(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第6703149号
(P6703149)

(45)発行日　令和2年6月3日(2020.6.3)　(24)登録日　令和2年5月11日(2020.5.11)

(51)Int.Cl.		F I		
H01L 51/50	(2006.01)	H05B	33/14	B
C09K 11/06	(2006.01)	H05B	33/22	B
H01L 27/32	(2006.01)	C09K	11/06	660
G09F 9/30	(2006.01)	C09K	11/06	690
		H01L	27/32	

請求項の数 9　(全 139 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2019-9843(P2019-9843)
(22)出願日　平成31年1月24日(2019.1.24)
(62)分割の表示　特願2017-508203(P2017-508203)の分割
原出願日　平成28年3月10日(2016.3.10)
(65)公開番号　特開2019-110305(P2019-110305A)
(43)公開日　令和1年7月4日(2019.7.4)
審査請求日　平成31年3月11日(2019.3.11)
(31)優先権主張番号　特願2015-60728(P2015-60728)
(32)優先日　平成27年3月24日(2015.3.24)
(33)優先権主張国・地域又は機関
日本国(JP)

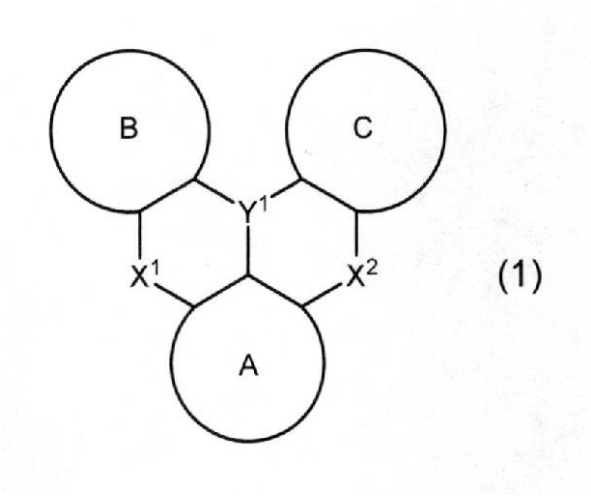
(73)特許権者　503092180
学校法人関西学院
兵庫県西宮市上ケ原一番町１番１５５号
(73)特許権者　311002067
ＪＮＣ株式会社
東京都千代田区大手町二丁目２番１号
(74)代理人　100092783
弁理士　小林　浩
(74)代理人　100128484
弁理士　井口　司
(74)代理人　100104282
弁理士　鈴木　康仁
(72)発明者　畠山　琢次
兵庫県三田市学園２丁目１番地　関西学院大学理工学部内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】有機電界発光素子

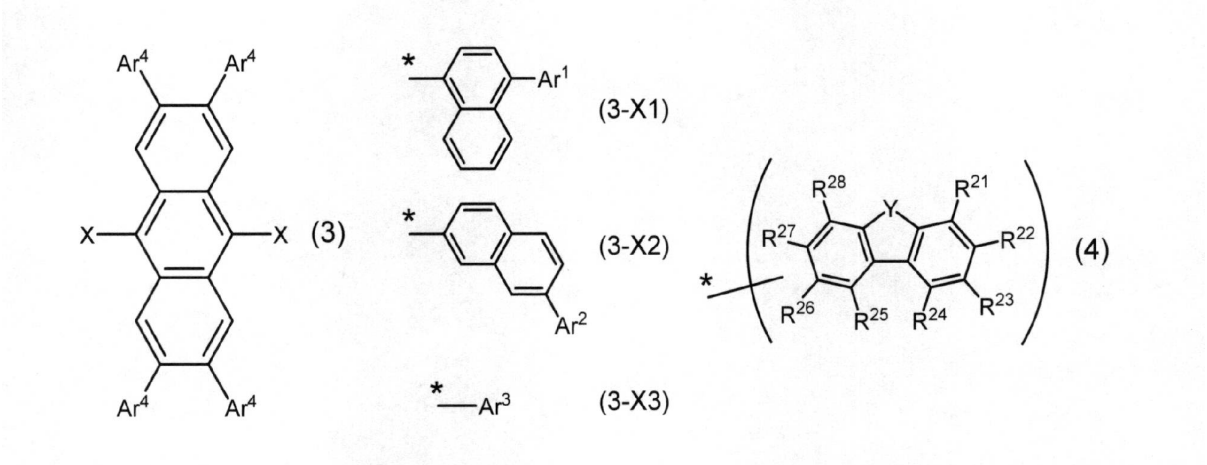
(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
陽極および陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に配置される発光層とを有する有機電界発光素子であって、
前記発光層は、下記一般式（１）で表される多環芳香族化合物および下記一般式（１）で表される構造を複数有する多環芳香族化合物の多量体の少なくとも１つと、下記一般式（３）で表されるアントラセン系化合物とを含む、有機電界発光素子。

【化１】



（上記式（１）中、
Ａ環、Ｂ環およびＣ環は、それぞれ独立して、アリール環または多環式ヘテロアリール環であって、少なくとも１つの環は多環式ヘテロアリール環であり、これらの環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、
Ｙ[1]はＢであり、
Ｘ[1]およびＸ[2]はそれぞれ独立してＮ－Ｒ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またはアルキルであり、また、前記Ｎ－ＲのＲは連結基または単結合により前記Ａ環、Ｂ環および／またはＣ環と結合していてもよく、そして、
式（１）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。）

【化２】



（上記式（３）中、
Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）および式（３－Ｘ２）におけるナフチレン部位は１つのベンゼン環で縮合されていてもよく、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式（３－Ｘ３）で表される基になることはなく、Ａｒ[1]、Ａｒ[2]およびＡｒ[3]は、それぞれ独立して、水素（Ａｒ[3]を除く）、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、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基であり、Ａｒ[3]における少なくとも１つの水素は、さらにフェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナ

フチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基で置換されていてもよく、

Ａｒ^{4}は、それぞれ独立して、水素、フェニル、ビフェニリル、ターフェニリル、ナフチル、または炭素数１～４のアルキルで置換されているシリルであり、そして、

式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素が重水素または上記式（４）で表される基で置換されていてもよく、

上記式（４）中、Ｙは－Ｏ－、－Ｓ－または＞Ｎ－Ｒ^{29}であり、Ｒ^{21}～Ｒ^{28}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、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コキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオ、トリアルキルシリル、置換されていてもよいアミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノであり、Ｒ^{21}～Ｒ^{28}のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、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、Ｒ^{29}は水素または置換されていてもよいアリールであり、式（４）で表される基は＊において式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）のナフタレン環、式（３－Ｘ３）の単結合、式（３－Ｘ３）のＡｒ^{3}と結合し、また式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素と置換し、式（４）の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。）

【請求項２】

上記式（１）中、

Ａ環、Ｂ環およびＣ環は、それぞれ独立して、アリール環または多環式ヘテロアリール環であって、少なくとも１つの環は多環式ヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも１つの水素は置換または無置換のアリール、置換または無置換のヘテロアリール、置換または無置換のジアリールアミノ、置換または無置換のジヘテロアリールアミノ、置換または無置換のアリールヘテロアリールアミノ、置換または無置換のアルキル、置換または無置換のアルコキシまたは置換または無置換のアリールオキシで置換されていてもよく、また、これらの環はＹ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}から構成される上記式中央の縮合２環構造と結合を共有する５員環または６員環を有し、

Ｙ^{1}はＢであり、

Ｘ^{1}およびＸ^{2}はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは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またはアルキルであり、また、前記Ｎ－ＲのＲは－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－または単結合により前記Ａ環、Ｂ環および／またはＣ環と結合していてもよく、前記－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－のＲは水素またはアルキルであり、

式（１）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く、そして、

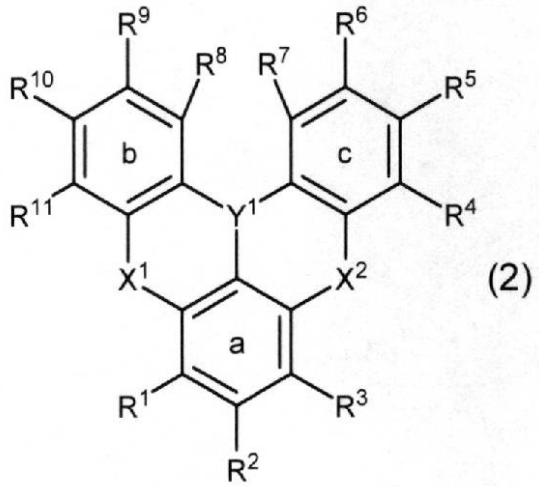
多量体の場合には、式（１）で表される構造を２または３個有する２または３量体である、

請求項１に記載する有機電界発光素子。

【請求項３】

前記発光層が、下記一般式（２）で表される多環芳香族化合物および下記一般式（２）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の少なくとも１つと、下記一般式（３’）で表されるアントラセン系化合物とを含む、請求項１に記載する有機電界発光素子。

【化３】



（上記式（２）中、

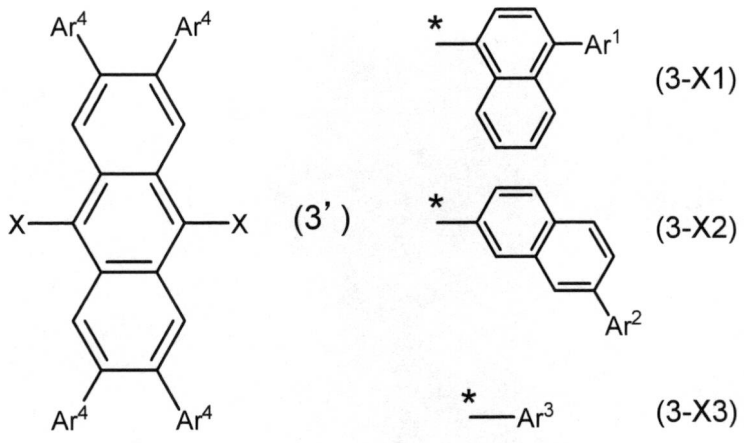
Ｒ^{1}、Ｒ^{2}、Ｒ^{3}、Ｒ^{4}、Ｒ^{5}、Ｒ^{6}、Ｒ^{7}、Ｒ^{8}、Ｒ^{9}、Ｒ^{10}およびＲ^{11}は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらにおける少なくとも１つの水素はアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、Ｒ^{1}～Ｒ^{11}のうちの隣接する基同士が結合してａ環、ｂ環またはｃ環と共にアリール環または多環式ヘテロアリール環を形成していてもよいが、ａ環、ｂ環またはｃ環の少なくとも１つの環と共に多環式ヘテロアリール環が形成されており、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、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、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、

Ｙ^{1}はＢであり、

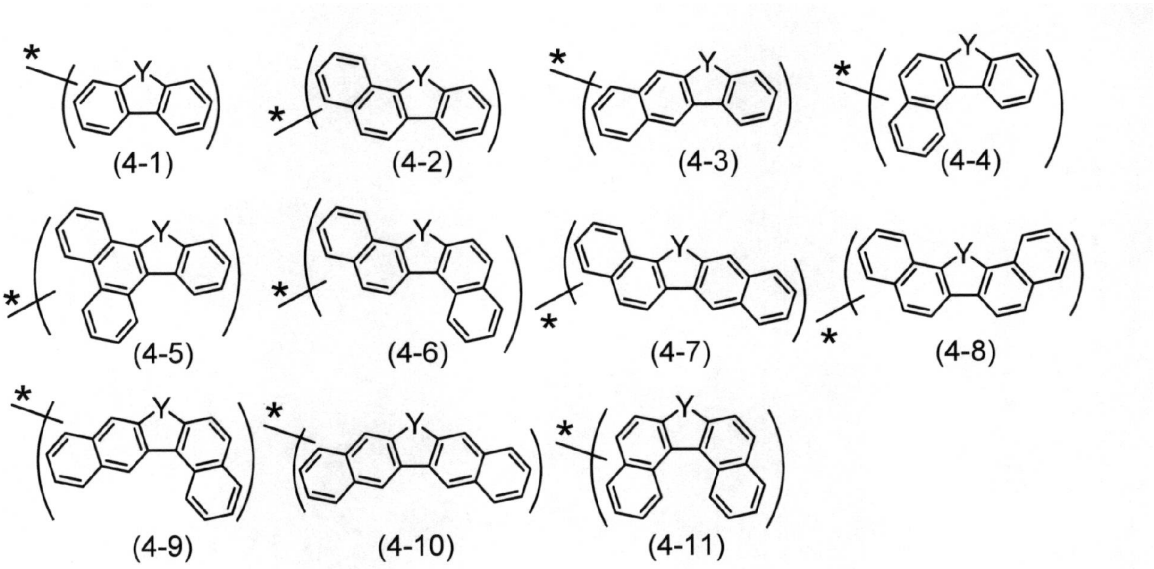
Ｘ^{1}およびＸ^{2}はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは炭素数６～１２のアリール、炭素数２～１５のヘテロアリールまたは炭素数１～６のアルキルであり、また、前記Ｎ－ＲのＲは－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－または単結合により前記ａ環、ｂ環および／またはｃ環と結合していてもよく、前記－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－のＲは炭素数１～６のアルキルであり、そして、

式（２）で表される化合物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。）

【化４】



【化５】



（上記式（３’）中、
Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３’）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式（３－Ｘ３）で表される基になることはなく、$Ａｒ^{1}$、$Ａｒ^{2}$および$Ａｒ^{3}$は、それぞれ独立して、水素（$Ａｒ^{3}$を除く）、フェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４－１）～式（４－１１）のいずれかで表される基であり、$Ａｒ^{3}$における少なくとも１つの水素は、さらにフェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４－１）～式（４－１１）のいずれかで表される基で置換されていてもよく、
$Ａｒ^{4}$は、それぞれ独立して、水素、フェニル、または、ナフチルであり、そして、
式（３’）で表される化合物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、
上記式（４－１）～式（４－１１）中、Ｙは－Ｏ－、－Ｓ－または＞Ｎ－$Ｒ^{29}$であり、$Ｒ^{29}$は水素またはアリールであり、式（４－１）～式（４－１１）で表される基における少なくとも１つの水素はアルキル、アリール、ヘテロアリール、アルコキシ、アリールオキシ、アリールチオ、トリアルキルシリル、ジアリール置換アミノ、ジヘテロアリール置換アミノ、アリールヘテロアリール置換アミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノで置換されていてもよく、式（４－１）～式（４－１１）で表される基は＊において式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）のナフタレン環、式（３－Ｘ３）の単結合、式（３－Ｘ３）の$Ａｒ^{3}$と結合し、式（４－１）～式（４－１１）の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。）

【請求項４】
上記式（２）中、
$Ｒ^{1}$、$Ｒ^{2}$、$Ｒ^{3}$、$Ｒ^{4}$、$Ｒ^{5}$、$Ｒ^{6}$、$Ｒ^{7}$、$Ｒ^{8}$、$Ｒ^{9}$、$Ｒ^{10}$および$Ｒ^{11}$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のヘテロアリールまたはジアリールアミノ（ただしアリールは炭素数６～１２のアリール）であり、また、$Ｒ^{1}$～$Ｒ^{11}$のうちの隣接する基同士が結合してａ環、ｂ環またはｃ環と共に炭素数９～１６のアリール環または多環式ヘテロアリール環を形成していてもよいが、ａ環、ｂ環またはｃ環の少なくとも１つの環と共に多環式ヘテロアリール環が形成されており、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のアリールで置換されていてもよく、前記多環式ヘテロアリール環は、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、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およびチアントレン環からなる群から選択され、

Y^1はＢであり、

X^1およびX^2はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは炭素数６～１０のアリールであり、そして、

式（２）で表される化合物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く、

上記式（３’）中、

Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３’）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式（３－Ｘ３）で表される基になることはなく、Ar^1、Ar^2およびAr^3は、それぞれ独立して、水素（Ar^3を除く）、フェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、または、上記式（４－１）～式（４－４）のいずれかで表される基であり、Ar^3における少なくとも１つの水素は、さらにフェニル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、または、上記式（４－１）～式（４－４）のいずれかで表される基で置換されていてもよく、

Ar^4は、それぞれ独立して、水素、フェニル、または、ナフチルであり、そして、

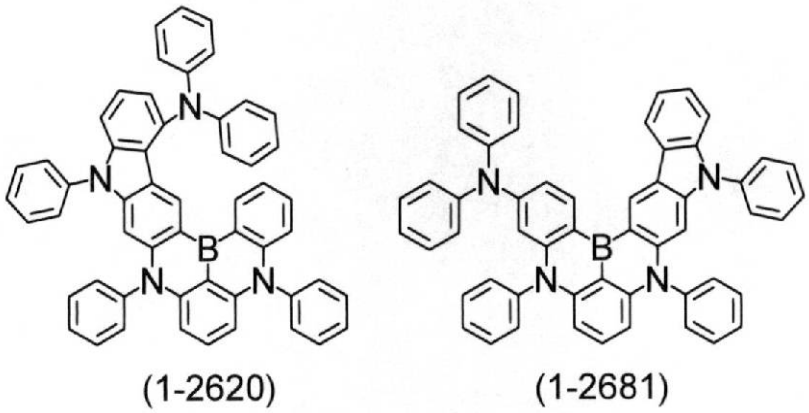
式（３’）で表される化合物における少なくとも１つの水素が重水素で置換されていてもよい、

請求項３に記載する有機電界発光素子。

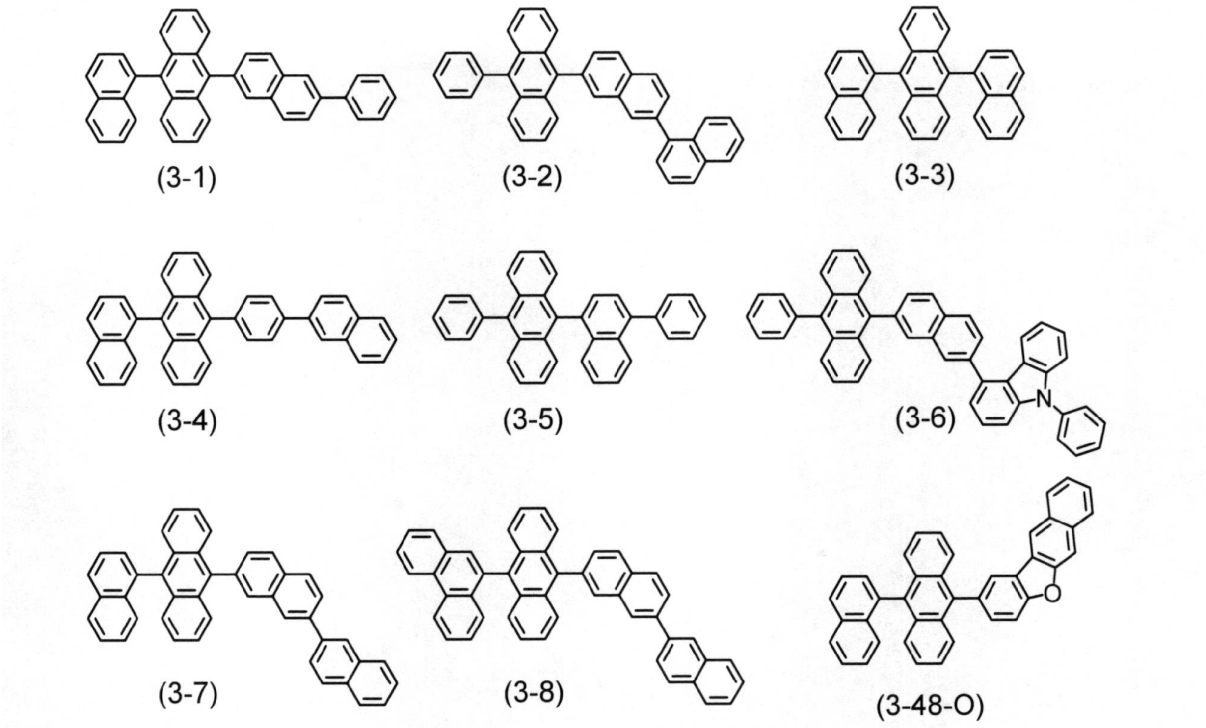
【請求項５】

前記発光層が、下記式（１－２６２０）または式（１－２６８１）で表される多環芳香族化合物と、下記式（３－１）、式（３－２）、式（３－３）、式（３－４）、式（３－５）、式（３－６）、式（３－７）、式（３－８）、または式（３－４８－Ｏ）で表されるアントラセン系化合物の少なくとも１つとを含む、請求項１～４のいずれかに記載する有機電界発光素子。

【化６】



【化７】



【請求項６】
さらに、前記陰極と該発光層との間に配置される電子輸送層および／または電子注入層を有し、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、カルバゾール誘導体、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１～５のいずれかに記載する有機電界発光素子。
【請求項７】
前記電子輸送層および／または電子注入層が、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６に記載の有機電界発光素子。
【請求項８】
請求項１～７のいずれかに記載する有機電界発光素子を備えた表示装置。
【請求項９】
請求項１～７のいずれかに記載する有機電界発光素子を備えた照明装置。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、ドーパント材料としての多環芳香族化合物またはその多量体とホスト材料としての特定のアントラセン系化合物とを含む発光層を有する有機電界発光素子、これを用いた表示装置および照明装置に関する。
【背景技術】
【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（以下、有機ＥＬ素子）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、および最適な発光特性となる複数材料の組み合わせについては、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。

【０００４】

発光層用材料としては、例えばベンゾフルオレン系化合物などが開発されている（国際公開第2004/061047号公報）。また、正孔輸送材料としては、例えばトリフェニルアミン系化合物などが開発されている（特開2001-172232号公報）。また、電子輸送材料としては、例えばアントラセン系化合物などが開発されている（特開2005-170911号公報）。

【０００５】

また、近年ではトリフェニルアミン誘導体を改良した材料も報告されている（国際公開第2012/118164号公報）。この材料は既に実用化されていたＮ，Ｎ’－ジフェニル－Ｎ，Ｎ’－ビス（３－メチルフェニル）－１，１’－ビフェニル－４，４’－ジアミン（ＴＰＤ）を参考にして、トリフェニルアミンを構成する芳香環同士を連結することでその平面性を高めたことを特徴とする材料である。この文献では例えばＮＯ連結系化合物（６３頁の化合物１）の電荷輸送特性が評価されているが、ＮＯ連結系化合物以外の材料の製造方法については記載されておらず、また、連結する元素が異なれば化合物全体の電子状態が異なるため、ＮＯ連結系化合物以外の材料から得られる特性も未だ知られていない。このような化合物の例は他にも見られる（国際公開第2011/107186号公報）。例えば、三重項励起子のエネルギー（Ｔ１）が大きい共役構造を有する化合物は、より短い波長の燐光を発することができるため、青色の発光層用材料として有益である。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００６】

【特許文献１】国際公開第2004/061047号公報
【特許文献２】特開2001-172232号公報
【特許文献３】特開2005-170911号公報
【特許文献４】国際公開第2012/118164号公報
【特許文献５】国際公開第2011/107186号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

上述するように、有機ＥＬ素子に用いられる材料としては種々のもの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、従来のものとは異なる化合物からなる材料の開発が望まれている。特に、特許文献４で報告されたＮＯ連結系化合物以外の材料から得られる有機ＥＬ特性やその製造方法は未だ知られておらず、また、ＮＯ連結系化合物以外の材料と組み合わせて最適な発光特性が得られる化合物についても知られていない。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、ホウ素原子と窒素原子で複数の芳香族環を連結した新規な多環芳香族化合物を見出し、その製造に成功した。そして、この多環芳香族化合物と特定のアントラセン系化合物を含有する発光層を一対の電極間

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。

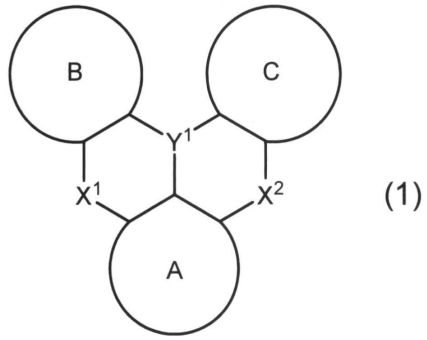
【０００９】

［１］

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る発光層とを有する有機電界発光素子であって、

前記発光層は、下記一般式（１）で表される多環芳香族化合物および下記一般式（１）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の少なくとも１つと、下記一般式（３）で表されるアントラセン系化合物とを含む、有機電界発光素子。

【化８】



(1)

（上記式（１）中、

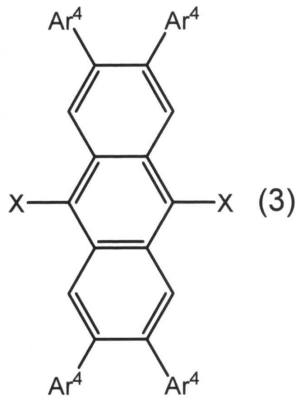
Ａ環、Ｂ環およびＣ環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも１つの水素は置換されていてもよく、

Y^1はＢであり、

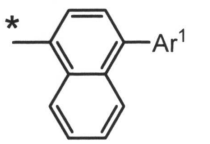
X^1およびX^2はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリールまたはアルキルであり、また、前記Ｎ－ＲのＲは連結基または単結合により前記Ａ環、Ｂ環および／またはＣ環と結合していてもよく、そして、

式（１）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。）

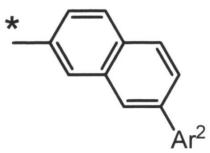
【化９】



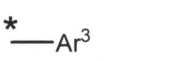
(3)



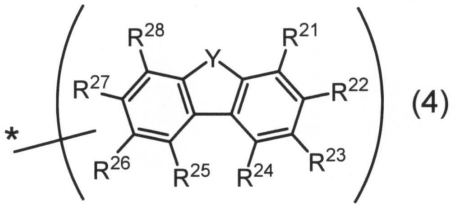
(3-X1)



(3-X2)



(3-X3)



(4)

（上記式（３）中、

Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）および式（３－Ｘ２）におけるナフチレン部位は１つのベンゼン環で縮合されていてもよく、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式

（３－Ｘ３）で表される基になることはなく、Ａｒ^{1}、Ａｒ^{2}およびＡｒ^{3}は、それぞれ独立して、水素（Ａｒ^{3}を除く）、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、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基であり、Ａｒ^{3}における少なくとも１つの水素は、さらにフェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基で置換されていてもよく、

Ａｒ^{4}は、それぞれ独立して、水素、フェニル、ビフェニリル、ターフェニリル、ナフチル、または炭素数１～４のアルキルで置換されているシリルであり、そして、

式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素が重水素または上記式（４）で表される基で置換されていてもよく、

上記式（４）中、Ｙは－Ｏ－、－Ｓ－または＞Ｎ－Ｒ^{29}であり、Ｒ^{21}～Ｒ^{28}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、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コキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオ、トリアルキルシリル、置換されていてもよいアミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノであり、Ｒ^{21}～Ｒ^{28}のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、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、Ｒ^{29}は水素または置換されていてもよいアリールであり、式（４）で表される基は＊において式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）のナフタレン環、式（３－Ｘ３）の単結合、式（３－Ｘ３）のＡｒ^{3}と結合し、また式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素と置換し、式（４）の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。）

【００１０】

［２］

上記式（１）中、

Ａ環、Ｂ環およびＣ環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも１つの水素は置換または無置換のアリール、置換または無置換のヘテロアリール、置換または無置換のジアリールアミノ、置換または無置換のジヘテロアリールアミノ、置換または無置換のアリールヘテロアリールアミノ、置換または無置換のアルキル、置換または無置換のアルコキシまたは置換または無置換のアリールオキシで置換されていてもよく、また、これらの環はＹ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}から構成される上記式中央の縮合２環構造と結合を共有する５員環または６員環を有し、

Ｙ^{1}はＢであり、

Ｘ^{1}およびＸ^{2}はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは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またはアルキルであり、また、前記Ｎ－ＲのＲは－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－または単結合により前記Ａ環、Ｂ環および／またはＣ環と結合していてもよく、前記－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－のＲは水素またはアルキルであり、

式（１）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く、そして、

多量体の場合には、式（１）で表される構造を２または３個有する２または３量体である、

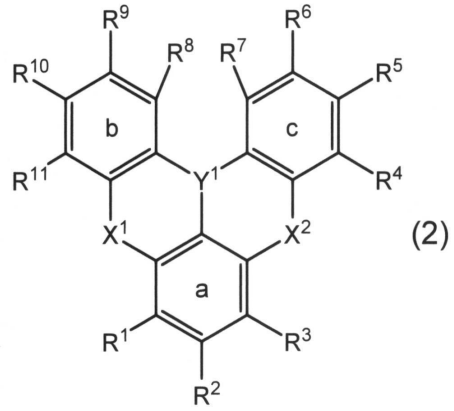
上記［１］に記載する有機電界発光素子。

【００１１】

［３］

前記発光層が、下記一般式（２）で表される多環芳香族化合物および下記一般式（２）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の少なくとも１つと、下記一般式（３）で表されるアントラセン系化合物とを含む、上記［１］に記載する有機電界発光素子。

【化１０】



(2)

（上記式（２）中、

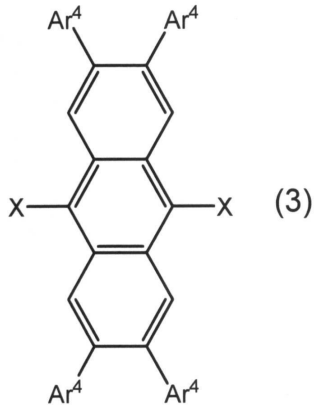
Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]、Ｒ[8]、Ｒ[9]、Ｒ[10]およびＲ[11]は、それぞれ独立して、水素、アリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシであり、これらにおける少なくとも１つの水素はアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、また、Ｒ[1]～Ｒ[11]のうちの隣接する基同士が結合してａ環、ｂ環またはｃ環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも１つの水素はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、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、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、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよく、

Ｙ[1]はＢであり、

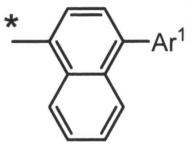
Ｘ[1]およびＸ[2]はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは炭素数６～１２のアリール、炭素数２～１５のヘテロアリールまたは炭素数１～６のアルキルであり、また、前記Ｎ－ＲのＲは－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｃ（－Ｒ）$_2$－または単結合により前記ａ環、ｂ環および／またはｃ環と結合していてもよく、前記－Ｃ（－Ｒ）$_2$－のＲは炭素数１～６のアルキルであり、そして、

式（２）で表される化合物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。）

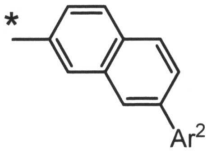
【化１１】



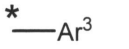
(3)



(3-X1)

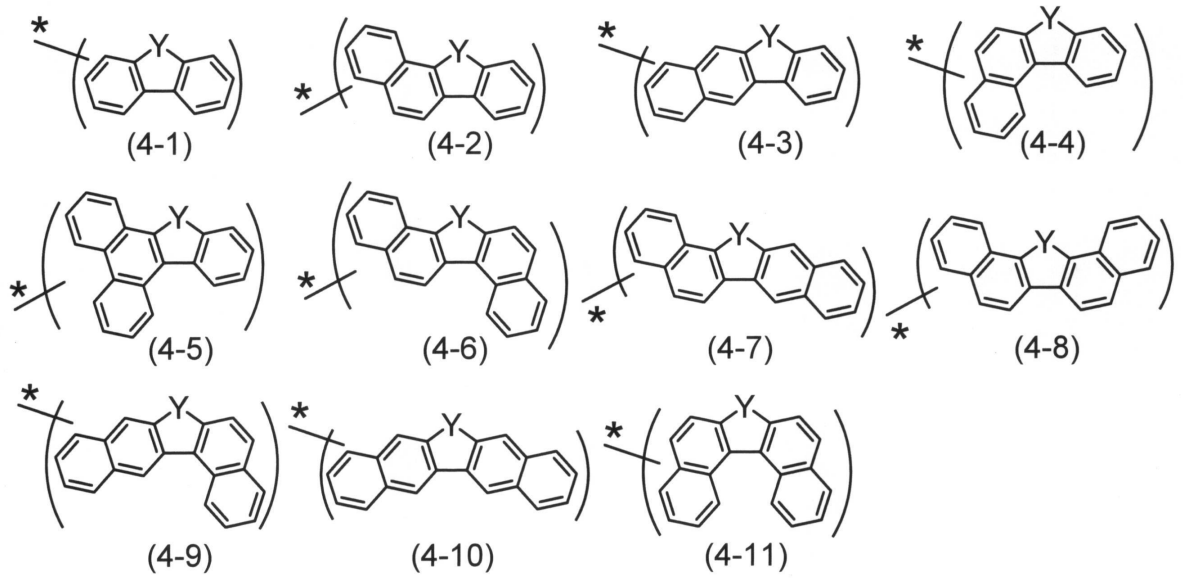


(3-X2)



(3-X3)

【化１２】



（上記式（３）中、

Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式（３－Ｘ３）で表される基になることはなく、$Ａｒ^{1}$、$Ａｒ^{2}$および$Ａｒ^{3}$は、それぞれ独立して、水素（$Ａｒ^{3}$を除く）、フェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４－１）～式（４－１１）のいずれかで表される基であり、$Ａｒ^{3}$における少なくとも１つの水素は、さらにフェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４－１）～式（４－１１）のいずれかで表される基で置換されていてもよく、

$Ａｒ^{4}$は、それぞれ独立して、水素、フェニル、または、ナフチルであり、そして、

式（３）で表される化合物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、

上記式（４－１）～式（４－１１）中、Ｙは－Ｏ－、－Ｓ－または＞Ｎ－$Ｒ^{29}$であり、$Ｒ^{29}$は水素またはアリールであり、式（４－１）～式（４－１１）で表される基における少なくとも１つの水素はアルキル、アリール、ヘテロアリール、アルコキシ、アリールオキシ、アリールチオ、トリアルキルシリル、ジアリール置換アミノ、ジヘテロアリール置換アミノ、アリールヘテロアリール置換アミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノで置換されていてもよく、式（４－１）～式（４－１１）で表される基は＊において式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）のナフタレン環、式（３－Ｘ３）の単結合、式（３－Ｘ３）の$Ａｒ^{3}$と結合し、式（４－１）～式（４－１１）の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。）

【００１２】

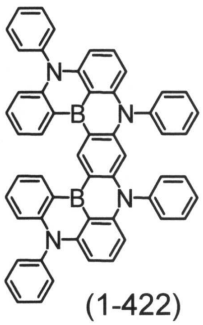
［４］

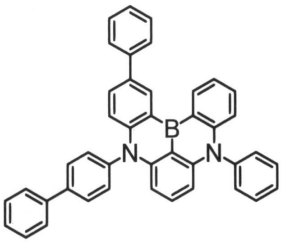
上記式（２）中、

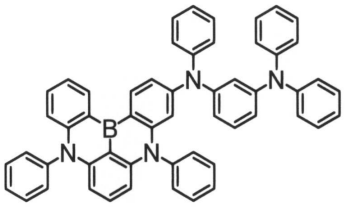
$Ｒ^{1}$、$Ｒ^{2}$、$Ｒ^{3}$、$Ｒ^{4}$、$Ｒ^{5}$、$Ｒ^{6}$、$Ｒ^{7}$、$Ｒ^{8}$、$Ｒ^{9}$、$Ｒ^{10}$および$Ｒ^{11}$は、それぞれ独立して、水素、炭素数６～３０のアリール、炭素数２～３０のヘテロアリールまたはジアリールアミノ（ただしアリールは炭素数６～１２のアリール）であり、また、$Ｒ^{1}$～$Ｒ^{11}$のうちの隣接する基同士が結合してａ環、ｂ環またはｃ環と共に炭素数９～１６のアリール環または炭素数６～１５のヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも１つの水素は炭素数６～１０のアリールで置換されていてもよ

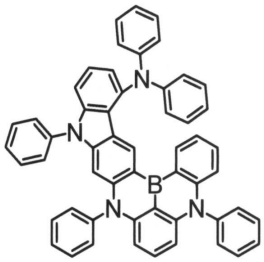
く、
Ｙ^{1}はＢであり、
Ｘ^{1}およびＸ^{2}はそれぞれ独立してＮ－Ｒであり、前記Ｎ－ＲのＲは炭素数６～１０のアリールであり、そして、
式（２）で表される化合物における少なくとも１つの水素がハロゲンまたは重水素で置換されていてもよく、
上記式（３）中、
Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式（３－Ｘ３）で表される基になることはなく、Ａｒ^{1}、Ａｒ^{2}およびＡｒ^{3}は、それぞれ独立して、水素（Ａｒ^{3}を除く）、フェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、または、上記式（４－１）～式（４－４）のいずれかで表される基であり、Ａｒ^{3}における少なくとも１つの水素は、さらにフェニル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、または、上記式（４－１）～式（４－４）のいずれかで表される基で置換されていてもよく、
Ａｒ^{4}は、それぞれ独立して、水素、フェニル、または、ナフチルであり、そして、
式（３）で表される化合物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、
上記［３］に記載する有機電界発光素子。
【００１３】
［５］
前記発光層が、下記式（１－４２２）、式（１－１１５２）、式（１－１１５９）、式（１－２６２０）、式（１－２６７６）、式（１－２６７９）、または式（１－２６８０）で表される多環芳香族化合物の少なくとも１つと、下記式（３－１）、式（３－２）、式（３－３）、式（３－４）、式（３－５）、式（３－６）、式（３－７）、式（３－８）、または式（３－４８－Ｏ）で表されるアントラセン系化合物の少なくとも１つとを含む、上記［１］～［４］のいずれかに記載する有機電界発光素子。

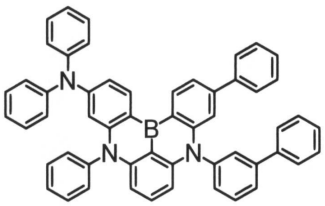
【化１３】

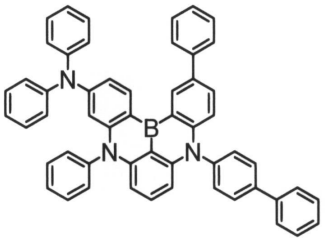

(1-422)

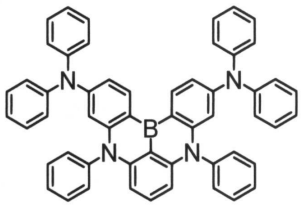

(1-1152)


(1-1159)

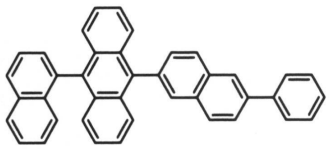

(1-2620)

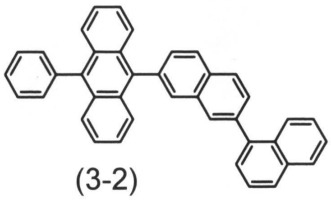

(1-2676)


(1-2679)

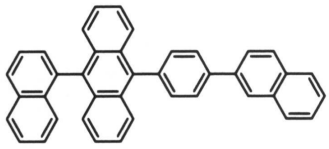

(1-2680)

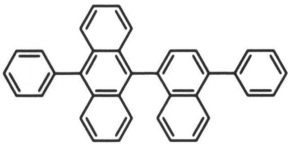
【化１４】

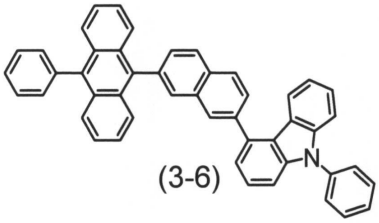

(3-1)

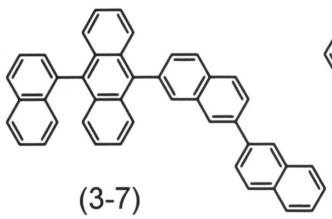

(3-2)

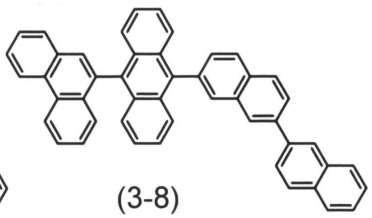
(3-3)

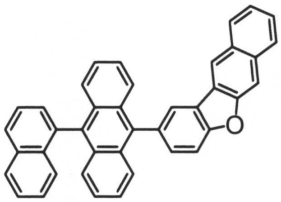

(3-4)


(3-5)


(3-6)


(3-7)


(3-8)


(3-48-O)

【００１４】

［６］

さらに、前記陰極と該発光層との間に配置される電子輸送層および／または電子注入層を有し、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、カルバゾール誘導体、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、上記［１］～［５］のいずれかに記載する有機電界発光素子。

【００１５】

［７］

前記電子輸送層および／または電子注入層が、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、上記［６］に記載の有機電界発光素子。

【００１６】

［８］

上記［１］～［７］のいずれかに記載する有機電界発光素子を備えた表示装置。

【００１７】

［９］

上記［１］～［７］のいずれかに記載する有機電界発光素子を備えた照明装置。

【発明の効果】

【００１８】

本発明の好ましい態様によれば、新規な多環芳香族化合物と、それと組み合わせて最適な発光特性が得られるアントラセン系化合物とを提供することができ、これらを組み合わせてなる発光層用材料を用いて有機ＥＬ素子を作製することで、量子効率が優れた有機ＥＬ素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【００１９】

【図１】本実施形態に係る有機ＥＬ素子を示す概略断面図である。

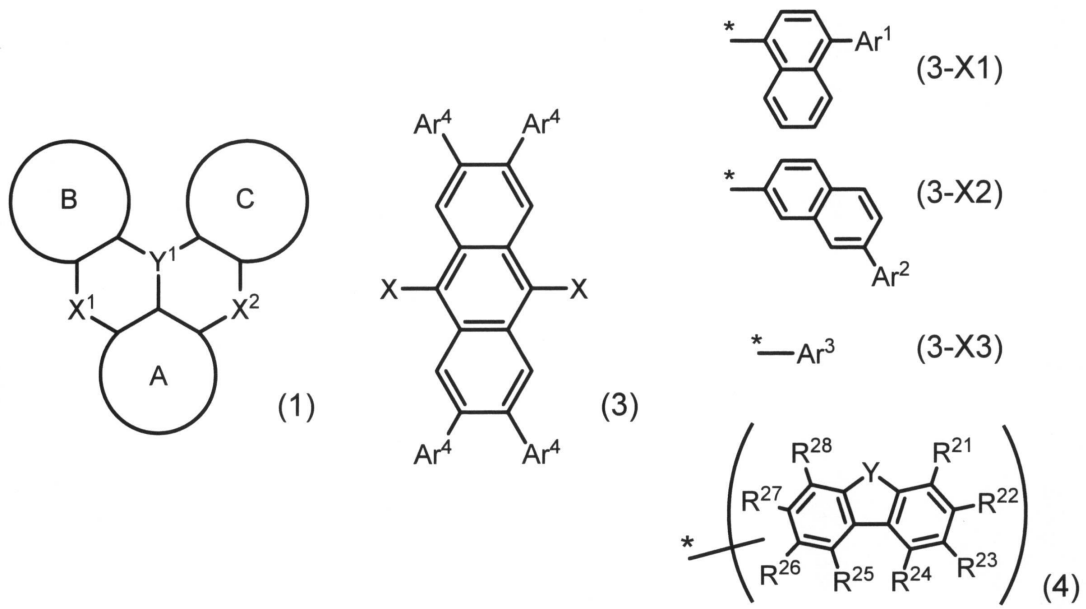
【発明を実施するための形態】

【００２０】

１．有機ＥＬ素子における特徴的な発光層

本発明は、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る発光層とを有する有機ＥＬ素子であって、前記発光層は、下記一般式（１）で表される多環芳香族化合物および下記一般式（１）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の少なくとも１つと、下記一般式（３）で表されるアントラセン系化合物とを、有機ＥＬ素子である。

【化１５】



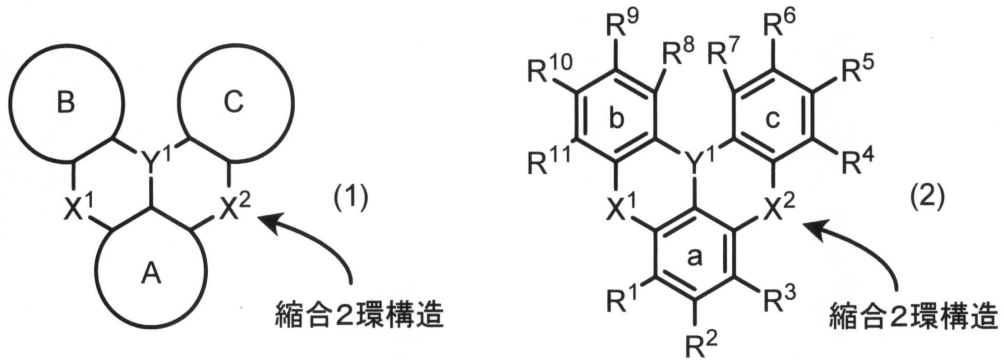
なお、式（１）におけるＡ、Ｂ、Ｃ、Ｙ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}は上述した定義と同じであり、式（３）、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）、式（３－Ｘ３）および式（４）におけるＸ、Ａｒ^{1}～Ａｒ^{4}、ＹおよびＲ^{21}～Ｒ^{28}は上述した定義と同じである。

【００２１】

１－１．多環芳香族化合物およびその多量体

一般式（１）で表される多環芳香族化合物および一般式（１）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は基本的にはドーパントとして機能する。上記多環芳香族化合物およびその多量体は、好ましくは、下記一般式（２）で表される多環芳香族化合物、または下記一般式（２）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。

【化１６】



【００２２】

一般式（１）におけるＡ環、Ｂ環およびＣ環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも１つの水素は置換基で置換されていてもよい。この置換基は、置換または無置換のアリール、置換または無置換のヘテロアリール、置換または無置換のジアリールアミノ、置換または無置換のジヘテロアリールアミノ、置換または無置換のアリールヘテロアリールアミノ（アリールとヘテロアリールを有するアミノ基）、置換または無置換のアルキル、置換または無置換のアルコキシまたは置換または無置換のアリールオキシが好ましい。これらの基が置換基を有する場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリールまたはアルキルがあげられる。また、上記アリール環またはヘテロアリール環は、Ｙ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}から構成される一般式（１）中

央の縮合２環構造（以下、この構造を「Ｄ構造」とも言う）と結合を共有する５員環または６員環を有することが好ましい。

【００２３】

ここで、「縮合２環構造（Ｄ構造）」とは、一般式（１）の中央に示した、Y^1、X^1およびX^2を含んで構成される２つの飽和炭化水素環が縮合した構造を意味する。また、「縮合２環構造と結合を共有する６員環」とは、例えば上記一般式（２）で示すように前記Ｄ構造に縮合したａ環（ベンゼン環（６員環））を意味する。また、「（Ａ環である）アリール環またはヘテロアリール環がこの６員環を有する」とは、この６員環だけでＡ環が形成されるか、または、この６員環を含むようにこの６員環にさらに他の環などが縮合してＡ環が形成されることを意味する。言い換えれば、ここで言う「６員環を有する（Ａ環である）アリール環またはヘテロアリール環」とは、Ａ環の全部または一部を構成する６員環が、前記Ｄ構造に縮合していることを意味する。「Ｂ環（ｂ環）」、「Ｃ環（ｃ環）」、また「５員環」についても同様の説明が当てはまる。

【００２４】

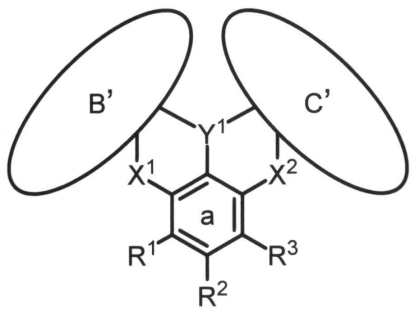
一般式（１）におけるＡ環（またはＢ環、Ｃ環）は、一般式（２）におけるａ環とその置換基R^1～R^3（またはｂ環とその置換基R^4～R^7、ｃ環とその置換基R^8～R^{11}）に対応する。すなわち、一般式（２）は、一般式（１）のＡ～Ｃ環として「６員環を有するＡ～Ｃ環」が選択されたものに対応する。その意味で、一般式（２）の各環を小文字のａ～ｃで表した。

