

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6469246号
(P6469246)

(45) 発行日 平成31年2月13日(2019.2.13)

(24) 登録日 平成31年1月25日(2019.1.25)

(51) Int. Cl.

F I

CO7D 209/86	(2006.01)	CO7D 209/86	
HO1L 51/50	(2006.01)	HO5B 33/14	B
HO1L 27/32	(2006.01)	HO1L 27/32	
CO7D 495/04	(2006.01)	HO5B 33/22	B
CO7D 519/00	(2006.01)	HO5B 33/22	D

請求項の数 12 (全 69 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2017-546711 (P2017-546711)
 (86) (22) 出願日 平成28年3月2日(2016.3.2)
 (65) 公表番号 特表2018-510148 (P2018-510148A)
 (43) 公表日 平成30年4月12日(2018.4.12)
 (86) 国際出願番号 PCT/KR2016/002056
 (87) 国際公開番号 W02016/140497
 (87) 国際公開日 平成28年9月9日(2016.9.9)
 審査請求日 平成29年9月4日(2017.9.4)
 (31) 優先権主張番号 10-2015-0029762
 (32) 優先日 平成27年3月3日(2015.3.3)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)

(73) 特許権者 515127979
 ドク サン ネオルクス カンパニー リ
 ミテッド
 大韓民国 31027 チュンチョンナム
 ード チョナン-シ ソブク-ク イプジ
 ャン-ミョン スクゴル-ギル 21-3
 2
 (74) 代理人 100079049
 弁理士 中島 淳
 (74) 代理人 100084995
 弁理士 加藤 和詳

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電気素子用化合物、これを用いた有機電気素子及びその電子装置

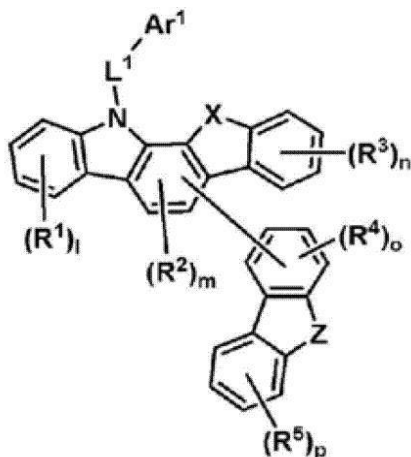
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記式2で表される化合物：

【化1】

<式2>



前記式 2 において、

R^1 から R^5 は互いに独立に、重水素；ハロゲン；シアノ基；ニトロ基； $C_6 - C_{60}$ のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si 及び P のうち、少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロ環基； $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環との縮合環基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_2 - C_{20}$ のアルキニル基； $C_1 - C_{30}$ のアルコキシ基； $-L' - N(R')(R'')$ ；及びこれらの組み合わせからなる群より選ばれ、隣接する R^1 同士、隣接する R^3 同士、隣接する R^4 同士、又は隣接する R^5 同士互いに結合して環を形成していてもよく、 l 、 n 及び p はそれぞれ 0 - 4 の整数であり、 m は 0 又は 1 の整数であり、 o は 0 - 3 の整数であり、

X は O、S、 $C(R^6)(R^7)$ 、 $Si(R^8)(R^9)$ 、又は Se であり、

Z は $N - (L^2 - Ar^2)$ 、O、S、 $C(R^{10})(R^{11})$ 、 $Si(R^{12})(R^{13})$ 、又は Se であり、

Ar^1 及び Ar^2 は互いに独立に、水素；重水素；ハロゲン； $C_6 - C_{60}$ のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si 及び P のうち、少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロ環基； $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環との縮合環基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_2 - C_{20}$ のアルキニル基； $C_1 - C_{30}$ のアルコキシ基； $C_6 - C_{60}$ のアリールオキシル基、及び $-L' - N(R')(R'')$ ；からなる群より選ばれ、

L^1 、 L^2 及び L' は互いに独立に、単結合； $C_6 - C_{60}$ のアリーレン基；フルオレニレン基；O、N、S、Si 及び P からなる群より選ばれた少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロ環基；及び $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環との縮合環基；脂肪族炭化水素基；及びこれらの組み合わせからなる群より選ばれ、

R^6 から R^{13} は互いに独立に、水素；重水素； $C_6 - C_{24}$ のアリール基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_1 - C_{30}$ のアルコキシ基；及びこれらの組み合わせ；からなる群より選ばれ、 R^6 と R^7 同士、 R^8 と R^9 同士、 R^{10} と R^{11} 同士、又は R^{12} と R^{13} 同士互いに結合してスピロ化合物を形成していてもよく、

前記 R' 及び R'' は互いに独立に、 $C_6 - C_{30}$ のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si 及び P のうち、少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{30}$ のヘテロ環基； $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環との縮合環基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基；及びこれらの組み合わせからなる群より選ばれ、

前記各記号がアリール基、フルオレニル基、ヘテロ環基、縮合環基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アリールオキシル基、アリーレン基、フルオレニレン基又は脂肪族炭化水素である場合には、これらのそれぞれは、互いに独立に、重水素；ハロゲン；シラン基；シロキササン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキルチオ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_2 - C_{20}$ のアルキニル基； $C_6 - C_{20}$ のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si 及び P からなる群より選ばれた少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{20}$ のヘテロ環基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基； $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；アリールアミン基及びヘテロアリールアミン基からなる群より選ばれた 1 つ以上の置換基で更に置換されていてもよい。

【請求項 2】

前記式 2 は下記式 4 から式 7 のうちのいずれか 1 つで表される、請求項 1 に記載の化合物：

10

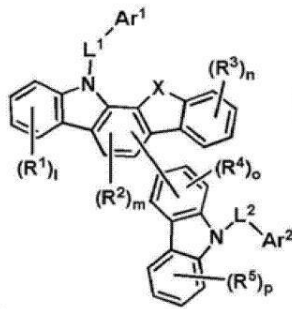
20

30

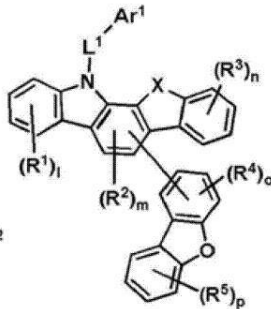
40

【化2】

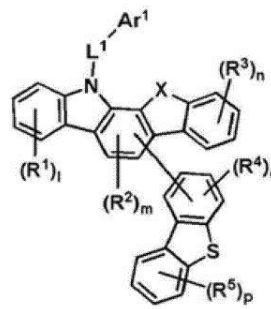
<式4>



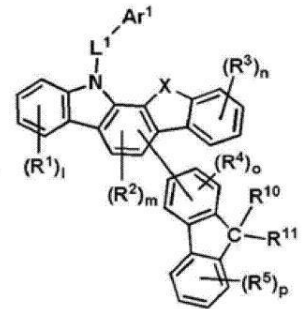
<式5>



<式6>



<式7>



10

前記式4から式7において、各記号は請求項1における定義と同様である。

【請求項3】

1、m及びnが全て0である、請求項1又は2に記載の化合物。

【請求項4】

oとpはいずれも0であるか；又はoとpはそれぞれ2以上の整数であり、隣接するR⁴同士、又は隣接するR⁵同士互いに結合して環を形成しているもよい、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の化合物。

20

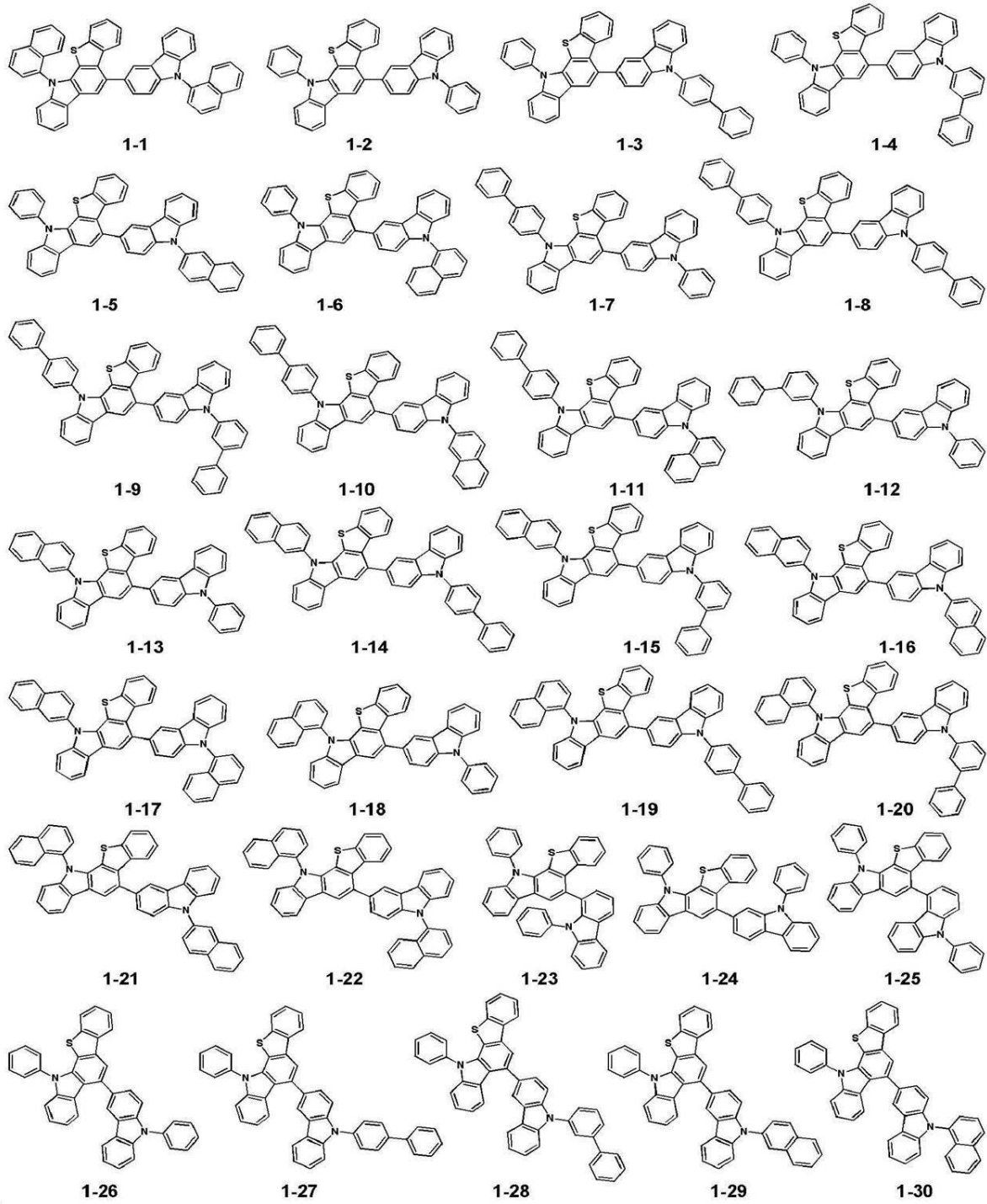
【請求項5】

XはS又はOである、請求項1～請求項4のいずれか1項に記載の化合物。

【請求項6】

下記化合物のうちの1つであることを特徴とする請求項1に記載の化合物：

【化 3】



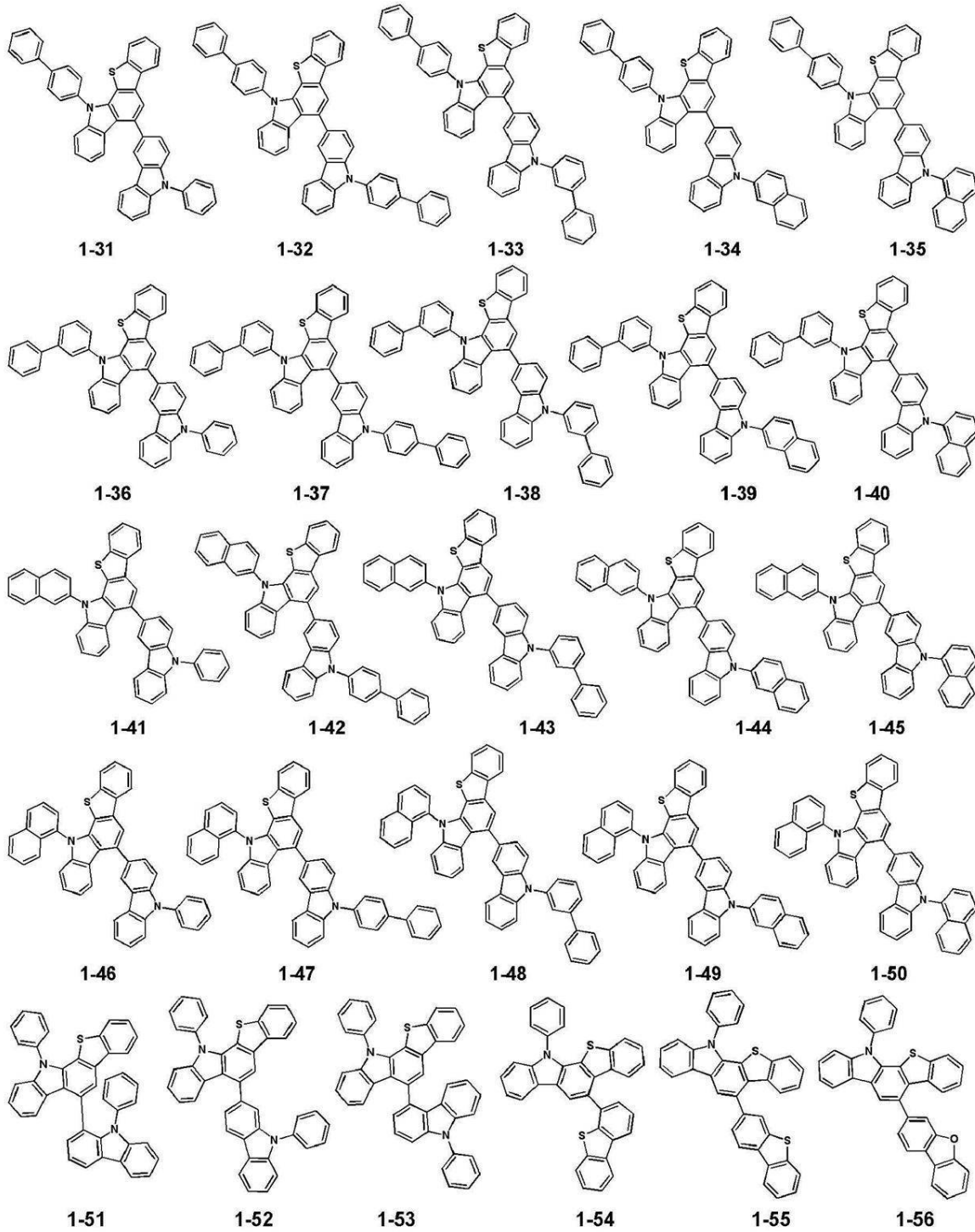
10

20

30

40

【化 4】



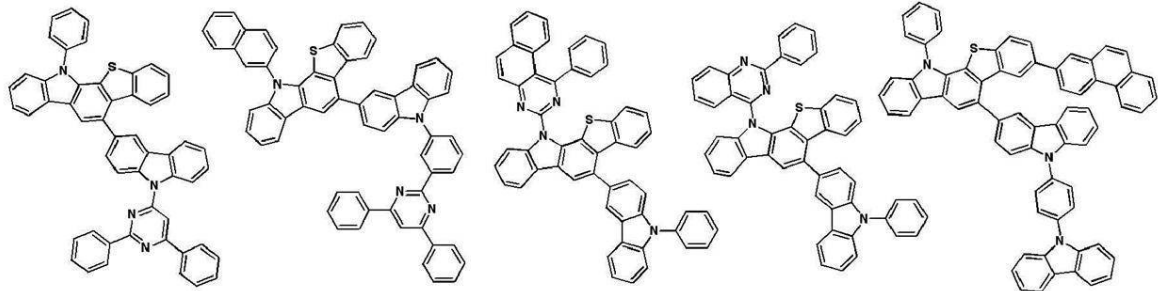
10

20

30

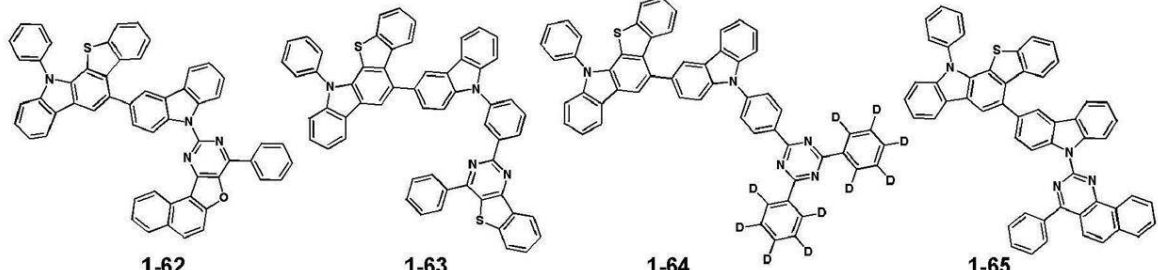
40

【化 5】

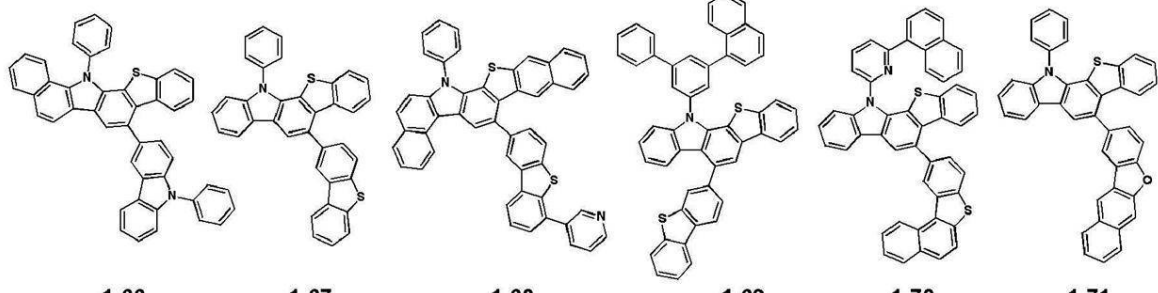


1-57 1-58 1-59 1-60 1-61

10

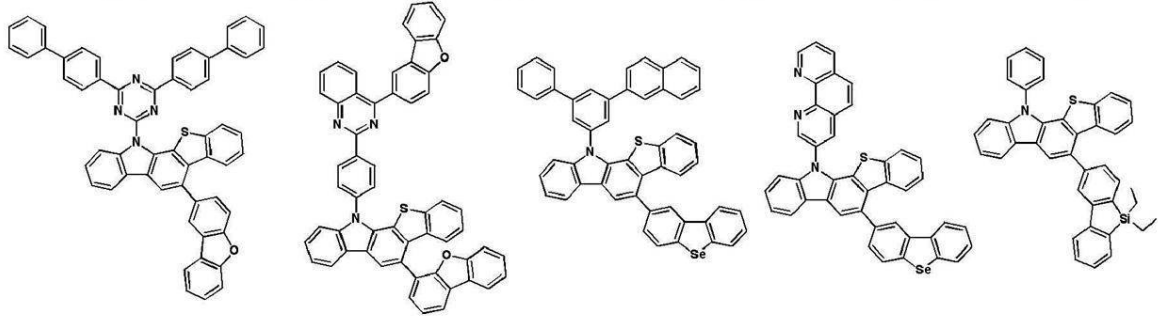


1-62 1-63 1-64 1-65



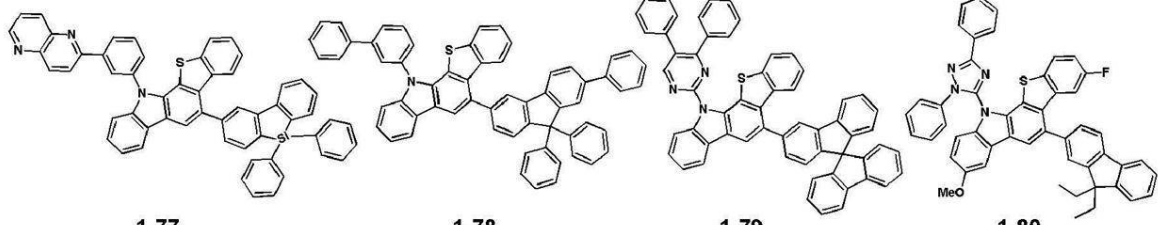
1-66 1-67 1-68 1-69 1-70 1-71

20



1-72 1-73 1-74 1-75 1-76

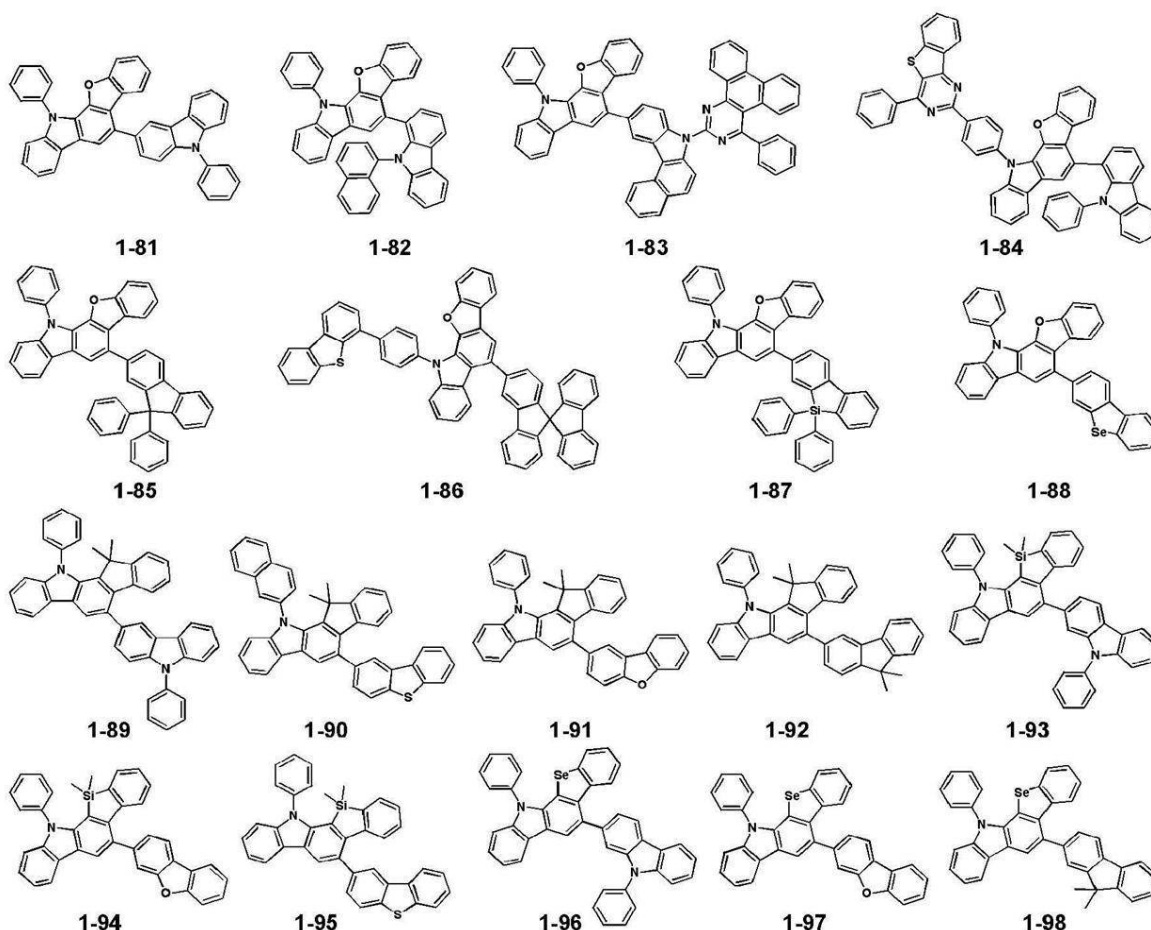
30



1-77 1-78 1-79 1-80

40

【化 6】



10

20

【請求項 7】

第 1 電極、第 2 電極、及び前記第 1 電極と第 2 電極との間に位置する有機物層を含む有機電気素子において、

30

前記有機物層は請求項 1 ~ 請求項 6 のいずれか 1 項に記載の化合物を含有することを特徴とする有機電気素子。

【請求項 8】

前記有機物層の正孔注入層、正孔輸送層、発光補助層、発光層、電子輸送補助層、電子輸送層及び電子注入層のうち、少なくとも 1 つに前記化合物が含まれ、前記化合物が 1 種の単独でまたは 2 種以上の混合物として含まれることを特徴とする請求項 7 に記載の有機電子素子。

【請求項 9】

前記第 1 電極と第 2 電極の一面のうちの前記有機物層と反対となる少なくとも一面に形成される光効率改善層を更に含む請求項 7 又は請求項 8 に記載の有機電気素子。

40

【請求項 10】

前記有機物層はスピンコーティング工程、ノズルプリンティング工程、インクジェットプリンティング工程、スロットコーティング工程、ディップコーティング工程又はロールツーロール工程によって形成されることを特徴とする請求項 7 ~ 請求項 9 のいずれか 1 項に記載の有機電気素子。

【請求項 11】

請求項 7 ~ 請求項 10 のいずれか 1 項に記載の有機電気素子を含むディスプレイ装置；及び

前記ディスプレイ装置を駆動する制御部；を含む電子装置。

【請求項 12】

50

前記有機電気素子は、有機電気発光素子、有機太陽電池、有機感光体、有機トランジスタ、及び単色又は白色照明用素子のうち、少なくとも1つであることを特徴とする請求項11に記載の電子装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は有機電気素子用化合物、これを用いた有機電気素子及びその電子装置に関する。

【背景技術】

【0002】

一般に有機発光現象とは、有機物質を用いて電気エネルギーを光エネルギーに変換させる現象を称する。有機発光現象を利用する有機電気素子は通常、正極と負極及びこの間に有機物層を含む構造を有する。ここで、有機物層は有機電気素子の効率と安定性を高めるために、それぞれ他の物質で構成された多層の構造からなる場合が多く、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層及び電子注入層などからなり得る。

【0003】

有機電気素子において有機物層として用いられる材料は、機能によって発光材料と電荷輸送材料、例えば、正孔注入材料、正孔輸送材料、電子輸送材料、電子注入材料などに分類することができる。

【0004】

そして、前記発光材料は、分子量によって高分子型と低分子型に分類することができ、発光メカニズムによって電子の一重項励起状態に由来する蛍光材料と電子の三重項励起状態に由来する燐光材料に分類することができる。また、発光材料は発光色によって青色、緑色、赤色発光材料と、より好ましい天然色を具現するために必要な黄色及びオレンジ色発光材料に区分することができる。

【0005】

一方、発光材料として1つの物質のみ用いる場合、分子間の相互作用によって最大発光波長が長波長に移動し、色純度が低下したり、発光減殺効果により素子の効率が減少するという問題が発生するので、色純度の増加とエネルギーの遷移による発光効率を増加させるために、発光材料としてホスト/ドープメント系を用いることができる。

【0006】

その原理は、発光層を形成するホストよりもエネルギー帯域の間隙が小さなドープメントを発光層に少量混合すれば、発光層で発生したエキシトンがドープメントに輸送され、効率の高い光を発する。このとき、ホストの波長がドープメントの波長帯に移動するので、利用するドープメントの種類によって所望の波長の光が得られる。

【0007】

現在、携帯用ディスプレイ市場は、大面積ディスプレイへと大きさが増大している傾向にあり、これにより既存の携帯用ディスプレイで要求されていた消費電力よりも更に大きな消費電力が要求されている。従って、バッテリーという制限的な電力供給源を有している携帯用ディスプレイ立場では消費電力が非常に重要な要素となったうえ、効率と寿命の問題も必ず解決しなければならない状況である。

【0008】

効率と寿命、駆動電圧などは互いに関連性があり、効率が増加すれば、相対的に駆動電圧が低下し、駆動電圧が低下しつつ、駆動時に発生するジュール熱 (Joule heating) による有機物質の結晶化が少なくなり、結果として寿命が長くなる傾向を示す。しかしながら、前記有機物層を単純に改善することで、効率を最大化させることはできない。なぜなら、各有機物層間のエネルギー準位 (energy level) 及び T_1 値、物質の固有特性 (移動度、界面特性など) などが最適の組み合わせとなったとき、長寿命と高効率を同時に達成できるためである。従って、高い熱的安定性を有し、発光層内で効率的に荷電平衡 (charge balance) が維持できる発光材料の開発が必

10

20

30

40

50

要であるのが現状である。

【0009】

即ち、有機電気素子が有する優れた特徴を十分に発揮するためには、素子内の有機物層をなす物質、例えば、正孔注入物質、正孔輸送物質、発光物質、電子輸送物質、電子注入物質などが安定的、且つ効率的な材料によって後押されることが前提とならなければならないが、未だに安定的、且つ効率的な有機電気素子用有機物層材料の開発が十分に行われていない状態である。従い、新しい材料の開発が求め続であり、特に発光層のホスト物質の開発が切実に要求されている。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0010】

本発明は、素子の高い発光効率、低い駆動電圧、高耐熱性、色純度及び寿命を向上させることができる化合物、これを用いた有機電子素子及びその電子装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

