

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2017-8061

(P2017-8061A)

(43) 公開日 平成29年1月12日(2017.1.12)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C07D 471/14 (2006.01)	C07D 471/14 101	3K107
H05B 33/12 (2006.01)	H05B 33/12 C	4C050
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/22 D	4C065
C07D 487/04 (2006.01)	H05B 33/14 B	4C071
C07D 487/14 (2006.01)	C07D 487/04 137	4C072

審査請求 有 請求項の数 9 O L (全 37 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2016-139598 (P2016-139598)
 (22) 出願日 平成28年7月14日 (2016. 7. 14)
 (62) 分割の表示 特願2015-550 (P2015-550) の分割
 原出願日 平成22年3月17日 (2010. 3. 17)
 (31) 優先権主張番号 10-2009-0023944
 (32) 優先日 平成21年3月20日 (2009. 3. 20)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)

(71) 出願人 509266480
 ローム・アンド・ハース・エレクトロニッ
 ク・マテリアルズ・コリア・リミテッド
 大韓民国 331-980 チュンチョン
 ナムード チョナンシー ソブクーク 3
 コンダン 1-ロ 56
 (74) 代理人 110000589
 特許業務法人センダ国際特許事務所
 (72) 発明者 キム, チ・シク
 大韓民国, 133-111, ソウル, ソン
 ドン-グウ, ソンス・1-ガ・14-60
 , サード・フロア

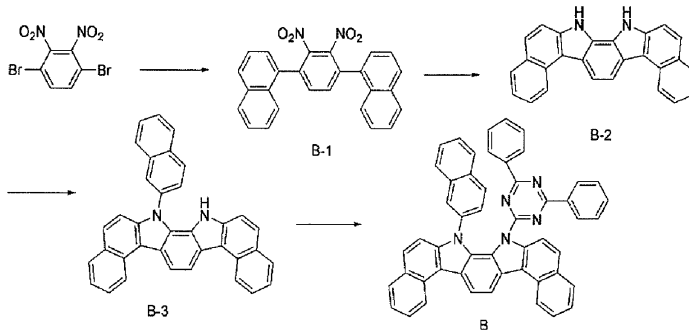
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規有機電界発光化合物およびこれを使用する有機電界発光素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 有機電界発光素子のホスト材料として使用した場合、従来のホスト材料と比較して高い発光効率及び優れた寿命特性を示す有機電界発光化合物の提供。

【解決手段】 例えば式 B で例示される有機電界発光化合物。



【選択図】 なし

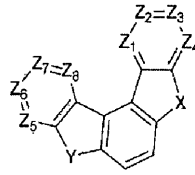
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

化学式 2 ~ 4 のいずれかで表される有機電界発光化合物：

【化 1】

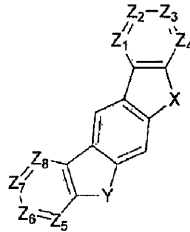
[化学式 2]



10

【化 2】

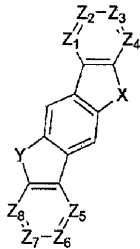
[化学式 3]



20

【化 3】

[化学式 4]



30

式中、XおよびYは独立してN (Ar_1)、OおよびSから選択され、 Ar_1 は互いに異なってもよく、並びに2以上の Ar_1 基が存在する場合には Ar_1 は Ar_1 もしくは Ar_2 として表されることができ；

$Z_1 \sim Z_8$ は独立してC (Ar_3)およびNから選択され、 Ar_3 は互いに異なってもよく、並びに隣り合う Ar_3 基は一緒に結合して環を形成していてもよく；

Ar_2 は(C1 - C60)アルキル、(C3 - C60)シクロアルキル、N、O、S、SiおよびPから選択される1以上のヘテロ原子を含む5員もしくは6員のヘテロシクロアルキル、(C7 - C60)ビスシクロアルキル、アダマンチル、(C2 - C60)アルケニル、(C2 - C60)アルキニル、(C6 - C60)アリールおよび(C3 - C60)ヘテロアリールから選択され；

Ar_1 は(C6 - C60)アリールまたは(C3 - C60)ヘテロアリールであり；

Ar_3 は独立して水素、(C1 - C60)アルキル、ハロゲン、シアノ、(C3 - C60)シクロアルキル、N、O、S、SiおよびPから選択される1以上のヘテロ原子を含む5員もしくは6員のヘテロシクロアルキル、(C7 - C60)ビスシクロアルキル、アダマンチル、(C2 - C60)アルケニル、(C2 - C60)アルキニル、(C6 - C60)アリール、(C1 - C60)アルコキシ、(C6 - C60)アリールオキシ、(C3 - C60)ヘテロアリール、(C6 - C60)アリールチオ、(C1 - C60)アルキルチオ、モノもしくはジ(C1 - C30)アルキルアミノ、モノもしくはジ(C6 - C30)アリールアミノ、トリ(C1 - C30)アルキルシリル、ジ(C1 - C30)アルキル(C6 - C30)アリールシリル、トリ(C6 - C30)アリールシリル、モノもしくはジ(C6 - C30)アリールボラニル、モノもしくはジ(C1 - C60)アルキルボラニル

40

50

、ニトロおよびヒドロキシルから選択され；並びに

$Ar_1 \sim Ar_3$ のアルキル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、ビシクロアルキル、アダマンチル、アルケニル、アルキニル、アリール、アルコキシ、アリーロキシ、ヘテロアリール、アリールチオ、アルキルチオ、アルキルアミノ、アリールアミノ、トリアルキルシリル、ジアルキルアリールシリル、トリアリールシリル、アリールボラニルもしくはアルキルボラニルは、(C1 - C60) アルキル、ハロゲン、シアノ、(C3 - C60) シクロアルキル、N、O、S、Si および P から選択される 1 以上のヘテロ原子を含む 5 員もしくは 6 員のヘテロシクロアルキル、(C7 - C60) ビシクロアルキル、アダマンチル、(C2 - C60) アルケニル、(C2 - C60) アルキニル、(C6 - C60) アリール、(C1 - C60) アルコキシ、(C6 - C60) アリーロキシ、P (= O) $R_a R_b$ で置換された (C6 - C60) アリール [R_a および R_b は独立して (C1 - C60) アルキルもしくは (C6 - C60) アリールを表す]、(C3 - C60) ヘテロアリール、(C6 - C60) アリールで置換された (C3 - C60) ヘテロアリール、(C1 - C60) アルキルで置換された (C3 - C60) ヘテロアリール、(C6 - C60) アリール (C1 - C60) アルキル、(C6 - C60) アリールチオ、(C1 - C60) アルキルチオ、モノもしくはジ (C1 - C30) アルキルアミノ、モノもしくはジ (C6 - C30) アリールアミノ、トリ (C1 - C30) アルキルシリル、ジ (C1 - C30) アルキル (C6 - C30) アリールシリル、トリ (C6 - C30) アリールシリル、モノもしくはジ (C6 - C30) アリールボラニル、モノもしくはジ (C1 - C60) アルキルボラニル、ニトロおよびヒドロキシルからなる群から選択される 1 種以上の置換基によってさらに置換されていてよく、

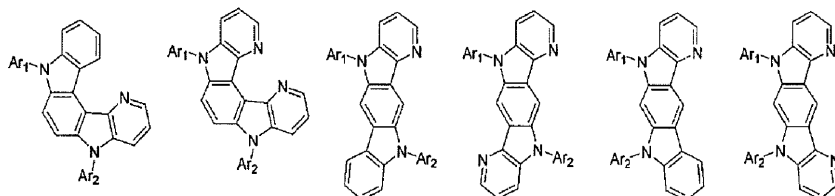
ただし、X および Y の双方が N (Ar_1) であり、かつ $Z_1 \sim Z_8$ の全てが C (Ar_3) である場合は除かれ、並びに、

Ar_1 が (C6 - C60) アリールの場合、かかる (C6 - C60) アリールは、(C3 - C60) ヘテロアリール、(C6 - C60) アリールで置換された (C3 - C60) ヘテロアリールおよび (C1 - C60) アルキルで置換された (C3 - C60) ヘテロアリールからなる群から選択される 1 種以上の置換基によって置換されている。

【請求項 2】

下記化合物から選択される請求項 1 に記載の有機電界発光化合物：

【化 4】

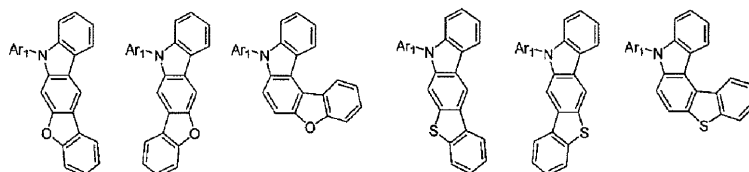


式中、 Ar_1 および Ar_2 は請求項 1 におけるように定義される。

【請求項 3】

下記化合物から選択される請求項 1 に記載の有機電界発光化合物：

【化 5】



式中、 Ar_1 は請求項 1 におけるように定義される。

【請求項 4】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光化合物を含む有機電界発光素子。

10

20

30

40

50

【請求項 5】

第 1 の電極；第 2 の電極；並びに、第 1 の電極と第 2 の電極との間に設けられた 1 以上の有機層；を含む有機電界発光素子であって、前記有機層が請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光化合物の 1 種以上と、1 種以上のリン光ドープメントを含む、請求項 4 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 6】

有機層が、アリアルアミン化合物およびスチリルアリアルアミン化合物からなる群から選択される 1 種以上のアミン化合物をさらに含む、請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 7】

有機層が、第 1 族、第 2 族、第 4 周期および第 5 周期遷移金属、ランタニド金属並びに d - 遷移元素、またはこれらから形成される複合体の有機金属からなる群から選択される 1 種以上の金属をさらに含む、請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

10

【請求項 8】

有機層が電界発光層および電荷発生層を含む、請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 9】

有機電界発光素子が白色光を発光する有機電界発光素子であり、有機層が青色、赤色もしくは緑色の光を発光する 1 以上の有機電界発光層を同時に含む、請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【0001】

本発明は、新規の有機電界発光化合物 (organic electroluminescent compound)、およびこれを含む有機電界発光素子 (organic electroluminescent devices) に関する。具体的には、本発明は、電界発光材料として使用される新規の有機電界発光化合物及びこれをホストとして使用している有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

OLED (有機発光ダイオード) の発光効率を決定する最も重要な要因は電界発光材料の種類である。電界発光材料として蛍光材料が現在まで広く使用されてきたが、リン光材料の開発は、電界発光メカニズムの観点から発光効率を理論的に 4 倍まで向上させるための最良の方法の 1 つである。

30

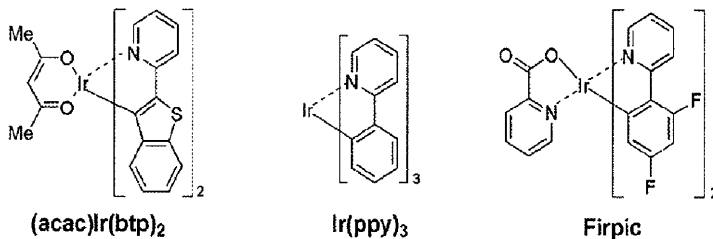
【0003】

現在まで、イリジウム (III) 錯体はリン光材料として広く知られており、例えば、(acac)Ir(btp)₂、Ir(ppy)₃ および Firpic はそれぞれ赤色、緑色、および青色のリン光材料として広く知られている。特に、多くのリン光材料が近年、日本、欧州および米国において開発されてきた。

【0004】

【化 1】

40



【0005】

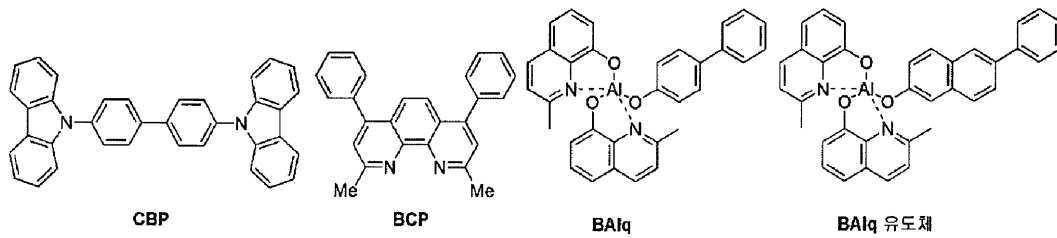
リン光発光材料のためのホスト材料として、4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ビフェニル (CBP) が現在まで最も広く知られており、正孔ブロッキング層 (例えば、B

50

CBPおよびBALq)が適用された高効率のOLEDが知られている。パイオニア(日本国)などはホストとしてビス(2-メチル-8-キノリナト)(p-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)(BALq)誘導体を使用する高性能のOLEDを報告した。

【0006】

【化2】



10

【0007】

先行技術の材料は発光特性の観点からは有利であるが、その材料は低いガラス転移温度および非常に劣った熱安定性を有しており、その結果その材料は高温、真空での蒸着プロセス中に変化する傾向がある。OLEDにおいては、電力効率 = (/ 電圧) × 電流効率が定義される。よって、電力効率は電圧に反比例し、そしてOLEDのより低い電力消費を得るためには電力効率はより高くあるべきである。実際には、リン光電界発光材料を使用するOLEDは、蛍光EL材料を使用するOLEDよりも有意に高い電流効率(c d / A)を示す。しかし、リン光材料のホスト材料としてBALqおよびCBPのような従来の材料が使用される場合には、蛍光材料を使用するOLEDと比較してより高い駆動電圧のせいで電力効率(l m / w)の観点から有意な利点を得ることはできない。さらに、このようなOLEDは満足な素子寿命をもたらすことができない。

20

【0008】

よって、より向上した安定性および性能を有するホスト材料の開発が必要とされる。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明者は従来技術の課題を克服することに努め、その結果、優れた発光効率および著しく延長された素子寿命を有する有機電界発光素子を実現するための新規の電界発光化合物を発明した。

30

【0010】

よって、本発明の目的はこれらの課題を克服し、そして従来のホスト材料と比較してより良好な発光効率、向上した素子寿命、および適切な色座標をもたらす骨格を含む有機電界発光化合物を提供することである。

【0011】

本発明の別の目的は、前記有機電界発光化合物を電界発光材料として使用する、高効率および長寿命の有機電界発光素子を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0012】

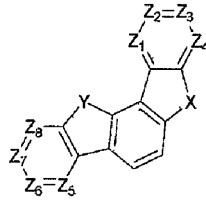
具体的には、本発明は化学式(1)~(5)のいずれかで表される有機電界発光化合物、およびこれを含む有機電界発光素子に関する。本発明の有機電界発光化合物は、従来のホスト材料と比較してより良好な発光効率および優れた寿命特性を提供するので、この化合物から優れた駆動寿命を有するOLEDが得られうる。

40

【0013】

【化 3】

[化学式 1]

