(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2025年3月6日(06.03.2025)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2025/047665 A1

(51) 国際特許分類:
H10K 30/60 (2023.01) *H10K 30/86* (2023.01)
C07D 471/16 (2006.01) *H10K 39/32* (2023.01)
H01L 27/146 (2006.01) *H10K 50/15* (2023.01)
H10K 30/30 (2023.01) *H10K 85/60* (2023.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/030239

(22) 国際出願日： 2024年8月26日(26.08.2024)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

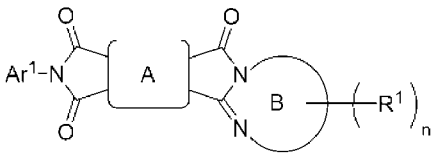
(30) 優先権データ：
特願 2023-140235 2023年8月30日(30.08.2023) JP

(71) 出願人: 東ソー株式会社 (**TOSOH CORPORATION**) [JP/JP]; 〒7468501 山口県周南市開成町４５６０番地 Yamaguchi (JP). 公益財団法人相模中央化学研究所 (**SAGAMI CHEMICAL RESEARCH INSTITUTE**) [JP/JP]; 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ Kanagawa (JP).

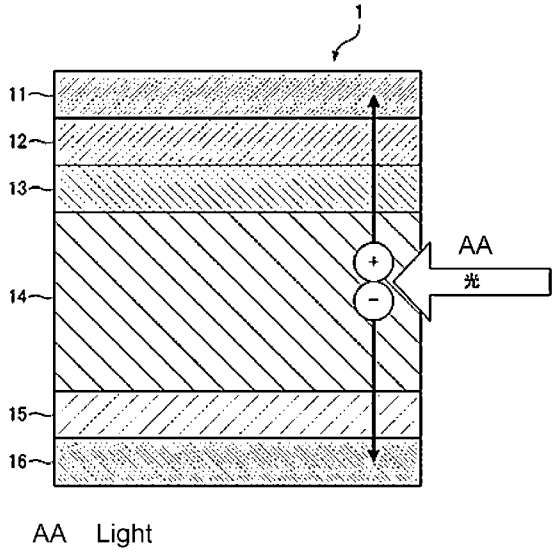
(72) 発明者: 磯田 恭佑 (**ISODA Kyosuke**); 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 公益財団法人相模中央化学研究所内 Kanagawa (JP). 松本 周也 (**MATSUMOTO Shuya**); 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 公益財団法人相模中央化学研究所内 Kanagawa (JP). 北國 智子 (**KITAGUNI Tomoko**); 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 公益財団法人相模中央化学研究所内 Kanagawa (JP). 大塚 信彦 (**OHTSUKA Nobuhiko**); 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 公益財団法人相模中央化学研究所内 Kanagawa (JP). 林 和史 (**HAYASHI Kazushi**); 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 公益財団法人相模中央化学研究所内 Kanagawa (JP). 森迫 祥吾 (**MORISAKO Shogo**); 〒2521193 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 公益財団法人相模中央化学研究所内 Kanagawa (JP). 新井 信道 (**ARAI Nobumichi**); 〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 東ソー株式会社 東京研究センター内 Kanagawa (JP). 新屋 宏和

(54) **Title:** PHOTOELECTRIC CONVERSION ELEMENT, HOLE TRANSPORT PROMOTING MATERIAL, AND COMPOUND

(54) 発明の名称： 光電変換素子、正孔輸送促進材料、および化合物



(1)



(57) **Abstract:** The present invention provides: a photoelectric conversion element in which the hole transport ability can be improved; a hole transport promoting material; and a compound. Provided is a photoelectric conversion element that includes a first electrode, a second electrode, and a light-receiving layer and an organic layer, which are disposed between the first electrode and the second electrode. The organic layer includes a hole transport layer and a hole transport promoting layer that contains an imide compound represented by formula (1), or alternatively, the organic layer includes a layer that is obtained by mixing a hole transport material and an imide compound represented by formula (1). (In formula (1), ring A represents an optionally substituted aromatic hydrocarbon ring (which may be a monocyclic ring, a fused ring, or a linked ring including a plurality of rings) having 6 to 20 carbon atoms; ring B represents an imidazole ring or a fused imidazole ring having 5 to 20 carbon atoms; R^1 represents a specific group; and Ar^1 represents a specific group.)

WO 2025/047665 A1

［続葉有］

(SHINYA Hirokazu)；〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 東ソー株式会社 東京研究センター内 Kanagawa (JP). 岡田 壮史(OKADA Takeshi)；〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１ 東ソー株式会社 東京研究センター内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人：高岡 亮一，外 (TAKAOKA Ryoichi et al.)；〒1710021 東京都豊島区西池袋５－４－７ 池袋トーセイビル５階 高岡ＩＰ特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国（表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能）：AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国（表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能）：ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：正孔の輸送能力を向上させることができる光電変換素子、正孔輸送促進材料、および化合物の提供。 第一の電極、第二の電極、および前記第一の電極と前記第二の電極の間に配置された受光層および有機層を含む光電変換素子であって、 前記有機層は、正孔輸送層、および下記式（１）で示されるイミド化合物を含有する正孔輸送促進層を含むか、または、正孔輸送材料と下記式（１）で示されるイミド化合物とを混合してなる層を含む、光電変換素子。 （式（１）中、 環Ａは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す； 環Ｂはイミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す； Ｒ^{1}は、特定の基を表す； Ａｒ^{1}は、特定の基を表す。）

明　細　書

発明の名称 ： 光電変換素子、正孔輸送促進材料、および化合物

技術分野

[0001]　本発明は、光電変換素子、正孔輸送促進材料、および化合物に関する。

背景技術

[0002]　現在、有機物を用いた新しい高機能デバイスの創製が積極的に試みられており、特に光電変換素子、有機ＥＬ素子等の有機電子素子に関する研究開発が活発に行われ、デバイスの高性能化を目指した材料・デバイス設計が進められている。例えば、動画撮影用途に用いられる光電変換素子においては、受光層で生成したキャリア（電子および正孔）を電極に運ぶ速度が遅いと残像の原因になるという問題があった。有機ＥＬ素子においては、電極から発光層へキャリアを輸送する速度が遅いと、駆動電圧を上昇させるという問題があった。したがって、デバイスの高性能化のためには、素子内でのキャリアの高効率な移動が必要とされている。

[0003]　例えば、イミド構造を有する化合物を有機薄膜太陽電池の電子輸送層に使用することが開示されている（特許文献１参照）が、有機電子素子の分野においては一層の性能向上が求められており、そのためにさらなる改良を必要としている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005]　本発明の目的は、正孔の輸送能力を向上させることができる光電変換素子、正孔の輸送能力を向上させることができる正孔輸送促進材料、および化合物を提供することである。

課題を解決するための手段

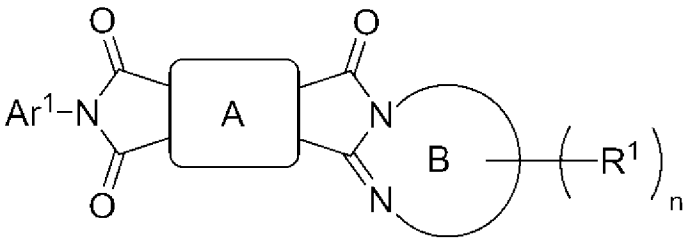
[0006] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、下記特定構造の化合物を含有する正孔輸送促進層を含むか、または、正孔輸送材料と前記化合物とを混合してなる層を含む光電変換素子において正孔輸送能力を向上させ得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0007] すなわち、本発明は以下の態様を包含するものである。

［１］ 第一の電極、第二の電極、および前記第一の電極と前記第二の電極の間に配置された受光層および有機層を含む光電変換素子であって、

前記有機層は、正孔輸送層、および下記式（１）で示される化合物を含有する正孔輸送促進層を含むか、または、正孔輸送材料と下記式（１）で示される化合物とを混合してなる層を含む、

光電変換素子。



(1)

（式（１）中、

環Ａは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

環Ｂはイミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

Ｒ１は、各々独立に、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す；

ｎは０、１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｂがイミダゾール環の場合、ｎは０、１または２を表す；

Ａｒ[1]は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

前記芳香族炭化水素環、前記芳香族炭化水素基、または前記複素芳香族基に置換されてもよい置換基としては、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基である。）

［２］　前記受光層が、少なくとも二種の有機成分を含有する層である、［１］に記載の光電変換素子。

［３］　前記有機層は、前記正孔輸送層、および前記式（１）で示されるイミド化合物を含有する前記正孔輸送促進層を含み、

前記正孔輸送促進層が、前記正孔輸送層と隣接している、［１］または［２］に記載の光電変換素子。

［４］　前記有機層は、前記正孔輸送材料と前記式（１）で示されるイミド化合物とを混合してなる前記層を含む、［１］または［２］に記載の光電変換素子。

［５］　前記式（１）におけるＲ[1]において、少なくとも１つがシアノ基である、［１］～［４］のいずれかに記載の光電変換素子。

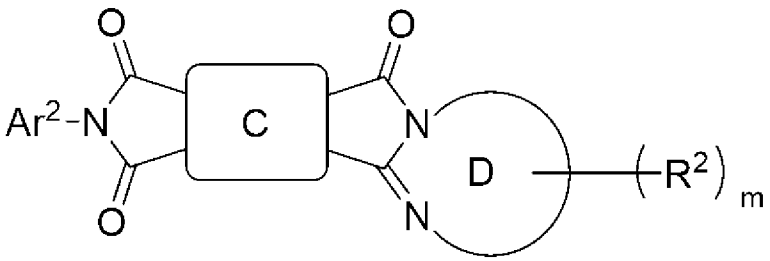
［６］　前記式（１）におけるｎが、１または２である、［１］～［５］のいずれかに記載の光電変換素子。

［７］　前記式（１）における環Ａが、ベンゼン環またはナフタレン環である、［１］～［６］のいずれかに記載の光電変換素子。

［８］　前記式（１）におけるＡｒ[1]が、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいナフチル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいピラジル基、置換されていてもよいピリミジル基、置換されていてもよいトリアジル基、置換されていてもよいキノリル基、置換されていてもよいイソキノリル基、置換されていてもよいキノキサリル基、または置換されていてもよいキナゾリニル基である、［１］～［７］のいずれかに記載の光電変換素子。

［９］　前記式（１）におけるＡｒ[1]が、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、キノリル基、シアノキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基である、［１］～［８］のいずれかに記載の光電変換素子。

［１０］　下記式（１ａ）で示される正孔輸送促進材料。



(1a)

（式（１ａ）中、

環Ｃは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

環Ｄはイミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

Ｒ[2]は、各々独立に、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル

基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す；

ｍは０、１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｄがイミダゾール環の場合、ｍは０、１または２を表す；

Ａｒ^{2}は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

前記芳香族炭化水素環、前記芳香族炭化水素基、または前記複素芳香族基に置換されてもよい置換基としては、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基である。）

［１１］　前記式（１ａ）におけるＲ^{2}において、少なくとも１つがシアノ基である、［１０］に記載の正孔輸送促進材料。

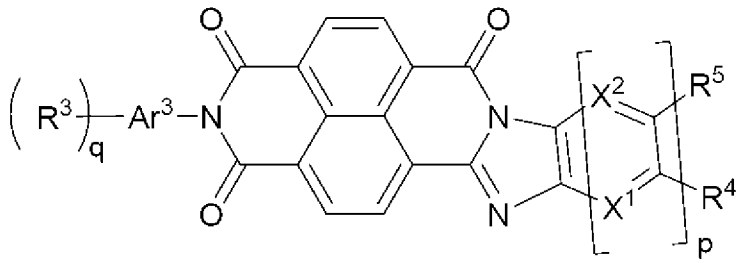
［１２］　前記式（１ａ）におけるｍが、１または２である、［１０］または［１１］に記載の正孔輸送促進材料。

［１３］　前記式（１ａ）における環Ｃが、ベンゼン環またはナフタレン環である、［１０］～［１２］のいずれかに記載の正孔輸送促進材料。

［１４］　前記式（１ａ）におけるAr^2が、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいナフチル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいピラジル基、置換されていてもよいピリミジル基、置換されていてもよいトリアジル基、置換されていてもよいキノリル基、置換されていてもよいイソキノリル基、置換されていてもよいキノキサリル基、または置換されていてもよいキナゾリニル基である、［１０］～［１３］のいずれかに記載の正孔輸送促進材料。

［１５］　前記式（１ａ）におけるAr^2が、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、キノリル基、シアノキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基である、［１０］～［１４］のいずれかに記載の正孔輸送促進材料。

［１６］　式（１ｂ）で示されるイミド化合物。



(1b)

（式（１ｂ）中、

ｐは、０、１、または２を表す；

ｑは、１、２、３、４または５を表す；

X^1は窒素原子または$C-R^6$を表す；

X^2は窒素原子または$C-R^7$を表す；

Ar^3は、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す

；

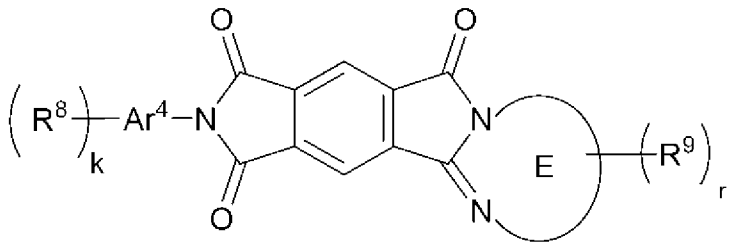
Ｒ[3]は、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい；

Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、およびＲ[7]は、各々独立に、水素原子またはシアノ基を表す；

ただし、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、およびＲ[7]のうち、少なくとも２つはシアノ基である。）

［１７］　前記式（１ｂ）におけるＡｒ[3]がフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピラジル基、またはピリミジル基である、［１６］に記載のイミド化合物。

［１８］　式（１ｃ）で示されるイミド化合物。



(1c)

（式（１ｃ）中、

ｋは、０、１、２、３、４または５を表す；

環Ｅは、イミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

ｒは１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｅがイミダゾール環の場合、ｒは１または２を表す；

Ｒ[8]は、各々独立に、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～

２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい；

Ar^4は、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～１８の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

R^9は、各々独立に、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい。）

［１９］　前記式（１ｃ）におけるR^9において、少なくとも１つがシアノ基である、［１８］に記載のイミド化合物。

［２０］　前記式（１ｃ）におけるAr^4がフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピラジル基、またはピリミジル基である、［１８］または［１９］に記載のイミド化合物。

［２１］　前記式（１ｃ）における環Ｅが、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、またはイミダゾピラジン環である、［１８］～［２０］のいずれかに記載のイミド化合物。

発明の効果

[0008] 本発明により、正孔の輸送能力を向上させることができる光電変換素子、正孔の輸送能力を向上させることができる正孔輸送促進材料、および化合物を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明に係る光電変換素子の積層構成の一例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0010] （光電変換素子）

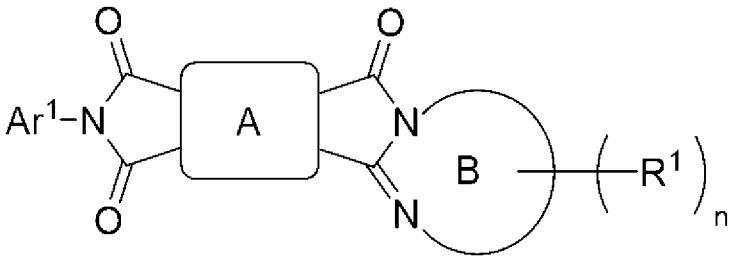
本発明は、光電変換素子を対象とし、該光電変換素子において、下記特定構造の化合物を含有する正孔輸送促進層を含むか、または、正孔輸送材料と前記化合物とを混合してなる層を含むことにより、正孔の輸送能力を向上させることができる光電変換素子を提供するものである。

本発明の光電変換素子は、光エネルギーを電気エネルギーや電気信号に変換する素子であり、撮像素子、光センサ、太陽電池等を含む。

[0011] 本発明の光電変換素子は、第一の電極、第二の電極、および第一の電極と第二の電極の間に配置された有機層を含む。

有機層は、正孔輸送層、および下記式（１）で示されるイミド化合物（以下、単に「イミド化合物（１）」と称することがある。）を含有する正孔輸送促進層を含むか、または、正孔輸送材料とイミド化合物（１）とを混合してなる層を含む。

[0012] [化1]



(1)

イミド化合物（１）についての詳しい説明は、後述する。

ここで、正孔輸送層は正孔を輸送する役割を有し、正孔輸送材料を含有する。正孔輸送促進層は、第一の電極と正孔輸送層の間に配置され、正孔輸送と電極の間の正孔のやりとりをスムーズにする役割を有し、正孔輸送促進材料を含有する。

本発明では、イミド化合物（１）は、正孔輸送促進材料として用いられる。

[0013] 本発明の光電変換素子は、第一の電極、第二の電極、および第一の電極と第二の電極の間に配置された有機層および受光層を含む。

以下、光電変換素子の素子構成について説明する。

[0014] ＜光電変換素子の構成＞

本発明に係る光電変換素子は、第一の電極、第二の電極、および第一の電極と第二の電極の間に配置された有機層を含み、有機層は正孔輸送領域を含む。正孔輸送領域は、第一の電極と受光層との間の領域を指し、例えば正孔輸送層及び正孔輸送促進層を含む。

本発明では、正孔輸送促進層に含有される正孔輸送促進材料（または正孔輸送材料と混合してなる層に含有される正孔輸送促進材料）として、上記イミド化合物（１）を用いることができる。

正孔輸送領域は、好ましくは第一の電極に隣接している。

光電変換素子は、他の層を含むことができる。他の層としては一般に光電変換素子に使用される層が挙げられる。例えば、受光層、電子輸送層、正孔阻止層、電子阻止層、バッファ層等が挙げられるが、これらに限定されない。

[0015] 本発明に係る光電変換素子は、例えば、第一の電極、正孔輸送促進層、正孔輸送層、および第二の電極がこの順で積層されているか、または第一の電極、正孔輸送層を形成する正孔輸送材料と上記イミド化合物（１）とが混合されてなる層、および第二の電極がこの順で積層されている。

また、光電変換素子は、例えば、第一の電極、正孔輸送促進層、および正孔輸送層がこの順で隣接して積層されていてもよいし、第一の電極と正孔輸送促進層の間、または正孔輸送促進層と正孔輸送層の間にバッファ層等の他の層が介在していてもよい。

[0016] 一形態において、本発明に係る光電変換素子は、第一の電極、正孔輸送促進層、正孔輸送層、受光層、および第二の電極がこの順で積層されている。別の形態において、本発明に係る光電変換素子は、第一の電極、正孔輸送促進層、正孔輸送層、受光層、電子輸送層、および第二の電極がこの順で積層

されている。上記各層は隣接して積層されていてもよいし、上記任意の層と層の間に他の層が介在していてもよい。

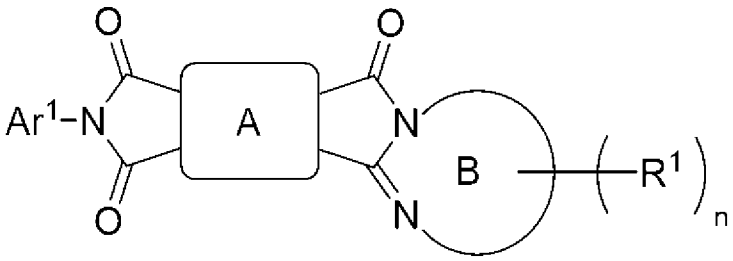
[0017] 光電変換素子は、第一の電極側および第二の電極側のいずれから光が入射してもよく、第一の電極および第二の電極のいずれが透明電極であってもよい。例えば、透明電極（第二の電極）、電子輸送層、受光層、正孔輸送層、正孔輸送促進層、および金属電極（第一の電極）の順に積層された構造であってよく、透明電極（第一の電極）、正孔輸送促進層、正孔輸送層、受光層、電子輸送層、及び金属電極（第二の電極）の順に積層された構造であってもよい。更に、第一の電極および第二の電極は共に透明電極であってもよい。

[0018] 次に、本発明の光電変換素子において、正孔輸送促進材料として有機層に含有されるイミド化合物（１）について説明する。

[0019] ＜イミド化合物（１）＞

本発明の光電変換素子における有機層は、下記イミド化合物（１）を含有する。

[0020] [化2]



(1)

[0021] （式（１）中、

環Ａは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

環Ｂはイミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

Ｒ[1]は、各々独立に、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、

トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す；

ｎは０、１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｂがイミダゾール環の場合、ｎは０、１または２を表す；

Ａｒ[1]は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

前記芳香族炭化水素環、前記芳香族炭化水素基、または前記複素芳香族基に置換されてもよい置換基としては、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基である。）

[0022] 本明細書中、Ａｒ[1]は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。

[0023] Ａｒ[1]における炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、ピレニル基、ペリレニル

基、トリフェニレニル基、テトラセニル基、クリセニル基、フルオレニル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、９，９－ジフェニルフルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ビフェニリル基、ターフェニル基、ナフチルフェニル基、フェニルナフチル基、ビナフチル基、アントリルフェニル基、フェニルアントリル基、等が挙げられる。

Ａｒ[1]における炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）としては、例えば、ピリジル基、ピリミジル基、ピラジル基、トリアジル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリル基、キナゾリニル基、ピリドピリミジニル基、ベンゾキノリル基、ベンゾイソキノリル基、フェナントロリル基、フェナントリジル基、アクリジル基、フェナジニル基、フェノキサジニル基、フェノチアジニル基、ベンゾキノキサリル基、ヘキサアザトリフェニレニル基、チエニル基、フリル基、ベンゾチエニル基、ベンゾフリル基、イソベンゾフリル基、ジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、ベンゾオキサゾリル基、ピロール基、インドール基、イソインドール基、インドリジニル基、プリン基、イミダゾリル基、カルバゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾール基、ビピリジル基、フェニルピリジル基、ジフェニルピリミジル基、ターピリジル基、ジフェニルピリミジル基、ジピリジルピリミジル基、フェニルピラジル基、ピリジルピラジル基、ジフェニルトリアジル基、ジピリジルトリアジル基、フェニルキノリル基、ピリジルキノリル基、フェニルイソキノリル基、ピリジルイソキノリル基等が挙げられる。

Ａｒ[1]は、フェニル基、ナフチル基、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、トリアジル基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリル基、キナゾリニル基が好ましく、素子特性が優れる点でフェニル基、ピリジル基、ピラジル基またはキノリル基が更に好ましい。更に、これらの基は後述の置換基で置換されていてもよく、その置換基がシアノ基であることがより好ましい。

[0024] 本明細書中、Ｒ[1]はヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基

、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す。

[0025] Ｒ[1]の具体例としては、特に限定するものではないが、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、パーフルオロエチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロペンチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロヘプチル基、パーフルオロオクチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、イソプロピル基、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、トリシアノフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、フルオロフェニル基、ジフルオロフェニル基、トリフルオロフェニル基、パーフルオロフェニル基、ビフェニル基、ピリジルフェニル基、ビスピリジルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、ビストリフルオロメチルフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、フェニルナフチル基、ピリジルナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、テトラセニル基、クリセニル基、フルオレニル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、９，９－ジフェニルフルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ビフェニリル基、ターフェニル基、ナフチルフェニル基、フェニルナフチル基、ビナフチル基、アントリルフェニル基、フェニルアントリル基、ナフチルアントリル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、トリシアノピ

リジル基、メチルピリジル基、ジメチルピリジル基、トリメチルピリジル基、フルオロピリジル基、ジフルオロピリジル基、トリフルオロピリジル基、テトラフルオロピリジル基、フェニルピリジル基、ジフェニルピリジル基、ビピリジル基、ターピリジル基、トリフルオロメチルピリジル基、ビストリフルオロメチルピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、トリシアノピリミジル基、メチルピリミジル基、ジメチルピリミジル基、トリメチルピリミジル基、フルオロピリミジル基、ジフルオロピリミジル基、トリフルオロピリミジル基、テトラフルオロピリミジル基、フェニルピリミジル基、ジフェニルピリミジル基、ピリジルピリミジル基、ビスピリジルピリミジル基、トリフルオロメチルピリミジル基、ビストリフルオロメチルピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、トリシアノピラジル基、メチルピラジル基、ジメチルピラジル基、トリメチルピラジル基、フルオロピラジル基、ジフルオロピラジル基、トリフルオロピラジル基、テトラフルオロピラジル基、フェニルピラジル基、ピリジルピラジル基、トリフルオロメチルピラジル基、ビストリフルオロメチルピラジル基、トリアジル基、シアノトリアジル基、ジシアノトリアジル基、メチルトリアジル基、ジメチルトリアジル基、フルオロトリアジル基、ジフルオロトリアジル基、フェニルトリアジル基、ジフェニルトリアジル基、ピリジルトリアジル基、ビスピリジルトリアジル基、トリフルオロメチルトリアジル基、ビストリフルオロメチルトリアジル基、キノリル基、シアノキノリル基、ジシアノキノリル基、フェニルキノリル基、ピリジルキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、ジシアノイソキノリル基、フェニルイソキノリル基、ピリジルイソキノリル基、キノキサリル基、シアノキノキサリル基、ジシアノキノキサリル基、フェニルキノキサリル基、ピリジルキノキサリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基、ジシアノキナゾリニル基、フェニルキナゾリニル基、ピリジルキナゾリニル基、ピリドピリミジニル基、シアノピリドピリミジニル基、ジシアノピリドピリミジニル基、ベンゾキノリル基、シアノベンゾキノリル基、ジシアノベンゾキノリル

基、ベンゾイソキノリル基、シアノベンゾイソキノリル基、ジシアノベンゾイソキノリル基、フェナントロリル基、シアノフェナントロリル基、ジシアノフェナントロリル基、フェナントリジル基、シアノフェナントリジル基、ジシアノフェナントリジル基、アクリジル基、シアノアクリジル基、ジシアノアクリジル基、フェナジニル基、シアノフェナジニル基、ジシアノフェナジニル基、フェノキサジニル基、シアノフェノキサジニル基、フェノチアジニル基、シアノフェノチアジニル基、ベンゾキノキサリル基、シアノベンゾキノキサリル基、ヘキサアザトリフェニレニル基、ペンタシアノヘキサアザトリフェニル基、チエニル基、シアノチエニル基、ジシアノチエニル基、フリル基、シアノフリル基、ジシアノフリル基、ベンゾチエニル基、シアノベンゾチエニル基、ジシアノベンゾチエニル基、ベンゾフリル基、シアノベンゾフリル基、ジシアノベンゾフリル基、イソベンゾフリル基、シアノイソベンゾフリル基、ジシアノイソベンゾフリル基、ジベンゾチオフェニル基、シアノジベンゾチオフェニル基、ジシアノジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、シアノジベンゾフラニル基、ジシアノジベンゾフラニル基、ベンゾオキサゾールイル基、シアノベンゾオキサゾールイル基、ジシアノベンゾオキサゾールイル基、ピロールイル基、シアノピロールイル基、インドールイル基、ジシアノインドールイル基、イソインドールイル基、シアノイソインドールイル基、ジシアノイソインドールイル基、インドリジニル基、シアノインドリジニル基、プリン基、シアノプリン基、イミダゾールイル基、シアノイミダゾールイル基、ジシアノイミダゾールイル基、カルバゾリル基、シアノカルバゾリル基、ジシアノカルバゾリル基、チアゾールイル基、チアジアゾールイル基、トリアゾールイル基等が挙げられる。

この中で、シアノ基、フッ素原子、トリフルオロメチル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、キノリル基、シアノキノリル基、ジシアノキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノ

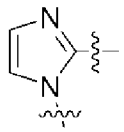
リル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基、キノキサリル基、またはシアノキノキサリル基が好ましく、素子性能が優れる点で、R^1が少なくとも１つのシアノ基を有していることが更に好ましい。

[0026] 本明細書中、式（１）中の環Ａは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。ここで炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）としては、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、ペリレン環、トリフェニレン環、テトラセン環、クリセン環、フルオレン環、９，９－ジメチルフルオレン環、９，９－ジフェニルフルオレン環、スピロビフルオレン環、ビフェニル環、ターフェニル環等が挙げられる。環Ａは、合成が容易な点でベンゼン環、ナフタレン環、またはペリレン環が好ましく、素子性能が優れる点でベンゼン環またはナフタレン環が好ましい。

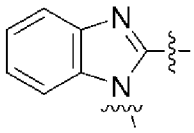
[0027] 式（１）中の環Ｂは、イミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す。環Ｂの具体例としては、例えば下記の（Ｂ－１）から（Ｂ－１５）が好ましい例として挙げられる。環Ｂは、合成が容易な点で（Ｂ－１）のイミダゾール環、（Ｂ－２）のベンゾイミダゾール環、または（Ｂ－９）のイミダゾピラジン環が好ましく、素子性能が優れる点で（Ｂ－１）が更に好ましい。

[0028]

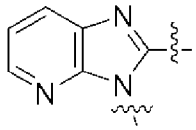
[化3]



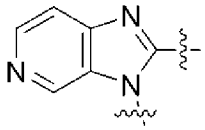
(B-1)



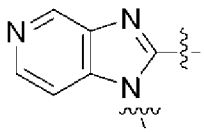
(B-2)



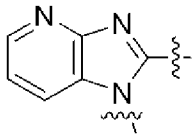
(B-3)



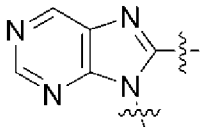
(B-4)



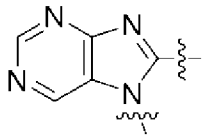
(B-5)



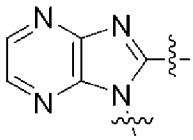
(B-6)



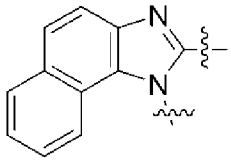
(B-7)



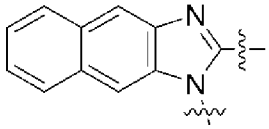
(B-8)



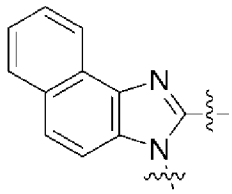
(B-9)



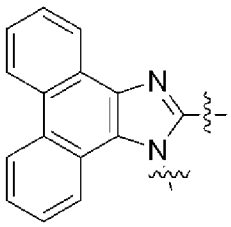
(B-10)



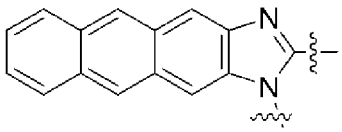
(B-11)



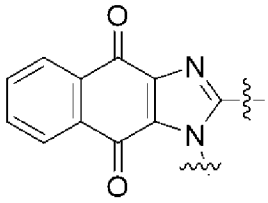
(B-12)



(B-13)



(B-14)



(B-15)

[0029] 環Ａにおける芳香族芳炭化水素環、Ａｒ[1]における芳香族炭化水素基、およびＡｒ[1]における複素芳香族基は置換基を有していてもよい。

ここでの置換基は、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基も

しくは原子が組み合わさった基である。

[0030] これら置換基の具体例としては、特に限定するものでは無いが、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、トリシアノフェニル基、フルオロフェニル基、ジフルオロフェニル基、トリフルオロフェニル基、パーフルオロフェニル基、ビフェニル基、ピリジルフェニル基、ビスピリジルフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、フェニルナフチル基、ピリジルナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、テトラセニル基、クリセニル基、フルオレニル基、９，９－ジフェニルフルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ビフェニリル基、ターフェニル基、ナフチルフェニル基、フェニルナフチル基、ビナフチル基、アントリルフェニル基、フェニルアントリル基、ナフチルアントリル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、トリシアノピリジル基、フルオロピリジル基、ジフルオロピリジル基、トリフルオロピリジル基、テトラフルオロピリジル基、フェニルピリジル基、ジフェニルピリジル基、ビピリジル基、ターピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、トリシアノピリミジル基、フルオロピリミジル基、ジフルオロピリミジル基、トリフルオロピリミジル基、テトラフルオロピリミジル基、フェニルピリミジル基、ジフェニルピリミジル基、ピリジルピリミジル基、ビスピリジルピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、トリシアノピラジル基、フルオロピラジル基、ジフルオロピラジル基、トリフルオロピラジル基、テトラフルオロピラジル基、フェニルピラジル基、ピリジルピラジル基、トリアジル基、シアノトリアジル基、ジシアノトリアジル基、フルオロトリアジル基、ジフルオロトリアジル基、フェニルトリアジル基、ジフェニルトリアジル基、ピリジルトリアジル基、ビスピリジルトリアジル基、キノリル基、シアノキノリル基、ジシアノキノリル基、フェニルキノリル基、ピリジルキノリル基、イソキノリル基

