

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年12月15日(15.12.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/260119 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 495/14 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
C07D 519/00 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/023247

(22) 国際出願日: 2022年6月9日(09.06.2022)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

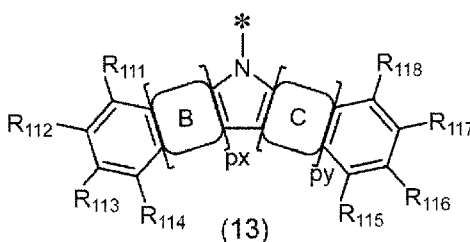
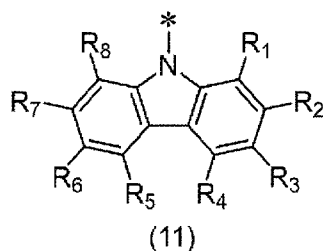
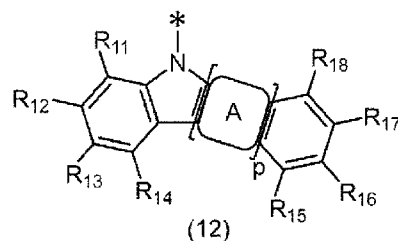
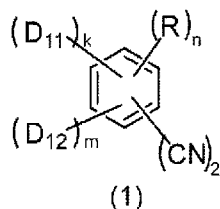
特願 2021-097473 2021年6月10日(10.06.2021) JP
特願 2021-150650 2021年9月15日(15.09.2021) JP
特願 2022-067595 2022年4月15日(15.04.2022) JP

(71) 出願人: 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区大手町一丁目2番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 安川 圭一 (YASUKAWA Keiichi); 〒1008321 東京都千代田区大手町一丁目2番1号 出光興産株式会社内 Tokyo (JP). 松本尚人(MATSUMOTO Hisato); 〒1008321 東京都千代田区大手町一丁目2番1号 出光興産株式会社内 Tokyo (JP). 寺田 一輝(TERADA Kazuki); 〒1008321 東京都千代田区大手町一丁目2番1号 出光興産株式会社内 Tokyo (JP). 飯田 真依子(IIDA Maiko); 〒1008321 東京都千代田区大手町一丁目2番1号 出光興産株式会社内 Tokyo (JP).

(54) Title: COMPOUND, MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENTS, ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ELECTRONIC DEVICE

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



(57) Abstract: A compound which is represented by general formula (1). In general formula (1), CN represents a cyano group; each of D₁₁ and D₁₂ independently represents a group that is represented by general formula (11), general formula (12) or general formula (13), provided that at least one D₁₁ moiety is a group that is represented by general formula (12) or general formula (13); and R represents a hydrogen atom, an aryl group or the like.

(57) 要約: 下記一般式(1)で表される化合物。一般式(1)において、CNは、シアノ基であり、D₁₁及びD₁₂は、それぞれ独立に、一般式(11)、一般式(12)又は一般式(13)で表される基であり、但し、少なくとも1つのD₁₁は、一般式(12)又は一般式(13)で表される基であり、Rは、水素原子及びアリール基等である。

(74) 代理人: 特許業務法人樹之下知的財産事務所
(KINOSHITA & ASSOCIATES); 〒1670051 東
京 都 杉 並 区 荻 窪 五 丁 目 2 6 番 1 3
号 3 階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP,
KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,
LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW,
MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE,
PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,
SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT,
TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器

技術分野

[0001] 本発明は、化合物、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子及び電子機器に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機ＥＬ素子」という場合がある。）に電圧を印加すると、陽極から正孔が発光層に注入され、また陰極から電子が発光層に注入される。そして、発光層において、注入された正孔と電子とが再結合し、励起子が形成される。このとき、電子スピンの統計則により、一重項励起子が２５％の割合で生成し、及び三重項励起子が７５％の割合で生成する。

一重項励起子からの発光を用いる蛍光型の有機ＥＬ素子は、携帯電話及びテレビ等のフルカラーディスプレイへ応用されつつあるが、内部量子効率２５％が限界といわれている。そのため、有機ＥＬ素子の性能を向上するための検討が行われている。

[0003] 例えば、一重項励起子に加えて三重項励起子を利用して、有機ＥＬ素子をさらに効率的に発光させることが期待されている。このような背景から、熱活性化遅延蛍光（以下、単に「遅延蛍光」という場合がある。）を利用した高効率の蛍光型の有機ＥＬ素子が提案され、研究がなされている。

TADF (Thermally Activated Delayed Fluorescence、熱活性化遅延蛍光) 機構（メカニズム）は、一重項準位と三重項準位とのエネルギー差（ $\Delta S T$ ）の小さな材料を用いた場合に、三重項励起子から一重項励起子への逆項間交差が熱的に生じる現象を利用するメカニズムである。熱活性化遅延蛍光については、例えば、『安達

千波矢編、「有機半導体のデバイス物性」、講談社、2012年4月1日発行、261－268ページ』に記載されている。

熱活性化遅延蛍光性（TADF性）を示す化合物（以下、TADF性化合物とも称する）としては、例えば、分子内に、ドナー部位とアクセプター部位とが結合した化合物が知られている。

[0004] 有機EL素子並びに有機EL素子に用いる化合物に関する文献として、特許文献1、特許文献2、特許文献3及び特許文献4が挙げられる。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開第2014／208698号

特許文献2：国際公開第2019／195104号

特許文献3：国際公開第2019／190235号

特許文献4：国際公開第2021／066059号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] ディスプレイ等の電子機器の性能を向上させるために、有機EL素子の性能の更なる向上が要望されている。有機EL素子の性能としては、例えば、輝度、発光波長、色度、発光効率、駆動電圧、及び寿命が挙げられる。有機EL素子の発光効率を向上させるための要素としては、例えば、フォトルミネッセンス量子収率（PLQY：photoluminescence quantum yield）の高い化合物を用いることが挙げられる。また、有機EL素子は、長寿命化も望まれている。

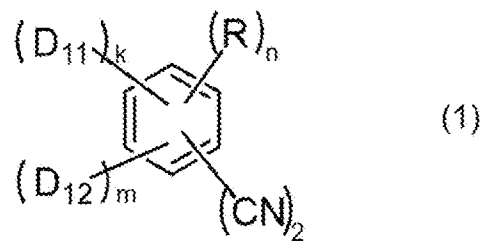
[0007] 本発明は、PLQYの高い化合物を提供することを目的とする。また、本発明は、PLQYの高い化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子、並びに当該有機エレクトロルミネッセンス素子を搭載した電子機器を提供することも目的とする。また、本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子の高性能化、特に高効率化及

び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる化合物を提供することも目的とする。また、本発明は、高性能化、特に高効率化及び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる有機エレクトロルミネッセンス素子を提供すること、並びに当該有機エレクトロルミネッセンス素子を搭載した電子機器を提供することも目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の一態様によれば、下記一般式（１）で表される化合物が提供される。

[0009] [化1]



[0010] （前記一般式（１）において、

CNは、シアノ基であり、

D₁₁及びD₁₂は、それぞれ独立に、下記一般式（１１）、一般式（１２）又は一般式（１３）で表される基であり、但し、少なくとも１つのD₁₁は、下記一般式（１２）又は一般式（１３）で表される基であり、

Rは、それぞれ独立して、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数１～５０のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数３～５０のシクロアルキル基、

—Si(R₉₀₁)(R₉₀₂)(R₉₀₃)で表される基、

—O—(R₉₀₄)で表される基、

—S— (R_{905}) で表される基、

—N (R_{906}) (R_{907}) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C (=O) R_{908} で表される基、

—COOR $_{909}$ で表される基、

シアノ基、

ニトロ基、

—P (=O) (R_{931}) (R_{932}) で表される基、

—Ge (R_{933}) (R_{934}) (R_{935}) で表される基、

—B (R_{936}) (R_{937}) で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

但し、少なくとも 1 つの R は、置換基であり、少なくとも 1 つの置換基としての R は、

前記一般式 (1) 中のベンゼン環との炭素—炭素結合により結合し、

k は、1 又は 2 であり、

m は、0、1 又は 2 であり、

n は、1、2 又は 3 であり、

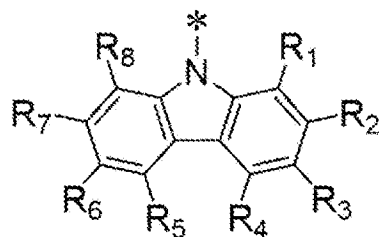
k + m + n は、4 であり、

k が 2 のとき、複数の D_{11} は、互いに同一であるか、又は異なり、

m が 2 のとき、複数の D_{12} は、互いに同一であるか、又は異なり、

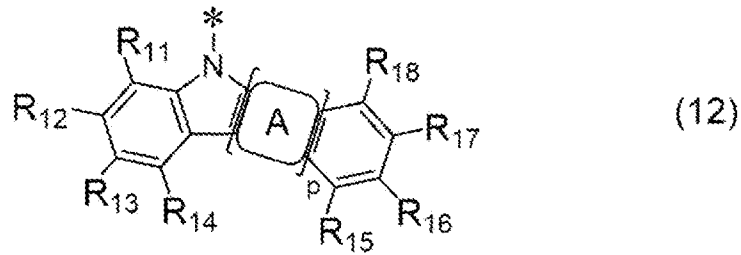
n が 2 又は 3 のとき、複数の R は、互いに同一であるか、又は異なる。))

[0011] [化2]

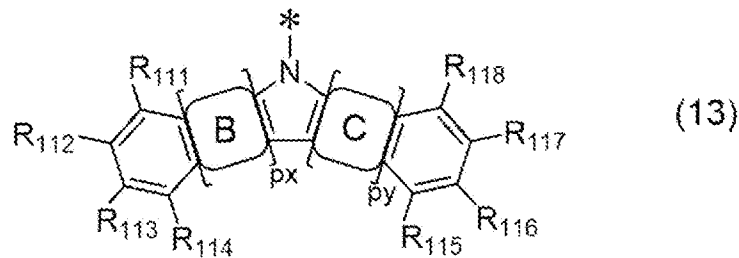


(11)

[0012] [化3]



[0013] [化4]



[0014] (前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式(13)における $R_{111} \sim R_{118}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式(11)における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式(12)における置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{11} \sim R_{18}$ 、並びに前記一般式(13)における置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{111} \sim R_{118}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

—S i (R₉₀₁) (R₉₀₂) (R₉₀₃) で表される基、

—O— (R₉₀₄) で表される基、

—S— (R₉₀₅) で表される基、

—N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C (=O) R₉₀₈ で表される基、

—C O O R₉₀₉ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

—P (=O) (R₉₃₁) (R₉₃₂) で表される基、

—G e (R₉₃₃) (R₉₃₄) (R₉₃₅) で表される基、

—B (R₉₃₆) (R₉₃₇) で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

前記一般式 (12) 及び前記一般式 (13) において、

環 A、環 B 及び環 C は、それぞれ独立に、下記一般式 (14) 及び一般式 (15) で表される環構造からなる群から選択されるいずれかの環構造であり、

環 A、環 B 及び環 C は、隣接する環と任意の位置で縮合し、

p、p x 及び p y は、それぞれ独立に、1、2、3 又は 4 であり、

p が 2、3 又は 4 の場合、複数の環 A は、互いに同一であるか、又は異なり、

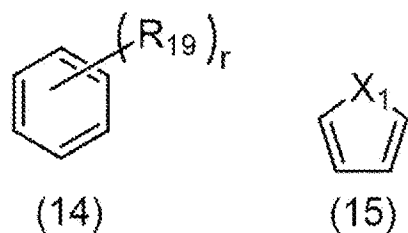
$p \times$ が 2、3 又は 4 の場合、複数の環 B は、互いに同一であるか、又は異なり、

$p y$ が 2、3 又は 4 の場合、複数の環 C は、互いに同一であるか、又は異なり、

但し、少なくとも 1 つの D_{11} は、前記一般式 (12) 又は一般式 (13) で表される基であって、この D_{11} としての前記一般式 (12) 中の p が 4 であり、4 つの環 A が 2 つの下記一般式 (14) で表される環構造及び 2 つの下記一般式 (15) で表される環構造を含み、この D_{11} としての前記一般式 (13) 中の $p \times$ 及び $p y$ が 2 であり、2 つの環 B が 1 つの下記一般式 (14) で表される環構造及び 1 つの下記一般式 (15) で表される環構造を含み、2 つの環 C が 1 つの下記一般式 (14) で表される環構造及び 1 つの下記一般式 (15) で表される環構造を含み、

前記一般式 (11) ~ (13) 中の * は、前記一般式 (1) 中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[0015] [化5]



[0016] (前記一般式 (14) において、

r は、0、2 又は 4 であり、

複数の R_{19} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (15) において、 X_1 は、硫黄原子又は酸素原子であり、

置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合

環を形成しない R_{19} は、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

—S i (R_{901}) (R_{902}) (R_{903}) で表される基、

—O— (R_{904}) で表される基、

—S— (R_{905}) で表される基、

—N (R_{906}) (R_{907}) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C (=O) R_{908} で表される基、

—C O O R_{909} で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

—P (=O) (R_{931}) (R_{932}) で表される基、

—G e (R_{933}) (R_{934}) (R_{935}) で表される基、

—B (R_{936}) (R_{937}) で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

複数の R_{19} は、互いに同一であるか又は異なり、

複数の X_1 は、互いに同一であるか又は異なり、

ただし、前記一般式 (13) で表される基である D_{11} は、下記条件 (P v 1)、条件 (P v 2) 及び条件 (P v 3) の少なくともいずれかを満たす。

条件 (P v 1) : k が 2 のとき、環 B としての前記一般式 (15) で表される環構造中の X_1 及び環 C としての前記一般式 (15) で表される環構造中

の X_1 の少なくともいずれかが、酸素原子である。

条件 (P v 2) : k が 2 のとき、2 つの D_{11} は、互いに異なる。

条件 (P v 3) : n が 3 のとき、環 B としての前記一般式 (15) で表される環構造中の X_1 及び環 C としての前記一般式 (15) で表される環構造中の X_1 は、それぞれ独立に、硫黄原子又は酸素原子である。)

(一般式中、 R_{901} 、 R_{902} 、 R_{903} 、 R_{904} 、 R_{905} 、 R_{906} 、 R_{907} 、 R_{908} 、 R_{909} 、 R_{931} 、 R_{932} 、 R_{933} 、 R_{934} 、 R_{935} 、 R_{936} 及び R_{937} は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 50 のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の複素環基であり、

R_{901} が複数存在する場合、複数の R_{901} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{902} が複数存在する場合、複数の R_{902} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{903} が複数存在する場合、複数の R_{903} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{904} が複数存在する場合、複数の R_{904} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{905} が複数存在する場合、複数の R_{905} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{906} が複数存在する場合、複数の R_{906} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{907} が複数存在する場合、複数の R_{907} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{908} が複数存在する場合、複数の R_{908} は、互いに同一であるか又は異なり、

り、

R_{909} が複数存在する場合、複数の R_{909} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{931} が複数存在する場合、複数の R_{931} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{932} が複数存在する場合、複数の R_{932} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{933} が複数存在する場合、複数の R_{933} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{934} が複数存在する場合、複数の R_{934} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{935} が複数存在する場合、複数の R_{935} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{936} が複数存在する場合、複数の R_{936} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{937} が複数存在する場合、複数の R_{937} は、互いに同一であるか又は異な

る。)

[0017] 本発明の一態様によれば、本発明の一態様に係る化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が提供される。

[0018] 本発明の一態様によれば、陽極と、陰極と、有機層と、を有し、前記有機層は、本発明の一態様に係る化合物を化合物M2として含む、有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。

[0019] 本発明の一態様によれば、本発明の一態様に係る有機エレクトロルミネッセンス素子を搭載した電子機器が提供される。

[0020] 本発明の一態様によれば、PLQYの高い化合物を提供できる。また、本発明の一態様によれば、PLQYの高い化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料又は有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できる。また、本発明の一態様によれば、当該有機エレクトロルミネッセンス素子を

搭載した電子機器を提供できる。また、本発明の一態様によれば、有機エレクトロルミネッセンス素子の高性能化、特に高効率化及び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる化合物を提供できる。また、本発明の一態様によれば、高性能化、特に高効率化及び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる有機エレクトロルミネッセンス素子を提供すること、並びに当該有機エレクトロルミネッセンス素子を搭載した電子機器を提供することもできる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]過渡 P L を測定する装置の概略図である。

[図2]過渡 P L の減衰曲線の一例を示す図である。

[図3]本発明の第三実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の概略構成を示す図である。

[図4]本発明の第三実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の発光層における化合物 M 1 及び化合物 M 2 のエネルギー準位、並びにエネルギー移動の関係を示す図である。

[図5]本発明の第四実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の発光層における化合物 M 1 、化合物 M 2 及び化合物 M 3 のエネルギー準位、並びにエネルギー移動の関係を示す図である。

[図6]本発明の第五実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の一例の発光層における化合物 M 2 及び化合物 M 3 のエネルギー準位、並びにエネルギー移動の関係を示す図である。

発明を実施するための形態

[0022] [定義]

本明細書において、水素原子とは、中性子数が異なる同位体、即ち、軽水素 (protium)、重水素 (deuterium)、及び三重水素 (tritium) を包含する。

[0023] 本明細書において、化学構造式中、「R」等の記号や重水素原子を表す「D」が明示されていない結合可能位置には、水素原子、即ち、軽水素原子、重水素原子、又は三重水素原子が結合しているものとする。

[0024] 本明細書において、環形成炭素数とは、原子が環状に結合した構造の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、及び複素環化合物）の当該環自体を構成する原子のうちの炭素原子の数を表す。当該環が置換基によって置換される場合、置換基に含まれる炭素は環形成炭素数には含まない。以下で記される「環形成炭素数」については、別途記載のない限り同様とする。例えば、ベンゼン環は環形成炭素数が6であり、ナフタレン環は環形成炭素数が10であり、ピリジン環は環形成炭素数5であり、フラン環は環形成炭素数4である。また、例えば、9, 9-ジフェニルフルオレニル基の環形成炭素数は13であり、9, 9'-スピロビフルオレニル基の環形成炭素数は25である。

また、ベンゼン環に置換基として、例えば、アルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、ベンゼン環の環形成炭素数に含めない。そのため、アルキル基が置換しているベンゼン環の環形成炭素数は、6である。また、ナフタレン環に置換基として、例えば、アルキル基が置換している場合、当該アルキル基の炭素数は、ナフタレン環の環形成炭素数に含めない。そのため、アルキル基が置換しているナフタレン環の環形成炭素数は、10である。

[0025] 本明細書において、環形成原子数とは、原子が環状に結合した構造（例えば、単環、縮合環、及び環集合）の化合物（例えば、単環化合物、縮合環化合物、架橋化合物、炭素環化合物、及び複素環化合物）の当該環自体を構成する原子の数を表す。環を構成しない原子（例えば、環を構成する原子の結合を終端する水素原子）や、当該環が置換基によって置換される場合の置換基に含まれる原子は環形成原子数には含まない。以下で記される「環形成原子数」については、別途記載のない限り同様とする。例えば、ピリジン環の環形成原子数は6であり、キナゾリン環の環形成原子数は10であり、フラン環の環形成原子数は5である。例えば、ピリジン環に結合している水素原子、又は置換基を構成する原子の数は、ピリジン環形成原子数の数に含めない。そのため、水素原子、又は置換基が結合しているピリジン環の環形成原

子数は、6である。また、例えば、キナゾリン環の炭素原子に結合している水素原子、又は置換基を構成する原子については、キナゾリン環の環形成原子数の数に含めない。そのため、水素原子、又は置換基が結合しているキナゾリン環の環形成原子数は10である。

[0026] 本明細書において、「置換もしくは無置換の炭素数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「炭素数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の炭素数を表し、置換されている場合の置換基の炭素数を含めない。ここで、「 YY 」は、「 XX 」よりも大きく、「 XX 」は、1以上の整数を意味し、「 YY 」は、2以上の整数を意味する。

[0027] 本明細書において、「置換もしくは無置換の原子数 $XX \sim YY$ の ZZ 基」という表現における「原子数 $XX \sim YY$ 」は、 ZZ 基が無置換である場合の原子数を表し、置換されている場合の置換基の原子数を含めない。ここで、「 YY 」は、「 XX 」よりも大きく、「 XX 」は、1以上の整数を意味し、「 YY 」は、2以上の整数を意味する。

[0028] 本明細書において、無置換の ZZ 基とは「置換もしくは無置換の ZZ 基」が「無置換の ZZ 基」である場合を表し、置換の ZZ 基とは「置換もしくは無置換の ZZ 基」が「置換の ZZ 基」である場合を表す。

本明細書において、「置換もしくは無置換の ZZ 基」という場合における「無置換」とは、 ZZ 基における水素原子が置換基と置き換わっていないことを意味する。「無置換の ZZ 基」における水素原子は、軽水素原子、重水素原子、又は三重水素原子である。

また、本明細書において、「置換もしくは無置換の ZZ 基」という場合における「置換」とは、 ZZ 基における1つ以上の水素原子が、置換基と置き換わっていることを意味する。「 AA 基で置換された BB 基」という場合における「置換」も同様に、 BB 基における1つ以上の水素原子が、 AA 基と置き換わっていることを意味する。

[0029] 「本明細書に記載の置換基」

以下、本明細書に記載の置換基について説明する。

[0030] 本明細書に記載の「無置換のアリール基」の環形成炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、6～50であり、好ましくは6～30、より好ましくは6～18である。

本明細書に記載の「無置換の複素環基」の環形成原子数は、本明細書に別途記載のない限り、5～50であり、好ましくは5～30、より好ましくは5～18である。

本明細書に記載の「無置換のアルキル基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、1～50であり、好ましくは1～20、より好ましくは1～6である。

本明細書に記載の「無置換のアルケニル基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、2～50であり、好ましくは2～20、より好ましくは2～6である。

本明細書に記載の「無置換のアルキニル基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、2～50であり、好ましくは2～20、より好ましくは2～6である。

本明細書に記載の「無置換のシクロアルキル基」の環形成炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、3～50であり、好ましくは3～20、より好ましくは3～6である。

本明細書に記載の「無置換のアリーレン基」の環形成炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、6～50であり、好ましくは6～30、より好ましくは6～18である。

本明細書に記載の「無置換の2価の複素環基」の環形成原子数は、本明細書に別途記載のない限り、5～50であり、好ましくは5～30、より好ましくは5～18である。

本明細書に記載の「無置換のアルキレン基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、1～50であり、好ましくは1～20、より好ましくは1～6である。

[0031] ・「置換もしくは無置換のアリール基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」の具体例（具体例群G 1）としては、以下の無置換のアリール基（具体例群G 1 A）及び置換のアリール基（具体例群G 1 B）等が挙げられる。（ここで、無置換のアリール基とは「置換もしくは無置換のアリール基」が「無置換のアリール基」である場合を指し、置換のアリール基とは「置換もしくは無置換のアリール基」が「置換のアリール基」である場合を指す。）本明細書において、単に「アリール基」という場合は、「無置換のアリール基」と「置換のアリール基」の両方を含む。

「置換のアリール基」は、「無置換のアリール基」の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。「置換のアリール基」としては、例えば、下記具体例群G 1 Aの「無置換のアリール基」の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基、及び下記具体例群G 1 Bの置換のアリール基の例等が挙げられる。尚、ここに列挙した「無置換のアリール基」の例、及び「置換のアリール基」の例は、一例に過ぎず、本明細書に記載の「置換のアリール基」には、下記具体例群G 1 Bの「置換のアリール基」におけるアリール基自体の炭素原子に結合する水素原子がさらに置換基と置き換わった基、及び下記具体例群G 1 Bの「置換のアリール基」における置換基の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も含まれる。

[0032] ・無置換のアリール基（具体例群G 1 A）：

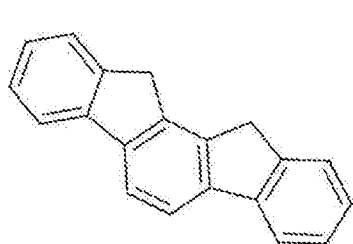
フェニル基、
p-ビフェニル基、
m-ビフェニル基、
o-ビフェニル基、
p-ターフェニル-4-イル基、
p-ターフェニル-3-イル基、
p-ターフェニル-2-イル基、
m-ターフェニル-4-イル基、
m-ターフェニル-3-イル基、

m-ターフェニル-2-イル基、
o-ターフェニル-4-イル基、
o-ターフェニル-3-イル基、
o-ターフェニル-2-イル基、
1-ナフチル基、
2-ナフチル基、
アントリル基、
ベンゾアントリル基、
フェナントリル基、
ベンゾフェナントリル基、
フェナレニル基、
ピレニル基、
クリセニル基、
ベンゾクリセニル基、
トリフェニレニル基、
ベンゾトリフェニレニル基、
テトラセニル基、
ペンタセニル基、
フルオレニル基、
9, 9'-スピロビフルオレニル基、
ベンゾフルオレニル基、
ジベンゾフルオレニル基、
フルオランテニル基、
ベンゾフルオランテニル基、
ペリレニル基、及び

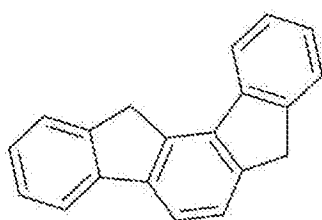
下記一般式 (TEMP-1) ~ (TEMP-15) で表される環構造から 1 つの水素原子を除くことにより誘導される 1 価のアリール基。

[0033]

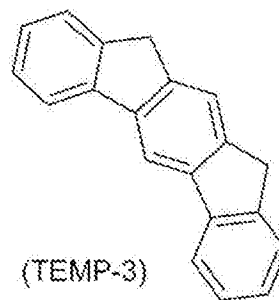
[化6]



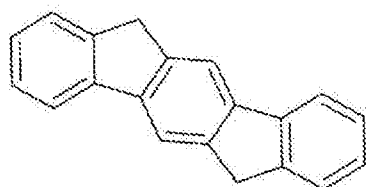
(TEMP-1)



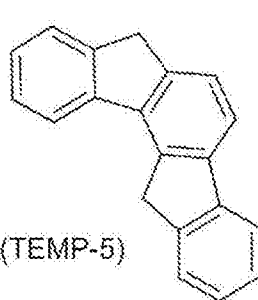
(TEMP-2)



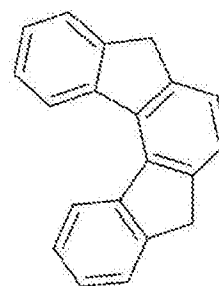
(TEMP-3)



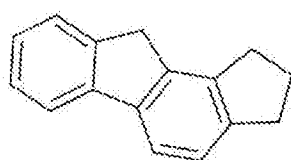
(TEMP-4)



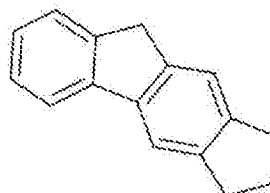
(TEMP-5)



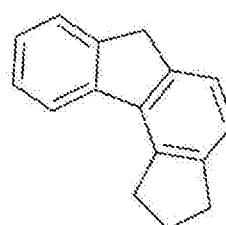
(TEMP-6)



(TEMP-7)

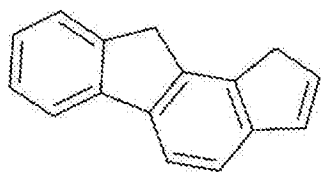


(TEMP-8)

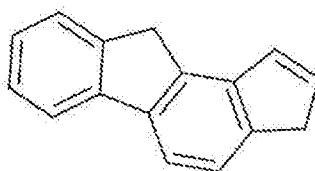


(TEMP-9)

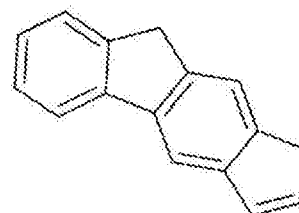
[0034] [化7]



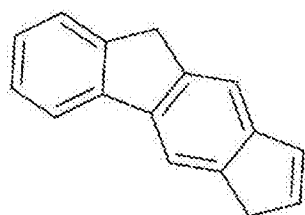
(TEMP-10)



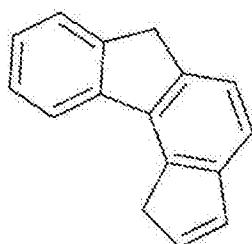
(TEMP-11)



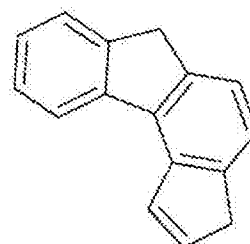
(TEMP-12)



(TEMP-13)



(TEMP-14)



(TEMP-15)

[0035] ・置換のアリール基（具体例群G 1 B）：

o-トリル基、
m-トリル基、
p-トリル基、
パラ-キシリル基、
メタ-キシリル基、
オルト-キシリル基、
パラ-イソプロピルフェニル基、
メタ-イソプロピルフェニル基、
オルト-イソプロピルフェニル基、
パラ-t-ブチルフェニル基、
メタ-t-ブチルフェニル基、
オルト-t-ブチルフェニル基、
3, 4, 5-トリメチルフェニル基、
9, 9-ジメチルフルオレニル基、
9, 9-ジフェニルフルオレニル基、
9, 9-ビス（4-メチルフェニル）フルオレニル基、
9, 9-ビス（4-イソプロピルフェニル）フルオレニル基、
9, 9-ビス（4-t-ブチルフェニル）フルオレニル基、
シアノフェニル基、
トリフェニルシリルフェニル基、
トリメチルシリルフェニル基、
フェニルナフチル基、
ナフチルフェニル基、及び

前記一般式（TEMP-1）～（TEMP-15）で表される環構造から誘導される1価の基の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基。

[0036] ・「置換もしくは無置換の複素環基」

本明細書に記載の「複素環基」は、環形成原子にヘテロ原子を少なくとも

1つ含む環状の基である。ヘテロ原子の具体例としては、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、ケイ素原子、リン原子、及びホウ素原子が挙げられる。

本明細書に記載の「複素環基」は、単環の基であるか、又は縮合環の基である。

本明細書に記載の「複素環基」は、芳香族複素環基であるか、又は非芳香族複素環基である。

本明細書に記載の「置換もしくは無置換の複素環基」の具体例（具体例群G 2）としては、以下の無置換の複素環基（具体例群G 2 A）、及び置換の複素環基（具体例群G 2 B）等が挙げられる。（ここで、無置換の複素環基とは「置換もしくは無置換の複素環基」が「無置換の複素環基」である場合を指し、置換の複素環基とは「置換もしくは無置換の複素環基」が「置換の複素環基」である場合を指す。）本明細書において、単に「複素環基」という場合は、「無置換の複素環基」と「置換の複素環基」の両方を含む。

「置換の複素環基」は、「無置換の複素環基」の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。「置換の複素環基」の具体例は、下記具体例群G 2 Aの「無置換の複素環基」の水素原子が置き換わった基、及び下記具体例群G 2 Bの置換の複素環基の例等が挙げられる。尚、ここに列挙した「無置換の複素環基」の例や「置換の複素環基」の例は、一例に過ぎず、本明細書に記載の「置換の複素環基」には、具体例群G 2 Bの「置換の複素環基」における複素環基自体の環形成原子に結合する水素原子がさらに置換基と置き換わった基、及び具体例群G 2 Bの「置換の複素環基」における置換基の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も含まれる。

[0037] 具体例群G 2 Aは、例えば、以下の窒素原子を含む無置換の複素環基（具体例群G 2 A 1）、酸素原子を含む無置換の複素環基（具体例群G 2 A 2）、硫黄原子を含む無置換の複素環基（具体例群G 2 A 3）、及び下記一般式（TEMP-16）～（TEMP-33）で表される環構造から1つの水素原子を除くことにより誘導される1価の複素環基（具体例群G 2 A 4）を含む。

[0038] 具体例群G 2 Bは、例えば、以下の窒素原子を含む置換の複素環基（具体例群G 2 B 1）、酸素原子を含む置換の複素環基（具体例群G 2 B 2）、硫黄原子を含む置換の複素環基（具体例群G 2 B 3）、及び下記一般式（TEMP-16）～（TEMP-33）で表される環構造から誘導される1価の複素環基の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基（具体例群G 2 B 4）を含む。

[0039] ・窒素原子を含む無置換の複素環基（具体例群G 2 A 1）：

ピロリル基、
イミダゾリル基、
ピラゾリル基、
トリアゾリル基、
テトラゾリル基、
オキサゾリル基、
イソオキサゾリル基、
オキサジアゾリル基、
チアゾリル基、
イソチアゾリル基、
チアジアゾリル基、
ピリジル基、
ピリダジニル基、
ピリミジニル基、
ピラジニル基、
トリアジニル基、
インドリル基、
イソインドリル基、
インドリジニル基、
キノリジニル基、
キノリル基、

イソキノリル基、
シンノリル基、
フタラジニル基、
キナゾリニル基、
キノキサリニル基、
ベンゾイミダゾリル基、
インダゾリル基、
フェナントロリニル基、
フェナントリジニル基、
アクリジニル基、
フェナジニル基、
カルバゾリル基、
ベンゾカルバゾリル基、
モルホリノ基、
フェノキサジニル基、
フェノチアジニル基、
アザカルバゾリル基、及び
ジアザカルバゾリル基。

[0040] ・酸素原子を含む無置換の複素環基（具体例群G 2 A 2）：

フリル基、
オキサゾリル基、
イソオキサゾリル基、
オキサジアゾリル基、
キサントニル基、
ベンゾフラニル基、
イソベンゾフラニル基、
ジベンゾフラニル基、
ナフトベンゾフラニル基、

ベンゾオキサゾリル基、
ベンゾイソキサゾリル基、
フェノキサジニル基、
モルホリノ基、
ジナフトフラニル基、
アザジベンゾフラニル基、
ジアザジベンゾフラニル基、
アザナフトベンゾフラニル基、及び
ジアザナフトベンゾフラニル基。

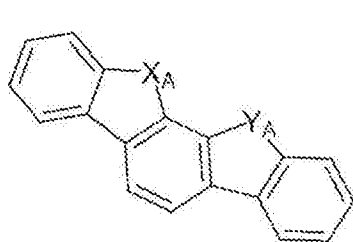
[0041] ・硫黄原子を含む無置換の複素環基（具体例群 G 2 A 3）：

チエニル基、
チアゾリル基、
イソチアゾリル基、
チアジアゾリル基、
ベンゾチオフェニル基（ベンゾチエニル基）、
イソベンゾチオフェニル基（イソベンゾチエニル基）、
ジベンゾチオフェニル基（ジベンゾチエニル基）、
ナフトベンゾチオフェニル基（ナフトベンゾチエニル基）、
ベンゾチアゾリル基、
ベンゾイソチアゾリル基、
フェノチアジニル基、
ジナフトチオフェニル基（ジナフトチエニル基）、
アザジベンゾチオフェニル基（アザジベンゾチエニル基）、
ジアザジベンゾチオフェニル基（ジアザジベンゾチエニル基）、
アザナフトベンゾチオフェニル基（アザナフトベンゾチエニル基）、及び
ジアザナフトベンゾチオフェニル基（ジアザナフトベンゾチエニル基）。

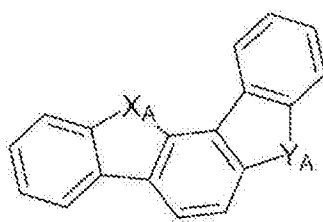
[0042] ・下記一般式（TEMP-16）～（TEMP-33）で表される環構造から1つの水素原子を除くことにより誘導される1価の複素環基（具体例群 G

2 A 4) :

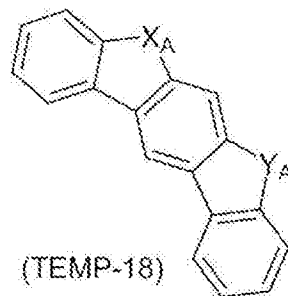
[0043] [化8]



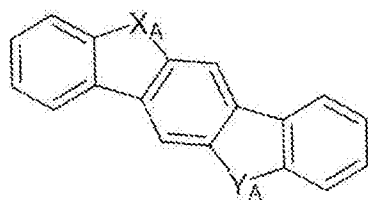
(TEMP-16)



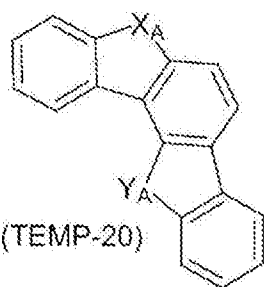
(TEMP-17)



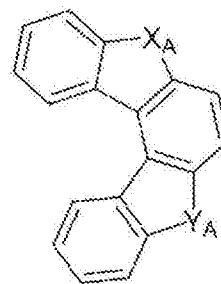
(TEMP-18)



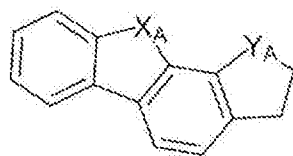
(TEMP-19)



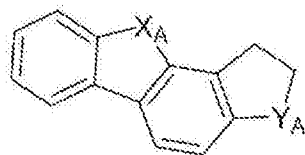
(TEMP-20)



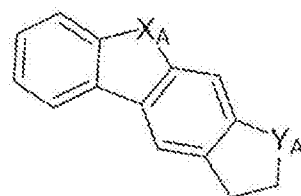
(TEMP-21)



(TEMP-22)



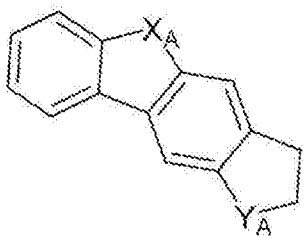
(TEMP-23)



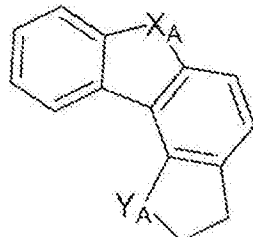
(TEMP-24)

[0044]

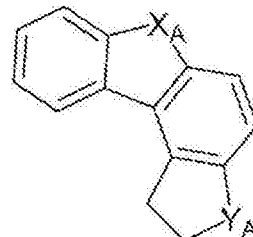
[化9]



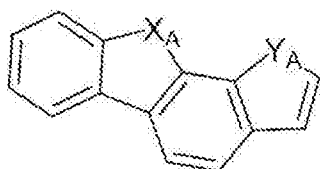
(TEMP-25)



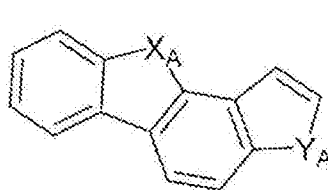
(TEMP-26)



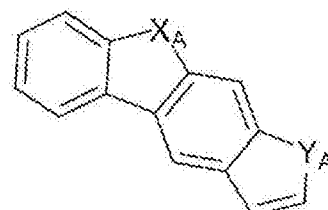
(TEMP-27)



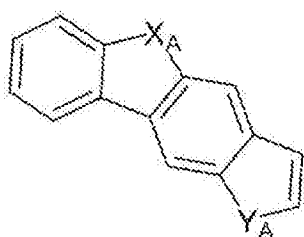
(TEMP-28)



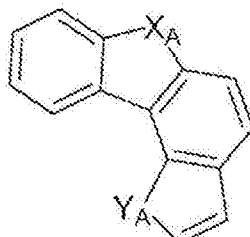
(TEMP-29)



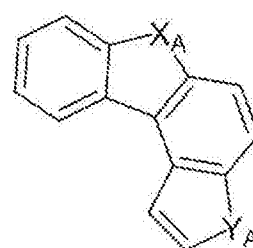
(TEMP-30)



(TEMP-31)



(TEMP-32)



(TEMP-33)

[0045] 前記一般式 (TEMP-16) ~ (TEMP-33) において、 X_A 及び Y_A は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、NH、又は CH_2 である。ただし、 X_A 及び Y_A のうち少なくとも1つは、酸素原子、硫黄原子、又はNHである。

前記一般式 (TEMP-16) ~ (TEMP-33) において、 X_A 及び Y_A の少なくともいずれかがNH、又は CH_2 である場合、前記一般式 (TEMP-16) ~ (TEMP-33) で表される環構造から誘導される1価の複素環基には、これらNH、又は CH_2 から1つの水素原子を除いて得られる1価の基が含まれる。

