

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7624648号
(P7624648)

(45)発行日 令和7年1月31日(2025.1.31)

(24)登録日 令和7年1月23日(2025.1.23)

(51)国際特許分類		F I	
C 0 7 F	5/02 (2006.01)	C 0 7 F	5/02 A
H 1 0 K	50/10 (2023.01)	H 0 5 B	33/14 B
H 1 0 K	50/16 (2023.01)	H 0 5 B	33/22 B
H 1 0 K	50/15 (2023.01)	H 0 5 B	33/22 D
C 0 9 K	11/06 (2006.01)	C 0 9 K	11/06 6 6 0
		請求項の数	13 (全198頁) 最終頁に続く
(21)出願番号	特願2020-136216(P2020-136216)	(73)特許権者	503092180 学校法人関西学院 兵庫県西宮市上ヶ原一番町1番155号
(22)出願日	令和2年8月12日(2020.8.12)	(73)特許権者	521180485 エスケーマテリアルズジェイエヌシー株式会社 大韓民国キョンギ道ファソン市ドンタン キフン路560、11階
(65)公開番号	特開2022-32441(P2022-32441A)	(74)代理人	110000109 弁理士法人特許事務所サイクス
(43)公開日	令和4年2月25日(2022.2.25)	(72)発明者	畠山 琢次 兵庫県三田市学園2丁目1番地 関西学 院大学理工学部内
審査請求日	令和5年7月18日(2023.7.18)	(72)発明者	川角 亮介 千葉県市原市五井海岸5番地の1 J N 最終頁に続く

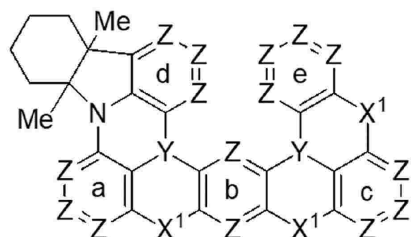
(54)【発明の名称】 多環芳香族化合物

(57)【特許請求の範囲】

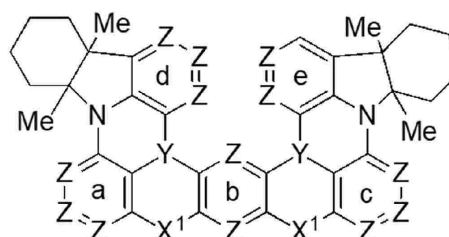
【請求項1】

下記式（3-1-1）、式（3-1-2）、式（3-2-1）のいずれかで表される多環芳香族化合物；

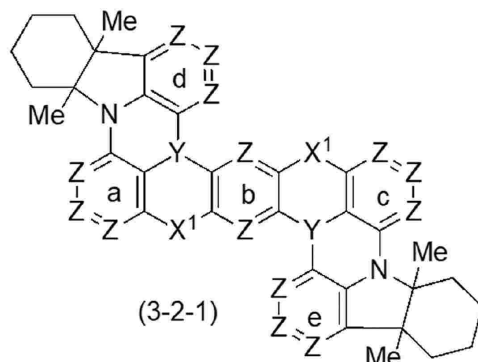
【化 1】



(3-1-1)



(3-1-2)



(3-2-1)

式 (3-1-1)、式 (3-1-2)、式 (3-2-1) 中、

X^1 は、それぞれ独立して、 $\geq N-R$ または $\geq O$ であり、前記 $\geq N-R$ の R は、炭素数 1 ～ 6 のアルキルもしくは炭素数 3 ～ 14 のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数 6 ～ 12 のアリールまたは炭素数 1 ～ 6 のアルキルもしくは炭素数 3 ～ 14 のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数 2 ～ 15 のヘテロアリールであり、

Y は、それぞれ独立して、 B であり、

Z は、それぞれ独立して、 $-C(-R^Z)=$ であり、

R^Z は、それぞれ独立して、水素、炭素数 6 ～ 16 のアリール、炭素数 2 ～ 20 のヘテロアリール、ジアリールアミノ (ただしアリールは炭素数 6 ～ 10 のアリール)、炭素数 1 ～ 12 のアルキル、または炭素数 3 ～ 16 のシクロアルキルであり、これらにおける少なくとも 1 つの水素は、炭素数 6 ～ 16 のアリール、炭素数 2 ～ 20 のヘテロアリール、炭素数 6 ～ 16 のアルキルまたは炭素数 3 ～ 16 のシクロアルキルで置換されていてもよく、

式 (3-1-1)、式 (3-1-2)、式 (3-2-1) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素は重水素で置換されていてもよい。

【請求項 2】

下記式のいずれかで表される、請求項 1 に記載の多環芳香族化合物；

10

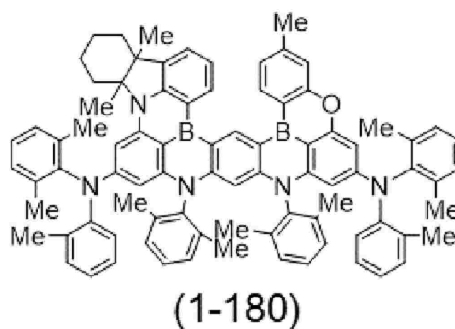
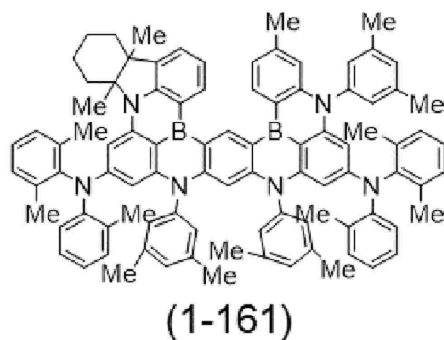
20

30

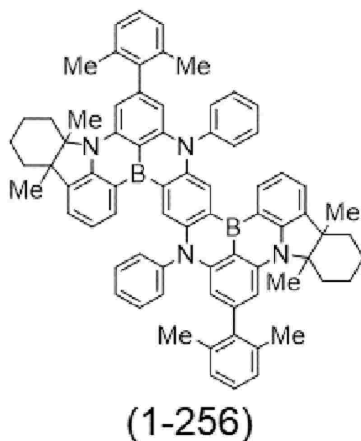
40

50

【化 2】



10



20

式中、Me はメチルである。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の多環芳香族化合物を含有する、有機デバイス用材料。

【請求項 4】

前記有機デバイス用材料が、有機電界発光素子用材料、有機電界効果トランジスタ用材料または有機薄膜太陽電池用材料である、請求項 3 に記載の有機デバイス用材料。

30

【請求項 5】

前記有機電界発光素子用材料が発光層用材料である、請求項 4 に記載の有機デバイス用材料。

【請求項 6】

請求項 1 または 2 に記載の多環芳香族化合物と、有機溶媒とを含む、組成物。

【請求項 7】

陽極および陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に配置され、請求項 1 または 2 に記載の多環芳香族化合物を含有する有機層とを有する、有機電界発光素子。

【請求項 8】

前記有機層が発光層である、請求項 7 に記載の有機電界発光素子。

40

【請求項 9】

前記発光層が、ホストと、ドーパントとしての前記多環芳香族化合物とを含む、請求項 8 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 10】

前記ホストが、アントラセン系化合物、フルオレン系化合物またはジベンゾクリセン系化合物である、請求項 9 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 11】

前記陰極と前記発光層との間に配置される電子輸送層および電子注入層の少なくとも 1 つの層を有し、該電子輸送層および電子注入層の少なくとも 1 つは、ボラン誘導体、ピリジン誘導体、フルオランテン誘導体、BO 系誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオ

50

レン誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ピリミジン誘導体、アリアルニトリル誘導体、トリアジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体およびキノリノール系金属錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、請求項8～10のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【請求項12】

前記電子輸送層および電子注入層の少なくとも1つの層が、さらに、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体および希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、請求項11に記載の有機電界発光素子。

10

【請求項13】

請求項7～12のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を備えた表示装置または照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、多環芳香族化合物に関する。本発明はまた、上記多環芳香族化合物を含む有機デバイス用材料、有機電界発光素子、並びに、表示装置および照明装置に関する。

【背景技術】

20

【0002】

従来、電界発光する発光素子を用いた表示装置は、省電力化や薄型化が可能なことから、種々研究され、さらに、有機材料から成る有機電界発光素子（本明細書中で「有機EL素子」または単に「素子」と表記することがある。）は、軽量化や大型化が容易なことから活発に検討されてきた。特に、光の三原色の一つである青色などの発光特性を有する有機材料の開発、および正孔、電子などの電荷輸送能（半導体や超電導体となる可能性を有する）を備えた有機材料の開発については、高分子化合物、低分子化合物を問わずこれまで活発に研究されてきた。

【0003】

有機EL素子は、陽極および陰極からなる一対の電極と、当該一対の電極間に配置され、有機化合物を含む一層または複数の層とからなる構造を有する。有機化合物を含む層には、発光層や、正孔、電子などの電荷を輸送または注入する電荷輸送／注入層などがあるが、これらの層に適当な種々の有機材料が開発されている。

30

【0004】

その中で、特許文献1では、芳香族環をホウ素、リン、酸素、窒素、硫黄などのヘテロ元素で連結した多環芳香族化合物が、有機電界発光素子等の材料として有用であることが開示されている。この多環芳香族化合物は、大きなHOMO-LUMOギャップおよび高い三重項励起エネルギー（ E_T ）を有するとともに、熱活性型遅延蛍光を示すため、特に有機電界発光素子の蛍光材料として有用であることが報告されている。

【先行技術文献】

40

【特許文献】

【0005】

【文献】国際公開第2015／102118号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

上述のように、有機EL素子に用いられる材料としては種々の材料が開発されているが、有機EL素子用材料の選択肢を増やすために、従来とは異なる化合物からなる材料の開発が望まれている。本発明は、有機EL素子等の有機デバイス用材料として有用な新規材料を提供することを課題とする。

50

【課題を解決するための手段】

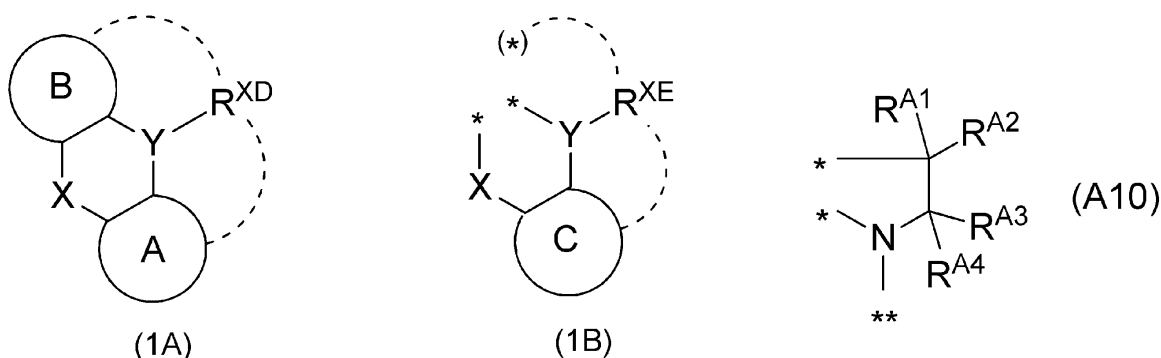
【0007】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討し、芳香族環をホウ素、リン、酸素、窒素、硫黄などのヘテロ元素で連結した多環芳香族化合物として新たな化合物の製造に成功した。また、この多環芳香族化合物を含有する層を一对の電極間に配置して有機EL素子を構成することにより、優れた有機EL素子が得られることを見出し、本発明を完成させた。すなわち本発明は、以下のような多環芳香族化合物、さらには以下のような多環芳香族化合物を含む有機デバイス用材料等を提供する。

【0008】

<1> 式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる多環芳香族化合物；

【化1】



式(1A)および式(1B)中、

A環およびB環は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール環または置換されていてもよいヘテロアリール環であり、

R^{XD} は、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、破線が—X—または単結合となってA環またはB環の少なくとも1つと結合していてもよく、

A環、B環または R^{XD} の少なくとも1つにおける前記アリール環またはヘテロアリール環は式(1B)で表される部分構造に結合しており、

式(1B)で表される部分構造は2つの*の位置で前記アリール環またはヘテロアリール環の環上で隣接する2つの原子にそれぞれ結合し、

C環は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール環または置換されていてもよいヘテロアリール環であり、

R^{XE} は、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、破線が—X—または単結合となってC環と結合していてもよく、また、破線が—X—または単結合となって式(1B)で表される部分構造が結合している環と(*)の位置で結合していてもよく、

Yは、それぞれ独立して、B、P、 $P=O$ または $P=S$ であり、

Xは、それぞれ独立して、 $>C(-R)_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ 、 $>Si(-R)_2$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ のRは、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、前記 $>C(-R)_2$ および $>Si(-R)_2$ のRは、それぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、また連結基によって互いに結合していてもよく、また、前記 $>N-R$ 、前記 $>C(-R)_2$ 、および前記 $>Si(-R)_2$ のRの少なくとも1つは連結基または単結合によりA環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} の少なくとも1つと結合していてもよく、

Xは、少なくとも1つが $>N-R$ であり、 $>N-R$ であるXの少なくとも1つにおける

Rは前記A環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} の1つと結合して式(A10)で表される部分構造を形成しており、式(A10)中、 $R^{A1} \sim R^{A4}$ はそれぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、 $R^{A1} \sim R^{A4}$ の任意の2～4個は連結基または単結合により互いに結合していてもよく、式(A10)で表される部分構造は、2つの*の位置で一方の環に、**の位置で他方の環に結合しており、

前記多環芳香族化合物におけるアリール環およびヘテロアリール環からなる群より選択される少なくとも1つは、少なくとも1つのシクロアルカンで縮合されていてもよく、当該シクロアルカンにおける少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、当該シクロアルカンにおける少なくとも1つの $-CH_2-$ は $-O-$ で置換されていてもよく、

10

前記多環芳香族化合物における少なくとも1つの水素は、重水素、シアノまたはハロゲンで置換されていてもよい。

【0009】

<2> R^{XD} が置換されていてもよいアリールまたは置換されていてもよいヘテロアリールであり、破線が $-X-$ となってA環と結合しており、かつ

R^{XE} が置換されていてもよいアリールまたは置換されていてもよいヘテロアリールであり、破線が $-X-$ となってC環と結合している、<1>に記載の多環芳香族化合物。

<3> R^{A1} および R^{A4} が互いに結合し、 R^{A2} および R^{A3} がそれぞれ独立して水素または置換されていてもよいアルキルである、<1>または<2>に記載の多環芳香族化合物。

<4> R^{A1} および R^{A4} が互いに結合して $-(CH_2)_4-$ を形成しており、 R^{A2} および R^{A3} がいずれもメチルである、<1>または<2>に記載の多環芳香族化合物。

20

<5> A環、B環およびC環が置換されているアリール環または置換されているヘテロアリール環であるときの置換基ならびに R^{XD} および R^{XE} が置換されているアリールまたは置換されているヘテロアリールであるときの置換基がいずれも、置換もしくは無置換のアリール、置換もしくは無置換のヘテロアリール、置換もしくは無置換のジアリールアミノ、置換もしくは無置換のジヘテロアリールアミノ、置換もしくは無置換のアリールヘテロアリールアミノ、置換もしくは無置換のジアリールボリル(2つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい)、置換もしくは無置換のアルキル、置換もしくは無置換のシクロアルキル、置換もしくは無置換のアルコキシ、置換もしくは無置換のアリールオキシ、置換シリルおよび $-L-Ak$ からなる群より選択され、

30

Lは $>N-R$ 、 $>O$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ のRは、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、前記 $>N-R$ のRは連結基または単結合によりAkと結合していてもよく、

Akは水素、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、当該アルキルおよびシクロアルキルにおける少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、当該アルキルおよびシクロアルキルにおける少なくとも1つの $-CH_2-$ は $-O-$ および $-S-$ で置換されていてもよく、

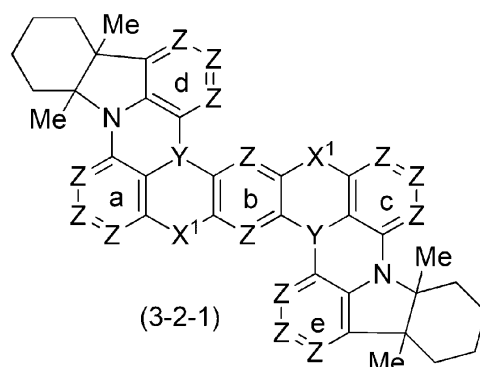
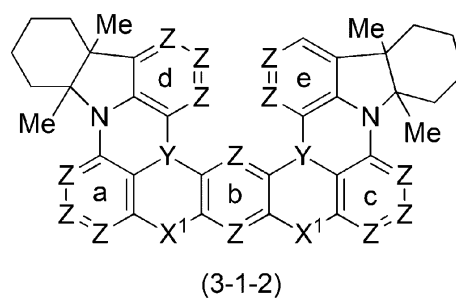
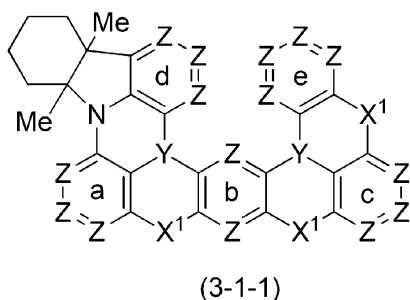
A環、B環、C環、 R^{XD} および R^{XE} は、いずれも、5員環または6員環において、いずれかのXおよびYに結合している、<1>～<4>のいずれかに記載の多環芳香族化合物。

40

【0010】

<6> 下記式(3-1-1)、式(3-1-2)、式(3-2-1)のいずれかで表される、<1>に記載の多環芳香族化合物；

【化 2】



式 (3-1-1)、式 (3-1-2)、式 (3-2-1) 中、

X^1 は、それぞれ独立して、 $>C(-R)_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ 、 $>Si(-R)_2$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ の R は、炭素数 1~6 のアルキルもしくは炭素数 3~14 のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数 6~12 のアリール、炭素数 1~6 のアルキルもしくは炭素数 3~14 のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数 2~15 のヘテロアリール、炭素数 1~6 のアルキルまたは炭素数 3~14 のシクロアルキルであり、前記 $>C(-R)_2$ および $>Si(-R)_2$ の R は、それぞれ独立して、水素、炭素数 6~12 のアリール、炭素数 1~6 のアルキルまたは炭素数 3~14 のシクロアルキルであり、

Y は、それぞれ独立して、 B 、 P 、 $P=O$ または $P=S$ であり、

Z は、それぞれ独立して、 $-C(-R^Z)_2$ または $-N=$ であり、隣り合う 2 つの Z は、 $-C(-R^Z)_2-$ 、 $-Si(-R^Z)_2-$ 、 $-N(-R^Z)-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ に置き換えられてもよく、

R^Z は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、ジアリールボリル (2 つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい)、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、置換シリルまたは $-L-Ak$ であり、これらにおける少なくとも 1 つの水素は、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよく、また、 R^Z のうちの隣接する基同士が結合して a 環、 c 環、 d 環または e 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも 1 つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、ジアリールボリル (2 つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい)、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、置換シリルまたは $-L-Ak$ で置換されていてもよく、これらにおける少なくとも 1 つの水素は、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよく、

L は $>N-R$ 、 $>O$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ の R は、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、前記 $>N-R$ の R は連結基または単結合により Ak と結合していてもよく、

A kは水素、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、当該アルキルおよびシクロアルキルにおける少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、当該アルキルおよびシクロアルキルにおける少なくとも1つの $-CH_2-$ は $-O-$ および $-S-$ で置換されていてもよく、

式(3-1-1)、式(3-1-2)、式(3-2-1)で表される化合物における少なくとも1つの水素は、重水素、シアノまたはハロゲンで置換されていてもよい。

【0011】

<7> YはBであり、

Zは、それぞれ独立して、 $-C(-R^Z)=$ または $-N=$ であり、ただし、Yに対してo位またはp位のZは、 $-C(-R^Z)=$ である、<6>に記載の多環芳香族化合物。

<8> Zがいずれも $-C(-R^Z)=$ である、<7>に記載の多環芳香族化合物。

<9> <1>~<8>のいずれかに記載の多環芳香族化合物に反応性置換基が置換した、反応性化合物。

<10> <9>に記載の反応性化合物をモノマーとして高分子化させた高分子化合物、または、当該高分子化合物をさらに架橋させた高分子架橋体。

【0012】

<11> 主鎖型高分子に<9>に記載の反応性化合物を置換させたペンダント型高分子化合物、または、当該ペンダント型高分子化合物をさらに架橋させたペンダント型高分子架橋体。

<12> <1>~<8>のいずれかに記載の多環芳香族化合物を含有する、有機デバイス用材料。

<13> <9>に記載の反応性化合物を含有する、有機デバイス用材料。

<14> <10>に記載の高分子化合物または高分子架橋体を含有する、有機デバイス用材料。

<15> <11>に記載のペンダント型高分子化合物またはペンダント型高分子架橋体を含有する、有機デバイス用材料。

<16> 前記有機デバイス用材料が、有機電界発光素子用材料、有機電界効果トランジスタ用材料または有機薄膜太陽電池用材料である、<12>~<15>のいずれかに記載の有機デバイス用材料。

<17> 前記有機電界発光素子用材料が発光層用材料である、<16>に記載の有機デバイス用材料。

<18> <1>~<8>のいずれかに記載の多環芳香族化合物と、有機溶媒とを含む、組成物。

<19> <9>に記載の反応性化合物と、有機溶媒とを含む、組成物。

<20> 主鎖型高分子と、<9>に記載の反応性化合物と、有機溶媒とを含む、組成物。

【0013】

<21> <10>に記載の高分子化合物または高分子架橋体と、有機溶媒とを含む、組成物。

<22> <11>に記載のペンダント型高分子化合物またはペンダント型高分子架橋体と、有機溶媒とを含む、組成物。

<23> 陽極および陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に配置され、<1>~<8>のいずれかに記載の多環芳香族化合物、<9>に記載の反応性化合物、<10>に記載の高分子化合物もしくは高分子架橋体、または、<11>に記載のペンダント型高分子化合物もしくはペンダント型高分子架橋体を含有する有機層とを有する、有機電界発光素子。

<24> 前記有機層が発光層である、<23>に記載の有機電界発光素子。

<25> 前記発光層が、ホストと、ドーパントとしての前記多環芳香族化合物、反応性化合物、高分子化合物、高分子架橋体、ペンダント型高分子化合物またはペンダント型高分子架橋体とを含む、<24>に記載の有機電界発光素子。

【0014】

10

20

30

40

50

< 2 6 > 前記ホストが、アントラセン系化合物、フルオレン系化合物またはジベンゾクリセン系化合物である、< 2 5 >に記載の有機電界発光素子。

< 2 7 > 前記陰極と前記発光層との間に配置される電子輸送層および電子注入層の少なくとも1つの層を有し、該電子輸送層および電子注入層の少なくとも1つは、ボラン誘導体、ピリジン誘導体、フルオランテン誘導体、B O系誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオレン誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ピリミジン誘導体、アリアルニトリル誘導体、トリアジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体およびキノリノール系金属錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、< 2 4 > ~ < 2 6 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

< 2 8 > 前記電子輸送層および電子注入層の少なくとも1つの層が、さらに、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体および希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、< 2 7 > に記載の有機電界発光素子。

< 2 9 > 正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層および電子注入層のうちの少なくとも1つの層が、各層を形成し得る低分子化合物をモノマーとして高分子化させた高分子化合物、もしくは、当該高分子化合物をさらに架橋させた高分子架橋体、または、各層を形成し得る低分子化合物を主鎖型高分子と反応させたペンダント型高分子化合物、もしくは、当該ペンダント型高分子化合物をさらに架橋させたペンダント型高分子架橋体を含む、< 2 4 > ~ < 2 8 > のいずれかに記載の有機電界発光素子。

< 3 0 > < 2 3 > ~ < 2 9 > のいずれかに記載の有機電界発光素子を備えた表示装置または照明装置。

【発明の効果】

【0 0 1 5】

本発明により、新規な多環芳香族化合物が提供される。本発明の多環芳香族化合物は有機デバイス用材料、特に有機電界発光素子の発光層形成のための発光層用材料として有用である。

【図面の簡単な説明】

【0 0 1 6】

【図1】有機E L素子の例を示す概略断面図である。

【図2】バンクを有する基板にインクジェット法を用いて有機E L素子を作製する方法を説明する図である。

【発明を実施するための形態】

【0 0 1 7】

以下において、本発明について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、代表的な実施形態や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施形態に限定されるものではない。なお、本明細書において「~」を用いて表される数値範囲は「~」前後に記載される数値を下限値および上限値として含む範囲を意味する。また、本明細書において構造式の説明における「水素」は「水素原子(H)」を意味する。

【0 0 1 8】

本明細書において化学構造や置換基を炭素数で表すことがあるが、化学構造に置換基が置換した場合や、置換基にさらに置換基が置換した場合などにおける炭素数は、化学構造や置換基それぞれの炭素数を意味し、化学構造と置換基の合計の炭素数や、置換基と置換基の合計の炭素数を意味するものではない。例えば、「炭素数Xの置換基Aで置換された炭素数Yの置換基B」とは、「炭素数Yの置換基B」に「炭素数Xの置換基A」が置換することを意味し、炭素数Yは置換基Aおよび置換基Bの合計の炭素数ではない。また例えば、「置換基Aで置換された炭素数Yの置換基B」とは、「炭素数Yの置換基B」に「(炭素数限定がない)置換基A」が置換することを意味し、炭素数Yは置換基Aおよび置換基Bの合計の炭素数ではない。

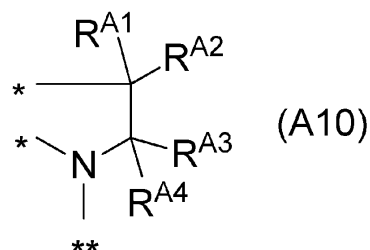
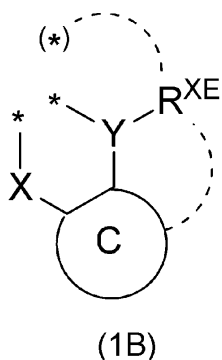
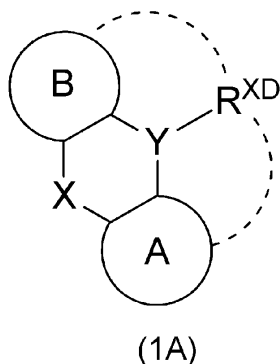
【0019】

1. 多環芳香族化合物

本発明の多環芳香族化合物は、下記式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる多環芳香族化合物である。

【0020】

【化3】



10

【0021】

式(1A)および式(1B)において、「A」、「B」、「C」は環構造を示す符号である。また、式(1A)および式(1B)において、破線は、破線の両端にある環または基が互いに結合していても結合していなくてもよいことを示す。式(1A)および式(1B)において、*は位置を示すが、式(1B)において破線の一端にある(*)はその位置が存在していても存在していなくてもよいことを示す。

20

【0022】

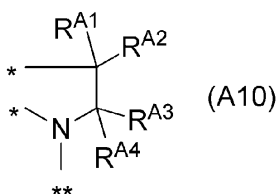
本発明の多環芳香族化合物は、環構造と環構造とを連結するXの少なくとも1つが、>N-Rであって、このRが、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、連結基または単結合によりA環、B環、C環、R^{XD}、またはR^{XE}の少なくとも1つにおけるアリール環またはヘテロアリール環と連結した構造を有する。

具体的には、本発明の多環芳香族化合物は、上記のような連結により、以下の部分構造(A10)を有する。

30

【0023】

【化4】



【0024】

式(A10)中、R^{A1}~R^{A4}はそれぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、R^{A1}~R^{A4}の任意の2~4個は連結基または単結合により互いに結合していてもよく、2つの*の位置でXが結合する2つの環の一方の環に、**の位置で他方の環に結合している。すなわち、式(A10)中のNはXが>N-Rであるというときの>N-RのNである。2つの*の位置で結合する環上の原子は互いに隣接する原子(炭素原子が好ましい)であればよい。

40

式(A10)で表される部分構造は結合解離エネルギー(BDE)の弱いN-C結合を含むが、環を形成するもう一つの結合があることでN-C結合の切断時にも逆反応(再結合反応)が促進されるため、本発明の多環芳香族化合物はより安定な構造になる。したがって、本発明の多環芳香族化合物を用いて製造される有機EL素子では素子寿命が長くなることが期待される。

50

本発明の多環芳香族化合物に含まれる上記のような連結による式 (A 1 0) で表される部分構造の数は、1 ～ 「X の数」であり、1 または 2 であることが好ましい。

【0 0 2 5】

式 (A 1 0) 中、 $R^{A1} \sim R^{A4}$ は水素、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、 $R^{A1} \sim R^{A4}$ の任意の 2 ～ 4 個は連結基により互いに連結していてもよい。

$R^{A1} \sim R^{A4}$ は、任意の 2 個 (R^{A1} および R^{A4} 、 R^{A1} および R^{A4} ならびに R^{A1} および R^{A4} 、 R^{A1} および R^{A2} 、 R^{A3} および R^{A4} 、 R^{A1} および R^{A4} ならびに R^{A1} および R^{A4}) が連結基または単結合により互いに結合していることが好ましく、 R^{A1} および R^{A4} が連結基または単結合により互いに結合していることがより好ましい。互いに結合して形成されている 2 価の基としては、アルキレンがあげられる。当該アルキレンにおける少なくとも 1 つの水素はアルキルもしくはシクロアルキルで置換されていてもよく、当該アルカンにおける少なくとも 1 つ (好ましくは 1 つ) の $-CH_2-$ は $-O-$ および $-S-$ で置換されていてもよい。連結基としては、炭素数 2 ～ 5 の直鎖アルキレンが好ましく、炭素数 3 または 4 の直鎖アルキレンがより好ましく、炭素数 4 の直鎖アルキレン ($-(CH_2)_4-$) がさらに好ましい。炭素数 4 の直鎖アルキレン ($-(CH_2)_4-$) は無置換であることが特に好ましい。

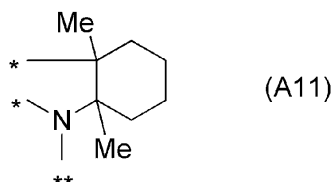
【0 0 2 6】

連結基による連結に関与していない残りの $R^{A1} \sim R^{A4}$ は、それぞれ独立して、水素または置換されていてもよいアルキルであることが好ましく、置換されていてもよい炭素数 1 ～ 6 のアルキルであることがより好ましく、無置換の炭素数 1 ～ 6 のアルキルであることがさらに好ましく、いずれもメチルであることが最も好ましい。

すなわち、式 (A 1 0) で表される部分構造としては、以下式 (A 1 1) で表される構造が好ましい。

【0 0 2 7】

【化 5】



式 (A 1 1) 中、Me はメチルであり、2 つの * の位置で X が結合する 2 つの環の一方の環に、** の位置で他方の環に結合している。

【0 0 2 8】

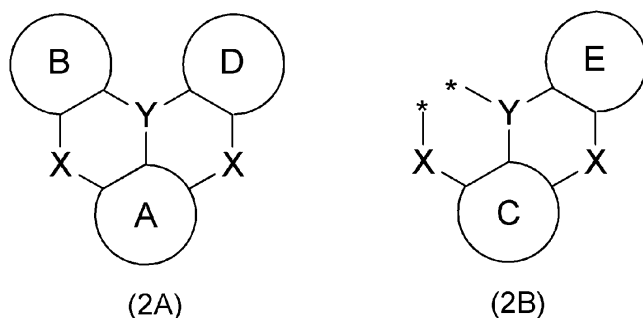
式 (1 A) および式 (1 B) において、A 環および B 環および C 環は、それぞれ独立して置換されていてもよいアリール環または置換されていてもよいヘテロアリール環である。

式 (1 A) において、 R^{XD} は、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルである。 R^{XD} は、破線が $-X-$ または単結合となって A 環または B 環の少なくとも 1 つと結合していてもよい。 R^{XD} は、置換されていてもよいアリールまたは置換されていてもよいヘテロアリールであることが好ましい。また、 R^{XD} は、破線が $-X-$ となって A 環と結合していることが好ましい。式 (1 B) において、 R^{XE} は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルである。 R^{XE} は、破線が $-X-$ または単結合となって C 環と結合していてもよく、また、破線が $-X-$ または単結合となって式 (1 B) で表される部分構造が結合している環と (*) の位置で結合していてもよい。 R^{XE} は、置換されていてもよいアリールまたは置換されていてもよいヘテロアリールであることが好ましい。また、 R^{XE} は、破線が $-X-$ となって C 環と結合していることが好ましい。

すなわち、式(1A)は下記式(2A)であることが好ましく、式(1B)は下記式(2B)であることが好ましい。

【0029】

【化6】



10

【0030】

式(2A)において、A環、B環またはD環の少なくとも1つにおけるアリール環またはヘテロアリール環は式(2B)で表される部分構造に結合しており、

式(2B)で表される部分構造は2つの*の位置で前記アリール環またはヘテロアリール環の環上で隣接する2つの原子にそれぞれ結合している。

式(2A)において、式(1A)と同じ記号は式(1A)中のそれぞれと同義である。「D」は環構造を示す符号であり、式(1A)の R^{XD} の一態様である。式(2B)において、式(1B)と同じ記号は式(1B)中のそれぞれと同義である。「E」は環構造を示す符号であり、式(1B)中の R^{XE} の一態様である。

20

【0031】

式(1A)および式(1B)におけるA環、B環、C環、 R^{XD} および R^{XE} は、(式(2A)および式(2B)におけるA環、B環、C環、D環およびE環)は、いずれも、5員環または6員環において、いずれかのXおよびYに結合していることが好ましい。ここで、「5員環または6員環において、いずれかのXおよびYに結合している」とは、この5員環または6員環だけで環が形成されるか、または、この5員環または6員環を含むようにさらに他の環などが縮合してA環、B環、C環、 R^{XD} または R^{XE} におけるアリール環またはヘテロアリール環が形成され、そのうちの5員環または6員環上の環構成原子においていずれかのXおよびYに結合していることを意味する

30

【0032】

式(1A)および式(1B)におけるA環、B環、およびC環ならびに式(2A)および式(2B)におけるA環、B環、C環、D環およびE環は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール環または置換されていてもよいヘテロアリール環である。

【0033】

式(1A)および式(1B)におけるA環、B環、C環、 R^{XD} および R^{XE} ならびに式(2A)および式(2B)におけるA環、B環、C環、D環およびE環における「アリール環」としては、例えば、炭素数6～30のアリール環があげられ、炭素数6～16のアリール環が好ましく、炭素数6～12のアリール環がより好ましく、炭素数6～10のアリール環が特に好ましい。

40

【0034】

具体的な「アリール環」としては、単環系であるベンゼン環、二環系であるビフェニル環、縮合二環系であるナフタレン環、インデン環、三環系であるテルフェニル環(m-テルフェニル、o-テルフェニル、p-テルフェニル)、縮合三環系である、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、アントラセン環、縮合四環系であるトリフェニレン環、ピレン環、ナフタセン環、クリセン環、縮合五環系であるペリレン環、ペンタセン環などがあげられる。また、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、インデン環には、それぞれフルオレン環、ベンゾフルオレン環、シクロペンタン環などがスピ

50

口結合した構造も含まれる。なお、フルオレン環、ベンゾフルオレン環およびインデン環は、メチレンの2つの水素のうちの2つがそれぞれ後述の第1の置換基としてのメチルなどのアルキルに置換して、ジメチルフルオレン環、ジメチルベンゾフルオレン環およびジメチルインデン環などとなっているものも含まれる。

【0035】

式(1A)および式(1B)におけるA環、B環、C環、 R^{XD} および R^{XE} ならびに式(2A)および式(2B)におけるA環、B環、C環、D環およびE環における「ヘテロアリアル環」としては、例えば、炭素数2~30のヘテロアリアル環があげられ、炭素数2~25のヘテロアリアル環が好ましく、炭素数2~20のヘテロアリアル環がより好ましく、炭素数2~15のヘテロアリアル環がさらに好ましく、炭素数2~10のヘテロアリアル環が特に好ましい。また、「ヘテロアリアル環」としては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1ないし5個含有する複素環などがあげられる。

10

【0036】

具体的な「ヘテロアリアル環」としては、例えば、ピロール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、ピラゾール環、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、インドール環、イソインドール環、1H-インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、1H-ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シンノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、プリン環、プテリジン環、カルバゾール環、アクリジン環、フェノキサチン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、フェナジン環、フェナザシリン環、インドリジン環、フラン環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、チオフエン環、ベンゾチオフエン環、ジベンゾチオフエン環、フラザン環、チアントレン環、インドロカルバゾール環、ベンゾインドロカルバゾール環、ベンゾベンゾインドロカルバゾール環、ナフトベンゾフラン環、ジオキシン環、ジヒドロアクリジン環、キサンテン環、チオキサンテン環、ジベンゾジオキシン環などがあげられる。また、ジヒドロアクリジン環、キサンテン環、チオキサンテン環、は、メチレンの2つの水素のうちの2つがそれぞれ後述の第1の置換基としてのメチルなどのアルキルに置換して、ジメチルジヒドロアクリジン環、ジメチルキサンテン環、ジメチルチオキサンテン環などとなっているものも好ましい。また二環系であるビピリジン環、フェニルピリジン環、ピリジルフェニル環、三環系であるテルピリジル環、ビスピリジルフェニル環、ピリジルピフェニル環も「ヘテロアリアル環」としてあげられる。また、「ヘテロアリアル環」にはピラン環も含まれるものとする。

20

30

【0037】

上記のアリアル環またはヘテロアリアル環における少なくとも1つの水素が、置換基で置換されているときの置換基は、置換もしくは無置換のアリアル、置換もしくは無置換のヘテロアリアル、置換もしくは無置換のジアリアルアミノ、置換もしくは無置換のジヘテロアリアルアミノ、置換もしくは無置換のアリアルヘテロアリアルアミノ（アリアルとヘテロアリアルを有するアミノ）、置換もしくは無置換のジアリアルボリル（2つのアリアルは単結合または連結基を介して結合していてもよい）、置換もしくは無置換のアルキル、置換もしくは無置換のシクロアルキル、置換もしくは無置換のアルコキシ、置換もしくは無置換のアリアルオキシ、置換シリル、または-L-Akが好ましい。これらの基が置換基を有する場合の置換基としては、アリアル、ヘテロアリアル、アルキルまたはシクロアルキル、またはジアリアルアミノがあげられる。

40

【0038】

上記「アリアル環」または「ヘテロアリアル環」における少なくとも1つの水素は、第1の置換基である、置換もしくは無置換の「アリアル」、置換もしくは無置換の「ヘテロアリアル」、置換もしくは無置換の「ジアリアルアミノ」、置換もしくは無置換の「ジヘテロアリアルアミノ」、置換もしくは無置換の「アリアルヘテロアリアルアミノ」、置換

50

もしくは無置換の「ジアリールボリル（２つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい）」、置換もしくは無置換の「アルキル」、置換もしくは無置換の「シクロアルキル」、置換もしくは無置換の「アルコキシ」、置換もしくは無置換の「アリールオキシ」、置換の「シリル」または－L－A kで置換されていてもよい。この第１の置換基としての「アリール」や「ヘテロアリール」、「ジアリールアミノ」のアリール、「ジヘテロアリールアミノ」のヘテロアリール、「アリールヘテロアリールアミノ」のアリールとヘテロアリール、「ジアリールボリル」のアリール、また「アリールオキシ」のアリールとしては上述した「アリール環」または「ヘテロアリール環」の一価の基があげられる。

【００３９】

具体的に「アリール」としては、例えば、炭素数６～３０のアリールがあげられ、炭素数６～２４のアリールが好ましく、炭素数６～２０のアリールがより好ましく、炭素数６～１６のアリールがさらに好ましく、炭素数６～１２のアリールが特に好ましく、炭素数６～１０のアリールが最も好ましい。

【００４０】

具体的なアリールとしては、例えば、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールである（２－，３－，４－）ピフェニル、縮合二環系アリールである（１－，２－）ナフチル、（２－，３－，４－，５－，６－，７－）インデニル、三環系アリールであるテルフェニル（m-テルフェニル－２’－イル、m-テルフェニル－４’－イル、m-テルフェニル－５’－イル、o-テルフェニル－３’－イル、o-テルフェニル－４’－イル、p-テルフェニル－２’－イル、m-テルフェニル－２－イル、m-テルフェニル－３－イル、m-テルフェニル－４－イル、o-テルフェニル－２－イル、o-テルフェニル－３－イル、o-テルフェニル－４－イル、p-テルフェニル－２－イル、p-テルフェニル－３－イル、p-テルフェニル－４－イル）、縮合三環系アリールである、アセナフチレン－（１－，３－，４－，５－）イル、フルオレン－（１－，２－，３－，４－，９－）イル、フェナレン－（１－，２－）イル、（１－，２－，３－，４－，９－）フェナントリル、四環系アリールであるクアテルフェニル（５’－フェニル－m-テルフェニル－２－イル、５’－フェニル－m-テルフェニル－３－イル、５’－フェニル－m-テルフェニル－４－イル、m-クアテルフェニル）、縮合四環系アリールであるトリフェニレン－（１－，２－）イル、ピレン－（１－，２－，４－）イル、ナフタセン－（１－，２－，５－）イル、縮合五環系アリールであるペリレン－（１－，２－，３－）イル、ペンタセン－（１－，２－，５－，６－）イルなどがあげられる。

【００４１】

また、「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数２～３０のヘテロアリールがあげられ、炭素数２～２５のヘテロアリールが好ましく、炭素数２～２０のヘテロアリールがより好ましく、炭素数２～１５のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数２～１０のヘテロアリールが特に好ましい。また、ヘテロアリールとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を１ないし５個含有する複素環などがあげられる。

【００４２】

具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、ベンゾ[b]チエニル、ジベンゾチエニル、インドリル、イソインドリル、１H-インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、１H-ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチイニル、チアントレニル、インドリジニルなどがあげられる。

【0043】

また第1の置換基としての「アルキル」としては、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1～24の直鎖アルキルまたは炭素数3～24の分岐鎖アルキルがあげられる。炭素数1～18のアルキル（炭素数3～18の分岐鎖アルキル）が好ましく、炭素数1～12のアルキル（炭素数3～12の分岐鎖アルキル）がより好ましく、炭素数1～8のアルキル（炭素数3～8の分岐鎖アルキル）がさらに好ましく、炭素数1～6のアルキル（炭素数3～6の分岐鎖アルキル）が特に好ましく、炭素数1～5のアルキル（炭素数3～5の分岐鎖アルキル）が最も好ましい。

【0044】

具体的なアルキルとしては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、*t*-ペンチル（*t*-アミル）、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3,3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、*n*-ヘプチル、1-メチルヘキシル、*n*-オクチル、*t*-オクチル（1,1,3,3-テトラメチルブチル）、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチル、*n*-ノニル、2,2-ジメチルヘプチル、2,6-ジメチル-4-ヘプチル、3,5,5-トリメチルヘキシル、*n*-デシル、*n*-ウンデシル、1-メチルデシル、*n*-ドデシル、*n*-トリデシル、1-ヘキシルヘプチル、*n*-テトラデシル、*n*-ペンタデシル、*n*-ヘキサデシル、*n*-ヘプタデシル、*n*-オクタデシル、*n*-エイコシルなどがあげられる。

【0045】

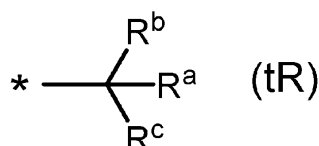
また、例えば、1-エチル-1-メチルプロピル、1,1-ジエチルプロピル、1,1-ジメチルブチル、1-エチル-1-メチルブチル、1,1,4-トリメチルペンチル、1,1,2-トリメチルプロピル、1,1-ジメチルオクチル、1,1-ジメチルペンチル、1,1-ジメチルヘプチル、1,1,5-トリメチルヘキシル、1-エチル-1-メチルヘキシル、1-エチル-1,3-ジメチルブチル、1,1,2,2-テトラメチルプロピル、1-ブチル-1-メチルペンチル、1,1-ジエチルブチル、1-エチル-1-メチルペンチル、1,1,3-トリメチルブチル、1-プロピル-1-メチルペンチル、1,1,2-トリメチルプロピル、1-エチル-1,2,2-トリメチルプロピル、1-プロピル-1-メチルブチル、1,1-ジメチルヘキシルなどもあげられる。

【0046】

上記の「アルキル」を含む置換基として、下記式（*tR*）で表されるターシャリアルキルは、上記のアリール環またはヘテロアリール環における少なくとも1つの水素が、置換基で置換されているときの置換基として、特に好ましいものの1つである。このような嵩高い置換基により分子間距離が増加するため発光量子収率（*PLQY*）が向上するからである。また、式（*tR*）で表されるターシャリアルキルが第2の置換基として他の置換基に置換している置換基も好ましい。具体的には、（*tR*）で表されるターシャリアルキルで置換されたジアリールアミノ、（*tR*）で表されるターシャリアルキルで置換されたカルバゾリル（好ましくは、*N*-カルバゾリル）または（*tR*）で表されるターシャリアルキルで置換されたベンゾカルバゾリル（好ましくは、*N*-ベンゾカルバゾリル）があげられる。「ジアリールアミノ」については下記「第1の置換基」として説明する基があげられる。ジアリールアミノ、カルバゾリルおよびベンゾカルバゾリルへの式（*tR*）の基の置換形態としては、これらの基におけるアリール環またはベンゼン環の一部または全ての水素が式（*tR*）の基で置換された例があげられる。

【0047】

【化7】



10

20

30

40

50

【0048】

式(tR)中、R^a、R^b、およびR^cはそれぞれ独立して炭素数1～24のアルキルであり、前記アルキルにおける任意の-CH₂-は-O-で置換されていてもよく、式(tR)で表される基は*において式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる化合物における少なくとも1つの水素と置換する。

【0049】

R^a、R^bおよびR^cの「炭素数1～24のアルキル」としては、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1～24の直鎖アルキルまたは炭素数3～24の分岐鎖アルキル、炭素数1～18のアルキル(炭素数3～18の分岐鎖アルキル)、炭素数1～12のアルキル(炭素数3～12の分岐鎖アルキル)、炭素数1～6のアルキル(炭素数3～6の分岐鎖アルキル)、炭素数1～4のアルキル(炭素数3～4の分岐鎖アルキル)があげられる。

10

【0050】

式(tR)におけるR^a、R^b、およびR^cの炭素数の合計は炭素数3～20が好ましく、炭素数3～10が特に好ましい。

【0051】

R^a、R^b、およびR^cの具体的なアルキルとしては、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、s-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、t-ペンチル、n-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3,3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、n-ヘプチル、1-メチルヘキシル、n-オクチル、t-オクチル、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチル、n-ノニル、2,2-ジメチルヘプチル、2,6-ジメチル-4-ヘプチル、3,5,5-トリメチルヘキシル、n-デシル、n-ウンデシル、1-メチルデシル、n-ドデシル、n-トリデシル、1-ヘキシルヘプチル、n-テトラデシル、n-ペンタデシル、n-ヘキサデシル、n-ヘプタデシル、n-オクタデシル、n-エイコシルなどがあげられる。

20

【0052】

式(tR)で表される基としては、例えばt-ブチル、t-アミル、1-エチル-1-メチルプロピル、1,1-ジエチルプロピル、1,1-ジメチルブチル、1-エチル-1-メチルブチル、1,1,3,3-テトラメチルブチル、1,1,4-トリメチルペンチル、1,1,2-トリメチルプロピル、1,1-ジメチルオクチル、1,1-ジメチルペンチル、1,1-ジメチルヘプチル、1,1,5-トリメチルヘキシル、1-エチル-1-メチルヘキシル、1-エチル-1,3-ジメチルブチル、1,1,2,2-テトラメチルプロピル、1-ブチル-1-メチルペンチル、1,1-ジエチルブチル、1-エチル-1-メチルペンチル、1,1,3-トリメチルブチル、1-プロピル-1-メチルペンチル、1,1,2-トリメチルプロピル、1-エチル-1,2,2-トリメチルプロピル、1-プロピル-1-メチルブチル、1,1-ジメチルヘキシルなどがあげられる。これらのうち、t-ブチルおよびt-アミルが好ましい。

30

【0053】

第1の置換基としての「シクロアルキル」としては、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数3～20のシクロアルキル、炭素数3～16のシクロアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数5～8のシクロアルキル、炭素数5～6のシクロアルキル、炭素数5のシクロアルキルなどがあげられる。

40

【0054】

具体的なシクロアルキルとしては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、およびこれらの炭素数1～5のアルキル(特にメチル)置換体や、ノルボルネニル、ビシクロ[1.0.1]ブチル、ビシクロ[1.1.1]ペンチル、ビシクロ[2.0.1]ペンチル、ビシクロ[1.2.1]ヘキシル、ビシクロ[3.0.1]ヘキシル、ビシクロ[2.1.2]ヘプチル、ビシクロ[2.2.2]オクチル、アダマンチル、ジアマンチル

50

、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられる。

【0055】

また第1の置換基としての「アルコキシ」としては、例えば、炭素数1～24の直鎖または炭素数3～24の分岐鎖のアルコキシがあげられる。炭素数1～18のアルコキシ（炭素数3～18の分岐鎖のアルコキシ）が好ましく、炭素数1～12のアルコキシ（炭素数3～12の分岐鎖のアルコキシ）がより好ましく、炭素数1～6のアルコキシ（炭素数3～6の分岐鎖のアルコキシ）がさらに好ましく、炭素数1～5のアルコキシ（炭素数3～5の分岐鎖のアルコキシ）が特に好ましい。

【0056】

具体的なアルコキシとしては、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、イソブトキシ、s-ブトキシ、t-ブトキシ、t-アミルオキシ、ペンチルオキシ、ヘキシルオキシ、ヘプチルオキシ、オクチルオキシなどがあげられる。

【0057】

また第1の置換基としての「置換シリル」としては、例えば、アルキル、シクロアルキル、およびアリアルからなる群より選択される3つの置換基で置換されたシリルがあげられる。例えば、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、ジアルキルシクロアルキルシリル、アルキルジシクロアルキルシリル、トリアリアルシリル、ジアルキルアリアルシリル、およびアルキルジアリアルシリルがあげられる。

【0058】

「トリアルキルシリル」としては、シリル基における3つの水素がそれぞれ独立してアルキルで置換された基があげられ、このアルキルは上述した第1の置換基における「アルキル」として説明した基を引用することができる。置換するのに好ましいアルキルは、炭素数1～5のアルキルであり、具体的にはメチル、エチル、プロピル、i-プロピル、ブチル、sec-ブチル、t-ブチル、t-アミルなどがあげられる。

【0059】

具体的なトリアルキルシリルとしては、トリメチルシリル、トリエチルシリル、トリプロピルシリル、トリi-プロピルシリル、トリブチルシリル、トリsec-ブチルシリル、トリt-ブチルシリル、トリt-アミルシリル、エチルジメチルシリル、プロピルジメチルシリル、i-プロピルジメチルシリル、ブチルジメチルシリル、sec-ブチルジメチルシリル、t-ブチルジメチルシリル、t-アミルジメチルシリル、メチルジエチルシリル、プロピルジエチルシリル、i-プロピルジエチルシリル、ブチルジエチルシリル、sec-ブチルジエチルシリル、t-ブチルジエチルシリル、t-アミルジエチルシリル、メチルジプロピルシリル、エチルジプロピルシリル、ブチルジプロピルシリル、sec-ブチルジプロピルシリル、t-ブチルジプロピルシリル、t-アミルジプロピルシリル、メチルジi-プロピルシリル、エチルジi-プロピルシリル、ブチルジi-プロピルシリル、sec-ブチルジi-プロピルシリル、t-ブチルジi-プロピルシリル、t-アミルジi-プロピルシリルなどがあげられる。

【0060】

「トリシクロアルキルシリル」としては、シリル基における3つの水素がそれぞれ独立してシクロアルキルで置換された基があげられ、このシクロアルキルは上述した第1の置換基における「シクロアルキル」として説明した基を引用することができる。置換するのに好ましいシクロアルキルは、炭素数5～10のシクロアルキルであり、具体的にはシクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、ビスシクロ[1.1.1]ペンチル、ビスシクロ[2.0.1]ペンチル、ビスシクロ[1.2.1]ヘキシル、ビスシクロ[3.0.1]ヘキシル、ビスシクロ[2.1.2]ヘプチル、ビスシクロ[2.2.2]オクチル、アダマンチル、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられる。

【0061】

具体的なトリシクロアルキルシリルとしては、トリシクロペンチルシリル、トリシクロヘキシルシリルなどがあげられる。

10

20

30

40

50

【0062】

2つのアルキルと1つのシクロアルキルが置換したジアルキルシクロアルキルシリルと、1つのアルキルと2つのシクロアルキルが置換したアルキルジシクロアルキルシリルの具体例としては、上述した具体的なアルキルおよびシクロアルキルから選択される基が置換したシリルがあげられる。

【0063】

2つのアルキルと1つのアリールが置換したジアルキルアリールシリル、1つのアルキルと2つのアリールが置換したアルキルジアリールシリル、および3つのアリールが置換したトリアリールシリルの具体例としては、上述した具体的なアルキルおよびアリールから選択される基が置換したシリルがあげられる。トリアリールシリルの具体例としては、特にトリフェニルシリルがあげられる。

10

【0064】

また第1の置換基の「ジアリールボリル」中の「アリール」としては、上述したアリールの説明を引用できる。また、この2つのアリールは単結合または連結基（例えば $>C(-R)_2$ 、 $>O$ 、 $>S$ または $>N-R$ ）を介して結合していてもよい。ここで、 $>C(-R)_2$ および $>N-R$ のRは、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシ（以上、第1置換基）であり、当該第1置換基にはさらにアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキル（以上、第2置換基）が置換していてもよく、これらの基の具体例としては、上述した第1置換基としてのアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、またはアリールオキシの説明を引用できる。

20

【0065】

第1の置換基の $-L-A_k$ において、Lは $>N-R$ 、 $>O$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ のRは、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルである。また、前記 $>N-R$ のRは連結基または単結合により A_k と結合していてもよい。

【0066】

A_k は水素、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、当該アルキルおよびシクロアルキルにおける少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、当該アルキルおよびシクロアルキルにおける少なくとも1つの $-CH_2-$ は $-O-$ および $-S-$ で置換されていてもよい。

30

【0067】

Lは $>N-R$ であることが好ましい。

Lが $>N-R$ であるときのRはアルキルもしくはシクロアルキルで置換されていてもよいアリール、アルキルもしくはシクロアルキルで置換されていてもよいヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルであることが好ましく、アルキルで置換されていてもよいアリール、アルキルで置換されていてもよいヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルであることがより好ましく、アルキルで置換されていてもよいアリールであることがさらに好ましく、メチルで置換されていてもよいフェニルであることが特に好ましい。

【0068】

A_k は炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルであることが好ましく、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数3～8のシクロアルキルであることが好ましく、炭素数1～4のアルキルであることがより好ましく、メチルであることがさらに好ましい。

40

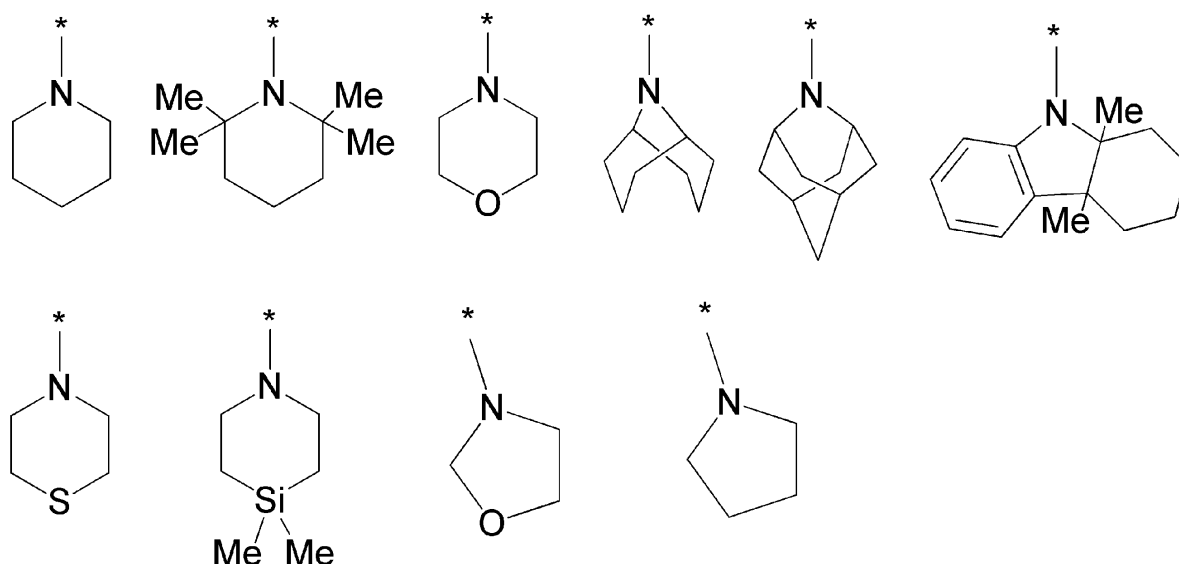
【0069】

Lが $>N-R$ であるときのRは連結基または単結合により A_k と結合していてもよい。このときの連結基としては $>O$ 、 $>S$ または $>Si(-R)_2$ などがあげられる。 $>Si(-R)_2$ のRは、水素、炭素数6～12のアリール、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルである。 $>N-R$ のRが連結基または単結合により A_k と結合した構造の例としては以下があげられる。

50

【0070】

【化8】



10

【0071】

上記各式中、Meはメチルであり、*の位置でA環、B環、C環、 R^{XD} または R^{XE} におけるアリール環またはヘテロアリール環の環構成原子に結合する。

20

【0072】

第1の置換基である、置換もしくは無置換の「アリール」、置換もしくは無置換の「ヘテロアリール」、置換もしくは無置換の「ジアリールアミノ」、置換もしくは無置換の「ジヘテロアリールアミノ」、置換もしくは無置換の「アリールヘテロアリールアミノ」、置換もしくは無置換の「ジアリールボリル（2つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい）」、置換もしくは無置換の「アルキル」、置換もしくは無置換の「シクロアルキル」、置換もしくは無置換の「アルコキシ」、置換もしくは無置換の「アリールオキシ」、または、置換の「シリル」は、置換または無置換と説明されているとおり、それらにおける少なくとも1つの水素が第2の置換基で置換されていてもよい。この第2の置換基としては、例えば、アリール、ヘテロアリール、アルキル、またはシクロアルキルがあげられ、それらの具体例は、上述した「アリール環」または「ヘテロアリール環」の一価の基、また第1の置換基としての「アルキル」または「シクロアルキル」の説明を参照することができる。また、第2の置換基としてのアリールやヘテロアリールには、それらにおける少なくとも1つの水素が、フェニルなどのアリール（具体例は上述した基）、メチル、*tert*-ブチルなどのアルキル（具体例は上述した基）またはシクロヘキシルなどのシクロアルキル（具体例は上述した基）で置換された構造も第2の置換基としてのアリールやヘテロアリールに含まれる。その一例としては、第2の置換基がカルバゾリルの場合には、9位における少なくとも1つの水素が、フェニルなどのアリール、メチルなどのアルキルまたはシクロヘキシルなどのシクロアルキルで置換されたカルバゾリルも第2の置換基としてのヘテロアリールに含まれる。

30

40

【0073】

第1置換基の構造の立体障害性、電子供与性および電子吸引力によって、発光波長を調整することができる。好ましくは以下の構造式で表される基であり、より好ましくは、メチル、*tert*-ブチル、*tert*-アミル、*tert*-オクチル、ネオペンチル、アダマンチル、フェニル、*o*-トリル、*p*-トリル、2,4-キシリル、2,5-キシリル、2,6-キシリル、2,4,6-メシチル、ジフェニルアミノ、ジ-*p*-トリルアミノ、ビス(*p*-(*tert*-ブチル)フェニル)アミノ、カルバゾリル（特に、*N*-カルバゾリル）、3,6-ジメチルカルバゾリル、3,6-ジ-*tert*-ブチルカルバゾリルおよびフェノキシであり、さらに好ましくは、メチル、*tert*-ブチル、*tert*-アミル、*tert*-オクチル、ネオペンチル、アダマンチ

50

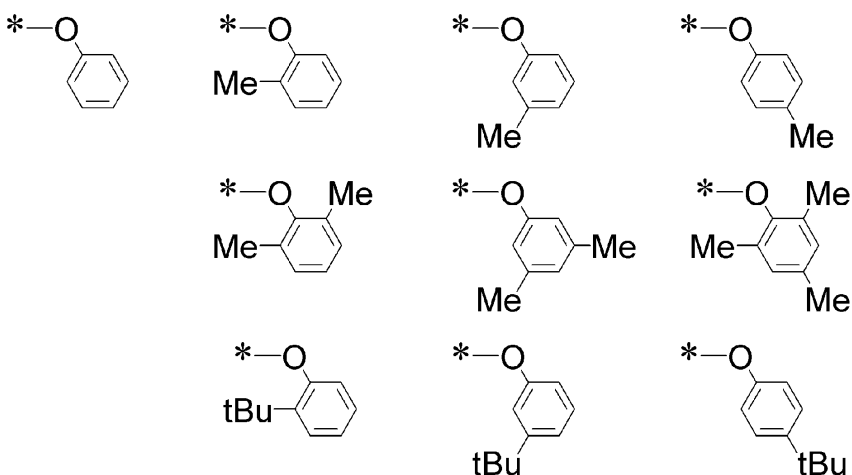
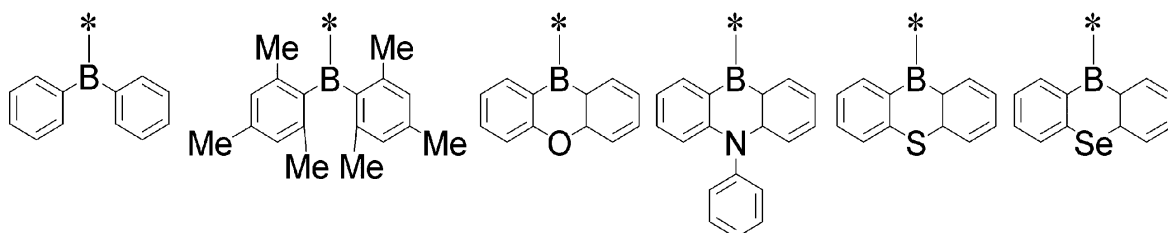
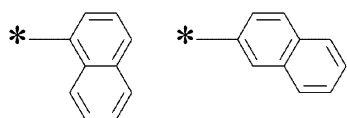
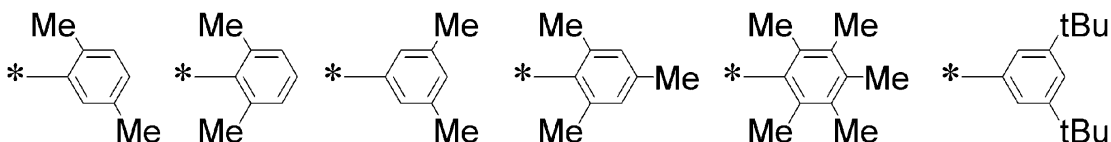
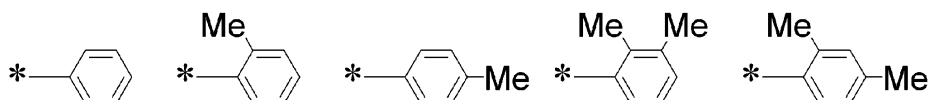
ル、フェニル、*o*-トリル、2,6-キシリル、2,4,6-メシチル、ジフェニルアミノ、*p*-トリルアミノ、ビス(*p*-(*t*-ブチル)フェニル)アミノ、カルバゾリル、3,6-ジメチルカルバゾリルおよび3,6-ジ-*t*-ブチルカルバゾリルである。合成の容易さの観点からは、立体障害が大きい方が選択的な合成のために好ましく、具体的には、*t*-ブチル、*t*-アミル、*t*-オクチル、アダマンチル、*o*-トリル、*p*-トリル、2,4-キシリル、2,5-キシリル、2,6-キシリル、2,4,6-メシチル、ジ-*p*-トリルアミノ、ビス(*p*-(*t*-ブチル)フェニル)アミノ、3,6-ジメチルカルバゾリルおよび3,6-ジ-*t*-ブチルカルバゾリルが好ましい。

【0074】

下記構造式において、「Me」はメチル、「tBu」は*t*-ブチル、「tAm」は*t*-アミル、「tOct」は*t*-オクチル、*は結合位置を表す。

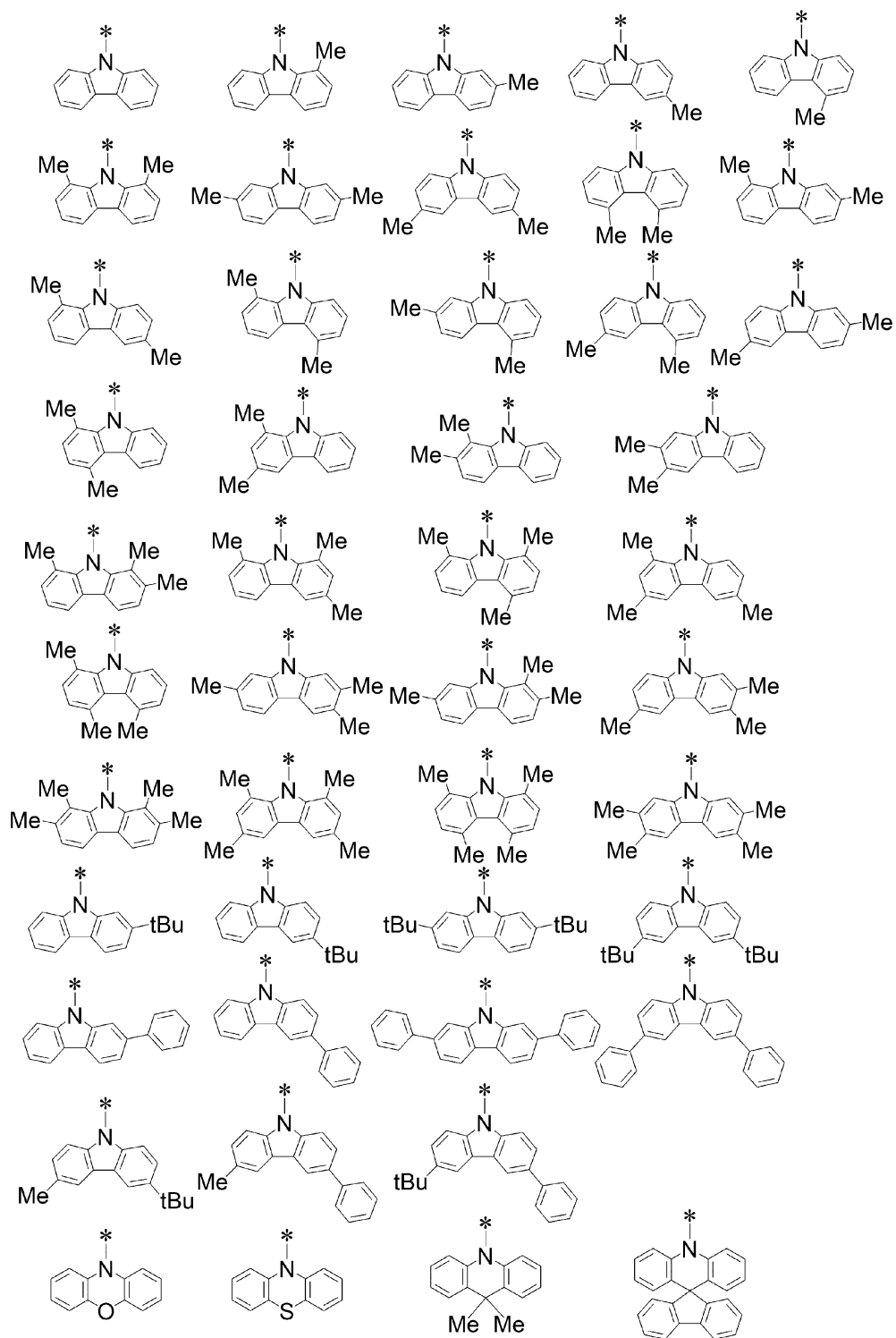
【化9】

*—Me *—tBu *—tAm *—tOct



【0075】

【化 1 0】



10

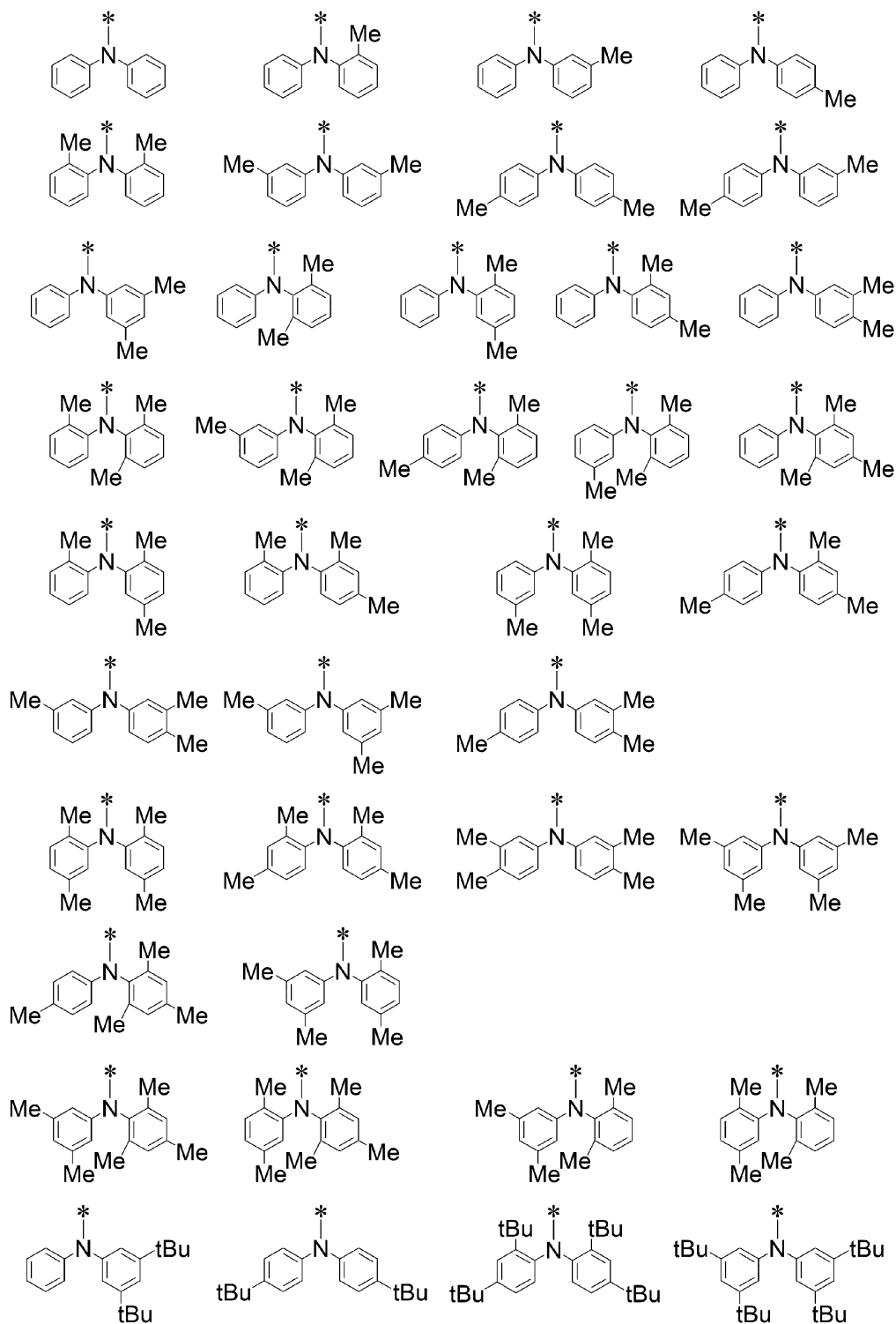
20

30

40

【 0 0 7 6 】

【化 1 1】



【 0 0 7 7】

10

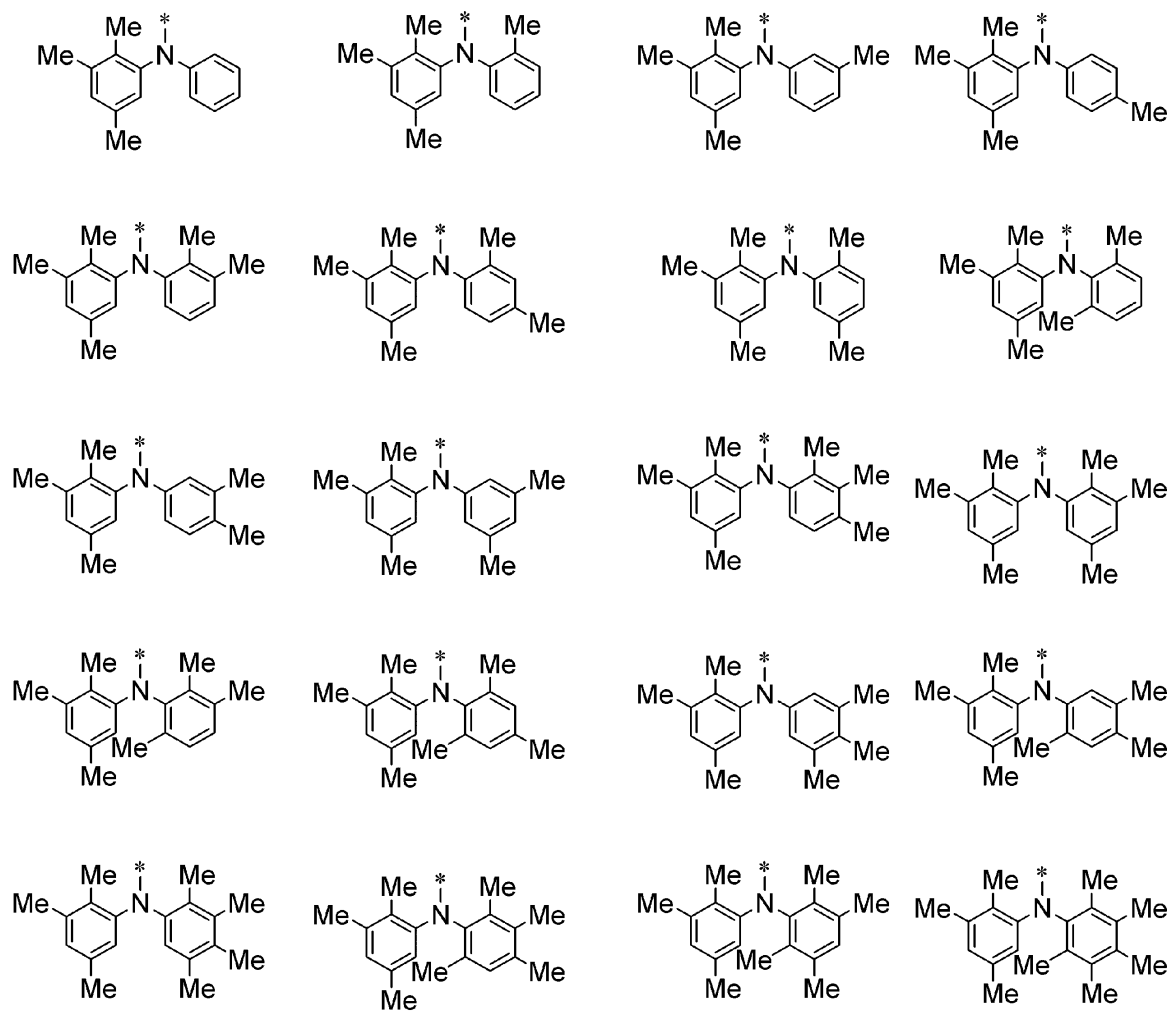
20

30

40

50

【化 1 2】



10

20

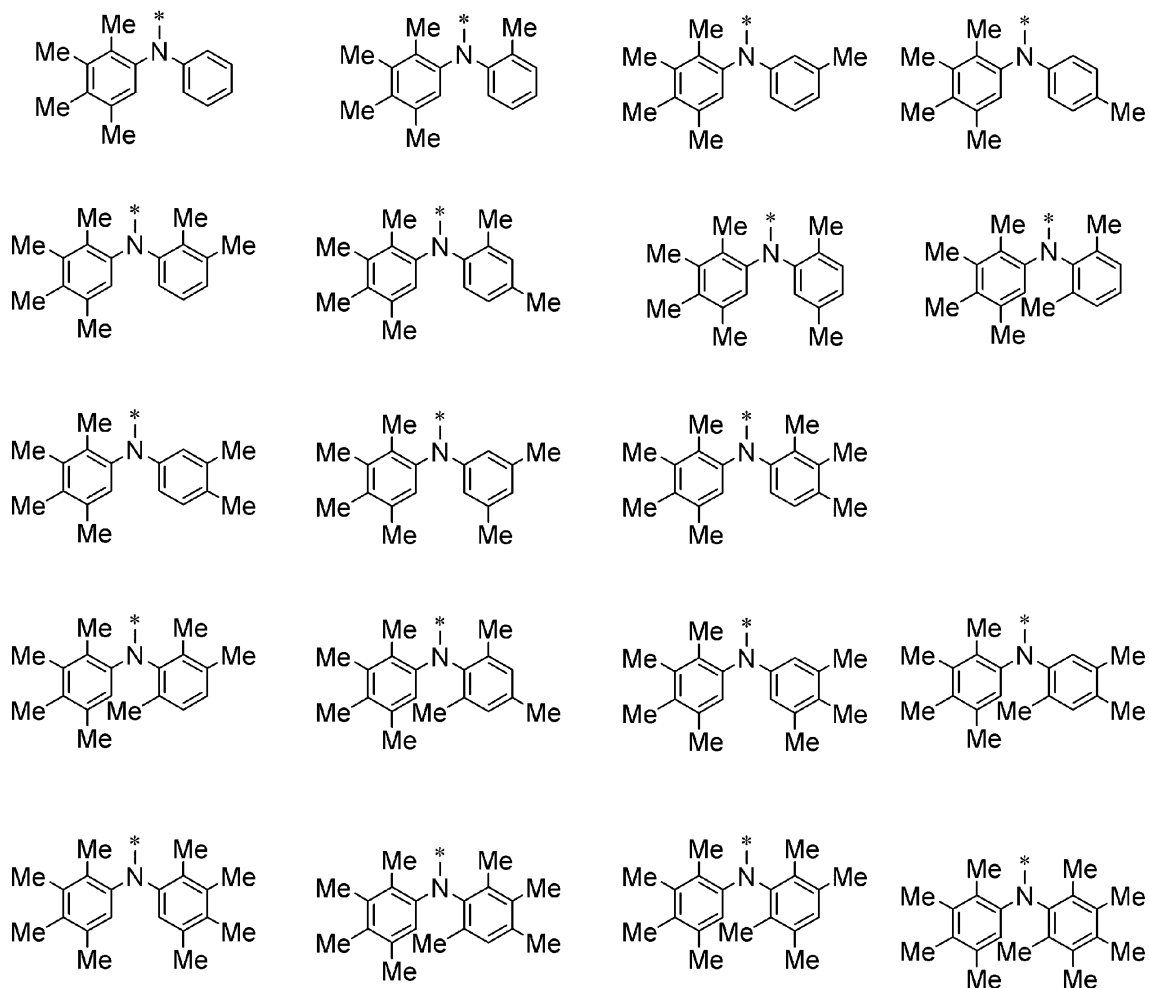
【 0 0 7 8】

30

40

50

【化 1 3】



10

20

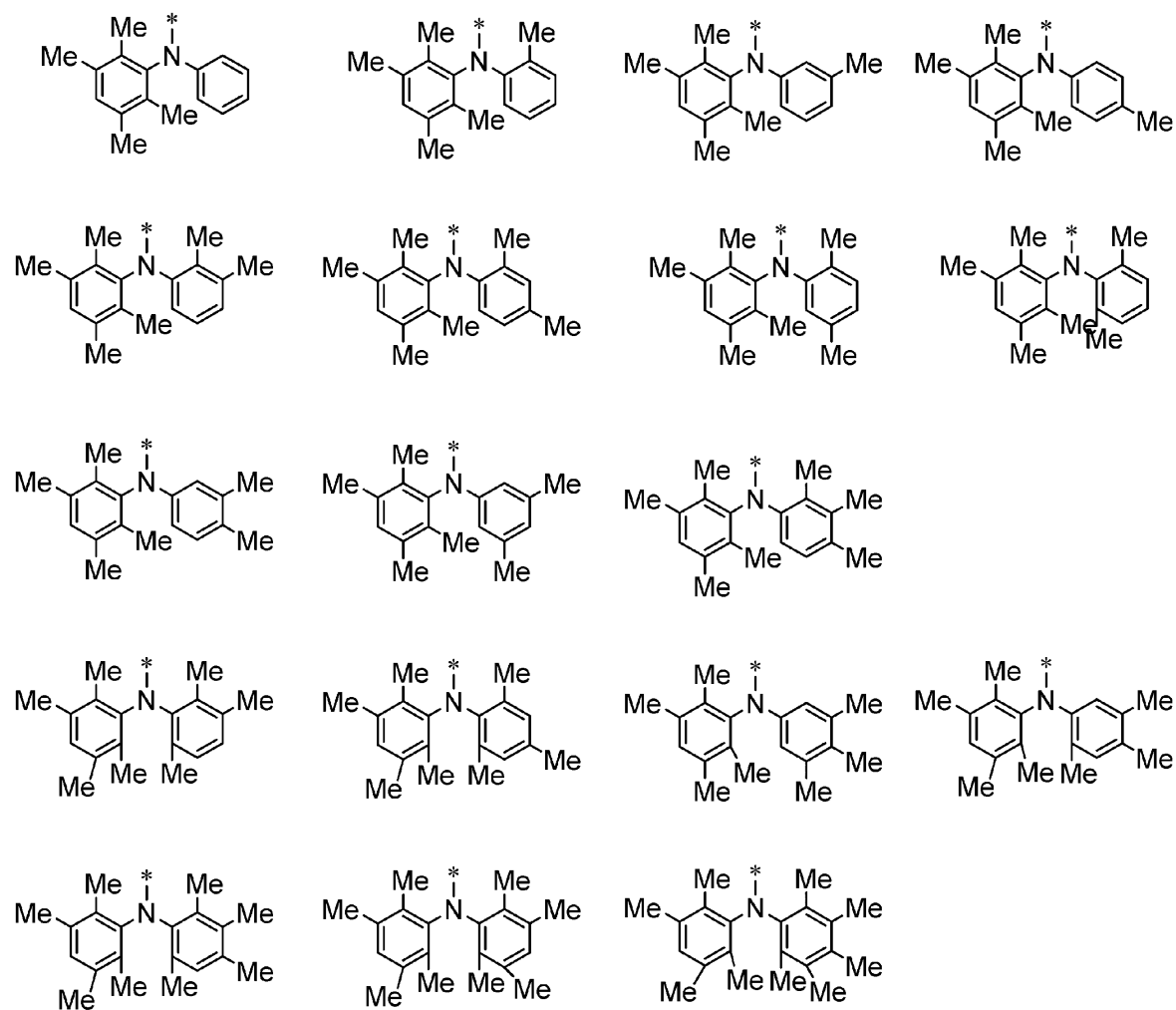
【 0 0 7 9】

30

40

50

【化 1 4】



【 0 0 8 0】

10

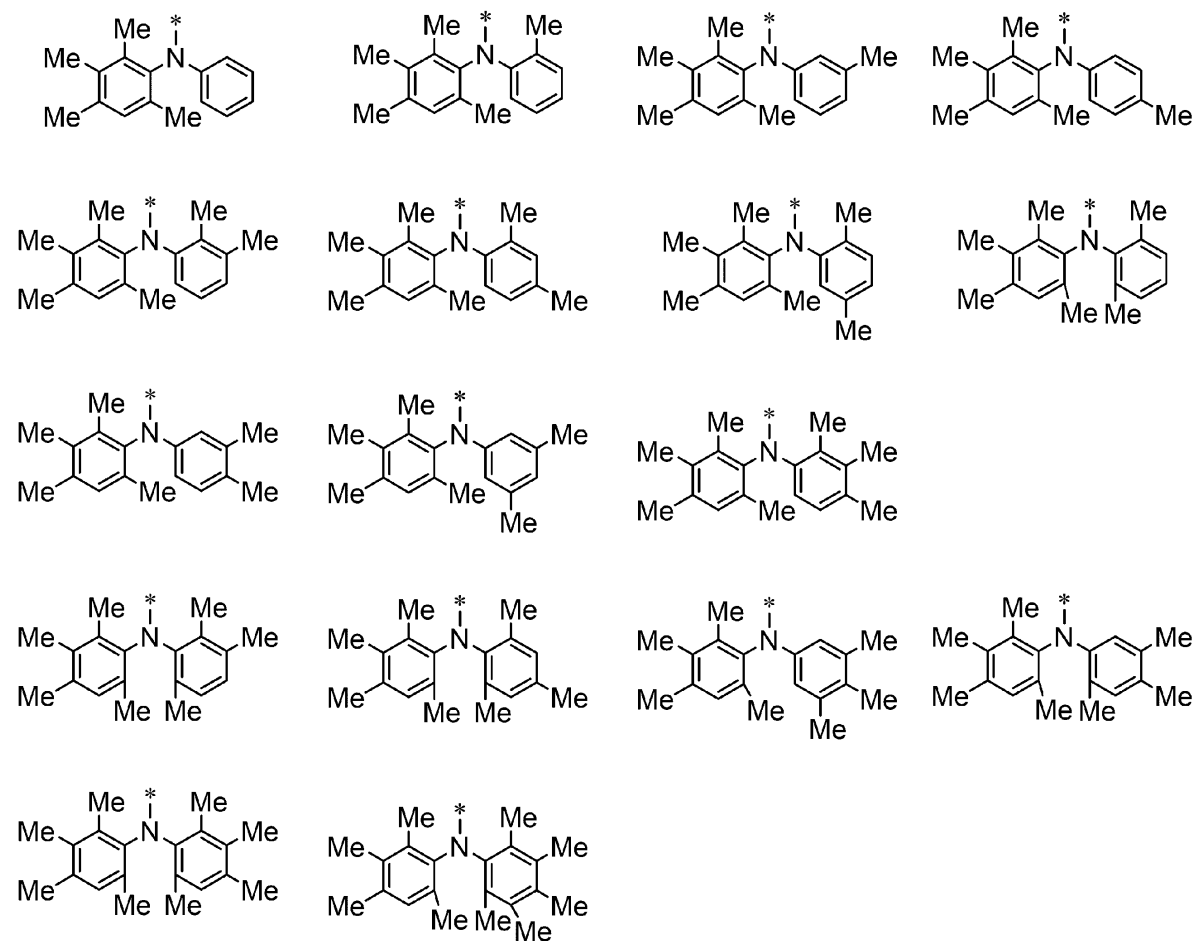
20

30

40

50

【化 1 5】



10

20

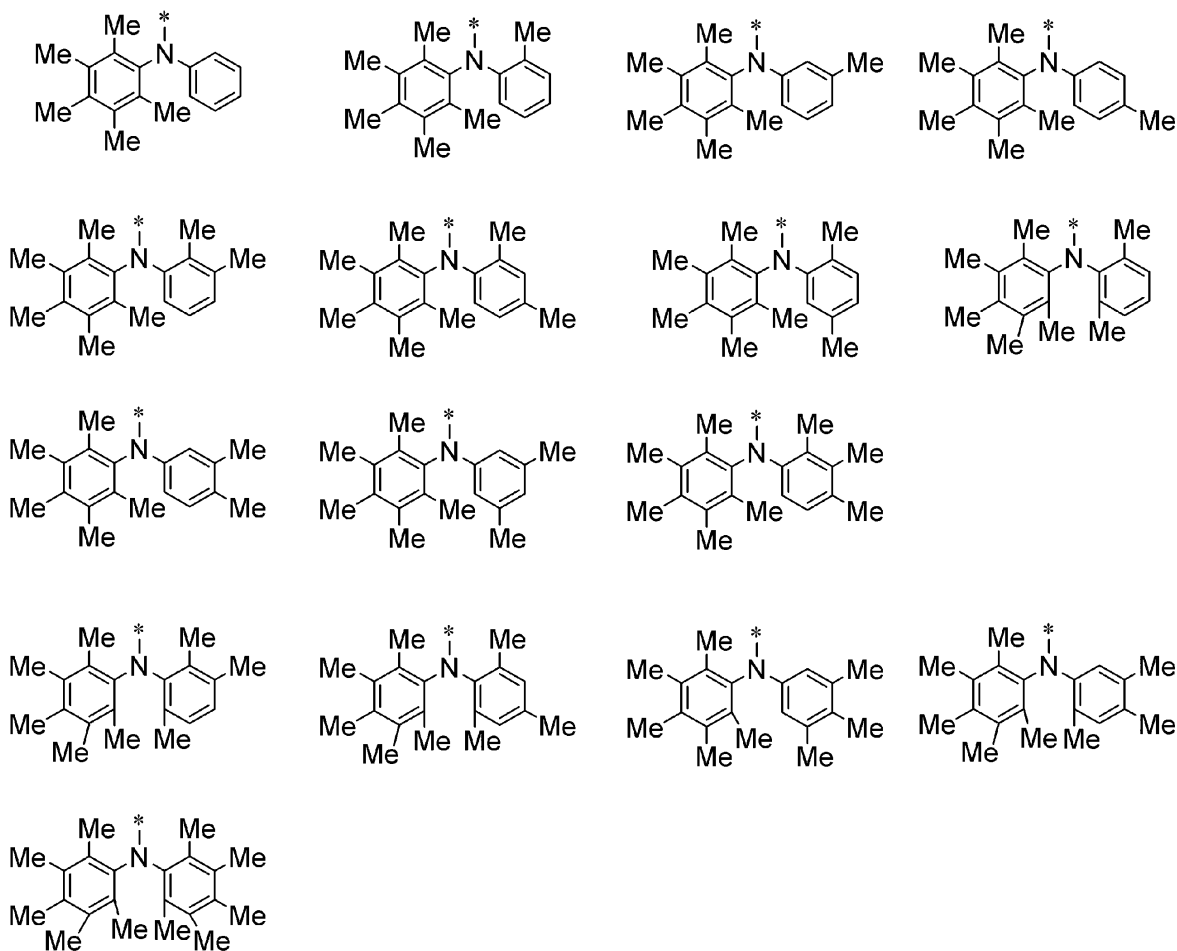
【0 0 8 1】

30

40

50

【化 1 6】

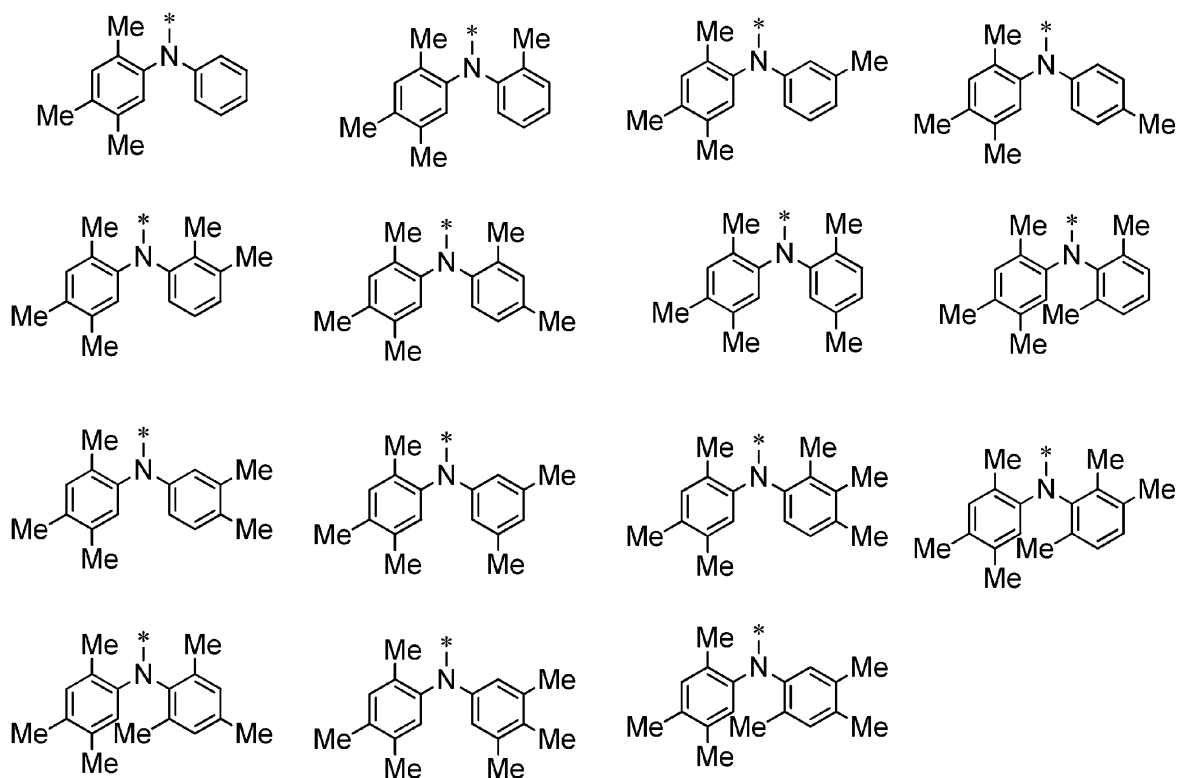


10

20

【 0 0 8 2】

【化 1 7】



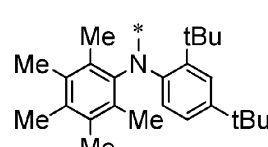
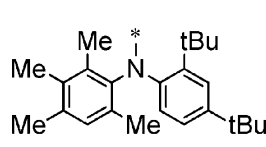
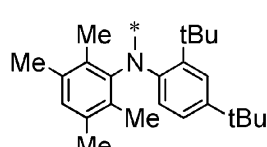
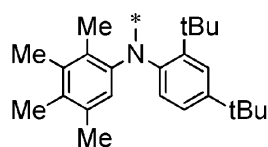
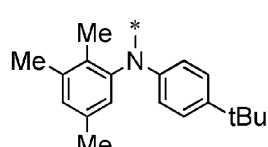
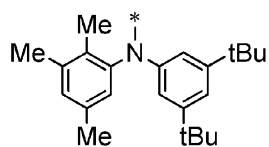
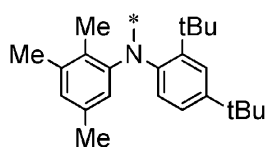
30