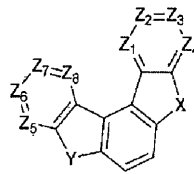


【 0 0 1 4 】

10

【化 4】

[化学式 2]

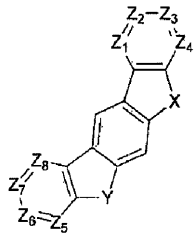


【 0 0 1 5 】

20

【化 5】

[化学式 3]

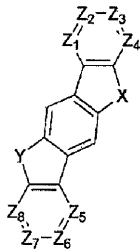


【 0 0 1 6 】

30

【化 6】

[化学式 4]

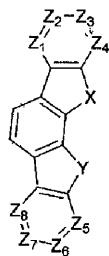


【 0 0 1 7 】

40

【化 7】

[化学式 5]



【 0 0 1 8 】

式中、XおよびYは独立してN(Ar₁)、OおよびSから選択され、Ar₁は互いに

50

異なってもよく、並びに2以上の $A r_1$ 基が存在する場合には $A r_1$ は $A r_1$ もしくは $A r_2$ として表されることができ；

$Z_1 \sim Z_8$ は独立して $C(A r_3)$ およびNから選択され、 $A r_3$ は互いに異なってもよく、並びに隣り合う $A r_3$ 基は一緒に結合して環を形成していてもよく；

$A r_1$ および $A r_2$ は独立して($C1 - C60$)アルキル、($C3 - C60$)シクロアルキル、N、O、S、SiおよびPから選択される1以上のヘテロ原子を含む5員もしくは6員のヘテロシクロアルキル、($C7 - C60$)ピシクロアルキル、アダマンチル、($C2 - C60$)アルケニル、($C2 - C60$)アルキニル、($C6 - C60$)アリーールおよび($C3 - C60$)ヘテロアリーールから選択され；

$A r_3$ は独立して水素、($C1 - C60$)アルキル、ハロゲン、シアノ、($C3 - C60$)シクロアルキル、N、O、S、SiおよびPから選択される1以上のヘテロ原子を含む5員もしくは6員のヘテロシクロアルキル、($C7 - C60$)ピシクロアルキル、アダマンチル、($C2 - C60$)アルケニル、($C2 - C60$)アルキニル、($C6 - C60$)アリーール、($C1 - C60$)アルコキシ、($C6 - C60$)アリーールオキシ、($C3 - C60$)ヘテロアリーール、($C6 - C60$)アリーールチオ、($C1 - C60$)アルキルチオ、モノもしくはジ($C1 - C30$)アルキルアミノ、モノもしくはジ($C6 - C30$)アリーールアミノ、トリ($C1 - C30$)アルキルシリル、ジ($C1 - C30$)アルキル($C6 - C30$)アリーールシリル、トリ($C6 - C30$)アリーールシリル、モノもしくはジ($C6 - C30$)アリーールボラニル、モノもしくはジ($C1 - C60$)アルキルボラニル、ニトロおよびヒドロキシルから選択され；並びに

$A r_1 \sim A r_3$ のアルキル、シクロアルキル、ヘテロシクロアルキル、ピシクロアルキル、アダマンチル、アルケニル、アルキニル、アリーール、アルコキシ、アリーールオキシ、ヘテロアリーール、アリーールチオ、アルキルチオ、アルキルアミノ、アリーールアミノ、トリアルキルシリル、ジアルキルアリーールシリル、トリアリーールシリル、アリーールボラニルもしくはアルキルボラニルは、($C1 - C60$)アルキル、ハロゲン、シアノ、($C3 - C60$)シクロアルキル、N、O、S、SiおよびPから選択される1以上のヘテロ原子を含む5員もしくは6員のヘテロシクロアルキル、($C7 - C60$)ピシクロアルキル、アダマンチル、($C2 - C60$)アルケニル、($C2 - C60$)アルキニル、($C6 - C60$)アリーール、($C1 - C60$)アルコキシ、($C6 - C60$)アリーールオキシ、 $P(=O)R_aR_b$ で置換された($C6 - C60$)アリーール [R_a および R_b は独立して($C1 - C60$)アルキルもしくは($C6 - C60$)アリーールを表す]、($C3 - C60$)ヘテロアリーール、($C6 - C60$)アリーールで置換された($C3 - C60$)ヘテロアリーール、($C1 - C60$)アルキルで置換された($C3 - C60$)ヘテロアリーール、($C6 - C60$)アリーール($C1 - C60$)アルキル、($C6 - C60$)アリーールチオ、($C1 - C60$)アルキルチオ、モノもしくはジ($C1 - C30$)アルキルアミノ、モノもしくはジ($C6 - C30$)アリーールアミノ、トリ($C1 - C30$)アルキルシリル、ジ($C1 - C30$)アルキル($C6 - C30$)アリーールシリル、トリ($C6 - C30$)アリーールシリル、モノもしくはジ($C6 - C30$)アリーールボラニル、モノもしくはジ($C1 - C60$)アルキルボラニル、ニトロおよびヒドロキシルからなる群から選択される1種以上の置換基によってさらに置換されていてよく、

ただし、XおよびYの双方がN($A r_1$)であり、かつ $Z_1 \sim Z_8$ の全てが $C(A r_3)$ である場合を除く。

【0019】

本明細書において記載される場合、「($C1 - C60$)アルキル」部分を含む置換基は1~60個の炭素原子、1~20個の炭素原子、または1~10個の炭素原子を含むことができる。「($C6 - C60$)アリーール」部分を含む置換基は6~60個の炭素原子、6~20個の炭素原子、または6~12個の炭素原子を含むことができる。「($C3 - C60$)ヘテロアリーール」部分を含む置換基は3~60個の炭素原子、4~20個の炭素原子、または4~12個の炭素原子を含むことができる。「($C3 - C60$)シクロアルキル」部分を含む置換基は3~60個の炭素原子、3~20個の炭素原子、または3~7個の

10

20

30

40

50

炭素原子を含むことができる。「(C₂ - C₆₀)アルケニルもしくはアルキニル」部分を含む置換基は2～60個の炭素原子、2～20個の炭素原子、または2～10個の炭素原子を含むことができる。

【0020】

本発明の用語「アルキル」は線状もしくは分岐で飽和の一価の炭化水素基もしくはその組み合わせを含み、これは炭素原子と水素原子とのみから構成される。用語「アルコキシ」は-O-アルキル基を意味し、このアルキルは上述のように定義される。

【0021】

本明細書に記載される用語「アリール」は、芳香族炭化水素から1つの水素原子を除去することによりその芳香族炭化水素から得られる有機基を表す。アリール基には単環系もしくは縮合環系が挙げられ、そのそれぞれの環は好適には4～7個、好ましくは5もしくは6個の環原子を含む。2以上のアリール基が化学結合を介して一緒にされている構造も含まれる。具体的な例としては、フェニル、ナフチル、ピフェニル、アントリル、インデニル、フルオレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、ペリレニル、クリセニル、ナфтаセニル、フルオランテニルなどが挙げられるが、これらに限定されない。

10

【0022】

本明細書に記載される用語「ヘテロアリール」は、芳香族環骨格原子のためのN、OおよびSから選択される1～4個のヘテロ原子と、残りの芳香族環骨格原子のための炭素原子とを含むアリール基を意味する。ヘテロアリールは、5員もしくは6員の単環式ヘテロアリール、または1以上のベンゼン環と縮合している多環式ヘテロアリールであってよく、部分的に飽和されていてよい。化学結合を介して結合されている1以上のヘテロアリール基を有する構造も含まれる。ヘテロアリール基には、そのヘテロ原子が酸化されるかまたは四級化されて、N-オキシド、第四級塩などを形成する2価のアリール基も挙げられる。具体的な例には、単環式ヘテロアリール基、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、イミダゾリル、ピラゾリル、チアゾリル、チアジアゾリル、イソチアゾリル、イソオキサゾリル、オキサゾリル、オキサジアゾリル、トリアジニル、テトラジニル、トリアゾリル、テトラゾリル、フラザニル、ピリジル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニル；多環式ヘテロアリール基、例えば、ベンゾフリル、ベンゾチエニル、イソベンゾフリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾイソオキサゾリル、ベンゾオキサゾリル、イソインドリル、インドリル、インダゾリル、ベンゾチアジアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリニル、キナゾリニル、キノリジニル、キノキサリニル、カルバゾリル、フェナントリジニルおよびベンゾジオキサリル；並びに、その対応するN-オキシド（例えば、ピリジルN-オキシド、キノリルN-オキシド）、および第四級塩が挙げられるが、これらに限定されない。

