(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
2014 年 10 月 2 日(02.10.2014)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2014/157371 A1

(51) 国際特許分類:
C07D 409/10 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C07D 409/14 (2006.01) *H05B 33/10* (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2014/058602

(22) 国際出願日: 2014 年 3 月 26 日(26.03.2014)

(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 2013-070700 2013 年 3 月 28 日(28.03.2013) JP

(71) 出願人: 日本合成化学工業株式会社(THE NIPPON SYNTHETIC CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5300018 大阪府大阪市北区小松原町２番４号 Osaka (JP). 学校法人君が淵学園(KIMIGAFUCHI GAKUEN) [JP/JP]; 〒8600082 熊本県熊本市池田４丁目２２番１号 Kumamoto (JP).

(72) 発明者: 八田　泰三(HATTA Taizo); 〒8600082 熊本県熊本市池田４丁目２２番１号　学校法人君が淵学園（崇城大学）内 Kumamoto (JP). 水城 圭司(MIZUKI Keiji); 〒8600082 熊本県熊本市池田４丁目２２番１号　学校法人君が淵学園（崇城大学）内 Kumamoto (JP). 桑原　廉枋(KUWAHARA Renpei); 〒8600082 熊本県熊本市池田４丁目２２番１号　学校法人君が淵学園（崇城大学）内 Kumamoto (JP). 平尾　純孝(HIRAO Yoshiyuki); 〒5300018 大阪府大阪市北区小松原町２番４号 日本合成化学工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 濱田　百合子, 外(HAMADA Yuriko et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目７番１３号 虎ノ門イーストビルディング１０階　栄光特許事務所 Tokyo (JP).

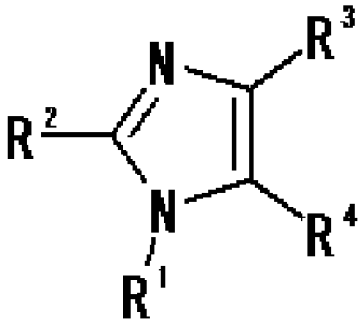
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, 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, 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 IMIDAZOLE COMPOUND, MATERIAL FOR ELECTRONIC DEVICES, LIGHT EMITTING ELEMENT, ELECTRONIC DEVICE AND METHOD FOR MANUFACTURING ELECTRONIC DEVICE

(54) 発明の名称 : 新規イミダゾール化合物、電子デバイス用材料、発光素子、電子デバイス及びその製造方法



(1)

(57) **Abstract**: The present invention provides a novel imidazole compound which is capable of reducing the number of layers in a light emitting element structure, and which provides a thin film having excellent stability. An imidazole compound of the present invention is represented by general formula (1). (In the formula, each of R^1-R^4 independently represents a dibenzothiophenyl group, a hydrogen atom, an alkyl group having 1-10 carbon atoms, or an aromatic hydrocarbon group, each of which is directly bonded or bonded via a bonding chain having a conjugated structure; and at least one of the R^1-R^4 moieties is a dibenzothiophenyl group that is directly bonded or bonded via a bonding chain having a conjugated structure.)

(57) 要約:　本発明は、発光素子構造の低層化が可能であり、薄膜の安定性に優れた新規イミダゾール化合物を提供する。本発明のイミダゾール化合物は一般式（１）で示される。（式中、R^1～R^4は、それぞれ独立に、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基、芳香族炭化水素基を表し、R^1～R^4のうち少なくとも１つは、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基である。）

WO 2014/157371 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 ：

新規イミダゾール化合物、電子デバイス用材料、発光素子、電子デバイス及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、新規イミダゾール化合物、電子デバイス用材料、発光素子、電子デバイス及びその製造方法に関し、とりわけ有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子等の発光素子の発光層を構成する発光材料として、また発光素子の発光層を構成するホスト材料として有用な新規イミダゾール化合物、これを含有する電子デバイス用材料、この電子デバイス用材料を含有する発光素子、その発光素子を含む電子デバイス及びその電子デバイスの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 電子デバイス用材料、特には有機ＥＬ素子等の発光素子の発光層を構成する発光材料やホスト材料として、これまで様々な検討が行われてきている。

例えば、特許文献１には、２，４，５－トリアリール置換イミダゾール化合物及び１，２，４，５－テトラアリール置換イミダゾール化合物を青色蛍光発光材料に用いることが記載されている。

また、特許文献２には、ｏ－フェニルピリジン誘導体を発光材料に用いること、２，４，５－トリス（６－ピリジルビフェニル）イミダゾール誘導体を燐光ホスト材料として用いることが記載されている。

さらに、非特許文献１には、ＣＢＰ（４，４’－Ｎ，Ｎ’－ジカルバゾール－ビフェニル）やｍＣＰ（Ｎ，Ｎ’－ジカルバゾイル－３，５－ベンゼン）をホスト材料として用いることが記載されている。

また、非特許文献２には、ベンゾジフラン誘導体をバイポーラー性ホスト材料として用いることが記載されている。

[0003] 燐光発光材料を発光材料（ドーパント）として用いた発光素子におけるホ

スト材料は、電子とホールの輸送能力を十分に持ち、且つ高いガラス転移点（Ｔｇ）と成膜性を有することが必要である。

[0004] しかしながら、良く知られたホスト化合物であるＣＢＰは薄膜の安定性が不十分である。またｍＣＰはガラス転移点（Ｔｇ）が低いので、素子を形成した際の熱安定性が低いという問題があった。

[0005] また、近年、高い発光効率を得るために、素子構造は非常に多くの層からなる多層構造になってきているので、素子構造の低層化による製造工程の簡略化、コストダウンが求められている。例えば非特許文献２に記載のベンゾジフラン誘導体を用いた発光素子においては、有機層の単層化ないし低層化を実現可能であるが、素子構成が特殊であり、製造が困難である。また、その成膜プロセスは真空蒸着法に限られるので、製造工程が煩雑であるという問題もある。すなわち、素子構成と製造プロセスをともに簡略化しうる電子デバイス用材料がこれまで見つかっていないのが現状である。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第２００５／０８５２０８号

特許文献2：日本国特開２００３－２８２２７０号公報

非特許文献

[0007] 非特許文献1：Ａｐｐｌ．Ｐｈｙｓ．Ｌｅｔｔ．２００３，８２，２４２２

非特許文献2：Ａｄｖ．Ｍａｔｅｒ．２００９，２１，３７７６

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は上記の事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、発光素子構造の低層化が可能であり、薄膜の安定性に優れた新規イミダゾール化合物を提供することである。また、本発明の目的は、かかる新規イミダゾール化合物を含有する電子デバイス用材料、この電子デバイス用材料を含有する発光素子、その発光素子を含む電子デバイス及びその電子デバイスの製造方法

を提供することである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、上記課題を解決するために、鋭意検討を重ねた結果、イミダゾール環に、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結した、置換基を有していてもよいジベンゾチオフェニル基を有するイミダゾール化合物が、上記課題を解決しうることを見出した。

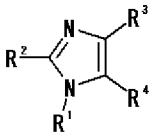
また、上記イミダゾール化合物を含有する発光素子、例えば発光層における発光材料やホスト材料として上記イミダゾール化合物を含有する発光素子が好適であることをも見出した。

さらに、上記イミダゾール化合物は、ガラス転移点（Ｔｇ）が高いので、薄膜を成膜した場合に薄膜の安定性が高いことをも見出した。

[0010] すなわち、本発明は、以下の［１］～［１３］の構成を有する。

［１］一般式（１）で示されるイミダゾール化合物。

[0011] [化1]



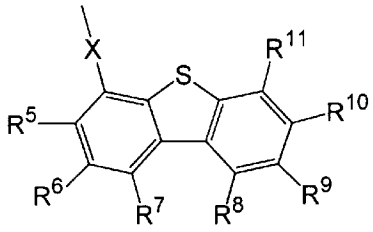
(1)

[0012] （式（１）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立に、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]のうち少なくとも１つは、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基である。）

[0013] ［２］前記一般式（１）中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[3]及びＲ[4]のうち少なくとも１つが、下記一般式（８）で示される基である前記［１］に記載のイミダゾール化合物。

[0014]

[化2]

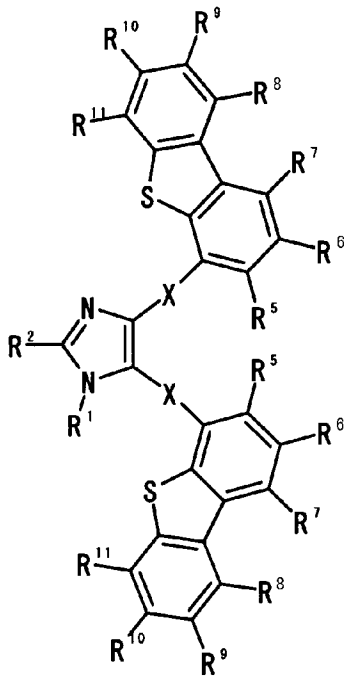


(8)

[0015] （式（８）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。）

[0016] ［３］一般式（２）で示される前記［１］又は［２］に記載のイミダゾール化合物。

[0017] [化3]



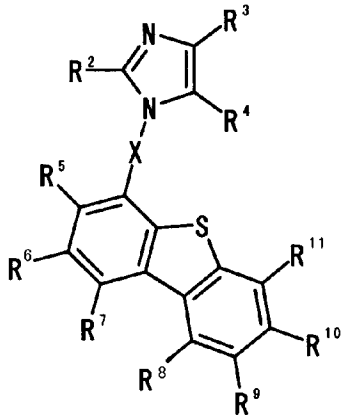
(2)

[0018] （式（２）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]及び

R^2は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、R^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。なお、複数あるＸ及びR^5～R^{11}は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよい。）

[0019] ［４］一般式（３）で示される前記［１］に記載のイミダゾール化合物。

[0020] [化4]



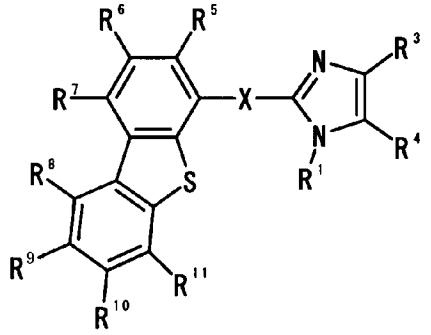
(3)

[0021] （式（３）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、R^2、R^3及びR^4は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、R^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。）

[0022] ［５］一般式（４）で示される前記［１］に記載のイミダゾール化合物。

[0023]

[化5]



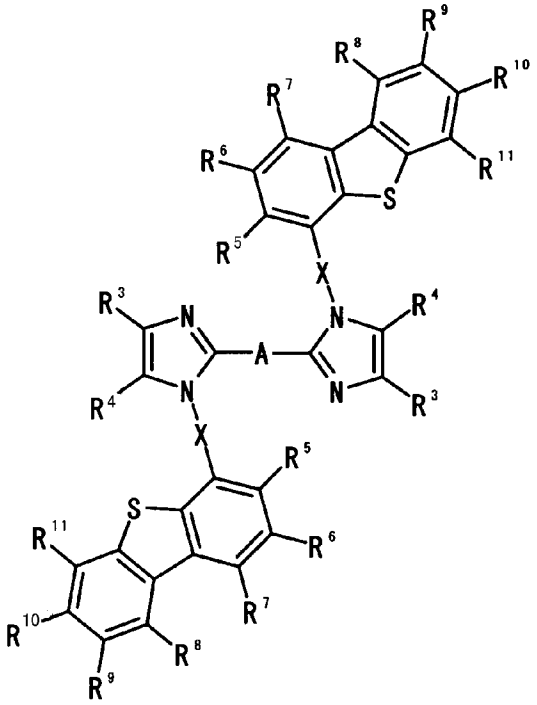
(4)

[0024] （式（４）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。）

[0025] ［６］一般式（７）で示される前記［１］に記載のイミダゾール化合物。

[0026]

[化6]



(7)

[0027] （式（７）中、Ａは不飽和炭化水素鎖又は芳香族鎖を表し、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。なお、複数あるＸ及びＲ[3]～Ｒ[11]は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよい。）

[0028] ［７］前記［１］～［６］のいずれか１つに記載のイミダゾール化合物を含有する電子デバイス用材料。

［８］前記［７］に記載の電子デバイス用材料を含有する発光素子。

［９］前記［７］に記載の電子デバイス用材料を含有する層を陰極と陽極の間に有する発光素子。

［１０］前記［７］に記載の電子デバイス用材料をホスト材料として含有す

る発光素子。

［１１］前記［８］～［１０］のいずれか１つに記載の発光素子を含む電子デバイス。

［１２］前記［７］に記載の電子デバイス用材料を基板上に塗布し、成膜する工程を有する電子デバイスの製造方法。

［１３］前記［７］に記載の電子デバイス用材料を基板上に蒸着し、成膜する工程を有する電子デバイスの製造方法。

発明の効果

[0029] 本発明の新規イミダゾール化合物は、ガラス転移点（Ｔｇ）が高いので、薄膜を成膜した場合に薄膜の安定性が高い。したがって、本発明の新規イミダゾール化合物を含有する電子デバイス用材料を用いて、例えば発光素子に適用した場合、発光効率が向上し、発光素子が長寿命化され、かかる発光素子を含む、ディスプレイ装置などの電子デバイスも長寿命化されるという効果が得られる。

本発明の電子デバイス用材料をホスト材料として用いることによって、安定で高い量子効率の発光素子を得ることができる。

また、本発明のイミダゾール化合物を含有する電子デバイス用材料は優れた成膜性を有していることから、溶液塗布、蒸着、溶融塗布法による成膜が可能となる。特に、ホスト材料として、さらに燐光ドーパントのホスト材料として、従来は難しかった溶液塗布、蒸着、溶融塗布法による発光層の成膜が可能となる。

図面の簡単な説明

[0030] [図1]図１は、実施例３で合成したイミダゾール化合物溶液の各濃度における、スピンコート時の回転数と膜厚との関係を示すグラフである。

[図2]図２は、実施例６で合成したイミダゾール化合物溶液の各濃度における、スピンコート時の回転数と膜厚との関係を示すグラフである。

[図3]図３は、実施例１１で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図4]図４は、実施例１１で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図5]図５は、実施例１２で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図6]図６は、実施例１２で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図7]図７は、実施例１３で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図8]図８は、実施例１３で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図9]図９は、実施例１４で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図10]図１０は、実施例１４で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図11]図１１は、実施例１５で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図12]図１２は、実施例１５で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図13]図１３は、実施例１６で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図14]図１４は、実施例１６で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図15]図１５は、実施例１７で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図16]図１６は、実施例１７で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図17]図１７は、比較例３で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図18]図１８は、比較例３で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図19]図１９は、実施例１８で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

[図20]図２０は、実施例１８で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

[図21]図２１は、比較例４で作成した発光素子の電圧－輝度特性を示すグラフである。

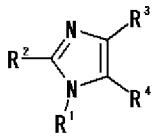
[図22]図２２は、比較例４で作成した発光素子の電圧－電流効率を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0031] 以下に、本発明を詳細に述べる。

本発明のイミダゾール化合物は、下記一般式（１）で示されるものである。

[0032] [化7]



(1)

[0033] 一般式（１）中、Ｒ^{1}、Ｒ^{2}、Ｒ^{3}及びＲ^{4}は、それぞれ独立に、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表す。

一般式（１）において、Ｒ^{1}、Ｒ^{2}、Ｒ^{3}及びＲ^{4}のうち少なくとも１つは、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基である。ジベンゾチオフェニル基の４位で直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結していることが好ましい。

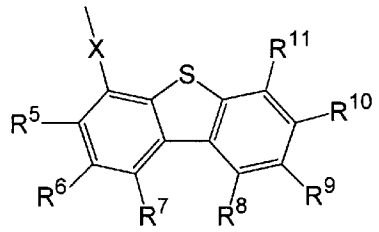
[0034] 一般式（１）中、Ｒ^{1}、Ｒ^{2}、Ｒ^{3}及びＲ^{4}が示すジベンゾチオフェニル基は、イミダゾール環に直接結合していてもよく、あるいは共役構造を有する結合鎖を介して連結していてもよい。共役構造を有する結合鎖としては、例え

ば、後述する一般式（２）～（７）におけるＸや一般式（７）におけるＡが挙げられる。

また、一般式（１）中、Ｒ[1]、Ｒ[3]、Ｒ[3]及びＲ[4]が示すジベンゾチオフェニル基は、置換基を有していてもよい。かかる置換基としては、後述する一般式（２）～（７）のＲ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]が示す基が挙げられる。