40

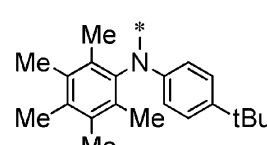
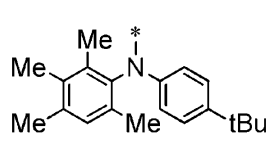
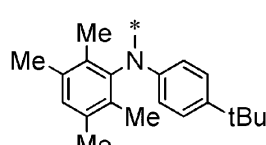
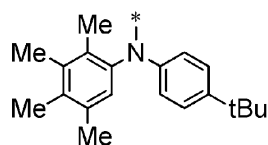
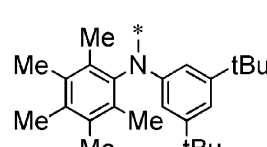
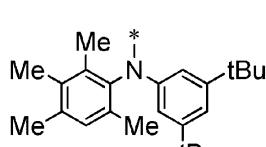
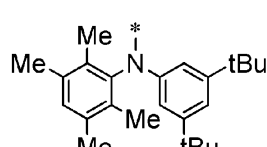
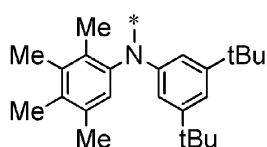
50

【 0 0 8 3 】

【 化 1 8 】



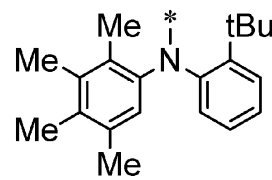
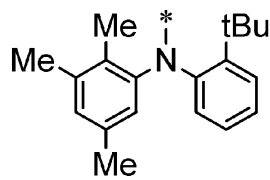
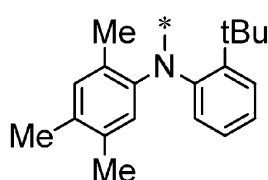
10



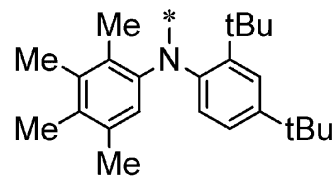
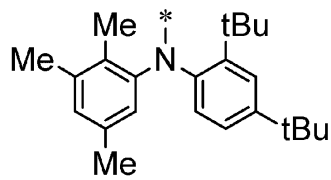
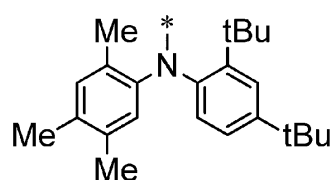
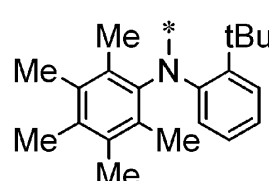
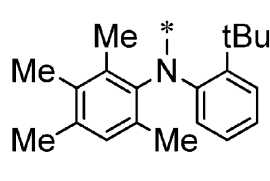
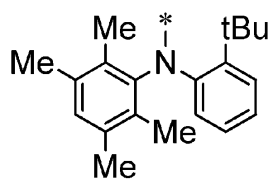
20

【 0 0 8 4 】

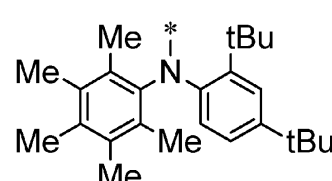
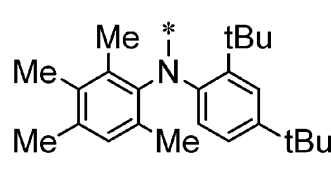
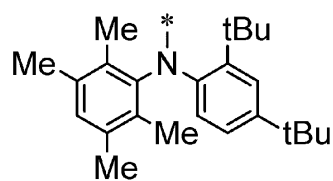
【 化 1 9 】



30



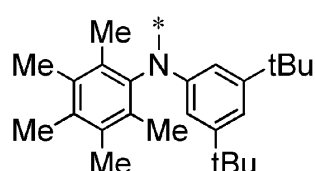
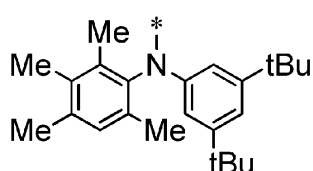
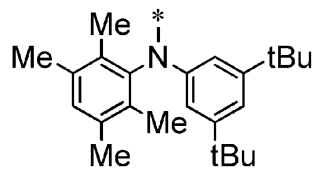
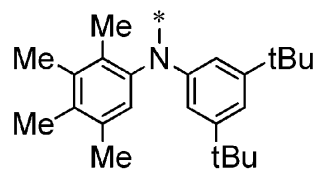
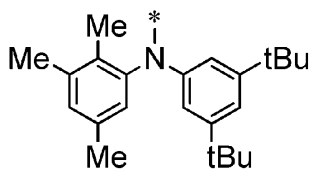
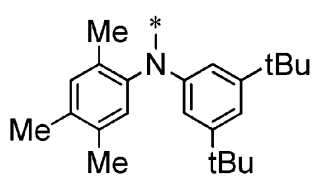
40



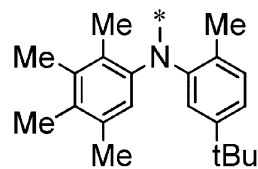
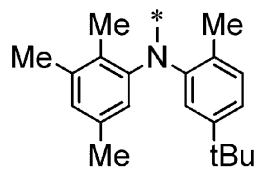
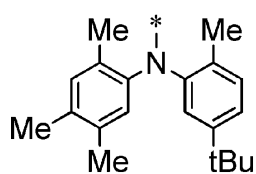
50

【 0 0 8 5 】

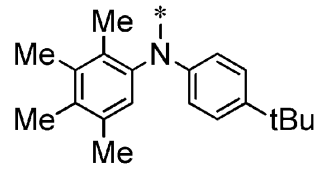
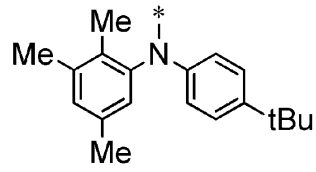
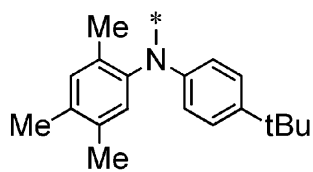
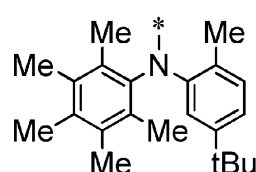
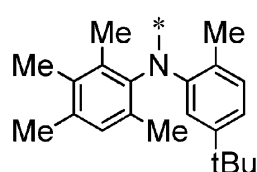
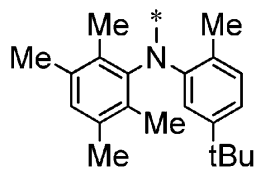
【 化 2 0 】



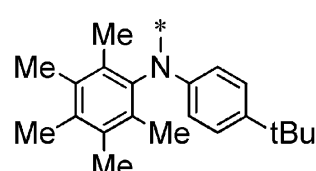
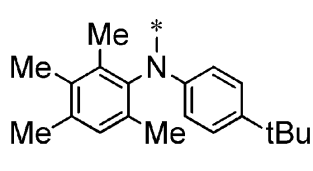
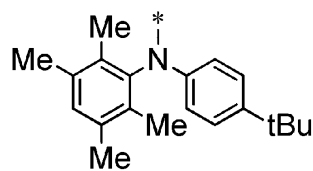
10



20



30

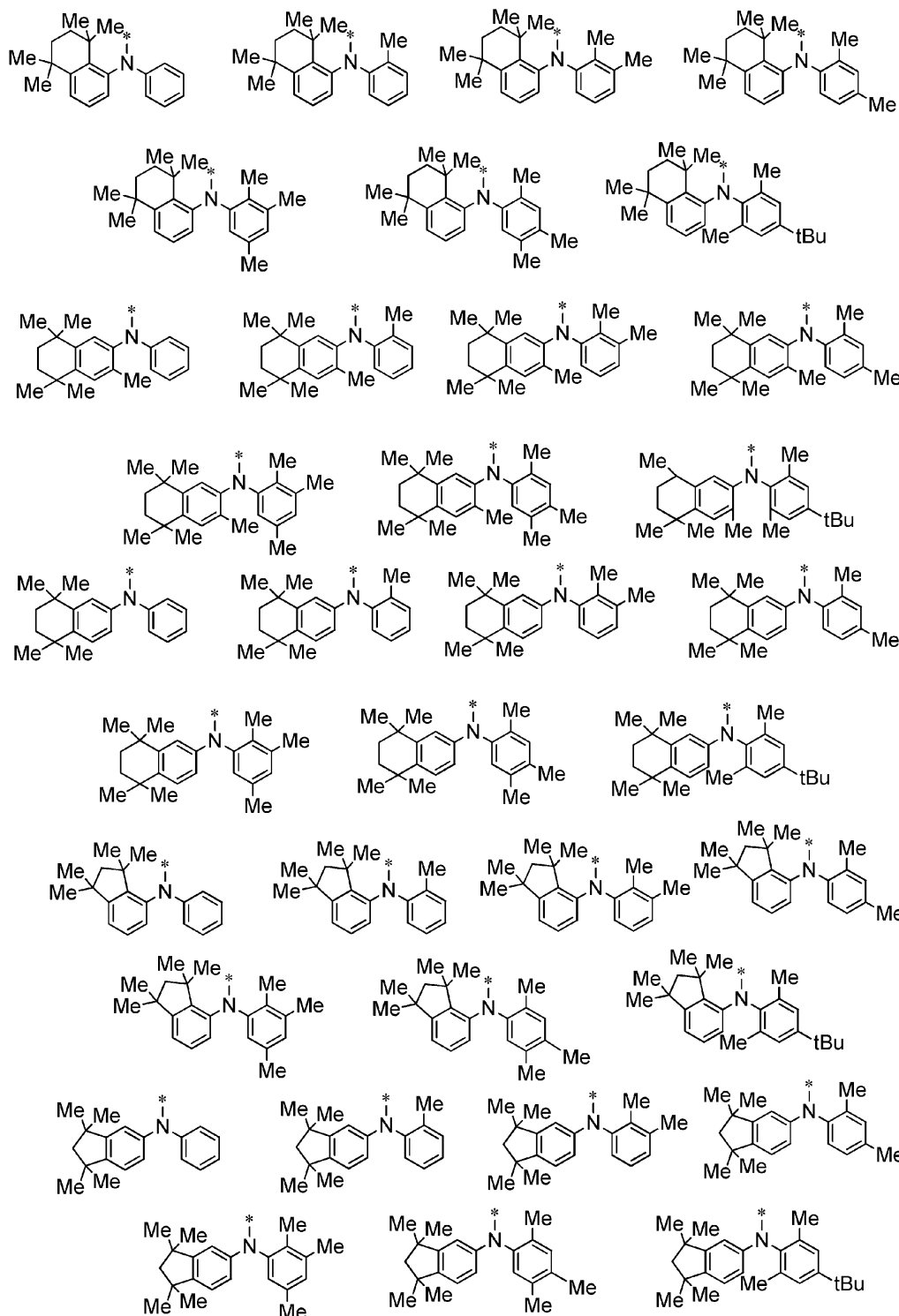


40

【 0 0 8 6 】

50

【化 2 1】



10

20

30

40

【0087】

式(1A)および式(1B)において、Yは、それぞれ独立して、B、P、P=OまたはP=Sであり、BまたはP=Oが好ましく、Bがより好ましい。この説明は式(2A)および式(2B)におけるYにも同様に当てはまる。

【0088】

式(1A)および式(1B)におけるXは、それぞれ独立して、 $>C(-R)_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ 、 $>Si(-R)_2$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ のRは、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、前記 $>C(-R)_2$ および $>Si(-R)_2$

50

)_2 のRは、それぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、また連結基によって互いに結合していてもよく、また、前記 >N-R 、前記 >C(-R)_2 、および前記 >Si(-R)_2 のRの少なくとも1つは連結基または単結合により前記A環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} の少なくとも1つと結合していてもよい。そして、上述のように、Xは、少なくとも1つが、Rが置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルである >N-R であって、Rを介して連結基または単結合によりA環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} の少なくとも1つにおけるアリール環またはヘテロアリール環と連結している。この式(1A)および式(1B)におけるXの説明および下記の好ましい範囲等についての説明は、式(2A)および式(2B)におけるXにも同様に当てはまる。

なお、「A環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} の少なくとも1つ」は式(2A)および式(2B)においては「A環、B環、C環、D環またはE環からなる群より選択される少なくとも1つ」と読み替える。

10

【0089】

式(1A)および式(1B)のXである >Si(-R)_2 のRは、上述した第2の置換基で置換されていてもよい、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルである。このアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルとしては上述する基があげられる。特に炭素数6～10のアリール（例えばフェニル、ナフチルなど）、炭素数2～15のヘテロアリール（例えばカルバゾリルなど）、炭素数1～5のアルキル（例えばメチル、エチルなど）または炭素数5～10のシクロアルキル（好ましくはシクロヘキシルやアダマンチル）が好ましい。この説明は式(2A)および式(2B)におけるXにおける >Si(-R)_2 のRにも同様に当てはまる。

20

【0090】

式(1A)および式(1B)のXである >C(-R)_2 のRは、水素、上述した第2の置換基で置換されていてもよい、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルである。このアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルとしては上述する基があげられる。特に炭素数6～10のアリール（例えばフェニル、ナフチルなど）、炭素数2～15のヘテロアリール（例えばカルバゾリルなど）、炭素数1～5のアルキル（例えばメチル、エチルなど）または炭素数5～10のシクロアルキル（好ましくはシクロヘキシルやアダマンチル）が好ましい。この説明は式(2A)および式(2B)におけるXにおける >C(-R)_2 のRにも同様に当てはまる。

30

【0091】

式(1A)および式(1B)におけるXは、少なくとも1つが上述の >N-R であり、その他のXは、それぞれ独立して、 >O または >N-R であることが好ましく、いずれか1つ以上が >N-R であることがより好ましく、いずれも >N-R であることがさらに好ましい。

【0092】

Xである >N-R のRにおけるアリール、ヘテロアリール、アルキル、シクロアルキルについては、上記の第1の置換基としてのそれらの説明を参照できる。Xにおける >N-R のRは置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリールまたは置換されていてもよいシクロアルキルであることが好ましく、置換されていてもよいアリールであることがより好ましい。ここで、アリールとしては、フェニル、ビフェニリル（特に、2-ビフェニリル）、およびテルフェニリル（特に、テルフェニル-2'-イル）が好ましく、フェニル、ビフェニリルがより好ましい。アリールが置換されている場合の置換基としてはメチルまたは上述の式(tR)で表されるターシャリアルキルが好ましい。アリールにおける置換基数は0～3つが好ましく、1～2つがより好ましい。

40

【0093】

Xである >N-R のRとしては、無置換フェニル、オルト位またはパラ位にメチルが結合したフェニルおよび1つまたは2つのオルト位にメチルが結合したフェニルが特に好ましい。

50

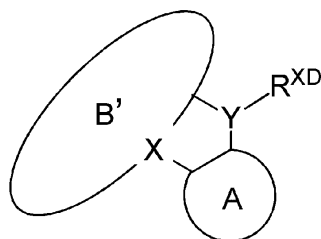
【0094】

Xである $>N-R$ 、 $>Si(-R)_2$ および $>C(-R)_2$ の少なくとも1つにおけるRは連結基または単結合によりA環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} における少なくとも1つの環と結合していてもよい。連結基としては、 $-O-$ 、 $-S-$ 、または $-C(-R)_2-$ が好ましい。なお、前記「 $-C(-R)_2-$ 」のRは、水素、アルキルまたはシクロアルキルである。このような構造の例としては、具体的には上述の式(A10)で表される構造があげられる。そのほか、より一般的には、下記式(1-3-1)で表される、Xが縮合環B'に取り込まれた環構造を有する化合物、および下記式(1-3-2)で表される、Xが縮合環A'に取り込まれた環構造を有する化合物があげられる。形成されてできた縮合環B'（または縮合環A'）は例えば、カルバゾール環、フェノキサジン環、フェノチアジン環またはアクリジン環である。

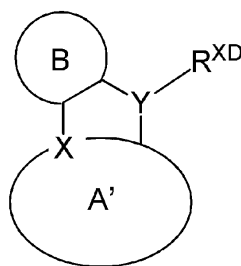
10

【0095】

【化22】



(1-3-1)



(1-3-2)

20

【0096】

式(1A)および式(1B)のXがA環、B環、C環、 R^{XD} 、または R^{XE} における少なくとも1つの環と結合する場合の連結基としては、例えば $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(-R)_2-$ または単結合などがあげられ、これらの中の「 $-C(-R)_2-$ 」のRは、水素、アルキル、またはシクロアルキルであるが、このアルキルまたはシクロアルキルとしては上述する基があげられる。特に炭素数1～5のアルキル（例えばメチル、エチルなど）または炭素数5～10のシクロアルキル（好ましくはシクロヘキシルやアダマンチル）が好ましい。この説明は式(2A)および式(2B)におけるXがA環、B環、C環、D環またはE環における少なくとも1つの環の少なくとも1つの環と結合する場合の連結基「 $-C(-R)_2-$ 」にも同様に当てはまる。

30

【0097】

式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる化合物におけるアリアル環およびヘテロアリアル環からなる群より選択される少なくとも1つは、少なくとも1つのシクロアルカンで縮合されていてもよく、当該シクロアルカンにおける少なくとも1つの水素は置換されていてもよく、当該シクロアルカンにおける少なくとも1つの $-CH_2-$ は $-O-$ で置換されていてもよい。この説明は、式(1A)および式(1B)が、それぞれ式(2A)および式(2B)である場合の化合物についても、同様に当てはまる。

40

【0098】

「シクロアルカン」としては、炭素数3～24のシクロアルカン、炭素数3～20のシクロアルカン、炭素数3～16のシクロアルカン、炭素数3～14のシクロアルカン、炭素数5～10のシクロアルカン、炭素数5～8のシクロアルカン、炭素数5～6のシクロアルカン、炭素数5のシクロアルカンなどがあげられる。

【0099】

具体的なシクロアルカンとしては、シクロプロパン、シクロブタン、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、シクロオクタン、シクロノナン、シクロデカン、ノル

50

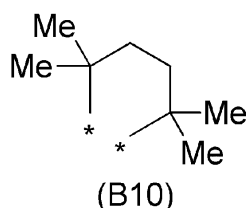
ボルネン、ビスクロ [1. 0. 1] ブタン、ビスクロ [1. 1. 1] ペンタン、ビスクロ [2. 0. 1] ペンタン、ビスクロ [1. 2. 1] ヘキサン、ビスクロ [3. 0. 1] ヘキサン、ビスクロ [2. 1. 2] ヘプタン、ビスクロ [2. 2. 2] オクタン、アダマンタン、ジアマンタン、デカヒドロナフタレンおよびデカヒドロアズレン、ならびに、これらの炭素数 1～5 のアルキル（特にメチル）置換体、ハロゲン（特にフッ素）置換体および重水素置換体などがあげられる。

【0100】

これらの中でもシクロアルカンの α 位の炭素（アリール環またはヘテロアリール環に縮合するシクロアルキルにおいて、縮合部位の炭素に隣接する位置の炭素）における少なくとも 1 つの水素が置換された構造が好ましく、 α 位の炭素における 2 つの水素が置換された構造がより好ましく、2 つの α 位の炭素における合計 4 つの水素が置換された構造がさらに好ましい。この置換基としては、炭素数 1～5 のアルキル（特にメチル）置換体、ハロゲン（特にフッ素）置換体および重水素置換体などがあげられる。特に、アリール環またはヘテロアリール環において隣接する炭素原子に下記式 (B10) で表される部分構造が結合した構造となっていることが好ましい。

【0101】

【化23】



式 (B10) 中、Me はメチルを示し、* は結合位置を示す。

【0102】

式 (1A) で表される部分構造および少なくとも 1 つの式 (1B) で表される部分構造からなる多環芳香族化合物の化学構造中の水素は、その全てまたは一部が重水素、シアノ、またはハロゲンで置換されていてもよい。例えば、式 (1A) で表される部分構造および少なくとも 1 つの式 (1B) で表される部分構造からなる多環芳香族化合物においては、A 環、B 環、C 環、 R^{XD} 、または R^{XE} におけるアリール環またはヘテロアリール環、これらの環への置換基、ならびに、X が $>N-R$ 、 $>C(-R)_2$ 、または $>Si(-R)_2$ であるときの R (=アルキル、シクロアルキル、アリール) における水素が重水素、シアノまたはハロゲンで置換されうるが、これらの中でもアリールやヘテロアリールにおける全てまたは一部の水素が重水素、シアノ、またはハロゲンで置換された態様があげられる。ハロゲンは、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素であり、好ましくはフッ素、塩素、または臭素、より好ましくはフッ素または塩素であり、フッ素がさらに好ましい。また耐久性の観点から、式 (1A) で表される部分構造および少なくとも 1 つの式 (1B) で表される部分構造からなる多環芳香族化合物の化学構造中の水素は、その全てまたは一部が重水素されていることも好ましい。この説明は、式 (1A) および式 (1B) が、それぞれ式 (2A) および式 (2B) である場合の化合物についても、同様に当てはまる。

【0103】

式 (1A) で表される部分構造および少なくとも 1 つの式 (1B) で表される部分構造からなる多環芳香族化合物の例としては下記式 (3-1) ～ (3-4) のいずれかで表される多環芳香族化合物があげられる。

10

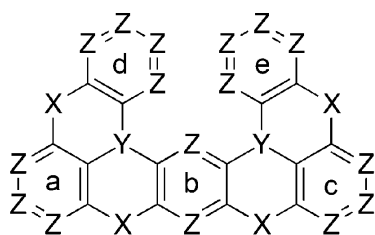
20

30

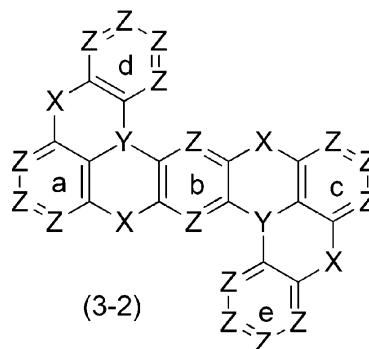
40

50

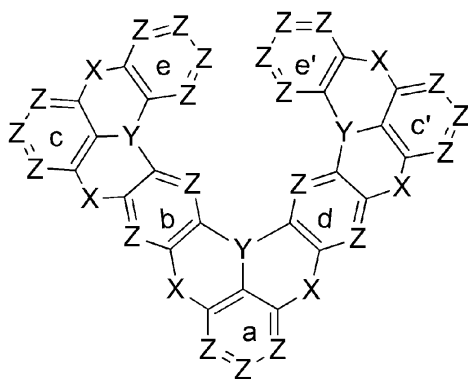
【化 2 4】



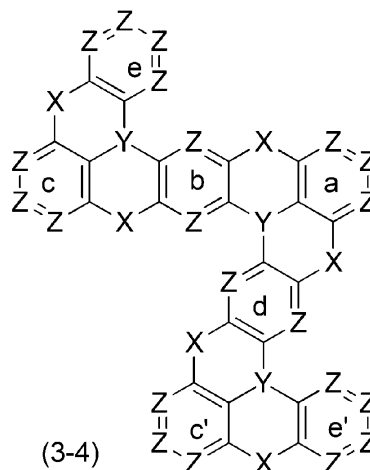
(3-1)



(3-2)



(3-3)



(3-4)

【0104】

式(3-1)～式(3-4)において、式(1A)および式(1B)中と同じ記号は式(1A)および式(1B)中のそれぞれと同義であり、好ましい範囲も同一である。なお、式(1A)および式(1B)におけるA環、B環、C環、 R^{XD} および R^{XE} は、それぞれ、a環、b環、c環、d環およびe環またはa環、b環、c環(c'環)、d環、e環(e'環)と読み替えるものとする。

式(3-1)～式(3-4)において、Zは、それぞれ独立して、 $-C(-R^Z)=$ または $-N=$ であり、隣り合う2つのZは、 $-C(-R^Z)_2-$ 、 $-Si(-R^Z)_2-$ 、 $-N(-R^Z)-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ に置き換えられてもよい。隣り合う2つのZが、 $-C(-R^Z)_2-$ 、 $-Si(-R^Z)_2-$ 、 $-N(-R^Z)-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ に置き換えられた構造としてはシクロペンタジエン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、チアゾール環、オキサゾール環などがあげられる。

【0105】

式(3-1)～式(3-4)中、Zは、それぞれ独立して、 $-C(-R^Z)=$ または $-N=$ であり、隣り合う2つのZは、 $-C(-R^Z)_2-$ 、 $-Si(-R^Z)_2-$ 、 $-N(-R^Z)-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ に置き換えられていないことが好ましい。このとき、Yに対してo(オルト)位またはp(パラ)位のZは、 $-C(-R^Z)=$ であることが好ましい。また、 $-N=$ であるZを含む環(単環)においては、複数のZのうち1つまたは2つが $-N=$ であることが好ましく、2つが $-N=$ であるとき、2つの $-N=$ は互いに隣接していないことが好ましい。6員環が $-N=$ であるZを含む環であるときは、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、または1,2,3-トリアジン環が好ましく、ピリジン環、ピラジン環、またはピリミジン環がより好ましい。 $-N=$ であるZを含む環(単環)は0～4個であることが好ましく、0～3個であることがより好ましく、0～2個であることがさらに好ましく、0～1個であることが特に好ましい。

【0106】

具体的には、Zは、いずれも $-C(-R^Z)=$ であること、すなわち、いずれの環も置換

10

20

30

40

50

基を有していてもよいベンゼン環であることが好ましい。また、式(3-1)および式(3-2)においては、いずれも $-C(-R^Z)=$ であることに加えて、b環のZのいずれか1つ以上が $-N=$ であり、その他のZが、それぞれ独立して、 $-C(-R^Z)=$ であることも好ましい。

【0107】

R^Z は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、ジアリールボリル(2つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい)、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシまたは置換シリルであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよく、また、 R^Z のうちの隣接する基同士が結合してa環、c環、d環およびe環またはa環、c環、d環、e環、c'環およびe'環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、ジアリールボリル(2つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい)、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、または置換シリルで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよい。

【0108】

R^Z の詳細や好ましい範囲については、上記の第1の置換基および第2の置換基の説明を参照することができる。

【0109】

式(3-1)～式(3-4)中、Zが $-C(-R^Z)=$ であるときの R^Z は、それぞれ独立して、水素、炭素数6～30のアリール、炭素数2～30のヘテロアリール、ジアリールアミノ(ただしアリールは炭素数6～12のアリール)、ジアリールボリル(ただしアリールは炭素数6～12のアリールであり、2つのアリールは単結合または連結基を介して結合していてもよい)、炭素数1～24のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、トリアリールシリル(ただしアリールは炭素数6～12のアリール)、またはトリアルキルシリル(ただしアルキルは炭素数1～6のアルキル)であることが好ましく、ただし、隣接する R^Z 同士が結合してa環、b環またはc環と共に炭素数9～16のアリール環または炭素数6～15のヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素は、炭素数6～10のアリール、炭素数1～12のアルキル、炭素数3～16のシクロアルキル、トリアリールシリル(ただしアリールは炭素数6～12のアリール)、またはトリアルキルシリル(ただしアルキルは炭素数1～5のアルキル)で置換されていてもよく、

それぞれ独立して、水素、炭素数6～16のアリール、炭素数2～20のヘテロアリール、ジアリールアミノ(ただしアリールは炭素数6～10のアリール)、炭素数1～12のアルキルまたは炭素数3～16のシクロアルキルであることがより好ましく、

それぞれ独立して、水素、炭素数6～16のアリール、ジアリールアミノ(ただしアリールは炭素数6～10のアリール)、炭素数1～12のアルキルまたは炭素数3～16のシクロアルキルであることがさらに好ましい。

【0110】

式(3-1)～式(3-4)それぞれにおけるa環、b環、c環(c'環)、d環、e環(e'環)において、各環における $\bar{R}$ は、0～2個が水素以外の置換基であってその他が水素であることが好ましく、0～1個が水素以外の置換基であってその他が水素であることがより好ましい。

式(3-1)～式(3-4)それぞれにおけるa環、b環、c環(c'環)、d環、e環(e'環)のうち、Xである $>N-R$ のRと結合し、上述の式(A10)で表される構造を形成している環においては結合部分以外のZはC-Hであることが好ましい。

【0111】

10

20

30

40

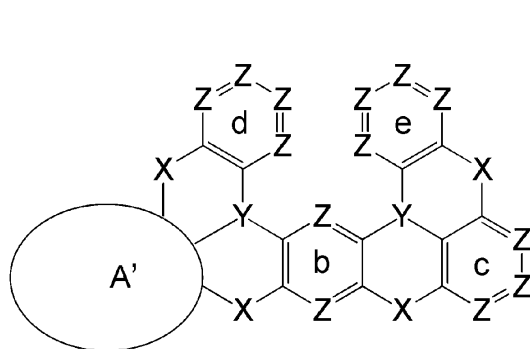
50

式(3-1)～(3-4)それぞれにおいて、隣接するC(炭素原子)に結合するR^Z同士が結合してa環、b環、c環(c'環)、d環、またはe環(e'環)と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよい。

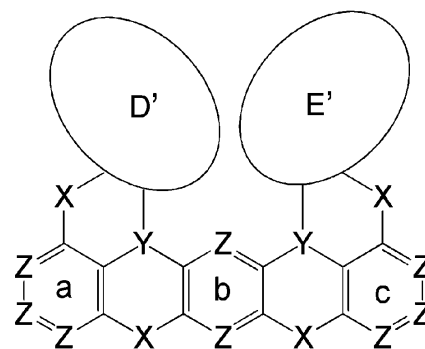
式(3-1)で表される化合物で例を示すと、R^Z同士が結合してa環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成した構造として、下記式(3-1-a)で示す構造、R^Z同士が結合してd環と共に、およびR^Z同士が結合してe環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成した構造として下記式(3-1-b)で示す構造があげられる。各式中のA'環、D'環およびE'環は、式(3-1)におけるそれぞれa環、d環およびe環に対応する。また、各式中のZ、a、b、c、d、e、Y、XおよびZの定義は式(3-1)における定義と同じである。

【0112】

【化25】



(3-1-a)



(3-1-b)

【0113】

式(3-1-a)および式(3-1-b)中のA'環、D'環およびE'環は、式(3-1)で説明すれば、隣接するC(炭素原子)に結合するR^Z同士が結合して、それぞれa環、b環およびe環と共に形成したアリール環またはヘテロアリール環を示す(a環、b環およびe環に他の環構造が縮合してできた縮合環ともいえる)。なお、式では示していないが、b環およびc環がB'環およびC'環に変化した化合物や、a環、b環、c環(c'環)、d環、またはe環(e'環)の全てがA'環、B'環、C'環、D'環およびE'環に変化した化合物もある。

【0114】

例えば、a環(または、b環、c環(c'環)、d環、またはe環(e'環))であるベンゼン環に対してベンゼン環、インドール環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、シクロペンタジエン環、またはインデン環が縮合して形成されるA'環(またはB'環、C'環、D'環およびE'環)である縮合環はそれぞれフタレン環、カルバゾール環、インドール環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インデン環、またはフルオレン環である。

【0115】

また、例えば、a環(または、b環、c環(c'環)、d環、またはe環(e'環))であるシクロペンタジエン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環において、隣接するCに結合するR^Z同士が結合して環を形成することにより、ベンゼン環を形成した場合の縮合環の例としてはインデン環、インドール環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環である。

【0116】

式(3-1)～(3-4)のいずれかで表される多環芳香族化合物の好ましい例としては、式(3-1-1)、式(3-1-2)、式(3-2-1)のいずれかで表される多環芳香族化合物があげられる。

【0117】

10

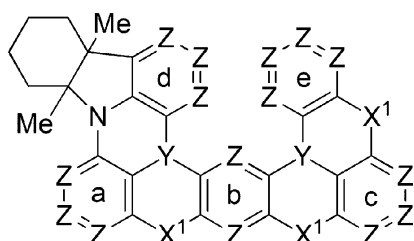
20

30

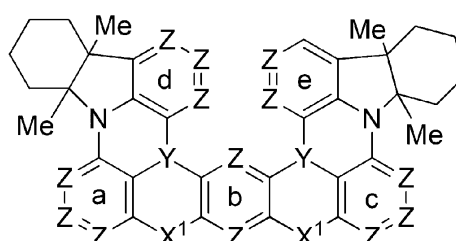
40

50

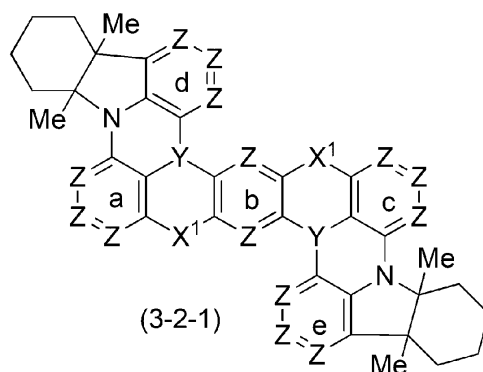
【化 2 6】



(3-1-1)



(3-1-2)



(3-2-1)

【0118】

式(3-1-1)、式(3-1-2)、式(3-2-1)中、式(3-1)～式(3-4)と同じ記号は式(3-1)～式(3-4)中のそれぞれと同義であり、好ましい範囲も同一である。

式(3-1-1)、式(3-1-2)、式(3-2-1)中、 X^1 は、それぞれ独立して、 $>C(-R)_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ 、 $>Si(-R)_2$ または $>S$ であり、前記 $>N-R$ のRは、炭素数1～6のアルキルもしくは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数6～12のアリール、炭素数1～6のアルキルもしくは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数2～15のヘテロアリール、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルであり、前記 $>C(-R)_2$ および $>Si(-R)_2$ のRは、それぞれ独立して、水素、炭素数6～12のアリール、炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルである。 X^1 の好ましい範囲としては式(1A)および式(1B)におけるXの好ましい範囲を参照することができるが、具体的には、 $>N-R$ または $>O$ であることが好ましく、このときの、 $>N-R$ のRは、炭素数1～6のアルキルで置換されていてもよい炭素数6～12のアリールまたは炭素数1～6のアルキルで置換されていてもよい炭素数2～15のヘテロアリールであることが好ましく、炭素数1～6のアルキルで置換されていてもよい炭素数6～12のアリールであることがより好ましく、メチルまたはメブチルで置換されていてもよいフェニルであることがさらに好ましい。

【0119】

式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる多環芳香族化合物の例としてはさらに具体的な例としては下記式のいずれかで表される多環芳香族化合物があげられる。

【0120】

10

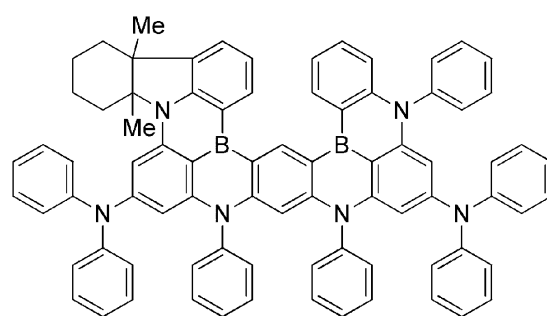
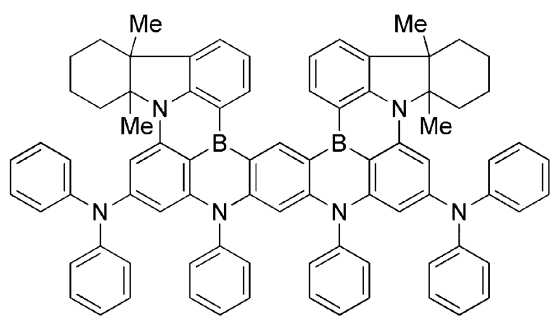
20

30

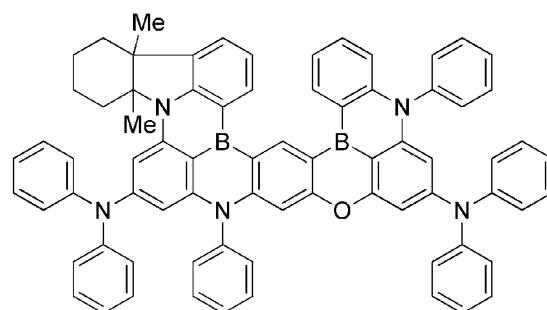
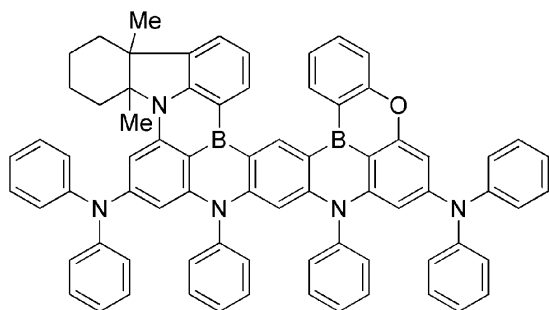
40

50

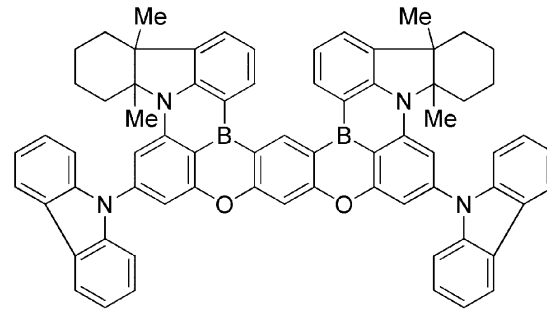
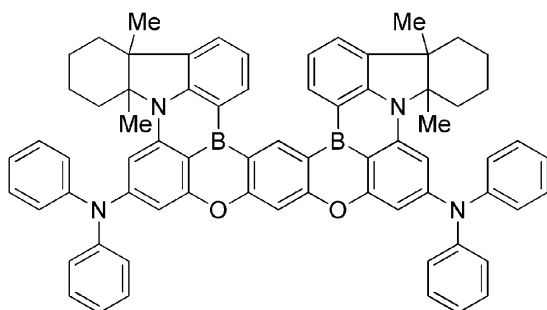
【化 2 7】



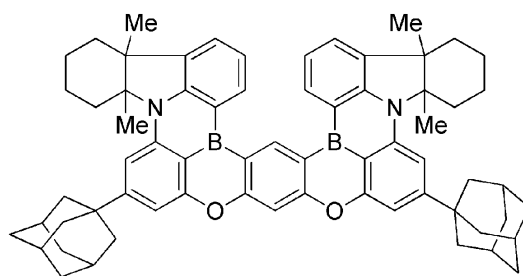
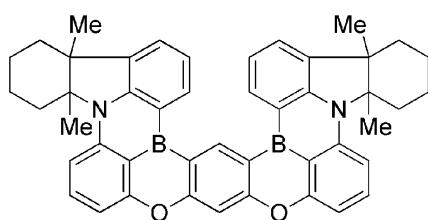
10



20



30

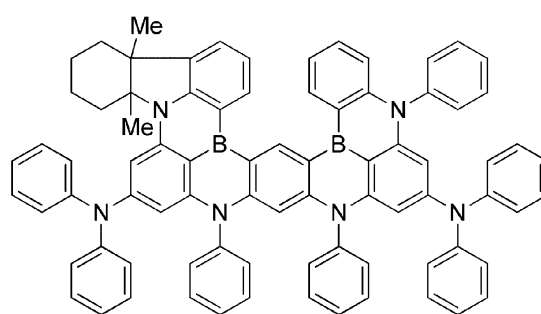
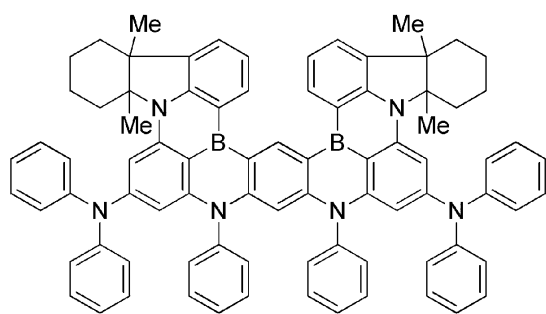


【 0 1 2 1】

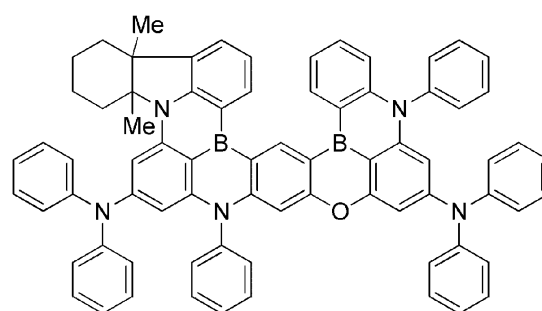
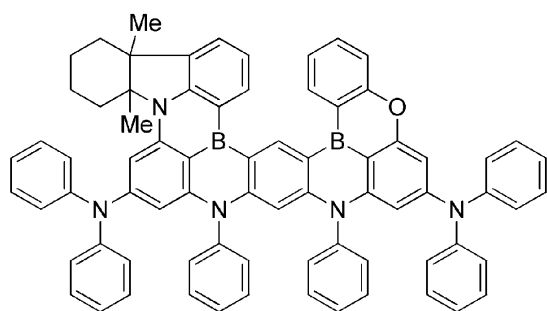
40

50

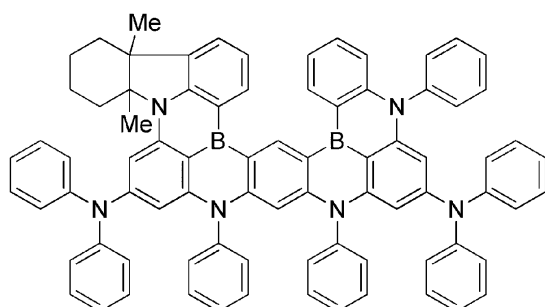
【化 2 8】



10



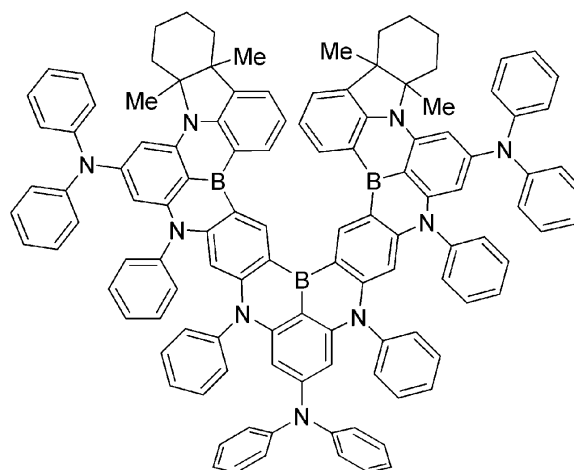
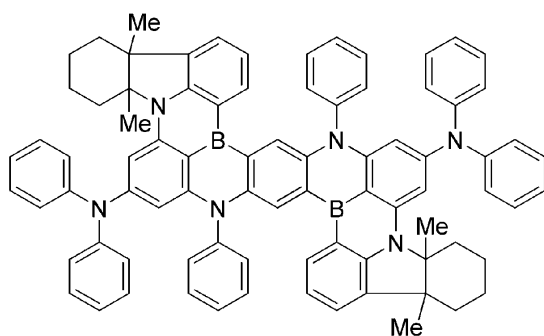
20



30

【 0 1 2 2】

【化 2 9】



40

【 0 1 2 3】

上記各構造式中のベンゼン環に結合した水素は、メチルまたはセーブチルで置換されていてもよく、また連続した水素は上述の式（B 1 0）で表される部分構造で置換されていてもよい。

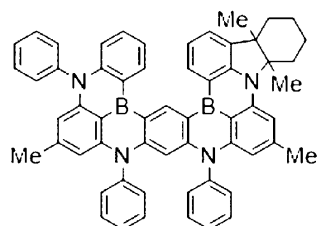
50

【0124】

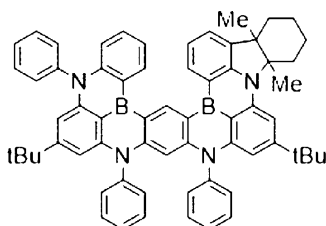
本発明の多環芳香族化合物のさらに具体的な例としては、以下の構造式で表される化合物があげられる。なお、下記構造式中の「Me」はメチル、「tBu」はtertブチルを示す。

【0125】

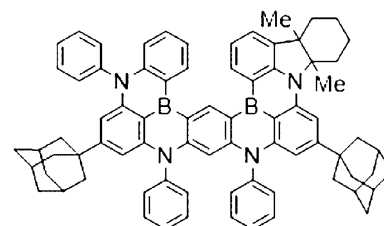
【化30】



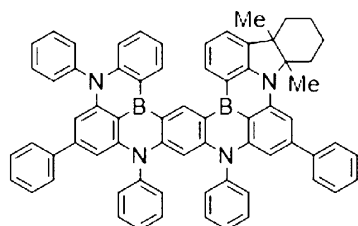
(1-1)



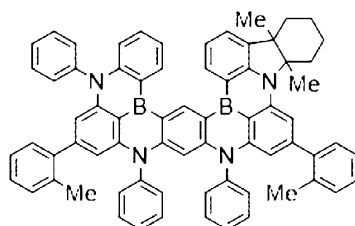
(1-2)



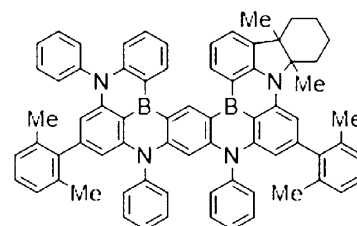
(1-3)



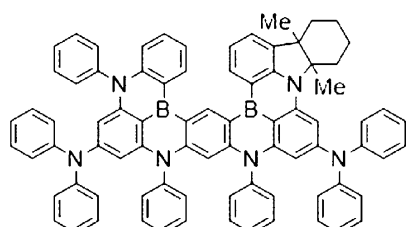
(1-4)



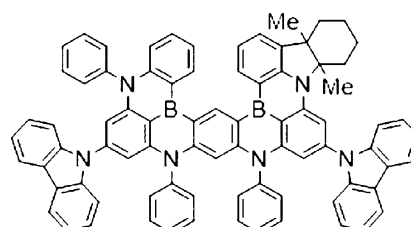
(1-5)



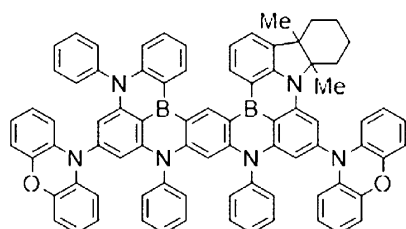
(1-6)



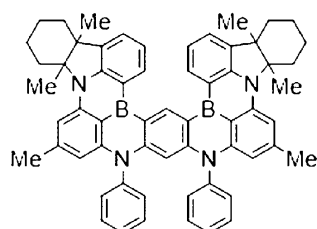
(1-7)



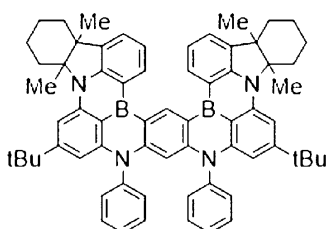
(1-8)



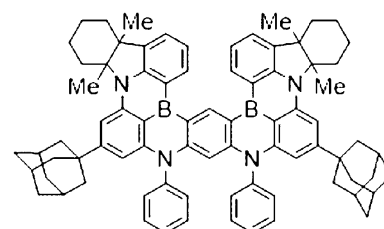
(1-9)



(1-11)



(1-12)



(1-13)

【0126】

10

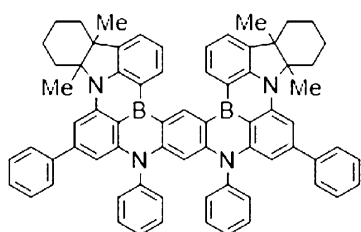
20

30

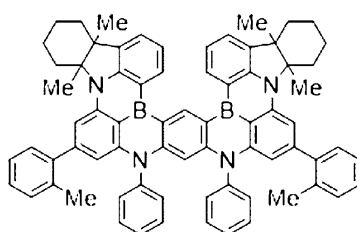
40

50

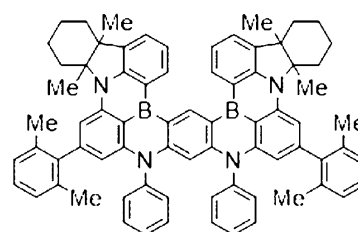
【化 3 1】



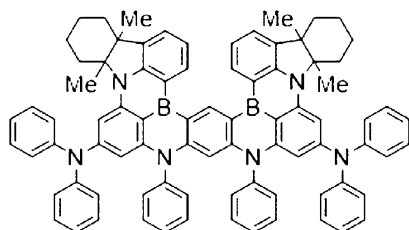
(1-14)



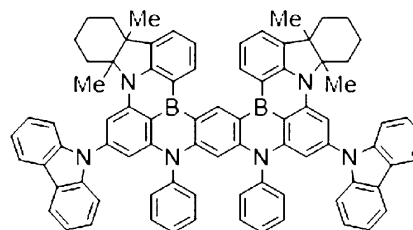
(1-15)



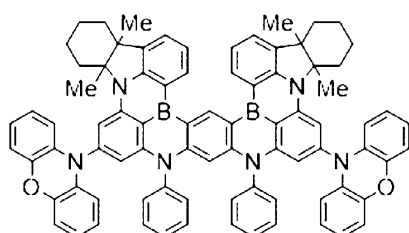
(1-16)



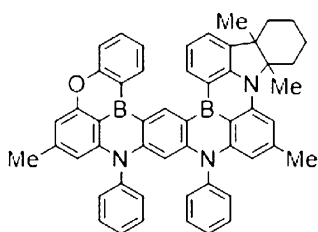
(1-17)



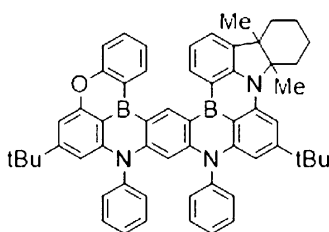
(1-18)



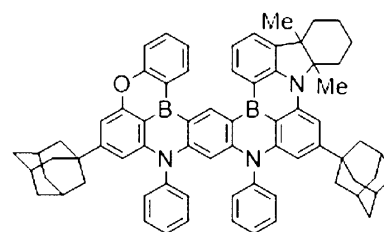
(1-19)



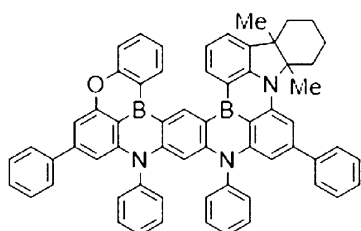
(1-21)



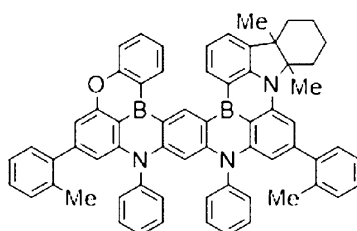
(1-22)



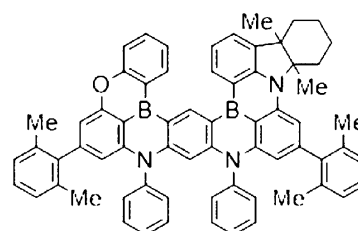
(1-23)



(1-24)



(1-25)



(1-26)

【 0 1 2 7 】

10

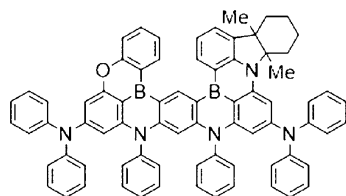
20

30

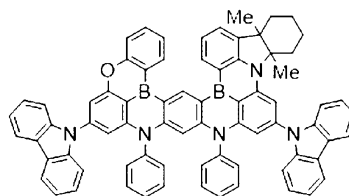
40

50

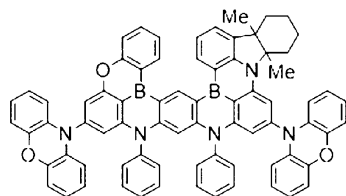
【化 3 2】



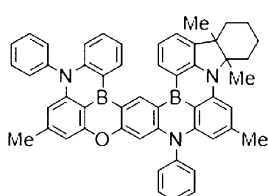
(1-27)



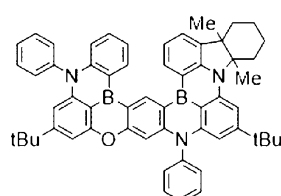
(1-28)



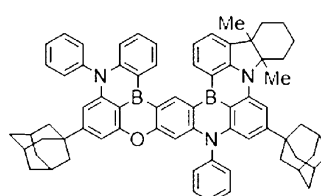
(1-29)



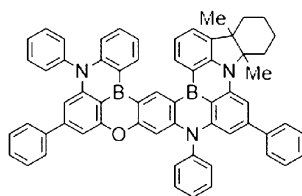
(1-31)



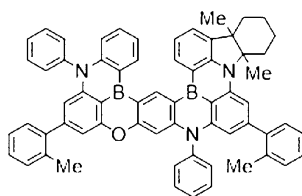
(1-32)



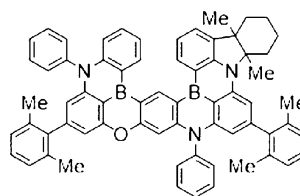
(1-33)



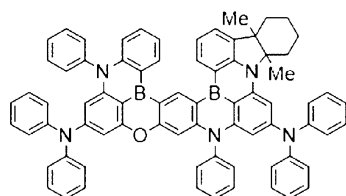
(1-34)



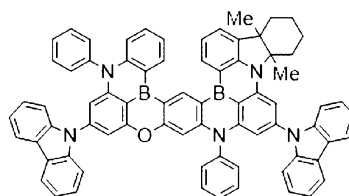
(1-35)



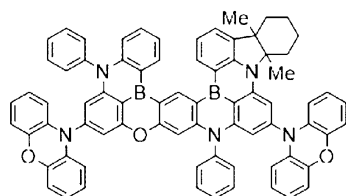
(1-36)



(1-37)



(1-38)



(1-39)

【 0 1 2 8】

10

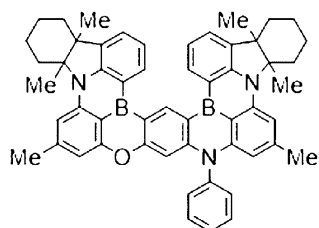
20

30

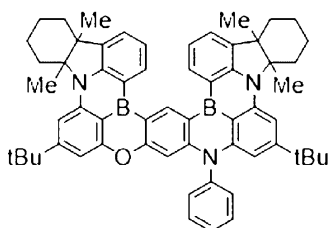
40

50

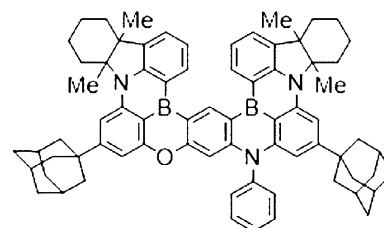
【化 3 3】



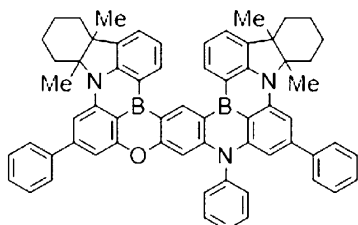
(1-41)



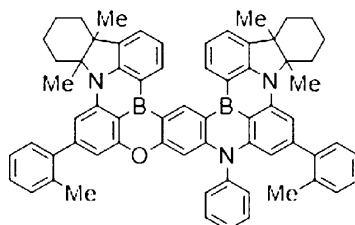
(1-42)



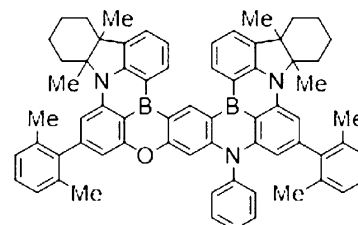
(1-43)



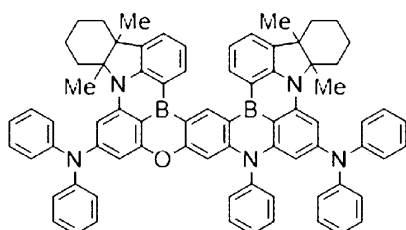
(1-44)



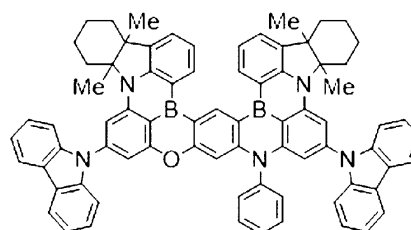
(1-45)



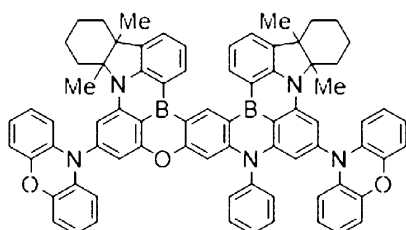
(1-46)



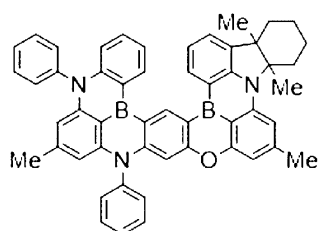
(1-47)



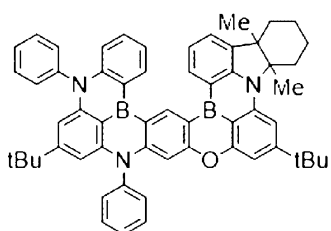
(1-48)



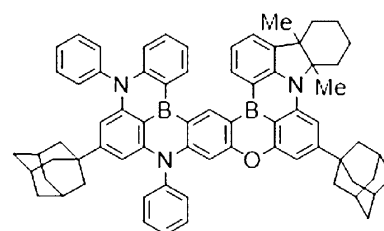
(1-49)



(1-51)



(1-52)



(1-53)

【 0 1 2 9 】

10

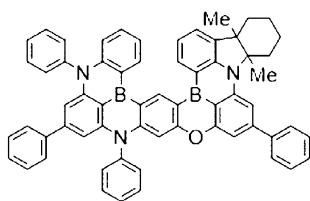
20

30

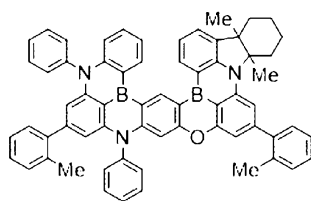
40

50

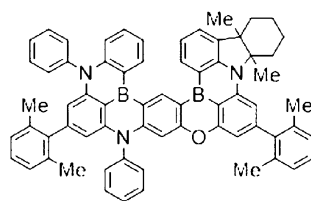
【化 3 4】



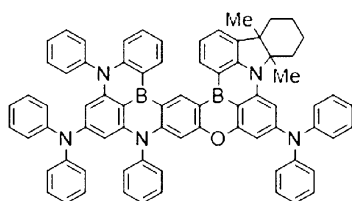
(1-54)



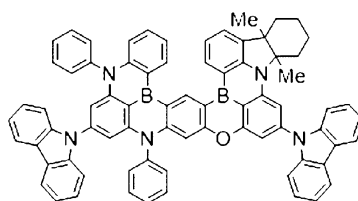
(1-55)



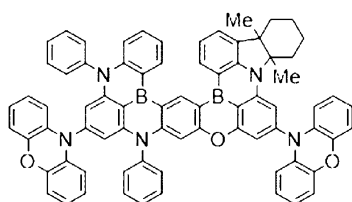
(1-56)



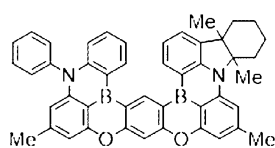
(1-57)



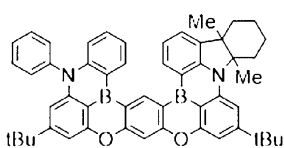
(1-58)



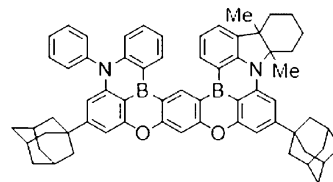
(1-59)



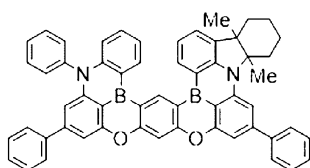
(1-61)



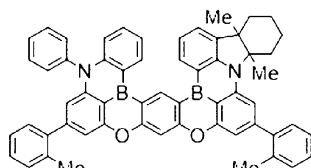
(1-62)



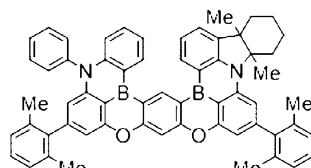
(1-63)



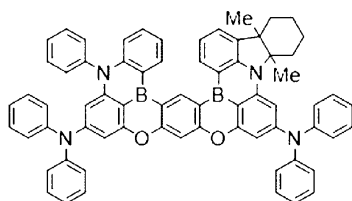
(1-64)



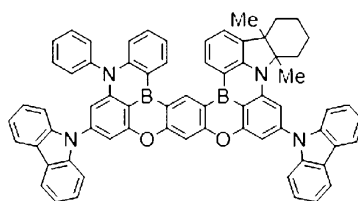
(1-65)



(1-66)



(1-67)



(1-68)

【 0 1 3 0 】

10

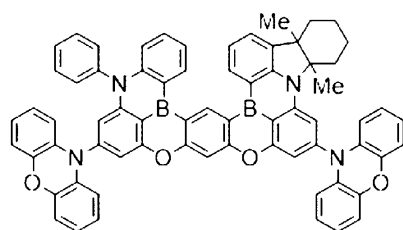
20

30

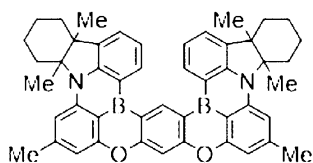
40

50

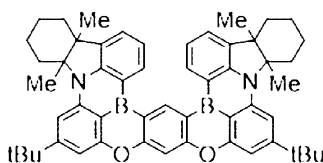
【化 3 5】



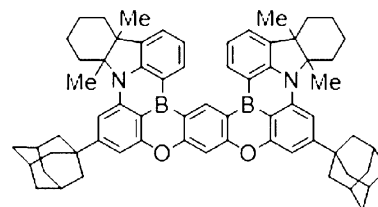
(1-69)



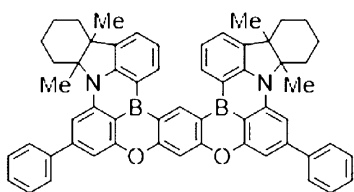
(1-71)



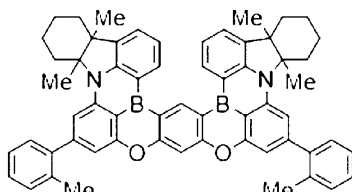
(1-72)



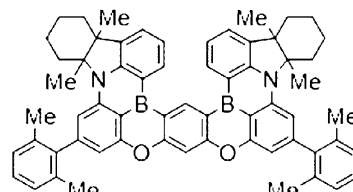
(1-73)



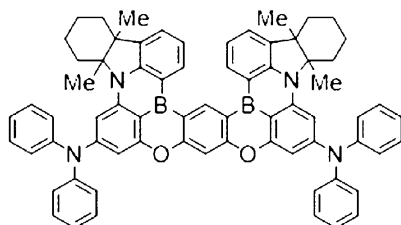
(1-74)



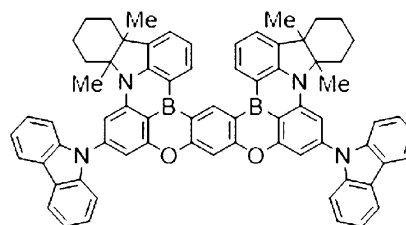
(1-75)



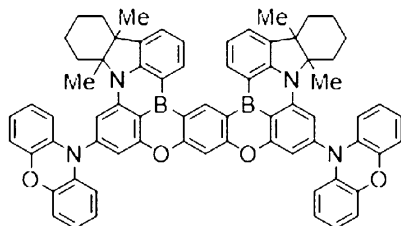
(1-76)



(1-77)



(1-78)



(1-79)

【 0 1 3 1】

10

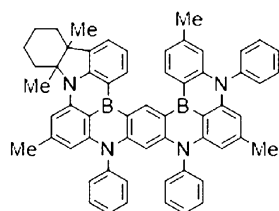
20

30

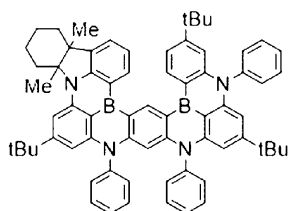
40

50

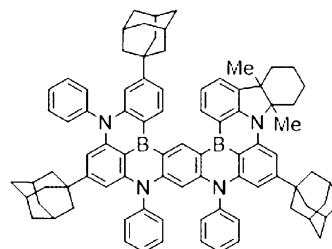
【化 3 6】



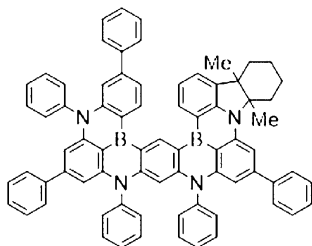
(1-81)



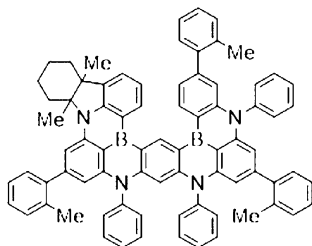
(1-82)



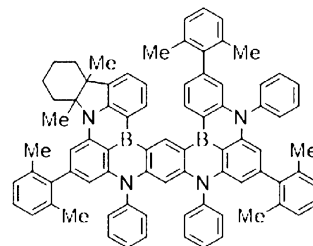
(1-83)



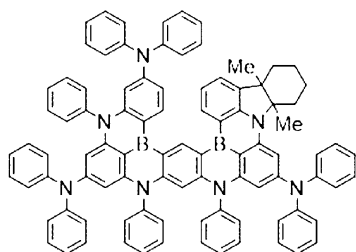
(1-84)



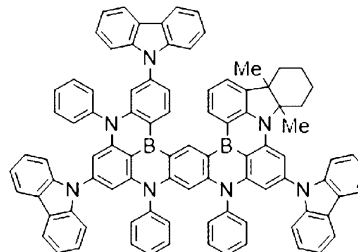
(1-85)



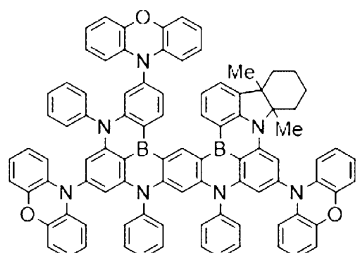
(1-86)



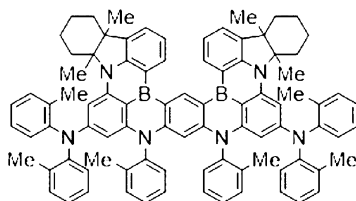
(1-87)



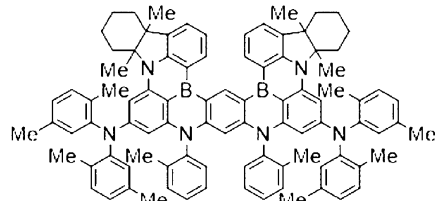
(1-88)



(1-89)



(1-91)



(1-92)

【 0 1 3 2 】

10

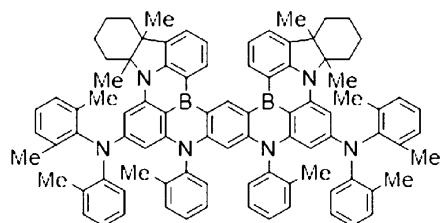
20

30

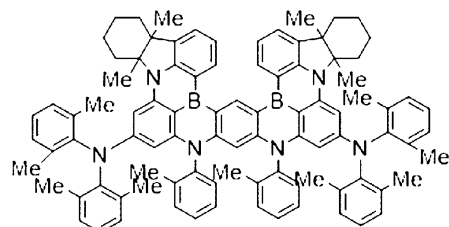
40

50

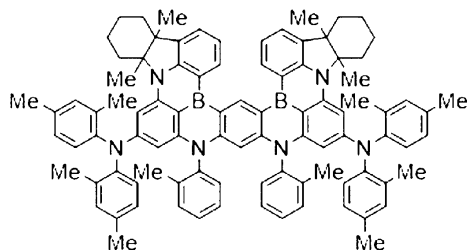
【化 3 7】



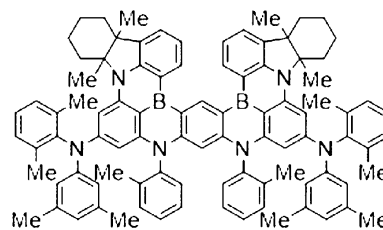
(1-93)



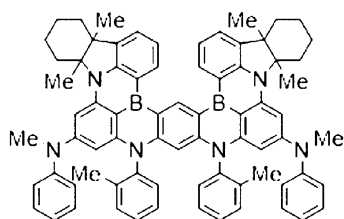
(1-94)



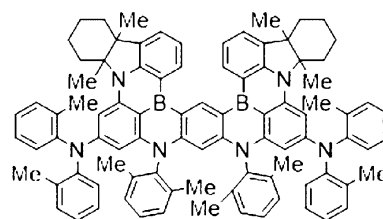
(1-95)



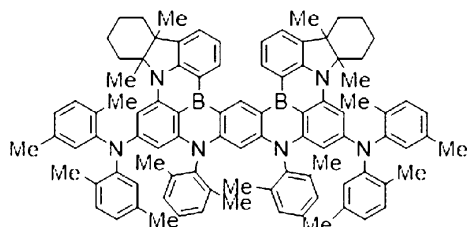
(1-96)



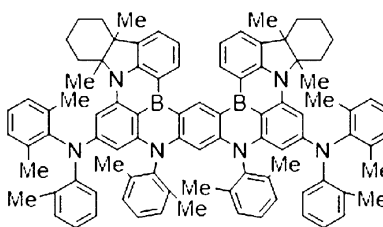
(1-97)



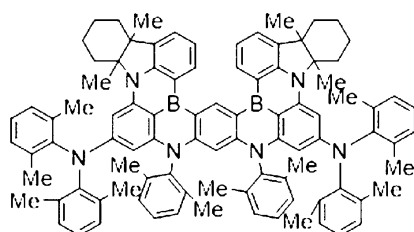
(1-98)



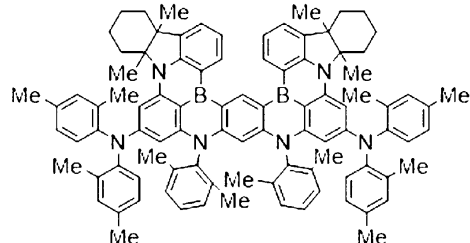
(1-99)



(1-100)



(1-101)



(1-102)

【 0 1 3 3 】

10

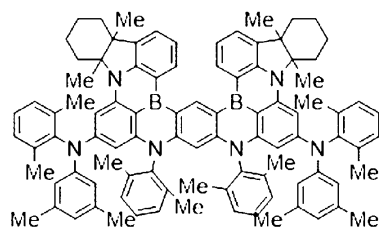
20

30

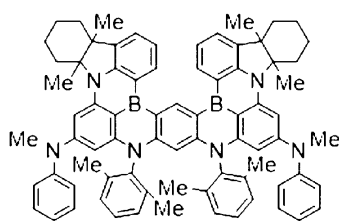
40

50

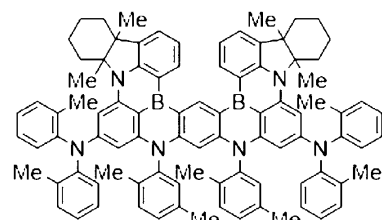
【化 3 8】



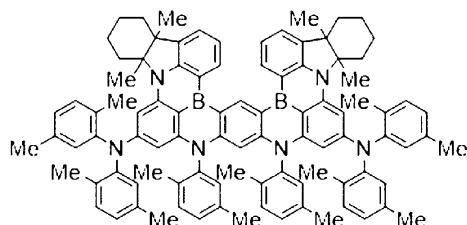
(1-103)



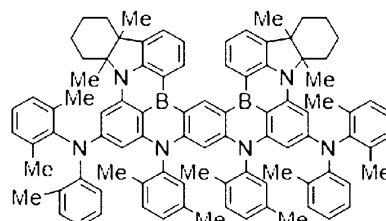
(1-104)