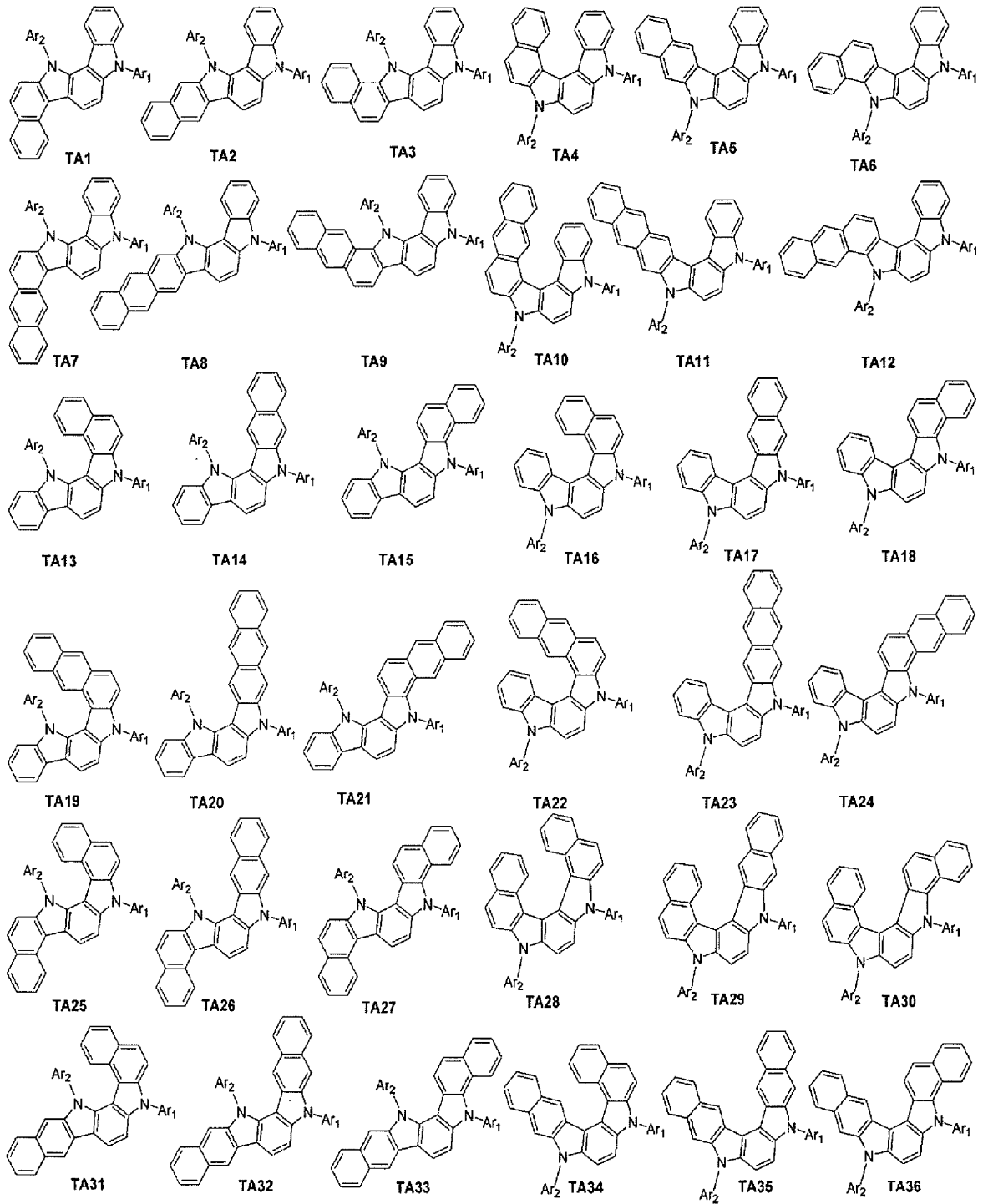
20

30

【0023】

本発明の有機電界発光化合物は下記化学式のいずれかで表される化合物によって例示される：

【化 8】

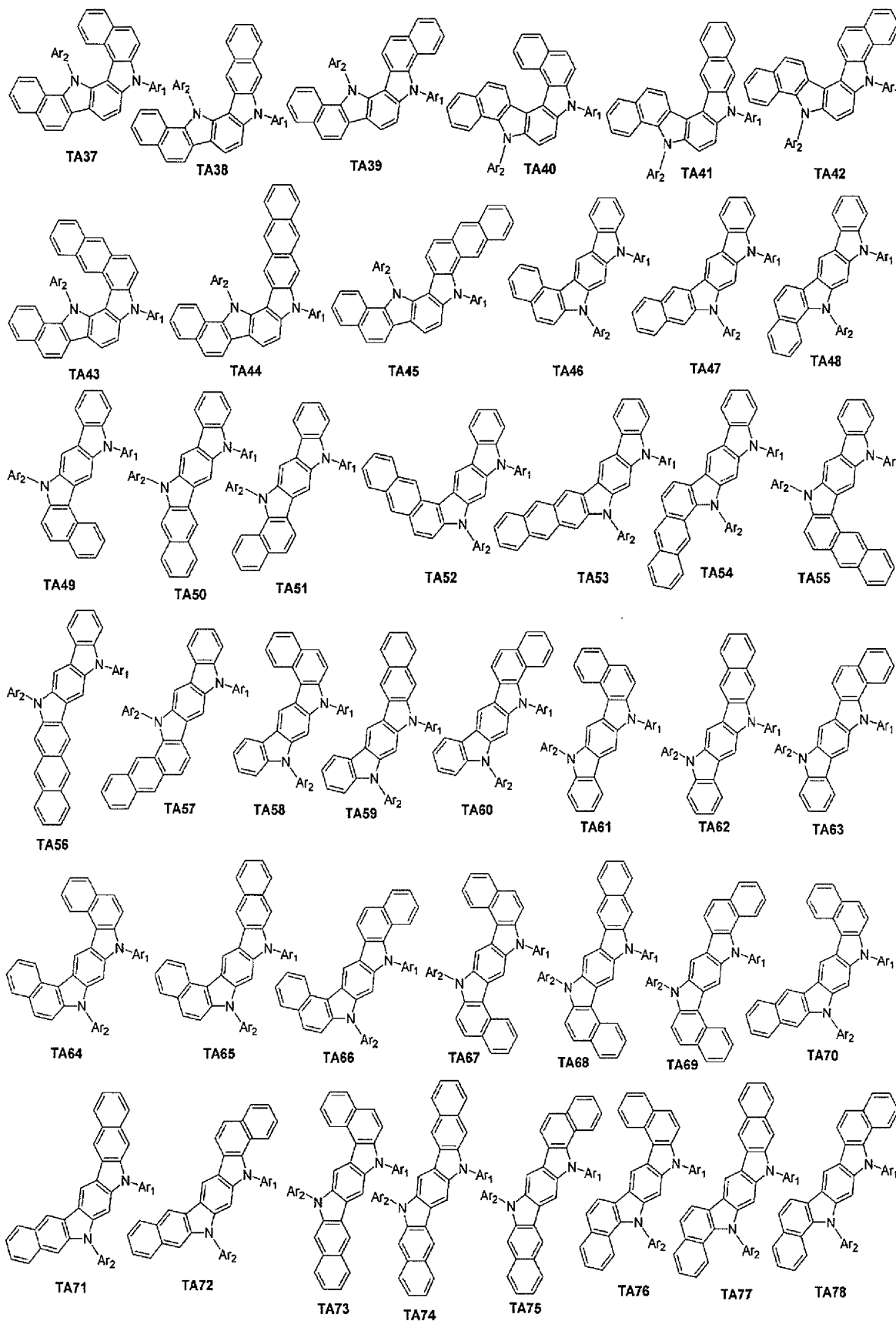


10

20

30

【化 9】



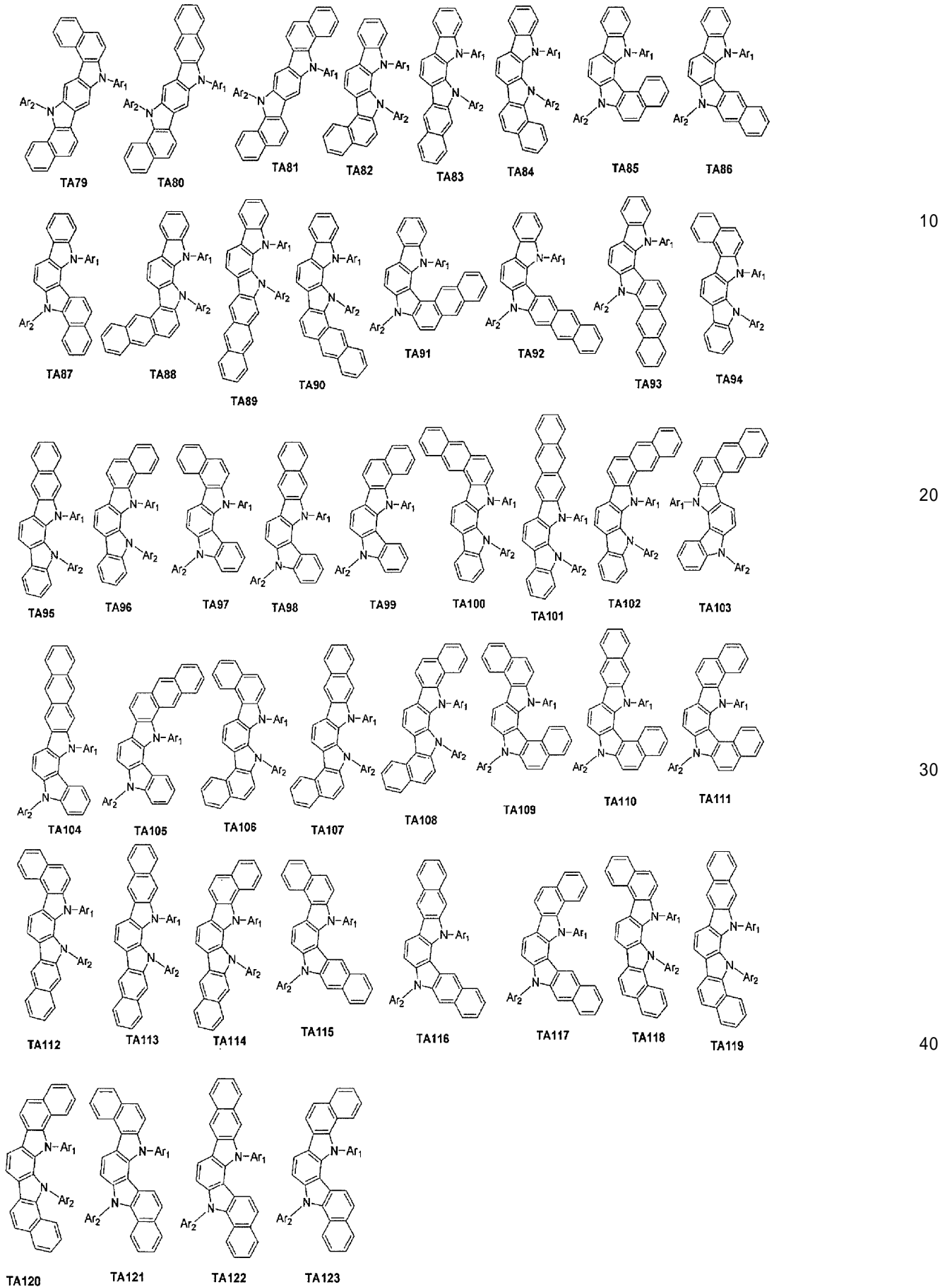
10

20

30

40

【化 1 0】

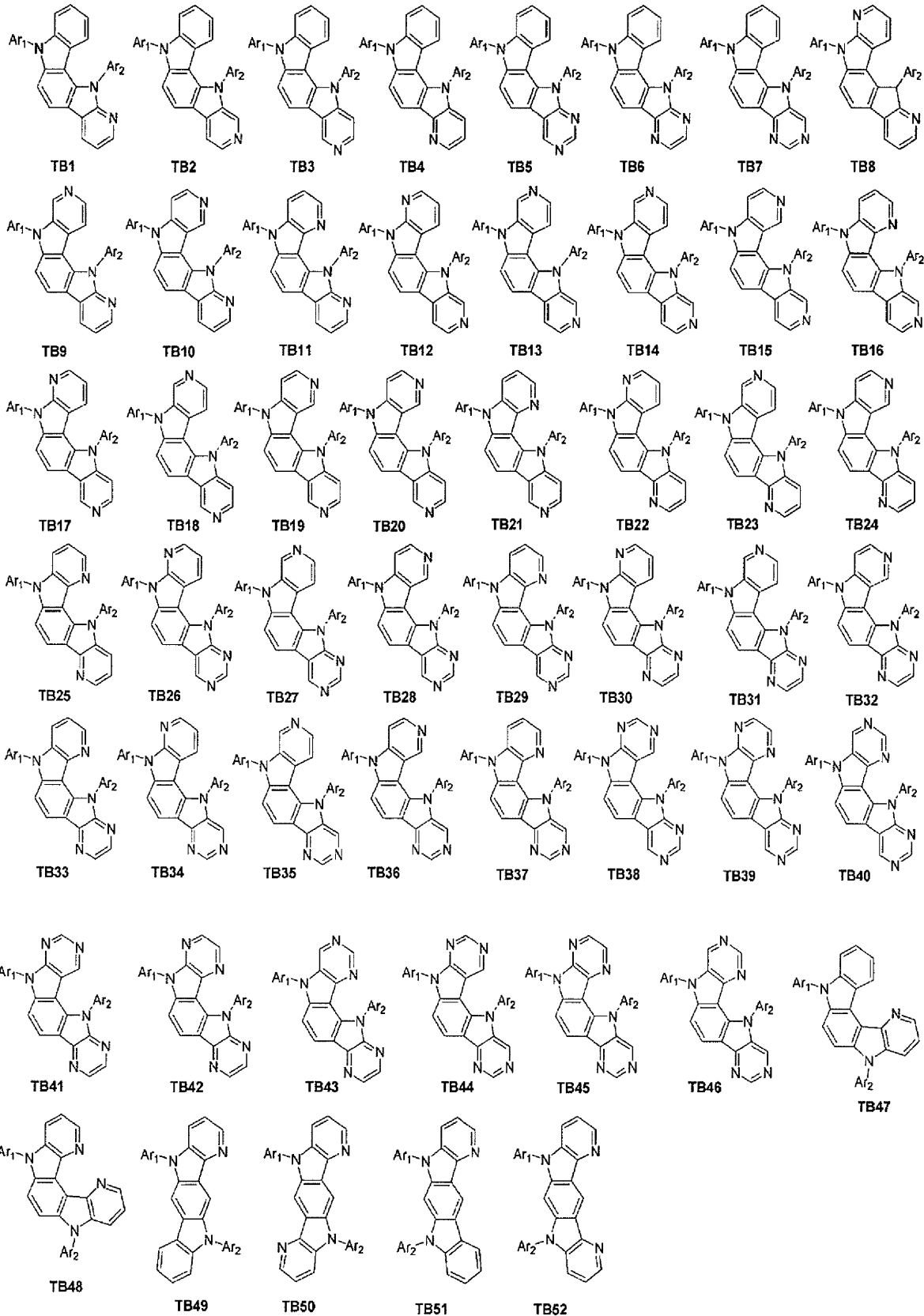


式中、Ar₁ および Ar₂ は化学式(1) ~ (5)におけるように定義される。

【0024】

さらに、本発明の有機電界発光化合物は下記化学式のいずれかで表される化合物によって例示される：

【化11】



式中、Ar₁ および Ar₂ は化学式(1) ~ (5)におけるように定義される。

【0025】

10

20

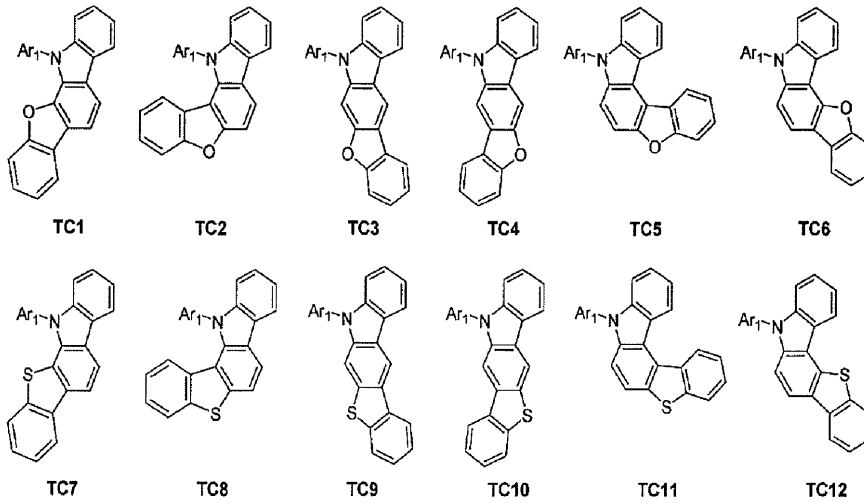
30

40

50

本発明の有機電界発光化合物は下記化学式のいずれかで表される化合物によって具体的に例示されうる：

【化12】



10

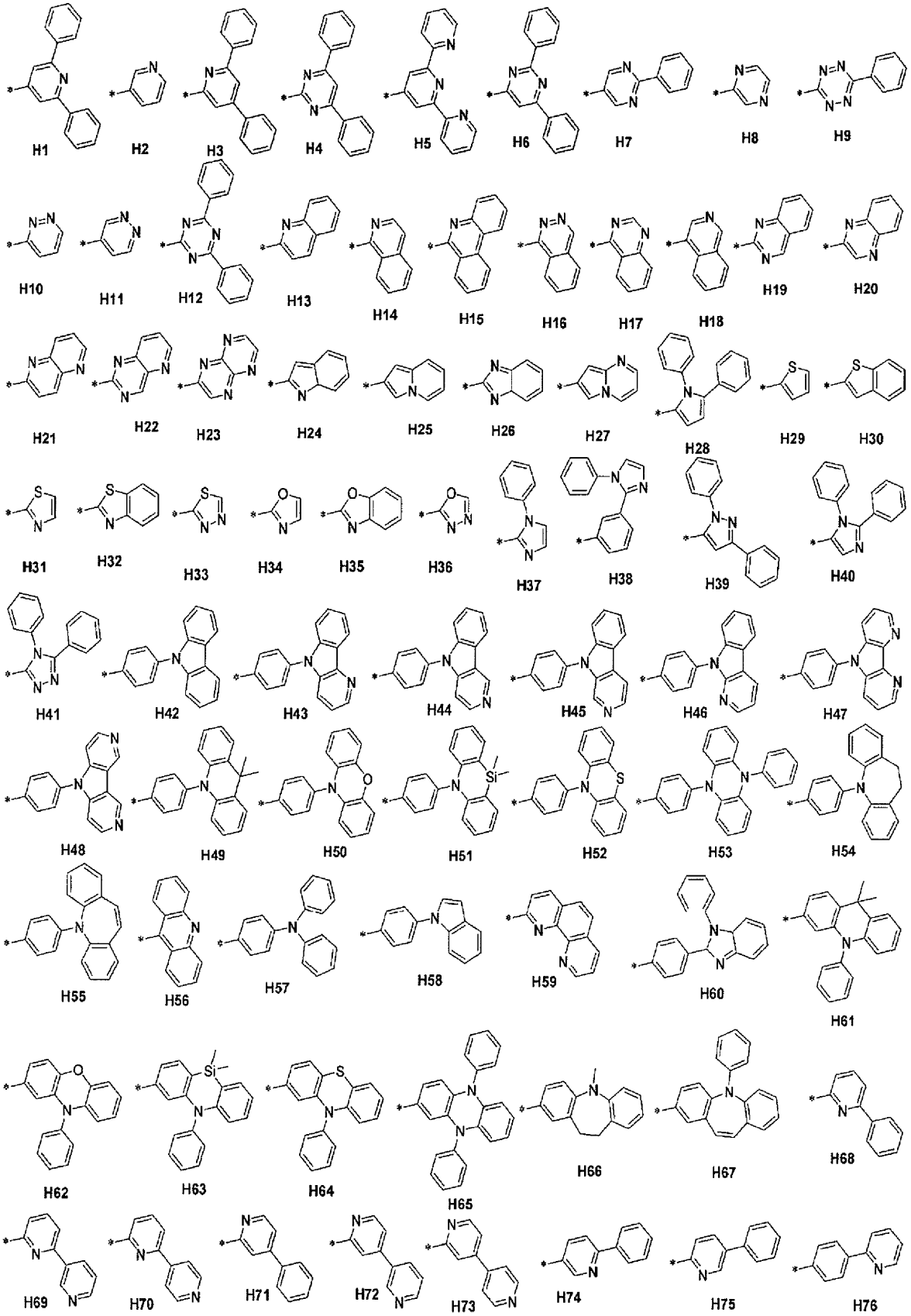
式中、 Ar_1 は化学式(1)~(5)におけるように定義される。

【0026】

より具体的には、 Ar_1 および Ar_2 は独立して、フェニル、1-ナフチルもしくは2-ナフチル、または下記化学式のいずれかで表される置換基を表すが、これに限定されない：

