

(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
2017年10月12日(12.10.2017)



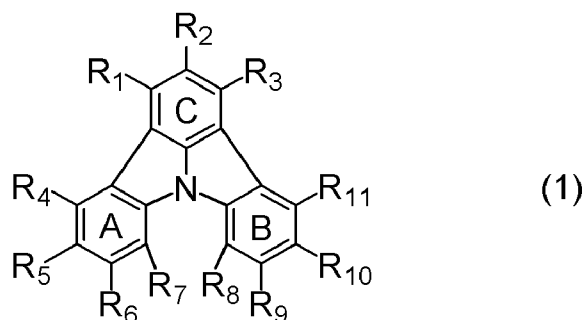
(10) 国際公開番号
WO 2017/175690 A1

- (51) 国際特許分類:
C07D 487/04 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/013836
- (22) 国際出願日: 2017年3月31日(31.03.2017)
- (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 2016-078344 2016年4月8日(08.04.2016) JP
特願 2017-025391 2017年2月14日(14.02.2017) JP
- (71) 出願人: 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 高橋 良多 (TAKAHASHI, Ryota); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 加藤 朋希 (KATO, Tomoki); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 池田 秀嗣 (IKEDA, Hidetsugu); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門ESビル7階 特許業務法人大谷特許事務所 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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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, 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).

[続葉有]

(54) Title: NOVEL COMPOUND, ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ELECTRONIC APPLIANCE

(54) 発明の名称: 新規な化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器



(57) Abstract: Provided are: a novel compound with which an organic electroluminescent (EL) element showing excellent performance can be produced; an organic EL element including the compound; and an electronic appliance equipped with the organic EL element. Specifically provided are: a compound represented by the following formula (1); a material for organic EL elements which comprises the compound; an organic EL element comprising a cathode, an anode, and one or more organic thin film layers sandwiched therebetween which comprise a luminescent layer, wherein at least one of the organic thin film layers comprises the compound; and an electronic appliance equipped with the organic EL element. (In formula (1), A, B, C, and R₁ to R₁₁ are as defined in the description.)

(57) 要約: 優れた性能を示す有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子を製造することができる新規な化合物、当該化合物を有する有機EL素子、並びに当該有機EL素子を備える電子機器提供する。下記式(1)で表される化合物、化合物を含有する有機EL素子用材料、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記化合物を含有する有機EL素子、該有機EL素子を備えた電子機器。(上記式中、A、B、C、R₁~R₁₁は、明細書中で定義したとおりである。)



WO 2017/175690 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

新規な化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

技術分野

[0001] 本発明は、新規な化合物及び該新規な化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関する。また本発明は、該新規な化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器に関する。

背景技術

[0002] 一般に有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子は、陽極、陰極、及び陽極と陰極に挟まれた1層以上の有機薄膜層から構成されている。両電極間に電圧が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が発光領域に注入され、注入された電子と正孔は発光領域において再結合して励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際に光を放出する。

また、有機EL素子は、発光層に種々の発光材料を用いることにより、多様な発光色を得ることが可能であることから、ディスプレイなどへの実用化研究が盛んである。例えば赤色、緑色、青色の三原色の発光材料の研究が活発であり、特性向上を目指して鋭意研究がなされている。

有機EL素子用の材料として、例えば特許文献1～6に記載の化合物などが知られている。

先行技術文献

特許文献

- [0003] 特許文献1：特開2014-73965号公報
特許文献2：国際公開第2016/006925号
特許文献3：中国特許第104119347号公報
特許文献4：国際公開第2011/128017号
特許文献5：韓国特許第10-2015-0135125号公報
特許文献6：国際公開第2013/077344号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本願発明者らの更なる検討により、特許文献1～6に開示された化合物には、有機EL素子に用いた際の性能として更なる改善の余地があることが判明した。

本発明の目的は、優れた性能を示す有機EL素子を製造することができる新規な化合物、並びに該新規な化合物を含有する有機EL素子用材料を提供することである。また、本発明の別の目的は、当該化合物を有する有機EL素子、並びに当該有機EL素子を備える電子機器を提供することである。

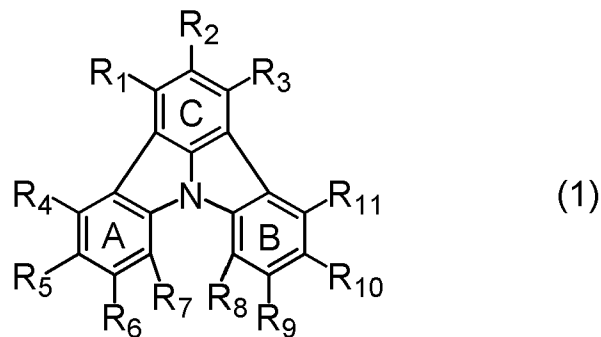
課題を解決するための手段

[0005] 本発明者らは、前記課題を解決するために、鋭意研究を重ねた結果、インドロ[3,2,1-jk]カルバゾールに含まれる2つ以上のベンゼン環に縮環した下記式(1)で表される化合物を有機EL素子の材料として用いることで、上記課題を解決し得ることを見出した。

[0006] 本発明には、下記[1]～[4]の態様が含まれる。

[1] 本発明の一態様によれば、下記式(1)で表される化合物が提供される。

[化1]



[0007] [式中、式(1)において、

R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つ以上の対のそれぞれにおいて、 R_n と R_{n+1} (n は1、2、4～6、及び8～10から選ばれる整数を表す)は

互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する。この環構造を構成する原子のうち、置換基を有する原子は水素原子または置換基を有し、該置換基は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールチオ基、 $-S i (R_{101}) (R_{102}) (R_{103})$ で表される基、 $-N (R_{104}) (R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50のヘテロアリール基から選ばれる。それら置換基同士が結合してさらなる環構造を形成してもよい。なお、前記原子数3以上の環の原子数には、前記置換基の原子数は含まない。

ただし、 R_1 と R_2 からなる対と R_2 と R_3 からなる対； R_4 と R_5 からなる対と R_5 と R_6 からなる対； R_5 と R_6 からなる対と R_6 と R_7 からなる対； R_8 と R_9 からなる対と R_9 と R_{10} からなる対；及び R_9 と R_{10} からなる対と R_{10} と R_{11} からなる対が、環構造を同時に形成することはない。

前記2つ以上の対は、環A、環B及び環Cから選ばれる2又は3つの環が、前記炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を有するように選ばれ、前記2又は3つの環が有する2つ以上の環構造は同一でも異なってもよい。

前記原子数3以上の環構造を形成しない $R_1 \sim R_{11}$ は、水素原子または置換基を表し、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に、ハ

ロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基である。

$R_{101} \sim R_{105}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基を示す。]

[2] 本発明の一態様によれば、上記[1]に記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が提供される。

[3] 本発明の一態様によれば、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、上記[1]に記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。

[4] 本発明の一態様によれば、上記[3]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた電子機器が提供される。

発明の効果

[0008] 本発明の化合物を有機EL素子用材料として用いると、得られる有機EL素子は、優れた性能を有する。本発明の有機EL素子は電子機器として有用

である。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の構成を示す概略図である。

[図2]実施例1における化合物2のフォトルミネッセンススペクトルを示す図である。

[図3]実施例1における化合物2の吸収スペクトルを示す図である。

発明を実施するための形態

[0010] 本明細書において、「置換もしくは無置換の炭素数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「炭素数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の炭素数を表すものであり、置換されている場合の置換基の炭素数は含めない。

また、本明細書において、「置換もしくは無置換の原子数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「原子数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の原子数を表すものであり、置換されている場合の置換基の原子数は含めない。

[0011] 本明細書において、環形成炭素数とは、原子が環状に結合した構造の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子のうちの炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素数には含まない。以下で記される「環形成炭素数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が6であり、ナフタレン環は環形成炭素数が10であり、ピリジニル基は環形成炭素数5であり、フラニル基は環形成炭素数4である。また、ベンゼン環やナフタレン環に置換基として例えばアルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、環形成炭素数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の炭素数は環形成炭素数の数に含めない。

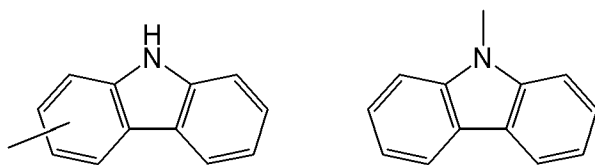
[0012] また、本明細書において、環形成原子数とは、原子が環状に結合した構造（例えば単環、縮合環、環集合）の化合物（例えば単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、複素環化合物）の当該環自体を構成する原子の数を表す。環を構成しない原子や、当該環が置換基によって置換される場合の置換基に含まれる原子は環形成原子数には含まない。以下で記される「環形成原子数」については、特筆しない限り同様とする。例えば、ピリジン環の環形成原子数は6であり、キナゾリン環の環形成原子数は10であり、フラン環の環形成原子数は5である。ピリジン環やキナゾリン環の炭素原子にそれぞれ結合している水素原子や置換基を構成する原子については、環形成原子数の数に含めない。また、フルオレン環に置換基として例えばフルオレン環が結合している場合（スピロフルオレン環を含む）、置換基としてのフルオレン環の原子数は環形成原子数の数に含めない。

[0013] また、本明細書において、「水素原子」とは、中性子数が異なる同位体、すなわち、軽水素（protium）、重水素（deuterium）及び三重水素（tritium）を包含する。

本明細書中において、「ヘテロアリール基」、「ヘテロアリーレン基」及び「複素環基」は、環形成原子として、少なくとも1つのヘテロ原子を含む基であり、該ヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子から選ばれる1種以上であることが好ましい。

[0014] 本明細書中において、「置換もしくは無置換のカルバゾリル基」は、下記のカルバゾリル基、

[化2]

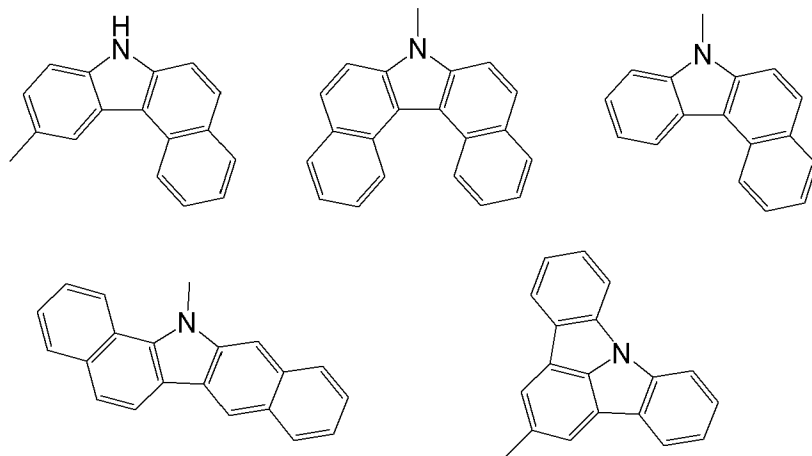


及び上記の基に対して、さらに任意の置換基を有する置換カルバゾリル基を表す。

なお、当該置換カルバゾリル基は、任意の置換基同士が互いに結合して縮

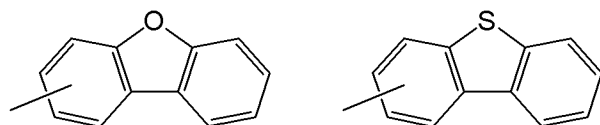
環してもよく、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子等のヘテロ原子を含んでもよく、また、結合位置は1位～9位のいずれであってもよい。このような置換カルバゾリル基の具体例として、例えば、下記に示す基が挙げられる。

[0015] [化3]



[0016] 本明細書において、「置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基」及び「置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基」は、下記のジベンゾフラニル基及びジベンゾチオフェニル基、

[化4]



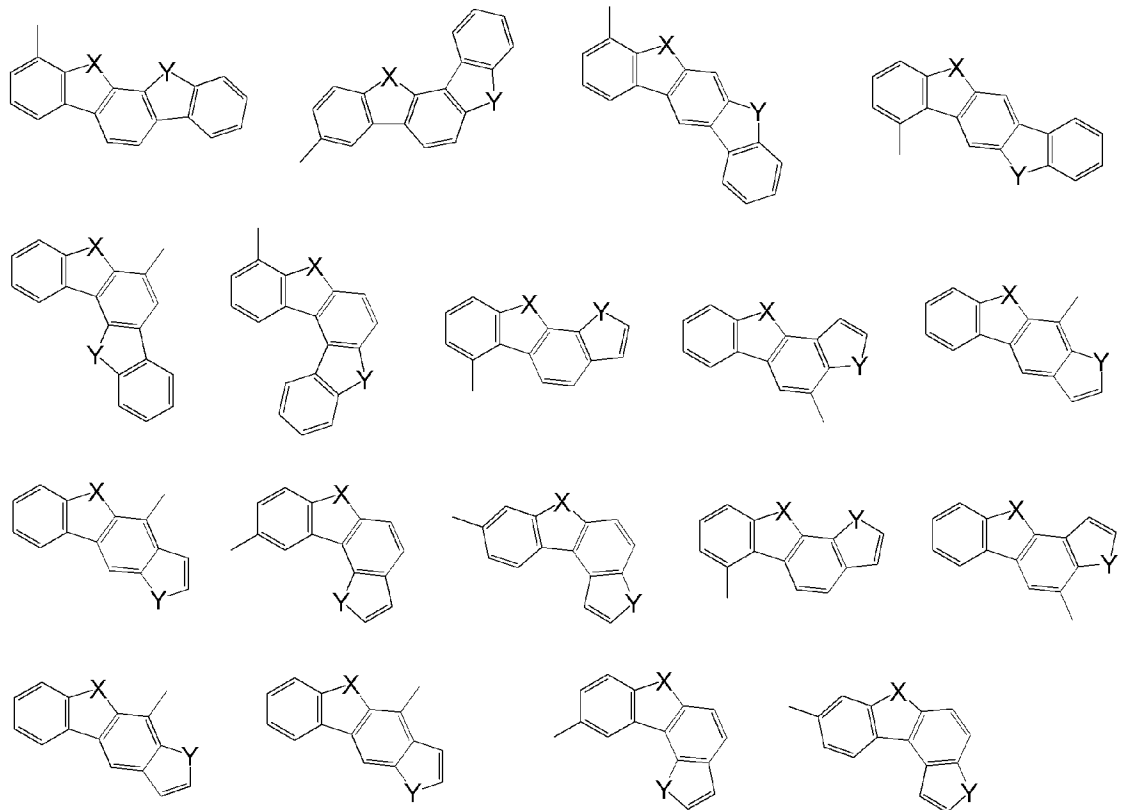
及び上記の基に対して、さらに任意の置換基を有する置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基を表す。

なお、当該置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基は、任意の置換基同士が互いに結合して縮環してもよく、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子及びセレン原子等のヘテロ原子を含んでもよく、また、結合位置は1位～8位のいずれであってもよい。

このような置換ジベンゾフラニル基及び置換ジベンゾチオフェニル基の具体例として、例えば、下記に示す基が挙げられる。

[0017]

[化5]



[上記式中、Xは酸素原子又は硫黄原子を表し、Yは酸素原子、硫黄原子、NH、NR^a（R^aはアルキル基又はアリアル基である。）、CH₂、又は、CR^b₂（R^bはアルキル基又はアリアル基である。）を表す。]

[0018] また、「置換基」、又は「置換もしくは無置換」との記載における置換基としては、別段の定めのない限り、炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基；環形成炭素数3～50（好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6）のシクロアルキル基；環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリアル基；環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリアル基を有する炭素数7～51（好ましくは7～30、より好ましくは7～20）のアラルキル基；アミノ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリアル基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基；炭素数1

～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基を有するアルコキシ基；環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基を有するアリールオキシ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基；環形成原子数5～50（好ましくは5～24、より好ましくは5～13）のヘテロアリール基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のハロアルキル基；ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）；シアノ基；ニトロ基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するスルホニル基；炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォルル基；アルキルスルホニルオキシ基；アリールスルホニルオキシ基；アルキルカルボニルオキシ基；アリールカルボニルオキシ基；ホウ素含有基；亜鉛含有基；スズ含有基；ケイ素含有基；マグネシウム含有基；リチウム含有基；ヒドロキシ基；アルキル置換又はアリール置換カルボニル基；カルボキシル基；ビニル基；（メタ）アクリロイル基；エポキシ基；並びにオキセタニル基からなる群より選ばれる少なくとも1つが好ましいが、特にこれらに制限されるものではない。

これらの置換基は、さらに上述の任意の置換基により置換されていてもよい。また、これらの置換基は、複数の置換基が互いに結合して環を形成していてもよい。

「置換もしくは無置換の」という場合における「無置換」とは前記置換基で置換されておらず、水素原子が結合していることを意味する。

[0019] 上記置換基の中でも、より好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～

50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50（好ましくは3～10、より好ましくは3～8、さらに好ましくは5又は6）のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50（好ましくは1～18、より好ましくは1～8）のアルキル基及び置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～25、より好ましくは6～18）のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～24、より好ましくは5～13）のヘテロアリール基、ハロゲン原子、シアノ基である。

[0020] 前記炭素数1～50のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基（異性体基を含む）、ヘキシル基（異性体基を含む）、ヘプチル基（異性体基を含む）、オクチル基（異性体基を含む）、ノニル基（異性体基を含む）、デシル基（異性体基を含む）、ウンデシル基（異性体基を含む）、及びドデシル基（異性体基を含む）などが挙げられる。これらの中でも、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基及びペンチル基（異性体基を含む）が好ましく、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基及び*t*-ブチル基がより好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基及び*t*-ブチル基が特に好ましい。

前記環形成炭素数3～50のシクロアルキル基としては、例えば、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、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基などが挙げられる。これらの中でも、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

前記環形成炭素数6～50のアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、ナフチル基、アセナフチレニル基、ア

ントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾ [c] フェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾ [g] クリセニル基、s-インダセニル基、a s-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾ [k] フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾ [b] トリフェニレニル基及びペリレニル基などが挙げられる。これらの中でも、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、ピレニル基、フルオランテニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基がより好ましく、フェニル基がさらに好ましい。

前記環形成炭素数 6～50 のアリール基を有する炭素数 7～51 のアラルキル基の具体例としては、アリール基部位が前記環形成炭素数 6～50 のアリール基の具体例であるものが挙げられ、アルキル基部位が前記炭素数 1～50 のアルキル基の具体例であるものが挙げられる。前記炭素数 7～51 のアラルキル基の好ましい例としては、前記アリール基部位が前記環形成炭素数 6～50 のアリール基の好ましい例であるものが挙げられ、前記アルキル基部位が前記炭素数 1～50 のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

前記炭素数 1～50 のアルキル基及び環形成炭素数 6～50 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基の具体例としては、アリール基部位が前記環形成炭素数 6～50 のアリール基の具体例であるものが挙げられ、アルキル基部位が前記炭素数 1～50 のアルキル基の具体例であるものが挙げられる。前記炭素数 1～50 のアルキル基及び環形成炭素数 6～50 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換又はジ置換アミノ基の好ましい例としては、前記アリール基部位が前記環形成炭素数 6～50 のアリール基の好ましい例であるものが挙げられ、前記アルキル基部位が前記炭素数 1～50 のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例、特に好ましい具体例についても同様である。

前記炭素数 1～50 のアルキル基を有するアルコキシ基の具体例としては、アルキル基部位が前記炭素数 1～50 のアルキル基の具体例であるものが挙げられる。前記炭素数 1～50 のアルキル基を有するアルコキシ基の好ましい例としては、前記アルキル基部位が前記炭素数 1～50 のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例、特に好ましい具体例についても同様である。

前記環形成炭素数 6～50 のアリール基を有するアリーロキシ基の具体例としては、アリール基部位が前記環形成炭素数 6～50 のアリール基の具体例であるものが挙げられる。前記環形成炭素数 6～50 のアリール基を有するアリーロキシ基の好ましい例としては、前記アリール基部位が前記環形成炭素数 6～50 のアリール基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

前記炭素数 1～50 のアルキル基及び環形成炭素数 6～50 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基としては、モノアルキルシリル基、ジアルキルシリル基、トリアルキルシリル基；モノアリールシリル基、ジアアリールシリル基、トリアアリールシリル基；モノアルキルジアアリールシリル基、ジアルキルモノアリールシリル基が挙げられ、これらのアルキル基部位及びアリール部位を、それぞれ、前記環形成炭素数 6～50 のアリール基、炭素数 1～50 のアルキル基の具体例とした例が挙げられる。また、前記炭素数 1～50 のアルキル基及び環形成炭素数 6～50 のアリール基から選ばれる置換基を有するモノ置換、ジ置換又はトリ置換シリル基の好ましい例としては、モノアルキルシリル基、ジアルキルシリル基、トリアルキルシリル基；モノアリールシリル基、ジアアリールシリル基、トリアアリールシリル基；モノアルキルジアアリールシリル基、ジアルキルモノアリールシリル基のアルキル基部位及びアリール部位が、それぞれ、前記環形成炭素数 6～50 のアリール基、炭素数 1～50 のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例、特に好ましい具体例についても同様である。

前記環形成原子数5～50のヘテロアリール基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、イソベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、9-フェニルカルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基及びキサントニル基などが挙げられる。これらの中でも、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、ベンズイミダゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、9-フェニルカルバゾリル基、フェナントロリニル基、キナゾリニル基が好ましい。

前記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

前記炭素数1～50のハロアルキル基の具体例としては、前記炭素数1～50のアルキル基の水素原子が前記ハロゲン原子で置換された例が挙げられ、その場合の好ましいアルキル基は、前記炭素数1～50のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例、特に好ましい具体例についても同様である。

前記炭素数1～50のアルキル基及び環形成炭素数6～50のアリール基から選ばれる置換基を有するスルホニル基、前記炭素数1～50のアルキル

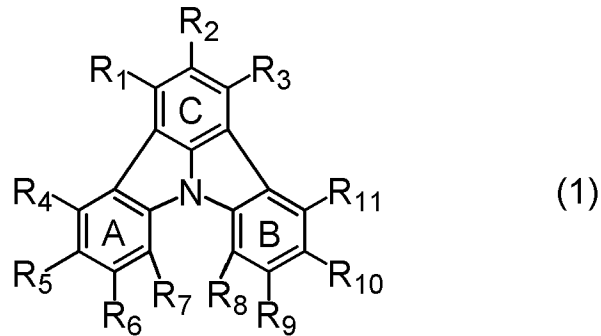
基及び環形成炭素数 6～50 のアリアル基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリアルスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリアルカルボニルオキシ基、アルキル置換又はアリアル置換カルボニル基の例としては、それぞれのアリアル基部位とアルキル基部位を、それぞれ、前記環形成炭素数 6～50 のアリアル基、炭素数 1～50 のアルキル基の具体例とした例が挙げられる。また、前記炭素数 1～50 のアルキル基及び環形成炭素数 6～50 のアリアル基から選ばれる置換基を有するスルホニル基、前記炭素数 1～50 のアルキル基及び環形成炭素数 6～50 のアリアル基から選ばれる置換基を有するジ置換ホスフォル基、アルキルスルホニルオキシ基、アリアルスルホニルオキシ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリアルカルボニルオキシ基、アルキル置換又はアリアル置換カルボニル基の好ましい例としては、それぞれのアリアル基部位とアルキル基部位が、それぞれ、前記環形成炭素数 6～50 のアリアル基、炭素数 1～50 のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例、特に好ましい具体例についても同様である。

[0021] 本明細書中、好ましいとする態様（例えば、化合物、各種基、数値範囲等）は、他のあらゆる態様（例えば、化合物、各種基、数値範囲等）と任意に組み合わせることができ、また、好ましいとする態様（より好ましい態様、更に好ましい態様、特に好ましい態様を含む。）の組み合わせはより好ましいと言える。

[0022] [化合物]

本発明の一様態に係る化合物は、下記式（1）で表される。

[化6]



[0023] [式中、式(1)において、

R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つ以上の対のそれぞれにおいて、 R_n と R_{n+1} (n は1、2、4~6、及び8~10から選ばれる整数を表す)は互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する。この環構造を構成する原子のうち、置換基を有しうる原子は水素原子または置換基を有し、該置換基は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50のヘテロアリール基から選ばれる。それら置換基同士が結合してさらなる環構造を形成してもよい。なお、前記原子数3以上の環の原子数には、前記置換基

の原子数は含まない。

ただし、 R_1 と R_2 からなる対と R_2 と R_3 からなる対； R_4 と R_5 からなる対と R_5 と R_6 からなる対； R_5 と R_6 からなる対と R_6 と R_7 からなる対； R_8 と R_9 からなる対と R_9 と R_{10} からなる対；及び R_9 と R_{10} からなる対と R_{10} と R_{11} からなる対が、環構造を同時に形成することはない。

前記2つ以上の対は、環A、環B及び環Cから選ばれる2又は3つの環が、前記炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を有するように選ばれ、前記2又は3つの環が有する2つ以上の環構造は同一でも異なってもよい。

前記原子数3以上の環構造を形成しない $R_1 \sim R_{11}$ は、水素原子または置換基を表し、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基である。

$R_{101} \sim R_{105}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基を示す。]

[0024] 本段落では、前段落における、「 R_n と R_{n+1} (n は1、2、4~6、及び8~10から選ばれる整数を表す)は互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する」の意味を詳述する。

$R_1 \sim R_{11}$ は、水素原子または置換基を表すか、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から選ばれる1つの原子または複数個の互いに結合した原子を表す。

$R_1 \sim R_{11}$ が、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から選ばれる1つの原子または複数個の互いに結合した原子を表す場合は、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つ以上の対のそれぞれにおいて、 R_n と R_{n+1} (n は1、2、4~6、及び8~10から選ばれる整数を表す)は互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子及び窒素原子から選ばれる原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する。

上記した R_n と R_{n+1} (n は1、2、4~6、及び8~10から選ばれる整数を表す)が互いに結合するとは、 R_n が表すいずれかの原子と R_{n+1} が表すいずれかの原子が、互いに連結している状態を示す。ここで、「 R_n が表すいずれかの原子」は、 R_n が1つの原子を表す場合には該1つの原子を意味し、 R_n が複数個の互いに結合した原子を表す場合には R_n の末端の原子または末端以外の原子を意味する。前記「 R_{n+1} が表すいずれかの原子」についても同様である。

該結合は、例えば単結合、二重結合、または1~2の間の結合次数を有する結合である。 R_n 、 R_{n+1} が複数個の互いに結合した原子を表す場合の「結合」についても、同様である。

[0025] 本発明の一様態において、前記式(1)の化合物は、前記の環構造(式(1))の R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる対のそれぞれにおいて、 R_n と R

$n+1$ (n は1、2、4~6、及び8~10から選ばれる整数を表す)が互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成する原子数3以上の環構造)を2つ有することは、好ましい。例えば、 R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つ以上の対のそれぞれにおいて、 R_n と R_{n+1} (n は4~6、及び8~10から選ばれる整数を表す)は互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成することが挙げられる。本発明の一様態において、式(1)の R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つの対において、前記環構造を有することが挙げられる。

また、本発明の一様態において、前記式(1)の化合物は、該環構造を3つ有することもまた、好ましい。その場合、該環構造は、それぞれ前記式(1)の母骨格上の異なるベンゼン環、すなわち、環A、環B、環Cのそれぞれに1つずつ、該環構造があることが特に好ましい。

また、本発明の一様態において、前記式(1)の化合物は、該環構造を4つ以上有することも好ましい。

[0026] また、本発明の一様態において、前記式(1)の化合物は、 $R_1 \sim R_3$ が、水素原子または置換基を表し、 $R_1 \sim R_3$ が置換基を表す場合、 $R_1 \sim R_3$ はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102}$

) (R_{103}) で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基であることは、好ましい。

[0027] 式 (1) 中、 $R_1 \sim R_{11}$ が示すハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数 1 ~ 20 (好ましくは 1 ~ 10、より好ましくは 1 ~ 6) のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基 (異性体基を含む)、ヘキシル基 (異性体基を含む)、ヘプチル基 (異性体基を含む)、オクチル基 (異性体基を含む)、ノニル基 (異性体基を含む)、デシル基 (異性体基を含む)、ウンデシル基 (異性体基を含む)、及びドデシル基 (異性体基を含む) などが挙げられる。これらの中でも、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基及びペンチル基 (異性体基を含む) が好ましく、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*s*-ブチル基及び *t*-ブチル基がより好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基及び *t*-ブチル基がさらに好ましい。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数 1 ~ 20 (好ましくは 1 ~ 10、より好ましくは 1 ~ 6) のアルケニル基としては、ビニル基、2-プロペニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、4-ペンテニル基、2-メチル-2-プロペニル基、2-メチル-2-ブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基等が挙げられる。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数 1 ~ 20 (好ましくは 1 ~ 10、より好ましくは 1 ~ 6) のアルキニル基としては、2-プロピニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、4-ペンチニル基、5-ヘキシニル基、1-メチル-2-プロピニル基、1-メチル-2-ブチニル基、1, 1-ジメチル-2-プロピニル基等が挙げられる。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す環形成炭素数3～20（好ましくは3～6、より好ましくは5又は6）のシクロアルキル基としては、例えば、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、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、アダマンチル基などが挙げられる。これらの中でも、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

[0028] $R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記炭素数1～20のアルキル基であるアルコキシ基が挙げられる。好ましいアルコキシ基の具体例としては、アルキル基部位が前記炭素数1～50のアルキル基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のフルオロアルキル基としては、前記アルキル基の水素原子がフッ素で置換された基が挙げられ、好ましいハロアルキル基としては前記好ましいアルキル基であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のフルオロアルコキシ基としては、前記アルコキシ基の水素原子がフッ素で置換された基が挙げられ、好ましいアルコキシ基としては前記好ましいアルコキシ基が挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～24、さらに好ましくは6～18）のアリールオキシ基としては、アリール基部位が、後述する $R_1 \sim R_{11}$ の環形成炭素数6～50のアリール基であるものが挙げられる。好ましいアリールオキシ基の具体例としては、アリール基部位が、後述の環形成炭素数6～50のアリール基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す炭素数1～20（好ましくは炭素数1～10、より好ましくは炭素数1～6）のアルキルチオ基としては、アルキル基部位が前記炭素数1～20のアルキル基であるものが挙げられる。好ましいアルキルチオ基の具体例としては、アルキル基部位が、前記好ましいアルキル基であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

$R_1 \sim R_{11}$ が示す環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～24、さらに好ましくは6～18）のアリールチオ基としては、アリール基部位が、後述する $R_1 \sim R_{11}$ の環形成炭素数6～50のアリール基であるものが挙げられる。好ましいアリールチオ基の具体例としては、アリール基部位が、後述の環形成炭素数6～50のアリール基の好ましい例であるものが挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

[0029] $R_1 \sim R_{11}$ が示す「 $-S_i(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基」としては、具体的には、モノアルキルシリル基、ジアルキルシリル基、トリアルキルシリル基；モノアリールシリル基、ジアリールシリル基、トリアリールシリル基；モノアルキルジアリールシリル基、ジアルキルモノアリールシリル基が挙げられる。

これら置換シリル基において、アルキル基部位の炭素数は、それぞれ、好ましくは1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～6である。アリール基部位の環形成炭素数は、それぞれ、好ましくは6～50、より好ましくは6～30、さらに好ましくは6～24、特に好ましくは6～18である。

これらの中でも、トリアルキルシリル基、トリアリールシリル基が好ましく、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリスプロピルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、トリトリルシリル基がより好ましい。

[0030] $R_1 \sim R_{11}$ が示す「 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基」としては、具

体的には、モノアルキルアミノ基、ジアルキルアミノ基、モノアリアルアミノ基、ジアリアルアミノ基、モノヘテロアリアルアミノ基、ジヘテロアリアルアミノ基、モノアルキルモノアリアルアミノ基、モノアルキルモノヘテロアリアルアミノ基、モノアリアルモノヘテロアリアルアミノ基が挙げられる。これら置換アミノ基中のアリアル基部位は、炭素数1~20（好ましくは1~10、より好ましくは1~6）のアルキル基などが置換していてもよい。

これら置換アミノ基において、アルキル基部位の炭素数は、それぞれ、好ましくは1~20、より好ましくは1~10、さらに好ましくは1~6である。アリアル基部位の環形成炭素数は、それぞれ、好ましくは6~50、より好ましくは6~30、さらに好ましくは6~24、特に好ましくは6~18である。ヘテロアリアル基部位の環形成原子数は、それぞれ、好ましくは5~50、より好ましくは5~30、さらに好ましくは5~18、特に好ましくは5~13である。

これらの中でも、ジアルキルアミノ基、ジアリアルアミノ基、ジヘテロアリアルアミノ基、モノアリアルモノヘテロアリアルアミノ基が好ましく、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ビス（アルキル置換フェニル）アミノ基、ビス（アリアル置換フェニル）アミノ基がより好ましい。

また、アルキル基部位の具体例としては、前記炭素数1~20のアルキル基の具体例が挙げられる。アルキル基部位の好ましい例としては、前記炭素数1~20のアルキル基の好ましい例が挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

アリアル基部位の具体例としては、後述する環形成炭素数6~50のアリアル基の具体例が挙げられる。アリアル基部位の好ましい具体例としては、後述する環形成炭素数6~50のアリアル基の好ましい具体例が挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

ヘテロアリアル基部位の具体例としては、後述する環形成原子数5~50

のヘテロアリアル基の具体例が挙げられる。ヘテロアリアル基部位の好ましい具体例としては、後述する環形成原子数5～50のヘテロアリアル基の好ましい具体例が挙げられる。より好ましい具体例、さらに好ましい具体例についても同様である。

なお、式(1)中、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基が複数存在する場合、これらは互いに同一でも異なってもよい。また、式(1)中、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基が複数存在する場合、これらは互いに同一でも異なってもよい。

[0031] $R_1 \sim R_{11}$ が示す環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～24、さらに好ましくは6～18）のアリアル基は、縮合環であっても非縮合環であってもよい。該アリアル基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アセナフチレニル基、アントリル基、ベンゾアントリル基、アセアントリル基、フェナントリル基、ベンゾ[c]フェナントリル基、フェナレニル基、フルオレニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、ベンゾ[g]クリセニル基、s-インダセニル基、as-インダセニル基、フルオランテニル基、ベンゾ[k]フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ベンゾ[b]トリフェニレニル基及びペリレニル基などが挙げられる。これらの中でも、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、ピレニル基、フルオランテニル基が好ましく、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基がより好ましく、フェニル基がさらに好ましい。

[0032] $R_1 \sim R_{11}$ が示す環形成原子数5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～18、特に好ましくは5～13）のヘテロアリアル基は、少なくとも1個、好ましくは1～5個、より好ましくは1～4個、さらに好ましくは1～3個のヘテロ原子を含む。該ヘテロ原子としては、例えば、窒素原子、硫黄原子及び酸素原子が挙げられ、窒素原子、酸素原子が好ましい。

該ヘテロアリアル基としては、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、

ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、インドリル基、イソインドリル基、ベンゾフラニル基、イソベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、イソベンゾチオフェニル基、インドリジニル基、キノリジニル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリル基、フタラジニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズオキサゾリル基、ベンズチアゾリル基、インダゾリル基、ベンズイソキサゾリル基、ベンズイソチアゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、9-フェニルカルバゾリル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェノチアジニル基、フェノキサジニル基及びキサントニル基などが挙げられる。これらの中でも、ピリジル基、イミダゾピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、ベンズイミダゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、カルバゾリル基、9-フェニルカルバゾリル基、フェナントロリニル基、キナゾリニル基が好ましい。

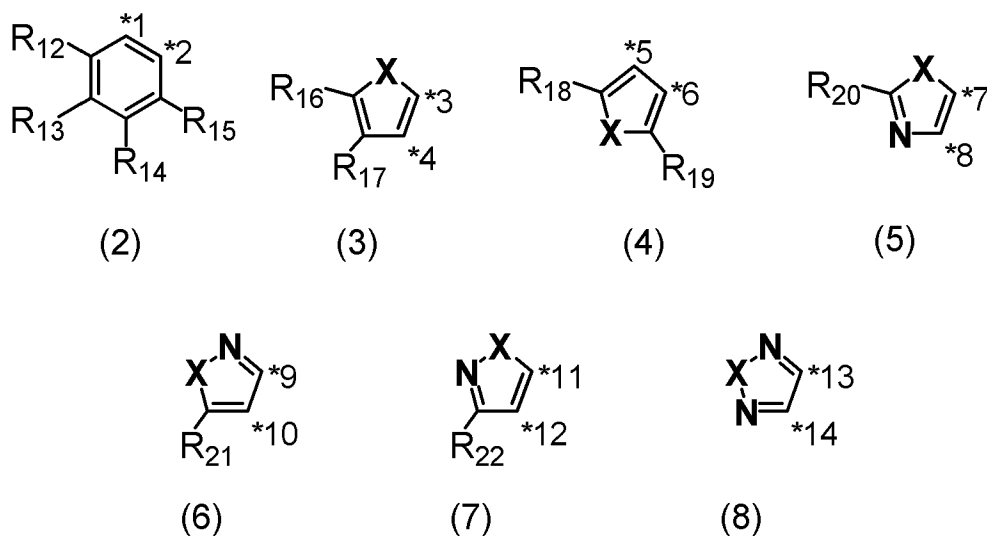
[0033] 式(1)において、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する場合の環構造が有する置換基の示す、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_1$

o₄) (R_{105}) で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 のヘテロアリール基の例としては、上記 $R_1 \sim R_{11}$ で説明した各基の例と同様の具体例が挙げられ、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。前記置換基としては、例えば、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基が挙げられる。