[0035] 一般式（１）で示されるイミダゾール化合物において、Ｒ[1]及びＲ[2]が、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[3]及びＲ[4]のうち少なくとも１つが、下記一般式（８）で示される基であるイミダゾール化合物が好ましい。

[0036] [化8]



(8)

[0037] （式（８）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。）

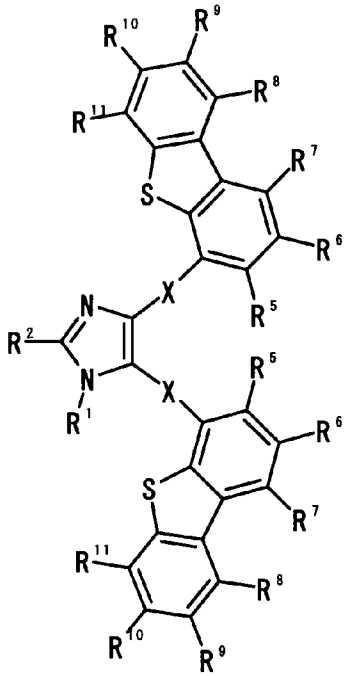
[0038] 一般式（８）中、Ｘが示す不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖としては、後述する一般式（２）～（７）におけるＸが挙げられる。また、Ｒ[5]～Ｒ[11]が示す炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基及び炭素数１～６のフッ化アルキル基としては、後述する一般式（２）～（７）に示す基が挙げられる。

[0039] 一般式（８）中のＲ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ

縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。また、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、イミダゾール環を基本骨格とする構造に付随するジベンゾチオフェン基の置換基であり、悪影響を与えない範囲で、任意の置換基を有していてもよい。好ましくはそれぞれ独立に水素原子又は炭素数１～６のアルキル基である。

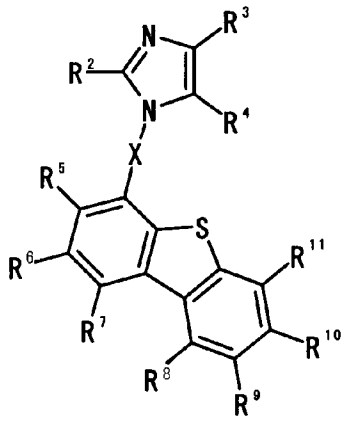
[0040] 上記一般式（１）で示されるイミダゾール化合物の具体例として、例えば、下記式（２）～（７）に示される化合物を挙げることができる。

[0041] [化9]



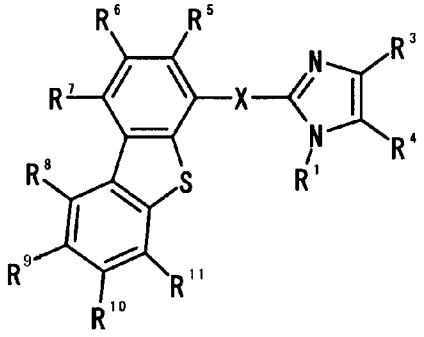
(2)

[0042] [化10]



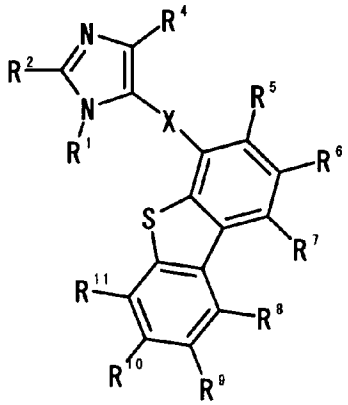
(3)

[0043] [化11]



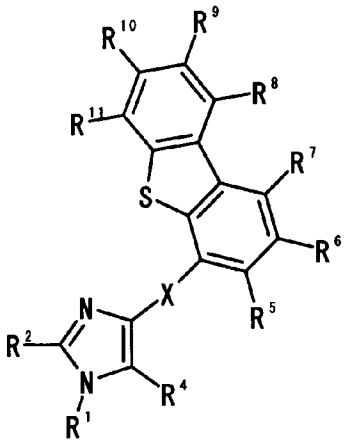
(4)

[0044] [化12]



(5)

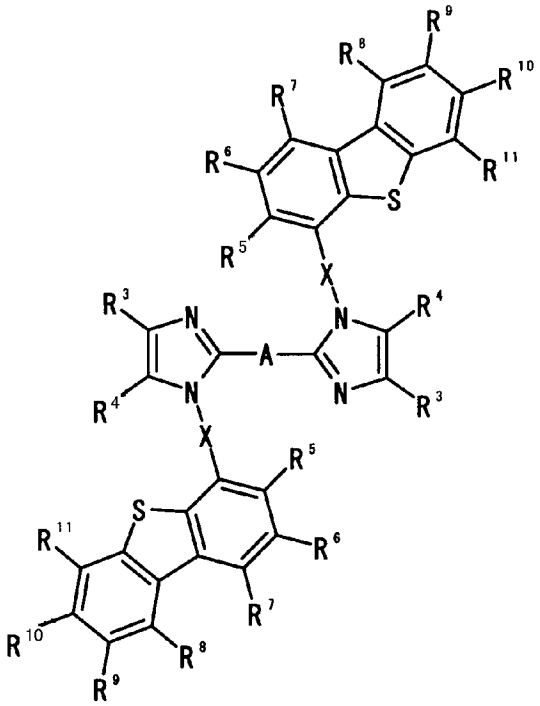
[0045] [化13]



(6)

[0046]

[化14]



(7)

[0047] 一般式（２）～（７）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表す。

[0048] Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]が示す炭素数１～１０のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、アミル基、イソアミル基、ｔｅｒｔ－アミル基、ネオペンチル基、ｎ－ヘキシル基などが挙げられ、好ましくは炭素数１～８、特に好ましくは炭素数１～６、さらに好ましくは炭素数１～４のアルキル基である。

上記炭素数１～１０のアルキル基は置換基を有していてもよく、かかる置換基としては、例えば、アミノ基、芳香族炭化水素基を有するアミノ基（例えば、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基など）、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子など）、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基など）、フェニル基、多環芳香族炭化水素基などが

挙げられる。上記の芳香族炭化水素基、フェニル基、及び多環芳香族炭化水素基は、アミノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルコキシ基、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のフッ化アルキル基を有していてもよい。

[0049] Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]が示す芳香族炭化水素基はフェニル基、多環芳香族炭化水素基又はビフェニル基を表し、その炭素数は通常６～２０、より好ましくは６～１８、特に好ましくは炭素数６～１６、殊に好ましくは炭素数６～１２である。

[0050] 上記多環芳香族炭化水素基としては、好ましくは炭素数９～２０、より好ましくは炭素数１０～１８、特に好ましくは炭素数１０～１６の多環芳香族炭化水素基が挙げられる。

例えば、ペンタレニル基、インデニル基、アズレニル基、ナフチル基等の炭素縮合二環系、インダセニル基、ビフェニレニル基、アセナフチレニル基、フルオレニル基、フェナレニル基、フェナントリル基、アントラセニル基等の炭素縮合三環系、ピレニル基、クリセニル基等の炭素縮合四環系、ペリレニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基等の炭素縮合五環系などが挙げられる。好ましくは炭素縮合二～四環系であり、特に好ましくは炭素縮合二～三環系である。

好ましくは炭素数１０～１８の炭素縮合二～四環系であり、特に好ましくは炭素数１０～１６の炭素縮合二～三環系である。

[0051] Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]が示すフェニル基、多環芳香族炭化水素基及びビフェニル基等の芳香族炭化水素基は置換基を有していてもよく、かかる置換基としては、例えば、アミノ基、芳香族炭化水素基を有するアミノ基（例えば、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基などが挙げられる。さらに芳香族炭化水素基はアミノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルコキシ基、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のフッ化アルキル基を有していてもよい。）、フッ化アルキル基（例えば、炭素数１～６のフッ化アルキル基）、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭

素原子、ヨウ素原子など）、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、アミル基、イソアミル基、ｔｅｒｔ－アミル基、ネオペンチル基、ｎ－ヘキシル基など）、炭素数１～６のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基など）などが挙げられる。

[0052] 一般式（２）～（７）におけるＸは、共役構造を有し、分子の共役を保持することができる結合鎖である。通常、不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表す。

不飽和炭化水素鎖としては、二重結合、三重結合により共役系が延びた炭素数１～６の不飽和炭化水素鎖が挙げられ、具体的には、例えば、ビニレン、プロペニレン、テトラメチレン、１，２－ジメチルエチレン、エチニレン、１，３－ブタジイニレンなどが挙げられる。

芳香族炭化水素鎖としては、例えばベンゼンから誘導される２価鎖（以下、フェニル鎖と称することがある）、多環芳香族炭化水素から誘導される２価鎖（以下、多環芳香族炭化水素鎖と称することがある）、ビフェニルから誘導される２価鎖（例えば、４，４’－ビフェニリレンなど）（以下、ビフェニル鎖と称することがある）などが挙げられる。芳香族炭化水素鎖の炭素数は通常６～２０であり、好ましくは６～１８であり、特に好ましくは６～１２である。

Ｘは、これらの不飽和炭化水素鎖及び芳香族炭化水素鎖から選ばれた２種以上の鎖が組み合わせられることにより連結された連結鎖であってもよい。

[0053] Ｘが示す不飽和炭化水素鎖及び芳香族炭化水素鎖は置換基を有していてもよく、かかる置換基としては、例えば、アミノ基、芳香族炭化水素基を有するアミノ基（例えば、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基などが挙げられる。さらに芳香族炭化水素基はアミノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルコキシ基、炭素数１～６のアルキル基、炭素数

１～６のフッ化アルキル基を有していてもよい。）、フッ化アルキル基（例えば、炭素数１～６のフッ化アルキル基）、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子など）、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、アミル基、イソアミル基、ｔｅｒｔ－アミル基、ネオペンチル基、ｎ－ヘキシル基など）、炭素数１～６のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基など）などが挙げられる。

[0054] 一般式（２）～（７）中のＸは、好ましくは芳香族炭化水素鎖であり、より好ましくは炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖であり、さらに好ましくはフェニル鎖、ビフェニル鎖であり、特に好ましくはフェニル鎖である。最も好ましくは結合鎖をメタ位もしくはパラ位に有するフェニル鎖である。

[0055] 一般式（７）におけるＡは、Ｘと同様に、共役構造を有し、分子の共役を保持することができる結合鎖を表す。かかる結合鎖としては、不飽和炭化水素鎖、及び芳香族炭化水素鎖、複素芳香族鎖などの芳香族鎖が挙げられ、これら不飽和炭化水素鎖、芳香族鎖から選ばれた２種以上の鎖が組み合わせられることにより連結された連結鎖であってもよい。

不飽和炭化水素鎖及び芳香族炭化水素鎖としては上記Ｘと同様である。

複素芳香族鎖としては、例えば、イミダゾール、フラン、チオフェン、ピロール、ピリジン等から誘導される２価鎖が挙げられる。この結合鎖Ａにおける不飽和炭化水素鎖、及び芳香族炭化水素鎖、複素芳香族鎖などの芳香族鎖は、置換基を有していてもよく、かかる置換基としては、例えば、アミノ基、芳香族炭化水素基を有するアミノ基（例えば、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基などが挙げられる。さらに芳香族炭化水素基はアミノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルコキシ基、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のフッ化アルキル基を有していてもよい

。）、フッ化アルキル基（例えば、炭素数１～６のフッ化アルキル基）、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子など）、ニトロ基、シアノ基、炭素数１～６のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、アミル基、イソアミル基、ｔｅｒｔ－アミル基、ネオペンチル基、ｎ－ヘキシル基など）、炭素数１～６のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基など）などが挙げられる。

[0056] 一般式（７）中のＡは、好ましくは芳香族鎖であり、より好ましくは炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖であり、さらに好ましくはフェニル鎖、ビフェニル鎖であり、特に好ましくはフェニル鎖である。最も好ましくは結合鎖をメタ位もしくはパラ位に有するフェニル鎖である。

[0057] 一般式（２）～（７）中のR^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、ジベンゾチオフェニル基が有する置換基を示すものであり、それぞれ独立に水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表す。

[0058] 炭素数１～６のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、アミル基、イソアミル基、ｔｅｒｔ－アミル基、ネオペンチル基、ｎ－ヘキシル基などが挙げられ、好ましくは炭素数１～３のアルキル基である。

炭素数１～６のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基などが挙げられ、好ましくは炭素数１～３のアルコキシ基である。

炭素数１～６のフッ化アルキル基としては、例えば、トリフルオロメチル

、ジフルオロメチル等が挙げられる。

多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基としては、例えば、ジナフチルアミノ基、ジアントラセニル基などが挙げられる。

[0059] 一般式（２）～（７）中のＲ^{5}、Ｒ^{6}、Ｒ^{7}、Ｒ^{8}、Ｒ^{9}、Ｒ^{10}及びＲ^{11}は、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。また、Ｒ^{5}、Ｒ^{6}、Ｒ^{7}、Ｒ^{8}、Ｒ^{9}、Ｒ^{10}及びＲ^{11}は、イミダゾール環を基本骨格とする構造に付随するジベンゾチオフェン基の置換基であり、悪影響を与えない範囲で、任意の置換基を有していてもよい。

好ましくはそれぞれ独立に水素原子、炭素数１～６のアルキル基である。

[0060] なお、一般式（２）及び（７）において、複数あるＸ及びＲ^{3}～Ｒ^{11}は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよい。

[0061] 本発明のイミダゾール化合物である一般式（１）に示されるイミダゾール化合物は、イミダゾール骨格をベースとし、イミダゾールの１，２，４，５位に置換基として特定のジベンゾチオフェニル基を含むものである。これにより、イミダゾール環の置換基による立体障害のために分子全体の平面性が崩れることで結晶性が低くなり、製膜後の薄膜の安定性が増すことなどの理由で、本発明特有の効果が得られると推測される。

[0062] 一般式（１）中のＲ^{1}は、好ましくは、炭素数１～８のアルキル基及び炭素数６～２０の芳香族炭化水素基であり、より好ましくは、炭素数１～４のアルキル基及び炭素数６～１６の芳香族炭化水素基である。なお、かかる芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、好ましくはフッ素、トリフルオロメチル基、シアノ基、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基及びジフェニルアミノ基である。

[0063] 一般式（１）中のＲ^{2}は、好ましくは、炭素数１～８のアルキル基及び炭素数６～２０の芳香族炭化水素基であり、より好ましくは、炭素数１～４のアルキル基及び炭素数６～１６の芳香族炭化水素基である。なお、かかる芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、フッ素、トリフルオロメチル基、シアノ基、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基及びジフェ

ニルアミノ基が好ましい。

[0064] 一般式（１）中のＲ[3]は、好ましくは、炭素数１～８のアルキル基及び炭素数６～２０の芳香族炭化水素基であり、より好ましくは、炭素数１～４のアルキル基及び炭素数６～１６の芳香族炭化水素基であり、さらに好ましくはフェニル基及びビフェニル基である。かかる芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、フッ素、トリフルオロメチル基、シアノ基、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基及びジフェニルアミノ基が好ましい。

[0065] 一般式（１）中のＲ[4]は、好ましくは、炭素数１～８のアルキル基及び炭素数６～２０の芳香族炭化水素基であり、より好ましくは、炭素数１～４のアルキル基及び炭素数６～１６の芳香族炭化水素基であり、さらに好ましくはフェニル基及びビフェニル基である。かかる芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、フッ素、トリフルオロメチル基、シアノ基、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基及びジフェニルアミノ基が好ましい。

[0066] なお、一般式（２）で示されるイミダゾール化合物は、イミダゾール環における４位と５位に特定のジベンゾチオフェニル基を含み、イミダゾール環の１位と２位に特定の官能基を有するものである。

一般式（２）で示されるイミダゾール化合物において、４位と５位にそれぞれ複数あるＸ及びＲ[5]～Ｒ[11]は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよいが、好ましくはイミダゾール環における４位と５位の置換基が対称構造である。すなわち、複数あるＸ、Ｒ[3]、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]がそれぞれ同一であることが好ましい。

一般式（２）で示されるイミダゾール化合物として好ましくは、Ｘが芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ独立して、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