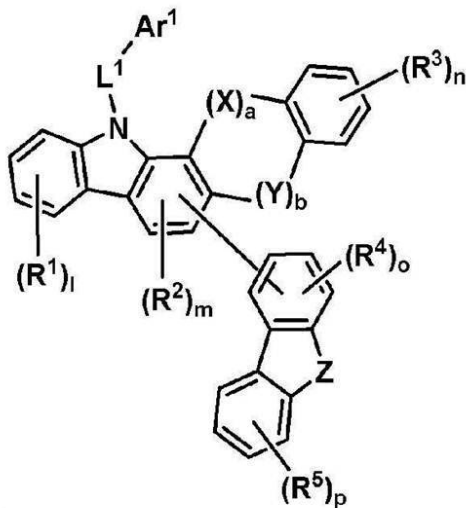
【0011】

一側面において、本発明は下記式で表される化合物を提供する。

【0012】

【化1】

20



30

【0013】

他の側面において、本発明は前記式で表される化合物を用いた有機電気素子及びその電子装置を提供する。

【発明の効果】

【0014】

本発明の一実施例に係る化合物を用いることで、素子の高い発光効率、低い駆動電圧、高耐熱性を達成することができ、素子の色純度及び寿命を向上させることができる。

40

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】本発明に係る有機電気発光素子の例示図を示す。

【図2】比較化合物4と本発明の化合物2-1の物性を示す。

【発明を実施するための形態】

【0016】

以下、本発明の実施例を添付の図面を参照して詳細に説明する。

【0017】

各図面の構成要素に参照符号を付すにおいて、同一の構成要素に対しては、たとえ他の

50

図面上に表示されても、可能な限り同一の符号を有するようにしていることに留意すべきである。また、本発明を説明するにおいて、関連する公知の構成又は機能に関する具体的な説明が本発明の要旨を曖昧にするおそれがあると判断される場合には、その詳細な説明は省略する。

【0018】

本発明の構成要素を説明するにおいて、第1、第2、A、B、(a)、(b)などの用語を用いることができる。このような用語は、その構成要素を他の構成要素と区別するためのものに過ぎず、その用語により該当構成要素の本質や順番又は順序などが限定されるわけではない。ある構成要素が他の構成要素に「連結」、「結合」又は「接続」されると記載された場合、その構成要素は、その他の構成要素に直接的に連結又は接続することができるが、各構成要素の間に他の構成要素が「連結」、「結合」又は「接続」されることもある理解されるべきである。

10

【0019】

また、層、膜、領域、板などの構成要素が他の構成要素「の上に」又は「上に」あるとする場合、これは他の構成要素の「真上に」ある場合のみならず、その中間に他の構成要素がある場合も含むことができると理解されるべきである。反対に、ある構成要素が他の部分の「真上に」あるとする場合には、中間に他の部分がないことを意味すると理解されるべきである。

【0020】

本明細書及び添付の請求の範囲において用いられたように、特に言及しない限り、下記用語の意味は、下記と同様である：

20

【0021】

本明細書に用いられた用語「ハロ」又は「ハロゲン」は、他の説明がない限り、フッ素(F)、ブローム(Br)、塩素(Cl)又はヨード(I)である。

【0022】

本発明に用いられた用語「アルキル」又は「アルキル基」は、他の説明がない限り、1ないし60の炭素数の単一結合を有し、直鎖アルキル基、分岐鎖アルキル基、シクロアルキル(脂環族)基、アルキル-置換されたシクロアルキル基、シクロアルキル-置換されたアルキル基をはじめとする飽和脂肪族作用基のラジカルを意味する。

【0023】

本発明で用いられた用語「ハロアルキル基」又は「ハロゲンアルキル基」は、他の説明がない限り、ハロゲンで置換されたアルキル基を意味する。

30

【0024】

本発明に用いられた用語「アルケニル基」又は「アルキニル基」は、他の説明がない限り、それぞれ2ないし60の炭素数の二重結合又は三重結合を有し、直鎖型又は側鎖型鎖基を含み、これに制限されるものではない。

【0025】

本発明に用いられた用語「シクロアルキル」は、他の説明がない限り、3ないし60の炭素数を有する環を形成するアルキルを意味し、これに制限されるものではない。

【0026】

本発明に用いられた用語「アルコキシル基」、「アルコキシ基」、又は「アルキルオキシ基」は、酸素ラジカルが付着されたアルキル基を意味し、他の説明がない限り、1ないし60の炭素数を有し、これに制限されるものではない。

40

【0027】

本発明に用いられた用語「アリーロキシル基」又は「アリーロキシ基」は、酸素ラジカルが付着されたアリール基を意味し、他の説明がない限り、6ないし60の炭素数を有し、これに制限されるものではない。

【0028】

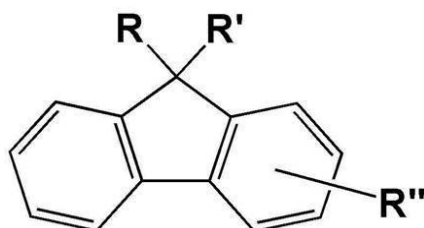
本発明に用いられた用語「フルオレニル基」又は「フルオレニレン基」は、他の説明がない限り、それぞれ下記構造においてR、R'及びR"がすべて水素である1価又は2価

50

の作用基を意味し、「置換されたフルオレニル基」又は「置換されたフルオレニレン基」は置換基 R、R'、R'' のうち、少なくとも 1 つが水素以外の置換基であることを意味し、R と R' が互いに結合され、これらが結合された炭素と共にスピロ化合物を形成した場合を含む。

【0029】

【化2】



10

【0030】

本発明に用いられた用語「アリアル基」及び「アリーレン基」は、他の説明がない限り、それぞれ 6 ないし 60 の炭素数を有し、これに制限されるものではない。本発明でアリアル基又はアリーレン基は単環系、環集合体、縮合多環系、スピロ化合物等を含む。

【0031】

本発明に用いられた用語「ヘテロ環基」は「ヘテロアリアル基」又は「ヘテロアリーレン基」のような芳香族環のみならず、非芳香族環も含み、他の説明がない限り、それぞれ 1 つ以上のヘテロ原子を含む炭素数 2 ないし 60 の環を意味するが、ここに制限されるものではない。本明細書に用いられた用語「ヘテロ原子」は他の説明がない限り、N、O、S、P 又は Si を示し、ヘテロ環基はヘテロ原子を含む単環系、環集合体、縮合多環系、スピロ化合物等を意味する。

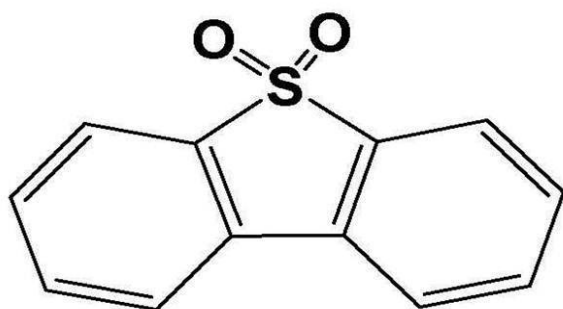
20

【0032】

また、「ヘテロ環基」は環を形成する炭素の代わりに SO_2 を含む環も含むことができる。例えば、「ヘテロ環基」は下記化合物を含む。

【0033】

【化3】



30

【0034】

本発明に用いられた用語「環」は単環及び多環を含み、炭化水素環はもとより少なくとも 1 つのヘテロ原子を含むヘテロ環を含み、芳香族及び非芳香族環を含む。

40

【0035】

本発明に用いられた用語「多環」はビフェニル、ターフェニルなどと同様の環集合体 (ring assemblies)、縮合 (fused) 多環系及びスピロ化合物を含み、芳香族のみならず、非芳香族も含み、炭化水素環はもとより少なくとも 1 つのヘテロ原子を含むヘテロ環を含む。

【0036】

本発明に用いられた用語「環集合体 (ring assemblies)」は 2 つ又はその以上の環系 (単環又は縮合環系) が単結合か又は二重結合を通じて互いに直接連絡されており、このような環の間の直接連結の数がこの化合物に入っている環系の総数より 1

50

つが少ないことを意味する。環集合体は同一又は相違する環系が単結合か二重結合を通じて互いに直接連結することができる。

【0037】

本発明に用いられた用語「縮合多環系」は少なくとも2つの原子の共有する縮合(fused)環形態を意味し、2つ以上の炭化水素類の環系が縮合形態及び少なくとも1つのヘテロ原子を含むヘテロ環系が少なくとも1つの縮合形態等を含む。このような縮合多環系は芳香族環、ヘテロ芳香族環、脂肪族環又はこれら環の組み合わせであり得る。

【0038】

本発明に用いられた用語「スピロ化合物」は「スピロ連結(spiro union)」を有し、スピロ連結は2つの環が専ら1つの原子を共有することで行われる連結を意味する。このとき、2つの環に共有された原子を「スピロ原子」と称し、1つの化合物に入っているスピロ原子の数により、これらをそれぞれ「モノスピロー」、「ジスピロー」、「トリスピロー」化合物と称する。

10

【0039】

また、接頭辞が連続して命名される場合、先に記載された順に置換基が羅列されることを意味する。例えば、アリアルアルコキシ基の場合、アリアル基で置換されたアルコキシ基を意味し、アルコキシルカルボニル基の場合、アルコキシル基で置換されたカルボニル基を意味し、またアリアルカルボニルアルケニル基の場合、アリアルカルボニル基で置換されたアルケニル基を意味し、ここでアリアルカルボニル基は、アリアル基で置換されたカルボニル基である。

20

【0040】

また、明示的な説明がない限り、本発明に用いられた用語「置換又は非置換の」における「置換」は重水素、ハロゲン、アミノ基、ニトリル基、ニトロ基、 C_1-C_{20} のアルキル基、 C_1-C_{20} のアルコキシル基、 C_1-C_{20} のアルキルアミン基、 C_1-C_{20} のアルキルチオフェン基、 C_6-C_{20} のアリアルチオフェン基、 C_2-C_{20} のアルケニル基、 C_2-C_{20} のアルキニル基、 C_3-C_{20} のシクロアルキル基、 C_6-C_{20} のアリアル基、重水素で置換された C_6-C_{20} のアリアル基、 C_8-C_{20} のアリアルアルケニル基、シラン基、ホウ素基、ゲルマニウム基、及びO、N、S、Si及びPからなる群より選択された少なくとも1つのヘテロ原子を含む C_2-C_{20} のヘテロ環基からなる群より選択される1つ以上の置換基で置換されることを意味し、これらの置換基に制限されるものではない。

30

【0041】

本明細書において各記号及びその置換基の例として示されるアリアル基、アリーレン基、ヘテロ環基などに該当する「基の名称」は「価数を反映させた基の名称」を記載してもよく、「母体化合物の名称」で記載してもよい。例えば、アリアル基の一種である「フェナントレン」の場合、1価の「基」は「フェナントリル」に、2価の基は「フェナントリレン」などのように価数を区分して基の名称を記載することもできるが、価数と関係なく母体化合物の名称である「フェナントレン」と記載することもできる。同様に、ピリミジンの場合にも、価数と関係なく「ピリミジン」と記載するか、1価の場合にはピリミジニル、2価の場合にはピリミジニレンなどのように該当価数の「基の名称」で記載することもできる。

40

【0042】

また、明示的な説明がない限り、本発明に用いられる式は、下記式の指数定義による置換基の定義と同様に適用される。

【0043】

【化4】



10

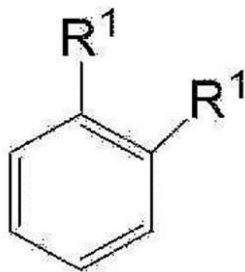
【0044】

ここで、 a が0の整数であるとき、置換基 R^1 は不在であり、 a が1の整数であるとき、1つの置換基 R^1 はベンゼン環を形成する炭素のうち、いずれか1つの炭素に結合し、 a が2又は3の整数であるとき、それぞれ下記と同様に結合し、このとき、 R^1 は互いに同一又は異なることもあり、 a が4ないし6の整数であるとき、これと類似する方式でベンゼン環の炭素に結合し、一方、ベンゼン環を形成する炭素に結合された水素の表示は省略する。

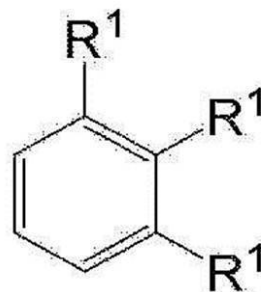
【0045】

20

【化5】



(a=2)



(a=3)

30

【0046】

図1は、本発明の一実施例に係る有機電気素子に対する例示図である。

【0047】

図1を参照すれば、本発明の一実施例に係る有機電気素子100は、基板110上に形成された第1電極120、第2電極180及び第1電極120と第2電極180との間に本発明に係る化合物を含む有機物層を備える。このとき、第1電極120はアノード（正極）であり、第2電極180はカソード（負極）であり得、インバート型の場合には、第1電極がカソードであり、第2電極がアノードであり得る。

40

【0048】

有機物層は、第1電極120上に順次、正孔注入層130、正孔輸送層140、発光層150、電子輸送層160及び電子注入層170を含むことができる。このとき、発光層150を除いた残りの層が形成されないこともあり得る。正孔阻止層、電子阻止層、発光補助層151、バッファ層141などを更に含んでもよく、電子輸送層160などが正孔阻止層の機能を行ってもよい。

【0049】

また、図示していないが、本発明の一実施例に係る有機電気素子は第1電極と第2電極のうち、少なくとも一面のうち前記有機物層と反対の一面に形成された保護層又は光効率改善層（Capping layer）を更に含むことができる。

50

【0050】

前記有機物層に適用される本発明の一実施例に係る化合物は、正孔注入層130、正孔輸送層140、電子輸送補助層、電子輸送層160、電子注入層170、発光層150、光効率改善層、発光補助層などの材料として使用することもできる。一例として、本発明の化合物は発光層150の材料として使用することもできる。

【0051】

一方、同一のコアであっても、ある位置に、ある置換基を結合させるかによってバンドギャップ (band gap)、電気的特性、界面特性などが異なることがあるため、コアの選択及びこれに結合されたサブ (sub) - 置換体の組み合わせも非常に重要であり、特に各有機物層間のエネルギー準位 (energy level) 及びT1値、物質の固有特性 (移動度、界面特性など) などが最適の組み合わせとなったとき、長寿命と高効率を同時に達成することができる。

10

【0052】

本発明の一実施例に係る有機電気発光素子は、多様な蒸着法 (deposition) を用いて製造することができる。PVDやCVDなどの蒸着方法を用いて製造することができるが、例えば、基板上に金属又は伝導性を有する金属酸化物又はこれらの合金を蒸着させて正極120を形成し、その上に正孔注入層130、正孔輸送層140、発光層150、電子輸送層160及び電子注入層170を含む有機物層を形成した後、その上に負極180として使用できる物質を蒸着させることによって製造することができる。また、正孔輸送層140と発光層150の間に発光補助層151が、発光層150と電子輸送層160の間に電子輸送補助層が追加でさらに形成されることができる。

20

【0053】

また、有機物層は多様な高分子素材を用いて蒸着法ではない溶液工程又はソルベントプロセス (solvent process)、例えば、スピコート工程、ノズルプリンティング工程、インクジェットプリンティング工程、スロットコート工程、ディップコート工程、ロールツーロール工程、ドクターブレード工程、スクリーンプリンティング工程、又は熱転写法などの方法によってより少ない数の層で製造することができる。本発明に係る有機物層は、多様な方法で形成することができるので、その形成方法によって本発明の権利範囲が制限されるものではない。

【0054】

本発明の一実施例に係る有機電気素子は、用いられる材料によって前面発光型、後面発光型又は両面発光型であり得る。

30

【0055】

WOLED (White Organic Light Emitting Device) は、高解像度の実現が容易であり、工程性に優れた一方、既存のLCDのカラーフィルタ技術を用いて製造することができるという利点がある。主に、バックライト装置として用いられる白色有機発光素子に対する多様な構造が提案され特許化されている。代表として、R (Red)、G (Green)、B (Blue) 発光部を相互平面的に並列配置 (side-by-side) 方式、R、G、B発光層が上下に積層される積層 (stacking) 方式があり、青色 (B) 有機発光層による電界発光とこれからの光を利用して無機蛍光体の自発光 (photo-luminescence) を利用する色変換物質 (color conversion material、CCM) 方式などがあるが、本発明はこのようなWOLEDにも適用することができる。

40

【0056】

また、本発明の一実施例に係る有機電気素子は、有機電気発光素子、有機太陽電池、有機感光体、有機トランジスタ、単色又は白色照明用素子のうちの1つであり得る。

【0057】

本発明の他の実施例は、前述した本発明の有機電気素子を含むディスプレイ装置と、このディスプレイ装置を制御する制御部を含む電子装置を含むことができる。このとき、電子装置は現在又は将来の有無線通信端末であり得、携帯電話などの移動通信端末、PDA

50

、電子辞書、PMP、リモコン、ナビゲーション、ゲーム機、各種テレビ、各種コンピュータなど、あらゆる電子装置を含む。

【0058】

以下、本発明の一側面に係る化合物について説明する。

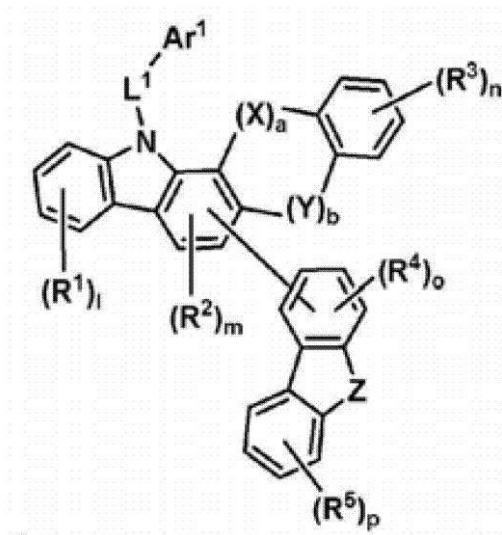
【0059】

本発明の一側面に係る化合物は、下記式1で表される。

【0060】

【化6】

<式1>



【0061】

前記式1において、各記号は下記と同様に定義することができる。

【0062】

Ar¹は水素；重水素；ハロゲン；C₆-C₆₀のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPのうち、少なくとも1つのヘテロ原子を含むC₂-C₆₀のヘテロ環基；C₃-C₆₀の脂肪族環とC₆-C₆₀の芳香族環の縮合環基；C₁-C₅₀のアルキル基；C₂-C₂₀のアルケニル基；C₂-C₂₀のアルキニル基；C₁-C₃₀のアルコキシ基；C₆-C₃₀のアリールオキシ基；及び-L'-N(R')(R'')；からなる群から選択されることができる。

【0063】

好ましくは、Ar¹はC₆-C₃₀のアリール基、C₂-C₃₀のヘテロ環基、フルオレニル基、C₁-C₁₀のアルキル基、C₂-C₁₀のアルケニル基などであったり、さらに好ましくは、C₆-C₁₂のアリール基、C₂-C₁₂のヘテロ環基などであったり、具体的に、フェニル、ナフチル、ピフェニル、ジメチルフルオレン、ジフェニルフルオレン、ジメチルベンゾフルオレン、スピロピフルオレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、トリアゾール、1、10-フェナントロリン、1、5-ナフチリジン、キナゾリン、ベンゾキナゾリン及びインドールなどのようなNを含むヘテロ環基、ジベンゾチオフェンなどのようなSを含むヘテロ環基、ベンゾチエノピリミジンなどのようなNとSを含むヘテロ環基、ベンゾフロピリミジン及びベンゾフロピリジンなどのようなNとOを含むヘテロ環基、プロペニル、tert-ブチル、エテニルであり得る。

【0064】

前記式1において、L¹は単結合；C₆-C₆₀のアリーレン基；フルオレニレン基；O、N、S、Si及びPからなる群より選ばれた少なくとも1つのヘテロ原子を含むC₂-C₆₀のヘテロ環基；及びC₃-C₆₀の脂肪族環とC₆-C₆₀の芳香族環の縮合環

10

20

30

40

50

基；脂肪族炭化水素基；及びこれらの組み合わせからなる群より選ばれることができる。

【0065】

L^1 は、好ましくは、 $C_6 - C_{30}$ のアリーレン基、フルオレニレン基、 $C_2 - C_{30}$ のヘテロ環基などであったり、さらに好ましくは、 $C_6 - C_{12}$ のアリーレン基、 $C_2 - C_{12}$ のヘテロ環基などであったり、具体的に、フェニレン、ナフチレン、ピフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、トリアゾール、1、10-フェナントロリン、1、5-ナフチリジン、キナゾリン、ベンゾキナゾリン、インドールなどのようなNを含むヘテロ環基、ベンゾチエノピリジンなどのようなNとSを含むヘテロ環基、ベンゾフロピリジン及びベンゾフロピリミジンなどのようなNとOを含むヘテロ環基などであり得る。

【0066】

前記式1において、 R^1 ないし R^5 は互いに独立に、重水素；ハロゲン；シアノ基；ニトロ基； $C_6 - C_{60}$ のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPのうち、少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロ環基； $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環の縮合環基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_2 - C_{20}$ のアルキニル基； $C_1 - C_{30}$ のアルコキシ基； $-L^1-N(R^1)(R^2)$ ；及びこれらの組み合わせ；からなる群より選ばれ、隣接する R^1 同士、隣接する R^3 同士、隣接する R^4 同士、又は隣接する R^5 同士互いに結合して環を形成することができ、l、n及びpはそれぞれ0-4の整数であり、mは0又は1の整数であり、oは0-3の整数である。l、n、p及びoなどが2以上の整数である場合には、複数の R_1 、 R_3 、 R_4 、 R_5 などは、それぞれ、互いに同じか異なることができる。

【0067】

R^1 ないし R^5 は、好ましくは、 $C_6 - C_{30}$ のアリール基、 $C_2 - C_{30}$ のヘテロ環基、 $C_2 - C_{10}$ のアルケニル基、ハロゲン、シアノ基、ニトロ基、 $C_1 - C_{10}$ アルコキシ基、 $-L^1-N(R^1)(R^2)$ などであったり、さらに好ましくは、 $C_6 - C_{14}$ のアリール基、 $C_2 - C_{12}$ のヘテロ環基、ハロゲン、シアノ基、ニトロ基、 $C_1 - C_4$ アルコキシ基、 $C_2 - C_4$ アルケニル基、 $-L^1-N(R^1)(R^2)$ などであったり、具体的に、フェニル、フェナントリル、ピリジル及びカルバゾリルなどのようなNを含むヘテロ環基、プロペニル、フルオロ、ジフェニルアミン、シアノ、メトキシ、ニトロなどであり得る。

【0068】

また、 R^1 同士、 R^3 同士、 R^4 同士、および/又は R^5 同士を互いに結合して環を形成する場合には、好ましくは1つ又は2つのベンゼン環を形成することによって、これらが結合されたベンゼンリングと共にナフタレン、フェナントレン等の環を形成することができる。

【0069】

X及びYは互いに独立に、O、S、 $C(R^6)(R^7)$ 、 $Si(R^8)(R^9)$ 、又はSeであり、aとbはそれぞれ0又は1であり、ただし、aとbのうち少なくとも一つは1である。つまり、 $a+b$ は1と同じか大きい。ここで、指数aとbが“0”という意味は、XとYが存在しない、最終的に両方のベンゼンリングの炭素が、これらの媒介に結合するのではなく、直接結合することを意味する。

【0070】

Zは $N-(L^2-Ar^2)$ 、O、S、 $C(R^{10})(R^{11})$ 、 $Si(R^{12})(R^{13})$ 、又はSeである。

【0071】

Zが $N-(L^2-Ar^2)$ である場合には、 L^2 は単結合； $C_6 - C_{60}$ のアリーレン基；フルオレニレン基；O、N、S、Si及びPからなる群より選ばれた少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロ環基；及び $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環の縮合環基；脂肪族炭化水素基；及びこれらの組み合わせからなる群より選することができる。

【0072】

L^2 は、好ましくは、 $C_6 - C_{30}$ のアリーレン基、 $C_2 - C_{30}$ のヘテロ環基などであったり、さらに好ましくは、 $C_6 - C_{18}$ のアリーレン基、 $C_2 - C_{10}$ のヘテロ環基などであったり、具体的

10

20

30

40

50

に、フェニレン、ナフチレン、ピフェニレン、ピレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、トリアゾール、キナゾリン、ベンゾキナゾリン、ジベンゾキナゾリンなどのようなNを含むヘテロ環基、ベンゾチエノピリミジンのようなNとSを含むヘテロ環基、ベンゾフロピリミジンのようなNとOを含むヘテロ環基などであり得る。

【0073】

Ar²は水素；重水素；ハロゲン；C₆ - C₆₀のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPのうち、少なくとも1つのヘテロ原子を含むC₂ - C₆₀のヘテロ環基；C₃ - C₆₀の脂肪族環とC₆ - C₆₀の芳香族環の縮合環基；C₁ - C₅₀のアルキル基；C₂ - C₂₀のアルケニル基；C₂ - C₂₀のアルキニル基；C₁ - C₃₀のアルコキシ基；C₆ - C₃₀のアリールオキシ基；及び-L'-N(R')(R")；からなる群から選択されることができる。

10

【0074】

Ar²は、好ましくは、C₆ - C₃₀のアリール基、C₂ - C₃₀のヘテロ環基、C₆ - C₁₀のアルコキシ基、ハロゲンなどであったり、さらに好ましくは、C₆ - C₁₈のアリール基、C₂ - C₁₀のヘテロ環基などであったり、具体的に、フェニル、ナフチル、ピフェニル、ピレン、フェナントレン、トリフェニレン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、カルバゾール、キナゾリン、ベンゾキナゾリン、ジベンゾキナゾリン、トリアゾールなどのようなNを含むヘテロ環基、ジベンゾフランのようなOを含むヘテロ環基、ベンゾフロピリミジン、ナフトフロピリミジンなどのようなN及びOを含むヘテロ環基、ベンゾチエノピリジン、ベンゾチエノピリミジンなどのようなN及びSを含むヘテロ環基、メトキシ基、フルオロなどであり得る。

20

【0075】

前記X、Y及びZにおいて、R⁶ないしR¹³は互いに独立に、水素；重水素；C₆ - C₂₄のアリール基；C₁ - C₅₀のアルキル基；C₂ - C₂₀のアルケニル基；C₁ - C₃₀のアルコキシ基；及びこれらの組み合わせ；からなる群より選択されることができる。R⁶ないしR¹³は、好ましくは、C₆ - C₁₂のアリール基、C₁ - C₁₀のアルキル基であったり具体的には、メチル、エチル、フェニル等であることができる。

【0076】

また、R⁶ないしR¹³は隣接した基同士互いに結合して環を形成することができる。R⁶とR⁷、R⁸とR⁹、R¹⁰とR¹¹、またはR¹²とR¹³同士互いに結合してスピロ化合物を形成することができ、好ましくは、R¹⁰とR¹¹同士結合するか、R¹²とR¹³同士互いに結合してスピロピフルオレンを形成することができる。

30

【0077】

L'は互いに独立に、単結合；C₆ - C₆₀のアリーレン基；フルオレニレン基；O、N、S、Si及びPからなる群より選ばれた少なくとも1つのヘテロ原子を含むC₂ - C₆₀のヘテロ環基；及びC₃ - C₆₀の脂肪族環とC₆ - C₆₀の芳香族環の縮合環基；脂肪族炭化水素基；及びこれらの組み合わせからなる群より選択されることができる。つまり、Ar¹、Ar²、及びR¹ないしR⁵が-L'-N(R')(R")である場合には、L'は、互いに独立して、上記のように定義することができる。

【0078】

前記R'及びR"は互いに独立に、C₆ - C₃₀のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPのうち、少なくとも1つのヘテロ原子を含むC₂ - C₃₀のヘテロ環基；C₃ - C₆₀の脂肪族環とC₆ - C₆₀の芳香族環の縮合環基；C₁ - C₅₀のアルキル基；C₂ - C₂₀のアルケニル基；及びこれらの組み合わせからなる群より選択されることができる。つまり、Ar¹、Ar²、及びR¹ないしR⁵が-L'-N(R')(R")である場合には、R'及びR"は、互いに独立して、上記のように定義することができる。

40

【0079】

前記式1の各記号がアリール基、フルオレニル基、ヘテロ環基、縮合環基、ルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アリーレン基、フルオレニレン基又は脂肪族炭化水素である場合には、これらのそれぞれは、互いに独立に、重水素；ハロゲ

50

ン；シラン基；シロキサン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキルチオ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_2 - C_{20}$ のアルキニル基； $C_6 - C_{20}$ のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPからなる群より選ばれた少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{20}$ のヘテロ環基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基； $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；アリールアミン基及びヘテロアリールアミン基からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換され得る。

【0080】

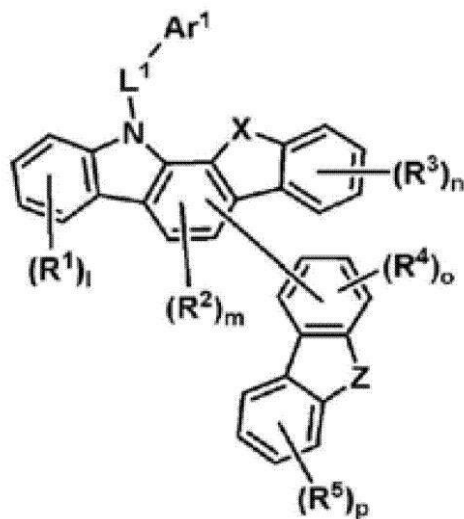
具体的には、前記式1は、下記式2又は式3で表されることができる。下記式2は、式1のbが'0'である場合であり、式3は、aが'0'である場合である。