、シアノイソキノリル基、ジシアノイソキノリル基、フェニルイソキノリル基、ピリジルイソキノリル基、キノキサリル基、シアノキノキサリル基、ジシアノキノキサリル基、フェニルキノキサリル基、ピリジルキノキサリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基、ジシアノキナゾリニル基、フェニルキナゾリニル基、ピリジルキナゾリニル基、ピリドピリミジニル基、シアノピリドピリミジニル基、ジシアノピリドピリミジニル基、ベンゾキノリル基、シアノベンゾキノリル基、ジシアノベンゾキノリル基、ベンゾイソキノリル基、シアノベンゾイソキノリル基、ジシアノベンゾイソキノリル基、フェナントロリル基、シアノフェナントロリル基、ジシアノフェナントロリル基、フェナントリジル基、シアノフェナントリジル基、ジシアノフェナントリジル基、アクリジル基、シアノアクリジル基、ジシアノアクリジル基、フェナジニル基、シアノフェナジニル基、ジシアノフェナジニル基、フェノキサジニル基、シアノフェノキサジニル基、フェノチアジニル基、シアノフェノチアジニル基、ベンゾキノキサリル基、シアノベンゾキノキサリル基、ヘキサアザトリフェニレニル基、ペンタシアノヘキサアザトリフェニル基、チエニル基、シアノチエニル基、ジシアノチエニル基、フリル基、シアノフリル基、ジシアノフリル基、ベンゾチエニル基、シアノベンゾチエニル基、ジシアノベンゾチエニル基、ベンゾフリル基、シアノベンゾフリル基、ジシアノベンゾフリル基、イソベンゾフリル基、シアノイソベンゾフリル基、ジシアノイソベンゾフリル基、ジベンゾチオフェニル基、シアノジベンゾチオフェニル基、ジシアノジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、シアノジベンゾフラニル基、ジシアノジベンゾフラニル基、ベンゾオキサゾールイル基、シアノベンゾオキサゾールイル基、ジシアノベンゾオキサゾールイル基、ピロールイル基、シアノピロールイル基、インドールイル基、ジシアノインドールイル基、イソインドールイル基、シアノイソインドールイル基、ジシアノイソインドールイル基、インドリジニル基、シアノインドリジニル基、プリン基、シアノプリン基、イミダゾールイル基、シアノイミダゾールイル基、ジシアノイミダゾールイル基、カルバゾリル基、シアノカルバゾ

リル基、ジシアノカルバゾリル基、チアゾールイル基、チアジアゾールイル基、トリアゾールイル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロエチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロペンチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロヘプチル基、パーフルオロオクチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、イソプロピル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、ビストリフルオロメチルフェニル基、メチルピリジル基、ジメチルピリジル基、トリメチルピリジル基、トリフルオロメチルピリジル基、ビストリフルオロメチルピリジル基、メチルピリミジル基、ジメチルピリミジル基、トリメチルピリミジル基、トリフルオロメチルピリミジル基、ビストリフルオロメチルピリミジル基、メチルピラジル基、ジメチルピラジル基、トリメチルピラジル基、トリフルオロメチルピラジル基、ビストリフルオロメチルピラジル基、メチルトリアジル基、ジメチルトリアジル基、トリフルオロメチルトリアジル基、ビストリフルオロメチルトリアジル基等が挙げられる。このなかで、素子性能に優れる点でフェニル基、ナフチル基、ピリジル基、ピラジル基、ピリミジル基、シアノ基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、シアノピリジル基、またはジシアノピリジル基が好ましく、合成が容易な点でシアノ基が更に好ましい。

[0031] ｎは０、１、２、３、または４を表す。ただし、環Ｂがイミダゾール環の場合、ｎは０、１または２を表す。

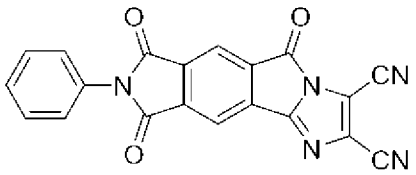
素子性能が優れる点で、ｎは１、２、３または４であることが好ましく、合成が容易な点で１または２であることが更に好ましい。

[0032] イミド化合物（１）の好ましい具体例を以下に示すが、本発明の化合物はこれらに限定されない。イミド化合物（１）としては、下記式（Ｃ－１）～（Ｃ－４１６）で示される化合物を例示することができる。中でも、（Ｃ－

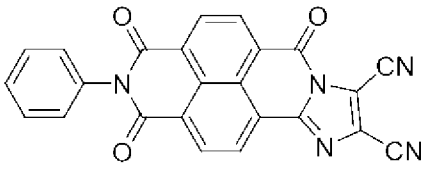
１）～（Ｃ－１４０）で表される化合物がより好ましく、（Ｃ－２）、（Ｃ－６）、（Ｃ－１０）、（Ｃ－５２）、（Ｃ－７２）および（Ｃ－８２）で表される化合物がさらに好ましい。

[0033]

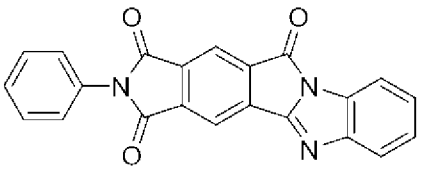
[化4]



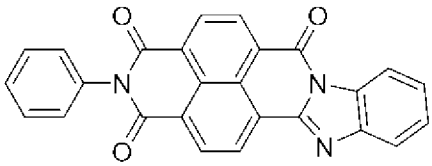
(C-1)



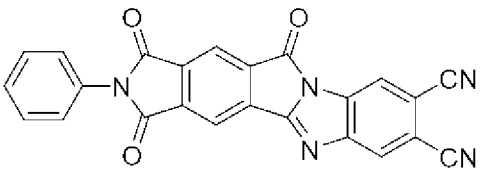
(C-2)



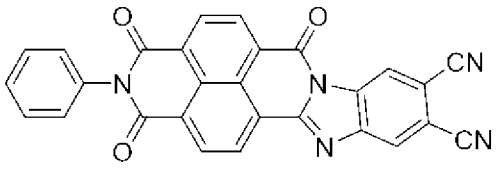
(C-3)



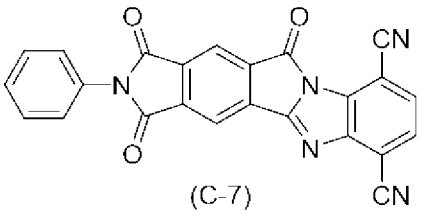
(C-4)



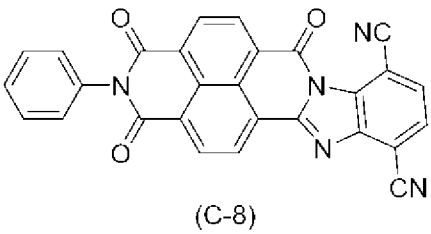
(C-5)



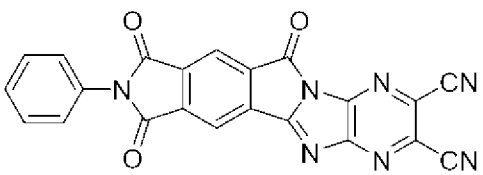
(C-6)



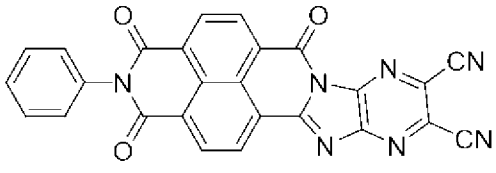
(C-7)



(C-8)

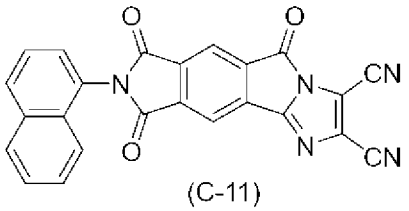


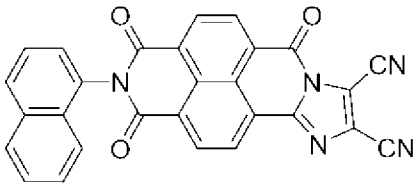
(C-9)

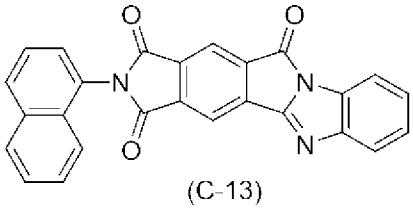


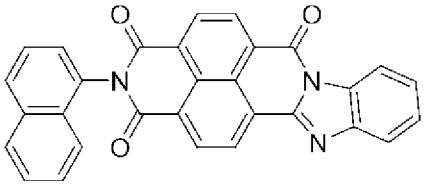
(C-10)

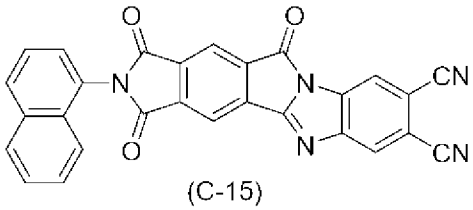
[0034] [化5]

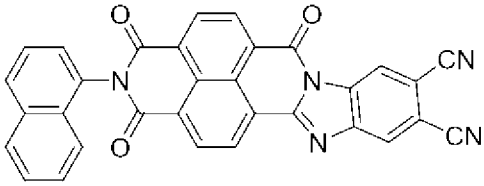

(C-11)

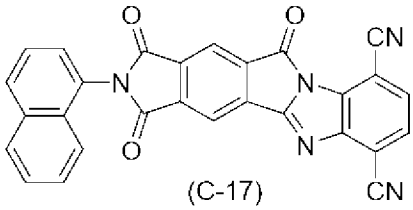

(C-12)

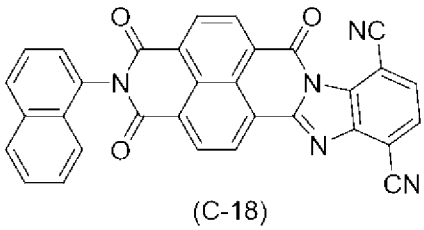

(C-13)

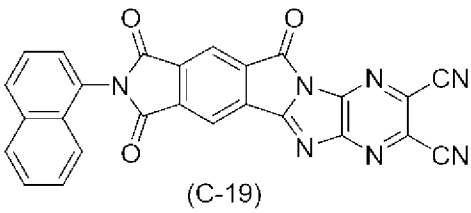

(C-14)

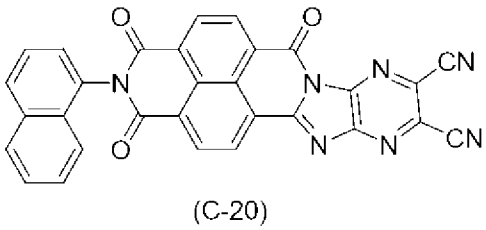

(C-15)


(C-16)


(C-17)

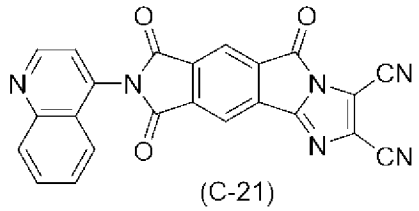

(C-18)


(C-19)

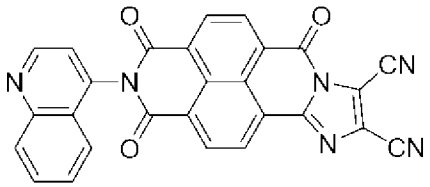

(C-20)

[0035]

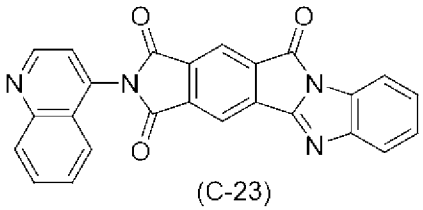
[化6]



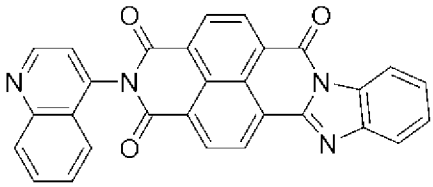
(C-21)



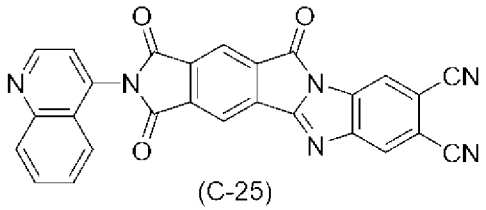
(C-22)



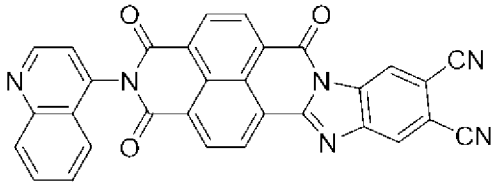
(C-23)



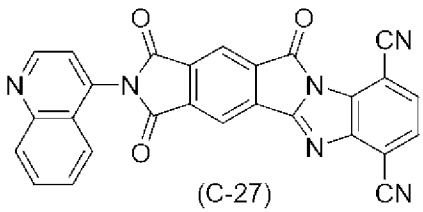
(C-24)



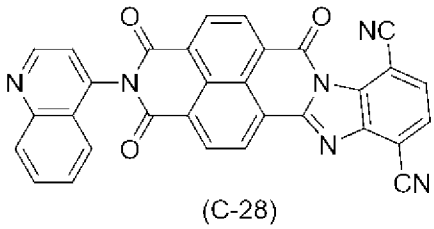
(C-25)



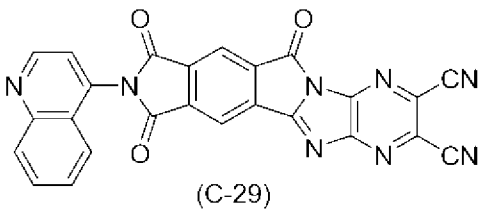
(C-26)



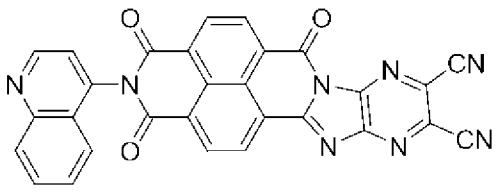
(C-27)



(C-28)



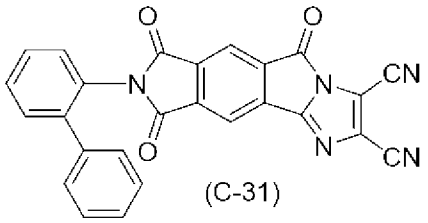
(C-29)

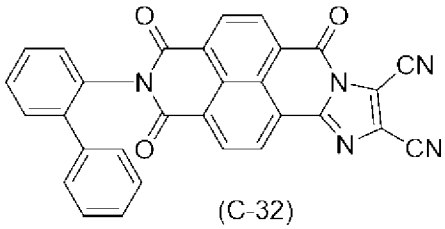


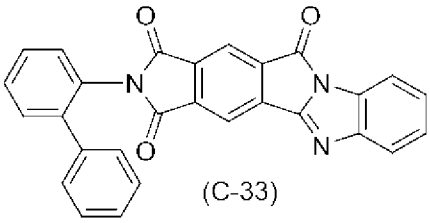
(C-30)

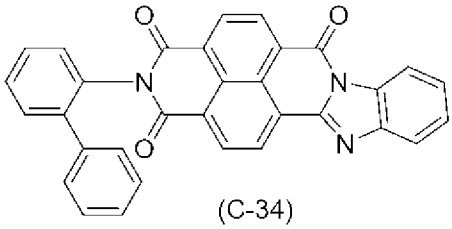
[0036]

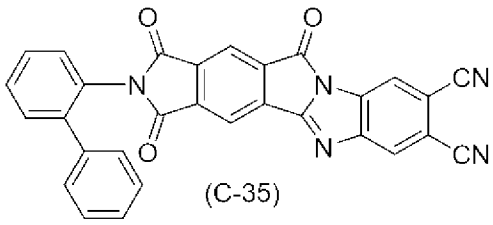
[化7]

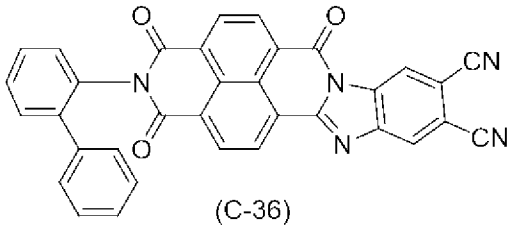

(C-31)

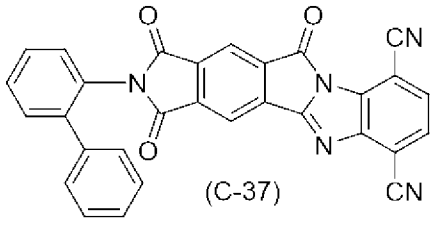

(C-32)

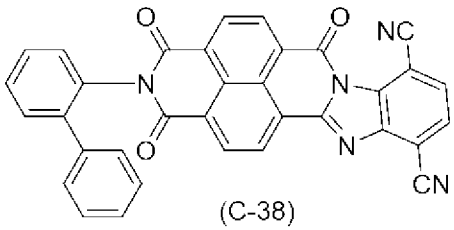

(C-33)

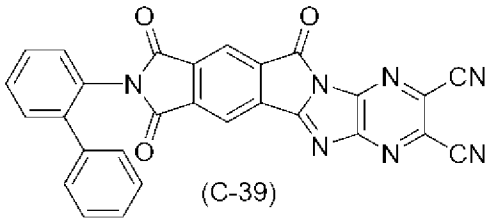

(C-34)

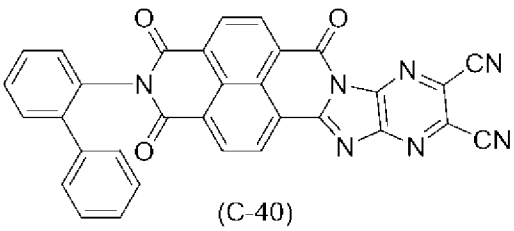

(C-35)


(C-36)

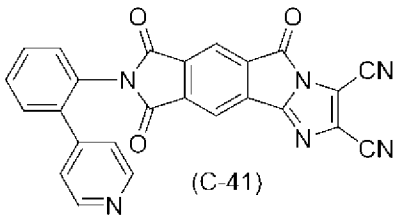

(C-37)

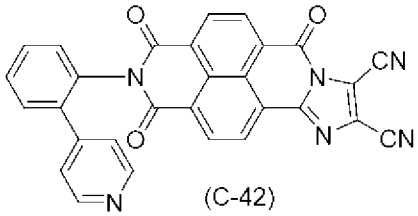

(C-38)

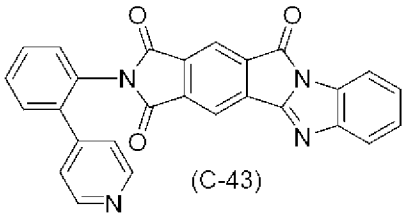

(C-39)

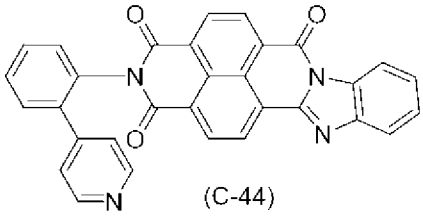

(C-40)

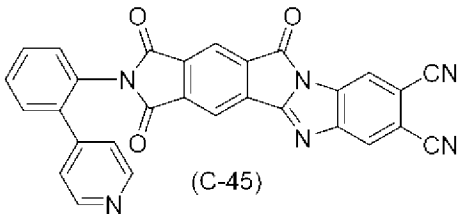
[0037] [化8]

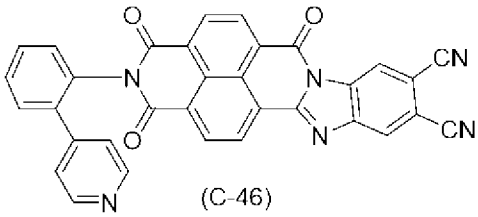

(C-41)

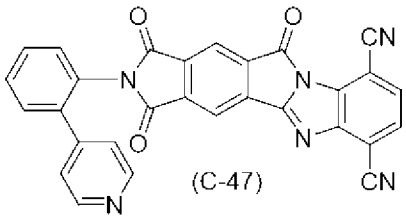

(C-42)

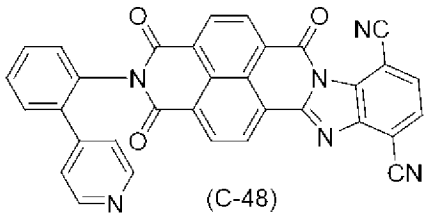

(C-43)

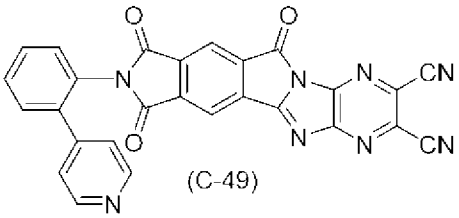

(C-44)

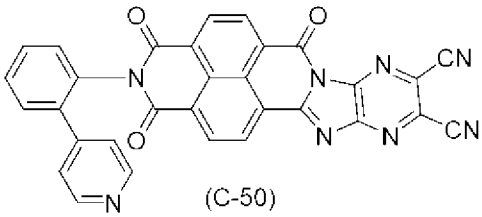

(C-45)


(C-46)


(C-47)

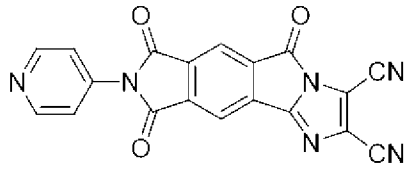

(C-48)


(C-49)

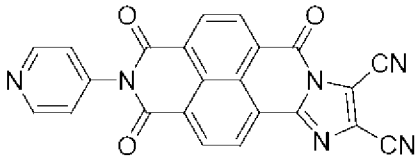

(C-50)

[0038]

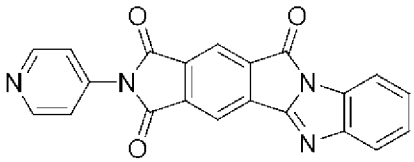
[化9]



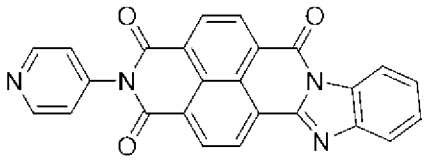
(C-51)



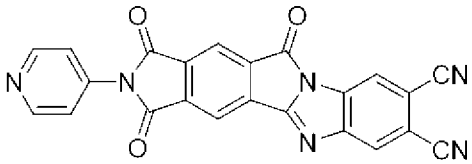
(C-52)



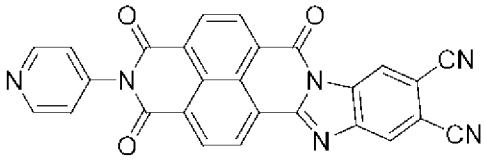
(C-53)



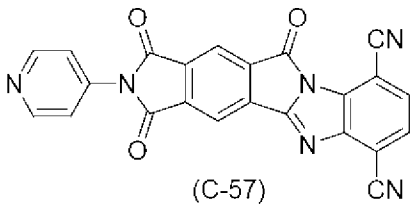
(C-54)



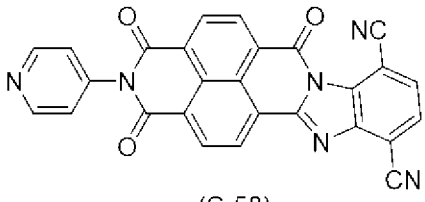
(C-55)



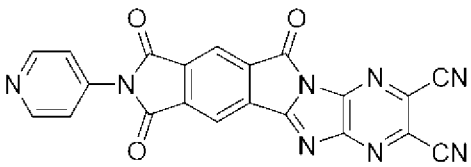
(C-56)



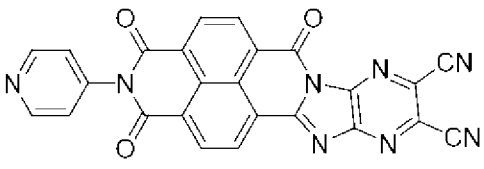
(C-57)



(C-58)



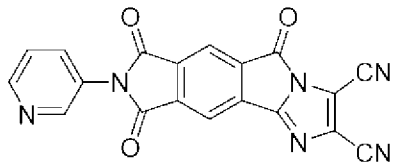
(C-59)



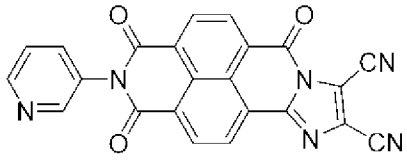
(C-60)

[0039]

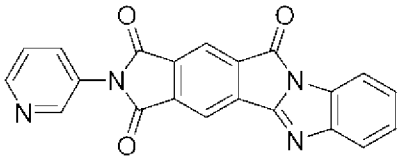
[化10]



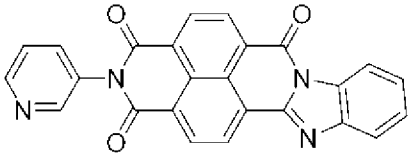
(C-61)



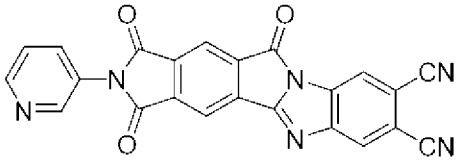
(C-62)



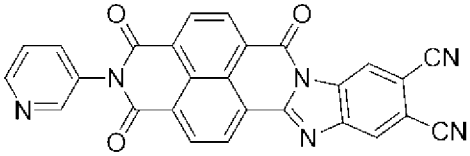
(C-63)



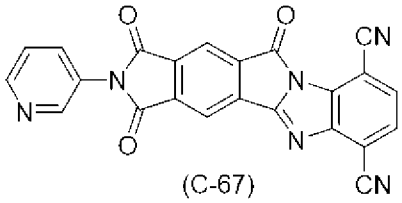
(C-64)



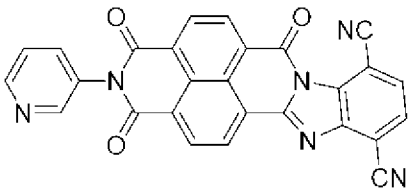
(C-65)



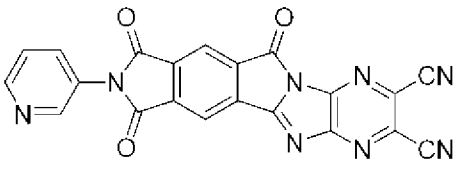
(C-66)



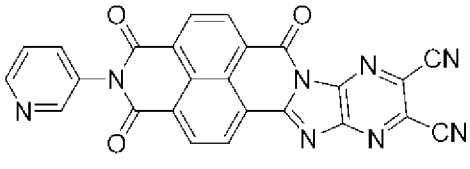
(C-67)



(C-68)



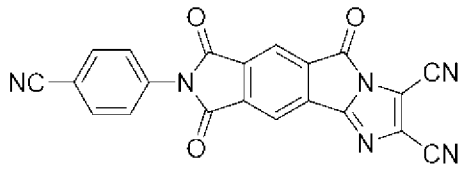
(C-69)

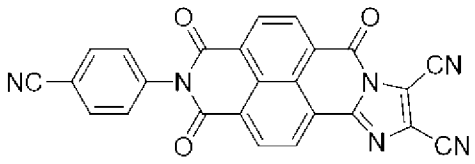


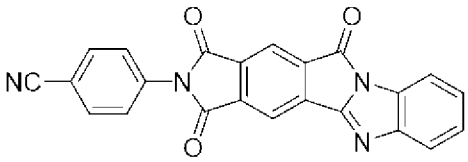
(C-70)

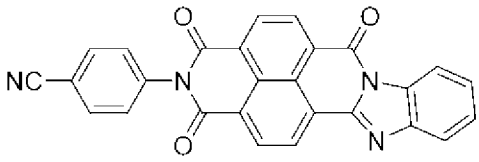
[0040]

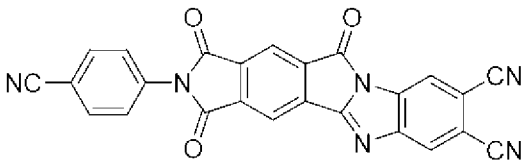
[化11]

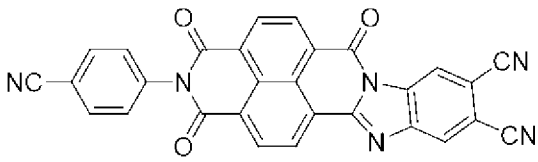

(C-71)

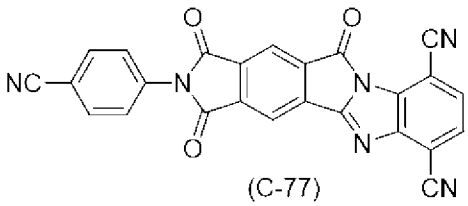

(C-72)

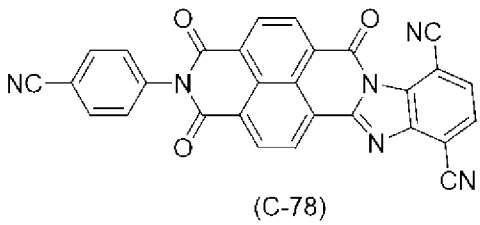

(C-73)

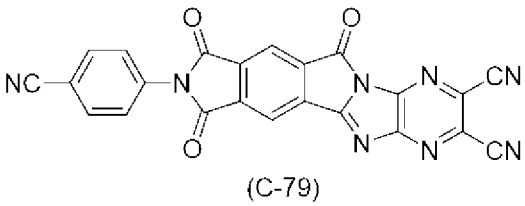

(C-74)

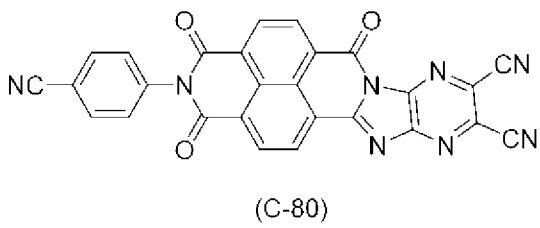

(C-75)


(C-76)


(C-77)

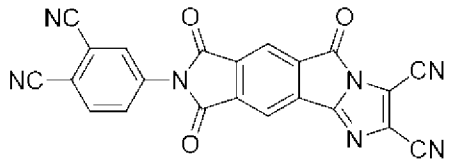

(C-78)


(C-79)

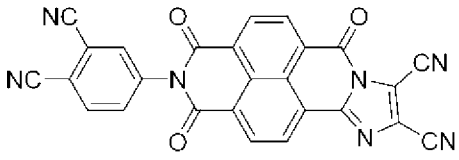

(C-80)

[0041]

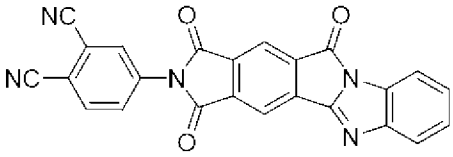
[化12]



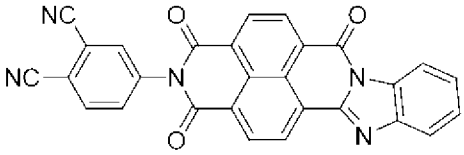
(C-81)



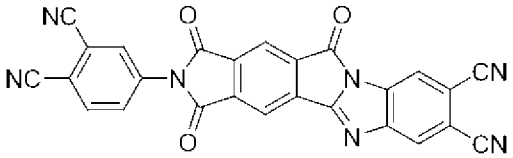
(C-82)



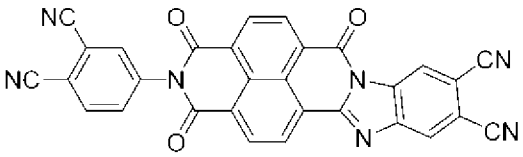
(C-83)



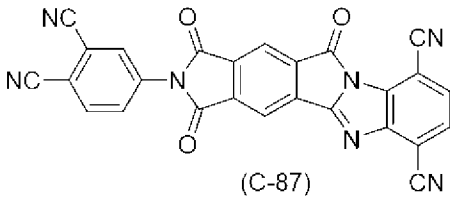
(C-84)



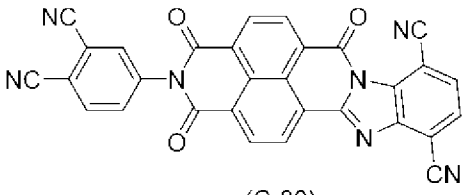
(C-85)



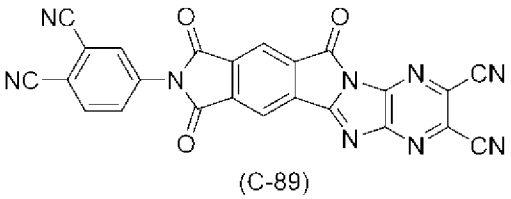
(C-86)



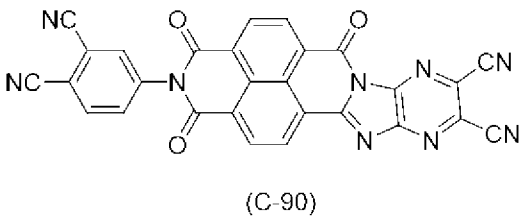
(C-87)



(C-88)



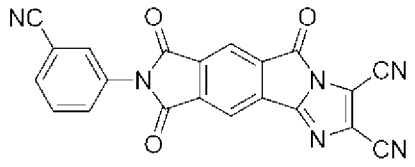
(C-89)



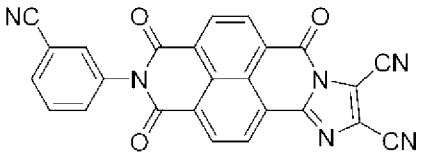
(C-90)

[0042]