[0034] 前記式 (1) において、 R_n と R_{n+1} が結合する 2 つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数 3 以上の環構造は、特に限定されないが、原子数 3 ~ 7 の環であると好ましく、原子数 5 または 6 の環であると特に好ましい。

また、前記式 (1) において、 R_n と R_{n+1} が結合する 2 つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数 3 以上の環は、下記式 (2) ~ (8) から選ばれるいずれかの環であることも好ましく、(9) ~ (11) から選ばれるいずれかの基であることも好ましい。

[化7]



[0035] (式 (2) ~ (8) において、 $*1$ と $*2$ 、 $*3$ と $*4$ 、 $*5$ と $*6$ 、 $*7$ と $*8$ 、 $*9$ と $*10$ 、 $*11$ と $*12$ 及び $*13$ と $*14$ のそれぞれは、 R_n と R_{n+1} が結合する前記 2 つの環形成炭素原子を表し、 R_n が結合する環形

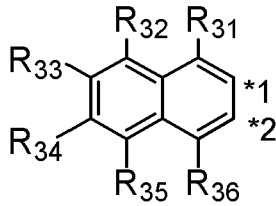
成炭素原子は、*1と*2、*3と*4、*5と*6、*7と*8、*9と*10、*11と*12及び*13と*14が表す2つの環形成炭素原子のどちらであってもよい。

XはC(R₂₃)(R₂₄)、NR₂₅、O、Sから選ばれる。R₁₂~R₂₅は、前記R₁~R₁₁と同じである。

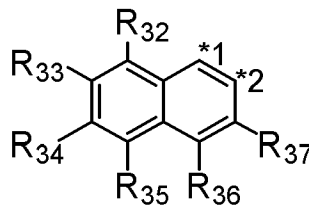
R₁₂~R₁₇及びR₂₃~R₂₄は、隣接する基同士で互いに結合して環構造を形成してもよい。))

R₁₂~R₂₅の例としては、前記式(1)のR₁~R₁₁と同じであり、具体例や好ましい基も同様のものが挙げられる。

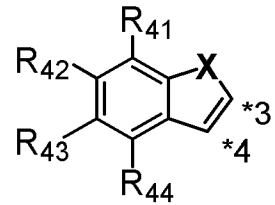
[0036] [化8]



(9)



(10)



(11)

[0037] (式(9)~(11)において、*1と*2、及び*3と*4のそれぞれは、R_nとR_{n+1}が結合する前記2つの環形成炭素原子を表し、R_nが結合する環形成炭素原子は、*1と*2、又は*3と*4が表す2つの環形成炭素原子のどちらであってもよい。

R₃₁~R₃₇及びR₄₁~R₄₄は、前記R₁₂~R₂₅と同じであり、Xは、前記と同じである。

R₃₁~R₃₇及びR₄₁~R₄₄は、隣接する基同士で互いに結合して環構造を形成してもよい。))

Xに含まれるR₂₃~R₂₅、R₃₁~R₃₇及びR₄₁~R₄₄の例としては、前記式(1)のR₁~R₁₁と同じであり、具体例や好ましい基も同様のものが挙げられる。

[0038] 式(1)において、R₂、R₄、R₅、R₁₀及びR₁₁の少なくとも1つ(好ましくは、R₂、R₅及びR₁₀の少なくとも1つ、さらに好ましくはR₂)が、

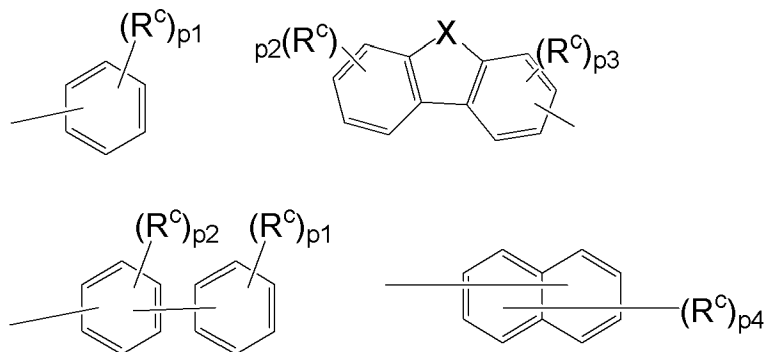
環構造を形成しない基であって、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～20 のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基 [$R_{101} \sim R_{103}$ は前記と同じ]、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基 [R_{104} 及び R_{105} は前記と同じ]、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基であると好ましい。

これら各基の具体例、好ましい炭素数及び原子数等は前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。

[0039] (i) 式 (1) において、 R_n と R_{n+1} が結合する 2 つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数 3 以上の環構造を形成する場合の環構造が有する置換基、(ii) 式 (1) において、前記環構造を形成しない $R_1 \sim R_{11}$ 、(iii) 式 (2) ～ (11) において、 $R_{12} \sim R_{22}$ 、 $R_{31} \sim R_{37}$ 及び $R_{41} \sim R_{44}$ が、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかであると好ましい。

[0040]

[化9]



(式中、 R^o は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。Xは前記と同じである。

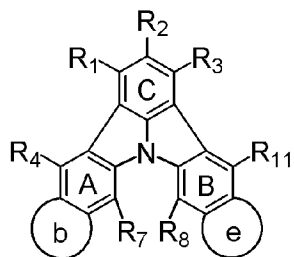
p_1 は0～5の整数、 p_2 は0～4の整数、 p_3 は0～3の整数、 p_4 は0～7の整数である。)

Xに含まれる $R_{23} \sim R_{25}$ 、及び R^o の例としては、前記式(1)の $R_1 \sim R_{11}$ と同じであり、具体例や好ましい基も同様のものが挙げられる。

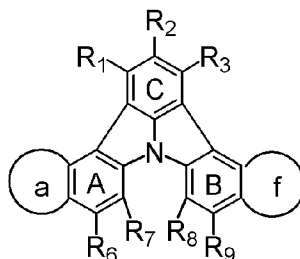
[0041] 前記式(1)の化合物は、下記式(1-1)～(1-6)のいずれかで表されると好ましく、式(1-1)～(1-3)及び(1-5)のいずれかで表されるとより好ましく、式(1-1)及び(1-5)のいずれかで表されるとさらに好ましい。

[0042]

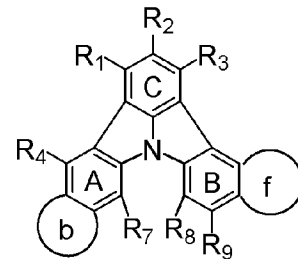
[化10]



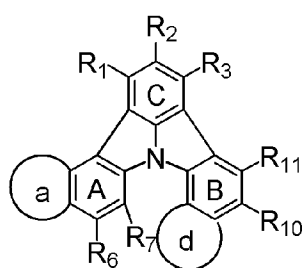
(1-1)



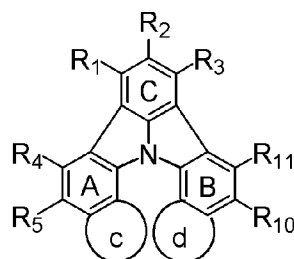
(1-2)



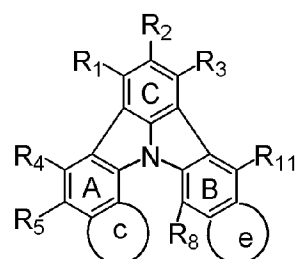
(1-3)



(1-4)



(1-5)



(1-6)

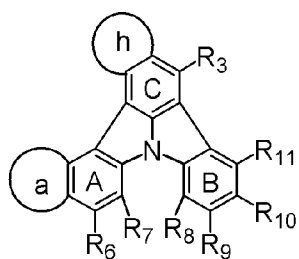
[0043] (式(1-1)～(1-6)において、 $R_1 \sim R_{11}$ は前記と同じであり、具体例、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。環a～fは、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造である。この環は、さらに置換基を有していてもよく、それら置換基同士が結合して環構造を形成してもよい。さらに有してもよい置換基は、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合と同じである。なお、前記原子数3以上の環は、さらに置換している置換基の原子数は含まない。)

式(1-1)～(1-6)において、前記環a～fの示す、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造は、特に限定されないが、原子数3～7の環であると好ましく、原子数5または6の環であると特に好ましい。また、前記式(2)～(8)から選ばれるいずれかの環であることも好ましく、(9)～(11)から選ばれるいずれかの基であることも好ましい。

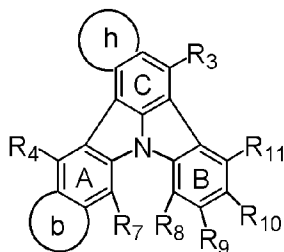
式(1-1)～(1-6)において、さらに有してもよい置換基としては、上記 $R_1 \sim R_{11}$ で説明した各基の例と同様の具体例が挙げられ、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。

[0044] 前記式(1)の化合物は、下記式(2-1)～(2-6)のいずれかで表されると好ましく、式(2-2)及び(2-5)のいずれかで表されるとより好ましい。

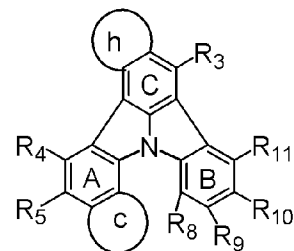
[0045] [化11]



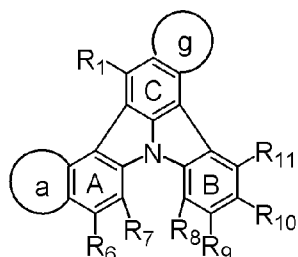
(2-1)



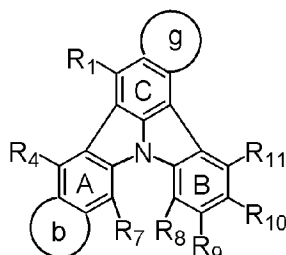
(2-2)



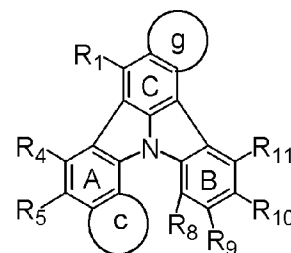
(2-3)



(2-4)



(2-5)



(2-6)

[0046] (式(2-1)～(2-6)において、 R_1 及び $R_3 \sim R_{11}$ は前記と同じであり、具体例、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。環a～c及びg～hは、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造である。この環は、さらに置換基を有していてもよく、それら置換基同士が結合して環構造を形成してもよい。さらに有してもよい置換基は、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合と同じである。なお、前記原子数3以上の環は、さらに置換している置換基の原子数は含まない。)

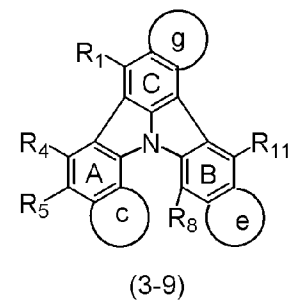
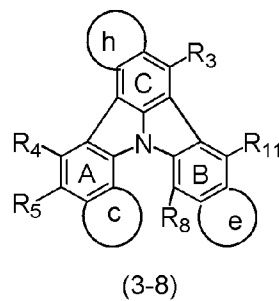
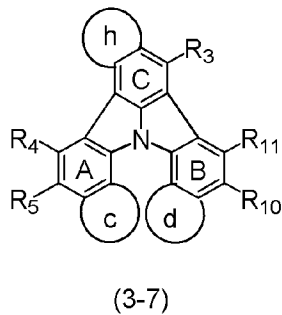
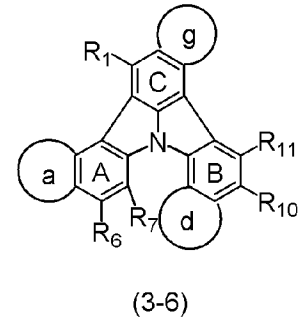
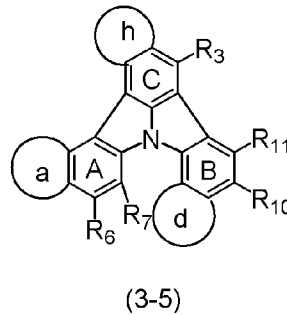
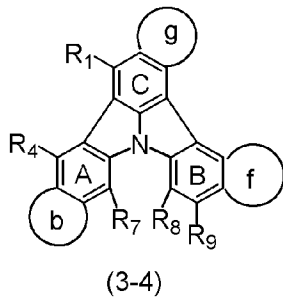
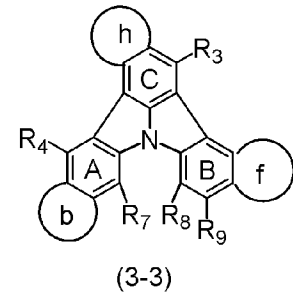
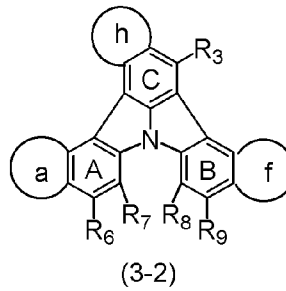
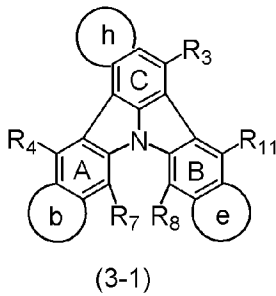
式(2-1)～(2-6)において、前記環a～c及びg～hの示す、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造は、特に限定されないが、原子数3～7の環であると好ましく、原子数5または6の環であると特に好ましい。また、前記式(2)～(8)から選ばれるいずれかの環であることも好ましく、(9)～(11)から選ばれるい

いずれかの基であることも好ましい。

式(2-1)～(2-6)において、さらに有してもよい置換基としては、上記 $R_1 \sim R_{11}$ で説明した各基の例と同様の具体例が挙げられ、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。

[0047] 前記式(1)の化合物は、下記式(3-1)～(3-9)のいずれかで表されると好ましく、式(3-1)で表されるとより好ましい。

[0048] [化12]



[0049] (式(3-1)～(3-9)において、 R_1 及び $R_3 \sim R_{11}$ は前記と同じであり、具体例、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。環a～hは、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造である。この環は、さらに置換基を有している

もよく、それら置換基同士が結合して環構造を形成してもよい。さらに有してもよい置換基は、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合と同じである。なお、前記原子数3以上の環は、さらに置換している置換基の原子数は含まない。）

式(3-1)～(3-9)において、前記環a～hの示す、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造は、特に限定されないが、原子数3～7の環であると好ましく、原子数5または6の環であると特に好ましい。また、前記式(2)～(8)から選ばれるいずれかの環であることも好ましく、(9)～(11)から選ばれるいずれかの基であることも好ましい。

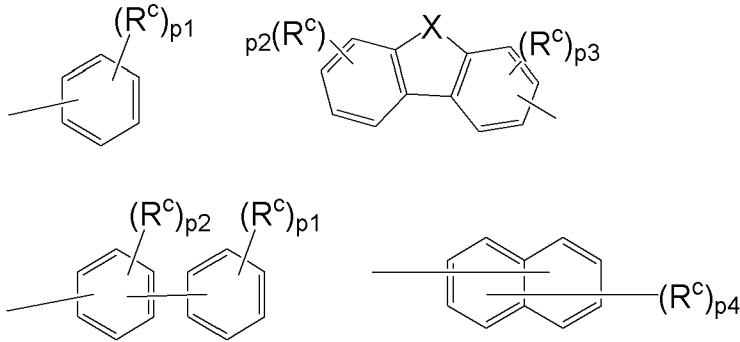
式(3-1)～(3-9)において、前記環a～hの示す、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造は、例えば、炭素原子、酸素原子、硫黄原子から構成される原子数3以上の環構造である。また、前記環g又はhが置換基を有する場合の置換基の前記ヘテロアリアル基に含まれるヘテロ原子は、例えば、硫黄原子及び/又は酸素原子である。

式(3-1)～(3-9)において、さらに有してもよい置換基としては、上記 $R_1 \sim R_{11}$ で説明した各基の例と同様の具体例が挙げられ、好ましい炭素数、原子数及び好ましい基も同様である。

[0050] 前記式(1-1)～(1-6)、(2-1)～(2-6)及び(3-1)～(3-9)において、環a～hがさらに置換基を有する場合の置換基もしくは環a～hを形成しない $R_1 \sim R_{11}$ が、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリアル基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリアル基、又は下記の群から選択される基のいずれかであると好ましい。

[0051]

[化13]



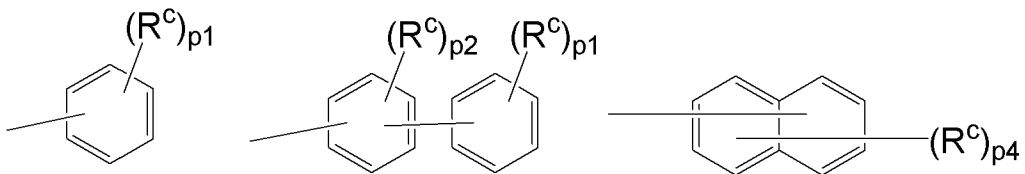
(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。 X は前記と同じである。

p_1 は0～5の整数、 p_2 は0～4の整数、 p_3 は0～3の整数、 p_4 は0～7の整数である。)

X に含まれる $R_{23} \sim R_{25}$ 及び R^c の例としては、前記式(1)の $R_1 \sim R_{11}$ と同じであり、具体例や好ましい基も同様のものが挙げられる。

[0052] 前記環 g 又は h がさらに置換基を有する場合の置換基としては、例えば、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかが挙げられる。

[化14]

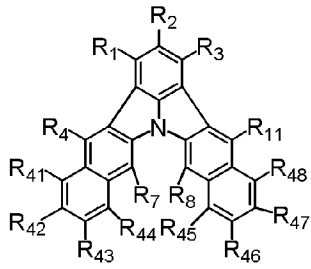


(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。

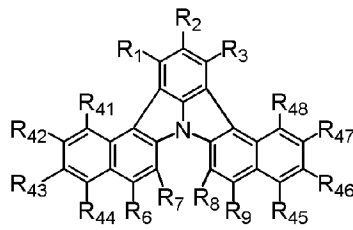
p_1 は0～5の整数、 p_2 は0～4の整数、 p_4 は0～7の整数である。)

[0053] 前記式(1)の化合物は、下記式(4-1)～(4-4)のいずれかで表されると好ましい。

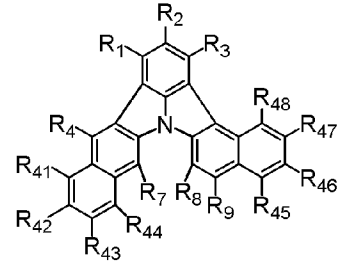
[化15]



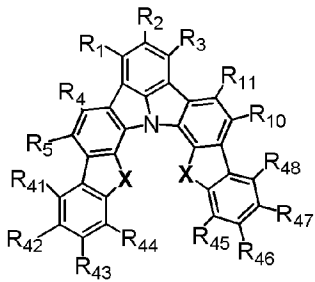
(4-1)



(4-2)



(4-3)



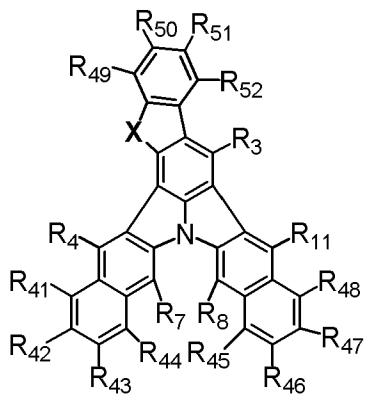
(4-4)

[0054] (式(4-1)～(4-4)において、XはC(R₂₃)(R₂₄)、NR₂₅、O、Sから選ばれる。R₁～R₅、R₇～R₁₁、R₄₁～R₄₈及びR₂₃～R₂₅は、前記R₁～R₁₁と同じである。)

R₁～R₅、R₇～R₁₁、R₄₁～R₄₈及びR₂₃～R₂₅の例としては、前記式(1)のR₁～R₁₁と同じであり、具体例や好ましい基も同様のものが挙げられる。

[0055] 前記式(1)の化合物は、下記式(5-1)で表されると好ましい。

[化16]



(5-1)

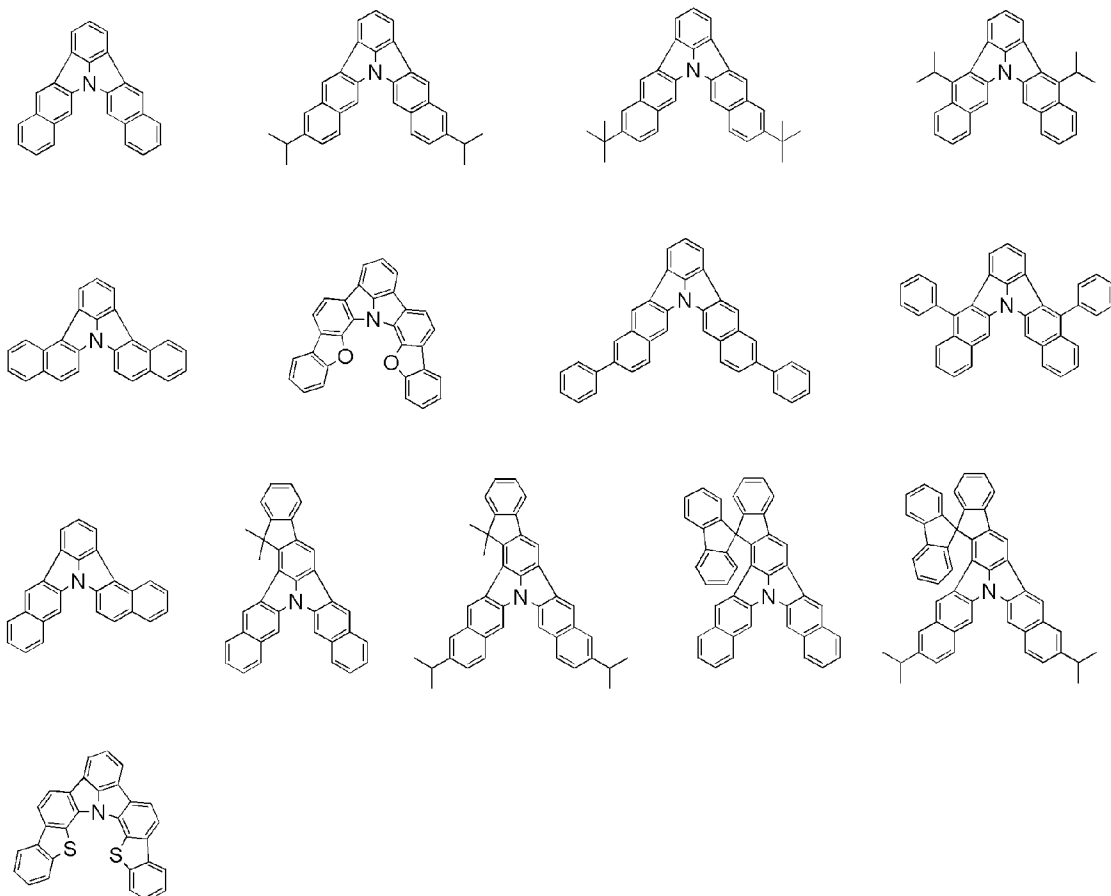
(式(5-1)において、XはC(R₂₃)(R₂₄)、NR₂₅、O、Sから選ばれる。R₃、R₄、R₇、R₈、R₁₁、R₄₁~R₅₂及びR₂₃~R₂₅は、前記R₁~R₁₁と同じである。)

R₃、R₄、R₇、R₈、R₁₁、R₄₁~R₅₂及びR₂₃~R₂₅の例としては、前記式(1)のR₁~R₁₁と同じであり、具体例や好ましい基も同様のものが挙げられる。例えば、R₂₅は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基である。

[0056] 本発明の化合物の具体例を以下に挙げるが、特にこれらに制限されるものではない。

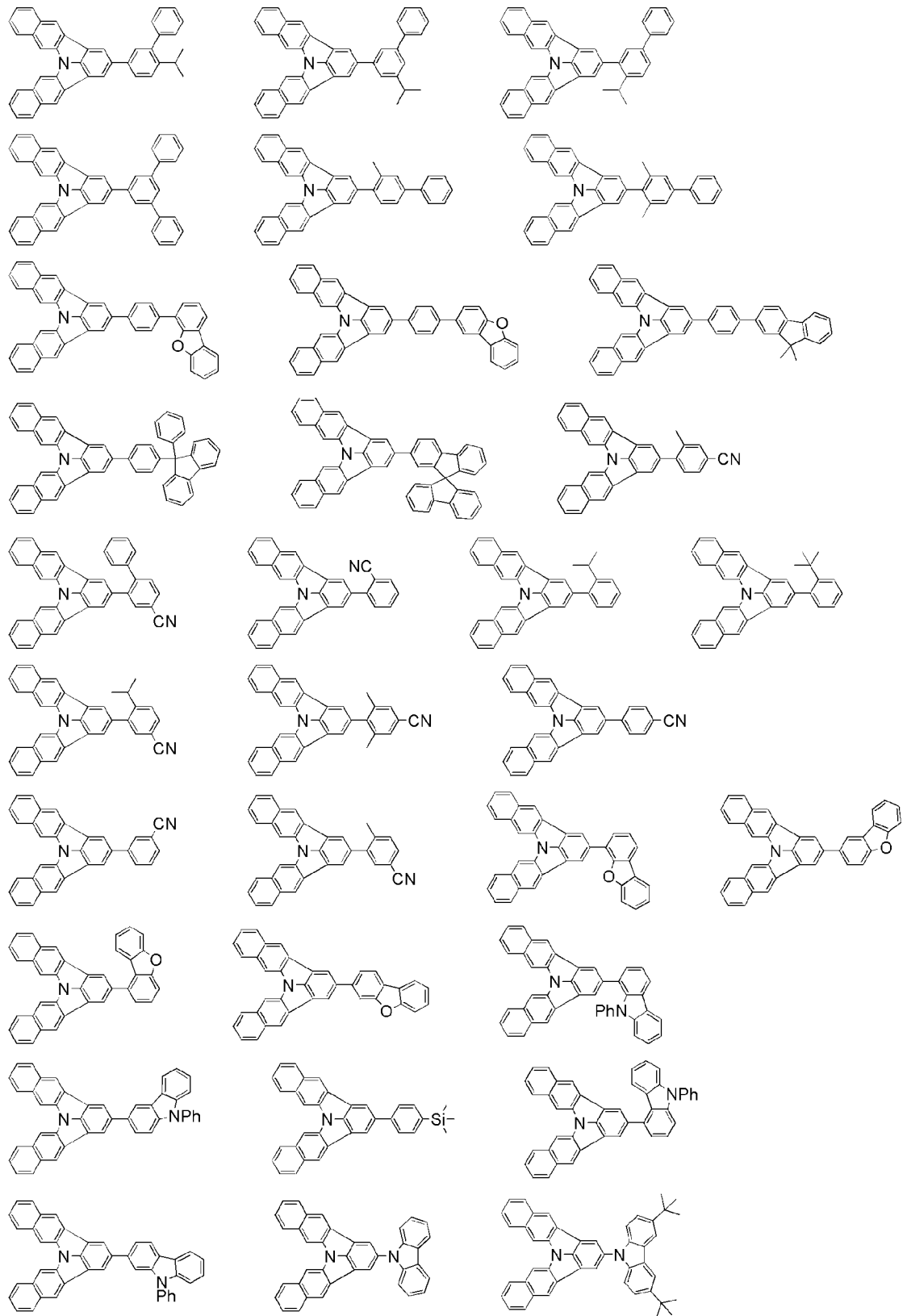
下記具体例中、Phはフェニル基、Dは重水素原子を示す。

[0057] [化17]



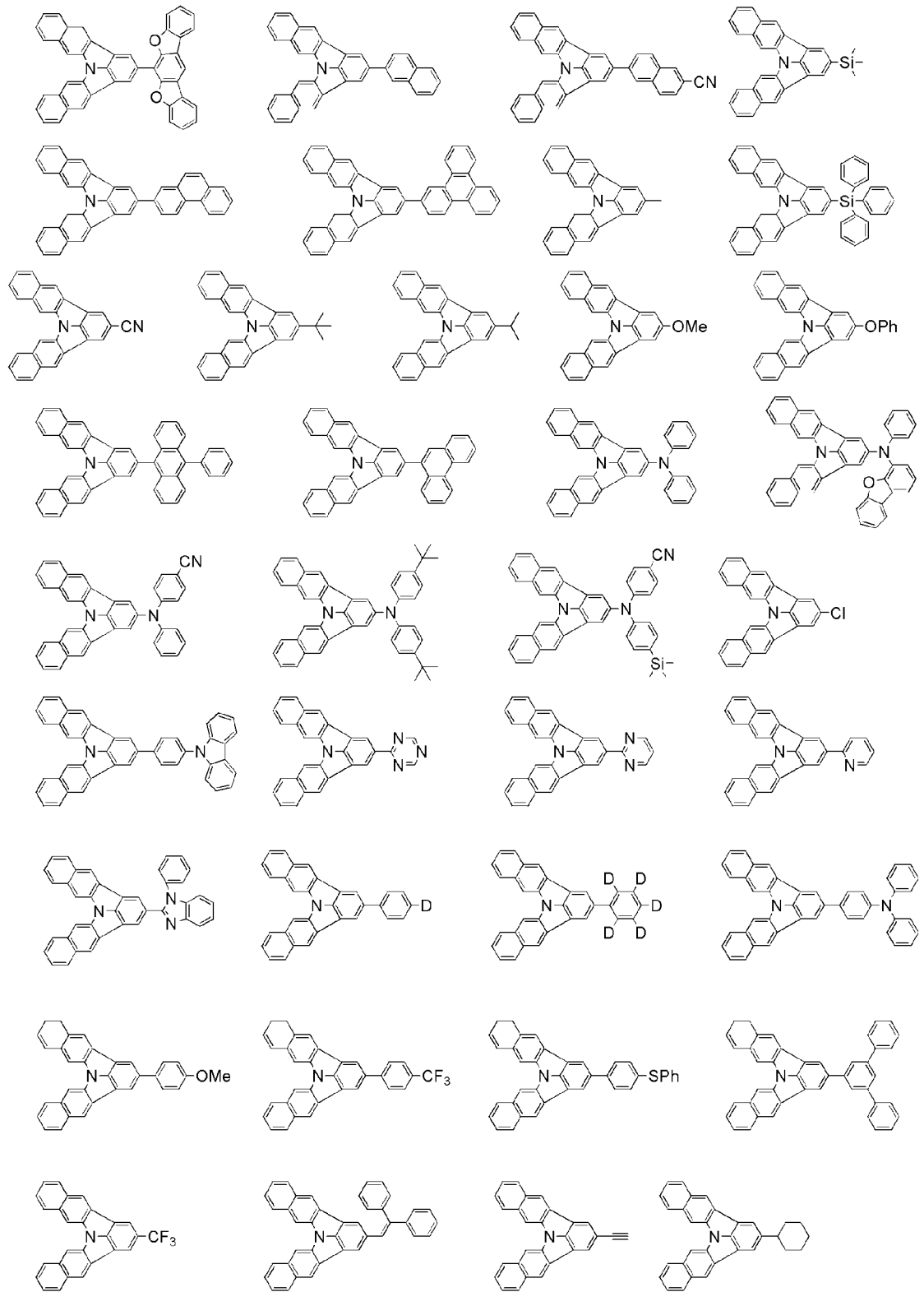
[0058]

[0059] [化19]



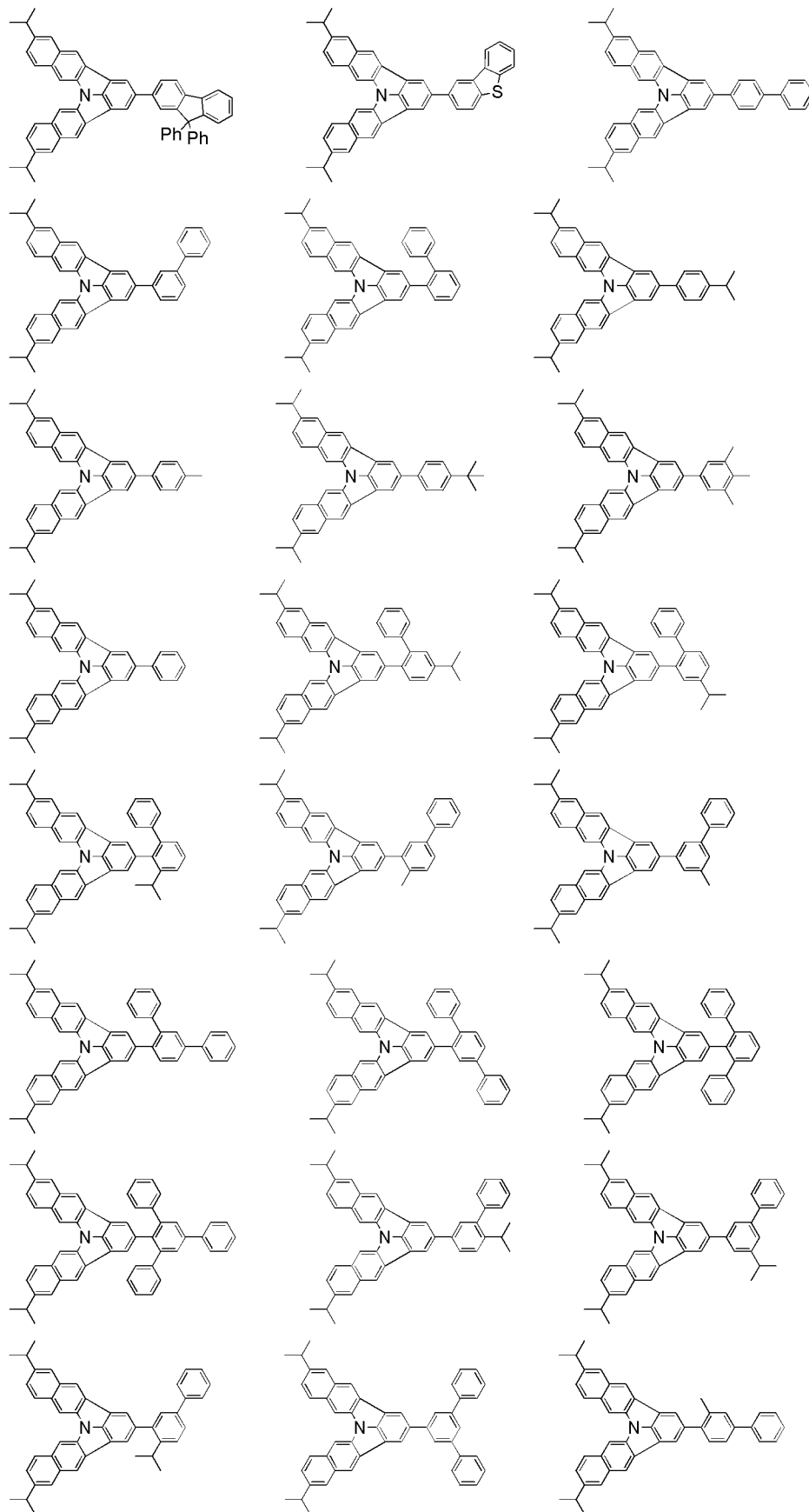
[0060]

[化20]