[0046] ・窒素原子を含む置換の複素環基（具体例群G2B1）：

（9-フェニル）カルバゾリル基、

(9-ビフェニル) カルバゾリル基、
(9-フェニル) フェニルカルバゾリル基、
(9-ナフチル) カルバゾリル基、
ジフェニルカルバゾール-9-イル基、
フェニルカルバゾール-9-イル基、
メチルベンゾイミダゾリル基、
エチルベンゾイミダゾリル基、
フェニルトリアジニル基、
ビフェニルトリアジニル基、
ジフェニルトリアジニル基、
フェニルキナゾリニル基、及び
ビフェニルキナゾリニル基。

[0047] ・酸素原子を含む置換の複素環基（具体例群G 2 B 2）：

フェニルジベンゾフラニル基、
メチルジベンゾフラニル基、
t-ブチルジベンゾフラニル基、及び
スピロ〔9H-キサンテン-9, 9'-〔9H〕フルオレン〕の1価の残基。

[0048] ・硫黄原子を含む置換の複素環基（具体例群G 2 B 3）：

フェニルジベンゾチオフェニル基、
メチルジベンゾチオフェニル基、
t-ブチルジベンゾチオフェニル基、及び
スピロ〔9H-チオキサンテン-9, 9'-〔9H〕フルオレン〕の1価の残基。

[0049] ・前記一般式（TEMP-16）～（TEMP-33）で表される環構造から誘導される1価の複素環基の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基（具体例群G 2 B 4）：

[0050] 前記「1価の複素環基の1つ以上の水素原子」とは、該1価の複素環基の

環形成炭素原子に結合している水素原子、 X_A 及び Y_A の少なくともいずれかがNHである場合の窒素原子に結合している水素原子、及び X_A 及び Y_A の一方が CH_2 である場合のメチレン基の水素原子から選ばれる1つ以上の水素原子を意味する。

[0051] ・「置換もしくは無置換のアルキル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」の具体例（具体例群G 3）としては、以下の無置換のアルキル基（具体例群G 3 A）及び置換のアルキル基（具体例群G 3 B）が挙げられる。（ここで、無置換のアルキル基とは「置換もしくは無置換のアルキル基」が「無置換のアルキル基」である場合を指し、置換のアルキル基とは「置換もしくは無置換のアルキル基」が「置換のアルキル基」である場合を指す。）以下、単に「アルキル基」という場合は、「無置換のアルキル基」と「置換のアルキル基」の両方を含む。

「置換のアルキル基」は、「無置換のアルキル基」における1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。「置換のアルキル基」の具体例としては、下記の「無置換のアルキル基」（具体例群G 3 A）における1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基、及び置換のアルキル基（具体例群G 3 B）の例等が挙げられる。本明細書において、「無置換のアルキル基」におけるアルキル基は、鎖状のアルキル基を意味する。そのため、「無置換のアルキル基」は、直鎖である「無置換のアルキル基」、及び分岐状である「無置換のアルキル基」が含まれる。尚、ここに列挙した「無置換のアルキル基」の例や「置換のアルキル基」の例は、一例に過ぎず、本明細書に記載の「置換のアルキル基」には、具体例群G 3 Bの「置換のアルキル基」におけるアルキル基自体の水素原子がさらに置換基と置き換わった基、及び具体例群G 3 Bの「置換のアルキル基」における置換基の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も含まれる。

[0052] ・無置換のアルキル基（具体例群G 3 A）：

メチル基、

エチル基、
n-プロピル基、
イソプロピル基、
n-ブチル基、
イソブチル基、
s-ブチル基、及び
t-ブチル基。

[0053] ・置換のアルキル基（具体例群G 3 B）：

ヘプタフルオロプロピル基（異性体を含む）、
ペンタフルオロエチル基、
2，2，2-トリフルオロエチル基、及び
トリフルオロメチル基。

[0054] ・「置換もしくは無置換のアルケニル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアルケニル基」の具体例（具体例群G 4）としては、以下の無置換のアルケニル基（具体例群G 4 A）、及び置換のアルケニル基（具体例群G 4 B）等が挙げられる。（ここで、無置換のアルケニル基とは「置換もしくは無置換のアルケニル基」が「無置換のアルケニル基」である場合を指し、「置換のアルケニル基」とは「置換もしくは無置換のアルケニル基」が「置換のアルケニル基」である場合を指す。）本明細書において、単に「アルケニル基」という場合は、「無置換のアルケニル基」と「置換のアルケニル基」の両方を含む。

「置換のアルケニル基」は、「無置換のアルケニル基」における1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。「置換のアルケニル基」の具体例としては、下記の「無置換のアルケニル基」（具体例群G 4 A）が置換基を有する基、及び置換のアルケニル基（具体例群G 4 B）の例等が挙げられる。尚、ここに列挙した「無置換のアルケニル基」の例や「置換のアルケニル基」の例は、一例に過ぎず、本明細書に記載の「置換のアルケニル基」には、具体例群G 4 Bの「置換のアルケニル基」におけるアルケニル基

自体の水素原子がさらに置換基と置き換わった基、及び具体例群 G 4 B の「置換のアルケニル基」における置換基の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も含まれる。

[0055] ・無置換のアルケニル基（具体例群 G 4 A）：

ビニル基、
アリル基、
1－ブテニル基、
2－ブテニル基、及び
3－ブテニル基。

[0056] ・置換のアルケニル基（具体例群 G 4 B）：

1，3－ブタンジエニル基、
1－メチルビニル基、
1－メチルアリル基、
1，1－ジメチルアリル基、
2－メチルアリル基、及び
1，2－ジメチルアリル基。

[0057] ・「置換もしくは無置換のアルキニル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアルキニル基」の具体例（具体例群 G 5）としては、以下の無置換のアルキニル基（具体例群 G 5 A）等が挙げられる。（ここで、無置換のアルキニル基とは、「置換もしくは無置換のアルキニル基」が「無置換のアルキニル基」である場合を指す。）以下、単に「アルキニル基」という場合は、「無置換のアルキニル基」と「置換のアルキニル基」の両方を含む。

「置換のアルキニル基」は、「無置換のアルキニル基」における 1 つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。「置換のアルキニル基」の具体例としては、下記の「無置換のアルキニル基」（具体例群 G 5 A）における 1 つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基等が挙げられる。

[0058] ・無置換のアルキニル基（具体例群 G 5 A）：

エチニル基。

[0059] ・「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」の具体例（具体例群G 6）としては、以下の無置換のシクロアルキル基（具体例群G 6 A）、及び置換のシクロアルキル基（具体例群G 6 B）等が挙げられる。（ここで、無置換のシクロアルキル基とは「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」が「無置換のシクロアルキル基」である場合を指し、置換のシクロアルキル基とは「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」が「置換のシクロアルキル基」である場合を指す。）本明細書において、単に「シクロアルキル基」という場合は、「無置換のシクロアルキル基」と「置換のシクロアルキル基」の両方を含む。

「置換のシクロアルキル基」は、「無置換のシクロアルキル基」における1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。「置換のシクロアルキル基」の具体例としては、下記の「無置換のシクロアルキル基」（具体例群G 6 A）における1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基、及び置換のシクロアルキル基（具体例群G 6 B）の例等が挙げられる。尚、ここに列挙した「無置換のシクロアルキル基」の例や「置換のシクロアルキル基」の例は、一例に過ぎず、本明細書に記載の「置換のシクロアルキル基」には、具体例群G 6 Bの「置換のシクロアルキル基」におけるシクロアルキル基自体の炭素原子に結合する1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基、及び具体例群G 6 Bの「置換のシクロアルキル基」における置換基の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も含まれる。

[0060] ・無置換のシクロアルキル基（具体例群G 6 A）：

シクロプロピル基、
シクロブチル基、
シクロペンチル基、
シクロヘキシル基、
1-アダマンチル基、

2-アダマンチル基、
1-ノルボルニル基、及び
2-ノルボルニル基。

[0061] ・置換のシクロアルキル基（具体例群G 6 B）：

4-メチルシクロヘキシル基。

[0062] ・「 $-Si(R_{901})(R_{902})(R_{903})$ で表される基」

本明細書に記載の $-Si(R_{901})(R_{902})(R_{903})$ で表される基の具体例（具体例群G 7）としては、

$-Si(G1)(G1)(G1)$ 、
 $-Si(G1)(G2)(G2)$ 、
 $-Si(G1)(G1)(G2)$ 、
 $-Si(G2)(G2)(G2)$ 、
 $-Si(G3)(G3)(G3)$ 、及び
 $-Si(G6)(G6)(G6)$

が挙げられる。ここで、

G 1 は、具体例群G 1 に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。

G 2 は、具体例群G 2 に記載の「置換もしくは無置換の複素環基」である。

G 3 は、具体例群G 3 に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」である。

G 6 は、具体例群G 6 に記載の「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」である。

$-Si(G1)(G1)(G1)$ における複数のG 1 は、互いに同一であるか、又は異なる。

$-Si(G1)(G2)(G2)$ における複数のG 2 は、互いに同一であるか、又は異なる。

$-Si(G1)(G1)(G2)$ における複数のG 1 は、互いに同一であ

るか、又は異なる。

—S i (G 2) (G 2) (G 2) における複数のG 2は、互いに同一であるか、又は異なる。

—S i (G 3) (G 3) (G 3) における複数のG 3は、互いに同一であるか、又は異なる。

—S i (G 6) (G 6) (G 6) における複数のG 6は、互いに同一であるか、又は異なる。

[0063] ・「—O—(R₉₀₄)で表される基」

本明細書に記載の—O—(R₉₀₄)で表される基の具体例(具体例群G 8)としては、

—O (G 1)、
—O (G 2)、
—O (G 3)、及び
—O (G 6)

が挙げられる。

ここで、

G 1は、具体例群G 1に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。

G 2は、具体例群G 2に記載の「置換もしくは無置換の複素環基」である。

G 3は、具体例群G 3に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」である。

G 6は、具体例群G 6に記載の「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」である。

[0064] ・「—S—(R₉₀₅)で表される基」

本明細書に記載の—S—(R₉₀₅)で表される基の具体例(具体例群G 9)としては、

—S (G 1)、

- －S (G 2)、
- －S (G 3)、及び
- －S (G 6)

が挙げられる。

ここで、

G 1 は、具体例群 G 1 に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。

G 2 は、具体例群 G 2 に記載の「置換もしくは無置換の複素環基」である。

G 3 は、具体例群 G 3 に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」である。

G 6 は、具体例群 G 6 に記載の「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」である。

[0065] ・「－N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基」

本明細書に記載の－N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基の具体例（具体例群 G 10）としては、

- －N (G 1) (G 1)、
- －N (G 2) (G 2)、
- －N (G 1) (G 2)、
- －N (G 3) (G 3)、及び
- －N (G 6) (G 6)

が挙げられる。

ここで、

G 1 は、具体例群 G 1 に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。

G 2 は、具体例群 G 2 に記載の「置換もしくは無置換の複素環基」である。

G 3 は、具体例群 G 3 に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」であ

る。

G 6 は、具体例群 G 6 に記載の「置換もしくは無置換のシクロアルキル基」である。

— N (G 1) (G 1) における複数の G 1 は、互いに同一であるか、又は異なる。

— N (G 2) (G 2) における複数の G 2 は、互いに同一であるか、又は異なる。

— N (G 3) (G 3) における複数の G 3 は、互いに同一であるか、又は異なる。

— N (G 6) (G 6) における複数の G 6 は、互いに同一であるか、又は異なる。

[0066] ・「ハロゲン原子」

本明細書に記載の「ハロゲン原子」の具体例（具体例群 G 1 1）としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子等が挙げられる。

[0067] ・「置換もしくは無置換のフルオロアルキル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のフルオロアルキル基」は、「置換もしくは無置換のアルキル基」におけるアルキル基を構成する炭素原子に結合している少なくとも 1 つの水素原子がフッ素原子と置き換わった基を意味し、「置換もしくは無置換のアルキル基」におけるアルキル基を構成する炭素原子に結合している全ての水素原子がフッ素原子で置き換わった基（パーフルオロ基）も含む。「無置換のフルオロアルキル基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、1～50であり、好ましくは1～30であり、より好ましくは1～18である。「置換のフルオロアルキル基」は、「フルオロアルキル基」の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。尚、本明細書に記載の「置換のフルオロアルキル基」には、「置換のフルオロアルキル基」におけるアルキル鎖の炭素原子に結合する1つ以上の水素原子がさらに置換基と置き換わった基、及び「置換のフルオロアルキル基」における置換基の1つ以上の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も

含まれる。「無置換のフルオロアルキル基」の具体例としては、前記「アルキル基」（具体例群G 3）における1つ以上の水素原子がフッ素原子と置き換わった基の例等が挙げられる。

[0068] ・「置換もしくは無置換のハロアルキル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のハロアルキル基」は、「置換もしくは無置換のアルキル基」におけるアルキル基を構成する炭素原子に結合している少なくとも1つの水素原子がハロゲン原子と置き換わった基を意味し、「置換もしくは無置換のアルキル基」におけるアルキル基を構成する炭素原子に結合している全ての水素原子がハロゲン原子で置き換わった基も含む。「無置換のハロアルキル基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、1～50であり、好ましくは1～30であり、より好ましくは1～18である。「置換のハロアルキル基」は、「ハロアルキル基」の1つ以上の水素原子が置換基と置き換わった基を意味する。尚、本明細書に記載の「置換のハロアルキル基」には、「置換のハロアルキル基」におけるアルキル鎖の炭素原子に結合する1つ以上の水素原子がさらに置換基と置き換わった基、及び「置換のハロアルキル基」における置換基の1つ以上の水素原子がさらに置換基と置き換わった基も含まれる。「無置換のハロアルキル基」の具体例としては、前記「アルキル基」（具体例群G 3）における1つ以上の水素原子がハロゲン原子と置き換わった基の例等が挙げられる。ハロアルキル基をハロゲン化アルキル基と称する場合がある。

[0069] ・「置換もしくは無置換のアルコキシ基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアルコキシ基」の具体例としては、—O（G 3）で表される基であり、ここで、G 3は、具体例群G 3に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」である。「無置換のアルコキシ基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、1～50であり、好ましくは1～30であり、より好ましくは1～18である。

[0070] ・「置換もしくは無置換のアルキルチオ基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアルキルチオ基」の具体例とし

ては、 $-S(G3)$ で表される基であり、ここで、 $G3$ は、具体例群 $G3$ に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」である。「無置換のアルキルチオ基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、 $1 \sim 50$ であり、好ましくは $1 \sim 30$ であり、より好ましくは $1 \sim 18$ である。

[0071] ・「置換もしくは無置換のアリールオキシ基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアリールオキシ基」の具体例としては、 $-O(G1)$ で表される基であり、ここで、 $G1$ は、具体例群 $G1$ に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。「無置換のアリールオキシ基」の環形成炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、 $6 \sim 50$ であり、好ましくは $6 \sim 30$ であり、より好ましくは $6 \sim 18$ である。

[0072] ・「置換もしくは無置換のアリールチオ基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアリールチオ基」の具体例としては、 $-S(G1)$ で表される基であり、ここで、 $G1$ は、具体例群 $G1$ に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。「無置換のアリールチオ基」の環形成炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、 $6 \sim 50$ であり、好ましくは $6 \sim 30$ であり、より好ましくは $6 \sim 18$ である。

[0073] ・「置換もしくは無置換のトリアルキルシリル基」

本明細書に記載の「トリアルキルシリル基」の具体例としては、 $-Si(G3)(G3)(G3)$ で表される基であり、ここで、 $G3$ は、具体例群 $G3$ に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」である。 $-Si(G3)(G3)(G3)$ における複数の $G3$ は、互いに同一であるか、又は異なる。「トリアルキルシリル基」の各アルキル基の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、 $1 \sim 50$ であり、好ましくは $1 \sim 20$ であり、より好ましくは $1 \sim 6$ である。

[0074] ・「置換もしくは無置換のアラルキル基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアラルキル基」の具体例としては、 $-(G3)-(G1)$ で表される基であり、ここで、 $G3$ は、具体例群 $G3$ に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」であり、 $G1$ は、具体例

群G 1 に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」である。従って、「アラルキル基」は、「アルキル基」の水素原子が置換基としての「アリール基」と置き換わった基であり、「置換のアルキル基」の一態様である。「無置換のアラルキル基」は、「無置換のアリール基」が置換した「無置換のアルキル基」であり、「無置換のアラルキル基」の炭素数は、本明細書に別途記載のない限り、7～50であり、好ましくは7～30であり、より好ましくは7～18である。

「置換もしくは無置換のアラルキル基」の具体例としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、及び2- β -ナフチルイソプロピル基等が挙げられる。

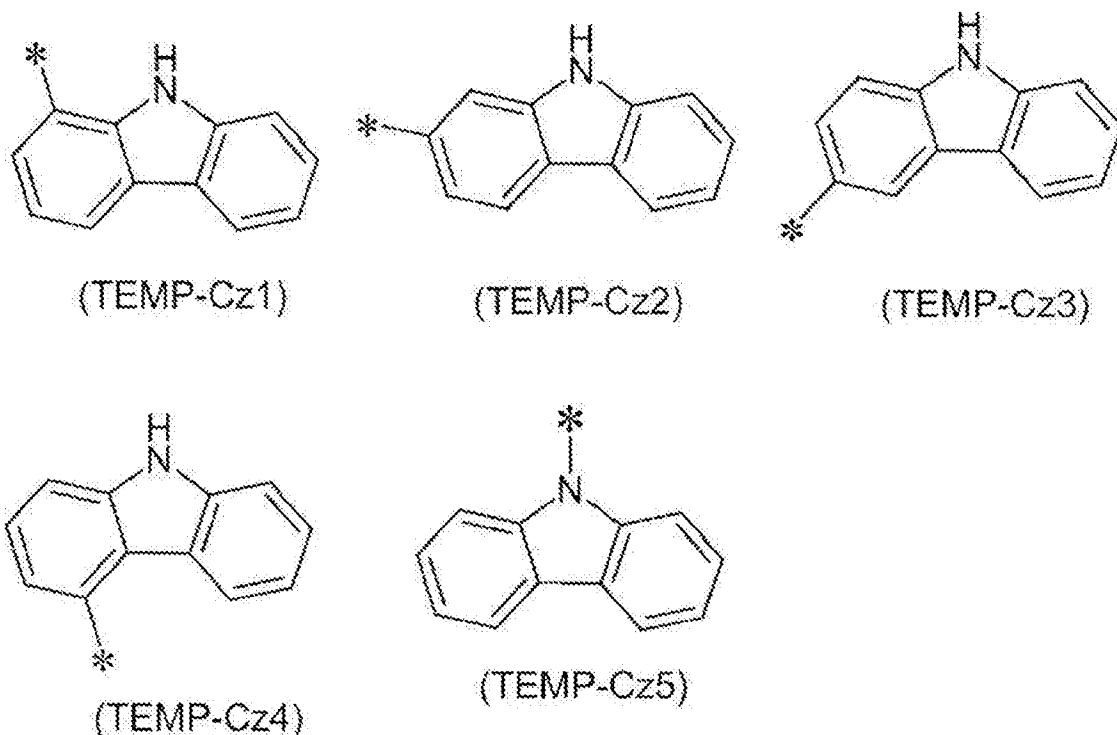
[0075] 本明細書に記載の置換もしくは無置換のアリール基は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくはフェニル基、*p*-ビフェニル基、*m*-ビフェニル基、*o*-ビフェニル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*-ターフェニル-2-イル基、*o*-ターフェニル-4-イル基、*o*-ターフェニル-3-イル基、*o*-ターフェニル-2-イル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル基、クリセニル基、トリフェニレニル基、フルオレニル基、9, 9'-ススピロビフルオレニル基、9, 9-ジメチルフルオレニル基、及び9, 9-ジフェニルフルオレニル基等である。

[0076] 本明細書に記載の置換もしくは無置換の複素環基は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくはピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリル基、イソキノリル基、キナゾリニル基、ベンゾイミダゾリル基、フェ

ナントロリニル基、カルバゾリル基（１－カルバゾリル基、２－カルバゾリル基、３－カルバゾリル基、４－カルバゾリル基、又は９－カルバゾリル基）、ベンゾカルバゾリル基、アザカルバゾリル基、ジアザカルバゾリル基、ジベンゾフラニル基、ナフトベンゾフラニル基、アザジベンゾフラニル基、ジアザジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、ナフトベンゾチオフェニル基、アザジベンゾチオフェニル基、ジアザジベンゾチオフェニル基、（９－フェニル）カルバゾリル基（（９－フェニル）カルバゾール－１－イル基、（９－フェニル）カルバゾール－２－イル基、（９－フェニル）カルバゾール－３－イル基、又は（９－フェニル）カルバゾール－４－イル基）、（９－ビフェニリル）カルバゾリル基、（９－フェニル）フェニルカルバゾリル基、ジフェニルカルバゾール－９－イル基、フェニルカルバゾール－９－イル基、フェニルトリアジニル基、ビフェニリルトリアジニル基、ジフェニルトリアジニル基、フェニルジベンゾフラニル基、及びフェニルジベンゾチオフェニル基等である。

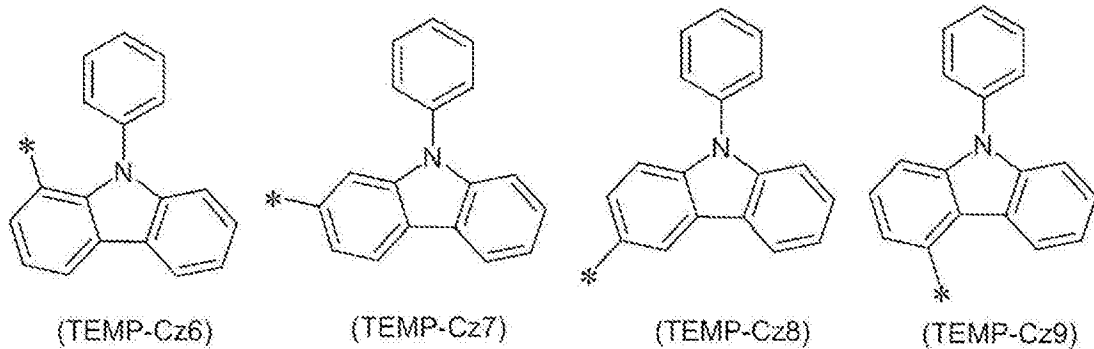
[0077] 本明細書において、カルバゾリル基は、本明細書に別途記載のない限り、具体的には以下のいずれかの基である。

[0078] [化10]



[0079] 本明細書において、（９－フェニル）カルバゾリル基は、本明細書に別途記載のない限り、具体的には以下のいずれかの基である。

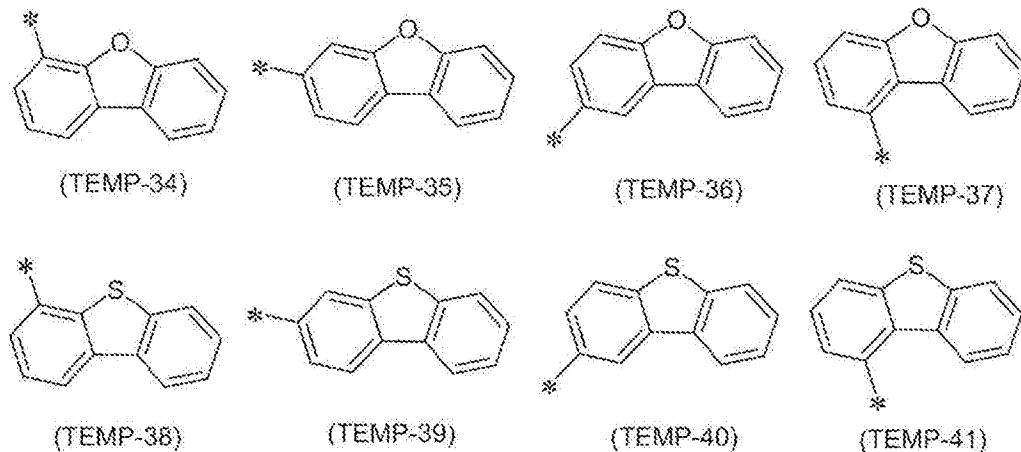
[0080] [化11]



[0081] 前記一般式（TEMP-Cz1）～（TEMP-Cz9）中、*は、結合位置を表す。

[0082] 本明細書において、ジベンゾフラニル基、及びジベンゾチオフェニル基は、本明細書に別途記載のない限り、具体的には以下のいずれかの基である。

[0083] [化12]



[0084] 前記一般式（TEMP-34）～（TEMP-41）中、*は、結合位置を表す。

[0085] 本明細書に記載の置換もしくは無置換のアルキル基は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、及びt-ブチル基等である。

[0086] ・「置換もしくは無置換のアリーレン基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアリーレン基」は、別途記載の

ない限り、上記「置換もしくは無置換のアリール基」からアリール環上の1つの水素原子を除くことにより誘導される2価の基である。「置換もしくは無置換のアリーレン基」の具体例（具体例群G 1 2）としては、具体例群G 1 に記載の「置換もしくは無置換のアリール基」からアリール環上の1つの水素原子を除くことにより誘導される2価の基等が挙げられる。

[0087] ・「置換もしくは無置換の2価の複素環基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換の2価の複素環基」は、別途記載のない限り、上記「置換もしくは無置換の複素環基」から複素環上の1つの水素原子を除くことにより誘導される2価の基である。「置換もしくは無置換の2価の複素環基」の具体例（具体例群G 1 3）としては、具体例群G 2 に記載の「置換もしくは無置換の複素環基」から複素環上の1つの水素原子を除くことにより誘導される2価の基等が挙げられる。

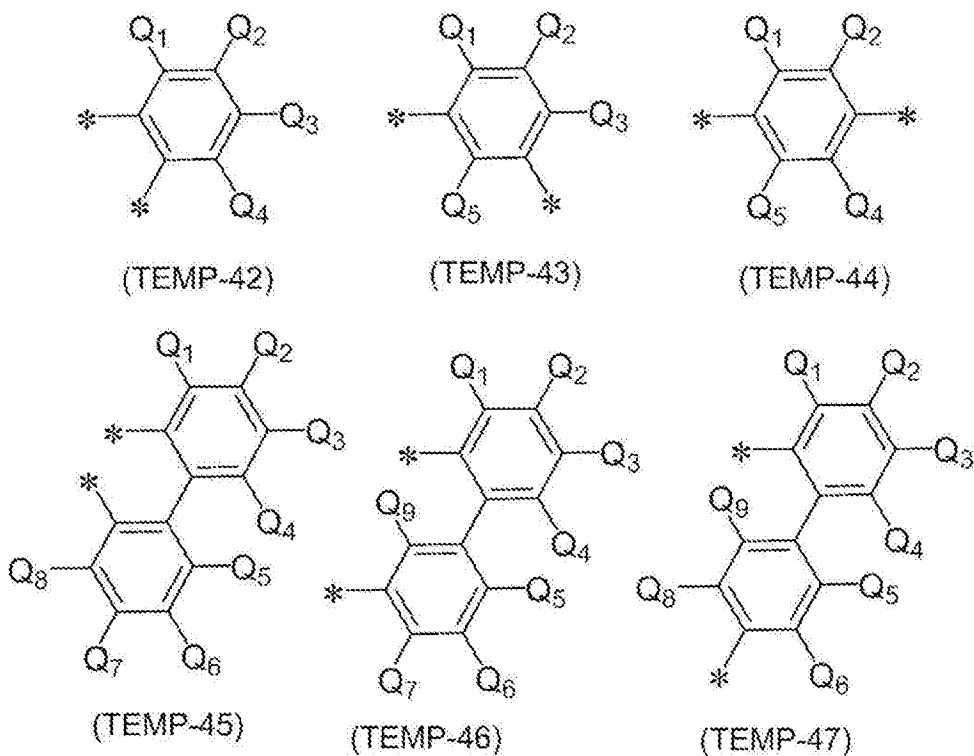
[0088] ・「置換もしくは無置換のアルキレン基」

本明細書に記載の「置換もしくは無置換のアルキレン基」は、別途記載のない限り、上記「置換もしくは無置換のアルキル基」からアルキル鎖上の1つの水素原子を除くことにより誘導される2価の基である。「置換もしくは無置換のアルキレン基」の具体例（具体例群G 1 4）としては、具体例群G 3 に記載の「置換もしくは無置換のアルキル基」からアルキル鎖上の1つの水素原子を除くことにより誘導される2価の基等が挙げられる。

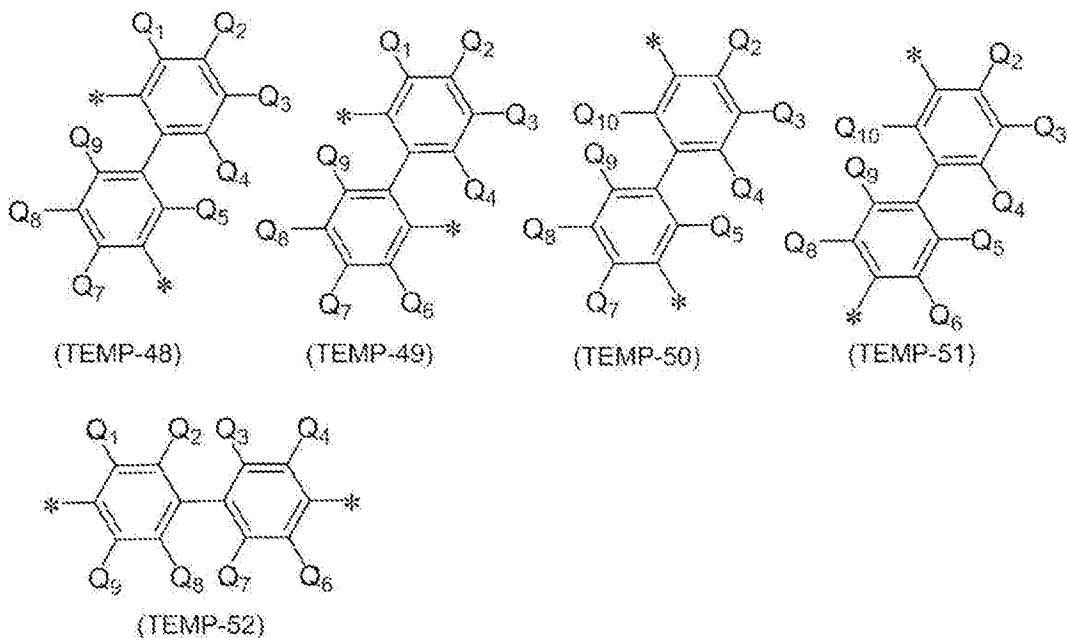
[0089] 本明細書に記載の置換もしくは無置換のアリーレン基は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくは下記一般式（TEMP-4 2）～（TEMP-6 8）のいずれかの基である。

[0090]

[化13]



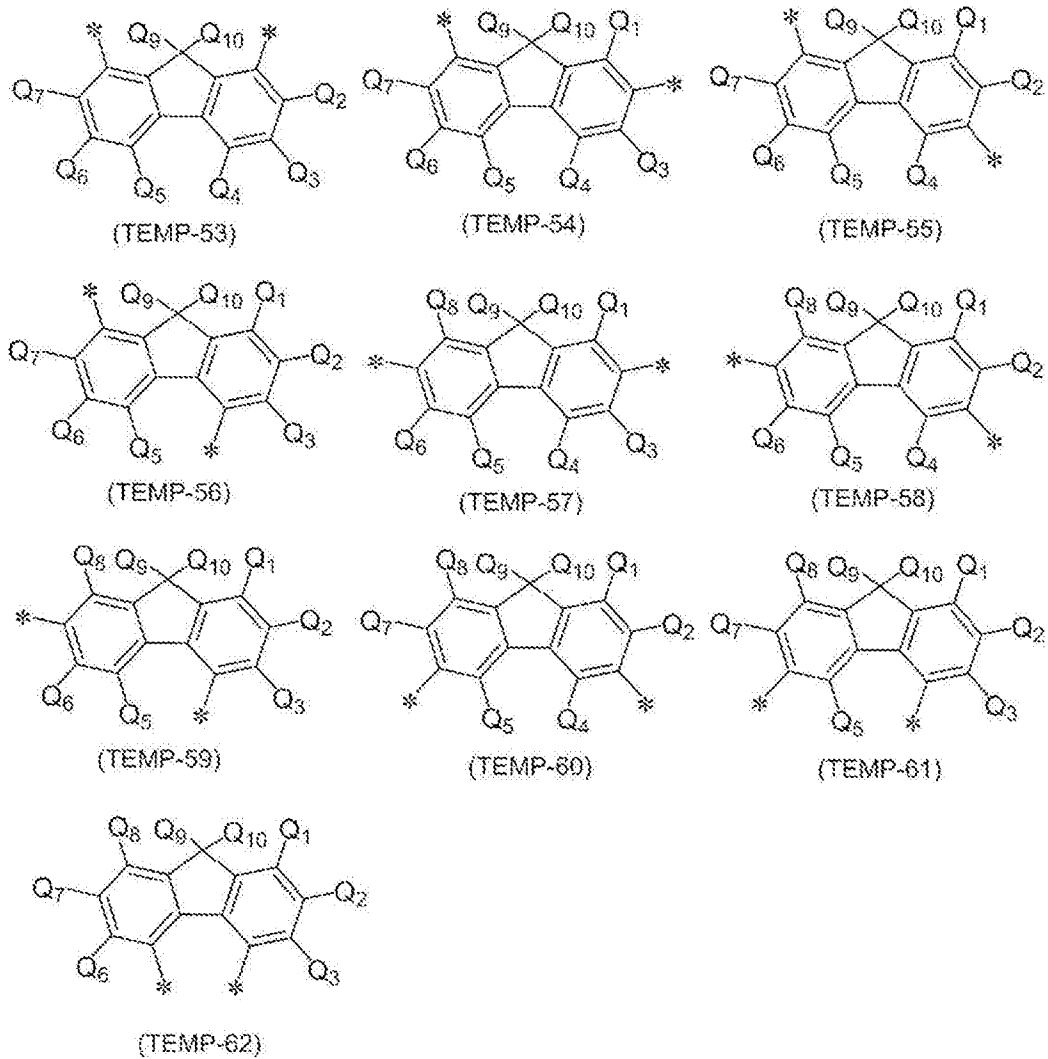
[0091] [化14]



[0092] 前記一般式 (TEMP-42) ~ (TEMP-52) 中、 $Q_1 \sim Q_{10}$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換基である。

前記一般式 (TEMP-42) ~ (TEMP-52) 中、* は、結合位置を表す。

[0093] [化15]



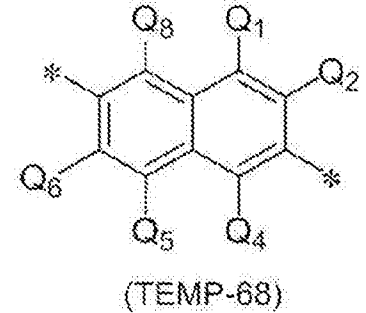
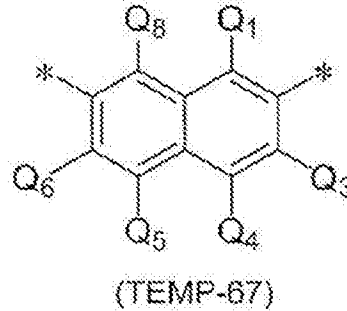
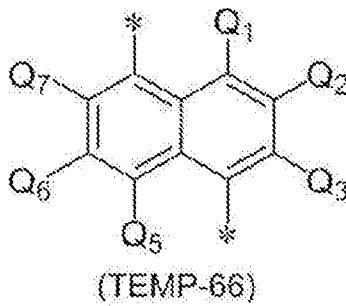
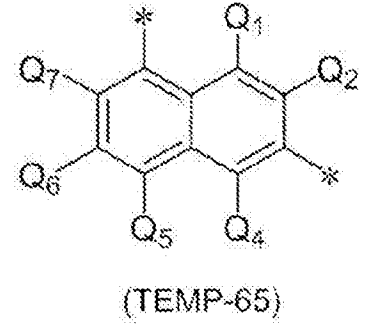
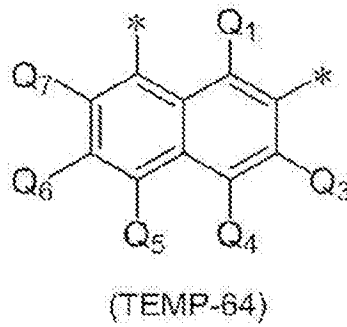
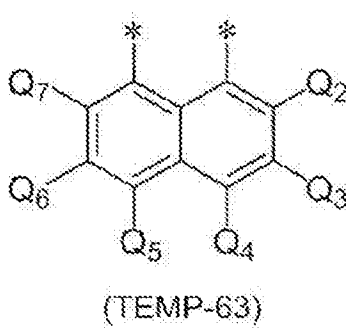
[0094] 前記一般式 (TEMP-53) ~ (TEMP-62) 中、 $Q_1 \sim Q_{10}$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換基である。

式 Q_9 及び Q_{10} は、単結合を介して互いに結合して環を形成してもよい。

前記一般式 (TEMP-53) ~ (TEMP-62) 中、* は、結合位置を表す。

[0095]

[化16]



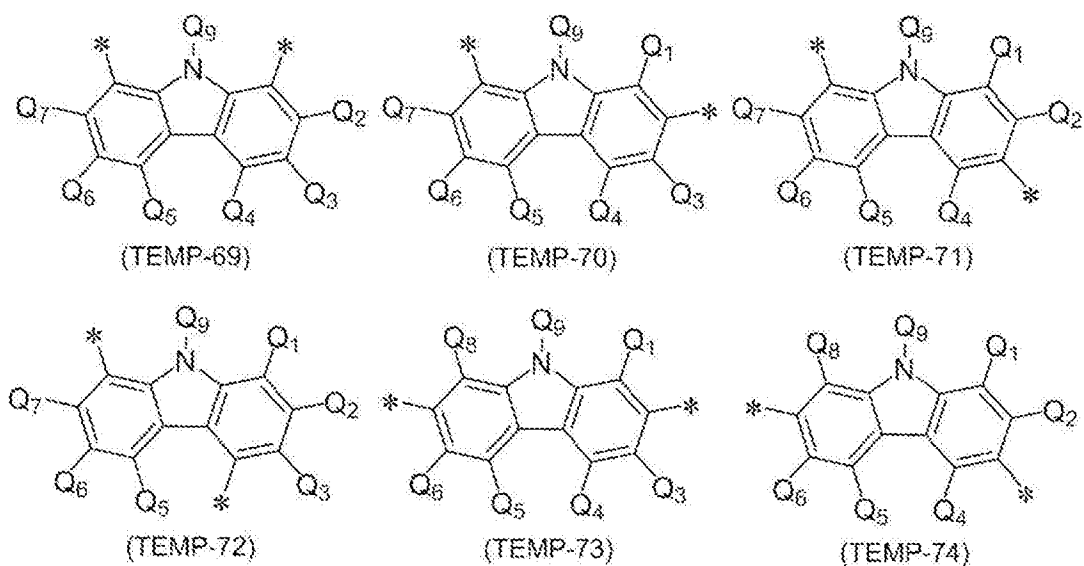
[0096] 前記一般式 (TEMP-63) ~ (TEMP-68) 中、 $Q_1 \sim Q_8$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換基である。

前記一般式 (TEMP-63) ~ (TEMP-68) 中、* は、結合位置を表す。

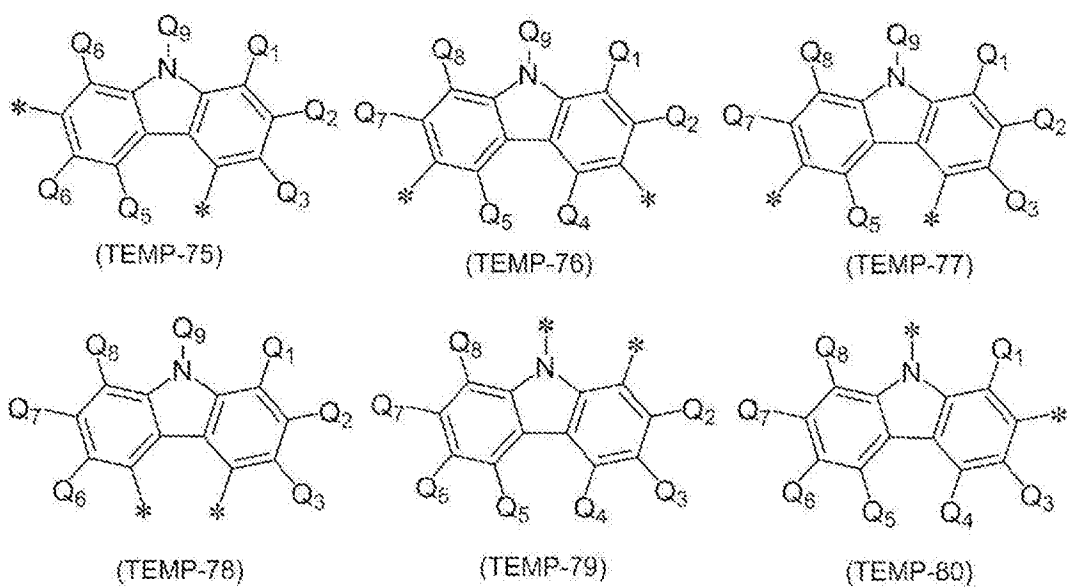
[0097] 本明細書に記載の置換もしくは無置換の2価の複素環基は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくは下記一般式 (TEMP-69) ~ (TEMP-102) のいずれかの基である。