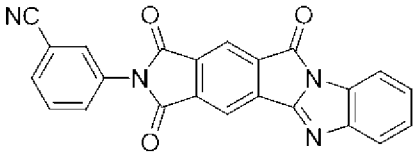
[化13]



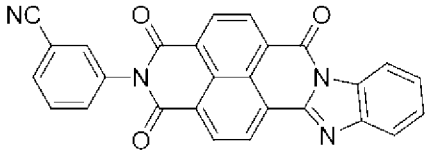
(C-91)



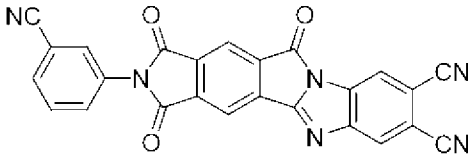
(C-92)



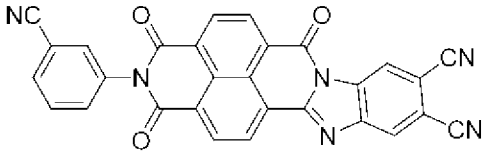
(C-93)



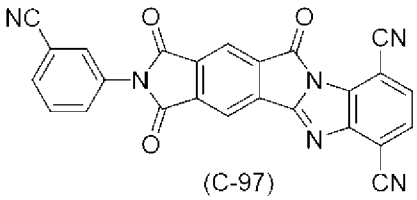
(C-94)



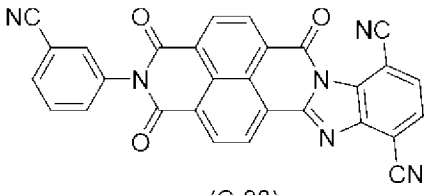
(C-95)



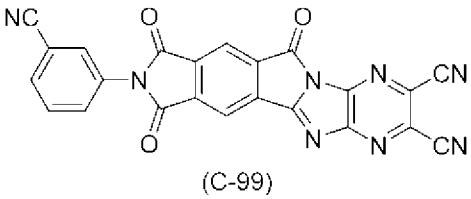
(C-96)



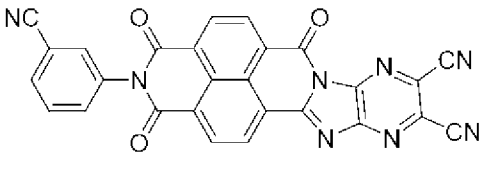
(C-97)



(C-98)



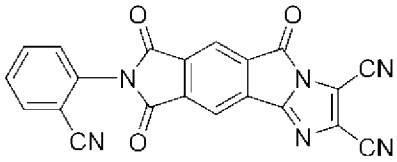
(C-99)



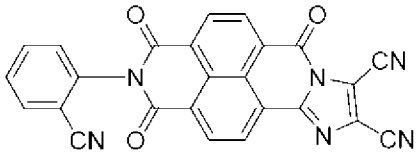
(C-100)

[0043]

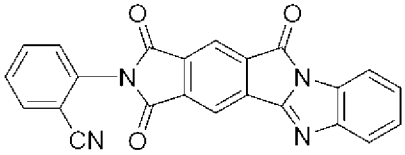
[化14]



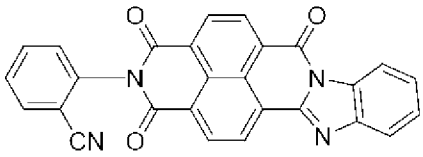
(C-101)



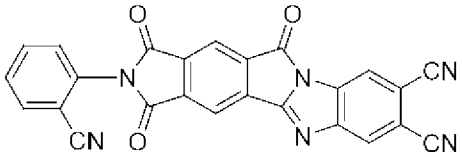
(C-102)



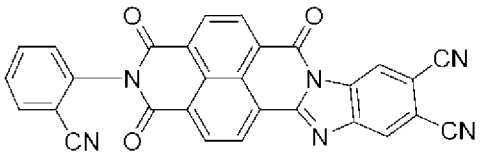
(C-103)



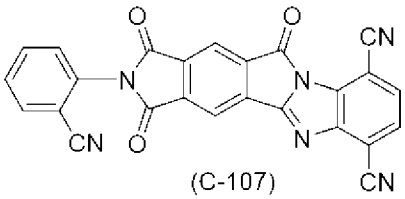
(C-104)



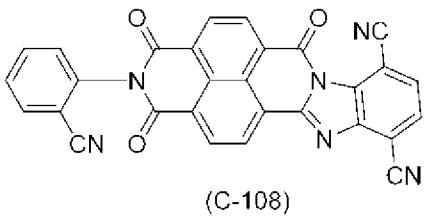
(C-105)



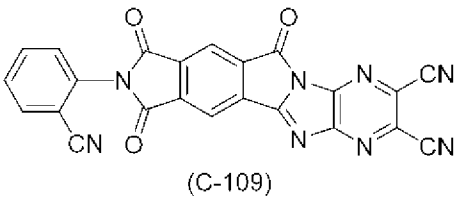
(C-106)



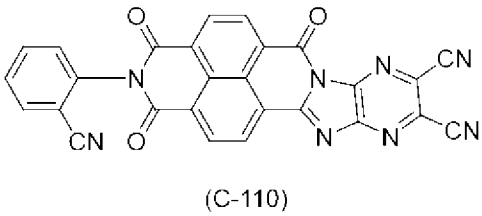
(C-107)



(C-108)



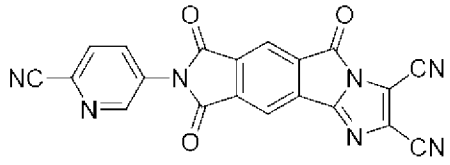
(C-109)



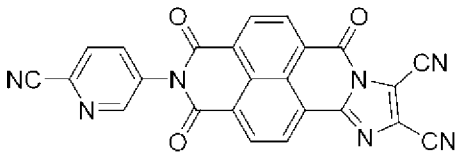
(C-110)

[0044]

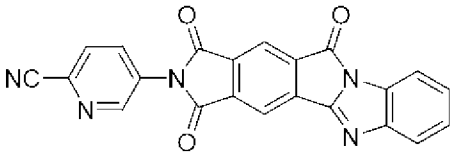
[化15]



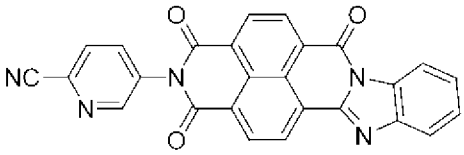
(C-111)



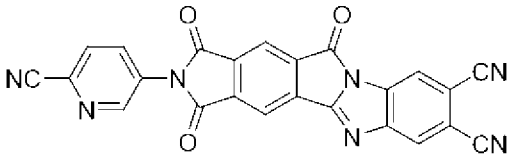
(C-112)



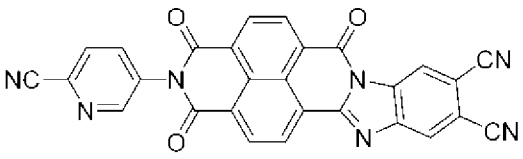
(C-113)



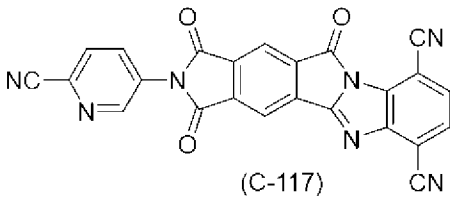
(C-114)



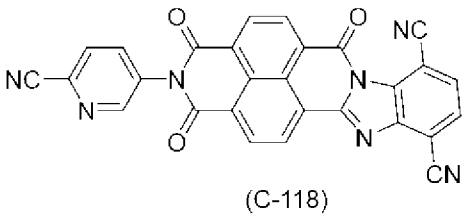
(C-115)



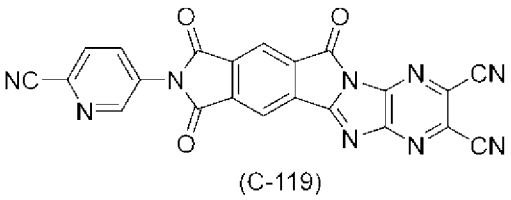
(C-116)



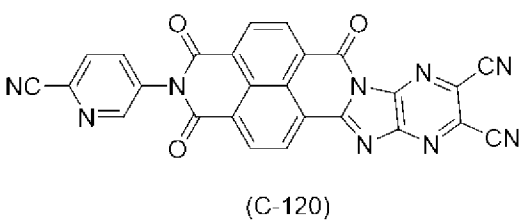
(C-117)



(C-118)



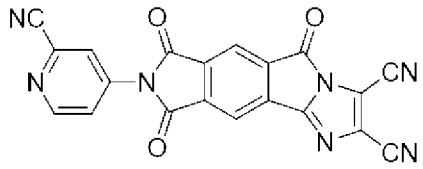
(C-119)



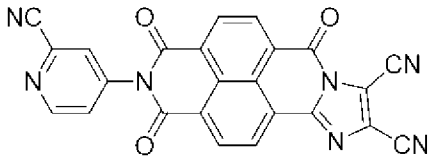
(C-120)

[0045]

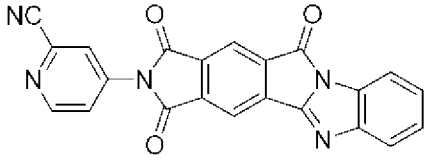
[化16]



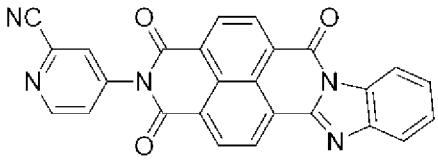
(C-121)



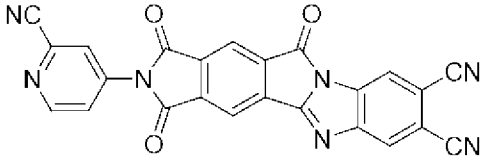
(C-122)



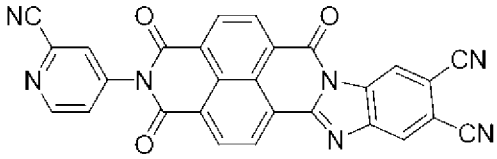
(C-123)



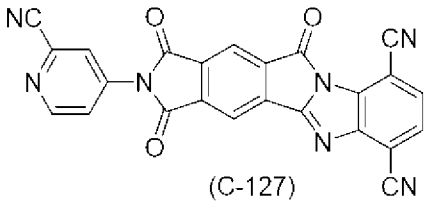
(C-124)



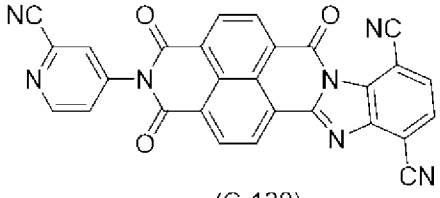
(C-125)



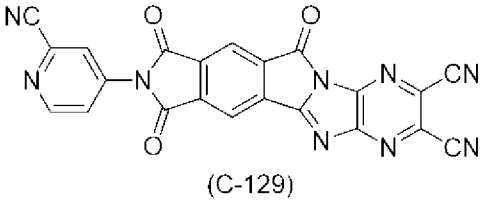
(C-126)



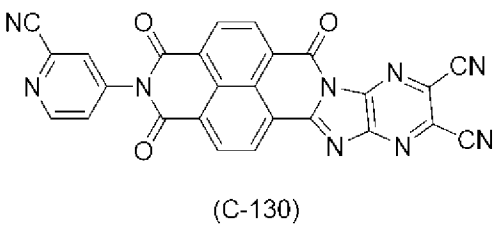
(C-127)



(C-128)



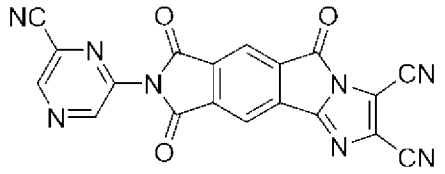
(C-129)



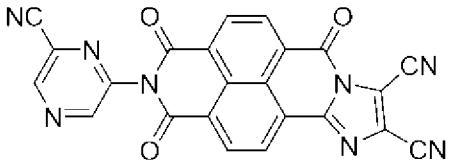
(C-130)

[0046]

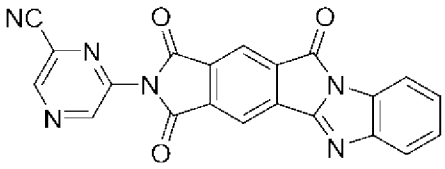
[化17]



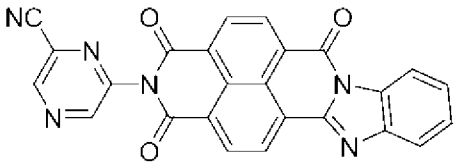
(C-131)



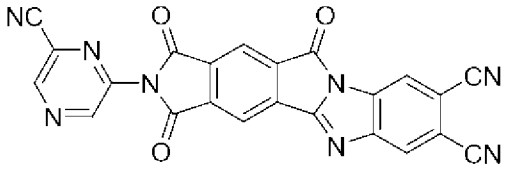
(C-132)



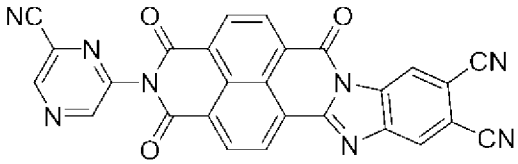
(C-133)



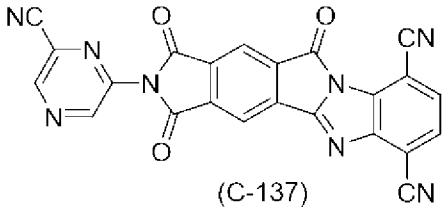
(C-134)



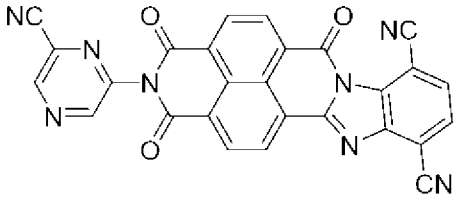
(C-135)



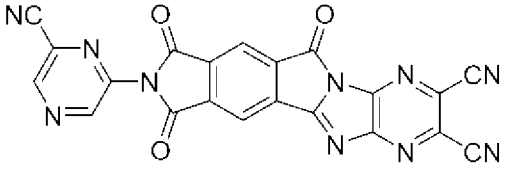
(C-136)



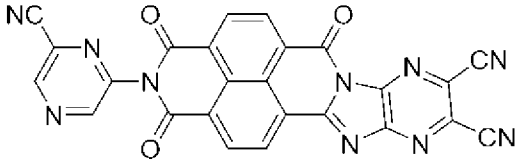
(C-137)



(C-138)

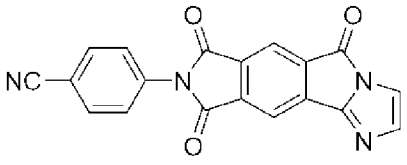


(C-139)

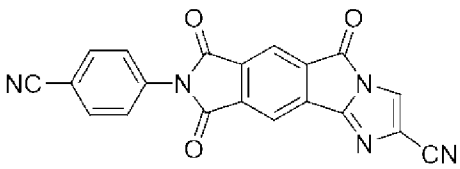


(C-140)

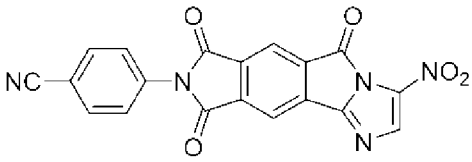
[0047] [化18]



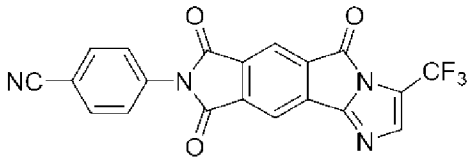
(C-141)



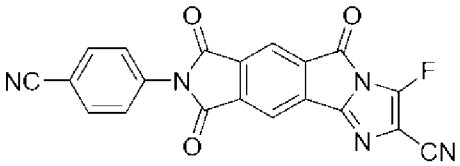
(C-142)



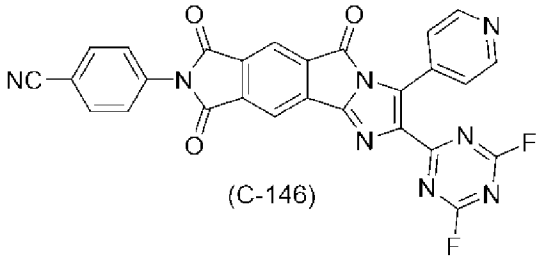
(C-143)



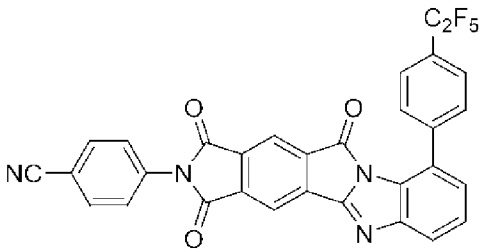
(C-144)



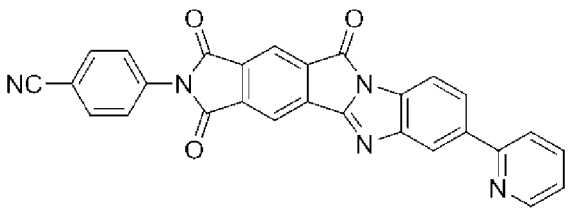
(C-145)



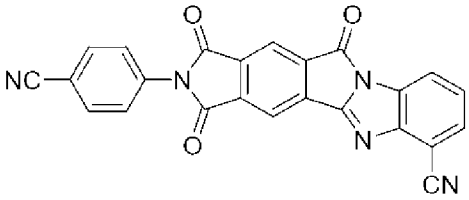
(C-146)



(C-147)



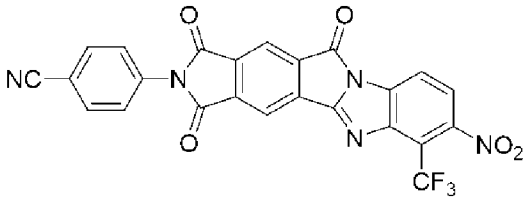
(C-148)



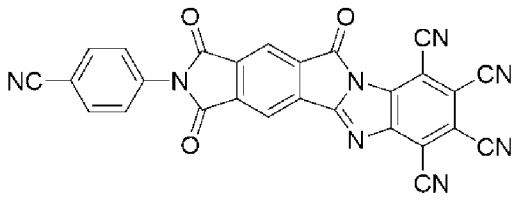
(C-149)

[0048]

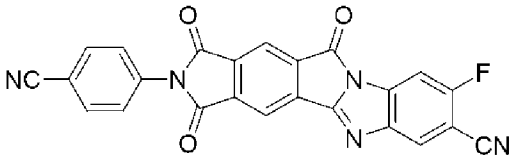
[化19]



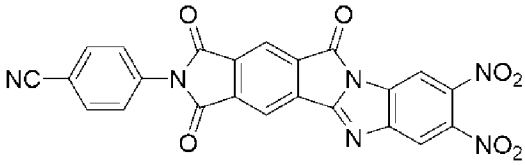
(C-150)



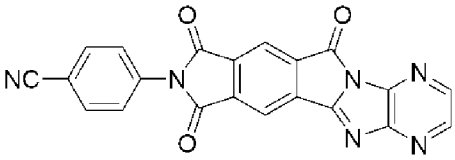
(C-151)



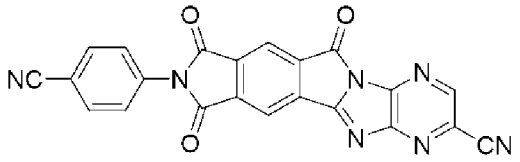
(C-152)



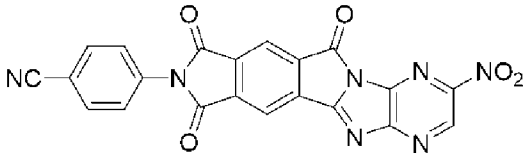
(C-153)



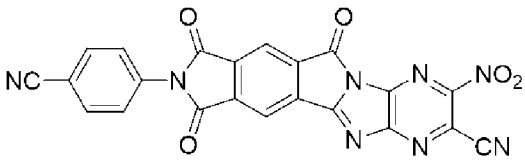
(C-154)



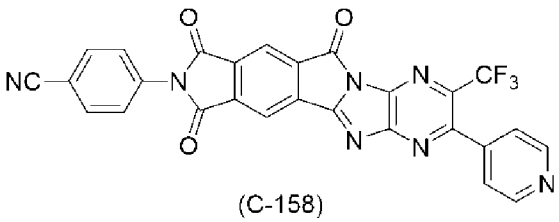
(C-155)



(C-156)



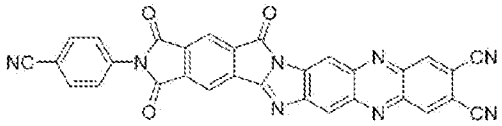
(C-157)



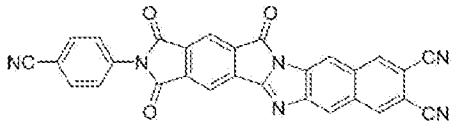
(C-158)

[0049]

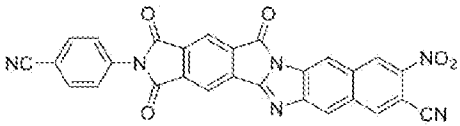
[化20]



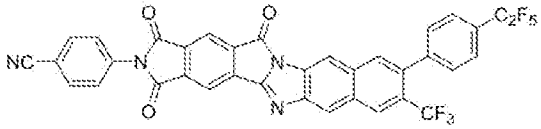
(C-159)



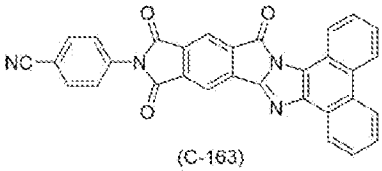
(C-160)



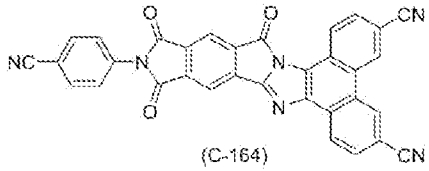
(C-161)



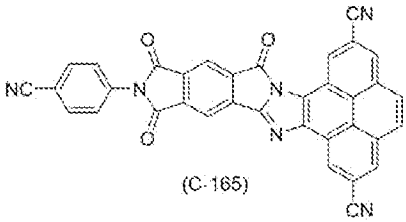
(C-162)



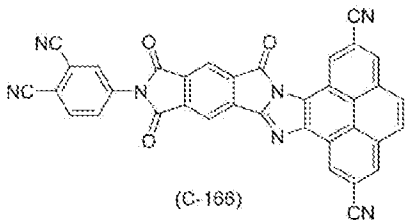
(C-163)



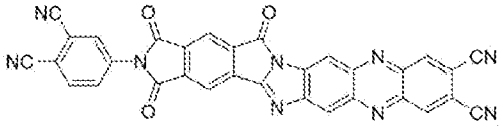
(C-164)



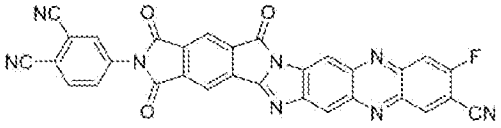
(C-165)



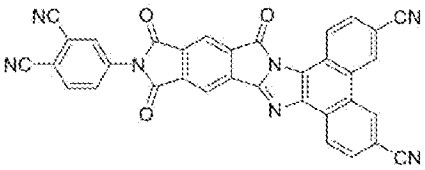
(C-166)



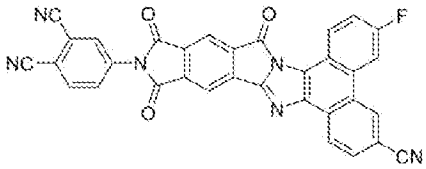
(C-167)



(C-168)



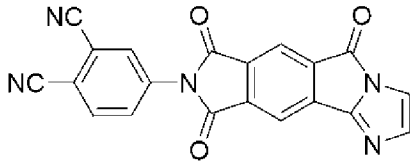
(C-169)



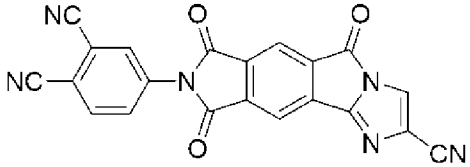
(C-170)

[0050]

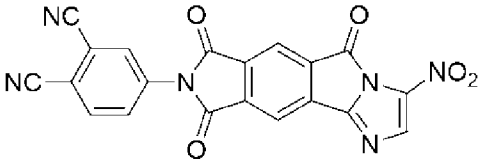
[化21]



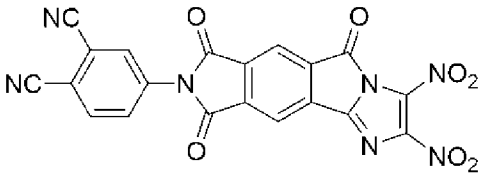
(C-171)



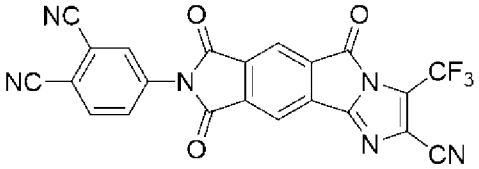
(C-172)



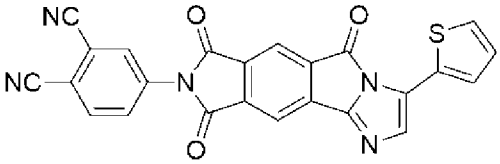
(C-173)



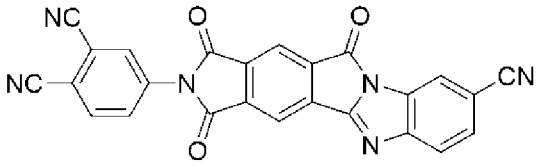
(C-174)



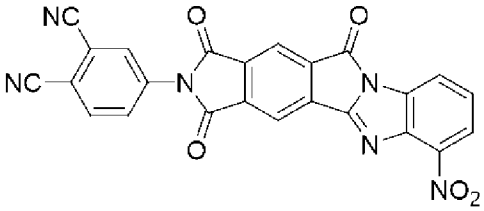
(C-175)



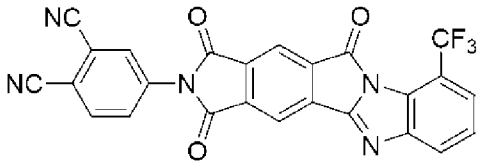
(C-176)



(C-177)



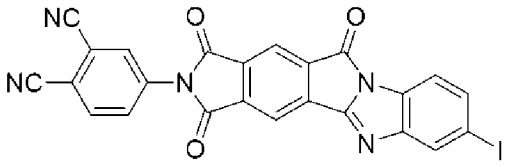
(C-178)



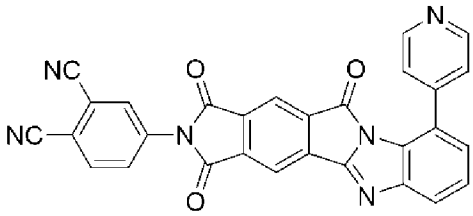
(C-179)

[0051]

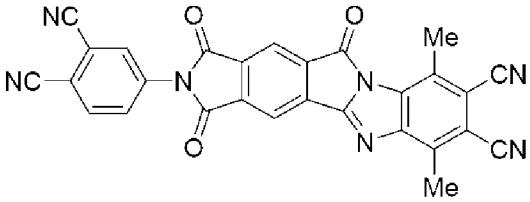
[化22]



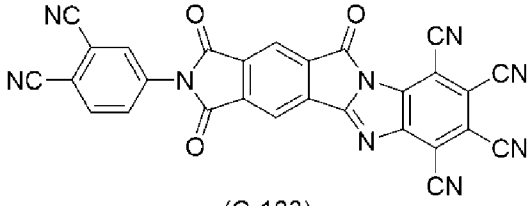
(C-180)



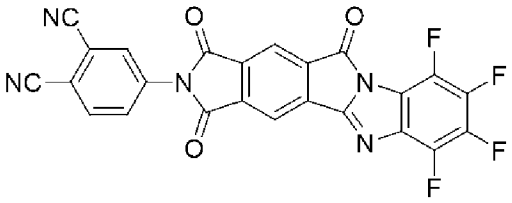
(C-181)



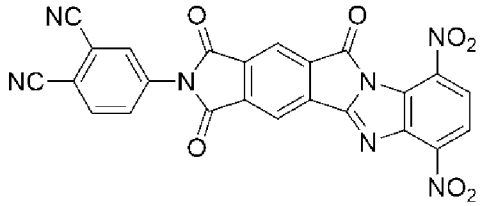
(C-182)



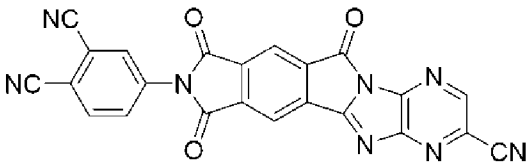
(C-183)



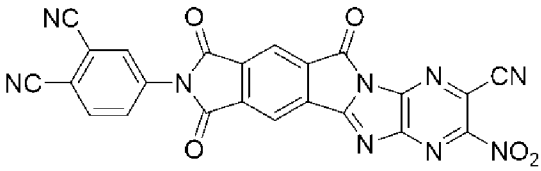
(C-184)



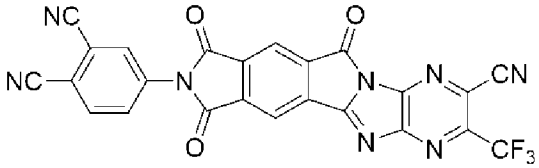
(C-185)



(C-186)



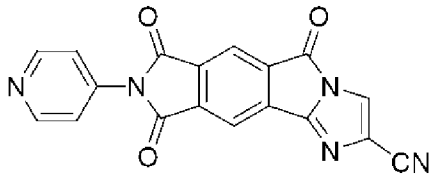
(C-187)



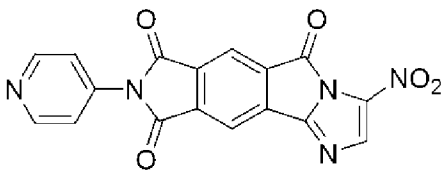
(C-188)

[0052]

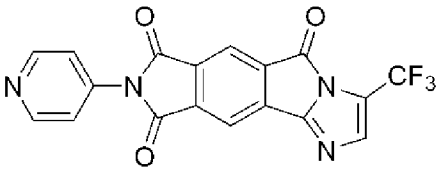
[化23]



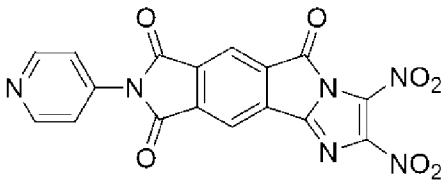
(C-189)



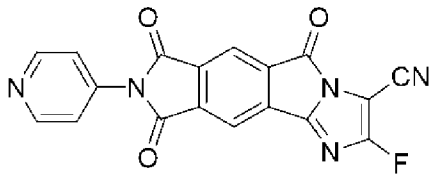
(C-190)



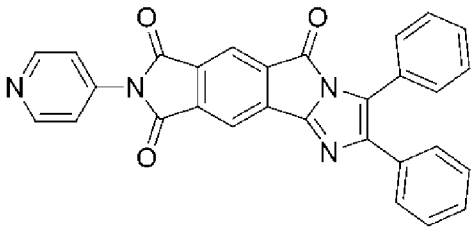
(C-191)



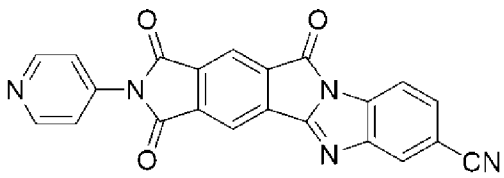
(C-192)



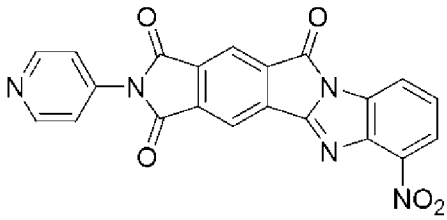
(C-193)



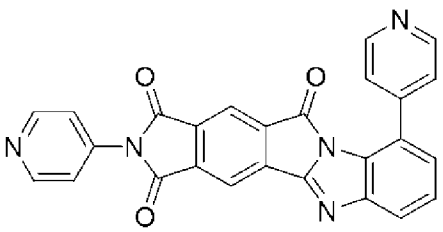
(C-194)



(C-195)



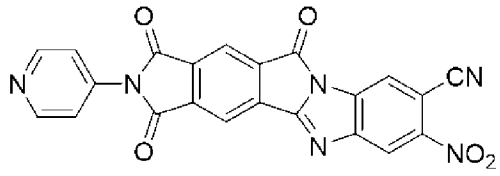
(C-196)



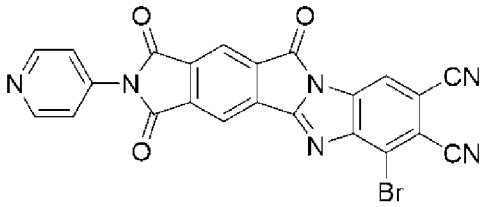
(C-197)

[0053]