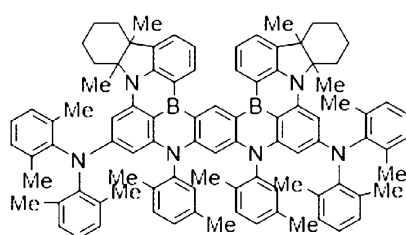
(1-105)



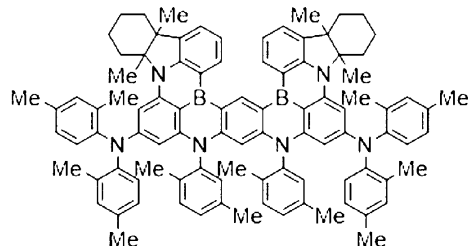
(1-106)



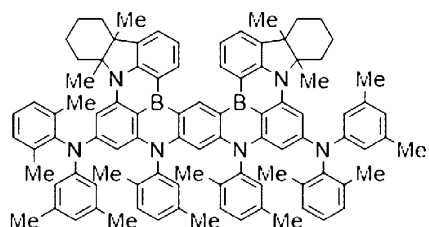
(1-107)



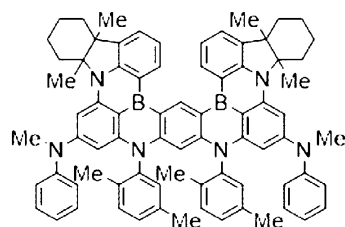
(1-108)



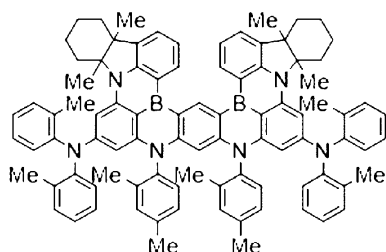
(1-109)



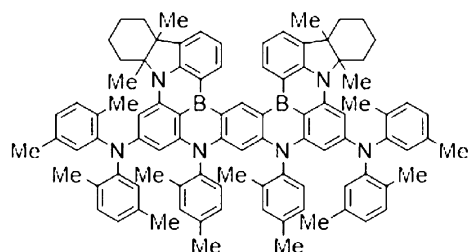
(1-110)



(1-111)



(1-112)



(1-113)

【 0 1 3 4 】

10

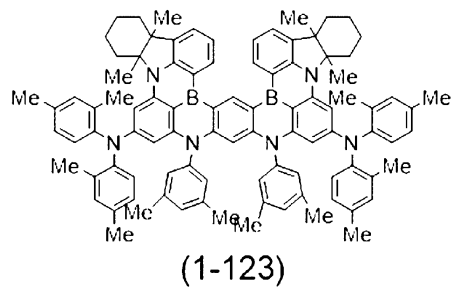
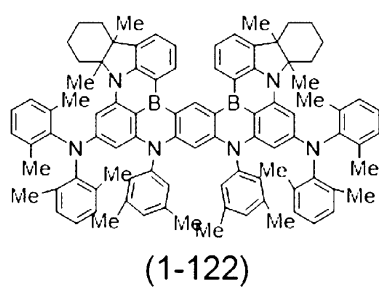
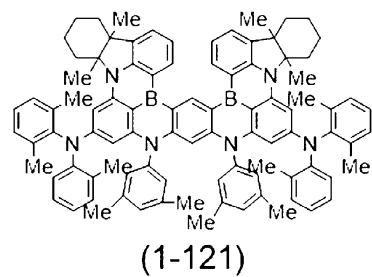
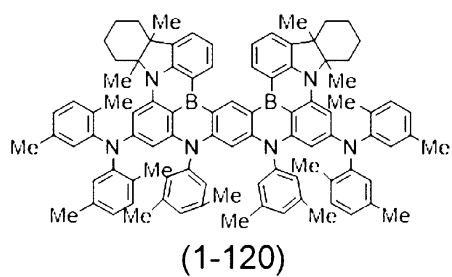
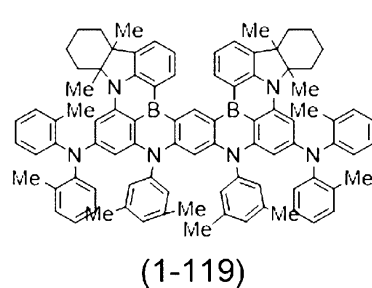
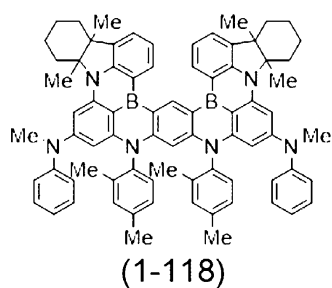
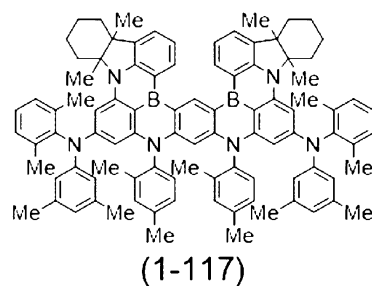
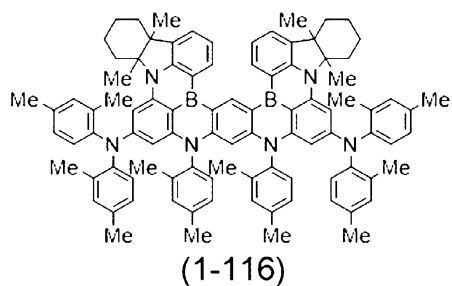
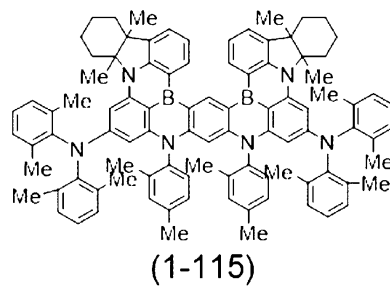
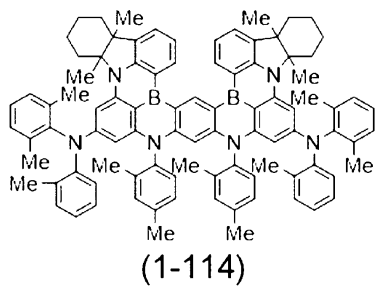
20

30

40

50

【化 3 9】



【 0 1 3 5 】

10

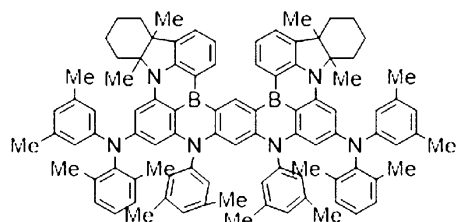
20

30

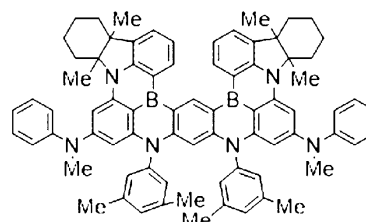
40

50

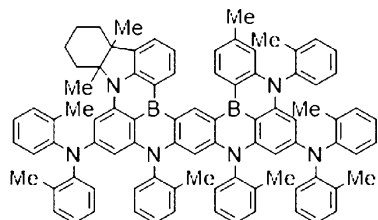
【化 4 0】



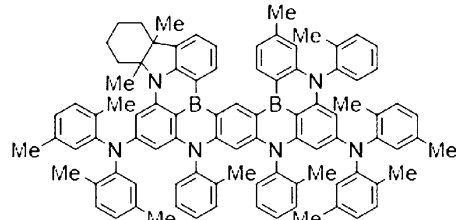
(1-124)



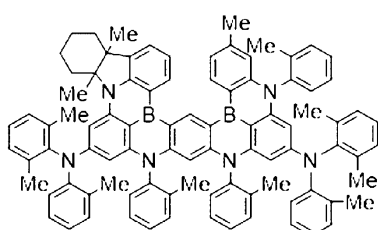
(1-125)



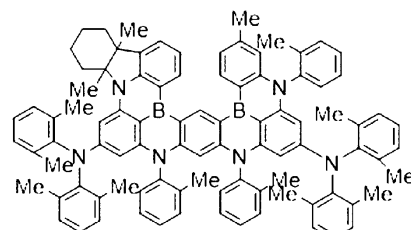
(1-131)



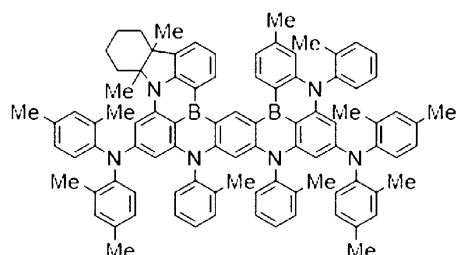
(1-132)



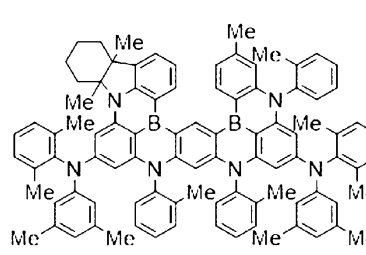
(1-133)



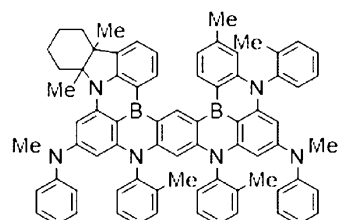
(1-134)



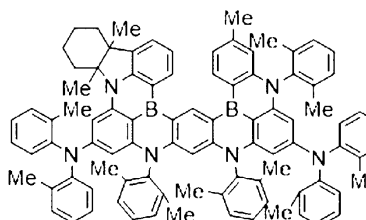
(1-135)



(1-136)



(1-137)



(1-138)

【 0 1 3 6】

10

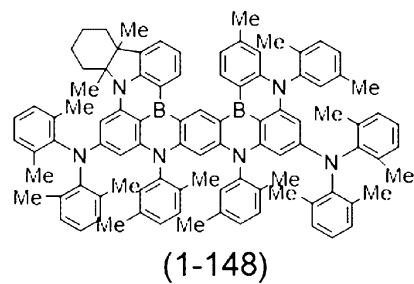
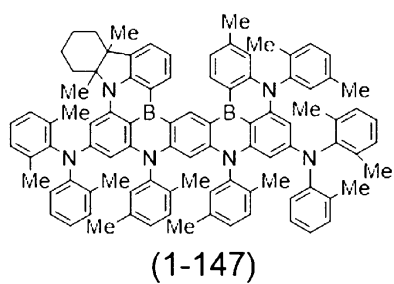
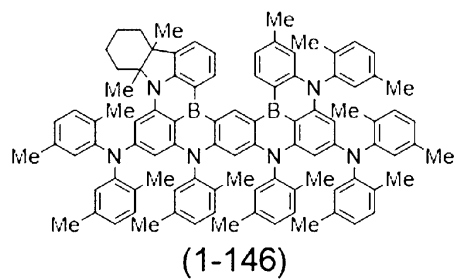
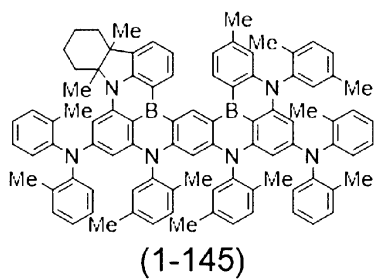
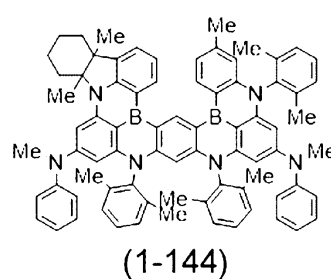
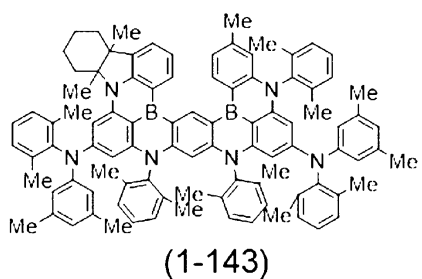
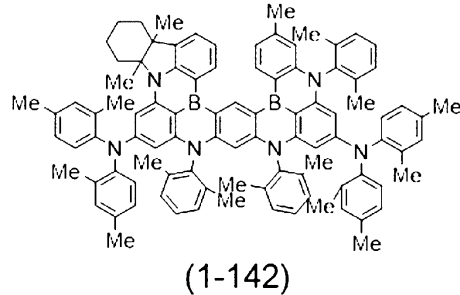
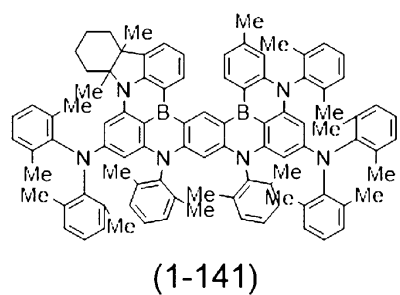
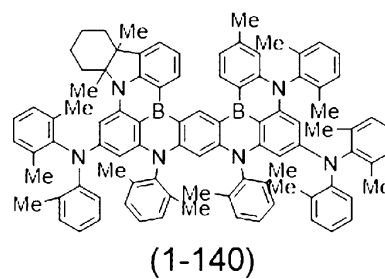
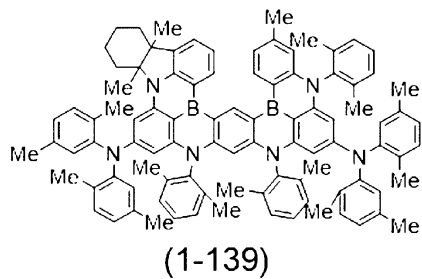
20

30

40

50

【化 4 1】



【 0 1 3 7 】

10

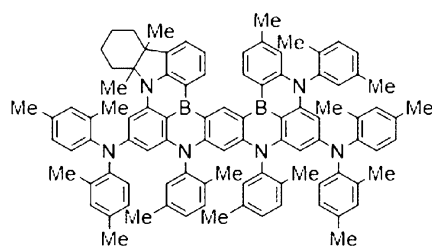
20

30

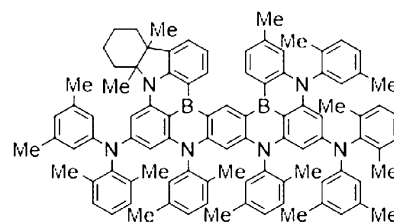
40

50

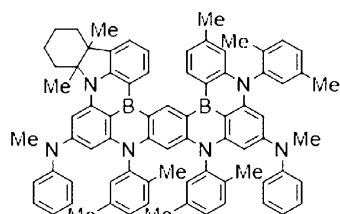
【化 4 2】



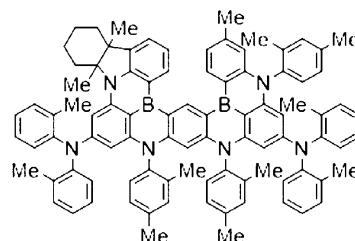
(1-149)



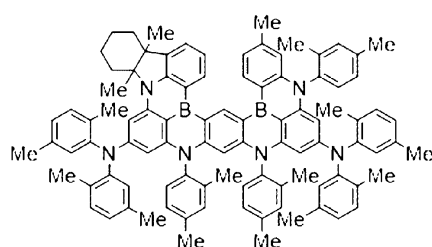
(1-150)



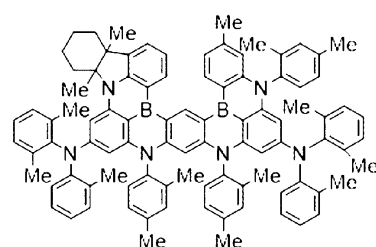
(1-151)



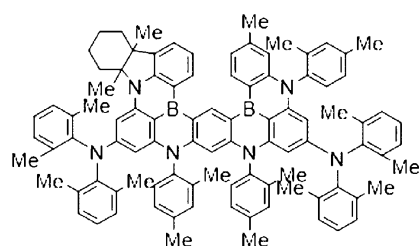
(1-152)



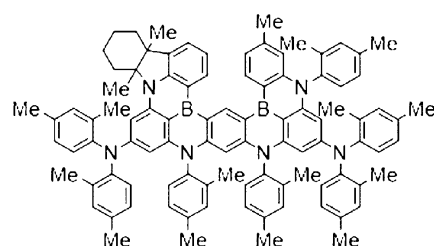
(1-153)



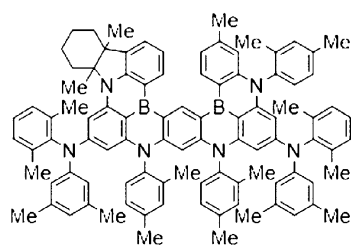
(1-154)



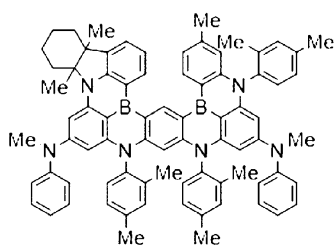
(1-155)



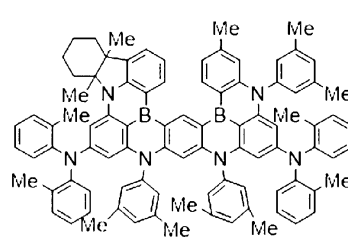
(1-156)



(1-157)



(1-158)



(1-159)

【 0 1 3 8 】

10

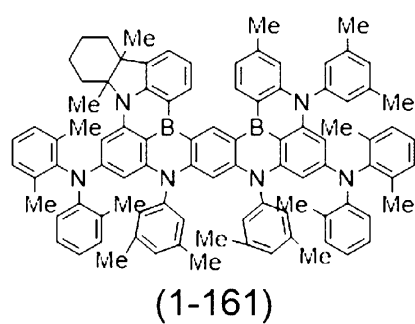
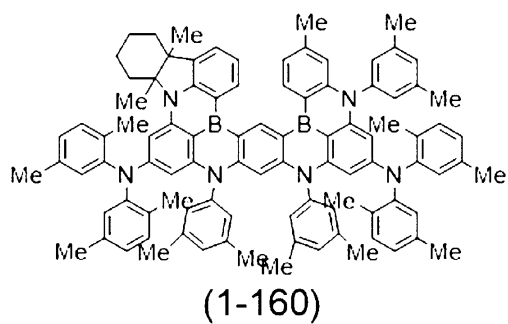
20

30

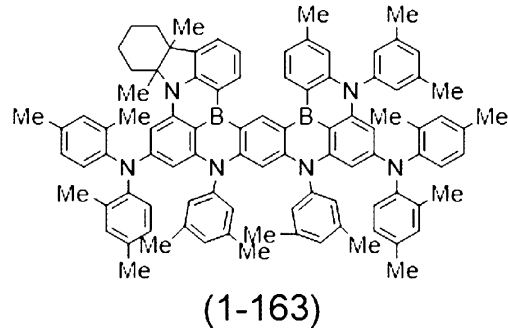
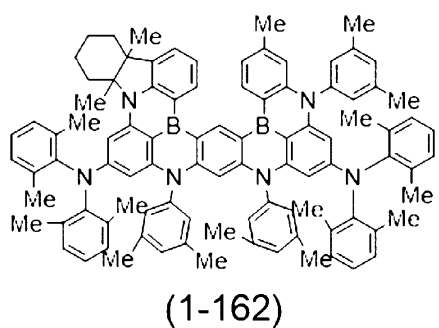
40

50

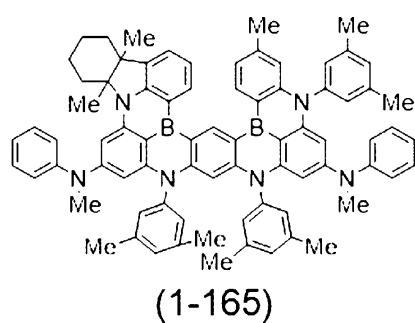
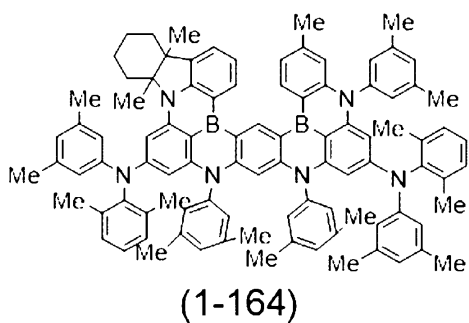
【化 4 3】



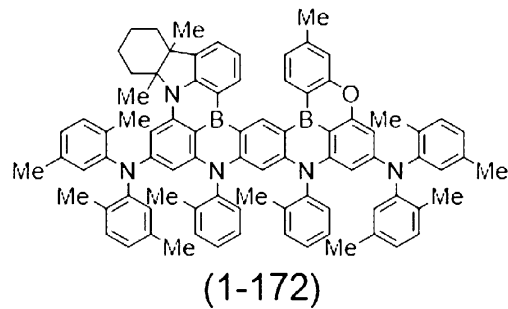
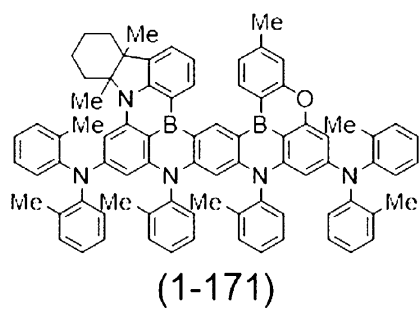
10



20



30

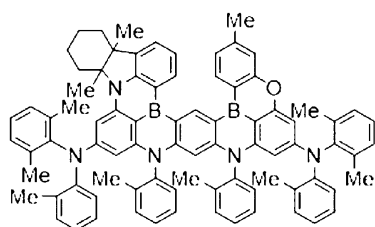


【 0 1 3 9 】

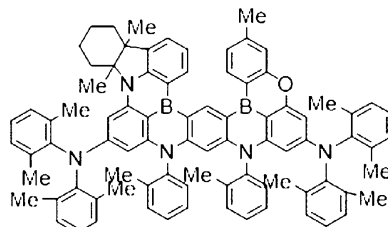
40

50

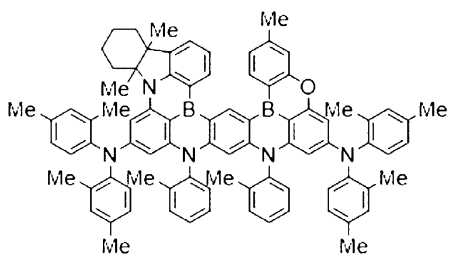
【化 4 4】



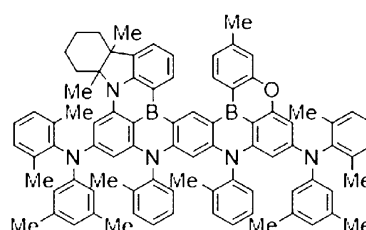
(1-173)



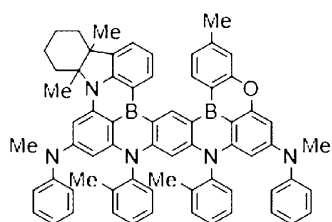
(1-174)



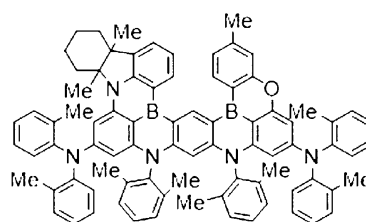
(1-175)



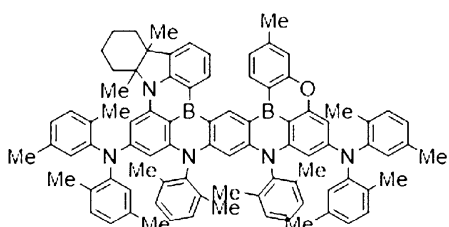
(1-176)



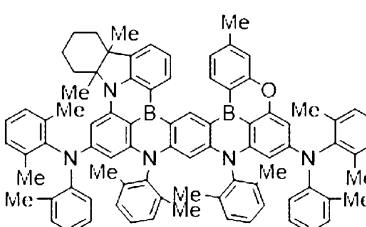
(1-177)



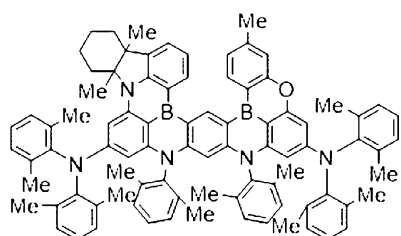
(1-178)



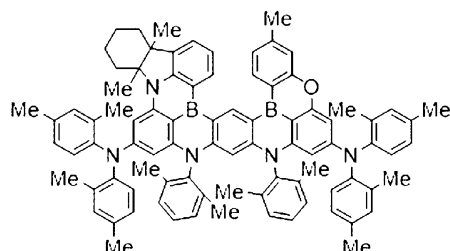
(1-179)



(1-180)



(1-181)



(1-182)

【 0 1 4 0 】

10

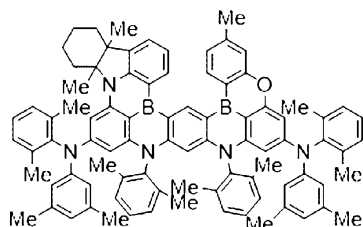
20

30

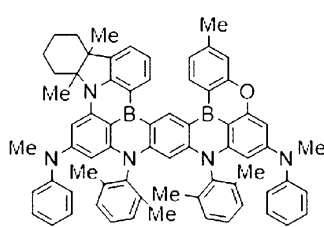
40

50

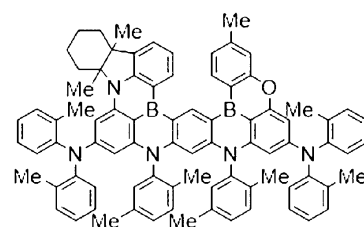
【化 4 5】



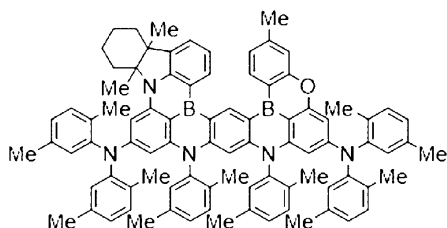
(1-183)



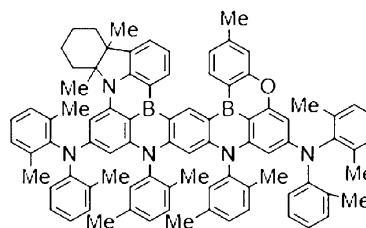
(1-184)



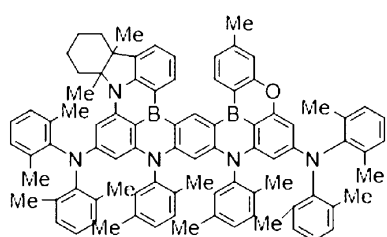
(1-185)



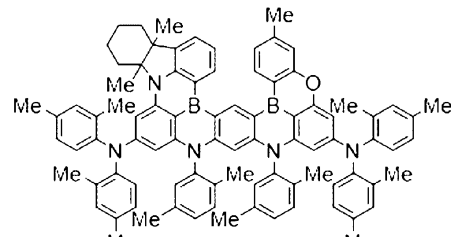
(1-186)



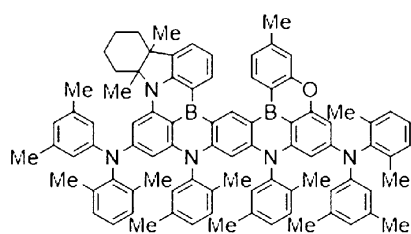
(1-187)



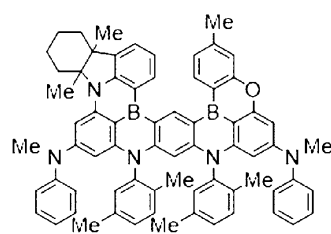
(1-188)



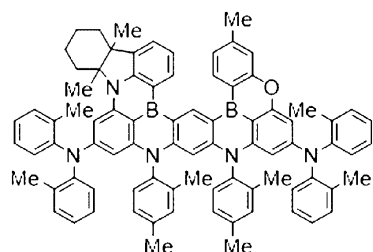
(1-189)



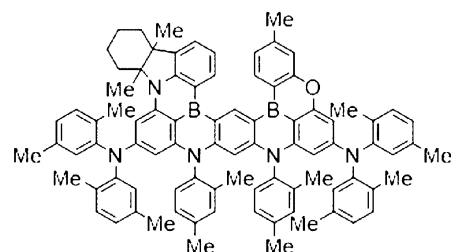
(1-190)



(1-191)



(1-192)



(1-193)

【 0 1 4 1】

10

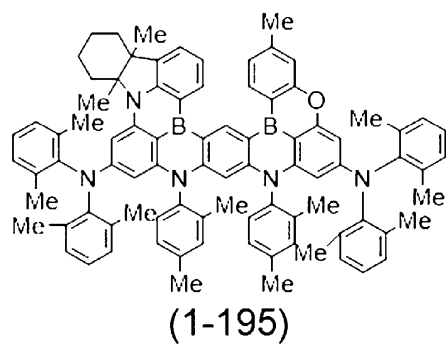
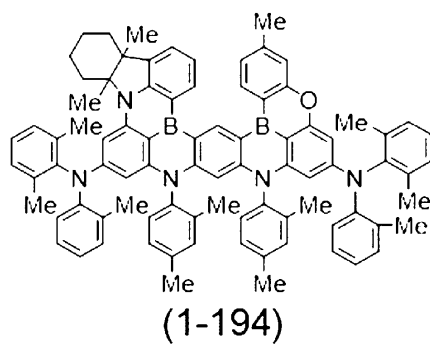
20

30

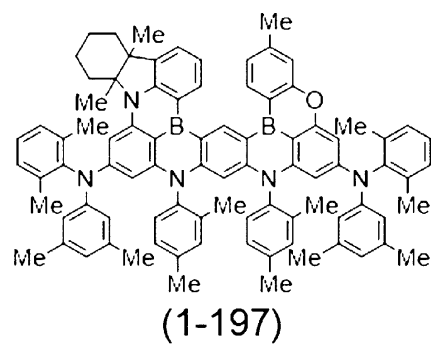
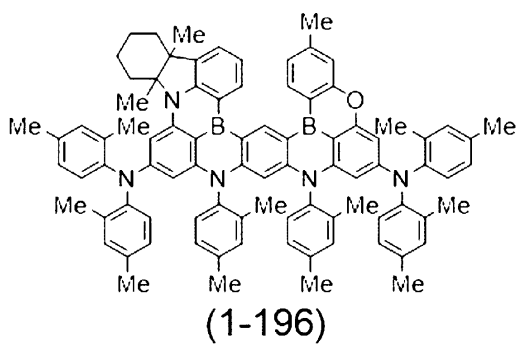
40

50

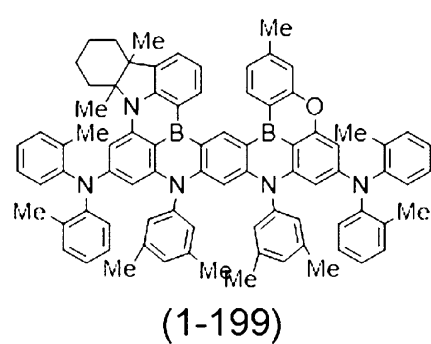
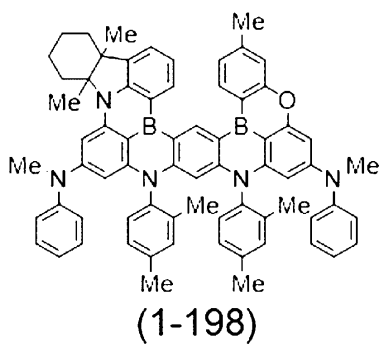
【化 4 6】



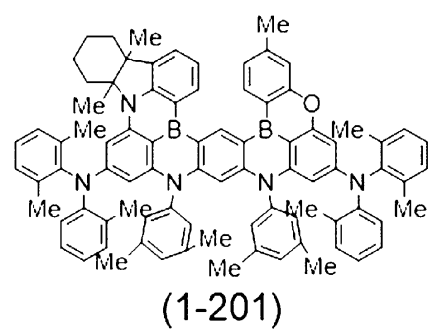
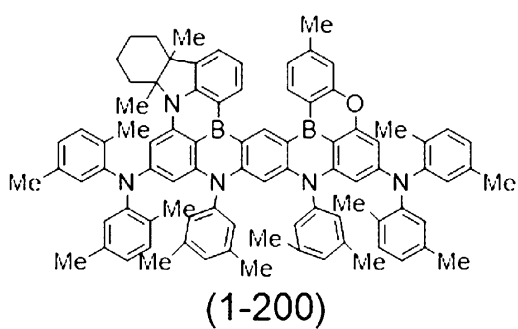
10



20



30

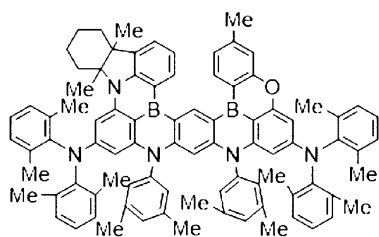


【 0 1 4 2】

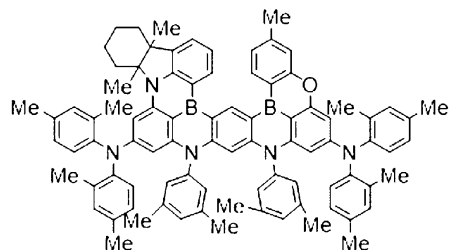
40

50

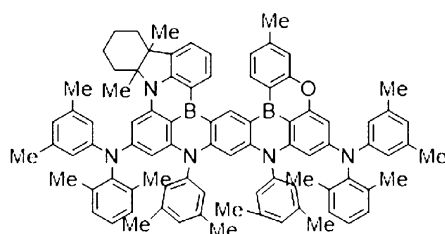
【化 4 7】



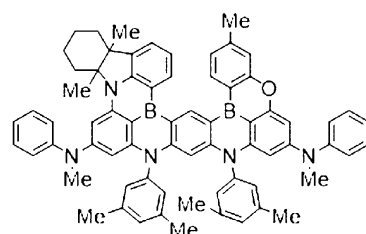
(1-202)



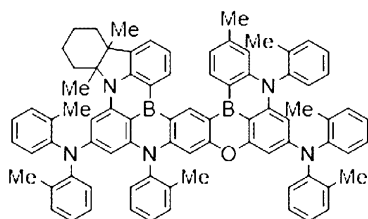
(1-203)



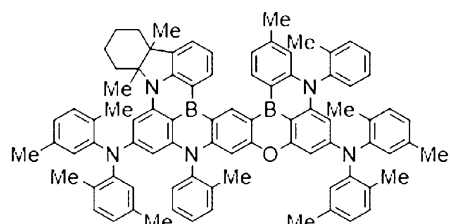
(1-204)



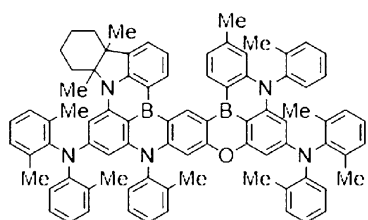
(1-205)



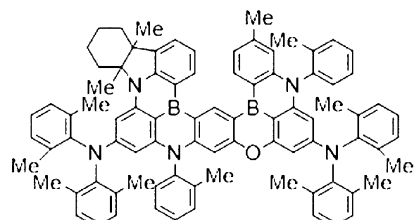
(1-211)



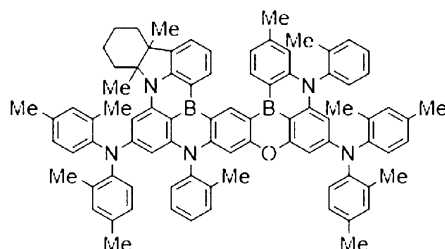
(1-212)



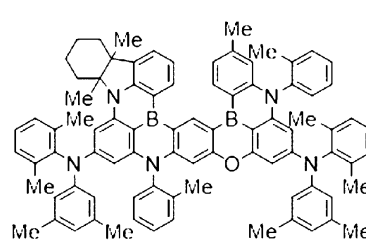
(1-213)



(1-214)



(1-215)



(1-216)

【 0 1 4 3 】

10

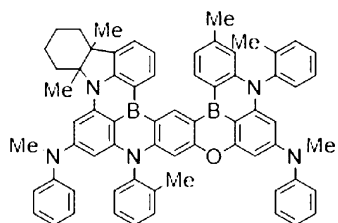
20

30

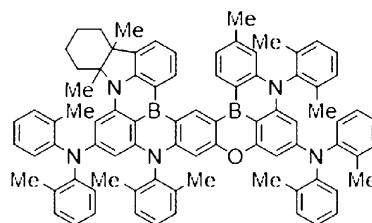
40

50

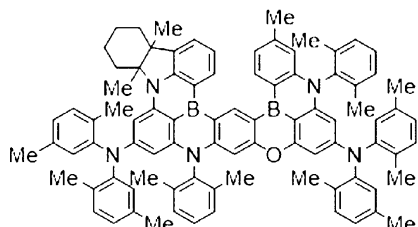
【化 4 8】



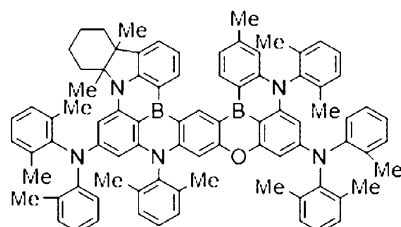
(1-217)



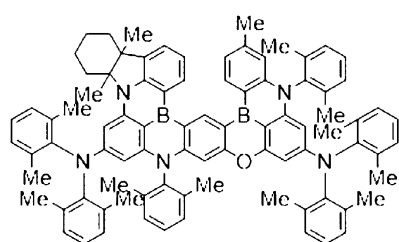
(1-218)



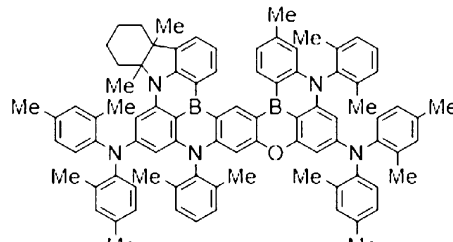
(1-219)



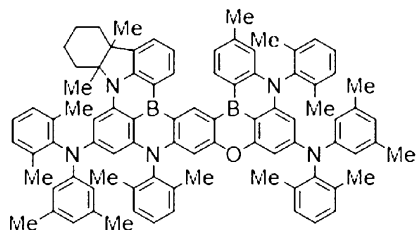
(1-220)



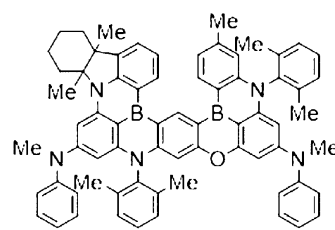
(1-221)



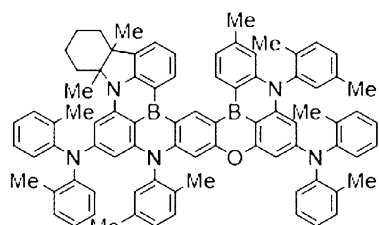
(1-222)



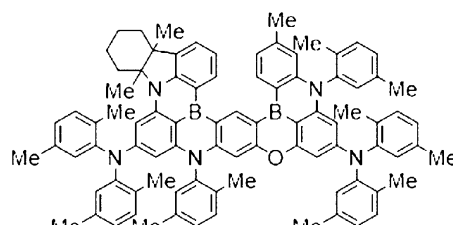
(1-223)



(1-224)



(1-225)



(1-226)

【 0 1 4 4】

10

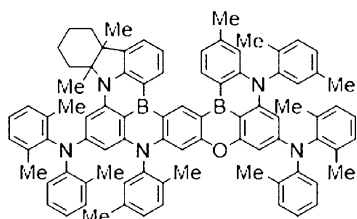
20

30

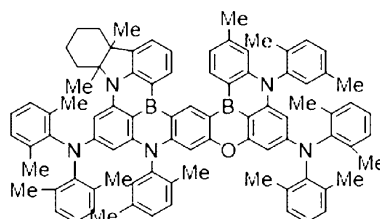
40

50

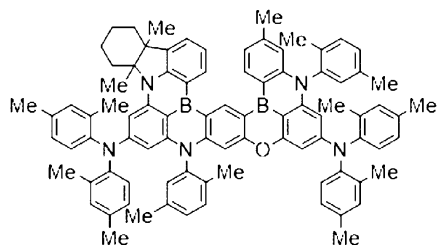
【化 4 9】



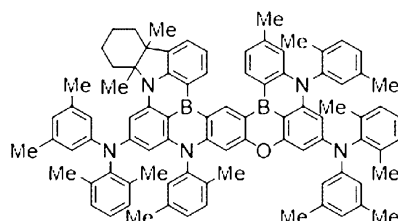
(1-227)



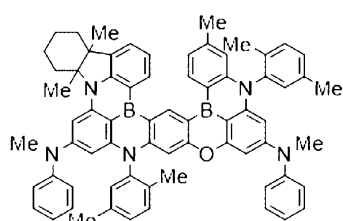
(1-228)



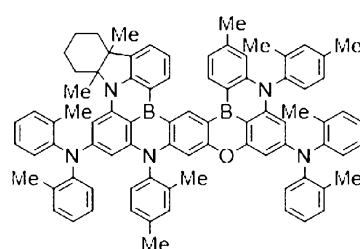
(1-229)



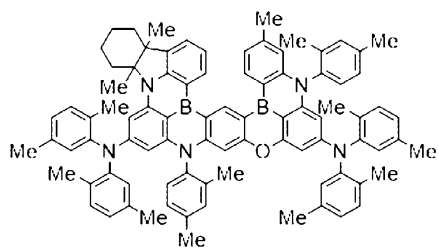
(1-230)



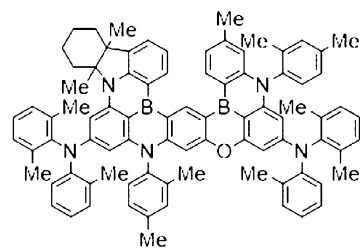
(1-231)



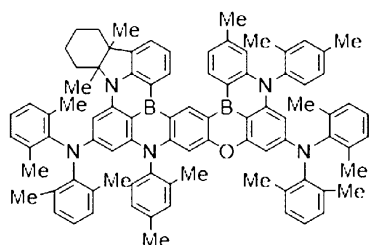
(1-232)



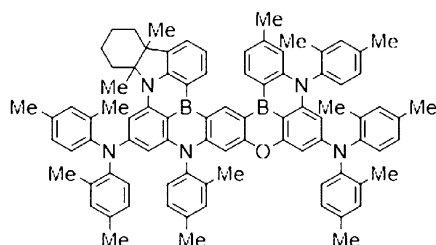
(1-233)



(1-234)



(1-235)



(1-236)

【 0 1 4 5】

10

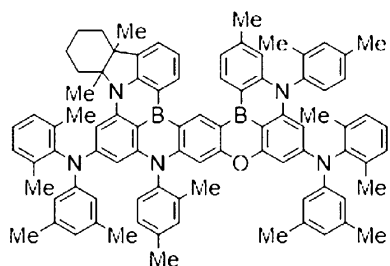
20

30

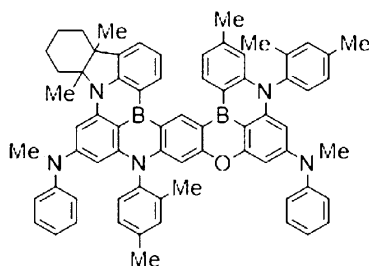
40

50

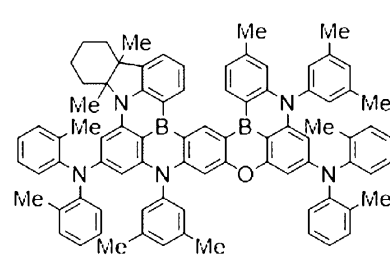
【化 5 0】



(1-237)

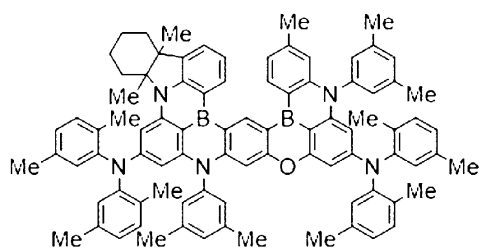


(1-238)

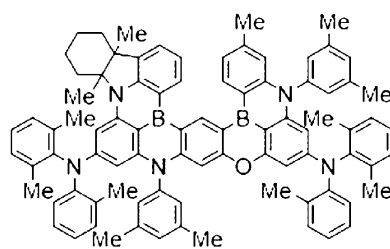


(1-239)

10

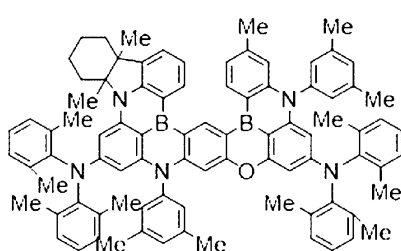


(1-240)

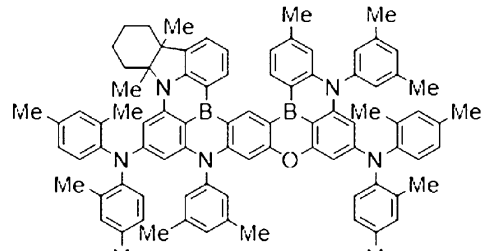


(1-241)

20

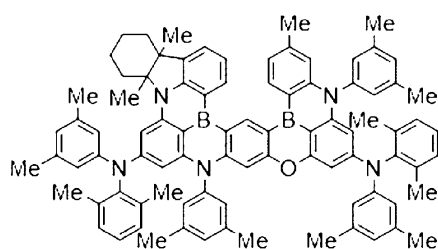


(1-242)

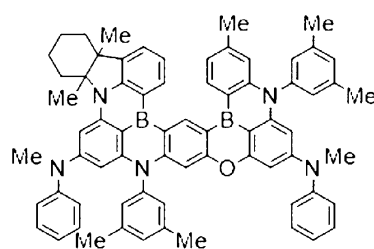


(1-243)

30



(1-244)



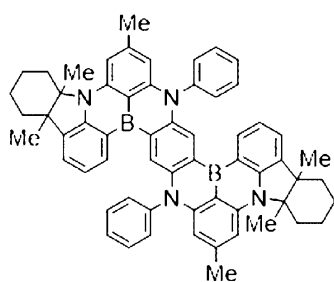
(1-245)

【 0 1 4 6】

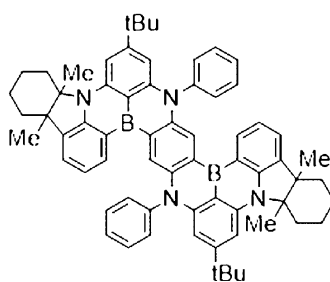
40

50

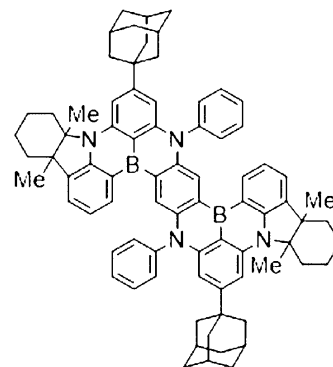
【化 5 1】



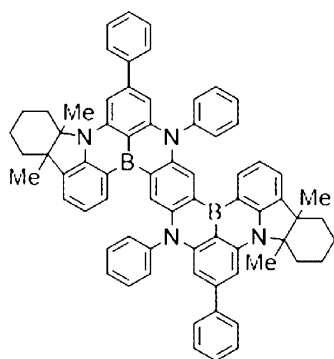
(1-251)



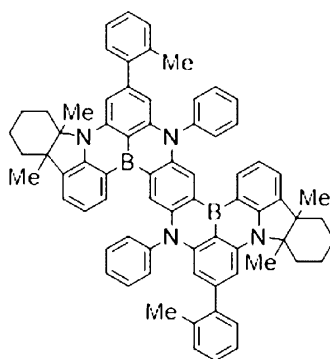
(1-252)



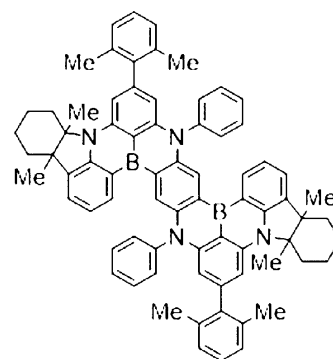
(1-253)



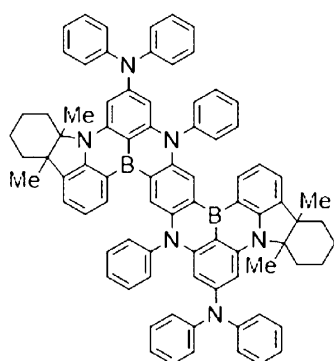
(1-254)



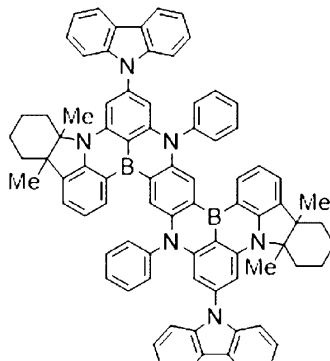
(1-255)



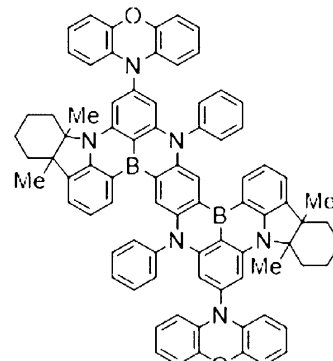
(1-256)



(1-257)



(1-258)



(1-259)

【 0 1 4 7 】

10

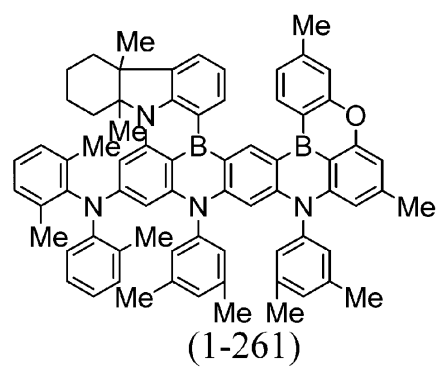
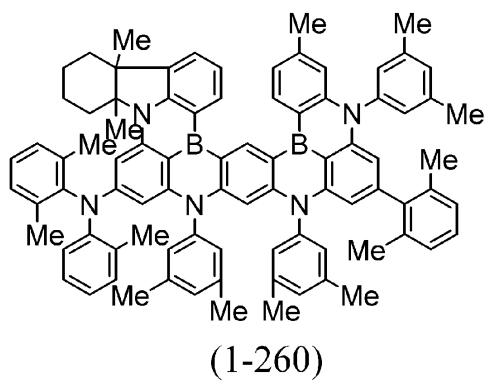
20

30

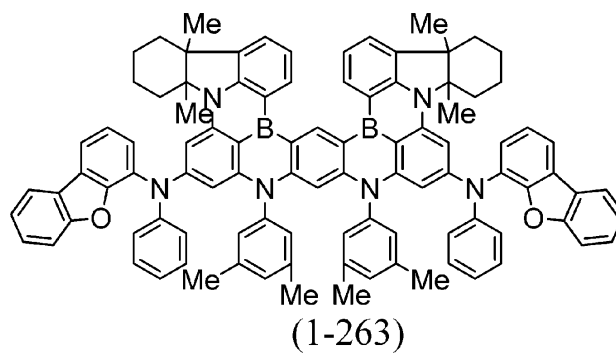
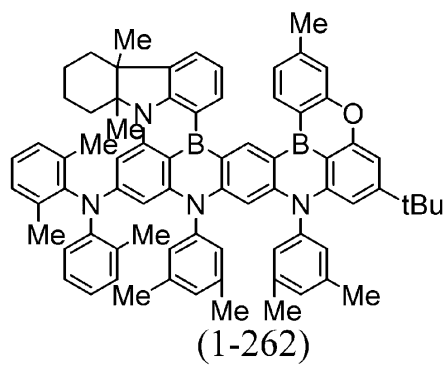
40

50

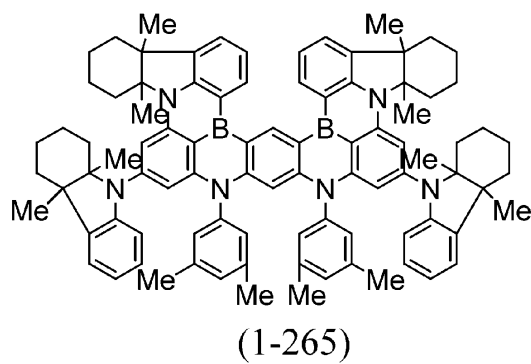
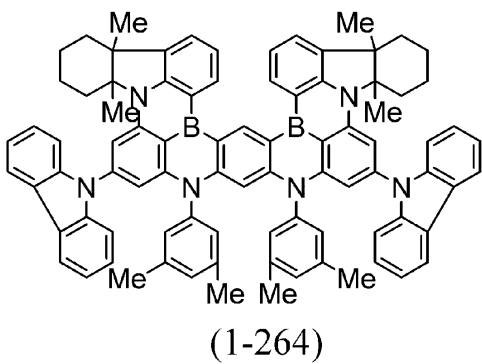
【化 5 2】



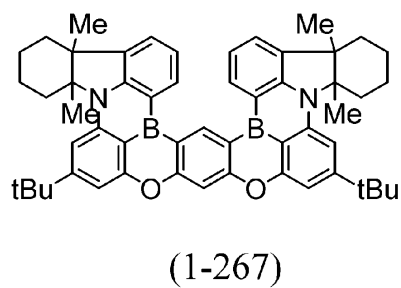
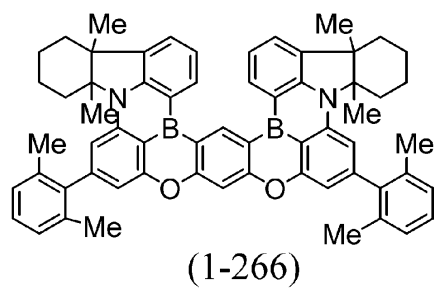
10



20



30

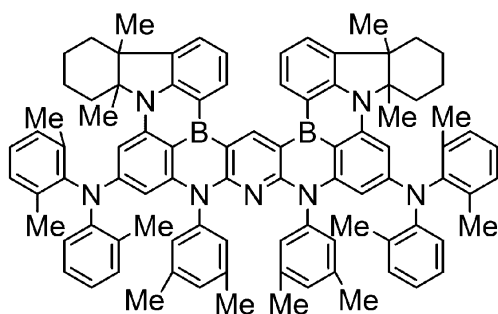


【 0 1 4 8 】

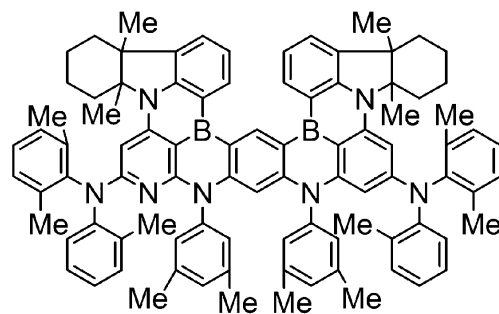
40

50

【化 5 3】

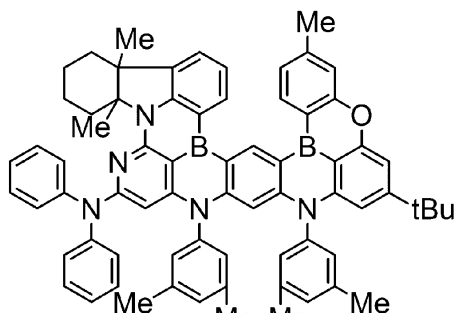


(1-268)

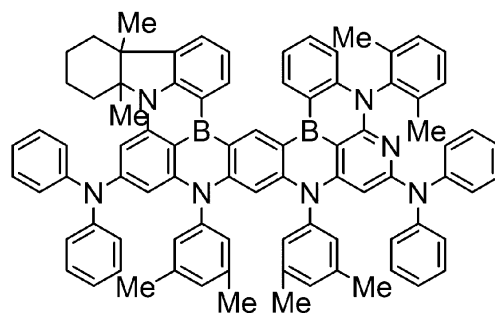


(1-269)

10

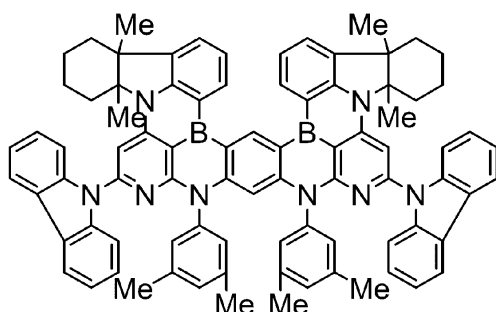


(1-270)

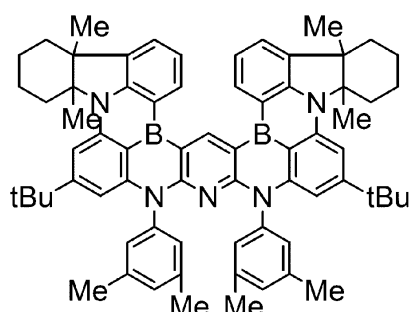


(1-271)

20

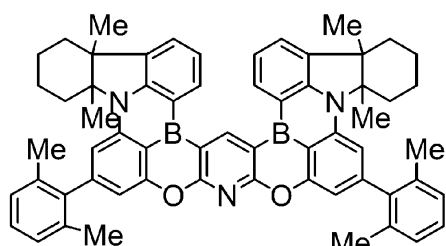


(1-272)

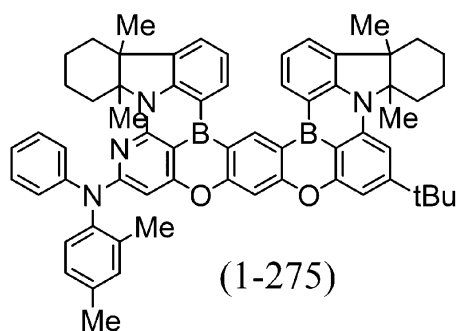


(1-273)

30



(1-274)



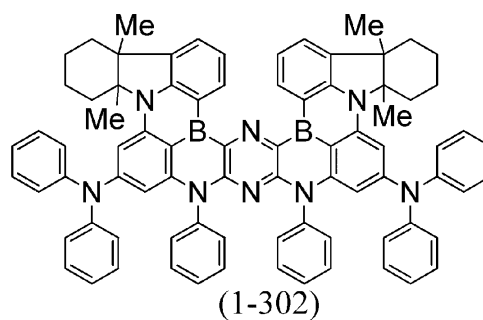
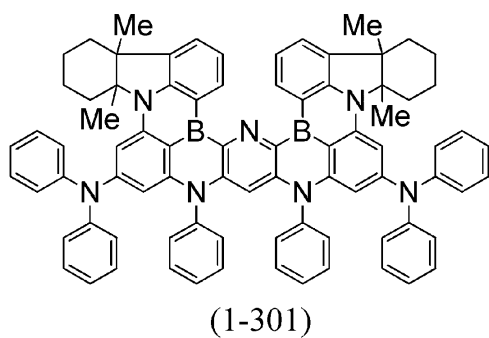
(1-275)

40

【 0 1 4 9 】

50

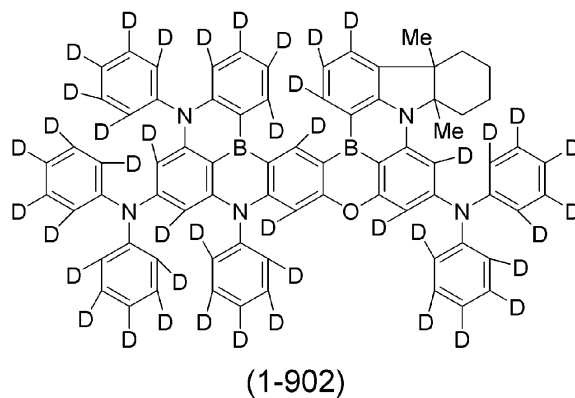
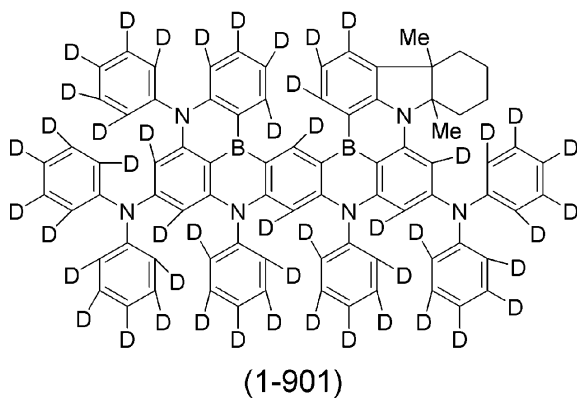
【化 5 4】



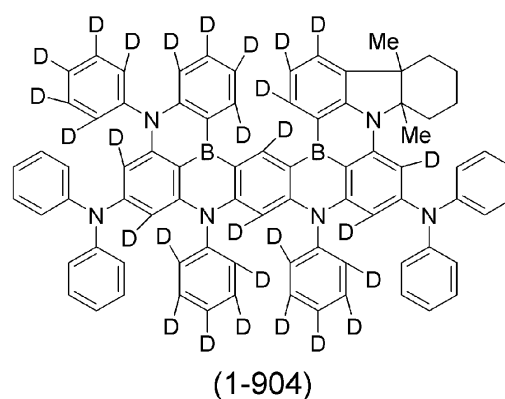
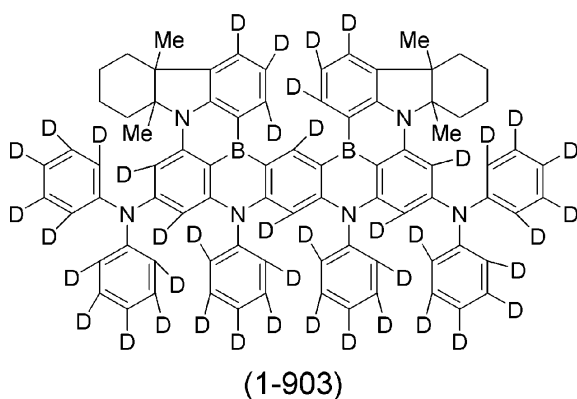
10

【 0 1 5 0】

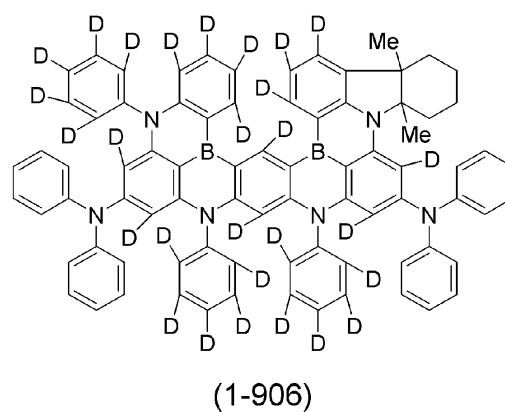
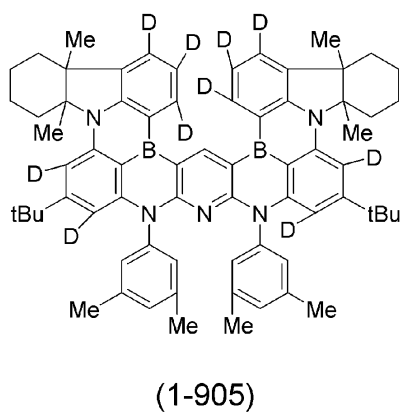
【化 5 5】



20



30



40

【 0 1 5 1】

式 (1 A) で表される部分構造および少なくとも 1 つの式 (1 B) で表される部分構造からなる多環芳香族化合物は、これらに反応性置換基が置換した反応性化合物をモノマーとして高分子化させた高分子化合物 (この高分子化合物を得るための前記モノマーは重合

50

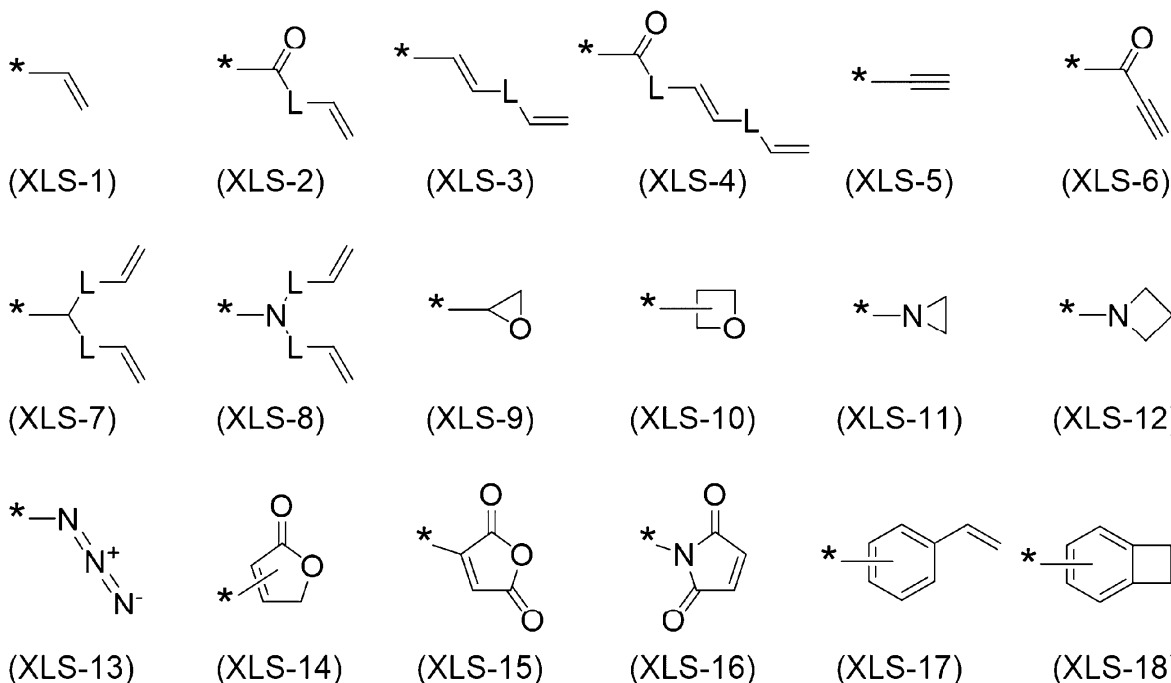
性置換基を有する)、もしくは当該高分子化合物をさらに架橋させた高分子架橋体(この高分子架橋体を得るための前記高分子化合物は架橋性置換基を有する)、または、主鎖型高分子と前記反応性化合物とを反応させたペンダント型高分子化合物(このペンダント型高分子化合物を得るための前記反応性化合物は反応性置換基を有する)、もしくは当該ペンダント型高分子化合物をさらに架橋させたペンダント型高分子架橋体(このペンダント型高分子架橋体を得るための前記ペンダント型高分子化合物は架橋性置換基を有する)としても、有機デバイス用材料、例えば、有機電界発光素子用材料、有機電界効果トランジスタ用材料または有機薄膜太陽電池用材料に用いることができる。

【0152】

上述した反応性置換基(前記重合性置換基、前記架橋性置換基、および、ペンダント型高分子を得るための反応性置換基を含み、以下、単に「反応性置換基」とも言う)としては、上記多環芳香族化合物を高分子量化できる置換基、そのようにして得られた高分子化合物をさらに架橋化できる置換基、また、主鎖型高分子にペンダント反応し得る置換基であれば特に限定されないが、アルケニル、アルキニル、シクロアルキルの不飽和体(例えばシクロブテニル)、シクロアルキルにおける少なくとも1つの $-CH_2-$ が $-O-$ で置換された基(例えばエポキシ)、縮合したシクロアルカンの不飽和体(例えば縮合したシクロブテン)などがあげられ、以下の構造の置換基が好ましい。各構造式中の*は結合位置を示す。

【0153】

【化56】



【0154】

Lは、それぞれ独立して、単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $>C=O$ 、 $-O-C(=O)-$ 、炭素数1~12のアルキレン、炭素数1~12のオキシャルキレンおよび炭素数1~12のポリオキシャルキレンである。上記置換基の中でも、式(XLS-1)、式(XLS-2)、式(XLS-3)、式(XLS-9)、式(XLS-10)または式(XLS-17)で表される基が好ましく、式(XLS-1)、式(XLS-3)または式(XLS-17)で表される基がより好ましい。

【0155】

このような高分子化合物、高分子架橋体、ペンダント型高分子化合物およびペンダント型高分子架橋体(以下、単に「高分子化合物および高分子架橋体」とも言う)の用途の詳細については後述する。

【0156】

2. 多環芳香族化合物の製造方法

式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる多環芳香族化合物は、基本的には、まずA環(a環)、B環(b環)、C環(c環)、 R^{XD} (D環、d環)、 R^{XE} (E環、e環)を結合基(Xを含む基)で結合させることで中間体を製造し(第1反応)、その後に、A環(a環)、B環(b環)、C環(c環)、 R^{XD} (D環、d環)、 R^{XE} (E環、e環)を結合基(Yを含む基)で結合させることで最終生成物を製造することができる(第2反応)。第1反応では、例えばエーテル化反応であれば、求核置換反応、ウルマン反応といった一般的反応が利用でき、アミノ化反応であればブッフバルト-ハートウィッグ反応といった一般的反応が利用できる。また、第2反応では、タンデムヘテロフリーデルクラフツ反応(連続的な芳香族求電子置換反応、以下同様)が利用できる。これらの製造方法については、国際公開第2015/102118号などの先行文献に記載の方法を参照できる。反応工程のどこかで、式(A10)で表される部分構造を有する原料を用いたり、式(A10)で表される部分構造を導入する工程を追加したりすることで、式(A10)で表される部分構造を有する化合物を製造することができる。式(A10)で表される部分構造は、フィッシャーのインドール合成および付加反応を用いることで合成できる。

10

【0157】

3. 有機デバイス

本発明に係る多環芳香族化合物は、有機デバイス用材料として用いることができる。有機デバイスとしては、例えば、有機電界発光素子、有機電界効果トランジスタまたは有機薄膜太陽電池などがあげられる。

20

【0158】

3-1. 有機電界発光素子

以下に、本実施形態に係る有機EL素子について図面に基づいて詳細に説明する。図1は、本実施形態に係る有機EL素子を示す概略断面図である。

【0159】

3-1-1. 有機電界発光素子の構造

図1に示された有機EL素子100は、基板101と、基板101上に設けられた陽極102と、陽極102の上に設けられた正孔注入層103と、正孔注入層103の上に設けられた正孔輸送層104と、正孔輸送層104の上に設けられた発光層105と、発光層105の上に設けられた電子輸送層106と、電子輸送層106の上に設けられた電子注入層107と、電子注入層107の上に設けられた陰極108とを有する。

30

【0160】

なお、有機EL素子100は、作製順序を逆にして、例えば、基板101と、基板101上に設けられた陰極108と、陰極108の上に設けられた電子注入層107と、電子注入層107の上に設けられた電子輸送層106と、電子輸送層106の上に設けられた発光層105と、発光層105の上に設けられた正孔輸送層104と、正孔輸送層104の上に設けられた正孔注入層103と、正孔注入層103の上に設けられた陽極102とを有する構成としてもよい。

40

【0161】

上記各層すべてがなくてはならないわけではなく、最小構成単位を陽極102と発光層105と陰極108とからなる構成として、正孔注入層103、正孔輸送層104、電子輸送層106、電子注入層107は任意に設けられる層である。また、上記各層は、それぞれ単一層からなってもよいし、複数層からなってもよい。

【0162】

有機EL素子を構成する層の態様としては、上述する「基板/陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極」の構成態様の他に、「基板/陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/正孔注入層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極」、「基板/陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層

50

／電子注入層／陰極」、「基板／陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極」、「基板／陽極／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極」、「基板／陽極／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極」、「基板／陽極／正孔輸送層／陰極」、「基板／陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極」、「基板／陽極／正孔注入層／発光層／電子輸送層／陰極」、「基板／陽極／発光層／電子輸送層／陰極」、「基板／陽極／発光層／電子注入層／陰極」の構成態様であってもよい。

【0163】

3-1-2. 有機電界発光素子における基板

基板101は、有機EL素子100の支持体であり、通常、石英、ガラス、金属、プラスチックなどが用いられる。基板101は、目的に応じて板状、フィルム状、またはシート状に形成され、例えば、ガラス板、金属板、金属箔、プラスチックフィルム、プラスチックシートなどが用いられる。なかでも、ガラス板、および、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂製の板が好ましい。ガラス基板であれば、ソーダライムガラスや無アルカリガラスなどが用いられ、また、厚みも機械的強度を保つのに十分な厚みがあればよいので、例えば、0.2mm以上あればよい。厚さの上限値としては、例えば、2mm以下、好ましくは1mm以下である。ガラスの材質については、ガラスからの溶出イオンが少ない方がよいので無アルカリガラスの方が好ましいが、 SiO_2 などのバリアコートをしたソーダライムガラスも市販されているのでこれを使用することができる。また、基板101には、ガスバリア性を高めるために、少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜などのガスバリア膜を設けてもよく、特にガスバリア性が低い合成樹脂製の板、フィルムまたはシートを基板101として用いる場合にはガスバリア膜を設けるのが好ましい。

【0164】

3-1-3. 有機電界発光素子における陽極

陽極102は、発光層105へ正孔を注入する役割を果たす。なお、陽極102と発光層105との間に正孔注入層103および／または正孔輸送層104が設けられている場合には、これらを介して発光層105へ正孔を注入することになる。

【0165】

陽極102を形成する材料としては、無機化合物および有機化合物があげられる。無機化合物としては、例えば、金属（アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、クロムなど）、金属酸化物（インジウムの酸化物、スズの酸化物、インジウム－スズ酸化物（ITO）、インジウム－亜鉛酸化物（IZO）など）、ハロゲン化金属（ヨウ化銅など）、硫化銅、カーボンブラック、ITOガラスやネサガラスなどがあげられる。有機化合物としては、例えば、ポリ（3－メチルチオフェン）などのポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリンなどの導電性ポリマーなどがあげられる。その他、有機EL素子の陽極として用いられている物質の中から適宜選択して用いることができる。

【0166】

透明電極の抵抗は、発光素子の発光に十分な電流が供給できればよいので限定されないが、発光素子の消費電力の観点からは低抵抗であることが望ましい。例えば、 $300\Omega/\square$ 以下のITO基板であれば素子電極として機能するが、現在では $10\Omega/\square$ 程度の基板の供給も可能になっていることから、例えば $100\sim 5\Omega/\square$ 、好ましくは $50\sim 5\Omega/\square$ の低抵抗品を使用することが特に望ましい。ITOの厚みは抵抗値に合わせて任意に選ぶ事ができるが、通常 $50\sim 300\text{nm}$ の間で用いられることが多い。

【0167】

3-1-4. 有機電界発光素子における正孔注入層、正孔輸送層

正孔注入層103は、陽極102から移動してくる正孔を、効率よく発光層105内または正孔輸送層104内に注入する役割を果たす。正孔輸送層104は、陽極102から注入された正孔または陽極102から正孔注入層103を介して注入された正孔を、効率よく発光層105に輸送する役割を果たす。正孔注入層103および正孔輸送層104は、それぞれ、正孔注入・輸送材料の一種または二種以上を積層、混合するか、正孔注入・

輸送材料と高分子結着剤の混合物により形成される。また、正孔注入・輸送材料に塩化鉄(III)のような無機塩を添加して層を形成してもよい。

【0168】

正孔注入・輸送材料としては電界を与えられた電極間において正極からの正孔を効率よく注入・輸送することが必要で、正孔注入効率が高く、注入された正孔を効率よく輸送することが望ましい。そのためにはイオン化ポテンシャルが小さく、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが好ましい。

【0169】

正孔注入層103および正孔輸送層104を形成する材料としては、光導電材料において、正孔の電荷輸送材料として従来から慣用されている化合物、p型半導体、有機EL素子の正孔注入層および正孔輸送層に使用されている公知の化合物の中から任意の化合物を選択して用いることができる。それらの具体例は、カルバゾール誘導体(N-フェニルカルバゾール、ポリビニルカルバゾールなど)、ビス(N-アリールカルバゾール)またはビス(N-アルキルカルバゾール)などのビスカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体(芳香族第3級アミノを主鎖または側鎖に持つポリマー、1,1'-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(3-メチルフェニル)-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジナフチル-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(3-メチルフェニル)-4,4'-ジフェニル-1,1'-ジアミン、N,N'-ジナフチル-N,N'-ジフェニル-4,4'-ジフェニル-1,1'-ジアミン、N⁴,N⁴'-ジフェニル-N⁴,N⁴'-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン、N⁴,N⁴',N⁴'-テトラ[1,1'-ビフェニル]-4-イル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン、4,4',4''-トリス(3-メチルフェニル(フェニル)アミノ)トリフェニルアミン、N-([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-9,9-ジメチル-N-(4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル)-9H-フルオレン-2-アミン、N,N'-ビス(4-(ジベンゾ[b,d]フラン-4-イル)フェニル)-[1,1':4',1''-テルフェニル]-4-アミンなどのトリフェニルアミン誘導体、スターバーストアミン誘導体など)、スチルベン誘導体、フタロシアニン誘導体(無金属、銅フタロシアニンなど)、ピラゾリン誘導体、ヒドラゾン系化合物、ベンゾフラン誘導体やチオフエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、キノキサリン誘導体(例えば、1,4,5,8,9,12-ヘキサアザトリフェニレン-2,3,6,7,10,11-ヘキサカルボニトリルなど)、ポルフィリン誘導体などの複素環化合物、ポリシランなどである。ポリマー系では前記単量体を側鎖に有するポリカーボネートやスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾールおよびポリシランなどが好ましいが、発光素子の作製に必要な薄膜を形成し、陽極から正孔が注入できて、さらに正孔を輸送できる化合物であれば特に限定されない。

【0170】

また、有機半導体の導電性は、ドーピングにより、強い影響を受けることも知られている。有機半導体マトリックス物質は、電子供与性の良好な化合物、または、電子受容性の良好な化合物から構成されている。電子供与物質のドーピングのために、テトラシアノキノンジメタン(TCNQ)または2,3,5,6-テトラフルオロテトラシアノー-1,4-ベンゾキノンジメタン(F4TCNQ)などの強い電子受容体が知られている(例えば、文献「M.Pfeiffer,A.Beyer,T.Fritz,K.Leo,Appl.Phys.Lett.,73(22),3202-3204(1998)」および文献「J.Blochwitz,M.Pfeiffer,T.Fritz,K.Leo,Appl.Phys.Lett.,73(6),729-731(1998)」を参照)。これらは、電子供与型ベース物質(正孔輸送物質)における電子移動プロセスによって、いわゆる正孔を生成する。正孔の数および移動度によって、ベース物質の伝導性が、かなり大きく変化する。正孔輸送特性を有するマトリックス物質としては、例えばベンジジン誘導体(TPDなど)またはスターバーストアミン誘導体(TDATAなど)、または、特定の金属フタロシアニン(特に、亜鉛フタロシアニン(

10

20

30

40

50

ZnPC)など)が知られている(特開2005-167175号公報)。

【0171】

上述した正孔注入層用材料および正孔輸送層用材料は、これらに反応性置換基が置換した反応性化合物をモノマーとして高分子化させた高分子化合物、もしくはその高分子架橋体、または、主鎖型高分子と前記反応性化合物とを反応させたペンダント型高分子化合物、もしくはそのペンダント型高分子架橋体としても、正孔層用材料に用いることができる。この場合の反応性置換基としては、式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる多環芳香族化合物での説明を引用できる。

このような高分子化合物および高分子架橋体の用途の詳細については後述する。

【0172】

3-1-5. 有機電界発光素子における発光層

発光層105は、電界を与えられた電極間において、陽極102から注入された正孔と、陰極108から注入された電子とを再結合させることにより発光するものである。発光層105を形成する材料としては、正孔と電子との再結合によって励起されて発光する化合物(発光性化合物)であればよく、安定な薄膜形状を形成することができ、かつ、固体状態で強い発光(蛍光)効率を示す化合物が好ましい。発光層は単一層でも複数層からなってもどちらでもよく、それぞれ発光層用材料(ホスト材料、ドーパント材料)により形成される。ホスト材料とドーパント材料は、それぞれ一種類であっても、複数の組み合わせであっても、いずれでもよい。例えば、ドーパント材料として、エミッティングドーパントおよびアシスティングドーパントを用いてもよい。ドーパント材料はホスト材料の全体に含まれていても、部分的に含まれていても、いずれであってもよい。ドーピング方法としては、ホスト材料との共蒸着法によって形成することができるが、ホスト材料と予め混合してから同時に蒸着してもよい。また、発光層は、有機溶媒に材料を溶解して調製した発光層形成用組成物を用いた湿式成膜法により形成することもできる。

【0173】

本発明の多環芳香族化合物は、有機電界発光素子の発光層の形成材料として好ましく用いることができる。本発明の多環芳香族化合物は、発光層におけるエミッティングドーパントまたはアシスティングドーパントとして用いることがより好ましく、エミッティングドーパントとして用いることがさらに好ましい。

【0174】

本発明の多環芳香族化合物を含む発光層は、ホスト化合物を含んでもよい。ここで、ホスト化合物は、1種類であっても2種類以上であってもよい。

また、発光層は単一層でも複数層からなってもどちらでもよい。また、ホスト化合物、エミッティングドーパント材料、およびアシスティングドーパント材料は、同一の層内に含まれていてもよく、複数層に少なくとも1成分ずつ含まれていてもよい。発光層が含むホスト化合物およびドーパント材料(エミッティングドーパントまたはアシスティングドーパント)は、それぞれ一種類であっても、複数の組み合わせであっても、いずれでもよい。アシスティングドーパントおよびエミッティングドーパントは、マトリックスとしてのホスト化合物中に、全体的に含まれていてもよいし、部分的に含まれていてもよい。

【0175】

ホスト材料の使用量はホスト材料の種類によって異なり、そのホスト材料の特性に合わせて決めればよい。ホスト材料の使用量の目安は、好ましくは発光層用材料全体の50~99.999質量%であり、より好ましくは80~99.95質量%であり、さらに好ましくは90~99.9質量%である。

【0176】

ドーパント材料の使用量はドーパント材料の種類によって異なり、そのドーパント材料の特性に合わせて決めればよい。ドーパントの使用量の目安は、好ましくは発光層用材料全体の0.001~50質量%であり、より好ましくは0.05~20質量%であり、さらに好ましくは0.1~10質量%である。上記の範囲であれば、例えば、濃度消光現象を防止できるという点で好ましい。

10

20

30

40

50

【0177】

一方、TADF材料をドーパント材料として用いた有機電界発光素子においては、ドーパント材料の使用量は低濃度である方が濃度消光現象を防止できるという点で好ましいが、ドーパント材料の使用量が高濃度である方が熱活性型遅延蛍光機構の効率の点からは好ましい。さらには、TADF材料をアシスティングドーパントとして用いた有機電界発光素子においては、アシスティングドーパントの熱活性型遅延蛍光機構の効率の点からは、アシスティングドーパントの使用量に比べてエミッティングドーパントの使用量が低濃度であることが好ましい。

【0178】

アシスティングドーパント材料が使用される場合における、ホスト材料、エミッティングドーパントおよびアシスティングドーパントの使用量の目安は、それぞれ、発光層用材料全体の40～99.999質量%、59～1質量%および20～0.001質量%であり、好ましくは、それぞれ、60～99.99質量%、39～5質量%および10～0.01質量%であり、より好ましくは、70～99.95質量%、29～10質量%および5～0.05質量%である。