[0098]

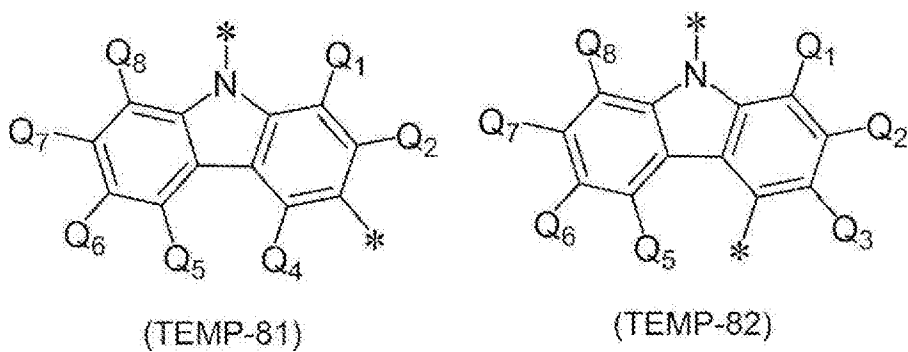
[化17]



[0099] [化18]

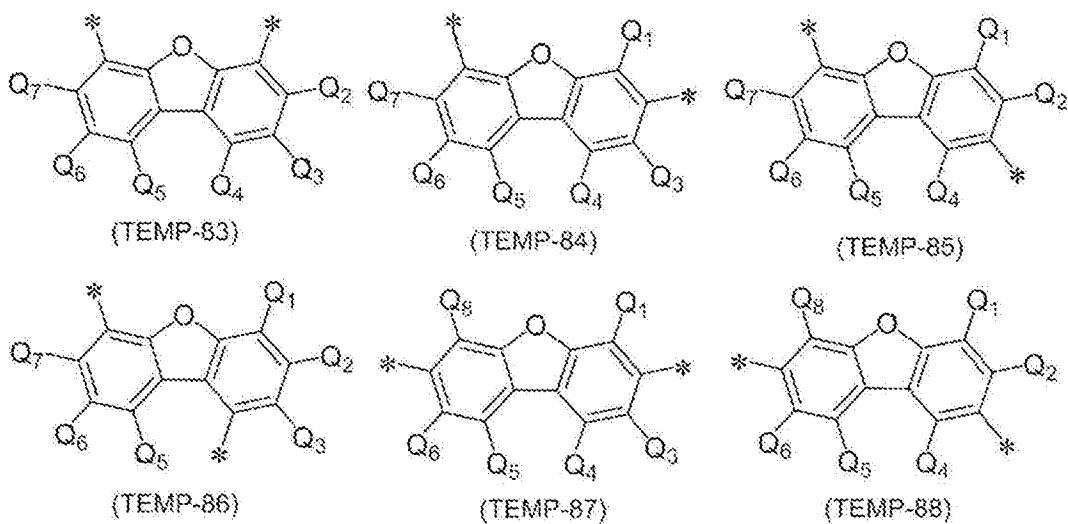


[0100] [化19]

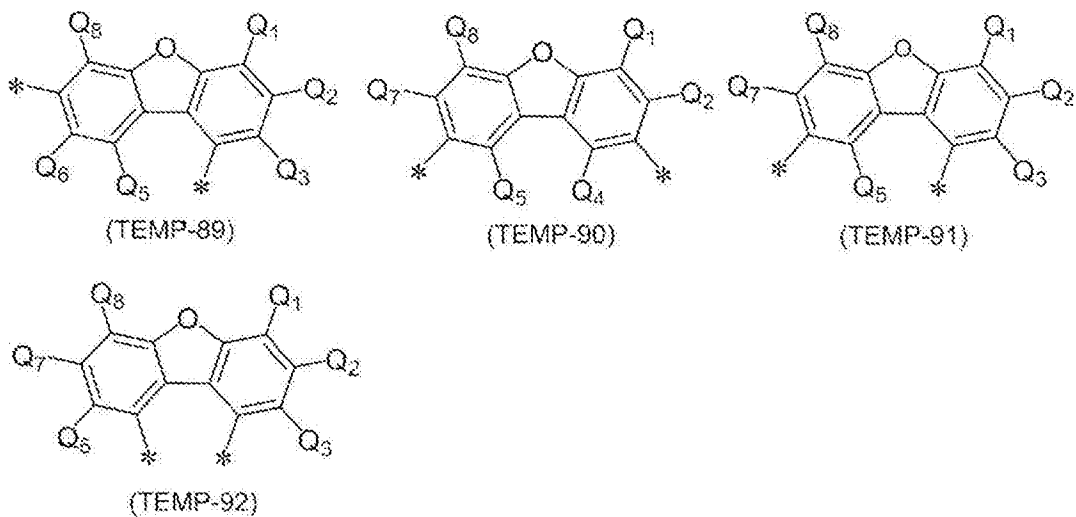
[0101] 前記一般式 (TEMP-69) ~ (TEMP-82) 中、 $Q_1 \sim Q_9$ は、そ

れぞれ独立に、水素原子、又は置換基である。

[0102] [化20]

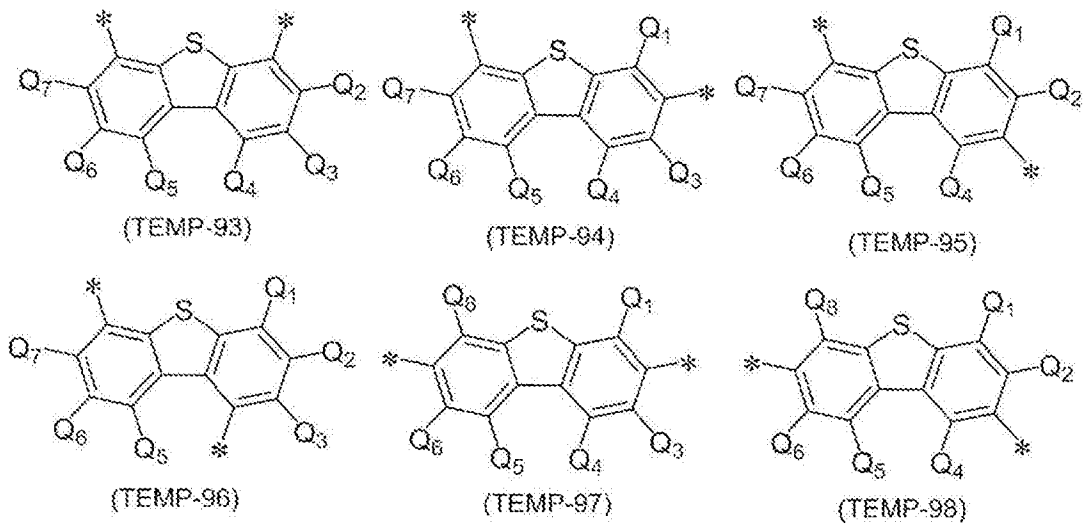


[0103] [化21]

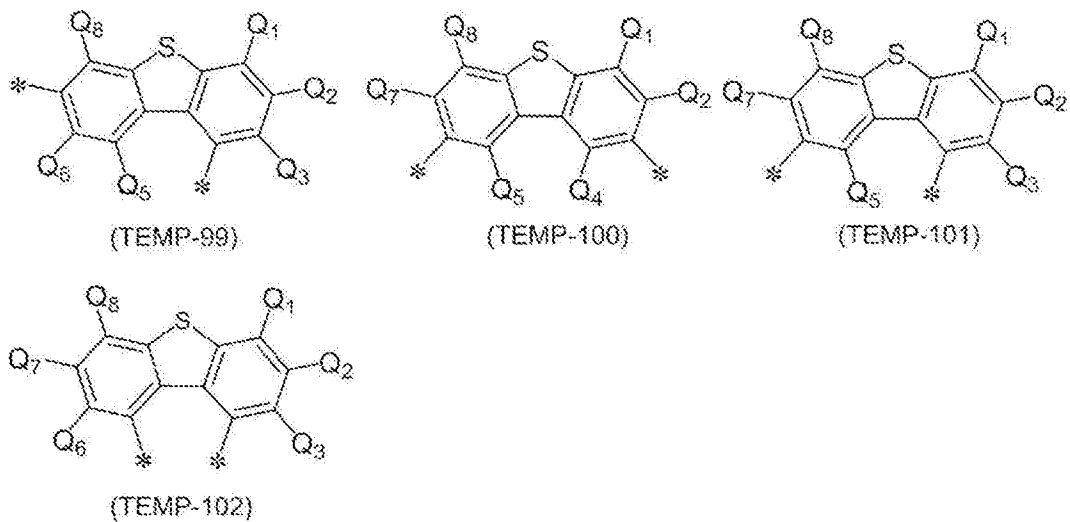


[0104]

[化22]



[0105] [化23]



[0106] 前記一般式 (TEMP-83) ~ (TEMP-102) 中、 $Q_1 \sim Q_8$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は置換基である。

[0107] 以上が、「本明細書に記載の置換基」についての説明である。

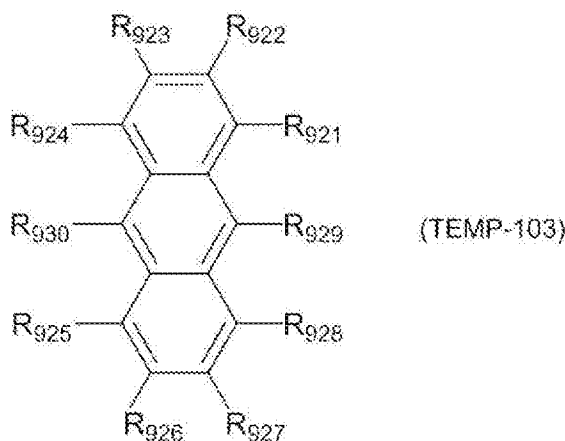
[0108] ・「結合して環を形成する場合」

本明細書において、「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は互いに結合せず」という場合は、「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成する」場合と、「隣接する2つ以上からなる組の1

組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成する」場合と、「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合しない」場合と、を意味する。

本明細書における、「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成する」場合、及び「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成する」場合（以下、これらの場合をまとめて「結合して環を形成する場合」と称する場合がある。）について、以下、説明する。母骨格がアントラセン環である下記一般式（TEMP-103）で表されるアントラセン化合物の場合を例として説明する。

[0109] [化24]

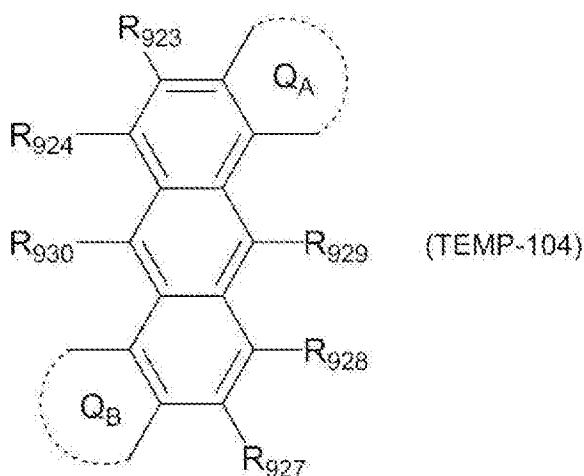


[0110] 例えば、R₉₂₁～R₉₃₀のうちの「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、環を形成する」場合において、1組となる隣接する2つ以上からなる組とは、R₉₂₁とR₉₂₂との組、R₉₂₂とR₉₂₃との組、R₉₂₃とR₉₂₄との組、R₉₂₄とR₉₃₀との組、R₉₃₀とR₉₂₅との組、R₉₂₅とR₉₂₆との組、R₉₂₆とR₉₂₇との組、R₉₂₇とR₉₂₈との組、R₉₂₈とR₉₂₉との組、並びにR₉₂₉とR₉₂₁との組である。

[0111] 上記「1組以上」とは、上記隣接する2つ以上からなる組の2組以上が同時に環を形成してもよいことを意味する。例えば、R₉₂₁とR₉₂₂とが互いに結合して環Q_Aを形成し、同時にR₉₂₅とR₉₂₆とが互いに結合して環Q_Bを形

成した場合は、前記一般式（TEMP-103）で表されるアントラセン化合物は、下記一般式（TEMP-104）で表される。

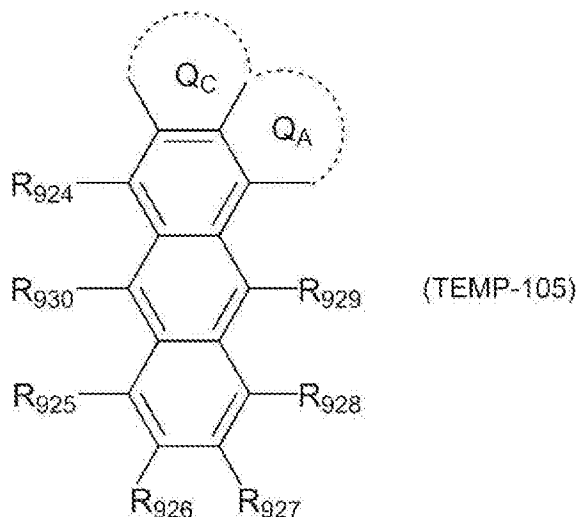
[0112] [化25]



[0113] 「隣接する2つ以上からなる組」が環を形成する場合とは、前述の例のように隣接する「2つ」からなる組が結合する場合だけではなく、隣接する「3つ以上」からなる組が結合する場合も含む。例えば、 R_{921} と R_{922} とが互いに結合して環 Q_A を形成し、かつ、 R_{922} と R_{923} とが互いに結合して環 Q_C を形成し、互いに隣接する3つ（ R_{921} 、 R_{922} 及び R_{923} ）からなる組が互いに結合して環を形成して、アントラセン母骨格に縮合する場合を意味し、この場合、前記一般式（TEMP-103）で表されるアントラセン化合物は、下記一般式（TEMP-105）で表される。下記一般式（TEMP-105）において、環 Q_A 及び環 Q_C は、 R_{922} を共有する。

[0114]

[化26]



[0115] 形成される「単環」、又は「縮合環」は、形成された環のみの構造として、飽和の環であっても不飽和の環であってもよい。「隣接する2つからなる組の1組」が「単環」、又は「縮合環」を形成する場合であっても、当該「単環」、又は「縮合環」は、飽和の環、又は不飽和の環を形成することができる。例えば、前記一般式（TEMP-104）において形成された環 Q_A 及び環 Q_B は、それぞれ、「単環」又は「縮合環」である。また、前記一般式（TEMP-105）において形成された環 Q_A 、及び環 Q_C は、「縮合環」である。前記一般式（TEMP-105）の環 Q_A と環 Q_C とは、環 Q_A と環 Q_C とが縮合することによって縮合環となっている。前記一般式（TEMP-104）の環 Q_A がベンゼン環であれば、環 Q_A は、単環である。前記一般式（TEMP-104）の環 Q_A がナフタレン環であれば、環 Q_A は、縮合環である。

[0116] 「不飽和の環」とは、芳香族炭化水素環、又は芳香族複素環を意味する。

「飽和の環」とは、脂肪族炭化水素環、又は非芳香族複素環を意味する。

芳香族炭化水素環の具体例としては、具体例群G1において具体例として挙げられた基が水素原子によって終端された構造が挙げられる。

芳香族複素環の具体例としては、具体例群G2において具体例として挙げられた芳香族複素環基が水素原子によって終端された構造が挙げられる。

脂肪族炭化水素環の具体例としては、具体例群G6において具体例として

挙げられた基が水素原子によって終端された構造が挙げられる。

「環を形成する」とは、母骨格の複数の原子のみ、あるいは母骨格の複数の原子とさらに1以上の任意の元素で環を形成することを意味する。例えば、前記一般式(TEMP-104)に示す、 R_{921} と R_{922} とが互いに結合して形成された環 Q_A は、 R_{921} が結合するアントラセン骨格の炭素原子と、 R_{922} が結合するアントラセン骨格の炭素原子と、1以上の任意の元素とで形成する環を意味する。具体例としては、 R_{921} と R_{922} とで環 Q_A を形成する場合において、 R_{921} が結合するアントラセン骨格の炭素原子と、 R_{922} とが結合するアントラセン骨格の炭素原子と、4つの炭素原子とで単環の不飽和の環を形成する場合、 R_{921} と R_{922} とで形成する環は、ベンゼン環である。

[0117] ここで、「任意の元素」は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくは、炭素元素、窒素元素、酸素元素、及び硫黄元素からなる群から選択される少なくとも1種の元素である。任意の元素において(例えば、炭素元素、又は窒素元素の場合)、環を形成しない結合は、水素原子等で終端されてもよいし、後述する「任意の置換基」で置換されてもよい。炭素元素以外の任意の元素を含む場合、形成される環は複素環である。

単環または縮合環を構成する「1以上の任意の元素」は、本明細書に別途記載のない限り、好ましくは2個以上15個以下であり、より好ましくは3個以上12個以下であり、さらに好ましくは3個以上5個以下である。

本明細書に別途記載のない限り、「単環」、及び「縮合環」のうち、好ましくは「単環」である。

本明細書に別途記載のない限り、「飽和の環」、及び「不飽和の環」のうち、好ましくは「不飽和の環」である。

本明細書に別途記載のない限り、「単環」は、好ましくはベンゼン環である。

本明細書に別途記載のない限り、「不飽和の環」は、好ましくはベンゼン環である。

「隣接する2つ以上からなる組の1組以上」が、「互いに結合して、置換

もしくは無置換の単環を形成する」場合、又は「互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成する」場合、本明細書に別途記載のない限り、好ましくは、隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、母骨格の複数の原子と、1個以上15個以下の炭素元素、窒素元素、酸素元素、及び硫黄元素からなる群から選択される少なくとも1種の元素とからなる置換もしくは無置換の「不飽和の環」を形成する。

[0118] 上記の「単環」、又は「縮合環」が置換基を有する場合の置換基は、例えば後述する「任意の置換基」である。上記の「単環」、又は「縮合環」が置換基を有する場合の置換基の具体例は、上述した「本明細書に記載の置換基」の項で説明した置換基である。

上記の「飽和の環」、又は「不飽和の環」が置換基を有する場合の置換基は、例えば後述する「任意の置換基」である。上記の「単環」、又は「縮合環」が置換基を有する場合の置換基の具体例は、上述した「本明細書に記載の置換基」の項で説明した置換基である。

以上が、「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成する」場合、及び「隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成する」場合（「結合して環を形成する場合」）についての説明である。

[0119] ・「置換もしくは無置換の」という場合の置換基

本明細書における一実施形態においては、前記「置換もしくは無置換の」という場合の置換基（本明細書において、「任意の置換基」と呼ぶことがある。）は、例えば、

無置換の炭素数1～50のアルキル基、

無置換の炭素数2～50のアルケニル基、

無置換の炭素数2～50のアルキニル基、

無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、

—Si(R₉₀₁)(R₉₀₂)(R₉₀₃)、

—O—(R₉₀₄)、

—S— (R_{905})、

—N (R_{906}) (R_{907})、

ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、

無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、及び無置換の環形成原子数 5～50 の複素環基からなる群から選択される基等であり、

ここで、 $R_{901} \sim R_{907}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～50 のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 の複素環基である。

R_{901} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{901} は、互いに同一であるか、又は異なり、

R_{902} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{902} は、互いに同一であるか、又は異なり、

R_{903} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{903} は、互いに同一であるか、又は異なり、

R_{904} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{904} は、互いに同一であるか、又は異なり、

R_{905} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{905} は、互いに同一であるか、又は異なり、

R_{906} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{906} は、互いに同一であるか、又は異なり、

R_{907} が 2 個以上存在する場合、2 個以上の R_{907} は、互いに同一であるか又は異なる。

[0120] 一実施形態においては、前記「置換もしくは無置換の」という場合の置換基は、

炭素数 1～50 のアルキル基、

環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、及び環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基からなる群から選択される基である。

[0121] 一実施形態においては、前記「置換もしくは無置換の」という場合の置換基は、

炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、

環形成炭素数 6 ～ 18 のアリール基、及び環形成原子数 5 ～ 18 の複素環基からなる群から選択される基である。

[0122] 上記任意の置換基の各基の具体例は、上述した「本明細書に記載の置換基」の項で説明した置換基の具体例である。

[0123] 本明細書において別途記載のない限り、隣接する任意の置換基同士で、「飽和の環」、又は「不飽和の環」を形成してもよく、好ましくは、置換もしくは無置換の飽和の 5 員環、置換もしくは無置換の飽和の 6 員環、置換もしくは無置換の不飽和の 5 員環、又は置換もしくは無置換の不飽和の 6 員環を形成し、より好ましくは、ベンゼン環を形成する。

本明細書において別途記載のない限り、任意の置換基は、さらに置換基を有してもよい。任意の置換基がさらに有する置換基としては、上記任意の置換基と同様である。

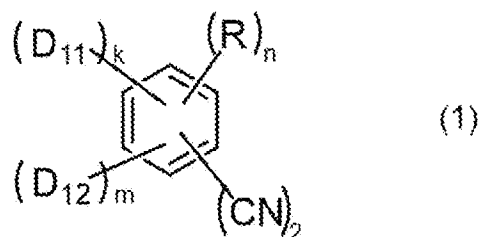
[0124] 本明細書において、「A A ～ B B」を用いて表される数値範囲は、「A A ～ B B」の前に記載される数値 A A を下限値とし、「A A ～ B B」の後に記載される数値 B B を上限値として含む範囲を意味する。

[0125] 〔第一実施形態〕

<化合物>

本実施形態に係る化合物は、下記一般式 (1) で表される化合物である。

[0126] [化27]



[0127] (前記一般式 (1) において、

CNは、シアノ基であり、

D_{11} 及び D_{12} は、それぞれ独立に、下記一般式 (11)、一般式 (12) 又は一般式 (13) で表される基であり、但し、少なくとも1つの D_{11} は、下記一般式 (12) 又は一般式 (13) で表される基であり、

Rは、それぞれ独立して、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903})で表される基、

—O—(R_{904})で表される基、

—S—(R_{905})で表される基、

—N(R_{906})(R_{907})で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数7～50のアラルキル基、

—C(=O) R_{908} で表される基、

—COO R_{909} で表される基、

シアノ基、

ニトロ基、

—P(=O)(R_{931})(R_{932})で表される基、

—Ge(R_{933})(R_{934})(R_{935})で表される基、

—B(R_{936})(R_{937})で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

但し、少なくとも1つのRは、置換基であり、少なくとも1つの置換基としてのRは、前記一般式 (1) 中のベンゼン環との炭素—炭素結合により結

合し、

k は、1 又は 2 であり、

m は、0、1 又は 2 であり、

n は、1、2 又は 3 であり、

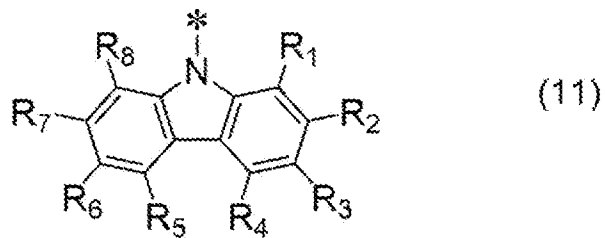
k + m + n は、4 であり、

k が 2 のとき、複数の D_{11} は、互いに同一であるか、又は異なり、

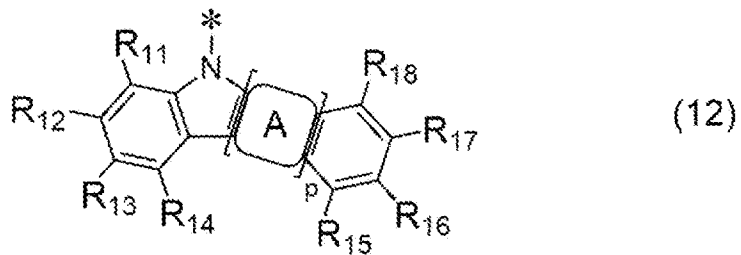
m が 2 のとき、複数の D_{12} は、互いに同一であるか、又は異なり、

n が 2 又は 3 のとき、複数の R は、互いに同一であるか、又は異なる。))

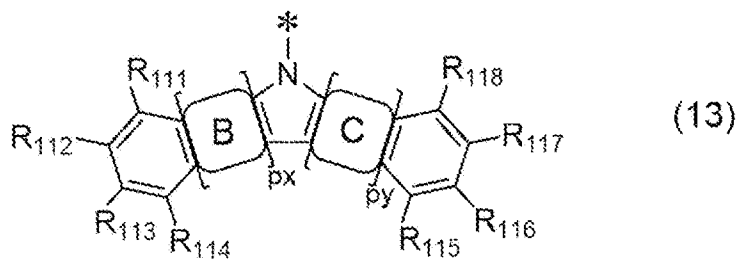
[0128] [化28]



[0129] [化29]



[0130] [化30]



[0131] (前記一般式 (12) における $R_{11} \sim R_{18}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (13) における $R_{111} \sim R_{118}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (11) における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式 (12) における置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{11} \sim R_{18}$ 、並びに前記一般式 (13) における置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{111} \sim R_{118}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903}) で表される基、

—O—(R_{904}) で表される基、

—S—(R_{905}) で表される基、

—N(R_{906})(R_{907}) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C(=O) R_{908} で表される基、

—COOR $_{909}$ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

—P(=O)(R₉₃₁)(R₉₃₂)で表される基、

—Ge(R₉₃₃)(R₉₃₄)(R₉₃₅)で表される基、

—B(R₉₃₆)(R₉₃₇)で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

前記一般式(12)及び前記一般式(13)において、

環A、環B及び環Cは、それぞれ独立に、下記一般式(14)及び一般式(15)で表される環構造からなる群から選択されるいずれかの環構造であり、

環A、環B及び環Cは、隣接する環と任意の位置で縮合し、

p、p_x及びp_yは、それぞれ独立に、1、2、3又は4であり、

pが2、3又は4の場合、複数の環Aは、互いに同一であるか、又は異なり、

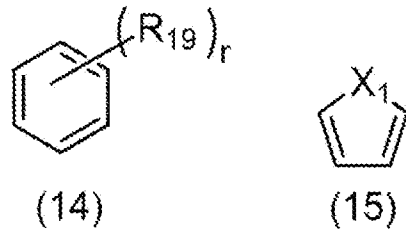
p_xが2、3又は4の場合、複数の環Bは、互いに同一であるか、又は異なり、

p_yが2、3又は4の場合、複数の環Cは、互いに同一であるか、又は異なり、

但し、少なくとも1つのD₁₁は、前記一般式(12)又は一般式(13)で表される基であって、このD₁₁としての前記一般式(12)中のpが4であり、4つの環Aが2つの下記一般式(14)で表される環構造及び2つの下記一般式(15)で表される環構造を含み、このD₁₁としての前記一般式(13)中のp_x及びp_yが2であり、2つの環Bが1つの下記一般式(14)で表される環構造及び1つの下記一般式(15)で表される環構造を含み、2つの環Cが1つの下記一般式(14)で表される環構造及び1つの下記一般式(15)で表される環構造を含み、

前記一般式(11)～(13)中の*は、前記一般式(1)中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[0132] [化31]



[0133] (前記一般式 (14) において、

r は、0、2 又は 4 であり、

複数の R_{19} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (15) において、 X_1 は、硫黄原子又は酸素原子であり、置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{19} は、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903}) で表される基、—O—(R_{904}) で表される基、—S—(R_{905}) で表される基、—N(R_{906})(R_{907}) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C(=O) R_{908} で表される基、—COOR $_{909}$ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

—P(=O)(R₉₃₁)(R₉₃₂)で表される基、

—Ge(R₉₃₃)(R₉₃₄)(R₉₃₅)で表される基、

—B(R₉₃₆)(R₉₃₇)で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

複数のR₁₉は、互いに同一であるか又は異なり、

複数のX₁は、互いに同一であるか又は異なり、

ただし、前記一般式(13)で表される基であるD₁₁は、下記条件(Pv1)、条件(Pv2)及び条件(Pv3)の少なくともいずれかを満たす。

条件(Pv1)：kが2のとき、環Bとしての前記一般式(15)で表される環構造中のX₁及び環Cとしての前記一般式(15)で表される環構造中のX₁の少なくともいずれかが、酸素原子である。

条件(Pv2)：kが2のとき、2つのD₁₁は、互いに異なる。

条件(Pv3)：nが3のとき、環Bとしての前記一般式(15)で表される環構造中のX₁及び環Cとしての前記一般式(15)で表される環構造中のX₁は、それぞれ独立に、硫黄原子又は酸素原子である。)

(一般式中、R₉₀₁、R₉₀₂、R₉₀₃、R₉₀₄、R₉₀₅、R₉₀₆、R₉₀₇、R₉₀₈、R₉₀₉、R₉₃₁、R₉₃₂、R₉₃₃、R₉₃₄、R₉₃₅、R₉₃₆及びR₉₃₇は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

R₉₀₁が複数存在する場合、複数のR₉₀₁は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{902} が複数存在する場合、複数の R_{902} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{903} が複数存在する場合、複数の R_{903} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{904} が複数存在する場合、複数の R_{904} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{905} が複数存在する場合、複数の R_{905} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{906} が複数存在する場合、複数の R_{906} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{907} が複数存在する場合、複数の R_{907} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{908} が複数存在する場合、複数の R_{908} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{909} が複数存在する場合、複数の R_{909} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{931} が複数存在する場合、複数の R_{931} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{932} が複数存在する場合、複数の R_{932} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{933} が複数存在する場合、複数の R_{933} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{934} が複数存在する場合、複数の R_{934} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{935} が複数存在する場合、複数の R_{935} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{936} が複数存在する場合、複数の R_{936} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{937} が複数存在する場合、複数の R_{937} は、互いに同一であるか又は異なる。))

[0134] 本実施形態によれば、P L Q Yの高い化合物を提供することができる。

[0135] 本実施形態に係る化合物において、 D_{11} 及び D_{12} が互いに異なる基である場合、又は複数の D_{11} が互いに異なる基である場合、本実施形態に係る化合物を有機E L素子の有機層に利用した際に正孔注入特性が向上し、発光効率及び寿命の少なくともいずれかが向上する。具体的には、 D_{11} 及び D_{12} が異なる酸化電位を有するため、段階的に正孔が有機層へ注入されるためである。

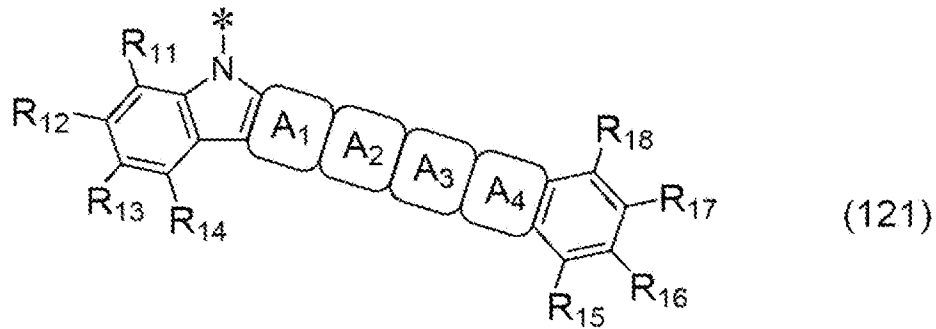
また、本実施形態に係る化合物において、全ての D_{11} 及び D_{12} が、 X_1 以外の点で化学構造が互いに同じ基である場合、少なくとも1つの X_1 が酸素原子であれば、有機E L素子が長寿命化する。少なくとも1つの X_1 が酸素原子である基は、全ての X_1 が硫黄原子である基に比べて、一般式(1)に示されるベンゼン環に対する結合角度が小さくなるため、本実施形態に係る化合物を有機層に用いることで、長寿命化すると考えられる。

[0136] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(11)～(13)で表される基等が結合する前記一般式(1)のベンゼン環とは、前記一般式(1)において明示的に示されているベンゼン環そのものであって、R、 D_{11} 及び D_{12} に含まれるベンゼン環ではない。

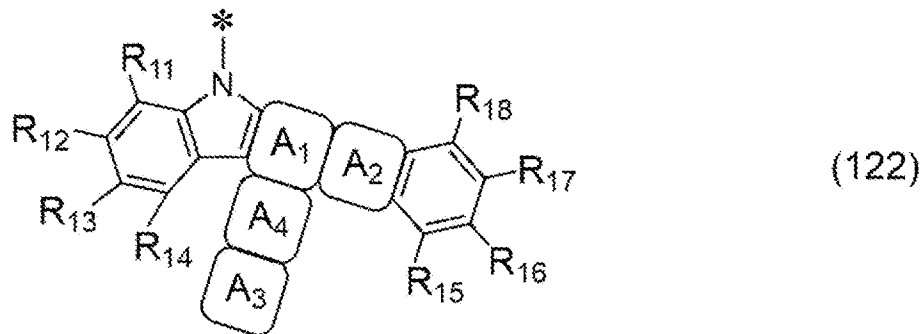
後述する一般式(110)、(120)、(130)、(126)、(127)、(126A)、(127A)、(127B)、(111)、(112)及び(113)で表される化合物においても、これら一般式において明示的に示されているベンゼン環そのものに、前記一般式(11)～(13)で表される基等は、前記一般式(1)の場合と同様、結合する。

[0137] 本実施形態に係る化合物において、少なくとも1つの D_{11} は、下記一般式(121)、一般式(122)又は一般式(131)で表される基であることが好ましい。

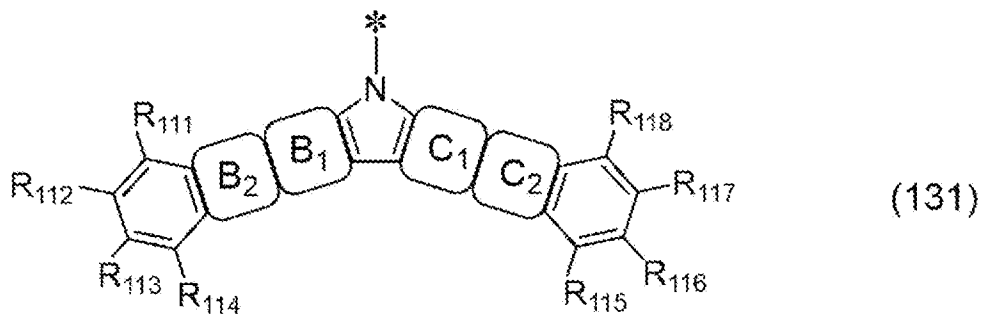
[0138] [化32]



[0139] [化33]



[0140] [化34]



[0141] (前記一般式(121)及び一般式(122)において、 $R_{11} \sim R_{18}$ は、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ と同義であり、

環 A_1 、環 A_2 、環 A_3 及び環 A_4 の内、2つが前記一般式(14)で表される環構造であり、残りの2つが前記一般式(15)で表される環構造であり、

前記一般式(131)において、 $R_{111} \sim R_{118}$ は、前記一般式(13)における $R_{111} \sim R_{118}$ と同義であり、

環 B_1 及び環 B_2 の一方が、前記一般式(14)で表される環構造であり、

環 B_1 及び環 B_2 の他方が、前記一般式 (15) で表される環構造であり、
 環 C_1 及び環 C_2 の一方が、前記一般式 (14) で表される環構造であり、
 環 C_1 及び環 C_2 の他方が、前記一般式 (15) で表される環構造であり、
 前記一般式 (121)、一般式 (122) 及び一般式 (131) 中の*は
 、前記一般式 (1) 中のベンゼン環との結合位置を示す。)

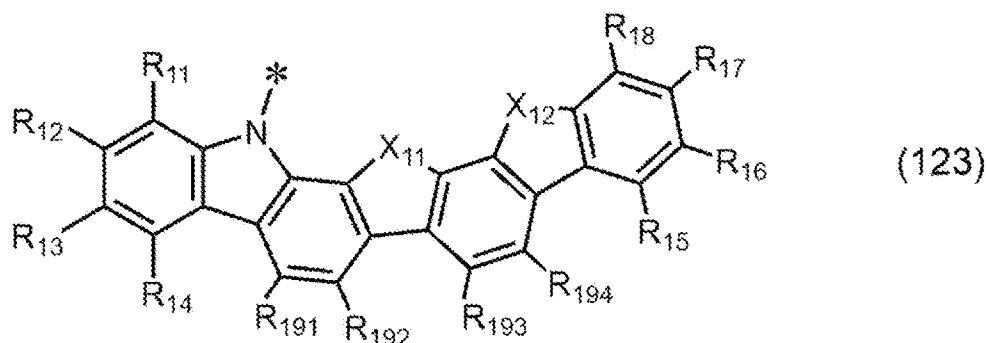
[0142] 本実施形態に係る化合物において、環 A_1 及び環 A_3 が、前記一般式 (14) で表される環構造であり、環 A_2 及び環 A_4 が前記一般式 (15) で表される環構造であることが好ましい。

本実施形態に係る化合物において、環 B_1 が、前記一般式 (14) で表される環構造であり、環 B_2 が、前記一般式 (15) で表される環構造であり、環 C_1 が、前記一般式 (14) で表される環構造であり、環 C_2 が、前記一般式 (15) で表される環構造であることが好ましい。

[0143] 本実施形態に係る化合物において、少なくとも1つの D_{11} が、前記一般式 (131) で表される基であることが好ましい。

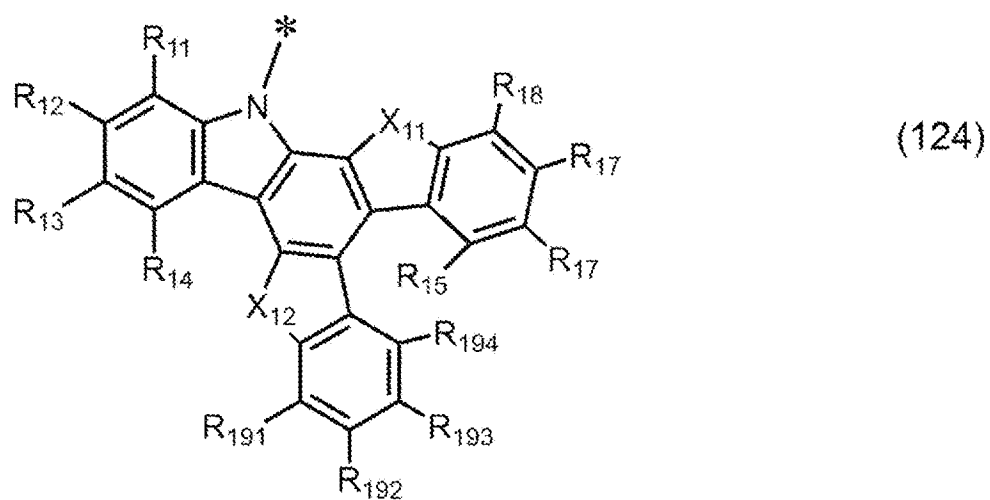
[0144] 本実施形態に係る化合物において、少なくとも1つの D_{11} が、下記一般式 (123)、一般式 (124)、一般式 (125) 又は一般式 (132) で表される基であることが好ましい。

[0145] [化35]