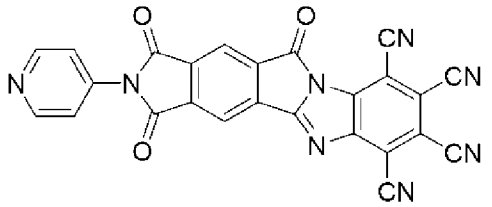
[化24]



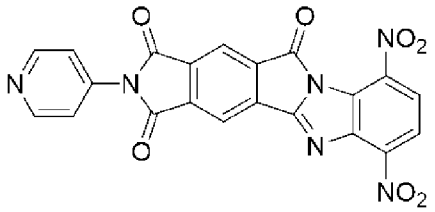
(C-198)



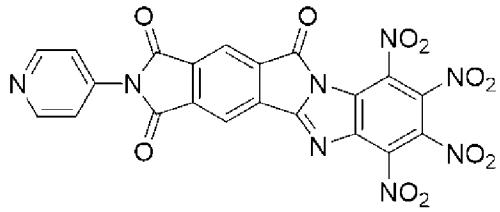
(C-199)



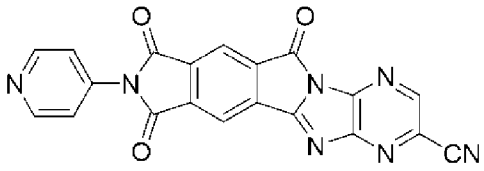
(C-200)



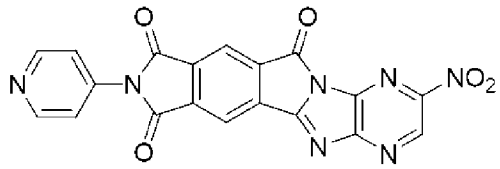
(C-201)



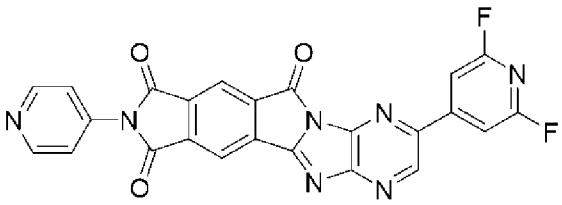
(C-202)



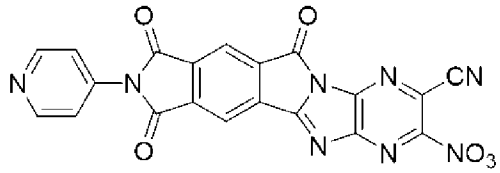
(C-203)



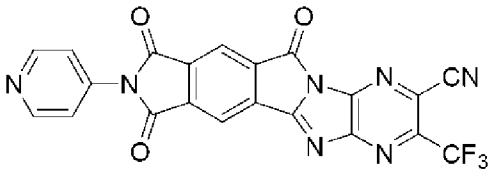
(C-204)



(C-205)



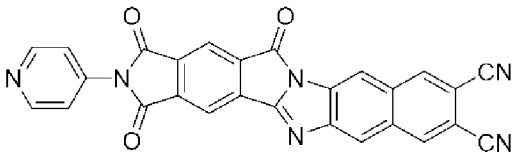
(C-206)



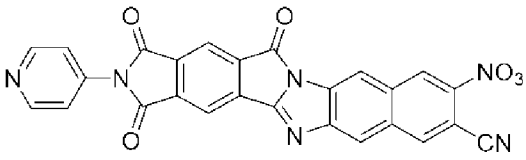
(C-207)

[0054]

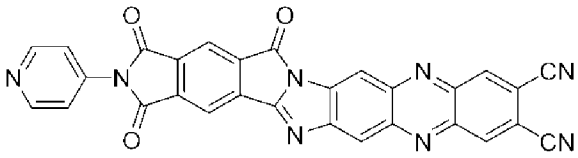
[化25]



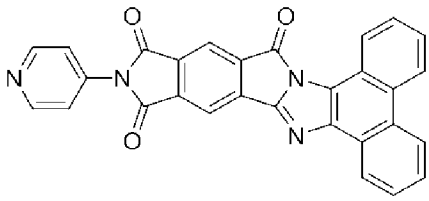
(C-208)



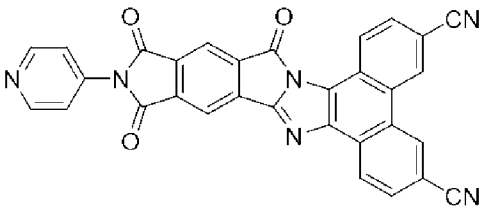
(C-209)



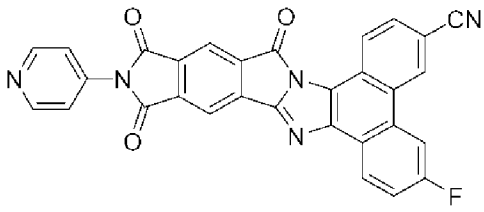
(C-210)



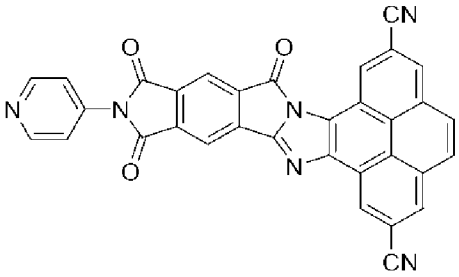
(C-211)



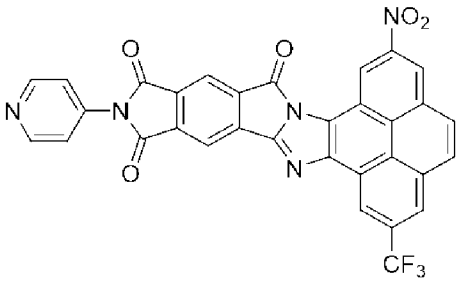
(C-212)



(C-213)



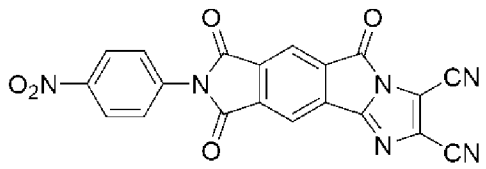
(C-214)



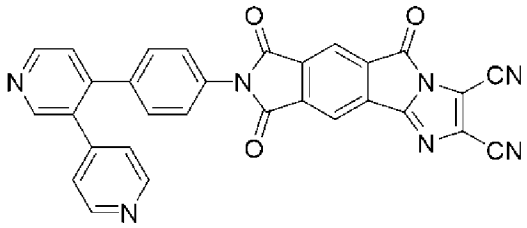
(C-215)

[0055]

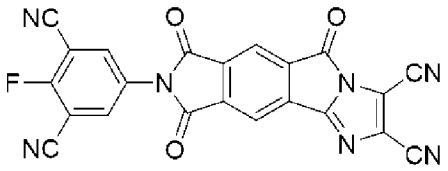
[化26]



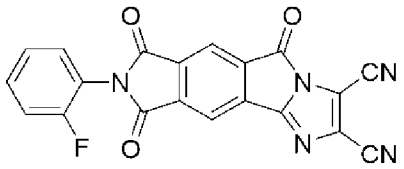
(C-216)



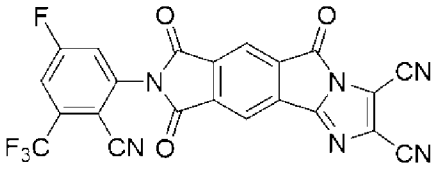
(C-217)



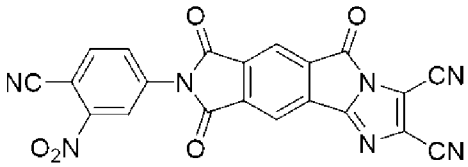
(C-218)



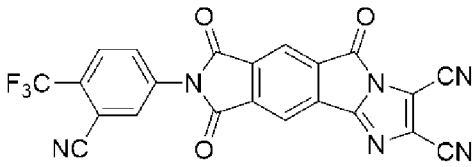
(C-219)



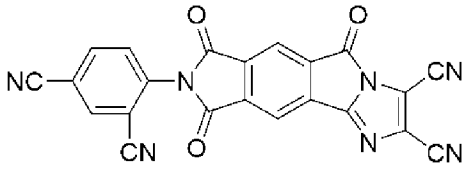
(C-220)



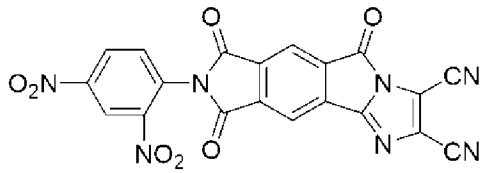
(C-221)



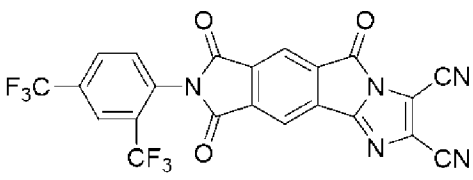
(C-222)



(C-223)



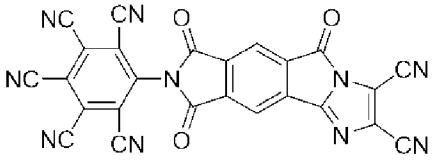
(C-224)



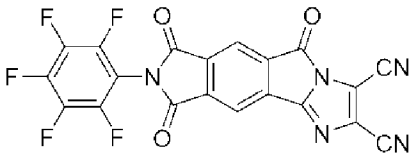
(C-225)

[0056]

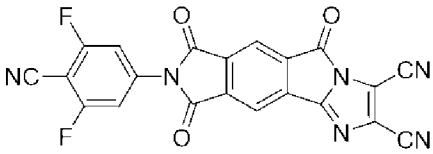
[化27]



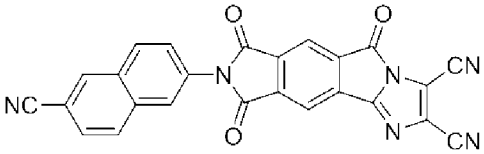
(C-226)



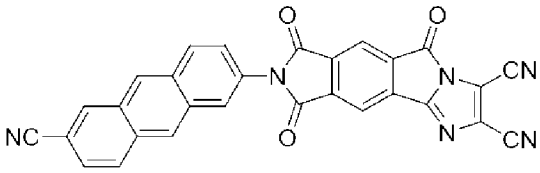
(C-227)



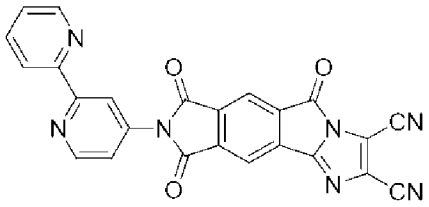
(C-228)



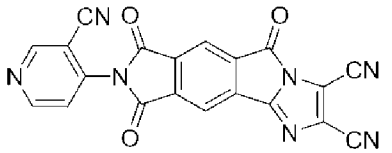
(C-229)



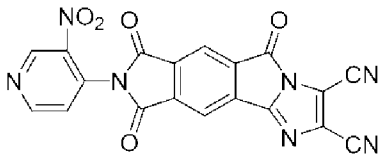
(C-230)



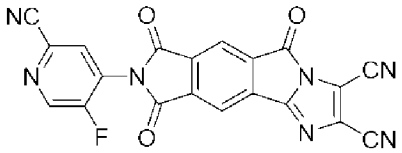
(C-231)



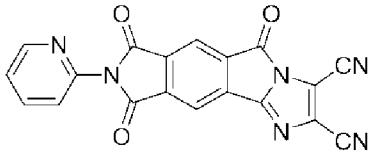
(C-232)



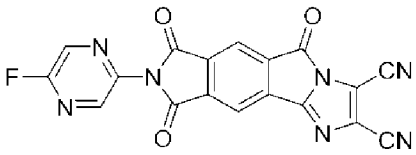
(C-233)



(C-234)



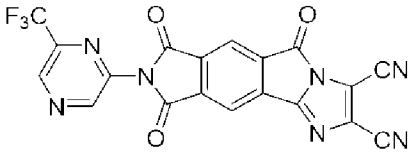
(C-235)



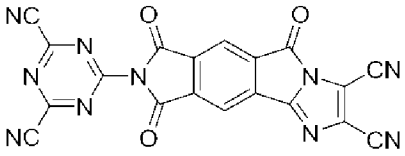
(C-236)

[0057]

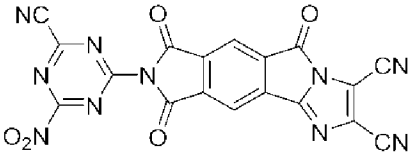
[化28]



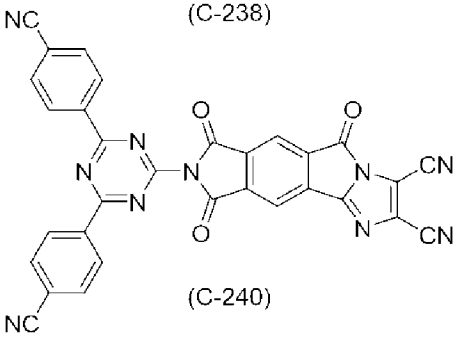
(C-237)



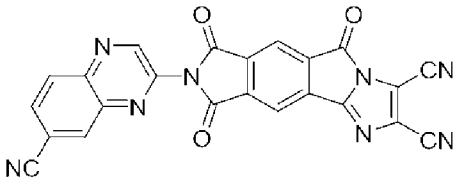
(C-238)



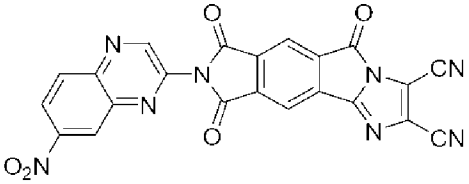
(C-239)



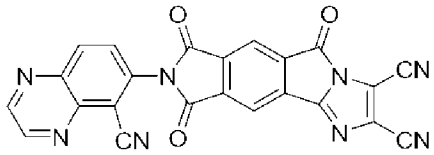
(C-240)



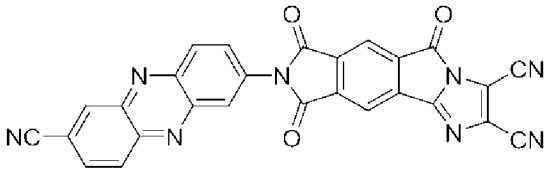
(C-241)



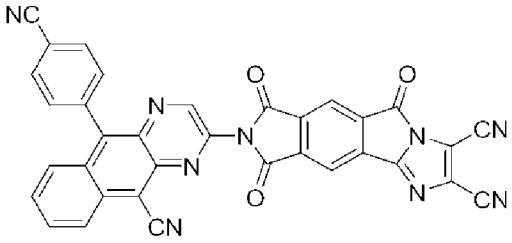
(C-242)



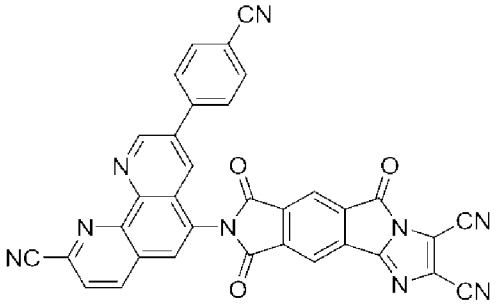
(C-243)



(C-244)



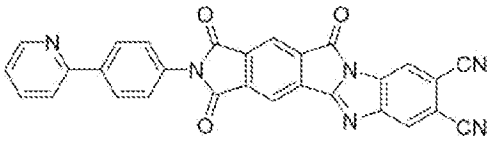
(C-245)



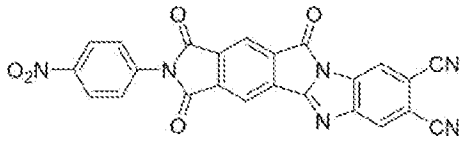
(C-246)

[0058]

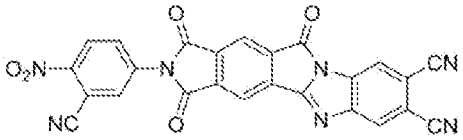
[化29]



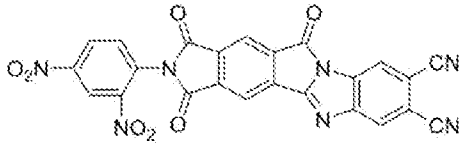
(C-247)



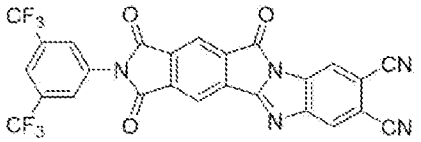
(C-248)



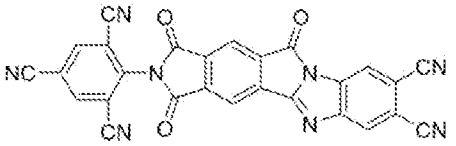
(C-249)



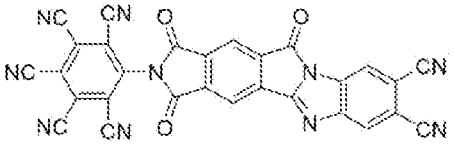
(C-250)



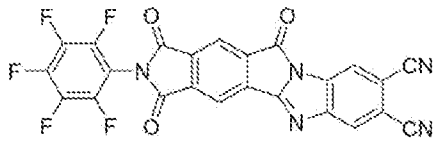
(C-251)



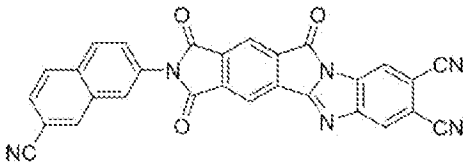
(C-252)



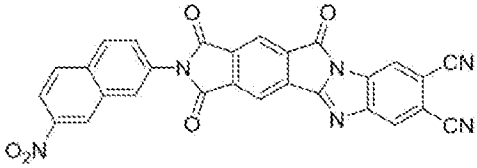
(C-253)



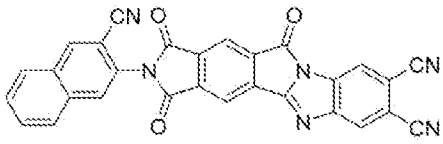
(C-254)



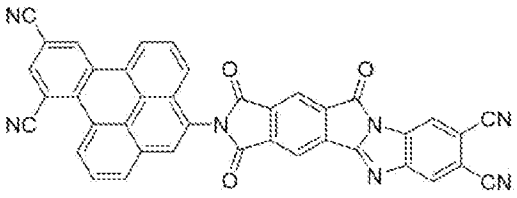
(C-255)



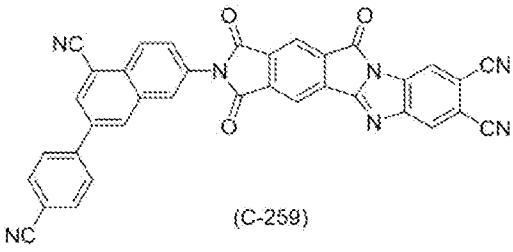
(C-256)



(C-257)

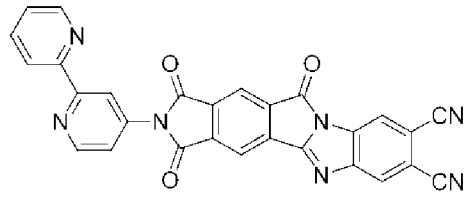


(C-258)

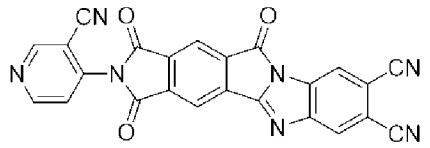


(C-259)

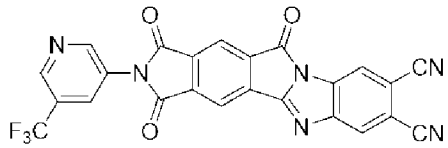
[0059] [化30]



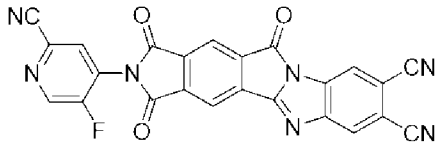
(C-260)



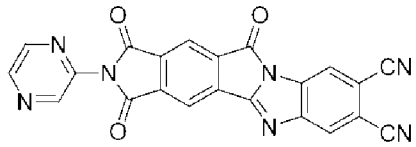
(C-261)



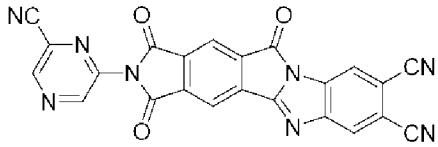
(C-262)



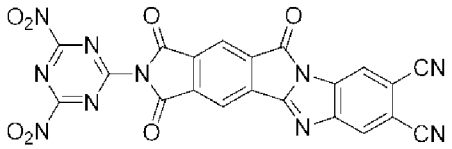
(C-263)



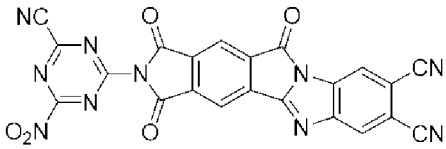
(C-264)



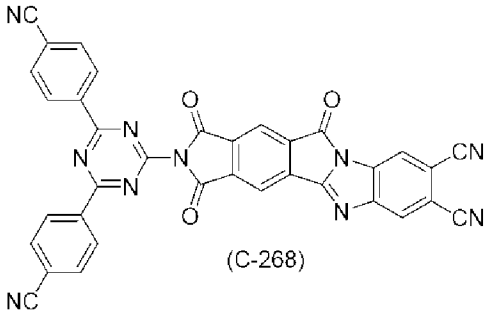
(C-265)



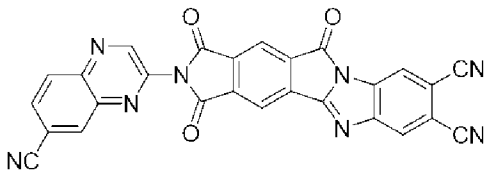
(C-266)



(C-267)



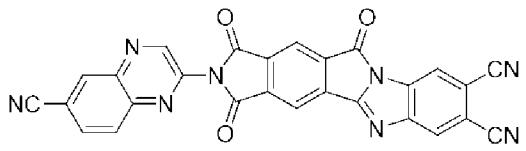
(C-268)



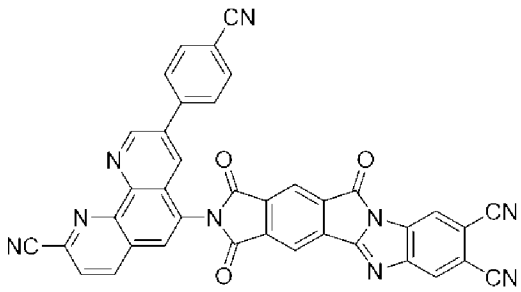
(C-269)

[0060]

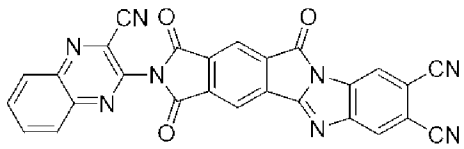
[化31]



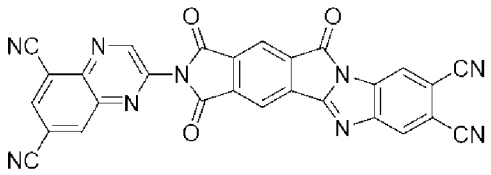
(C-270)



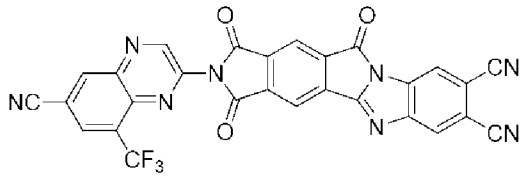
(C-271)



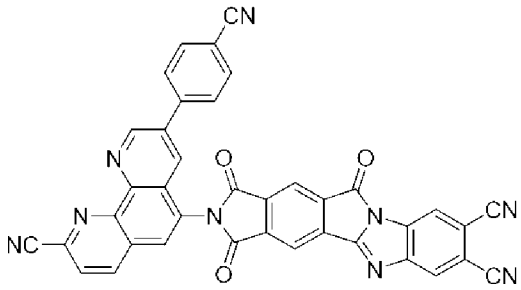
(C-272)



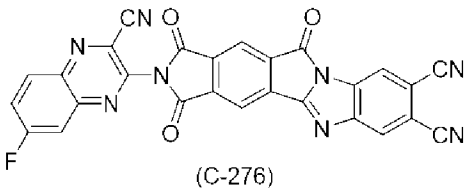
(C-273)



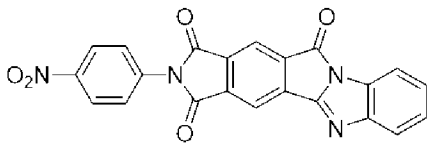
(C-274)



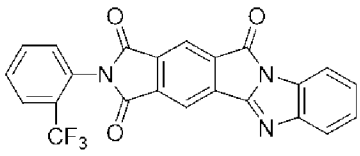
(C-275)



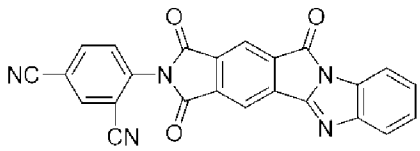
(C-276)



(C-277)



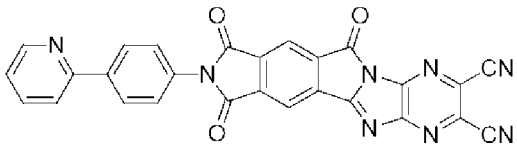
(C-278)



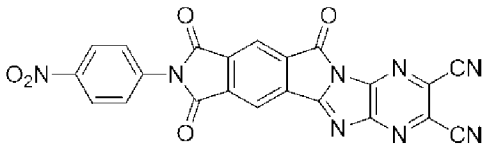
(C-279)

[0061]

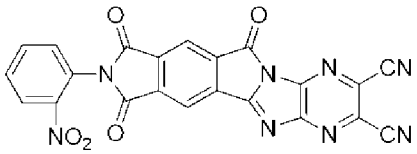
[化32]



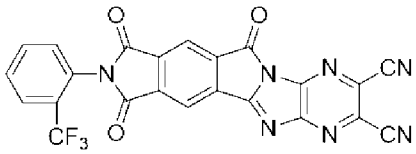
(C-280)



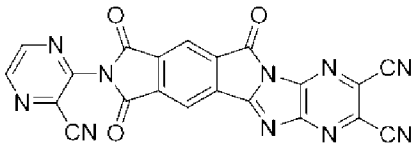
(C-281)



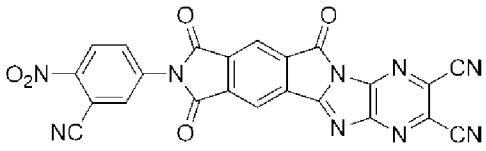
(C-282)



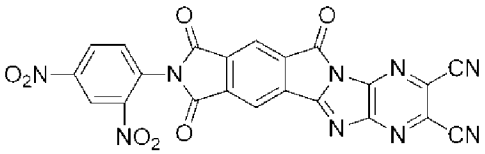
(C-283)



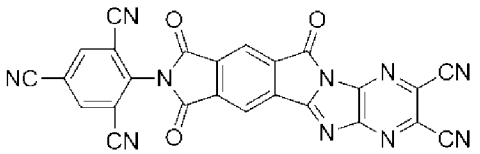
(C-284)



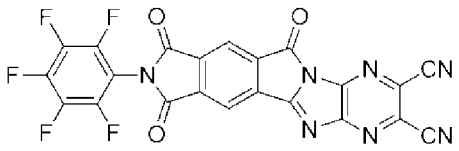
(C-285)



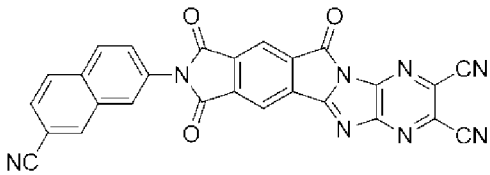
(C-286)



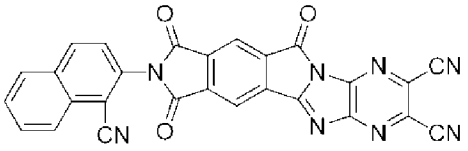
(C-287)



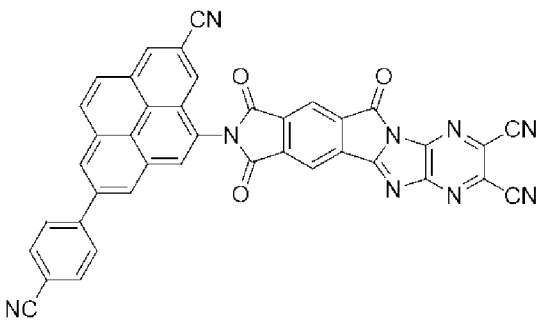
(C-288)



(C-289)



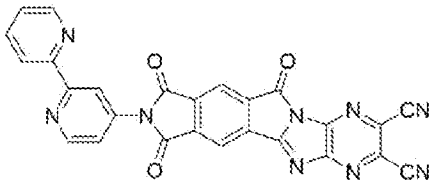
(C-290)



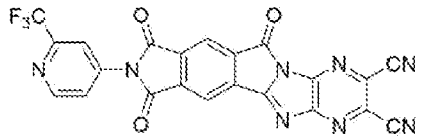
(C-291)

[0062]

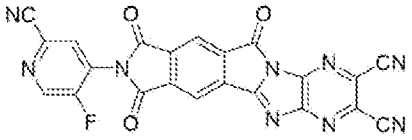
[化33]



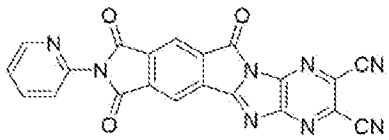
(C-292)



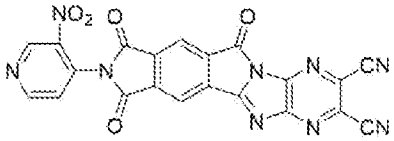
(C-293)



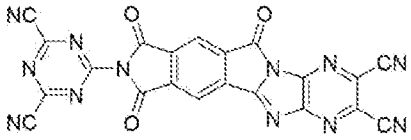
(C-294)



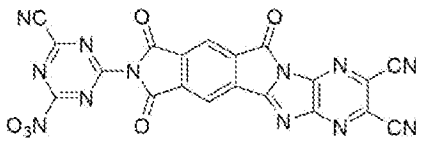
(C-295)



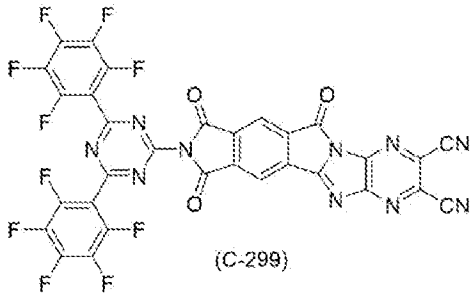
(C-296)



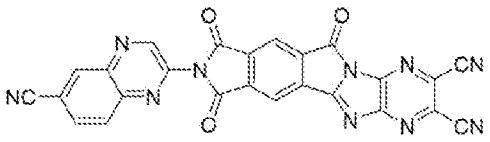
(C-297)



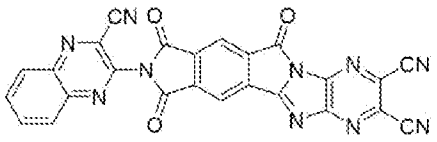
(C-298)



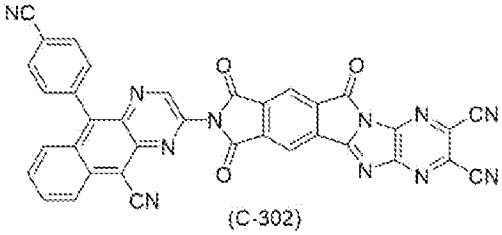
(C-299)



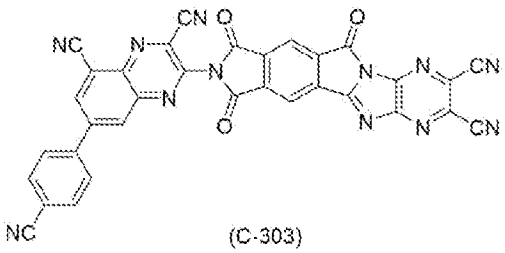
(C-300)



(C-301)



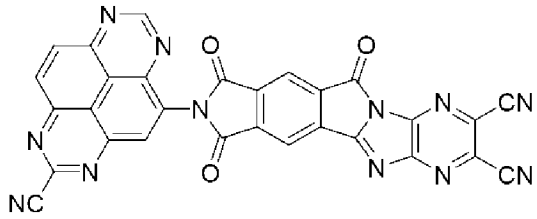
(C-302)



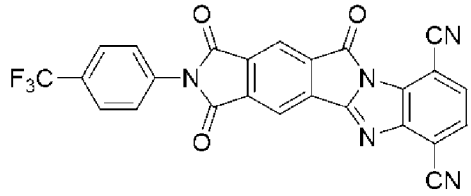
(C-303)

[0063]