10

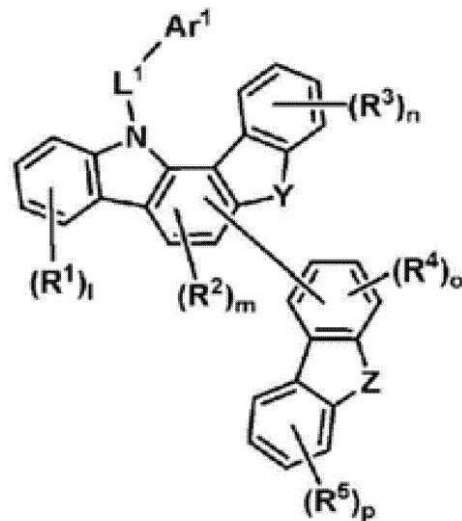
【0081】

【化7】

<式2>



<式3>



20

30

【0082】

前記式2と3において、各記号は請求項1における定義と同様である。

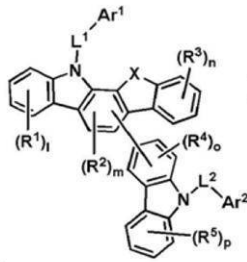
【0083】

また、前記式1は下記式4ないし式9のうちのいずれか1つに表されることができ、これらの式の各記号は、各記号は請求項1における定義と同様である。

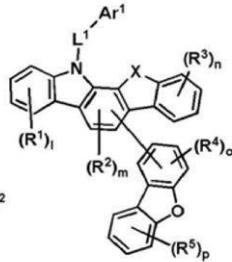
【0084】

【化8】

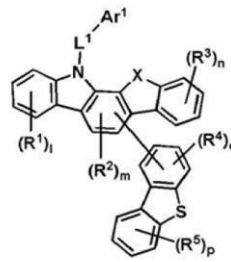
<式4>



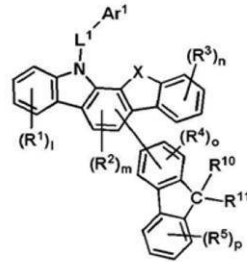
<式5>



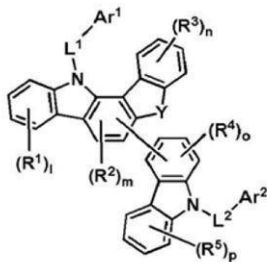
<式6>



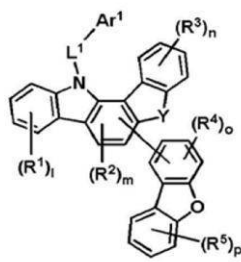
<式7>



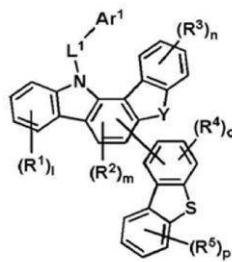
<式8>



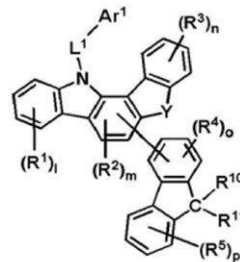
<式9>



<式10>



<式11>



10

20

【0085】

好ましくは、式1ないし9において、 l 、 m 及び n がすべて0であることができる。また、式1ないし9において、 R^4 と R^5 両方が水素であることができ、 o と p は、それぞれ、2以上である場合、隣接する R^4 同士、又は隣接する R^5 同士互いに結合して環を形成することができる。また、好ましくは、式1ないし9において、 X 又は Y はS又はOであることができる。

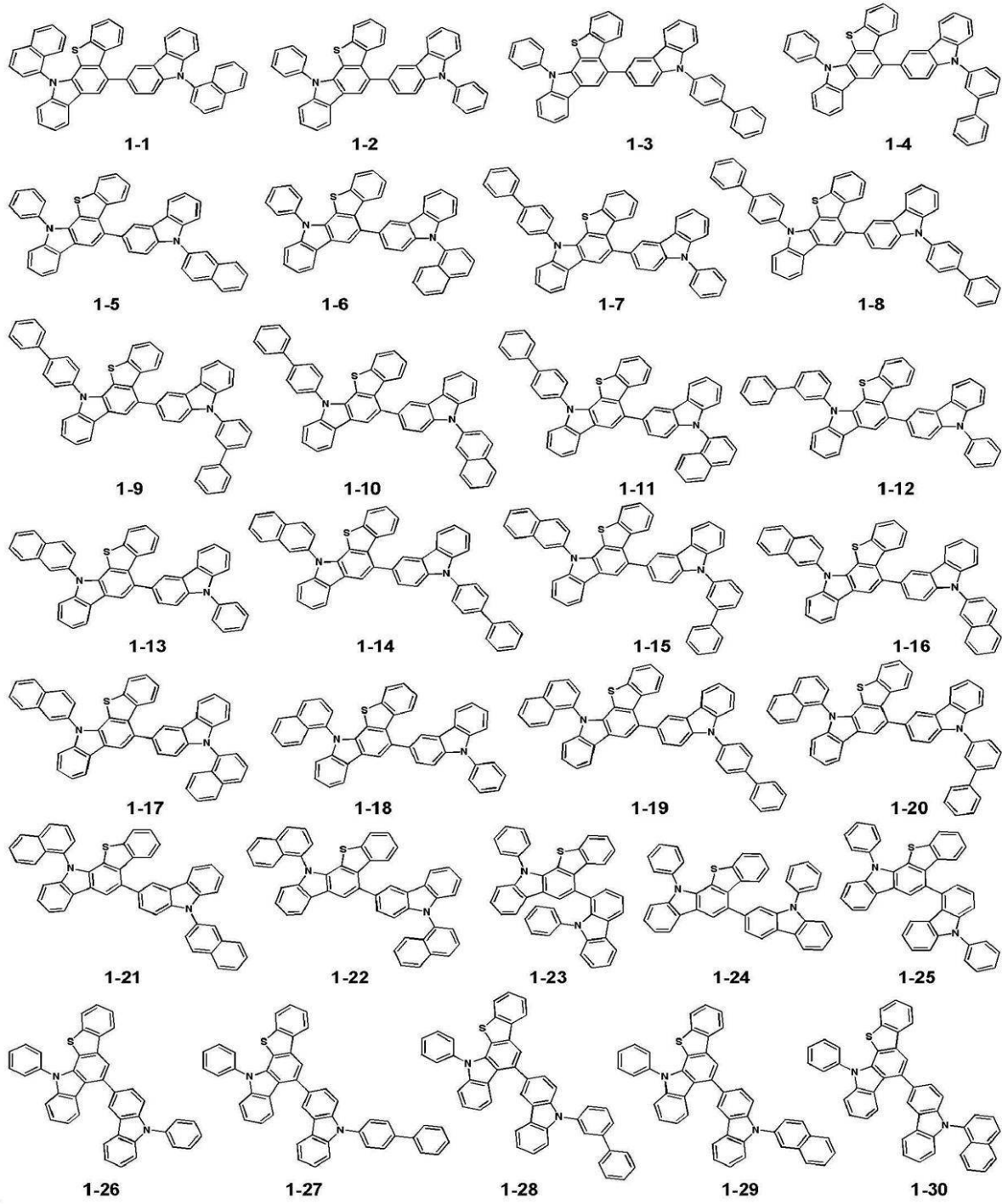
【0086】

具体的に、前記式1は下記化合物のうち、いずれか1つであり得る。

【0087】

30

【化 9】



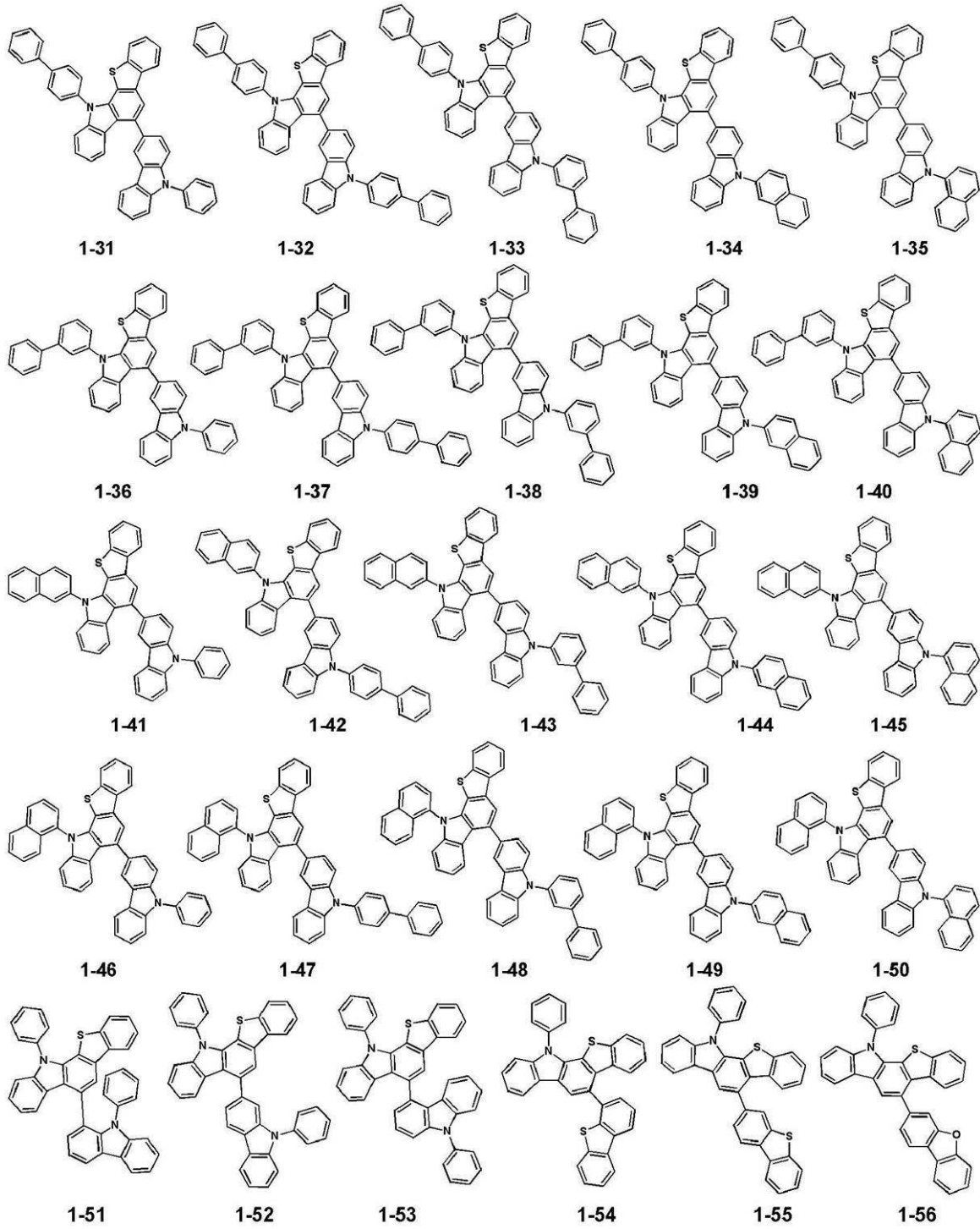
10

20

30

【 0 0 8 8 】

【化 1 0】



10

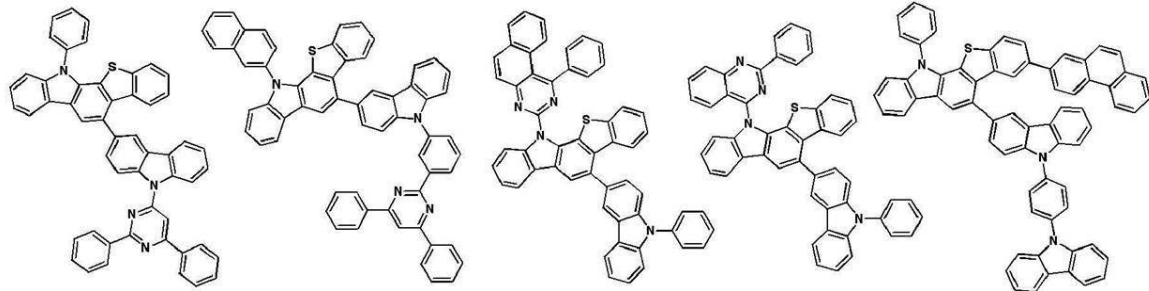
20

30

【 0 0 8 9 】

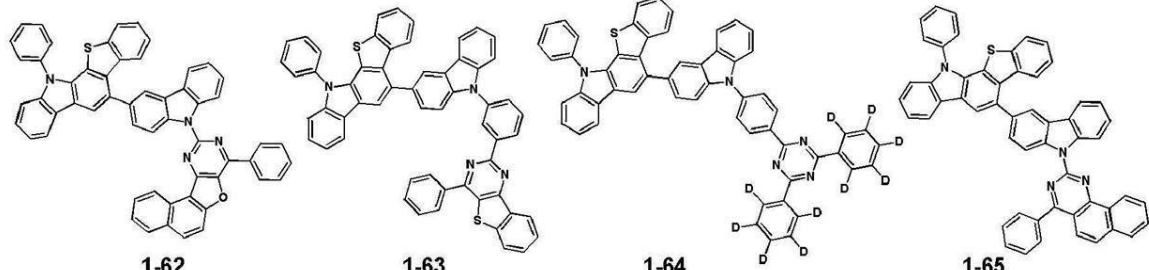
40

【化 1 1】

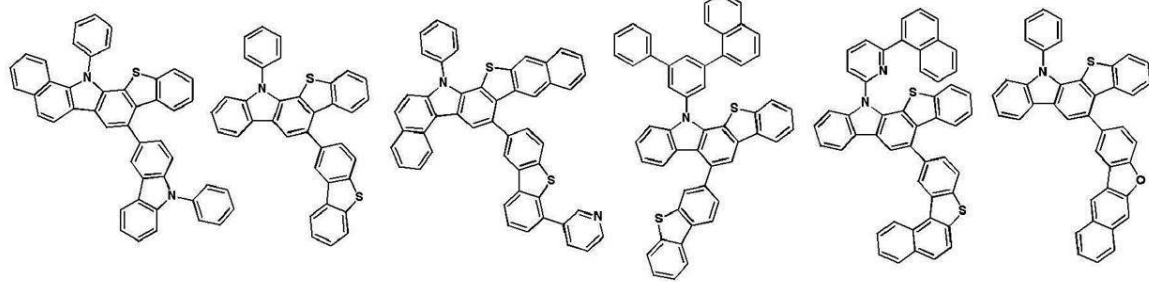


1-57 1-58 1-59 1-60 1-61

10

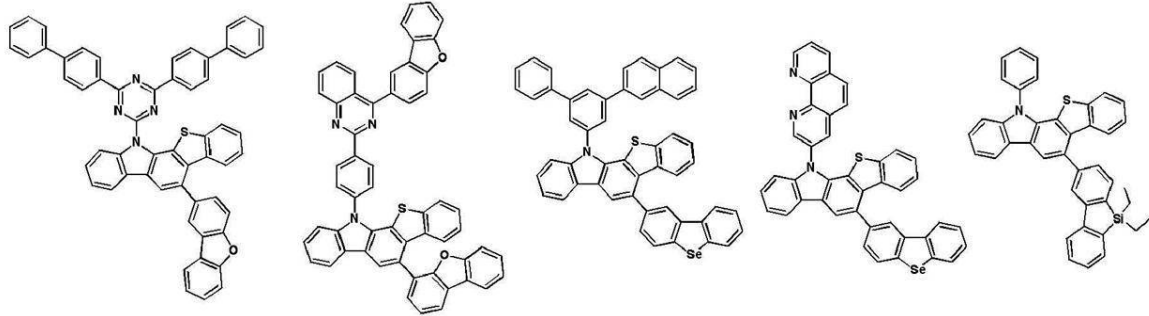


1-62 1-63 1-64 1-65



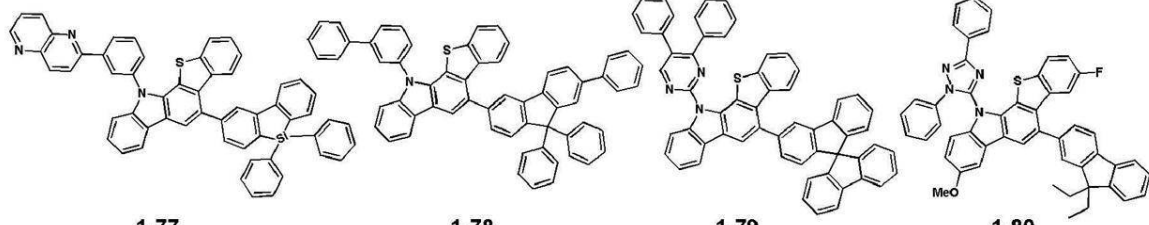
1-66 1-67 1-68 1-69 1-70 1-71

20



1-72 1-73 1-74 1-75 1-76

30

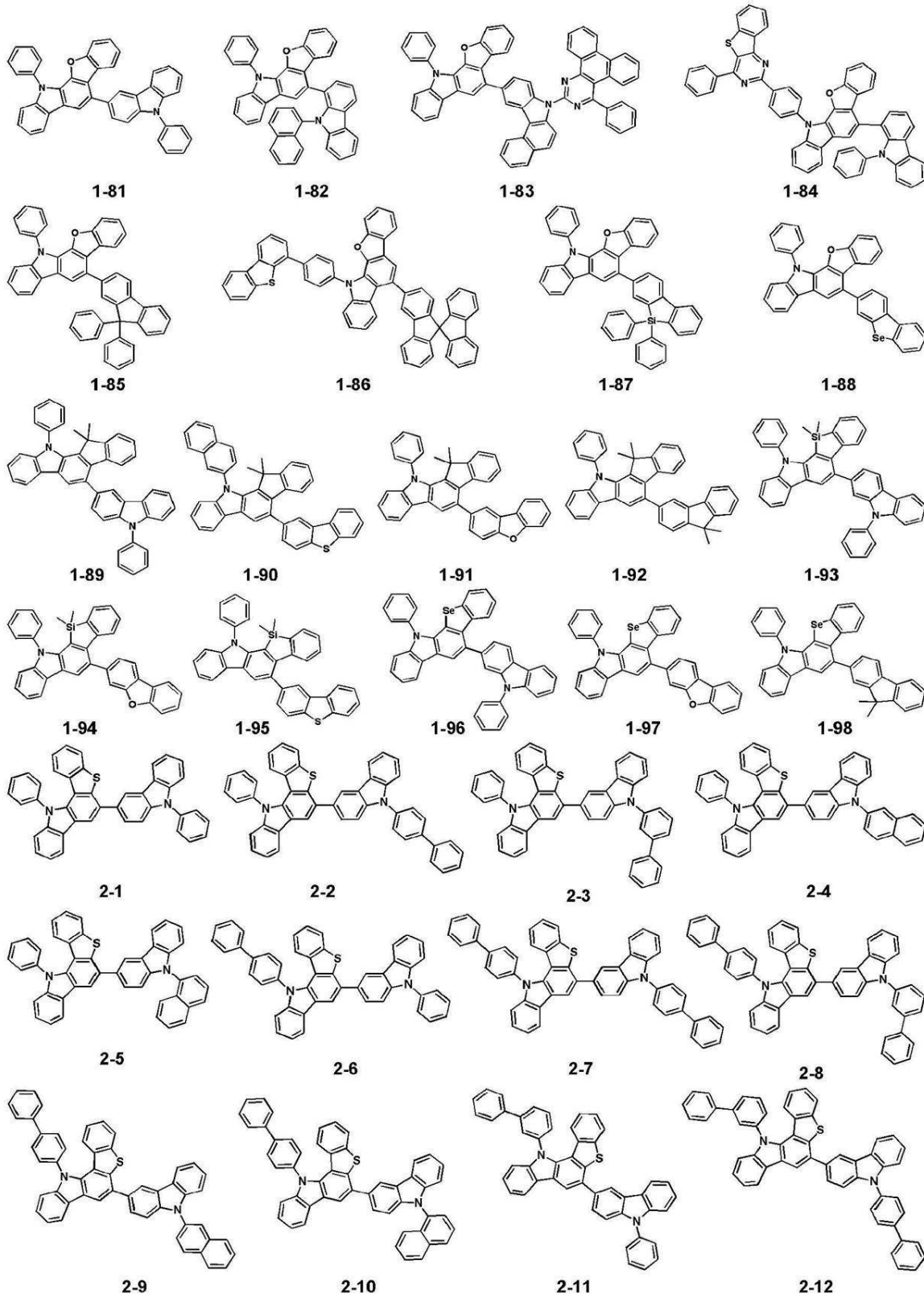


1-77 1-78 1-79 1-80

40

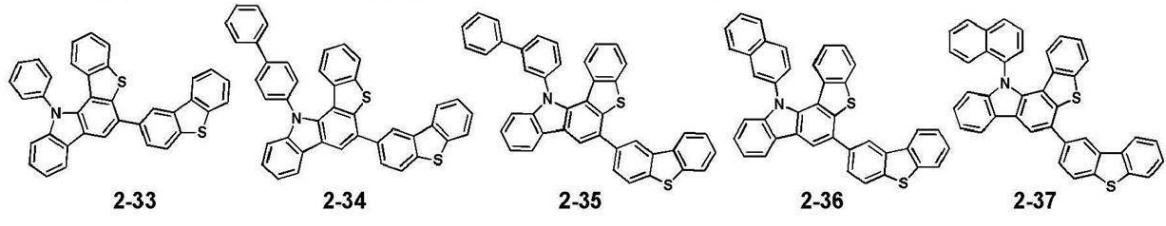
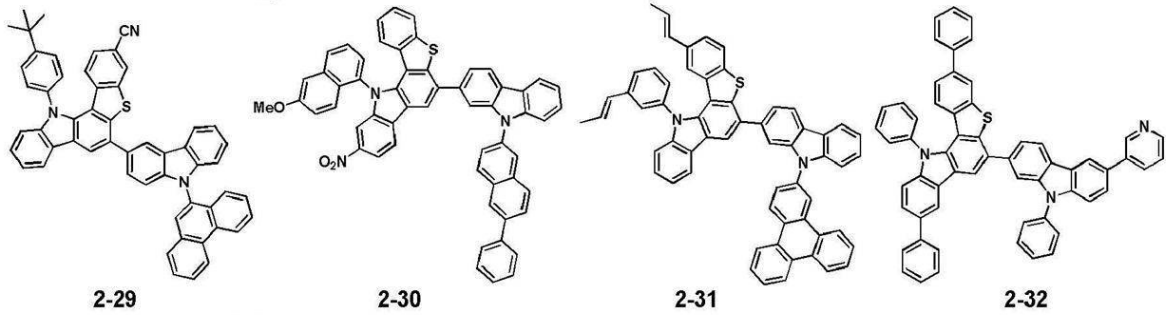
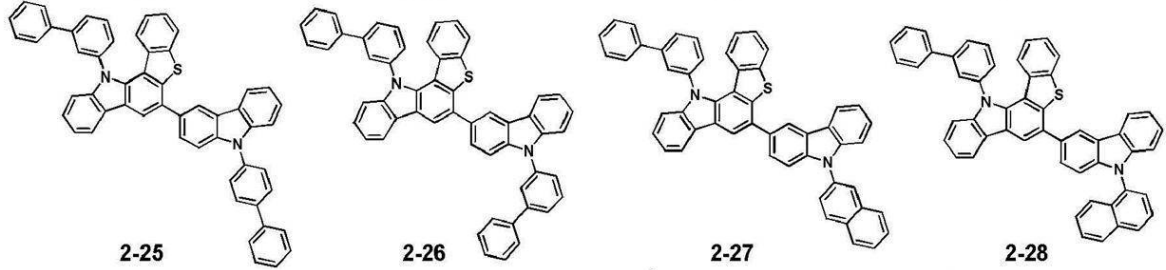
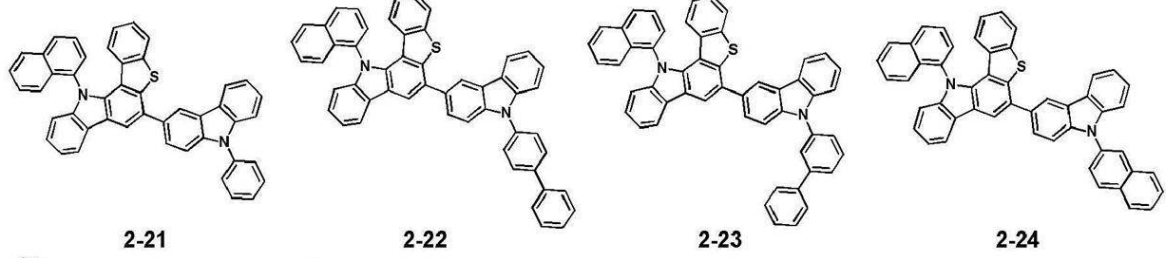
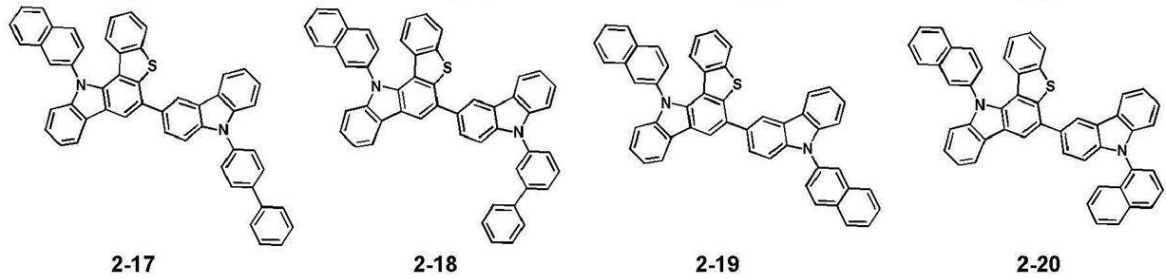
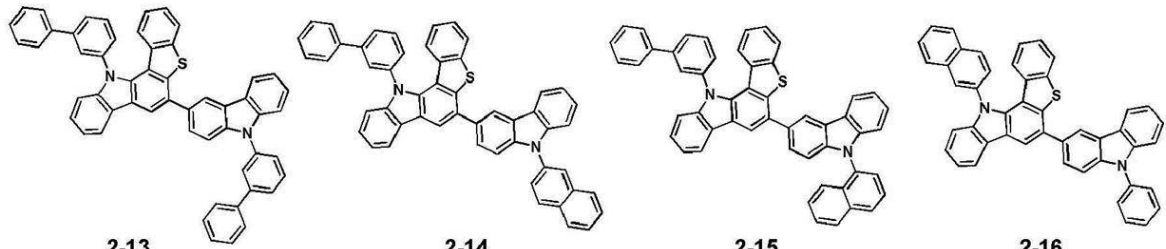
【 0 0 9 0 】