【0179】

3-1-5-1. ホスト化合物

ホスト材料としては、以前から発光体として知られていたアントラセンやピレンなどの縮合環誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体やジスチリルベンゼン誘導体などのビススチリル誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、フルオレン誘導体、ベンゾフルオレン誘導体などがあげられる。

【0180】

ホスト材料のT1エネルギーは、発光層内でのTADFの発生を阻害せず促進させる観点から、発光層内において最も高いT1エネルギーを有するドーパントまたはアシスティングドーパントのT1エネルギーに比べて高い方が好ましく、具体的には、ホストのT1エネルギーは、0.01 eV以上が好ましく、0.03 eV以上がより好ましく、0.1 eV以上がさらに好ましい。

また、ホスト材料にTADF活性な化合物を用いてもよい。

【0181】

ホスト材料としては、例えば、下記式(H1)で表される化合物、下記式(H2)で表される化合物、下記式(H3)で表される化合物、下記式(H4)で表される構造を含む化合物、下記式(H5)で表される化合物、および下記式(H6)で表される化合物があげられる。

10

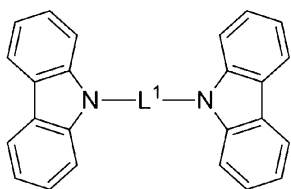
20

30

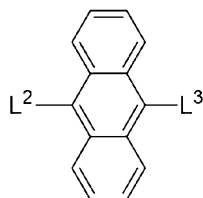
40

50

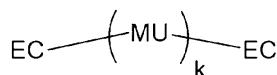
【化 5 7】



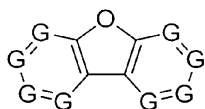
(H1)



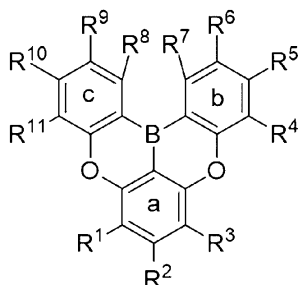
(H2)



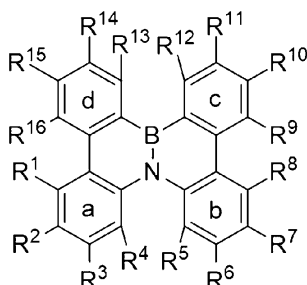
(H3)



(H4)



(H5)

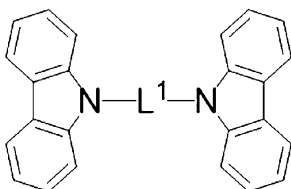


(H6)

【 0 1 8 2】

3-1-5-1-1. 式 (H1) で表される化合物

【化 5 8】



(H1)

【 0 1 8 3】

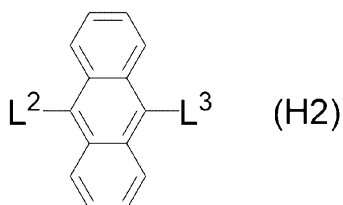
式 (H1) 中、 L^1 は炭素数 6 ～ 24 のアリーレンであり、炭素数 6 ～ 16 のアリーレンが好ましく、炭素数 6 ～ 12 のアリーレンがより好ましく、炭素数 6 ～ 10 のアリーレンが特に好ましく、具体的には、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、テルフェニル環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環、ピレン環、ナフタセン環、ペリレン環およびペンタセン環などの二価の基があげられる。

式 (H1) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素は、炭素数 1 ～ 6 のアルキル、炭素数 3 ～ 14 のシクロアルキル、シアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されている。

【 0 1 8 4】

3-1-5-1-2. 式 (H2) で表される化合物

【化 5 9】



(H2)

10

20

30

40

50

【0185】

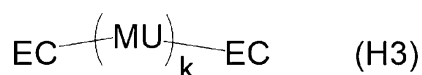
式(H2)中、 L^2 および L^3 は、それぞれ独立して、炭素数6～30のアリールまたは炭素数2～30のヘテロアリールである。アリールとしては、炭素数6～24のアリールが好ましく、炭素数6～16のアリールがより好ましく、炭素数6～12のアリールがさらに好ましく、炭素数6～10のアリールが特に好ましく、具体的には、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、テルフェニル環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、トリフェニレン環、ピレン環、ナフタセン環、ペリレン環およびペンタセン環などの一価の基があげられる。ヘテロアリールとしては、炭素数2～25のヘテロアリールが好ましく、炭素数2～20のヘテロアリールがより好ましく、炭素数2～15のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数2～10のヘテロアリールが特に好ましく、具体的には、ピロール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、ピラゾール環、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、インドール環、イソインドール環、1H-インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、1H-ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シンノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、プリン環、プテリジン環、カルバゾール環、アクリジン環、フェノキサチイン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、フェナジン環、インドリジン環、フラン環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、チオフェン環、ベンゾチオフェン環、ジベンゾチオフェン環、フラザン環、オキサジアゾール環およびチアントレン環などの一価の基があげられる。

式(H2)で表される化合物における少なくとも1つの水素は、炭素数1～6のアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、シアノ、ハロゲンまたは重水素で置換されていてよい。

【0186】

3-1-5-1-3. 式(H3)で表される化合物

【化60】



【0187】

式(H3)において、

MUはそれぞれ独立して2価の芳香族基、ECはそれぞれ独立して1価の芳香族基であり、 k は2～50000の整数である。

【0188】

より具体的には、

MUは、それぞれ独立して、アリーレン、ヘテロアリーレン、ジアリーレンアリールアミノ、ジアリーレンアリールボリル、オキサボリン-ジイル、アザボリン-ジイルであり、

ECは、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシであり、

MUおよびECにおける少なくとも1つの水素はさらに、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、アルキルおよびシクロアルキルで置換されていてよく、

k は2～50000の整数である。

k は20～50000の整数であることが好ましく、100～50000の整数であることがより好ましい。

【0189】

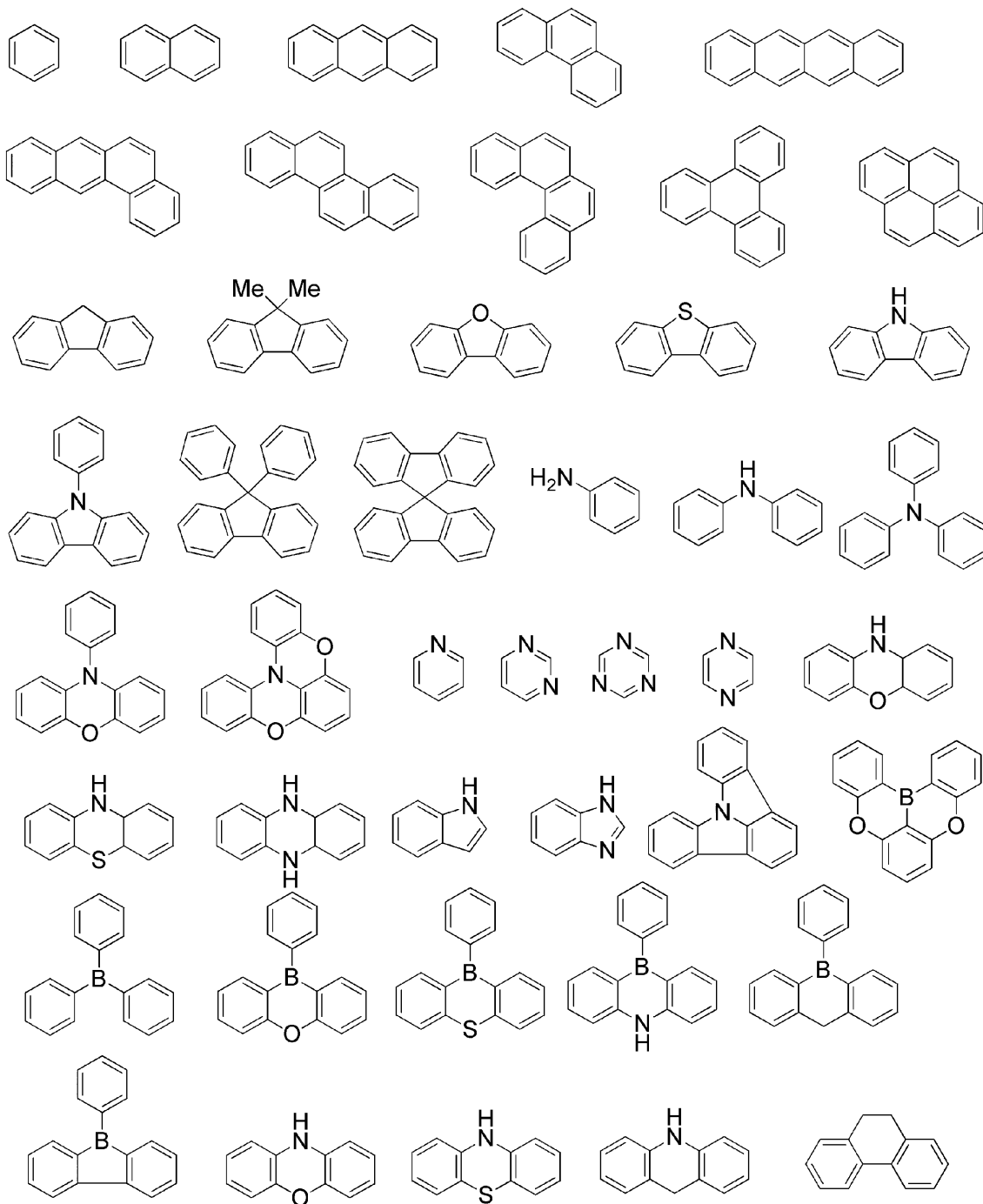
式(H3)中のMUおよびECにおける少なくとも1つの水素は、炭素数1～24のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、ハロゲンまたは重水素で置換されていてよく、さらに、前記アルキルにおける任意の $-CH_2-$ は $-O-$ または $-Si(CH_3)_2-$ で置換されていてよく、前記アルキルにおける式(H3)中のECに直結している $-C$

H₂を除く任意の-C H₂-は炭素数6～24のアリーレンで置換されていてもよく、前記アルキルにおける任意の水素はフッ素で置換されていてもよい。

【0190】

MUとしては、例えば、以下の構造の2価の誘導体（例えば以下の構造のいずれかの化合物から任意の2つの水素原子を除いて表される2価の基、以下の構造のいずれかの化合物から任意の2つの水素原子を除いて表される2価の基の2つ以上の組み合わせから構成される2価の基、それらの基における水素の少なくとも1つがアルキル等で置換された2価の基など）があげられる。

【化61】

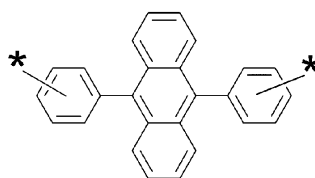


【0191】

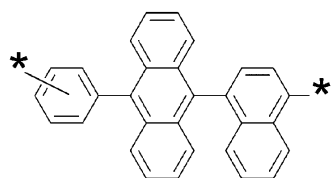
より具体的には、以下のいずれかの構造を有する2価の基があげられる。これらにおいて、MUは*において他のMUまたはECと結合する。

【0192】

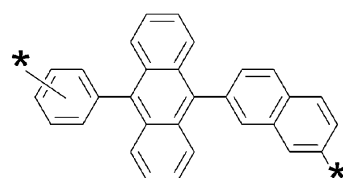
【化 6 2】



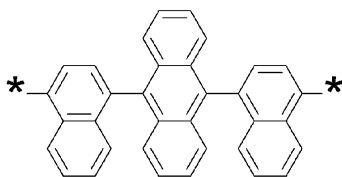
(MU-1-1)



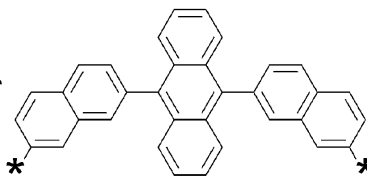
(MU-1-2)



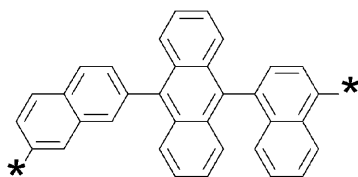
(MU-1-3)



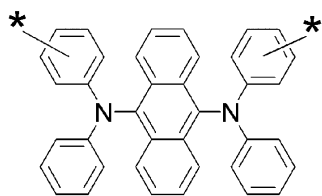
(MU-1-4)



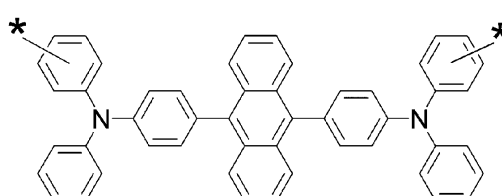
(MU-1-5)



(MU-1-6)



(MU-1-11)



(MU-1-12)

【 0 1 9 3 】

10

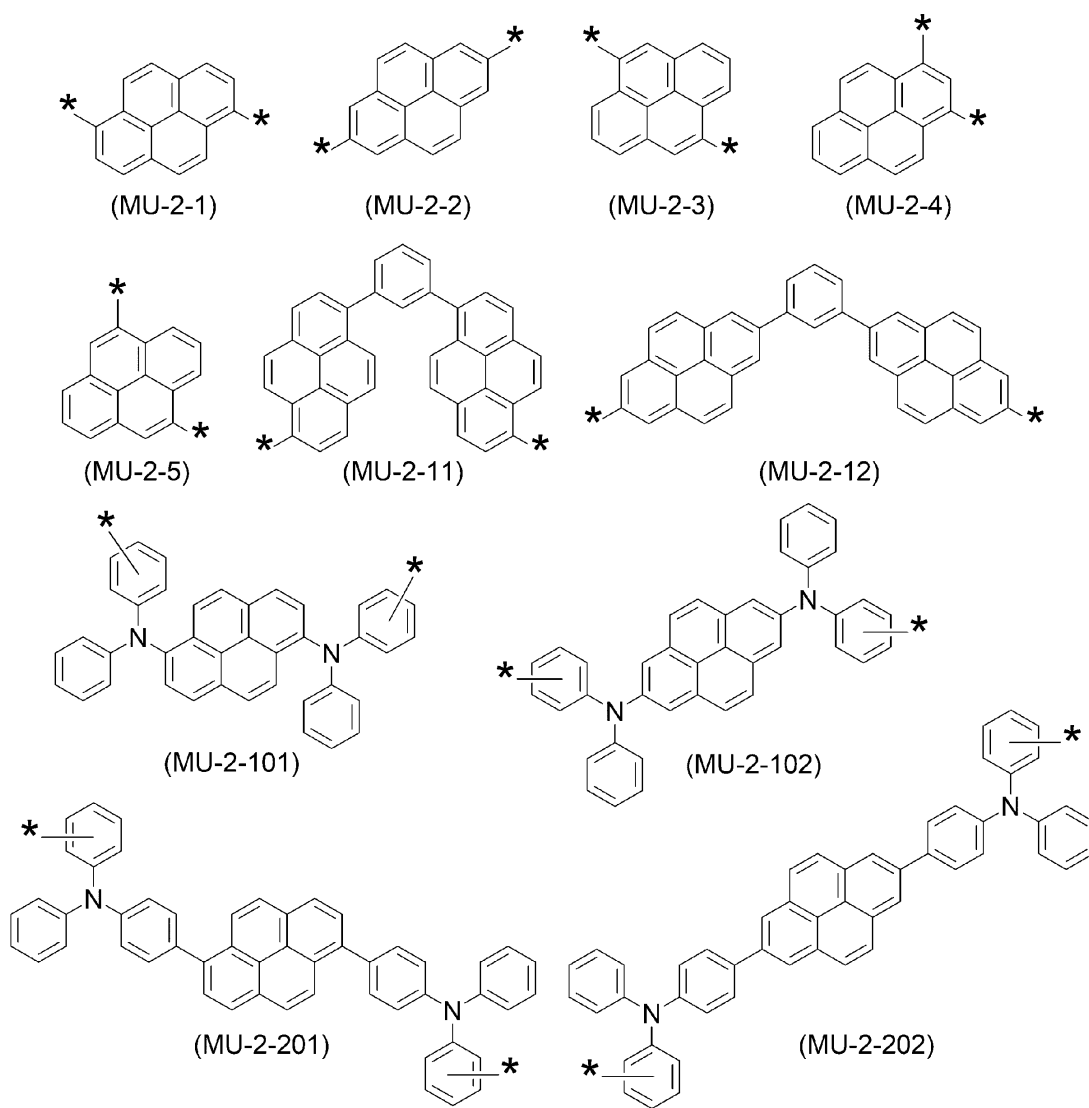
20

30

40

50

【化 6 3】



【 0 1 9 4 】

10

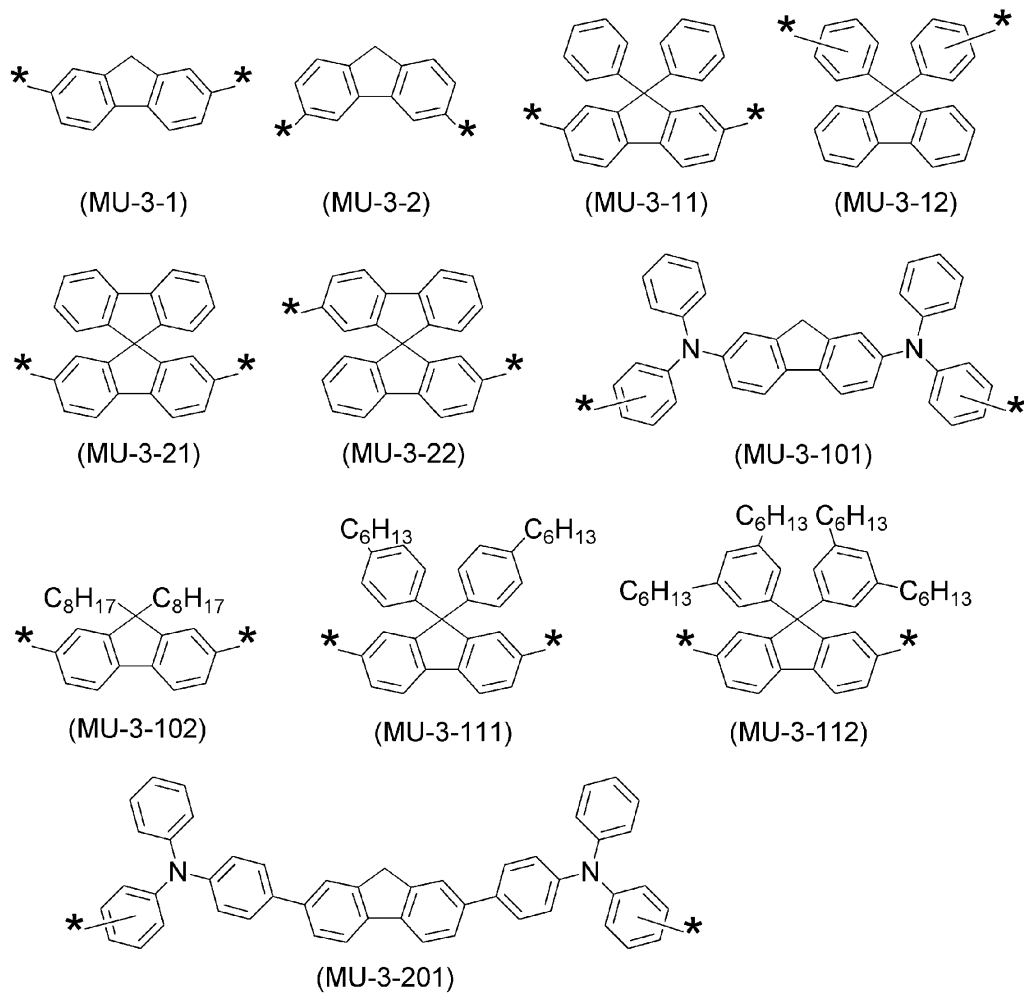
20

30

40

50

【化 6 4】



10

20

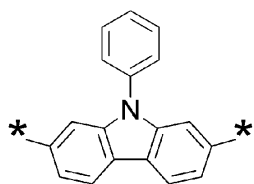
【 0 1 9 5】

30

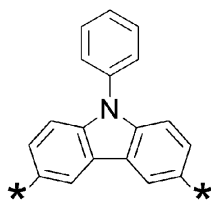
40

50

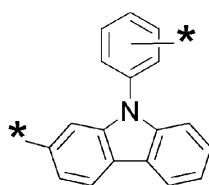
【化 6 5】



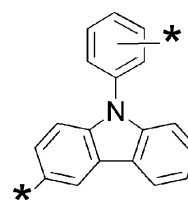
(MU-4-1)



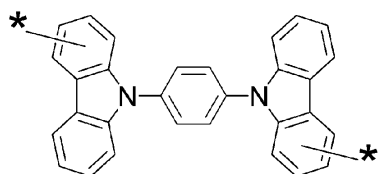
(MU-4-2)



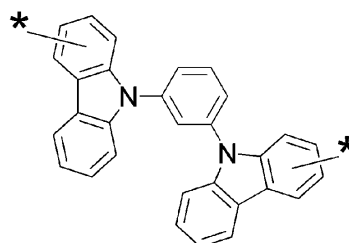
(MU-4-11)



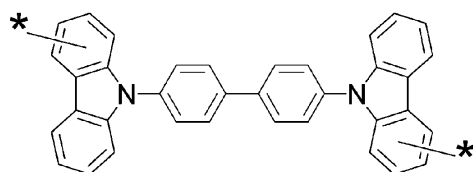
(MU-4-12)



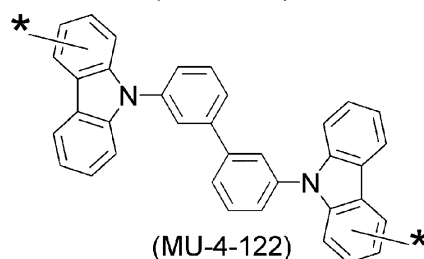
(MU-4-101)



(MU-4-102)



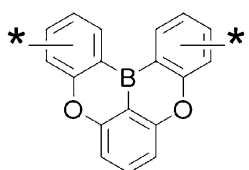
(MU-4-121)



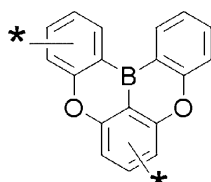
(MU-4-122)

【 0 1 9 6】

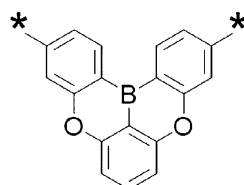
【化 6 6】



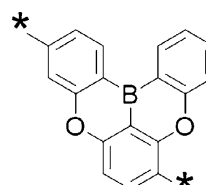
(MU-5-1)



(MU-5-2)



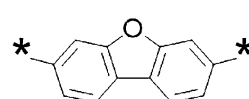
(MU-5-11)



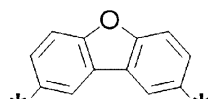
(MU-5-12)

【 0 1 9 7】

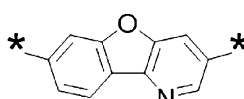
【化 6 7】



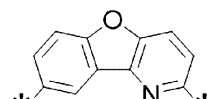
(MU-6-1)



(MU-6-2)



(MU-6-3)



(MU-6-4)

【 0 1 9 8】

10

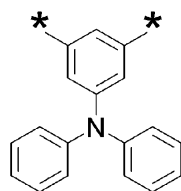
20

30

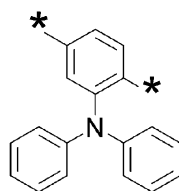
40

50

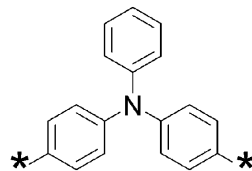
【化 6 8】



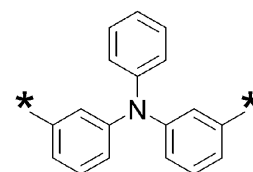
(MU-7-1)



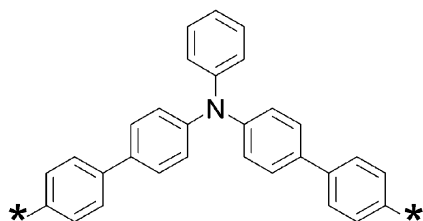
(MU-7-2)



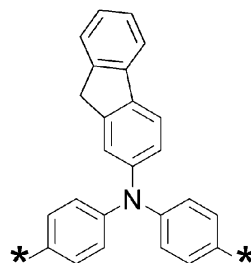
(MU-7-3)



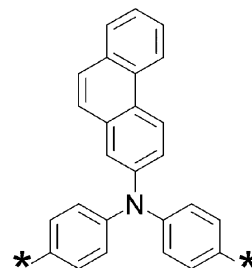
(MU-7-4)



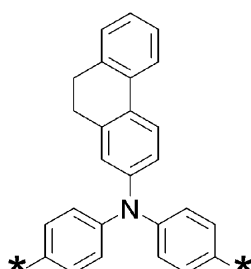
(MU-7-31)



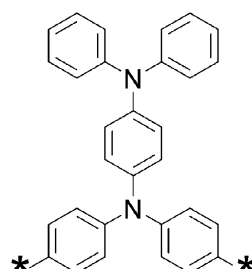
(MU-7-32)



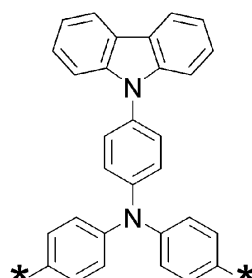
(MU-7-33)



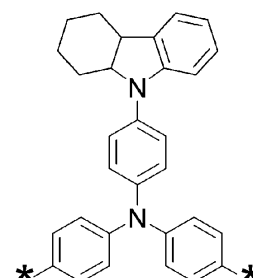
(MU-7-34)



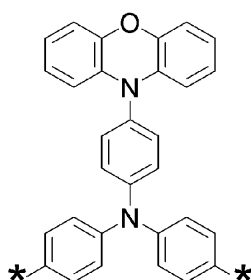
(MU-7-35)



(MU-7-36)



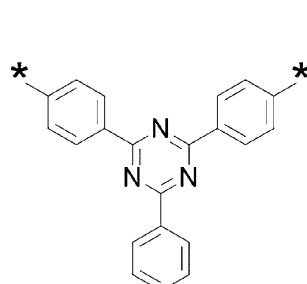
(MU-7-37)



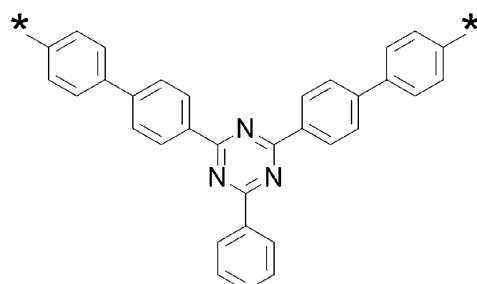
(MU-7-38)

【 0 1 9 9】

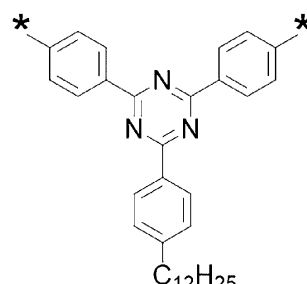
【化 6 9】



(MU-8-1)



(MU-8-2)



(MU-8-1)

【 0 2 0 0】

10

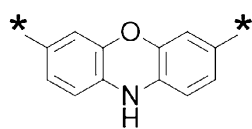
20

30

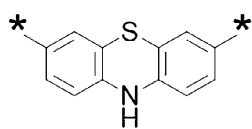
40

50

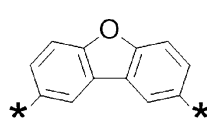
【化 7 0】



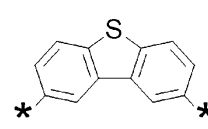
(MU-9-1)



(MU-9-2)



(MU-9-3)



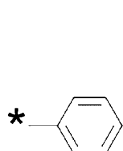
(MU-9-4)

【 0 2 0 1】

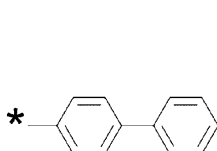
また、E Cとしては、例えば下記式で表される基があげられる。これらにおいて、E Cは*においてMUと結合する。

【 0 2 0 2】

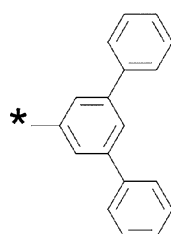
【化 7 1】



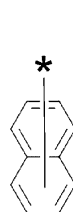
(EC-1)



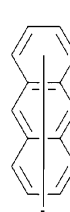
(EC-2)



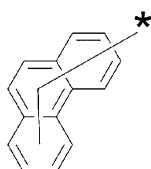
(EC-3)



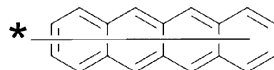
(EC-4)



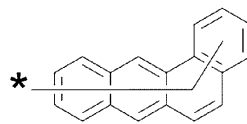
(EC-5)



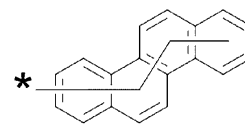
(EC-6)



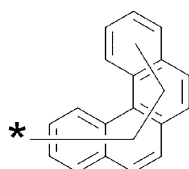
(EC-7)



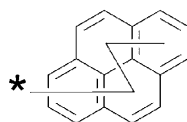
(EC-8)



(EC-9)



(EC-10)



(EC-11)

【 0 2 0 3】

10

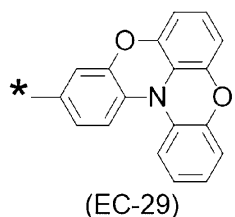
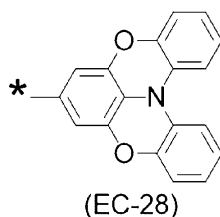
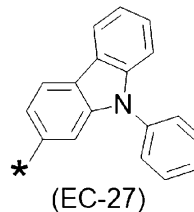
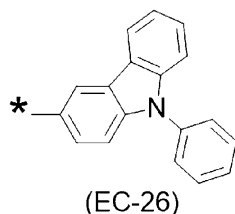
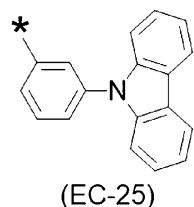
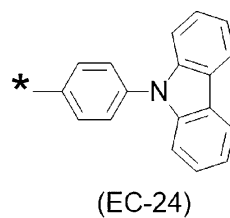
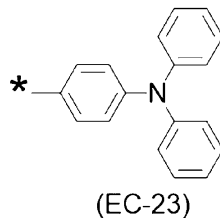
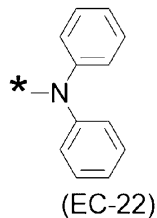
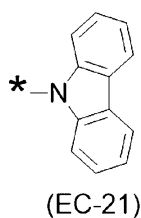
20

30

40

50

【化 7 2】



【0 2 0 4】

式 (H 3) で表される化合物は、溶解性および塗布成膜性の観点から、分子中の MU 総数 (k) の 10 ~ 100 % の MU が炭素数 1 ~ 24 のアルキルを有することが好ましく、分子中の MU 総数 (k) の 30 ~ 100 % の MU が炭素数 1 ~ 18 のアルキル (炭素数 3 ~ 18 の分岐鎖アルキル) を有することがより好ましく、分子内の MU 総数 (k) の 50 ~ 100 % の MU が炭素数 1 ~ 12 のアルキル (炭素数 3 ~ 12 の分岐鎖アルキル) を有することがさらに好ましい。一方、面内配向性および電荷輸送の観点からは、分子中の MU 総数 (k) の 10 ~ 100 % の MU が炭素数 7 ~ 24 のアルキルを有することが好ましく、分子中の MU 総数 (k) の 30 ~ 100 % の MU が炭素数 7 ~ 24 のアルキル (炭素数 7 ~ 24 の分岐鎖アルキル) を有することがより好ましい。

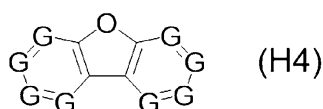
【0 2 0 5】

3-1-5-1-4. 式 (H 4) で表される構造を含む化合物

式 (H 4) で表される構造を含む化合物は、式 (H 4) で表される構造を複数個、好ましくは 1 ~ 5 個、より好ましくは 1 ~ 3 個、さらに好ましくは 1 ~ 2 個、最も好ましくは 1 個含み、複数個含む場合には当該構造同士が直接単結合で結合されるか、または特定の連結基で結合される。

【0 2 0 6】

【化 7 3】



【0 2 0 7】

式 (H 4) 中、G は「= C (- H) -」または「= N -」であり、前記「= C (- H) -」中の H は置換基または他の式 (H 4) で表される構造で置換されていてもよい。

【0 2 0 8】

式 (H 4) で表される構造を含む化合物としては、例えば、国際公開第 2012 / 153780 号および国際公開第 2013 / 038650 号等に記載の化合物を用いることができ、前記文献中に記載の方法にしたがって製造することができる。

【0209】

Gである「 $=C(-H)-$ 」中のHが置換される場合の置換基の例としては、アリーール、ヘテロアリーール、置換シリル、置換ホスフィンオキシド基、および置換カルボキシなどがあげられる。

【0210】

置換基である「アリーール」の具体例としては、フェニル、トリル、キシリル、ナフチル、フェナントリル、ピレニル、クリセニル、ベンゾ[c]フェナントリル、ベンゾ[g]クリセニル、ベンゾアントリル、トリフェニレニル、フルオレニル、9,9-ジメチルフルオレニル、ベンゾフルオレニル、ジベンゾフルオレニル、ビフェニリル、テルフェニリル、クアテルフェニリル、フルオランテニル等があげられ、好ましくはフェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、クアテルフェニリル、ナフチル、トリフェニレニルおよびフルオレニル等をあげることができる。置換基を有するアリーールとしては、トリル、キシリルおよび9,9-ジメチルフルオレニル等をあげることができる。具体例が示すように、アリーールは、縮合アリーールおよび非縮合アリーールの両方を含む。

10

【0211】

置換基である「ヘテロアリーール」の具体例としては、ピロリル、ピラゾリル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピリジル、トリアジニル、インドリル、イソインドリル、イミダゾリル、ベンゾイミダゾリル、インダゾリル、イミダゾ[1,2-a]ピリジニル、フリル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、アザジベンゾフラニル、チエニル、ベンゾチエニル、ジベンゾチエニル、アザジベンゾチエニル、キノリル、イソキノリル、キノキサリニル、キナゾリニル、ナフチリジニル、カルバゾリル、アザカルバゾリル、フェナントリジニル、アクリジニル、フェナントロリニル、フェナジニル、フェノチアジニル、フェノキサジニル、オキサゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、ベンゾオキサゾリル、チアゾリル、チアジアゾリル、ベンゾチアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル等があげられ、好ましくは、ジベンゾフラニル、ジベンゾチエニル、カルバゾリル、ピリジル、ピリミジニル、トリアジニル、アザジベンゾフラニルおよびアザジベンゾチエニル等をあげることができる。ジベンゾフラニル、ジベンゾチエニル、アザジベンゾフラニルまたはアザジベンゾチエニルがさらに好ましい。

20

【0212】

置換基である「置換シリル」は、置換または無置換のトリアルキルシリル、置換または無置換のアリーールアルキルシリル、および置換または無置換のトリアリーールシリルからなる群から選択される基であることも好ましい。

30

【0213】

置換または無置換のトリアルキルシリルの具体例としては、トリメチルシリルおよびトリエチルシリルをあげることができる。置換または無置換のアリーールアルキルシリルの具体例としては、ジフェニルメチルシリル、ジトリルメチルシリルおよびフェニルジメチルシリル等をあげることができる。置換または無置換のトリアリーールシリルの具体例としては、トリフェニルシリルおよびトリトリルシリル等をあげることができる。

【0214】

置換基である「置換ホスフィンオキシド基」は、置換または無置換のジアリーールホスフィンオキシド基であることも好ましい。置換または無置換のジアリーールホスフィンオキシド基の具体例としては、ジフェニルホスフィンオキシドおよびジトリルホスフィンオキシド等をあげることができる。

40

【0215】

置換基である「置換カルボキシ」としては、例えば、ベンゾイルオキシ等があげられる。

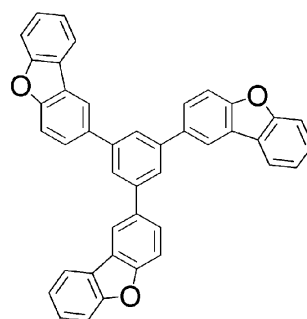
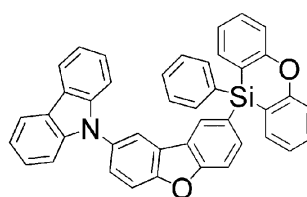
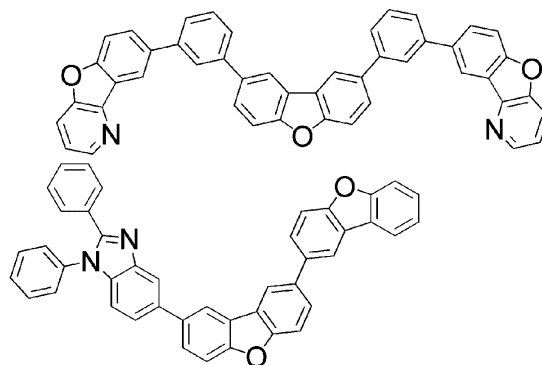
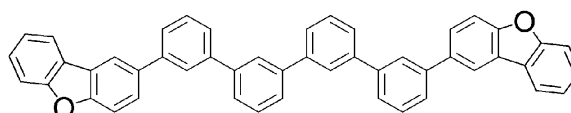
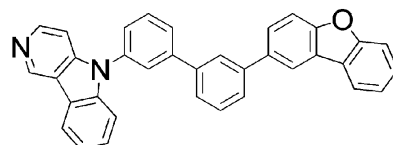
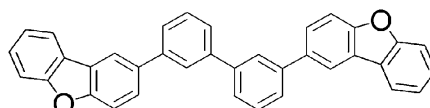
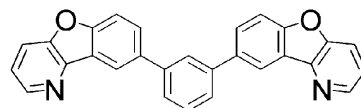
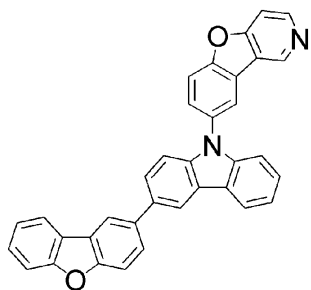
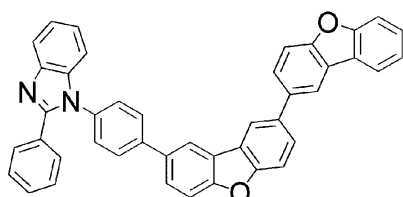
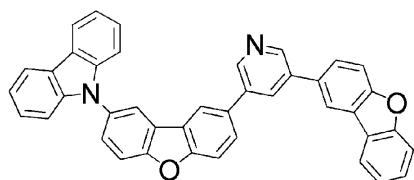
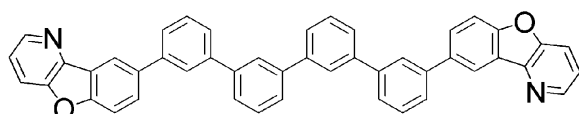
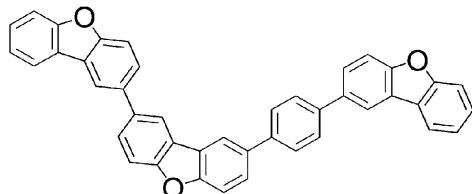
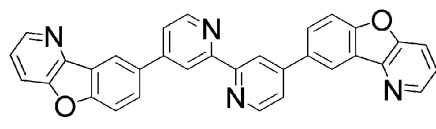
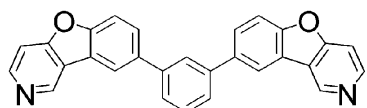
【0216】

式(H4)で表される構造を複数個結合する連結基としては、上述したアリーールやヘテロアリーールの2~4価、2~3価、または2価の誘導体があげられる。

【0217】

式(H4)で表される構造を含む化合物の具体例を以下に示す。

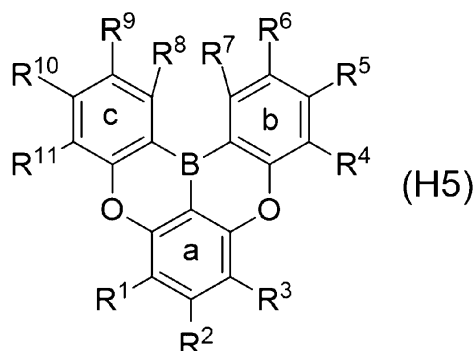
50



40

3-1-5-1-5-1. 式 (H5) で表される化合物

【化 7 5】



10

【0 2 1 9】

式 (H 5) において、 $R^1 \sim R^{11}$ は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシであり、これらにおける少なくとも 1 つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよく、

$R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも 1 つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも 1 つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよい。

20

また、式 (H 5) における任意の少なくとも 1 つ (好ましくは 1 ~ 3) の $-C(R^n)-$ (n は 1 ~ 11) は $-N=$ に置換されていてもよい。

さらに、式 (H 5) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素は、式 (F G - 1) で表される基、式 (F G - 2) で表される基、または炭素数 1 ~ 24 のアルキルで置換されていてもよく、さらに、前記アルキルにおける任意の $-CH_2-$ は $-O-$ または $-Si(CH_3)_2-$ で置換されていてもよく、前記アルキルにおける式 (H 5) で表される化合物に直結している $-CH_2-$ を除く任意の $-CH_2-$ は炭素数 6 ~ 24 のアリーレンで置換されていてもよく、前記アルキルにおける任意の水素はフッ素で置換されていてもよい。

30

また、式 (H 5) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素は、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

【0 2 2 0】

式 (H 5) では、a 環、b 環および c 環の置換基 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも 1 つの水素はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも 1 つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよい。ただし、ここで「隣接する基」とは同一環上で隣り合う基を表し、「隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成」した化合物は、例えば、後述する具体的な化合物として列挙した式 (H 5 - 2) ~ 式 (H 5 - 17) で表されるような化合物に対応する。すなわち、例えば a 環 (または b 環または c 環) に対してベンゼン環、インドール環、ピロール環、ベンゾフラン環またはベンゾチオフェン環が縮合して形成される化合物であり、形成されてできた縮合環はそれぞれナフタレン環、カルバゾール環、インドール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環である。

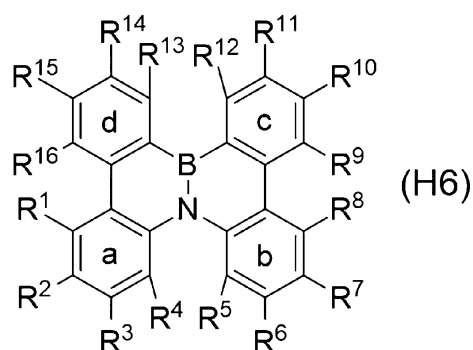
40

【0 2 2 1】

3 - 1 - 5 - 1 - 5 - 2 . 式 (H 6) で表される化合物

50

【化 7 6】



【0 2 2 2】

式 (H 6) において、 $R^1 \sim R^{16}$ は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシであり、これらにおける少なくとも 1 つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよく、

$R^1 \sim R^{16}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環、c 環または d 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも 1 つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも 1 つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよい。

また、式 (H 6) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素は、式 (F G - 1) で表される基、式 (F G - 2) で表される基、または炭素数 1 ~ 24 のアルキルで置換されていてもよく、さらに、前記アルキルにおける任意の $-CH_2-$ は $-O-$ または $-Si(CH_3)_2-$ で置換されていてもよく、前記アルキルにおける式 (H 6) で表される化合物に直結している $-CH_2-$ を除く任意の $-CH_2-$ は炭素数 6 ~ 24 のアリーレンで置換されていてもよく、前記アルキルにおける任意の水素はフッ素で置換されていてもよい。

また、式 (H 6) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素は、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

【0 2 2 3】

式 (H 6) では、a 環、b 環、c 環および d 環の置換基 $R^1 \sim R^{16}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環、c 環または c 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも 1 つの水素はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも 1 つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよい。ただし、ここで「隣接する基」とは同一環上で隣り合う基を表し、「隣接する基同士が結合して a 環、b 環、c 環または d 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成」した化合物は、例えば、後述する式 (H 6) の具体的な化合物として列挙した式 (H 6 - 2) ~ (H 6 - 5) で表されるような化合物を参考にして説明することができる。すなわち、例えば a 環 (または b 環または c 環または d 環) に対してベンゼン環、インドール環、ピロール環、ベンゾフラン環またはベンゾチオフェン環が縮合して形成される化合物であり、形成されてできた縮合環はそれぞれナフタレン環、カルバゾール環、インドール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環である。

【0 2 2 4】

3 - 1 - 5 - 1 - 5 - 3. 「式 (H 5) における $R^1 \sim R^{11}$ 」 および 「式 (H 6) における $R^1 \sim R^{16}$ 」

「式 (H 5) における $R^1 \sim R^{11}$ 」 および 「式 (H 6) における $R^1 \sim R^{16}$ 」 は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールア

ミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシであって、炭素数 6 ～ 30 のアリール、炭素数 2 ～ 30 のヘテロアリール、ジアリールアミノ（2つの炭素数 6 ～ 30 のアリールを有するアミノ）、ジヘテロアリールアミノ（2つの炭素数 2 ～ 30 のヘテロアリールを有するアミノ）、アリールヘテロアリールアミノ（炭素数 6 ～ 30 のアリールと炭素数 2 ～ 30 のヘテロアリールとを有するアミノ）または炭素数 6 ～ 30 のアリールオキシが好ましい。

【0225】

「アリール」、「ジアリールアミノ」のアリール、「アリールヘテロアリールアミノ」のアリール、および、「アリールオキシ」のアリールとしては、例えば、単環系であるベンゼン環、二環系であるビフェニル環、縮合二環系であるナフタレン環、三環系であるテルフェニル環（*m*-テルフェニル、*o*-テルフェニル、*p*-テルフェニル）、縮合三環系である、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、縮合四環系であるトリフェニレン環、ピレン環、ナフタセン環、縮合五環系であるペリレン環、ペンタセン環などがあげられる。さらに、後述するように、これらのアリールに以下で定義するヘテロアリールが置換したものも、式（H5）および式（H6）ではアリールとして定義する。

【0226】

「ヘテルアリール」、「ジヘテロアリールアミノ」のヘテロアリール、および、「アリールヘテロアリールアミノ」のヘテロアリールとしては、例えば、ピロール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、ピラゾール環、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、インドール環、イソインドール環、1H-インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、1H-ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シンノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、プリン環、プテリジン環、カルバゾール環、アクリジン環、フェノキサチイン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、フェナジン環、インドリジン環、フラン環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、チオフエン環、ベンゾチオフエン環、ジベンゾチオフエン環、フラザン環、オキサジアゾール環、チアントレン環およびN-アリール置換された前記ヘテロアリールなどの一価の基があげられる。さらに、後述するように、これらのヘテロアリールに以上で定義したアリールが置換したものも、式（H5）および式（H6）ではヘテロアリールとして定義する。

【0227】

また、式（H5）における $R^1 \sim R^{11}$ や式（H6）における $R^1 \sim R^{16}$ として説明した、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシは、これらにおける少なくとも1つの水素がさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよい。このように置換するアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノとしては、 $R^1 \sim R^{11}$ や $R^1 \sim R^{16}$ の欄で説明したものと同じものがあげられる。

【0228】

$R^1 \sim R^{11}$ や $R^1 \sim R^{16}$ の具体的なものとしては、例えば、下記式（RG-1）～式（RG-10）で表される基があげられる。なお、下記式（RG-1）～式（RG-10）で表される基は*において式（H5）や式（H6）と結合する。

【0229】

10

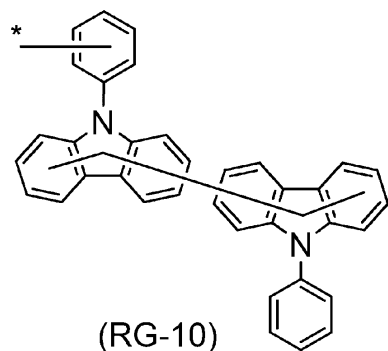
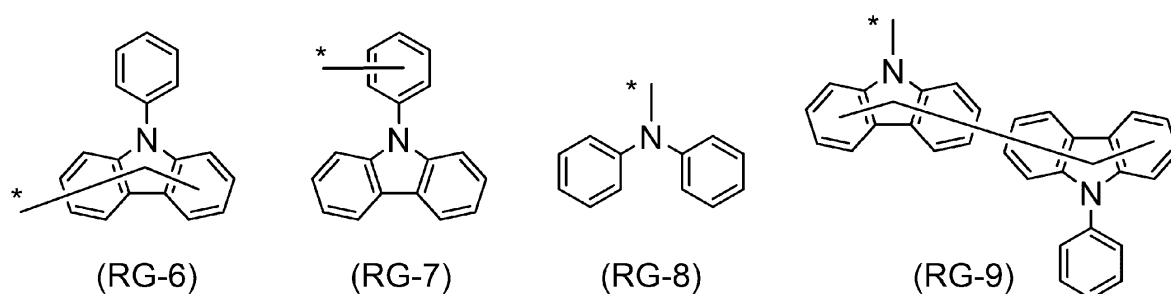
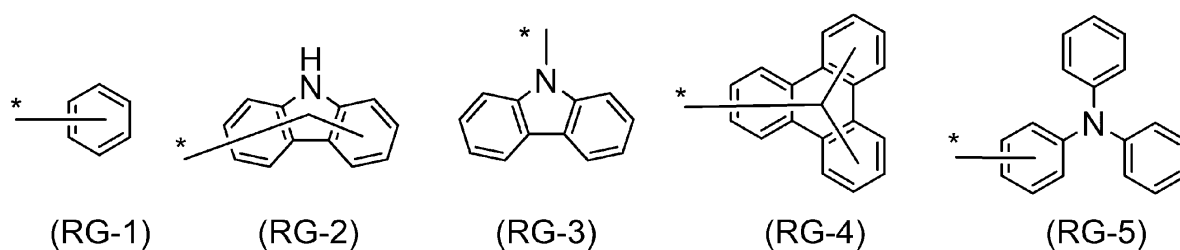
20

30

40

50

【化 7 7】

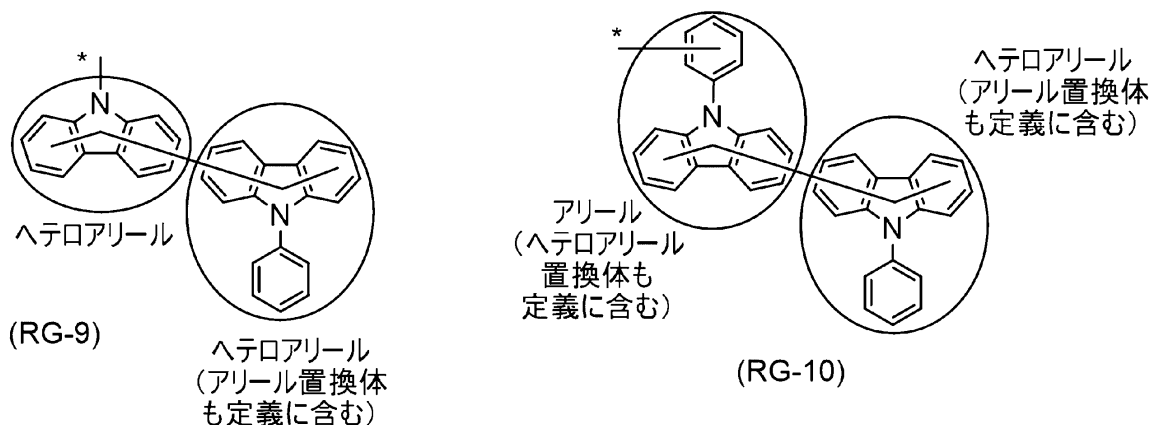


【 0 2 3 0】

上述した具体的な基を参考にして、式 (H 5) および式 (H 6) で定義する「アリール」および「ヘテロアリール」について説明すると、式 (R G - 1)、式 (R G - 4) および式 (R G - 7) はアリールであり、式 (R G - 2)、式 (R G - 3) および式 (R G - 6) はヘテロアリールであり、式 (R G - 9) はヘテロアリールが置換したヘテロアリールであり、式 (R G - 1 0) はヘテロアリールが置換したアリールである。なお、式 (R G - 5) はジアリールアミノ (ジフェニルアミノ) が置換したアリール (フェニル) であり、式 (R G - 8) はジアリールアミノ (ジフェニルアミノ) である。

【 0 2 3 1】

【化 7 8】



10

【0232】

3-1-5-1-5-4. 式 (H5) において、a 環、b 環または c 環の隣接する基同士が結合して形成する環、および、式 (H6) において、a 環、b 環、c 環または d 環の隣接する基同士が結合して形成する環

式 (H5) における「 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共に形成されたアリール環」、および、式 (H6) における「 $R^1 \sim R^{16}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環、c 環または d 環と共に形成されたアリール環」としては、例えば、炭素数 6～30 のアリール環があげられ、炭素数 6～16 のアリール環が好ましく、炭素数 6～12 のアリール環がより好ましく、炭素数 6～10 のアリール環が特に好ましい。ただし、形成されたアリール環の炭素数は a 環、b 環、c 環または d 環の炭素数 6 を含める。

20

【0233】

形成されたアリール環の具体例としては、例えば、縮合二環系であるナフタレン環、縮合三環系である、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、縮合四環系であるトリフェニレン環、ピレン環、ナフタセン環、縮合五環系であるペリレン環、ペンタセン環などがあげられる。

【0234】

式 (H5) における「 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共に形成されたヘテロアリール環」、および、式 (H6) における「 $R^1 \sim R^{16}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環、c 環または d 環と共に形成されたアリール環」としては、例えば、炭素数 6～30 のヘテロアリール環があげられ、炭素数 6～25 のヘテロアリール環が好ましく、炭素数 6～20 のヘテロアリール環がより好ましく、炭素数 6～15 のヘテロアリール環がさらに好ましく、炭素数 6～10 のヘテロアリール環が特に好ましい。また、「ヘテロアリール環」としては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を 1 ないし 5 個含有する複素環などがあげられる。ただし、形成されたヘテロアリール環の炭素数は a 環、b 環、c 環または d 環の炭素数 6 を含める。

30

【0235】

形成されたヘテロアリール環の具体例としては、例えば、インドール環、イソインドール環、1H-インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、1H-ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シンノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、フタラジン環、カルバゾール環、アクリジン環、フェノキサチン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、フェナジン環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、ジベンゾチオフェン環、チアントレン環などがあげられる。

40

【0236】

形成された環における少なくとも 1 つの水素は、アリール、ヘテロアリール、ジアリー

50

ルアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素はさらにアリール、ヘテロアリールまたはジアリールアミノで置換されていてもよい。この説明については、式(H5)の $R^1 \sim R^{11}$ や式(H6)の $R^1 \sim R^{16}$ における説明を引用することができる。

【0237】

3-1-5-1-5-5. 化合物の具体例

以下に、式(H5)または式(H6)で表される化合物のさらに具体的な構造を示す。

以下の式(H5)または式(H6)で表される化合物の具体的な構造は、炭素数1~24のアルキルで置換されていてもよい。

【0238】

10

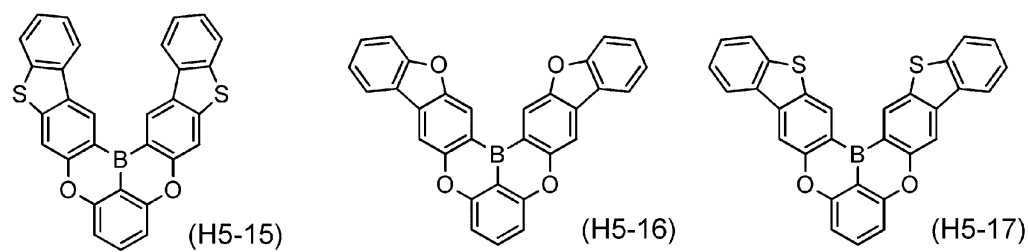
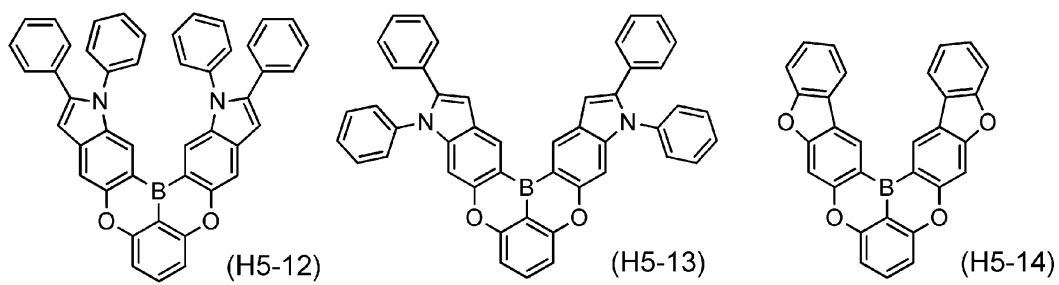
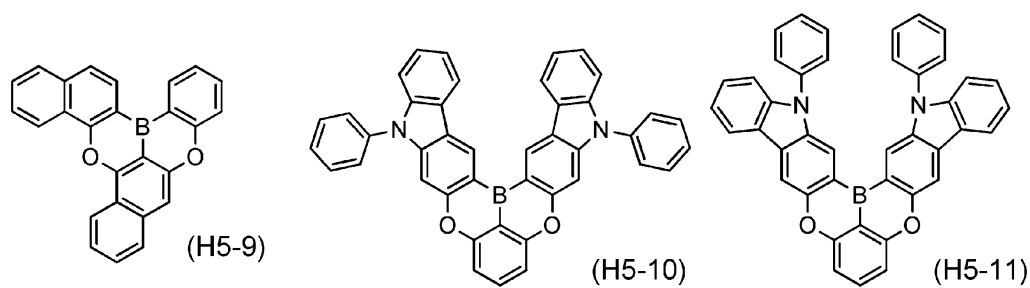
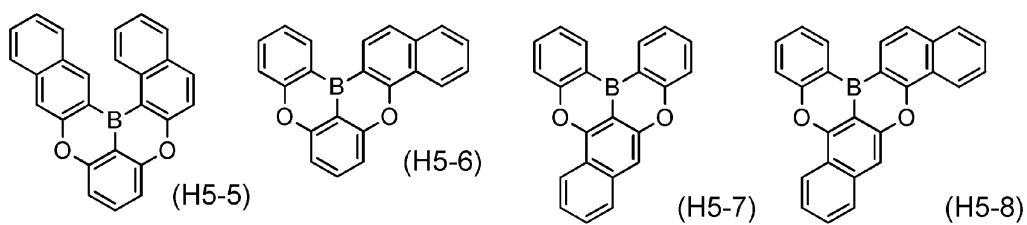
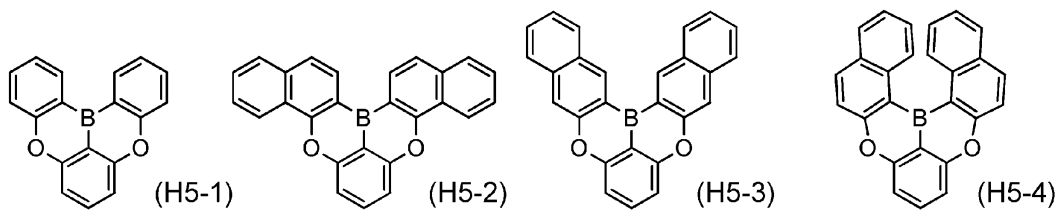
20

30

40

50

【化 7 9】



【 0 2 3 9】

10

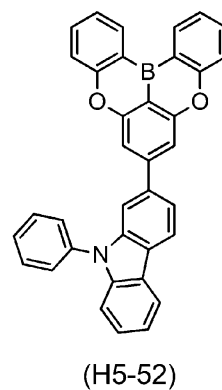
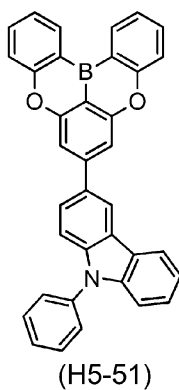
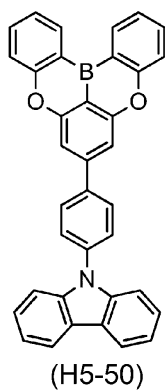
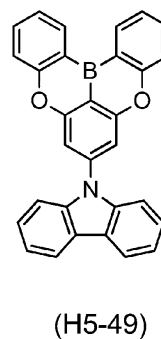
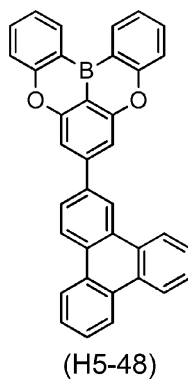
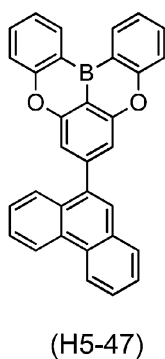
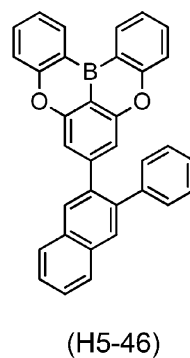
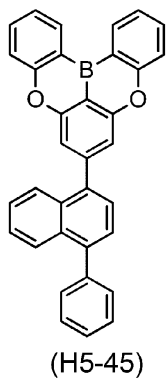
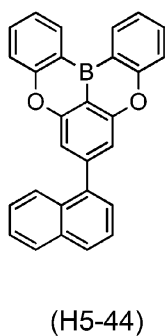
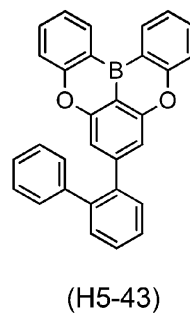
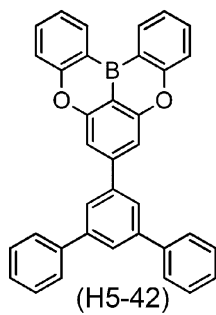
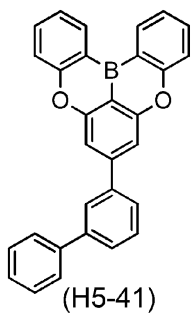
20

30

40

50

【化 8 0】



【 0 2 4 0】

10

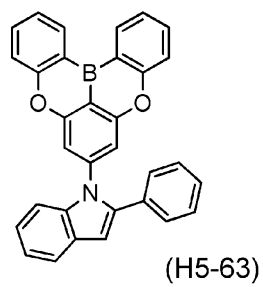
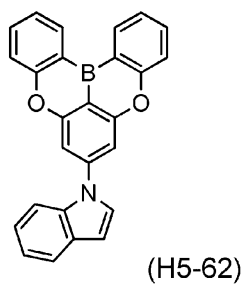
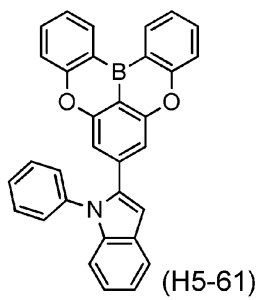
20

30

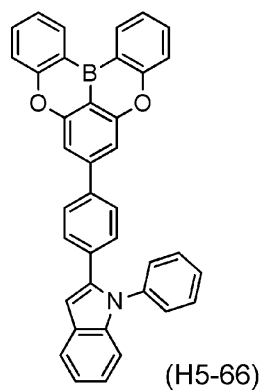
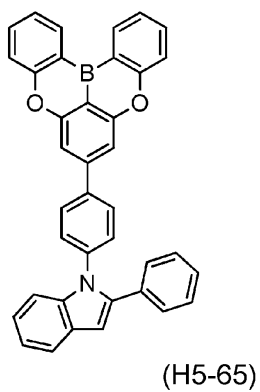
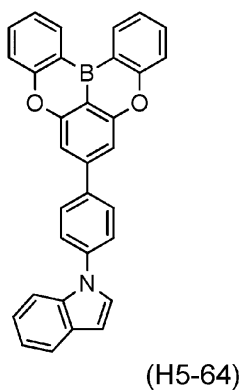
40

50

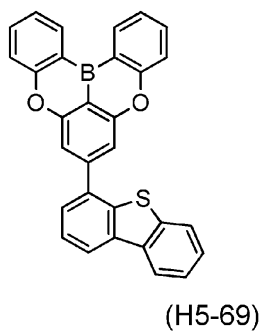
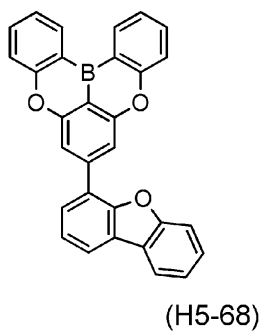
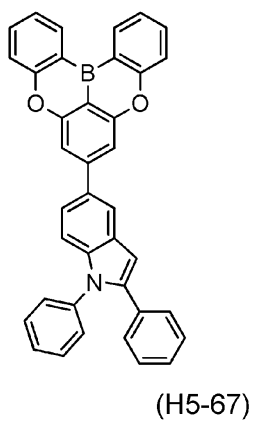
【化 8 1】



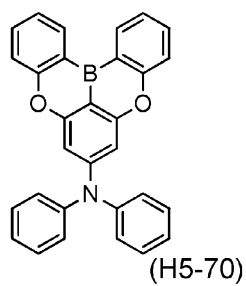
10



20



30

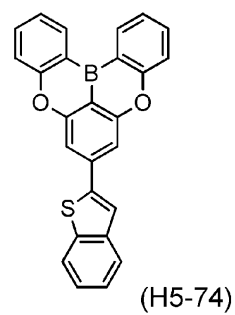
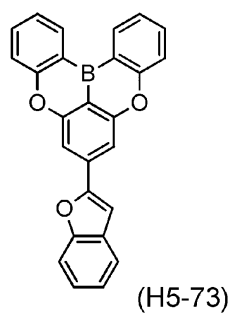
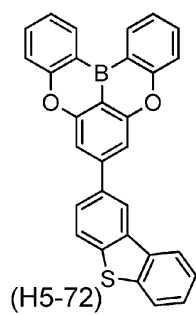
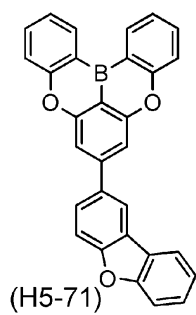


40

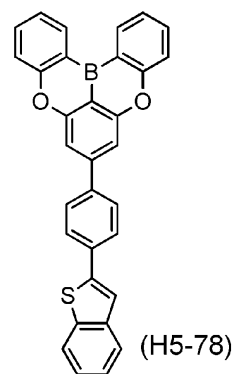
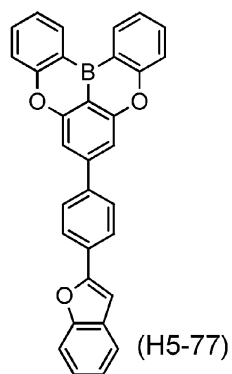
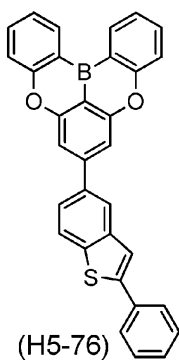
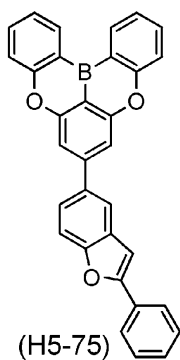
【 0 2 4 1】

50

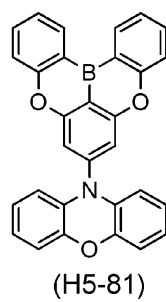
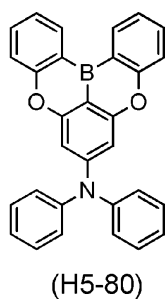
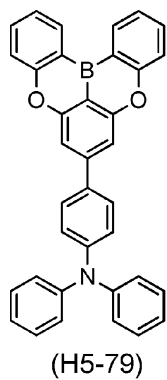
【化 8 2】



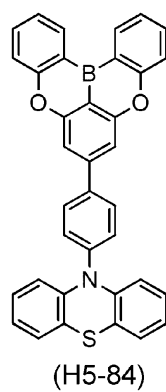
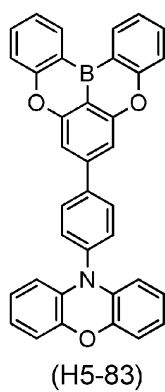
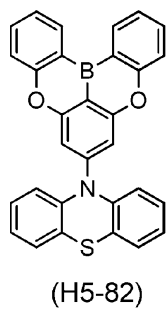
10



20



30

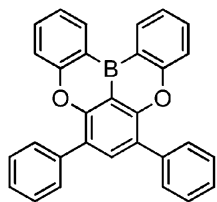


40

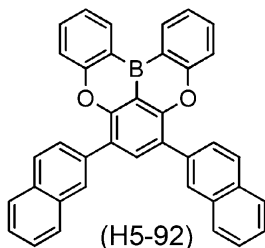
【 0 2 4 2】

50

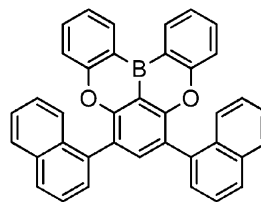
【化 8 3】



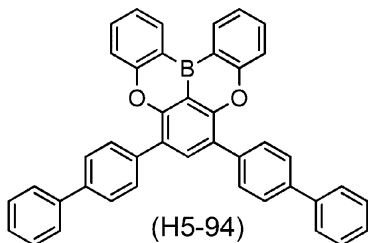
(H5-91)



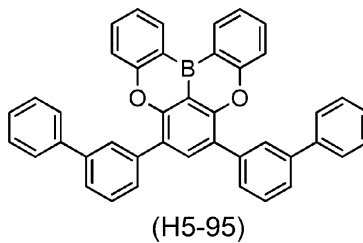
(H5-92)



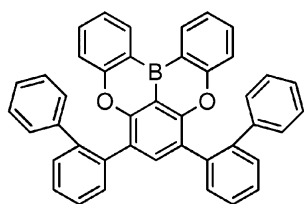
(H5-93)



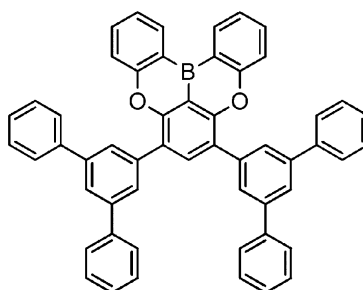
(H5-94)



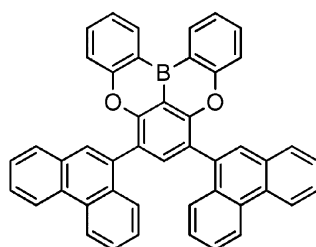
(H5-95)



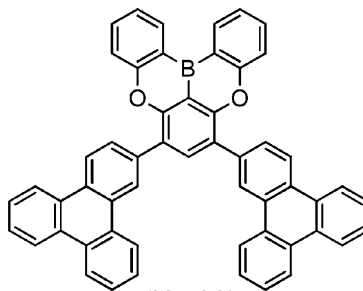
(H5-96)



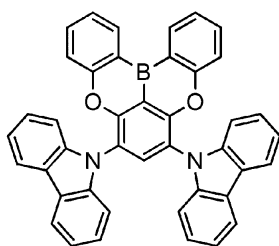
(H5-97)



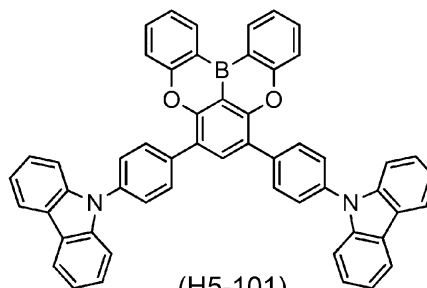
(H5-98)



(H5-99)



(H5-100)



(H5-101)

【 0 2 4 3 】

10

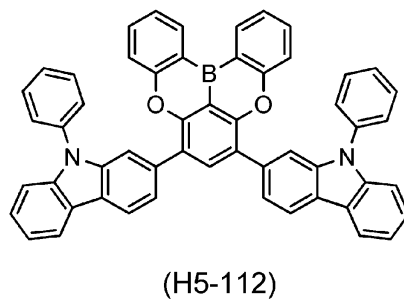
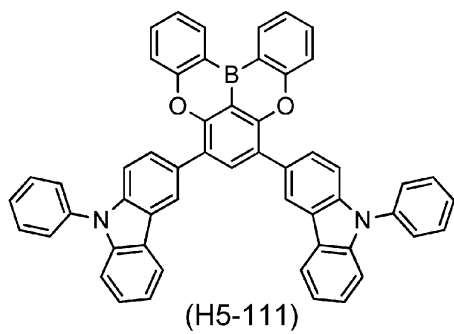
20

30

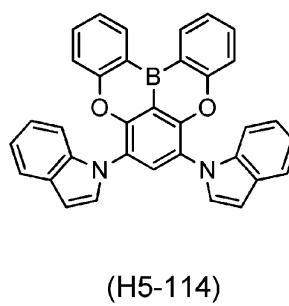
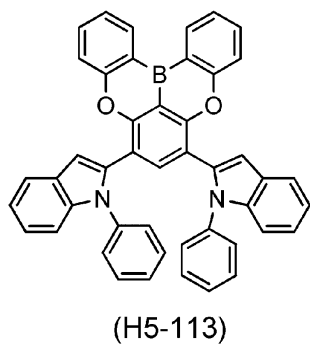
40

50

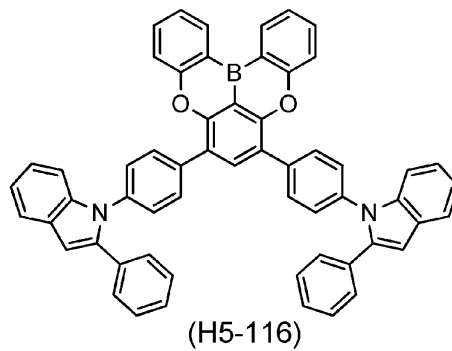
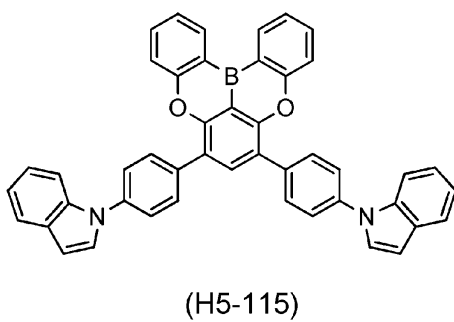
【化 8 4】



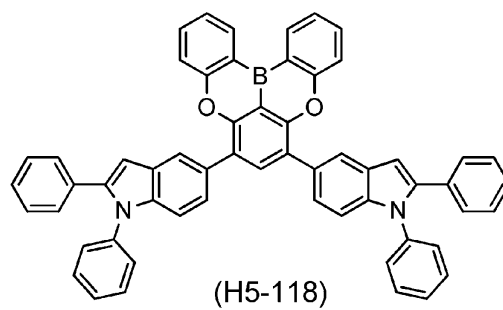
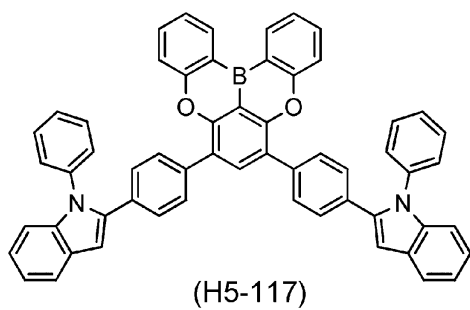
10



20



30

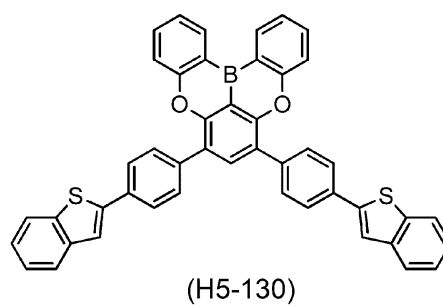
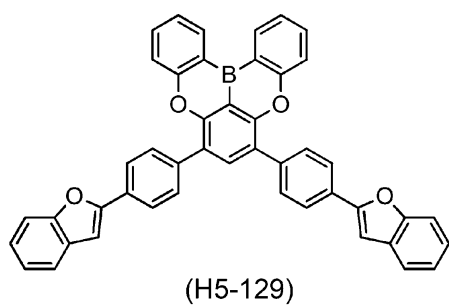
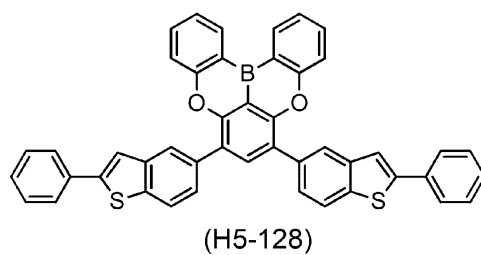
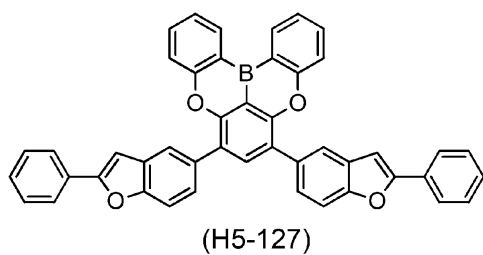
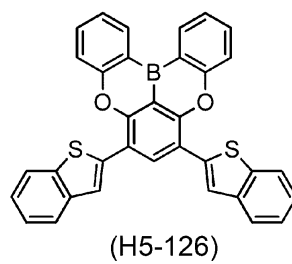
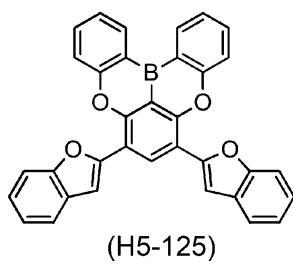
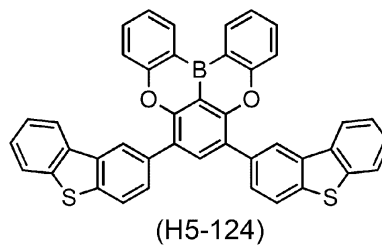
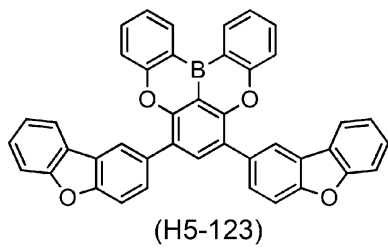
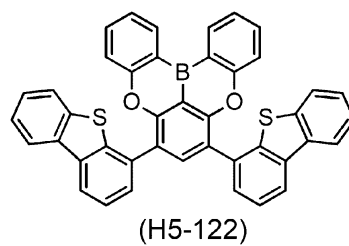
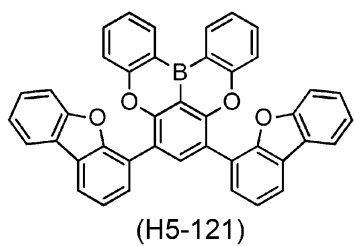


40

【 0 2 4 4】

50

【化 8 5】



【 0 2 4 5】

10

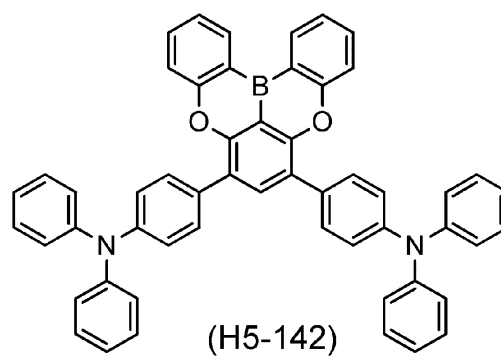
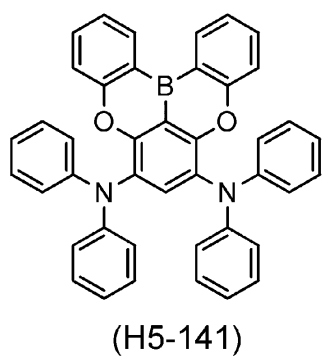
20

30

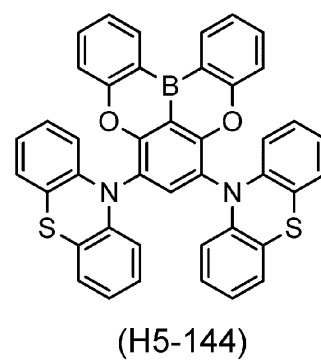
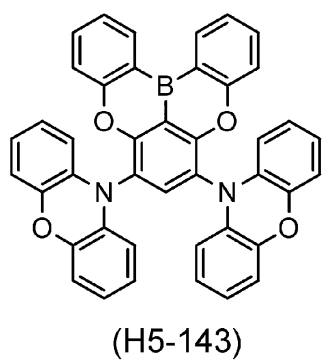
40

50

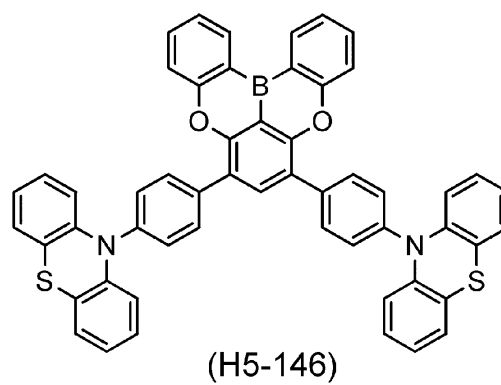
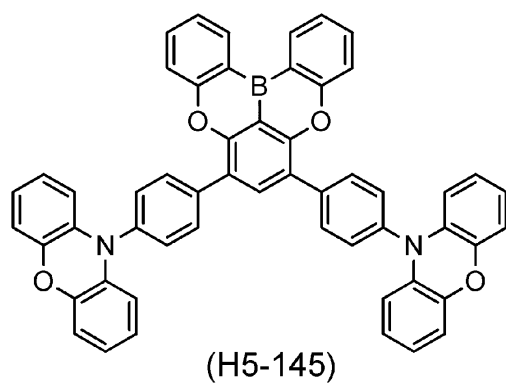
【化 8 6】



10



20



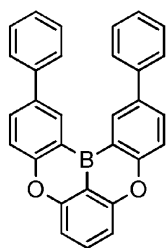
30

【 0 2 4 6 】

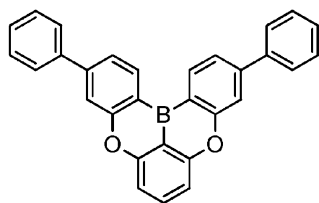
40

50

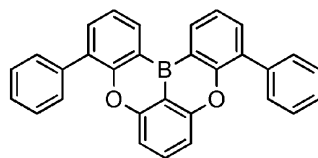
【化 8 7】



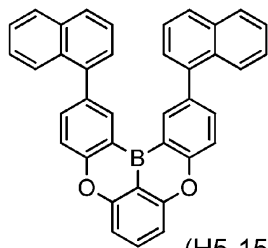
(H5-151)



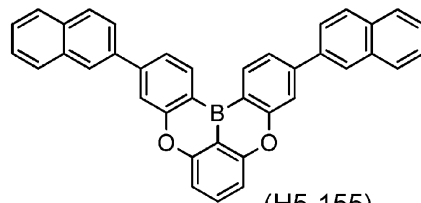
(H5-152)