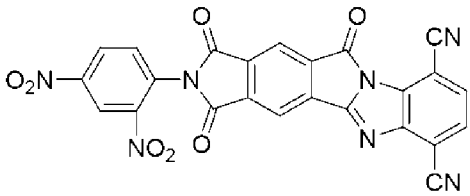
[化34]



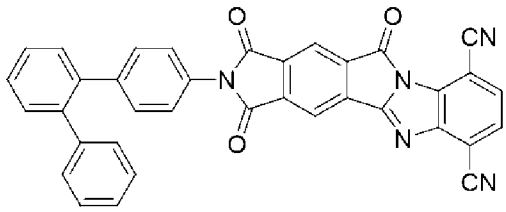
(C-304)



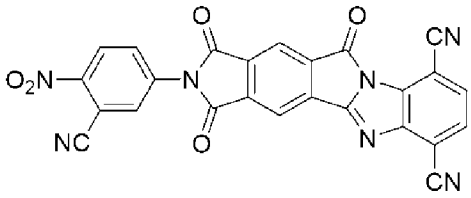
(C-305)



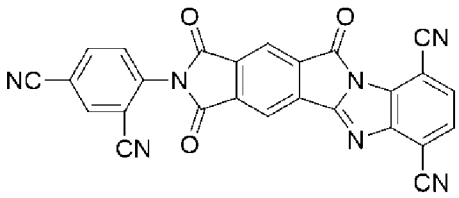
(C-306)



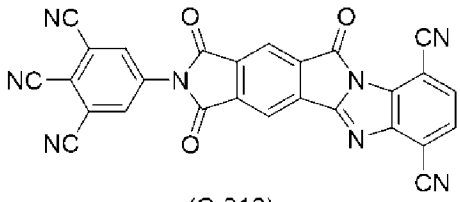
(C-307)



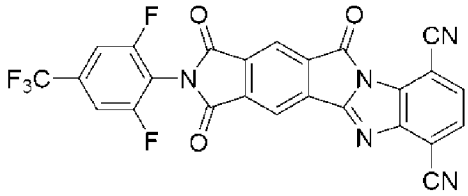
(C-308)



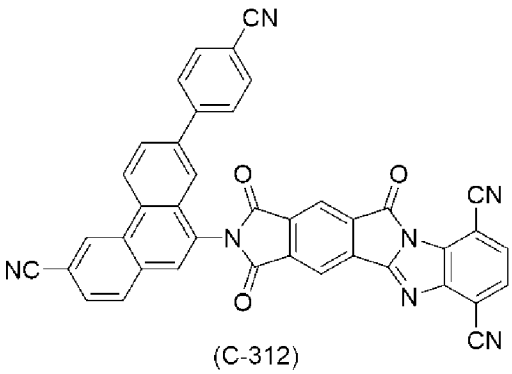
(C-309)



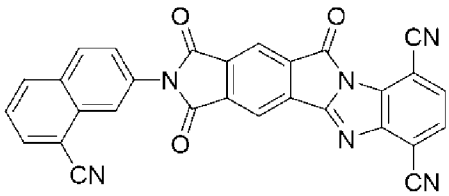
(C-310)



(C-311)



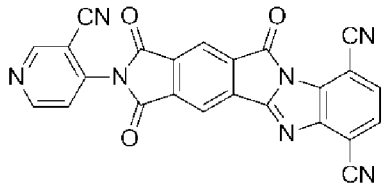
(C-312)



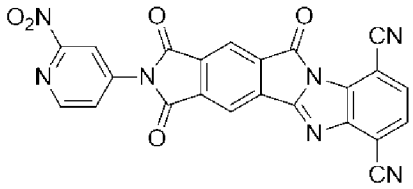
(C-313)

[0064]

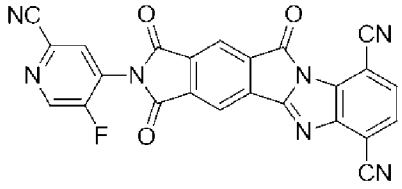
[化35]



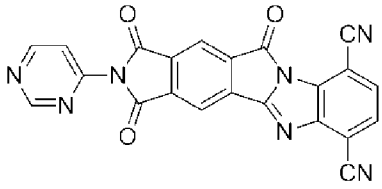
(C-314)



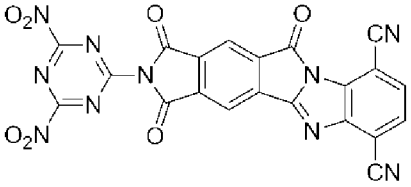
(C-315)



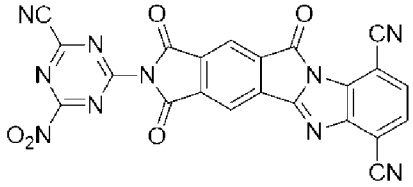
(C-316)



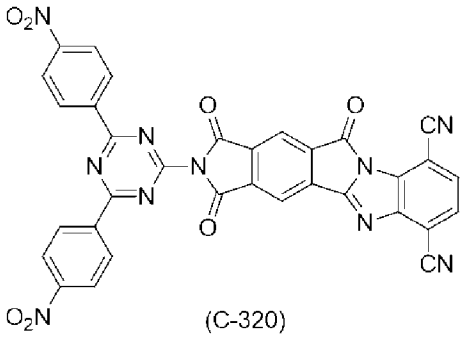
(C-317)



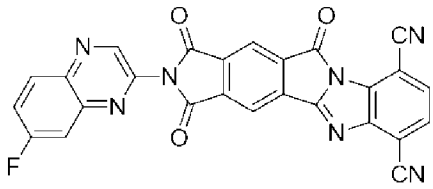
(C-318)



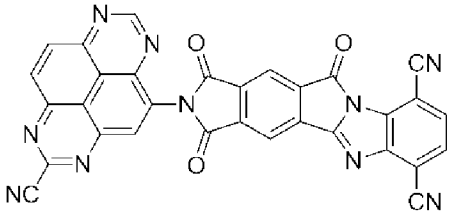
(C-319)



(C-320)



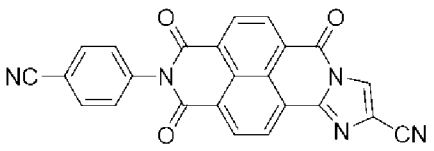
(C-321)



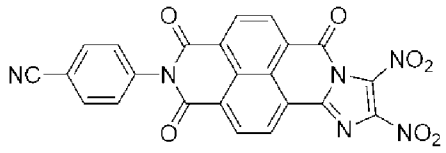
(C-322)

[0065]

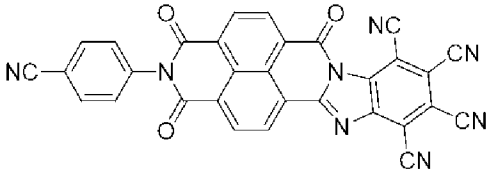
[化36]



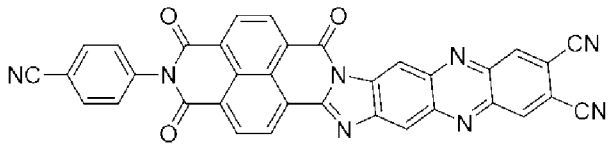
(C-323)



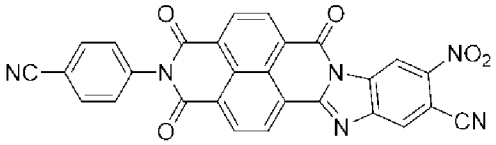
(C-324)



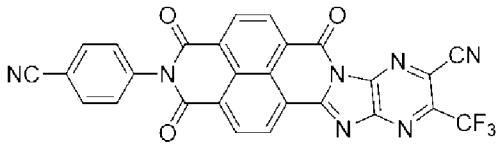
(C-325)



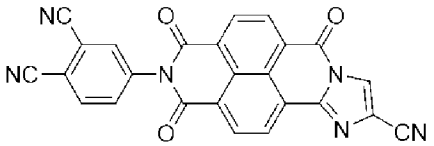
(C-326)



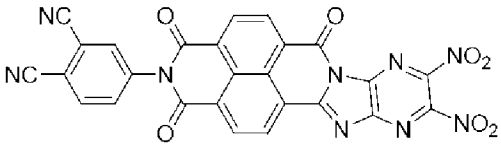
(C-327)



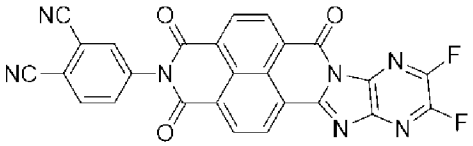
(C-328)



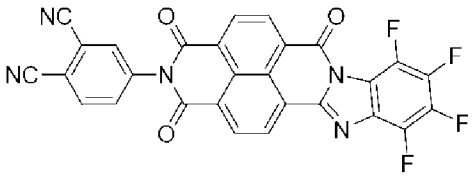
(C-329)



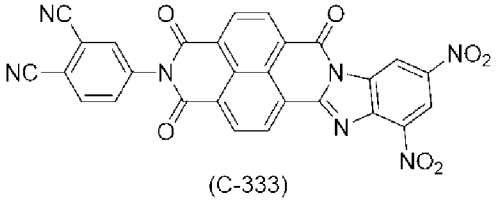
(C-330)



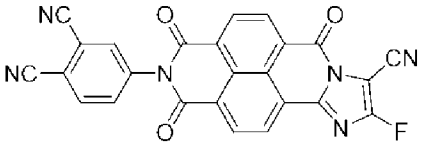
(C-331)



(C-332)



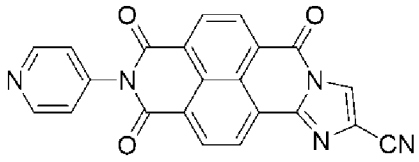
(C-333)



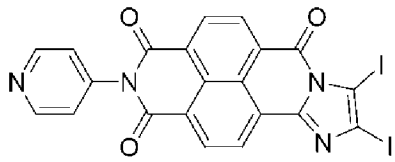
(C-334)

[0066]

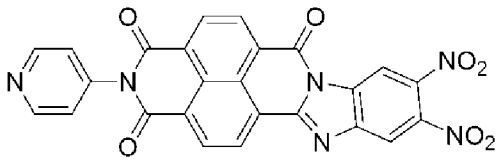
[化37]



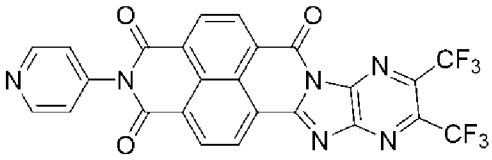
(C-335)



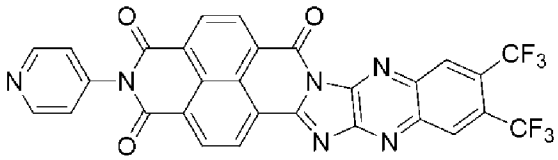
(C-336)



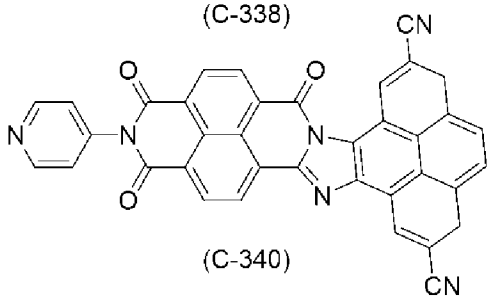
(C-337)



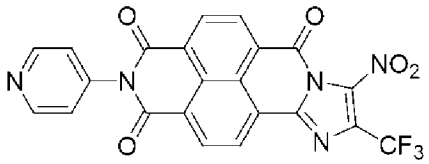
(C-338)



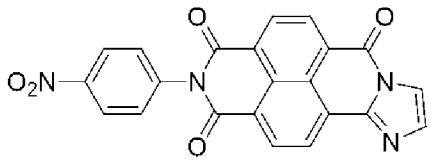
(C-339)



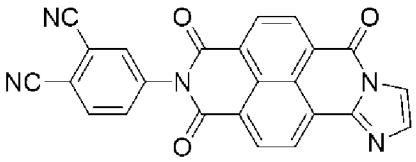
(C-340)



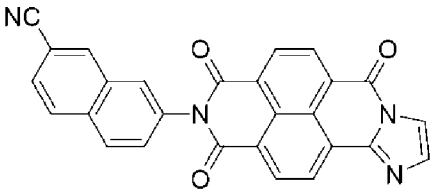
(C-341)



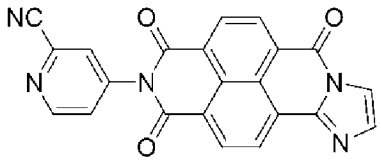
(C-342)



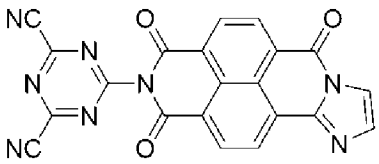
(C-343)



(C-344)



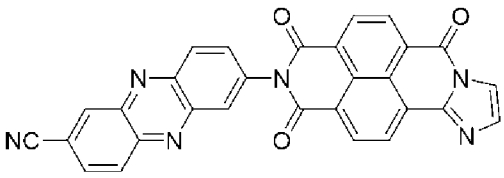
(C-345)



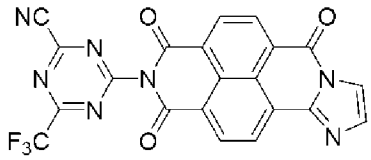
(C-346)

[0067]

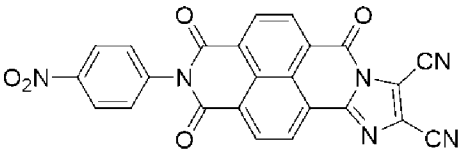
[化38]



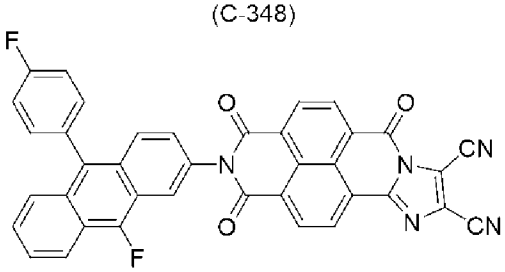
(C-347)



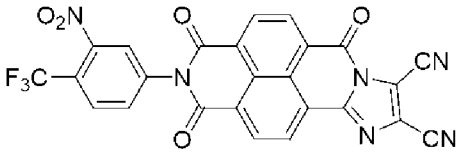
(C-348)



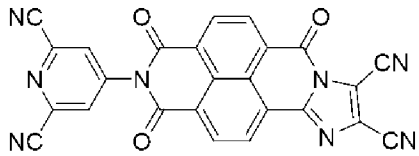
(C-349)



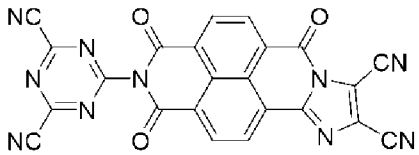
(C-350)



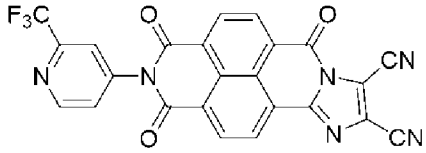
(C-351)



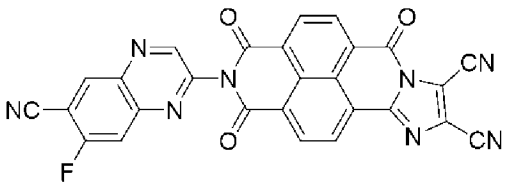
(C-352)



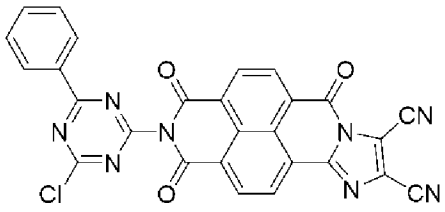
(C-353)



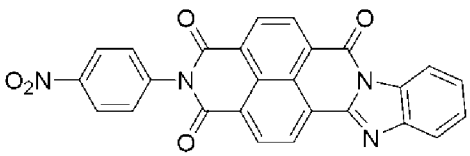
(C-354)



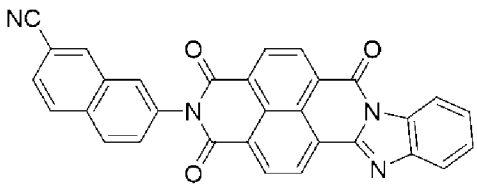
(C-355)



(C-356)



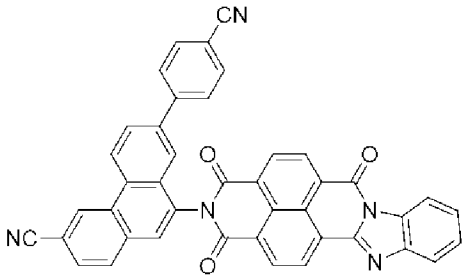
(C-357)



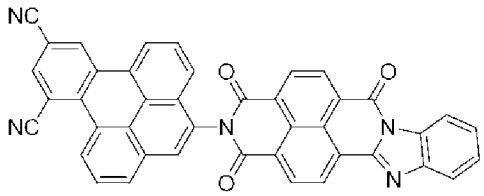
(C-358)

[0068]

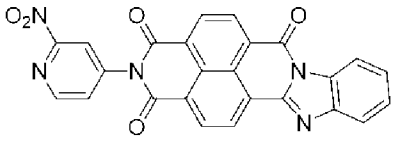
[化39]



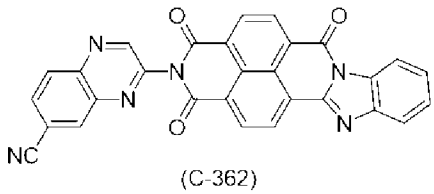
(C-359)



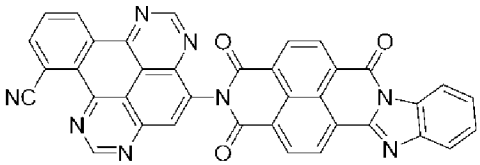
(C-360)



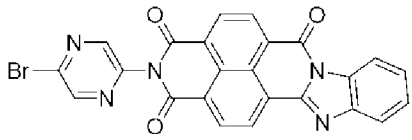
(C-361)



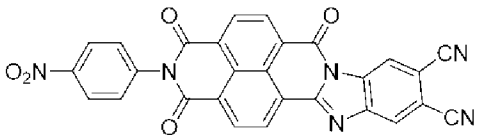
(C-362)



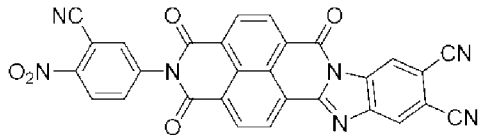
(C-363)



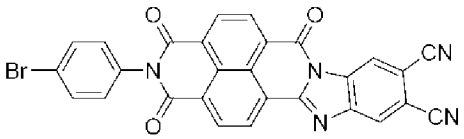
(C-364)



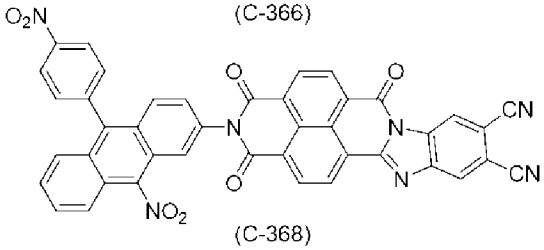
(C-365)



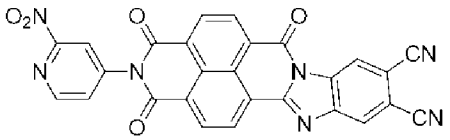
(C-366)



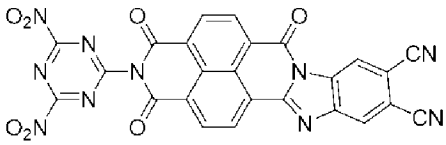
(C-367)



(C-368)



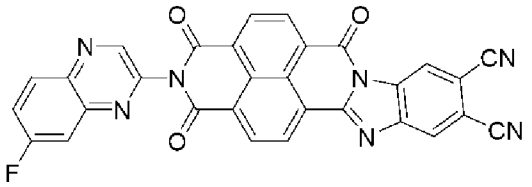
(C-369)



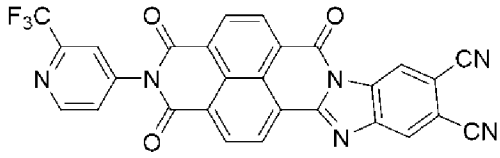
(C-370)

[0069]

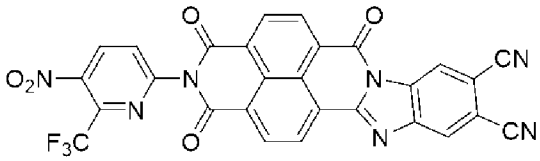
[化40]



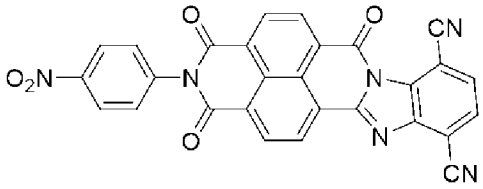
(C-371)



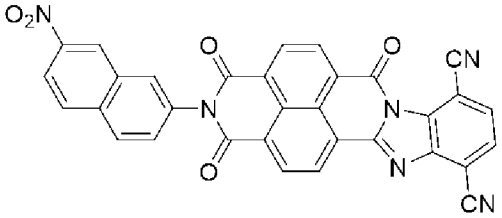
(C-372)



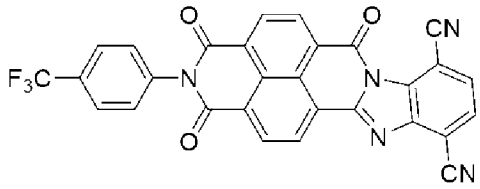
(C-373)



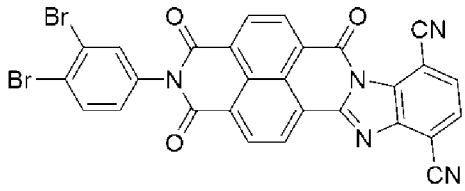
(C-374)



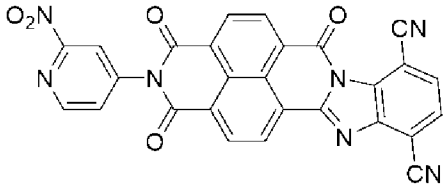
(C-375)



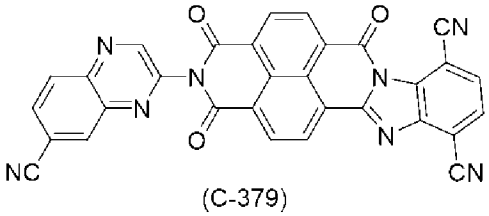
(C-376)



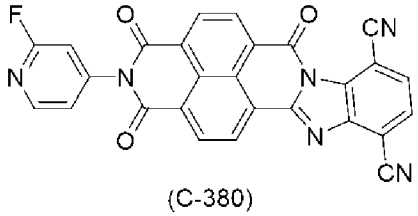
(C-377)



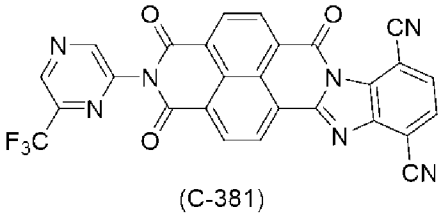
(C-378)



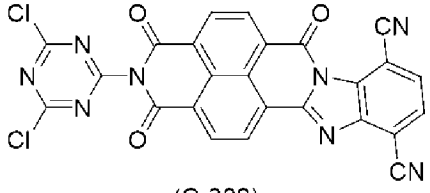
(C-379)



(C-380)



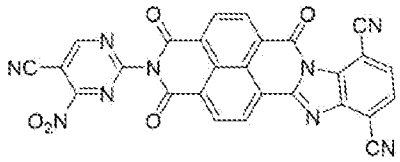
(C-381)



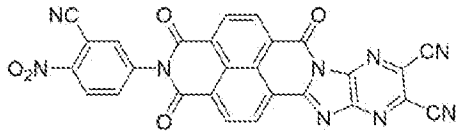
(C-382)

[0070]

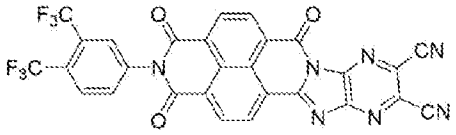
[化41]



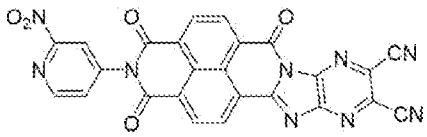
(C-383)



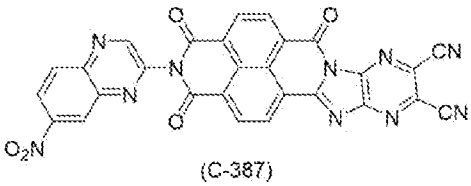
(C-384)



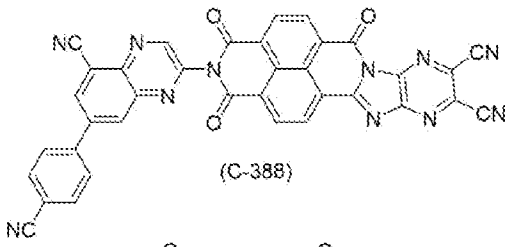
(C-385)



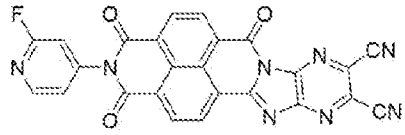
(C-386)



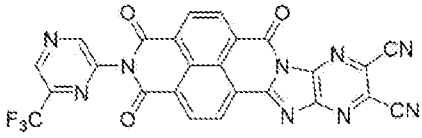
(C-387)



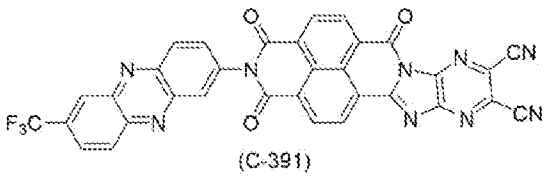
(C-388)



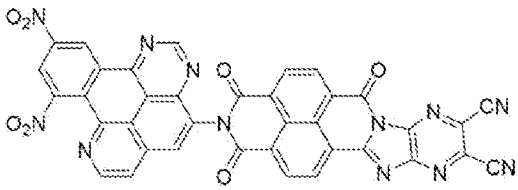
(C-389)



(C-390)



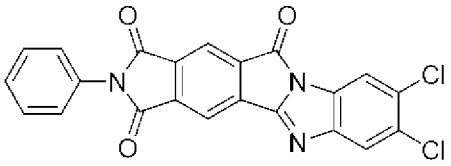
(C-391)



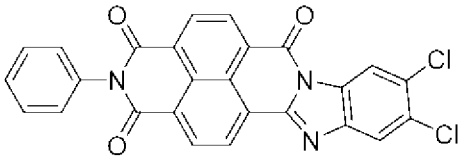
(C-392)

[0071]

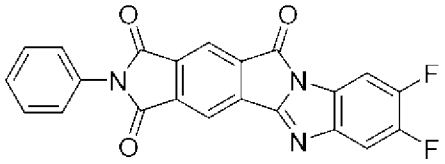
[化42]



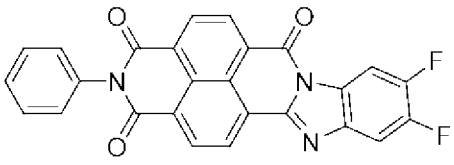
(C-393)



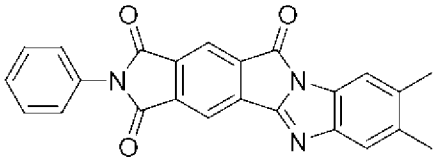
(C-394)



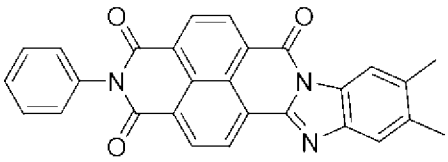
(C-395)



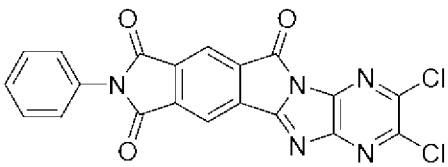
(C-396)



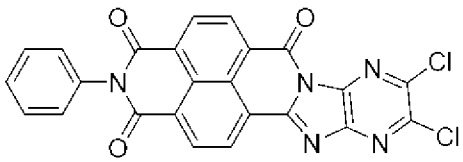
(C-397)



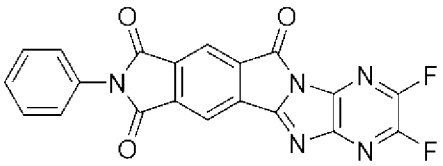
(C-398)



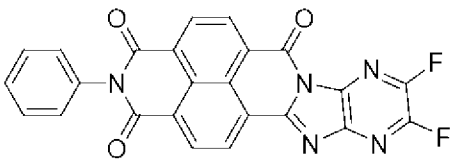
(C-399)



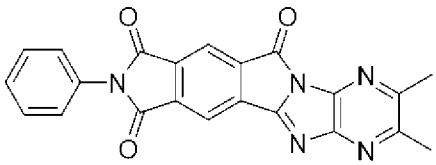
(C-400)



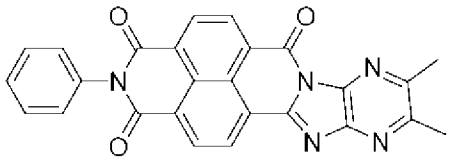
(C-401)



(C-402)



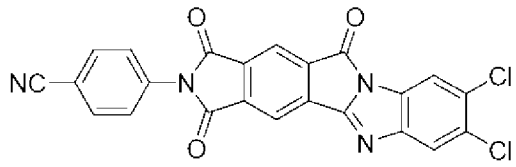
(C-403)

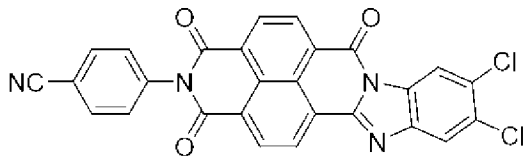


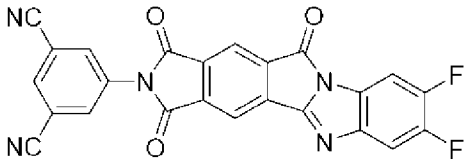
(C-404)

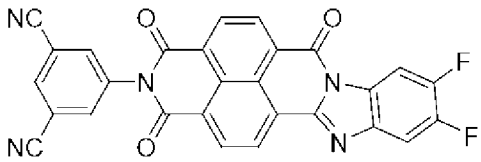
[0072]

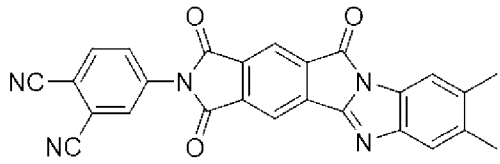
[化43]

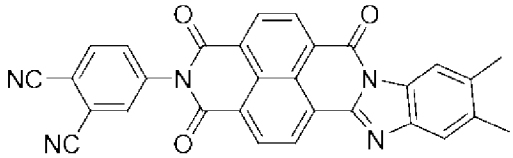

(C-405)

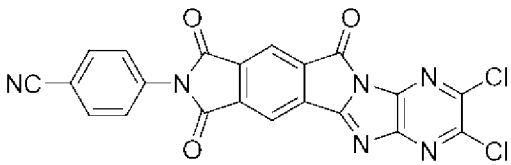

(C-406)

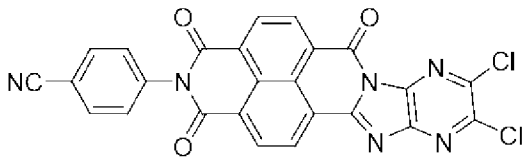

(C-407)

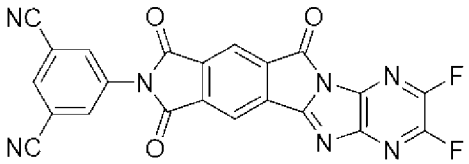

(C-408)

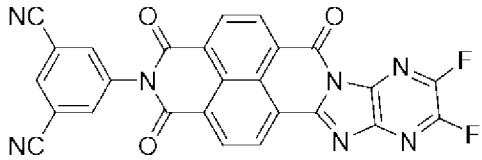

(C-409)

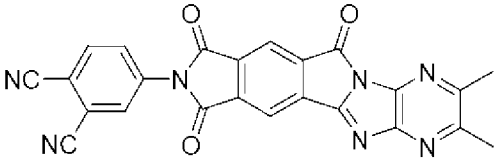

(C-410)

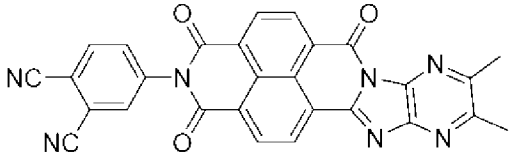

(C-411)


(C-412)


(C-413)


(C-414)