さらに好ましくは、Ｘが炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]は炭素数１～１０のアルキル基を表し、Ｒ[2]は炭素数６～２０の芳香族炭化水素

基を表し、R^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

[0067] なお、一般式（３）で示されるイミダゾール化合物は、イミダゾール環における１位に特定のジベンゾチオフェニル基を含み、イミダゾール環の２，４及び５位に特定の官能基を有するものである。

一般式（３）で示されるイミダゾール化合物として好ましくは、Ｘが芳香族炭化水素鎖を表し、R^2は炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～２０の芳香族炭化水素基を表し、R^3及びR^4は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～２０の芳香族炭化水素基を表し、R^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

さらに好ましくは、Ｘが炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖を表し、R^2は炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～１２の芳香族炭化水素基を表し、R^3及びR^4は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～１２の芳香族炭化水素基を表し、R^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

さらには、２，４及び５位のR^2、R^3及びR^4がそれぞれ同一であることが好ましい。

[0068] なお、一般式（４）で示されるイミダゾール化合物は、イミダゾール環における２位に特定のジベンゾチオフェニル基を含み、イミダゾール環の１，４及び５位に特定の官能基を有するものである。

一般式（４）で示されるイミダゾール化合物として好ましくは、Ｘは芳香族炭化水素鎖を表し、R^1、R^3及びR^4は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～２０の芳香族炭化水素基を表し、R^5、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

さらに好ましくは、Ｘは炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～１２の芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

さらには、１，４及び５位のＲ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]がそれぞれ同一であることが好ましい。

[0069] なお、一般式（７）で示されるイミダゾール化合物は、イミダゾール環における１位に特定のジベンゾチオフェニル基を含み、４位と５位に特定の官能基を有するイミダゾール環が、２位の位置で結合鎖を介して結合した化合物である。

一般式（７）で示されるイミダゾール化合物において、複数あるＸ及びＲ[5]～Ｒ[11]は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよいが、結合鎖Ａを中心に対称構造であることが好ましい。すなわち、複数あるＸ、Ｒ[3]、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]がそれぞれ同一であることが好ましい。

一般式（７）で示されるイミダゾール化合物として好ましくは、Ａが芳香族炭化水素鎖を表し、Ｘが芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～２０の芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

さらに好ましくは、Ａが炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖を表し、Ｘが炭素数６～２０の芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、炭素数１～１０のアルキル基又は炭素数６～１２の芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を表すイミダゾール化合物である。

[0070] 本発明の一般式（１）～（７）で示されるイミダゾール化合物は、ガラス

転移点が高いため、熱安定性に優れた発光素子として、更には電子デバイスとして好適に用いることができる。

かかる化合物のガラス転移点（Ｔｇ）は、通常１００℃以上である。発光素子の発光層として、特にはホスト材料として用いる際にアモルファス状態であることが好ましいため、かかるガラス転移点は高いもしくはピークが無いことが好ましい。後述する多様な製造方法を採用することができる点で、好ましくはガラス転移点（Ｔｇ）が、８５℃以上、より好ましくは９０℃以上、特に好ましくは１００℃以上である。また、融点（Ｔｍ）は通常１３０℃～４００℃であり、好ましくは１５０～３８０℃であり、特に好ましくは１８０～３５０℃である。

[0071] また、本発明の一般式（１）～（７）で示されるイミダゾール化合物の分解温度（Ｔｄ）は、通常２８０℃超であり、好ましくは２９０℃以上である。かかる温度が高いことで、蒸着法など高温状態に晒される方法に適用することが可能である。

[0072] 一般式（１）～（７）で示されるイミダゾール化合物は、例えばＪ．Ｏｒｇ．Ｃｈｅｍ，１９３７，２，３１９等に記載の公知一般の方法により製造することができる。さらに、イミダゾール化合物の置換基については、鈴木カップリング、薗頭カップリング等、公知の反応方法を用いて導入することが可能である。

[0073] 本発明の一般式（１）～（７）で示されるイミダゾール化合物は電子デバイス用材料として発光素子や有機薄膜太陽電池等に好適に用いることができる。

[0074] 詳細には、例えば、有機ＥＬディスプレイや有機ＥＬ照明などに用いる発光ダイオードなどの発光素子の発光層に含まれるホスト材料として好適に用いることができる。

[0075] 本発明の電子デバイス用材料は、本発明の新規イミダゾール化合物を通常１～１００重量％にて含むものである。目的とする用途により、公知の溶媒、他の発光材料、他のホスト材料、添加剤等を０～９９重量％含有していて

もよい。

[0076] 本発明の電子デバイスは、発光素子を含み、例えば、陰極及び陽極と、これら各極間に介在する発光層とを有する発光素子を含む。かかる発光素子としては、例えば、有機ＥＬ素子が挙げられる。有機ＥＬ素子では、陽極から正孔が、陰極から電子が発光層に注入され、それらが発光層中で再結合することにより励起子が生成し、これが失活する際に発光する。この有機ＥＬ素子は、発光光源、照明装置、表示デバイスなどの電子デバイスに応用できる。

なお、有機ＥＬ素子の陰極、陽極、及び発光層を構成するその他の材料などは、公知のものから適宜選択して用いることができる。また、上記素子は、陰極と発光層との間に電子輸送材料を含む電子輸送層を備えていてもよく、陽極と有機薄膜層との間に正孔輸送材料を含む正孔輸送層を備えていてもよい。これらの電子輸送材料や正孔輸送材料も公知の材料を適宜用いることができる。

[0077] 本発明のイミダゾール化合物は、電子デバイス用材料として発光層に含有される発光材料（ドーパント材料）やホスト材料として好適に用いることができる。

２種以上の化合物で構成される発光層中において、混合比（重量比）の最も低い化合物が発光材料であり、混合比（重量比）の最も高い化合物がホスト材料である。例えば、発光層が化合物Ａ、化合物Ｂの２種から構成され、その混合比がＡ：Ｂ＝１０：９０であれば、化合物Ａが発光材料化合物であり、化合物Ｂがホスト化合物である。さらに、発光層が化合物Ａ、化合物Ｂ及び化合物Ｃの３種から構成され、その混合比がＡ：Ｂ：Ｃ＝５：１０：８５であれば、化合物Ａが発光材料化合物であり、化合物Ｃがホスト化合物である。

本発明のイミダゾール化合物を発光材料に用いる場合、キャリア輸送、注入材料、キャリアブロック材料として正孔輸送材料や電子輸送材料に適用することも可能である。

[0078] また、かかる電子デバイス用材料は、本発明の新規イミダゾール化合物を含有するので、溶液塗布、溶融塗布等の塗布法や蒸着法により基板上に薄膜を成膜し発光素子を製造することが可能である。

例えば、本発明の電子デバイス用材料を用いて発光素子の発光層を成膜する方法としては、該電子デバイス用材料の溶液を基板上に塗布する又は該電子デバイス用材料を溶融させて基板上に塗布するなどの塗布方法、該電子デバイス用材料を基板上に蒸着する方法などが挙げられる。

[0079] かかる基板としては、一般的に電子デバイスに用いられる公知の基板が挙げられ、ガラス、水晶、サファイア、シリコン、炭化ケイ素、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリエーテルスルフォン、ポリイミド、シクロオレフィン系ポリマー及びポリカーボネイトなどが挙げられる。

かかる基板は、ＩＴＯ等の透明導電層を有していてもよい。

[0080] 本発明の電子デバイス用材料の溶液を基板上に塗布する方法としては、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法などが挙げられる。電子デバイス用材料の溶液に用いられる溶剤としては、例えば、トルエン、キシレンなどの芳香族化合物、１，２－ジクロロエタン、クロロベンゼンなどの含ハロゲン溶剤、エチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル系溶剤、酢酸エチルなどの脂肪族エステル、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン系溶剤、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドなどのアミド系溶剤、ジメチルスルホキシドなどが挙げられる。これらは１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

電子デバイス用材料の溶液を基板や他の層の上に塗布した後、必要に応じて、加熱乾燥や減圧乾燥などを行って溶剤を除去することによって、発光層が成膜される。

[0081] 本発明の電子デバイス用材料を基板上に蒸着する方法としては、例えばシグマアルドリッチ「材料科学の基礎」Ｖｏｌ．１，Ｎｏ．１記載の公知一般の蒸着法を適用することができる。

また、本発明の電子デバイス用材料を基板上に溶融塗布する方法としては、一般的な溶融コーティング法を適用することができる。

実施例

[0082] 以下、実施例を挙げて本発明を更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

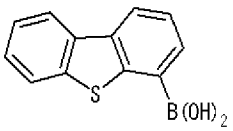
実施例で得られた化合物は、それぞれ融点（ｍｐ）、赤外分光法（ＩＲ）、核磁気共鳴法（^{1}Ｈ　ＮＭＲ、^{13}Ｃ　ＮＭＲ）、マトリックス支援レーザー脱離イオン化法（ＭＡＬＤＩ）と飛行時間型（ＴＯＦ）重量分析計（ＭＳ）を用いて同定した。実施例にて採用した分析条件等を実施例中に記載した。

[0083] 〔参考例１〕

４－ジベンゾチオフェンボロン酸の合成

窒素雰囲気下、－７０℃にてジベンゾチフェン（５．０ｇ）の乾燥ＴＨＦ（１００ｍＬ）溶液に１．５７Ｍブチルリチウムヘキサン溶液（１９．０ｍＬ）を１０分かけて滴下した。溶液を室温まで昇温して４時間攪拌後、再び－６０℃まで冷却し、ホウ酸トリメチル（１０．０ｍＬ）を一気に加えた。反応混合物を室温まで昇温後、１０％酢酸水溶液（２０ｍＬ）とジエチルエーテル（１００ｍＬ）を加えて２時間攪拌した。有機層を水（５０ｍＬ）で３回洗浄した後、１０％水酸化ナトリウム水溶液（４０ｍＬ）で５回抽出した。抽出液を酢酸で中和し、析出した無色沈殿を濾取して水（１００ｍＬ）で洗浄後、アセトン－水より再結晶を行い、下記に示す４－ジベンゾチオフェンボロン酸を無色針状晶として５．３ｇ（収率８５％）得た。

[0084] [化15]



[0085] ｍ．ｐ．＞３００℃（ｄｅｃｏｍｐ．）

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３２２３（ν_{OH}），３０６１，１５８１，１５６６，１５５５，１４８２（$\nu_{C=C}$），１４５３，１４４２，１３８３，１３６５，１３４５，１３１５，１２９５，１２４９，１２２０，１１７２，１１２

４，１０９９，１０６４，１０２６，１０１２，９７０，８２３，８０３，７５０，７２２；

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ$_6$）：δ７．４７－７．５０（ｍ，２Ｈ，ＡｒＨ），７．６４（ｔ，Ｊ＝７．４Ｈｚ，１Ｈ，ＡｒＨ），８．０６（ｄｄ，Ｊ＝４．２，２．１Ｈｚ，１Ｈ，ＡｒＨ），８．３６（ｄｄ，Ｊ＝６．２，２．１Ｈｚ，１Ｈ，ＡｒＨ），８．３９（ｄ，Ｊ＝７．１Ｈｚ，１Ｈ，ＡｒＨ），８．４５（ｄ，Ｊ＝７．０８Ｈｚ，１Ｈ，ＡｒＨ）

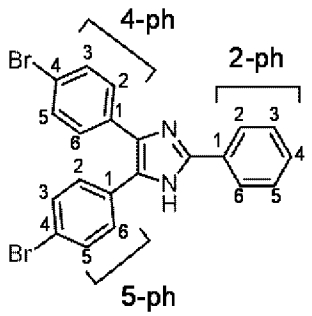
ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ　$C_{12}H_9BO_2S$；２２８（M^+），ｆｏｕｎｄ：２２８（M^+）．

[0086] 〔参考例２〕

４，５－ビス（４－ブロモフェニル）－２－フェニル－１Ｈ－イミダゾールの合成

酢酸（４０ｍｌ）に、酢酸アンモニウム（１．２７ｇ）、ベンズアルデヒド（０．４１ｇ）及び４，４’－ジブロモベンジル（１．１０ｇ）を加え、２４時間加熱還流した。反応終了後、反応混合物に水（６０ｍｌ）を加え、析出した沈殿物をろ取し、これを水（１５０ｍｌ）で３回洗浄した。得られた固体をＴＨＦに溶かした後、減圧下濃縮して得られた固体をベンゼン（８０ｍｌ）で洗浄し白色固体を得た。これをＴＨＦ－ベンゼン（１：１）混合溶媒で再結晶し、無色針状晶として下記に示す４，５－ビス（４－ブロモフェニル）－２－フェニル－１Ｈ－イミダゾール（１．０９ｇ、収率８０％）を得た。

[0087] [化16]



[0088] m．p．＞３００℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３４５２（ν_{NH}），１４９７，１４８５，１４６２（$\nu_{C=C}$），１０８１，１０１１（ν_{C-Br}），８３２，７１７

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（２７０ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ７．３６－７．７６（ｍ，１１Ｈ，２，３，５，６－Ｈ　ｉｎ　４，５－Ｐｈ，３，４，５－Ｈ　ｉｎ　２－Ｐｈ），８．０６（ｄ，Ｊ＝６．８Ｈｚ，２Ｈ，２，６－Ｈ　ｉｎ　２－ｐｈ），１２．７８（ｂｒ－ｓ，１Ｈ，ＮＨ）

^{13}Ｃ　ＮＭＲ（６７．８ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ１１９．６９，１２１．００，１２５．２１，１２７．３５，１２８．４１，１２８．６３，１２９．０２，１２９．８２，１２９．９６，１３０．２８，１３１．２０，１３１．６４，１３４．０７，１３６．３２，１４６．０１

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ　$C_{21}H_{14}Br_2N_2$；４５２（M^+），ｆｏｕｎｄ：４５３（$[M+H]^+$）．

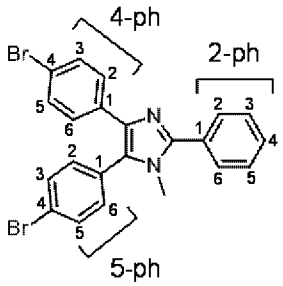
[0089] 〔参考例３〕

４，５－ビス（４－ブロモフェニル）－１－メチル－２－フェニルイミダゾールの合成

アルゴン気流下、ＤＭＦ（６ｍｌ）の溶液に炭酸カリウム（１．６６ｇ）及び４，５－ビス（４－ブロモフェニル）－２－フェニル－１Ｈ－イミダゾール（１．３６ｇ）を加え室温で３０分間攪拌し、ヨウ化メチル（０．８５ｇ）を加え同温で３０分間撹拌した。反応終了後に水（１２０ｍｌ）を加え、析出した沈殿物を濾取すると白色固体が得られた。これをアセトニトリルから再結晶し、下記に示す４，５－ビス（４－ブロモフェニル）－１－メチル－２－フェニルイミダゾール（１．１８ｇ、収率８４％）を得た。

[0090]

[化17]



[0091] m．p．２２４－２２５℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３０７０，２９７８，２９４０（ν_{C-H}），１４９３，１４７６（$\nu_{C=C}$），１３８１，１０６９，１００８（ν_{C-Br}），８２８，７７２，７０２

^{1}Ｈ ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ３．４８（３Ｈ，ｓ，CH_3），７．３３－７．５７（９Ｈ，ｍ，３，４，５－Ｈ ｉｎ ２－Ｐｈ，３，５－Ｈ ｉｎ ４，５－Ｐｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ４－Ｐｈ），７．７２－７．７８（４Ｈ，ｍ，２，６－Ｈ ｉｎ ５－Ｐｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ２－Ｐｈ）

^{13}Ｃ ＮＭＲ（１００．５ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ３３．０４（CH_3），１１９．２６，１２２．２３，１２８．０９，１２８．４４，１２８．５７，１２８．６８，１２９．４３，１２９．４７，１３０．２２，１３１．５０，１３２．０８，１３２．５９，１３３．６２，１３５．５１，１４７．２７

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{22}H_{16}Br_2N_2$；４６８（M^+），ｆｏｕｎｄ：４６９（$[M+H]^+$）．