20

【化 1 3】



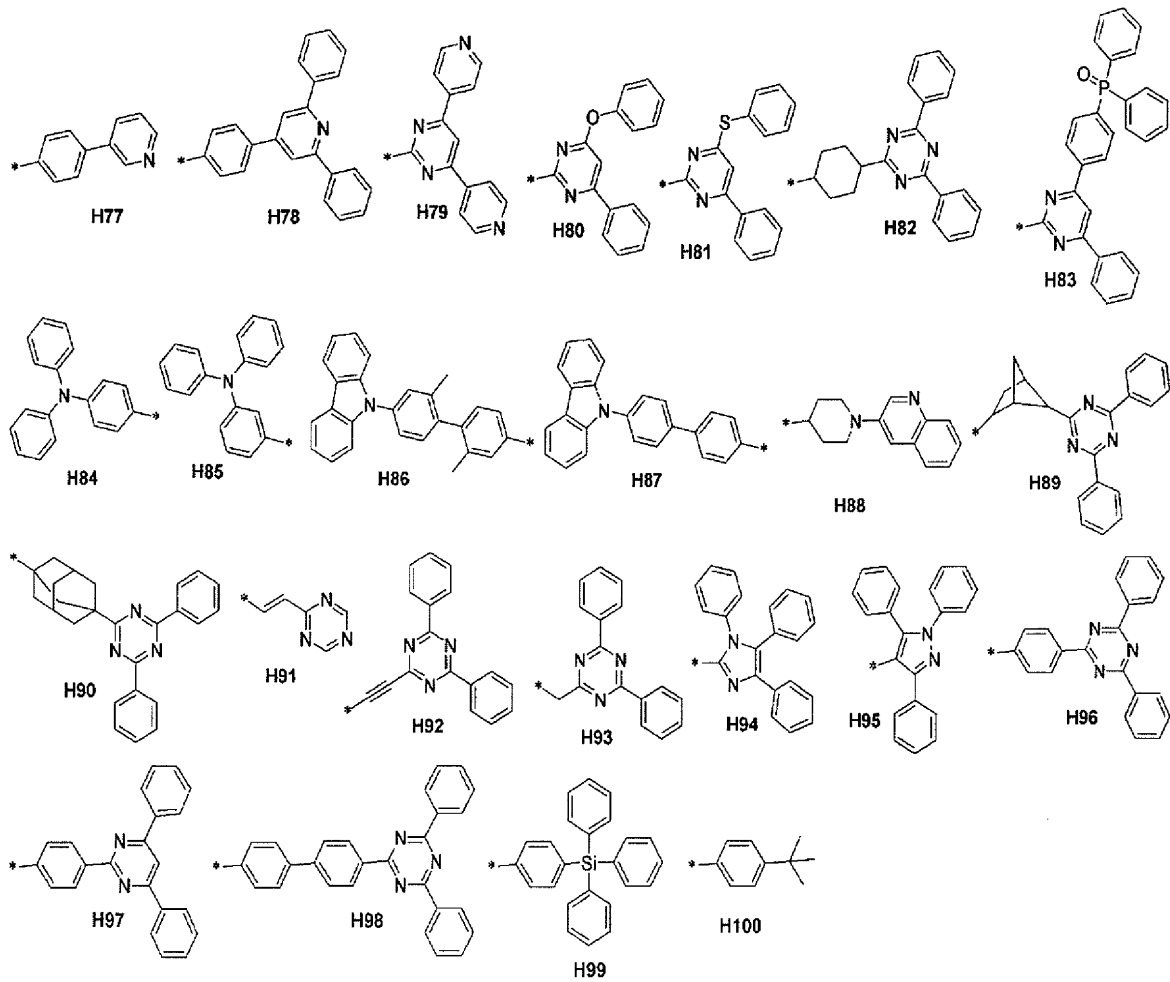
10

20

30

40

【化 1 4】



10

20

【0027】

本発明は、第1の電極；第2の電極；並びに、第1の電極と第2の電極との間に設けられた少なくとも1つの有機層；を含んでなる有機電界発光素子であって、化学式(1)~(5)のいずれかで表される有機電界発光化合物の1種以上を前記有機層が含む有機電界発光素子も提供する。

30

【0028】

本発明の有機電界発光素子は、有機層が電界発光層を含み、当該電界発光層が電界発光ホストとして化学式(1)~(5)のいずれかで表される化合物の1種以上と、1種以上のリン光ドープメントとを含むことで特徴付けられる。このドープメントは特に限定されない。

【0029】

本発明の有機電界発光素子は、化学式(1)~(5)のいずれかによって表される有機電界発光化合物の1種以上と共に、アリールアミン化合物およびスチリルアリールアミン化合物からなる群から選択される1種以上の化合物をさらに含むことができる。

40

【0030】

本発明の有機電界発光素子においては、有機層は化学式(1)~(5)のいずれかで表される有機電界発光化合物の1種以上と共に、第1族、第2族、第4周期および第5周期遷移金属、ランタニド金属並びにd-遷移元素、またはその複合体の有機金属からなる群から選択される1種以上の金属をさらに含むことができる。有機層は電界発光層および電荷発生層を含むことができる。

【0031】

有機電界発光素子は、白色光を発光する有機電界発光素子を形成するために、上述のよ

50

うな有機電界発光化合物に加えて、青色、緑色、もしくは赤色の光を発光する１種以上の有機電界発光層を含むこともできる。

【発明の効果】

【0032】

本発明の有機電界発光化合物は、OLEDの有機電界発光材料のホスト材料として使用される場合に優れた発光効率および材料の非常に良好な寿命特性を示し、その結果その化合物から非常に良好な駆動寿命を有するOLEDが製造される。

【発明を実施するための形態】

【0033】

本発明の典型的な有機電界発光化合物、その製造、および電界発光素子の発光特性を示すために、製造例および実施例を参照することにより本発明がさらに説明されるが、これら実施例は本発明の実施形態をより良好に理解するためのみに提供されるのであり、何らかの手段によって本発明の範囲を限定することを意図するものではない。

10

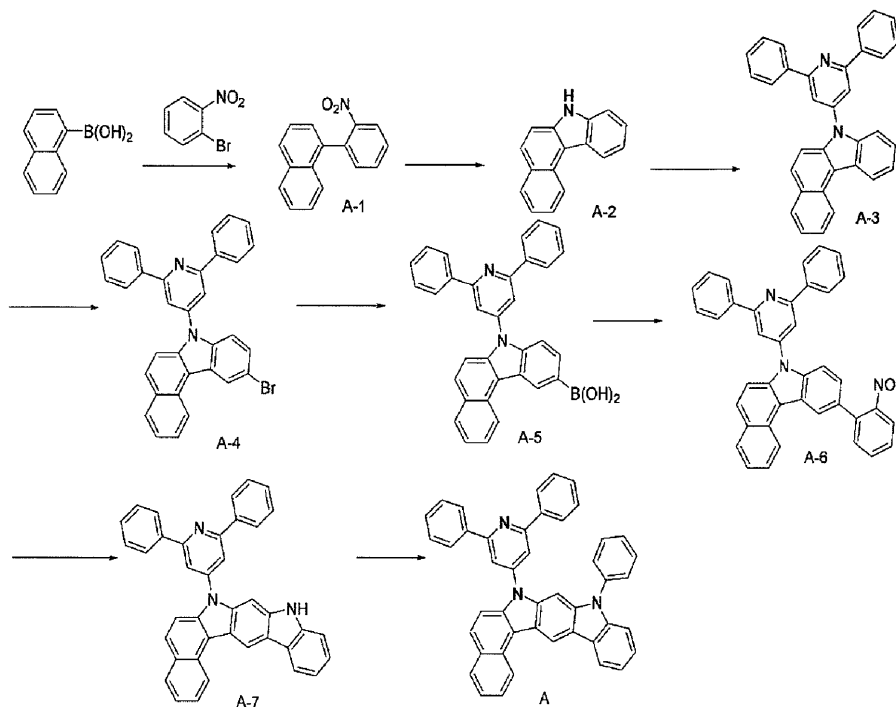
【実施例】

【0034】

製造例

[製造例1] 化合物(A)の製造

【化15】



20

30

【0035】

化合物(A-1)の製造

ブromo-2-ニトロベンゼン(30g、148.5mmol)、1-ナフタレンボロン酸(30.6g、178.2mmol)、Pd(PPh₃)₄(5.14g、4.45mmol)、2MのK₂CO₃水溶液(297.01mmol)、トルエン(500mL)およびエタノール(200mL)の混合物を還流下で4時間攪拌した。この混合物を周囲温度まで冷却した後で、これに蒸留水を添加した。得られた混合物を酢酸エチルで抽出し、その抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通した精製で化合物(A-1)(31g、124.3mmol、84.03%)を得た。

40

【0036】

化合物(A-2)の製造

化合物(A-1)(31g、124.3mmol)およびトリエチルホスファイト(300mL)の混合物を還流下で10時間攪拌した。この混合物を周囲温度まで冷却した後

50

で、減圧下で有機溶媒を蒸留除去した。これに蒸留水を添加し、混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通した精製で化合物(A-2)(18g、82.84mmol、66.81%)を得た。

【0037】

化合物(A-3)の製造

化合物(A-2)(18g、82.84mmol)、1,5-ジフェニル-3-クロロピリジン(26.4g、99.41mmol)、Pd(OAc)₂(1.85g、8.28mmol)、P(t-bu)₃(8.17ml、16.5mmol、キシレン中50%)、NaOt-bu(23.8g、248.5mmol)およびトルエン(500mL)の混合物を還流下で12時間攪拌した。この混合物を周囲温度まで冷却した後で、これに蒸留水を添加し、混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通した精製で化合物(A-3)(19g、42.54mmol、51.36%)を得た。

10

【0038】

化合物(A-4)の製造

DMF(200mL)に溶解した化合物(A-3)(19g、42.54mmol)の溶液に、NBS(8.33g、46.80mmol)を添加した。周囲温度で10時間後、減圧下で有機溶媒を蒸留除去した。これに蒸留水を添加し、混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通した精製で化合物(A-4)(20g、38.06mmol、89.47%)を得た。

20

【0039】

化合物(A-5)の製造

THF200mLに溶解した化合物(A-4)(20g、38.06mmol)の溶液に、n-buLi(15.22mL、38.06mmol、ヘキサン中2.5M)を-78でゆっくりと添加した。1時間攪拌した後で、これにホウ酸トリメチル(5.51mL、49.48mmol)を添加した。この混合物をゆっくりと周囲温度まで暖め、12時間攪拌した。蒸留水を添加し、混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通した精製で化合物(A-5)(8g、16.31mmol、42.86%)を得た。

30

【0040】

化合物(A-6)の製造

化合物(A-5)(8g、16.31mmol)、プロモ-2-ニトロベンゼン(3.95g、19.57mmol)、Pd(PPh₃)₄(0.56g、0.48mmol)、2MのK₂CO₃水溶液(16mL、32.62mmol)、トルエン(70mL)、およびエタノール(20mL)の混合物を還流下で攪拌した。化合物(A-1)の合成と同じ手順に従って、化合物(A-6)(7g、12.33mmol、75.62%)が得られた。

【0041】

化合物(A-7)の製造

化合物(A-6)(7g、12.33mmol)がトリエチルホスファイト(100mL)と混合され、化合物(A-2)の合成と同じ手順が行われて、化合物(A-7)(4g、7.46mmol、58.33%)を得た。

40

【0042】

化合物(A)の製造

化合物(A-7)(4g、7.46mmol)、ヨードベンゼン(1.25mL、11.20mmol)、銅粉体(0.17g、11.20mmol)、K₂CO₃(3.09g)、18-クラウン-6(0.15g、1.59mmol)および1,2-ジクロロベンゼン(100mL)の混合物を還流下で15時間攪拌した。この反応混合物を周囲温度まで冷却した後で、減圧下で有機溶媒を蒸留除去した。これに蒸留水を添加し、混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物をカラムを通して精製して、化合物(A)(3.6g

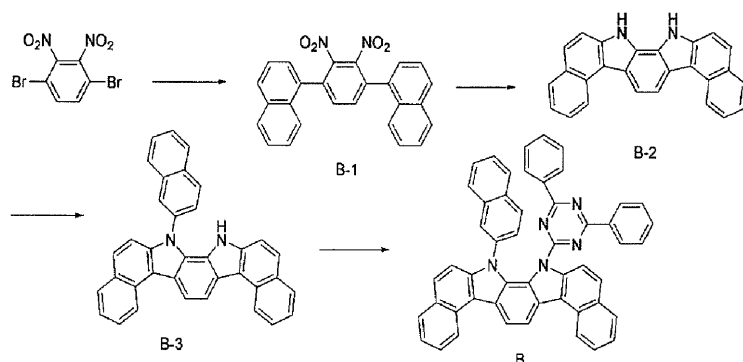
50

、 5 . 8 8 m m o l 、 7 8 . 8 8 %) を得た。

【 0 0 4 3 】

[製造例 2] 化合物 (B) の製造

【 化 1 6 】



10

【 0 0 4 4 】

化合物 (B - 1) の製造

1,4-ジブロモ-2,3-ジニトロベンゼン (2 0 g 、 6 1 . 3 6 m m o l) 、 1 - ナフタレンボロン酸 (2 6 g 、 1 5 3 . 4 2 m m o l) 、 Pd (P P h ₃) ₄ (3 . 5 4 g 、 3 . 0 6 m m o l) 、 2 M の K ₂ C O ₃ 水溶液 (9 0 m L) 、 トルエン (2 0 0 m L) およびエタノール (1 0 0 m L) の混合物を還流下で 1 0 時間攪拌した。この反応混合物を周囲温度まで冷却した後で、これに蒸留水を添加し、得られた混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通じた精製で化合物 (B - 1) (2 2 g 、 5 2 . 3 2 m m o l 、 8 5 . 2 8 %) を得た。

20

【 0 0 4 5 】

化合物 (B - 2) の製造

化合物 (B - 1) (2 2 g 、 5 2 . 3 2 m m o l) およびトリエチルホスファイト (2 0 0 m L) を混合して 1 8 0 ° で攪拌した。化合物 (A - 2) の合成と同じ手順に従って、化合物 (B - 2) (1 0 g 、 2 8 . 0 5 m m o l 、 5 3 . 9 5 %) を得た。