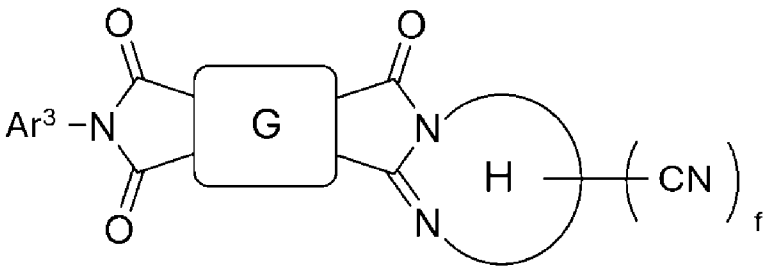

(C-415)


(C-416)

[0073] 上記式（１）で表されるイミド化合物のより好ましい実施形態としては、

下記式（Ｘ－１）で表される化合物が挙げられる。

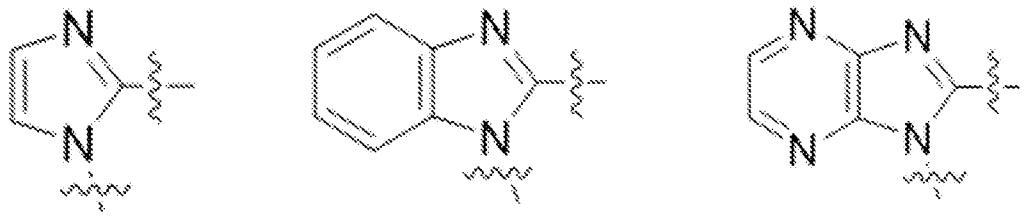
[化44]



(X-1)

（式（Ｘ－１）中、環Ｇはベンゼン環又はナフタレン環を表す。環Ｈは、下記（Ｈ－１）、（Ｈ－２）、及び（Ｈ－３）からなる群から選ばれる。ｆは１又は２である。Ａｒ^{3}は、シアノ基で置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、またはシアノ基で置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。

[化45]



(H-1) (H-2) (H-3)

[0074] 式（Ｘ－１）で表されるイミド化合物は、共役系が広がった共役拡張型の構造を有しており、正孔輸送材料のＨＯＭＯ軌道との強い相互作用が期待される。更に、蒸着材料としての熱安定性にも優れている。このため、光電変換素子において正孔輸送材料を組み合わせた際、特に正孔輸送能力を促進しやすいものとなる。

[0075] 上記式（Ｘ－１）において、Ａｒ^{3}は、フェニル基、ピリジル基、ピラジル

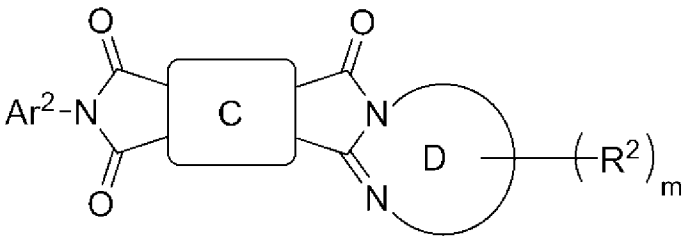
基またはキノリル基が好ましく、これらの基はシアノ基で置換されていてもよい。

Ａｒ[3]がこれらの基であると、ＬＵＭＯ準位を適切に調整可能であり、隣接層との相互作用を最適化することが可能である。更に、合成が容易であり、蒸着材料としての熱安定性にも優れている。

[0076]（正孔輸送促進材料）

また、本発明は、下記式（１ａ）で示される正孔輸送促進材料（以下、単に「正孔輸送促進材料（１a）」と称することがある。）に関する。

[化46]



(1a)

[0077] 式（１ａ）におけるＡｒ[2]は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。

Ａｒ[2]の具体例および好ましい例は、式（１）における環Ａｒ[1]と同様の例が挙げられる。

[0078] Ｒ[2]は、各々独立に、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の芳香族複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す。

Ｒ[2]の具体例および好ましい例は、式（１）における環Ｒ[1]と同様の例が挙

げられる。

[0079] 環Ｃは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。

環Ｃの具体例および好ましい例は、式（１）における環Ａと同様の例が挙げられる。

[0080] 環Ｄはイミダゾール環、炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す。

環Ｄの具体例および好ましい例は、式（１）における環Ｂと同様の例が挙げられる。

[0081] ｍは０、１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｃがイミダゾール環の場合、ｍは０、１または２を表す；

素子性能が優れる点で、ｍは１、２、３または４であることが好ましく、合成が容易な点で２であることが更に好ましい。

[0082] 環Ｃにおける芳香族炭化水素環、Ａｒ^{2}における芳香族炭化水素基、Ａｒ^{2}における複素芳香族基は置換基を有していてもよい。ここでの置換基は式（１）における置換基と同様の例が挙げられる。

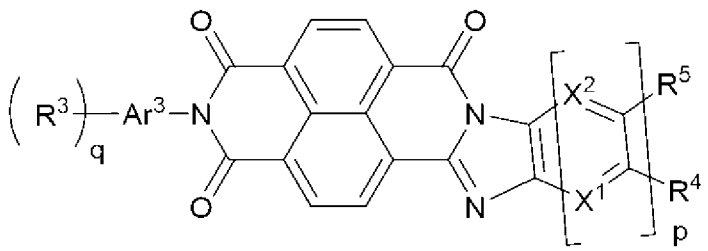
[0083] 化合物（１ａ）の好ましい具体例としては、前記式（Ｃ－１）～（Ｃ－３９２）で示される化合物を例示することができる。中でも、（Ｃ－１）～（Ｃ－１４０）で表される化合物がより好ましく、（Ｃ－２）、（Ｃ－５２）、（Ｃ－７２）および（Ｃ－８２）で表される化合物がさらに好ましい。

[0084] （イミド化合物）

次に、下記式（１ｂ）で示される本発明のイミド化合物（以下、単に「イミド化合物（１ｂ）」と称することがある。）について説明する。

[0085] ＜式（１ｂ）で表されるイミド化合物＞

[化47]



(1b)

[0086] 式（１ｂ）において、Ｒ^{3}は、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０のヘテロ芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい。

Ｒ^{3}の具体例としては、特に限定するものではないが、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、トリシアノフェニル基、フルオロフェニル基、ジフルオロフェニル基、トリフルオロフェニル基、パーフルオロフェニル基、ビフェニル基、ピリジルフェニル基、ビスピリジルフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、フェニルナフチル基、ピリジルナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、テトラセニル基、クリセニル基、フルオレニル基、９，９－ジフェニルフルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ビフェニリル基、ターフェニル基、ナフチルフェニル基、フェニルナフチル基、ビナフチル基、アントリルフェニル基、フェニルアントリル基、ナフチルアントリル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、トリシアノピリジル基、フルオロピリジル基、ジフルオロピリジル基、トリフルオロピリジル基、テトラフルオロピリジル基、フェニルピリジル基、ジフェニルピリジル基、ビピリジル基、ターピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、トリシアノピリミジル基、フルオロピリミジル基、ジフルオロピリミジル基、トリフルオロピリミジル基、テトラフルオロピリミジル基、フェニルピリミジル基、ジフェニルピリミジル基、ピリジルピリミジル基、ビスピリジルピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、トリシアノピラジル基、フルオロピラジル基、ジフルオロピラジル基、トリフルオロピラジル基、テトラフルオロピラジル基、フェニルピラジル基、ピリジルピラジル基、トリアジ

ル基、シアノトリアジル基、ジシアノトリアジル基、フルオロトリアジル基、ジフルオロトリアジル基、フェニルトリアジル基、ジフェニルトリアジル基、ピリジルトリアジル基、ビスピリジルトリアジル基、キノリル基、シアノキノリル基、ジシアノキノリル基、フェニルキノリル基、ピリジルキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、ジシアノイソキノリル基、フェニルイソキノリル基、ピリジルイソキノリル基、キノキサリル基、シアノキノキサリル基、ジシアノキノキサリル基、フェニルキノキサリル基、ピリジルキノキサリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基、ジシアノキナゾリニル基、フェニルキナゾリニル基、ピリジルキナゾリニル基、ピリドピリミジニル基、シアノピリドピリミジニル基、ジシアノピリドピリミジニル基、ベンゾキノリル基、シアノベンゾキノリル基、ジシアノベンゾキノリル基、ベンゾイソキノリル基、シアノベンゾイソキノリル基、ジシアノベンゾイソキノリル基、フェナントロリル基、シアノフェナントロリル基、ジシアノフェナントロリル基、フェナントリジル基、シアノフェナントリジル基、ジシアノフェナントリジル基、アクリジル基、シアノアクリジル基、ジシアノアクリジル基、フェナジニル基、シアノフェナジニル基、ジシアノフェナジニル基、フェノキサジニル基、シアノフェノキサジニル基、フェノチアジニル基、シアノフェノチアジニル基、ベンゾキノキサリル基、シアノベンゾキノキサリル基、ヘキサアザトリフェニレニル基、ペンタシアノヘキサアザトリフェニル基、チエニル基、シアノチエニル基、ジシアノチエニル基、フリル基、シアノフリル基、ジシアノフリル基、ベンゾチエニル基、シアノベンゾチエニル基、ジシアノベンゾチエニル基、ベンゾフリル基、シアノベンゾフリル基、ジシアノベンゾフリル基、イソベンゾフリル基、シアノイソベンゾフリル基、ジシアノイソベンゾフリル基、ジベンゾチオフェニル基、シアノジベンゾチオフェニル基、ジシアノジベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、シアノジベンゾフラニル基、ジシアノジベンゾフラニル基、ベンゾオキサゾールイル基、シアノベンゾオキサゾールイル基、ジシアノベンゾオキサゾールイル基、ピロールイル基、シアノピロールイル基、イン

ドールイル基、ジシアノインドールイル基、イソインドールイル基、シアノイソインドールイル基、ジシアノイソインドールイル基、インドリジニル基、シアノインドリジニル基、プリン基、シアノプリン基、イミダゾールイル基、シアノイミダゾールイル基、ジシアノイミダゾールイル基、カルバゾリル基、シアノカルバゾリル基、ジシアノカルバゾリル基、チアゾールイル基、チアジアゾールイル基、またはトリアゾールイル基等が挙げられる。

この中で、シアノ基、フッ素原子、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、キノリル基、シアノキノリル基、ジシアノキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基、キノキサリル基、またはシアノキノキサリル基が好ましく、素子性能が優れる点で、シアノ基が更に好ましい。

[0087] 式（１ｂ）において、R^4、R^5、R^6、およびR^7は、各々独立に、水素原子またはシアノ基を表す。

ただし、R^4、R^5、R^6、およびR^7のうち、少なくとも２つはシアノ基である。

[0088] ｐは、０、１、または２を表す。

合成が容易な点で、ｐは０または１であることが好ましく、素子性能が優れる点で１であることが更に好ましい。

[0089] ｑは、１、２、３、４または５を表す；

合成が容易な点で、qは０、１、または２であることが好ましく、素子性能が優れる点で１であることが更に好ましい。

[0090] Ar^3は、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基を表す（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。

Ar^3における炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または

複数の環を含む連結環であってもよい。）としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、テトラセニル基、クリセニル基、フルオレニル基、９，９－ジメチルフルオレニル基、９，９－ジフェニルフルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ビフェニリル基、ターフェニル基、ナフチルフェニル基、フェニルナフチル基、ビナフチル基、アントリルフェニル基、フェニルアントリル基、ナフチルアントリル基、ピリジル基、ピラジル基、またはピリミジル基等が挙げられる。素子性能が優れる点で、フェニル基またはナフチル基が好ましい。

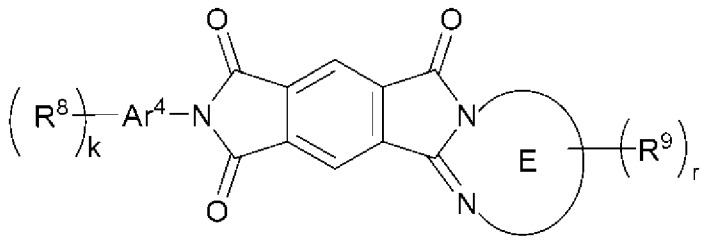
[0091] X^1は窒素原子またはＣ－R^6を表し、X^2は窒素原子またはＣ－R^7を表す。このうち、R^6及びR^7は、上述した基を表す。

[0092] 化合物（１ｂ）の好ましい具体例としては、前記式（Ｃ－１）～（Ｃ－１４０）で示される化合物のうちＣ－ｎ（ｎは１～１４０を表す）のｎが偶数である化合物、前記式（Ｃ－３２３）～（Ｃ－３９２）で例示することができる。中でも、前記式（Ｃ－１）～（Ｃ－１４０）で示される化合物のうちＣ－ｎ（ｎは１～１４０を表す）のｎが偶数である化合物がより好ましく、（Ｃ－５２）および（Ｃ－８２）で表される化合物がさらに好ましい。

[0093] ＜式（１ｃ）で示されるイミド化合物＞

次に、下記式（１ｃ）で示される本発明に用いられるイミド化合物（以下、単に「イミド化合物（１ｃ）」と称することがある。）について説明する。

[化48]



(1c)

[0094] 式（１ｃ）において、R^8は、各々独立に、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複

素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい。

R^8の具体例および好ましい例は、式（１ｂ）におけるR^3と同様の例が挙げられる。

[0095] R^9は、各々独立に、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい。

R^9の具体例および好ましい例は、式（１ｂ）におけるR^4と同様の例が挙げられる。

[0096] Ar^4は、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～１８の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す。

Ar^4の具体例および好ましい例は、式（１ｂ）におけるAr^3と同様の例が挙げられる。

[0097] 環Ｅは、イミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す。

環Ｅの具体例および好ましい例は、式（１）における環Ｂと同様の例が挙げられる。

[0098] ｒは１、２、３、または４を表す。

ただし、環Ｅがイミダゾール環の場合、ｒは１または２を表す。

素子性能が優れる点で、ｒは１または２であることが好ましく、合成が容易な点で２であることが更に好ましい。

[0099] ｋは、０、１、２、３、４または５を表す。

合成が容易な点で、ｋは０、１、または２であることが好ましく、素子性能が優れる点で１であることが更に好ましい。

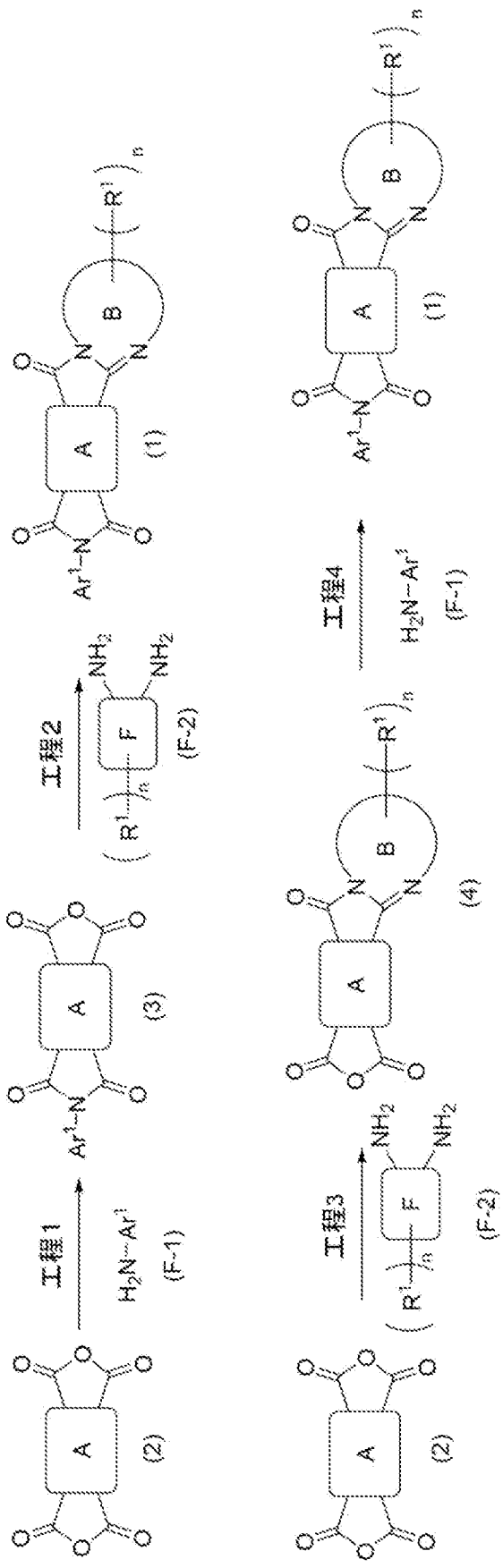
[0100] 化合物（１ｃ）の好ましい具体例としては、前記式（Ｃ－１）～（Ｃ－１４０）で示される化合物のうちＣ－ｎ（ｎは１～１４０を表す）のｎが奇数である化合物、前記式（Ｃ－１４１）～（Ｃ－３２２）で例示することができる。中でも、（Ｃ－１）、（Ｃ－５）、（Ｃ－９）、（Ｃ－５１）、（Ｃ－５５）、（Ｃ－５９）、（Ｃ－８１）、（Ｃ－８５）および（Ｃ－８９）が好ましく、（Ｃ－１）、（Ｃ－５１）および（Ｃ－８１）で表される化合物がさらに好ましい。

[0101] ［製造方法］

式（１）で示されるイミド化合物は、公知の方法、またはそれらの組み合わせによって合成することができる。例えば、イミド化合物（１）は、以下に示す工程１～４に示される方法により合成することができる。

[0102]

[化49]



[0103] 式中、ｎ、環Ａ、環Ｂ、Ｒ[1]およびＡｒ[1]は、前記と同義である。環Ｆはビニレン基、または炭素数４～１９の２価の芳香族基を表す。

[0104] 工程１は、テトラカルボン酸無水物（２）とアミン化合物（Ｆ－１）とを反応させ、モノイミド化合物（３）を得る方法であり、例えば、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｃｈｅｍ．Ｅｕｒ．Ｊ．２００６，１２，６５９２、Ｊ．Ｐｈｙｓ．Ｃｈｅｍ．Ｃ，２００８，１１２，１７２１．）に開示された反応条件、もしくは合成参考例１～４に開示した方法に従うことで目的物を得ることができる。

[0105] 工程１に用いるテトラカルボン酸無水物（２）は、例えば、Ａｎｇｅｗ．Ｃｈｅｍ．Ｉｎｔ．Ｅｄ．２０１７，５６，１３０３１．に開示された方法に従って合成することが出来る。また、市販品を用いてもよい。

[0106] 工程１に用いるアミン化合物（Ｆ－１）は、例えば、Ｓｙｎｌｅｔｔ ２００８，１５，２２８７．に開示された方法に従って合成することが出来る。また、市販品を用いてもよい。

[0107] 工程１に用いるアミン化合物（Ｆ－１）の当量は、モノイミド化合物（３）の収率がよい点で、テトラカルボン酸無水物（２）に対して０．３～１．５当量の範囲にあることが好ましく、０．５～１．１当量の範囲にあることがより好ましい。

[0108] 工程１は、溶媒中で実施してもよい。該溶媒は反応を阻害しないものであれば特に制限はないが、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、テトラクロロエタン等のハロアルカン；ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、シクロペンチルメチルエーテル（ＣＰＭＥ）、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）、２－メチルテトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン、ジメトキシエタン等のエーテル；ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン、テトラリン等の芳香族炭化水素；イミダゾール、ピリジン、ピラジン、キノリン等の複素芳香族化合物；エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、

エチルメチルカーボネート、４－フルオロエチレンカーボネート等の炭酸エステル；酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、酪酸メチル、γ－ラクトン等のエステル；Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（ＤＭＦ）、ジメチルアセトアミド（ＤＭＡｃ）、Ｎ－メチルピロリドン（ＮＭＰ）等のアミド；Ｎ，Ｎ，Ｎ’，Ｎ’－テトラメチルウレア（ＴＭＵ）、Ｎ，Ｎ’－ジメチルプロピレンウレア（ＤＭＰＵ）等のウレア；ジメチルスルホキシド（ＤＭＳＯ）等のスルホキシド；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、オクタノール、ベンジルアルコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、２，２，２－トリフルオロエタノール等のアルコール；等が挙げられる。これらは１種のみで用いてもよく、任意の比で混合して用いてもよい。溶媒の使用量に特に制限はない。これらのうち、反応収率がよい点でＤＭＦ、ＤＭＡｃ、ピリジンおよびこれらの混合溶媒を用いることが好ましい。

[0109] 工程１は、縮合剤の存在下に行うことで反応を促進することができる。該縮合剤としては、アルミナ、シリカゲル等の固体酸；四塩化チタン、四塩化スズ、五塩化アンチモン等の金属塩化物；トリエチルアミン、ピリジン、４－ジメチルアミノピリジン、ジアザビシクロウンデセン、テトラメチルエチレンジアミン、１，４－ジアザビシクロ［２．２．２］オクタン等の有機塩基；１－［３－（ジメチルアミノ）プロピル］－３－エチルカルボジイミド、１－エチル－３－（３－ジメチルアミノプロピル）カルボジイミド塩酸塩（ＥＤＣ）、Ｎ，Ｎ’－ジシクロヘキシルカルボジイミド、Ｎ，Ｎ’－ジイソプロピルカルボジイミド、Ｎ，Ｎ’－カルボニルジイミダゾール、１，１’－カルボニルジ（１，２，４－トリアゾール）等のカルボジイミドを例示することができる。反応収率がよい点で有機塩基、縮合剤が好ましく、得られるモノイミド化合物（３）の純度がよい点でトリエチルアミン、ピリジンまたはＥＤＣがより好ましい。

[0110] 工程１は、－８０℃～３００℃から適宜選択された温度にて実施すること

ができ、反応収率がよい点で２０℃～２５０℃から適宜選択された温度にて実施することが好ましく、５０℃～２００℃から適宜選択された温度にて実施することがより好ましい。

[0111] モノイミド化合物（３）は、工程１の終了後に通常の処理をすることで得られる。必要に応じて、洗浄、沈殿、ろ過、透析、再結晶、カラムクロマトグラフィー、分取ＨＰＬＣ、またはソックスレー抽出等の当業者が有機化合物の精製に用いる汎用的な手段を適宜用いて精製してもよい。また、モノイミド化合物（３）は、精製することなく工程２に供してもよい。

[0112] 工程２は、モノイミド化合物（３）とジアミン化合物（Ｆ－２）とを反応させ、本発明の光電変換素子に含まれるイミド化合物（１）（以下、単に「イミド化合物（１）」ということがある。）を得る方法であり、例えば、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｊ．Ｏｒｇ．Ｃｈｅｍ．２００９，７４，８９１４．）に開示された反応条件、もしくは合成実施例Ｃ－２，５２，７２および８２に開示した方法に従うことで目的物を得ることができる。

[0113] 工程２に用いるジアミン化合物（Ｆ－２）は、例えば、Ｃｈｅｍ．Ｅｕｒ．Ｊ．２０１５，２１，１７３１４．に開示された方法に従って合成することが出来る。また、市販品を用いてもよい。

[0114] 工程２に用いるアミン化合物（Ｆ－２）の当量は、イミド化合物（１）の収率がよい点で、モノイミド化合物（３）に対して０．５～１．５当量の範囲にあることが好ましく、０．８～１．２当量の範囲にあることがより好ましい。

[0115] 工程２は、溶媒中で実施してもよい。該溶媒は反応を阻害しないものであれば特に制限はないが、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、テトラクロロエタン等のハロアルカン；ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、シクロペンチルメチルエーテル（ＣＰＭＥ）、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）、２－メチルテトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン、ジメトキシエタン等のエーテル；ベンゼン、トルエン、キ

シレン、メシチレン、テトラリン等の芳香族炭化水素；イミダゾール、ピリジン、ピラジン、キノリン等の複素芳香族化合物；エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、４－フルオロエチレンカーボネート等の炭酸エステル；酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、酪酸メチル、γ－ラクトン等のエステル；Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（ＤＭＦ）、ジメチルアセトアミド（ＤＭＡｃ）、Ｎ－メチルピロリドン（ＮＭＰ）等のアミド；Ｎ，Ｎ，Ｎ’，Ｎ’－テトラメチルウレア（ＴＭＵ）、Ｎ，Ｎ’－ジメチルプロピレンウレア（ＤＭＰＵ）等のウレア；ジメチルスルホキシド（ＤＭＳＯ）等のスルホキシド；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、オクタノール、ベンジルアルコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、２，２，２－トリフルオロエタノール等のアルコール；等が挙げられる。これらは１種のみで用いてもよく、任意の比で混合して用いてもよい。溶媒の使用量に特に制限はない。これらのうち、反応収率がよい点でＤＭＦ、ＤＭＡｃ、ピリジン、キシレンおよびこれらの混合溶媒を用いることが好ましい。

[0116] 工程２は、縮合剤の存在下に行うことで反応を促進することができる。該縮合剤としては、アルミナ、シリカゲル等の固体酸；四塩化チタン、四塩化スズ、五塩化アンチモン等の金属塩化物；トリエチルアミン、ピリジン、４－ジメチルアミノピリジン、ジアザビシクロウンデセン、テトラメチルエチレンジアミン、１，４－ジアザビシクロ［２．２．２］オクタン等の有機塩基；１－［３－（ジメチルアミノ）プロピル］－３－エチルカルボジイミド、１－エチル－３－（３－ジメチルアミノプロピル）カルボジイミド塩酸塩（ＥＤＣ）、Ｎ，Ｎ’－ジシクロヘキシルカルボジイミド、Ｎ，Ｎ’－ジイソプロピルカルボジイミド、Ｎ，Ｎ’－カルボニルジイミダゾール、１，１’－カルボニルジ（１，２，４－トリアゾール）等のカルボジイミドを例示することができる。反応収率がよい点で有機塩基が好ましく、得られるイミ

ド化合物（１）の純度がよい点でトリエチルアミンまたはピリジンがより好ましい。

[0117] 工程２は、－８０℃～３００℃から適宜選択された温度にて実施することができ、反応収率がよい点で２０℃～２５０℃から適宜選択された温度にて実施することが好ましく、５０℃～２００℃から適宜選択された温度にて実施することがより好ましい。

[0118] イミド化合物（１）は、工程２の終了後に通常の処理をすることで得られる。必要に応じて、洗浄、沈殿、ろ過、透析、再結晶、カラムクロマトグラフィー、分取ＨＰＬＣ、またはソックスレー抽出等の当業者が有機化合物の精製に用いる汎用的な手段を適宜用いて精製してもよい。

[0119] 工程３は、テトラカルボン酸無水物（２）とジアミン化合物（Ｆ－２）と反応させ、縮合環イミダゾール化合物（４）を得る方法であり、例えば、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｊ．Ｏｒｇ．Ｃｈｅｍ．２００９，７４，８９１４．）に開示された反応条件、もしくは合成参考例１～４に開示した方法に従うことで目的物を得ることができる。

[0120] 工程３に用いるジアミン化合物（Ｆ－２）の当量は、縮合環イミダゾール化合物（４）の収率がよい点で、テトラカルボン酸無水物（２）に対して０．５～１．５当量の範囲にあることが好ましく、０．８～１．２当量の範囲にあることがより好ましい。

[0121] 工程３は、溶媒中で実施してもよい。該溶媒は反応を阻害しないものであれば特に制限はなく、工程２で例示した溶媒と同様のものを例示することができ、これらは１種のみで用いてもよく、任意の比で混合して用いてもよい。溶媒の使用量に特に制限はない。これらのうち、反応収率がよい点でＤＭＦ、ＤＭＡｃ、ピリジン、キシレンおよびこれらの混合溶媒を用いることが好ましい。

[0122] 工程３は、縮合剤の存在下に行うことで反応を促進することができる。該縮合剤としては、工程２で例示した縮合剤と同様のものを例示することができ、反応収率がよい点で有機塩基が好ましく、得られる縮合環イミダゾール

化合物（４）の純度がよい点でトリエチルアミンまたはピリジンがより好ましい。

[0123] 工程３は、－８０℃～３００℃から適宜選択された温度にて実施することができ、反応収率がよい点で２０℃～２５０℃から適宜選択された温度にて実施することが好ましく、５０℃～２００℃から適宜選択された温度にて実施することがより好ましい。

[0124] 縮合環イミダゾール化合物（４）は、工程３の終了後に通常の処理をすることで得られる。必要に応じて、洗浄、沈殿、ろ過、透析、再結晶、カラムクロマトグラフィー、分取ＨＰＬＣ、またはソックスレー抽出等の当業者が有機化合物の精製に用いる汎用的な手段を適宜用いて精製してもよい。また、縮合環イミダゾール化合物（４）は、精製することなく工程４に供してもよい。

[0125] 工程４は、縮合環イミダゾール化合物（４）とアミン化合物（Ｆ－１）とを反応させ、イミド化合物（１）を得る方法であり、例えば、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｃｈｅｍ．Ｅｕｒ．Ｊ．２００６，１２，６５９２、Ｊ．Ｐｈｙｓ．Ｃｈｅｍ．Ｃ，２００８，１１２，１７２１．）に開示された反応条件、もしくは合成実施例Ｃ－２，５２，７２および８２に開示した方法に従うことで目的物を得ることができる。

[0126] 工程４に用いるアミン化合物（Ｆ－１）の当量は、イミド化合物（１）の収率がよい点で、縮合環イミダゾール化合物（４）に対して０．３～１．５当量の範囲にあることが好ましく、０．５～１．０当量の範囲にあることがより好ましい。

[0127] 工程４は、溶媒中で実施してもよい。該溶媒は反応を阻害しないものであれば特に制限はなく、工程１で例示した溶媒と同様のものを例示することができ、これらは１種のみで用いてもよく、任意の比で混合して用いてもよい。溶媒の使用量に特に制限はない。これらのうち、反応収率がよい点でＤＭＦ、ＤＭＡｃ、ピリジン、キシレンおよびこれらの混合溶媒を用いることが好ましい。

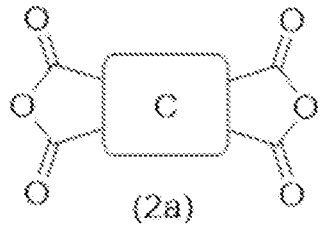
[0128] 工程４は、縮合剤の存在下に行うことで反応を促進することができる。該縮合剤としては、工程１で例示した縮合剤と同様のものを例示することができ、反応収率がよい点で有機塩基、縮合剤が好ましく、得られるイミド化合物（１）の純度がよい点でトリエチルアミン、ピリジンまたはＥＤＣがより好ましい。

[0129] 工程４は、－８０℃～３００℃から適宜選択された温度にて実施することができ、反応収率がよい点で２０℃～２５０℃から適宜選択された温度にて実施することが好ましく、５０℃～２００℃から適宜選択された温度にて実施することがより好ましい。

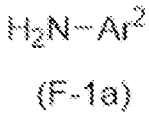
[0130] イミド化合物（１）は、工程４の終了後に通常の処理をすることで得られる。必要に応じて、洗浄、沈殿、ろ過、透析、再結晶、カラムクロマトグラフィー、分取ＨＰＬＣ、またはソックスレー抽出等の当業者が有機化合物の精製に用いる汎用的な手段を適宜用いて精製してもよい。

[0131] 式（１ａ）で示される本発明の正孔輸送促進材料（以下、単に「正孔輸送促進材料（１ａ）」と称することがある。）は、下記式で示されるテトラカルボン酸無水物（２ａ）、アミン化合物（Ｆ－１ａ）およびジアミン化合物（Ｆ－２ａ）を用いて、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｃｈｅｍ．Ｅｕｒ．Ｊ．２００６，１２，６５９２、Ｊ．Ｐｈｙｓ．Ｃｈｅｍ．Ｃ，２００８，１１２，１７２１、Ｊ．Ｏｒｇ．Ｃｈｅｍ．２００９，７４，８９１４．）に開示された反応条件、合成実施例および参考例Ｃ－２，５２，７２、８２に開示した方法並びに前記工程１～４で説明した方法に従って製造することができる。

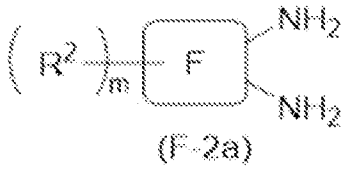
[化50]



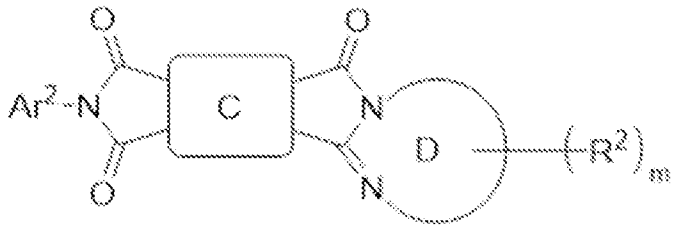
(2a)



(F-1a)



(F-2a)

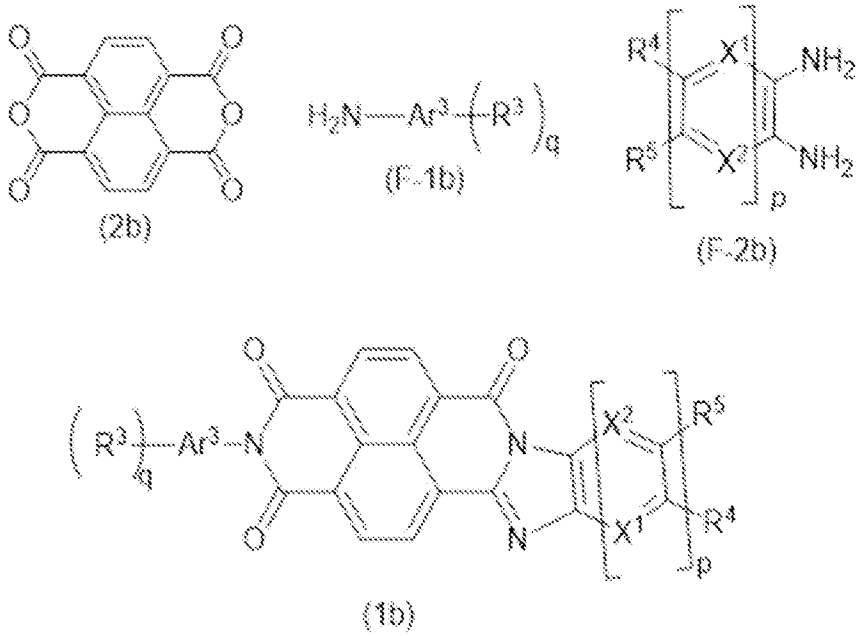


(1a)

