した。なお、印加電圧に対する発光輝度の値を示すグラフを図2に示す。

【図面の簡単な説明】

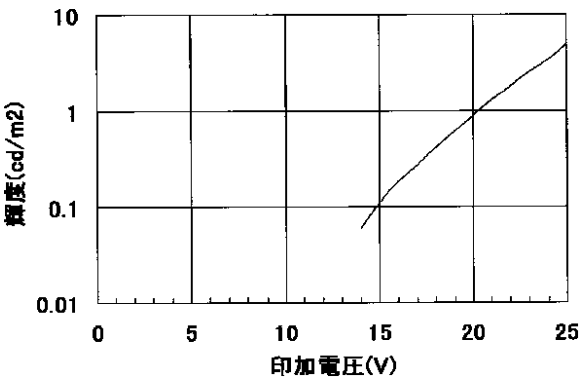
【図1】図1は、実施例5で得られた有機エレクトロルミネッセンス素子の蛍光スペクトルである。

【図2】図2は、実施例5で得られた有機エレクトロルミネッセンス素子の印加電圧に対する発光輝度を示すグラフである。

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マコ-ト' (参考)
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	B
			D
(72)発明者 白井 和子	(72)発明者 蒲原 茂樹		
大阪府堺市出島海岸通り2丁目1-17	兵庫県姫路市勝原区勝原町49-18		
(72)発明者 北口 透	Fターム(参考) 3K007 AB02 AB04 BA07 CA01 CA06		
神奈川県横浜市戸塚区平戸3丁目20番1-401	CB01 DA00 DB03 EB00 FA01		
	4C063 AA03 BB03 CC36 DD08 EE10		
	4C064 AA11 CC01 DD05 EE01 FF01		
	GG08		

专利名称(译)	含氮杂环化合物		
公开(公告)号	JP2002338553A	公开(公告)日	2002-11-27
申请号	JP2001143744	申请日	2001-05-14
[标]申请(专利权)人(译)	大赛璐股份有限公司		
申请(专利权)人(译)	大赛璐化学工业有限公司		
[标]发明人	松岡 賢 白井 和子 北口 透 蒲原 茂樹		
发明人	松岡 賢 白井 和子 北口 透 蒲原 茂樹		
IPC分类号	H01L51/50 C07D243/08 C07D403/14 C07D455/04 C09K11/06 H01L51/30 H05B33/14 H05B33/22		
CPC分类号	C07D455/04 C07D243/08 C07D403/14 C09K11/06 C09K2211/1029 C09K2211/1044 H01L51/004 H01L51/0067 H01L51/0072 H01L51/5012 H01L2251/308 H05B33/14		
FI分类号	C07D243/08.501 C07D403/14 C07D455/04 C09K11/06.650 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB04 3K007/BA07 3K007/CA01 3K007/CA06 3K007/CB01 3K007/DA00 3K007/DB03 3K007/EB00 3K007/FA01 4C063/AA03 4C063/BB03 4C063/CC36 4C063/DD08 4C063/EE10 4C064/AA11 4C064/CC01 4C064/DD05 4C064/EE01 4C064/FF01 4C064/GG08 3K007/AB00 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC07 3K107/DD59 3K107/DD66 3K107/EE25 3K107/GG51		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种用作功能材料的含氮杂环化合物，其制备方法以及使用其的有机EL器件。含氮杂环化合物可通过光照射或电场的作用而发光或变色，并由下式（I）表示。[化学1] X¹和X²是吸电子基团，例如氰基，环Z¹，而Z²是烃环或杂环（羟基，烷氧基，氨基，具有给电子基团如N-取代的氨基的苯环，或具有氮原子作为杂原子的杂环的稠环和苯环。通过在—对电极之间插入含有该化合物的有机层，可以得到有机EL元件。