【００２５】

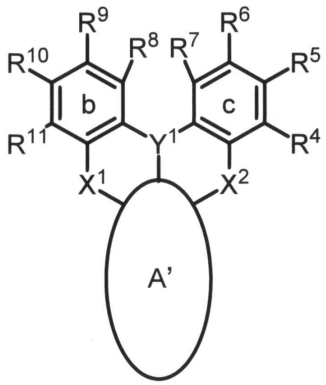
一般式（２）では、ａ環、ｂ環およびｃ環の置換基R^1～R^{11}のうちの隣接する基同士が結合してａ環、ｂ環またはｃ環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも１つの水素はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも１つの水素はアリール、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよい。したがって、一般式（２）で表される多環芳香族化合物は、ａ環、ｂ環およびｃ環における置換基の相互の結合形態によって、下記式（２－１）および式（２－２）に示すように、化合物を構成する環構造が変化する。各式中のＡ’環、Ｂ’環およびＣ’環は、一般式（１）におけるそれぞれＡ環、Ｂ環およびＣ環に対応する。なお、式（２－１）および式（２－２）におけるR^1～R^{11}、Y^1、X^1およびX^2は式（２）における定義と同じである。

【００２６】

【化１７】



(2-1)



(2-2)

【００２７】

上記式（２－１）および式（２－２）中のＡ’環、Ｂ’環およびＣ’環は、一般式（２）で説明すれば、置換基R^1～R^{11}のうちの隣接する基同士が結合して、それぞれａ環、ｂ環およびｃ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

またはｃ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、式では示してはいないが、ａ環、ｂ環およびｃ環の全てがＡ’環、Ｂ’環およびＣ’環に変化した化合物もある。また、上記式（２－１）および式（２－２）から分かるように、例えば、ｂ環のＲ^{8}とｃ環のＲ^{7}、ｂ環のＲ^{11}とａ環のＲ^{1}、ｃ環のＲ^{4}とａ環のＲ^{3}などは「隣接する基同士」には該当せず、これらが結合することはない。すなわち、「隣接する基」とは同一環上で隣接する基を意味する。

【００２８】

上記式（２－１）や式（２－２）で表される化合物は、例えば後述する具体的化合物として列挙した式（１－２）～（１－１７）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）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、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Ａ’環（またはＢ’環またはＣ’環）を有する化合物であり、形成されてできた縮合環Ａ’（または縮合環Ｂ’または縮合環Ｃ’）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。

【００２９】

一般式（１）および一般式（２）におけるＹ^{1}はＢである。

【００３０】

一般式（１）におけるＸ^{1}およびＸ^{2}は、それぞれ独立して、Ｎ－Ｒ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またはアルキルであり、前記Ｎ－ＲのＲは連結基または単結合により前記Ｂ環および／またはＣ環と結合していてもよく、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は水素またはアルキルである。この説明は一般式（２）におけるＸ^{1}およびＸ^{2}でも同じである。

【００３１】

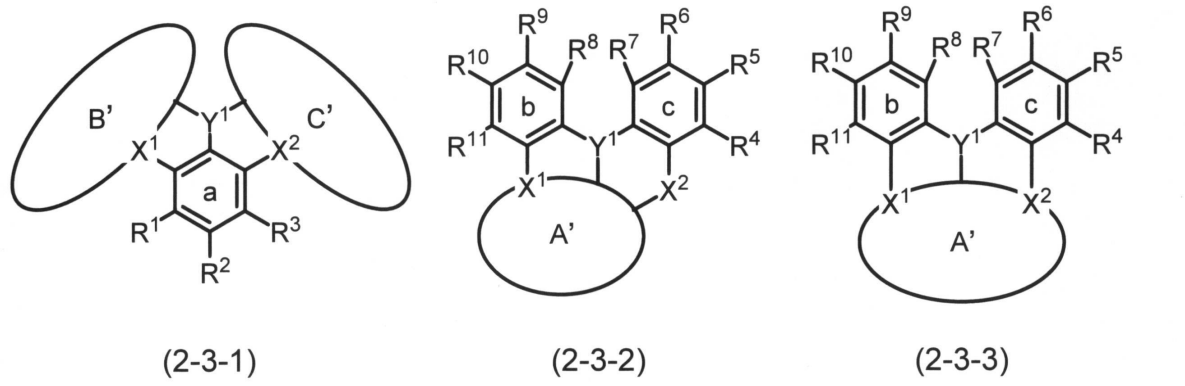
ここで、一般式（１）における「Ｎ－ＲのＲは連結基または単結合により前記Ａ環、Ｂ環および／またはＣ環と結合している」との規定は、一般式（２）では「Ｎ－ＲのＲは－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－または単結合により前記ａ環、ｂ環および／またはｃ環と結合している」との規定に対応する。

この規定は、下記式（２－３－１）で表される、Ｘ^{1}やＸ^{2}が縮合環Ｂ’および縮合環Ｃ’に取り込まれた環構造を有する化合物で表現できる。すなわち、例えば一般式（２）におけるｂ環（またはｃ環）であるベンゼン環に対してＸ^{1}（またはＸ^{2}）を取り込むようにして他の環が縮合して形成されるＢ’環（またはＣ’環）を有する化合物である。この化合物は、例えば後述する具体的化合物として列挙した、式（１－４５１）～（１－４６２）で表されるような化合物および式（１－１４０１）～（１－１４６０）で表されるような化合物に対応し、形成されてできた縮合環Ｂ’（または縮合環Ｃ’）は例えばフェノキサジン環、フェノチアジン環またはアクリジン環である。

また、上記規定は、下記式（２－３－２）や式（２－３－３）で表される、Ｘ^{1}および／またはＸ^{2}が縮合環Ａ’に取り込まれた環構造を有する化合物でも表現できる。すなわち、例えば一般式（２）におけるａ環であるベンゼン環に対してＸ^{1}（および／またはＸ^{2}）を取り込むようにして他の環が縮合して形成されるＡ’環を有する化合物である。この化合物は、例えば後述する具体的化合物として列挙した式（１－４７１）～（１－４７９）で表されるような化合物に対応し、形成されてできた縮合環Ａ’は例えばフェノキサジン環、フェノチアジン環またはアクリジン環である。なお、式（２－３－１）～式（２－３－３）におけるＲ^{1}～Ｒ^{11}、Ｙ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}は式（２）における定義と同じである。

【００３２】

【化１８】



(2-3-1) (2-3-2) (2-3-3)

【００３３】

一般式（１）のＡ環、Ｂ環およびＣ環である「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。なお、この「アリール環」は、一般式（２）で規定された「Ｒ１～Ｒ１１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」に対応し、また、ａ環（またはｂ環、ｃ環）がすでに炭素数６のベンゼン環で構成されているため、これに５員環が縮合した縮合環の合計炭素数９が下限の炭素数となる。

【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、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。

【００３５】

一般式（１）のＡ環、Ｂ環およびＣ環である「ヘテロアリール環」としては、例えば、炭素数２～３０のヘテロアリール環があげられ、炭素数２～２５のヘテロアリール環が好ましく、炭素数２～２０のヘテロアリール環がより好ましく、炭素数２～１５のヘテロアリール環がさらに好ましく、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。なお、この「ヘテロアリール環」は、一般式（２）で規定された「Ｒ１～Ｒ１１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」に対応し、また、ａ環（またはｂ環、ｃ環）がすでに炭素数６のベンゼン環で構成されているため、これに５員環が縮合した縮合環の合計炭素数６が下限の炭素数となる。

【００３６】

具体的な「ヘテロアリール環」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、チアントレン環などがあげられる。

【００３７】

上記「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つの水素は、第１の置換基である、置換または無置換の「アリール」、置換または無置換の「ヘテロアリール」、置換または無置換の「ジアリールアミノ」、置換または無置換の「ジヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アリールヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アルキル」、置換または無置換の「アルコキシ」、または、置換または無置換の「アリールオキシ」で置換されていてもよいが、この第１の置換基としての「アリール」や「ヘテルアリール」、「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、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。

【００３８】

また第１の置換基としての「アルキル」としては、直鎖および分枝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の分枝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の分枝鎖アルキル）が好ましく、炭素数１～１２のアルキル（炭素数３～１２の分枝鎖アルキル）がより好ましく、炭素数１～６のアルキル（炭素数３～６の分枝鎖アルキル）がさらに好ましく、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分枝鎖アルキル）が特に好ましい。

【００３９】

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。

【００４０】

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の分枝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の分枝鎖のアルコキシ）が好ましく、炭素数１～１２のアルコキシ（炭素数３～１２の分枝鎖のアルコキシ）がより好ましく、炭素数１～６のアルコキシ（炭素数３～６の分枝鎖のアルコキシ）がさらに好ましく、炭素数１～４のアルコキシ（炭素数３～４の分枝鎖のアルコキシ）が特に好ましい。

【００４１】

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、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。

【００４２】

第１の置換基である、置換または無置換の「アリール」、置換または無置換の「ヘテロアリール」、置換または無置換の「ジアリールアミノ」、置換または無置換の「ジヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アリールヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アルキル」、置換または無置換の「アルコキシ」、または、置換または無置換の「アリールオキシ」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、ヘテロアリールまたはアルキルがあげられ、それらの具体的なものは、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」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（具体例は上述したもの）やメチルなどのアルキル（具体例は上述したもの）で置換されたものも第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基の場合には、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やメチルなどのアルキルで置換されたカルバゾリル基も第２の置換基としてのヘテロアリールに含まれる。

【００４３】

一般式（２）のＲ^{1}～Ｒ^{11}におけるアリール、ヘテルアリール、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、またはアリールオキシのアリールとしては、一般式（１）で説明した「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。また、Ｒ^{1}～Ｒ^{11}におけるアルキルまたはアルコキシとしては、上述した一般式（１）の説明における第１の置換基としての「アルキル」や「アルコキシ」の説明を参照することができる。さらに、これらの基への置換基としてのアリール、ヘテロアリールまたはアルキルも同様である。また、また、Ｒ^{1}～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た場合の、これらの環への置換基であるヘテロアリール、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、アルコキシまたはアリールオキシ、および、さらなる置換基であるアリール、ヘテロアリールまたはアルキルについても同様である。

【００４４】

一般式（１）のＸ^{1}およびＸ^{2}におけるＮ－Ｒ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、ヘテロアリールまたはアルキルであり、アリールやヘテロアリールにおける少なくとも１つの水素は例えばアルキルで置換されていてもよい。このアリール、ヘテロアリールやアルキルとしては上述するものがあげられる。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１～４のアルキル（例えばメチル、エチルなど）が好ましい。この説明は一般式（２）におけるＸ^{1}およびＸ^{2}でも同じである。

【００４５】

一般式（１）における連結基である「－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－」のＲは水素またはアルキルであるが、このアルキルとしては上述するものがあげられる。特に炭素数１～４のアルキル（例えばメチル、エチルなど）が好ましい。この説明は一般式（２）における連結基である「－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－」でも同じである。

【００４６】

また、発光層には、一般式（１）で表される単位構造を複数有する多環芳香族化合物の多量体、好ましくは、一般式（２）で表される単位構造を複数有する多環芳香族化合物の多量体が含まれてもよい。多量体は、２～６量体が好ましく、２～３量体がより好ましく、２量体が特に好ましい。多量体は、一つの化合物の中に上記単位構造を複数有する形態であればよく、例えば、上記単位構造が単結合、炭素数１～３のアルキレン基、フェニレン基、ナフチレン基などの連結基で複数結合した形態に加えて、上記単位構造に含まれる任意の環（Ａ環、Ｂ環またはＣ環、ａ環、ｂ環またはｃ環）を複数の単位構造で共有するようにして結合した形態であってもよく、また、上記単位構造に含まれる任意の環（Ａ環、Ｂ環またはＣ環、ａ環、ｂ環またはｃ環）同士が縮合するようにして結合した形態であってもよい。

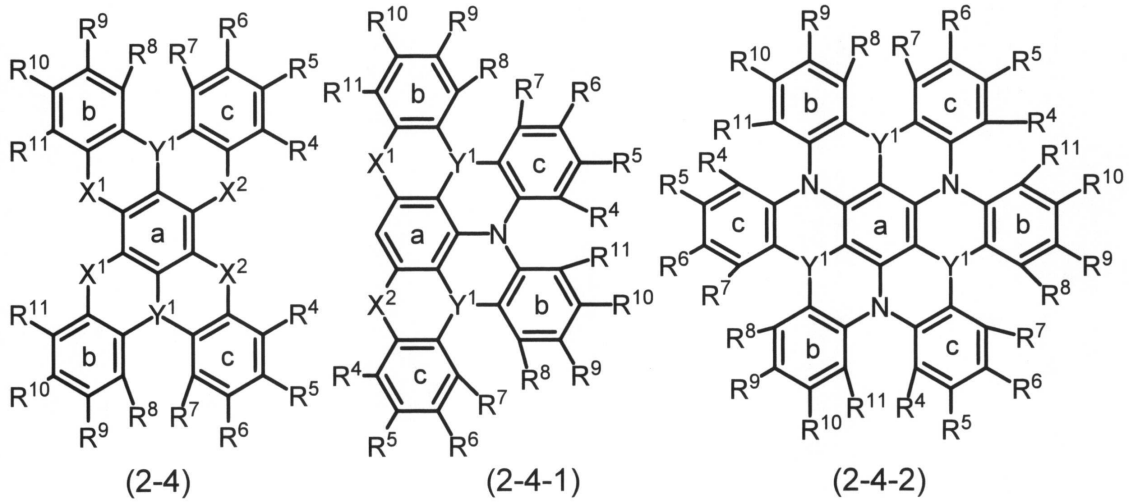
【００４７】

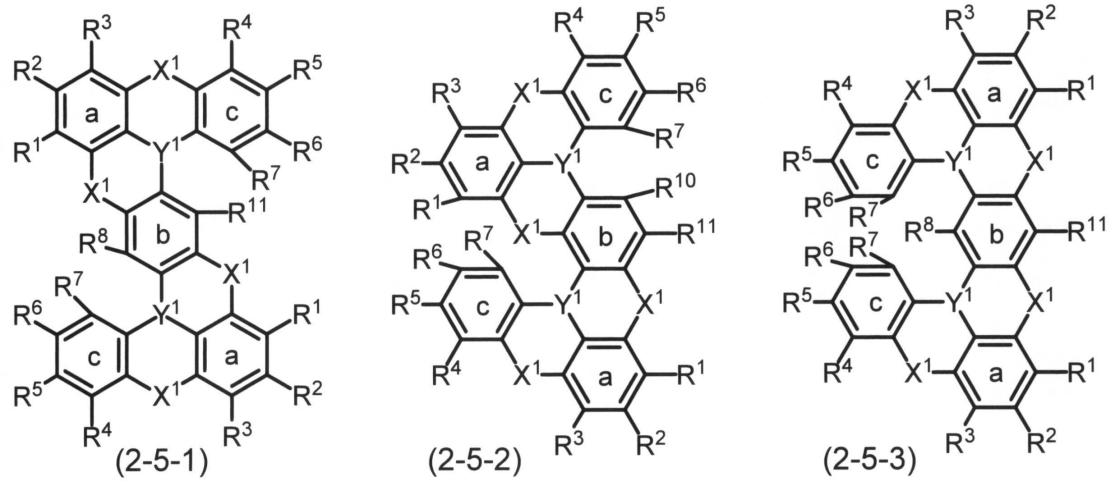
このような多量体としては、例えば、下記式（２－４）、式（２－４－１）、式（２－４－２）、式（２－５－１）～式（２－５－４）または式（２－６）で表される多量体化合物があげられる。下記式（２－４）は２量体化合物、式（２－４－１）は２量体化合物、式（２－４－２）は３量体化合物、式（２－５－１）は２量体化合物、式（２－５－２）は２量体化合物、式（２－５－３）は２量体化合物、式（２－５－４）は３量体化合物、式（２－６）は２量体化合物である。下記式（２－４）で表される多量体化合物は、例えば後述する式（１－４２３）で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式（

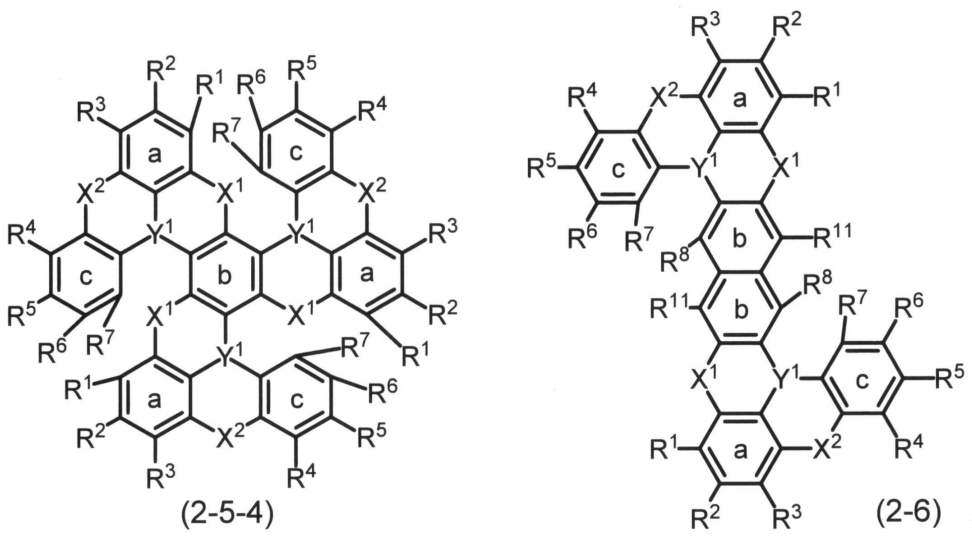
２）で説明すれば、ａ環であるベンゼン環を共有するようにして、複数の一般式（２）で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式（２－４－１）で表される多量体化合物は、例えば後述する式（１－２６６５）で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式（２）で説明すれば、ａ環であるベンゼン環を共有するようにして、二つの一般式（２）で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式（２－４－２）で表される多量体化合物は、例えば後述する式（１－２６６６）で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式（２）で説明すれば、ａ環であるベンゼン環を共有するようにして、二つの一般式（２）で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式（２－５－１）～式（２－５－４）で表される多量体化合物は、例えば後述する式（１－４２１）、式（１－４２２）、式（１－４２４）または式（１－４２５）で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式（２）で説明すれば、ｂ環（またはｃ環）であるベンゼン環を共有するようにして、複数の一般式（２）で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式（２－６）で表される多量体化合物は、例えば後述する式（１－４３１）～（１－４３５）で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式（２）で説明すれば、例えばある単位構造のｂ環（またはａ環、ｃ環）であるベンゼン環とある単位構造のｂ環（またはａ環、ｃ環）であるベンゼン環とが縮合するようにして、複数の一般式（２）で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。なお、式（２－４）、式（２－４－１）、式（２－４－２）、式（２－５－１）～式（２－５－４）および式（２－６）におけるR^{1}～R^{11}、Y^{1}、X^{1}およびX^{2}は式（２）における定義と同じである。

【００４８】

【化１９】







【００４９】

多量体化合物は、式（２－４）、式（２－４－１）または式（２－４－２）で表現される多量化形態と、式（２－５－１）～式（２－５－４）のいずれかまたは式（２－６）で表現される多量化形態とが組み合わさった多量体であってもよく、式（２－５－１）～式（２－５－４）のいずれかで表現される多量化形態と、式（２－６）で表現される多量化形態とが組み合わさった多量体であってもよく、式（２－４）、式（２－４－１）または式（２－４－２）で表現される多量化形態と式（２－５－１）～式（２－５－４）のいず

れかで表現される多量化形態と式（２－６）で表現される多量化形態とが組み合わさった多量体であってもよい。

【００５０】

また、一般式（１）または（２）で表される多環芳香族化合物およびその多量体の化学構造中の水素は、その全てまたは一部が重水素であってもよい。

【００５１】

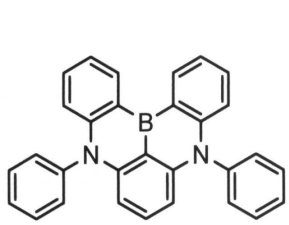
また、一般式（１）または（２）で表される多環芳香族化合物およびその多量体の化学構造中の水素は、その全てまたは一部がハロゲンであってもよい。例えば、式（１）においては、Ａ環、Ｂ環、Ｃ環（Ａ～Ｃ環はアリール環またはヘテロアリール環）、Ａ～Ｃ環への置換基、ならびに、X^1およびX^2であるＮ－Ｒにおける Ｒ（＝アルキル、アリール）における水素がハロゲンで置換されうるが、これらの中でもアリールやヘテロアリールにおける全てまたは一部の水素がハロゲンで置換された態様があげられる。ハロゲンは、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素であり、好ましくはフッ素、塩素または臭素、より好ましくは塩素である。

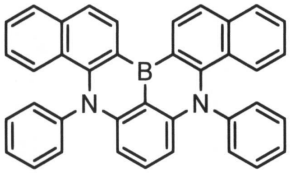
【００５２】

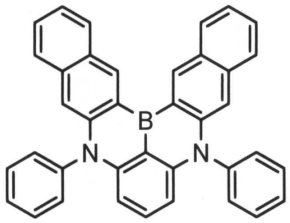
多環芳香族化合物およびその多量体のさらに具体的な例としては、例えば、下記式（１－４０１）～（１－４６２）で表される化合物、下記式（１－１４０１）～（１－１４６０）で表される化合物、下記式（１－４７１）～（１－４７９）で表される化合物、下記式（１－１１５１）～（１－１１５９）で表される化合物、下記式（１－２６１９）で表される化合物、および下記式（１－２６２０）～（１－２７０５）で表される化合物があげられる。

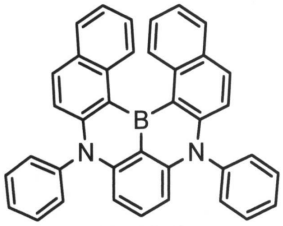
【００５３】

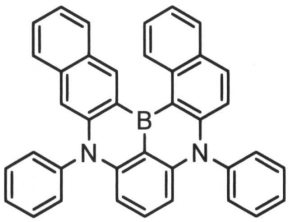
【化２０】

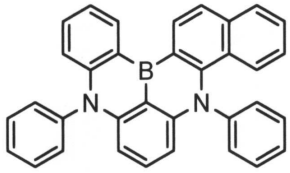

(1-401)

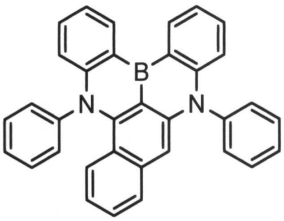

(1-402)

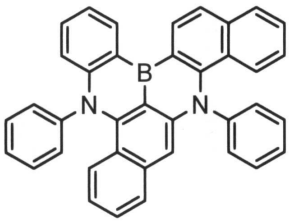

(1-403)

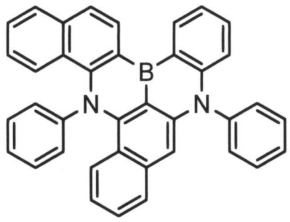

(1-404)

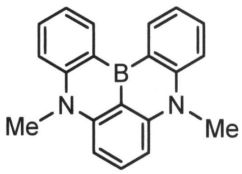

(1-405)

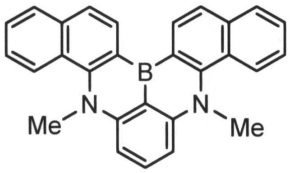

(1-406)

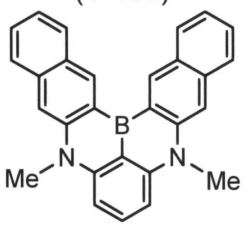

(1-407)

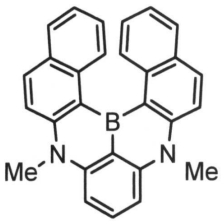

(1-408)

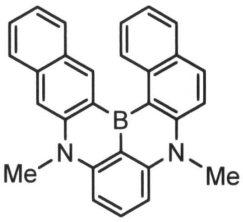

(1-409)

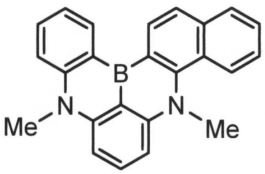

(1-411)

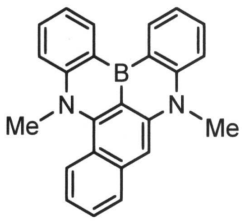

(1-412)

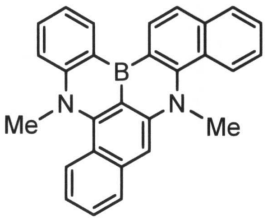

(1-413)

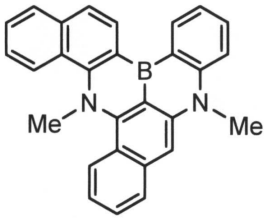

(1-414)


(1-415)


(1-416)

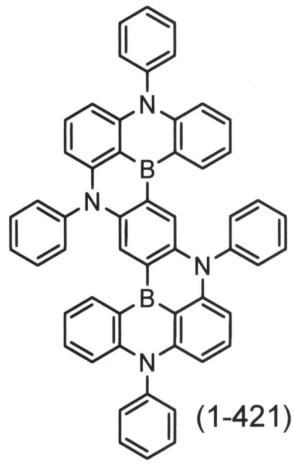

(1-417)


(1-418)

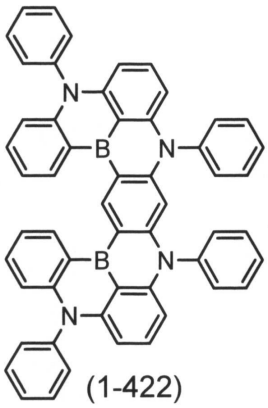

(1-419)

【００５４】

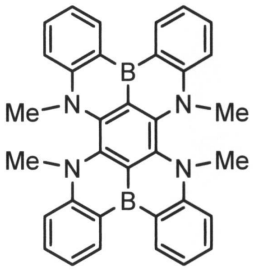
【化２１】



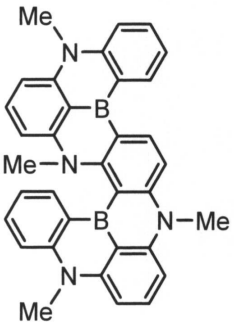
(1-421)



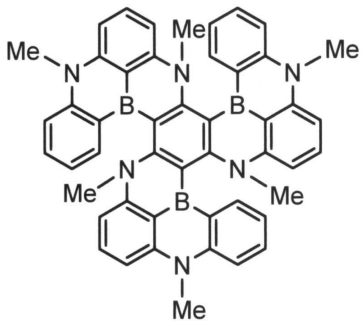
(1-422)



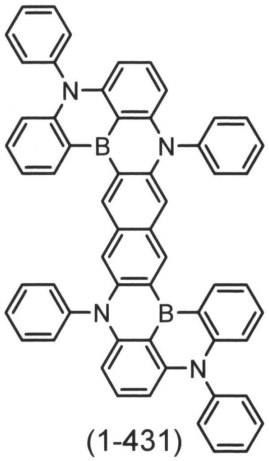
(1-423)



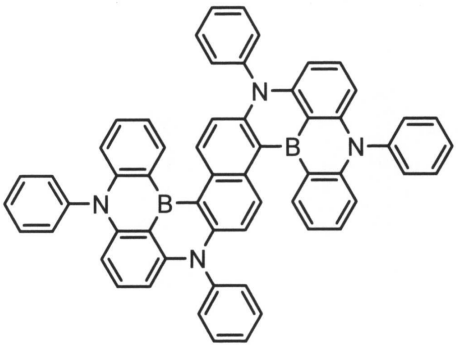
(1-424)



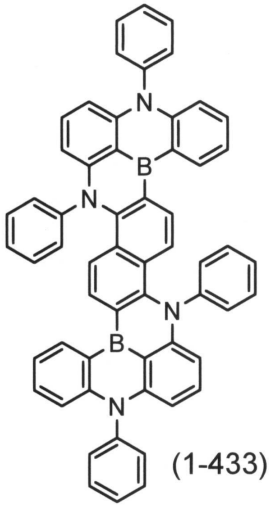
(1-425)



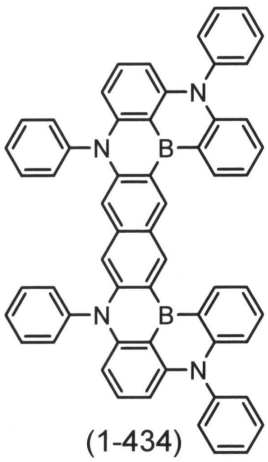
(1-431)



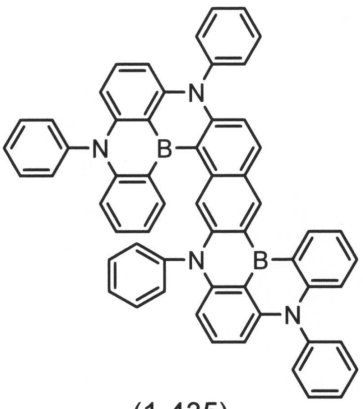
(1-432)



(1-433)



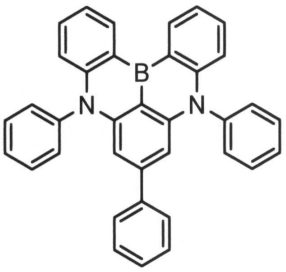
(1-434)



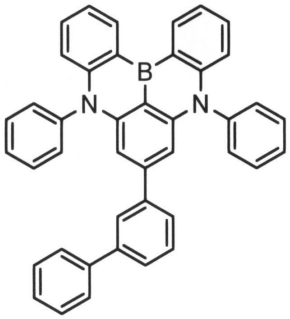
(1-435)

【００５５】

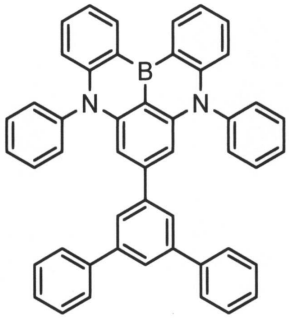
【化２２】



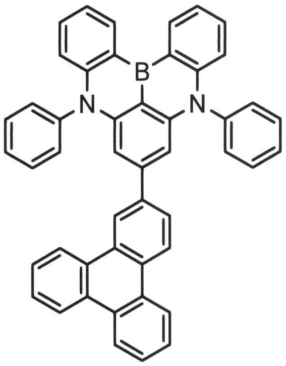
(1-441)



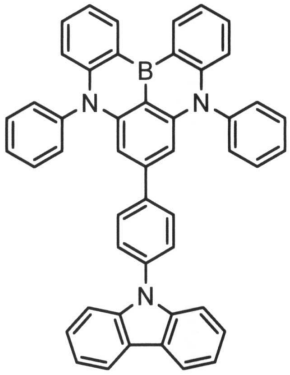
(1-442)



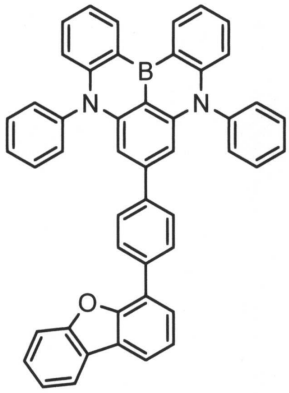
(1-443)



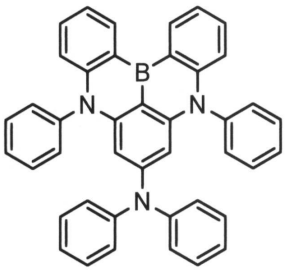
(1-444)



(1-445)



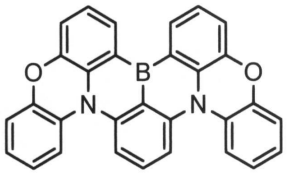
(1-446)



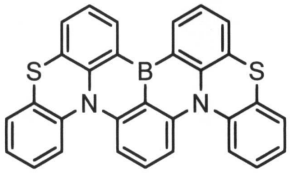
(1-447)

【００５６】

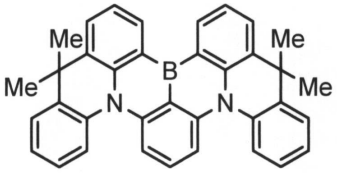
【化２３】



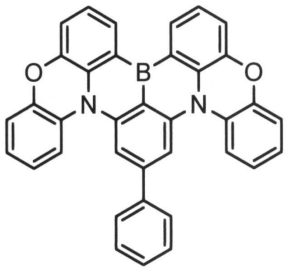
(1-451)



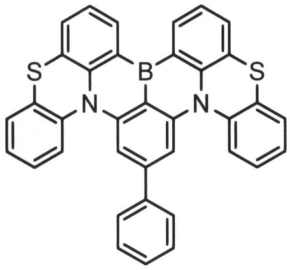
(1-452)



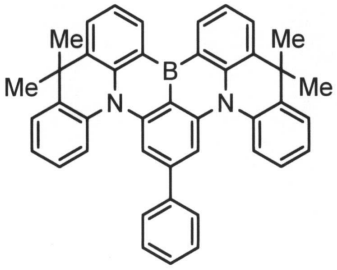
(1-453)



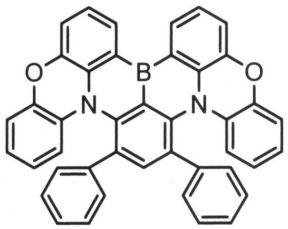
(1-454)



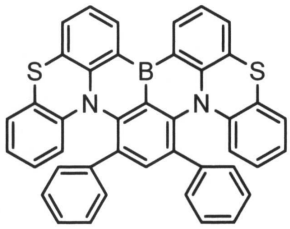
(1-455)



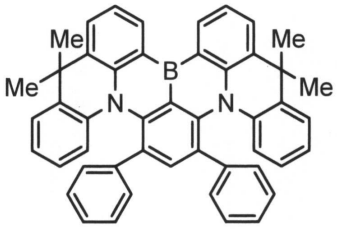
(1-456)



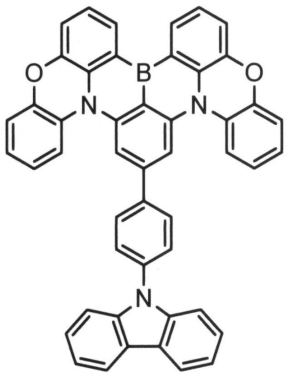
(1-457)



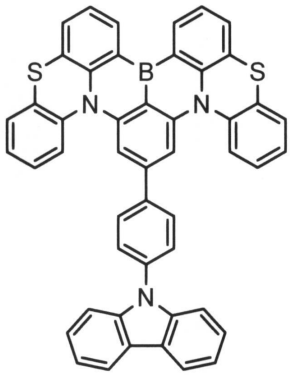
(1-458)



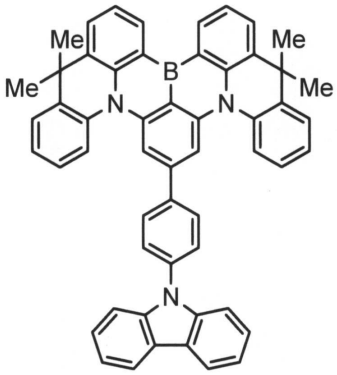
(1-459)



(1-460)



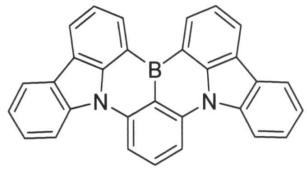
(1-461)

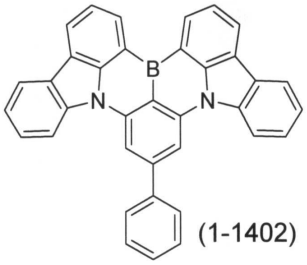


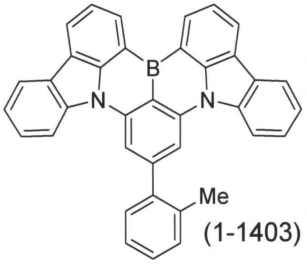
(1-462)

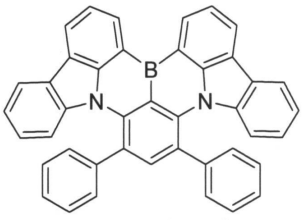
【００５７】

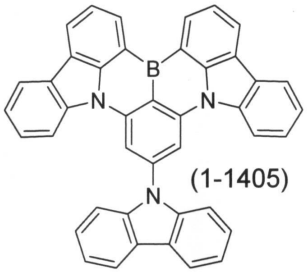
【化２４】

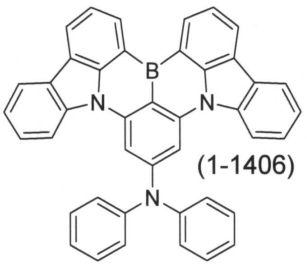

(1-1401)

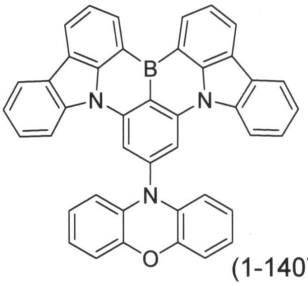

(1-1402)

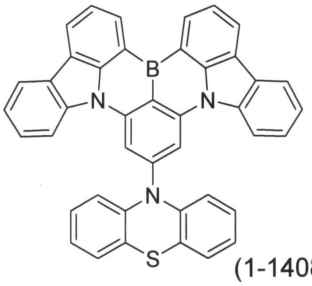

(1-1403)

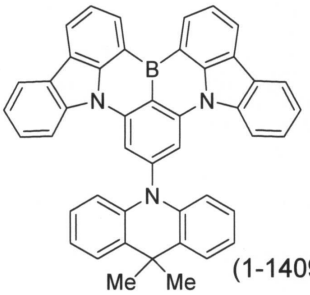

(1-1404)

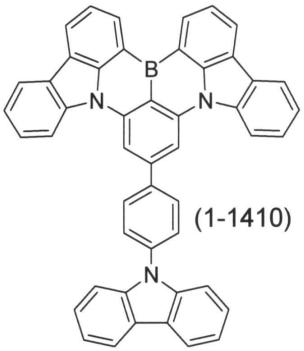

(1-1405)

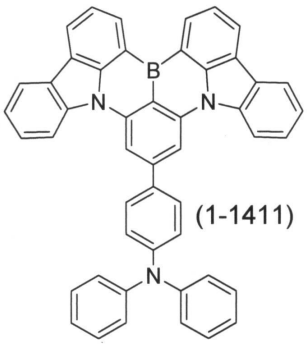

(1-1406)

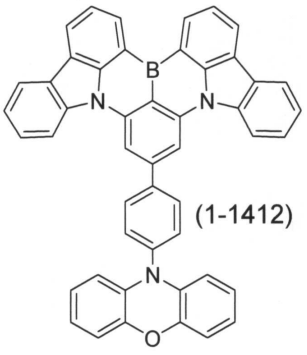

(1-1407)

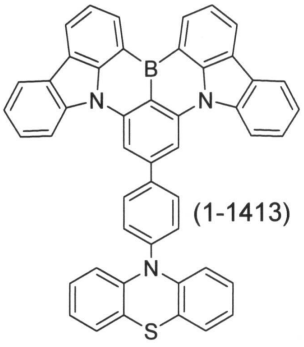

(1-1408)

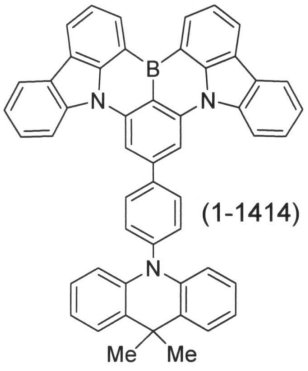

(1-1409)


(1-1410)


(1-1411)

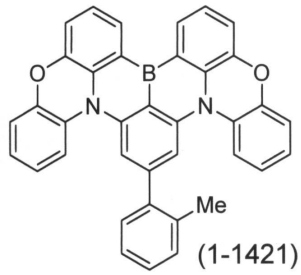

(1-1412)

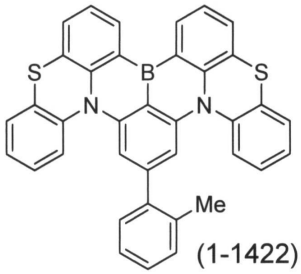

(1-1413)

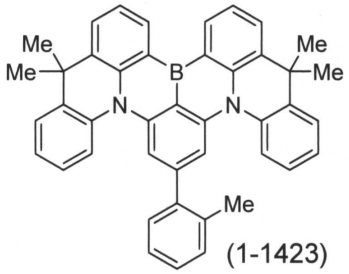

(1-1414)

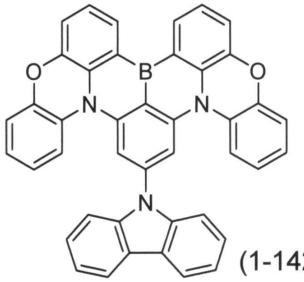
【００５８】

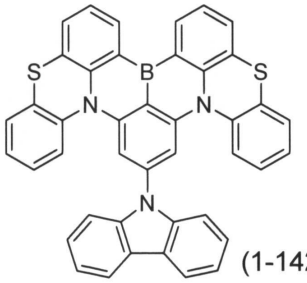
【化２５】

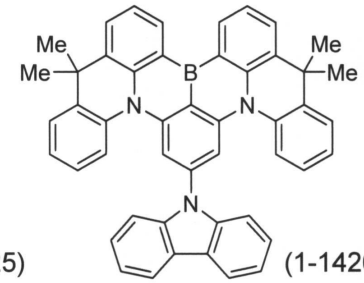

(1-1421)

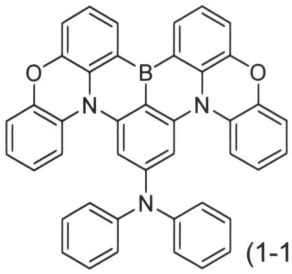

(1-1422)

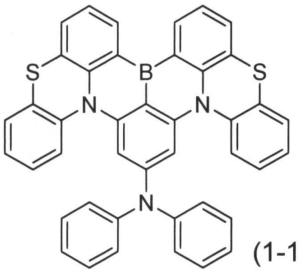

(1-1423)

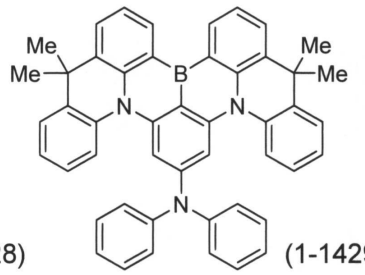

(1-1424)

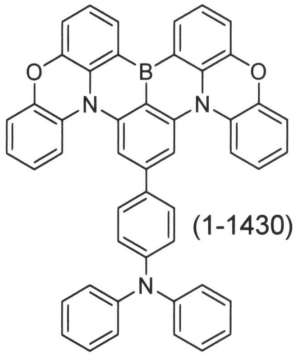

(1-1425)

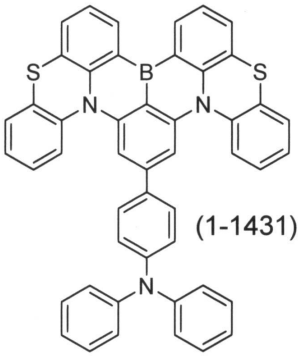

(1-1426)

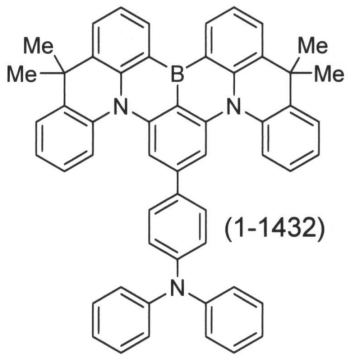

(1-1427)

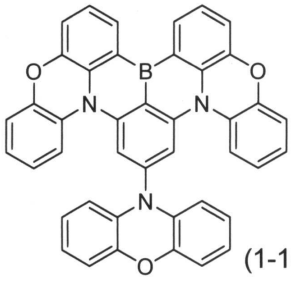

(1-1428)

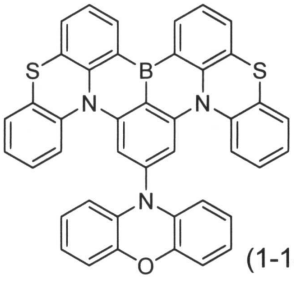

(1-1429)

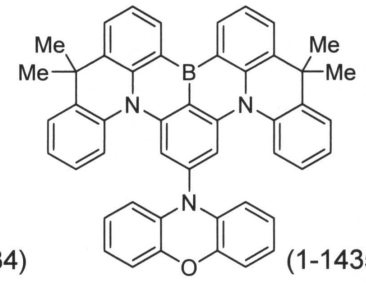

(1-1430)


(1-1431)


(1-1432)

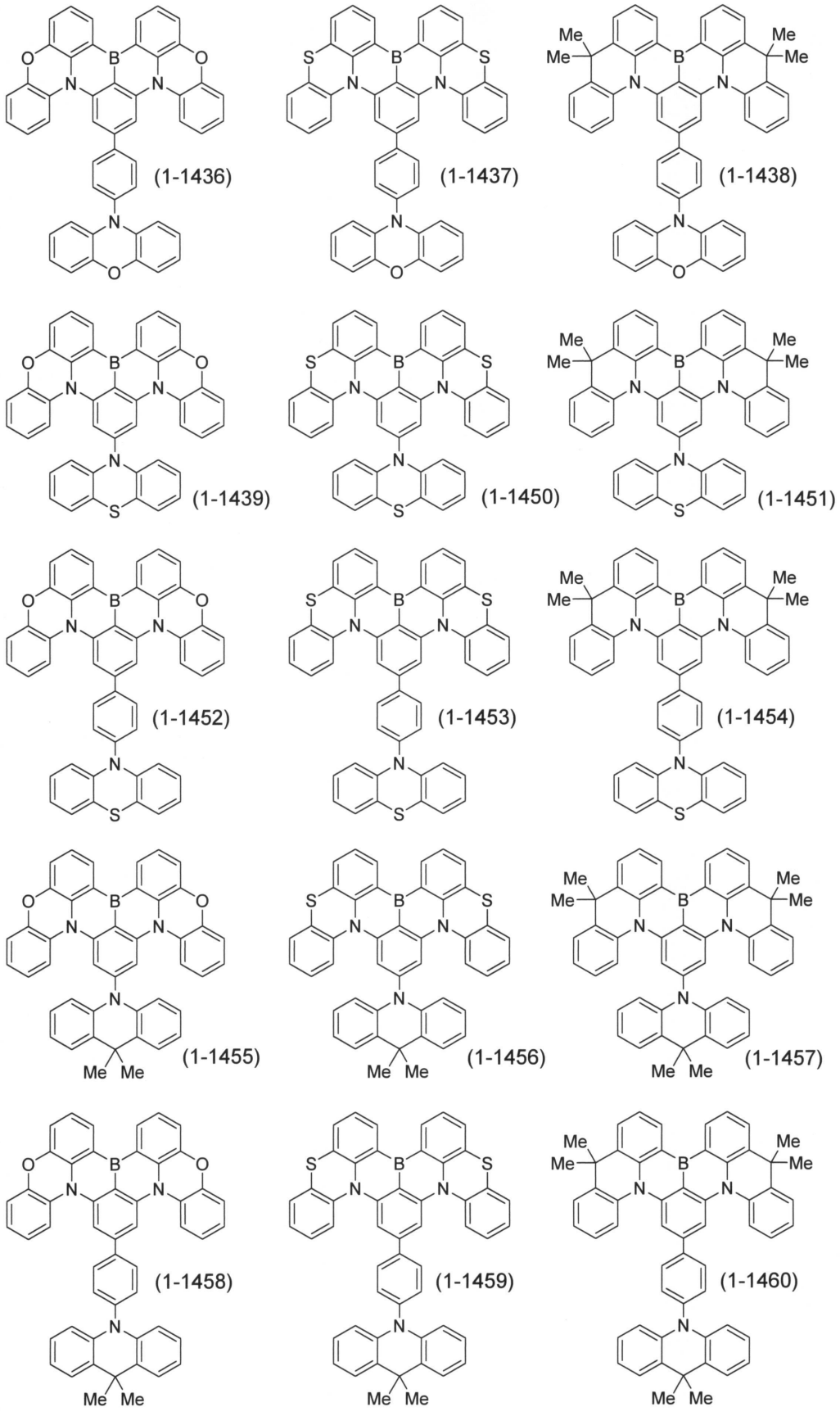

(1-1433)


(1-1434)


(1-1435)

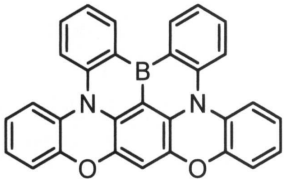
【００５９】

【化２６】

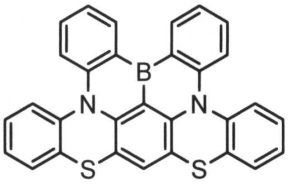

(1-1436)
(1-1437)
(1-1438)
(1-1439)
(1-1450)
(1-1451)
(1-1452)
(1-1453)
(1-1454)
(1-1455)
(1-1456)
(1-1457)
(1-1458)
(1-1459)
(1-1460)