（式中、（１ａ）、（２ａ）、（Ｆ－１ａ）および（Ｆ－２ａ）は前記と同じ意味を表す。）

[0132] 式（１ｂ）で示される本発明のイミド化合物（以下、単に「イミド化合物（１ｂ）」と称することがある。）は、下記式で示されるテトラカルボン酸無水物（２ｂ）、アミン化合物（Ｆ－１ｂ）およびジアミン化合物（Ｆ－２ｂ）を用いて、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｃｈｅｍ．Ｅｕｒ．Ｊ．２００６，１２，６５９２、Ｊ．Ｐｈｙｓ．Ｃｈｅｍ．Ｃ，２００８，１１２，１７２１、Ｊ．Ｏｒｇ．Ｃｈｅｍ．２００９，７４，８９１４．）に開示された反応条件、合成実施例および参考例Ｃ－２，５２，７２、８２に開示した方法並びに前記工程１～４で説明した方法に従って製造することができる。

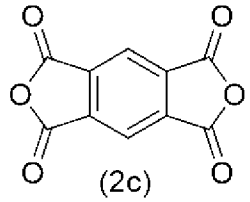
[化51]



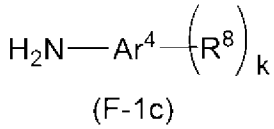
（式中、（１ｂ）、（２ｂ）、（Ｆ－１ｂ）および（Ｆ－２ｂ）は前記と同じ意味を表す。）

[0133] 式（１ｃ）で示される本発明のイミド化合物（以下、単に「イミド化合物（１ｃ）」と称することがある。）は、下記式で示されるテトラカルボン酸無水物（２ｃ）、アミン化合物（Ｆ－１ｃ）およびジアミン化合物（Ｆ－２ｃ）を用いて、文献（ＷＯ２０２１／１６８３５８Ａ１、Ｃｈｅｍ．Ｅｕｒ．Ｊ．２００６，１２，６５９２、Ｊ．Ｐｈｙｓ．Ｃｈｅｍ．Ｃ，２００８，１１２，１７２１、Ｊ．Ｏｒｇ．Ｃｈｅｍ．２００９，７４，８９１４．）に開示された反応条件、合成実施例および参考例Ｃ－２，５２，７２、８２に開示した方法並びに前記工程１～４で説明した方法に従って製造することができる。

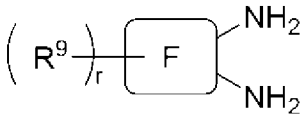
[化52]



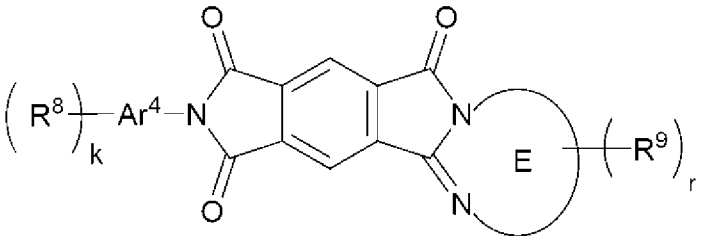
(2c)



(F-1c)



(F-2c)



(1c)

（式中、（１ｃ）、（２ｃ）、（Ｆ－１ｃ）および（Ｆ－２ｃ）は前記と同じ意味を表す。）

[0134] ＜＜イミド化合物（１）の作用効果＞＞

イミド化合物（１）は、環Ａで示される芳香族炭化水素環の左右にイミド環を有するとともに、環Ｂで示されるイミダゾール環（又は縮合イミダゾール環）を有する、いわゆる「共役拡張型のイミド構造」を有する。このような構造により、正孔輸送材料のＨＯＭＯ軌道との強い相互作用が期待される。正孔輸送促進層が式（１）で表される化合物を含有すること、または正孔輸送材料とイミド化合物（１）とを混合してなる層を含むことにより、隣接する正孔輸送層のＨＯＭＯ軌道との相互作用が高まり、正孔輸送層と正孔輸送促進層の間のキャリア授受が促進されることが期待される。このように、式（１）で表される化合物は、きわめて深いＬＵＭＯ準位を有するため、正孔輸送層と電極の間の正孔のやり取りがスムーズになることが期待される。

[0135] 本発明者らは、上述のように、イミド化合物（１）に、正孔輸送層と電極との間の正孔のやり取りをスムーズにする正孔輸送促進材料として有効に使用し得ることを見出した。そして、実際に光電変換素子において、イミド化合物（１）（正孔輸送促進材料）を正孔輸送材料と組み合わせた際にその正孔輸送能力が促進されることを確認した。すなわち、光電変換素子において

、受光層内で発生したキャリアを電極側に取り出す際のエネルギー障壁を、本願の正孔輸送促進材料であるイミド化合物（１）によって低減し得ることを発見した。

[0136] ＜実施形態＞

本発明の光電変換素子の積層構成として、例えば下記（ｉ）または下記（ｉｉ）の構成が挙げられる。

（ｉ）：第一の電極／正孔輸送促進層／正孔輸送層／受光層／第二の電極

（ｉｉ）：第一の電極／正孔輸送促進層／正孔輸送層／受光層／電子輸送層／第二の電極

[0137] 以下、本発明に係る光電変換素子を、上記（ｉｉ）の構成を例に挙げて、図１を参照しながら更に詳細に説明する。図１は、本発明に係る光電変換素子の積層構成の一例を示す概略断面図である。

[0138] ＜＜第１の実施形態＞＞

第１の実施形態による光電変換素子は、図１に示す積層構成を備えた有機撮像素子または光センサである。

光電変換素子１は、第一の電極１１（第一の電極）、正孔輸送促進層１２、正孔輸送層１３、受光層１４、電子輸送層１５、および第二の電極１６（第二の電極）をこの順で備える。ただし、これらの層のうちの一部の層が省略されていてもよく、また逆に他の層が追加されていてもよい。

[0139] 図１に示す光電変換素子１では、透明である第一の電極１１の上方から、光が入射し、受光層１４で受光する。なお、図１では便宜上受光層１４の側面から光が入射するように示されている。また、光電変換素子１は、受光層１４で光電変換により発生した電荷（正孔および電子）のうち、正孔を第一の電極１１に移動させ、電子を第二の電極１６に移動させるように、電圧が印加される。すなわち、第一の電極１１を正孔捕集電極とし、第二の電極１６を電子捕集電極としている。なお、図１では、第一の電極１１の上面に設けられた基板が省略されている。ここでの基板としては特に限定はなく、例えばガラス板、石英板、プラスチック板等が挙げられる。また、基板側から

光が入射する構成の場合、基板は光の波長に対して透明である。以下では、上記各層について説明する。

[0140] ［第一の電極１１］

基板上には第一の電極１１または第二の電極１６が設けられている。

光が第一の電極１１を通過して、受光層１４に入射する構成の光電変換素子の場合、第一の電極は当該光を通すかまたは実質的に通す透明材料で形成される。ここで、「光を通す」とは（可視光の）平均透過率が８０％以上であることいい、「実質的に通す」とは平均透過率が５０％以上であるという。すなわち、本明細書において、「透明」とは平均透過率が５０％以上であることを意味する。

[0141] 第一の電極１１または第二の電極１６に用いられる透明材料としては、特に限定されないが、例えば、インジウム－錫酸化物（ＩＴＯ；Ｉｎｄｉｕｍ Ｔｉｎ Ｏｘｉｄｅ）、インジウム－亜鉛酸化物（ＩＺＯ；Ｉｎｄｉｕｍ Ｚｉｎｃ Ｏｘｉｄｅ）、酸化錫、アルミニウム・ドープ型酸化錫、マグネシウム－インジウム酸化物、ニッケル－タングステン酸化物、その他の金属酸化物、窒化ガリウム等の金属窒化物、セレン化亜鉛等の金属セレン化物、および硫化亜鉛等の金属硫化物等が挙げられる。

[0142] なお、第二の電極１６側のみから光が受光層１４に入射する構成の光電変換素子の場合、第一の電極１１の透過特性は重要ではない。したがって、この場合の第一の電極に用いられる材料の一例としては、金、イリジウム、モリブデン、パラジウム、白金等が挙げられる。

[0143] ［正孔輸送促進層１２］

第一の電極１１と後述する正孔輸送層１３との間には、正孔輸送促進層１２が設けられている。正孔輸送促進層１２は、正孔輸送層１３から第一の電極１１への正孔輸送を促進させるために設けられる。正孔輸送促進層１２は、前述のイミド化合物（１）を含有する。また、イミド化合物（１）以外の化合物を一緒に含有させることもできる。正孔輸送促進層１２に含有させることができる化合物としては、例えば従来公知の正孔輸送材料が挙げられ、

後述の正孔輸送層１３に用いる化合物等が挙げられる。

[0144] ［正孔輸送層１３］

正孔輸送促進層１２と受光層１４との間には、正孔輸送層１３が設けられている。

正孔輸送層１３は、受光層１４で発生した正孔を受光層１４から第一の電極１１へ輸送する役割と、受光層１４で発生した電子が第一の電極１１側へ移動するのをブロックする役割とを有する。また用途によっては第一の電極１１からの電子注入をブロックする役割を有することもある。

[0145] 正孔輸送層１３は、一種または二種以上の材料からなる単層構造であってもよく、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。正孔輸送層１３に含有させることができる正孔輸送材料は、公知の正孔輸送材料であってよい。公知の正孔輸送材料としては、芳香族第三級アミン化合物、ナフタレン化合物、アントラセン化合物、テトラセン化合物、ペンタセン化合物、フェナントレン化合物、ピレン化合物、ペリレン化合物、フルオレン化合物、カルバゾール化合物、インドール化合物、ピロール化合物、ピセン化合物、チオフェン化合物、ベンゾトリフラン化合物、ベンゾトリチオフェン化合物、ナフトジチオフェン化合物、ナフトチエノチオフェン化合物、ベンゾジフラン化合物、ベンゾジチオフェン化合物、ベンゾチオフェン化合物、ナフトビスベンゾチオフェン化合物、クリセノジチオフェン化合物、ベンゾチエノベンゾチオフェン化合物、インドロカルバゾール化合物等が挙げられる。

これらの中でも、フルオレン化合物、ナフトジチオフェン化合物、ナフトチエノチオフェン化合物、ベンゾジフラン化合物、ベンゾチオフェン化合物、ナフトビスベンゾチオフェン化合物、クリセノジチオフェン化合物、ベンゾチエノベンゾチオフェン化合物、インドロカルバゾール化合物等が好ましく、特にフルオレン化合物、クリセノジチオフェン化合物、ベンゾチエノベンゾチオフェン化合物、インドロカルバゾール化合物が好ましい。

[0146] ［受光層１４］

正孔輸送層１３と後述する電子輸送層１５との間には、受光層１４が設けられている。

受光層１４の材料としては、光電変換機能を有する材料が挙げられる。

[0147] 受光層１４は、一種または二種以上の材料からなる単層構造であってもよく、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

中でも、光電変換効率を高める為には、受光層１４は少なくとも二種の材料（有機成分）を含有する層からなることが好ましい。

[0148] 一種の材料からなる単層構造である受光層１４に用いられる材料（有機成分）としては、例えば、（ｉ）クマリンおよびその誘導体、キナクリドンおよびその誘導体、フタロシアニンおよびその誘導体等が挙げられる。

二種の材料からなる単層構造である受光層１４に用いられる材料（有機成分）としては、例えば、前述の（ｉ）クマリンおよびその誘導体、キナクリドンおよびその誘導体、フタロシアニンおよびその誘導体と、（ｉｉ）フラーレンおよびその誘導体、その他アクセプター材料との組み合わせが挙げられる。これらの材料からなる受光層４の作製は、予め粉末を混合した状態で蒸着させて形成しても良いし、任意の割合で共蒸着することで形成しても良い。

三種の材料からなる単層構造である受光層１４に用いられる材料（有機成分）としては、前述の（ｉ）クマリンおよびその誘導体、キナクリドンおよびその誘導体、フタロシアニンおよびその誘導体、（ｉｉ）フラーレンおよびその誘導体、その他アクセプター材料、および（ｉｉｉ）正孔輸送材料との組み合わせが挙げられる。これらの材料からなる受光層１４の作製は、予め粉末を混合した状態で蒸着させて形成しても良いし、任意の割合で共蒸着することで形成しても良い。

[0149] （ｉ）クマリン誘導体の具体例としては、クマリン６、クマリン３０が挙げられる。キナクリドン誘導体の具体例としては、Ｎ，Ｎ－ジメチルキナクリドンが挙げられる。フタロシアニン誘導体の具体例としては、ホウ素サブフタロシアニンクロリド、ホウ素サブナフタロシアニンクロリド（ＳｕｂＮ

Ｃ）が挙げられる。

（ｉｉ）フラーレンおよびその誘導体の具体例としては、［６０］フラーレン、［７０］フラーレン、［６，６］－フェニル－Ｃ６１－酪酸メチル（［６０］ＰＣＢＭ）が挙げられる。

（ｉｉｉ）正孔輸送材料の好ましい化合物および具体例としては、前述の正孔輸送層１３で用いるものと同じものが挙げられる。

[0150] また、光電変換機能を有する材料は受光層のみに含有されることに限定されるものではない。例えば、光電変換機能を有する材料は、受光層１４に隣接した層（正孔輸送層１３、または電子輸送層１５）を含有していてもよい。

[0151] ［電子輸送層１５］

受光層１４と後述する第二の電極１６との間には、電子輸送層１５が設けられている。

電子輸送層１５は、受光層１４で発生した電子を第二の電極１６へ輸送する役割と、電子輸送先の第二の電極１６から受光層１４に正孔が移動するのをブロックする役割とを有する。また用途によっては第二の電極１６からの正孔注入をブロックする役割を有することもある。

[0152] また、電子輸送層１５に含有させることができる電子輸送材料は、公知の電子輸送材料であってよく、電子輸送材料としては、例えば、フラーレン、フラーレン誘導体、トリアジン誘導体、ビス（８－ヒドロキシキノリナート）マンガン、トリス（８－ヒドロキシキノリナート）アルミニウム、トリス（２－メチル－８－ヒドロキシキノリナート）アルミニウム、ＢＣＰ（２，９－ジメチル－４，７－ジフェニル－１，１０－フェナントロリン）、Ｂｐｈｅｎ（４，７－ジフェニル－１，１０－フェナントロリン）、ＢＡｌｑ（ビス（２－メチル－８－キノリノラート）－４－（フェニルフェノラート）アルミニウム）、４，６－ビス（３，５－ジ（ピリジン－４－イル）フェニル）－２－メチルピリミジン、Ｎ，Ｎ’－ジフェニル－１，４，５，８－ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド、およびＮ，Ｎ’－ジ（４－ピリジル）

－１，４，５，８－ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド等が挙げられる。

[0153] 電子輸送層１５は、一種または二種以上の材料からなる単層構造であってもよく、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

[0154] ［第二の電極１６］

電子輸送層１５上には第二の電極１６が設けられている。

第二の電極１６の材料としては、例えば、インジウム－錫酸化物（ＩＴＯ）、インジウム－亜鉛酸化物（ＩＺＯ）、ナトリウム、ナトリウム－カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（Al_2O_3）混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、金、白金、希土類金属、酸化モリブデン等が挙げられる。尚、前記第一の電極１１と第二の電極１６は同一であっても相異なっていてもよい。

[0155] ［各層の形成方法］

以上説明した第一の電極１１、第二の電極１６を除く各層は、それぞれの層の材料（必要に応じて結着樹脂等の材料、溶剤と共に）を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、ＬＢ（Ｌａｎｇｍｕｉｒ－Ｂｌｏｄｇｅｔｔ　ｍｅｔｈｏｄ）法等の公知の方法によって薄膜化することにより、形成することができる。

このようにして形成された各層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は５ｎｍ以上５μｍ以下の範囲である。

[0156] 第一の電極１１および第二の電極１６は、電極材料を蒸着やスパッタリング等の方法によって薄膜化することにより、形成することができる。蒸着やスパッタリングの際に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよく、蒸着やスパッタリング等によって薄膜を形成した後、フォトリソグラフィーで所望の形状のパターンを形成してもよい。

[0157] 第一の電極１１および第二の電極１６の膜厚は、１μｍ以下であることが好ましく、１０ｎｍ以上２００ｎｍ以下であることがより好ましい。

[0158] 第一の電極１１および第二の電極１６は、必要に応じてそれぞれを構成する材料を入れ替えても良い（逆型構造とも呼ばれる）。このような構造の場合、光は第二の電極１６を通過して、受光層１４に入射する構成の光電変換素子となる。

[0159] 本実施形態の光電変換素子を備えた撮像素子は、例えば、デジタルカメラやデジタルビデオカメラの撮像素子、および携帯電話等に内蔵された撮像素子に適用することができる。光センサは、例えば、テレビのリモコンやエアコンのスイッチ、自動ドアの開閉等に適用することができる。

[0160] ＜＜第２の実施形態＞＞

本発明の第２の実施形態による光電変換素子は、図１に示す積層構成を備えた太陽電池である。太陽電池１は、第一の電極１１と受光層１４との間に正孔輸送促進層１２および正孔輸送層１３が設けられており、第二の電極１６と受光層１４との間には電子輸送層１５が設けられている。ただし、これらの層のうちの一部の層が省略されていてもよく、また逆に他の層が追加されていてもよい。

[0161] ［第一の電極１１］

第一の電極１１は、例えば透明材料からなり、透明材料は第１の実施形態における透明材料を用いることができる。第一の電極１１は任意の基材（例えば、ガラス、プラスチック、高分子フィルム等の透明基板）上に形成されていてもよい。

[0162] ［正孔輸送促進層１２］

正孔輸送促進層１２の材料は、第１の実施形態における正孔輸送促進層１２の材料（イミド化合物（１））と同じである。正孔輸送促進層１２の材料は、第１の実施形態における材料以外に従来公知の正孔輸送材料を含有してもよい。

[0163] ［正孔輸送層１３］

正孔輸送層１３の材料は、第１の実施形態における正孔輸送層１３の材料と同じである。正孔輸送層１３の材料は、第１の実施形態における正孔輸送材料以外に、従来公知の正孔輸送材料を含有してもよい。

[0164] ［受光層１４］

受光層１４の材料は、電子供与材料および電子受容材料を用いたものであればよく、電子供与材料と電子受容材料とが平面同士で結合された平面結合型でも、電子供与材料と電子受容材料とが混合して成膜されたバルクヘテロ結合型でもよい。

電子供与材料は特に限定されないが、有機半導体が好ましい。電子供与材料としては、例えば、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体等の高分子化合物およびそれらの共重合体、あるいはフタロシアニン誘導体およびその金属錯体、ポルフィリン誘導体およびその金属錯体、ペンタセン等のアセン誘導体、ジアミン誘導体等の低分子化合物等が挙げられる。電子供与材料は、本発明の効果を損なわない範囲において有機半導体とともに無機半導体を用いることもできる。

電子受容材料は特に限定されないが、有機半導体が好ましい。電子受容材料としては、例えば、フラーレン誘導体、ペリレン誘導体、ナフタレン誘導体等が挙げられる。

[0165] ［電子輸送層１５］

電子輸送層１５の材料は、第１の実施形態における電子輸送材料を用いることができる。また、電子輸送材料としてフッ化ナトリウム、フッ化セシウム等のアルカリ金属ハロゲン化物、フッ化カルシウム等のアルカリ土類金属ハロゲン化合物、炭酸セシウム等の炭酸塩、酸化チタン、酸化亜鉛等の無機系ｎ型半導体を用いてもよい。

[0166] ［第二の電極１６］

第二の電極１６は、例えば、マグネシウム、カルシウム、ナトリウム、カリウム、チタン、インジウム、イットリウム、リチウム、ガドリニウム、アルミニウム、銀、スズ、鉛等の金属、またはこれらの合金が挙げられるが、

これらに限定されない。

[0167] 第一の電極１１および第二の電極１６は、必要に応じてそれぞれを構成する材料を入れ替えても良い（逆型構造とも呼ばれる）。このような構造の場合、光は第二の電極１６を通過して、受光層１４に入射する構成の光電変換素子となる。

[0168] ［各層の形成方法］

各層の形成方法は特に限定されず、例えば基板上に、蒸着法、スピンコート法、キャスト法、パターン転写法等を用いて第一の電極１１、正孔輸送促進層１２、正孔輸送層１３、受光層１４、電子輸送層１５、および第二の電極１６を順次積層してもよいし、正孔輸送促進層１２、正孔輸送層１３、受光層１４、および電子輸送層１５を積層した後、この積層体に第一の電極１１および第二の電極１６をそれぞれ転写、蒸着、スパッタリング等によって形成してもよい。

[0169] 本発明の光電変換素子、および該素子を形成する各層の形成方法は、上述の実施形態に示した素子および方法に限定されない。例えば、第一の電極、受光層（または発光層）、電子輸送層、第二の電極の材料は公知の他の材料と適宜置き換えることができる。また、正孔輸送促進層および正孔輸送層は、イミド化合物（１）と正孔輸送材料を混合して形成された層に置き換えることもできる。

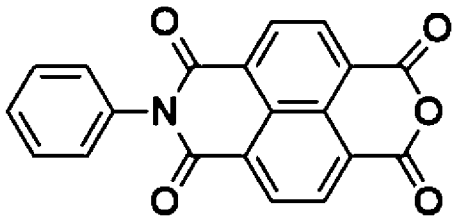
実施例

[0170] 以下に本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定して解釈されるものではない。

^{1}Ｈ－ＮＭＲの測定には、Ｂｒｕｋｅｒ　ＡＳＣＥＮＤ　ＨＤ（４００ＭＨｚ；ＢＲＵＫＥＲ製）を用いた。^{1}Ｈ－ＮＭＲは、重クロロホルム（$CDCl_3$）を測定溶媒とし、内部標準物質としてテトラメチルシラン（ＴＭＳ）を用いて測定した。また、測定には市販の試薬を用いた。

[0171] （合成参考例１）

[化53]

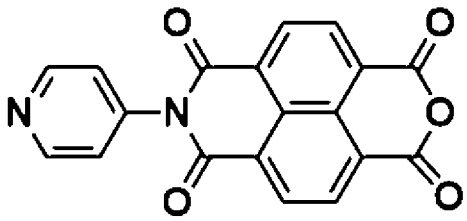


アルゴン雰囲気下、ナフタレン－１，４，５，８－テトラカルボン酸二無水物（１０．６ｇ，３９．５ｍｍｏｌ）、１－（３－ジメチルアミノプロピル）－３－エチルカルボジイミド塩酸塩（２．８９ｇ，１５．１ｍｍｏｌ）をＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（８０ｍＬ）に懸濁し、１２０℃で１時間撹拌した。その後、反応溶液にアニリン（２．３３ｇ，２５．０ｍｍｏｌ）を添加し、１２０℃で２時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を留去し得られた固体を熱クロロホルムで洗浄した。洗浄後のろ液から低沸分を留去し得られた固体を１，４－ジオキサンによる再結晶にて精製することで７－フェニル－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオンを得た（収量５．２４ｇ，収率６１％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：８．８７（ｍ，４Ｈ），７．６２－７．５２（ｍ，３Ｈ），７．３４－７．３１（ｍ，２Ｈ）．

[0172] （合成参考例２）

[化54]



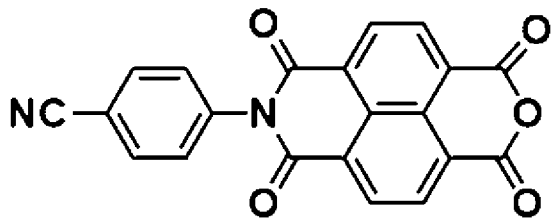
アルゴン雰囲気下、ナフタレン－１，４，５，８－テトラカルボン酸二無水物（１０．６ｇ，３９．５ｍｍｏｌ）、１－（３－ジメチルアミノプロピル）－３－エチルカルボジイミド塩酸塩（２．８９ｇ，１５．１ｍｍｏｌ）をＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（８０ｍＬ）に懸濁し、１２０℃で１時間撹拌した。その後、反応溶液に４－アミノピリジン（２．３５ｇ，２５．０

ｍｍｏｌ）を添加し、１２０℃で１６時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を留去し得られた懸濁液に水を加え析出した固体をろ取した。ろ取した固体を熱クロロホルムにて洗浄し、得られたろ液から低沸分を留去した。得られた固体を無水酢酸（１０ｍＬ）に懸濁させ１２０℃で１時間加熱撹拌した。室温まで放冷後、析出した固体をろ取することで７－（ピリジン－４－イル）－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオンを得た（収量１．８９ｇ，収率２２％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：８．８９－８．８７（ｍ，６Ｈ），７．３３（ｄ，Ｊ＝４．５Ｈｚ，２Ｈ）．

[0173]（合成参考例３）

[化55]

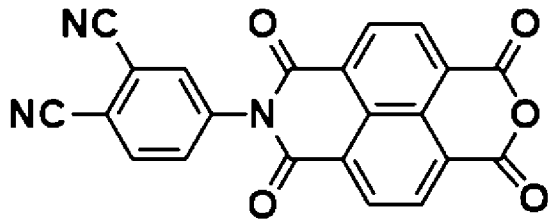


アルゴン雰囲気下、ナフタレン－１，４，５，８－テトラカルボン酸二無水物（１０．６ｇ，３９．５ｍｍｏｌ）、１－（３－ジメチルアミノプロピル）－３－エチルカルボジイミド塩酸塩（２．８９ｇ，１５．１ｍｍｏｌ）をＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（８０ｍＬ）に懸濁し、１２０℃で１時間撹拌した。その後、反応溶液に４－アミノベンゾニトリル（２．９５ｇ，２５．０ｍｍｏｌ）を添加し、１２０℃で１６時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を留去し得られた懸濁液に水を加え析出した固体をろ取した。ろ取した固体を熱クロロホルムにて洗浄し、得られたろ液から低沸分を留去した。得られた固体を無水酢酸（１０ｍＬ）に懸濁させ１２０℃で１時間加熱撹拌した。室温まで放冷後、析出した固体をろ取することで４－（１，３，６，８－テトラオキソ－１，３，６，８－テトラヒドロ－７Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－７－イル）ベンゾニトリルを得た（収量１．５０ｇ，収率１６％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_3$）δ（ｐｐｍ）：８．９１－８．８８（ｍ，４Ｈ），７．９１（ｄ，Ｊ＝８．６Ｈｚ，２Ｈ），７．４９（ｄ，Ｊ＝８．６Ｈｚ，２Ｈ）．

[0174]（合成参考例４）

[化56]

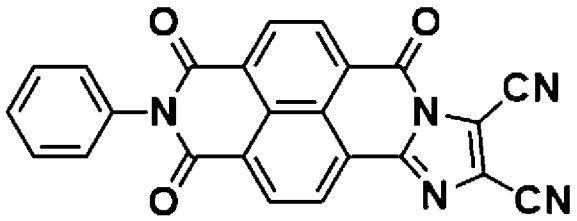


アルゴン雰囲気下、ナフタレン－１，４，５，８－テトラカルボン酸二無水物（１５．０ｇ，５５．９ｍｍｏｌ）、１－（３－ジメチルアミノプロピル）－３－エチルカルボジイミド塩酸塩（４．０２ｇ，２１．０ｍｍｏｌ）をＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（５００ｍＬ）に懸濁した。この反応溶液を１２０℃で１時間撹拌した後、４－アミノフタロニトリル（５．００ｇ，３４．９ｍｍｏｌ）を添加し、１２０℃でさらに１７時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を減圧留去し得られた懸濁液に水を加え析出した固体をろ取し、無水酢酸（１００ｍＬ）に懸濁させ１２０℃で１時間加熱撹拌した。室温まで放冷後固体をろ別し、ろ液に水を加え析出した固体をろ取した。ろ取した固体を１，４－ジオキサンによる再結晶にて精製することで目的の４－（１，３，６，８－テトラオキソ－１，３，６，８－テトラヒドロ－７Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－７－イル）フタロニトリルを得た（収量４．８７ｇ，収率３５％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＤＭＳＯ－ｄ$_6$）δ（ｐｐｍ）：８．７７－８．７０（ｍ，４Ｈ），８．４０（ｄ，Ｊ＝８．３Ｈｚ，１Ｈ），８．３２（ｄ，Ｊ＝１．９Ｈｚ，１Ｈ），８．１０（ｄｄ，Ｊ＝８．３，１．９Ｈｚ，１Ｈ）．

[0175]（合成実施例１：化合物（Ｃ－２）の合成）

[化57]



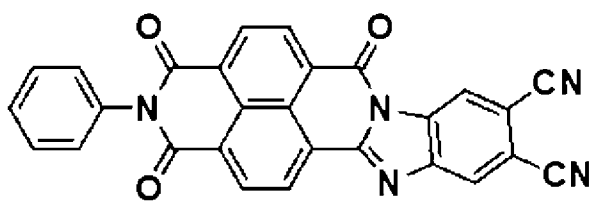
(C-2)

アルゴン雰囲気下、合成参考例１にて得た７－フェニル－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオン（２．００ｇ，５．８３ｍｍｏｌ）と２，３－ジアミノマレオニトリル（６９３ｍｇ，６．４１ｍｍｏｌ）をピリジン（２００ｍＬ）に懸濁し、１２０℃で１６時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を留去し得られた固体を１．０Ｍ－塩酸水溶液で洗浄し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン／酢酸エチル＝８／２）によって精製することで目的の化合物（Ｃ－２）１，３，６－トリオキソ－２－フェニル－１，２，３，６－テトラヒドロベンゾ［ｌｍｎ］イミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－８，９－ジカルボニトリルを橙色固体として得た（収量５８１ｍｇ，収率２４％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：９．０９（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９７（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９５（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９１（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），７．６３－７．５２（ｍ，３Ｈ），７．３５－７．３２（ｍ，２Ｈ）．

[0176] （合成実施例２：化合物（Ｃ－６）の合成）

[化58]



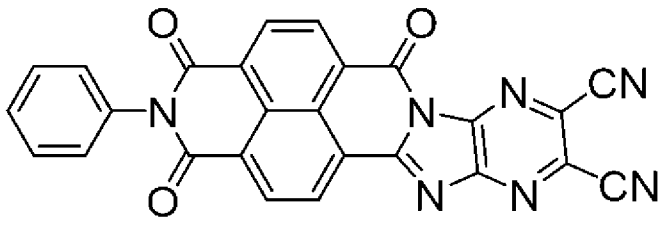
(C-6)

アルゴン雰囲気下、合成参考例１にて得た７－フェニル－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオン（６８７ｍｇ，２．００ｍｍｏｌ）、４，５－ジアミノフタロニトリル（６３３ｍｇ，４．００ｍｍｏｌ）、１,４－ジアザビシクロ［２．２．２］オクタン（１１２ｍｇ，１．００ｍｍｏｌ）をジメチルアセトアミド（４０ｍＬ）に懸濁し、１５０℃で１４時間撹拌した。室温まで放冷後、減圧下での溶媒留去により得られた固体を水で洗浄した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン／酢酸エチル＝３／７）によって精製することで目的の化合物（Ｃ－６）１，２，３，６－テトラヒドロ－１，３，６－トリオキソ－２－フェニルベンゾ［ｌｍｎ］ベンズイミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－９，１０－ジカルボニトリルを黄色固体として得た（収量４１１ｍｇ，収率４４％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：９．１４（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），９．０８（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），９．０７（ｓ，１Ｈ），８．９６（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９４（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．３８（ｓ，１Ｈ），７．６４－７．５４（ｍ，３Ｈ），７．３８－７．３２（ｍ，２Ｈ）．

[0177]（合成実施例３：化合物（Ｃ－１０）の合成）

[化59]



(C-10)

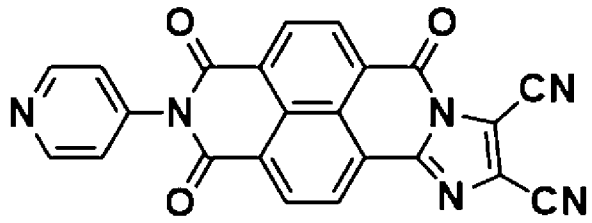
窒素雰囲気下、合成参考例１にて得た７－フェニル－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオン（３４０ｍｇ，１．０ｍｍｏｌ）及びジアミノジシアノピラジン（１７６ｍｇ，１．１ｍｍｏｌ）をＮ，Ｎ－ジメチルアセトアミド（１０ｍＬ）に溶