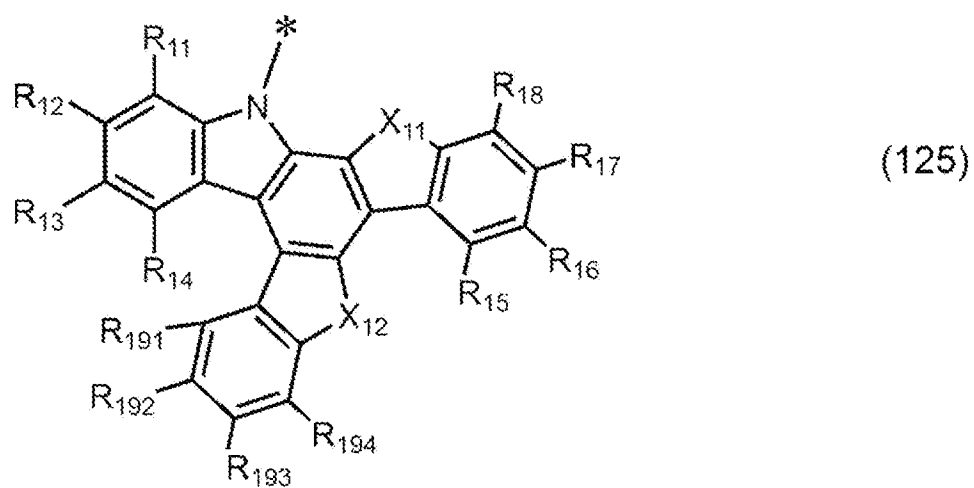


[0146]

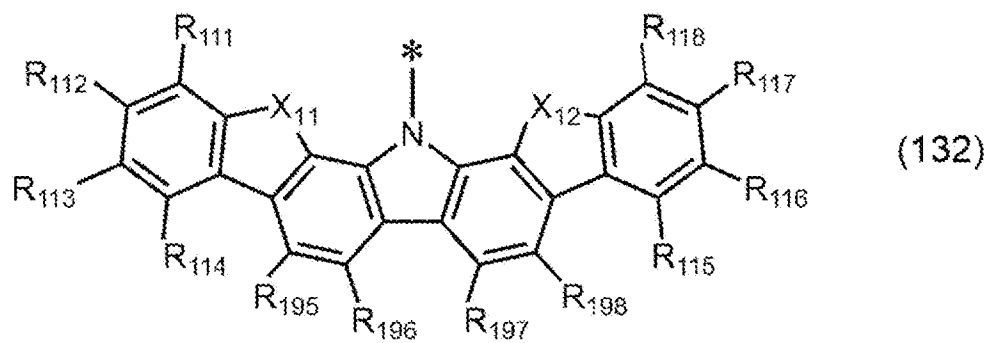
[化36]



[0147] [化37]



[0148] [化38]



[0149] (前記一般式(123)、一般式(124)及び一般式(125)において

、 $R_{11} \sim R_{18}$ は、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ と同義であり、 $R_{191} \sim R_{194}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(14)における R_{19} と同義であり、

前記一般式(132)において、 $R_{111} \sim R_{118}$ は、前記一般式(13)における $R_{111} \sim R_{118}$ と同義であり、 $R_{195} \sim R_{198}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(14)における R_{19} と同義であり、

前記一般式(123)、一般式(124)、一般式(125)及び一般式(132)において、 X_{11} 及び X_{12} は、それぞれ独立に、前記一般式(15)における X_1 と同義であり、*は、前記一般式(1)中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[0150] 本実施形態に係る化合物において、 $R_{191} \sim R_{194}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しないことが好ましい。

本実施形態に係る化合物において、 $R_{195} \sim R_{198}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しないことが好ましい。

[0151] 本実施形態に係る化合物において、 X_{11} が硫黄原子であることが好ましい。

[0152] 本実施形態に係る化合物において、一般式(123)、一般式(124)及び一般式(125)で表される基における X_{11} が硫黄原子であることが好ましい。

[0153] 本実施形態に係る化合物において、少なくとも1つの D_{11} が、前記一般式(132)で表される基であることが好ましい。

本実施形態に係る化合物において、一般式(132)で表される基における X_{11} が硫黄原子であることが好ましい。本実施形態に係る化合物において、一般式(132)で表される基における X_{11} が硫黄原子であり、 X_{12} が硫黄原子又は酸素原子であることがより好ましい。

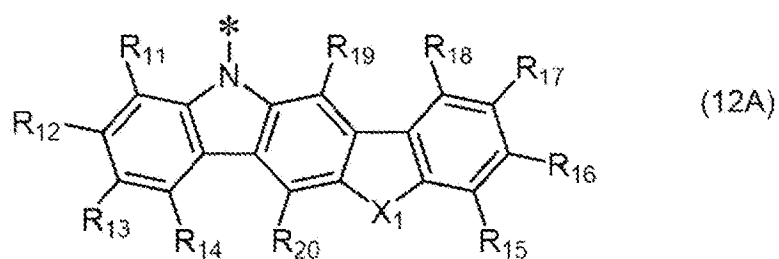
[0154] 本実施形態に係る化合物において、 D_{12} は、前記一般式(11)又は前記一般式(12)で表される基であることが好ましい。

[0155] 本実施形態に係る化合物において、 D_{12} は、前記一般式(12)で表され

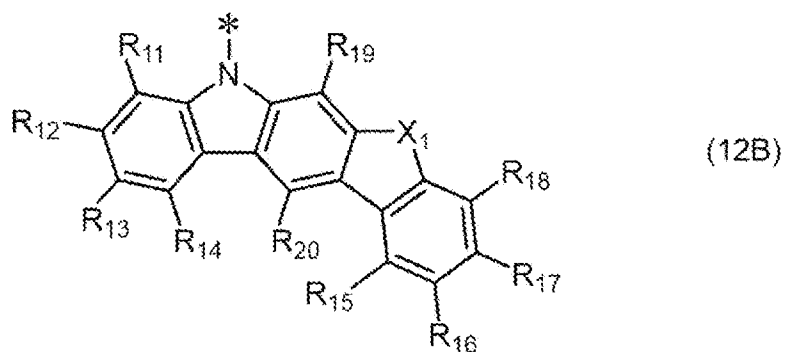
る基であることが好ましい。

[0156] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(12)で表される基は、下記一般式(12A)、(12B)、(12C)、(12D)、(12E)及び(12F)で表される基からなる群から選択されるいずれかの基であることが好ましい。

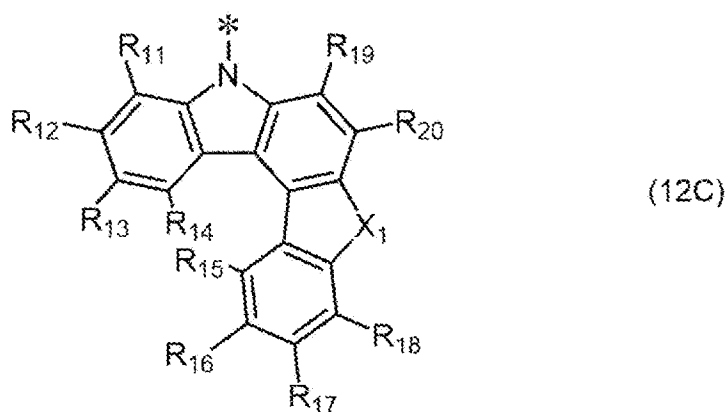
[0157] [化39]



[0158] [化40]

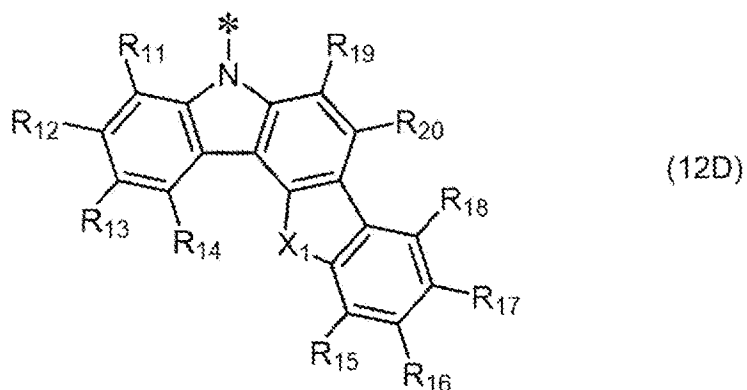


[0159] [化41]

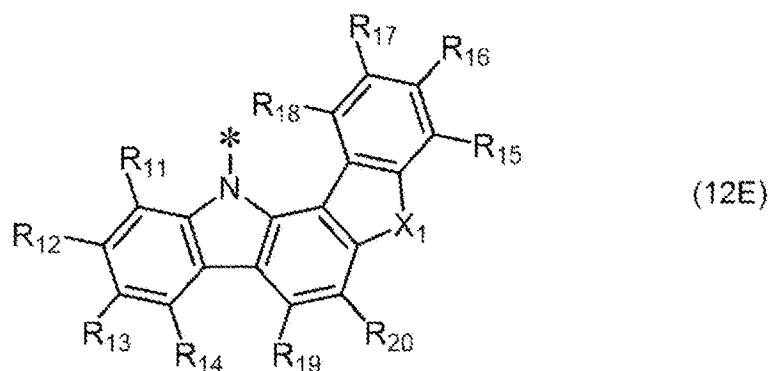


[0160]

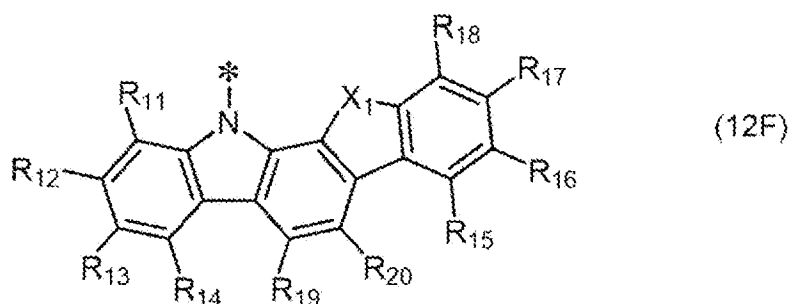
[化42]



[0161] [化43]



[0162] [化44]



[0163] (前記一般式(12A)、(12B)、(12C)、(12D)、(12E)及び(12F)において、

$R_{11} \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ と同義であり、

R_{19} 及び R_{20} は、それぞれ独立に、前記一般式(14)における R_{19} と同

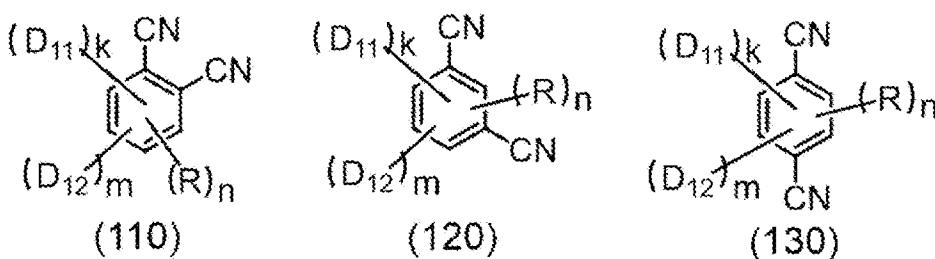
義であり、

X_1 は、前記一般式(15)における X_1 と同義であり、

前記一般式(12A)、(12B)、(12C)、(12D)、(12E)及び(12F)中の*は、前記一般式(1)中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[0164] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)で表される化合物は、下記一般式(110)、一般式(120)又は一般式(130)で表されることが好ましい。

[0165] [化45]



[0166] (前記一般式(110)、一般式(120)及び一般式(130)において、 D_{11} 、 D_{12} 、 R 、 k 、 m 及び n は、それぞれ、前記一般式(1)における D_{11} 、 D_{12} 、 R 、 k 、 m 及び n と同義である。)

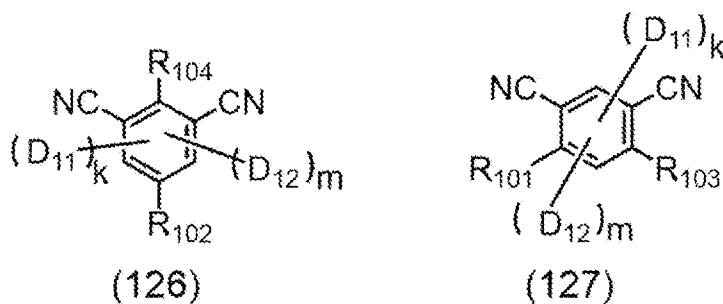
[0167] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)中の n が2又は3であることが好ましい。

[0168] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)中の n が2であることも好ましい。

[0169] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)で表される化合物は、下記一般式(126)又は一般式(127)で表されることも好ましい。

[0170]

[化46]



[0171] (前記一般式(126)及び一般式(127)において、 D_{11} は、前記一般式(1)における D_{11} と同義であり、 D_{12} は、前記一般式(1)における D_{12} と同義であり、 $R_{101} \sim R_{104}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(1)における R と同義であり、 k は、1又は2であり、 m は、0又は1であり、 $k+m$ は、2である。)

[0172] 本実施形態に係る化合物において、 k が2であり、2つの D_{11} の内、一方の D_{11} が前記一般式(12)で表される基であり、他方の D_{11} が前記一般式(13)で表される基であることも好ましい。

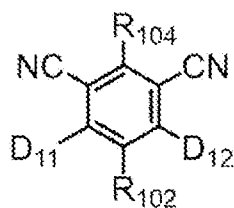
[0173] 本実施形態に係る化合物において、 k が2であり、2つの D_{11} が前記一般式(13)で表される基であり、 D_{11} としての2つの一般式(13)で表される基は、互いに異なることも好ましい。

[0174] 本実施形態に係る化合物において、 k 及び m が1であり、 D_{11} 及び D_{12} の内、一方が前記一般式(12)で表される基であり、他方が前記一般式(13)で表される基であることも好ましい。

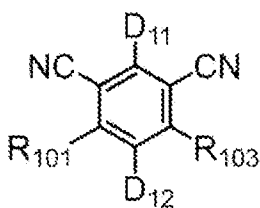
[0175] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)で表される化合物は、下記一般式(126A)、一般式(127A)又は一般式(127B)で表されることも好ましい。

[0176]

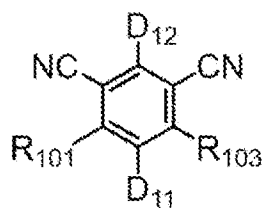
[化47]



(126A)



(127A)



(127B)

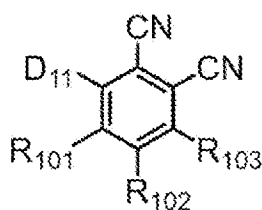
[0177] (前記一般式(126A)、一般式(127A)及び一般式(127B)において、 D_{11} は、前記一般式(1)における D_{11} と同義であり、 D_{12} は、前記一般式(1)における D_{12} と同義であり、 $R_{101} \sim R_{104}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(1)におけるRと同義である。)

[0178] 前記一般式(126A)、一般式(127A)及び一般式(127B)において、 D_{11} 及び D_{12} は、互いに異なる基であることが好ましい。

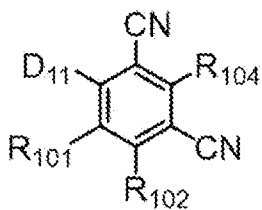
[0179] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)中のnが3であることも好ましい。

[0180] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)で表される化合物は、下記一般式(111)、一般式(112)又は一般式(113)で表されることも好ましい。

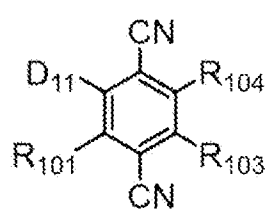
[0181] [化48]



(111)



(112)



(113)

[0182] (前記一般式(111)、一般式(112)及び一般式(113)において、 D_{11} は、前記一般式(1)における D_{11} と同義であり、 $R_{101} \sim R_{104}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(1)におけるRと同義である。)

[0183] 本実施形態に係る化合物において、複数のRのうちの隣接する2つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しない。

本実施形態に係る化合物において、 $R_{101} \sim R_{104}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しない。

[0184] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)中のRは、それぞれ独立して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～14の複素環基であることが好ましい。

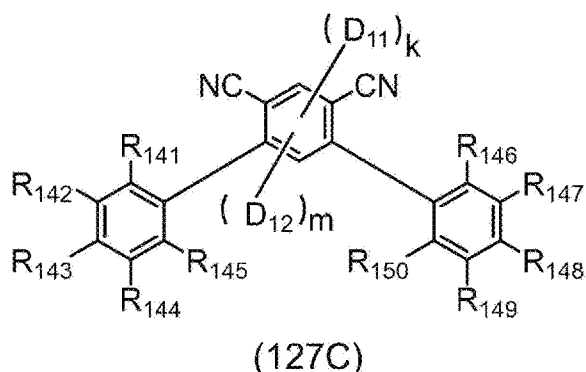
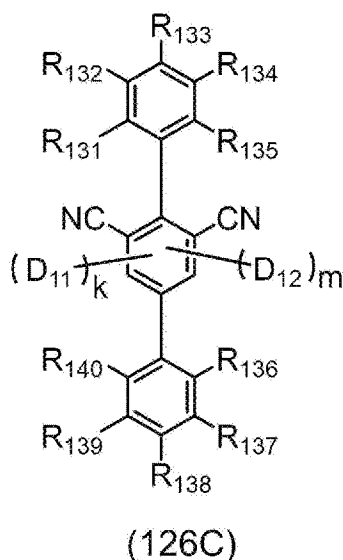
[0185] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)中のRは、それぞれ独立して、置換もしくは無置換のフェニル基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数6の複素環基であることが好ましい。

[0186] 本実施形態に係る化合物において、 $R_{101} \sim R_{104}$ は、それぞれ独立して、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～14の複素環基であることが好ましい。

本実施形態に係る化合物において、 $R_{101} \sim R_{104}$ は、それぞれ独立して、置換もしくは無置換のフェニル基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数6の複素環基であることが好ましい。

[0187] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式(1)で表される化合物は、下記一般式(126C)又は(127C)で表されることも好ましい。

[0188] [化49]

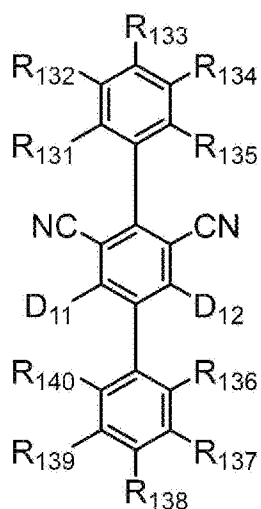


[0189] (前記一般式(126C)及び一般式(127C)において、 D_{11} は、前記

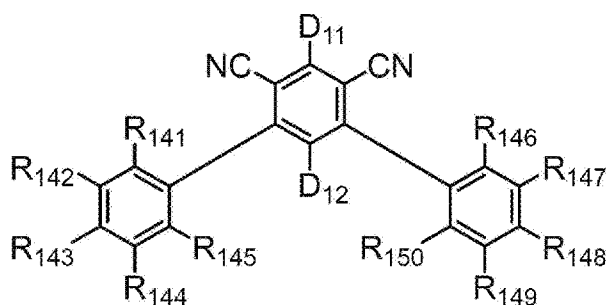
一般式（１）における D_{11} と同義であり、 D_{12} は、前記一般式（１）における D_{12} と同義であり、 $R_{131} \sim R_{140}$ 及び $R_{141} \sim R_{150}$ は、それぞれ独立に、前記一般式（１）における R と同義であり、 k は、１又は２であり、 m は、０又は１であり、 $k + m$ は、２である。）

[0190] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式（１）で表される化合物は、下記一般式（１２６Ｄ）又は（１２７Ｄ）で表されることも好ましい。

[0191] [化50]



(126D)



(127D)

[0192] （前記一般式（１２６Ｄ）及び（１２７Ｄ）において、 D_{11} は、前記一般式（１）における D_{11} と同義であり、 D_{12} は、前記一般式（１）における D_{12} と同義であり、 $R_{131} \sim R_{140}$ 及び $R_{141} \sim R_{150}$ は、それぞれ独立に、前記一般式（１）における R と同義である。）

[0193] 本実施形態に係る化合物において、 D_{11} は、前記一般式（１３２）で表される基であり、 D_{12} は、前記一般式（１２Ａ）～（１２Ｆ）のいずれかで表される基であることが好ましい。

[0194] 本実施形態に係る化合物において、 $R_{131} \sim R_{140}$ 及び $R_{141} \sim R_{150}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数３～５０のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数６～５０のアリール基、又は置換もしくは

無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であることが好ましく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基であることがより好ましい。

[0195] 本実施形態に係る化合物において、 $R_1 \sim R_8$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しない。

本実施形態に係る化合物において、 $R_{11} \sim R_{18}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しないことが好ましい。

本実施形態に係る化合物において、 $R_{11} \sim R_{20}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しないことが好ましい。

本実施形態に係る化合物において、 $R_{111} \sim R_{118}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組は、いずれも互いに結合しないことが好ましい。

[0196] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式 (11) における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式 (12) における $R_{11} \sim R_{18}$ 、前記一般式 (13) における $R_{111} \sim R_{118}$ 並びに前記一般式 (14) における R_{19} は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基であることが好ましい。

[0197] 本実施形態に係る化合物において、前記一般式 (11) における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式 (12) における $R_{11} \sim R_{18}$ 、前記一般式 (13) における $R_{111} \sim R_{118}$ 並びに前記一般式 (14) における R_{19} は、それぞれ独立に、水素原子、無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、又は無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基であることが好ましい。

[0198] 本実施形態に係る化合物において、 $R_{191} \sim R_{198}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、又は置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基であることが好ましく、水素原子、無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシ

クロアルキル基、又は無置換の環形成炭素数6～50のアリール基であることがより好ましい。

[0199] 本実施形態に係る化合物は、遅延蛍光性の化合物であることが好ましい。

[0200] ・遅延蛍光性

遅延蛍光については、「有機半導体のデバイス物性」（安達千波矢編、講談社発行）の261～268ページで解説されている。その文献の中で、蛍光発光材料の励起一重項状態と励起三重項状態のエネルギー差 ΔE_{13} を小さくすることができれば、通常は遷移確率が低い励起三重項状態から励起一重項状態への逆エネルギー移動が高効率で生じ、熱活性化遅延蛍光（Thermally Activated delayed Fluorescence, TADF）が発現すると説明されている。さらに、当該文献中の図10.38で、遅延蛍光の発生メカニズムが説明されている。本実施形態に係る化合物は、このようなメカニズムで発生する熱活性化遅延蛍光を示す化合物であることが好ましい。

[0201] 一般に、遅延蛍光の発光は過渡PL（Photo Luminescence）測定により確認できる。

[0202] 過渡PL測定から得た減衰曲線に基づいて遅延蛍光の挙動を解析することもできる。過渡PL測定とは、試料にパルスレーザーを照射して励起させ、照射を止めた後のPL発光の減衰挙動（過渡特性）を測定する手法である。TADF材料におけるPL発光は、最初のPL励起で生成する一重項励起子からの発光成分と、三重項励起子を経由して生成する一重項励起子からの発光成分に分類される。最初のPL励起で生成する一重項励起子の寿命は、ナノ秒オーダーであり、非常に短い。そのため、当該一重項励起子からの発光は、パルスレーザーを照射後、速やかに減衰する。

一方、遅延蛍光は、寿命の長い三重項励起子を経由して生成する一重項励起子からの発光のため、ゆるやかに減衰する。このように最初のPL励起で生成する一重項励起子からの発光と、三重項励起子を経由して生成する一重項励起子からの発光とでは、時間的に大きな差がある。そのため、遅延蛍光

由来の発光強度を求めることができる。

[0203] 図1には、過渡PLを測定するための例示的装置の概略図が示されている。図1を用いた過渡PLの測定方法、及び遅延蛍光の挙動解析の一例を説明する。

[0204] 図1の過渡PL測定装置100は、所定波長の光を照射可能なパルスレーザー部101と、測定試料を収容する試料室102と、測定試料から放射された光を分光する分光器103と、2次元像を結像するためのストリークカメラ104と、2次元像を取り込んで解析するパーソナルコンピュータ105とを備える。なお、過渡PLの測定は、図1に記載の装置に限定されない。

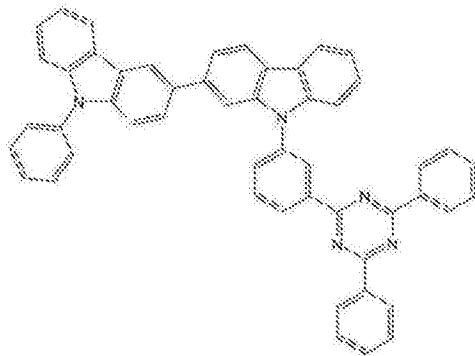
[0205] 試料室102に収容される試料は、マトリックス材料に対し、ドーピング材料が12質量%の濃度でドーピングされた薄膜を石英基板に成膜することで得られる。

[0206] 試料室102に収容された薄膜試料に対し、パルスレーザー部101からパルスレーザーを照射してドーピング材料を励起させる。励起光の照射方向に対して90度の方向へ発光を取り出し、取り出した光を分光器103で分光し、ストリークカメラ104内で2次元像を結像する。その結果、縦軸が時間に対応し、横軸が波長に対応し、輝点が発光強度に対応する2次元画像を得ることができる。この2次元画像を所定の時間軸で切り出すと、縦軸が発光強度であり、横軸が波長である発光スペクトルを得ることができる。また、当該2次元画像を波長軸で切り出すと、縦軸が発光強度の対数であり、横軸が時間である減衰曲線（過渡PL）を得ることができる。

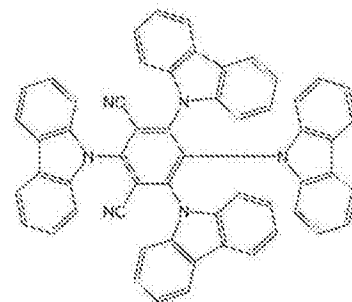
[0207] 例えば、マトリックス材料として、下記参考化合物H1を用い、ドーピング材料として下記参考化合物D1を用いて上述のようにして薄膜試料Aを作製し、過渡PL測定を行った。

[0208]

[化51]



(参考化合物 H1)

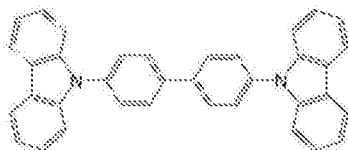


(参考化合物 D1)

[0209] ここでは、前述の薄膜試料 A、及び薄膜試料 B を用いて減衰曲線を解析した。薄膜試料 B は、マトリックス材料として下記参考化合物 H 2 を用い、ドーピング材料として前記参考化合物 D 1 を用いて、上述のようにして薄膜試料を作製した。

[0210] 図 2 には、薄膜試料 A 及び薄膜試料 B について測定した過渡 P L から得た減衰曲線が示されている。

[0211] [化52]



(参考化合物 H2)

[0212] 上記したように過渡 P L 測定によって、縦軸を発光強度とし、横軸を時間とする発光減衰曲線を得ることができる。この発光減衰曲線に基づいて、光励起により生成した一重項励起状態から発光する蛍光と、三重項励起状態を経由し、逆エネルギー移動により生成する一重項励起状態から発光する遅延蛍光との、蛍光強度比を見積もることができる。遅延蛍光性の材料では、素早く減衰する蛍光の強度に対し、緩やかに減衰する遅延蛍光の強度の割合が、ある程度大きい。

[0213] 具体的には、遅延蛍光性の材料からの発光としては、P r o m p t 発光（即時発光）と、D e l a y 発光（遅延発光）とが存在する。P r o m p t 発

光（即時発光）とは、当該遅延蛍光性の材料が吸収する波長のパルス光（パルスレーザーから照射される光）で励起された後、当該励起状態から即座に観察される発光である。Delay発光（遅延発光）とは、当該パルス光による励起後、即座には観察されず、その後観察される発光である。

[0214] Prompt発光とDelay発光の量とその比は、“Nature 492, 234–238, 2012”（参考文献1）に記載された方法と同様の方法により求めることができる。なお、Prompt発光とDelay発光の量の算出に使用される装置は、前記参考文献1に記載の装置、または図1に記載の装置に限定されない。

[0215] また、本実施形態に係る化合物の遅延蛍光性の測定には、次に示す方法により作製した試料を用いる。例えば、本実施形態に係る化合物をトルエンに溶解し、自己吸収の寄与を取り除くため励起波長において吸光度が0.05以下の希薄溶液を調製する。また酸素による消光を防ぐため、試料溶液を凍結脱気した後にアルゴン雰囲気下で蓋付きのセルに封入することで、アルゴンで飽和された酸素フリーの試料溶液とする。

上記試料溶液の蛍光スペクトルを分光蛍光光度計FP-8600（日本分光社製）で測定し、また同条件で9,10-ジフェニルアントラセンのエタノール溶液の蛍光スペクトルを測定する。両スペクトルの蛍光面積強度を用いて、Morris et al., J. Phys. Chem., 80 (1976) 969中の(1)式により全蛍光量子収率を算出する。

[0216] 本実施形態においては、測定対象化合物のPrompt発光（即時発光）の量を X_P とし、Delay発光（遅延発光）の量を X_D としたときに、 X_D/X_P の値が0.05以上であることが好ましい。

本明細書における本実施形態に係る化合物以外の化合物のPrompt発光とDelay発光の量とその比の測定も、本実施形態に係る化合物のPrompt発光とDelay発光の量とその比の測定と同様である。

[0217] $\cdot \Delta S T$

本実施形態では、最低励起一重項エネルギー S_1 と、77 [K]におけるエ

エネルギーギャップ T_{77K} との差($S_1 - T_{77K}$)を ΔST として定義する。

[0218] 本実施形態に係る化合物の最低励起一重項エネルギー S_1 (M1) と、本実施形態に係る化合物の77 [K]におけるエネルギーギャップ T_{77K} (M1) との差 ΔST (M1) は、好ましくは0.3 eV未満、より好ましくは0.2 eV未満、さらに好ましくは0.1 eV未満、よりさらに好ましくは0.01 eV未満である。すなわち、 ΔST (M1) は、下記数式(数10)、(数11)、(数12)又は(数13)の関係を満たすことが好ましい。

$$\Delta ST (M1) = S_1 (M1) - T_{77K} (M1) < 0.3 \text{ eV} \quad \dots (\text{数} 10)$$

$$\Delta ST (M1) = S_1 (M1) - T_{77K} (M1) < 0.2 \text{ eV} \quad \dots (\text{数} 11)$$

$$\Delta ST (M1) = S_1 (M1) - T_{77K} (M1) < 0.1 \text{ eV} \quad \dots (\text{数} 12)$$

$$\Delta ST (M1) = S_1 (M1) - T_{77K} (M1) < 0.01 \text{ eV} \quad \dots (\text{数} 13)$$

[0219] ・三重項エネルギーと77 [K]におけるエネルギーギャップとの関係

ここで、三重項エネルギーと77 [K]におけるエネルギーギャップとの関係について説明する。本実施形態では、77 [K]におけるエネルギーギャップは、通常定義される三重項エネルギーとは異なる点がある。

三重項エネルギーの測定は、次のようにして行われる。まず、測定対象となる化合物を適切な溶媒中に溶解した溶液を石英ガラス管内に封入した試料を作製する。この試料について、低温(77 [K])で燐光スペクトル(縦軸：燐光発光強度、横軸：波長とする。)を測定し、この燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値に基づいて、所定の換算式から三重項エネルギーを算出する。

ここで、本実施形態に係る化合物の内、熱活性化遅延蛍光性の化合物は、 ΔST が小さい化合物であることが好ましい。 ΔST が小さいと、低温(77 [K])状態でも、項間交差、及び逆項間交差が起こりやすく、励起一重

項状態と励起三重項状態とが混在する。その結果、上記と同様にして測定されるスペクトルは、励起一重項状態、及び励起三重項状態の両者からの発光を含んでおり、いずれの状態から発光したのかについて峻別することは困難であるが、基本的には三重項エネルギーの値が支配的と考えられる。

そのため、本実施形態では、通常の三重項エネルギー T と測定手法は同じであるが、その厳密な意味において異なることを区別するため、次のようにして測定される値をエネルギーギャップ T_{77K} と称する。測定対象となる化合物を EPA（ジエチルエーテル：イソペンタン：エタノール＝5：5：2（容積比））中に、濃度が $10 \mu\text{mol/L}$ となるように溶解し、この溶液を石英セル中に入れて測定試料とする。この測定試料について、低温（77 [K]）で燐光スペクトル（縦軸：燐光発光強度、横軸：波長とする。）を測定し、この燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値 λ_{edge} [nm] に基づいて、次の換算式（F1）から算出されるエネルギー量を 77 [K] におけるエネルギーギャップ T_{77K} とする。

$$\text{換算式 (F1)} : T_{77K} [\text{eV}] = 1239.85 / \lambda_{\text{edge}}$$

[0220] 燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線は以下のように引く。燐光スペクトルの短波長側から、スペクトルの極大値のうち、最も短波長側の極大値までスペクトル曲線上を移動する際に、長波長側に向けて曲線上の各点における接線を考える。この接線は、曲線が立ち上がるにつれ（つまり縦軸が増加するにつれ）、傾きが増加する。この傾きの値が極大値をとる点において引いた接線（すなわち変曲点における接線）が、当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とする。

なお、スペクトルの最大ピーク強度の 15% 以下のピーク強度をもつ極大点は、上述の最も短波長側の極大値には含めず、最も短波長側の極大値に最も近い、傾きの値が極大値をとる点において引いた接線を当該燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対する接線とする。

燐光の測定には、（株）日立ハイテクノロジー製の F-4500 形分光蛍

光光度計本体を用いることができる。なお、測定装置はこの限りではなく、冷却装置、及び低温用容器と、励起光源と、受光装置とを組み合わせることにより、測定してもよい。

[0221] ・最低励起一重項エネルギー S_1

溶液を用いた最低励起一重項エネルギー S_1 の測定方法（溶液法と称する場合がある。）としては、下記の方法が挙げられる。

測定対象となる化合物の $10 \mu\text{mol/L}$ トルエン溶液を調製して石英セルに入れ、常温（ 300K ）でこの試料の吸収スペクトル（縦軸：吸収強度、横軸：波長とする。）を測定する。この吸収スペクトルの長波長側の立ち下がりに対して接線を引き、その接線と横軸との交点の波長値 $\lambda_{\text{edge}} [\text{nm}]$ を次に示す換算式（F2）に代入して最低励起一重項エネルギーを算出する。

$$\text{換算式 (F2)} : S_1 [\text{eV}] = 1239.85 / \lambda_{\text{edge}}$$

吸収スペクトル測定装置としては、例えば、日立社製の分光光度計（装置名：U3310）が挙げられるが、これに限定されない。

[0222] 吸収スペクトルの長波長側の立ち下がりに対する接線は以下のように引く。吸収スペクトルの極大値のうち、最も長波長側の極大値から長波長方向にスペクトル曲線上を移動する際に、曲線上の各点における接線を考える。この接線は、曲線が立ち下がるにつれ（つまり縦軸の値が減少するにつれ）、傾きが減少しその後増加することを繰り返す。傾きの値が最も長波長側（ただし、吸光度が0.1以下となる場合は除く）で極小値をとる点において引いた接線を当該吸収スペクトルの長波長側の立ち下がりに対する接線とする。

なお、吸光度の値が0.2以下の極大点は、上記最も長波長側の極大値には含めない。

[0223] （本実施形態に係る化合物の製造方法）

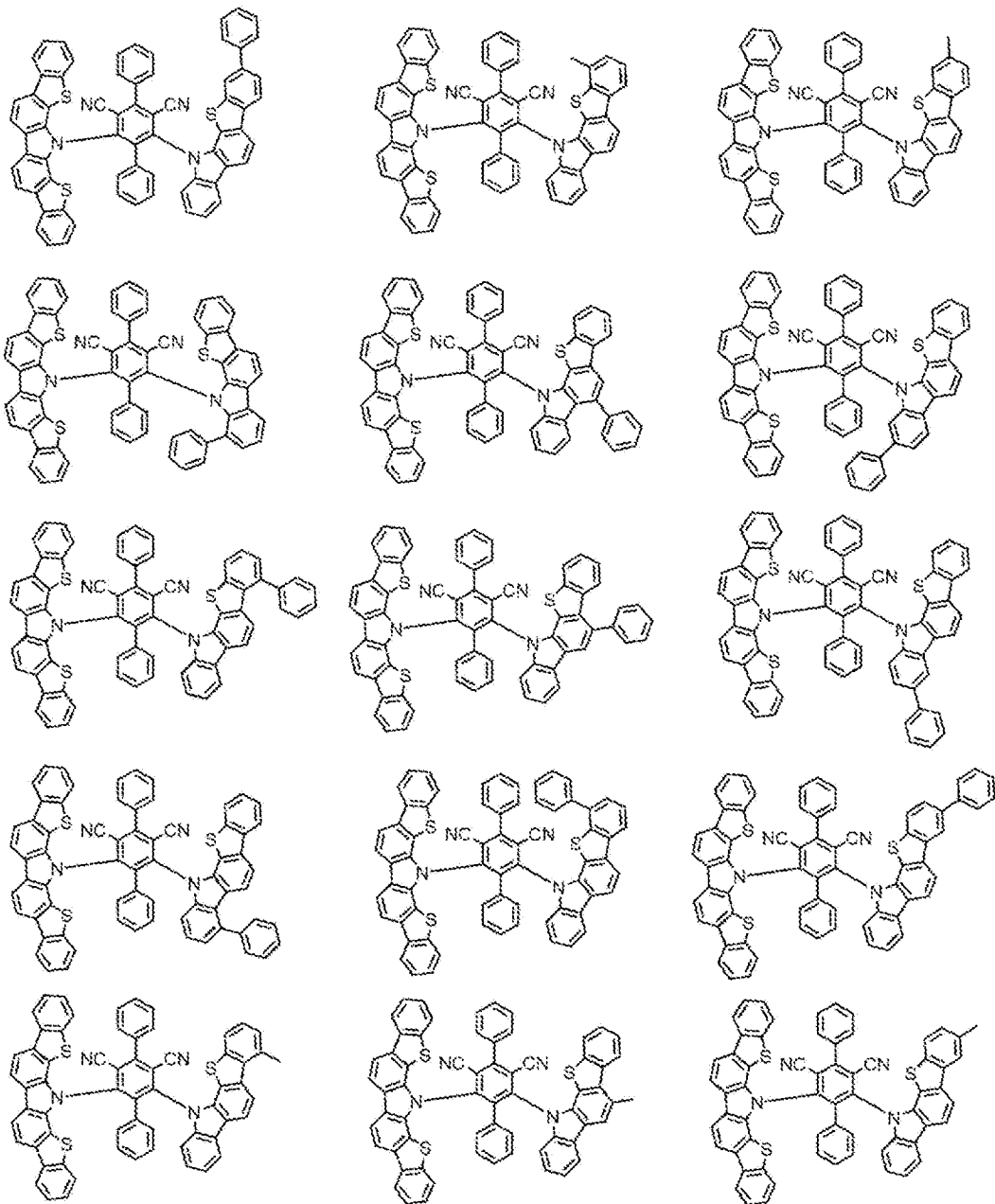
本実施形態に係る化合物は、後述する実施例に記載の合成方法に従って、又は当該合成方法に倣い、目的物に合わせた既知の代替反応及び原料を用い

ることで、製造できる。

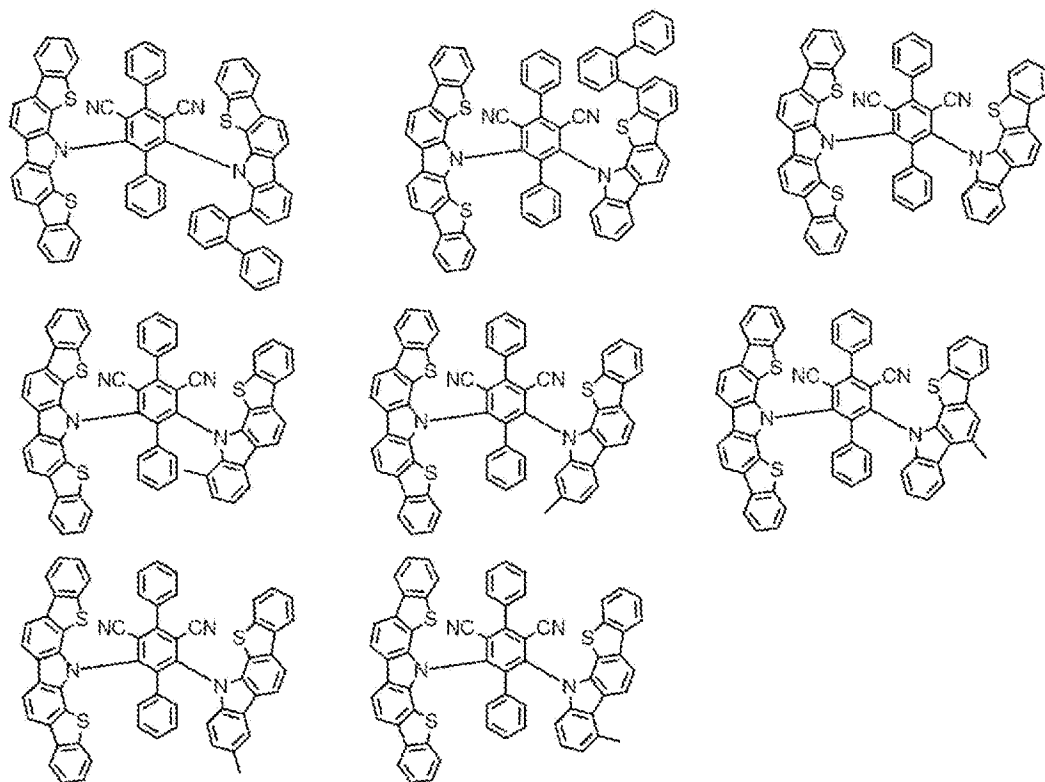
[0224] (本実施形態に係る化合物の具体例)