【化 1 2】



【 0 0 9 1 】

【化 1 3】



10

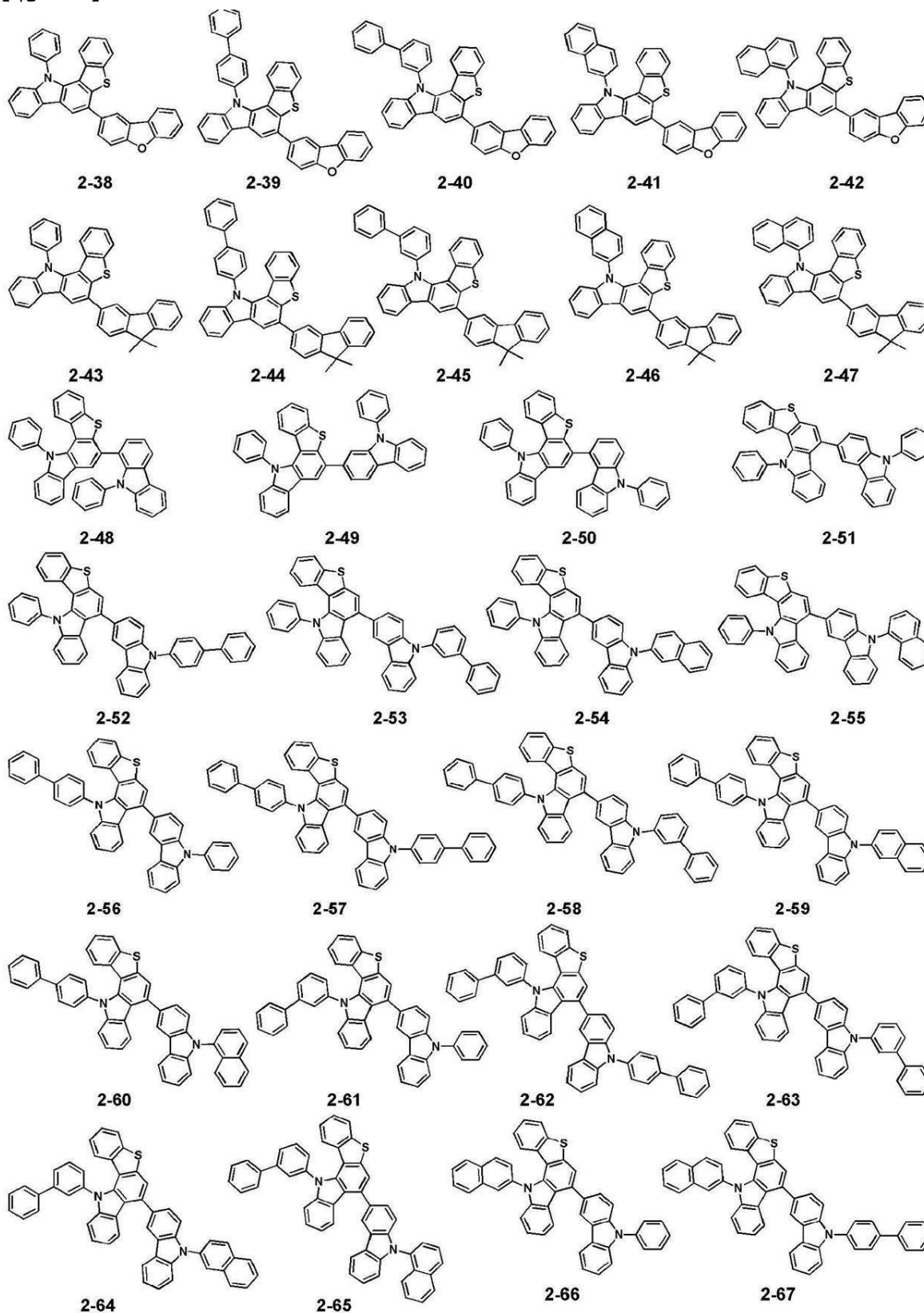
20

30

40

【 0 0 9 2 】

【化 1 4】



10

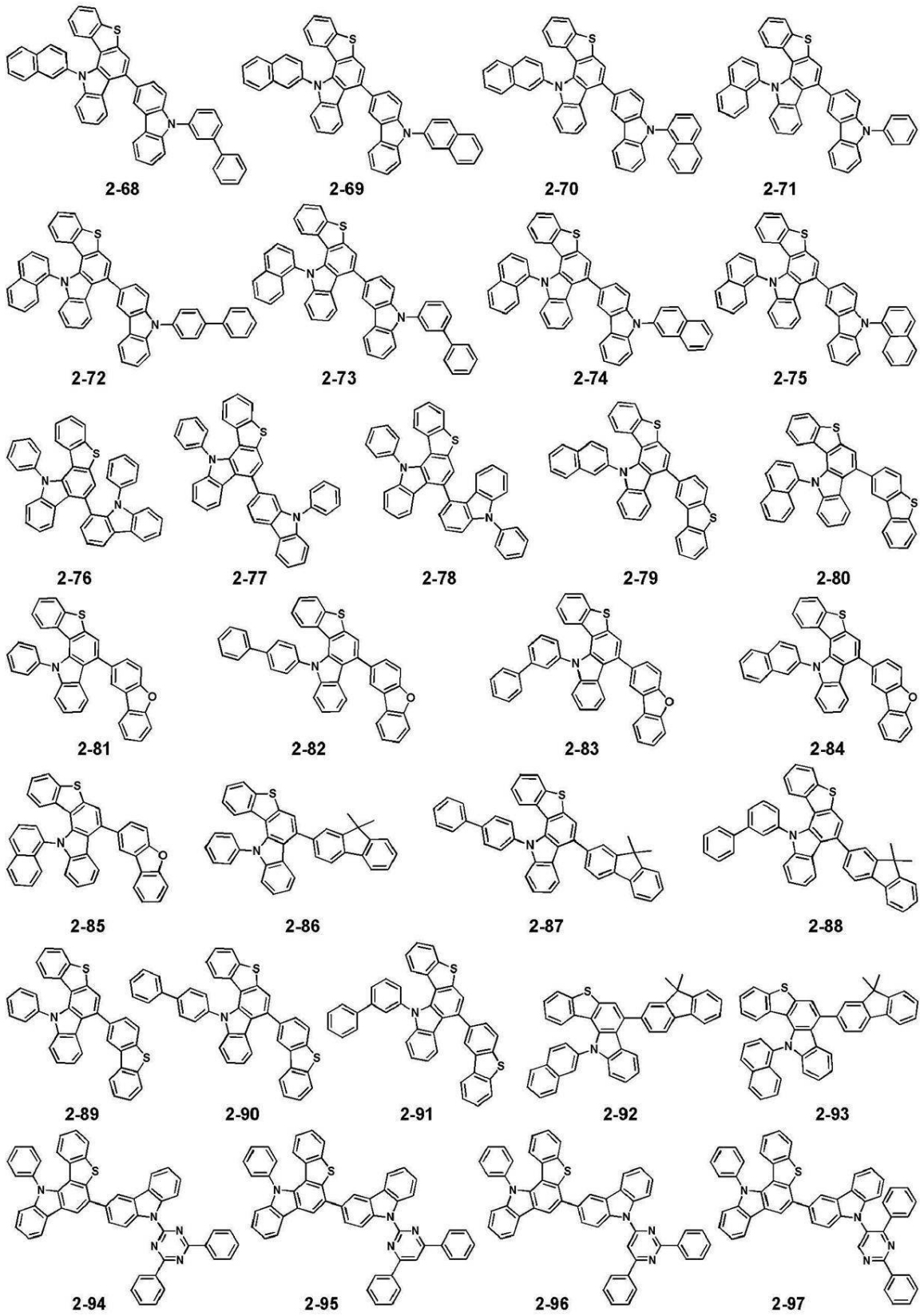
20

30

40

【 0 0 9 3 】

【化 1 5】



10

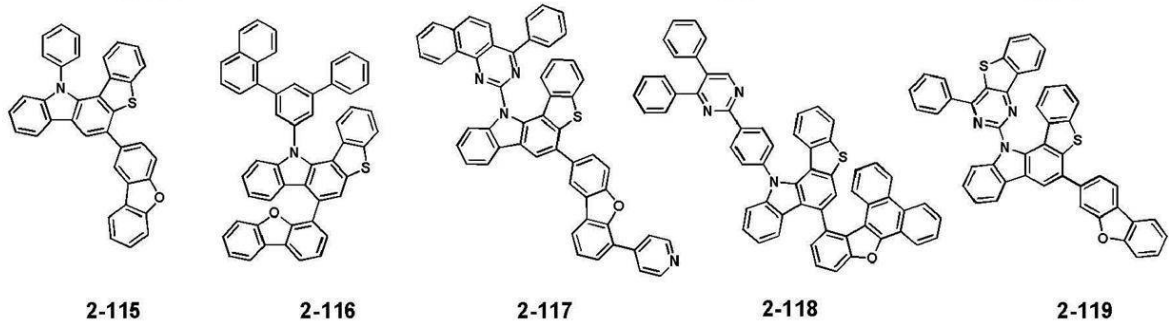
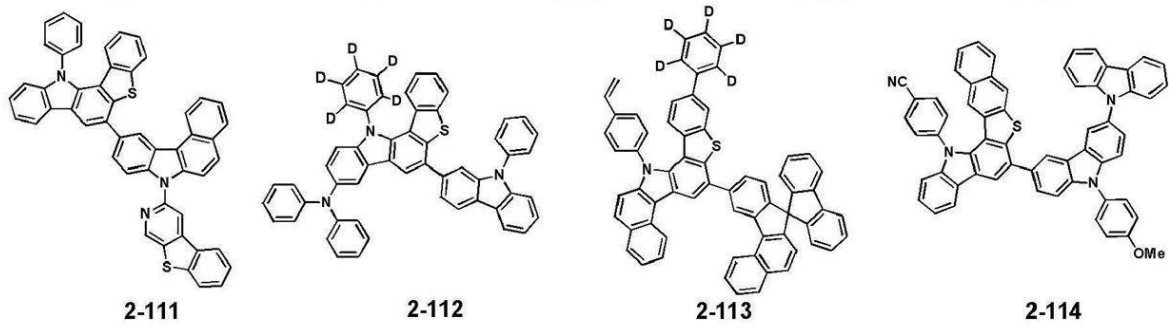
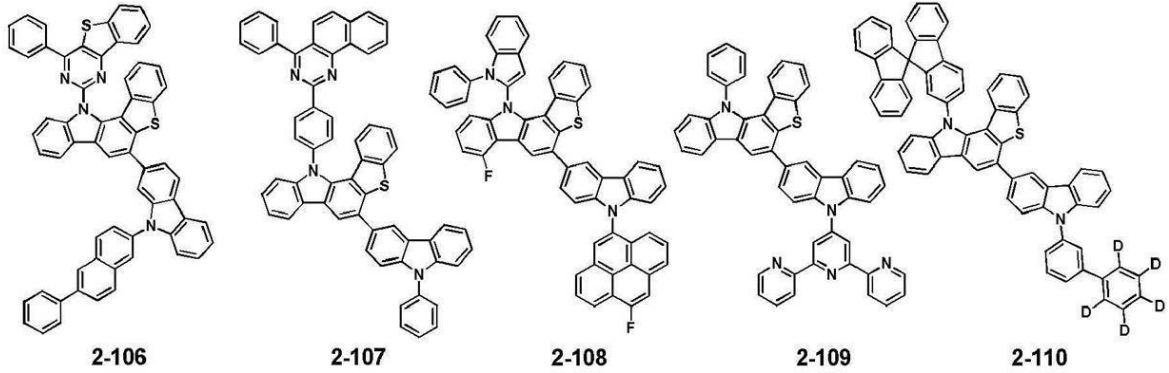
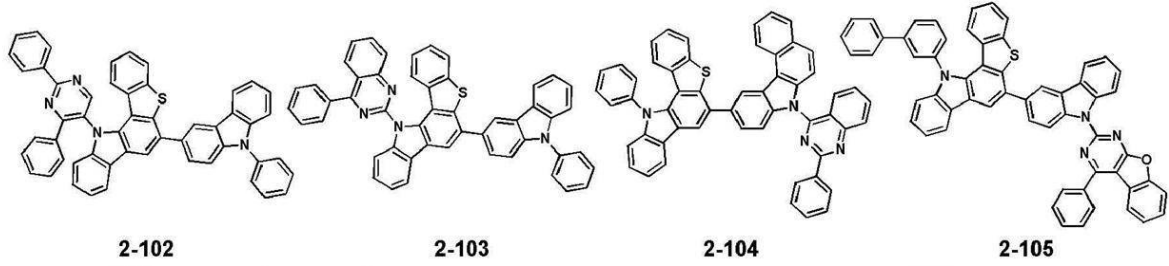
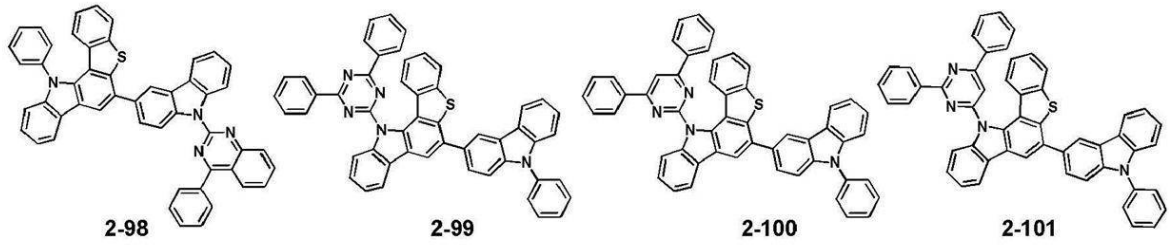
20

30

40

【 0 0 9 4 】

【化 1 6】



【 0 0 9 5 】

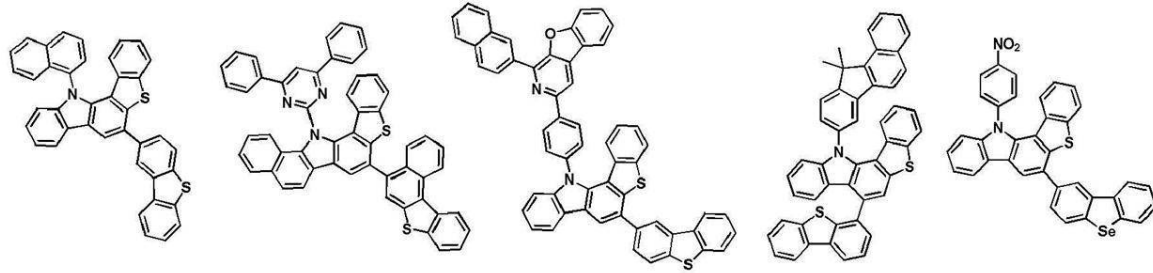
10

20

30

40

【化 17】



2-120

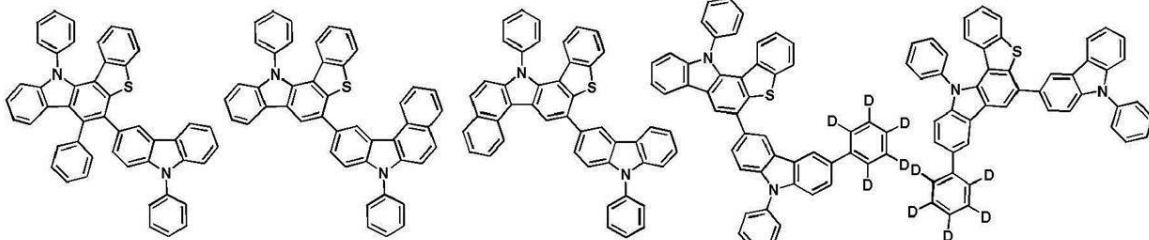
2-121

2-122

2-123

2-124

10



2-125

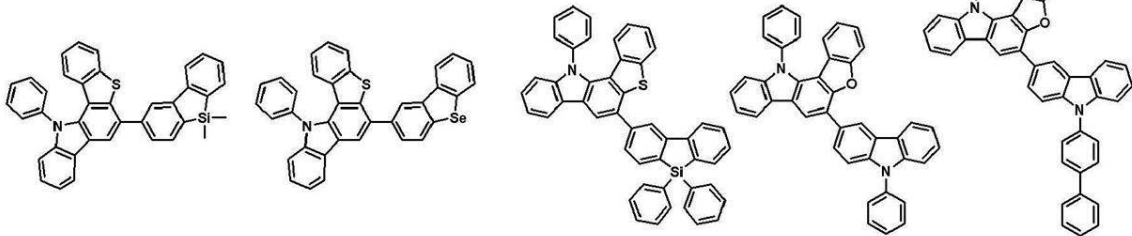
2-126

2-127

2-128

2-129

20



2-130

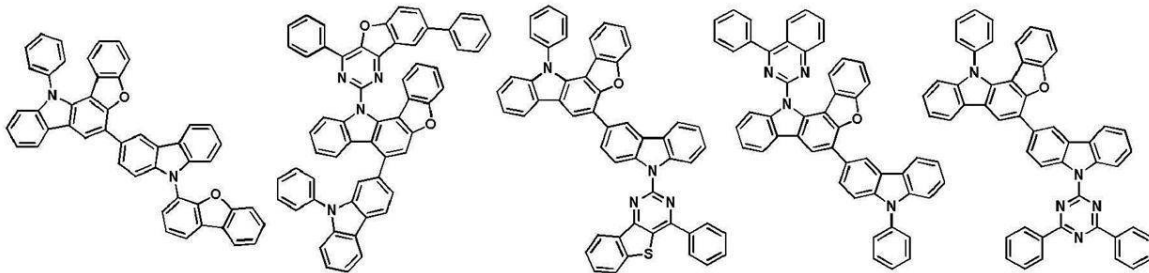
2-131

2-132

2-133

2-134

30



2-135

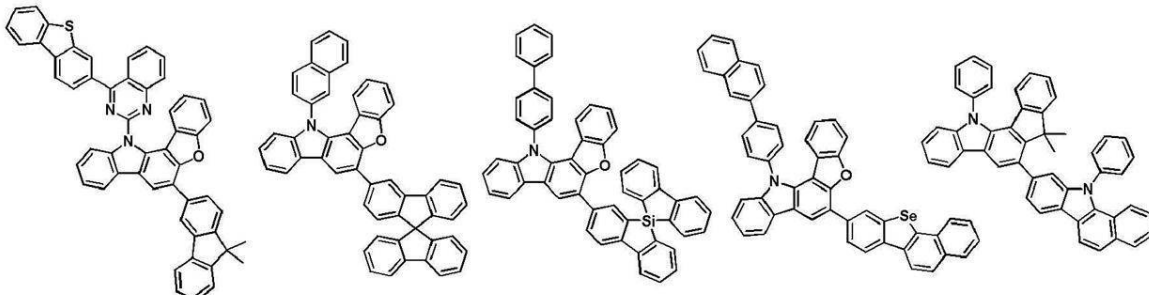
2-136

2-137

2-138

2-139

40



2-140

2-141

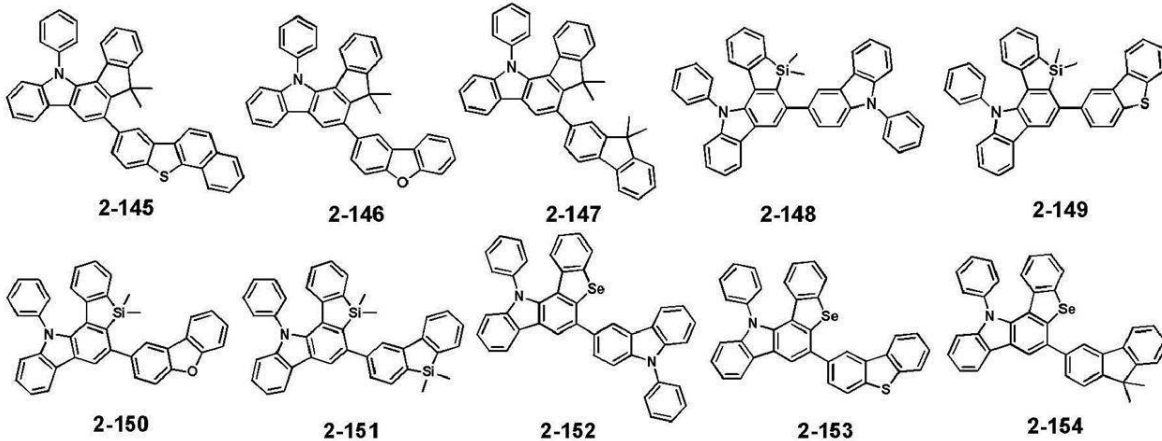
2-142

2-143

2-144

【 0 0 9 6 】

【化18】



10

【0097】

本発明の他の側面において、本発明は第1電極；第2電極；及び前記第1電極と第2電極との間に形成された有機物層；を含む有機電子素子を提供する。前記有機物層は正孔注入層、正孔輸送層、発光補助層、発光層、電子輸送補助層、電子輸送層及び電子注入層のうち、少なくとも1つであり、前記化合物はこのような有機物層のうちの少なくとも1つに、好ましくは、発光層に含まれ。有機物層に含まれる化合物は、前記式1ないし式9で表示される1種の単独の化合物または2種以上の混合物であることができる。また、前記第1電極と第2電極の一面のうちの前記有機物層と反対となる少なくとも一面には、発光効率改善層が更に形成されることができ、前記有機物層はスピンコーティング工程、ノズルプリンティング工程、インクジェットプリンティング工程、スロットコーティング工程、ディップコーティング工程又はロールツーロール工程によって形成することができる。

20

【0098】

本発明の他の側面において、本発明は有機電気素子を含むディスプレイ装置、及び前記ディスプレイ装置を駆動する制御部を含み、前記有機電気素子は有機電気発光素子、有機太陽電池、有機感光体、有機トランジスタ、及び単色又は白色照明用素子のうち、少なくとも1つであることができる。

30

【0099】

以下、本発明に係る式1と式2で表される化合物の合成例及び有機電気素子の製造例に対して実施例を挙げて具体的に説明するが、本発明が下記実施例に限定されるものではない。

【0100】

式1の合成例

【0101】

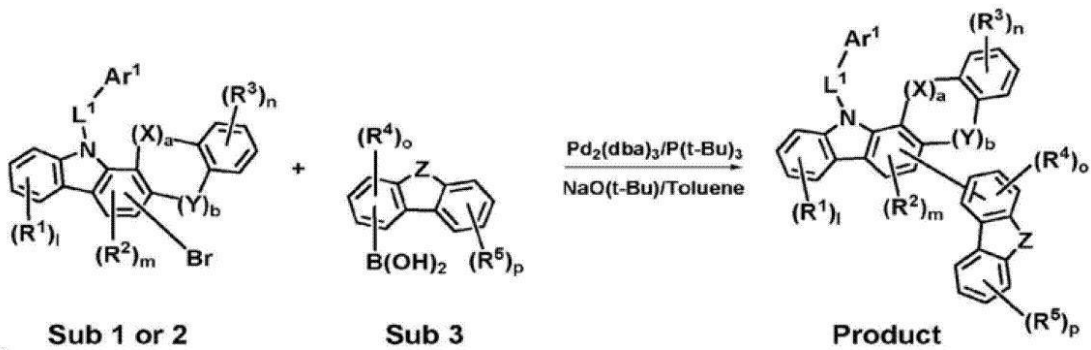
式1で表される化合物(product)は、下記反応式1のようにSub1またはSub2をSub3と反応させて製造される。

【0102】

40

【化19】

<反応式1>



10

【0103】

Sub1の合成例

【0104】

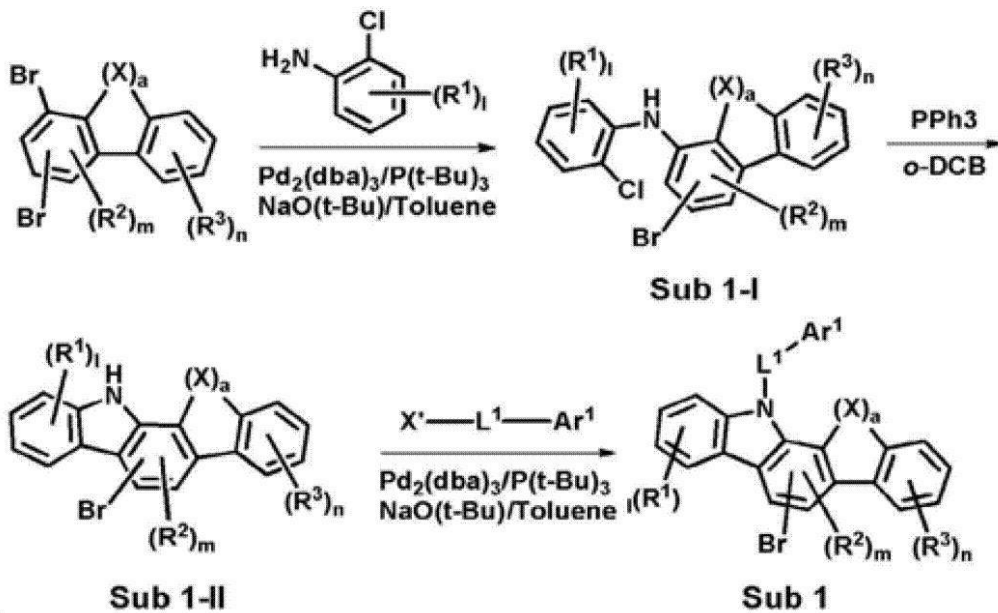
反応式1のSub1は、下記反応式2の反応経路により合成することができるが、これに限定されるものではない。

【0105】

【化20】

20

<反応式2> (X' = I, Br, Cl)



30

40

【0106】

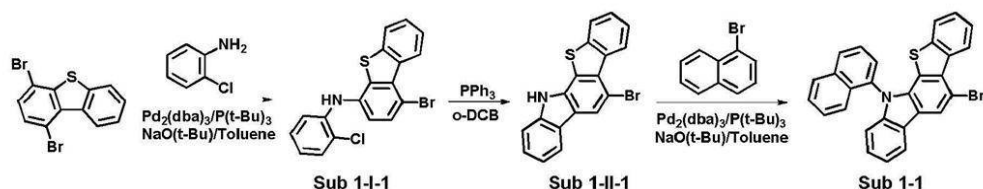
前記反応式2のSub1に属する化合物の合成例は、以下の通りである。

【0107】

1. Sub1-1の合成例 (a=1, b=0, X=S)

【0108】

【化21】



【0109】

Sub1-I-1の合成法

【0110】

丸底フラスコに2-Chloroaniline(67.2g、525mmol)、1,4-Dibromodibenzothiophene(150g、438mmol)、Pd₂(dba)₃(16.2g、17.4mmol)、P(t-Bu)₃(15g、43.8mmol)、NaO(t-Bu)(126g、1317mmol)、Toluene(1.5L)を入れる。その後、70 °Cの状態では4時間加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をMethylene chlorideとHexaneに再結晶して生成物Sub1-I-1(135g、79%)を得た。

【0111】

Sub1-II-1の合成法

【0112】

丸底フラスコにSub1-I-1(135g、348mmol)、PPh₃(228g、867mmol)、o-Dichlorobenzene(900mL)を入れる。その後、180 °Cで24時間加熱還流させる。反応が終結すると、常温で冷やした後、濃縮する。濃縮された化合物をsilicagel column及び再結晶して生成物Sub1-II-1(91.8g、75%)を得た。

【0113】

Sub1-1の合成法

【0114】

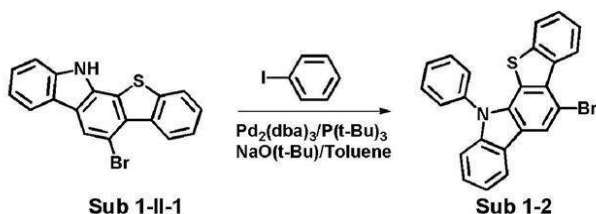
丸底フラスコにSub1-II-1(30.6g87mmol)、1-Bromonaphthalene(21.5g、104mmol)、Pd₂(dba)₃(3.2g、3.5mmol)、P(t-Bu)₃(1.8g、8.7mmol)、NaO(t-Bu)(25g、261mmol)、Toluene(300mL)を入れる。その後、110 °Cの状態では8時間加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をMethylene chlorideとHexaneに再結晶して生成物Sub1-1(31.6g、74%)を得た。

【0115】

2.Sub1-2の合成例(a=1、b=0、X=S)

【0116】

【化22】



【0117】

丸底フラスコにSub1-II-1(30g、84mmol)、Iodobenzene(20.7g、102mmol)、Pd₂(dba)₃(3g、3.3mmol)、P(t-Bu)₃(1.8g、8.4mmol)、NaO(t-Bu)(24.6g、255mmol)、Toluene(240mL)を入れた後、前記Sub1-1の合成方法を使用して生成物Sub1-2(28g、76%)を得た。

【0118】

3.Sub1-3の合成例(a=1、b=0、X=S)

【0119】

10

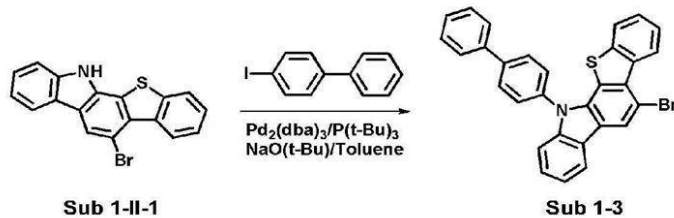
20

30

40

50

【化23】



【0120】

丸底フラスコにSub1-II-1(30.6g87mmol)、4-Iodo-1, 1'-biphenyl(29.2g、104mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ (3.2g、3.5mmol)、 $\text{P}(\text{t-Bu})_3$ (1.8g、8.7mmol)、 $\text{NaO}(\text{t-Bu})$ (25g、261mmol)、Toluene(300mL)を入れた後、前記Sub1-1の合成方法を使用して生成物Sub1-3(32g、74%)を得た。

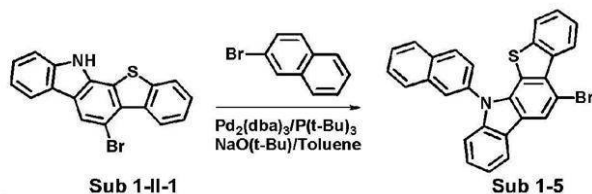
10

【0121】

Sub1-5の合成例(a=1、b=0、X=S)

【0122】

【化24】



20

【0123】

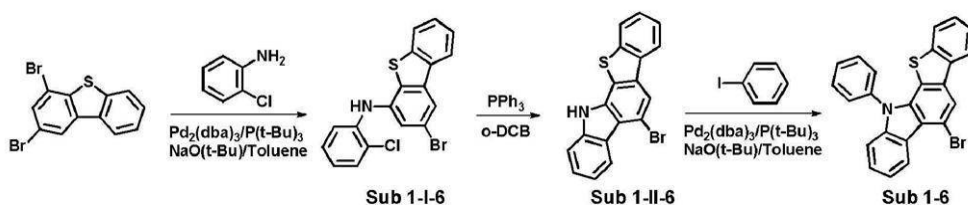
丸底フラスコにSub1-II-1(30.6g87mmol)、2-Bromonaphthalene(21.5g、104mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ (3.2g、3.5mmol)、 $\text{P}(\text{t-Bu})_3$ (1.8g、8.7mmol)、 $\text{NaO}(\text{t-Bu})$ (25g、261mmol)、Toluene(300mL)を入れた後、前記Sub1-I-1の合成方法を使用してSub1-5(29.1g、70%)を得た。

【0124】

Sub1-6の合成例(a=1、b=0、X=S)

【0125】

【化25】



30

【0126】

Sub1-I-6の合成法(a=1、b=0、X=S)

【0127】

丸底フラスコに2-Chloroaniline(22.4g、175mmol)、2, 4-Dibromodibenzothiophene(50g、146mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ (5.4g、5.8mmol)、 $\text{P}(\text{t-Bu})_3$ (5g、14.6mmol)、 $\text{NaO}(\text{t-Bu})$ (42g、439mmol)、Toluene(500mL)を入れた後、前記Sub1-I-1の合成方法を使用して生成物Sub1-I-6(46g、90%)を得た。

40

【0128】

Sub1-II-6の合成法

【0129】

丸底フラスコにSub1-I-6(45g、116mmol)、 PPh_3 (76g、289mmol)、o-Dichlorobenzene(300mL)を入れた後、前記Sub1-II-1の合成方法を使用して生成物Sub1-II-6(32.6g、80%)を得た。

50

【 0 1 3 0 】

Sub1-6の合成法

【 0 1 3 1 】

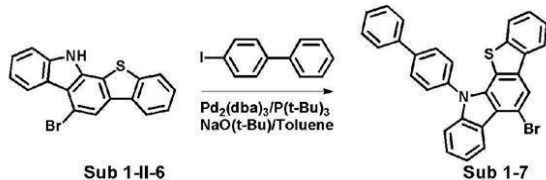
丸底フラスコにSub1-II-6(10g、28mmol)、Iodobenzene(6.9g、34mmol)、Pd₂(dba)₃(1g、1.1mmol)、P(t-Bu)₃(0.6g、2.8mmol)、NaO(t-Bu)(8.2g、85mmol)、Toluene(80mL)を入れた後、前記Sub1-1の合成方法を使用して生成物Sub1-6(10g、84%)を得た。