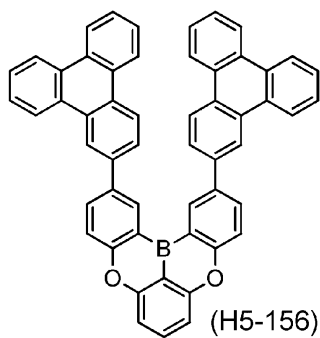
(H5-153)



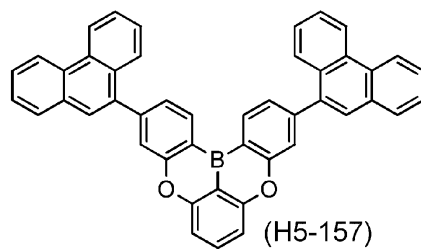
(H5-154)



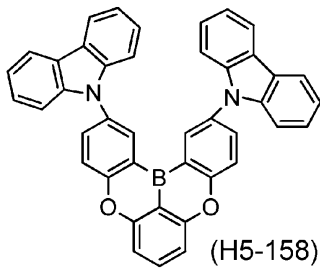
(H5-155)



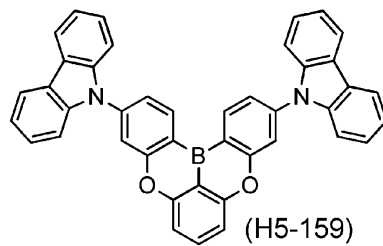
(H5-156)



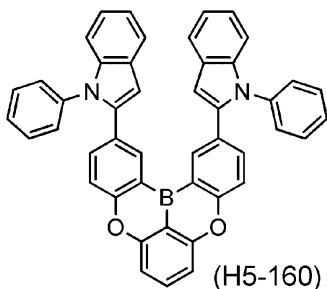
(H5-157)



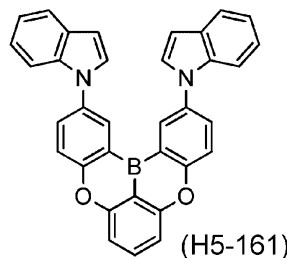
(H5-158)



(H5-159)



(H5-160)



(H5-161)

【 0 2 4 7 】

10

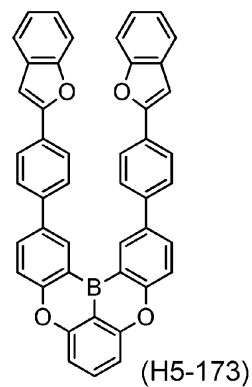
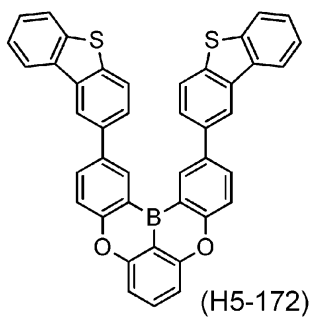
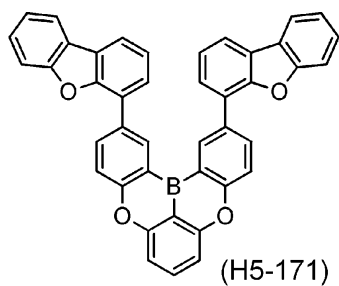
20

30

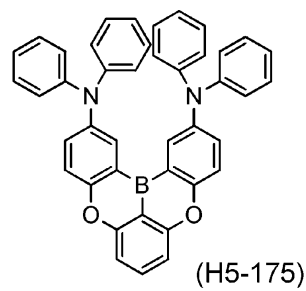
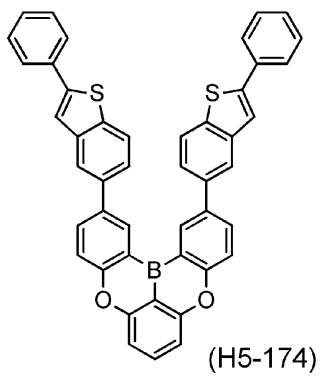
40

50

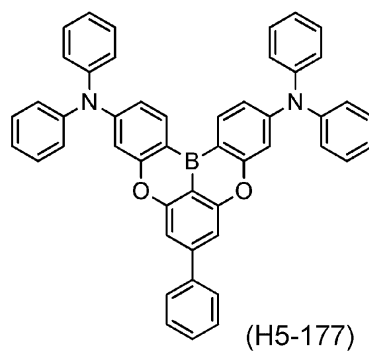
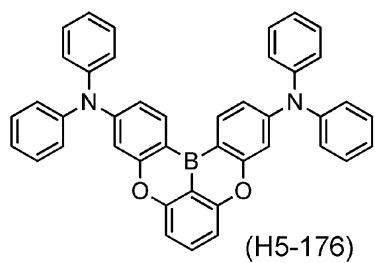
【化 8 8】



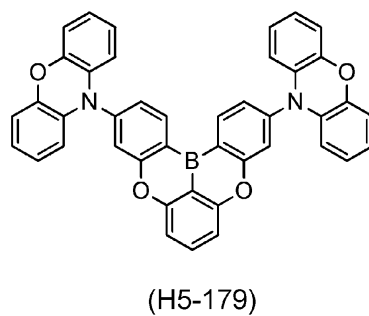
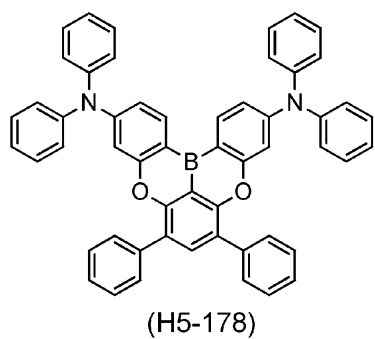
10



20



30

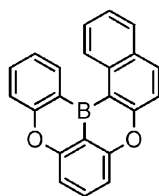


40

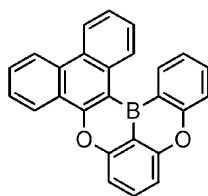
【 0 2 4 8 】

50

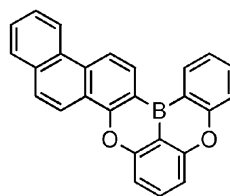
【化 8 9】



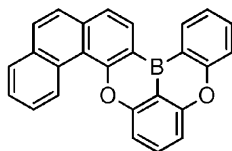
(H5-1001)



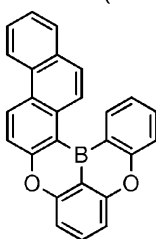
(H5-1002)



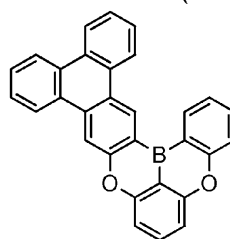
(H5-1003)



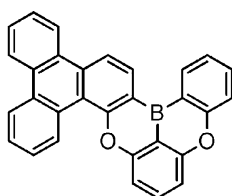
(H5-1004)



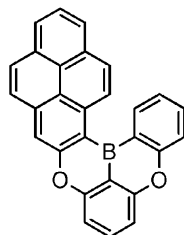
(H5-1005)



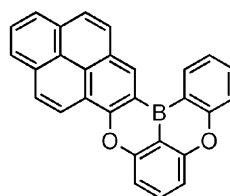
(H5-1006)



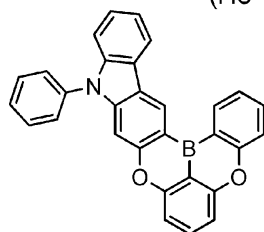
(H5-1007)



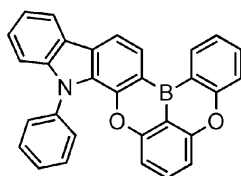
(H5-1008)



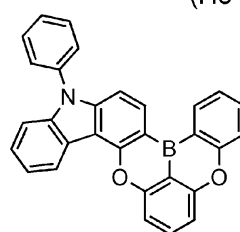
(H5-1009)



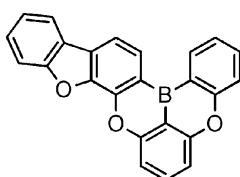
(H5-1010)



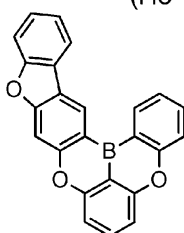
(H5-1011)



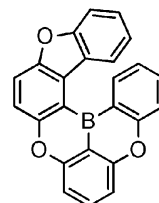
(H5-1012)



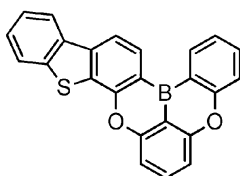
(H5-1013)



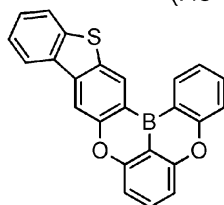
(H5-1014)



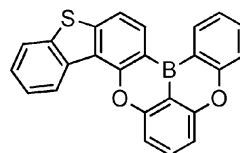
(H5-1015)



(H5-1016)



(H5-1017)



(H5-1018)

【 0 2 4 9】

10

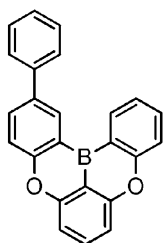
20

30

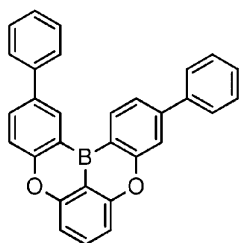
40

50

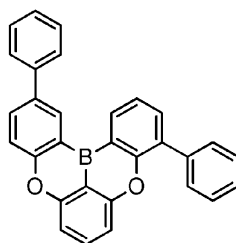
【化 9 0】



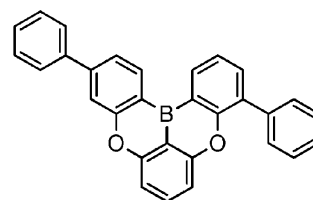
(H5-1021)



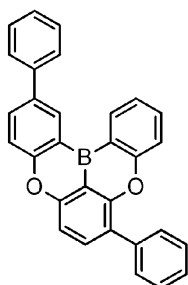
(H5-1022)



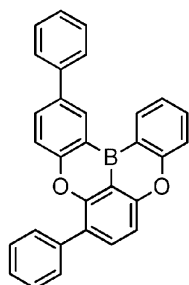
(H5-1023)



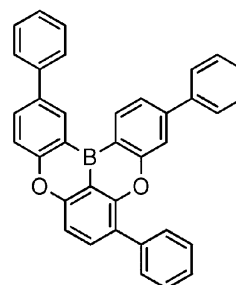
(H5-1024)



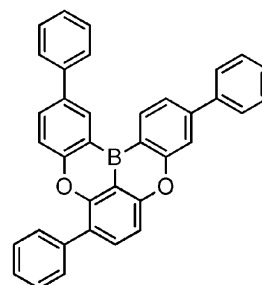
(H5-1025)



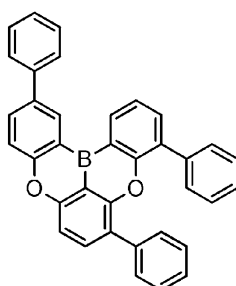
(H5-1026)



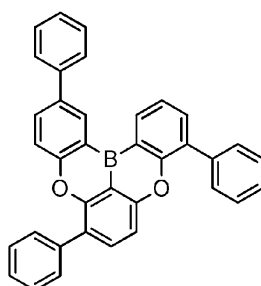
(H5-1027)



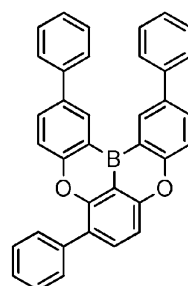
(H5-1028)



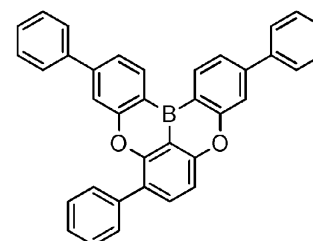
(H5-1029)



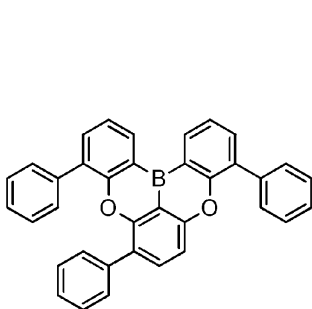
(H5-1030)



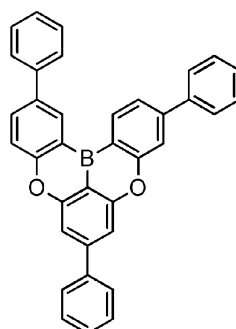
(H5-1031)



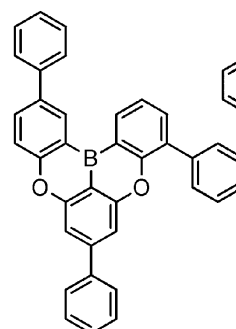
(H5-1032)



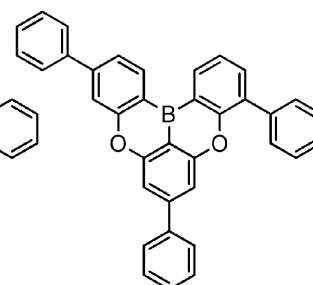
(H5-1033)



(H5-1034)



(H5-1035)



(H5-1036)

【 0 2 5 0】

10

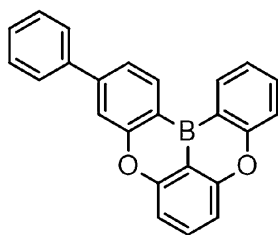
20

30

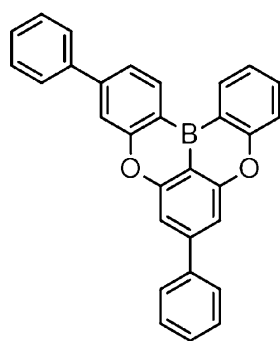
40

50

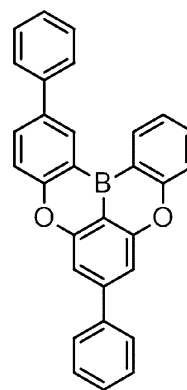
【化 9 1】



(H5-1037)



(H5-1038)



(H5-1039)

10

【 0 2 5 1】

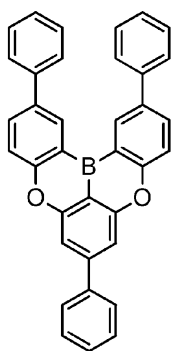
20

30

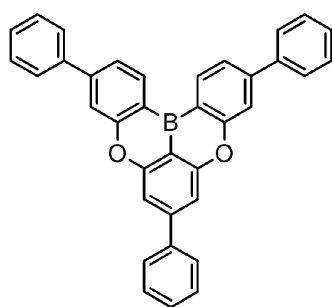
40

50

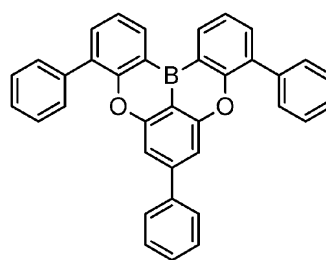
【化 9 2】



(H5-1041)

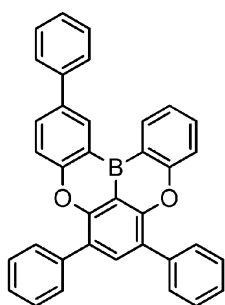


(H5-1042)

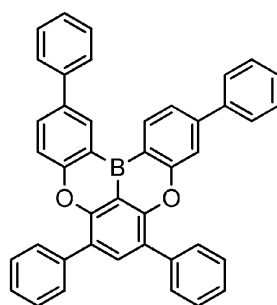


(H5-1043)

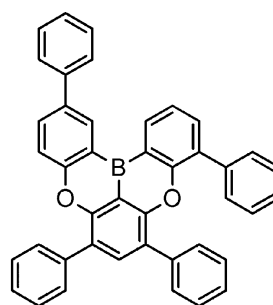
10



(H5-1044)

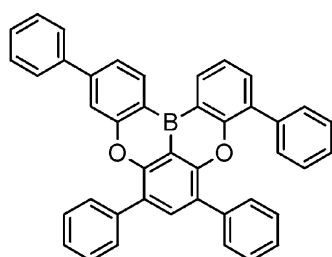


(H5-1045)



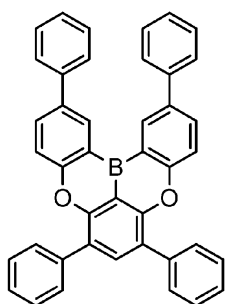
(H5-1046)

20

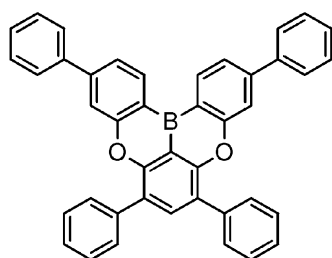


(H5-1047)

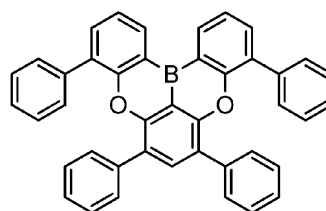
30



(H5-1048)



(H5-1049)



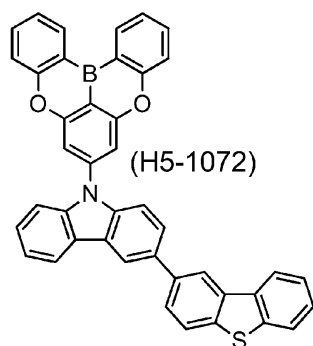
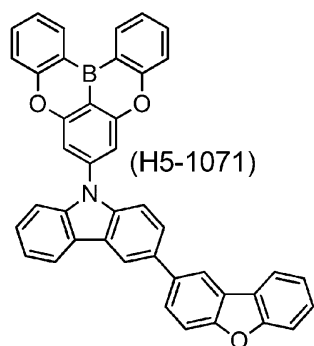
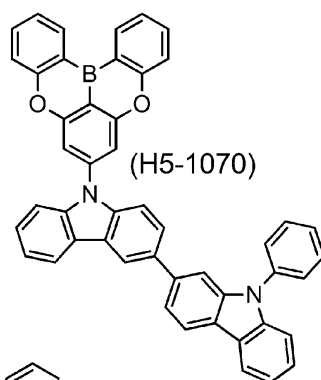
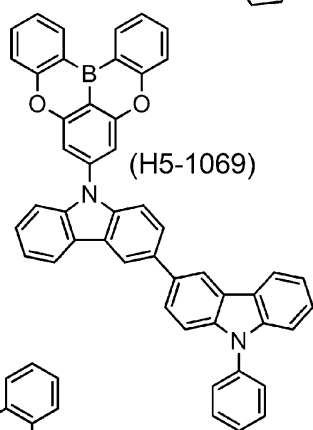
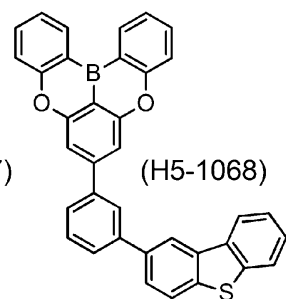
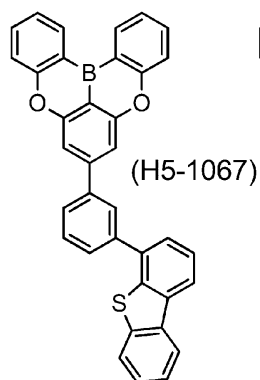
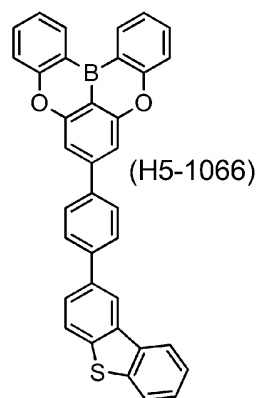
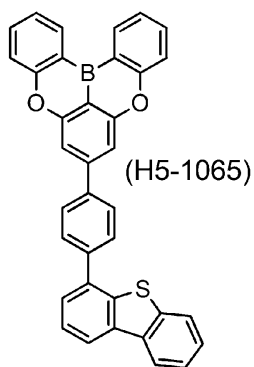
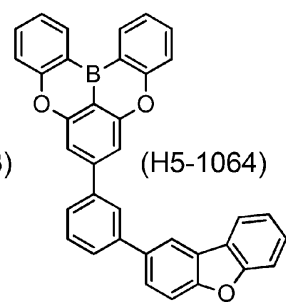
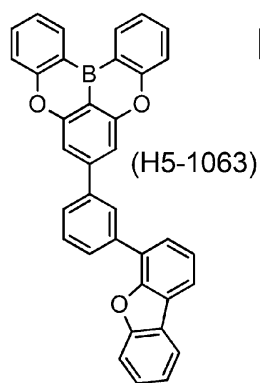
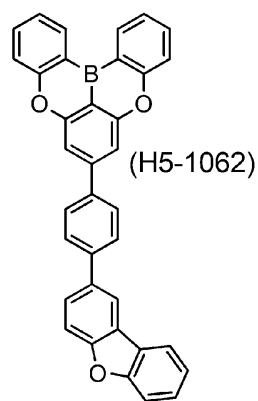
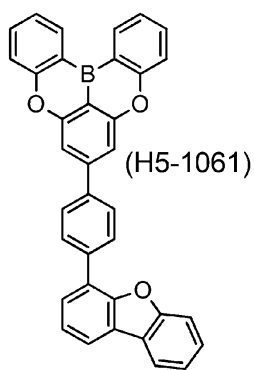
(H5-1050)

40

【 0 2 5 2】

50

【化 9 3】



【 0 2 5 3】

10

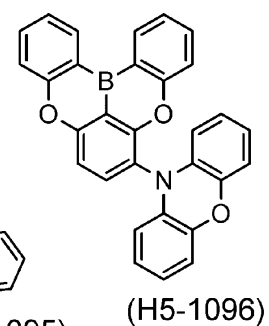
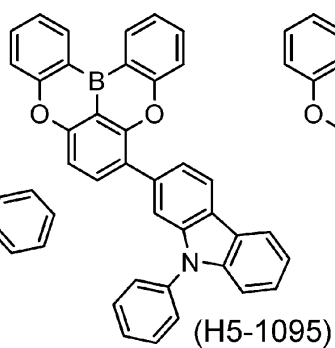
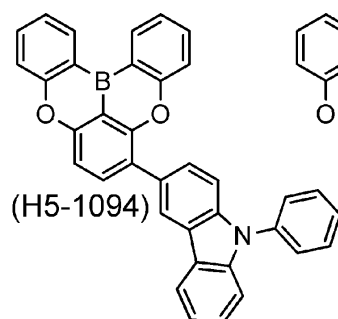
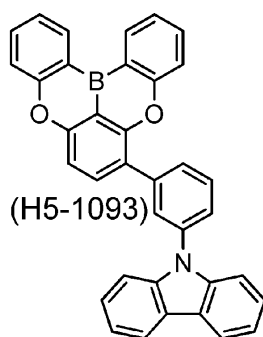
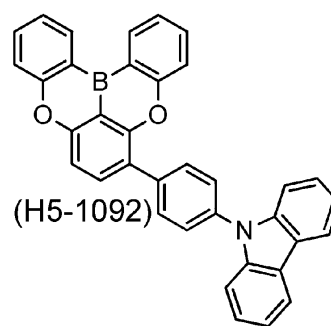
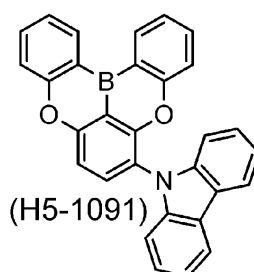
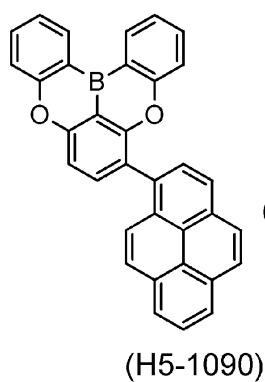
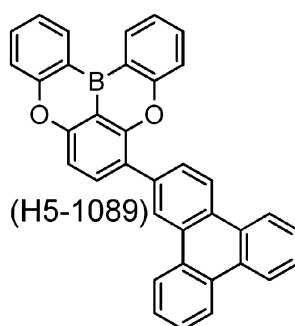
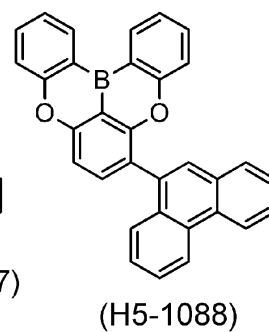
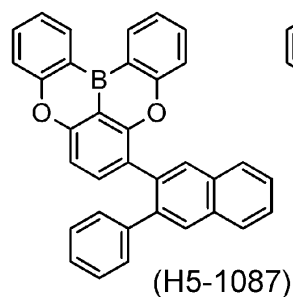
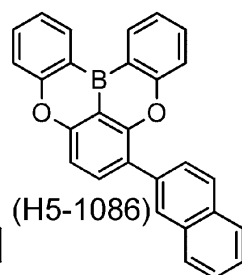
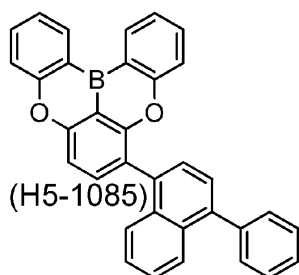
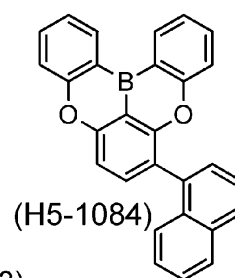
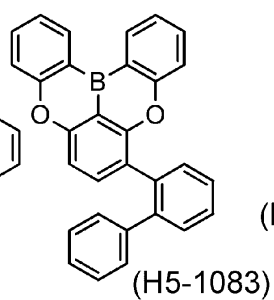
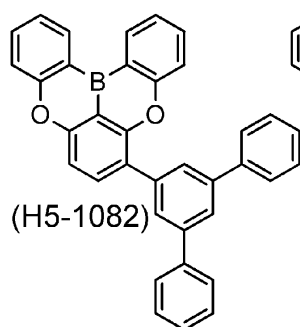
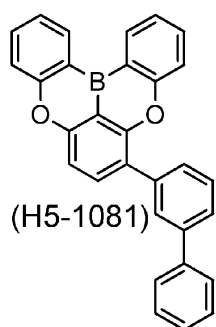
20

30

40

50

【化 9 4】



【 0 2 5 4】

10

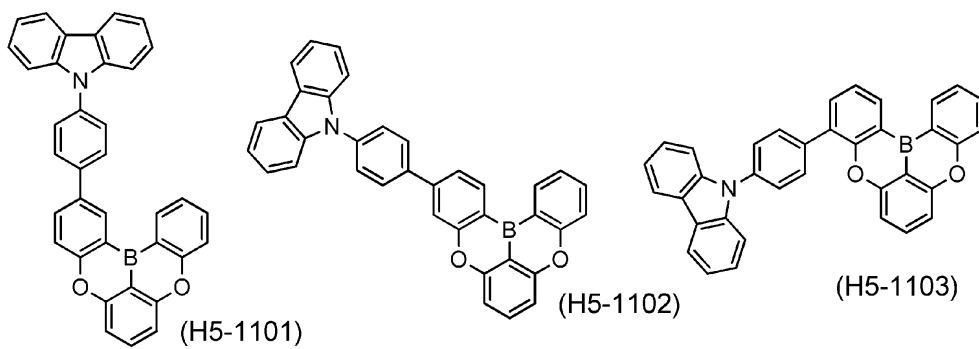
20

30

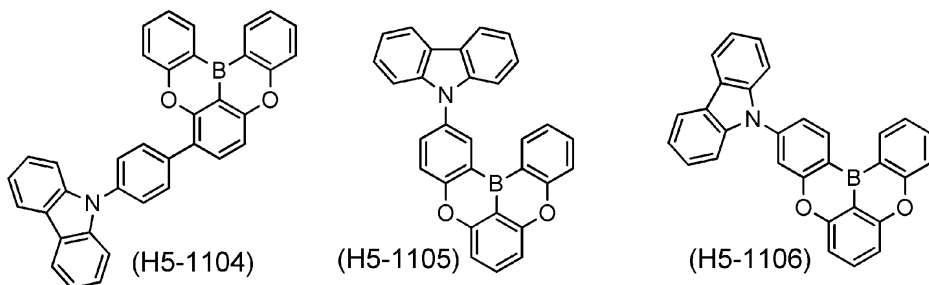
40

50

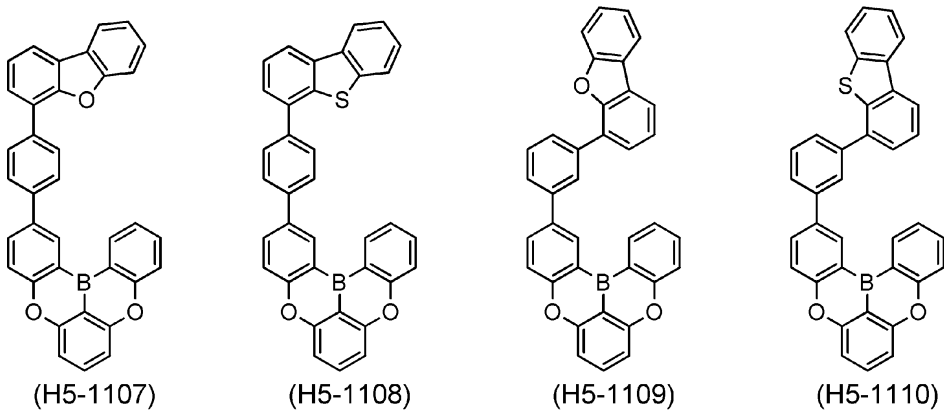
【化 9 5】



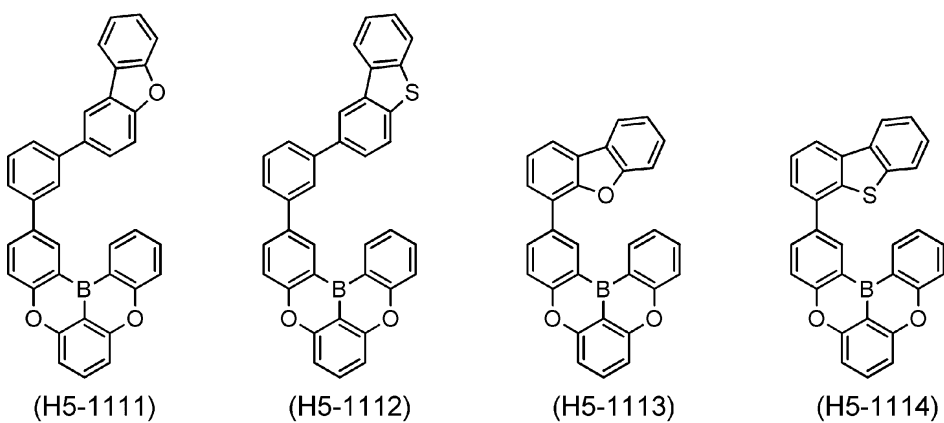
10



20



30

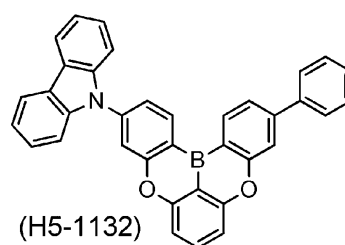
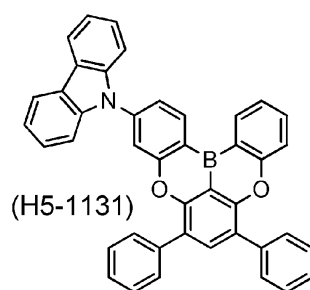
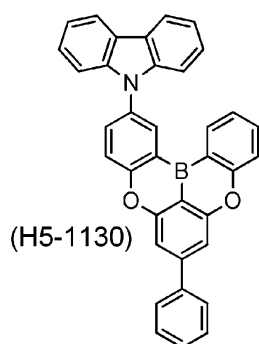
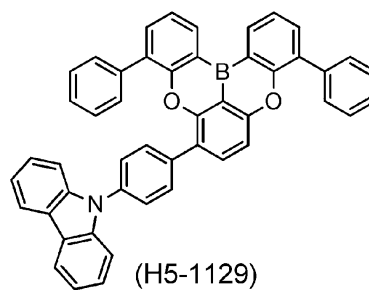
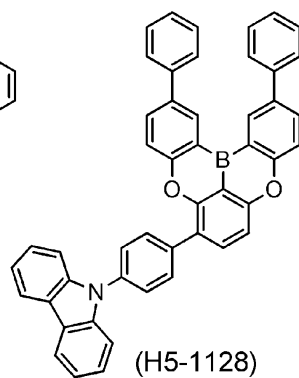
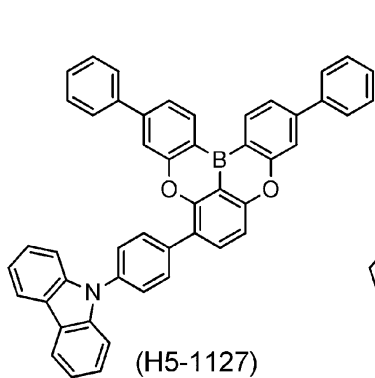
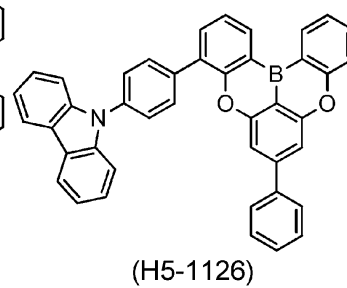
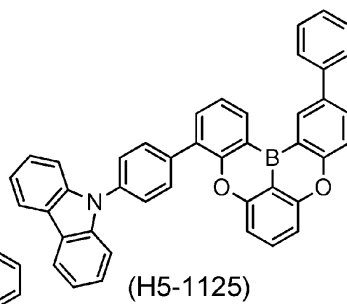
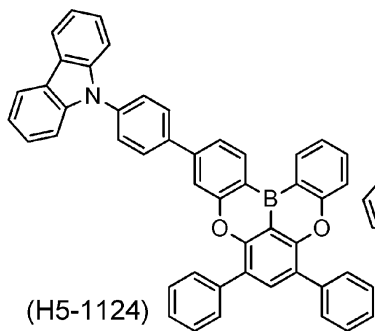
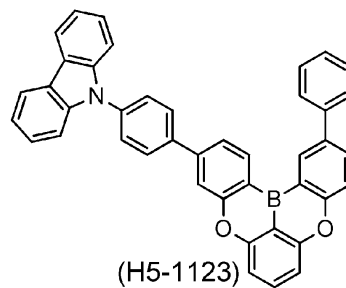
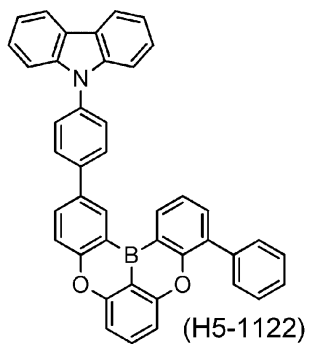
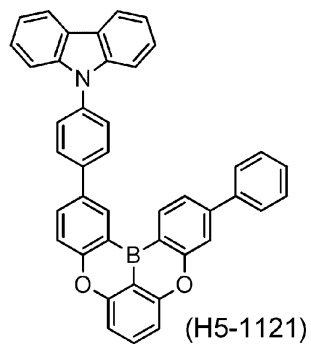


40

【 0 2 5 5】

50

【化 9 6】



【 0 2 5 6 】

10

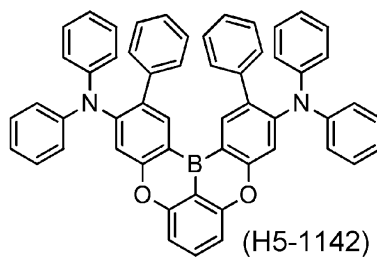
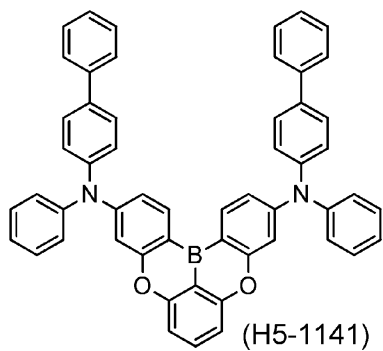
20

30

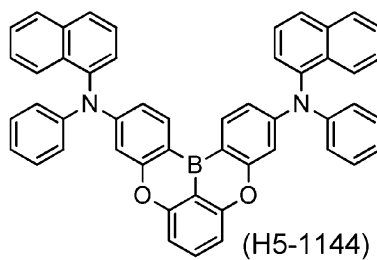
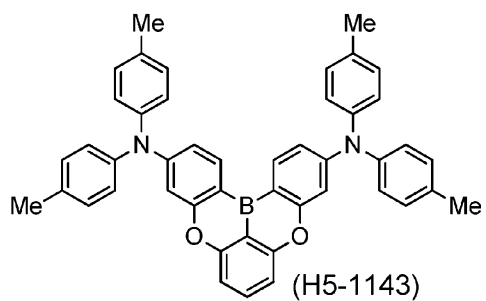
40

50

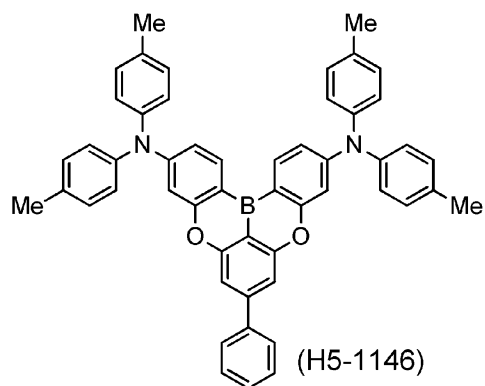
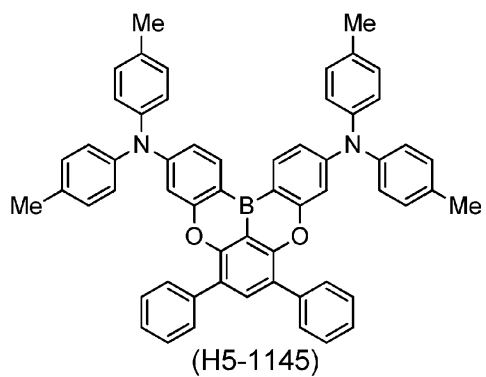
【化 9 7】



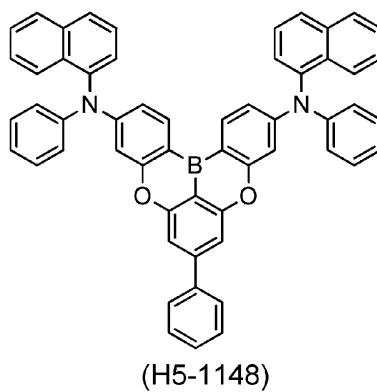
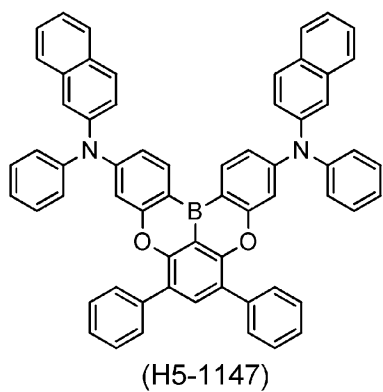
10



20



30

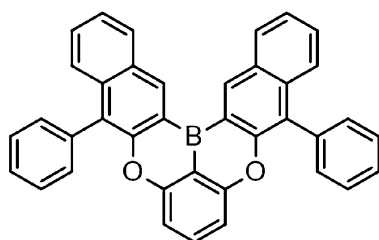


40

【 0 2 5 7】

50

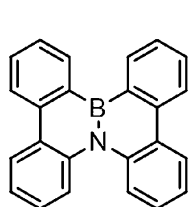
【化 9 8】



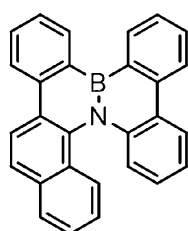
(H5-1271)

【 0 2 5 8】

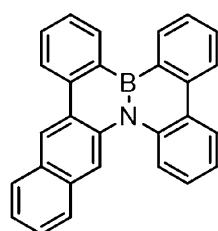
【化 9 9】



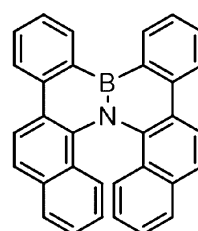
(H6-1)



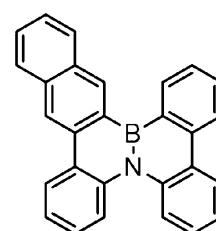
(H6-2)



(H6-3)



(H6-4)



(H6-5)

【 0 2 5 9】

10

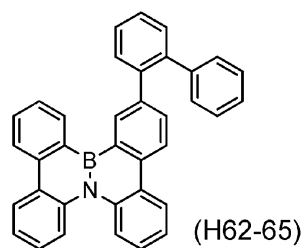
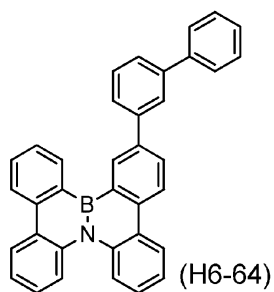
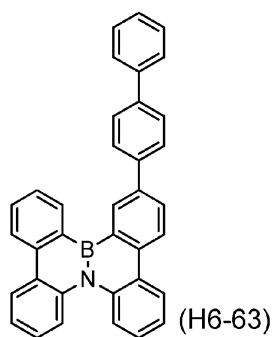
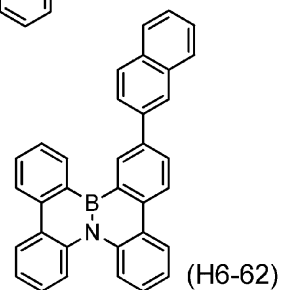
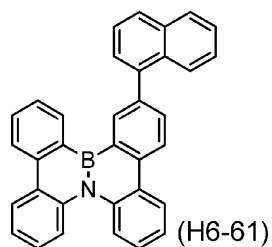
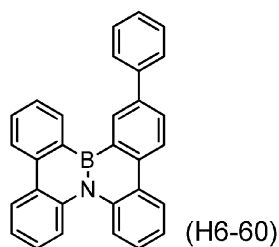
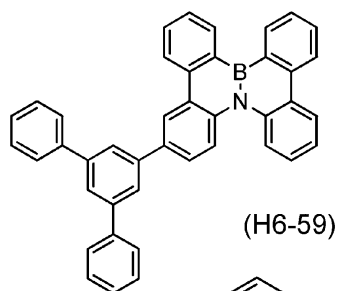
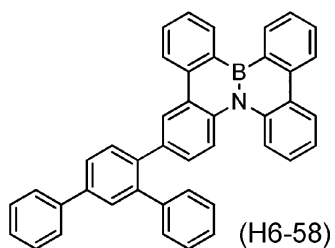
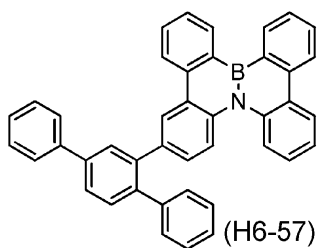
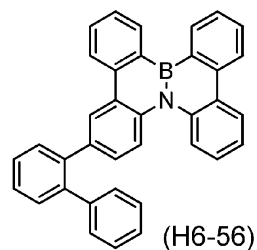
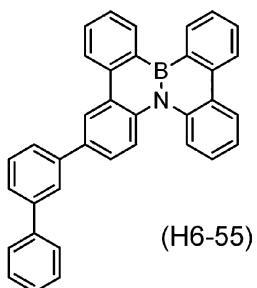
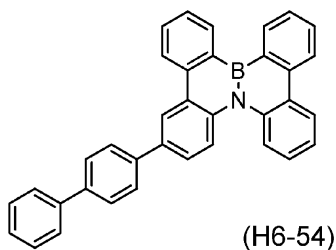
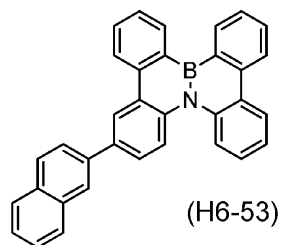
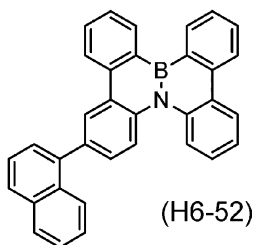
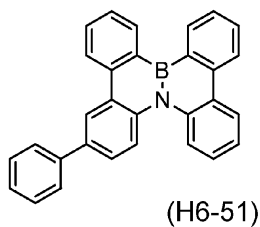
20

30

40

50

【化 1 0 0】



【 0 2 6 0】

10

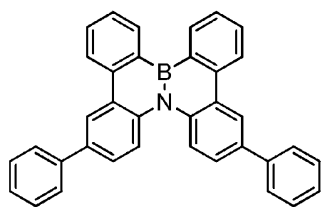
20

30

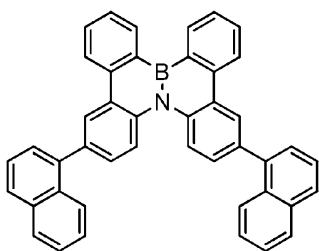
40

50

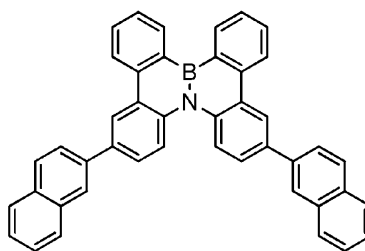
【化 1 0 1】



(H6-66)

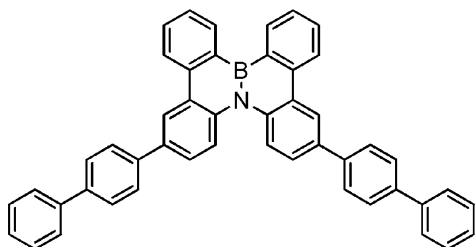


(H6-67)

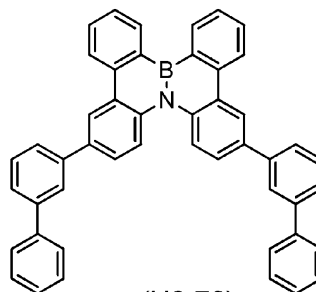


(H6-68)

10

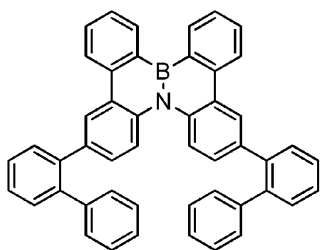


(H6-69)

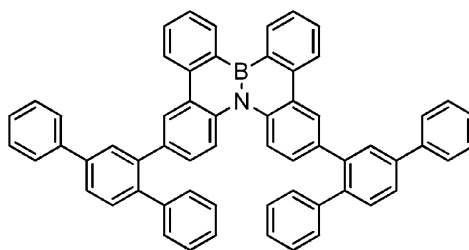


(H6-70)

20

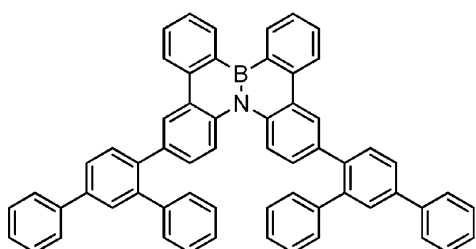


(H6-71)

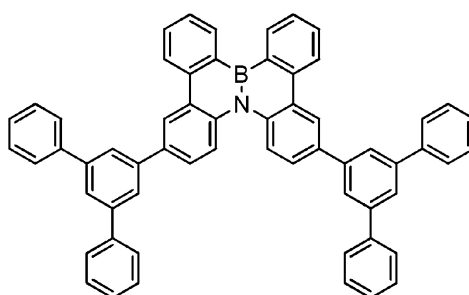


(H6-72)

30



(H6-73)



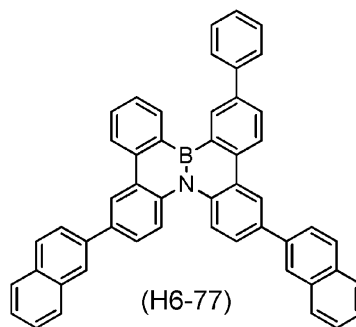
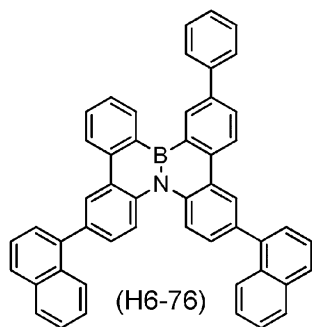
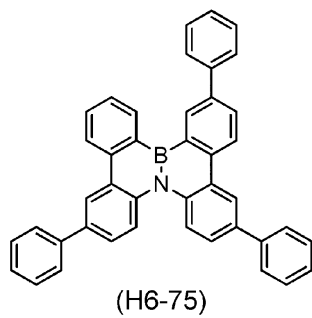
(H6-74)

40

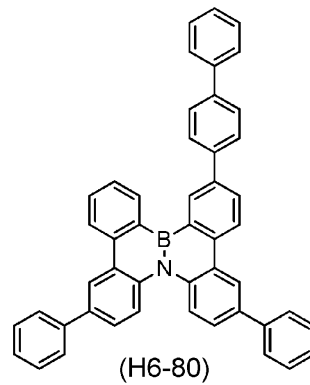
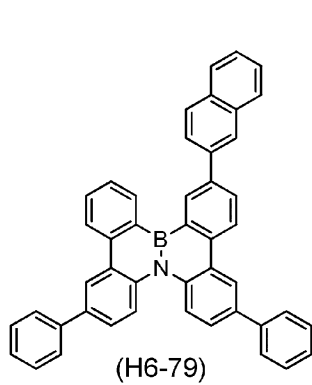
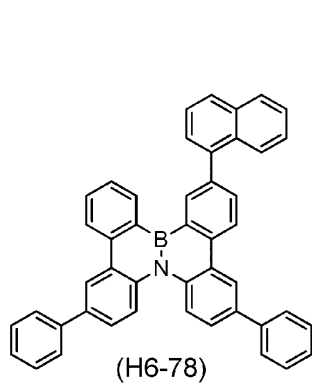
【 0 2 6 1】

50

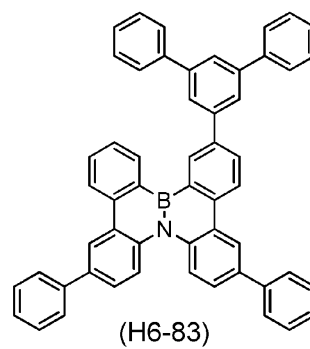
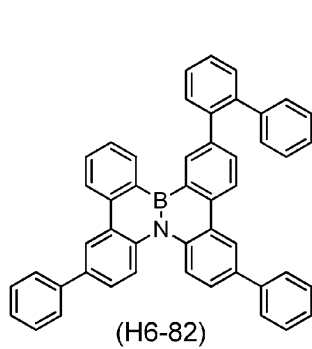
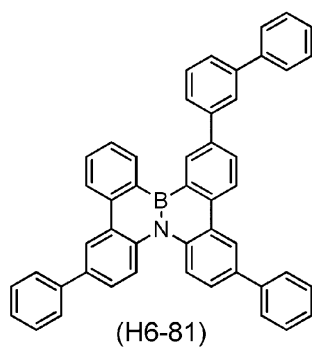
【化 1 0 2】



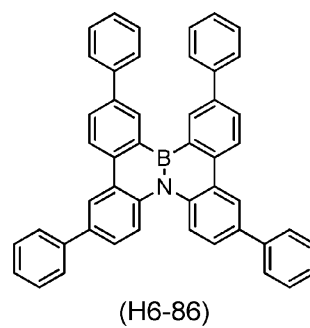
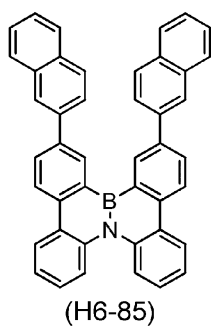
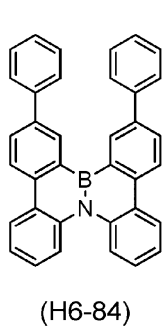
10



20



30

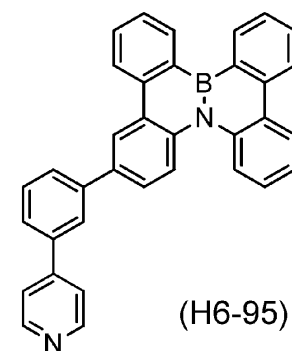
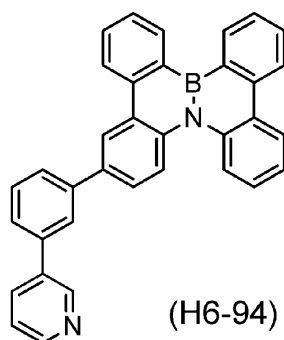
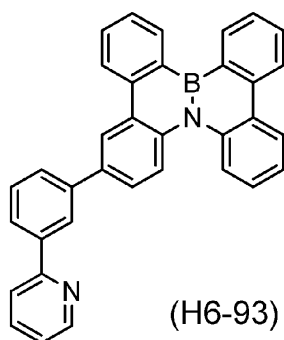
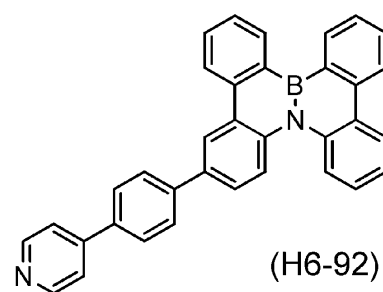
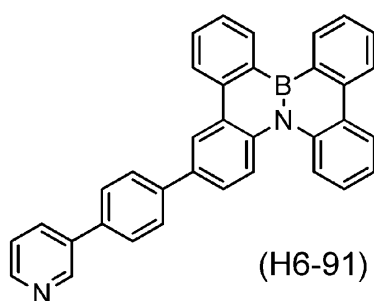
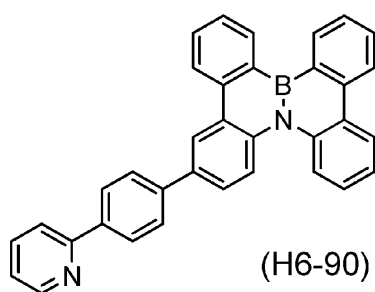
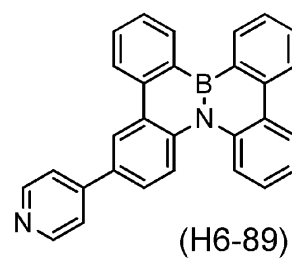
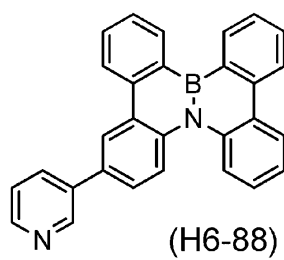
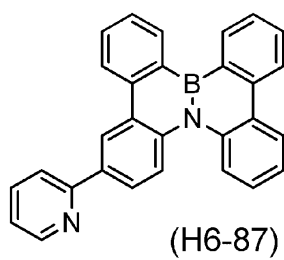


40

【 0 2 6 2】

50

【化 1 0 3】



【 0 2 6 3】

10

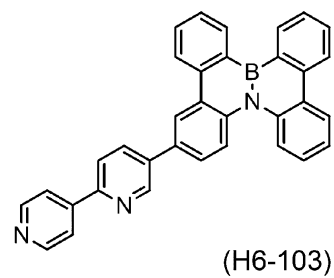
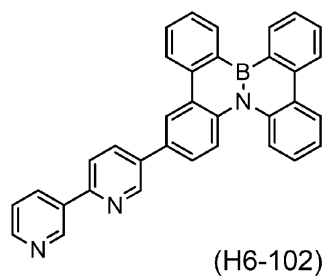
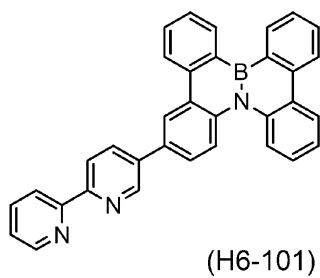
20

30

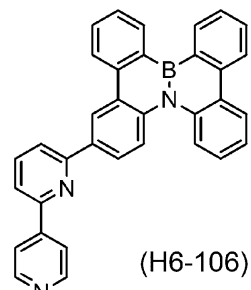
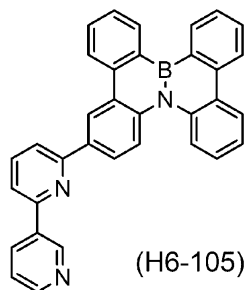
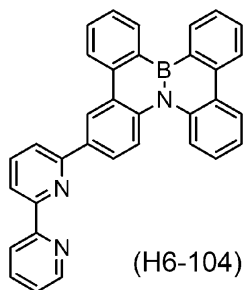
40

50

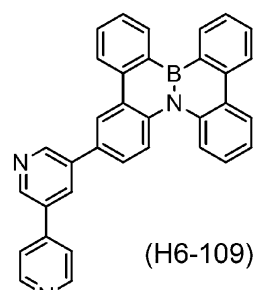
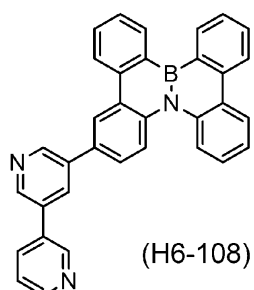
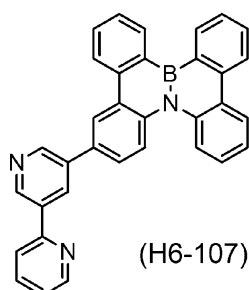
【化 1 0 4】



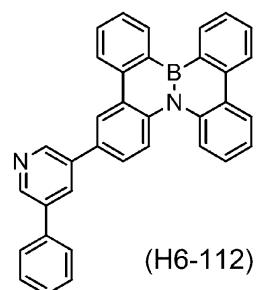
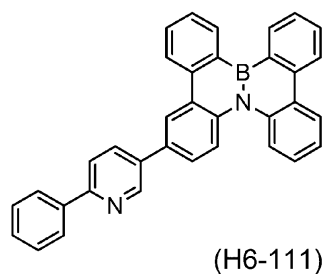
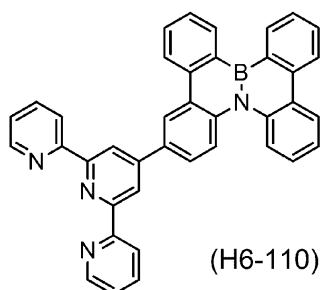
10



20



30

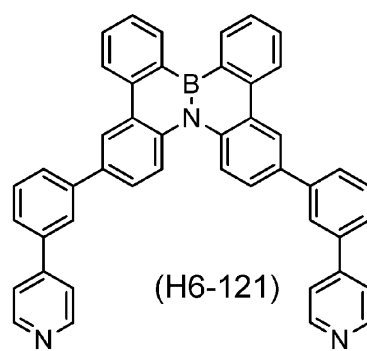
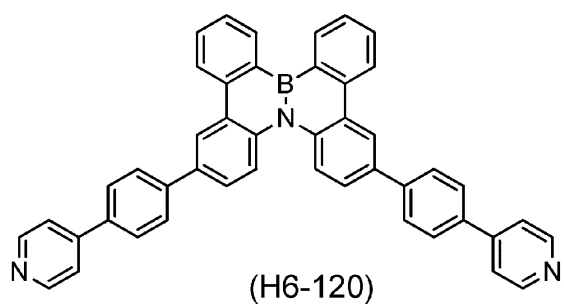
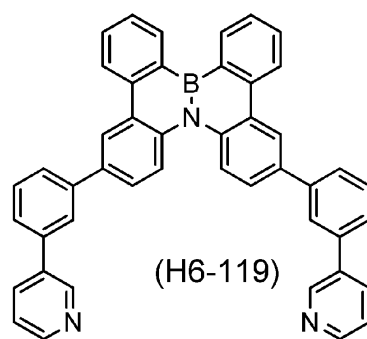
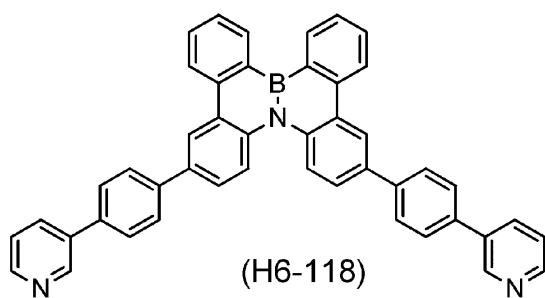
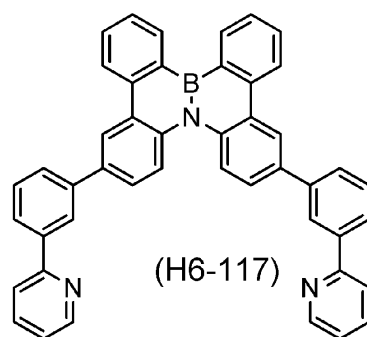
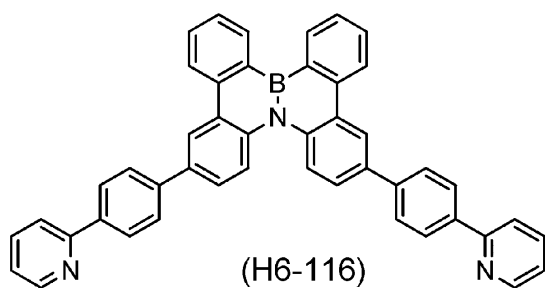
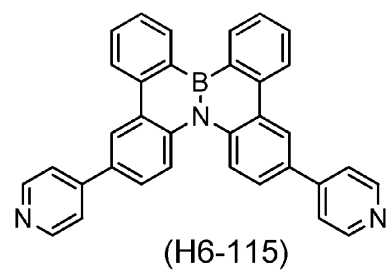
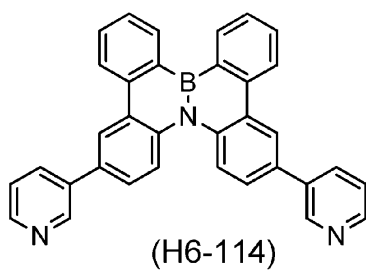
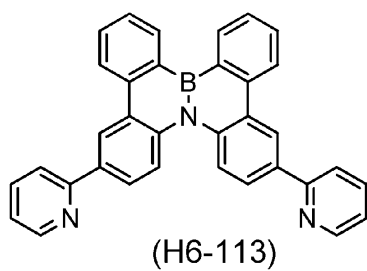


40

【 0 2 6 4】

50

【化 1 0 5】



【 0 2 6 5】

10

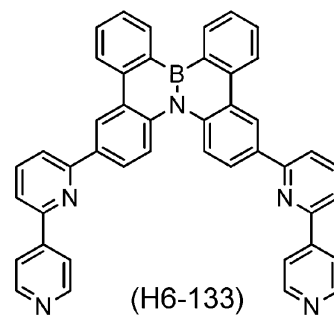
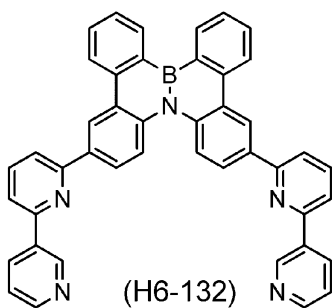
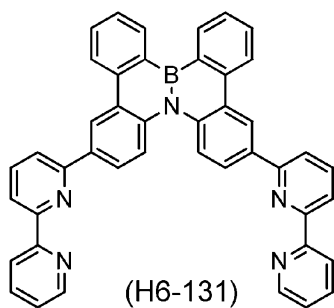
20

30

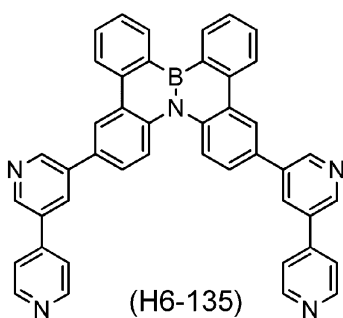
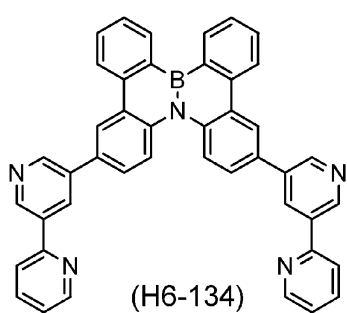
40

50

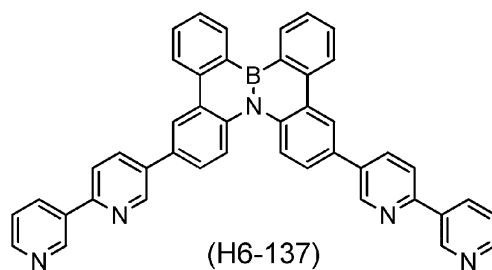
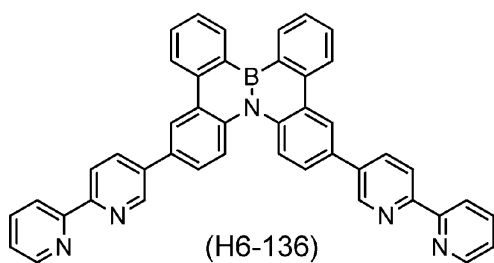
【化 1 0 6】



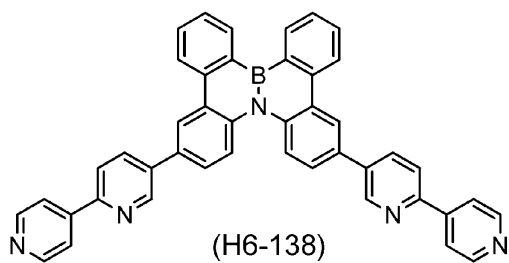
10



20



30

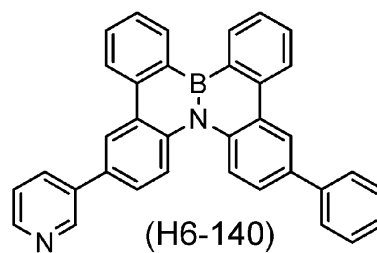
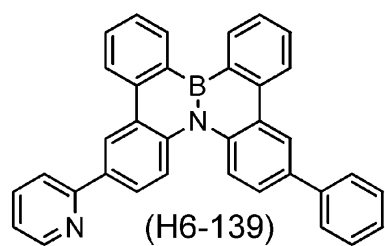


40

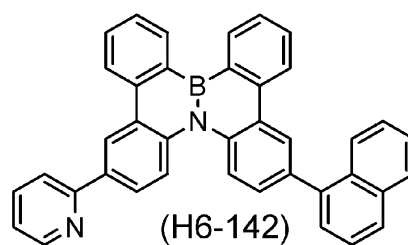
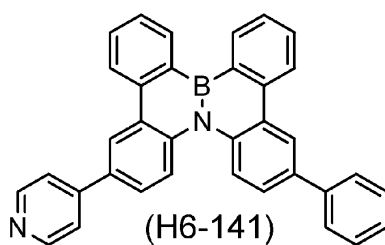
【 0 2 6 6】

50

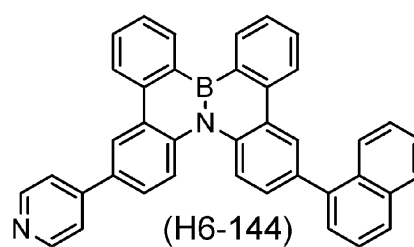
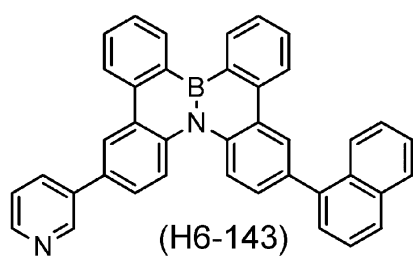
【化 1 0 7】



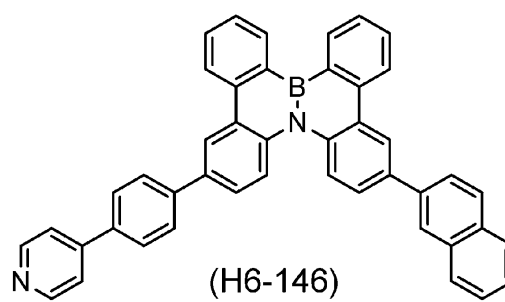
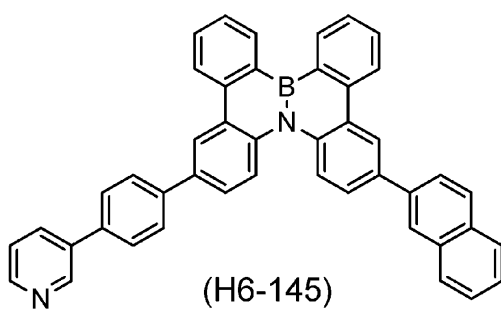
10



20



30

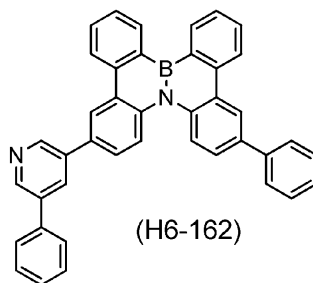
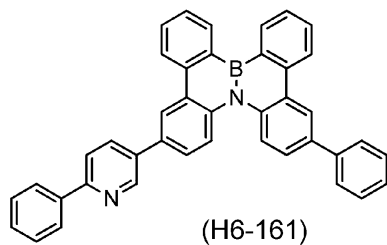
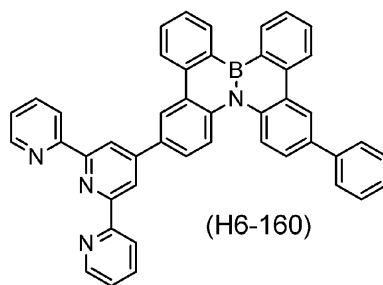
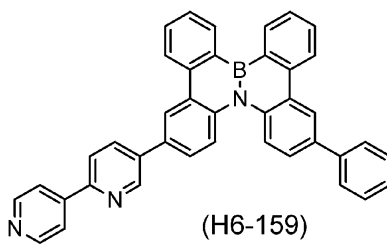
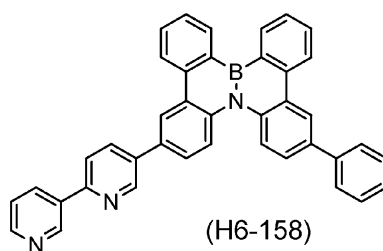
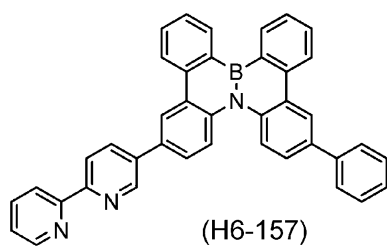
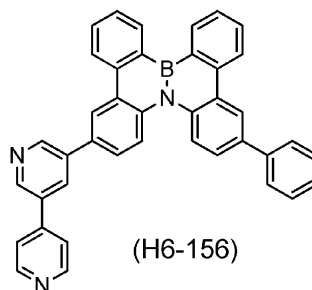
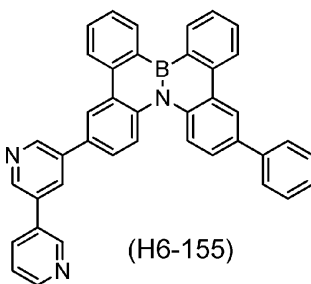
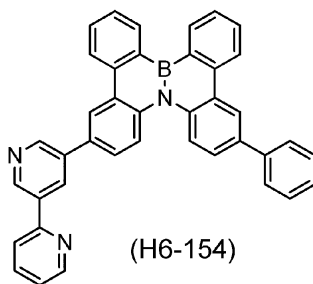
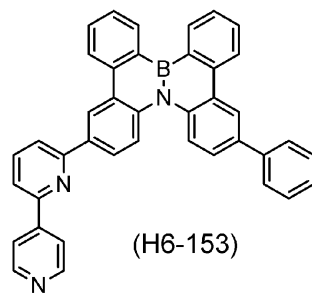
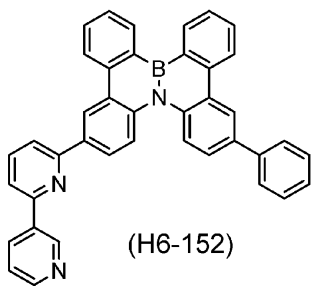
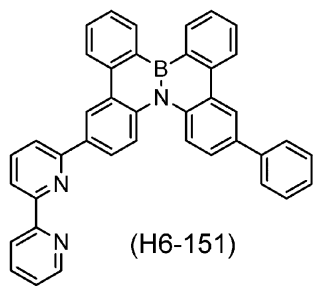


40

【 0 2 6 7】

50

【化 1 0 8】



【 0 2 6 8】

10

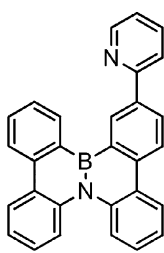
20

30

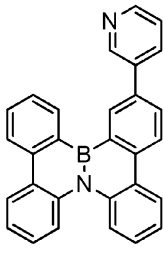
40

50

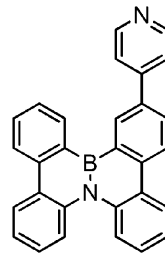
【化 1 0 9】



(H6-163)

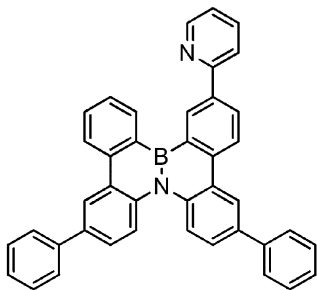


(H6-164)

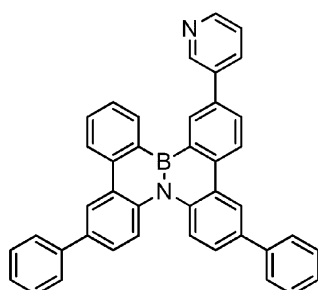


(H6-165)

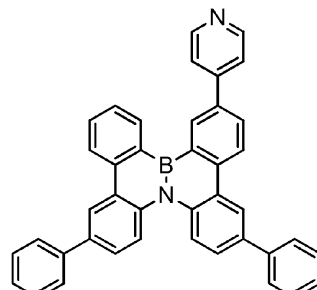
10



(H6-166)

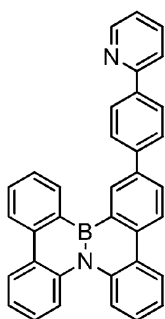


(H6-167)

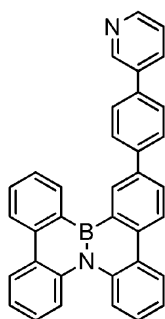


(H6-168)

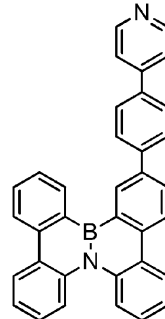
20



(H6-171)

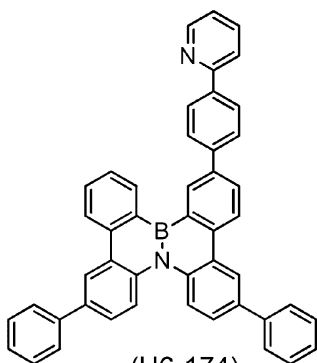


(H6-172)

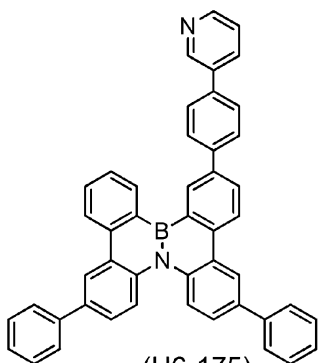


(H6-173)

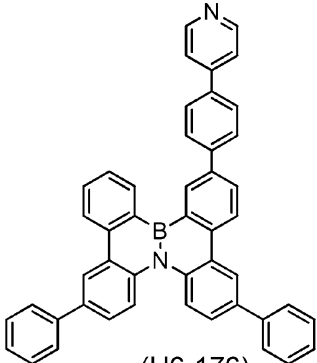
30



(H6-174)



(H6-175)



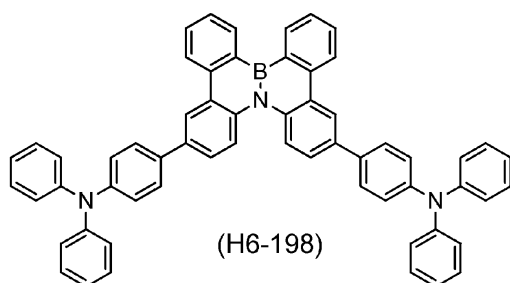
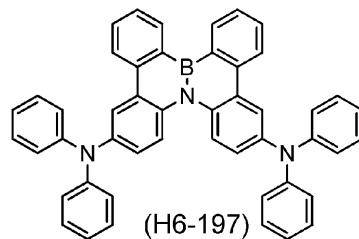
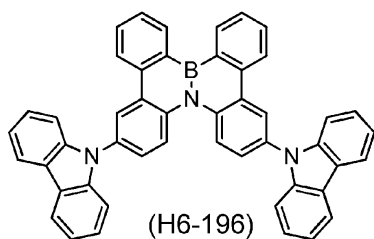
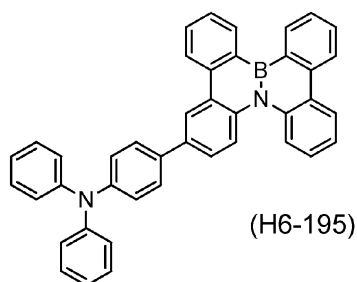
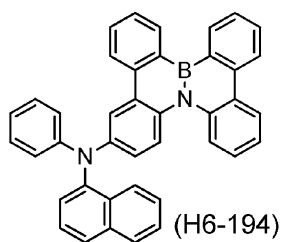
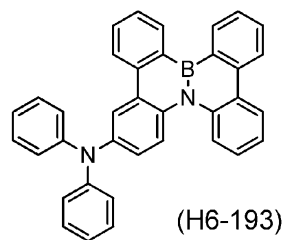
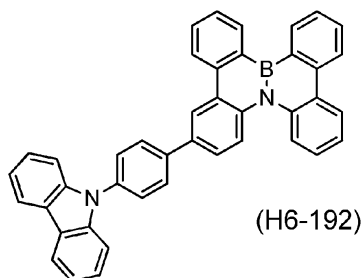
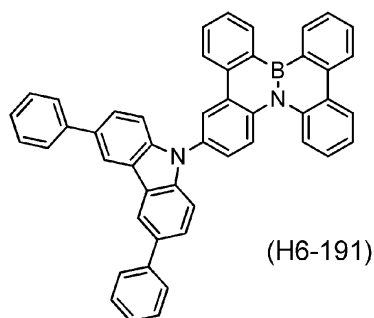
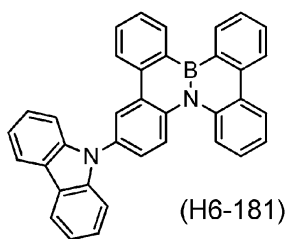
(H6-176)

40

【 0 2 6 9】

50

【化 1 1 0】



【 0 2 7 0】

10

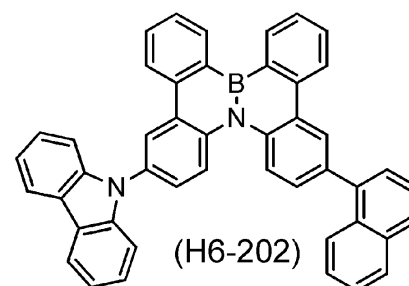
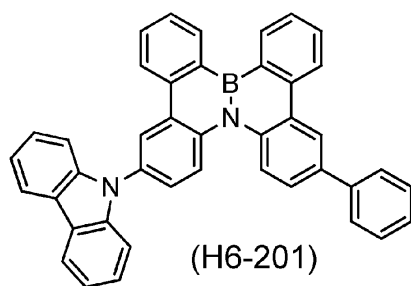
20

30

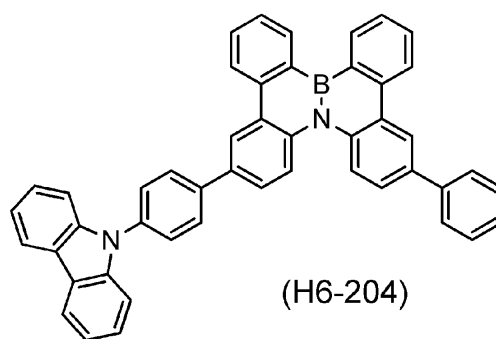
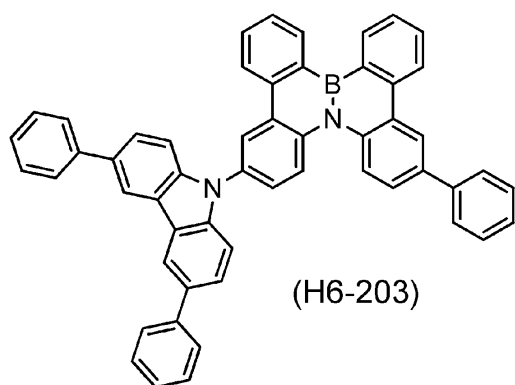
40

50

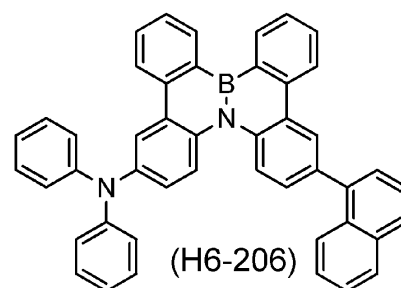
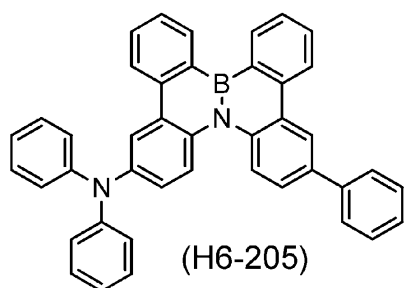
【化 1 1 1】



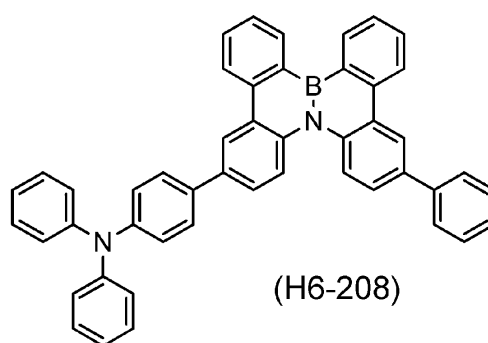
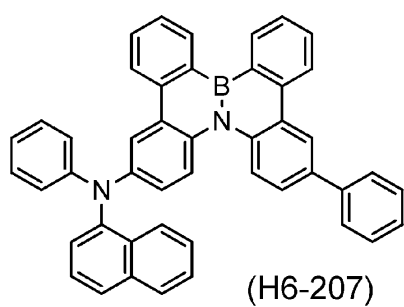
10



20



30

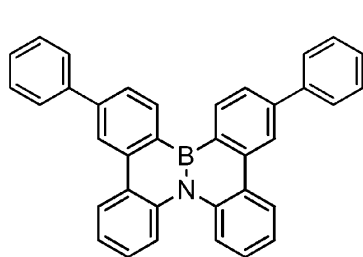


【 0 2 7 1】

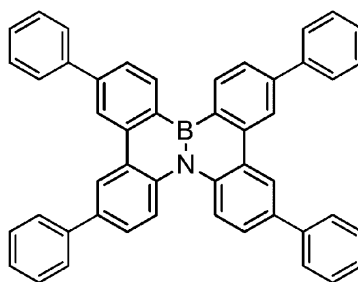
40

50

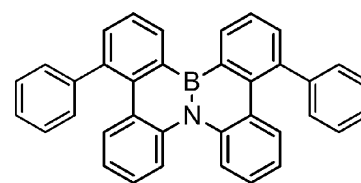
【化 1 1 2】



(H6-211)