本実施形態に係る化合物の具体例としては、例えば、以下の化合物が挙げられる。ただし、本発明は、これら具体例に限定されない。本明細書において、重水素原子は、化学式中でDと表記し、軽水素原子は、Hと表記するか又は記載を省略する。

[0225] [化53]

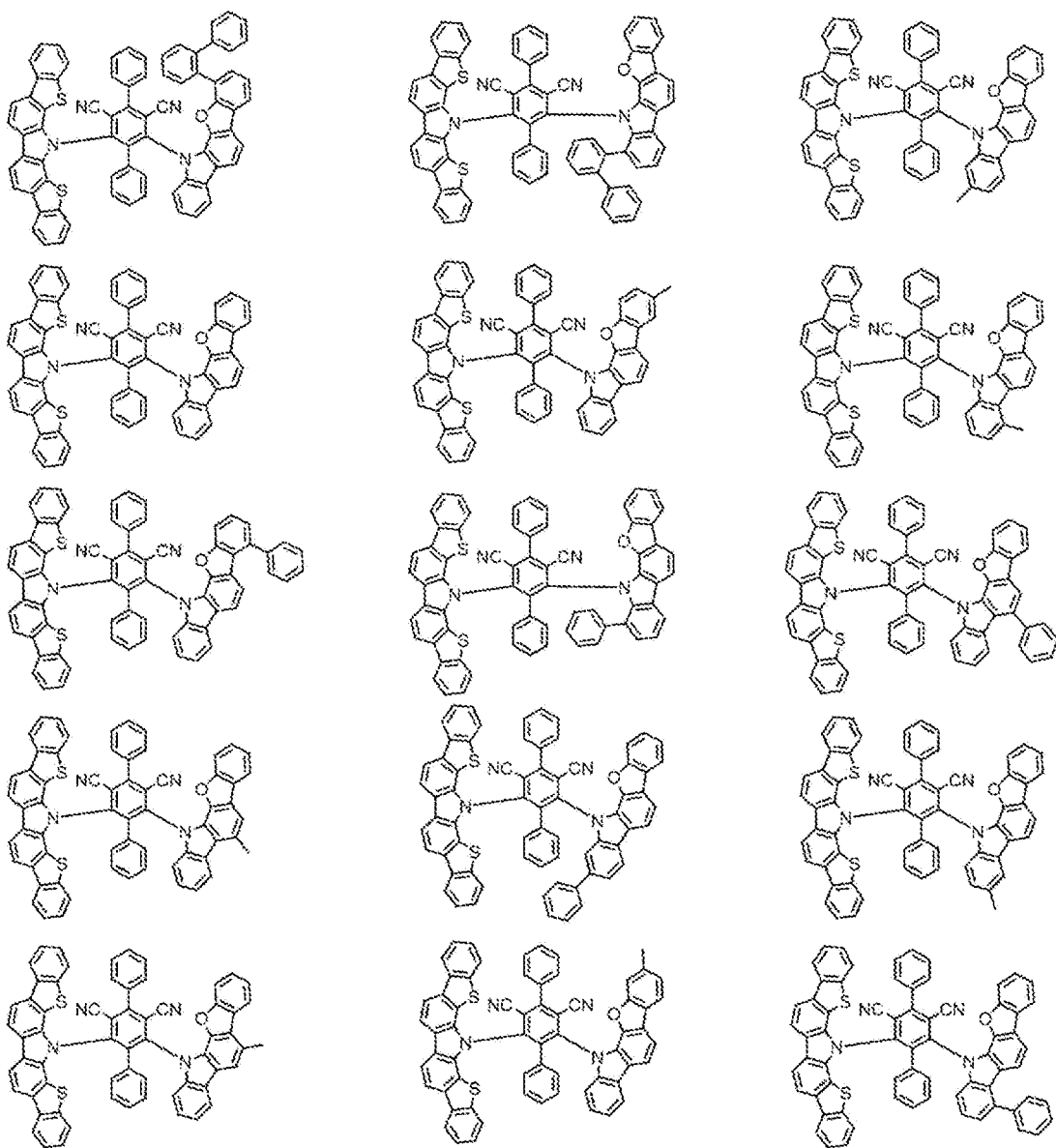


[0226] [化54]



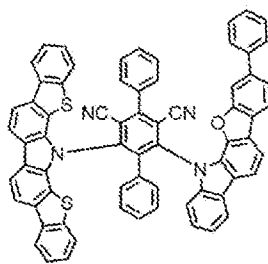
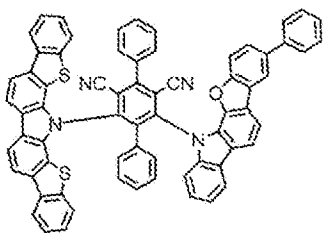
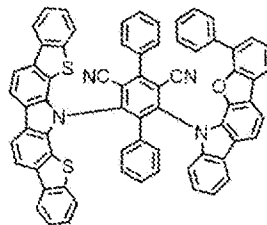
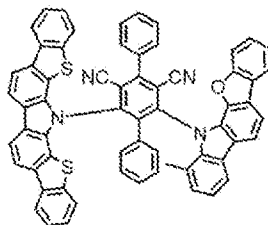
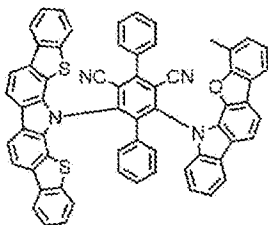
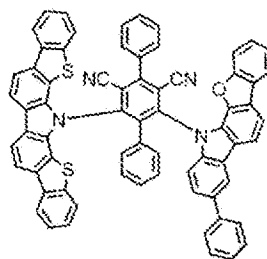
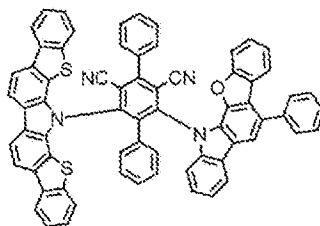
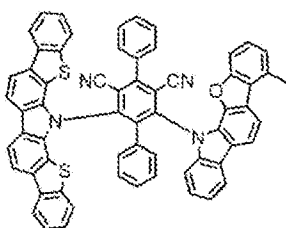
[0227]

[化55]



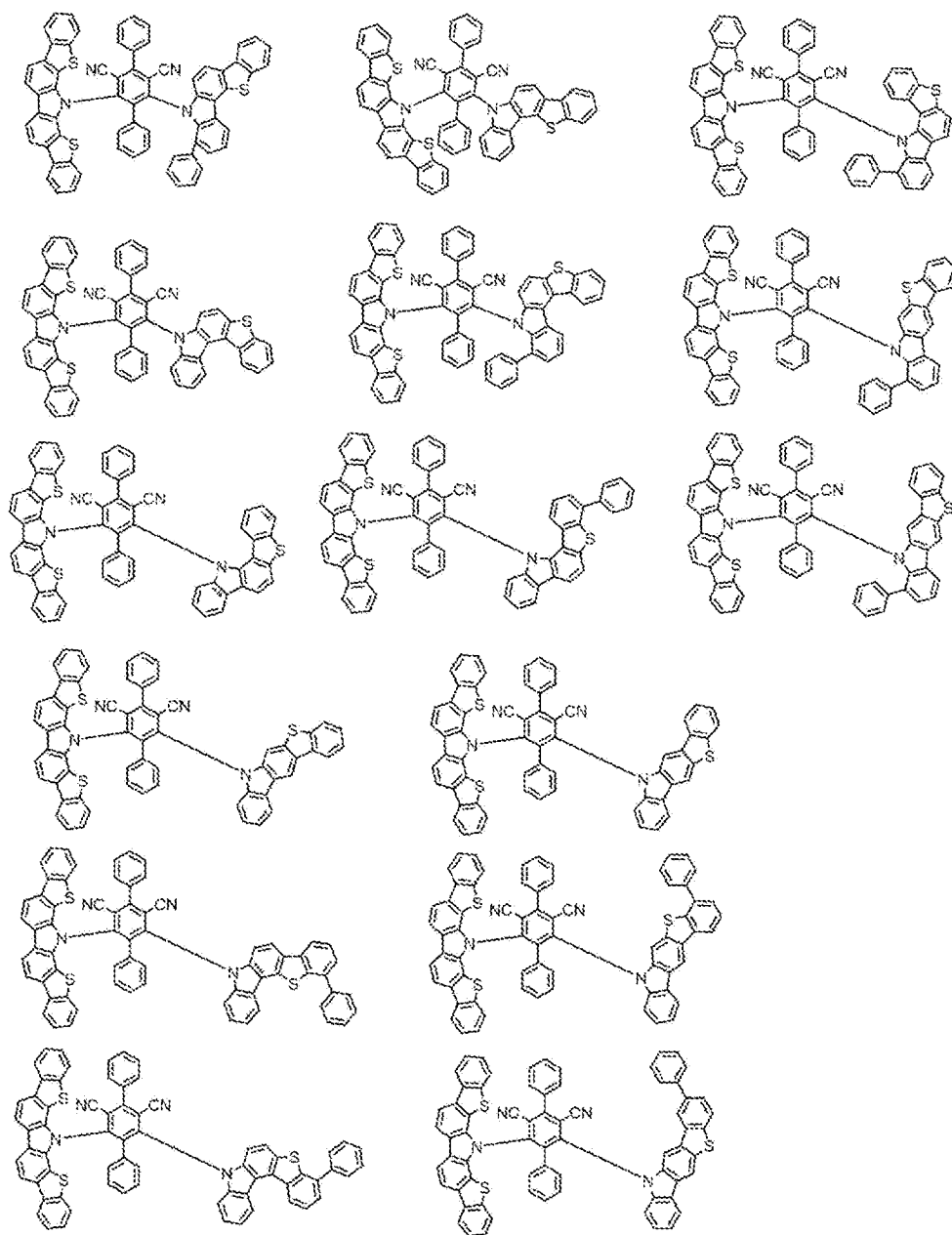
[0228]

[化56]



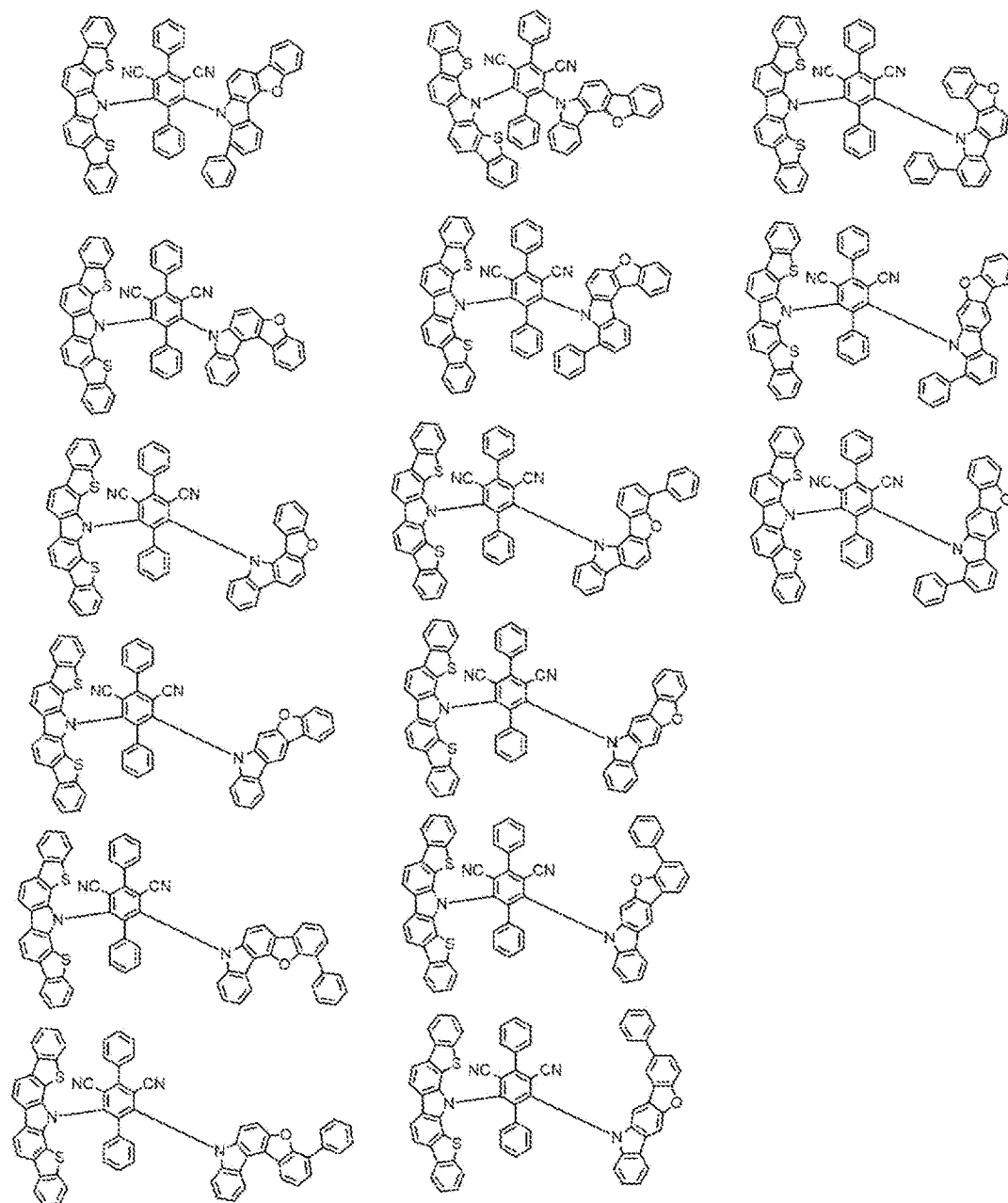
[0229]

[化57]



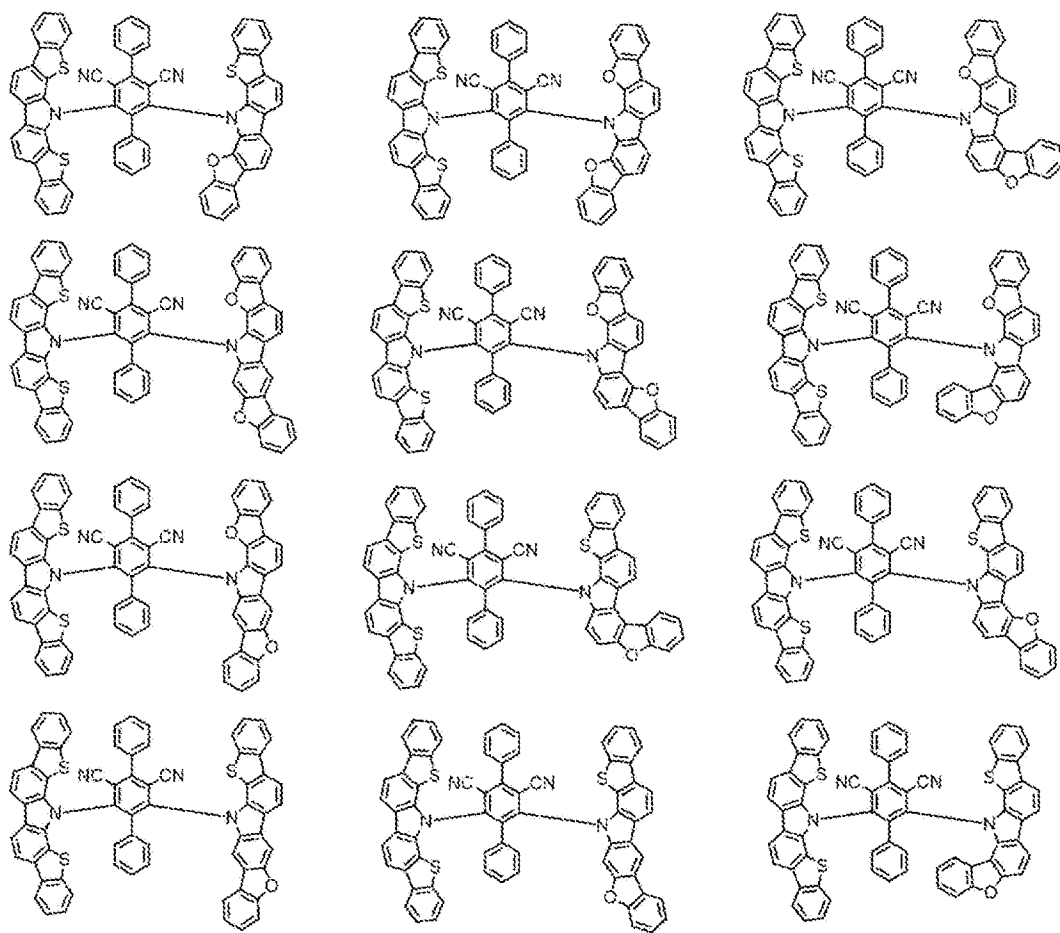
[0230]

[化58]



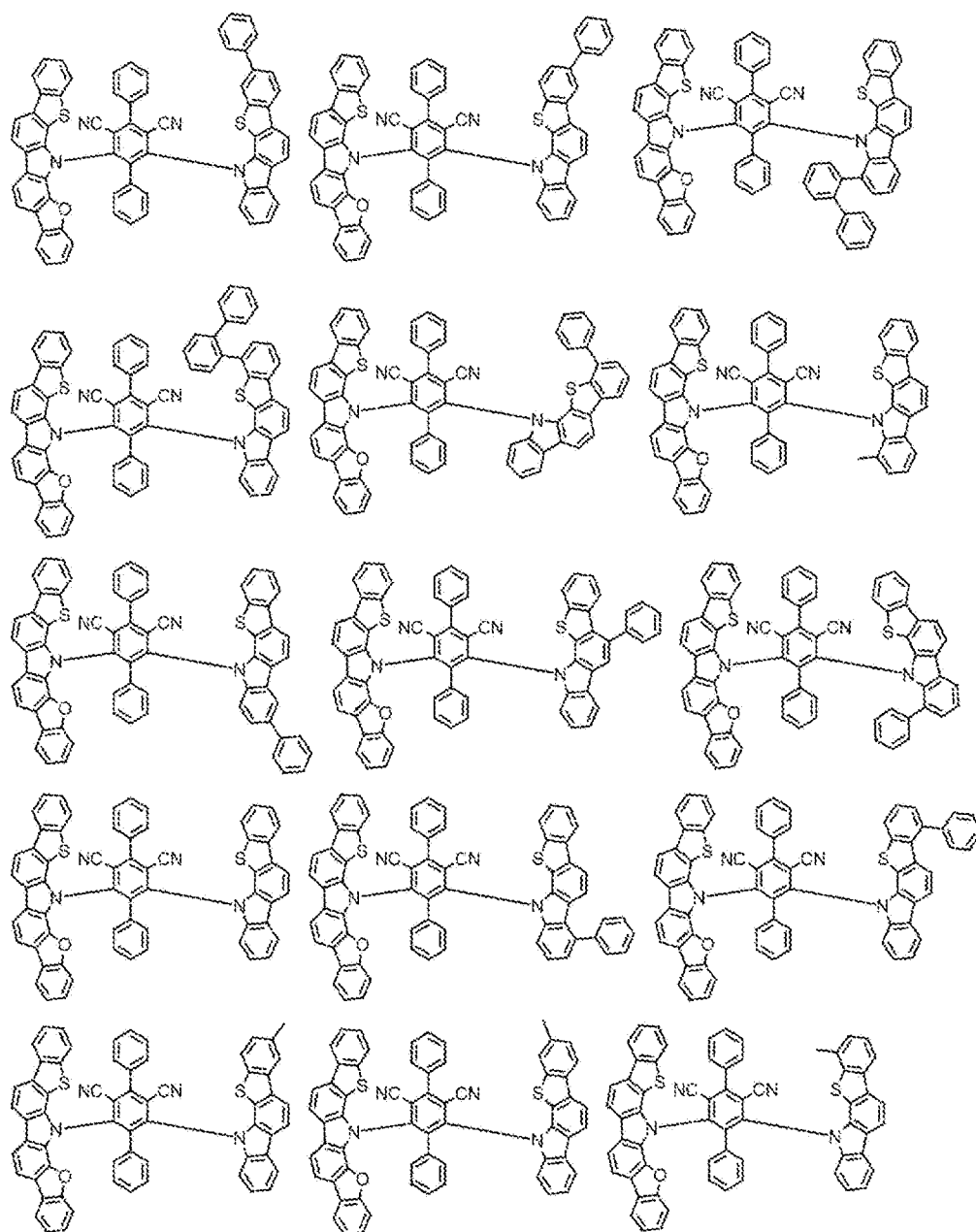
[0231]

[化59]



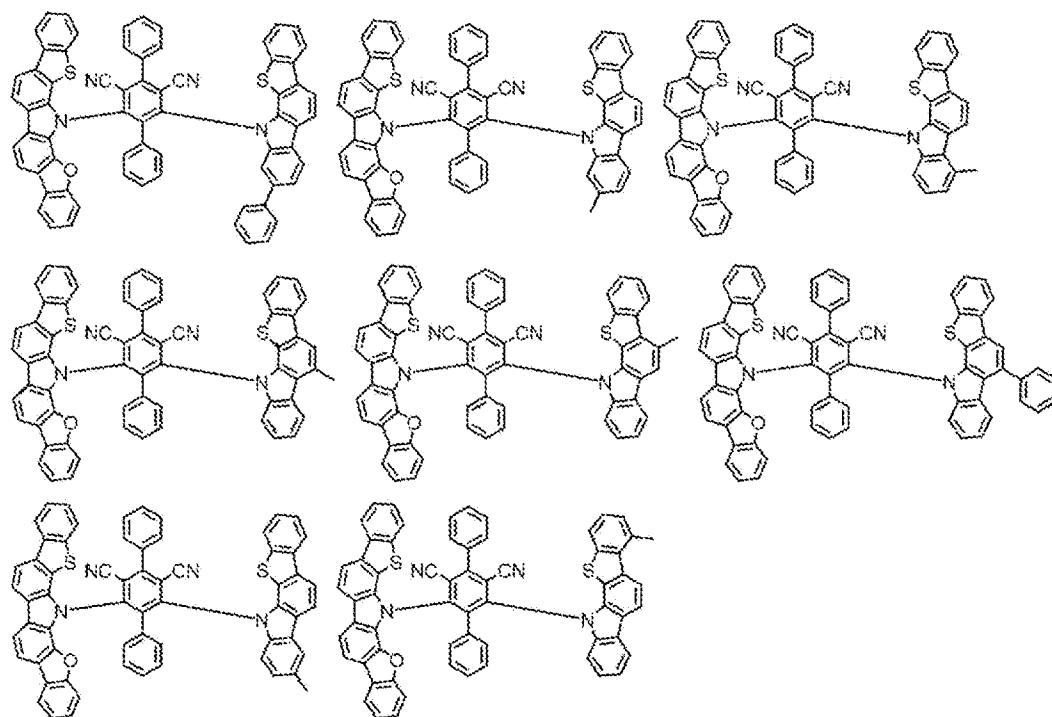
[0232]

[化60]



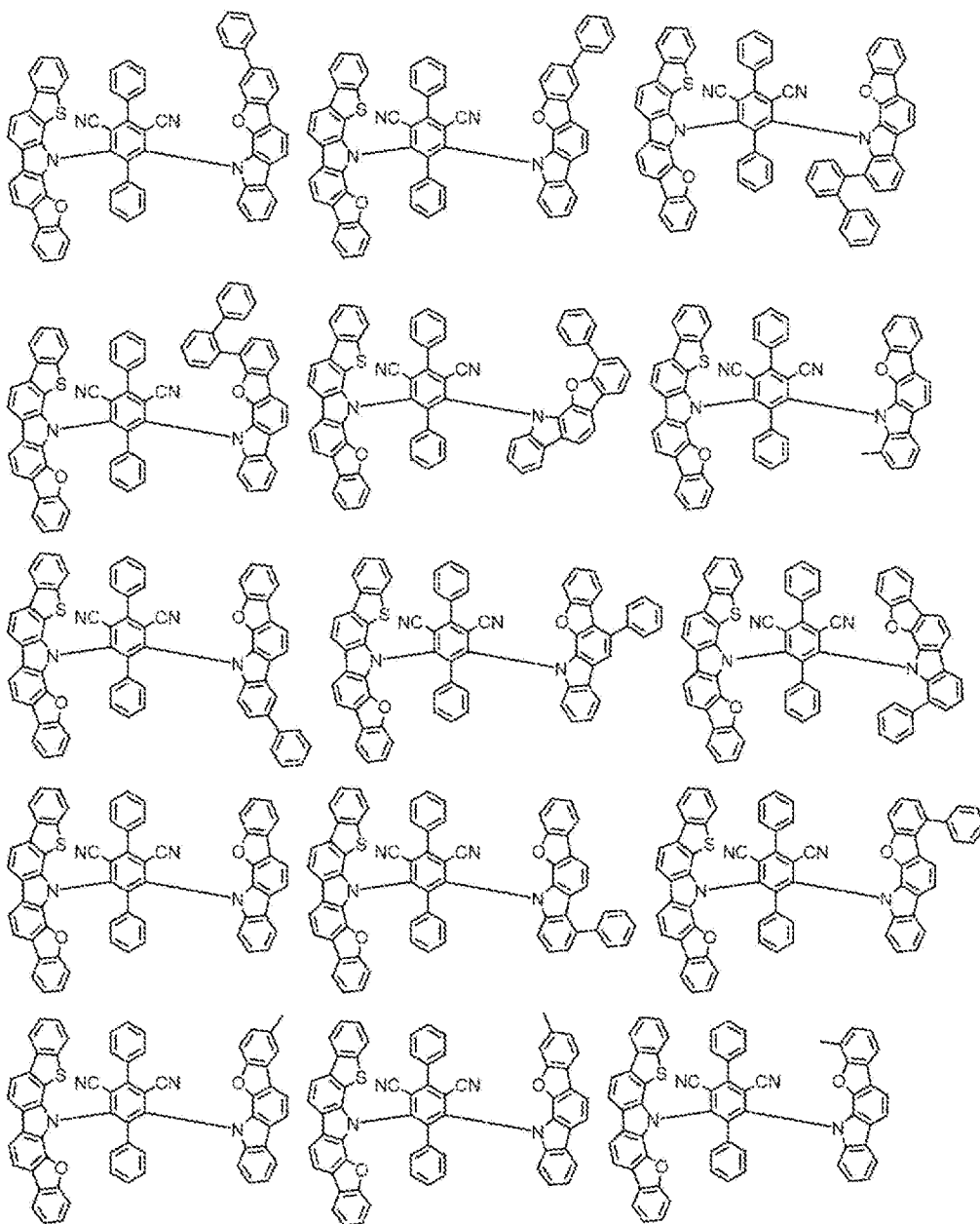
[0233]

[化61]



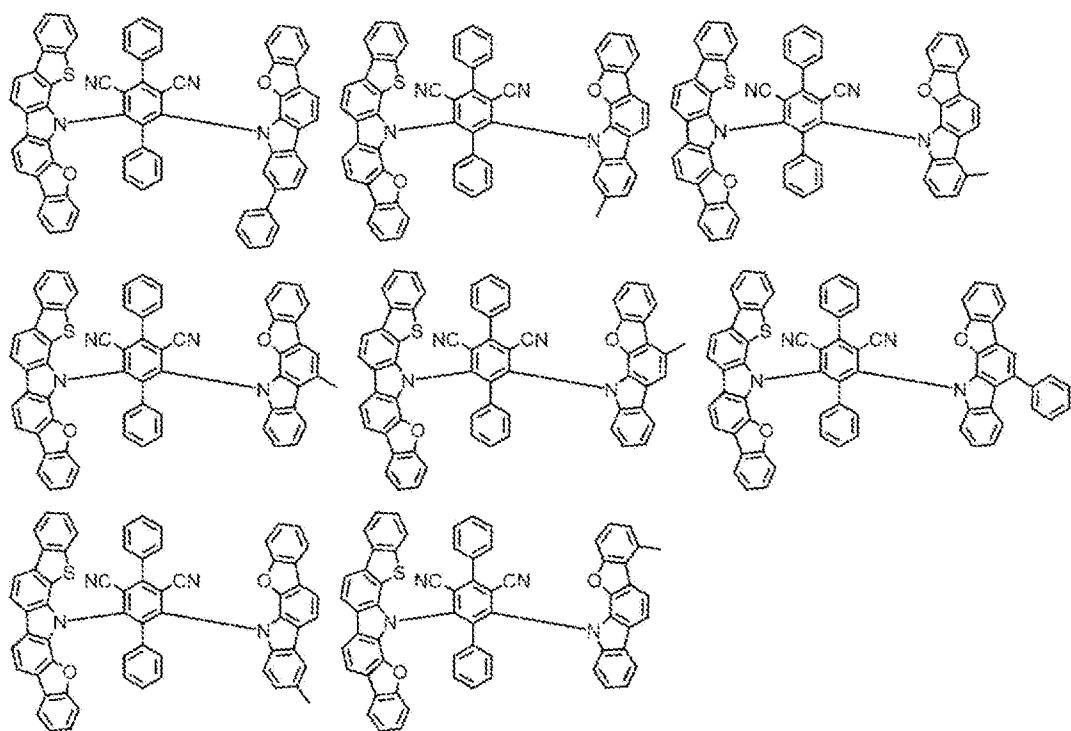
[0234]

[化62]



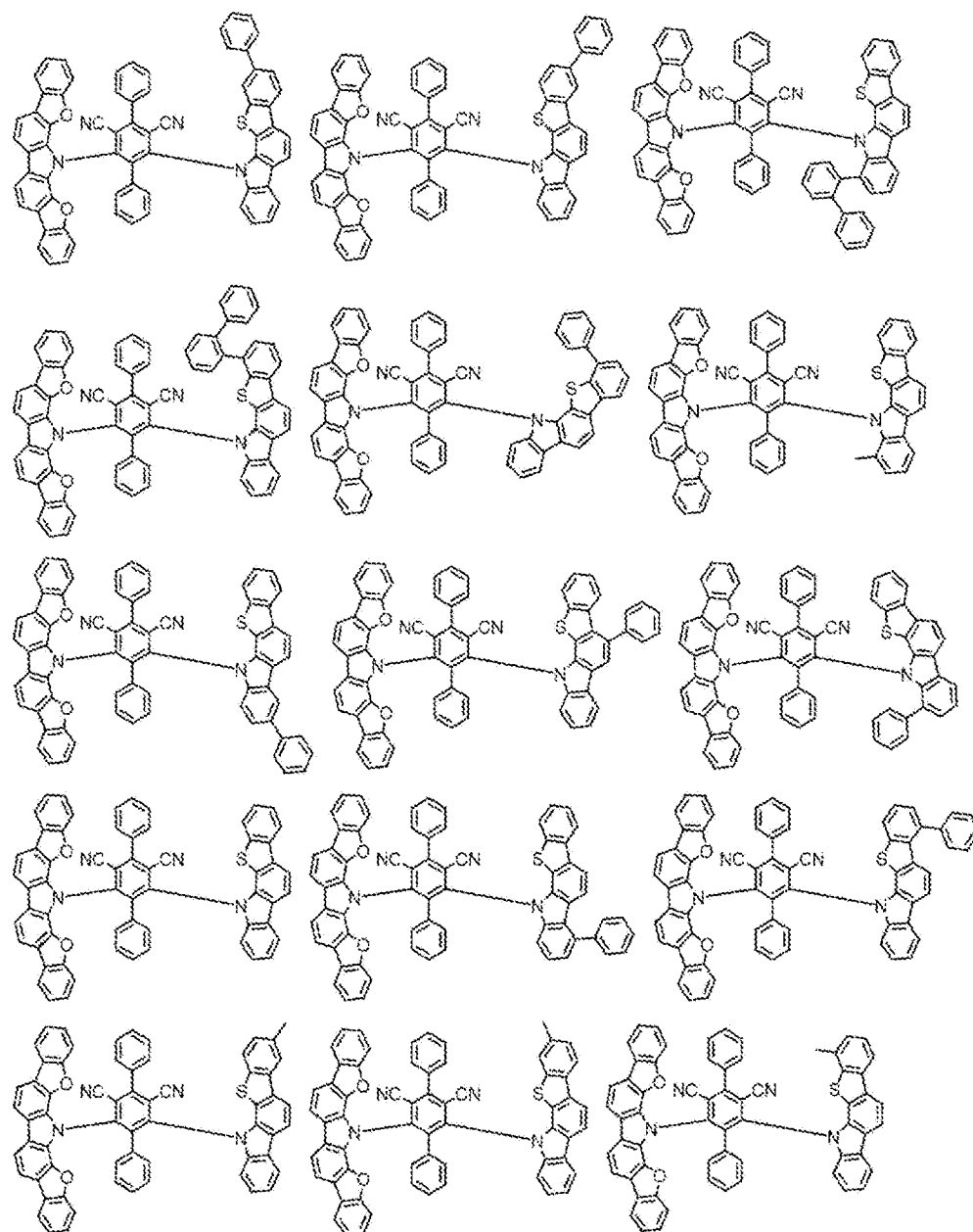
[0235]

[化63]



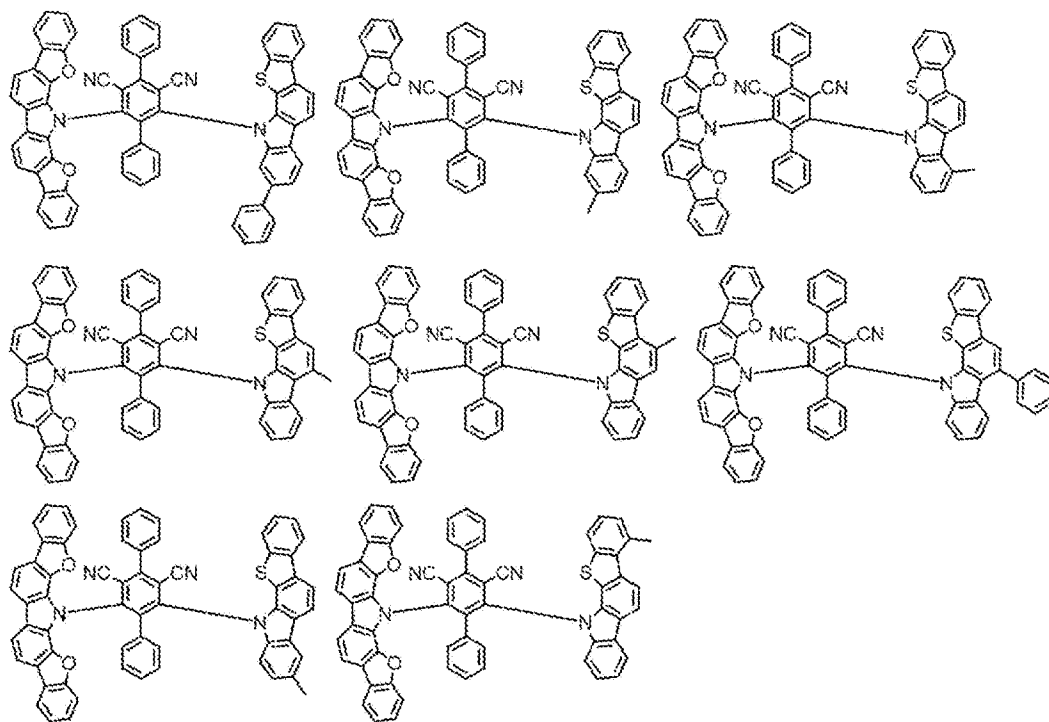
[0236]

[化64]



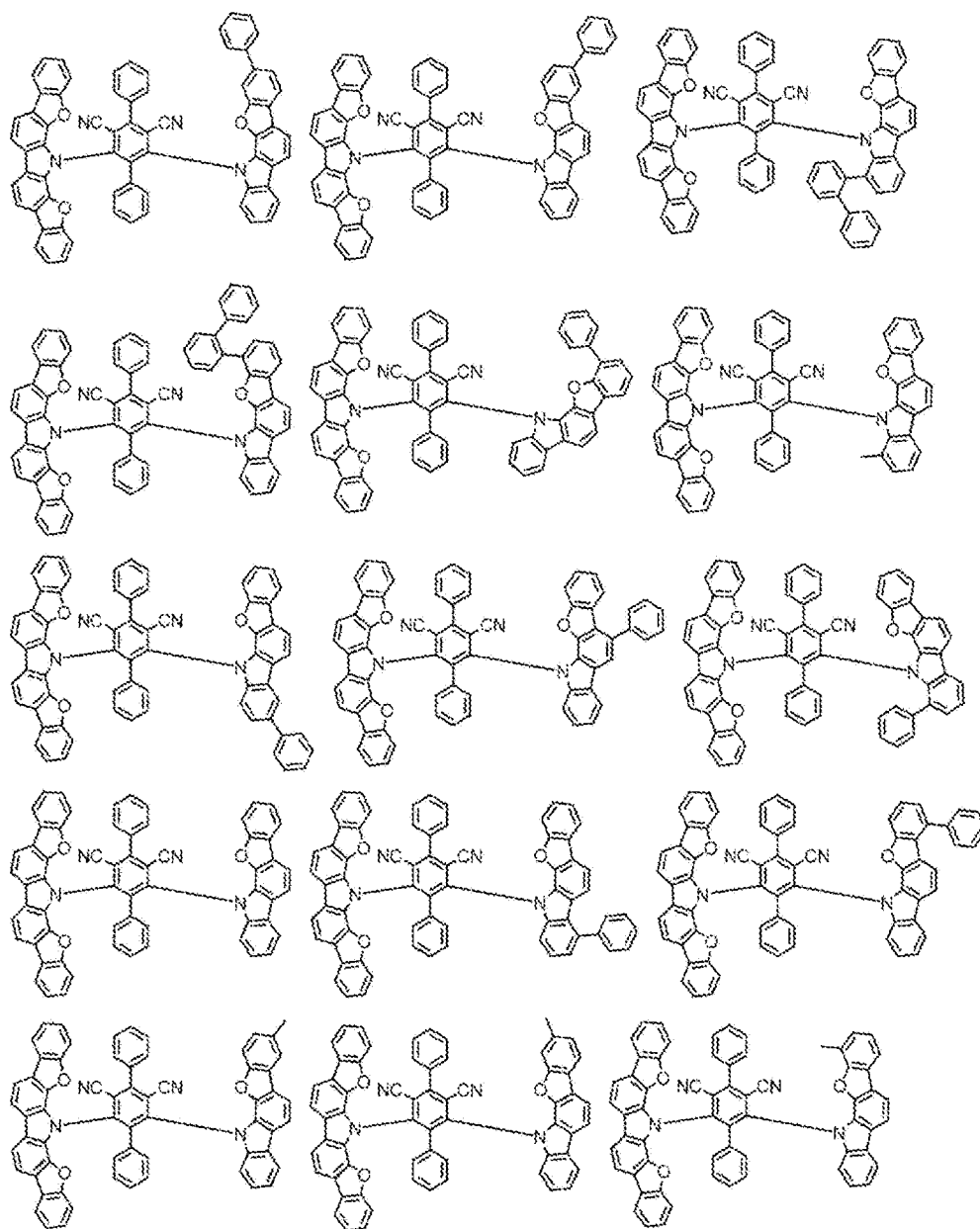
[0237]

[化65]