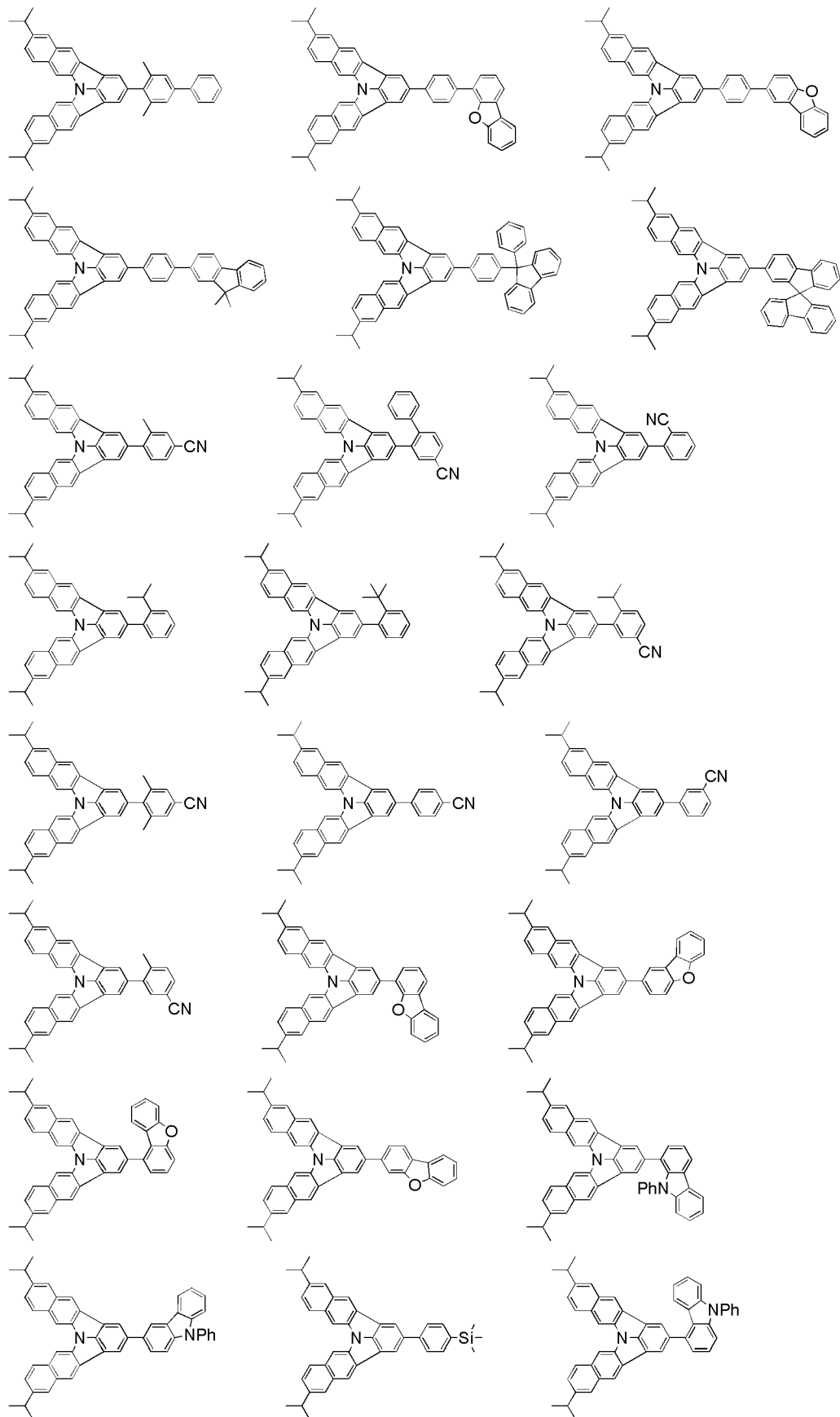


[0061]

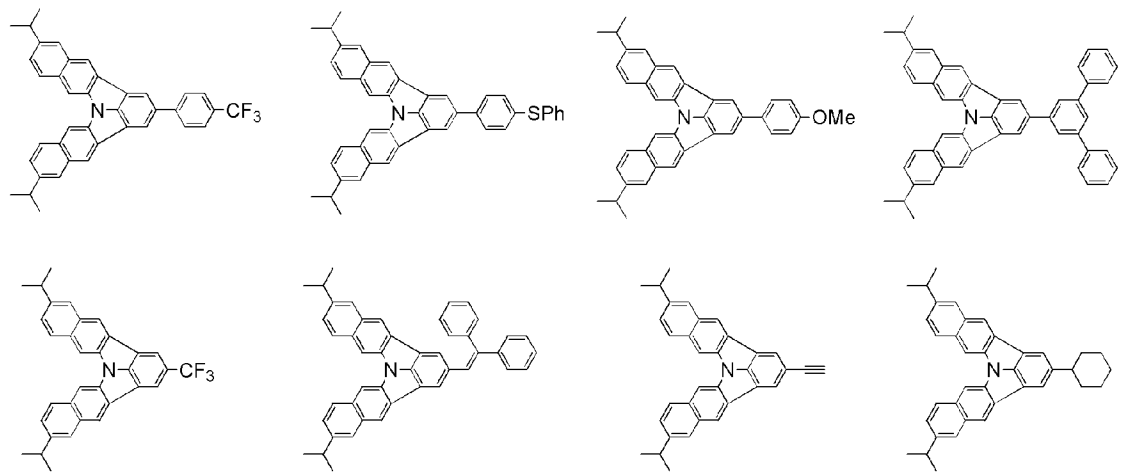
[0062] [化22]



[0063] [化23]

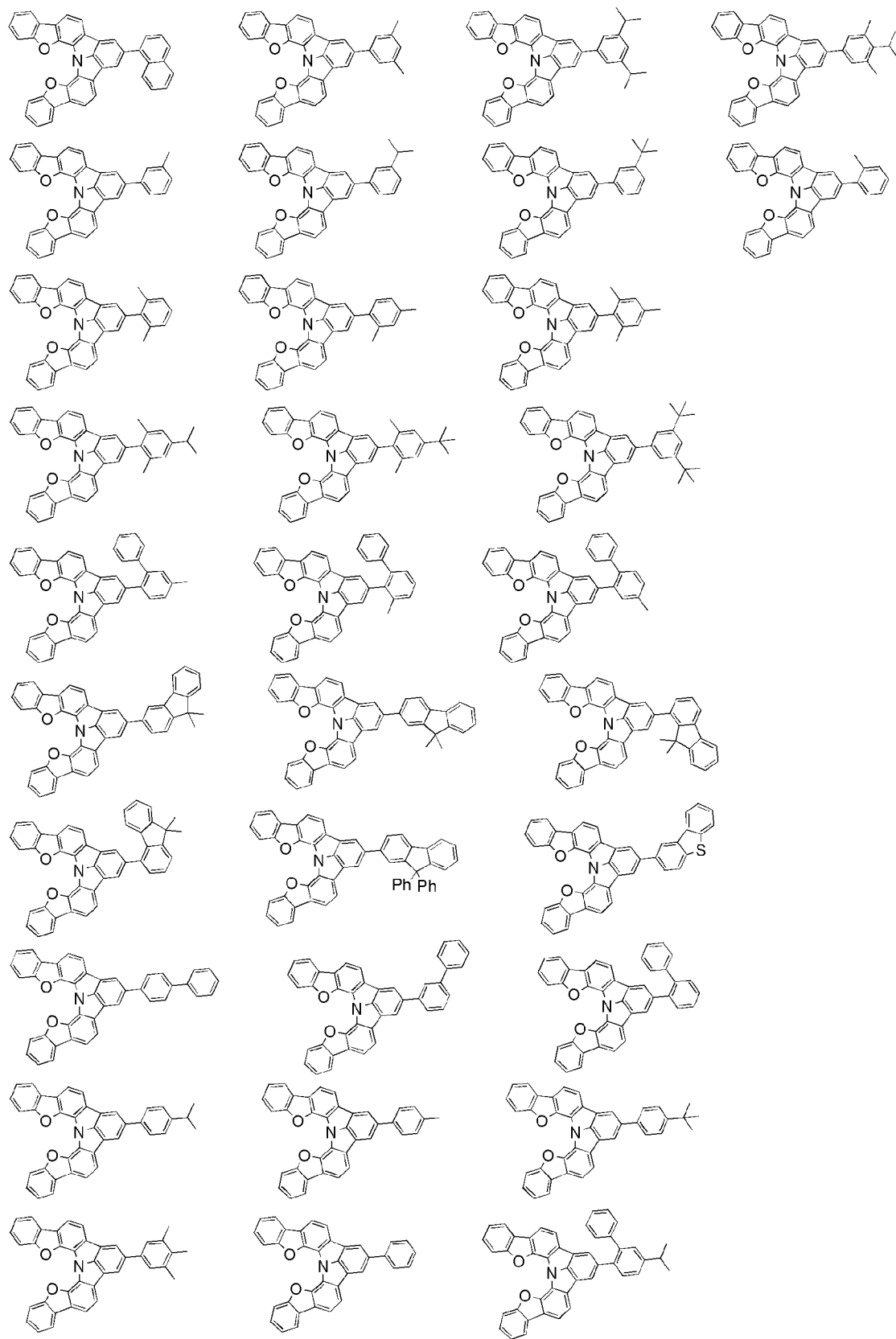


[0065] [化25]



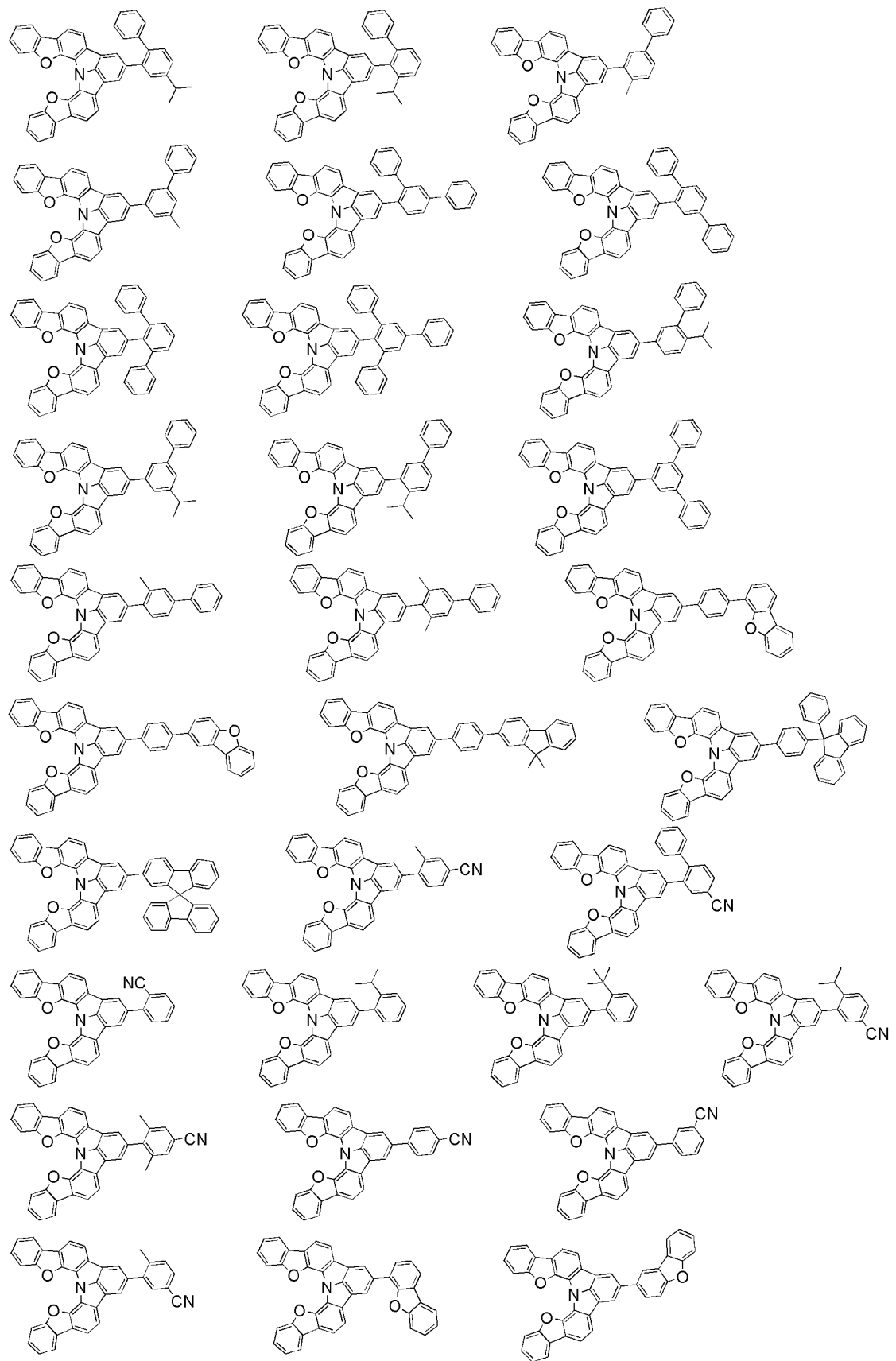
[0066]

[化26]

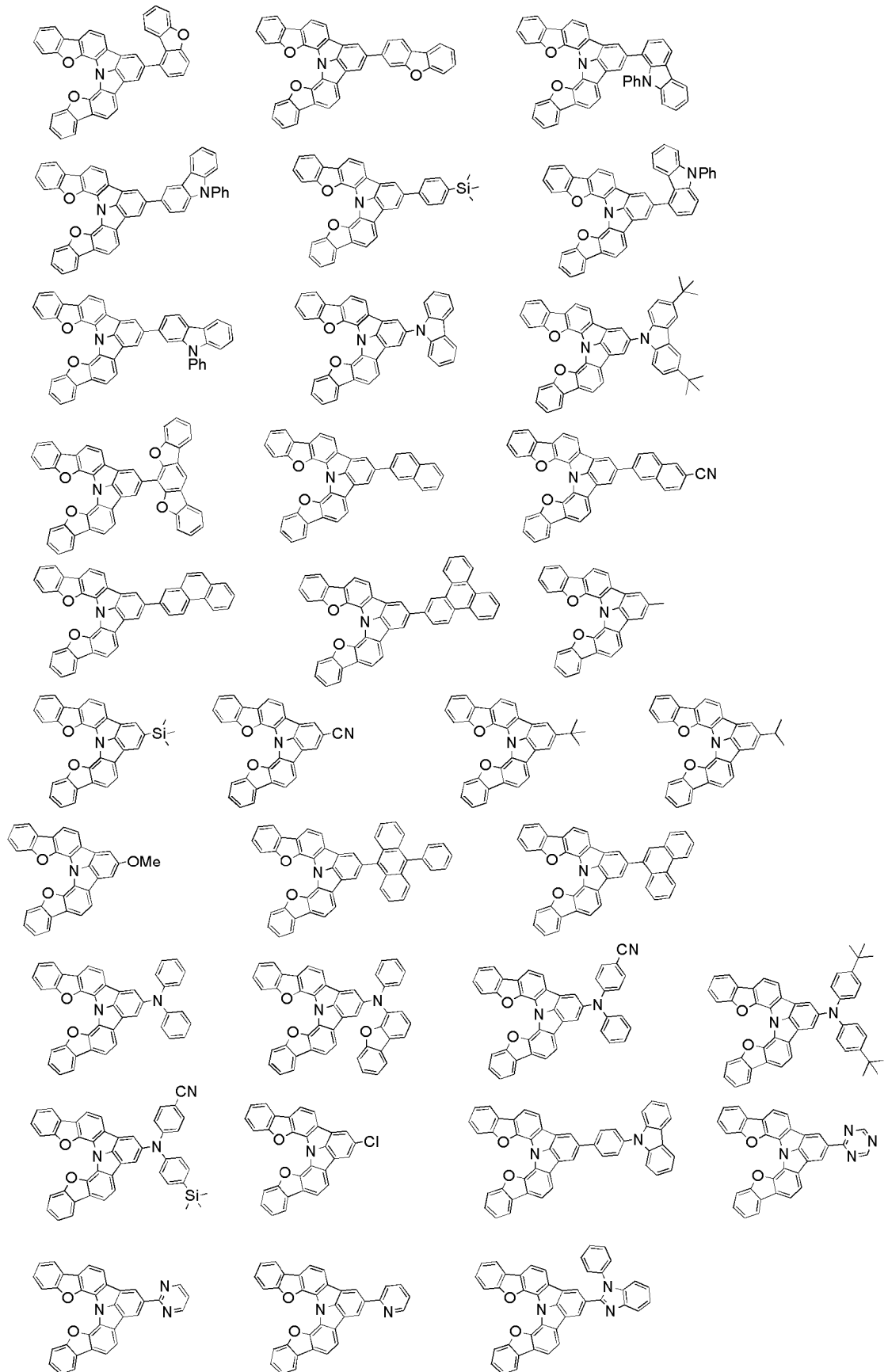


[0067]

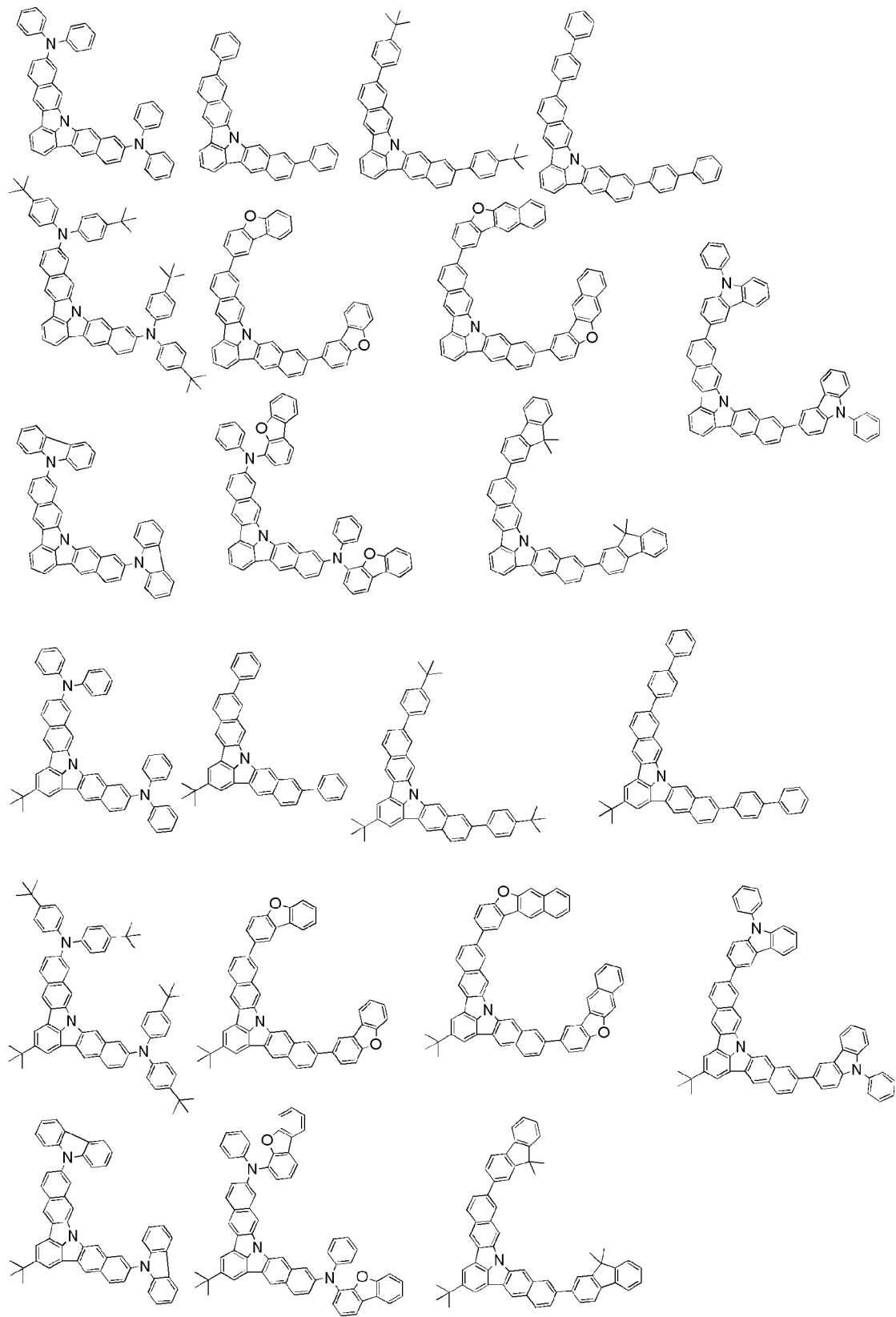
[化27]



[0068] [化28]

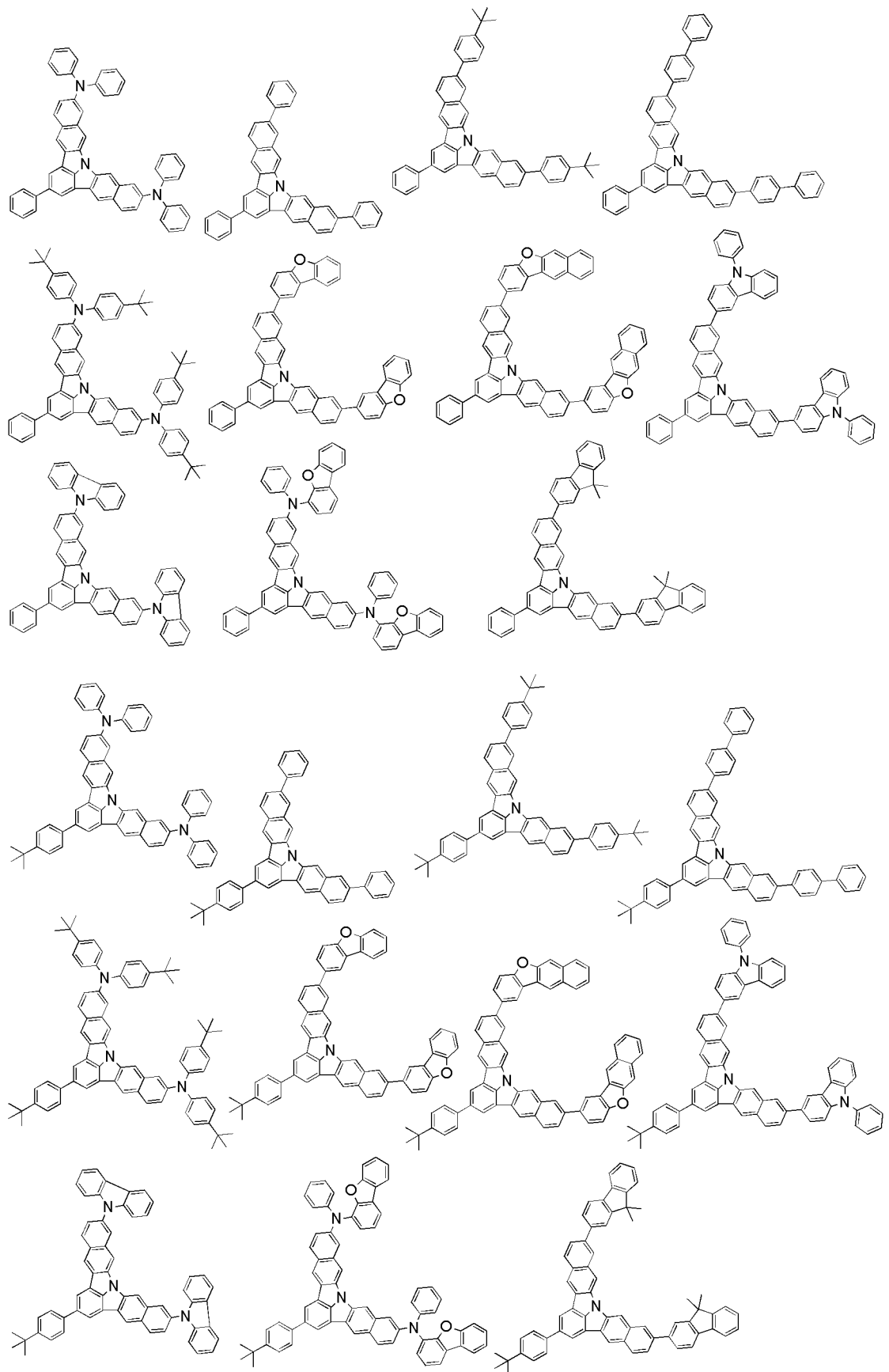


[0069] [化29]

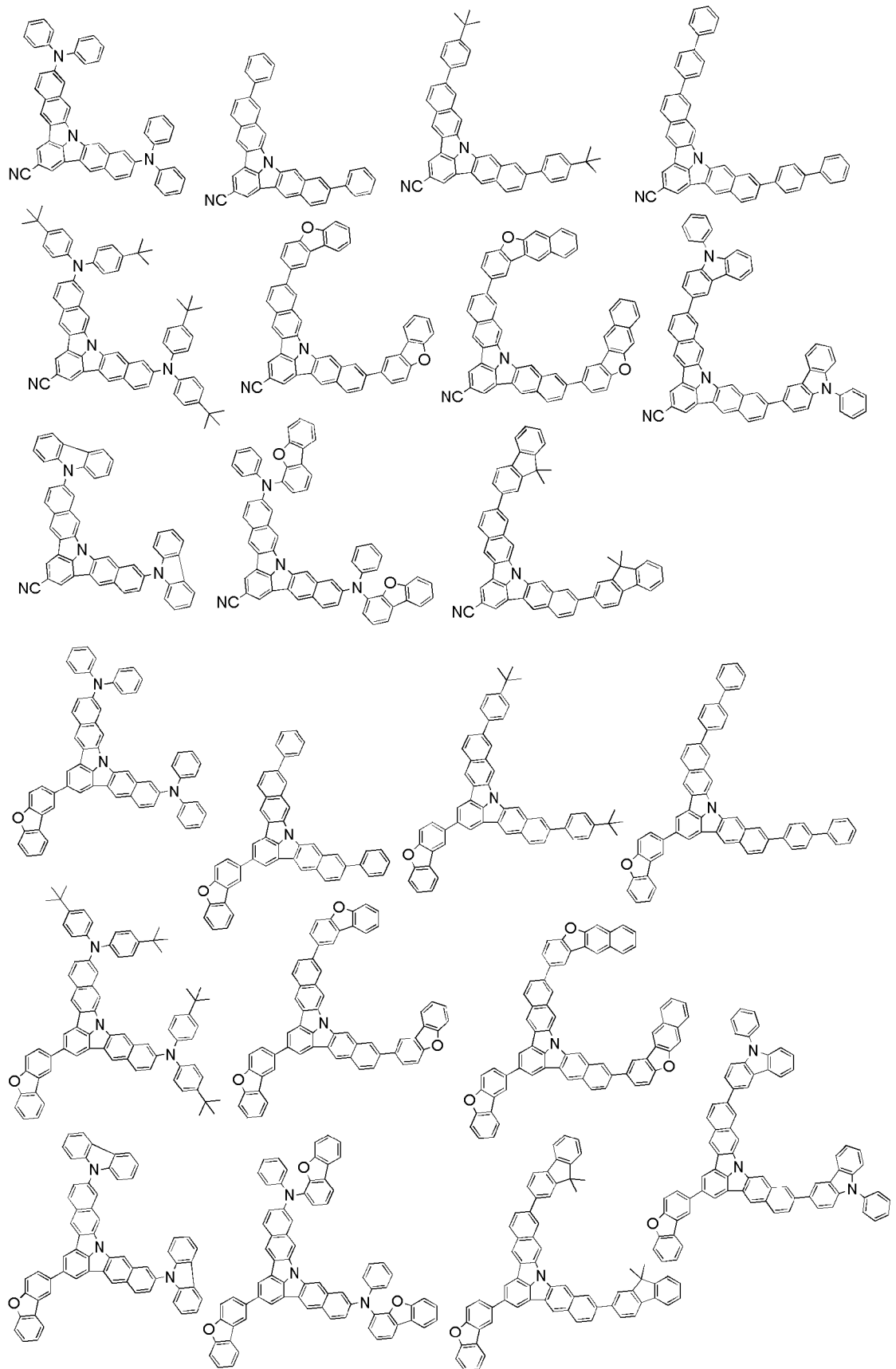


[0070]

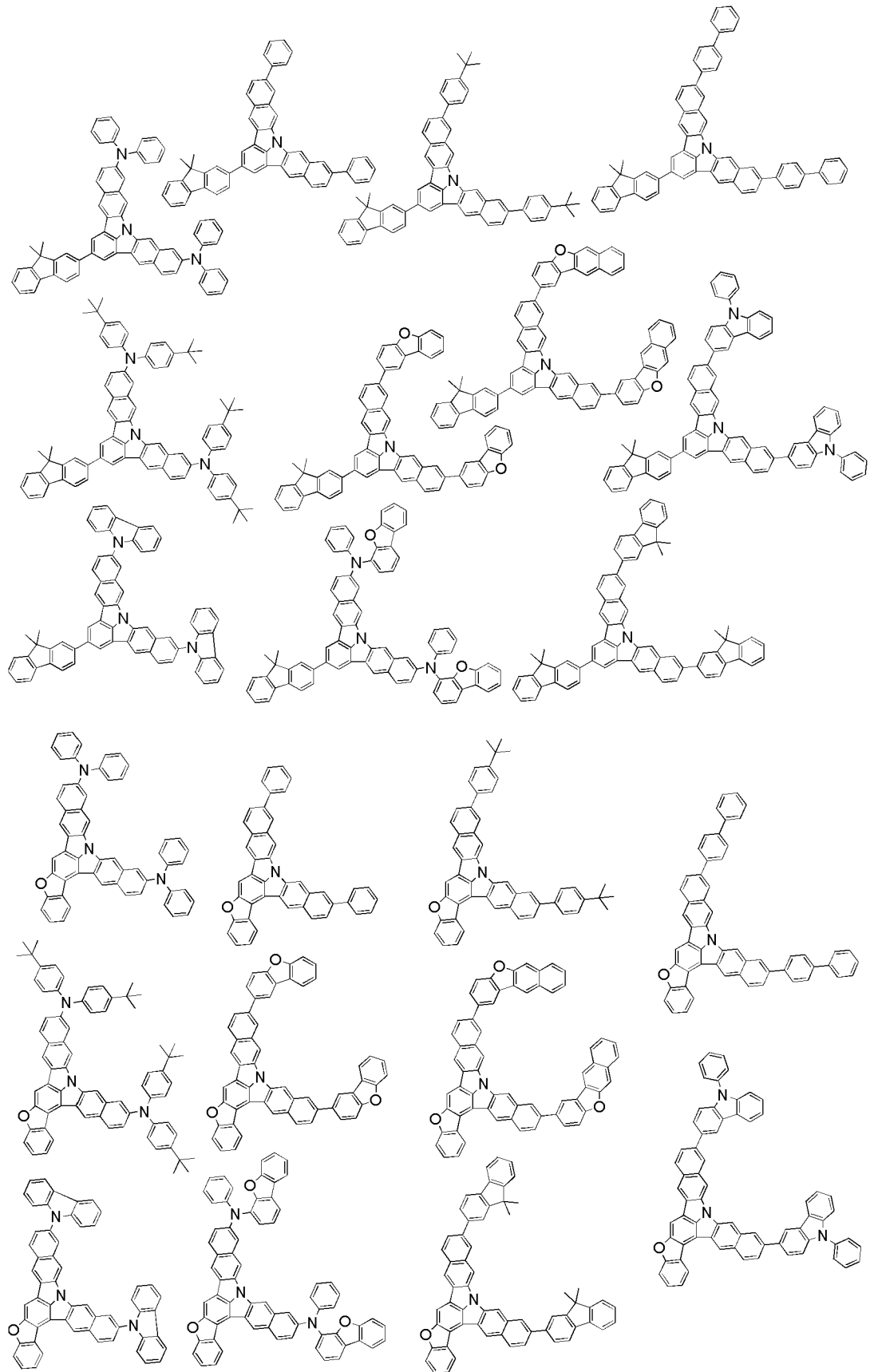
[化30]



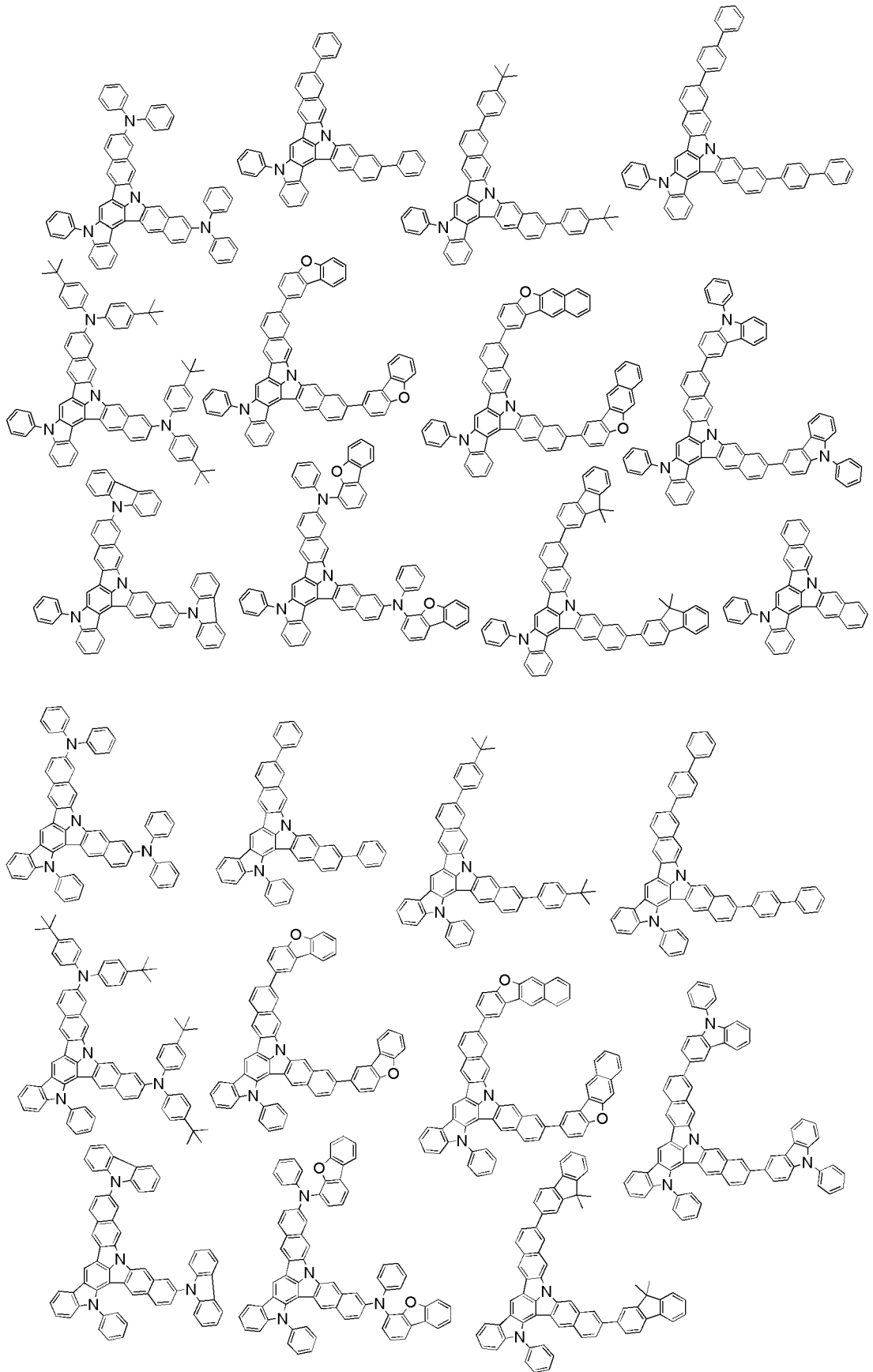
[0071] [化31]