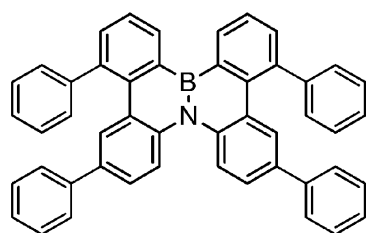


(H6-212)

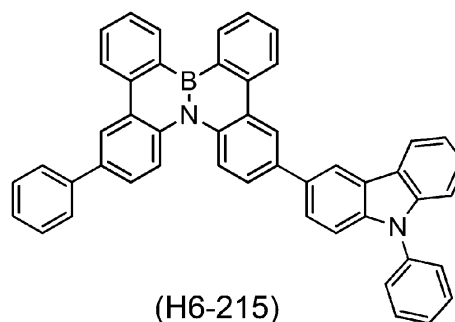


(H6-213)

10

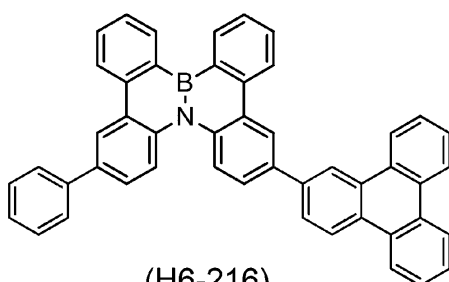


(H6-214)



(H6-215)

20



(H6-216)

30

【0 2 7 2】

3-1-5-1-5-6. 式 (H5) または式 (H6) で表される化合物の製造方法

式 (H5) で表される化合物は、まず a ~ c 環を結合基 (—O—) で結合させることで中間体を製造し (第1反応)、その後に、a ~ c 環を結合基 (B を含む基) で結合させることで最終生成物を製造することができる (第2反応)。また、式 (H6) で表される化合物は、まず a ~ d 環を結合基 (>NH または単結合) で結合させることで中間体を製造し (第1反応)、その後に、a ~ d 環を結合基 (B を含む基) で結合させることで最終生成物を製造することができる (第2反応)。第1反応では、例えばエーテル化反応であれば、求核置換反応、ウルマン反応といった一般的反応が利用でき、アミノ化反応で有ればブッフバルト-ハートウィッグ反応といった一般的反応が利用できる。また、第2反応では、タンデムヘテロフリーデルクラフツ反応 (連続的な芳香族求電子置換反応、以下同様) が利用できる。

40

【0 2 7 3】

<製造方法: 式 (H5) で表される化合物の第2反応の例>

第2反応は、下記スキーム (1) に示すように、a 環、b 環および c 環を結合する B (ホウ素) を導入する反応であり、例として式 (H5) で表される化合物の場合を以下に示す。まず、2つの O の間の水素原子を n-ブチルリチウム、sec-ブチルリチウムまた

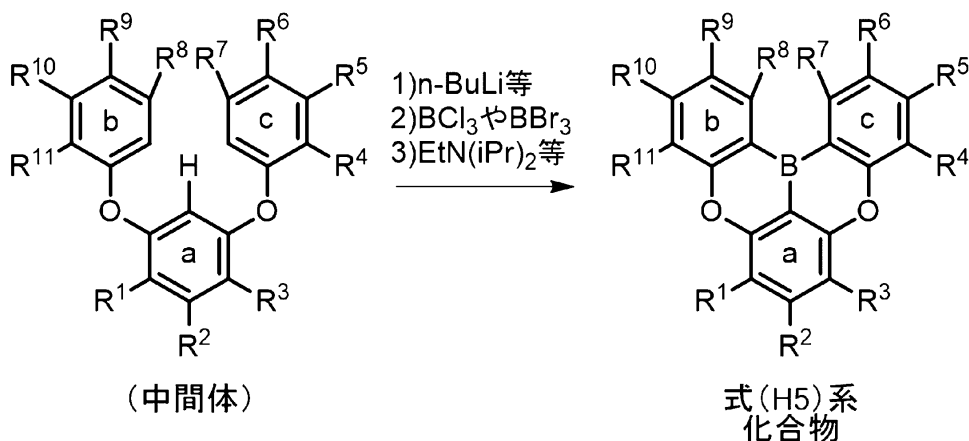
50

はセーブチルリチウム等でオルトメタル化する。次いで、三塩化ホウ素や三臭化ホウ素等を加え、リチウム-ホウ素の金属交換を行った後、N,N-ジイソプロピルエチルアミン等のブレンステッド塩基を加えることで、タンデムボラフリーデルクラフツ反応させ、目的物を得ることができる。第2反応においては反応を促進させるために三塩化アルミニウム等のルイス酸を加えてもよい。

【0274】

【化113】

スキーム(1)



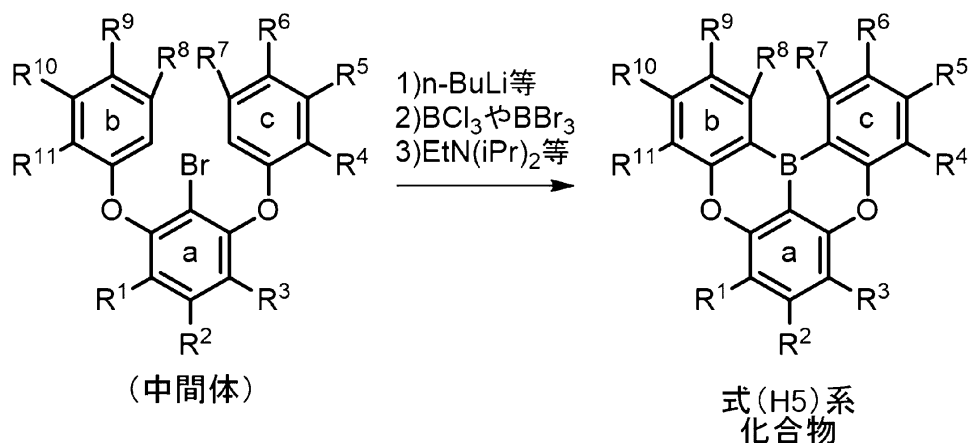
【0275】

上記スキームにおいては、オルトメタル化により所望の位置へリチウムを導入したが、下記スキーム(2)のようにリチウムを導入したい位置に臭素原子等を導入し、ハロゲン-メタル交換によっても所望の位置へリチウムを導入することができる。

【0276】

【化114】

スキーム(2)



【0277】

上述の合成法を適宜選択し、使用する原料も適宜選択することで、所望の位置に置換基を有し、式(H-5)で表される化合物を合成することができる。

【0278】

<製造方法：式(H6)で表される化合物の製造方法の例>

式(H6)で表される化合物の製造方法についても、上述した式(H5)で表される化合物の製造方法における第1反応および第2反応を適用できる。つまり、第2反応はNHとc環およびd環を結合するB(ホウ素)を導入する反応であり、NHの水素原子をn-ブチルリチウム、sec-ブチルリチウムまたはセーブチルリチウム等でオルトメタル化

した後、三塩化ホウ素や三臭化ホウ素等を加えてリチウム－ホウ素の金属交換を行い、さらにN，N－ジイソプロピルエチルアミン等のブレンステッド塩基を加えることで、タンデムボラフリーデルクラフツ反応させ、目的物を得ることができる。ここでも第2反応においては反応を促進させるために三塩化アルミニウム等のルイス酸を加えてもよい。

【0279】

3-1-5-2. TADF材料

発光層には、TADF材料が含まれていることも好ましい。

本明細書において、TADF材料とは「熱活性型遅延蛍光体」である材料を意味する。「熱活性型遅延蛍光体」では、励起一重項状態と励起三重項状態のエネルギー差を小さくすることで、通常は遷移確率が低い励起三重項状態から励起一重項状態への逆エネルギー移動を高効率で生じさせ、一重項からの発光（熱活性型遅延蛍光、TADF）が発現する。通常の蛍光発光では電流励起により生じた75%の三重項励起子は熱失活経路を通るため蛍光として取りだすことはできない。一方、TADFでは全ての励起子を蛍光発光に利用することができ、高効率な有機EL素子を実現できる。

【0280】

TADF材料は、ドナーと呼ばれる電子供与性の置換基とアクセプターと呼ばれる電子受容性の置換基を用いて分子内のHOMOとLUMOを局在化させて、効率的な逆項間交差（reverse intersystem crossing）が起きるようにデザインされた、ドナー－アクセプター型TADF化合物（D-A型TADF化合物）であることが好ましい。

【0281】

ここで、本明細書において「電子供与性の置換基」（ドナー）とは、TADF化合物分子中でHOMO軌道が局在する置換基および部分構造のことを意味し、「電子受容性の置換基」（アクセプター）とは、TADF化合物分子中でLUMO軌道が局在する置換基および部分構造のことを意味することとする。

【0282】

一般的に、ドナーやアクセプターを用いたTADF化合物は、構造に起因してスピン軌道結合（SOC: Spin Orbit Coupling）が大きく、かつ、HOMOとLUMOの交換相互作用が小さく $\Delta E(S T)$ が小さいために、非常に速い逆項間交差速度が得られる。一方、ドナーやアクセプターを用いたTADF化合物は、励起状態での構造緩和が大きくなり（ある分子においては、基底状態と励起状態では安定構造が異なるため、外部刺激により基底状態から励起状態への変換が起きると、その後、励起状態における安定構造へと構造が変化する）、幅広い発光スペクトルを与えるため、発光材料として使うと色純度を低下させる可能性がある。

【0283】

しかし、本発明の多環芳香族化合物を同時に用いることにより、本発明の多環芳香族化合物はエミッティングドーパントとして、TADF材料は、アシスティングドーパントとして機能し、高い色純度を与えることができる。TADF材料は、その発光スペクトルが本発明の多環芳香族化合物の吸収スペクトルと少なくとも一部重なる化合物であればよい。本発明の多環芳香族化合物とTADF材料とはいずれも同じ層に含まれていてもよく、隣接する層に含まれていてもよい。

【0284】

このような目的で使用できるTADF材料としては、例えば下記式（H7）で表される化合物、または下記式（H7）を部分構造として有する化合物があげられる。

【0285】

【化115】



【0286】

式 (H 7) において、E Dは電子供与性基であり、L nは連結基であり、E Aは電子受容性基であり、式 (H 7) で表される化合物の一重項エネルギー (S^1) と三重項エネルギー (T^1) のエネルギー差 ($\Delta S^1 T^1$) は0.2 eV以下である (Hiroki Uoyama, Kenichi Goushi, Katsuyuki Shizu, Hiroko Nomura, Chihaya Adachi, Nature, 492, 234-238 (2012))。エネルギー差 ($\Delta S^1 T^1$) は、好ましくは0.15 eV以下であり、より好ましくは0.10 eV以下であり、さらに好ましくは0.08 eV以下である。

【0287】

TADF材料に用いられる電子供与性基 (ドナー性の構造) および電子受容性基 (アクセプター性の構造) としては、例えば、Chemistry of Materials, 2017, 29, 1946-1963に記載の構造を用いることができる。EDとしては、例えば、 sp^3 窒素を含有する官能基があげられ、より具体的には、カルバゾール、ジメチルカルバゾール、ジ-tert-ブチルカルバゾール、ジメトキシカルバゾール、テトラメチルカルバゾール、ベンゾフルオロカルバゾール、ベンゾチエノカルバゾール、フェニルジヒドロインドロカルバゾール、フェニルピカルバゾール、ピカルバゾール、ターカルバゾール、ジフェニルカルバゾリルアミン、テトラフェニルカルバゾリルジアミン、フェノキサジン、ジヒドロフェナジン、フェノチアジン、ジメチルジヒドロアクリジン、ジフェニルアミン、ビス (tert-ブチル) フェニル) アミン、(ジフェニルアミノ) フェニル) ジフェニルベンゼンジアミン、ジメチルテトラフェニルジヒドロアクリジンジアミン、テトラメチル-ジヒドロインデノアクリジンおよびジフェニル-ジヒドロベンゾアザシリンなどから誘導される基があげられる。また、EAとしては、例えば、 sp^2 窒素含有芳香族環、CN置換芳香族環、ケトンを含む環およびシアノ、より具体的には、スルホニルベンゼン、ベンゾフェノン、フェニレンビス (フェニルメタノン)、ベンゾニトリル、イソニコチノニトリル、フタロニトリル、イソフタロニトリル、パラフタロニトリル、トリアゾール、オキサゾール、チアジアゾール、ベンゾチアジアゾール、ベンゾビス (チアジアゾール)、ベンゾオキサゾール、ベンゾビス (オキサゾール)、キノリン、ベンゾイミダゾール、ジベンゾキノキサリン、ヘプタアザフェナレン、チオキサントンジオキソド、ジメチルアントラセノン、アントラセンジオン、ピリジン、シクロヘプタビピリジン、ベンゼントリカルボニトリル、フルオレンジカルボニトリル、ピラジンジカルボニトリル、ピリジンジカルボニトリル、ジベンゾキノキサリンジカルボニトリル、ピリミジン、フェニルピリミジン、メチルピリミジン、トリアジン、トリフェニルトリアジン、ビス (フェニルスルホニル) ベンゼン、ジメチルチオキサントンジオキソド、チアンスレンテトラオキソドおよびトリス (ジメチルフェニル) ボランなどから誘導される基があげられる。Lnとしては、例えば、単結合およびアリーレンがあげられ、より具体的には、フェニレン、ビフェニレン、ナフチレンなどがあげられる。また、いずれの構造においても水素がアルキル、シクロアルキルおよびアリールで置換されてもよい。特に、部分構造として、カルバゾール、フェノキサジン、アクリジン、トリアジン、ピリミジン、ピラジン、チオキサントン、ベンゾニトリル、フタロニトリル、イソフタロニトリル、ジフェニルスルホン、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールおよびベンゾフェノンから選択される少なくとも一つを有する化合物であることが好ましい。

式 (H 7) において、連結基のLnはドナー性の部分構造とアクセプター性の部分構造を分けるスペーサー構造として機能する。

【0288】

式 (H 7) で表される化合物は、より具体的には、式 (H 7-1)、式 (H 7-2) および式 (H 7-3) のいずれかで表される化合物であればよい。

10

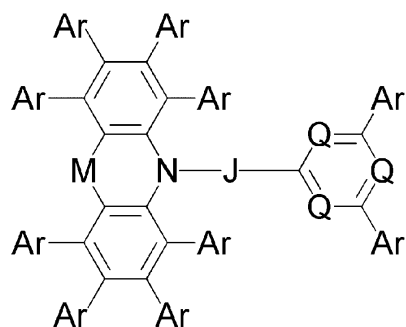
20

30

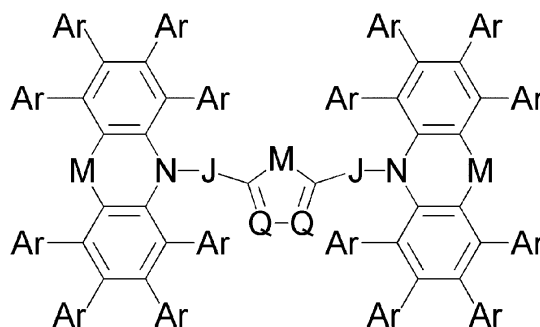
40

50

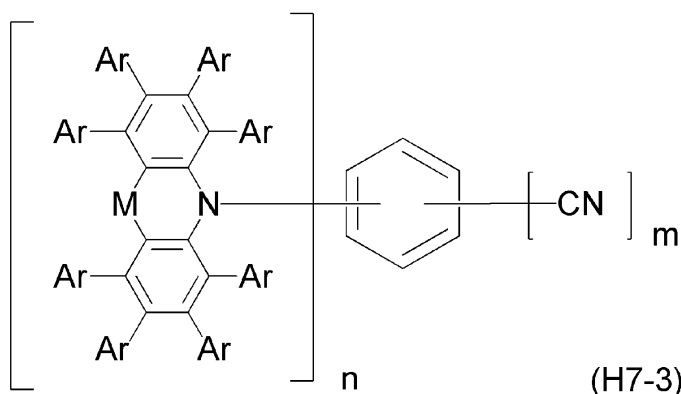
【化 1 1 6】



(H7-1)



(H7-2)



(H7-3)

【 0 2 8 9】

式 (H7-1)、式 (H7-2) および式 (H7-3) 中、

Mは、それぞれ独立して、単結合、 $-O-$ 、 $>N-Ar$ または $>C(-Ar)_2$ であり、形成する部分構造のHOMOの深さおよび励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位の高さの観点から、好ましくは、単結合、 $-O-$ または $>N-Ar$ であり、

Jは、式 (H7) におけるLnに対応する連結基であり、それぞれ独立して、炭素数6～18のアリーレンであり、ドナー性の部分構造とアクセプター性の部分構造から染み出す共役の大きさの観点から、炭素数6～12のアリーレンが好ましく、より具体的には、フェニレン、メチルフェニレンおよびジメチルフェニレンがあげられ、

Qは、それぞれ独立して、 $=C(-H)-$ または $=N-$ であり、形成する部分構造のLUMOの浅さおよび励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位の高さの観点から、好ましくは、 $=N-$ であり、

Arは、それぞれ独立して、水素、炭素数6～24のアリール、炭素数2～24のヘテロアリール、炭素数1～12のアルキルまたは炭素数3～18のシクロアルキルであり、形成する部分構造のHOMOの深さおよび励起一重項エネルギー準位および励起三重項エネルギー準位の高さの観点から、好ましくは、水素、炭素数6～12のアリール、炭素数2～14のヘテロアリール、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数6～10のシクロアルキルであり、より好ましくは、水素、フェニル、トリル、キシリル、メシチル、ピフェニル、ピリジル、ビピリジル、トリアジル、カルバゾリル、ジメチルカルバゾリル、ジ-tert-ブチルカルバゾリル、ベンゾイミダゾールまたはフェニルベンゾイミダゾールであり、さらに好ましくは、水素、フェニルまたはカルバゾリルであり、

mは、1または2であり、

nは、 $2 \sim (6-m)$ の整数であり、立体障害の観点から、好ましくは、 $4 \sim (6-m)$ の整数である。

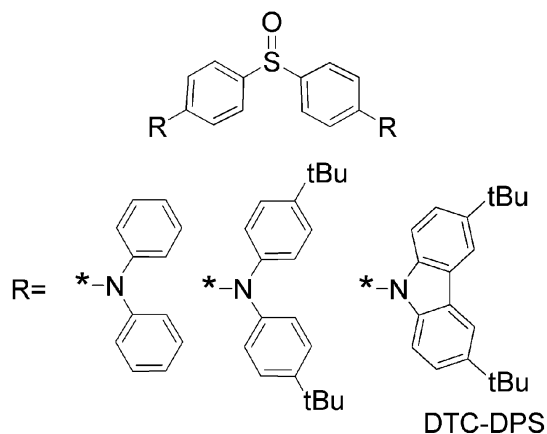
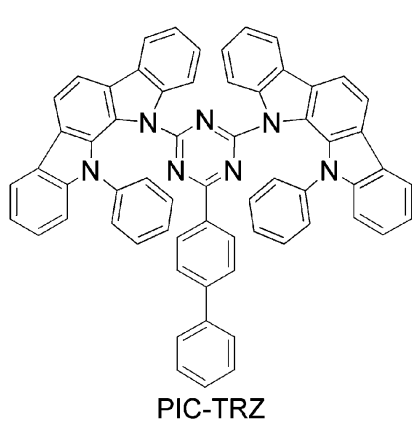
さらに、上記各式で表される化合物における少なくとも1つの水素は、ハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

【 0 2 9 0 】

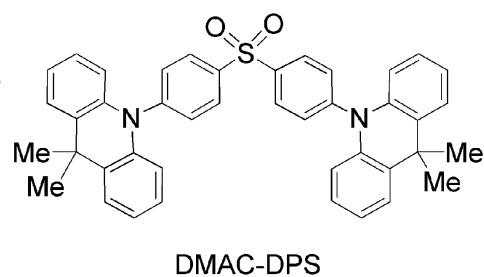
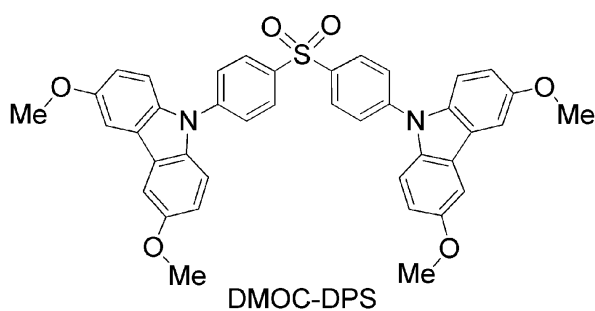
式（H7）で表される化合物としては、例えば、下記構造で表される化合物があげられる。なお、構造式中の＊は結合位置、「Me」はメチル、「tBu」はｔ－ブチルを示す。

【 0 2 9 1 】

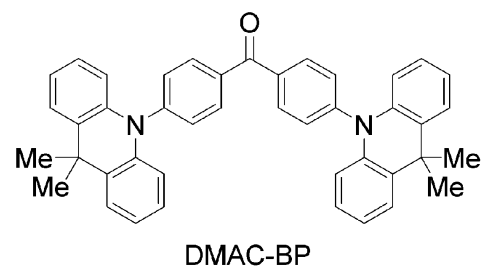
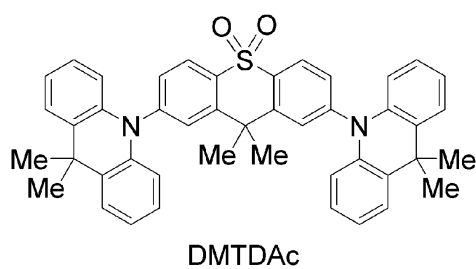
【 化 1 1 7 】



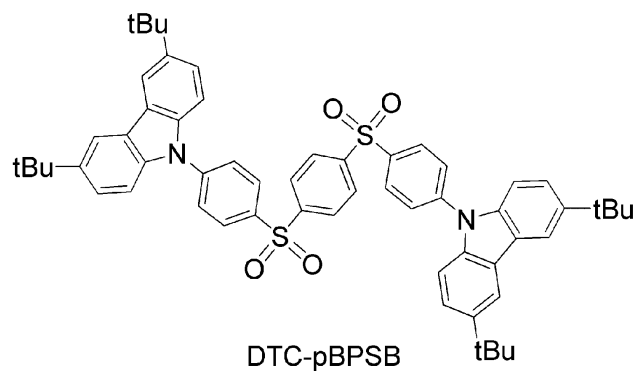
10



20



30

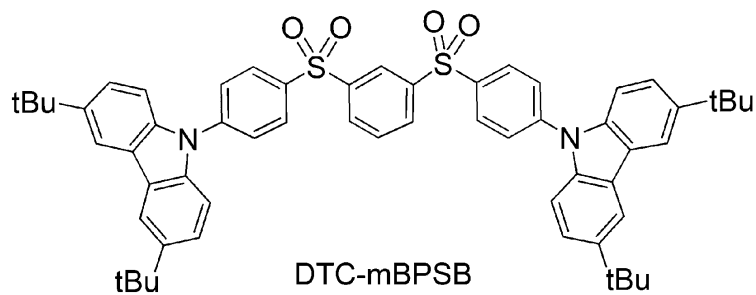


40

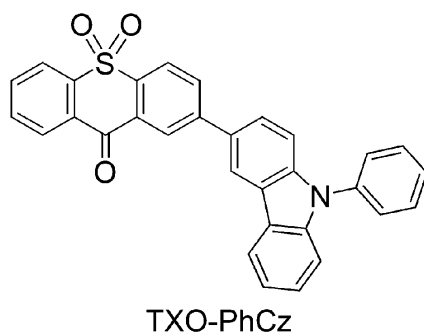
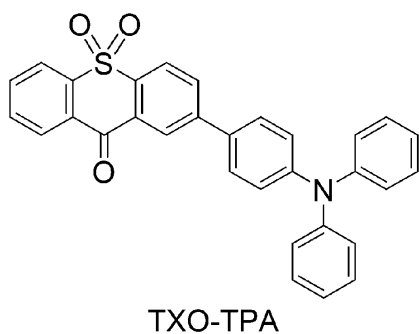
【 0 2 9 2 】

50

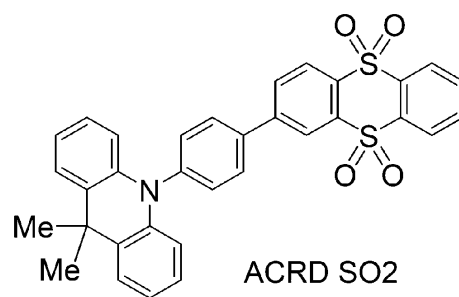
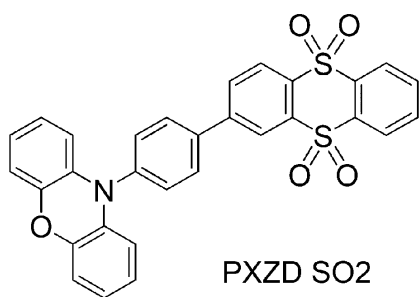
【化 1 1 8】



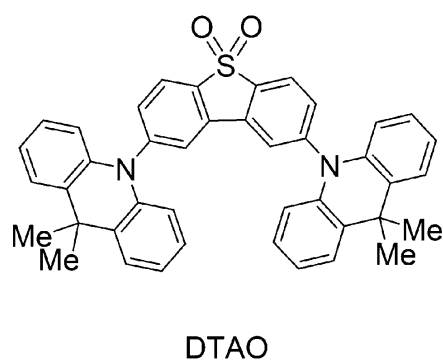
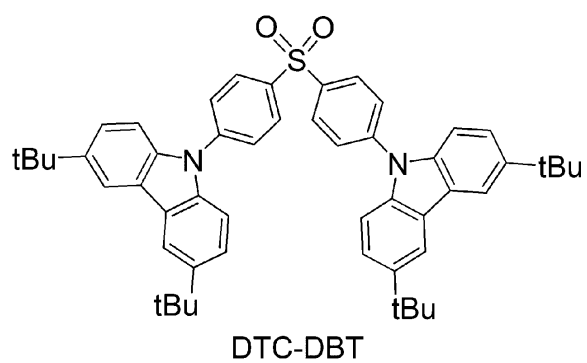
10



20



30

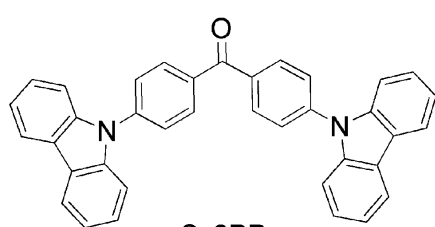


【 0 2 9 3】

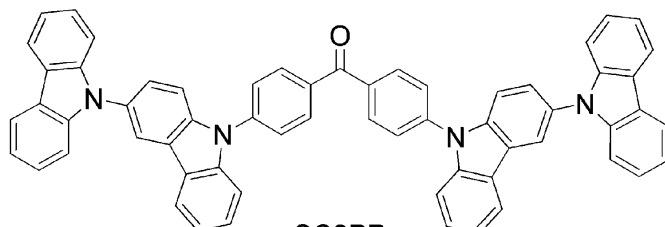
40

50

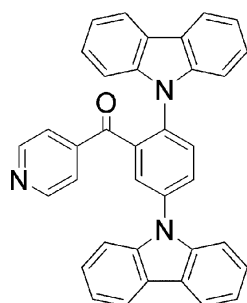
【化 1 1 9】



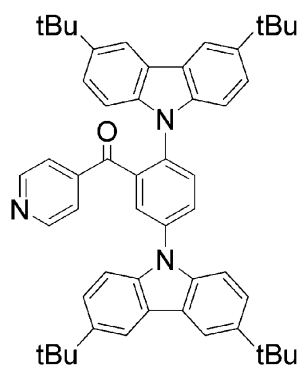
Cz2BP



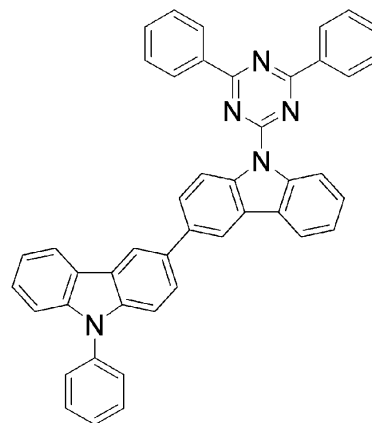
CC2BP



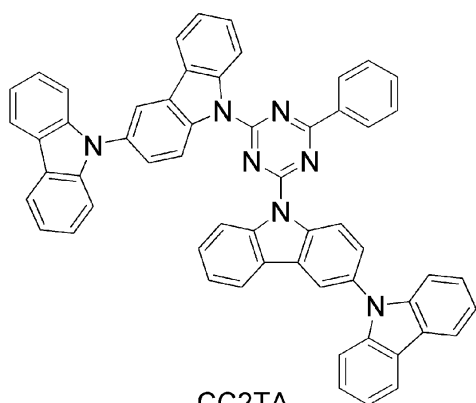
DCBPY



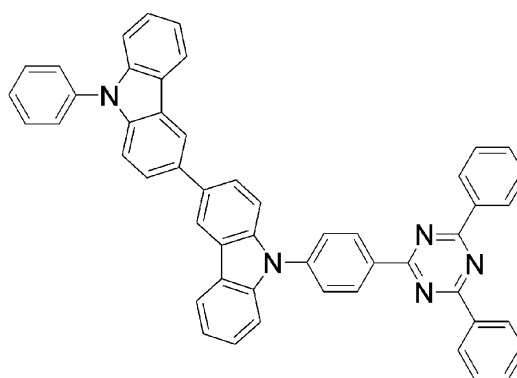
DTCPY



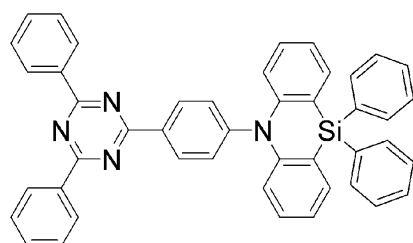
CzT



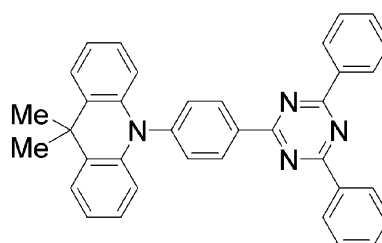
CC2TA



BCzT



DTPDDA



DMAC-TRZ

【 0 2 9 4】

10

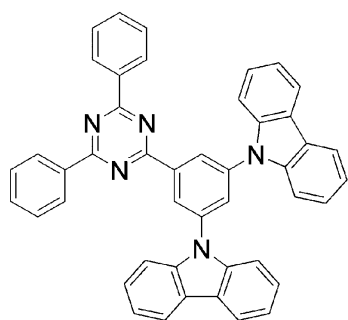
20

30

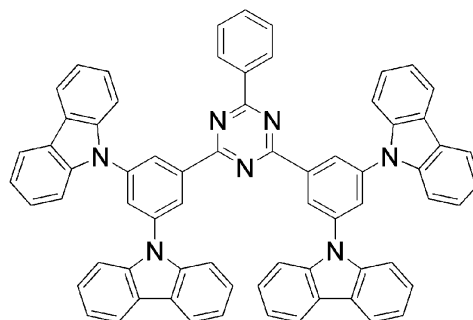
40

50

【化 1 2 0】

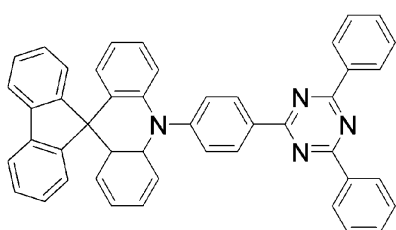


DCzTrz

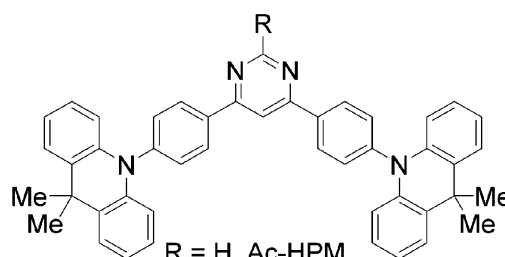


DDCzTrz

10

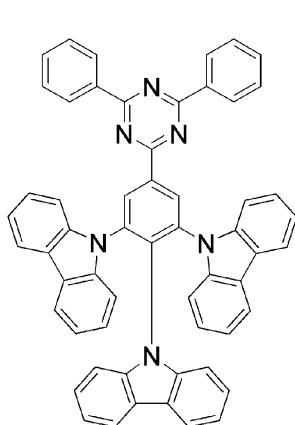


spiroAC-TRZ

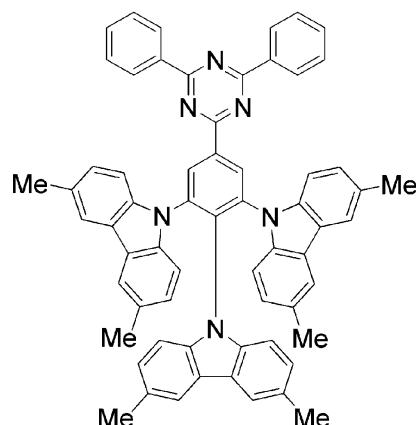


R = H, Ac-HPM
R = Ph, Ac-PPM
R = Me Ac-MPM

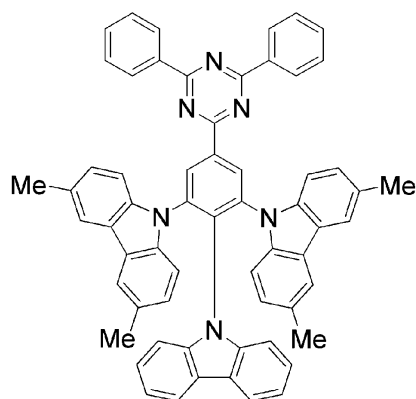
20



TCzTrz

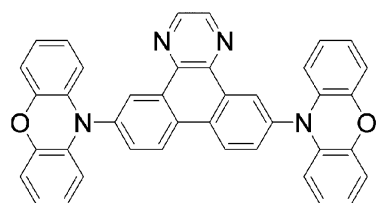


TmCzTrz

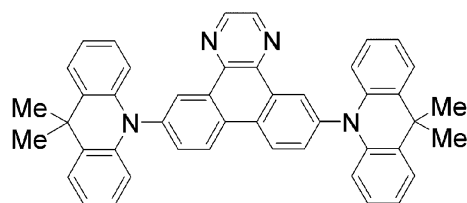


DCzmCzTrz

30



ATP-PXZ



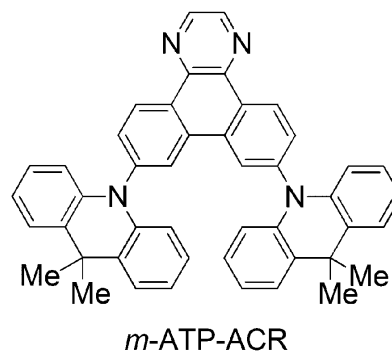
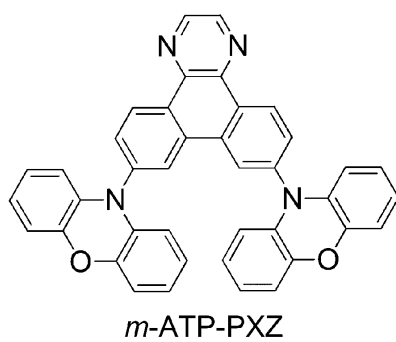
ATP-ACR

40

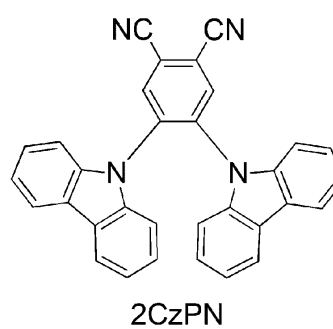
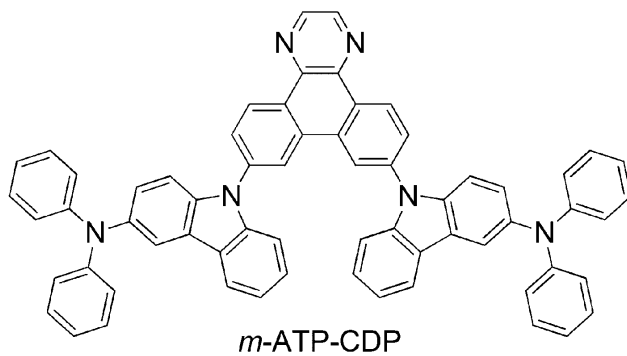
【 0 2 9 5】

50

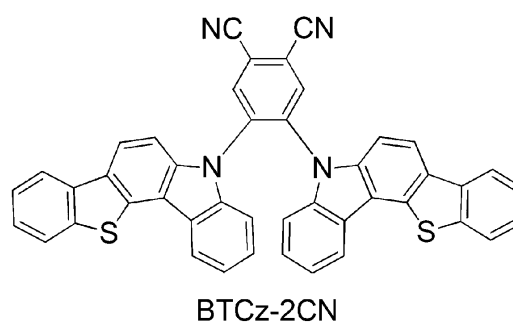
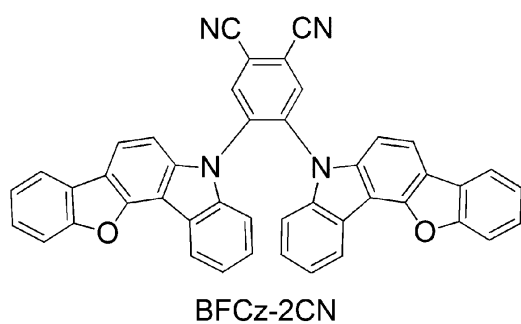
【化 1 2 1】



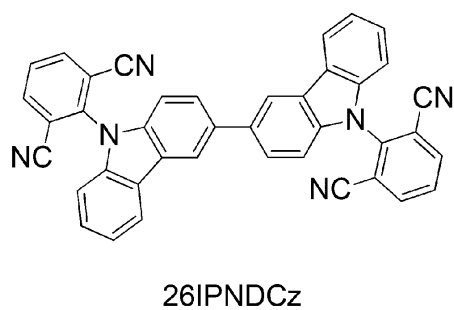
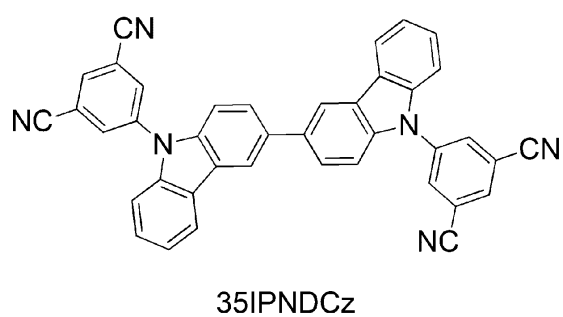
10



20



30

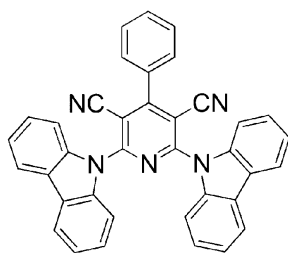


40

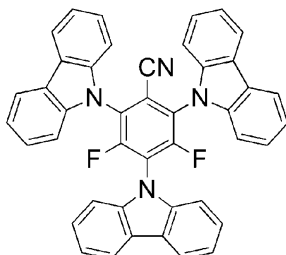
【 0 2 9 6】

50

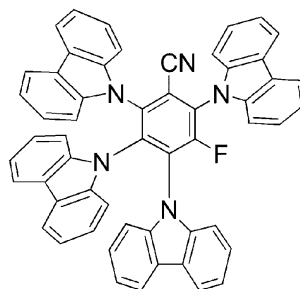
【化 1 2 2】



CPC

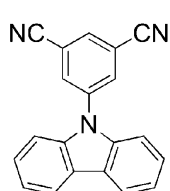


3CzFCN

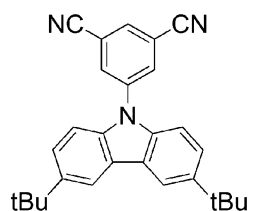


4CzFCN

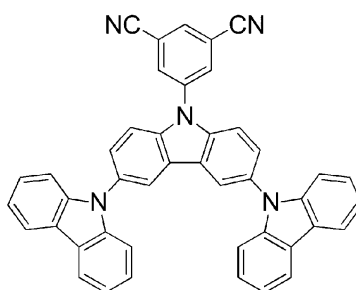
10



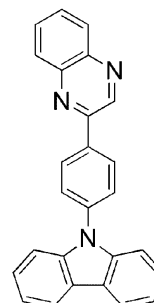
DCN1



DCN2

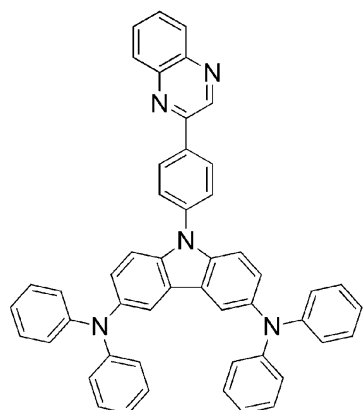


DCN3

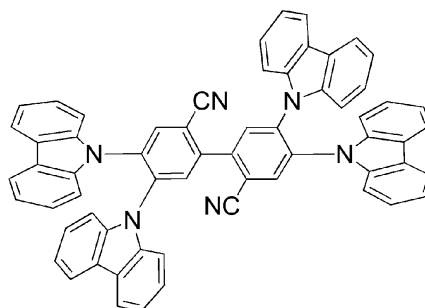


CZQ

20

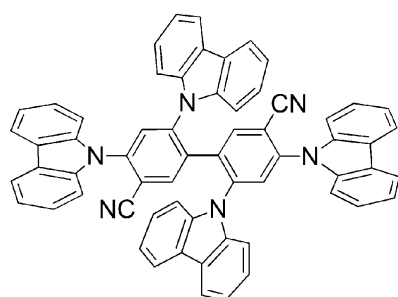


DACQ

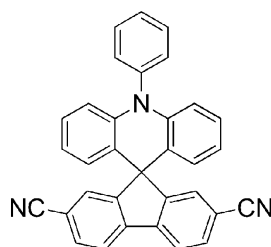


CNBPCz

30



CzBPCN



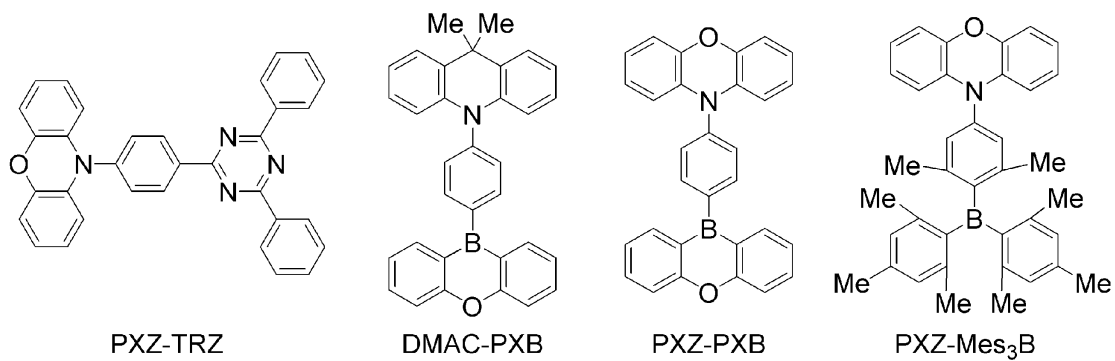
ACRFLCN

40

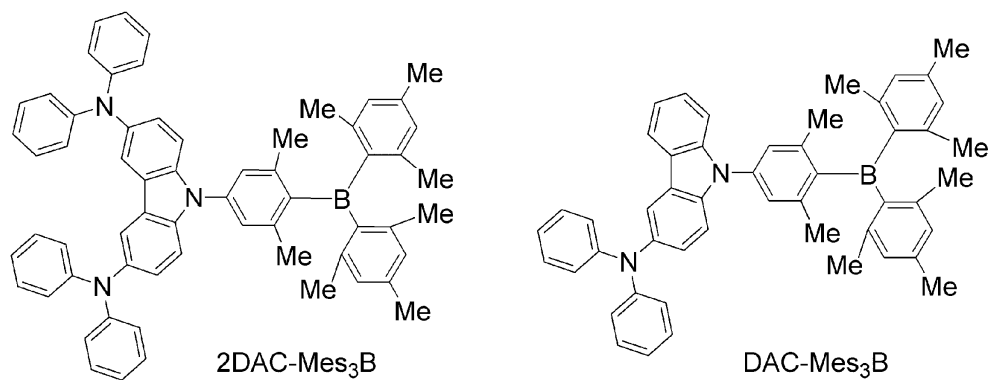
【 0 2 9 7】

50

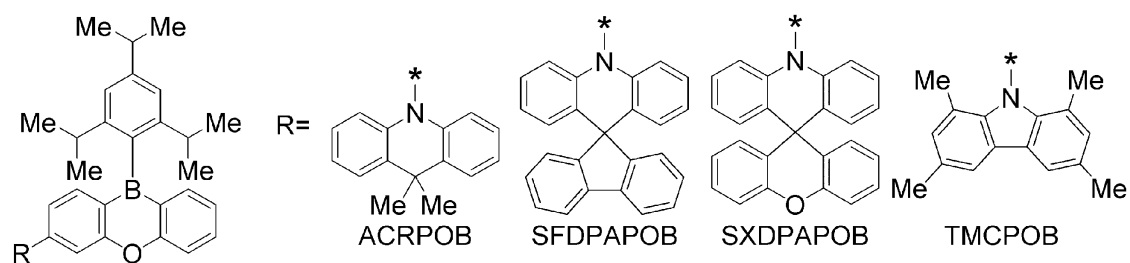
【化 1 2 3】



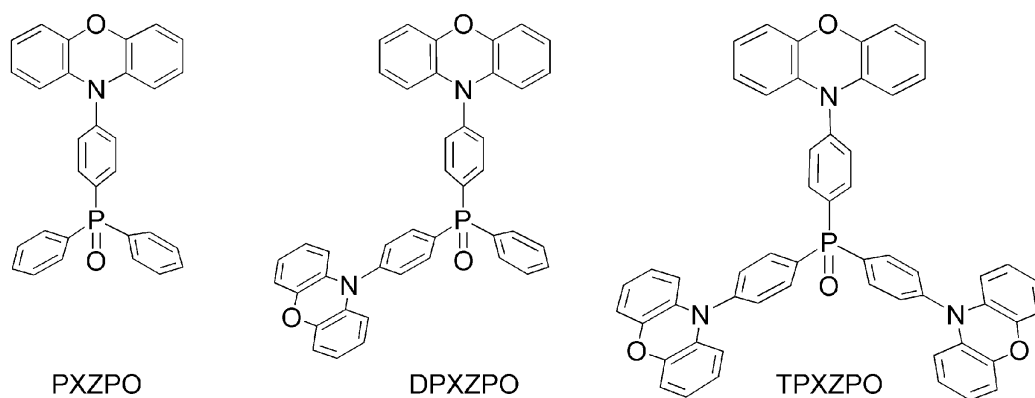
10



20



30

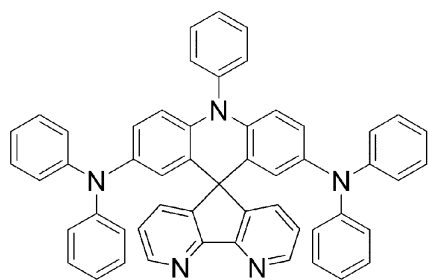


40

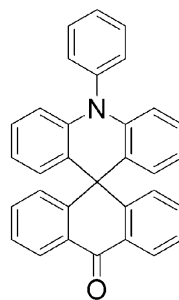
【 0 2 9 8】

50

【化 1 2 4】

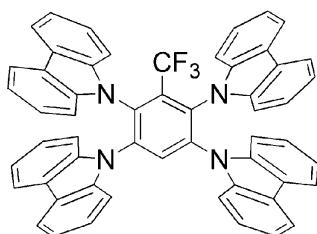
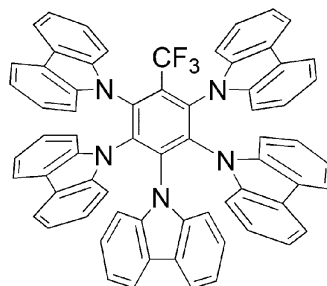


DPAA-AF

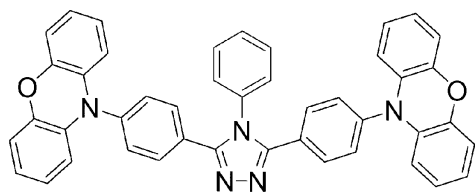


ACRSA

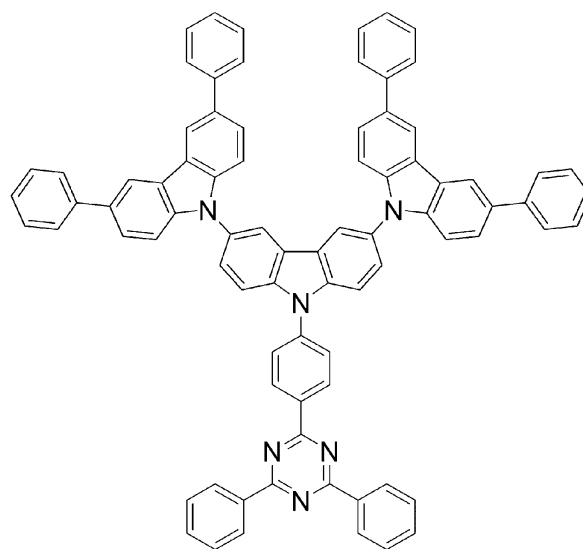
10

4CzCF₃Ph5CzCF₃Ph

20

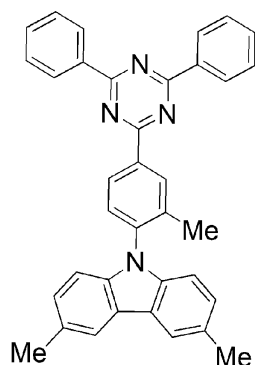


2PXZ-TAZ



BDPCC-TPTA

30



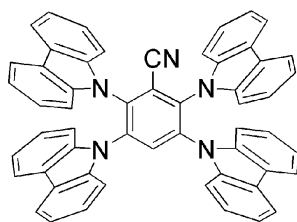
Cz-TRZ3

40

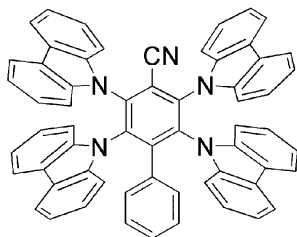
【 0 2 9 9 】

50

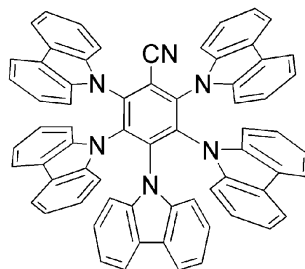
【化 1 2 5】



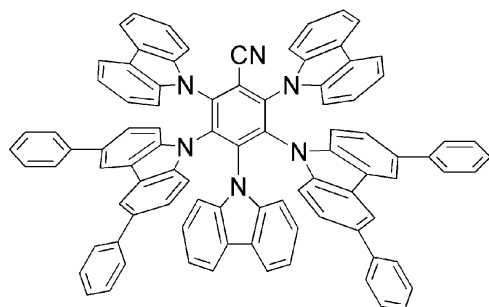
4CzBN



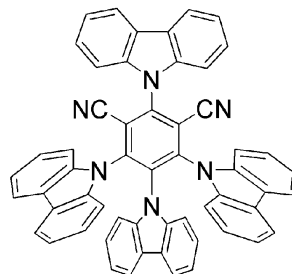
4CzBN-Ph



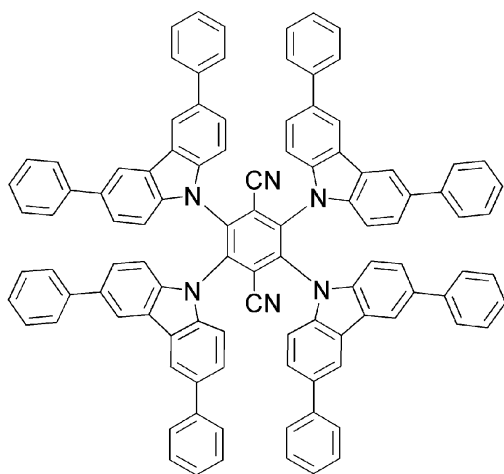
5CzBN



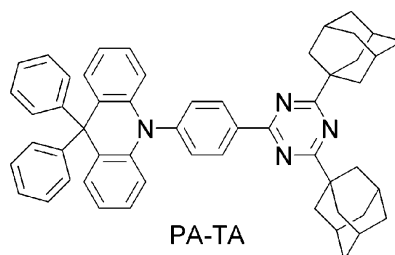
3Cz2DPhCzBN



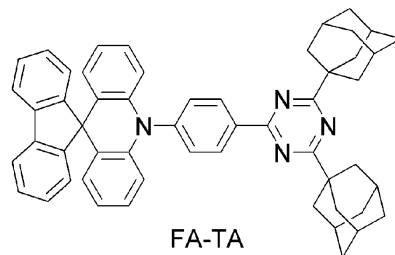
4CzIPN



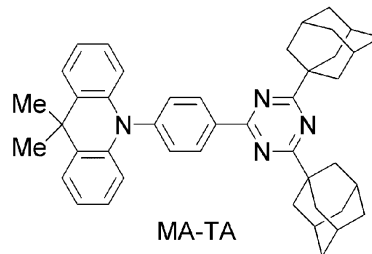
4CzTPN-Ph



PA-TA



FA-TA



MA-TA

【0300】

式 (H7) で表される化合物としては、上記具体的な化合物の中で、PIC-TRZ、TXO-TPA、TXO-PhCz、PXZD SO₂、ACRD SO₂、DTC-DBT、DTAO、4CzBN、4CzBN-Ph、5CzBN、3Cz2DPhCzBN、4CzIPN、2PXZ-TAZ、Cz-TRZ3、BDPCC-TPTA、MA-TA、PA-TA、FA-TA、PXZ-TRZ、DMAC-TRZ、BCzT、DCzTrz、DDCzTrz、spiroAC-TRZ、Ac-HPM、Ac-PPM、Ac-MPM、TCzTrz、TmCzTrzおよびDCzmCzTrzが好ましい。

【0301】

10

20

30

40

50

3-1-5-3. ドーパント材料

本発明の多環芳香族化合物は、ドーパント材料として用いることが好ましい。

本発明の多環芳香族化合物以外で用いることができるドーパント材料としては、特に限定されず、既知の化合物を用いることができ、所望の発光色に応じて様々な材料の中から選択することができる。具体的には、例えば、フェナンスレン、アントラセン、ピレン、テトラセン、ペンタセン、ペリレン、ナフトピレン、ジベンゾピレン、ルブレンおよびクリセンなどの縮合環誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾトリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、スチルベン誘導体、チオフェン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体やジスチリルベンゼン誘導体などのビススチリル誘導体（特開平1-245087号公報）、ビススチリルアリーレン誘導体（特開平2-247278号公報）、ジアザインダセン誘導体、フラン誘導体、ベンゾフラン誘導体、フェニルイソベンゾフラン、ジメシチルイソベンゾフラン、ジ（2-メチルフェニル）イソベンゾフラン、ジ（2-トリフルオロメチルフェニル）イソベンゾフラン、フェニルイソベンゾフランなどのイソベンゾフラン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、7-ジアルキルアミノクマリン誘導体、7-ピペリジノクマリン誘導体、7-ヒドロキシクマリン誘導体、7-メトキシクマリン誘導体、7-アセトキシクマリン誘導体、3-ベンゾチアゾリルクマリン誘導体、3-ベンゾイミダゾリルクマリン誘導体、3-ベンゾオキサゾリルクマリン誘導体などのクマリン誘導体、ジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、ポリメチン誘導体、シアニン誘導体、オキソベンゾアンスラセン誘導体、キサンテン誘導体、ローダミン誘導体、フルオレセイン誘導体、ピリリウム誘導体、カルボスチリル誘導体、アクリジン誘導体、オキサジン誘導体、フェニレンオキサイド誘導体、キナクリドン誘導体、キナゾリン誘導体、ピロロピリジン誘導体、フロピリジン誘導体、1, 2, 5-チアジアゾロピレン誘導体、ピロメテン誘導体、ペリノン誘導体、ピロロピロール誘導体、スクアリリウム誘導体、ビオラントロン誘導体、フェナジン誘導体、アクリドン誘導体、デアザフラビン誘導体、フルオレン誘導体およびベンゾフルオレン誘導体などがあげられる。

【0302】

発色光ごとに例示すると、青～青緑色ドーパント材料としては、ナフタレン、アントラセン、フェナンスレン、ピレン、トリフェニレン、ペリレン、フルオレン、インデン、クリセンなどの芳香族炭化水素化合物やその誘導体、フラン、ピロール、チオフェン、シロール、9-シラフルオレン、9, 9'-スピロビシラフルオレン、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、インドール、ジベンゾチオフェン、ジベンゾフラン、イミダゾピリジン、フェナントロリン、ピラジン、ナフチリジン、キノキサリン、ピロロピリジン、チオキサンテンなどの芳香族複素環化合物やその誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、スチルベン誘導体、アルダジン誘導体、クマリン誘導体、イミダゾール、チアゾール、チアジアゾール、カルバゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾールなどのアゾール誘導体およびその金属錯体およびN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ（3-メチルフェニル）-4, 4'-ジフェニル-1, 1'-ジアミンに代表される芳香族アミン誘導体などがあげられる。

【0303】

また、緑～黄色ドーパント材料としては、クマリン誘導体、フタルイミド誘導体、ナフタルイミド誘導体、ペリノン誘導体、ピロロピロール誘導体、シクロペンタジエン誘導体、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体およびルブレンなどのナフタセン誘導体などがあげられ、さらに上記青～青緑色ドーパント材料として例示した化合物に、アリール、ヘテロアリール、アリールビニル、アミノ、シアノなど長波長化を可能とする置換基を導入した化合物も好適な例としてあげられる。

【0304】

さらに、橙～赤色ドーパント材料としては、ビス（ジイソプロピルフェニル）ペリレン

テトラカルボン酸イミドなどのナフタルイミド誘導体、ペリノン誘導体、アセチルアセトンやベンゾイルアセトンとフェナントロリンなどを配位子とするEu錯体などの希土類錯体、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランやその類縁体、マグネシウムフタロシアニン、アルミニウムクロロフタロシアニンなどの金属フタロシアニン誘導体、ローダミン化合物、デアザフラビン誘導体、クマリン誘導体、キナクリドン誘導体、フェノキサジン誘導体、オキサジン誘導体、キナゾリン誘導体、ピロロピリジン誘導体、スクアリリウム誘導体、ビオラントロン誘導体、フェナジン誘導体、フェノキサゾン誘導体およびチアジアゾロピレン誘導体などあげられ、さらに上記青～青緑色および緑～黄色ドーパント材料として例示した化合物に、アリール、ヘテロアリール、アリールビニル、アミノ、シアノなど長波長化を可能とする置換基を導入した化合物も好適な例としてあげられる。

10

【0305】

その他、ドーパントとしては、化学工業2004年6月号13頁、および、それにあげられた参考文献などに記載された化合物などの中から適宜選択して用いることができる。

【0306】

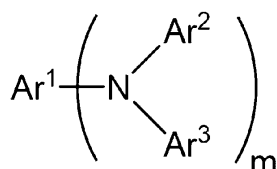
上述するドーパント材料の中でも、特にスチルベン構造を有するアミン、ペリレン誘導体、ボラン誘導体、芳香族アミン誘導体、クマリン誘導体、ピラン誘導体またはピレン誘導体が好ましい。

【0307】

スチルベン構造を有するアミンは、例えば、下記式で表される。

20

【化126】



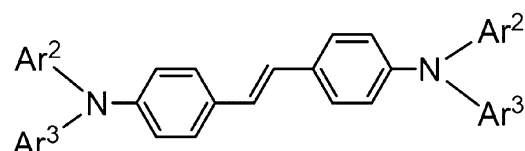
当該式中、 Ar^1 は炭素数6～30のアリールに由来するm価の基であり、 Ar^2 および Ar^3 は、それぞれ独立して炭素数6～30のアリールであるが、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ の少なくとも1つはスチルベン構造を有し、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ は、アリール、ヘテロアリール、アルキル、シクロアルキル、トリ置換シリル（アリール、アルキルおよび／またはシクロアルキルでトリ置換されたシリル）またはシアノで置換されていてもよく、そして、mは1～4の整数である。

30

【0308】

スチルベン構造を有するアミンは、下記式で表されるジアミノスチルベンがより好ましい。

【化127】



40

当該式中、 Ar^2 および Ar^3 は、それぞれ独立して炭素数6～30のアリールであり、 Ar^2 および Ar^3 は、アリール、ヘテロアリール、アルキル、シクロアルキル、トリ置換シリル（アリール、アルキルおよび／またはシクロアルキルでトリ置換されたシリル）またはシアノで置換されていてもよい。

【0309】

炭素数6～30のアリールの具体例は、フェニル、ナフチル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントレニル、アントリル、フルオランテニル、トリフェニレニル、ピレニル、クリセニル、ナфтаセニル、ペリレニル、スチルベニル、ジスチリ

50

ルフェニル、ジスチリルビフェニル、ジスチリルフルオレニルなどがあげられる。

【0310】

スチルベン構造を有するアミンの具体例は、N, N, N', N'-テトラ(4-ビフェニル) - 4, 4'-ジアミノスチルベン、N, N, N', N'-テトラ(1-ナフチル) - 4, 4'-ジアミノスチルベン、N, N, N', N'-テトラ(2-ナフチル) - 4, 4'-ジアミノスチルベン、N, N'-ジ(2-ナフチル) - N, N'-ジフェニル - 4, 4'-ジアミノスチルベン、N, N'-ジ(9-フェナントリル) - N, N'-ジフェニル - 4, 4'-ジアミノスチルベン、4, 4'-ビス[4"-ビス(ジフェニルアミノ)スチリル] - ビフェニル、1, 4-ビス[4'-ビス(ジフェニルアミノ)スチリル] - ベンゼン、2, 7-ビス[4'-ビス(ジフェニルアミノ)スチリル] - 9, 9-ジメチルフルオレン、4, 4'-

10

ビス(9-エチル-3-カルバゾビニレン) - ビフェニル、4, 4'-ビス(9-フェニル-3-カルバゾビニレン) - ビフェニルなどがあげられる。

また、特開2003-347056号公報、および特開2001-307884号公報などに記載されたスチルベン構造を有するアミンを用いてもよい。

【0311】

ペリレン誘導体としては、例えば、3, 10-ビス(2, 6-ジメチルフェニル)ペリレン、3, 10-ビス(2, 4, 6-トリメチルフェニル)ペリレン、3, 10-ジフェニルペリレン、3, 4-ジフェニルペリレン、2, 5, 8, 11-テトラ-*tert*-ブチルペリレン、3, 4, 9, 10-テトラフェニルペリレン、3-(1'-ピレニル) - 8, 11-ジ(*tert*-ブチル)ペリレン、3-(9'-アントリル) - 8, 11-ジ(*tert*-ブチル)ペリレン、3, 3'-ビス(8, 11-ジ(*tert*-ブチル)ペリレニル)などがあげられる。

20

また、特開平11-97178号公報、特開2000-133457号公報、特開2000-26324号公報、特開2001-267079号公報、特開2001-267078号公報、特開2001-267076号公報、特開2000-34234号公報、特開2001-267075号公報、および特開2001-217077号公報などに記載されたペリレン誘導体を用いてもよい。

【0312】

ボラン誘導体としては、例えば、1, 8-ジフェニル-10-(ジメシチルボリル)アントラセン、9-フェニル-10-(ジメシチルボリル)アントラセン、4-(9'-アントリル)ジメシチルボリルナフタレン、4-(10'-フェニル-9'-アントリル)ジメシチルボリルナフタレン、9-(ジメシチルボリル)アントラセン、9-(4'-ビフェニル) - 10-(ジメシチルボリル)アントラセン、9-(4'-(N-カルバゾリル)フェニル) - 10-(ジメシチルボリル)アントラセンなどがあげられる。

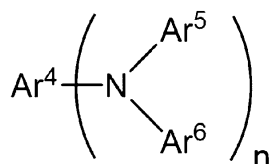
30

また、国際公開第2000/40586号などに記載されたボラン誘導体を用いてもよい。

【0313】

芳香族アミン誘導体は、例えば、下記式で表される。

【化128】



40

当該式中、Ar⁴は炭素数6～30のアリールに由来するn個の基であり、Ar⁵およびAr⁶はそれぞれ独立して炭素数6～30のアリールであり、Ar⁴～Ar⁶は、アリール、ヘテロアリール、アルキル、シクロアルキル、トリ置換シリル(アリール、アルキルおよび/またはシクロアルキルでトリ置換されたシリル)またはシアノで置換されていてもよく、そして、nは1～4の整数である。

【0314】

50

特に、 Ar^4 がアントラセン、クリセン、フルオレン、ベンゾフルオレンまたはピレンに由来する2価の基であり、 Ar^5 および Ar^6 がそれぞれ独立して炭素数6～30のアリールであり、 $Ar^4 \sim Ar^6$ は、アリール、ヘテロアリール、アルキル、シクロアルキル、トリ置換シリル（アリール、アルキルおよび／またはシクロアルキルでトリ置換されたシリル）またはシアノで置換されていてもよく、そして、 n は2である、芳香族アミン誘導体がより好ましい。

【0315】

炭素数6～30のアリールの具体例は、フェニル、ナフチル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントレニル、アントリル、フルオランテニル、トリフェニレニル、ピレニル、クリセニル、ナфтаセニル、ペリレニル、ペンタセニルなどがあげられる。

10

【0316】

芳香族アミン誘導体としては、クリセン系としては、例えば、 N, N, N', N' -テトラフェニルクリセン-6, 12-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(p-トリル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(m-トリル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラキス(4-イソプロピルフェニル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(ナフタレン-2-イル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ジ(p-トリル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-エチルフェニル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-イソプロピルフェニル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-tert-ブチルフェニル)クリセン-6, 12-ジアミン、 N, N' -ビス(4-イソプロピルフェニル)- N, N' -ジ(p-トリル)クリセン-6, 12-ジアミンなどがあげられる。

20

【0317】

また、ピレン系としては、例えば、 N, N, N', N' -テトラフェニルピレン-1, 6-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(p-トリル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(m-トリル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラキス(4-イソプロピルフェニル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラキス(3, 4-ジメチルフェニル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ジ(p-トリル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-エチルフェニル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-イソプロピルフェニル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-tert-ブチルフェニル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N' -ビス(4-イソプロピルフェニル)- N, N' -ジ(p-トリル)ピレン-1, 6-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラキス(3, 4-ジメチルフェニル)-3, 8-ジフェニルピレン-1, 6-ジアミン、 N, N, N, N' -テトラフェニルピレン-1, 8-ジアミン、 N, N' -ビス(ビフェニル-4-イル)- N, N' -ジフェニルピレン-1, 8-ジアミン、 N^1, N^6 -ジフェニル- N^1, N^6 -ビス(4-トリメチルシラニル-フェニル)-1H, 8H-ピレン-1, 6-ジアミンなどがあげられる。

30

【0318】

また、アントラセン系としては、例えば、 N, N, N, N' -テトラフェニルアントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(p-トリル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラ(m-トリル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N, N', N' -テトラキス(4-イソプロピルフェニル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ジ(p-トリル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ジ(m-トリル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-エチルフェニル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-イソプロピルフェニル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N' -ジフェニル- N, N' -ビス(4-tert-ブチルフェニル)アントラセン-9, 10-ジアミン、 N, N' -ビス(4-イソ

40

50

プロピルフェニル) - N, N'-ジ (p-トリル) アントラセン-9, 10-ジアミン、2, 6-ジ-tert-ブチル-N, N, N', N'-テトラ (p-トリル) アントラセン-9, 10-ジアミン、2, 6-ジ-tert-ブチル-N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス (4-イソプロピルフェニル) アントラセン-9, 10-ジアミン、2, 6-ジ-tert-ブチル-N, N'-ビス (4-イソプロピルフェニル) - N, N'-ジ (p-トリル) アントラセン-9, 10-ジアミン、2, 6-ジシクロヘキシル-N, N'-ビス (4-イソプロピルフェニル) - N, N'-ビス (4-tert-ブチルフェニル) アントラセン-9, 10-ジアミン、9, 10-ビス (4-ジフェニルアミノ-フェニル) アントラセン、9, 10-ビス (4-ジ (1-ナフチルアミノ) フェニル) アントラセン、9, 10-ビス (4-ジ (2-ナフチルアミノ) フェニル) アントラセン、10-ジ-p-トリルアミノ-9- (4-ジ-p-トリルアミノ-1-ナフチル) アントラセン、10-ジフェニルアミノ-9- (4-ジフェニルアミノ-1-ナフチル) アントラセン、10-ジフェニルアミノ-9- (6-ジフェニルアミノ-2-ナフチル) アントラセンなどがあげられる。

【0319】

また、他には、[4- (4-ジフェニルアミノ-フェニル) ナフタレン-1-イル] -ジフェニルアミン、[6- (4-ジフェニルアミノ-フェニル) ナフタレン-2-イル] -ジフェニルアミン、4, 4'-ビス [4-ジフェニルアミノナフタレン-1-イル] ビフェニル、4, 4'-ビス [6-ジフェニルアミノナフタレン-2-イル] ビフェニル、4, 4''-ビス [4-ジフェニルアミノナフタレン-1-イル] -p-テルフェニル、4, 4''-ビス [6-ジフェニルアミノナフタレン-2-イル] -p-テルフェニルなどがあげられる。

また、特開2006-156888号公報などに記載された芳香族アミン誘導体を用いてもよい。

【0320】

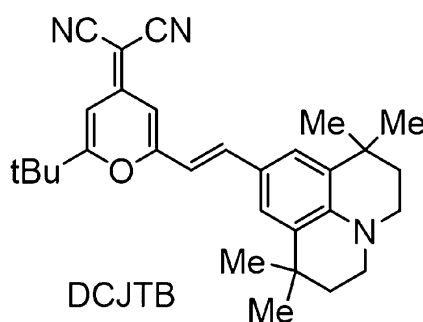
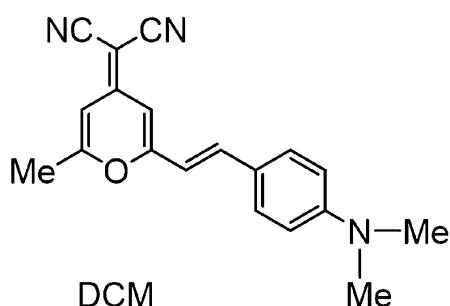
クマリン誘導体としては、クマリン-6、クマリン-334などがあげられる。

また、特開2004-43646号公報、特開2001-76876号公報、および特開平6-298758号公報などに記載されたクマリン誘導体を用いてもよい。

【0321】

ピラン誘導体としては、下記のDCM、DCJTBなどがあげられる。

【化129】



また、特開2005-126399号公報、特開2005-097283号公報、特開2002-234892号公報、特開2001-220577号公報、特開2001-081090号公報、および特開2001-052869号公報などに記載されたピラン誘導体を用いてもよい。

【0322】

3-1-6. 有機電界発光素子における電子注入層、電子輸送層

電子注入層107は、陰極108から移動してくる電子を、効率よく発光層105内または電子輸送層106内に注入する役割を果たす。電子輸送層106は、陰極108から注入された電子または陰極108から電子注入層107を介して注入された電子を、効率

10

20

30

40

50

よく発光層 105 に輸送する役割を果たす。電子輸送層 106 および電子注入層 107 は、それぞれ、電子輸送・注入材料の一種または二種以上を積層、混合するか、電子輸送・注入材料と高分子結着剤の混合物により形成される。

【0323】

電子注入・輸送層とは、陰極から電子が注入され、さらに電子を輸送することをつかさどる層であり、電子注入効率がよく、注入された電子を効率よく輸送することが望ましい。そのためには電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが好ましい。しかしながら、正孔と電子の輸送バランスを考えた場合に、陽極からの正孔が再結合せずに陰極側へ流れるのを効率よく阻止できる役割を主に果たす場合には、電子輸送能力がそれ程高くなくても、発光効率を向上させる効果は電子輸送能力が高い材料と同等に有する。したがって、本実施形態における電子注入・輸送層は、正孔の移動を効率よく阻止できる層の機能も含まれてもよい。

【0324】

電子輸送層 106 または電子注入層 107 を形成する材料（電子輸送材料）としては、光導電材料において電子伝達化合物として従来から慣用されている化合物、有機 EL 素子の電子注入層および電子輸送層に使用されている公知の化合物の中から任意に選択して用いることができる。

【0325】

電子輸送層または電子注入層に用いられる材料としては、炭素、水素、酸素、硫黄、ケイ素およびリンの中から選ばれる一種以上の原子で構成される芳香族環または複素芳香族環からなる化合物、ピロール誘導体およびその縮合環誘導体および電子受容性窒素を有する金属錯体の中から選ばれる少なくとも一種を含有することが好ましい。具体的には、ナフタレン、アントラセンなどの縮合環系芳香族環誘導体、4, 4'-ビス（ジフェニルエニル）ビフェニルに代表されるスチリル系芳香族環誘導体、ペリノン誘導体、クマリン誘導体、ナフタルイミド誘導体、アントラキノンやジフェノキノンなどのキノン誘導体、リンオキサイド誘導体、アリアルニトリル誘導体およびインドール誘導体などがあげられる。電子受容性窒素を有する金属錯体としては、例えば、ヒドロキシフェニルオキサゾール錯体などのヒドロキシアゾール錯体、アゾメチン錯体、トロポロン金属錯体、フラボノール金属錯体およびベンゾキノリン金属錯体などがあげられる。これらの材料は単独でも用いられるが、異なる材料と混合して使用しても構わない。

【0326】

また、他の電子伝達化合物の具体例として、ピリジン誘導体、ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオレン誘導体、フェナントロリン誘導体、ペリノン誘導体、クマリン誘導体、ナフタルイミド誘導体、アントラキノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体（1, 3-ビス〔4-tert-ブチルフェニル〕1, 3, 4-オキサジアゾリル〕フェニレンなど）、チオフェン誘導体、トリアゾール誘導体（N-ナフチル-2, 5-ジフェニル-1, 3, 4-トリアゾールなど）、チアジアゾール誘導体、オキシンの金属錯体、キノリノール系金属錯体、キノキサリン誘導体、キノキサリン誘導体のポリマー、ベンザゾール類化合物、ガリウム錯体、ピラゾール誘導体、パーフルオロ化フェニレン誘導体、トリアジン誘導体、ピラジン誘導体、ベンゾキノリン誘導体（2, 2'-ビス（ベンゾ[h]キノリン-2-イル）-9, 9'-スピロビフルオレンなど）、イミダゾピリジン誘導体、ボラン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体（トリス（N-フェニルベンゾイミダゾール-2-イル）ベンゼンなど）、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、キノリン誘導体、テルピリジンなどのオリゴピリジン誘導体、ビピリジン誘導体、テルピリジン誘導体（1, 3-ビス（4'-（2, 2': 6'2"-テルピリジニル））ベンゼンなど）、ナフチリジン誘導体（ビス（1-ナフチル）-4-（1, 8-ナフチリジン-2-イル）フェニルホスフィンオキサイドなど）、アルダジン誘導体、アリアルニトリル誘導体、インドール誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ビススチリル誘導体などがあげられる。

【0327】

また、電子受容性窒素を有する金属錯体を用いることもでき、例えば、キノリノール系金属錯体やヒドロキシフェニルオキサゾール錯体などのヒドロキシアゾール錯体、アゾメチン錯体、トロポロン金属錯体、フラボノール金属錯体およびベンゾキノリン金属錯体などがあげられる。

【0328】

上述した材料は単独でも用いられるが、異なる材料と混合して使用しても構わない。

【0329】

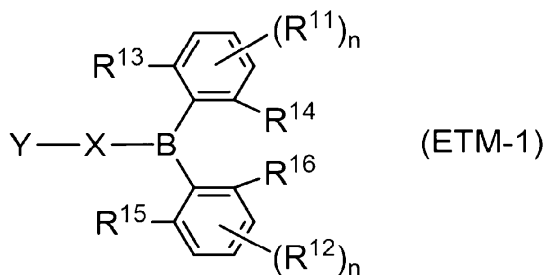
上述した材料の中でも、ボラン誘導体、ピリジン誘導体、フルオランテン誘導体、B O系誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオレン誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ピリミジン誘導体、アリールニトリル誘導体、トリアジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、およびキノリノール系金属錯体が好ましい。

【0330】

<ボラン誘導体>

ボラン誘導体は、例えば下記式（ETM-1）で表される化合物であり、詳細には特開2007-27587号公報に開示されている。

【化130】

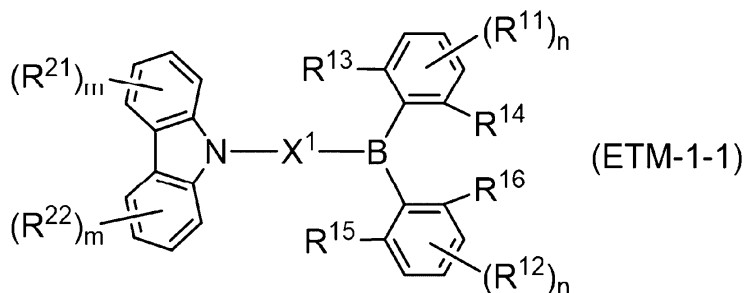


式（ETM-1）中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも1つであり、 $R^{13} \sim R^{16}$ は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、または置換されていてもよいアリールであり、Xは、置換されていてもよいアリーレンであり、Yは、置換されていてもよい炭素数16以下のアリール、置換されているボリル、または置換されていてもよいカルバゾリルであり、そして、nはそれぞれ独立して0～3の整数である。また、「置換されていてもよい」または「置換されている」場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

【0331】

式（ETM-1）で表される化合物の中でも、下記式（ETM-1-1）で表される化合物や下記式（ETM-1-2）で表される化合物が好ましい。

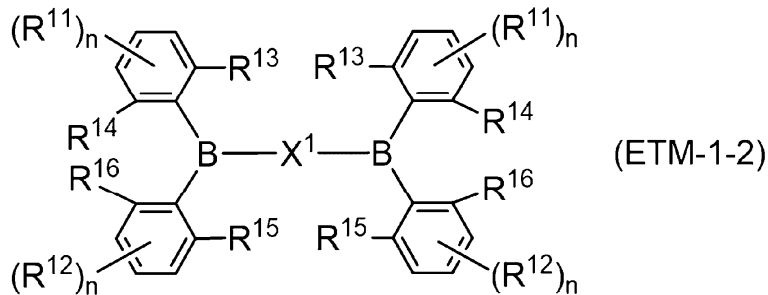
【化131】



式（ETM-1-1）中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されてい

もよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも1つであり、 $R^{13} \sim R^{16}$ は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、または置換されていてもよいアリールであり、 R^{21} および R^{22} は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも1つであり、 X^1 は、置換されていてもよい炭素数20以下のアリーレンであり、 n はそれぞれ独立して0～3の整数であり、そして、 m はそれぞれ独立して0～4の整数である。また、「置換されていてもよい」または「置換されている」場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

【化132】



式(ETM-1-2)中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも1つであり、 $R^{13} \sim R^{16}$ は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、または置換されていてもよいアリールであり、 X^1 は、置換されていてもよい炭素数20以下のアリーレンであり、そして、 n はそれぞれ独立して0～3の整数である。また、「置換されていてもよい」または「置換されている」場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

【0332】

X^1 の具体的な例としては、下記式(X-1)～式(X-9)のいずれかで表される2価の基があげられる。

10

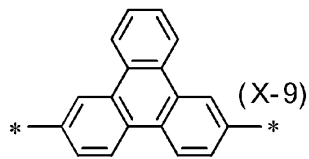
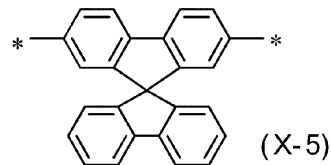
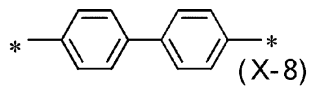
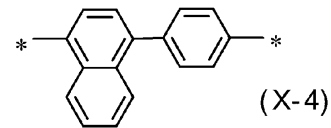
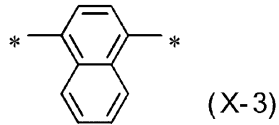
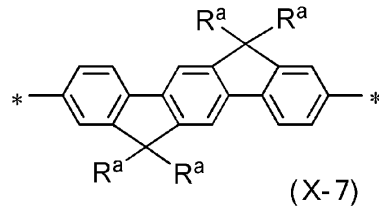
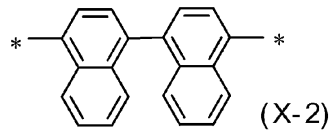
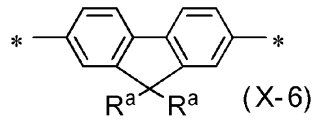
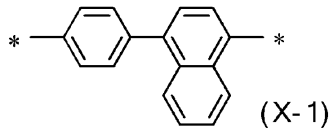
20

30

40

50

【化 1 3 3】

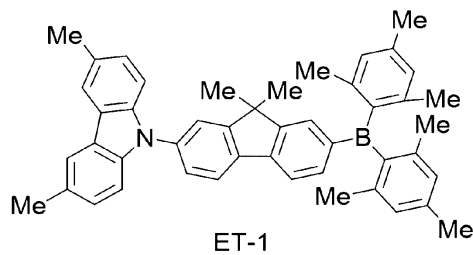


(各式中、 R^a は、それぞれ独立してアルキル、シクロアルキルまたは置換されていてもよいフェニルであり、*は結合位置を表す。)

【0 3 3 3】

このボラン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化 1 3 4】



【0 3 3 4】

このボラン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0 3 3 5】

<ピリジン誘導体>

ピリジン誘導体は、例えば下記式 (ETM-2) で表される化合物であり、好ましくは式 (ETM-2-1) または式 (ETM-2-2) で表される化合物である。

10

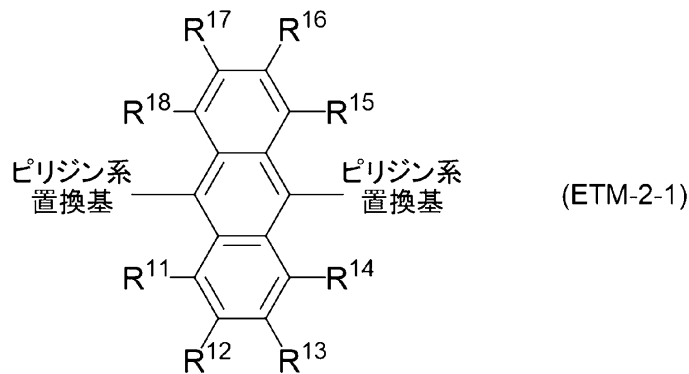
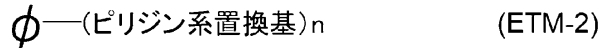
20