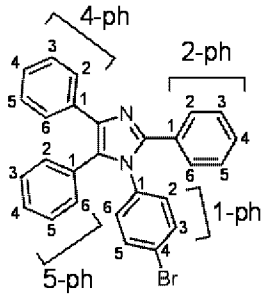
[0092] 〔参考例４〕

１－（４－ブロモフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

ベンズアルデヒド（０．５４ｇ）と４－ブロモアニリン（０．８６ｇ）に酢酸（５ｍＬ）を加えて１０分間加熱還流後、ベンジル（１．０５ｇ）と酢

酸アンモニウム（０．３９ｇ）を加えて更に３時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、メタノール（５０ｍＬ）を加えて室温で２時間静置した。析出した無色粉末を濾取し、メタノール（２０ｍＬ）で洗浄し、無色粉末として下記に示す１－（４－ブロモフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．８３ｇ、収率８１％）を得た。

[0093] [化18]



[0094] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．１８５－１８６℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３０５３，１６０１，１４８８，１４６７，１４４６，１３９７，１３７０，１３２７，１２９６，１２７１，１２３９，１１７８，１１５６，１１４０，１０９９，１０７４，１０２８，１０１６（ν_{C-Br}），１００２，９７９，９５９，９２６，９１５，８４０，７８３，７６８，７４９，７３１，７１８，７０５，６９０

^{1}Ｈ ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ$_{6}$）δ７．１５－７．２５（ｍ，８Ｈ，２，３，４，５，６－Ｈ ｉｎ ４－ｐｈ，３，４，５－Ｈ ｉｎ ５－ｐｈ），７．３０－７．３２（ｍ，５Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ １－ｐｈ，３，４，５－Ｈ ｉｎ ２－ｐｈ），７．３９－７．４１（ｍ，２Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ５－ｐｈ），７．４８－７．５１（ｍ，４Ｈ，３，５－Ｈ ｉｎ １－ｐｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ２－ｐｈ）

^{13}Ｃ ＮＭＲ（１００．５ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ$_{6}$）δ１２１．４５，１２６．１１，１２６．２０，１２７．８１，１２７．９２，１２８．１４，１２８．２４，１３０．００，１３０．０２，１３０．５７，１３０．８９，１３１．７８，１３４．０７，１３５．８３，１３６．８１，１４５．８９；ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／

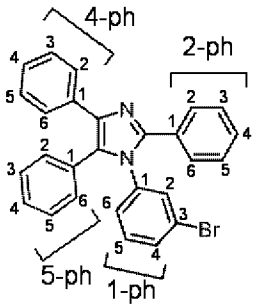
ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{27}H_{19}BrN_2$；４５０（M^+），ｆｏｕｎｄ：４５０（M^+）．

[0095] 〔参考例５〕

１－（３－ブロモフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

ベンズアルデヒド（１．０６ｇ）と３－ブロモアニリン（１．７２ｇ）酢酸（１０ｍＬ）を加えて１０分間加熱還流後、ベンジル（２．１０ｇ）と酢酸アンモニウム（７７０ｍｇ）を加えて更に４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、メタノール（５０ｍＬ）を加えて室温で２時間静置した。析出した無色粉末を濾取し、メタノール（２０ｍＬ）で洗浄し、無色粉末として下記に示す１－（３－ブロモフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾール（３．４５ｇ、収率７６％）を得た。

[0096] [化19]



[0097] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ　ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．２０５－２０６℃

ＩＲ（ＡＴＲ，cm^{-1}）３０６０，１６０１，１５９０，１５７４，１５００，１４７９（$\nu_{C=C}$），１４４１，１３８１，１３０８，１２４８，１１８０，１１５７，１１３９，１１０２，１０７２，１０４８，１０２０，１００４，９６０，９１５，８５０，７９９，７６９，７４７，６９４

^1H ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ７．１６（ｔ，Ｊ＝７．３Ｈｚ，１Ｈ，４－Ｈ　ｉｎ　４－ｐｈ），７．２１－７．２７（ｍ，７Ｈ，２，３，５，６－Ｈ　ｉｎ　４－ｐｈ，３，４，５－Ｈ　ｉｎ　５－ｐｈ），７．３０－７．３３（ｍ，５Ｈ，５，６－Ｈ　ｉｎ　１－ｐｈ，３，４，５－Ｈ　ｉｎ　２－ｐｈ），７．３９－７．４２（ｍ，２Ｈ，２，６－Ｈ

in 5－ph），7．49－7．51（m，4H，2，4－H in 1－ph，2，6－H in 2－ph）

^{13}C NMR（100．5MHz，DMSO－d_6）δ121．21，126．26，126．36，127．95，127．99，128．08，128．28，128．37，128．44，130．13，130．64，131．08，131．42，131．55，134．21，136．90，138．05，146．01

MALDI－TOF－MS（positive，Dithranol）m／z：calcd．for $C_{27}H_{19}BrN_2$；450（M^+），found：451（$[M+H]^+$）．

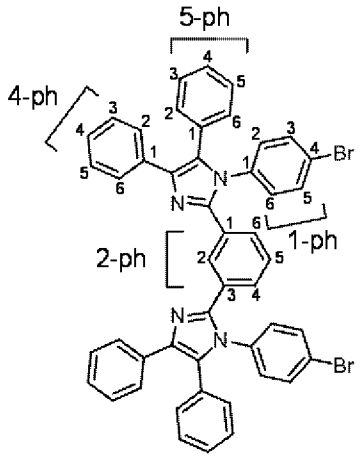
[0098] 〔参考例6〕

1，3－ビス［1－（4－ブロモフェニル）－4，5－ジフェニルイミダゾール－2－イル］ベンゼンの合成

イソフタルアルデヒド（0．34g）と4－ブロモアニリン（0．86g）に酢酸（5mL）を加えて15分間加熱還流後、ベンジル（1．05g）と酢酸アンモニウム（0．39g）を加えて更に3時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、エタノール（20mL）を加えると直ちに無色粉末が析出した。これを濾取してエタノール（50mL）で洗浄し、無色粉末として下記に示す1，3－ビス［1－（4－ブロモフェニル）－4，5－ジフェニルイミダゾール－2－イル］ベンゼン（1．65g、収率80％）を得た。

[0099]

[化20]



[0100] Colorless powder; m. p. >300℃

IR (ATR, cm^{-1}) 3058, 1603, 1487 ($\nu_{C=C}$), 1467, 1455, 1441, 1398, 1365, 1099, 1073, 1063, 1013 (ν_{C-Br}), 959, 912, 846, 837, 798, 774, 691

^{1}H NMR (400MHz, DMSO-d_6) δ7.14-7.26 (m, 16H, 2, 3, 4, 5, 6-H in 4-ph, 3, 4, 5-H in 5-ph), 7.31-7.33 (m, 5H, 2, 6-H in 1-ph, 5-H in 2-ph), 7.39-7.41 (m, 2H, 2, 6-H in 5-ph), 7.48 (d, J=7.2Hz, 4H, 3, 5-H in 1-ph), 7.53 (d, J=8.6Hz, 4H, 4, 6-H in 2-ph), 7.78 (s, 1H, 2-H in 2-ph)

^{13}C NMR (100.5MHz, DMSO-d_6) δ121.79, 126.17, 126.38, 127.79, 127.92, 128.03, 128.44, 128.49, 128.77, 130.12, 130.27, 130.67, 131.07, 131.25, 132.06, 134.10, 135.86, 136.98, 145.37

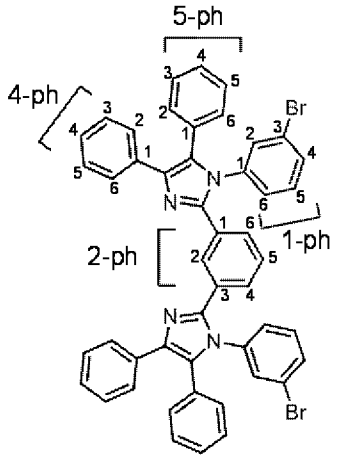
MALDI-TOF-MS (positive, Dithranol) m/z: calcd. for $C_{48}H_{32}Br_2N_4$; 822 (M^+), found: 823 ($[M+H]^+$).

[0101] 〔参考例７〕

１，３－ビス［１－（３－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼンの合成

イソフタルアルデヒド（０．６７ｇ）と３－ブロモアニリン（１．７２ｇ）に酢酸（１０ｍＬ）を加えて１５分間加熱還流後、ベンジル（２．１０ｇ）と酢酸アンモニウム（０．７７ｇ）を加えて更に３時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、エタノール（４０ｍＬ）を加えると直ちに無色粉末が析出した。これを濾取してエタノール（５０ｍＬ）で洗浄し、無色粉末として下記に示す１，３－ビス［１－（３－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼン（３．５０ｇ、収率８５％）を得た。

[0102] [化21]



[0103] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ　ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．２５０－２５１℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３０８４，３０６０，１５８９，１５７５，１５０１，１４７７（$\nu_{C=C}$），１４４１，１４２６，１３６１，１３１７，１２５５，１２３４，１１８２，１１５７，１０９１，１０６９，１０２８（ν_{C-Br}），９９９，９６０，９１２，８８９，８７７，８２６，７９５，７７７，７１８，６９２

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ$_6$）δ７．１４－７．３６（ｍ，２３Ｈ，２，３，４，５，６－Ｈ　ｉｎ　４－　ａｎｄ　５－ｐｈ，５－Ｈ　ｉｎ　２－ｐｈ，５－Ｈ　ｉｎ　１－ｐｈ），７．４５－７．５６（ｍ，

８Ｈ，４，６－Ｈ　ｉｎ　２－ｐｈ，２，４，６－Ｈ　ｉｎ　１－ｐｈ），７．８４（ｓ，１Ｈ，２－Ｈ　ｉｎ　２－ｐｈ）

^{13}Ｃ　ＮＭＲ（１００．５ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－$ｄ_6$）δ１２１．３９，１２６．１７，１２６．４１，１２７．６２，１２７．８５，１２７．９８，１２８．４０，１２８．５２，１２８．６０，１３０．０７，１３０．１８，１３０．７７，１３１．１１，１３１．３３，１３１．６９，１３４．０６，１３６．９１，１３７．９３，１４５．２２

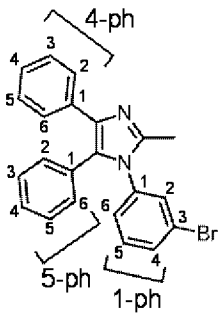
ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ　$Ｃ_{48}Ｈ_{32}Ｂｒ_2Ｎ_4$；８２２（$Ｍ^+$），ｆｏｕｎｄ：８２３（$[Ｍ＋Ｈ]^+$）．

[0104] 〔参考例８〕

１－（３－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニル－２－メチルイミダゾールの合成

３－ブロモアニリン（１．７２ｇ）とパラアセトアルデヒド（０．４５ｇ）に酢酸（１０ｍＬ）を加えて１００℃で３０分間撹拌後、ベンジル（２．１０ｇ）と酢酸アンモニウム（０．７７ｇ）　を加えて更に６時間撹拌した。反応混合物を水（５０ｍＬ）に注ぎ、２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液を加えて中和後にジクロロメタン（２０ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮して得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付し、クロロホルム溶出分より無色粉末として下記に示す１－（３－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニル－２－メチルイミダゾール（２．５３ｇ、収率６５％）を得た。

[0105] [化22]



[0106] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．１８２－１８３℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３０８９，３０５５，２９２４（ν_{C-H}），１５９２，１５２３，１５００，１４７８（$\nu_{C=C}$），１４４８，１４２７，１３９３，１３６０，１３２５，１２３２，１１５９，１１００，１０７２，１０３９，１０２６，９９９，９６５，９１４，８６９，８４６，８０９，７８５，７７１，７６０，７４１，６９６，６８７，６５５

^{1}Ｈ ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ２．２４（ｓ，３Ｈ，CH_3），７．１２（ｔ，Ｊ＝７．２Ｈｚ，１Ｈ，４－Ｈ ｉｎ ４－ｐｈ），７．１６－７．２１（ｍ，４Ｈ，２，３，５，６－Ｈ ｉｎ ４－ｐｈ），７．２６－７．３５（ｍ，５Ｈ，５，６－Ｈ ｉｎ １－ｐｈ，３，４，５－Ｈ ｉｎ ５－ｐｈ），７．４２（ｄ，Ｊ＝７．２Ｈｚ，２Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ５－ｐｈ），７．５３－７．５５（ｍ，２Ｈ，２，４－Ｈ ｉｎ １－ｐｈ）

^{13}Ｃ ＮＭＲ（１００．５ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－d_6）δ１３．５３（CH_3），１２１．３７，１２６．０２，１２６．１０，１２７．２７，１２７．８９，１２８．０８，１２８．３８，１２９．０１，１３０．６０，１３０．７３，１３０．７７，１３１．３６，１３４．５４，１３５．６６，１３７．６１，１４４．３１

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{22}H_{17}BrN_2$；３８８（M^+），ｆｏｕｎｄ：３８９（$[M+H]^+$）．

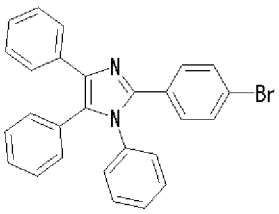
[0107] 〔参考例９〕

２－（４－ブロモフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

４－ブロモベンズアルデヒド（５．５５ｇ）とアニリン（２．７９ｇ）に酢酸（３０ｍＬ）を加えて３０分間加熱還流した後、ベンジル（６．３１ｇ）と酢酸アンモニウム（２．３１ｇ）を加えて更に５時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、塩化メチレン（１００ｍＬ）を加えて分液した

後、有機層を水（５０ｍＬ）で４回洗浄した。得られた有機層を減圧下濃縮し、得られた残渣をエタノールで洗浄後、乾燥し、下記に示す２－（４－ブロモフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾール（９．４７ｇ、収率７０％）を得た。

[0108] [化23]

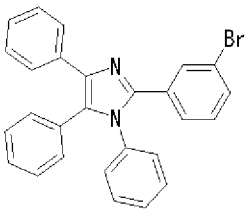


[0109] 〔参考例１０〕

２－（３－ブロモフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

３－ブロモベンズアルデヒド（５．５５ｇ）アニリン（２．７９ｇ）に酢酸（３０ｍＬ）を加えて３０分間加熱還流した後、ベンジル（６．３１ｇ）と酢酸アンモニウム（２．３１ｇ）を加えて更に５時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、塩化メチレン（１００ｍＬ）を加えて分液した後、有機層を水（５０ｍＬ）で４回洗浄した。得られた有機層を減圧下濃縮し、得られた残渣をエタノールで洗浄後、乾燥し、下記に示す２－（３－ブロモフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾール（６．８３ｇ、収率５１％）を得た。

[0110] [化24]



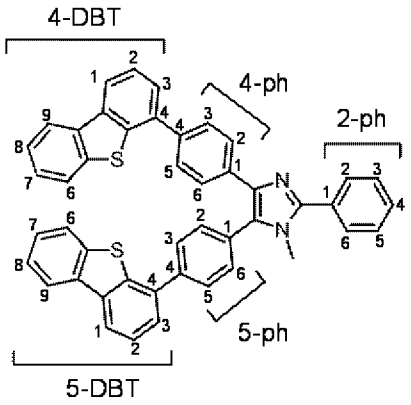
[0111] 〔実施例１〕

４，５－ビス（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－１－メチル－２－フェニルイミダゾールの合成

窒素雰囲気下、４，５－ビス（４－ブロモフェニル）－１－メチル－２－

フェニルイミダゾール（１．０ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（１．１ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（９９ｍｇ）に、脱気したトルエン（１５ｍＬ）、エタノール（５ｍＬ）及び２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液（１０ｍＬ）を加え、４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷し、水（５０ｍＬ）を加えてジクロロメタン（２０ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付した。ジクロロメタン溶出分より得られた無色固体をジクロロメタン－ヘキサンから再結晶し、無色粉末として下記に示す４，５－ビス（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－１－メチル－２－フェニルイミダゾール（１．３ｇ、収率８６％）を得た。

[0112] [化25]



[0113] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．２９４－２９５℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３０５２，２９２７（ν_{C-H}），１６１３，１６０３，１５７９，１５１９，１４９７，１４７６（$\nu_{C=C}$），１４４０，１３８０，１３２３，１３００，１２４８，１１８１，１１６０，１１０２，１１６６，１１４６，１０１８，９６０，９３３，８５４，８２８，７９８，７６９，７４５，７２７，７０２，６９２

^{1}Ｈ ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ$_6$）δ３．６１（ｓ，３Ｈ，ＣＨ$_3$），７．４９－７．６３（ｍ，９Ｈ，３，５－Ｈ ｉｎ ２－，４－，ａｎｄ５－ｐｈ，４－Ｈ ｉｎ ２－ｐｈ，３－Ｈ ｉｎ ４－ａｎｄ５－ＤＢＴ），７．６８－７．７７（ｍ，８Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ４－ａｎｄ５－