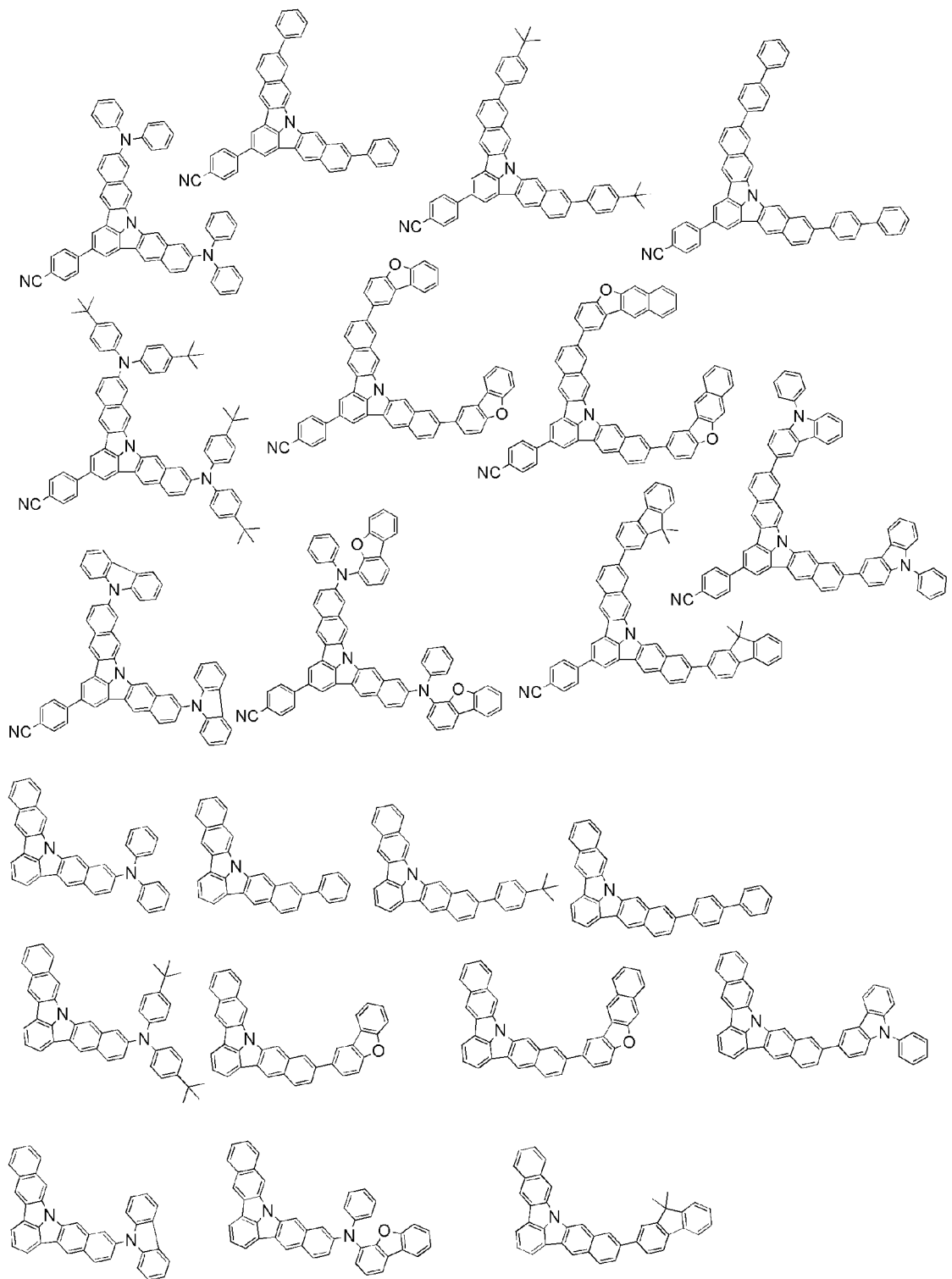
[0072] [化32]



[0073] [化33]

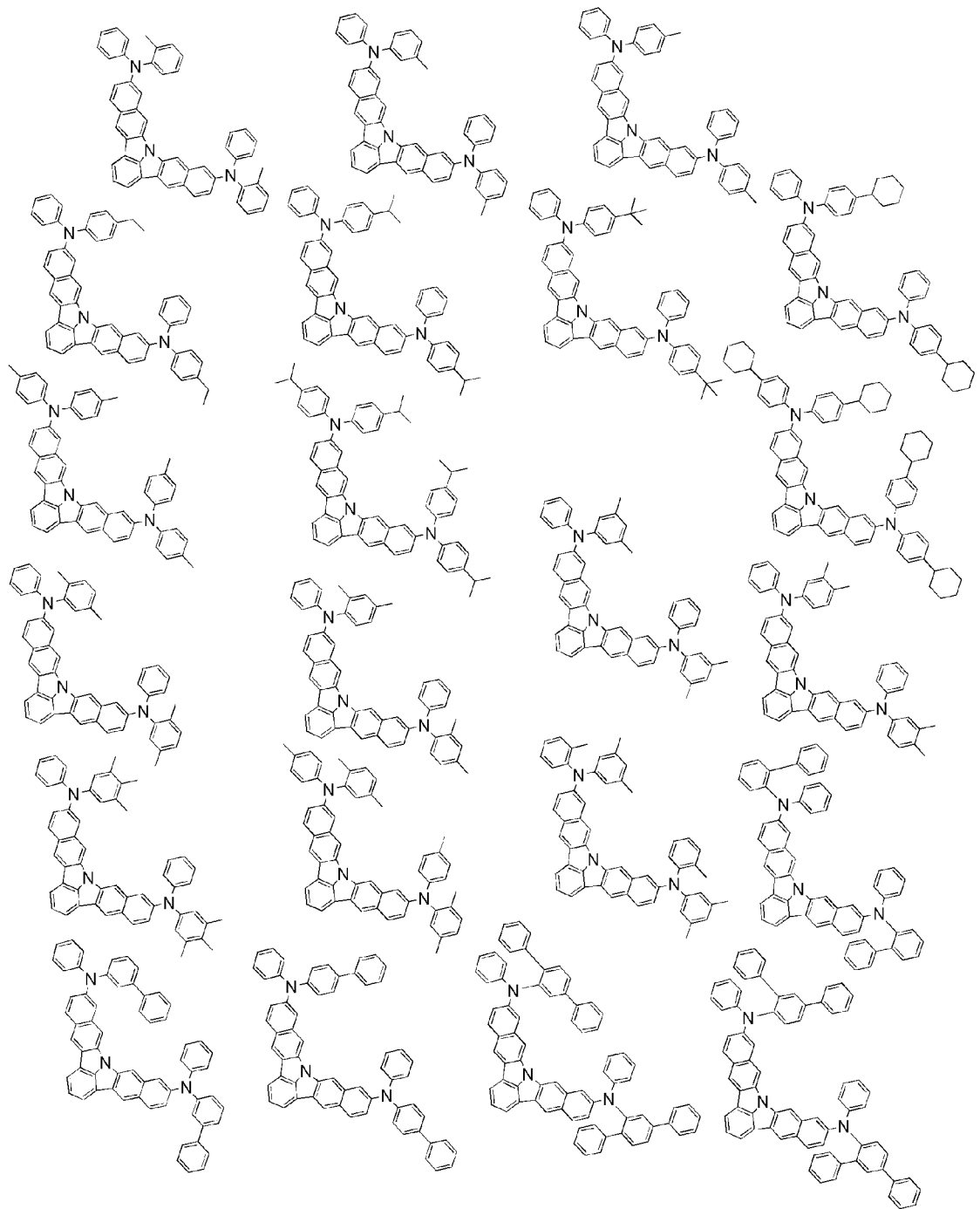


[化35]



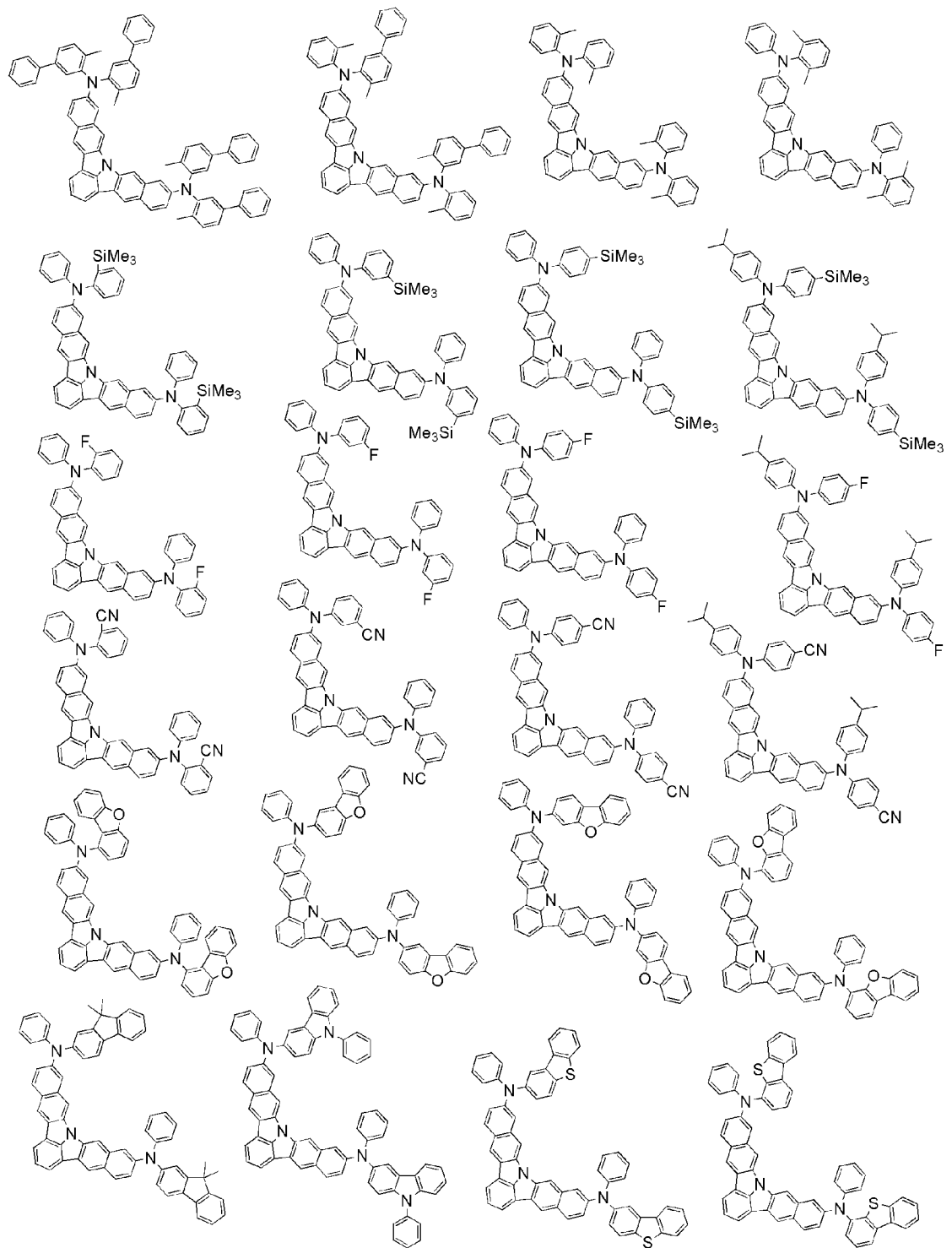
[0076]

[化36]



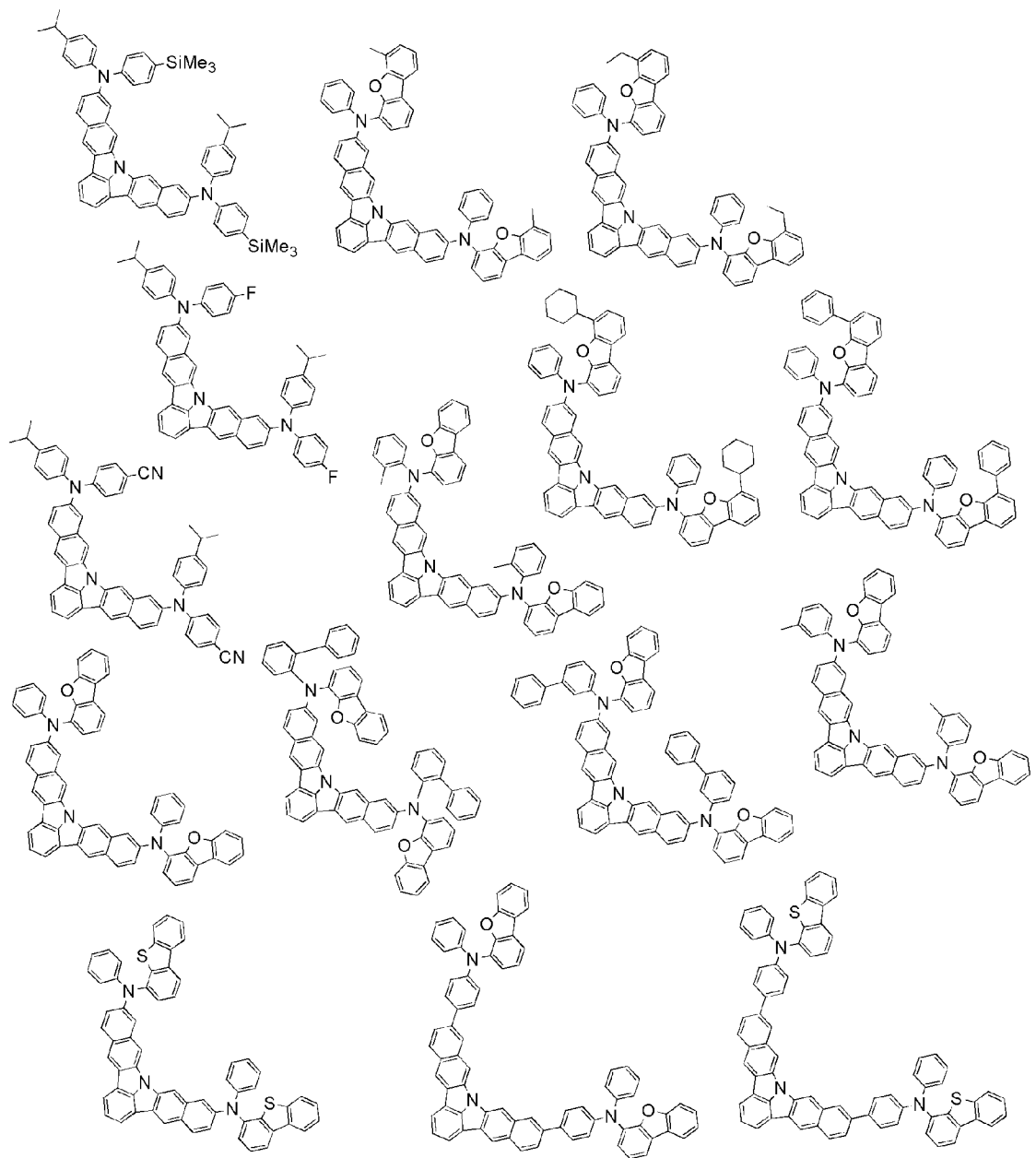
[0077]

[化37]



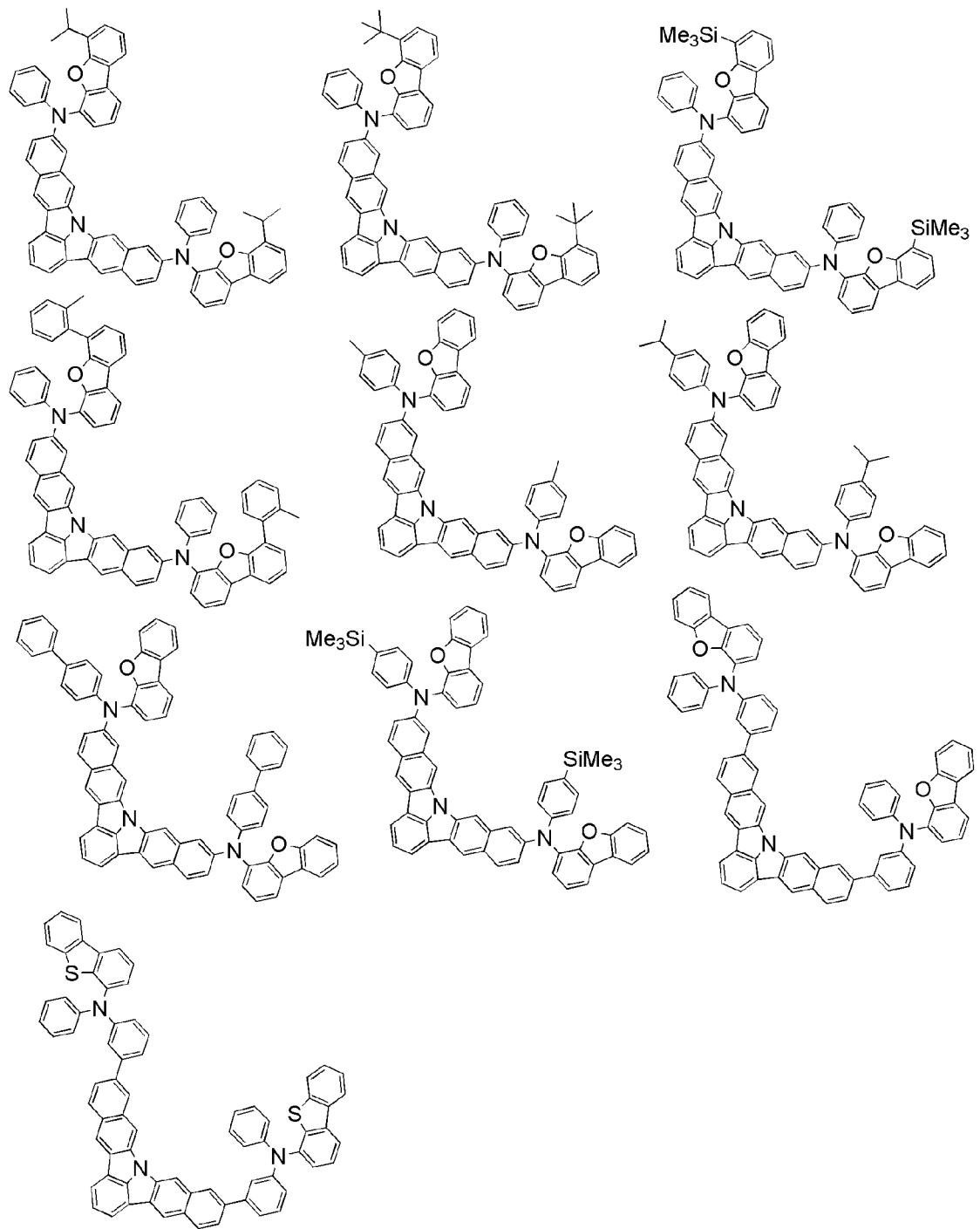
[0078]

[化38]



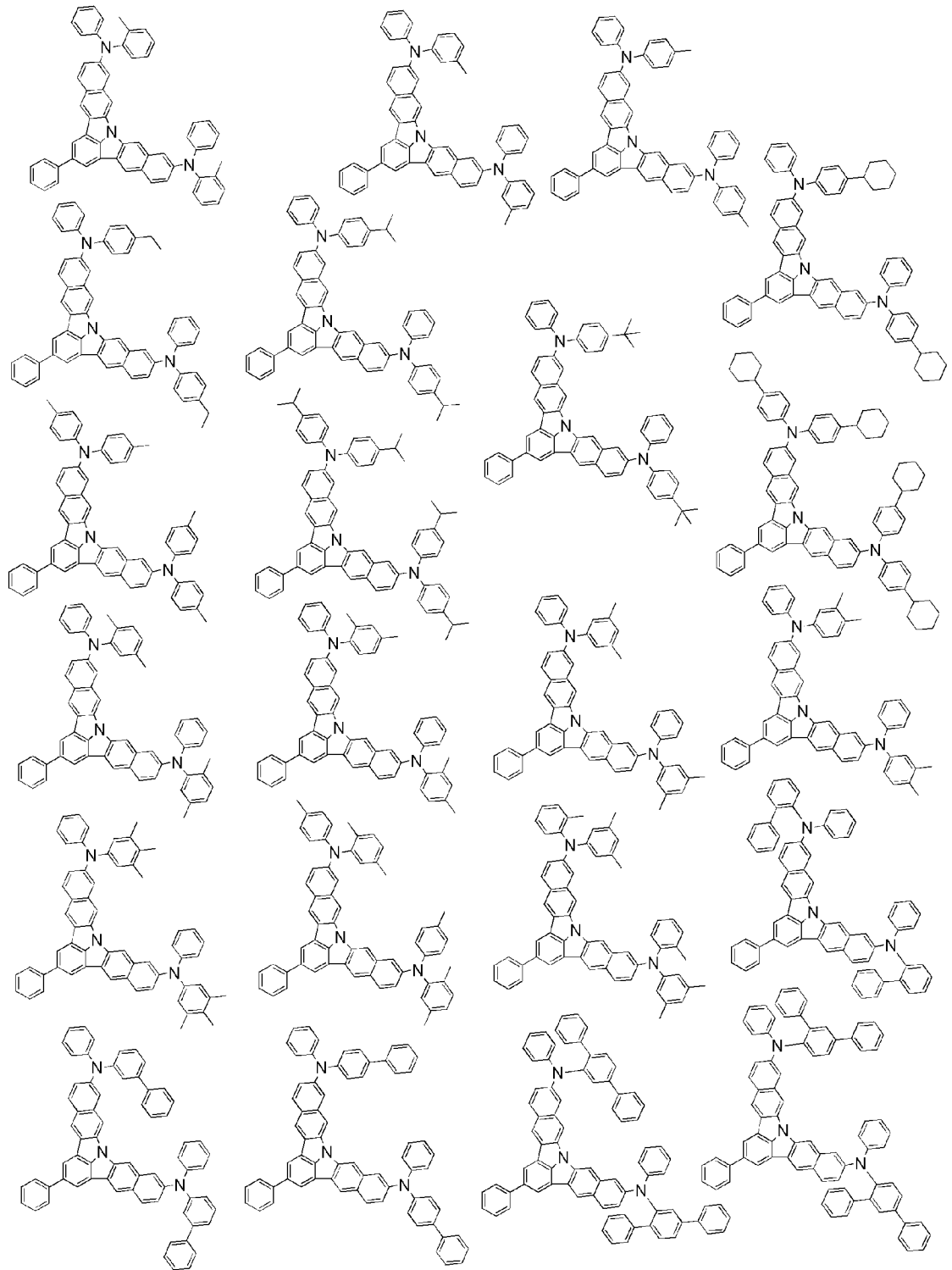
[0079]

[化39]



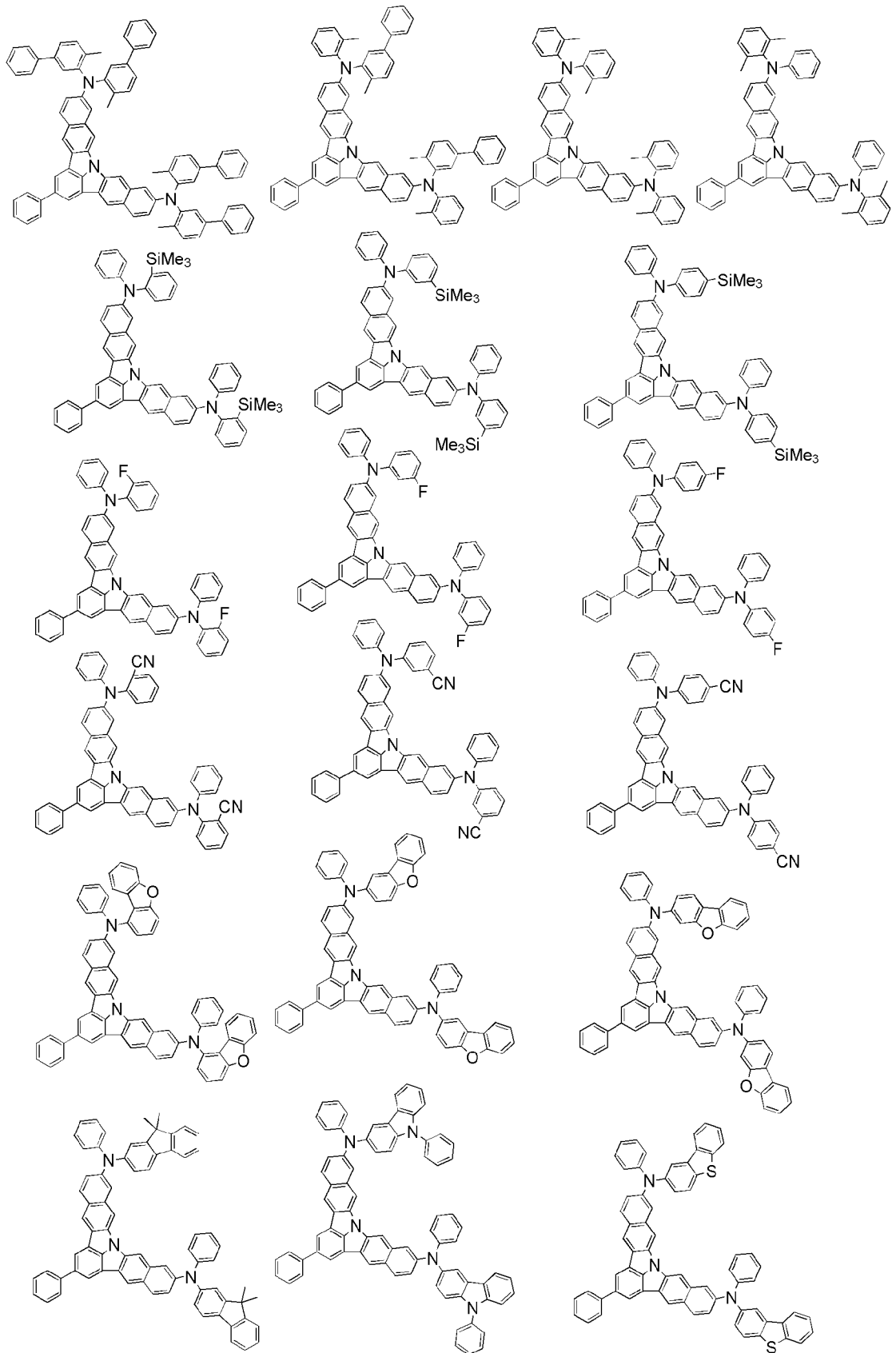
[0080]

[化40]

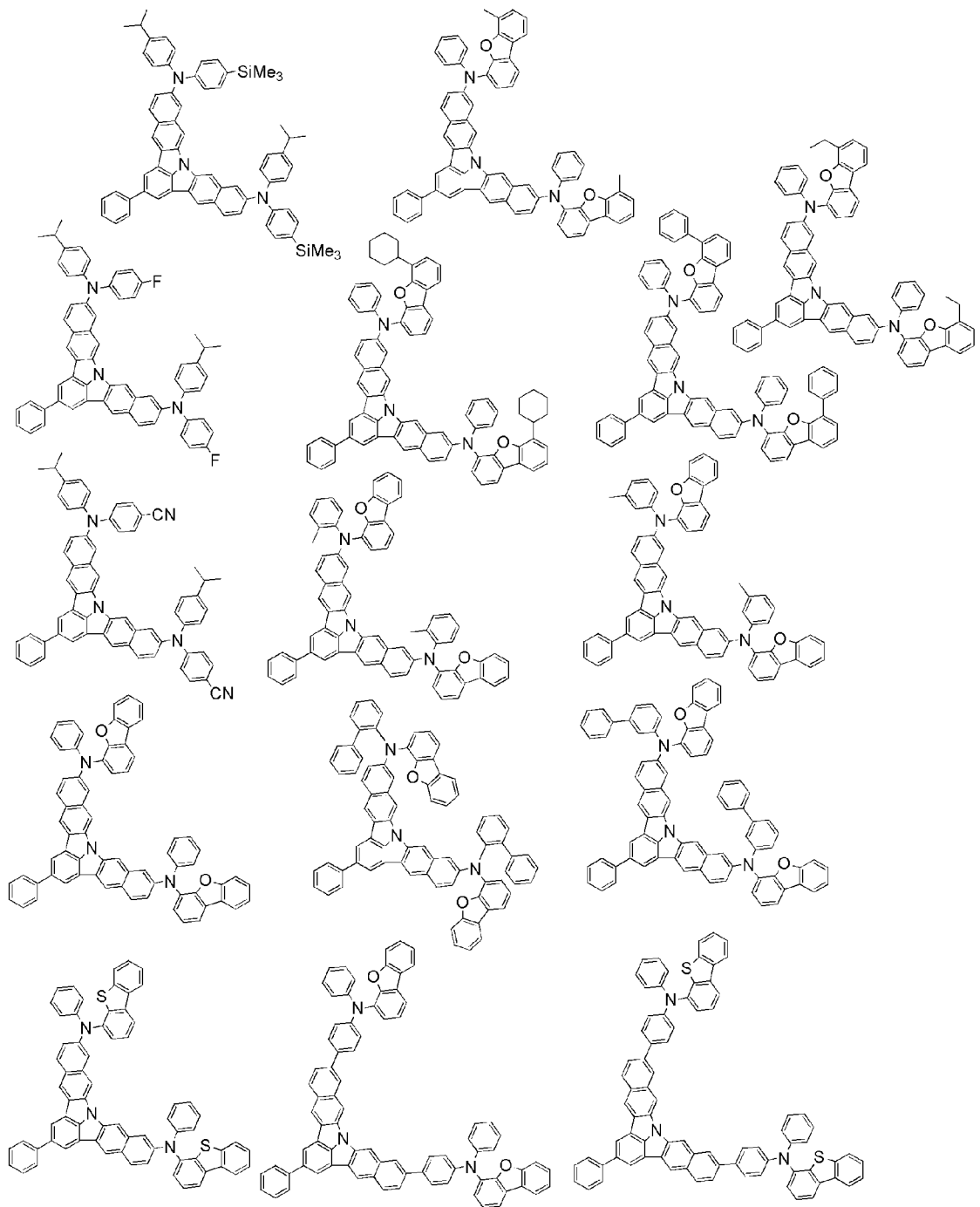


[0081]

[化41]

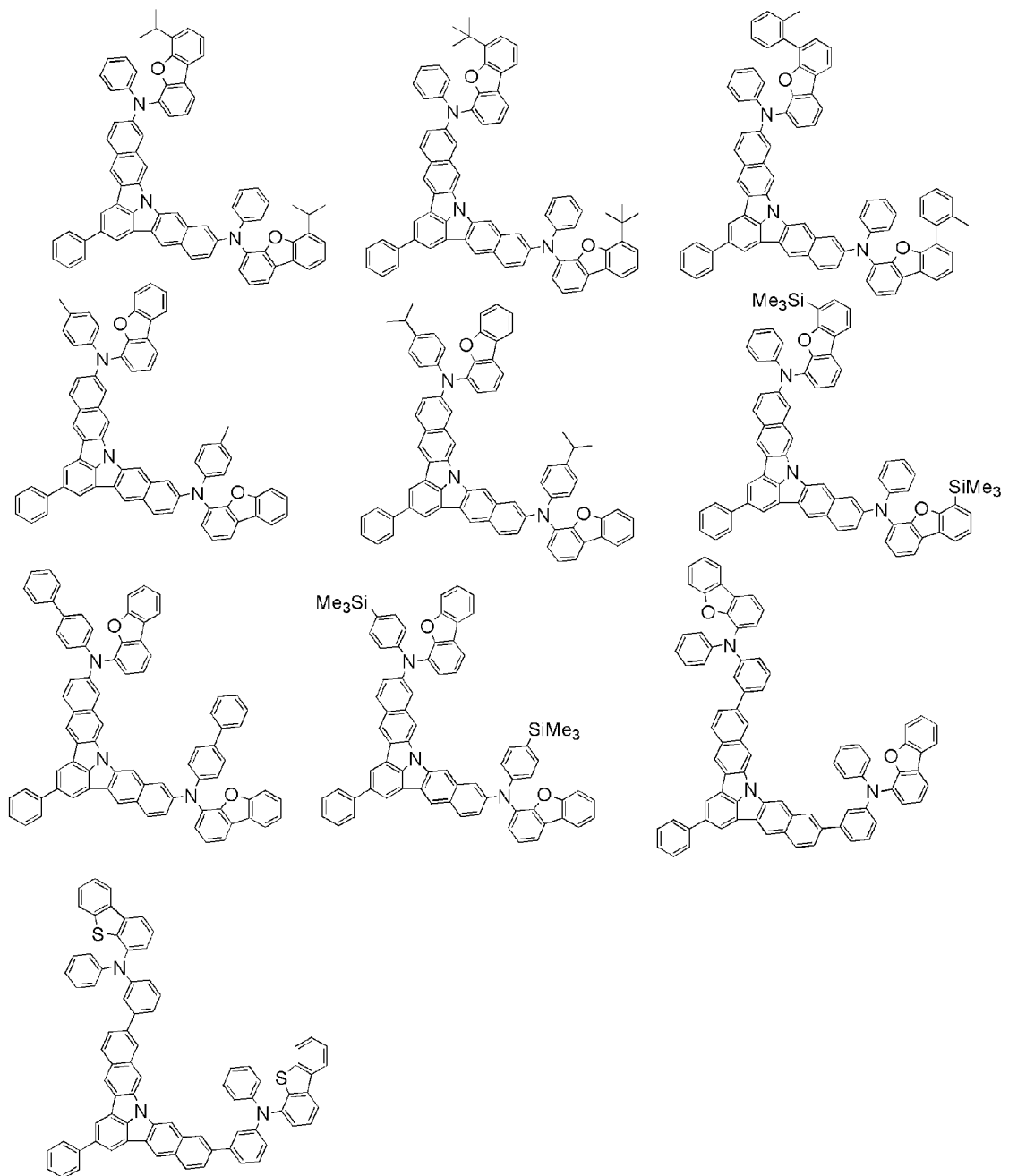


[0082] [化42]



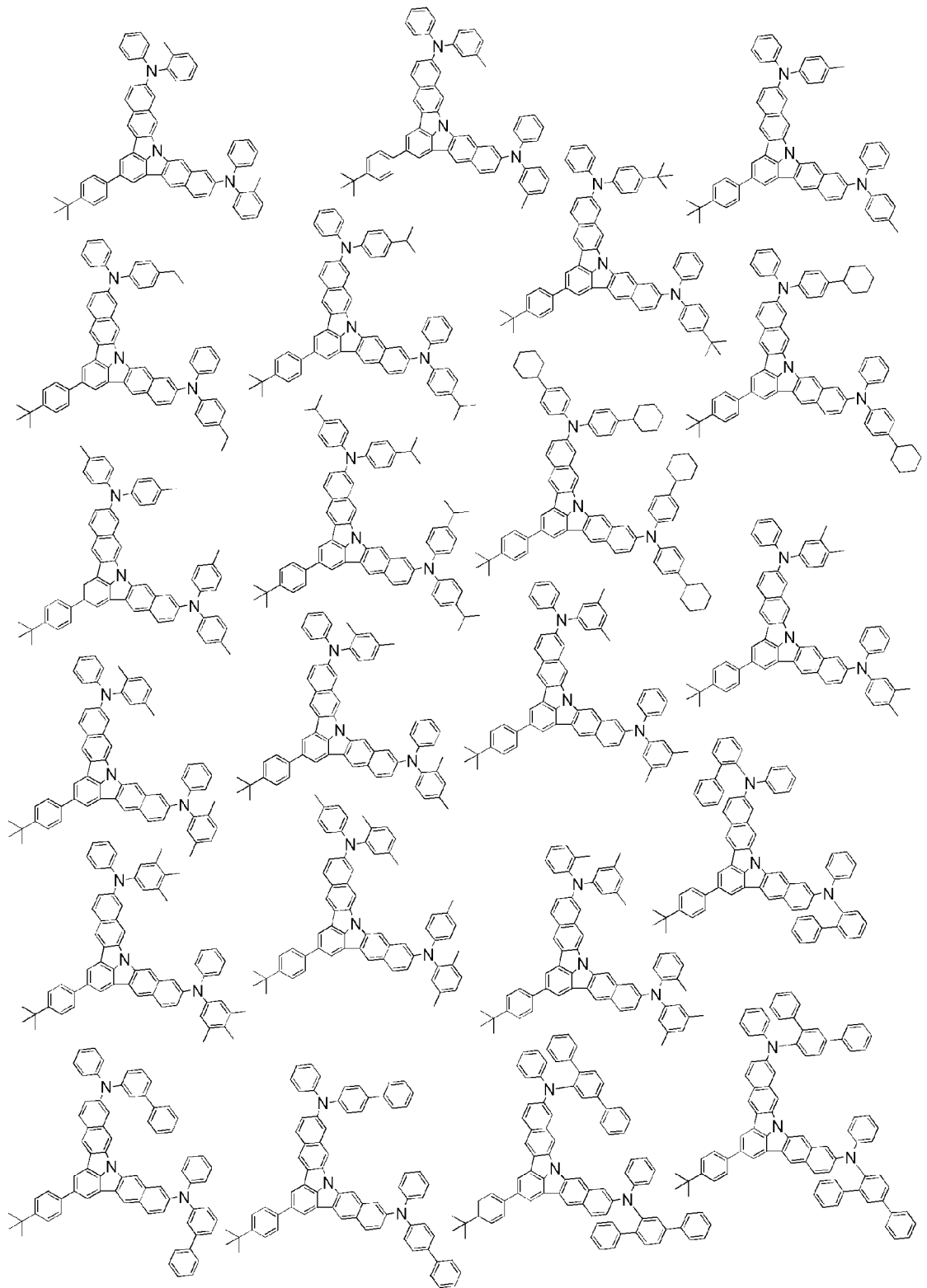
[0083]

[化43]