【００６０】

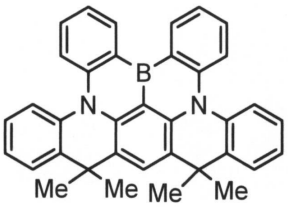
【化２７】



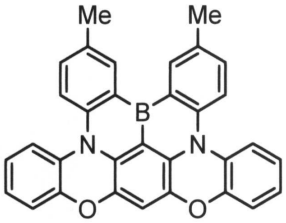
(1-471)



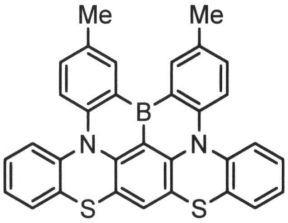
(1-472)



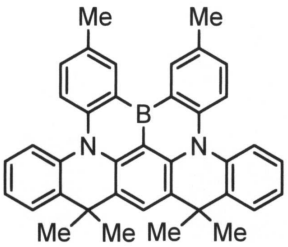
(1-473)



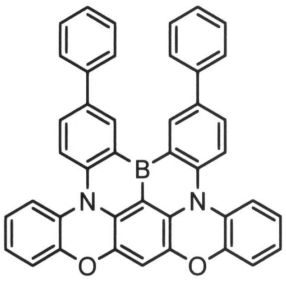
(1-474)



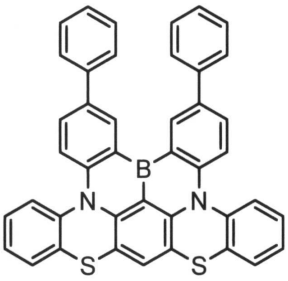
(1-475)



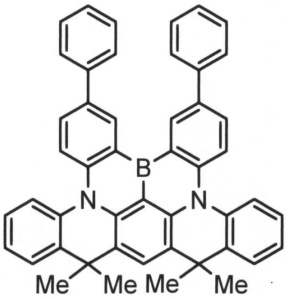
(1-476)



(1-477)



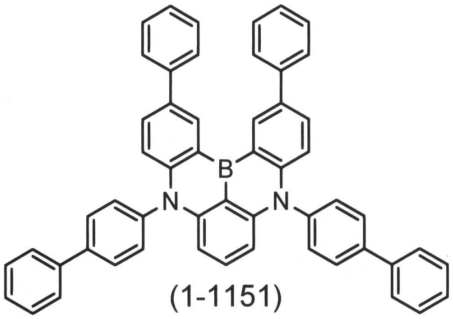
(1-478)

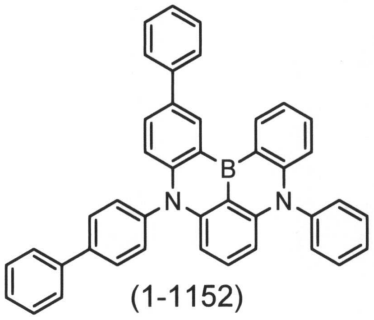


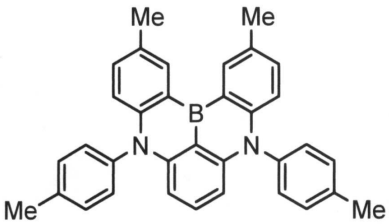
(1-479)

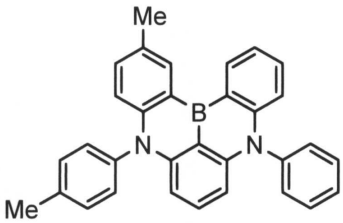
【００６１】

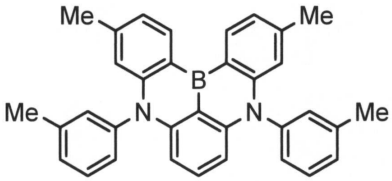
【化２８】

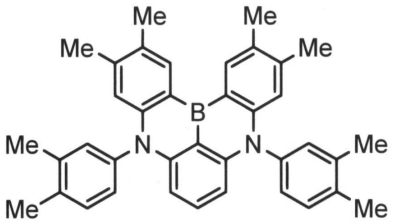

(1-1151)

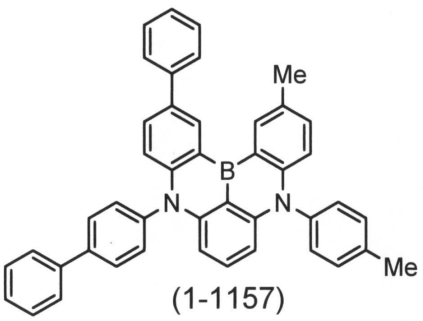

(1-1152)

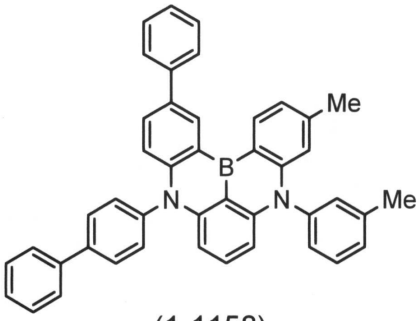

(1-1153)

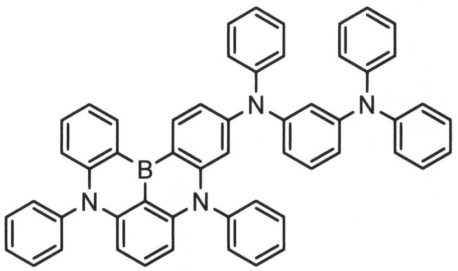

(1-1154)


(1-1155)


(1-1156)

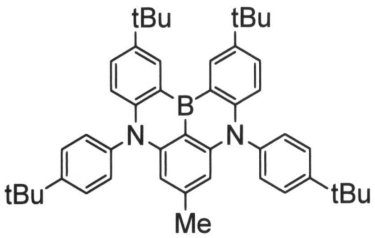

(1-1157)


(1-1158)

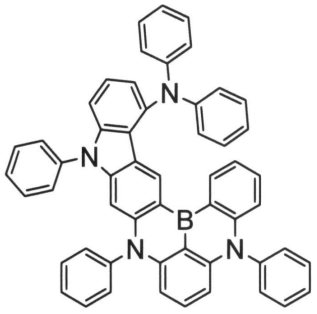

(1-1159)

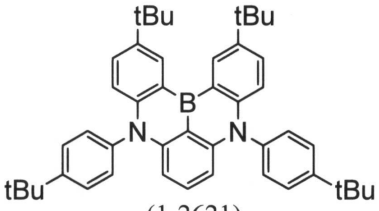
【００６２】

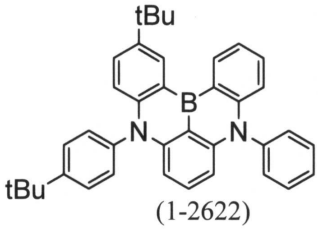
【化２９】

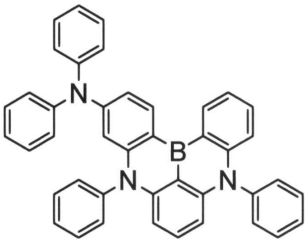

(1-2619)

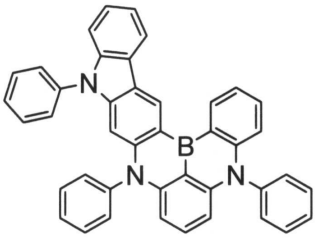
【００６３】
【化３０】

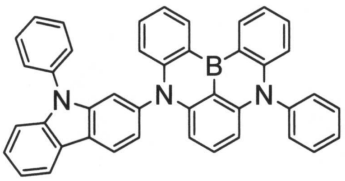

(1-2620)

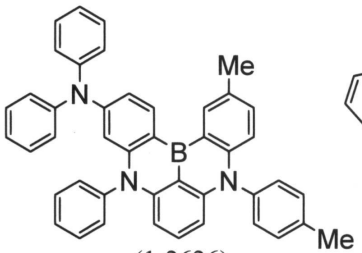

(1-2621)

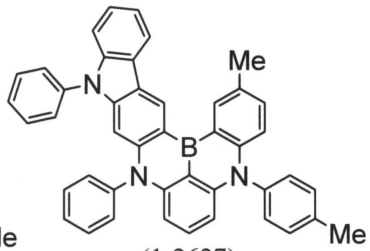

(1-2622)

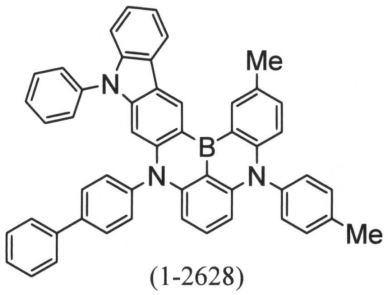

(1-2623)

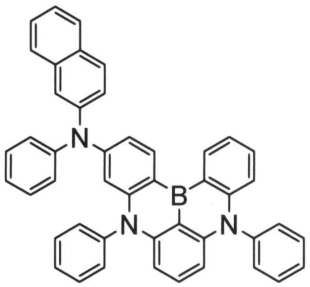

(1-2624)

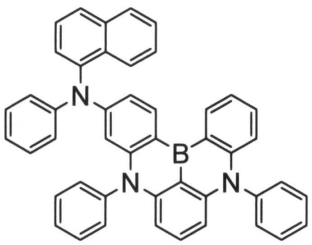

(1-2625)

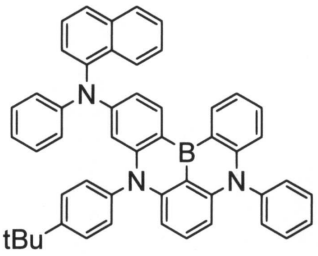

(1-2626)

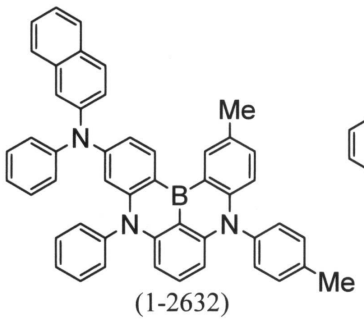

(1-2627)

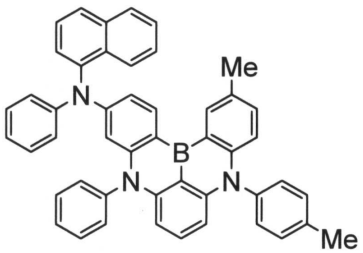

(1-2628)

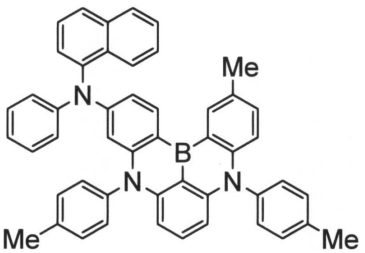

(1-2629)


(1-2630)


(1-2631)

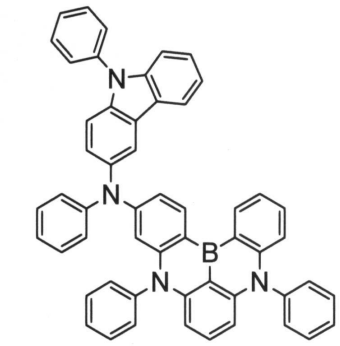

(1-2632)


(1-2633)

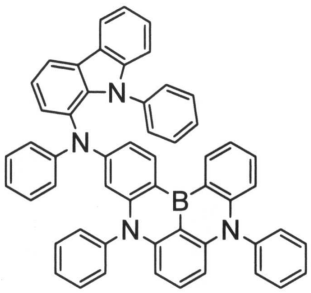

(1-2634)

【００６４】

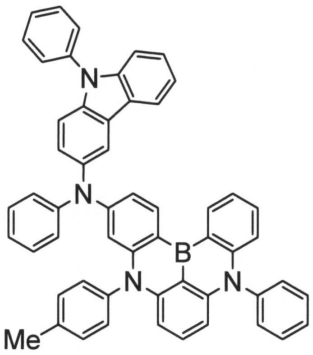
【化３１】



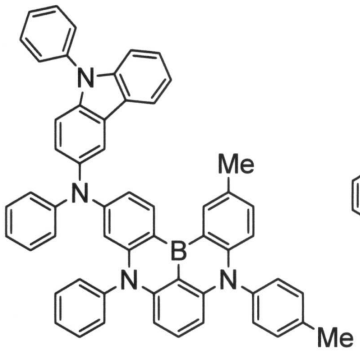
(1-2635)



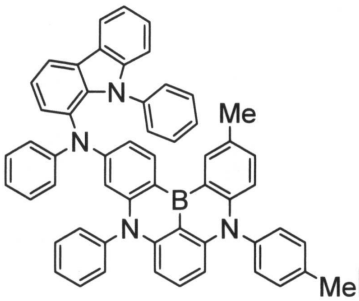
(1-2636)



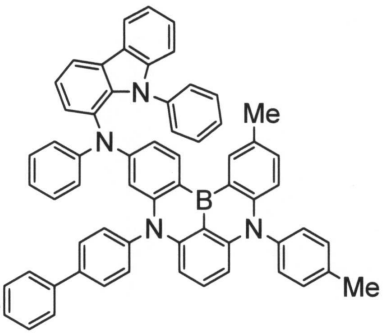
(1-2637)



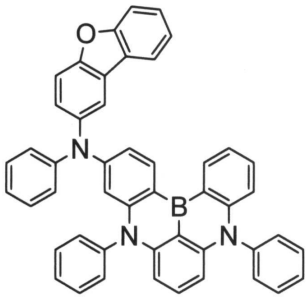
(1-2638)



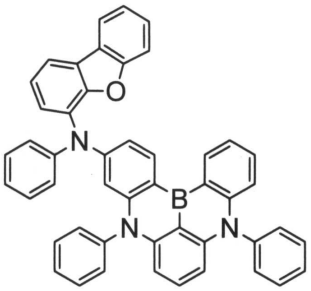
(1-2639)



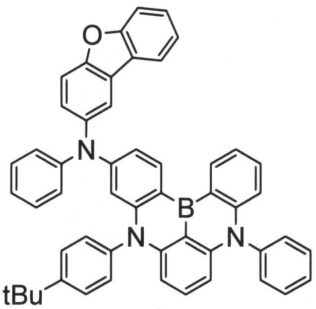
(1-2640)



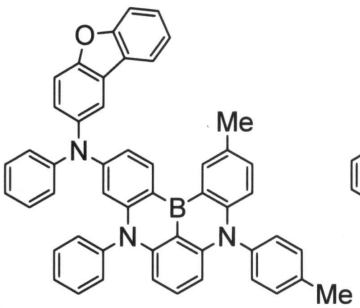
(1-2641)



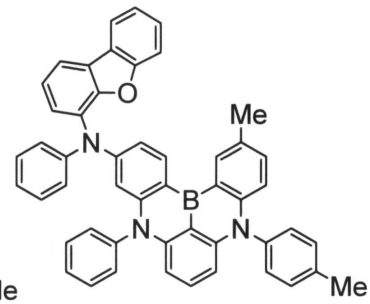
(1-2642)



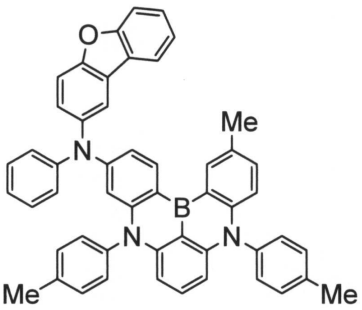
(1-2643)



(1-2644)



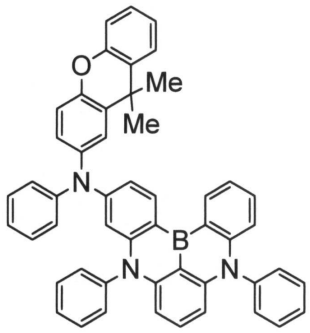
(1-2645)



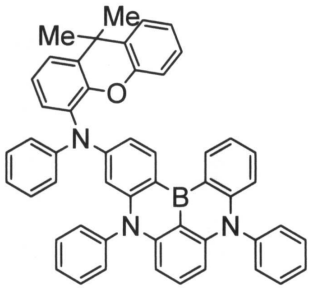
(1-2646)

【００６５】

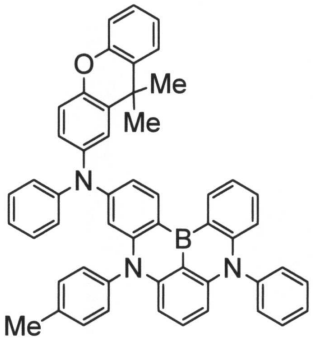
【化３２】



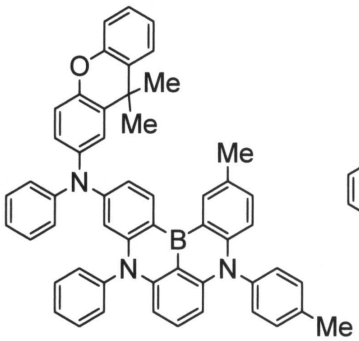
(1-2647)



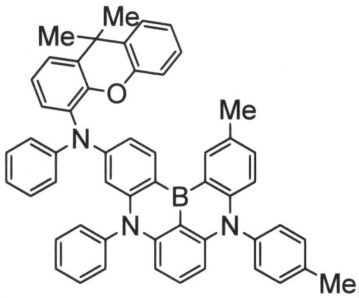
(1-2648)



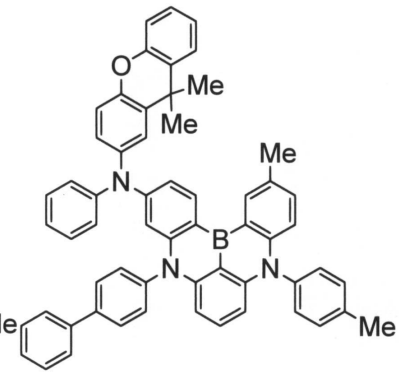
(1-2649)



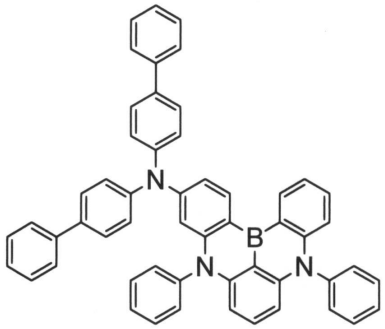
(1-2650)



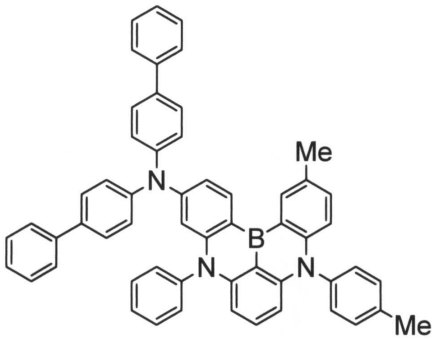
(1-2651)



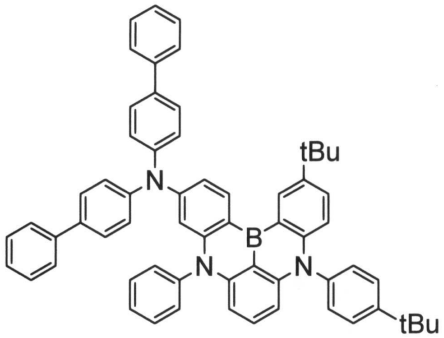
(1-2652)



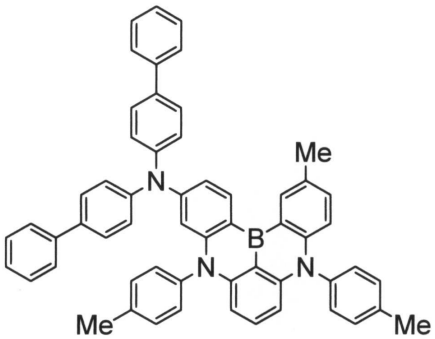
(1-2653)



(1-2654)



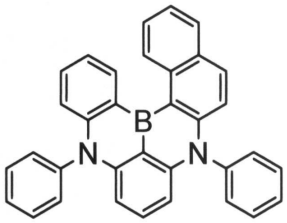
(1-2655)



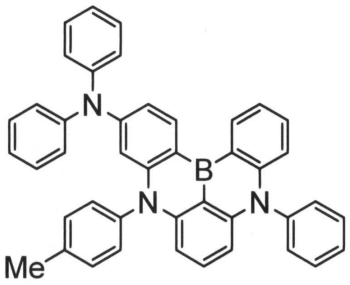
(1-2656)

【００６６】

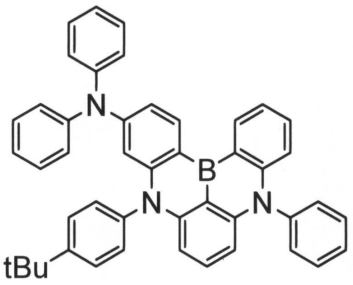
【化３３】



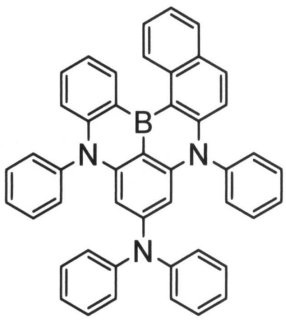
(1-2657)



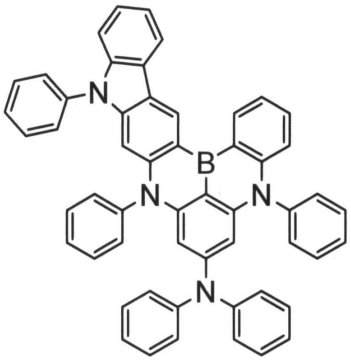
(1-2658)



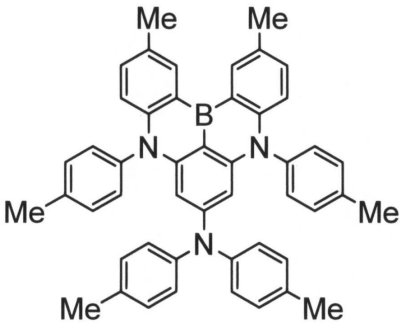
(1-2659)



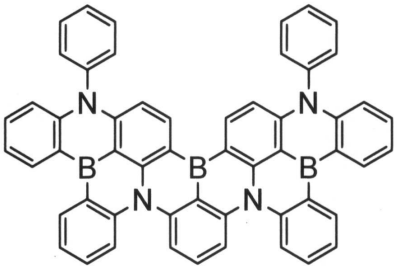
(1-2660)



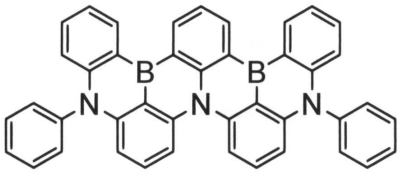
(1-2661)



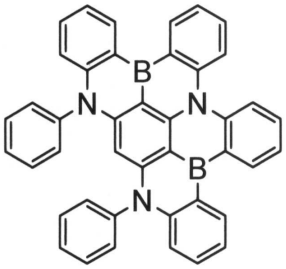
(1-2662)



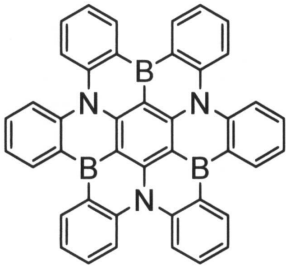
(1-2663)



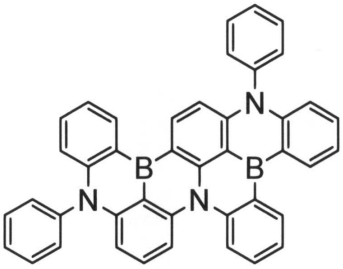
(1-2664)



(1-2665)



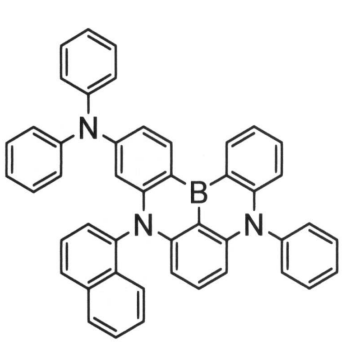
(1-2666)

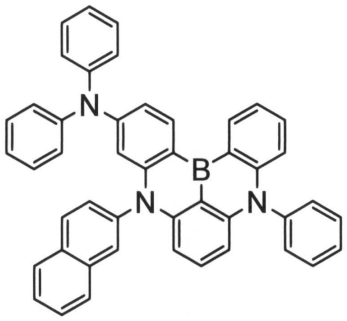


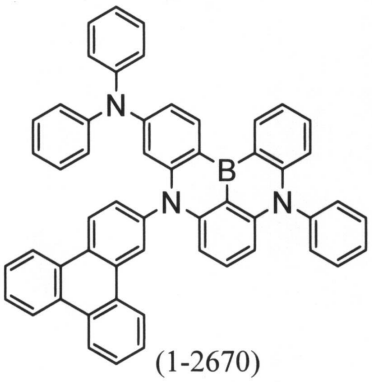
(1-2667)

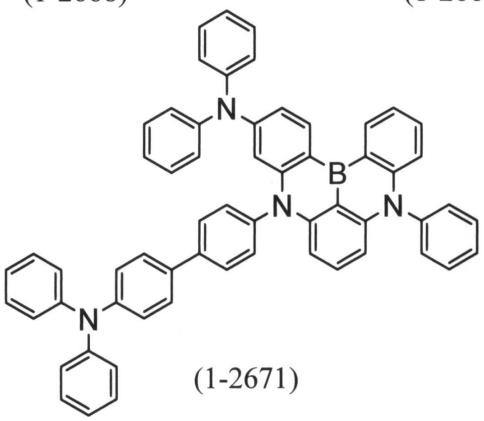
【００６７】

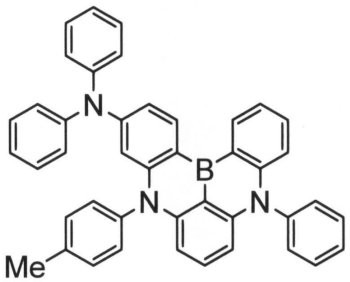
【化３４】

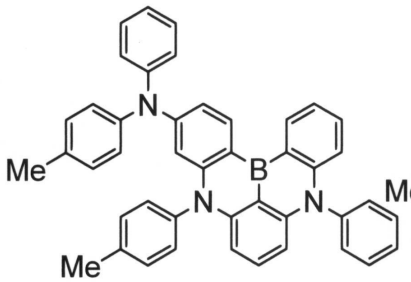

(1-2668)

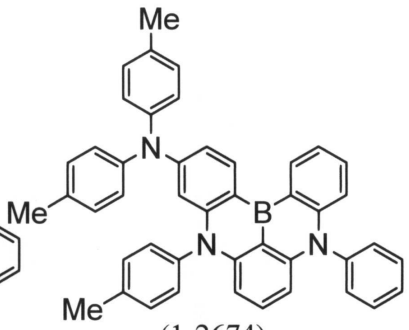

(1-2669)

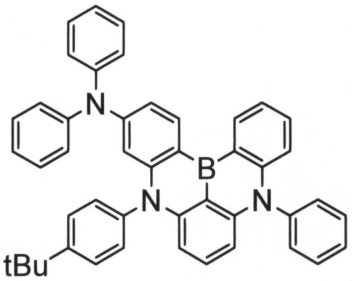

(1-2670)

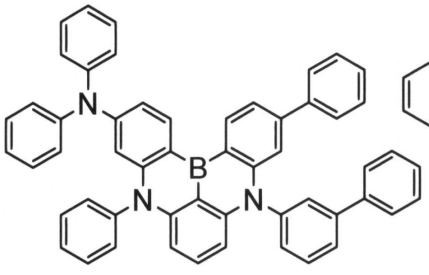

(1-2671)

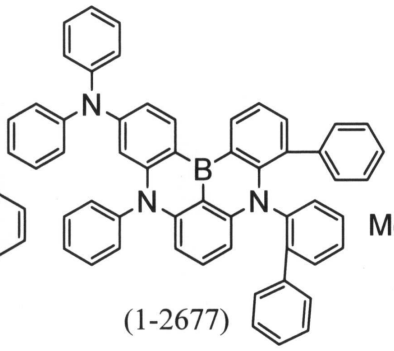

(1-2672)

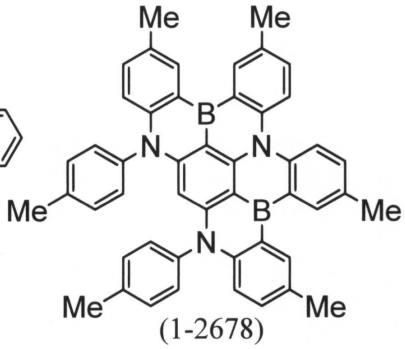

(1-2673)


(1-2674)


(1-2675)

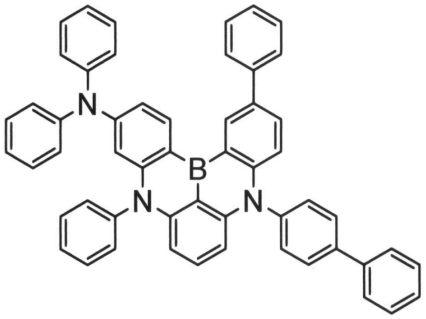

(1-2676)


(1-2677)

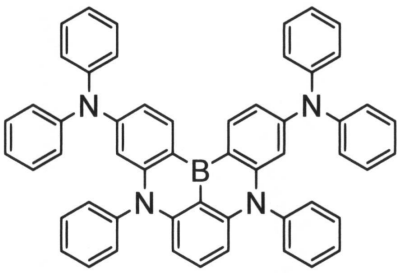

(1-2678)

【００６８】

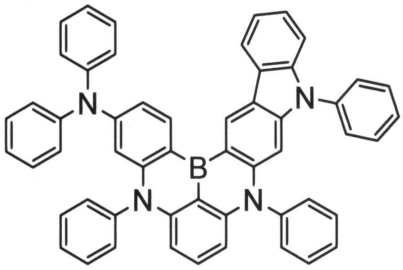
【化３５】



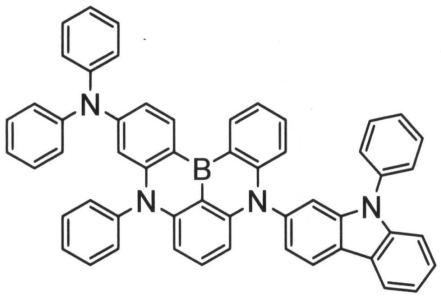
(1-2679)



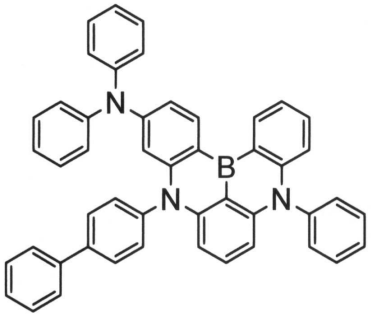
(1-2680)



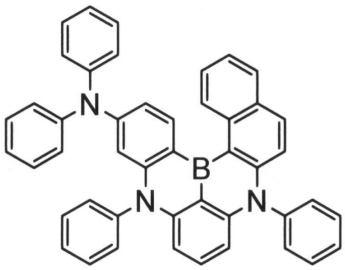
(1-2681)



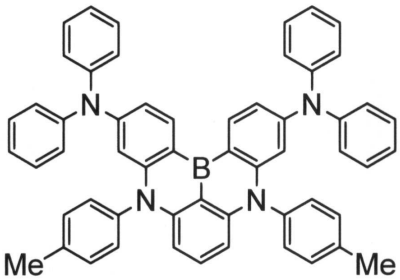
(1-2682)



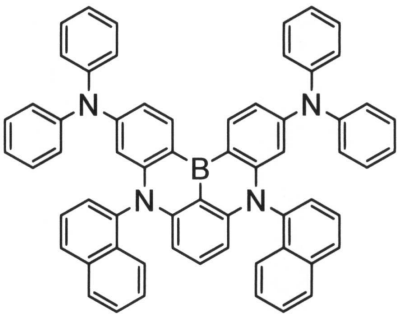
(1-2683)



(1-2684)



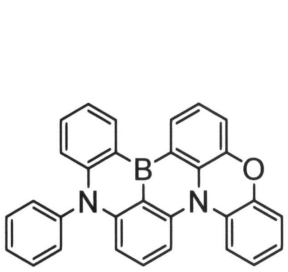
(1-2685)



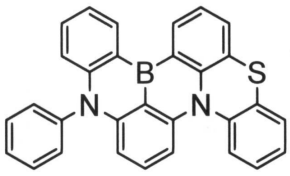
(1-2686)

【００６９】

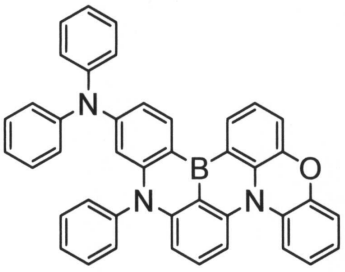
【化３６】



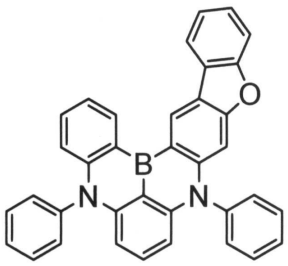
(1-2691)



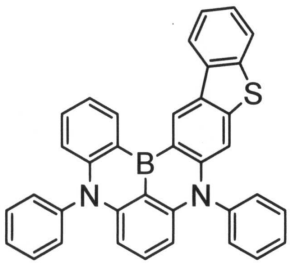
(1-2692)



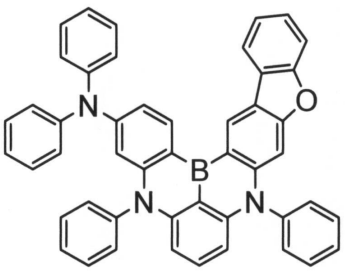
(1-2693)



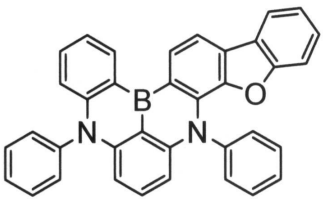
(1-2694)



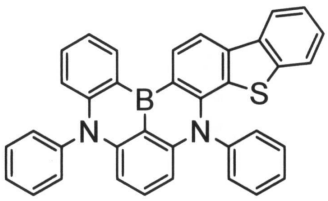
(1-2695)



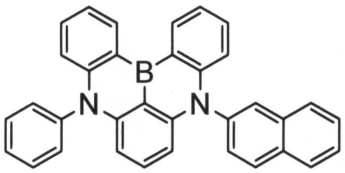
(1-2696)



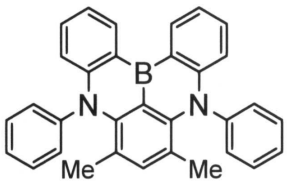
(1-2697)



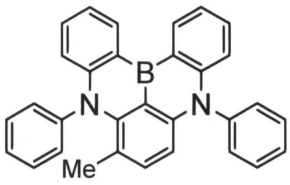
(1-2698)



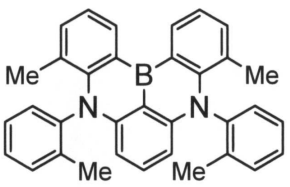
(1-2699)



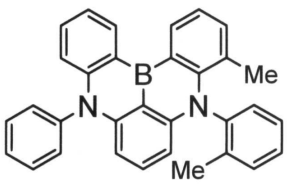
(1-2700)



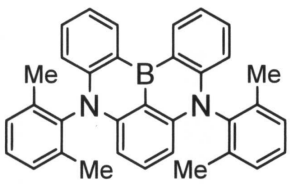
(1-2701)



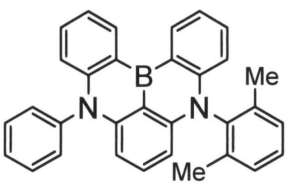
(1-2702)



(1-2703)



(1-2704)



(1-2705)

【００７０】

また、多環芳香族化合物およびその多量体は、Ａ環、Ｂ環およびＣ環（ａ環、ｂ環およびｃ環）の少なくとも１つにおける、Y^1に対するパラ位にフェニルオキシ基、カルバゾリル基またはジフェニルアミノ基を導入することで、Ｔ１エネルギーの向上（およそ０．０１～０．１ｅＶ向上）が期待できる。特に、Ｂ（ホウ素）に対するパラ位にフェニルオキシ基を導入することで、Ａ環、Ｂ環およびＣ環（ａ環、ｂ環およびｃ環）であるベンゼ

ン環上のＨＯＭＯがよりホウ素に対するメタ位に局在化し、ＬＵＭＯがホウ素に対するオルトおよびパラ位に局在化するため、Ｔ１エネルギーの向上が特に期待できる。

【００７１】

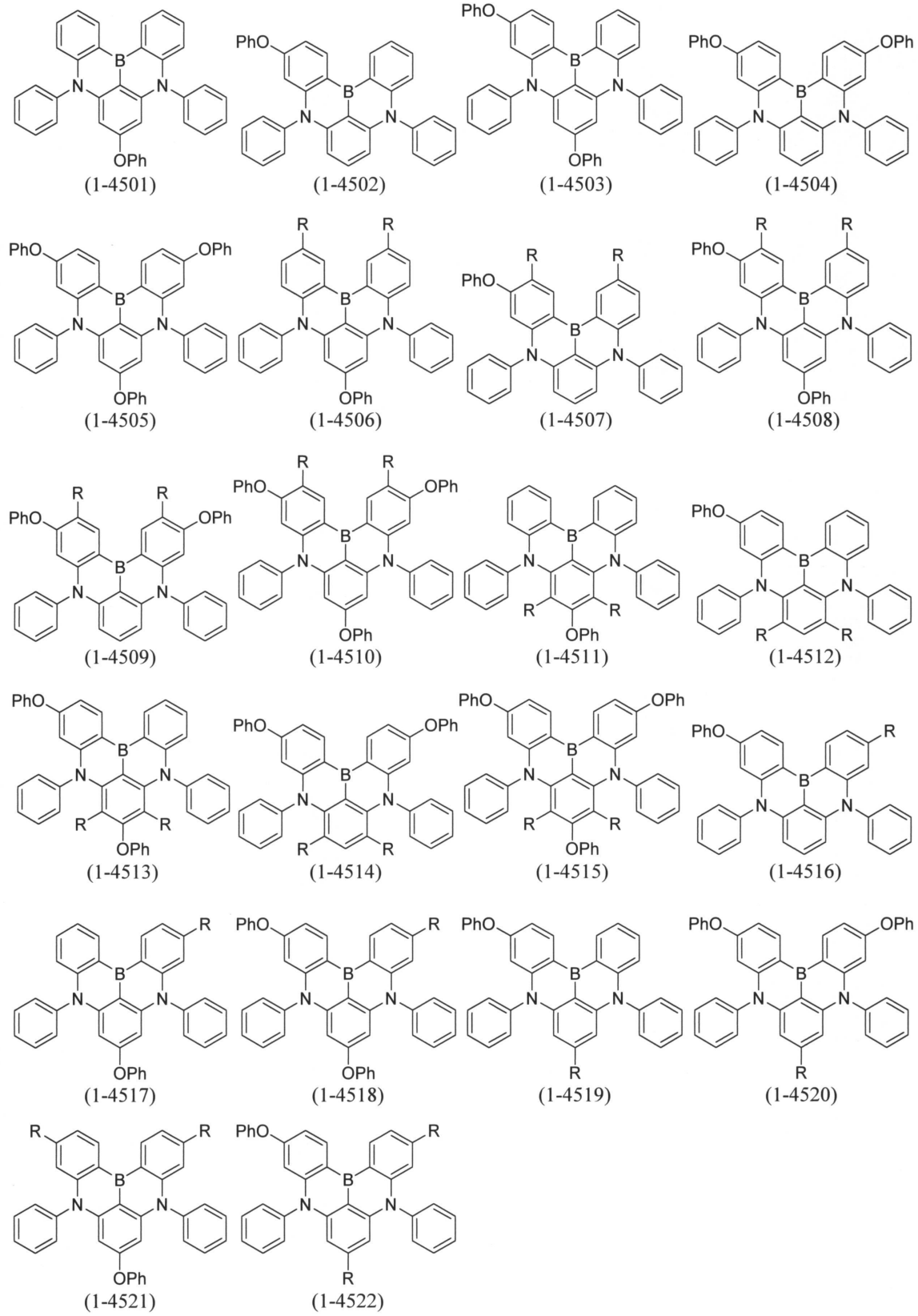
このような具体例としては、例えば、下記式（１－４５０１）～（１－４５２２）で表される化合物があげられる。

なお、式中のＲはアルキルであり、直鎖および分枝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の分枝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の分枝鎖アルキル）が好ましく、炭素数１～１２のアルキル（炭素数３～１２の分枝鎖アルキル）がより好ましく、炭素数１～６のアルキル（炭素数３～６の分枝鎖アルキル）がさらに好ましく、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分枝鎖アルキル）が特に好ましい。また、Ｒとしては他にフェニルがあげられる。

また、「ＰｈＯ－」はフェニルオキシ基であり、このフェニルは直鎖または分枝鎖のアルキルで置換されていてもよく、例えば、炭素数１～２４の直鎖アルキルまたは炭素数３～２４の分枝鎖アルキル、炭素数１～１８のアルキル（炭素数３～１８の分枝鎖アルキル）、炭素数１～１２のアルキル（炭素数３～１２の分枝鎖アルキル）、炭素数１～６のアルキル（炭素数３～６の分枝鎖アルキル）、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分枝鎖アルキル）で置換されていてもよい。

【００７２】

【化３７】



【００７３】

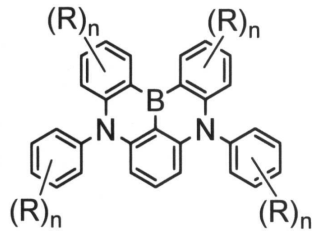
また、多環芳香族化合物およびその多量体の具体的な例としては、上述した化合物において、化合物中の１個または複数個の芳香環における少なくとも１つの水素が１個または複数個のアルキルやアリールで置換された化合物があげられ、より好ましくは１～２個の炭素数１～１２のアルキルや炭素数６～１０のアリールで置換された化合物があげられる

。

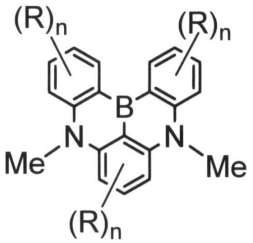
具体的には、以下の化合物があげられる。下記式中のＲはそれぞれ独立して炭素数１～１２のアルキルまたは炭素数６～１０のアリール、好ましくは炭素数１～４のアルキルまたはフェニルであり、ｎはそれぞれ独立して０～２、好ましくは１である。

【００７４】

【化３８】

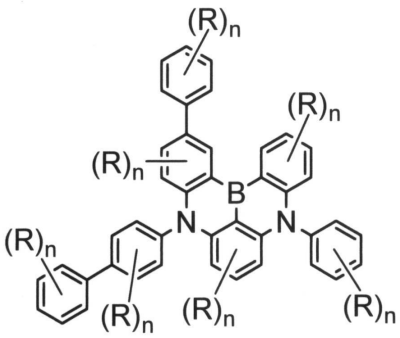


(1-401-R)

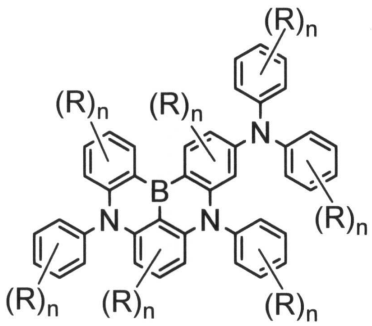


(1-411-R)

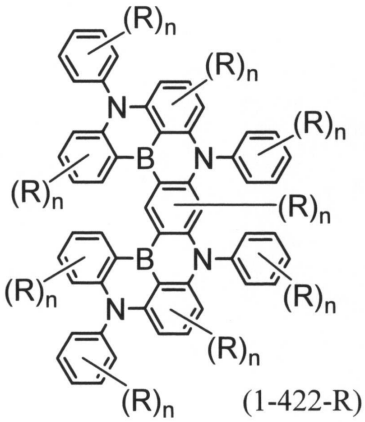
(1-447-R)



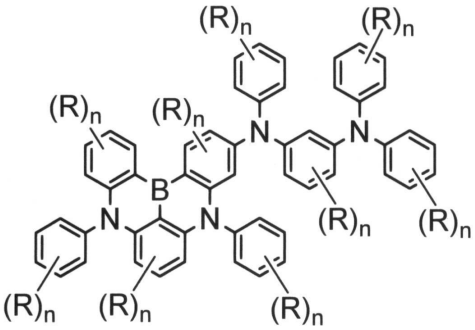
(1-1152-R)



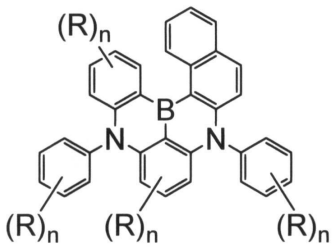
(1-2623-R)



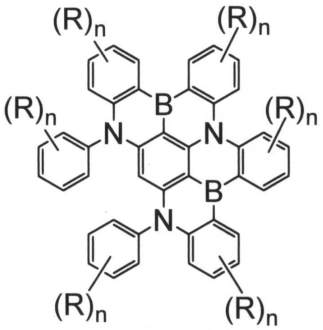
(1-422-R)



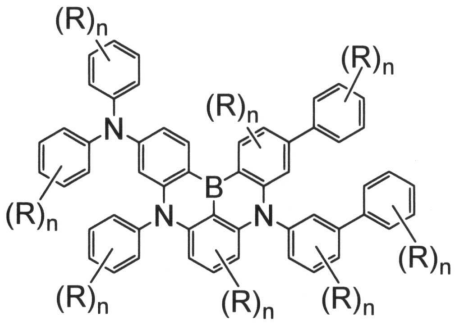
(1-1159-R)



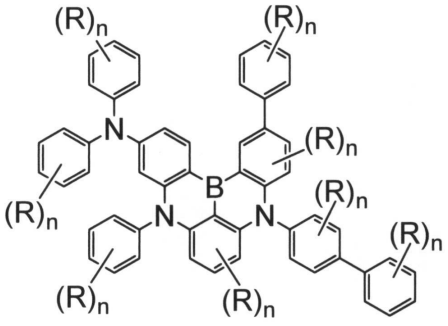
(1-2657-R)



(1-2665-R)

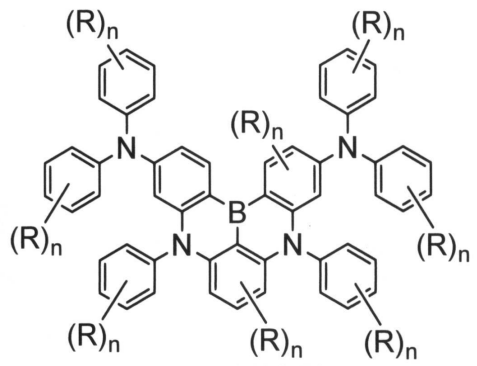


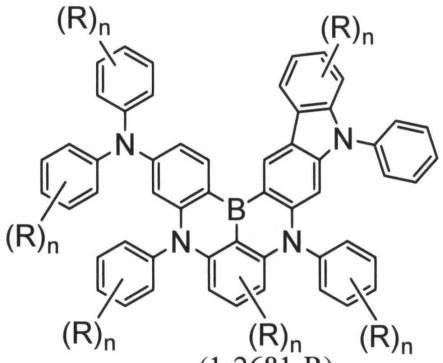
(1-2676-R)

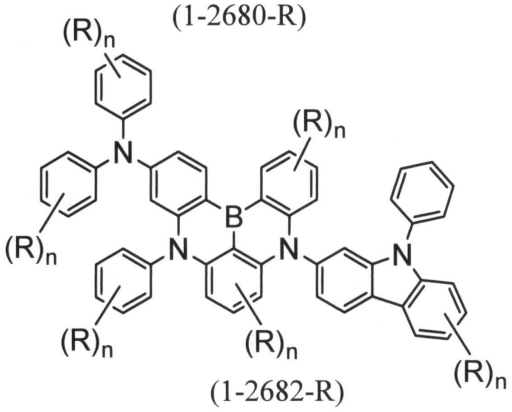


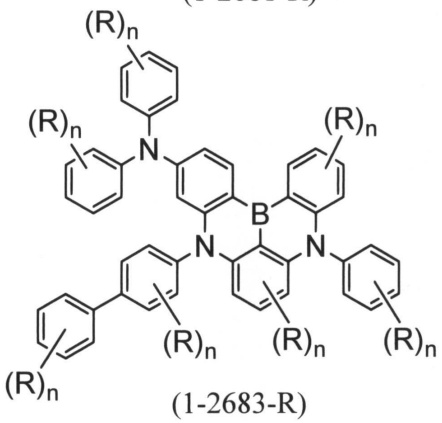
(1-2679-R)