ｐｈ，７，８－Ｈ ｉｎ ４－ａｎｄ５－ＤＢＴ），７．８７（ｄ，Ｊ＝７．２Ｈｚ，２Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ２－ｐｈ），７．９６－８．０３（ｍ，４Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ４－ａｎｄ５－ＤＢＴ），８．３６（ｄｄ，Ｊ＝７．６，１．６Ｈｚ，１Ｈ，１－Ｈ ｉｎ ４－ＤＢＴ），８．３９（ｄｄ，Ｊ＝７．６，１．４Ｈｚ，１Ｈ，１－Ｈ ｉｎ ５－ＤＢＴ），８．４３（ｄｄ，Ｊ＝７．６，１．５Ｈｚ，１Ｈ，９－Ｈ ｉｎ ４－ＤＢＴ），８．４４（ｄｄ，Ｊ＝７．６，１．７Ｈｚ，１Ｈ，９－Ｈ ｉｎ ５－ＤＢＴ）

^{13}Ｃ ＮＭＲ（１００．５ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－$ｄ_6$）δ３２．９０（CH_3），１２０．６０，１２１．１０，１２１．８３，１２１．９２，１２２．４７，１２２．５４，１２４．４８，１２４．５８，１２５．２８，１２６．４３，１２６．５３，１２６．８０，１２６．８６，１２６．９７，１２７．４３，１２８．２７，１２８．３６，１２８．４２，１２８．４，１３０．１９，１３０．３２，１３０．４８，１３１．１５，１３４．５０，１３５．００，１３５．３３，１３５．６１，１３５．７５，１３６．１１，１３６．９３，１３７．１１，１３７．３４，１３８．２０，１３９．８６

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{46}H_{30}N_2S_2$；６７４（M^+），ｆｏｕｎｄ：６７５（$[M+H]^+$）

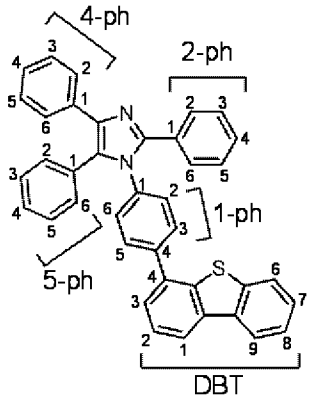
[0114] 〔実施例２〕

１－（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

１－（４－ブロモフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．００ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（０．５６ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（５１ｍｇ）に、脱気したトルエン（１５ｍＬ）、エタノール（５ｍＬ）及び２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液（１０ｍＬ）を加え、３時間加熱還流した。反応混合物を水（５０ｍＬ）に注ぎ、ジクロロメタン（２０ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグ

ネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付し、ジクロロメタン：メタノール＝３０：１（ｖ／ｖ）溶出分より無色粉末として下記に示す１－（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．０３ｇ、収率８４％）を得た。

[0115] [化26]



[0116] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．２１０－２１１℃

ＩＲ（ＡＴＲ，ｃｍ$^{-1}$）３０６０，１６０１，１５１２，１５００，１４７９（$\nu_{C=C}$），１４４１，１３８１，１３０８，１２４８，１１８０，１１５７，１１３９，１１０２，１０７２，１０４８，１０２０，１００４，９６０，９１５，８５０，７９９，７６９，７４７，６９４

^{1}Ｈ ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ$_6$）δ７．２０（ｔ，Ｊ＝７．３Ｈｚ，１Ｈ，４－Ｈ ｉｎ ４－ｐｈ），７．２７（ｔ，Ｊ＝７．３Ｈｚ，２Ｈ，３，５－Ｈ ｉｎ ４－ｐｈ），７．３２－７．３７（ｍ，８Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ４－ｐｈ，３，４，５－Ｈ ｉｎ ２－ａｎｄ５－ｐｈ），７．４５－７．５２（ｍ，４Ｈ，３，５－Ｈ ｉｎ １－ｐｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ５－ｐｈ），７．５２－７．５６（ｍ，５Ｈ，３，７，８－Ｈ ｉｎ ＤＢＴ，３，５－Ｈ ｉｎ １－ｐｈ），７．６２（ｔ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ，２－Ｈ ｉｎ ＤＢＴ），７．７０（ｄ，Ｊ＝８．５Ｈｚ，２Ｈ，２，６－Ｈ ｉｎ ２－ｐｈ），８．０３（ｄｄ，Ｊ＝５．９，３．３Ｈｚ，１Ｈ，６－Ｈ ｉｎ ＤＢＴ），８．３８－８．４１（ｍ，２Ｈ，１，９－Ｈ ｉｎ ＤＢＴ）

^{13}C NMR（１００．５MHz，DMSO－d_6）δ１２１．１７，１２１．９１，１２２．５４，１２４．５９，１２５．３０，１２６．１９，１２６．６９，１２６．９９，１２７．８１，１２７．８９，１２８．０８，１２８．１９，１２８．３３，１２９．０８，１３０．１４，１３０．１９，１３０．９２，１３１．０５，１３４．２０，１３４．７４，１３４．９３，１３５．６６，１３６．２６，１３６．８５，１３７．１０，１３８．１４，１３９．７０，１４５．９４

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{39}H_{26}N_2S$；５５４（M^+），ｆｏｕｎｄ：５５４（M^+），５５５（$[M+H]^+$）．

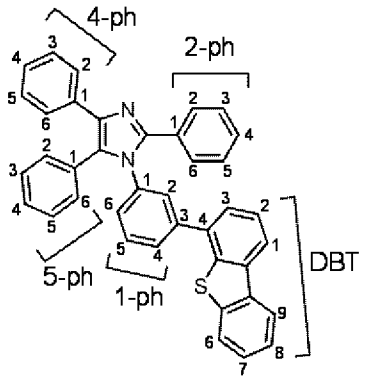
[0117]〔実施例３〕

１－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

１－（３－ブロモフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．５０ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（０．８３ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（７７ｍｇ）に、脱気したトルエン（１０ｍＬ）、エタノール（５ｍＬ）及び２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液（１０ｍＬ）を加え、４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷し、有機層を分離して５Ｎ水酸化ナトリウム水溶液（１０ｍＬ）で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付し、ジクロロメタン：メタノール＝２０：１（ｖ／ｖ）溶出分より得られた無色固体をジクロロメタン－ヘキサンより再結晶し、下記に示す１－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－２，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．５５ｇ、収率８４％）を得た。

[0118]

[化27]



[0119] Colorless powder; m. p. 209−210℃

IR (ATR, cm^{-1}) 3062, 1600, 1585, 1495, 1475 ($\nu_{C=C}$), 1460, 1441, 1388, 1378, 1370, 1301, 1287, 1249, 1178, 1158, 1137, 1104, 1088, 1072, 1052, 1027, 970, 962, 942, 924, 915, 894, 851, 798, 784, 773, 755, 691

^1H NMR (400MHz, DMSO−d_6) δ7.18 (t, J=7.3Hz, 1H, 4−H in 4−ph), 7.26 (t, J=7.3Hz, 2H, 3, 5−H in 4−ph), 7.32−7.38 (m, 10H, 5, 6−H in 1−ph, 2, 6−H in 4−ph, 3, 4, 5−H in 2−and5−ph), 7.47−7.53 (m, 7H, 3, 7, 8−H in DBT, 2, 6−H in 2−and5−ph), 7.57 (t, J=7.6Hz, 1H, 2−H in DBT), 7.61 (t, J=1.7Hz, 1H, 2−H in 1−ph), 7.66 (td, J=8.1, 1.7Hz, 1H, 4−H in 1−ph), 7.93 (dd, J=5.9, 3.3Hz, 1H, 6−H in DBT), 8.34−8.38 (m, 2H, 1, 9−H in DBT)

^{13}C NMR (100.5MHz, DMSO−d_6) δ121.35, 122.09, 122.54, 124.71, 125.39, 126.39, 126.73, 127.17, 127.99, 128.18, 128.27, 128.35, 128.49, 129.78, 130.39, 130.46,

１３１．１３，１３１．１８，１３４．３７，１３４．６９，１３５．０４，１３５．７８，１３７．０２，１３７．１１，１３７．４２，１３８．４２，１４０．５５，１４６．２４

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{39}H_{26}N_2S$；５５４（M^+），ｆｏｕｎｄ：５５５（［Ｍ＋Ｈ］$^+$）．

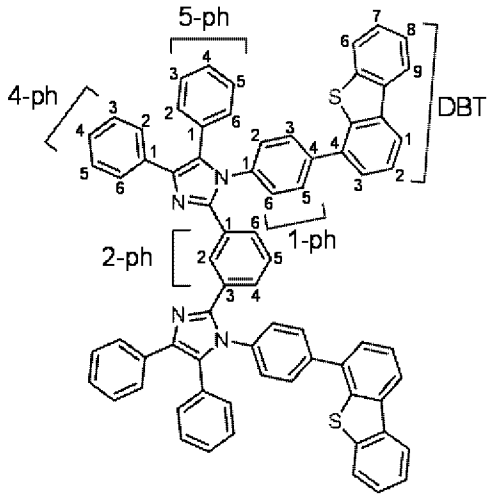
[0120]〔実施例４〕

１，３－ビス［１－（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼンの合成

窒素雰囲気下、１，３－ビス［１－（４－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼン（１．００ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（０．６１ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（５６ｍｇ）に、脱気したトルエン（１５ｍＬ）、エタノール（５ｍＬ）及び２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液（１０ｍＬ）を加え、４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、水（５０ｍＬ）に注ぎ、ジクロロメタン（１５ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付した。ジクロロメタン：メタノール＝２０：１（ｖ／ｖ）溶出分より得られた無色固体を、ジクロロメタン－アセトンより再結晶し、無色粉末として下記に示す１，３－ビス［１－（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼン（１．２１ｇ、収率９７％）を得た。

[0121]

[化28]



[0122] Colorless powder; m. p. 203−205℃

IR (ATR, cm^{-1}) 3058, 1603, 1487 ($\nu_{C=C}$), 1454, 1441, 1398, 1365, 1293, 1178, 1099, 1073, 1063, 1027, 1013, 981, 959, 912, 846, 837, 798, 774, 744, 692

^{1}H NMR (400MHz, DMSO−d_6) δ7.08 (d, J=7.0Hz, 4H, 2, 6−H in 4−ph), 7.14−7.27 (m, 18H, 3, 4, 5−H in 4−and5−ph, 2, 6−H in 1−ph, 8−H in DBT), 7.31−7.34 (m, 3H, 7−H in DBT, 5−H in 2−ph), 7.40−7.50 (m, 8H, 3, 5−H in 1−ph, 2, 6−H in 5−ph), 7.55 (t, J=7.8Hz, 2H, 2−H in DBT), 7.60 (dd, J=7.8, 1.8Hz, 2H, 3−H in DBT), 7.66−7.69 (m, 5H, 2, 4, 6−H in 2−ph, 6−H in DBT), 8.36−8.39 (m, 4H, 1, 9−H in DBT)

^{13}C NMR (100.5MHz, DMSO−d_6) δ121.31, 122.04, 122.62, 124.71, 125.17, 125.42, 126.24, 126.35, 126.81, 126.98, 127.95, 128.05, 128.21, 128.30, 128.35, 128.69,

１２８．７６，１２９．０２，１３０．２１，１３０．２４，１３０．９４，１３４．２４，１３４．９４，１３５．０８，１３５．８１，１３６．０９，１３７．０２，１３７．３６，１３８．２８，１３９．８６，１４５．５１

ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{72}H_{46}N_4S_2$；１０３０（M^+），ｆｏｕｎｄ：１０３０（M^+），１０３１（$[M+H]^+$）．

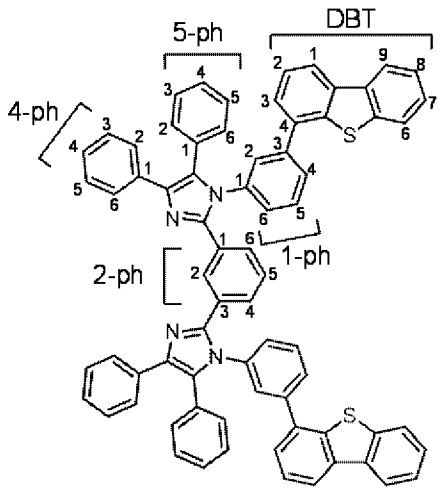
[0123]〔実施例５〕

１，３－ビス［１－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼンの合成

窒素雰囲気下、１，３－ビス［１－（３－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼン（１．００ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（０．６１ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（５６ｍｇ）に、脱気したトルエン（５ｍＬ）、エタノール（２ｍＬ）及び２Ｍ炭酸ナトリウム水溶液（５ｍＬ）を加え、４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷後、水（５０ｍＬ）に注ぎ、ジクロロメタン（１５ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付した。クロロホルム溶出分より得られた無色固体をジクロロメタン－ヘキサンより再結晶し、無色粉末として下記に示す１，３－ビス［１－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール－２－イル］ベンゼン（１．２０ｇ、収率９６％）を得た。

[0124]

[化29]



[0125] Colorless powder; m. p. 196−198℃

IR (ATR, cm^{-1}) 3058, 1601, 1586, 1495, 1477 ($\nu_{C=C}$), 1462, 1442, 1418, 1384, 1360, 1301, 1249, 1180, 1162, 1130, 1103, 1071, 1026, 1002, 964, 909, 894, 861, 818, 804, 794, 773, 750, 718, 694

^{1}H NMR (400MHz, DMSO−d_6) δ 7.13−7.26 (m, 14H, 2, 3, 4, 5, 6−H in 4−ph, 3, 5−H in 5−ph), 7.30−7.57 (m, 26H, 2, 4, 5, 6−H in 1−and2−ph, 2, 4, 6−H in 5−ph, 2, 6−H in 5−ph, 2, 3, 7, 8−H in DBT), 7.76 (d, J=7.9Hz, 2H, 6−H in DBT), 8.13 (d, J=6.8Hz, 2H, 1−H in DBT), 8.24 (d, J=7.8Hz, 2H, 9−H in DBT)

^{13}C NMR (100.5MHz, DMSO−d_6) δ 120.96, 121.82, 122.30, 124.38, 124.96, 126.17, 126.77, 127.20, 127.51, 127.66, 127.79, 127.92, 127.99, 128.07, 128.21, 128.28, 128.63, 129.57, 130.10, 130.25, 130.97

，１３１．０４，１３２．９８，１３４．１０，１３４．２８，１３４．８４，１３５．４５，１３６．６７，１３６．９０，１３７．１１，１３８．２４，１４０．４３，１４５．５３

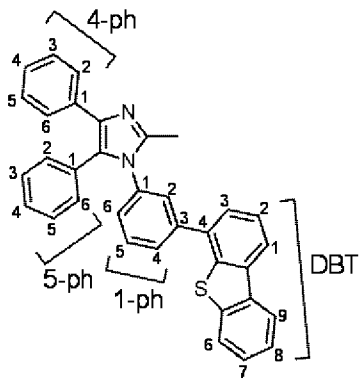
ＭＡＬＤＩ－ＴＯＦ－ＭＳ（ｐｏｓｉｔｉｖｅ，Ｄｉｔｈｒａｎｏｌ）ｍ／ｚ：ｃａｌｃｄ．ｆｏｒ $C_{72}H_{46}N_4S_2$；１０３０（M^+），ｆｏｕｎｄ：１０３１（［Ｍ＋Ｈ］$^+$）．

[0126] 〔実施例６〕

１－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－４，５－ジフェニル－２－メチルイミダゾールの合成

窒素雰囲気下、１－（３－ブロモフェニル）－４，５－ジフェニル－２－メチルイミダゾール（１．００ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（０．６５ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（５９ｍｇ）に、脱気したトルエン（１０ｍＬ）、エタノール（２ｍＬ）及び２Ｍ酸ナトリウム水溶液（５ｍＬ）を加え、５時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷して水（５０ｍＬ）に注ぎ、トルエン（２０ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ＷＮ３００）に付し、クロロホルム溶出分より無色固体を得た。これをジクロロメタン－ヘキサンより再結晶し、無色粉末として下記に示す１－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－４，５－ジフェニル－２－メチルイミダゾール（０．９９ｇ、収率７８％）を得た。

[0127] [化30]



[0128] Colorless powder; m. p. 198−199℃

IR (ATR, cm^{-1}) 3061, 2924 (ν_{C-H}), 1600, 1587, 1526, 1492, 1478 ($\nu_{C=C}$), 1442, 1430, 1395, 1360, 1336, 1300, 1267, 1247, 1230, 1178, 1157, 1100, 1071, 1052, 1026, 1009, 1000, 986, 964, 918, 900, 891, 854, 810, 801, 785, 777, 754, 745, 724, 712, 699

^1H NMR (400MHz, DMSO−d_6) δ2.36 (s, 3H, CH_3), 7.14 (t, J=7.3Hz, 1H, 4−H in 4−ph), 7.20−7.26 (m, 4H, 2, 3, 5, 6−H in 4−ph), 7.33−7.37 (m, 3H, 3, 4, 5−H in 5−ph), 7.43−7.46 (m, 4H, 5, 6−H in 1−ph, 2, 6−H in 5−ph), 7.52−7.55 (m, 2H, 3, 7−H in DBT), 7.59−7.63 (m, 3H, 2, 8−H in DBT, 2−H in 1−ph), 7.72 (td, J=8.5, 1.3Hz, 1H, 4−H in 1−ph), 7.98−8.01 (m, 1H, 6−H in DBT), 8.37−8.40 (m, 2H, 1, 9−H in DBT)

^{13}C NMR (100.5MHz, DMSO−d_6) δ13.80 (CH_3), 121.45, 122.18, 122.71, 124.79, 125.51, 126.06, 126.18, 126.98, 127.25, 127.29, 127.74, 127.98, 128.05, 128.60, 129.14, 129.94, 130.79, 134.62, 134.75, 135.05, 135.57, 135.80, 136.63, 137.27, 128.29, 140.55, 144.49

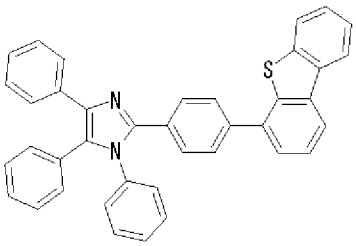
MALDI−TOF−MS (positive, Dithranol) m/z: calcd. for $C_{34}H_{24}N_2S$; 492 (M^+), found: 492 (M^+).