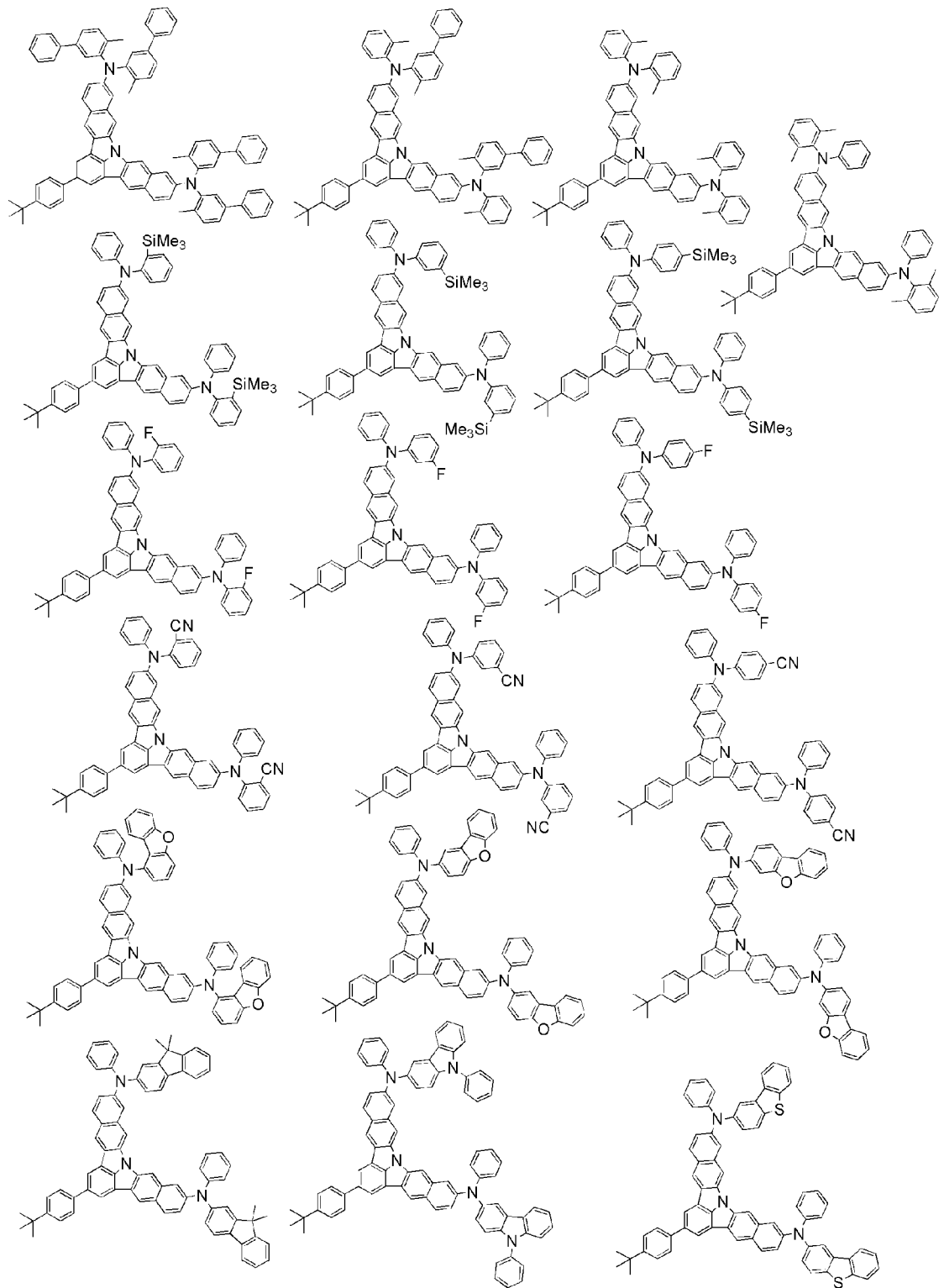
[0084]

[化44]



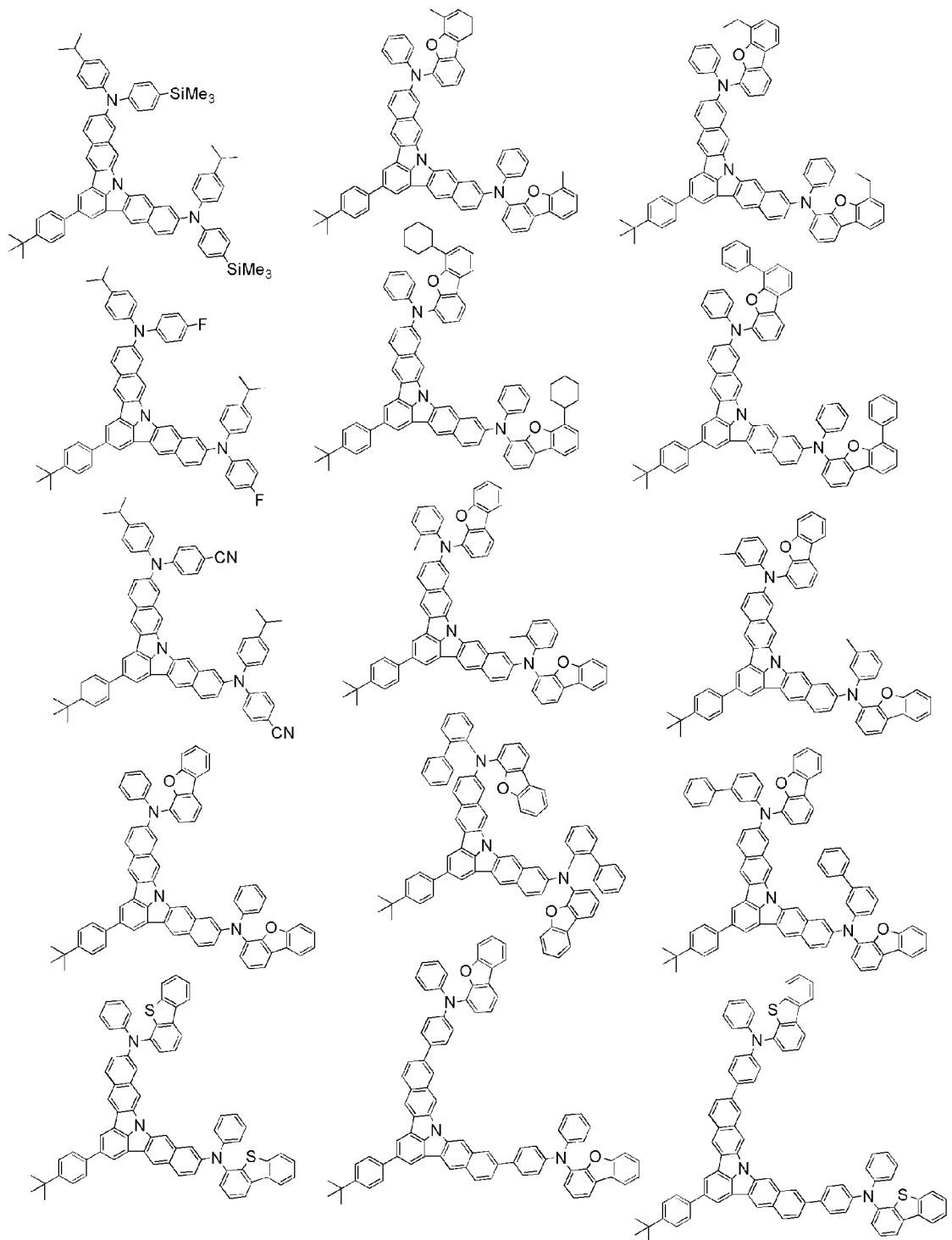
[0085]

[化45]



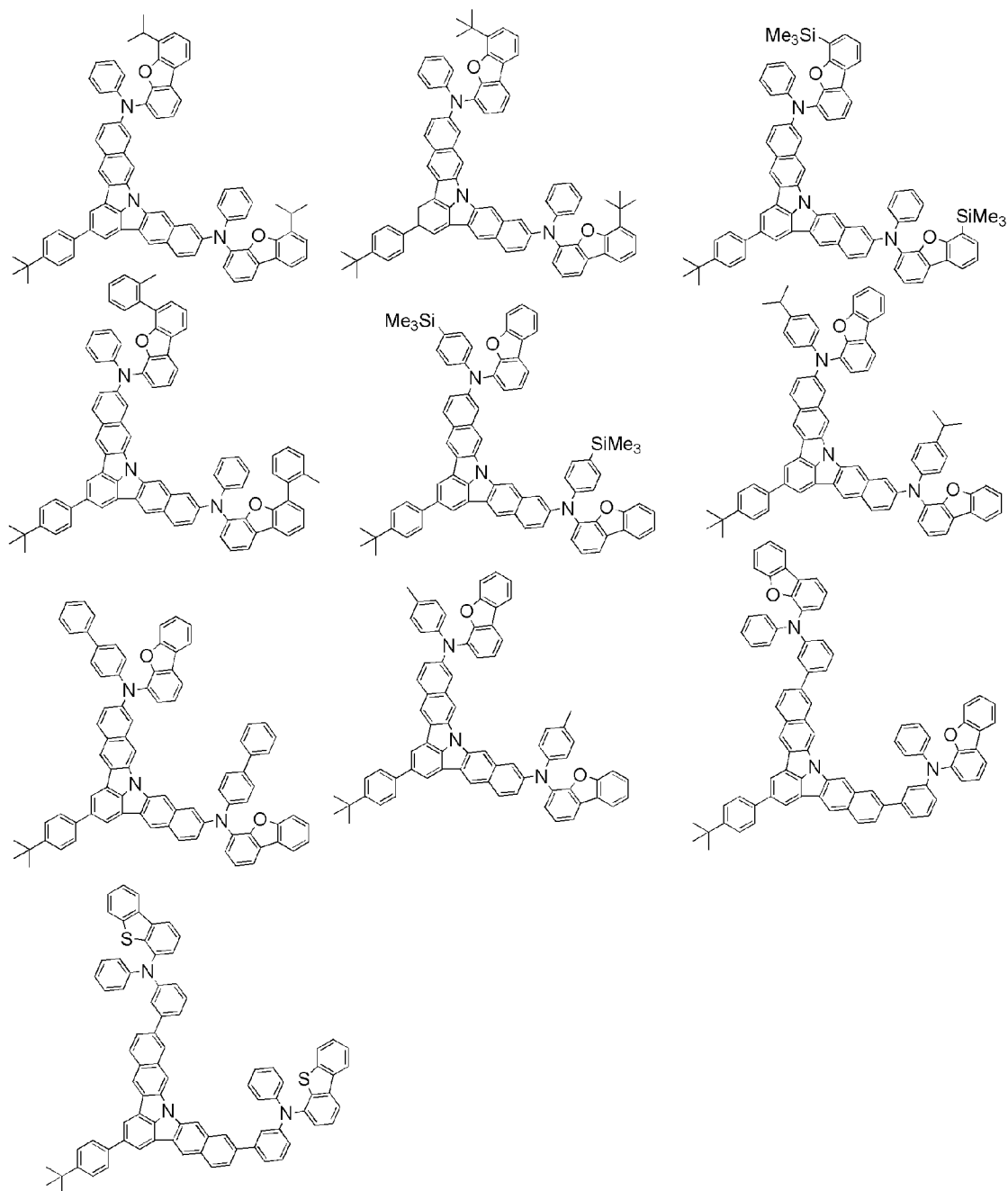
[0086]

[化46]



[0087]

[化47]



[0088] 上記本発明の一態様の化合物は、有機EL素子用材料として有用である。

なお、本発明の化合物の製造方法に特に制限はなく、本明細書の実施例等を参照しながら、公知の合成反応を適宜利用及び変更して容易に製造することができる。

[0089] また、本発明の一様態において、本発明の化合物は有機EL素子の発光層の蛍光ドーパント材料として用いることができる。

有機EL素子が有する発光層のドーパント材料としては、発光効率の観点から、蛍光量子収率（PLQY）及び蛍光発光スペクトルの形状（半値幅）が重要視される。

フルカラーディスプレイで用いられる赤、緑及び青の3原色やそれに黄等を加えた4色以上の光は、目的の色域に最適化させるために、カラーフィルタによるカットや、マイクロキャビティ構造による目的の波長の光の増幅とそれ以外の光の減衰を受けた上で、外部に取り出されている。すなわち、目的の波長以外は削られるため、エネルギーのロスにつながる。従って、よりシャープな発光スペクトル形状を有する材料は、削られる波長域が小さくなるため、エネルギーのロスが少なく効率の面で有利となる。

シャープな発光スペクトルを示すドーパント材料としては、基底状態と励起状態の構造変化が少なく、振動準位が少ない化学構造が適すると考えられる。

[0090] 本発明の化合物は、芳香環の縮環構造を中心とする剛直な構造であることから基底状態と励起状態の構造変化が少ない。

加えて、本発明者らの鋭意検討の結果から、本発明の化合物は母骨格に置換基を有せずとも高いPLQYを持ち得ることが明らかになった。一般に、置換基を加えると振動準位の個数が増え、ブロードなスペクトルを有するようになるから、シャープな発光スペクトルを得るという観点からは置換基の個数は少ない方が望ましい。すなわち、一般に、置換基を有することによるPLQYの向上と、発光スペクトルのブロード化の間にトレードオフの関係がある。本発明の化合物においては、上記のように、母骨格に置換基を有せずとも高いPLQYを持ち得ることから、置換基を加えることによる振動準位の個数の増加を最小限に抑えつつ、高いPLQYとシャープな発光スペクトルを両立できる。

[0091] 本発明の化合物が対称性が高い縮環構造をとる場合は、振動準位が縮重するため、よりシャープな発光スペクトルを得られると考えられる。ここで、対称性が高い縮環構造とは、例えば前記式（1）における骨格のN原子とR₂

とを結ぶ直線を軸とした線対称となる縮環構造を意味する。

本発明の化合物が非対称の縮環構造をとる場合は、置換基を加えることのない波長の調整に特に有効である。ここで、非対称の縮環構造とは、例えば前記式(1)における骨格のN原子とR₂とを結ぶ直線を軸としたときに線対称ではない縮環構造を意味する。

また、青色蛍光ドーパント材料は、蛍光発光波長が適正な範囲(青色の可視光範囲、特に深い青色の範囲)に位置することが求められる。本発明者らは、本発明の化合物のように、インドロ[3,2,1-jk]カルバゾール環上の、互いに異なる環へ2環以上の縮環をすることで、その要求を満たしうることを見出した。

[0092] [有機EL素子]

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極の間に少なくとも発光層を含有する有機薄膜層を有し、この有機薄膜層のうちの少なくとも1層が前述した本発明の化合物を含む。本発明の有機EL素子には、低電圧駆動が可能なものが含まれ、且つ素子寿命が長いものも含まれる。また、該有機EL素子には、青色純度の高い発光が可能なものも含まれる。

前述の本発明の化合物が含まれる有機薄膜層の例としては、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、スペース層及び障壁層などが挙げられるが、特にこれらに限定されるものではない。

本発明の化合物は、発光層に含まれることが好ましく、特にドーパント材料として発光層に含まれることが好ましい。特に、蛍光発光を用いる発光層のドーパント材料として、発光層に含まれることが好ましく、また、熱活性化遅延蛍光(Thermally Activated Delayed Fluorescence)機構を用いる発光層のドーパント材料として、発光層に含まれることも好ましい。

[0093] ドーパント材料としての本発明の化合物の発光層における含有量は特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1~70

質量%が好ましく、0.1~30質量%がより好ましく、1~30質量%がさらに好ましく、1~20質量%がさらにより好ましく、1~10質量%が特により好ましい。蛍光ドーパント材料の含有量が0.1質量%以上であると十分な発光が得られ、70質量%以下であると濃度消光を避けることができる。

[0094] 本発明の有機EL素子は、蛍光発光型、燐光発光型又は熱活性化遅延蛍光 (Thermally Activated Delayed Fluorescence) 機構を用いる単色発光素子であっても、上記のハイブリッド型の白色発光素子であってもよいし、単独の発光ユニットを有するシンプル型であっても、複数の発光ユニットを有するタンデム型であってもよい。ここで、「発光ユニット」とは、一層以上の有機層を含み、そのうちの一層が発光層であり、注入された正孔と電子が再結合することにより発光することができる最小単位をいう。

[0095] 従って、シンプル型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(1) 陽極/発光ユニット/陰極

また、上記発光ユニットは、燐光発光層、蛍光発光層又は熱活性化遅延蛍光機構を用いる発光層を複数有する積層型であってもよく、その場合、各発光層の間に、燐光発光層で生成された励起子が蛍光発光層に拡散することを防ぐ目的で、スペース層を有していてもよい。発光ユニットの代表的な層構成を以下に示す。

(a) 正孔輸送層/発光層 (/ 電子輸送層)

(b) 正孔輸送層/第一蛍光発光層/第二蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(c) 正孔輸送層/燐光発光層/スペース層/蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(d) 正孔輸送層/第一燐光発光層/第二燐光発光層/スペース層/蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(e) 正孔輸送層/第一燐光発光層/スペース層/第二燐光発光層/スペース層/蛍光発光層 (/ 電子輸送層)

(f) 正孔輸送層／燐光発光層／スペース層／第一蛍光発光層／第二蛍光発光層（／電子輸送層）

[0096] 上記各燐光又は蛍光発光層は、それぞれ互いに異なる発光色を示すものとすることができる。具体的には、上記積層発光層（d）において、正孔輸送層／第一燐光発光層（赤色発光）／第二燐光発光層（緑色発光）／スペース層／蛍光発光層（青色発光）／電子輸送層といった層構成が挙げられる。

なお、各発光層と正孔輸送層あるいはスペース層との間には、適宜、電子障壁層を設けてもよい。また、各発光層と電子輸送層との間には、適宜、正孔障壁層を設けてもよい。電子障壁層や正孔障壁層を設けることで、電子又は正孔を発光層内に閉じ込めて、発光層における電荷の再結合確率を高め、発光効率を向上させることができる。

[0097] タンデム型有機EL素子の代表的な素子構成としては、以下の素子構成を挙げることができる。

(2) 陽極／第一発光ユニット／中間層／第二発光ユニット／陰極

ここで、上記第一発光ユニット及び第二発光ユニットとしては、例えば、それぞれ独立に上述の発光ユニットと同様のものを選択することができる。

上記中間層は、一般的に、中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、第一発光ユニットに電子を、第二発光ユニットに正孔を供給する、公知の材料構成を用いることができる。

[0098] 図1に、本発明の有機EL素子の一例の概略構成を示す。有機EL素子1は、基板2、陽極3、陰極4、及び該陽極3と陰極4との間に配置された発光ユニット（有機薄膜層）10とを有する。発光ユニット10は、少なくとも1つの蛍光発光層を含む発光層5を有する。発光層5と陽極3との間に正孔注入層／正孔輸送層6など、発光層5と陰極4との間に電子注入層／電子輸送層7などを形成してもよい。また、発光層5の陽極3側に電子障壁層を、発光層5の陰極4側に正孔障壁層を、それぞれ設けてもよい。これにより、電子や正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における励起子の生成確率を高めることができる。

[0099] (基板)

本発明の有機EL素子は、透光性基板上に作製する。透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、400nm～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上で平滑な基板が好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板などが挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英などを原料として用いてなるものを挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォンなどを原料として用いてなるものを挙げる事ができる。

[0100] (陽極)

有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上の仕事関数を有するものを用いることが効果的である。陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、酸化インジウム亜鉛酸化物、金、銀、白金、銅などが挙げられる。陽極はこれらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法などの方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の可視領域の光の透過率を10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は、材料にもよるが、通常10nm～1μm、好ましくは10nm～200nmの範囲で選択される。

[0101] (陰極)

陰極は電子注入層、電子輸送層又は発光層に電子を注入する役割を担うものであり、仕事関数の小さい材料により形成するのが好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金などが使用できる。陰極も、陽極と同様に、蒸着法やス

パタリング法などの方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、必要に応じて、陰極側から発光を取り出してもよい。

[0102] 以下、各層について、本発明の化合物以外に使用し得る材料について説明する。

(発光層)

発光機能を有する有機層である。

[0103] 上記発光層は、複数の発光層を積層した積層体とすることで、発光層界面に電子と正孔を蓄積させて、再結合領域を発光層界面に集中させて、量子効率を向上させることができる。

[0104] 発光層への正孔の注入し易さと電子の注入し易さは異なってもよく、また、発光層中での正孔と電子の移動度で表される正孔輸送能と電子輸送能が異なってもよい。

[0105] 発光層は、例えば蒸着法、スピコート法、LB法などの公知の方法により形成することができる。また、樹脂などの結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かした溶液をスピコート法などにより薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

[0106] 発光層は、分子堆積膜であることが好ましい。分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

発光層の膜厚は、好ましくは5～50nm、より好ましくは7～50nm、さらに好ましくは10～50nmである。5nm以上であると発光層の形成が容易であり、50nm以下であると駆動電圧の上昇が避けられる。

[0107] (ドーパント材料)

発光層を形成する蛍光ドーパント材料（蛍光発光材料）は一重項励状態から発光することのできる化合物であり、一重項励状態から発光する限り特に限定されないが、フルオランテン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、ピレ

ン誘導体、アリールアセチレン誘導体、フルオレン誘導体、ホウ素錯体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アントラセン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリールアミン誘導体などが挙げられ、好ましくは、アントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリールアミン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、ピレン誘導体、ホウ素錯体、より好ましくはアントラセン誘導体、フルオランテン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリールアミン誘導体、ホウ素錯体化合物である。

[0108] 蛍光ドーパント材料の発光層における含有量は特に制限はなく目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1~70質量%が好ましく、0.1~30質量%がより好ましく、1~30質量%がさらに好ましく、1~20質量%がさらにより好ましく、1~10質量%が特により好ましい。蛍光ドーパント材料の含有量が0.1質量%以上であると十分な発光が得られ、70質量%以下であると濃度消光を避けることができる。

[0109] (電子供与性ドーパント材料)

本発明の有機EL素子は、陰極と発光ユニットとの界面領域に電子供与性ドーパント材料を有することも好ましい。このような構成によれば、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。ここで、電子供与性ドーパント材料とは、仕事関数3.8 eV以下の金属を含有するものをいい、その具体例としては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物などから選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

[0110] アルカリ金属としては、Na (仕事関数: 2.36 eV)、K (仕事関数: 2.28 eV)、Rb (仕事関数: 2.16 eV)、Cs (仕事関数: 1.95 eV)などが挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。アルカリ土類金属としては、Ca (仕事関数: 2.9 eV)、Sr (仕事関数: 2.0 eV~2.5 eV)、Ba (仕事関数: 2.52 eV)などが挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。希土類金

属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Ybなどが挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

[0111] アルカリ金属化合物としては、Li₂O、Cs₂O、K₂Oなどのアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KFなどのアルカリハロゲン化物などが挙げられ、LiF、Li₂O、NaFが好ましい。アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa_xSr_{1-x}O (0 < x < 1)、Ba_xCa_{1-x}O (0 < x < 1)などが挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。希土類金属化合物としては、YbF₃、ScF₃、ScO₃、Y₂O₃、Ce₂O₃、GdF₃、TbF₃などが挙げられ、YbF₃、ScF₃、TbF₃が好ましい。

[0112] アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、β-ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが挙げられる。

[0113] 電子供与性ドーパント材料の添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により電子供与性ドーパント材料を蒸着しながら、界面領域を形成する有機化合物（発光材料や電子注入材料）を同時に蒸着させ、有機化合物に電子供与性ドーパント材料を分散する方法が好ましい。分散濃度はモル比で有機化合物：電子供与性ドーパント材料＝100：1～1：100である。

[0114] 電子供与性ドーパント材料を層状に形成する場合は、界面の有機層である

発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパント材料を単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1 nm～15 nmで形成する。電子供与性ドーパント材料を島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、電子供与性ドーパント材料を単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、島の厚み0.05 nm～1 nmで形成する。

本発明の有機EL素子における、主成分と電子供与性ドーパント材料の割合は、モル比で主成分：電子供与性ドーパント材料＝5：1～1：5であると好ましい。

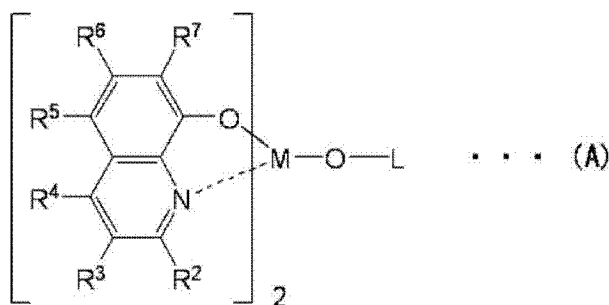
[0115] (電子輸送層)

発光層と陰極との間に形成される有機層であって、電子を陰極から発光層へ輸送する機能を有する。電子輸送層が複数層で構成される場合、陰極に近い有機層を電子注入層と定義することがある。電子注入層は、陰極から電子を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

[0116] 電子輸送層に用いる電子輸送性材料としては、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。また、含窒素環誘導体としては、含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する芳香族環、又は含窒素6員環もしくは5員環骨格を有する縮合芳香族環化合物が好ましい。

この含窒素環誘導体としては、例えば、下記式(A)で表される含窒素環金属キレート錯体が好ましい。

[0117] [化48]



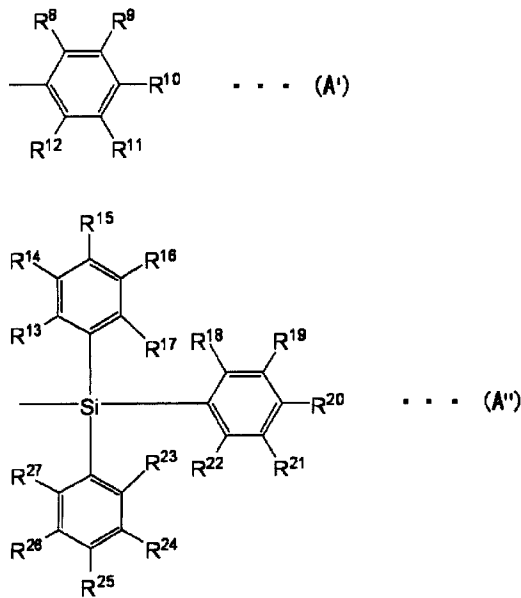
[0118] 式(A)におけるR²～R⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子

、オキシ基、アミノ基、炭素数1～40（好ましくは1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～6）の炭化水素基、炭素数1～40（好ましくは1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～6）のアルコキシ基、環形成炭素数6～40（好ましくは6～20、より好ましくは6～12）のアリールオキシ基、炭素数2～40（好ましくは2～20、より好ましくは2～10、さらに好ましくは2～5）のアルコシカルボニル基又は環形成原子数9～40（好ましくは9～30、より好ましくは9～20）の芳香族複素環基であり、これらは置換されていてもよい。

[0119] Mは、アルミニウム（Al）、ガリウム（Ga）又はインジウム（In）であり、Inであると好ましい。

[0120] Lは、下記式（A'）又は（A''）で表される基である。

[0121] [化49]



[0122] 前記式（A'）中、R⁸～R¹²は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40（好ましくは1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～6）の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、前記式（A''）中、R¹³～R²⁷は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40（好ましくは1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～6）の炭化

水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

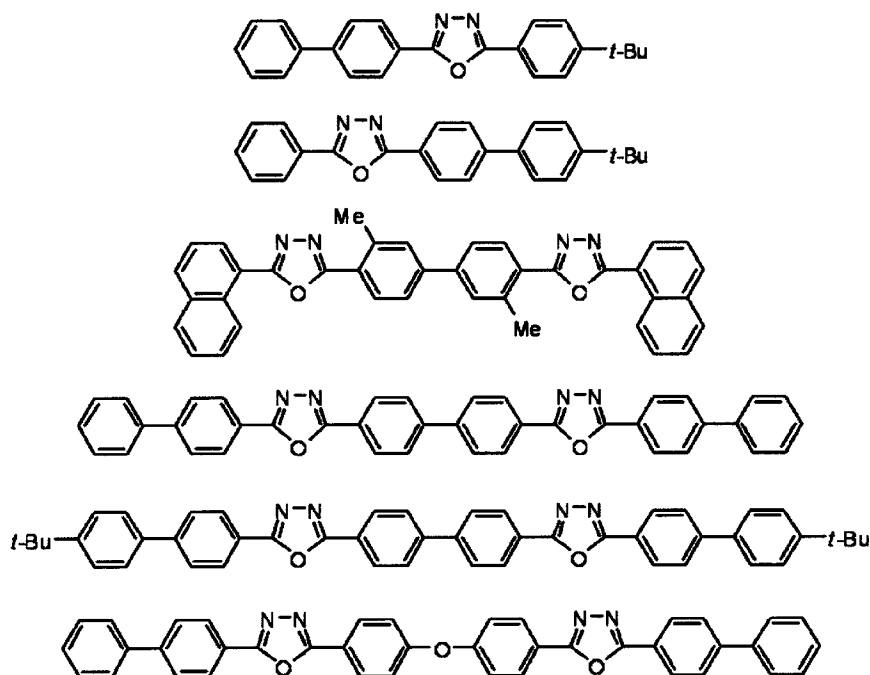
前記式 (A') 及び式 (A'') の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基としては、前記式 (A) 中の $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

また、 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の 2 価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

[0123] 電子輸送層に用いられる電子伝達性化合物としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環誘導体が好適である。

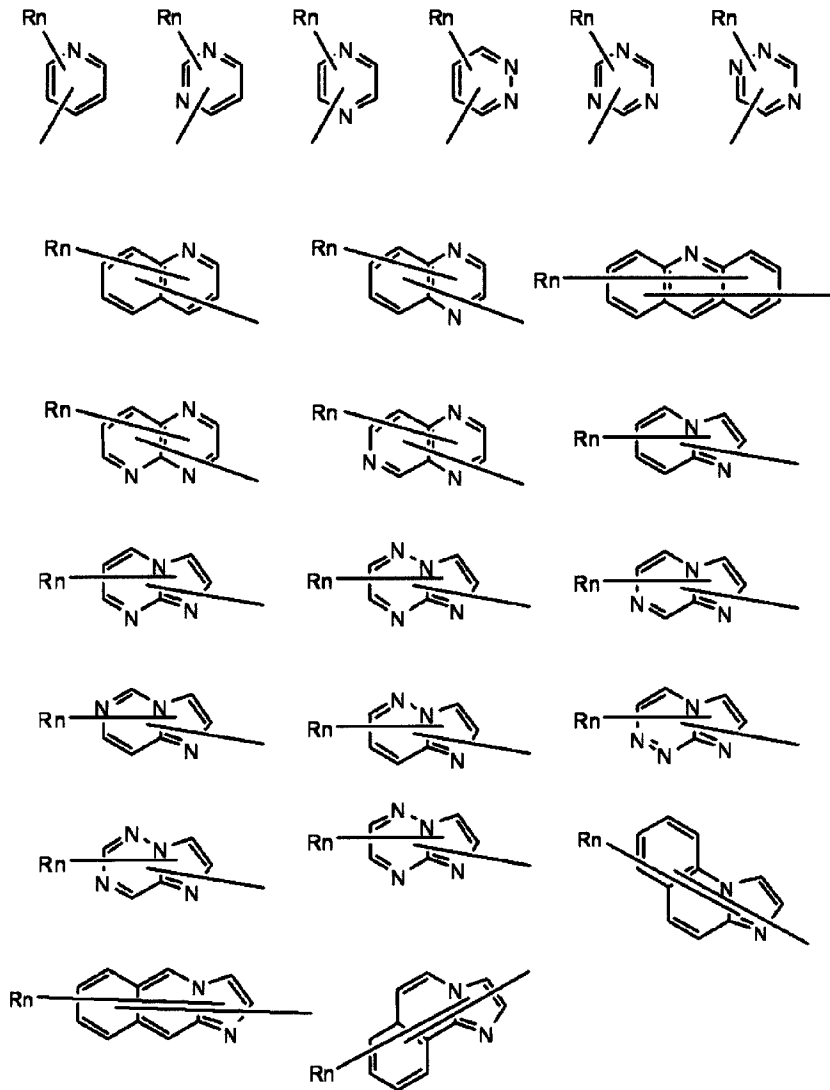
[0124] これらの電子伝達性化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のを挙げることができる。

[0125] [化50]



[0126] 電子伝達性化合物としての含窒素複素環誘導体としては、金属錯体でない含窒素化合物が挙げられる。例えば、以下の式で表される含窒素複素環基を有する化合物が好ましく挙げられる。

[0127] [化51]

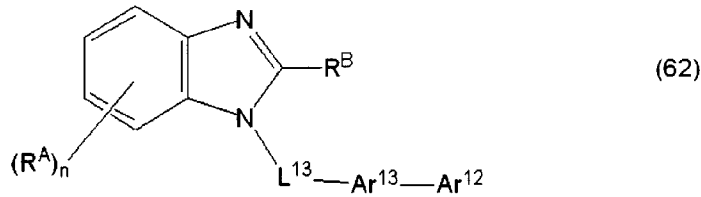
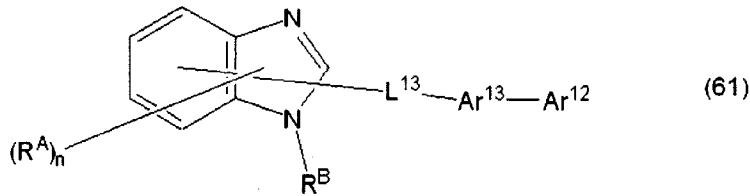
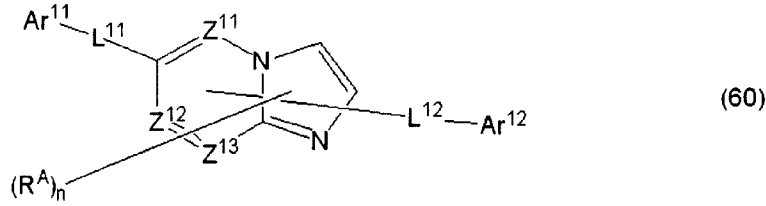


(上記式中、前記各式中、Rは、炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基、炭素数3～40の芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基、炭素数1～20のアルキル基、または炭素数1～20のアルコキシ基であり、nは0～5の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数のRは互いに同一又は異なってもよい)

[0128] 本発明の有機EL素子の電子輸送層は、下記式(60)～(62)で表さ

れる含窒素複素環誘導体を少なくとも1種含むことが特に好ましい。

[化52]



[0129] (式中、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

R^A 及び R^B は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～30、より好ましくは6～20、さらに好ましくは6～12）のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50（好ましくは5～30、より好ましくは5～20、さらに好ましくは5～12）の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のハロアルキル基又は置換もしくは無置換の炭素数1～20（好ましくは1～10、より好ましくは1～6）のアルコキシ基である。

n は、0～5の整数であり、 n が2以上の整数であるとき、複数の R^A は互いに同一でも異なってもよい。また、隣接する2つの R^A 同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の炭化水素環を形成していてもよい。

Ar^{11} は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50（好ましくは6～

30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12)のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50(好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12)の複素環基である。

$A r^{12}$ は、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1~20(好ましくは1~10、より好ましくは1~6)のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20(好ましくは1~10、より好ましくは1~6)のハロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~20(好ましくは1~10、より好ましくは1~6)のアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50(好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12)のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50(好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12)の複素環基である。

但し、 $A r^{11}$ 、 $A r^{12}$ のいずれか一方は、置換もしくは無置換の環形成炭素数10~50(好ましくは10~30、より好ましくは10~20、さらに好ましくは10~14)の縮合芳香族炭化水素環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数9~50(好ましくは9~30、より好ましくは9~20、さらに好ましくは9~14)の縮合芳香族複素環基である。

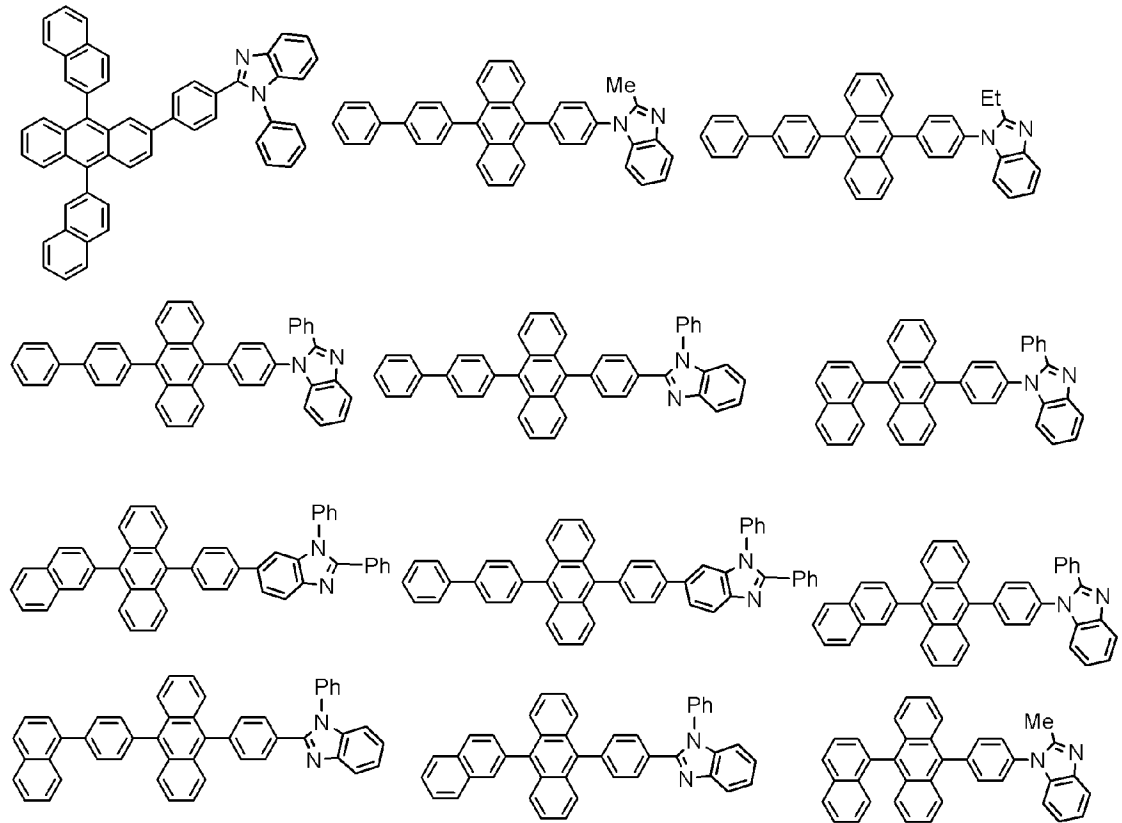
$A r^{13}$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50(好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12)のアリーレン基又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50(好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12)のヘテロアリーレン基である。