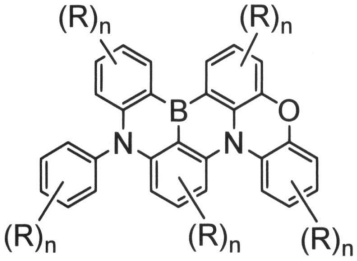
【００７５】
【化３９】

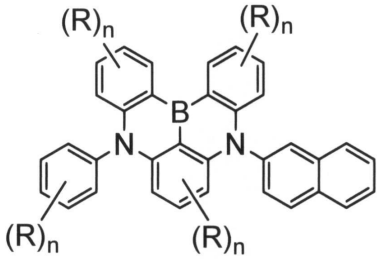

(1-2680-R)


(1-2681-R)


(1-2682-R)


(1-2683-R)


(1-2691-R)


(1-2699-R)

【００７６】
また、多環芳香族化合物およびその多量体の具体的な例としては、化合物中の１個または複数個のフェニル基または１個のフェニレン基における少なくとも１つの水素が１個または複数個の炭素数１～４のアルキル、好ましくは炭素数１～３のアルキル（好ましくは１個または複数個のメチル基）で置換された化合物があげられ、より好ましくは、１個のフェニル基のオルト位における水素（２箇所のうち２箇所とも、好ましくはいずれか一箇所）または１個のフェニレン基のオルト位における水素（最大４箇所のうち４箇所とも、好ましくはいずれか１箇所）がメチル基で置換された化合物があげられる。

【００７７】
化合物中の末端のフェニル基やｐ－フェニレン基のオルト位における少なくとも１つの水素をメチル基などで置換することにより、隣り合う芳香環同士が直交しやすくなって共役が弱まる結果、三重項励起エネルギー（E_T）を高めることが可能となる。

【００７８】
１－２．多環芳香族化合物およびその多量体の製造方法

一般式（１）や（２）で表される多環芳香族化合物およびその多量体は、基本的には、まずＡ環（ａ環）とＢ環（ｂ環）およびＣ環（ｃ環）とを結合基（X^1やX^2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）およびＣ環（ｃ環）を結合基（Y^1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、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。

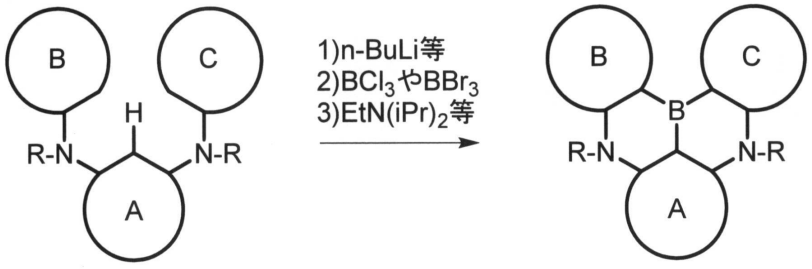
【００７９】

第２反応は、下記スキーム（１）や（２）に示すように、Ａ環（ａ環）、Ｂ環（ｂ環）およびＣ環（ｃ環）を結合するＹ^{1}（ホウ素）を導入する反応であり、まず、Ｘ^{1}とＸ^{2}（＞Ｎ－Ｒ）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はｔ－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。なお、スキーム（１）および（２）における構造式中のＲ^{1}～Ｒ^{11}およびＮ－ＲのＲは式（１）または式（２）における定義と同じである。

【００８０】

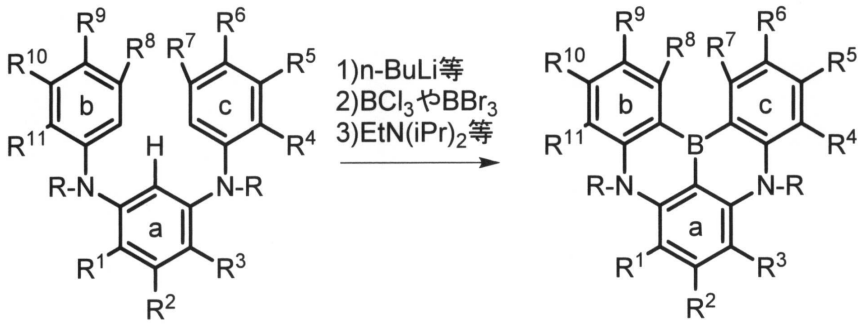
【化４０】

スキーム(1)



（中間体）　一般式(1)系化合物

スキーム(2)



（中間体）　一般式(2)系化合物

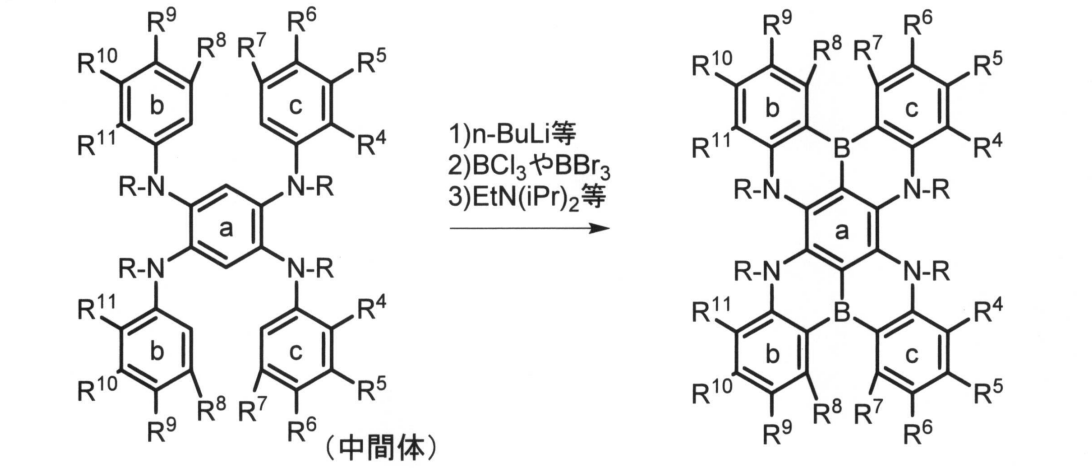
【００８１】

なお、上記スキーム（１）や（２）は、一般式（１）や（２）で表される多環芳香族化合物の製造方法を主に示しているが、その多量体については、複数のＡ環（ａ環）、Ｂ環（ｂ環）およびＣ環（ｃ環）を有する中間体を用いることで製造することができる。詳細には下記スキーム（３）～（５）で説明する。この場合、使用するブチルリチウム等の試薬の量を２倍量、３倍量とすることで目的物を得ることができる。なお、スキーム（３）～（５）における構造式中のＲ^{1}～Ｒ^{11}およびＮ－ＲのＲは式（２）における定義と同じである。

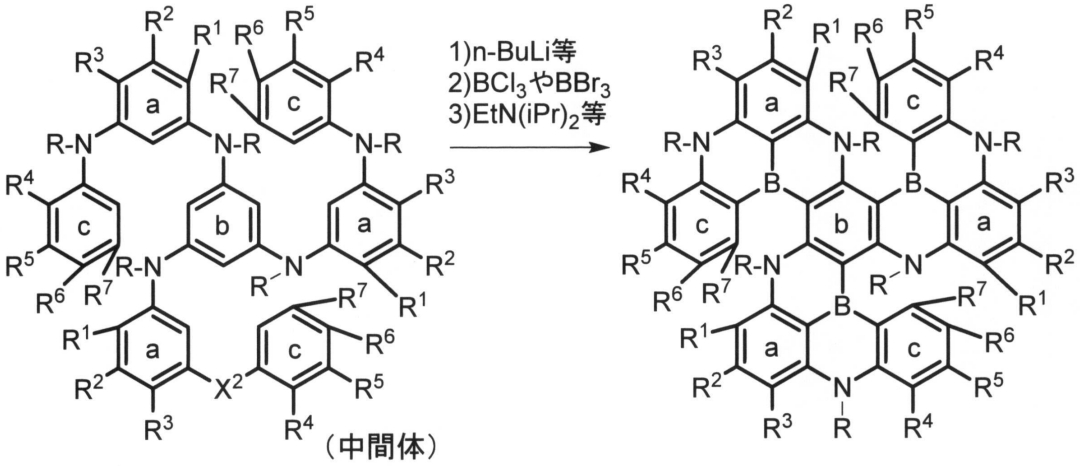
【００８２】

【化４１】

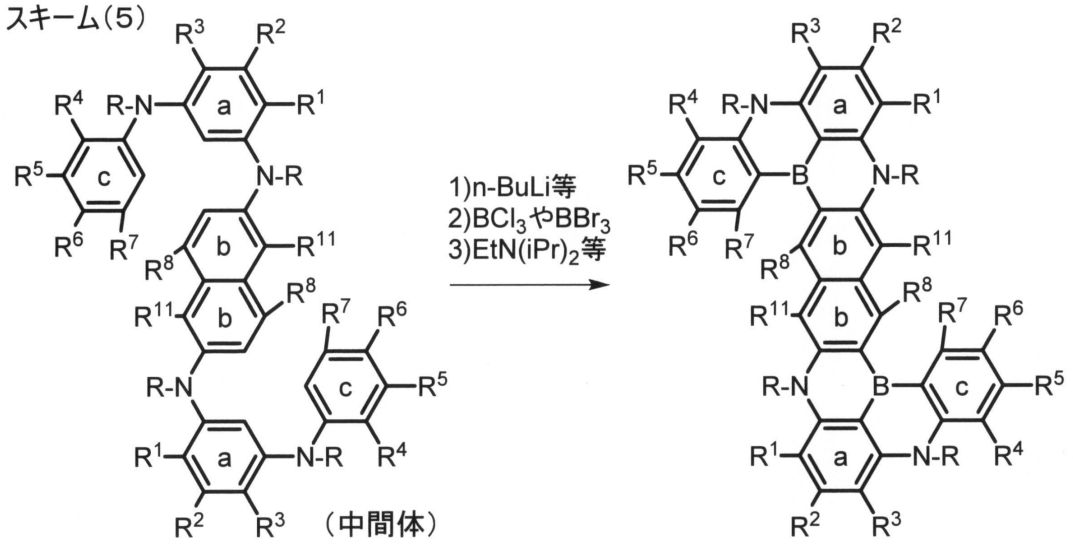
スキーム(3)



スキーム(4)



スキーム(5)

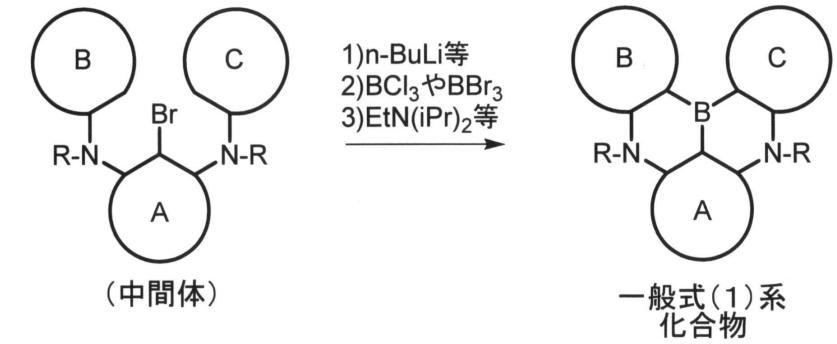


【００８３】

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（６）および（７）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。なお、スキーム（６）および（７）における構造式中のＲ１～Ｒ１１およびＮ－ＲのＲは式（１）または式（２）における定義と同じである。

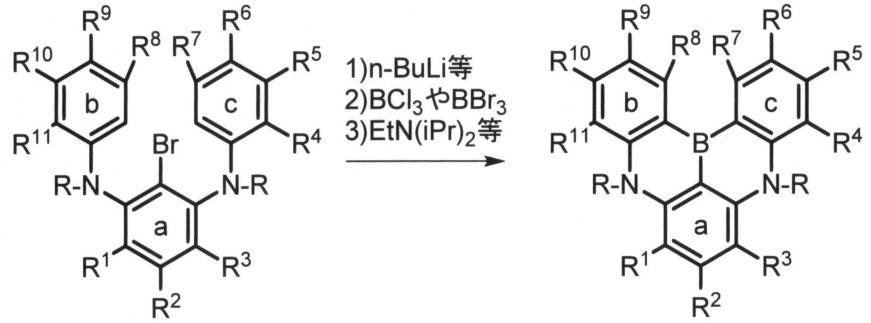
【００８４】
【化４２】

スキーム(6)



（中間体）　一般式(1)系化合物

スキーム(7)

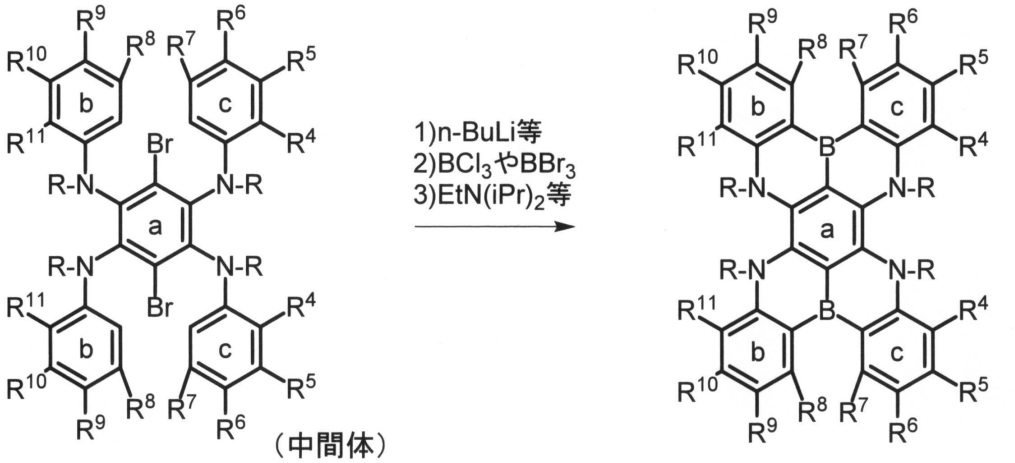


（中間体）　一般式(2)系化合物

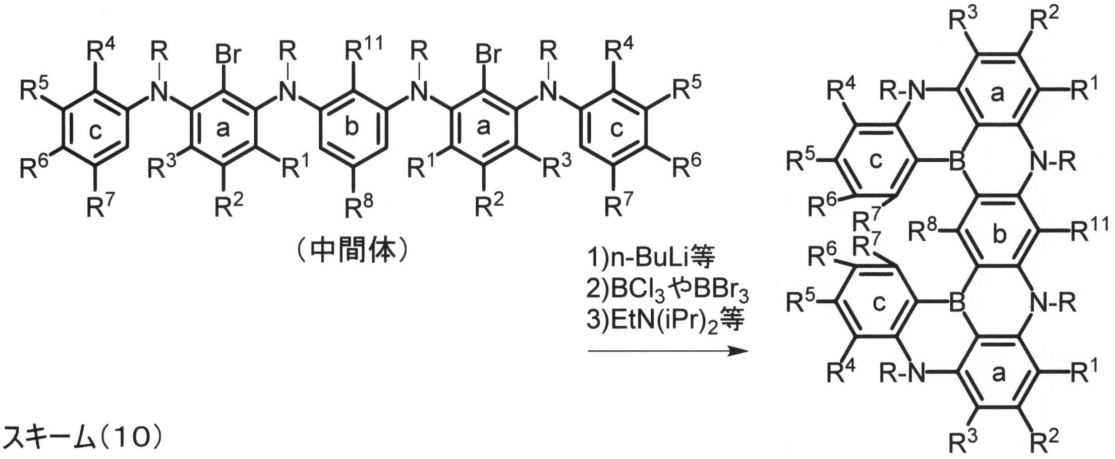
【００８５】
また、スキーム（３）で説明した多量体の製造方法についても、上記スキーム（６）および（７）のようにリチウムを導入したい位置に臭素原子や塩素原子等のハロゲンを導入し、ハロゲン－メタル交換によっても所望の位置へリチウムを導入することができる（下記スキーム（８）、（９）および（１０））。なお、スキーム（８）～（１０）における構造式中のＲ^{1}～Ｒ^{11}およびＮ－ＲのＲは式（２）における定義と同じである。
【００８６】

【化４３】

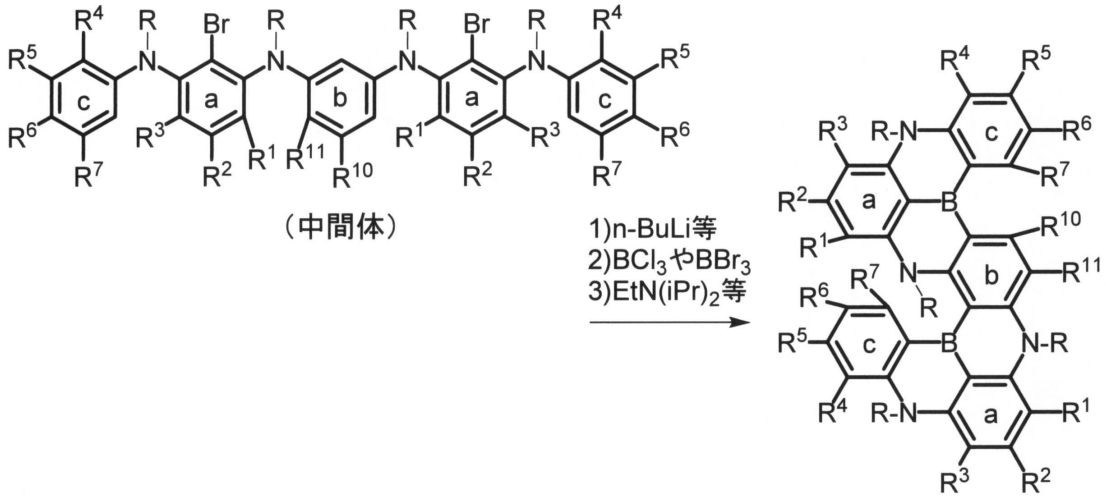
スキーム(8)



スキーム(9)



スキーム(10)



【００８７】

この方法によれば、置換基の影響でオルトメタル化ができないようなケースでも目的物を合成することができ有用である。

【００８８】

以上の反応で用いられる溶媒の具体例は、ｔ－ブチルベンゼンやキシレンなどである。

【００８９】

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する多環芳香族化合物およびその多量体を合成することができる。

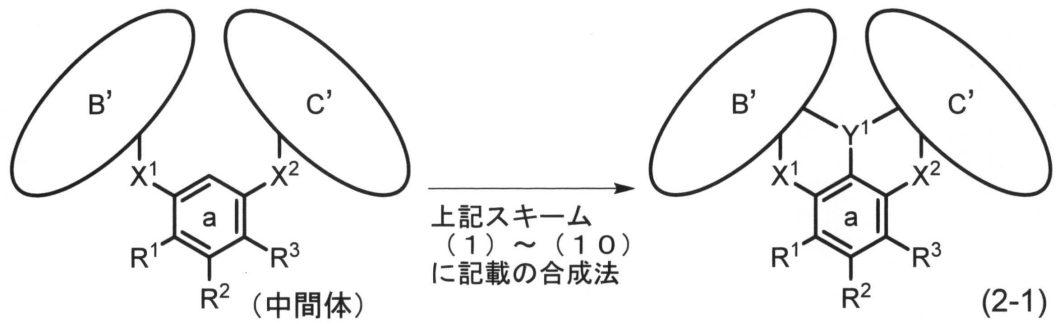
【００９０】

また、一般式（２）では、ａ環、ｂ環およびｃ環の置換基Ｒ^{1}～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またはヘテロアリールで置換されていてもよい。したがって、一般式（２）で表される多環芳香族化合物は、ａ環、ｂ環およびｃ環における置換基の相互の結合形態によって、下記スキーム（１１）および（１２）の式（２－１）および式（２－２）に示すように、化合物を構成する環構造が変化する。これらの化合物は下記スキーム（１１）および（１２）に示す中間体に上記スキーム（１）～（１０）で示した合成法を適用することで合成することができる。なお、スキーム（１１）および（１２）における構造式中のＲ^{1}～Ｒ^{11}、Ｙ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}は式（２）における定義と同じである。

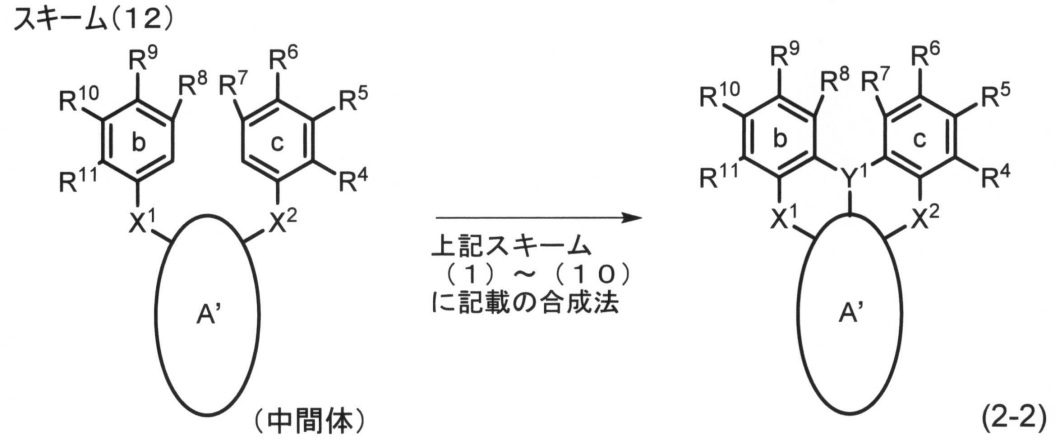
【００９１】

【化４４】

スキーム(11)



スキーム(12)



【００９２】

上記式（２－１）および式（２－２）中のＡ’環、Ｂ’環およびＣ’環は、置換基Ｒ^{1}～Ｒ^{11}のうちの隣接する基同士が結合して、それぞれａ環、ｂ環およびｃ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環またはｃ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、式では示してはいないが、ａ環、ｂ環およびｃ環の全てがＡ’環、Ｂ’環およびＣ’環に変化した化合物もある。

【００９３】

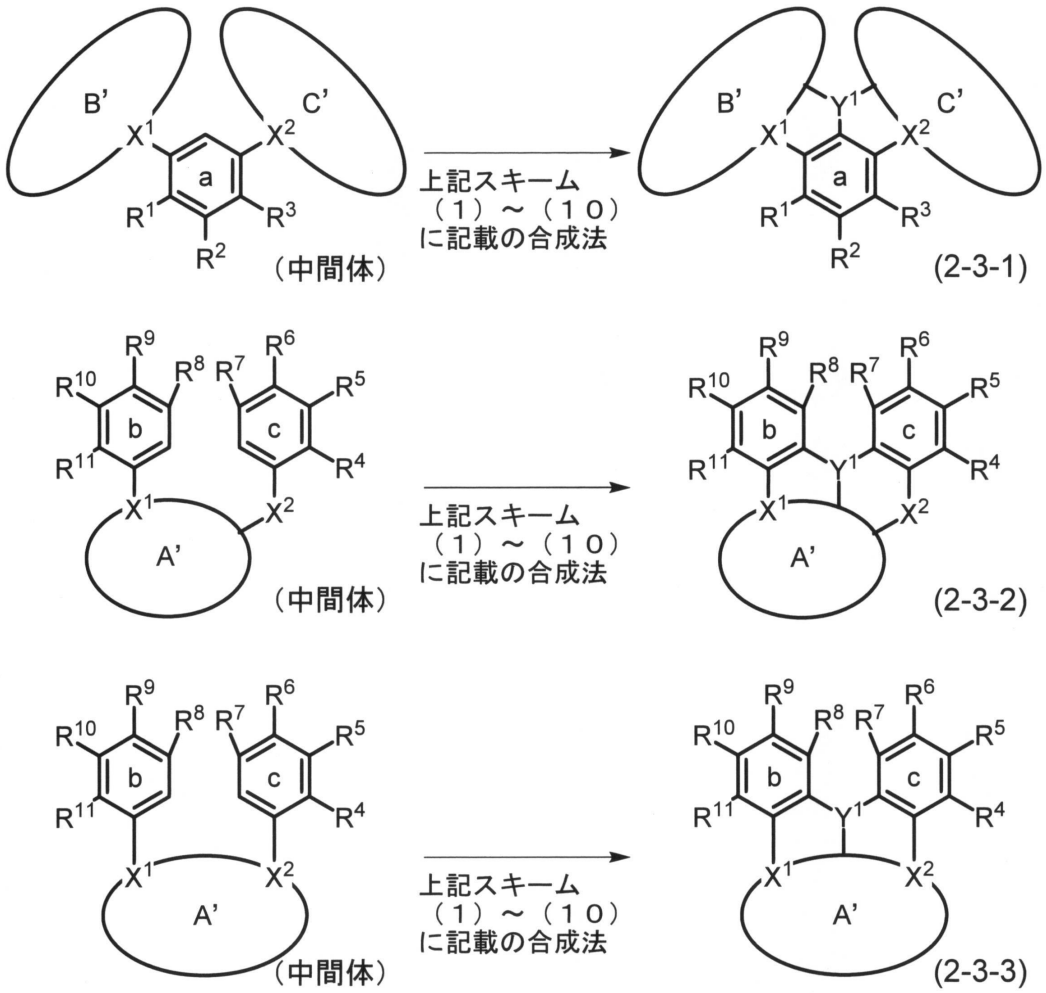
また、一般式（２）における「Ｎ－ＲのＲは－Ｏ－、－Ｓ－、－Ｃ（－Ｒ）$_{2}$－または単結合により前記ａ環、ｂ環および／またはｃ環と結合している」との規定は、下記スキーム（１３）の式（２－３－１）で表される、Ｘ^{1}やＸ^{2}が縮合環Ｂ’および縮合環Ｃ’に取り込まれた環構造を有する化合物や、式（２－３－２）や式（２－３－３）で表される、Ｘ^{1}やＸ^{2}が縮合環Ａ’に取り込まれた環構造を有する化合物で表現することができ

る。これらの化合物は下記スキーム（１３）に示す中間体に上記スキーム（１）～（１０）で示した合成法を適用することで合成することができる。なお、スキーム（１３）における構造式中のＲ^{1}～Ｒ^{11}、Ｙ^{1}、Ｘ^{1}およびＸ^{2}は式（２）における定義と同じである。

【００９４】

【化４５】

スキーム(13)



【００９５】

また、上記スキーム（１）～（１３）の合成法では、三塩化ホウ素や三臭化ホウ素等を加える前に、Ｘ^{1}とＸ^{2}の間の水素原子（またはハロゲン原子）をブチルリチウム等でオルトメタル化することで、タンデムヘテロフリーデルクラフツ反応させた例を示したが、ブチルリチウム等を用いたオルトメタル化を行わずに、三塩化ホウ素や三臭化ホウ素等の添加により反応を進行させることもできる。

【００９６】

なお、上記スキーム（１）～（１３）で使用するオルトメタル化試薬としては、メチルリチウム、ｎ－ブチルリチウム、ｓｅｃ－ブチルリチウム、ｔ－ブチルリチウム等のアルキルリチウム、リチウムジイソプロピルアミド、リチウムテトラメチルピペリジド、リチウムヘキサメチルジシラジド、カリウムヘキサメチルジシラジドなどの有機アルカリ化合物があげられる。

【００９７】

なお、上記スキーム（１）～（１３）で使用するメタル－Ｙ^{1}の金属交換試薬としては、Ｙ^{1}の三フッ化物、Ｙ^{1}の三塩化物、Ｙ^{1}の三臭化物、Ｙ^{1}の三ヨウ化物などのＹ^{1}の

ハロゲン化物、ＣＩＰＮ（ＮＥｔ$_2$）$_2$などのＹ^{1}のアミノ化ハロゲン化物、Ｙ^{1}のアルコキシ化物、Ｙ^{1}のアリールオキシ化物などがあげられる。

【００９８】

なお、上記スキーム（１）～（１３）で使用するブレンステッド塩基としては、Ｎ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン、トリエチルアミン、２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１，２，２，６，６－ペンタメチルピペリジン、Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリン、Ｎ，Ｎ－ジメチルトルイジン、２，６－ルチジン、テトラフェニルホウ酸ナトリウム、テトラフェニルホウ酸カリウム、トリフェニルボラン、テトラフェニルシラン、Ａｒ$_4$ＢＮａ、Ａｒ$_4$ＢＫ、Ａｒ$_3$Ｂ、Ａｒ$_4$Ｓｉ（なお、Ａｒはフェニルなどのアリール）などがあげられる。

【００９９】

上記スキーム（１）～（１３）で使用するルイス酸としては、ＡｌＣｌ$_3$、ＡｌＢｒ$_3$、ＡｌＦ$_3$、ＢＦ$_3$・ＯＥｔ$_2$、ＢＣｌ$_3$、ＢＢｒ$_3$、ＧａＣｌ$_3$、ＧａＢｒ$_3$、ＩｎＣｌ$_3$、ＩｎＢｒ$_3$、Ｉｎ（ＯＴｆ）$_3$、ＳｎＣｌ$_4$、ＳｎＢｒ$_4$、ＡｇＯＴｆ、ＳｃＣｌ$_3$、Ｓｃ（ＯＴｆ）$_3$、ＺｎＣｌ$_2$、ＺｎＢｒ$_2$、Ｚｎ（ＯＴｆ）$_2$、ＭｇＣｌ$_2$、ＭｇＢｒ$_2$、Ｍｇ（ＯＴｆ）$_2$、ＬｉＯＴｆ、ＮａＯＴｆ、ＫＯＴｆ、Ｍｅ$_3$ＳｉＯＴｆ、Ｃｕ（ＯＴｆ）$_2$、ＣｕＣｌ$_2$、ＹＣｌ$_3$、Ｙ（ＯＴｆ）$_3$、ＴｉＣｌ$_4$、ＴｉＢｒ$_4$、ＺｒＣｌ$_4$、ＺｒＢｒ$_4$、ＦｅＣｌ$_3$、ＦｅＢｒ$_3$、ＣｏＣｌ$_3$、ＣｏＢｒ$_3$などがあげられる。

【０１００】

上記スキーム（１）～（１３）では、タンデムヘテロフリーデルクラフツ反応の促進のためにブレンステッド塩基またはルイス酸を使用してもよい。ただし、Ｙ^{1}の三フッ化物、Ｙ^{1}の三塩化物、Ｙ^{1}の三臭化物、Ｙ^{1}の三ヨウ化物などのＹ^{1}のハロゲン化物を用いた場合は、芳香族求電子置換反応の進行とともに、フッ化水素、塩化水素、臭化水素、ヨウ化水素といった酸が生成するため、酸を捕捉するブレンステッド塩基の使用が効果的である。一方、Ｙ^{1}のアミノ化ハロゲン化物、Ｙ^{1}のアルコキシ化物を用いた場合は、芳香族求電子置換反応の進行とともに、アミン、アルコールが生成するために、多くの場合、ブレンステッド塩基を使用する必要はないが、アミノ基やアルコキシ基の脱離能が低いために、その脱離を促進するルイス酸の使用が効果的である。

【０１０１】

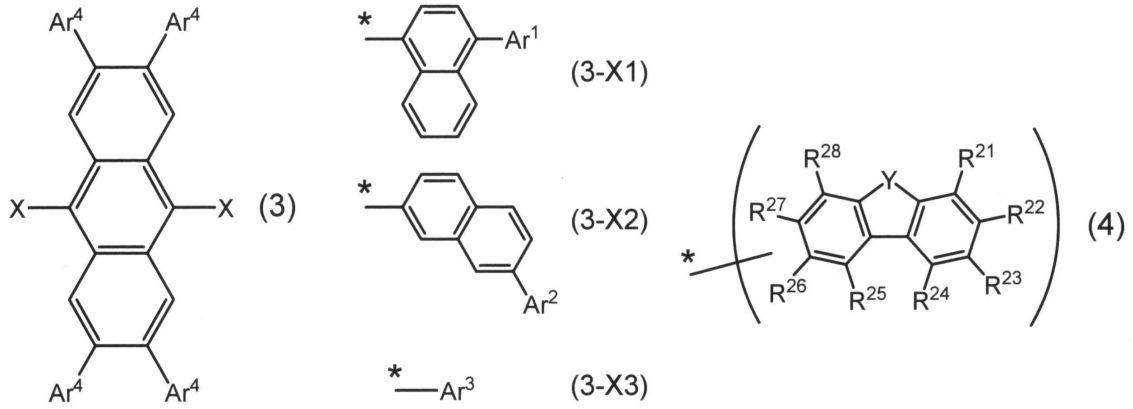
また、多環芳香族化合物やその多量体には、少なくとも一部の水素原子が重水素で置換されているものやフッ素や塩素などのハロゲンで置換されているものも含まれるが、このような化合物などは所望の箇所が重水素化、フッ素化または塩素化された原料を用いることで、上記と同様に合成することができる。

【０１０２】

１－３．アントラセン系化合物

一般式（３）で表されるアントラセン系化合物は基本的にはホストとして機能する。

【化４６】



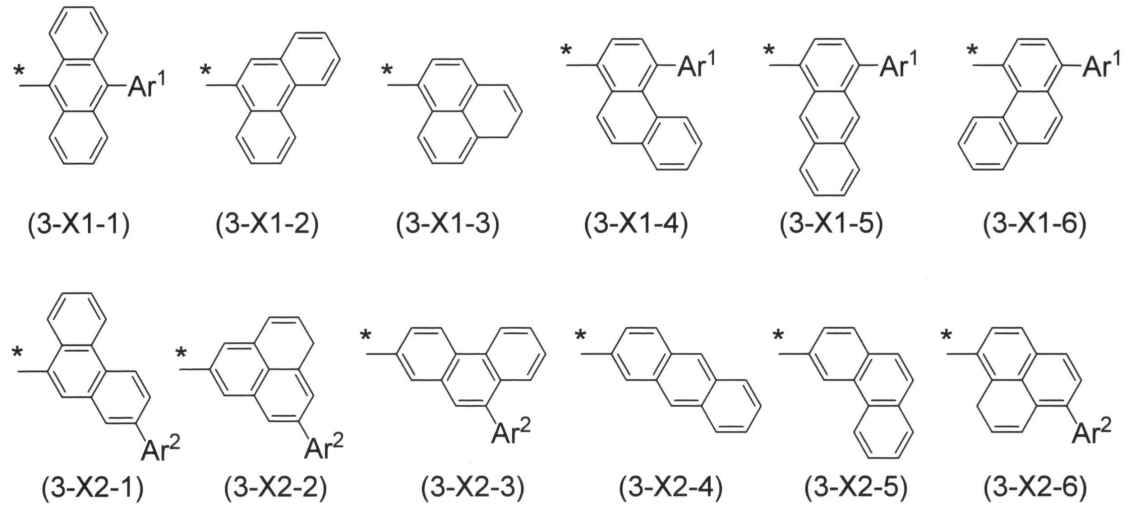
【０１０３】

一般式（３）では、Ｘはそれぞれ独立して上記式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基であり、式（３－Ｘ１）、式（３－Ｘ２）または式（３－Ｘ３）で表される基は＊において式（３）のアントラセン環と結合し、２つのＸが同時に式（３－Ｘ３）で表される基になることはない。また、好ましくは２つのＸが同時に式（３－Ｘ２）で表される基になることもない。

【０１０４】

式（３－Ｘ１）および式（３－Ｘ２）におけるナフチレン部位は１つのベンゼン環で縮合されていてもよい。このようにして縮合した構造は以下のとおりである。

【化４７】



【０１０５】

Ａｒ^{1}およびＡｒ^{2}は、それぞれ独立して、水素、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、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基（カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基およびフェニル置換カルバゾリル基も含む）である。なお、Ａｒ^{1}またはＡｒ^{2}が式（４）で表される基である場合は、式（４）で表される基はその＊において式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）中のナフタレン環と結合する。

【０１０６】

Ａｒ^{3}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、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル

、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基（カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基およびフェニル置換カルバゾリル基も含む）である。なお、Ａｒ^{3}が式（４）で表される基である場合は、式（４）で表される基はその＊において式（３－Ｘ３）中の直線で表される単結合と結合する。すなわち、式（３）のアントラセン環と式（４）で表される基が直接結合する。

また、Ａｒ^{3}は置換基を有していてもよく、Ａｒ^{3}における少なくとも１つの水素はさらにフェニル、ビフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニリル、または、上記式（４）で表される基（カルバゾリル基およびフェニル置換カルバゾリル基も含む）で置換されていてもよい。なお、Ａｒ^{3}が有する置換基が式（４）で表される基である場合は、式（４）で表される基はその＊において式（３－Ｘ３）中のＡｒ^{3}と結合する。

【０１０７】

Ａｒ^{4}は、それぞれ独立して、水素、フェニル、ビフェニリル、ターフェニリル、ナフチル、または炭素数１～４のアルキルで置換されているシリルである。

【０１０８】

シリルに置換する炭素数１～４のアルキルは、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、シクロブチルなどがあげられ、シリルにおける３つの水素が、それぞれ独立して、これらのアルキルで置換されている。

【０１０９】

具体的な「炭素数１～４のアルキルで置換されているシリル」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、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、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、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、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－プロピルシリルなどがあげられる。

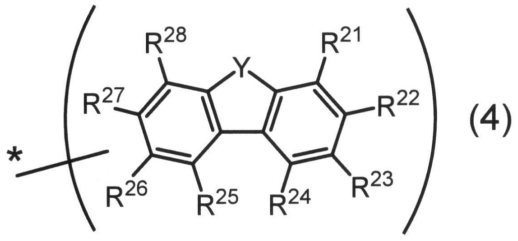
【０１１０】

また、一般式（３）で表されるアントラセン系化合物の化学構造中の水素は上記式（４）で表される基で置換されていてもよい。式（４）で表される基で置換される場合は、式（４）で表される基はその＊において式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素と置換する。

【０１１１】

式（４）で表される基は、式（３）で表されるアントラセン系化合物が有しうる置換基の１つである。

【化４８】



(4)

【０１１２】

上記式（４）中、Ｙは－Ｏ－、－Ｓ－または＞Ｎ－Ｒ^{29}であり、Ｒ^{21}～Ｒ^{28}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、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コキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオ、トリアルキルシリル、置換されていてもよいアミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノであり、R^{21}～R^{28}のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、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、R^{29}は水素または置換されていてもよいアリールである。

【０１１３】

R^{21}～R^{28}における「置換されていてもよいアルキル」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１～６のアルキル（炭素数３～６の分岐鎖アルキル）がさらに好ましく、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分岐鎖アルキル）が特に好ましい。

【０１１４】

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。

【０１１５】

R^{21}～R^{28}における「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、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。

【０１１６】

具体的な「アリール」としては、単環系であるフェニル、二環系であるビフェニリル、縮合二環系であるナフチル、三環系であるテルフェニリル（ｍ－テルフェニリル、ｏ－テルフェニリル、ｐ－テルフェニリル）、縮合三環系である、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、縮合四環系であるトリフェニレニル、ピレニル、ナフタセニル、縮合五環系であるペリレニル、ペンタセニルなどがあげられる。

【０１１７】

R^{21}～R^{28}における「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１～５個含有する複素環などがあげられる。

【０１１８】

具体的な「ヘテロアリール」としては、例えば、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、オキサジアゾリル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピラゾリル、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、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、フェノキサチイニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、インドリジニル、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、チエニル、ベンゾ［ｂ］チエニル、ジベンゾチエニル、フラザニル、オキサジアゾリル、チアントレニル、ナフトベンゾフラニル、ナフトベンゾチエニルなどがあげられる。

【０１１９】

Ｒ^{21}～Ｒ^{28}における「置換されていてもよいアルコキシ」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１～４のアルコキシ（炭素数３～４の分岐鎖のアルコキシ）が特に好ましい。

【０１２０】

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、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。

【０１２１】

Ｒ^{21}～Ｒ^{28}における「置換されていてもよいアリールオキシ」の「アリールオキシ」としては、－ＯＨ基の水素がアリールで置換された基であり、このアリールは上述したＲ^{21}～Ｒ^{28}における「アリール」として説明したものを引用することができる。

【０１２２】

Ｒ^{21}～Ｒ^{28}における「置換されていてもよいアリールチオ」の「アリールチオ」としては、－ＳＨ基の水素がアリールで置換された基であり、このアリールは上述したＲ^{21}～Ｒ^{28}における「アリール」として説明したものを引用することができる。

【０１２３】

Ｒ^{21}～Ｒ^{28}における「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ものがあげられ、このアルキルは上述したＲ^{21}～Ｒ^{28}における「アルキル」として説明したもの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１～４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、シクロブチルなどがあげられる。

【０１２４】

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、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、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、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、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－プロピルシリルなどがあげられる。

【０１２５】

Ｒ^{21}～Ｒ^{28}における「置換されていてもよいアミノ」の「置換されたアミノ」としては、例えば２つの水素がアリールやヘテロアリールで置換されたアミノ基があげられる。２つの水素がアリールで置換されたものがジアリール置換アミノであり、２つの水素がヘテロアリールで置換されたものがジヘテロアリール置換アミノであり、２つの水素がアリールとヘテロアリールで置換されたものがアリールヘテロアリール置換アミノである。このアリールやヘテロアリールは上述したＲ^{21}～Ｒ^{28}における「アリール」や「ヘテロアリール」として説明したものを引用することができる。

【０１２６】

具体的な「置換されたアミノ」としては、ジフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、フェ

ニルナフチルアミノ、ジピリジルアミノ、フェニルピリジルアミノ、ナフチルピリジルアミノなどがあげられる。

【０１２７】

R^{21}～R^{28}における「ハロゲン」としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素があげられる。

【０１２８】

R^{21}～R^{28}として説明した基のうち、いくつかは上述するように置換されてもよく、この場合の置換基としてはアルキル、アリールまたはヘテロアリールがあげられる。このアルキル、アリールまたはヘテロアリールは上述したR^{21}～R^{28}における「アルキル」、「アリール」または「ヘテロアリール」として説明したものを引用することができる。

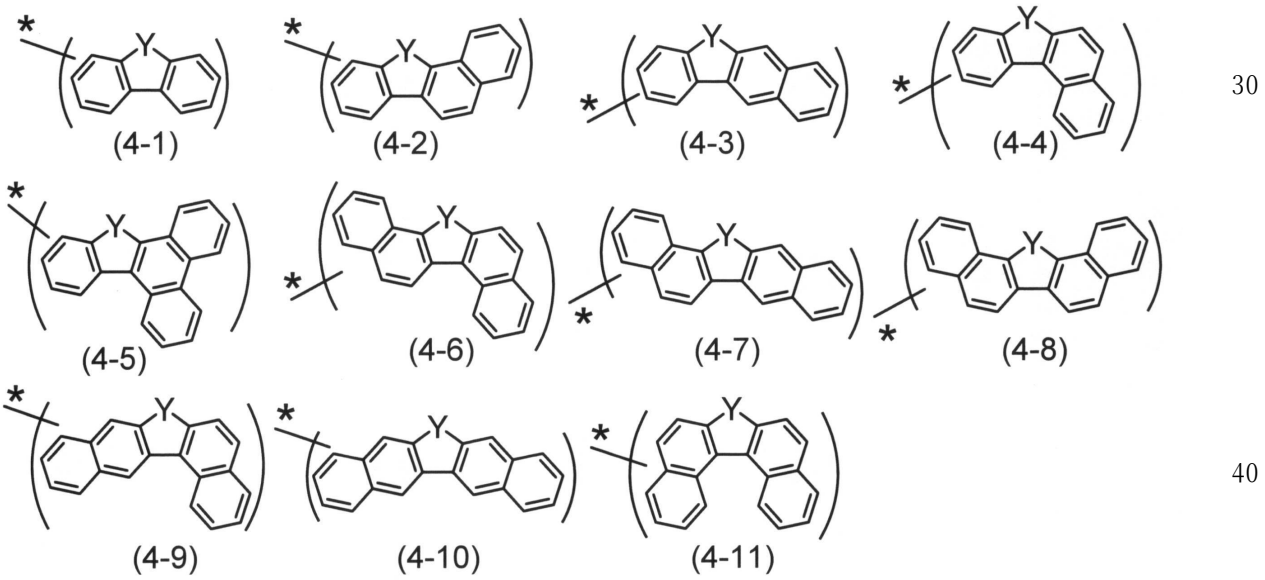
【０１２９】

Yとしての「＞N－R^{29}」におけるR^{29}は水素または置換されていてもよいアリールであり、このアリールとしては上述したR^{21}～R^{28}における「アリール」として説明したものを引用することができ、またその置換基としてはR^{21}～R^{28}に対する置換基として説明したものを引用することができる。

【０１３０】

R^{21}～R^{28}のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、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。環を形成しない場合が下記式（４－１）で表される基であり、環を形成した場合としては例えば下記式（４－２）～式（４－１１）で表される基があげられる。なお、式（４－１）～式（４－１１）のいずれかで表される基における少なくとも１つの水素はアルキル、アリール、ヘテロアリール、アルコキシ、アリールオキシ、アリールチオ、トリアルキルシリル、ジアリール置換アミノ、ジヘテロアリール置換アミノ、アリールヘテロアリール置換アミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノで置換されていてもよく、これらは上述したR^{21}～R^{28}における各基として説明したものを引用することができる。

【化４９】



【０１３１】

隣接する基が互いに結合してできた環としては、炭化水素環であれば例えばシクロヘキサン環があげられ、アリール環やヘテロアリール環としては上述したR^{21}～R^{28}における「アリール」や「ヘテロアリール」で説明した環構造があげられ、これらの環は上記式（４－１）における１つ又は２つのベンゼン環と縮合するように形成される。

【０１３２】

式（４）で表される基としては、例えば上記式（４－１）～式（４－１１）のいずれか

で表される基があげられ、上記式（４－１）～式（４－４）のいずれかで表される基が好ましく、上記式（４－１）、式（４－３）および式（４－４）のいずれかで表される基がより好ましく、上記式（４－１）で表される基がさらに好ましい。

【０１３３】

式（４）で表される基は、式（４）中の＊において、式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）中のナフタレン環、式（３－Ｘ３）中の単結合、式（３－Ｘ３）中の$Ａｒ^{3}$と結合し、また式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素と置換することは上述したとおりだが、これらの結合形態の中でも式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）中のナフタレン環、式（３－Ｘ３）中の単結合および／または式（３－Ｘ３）中の$Ａｒ^{3}$と結合した形態が好ましい。

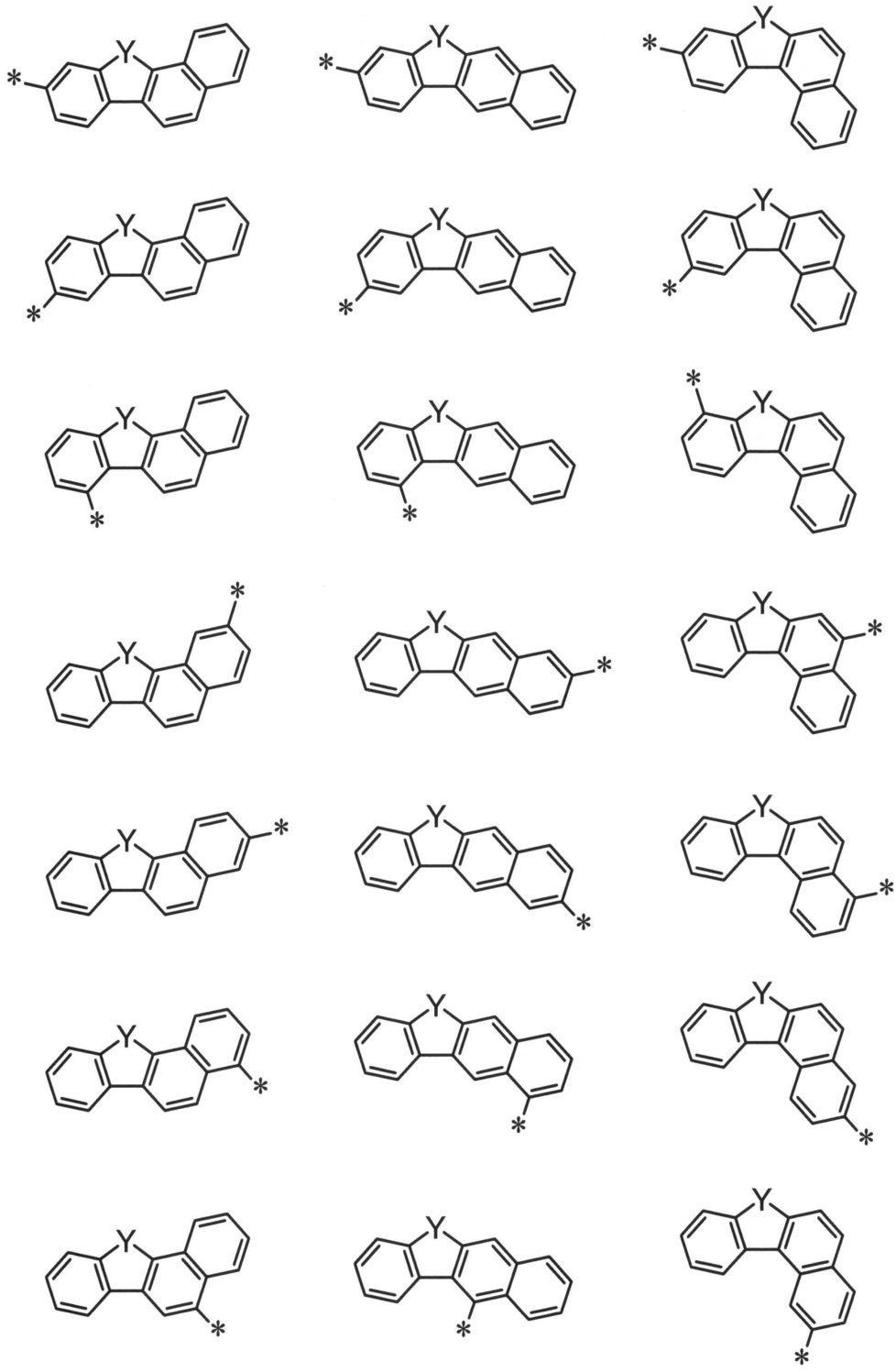
【０１３４】

また、式（４）で表される基の構造中で、式（３－Ｘ１）または式（３－Ｘ２）中のナフタレン環、式（３－Ｘ３）中の単結合、式（３－Ｘ３）中の$Ａｒ^{3}$が結合する位置、また、式（４）で表される基の構造中で、式（３）で表される化合物における少なくとも１つの水素と置換する位置は、式（４）の構造中のいずれの位置であってもよく、例えば式（４）の構造中の２つのベンゼン環のいずれかや、式（４）の構造中の$Ｒ^{21}$～$Ｒ^{28}$のうち隣接する基が互いに結合して形成されたいずれかの環や、式（４）の構造中のＹとしての「＞Ｎ－$Ｒ^{29}$」における$Ｒ^{29}$中のいずれかの位置で結合することができる。