【 0 1 3 2 】

Sub1-7の合成例(a=1、b=0、X=S)

【 0 1 3 3 】

【 化 2 6 】



10

【 0 1 3 4 】

丸底フラスコにSub1-II-6(10g、28mmol)、4-Iodo-1, 1'-biphenyl(9.5g、34mmol)、Pd₂(dba)₃(1g、1.1mmol)、P(t-Bu)₃(0.6g、2.8mmol)、NaO(t-Bu)(8.2g、85mmol)、Toluene(80mL)を入れた後、前記Sub1-1の合成方法を使用して生成物Sub1-7(10g、71%)を得た。

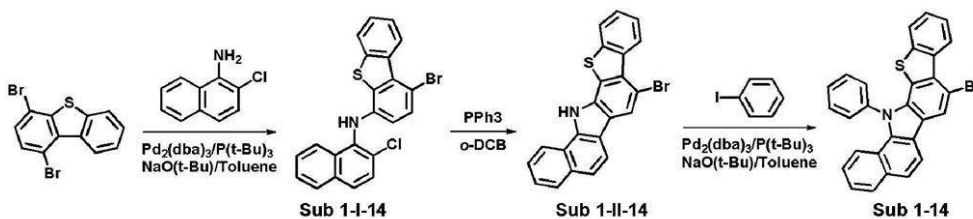
20

【 0 1 3 5 】

Sub1-14の合成例(a=1、b=0、X=S)

【 0 1 3 6 】

【 化 2 7 】



30

【 0 1 3 7 】

Sub1-I-14の合成法

【 0 1 3 8 】

丸底フラスコに2-Chloronaphthalen-1-amine(31g、175mmol)、2, 4-Dibromodibenzothienopyrene(50g、146mmol)、Pd₂(dba)₃(5.4g、5.8mmol)、P(t-Bu)₃(5g、14.6mmol)、NaO(t-Bu)(42g、439mmol)、Toluene(500mL)を入れた後、前記Sub1-I-1の合成方法を使用して生成物Sub1-I-14(48g、75%)を得た。

【 0 1 3 9 】

Sub1-II-14の合成法

【 0 1 4 0 】

丸底フラスコにSub1-I-14(30g、68mmol)、PPh₃(45g、171mmol)、o-Dichlorobenzene(150mL)を入れる。その後、180℃で24時間加熱還流させる。反応が終結すると、常温で冷やした後、濃縮する。濃縮された化合物をsilicagel column及び再結晶して生成物Sub1-II-14(25g、93%)を得た。

【 0 1 4 1 】

Sub1-14の合成

【 0 1 4 2 】

丸底フラスコにSub1-II-14(25g、62mmol)、Iodobenzene(15g、75mmol)、Pd₂(dba)₃(2.5g、2.5mmol)、P(t-Bu)₃(1.3g(6.2mmol)、NaO(t-Bu)(18g、186mmol)、Toluene(300mL)を入

50

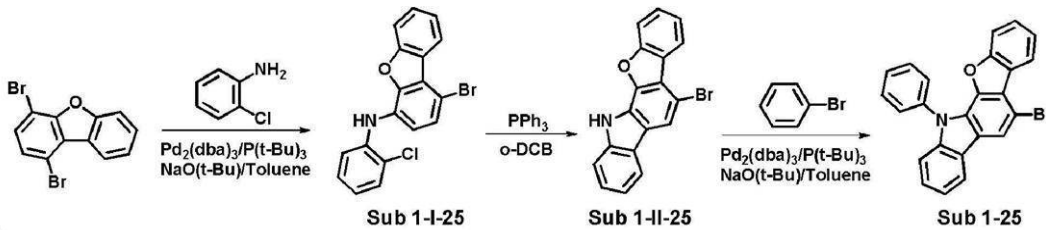
れる。その後、110 の状態で8時間加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をMethylene chlorideとHexaneに再結晶して生成物Sub1-14(20g、67%)を得た。

【0143】

Sub1-25の合成例(a=1、b=0、X=0)

【0144】

【化28】



10

【0145】

Sub1-I-25の合成法

【0146】

丸底フラスコに2-Chloronaphthalen-1-amine(23.45g、183.85mmol)、1,4-dibromodibenzo[b,d]furan(50g、153.4mmol)、Pd₂(dba)₃(5.58g、6.1mmol)、P(t-Bu)₃(3.1g、15.34mmol)、NaO(t-Bu)(44.32g、461.2mmol)、Toluene(340mL)を入れた後、前記Sub1-I-1の合成方法を使用して生成物Sub1-I-25(41.7g、73%)を得た。

20

【0147】

Sub1-II-25の合成法

【0148】

丸底フラスコにSub1-I-25(47g、126.1mmol)、PPh₃(82.7g、315.3mmol)、o-Dichlorobenzene(505mL)を入れた後、前記Sub1-II-1の合成方法を使用して生成物Sub1-II-25(35.62g、84%)を得た。

【0149】

Sub1-25の合成

【0150】

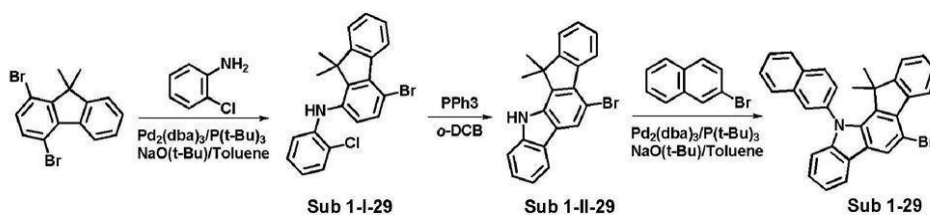
丸底フラスコにSub1-II-25(47g、126.13mmol)、Bromobenzene(19.59g、124.79mmol)、Pd₂(dba)₃(3.79g、4.14mmol)、P(t-Bu)₃(2.11g、10.4mmol)、NaO(t-Bu)(30.08g、313.045mmol)、Toluene(230mL)を入れた後、前記Sub1-1の合成方法を使用して生成物Sub1-25(34.77g、82%)を得た。

【0151】

Sub1-29の合成例

【0152】

【化29】



40

【0153】

Sub1-I-29の合成法

【0154】

丸底フラスコに2-Chloronaphthalen-1-amine(31g、175mmol)、1,4-dibromo-9,9-dimethyl-9H-fluorene(51g、146mmol)、Pd₂(dba)₃(5.4g、5.8mmol)、P(t-Bu)₃(5g、14.6mmol)

50

、NaO(t-Bu)(42g、439mmol)、Toluene(500mL)を入れた後、前記Sub1-I-1の合成方法を使用して生成物Sub1-I-29(36g、63%)を得た。

【0155】

Sub1-II-29の合成法

【0156】

丸底フラスコにSub1-I-29(27g、68mmol)、PPh₃(45g、171mmol)、o-Dichlorobenzene(150mL)を入れた後、前記Sub1-II-1の合成方法を使用して生成物Sub1-II-29(22g、92%)を得た。

【0157】

Sub1-29の合成

【0158】

丸底フラスコにSub1-II-29(22g、62mmol)、2-Bromonaphthalene(15g74mmo)、Pd₂(dba)₃(2.g、2.5mmol)、P(t-Bu)₃(1.3g(6.2mmol)、NaO(t-Bu)(18g、186mmol)、Toluene(300mL)を入れた後、前記Sub1-Iの合成方法を使用して生成物Sub1-29(20g、67%)を得た。

【0159】

S u b 1の例示

【0160】

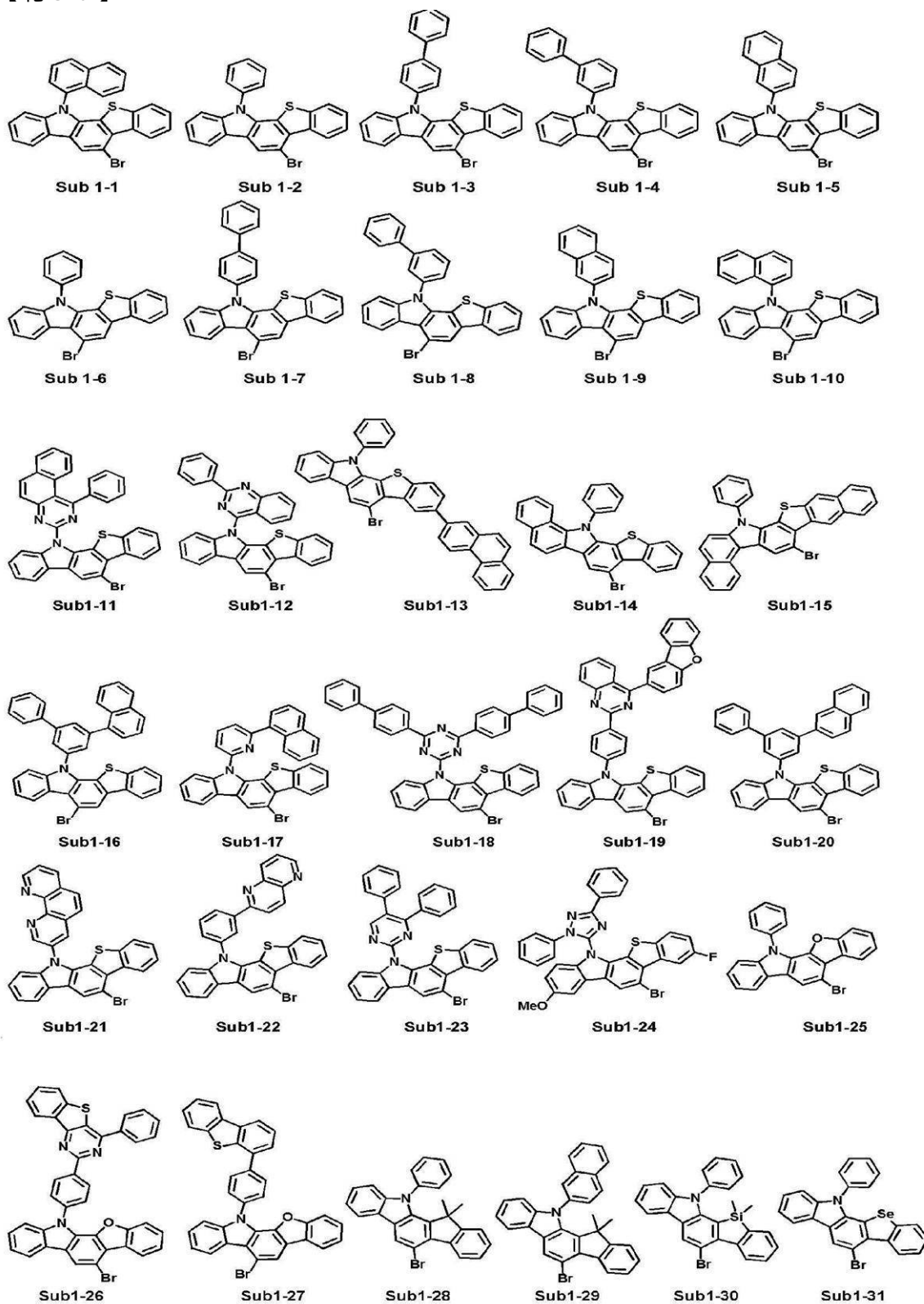
一方、Sub1に属する化合物は、下記のような化合物であることができるが、これに限定されるものではなく、表1は、Sub1に属する化合物のFD-MSの値を示したものである。

【0161】

10

20

【化 3 0】



10

20

30

40

【 0 1 6 2 】

【表1】

[表1]

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
Sub 1-1	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)	Sub 1-2	m/z=427.00 (C ₂₄ HBrNS=428.34)
Sub 1-3	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)	Sub 1-4	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)
Sub 1-5	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)	Sub 1-6	m/z=427.00 (C ₂₄ HBrNS=428.34)
Sub 1-7	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)	Sub 1-8	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)
Sub 1-9	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)	Sub 1-10	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)
Sub 1-11	m/z=605.06 (C ₃₆ H ₂₀ BrN ₃ S=606.53)	Sub 1-12	m/z=555.04 (C ₃₂ H ₁₈ BrN ₃ S=556.47)
Sub 1-13	m/z=603.07 (C ₃₈ H ₂₂ BrNS=604.56)	Sub 1-14	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)
Sub 1-15	m/z=527.03 (C ₃₂ H ₁₈ BrNS=528.46)	Sub 1-16	m/z=629.08 (C ₄₀ H ₂₄ BrNS=630.59)
Sub 1-17	m/z=554.05 (C ₃₃ H ₁₉ BrN ₂ S=555.49)	Sub 1-18	m/z=734.11 (C ₄₆ H ₂₇ BrN ₄ S=735.69)
Sub 1-19	m/z=721.08 (C ₄₄ H ₂₄ BrN ₃ OS=722.65)	Sub 1-20	m/z=629.08 (C ₄₀ H ₂₄ BrNS=630.59)
Sub 1-21	m/z=529.02 (C ₃₀ H ₁₆ BrN ₃ S=530.44)	Sub 1-22	m/z=555.04 (C ₃₂ H ₁₈ BrN ₃ S=556.47)
Sub 1-23	m/z=581.06 (C ₃₄ H ₂₀ BrN ₃ S=582.51)	Sub 1-24	m/z=600.06 (C ₃₃ H ₂₁ BrN ₄ OS=601.52)
Sub 1-25	m/z=411.03 (C ₂₄ H ₁₄ BrNO=412.28)	Sub 1-26	m/z=671.07 (C ₄₀ H ₂₂ BrN ₃ OS=672.59)
Sub 1-27	m/z=593.04 (C ₃₆ H ₂₀ BrNOS=594.52)	Sub 1-28	m/z=437.08 (C ₂₇ H ₂₀ BrN=438.36)
Sub 1-29	m/z=487.09 (C ₃₁ H ₂₂ BrN=488.42)	Sub 1-30	m/z=453.05 (C ₂₆ H ₂₀ BrNSi=454.43)
Sub 1-31	m/z=474.95 (C ₂₄ H ₁₄ BrNSe=475.24)		

10

20

【0163】

2. Sub2の合成例

【0164】

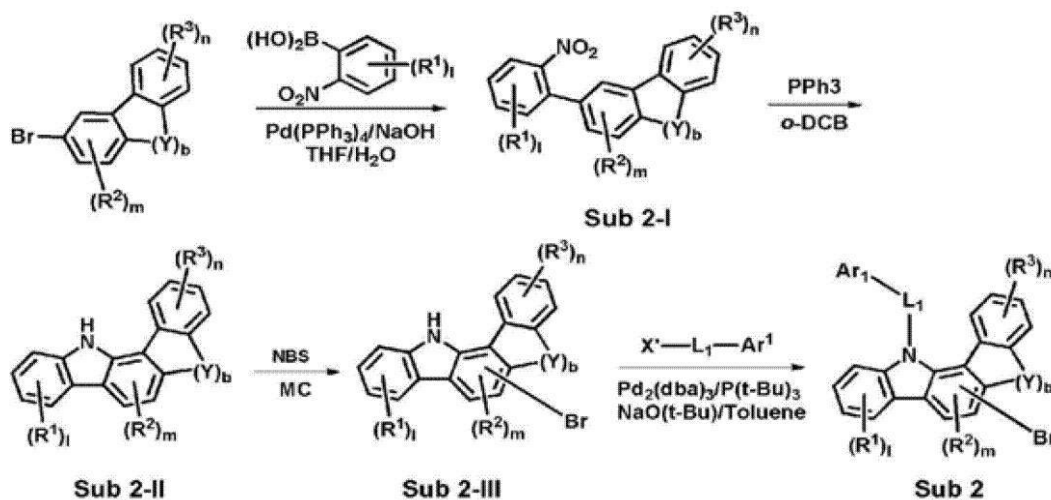
反応式1のSub2は、下記反応式3の反応経路により合成することができるが、これに限定されるものではない。

30

【0165】

【化31】

<反応式3> (X' = I, Br, Cl)



40

【0166】

前記反応式3のSub2に属する化合物の合成例は、以下の通りである。

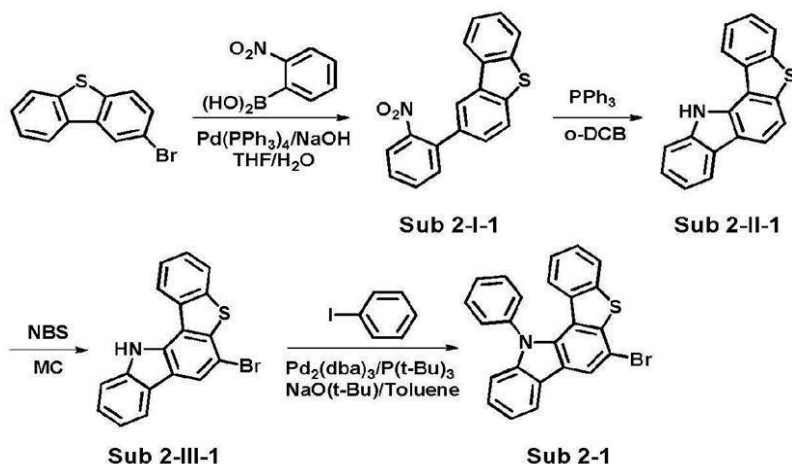
50

【 0 1 6 7 】

Sub2-1の合成例 (a=0、b=1、Y=S)

【 0 1 6 8 】

【 化 3 2 】



10

【 0 1 6 9 】

Sub2-I-1の合成法

【 0 1 7 0 】

丸底フラスコに2-Bromodibenzothiophene(100g、380mmol)、2-Nitrophenylboronic acid (76g、456mmol)、Pd(PPh₃)₄(18g、15mmol)、NaOH(46g、1140mmol)、THF(1.2L)/H₂O(0.6L)を入れる。その後、70 °Cの状態ですら4時間加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をMethylene chlorideとHexaneに再結晶して生成物Sub2-I-1(99g、85%)を得た。

【 0 1 7 1 】

Sub2-II-1の合成法

【 0 1 7 2 】

丸底フラスコにSub2-I-1(99g、323mmol)、PPh₃(218g、808mmol)、o-Dichlorobenzene(100g、700mmol)を入れる。その後、180 °Cで24時間加熱還流させる。反応が終結すると、常温で冷やした後、濃縮する。濃縮された化合物をsilicagel column及び再結晶して生成物Sub2-II-1(70g、80%)を得た。

30

【 0 1 7 3 】

Sub2-III-1の合成法

【 0 1 7 4 】

丸底フラスコにSub2-II-1(70g、293mmol)、N-Bromosuccinimide(52g、293mmol)、Methylene chloride(1L)を入れる。その後、常温で4時間攪拌する。反応が完了すると、蒸留水を入れた後、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をMethylene chlorideとHexaneに再結晶して生成物Sub2-III-1(86g、83%)を得た。

40

【 0 1 7 5 】

Sub2-1の合成法

【 0 1 7 6 】

丸底フラスコにSub2-III-1(30g、84mmol)、Iodobenzene(20.7g、102mmol)、Pd₂(dba)₃(3g、3.3mmol)、P(t-Bu)₃(1.8g、8.4mmol)、NaO(t-Bu)(24.6g、255mmol)、Toluene(240mL)を入れる。その後、110 °Cの状態ですら8時間加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をMethylene chlorideとHexaneに再結晶して生成物Sub2-1(28g、76%)を得た。

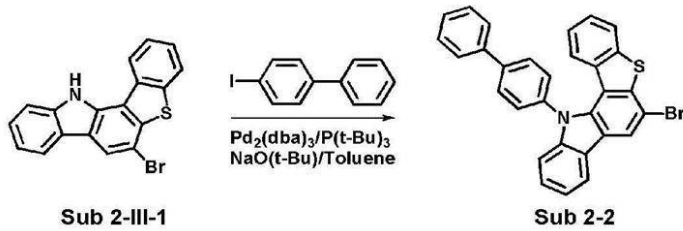
50

【 0 1 7 7 】

Sub2-2の合成例 (a=0、b=1、Y=S)

【 0 1 7 8 】

【 化 3 3 】



10

【 0 1 7 9 】

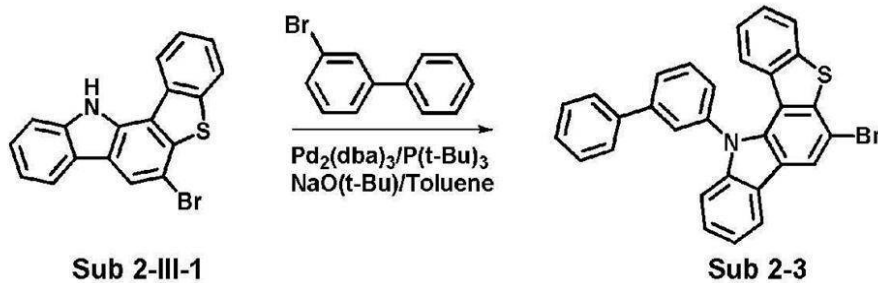
丸底フラスコにSub2-III-1(30g、84mmol)、4-Iodo-1, 1'-biphenyl(28.6g、102mmol)、Pd₂(dba)₃(3g、3.3mmol)、P(t-Bu)₃(1.8g、8.4mmol)、NaO(t-Bu)(24.6g、255mmol)、Toluene(240mL)を入れた後、前記Sub2-1の合成方法を使用して生成物Sub2-2(32g、76%)を得た。

【 0 1 8 0 】

Sub2-3の合成例 (a=0、b=1、Y=S)

【 0 1 8 1 】

【 化 3 4 】



20

【 0 1 8 2 】

丸底フラスコにSub2-III-1(30g、84mmol)、3-Bromo-1, 1'-biphenyl(23.8g、102mmol)、Pd₂(dba)₃(3g、3.3mmol)、P(t-Bu)₃(1.8g、8.4mmol)、NaO(t-Bu)(24.6g、255mmol)、Toluene(240mL)を入れた後、前記Sub2-1の合成方法を使用して生成物Sub2-3(34g、80%)を得た。

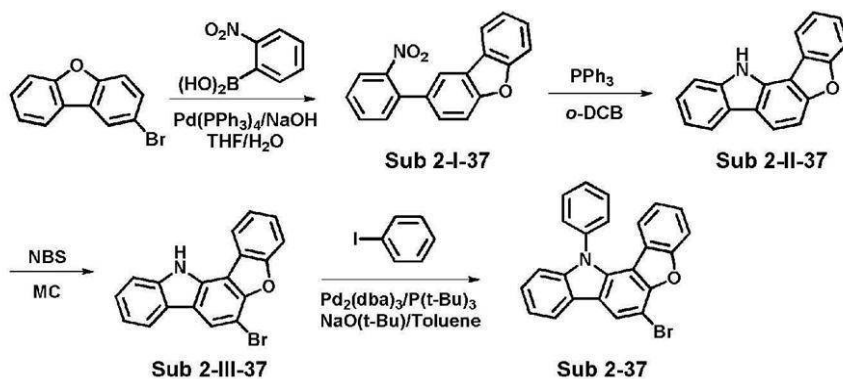
30

【 0 1 8 3 】

Sub2-37の合成例 (a=0、b=1、Y=O)

【 0 1 8 4 】

【 化 3 5 】



40

【 0 1 8 5 】

50

Sub2-I-37の合成法

【 0 1 8 6 】

丸底フラスコに2-Bromodibenzofuran(50g、202mmol)、2-Nitrophenyl boronic acid(40.5g、242mmol)、Pd(PPh₃)₄(9.3g、8mmol)、NaOH(24g、606mmol)、THF(600mL)/H₂O(300mL)を入れた後、前記Sub2-I-1の合成方法を使用して生成物Sub2-I-37(43g、74%)を得た。

【 0 1 8 7 】

Sub2-II-37の合成法

【 0 1 8 8 】

丸底フラスコにSub2-I-37(43g、110mmol)、PPh₃(72g、276mmol)、o-Dichlorobenzene(350mL)を入れた後、前記Sub2-II-1の合成方法を使用して生成物Sub2-II-37(23g、82%)を得た。

10

【 0 1 8 9 】

Sub2-III-37の合成法

【 0 1 9 0 】

丸底フラスコにSub2-II-37(23g、89mmol)、N-Bromosuccinimide(16g、89mmol)、Methylene chloride(300mL)を入れた後、前記Sub2-III-1の合成方法を使用して生成物Sub2-III-37(21g、70%)を得た。

【 0 1 9 1 】

Sub2-37の合成法

【 0 1 9 2 】

丸底フラスコにSub2-III-37(21g、62mmol)、Iodobenzene(15.3g、75mmol)、Pd₂(dba)₃(2.3g、2.5mmol)、P(t-Bu)₃(1.3g、6.2mmol)、NaO(t-Bu)(18g、187mmol)、Toluene(200mL)を入れた後、前記Sub2-I-1の合成方法を使用して生成物Sub2-37(16g、63%)を得た。

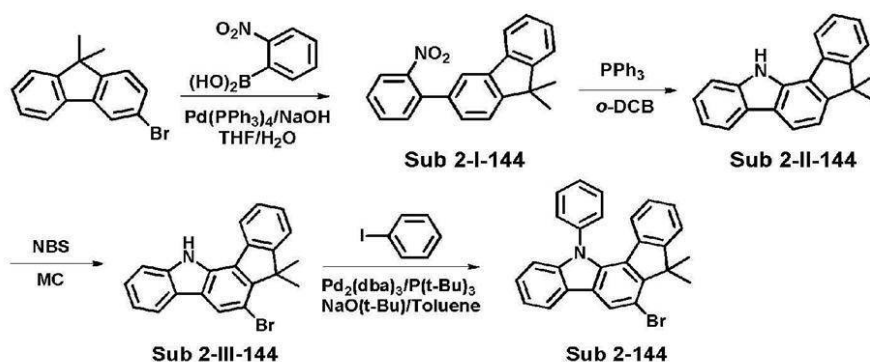
20

【 0 1 9 3 】

Sub2-144の合成例(a=0、b=1、Y=C)

【 0 1 9 4 】

【 化 3 6 】



30

【 0 1 9 5 】

Sub2-I-144の合成法

40

【 0 1 9 6 】

丸底フラスコに3-bromo-9,9-dimethyl-9H-fluorene(50g、183.04mmol)、2-Nitrophenyl boronic acid(36.6g、219.28mmol)、Pd(PPh₃)₄(8.4g、7.25mmol)、NaOH(22g、549.11mmol)、THF(805mL)/H₂O(402mL)を入れた後、前記Sub2-I-1の合成方法を使用して生成物Sub2-I-144(47.72g、69%)を得た。

【 0 1 9 7 】

Sub2-II-144の合成法

【 0 1 9 8 】

丸底フラスコにSub2-I-144(47g、149mmol)、PPh₃(97.7g、372.48mmol)、o-Dichlorobenzene(596mL)を入れた後、前記Sub2-II-1の合成方法を使用して生成物Sub2-II-144(30.41g

50

、72%)を得た。

【 0 1 9 9 】

Sub2-III-144の合成法

【 0 2 0 0 】

丸底フラスコにSub2-II-144(30g、89mmol)、N-Bromosuccinimide(18.8g、105.9mmol)、Methylene chloride(318mL)を入れた後、前記Sub2-III-1の合成方法を使用して生成物Sub2-III-144(18.24g、53%)を得た。

【 0 2 0 1 】

Sub2-144の合成法

【 0 2 0 2 】

丸底フラスコにSub2-III-144(18g、49.7mmol)、Iodobenzene(12.26g、60.1mmol)、Pd₂(dba)₃(1.83g、2mmol)、P(t-Bu)₃(1.01g、4.97mmol)、NaO(t-Bu)(14.4g、149.9mmol)、Toluene(109mL)を入れた後、前記Sub2-1の合成方法を使用して生成物Sub2-144(15.03g、69%)を得た。

【 0 2 0 3 】

S u b 2 の例示

【 0 2 0 4 】

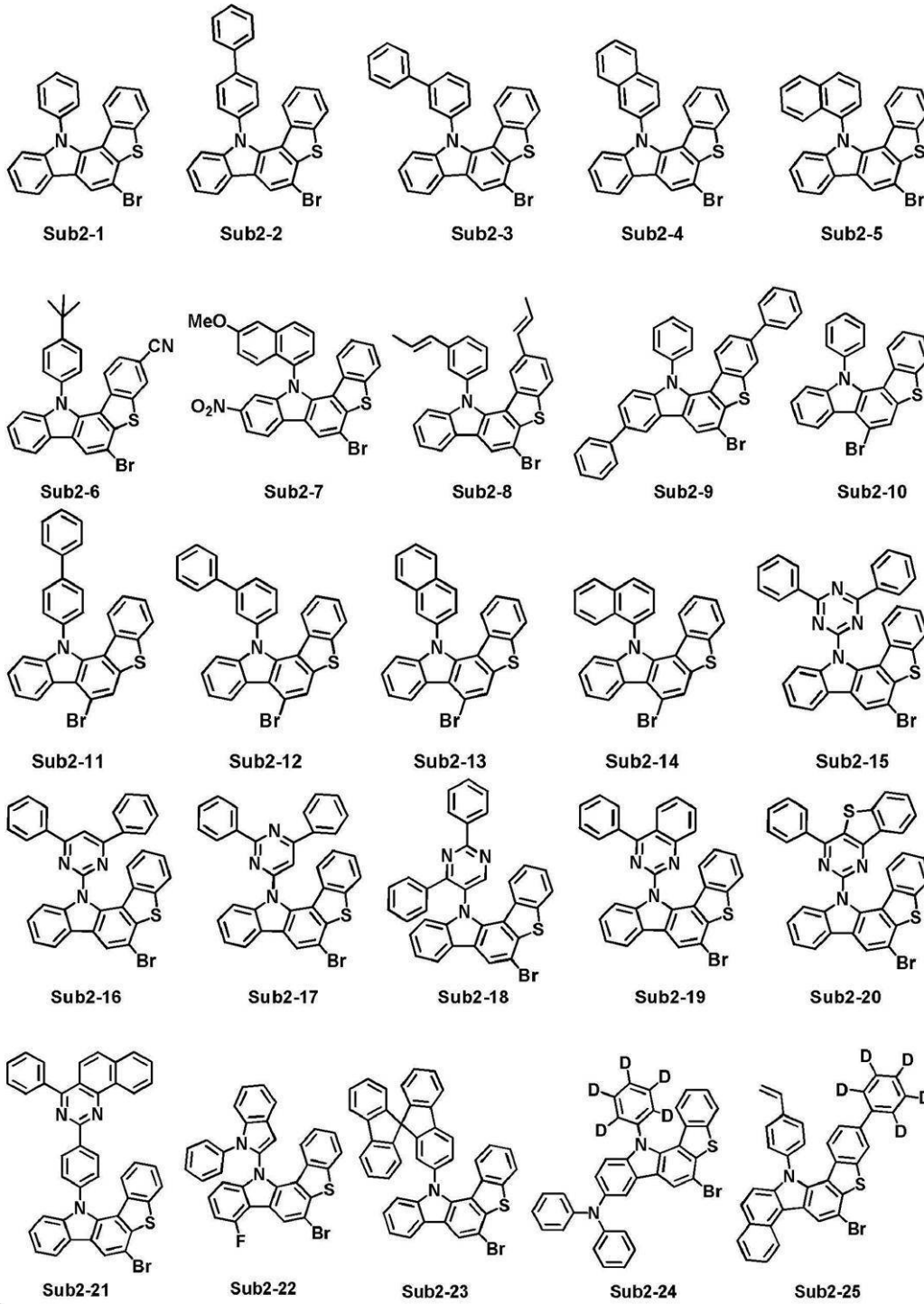
一方、Sub2に属する化合物は、下記のような化合物であることができるが、これに限定されるものではなく、表2は、Sub2に属する化合物のFD-MSの値を示したものである。