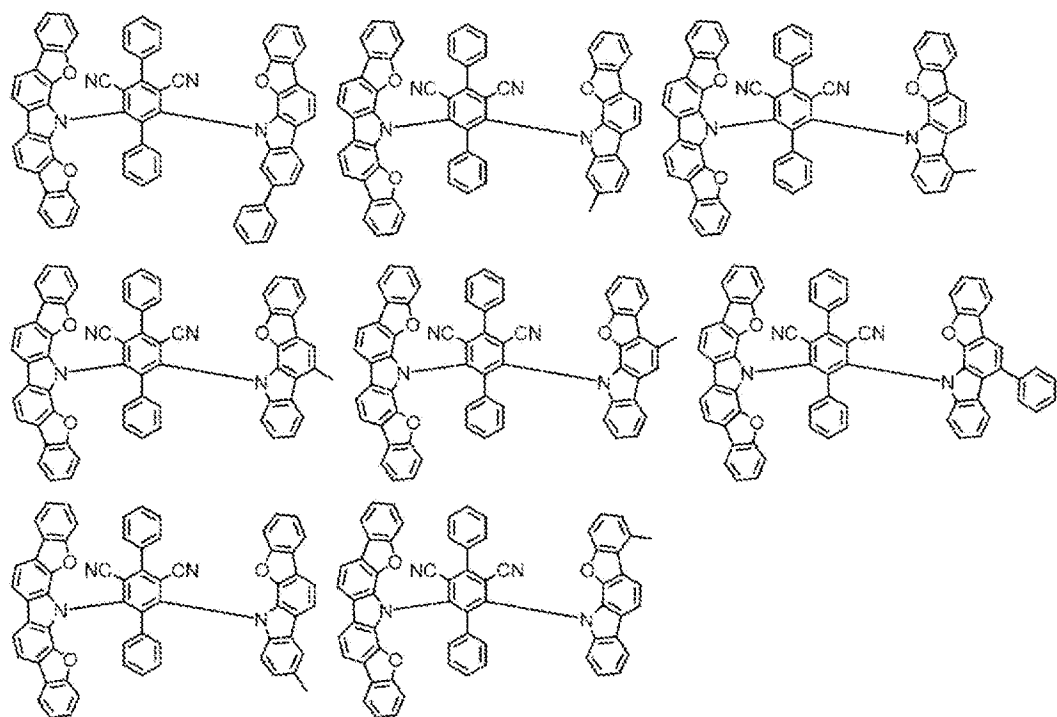
[0238]

[化66]

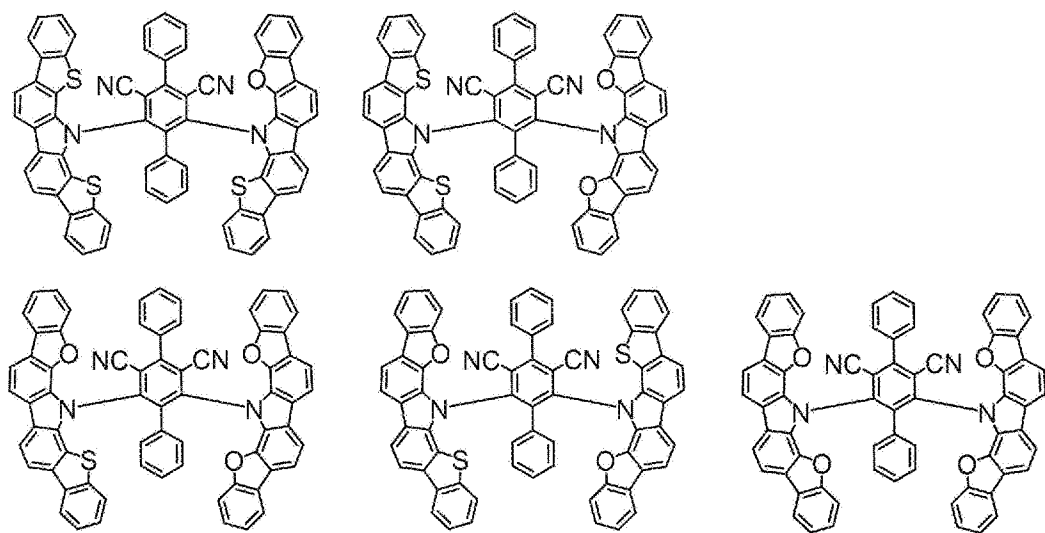


[0239]

[化67]

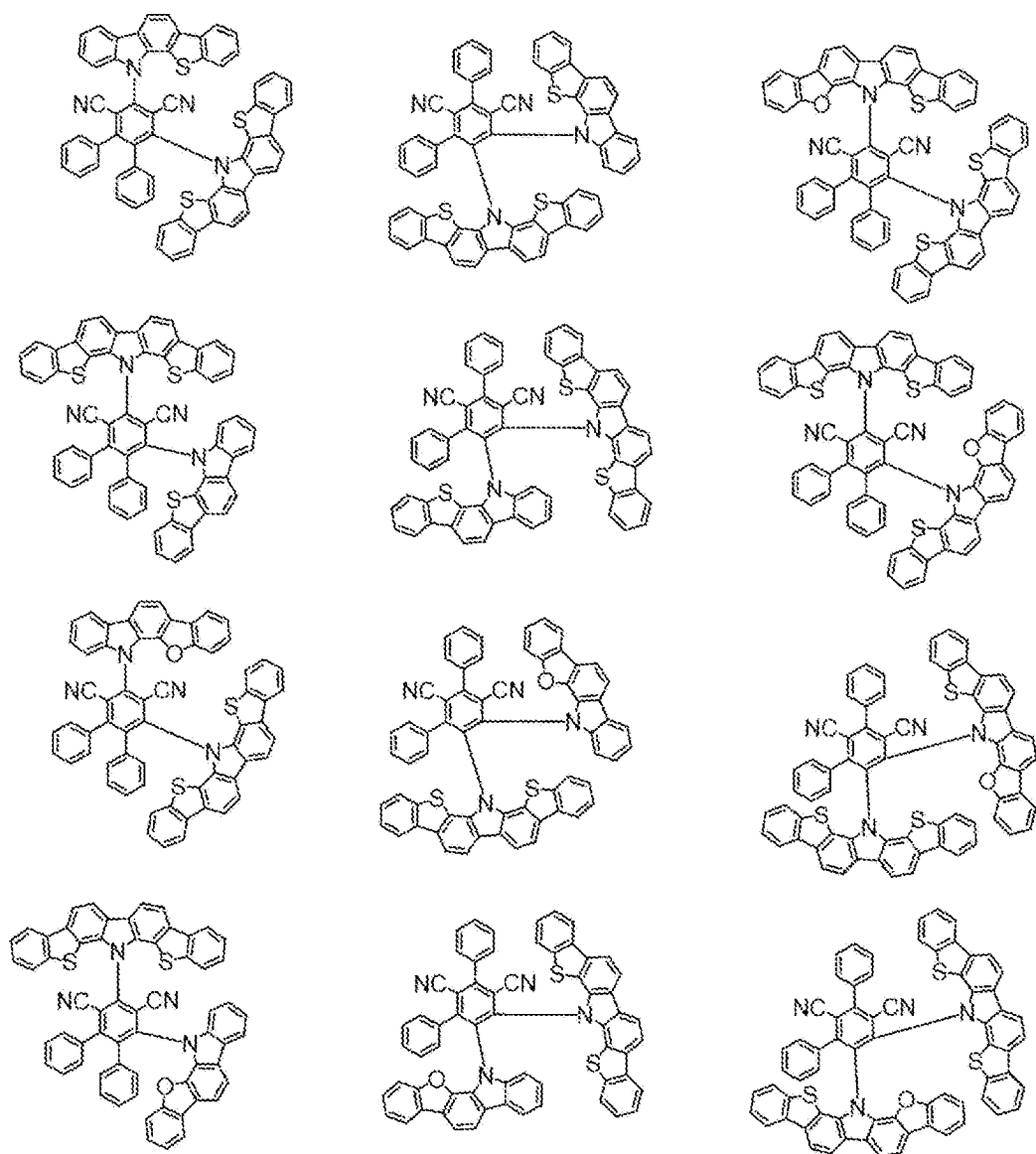


[0240] [化68]



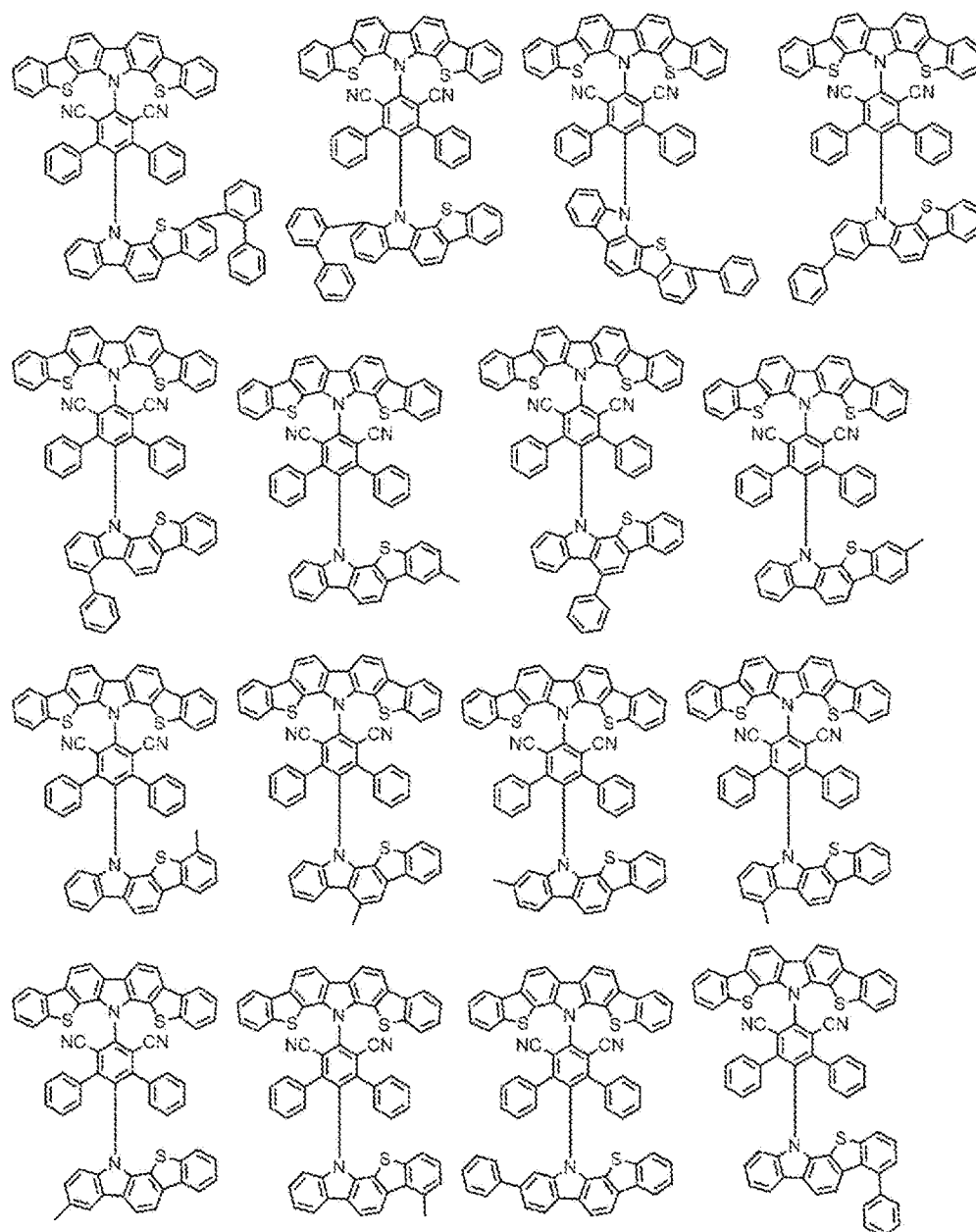
[0241]

[化69]



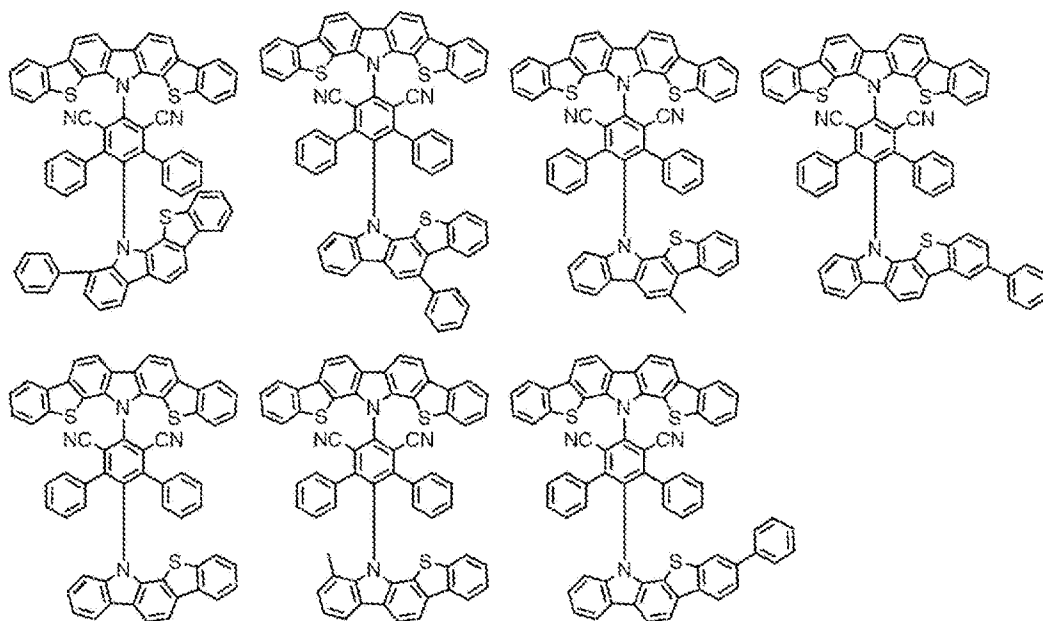
[0242]

[化70]



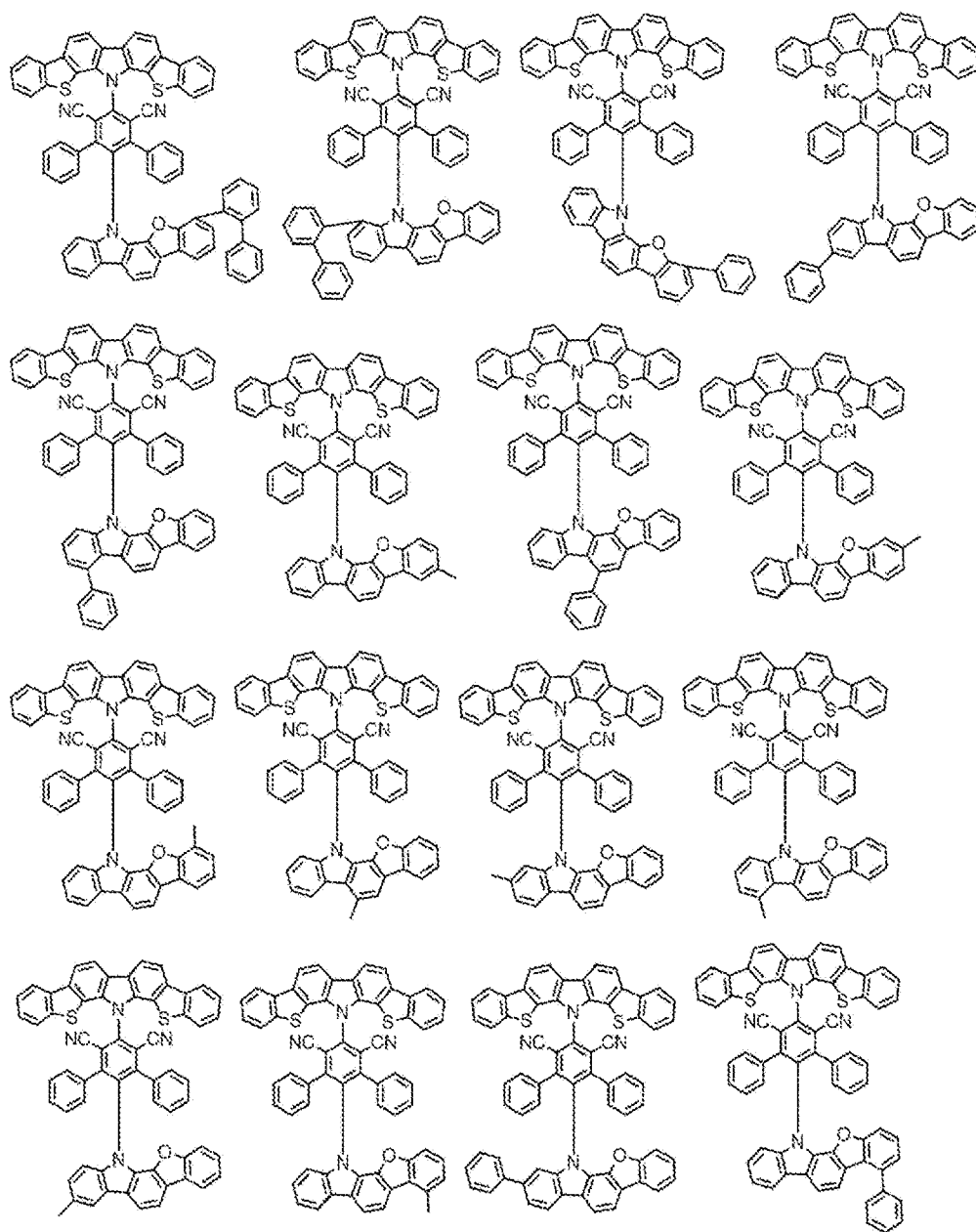
[0243]

[化71]



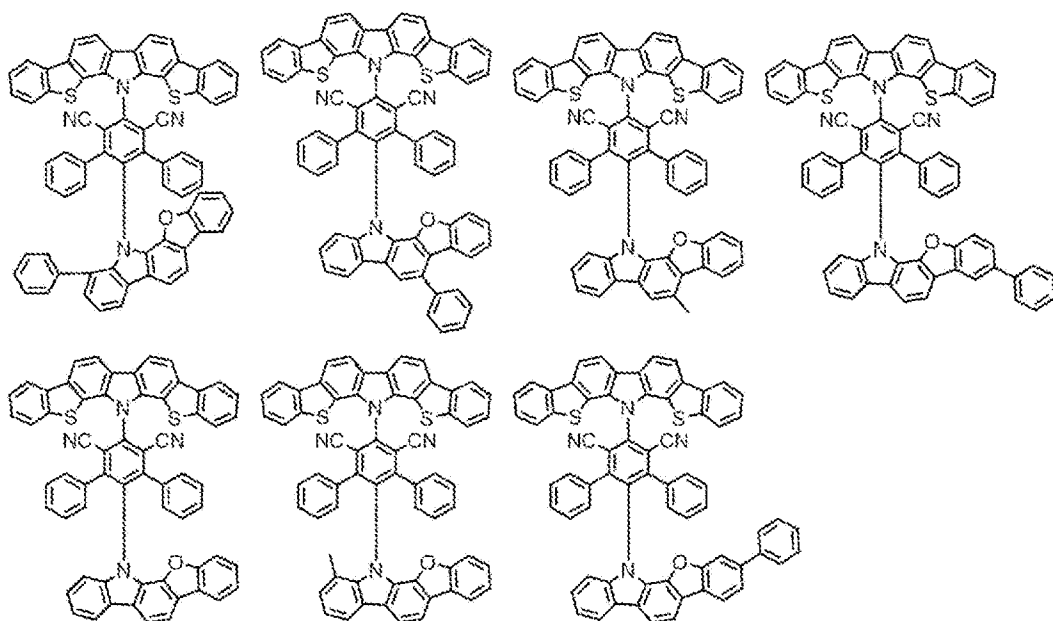
[0244]

[化72]

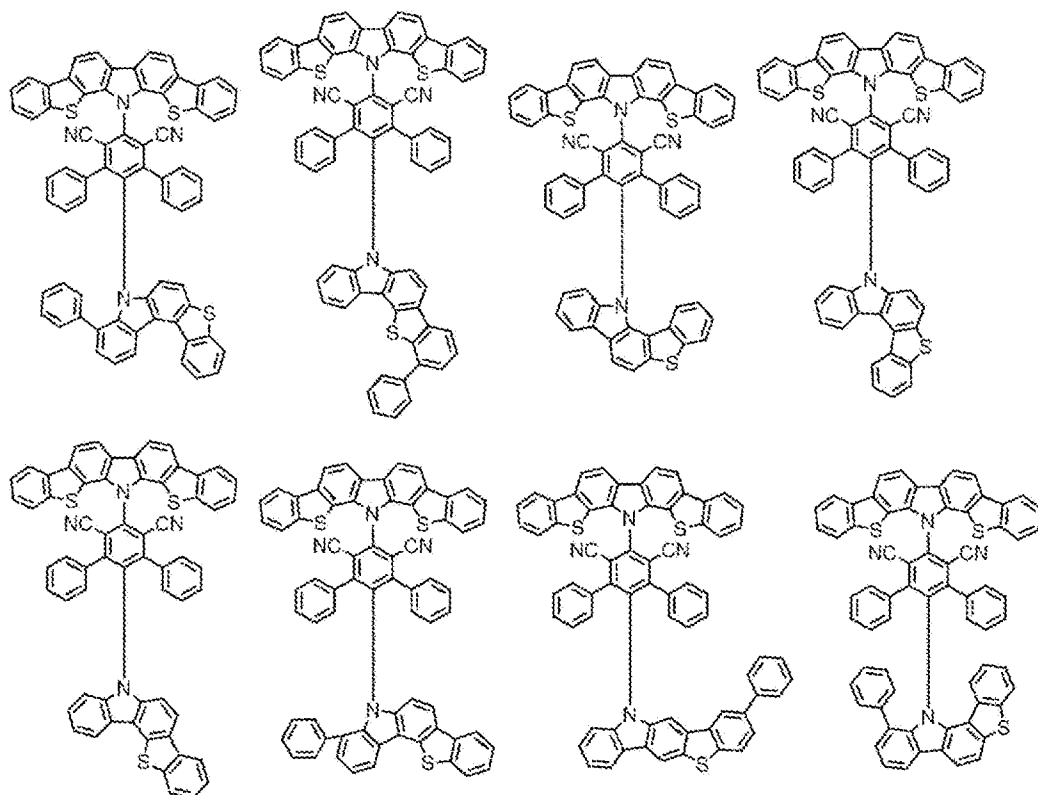


[0245]

[化73]

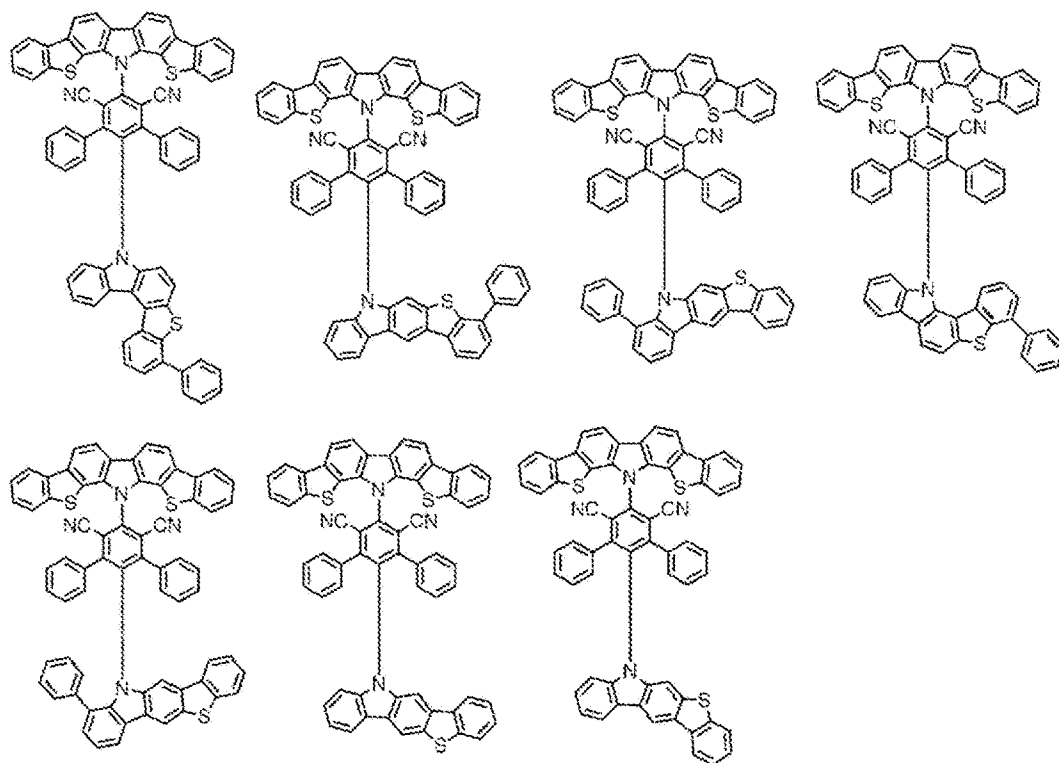


[0246] [化74]

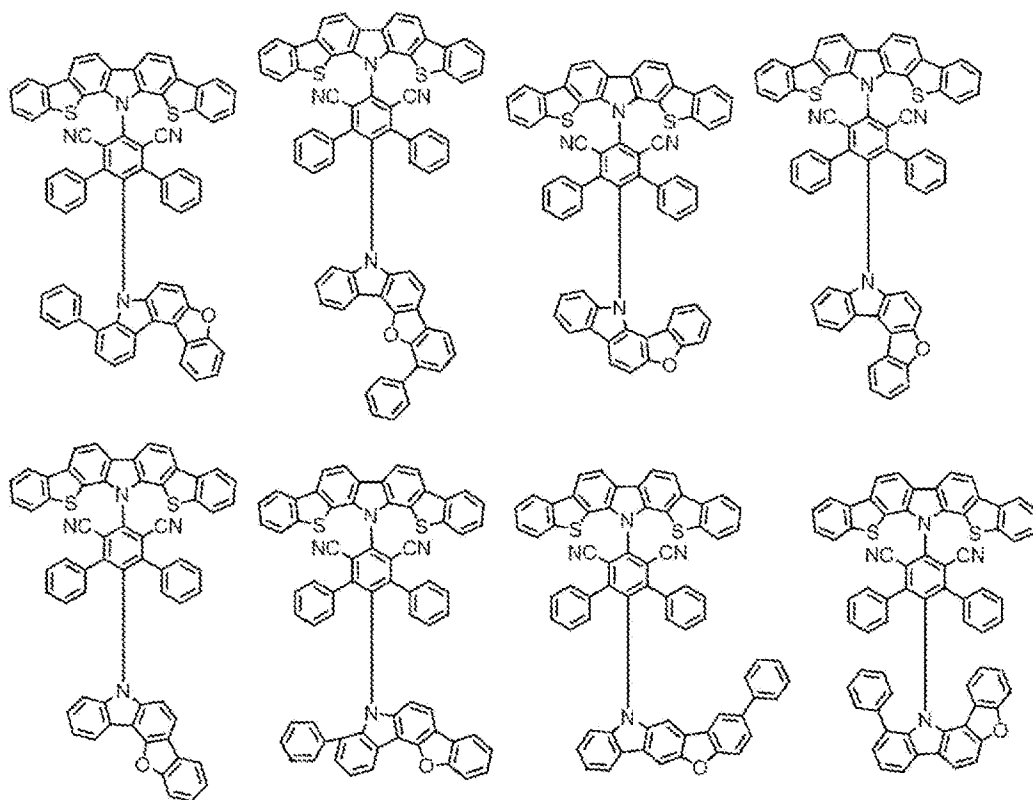


[0247]

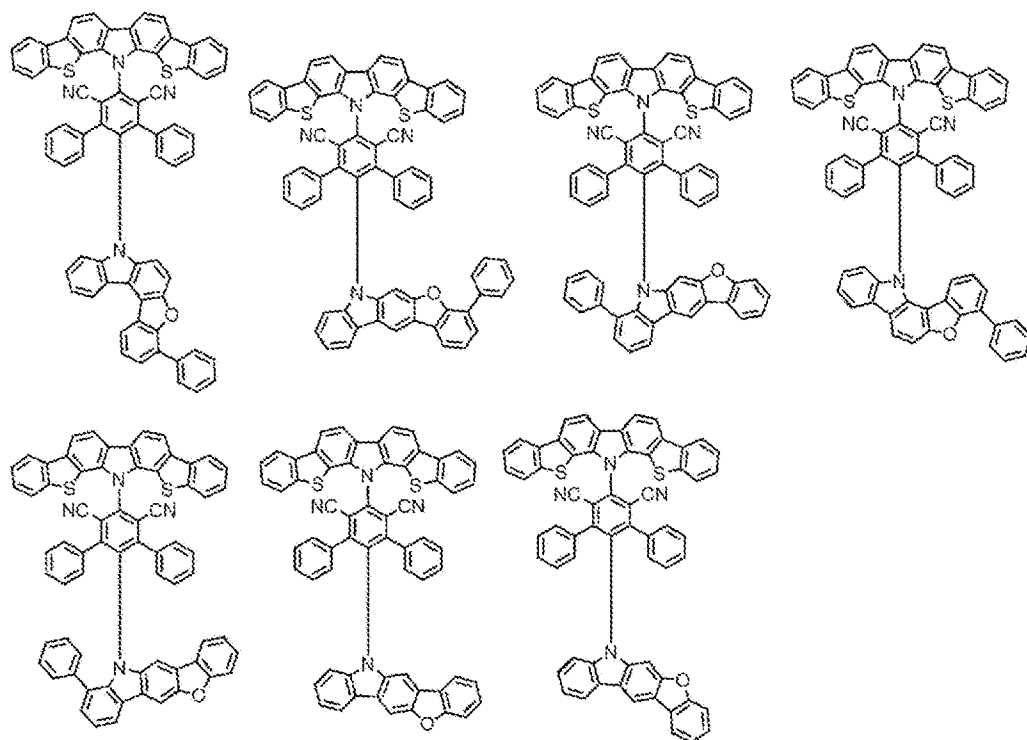
[化75]



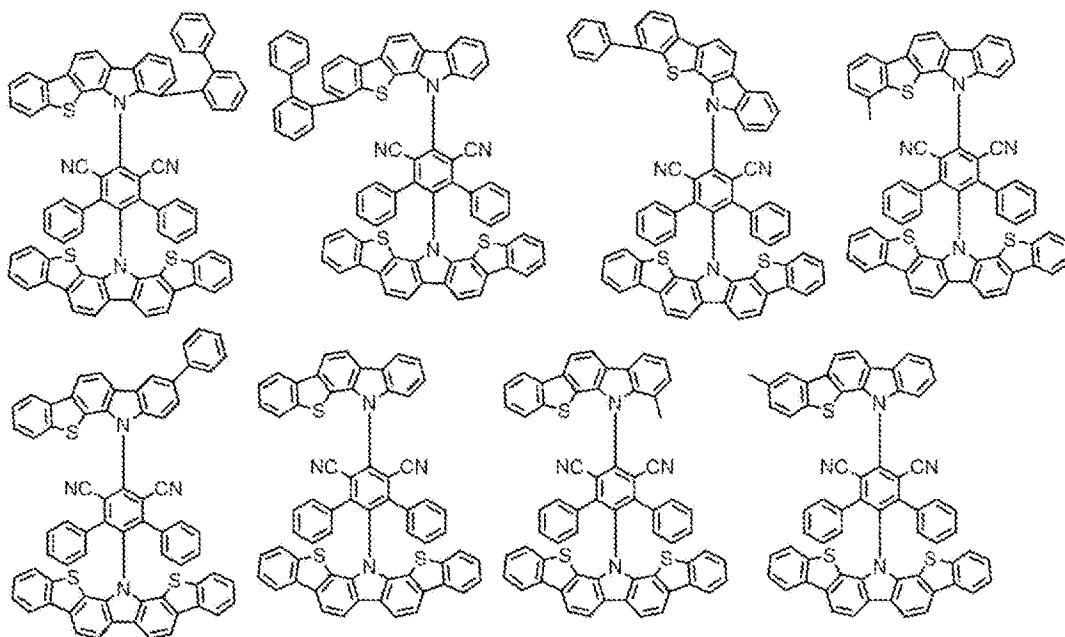
[0248] [化76]



[0249] [化77]

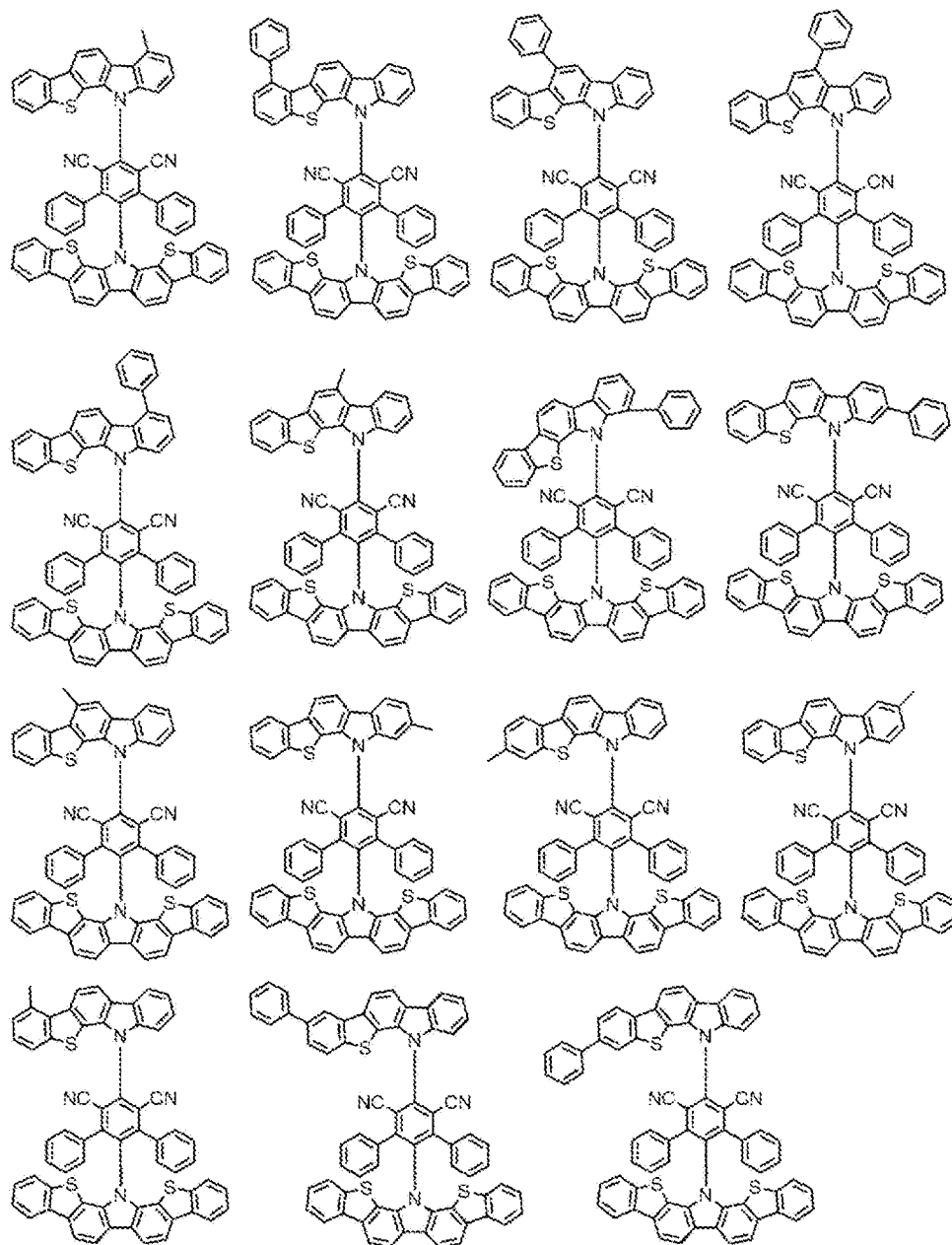


[0250] [化78]



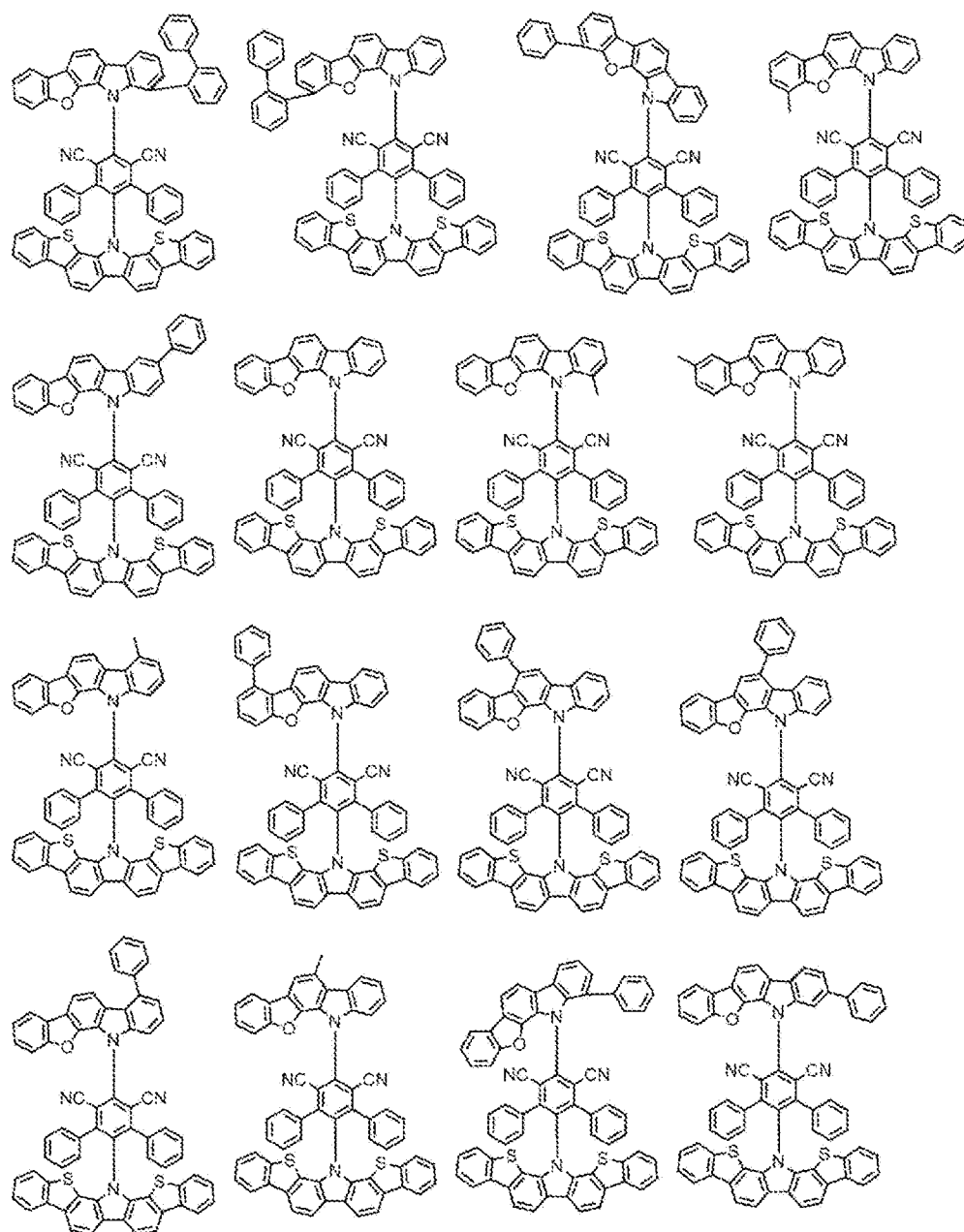
[0251]

[化79]