【０１３５】

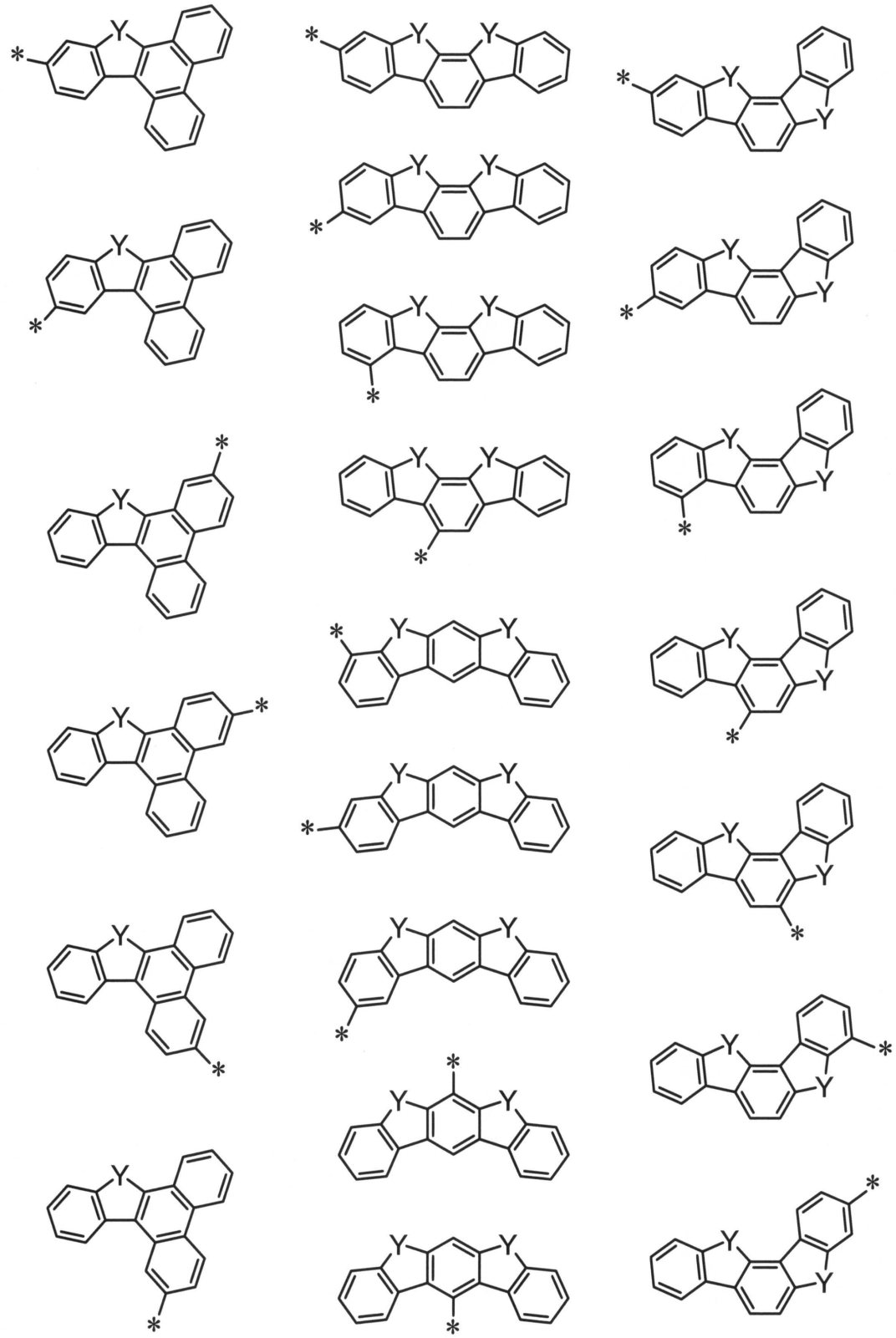
式（４）で表される基としては、例えば以下の基があげられる。式中のＹおよび＊は上記と同じ定義である。

【化５０】



【０１３６】

【化５１】



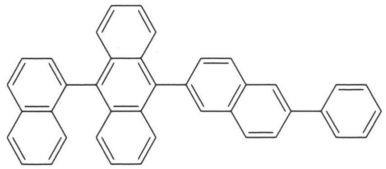
【０１３７】

また、一般式（３）で表されるアントラセン系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であってもよい。

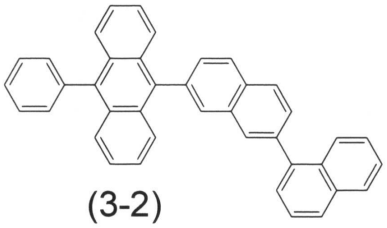
【０１３８】

アントラセン系化合物の具体的な例としては、例えば、下記式（３－１）～式（３－２６）で表される化合物があげられる。

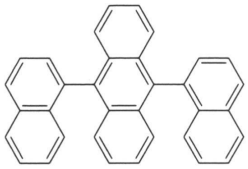
【０１３９】
【化５２】



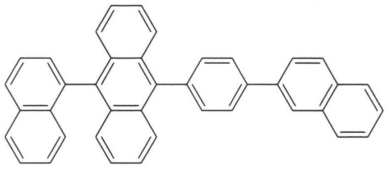
(3-1)



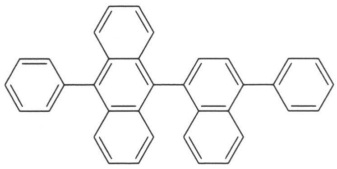
(3-2)



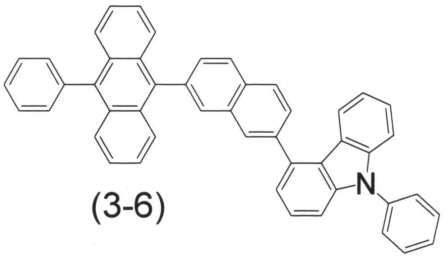
(3-3)



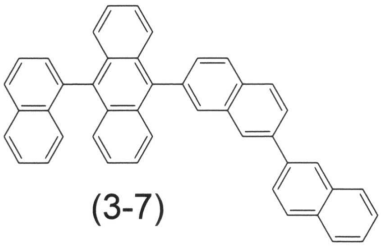
(3-4)



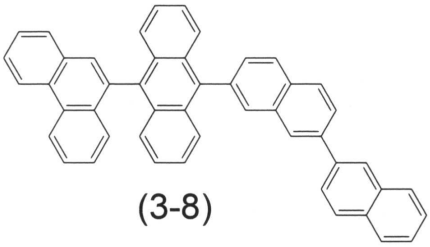
(3-5)



(3-6)



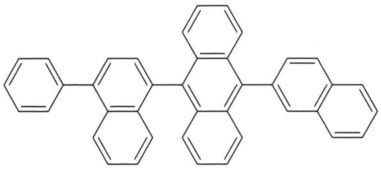
(3-7)



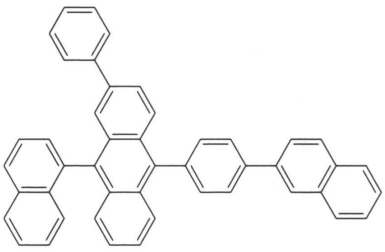
(3-8)

【０１４０】

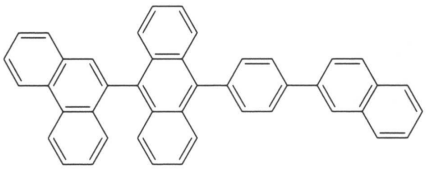
【化５３】



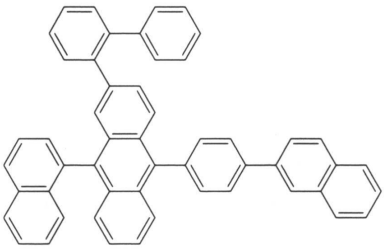
(3-11)



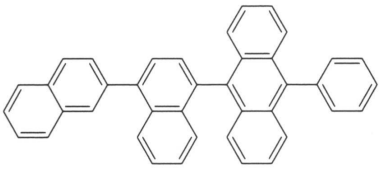
(3-12)



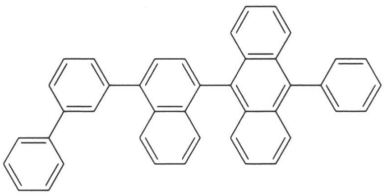
(3-13)



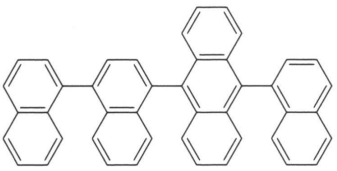
(3-14)



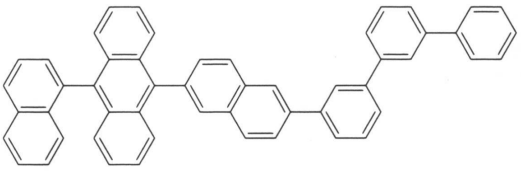
(3-15)



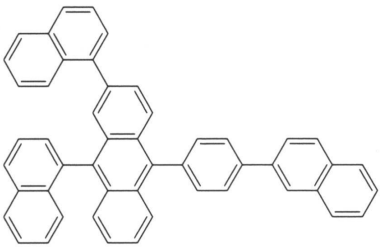
(3-16)



(3-17)



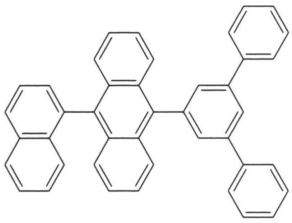
(3-18)



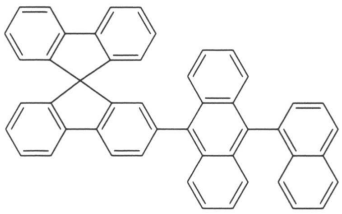
(3-19)

【０１４１】

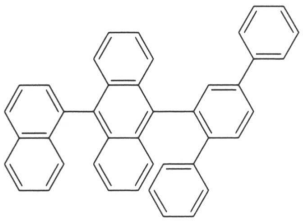
【化５４】



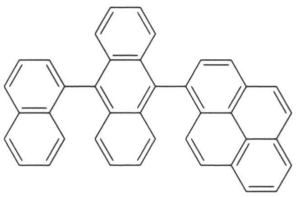
(3-21)



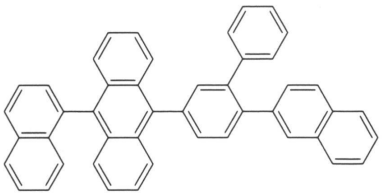
(3-22)



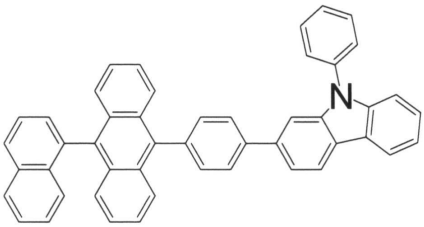
(3-23)



(3-24)



(3-25)



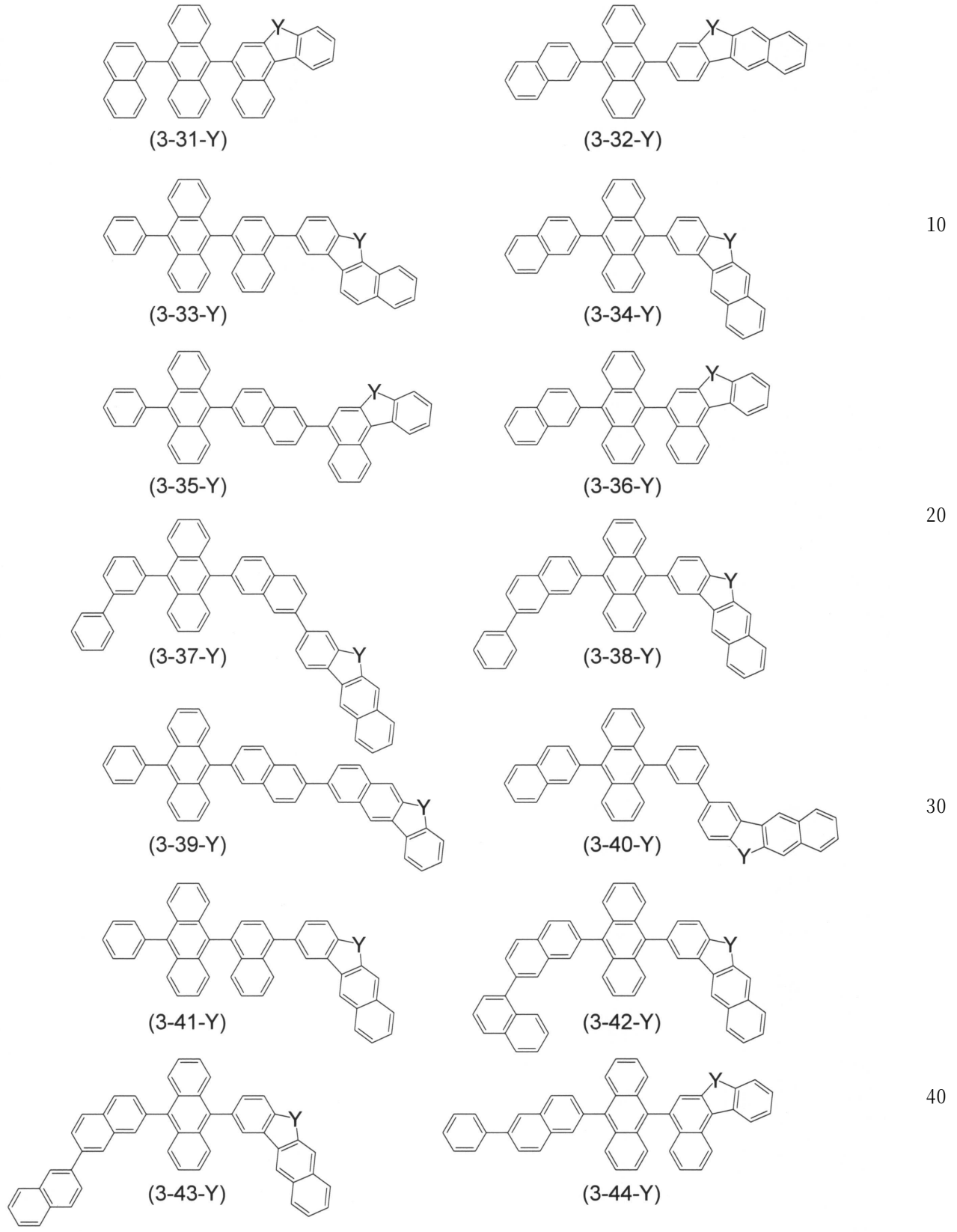
(3-26)

【０１４２】

アントラセン系化合物の具体的な例としては、例えば、下記式（３－３１－Ｙ）～式（３－６７－Ｙ）で表される化合物があげられる。式中のＹは－Ｏ－、－Ｓ－または＞Ｎ－Ｒ^{29}（Ｒ^{29}は上記と同じ定義）のいずれでもよく、Ｒ^{29}は例えばフェニル基である。式番号は、例えばＹがＯの場合は、式（３－３１－Ｙ）は式（３－３１－Ｏ）とし、Ｙが－Ｓ－または＞Ｎ－Ｒ^{29}の場合はそれぞれ式（３－３１－Ｓ）または式（３－３１－Ｎ）とする。

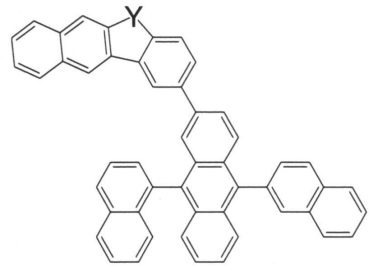
【０１４３】

【化５５】

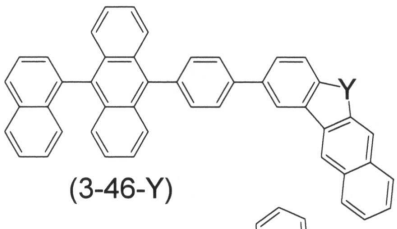

(3-31-Y)
(3-32-Y)
(3-33-Y)
(3-34-Y)
(3-35-Y)
(3-36-Y)
(3-37-Y)
(3-38-Y)
(3-39-Y)
(3-40-Y)
(3-41-Y)
(3-42-Y)
(3-43-Y)
(3-44-Y)

【０１４４】

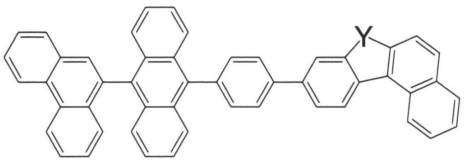
【化５６】



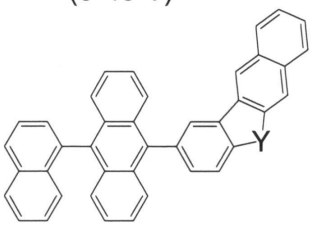
(3-45-Y)



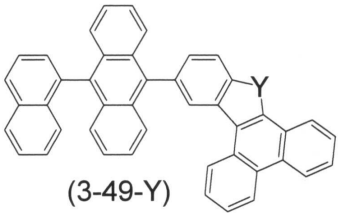
(3-46-Y)



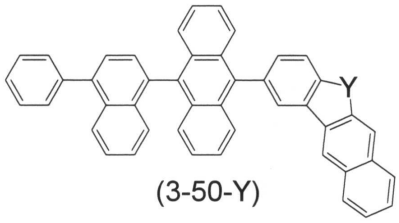
(3-47-Y)



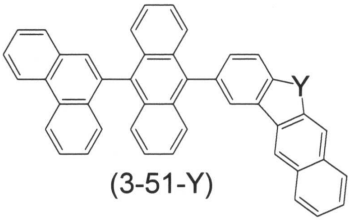
(3-48-Y)



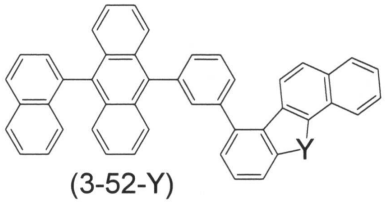
(3-49-Y)



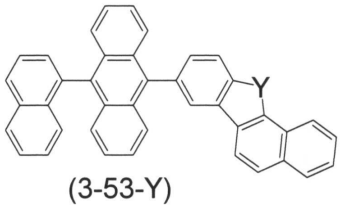
(3-50-Y)



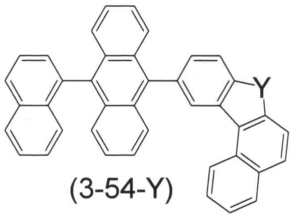
(3-51-Y)



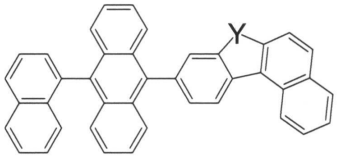
(3-52-Y)



(3-53-Y)



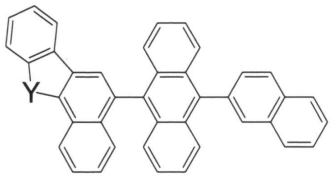
(3-54-Y)

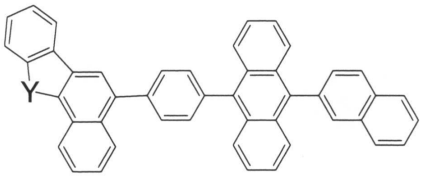


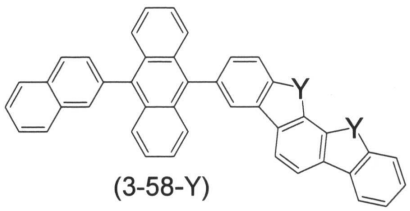
(3-55-Y)

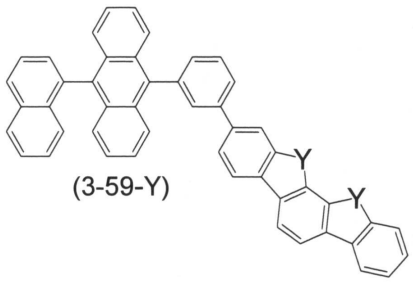
【０１４５】

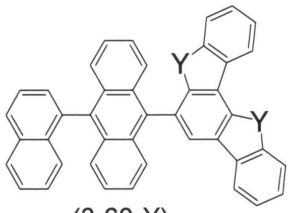
【化５７】

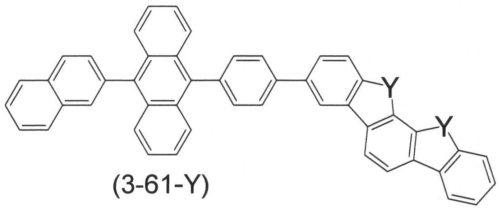

(3-56-Y)

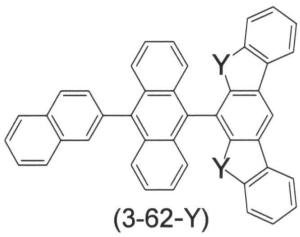

(3-57-Y)

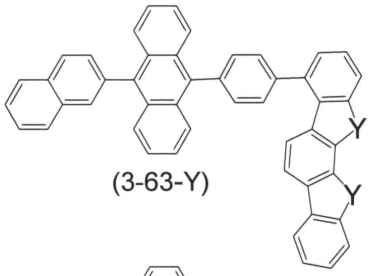

(3-58-Y)

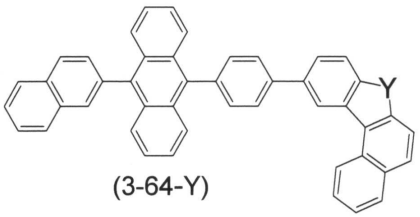

(3-59-Y)

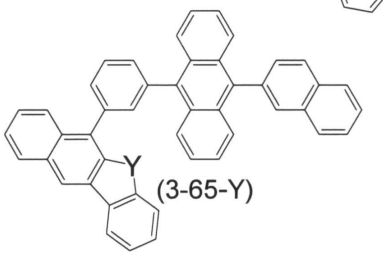

(3-60-Y)

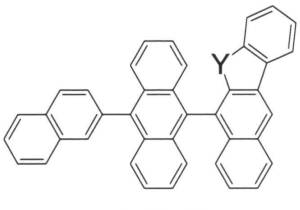

(3-61-Y)

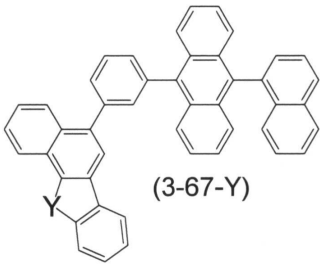

(3-62-Y)


(3-63-Y)


(3-64-Y)


(3-65-Y)


(3-66-Y)


(3-67-Y)

【０１４６】

２．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。

【０１４７】

＜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。
【０１４８】
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。
【０１４９】
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。
【０１５０】
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／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／発光層／電子輸送層／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。
【０１５１】
＜有機電界発光素子における基板＞
基板１０１は、有機ＥＬ素子１００の支持体となるものであり、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施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。
【０１５２】
＜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ものである。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。

【０１５３】
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。
【０１５４】
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、３００Ω／□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１０Ω／□程度の基板の供給も可能になっていることから、例えば１００～５Ω／□、好ましくは５０～５Ω／□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５０～３００ｎｍの間で用いられることが多い。
【０１５５】
＜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ものである。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ものである。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。
【０１５６】
正孔注入・輸送性物質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。
【０１５７】
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ものの中から任意のもの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、N^4，$N^{4'}$－ジフェニル－N^4，$N^{4'}$－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、N^4，N^4，$N^{4'}$，$N^{4'}$－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ェン誘導体、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るものではない。

【０１５８】

また、有機半導体の導電性は、そのドーピングにより、強い影響を受けることも知られている。このような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－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.Pheiffer,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（ＺｎＰｃ）など）が知られている（特開2005-167175号公報）。

【０１５９】

＜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）効率を示す化合物であるのが好ましい。本発明では、発光層用の材料として、ドーパント材料として上記一般式（１）で表される多環芳香族化合物および上記一般式（１）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の少なくとも１つと、ホスト材料として上記一般式（３）で表されるアントラセン系化合物とをを用いることができる。

【０１６０】

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。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。

【０１６１】

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重量％であり、より好ましくは８０～９９．９５重量％であり、さらに好ましくは９０～９９．９重量％である。

【０１６２】

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重量％であり、より好ましくは０．０５～２０重量％であり、さらに好ましくは０．１～１０重量％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。

【０１６３】
上記一般式（３）で表されるアントラセン系化合物と併用することができる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他の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。
【０１６４】
＜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ものである。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、効率よく発光層１０５に輸送する役割を果たすものである。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。
【０１６５】
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、電子注入効率が高く、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。
【０１６６】
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。
【０１６７】
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（ジフェニルエテニル）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、カルバゾー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。
【０１６８】
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、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－ｔ－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、オキシン誘導体の金属錯体、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、カルバゾール誘導体、インドール誘導体、リ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。

【０１６９】

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。

【０１７０】

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。

【０１７１】

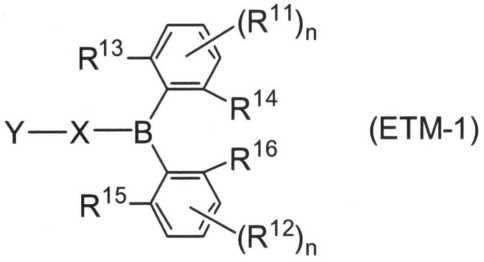
上述した材料の中でも、ボラン誘導体、ピリジン誘導体、フルオランテン誘導体、ＢＯ系誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオレン誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ピリミジン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、およびキノリノール系金属錯体が好ましい。

【０１７２】

＜ボラン誘導体＞

ボラン誘導体は、例えば下記一般式（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５８】



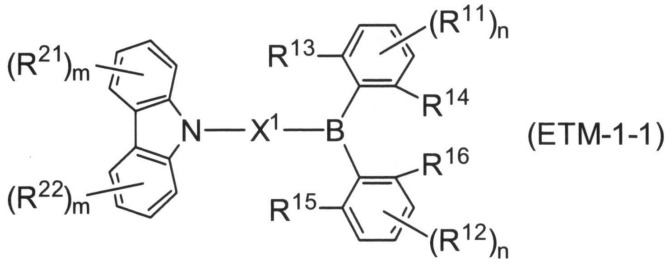
(ETM-1)

上記式（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、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一つであり、R^{13}～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、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、ヘテロアリールまたはアルキルなどが挙げられる。

【０１７３】

上記一般式（ＥＴＭ－１）で表される化合物の中でも、下記一般式（ＥＴＭ－１－１）で表される化合物や下記一般式（ＥＴＭ－１－２）で表される化合物が好ましい。

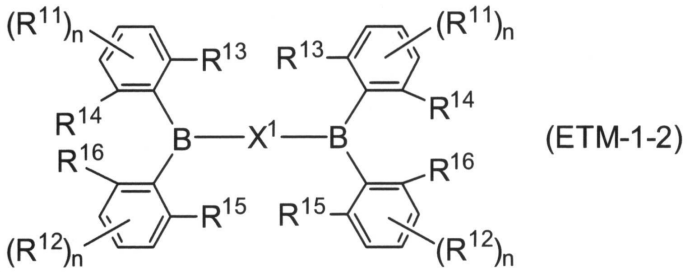
【化５９】



(ETM-1-1)

式（ＥＴＭ－１－１）中、Ｒ１１およびＲ１２は、それぞれ独立して、水素、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一つであり、Ｒ１３～Ｒ１６は、それぞれ独立して、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アリールであり、Ｒ２１およびＲ２２は、それぞれ独立して、水素、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一つであり、Ｘ１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、ヘテロアリールまたはアルキルなどが挙げられる。

【化６０】



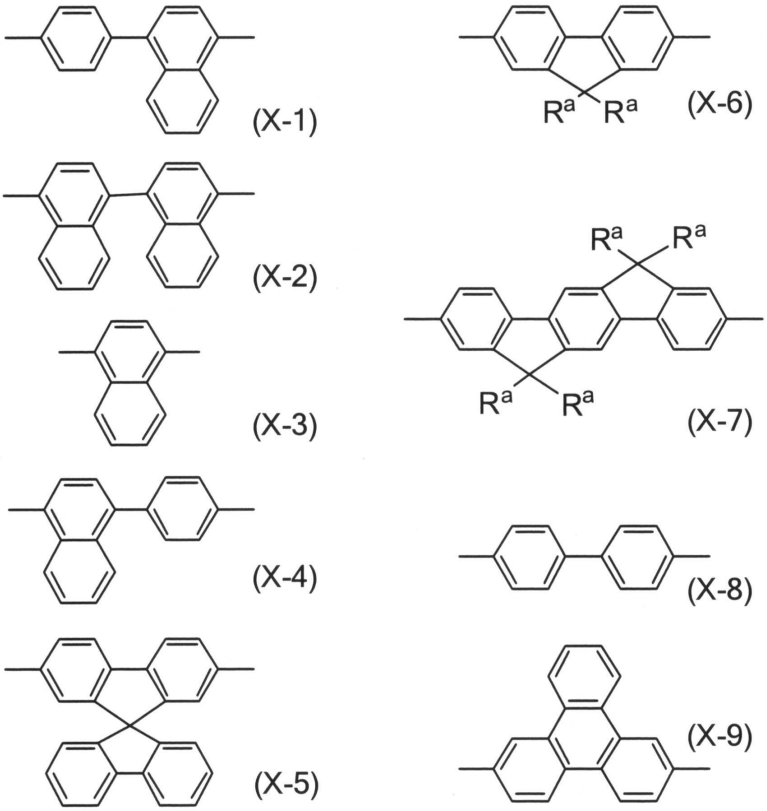
(ETM-1-2)

式（ＥＴＭ－１－２）中、Ｒ１１およびＲ１２は、それぞれ独立して、水素、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一つであり、Ｒ１３～Ｒ１６は、それぞれ独立して、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アリールであり、Ｘ１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、ヘテロアリールまたはアルキルなどが挙げられる。

【０１７４】

Ｘ１の具体的な例としては、下記式（Ｘ－１）～式（Ｘ－９）で表される２価の基があげられる。

【化６１】

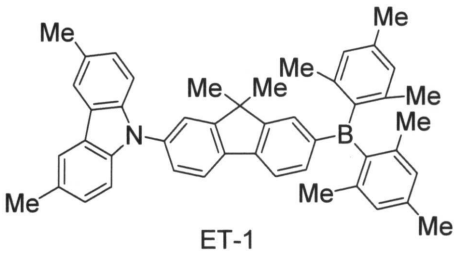


（各式中、Ｒ^{a}は、それぞれ独立してアルキル基又は置換されていてもよいフェニル基である。）

【０１７５】

このボラン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

【化６２】



【０１７６】

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。

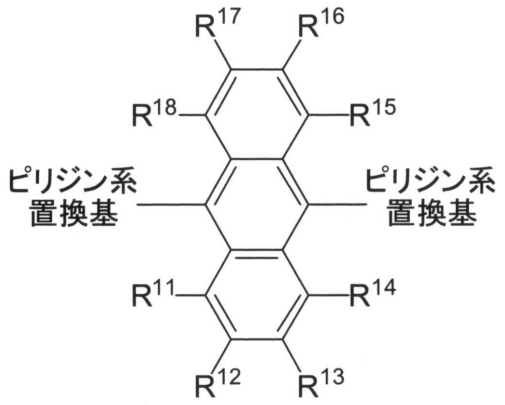
【０１７７】

＜ピリジン誘導体＞

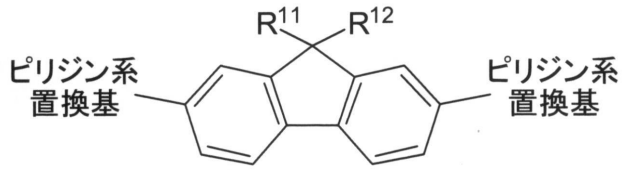
ピリジン誘導体は、例えば下記式（ＥＴＭ－２）で表される化合物であり、好ましくは式（ＥＴＭ－２－１）または式（ＥＴＭ－２－２）で表される化合物である。

【化６３】

(ETM-2)



(ETM-2-1)



(ETM-2-2)

【０１７８】

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。

【０１７９】

上記式（ＥＴＭ－２－１）において、Ｒ１１～Ｒ１８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。

【０１８０】

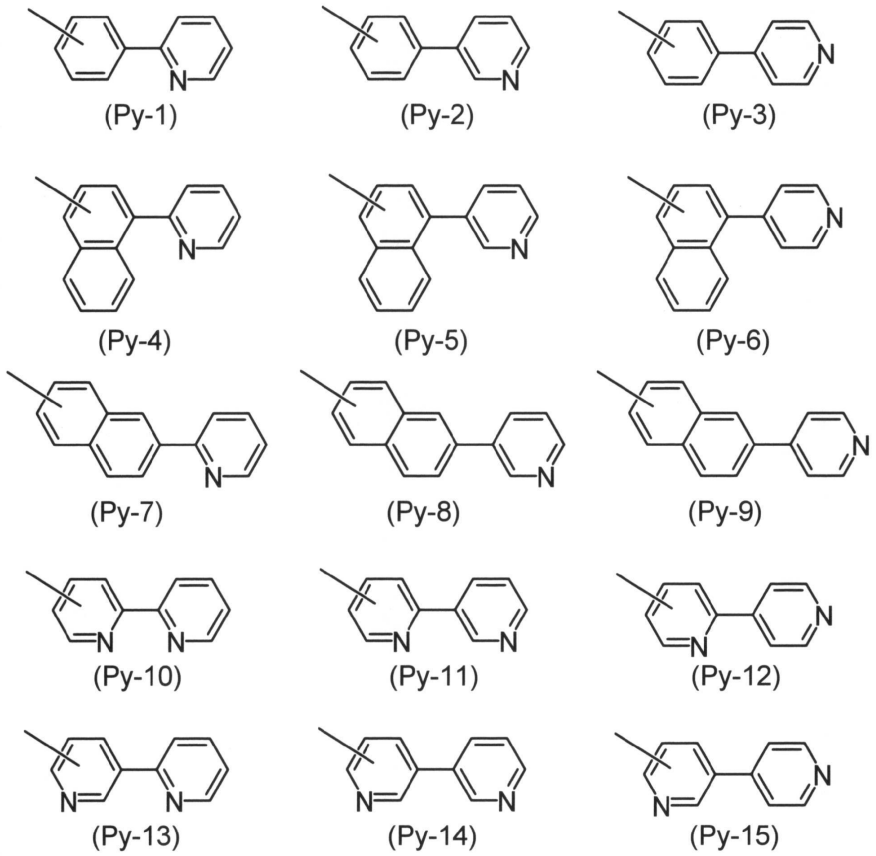
上記式（ＥＴＭ－２－２）において、Ｒ１１およびＲ１２は、それぞれ独立して、水素、アルキル（好ましくは炭素数１～２４のアルキル）、シクロアルキル（好ましくは炭素数３～１２のシクロアルキル）またはアリール（好ましくは炭素数６～３０のアリール）であり、Ｒ１１およびＲ１２は結合して環を形成していてもよい。

【０１８１】

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のアルキルで置換されていてもよい。また、ピリジン系置換基はフェニレン基やナフチレン基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。

【０１８２】

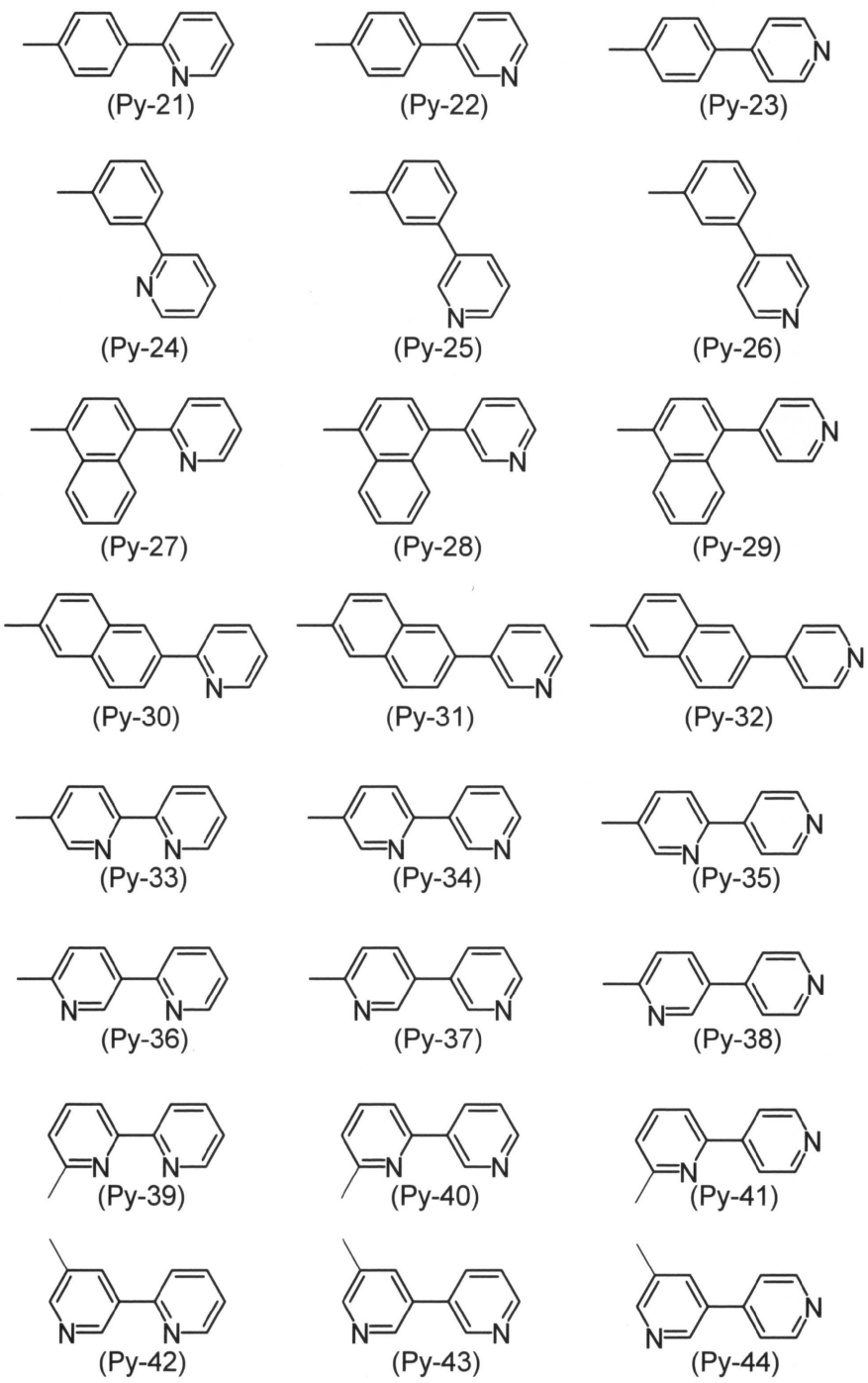
【化６４】



【０１８３】

ピリジン系置換基は、上記式（Ｐｙ－１）～式（Ｐｙ－１５）のいずれかであるが、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。

【化６５】



【０１８４】

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、上記式（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」のうちの一方はアリールで置き換えられていてもよい。

【０１８５】

Ｒ^{11}～Ｒ^{18}における「アルキル」としては、直鎖及び分枝鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数１～２４の直鎖アルキル又は炭素数３～２４の分枝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の分枝鎖アルキル）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の分枝鎖アルキル）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の分枝鎖アルキル）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の分枝鎖アルキル）である。

【０１８６】
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。

【０１８７】
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。

【０１８８】
R^{11}～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、シクロオクチル又はジメチルシクロヘキシルなどがあげられる。

【０１８９】
R^{11}～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。

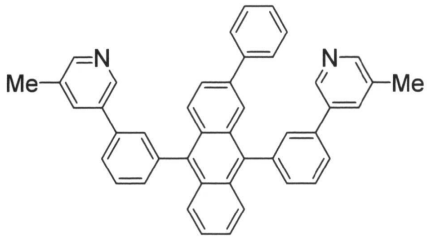
【０１９０】
具体的な「炭素数６～３０のアリール」としては、単環系アリールであるフェニル、縮合二環系アリールである（１－，２－）ナフチル、縮合三環系アリールである、アセナフチレン－（１－，３－，４－，５－）イル、フルオレン－（１－，２－，３－，４－，９－）イル、フェナレン－（１－，２－）イル、（１－，２－，３－，４－，９－）フェナントリル、縮合四環系アリールであるトリフェニレン－（１－，２－）イル、ピレン－（１－，２－，４－）イル、ナフタセン－（１－，２－，５－）イル、縮合五環系アリールであるペリレン－（１－，２－，３－）イル、ペンタセン－（１－，２－，５－，６－）イルなどがあげられる。

【０１９１】
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。

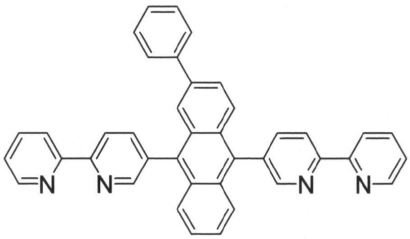
【０１９２】
上記式（ＥＴＭ－２－２）におけるR^{11}およびR^{12}は結合して環を形成していてもよく、この結果、フルオレン骨格の５員環には、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキサン、フルオレンまたはインデンなどがスピロ結合していてもよい。

【０１９３】
このピリジン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

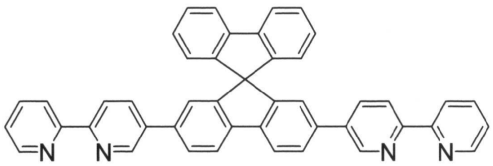
【化６６】



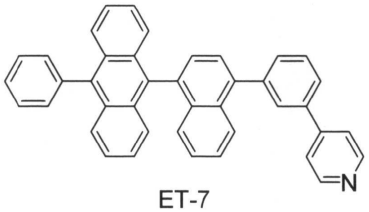
ET-2



ET-3



ET-6



ET-7

【０１９４】

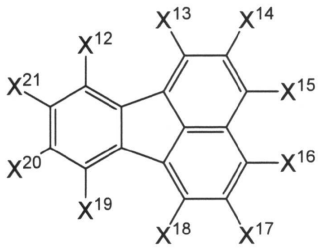
このピリジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０１９５】

＜フルオランテン誘導体＞

フルオランテン誘導体は、例えば下記一般式（ＥＴＭ－３）で表される化合物であり、詳細には国際公開第２０１０／１３４３５２号公報に開示されている。

【化６７】



(ETM-3)

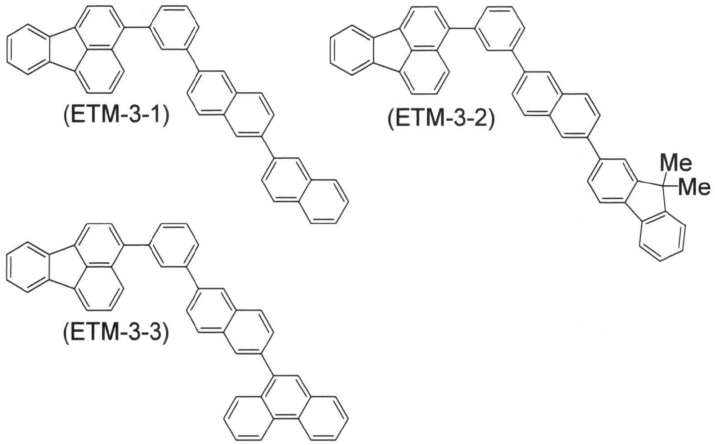
【０１９６】

上記式（ＥＴＭ－３）中、X^{12}～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、ヘテロアリールまたはアルキルなどが挙げられる。

【０１９７】

このフルオランテン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

【化６８】

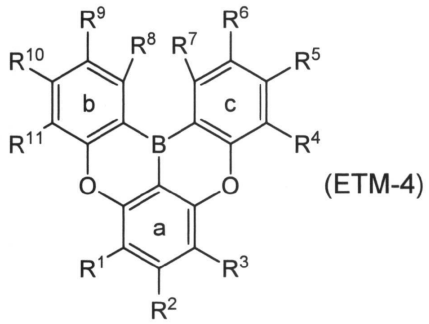


【０１９８】

＜ＢＯ系誘導体＞

ＢＯ系誘導体は、例えば下記式（ＥＴＭ－４）で表される多環芳香族化合物、または下記式（ＥＴＭ－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。

【化６９】



【０１９９】

Ｒ１～Ｒ１１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、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、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよい。

【０２００】

また、Ｒ１～Ｒ１１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、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、ヘテロアリールまたはアルキルで置換されていてもよい。

【０２０１】

また、式（ＥＴＭ－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。

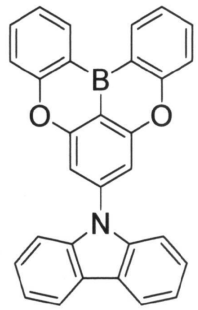
【０２０２】

式（ＥＴＭ－４）における置換基や環形成の形態、また式（ＥＴＭ－４）の構造が複数合わさってできる多量体の説明については、上記一般式（１）や式（２）で表される多環芳香族化合物やその多量体の説明を引用することができる。

【０２０３】

このＢＯ系誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

【化７０】



ET-5

【０２０４】

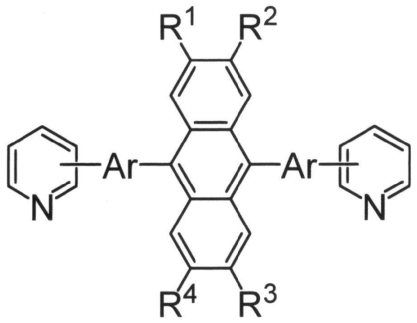
このＢＯ系誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２０５】

＜アントラセン誘導体＞

アントラセン誘導体の一つは、例えば下記式（ＥＴＭ－５－１）で表される化合物である。

【化７１】



(ETM-5-1)