L^{11} 、 L^{12} 及び L^{13} は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50(好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12)のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数9~50(好ましくは9~30、より好ましくは9~20、さらに好ましくは9~14)の2価の縮合芳香族複素環基である。)

[0130] 上記式(60)~(62)で表される含窒素複素環誘導体の具体例として

は、以下に示すものが挙げられる。

[化53]



[0131] 本発明の有機EL素子の電子輸送層は第1電子輸送層（陽極側）と第2電子輸送層（陰極側）の2層構造にしてもよい。

電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは1nm～100nmである。有機EL素子の電子輸送層は第1電子輸送層（陽極側）と第2電子輸送層（陰極側）の2層構造である場合、第1電子輸送層の膜厚は、好ましくは5～60nm、より好ましくは10～40nmであり、第2電子輸送層の膜厚は、好ましくは1～20nm、より好ましくは1～10nmである。

[0132] また、電子輸送層に隣接して設けることができる電子注入層の構成成分として、含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

[0133] このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金

属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニドなどで構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl などが挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 などのフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

[0134] また、半導体としては、 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Sb 及び Zn の少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物などの一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポットなどの画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物などが挙げられる。

[0135] このような絶縁体又は半導体を使用する場合、その層の好ましい厚みは、 $0.1\text{ nm} \sim 15\text{ nm}$ 程度である。また、本発明における電子注入層は、前述の電子供与性ドーパント材料を含有していても好ましい。

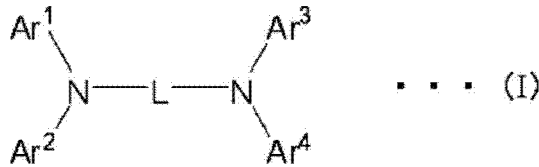
[0136] (正孔輸送層)

発光層と陽極との間に形成される有機層であって、正孔を陽極から発光層へ輸送する機能を有する。正孔輸送層が複数層で構成される場合、陽極に近

い有機層を正孔注入層と定義することがある。正孔注入層は、陽極から正孔を効率的に有機層ユニットに注入する機能を有する。

[0137] 正孔輸送層を形成し得る材料としては、芳香族アミン化合物、例えば、下記式 (I) で表される芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

[化54]

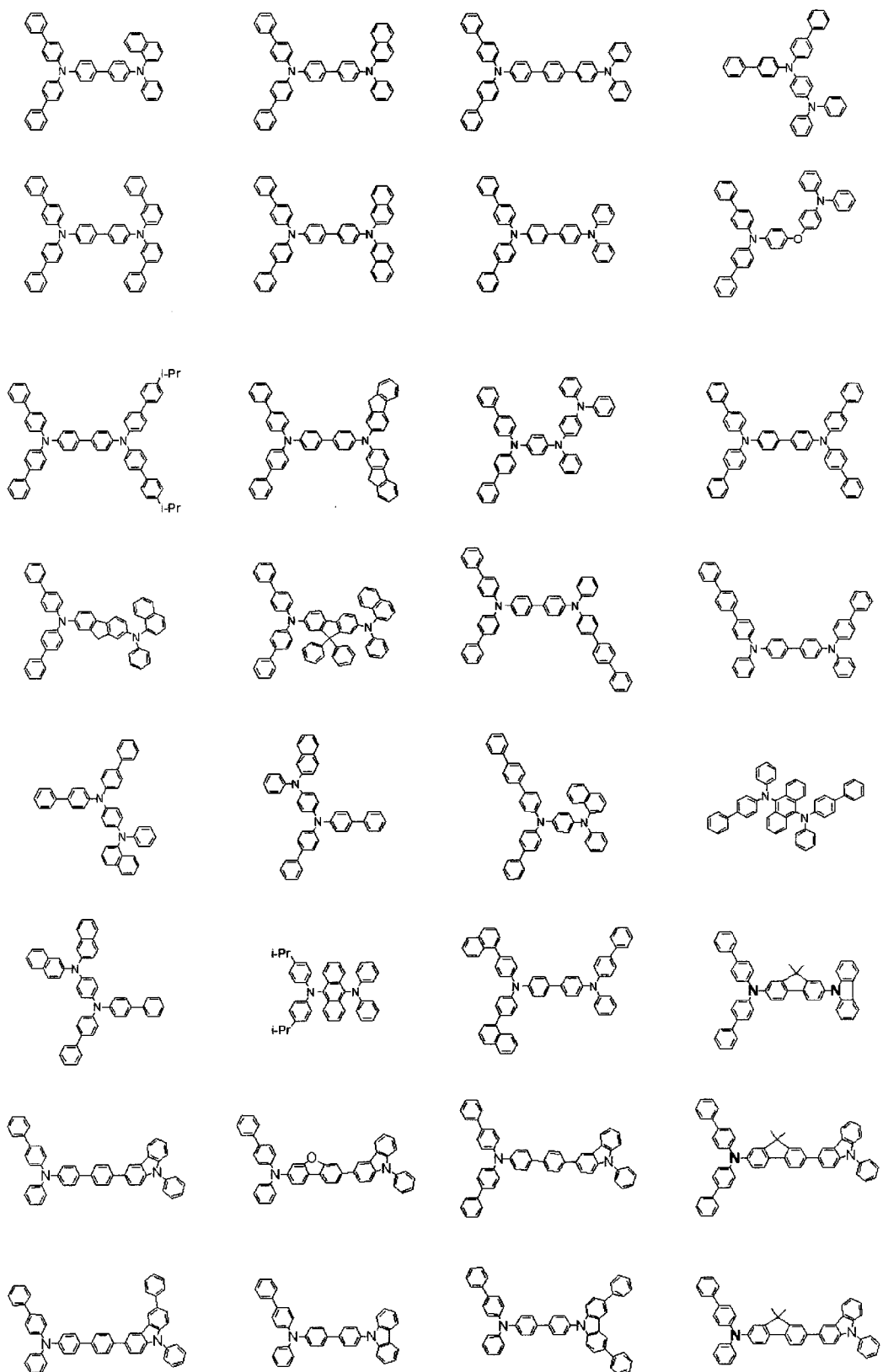


[0138] 前記式 (I) において、Ar¹~Ar⁴は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50 (好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12) の芳香族炭化水素基もしくは置換基を有していてもよい環形成炭素数6~50 (好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12) の縮合芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成原子数5~50 (好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12) の芳香族複素環基もしくは置換もしくは無置換の環形成原子数5~50 (好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12) の縮合芳香族複素環基、又は、それら芳香族炭化水素基又は縮合芳香族炭化水素基と芳香族複素環基又は縮合芳香族複素環基が結合した基を表す。Ar¹とAr²、Ar³とAr⁴で環を形成してもよい。

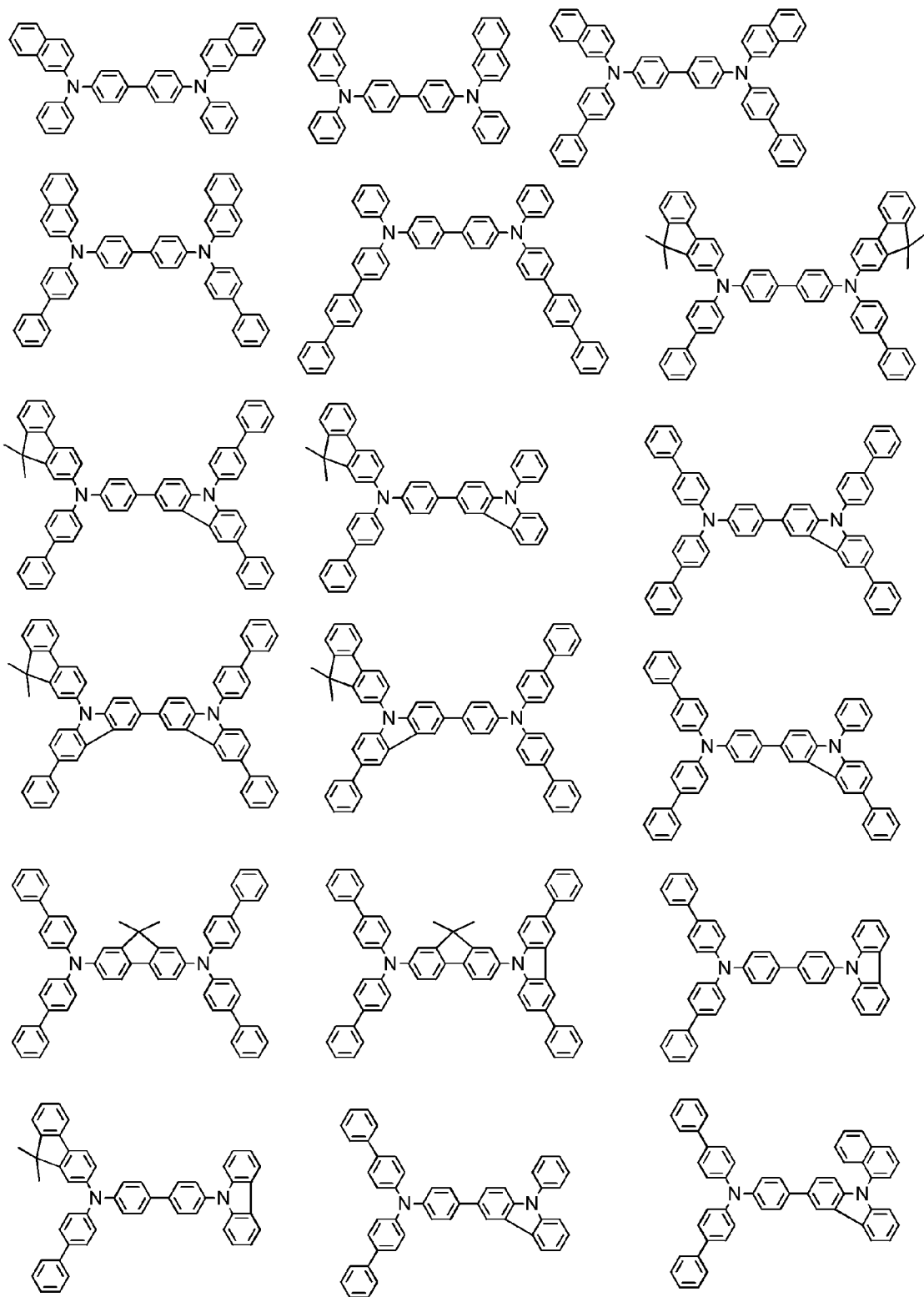
また、前記式 (I) において、Lは置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50 (好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12) の芳香族炭化水素基もしくは置換基を有していてもよい環形成炭素数6~50 (好ましくは6~30、より好ましくは6~20、さらに好ましくは6~12) の縮合芳香族炭化水素基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5~50 (好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12) の芳香族複素環基もしくは置換もしくは無置換の環形成原子数5~50 (好ましくは5~30、より好ましくは5~20、さらに好ましくは5~12) の縮合芳香族複素環基を表す。

[0139] 式(1)の化合物の具体例を以下に記す。

[0140] [化55]

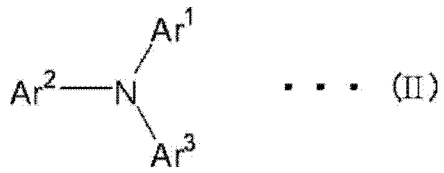


[0141] [化56]



[0142] また、下記式 (11) の芳香族アミンも正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

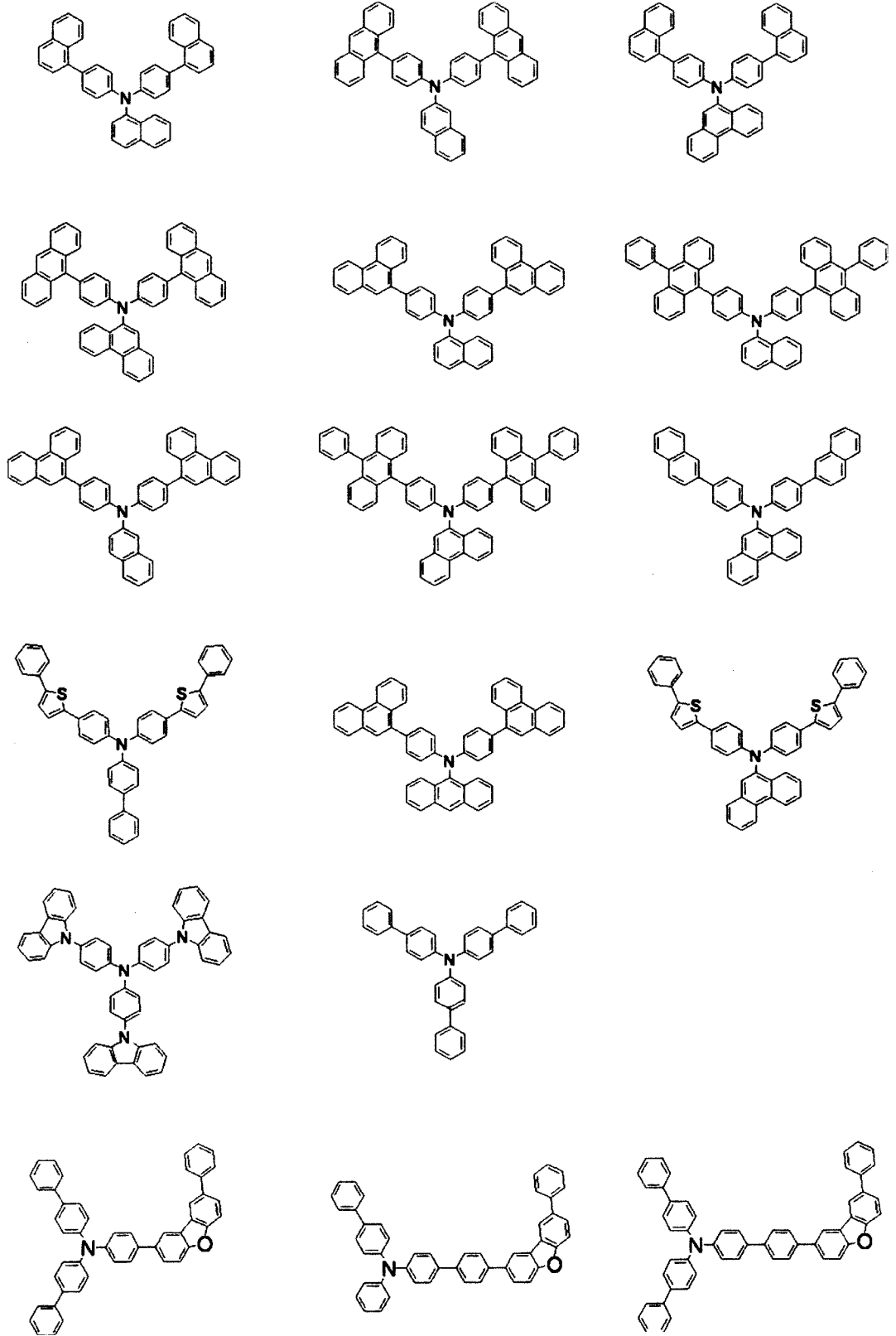
[0143] [化57]



[0144] 前記式 (I) において、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ の定義は前記式 (I) の $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ の定義と同様である。以下に式 (I) の化合物の具体例を記すがこれらに限定されるものではない。

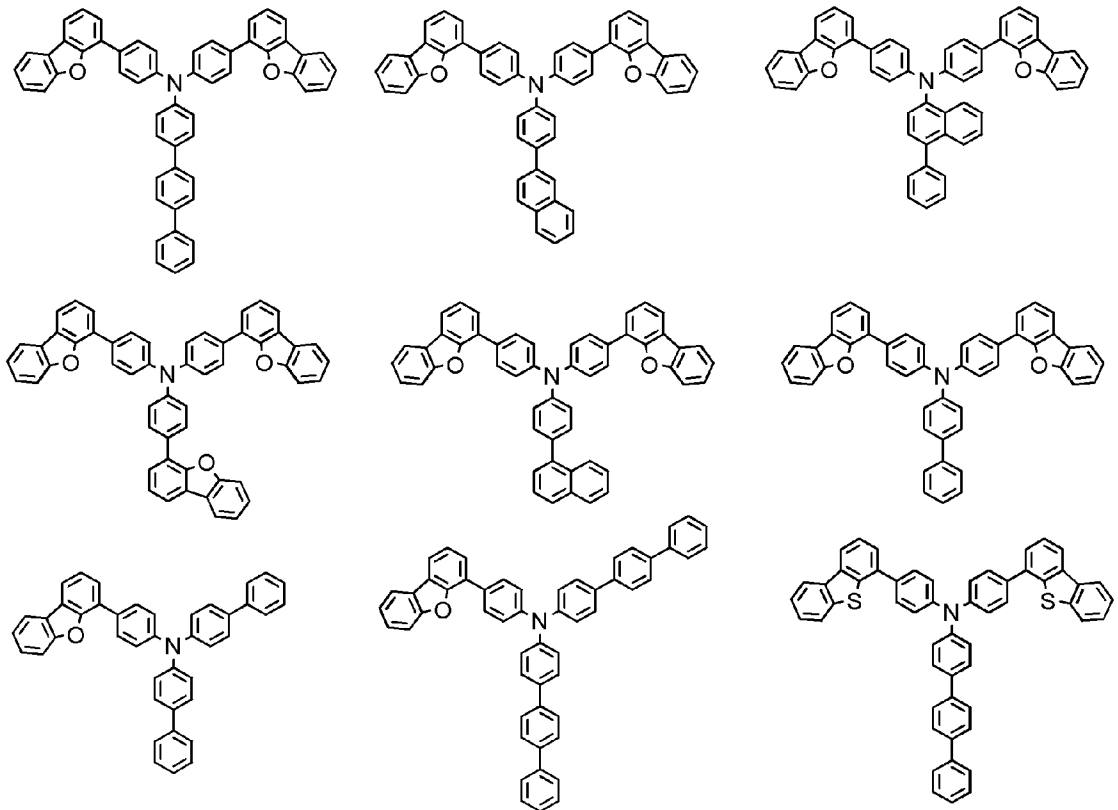
[0145]

[化58]



[0146]

[化59]



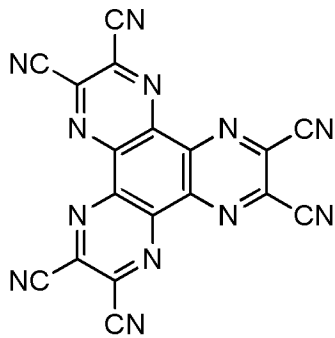
[0147] 本発明の有機EL素子の正孔輸送層は第1正孔輸送層（陽極側）と第2正孔輸送層（陰極側）の2層構造にしてもよい。

[0148] 正孔輸送層の膜厚は特に限定されないが、10～200nmであるのが好ましい。正孔輸送層が、第1正孔輸送層（陽極側）と第2正孔輸送層（陰極側）の2層構造である場合、第1正孔輸送層の膜厚は、好ましくは50～150nm、より好ましくは50～110nmであり、第2正孔輸送層の膜厚は、好ましくは5～50nm、より好ましくは5～30nmである。

[0149] 本発明の有機EL素子では、正孔輸送層又は第1正孔輸送層の陽極側にアクセプター材料を含有する層を接合してもよい。これにより駆動電圧の低下及び製造コストの低減が期待される。

[0150] 前記アクセプター材料としては下記式で表される化合物が好ましい。

[化60]



[0151] アクセプター材料を含有する層の膜厚は特に限定されないが、5～20 nmであるのが好ましい。

[0152] - n / p ドーピング -

上述の正孔輸送層や電子輸送層においては、特許第3695714号明細書に記載されているように、ドナー性材料のドーピング (n) やアクセプター性材料のドーピング (p) により、キャリア注入能を調整することができる。

n ドーピングの代表例としては、電子輸送材料にLiやCsなどの金属をドーピングする方法が挙げられ、p ドーピングの代表例としては、正孔輸送材料にF₄TCNQなどのアクセプター材料をドーピングする方法が挙げられる。

[0153] (スペース層)

上記スペース層とは、例えば、蛍光発光層と燐光発光層とを積層する場合に、燐光発光層で生成する励起子を蛍光発光層に拡散させない、あるいは、キャリアバランスを調整する目的で、蛍光発光層と燐光発光層との間に設けられる層である。また、スペース層は、複数の燐光発光層の間に設けることもできる。

スペース層は発光層間に設けられるため、電子輸送性と正孔輸送性を兼ね備える材料であることが好ましい。また、隣接する燐光発光層内の三重項エネルギーの拡散を防ぐため、三重項エネルギーが2.6 eV以上であることが好ましい。スペース層に用いられる材料としては、上述の正孔輸送層に用

いられるものと同様のものが挙げられる。

[0154] (障壁層)

本発明の有機EL素子は、発光層に隣接する部分に、電子障壁層、正孔障壁層、トリプレット障壁層といった障壁層を有することが好ましい。ここで、電子障壁層とは、発光層から正孔輸送層へ電子が漏れることを防ぐ層であり、発光層と正孔輸送層との間に設けられる層である。また、正孔障壁層とは、発光層から電子輸送層へ正孔が漏れることを防ぐ層であり、発光層と電子輸送層との間に設けられる層である。

トリプレット障壁層は、後述するように、発光層で生成する三重項励起子が、周辺の層へ拡散することを防止し、三重項励起子を発光層内に閉じ込めることによって三重項励起子の発光ドーパント材料以外の電子輸送層の分子上でのエネルギー失活を抑制する機能を有する。

電子注入層は、電界強度 $0.04 \sim 0.5 \text{ MV/cm}$ の範囲において、 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上であることが望ましい。これにより陰極からの電子輸送層への電子注入が促進され、ひいては隣接する障壁層、発光層への電子注入も促進し、より低電圧での駆動を可能にするためである。

[0155] [電子機器]

本発明の化合物を用いて得られる有機EL素子は、優れた性能を有するため、有機ELパネルモジュールなどの表示部品；テレビ、携帯電話、パーソナルコンピュータなどの表示装置；照明、車両用灯具の発光装置などの電子機器に使用できる。

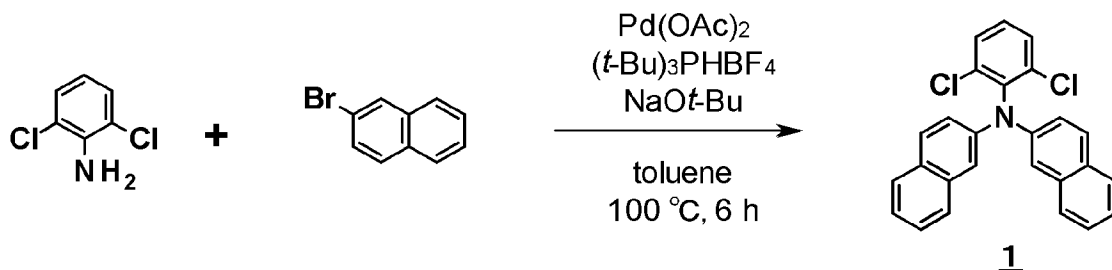
実施例

[0156] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらにより何ら限定されるものではない。

[0157] [合成実施例1 (化合物2の合成)]

(1) 中間体1の合成

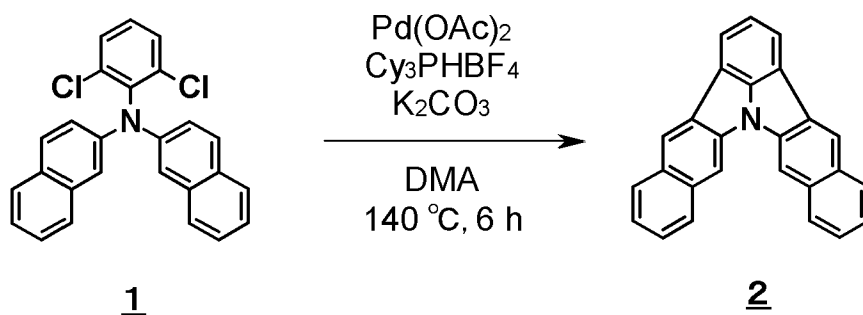
[化61]



[0158] アルゴン雰囲気下、2, 6-ジクロロアニリン 1.0 g (6.17 mmol)、2-ブロモナフタレン 2.68 g (13.0 mmol)、酢酸パラジウム 28 mg (0.123 mmol)、トリ *t*-ブチルホスフィンテトラフルオロボレート 72 mg (0.247 mmol)、及びナトリウム *t*-ブトキシド 1.78 g (18.5 mmol) をトルエン 15 mL に溶かし、100 °C で 6 時間攪拌した。反応終了後、水を加え、ジクロロメタンで抽出した。有機層を集め、濃縮後得られた固体をカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 1.8 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 1 であり、マスマスペクトル分析の結果、分子量 414.32 に対し、 $m/e = 414$ であった。(収率 71%)

[0159] (2) 化合物 2 の合成

[化62]



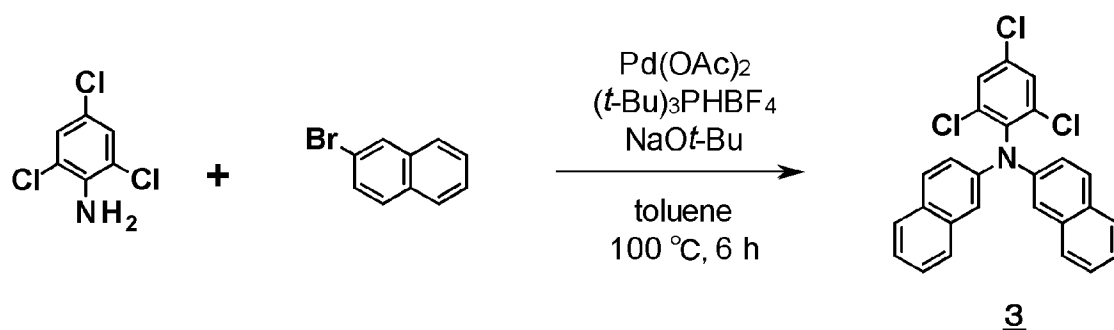
[0160] アルゴン雰囲気下、中間体 1 100 mg (0.241 mmol)、酢酸パラジウム 2.7 mg (0.0121 mmol)、トリシクロヘキシルホスフィンテトラフルオロボレート 9.0 mg (0.0241 mmol)、及び炭酸カリウム 133 mg (0.964 mmol) をジメチルアセトアミド 3 mL に溶かし、140 °C で 6 時間加熱した。反応終了後、水を加え、ジクロ

ロメタンで抽出した。有機層を集め、濃縮後得られた固体をフラッシュカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体 32 mg を得た。得られた固体は目的物である化合物 2 であり、マスペクトル分析の結果、分子量 341.40 に対し、341 であった。(収率 39%)

[0161] [合成実施例 2 (化合物 5 の合成)]

(1) 中間体 3 の合成

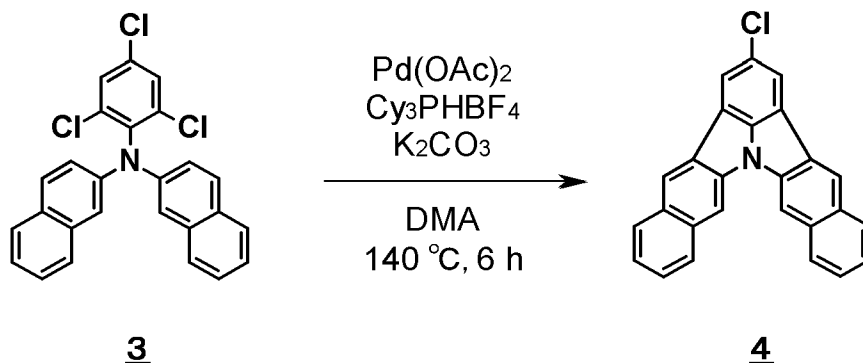
[化63]



[0162] アルゴン雰囲気下、2, 4, 6-トリクロロアニリン 1.0 g (5.09 mmol)、2-ブロモナフタレン 2.21 g (10.7 mmol)、酢酸パラジウム 22 mg (0.102 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィンテトラフルオロボレート 59 mg (0.204 mmol)、及びナトリウム *t*-ブトキシド 1.38 g (15.3 mmol) をトルエン 15 mL に溶かし、100 °C で 6 時間攪拌した。反応終了後、水を加え、ジクロロメタンで抽出した。有機層を集め、濃縮後得られた固体をカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 1.5 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 3 であり、マスペクトル分析の結果、分子量 448.77 に対し、 $m/e = 448$ であった。(収率 66%)

[0163] (2) 中間体 4 の合成

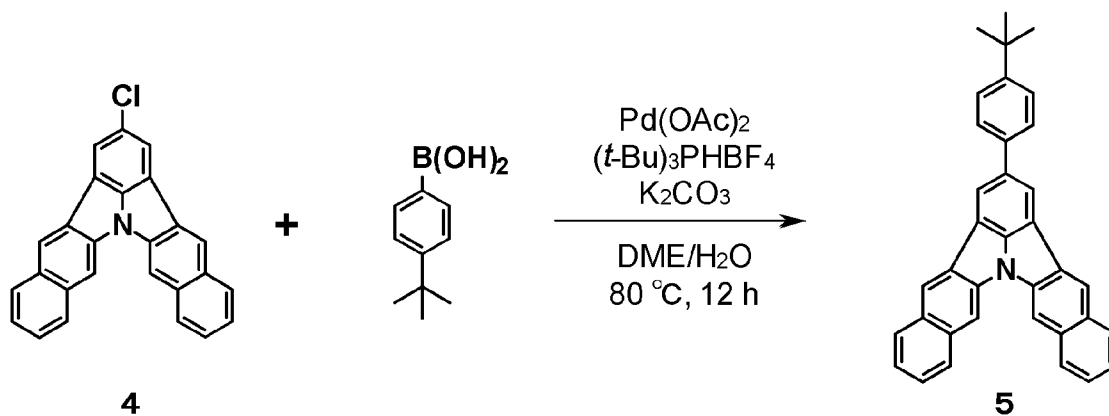
[化64]



[0164] アルゴン雰囲気下、中間体3 100 mg (0.223 mmol)、酢酸パラジウム2.5 mg (0.0111 mmol)、トリシクロヘキシルホスフィンテトラフルオロボレート6.4 mg (0.0222 mmol)、及び炭酸カリウム92 mg (0.669 mmol)をジメチルアセトアミド3 mLに溶かし、140 °Cで6時間加熱した。反応終了後、水を加え、ジクロロメタンで抽出した。有機層を集め、濃縮後得られた固体をフラッシュカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体26 mgを得た。得られた固体は目的物である中間体4であり、マススペクトル分析の結果、分子量375.85に対し、375であった。(収率30%)

[0165] (3) 化合物5の合成

[化65]

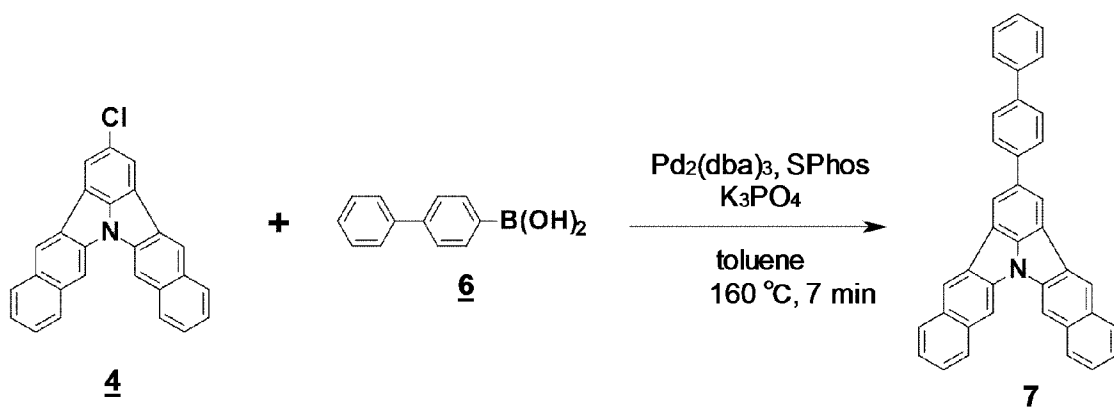


[0166] アルゴン雰囲気下、中間体4 20 mg (0.0532 mmol)、4-tert-ブチルフェニルボロン酸9.3 mg (0.0639 mmol)、酢酸パラジウム1.2 mg (0.00532 mmol)、トリtert-ブチルホ

スフィンテトラフルオロボレート3、1 mg (0.0106 mmol)、及び炭酸カリウム14.7 mg (0.106 mmol) にジメトキシエタン2 mLと水0.5 mLを加え、80°Cで12時間攪拌した。反応終了後、水を加え、ジクロロメタンで抽出した。有機層を集め、濃縮後得られた固体をカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体16 mgを得た。得られた固体は目的物である化合物5であり、マスペクトル分析の結果、分子量473.61に対し、 $m/e = 473$ であった。(収率64%)

[0167] [合成実施例3 (化合物7の合成)]

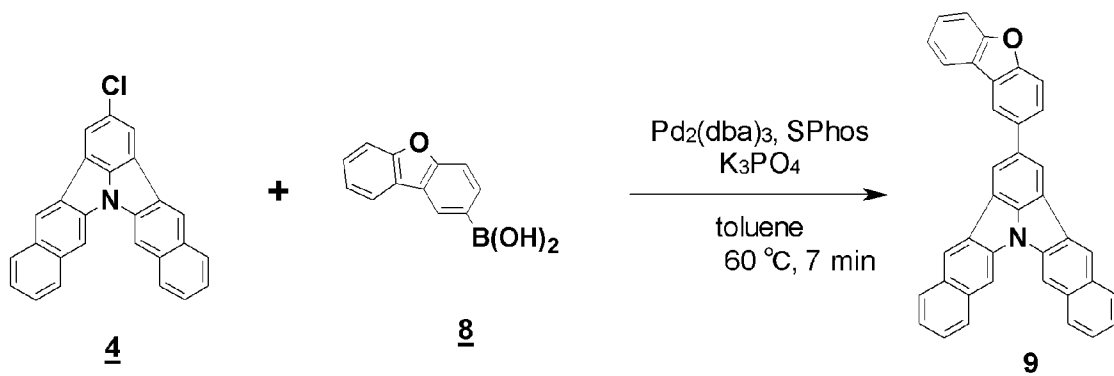
[化66]



[0168] アルゴン雰囲気下、中間体4 150 mg (0.399 mmol)、ボロン酸6 395 mg (1.995 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム15 mg (0.016 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノー-2', 6'-ジメトキシビフェニル(SPhos) 26 mg (0.064 mmol)、リン酸カリウム847 mg (3.99 mmol) にトルエン2 mLを加え、160°Cで7分間攪拌した。反応終了後、析出した固体をろ取し、トルエンとメタノールで洗浄し、黄色固体167 mgを得た。得られた固体は目的物である化合物7であり、マスペクトル分析の結果、分子量493.6に対し、 $m/e = 493$ であった。(収率83%)

[0169] [合成実施例4 (化合物9の合成)]