[0129] 〔実施例7〕

２－（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

アルゴン雰囲気下、２－（４－ブロモフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．５０ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（０．８３ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（７７ｍｇ）に、脱気したトルエン（１５ｍＬ）、エタノール（５ｍＬ）及び２Ｍ酸ナトリウム水溶液（１０ｍＬ）を加え、４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷して水（５０ｍＬ）に注ぎ、ジクロロメタン（２０ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ジクロロメタン溶出分をジクロロメタン－ヘキサンより再結晶し、無色粉末として下記に示す２－（４－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾール（０．９２ｇ、収率５０％）を得た。

[0130] [化31]



[0131] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ　ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．２３８℃

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ７．１１－７．３１（ｍ，１３Ｈ），７．４３－７．４５（ｍ，３Ｈ），７．５１（ｔ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），７．５８（ｄ，Ｊ＝８．４Ｈｚ，２Ｈ），７．６２－７．６６（ｍ，４Ｈ），７．８０－７．８２（ｍ，１Ｈ），８．１１（ｄｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１．２Ｈｚ，１Ｈ），８．１４－８．１６（ｍ，１Ｈ）

^{13}Ｃ　ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ１２０．６，１２１．７，１２２．６，１２４．４，１２５．１，１２６．７，１２６．９，１２６．９，１２７．４，１２８．０，１２８．２，１２８．４，１２８．５，１２８．５，１２９．２，１２９．３，１３０．２，１３０．６，１３１．２，１３

４．５，１３５．７，１３６．３，１３６．４，１３７．２，１３８．４，１３８．５，１３９．５，１４０．３，１４６．５．

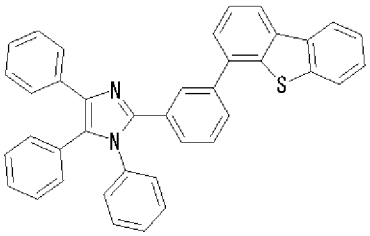
ＭＳ　ｍ／ｚ　５５５（［ＭＨ］$^{+}$）

[0132]〔実施例８〕

２－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾールの合成

アルゴン雰囲気下、２－（３－ブロモフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾール（２．００ｇ）、４－ジベンゾチオフェンボロン酸（１．１１ｇ）及びテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（０）（１０２ｍｇ）に、脱気したトルエン（２０ｍＬ）、エタノール（６．７ｍＬ）及び２Ｍ酸ナトリウム水溶液（１３．３ｍＬ）を加え、４時間加熱還流した。反応混合物を室温まで放冷して水（６５ｍＬ）に注ぎ、ジクロロメタン（３０ｍＬ）で２回抽出した。抽出液を硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ジクロロメタン溶出分をエタノールで洗浄、乾燥し、無色粉末として下記に示す２－（３－ジベンゾチオフェン－４－イルフェニル）－１，４，５－トリフェニルイミダゾール（１．００ｇ、収率４１％）を得た。

[0133] [化32]



[0134] Ｃｏｌｏｒｌｅｓｓ　ｐｏｗｄｅｒ；ｍ．ｐ．２２２℃

^{1}Ｈ　ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ７．１０－７．３１（ｍ，１４Ｈ），７．４０－７．４６（ｍ，４Ｈ），７．５８－７．６３（ｍ，３Ｈ），７．６９（ｄ，Ｊ＝７．６Ｈｚ，１Ｈ），７．７４（ｓ，１Ｈ），７．７７－７．７９（ｍ，１Ｈ），８．０８（ｄ，Ｊ＝８．０Ｈｚ，１Ｈ），８．１２－８．１４（ｍ，１Ｈ）

^{13}Ｃ　ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）δ１２０．５，１２１．７，１２２．６，１２４．４，１２５．０，１２６．７，１２６．８，１２７．０，１２７．４，１２８．１，１２８．１，１２８．２，１２８．３，１２８．４，１２８．６，１２８．７，１２９．１，１２９．４，１３０．７，１３１．１，１３１．２，１３１．２，１３４．５，１３５．８，１３６．１，１３６．４，１３７．２，１３８．５，１３８．５，１３９．６，１４０．４，１４６．７．

ＭＳ　ｍ／ｚ　５５５（［ＭＨ］$^+$）

[0135] 〔比較例１〕

従来より一般に用いられている材料であるＣＢＰ（４，４’－Ｎ，Ｎ’－Ｄｉｃａｒｂａｚｏｌｅ－ｂｉｐｈｅｎｙｌ）を用いた。

[0136] 〔評価項目〕

（熱的特性測定）

実施例１の化合物のＤＳＣ測定により、融点（Ｔｍ）及びガラス転移温度（Ｔｇ）の測定を行った。まずサンプルを１０℃／ｍｉｎで加熱し、吸熱融解を示すピークが得られた温度をＴｍとした。これを冷却固化させアモルファス状態とした後、再度加熱を行い、吸熱ピークが観測された温度をＴｇとした。また、実施例１の化合物のＴＧＡ（熱重量分析）を行なって分解温度（Ｔｄ）を測定した。その結果を表１に表す。

[0137] 実施例２～８の化合物及び比較例１のＣＢＰについて、実施例１の化合物と同様に、ＤＳＣ及びＴＧＡにより測定した。結果を表１に表す。

[0138]

[表1]

	Ｔｍ（℃）	Ｔｇ（℃）	Ｔｄ（℃）
実施例１	２８７	１３２	４１０
実施例２	２０９	９８	２９１
実施例３	２１０	９６	３２８
実施例４	１９４	１５４	４８５
実施例５	１９３	１５３	４５１
実施例６	２０１	８７	３０３
実施例７	２４７	１１３	４０４
実施例８	２３７	１０４	３６４
比較例１	２７９	８５	２８０

[0139] これらの結果から、本発明のイミダゾール化合物は、ＣＢＰと同等もしくはそれ以上のＴｇを有していることから、本発明のイミダゾール化合物を用いて有機ＥＬ素子などの発光素子を製造した際であってもＣＢＰと同等もしくはそれ以上の熱安定性、素子寿命が期待できることが分かる。また、素子作成時においては、ＣＢＰよりもＴｄが高いことから、真空蒸着などにより成膜する際の加熱による化合物の劣化をより抑制できることが分かる。

[0140] 〔実施例９〕

実施例３で合成したイミダゾール化合物の０．０１ｇ／ｍＬ、０．０２ｇ／ｍＬ及び０．０３ｇ／ｍＬクロロベンゼン溶液を用いて、洗浄済ＩＴＯ（酸化インジウムスズ）付ガラス基板に、１０００～２０００ｒｐｍの回転数領域でスピンコートし、１３０℃で１０分間アニーリングすることにより、結晶化は一切生じず、極めて均質な薄膜が得られた。触針式膜厚計（Ｖｅｅｃｏ社製「Ｄｅｋｔａｋ１５０」）を用いて膜厚測定を行った結果、図１に示すとおり、回転数と材料濃度により２５～１００ｎｍの範囲で膜厚が制御可能であることが分かった。

[0141] 〔実施例１０〕

実施例６で合成したイミダゾール化合物を用いて、実施例９と同様に成膜試験を行った。その結果、結晶化は一切生じず、極めて均質な薄膜が得られた。触針式膜厚計「Ｖｅｅｃｏ社製「Ｄｅｋｔａｋ１５０」」を用いて膜厚測定を行った結果、図２に示すとおり、回転数と材料濃度により２５～１００ｎｍの範囲で膜厚が制御可能であることが分かった。

[0142] ＜塗布法による発光素子の作成及び評価＞

〔実施例１１〕

洗浄済みＩＴＯパターン基板（５×５ｃｍ）にＰＥＤＯＴ／ＰＳＳ（Ｈｅｒａｅｕｓ社製「Ｃｌｅｖｉｏｕｓ　Ｐ　ＶＰ　ＣＨ４０００」）を０．２ｍＬ滴下し、２０００ｒｐｍで９０秒間スピンコートして２００℃で１０分間アニーリングを行い、２０ｎｍのホール注入層を成膜した。

次に、実施例３で合成したイミダゾール化合物の０．０３ｇ／ｍＬクロロベンゼン溶液に５重量％の$Ｉｒ（ｐｐｙ）_3$を添加して塗布液を０．２ｍＬ滴下し、１０００ｒｐｍで３０秒間スピンコートした後、１３０℃で１０分間アニーリングを行い、１００ｎｍの発光層を成膜した。

次いで、真空蒸着によりフッ化リチウム（１ｎｍ）とアルミニウム（１００ｎｍ）を成膜して陰極を形成し、さらにアルミキャップによる封止を行い、デバイスを作成した。得られた発光素子の素子特性をＩ－Ｖ－Ｌ測定システム（輝度計：コニカミノルタ　ＣＳ－２０００、ソースメーター：ＫＥＩＴＨＬＥＹ　２４２０）にて評価した。その結果を図３及び図４に示す。

[0143] 〔実施例１２〕

実施例３で合成したイミダゾール化合物の代わりに、実施例６で合成したイミダゾール化合物を用いたこと以外は実施例１１と同様の操作を行い、デバイスを作成した。得られた発光素子の素子特性を図５及び図６に示す。

[0144] 〔比較例２〕

実施例９において用いた実施例３のイミダゾール化合物を、一般的なホスト材料である比較例１のＣＢＰに替えて、実施例９と同様に、スピンコートによる成膜試験を行った。しかし、何れの濃度の場合にもＩＴＯガラス基板

上でＣＢＰ薄膜の結晶化が起こり、有機ＥＬ素子に必要なアモルファス膜を得ることができなかった。よって、実施例９における実施例３のイミダゾール化合物を用いたものと同様な発光素子を塗布法により作成することができなかった。

[0145] ＜真空蒸着法による素子の作成及び評価＞

〔実施例１３〕

洗浄済みＩＴＯ基板（膜厚１１０ｎｍ）に真空蒸着にて１，１－ビス［（Ｎ，Ｎ－ジ－ｐ－トリルアミノ）フェニル］シクロヘキサン（４０ｎｍ）を製膜し、ホール輸送層を形成した。これにＩｒ（ｐｐｙ）$_3$と実施例２のイミダゾール化合物を膜厚比２０：１になるように共蒸着に製膜し発光層（２０ｎｍ）を形成した。次いで１，３，５－トリ（ｐ－ピリド－３－イル－フェニル）ベンゼン（５０ｎｍ）を製膜し、電子輸送層を製膜した後、フッ化リチウム（０．５ｎｍ）とアルミニウム（１００ｎｍ）を成膜して陰極を形成し、キャップガラスによる封止を行い、発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図７及び図８に示す。

[0146] 〔実施例１４〕

実施例１３において用いた実施例２のイミダゾール化合物を実施例３で合成したイミダゾール化合物に替えた以外は同様に発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図９及び図１０に示す。

[0147] 〔実施例１５〕

実施例１３において用いた実施例２のイミダゾール化合物を実施例５で合成したイミダゾール化合物に替えた以外は同様に発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図１１及び図１２に示す。

[0148] 〔実施例１６〕

実施例１３において用いた実施例２のイミダゾール化合物を実施例６で合

成したイミダゾール化合物に替えた以外は同様に発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図１３及び図１４に示す。

[0149] 〔実施例１７〕

実施例１３において用いた実施例２のイミダゾール化合物を実施例８で合成したイミダゾール化合物に替えた以外は同様に発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図１５及び図１６に示す。

[0150] 〔比較例３〕

実施例１３において用いた実施例２のイミダゾール化合物を一般的なホスト化合物であるＣＢＰに替えた以外は同様に発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図１７及び図１８に示す。

[0151] 〔実施例１８〕

洗浄済みＩＴＯ基板（膜厚１１０ｎｍ）に真空蒸着にて１，１－ビス［（Ｎ，Ｎ－ジ－ｐ－トリルアミノ）フェニル］シクロヘキサン（４０ｎｍ）を製膜し、ホール輸送層を形成した。これにＩｒ（ｐｉｑ）$_3$と実施例１のイミダゾール化合物を膜厚比２０：１になるように共蒸着に製膜し発光層（２０ｎｍ）を形成した。次いで１，３，５－トリ（ｐ－ピリド－３－イル－フェニル）ベンゼン（５０ｎｍ）を製膜し、電子輸送層を製膜した後、フッ化リチウム（０．５ｎｍ）とアルミニウム（１００ｎｍ）を成膜して陰極を形成し、キャップガラスによる封止を行い、発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで赤色発光が確認された。得られた発光素子の素子特性を図１９及び図２０に示す。

[0152] 〔比較例４〕

実施例１８において用いた実施例１のイミダゾール化合物を一般的なホスト化合物であるＣＢＰに替えた以外は同様に発光素子を作成した。この発光素子に電圧を印加することで緑色発光が確認された。得られた発光素子の素

子特性を図２１及び図２２に示す。

[0153] 実施例１３～１８及び比較例３及び４で得られた発光素子について、１，０００ｃｄ／Ａでの電流効率、及び４Ｖでの発光輝度を表２に示す。

[0154] [表2]

	発光材料	電流効率（ｃｄ／Ａ）	４Ｖでの輝度（ｃｄ／m^2）
実施例１３	Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$	６３	２３３
実施例１４	Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$	７３	３６９
実施例１５	Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$	４３	５９２
実施例１６	Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$	５４	８２
実施例１７	Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$	５４	１２８
比較例３	Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$	４３	４９
実施例１８	Ｉｒ（ｐｉｑ）$_3$	９．８	１４８
比較例４	Ｉｒ（ｐｉｑ）$_3$	７．２	２

[0155] 以上の結果より、本発明のイミダゾール化合物は優れた成膜性を有していることから、発光材料やホスト材料として、特に燐光ドーパントのホスト材料として従来は難しかった塗布法による発光層の成膜が可能となることが分かる。また、分解温度（Ｔｄ）が高いことから、真空蒸着などにより成膜する際の加熱による化合物の劣化を抑制でき、真空蒸着により作成した素子においても、高効率な素子が得られることが分かる。

さらに、本発明のイミダゾール化合物はガラス転移点（Ｔｇ）が高く、かつ融点（Ｔｍ）が高いので、薄膜を成膜した場合に薄膜の安定性が高いことが分かる。

[0156] また、表２の結果より、Ｉｒ（ｐｐｙ）$_3$を発光材料に用い、本発明のイミダゾール化合物をホスト材料として発光素子に適用した場合、その電流効率については、ＣＢＰを用いた比較例３と比較して、本発明のイミダゾール化合物を用いた実施例１３，１４，１６及び１７はいずれも優れた値を示した。さらに４Ｖの低電圧での輝度はおよそ２～７倍の優れた値を示した。実施