【 0 0 4 6 】

化合物 (B - 3) の製造

化合物 (B - 2) (1 0 g 、 2 8 . 0 5 m m o l) 、 2 - ヨードナフタレン (7 . 1 g 、 2 8 . 0 5 m m o l) 、 銅粉体 (2 . 6 7 g 、 4 2 . 0 8 m m o l) 、 K ₂ C O ₃ (1 1 . 6 3 g 、 8 4 . 1 7 m m o l) 、 1 8 - クラウン - 6 (0 . 5 9 g 、 2 . 2 4 m m o l) および 1 , 2 - ジクロロベンゼン (1 0 0 m L) の混合物を 1 9 0 ° で 2 0 時間攪拌した。周囲温度まで冷却した後で、減圧下で有機溶媒を蒸留除去した。これに蒸留水を添加し、この混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通じた精製で化合物 (B - 3) (4 g 、 8 . 2 8 m m o l 、 2 9 . 6 0 %) を得た。

30

【 0 0 4 7 】

化合物 (B) の製造

D M F (2 0 m L) 中に溶解された Na H (0 . 4 9 g 、 1 2 . 4 3 m m o l 、 鋳物油中 6 0 % 分散物) を収容する反応容器に、 D M F (2 0 m L) 中に溶解された化合物 (B - 3) (4 g 、 8 . 2 8 m m o l) の溶液を添加した。1 時間後、これに、 D M F (2 0 m L) 中に溶解された 2 - クロロ - 4 , 6 - ジフェニル triアジン (2 . 6 6 g 、 9 . 9 4 m m o l) の溶液を添加した。1 2 時間の攪拌後、蒸留水を添加し、生じた固体を減圧下で濾別した。酢酸エチルおよび D M F からの再結晶化によって化合物 (B) (3 . 5 g 、 4 . 9 0 m m o l 、 5 9 . 2 1 %) を得た。

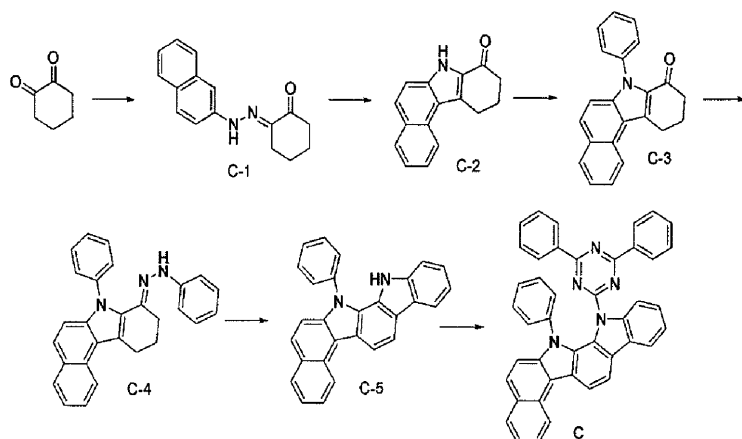
40

【 0 0 4 8 】

[製造例 3] 化合物 (C) の製造

50

【化 17】



10

【0049】

化合物(C-1)の製造

エタノール(1000 mL)中に溶解した1,2-シクロヘキシルジオン(42.52 g、379.26 mmol)の溶液に、2-ナフチルヒドラジン(20 g、126.42 mmol)をゆっくりと添加した。これに酢酸(0.28 mL、5.05 mmol)を添加し、この混合物を40 に加熱した。2時間後、この混合物を冷却し、これに蒸留水を添加した。生じた固体は減圧下で濾別されて、化合物(C-1)(17 g、67.37 mmol、53.47%)を得た。

20

【0050】

化合物(C-2)の製造

酢酸(100 mL)中に溶解した化合物(C-1)(17 g、67.37 mmol)に、トリフルオロ酢酸(10 mL)を添加した。周囲温度で2時間攪拌後、これに蒸留水を添加した。この混合物をNaOH水溶液で中和し、酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通した精製で化合物(C-2)(11 g、46.75 mmol、69.39%)を得た。

【0051】

化合物(C-3)の製造

化合物(B-3)の合成と同じ手順に従って、化合物(C-3)(10 g、32.11 mmol、68.69%)を得た。

30

【0052】

化合物(C-4)の製造

化合物(C-1)の合成と同じ手順に従って、化合物(C-4)(12 g、29.88 mmol、93.07%)を得た。

【0053】

化合物(C-5)の製造

化合物(C-2)の合成と同じ手順に従って、化合物(C-5)(6 g、15.68 mmol、52.50%)を得た。

40

【0054】

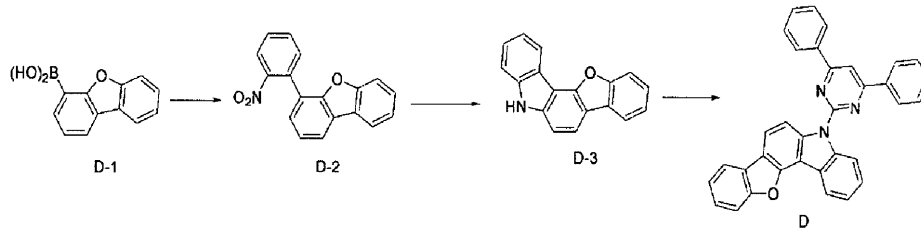
化合物(C)の製造

化合物(B)の合成と同じ手順に従って、化合物(C)(5 g、8.14 mmol、51.95%)を得た。

【0055】

[製造例4]化合物(D)の製造

【化 1 8】



【 0 0 5 6】

化合物 (D - 2) の製造

10

化合物 (A - 1) の合成と同じ手順に従うが化合物 (D - 1) を用いて、化合物 (D - 2) (1 1 g、3 8 . 0 2 m m o l、8 9 . 2 2 %) を得た。

【 0 0 5 7】

化合物 (D - 3) の製造

化合物 (A - 2) の合成と同じ手順に従って、化合物 (D - 3) (8 g、3 1 . 0 9 m m o l、8 1 . 7 8 %) を得た。

【 0 0 5 8】

化合物 (D) の製造

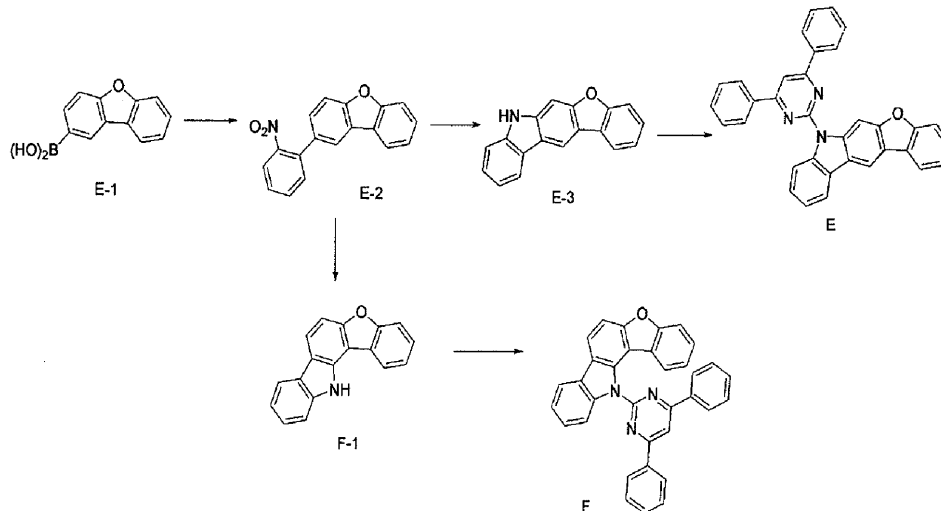
化合物 (B) の合成と同じ手順に従って、化合物 (D) (6 g、1 2 . 3 0 m m o l、3 8 . 7 0 %) を得た。

20

【 0 0 5 9】

[製造例 5] 化合物 E および F の製造

【化 1 9】



30

【 0 0 6 0】

化合物 (E - 2) の製造

40

化合物 (A - 1) の合成と同じ手順に従うが化合物 (E - 1) を用いて、化合物 (E - 2) (1 5 g、5 1 . 8 5 m m o l、8 6 . 5 1 %) を得た。

【 0 0 6 1】

化合物 (E - 3) の製造

化合物 (A - 2) の合成と同じ手順に従って、化合物 (E - 3) (6 g、2 3 . 3 1 m m o l、4 4 . 9 7 %) を得た。

【 0 0 6 2】

化合物 (E) の製造

化合物 (B) の合成と同じ手順に従って、化合物 (E) (5 g、1 0 . 2 5 m m o l、4 3 . 9 9 %) を得た。

【 0 0 6 3】

50

化合物 (F - 1) の製造

化合物 (A - 2) の合成と同じ手順に従って、化合物 (F - 1) (3 g、11.65 mmol、22.48%) を得た。

【 0064 】

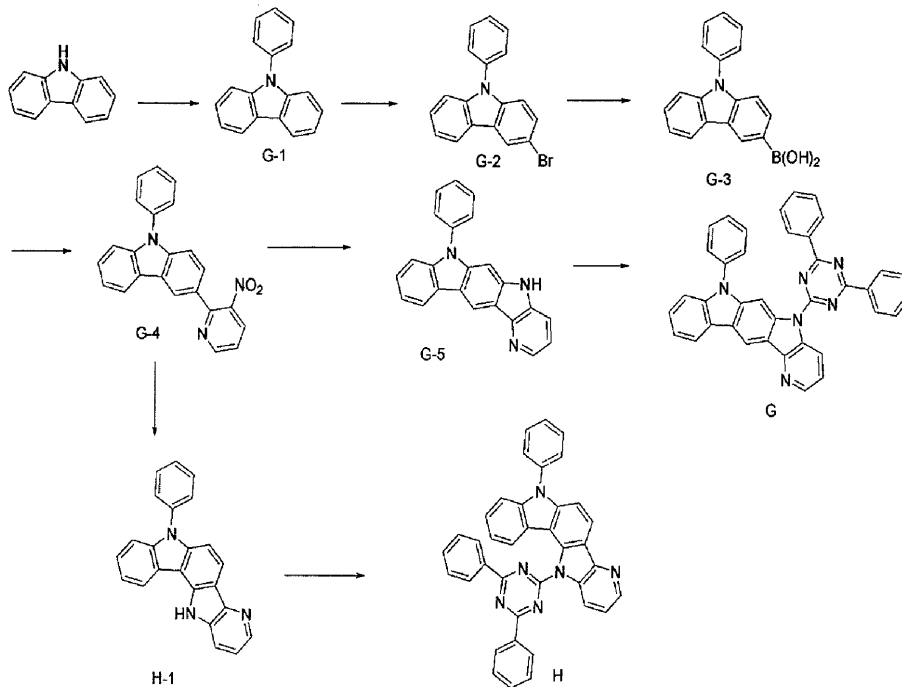
化合物 (F) の製造

化合物 (B) の合成と同じ手順に従って、化合物 (F) (3 g、6.15 mmol、52.81%) を得た。

【 0065 】

[製造例 6] 化合物 (G) および (H) の製造

【 化 20 】



【 0066 】

化合物 (G - 1) の製造

カルバゾール (20 g、119.6 mmol)、ヨードベンゼン (20 mL、179.41 mmol)、銅 (11.4 g、179.41 mmol)、 K_2CO_3 (49 g、358.8 mmol)、18 - クラウン - 6 (2.5 g、9.56 mmol) および 1,2 - ジクロロベンゼンの混合物を 190 で 12 時間攪拌した。周囲温度まで冷却した後で、この反応混合物を減圧下で蒸留した。これに蒸留水を添加し、得られた混合物を酢酸エチルで抽出した。この抽出物を硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留した。カラムを通して精製して、化合物 (G - 1) (22 g、90.42 mmol、75.60%) を得た。

【 0067 】

化合物 (G - 2) の製造

化合物 (A - 4) の合成と同じ手順に従って、化合物 (G - 2) (25 g、77.59 mmol、85.81%) を得た。

【 0068 】

化合物 (G - 3) の製造

化合物 (A - 5) の合成と同じ手順に従って、化合物 (G - 3) (11 g、38.31 mmol、49.37%) を得た。

【 0069 】

化合物 (G - 4) の製造

化合物 (A - 1) の合成と同じ手順に従って、化合物 (G - 4) (12 g、32.84

10

20

30

40

50

mmol、85.72%)を得た。

【0070】

化合物(G-5)の製造

化合物(A-2)の合成と同じ手順に従って、反応が4時間行われて、化合物(G-5)(6g、17.99mmol、54.80%)を得た。

【0071】

化合物(G)の製造

化合物(B)の合成と同じ手順に従って、化合物(G)(7g、12.39mmol、68.91%)を得た。

【0072】

化合物(H-1)の製造

化合物(A-2)の合成と同じ手順に従って、反応が4時間行われて化合物(H-1)(2g、5.99mmol、18.26%)を得た。

【0073】

化合物(H)の製造

化合物(B)の合成と同じ手順に従って、化合物(H)(1.7g、3.01mmol、50.26%)を得た。

【0074】

製造例1~6の手順に従って、有機電界発光化合物(TA、TBおよびTC)が製造された。このようにして製造されたこれらの有機電界発光化合物の置換基(Ar₁、Ar₂)、並びにこれら化合物の¹H NMRおよびMS/FABデータが表1および2に示される。

【0075】

10

20

【表 1】

[表 1]

化合物	Ar ₁	Ar ₂	¹ H NMR(CDCl ₃ , 200 MHz)	MS/FAB	
				実測値	計算値
TA-1	フェニル	H1	δ = 7.05(2H, m), 7.29(1H, m), 7.45~7.67(15H, m), 7.94~7.96(4H, m), 8.12~8.16(2H, m), 8.3(4H, m), 8.54(1H, m)	611.73	611.24
	フェニル	H4	δ = 7.29(1H, m), 7.41~7.51(10H, m), 7.58~7.67(5H, m), 7.79(4H, m), 7.94~7.96(4H, m), 8.12~8.16(2H, m), 8.54(1H, m), 8.63(1H, s)	612.72	612.23
	フェニル	H12	δ = 7.29(1H, m), 7.41~7.51(10H, m), 7.58~7.67(5H, m), 7.94~7.96(4H, m), 8.12~8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(1H, m)	613.71	613.23
	フェニル	H19	δ = 7.29(1H, m), 7.45~7.5(4H, m), 7.58~7.67(5H, m), 7.8(1H, m), 7.94~7.96(4H, m), 8.05~8.16(5H, m), 8.54(1H, m), 9.74(1H, m)	510.59	510.18
	フェニル	H32	δ = 7.29(1H, m), 7.45~7.67(11H, m), 7.94~8.01(5H, m), 8.12~8.18(3H, m), 8.54(1H, m)	515.63	515.15
	フェニル	H42	δ = 7.25~7.33(4H, m), 7.45~7.5(5H, m), 7.58~7.67(10H, m), 7.94~7.96(5H, m), 8.12~8.16(3H, m), 8.54~8.55(2H, m)	623.74	623.24
	フェニル	H69	δ = 7.29~7.32(2H, m), 7.45~7.5(4H, m), 7.58~7.72(7H, m), 7.86(1H, m), 7.94~7.96(4H, m), 8.12~8.16(2H, m), 8.54(1H, m), 8.76(1H, m), 8.93(1H, m), 9.75(1H, m)	536.62	536.20
	フェニル	H78	δ = 7.29(1H, m), 7.45~7.54(17H, m), 7.79(2H, m), 7.94~7.96(4H, m), 8.12~8.2(4H, m), 8.3(4H, m), 8.54(1H, m)	687.83	687.27
	フェニル	H82	δ = 1.73(2H, m), 1.88(2H, m), 2.72(1H, m), 3.64(1H, m), 7.29(1H, m), 7.41~7.51(10H, m), 7.58~7.71(6H, m), 7.94~7.96(2H, m), 8.05(1H, m), 8.12~8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(1H, m)	695.85	695.30
	フェニル	H90	δ = 1.36(3H, m), 1.43(4H, m), 1.65(4H, m), 1.8(2H, m), 2.09(1H, s), 7.29(1H, m), 7.41~7.51(10H, m), 7.58~7.71(6H, m), 7.94~7.96(2H, m), 8.05(1H, m), 8.12~8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(1H, m)	747.93	747.34