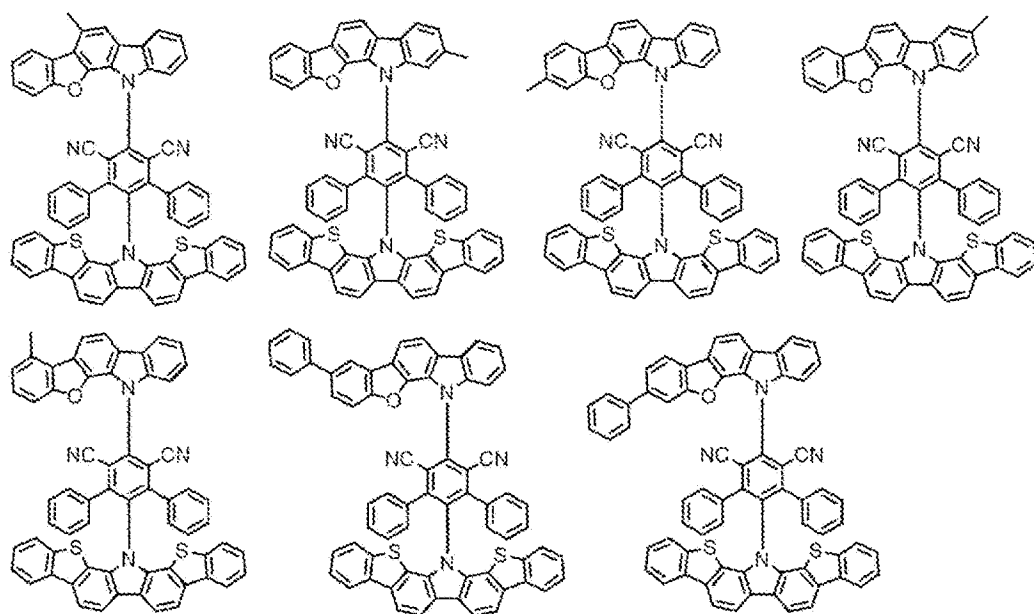
[0252]

[化80]

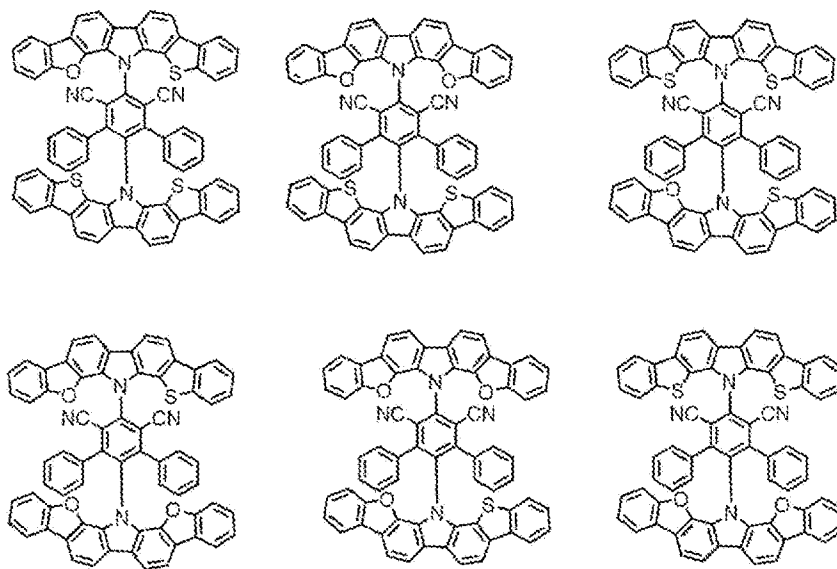


[0253]

[化81]

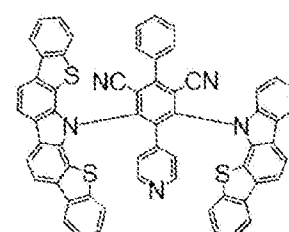
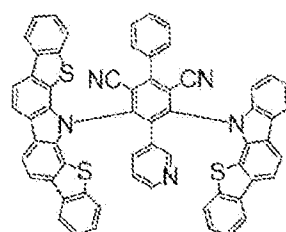
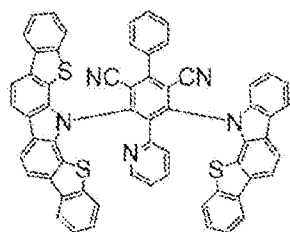
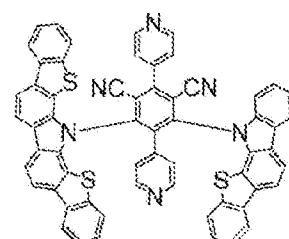
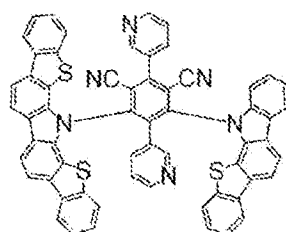
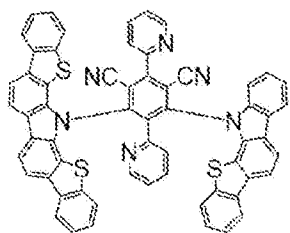
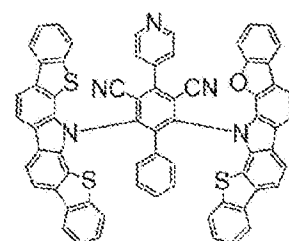
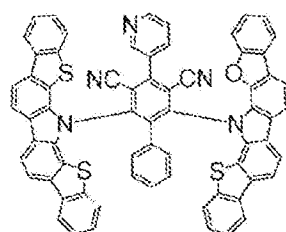
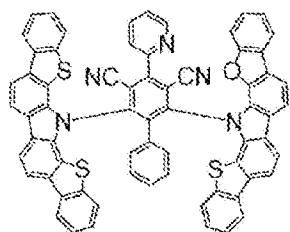
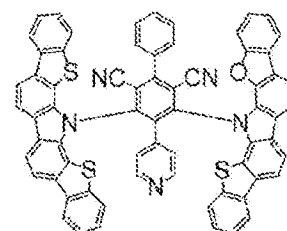
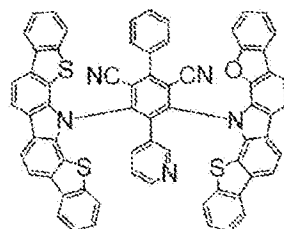
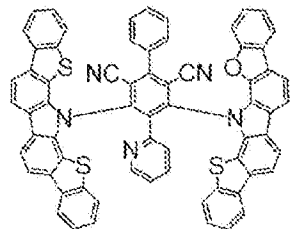
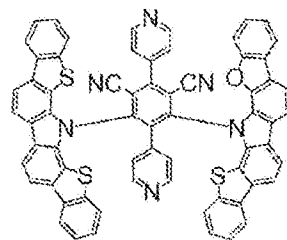
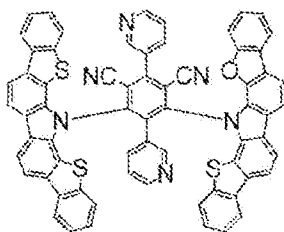
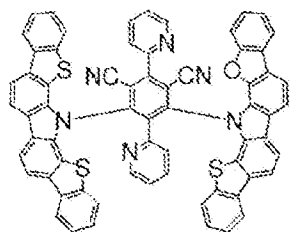


[0254] [化82]



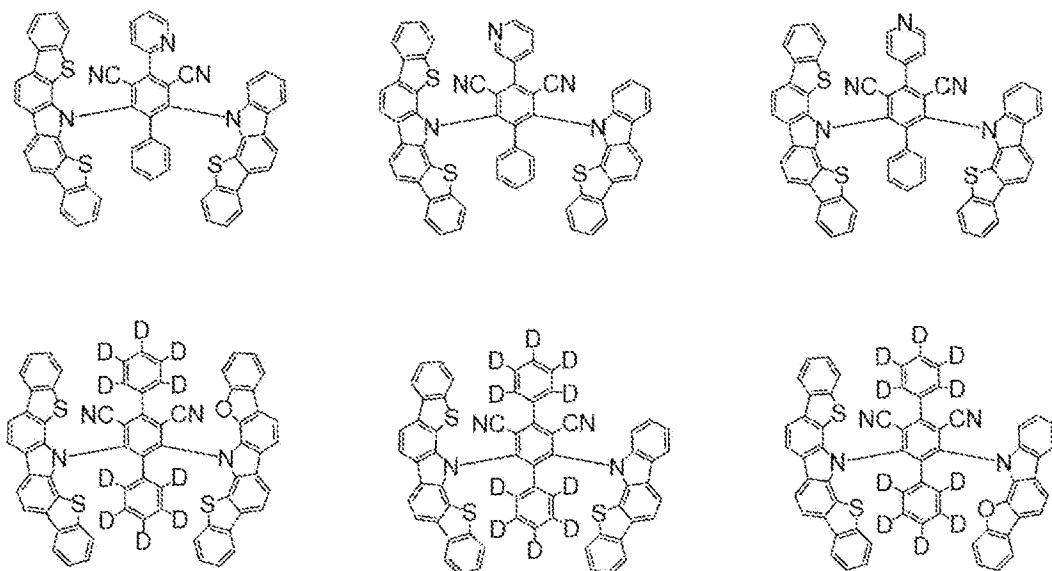
[0255]

[化83]

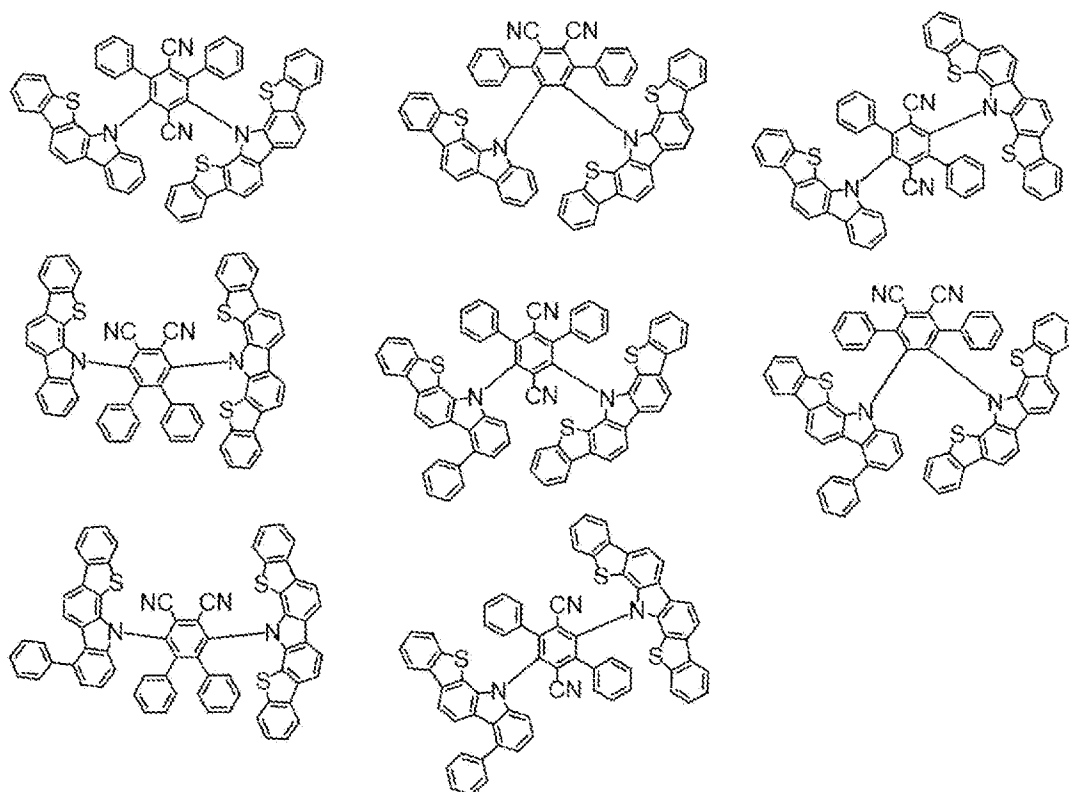


[0256]

[化84]

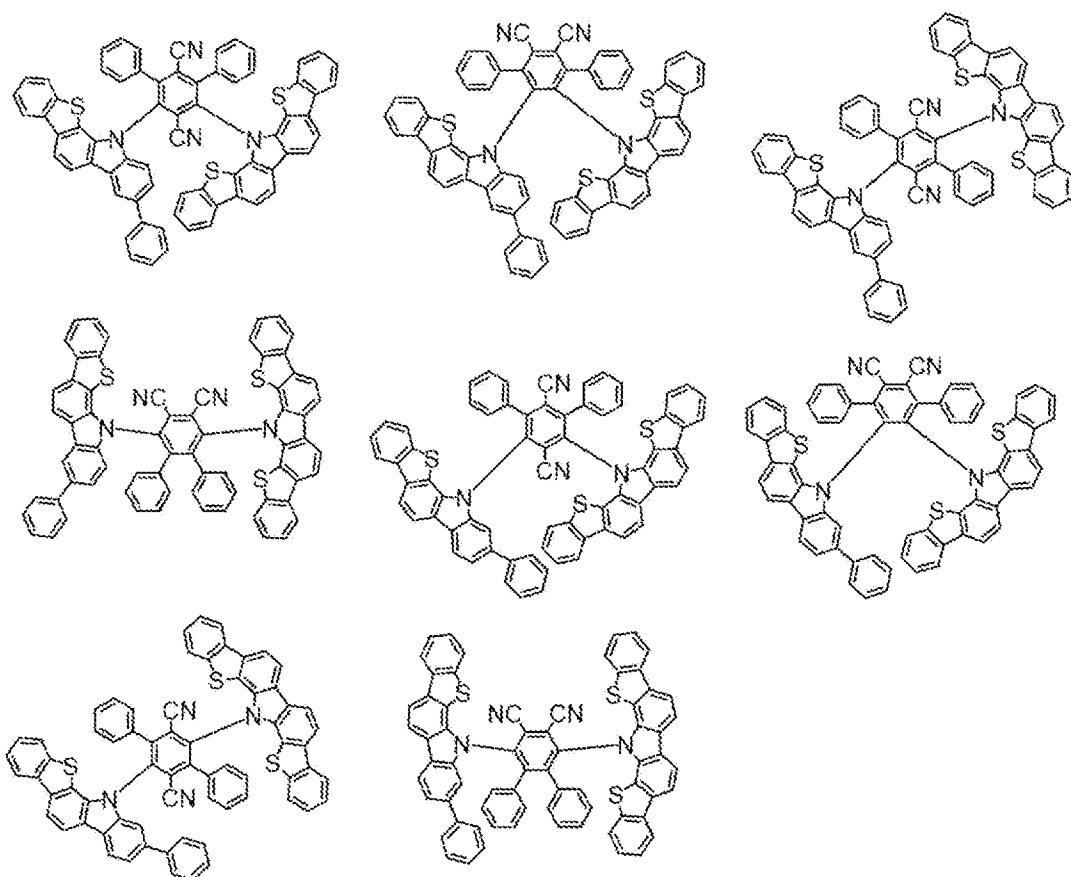


[0257] [化85]

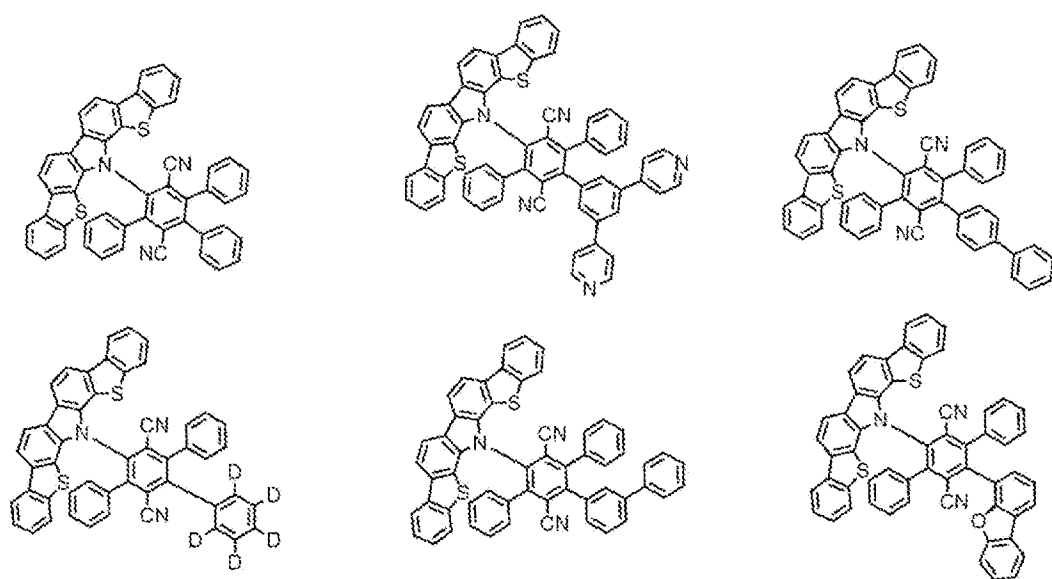


[0258]

[化86]

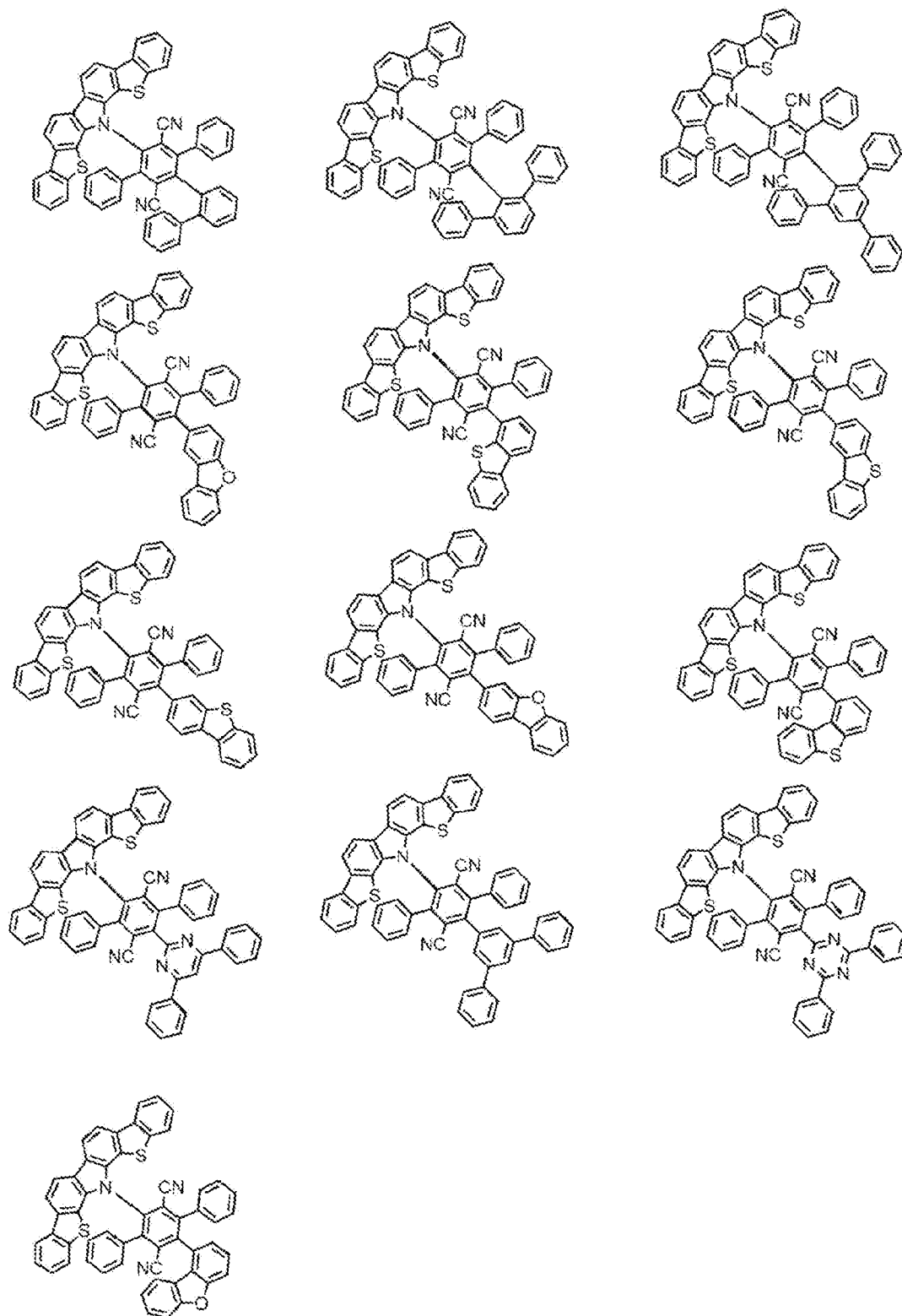


[0259] [化87]



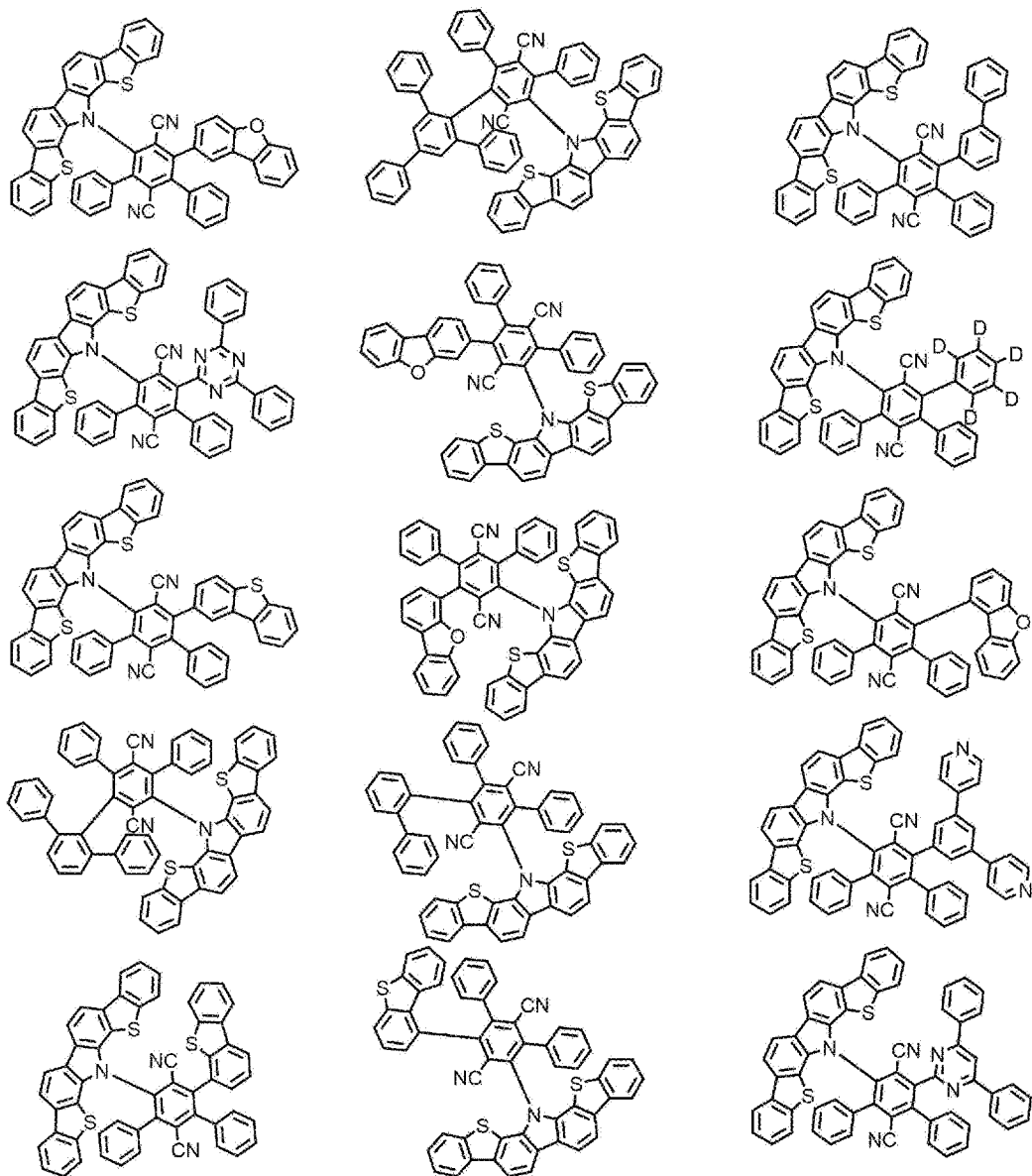
[0260]

[化88]



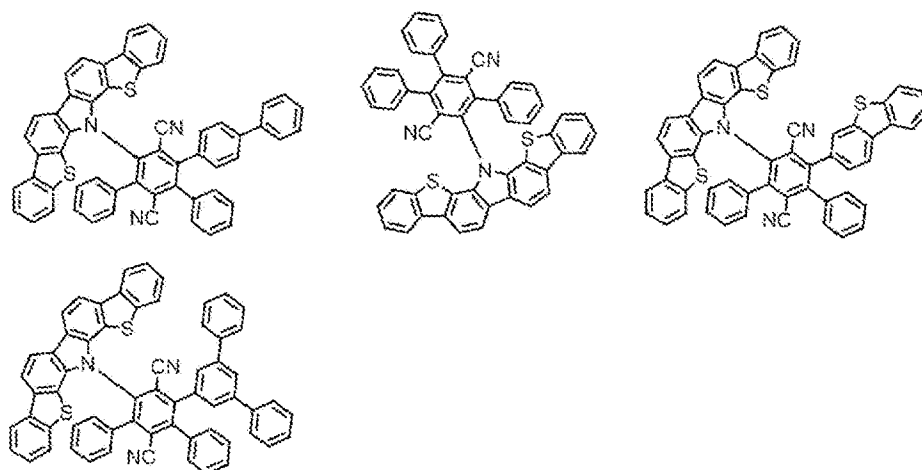
[0261]

[化89]

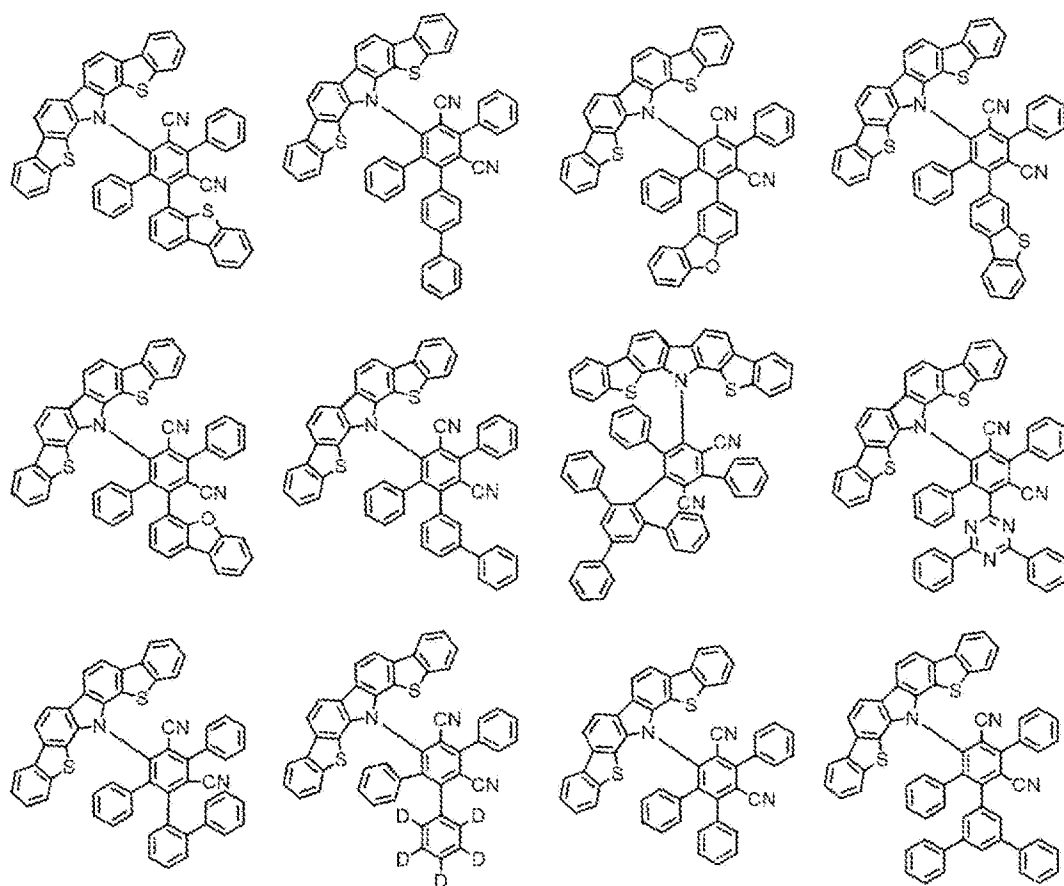


[0262]

[化90]

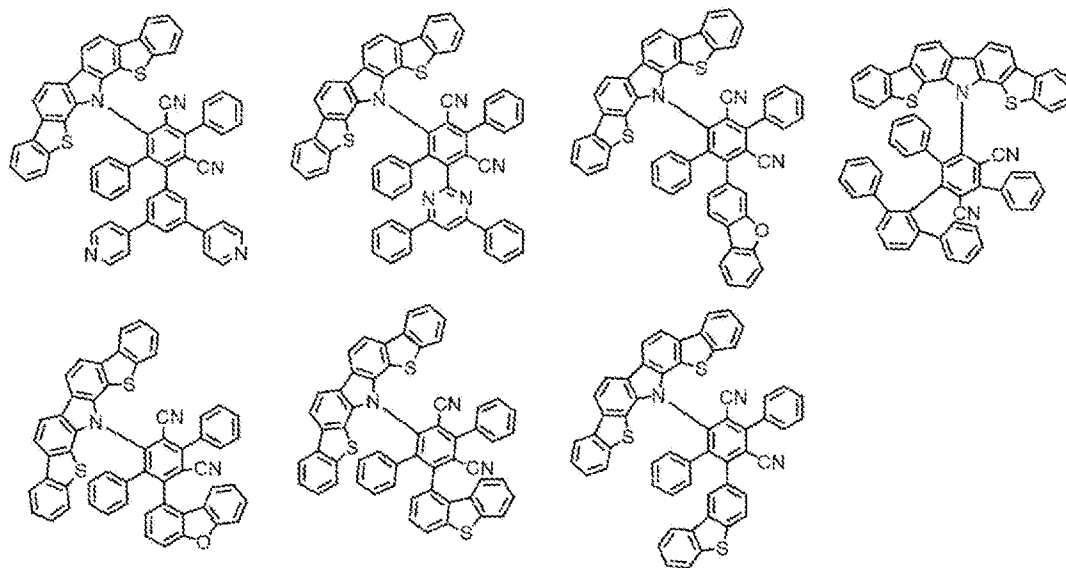


[0263] [化91]



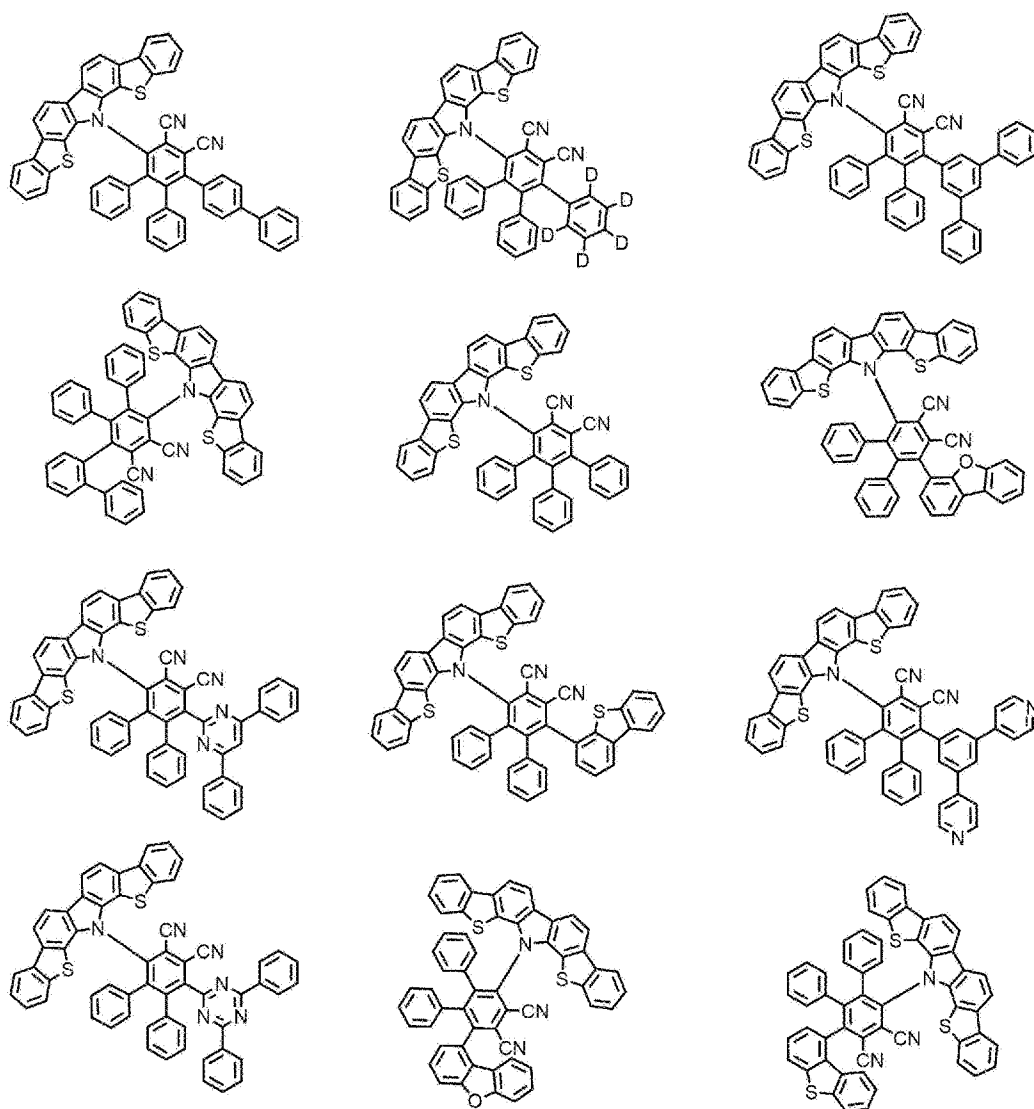
[0264]

[化92]



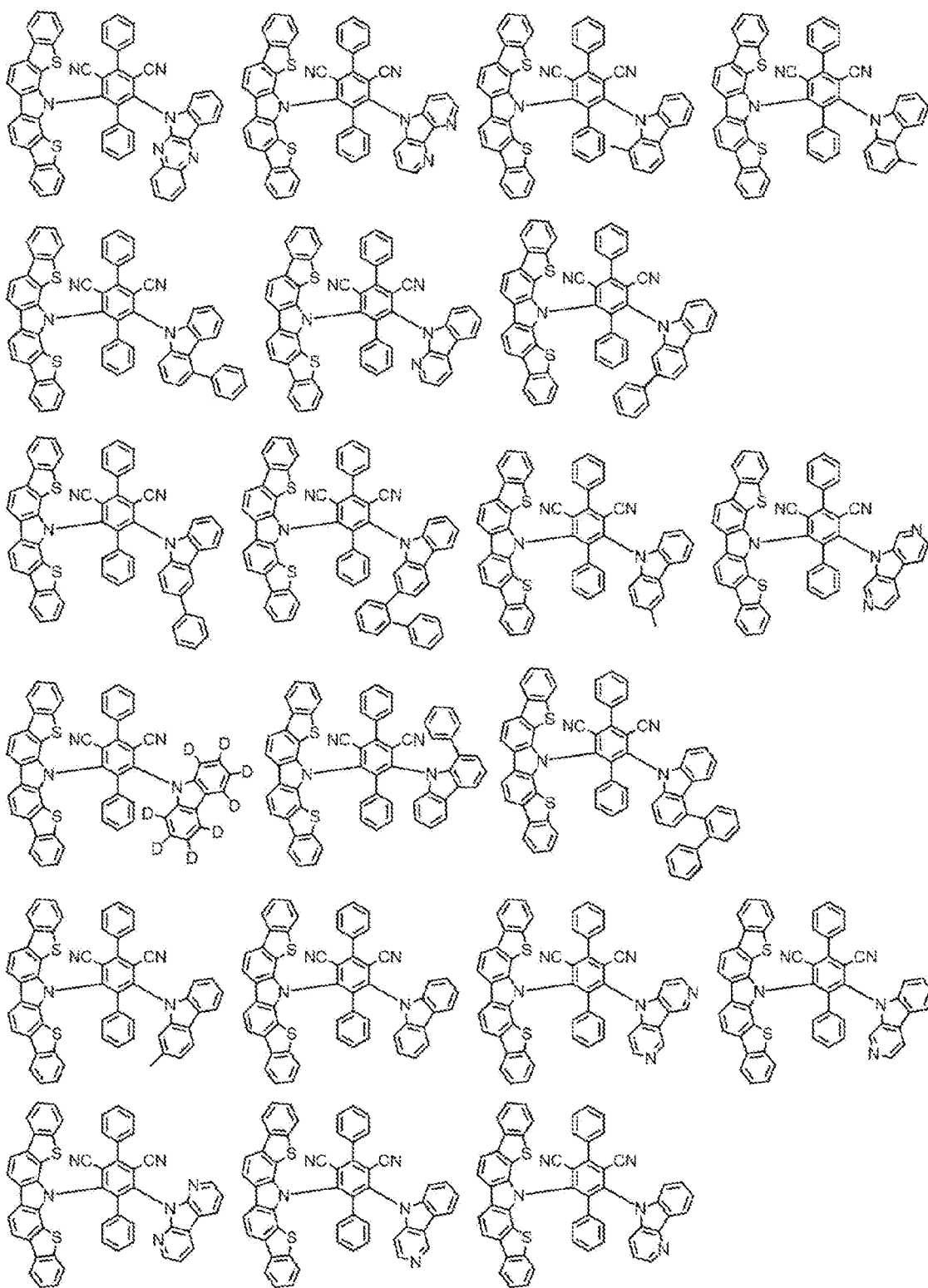
[0265]

[化93]



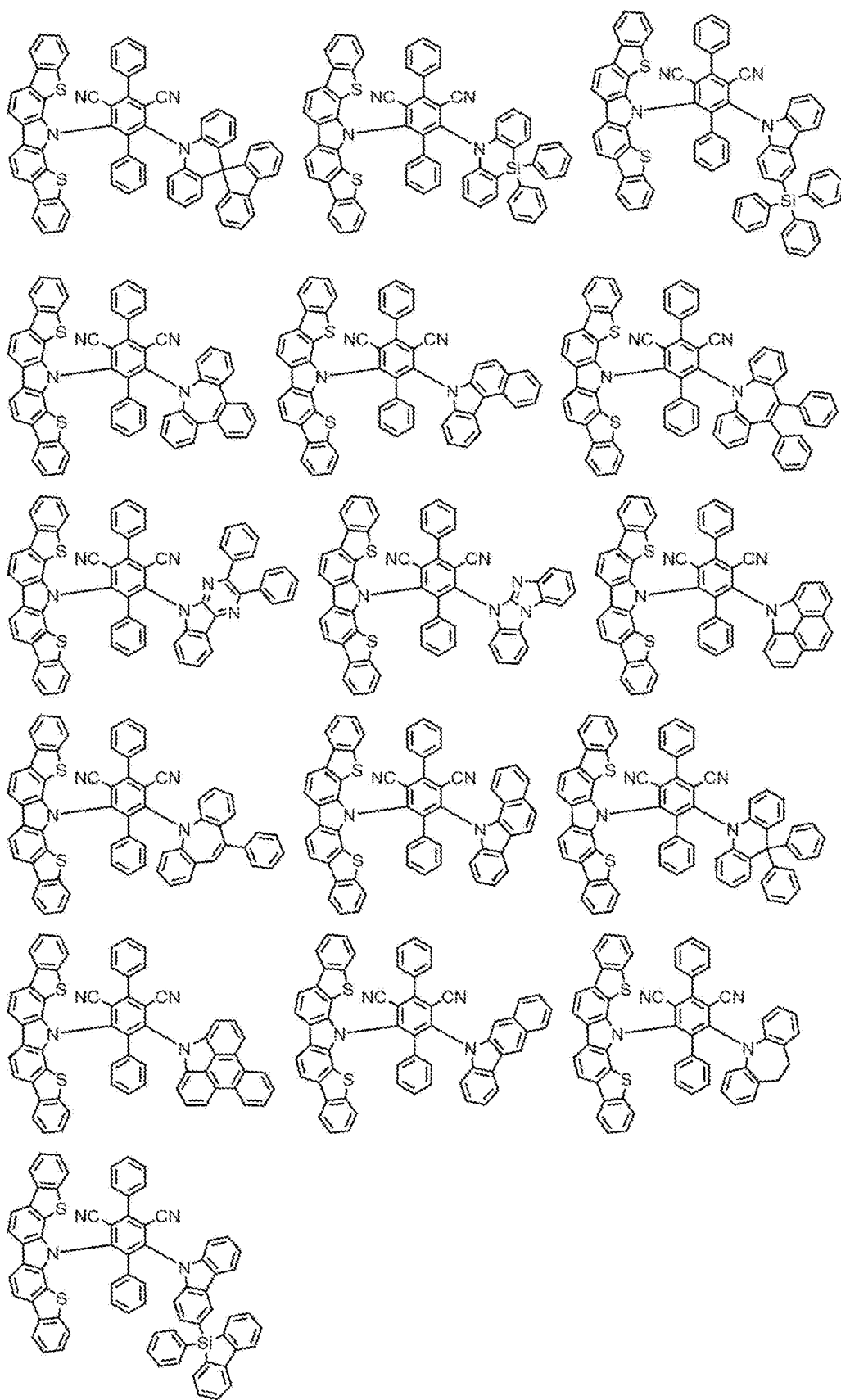
[0266]