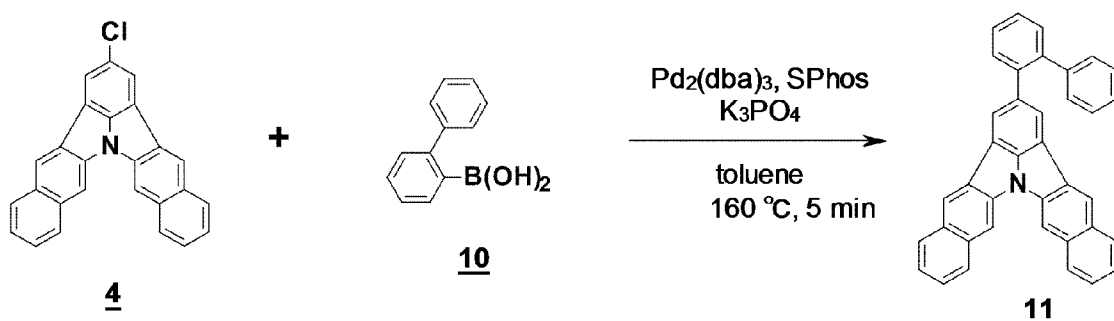
[化67]



[0170] アルゴン雰囲気下、中間体4 150mg (0.399mmol)、ボロン酸8 423mg (1.995mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム15mg (0.016mmol)、SPhos26mg (0.064mmol)、及びリン酸カリウム847mg (3.99mmol)にトルエン2mLを加え、160°Cで7分間撹拌した。反応終了後、析出した固体をろ取し、トルエンとメタノールで洗浄し、黄色固体188mgを得た。得られた固体は目的物である化合物9であり、マスペクトル分析の結果、分子量507.58に対し、 $m/e=507$ であった。(収率93%)

[0171] [合成実施例5 (化合物11の合成)]

[化68]

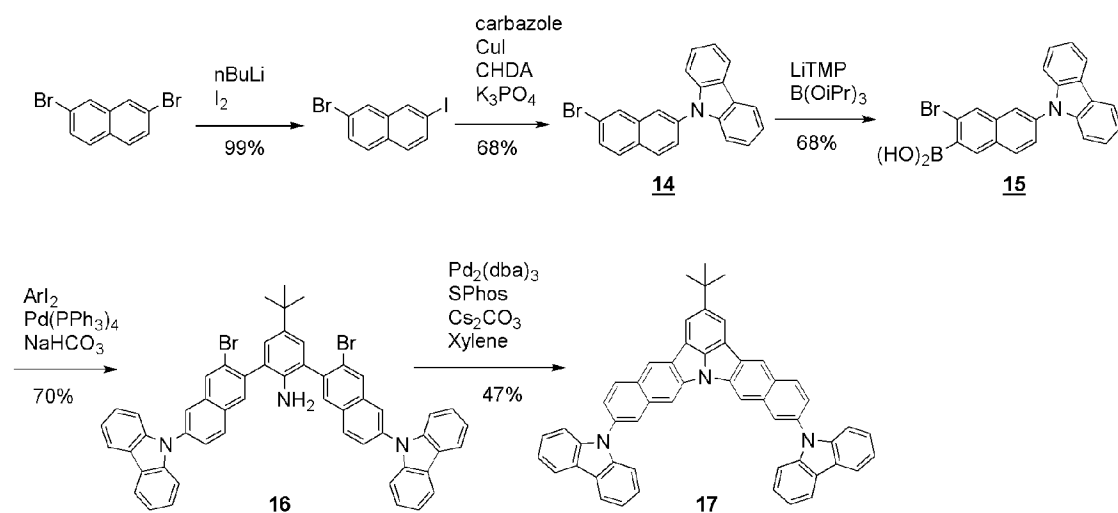


[0172] アルゴン雰囲気下、中間体4 150mg (0.399mmol)、ボロン酸10 395mg (1.995mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム15mg (0.016mmol)、SPhos26mg (0.064mmol)、及びリン酸カリウム847mg (3.99mmol)

) にトルエン 2 mL を加え、160°C で 5 分間攪拌した。反応終了後、析出した固体をろ取り、トルエンとメタノールで洗浄し、黄色固体 142 mg を得た。得られた固体は目的物である化合物 11 であり、マスペクトル分析の結果、分子量 493.6 に対し、 $m/e = 493$ であった。(収率 72%)

[0173] [合成実施例 6 (化合物 17 の合成)]

[化69]



[0174] (1) 2-ブロモ-7-ヨードナフタレンの合成

アルゴン雰囲気下、2,7-ジブロモナフタレン 5.0 g (17 mmol) を、無水テトラヒドロフラン 80 mL と無水トルエン 40 mL の混合溶媒に溶かし、ドライアイス/アセトン浴で -48°C に冷却した。これに、*n*-ブチルリチウム/ヘキサン溶液 10.6 mL (1.64 mol/L, 17 mmol) を加え、-45°C で 20 分間、次いで -72°C で 30 分間攪拌した。反応混合物にヨウ素 4.9 g (19 mmol) のテトラヒドロフラン溶液を加え、-72°C で 1 時間、次いで室温で 2.5 時間攪拌した。反応混合物を 10 質量% 亜硫酸ナトリウム水溶液 60 mL で失活させ、トルエン 150 mL で抽出した。有機層を飽和食塩水 30 mL で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去して減圧乾燥し、淡黄色固体 5.66 g を得た。得られた固体は目的物である 2-ブロモ-7-ヨードナフタレンであり、マスペクトル分析の結果、分子量 339 に対し、 $m/e = 339$ であった。(収率

99%)

[0175] (2) 中間体14の合成

アルゴン雰囲気下、9H-カルバゾール2.55g (15mmol)、2-ブromo-7-ヨードナフタレン5.7g (17mmol)、ヨウ化銅30mg (0.16mmol)、及びリン酸三カリウム7.5g (35mmol)を無水1,4-ジオキサン20mLに懸濁し、trans-1,2-ジアミノシクロヘキサン0.19mL (1.6mmol)を加え、10時間還流した。反応終了後、トルエン200mLを加え、無機物をろ別した。ろ液を濃縮して得られた褐色固体6.5gをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色針状晶3.8gを得た。得られた固体は目的物である中間体14であり、マススペクトル分析の結果、分子量332に対し、 $m/e = 332$ であった。(収率68%)

[0176] (3) 中間体15の合成

アルゴン雰囲気下、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン2.9g (20.6mmol)を無水テトラヒドロフラン30mLに溶かし、ドライアイス/アセトン浴で-43°Cに冷却した。これに、n-ブチルリチウム/ヘキサン溶液12.5mL (1.64mol/L、20.5mmol)を加え、-36°Cで20分攪拌後、-70°Cに冷却した。これにトリイソプロポキシボラン7mL (30mmol)を滴下し、次いで中間体14 3.8g (10.2mmol)を溶かしたテトラヒドロフラン溶液20mLを加え、冷却浴中で10時間攪拌した。反応終了後、5質量%塩酸100mLを加え、室温で30分間攪拌後、酢酸エチル150mLで抽出した。有機層を飽和食塩水30mLで洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、黄色アモルファス固体4.9gを得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体2.9gを得た。得られた固体は目的物である中間体15であり、マススペクトル分析の結果、分子量415に対し、 $m/e = 415$ であった。(収率68%)

[0177] (4) 中間体16の合成

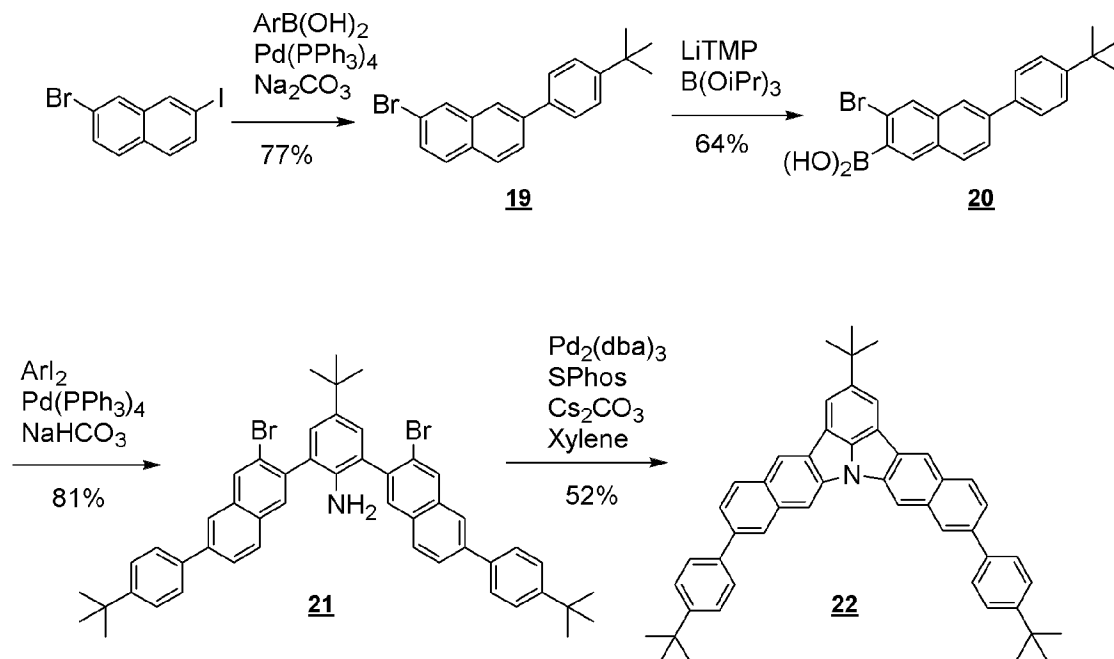
アルゴン雰囲気下、2,6-ジヨード-4-tert-ブチルアニリン1.27g (3.2mmol)、中間体15 2.9g (7.0mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム0.36g (0.31mmol)、及び炭酸水素ナトリウム2.1g (25mmol)を、1,2-ジメトキシエタン40mLに懸濁し、水21mLを加えて11時間還流した。反応終了後、ジクロロメタン200mLで抽出し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、黄色アモルファス固体3.5gを得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体2.0gを得た。得られた固体は目的物である中間体16であり、マススペクトル分析の結果、分子量887に対し、 $m/e = 887$ であった。(収率70%)

[0178] (5) 化合物17の合成

アルゴン雰囲気下、中間体16 1.0g (1.1mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)41mg (45 μ mol)、SPhos5mg (0.18mmol)、炭酸セシウム2.2g (6.7mmol)を無水キシレン100mLに懸濁し、10時間還流した。反応終了後、ろ別し、ろ物を水及びメタノールで洗浄して減圧乾燥し、淡緑色固体0.427gを得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体0.37gを得た。得られた固体は目的物である化合物17であり、マススペクトル分析の結果、分子量727に対し、 $m/e = 727$ であった。(収率47%)

[0179] [合成実施例7 (化合物22の合成)]

[化70]



[0180] (1) 中間体 19 の合成

アルゴン雰囲気下、4-tert-ブチルフェニルボロン酸 3.0 g (17 mmol)、2-ブロモ-7-ヨードナフタレン 5.66 g (17 mmol)、及びテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 0.35 g (0.30 mmol) を 1,2-ジメトキシエタン 45 mL に溶かし、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 23 mL (45 mmol) を加え、11 時間還流した。反応終了後、トルエン 150 mL で抽出した。有機層を飽和食塩水 30 mL で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、褐色固体 (9.2 g) を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 4.45 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 19 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 338 に対し、 $m/e = 338$ であった。(収率 77%)

[0181] (2) 中間体 20 の合成

アルゴン雰囲気下、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン 2.8 g (20 mmol) を無水テトラヒドロフラン 30 mL に溶かし、ドライアイス/アセトン浴で -40°C に冷却した。これに n-ブチルリチウム/ヘキサン

溶液 12 mL (1.64 mol/L、20 mmol) を加え、 -54°C で 20 分攪拌した。反応終了後、 -65°C に冷却し、トリイソプロポキシボラン 6 mL (26 mmol) を滴下し、次いで中間体 19 4.45 g (13 mmol) を溶かしたテトラヒドロフラン溶液 20 mL を加え、冷却浴中で 10 時間攪拌した。反応終了後、5 質量%塩酸 70 mL を加え、室温で 30 分間攪拌後、酢酸エチル 200 mL で抽出した。有機層を飽和食塩水 30 mL で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、黄色アモルファス固体 5.5 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 3.19 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 20 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 382 に対し、 $m/e = 382$ であった。(収率 64%)

[0182] (3) 中間体 21 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 20 3.19 g (8.3 mmol)、2,6-ジヨード-4-tert-ブチルアニリン 1.5 g (3.7 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 0.43 g (0.37 mmol)、炭酸水素ナトリウム 2.5 g (30 mmol) を 1,2-ジメトキシエタン 50 mL に懸濁し、水 25 mL を加えて 11 時間還流した。反応混合物をジクロロメタン 200 mL で抽出した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、黄色アモルファス固体 4.14 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 2.47 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 21 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 821 に対し、 $m/e = 821$ であった。(収率 81%)

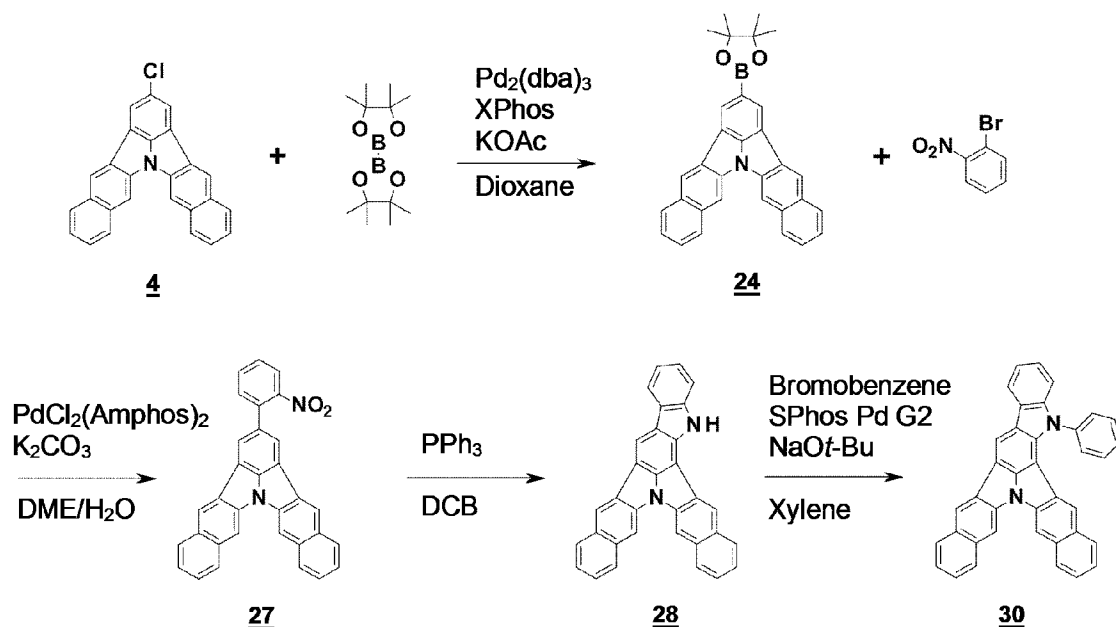
[0183] (4) 化合物 22 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 21 2.47 g (3.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) 0.11 g (0.12 mmol)、SPhos 0.20 g (0.49 mmol)、炭酸セシウム 5.9 g (18 mmol) を無水キシレン 250 mL に懸濁し、11 時間還流した。反応終了後、ろ別し、ろ物を水及びメタノールで順に洗浄して減圧乾燥し

、淡黄色針状晶 1.88 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体 1.03 g を得た。得られた固体は目的物である化合物 22 であり、マスマスペクトル分析の結果、分子量 661 に対し、 $m/e = 661$ であった。(収率 52%)

[0184] [合成実施例 8 (化合物 30 の合成)]

[化71]



[0185] (1) 中間体 24 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 4 1.00 g (2.66 mmol)、ビスピナコラトジボロン 1.15 g (4.52 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) 0.43 g (0.37 mmol)、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルピフェニル 101 mg (0.213 mmol)、及び酢酸カリウム 0.522 g (5.32 mmol) をジオキサンの 120 mL に溶かし、20 時間還流した。反応終了後、水を加えて攪拌し、沈殿物をろ取り、メタノールで洗浄した。得られた固体をカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄褐色固体 0.67 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 24 であり、マスマスペクトル分析の結果、分子量 467.36 に対し、 $m/e = 467$ であった。(収率 54%)

[0186] (2) 中間体 27 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 24 30 mg (0.064 mmol)、1-ブロモ-2-ニトロベンゼン 13 mg (0.064 mmol)、ビス(ジ tert-ブチル(4-ジメチルアミノフェニル)ホスフィン)ジクロロパラジウム(II) (PdCl₂(Amphos)₂: 化合物 26) 0.909 mg (0.00128 mmol) を 1, 2-ジメトキシエタン 3 mL に溶かし、2 M 炭酸ナトリウム水溶液 0.1 mL を加えて 24 時間還流した。沈殿物を熱時ろ過した後、ろ物をメタノール及びトルエンで洗浄し、橙色固体 13 mg を得た。得られた固体は目的物である中間体 27 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 462.50 に対し、 $m/e = 462$ であった。(収率 43%)

[0187] (3) 中間体 28 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 27 13 mg (0.028 mmol)、及びトリフェニルホスフィン 37 mg (0.14 mmol) を 1, 2-ジクロロベンゼン 1 mL に溶かし、50 時間還流した。反応終了後、メタノールを加えて、沈殿物をろ取り、褐色固体 4 mg を得た。得られた固体は目的物である中間体 28 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 430.50 に対し、 $m/e = 430$ であった。(収率 33%)

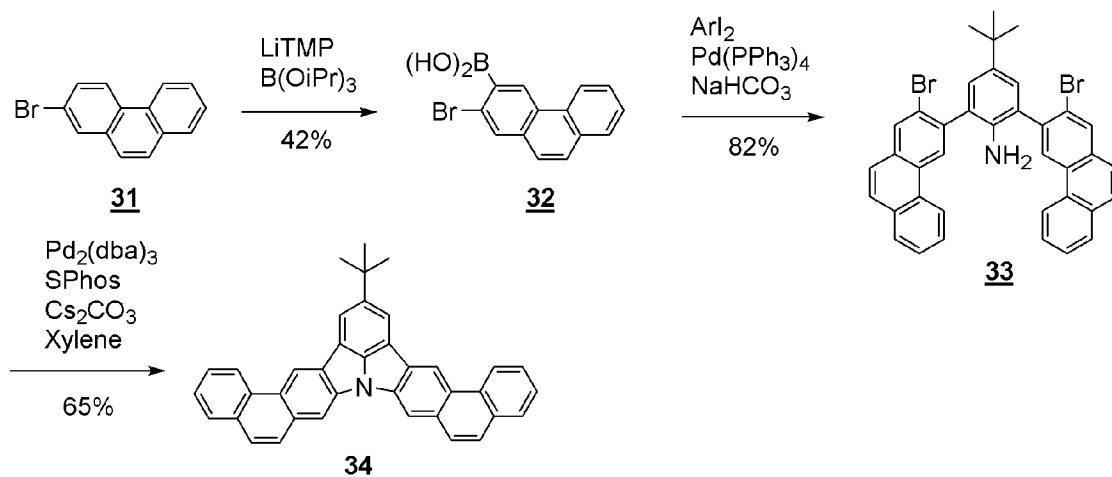
[0188] (4) 化合物 30 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 28 4 mg (0.01 mmol)、ブロモベンゼン 8 mg (0.05 mmol)、クロロ(2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル)[2-(2'-アミノ-1, 1'-ビフェニル)]パラジウム(II) (SPhos Pd G2) 7 mg (0.01 mmol)、ナトリウム tert-ブトキシド 3 mg (0.03 mmol) をキシレン(2 mL) に溶かし 8 時間還流した。反応終了後、反応溶液にクロロベンゼンを加えて加熱し、シリカゲルを加えてセライトろ過した。ろ物をヘキサンで洗浄し、黄色固体 1 mg を得た。得られた固体は目的物である化合物 39 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 50

6. 59 に対し、 $m/e = 506$ であった。(収率 20%)

[0189] [合成実施例 9 (化合物 34 の合成)]

[化72]



[0190] (1) 中間体 32 の合成

アルゴン雰囲気下、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン 4. 1 g (29 mmol) を、無水テトラヒドロフラン 45 mL に溶かし、ドライアイス/アセトン浴で -48°C に冷却した。これに、*n*-ブチルリチウム/ヘキサン溶液 18 mL (1.64 mol/L, 18 mmol) を加え、 -48°C で 20 分間攪拌後、 -65°C に冷却した。これにトリイソプロポキシボラン 9 mL (39 mmol) を滴下し、5 分後、2-ブロモフェナントレン 5.0 g (19 mmol) を溶かしたテトラヒドロフラン溶液 20 mL を加え、冷却浴中で 10 時間攪拌した。反応終了後、5 質量%塩酸 70 mL を加え、室温 (25°C) で 30 分間攪拌後、酢酸エチル 200 mL で抽出した。有機層を飽和食塩水 30 mL で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去して減圧乾燥し、淡黄色固体 5.97 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 2.4 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 32 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 300 に対し、 $m/e = 300$ であった。(収率 42%)

[0191] (2) 中間体 33 の合成

アルゴン雰囲気下、化合物 32 24 g (8.0 mmol)、2, 6-ジ

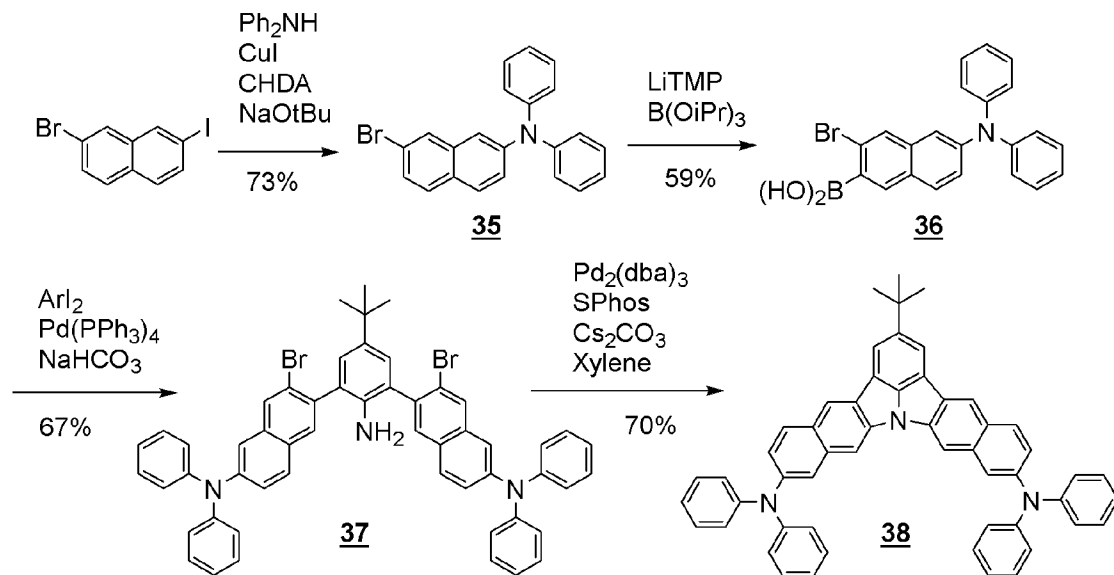
ヨード-4-tert-ブチルアニリン 1.45 g (3.6 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 0.42 g (0.36 mmol)、炭酸水素ナトリウム 2.4 g (29 mmol) を 1,2-ジメトキシエタン 50 mL に懸濁し、水 25 mL を加えて、10 時間還流した。反応混合物を水 150 mL で希釈し、固体をろ別し、ろ物を水及びメタノールで順に洗浄して減圧乾燥し、黄色固体 2.8 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 1.95 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 33 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 657 に対し、 $m/e = 657$ であった。(収率 82%)

[0192] (3) 化合物 34 の合成

アルゴン雰囲気下、中間体 33 1.95 g (3.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) 0.11 g (0.12 mmol)、SPhos 0.20 g (0.49 mmol)、炭酸セシウム 5.9 g (18 mmol) を無水キシレン 250 mL に懸濁し、10 時間還流した。反応終了後、ろ別し、ろ物を水及びメタノールで順に洗浄して減圧乾燥し、暗黄緑色固体 0.99 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色色板状晶 0.97 g を得た。得られた固体は目的物である化合物 34 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 497 に対し、 $m/e = 497$ であった。(収率 65%)

[0193] [合成実施例 10 (化合物 38 の合成)]

[化73]



[0194] (1) 中間体 35 の合成

アルゴン雰囲気下、2-ブロモ-7-ヨードナフタレン 2.83 g (16.7 mmol)、ジフェニルアミン 5.57 g (16.7 mmol)、ヨウ化銅 30 mg (0.16 mmol)、ナトリウム *t*-ブトキシド 2.2 g (23 mmol) を無水 1,4-ジオキササン 20 mL に懸濁し、*trans*-1,2-ジアミノシクロヘキサン 0.19 mL (1.6 mmol) を加え、110°C で 10 時間攪拌した。反応混合物をシリカパッドを通してろ別し、トルエン 100 mL で洗浄した。ろ液から溶媒留去し、減圧乾燥して濃褐色オイル 6.7 g を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、白色固体 4.56 g を得た。得られた固体は目的物である中間体 35 であり、マススペクトル分析の結果、分子量 373 に対し、 $m/e = 373$ であった。(収率 68%)

[0195] (2) 中間体 36 の合成

アルゴン雰囲気下、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン 3.4 g (24 mmol) を無水テトラヒドロフラン 35 mL に溶かし、ドライアイス/アセトン浴で -30°C に冷却した。これに、*n*-ブチルリチウム/ヘキサン溶液 14.7 mL (1.64 mol/L, 24 mmol) を加え、-20°C で 20 分攪拌後、-75°C に冷却した。これにトリイソプロポキシボラン

8. 3 mL (36 mmol) を滴下し、5分後、中間体35 4.5 g (12 mmol) を溶かしたテトラヒドロフラン溶液20 mLを加え、冷却浴中で10時間攪拌した。反応終了後、5質量%塩酸100 mLを加え、室温で30分間攪拌後、酢酸エチル150 mLで抽出した。有機層を飽和食塩水30 mLで洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、赤褐色アモルファス固体5.8 gを得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、淡黄色固体2.94 gを得た。得られた固体は目的物である中間体36であり、マススペクトル分析の結果、分子量417に対し、 $m/e = 417$ であった。(収率59%)

[0196] (3) 中間体37の合成

アルゴン雰囲気下、2,6-ジヨード-4-tert-ブチルアニリン1.28 g (3.19 mmol)、中間体36 2.94 g (7.0 mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム0.37 g (0.32 mmol)、及び炭酸水素ナトリウム2.1 g (25 mmol)を、1,2-ジメトキシエタン45 mLに懸濁し、水22 mLを加えて11時間還流した。反応終了後、ジクロロメタン150 mLで抽出し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒留去し、黄色アモルファス固体3.8 gを得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体1.92 gを得た。得られた固体は目的物である中間体37であり、マススペクトル分析の結果、分子量891に対し、 $m/e = 891$ であった。(収率67%)

[0197] (4) 化合物38の合成

アルゴン雰囲気下、中間体37 1.92 g (2.1 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)0.14 g (0.34 mmol)、炭酸セシウム4.1 g (12.6 mmol)を無水キシレン200 mLに懸濁し、11時間還流した。反応終了後、ろ別し、ろ液から溶媒留去し、減圧乾燥して、黄色固体を得た。これをカラムクロマトグラフィーを用いて精製し、黄色固体1.6 gを得た。得られた固体をトルエン40 mLで再結晶して、黄色針状晶1.07 gを得た。得られた固体は目的物である化

合物38であり、マスペクトル分析の結果、分子量731に対し、 $m/e = 731$ であった。(収率70%)

[0198] [実施例1]

合成実施例1で得られた化合物2を日立ハイテクサイエンス社製 分光光度計U-3310を用いて測定したところ、423nmに吸収ピーク波長が観測された。また、この化合物2を蛍光スペクトル測定装置日立ハイテクサイエンス社製 分光蛍光光度計F-7000を用いて測定したところ、349nmでの励起における蛍光発光ピーク波長が432nmにて観測された。

また、半値幅を、次のようにして測定した。

化合物2を溶媒(トルエン)に溶解(試料5 [$\mu\text{mol}/\text{mL}$])し、蛍光測定用試料とした。石英セルへ入れた蛍光測定用試料に室温(300 [K])で励起光を照射し、波長を変えながら蛍光強度を測定した。フォトルミネッセンススペクトルは、縦軸を蛍光強度、横軸を波長とした。蛍光の測定に用いた装置は、日立ハイテクサイエンス 分光蛍光光度計F-7000である。

このフォトルミネッセンススペクトルから化合物2の半値幅(nm)を測定した。フォトルミネッセンススペクトル測定結果を、図2に示す。その結果、化合物2の半値幅は16nmであった。

また、PLQYを、次のようにして測定した。

化合物2について、浜松ホトニクス社製 絶対PL量子収率測定装置 Quanta urus-QYを用いて、トルエン溶液で濃度を5 [$\mu\text{mol}/\text{mL}$]で測定した結果、PLQYの値は83%であった。

また、一重項エネルギーEgSを、以下のようにして求めた。

化合物2のトルエン溶液(20 $\mu\text{mol}/\text{mL}$)を日立ハイテクサイエンス社製 分光光度計U-3310を用い吸収スペクトルを測定した。この吸収スペクトルは、縦軸が吸光度、横軸が波長であり、最も長波長側のピークの立ち下がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値 λ_{edge} [nm]を求めた。この波長値を次に示す換算式でエネルギー値に換算した

値を $E_g S$ とした。

$$\text{換算式： } E_g S [\text{eV}] = 1239.85 / \lambda_{\text{edge}}$$

なお、吸収スペクトルの長波長側の立ち下がりに対する接線は以下のように引いた。吸収スペクトルの極大値のうち、最も長波長側の極大値から長波長方向にスペクトル曲線上を移動する際に、曲線上の各点における接線を考える。この接線は、曲線が立ち下がるにつれ（すなわち縦軸の値が減少するにつれ）、傾きが減少しその後増加することを繰り返す。傾きの値が最も長波長側で極小値をとる点において引いた接線を当該吸収スペクトルの長波長側の立ち下がりに対する接線とする。

上記のようにして求めた化合物 2 の一重項エネルギー (S_1) は、2.85 eV であった。化合物 2 の吸収スペクトルを、図 3 に示した。

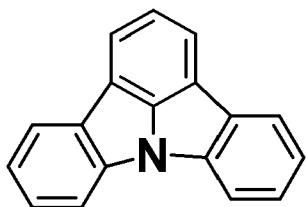
[0199] [実施例 2～9]

実施例 1 と同様にして、合成実施例 3～10 で得られた化合物 7、9、11、17、22、30、34 及び 38 の蛍光発光ピーク波長 (λ)、半値幅、及び PLQY を測定し、一重項エネルギー (S_1) も同様にして求めた。

[0200] [比較例 1]

実施例 1 と同様にして、下記比較化合物 1 の蛍光発光ピーク波長、半値幅、及び PLQY を測定し、一重項エネルギーも同様にして求めた。比較例化合物 1 の蛍光発光ピーク波長は 375 nm、半値幅は 24 nm、PLQY は 40% であり、一重項エネルギーは 3.30 eV であった。

[0201] [化74]



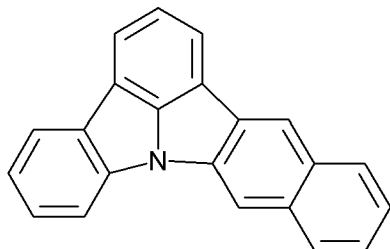
比較化合物 1

[0202] [比較例 2]

実施例 1 と同様にして、下記比較化合物 2 の蛍光発光ピーク波長、半値幅

、及びPLQYを測定し、一重項エネルギーも同様にして求めた。比較例化合物2の蛍光発光ピーク波長は406 nm、半値幅は17 nm、PLQYは60%であり、一重項エネルギーは3.02 eVであった。

[0203] [化75]

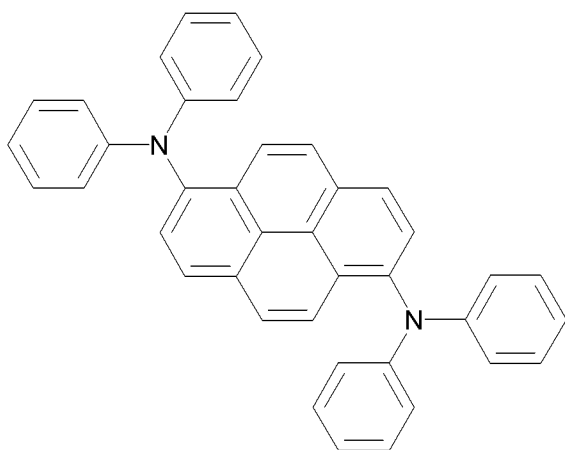


比較化合物2

[0204] [比較例3]

実施例1と同様にして、下記比較化合物3（ピレン誘導体）の蛍光発光ピーク波長、半値幅、及びPLQYを測定し、一重項エネルギーも同様にして求めた。比較例化合物2の蛍光発光ピーク波長は455 nm、半値幅は35 nm、PLQYは90%であり、一重項エネルギーは2.75 eVであった。

[0205] [化76]



比較化合物3

[0206] 上記実施例及び比較例の測定結果を表1にまとめて示す。

[0207]

[表1]

表1

		λ [nm]	半値幅 [nm]	PLQY [%]	S1 [eV]
実施例1	化合物2	432	16	83	2.85
実施例2	化合物7	442	17	75	2.79
実施例3	化合物9	442	18	77	2.79
実施例4	化合物11	439	16	79	2.81
実施例5	化合物17	436	15	83	2.83
実施例6	化合物22	444	17	84	2.78
実施例7	化合物30	435	16	80	2.83
実施例8	化合物34	426	15	72	2.89
実施例9	化合物38	440	15	83	2.81
比較例1	比較化合物1	375	24	40	3.30
比較例2	比較化合物2	406	17	60	3.02
比較例3	比較化合物3	455	35	90	2.75

[0208] 表1から分かるように、本願の化合物2、7、9、11、17、22、30、34及び38は、比較化合物1及び比較化合物3よりも半値幅が狭く、高い色純度、シャープなスペクトルを有する。また、本願の化合物2は、置換基を有せずに、比較化合物1及び比較化合物2よりも大幅に高いPLQYを示す。さらに、比較化合物1は375nm、比較化合物2は406nmと可視光外領域に蛍光発光ピーク波長を有するが、本願の化合物2、7、9、11、17、22、30、34及び38は、426~444nmと深い青色発光を示す。

[0209] <有機EL素子の作製>

以下のようにして、有機EL素子を作製した。

[0210] [素子実施例1]

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極（陽極）付きガラス基板（ジオマティック社製）について、イソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行った後、UVオゾン洗浄を30分間行った。ITOの膜厚は130nmとした。

洗浄後の前記ガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、透明電

極ラインが形成されている側の面上に透明電極を覆うようにして下記化合物 H I - 1 を蒸着し、膜厚 5 n m の正孔注入層を形成した。

この正孔注入層の成膜の上に、下記化合物 H T - 1 を蒸着し、膜厚 8 0 n m の第一正孔輸送層を形成した。

次いで、この第一正孔輸送層の上に、下記化合物 H T - 2 を蒸着し、膜厚 1 0 n m の第二正孔輸送層を形成した。

続けて、この第二正孔輸送層の上に、下記化合物 B H - 1 及び化合物 2 (ドーパント材料) を共蒸着し、膜厚 2 5 n m の発光層を形成した。発光層内における化合物 2 (ドーパント材料) の濃度を 4 質量%とした。