【 0 2 0 5 】

10

20

【化 3 7】



10

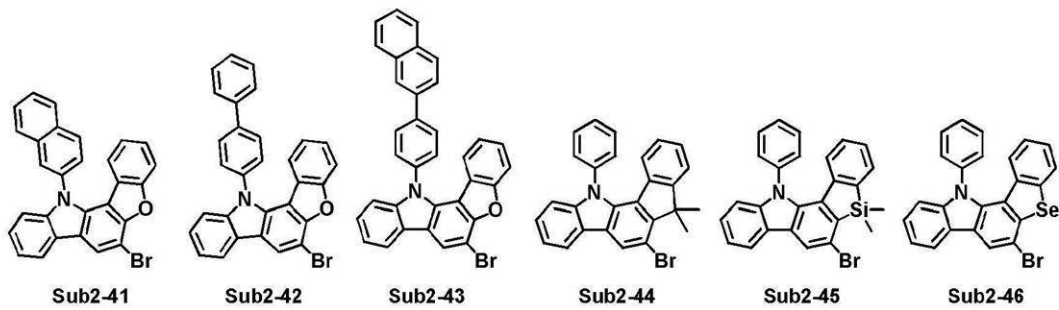
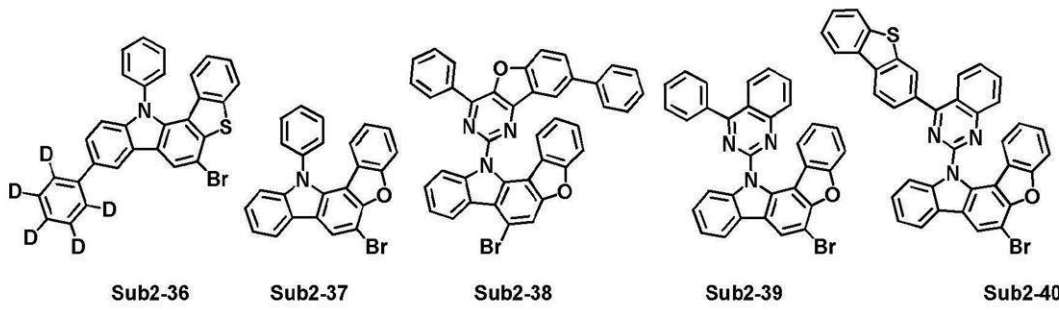
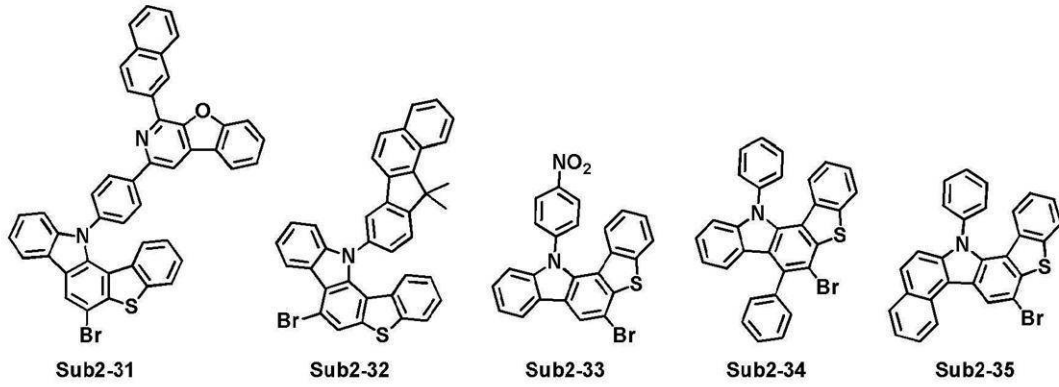
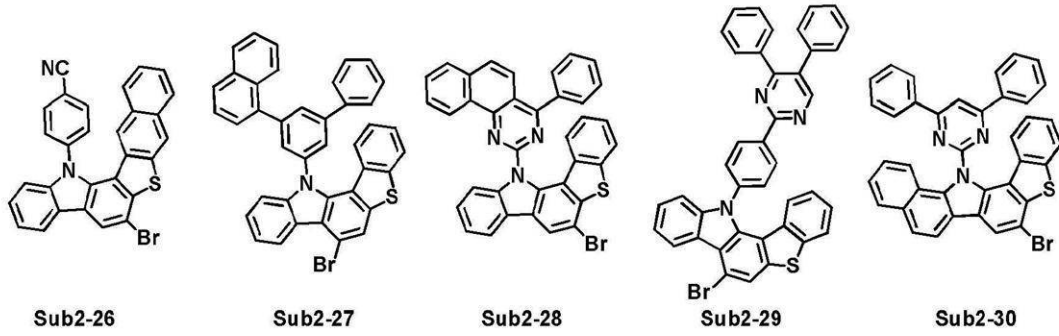
20

30

【 0 2 0 6】

40

【化 3 8】



【 0 2 0 7 】

10

20

30

40

【表2】

[表2]

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
Sub 2-1	m/z=427.00 (C ₂₄ HBrNS=428.34)	Sub 2-2	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)
Sub 2-3	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)	Sub 2-4	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)
Sub 2-5	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)	Sub 2-6	m/z=483.07 (C ₂₈ H ₂₂ BrNS=484.45)
Sub 2-7	m/z=507.03 (C ₂₉ H ₁₈ BrNOS=508.43)	Sub 2-8	m/z=467.03 (C ₂₇ H ₁₈ BrNS=468.41)
Sub 2-9	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)	Sub 2-10	m/z=427.00 (C ₂₄ HBrNS=428.34)
Sub 2-11	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)	Sub 2-12	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)
Sub 2-13	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)	Sub 2-14	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)
Sub 2-15	m/z=582.05 (C ₃₃ H ₁₉ BrN ₄ S=583.50)	Sub 2-16	m/z=581.06 (C ₃₄ H ₂₀ BrN ₃ S=582.51)
Sub 2-17	m/z=581.06 (C ₃₄ H ₂₀ BrN ₃ S=582.51)	Sub 2-18	m/z=581.06 (C ₃₄ H ₂₀ BrN ₃ S=582.51)
Sub 2-19	m/z=555.04 (C ₃₂ H ₁₈ BrN ₅ S=556.47)	Sub 2-20	m/z=611.01 (C ₃₄ H ₁₈ BrN ₅ S ₂ =612.56)
Sub 2-21	m/z=681.09 (C ₄₂ H ₂₄ BrN ₅ S=682.63)	Sub 2-22	m/z=542.05 (C ₃₂ H ₁₉ BrN ₂ S=543.48)
Sub 2-23	m/z=665.08 (C ₄₃ H ₂₄ BrNS=666.63)	Sub 2-24	m/z=599.11 (C ₃₆ H ₁₈ D ₅ BrN ₂ S=600.58)
Sub 2-25	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)	Sub 2-26	m/z=502.01 (C ₂₉ H ₁₅ BrN ₂ S=503.41)
Sub 2-27	m/z=629.08 (C ₄₀ H ₂₄ BrNS=630.59)	Sub 2-28	m/z=605.06 (C ₃₆ H ₂₀ BrN ₃ S=606.53)
Sub 2-29	m/z=657.09 (C ₄₀ H ₂₄ BrN ₃ S=658.61)	Sub 2-30	m/z=631.07 (C ₃₈ H ₂₂ BrN ₃ S=632.57)
Sub 2-31	m/z=720.09 (C ₄₅ H ₂₅ BrN ₂ O ₂ S=721.66)	Sub 2-32	m/z=593.08 (C ₃₇ H ₂₄ BrNS=594.56)
Sub 2-33	m/z=471.99 (C ₂₄ H ₁₃ BrN ₂ O ₂ S=473.34)	Sub 2-34	m/z=503.03 (C ₃₀ H ₁₈ BrNS=504.44)
Sub 2-35	m/z=477.02 (C ₂₈ H ₁₆ BrNS=478.40)	Sub 2-36	m/z=508.07 (C ₃₀ H ₁₃ D ₅ BrNS=509.47)
Sub 2-37	m/z=411.03 (C ₂₄ H ₁₄ BrNO=412.28)	Sub 2-38	m/z=655.09 (C ₄₀ H ₂₂ BrN ₃ O ₂ =656.53)
Sub 2-39	m/z=539.06 (C ₃₂ H ₁₈ BrN ₃ O=540.41)	Sub 2-40	m/z=645.05 (C ₃₈ H ₂₀ BrN ₃ O ₂ S=646.55)
Sub 2-41	m/z=461.04 (C ₂₈ H ₁₆ BrNO=462.34)	Sub 2-42	m/z=487.06 (C ₃₀ H ₁₈ BrNO=488.37)
Sub 2-43	m/z=537.07 (C ₃₄ H ₂₀ BrNO=538.43)	Sub 2-44	m/z=437.08 (C ₂₇ H ₂₀ BrN=438.36)
Sub 2-45	m/z=453.05 (C ₂₀ H ₂₀ BrNSi=453.43)	Sub 2-46	m/z=474.95 (C ₂₄ H ₁₄ BrNSi=478.24)

10

20

30

【0208】

Sub3の例示

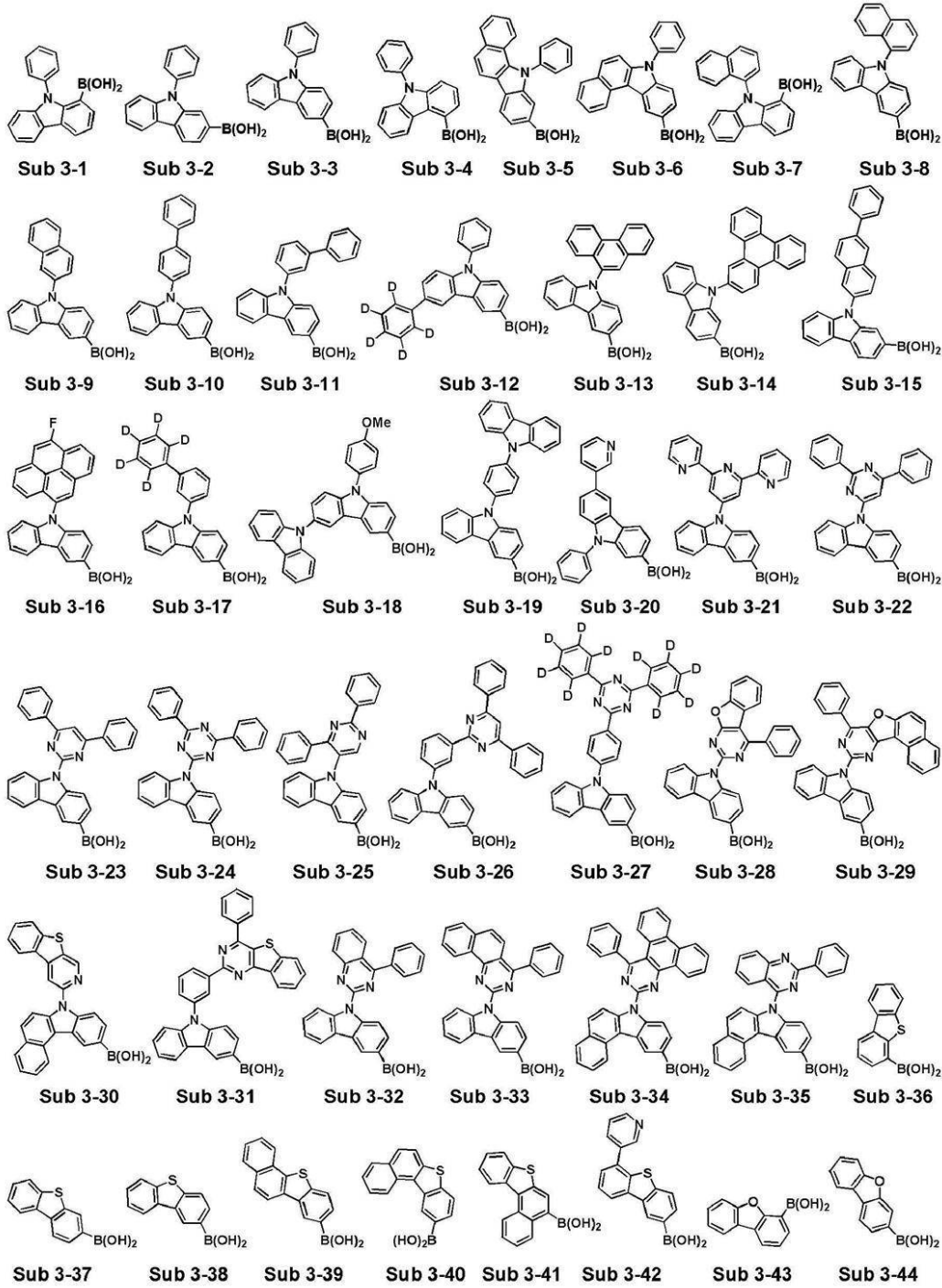
【0209】

一方、Sub3に属する化合物は、下記のような化合物であることができるが、これに限定されるものではなく、表3は、Sub3に属する化合物のFD-MSの値を示したものである。

40

【0210】

【化 3 9】



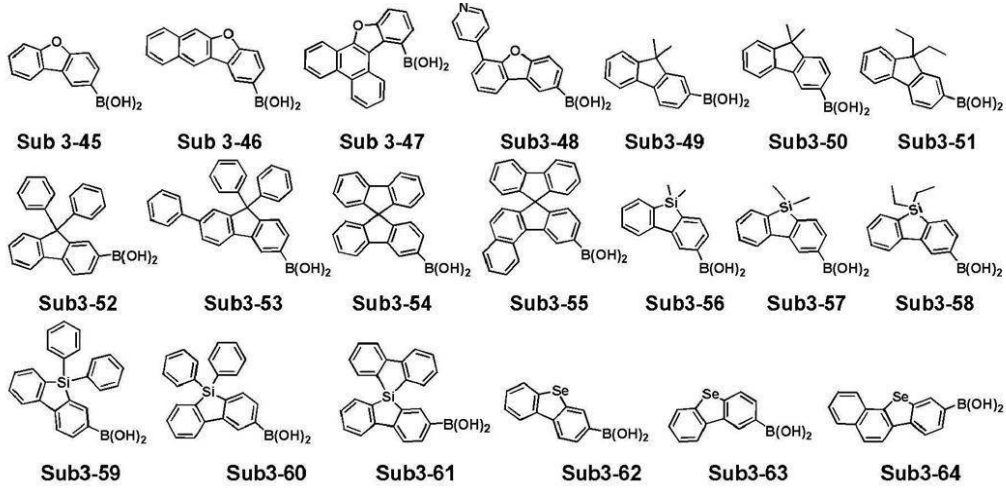
10

20

30

【 0 2 1 1】

【化40】



【0212】

【表3】

[表3]

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
Sub 3-1	m/z=287. 11 (C ₁₈ H ₁₄ BN ₂ O ₂ =287. 12)	Sub 3-2	m/z=287. 11 (C ₁₈ H ₁₄ BN ₂ O ₂ =287. 12)
Sub 3-3	m/z=287. 11 (C ₁₈ H ₁₄ BN ₂ O ₂ =287. 12)	Sub 3-4	m/z=287. 11 (C ₁₈ H ₁₄ BN ₂ O ₂ =287. 12)
Sub 3-5	m/z=337. 13 (C ₂₂ H ₁₆ BN ₂ O ₂ =337. 18)	Sub 3-6	m/z=337. 13 (C ₂₂ H ₁₆ BN ₂ O ₂ =337. 18)
Sub 3-7	m/z=337. 13 (C ₂₂ H ₁₆ BN ₂ O ₂ =337. 18)	Sub 3-8	m/z=337. 13 (C ₂₂ H ₁₆ BN ₂ O ₂ =337. 18)
Sub 3-9	m/z=337. 13 (C ₂₂ H ₁₆ BN ₂ O ₂ =337. 18)	Sub 3-10	m/z=363. 14 (C ₂₄ H ₁₈ BN ₂ O ₂ =363. 22)
Sub 3-11	m/z=363. 14 (C ₂₄ H ₁₈ BN ₂ O ₂ =363. 22)	Sub 3-12	m/z=368. 17 (C ₂₄ H ₁₃ D ₅ BN ₂ O ₂ =368. 25)
Sub 3-13	m/z=387. 14 (C ₂₆ H ₁₈ BN ₂ O ₂ =387. 24)	Sub 3-14	m/z=437. 16 (C ₃₀ H ₂₀ BN ₂ O ₂ =437. 30)
Sub 3-15	m/z=413. 16 (C ₂₈ H ₂₀ BN ₂ O ₂ =413. 27)	Sub 3-16	m/z=429. 13 (C ₂₈ H ₁₇ BFN ₂ O ₂ =429. 25)
Sub 3-17	m/z=368. 17 (C ₂₄ H ₁₃ D ₅ BN ₂ O ₂ =368. 25)	Sub 3-18	m/z=482. 18 (C ₃₁ H ₂₃ BN ₃ O ₃ =482. 34)
Sub 3-19	m/z=452. 17 (C ₃₀ H ₂₁ BN ₂ O ₂ =452. 31)	Sub 3-20	m/z=364. 14 (C ₂₃ H ₁₇ BN ₂ O ₂ =364. 20)
Sub 3-21	m/z=442. 16 (C ₂₇ H ₁₉ BN ₄ O ₂ =442. 28)	Sub 3-22	m/z=441. 16 (C ₂₈ H ₂₀ BN ₃ O ₂ =441. 29)
Sub 3-23	m/z=441. 26 (C ₂₈ H ₂₀ BN ₃ O ₂ =441. 29)	Sub 3-24	m/z=442. 16 (C ₂₇ H ₁₉ BN ₄ O ₂ =442. 28)
Sub 3-25	m/z=441. 16 (C ₂₈ H ₂₀ BN ₃ O ₂ =441. 29)	Sub 3-26	m/z=517. 20 (C ₃₄ H ₂₄ BN ₃ O ₂ =517. 38)
Sub 3-27	m/z=528. 25 (C ₃₃ H ₁₃ D ₁₀ BN ₄ O ₂ =528. 43)	Sub 3-28	m/z=455. 14 (C ₂₈ H ₁₈ BN ₃ O ₃ =455. 27)
Sub 3-29	m/z=505. 16 (C ₃₂ H ₂₀ BN ₃ O ₃ =505. 33)	Sub 3-30	m/z=444. 11 (C ₂₇ H ₁₇ BN ₃ O ₂ S=444. 31)
Sub 3-31	m/z=547. 15 (C ₃₄ H ₂₂ BN ₃ O ₂ S=547. 43)	Sub 3-32	m/z=415. 15 (C ₂₆ H ₁₈ BN ₃ O ₂ =415. 25)
Sub 3-33	m/z=465. 16 (C ₃₀ H ₂₀ BN ₃ O ₂ =465. 31)	Sub 3-34	m/z=565. 20 (C ₃₈ H ₂₄ BN ₃ O ₂ =565. 43)
Sub 3-35	m/z=465. 16 (C ₃₀ H ₂₀ BN ₃ O ₂ =465. 31)	Sub 3-36	m/z=228. 04 (C ₁₂ H ₉ BO ₂ S=228. 07)
Sub 3-37	m/z=228. 04 (C ₁₂ H ₉ BO ₂ S=228. 07)	Sub 3-38	m/z=228. 04 (C ₁₂ H ₉ BO ₂ S=228. 07)
Sub 3-39	m/z=278. 06 (C ₁₆ H ₁₁ BN ₂ S=278. 13)	Sub 3-40	m/z=278. 06 (C ₁₆ H ₁₁ BO ₂ S=278. 13)
Sub 3-41	m/z=278. 06 (C ₁₆ H ₁₁ BO ₂ S=278. 13)	Sub 3-42	m/z=305. 07 (C ₁₇ H ₁₂ BN ₂ O ₂ S=305. 16)
Sub 3-43	m/z=212. 06 (C ₁₂ H ₉ BO ₃ =212. 01)	Sub 3-44	m/z=212. 06 (C ₁₂ H ₉ BO ₃ =212. 01)
Sub 3-45	m/z=212. 06 (C ₁₂ H ₉ BO ₃ =212. 01)	Sub 3-46	m/z=262. 08 (C ₁₆ H ₁₁ BO ₃ =262. 07)
Sub 3-47	m/z=312. 10 (C ₂₀ H ₁₃ BO ₃ =312. 13)	Sub 3-48	m/z=289. 09 (C ₁₇ H ₁₂ BN ₃ O ₃ =289. 09)
Sub 3-49	m/z=238. 12 (C ₁₅ H ₁₅ BO ₂ =238. 09)	Sub 3-50	m/z=238. 12 (C ₁₅ H ₁₅ BO ₂ =238. 09)
Sub 3-51	m/z=266. 15 (C ₁₇ H ₁₉ BO ₂ =266. 14)	Sub 3-52	m/z=362. 15 (C ₂₅ H ₁₉ BO ₂ =362. 23)
Sub 3-53	m/z=438. 18 (C ₃₁ H ₂₃ BO ₂ =438. 32)	Sub 3-54	m/z=360. 13 (C ₂₄ H ₁₇ BO ₂ =360. 21)
Sub 3-55	m/z=410. 15 (C ₂₉ H ₁₉ BO ₂ =410. 27)	Sub 3-56	m/z=254. 09 (C ₁₄ H ₁₅ BO ₂ Si=254. 16)
Sub 3-57	m/z=254. 09 (C ₁₄ H ₁₅ BO ₂ Si=254. 16)	Sub 3-58	m/z=282. 12 (C ₁₆ H ₁₉ BO ₂ Si=282. 22)
Sub 3-59	m/z=378. 12 (C ₂₄ H ₁₉ BO ₂ Si=378. 30)	Sub 3-60	m/z=378. 12 (C ₂₄ H ₁₉ BO ₂ Si=378. 30)
Sub 3-61	m/z=376. 11 (C ₂₄ H ₁₇ BO ₂ Si=376. 29)	Sub 3-62	m/z=275. 99 (C ₁₂ H ₉ BO ₂ Se=274. 97)
Sub 3-63	m/z=275. 99 (C ₁₂ H ₉ BO ₂ Se=274. 97)	Sub 3-64	m/z=326. 00 (C ₁₆ H ₁₁ BO ₂ Se=325. 03)

10

20

30

40

【0213】

式1(Product)の合成法

【0214】

丸底フラスコにSub1またはSub2の化合物(1当量)を入れて、Sub3の化合物(1当量)、Pd(PPh₃)₄(0.03 - 0.05当量)、NaOH(3当量)、THF(3mL/1mmol)、水(1.5mL/1mmol)を入れる。そ

50

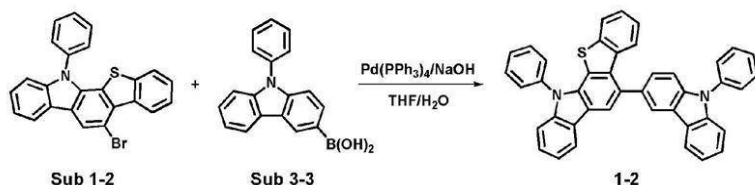
の後、80 °C の状態で加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をTolueneとAcetoneに再結晶して生成物を得た。

【0215】

化合物1-2の合成

【0216】

【化41】



10

【0217】

丸底フラスコにSub1-2(5g、11.5mmol)、Sub3-3(3.9g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れる。その後、80 °C の状態で8時間加熱還流させる。反応が完了すると、常温で蒸留水を入れて希釈させ、Methylene chlorideと水で抽出する。有機層をMgSO₄で乾燥して濃縮した後、生成された化合物をTolueneとAcetoneに再結晶して生成物1-2(5.4g、80%)を得た。

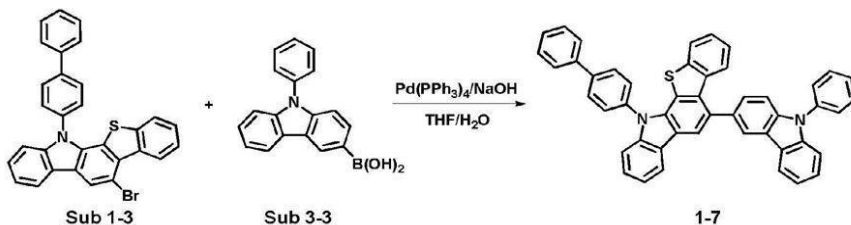
【0218】

20

化合物1-7の合成

【0219】

【化42】



30

【0220】

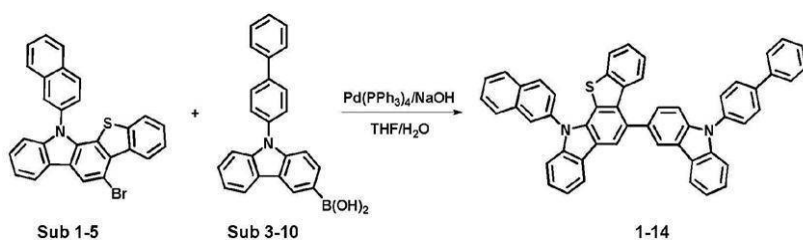
Sub1-3(10g、20mmol)、Sub3-3(5.7g、20mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.9g、0.8mmol)、NaOH(2.4g、59mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-7(11.3g、85%)を得た。

【0221】

化合物1-14の合成

【0222】

【化43】



40

【0223】

Sub1-5(10g、21mmol)、Sub3-10(7.6g、21mmol)、Pd(PPh₃)₄(1g、0.8mmol)、NaOH(2.5g、63mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-14(12.3g、82%)を得た。

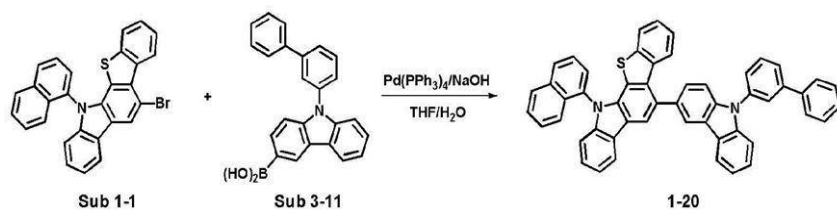
【0224】

50

化合物1-20の合成

【 0 2 2 5 】

【 化 4 4 】



【 0 2 2 6 】

10

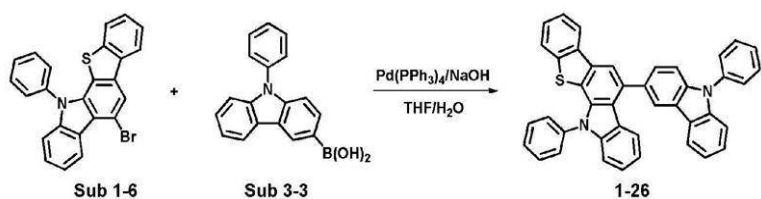
Sub1-1(10g、21mmol)、Sub3-11(7.6g、21mmol)、Pd(PPh₃)₄(1g、0.8mmol)、NaOH(2.5g、63mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-20(12.5g、83%)を得た。

【 0 2 2 7 】

化合物1-26の合成

【 0 2 2 8 】

【 化 4 5 】



20

【 0 2 2 9 】

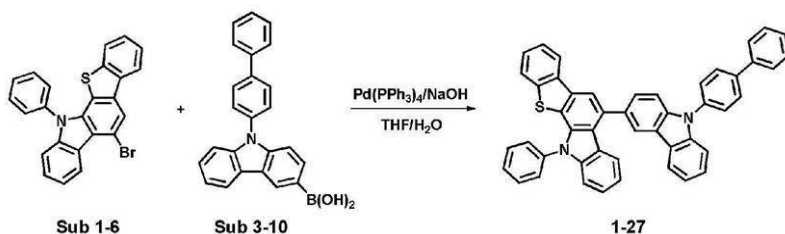
Sub1-6(5g、11.5mmol)、Sub3-3(3.9g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-26(4.9g、72%)を得た。