10

20

30

【表 2】

(表1のつづき)

	2-ナフチル	H92	$\delta = 7.29(1H, m), 7.36\sim 7.41(3H, m), 7.5\sim 7.51(5H, m), 7.59\sim 7.67(5H, m), 7.83(1H, m), 7.94\sim 8(7H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(1H, m)$	687.79	687.24	
	1-ナフチル	H94	$\delta = 7.29(1H, m), 7.41(2H, m), 7.45(1H, m), 7.47\sim 7.55(18H, m), 7.79(2H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.08\sim 8.16(5H, m), 8.54(1H, m)$	726.86	726.28	
	H99	H98	$\delta = 7.25\sim 7.29(3H, m), 7.36\sim 7.41(3H, m), 7.5\sim 7.51(5H, m), 7.59\sim 7.68(7H, m), 7.79\sim 7.85(5H, m), 7.94\sim 8(7H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(1H, m)$	815.96	815.30	10
	H100	H1	$\delta = 1.35(9H, s), 7.05(2H, m), 7.28\sim 7.29(3H, m), 7.46\sim 7.54(9H, m), 7.63\sim 7.67(3H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.3(4H, m), 8.54(1H, m)$	667.84	667.30	
	H1	H1	$\delta = 7.05(4H, m), 7.29(1H, m), 7.47\sim 7.54(13H, m), 7.63\sim 7.67(3H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.3(8H, m), 8.54(1H, m)$	764.91	764.29	
	H4	H4	$\delta = 7.29(1H, m), 7.41(4H, m), 7.5\sim 7.51(9H, m), 7.63\sim 7.67(3H, m), 7.79(8H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.54(1H, m), 8.63(2H, s)$	766.89	766.28	20
	H12	H12	$\delta = 7.29(1H, m), 7.41(4H, m), 7.5\sim 7.51(9H, m), 7.63\sim 7.67(3H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.28(8H, m), 8.54(1H, m)$	768.86	768.27	
TA-7	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.29(1H, m), 7.39(3H, m), 7.45\sim 7.63(13H, m), 7.91\sim 7.96(5H, m), 8.12(1H, m), 8.3\sim 8.31(6H, m)$	661.79	661.25	
	フェニル	H4	$\delta = 7.29(1H, m), 7.39\sim 7.51(13H, m), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.79(4H, m), 7.91\sim 7.96(5H, m), 8.12(1H, m), 8.31(2H, m), 8.63(1H, s)$	662.78	662.25	30
	フェニル	H12	$\delta = 7.29(1H, m), 7.39\sim 7.51(13H, m), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.91\sim 7.96(5H, m), 8.12(1H, m), 8.28\sim 8.31(6H, m)$	663.77	663.24	
	H2	H40	$\delta = 7.29\sim 7.39(5H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(7H, m), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.71(1H, m), 7.91\sim 7.96(5H, m), 8.12(1H, m), 8.28\sim 8.34(5H, m), 8.45(1H, m)$	651.76	651.24	
	H8	H91	$\delta = 5.6(1H, m), 6.9(1H, m), 7.29(1H, m), 7.39(3H, m), 7.5(1H, m), 7.63(1H, m), 7.91\sim 7.96(5H, m), 8.12(1H, m), 8.31(2H, m), 8.76(2H, m), 8.82(3H, m)$	539.59	539.19	
TA-13	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.45\sim 7.54(15H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.16(1H, m), 8.3(4H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m)$	611.73	611.24	40
	フェニル	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.58\sim 7.67(6H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.16(1H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m), 8.63(1H, s)$	612.72	612.23	

【表 3】

(表1のつづき)

	フェニル	H12	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.58\sim 7.67(6H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.16(1H, m), 8.28(4H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m)$	613.71	613.23	10
	H2	H87	$\delta = 7.25\sim 7.34(6H, m), 7.5(1H, m), 7.63\sim 7.71(10H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.34(1H, m), 8.45(1H, m), 8.54\sim 8.55(3H, m)$	700.83	700.26	
	H11	H93	$\delta = 5.11(2H, m), 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.51(5H, m), 7.63\sim 7.71(5H, m), 7.94(1H, m), 8.05(1H, m), 8.16(1H, m), 8.28(4H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m), 9.2(2H, m)$	629.71	629.23	
TA-25	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.45\sim 7.54(17H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.16(2H, m), 8.3(4H, m), 8.54(2H, m)$	661.79	661.25	20
	フェニル	H4	$\delta = 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.58\sim 7.67(8H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.16(2H, m), 8.54(2H, m), 8.63(1H, s)$	662.78	662.25	
	フェニル	H12	$\delta = 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.58\sim 7.67(8H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(2H, m)$	663.77	663.24	
	H7	H26	$\delta = 7.41\sim 7.51(6H, m), 7.58\sim 7.67(8H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.16(2H, m), 8.28(2H, m), 8.54(2H, m), 8.71(2H, m)$	586.68	586.22	
	H76	H96	$\delta = 7(1H, m), 7.26(1H, m), 7.45\sim 7.51(4H, m), 7.58\sim 7.71(10H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.16(2H, m), 8.3(2H, m), 8.5\sim 8.54(3H, m)$	585.69	585.22	
TA-27	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.45\sim 7.58(12H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.3(4H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m)$	661.79	661.25	30
	フェニル	H4	$\delta = 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m), 8.63(1H, s), (H,)$	662.78	662.25	
	フェニル	H12	$\delta = 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.28(4H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m)$	663.77	663.24	
	H24	H35	$\delta = 2.9(1H, m), 5.13(1H, m), 5.66(1H, m), 6.16(1H, m), 6.44(1H, m), 7.39(2H, m), 7.57(1H, m), 7.67(4H, m), 7.74(2H, m), 7.81(1H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m)$	588.66	588.20	
	H97	H97	$\delta = 7.41(4H, m), 7.51(8H, m), 7.57(1H, m), 7.67\sim 7.68(8H, m), 7.79(12H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.23(2H, s), 8.51\sim 8.54(2H, m)$	969.14	968.36	
TA-46	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.29(1H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(10H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.67(5H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.3(4H, m), 8.54(1H, m)$	611.73	611.24	40
	フェニル	H4	$\delta = 7.29(1H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(10H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.67(5H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.54(1H, m), 8.63(1H, s)$	612.72	612.23	
	フェニル	H12	$\delta = 7.29(1H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(10H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.67(5H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54(1H, m)$	613.71	613.23	
	H2	H59	$\delta = 7.29\sim 7.34(2H, m), 7.4(1H, s), 7.5(1H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.71(5H, m), 7.81(1H, m), 7.91\sim 7.96(3H, m), 8.06\sim 8.16(3H, m), 8.34\sim 8.38(3H, m), 8.45(1H, m), 8.54(1H, m), 8.83(1H, m)$	561.63	561.20	

【表4】

(表1のつづき)

	H10	H95	$\delta = 7.29(1H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(8H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.68(8H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.35(1H, m), 8.54(1H, m), 9.38(1H, m)$	678.78	678.25	
TA-55	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.29(1H, m), 7.39(3H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(10H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.91(3H, m), 8.12(1H, m), 8.3\sim 8.31(6H, m)$	661.79	661.25	
	フェニル	H4	$\delta = 7.29(1H, m), 7.39(3H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(10H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.79(4H, m), 7.91(3H, m), 8.12(1H, m), 8.31(2H, m), 8.63(1H, s)$	662.78	662.25	10
	フェニル	H12	$\delta = 7.29(1H, m), 7.39(3H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(10H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.91(3H, m), 8.12(1H, m), 8.28\sim 8.31(6H, m)$	663.77	663.24	
	H4	H43	$\delta = 7.22\sim 7.39(7H, m), 7.4(1H, s), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.51(5H, m), 7.55(1H, s), 7.62\sim 7.63(5H, m), 7.79(4H, m), 7.91\sim 7.97(5H, m), 8.12(1H, m), 8.31(2H, m), 8.43(1H, m), 8.63(1H, s), 8.74(1H, m)$	828.96	828.30	
	H12	H89	$\delta = 1.88\sim 1.91(2H, m), 2.3\sim 2.33(4H, m), 3.22(1H, m), 3.7(1H, m), 7.17(2H, s), 7.29(1H, m), 7.39\sim 7.41(7H, m), 7.5\sim 7.51(9H, m), 7.77(1H, m), 7.91(3H, m), 8.12(1H, m), 8.28\sim 8.31(10H, m)$	899.05	898.35	20
TA-66	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(9H, m), 7.55(1H, s), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.3(4H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m)$	661.79	661.25	
	フェニル	H4	$\delta = 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m), 8.63(1H, s), (H.)$	662.78	662.25	
	フェニル	H12	$\delta = 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.28(4H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m)$	663.77	663.24	
	H7	H49	$\delta = 1.72(6H, s), 6.55(2H, m), 6.63(2H, m), 6.73(2H, m), 7.02\sim 7.05(4H, m), 7.37(2H, m), 7.4(1H, s), 7.41(1H, m), 7.51(2H, m), 7.55(1H, s), 7.57(1H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.28(2H, m), 8.51\sim 8.54(2H, m), 8.71(2H, m)$	793.95	793.32	30
	H18	H88	$\delta = 1.94(4H, m), 2.96(4H, m), 3.7(1H, m), 7.1(1H, m), 7.17(2H, s), 7.42(1H, m), 7.49\sim 7.57(4H, m), 7.67(4H, m), 7.76(1H, m), 7.86\sim 7.96(5H, m), 8.12\sim 8.21(4H, m), 8.48\sim 8.54(3H, m), 8.91(1H, m)$	693.84	693.29	
TA-82	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.45\sim 7.58(12H, m), 7.67(2H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.3(4H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m)$	611.73	611.24	
	フェニル	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(2H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m), 8.63(1H, s)$	612.72	612.23	
	フェニル	H12	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(2H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.28(4H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m)$	613.71	613.23	40

【表5】

(表1のつづき)

	H2	H76	$\delta = 7(1H, m), 7.25\sim 7.26(2H, m), 7.33\sim 7.34(2H, m), 7.51(1H, m), 7.57(1H, m), 7.67\sim 7.71(5H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.3\sim 8.34(3H, m), 8.45\sim 8.55(4H, m)$	536.62	536.20	
	H31	H80	$\delta = 6.95\sim 7.01(3H, m), 7.25\sim 7.33(4H, m), 7.41(1H, m), 7.51(2H, m), 7.56(1H, s), 7.57\sim 7.6(2H, m), 7.67(2H, m), 7.77\sim 7.79(3H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.12\sim 8.16(2H, m), 8.54\sim 8.55(2H, m)$	635.74	635.18	
TA-106	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.45\sim 7.58(12H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.3(4H, m), 8.54(2H, m)$	661.79	661.25	10
	フェニル	H4	$\delta = 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.54(2H, m), 8.63(1H, s)$	662.78	662.25	
	フェニル	H12	$\delta = 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.57\sim 7.58(3H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(4H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.28(4H, m), 8.54(2H, m)$	663.77	663.24	
	H2	H15	$\delta = 7.34(1H, m), 7.42(1H, m), 7.49(1H, m), 7.57\sim 7.6(2H, m), 7.67\sim 7.78(7H, m), 7.92\sim 7.98(6H, m), 8.06\sim 8.16(4H, m), 8.34(1H, m), 8.45(1H, m), 8.54(2H, m)$	610.70	610.22	
	H8	H88	$\delta = 1.94(4H, m), 2.96(4H, m), 3.7(1H, m), 7.1(1H, m), 7.52\sim 7.57(3H, m), 7.67\sim 7.71(5H, m), 7.86\sim 7.96(4H, m), 8.05(1H, m), 8.12\sim 8.16(3H, m), 8.48\sim 8.54(3H, m), 8.76(2H, m), 8.82(1H, m)$	644.77	644.27	20
TA-116	フェニル	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.4\sim 7.58(15H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.16(4H, m), 8.3(4H, m)$	661.79	661.25	
	フェニル	H4	$\delta = 7.4\sim 7.58(15H, m), 7.67(4H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.16(4H, m), 8.63(1H, s), (H,)$	662.78	662.25	
	フェニル	H12	$\delta = 7.4\sim 7.58(15H, m), 7.67(4H, m), 7.94\sim 7.96(2H, m), 8.16(4H, m), 8.28(4H, m)$	663.77	663.24	
	H13	H13	$\delta = 7.4(2H, m), 7.55\sim 7.6(4H, m), 7.67(4H, m), 7.78(2H, m), 7.91\sim 7.98(6H, m), 8.06(2H, m), 8.16(4H, m), 8.38(2H, m)$	610.70	610.22	30
	H12	H86	$\delta = 2.59(6H, s), 7.25\sim 7.33(3H, m), 7.4\sim 7.41(4H, m), 7.49\sim 7.55(9H, m), 7.62\sim 7.67(9H, m), 7.94\sim 7.96(3H, m), 8.12\sim 8.16(5H, m), 8.28(4H, m), 8.55(1H, m)$	933.11	932.36	
TB-4	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(14H, m), 7.97(1H, m), 8.12(1H, m), 8.3(4H, m), 8.43(2H, m)$	562.66	562.22	
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.63(14H, m), 7.79(4H, m), 7.97(1H, m), 8.12(1H, m), 8.43(2H, m), 8.63(1H, s), (H,)$	563.65	563.21	
	H5	フェニル	$\delta = 7.14(2H, m), 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(8H, m), 7.7(2H, m), 7.97(1H, m), 8.12\sim 8.15(3H, m), 8.43(2H, m), 8.53(2H, m), 9.3(2H, m)$	564.64	564.21	
	H12	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.63(14H, m), 7.97(1H, m), 8.12(1H, m), 8.28(4H, m), 8.43(2H, m)$	564.64	564.21	40
	H24	フェニル	$\delta = 2.9(1H, m), 5.13(1H, m), 5.66(1H, m), 6.16(1H, m), 6.44(1H, m), 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.5(4H, m), 7.58\sim 7.63(3H, m), 7.81(1H, m), 7.94\sim 7.97(3H, m), 8.12(1H, m), 8.43(1H, m)$	448.52	448.17	