例１５においては電流効率は同レベルであるが、４Ｖの低電圧での輝度はおよそ１２倍の非常に優れた値を示した。

また、Ｉｒ（ｐｉｑ）$_3$を発光材料に用い、本発明のイミダゾール化合物をホスト材料として発光素子に適用した場合、その電流効率については、ＣＢＰを用いた比較例４と比較して、本発明のイミダゾール化合物を用いた実施例１８は優れた値を示した。さらに４Ｖの低電圧での輝度はおよそ７５倍の非常に優れた値を示した。

このように、本発明のイミダゾール化合物を用いることにより、低電圧での駆動特性に優れた、高効率な素子が得られることが分かる。

[0157] したがって、本発明のイミダゾール化合物を含有する電子デバイス用材料を、例えば、発光ダイオードなどの発光素子に適用した場合、溶液塗布、蒸着、溶融塗布法による発光層の成膜が可能になるとともに、発光効率が向上し、発光素子、ひいては電子デバイスが長寿命化されるという効果が得られる。

[0158] 本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。本出願は、２０１３年３月２８日出願の日本特許出願（特願２０１３－０７０７００）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

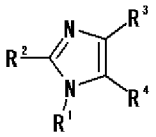
産業上の利用可能性

[0159] 本発明の新規イミダゾール化合物を含有する電子デバイス用材料は、発光素子や有機薄膜太陽電池等の様々な電子デバイスに利用することができる。例えば、有機ＥＬ素子等の発光素子を含む様々な電子デバイス、より具体的には、フラットパネル・ディスプレイ（例えば、コンピュータ用ディスプレイや壁掛けテレビ）や面発光体光源（例えば、照明、複写機用光源、液晶ディスプレイ用バックライト光源、計器類のバックライト光源）、表示板、標識灯等の電子デバイスにおいて、好適に利用することができる。

請求の範囲

[請求項1] 一般式（１）で示されるイミダゾール化合物。

[化1]



(1)

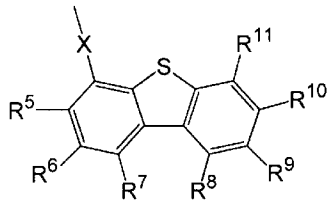
（式（１）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立に、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]のうち少なくとも１つは、直接結合するか、又は共役構造を有する結合鎖を介して連結したジベンゾチオフェニル基である。）

[請求項2] 前記一般式（１）中、

Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、

Ｒ[3]及びＲ[4]のうち少なくとも１つが、下記一般式（８）で示される基である請求項１に記載のイミダゾール化合物。

[化2]



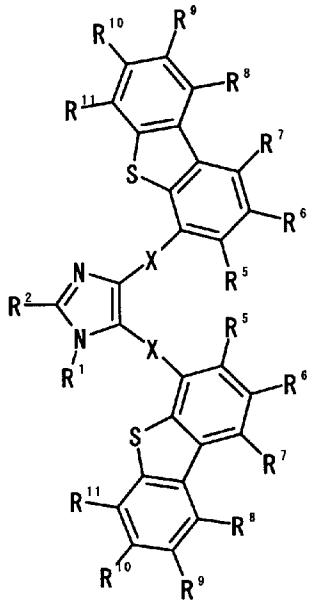
(8)

（式（８）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成し

ていてもよい。）

[請求項3] 一般式（２）で示される請求項１又は請求項２に記載のイミダゾール化合物。

[化3]

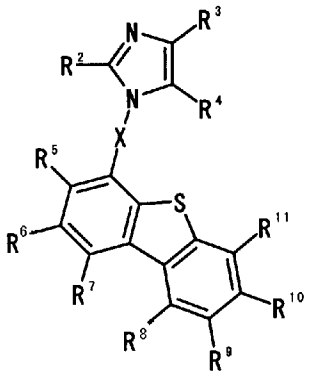


(2)

（式（２）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。なお、複数あるＸ及びＲ[5]～Ｒ[11]は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよい。）

[請求項4] 一般式（３）で示される請求項１に記載のイミダゾール化合物。

[化4]

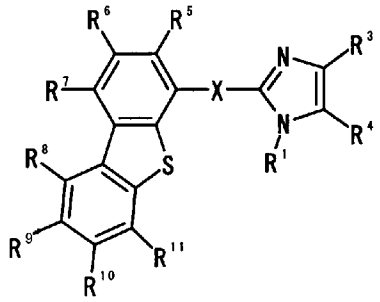


(3)

（式（３）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[2]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。）

[請求項5] 一般式（４）で示される請求項１に記載のイミダゾール化合物。

[化5]



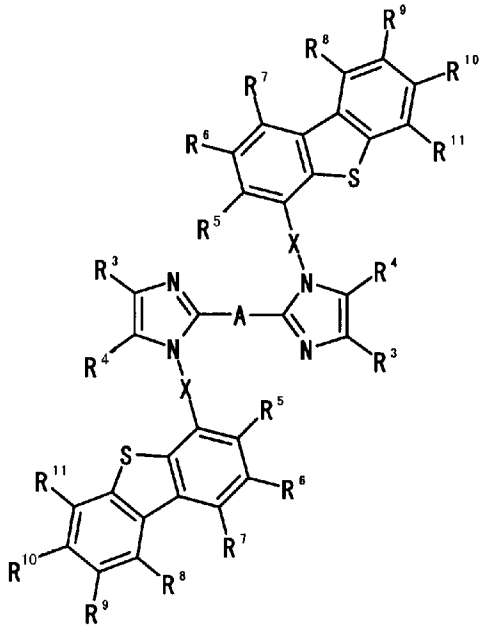
(4)

（式（４）中、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[1]、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６

のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。）

[請求項6] 一般式（７）で示される請求項１に記載のイミダゾール化合物。

[化6]



(7)

（式（７）中、Ａは不飽和炭化水素鎖又は芳香族鎖を表し、Ｘは不飽和炭化水素鎖又は芳香族炭化水素鎖を表し、Ｒ[3]及びＲ[4]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～１０のアルキル基又は芳香族炭化水素基を表し、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]及びＲ[11]は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基、フェニル基、多環芳香族炭化水素基を有するアミノ基、炭素数１～６のフッ化アルキル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基又はカルバゾール基を表し、それぞれ縮環して５員環もしくは６員環を形成していてもよい。なお、複数あるＸ及びＲ[3]～Ｒ[11]は、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよい。）

[請求項7] 請求項１～請求項６のいずれか１項に記載のイミダゾール化合物を

含有する電子デバイス用材料。

[請求項8] 請求項７に記載の電子デバイス用材料を含有する発光素子。

[請求項9] 請求項７に記載の電子デバイス用材料を含有する層を陰極と陽極の間に有する発光素子。

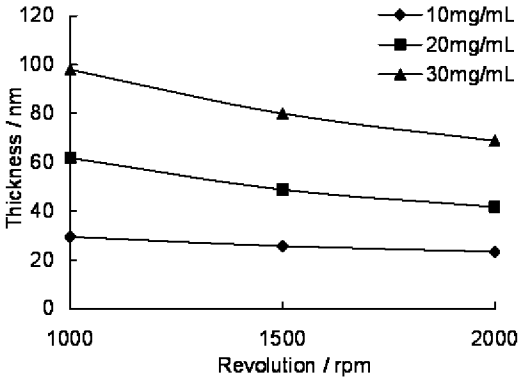
[請求項10] 請求項７に記載の電子デバイス用材料をホスト材料として含有する発光素子。

[請求項11] 請求項８～請求項１０のいずれか１項に記載の発光素子を含む電子デバイス。

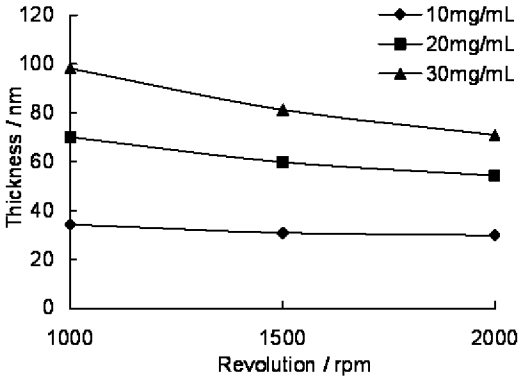
[請求項12] 請求項７に記載の電子デバイス用材料を基板上に塗布し、成膜する工程を有する電子デバイスの製造方法。

[請求項13] 請求項７に記載の電子デバイス用材料を基板上に蒸着し、成膜する工程を有する電子デバイスの製造方法。

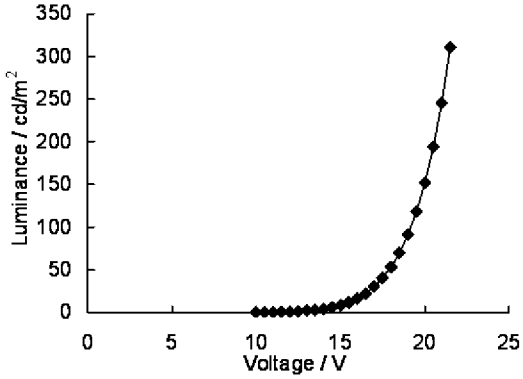
[図1]


10mg/mL
20mg/mL
30mg/mL
Thickness / nm
120
100
80
60
40
20
0
1000
1500
2000
Revolution / rpm

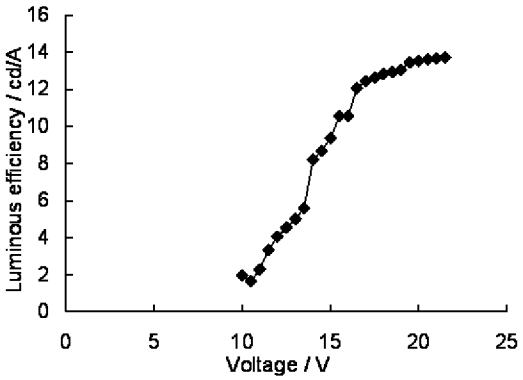
[図2]


10mg/mL
20mg/mL
30mg/mL
Thickness / nm
120
100
80
60
40
20
0
1000
1500
2000
Revolution / rpm

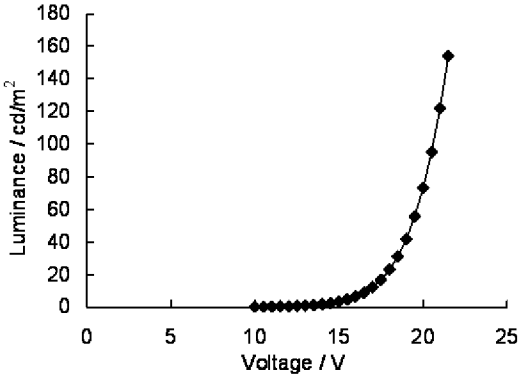
[図3]


Luminance / cd/m2
350
300
250
200
150
100
50
0
0
5
10
15
20
25
Voltage / V

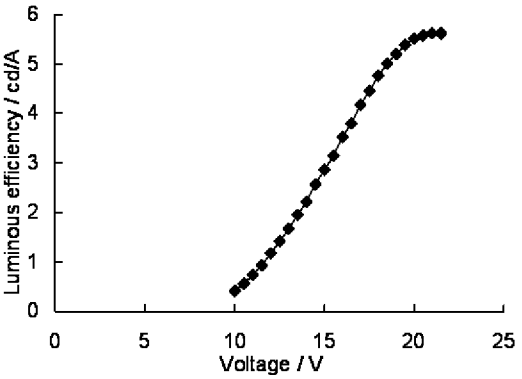
[図4]


Luminous efficiency / cd/A
16
14
12
10
8
6
4
2
0
0
5
10
15
20
25
Voltage / V

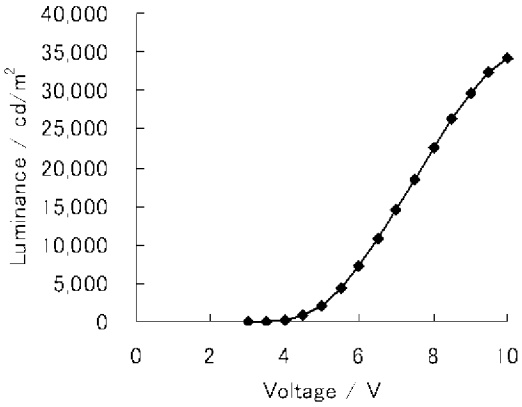
[図5]


Luminance / cd/m2
180
160
140
120
100
80
60
40
20
0
0
5
10
15
20
25
Voltage / V

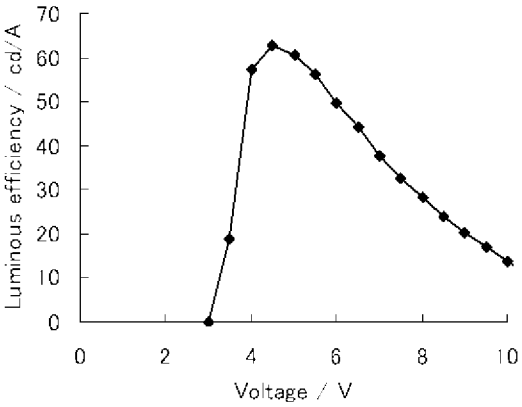
[図6]


Luminous efficiency / cd/A
6
5
4
3
2
1
0
0
5
10
15
20
25
Voltage / V

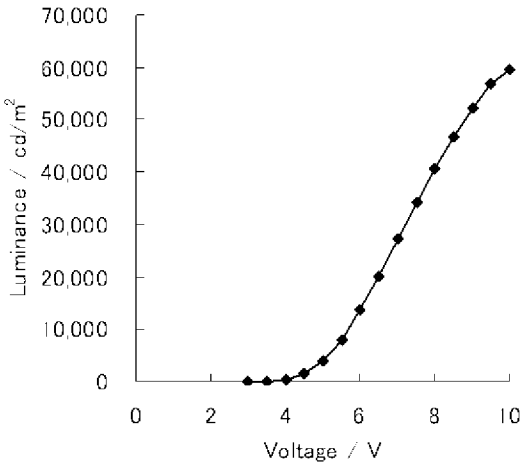
[図7]


Luminance / cd/m2
40,000
35,000
30,000
25,000
20,000
15,000
10,000
5,000
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

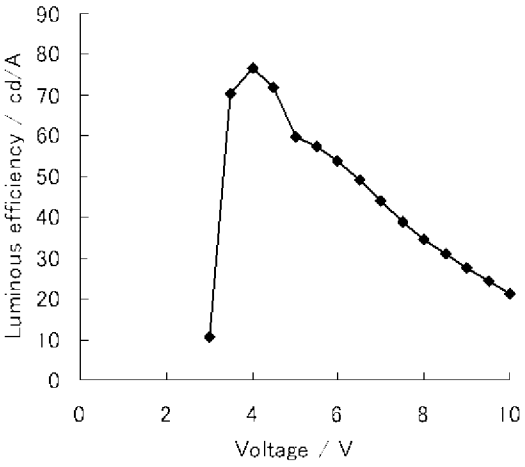
[図8]


Luminous efficiency / cd/A
70
60
50
40
30
20
10
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

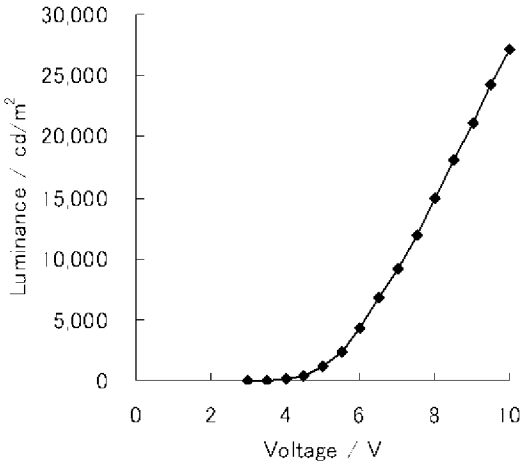
[図9]


70,000
60,000
50,000
40,000
30,000
20,000
10,000
0
Luminance / cd/m2
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