【０２０６】

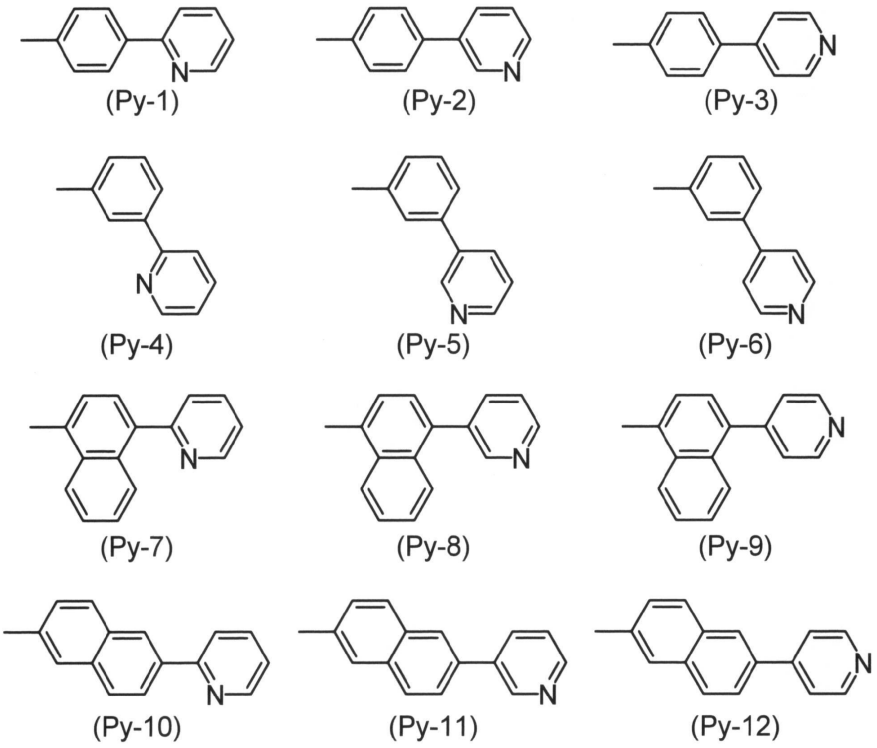
Ａｒは、それぞれ独立して、２価のベンゼンまたはナフタレンであり、Ｒ^{1}～Ｒ^{4}は、それぞれ独立して、水素、炭素数１～６のアルキル、炭素数３から６のシクロアルキルまたは炭素数６～２０のアリールである。

【０２０７】

Ａｒは、それぞれ独立して、２価のベンゼンまたはナフタレンから適宜選択することができ、２つのＡｒが異なっていても同じであってもよいが、アントラセン誘導体の合成の容易さの観点からは同じであることが好ましい。Ａｒはピリジンと結合して、「Ａｒおよびピリジンからなる部位」を形成しており、この部位は例えば下記式（Ｐｙ－１）～式（Ｐｙ－１２）のいずれかで表される基としてアントラセンに結合している。

【０２０８】

【化７２】



【０２０９】

これらの基の中でも、上記式（Ｐｙ－１）～式（Ｐｙ－９）のいずれかで表される基が好ましく、上記式（Ｐｙ－１）～式（Ｐｙ－６）のいずれかで表される基がより好ましい。アントラセンに結合する２つの「Ａｒおよびピリジンからなる部位」は、その構造が同じであっても異なっていてもよいが、アントラセン誘導体の合成の容易さの観点からは同じ構造であることが好ましい。ただし、素子特性の観点からは、２つの「Ａｒおよびピリジンからなる部位」の構造が同じであっても異なっていても好ましい。

【０２１０】

R^1～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枝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の分枝鎖アルキルである。より好ましくは、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分枝鎖アルキル）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。

【０２１１】

R^1～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。

【０２１２】

R^1～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。

【０２１３】

「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－，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－）イルなどがあげられる。

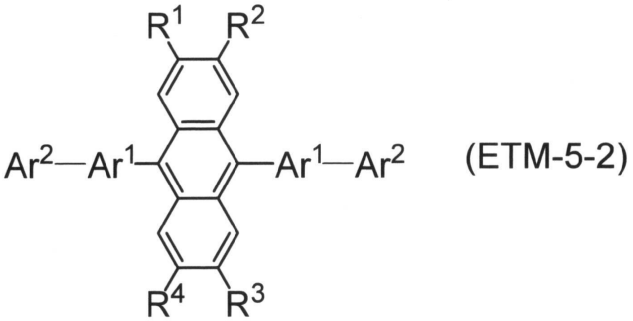
【０２１４】

好ましい「炭素数６～２０のアリール」は、フェニル、ビフェニリル、テルフェニリルまたはナフチルであり、より好ましくは、フェニル、ビフェニリル、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、ビフェニリル、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。

【０２１５】

アントラセン誘導体の一つは、例えば下記式（ＥＴＭ－５－２）で表される化合物である。

【化７３】



【０２１６】

Ａｒ^{1}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。

【０２１７】

Ａｒ^{2}は、それぞれ独立して、炭素数６～２０のアリールであり、上記式（ＥＴＭ－５－１）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。

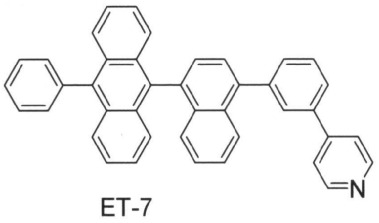
【０２１８】

Ｒ^{1}～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のアリールであり、上記式（ＥＴＭ－５－１）におけるものと同じ説明を引用することができる。

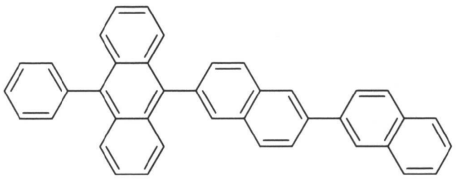
【０２１９】

これらのアントラセン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

【化７４】



ET-7



【０２２０】

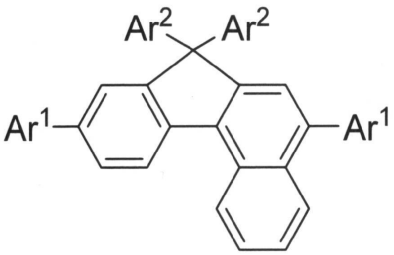
これらのアントラセン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２２１】

＜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。

【化７５】



(ETM-6)

【０２２２】

Ａｒ^{1}は、それぞれ独立して、炭素数６～２０のアリールであり、上記式（ＥＴＭ－５－１）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。

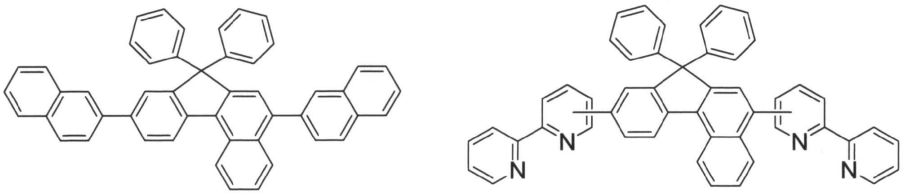
【０２２３】

Ａｒ^{2}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Ａｒ^{2}は結合して環を形成していてもよい。

【０２２４】

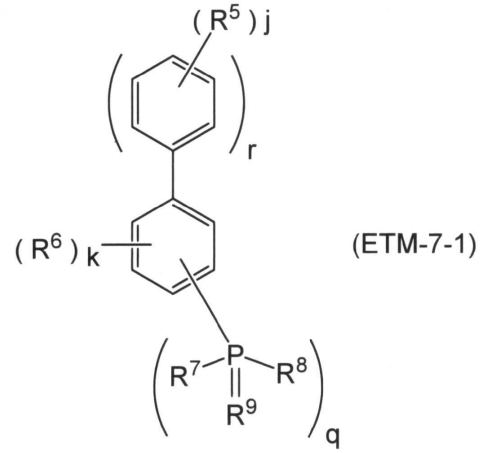
Ａｒ^{2}における「アルキル」としては、直鎖及び分枝鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数１～２４の直鎖アルキル又は炭素数３～２４の分枝鎖アルキルがあげられる。好ましい「アルキル」は、炭素数１～１８のアルキル（炭素数３～１８の分枝鎖アルキル）である。より好ましい「アルキル」は、炭素数１～１２のアルキル（炭素数３～１２の分枝鎖アルキル）である。さらに好ましい「アルキル」は、炭素数１～６のアルキル（炭素数３～６の分枝鎖アルキル）である。特に好ましい「アルキル」は、炭素数１～４のアルキル（炭素数３～４の分枝鎖アルキル）である。具体的な「アルキル」としては、メチル、エチル、ｎ－プロピル、イソプロピル、ｎ－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。

【０２２５】
Ａｒ^{2}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、シクロオクチル又はジメチルシクロヘキシルなどがあげられる。
【０２２６】
Ａｒ^{2}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。
【０２２７】
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。
【０２２８】
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。
【０２２９】
このベンゾフルオレン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。
【化７６】



【０２３０】
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。
【０２３１】
＜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号公報にも記載されている。

【化７７】



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、

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、

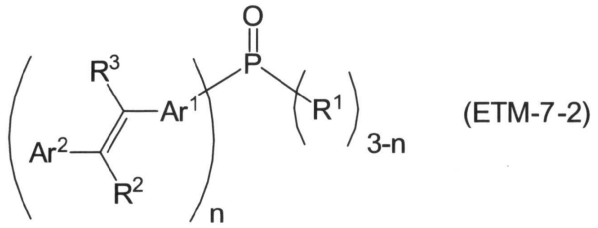
ｊは０または１であり、ｋは０または１であり、ｒは０～４の整数であり、ｑは１～３の整数である。

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

【０２３２】

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７８】



【０２３３】

Ｒ[1]～Ｒ[3]は、同じでも異なっていてもよく、水素、アルキル基、シクロアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、複素環基、ハロゲン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、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。

【０２３４】

Ａｒ[1]は、同じでも異なっていてもよく、アリーレン基またはヘテロアリーレン基である。Ａｒ[2]は、同じでも異なっていてもよく、アリール基またはヘテロアリール基である。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。

【０２３５】

これらの置換基の内、アルキル基とは、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基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、アルキル基、アリール基、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、アルキル基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。

【０２３６】

また、シクロアルキル基とは、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。アルキル基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。

【０２３７】

また、アラルキル基とは、例えば、ベンジル基、フェニルエチル基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。

【０２３８】

また、アルケニル基とは、例えば、ビニル基、アリル基、ブタジエニル基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。アルケニル基の炭素数は特に限定されないが、通常、２～２０の範囲である。

【０２３９】

また、シクロアルケニル基とは、例えば、シクロペンテニル基、シクロペンタジエニル基、シクロヘキセン基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。

【０２４０】

また、アルキニル基とは、例えば、アセチレニル基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。アルキニル基の炭素数は特に限定されないが、通常、２～２０の範囲である。

【０２４１】

また、アルコキシ基とは、例えば、メトキシ基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。アルコキシ基の炭素数は特に限定されないが、通常、１～２０の範囲である。

【０２４２】

また、アルキルチオ基とは、アルコキシ基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。

【０２４３】

また、アリールエーテル基とは、例えば、フェノキシ基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。アリールエーテル基の炭素数は特に限定されないが、通常、６～４０の範囲である。

【０２４４】

また、アリールチオエーテル基とは、アリールエーテル基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。

【０２４５】

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

【０２４６】

また、複素環基とは、例えば、フラニル基、チオフェニル基、オキサゾリル基、ピリジル基、キノリニル基、カルバゾリル基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。

【０２４７】

ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素を示す。

【０２４８】

アルデヒド基、カルボニル基、アミノ基には、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ものも含むことができる。

【０２４９】

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。

【０２５０】

シリル基とは、例えば、トリメチルシリル基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。シリル基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。

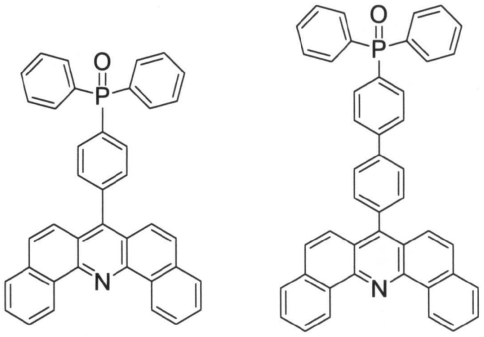
【０２５１】

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等の間で共役または非共役の縮合環を形成するものである。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。

【０２５２】

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

【化７９】



【０２５３】

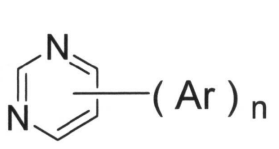
このホスフィンオキサイド誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２５４】

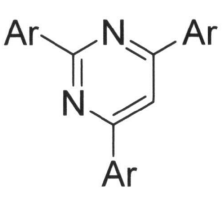
＜ピリミジン誘導体＞

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号公報にも記載されている。

【化８０】



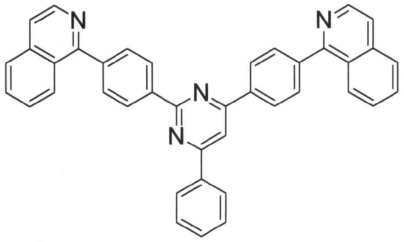
(ETM-8)



(ETM-8-1)

【０２５５】
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。
【０２５６】
「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。
【０２５７】
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
【０２５８】
「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。
【０２５９】
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。
【０２６０】
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。
【０２６１】
このピリミジン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

【化８１】



【０２６２】

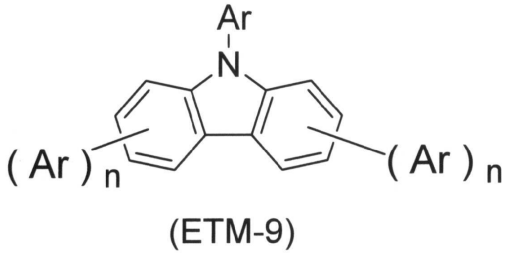
このピリミジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２６３】

＜カルバゾール誘導体＞

カルバゾール誘導体は、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。詳細は米国公開公報２０１４／０１９７３８６号公報に記載されている。

【化８２】



(ETM-9)

【０２６４】

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０～４の整数であり、好ましくは０～３の整数であり、より好ましくは０または１である。

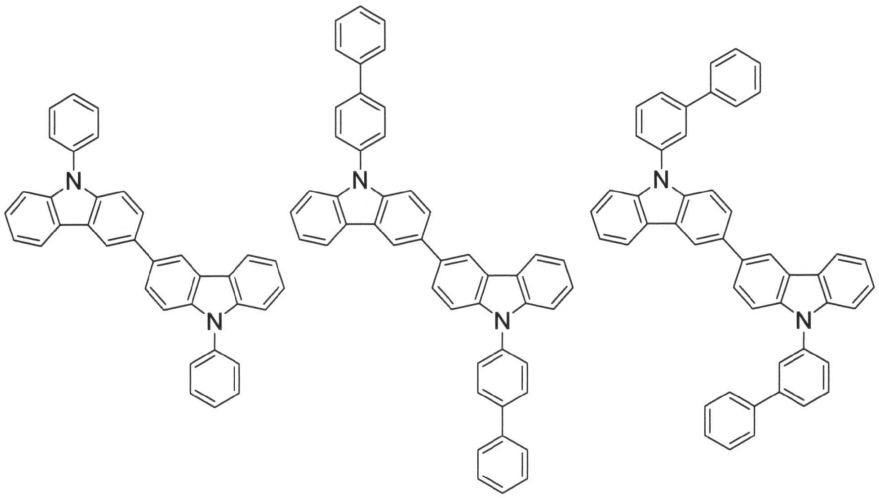
【０２６５】

「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。

【０２６６】

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

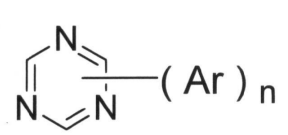
られる
【０２６７】
「置換されていてもよいヘテロアリール」の「ヘテロアリール」としては、例えば、炭素数２～３０のヘテロアリールがあげられ、炭素数２～２５のヘテロアリールが好ましく、炭素数２～２０のヘテロアリールがより好ましく、炭素数２～１５のヘテロアリールがさらに好ましく、炭素数２～１０のヘテロアリールが特に好ましい。また、ヘテロアリールとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を１ないし５個含有する複素環などがあげられる。
【０２６８】
具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、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。
【０２６９】
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。
【０２７０】
カルバゾール誘導体は、上記式（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。
【０２７１】
このカルバゾール誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。
【化８３】



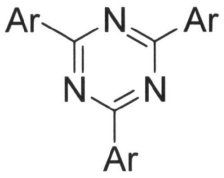
【０２７２】
このカルバゾール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。
【０２７３】
＜トリアジン誘導体＞
トリアジン誘導体は、例えば下記式（ＥＴＭ－１０）で表される化合物であり、好まし

くは下記式（ＥＴＭ－１０－１）で表される化合物である。詳細は米国公開公報２０１１／０１５６０１３号公報に記載されている。

【化８４】



(ETM-10)



(ETM-10-1)

【０２７４】

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。

【０２７５】

「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。

【０２７６】

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

【０２７７】

「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。

【０２７８】

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。

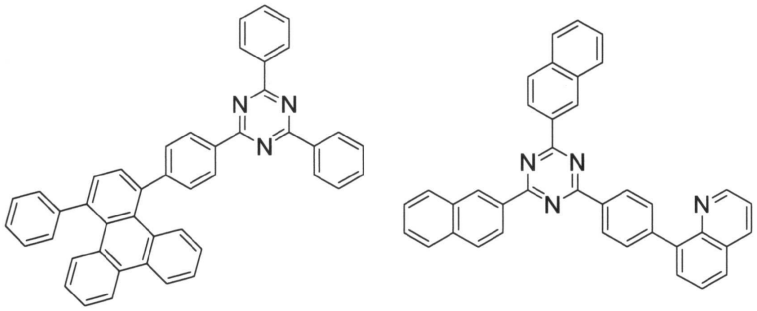
【０２７９】

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。

【０２８０】

このトリアジン誘導体の具体例としては、例えば以下のものがあげられる。

【化８５】



【０２８１】

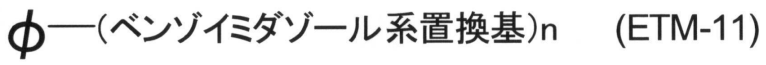
このトリアジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２８２】

＜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。

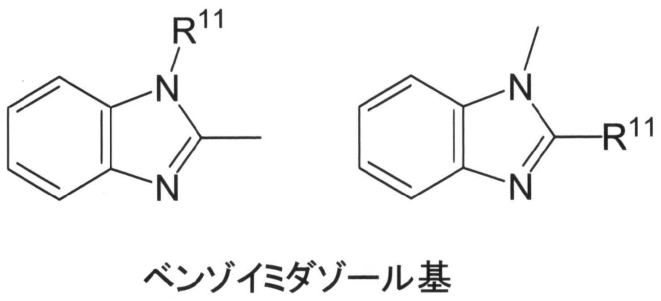
【化８６】



【０２８３】

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、上記式（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」の中のピリジル基がベンゾイミダゾール基に置き換わったものであり、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。

【化８７】



ベンゾイミダゾール基

【０２８４】

上記ベンゾイミダゾール基における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、上記式（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。

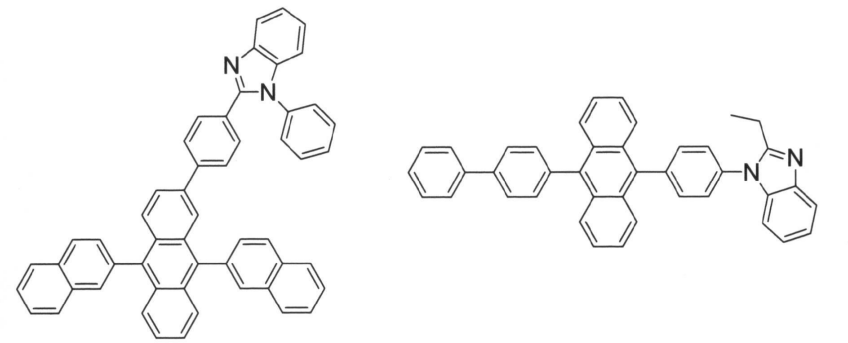
【０２８５】

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、この場合の構造は上記式（ＥＴＭ－２－１）または式（ＥＴＭ－２－２）のものを引用することができ、各式中のR^{11}～R^{18}は上記式（ＥＴＭ－２－１）または式（ＥＴＭ－２－２）で説明したものを引用することができる。また、上記式（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}～R^{18}で置き換えてもよい（すなわちｎ＝１）。さらに、例えば上記式（ＥＴＭ－２－１）におけるR^{11}～R^{18}の少なくとも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}～R^{18}で置き換えてもよい。

【０２８６】

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。

【化８８】



【０２８７】

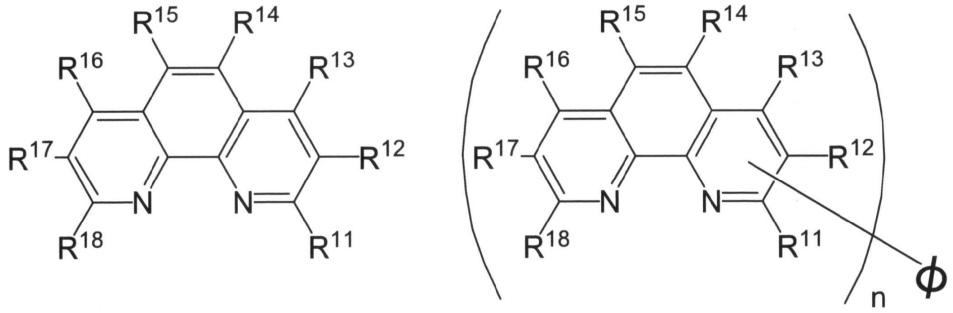
このベンゾイミダゾール誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２８８】

＜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２００６／０２１９８２号公報に記載されている。

【化８９】



(ETM-12) (ETM-12-1)

【０２８９】

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。

【０２９０】

各式のＲ１１～Ｒ１８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、上記式（ＥＴＭ－１２－１）においてはＲ１１～Ｒ１８のいずれかがアリール環であるφと結合する。

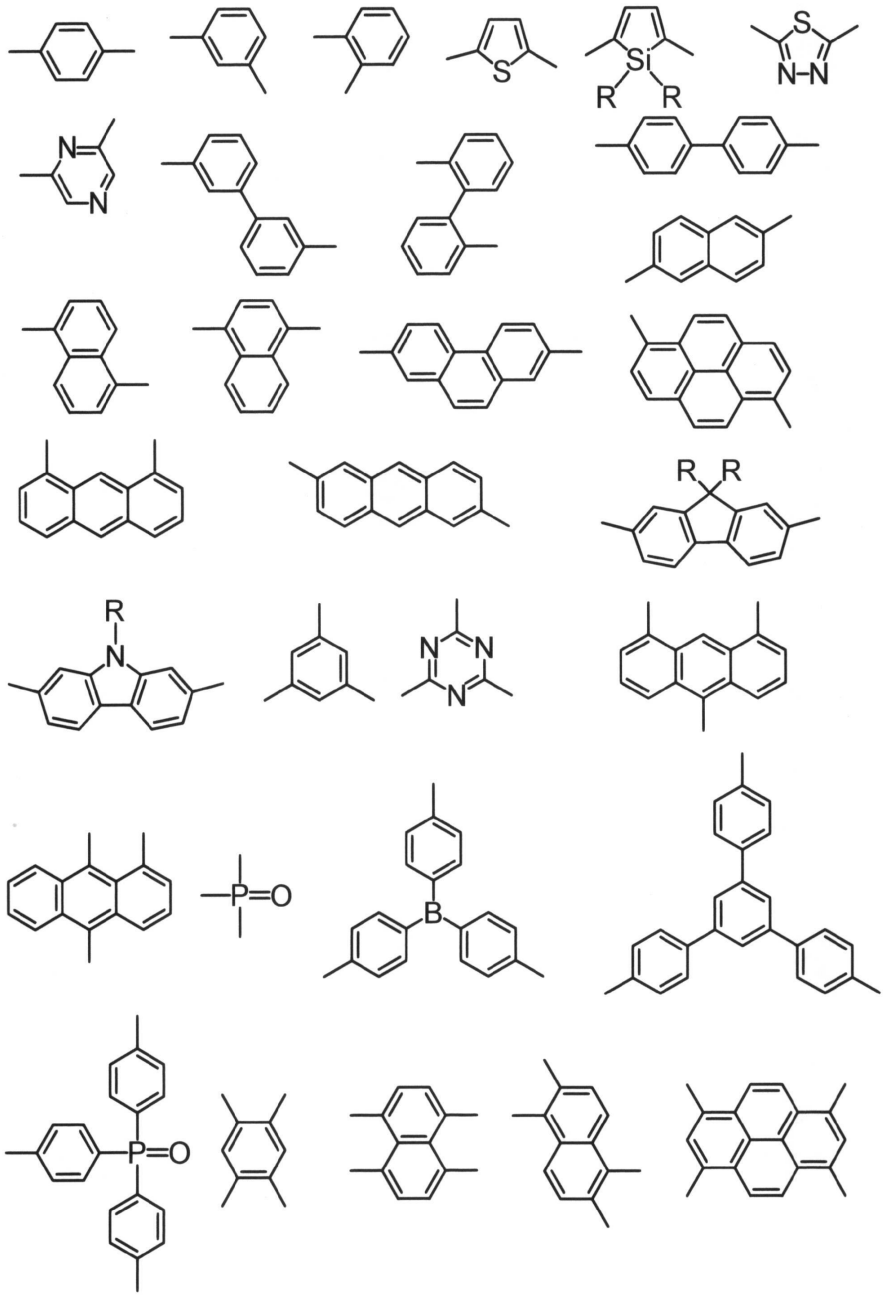
【０２９１】

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。

【０２９２】

Ｒ１１～Ｒ１８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、上記式（ＥＴＭ－２）におけるＲ１１～Ｒ１８の説明を引用することができる。また、φは上記したもののほかに、例えば、以下の構造式のものがあげられる。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る。

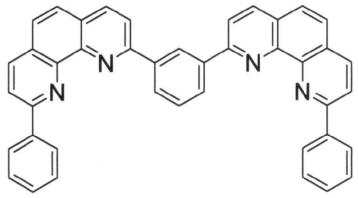
【化９０】



【０２９３】

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－ビ（１，１０－フェナントロリン－５－イル）、バソクプロインや１，３－ビス（２－フェニル－１，１０－フェナントロリン－９－イル）ベンゼンなどがあげられる。

【化９１】



【０２９４】

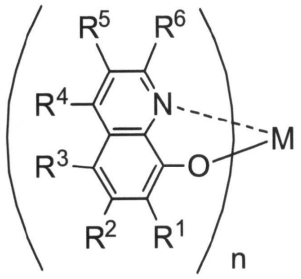
このフェナントロリン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２９５】

＜キノリノール系金属錯体＞

キノリノール系金属錯体は、例えば下記一般式（ＥＴＭ－１３）で表される化合物である。

【化９２】



(ETM-13)

式中、Ｒ^{1}～Ｒ^{6}は、それぞれ独立して、水素、フッ素、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ールであり、ＭはＬｉ、Ａｌ、Ｇａ、ＢｅまたはＺｎであり、ｎは１～３の整数である。

【０２９６】

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－ｔ－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－ｔ－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。

【０２９７】

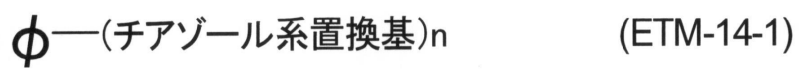
このキノリノール系金属錯体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【０２９８】

＜チアゾール誘導体およびベンゾチアゾール誘導体＞

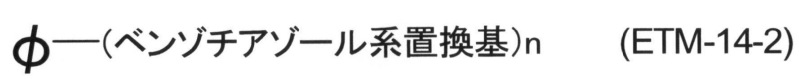
チアゾール誘導体は、例えば下記式（ＥＴＭ－１４－１）で表される化合物である。

【化９３】



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。

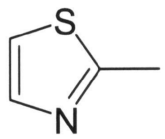
【化９４】



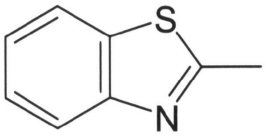
【０２９９】

各式の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、「チアゾール系置換基」や「ベンゾチアゾール系置換基」は、上記式（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」の中のピリジル基がチアゾール基やベンゾチアゾール基に置き換わったものであり、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。

【化９５】



チアゾール基



ベンゾチアゾール基

【０３００】

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、この場合の構造は上記式（ＥＴＭ－２－１）または式（ＥＴＭ－２－２）のものを引用することができ、各式中のＲ１１～Ｒ１８は上記式（ＥＴＭ－２－１）または式（ＥＴＭ－２－２）で説明したものを引用することができる。また、上記式（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し（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Ｒ１１～Ｒ１８で置き換えてもよい（すなわちｎ＝１）。さらに、例えば上記式（ＥＴＭ－２－１）におけるＲ１１～Ｒ１８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Ｒ１１～Ｒ１８で置き換えてもよい。

【０３０１】

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。

【０３０２】

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を含んでいてもよい。この還元性物質は、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、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。

【０３０３】

好ましい還元性物質としては、Ｎａ（仕事関数２．３６ｅＶ）、Ｋ（同２．２８ｅＶ）、Ｒｂ（同２．１６ｅＶ）またはＣｓ（同１．９５ｅＶ）などのアルカリ金属や、Ｃａ（同２．９ｅＶ）、Ｓｒ（同２．０～２．５ｅＶ）またはＢａ（同２．５２ｅＶ）などのアルカリ土類金属があげられ、仕事関数が２．９ｅＶ以下のものが特に好ましい。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２．９ｅＶ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。

【０３０４】

＜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ものである。

【０３０５】

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もの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、これらに限定されるものではない。

【０３０６】

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、電子線ビーム、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。

【０３０７】

＜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。

【０３０８】

＜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。

【０３０９】

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。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。

【０３１０】

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。

【０３１１】

＜有機電界発光素子の応用例＞

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。

【０３１２】

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。

【０３１３】

マトリクスとは、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たものをいい、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ッ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、アクティブマトリッ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。

【０３１４】

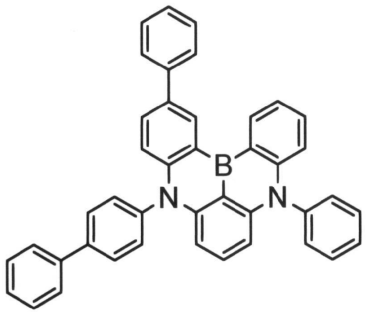
セグメント方式（タイプ）では、予め決められた情報を表示するようにパターンを形成し、決められた領域を発光させることになる。例えば、デジタル時計や温度計における時刻や温度表示、オーディオ機器や電磁調理器などの動作状態表示および自動車のパネル表示などがあげられる。

【０３１５】

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、従来方式のもの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。

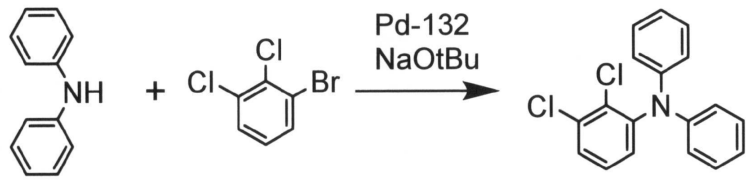
【実施例】

【０３１６】
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、多環芳香族化合物およびその多量体の合成例について、以下に説明する。
【０３１７】
合成例（１）
化合物（１－１１５２）：９－（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－５，１２－ジフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセンの合成
【化９６】



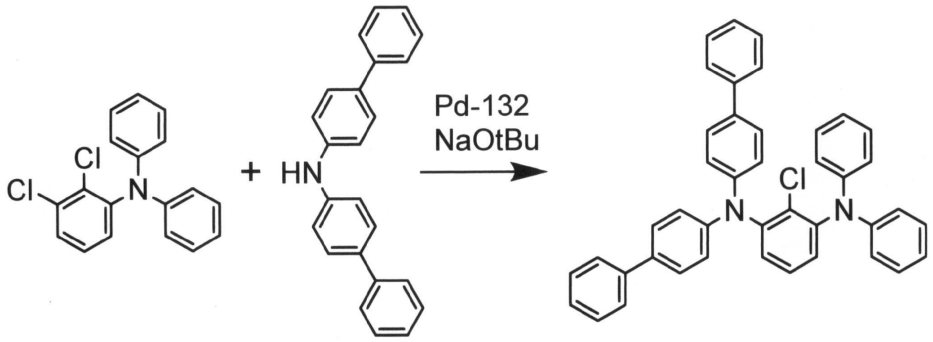
(1-1152)

【０３１８】
窒素雰囲気下、ジフェニルアミン（３７．５ｇ）、１－ブロモ－２，３－ジクロロベンゼン（５０．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（ジョンソンマッセイ）（０．８ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（３２．０ｇ）およびキシレン（５００ｍｌ）の入ったフラスコを８０℃で４時間加熱撹拌した後、１２０℃まで昇温して更に３時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝１／２０（容量比））で精製し、２，３－ジクロロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（６３．０ｇ）を得た。
【化９７】



【０３１９】
窒素雰囲気下、２，３－ジクロロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（１６．２ｇ）、ジ（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）アミン（１５．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（ジョンソンマッセイ）（０．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（６．７ｇ）およびキシレン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルショートパスカラム（展開液：加熱したトルエン）で精製し、更にヘプタン／酢酸エチル＝１（容量比）混合溶媒で洗浄することで、N^1，N^1－ジ（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－２－クロロ－N^3，N^3－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２２．０ｇ）を得た。

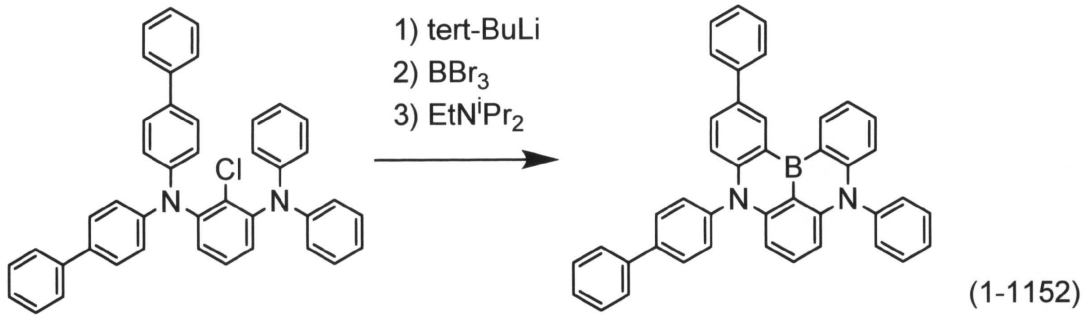
【化９８】



【０３２０】

Ｎ[1]，Ｎ[1]－ジ（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－２－クロロ－Ｎ[3]，Ｎ[3]－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２２．０ｇ）およびｔｅｒｔ－ブチルベンゼン（１３０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、－３０℃で、１．６Ｍのｔｅｒｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（３７．５ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して１時間撹拌した後、ｔｅｒｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－３０℃まで冷却して三臭化ホウ素（６．２ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び０℃まで冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（１２．８ｍｌ）を加え、発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルショートパスカラム（展開液：加熱したクロロベンゼン）で精製した。還流したヘプタンおよび還流した酢酸エチルで洗浄後、更にクロロベンゼンから再沈殿させることで、式（１－１１５２）で表される化合物（５．１ｇ）を得た。

【化９９】



(1-1152)

【０３２１】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

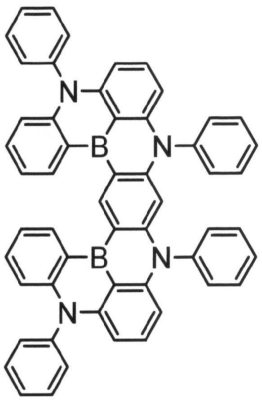
[1]Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ[3]）：δ＝９．１７（ｓ，１Ｈ）、８．９９（ｄ，１Ｈ）、７．９５（ｄ，２Ｈ）、７．６８－７．７８（ｍ，７Ｈ）、７．６０（ｔ，１Ｈ）、７．４０－７．５６（ｍ，１０Ｈ）、７．３６（ｔ，１Ｈ）、７．３０（ｍ，２Ｈ）、６．９５（ｄ，１Ｈ）、６．７９（ｄ，１Ｈ）、６．２７（ｄ，１Ｈ）、６．１８（ｄ，１Ｈ）．

【０３２２】

合成例（２）

化合物（１－４２２）：５，９，１１，１５－テトラフェニル－５，９，１１，１５－テトラヒドロ－５，９，１１，１５－テトラアザ－１９ｂ，２０ｂ－ジボラナフト［３，２，１－ｄｅ：１’，２’，３’－ｊｋ］ペンタセンの合成

【化１００】

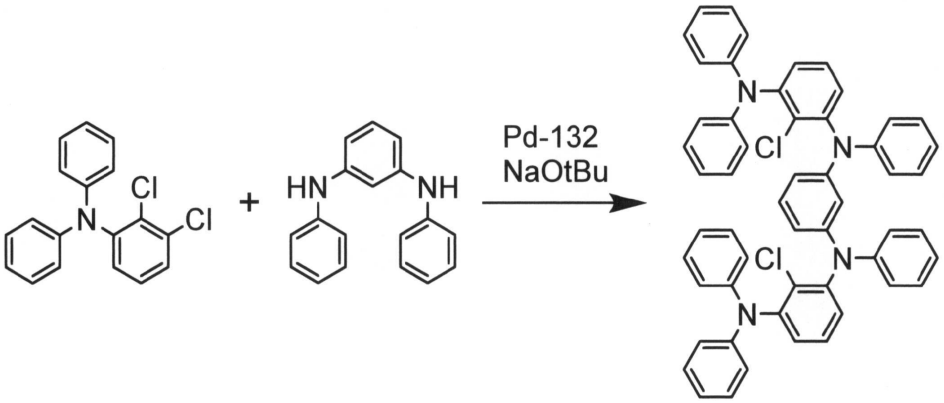


(1-422)

【０３２３】

窒素雰囲気下、２，３－ジクロロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（３６．０ｇ）、Ｎ[1]，Ｎ[3]－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１２．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（ジョンソンマッセイ）（０．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（１１．０ｇ）およびキシレン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で３時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン混合溶媒）で精製した。この際、展開液中のトルエンの比率を徐々に増加させて目的物を溶出させた。更に活性炭カラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン）で精製することで、Ｎ[1]，Ｎ[1]’－（１，３－フェニレン）ビス（２－クロロ－Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン）（２２．０ｇ）を得た。

【化１０１】

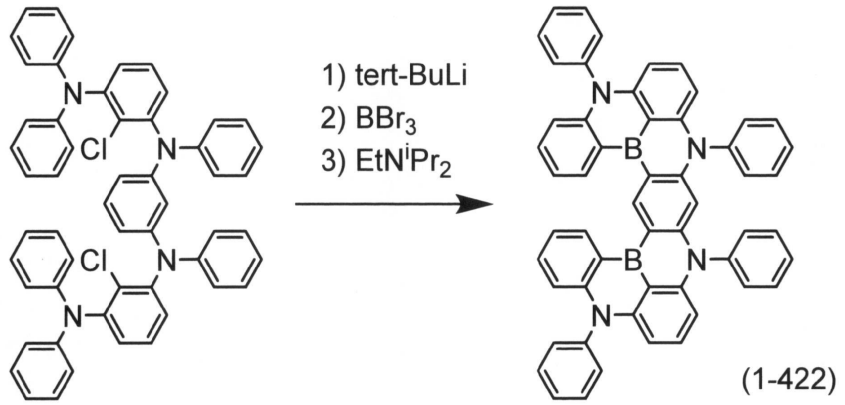


【０３２４】

Ｎ[1]，Ｎ[1]’－（１，３－フェニレン）ビス（２－クロロ－Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン）（２２．０ｇ）およびｔｅｒｔ－ブチルベンゼン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、－３０℃で、１．６Ｍのｔｅｒｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（４２．０ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して５時間撹拌した後、ｔｅｒｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－３０℃まで冷却して三臭化ホウ素（７．６ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び０℃まで冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（１８．９ｍｌ）を加え、発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液を加え、析出した固体を濾別した。ろ液を分液し、有機層をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝１（容量比））で精製した。溶媒を減圧留去して得られた固体をクロロベンゼンに溶かし、酢酸エチルを加えることで再沈殿させ、式（１－４２２）で表さ

れる化合物（０．６ｇ）を得た。

【化１０２】



【０３２５】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ６）：δ＝１０．３８（ｓ，１Ｈ）、９．０８（ｄ，２Ｈ）、７．８１（ｔ，４Ｈ）、７．７０（ｔ，２Ｈ）、７．３８－７．６０（ｍ，１４Ｈ）、７．３０（ｔ，２Ｈ）、７．１８（ｄ，４Ｈ）、６．７４（ｄ，２Ｈ）、６．０７（ｄ，２Ｈ）、６．０２（ｄ，２Ｈ）、５．７８（ｓ，１Ｈ）．

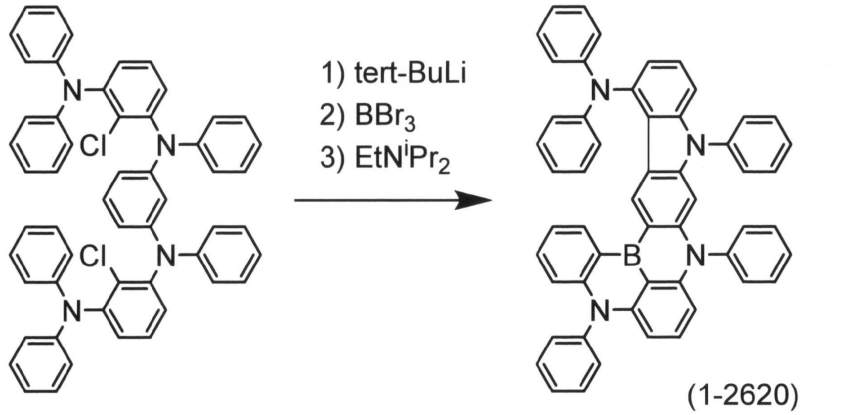
【０３２６】

合成例（３）

化合物（１－２６２０）の合成

前記合成例（２）の精製工程において式（１－４２２）で表される化合物を沈殿させた後、吸引ろ過にて回収したろ液を活性炭カラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン）で精製した後、溶出液を濃縮し、析出した固形物をヘプタンで洗浄することで、固体（０．３ｇ）を得た。この操作で得られた固体が前記の反応工程で副生した下記式（１－２６２０）で表される化合物であることを、ＮＭＲ測定によって確認した。

【化１０３】



【０３２７】

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ６）：δ＝９．３９（ｓ，１Ｈ）、８．３５（ｄ，１Ｈ）、７．７７（ｔ，２Ｈ）、７．６９（ｍ，３Ｈ）、７．３５－７．６２（ｍ，１２Ｈ）、７．２８（ｍ，４Ｈ）、７．２０（ｄ，６Ｈ）、７．０９（ｄ，１Ｈ）、７．０３（ｔ，１Ｈ）、６．９６（ｔ，２Ｈ）、６．６２（ｄ，１Ｈ）、６．５５（ｓ，１Ｈ）、６．００（ｄ，２Ｈ）．

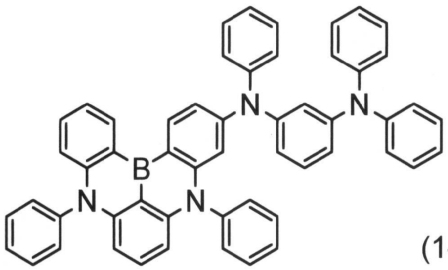
【０３２８】

合成例（４）

化合物（１－１１５９）：Ｎ^1－（５，９－ジフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－

ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３－イル）－Ｎ^{1}，Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミンの合成

【化１０４】

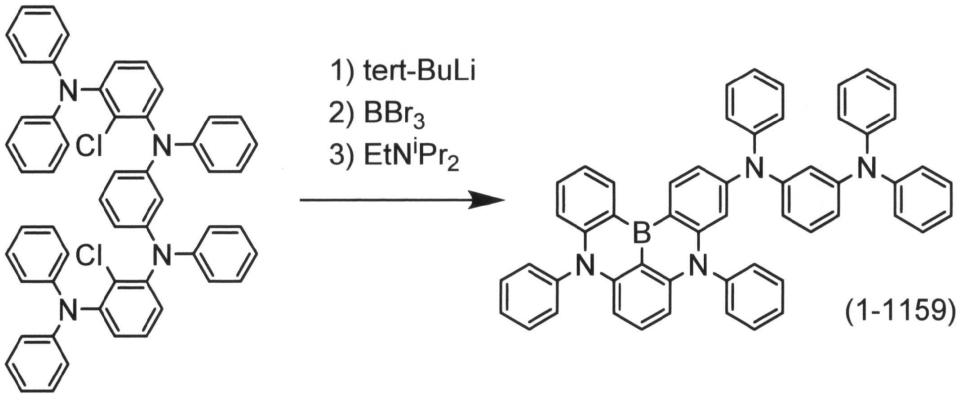


(1-1159)

【０３２９】

式（１－４２２）で表される化合物（０．６ｇ）のシリカゲルカラムクロマト精製において、当該誘導体を含むフラクションを分取した。更に還流したヘプタンで洗浄後、クロロベンゼン／酢酸エチルから再沈殿させることで、式（１－１１５９）で表される化合物（１．１ｇ）を得た。

【化１０５】



(1-1159)

【０３３０】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

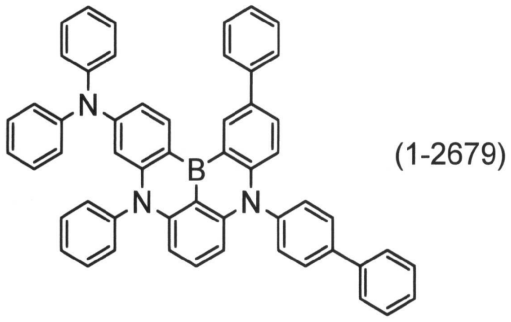
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ－ｄ６）：δ＝８．７８（ｄ，１Ｈ）、８．６６（ｄ，１Ｈ）、７．６９（ｔ，２Ｈ）、７．５９（ｔ，１Ｈ）、７．５９（ｔ，２Ｈ）、７．４９（ｍ，２Ｈ）、７．４０（ｄ，２Ｈ）、７．２２－７．３２（ｍ，１０Ｈ）、７．１８（ｔ，１Ｈ）、６．９７－７．０７（ｍ，９Ｈ）、６．８９（ｄ，１Ｈ）、６．６０－６．７０（ｍ，４Ｈ）、６．１１（ｓ，１Ｈ）、５．９６（ｍ，２Ｈ）．

【０３３１】

合成例（５）

化合物（１－２６７９）：９－（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－Ｎ，Ｎ，５，１２－テトラフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３－アミンの合成

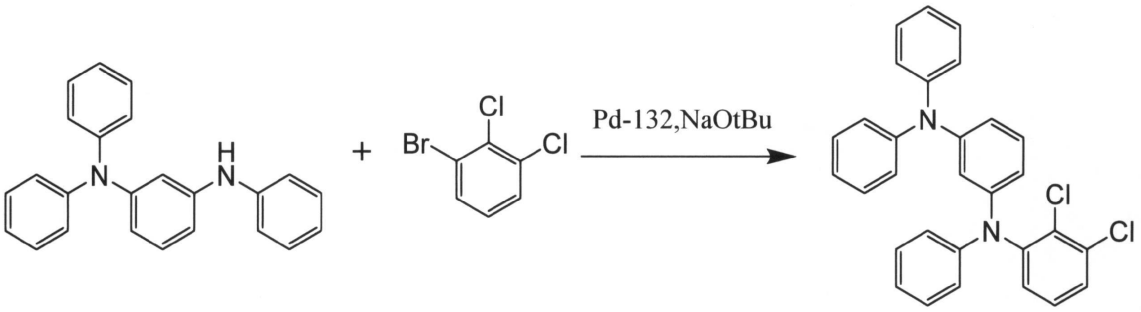
【化１０６】



【０３３２】

窒素雰囲気下、Ｎ[1]，Ｎ[1]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（５１．７ｇ）、１－ブロモ－２，３－ジクロロベンゼン（３５．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．６ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（２２．４ｇ）およびキシレン（３５０ｍｌ）の入ったフラスコを９０℃で２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５（容量比））で精製することで、Ｎ[1]－（２，３－ジクロロフェニル）－Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（６１．８ｇ）を得た。