続けて、この発光層の上に、下記化合物 E T - 1 を蒸着し、膜厚 1 0 n m の第一電子輸送層を形成した。

続けて、この第一電子輸送層の上に、下記化合物 E T - 2 を蒸着し、膜厚 1 5 n m の第二電子輸送層を形成した。

さらに、この第二電子輸送層の上に、フッ化リチウム (L i F) を蒸着し、膜厚 1 n m の電子注入性電極を形成した。

そして、この電子注入性電極の上に、金属アルミニウム (A l) を蒸着し、膜厚 8 0 n m の金属陰極を形成した。

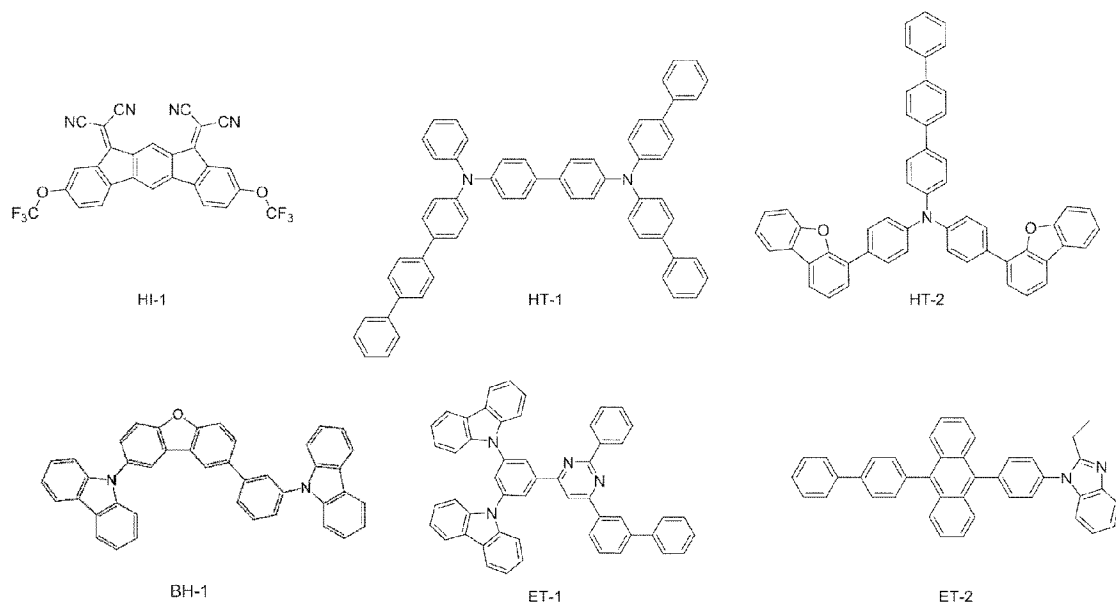
上記において作製した有機 E L 素子の構成は、以下のとおりである。

I T O (1 3 0) / H I - 1 (5) / H T - 1 (8 0) / H T - 2 (1 0) / B H - 1 : 化合物 2 (2 5 : 4 質量%) / E T - 1 (1 0) / E T - 2 (1 5) / L i F (1) / A l (8 0)

なお、括弧内の数字は、膜厚 (単位 : n m) を示す。

[0211]

[化77]



[0212] <有機EL素子の評価>

作製した有機EL素子について、以下の評価を行った。

・駆動電圧

電流密度が 10 mA/cm^2 となるように有機EL素子に電圧を印加したときの電圧（単位：V）を計測した。

・主ピーク波長

電流密度が 10 mA/cm^2 となるように有機EL素子に電圧を印加したときの主ピーク波長（単位：nm）を、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタ株式会社製）を用いて計測した。

[0213] 作製した有機EL素子の駆動電圧は4.81Vであり、主ピーク波長が448nmの青色発光を示すことが認められた。

符号の説明

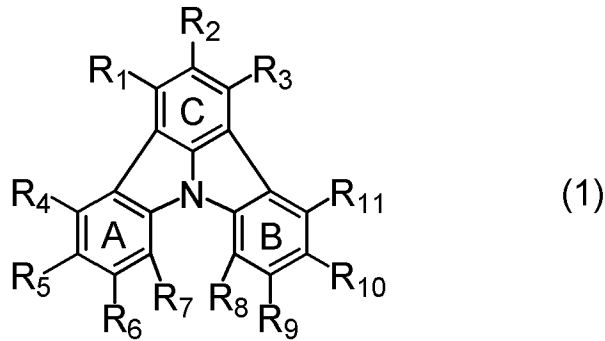
- [0214]
- 1 有機エレクトロルミネッセンス素子
 - 2 基板
 - 3 陽極
 - 4 陰極
 - 5 発光層

- 6 正孔注入層／正孔輸送層
- 7 電子注入層／電子輸送層
- 10 発光ユニット

請求の範囲

[請求項1] 下記式（1）で表される化合物。

[化1]



[式中、式（1）において、

R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、 R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つ以上の対のそれぞれにおいて、 R_n と R_{n+1} （ n は1、2、4～6、及び8～10から選ばれる整数を表す）は互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する。この環構造を構成する原子のうち、置換基を有しうる原子は水素原子または置換基を有し、該置換基は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$

で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基から選ばれる。それら置換基同士が結合してさらなる環構造を形成してもよい。なお、前記原子数3以上の環の原子数には、前記置換基の原子数は含まない。

ただし、 R_1 と R_2 からなる対と R_2 と R_3 からなる対； R_4 と R_5 からなる対と R_5 と R_6 からなる対； R_5 と R_6 からなる対と R_6 と R_7 からなる対； R_8 と R_9 からなる対と R_9 と R_{10} からなる対；及び R_9 と R_{10} からなる対と R_{10} と R_{11} からなる対が、環構造を同時に形成することはない。

前記2つ以上の対は、環A、環B及び環Cから選ばれる2又は3つの環が、前記炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を有するように選ばれ、前記2又は3つの環が有する2つ以上の環構造は同一でも異なってもよい。

前記原子数3以上の環構造を形成しない $R_1 \sim R_{11}$ は、水素原子または置換基を表し、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは

は無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基である。

$R_{101} \sim R_{105}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基を示す。]

[請求項2]

R_4 と R_5 、 R_5 と R_6 、 R_6 と R_7 、 R_8 と R_9 、 R_9 と R_{10} 、及び、 R_{10} と R_{11} から選ばれる2つ以上の対のそれぞれにおいて、 R_n と R_{n+1} (n は4～6、及び8～10から選ばれる整数を表す)は互いに結合して、 R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造を形成する、請求項1に記載の化合物。

[請求項3]

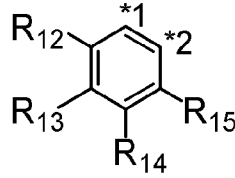
$R_1 \sim R_3$ は、水素原子または置換基を表し、 $R_1 \sim R_3$ が置換基を表す場合、 $R_1 \sim R_3$ はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基である、請求項1又は2に記載の化合物。

[請求項4]

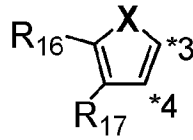
R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、

酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環が、下記式(2)～(8)から選ばれるいずれかの環である請求項1～3のいずれかに記載の化合物。

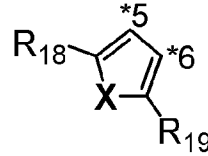
[化2]



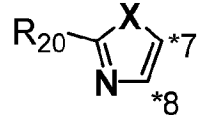
(2)



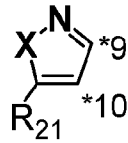
(3)



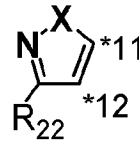
(4)



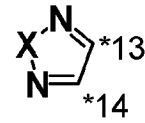
(5)



(6)



(7)



(8)

(式(2)～(8)において、*1と*2、*3と*4、*5と*6、*7と*8、*9と*10、*11と*12及び*13と*14のそれぞれは、 R_n と R_{n+1} が結合する前記2つの環形成炭素原子を表し、 R_n が結合する環形成炭素原子は、*1と*2、*3と*4、*5と*6、*7と*8、*9と*10、*11と*12及び*13と*14が表す2つの環形成炭素原子のどちらであってもよい。

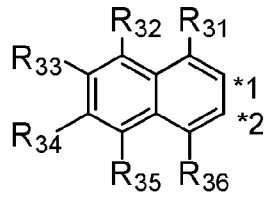
XはC(R_{23})(R_{24})、 NR_{25} 、O、Sから選ばれる。 R_{12} ～ R_{25} は、前記 R_1 ～ R_{11} と同じである。

R_{12} ～ R_{17} 及び R_{23} ～ R_{24} は、隣接する基同士で互いに結合して環構造を形成してもよい。))

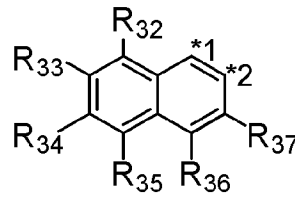
[請求項5]

R_n と R_{n+1} が結合する2つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環が、下記式(9)～(11)から選ばれるいずれかの環である請求項1～4のいずれかに記載の化合物。

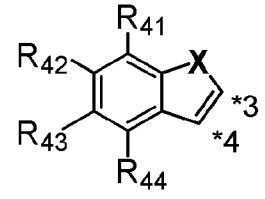
[化3]



(9)



(10)



(11)

(式(9)～(11)において、*1と*2、及び*3と*4のそれぞれは、 R_n と R_{n+1} が結合する前記2つの環形成炭素原子を表し、 R_n が結合する環形成炭素原子は、*1と*2、又は*3と*4が表す2つの環形成炭素原子のどちらであってもよい。

$R_{31} \sim R_{37}$ 及び $R_{41} \sim R_{44}$ は、前記 $R_{12} \sim R_{25}$ と同じであり、Xは、前記と同じである。

$R_{31} \sim R_{37}$ 及び $R_{41} \sim R_{44}$ は、隣接する基同士で互いに結合して環構造を形成してもよい。)

[請求項6]

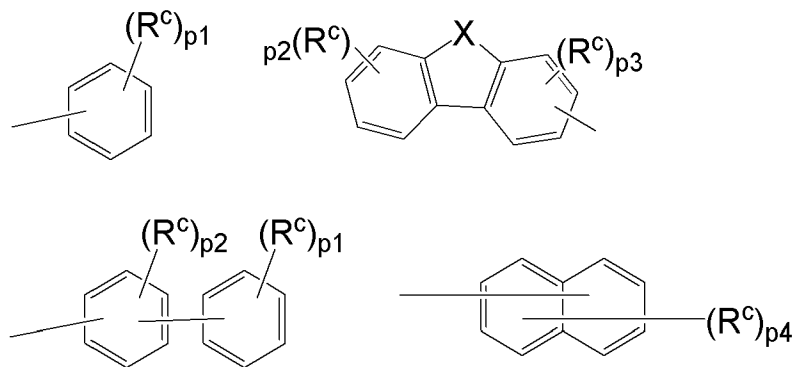
式(1)において、 R_2 、 R_4 、 R_5 、 R_{10} 及び R_{11} の少なくとも1つが、前記原子数3以上の環構造を形成しない基であって、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキニル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、アミノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキルチオ基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリールチオ基、 $-Si(R_{101})(R_{102})(R_{103})$ で表される基 [$R_{101} \sim R_{103}$ は前記と同じ]、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基 [R_{104} 及び R_{105} は前記と同じ]、置換もしくは無置換の環形成炭

素数 6～50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基である、請求項 1～5 のいずれかに記載の化合物。

[請求項7]

式 (1) において、 R_n と R_{n+1} が結合する 2 つの環形成炭素原子と共に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数 3 以上の環構造を形成する場合の環構造が有する置換基が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 のヘテロアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかである請求項 1～6 のいずれかに記載の化合物。

[化4]



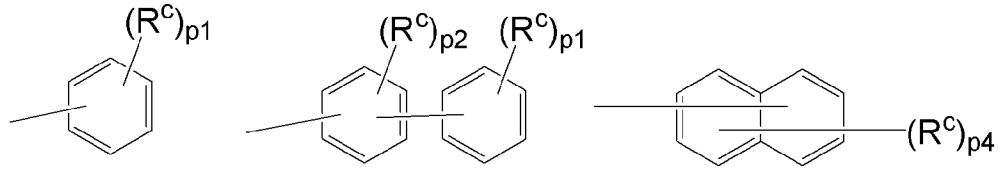
(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。 X は前記と同じである。

p_1 は 0～5 の整数、 p_2 は 0～4 の整数、 p_3 は 0～3 の整数、 p_4 は 0～7 の整数である。)

[請求項8]

前記環構造が有する置換基が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかである請求項 7 に記載の化合物。

[化5]



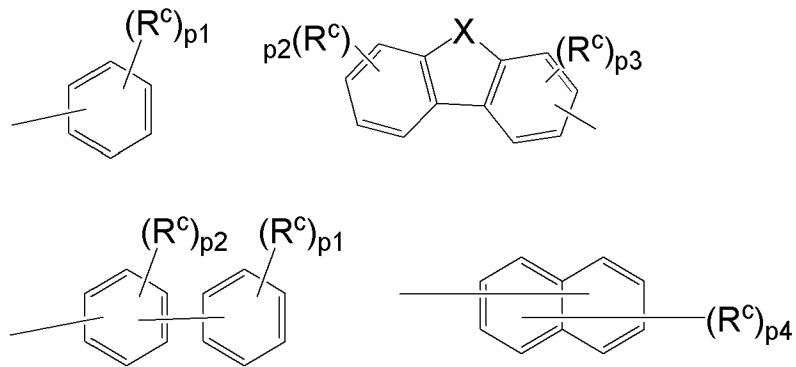
(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。

p_1 は0～5の整数、 p_2 は0～4の整数、 p_4 は0～7の整数である。)

[請求項9]

式(1)において、前記環構造を形成しない $R_1 \sim R_{11}$ が、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかである請求項1～8のいずれかに記載の化合物。

[化6]



(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。 X は前記と同じである。

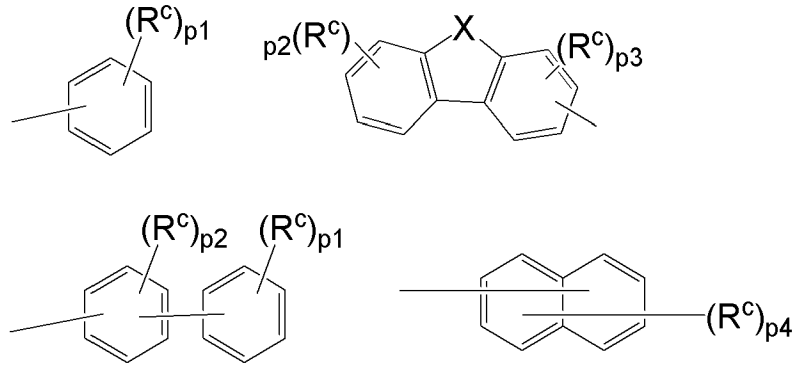
p_1 は0～5の整数、 p_2 は0～4の整数、 p_3 は0～3の整数、 p_4 は0～7の整数である。)

[請求項10]

式(2)～(11)において、 $R_{12} \sim R_{22}$ 、 $R_{31} \sim R_{37}$ 及び $R_{41} \sim R_{44}$ が、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もし

くは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかである請求項4～9のいずれかに記載の化合物。

[化7]

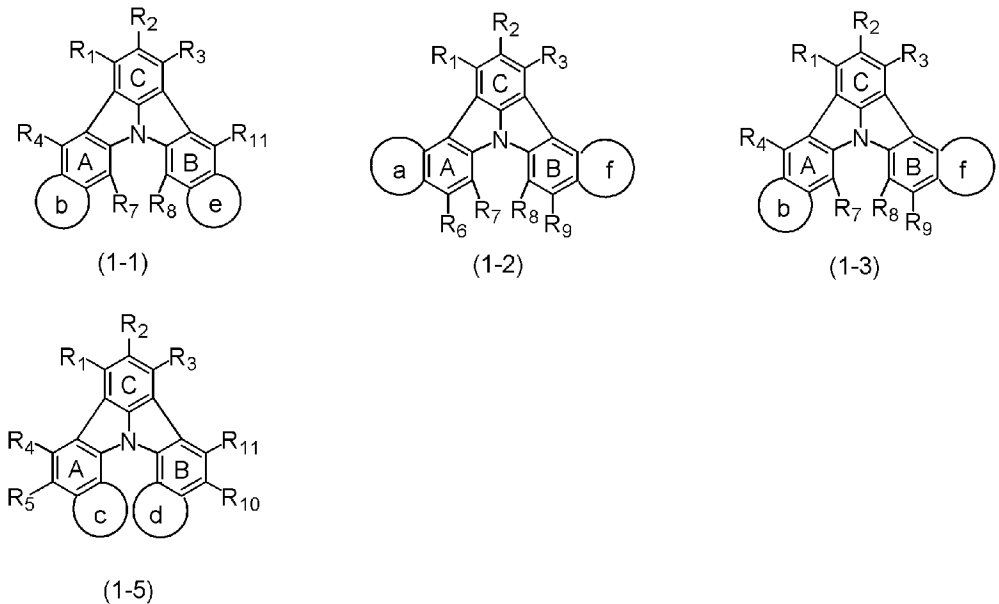


(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。 X は前記と同じである。

p_1 は0～5の整数、 p_2 は0～4の整数、 p_3 は0～3の整数、 p_4 は0～7の整数である。)

[請求項11] 下記式(1-1)～(1-3)及び(1-5)のいずれかで表される請求項1に記載の化合物。

[化8]

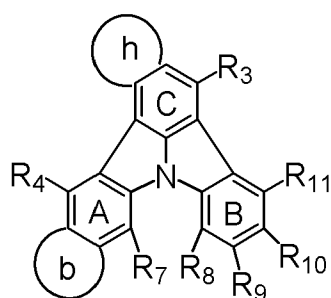


(式(1-1)～(1-3)及び(1-5)において、 $R_1 \sim R_{11}$ は

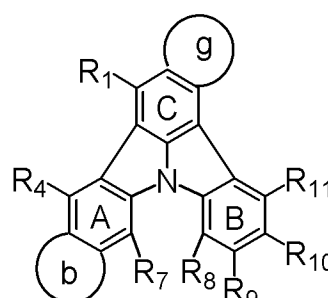
前記と同じである。環 a～f は、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数 3 以上の環構造である。この環は、さらに置換基を有していてもよく、それら置換基同士が結合して環構造を形成してもよい。さらに有してもよい置換基は、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合と同じである。なお、前記原子数 3 以上の環は、さらに置換している置換基の原子数は含まない。)

[請求項12] 下記式 (2-2) 及び (2-5) のいずれかで表される請求項 1 に記載の化合物。

[化9]



(2-2)

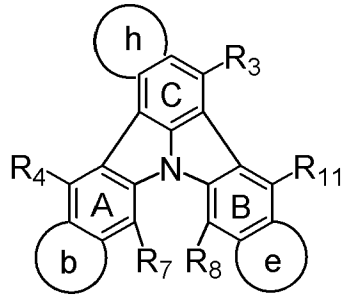


(2-5)

(式 (2-2) 及び (2-5) において、 R_1 、 R_3 、 R_4 及び $R_7 \sim R_{11}$ は前記と同じである。環 b 及び g～h は、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数 3 以上の環構造である。この環は、さらに置換基を有していてもよく、それら置換基同士が結合して環構造を形成してもよい。さらに有してもよい置換基は、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合と同じである。なお、前記原子数 3 以上の環は、さらに置換している置換基の原子数は含まない。)

[請求項13] 下記式 (3-1) で表される請求項 1 に記載の化合物。

[化10]



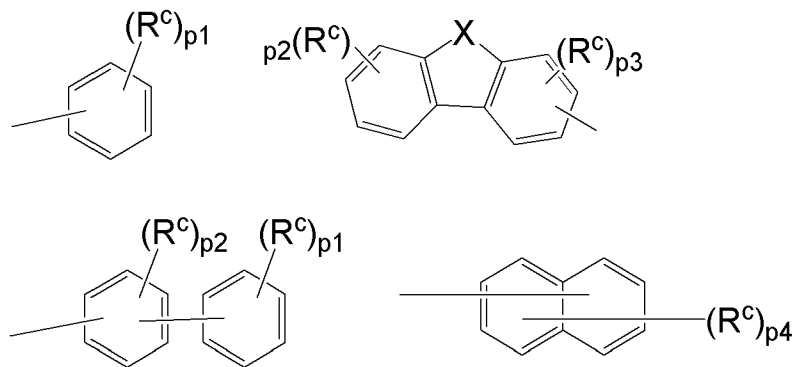
(3-1)

(式(3-1)において、 R_3 、 R_4 、 R_7 、 R_8 及び R_{11} は前記と同じである。環b、e及びhは、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子、硫黄原子、窒素原子から構成される原子数3以上の環構造である。この環は、さらに置換基を有していてもよく、それら置換基同士が結合して環構造を形成してもよい。さらに有してもよい置換基は、 $R_1 \sim R_{11}$ が置換基を表す場合と同じである。なお、前記原子数3以上の環は、さらに置換している置換基の原子数は含まない。)

[請求項14]

前記環a～fがさらに置換基を有する場合の置換基が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、 $-N(R_{104})(R_{105})$ で表される基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかである請求項11～13のいずれかに記載の化合物。

[化11]



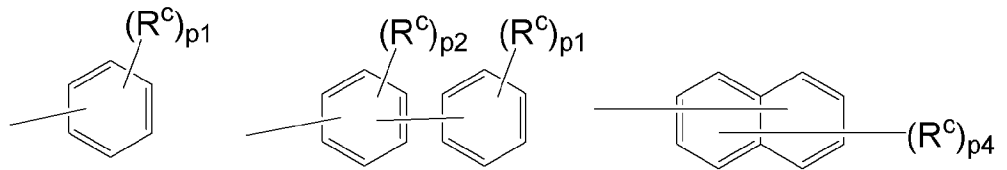
(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。X

は前記と同じである。

p_1 は 0～5 の整数、 p_2 は 0～4 の整数、 p_3 は 0～3 の整数、 p_4 は 0～7 の整数である。)

[請求項15] 前記環 g 及び h がさらに置換基を有する場合の置換基が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1～20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、又は下記の群から選択される基のいずれかである請求項 12～14 のいずれかに記載の化合物。

[化12]

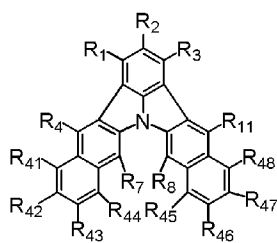


(式中、 R^c は、それぞれ独立に、前記 $R_1 \sim R_{11}$ と同じである。

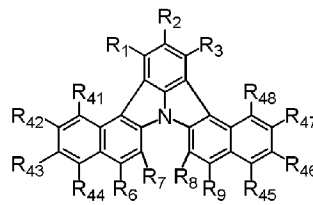
p_1 は 0～5 の整数、 p_2 は 0～4 の整数、 p_4 は 0～7 の整数である。)

[請求項16] 下記式 (4-1)～(4-4) のいずれかで表される請求項 1 に記載の化合物。

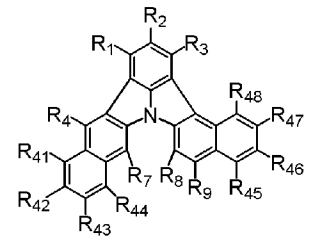
[化13]



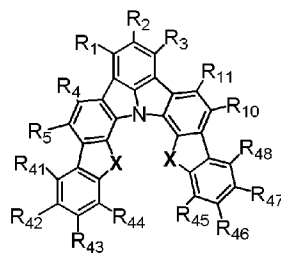
(4-1)



(4-2)



(4-3)

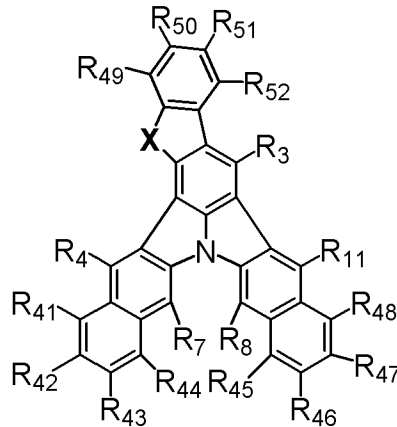


(4-4)

(式(4-1)～(4-4)において、XはC(R₂₃)(R₂₄)、NR₂₅、O、Sから選ばれる。R₁～R₅、R₇～R₁₁、R₄₁～R₄₈及びR₂₃～R₂₅は、前記R₁～R₁₁と同じである。)

[請求項17] 下記式(5-1)で表される請求項1に記載の化合物。

[化14]



(5-1)

(式(5-1)において、XはC(R₂₃)(R₂₄)、NR₂₅、O、Sから選ばれる。R₃、R₄、R₇、R₈、R₁₁、R₄₁～R₅₂及びR₂₃～R₂₅は、前記R₁～R₁₁と同じである。)

[請求項18] R₂₅は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基である、請求項17に記載の化合物。

[請求項19] 請求項1～18のいずれかに記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項20] 有機エレクトロルミネッセンス素子用のドーパント材料である、請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

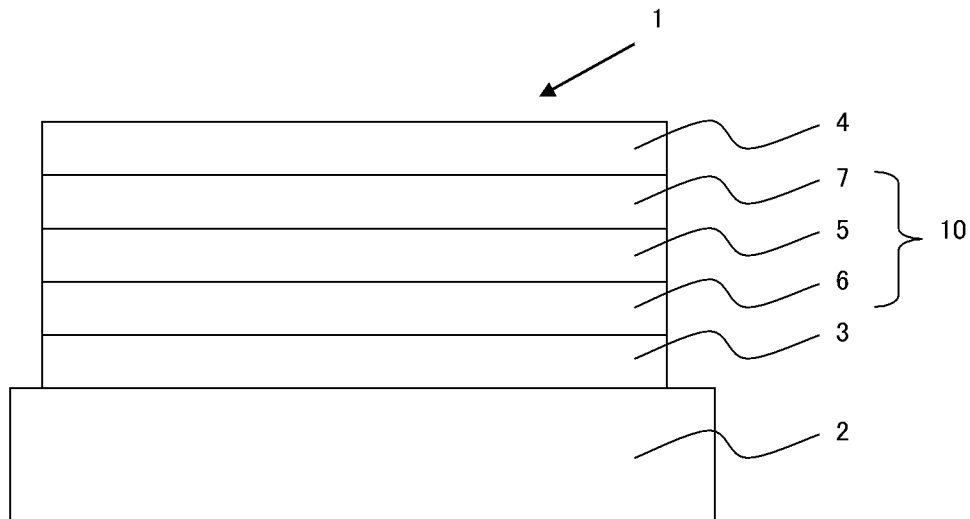
[請求項21] 陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1～18のいずれかに記載の化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項22] 前記発光層が請求項1～18のいずれかに記載の化合物を含有する、請求項21に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

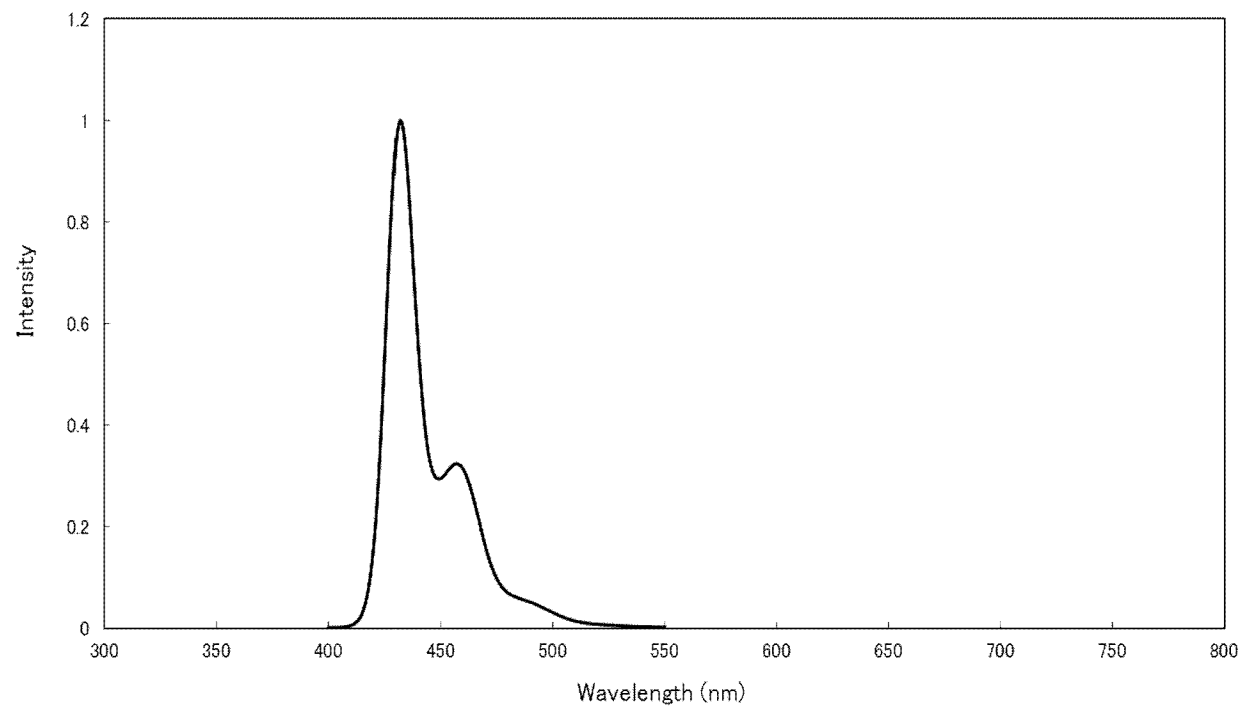
[請求項23] 前記発光層が請求項1～18のいずれかに記載の化合物を0.1～30質量%含有する、請求項22に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

[請求項24] 請求項21～23のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子を備えた電子機器。

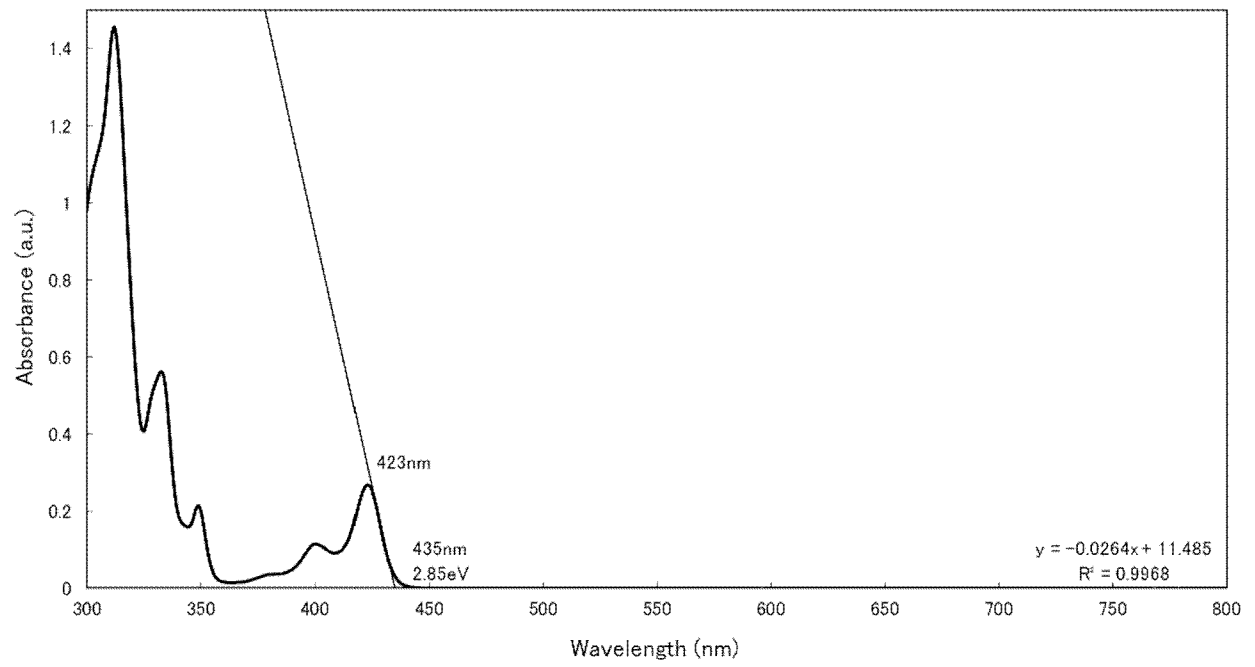
[図1]



[図2]



[3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013836

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D487/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

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)

C07D487/04, C09K11/06, H01L51/50

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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.
X/A	CN 104119347 A (YANTAI VALIANT FINE CHEMICALS CO., LTD.), 29 October 2014 (29.10.2014), claims, formulae I, III; compounds C001 to 029, 059 to 110, 134 to 156 (Family: none)	1-4, 6-10, 19-24/5, 11-18
A	WO 2013/077344 A1 (UDC Ireland Ltd.), 30 May 2013 (30.05.2013), entire text & JP 13-77344 A1 & US 2014/0319507 A1 & DE 112012004870 T & KR 10-2014-0101807 A & KR 10-2016-0135378 A & TW 201329082 A	1-24



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

“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
23 June 2017 (23.06.17)

Date of mailing of the international search report
04 July 2017 (04.07.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013836

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	WO 2016/195441 A1 (LG CHEM, LTD.), 08 December 2016 (08.12.2016), entire text & KR 10-2016-0142792 A	1, 3-12, 14, 15 18-24
P,X	WO 2017/014460 A1 (DUK SAN NEOLUX CO., LTD.), 26 January 2017 (26.01.2017), claims; compounds 1-12, 2-12 & KR 10-2017-0009417 A	1, 3-12, 14, 15 18-24

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013836

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
See extra sheet.

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013836

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

Hereinafter, the ring structure formed by the mutual bonding of the two of a pair selected from among pairs of R_n and R_{n+1} is referred to as "ring structure".

(Invention 1) Claims 1, 3-10, 14, 15, and 19-24 (the case where at least two "ring structures" have been formed on A or B each or where one "ring structure" has been formed on A and B each) and claims 2, 11, 13, 16, 17, and 18

Document 1 (see, in particular, the formulae I and III given in claims, compounds C001-029, 059-110, and 134-156) gives compounds represented by the formula (1) given in claim 1 of the present application. Consequently, claim 1 lacks novelty in the light of document 1 and hence has no special technical feature.

Therefore, the part of the invention in claims 1, 3-10, 14, 15, and 19-24 which relates to a compound represented by formula (1) where at least two "ring structures" have been formed on A or B each or where one "ring structure" has been formed on A and B each is classified as Invention 1.

Document 1: CN 104119347 A (YANTAI VALIANT FINE CHEMICALS CO., LTD.), 29 October 2014 (29.10.2014)

(Invention 2) claims 1, 3-10, 14, 15, 19-24 (the case where these claims directly or indirectly refer to claim 2) and claim 12

The part of the invention in claims 1-24 which is not involved in Invention 1, that is, the part in which one "ring structure" has been formed either on A and C each or on B and C each, is classified as Invention 2.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. C07D487/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i		
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）） Int.Cl. C07D487/04, C09K11/06, H01L51/50		
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 1971-2017年 日本国実用新案登録公報 1996-2017年 日本国登録実用新案公報 1994-2017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
X/ A A	CN 104119347 A (YANTAI VALIANT FINE CHEMICALS CO., LTD) 2014. 10. 29, 特許請求の範囲の式 I, III, 化合物 C001-029, 059-110, 134-156 (ファミリーなし) WO 2013/077344 A1 (ユー・ディー・シー アイランド リミテッ ド) 2013. 05. 30, 全文 & JP 13-77344 A1 & US 2014/0319507 A1 & DE 112012004870 T & KR 10-2014-0101807 A & KR 10-2016-0135378 A & TW 201329082 A	1-4, 6-10, 19- 24/ 5, 11-18 1-24
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> 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 「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矛盾するものではなく、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 23. 06. 2017	国際調査報告の発送日 04. 07. 2017	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 黒川 美陶 電話番号 03-3581-1101 内線 3443	4H 3342

C (続き) . 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
P, X	WO 2016/195441 A1 (LG CHEM, LTD.) 2016. 12. 08, 全文 & KR 10-2016-0142792 A	1, 3-12, 14, 15 18-24
P, X	WO 2017/014460 A1 (DUK SAN NEOLUX CO., LTD) 2017. 01. 26, 特許 請求の範囲, 化合物 1-12, 2-12 & KR 10-2017-0009417 A	1, 3-12, 14, 15 18-24

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

特別ページ参照

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

[第 III 欄の続き]

以下、 R_n と R_{n+1} から選ばれる対が互いに結合して形成する環構造を、“環構造”という。

(発明 1) 請求項 1, 3-10, 14, 15, 19-24 (少なくとも“環構造”が、A に 2 つ、B に 2 つ、若しくは A 及び B のそれぞれに 1 つずつ形成される場合)、及び請求項 2, 11, 13, 16, 17, 18

文献 1 (特に、特許請求の範囲の式 I, III, 化合物 C001-029, 059-110, 134-156 参照) には、本願請求項 1 の式(1)で表される化合物が記載されており、請求項 1 は、文献 1 により新規性が欠如しているため、特別な技術的特徴を有しない。

したがって、式(1)の化合物において、少なくとも“環構造”が、A に 2 つ、B に 2 つ、若しくは A 及び B のそれぞれに 1 つずつ形成される上記請求項に係る発明の部分を、発明 1 に区分する。

文献 1: CN 104119347 A (YANTAI VALIANT FINE CHEMICALS CO., LTD) 2014.10.29

(発明 2) 請求項 1, 3-10, 14, 15, 19-24 (直接又は間接に請求項 2 を引用する場合)、及び請求項 12

請求項 1-24 に係る発明のうち、発明 1 に含まれない部分、すなわち、“環構造”が、A 及び C のそれぞれに 1 つずつ、若しくは B 及び C のそれぞれに 1 つずつ形成される部分を、発明 2 に区分する。