【表 6】

(表1のつづき)

	H38	フェニル	$\delta = 7.16\sim 7.22(2H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.51(16H, m), 7.97(1H, m), 8.09\sim 8.12(2H, m), 8.28(1H, m), 8.43(2H, m)$	551.64	551.21	
	H49	フェニル	$\delta = 1.72(6H, s), 6.55(2H, m), 6.63(2H, m), 6.73(2H, m), 7.02\sim 7.05(4H, m), 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.37(2H, m), 7.45\sim 7.63(8H, m), 7.97(1H, m), 8.12(1H, m), 8.43(2H, m)$	616.75	616.26	
	H56	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(10H, m), 7.78(2H, m), 7.97\sim 7.98(3H, m), 8.12(1H, m), 8.22(2H, m), 8.43(2H, m)$	510.59	510.18	10
	H72	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(10H, m), 7.97(1H, m), 8.12(1H, m), 8.4\sim 8.47(5H, m), 8.7(1H, m), 9.24(1H, m)$	487.55	487.18	
	H81	フェニル	$\delta = 7.22\sim 7.29(5H, m), 7.39\sim 7.5(13H, m), 7.66(1H, s), 7.79(2H, m), 7.97(1H, m), 8.12(1H, m), 8.43(2H, m)$	595.71	595.18	
TB-7	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(14H, m), 8.12(1H, m), 8.3(4H, m), 8.43(1H, m), 8.63(2H, m)$	563.65	563.21	
	H4	フェニル	$\delta = 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.63(14H, m), 7.79(4H, m), 8.12(1H, m), 8.43(1H, m), 8.63(3H, m)$	564.64	564.21	20
	H12	フェニル	$\delta = 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.63(14H, m), 8.12(1H, m), 8.28(4H, m), 8.43(1H, m), 8.63(2H, m)$	565.63	565.20	
	H23	フェニル	$\delta = 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(8H, m), 8.12(1H, m), 8.43(1H, m), 8.63(4H, m), 8.82(1H, s), (H,)$	464.48	464.15	
	H97	フェニル	$\delta = 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.51(16H, m), 7.79(6H, m), 8.12(1H, m), 8.23(1H, s), 8.43(1H, m), 8.63(2H, m)$	640.73	640.24	
TB-25	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(2H, m), 7.45\sim 7.58(12H, m), 7.97(2H, m), 8.3(4H, m), 8.43(3H, m)$	563.65	563.21	
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.41\sim 7.58(12H, m), 7.79(4H, m), 7.97(2H, m), 8.43(3H, m), 8.63(1H, s)$	564.64	564.21	30
	H9	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.41\sim 7.58(9H, m), 7.97(2H, m), 8.28(2H, m), 8.43(3H, m)$	490.52	490.17	
	H12	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.41\sim 7.58(12H, m), 7.97(2H, m), 8.28(4H, m), 8.43(3H, m)$	565.63	565.20	
	H16	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.45\sim 7.58(6H, m), 7.97(2H, m), 8.43(3H, m), 8.66(2H, m), 8.74(2H, m), 9.4(1H, m)$	462.50	462.16	
TB-33	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(1H, m), 7.45\sim 7.58(12H, m), 7.97(1H, m), 8.3(4H, m), 8.43(2H, m), 8.63(2H, m)$	564.64	564.21	
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.41\sim 7.58(12H, m), 7.79(4H, m), 7.97(1H, m), 8.43(2H, m), 8.63(3H, m)$	565.63	565.20	40
	H12	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.41\sim 7.58(12H, m), 7.97(1H, m), 8.28(4H, m), 8.43(2H, m), 8.63(2H, m)$	566.61	566.20	
	H39	フェニル	$\delta = 7.05(1H, s), 7.22(1H, m), 7.41\sim 7.51(7H, m), 7.58(4H, m), 7.94\sim 7.97(3H, m), 8.05(2H, m), 8.24(2H, m), 8.43(1H, m), 8.63(2H, m)$	533.61	533.20	

【表 7】

(表1のつづき)

	H89	フェニル	$\delta = 1.88\sim 1.91(2H, m), 2.3\sim 2.33(2H, m), 3.22(1H, m), 3.7(1H, m), 7.22(1H, m), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.58(2H, m), 7.71(1H, m), 7.97(1H, m), 8.05(1H, m), 8.28(4H, m), 8.43(1H, m), 8.63(2H, m)$	646.74	646.26	
TB-47	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.45\sim 7.63(14H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.12(1H, m), 8.3(4H, m), 8.43(1H, m)$	562.66	562.22	10
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.51(10H, m), 7.58\sim 7.63(4H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.12(1H, m), 8.43(1H, m), 8.63(1H, s)$	563.65	563.21	
	H83	フェニル	$\delta = 7.22(1H, m), 7.29(1H, m), 7.41\sim 7.51(13H, m), 7.58\sim 7.63(4H, m), 7.77\sim 7.83(10H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.12(1H, m), 8.43(1H, m), 8.63(1H, s)$	763.82	763.25	
TB-48	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(2H, m), 7.45\sim 7.62(12H, m), 7.94\sim 7.97(3H, m), 8.3(4H, m), 8.43(2H, m)$	563.65	563.21	
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.58\sim 7.62(3H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.97(3H, m), 8.43(2H, m), 8.63(1H, s)$	564.64	564.21	20
	H58	フェニル	$\delta = 6.52(1H, m), 6.87(1H, m), 7.22(2H, m), 7.33(1H, m), 7.45\sim 7.5(3H, m), 7.58\sim 7.62(8H, m), 7.93\sim 7.97(5H, m), 8.43(2H, m)$	525.60	525.20	
TB-49	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22\sim 7.25(2H, m), 7.33(1H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.3(4H, m), 8.43(1H, m), 8.55(1H, m)$	562.66	562.22	
	H4	フェニル	$\delta = 7.22\sim 7.25(2H, m), 7.33(1H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.43(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	563.65	563.21	
	H47	フェニル	$\delta = 7.22\sim 7.25(4H, m), 7.33(1H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.5(3H, m), 7.55(1H, s), 7.58\sim 7.62(6H, m), 7.94\sim 7.97(4H, m), 8.43(3H, m), 8.55(1H, m)$	576.65	576.21	30
TB-50	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(2H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.97(2H, m), 8.3(4H, m), 8.43(2H, m)$	563.65	563.21	
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.79(4H, m), 7.97(2H, m), 8.43(2H, m), 8.63(1H, s)$	564.64	564.21	
	H62	フェニル	$\delta = 6.59\sim 6.63(4H, m), 6.77\sim 6.81(2H, m), 6.89\sim 6.94(4H, m), 7.2\sim 7.22(4H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.5(3H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.97(2H, m), 8.43(2H, m)$	591.66	591.21	
TB-51	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22\sim 7.25(2H, m), 7.33(1H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.3(4H, m), 8.43(1H, m), 8.55(1H, m)$	562.66	562.22	40
	H4	フェニル	$\delta = 7.22\sim 7.25(2H, m), 7.33(1H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.43(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	563.65	563.21	
	H33	フェニル	$\delta = 7.22\sim 7.25(2H, m), 7.33(1H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.5(3H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.94\sim 7.97(2H, m), 8.43(1H, m), 8.55(1H, m), 9(1H, s)$	417.49	417.10	

【表 8】

(表1のつづき)

TB-52	H1	フェニル	$\delta = 7.05(2H, m), 7.22(2H, m), 7.4(1H, s), 7.45\sim 7.54(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.97(2H, m), 8.3(4H, m), 8.43(2H, m)$	563.65	563.21
	H4	フェニル	$\delta = 7.22(2H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.79(4H, m), 7.97(2H, m), 8.43(2H, m), 8.63(1H, s)$	564.64	564.21
	H79	H12	$\delta = 7.22(2H, m), 7.4(1H, s), 7.41\sim 7.51(9H, m), 7.55(1H, s), 7.58(2H, m), 7.97(2H, m), 8.28(4H, m), 8.43(2H, m)$	565.63	565.20

10

【表 9】

[表 2]

化合物	Ar ₁	¹ H NMR(CDCl ₃ , 200 MHz)	MS/FAB	
			実測値	計算値
TC-1	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.38(3H, m), 7.47(2H, m), 7.53\sim 7.54(5H, m), 7.66(1H, m), 7.89\sim 7.94(3H, m), 8.3(4H, m), 8.55(1H, m)$	486.56	486.17
	H9	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(4H, m), 7.51\sim 7.53(3H, m), 7.66(1H, m), 7.89\sim 7.94(3H, m), 8.28(2H, m), 8.55(1H, m)$	413.43	413.13
	H12	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.51\sim 7.53(5H, m), 7.66(1H, m), 7.89\sim 7.94(3H, m), 8.28(4H, m), 8.55(1H, m)$	488.54	488.16
TC-2	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.51(4H, m), 7.59(1H, m), 7.66(2H, m), 7.79(4H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	487.55	487.17
	H12	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.51(4H, m), 7.59(1H, m), 7.66(2H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.28(4H, m), 8.55(1H, m)$	488.54	488.16
	H20	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.38(3H, m), 7.59(1H, m), 7.66\sim 7.67(4H, m), 7.8(2H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m), 8.7(1H, s)$	385.42	385.12
TC-3	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.42(1H, s), 7.49(1H, s), 7.51(4H, m), 7.66(1H, m), 7.79(4H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	487.55	487.17
	H12	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.42(1H, s), 7.49(1H, s), 7.51(4H, m), 7.66(1H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.28(4H, m), 8.55(1H, m)$	488.54	488.16
	H94	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.42(1H, s), 7.45\sim 7.47(3H, m), 7.49(1H, s), 7.5\sim 7.51(6H, m), 7.58(2H, m), 7.66(1H, m), 7.79(2H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m)$	551.64	551.20
TC-4	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.38(3H, m), 7.42(1H, s), 7.47(2H, m), 7.49(1H, s), 7.54(4H, m), 7.66(1H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.3(4H, m), 8.55(1H, m)$	486.56	486.17
	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.42(1H, s), 7.49(1H, s), 7.51(4H, m), 7.66(1H, m), 7.79(4H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	487.55	487.17
	H95	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.42(1H, s), 7.45(1H, m), 7.49(1H, s), 7.51(4H, m), 7.58\sim 7.66(5H, m), 7.79(4H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m)$	551.64	551.20

20

30

40

【表 10】

(表2のつづき)

TC-5	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.19\sim 7.25(2H, m), 7.32\sim 7.38(3H, m), 7.47(2H, m), 7.54(4H, m), 7.66(2H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.3(4H, m), 8.55(1H, m)$	486.56	486.17	10
	H12	$\delta = 7.19\sim 7.25(2H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.51(4H, m), 7.66(2H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.28(4H, m), 8.55(1H, m)$	488.54	488.16	
	H50	$\delta = 6.59\sim 6.63(4H, m), 6.77(2H, m), 6.89\sim 6.92(4H, m), 7.19\sim 7.25(2H, m), 7.32\sim 7.38(5H, m), 7.66(2H, m), 7.89\sim 7.94(2H, m), 8.55(1H, m)$	514.57	514.17	
	H70	$\delta = 7.19\sim 7.25(2H, m), 7.32\sim 7.38(4H, m), 7.66\sim 7.72(3H, m), 7.86\sim 7.94(3H, m), 8.5\sim 8.55(3H, m), 8.78(2H, m)$	411.45	411.14	
TC-6	H4	$\delta = 7.13(1H, m), 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.41(5H, m), 7.51(4H, m), 7.66(1H, m), 7.79(4H, m), 7.89\sim 7.94(3H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s), (H,)$	487.55	487.17	20
	H14	$\delta = 7.13(1H, m), 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.42(5H, m), 7.49(1H, m), 7.63\sim 7.66(2H, m), 7.89\sim 7.94(4H, m), 8.21(1H, m), 8.55(1H, m)$	384.43	384.13	
	H48	$\delta = 7.13(1H, m), 7.25(1H, m), 7.32\sim 7.38(3H, m), 7.51(2H, m), 7.62\sim 7.66(5H, m), 7.89\sim 7.94(3H, m), 8.43(2H, m), 8.55(1H, m), 9.34(2H, m)$	500.55	500.16	
TC-7	H12	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.6(1H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.05(1H, m), 8.28(4H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	504.60	504.14	30
	H30	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.5\sim 7.52(4H, m), 7.6(1H, m), 7.7(1H, m), 7.79(1H, m), 7.94\sim 7.98(3H, m), 8.05(1H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	405.53	405.06	
	H73	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.5\sim 7.52(3H, m), 7.6(1H, m), 7.94\sim 7.99(4H, m), 8.05(1H, m), 8.4\sim 8.47(3H, m), 8.55(1H, m), 8.75(2H, m)$	427.52	427.11	
TC-8	H1	$\delta = 7.05(2H, m), 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.47\sim 7.54(8H, m), 7.8(1H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.08(1H, m), 8.3(4H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	502.63	502.15	40
	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.79\sim 7.8(5H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.08(1H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	503.62	503.15	
	H96	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.68(2H, m), 7.79\sim 7.8(3H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.08(1H, m), 8.28(4H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	580.70	580.17	
TC-9	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.78(1H, s), 7.79(4H, m), 7.86(1H, s), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	503.15	503.62	40
	H52	$\delta = 6.63(2H, m), 6.97(2H, m), 7.16\sim 7.25(7H, m), 7.33\sim 7.37(3H, m), 7.5\sim 7.52(2H, m), 7.78(1H, s), 7.86(1H, s), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	546.70	546.12	
	H65	$\delta = 6.38\sim 6.39(4H, m), 6.56(2H, m), 6.63(4H, m), 6.73(1H, m), 6.81(2H, m), 7.2\sim 7.25(5H, m), 7.33(1H, m), 7.5\sim 7.52(2H, m), 7.78(1H, s), 7.86(1H, s), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	605.75	605.19	

【表 1 1】

(表 2 のつづき)