【 0 2 3 0 】

化合物1-27の合成

【 0 2 3 1 】

【 化 4 6 】



30

【 0 2 3 2 】

Sub1-6(5g、11.5mmol)、Sub3-10(4.2g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-27(6.5g、85%)を得た。

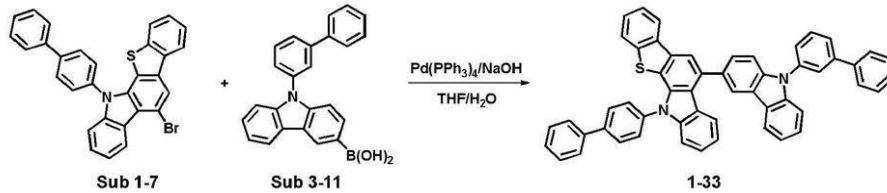
40

【 0 2 3 3 】

化合物1-33の合成

【 0 2 3 4 】

【化47】



【0235】

Sub1-7(10g、20mmol)、Sub3-11(7.3g、20mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.9g、0.8mmol)、NaOH(2.4g、59mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-33(13.5g、91%)を得た。

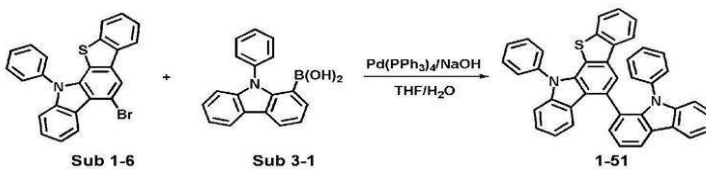
10

【0236】

化合物1-51の合成

【0237】

【化48】



20

【0238】

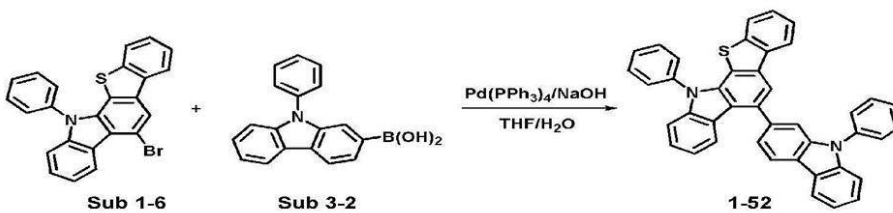
Sub1-6(5g、11.5mmol)、Sub3-1(3.9g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-51(3.5g、51%)を得た。

【0239】

化合物1-52の合成

【0240】

【化49】



30

【0241】

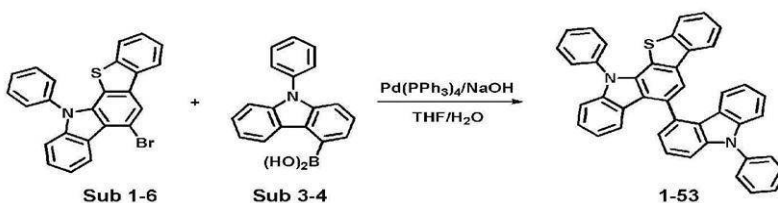
Sub1-6(5g、11.5mmol)、Sub3-2(3.9g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-52(3.8g、56%)を得た。

【0242】

化合物1-53の合成

【0243】

【化50】



【0244】

50

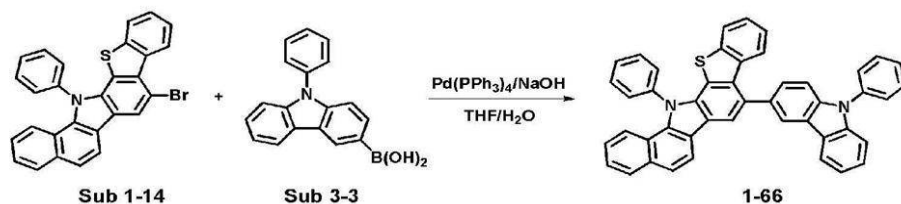
Sub1-6(5g、11.5mmol)、Sub3-4(3.9g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-53(4.2g、62%)を得た。

【0245】

化合物1-66の合成

【0246】

【化51】



10

【0247】

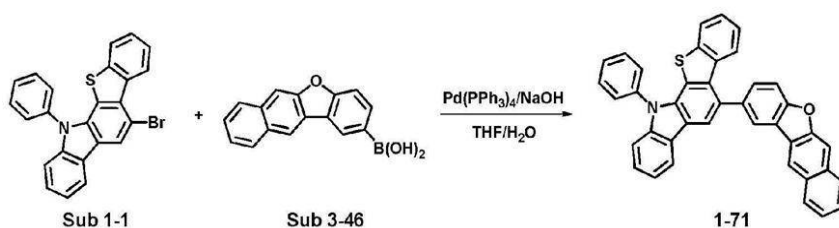
Sub1-14(10g、21mmol)、Sub3-3(7.6g、21mmol)、Pd(PPh₃)₄(1g、0.8mmol)、NaOH(2.5g、63mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-66(8.5g、63%)を得た。

【0248】

化合物1-71の合成

【0249】

【化52】



20

【0250】

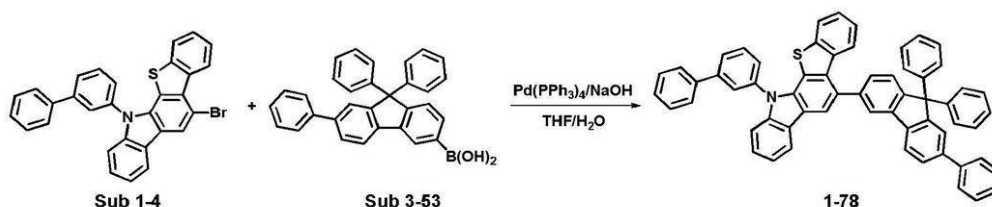
丸底フラスコにSub1-1(5g、11.5mmol)、Sub3-46(3.0g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-71(4.7g、73%)を得た。

【0251】

化合物1-78の合成

【0252】

【化53】



30

40

【0253】

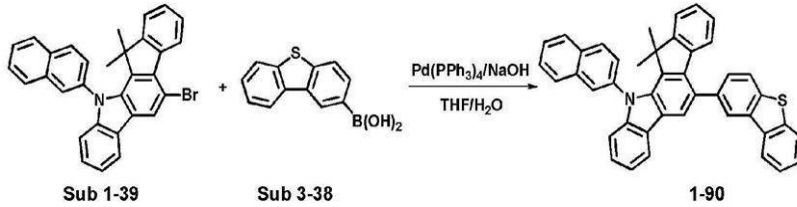
丸底フラスコにSub1-4(5g、9.9mmol)、Sub3-53(4.3g、9.9mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.4mmol)、NaOH(1.2g、29.7mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-78(5.3g、65%)を得た。

【0254】

化合物1-90の合成

【0255】

【化54】



【0256】

丸底フラスコにSub1-39(10g、20.5mmol)、Sub3-38(5.9g、20.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(1g、0.8mmol)、NaOH(2.5g、61mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物1-90(5.8g、48%)を得た。

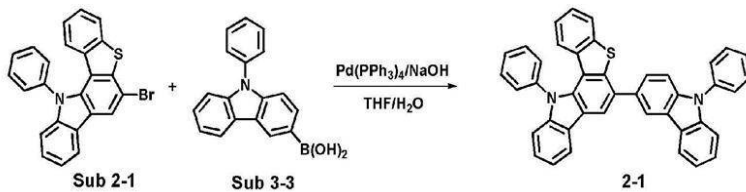
10

【0257】

化合物2-1の合成

【0258】

【化55】



20

【0259】

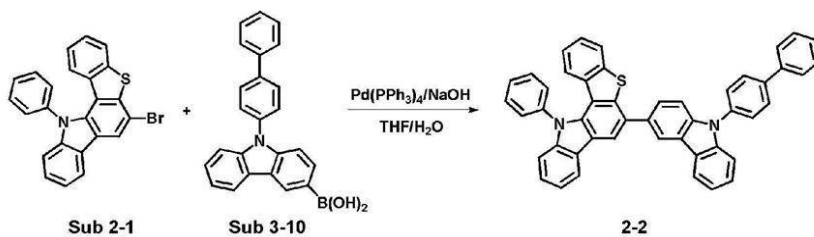
丸底フラスコにSub2-1(5g、11.5mmol)、Sub3-3(3.9g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-1(5.5g、81%)を得た。

【0260】

化合物2-2の合成

【0261】

【化56】



30

【0262】

丸底フラスコにSub2-1(5g、11.5mmol)、Sub3-10(4.2g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-2(6.1g、80%)を得た。

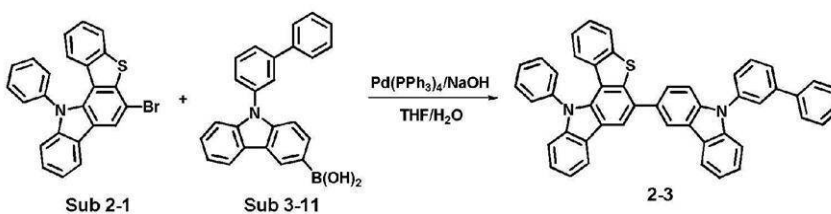
40

【0263】

化合物2-3の合成

【0264】

【化57】



50

【 0 2 6 5 】

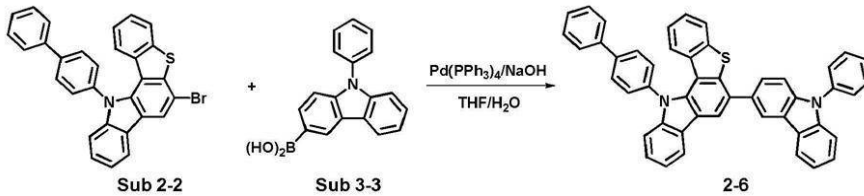
丸底フラスコにSub2-1(5g、11.5mmol)、Sub3-11(4.2g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-3(5.8g、76%)を得た。

【 0 2 6 6 】

化合物2-6の合成

【 0 2 6 7 】

【 化 5 8 】



10

【 0 2 6 8 】

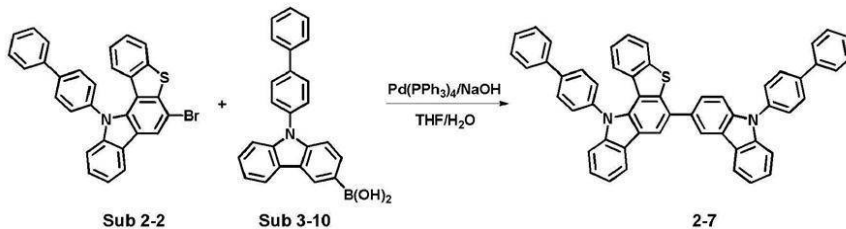
丸底フラスコにSub2-2(10g、20mmol)、Sub3-3(5.7g、20mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.9g、0.8mmol)、NaOH(2.4g、59mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-6(10.3g、81%)を得た。

【 0 2 6 9 】

化合物2-7の合成

【 0 2 7 0 】

【 化 5 9 】



20

【 0 2 7 1 】

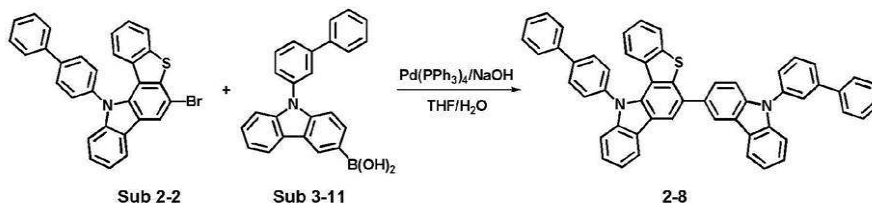
丸底フラスコにSub2-2(10g、20mmol)、Sub3-10(7.3g、20mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.9g、0.8mmol)、NaOH(2.4g、59mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-7(11g、74%)を得た。

【 0 2 7 2 】

化合物2-8の合成

【 0 2 7 3 】

【 化 6 0 】



40

【 0 2 7 4 】

丸底フラスコにSub2-2(10g、20mmol)、Sub3-11(7.3g、20mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.9g、0.8mmol)、NaOH(2.4g、59mmol)、THF(40mL)/H₂O(20mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-8(12g、81%)を得た。

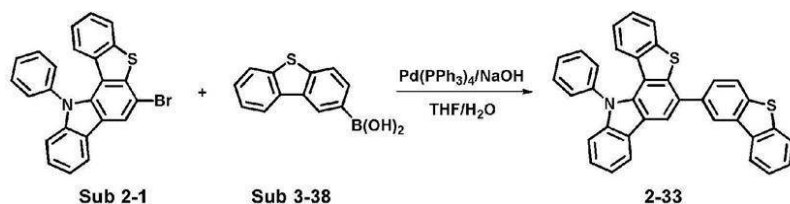
【 0 2 7 5 】

化合物2-33の合成

【 0 2 7 6 】

50

【化61】



【0277】

丸底フラスコにSub2-1(5g、11.5mmol)、Sub3-38(2.6g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-1(5.0g、82%)を得た。

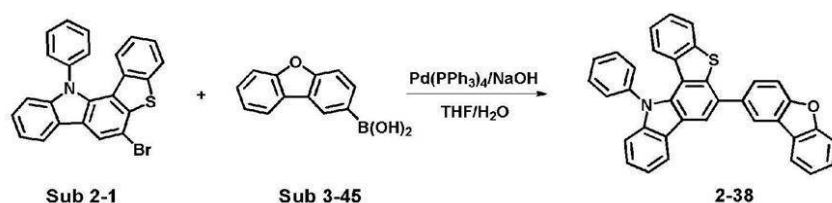
10

【0278】

化合物2-38の合成

【0279】

【化62】



20

【0280】

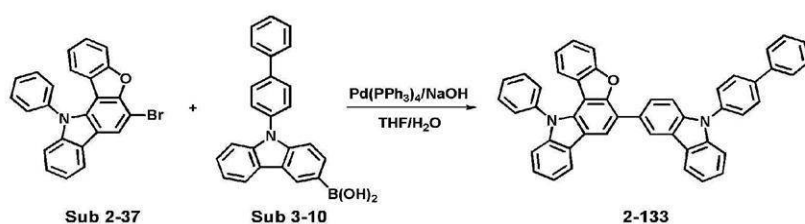
丸底フラスコにSub2-1(5g、11.5mmol)、Sub3-45(2.4g、11.5mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.5g、0.5mmol)、NaOH(1.4g、35mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-1(4.4g、74%)を得た。

【0281】

化合物2-133の合成

【0282】

【化63】



30

【0283】

丸底フラスコにSub2-37(5g、12mmol)、Sub3-10(4.4g、12mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.6g、0.5mmol)、NaOH(1.5g、36mmol)、THF(30mL)/H₂O(15mL)を入れた後、前記1-2の合成方法を使用して生成物2-133(5.6g、72%)を得た。

40

【0284】

【表 4 - 1】

[表4]

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
1-1	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)	1-2	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)
1-3	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)	1-4	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)
1-5	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)	1-6	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)
1-7	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)	1-8	m/z=742. 24 (C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742. 93)
1-9	m/z=742. 24 (C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742. 93)	1-10	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-11	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-12	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)
1-13	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)	1-14	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-15	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-16	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)
1-17	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)	1-18	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)
1-19	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-20	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-21	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)	1-22	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)
1-23	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)	1-24	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)
1-25	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)	1-26	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)
1-27	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)	1-28	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)
1-29	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)	1-30	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)
1-31	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)	1-32	m/z=742. 24 (C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742. 93)
1-33	m/z=742. 24 (C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742. 93)	1-34	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-35	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-36	m/z=666. 21 (C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666. 83)
1-37	m/z=742. 24 (C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742. 93)	1-38	m/z=742. 24 (C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742. 93)
1-39	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-40	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-41	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)	1-42	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-43	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-44	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)
1-45	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)	1-46	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)
1-47	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)	1-48	m/z=716. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716. 89)
1-49	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)	1-50	m/z=690. 21 (C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690. 85)
1-51	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)	1-52	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)
1-53	m/z=590. 18 (C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590. 73)	1-54	m/z=531. 11 (C ₃₆ H ₂₁ NS ₂ =531. 69)
1-55	m/z=531. 11 (C ₃₆ H ₂₁ NS ₂ =531. 69)	1-56	m/z=515. 13 (C ₃₆ H ₂₁ NOS=515. 62)
1-57	m/z=744. 23 (C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=743. 90)	1-58	m/z=870. 28 (C ₆₂ H ₃₈ N ₄ S=871. 06)
1-59	m/z=768. 23 (C ₅₄ H ₃₂ N ₄ S=768. 92)	1-60	m/z=718. 22 (C ₅₀ H ₃₀ N ₄ S=718. 87)
1-61	m/z=931. 30 (C ₆₈ H ₄₁ N ₃ S=932. 14)	1-62	m/z=808. 23 (C ₅₆ H ₃₂ N ₄ OS=808. 94)
1-63	m/z=850. 22 (C ₅₈ H ₃₄ N ₄ S ₂ =851. 05)	1-64	m/z=831. 32 (C ₅₇ H ₂₅ D ₁₀ N ₅ S=832. 05)
1-65	m/z=768. 23 (C ₅₄ H ₃₂ N ₄ S=768. 92)	1-66	m/z=640. 20 (C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640. 79)
1-67	m/z=531. 11 (C ₃₆ H ₂₁ NS ₂ =531. 69)	1-68	m/z=708. 17 (C ₄₉ H ₂₈ N ₂ S ₂ =708. 89)
1-69	m/z=733. 19 (C ₅₂ H ₃₁ NS ₂ =733. 94)	1-70	m/z=708. 17 (C ₄₉ H ₂₈ N ₂ S ₂ =708. 89)

10

20

30

40

【表4 - 2】

1-71	m/z=565.15(C ₄₀ H ₂₃ NOS=565.68)	1-72	m/z=822.25(C ₅₇ H ₃₄ N ₄ OS=822.97)
1-73	m/z=809.21(C ₅₆ H ₃₁ N ₃ O ₂ S=809.93)	1-74	m/z=781.13(C ₅₂ H ₃₁ NSSe=780.83)
1-75	m/z=681.08(C ₄₂ H ₂₃ N ₃ SSe=680.68)	1-76	m/z=585.19(C ₄₀ H ₃₁ NSSi=585.83)
1-77	m/z=809.23(C ₅₆ H ₃₅ N ₃ SSi=810.05)	1-78	m/z=817.28(C ₆₁ H ₃₉ NS=818.03)
1-79	m/z=817.26(C ₅₉ H ₃₅ N ₃ S=817.99)	1-80	m/z=742.28(C ₅₀ H ₃₀ N ₄ OS=742.93)
1-81	m/z=574.20(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ O=574.67)	1-82	m/z=624.22(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ O=624.73)
1-83	m/z=852.29(C ₆₂ H ₃₆ N ₄ O=852.98)	1-84	m/z=834.25(C ₅₈ H ₃₄ N ₄ OS=834.98)
1-85	m/z=649.24(C ₄₉ H ₃₁ NO=649.78)	1-86	m/z=829.24(C ₆₁ H ₃₅ NOS=830.00)
1-87	m/z=665.22(C ₄₈ H ₃₁ NOSi=665.85)	1-88	m/z=563.08(C ₃₆ H ₂₁ NOSe=562.52)
1-89	m/z=600.26(C ₄₅ H ₃₂ N ₂ =600.75)	1-90	m/z=591.20(C ₄₃ H ₂₉ NS=591.76)
1-91	m/z=525.21(C ₃₉ H ₂₇ NO=525.64)	1-92	m/z=551.26(C ₄₂ H ₃₃ N=551.72)
1-93	m/z=616.23(C ₄₄ H ₃₂ N ₂ Si=616.82)	1-94	m/z=541.19(C ₃₈ H ₂₇ NOSi=541.71)
1-95	m/z=557.16(C ₃₈ H ₂₇ NSSi=557.78)	1-96	m/z=638.13(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ Se=637.63)
1-97	m/z=563.08(C ₃₆ H ₂₁ NOSe=562.52)	1-98	m/z=589.13(C ₃₉ H ₂₇ NSe=588.60)
2-1	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)	2-2	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)
2-3	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)	2-4	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)
2-5	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)	2-6	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)
2-7	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)	2-8	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)
2-9	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-10	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-11	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)	2-12	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)
2-13	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)	2-14	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-15	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-16	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-17	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-18	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-19	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)	2-20	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)
2-21	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)	2-22	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-23	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-24	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)
2-25	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)	2-26	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)
2-27	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-28	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-29	m/z=746.28(C ₅₄ H ₃₈ N ₂ S=746.96)	2-30	m/z=796.25(C ₅₇ H ₃₆ N ₂ OS=796.97)
2-31	m/z=780.26(C ₅₇ H ₃₆ N ₂ S=780.97)	2-32	m/z=743.24(C ₅₃ H ₃₃ N ₃ S=743.91)
2-33	m/z=531.11(C ₃₆ H ₂₁ NS ₂ =531.69)	2-34	m/z=607.14(C ₄₂ H ₂₅ NS ₂ =607.78)
2-35	m/z=607.14(C ₄₂ H ₂₅ NS ₂ =607.78)	2-36	m/z=581.13(C ₄₀ H ₂₃ NS ₂ =581.75)
2-37	m/z=581.13(C ₄₀ H ₂₃ NS ₂ =581.75)	2-38	m/z=515.13(C ₃₆ H ₂₁ NOS=515.62)
2-39	m/z=591.17(C ₄₂ H ₂₅ NOS=591.72)	2-40	m/z=591.17(C ₄₂ H ₂₅ NOS=591.72)
2-41	m/z=565.15(C ₄₀ H ₂₃ NOS=565.68)	2-42	m/z=565.15(C ₄₀ H ₂₃ NOS=565.68)
2-43	m/z=541.19(C ₃₉ H ₂₇ NS=541.70)	2-44	m/z=617.21(C ₄₅ H ₃₁ NS=617.80)

10

20

30

40

【0286】

【表 4 - 3】

2-45	m/z=617.21(C ₄₅ H ₃₁ NS=617.80)	2-46	m/z=591.20(C ₄₃ H ₂₉ NS=591.76)
2-47	m/z=591.20(C ₄₃ H ₂₉ NS=591.76)	2-48	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)
2-49	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)	2-50	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)
2-51	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)	2-52	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)
2-53	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)	2-54	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)
2-55	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)	2-56	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)
2-57	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)	2-58	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)
2-59	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-60	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-61	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)	2-62	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)
2-63	m/z=742.24(C ₅₄ H ₃₄ N ₂ S=742.93)	2-64	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-65	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-66	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)
2-67	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-68	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-69	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)	2-70	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)
2-71	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)	2-72	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)
2-73	m/z=716.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₂ S=716.89)	2-74	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)
2-75	m/z=690.21(C ₅₀ H ₃₀ N ₂ S=690.85)	2-76	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)
2-77	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)	2-78	m/z=590.18(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ S=590.73)
2-79	m/z=581.13(C ₄₀ H ₂₃ NS ₂ =581.75)	2-80	m/z=581.13(C ₄₀ H ₂₃ NS ₂ =581.75)
2-81	m/z=515.13(C ₃₆ H ₂₁ NOS=515.62)	2-82	m/z=591.17(C ₄₂ H ₂₅ NOS=591.72)
2-83	m/z=591.17(C ₄₂ H ₂₅ NOS=591.72)	2-84	m/z=565.15(C ₄₀ H ₂₃ NOS=565.68)
2-85	m/z=565.15(C ₄₀ H ₂₃ NOS=565.68)	2-86	m/z=541.19(C ₃₉ H ₂₇ NS=541.70)
2-87	m/z=617.21(C ₄₅ H ₃₁ NS=617.80)	2-88	m/z=617.21(C ₄₅ H ₃₁ NS=617.80)
2-89	m/z=531.11(C ₃₆ H ₂₁ NS ₂ =531.69)	2-90	m/z=607.14(C ₄₂ H ₂₅ NS ₂ =607.78)
2-91	m/z=607.14(C ₄₂ H ₂₅ NS ₂ =607.78)	2-92	m/z=591.20(C ₄₃ H ₂₉ NS=591.76)
2-93	m/z=591.20(C ₄₃ H ₂₉ NS=591.76)	2-94	m/z=745.23(C ₅₁ H ₃₁ N ₅ S=745.89)
2-95	m/z=744.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=744.90)	2-96	m/z=744.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=744.90)
2-97	m/z=744.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=744.90)	2-98	m/z=718.22(C ₅₀ H ₃₀ N ₄ S=718.87)
2-99	m/z=745.23(C ₅₁ H ₃₁ N ₅ S=745.89)	2-100	m/z=744.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=744.90)
2-101	m/z=744.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=744.90)	2-102	m/z=744.23(C ₅₂ H ₃₂ N ₄ S=744.90)
2-103	m/z=718.22(C ₅₀ H ₃₀ N ₄ S=718.87)	2-104	m/z=768.24(C ₅₄ H ₃₂ N ₄ S=768.92)
2-105	m/z=834.25(C ₅₈ H ₃₄ N ₄ OS=834.98)	2-106	m/z=900.24(C ₆₂ H ₃₆ N ₄ S ₂ =901.11)
2-107	m/z=844.27(C ₆₀ H ₃₆ N ₄ S=845.02)	2-108	m/z=847.25(C ₆₀ H ₃ FN ₃ S=848.00)
2-109	m/z=745.23(C ₅₁ H ₃₁ N ₅ S=745.89)	2-110	m/z=909.32(C ₆₇ H ₃₅ D ₅ N ₂ S=910.14)
2-111	m/z=747.18(C ₅₁ H ₂₉ N ₃ S ₂ =747.93)	2-112	m/z=762.29(C ₅₄ H ₃₀ D ₅ N ₃ S=762.97)
2-113	m/z=789.25(C ₅₉ H ₃₅ NS=789.98)	2-114	m/z=860.26(C ₆₀ H ₃₆ N ₄ OS=861.02)
2-115	m/z=515.13(C ₃₆ H ₂₁ NOS=515.62)	2-116	m/z=717.21(C ₅₂ H ₃₁ NOS=717.87)

10

20

30

40

【 0 2 8 7 】

【表 4 - 4】

2-117	m/z=770.21(C ₅₃ H ₃₀ N ₄ S=770.90)	2-118	m/z=845.25(C ₆₀ H ₃₅ N ₃ OS=846.00)
2-119	m/z=699.14(C ₄₆ H ₂₅ N ₃ S ₂ =699.84)	2-120	m/z=581.13(C ₄₀ H ₂₃ NS ₂ =581.75)
2-121	m/z=785.20(C ₅₄ H ₃₁ N ₃ S ₂ =785.97)	2-122	m/z=824.20(C ₅₇ H ₃₂ N ₂ OS ₂ =825.01)
2-123	m/z=697.19(C ₄₉ H ₃₁ NS ₂ =697.91)	2-124	m/z=624.04(C ₃₆ H ₂₀ N ₂ O ₂ SSe=623.58)
2-125	m/z=666.21(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ S=666.83)	2-126	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)
2-127	m/z=640.20(C ₄₆ H ₂₈ N ₂ S=640.79)	2-128	m/z=671.24(C ₄₈ H ₂₅ D ₅ N ₂ S=671.86)
2-129	m/z=671.24(C ₄₈ H ₂₅ D ₅ N ₂ S=671.86)	2-130	m/z=557.16(C ₃₈ H ₂₇ NSSi=557.78)
2-131	m/z=579.06(C ₃₆ H ₂₁ NSSe=579.58)	2-132	m/z=681.19(C ₄₈ H ₃₁ NSSi=681.92)
2-133	m/z=574.20(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ O=574.67)	2-134	m/z=650.24(C ₄₈ H ₃₀ N ₂ O=650.76)
2-135	m/z=664.22(C ₄₈ H ₂₈ N ₂ O ₂ =664.75)	2-136	m/z=818.27(C ₅₈ H ₃₄ N ₄ O ₂ =818.92)
2-137	m/z=758.21(C ₅₂ H ₃₀ N ₄ OS=758.89)	2-138	m/z=702.24(C ₅₀ H ₃₀ N ₄ O=702.80)
2-139	m/z=729.25(C ₅₁ H ₃₁ N ₅ O=729.82)	2-140	m/z=759.23(C ₅₃ H ₃₃ N ₃ OS=759.91)
2-141	m/z=697.24(C ₅₃ H ₃₁ NO=697.82)	2-142	m/z=739.23(C ₅₄ H ₃₃ NOSi=739.93)
2-143	m/z=739.14(C ₅₀ H ₂₉ NOSe=738.73)	2-144	m/z=650.27(C ₄₉ H ₃₄ N ₂ =650.81)
2-145	m/z=591.20(C ₄₃ H ₂₉ NO=591.76)	2-146	m/z=525.21(C ₃₉ H ₂₇ NO=525.64)
2-147	m/z=551.26(C ₄₂ H ₃₃ =551.72)	2-148	m/z=616.23(C ₄₄ H ₃₂ N ₂ Si=616.82)
2-149	m/z=557.16(C ₃₈ H ₂₇ NSSi=557.78)	2-150	m/z=541.19(C ₃₈ H ₂₇ NOSi=541.71)
2-151	m/z=583.22(C ₄₀ H ₃₃ NSi ₂ =583.87)	2-152	m/z=638.13(C ₄₂ H ₂₆ N ₂ Se=637.63)
2-153	m/z=579.06(C ₃₆ H ₂₁ NSSe=578.58)	2-154	m/z=589.13(C ₃₉ H ₂₇ NSe=588.60)

10

20

【 0 2 8 8 】

有機電気素子の製造評価

【 0 2 8 9 】

[実施例 1] グリーン有機電気発光素子 (燐光ホスト)