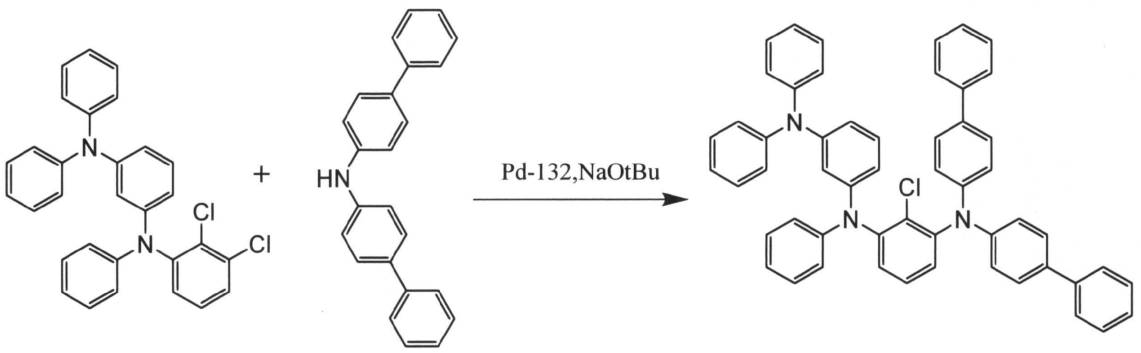
【化１０７】



【０３３３】

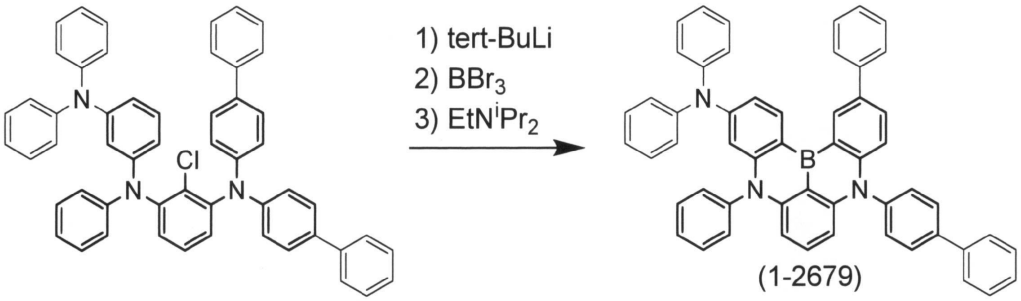
窒素雰囲気下、Ｎ[1]－（２，３－ジクロロフェニル）－Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１５．０ｇ）、ジ（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）アミン（１０．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．２ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（４．５ｇ）およびキシレン（７０ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水およびトルエンを加えて分液した。次いで、シリカゲルショートパスカラム（展開液：トルエン）で精製した。得られた油状物を酢酸エチル／ヘプタン混合溶媒で再沈殿させることで、Ｎ[1]，Ｎ[1]－ジ（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－２クロロ－Ｎ[3]－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ[3]－フェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１８．５ｇ）を得た。

【化１０８】



【０３３４】
Ｎ^{1}，Ｎ^{1}－ジ（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－２クロロ－Ｎ^{3}－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ^{3}－フェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１８．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１３０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．７Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（２７．６ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して３時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（４．５ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（８．２ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えて分液した。次いで、加熱したクロロベンゼンに溶解させ、シリカゲルショートパスカラム（展開液：加熱したトルエン）で精製した。更にクロロベンゼンから再結晶させることで、式（１－２６７９）で表される化合物（３．０ｇ）を得た。

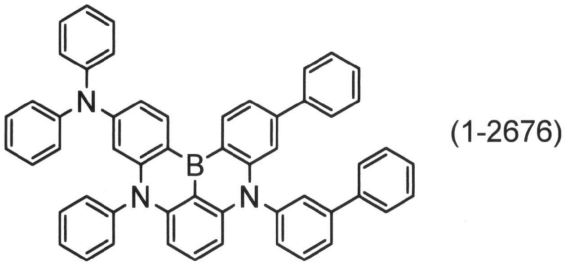
【化１０９】



【０３３５】
ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝９．０９（ｍ，１Ｈ）、８．７９（ｄ，１Ｈ）、７．９３（ｄ，２Ｈ）、７．７５（ｄ，２Ｈ）、７．７２（ｄ，２Ｈ）、７．６７（ｍ，１Ｈ）、７．５２（ｔ，２Ｈ）、７．４０－７．５０（ｍ，７Ｈ）、７．２７－７．３８（ｍ，２Ｈ）、７．１９－７．２６（ｍ，７Ｈ）、７．１１（ｍ，４Ｈ）、７．０３（ｔ，２Ｈ）、６．９６（ｄｄ，１Ｈ）、６．９０（ｄ，１Ｈ）、６．２１（ｍ，２Ｈ）、６．１２（ｄ，１Ｈ）．

【０３３６】
合成例（６）
化合物（１－２６７６）：９－（［１，１’－ビフェニル］－３－イル）－Ｎ，Ｎ，５，１１－テトラフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３－アミンの合成

【化１１０】

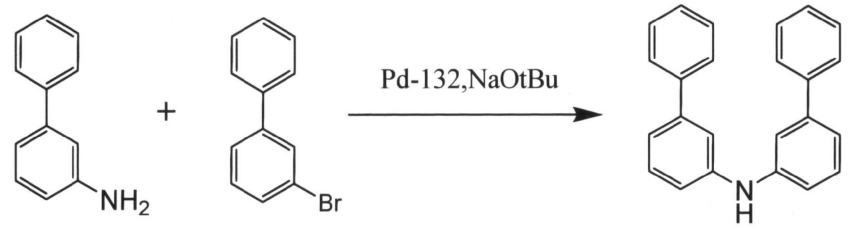


(1-2676)

【０３３７】
窒素雰囲気下、［１，１’－ビフェニル］－３－アミン（１９．０ｇ）、４－ブロモ－１，１’－ビフェニル（２５．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．８ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（１５．５ｇ）およびキシレン（２００ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で６時間加熱撹拌し

た。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５（容量比））で精製した。溶媒を減圧留去して得られた固体をヘプタンで洗浄し、ジ（［１，１’－ビフェニル］－３－イル）アミン（３０．０ｇ）を得た。

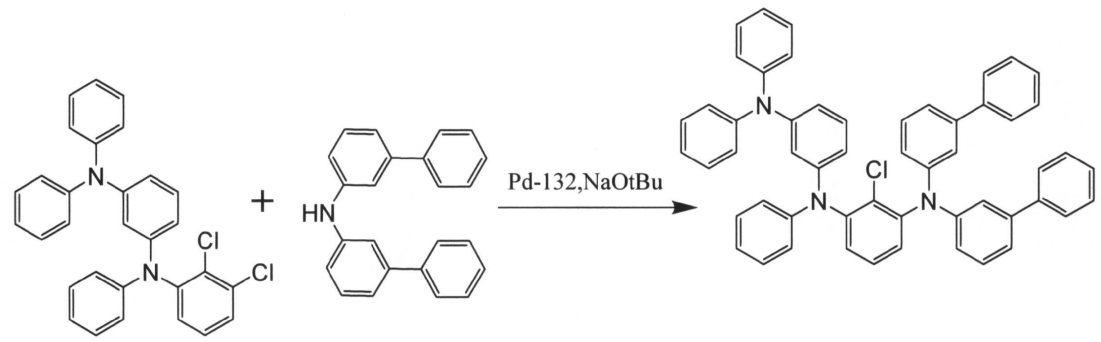
【化１１１】



【０３３８】

窒素雰囲気下、N^1－（２，３－ジクロロフェニル）－N^1，N^3，N^3－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１５．０ｇ）、ジ（［１，１’－ビフェニル］－３－イル）アミン（１０．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．２ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（４．５ｇ）およびキシレン（７０ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５（容量比））で精製した。目的物を含むフラクションを減圧留去することで再沈殿させ、N^1，N^1－ジ（［１，１’－ビフェニル］－３－イル）－２－クロロ－N^3－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－N^3－フェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２０．３ｇ）を得た。

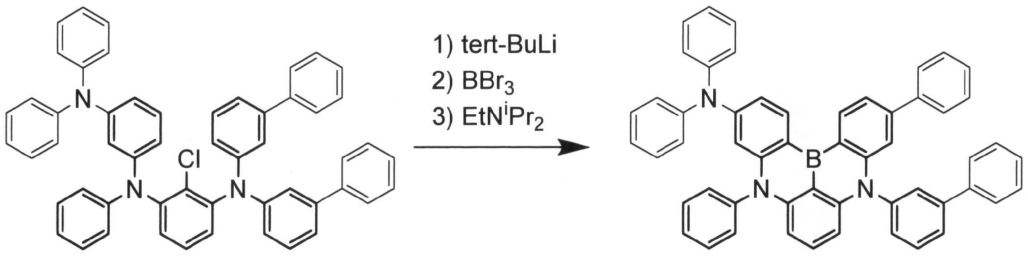
【化１１２】



【０３３９】

N^1，N^1－ジ（［１，１’－ビフェニル］－３－イル）－２－クロロ－N^3－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－N^3－フェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２０．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．６Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（３２．６ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して２時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（５．０ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（９．０ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して１．５時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５）で精製した。更に、トルエン／ヘプタン混合溶媒、クロロベンゼン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６７６）で表される化合物（５．０ｇ）を得た。

【化１１３】



(1-2676)

【０３４０】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

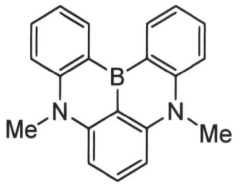
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ＝８．９３（ｄ，１Ｈ）、８．７７（ｄ，１Ｈ）、７．８４（ｍ，１Ｈ）、７．７７（ｔ，１Ｈ）、７．６８（ｍ，３Ｈ）、７．３３－７．５０（ｍ，１２Ｈ）、７．３０（ｔ，１Ｈ）、７．２２（ｍ，７Ｈ）、７．１１（ｍ，４Ｈ）、７．０３（ｍ，３Ｈ）、６．９７（ｄｄ，１Ｈ）、６．２０（ｍ，２Ｈ）、６．１１（ｄ，１Ｈ））．

【０３４１】

合成例（７）

化合物（１－４１１）：５，９－ジメチル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセンの合成

【化１１４】

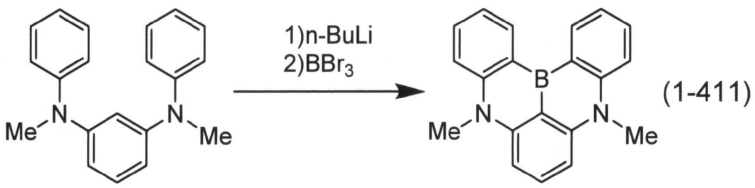


(1-411)

【０３４２】

Ｎ^1，Ｎ^3－ジメチル－Ｎ^1，Ｎ^3－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２．９ｇ）のｔ－ブチルベンゼン（２０ｍｌ）溶液に、窒素雰囲気下、０℃で１．６Ｍのｎ－ブチルリチウムヘキサン溶液（２５．０ｍｌ）を加えた。１００℃まで昇温してヘキサンを留去し、更に２１時間加熱撹拌した。－４０℃まで冷却してＴＨＦ（１０ｍｌ）を加えた後、三臭化ホウ素（１．９ｍｌ）を加え、１時間かけて室温まで昇温した後、０℃まで冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルアミン（５．２ｍｌ）を加え、フロリジルショートパスカラムを用いて濾過した。溶媒を減圧留去した後、アセトニトリルで洗浄することで、黄緑色固体として式（１－４１１）で表される化合物（０．９６ｇ）を得た。

【化１１５】



(1-411)

【０３４３】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

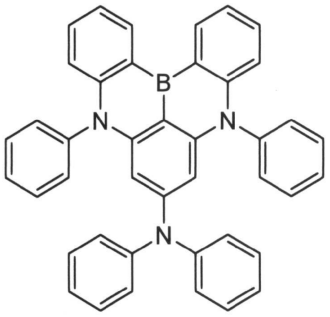
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ＝８．７３（ｄｄ，２Ｈ）、７．７５（ｔ，１Ｈ）、７．６７（ｍ，２Ｈ）、７．５７（ｄｄ，２Ｈ）、７．２９（ｍ，２Ｈ）、７．００（ｄ，２Ｈ）、３．９１（ｓ，６Ｈ）．

【０３４４】

合成例（８）

化合物（１－４４７）：Ｎ，Ｎ，５，９－テトラフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－７－アミンの合成

【化１１６】

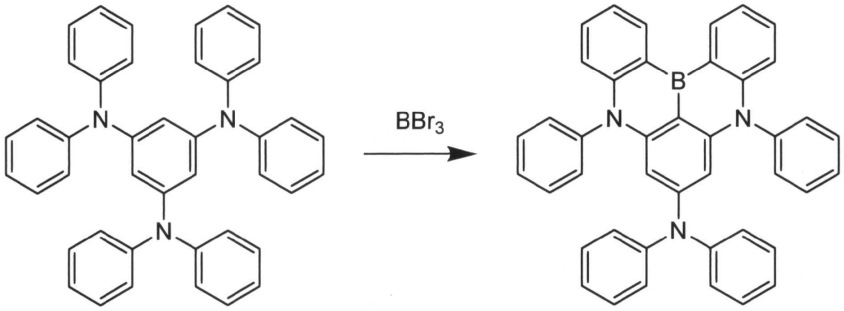


(1-447)

【０３４５】

窒素雰囲気下、N^1，N^1，N^3，N^3，N^5，N^5－ヘキサフェニル－１，３，５－ベンゼントリアミン（１１．６ｇ，２０ｍｍｏｌ）およびｏ－ジクロロベンゼン（１２０ｍｌ）の入ったフラスコに、室温で三臭化ホウ素（３．７８ｍｌ，４０ｍｍｏｌ）を加えた後、１７０℃で４８時間加熱撹拌した。その後、６０℃で減圧下、反応溶液を留去した。フロリジルショートパスカラムを用いてろ過し、溶媒を減圧留去して粗生成物を得た。ヘキサンを用いて粗成生物を洗浄することで、黄色固体である式（１－４４７）で表される化合物（１１．０ｇ）を得た。

【化１１７】



(1-447)

【０３４６】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ＝８．８９（ｄｄ，２Ｈ）、７．４７（ｔ，４Ｈ）、７．３９（ｍ，４Ｈ）、７．２４（ｍ，６Ｈ）、７．１０（ｍ，４Ｈ）、６．９４（ｍ，６Ｈ）、６．７２（ｄ，２Ｈ）、５．２２（ｍ，２Ｈ）．

【０３４７】

また、N^1，N^1，N^3，N^3，N^5，N^5－ヘキサフェニルベンゼン－１，３，５－トリアミン（１１．６ｇ、２０ｍｍｏｌ）およびオルトジクロロベンゼン（ＯＤＣＢ、１２０ｍＬ）に、窒素雰囲気下、室温で三臭化ホウ素（３．７８ｍＬ、４０ｍｍｏｌ）を加えた後、１７０℃で４８時間加熱撹拌した。その後、６０℃で減圧下、反応溶液を留去した。フロリジルショートパスカラムを用いて濾過し、溶媒を減圧留去して粗成生物を得た。ヘキサンを用いて粗成生物を洗浄することで、黄色固体として式（１－４４７）で表される化合物を得た（１１．０ｇ、収率９４％）。

【０３４８】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

^{1}Ｈ ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）δ 5.62 (brs, 2H), 6.71 (d, 2H), 6.90-6.93 (m, 6H), 7.05-7.09 (m, 4H), 7.20-7.27(m, 6H), 7.33-7.38 (m, 4H), 7.44-7.48 (m, 4H), 8.90 (dd, 2H)

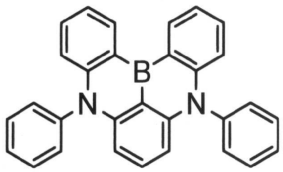
^{13}C NMR（101MHz，$CDCl_3$）δ 98.4 (2C), 116.8 (2C), 119.7 (2C), 123.5 (2C), 125.6 (4C), 128.1 (2C), 128.8 (4C), 130.2 (4C), 130.4 (2C), 130.7 (4C), 134.8 (2C), 142.1 (2C), 146.6 (2C), 147.7 (2C), 147.8 (2C), 151.1

【０３４９】

合成例（９）

化合物（１－４０１）：５，９－ジフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセンの合成

【化１１８】

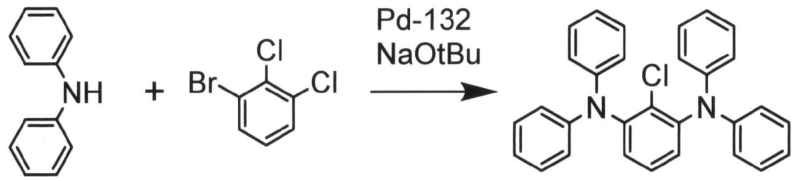


(1-401)

【０３５０】

窒素雰囲気下、ジフェニルアミン（６６．０ｇ）、１－ブロモ－２，３－ジクロロベンゼン（４０．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（ジョンソンマッセイ）（１．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（４３．０ｇ）およびキシレン（４００ｍｌ）の入ったフラスコを８０℃で２時間加熱撹拌した後、１２０℃まで昇温して更に３時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加え、析出した固体を吸引ろ過にて採取した。次いで、シリカゲルショートパスカラム（展開液：加熱したトルエン）で精製した。溶媒を減圧留去して得られた固体をヘプタンで洗浄することで２－クロロ－N^1，N^1，N^3，N^3－テトラフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（６５．０ｇ）を得た。

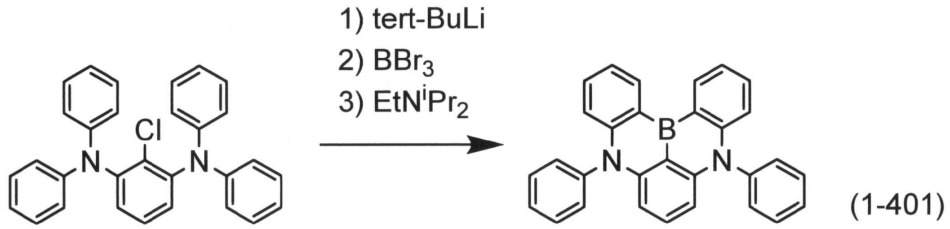
【化１１９】



【０３５１】

２－クロロ－N^1，N^1，N^3，N^3－テトラフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２０．０ｇ）およびｔｅｒｔ－ブチルベンゼン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、－３０℃で、１．７Ｍのｔｅｒｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（２７．６ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して２時間撹拌した後、ｔｅｒｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－３０℃まで冷却して三臭化ホウ素（５．１ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び０℃まで冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（１５．６ｍｌ）を加え、発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して３時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いでヘプタンを加えて分液した。次いで、シリカゲルショートパスカラム（添加液：トルエン）で精製した後、溶媒を減圧留去し得られた固体をトルエンに溶かし、ヘプタンを加えて再沈殿させ、式（１－４０１）で表される化合物（６．０ｇ）を得た。

【化１２０】



(1-401)

【０３５２】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

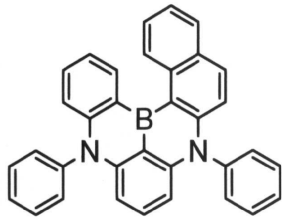
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝８．９４（ｄ，２Ｈ）、７．７０（ｔ，４Ｈ）、７．６０（ｔ，２Ｈ）、７．４２（ｔ，２Ｈ）、７．３８（ｄ，４Ｈ）、７．２６（ｍ，３Ｈ）、６．７６（ｄ，２Ｈ）、６．１４（ｄ，２Ｈ）．

【０３５３】

合成例（１０）および（１１）

化合物（１－２６５７）：３，７－ジフェニル－３，７－ジヒドロ－３，７－ジアザ－１１ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｎｏ］テトラフェンの合成

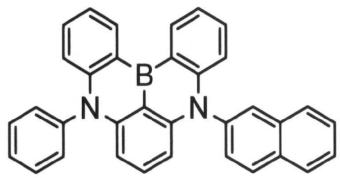
【化１２１】



(1-2657)

化合物（１－２６９９）：９－（ナフタレン－２－イル）－５－フェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセンの合成

【化１２２】

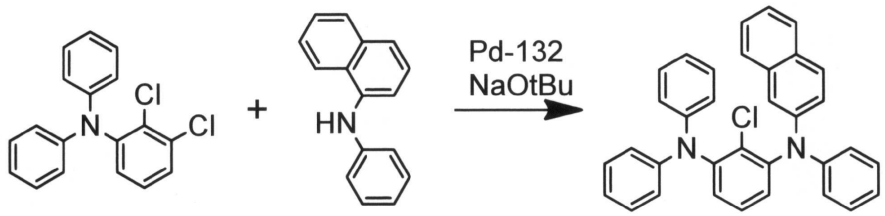


(1-2699)

【０３５４】

窒素雰囲気下、２，３－ジクロロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（１５．０ｇ）、Ｎ－フェニルナフタレン－１－アミン（１０．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（６．９ｇ）およびキシレン（１００ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルショートパスカラム（展開液：トルエン／ヘプタン＝１／１（容量比））で精製し、更にヘプタン溶媒で再沈殿させることで、２－クロロ－Ｎ^{1}－（ナフタレン－２－イル）－Ｎ^{1}，Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１８．０ｇ）を得た。

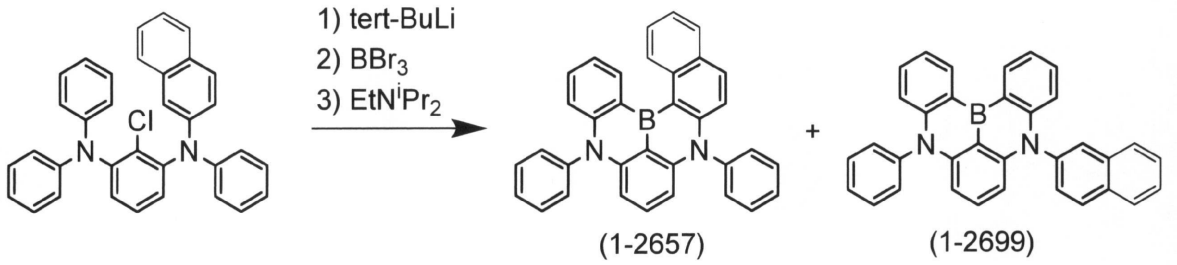
【化１２３】



【０３５５】

２－クロロ－Ｎ^{1}－（ナフタレン－２－イル）－Ｎ^{1}，Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１８．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．６Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（４５．３ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して２時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（６．８ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（１２．５ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝３／７）で精製した。更に加熱したヘプタンで洗浄後、更にトルエン／酢酸エチル混合溶液から再沈殿させることで、式（１－２６５７）で表される化合物（３．２ｇ）を得た。また、この再沈殿のろ液を活性炭カラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝１／１）で精製した後、ヘプタン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６９９）で表される化合物（０．１ｇ）を得た。

【化１２４】



【０３５６】

ＮＭＲ測定により得られた化合物（１－２６５７）の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝８．９４（ｍ，１Ｈ）、８．５０（ｄ，１Ｈ）、７．８０（ｍ，１Ｈ）、７．７７（ｄ，１Ｈ）、７．７０（ｍ，４Ｈ）、７．６１（ｍ，２Ｈ）、７．４６（ｍ，２Ｈ）、７．３５－７．４４（ｍ，５Ｈ）、７．２５（ｍ，１Ｈ）、７．０３（ｔ，１Ｈ）、６．９５（ｄ，１Ｈ）、６．７７（ｄ，１Ｈ）、６．２３（ｄ，１Ｈ）、６．１８（ｄ，１Ｈ）．

【０３５７】

ＮＭＲ測定により得られた化合物（１－２６９９）の構造を確認した。

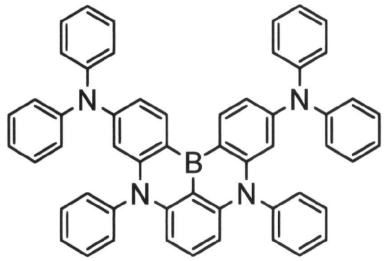
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝８．９７（ｍ，２Ｈ）、８．１８（ｄ，１Ｈ）、８．０３（ｄ，１Ｈ）、７．９２（ｍ，２Ｈ）、７．７０（ｔ，２Ｈ）、７．５６－６６（ｍ，３Ｈ）、７．３６－４８（ｍ，５Ｈ）、７．２０－７．３２（ｍ，３Ｈ）、６．７８（ｔ，２Ｈ）、６．１５（ｍ，２Ｈ）．

【０３５８】

合成例（１２）

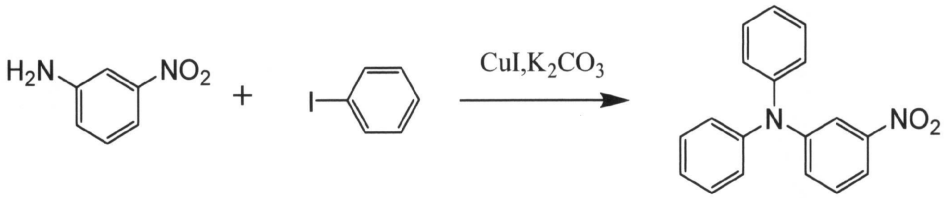
化合物（１－２６８０）：Ｎ^{3}，Ｎ^{3}，Ｎ^{11}，Ｎ^{11}，５，９－ヘキサフェニル－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３，１１－ジア

ミンの合成
【化１２５】

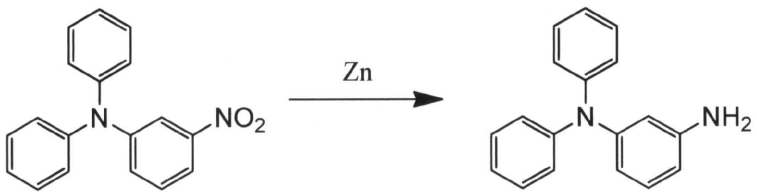


(1-2680)

【０３５９】
窒素雰囲気下、３－ニトロアニリン（２５．０ｇ）、ヨードベンゼン（８１．０ｇ）、ヨウ化銅（３．５ｇ）、炭酸カリウム（１００．０ｇ）およびオルトジクロロベンゼン（２５０ｍｌ）の入ったフラスコを還流温度で１４時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、アンモニア水を加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝３／７（容量比））で精製することで、３－ニトロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（４４．０ｇ）を得た。
【化１２６】



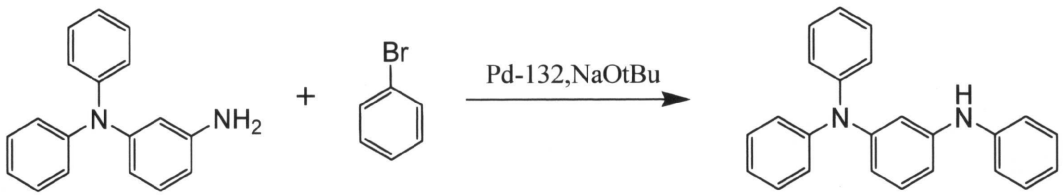
【０３６０】
窒素雰囲気下、氷浴で冷却した酢酸を加えて撹拌した。この溶液に、３－ニトロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（４４．０ｇ）を反応温度が著しく上昇しない程度に分割して添加した。添加終了後、室温で３０分間撹拌し、原料の消失を確認した。反応終了後、上澄みをデカンテーションにて採取して炭酸ナトリウムで中和し、酢酸エチルで抽出した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝９／１（容量比））で精製した。目的物の入ったフラクションから溶媒を減圧留去し、ヘプタンを加えることで再沈殿させ、Ｎ^{1}，Ｎ^{1}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（３６．０ｇ）を得た。
【化１２７】



【０３６１】
窒素雰囲気下、Ｎ^{1}，Ｎ^{1}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（６０．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（１．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（３３．５ｇ）およびキシレン（３００ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で加熱撹拌した。この溶液に、ブロモベンゼン（３６．２ｇ）のキシレン（５０ｍｌ）溶液をゆっくり滴下し、滴下終了後、１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５（容量比））で精製することで、Ｎ^{1}，Ｎ^{1}，Ｎ^{3}－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（７３．０ｇ）

を得た。

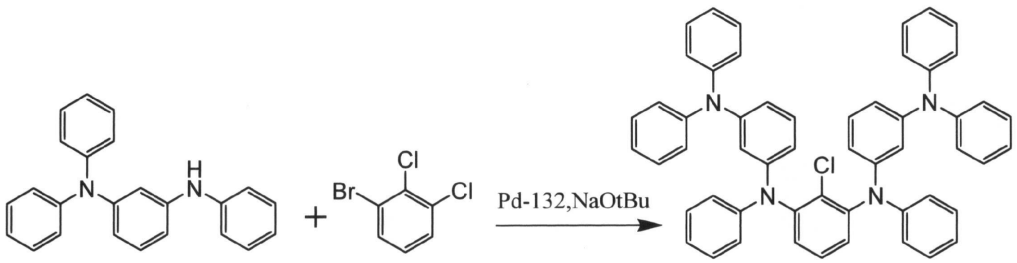
【化１２８】



【０３６２】

窒素雰囲気下、Ｎ[1]，Ｎ[1]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２０．０ｇ）、１－ブロモ－２，３－ジクロロベンゼン（６．４ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．２ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（６．８ｇ）およびキシレン（７０ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製することで、Ｎ[1]，Ｎ[1]’－（２－クロロ－１，３－フェニレン）ビス（Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン）（１５．０ｇ）を得た。

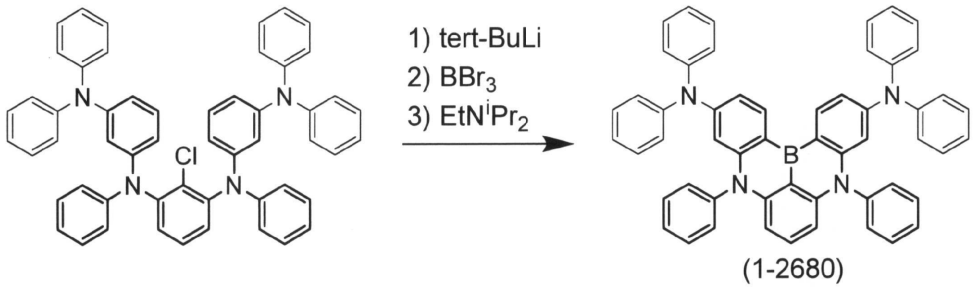
【化１２９】



【０３６３】

Ｎ[1]，Ｎ[1]’－（２－クロロ－１，３－フェニレン）ビス（Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン）（１２．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１００ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．７Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（１８．１ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して２時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（２．９ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（５．４ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して３時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加え、不溶性の固体を濾別した後分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５）で精製した。更に加熱したヘプタン、酢酸エチルで洗浄後、トルエン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６８０）で表される化合物（２．０ｇ）を得た。

【化１３０】



(1-2680)

【０３６４】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

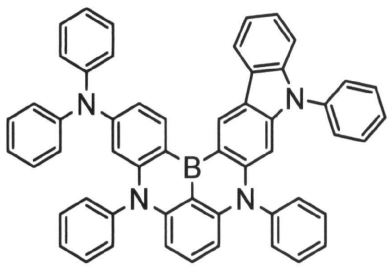
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ＝８．６５（ｄ，２Ｈ）、７．４４（ｔ，４Ｈ）、７．３３（ｔ，２Ｈ）、７．２０（ｍ，１２Ｈ）、７．１３（ｔ，１Ｈ）、７．０８（ｍ，８Ｈ）、７．００（ｔ，４Ｈ）、６．８９（ｄｄ，２Ｈ）、６．１６（ｍ，２Ｈ）、６．０３（ｄ，２Ｈ）．

【０３６５】

合成例（１３）および（１４）

化合物（１－２６８１）：Ｎ，Ｎ，５，９，１１－ペンタフェニル－９，１１－ジヒドロ－５Ｈ－５，９，１１－トリアザ－１６ｂ－ボラインデノ［２，１－ｂ］ナフト［１，２，３－ｆｇ］アントラセン－３－アミンの合成

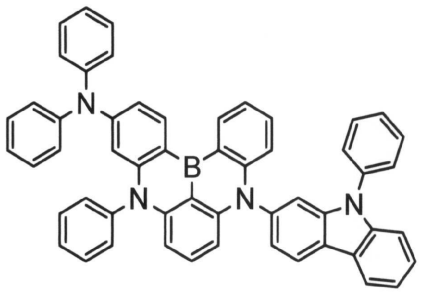
【化１３１】



(1-2681)

化合物（１－２６８２）：Ｎ，Ｎ，５－トリフェニル－９－（９－フェニル－９Ｈ－カルバゾール－２－イル）－５，９－ジヒドロ－５Ｈ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３－アミンの合成

【化１３２】



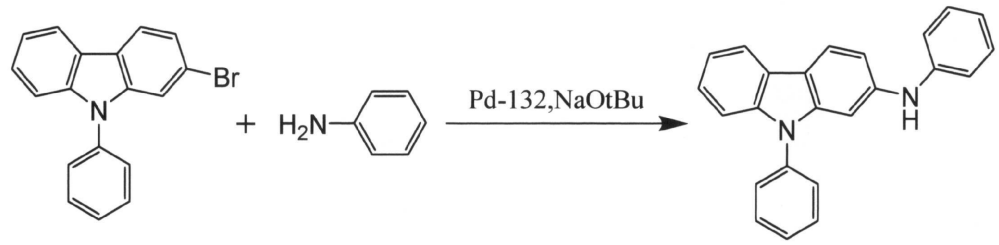
(1-2682)

【０３６６】

窒素雰囲気下、２－ブロモ－９－フェニル－９Ｈ－カルバゾール（１０．０ｇ）、アニリン（３．５ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．２ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（４．５ｇ）およびキシレン（１００ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で４時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液し、更に有機層を希塩酸で洗浄し、未反応のアニリンを除去した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製することで、Ｎ，９－ジフェニル－９Ｈ－カル

バゾール－２－アミン（１０．４ｇ）を得た。

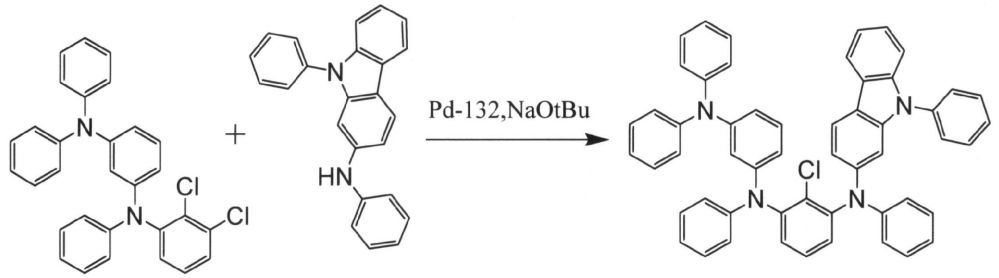
【化１３３】



【０３６７】

窒素雰囲気下、Ｎ[1]－（２，３－ジクロロフェニル）－Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１４．０ｇ）、Ｎ，９－ジフェニル－９Ｈ－カルバゾール－２－アミン（１０．４ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．２ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（４．１ｇ）およびキシレン（９０ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水およびトルエンを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製することで、２－クロロ－Ｎ[1]－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ[1]，Ｎ[3]－ジフェニル－Ｎ[3]－（９－フェニル－９Ｈ－カルバゾール－２－イル）ベンゼン－１，３－ジアミン（１８．５ｇ）を得た。

【化１３４】



【０３６８】

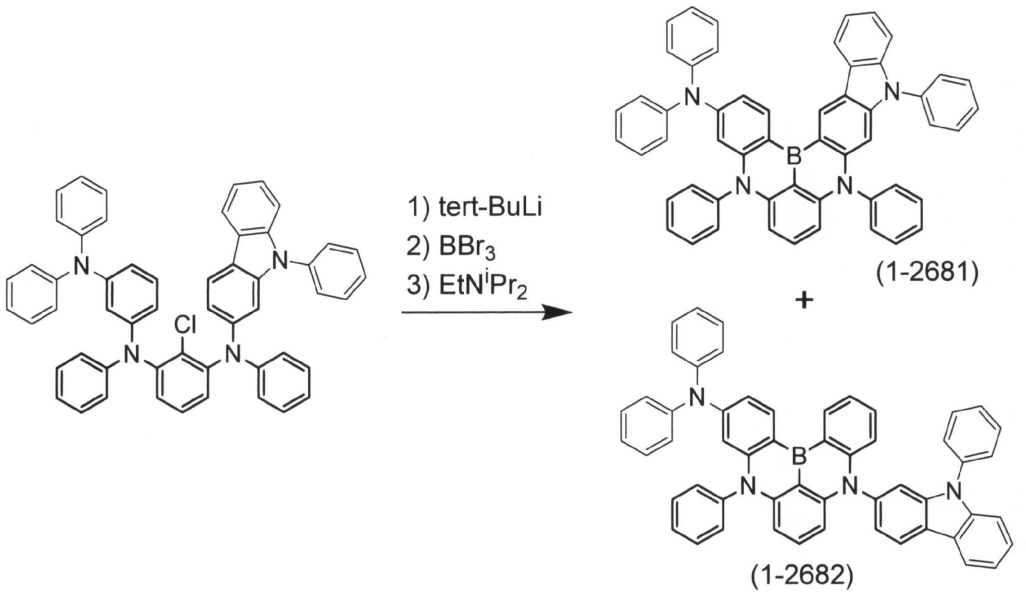
２－クロロ－Ｎ[1]－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ[1]，Ｎ[3]－ジフェニル－Ｎ[3]－（９－フェニル－９Ｈ－カルバゾール－２－イル）ベンゼン－１，３－ジアミン（１８．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１００ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．７Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（２７．２ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して３時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（４．４ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（８．１ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液および酢酸エチルを加えることで析出した沈殿を吸引ろ過にて採取した。次いで、加熱したクロロベンゼンに溶解させ、シリカゲルショートパスカラム（展開液：加熱したトルエン）で精製した。加熱したヘプタンで洗浄した後、クロロベンゼン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６８１）で表される化合物（３．０ｇ）を得た。

【０３６９】

反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液および酢酸エチルを加えることで析出した沈殿を採取した際のろ液を、活性炭カラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５（容量比））、次いでシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製した。更にヘプタン／酢酸エチル混合溶媒、次いでヘプタン／トルエン混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６８２

）で表される化合物（０．６ｇ）を得た。

【化１３５】



【０３７０】

ＮＭＲ測定により得られた化合物（１－２６８１）の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ＝９．５７（ｓ，１Ｈ）、８．９３（ｄ，１Ｈ）、８．２６（ｄ，１Ｈ）、７．６１（ｔ，２Ｈ）、７．１０－７．５０（ｍ，２５Ｈ）、７．０４（ｍ，３Ｈ）、６．５９（ｓ，１Ｈ）、６．２５（ｍ，１Ｈ）、６．１０（ｔ，２Ｈ）．

【０３７１】

ＮＭＲ測定により得られた化合物（１－２６８２）の構造を確認した。

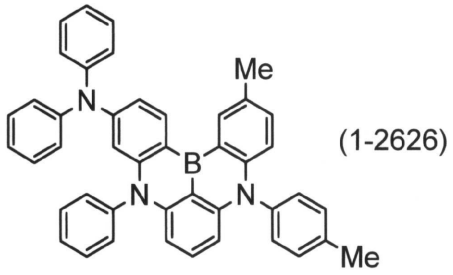
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ＝８．８６（ｄ，１Ｈ）、８．７３（ｄ，１Ｈ）、８．４３（ｄ，１Ｈ）、８．２４（ｄ，１Ｈ）、７．３１－７．５６（ｍ，１３Ｈ）、７．２９（ｄｄ，１Ｈ）、７．１２－２４（ｍ，８Ｈ）、７．１０（ｍ，４Ｈ）、７．０２（ｔ，２Ｈ）、６．９４（ｄｄ，１Ｈ）、６．７９（ｄ，１Ｈ）、６．１６（ｍ，２Ｈ）、６．０７（ｄ，１Ｈ）．

【０３７２】

合成例（１５）

化合物（１－２６２６）：１２－メチル－Ｎ，Ｎ，５－トリフェニル－９－（ｐ－トリル）－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３－アミンの合成

【化１３６】

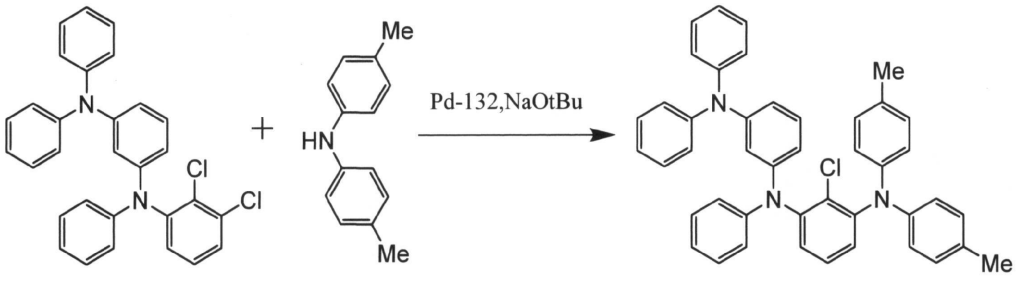


【０３７３】

窒素雰囲気下、Ｎ^1－（２，３－ジクロロフェニル）－Ｎ^1，Ｎ^3，Ｎ^3－トリフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１５．０ｇ）、ジ－ｐ－トリルアミン（６．１ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．２ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（４．５ｇ）およびキシレン（７０ｍｌ）の入っ

たフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製した。目的物を含むフラクションを減圧留去することで再沈殿させ、２－クロロ－Ｎ^{1}－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ^{1}－フェニル－Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－ジ－ｐ－トリルベンゼン－１，３－ジアミン（１５．０ｇ）を得た。

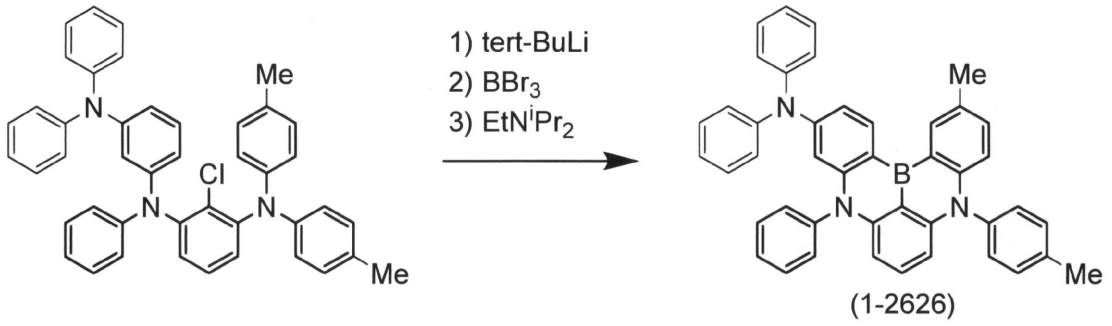
【化１３７】



【０３７４】

２－クロロ－Ｎ^{1}－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ^{1}－フェニル－Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－ジ－ｐ－トリルベンゼン－１，３－ジアミン（１５．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１００ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．６Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（２９．２ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して２時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（４．４ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（８．１ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６）で精製した。更に加熱したヘプタンで洗浄後、トルエン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６２６）で表される化合物（２．０ｇ）を得た。

【化１３８】



【０３７５】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

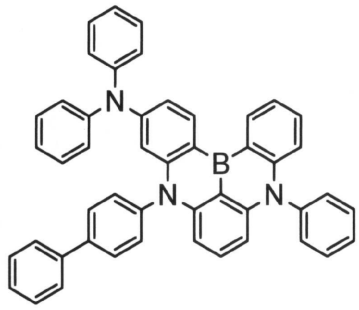
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝８．７４（ｄ，１Ｈ）、８．６４（ｍ，１Ｈ）、７．４２－７．５０（ｍ，４Ｈ）、７．３５（ｔ，１Ｈ）、７．１５－７．２５（ｍ，１０Ｈ）、７．１０（ｄ，４Ｈ）、７．０２（ｔ，２Ｈ）、７．９４（ｄｄ，１Ｈ）、６．６８（ｄ，１Ｈ）、６．２０（ｍ，１Ｈ）、６．１１（ｄ，１Ｈ）、６．０４（ｄ，１Ｈ）、２．５２（ｓ，３Ｈ）、２．４８（ｓ，３Ｈ）．

【０３７６】

合成例（１６）

化合物（１－２６８３）：５－（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－Ｎ，Ｎ，９－トリフェニル－５，９－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－３－アミンの合成

【化１３９】

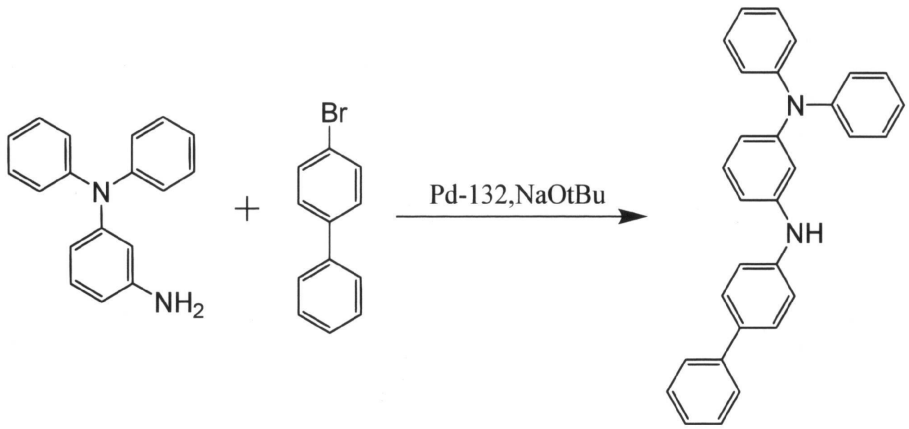


(1-2683)

【０３７７】

窒素雰囲気下、Ｎ^{1}，Ｎ^{1}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１２．０ｇ）、４－ブロモ－１，１’－ビフェニル（３０．２ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（６．６ｇ）およびキシレン（１００ｍｌ）の入ったフラスコを１００℃で２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製した。溶媒を減圧留去して得られた固体をヘプタンで洗浄し、Ｎ^{1}，（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１７．４ｇ）を得た。

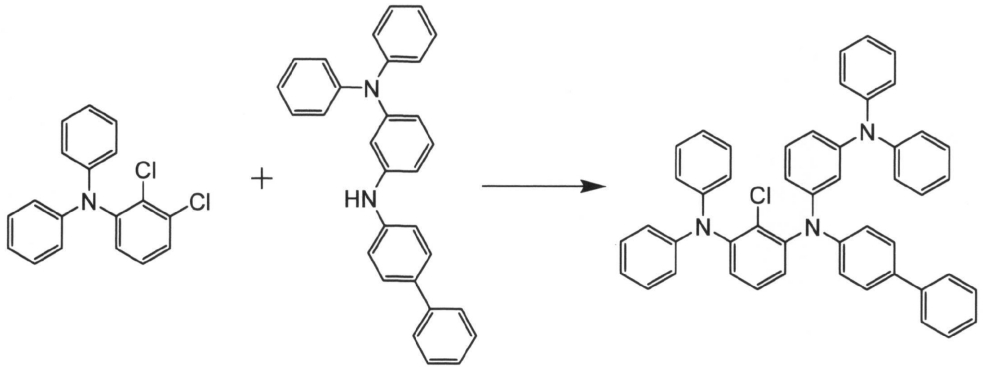
【化１４０】



【０３７８】

窒素雰囲気下、２，３－ジクロロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（１２．０ｇ）、Ｎ^{1}，（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１５．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．３ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（５．５ｇ）およびキシレン（１００ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６（容量比））で精製することで、Ｎ^{1}－（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－２－クロロ－Ｎ^{1}－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（２０．２ｇ）を得た。

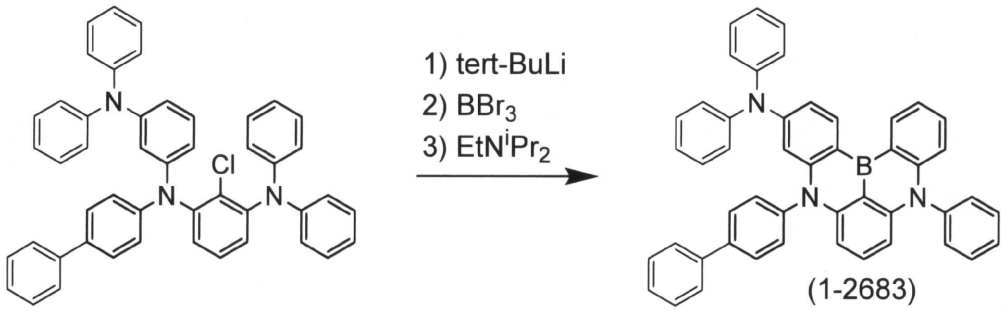
【化１４１】



【０３７９】

Ｎ^{1}－（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－２－クロロ－Ｎ^{1}－（３－（ジフェニルアミノ）フェニル）－Ｎ^{3}，Ｎ^{3}－ジフェニルベンゼン－１，３－ジアミン（１６．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１００ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．６Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（２６．１ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して２時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（４．０ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（８．１ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えることで析出した沈殿を吸引ろ過にて採取した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝４／６）で精製した。加熱したヘプタンで洗浄した後、クロロベンゼン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６８３）で表される化合物（２．７ｇ）を得た。

【化１４２】



【０３８０】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

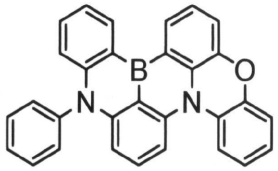
^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝８．８７（ｄ，１Ｈ）、８．７４（ｄ，１Ｈ）、７．６８（ｔ，２Ｈ）、７．６４（ｄ，２Ｈ）、７．５８（ｍ，３Ｈ）、７．５０（ｔ，２Ｈ）、７．３６－７．４４（ｍ，４Ｈ）、７．１６－７．２８（ｍ，８Ｈ）、７．１０（ｍ，４Ｈ）、６．９７（ｍ，３Ｈ）、６．７２（ｄ，１Ｈ）、６．２２（ｍ，２Ｈ）、６．１０（ｄ，１Ｈ）．