30

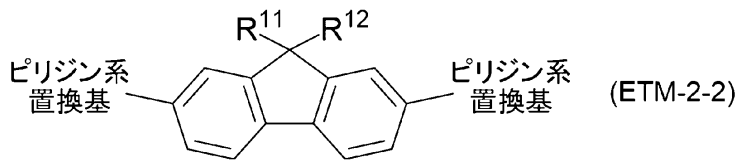
40

50

【化 1 3 5】



10



20

【0 3 3 6】

ϕ は、 n 価のアリール環（好ましくは n 価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環）であり、 n は 1 ～ 4 の整数である。

【0 3 3 7】

式 (ETM-2-1) において、 $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素、アルキル（好ましくは炭素数 1 ～ 24 のアルキル）、シクロアルキル（好ましくは炭素数 3 ～ 12 のシクロアルキル）またはアリール（好ましくは炭素数 6 ～ 30 のアリール）である。

【0 3 3 8】

式 (ETM-2-2) において、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立して、水素、アルキル（好ましくは炭素数 1 ～ 24 のアルキル）、シクロアルキル（好ましくは炭素数 3 ～ 12 のシクロアルキル）またはアリール（好ましくは炭素数 6 ～ 30 のアリール）であり、 R^{11} および R^{12} は結合して環を形成していてもよい。

30

【0 3 3 9】

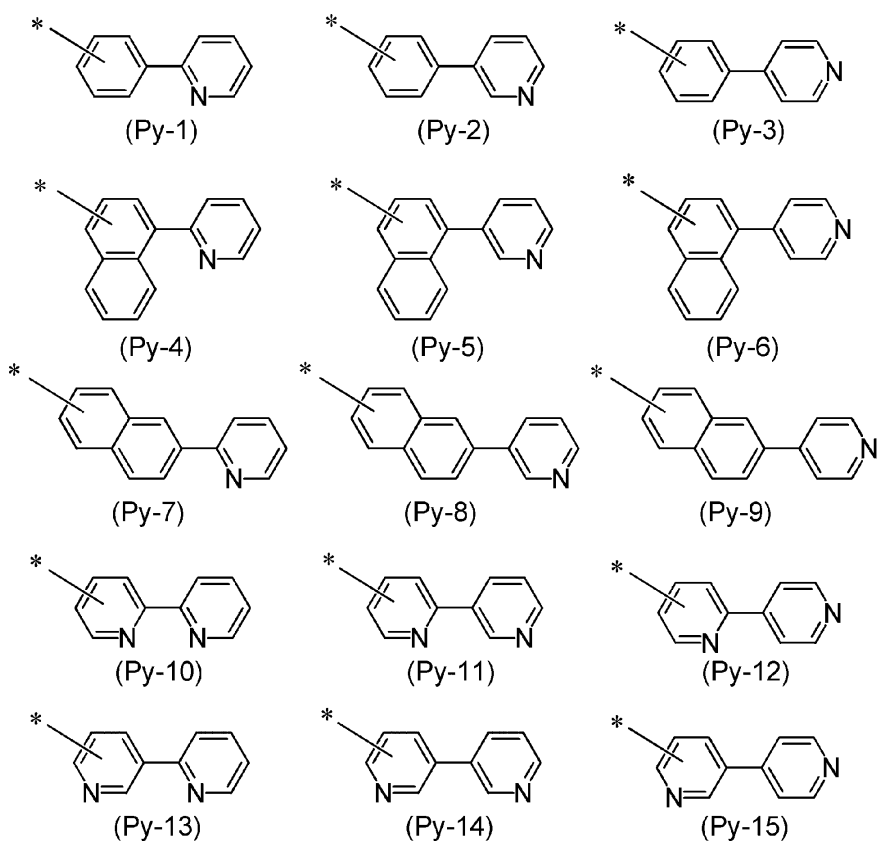
各式において、「ピリジン系置換基」は、下記式 (Py-1) ～ 式 (Py-15) のいずれか（式中の * は、結合位置を表す。）であり、ピリジン系置換基はそれぞれ独立して炭素数 1 ～ 4 のアルキルまたは炭素数 5 ～ 10 のシクロアルキルで置換されていてもよい。具体例としては、メチル、エチル、 n -プロピル、イソプロピル、 n -ブチル、イソブチル、 s -ブチル、または t -ブチルなどがあげられ、メチルが好ましい。また、ピリジン系置換基はフェニレンやナフチレンを介して各式における ϕ 、アントラセン環またはフルオレン環に結合していてもよい。

40

【0 3 4 0】

50

【化 1 3 6】



10

20

【 0 3 4 1】

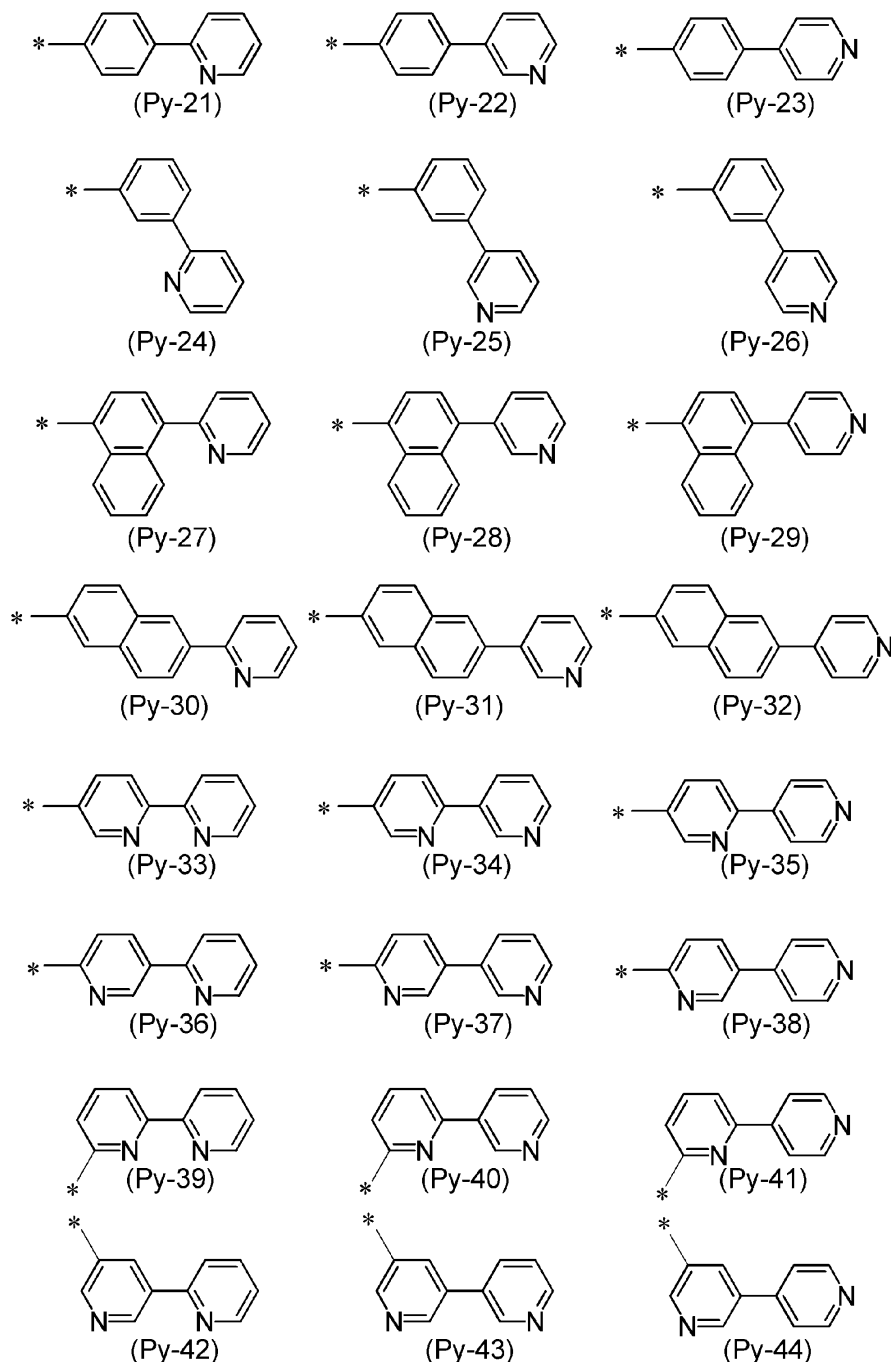
ピリジン系置換基は、式 (Py-1) ~ 式 (Py-15) のいずれか (式中の*は、結合位置を表す。) であるが、これらの中でも、下記式 (Py-21) ~ 式 (Py-44) のいずれかであることが好ましい。

30

40

50

【化 1 3 7】



10

20

30

【0 3 4 2】

各ピリジン誘導体における少なくとも1つの水素が重水素で置換されていてもよく、また、式 (ETM-2-1) および式 (ETM-2-2) における2つの「ピリジン系置換基」のうち的一方はアリールで置き換えられていてもよい。

40

【0 3 4 3】

R¹¹~R¹⁸における「アルキル」としては、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1~24の直鎖アルキルまたは炭素数3~24の分岐鎖アルキルがあげられる。好ましい「アルキル」は、炭素数1~18のアルキル（炭素数3~18の分岐鎖アルキル）である。より好ましい「アルキル」は、炭素数1~12のアルキル（炭素数3~12の分岐鎖アルキル）である。さらに好ましい「アルキル」は、炭素数1~6のアルキル（炭素数3~6の分岐鎖アルキル）である。特に好ましい「アルキル」は、炭素数1~4のアルキル（炭素数3~4の分岐鎖アルキル）である。

50

【0344】

具体的な「アルキル」としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、*t*-ペンチル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3, 3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、*n*-ヘプチル、1-メチルヘキシル、*n*-オクチル、*t*-オクチル、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチル、*n*-ノニル、2, 2-ジメチルヘプチル、2, 6-ジメチル-4-ヘプチル、3, 5, 5-トリメチルヘキシル、*n*-デシル、*n*-ウンデシル、1-メチルデシル、*n*-ドデシル、*n*-トリデシル、1-ヘキシルヘプチル、*n*-テトラデシル、*n*-ペンタデシル、*n*-ヘキサデシル、*n*-ヘプタデシル、*n*-オクタデシル、*n*-エイコシルなどがあげられる。

10

【0345】

ピリジン系置換基に置換する炭素数1~4のアルキルとしては、上記アルキルの説明を引用することができる。

【0346】

$R^{11} \sim R^{18}$ における「シクロアルキル」としては、例えば、炭素数3~12のシクロアルキルがあげられる。好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3~10のシクロアルキルである。より好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3~8のシクロアルキルである。さらに好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3~6のシクロアルキルである。

具体的な「シクロアルキル」としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、シクロヘプチル、メチルシクロヘキシル、シクロオクチルまたはジメチルシクロヘキシルなどがあげられる。

20

【0347】

$R^{11} \sim R^{18}$ における「アリール」としては、好ましいアリールは炭素数6~30のアリールであり、より好ましいアリールは炭素数6~18のアリールであり、さらに好ましくは炭素数6~14のアリールであり、特に好ましくは炭素数6~12のアリールである。

【0348】

具体的な「炭素数6~30のアリール」としては、単環系アリールであるフェニル、縮合二環系アリールである(1-, 2-)ナフチル、縮合三環系アリールである、アセナフチレン-(1-, 3-, 4-, 5-)イル、フルオレン-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)イル、フェナレン-(1-, 2-)イル、(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)フェナントリル、縮合四環系アリールであるトリフェニレン-(1-, 2-)イル、ピレン-(1-, 2-, 4-)イル、ナфтаセン-(1-, 2-, 5-)イル、縮合五環系アリールであるペリレン-(1-, 2-, 3-)イル、ペンタセン-(1-, 2-, 5-, 6-)イルなどがあげられる。

30

【0349】

好ましい「炭素数6~30のアリール」は、フェニル、ナフチル、フェナントリル、クリセニルまたはトリフェニレニルなどがあげられ、さらに好ましくはフェニル、1-ナフチル、2-ナフチルまたはフェナントリルがあげられ、特に好ましくはフェニル、1-ナフチルまたは2-ナフチルがあげられる。

40

【0350】

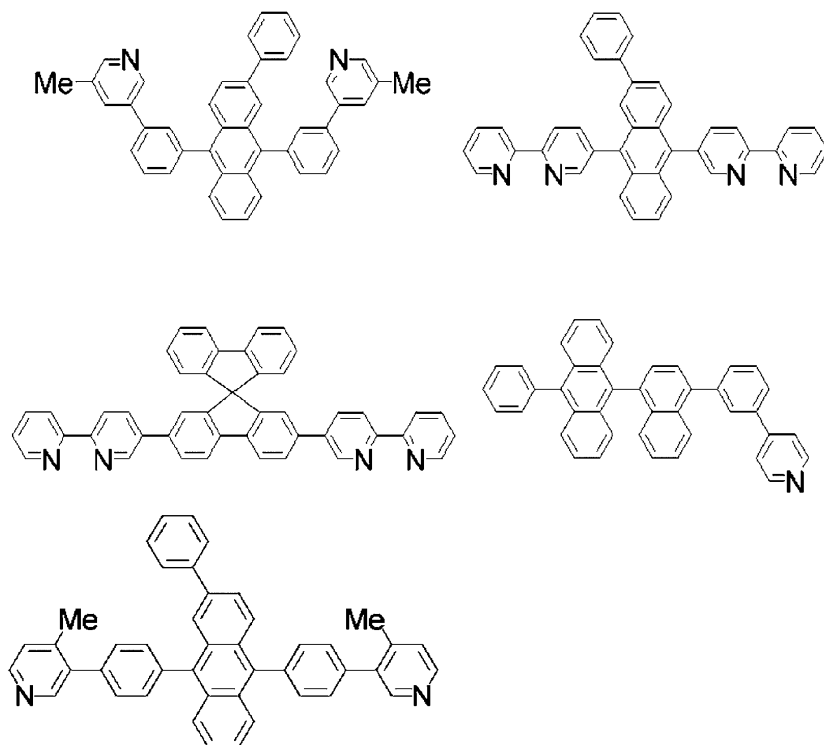
式(ETM-2-2)における R^{11} および R^{12} は結合して環を形成していてもよく、この結果、フルオレン骨格の5員環には、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキサン、フルオレンまたはインデンなどがスピロ結合していてもよい。

【0351】

このピリジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

50

【化 1 3 8】



10

20

【 0 3 5 2】

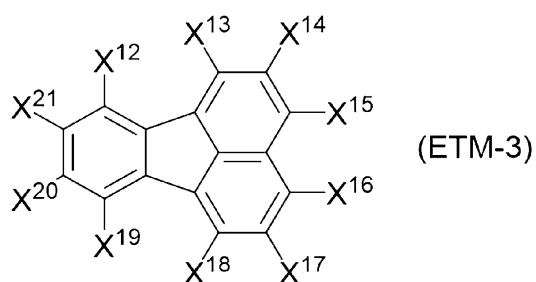
このピリジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【 0 3 5 3】

<フルオランテン誘導体>

フルオランテン誘導体は、例えば下記式（ETM-3）で表される化合物であり、詳細には国際公開第2010/134352号に開示されている。

【化 1 3 9】



30

【 0 3 5 4】

式（ETM-3）中、 $X^{12} \sim X^{21}$ は水素、ハロゲン、直鎖、分岐もしくは環状のアルキル、直鎖、分岐もしくは環状のアルコキシ、置換もしくは無置換のアリール、または置換もしくは無置換のヘテロアリールを表す。ここで、置換されている場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

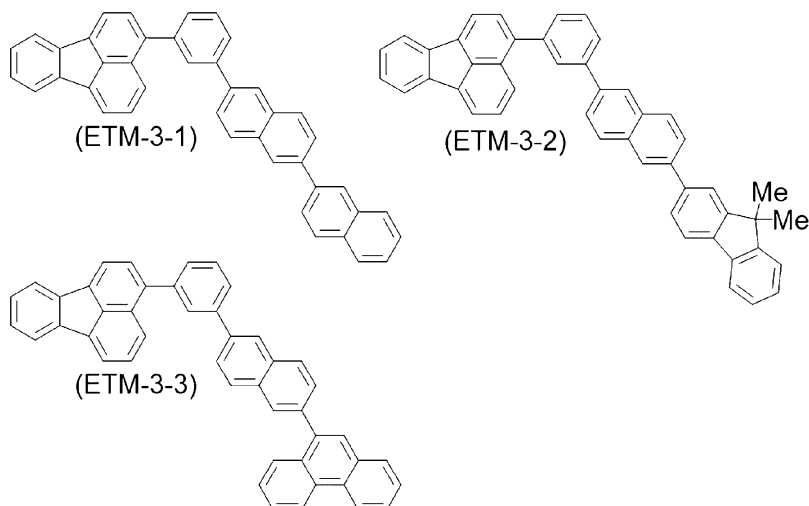
40

【 0 3 5 5】

このフルオランテン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

50

【化 1 4 0】



10

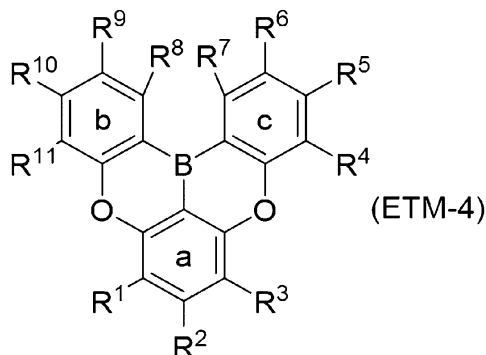
【 0 3 5 6】

< B O 系誘導体 >

B O 系誘導体は、例えば下記式 (E T M - 4) で表される多環芳香族化合物、または下記式 (E T M - 4) で表される構造を複数有する多環芳香族化合物の多量体である。

20

【化 1 4 1】



30

【 0 3 5 7】

$R^1 \sim R^{11}$ は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらにおける少なくとも 1 つの水素はアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよい。

【 0 3 5 8】

また、 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して a 環、b 環または c 環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも 1 つの水素はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも 1 つの水素はアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよい。

40

【 0 3 5 9】

また、式 (E T M - 4) で表される化合物または構造における少なくとも 1 つの水素がハロゲンまたは重水素で置換されていてもよい。

【 0 3 6 0】

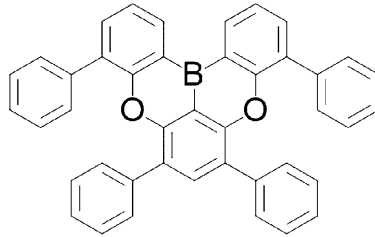
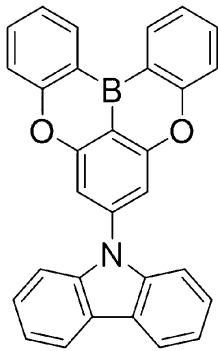
式 (E T M - 4) における置換基や環形成の形態の説明については、式 (1 A) および式 (1 B) で表される多環芳香族化合物の説明を引用することができる。

50

【 0 3 6 1 】

このBO系誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化 1 4 2】



10

【 0 3 6 2 】

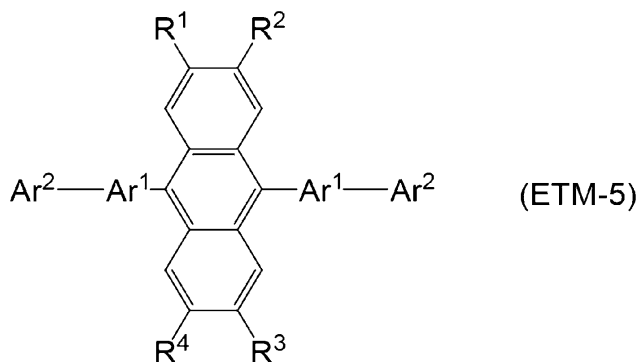
このBO系誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【 0 3 6 3 】

<アントラセン誘導体>

アントラセン誘導体の1つは、例えば下記式（ETM-5）で表される化合物である。

【化 1 4 3】



20

30

【 0 3 6 4 】

Ar¹は、それぞれ独立して、単結合、2価のベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フルオレン、またはフェナレンである。

【 0 3 6 5 】

Ar²は、それぞれ独立して、炭素数6～20のアリールであり、炭素数6～16のアリールが好ましく、炭素数6～12のアリールがより好ましく、炭素数6～10のアリールが特に好ましい。「炭素数6～20のアリール」の具体例としては、単環系アリールであるフェニル、(o-, m-, p-)トリル、(2, 3-, 2, 4-, 2, 5-, 2, 6-, 3, 4-, 3, 5-)キシリル、メシチル(2, 4, 6-トリメチルフェニル)、(o-, m-, p-)クメニル、二環系アリールである(2-, 3-, 4-)ビフェニリル、縮合二環系アリールである(1-, 2-)ナフチル、三環系アリールであるテルフェニリル(m-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-4'-イル、m-テルフェニル-5'-イル、o-テルフェニル-3'-イル、o-テルフェニル-4'-イル、p-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-2-イル、m-テルフェニル-3-イル、m-テルフェニル-4-イル、o-テルフェニル-2-イル、o-テルフェニル-3-イル、o-テルフェニル-4-イル、p-テルフェニル-2-イル、p-テルフェニル-3-イル、p-テルフェニル-4-イル)、縮合三環系アリールである、アントラセン-(1-, 2-, 9-)イル、アセナフチレン-(1-, 3-, 4-, 5-)イル、フルオレン-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)イル、フェナレン-(1-, 2-)イル、(1-, 2-,

40

50

３－，４－，９－）フェナントリル、縮合四環系アリールであるトリフェニレン（１－，２－）イル、ピレン（１－，２－，４－）イル、テトラセネ（１－，２－，５－）イル、縮合五環系アリールであるペリレン（１－，２－，３－）イルなどがあげられる。「炭素数６～１０のアリール」の具体例としては、フェニル、ビフェニル、ナフチル、テルフェニル、アントラセニル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、テトラセニル、ペリレニルなどがあげられる。

【０３６６】

$R^1 \sim R^4$ は、それぞれ独立して、水素、炭素数１～６のアルキル、炭素数３から６のシクロアルキルまたは炭素数６～２０のアリールである。

$R^1 \sim R^4$ における炭素数１～６のアルキルについては直鎖および分岐鎖のいずれでもよい。すなわち、炭素数１～６の直鎖アルキルまたは炭素数３～６の分岐鎖アルキルである。より好ましくは、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分岐鎖アルキル）である。具体例としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、*t*-ペンチル、*n*-ヘキシル、１-メチルペンチル、４-メチル-２-ペンチル、３，３-ジメチルブチル、または２-エチルブチルなどがあげられ、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、または*t*-ブチルが好ましく、メチル、エチル、または*t*-ブチルがより好ましい。

【０３６７】

$R^1 \sim R^4$ における炭素数３～６のシクロアルキルの具体例としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、シクロヘプチル、メチルシクロヘキシル、シクロオクチルまたはジメチルシクロヘキシルなどがあげられる。

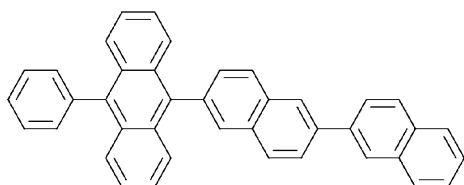
【０３６８】

$R^1 \sim R^4$ における炭素数６～２０のアリールについては、炭素数６～１６のアリールが好ましく、炭素数６～１２のアリールがより好ましく、炭素数６～１０のアリールが特に好ましい。「炭素数６～２０のアリール」の具体例としては、 Ar^2 における「炭素数６～２０のアリール」の具体例を引用することができる。好ましい「炭素数６～２０のアリール」は、フェニル、ビフェニル、テルフェニルまたはナフチルであり、より好ましくは、フェニル、ビフェニル、１-ナフチル、２-ナフチルまたは*m*-テルフェニル-５-イルであり、さらに好ましくは、フェニル、ビフェニル、１-ナフチルまたは２-ナフチルであり、最も好ましくはフェニルである。

【０３６９】

これらのアントラセン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化１４４】



【０３７０】

これらのアントラセン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０３７１】

<ベンゾフルオレン誘導体>

ベンゾフルオレン誘導体は、例えば下記式（ETM-6）で表される化合物である。

10

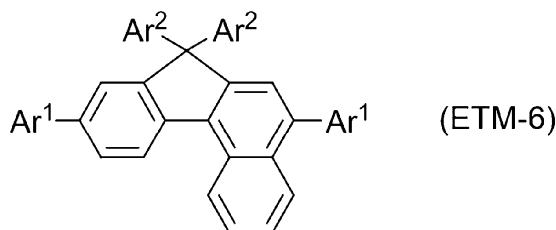
20

30

40

50

【化 1 4 5】



【0 3 7 2】

Ar¹は、それぞれ独立して、炭素数 6～20 のアリールであり、式 (ETM-5) の Ar²における「炭素数 6～20 のアリール」と同じ説明を引用することができる。炭素数 6～16 のアリールが好ましく、炭素数 6～12 のアリールがより好ましく、炭素数 6～10 のアリールが特に好ましい。具体例としては、フェニル、ビフェニリル、ナフチル、テルフェニリル、アントラセニル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、テトラセニル、ペリレニルなどがあげられる。

【0 3 7 3】

Ar²は、それぞれ独立して、水素、アルキル（好ましくは炭素数 1～24 のアルキル）、シクロアルキル（好ましくは炭素数 3～12 のシクロアルキル）またはアリール（好ましくは炭素数 6～30 のアリール）であり、2つの Ar²は結合して環を形成していてもよい。

【0 3 7 4】

Ar²における「アルキル」としては、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数 1～24 の直鎖アルキルまたは炭素数 3～24 の分岐鎖アルキルがあげられる。好ましい「アルキル」は、炭素数 1～18 のアルキル（炭素数 3～18 の分岐鎖アルキル）である。より好ましい「アルキル」は、炭素数 1～12 のアルキル（炭素数 3～12 の分岐鎖アルキル）である。さらに好ましい「アルキル」は、炭素数 1～6 のアルキル（炭素数 3～6 の分岐鎖アルキル）である。特に好ましい「アルキル」は、炭素数 1～4 のアルキル（炭素数 3～4 の分岐鎖アルキル）である。具体的な「アルキル」としては、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、s-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、t-ペンチル、n-ヘキシル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3,3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、n-ヘプチル、1-メチルヘキシルなどがあげられる。

【0 3 7 5】

Ar²における「シクロアルキル」としては、例えば、炭素数 3～12 のシクロアルキルがあげられる。好ましい「シクロアルキル」は、炭素数 3～10 のシクロアルキルである。より好ましい「シクロアルキル」は、炭素数 3～8 のシクロアルキルである。さらに好ましい「シクロアルキル」は、炭素数 3～6 のシクロアルキルである。具体的な「シクロアルキル」としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、シクロヘプチル、メチルシクロヘキシル、シクロオクチルまたはジメチルシクロヘキシルなどがあげられる。

【0 3 7 6】

Ar²における「アリール」としては、好ましいアリールは炭素数 6～30 のアリールであり、より好ましいアリールは炭素数 6～18 のアリールであり、さらに好ましくは炭素数 6～14 のアリールであり、特に好ましくは炭素数 6～12 のアリールである。

【0 3 7 7】

具体的な「炭素数 6～30 のアリール」としては、フェニル、ナフチル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、ナフタセニル、ペリレニル、ペンタセニルなどがあげられる。

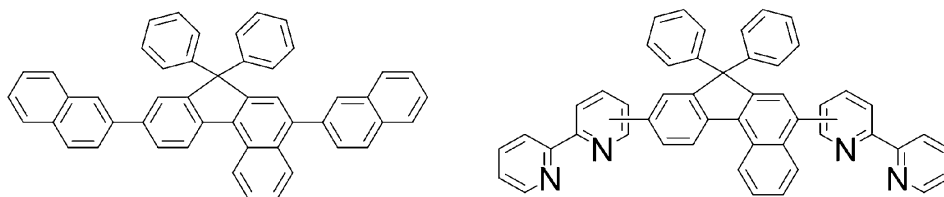
【0 3 7 8】

2つの Ar^2 は結合して環を形成していてもよく、この結果、フルオレン骨格の5員環には、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキサン、フルオレンまたはインデンなどがスピロ結合していてもよい。

【0379】

このベンゾフルオレン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化146】



10

【0380】

このベンゾフルオレン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

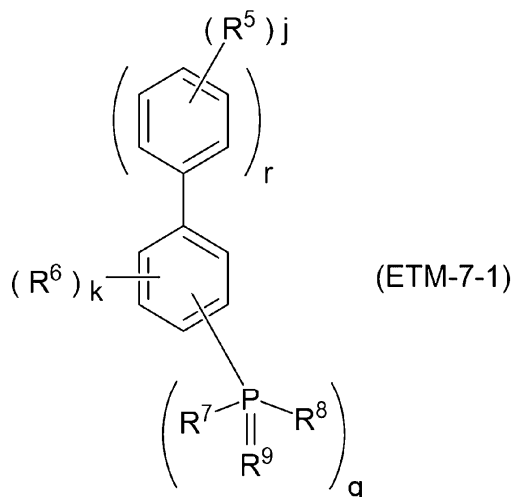
【0381】

<ホスフィンオキサイド誘導体>

ホスフィンオキサイド誘導体は、例えば下記式（ETM-7-1）で表される化合物である。詳細は国際公開第2013/079217号および国際公開第2013/079678号にも記載されている。

20

【化147】



30

【0382】

R^5 は、置換または無置換の、炭素数1～20のアルキル、炭素数3～16のシクロアルキル、炭素数6～20のアリールまたは炭素数5～20のヘテロアリールであり、

R^6 は、CN、置換または無置換の、炭素数1～20のアルキル、炭素数3～16のシクロアルキル、炭素数1～20のヘテロアルキル、炭素数6～20のアリール、炭素数5～20のヘテロアリール、炭素数1～20のアルコキシまたは炭素数6～20のアリールオキシであり、

40

R^7 および R^8 は、それぞれ独立して、置換または無置換の、炭素数6～20のアリールまたは炭素数5～20のヘテロアリールであり、

R^9 は酸素または硫黄であり、

j は0または1であり、 k は0または1であり、 r は0～4の整数であり、 q は1～3の整数である。

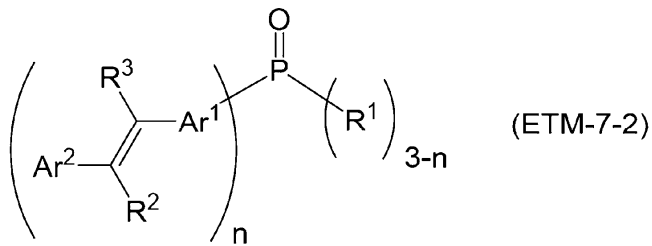
ここで、置換されている場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

【0383】

50

ホスフィンオキサイド誘導体は、例えば下記式（ETM-7-2）で表される化合物でもよい。

【化148】



10

【0384】

$R^1 \sim R^3$ は、同じでも異なってもよく、水素、アルキル、シクロアルキル、アラルキル、アルケニル、シクロアルケニル、アルキニル、アルコキシ、アルキルチオ、シクロアルキルチオ、アリールエーテル（アリールエーテル基）、アリールチオエーテル（アリールチオエーテル基）、アリール、複素環基、ハロゲン、シアノ、アルデヒド、カルボニル、カルボキシル、アミノ、ニトロ、シリル、および隣接置換基との間に形成される縮合環の中から選ばれる。

【0385】

Ar^1 は、同じでも異なってもよく、アリーレンまたはヘテロアリーレンである。 Ar^2 は、同じでも異なってもよく、アリールまたはヘテロアリールである。ただし、 Ar^1 および Ar^2 のうち少なくとも一方は置換基を有しているか、または隣接置換基との間に縮合環を形成している。 n は0～3の整数であり、 n が0のとき不飽和構造部分は存在せず、 n が3のとき R^1 は存在しない。

20

【0386】

これらの置換基の内、アルキルとは、例えば、メチル、エチル、プロピル、ブチルなどの飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。置換されている場合の置換基には特に制限は無く、例えば、アルキル、アリール、複素環基等をあげることができ、この点は、以下の記載にも共通する。また、アルキルの炭素数は特に限定されないが、入手の容易性やコストの点から、通常、1～20の範囲である。

30

【0387】

また、シクロアルキルとは、例えば、シクロプロピル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどの飽和脂環式炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルキル部分の炭素数は特に限定されないが、通常、3～20の範囲である。

【0388】

また、アラルキルとは、例えば、ベンジル、フェニルエチルなどの脂肪族炭化水素を介した芳香族炭化水素基を示し、脂肪族炭化水素と芳香族炭化水素はいずれも無置換でも置換されていてもかまわない。脂肪族部分の炭素数は特に限定されないが、通常、1～20の範囲である。

【0389】

また、アルケニルとは、例えば、ビニル、アリル、ブタジエニルなどの二重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルケニルの炭素数は特に限定されないが、通常、2～20の範囲である。

40

【0390】

また、シクロアルケニルとは、例えば、シクロペンテニル、シクロペンタジエニル、シクロヘキセニルなどの二重結合を含む不飽和脂環式炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。

【0391】

また、アルキニルとは、例えば、アセチレニルなどの三重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルキニルの炭素数は特

50

に限定されないが、通常、2～20の範囲である。

【0392】

また、アルコキシとは、例えば、メトキシなどのエーテル結合を介した脂肪族炭化水素基を示し、脂肪族炭化水素基は無置換でも置換されていてもかまわない。アルコキシの炭素数は特に限定されないが、通常、1～20の範囲である。

【0393】

また、アルキルチオとは、アルコキシのエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換された基である。

【0394】

また、シクロアルキルチオとは、シクロアルコキシのエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換された基である。

10

【0395】

また、アリールエーテルとは、例えば、フェノキシなどのエーテル結合を介した芳香族炭化水素基を示し、芳香族炭化水素基は無置換でも置換されていてもかまわない。アリールエーテルの炭素数は特に限定されないが、通常、6～40の範囲である。

【0396】

また、アリールチオエーテルとは、アリールエーテルのエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換された基である。

【0397】

また、アリールとは、例えば、フェニル、ナフチル、ピフェニル、フェナントリル、ターフェニル、ピレニルなどの芳香族炭化水素基を示す。アリールは無置換でも置換されていてもかまわない。アリールの炭素数は特に限定されないが、通常、6～40の範囲である。

20

【0398】

また、複素環基とは、例えば、フラニル、チエニル、オキサゾリル、ピリジル、キノリニル、カルバゾリルなどの炭素以外の原子を有する環状構造基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。複素環基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～30の範囲である。

【0399】

ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素を示す。

30

【0400】

アルデヒド、カルボニル、アミノには、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環などで置換された基も含むことができる。

【0401】

また、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環は無置換でも置換されていてもかまわない。

【0402】

シリルとは、例えば、トリメチルシリルなどのケイ素化合物基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。シリルの炭素数は特に限定されないが、通常、3～20の範囲である。また、ケイ素数は、通常、1～6である。

40

【0403】

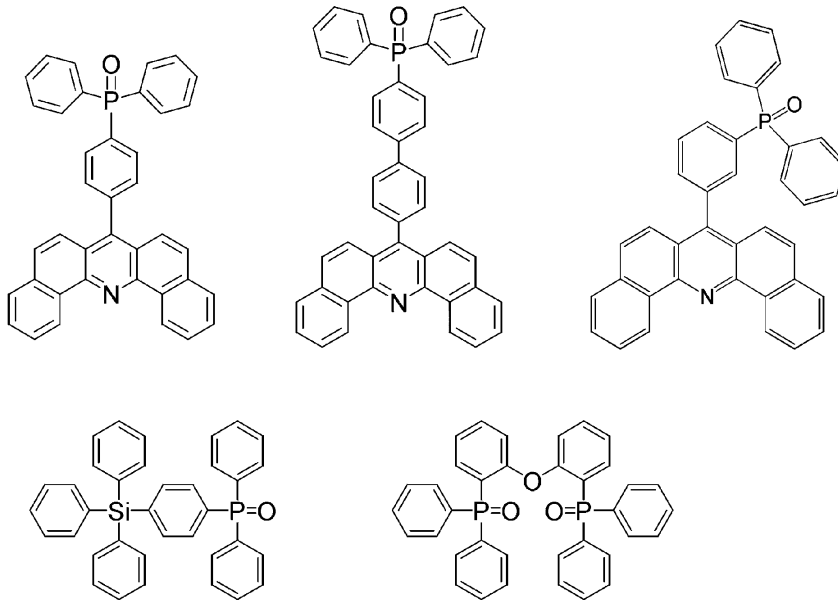
隣接置換基との間に形成される縮合環とは、例えば、 Ar^1 と R^2 、 Ar^1 と R^3 、 Ar^2 と R^2 、 Ar^2 と R^3 、 R^2 と R^3 、 Ar^1 と Ar^2 等の間で形成された共役または非共役の縮合環である。ここで、 n が1の場合、2つの R^1 同士で共役または非共役の縮合環を形成してもよい。これら縮合環は、環内構造に窒素、酸素、硫黄原子を含んでいてもよいし、さらに別の環と縮合してもよい。

【0404】

このホスフィンオキサイド誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

50

【化 1 4 9】



10

【0 4 0 5】

このホスフィンオキサイド誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

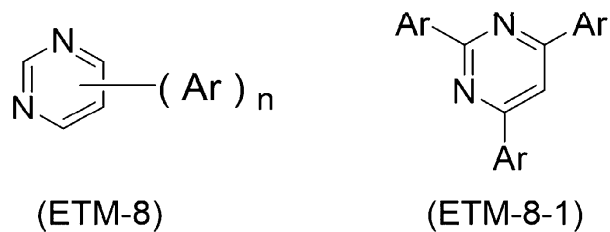
20

【0 4 0 6】

<ピリミジン誘導体>

ピリミジン誘導体は、例えば下記式（ETM-8）で表される化合物であり、好ましくは下記式（ETM-8-1）で表される化合物である。詳細は国際公開第2011/021689号にも記載されている。

【化 1 5 0】



30

【0 4 0 7】

Arは、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、または置換されていてもよいヘテロアリールである。nは1～4の整数であり、好ましくは1～3の整数であり、より好ましくは2または3である。

【0 4 0 8】

「置換されていてもよいアリール」の「アリール」としては、例えば、炭素数6～30のアリールがあげられ、好ましくは炭素数6～24のアリール、より好ましくは炭素数6～20のアリール、さらに好ましくは炭素数6～12のアリールである。

40

【0 4 0 9】

具体的な「アリール」としては、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールである（2-，3-，4-）ビフェニル、縮合二環系アリールである（1-，2-）ナフチル、三環系アリールであるテルフェニル（m-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-4'-イル、m-テルフェニル-5'-イル、o-テルフェニル-3'-イル、o-テルフェニル-4'-イル、p-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-2-イル、m-テルフェニル-3-イル、m-テルフェニル-4-イル、o-テルフェニル-2-イル、o-テルフェニル-3-イル、o-テルフェニル-4-イル、p-テルフェニル-2

50

－イル、p－テルフェニル－3－イル、p－テルフェニル－4－イル）、縮合三環系アリールである、アセナフチレン－（1－，3－，4－，5－）イル、フルオレン－（1－，2－，3－，4－，9－）イル、フェナレン－（1－，2－）イル、（1－，2－，3－，4－，9－）フェナントリル、四環系アリールであるクアテルフェニリル（5'－フェニル－m－テルフェニル－2－イル、5'－フェニル－m－テルフェニル－3－イル、5'－フェニル－m－テルフェニル－4－イル、m－クアテルフェニリル）、縮合四環系アリールであるトリフェニレン－（1－，2－）イル、ピレン－（1－，2－，4－）イル、ナフタセン－（1－，2－，5－）イル、縮合五環系アリールであるペリレン－（1－，2－，3－）イル、ペンタセン－（1－，2－，5－，6－）イルなどがあげられる。

【0410】

「置換されていてもよいヘテロアリール」の「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数2～30のヘテロアリールがあげられ、炭素数2～25のヘテロアリールが好ましく、炭素数2～20のヘテロアリールがより好ましく、炭素数2～15のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数2～10のヘテロアリールが特に好ましい。また、ヘテロアリールとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1ないし5個含有する複素環などがあげられる。

【0411】

具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾ[b]チエニル、インドリル、イソインドリル、1H－インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1H－ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチイニル、チアントレニル、インドリジニルなどがあげられる。

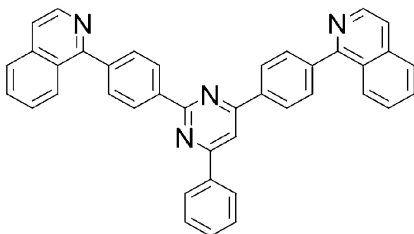
【0412】

また、上記アリールおよびヘテロアリールは置換されていてもよく、それぞれ例えば上記アリールやヘテロアリールで置換されていてもよい。

【0413】

このピリミジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化151】



【0414】

このピリミジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0415】

<アリールニトリル誘導体>

アリールニトリル誘導体は、例えば下記式（ETM－9）で表される化合物、またはそれが単結合などで複数結合した多量体である。詳細は米国出願公開第2014／0197386号明細書に記載されている。

10

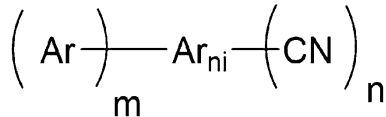
20

30

40

50

【化 1 5 2】



(ETM-9)

【0 4 1 6】

Ar_{ni}は、速い電子輸送性の観点からは炭素数が多いことが好ましく、高いT1の観点からは炭素数が少ないことが好ましい。Ar_{ni}は、具体的には、発光層に隣接する層に用いるには高いT1であることが好ましく、炭素数6～20のアリールであり、好ましくは炭素数6～14のアリール、より好ましくは炭素数6～10のアリールである。また、ニトリル基の置換個数nは、高いT1の観点からは多いことが好ましく、高いS1の観点からは少ないことが好ましい。ニトリル基の置換個数nは、具体的には、1～4の整数であり、好ましくは1～3の整数であり、より好ましくは1～2の整数であり、さらに好ましくは1である。

10

【0 4 1 7】

Arは、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、または置換されていてもよいヘテロアリールである。高いS1および高いT1の観点からドナー性のヘテロアリールであることが好ましく、電子輸送層として用いるためドナー性のヘテロアリールは少ないことが好ましい。電荷輸送性の観点からは炭素数の多いアリールまたはヘテロアリールが好ましく、置換基を多く有することが好ましい。Arの置換個数mは、具体的には、1～4の整数であり、好ましくは1～3の整数であり、より好ましくは1～2である。

20

【0 4 1 8】

「置換されていてもよいアリール」の「アリール」としては、例えば、炭素数6～30のアリールがあげられ、好ましくは炭素数6～24のアリール、より好ましくは炭素数6～20のアリール、さらに好ましくは炭素数6～12のアリールである。

【0 4 1 9】

具体的な「アリール」としては、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールである(2-, 3-, 4-)ピフェニリル、縮合二環系アリールである(1-, 2-)ナフチル、三環系アリールであるテルフェニリル(m-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-4'-イル、m-テルフェニル-5'-イル、o-テルフェニル-3'-イル、o-テルフェニル-4'-イル、p-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-2-イル、m-テルフェニル-3-イル、m-テルフェニル-4-イル、o-テルフェニル-2-イル、o-テルフェニル-3-イル、o-テルフェニル-4-イル、p-テルフェニル-2-イル、p-テルフェニル-3-イル、p-テルフェニル-4-イル)、縮合三環系アリールである、アセナフチレン-(1-, 3-, 4-, 5-)イル、フルオレン-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)イル、フェナレン-(1-, 2-)イル、(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)フェナントリル、四環系アリールであるクアテルフェニリル(5'-フェニル-m-テルフェニル-2-イル、5'-フェニル-m-テルフェニル-3-イル、5'-フェニル-m-テルフェニル-4-イル、m-クアテルフェニリル)、縮合四環系アリールであるトリフェニレン-(1-, 2-)イル、ピレン-(1-, 2-, 4-)イル、ナフタセン-(1-, 2-, 5-)イル、縮合五環系アリールであるペリレン-(1-, 2-, 3-)イル、ペンタセン-(1-, 2-, 5-, 6-)イルなどがあげられる。

30

40

【0 4 2 0】

「置換されていてもよいヘテロアリール」の「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数2～30のヘテロアリールがあげられ、炭素数2～25のヘテロアリールが好ましく、炭素数2～20のヘテロアリールがより好ましく、炭素数2～15のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数2～10のヘテロアリールが特に好ましい。また、ヘテロアリー

50

ルとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1ないし5個含有する複素環などがあげられる。

【0421】

具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾ[b]チエニル、インドリル、イソインドリル、1H-インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1H-ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチイニル、チアントレニル、インドリジニルなどがあげられる。

【0422】

また、上記アリールおよびヘテロアリールは置換されていてもよく、それぞれ例えば上記アリールやヘテロアリールで置換されていてもよい。

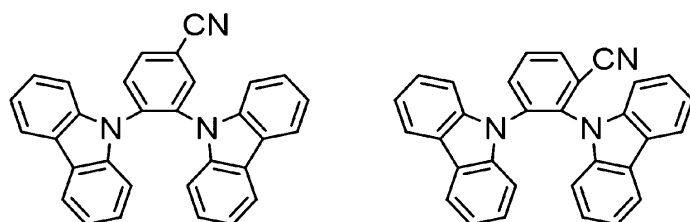
【0423】

アリールニトリル誘導体は、式(ETM-9)で表される化合物が単結合などで複数結合した多量体であってもよい。この場合、単結合以外に、アリール環(好ましくは多価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環)で結合されていてもよい。

【0424】

このアリールニトリル誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化153】



【0425】

このアリールニトリル誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0426】

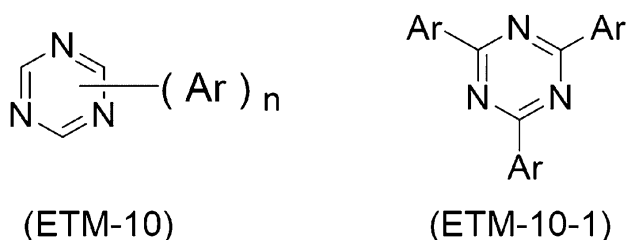
このカルバゾール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0427】

<トリアジン誘導体>

トリアジン誘導体は、例えば下記式(ETM-10)で表される化合物であり、好ましくは下記式(ETM-10-1)で表される化合物である。詳細は米国特許出願公開第2011/0156013号明細書に記載されている。

【化154】



【0428】

Arは、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、または置換されていてもよいヘテロアリールである。nは1～3の整数であり、好ましくは2または3である。

【0429】

「置換されていてもよいアリール」の「アリール」としては、例えば、炭素数6～30のアリールがあげられ、好ましくは炭素数6～24のアリール、より好ましくは炭素数6～20のアリール、さらに好ましくは炭素数6～12のアリールである。

【0430】

具体的な「アリール」としては、単環系アリールであるフェニル、二環系アリールである(2-, 3-, 4-)ビフェニリル、縮合二環系アリールである(1-, 2-)ナフチル、三環系アリールであるテルフェニリル(m-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-4'-イル、m-テルフェニル-5'-イル、o-テルフェニル-3'-イル、o-テルフェニル-4'-イル、p-テルフェニル-2'-イル、m-テルフェニル-2-イル、m-テルフェニル-3-イル、m-テルフェニル-4-イル、o-テルフェニル-2-イル、o-テルフェニル-3-イル、o-テルフェニル-4-イル、p-テルフェニル-2-イル、p-テルフェニル-3-イル、p-テルフェニル-4-イル)、縮合三環系アリールである、アセナフチレン-(1-, 3-, 4-, 5-)イル、フルオレン-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)イル、フェナレン-(1-, 2-)イル、(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)フェナントリル、四環系アリールであるクアテルフェニリル(5'-フェニル-m-テルフェニル-2-イル、5'-フェニル-m-テルフェニル-3-イル、5'-フェニル-m-テルフェニル-4-イル、m-クアテルフェニリル)、縮合四環系アリールであるトリフェニレン-(1-, 2-)イル、ピレン-(1-, 2-, 4-)イル、ナフタセン-(1-, 2-, 5-)イル、縮合五環系アリールであるペリレン-(1-, 2-, 3-)イル、ペンタセン-(1-, 2-, 5-, 6-)イルなどがあげられる。

【0431】

「置換されていてもよいヘテロアリール」の「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数2～30のヘテロアリールがあげられ、炭素数2～25のヘテロアリールが好ましく、炭素数2～20のヘテロアリールがより好ましく、炭素数2～15のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数2～10のヘテロアリールが特に好ましい。また、ヘテロアリールとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1ないし5個含有する複素環などがあげられる。

【0432】

具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾ[b]チエニル、インドリル、イソインドリル、1H-インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1H-ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチイニル、チアントレニル、インドリジニルなどがあげられる。

【0433】

また、上記アリールおよびヘテロアリールは置換されていてもよく、それぞれ例えば上記アリールやヘテロアリールで置換されていてもよい。

【0434】

このトリアジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

10

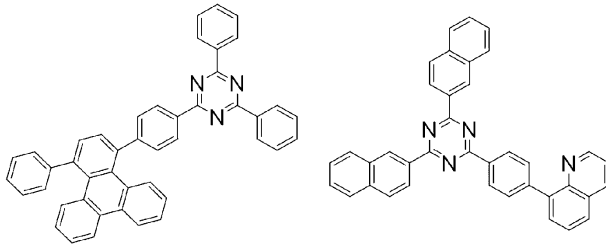
20

30

40

50

【化 1 5 5】



【0 4 3 5】

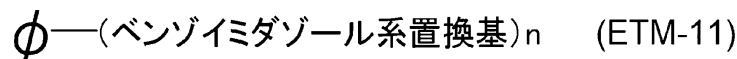
このトリアジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0 4 3 6】

<ベンゾイミダゾール誘導体>

ベンゾイミダゾール誘導体は、例えば下記式（ETM-11）で表される化合物である。

【化 1 5 6】

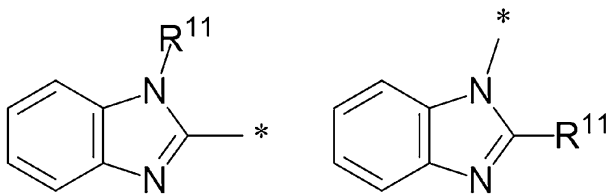


【0 4 3 7】

ϕ は、 n 価のアリール環（好ましくは n 価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環）であり、 n は 1～4 の整数であり、「ベンゾイミダゾール系置換基」は、式（ETM-2）、式（ETM-2-1）および式（ETM-2-2）における「ピリジン系置換基」の中のピリジルがベンゾイミダゾリルに置き換わった置換基であり、ベンゾイミダゾール誘導体における少なくとも 1 つの水素は重水素で置換されていてもよい。

【0 4 3 8】

【化 1 5 7】



ベンゾイミダゾリル

*は結合位置を示す。

【0 4 3 9】

上記ベンゾイミダゾリルにおける R^{11} は、水素、炭素数 1～24 のアルキル、炭素数 3～12 のシクロアルキルまたは炭素数 6～30 のアリールであり、式（ETM-2-1）および式（ETM-2-2）における R^{11} の説明を引用することができる。

【0 4 4 0】

ϕ は、さらに、アントラセン環またはフルオレン環であることが好ましく、この場合の構造は式（ETM-2-1）または式（ETM-2-2）での説明を引用することができる。各式中の $R^{11} \sim R^{18}$ は式（ETM-2-1）または式（ETM-2-2）での説明を引用することができる。また、式（ETM-2-1）または式（ETM-2-2）では 2 つのピリジン系置換基が結合した形態で説明されているが、これらをベンゾイミダゾール系置換基に置き換えるときには、両方のピリジン系置換基をベンゾイミダゾール系置換基で置き換えてもよいし（すなわち $n = 2$ ）、いずれか 1 つのピリジン系置換基をベンゾイミダゾール系置換基で置き換えて他方のピリジン系置換基を $R^{11} \sim R^{18}$ で置き換えてもよい（すなわち $n = 1$ ）。さらに、例えば式（ETM-2-1）における $R^{11} \sim R^{18}$ の少なく

10

20

30

40

50

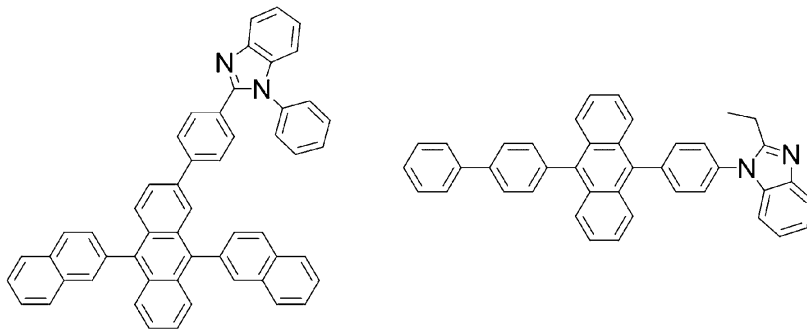
とも1つをベンゾイミダゾール系置換基で置き換えて「ピリジン系置換基」を $R^{11} \sim R^{18}$ で置き換えてもよい。

【0441】

このベンゾイミダゾール誘導体の具体例としては、例えば1-フェニル-2-(4-(10-フェニルアントラセン-9-イル)フェニル)-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、2-(4-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、2-(3-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、5-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)-1,2-ジフェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、1-(4-(10-(ナフタレン-2-イル)アントラセン-9-イル)フェニル)-2-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、2-(4-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、1-(4-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)フェニル)-2-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾール、5-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)-1,2-ジフェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾールなどがあげられる。

【0442】

【化158】



【0443】

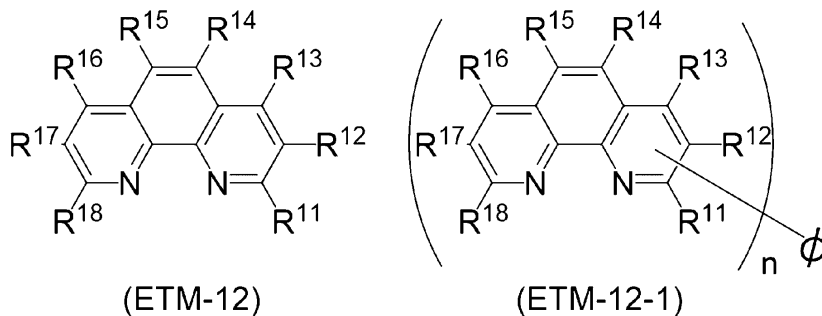
このベンゾイミダゾール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0444】

<フェナントロリン誘導体>

フェナントロリン誘導体は、例えば下記式(ETM-12)または式(ETM-12-1)で表される化合物である。詳細は国際公開第2006/021982号に記載されている。

【化159】



【0445】

ϕ は、 n 価のアリール環（好ましくは n 価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン

環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環)であり、 n は1～4の整数である。

【0446】

各式の $R^{11} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して、水素、アルキル（好ましくは炭素数1～24のアルキル）、シクロアルキル（好ましくは炭素数3～12のシクロアルキル）またはアリール（好ましくは炭素数6～30のアリール）である。また、式(ETM-12-1)においては $R^{11} \sim R^{18}$ のいずれかがアリール環である ϕ との結合手となる。

【0447】

各フェナントロリン誘導体における少なくとも1つの水素が重水素で置換されていてもよい。

【0448】

$R^{11} \sim R^{18}$ におけるアルキル、シクロアルキルおよびアリールとしては、式(ETM-2)における $R^{11} \sim R^{18}$ の説明を引用することができる。また、 ϕ は上記した例のほかに、例えば、以下の構造式があげられる。なお、下記構造式中の R は、それぞれ独立して、水素、メチル、エチル、イソプロピル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、ビフェニリルまたはテルフェニリルであり、*は、結合位置を表す。

【0449】

10

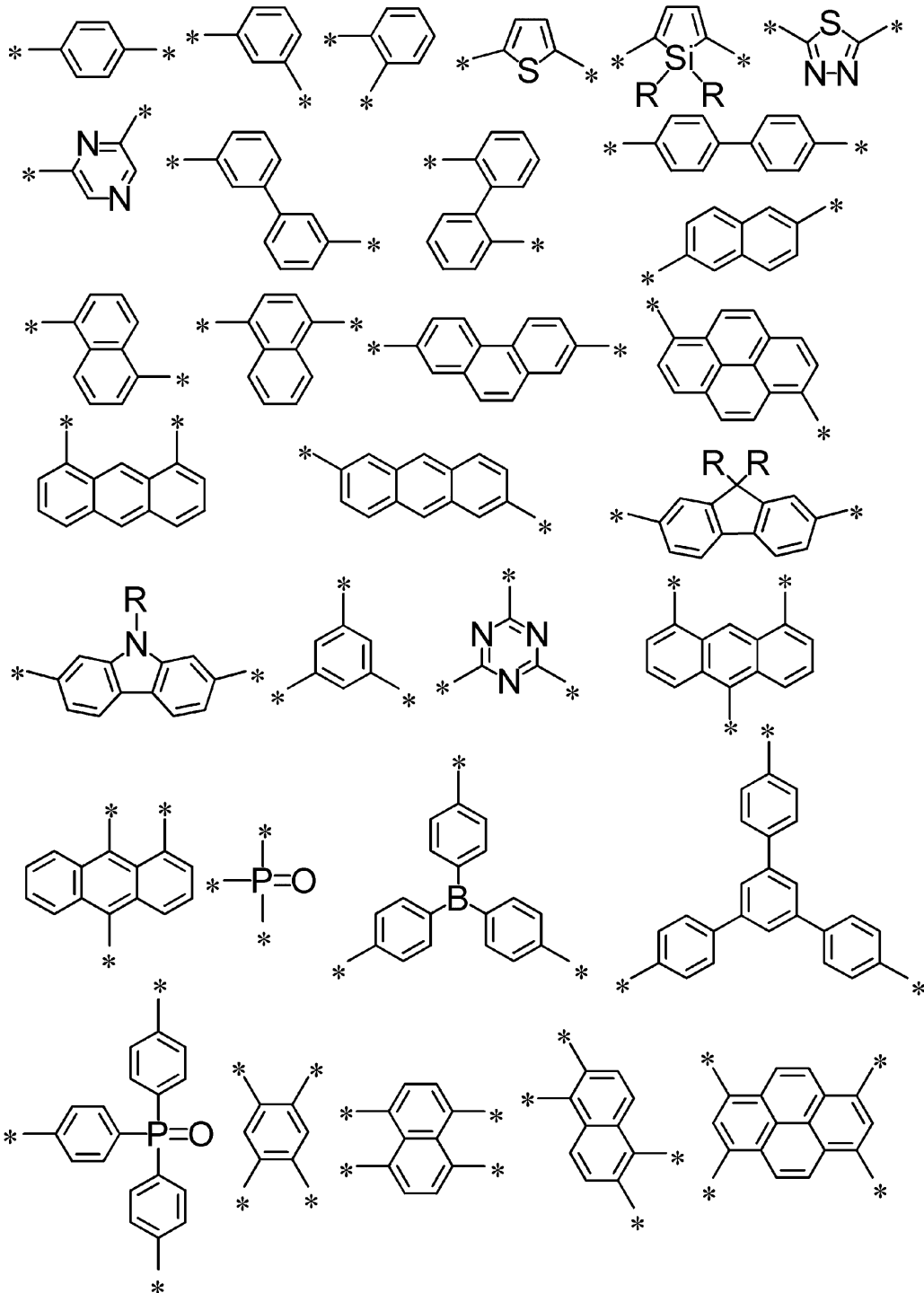
20

30

40

50

【化 160】



10

20

30

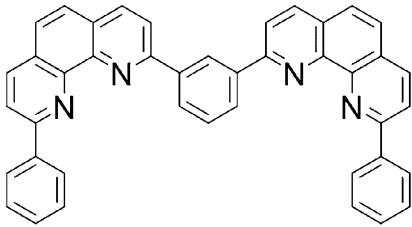
40

【0450】

このフェナントロリン誘導体の具体例としては、例えば4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン、9,10-ジ(1,10-フェナントロリン-2-イル)アントラセン、2,6-ジ(1,10-フェナントロリン-5-イル)ピリジン、1,3,5-トリ(1,10-フェナントロリン-5-イル)ベンゼン、9,9'-ジフルオロービ(1,10-フェナントロリン-5-イル)、バソクプロイン、1,3-ビス(2-フェニル-1,10-フェナントロリン-9-イル)ベンゼンや下記構造式で表される化合物などがあげられる。

50

【化 1 6 1】



【 0 4 5 1】

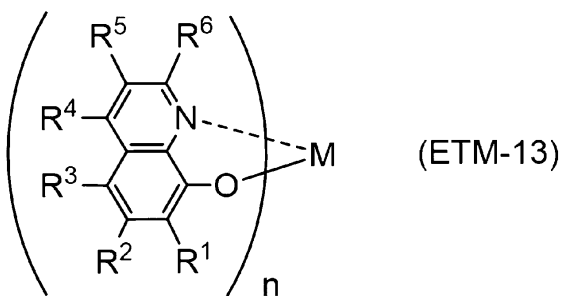
このフェナントロリン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【 0 4 5 2】

<キノリノール系金属錯体>

キノリノール系金属錯体は、例えば下記式（ETM-13）で表される化合物である。

【化 1 6 2】



式中、 $R^1 \sim R^6$ は、それぞれ独立して、水素、フッ素、アルキル、シクロアルキル、アラルキル、アルケニル、シアノ、アルコキシ、またはアリアルであり、MはLi、Al、Ga、Be、またはZnであり、nは1～3の整数である。

【 0 4 5 3】

キノリノール系金属錯体の具体例としては、8-キノリノールリチウム、トリス（8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（4-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（3, 4-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（4, 5-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（4, 6-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（フェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2-メチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3-メチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（4-メチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2-フェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3-フェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（4-フェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 3-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 6-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3, 4-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3, 5-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 6-ジフェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 4, 6-トリフェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 4, 6-トリメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 4, 5, 6-テトラメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノ

ラート) (1-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (2-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (4-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (10-ヒドロキシベンゾ [h] キノリン) ベリリウムなどがあげられる。

10

【0454】

20

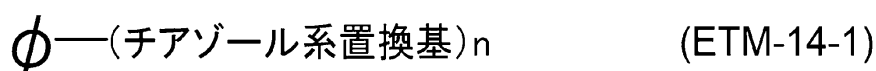
このキノリノール系金属錯体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0455】

<チアゾール誘導体およびベンゾチアゾール誘導体>

チアゾール誘導体は、例えば下記式 (ETM-14-1) で表される化合物である。

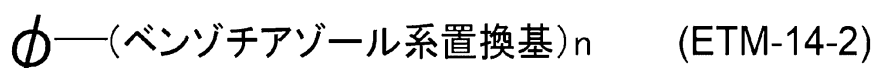
【化163】



ベンゾチアゾール誘導体は、例えば下記式 (ETM-14-2) で表される化合物である。

30

【化164】



【0456】

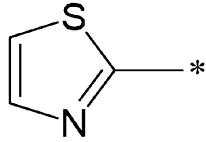
各式のφは、n個のアリール環 (好ましくはn個のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環) であり、nは1~4の整数であり、「チアゾール系置換基」や「ベンゾチアゾール系置換基」は、式 (ETM-2)、式 (ETM-2-1) および式 (ETM-2-2) における「ピリジン系置換基」の中のピリジルが下記のチアゾリルやベンゾチアゾリルに置き換わった置換基であり、チアゾール誘導体およびベンゾチアゾール誘導体における少なくとも1つの水素が重水素で置換されていてもよい。

40

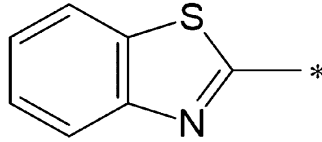
【0457】

50

【化 1 6 5】



チアゾリル



ベンゾチアゾリル

*は結合位置を示す。

【0 4 5 8】

φは、さらに、アントラセン環またはフルオレン環であることが好ましく、この場合の構造は式 (ETM-2-1) または式 (ETM-2-2) での説明を引用することができ、各式中の $R^{11} \sim R^{18}$ は式 (ETM-2-1) または式 (ETM-2-2) での説明を引用することができる。また、式 (ETM-2-1) または式 (ETM-2-2) では2つのピリジン系置換基が結合した形態で説明されているが、これらをチアゾール系置換基（またはベンゾチアゾール系置換基）に置き換えるときには、両方のピリジン系置換基をチアゾール系置換基（またはベンゾチアゾール系置換基）で置き換えてもよい（すなわち $n=2$ ）、いずれか1つのピリジン系置換基をチアゾール系置換基（またはベンゾチアゾール系置換基）で置き換えて他方のピリジン系置換基を $R^{11} \sim R^{18}$ で置き換えてもよい（すなわち $n=1$ ）。さらに、例えば式 (ETM-2-1) における $R^{11} \sim R^{18}$ の少なくとも1つをチアゾール系置換基（またはベンゾチアゾール系置換基）で置き換えて「ピリジン系置換基」を $R^{11} \sim R^{18}$ で置き換えてもよい。

【0 4 5 9】

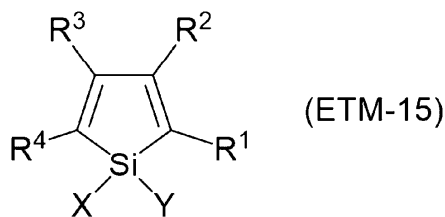
これらのチアゾール誘導体またはベンゾチアゾール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0 4 6 0】

<シロール誘導体>

シロール誘導体は、例えば下記式 (ETM-15) で表される化合物である。詳細は特開平9-194487号公報に記載されている。

【化 1 6 6】



(ETM-15)

【0 4 6 1】

XおよびYは、それぞれ独立して、アルキル、シクロアルキル、アルケニル、アルキニル、アルコキシ、アルケニルオキシ、アルキニルオキシ、アリール、ヘテロアリールであり、これらは置換されていてもよい。これらの基の詳細については、式 (1A) および式 (1B) における説明、さらに式 (ETM-7-2) における説明を引用できる。また、アルケニルオキシおよびアルキニルオキシは、それぞれアルコキシにおけるアルキル部分がアルケニルまたはアルキニルに置き換わった基であり、これらのアルケニルおよびアルキニルの詳細については式 (ETM-7-2) における説明を引用できる。

また、いずれもアルキルであるXとYとが結合して環を形成していてもよい。

【0 4 6 2】

$R^1 \sim R^4$ は、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、アミノ、アルキルカルボニル、アリールカルボニル、アルコキシカルボニル、アリールオキシカルボニル、アゾ基、アルキルカルボニルオキシ、アリールカルボニルオキシ、アルコキシカルボニルオキシ、アリールオキシカルボニルオキシ、ス

ルフィニル、スルフォニル、スルファニル、シリル、カルバモイル、アリール、ヘテロアリール、アルケニル、アルキニル、ニトロ、ホルミル、ニトロソ、ホルミルオキシ、イソシアノ、シアネート基、イソシアネート基、チオシアネート基、イソチオシアネート基、または、シアノであり、これらはアルキル、シクロアルキル、アリールまたはハロゲンで置換されていてもよく、隣接置換基との間に縮合環を形成していてもよい。

【0463】

$R^1 \sim R^4$ における、ハロゲン、アルキル、シクロアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、アミノ、アリール、ヘテロアリール、アルケニルおよびアルキニルの詳細については、式(1A)および式(1B)における説明を引用できる。

【0464】

$R^1 \sim R^4$ における、アルキルカルボニル、アリールカルボニル、アルコキシカルボニル、アリールオキシカルボニル、アルキルカルボニルオキシ、アリールカルボニルオキシ、アルコキシカルボニルオキシおよびアリールオキシカルボニルオキシ中の、アルキル、アリールおよびアルコキシの詳細についても、式(1A)および式(1B)における説明を引用できる。

【0465】

シリルとしては、シリル基、および、シリル基の3つの水素の少なくとも1つが、それぞれ独立して、アリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換された基があげられ、トリ置換シリルが好ましく、トリアリールシリル、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、ジアルキルシクロアルキルシリルおよびアルキルジシクロアルキルシリル等があげられる。これらにおける、アリール、アルキルおよびシクロアルキルの詳細については、式(1A)および式(1B)における説明を引用できる。

【0466】

隣接置換基との間に形成される縮合環とは、例えば、 R^1 と R^2 、 R^2 と R^3 、 R^3 と R^4 等の間で形成された共役または非共役の縮合環である。これら縮合環は、環内構造に窒素、酸素、硫黄原子を含んでいてもよいし、さらに別の環と縮合してもよい。

【0467】

ただし、好ましくは、 R^1 および R^4 がフェニルの場合、XおよびYは、アルキルまたはフェニルではない。また、好ましくは、 R^1 および R^4 がチエニル基の場合、XおよびYは、アルキルを、 R^2 および R^3 は、アルキル、アリール、アルケニルまたは R^2 と R^3 が結合して環を形成するシクロアルキルを同時に満たさない構造である。また、好ましくは、 R^1 および R^4 がシリル基の場合、 R^2 、 R^3 、XおよびYは、それぞれ独立して、水素または炭素数1から6のアルキルではない。また、好ましくは、 R^1 および R^2 でベンゼン環が縮合した構造の場合、XおよびYは、アルキルおよびフェニルではない。

【0468】

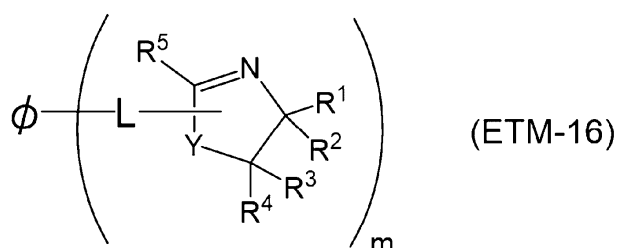
これらのシロール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0469】

<アゾリン誘導体>

アゾリン誘導体は、例えば下記式(ETM-16)で表される化合物である。詳細は国際公開第2017/014226号に記載されている。

【化167】



【0470】

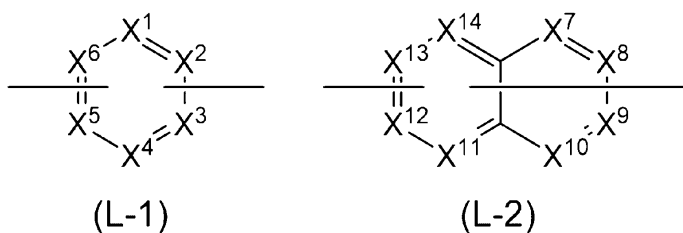
式 (ETM-16) 中、

ϕ は炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素に由来する m 価の基または炭素数 2 ～ 40 の芳香族複素環に由来する m 価の基であり、 ϕ の少なくとも 1 つの水素は炭素数 1 ～ 6 のアルキル、炭素数 3 ～ 14 のシクロアルキル、炭素数 6 ～ 18 のアリールまたは炭素数 2 ～ 18 のヘテロアリールで置換されていてもよく、

Y は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ または $>N-Ar$ であり、 Ar は炭素数 6 ～ 12 のアリールまたは炭素数 2 ～ 12 のヘテロアリールであり、 Ar の少なくとも 1 つの水素は炭素数 1 ～ 4 のアルキル、炭素数 5 ～ 10 のシクロアルキル、炭素数 6 ～ 12 のアリールまたは炭素数 2 ～ 12 のヘテロアリールで置換されていてもよく、 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立して水素、炭素数 1 ～ 4 のアルキルまたは炭素数 5 ～ 10 のシクロアルキルであり、ただし、前記 $>N-Ar$ における Ar および前記 $R^1 \sim R^5$ のうちのいずれか 1 つは L と結合する部位であり、

L は、それぞれ独立して、下記式 (L-1) で表される 2 価の基、および下記式 (L-2) で表される 2 価の基からなる群から選ばれ、

【化 168】



【0471】

式 (L-1) 中、 $X^1 \sim X^6$ はそれぞれ独立して $=CR^6-$ または $=N-$ であり、 $X^1 \sim X^6$ のうちの少なくとも 2 つは $=CR^6-$ であり、 $X^1 \sim X^6$ のうちの 2 つの $=CR^6-$ における R^6 は ϕ またはアゾリン環と結合する部位であり、それ以外の $=CR^6-$ における R^6 は水素であり、

式 (L-2) 中、 $X^7 \sim X^{14}$ はそれぞれ独立して $=CR^6-$ または $=N-$ であり、 $X^7 \sim X^{14}$ のうちの少なくとも 2 つは $=CR^6-$ であり、 $X^7 \sim X^{14}$ のうちの 2 つの $=CR^6-$ における R^6 は ϕ またはアゾリン環と結合する部位であり、それ以外の $=CR^6-$ における R^6 は水素であり、

L の少なくとも 1 つの水素は炭素数 1 ～ 4 のアルキル、炭素数 5 ～ 10 のシクロアルキル、炭素数 6 ～ 10 のアリールまたは炭素数 2 ～ 10 のヘテロアリールで置換されていてもよく、

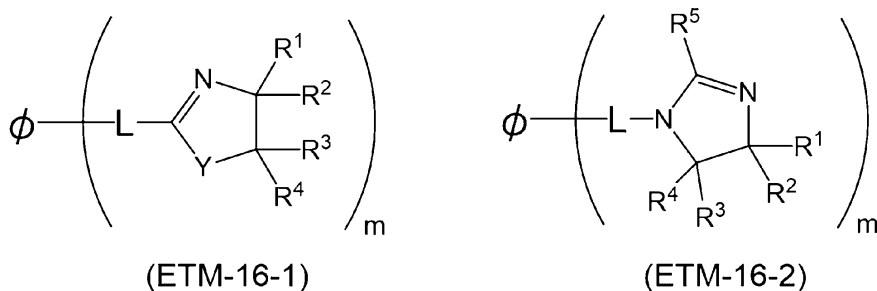
m は 1 ～ 4 の整数であり、 m が 2 ～ 4 であるとき、アゾリン環と L とで形成される基は同一であっても異なってもよく、そして、

式 (ETM-16) で表される化合物中の少なくとも 1 つの水素は重水素で置換されていてもよい。

【0472】

具体的なアゾリン誘導体は、下記式 (ETM-16-1) または式 (ETM-16-2) で表される化合物である。

【化 169】



【0473】

式(ETM-16-1)および式(ETM-16-2)中、

ϕ は炭素数6～40の芳香族炭化水素に由来するm個の基または炭素数2～40の芳香族複素環に由来するm個の基であり、 ϕ の少なくとも1つの水素は炭素数1～6のアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、炭素数6～18のアリールまたは炭素数2～18のヘテロアリールで置換されていてもよく、

式(ETM-16-1)中、Yは、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ または $>N-Ar$ であり、Arは炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールであり、Arの少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールで置換されていてもよく、

10

式(ETM-16-1)中、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ独立して水素、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルであり、ただし、 R^1 と R^2 は同一であり、また R^3 と R^4 は同一であり、

式(ETM-16-2)中、 $R^1 \sim R^5$ はそれぞれ独立して水素、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルであり、ただし、 R^1 と R^2 は同一であり、また R^3 と R^4 は同一であり、

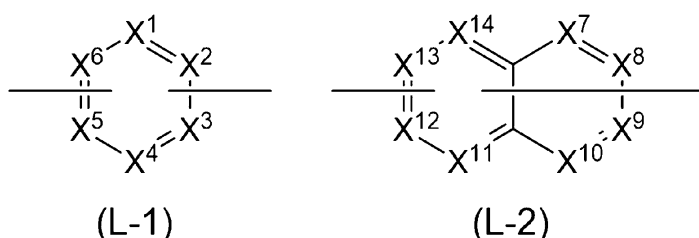
式(ETM-16-1)および式(ETM-16-2)中、

Lは、それぞれ独立して、下記式(L-1)で表される2個の基、および下記式(L-2)で表される2個の基からなる群から選ばれ、

20

【0474】

【化170】



式(L-1)中、 $X^1 \sim X^6$ はそれぞれ独立して $=CR^6-$ または $=N-$ であり、 $X^1 \sim X^6$ のうちの少なくとも2つは $=CR^6-$ であり、 $X^1 \sim X^6$ のうちの2つの $=CR^6-$ における R^6 は ϕ またはアゾリン環と結合する部位であり、それ以外の $=CR^6-$ における R^6 は水素であり、

30

式(L-2)中、 $X^7 \sim X^{14}$ はそれぞれ独立して $=CR^6-$ または $=N-$ であり、 $X^7 \sim X^{14}$ のうちの少なくとも2つは $=CR^6-$ であり、 $X^7 \sim X^{14}$ のうちの2つの $=CR^6-$ における R^6 は ϕ またはアゾリン環と結合する部位であり、それ以外の $=CR^6-$ における R^6 は水素であり、

Lの少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～10のアリールまたは炭素数2～10のヘテロアリールで置換されていてもよく、

40

mは1～4の整数であり、mが2～4であるとき、アゾリン環とLとで形成される基は同一であっても異なってもよく、そして、

式(ETM-16-1)または式(ETM-16-2)で表される化合物中の少なくとも1つの水素は重水素で置換されていてもよい。

【0475】

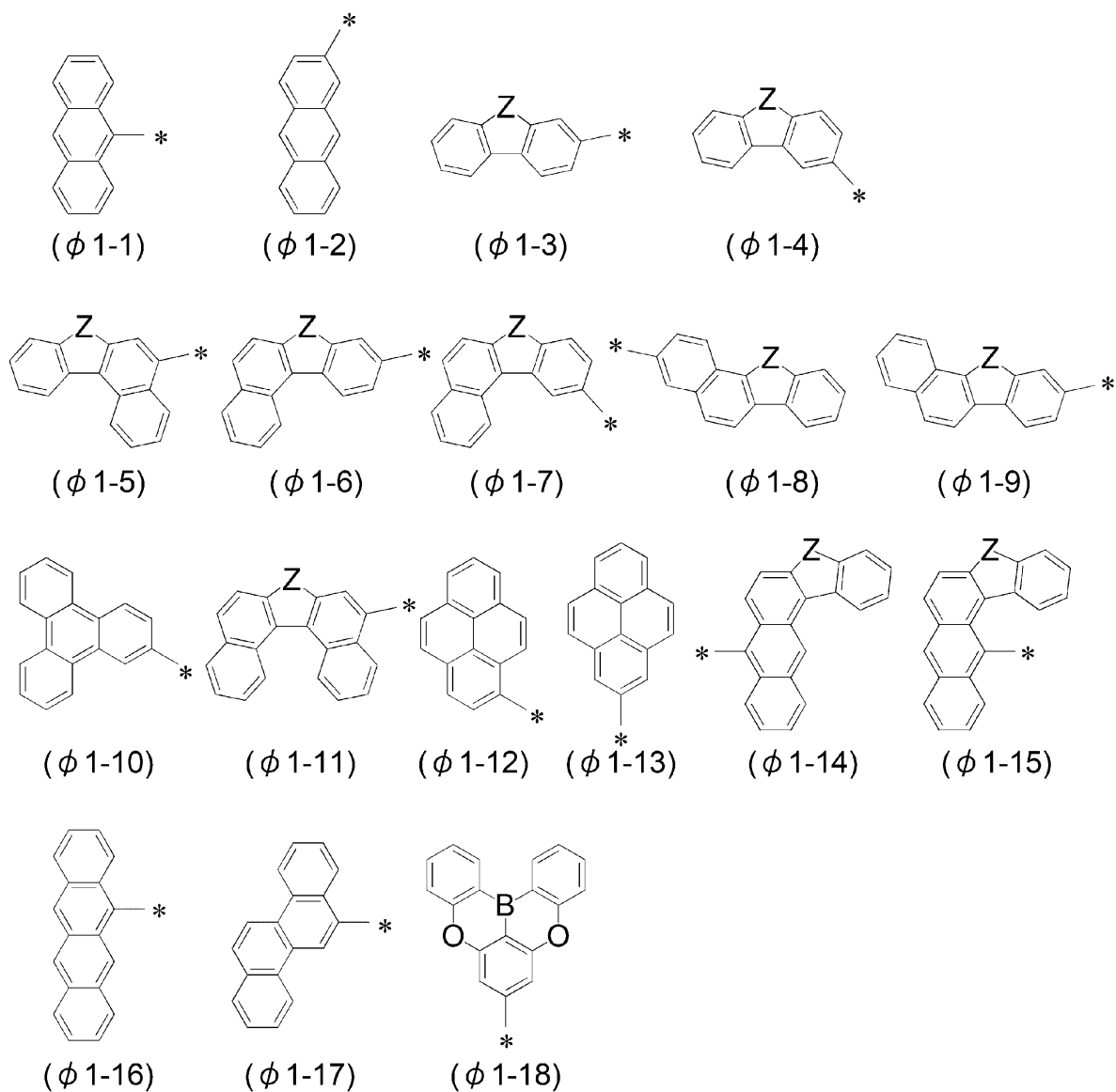
好ましくは、 ϕ は、下記式($\phi 1-1$)～式($\phi 1-18$)で表される1個の基、下記式($\phi 2-1$)～式($\phi 2-34$)で表される2個の基、下記式($\phi 3-1$)～式($\phi 3-3$)で表される3個の基、および下記式($\phi 4-1$)～式($\phi 4-2$)で表される4個の基からなる群から選択され、 ϕ の少なくとも1つの水素は炭素数1～6のアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、炭素数6～18のアリールまたは炭素数2～18のヘテ