TC-10	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.78(1H, s), 7.79(4H, m), 7.86(1H, s), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	503.62	503.15
	H6	$\delta = 7.25(1H, m), 7.32(1H, s), 7.33(1H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.78(1H, s), 7.79(2H, m), 7.86(1H, s), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.28(2H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	503.62	503.15
	H55	$\delta = 6.63(4H, m), 6.81(2H, m), 6.99\sim 7.05(4H, m), 7.25(3H, m), 7.33\sim 7.37(3H, m), 7.5\sim 7.52(2H, m), 7.78(1H, s), 7.86(1H, s), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	540.68	540.17
TC-11	H4	$\delta = 7.25\sim 7.33(3H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.98(3H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	503.62	503.15
	H12	$\delta = 7.25\sim 7.33(3H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.94\sim 7.98(3H, m), 8.28(4H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	504.60	504.14
	H28	$\delta = 6.47(1H, m), 6.58(1H, m), 7.25\sim 7.33(3H, m), 7.41\sim 7.52(8H, m), 7.58(2H, m), 7.79(2H, m), 7.94\sim 7.98(3H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	490.62	490.15
TC-12	H4	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(2H, m), 7.41(2H, m), 7.5\sim 7.52(6H, m), 7.79(4H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.05(1H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m), 8.63(1H, s)$	503.62	503.15
	H34	$\delta = 7.09(1H, m), 7.25(1H, m), 7.33(2H, m), 7.5\sim 7.52(2H, m), 7.69(1H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.05(1H, m), 8.45(1H, m), 8.55(1H, m)$	340.40	340.07
	H77	$\delta = 7.25(1H, m), 7.33(2H, m), 7.5\sim 7.57(3H, m), 7.68(2H, m), 7.79(2H, m), 7.94\sim 7.98(2H, m), 8.05(1H, m), 8.42\sim 8.45(2H, m), 8.55(1H, m), 8.7(1H, m), 9.24(1H, m)$	426.53	426.12

10

20

【 0 0 7 6 】

[実施例 1 ~ 1 0]

30

本発明の有機電界発光化合物を使用した O L E D の製造

本発明の電界発光化合物を使用することにより O L E D 素子が製造された。

まず、O L E D 用ガラス (サムスン - コーニングにより製造) から調製された透明電極 I T O 薄膜 (1 5 /) を、トリクロロエチレン、アセトン、エタノールおよび蒸留水を順に使用した超音波洗浄にかけ、イソプロパノール中に貯蔵し、その後使用した。

次に、真空蒸着装置の基体ホルダに I T O 基体を取り付け、この真空蒸着装置のセル内に 4 , 4 ' , 4 " - トリス (N , N - (2 - ナフチル) - フェニルアミノ) トリフェニルアミン (2 - T N A T A) (この化学構造は以下に示される) を入れ、次いでチャンバー内を 10^{-6} t o r r の真空に至るまで通気させた。セルに電流を適用して、2 - T N A T A を蒸発させ、それにより I T O 基体上に 6 0 n m の厚みを有する正孔注入層の蒸着物を生じさせた。

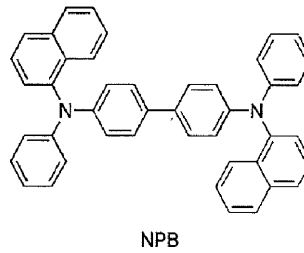
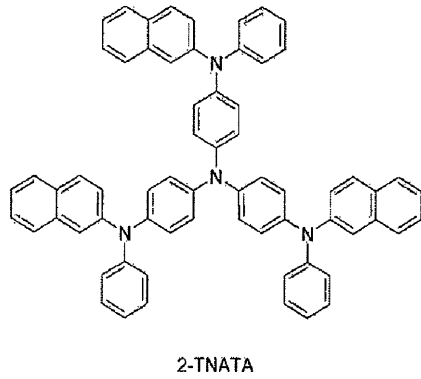
40

【 0 0 7 7 】

次いで、真空蒸着装置の他のセルに、N , N ' - ビス (- ナフチル) - N , N ' - ジフェニル - 4 , 4 ' - ジアミン (N P B) を入れ、このセルに電流を適用して N P B を蒸発させ、それにより正孔注入層上に 2 0 n m の厚みの正孔輸送層の蒸着物を生じさせた。

【 0 0 7 8 】

【化 2 1】



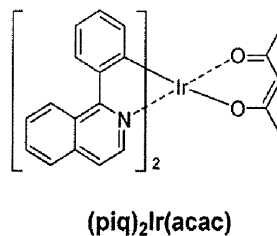
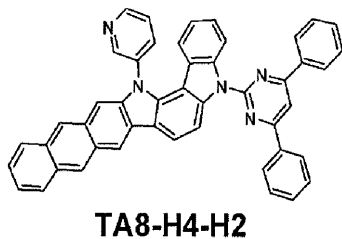
10

【 0 0 7 9 】

前記真空蒸着装置の一方のセルに、 10^{-6} torrでの真空昇華で精製された本発明の化合物（例えば、化合物TA8-H4-H2）を、他方のセルには電界発光ドーパント（例えば、化合物 $(\text{piq})_2\text{Ir}(\text{acac})$ ）をそれぞれ入れた。この2種の材料は異なる速度で蒸発させられ、4～10モル%の濃度でのドーピングを行い、それにより、正孔輸送層上に30nmの厚さを有する電界発光層を蒸着させた。

【 0 0 8 0 】

【化 2 2】



20

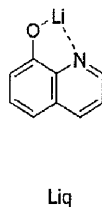
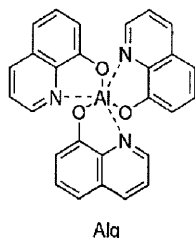
【 0 0 8 1 】

次いで、電子輸送層としてトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(III)(Alq)（この構造は以下に示される）を20nmの厚みで蒸着させ、そして電子注入層として、リチウムキノラート(Liq)を1～2nmの厚みで蒸着させた。その後、別の真空蒸着装置を使用して、150nmの厚みを有するAl陰極を蒸着させて、OLEDを製造した。

30

【 0 0 8 2 】

【化 2 3】



40

【 0 0 8 3 】

[実施例 1 1 ~ 2 0]

本発明の電界発光化合物を使用することによるOLEDの製造

実施例1～10のOLEDについてと同じ手順に従うが、ホスト材料として本発明の化合物（例えば、化合物TA4-H4-H4）を使用し、かつ電界発光ドーパントとして以下の化学式で表される有機イリジウム錯体 $(\text{Ir}(\text{ppy})_3)$ を使用して、OLEDが製造された。

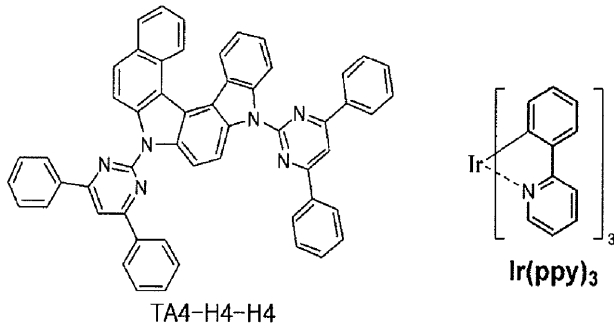
OLEDを製造するために使用されたそれぞれ材料は 10^{-6} torrでの真空昇華に

50

よって精製された後で電界発光材料として使用された。

【 0 0 8 4 】

【 化 2 4 】



10

【 0 0 8 5 】

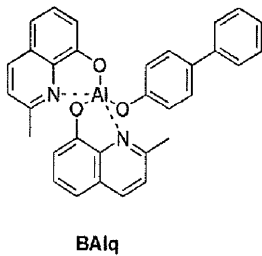
[比較例 1 および 2]

従来の電界発光材料を使用することによる O L E D の製造

実施例 1 および 1 1 に記載されるのと同じ手順に従うが、真空蒸着装置の他方のセルに、ホスト材料として本発明の電界発光化合物の代わりに、ビス(2-メチル-8-キノリナト)(p-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)(BAIq)を入れて、O L E D が製造された。

【 0 0 8 6 】

【 化 2 5 】



20

【 0 0 8 7 】

実施例 1 ~ 1 0 および実施例 1 1 ~ 2 0 から製造された O L E D (これらは本発明の有機電界発光化合物を含む)、並びに比較例 1 および 2 から製造された O L E D (これらは従来の電界発光化合物を含む)の駆動電圧および電力効率が 1, 0 0 0 c d / m² で測定され、結果が表 3 および 4 に示される。

30

【 0 0 8 8 】

表 3 および表 4 から認められうるように、本発明によって開発された有機電界発光化合物は素子性能の点で従来の材料と比較して優れた特性を示した。

【 0 0 8 9 】

【表 1 2】

[表 3]

	ホスト材料			EL材料	@1,000cd/m ²		EL色
	化合物	Ar ₁	Ar ₂		駆動電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	
実施例 1	TA8	H4	H2	(piq) ₂ Ir(acac)	5.9	3.6	赤色
実施例 2	TA33	フェニル	H74	(piq) ₂ Ir(acac)	6.2	3.8	赤色
実施例 3	TA45	H97	H69	(piq) ₂ Ir(acac)	4.9	5.1	赤色
実施例 4	TA74	H12	H12	(piq) ₂ Ir(acac)	6.4	4.0	赤色
実施例 5	TB27	H27	フェニル	(piq) ₂ Ir(acac)	5.7	3.7	赤色
実施例 6	TB40	H4	フェニル	(piq) ₂ Ir(acac)	5.1	4.3	赤色
実施例 7	TC1	H9	-	(piq) ₂ Ir(acac)	6.0	3.5	赤色
実施例 8	TC6	H14	-	(piq) ₂ Ir(acac)	5.0	4.8	赤色
実施例 9	TC9	H52	-	(piq) ₂ Ir(acac)	5.4	4.5	赤色
実施例 10	TC12	H34	-	(piq) ₂ Ir(acac)	6.1	3.9	赤色
比較例 1	BAIq			(piq) ₂ Ir(acac)	7.5	2.6	赤色

10

20

【 0 0 9 0 】

【表 1 3】

[表 4]

	ホスト材料			EL材料	@1,000cd/m ²		EL色
	化合物	Ar ₁	Ar ₂		駆動電圧 (V)	電力効率 (lm/W)	
実施例 11	TA4	H4	H4	Ir(ppy) ₃	5.4	14.2	緑色
実施例 12	TA49	フェニル	H12	Ir(ppy) ₃	5.7	14.9	緑色
実施例 13	TA58	H47	フェニル	Ir(ppy) ₃	5.2	15.7	緑色
実施例 14	TA84	H95	フェニル	Ir(ppy) ₃	5.1	16.1	緑色
実施例 15	TB3	H79	H2	Ir(ppy) ₃	6.4	13.8	緑色
実施例 16	TB30	H96	H14	Ir(ppy) ₃	6.5	13.5	緑色
実施例 17	TB45	H59	H76	Ir(ppy) ₃	5.5	15.9	緑色
実施例 18	TC3	H94	-	Ir(ppy) ₃	5.3	15.8	緑色
実施例 19	TC4	H50	-	Ir(ppy) ₃	5.6	14.7	緑色
実施例 20	TC11	H28	-	Ir(ppy) ₃	6.3	13.9	緑色
比較例 2	BAIq			Ir(ppy) ₃	7.8	8.4	緑色

30

40

【 0 0 9 1 】

表 3 から認められるように、本発明によって開発された化合物は従来の材料と比較して発光特性の点でより優れた特性を示した。本発明に従って製造された素子は従来の材料を用いて製造された比較例 1 の素子と比較して優れた電流特性を示し、それにより、1 V 以上低い駆動電圧を提供した。それらは、著しく向上した発光特性のせいで、比較例 1 の素子と比較して少なくとも 1 . 4 倍高い電流効率特性も示した。

【 0 0 9 2 】

50

表 4 から認められうるように、本発明によって開発された化合物が緑色電界発光のためのホストとして使用された場合、この素子はその優れた発光特性のせいで、比較例 2 の素子と比べて少なくとも 1.6 倍のかなり高い電力効率を示した。優れた発光特性は従来の材料と比較して確認された。特に、実施例 14 の素子は比較例 1 の素子と比べて 2.7 V 低い電圧で駆動され、実施例 17 の素子は 1000 cd/m^2 で 15.9 lm/W の電力効率および 5.5 V の駆動電圧を示した。

【0093】

よって、赤色もしくは緑色光を発光させるためのホスト材料として本発明に従う電界発光化合物を使用する素子は優れた発光特性を示すと共に、駆動電圧を低くし、その結果、特に緑色光を発光するための素子は $5.1 \sim 7.7 \text{ lm/W}$ の出力効率の増大を誘起し、結果的に電力消費の改良をもたらす。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード(参考)
C 0 7 D 471/22	(2006.01)	C 0 7 D 487/14	C S P	4 H 0 5 0
C 0 7 D 491/048	(2006.01)	C 0 7 D 471/22		
C 0 7 D 495/04	(2006.01)	C 0 7 D 491/048		
C 0 7 D 519/00	(2006.01)	C 0 7 D 495/04	1 0 3	
C 0 7 F 9/53	(2006.01)	C 0 7 D 519/00	3 0 1	
C 0 9 K 11/06	(2006.01)	C 0 7 D 519/00	3 1 1	
		C 0 7 F 9/53		
		C 0 9 K 11/06	6 9 0	
		C 0 9 K 11/06	6 6 0	

- (72)発明者 チョー, ヤン・チュン
大韓民国, 1 3 6 - 0 6 0, ソウル, ソンブク - グウ, ドナム - ドン・1 5 - 1, サムスン・アパートメント・ナンバー・1 0 1 - 1 1 1 1
- (72)発明者 クォン, ヒョク - チュー
大韓民国, 1 3 0 - 1 0 0, ソウル, トンデムン - グウ, チャンガン - ドン, サムスン・レミアン・2・チャ, ナンバー・2 2 4 - 2 0 0 1
- (72)発明者 キム, ボン・オク
大韓民国, 1 3 5 - 0 9 0, ソウル, ガンナム - グウ, サムソン - ドン・4, ハンソル・アパートメント・ナンバー・1 0 1 - 1 1 0 8
- (72)発明者 キム, ソン・ミン
大韓民国, 1 5 8 - 7 6 1, ソウル, ヤンチョン - グウ, モク・1 - ドン・9 1 7, モクドン・パラゴン, ナンバー・1 0 9 - 9 0 2
- (72)発明者 ユーン, スン・スー
大韓民国, 1 3 5 - 8 8 4, ソウル, カンナム - グウ, スソ - ドン, サミク・アパートメント, ナンバー・4 0 5 - 1 4 0 9

Fターム(参考) 3K107 AA01 CC07 CC09 CC12 CC14 CC21 DD52 DD53 DD59 DD64
DD67 DD68 DD69 DD72 DD78 FF13
4C050 AA01 AA08 BB04 CC04 CC16 DD02 EE02 FF00 GG01 HH04
4C065 AA04 AA19 BB04 BB09 CC03 DD03 DD04 EE03 EE04 HH01
JJ01 KK01 LL01 PP03 PP08 PP11 PP12 PP14 PP16 PP17
PP18
4C071 AA01 AA08 BB01 BB07 CC01 CC21 EE12 FF03 JJ01 JJ04
JJ05 JJ07 LL05
4C072 MM02 MM08
4H050 AA01 AA03 AB92