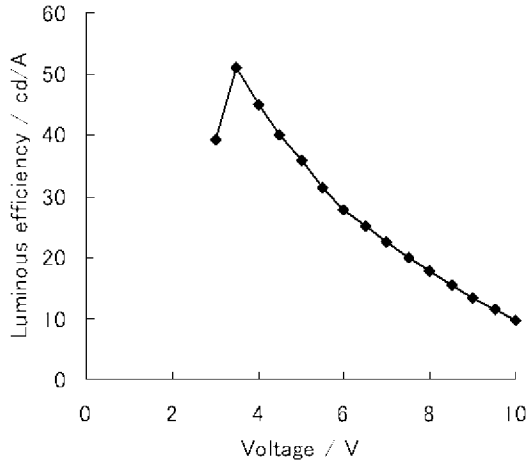
[図10]


90
80
70
60
50
40
30
20
10
0
Luminous efficiency / cd/A
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

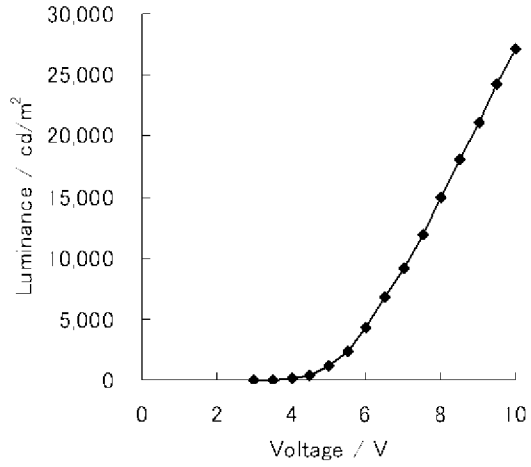
[図11]


30,000
25,000
20,000
15,000
10,000
5,000
0
Luminance / cd/m2
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

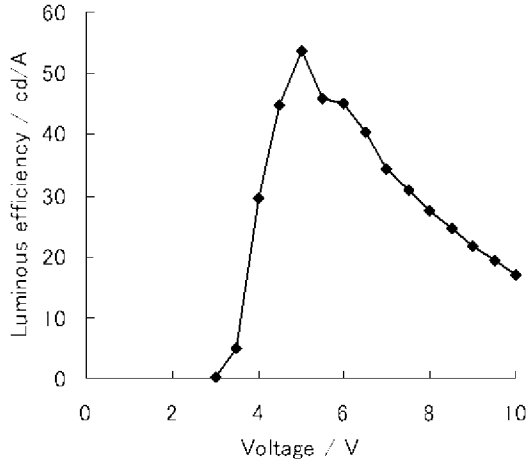
[図12]


Luminous efficiency / cd/A
60
50
40
30
20
10
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

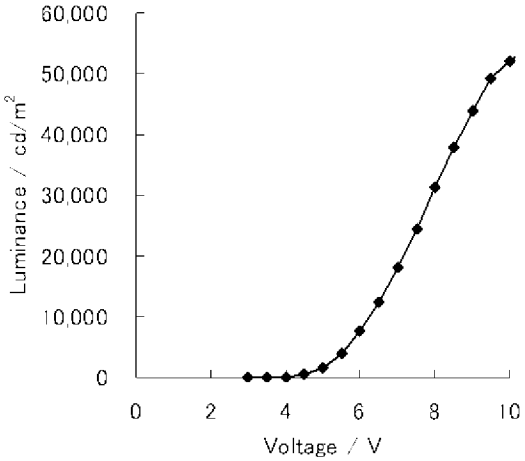
[図13]


Luminance / cd/m2
30,000
25,000
20,000
15,000
10,000
5,000
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

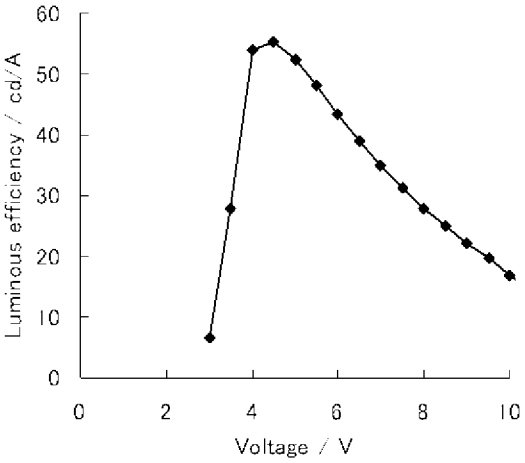
[図14]


Luminous efficiency / cd/A
60
50
40
30
20
10
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

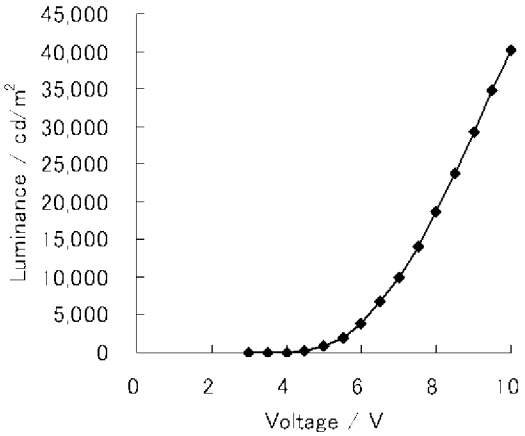
[図15]


60,000
50,000
40,000
30,000
20,000
10,000
0
Luminance / cd/m2
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

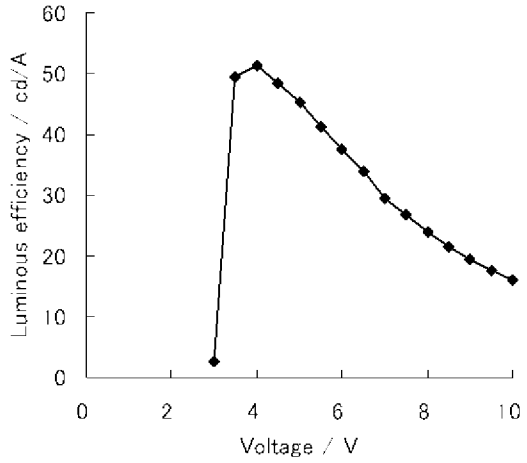
[図16]


60
50
40
30
20
10
0
Luminous efficiency / cd/A
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

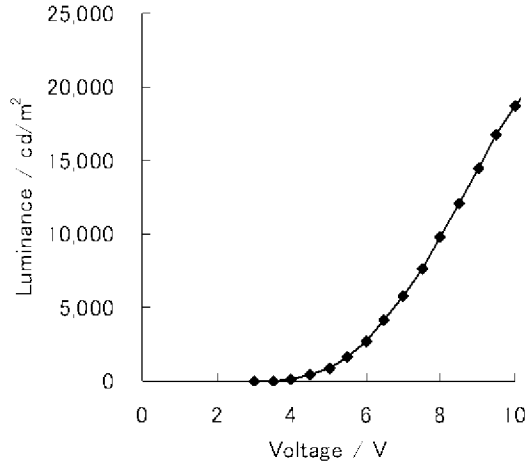
[図17]


45,000
40,000
35,000
30,000
25,000
20,000
15,000
10,000
5,000
0
Luminance / cd/m2
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

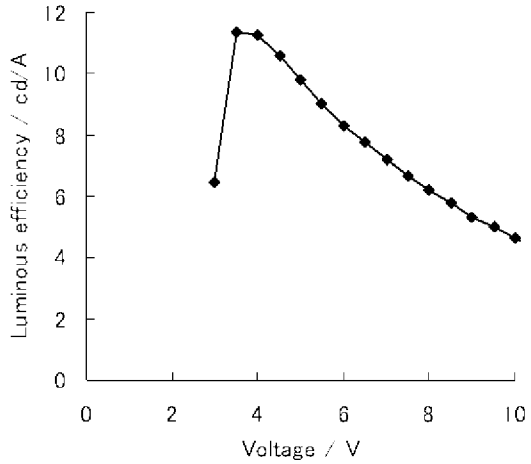
[図18]


Luminous efficiency / cd/A
60
50
40
30
20
10
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

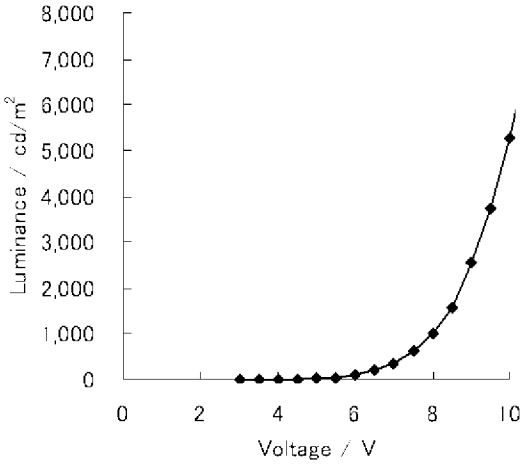
[図19]


Luminance / cd/m2
25,000
20,000
15,000
10,000
5,000
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

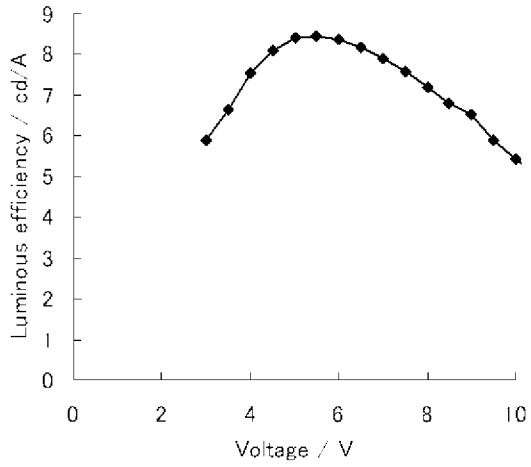
[図20]


Luminous efficiency / cd/A
12
10
8
6
4
2
0
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

[図21]


8,000
7,000
6,000
5,000
4,000
3,000
2,000
1,000
0
Luminance / cd/m2
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

[図22]


9
8
7
6
5
4
3
2
1
0
Luminous efficiency / cd/A
0
2
4
6
8
10
Voltage / V

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/058602

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C07D409/10(2006.01)i, *C07D409/14*(2006.01)i, *C09K11/06*(2006.01)i, *H01L51/50*(2006.01)i, *H05B33/10*(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)
C07D409/10, C07D409/14, C09K11/06, H01L51/50, H05B33/10

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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	JP 2013-048147 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 07 March 2013 (07.03.2013), entire text (particularly, claim 1; paragraph [0031]; paragraph [0056], compounds 29, 31, 38; paragraph [0065]) (Family: none)	1,2,4,7-13 3,5,6
X A	WO 2012/004765 A2 (BASF SE), 12 January 2012 (12.01.2012), entire text (particularly, claim 17) & EP 2590967 A1 & JP 2013-538440 A	1,7-13 2-6
X A	US 2012/0007063 A1 (BASF SE), 12 January 2012 (12.01.2012), entire text (particularly, claim 17) (Family: none)	1,7-13 2-6

☒ 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 11 April, 2014 (11.04.14)	Date of mailing of the international search report 22 April, 2014 (22.04.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/058602

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2011/106344 A1 (Universal Display Corp.), 01 September 2011 (01.09.2011), entire text (particularly, claim 14, compounds 13 to 24, 87 to 90; paragraphs [0134] to [0136]) & US 2011/0204333 A1 & EP 2539913 A1 & JP 2013-520508 A	1,7-13 2-6
X A	WO 2013/027633 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 28 February 2013 (28.02.2013), entire text (particularly, paragraph [0112], ligand 2-1) (Family: none)	1,7-13 2-6
X A	JP 2010-532400 A (BASF SE), 07 October 2010 (07.10.2010), paragraph [0253] (example 8) & US 2010/0219403 A1 & EP 2165377 A1 & WO 2009/003898 A1	1,7-13 2-6
X A	KR 10-2012-0096383 A (CS Elsolar Co., Ltd.), 30 August 2012 (30.08.2012), entire text (particularly, claim 1; claim 8, compounds 79 to 81) (Family: none)	1,7-13 2-6
X A	TRONNIER Alexander, et al., A Phosphorescent C-C* Cyclometalated Platinum(II) Dibenzothiophene NHC Complex, Organometallics, 2012, Vol.31(21), p.7447-7452	1,7-13 2-6
X	JP 54-022333 A (Merck Patent GmbH), 20 February 1979 (20.02.1979), page 41 (examples 716, 720) & US 4285961 A & GB 1585036 A & DE 2732750 A1 & FR 2398056 A1	1
A	JP 2010-238880 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 21 October 2010 (21.10.2010), entire text (particularly, paragraphs [0032] to [0036], compounds 1-8, 1-9, 3-7) (Family: none)	1-13
A	JP 2007-243101 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 20 September 2007 (20.09.2007), entire text (particularly, claim 1; paragraph [0039]) (Family: none)	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/058602

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2009/0032106 A1 (Agency for Science, Technology and Research), 05 February 2009 (05.02.2009), entire text (Family: none)	1-13
A	WO 2005/085208 A1 (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 15 September 2005 (15.09.2005), entire text (Family: none)	1-13

With respect to "a bonded chain having a conjugated structure" set forth in claim 1, an effective prior art search cannot be carried out since the specific ring structure thereof is not clear. Consequently, this prior art search has been carried out on the understanding that the bonded chain is an unsaturated hydrocarbon chain or an aromatic ring.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１４／０５８６０２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07D409/10(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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.　C07D409/10, C07D409/14, C09K11/06, H01L51/50, H05B33/10

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	１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１４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	JP 2013-048147 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2013.03.07, 全文（特に請求項１、段落 0031、段落 0056 の化合物 29,31,38、段落 0065）（ファミリーなし）	1,2,4,7-13 3,5,6
X A	WO 2012/004765 A2 (BASF SE) 2012.01.12, 全文（特に請求項１７） & EP 2590967 A1 & JP 2013-538440 A	1,7-13 2-6
X A	US 2012/0007063 A1 (BASF SE) 2012.01.12, 全文（特に請求項１７） （ファミリーなし）	1,7-13 2-6

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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 １１．０４．２０１４	国際調査報告の発送日 ２２．０４．２０１４
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｐ　４１５１ 三木　寛 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４９２

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
X A	WO 2011/106344 A1 (Universal Display Corporation) 2011.09.01, 全文（特に請求項14の化合物13-24,87-90,段落0134～0136）　& US 2011/0204333 A1 & EP 2539913 A1 & JP 2013-520508 A	1,7-13 2-6
X A	WO 2013/027633 A1（コニカミノルタホールディングス株式会社）2013.02.28, 全文（特に段落0112の配位子2-1）（ファミリーなし）	1,7-13 2-6
X A	JP 2010-532400 A（ビーエーエスエフ　ソシエタス・ヨーロピア）2010.10.07, 段落0253（実施例８）　& US 2010/0219403 A1 & EP 2165377 A1 & WO 2009/003898 A1	1,7-13 2-6
X A	KR 10-2012-0096383 A (CS Elsolar Co., Ltd.) 2012.08.30, 全文（特に、請求項１、請求項８の化合物79～81）（ファミリーなし）	1,7-13 2-6
X A	TRONNIER Alexander, et al., A Phosphorescent C-C* Cyclometalated Platinum(II) Dibenzothiophene NHC Complex, Organometallics, 2012, Vol.31(21), p.7447-7452	1,7-13 2-6
X	JP 54-022333 A（メルク・パテント・ゲゼルシヤフト・ミツト・ベシユレンクテル・ハフツング）1979.02.20, 第41頁(実施例716,720) & US 4285961 A & GB 1585036 A & DE 2732750 A1 & FR 2398056 A1	1
A	JP 2010-238880 A（コニカミノルタホールディングス株式会社）2010.10.21, 全文（特に段落0032-0036の化合物1-8,1-9,3-7）（ファミリーなし）	1-13
A	JP 2007-243101 A（コニカミノルタホールディングス株式会社）2007.09.20, 全文（特に請求項１、段落0039）（ファミリーなし）	1-13
A	US 2009/0032106 A1 (Agency for Science, Technology and Research) 2009.02.05, 全文（ファミリーなし）	1-13
A	WO 2005/085208 A1（日産化学工業株式会社）2005.09.15, 全文（ファミリーなし）	1-13

請求項１に記載の「共役構造を有する結合鎖」は、具体的な鎖構造が不明であり有効な先行技術調査ができないので、前記結合鎖は、不飽和炭化水素鎖か、もしくは芳香族環として先行技術調査を行った。