50

ロアリールで置換されていてもよい。

【0476】

【化171】



【0477】

10

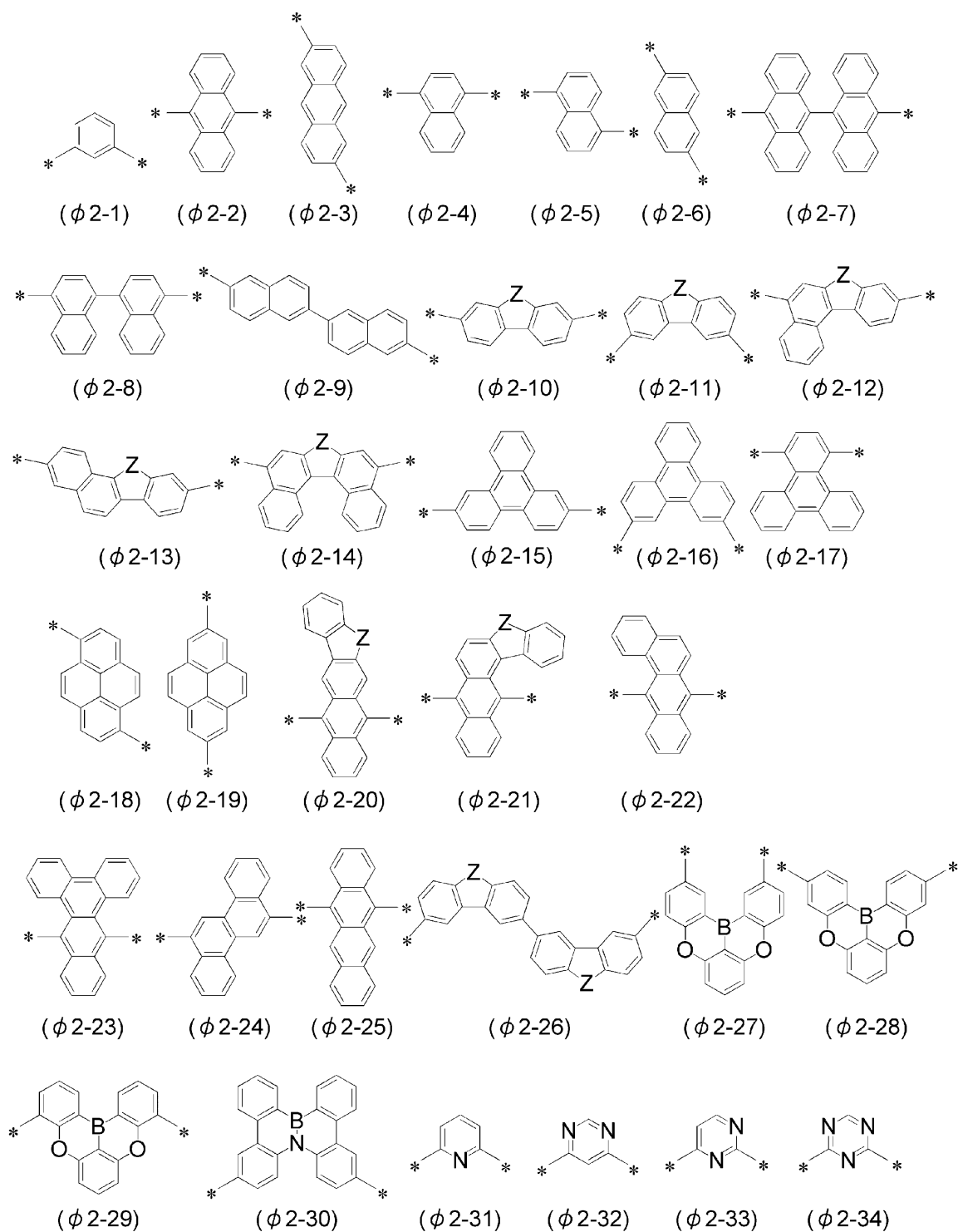
20

30

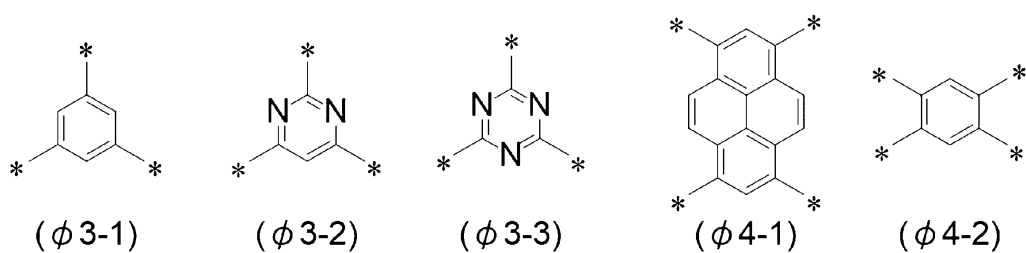
40

50

【化 1 7 2】



【化 1 7 3】



10

20

30

40

50

【0478】

式中のZは、 $>CR_2$ 、 $>N-Ar$ 、 $>N-L$ 、 $-O-$ または $-S-$ であり、 $>CR_2$ におけるRは、それぞれ独立して、炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールであり、Rは互いに結合して環を形成していてもよく、 $>N-Ar$ におけるArは炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールであり、 $>N-L$ におけるLは式(E T M-16)、式(E T M-16-1)または式(E T M-16-2)におけるLである。式中の*は、結合位置を表す。

【0479】

好ましくは、Lは、ベンゼン、ナフタレン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、イソキノリン、ナフチリジン、フタラジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、およびプテリジンからなる群から選択される環の2価の基であり、Lの少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～10のアリールまたは炭素数2～10のヘテロアリールで置換されていてもよい。

10

【0480】

好ましくは、YまたはZとしての $>N-Ar$ におけるArは、フェニル、ナフチル、ピリジニル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニル、トリアジニル、キノリニル、イソキノリニル、ナフチリジニル、フタラジニル、キノキサリニル、キナゾリニル、シンノリニル、およびプテリジニルからなる群から選択され、Yとしての $>N-Ar$ におけるArの少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキルまたは炭素数6～10のアリールで置換されていてもよい。

20

【0481】

好ましくは、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ独立して水素、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルであり、ただし、 R^1 と R^2 は同一であり、 R^3 と R^4 は同一であり、また $R^1 \sim R^4$ の全てが同時に水素になることはなく、そして、mは1または2であり、mが2であるとき、アゾリン環とLとで形成される基は同一である。

【0482】

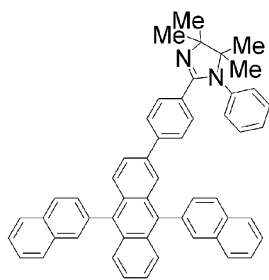
アゾリン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。なお、構造式中の「Me」はメチルを表す。

30

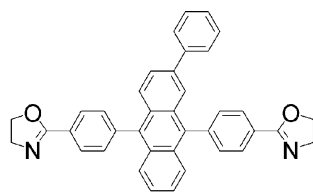
40

50

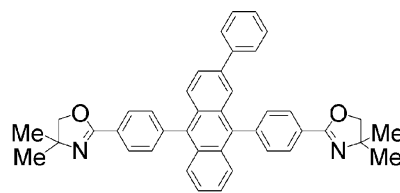
【化 1 7 4】



ETM-16-(1)

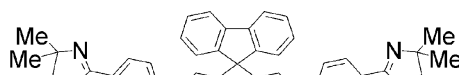


ETM-16-(2)

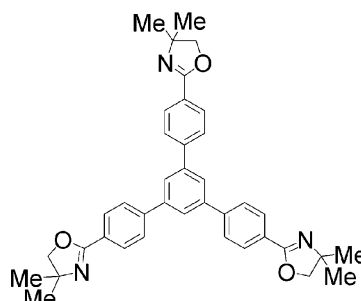


ETM-16-(3)

10

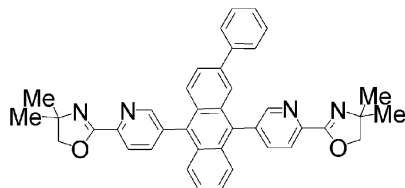


ETM-16-(4)

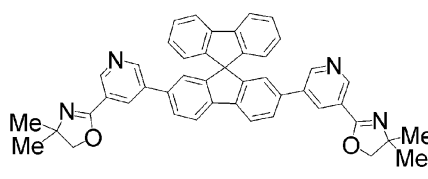


ETM-16-(5)

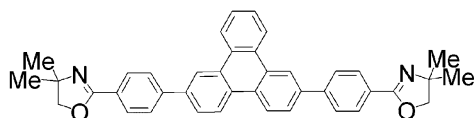
20



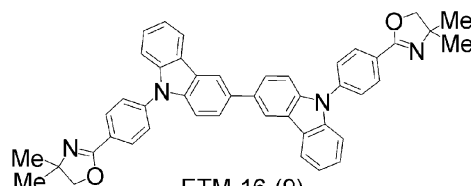
ETM-16-(6)



ETM-16-(7)

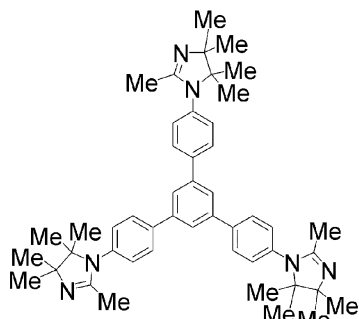


ETM-16-(8)



ETM-16-(9)

30



ETM-16-(10)

40

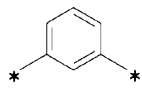
【 0 4 8 3】

より好ましくは、 ϕ は、下記式（ $\phi 2-1$ ）、式（ $\phi 2-31$ ）、式（ $\phi 2-32$ ）、式（ $\phi 2-33$ ）および式（ $\phi 2-34$ ）で表される2価の基からなる群から選択され、 ϕ の少なくとも1つの水素は炭素数6～18のアリールで置換されていてもよい。

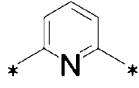
【 0 4 8 4】

50

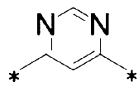
【化 1 7 5】



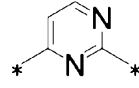
(φ 2-1)



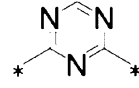
(φ 2-31)



(φ 2-32)



(φ 2-33)



(φ 2-34)

(*は結合位置を示す。)

【 0 4 8 5】

Lは、ベンゼン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、およびトリアジンからなる群から選択される環の2価の基であり、Lの少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～10のアリールまたは炭素数2～14のヘテロアリールで置換されていてもよく、

Yとしての>N-ArにおけるArは、フェニル、ピリジニル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニル、およびトリアジニルからなる群から選択され、当該Arの少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキルまたは炭素数6～10のアリールで置換されていてもよく、

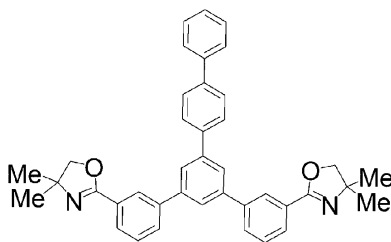
R¹～R⁴はそれぞれ独立して水素、炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルであり、ただし、R¹とR²は同一であり、R³とR⁴は同一であり、またR¹～R⁴の全てが同時に水素になることはなく、そして、

mは2であり、アゾリン環とLとで形成される基は同一である。

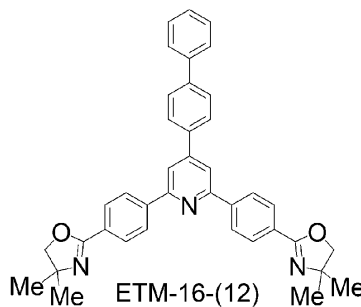
【 0 4 8 6】

アゾリン誘導体の他の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。なお、構造式中の「Me」はメチルを表す。

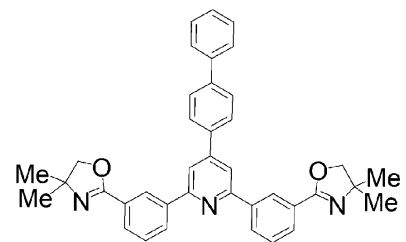
【化 1 7 6】



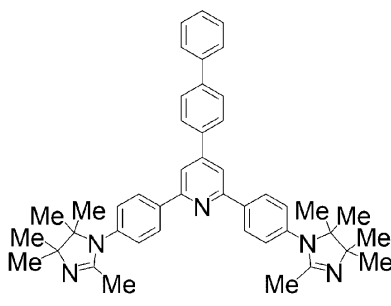
ETM-16-(11)



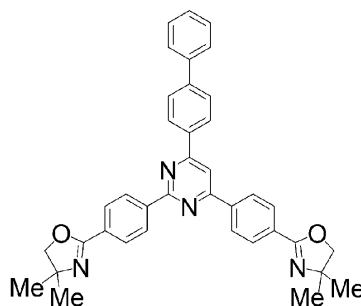
ETM-16-(12)



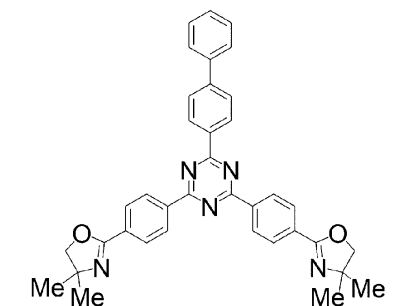
ETM-16-(13)



ETM-16-(14)



ETM-16-(15)



ETM-16-(16)

【 0 4 8 7】

このアゾリン誘導体を規定する上記各式中の、アルキル、シクロアルキル、アリールまたはヘテロアリールの詳細については、式(1A)および式(1B)における説明を引用できる。

【 0 4 8 8】

このアゾリン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0489】

<還元性物質>

電子輸送層または電子注入層には、さらに、電子輸送層または電子注入層を形成する材料を還元できる物質が含まれていてもよい。この還元性物質は、一定の還元性を有する物質であれば、様々な物質が用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体および希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも1つを好適に使用することができる。

10

【0490】

好ましい還元性物質としては、Na（仕事関数2.36 eV）、K（同2.28 eV）、Rb（同2.16 eV）またはCs（同1.95 eV）などのアルカリ金属や、Ca（同2.9 eV）、Sr（同2.0~2.5 eV）またはBa（同2.52 eV）などのアルカリ土類金属があげられ、仕事関数が2.9 eV以下の物質が特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性物質は、K、RbまたはCsのアルカリ金属であり、さらに好ましくはRbまたはCsであり、最も好ましいのはCsである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子輸送層または電子注入層を形成する材料への比較的少量の添加により、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。また、仕事関数が2.9 eV以下の還元性物質として、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRb、またはCsとNaとKとの組み合わせが好ましい。Csを含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子輸送層または電子注入層を形成する材料への添加により、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。

20

【0491】

上述した電子注入層用材料および電子輸送層用材料は、これらに反応性置換基が置換した反応性化合物をモノマーとして高分子化させた高分子化合物、もしくはその高分子架橋体、または、主鎖型高分子と前記反応性化合物とを反応させたペンダント型高分子化合物、もしくはそのペンダント型高分子架橋体としても、電子層用材料に用いることができる。この場合の反応性置換基としては、式(1A)で表される部分構造および少なくとも1つの式(1B)で表される部分構造からなる多環芳香族化合物での説明を引用できる。

30

このような高分子化合物および高分子架橋体の用途の詳細については後述する。

【0492】

3-1-7. 有機電界発光素子における陰極

陰極108は、電子注入層107および電子輸送層106を介して、発光層105に電子を注入する役割を果たす。

【0493】

陰極108を形成する材料としては、電子を有機層に効率よく注入できる物質であれば特に限定されないが、陽極102を形成する材料と同様の材料を用いることができる。なかでも、スズ、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、クロム、金、白金、鉄、亜鉛、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウムおよびマグネシウムなどの金属またはそれらの合金（マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、フッ化リチウム／アルミニウムなどのアルミニウム-リチウム合金など）などが好ましい。電子注入効率をあげて素子特性を向上させるためには、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウム、カルシウム、マグネシウムまたはこれら低仕事関数金属を含む合金が有効である。しかしながら、これらの低仕事関数金属は一般に大気中で不安定であることが多い。この点を改善するために、例えば、有機層に微量のリチウム、セシウムやマグネシウムをドーピングして、安定性の高い電極を使用する方法が知られている。その他のドーパントとしては、フッ化リチウム、フッ化セシウム、酸化リチウムおよび酸化セシウムのような無機塩も使用することができる。ただし、これらに限定されない。

40

50

【0494】

さらに、電極保護のために白金、金、銀、銅、鉄、スズ、アルミニウムおよびインジウムなどの金属、またはこれら金属を用いた合金、そしてシリカ、チタニアおよび窒化ケイ素などの無機物、ポリビニルアルコール、塩化ビニル、炭化水素系高分子化合物などを積層することが、好ましい例としてあげられる。これらの電極の作製法も、抵抗加熱、電子ビーム蒸着、スパッタリング、イオンプレーティングおよびコーティングなど、導通を取ることができれば特に制限されない。

【0495】

3-1-8. 各層で用いてもよい結着剤

以上の正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層および電子注入層に用いられる材料は単独で各層を形成することができるが、高分子結着剤としてポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル樹脂、ABS樹脂、ポリウレタン樹脂などの溶剤可溶性樹脂や、フェノール樹脂、キシレン樹脂、石油樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂などの硬化性樹脂などに分散させて用いることも可能である。

【0496】

3-1-9. 有機電界発光素子の作製方法

有機EL素子を構成する各層は、各層を構成すべき材料を蒸着法、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング、分子積層法、印刷法、スピンコート法またはキャスト法、コーティング法などの方法で薄膜とすることにより、形成することができる。このようにして形成された各層の膜厚については特に限定はなく、材料の性質に応じて適宜設定することができるが、通常2nm～5000nmの範囲である。膜厚は通常、水晶発振式膜厚測定装置などで測定できる。蒸着法を用いて薄膜化する場合、その蒸着条件は、材料の種類、膜の目的とする結晶構造および会合構造などにより異なる。蒸着条件は一般的に、ボート加熱温度+50～+400℃、真空度 10^{-6} ～ 10^{-3} Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度-150～+300℃、膜厚2nm～5μmの範囲で適宜設定することが好ましい。

【0497】

このようにして得られた有機EL素子に直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として印加すればよく、電圧2～40V程度を印加すると、透明または半透明の電極側（陽極または陰極、および両方）より発光が観測できる。また、この有機EL素子は、パルス電流や交流電流を印加した場合にも発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0498】

次に、有機EL素子を作製する方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／ホスト材料とドーパント材料からなる発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

【0499】

<蒸着法>

適当な基板上に、陽極材料の薄膜を蒸着法などにより形成させて陽極を作製した後、この陽極上に正孔注入層および正孔輸送層の薄膜を形成させる。この上にホスト材料とドーパント材料を共蒸着し薄膜を形成させて発光層とし、この発光層の上に電子輸送層、電子注入層を形成させ、さらに陰極用物質からなる薄膜を蒸着法などにより形成させて陰極とすることにより、目的の有機EL素子が得られる。なお、上述の有機EL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

【0500】

<湿式成膜法>

湿式成膜法は、有機EL素子の各有機層を形成し得る低分子化合物を液状の有機層形成用組成物として準備し、これを用いることによって実施される。この低分子化合物を溶解する適当な有機溶媒がない場合には、当該低分子化合物に反応性置換基を置換させた反応性化合物として溶解性機能を有する他のモノマーや主鎖型高分子と共に高分子化させた高分子化合物などから有機層形成用組成物を準備してもよい。

【0501】

湿式成膜法は、一般的には、基板に有機層形成用組成物を塗布する塗布工程および塗布された有機層形成用組成物から溶媒を取り除く乾燥工程を経ることで塗膜を形成する。上記高分子化合物が架橋性置換基を有する場合（これを架橋性高分子化合物ともいう）には、この乾燥工程によりさらに架橋して高分子架橋体が形成される。塗布工程の違いにより、スピンコーターを用いる方法をスピンコート法、スリットコーターを用いる方法をスリットコート法、版を用いる方法をグラビア、オフセット、リバースオフセット、フレキソ印刷法、インクジェットプリンタを用いる方法をインクジェット法、霧状に吹付ける方法をスプレー法と呼ぶ。

【0502】

一例として、図2を参考にして、バンクを有する基板にインクジェット法を用いて塗膜を形成する方法を説明する。まず、バンク(200)は基板(110)上の電極(120)の上に設けられている。この場合、インクジェットヘッド(300)より、バンク(200)間にインクの液滴(310)を滴下し、乾燥させることで塗膜(130)を作製することができる。これを繰り返し、次の塗膜(140)、さらに発光層(150)まで作製し、真空蒸着法を用い電子輸送層、電子注入層および電極を成膜すれば、バンク材で発光部位が区切られた有機EL素子を作製することができる。

【0503】

乾燥工程には、風乾、加熱、減圧乾燥などの方法がある。乾燥工程は1回のみ行なってもよく、異なる方法や条件を用いて複数回行なってもよい。また、例えば、減圧下での焼成のように、異なる方法を併用してもよい。

【0504】

湿式成膜法とは溶液を用いた成膜法であり、例えば、一部の印刷法（インクジェット法）、スピンコート法またはキャスト法、コーティング法などである。湿式成膜法は真空蒸着法と異なり高価な真空蒸着装置を用いる必要が無く、大気圧下で成膜することができる。加えて、湿式成膜法は大面積化や連続生産が可能であり、製造コストの低減につながる。

【0505】

一方で、真空蒸着法と比較した場合には、湿式成膜法は積層化が難しい場合がある。湿式成膜法を用いて積層膜を作製する場合、上層の組成物による下層の溶解を防ぐ必要があり、溶解性を制御した組成物、下層の架橋および直交溶媒（Orthogonal solvent、互いに溶解し合わない溶媒）などが駆使される。しかしながら、それらの技術を用いても、全ての膜の塗布に湿式成膜法を用いるのは難しい場合がある。

【0506】

そこで、一般的には、幾つかの層だけを湿式成膜法を用い、残りを真空蒸着法で有機EL素子を作製するという方法が採用される。

【0507】

例えば、湿式成膜法を一部適用し有機EL素子を作製する手順を以下に示す。

(手順1) 陽極の真空蒸着法による成膜

(手順2) 正孔注入層用材料を含む正孔注入層形成用組成物の湿式成膜法による成膜

(手順3) 正孔輸送層用材料を含む正孔輸送層形成用組成物の湿式成膜法による成膜

(手順4) ホスト材料とドーパント材料を含む発光層形成用組成物の湿式成膜法による成膜

(手順5) 電子輸送層の真空蒸着法による成膜

(手順6) 電子注入層の真空蒸着法による成膜

(手順7) 陰極の真空蒸着法による成膜

10

20

30

40

50

この手順を経ることで、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／ホスト材料とドーパント材料からなる発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機ＥＬ素子が得られる。

もちろん、下層の発光層の溶解を防ぐ手段があったり、また上記手順とは逆に陰極側から成膜する手段などを用いることで、電子輸送層用材料や電子注入層用材料を含む層形成用組成物として準備して、それらを湿式成膜法により成膜できる。

【０５０８】

<その他の成膜法>

有機層形成用組成物の成膜化には、レーザー加熱描画法（ＬＩＴＥ）を用いることができる。ＬＩＴＥとは基材に付着させた化合物をレーザーで加熱蒸着する方法で、基材へ塗布される材料に有機層形成用組成物を用いることができる。

10

【０５０９】

<任意の工程>

成膜の各工程の前後に、適切な処理工程、洗浄工程および乾燥工程を適宜入れてもよい。処理工程としては、例えば、露光処理、プラズマ表面処理、超音波処理、オゾン処理、適切な溶媒を用いた洗浄処理および加熱処理等があげられる。さらには、バンクを作製する一連の工程もあげられる。

【０５１０】

バンクの作製にはフォトリソグラフィ技術を用いることができる。フォトリソグラフィの利用可能なバンク材としては、ポジ型レジスト材料およびネガ型レジスト材料を用いることができる。また、インクジェット法、グラビアオフセット印刷、リバースオフセット印刷、スクリーン印刷などのパターン可能な印刷法も用いることができる。その際には永久レジスト材料を用いることもできる。

20

【０５１１】

バンクに用いられる材料としては、多糖類およびその誘導体、ヒドロキシルを有するエチレン性モノマーの単独重合体および共重合体、生体高分子化合物、ポリアクリロイル化合物、ポリエステル、ポリスチレン、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリスルフィド、ポリスルホン、ポリフェニレン、ポリフェニルエーテル、ポリウレタン、エポキシ（メタ）アクリレート、メラミン（メタ）アクリレート、ポリオレフィン、環状ポリオレフィン、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合ポリマー（ＡＢＳ）、シリコーン樹脂、ポリ塩化ビニル、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、ポリアセテート、ポリノルボルネン、合成ゴム、ポリフルオロビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリヘキサフルオロプロピレン等のフッ化ポリマー、フルオロオレフィン－ヒドロカーボンオレフィンの共重合ポリマー、フルオロカーボンポリマーがあげられるが、それだけに限定されない。

30

【０５１２】

<湿式成膜法に使用される有機層形成用組成物>

有機層形成用組成物は、有機ＥＬ素子の各有機層を形成し得る低分子化合物、または当該低分子化合物を高分子化させた高分子化合物を有機溶媒に溶解させて得られる。例えば、発光層形成用組成物は、第１成分として少なくとも１種のドーパント材料である多環芳香族化合物（またはその高分子化合物）と、第２成分として少なくとも１種のホスト材料と、第３成分として少なくとも１種の有機溶媒とを含有する。第１成分は、該組成物から得られる発光層のドーパント成分として機能し、第２成分は発光層のホスト成分として機能する。第３成分は、組成物中の第１成分と第２成分を溶解する溶媒として機能し、塗布時には第３成分自身の制御された蒸発速度により平滑で均一な表面形状を与える。

40

【０５１３】

<有機溶媒>

有機層形成用組成物は少なくとも一種の有機溶媒を含む。成膜時に有機溶媒の蒸発速度を制御することで、成膜性および塗膜の欠陥の有無、表面粗さ、平滑性を制御および改善することができる。また、インクジェット法を用いた成膜時は、インクジェットヘッドのピンホールでのメニスカス安定性を制御し、吐出性を制御・改善することができる。加え

50

て、膜の乾燥速度および誘導体分子の配向を制御することで、該有機層形成用組成物より得られる有機層を有する有機EL素子の電気特性、発光特性、効率、および寿命を改善することができる。

【0514】

(1) 有機溶媒の物性

少なくとも1種の有機溶媒の沸点は、 $130^{\circ}\text{C} \sim 300^{\circ}\text{C}$ であり、 $140^{\circ}\text{C} \sim 270^{\circ}\text{C}$ がより好ましく、 $150^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ がさらに好ましい。沸点が 130°C より高い場合、インクジェットの吐出性の観点から好ましい。また、沸点が 300°C より低い場合、塗膜の欠陥、表面粗さ、残留溶媒および平滑性の観点から好ましい。有機溶媒は、良好なインクジェットの吐出性、成膜性、平滑性および低い残留溶媒の観点から、2種以上の有機溶媒を含む構成がより好ましい。一方で、場合によっては、運搬性を考慮し、有機層形成用組成物中から溶媒を除去することで固形状態とした組成物であってもよい。

【0515】

さらに、有機溶媒が溶質の少なくとも1種に対する良溶媒(GS)と貧溶媒(PS)とを含み、良溶媒(GS)の沸点(BP_{GS})が貧溶媒(PS)の沸点(BP_{PS})よりも低い、構成が特に好ましい。

高沸点の貧溶媒を加えることで成膜時に低沸点の良溶媒が先に揮発し、組成物中の含有物の濃度と貧溶媒の濃度が増加し速やかな成膜が促される。これにより、欠陥が少なく、表面粗さが小さい、平滑性の高い塗膜が得られる。

【0516】

溶解度の差($\text{S}_{\text{GS}} - \text{S}_{\text{PS}}$)は、1%以上であることが好ましく、3%以上であることがより好ましく、5%以上であることがさらに好ましい。沸点の差($\text{BP}_{\text{PS}} - \text{BP}_{\text{GS}}$)は、 10°C 以上であることが好ましく、 30°C 以上であることがより好ましく、 50°C 以上であることがさらに好ましい。

【0517】

有機溶媒は、成膜後に、真空、減圧、加熱などの乾燥工程により塗膜より取り除かれる。加熱を行う場合、塗布成膜性改善の観点からは、溶質の少なくとも1種のガラス転移温度(T_g) + 30°C 以下で行うことが好ましい。また、残留溶媒の削減の観点からは、溶質の少なくとも1種のガラス転移点(T_g) - 30°C 以上で加熱することが好ましい。加熱温度が有機溶媒の沸点より低くても膜が薄いために、有機溶媒は十分に取り除かれる。また、異なる温度で複数回乾燥を行ってもよく、複数の乾燥方法を併用してもよい。

【0518】

(2) 有機溶媒の具体例

有機層形成用組成物に用いられる有機溶媒としては、アルキルベンゼン系溶媒、フェニルエーテル系溶媒、アルキルエーテル系溶媒、環状ケトン系溶媒、脂肪族ケトン系溶媒、単環性ケトン系溶媒、ジエステル骨格を有する溶媒および含フッ素系溶媒などがあげられ、具体例として、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、ノナノール、デカノール、ウンデカノール、ドデカノール、テトラデカノール、ヘキサ-2-オール、ヘプタ-2-オール、オクタ-2-オール、デカン-2-オール、ドデカン-2-オール、シクロヘキサノール、 α -テルピネオール、 β -テルピネオール、 γ -テルピネオール、 δ -テルピネオール、テルピネオール(混合物)、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジプロピレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールエチルメチルエーテル、ジエチレングリコールイソプロピルメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールブチルメチルエーテル、トリプロピレングリコールジメチルエーテル、トリエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノフェニルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールジブチルエーテル、トリエチレングリコールブチルメチルエーテル、ポリエチレングリコールジメチ

ルエーテル、テトラエチレングリコールジメチルエーテル、p-キシレン、m-キシレン、o-キシレン、2,6-ルチジン、2-フルオロ-m-キシレン、3-フルオロ-o-キシレン、2-クロロベンゾ三フッ化物、クメン、トルエン、2-クロロ-6-フルオロトルエン、2-フルオロアニソール、アニソール、2,3-ジメチルピラジン、プロモベンゼン、4-フルオロアニソール、3-フルオロアニソール、3-トリフルオロメチルアニソール、メシチレン、1,2,4-トリメチルベンゼン、t-ブチルベンゼン、2-メチルアニソール、フェネトール、ベンゾジオキソール、4-メチルアニソール、s-ブチルベンゼン、3-メチルアニソール、4-フルオロ-3-メチルアニソール、シメン、1,2,3-トリメチルベンゼン、1,2-ジクロロベンゼン、2-フルオロベンゾニトリル、4-フルオロベラトロール、2,6-ジメチルアニソール、n-ブチルベンゼン、3-フルオロベンゾニトリル、デカリン（デカヒドロナフタレン）、ネオペンチルベンゼン、2,5-ジメチルアニソール、2,4-ジメチルアニソール、ベンゾニトリル、3,5-ジメチルアニソール、ジフェニルエーテル、1-フルオロ-3,5-ジメトキシベンゼン、安息香酸メチル、イソペンチルベンゼン、3,4-ジメチルアニソール、o-トルニトリル、n-アミルベンゼン、ベラトロール、1,2,3,4-テトラヒドロナフタレン、安息香酸エチル、n-ヘキシルベンゼン、安息香酸プロピル、シクロヘキシルベンゼン、1-メチルナフタレン、安息香酸ブチル、2-メチルビフェニル、3-フェノキシトルエン、2,2'-ビトリル、ドデシルベンゼン、ジペンチルベンゼン、テトラメチルベンゼン、トリメトキシベンゼン、トリメトキシトルエン、2,3-ジヒドロベンゾフラン、1-メチル-4-(プロポキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ブチルオキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ペンチルオキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ヘキシルオキシメチル)ベンゼン、1-メチル-4-(ヘプチルオキシメチル)ベンゼン、ベンジルブチルエーテル、ベンジルペンチルエーテル、ベンジルヘキシルエーテル、ベンジルヘプチルエーテル、ベンジルオクチルエーテルなどがあげられるが、それだけに限定されない。また、溶媒は単一で用いてもよく、混合してもよい。

【0519】

<任意成分>

有機層形成用組成物は、その性質を損なわない範囲で、任意成分を含んでもよい。任意成分としては、バインダーおよび界面活性剤等があげられる。

【0520】

(1) バインダー

有機層形成用組成物は、バインダーを含有していてもよい。バインダーは、成膜時には膜を形成するとともに、得られた膜を基板と接合する。また、該有機層形成用組成物中で他の成分を溶解および分散および結着させる役割を果たす。

【0521】

有機層形成用組成物に用いられるバインダーとしては、例えば、アクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-ビニルアルコール共重合体、アクリロニトリル-エチレン-スチレン共重合体（AES）樹脂、アイオノマー、塩素化ポリエーテル、ジアリルフタレート樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、テフロン、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体（ABS）樹脂、アクリロニトリル-スチレン共重合体（AS）樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、アルキド樹脂、ポリウレタン、および、上記樹脂およびポリマーの共重合体、があげられるが、それだけに限定されない。

【0522】

有機層形成用組成物に用いられるバインダーは、1種のみであってもよく複数種を混合して用いてもよい。

【0523】

(2) 界面活性剤

有機層形成用組成物は、例えば、有機層形成用組成物の膜面均一性、膜表面の親溶媒性

10

20

30

40

50

および撥液性の制御のために界面活性剤を含有してもよい。界面活性剤は、親水性基の構造からイオン性および非イオン性に分類され、さらに、疎水性基の構造からアルキル系およびシリコン系およびフッ素系に分類される。また、分子の構造から、分子量が比較的小さく単純な構造を有する単分子系および分子量が大きく側鎖や枝分かれを有する高分子系に分類される。また、組成から、単一系、二種以上の界面活性剤および基材を混合した混合系に分類される。該有機層形成用組成物に用いることのできる界面活性剤としては、全ての種類の界面活性剤を用いることができる。

【0524】

界面活性剤としては、例えば、ポリフロ－No. 45、ポリフロ－KL－245、ポリフロ－No. 75、ポリフロ－No. 90、ポリフロ－No. 95（商品名、共栄社化学工業（株）製）、ディスパーベイク（Disperbyk）161、ディスパーベイク162、ディスパーベイク163、ディスパーベイク164、ディスパーベイク166、ディスパーベイク170、ディスパーベイク180、ディスパーベイク181、ディスパーベイク182、BYK300、BYK306、BYK310、BYK320、BYK330、BYK342、BYK344、BYK346（商品名、ビックケミー・ジャパン（株）製）、KP－341、KP－358、KP－368、KF－96－50CS、KF－50－100CS（商品名、信越化学工業（株）製）、サーフロンSC－101、サーフロンKH－40（商品名、セイミケミカル（株）製）、フタージェント222F、フタージェント251、FTX－218（商品名、（株）ネオス製）、EFTOP EF－351、EFTOP EF－352、EFTOP EF－601、EFTOP EF－801、EFTOP EF－802（商品名、三菱マテリアル（株）製）、メガファックF－470、メガファックF－471、メガファックF－475、メガファックR－08、メガファックF－477、メガファックF－479、メガファックF－553、メガファックF－554（商品名、DIC（株）製）、フルオロアルキルベンゼンスルホン酸塩、フルオロアルキルカルボン酸塩、フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル、フルオロアルキルアンモニウムヨード、フルオロアルキルベタイン、フルオロアルキルスルホン酸塩、ジグリセリントトラキス（フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル）、フルオロアルキルトリメチルアンモニウム塩、フルオロアルキルアミノスルホン酸塩、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンラウレート、ポリオキシエチレンオレエート、ポリオキシエチレンステアレート、ポリオキシエチレンラウリルアミン、ソルビタンラウレート、ソルビタンパルミテート、ソルビタンステアレート、ソルビタンオレエート、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタンラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンパルミテート、ポリオキシエチレンソルビタンステアレート、ポリオキシエチレンソルビタンオレエート、ポリオキシエチレンナフチルエーテル、アルキルベンゼンスルホン酸塩およびアルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩をあげることができる。

【0525】

また、界面活性剤は1種で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

【0526】

<有機層形成用組成物の組成および物性>

有機層形成用組成物における各成分の含有量は、有機層形成用組成物中の各成分の良好な溶解性、保存安定性および成膜性、ならびに、該有機層形成用組成物から得られる塗膜の良質な膜質、また、インクジェット法を用いた場合の良好な吐出性、該組成物を用いて作製された有機層を有する有機EL素子の、良好な電気特性、発光特性、効率、寿命の観点を考慮して決定される。例えば、発光層形成用組成物の場合には、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.0001質量%～2.0質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.0999質量%～8.0質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、90.0質量%～99.9質量%が好ましい。

【0527】

より好ましくは、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.005質量%～1.0質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.095質量%～4.0質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、95.0質量%～99.9質量%である。さらに好ましくは、第1成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.05質量%～0.5質量%、第2成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、0.25質量%～2.5質量%、第3成分が発光層形成用組成物の全質量に対して、97.0質量%～99.7質量%である。

【0528】

有機層形成用組成物は、上述した成分を、公知の方法で攪拌、混合、加熱、冷却、溶解、分散等を適宜選択して行うことによって製造できる。また、調製後に、ろ過、脱ガス（デガスとも言う）、イオン交換処理および不活性ガス置換・封入処理等を適宜選択して行ってもよい。

【0529】

有機層形成用組成物の粘度としては、高粘度である方が、良好な成膜性とインクジェット法を用いた場合の良好な吐出性が得られる。一方、低粘度である方が薄い膜を作りやすい。このことから、該有機層形成用組成物の粘度は、25℃における粘度が0.3～3 mPa・sであることが好ましく、1～3 mPa・sであることがより好ましい。本発明において、粘度は円錐平板型回転粘度計（コーンプレートタイプ）を用いて測定した値である。

【0530】

有機層形成用組成物の表面張力としては、低い方が良好な成膜性および欠陥のない塗膜が得られる。一方、高い方が良好なインクジェット吐出性を得られる。このことから、該有機層形成用組成物の粘度は、25℃における表面張力が20～40 mN/mであることが好ましく、20～30 mN/mであることがより好ましい。本発明において、表面張力は懸滴法を用いて測定した値である。

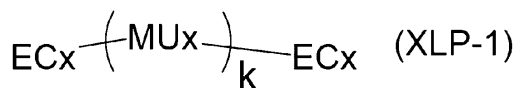
【0531】

<架橋性高分子化合物：式（XLP-1）で表される化合物>

次に、上述した高分子化合物が架橋性置換基を有する場合について説明する。このような架橋性高分子化合物は例えば下記式（XLP-1）で表される化合物である。

【0532】

【化177】



【0533】

式（XLP-1）において、

MUx、ECxおよびkは式（SPH-1）におけるMU、ECおよびkと同定義であり、ただし、式（XLP-1）で表される化合物は少なくとも1つの架橋性置換基（XLS）を有し、好ましくは架橋性置換基を有する1価または2価の芳香族基の含有量は、分子中0.1～80質量%である。

【0534】

架橋性置換基を有する1価または2価の芳香族化合物の含有量は、0.5～50質量%が好ましく、1～20質量%がより好ましい。

【0535】

架橋性置換基（XLS）としては、上述した高分子化合物をさらに架橋化できる基であれば特に限定されないが、以下の構造の置換基が好ましい。各構造式中の＊は結合位置を示す。

10

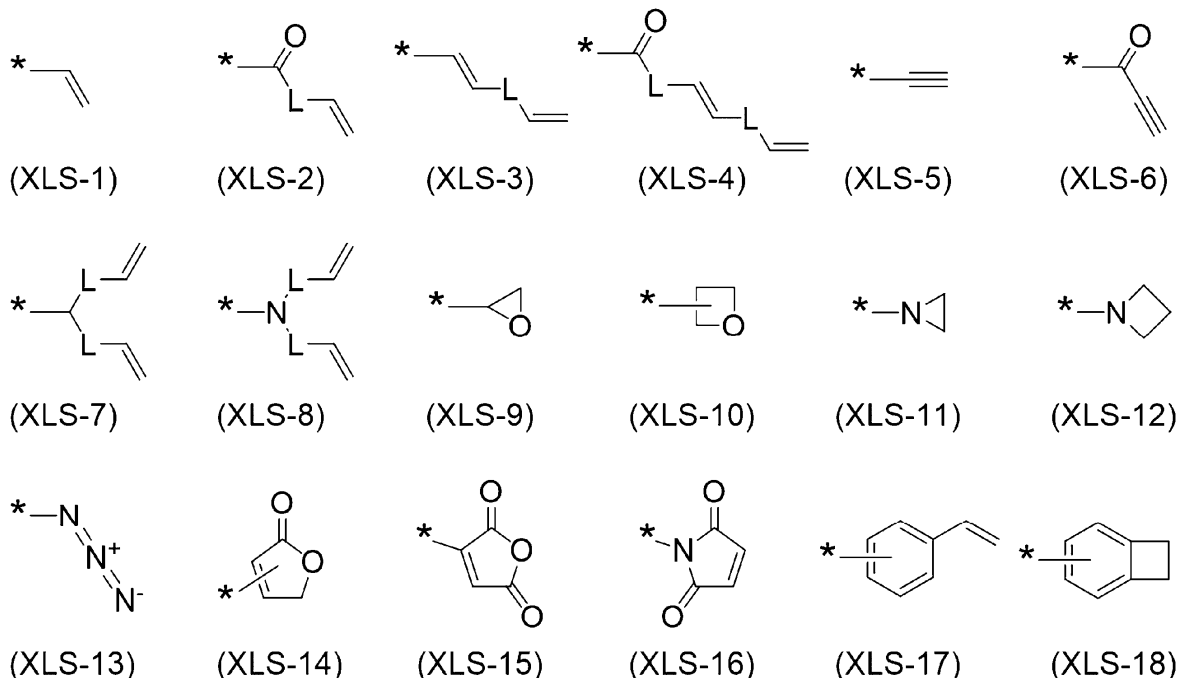
20

30

40

50

【化 1 7 8】



10

20

【 0 5 3 6】

L は、それぞれ独立して、単結合、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $>\text{C}=\text{O}$ 、 $-\text{O}-\text{C}(=\text{O})-$ 、炭素数 1～12 のアルキレン、炭素数 1～12 のオキシャルキレンおよび炭素数 1～12 のポリオキシャルキレンである。上記置換基の中でも、式 (XLS-1)、式 (XLS-2)、式 (XLS-3)、式 (XLS-9)、式 (XLS-10) または式 (XLS-17) で表される基が好ましく、式 (XLS-1)、式 (XLS-3) または式 (XLS-17) で表される基がより好ましい。

【 0 5 3 7】

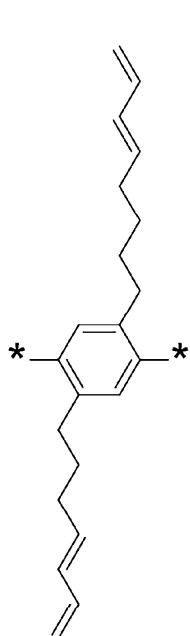
架橋性置換基を有する 2 価の芳香族化合物としては、例えば下記部分構造を有する化合物があげられる。

30

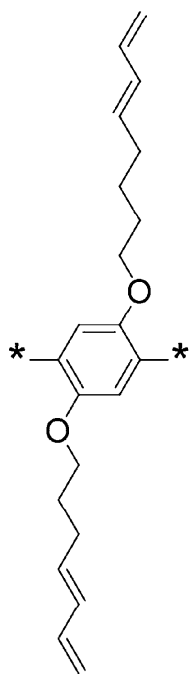
40

50

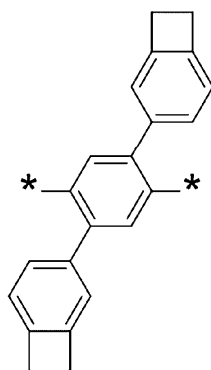
【化 1 7 9】



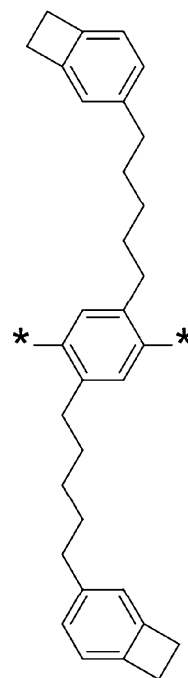
(MUx-1-1)



(MUx-1-2)



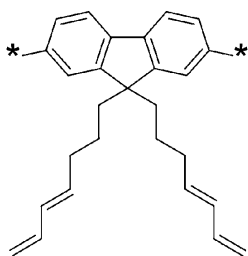
(MUx-1-3)



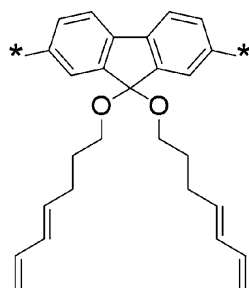
(MUx-1-4)

【 0 5 3 8】

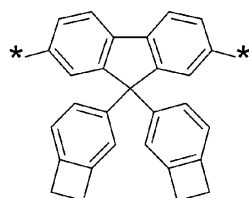
【化 1 8 0】



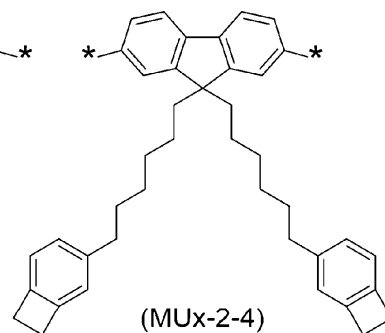
(MUx-2-1)



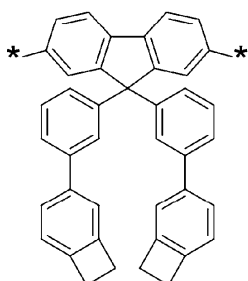
(MUx-2-2)



(MUx-2-3)



(MUx-2-4)



(MUx-2-5)

【 0 5 3 9】

10

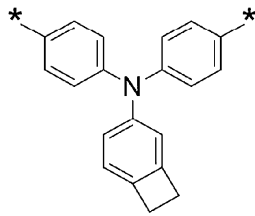
20

30

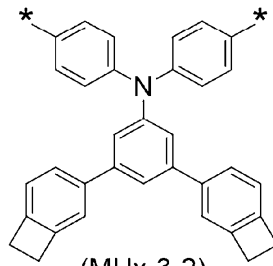
40

50

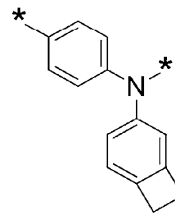
【化 1 8 1】



(MUx-3-1)



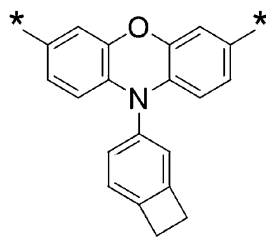
(MUx-3-2)



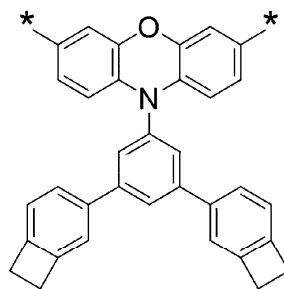
(MUx-3-3)

【 0 5 4 0】

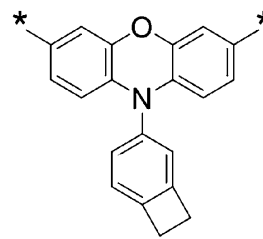
【化 1 8 2】



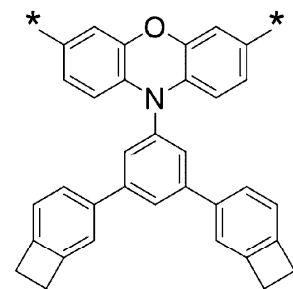
(MUx-4-1)



(MUx-4-2)



(MUx-4-3)



(MUx-4-4)

【 0 5 4 1】

< 高分子化合物および架橋性高分子化合物の製造方法 >

高分子化合物および架橋性高分子化合物の製造方法について、上述した式（SPH-1）で表される化合物および（XLP-1）で表される化合物を例にして説明する。これらの化合物は、公知の製造方法を適宜組み合わせて合成することができる。

【 0 5 4 2】

反応で用いられる溶媒としては、芳香族溶媒、飽和／不飽和炭化水素溶媒、アルコール溶媒、エーテル系溶媒などがあげられ、例えば、ジメトキシエタン、2-（2-メトキシエトキシ）エタン、2-（2-エトキシエトキシ）エタン等があげられる。

【 0 5 4 3】

また、反応は2相系で行ってもよい。2相系で反応させる場合は、必要に応じて、第4級アンモニウム塩等の相間移動触媒を加えてもよい。

【 0 5 4 4】

式（SPH-1）の化合物および（XLP-1）の化合物を製造する際、一段階で製造してもよいし、多段階を経て製造してもよい。また、原料を反応容器に全て入れてから反応を開始する一括重合法により行ってもよいし、原料を反応容器に滴下し加える滴下重合法により行ってもよいし、生成物が反応の進行に伴い沈殿する沈殿重合法により行ってもよく、これらを適宜組み合わせて合成することができる。例えば、式（SPH-1）で表される化合物を一段階で合成する際、モノマーユニット（MU）に重合性基が結合したモノマーおよびエンドキャップユニット（EC）に重合性基が結合したモノマーを反応容器に加えた状態で反応を行うことで目的物を得る。また、式（SPH-1）で表される化合物を多段階で合成する際、モノマーユニット（MU）に重合性基が結合したモノマーを目的の分子量まで重合した後、エンドキャップユニット（EC）に重合性基が結合したモノマーを加えて反応させることで目的物を得る。多段階で異なる種類のモノマーユニット（MU）に重合性基が結合したモノマーを加え反応を行えば、モノマーユニットの構造について濃度勾配を有するポリマーを作ることができる。また、前駆体ポリマーを調製した後、あと反応により目的物ポリマーを得ることができる。

【 0 5 4 5】

また、モノマーの重合性基を選べばポリマーの一次構造を制御することができる。例えば、合成スキームの1～3に示すように、ランダムな一次構造を有するポリマー（合成スキームの1）、規則的な一次構造を有するポリマー（合成スキームの2および3）などを合成することが可能であり、目的物に応じて適宜組み合わせ用いることができる。さらには、重合性基を3つ以上有するモノマーを用いれば、ハイパーブランチポリマーやデンドリマーを合成することができる。

【0546】

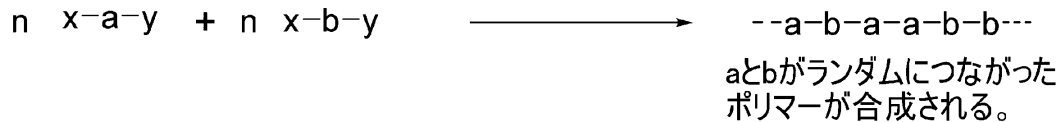
【化183】

a, b=MUまたはMUx

重合性基=x, y(それぞれxとyが結合する)

10

1) 2種のモノマー(x-a-y)および(x-b-y)を用いて合成されるポリマー



2) 2種のモノマー(x-a-x)および(y-b-y)を用いて合成されるポリマー



20

3) 2種のモノマー(x-a-y)および(y-b-y)を用いて合成されるポリマー



【0547】

30

本発明で用いることのできるモノマーとしては、特開2010-189630号公報、国際公開第2012/086671号、国際公開第2013/191088号、国際公開第2002/045184号、国際公開第2011/049241号、国際公開第2013/146806号、国際公開第2005/049546号、国際公開第2015/145871号、特開2010-215886号、特開2008-106241号公報、特開2010-215886号公報、国際公開第2016/031639号、特開2011-174062号公報、国際公開第2016/031639号、国際公開第2016/031639号、国際公開第2002/045184号に記載の方法に準じて合成することができる。

【0548】

40

また、具体的なポリマー合成手順については、特開2012-036388号公報、国際公開第2015/008851号、特開2012-36381号公報、特開2012-144722号公報、国際公開第2015/194448号、国際公開第2013/146806号、国際公開第2015/145871号、国際公開第2016/031639号、国際公開第2016/125560号、国際公開第2016/031639号、国際公開第2016/031639号、国際公開第2016/125560号、国際公開第2015/145871号、国際公開第2011/049241号、特開2012-144722号公報に記載の方法に準じて合成することができる。

【0549】

3-1-10. 有機電界発光素子の応用例

50

また、本発明は、有機EL素子を備えた表示装置または有機EL素子を備えた照明装置などにも応用することができる。

有機EL素子を備えた表示装置または照明装置は、本実施形態にかかる有機EL素子と公知の駆動装置とを接続するなど公知の方法によって製造することができ、直流駆動、パルス駆動、交流駆動など公知の駆動方法を適宜用いて駆動することができる。

【0550】

表示装置としては、例えば、カラーフラットパネルディスプレイなどのパネルディスプレイ、フレキシブルカラー有機電界発光（EL）ディスプレイなどのフレキシブルディスプレイなどがあげられる（例えば、特開平10-335066号公報、特開2003-321546号公報、特開2004-281086号公報など参照）。また、ディスプレイの表示方式としては、例えば、マトリクスおよび／またはセグメント方式などがあげられる。なお、マトリクス表示とセグメント表示は同じパネルの中に共存していてもよい。

【0551】

マトリクスでは、表示のための画素が格子状やモザイク状など二次元的に配置されており、画素の集合で文字や画像を表示する。画素の形状やサイズは用途によって決まる。例えば、パソコン、モニター、テレビの画像および文字表示には、通常一辺が300μm以下の四角形の画素が用いられ、また、表示パネルのような大型ディスプレイの場合は、一辺がmmオーダーの画素を用いることになる。モノクロ表示の場合は、同じ色の画素を配列すればよいが、カラー表示の場合には、赤、緑、青の画素を並べて表示させる。この場合、典型的にはデルタタイプとストライプタイプがある。そして、このマトリクスの駆動方法としては、線順次駆動方法やアクティブマトリクスのどちらでもよい。線順次駆動の方が構造が簡単であるという利点があるが、動作特性を考慮した場合、アクティブマトリクスの方が優れる場合があるので、これも用途によって使い分けることが必要である。

【0552】

セグメント方式（タイプ）では、予め決められた情報を表示するようにパターンを形成し、決められた領域を発光させることになる。例えば、デジタル時計や温度計における時刻や温度表示、オーディオ機器や電磁調理器などの動作状態表示および自動車のパネル表示などがあげられる。

【0553】

照明装置としては、例えば、室内照明などの照明装置、液晶表示装置のバックライトなどがあげられる（例えば、特開2003-257621号公報、特開2003-277741号公報、特開2004-119211号公報など参照）。バックライトは、主に自発光しない表示装置の視認性を向上させる目的に使用され、液晶表示装置、時計、オーディオ装置、自動車パネル、表示板および標識などに使用される。特に、液晶表示装置、中でも薄型化が課題となっているパソコン用途のバックライトとしては、従来方式が蛍光灯や導光板からなっているため薄型化が困難であることを考えると、本実施形態に係る発光素子を用いたバックライトは薄型で軽量が特徴になる。

【0554】

3-2. その他の有機デバイス

本発明に係る多環芳香族化合物は、上述した有機電界発光素子の他に、有機電界効果トランジスタまたは有機薄膜太陽電池などの作製に用いることができる。

【0555】

有機電界効果トランジスタは、電圧入力によって発生させた電界により電流を制御するトランジスタのことであり、ソース電極とドレイン電極の他にゲート電極が設けられている。ゲート電極に電圧を印加すると電界が生じ、ソース電極とドレイン電極間を流れる電子（またはホール）の流れを任意にせき止めて電流を制御することができるトランジスタである。電界効果トランジスタは、単なるトランジスタ（バイポーラトランジスタ）に比べて小型化が容易であり、集積回路などを構成する素子としてよく用いられている。

【0556】

有機電界効果トランジスタの構造は、通常、本発明に係る多環芳香族化合物を用いて形

成される有機半導体活性層に接してソース電極およびドレイン電極が設けられており、さらに有機半導体活性層に接した絶縁層（誘電体層）を挟んでゲート電極が設けられていればよい。その素子構造としては、例えば以下の構造があげられる。

- (1) 基板／ゲート電極／絶縁体層／ソース電極・ドレイン電極／有機半導体活性層
- (2) 基板／ゲート電極／絶縁体層／有機半導体活性層／ソース電極・ドレイン電極
- (3) 基板／有機半導体活性層／ソース電極・ドレイン電極／絶縁体層／ゲート電極
- (4) 基板／ソース電極・ドレイン電極／有機半導体活性層／絶縁体層／ゲート電極

このように構成された有機電界効果トランジスタは、アクティブマトリックス駆動方式の液晶ディスプレイや有機エレクトロルミネッセンスディスプレイの画素駆動スイッチング素子などとして適用できる。

【0557】

有機薄膜太陽電池は、ガラスなどの透明基板上にITOなどの陽極、ホール輸送層、光電変換層、電子輸送層、陰極が積層された構造を有する。光電変換層は陽極側にp型半導体層を有し、陰極側にn型半導体層を有している。本発明に係る多環芳香族化合物は、その物性に応じて、ホール輸送層、p型半導体層、n型半導体層、電子輸送層の材料として用いることが可能である。本発明に係る多環芳香族化合物は、有機薄膜太陽電池においてホール輸送材料や電子輸送材料として機能しうる。有機薄膜太陽電池は、上記の他にホールブロック層、電子ブロック層、電子注入層、ホール注入層、平滑化層などを適宜備えていてもよい。有機薄膜太陽電池には、有機薄膜太陽電池に用いられる既知の材料を適宜選択して組み合わせて用いることができる。

【実施例】

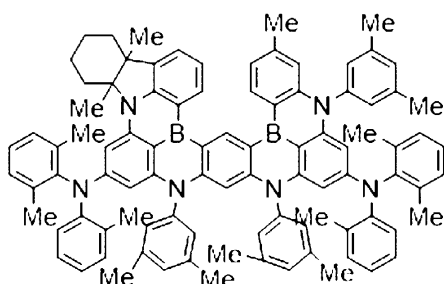
【0558】

以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明していくが、本発明はこれらに限定されるものではない。まず、多環芳香族化合物の合成例について、以下に説明する。

【0559】

合成例(1)：化合物(1-161)

【化184】



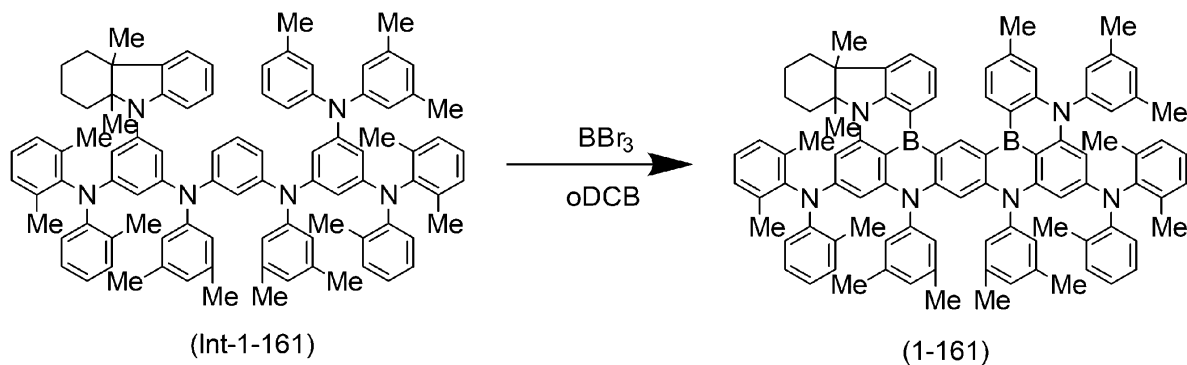
(1-161)

【0560】

反応容器に、化合物(Int-1-161) 3.24 g (2.5 mmol) を入れ窒素置換後、1,2-ジクロロベンゼン 20 mL を加えた。三臭化ホウ素 (BBr₃) 3.13 g を滴下ロートより滴下し、145℃で4.5時間還流した。酢酸ナトリウム水溶液で反応を停止させ、ジクロロメタンにて抽出した。溶媒を留去し得られた残渣をシリカゲルショートカラムクロマトグラフィー（溶離液：トルエン）で精製した。ヘプタンを用いて加熱還流洗浄を行うことで、化合物(1-161)を得た(1.02 g、収率31%)。

LC-MSによりm/z = 1311.73に目的物である化合物(1-161)を確認した。

【化 1 8 5】

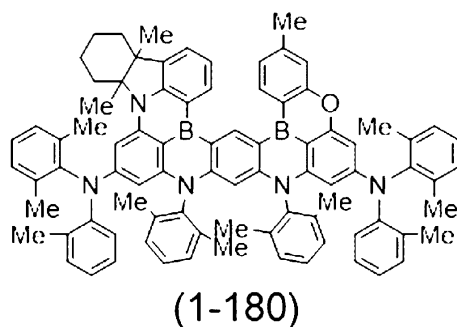


10

【 0 5 6 1】

合成例 (2) : 化合物 (1 - 1 8 0)

【化 1 8 6】



20

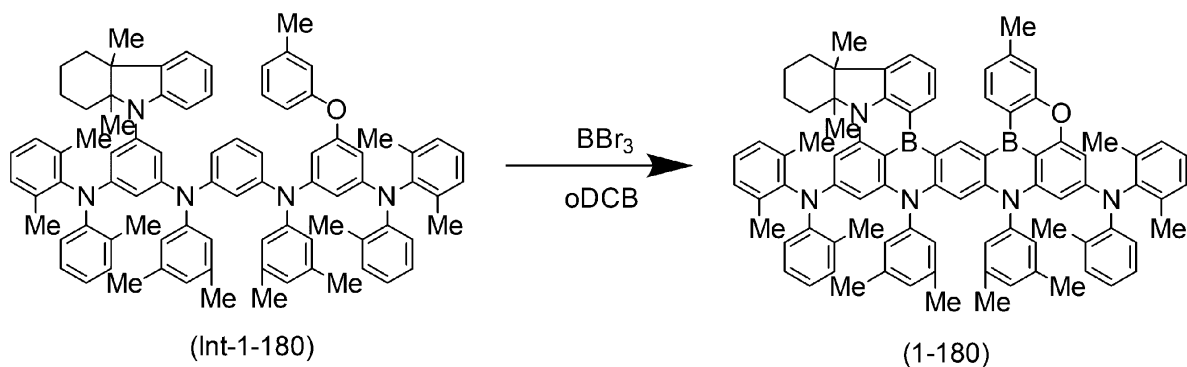
【 0 5 6 2】

反応容器に、化合物(Int - 1 - 1 8 0) 2 . 9 8 g (2 . 5 m m o l) を入れ窒素置換後、1 , 2 - ジクロロベンゼン 2 0 m L を加えた。三臭化ホウ素 (B B r ₃) 3 . 1 3 g を滴下ロートより滴下し、1 4 5 ° C で 1 2 時間還流した。酢酸ナトリウム水溶液で反応を停止させ、ジクロロメタンにて抽出した。溶媒を留去し得られた残渣をシリカゲルショートカラムクロマトグラフィー (溶離液 : トルエン / ヘプタン = 1 / 1 (容積比)) で精製した。ヘプタンを用いて加熱還流洗浄を行うことで、化合物 (1 - 1 8 0) を得た (0 . 7 5 g 、収率 2 5 %) 。

30

L C - M S により m / z = 1 2 0 7 . 6 5 に目的物である化合物 (1 - 1 8 0) を確認した。

【化 1 8 7】



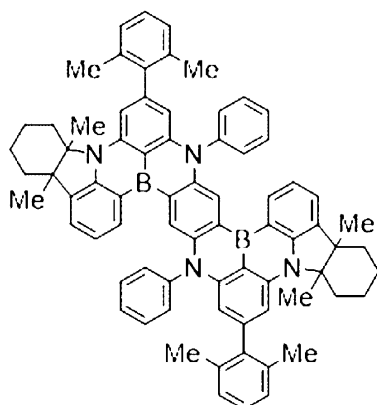
40

【 0 5 6 3】

合成例 (3) : 化合物 (1 - 2 5 6)

50

【化 1 8 8】



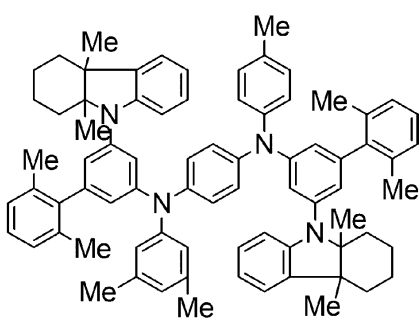
(1-256)

【0 5 6 4】

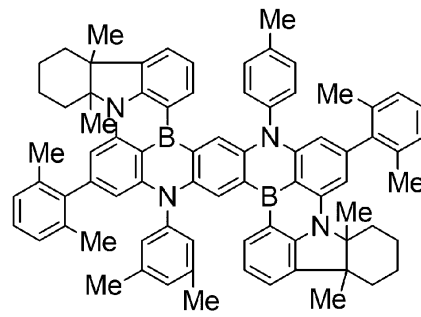
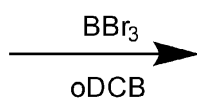
反応容器に、化合物(Int-1-256) 2.56 g (2.5 mmol) を入れ窒素置換後、1,2-ジクロロベンゼン 20 mL を加えた。三臭化ホウ素 (BBr₃) 3.13 g を滴下ロートより滴下し、145℃で14時間還流した。酢酸ナトリウム水溶液で反応を停止させ、ジクロロメタンにて抽出した。溶媒を留去し得られた残渣をシリカゲルショートカラムクロマトグラフィー (溶離液：トルエン) で精製した。ヘプタンを用いて加熱還流洗浄を行うことで、化合物 (1-256) を得た (0.38 g、収率14%)。

LC-MSにより $m/z = 1076.61$ に目的物である化合物 (1-256) を確認した。

【化 1 8 9】



(Int-1-256)



(1-256)

【0 5 6 5】

次に、本発明の化合物の基礎物性の評価と本発明の化合物を用いた有機EL素子の作製と評価について記載する。

【0 5 6 6】

(1) 蒸着型有機EL素子の作製と評価

実施例および比較例に係る有機EL素子を作製し、電圧を印加して電流密度、輝度、色度および外部量子効率などを測定する。作製した有機EL素子の構成として、以下の構成A (表1) および構成B (表2) を選定して評価する。ただし、本発明の化合物の適用はこれらの構成に限定されず、各層の膜厚や構成材料は本発明の化合物の基礎物性によって適宜変更することができる。

【0 5 6 7】

<<構成Aの素子構成と評価>>

10

20

30

40

50

【表 1】

	素子構成								輝度 500cd/m ² における評価結果					
	正孔 注入層 (40nm)	正孔 輸送層 1 (15nm)	正孔 輸送層 2 (15nm)	発光層 (20nm)		電子 輸送層 1 (10nm)	電子 輸送層 2 (20nm)	陰極 (1nm/ 100nm)	発光 波長 [nm]	半値 幅 [nm]	電圧 [V]	電流 密度 [mA/ cm ²]	効率 (EQE) [%]	寿命 LT50 [hrs]
				ホスト	ドーパント									
実施例 1	NPD	TcTa	mCP	BH-1	化合物 (1-161)	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al	477	21	4.9	2.1	21	43
比較例 1	NPD	TcTa	mCP	BH-1	化合物 (RBD-1)	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al	477	20	4.9	2	21	35
実施例 2	NPD	TcTa	mCP	BH-1	化合物 (1-180)	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al	468	26	4.8	2.1	20	37
比較例 2	NPD	TcTa	mCP	BH-1	化合物 (RBD-2)	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al	468	24	4.8	2.1	20	28
実施例 3	NPD	TcTa	mCP	BH-1	化合物 (1-256)	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al	550	25	4.8	2.3	15	33
比較例 3	NPD	TcTa	mCP	BH-1	化合物 (RBD-3)	2CzBN	BPY-TP2	LiF/Al	545	24	4.9	2.4	15	27

【0568】

表 1 において、

「NPD」は N，N'-ジフェニル-N，N'-ジナフチル-4，4'-ジアミノビフェニルであり、

「TcTa」は 4，4'，4"-トリス（N-カルバゾリル）トリフェニルアミンであり、

「mCP」は 1，3-ビス（N-カルバゾリル）ベンゼンであり、

「2CzBN」は、3，4-ジカルバゾリルベンゾニトリルであり

「BPY-TP2」は 2，7-ジ（[2，2'-ビピリジン]-5-イル）トリフェニレンである。

「BH-1」、「RBD-1」、「RBD-2」および「RBD-3」と合わせて、以下に化学構造を示す。

【0569】

10

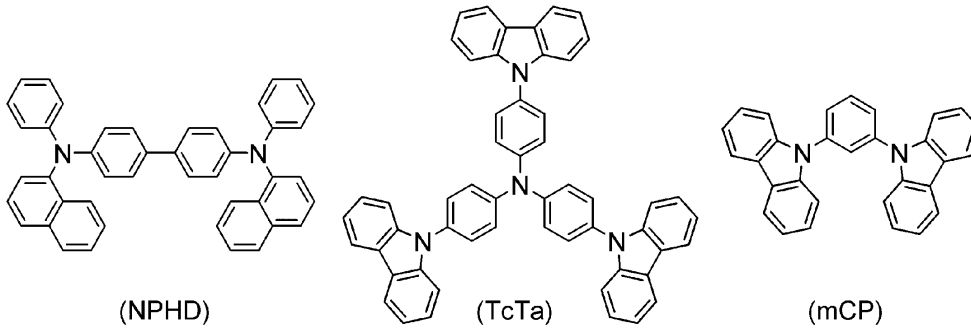
20

30

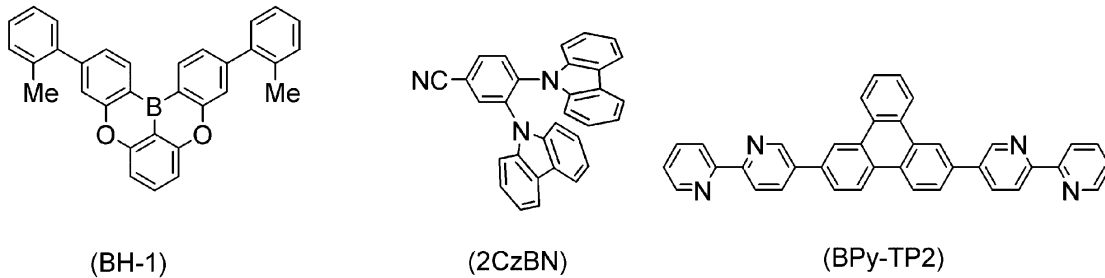
40

50

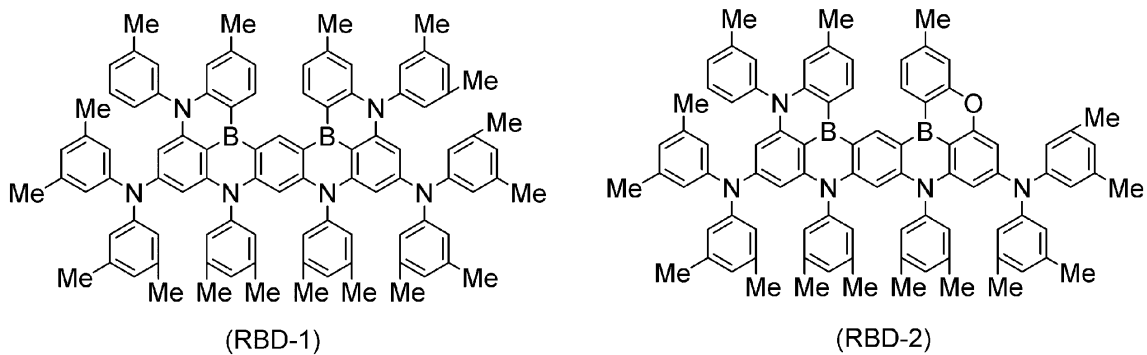
【化 1 9 0】



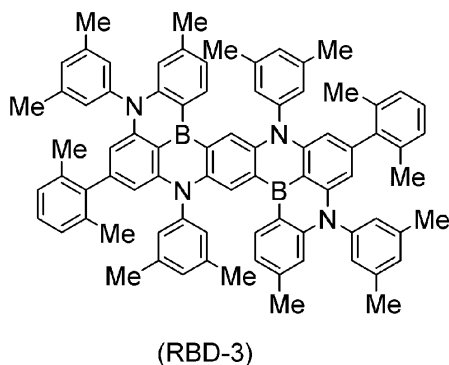
10



20



30



40

【 0 5 7 0】

<実施例 1>

<構成 A：化合物（1-161）をドーパントとした素子>

スパッタリングにより 200 nm の厚さに製膜した ITO を 50 nm まで研磨した、26 mm × 28 mm × 0.7 mm のガラス基板（（株）オプトサイエンス製）を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置（昭和真空（株）製）の基板ホルダーに固定し、NPD、TcTa、mCP、BH-1、化合物（1-161）、2CzBN および BPy-TP2 をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ポート、LiF およびアルミニウムをそれぞれ入れたタングステン製蒸着用ポートを装着した。

【 0 5 7 1】

50

透明支持基板のITO膜の上に順次、下記各層を形成した。真空槽を 5×10^{-4} Paまで減圧し、まず、NPDを加熱して膜厚40 nmになるように蒸着して正孔注入層を形成した。次に、TcTaを加熱して膜厚15 nmになるように蒸着して正孔輸送層を形成した。次に、mCPを加熱して膜厚15 nmになるように蒸着して電子阻止層を形成した。次に、BH-1と化合物(1-161)を同時に加熱して膜厚20 nmになるように蒸着して発光層を形成した。BH-1と化合物(1-161)の重量比がおおよそ99対1になるように蒸着速度を調節した。次に、2CzBNを加熱して膜厚10 nmになるように蒸着し、次いで、BPy-TP2を加熱して膜厚20 nmになるように蒸着し、2層からなる電子輸送層を形成した。各層の蒸着速度は0.01~1 nm/秒であった。その後、LiFを加熱して膜厚1 nmになるように0.01~0.1 nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、アルミニウムを加熱して膜厚100 nmになるように蒸着して陰極を形成し、有機EL素子を得た。このとき、アルミニウムの蒸着速度は1~10 nm/秒になるように調節した。

【0572】

<実施例2および3、比較例1~3>

実施例1のドーパントである化合物(1-161)を表1に記載のドーパントへ変更し素子を作製した。

【0573】

<評価>

作製された素子を、ITO電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、輝度500 cd/m²における、発光波長、半値幅、駆動電圧、電流密度、外部量子効率(EQE)、およびLT50(初期輝度500 cd/m²における電流密度で連続駆動させたときの250 cd/m²になるまでの時間)を測定した。評価結果を表1に示す。

【0574】

<<構成Bの素子構成と評価>>

【表2】

	素子構成									電流密度 20mA/cm ² における 評価結果				
	正孔 注入層 1 (40nm)	正孔 注入層 2 (5nm)	正孔 輸送層 1 (15nm)	正孔 輸送層 2 (10nm)	発光層 (20nm)		電子 輸送層 1 (5nm)	電子 輸送層 2 (25nm)	陰極 (1nm/ 100nm)	発光 波長 [nm]	半値 幅 [nm]	電圧 [V]	効率 (EQE) [%]	寿命 LT97 [hrs]
					ホスト	ドーパント								
実施例4	HI-1	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-2	化合物(1-256)	ET-1	ET-2+Liq	Liq/MgAg	550	27	3.8	7.3	280
比較例4	HI-1	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-2	化合物(RBD-3)	ET-1	ET-2+Liq	Liq/MgAg	545	28	4.1	6.9	243
実施例5	HI-1	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-3	化合物(1-256)	ET-1	ET-2+Liq	Liq/MgAg	550	29	3.6	7	321
比較例5	HI-1	HAT-CN	HT-1	HT-2	BH-3	化合物(RBD-3)	ET-1	ET-2+Liq	Liq/MgAg	545	29	3.9	6.7	257

【0575】

表2において、

「HI-1」はN⁴, N^{4'}-ジフェニル-N⁴, N^{4'}-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミンであり、

「HAT-CN」は1, 4, 5, 8, 9, 12-ヘキサアザトリフェニレンヘキサカルボニトリルであり、

「HT-1」はN-([1, 1'-ビフェニル]-4-イル)-9, 9-ジメチル-N-(4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル)-9H-フルオレン-2-アミンであり、「HT-2」はN, N-ビス(4-(ジベンゾ[b, d]フラン-4-イル)フェニル)-[1, 1':4', 1''-テルフェニル]-4-アミンであり、

「BH-2」は9-フェニル-10-(4-フェニルナフタレン-1-イル)アントラセンであり、

10

20

30

40

50

「BH-3」は2-(10-フェニルアントラセン-9-イル)ジベンゾ[b,d]フランであり

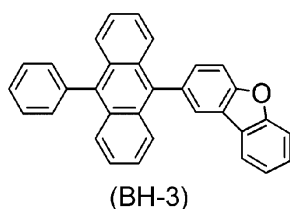
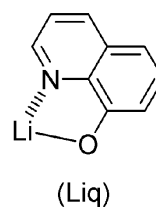
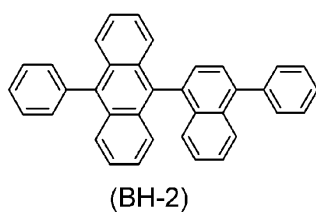
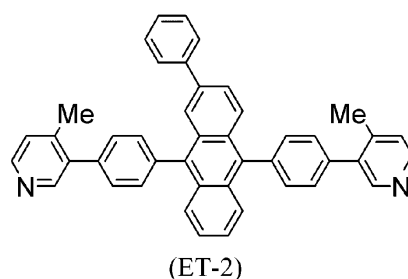
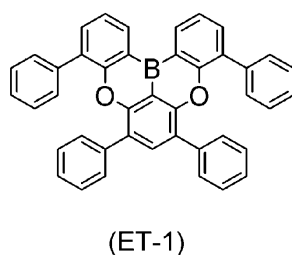
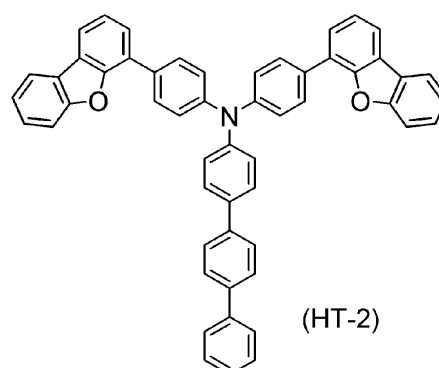
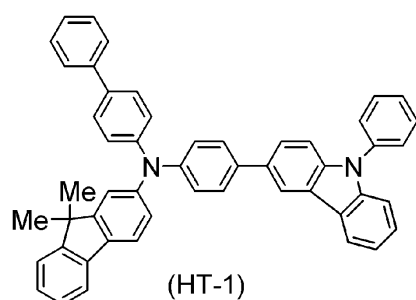
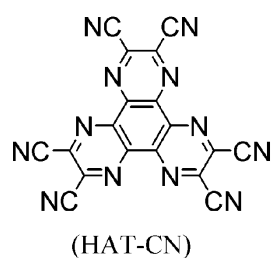
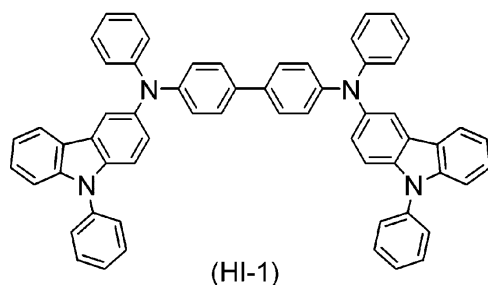
「ET-1」は4,6,8,10-テトラフェニル[1,4]ベンゾキサボリニノ[2,3,4-k]フェノキサボリニンであり、

「ET-2」は3,3'-(2-フェニルアントラセン-9,10-ジイル)ビス(4,1-フェニレン)ビス(4-メチルピリジン)であり、

「Liq」と共に以下に化学構造を示す。

【0576】

【化191】



【0577】

<実施例 4>

<構成 B：化合物（1-256）をドーパントとした素子>

スパッタリングにより 200 nm の厚さに製膜した ITO を 50 nm まで研磨した、26 mm × 28 mm × 0.7 mm のガラス基板（（株）オプトサイエンス製）を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置（昭和真空（株）製）の基板ホルダーに固定し、HI-1、HAT-CN、HT-1、HT-2、BH-2、化合物（1-256）、ET-1、ET-2 および Liq をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ボート、LiF およびアルミニウムをそれぞれ入れたタングステン製蒸着用ボートを装着した。

【0578】

透明支持基板の ITO 膜の上に順次、下記各層を形成した。真空槽を 5×10^{-4} Pa ま
で減圧し、まず、HI-1 を加熱して膜厚 40 nm になるように蒸着し、さらに HAT-
CN を加熱して膜厚 5 nm になるように蒸着して、二層からなる正孔注入層を形成した。
次いで、HT-1 を加熱して膜厚 15 nm になるように蒸着し、さらに HT-2 を加熱し
て膜厚 10 nm になるように蒸着して、二層からなる正孔輸送層を形成した。次に、BH
-2 と化合物（1-256）を同時に加熱して膜厚 25 nm になるように蒸着して発光層
を形成した。BH-2 と化合物（1-256）の重量比がおおよそ 99 対 1 になるように蒸
着速度を調節した。次に、ET-1 を加熱して膜厚 5 nm になるように蒸着し、さらに、
ET-2 および Liq を加熱して膜厚 25 nm になるように蒸着して、二層からなる電子
輸送層を形成した。ET-2 および Liq の重量比がおおよそ 1：1 になるように蒸着速度
を調節した。各層の蒸着速度は 0.01 ~ 1 nm/秒である。その後、LiF を加熱して
膜厚 1 nm になるように 0.01 ~ 0.1 nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、アルミ
ニウムを加熱して膜厚 100 nm になるように蒸着して陰極を形成して、有機 EL 素子
を得た。このとき、アルミニウムの蒸着速度は 1 ~ 10 nm/秒になるように調節した。

【0579】

<実施例 5、比較例 4 および 5>

実施例 4 のドーパントおよびホストを表 2 に記載のドーパントまたはホストへ変更し素子を作製した。

【0580】

<評価>

作製された素子を、ITO 電極を陽極、アルミニウム電極を陰極として直流電圧を印加し、電流密度 20 mA/cm² における発光波長、半値幅、駆動電圧、外部量子効率、および LT97（電流密度 20 mA/cm² で連続駆動させたときの初期輝度の 97% になるまでの時間）を測定した。評価結果を表 2 に示す。

【産業上の利用可能性】

【0581】

本発明の多環芳香族化合物は有機デバイス用材料、特に有機電界発光素子の発光層形成のための発光層用材料として有用である。

【符号の説明】

【0582】

- 100 有機電界発光素子
- 101 基板
- 102 陽極
- 103 正孔注入層
- 104 正孔輸送層
- 105 発光層
- 106 電子輸送層
- 107 電子注入層
- 108 陰極
- 110 基板
- 120 電極

10

20

30

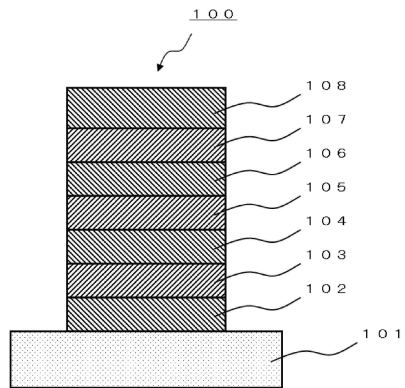
40

50

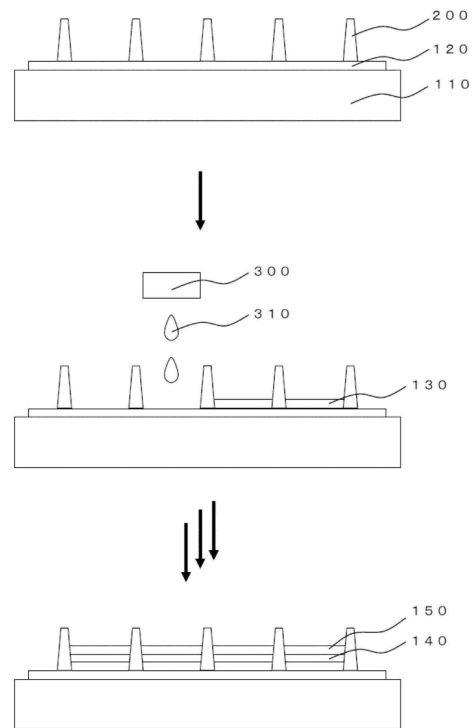
- 130 塗膜
140 塗膜
150 発光層
200 バンク
300 インクジェットヘッド
310 インクの液滴

【図面】

【図1】



【図2】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I
C 0 9 K 11/06 6 9 0

C石油化学株式会社 市原研究所内

(72)発明者 諫山 康平

千葉県市原市五井海岸5番地の1 JNC石油化学株式会社 市原研究所内

(72)発明者 山下 淳一

千葉県市原市五井海岸5番地の1 JNC石油化学株式会社 市原研究所内

(72)発明者 近藤 靖宏

千葉県市原市五井海岸5番地の1 JNC石油化学株式会社 市原研究所内

審査官 宮田 透

(56)参考文献 国際公開第2020/105990 (WO, A1)

国際公開第2020/040298 (WO, A1)

国際公開第2018/212169 (WO, A1)

国際公開第2021/150080 (WO, A1)

特開2020-083896 (JP, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C07F、H05B、C09K

Caplus/REGISTRY (STN)