【 0 2 9 0 】

まず、ガラス基板に形成されたITO層 (正極) 上にN¹-(naphthalen-2-yl)-N⁴、N⁴-bis(4-(naphthalen-2-yl(phenyl)amino)phenyl)-N¹-phenylbenzene-1, 4-diamine (2-TNATA と略す) 膜を真空蒸着して60nmの厚さの正孔注入層を形成した。前記正孔注入層上に、正孔輸送化合物で、4、4-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル (以下、-NPD と略す) を60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した。そして、本発明の化合物1-1をホストとして、Ir(ppy)₃[tris(2-phenylpyridine)-iridium]をドーパントとして95:5の重量でドーピングして30nmの厚さの発光層を形成した。次に、発光層上に(1,1'-ビスフェニル)-4-オレート)ビス(2-メチル-8-キノリンオレート)アルミニウム (以下「BALq」と略す) を10nmの厚さで真空蒸着して正孔阻止層を形成し、前記正孔阻止層上にトリス(8-キノリノール)アルミニウム (以下「Alq₃」 と略す) を40nmの厚さで成膜して電子輸送層を形成した。その電子輸送層上にを0.2nmの厚さで蒸着して電子注入層を形成し、次いでAlを150nmの厚さで蒸着して負極を形成した。

30

40

【 0 2 9 1 】

[実施例 2] ないし [実施例 80] グリーン有機発光素子

【 0 2 9 2 】

発光層のグリーンホスト物質として本発明の化合物1-1の代わりに、下記表5に記載された本発明の化合物を用いた点を除いては、前記実施例1と同様の方法で有機電気発光素子を製造した。

【 0 2 9 3 】

[比較例 1] ないし [比較例 7]

【 0 2 9 4 】

50

発光層のホスト物質として本発明の化合物 1-1 の代わりに、下記表5に記載された比較化合物1ないし比較化合物7のうちの1つを用いた点を除いては、前記実施例 1 と同様の方法で有機電気発光素子を製造した。

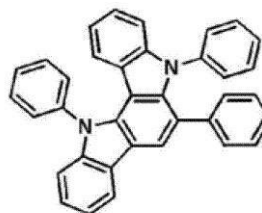
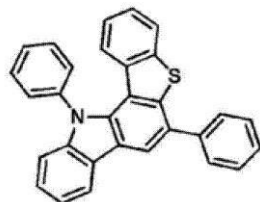
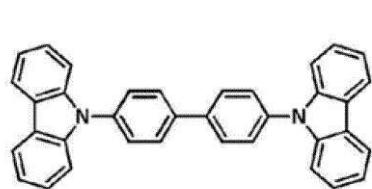
【 0 2 9 5 】

【化 6 4 】

<比較例化合物 1 >

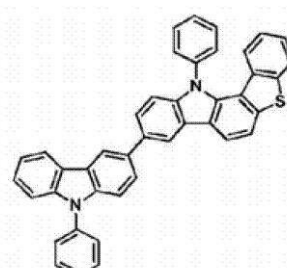
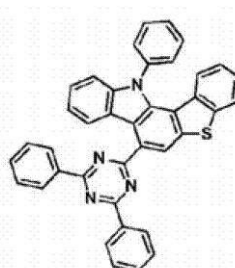
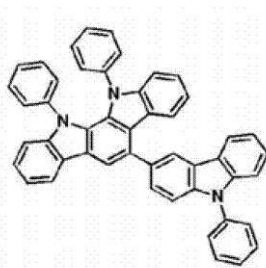
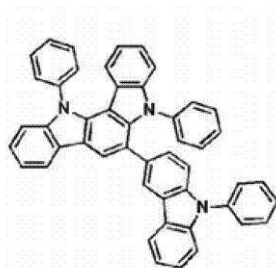
<比較例化合物2 >

<比較例化合物3 >



10

<比較例化合物4 > <比較例化合物5 > <比較例化合物6 > <比較例化合物7 >



20

前記のような実施例 1 ないし実施例80及び比較例 1 ないし比較例7により製造された有機電気発光素子に順バイアス直流電圧を加えてフォトリサーチ (p h o t o r e s e a r c h) 社の P R - 6 5 0 で電気発光 (E L) 特性を測定し、その測定結果、5000 cd / m² の基準輝度でマックスサイエンス社で製造された寿命測定装置によって T 95 寿命を測定した。下記表5は、素子作製と評価した結果を示す。

30

【 0 2 9 6 】

【表 5 - 1】

[表5]

	化合物	驱动电压 (v)	电流密度 (mA/cm ²)	亮度 (cd/m ²)	效率 (cd/A)	寿命 T(95)	CIE	
							X	Y
比较例(1)	比较化合物 1	6.7	22.2	5000	22.5	63.5	0.33	0.61
比较例(2)	比较化合物 2	6.3	17.7	5000	28.2	84.2	0.33	0.62
比较例(3)	比较化合物 3	6.5	20.3	5000	24.6	75.8	0.32	0.62
比较例(4)	比较化合物 4	6.4	16.9	5000	29.5	90.3	0.32	0.62
比较例(5)	比较化合物 5	6.4	17.2	5000	29.1	88.6	0.32	0.62
比较例(6)	比较化合物 6	6.2	15.1	5000	33.2	98.4	0.32	0.62
比较例(7)	比较化合物 7	6.2	16.1	5000	31.1	96.5	0.32	0.62
实施例(1)	化合物(1-1)	5.1	9.7	5000	51.6	141.0	0.32	0.62
实施例(2)	化合物(1-2)	5.1	9.5	5000	52.4	141.9	0.32	0.62
实施例(3)	化合物(1-3)	5.1	9.5	5000	52.5	142.3	0.32	0.62
实施例(4)	化合物(1-5)	4.9	9.6	5000	52.3	141.2	0.33	0.61
实施例(5)	化合物(1-7)	5.1	9.5	5000	52.5	142.3	0.33	0.61
实施例(6)	化合物(1-9)	4.9	9.7	5000	51.6	142.4	0.33	0.61
实施例(7)	化合物(1-11)	5.0	9.6	5000	52.3	141.0	0.33	0.62
实施例(8)	化合物(1-13)	4.9	9.6	5000	51.9	141.1	0.33	0.61
实施例(9)	化合物(1-19)	5.0	9.7	5000	51.6	142.5	0.33	0.62
实施例(10)	化合物(1-23)	5.0	10.2	5000	49.0	140.3	0.33	0.61
实施例(11)	化合物(1-25)	5.1	10.4	5000	47.9	139.1	0.33	0.61
实施例(12)	化合物(1-26)	5.2	10.5	5000	47.4	140.3	0.33	0.61
实施例(13)	化合物(1-29)	5.2	10.6	5000	47.3	140.5	0.33	0.62
实施例(14)	化合物(1-31)	5.3	10.9	5000	45.8	139.6	0.33	0.62
实施例(15)	化合物(1-35)	5.2	10.7	5000	46.8	140.9	0.33	0.61
实施例(16)	化合物(1-37)	5.2	10.9	5000	45.8	140.8	0.33	0.62
实施例(17)	化合物(1-55)	5.4	11.4	5000	43.7	135.4	0.33	0.61
实施例(18)	化合物(1-57)	5.1	11.0	5000	45.5	138.0	0.33	0.62
实施例(19)	化合物(1-58)	5.2	11.0	5000	45.3	138.2	0.33	0.61
实施例(20)	化合物(1-64)	5.4	11.6	5000	43.1	135.3	0.33	0.61
实施例(21)	化合物(1-67)	5.3	11.1	5000	45.1	139.1	0.33	0.61
实施例(22)	化合物(1-72)	5.2	11.6	5000	43.1	136.0	0.33	0.62
实施例(23)	化合物(1-74)	5.3	11.4	5000	44.0	136.4	0.33	0.62
实施例(24)	化合物(1-78)	5.3	11.3	5000	44.1	136.8	0.33	0.61
实施例(25)	化合物(1-81)	5.1	10.2	5000	49.2	138.5	0.33	0.61
实施例(26)	化合物(1-85)	5.1	10.7	5000	46.7	140.8	0.33	0.62
实施例(27)	化合物(1-87)	5.3	11.7	5000	42.8	135.0	0.33	0.61
实施例(28)	化合物(1-88)	5.2	11.3	5000	44.2	137.4	0.33	0.62

【表 5 - 2】

実施例(29)	化合物(1-89)	5.3	10.8	5000	46.2	138.3	0.33	0.62
実施例(30)	化合物(1-87)	5.3	11.5	5000	43.3	137.1	0.33	0.62
実施例(31)	化合物(1-88)	5.3	11.4	5000	43.9	137.2	0.33	0.62
実施例(32)	化合物(1-89)	5.3	10.7	5000	46.7	139.7	0.33	0.61
実施例(33)	化合物(1-93)	5.2	10.9	5000	45.9	138.1	0.33	0.61
実施例(34)	化合物(1-96)	5.2	10.9	5000	46.0	139.8	0.33	0.61
実施例(35)	化合物(2-1)	4.7	9.1	5000	55.1	144.9	0.33	0.61
実施例(36)	化合物(2-2)	4.8	9.3	5000	53.5	144.1	0.33	0.61
実施例(37)	化合物(2-3)	4.8	9.3	5000	53.9	143.6	0.33	0.61
実施例(38)	化合物(2-5)	5.0	9.2	5000	54.4	144.9	0.33	0.61
実施例(39)	化合物(2-11)	5.0	9.2	5000	54.2	144.5	0.33	0.61
実施例(40)	化合物(2-12)	4.8	9.2	5000	54.6	144.2	0.33	0.62
実施例(41)	化合物(2-13)	4.8	9.4	5000	53.1	143.8	0.33	0.62
実施例(42)	化合物(2-16)	4.8	9.2	5000	54.2	143.1	0.33	0.62
実施例(43)	化合物(2-24)	4.8	9.3	5000	53.8	144.0	0.33	0.61
実施例(44)	化合物(2-26)	4.8	9.4	5000	53.2	144.7	0.33	0.62
実施例(45)	化合物(2-27)	4.8	9.3	5000	53.6	143.4	0.33	0.62
実施例(46)	化合物(2-33)	4.9	9.5	5000	52.4	142.5	0.33	0.62
実施例(47)	化合物(2-37)	5.0	9.6	5000	52.3	141.9	0.33	0.62
実施例(48)	化合物(2-38)	5.0	10.2	5000	49.1	140.2	0.33	0.61
実施例(49)	化合物(2-39)	5.2	10.3	5000	48.5	138.9	0.33	0.61
実施例(50)	化合物(2-46)	5.1	10.7	5000	46.8	140.3	0.33	0.62
実施例(51)	化合物(2-48)	4.9	9.6	5000	51.9	141.1	0.33	0.61
実施例(52)	化合物(2-51)	4.9	9.6	5000	52.2	141.2	0.33	0.62
実施例(53)	化合物(2-57)	5.0	9.5	5000	52.4	142.2	0.33	0.62
実施例(54)	化合物(2-64)	5.0	9.7	5000	51.6	141.0	0.33	0.61
実施例(55)	化合物(2-66)	5.0	9.6	5000	52.3	141.3	0.33	0.62
実施例(56)	化合物(2-77)	5.0	10.0	5000	49.8	139.3	0.33	0.61
実施例(57)	化合物(2-79)	5.1	10.3	5000	48.5	138.6	0.33	0.61
実施例(58)	化合物(2-81)	5.1	10.8	5000	46.1	138.2	0.33	0.61
実施例(59)	化合物(2-86)	5.4	11.5	5000	43.6	136.2	0.33	0.62
実施例(60)	化合物(2-94)	5.0	9.6	5000	51.8	141.8	0.33	0.62
実施例(61)	化合物(2-95)	5.0	9.6	5000	51.9	142.1	0.33	0.62
実施例(62)	化合物(2-96)	5.0	9.7	5000	51.7	141.5	0.33	0.61
実施例(63)	化合物(2-97)	5.0	9.7	5000	51.6	141.1	0.33	0.61
実施例(64)	化合物(2-99)	4.9	9.6	5000	51.8	142.1	0.33	0.62
実施例(65)	化合物(2-100)	5.1	9.5	5000	52.4	142.5	0.33	0.61

10

20

30

40

【 0 2 9 8 】

【表 5 - 3】

実施例(66)	化合物(2-101)	5.0	9.5	5000	52.5	142.0	0.33	0.62
実施例(67)	化合物(2-115)	5.0	9.7	5000	51.8	142.4	0.33	0.62
実施例(68)	化合物(2-120)	5.1	9.7	5000	51.6	142.4	0.33	0.61
実施例(69)	化合物(2-128)	4.9	9.6	5000	52.3	141.3	0.33	0.61
実施例(70)	化合物(2-129)	4.9	9.6	5000	52.1	141.8	0.33	0.61
実施例(71)	化合物(2-130)	5.3	11.9	5000	41.9	133.5	0.33	0.62
実施例(72)	化合物(2-131)	5.3	11.8	5000	42.3	132.7	0.33	0.62
実施例(73)	化合物(2-133)	5.0	9.6	5000	52.2	141.1	0.33	0.61
実施例(74)	化合物(2-134)	5.0	9.5	5000	52.4	141.8	0.33	0.61
実施例(75)	化合物(2-135)	5.0	9.7	5000	51.8	142.1	0.33	0.61
実施例(76)	化合物(2-139)	4.9	9.7	5000	51.6	141.2	0.33	0.61
実施例(77)	化合物(2-141)	5.3	11.5	5000	43.4	136.6	0.33	0.61
実施例(78)	化合物(2-146)	5.2	10.8	5000	46.2	138.3	0.33	0.61
実施例(79)	化合物(2-148)	5.3	12.2	5000	41.1	134.5	0.33	0.61
実施例(80)	化合物(2-152)	5.3	12.2	5000	41.1	133.3	0.33	0.61

10

【0299】

20

前記表 5 に示すように、本発明の一実施例に係る化合物をグリーン燐光ホストの材料として用いた実施例 1 - 実施例 80 の場合、比較例 1 - 比較例 7 に比べて駆動電圧、発光効率及び寿命などが顕著に改善されたことが確認できた。

【0300】

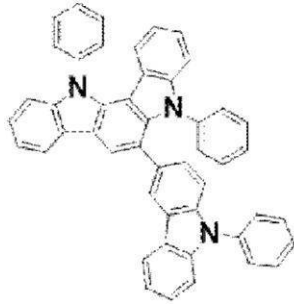
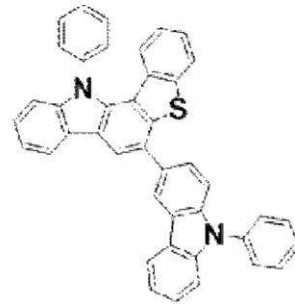
比較例 1 よりは 5 員環ヘテロ環の中央のベンゼンにフェニル基が置換された比較例 2 及び 3 の比較化合物 2 及び 3 が 5 員環ヘテロコアによって電荷の移動度及び熱的特性が増加して効率及び寿命が向上したことが確認でき、また、比較例 2 と比較例 3 の結果から 5 員環ヘテロ環化合物内のヘテロ原子の種類によって特性が変わることが確認できた。即ち、ヘテロ原子が N-N タイプよりも N-S タイプの場合、より良い素子結果を示すことが確認でき、その差異を示すために、下記表 6 で比較化合物 4 と本発明の化合物 2-1 の物性データを比較した。

30

【0301】

【表 6】

[表6]

	比较化合物 4	本发明化合物 2-1
化合物		
HOMO (electron cloud)	図 2 参照	図 2 参照
LUMO (electron cloud)	図 2 参照	図 2 参照
HOMO (eV)	-4.88	-5.13
LUMO (eV)	-0.71	-0.91
Eg (eV)	4.17	4.23
T1 (nm)	2.92	2.88

【0302】

前記表 6 において、本発明の化合物 2-1 と比較化合物 4 の LUMO 電子雲を詳察すれば、5 員環ヘテロ環が N-N タイプの場合（比較化合物 4）、電子雲が分離（*separation*）されてカルバゾール基内に分布しており、N-S タイプである本発明の化合物 2-1 の場合、電子雲が 5 員環ヘテロ環の骨格（*backbone*）内に分布していることが確認できる。

【0303】

これは分子内のヘテロ原子が提供する特性の差であって、コア内のヘテロ原子がコアの HOMO / LUMO レベル、バンドギャップエネルギー（*Band gap energy*）及び T1 値を決定する要因であることが分かる。前記 2 つの物質を比較してみると、HOMO、LUMO エネルギーレベルにおいて大きな差があるということが分かる。また、本発明の化合物 2-1 の T1 値が比較化合物 4 よりも更に低い値を有することによって、ホストにあったエキシトン（*exciton*）がドープメントに移動した後、ドープメントからホストに逆転移される現象を発生させる確率を顕著に減少させることによって、素子の発光効率が増加するようになるものと見られ、深い HOMO 値を有するため、正孔キャッピング（*capping*）能力が増加して発光層内の電荷均衡を効率的にさせ、発光層内における発生した剰余ポーラロンの数を減少させて効率及び寿命が向上するものと見られる。

【0304】

5 員環ヘテロ環の中央のベンゼン環にカルバゾールで置換されたが、N-N タイプの 5 員環リングを有する比較化合物 4 と比較化合物 5 の素子性能を比較すると、素子性能にお

10

20

30

40

50

いて大きな差がないことから、5員環ヘテロ環内のヘテロ原子の方向によっては大きな差はないということが確認できる。また、一般のアリール基であるトリアジン誘導体が置換された比較化合物6と本発明化合物の素子データを比較すると、中央のベンゼン環に一般的なヘテロアリール基が結合されることによって、効率及び寿命が向上するものではなく、本発明の化合物のように必ず特定形態のヘテロアリール基が結合されてこそ、効率や寿命などが向上することが確認できる。

【0305】

また、必ず5員環リングに結合するカルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェンのような置換基が5員環リングの中央のベンゼン環に結合せず、サイド(side)位置に結合した比較例7と本発明の化合物を比較すると、やはり本発明の化合物の場合、固有な特性である深いHOMOエネルギーレベルが更に広いバンドギャップエネルギーを有することによって、正孔が更に円滑に正孔輸送層から発光層へ輸送され、エキシトンが発光層内に束縛されず、発光漏れを防止する役割を果たすので、発光層内の電荷均衡が増加し、発光内の剰余ポーラロンを減少させて発光物質の変形が減少することにより、色純度、寿命、効率などが向上するものと判断される。

【0306】

このように前記表5の結果から、5員環リング化合物が含んでいるヘテロ原子の種類及び配列によって効率及び寿命が変わり得ることを示唆しており、どの位置にどの置換基を結合させるかによって、バンドギャップ(band gap)及び電気的特性、界面特性などが大きく変化し得るといことが分かる。特に、燐光ホストの場合、正孔輸送層及びドーパントとの相互関係を把握しなければならないため、類似するコアを用いても本発明の化合物が燐光ホストで示す優れた電気的特性を類推することは非常に難しい。

【0307】

[実施例81] レッド有機電気発光素子(燐光ホスト)

【0308】

まず、ガラス基板に形成されたITO層(正極)上に2-TNATAを真空蒸着して60nmの厚さの正孔注入層を形成した後、正孔注入層上に正孔輸送化合物で、NPDを60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した。次いで、正孔輸送層の上部に本発明の化合物1-59をホストとして、(piq)₂Ir(acac)[bis-(1-phenylisoquinoly)]iridium(III)acetylacetonateをドーパントとして用いて95:5の重量比でドーピングして30nmの厚さで発光層を形成した。次いでBALqを10nmの厚さで真空蒸着して正孔阻止層を形成し、Alq₃を40nmの厚さで成膜して電子輸送層を形成した。その後、電子輸送層上にLiFを0.2nmの厚さで蒸着して電子注入層を形成し、次いでAlを150nmの厚さで蒸着して負極を形成した。

【0309】

[実施例82] ないし[実施例96] レッド有機電気発光素子

【0310】

発光層のホスト物質として本発明の化合物1-59の代わりに、下記表7に記載された本発明の化合物を用いた点を除いては、前記実施例81と同様の方法で有機電気発光素子を製造した。

【0311】

[比較例8] ないし[比較例14]

【0312】

発光層のホスト物質として本発明の化合物1-59の代わりに、比較化合物1ないし比較化合物7のうちの1つを用いた点を除いては、前記実施例81と同様の方法で有機電気発光素子を製造した。

【0313】

前記のような実施例81ないし実施例96及び比較例8ないし比較例14により製造された有機電気発光素子に順バイアス直流電圧を加えてフォトリサーチ(photoresear

10

20

30

40

50

ch)社のPR-650で電気発光(EL)の特性を測定し、 2500 cd/m^2 の基準輝度でマックスサイエンス社で製造された寿命測定装置によってT95寿命を測定した。その測定結果は、下記表7の通りである。

【0314】

【表7】

[表7]

	化合物	駆動電圧 (v)	電流密度 (mA/cm ²)	亮度 (cd/m ²)	効率 (cd/A)	寿命 T(95)	CIE	
							X	Y
比較例(8)	比較化合物 1	6.8	36.2	2500	6.9	65.3	0.66	0.32
比較例(9)	比較化合物 2	6.5	35.2	2500	7.3	71.7	0.66	0.32
比較例(10)	比較化合物 3	6.6	34.2	2500	7.5	78.4	0.66	0.32
比較例(11)	比較化合物 4	6.4	32.1	2500	7.7	82.7	0.66	0.32
比較例(12)	比較化合物 5	6.5	33.8	2500	7.6	83.4	0.66	0.32
比較例(13)	比較化合物 6	6.4	35.7	2500	7.8	98.3	0.66	0.32
比較例(14)	比較化合物 7	6.3	32.5	2500	7.7	85.2	0.66	0.32
実施例(81)	化合物(1-59)	5.0	20.0	2500	12.5	149.3	0.66	0.32
実施例(82)	化合物(1-60)	4.9	19.1	2500	13.1	149.7	0.66	0.32
実施例(83)	化合物(1-63)	4.9	20.0	2500	12.5	148.8	0.66	0.32
実施例(84)	化合物(1-65)	4.8	18.4	2500	13.6	151.4	0.66	0.32
実施例(85)	化合物(1-66)	4.9	18.9	2500	13.0	149.7	0.66	0.32
実施例(86)	化合物(1-73)	5.1	20.3	2500	12.3	146.2	0.66	0.32
実施例(87)	化合物(1-84)	5.1	19.7	2500	12.7	150.1	0.66	0.32
実施例(88)	化合物(2-103)	4.8	17.5	2500	14.3	153.1	0.66	0.32
実施例(89)	化合物(2-104)	4.8	18.4	2500	13.6	152.2	0.66	0.32
実施例(90)	化合物(2-105)	4.9	17.5	2500	14.3	154.6	0.66	0.32
実施例(91)	化合物(2-106)	4.8	18.6	2500	13.4	151.1	0.66	0.32
実施例(92)	化合物(2-107)	4.8	18.9	2500	13.2	151.8	0.66	0.32
実施例(93)	化合物(2-119)	4.9	18.9	2500	13.2	151.8	0.66	0.32
実施例(94)	化合物(2-137)	5.0	19.4	2500	12.9	148.5	0.66	0.32
実施例(95)	化合物(2-138)	5.1	19.6	2500	12.8	150	0.66	0.32
実施例(96)	化合物(2-140)	5.0	20.3	2500	12.3	146.3	0.66	0.32

【0315】

前記表7から見ると、本発明の化合物を燐光レッドホスト物質として用いた場合にも、効率及び寿命の側面において非常に大幅に増加することが確認できた。前記表7で用いられた本発明の化合物は、レッド燐光ホストの2次置換基として広く用いられているキナゾリン誘導体などを適用させた化合物1-59-60、1-63、1-65、1-73、1-84、2-103-107、2-119、2-137-138、2-140と、本発明の化合物のうち、5員環ヘテロ環化合物のバックボーン(backbone)コアにアリール基が融合(fused)された1-66である。これは置換基及びバックボーン(backbone)に単純にリングを融合させるだけでもレッド燐光ホスト及びグリーン燐光ホストとして有用に使用可能であるということを意味する。

【0316】

これは本発明の化合物の場合、その固有な特性である深いHOMOエネルギーレベルによって正孔輸送層から発光層内の正孔の量を効率的に調節できるため、発光層内の正孔と電子が電荷均衡 (charge balance) をなすようになり、発光層界面における劣化を防止及び剰余ポーラロンの減少をもたらし得るため、本発明の化合物をホスト材料として用いた有機電気素子の寿命が向上するものと判断される。

【0317】

従って、前記表5と表7から、5員環リング化合物が含んでいるヘテロ原子の種類及び配列によって効率及び寿命が変わり得、どの位置にどの置換基を結合させるかによって、バンドギャップ (band gap) 及び電気的特性、界面特性などが大きく変化し得るということが分かり、特に、燐光ホストの場合、正孔輸送層及びドーパントとの相互関係を把握しなければならないため、類似するコアを用いても本発明の化合物が燐光ホストで示す特徴を類推することは非常に難しい。

10

【0318】

以上の説明は、本発明を例示的に説明したものに過ぎず、本発明の属する技術分野における通常の知識を有する者であれば、本発明の本質的な特性から逸脱しない範囲で多様な変形が可能である。従って、本明細書に開示された実施例は、本発明を限定するためのものではなく、説明するためのものであり、このような実施例によって本発明の思想と範囲が限定されるものではない。本発明の保護範囲は、下記の請求範囲によって解釈されるべきであり、それと同等な範囲内にあるあらゆる技術は、本発明の権利範囲に含むものとして解釈されるべきである。

20

【符号の説明】

【0319】

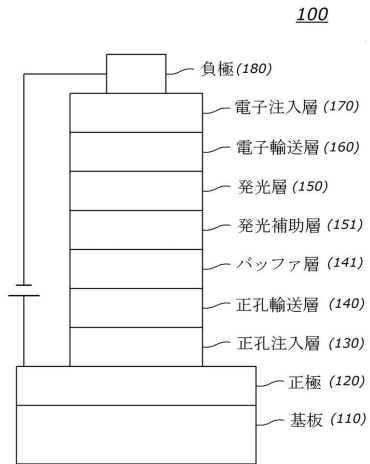
- 100 有機電子素子
- 110 基板
- 120 第1電極
- 130 正孔注入層
- 140 正孔輸送層
- 141 バッファ層
- 150 発光層
- 151 発光補助層
- 160 電子輸送層
- 170 電子注入層
- 180 第2電極

30

< 関連出願の相互参照 >

本特許出願は、2015年3月3日に韓国に出願した特許出願番号第10-2015-0029762号に対して米国特許法119(a)条(35U.S.C § 119(a))によって優先権を主張し、そのあらゆる内容は参考文献として本特許出願に併合される。なお、本特許出願は米国以外に国に対しても上記のような理由で優先権を主張すれば、その全内容は参考文献として本特許出願に組み込まれる。

【 図 1 】



【 図 2 】

	比较化合物 4	本发明化合物 2-1
化合物		
HOMO (electron cloud)		
LUMO (electron cloud)		
HOMO (eV)	-4.88	-5.13
LUMO (eV)	-0.71	-0.91
Eg (eV)	4.17	4.23
T1 (nm)	2.92	2.88

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
C 0 7 D 491/048	(2006.01)	C 0 7 D 495/04	1 0 3
C 0 7 D 409/04	(2006.01)	C 0 7 D 519/00	C S P
C 0 7 D 405/04	(2006.01)	C 0 7 D 491/048	
G 0 9 F 9/30	(2006.01)	C 0 7 D 409/04	
H 0 1 L 51/46	(2006.01)	C 0 7 D 405/04	
H 0 1 L 51/05	(2006.01)	G 0 9 F 9/30	3 6 5
H 0 1 L 51/30	(2006.01)	H 0 1 L 31/04	1 5 4 B
C 0 7 D 517/04	(2006.01)	H 0 1 L 31/04	1 5 4 C
C 0 7 F 7/08	(2006.01)	H 0 1 L 31/04	1 5 4 D
		H 0 1 L 29/28	1 0 0 A
		H 0 1 L 29/28	2 5 0 H
		C 0 7 D 517/04	
		C 0 7 D 519/00	3 0 1
		C 0 7 F 7/08	R
		C 0 7 F 7/08	S

- (72)発明者 パク ジュンファン
大韓民国 18443 キョンギ-ド ファソン-シ ドンタンバンソク-ロ 71 (バンソン-ドン ドンタン ソビトマエル サンヨン イェガ アパート) 452-2103
- (72)発明者 パク ジョンケム
大韓民国 08208 ソウル グロ-グ ギョンギン-ロ 67-ギル 33 (シンドリム-ドン シンドリム アイ-パーク)
- (72)発明者 ジュン ホヨン
大韓民国 31044 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ソブク-グ ソンゴ-ウブ チョンフン 3-ギル 19-1 シンピテル 11-204
- (72)発明者 カン ムンソン
大韓民国 31044 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ソブク-グ ソンゴ-ウブ チョンフン 3-ギル 19-1 シンピテル 12-304
- (72)発明者 ハ ジョン-ジン
大韓民国 31044 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ソブク-グ ソンゴ-ウブ チョンフン 3-ギル 19-1 シンピテル 12-405
- (72)発明者 キム ウォンサム
大韓民国 18429 キョンギ-ド ファソン-シ ドンタンオンウォン-ロ 21-13 モアミレド アパート 947-705
- (72)発明者 キム スル-ギ
大韓民国 34421 テジョン テドク-グ ドンチュンダン-ロ 31ボン-ギル 31 (ソンチョン-ドン デホ ビラ) A-201
- (72)発明者 イ ムンジェ
大韓民国 31204 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ドンナム-グ トンジョン 3-ロ 68 (シンバン-ドン シンバンハンソンフィル 하우스 アパート) 112-104

審査官 佐溝 茂良

- (56)参考文献 韓国公開特許第10-2014-0011093(KR,A)
国際公開第2013/108997(WO,A1)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D201/00 - 521/00
C07F 9/00 - 19/00
H05B 33/00 - 33/28
H01L 31/04
H01L 29/28
CAplus/REGISTRY(STN)