【０３８１】

合成例（１７）

化合物（１－２６９１）：１６－フェニル－１６Ｈ－８－オキサ－１２ｂ，１６－ジアザ－４ｂ－ボラジベンゾ［ａ，ｊ］ペリレンの合成

【化１４３】

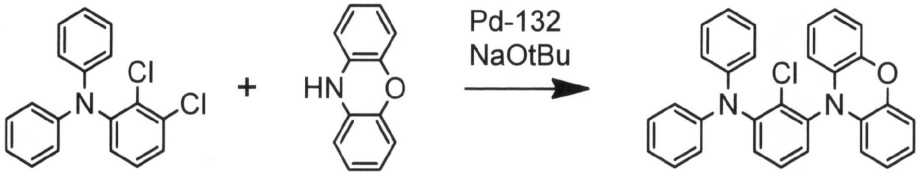


(1-2691)

【０３８２】

窒素雰囲気下、２，３－ジクロロ－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（１８．０ｇ）、１０Ｈ－フェノキサジン（１５．０ｇ）、Ｐｄ－１３２（０．４ｇ）、ＮａＯｔＢｕ（８．３ｇ）およびキシレン（１００ｍｌ）の入ったフラスコを１２０℃で１時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、水および酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン）で精製するした。目的物を含むフラクションから溶媒を減圧留去し、ヘプタンを加えることで再沈殿させ、２－クロロ－３－（１０Ｈ－フェノキサジン－１０－イル）－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（２３．０ｇ）を得た。

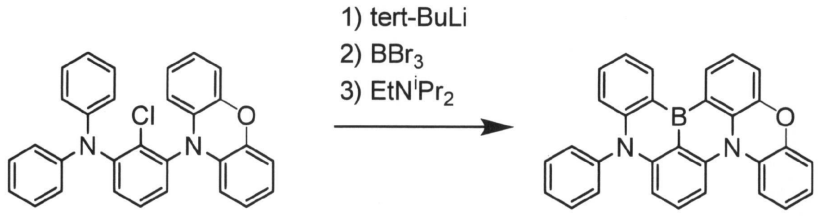
【化１４４】



【０３８３】

２－クロロ－３－（１０Ｈ－フェノキサジン－１０－イル）－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアニリン（２０．０ｇ）およびｔ－ブチルベンゼン（１５０ｍｌ）の入ったフラスコに、窒素雰囲気下、氷浴で冷却しながら、１．６Ｍのｔ－ブチルリチウムペンタン溶液（５４．０ｍｌ）を加えた。滴下終了後、６０℃まで昇温して３時間撹拌した後、ｔ－ブチルベンゼンより低沸点の成分を減圧留去した。－５０℃まで冷却して三臭化ホウ素（８．２ｍｌ）を加え、室温まで昇温して０．５時間撹拌した。その後、再び氷浴で冷却してＮ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（１５．１ｍｌ）を加えた。発熱が収まるまで室温で撹拌した後、１２０℃まで昇温して２時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、氷浴で冷やした酢酸ナトリウム水溶液、次いで酢酸エチルを加えて分液した。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝３／７）で精製し、更に活性炭クロマトグラフィー（展開液：トルエン／ヘプタン＝５／５（容量比））で精製した。クロロベンゼン／酢酸エチル混合溶媒で再沈殿させることで、式（１－２６９１）で表される化合物（２．８ｇ）を得た。

【化１４５】



(1-2691)

【０３８４】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝８．７３（ｄ，１Ｈ）、８．２０（ｄ，１Ｈ）、７．６５－７．８０（ｍ，３Ｈ）、７．５６－７．６４（ｄ，２Ｈ）、７．３

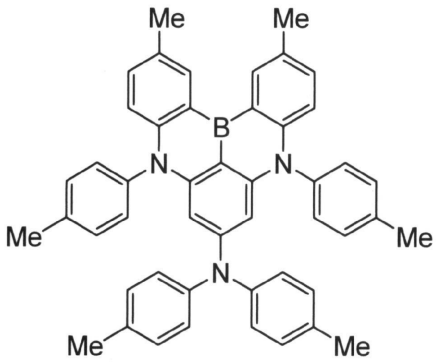
８－７．５４（ｍ，３Ｈ）、７．２０－７．３７（ｍ，３Ｈ）、７．１６（ｍ，１Ｈ）、７．１１（ｍ，１Ｈ）、７．０５（ｔ，１Ｈ）、６．９７（ｔ，１Ｈ）、６．７７（ｄ，１Ｈ）、６．２７（ｄ，１Ｈ））．

【０３８５】

合成例（１８）

化合物（１－２６６２）：２，１２－ジメチル－Ｎ，Ｎ，５，９－テトラ－ｐ－トリル－５，１３－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－７－アミンの合成

【化１４６】

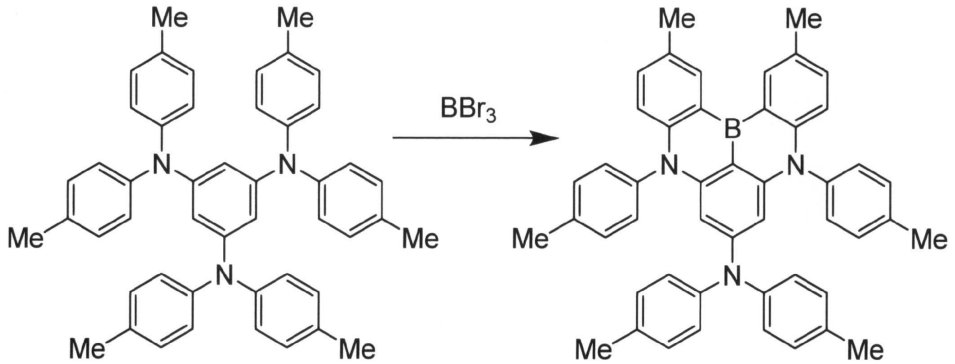


(1-2662)

【０３８６】

まず、Ｎ^{1}，Ｎ^{1}，Ｎ^{3}，Ｎ^{3}，Ｎ^{5}，Ｎ^{5}－ヘキサキス（４－メチルフェニル）－１，３，５－ベンゼントリアミン（１６．６ｇ、２５ｍｍｏｌ）およびｏ－ジクロロベンゼン（１５０ｍｌ）に窒素雰囲気下、室温で三臭化ホウ素（４．７３ｍｌ、５０ｍｍｏｌ）を加えた後、１７０℃で２０時間加熱撹拌した。その後、６０℃で減圧下、反応溶液を留去した。フロリジルショートパスカラムを用いて濾過し、溶媒を減圧留去して粗成生物を得た。ヘキサンを用いてその粗生成物を洗浄し、得られた固体に対してトルエンを用いて洗浄することで黄色固体として式（１－２６６２）で表される化合物（８．０８ｇ）を得た。

【化１４７】



(1-2662)

【０３８７】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝2.27 (s, 6H), 2.39 (s, 6H), 2.50 (s, 6H), 5.48 (brs, 2H), 6.68 (d, 2H), 6.83 (ddd, 4H), 6.89 (ddd, 4H), 7.07 (ddd, 4H), 7.17 (dd, 2H), 7.25 (ddd, 4H), 8.68 (sd, 2H).

^{13}Ｃ－ＮＭＲ（１０１ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）：δ＝20.78 (2C), 21.06 (2C), 21.11 (2C), 96.5 (2C), 116.7 (2C), 126.0 (4C), 128.2 (2C), 129.3 (4C), 129.9 (4C), 131.1 (4C), 131.3 (2C), 133.0 (2C), 134.6 (2C), 137.6 (2C), 139.8 (2C), 143.9 (2C),

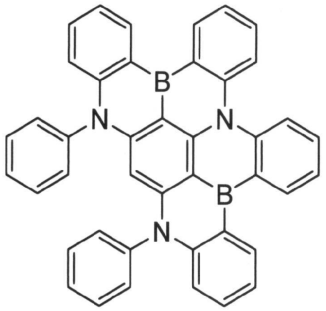
145.9 (2C), 148.0 (2C), 151.0.

【０３８８】

合成例（１９）

化合物（１－２６６５）：９，１１－ジフェニル－４ｂ，１１，１５ｂ，１９ｂ－テトラヒドロ－９Ｈ－９，１１，１９ｂ－トリアザ－４ｂ，１５ｂ－ジボラベンゾ［３，４］フェナントロ［２，１，１０，９－ｆｇｈｉ］ペンタセンの合成

【化１４８】

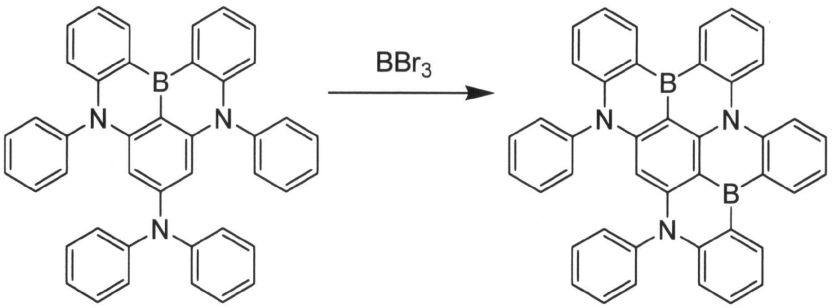


(1-2665)

【０３８９】

まず、Ｎ，Ｎ，５，９－テトラフェニル－５，１３－ジヒドロ－５，９－ジアザ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－７－アミン（０．２９４ｇ、０．５ｍｍｏｌ）およびｏ－ジクロロベンゼン（３．０ｍｌ）に、オートクレーブ内、窒素雰囲気下、室温で三臭化ホウ素（０．１４２ｍｌ、１．５ｍｍｏｌ）を加えた後、２６０℃で４８時間加熱撹拌した。その後、Ｎ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（０．７７５ｍｌ、４．５ｍｍｏｌ）を加え、フロリジルショートパスカラムを用いて濾過し、溶媒を減圧留去して粗成生物を得た。酢酸エチルを用いて粗成生物を洗浄することで、黄色固体として式（１－２６６５）で表される化合物（０．１１８ｇ）を得た。

【化１４９】



(1-2665)

【０３９０】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$）：δ = 5.24 (s, 1H), 6.81 (d, 2H), 7.12 - 7.18 (m, 6H), 7.34 (td, 2H), 7.41 - 7.49 (m, 8H), 7.45 (ddd, 2H), 8.31 (dd, 2H), 8.81 (dd, 2H), 8.91 (dd, 2H).

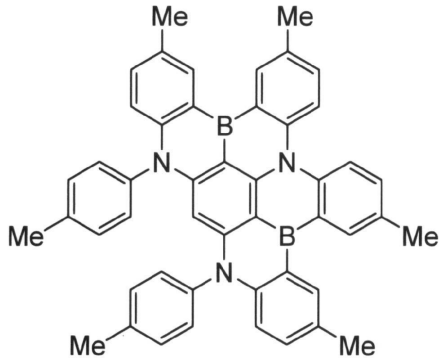
HRMS (DART) m/z $[M+H]^+$ Calcd for $C_{42}H_{28}B_2N_3$596.2483, observed 596.2499.

【０３９１】

合成例（２０）

化合物（１－２６７８）：３，６，１４，１７－テトラメチル－９，１１－ジ－ｐ－トリル－４ｂ，１１，１５ｂ，１９ｂ－テトラヒドロ－９Ｈ－９，１１，１９ｂ－トリアザ－４ｂ，１５ｂ－ジボラベンゾ［３，４］フェナントロ［２，１，１０，９－ｆｇｈｉ］ペンタセンの合成

【化１５０】

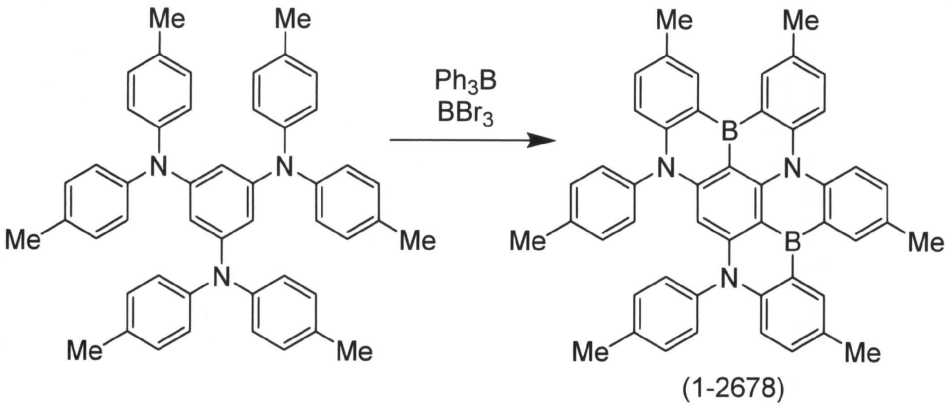


(1-2678)

【０３９２】

まず、Ｎ[1]，Ｎ[1]，Ｎ[3]，Ｎ[3]，Ｎ[5]，Ｎ[5]－ヘキサキス（４－メチルフェニル）－１，３，５－ベンゼントリアミン（０．３２２ｇ、０．５ｍｍｏｌ）およびｏ－ジクロロベンゼン（３．０ｍｌ）に、オートクレーブ内、窒素雰囲気下、室温でトリフェニルボラン（０．７３０ｇ、３．０ｍｍｏｌ）、三臭化ホウ素（０．２８４ｍｌ、３．０ｍｍｏｌ）を加えた後、２６０℃で２０時間加熱撹拌した。その後、Ｎ，Ｎ－ジイソプロピルエチルアミン（１．５５ｍｌ、９．１ｍｍｏｌ）を加え、フロリジルショートパスカラムを用いて濾過し、溶媒を減圧留去して粗生成物を得た。ヘキサンを用いてその粗生成物を洗浄し、得られた固体に対して酢酸エチルを用いて洗浄することで、黄色固体として式（１－２６７８）で表される化合物（０．１８８ｇ）を得た。

【化１５１】



(1-2678)

【０３９３】

ＮＭＲ測定により得られた化合物の構造を確認した。

[1]Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ[3]）：δ = 2.45 (s, 6H), 2.65 (s, 6H), 2.58 (s, 6H), 5.24 (brs, 1H), 6.74 (d, 2H), 6.97 (d, 4H), 7.15 - 7.27 (m, 6H), 7.34 (dd, 2H), 8.18 (d, 2H), 8.58 (d, 2H), 8.68 (d, 2H).

HRMS (DART) m/z $[M+H]^+$ Calcd for $C_{48}H_{40}B_2N_3$680.3424, observed 680.3404.

【０３９４】

以下、本発明をさらに詳細に説明するために、本発明の化合物を用いた有機ＥＬ素子の実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【０３９５】

実施例１～１４および比較例１～６に係る有機ＥＬ素子を作製し、それぞれ１０００ｃｄ／ｍ[2]発光時の特性である電圧（Ｖ）、発光波長（ｎｍ）、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）、外部量子効率（％）を測定した。

【０３９６】

発光素子の量子効率には、内部量子効率と外部量子効率とがあるが、発光素子の発光層

に電子（または正孔）として注入される外部エネルギーが純粋に光子に変換される割合を示したものが内部量子効率である。一方、この光子が発光素子の外部にまで放出された量に基づいて算出されるものが外部量子効率であり、発光層において発生した光子は、その一部が発光素子の内部で吸収されたりまたは反射され続けたりして、発光素子の外部に放出されないため、外部量子効率は内部量子効率よりも低くなる。

【０３９７】

外部量子効率の測定方法は次の通りである。アドバンテスト社製電圧／電流発生器Ｒ６１４４を用いて、素子の輝度が１０００ｃｄ／ｍ^{2}になる電圧を印加して素子を発光させた。ＴＯＰＣＯＮ社製分光放射輝度計ＳＲ－３ＡＲを用いて、発光面に対して垂直方向から可視光領域の分光放射輝度を測定した。発光面が完全拡散面であると仮定して、測定した各波長成分の分光放射輝度の値を波長エネルギーで割ってπを掛けた数値が各波長におけるフォトン数である。次いで、観測した全波長領域でフォトン数を積算し、素子から放出された全フォトン数とした。印加電流値を素電荷で割った数値を素子へ注入したキャリア数として、素子から放出された全フォトン数を素子へ注入したキャリア数で割った数値が外部量子効率である。

【０３９８】

作製した実施例１～１４および比較例１～６に係る有機ＥＬ素子における各層の材料構成、およびＥＬ特性データを下記表１に示す。

【表１】

	正孔注入層１(40nm)	正孔注入層２(5nm)	正孔輸送層(25nm)	発光層(20nm) ホスト	発光層(20nm) ドーパント化合物番号	電子輸送層１(5nm)	電子輸送層２(25nm)	陰極(1nm/100nm)	波長(nm)	色度(x,y)	電圧(V)	外部量子効率
実施例												
1	HI	HAT-CN	HT	3-1	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	467	(0.123,0.109)	3.9	6.6
2	HI	HAT-CN	HT	3-2	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	466	(0.124,0.105)	3.8	6.3
3	HI	HAT-CN	HT	3-3	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	466	(0.125,0.103)	3.9	6.2
4	HI	HAT-CN	HT	3-4	1-2679	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	464	(0.127,0.092)	3.9	7.0
5	HI	HAT-CN	HT	3-4	1-422	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	481	(0.091,0.212)	3.7	6.0
6	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	465	(0.127,0.095)	3.9	5.9
7	HI	HAT-CN	HT	3-6	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	467	(0.122,0.117)	3.6	5.9
8	HI	HAT-CN	HT	3-7	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	467	(0.124,0.109)	3.8	5.9
9	HI	HAT-CN	HT	3-8	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	467	(0.123,0.112)	3.9	6.0
10	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-2620	ET-5	ET-3	LiF/Al	464	(0.128,0.089)	3.7	7.2
11	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-1159	ET-5	ET-3	LiF/Al	456	(0.140,0.057)	3.8	6.9
12	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-2676	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	468	(0.124,0.111)	3.8	6.8
13	HI	HAT-CN	HT	3-1	1-422	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	480	(0.091,0.205)	3.8	6.8
14	HI	HAT-CN	HT	3-4	1-422	ET-4	ET-3	LiF/Al	481	(0.090,0.212)	3.6	6.9
比較例												
1	HI	HAT-CN	HT	H-101	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	466	(0.125,0.103)	3.8	5.5
2	HI	HAT-CN	HT	H-102	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	465	(0.127,0.099)	3.8	5.2
3	HI	HAT-CN	HT	H-103	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	465	(0.126,0.101)	3.9	4.9
4	HI	HAT-CN	HT	H-104	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	465	(0.127,0.095)	3.9	5.0
5	HI	HAT-CN	HT	H-105	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	466	(0.125,0.106)	4.1	5.4
6	HI	HAT-CN	HT	H-106	1-1152	ET-1	ET-2 + Liq	Liq/MgAg	466	(0.125,0.110)	3.8	5.1

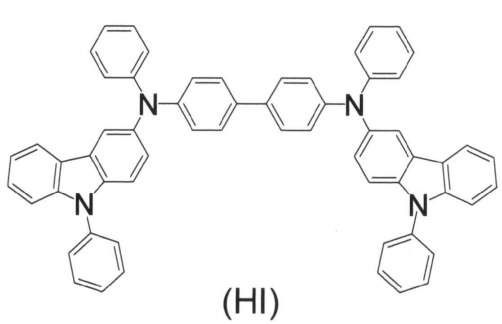
【０３９９】

表１において、「ＨＩ」（正孔注入層材料）はN^4，$N^{4'}$－ジフェニル－N^4，$N^{4'}$－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」（正孔注入層材料）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」（正孔輸送

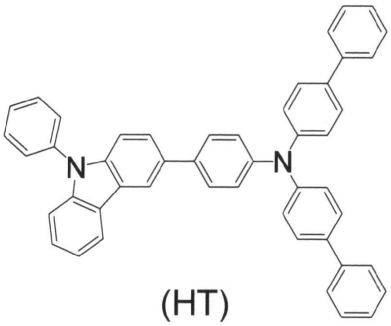
層材料）はＮ－（［１，１’－ビフェニル］－４－イル）－Ｎ－（４－（９－フェニル－９Ｈ－カルバゾール－３－イル）フェニル）－［１，１’－ビフェニル］－４－アミンであり、「ＥＴ－１」（電子輸送層材料）は９－（７－（ジメシチルボリル）－９，９－ジメチル－９Ｈ－フルオレン－２－イル）－３，６－ジメチル－９Ｈ－カルバゾールであり、「ＥＴ－２」（電子輸送層材料）は５，５’－（（２－フェニルアントラセン－９，１０－ジイル）ビス（３，１－フェニレン））ビス（３－メチルピリジン）であり、「ＥＴ－３」（電子輸送層材料）は５，５”－（２－フェニルアントラセン－９，１０－ジイル）ジ－２，２’－ビピリジンであり、「ＥＴ－４」（電子輸送層材料）は３－（３－（６－（９，９－ジメチル－９Ｈ－フルオレン－２－イル）ナフタレン－２イル）フェニル）フルオランテンであり、「ＥＴ－５」（電子輸送層材料）は９－（５，９－ジオキサ－１３ｂ－ボラナフト［３，２，１－ｄｅ］アントラセン－７－イル）－９Ｈ－カルバゾールであり、である。「Ｌｉｑ」と共に以下に化学構造を示す。

【０４００】

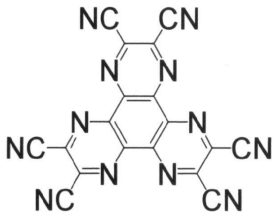
【化１５２】



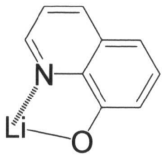
(HI)



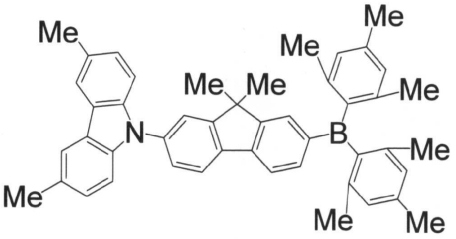
(HT)



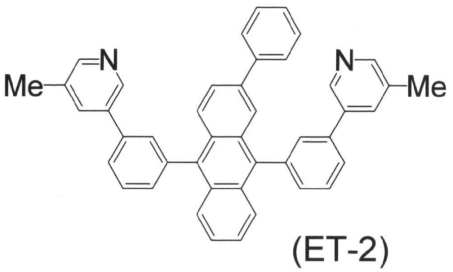
(HAT-CN)



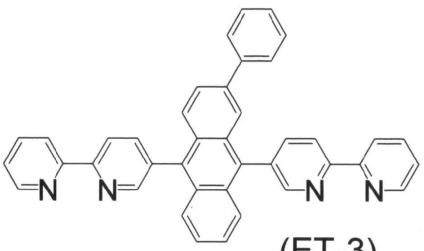
(Liq)



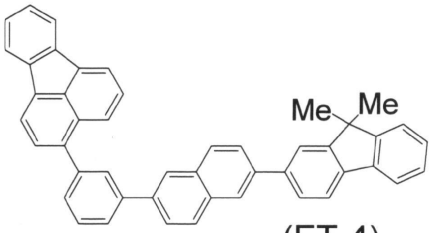
(ET-1)



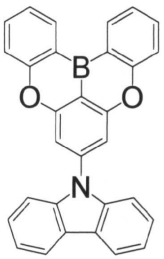
(ET-2)



(ET-3)



(ET-4)



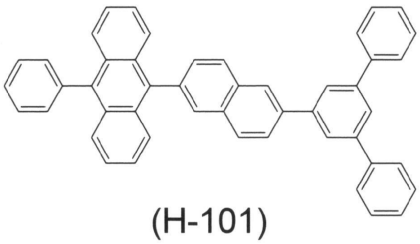
(ET-5)

【０４０１】

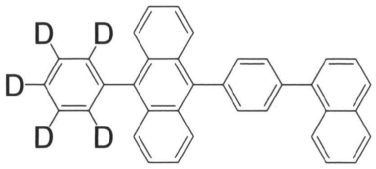
また、表１において、Ｈ－１０１～Ｈ１０６は比較例で用いたホスト材料であり、それぞれ以下の化学構造を有する。

【０４０２】

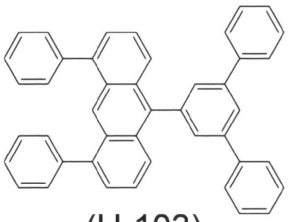
【化１５３】



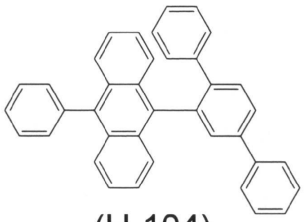
(H-101)



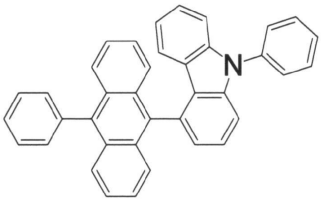
(H-102)



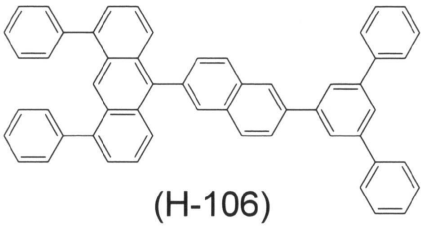
(H-103)



(H-104)



(H-105)



(H-106)

【０４０３】

＜実施例１＞

＜化合物（３－１）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

スパッタリングにより１８０ｎｍの厚さに製膜したＩＴＯを１５０ｎｍまで研磨した、２６ｍｍ×２８ｍｍ×０．７ｍｍ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（正孔注入層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＨＡＴ－ＣＮ（正孔注入層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＨＴ（正孔輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、化合物（３－１）（ホスト材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、化合物（１－１１５２）（ドーパント材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＥＴ－１（電子輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＥＴ－２（電子輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、Ｌｉｑを入れた窒化アルミニウム製蒸着用ボート、マグネシウムを入れた窒化アルミニウム製ボートおよび銀を入れた窒化アルミニウム製蒸着用ボートを装着した。

【０４０４】

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が入った蒸着用ボートを加熱して膜厚４０ｎｍになるように蒸着して正孔注入層１を形成した。次に、ＨＡＴ－ＣＮが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着して正孔注入層２を形成した。次に、ＨＴが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着して正孔輸送層を形成した。次に、化合物（３－１）が入った蒸着用ボートと化合物（１－１１５２）が入った蒸着用ボートを同時に加熱して膜厚２０ｎｍになるように蒸着して発光層を形成した。化合物（３－１）と化合物

（１－１１５２）の重量比がおよそ９５対５になるように蒸着速度を調節した。次に、ＥＴ－１の入った蒸着用ボートを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着して電子輸送層１を形成した。次に、ＥＴ－２が入った蒸着用ボートとＬｉｑが入った蒸着用ボートを同時に加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着して電子輸送層２を形成した。ＥＴ－２とＬｉｑの重量比がおよそ５０対５０になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は０．０１～１ｎｍ／秒であった。

【０４０５】

その後、Ｌｉｑが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚１ｎｍになるように０．０１～０．１ｎｍ／秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムが入った蒸着用ボートと銀が入った蒸着用ボートを同時に加熱して膜厚１００ｎｍ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、マグネシウムと銀の原子数比が１０対１となるように０．１ｎｍ～１０ｎｍ／秒の間で蒸着速度を調節した。

【０４０６】

ＩＴＯ電極を陽極、マグネシウム／銀電極を陰極として直流電圧を印加し、１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６７ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２３，０．１０９）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は６．６％であった。

【０４０７】

＜実施例２＞

＜化合物（３－２）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－２）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６６ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２４，０．１０５）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は６．３％であった。

【０４０８】

＜実施例３＞

＜化合物（３－３）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－３）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６６ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２５，０．１０３）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は６．２％であった。

【０４０９】

＜実施例４＞

＜化合物（３－４）をホスト、化合物（１－２６７９）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－４）に替え、ドーパント材料を化合物（１－２６７９）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６４ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２７，０．０９２）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は７．０％であった。

【０４１０】

＜実施例５＞

＜化合物（３－４）をホスト、化合物（１－４２２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－４）に替え、ドーパント材料を化合物（１－４２２）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４８１ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．０９１，０．２１２）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．７Ｖ、外部量子効率は６．０％であった。

【０４１１】

＜実施例６＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－５）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６５ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２７，０．０９５）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は５．９％であった。

【０４１２】

＜実施例７＞

＜化合物（３－６）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－６）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６７ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２２，０．１１７）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．６Ｖ、外部量子効率は５．９％であった。

【０４１３】

＜実施例８＞

＜化合物（３－７）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－７）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６７ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２４，０．１０９）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は５．９％であった。

【０４１４】

＜実施例９＞

＜化合物（３－８）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－８）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６７ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２３，０．１１２）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は６．０％であった。

【０４１５】

＜実施例１０＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－２６２０）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－５）に替え、ドーパント材料を化合物（１－２６２０）に替え、２層の電子輸送材料をそれぞれＥＴ－５とＥＴ－３に替え、陰極材料をＬｉＦとアルミニウムに替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６４ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２８，０．０８９）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．７Ｖ、外部量子効率は７．２％であった。

【０４１６】

＜実施例１１＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－１１５９）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－５）に替え、ドーパント材料を化合物（１－１１５９）に替え、２層の電子輸送材料をそれぞれＥＴ－５とＥＴ－３に替え、陰極材料をＬｉＦとアルミニウムに替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４５６ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１４０，０．０５７）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は６．９％であった。

【０４１７】

＜実施例１２＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－２６７６）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（３－５）に替え、ドーパント材料を化合物（１－２６７６）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６８ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２４，０．１１１）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は６．８％であっ

た。
【０４１８】
＜実施例１３＞
＜化合物（３－１）をホスト、化合物（１－４２２）をドーパントとした素子＞
ドーパント材料を化合物（１－４２２）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４８０ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．０９１，０．２０５）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は６．８％であった。
【０４１９】
＜実施例１４＞
＜化合物（３－４）をホスト、化合物（１－４２２）をドーパントとした素子＞
ホスト材料を化合物（３－４）に替え、ドーパント材料を化合物（１－４２２）に替え、２層の電子輸送材料をそれぞれＥＴ－４とＥＴ－３に替え、陰極材料をＬｉＦとアルミニウムに替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４８１ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．０９０，０．２１２）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．６Ｖ、外部量子効率は６．９％であった。
【０４２０】
＜比較例１＞
＜化合物（Ｈ－１０１）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞
ホスト材料を化合物（Ｈ－１０１）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６６ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２５，０．１０３）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は５．５％であった。
【０４２１】
＜比較例２＞
＜化合物（Ｈ－１０２）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞
ホスト材料を化合物（Ｈ－１０２）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６５ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２７，０．０９９）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は５．２％であった。
【０４２２】
＜比較例３＞
＜化合物（Ｈ－１０３）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞
ホスト材料を化合物（Ｈ－１０３）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６５ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２６，０．１０１）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は４．９％であった。
【０４２３】
＜比較例４＞
＜化合物（Ｈ－１０４）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞
ホスト材料を化合物（Ｈ－１０４）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６５ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２７，０．０９５）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．９Ｖ、外部量子効率は５．０％であった。
【０４２４】
＜比較例５＞
＜化合物（Ｈ－１０５）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞
ホスト材料を化合物（Ｈ－１０５）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６６ｎｍ、ＣＩＥ

色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２５，０．１０６）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は４．１Ｖ、外部量子効率は５．４％であった。

【０４２５】

＜比較例６＞

＜化合物（Ｈ－１０６）をホスト、化合物（１－１１５２）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（Ｈ－１０６）に替えた以外は実施例１に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６６ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１２５，０．１１０）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．８Ｖ、外部量子効率は５．１％であった。

【０４２６】

更に、実施例１５に係る有機ＥＬ素子を作製し、１０００ｃｄ／ｍ^{2}の輝度が得られる電流密度で駆動した際の外部量子効率を測定した。作製した有機ＥＬ素子における、各層の材料構成、およびＥＬ特性データを下記表２に示す。

【０４２７】

【表２Ａ】

	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層 (25nm)	発光層(20nm)		電子輸送層1 (10nm)	電子輸送層2 (20nm)	陰極 (1nm/100nm)
				ホスト	ドーパント			
実施例15	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-1159	ET-5	ET-3	LiF/Al

【表２Ｂ】

	波長 (nm)	色度 (x,y)	外部量子効率
実施例15	456	(0.140,0.057)	6.92

【０４２８】

＜実施例１５＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－１１５９）をドーパントとした素子＞

スパッタリングにより１８０ｎｍの厚さに製膜したＩＴＯを１５０ｎｍまで研磨した、２６ｍｍ×２８ｍｍ×０．７ｍｍのガラス基板（（株）オプトサイエンス）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（（株）長州産業）の基板ホルダーに固定し、ＨＩを入れたタンタル製蒸着ルツボ、ＨＡＴ－ＣＮを入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＨＴを入れたタンタル製蒸着用ルツボ、化合物（３－５）（ホスト材料）を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、化合物（１－１１５９）（ドーパント材料）を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＥＴ－５を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＥＴ－３を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＬｉＦを入れたタンタル製蒸着用ルツボおよびアルミニウムを入れた窒化アルミニウム製蒸着用ルツボを装着した。

【０４２９】

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２．０×１０$^{-4}$Ｐａまで減圧し、まず、ＨＩが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚４０ｎｍになるように蒸着し、次いで、ＨＡＴ－ＣＮが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着し、更にＨＴが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着することで３層からなる正孔注入層および正孔輸送層を形成した。次に、化合物（３－５）が入った蒸着用ルツボと化合物（１－１１５９）が入った蒸着用ルツボを同時に加熱して膜厚２０ｎｍになるように蒸着して発光層を形成した。化合物（３－５）と化合物（１－１１５９）の重量比がおよそ９５対５になるように蒸着速度を調節した。次に、ＥＴ－５が入

った蒸着用ルツボを加熱して膜厚１０ｎｍになるように蒸着し、次いで、ＥＴ－３が入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚２０ｎｍになるように蒸着することで２層からなる電子輸送層を形成した。各層の蒸着速度は０．０１～１ｎｍ／秒であった。

【０４３０】

その後、ＬｉＦが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚１ｎｍになるように０．０１～０．１ｎｍ／秒の蒸着速度で蒸着した。次いで、アルミニウムが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚１００ｎｍになるように蒸着して陰極を形成した。このとき、蒸着速度が０．１ｎｍ～２ｎｍ／秒になるように蒸着して陰極を形成し有機ＥＬ素子を得た。

【０４３１】

ＩＴＯ電極を陽極、ＬｉＦ／アルミニウム電極を陰極として、直流電圧を印加すると、約４５６ｎｍにピークトップを有する青色発光が得られた。その時のＣＩＥ色度は（ｘ，ｙ）＝（０．１４０，０．０５７）であり、輝度１０００ｃｄ／ｍ^{2}における外部量子効率は６．９２％であった。

【０４３２】

更に、実施例１６～１８および比較例７に係る有機ＥＬ素子を作製し、１０００ｃｄ／ｍ^{2}の輝度が得られる電流密度で駆動した際の外部量子効率を測定した。作製した有機ＥＬ素子における、各層の材料構成、およびＥＬ特性データを下記表３に示す。

【０４３３】

【表３Ａ】

	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層 (25nm)	発光層(20nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
				ホスト	ドーパント			
実施例16	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-2680	ET-1	ET-2	Liq/MgAg
実施例17	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-2679	ET-1	ET-2	Liq/MgAg
実施例18	HI	HAT-CN	HT	3-5	1-2676	ET-1	ET-2	Liq/MgAg
比較例7	HI	HAT-CN	HT	3-5	比較化合物1	ET-1	ET-2	Liq/MgAg

【表３Ｂ】

	波長 (nm)	色度 (x,y)	外部量子効率
実施例16	455	(0.142,0.051)	6.14
実施例17	463	(0.129,0.084)	6.42
実施例18	459	(0.124,0.111)	6.82
比較例7	471	(0.145,0.170)	3.67

【０４３４】

＜実施例１６＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－２６８０）をドーパントとした素子＞

スパッタリングにより１８０ｎｍの厚さに製膜したＩＴＯを１５０ｎｍまで研磨した、２６ｍｍ×２８ｍｍ×０．７ｍｍのガラス基板（（株）オプトサイエンス）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（（株）長州産業）の基板ホルダーに固定し、ＨＩを入れたタンタル製蒸着ルツボ、ＨＡＴ－ＣＮを入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＨＴを入れたタンタル製蒸着用ルツボ、化合物（３－５）（ホスト材料）を入れたタン

タル製蒸着用ルツボ、化合物（１－２６８０）（ドーパント材料）を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＥＴ－１を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、ＥＴ－２を入れたタンタル製蒸着用ルツボ、Ｌｉｑを入れた窒化アルミニウム製蒸着用ルツボ、マグネシウムを入れた窒化アルミニウム製ルツボおよび銀を入れた窒化アルミニウム製蒸着用ルツボを装着した。

【０４３５】

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２．０×１０$^{-4}$Ｐａまで減圧し、まず、ＨＩが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚４０ｎｍになるように蒸着し、次いで、ＨＡＴ－ＣＮが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着し、更にＨＴが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着することで３層からなる正孔注入層および正孔輸送層を形成した。次に、化合物（３－５）が入った蒸着用ルツボと化合物（１－２６８０）が入った蒸着用ルツボを同時に加熱して膜厚２０ｎｍになるように蒸着して発光層を形成した。化合物（３－５）と化合物（１－２６８０）の重量比がおよそ９５対５になるように蒸着速度を調節した。次に、ＥＴ－１が入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着し、次いで、ＥＴ－２が入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着することで２層からなる電子輸送層を形成した。各層の蒸着速度は０．０１～１ｎｍ／秒であった。

【０４３６】

その後、Ｌｉｑが入った蒸着用ルツボを加熱して膜厚１ｎｍになるように０．０１～０．１ｎｍ／秒の蒸着速度で蒸着した。次いで、マグネシウムが入ったボートと銀が入ったボートを同時に加熱して、膜厚１００ｎｍ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、マグネシウムと銀の原子数比が１０対１となるように０．１ｎｍ～１０ｎｍ／秒の間で蒸着速度を調節した。

【０４３７】

ＩＴＯ電極を陽極、マグネシウム／銀電極を陰極として、直流電圧を印加すると、約４５５ｎｍにピークトップを有する青色発光が得られた。その時のＣＩＥ色度は（ｘ，ｙ）＝（０．１４２，０．０５１）であり、輝度１０００ｃｄ／ｍ^{2}における外部量子効率は６．１４％であった。

【０４３８】

＜実施例１７＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－２６７９）をドーパントとした素子＞

発光層のドーパント材料を化合物（１－２６７９）に替えた以外は実施例１６に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。両電極に直流電圧を印加すると、約４６３ｎｍにピークトップを有する青色発光が得られた。その時のＣＩＥ色度は（ｘ，ｙ）＝（０．１２９，０．０８４）であり、輝度１０００ｃｄ／ｍ^{2}における外部量子効率は６．４２％であった。

【０４３９】

＜実施例１８＞

＜化合物（３－５）をホスト、化合物（１－２６７６）をドーパントとした素子＞

発光層のドーパント材料を化合物（１－２６７６）に替えた以外は実施例１６に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。両電極に直流電圧を印加すると、約４５９ｎｍにピークトップを有する青色発光が得られた。その時のＣＩＥ色度は（ｘ，ｙ）＝（０．１２４，０．１１１）であり、輝度１０００ｃｄ／ｍ^{2}における外部量子効率は６．８２％であった。

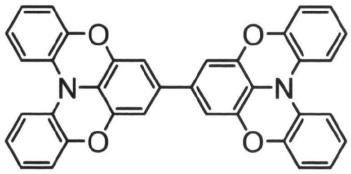
【０４４０】

＜比較例７＞

＜化合物（３－５）をホスト、比較化合物１をドーパントとした素子＞

比較化合物１は、国際公開第２０１２／１１８１６４号公報の６３頁に化合物１として開示されている。発光層のドーパント材料を（比較化合物１）に替えた以外は実施例１６に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。両電極に直流電圧を印加すると、約４７１ｎｍにピークトップを有する青色発光が得られた。その時のＣＩＥ色度は（ｘ，ｙ）＝（０．１４５，０．１７０）であり、輝度１０００ｃｄ／ｍ^{2}における外部量子効率は３．６７％であった。

【化１５４】



（比較化合物１）

【０４４１】

更に、実施例１９および比較例８に係る有機ＥＬ素子を作製し、１０００ｃｄ／ｍ^{2}の輝度が得られる電流密度で駆動した際の外部量子効率を測定した。作製した有機ＥＬ素子における、各層の材料構成、およびＥＬ特性データを下記表４に示す。

【０４４２】

【表４Ａ】

	正孔注入層1（40nm）	正孔注入層2（5nm）	正孔輸送層1（35nm）	正孔輸送層2（10nm）	発光層(25nm)		電子輸送層1（5nm）	電子輸送層2（25nm）	陰極（1nm/100nm）
					ホスト	ドーパント			
実施例19	HI	HAT-CN	HT	HT-2	3-48-O	1-2619	ET-6	ET-7 +Liq	Liq /MgAg
比較例8	HI	HAT-CN	HT	HT-2	H-107	1-2619	ET-6	ET-7 +Liq	Liq /MgAg

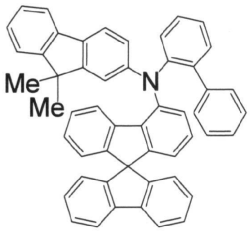
【表４Ｂ】

	波長（nm）	色度（x,y）	外部量子効率
実施例19	462	(0.131,0.088)	8.08
比較例8	461	(0.132,0.082)	7.66

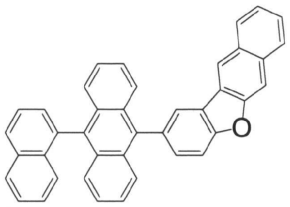
【０４４３】

表４における「ＨＴ－２」（正孔輸送層材料）、式（３－４８－Ｏ）の化合物（ホスト材料）、「Ｈ－１０７」（ホスト材料）、式（１－２６１９）の化合物（ドーパント材料）、「ＥＴ－６」（電子輸送層材料）、「ＥＴ－７」（電子輸送層材料）、の化学構造を以下に示す。

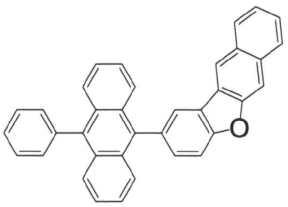
【化１５５】



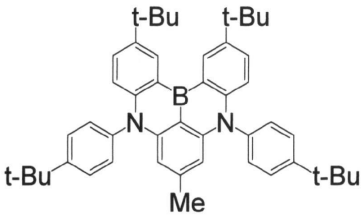
(HT-2)



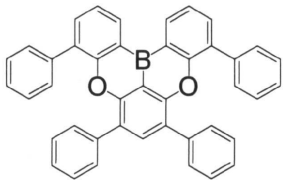
(3-48-O)



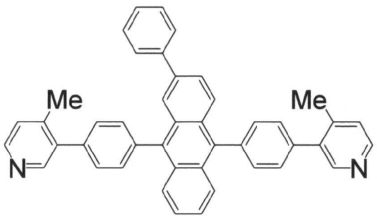
(H-107)



(1-2619)



(ET-6)



(ET-7)

【０４４４】

＜実施例１９＞

＜化合物（３－４８－Ｏ）をホスト、化合物（１－２６１９）をドーパントとした素子＞

スパッタリングにより１２０ｎｍの厚さに製膜したＩＴＯで、２６ｍｍ×２８ｍｍ×０．７ｍｍのガラス基板（（株）厚木ミクロ製）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（長州産業（株）製）の基板ホルダーに固定し、ＨＩ（正孔注入層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＨＡＴ－ＣＮ（正孔注入層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＨＴ（正孔輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＨＴ－２（正孔輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、化合物（３－４８－Ｏ）（ホスト材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、化合物（１－２６１９）（ドーパント材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＥＴ－６（電子輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、ＥＴ－７（電子輸送層材料）を入れたモリブデン製蒸着用ボート、Ｌｉｑを入れたモリブデン製蒸着用ボート、マグネシウムを入れたＳｉＣ製るつぼ、および銀を入れたＳｉＣ製るつぼを装着した。

【０４４５】

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1×10^{-4}Ｐａまで減圧し、まず、ＨＩが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚４０ｎｍになるように蒸着して正孔注入層１を形成した。次に、ＨＡＴ－ＣＮが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着して正孔注入層２を形成した。次に、ＨＴが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚３５ｎｍになるように蒸着して正孔輸送層１を形成した。次に、ＨＴ－２が入った蒸着用ボートを加熱して膜厚１０ｎｍになるように蒸着して正孔輸送層２を形成した。次に、化合物（３－４８－Ｏ）が入った蒸着用ボートと化合物（１－２６１９）が入った蒸着用ボートを同時に加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着して発光層を形成した。化合物（３－４８－Ｏ）と化合物（１－２６１９）の重量比がおよそ９８対２になるように蒸着速度を調節した。次に、ＥＴ－６の入った蒸着用ボートを加熱して膜厚５ｎｍになるように蒸着して電子輸送層１を形成した。次に、ＥＴ－７が入った蒸着用ボートとＬｉｑが入った蒸着用ボートを同時に加熱して膜厚２５ｎｍになるように蒸着して電子輸送層２を形成した。ＥＴ－７とＬｉｑの重量比がおよそ５０対５０になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は０．０１～１ｎｍ／秒であった。

【０４４６】

その後、Ｌｉｑが入った蒸着用ボートを加熱して膜厚１ｎｍになるように０．０１～０．１ｎｍ／秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムが入ったるつぼと銀が入ったる

つぼを同時に加熱して膜厚１００ｎｍ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、マグネシウムと銀の原子数比が１０対１となるように０．１ｎｍ～１０ｎｍ／秒の間で蒸着速度を調節した。

【０４４７】

ＩＴＯ電極を陽極、マグネシウム／銀電極を陰極として直流電圧を印加し、１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６２ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１３２，０．０８８）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．６Ｖ、外部量子効率は８．０８％であった。

【０４４８】

＜比較例８＞

＜化合物（Ｈ－１０７）をホスト、化合物（１－２６１９）をドーパントとした素子＞

ホスト材料を化合物（Ｈ－１０７）に替えた以外は実施例１９に準じた方法で有機ＥＬ素子を得た。１０００ｃｄ／ｍ^{2}発光時の特性を測定したところ、波長４６１ｎｍ、ＣＩＥ色度（ｘ，ｙ）＝（０．１３２，０．０８２）の青色発光が得られた。また、駆動電圧は３．５Ｖ、外部量子効率は７．６６％であった。

【産業上の利用可能性】

【０４４９】

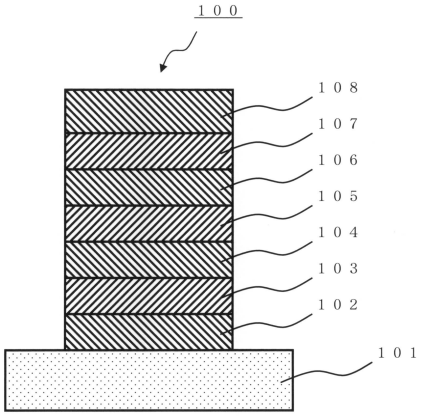
本発明の好ましい態様によれば、新規な多環芳香族化合物と、それと組み合わせて最適な発光特性が得られるアントラセン系化合物とを提供することができ、これらを組み合わせてなる発光層用材料を用いて有機ＥＬ素子を作製することで、量子効率が優れた有機ＥＬ素子を提供することができる。

【符号の説明】

【０４５０】

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

【図１】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.　　FI
　　G09F　9/30　365

特許法第３０条第２項適用　平成２７年３月１１日　日本大学　理工学部　船橋キャンパスにおいて開催された公益法人　日本化学会　第９５春季年会で発表：公開者　：畠山　琢次、中塚　宗一郎、平井　大貴　公開された発明の内容：ヘテロ元素を縮環部に有するジナフトペンタセン類縁体の合成と物性

(72)発明者　小池　俊弘
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　藤田　幸宏
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　岩井　好子

(56)参考文献　国際公開第２０１５／１０２１１８（WO，Ａ１）
国際公開第２０１６／１５２４１８（WO，Ａ１）
特開２０１７－１２６６０６（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｈ０１Ｌ　５１／５０
Ｃ０９Ｋ　１１／０６
Ｇ０９Ｆ　９／３０
Ｈ０１Ｌ　２７／３２
ＣＡｐｌｕｓ／ＲＥＧＩＳＴＲＹ（ＳＴＮ）