解し、１５０℃で２４時間攪拌した。室温まで放冷後、低沸分を減圧留去し得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー及びゲル浸透クロマトグラフィーにより精製を行い、目的の化合物（Ｃ－１０）１，２，３，６－テトラヒドロ－１，３，６－トリオキソ－２－フェニルベンゾ［ｉｍｎ］ピラジノ［2′，3′：4,5］イミダゾ［2，１－ｂ］［3，８］フェナントロリン－９，１０－ジカルボニトリル，を得た（収量２１０ｍｇ、収率４５％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：９．２２（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），９．０２（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．８２（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，２Ｈ），７．６１－７．４５（ｍ，５Ｈ）

[0178]（合成実施例４：化合物（Ｃ－５２）の合成）

[化60]



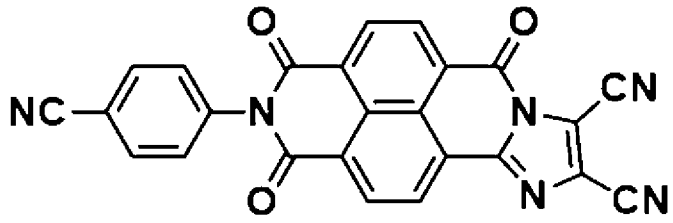
(C-52)

アルゴン雰囲気下、合成参考例２にて得た７－（ピリジン－４－イル）－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオン（３００ｍｇ，０．８７ｍｍｏｌ）と２，３－ジアミノマレオニトリル（１０４ｍｇ，０．９６ｍｍｏｌ）をピリジン（３０ｍＬ）に懸濁し、１２０℃で１６時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を留去し得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン／酢酸エチル／メタノール＝５／４／１）および再結晶（１，４－ジオキサン）によって精製することで目的の化合物（Ｃ－５２）１，３，６－トリオキソ－２－（ピリジン－４－イル）－１，２，３，６－テトラヒドロベンゾ［ｌｍｎ］イミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－８，９－ジカルボニトリルを橙色固体として得た（収量５２ｍｇ，収率１４％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_3$）δ（ｐｐｍ）：９．１０（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９９（ｍ，１Ｈ），８．９７（ｍ，１Ｈ），８．９３（ｍ，１Ｈ），８．８８（ｍ，２Ｈ），７．３３（ｄ，Ｊ＝４．５Ｈｚ，２Ｈ）．

[0179]（合成実施例５：化合物（Ｃ－７２）の合成）

[化61]



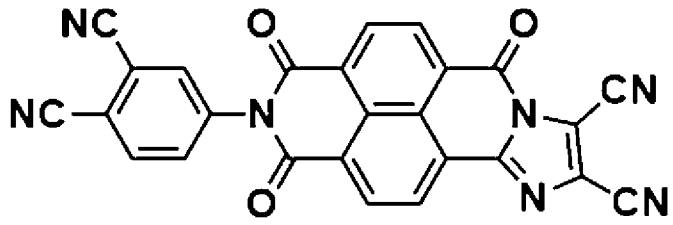
(C-72)

アルゴン雰囲気下、合成参考例３にて得た４－（１，３，６，８－テトラオキソ－１，３，６，８－テトラヒドロ－７Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－７－イル）ベンゾニトリル（３７０ｍｇ，１．１０ｍｍｏｌ）と２，３－ジアミノマレオニトリル（１２０ｍｇ，１．１０ｍｍｏｌ）をピリジン（３０ｍＬ）に懸濁し、１２０℃で２４時間撹拌した。室温まで放冷後、低沸分を留去し得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン／酢酸エチル＝８／２）によって精製することで目的の化合物（Ｃ－７２）２－（４－シアノフェニル）－１，３，６－トリオキソ－１，２，３，６－テトラヒドロベンゾ［ｌｍｎ］イミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－８，９－ジカルボニトリルを橙色固体として得た（収量３０ｍｇ，収率７％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_3$）δ（ｐｐｍ）：９．１０（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，１Ｈ），９．００（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，１Ｈ），８．９６（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，１Ｈ），８．９１（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，１Ｈ），７．９１（ｄ，Ｊ＝８．０Ｈｚ，２Ｈ），７．５０（ｄ，Ｊ＝８．０Ｈｚ，２Ｈ）．

[0180]（合成実施例６：化合物（Ｃ－８２）の合成）

[化62]



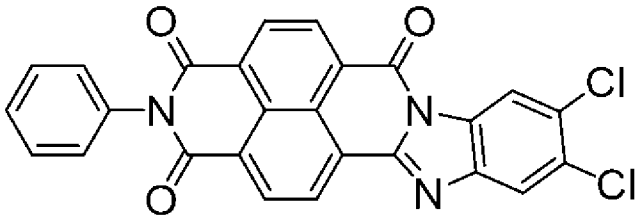
(C-82)

窒素雰囲気下、合成参考例４にて得た４－（１，３，６，８－テトラオキソ－３，６，７，８－テトラヒドロ－１Ｈ－ナフト［２，１，８－ｄｅｆ］イソクロメ－７－イル）フタロニトリル（８．１８ｇ，１９．６ｍｍｏｌ）及びジアミノマレオニトリル（２．３４ｇ，２１．６ｍｍｏｌ）をＮ，Ｎ－ジメチルアセトアミド（１９０ｍＬ）に溶解し、１５０℃で１７時間攪拌した。室温まで放冷後、低沸分を減圧留去し得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー及びゲル浸透クロマトグラフィーにより精製を行い、目的の化合物（Ｃ－８２）２－（３，４－ジシアノフェニル）－１，３，６－トリオキソ－１，２，３，６－テトラヒドロベンゾ［ｌｍｎ］イミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－８，９－ジカルトニトリルを得た（収量２６６ｍｇ、収率３％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：９．１１（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），９．００（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，１Ｈ），８．９７（ｄ，Ｊ＝７．７Ｈｚ，１Ｈ），８．９３（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．０４（ｄ，Ｊ＝８．３Ｈｚ，１Ｈ），７．８５（ｄ，Ｊ＝２．１Ｈｚ，１Ｈ），７．７７（ｄｄ，Ｊ＝８．３，２．１Ｈｚ，１Ｈ）．

[0181]（合成実施例７：化合物（Ｃ－３９４）の合成）

[化63]



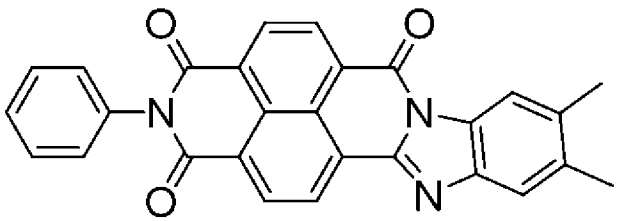
(C-394)

アルゴン雰囲気下、合成参考例１にて得た７－フェニル－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオン（１０３ｍｇ，０．３００ｍｍｏｌ）、４，５－ジクロロ－１，２－フェニレンジアミン（１０６ｍｇ，０．６００ｍｍｏｌ）を酢酸（６ｍＬ）に懸濁し、還流下で１４時間撹拌した。室温まで放冷後、反応混合液をろ過し、得られた固体を水で洗浄することで目的の化合物（Ｃ－３９４）９，１０－ジクロロ－２－フェニルベンゾ［ｌｍｎ］ベンズイミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－１，３，６（２Ｈ）－トリオンを橙色固体として得た（収量１４５ｍｇ，収率１００％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：９．０２（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），９．０１（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９０（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．８８（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．７０（ｓ，１Ｈ），８．０３（ｓ，１Ｈ），７．６４－７．５３（ｍ，３Ｈ），７．３９－７．３２（ｍ，２Ｈ）．

[0182]（合成実施例８：化合物（Ｃ－３９８の合成）

[化64]



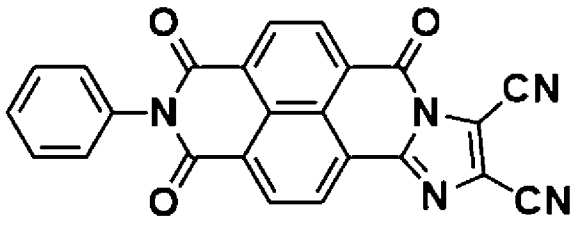
(C-398)

アルゴン雰囲気下、合成参考例１にて得た７－フェニル－１Ｈ－イソクロメノ［６，５，４－ｄｅｆ］イソキノリン－１，３，６，８（７Ｈ）－テトラオン（１００ｍｇ，０．２９１ｍｍｏｌ）、４，５－ジメチル－１，２－フェニレンジアミン（７９．３ｍｇ，０．５８２ｍｍｏｌ）を酢酸（５．８ｍＬ）に懸濁し、還流下で２時間撹拌した。室温まで放冷後、反応混合液をろ過し、得られた固体を水で洗浄することで目的の化合物（Ｃ－３９８）９，１０－ジメチル－２－フェニルベンゾ［ｌｍｎ］ベンズイミダゾ［２，１－ｂ］［３，８］フェナントロリン－１，３，６（２Ｈ）－トリオンを橙色固体として得た（収量１１１ｍｇ，収率８６％）。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（ＣＤＣｌ$_{3}$）δ（ｐｐｍ）：８．９７（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．９６（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．８７（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．８３（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），８．３２（ｓ，１Ｈ），７．６９（ｓ，１Ｈ），７．６３－７．５１（ｍ，３Ｈ），７．３８－７．３２（ｍ，２Ｈ）．

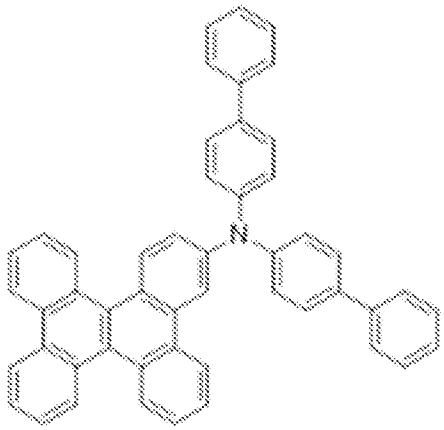
[0183] ［評価に用いた化合物］

[化65]

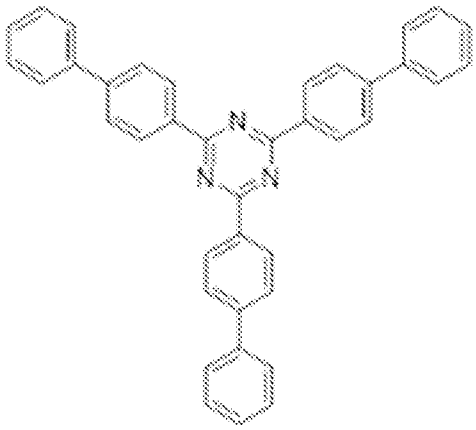


(C-2)

[化66]



(HTL-1)



(NPT)

[0184] ＜ホールオンリーデバイスの作製１および評価１＞

［素子実施例１］

第一の電極／第一の正孔注入層／正孔輸送層／正孔輸送促進層／第二の電極からなる構造を有するホールオンリーデバイスを作製し、該デバイスの正孔輸送特性を評価した。

（第一の電極）

第一の電極をその表面に備えた基板として、ＩＴＯ膜（膜厚１１０ｎｍ）がストライプ状にパターンされたＩＴＯ透明電極付きガラス基板を用意し、この基板をイソプロピルアルコールで洗浄した後、オゾン紫外線洗浄にて表面処理を行った。

[0185] （真空蒸着の準備）

上記表面処理が施された基板の２面のうち、ＩＴＯ膜が形成されている側の面上に、真空蒸着法で各層の真空蒸着を行い、各層を積層形成した。

まず、真空蒸着槽内に上記ガラス基板を導入し、１．０×１０$^{-4}$Ｐａまで減圧した。そして、以下の順で、各層の成膜条件に従ってそれぞれ作製した。

[0186] （第一の正孔注入層の作製）

ＩＴＯ膜にMoO_3を１ｎｍ製膜し、正孔注入層を作製した。

（正孔輸送層の作製）

正孔輸送材料として（ＨＴＬ－１）を１００ｎｍ成膜し、正孔輸送層を作製した。尚、（ＨＴＬ－１）は特開２０１８－１９３３７１に記載の方法で合成した。

（正孔輸送促進層の作製）

昇華精製した化合物（Ａ－６０）を１０ｎｍ成膜し、正孔輸送促進層を作製した。

[0187] （第二の電極の作製）

Ａｕを８０ｎｍ成膜し、第二の電極を作製した。

[0188] （ホールオンリーデバイスの正孔輸送能力評価）

素子実施例１のホールオンリーデバイスの第一の電極と第二の電極にそれぞれプラスとマイナスの電界をかけ、０．１ｍＡ／cm^2の電流密度における電圧値を測定した。得られた結果を表１に示す。

[0189] ［素子比較例１］

実施例１において正孔輸送促進層の作製に用いた化合物（Ｃ－２）の代わりに、化合物（ＮＰＴ）を用いたこと以外は、素子実施例１と同様の方法によりホールオンリーデバイスを作製した。得られたホールオンリーデバイスの正孔輸送能力を素子実施例１と同様の方法により評価した。結果を表１に示す。

[0190] ［素子比較例２］

正孔輸送促進層を有さないこと以外は、素子実施例１と同様の方法によりホールオンリーデバイスを作製した。得られたホールオンリーデバイスの正孔輸送能力を素子実施例１と同様の方法により評価した。結果を表１に示す。

[0191]

[表1]

	正孔輸送材料	正孔輸送促進材料	電圧(V)
素子実施例1	HTL－1	C－2	2.42
素子比較例1	HTL－1	NPT	6.41
素子比較例2	HTL－1	なし	6.26

[0192] 正孔輸送促進材料として化合物（Ｃ－２）を用いた素子実施例１の素子（ＨＯＤ電圧は２．４２Ｖ）は、公知の材料ＮＰＴを用いた素子比較例１の素子（ＨＯＤ電圧は６．４１Ｖ）および正孔輸送促進材料を用いなかった素子比較例２の素子（ＨＯＤ電圧は６．２６Ｖ）に比べＨＯＤ電圧が低下した。

尚、合成実施例にて合成した、化合物（Ｃ－６）、（Ｃ－１０）、（Ｃ－５２）、（Ｃ－７２）、および（Ｃ－８２）についても、素子実施例１と同様に、正孔輸送促進材料としての輸送能力向上効果（ＨＯＤ電圧の低減）が見られた。

[0193] ＜光電変換素子の作製および評価＞

［素子実施例２］

基板／第二の電極１６／電子輸送層１５／受光層１４／正孔輸送層１３／正孔輸送促進層１２／第一の電極１１からなる積層構成を有する光電変換素子１を作製し、該光電変換素子の暗電流及び外部量子効率を評価した。

[0194] （基板、第二の電極１６の用意）

第二の電極をその表面に備えた基板として、２ｍｍ幅のＩＴＯ膜（膜厚１１０ｎｍ）がストライプ状にパターンされたＩＴＯ透明電極付きガラス基板を用意した。ついで、この基板をイソプロピルアルコールで洗浄した後、オゾン紫外線洗浄にて表面処理を行った。

（真空蒸着の準備）

洗浄後の表面処理が施された基板上に、真空蒸着法で各層の真空蒸着を行い、各層を積層形成した。

まず、真空蒸着槽内に上記ガラス基板を導入し、７．０×１０$^{-5}$Ｐａまで減圧した。そして、以下の順で、各層の成膜条件に従ってそれぞれ作製した。

（電子輸送層１５の作製）

昇華精製した化合物４，６－ビス（３，５－ジ（ピリジン－４－イル）フェニル）－２－メチルピリミジンを０．０３ｎｍ／秒の速度で１０ｎｍ成膜し、電子輸送層１５を作製した。

（受光層１４の作製）

Ｎ，Ｎ－ジメチルキナクリドン及びフラーレンＣ６０を４：１（質量比）の割合で２５０ｎｍ成膜し、受光層１４を作製した。成膜速度は０．１３ｎｍ／秒であった。

（正孔輸送層１３の作製）

正孔輸送材料として（ＨＴＬ－１）を０．１０ｎｍ／秒の速度で１０ｎｍ成膜し、正孔輸送層１３を作製した。

（正孔輸送促進層１２の作製）

化合物（Ｃ－２）を０．２０ｎｍ／秒の速度で１０ｎｍ成膜し、正孔輸送促進層１２を作製した。

（第一の電極１１の作製）

最後に、基板上のＩＴＯストライプと直行するようにメタルマスクを配し、第一の電極１１を成膜した。第一の電極は、Ａｕを８０ｎｍ成膜することで作製した。Ａｕの成膜速度は０．１ｎｍ／秒であった。

[0195] 以上により、面積４ｍｍ^{2}の図１に示す光電変換素子１を作製した。上記のようにして作製した光電変換素子に、第二の電極１６側に電子が、第一の電極１１側に正孔が輸送されるように、絶対値として２．５Ｖの電圧を印加したときの、暗所での電流（暗電流）及び外部量子効率を評価した。暗電流（Ａ／ｃｍ^{2}）の測定は、ケースレー社製ソース・メジャー・ユニット２６３６Ｂを用いて評価した。外部量子効率の測定には太陽電池分光感度測定装置（相馬光学社製）を用いた。照射光の波長は５６０ｎｍで、強度５０μＷ／ｃ

m^2で測定を行った。結果を表２に示す。なお外部量子効率は、後述する素子比較例３における結果を基準値（１００）とした相対値である。暗電流は数値が低いほど性能に優れ、外部量子効率は数値が高いほど性能に優れることを示す。

[0196] ［素子比較例３］

正孔輸送促進層１２の作製において、化合物（Ｃ－２）の代わりに、化合物（ＮＰＴ）を用いたこと以外は、素子実施例２と同様の方法により、素子比較例３の光電変換素子を作製し、素子実施例２と同じ方法により暗電流及び外部量子効率を測定した。結果を表２に示す。

[0197] ［素子比較例４］

正孔輸送促進層１２を設けなかったこと以外は、素子実施例２と同様の方法により、素子比較例４の光電変換素子を作製し、素子実施例２と同じ方法により暗電流及び外部量子効率を測定した。結果を表２に示す。

[0198] [表2]

	正孔輸送材料	正孔輸送促進材料	暗電流(A/cm^2)	外部量子効率
素子実施例2	HTL−1	C−2	0.5	105
素子比較例3	HTL−1	NPT	100	100
素子比較例4	HTL−1	なし	10200	測定不能

[0199] 表２に示すとおり、本発明の光電変換素子用材料を用いた素子実施例２の素子では、素子比較例３および素子比較例４の素子と比べて暗電流が抑制され、且つ、高い外部量子効率が得られた。

尚、合成実施例にて合成した、化合物（Ｃ－６）、（Ｃ－１０）、（Ｃ－５２）、（Ｃ－７２）、および（Ｃ－８２）についても、素子実施例２と同様に、暗電流の抑制かつ外部量子効率の向上が見られた。

[0200] 本発明の光電変換素子は、上記式イミド化合物（１）を含むことにより、正孔の輸送能力を向上させることができ、光電変換素子に用いた場合にはより効率的に光電変換を行うことができる。また、本発明の光電変換素子は、上記式イミド化合物（１）を含むことにより、暗電流が抑制され、外部量子効率も高めることができる。

符号の説明

[0201] １　光電変換素子

１１　第一の電極

１２　正孔輸送促進層

１３　正孔輸送層

１４　受光層

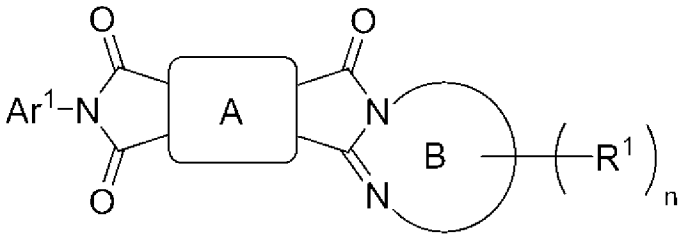
１５　電子輸送層

１６　第二の電極

請求の範囲

[請求項1] 第一の電極、第二の電極、および前記第一の電極と前記第二の電極の間に配置された受光層および有機層を含む光電変換素子であって、

前記有機層は、正孔輸送層、および下記式（１）で示されるイミド化合物を含有する正孔輸送促進層を含むか、または、正孔輸送材料と下記式（１）で示されるイミド化合物とを混合してなる層を含む、光電変換素子。



(1)

（式（１）中、

環Ａは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

環Ｂはイミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

Ｒ[1]は、各々独立に、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す；

ｎは０、１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｂがイミダゾール環の場合、ｎは０、１または２を表す

；

Ａｒ[1]は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

前記芳香族炭化水素環、前記芳香族炭化水素基、または前記複素芳香族基に置換されてもよい置換基としては、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基である。）

[請求項2] 前記受光層が、少なくとも二種の有機成分を含有する層である、請求項１に記載の光電変換素子。

[請求項3] 前記有機層は、前記正孔輸送層、および前記式（１）で示されるイミド化合物を含有する前記正孔輸送促進層を含み、

前記正孔輸送促進層が、前記正孔輸送層と隣接している、請求項１に記載の光電変換素子。

[請求項4] 前記有機層は、前記正孔輸送材料と前記式（１）で示されるイミド化合物とを混合してなる前記層を含む、請求項１に記載の光電変換素子。

[請求項5] 前記式（１）におけるＲ[1]において、少なくとも１つがシアノ基である、請求項１～４のいずれかに記載の光電変換素子。

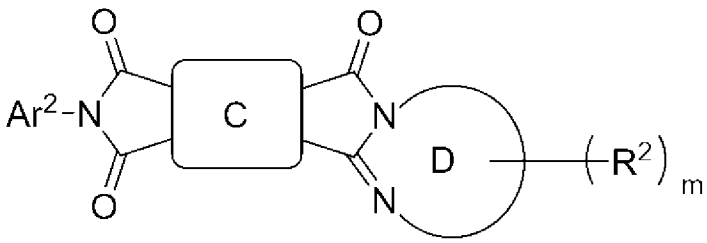
[請求項6] 前記式（１）におけるｎが、１または２である、請求項１～４のいずれかに記載の光電変換素子。

[請求項7] 前記式（１）における環Ａが、ベンゼン環またはナフタレン環である、請求項１～４のいずれかに記載の光電変換素子。

[請求項8] 前記式（１）におけるＡｒ[1]が、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいナフチル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいピラジル基、置換されていてもよいピリミジル基、置換されていてもよいトリアジル基、置換されていてもよいキノリル基、置換されていてもよいイソキノリル基、置換されていてもよいキノキサリル基、または置換されていてもよいキナゾリニル基である、請求項１～４のいずれかに記載の光電変換素子。

[請求項9] 前記式（１）におけるＡｒ[1]が、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、キノリル基、シアノキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基である、請求項１～４のいずれかに記載の光電変換素子。

[請求項10] 下記式（１ａ）で示される正孔輸送促進材料。



(1a)

（式（１ａ）中、

環Ｃは、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素環（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

環Ｄはイミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

Ｒ^{2}は、各々独立に、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基を表す；

ｍは０、１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｄがイミダゾール環の場合、ｍは０、１または２を表す；

Ａｒ^{2}は、置換されていてもよい炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または置換されていてもよい炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

前記芳香族炭化水素環、前記芳香族炭化水素基、または前記複素芳香族基に置換されてもよい置換基としては、ヒドロキシ基、カルボキシル基、ホルミル基、アシル基、ニトロ基、シアノ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、トリフルオロメチル基、メチル基、炭素数２～１０のフルオロアルキル基、炭素数１～１０のフルオロアルコキシ基、炭素数２～１０のアルキル基、炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または２つ以上の前記基もしくは原子が組み合わさった基である。）

[請求項11] 前記式（１ａ）におけるＲ^{2}において、少なくとも１つがシアノ基である、請求項１０に記載の正孔輸送促進材料。

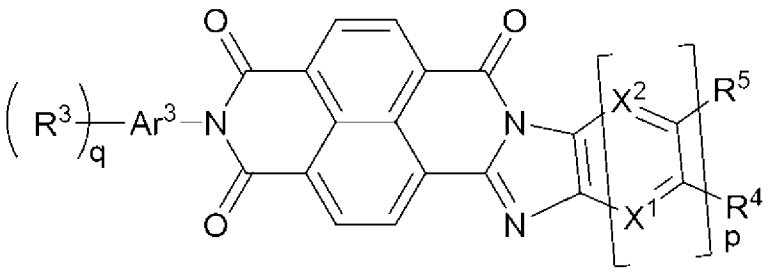
[請求項12] 前記式（１ａ）におけるｍが、１または２である、請求項１０に記載の正孔輸送促進材料。

[請求項13] 前記式（１ａ）における環Ｃが、ベンゼン環またはナフタレン環である、請求項１０に記載の正孔輸送促進材料。

[請求項14] 前記式（１ａ）におけるＡｒ^{2}が、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいナフチル基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいピラジル基、置換されていてもよいピリミジル基、置換されていてもよいトリアジル基、置換されていてもよいキノリル基、置換されていてもよいイソキノリル基、置換されていてもよいキノキサリル基、または置換されていてもよいキナゾリニル基である、請求項１０に記載の正孔輸送促進材料。

[請求項15] 前記式（１ａ）におけるＡｒ^{2}が、フェニル基、シアノフェニル基、ジシアノフェニル基、ナフチル基、シアノナフチル基、ジシアノナフチル基、ピリジル基、シアノピリジル基、ジシアノピリジル基、ピリミジル基、シアノピリミジル基、ジシアノピリミジル基、ピラジル基、シアノピラジル基、ジシアノピラジル基、キノリル基、シアノキノリル基、イソキノリル基、シアノイソキノリル基、キナゾリニル基、シアノキナゾリニル基である、請求項１０に記載の正孔輸送促進材料。

[請求項16] 式（１ｂ）で示されるイミド化合物。



(1b)

（式（１ｂ）中、

ｐは、０、１、または２を表す；

ｑは、１、２、３、４または５を表す；

X^1は窒素原子または$C-R^6$を表す；

X^2は窒素原子または$C-R^7$を表す；

Ar^3は、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

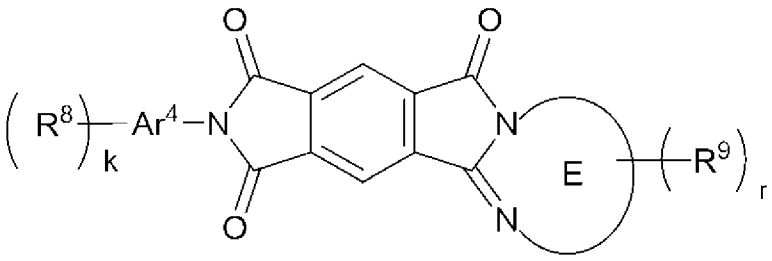
R^3は、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい；

R^4、R^5、R^6、およびR^7は、各々独立に、水素原子またはシアノ基を表す；

ただし、R^4、R^5、R^6、およびR^7のうち、少なくとも２つはシアノ基である。）

[請求項17] 前記式（１ｂ）におけるAr^3がフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピラジル基、またはピリミジル基である、請求項１６に記載のイミド化合物。

[請求項18] 式（１ｃ）で示されるイミド化合物。



(1c)

（式（１ｃ）中、

ｋは、０、１、２、３、４または５を表す；

環Ｅは、イミダゾール環、または炭素数５～２０の縮合イミダゾール環を表す；

ｒは１、２、３、または４を表す；

ただし、環Ｅがイミダゾール環の場合、ｒは１または２を表す；

R^8は、各々独立に、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい；

Ar^4は、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～１８の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表す；

R^9は、各々独立に、シアノ基、ニトロ基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、ヒドロキシ基、炭素数２～２０の複素芳香族基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）、または炭素数６～２０の芳香族炭化水素基（単環、縮合環、または複数の環を含む連結環であってもよい。）を表し、２つ以上の前記基または原子が組み合わさった基であってもよい。）

[請求項19] 前記式（１ｃ）におけるR^9において、少なくとも１つがシアノ基である、請求項１８に記載のイミド化合物。

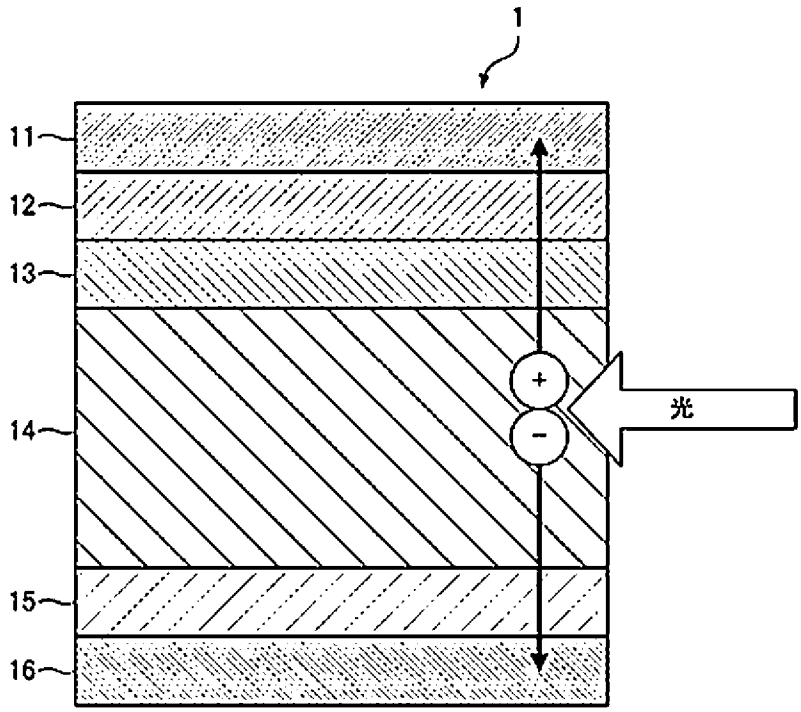
[請求項20] 前記式（１ｃ）におけるAr^4がフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントレニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピラジル基、またはピリミジル基である、請求項１８に記載のイミド化合物。

[請求項21] 前記式（１ｃ）における環Ｅが、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、またはイミダゾピラジン環である、請求項１８に記載のイミ

ド化合物。

WO 2025/047665 PCT/JP2024/030239

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/030239

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H10K 30/60(2023.01)i; ***C07D 471/16***(2006.01)i; ***H01L 27/146***(2006.01)i; ***H10K 30/30***(2023.01)i; ***H10K 30/86***(2023.01)i; ***H10K 39/32***(2023.01)i; ***H10K 50/15***(2023.01)i; ***H10K 85/60***(2023.01)i
FI: H10K30/60; H10K30/86; H10K39/32; H01L27/146 C; H10K50/15; H10K85/60; H10K30/30; C07D471/16 CSP

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H10K30/00-99/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2023-107233 A (TOSOH CORPORATION) 02 August 2023 (2023-08-02) entire text, all drawings	1-21
A	JP 2014-520394 A (NOVALED AG) 21 August 2014 (2014-08-21) entire text, all drawings	1-21
A	JP 2004-93804 A (CANON KABUSHIKI KAISHA) 25 March 2004 (2004-03-25) entire text, all drawings	1-21
A	JP 2004-93791 A (CANON KABUSHIKI KAISHA) 25 March 2004 (2004-03-25) entire text, all drawings	1-21
A	US 2018/0006243 A1 (LG DISPLAY CO., LTD.) 04 January 2018 (2018-01-04) entire text, all drawings	1-21

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"D" document cited by the applicant in the international application
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
10 September 2024	**24 September 2024**

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/030239

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2023-107233 A	02 August 2023	(Family: none)	
JP 2014-520394 A	21 August 2014	US 2014/0174537 A1 entire text, all drawings	
JP 2004-93804 A	25 March 2004	(Family: none)	
JP 2004-93791 A	25 March 2004	(Family: none)	
US 2018/0006243 A1	04 January 2018	KR 10-2018-0003220 A CN 107556307 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/030239

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

H10K 30/60(2023.01)i; C07D 471/16(2006.01)i; H01L 27/146(2006.01)i; H10K 30/30(2023.01)i; H10K 30/86(2023.01)i; H10K 39/32(2023.01)i; H10K 50/15(2023.01)i; H10K 85/60(2023.01)i
FI: H10K30/60; H10K30/86; H10K39/32; H01L27/146 C; H10K50/15; H10K85/60; H10K30/30; C07D471/16 CSP

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

H10K30/00-99/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2023-107233 A (東ソー株式会社) 02.08.2023 (2023-08-02) 全文、全図	1-21
A	JP 2014-520394 A (ノヴァレッド・アクチエンゲゼルシャフト) 21.08.2014 (2014-08-21) 全文、全図	1-21
A	JP 2004-93804 A (キヤノン株式会社) 25.03.2004 (2004-03-25) 全文、全図	1-21
A	JP 2004-93791 A (キヤノン株式会社) 25.03.2004 (2004-03-25) 全文、全図	1-21
A	US 2018/0006243 A1 (LG DISPLAY CO., LTD.) 04.01.2018 (2018-01-04) 全文、全図	1-21

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
10.09.2024	24.09.2024

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）

桂城　厚 2K 1764

電話番号 03-3581-1101 内線 3255

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/030239

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2023-107233 A	02.08.2023	（ファミリーなし）	
JP 2014-520394 A	21.08.2014	US 2014/0174537 A1 全文、全図	
JP 2004-93804 A	25.03.2004	（ファミリーなし）	
JP 2004-93791 A	25.03.2004	（ファミリーなし）	
US 2018/0006243 A1	04.01.2018	KR 10-2018-0003220 A CN 107556307 A	