[化94]

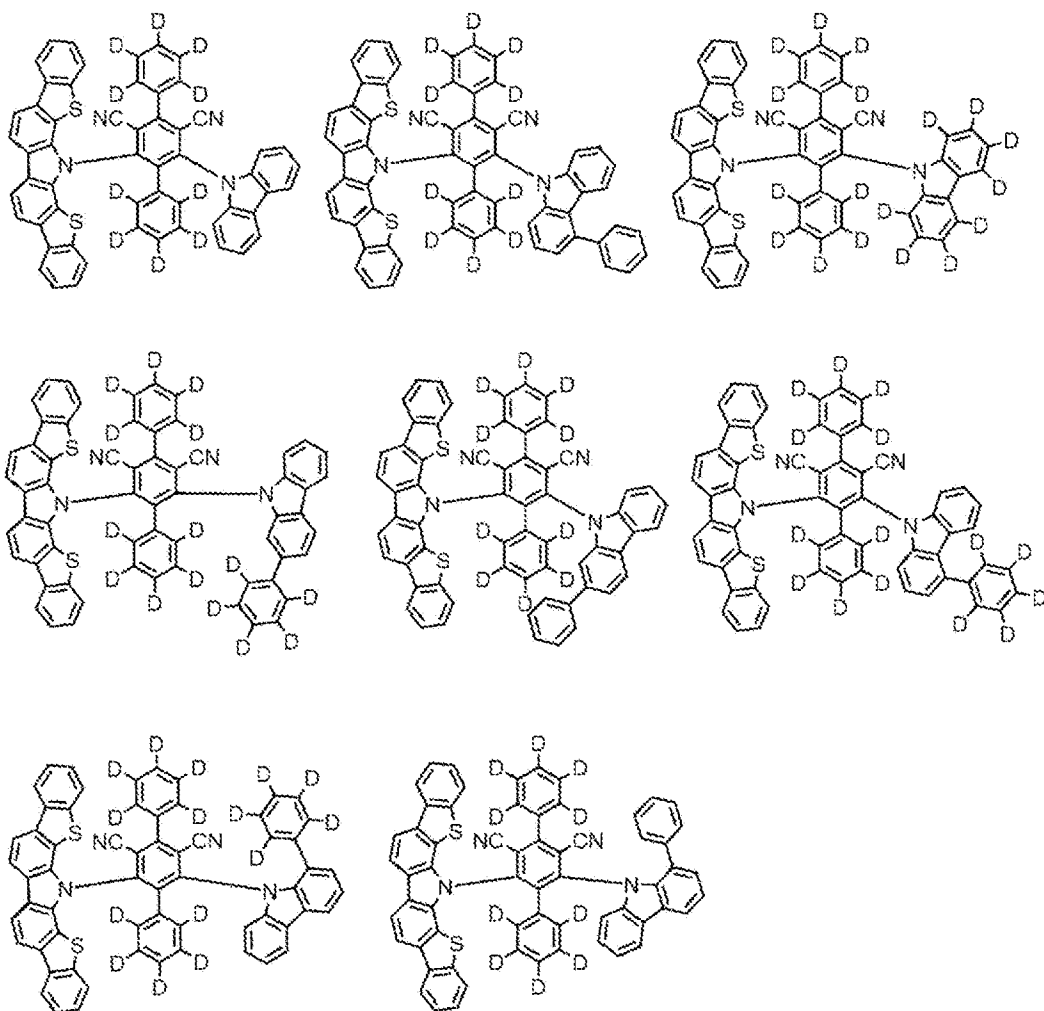


[0267]

[化95]

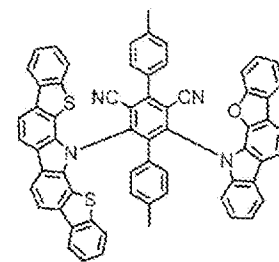
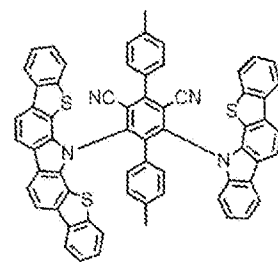
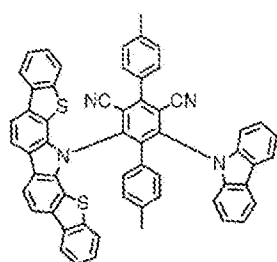
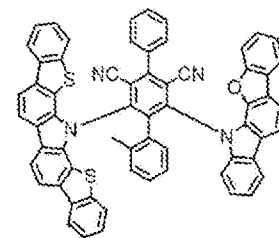
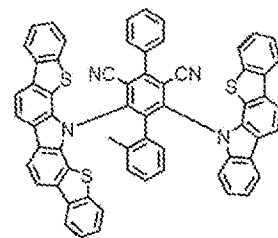
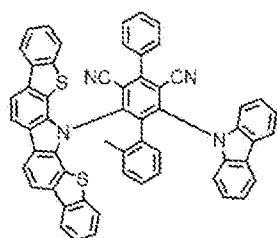
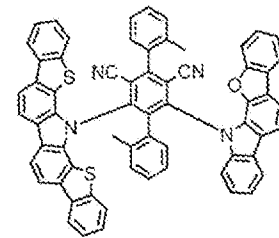
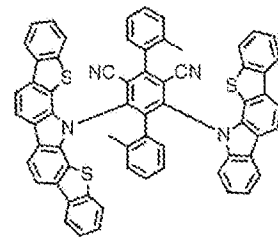
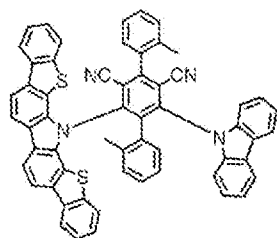
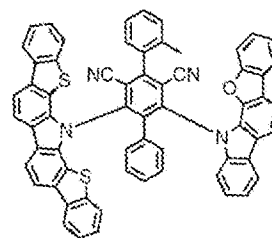
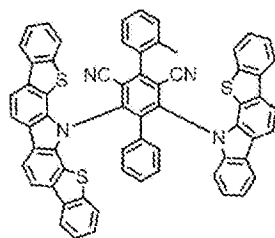
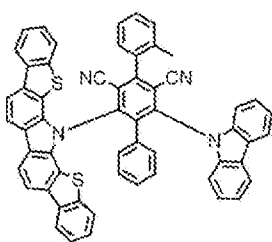


[0268] [化96]



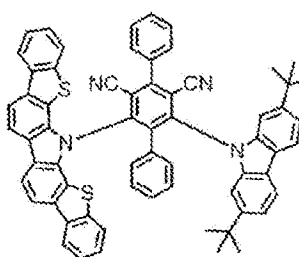
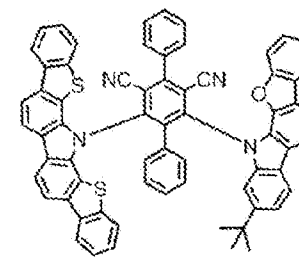
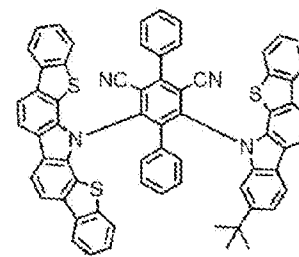
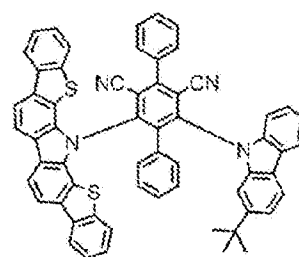
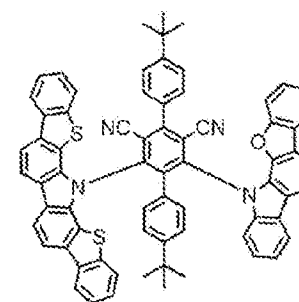
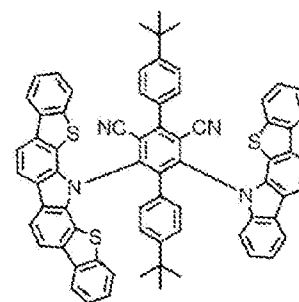
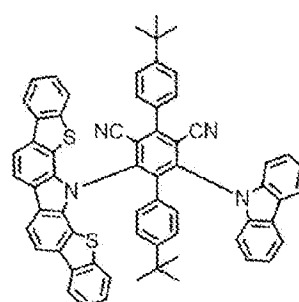
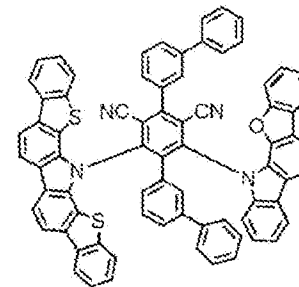
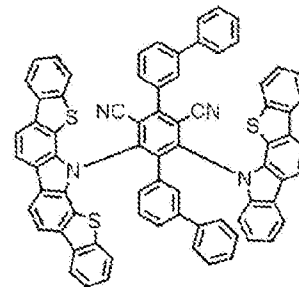
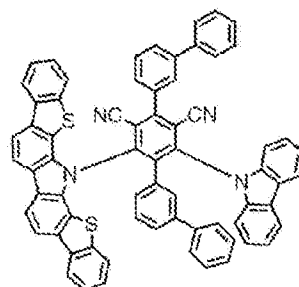
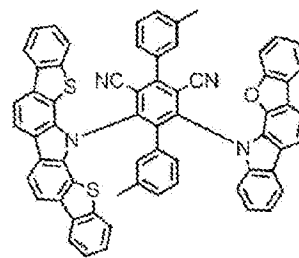
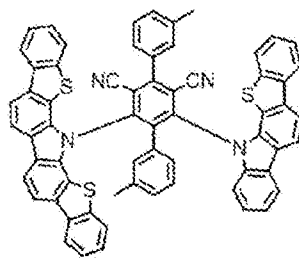
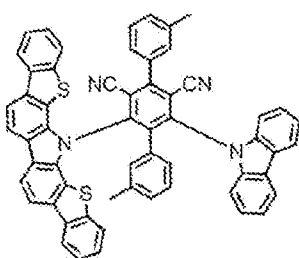
[0269]

[化97]



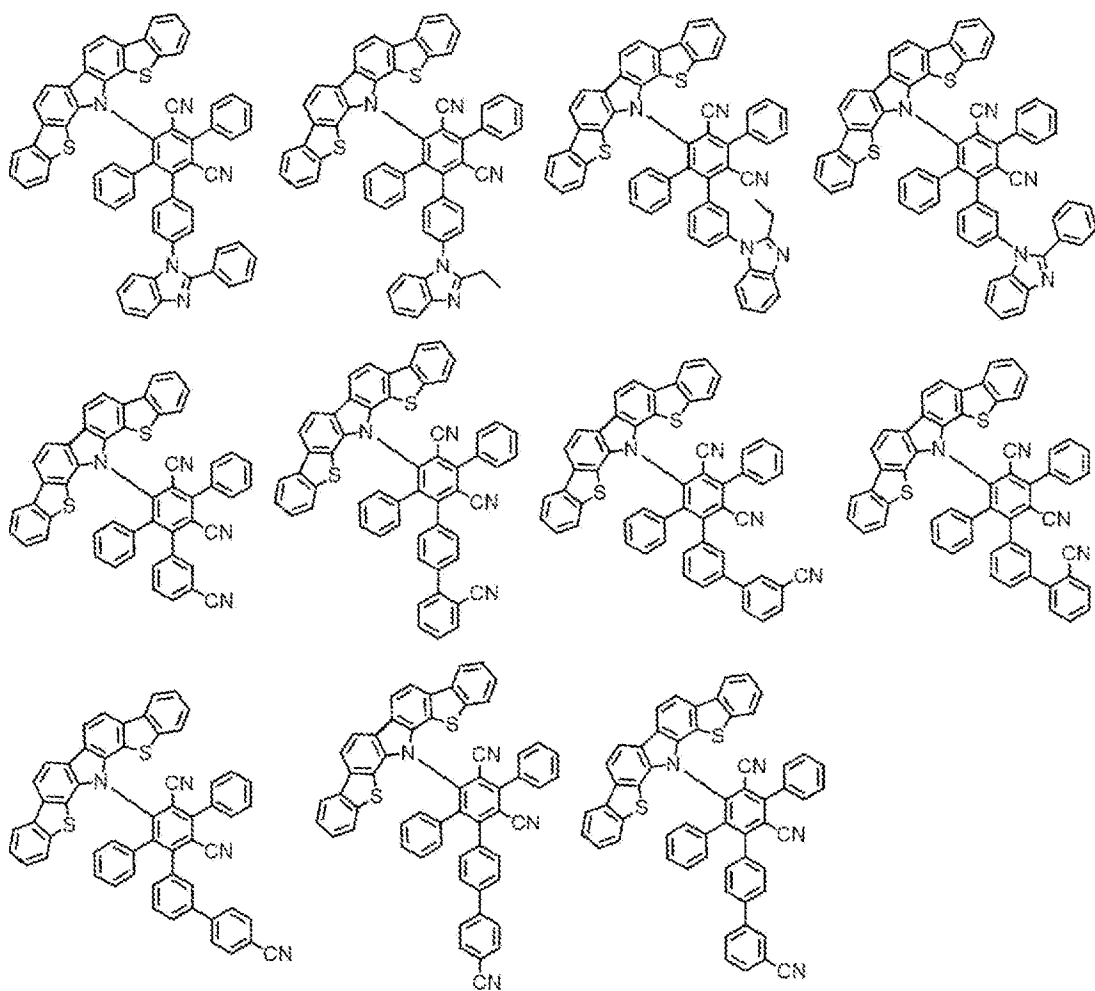
[0270]

[化98]



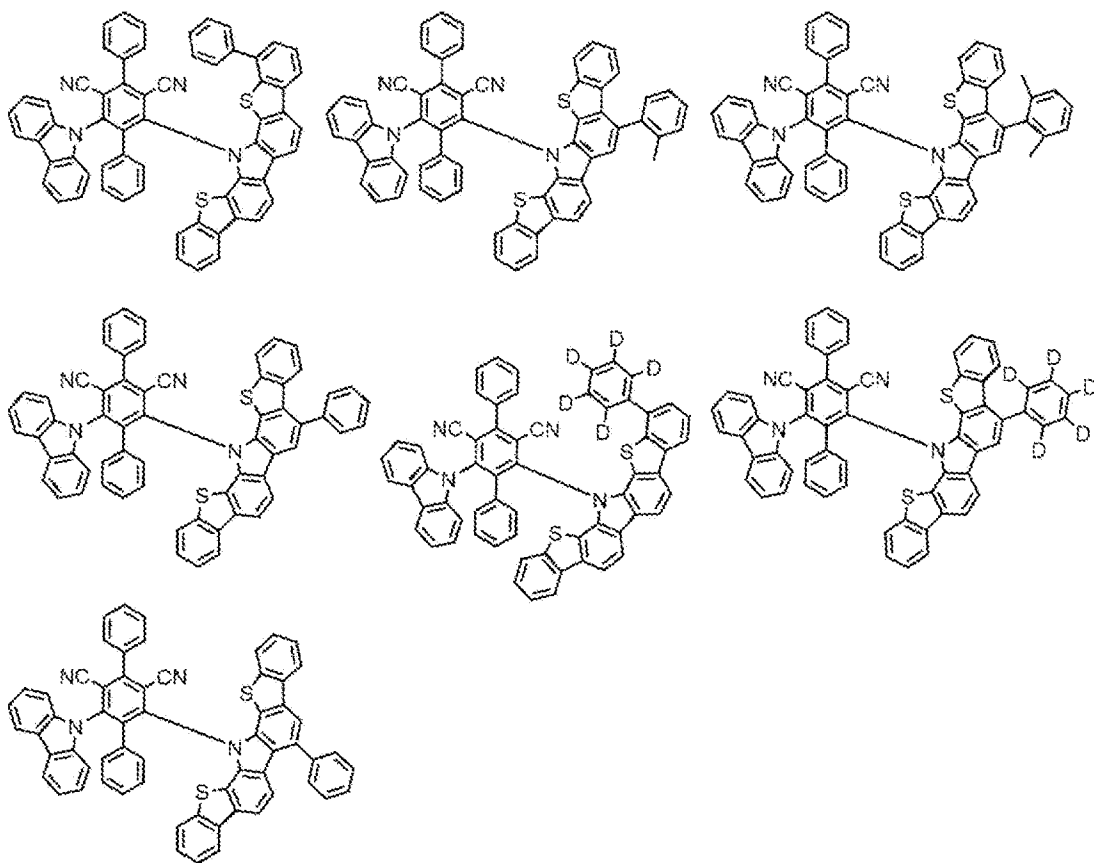
[0271]

[化99]



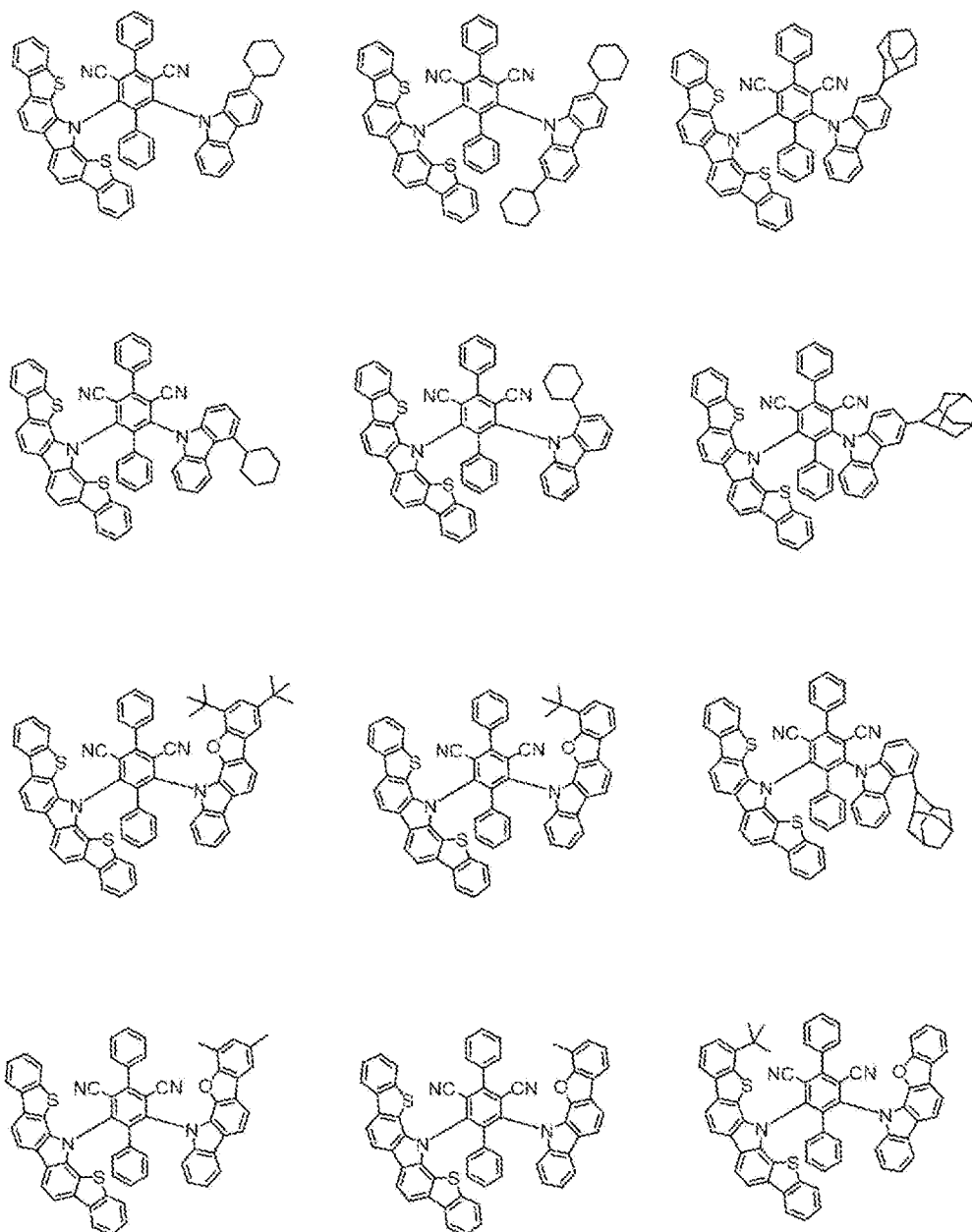
[0272]

[化100]



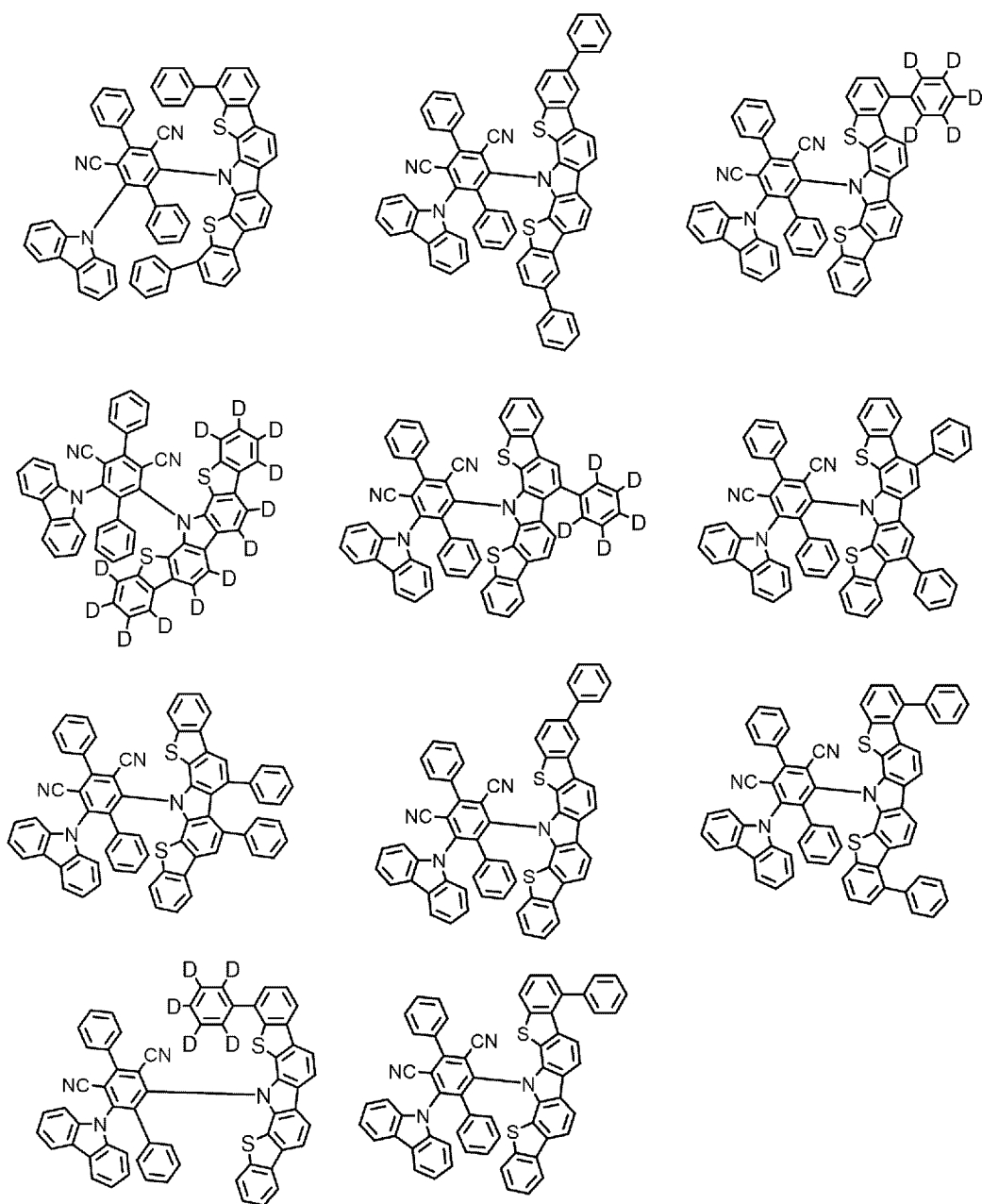
[0273]

[化101]



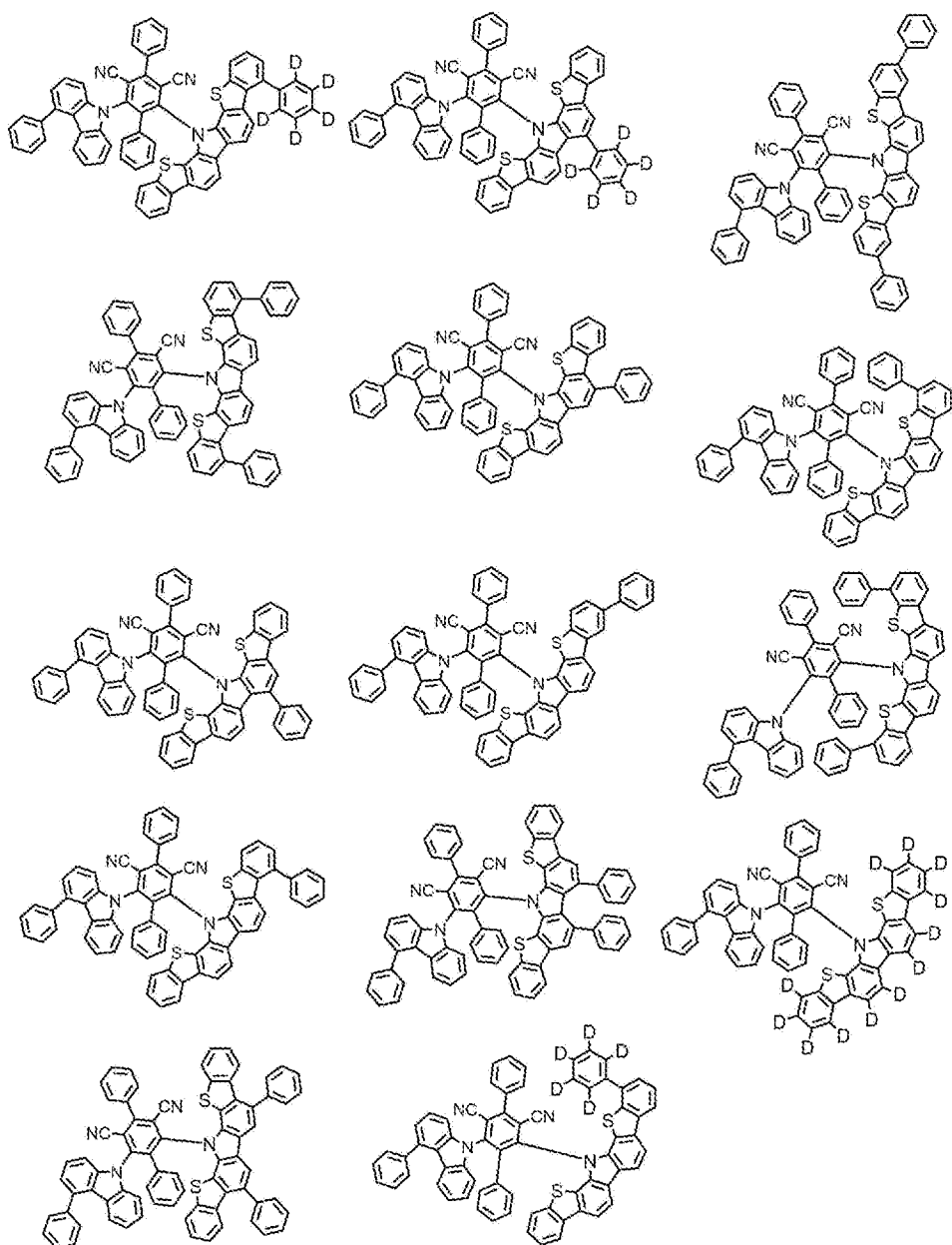
[0274]

[化102]



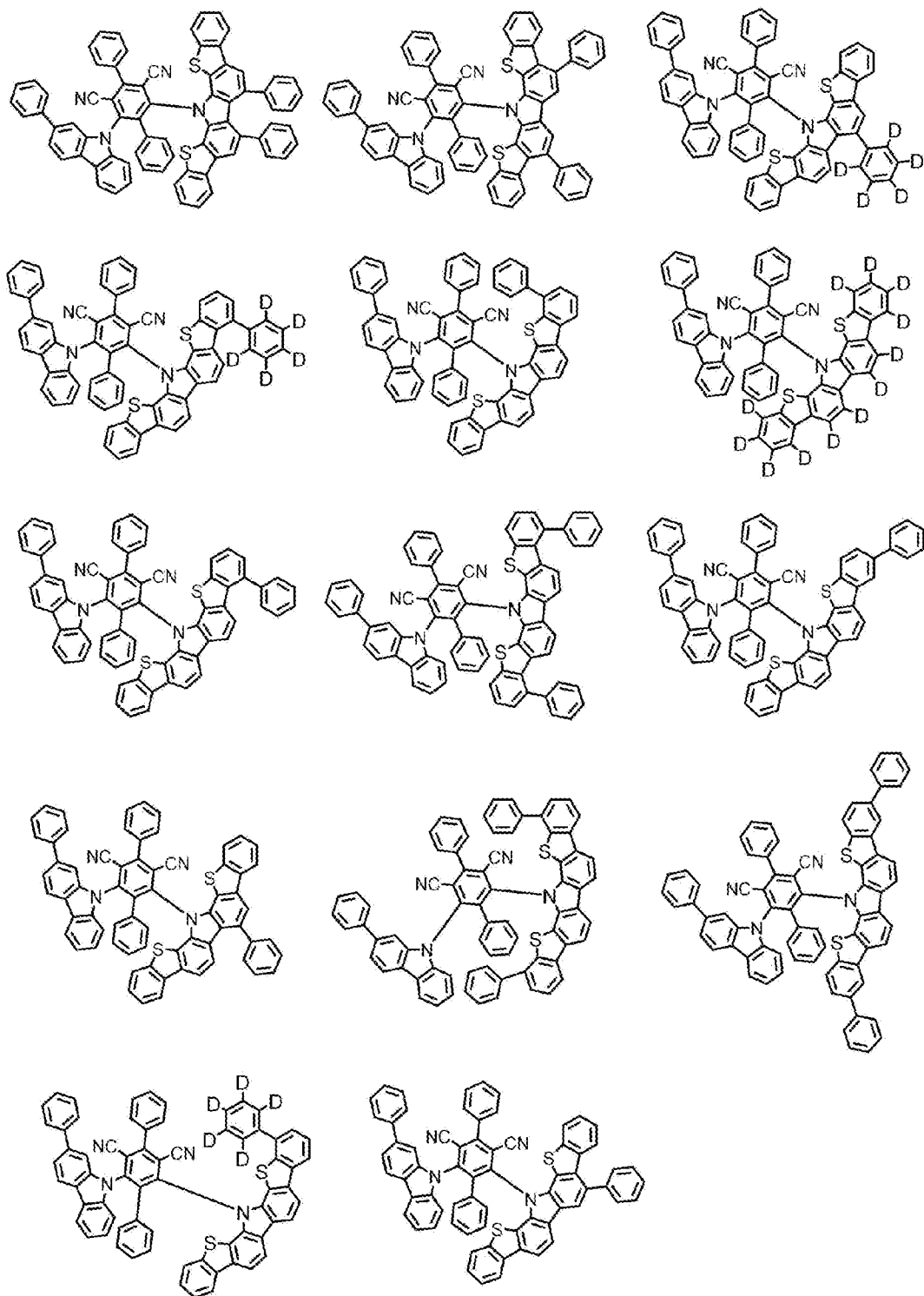
[0275]

[化103]



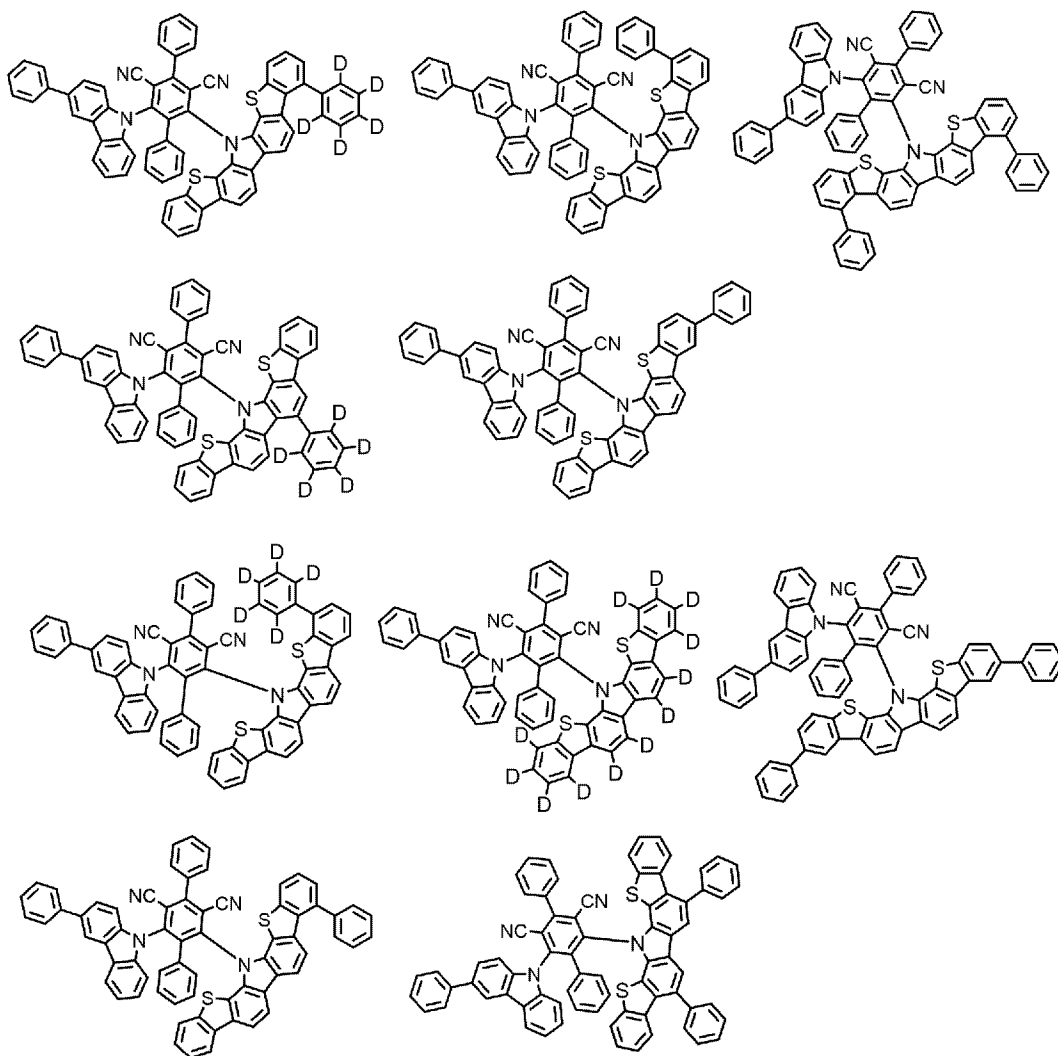
[0276]

[化104]

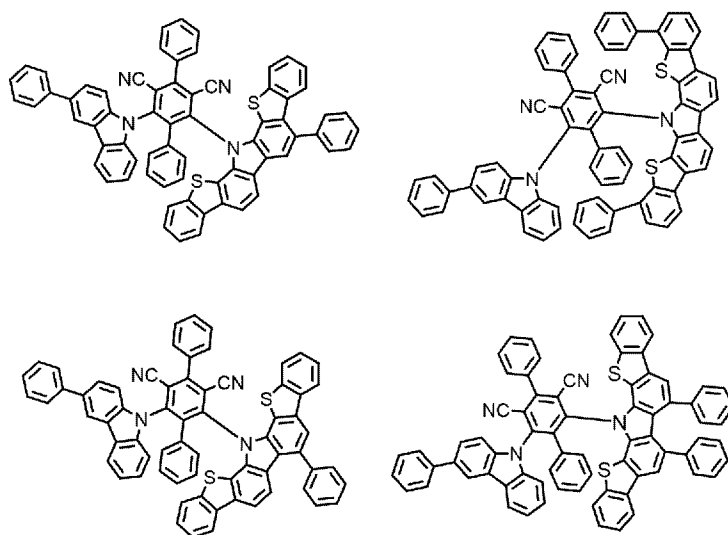


[0277]

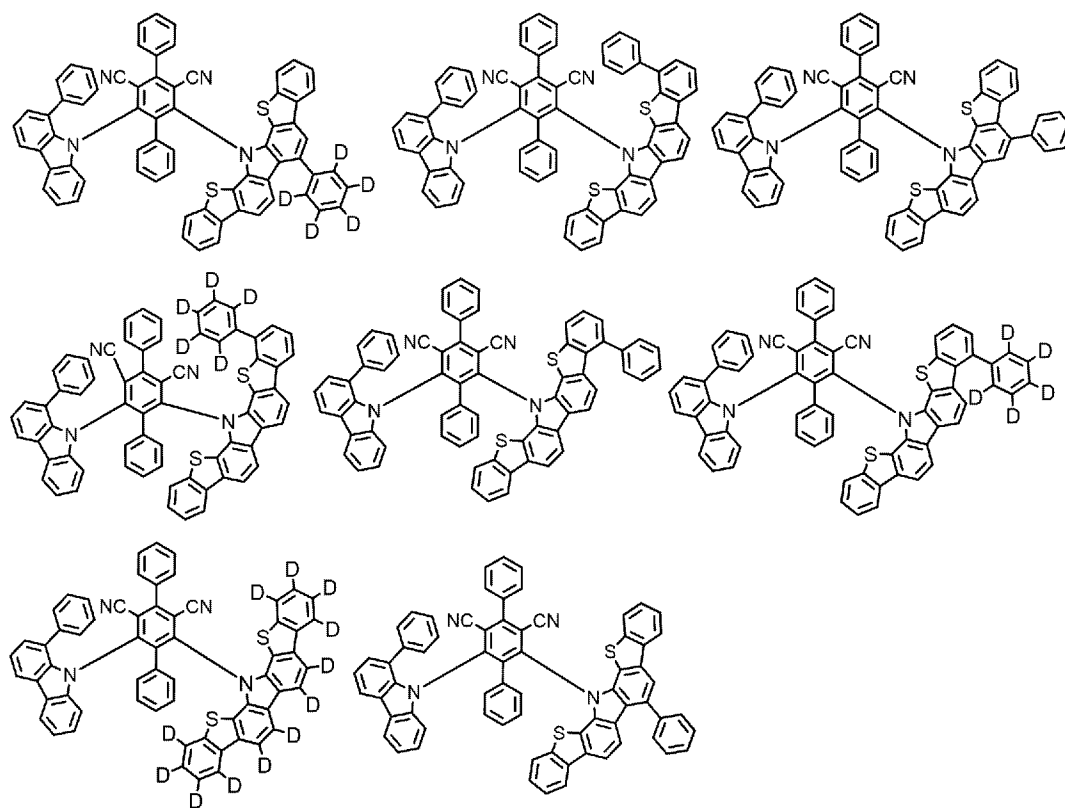
[化105]



[0278] [化106]

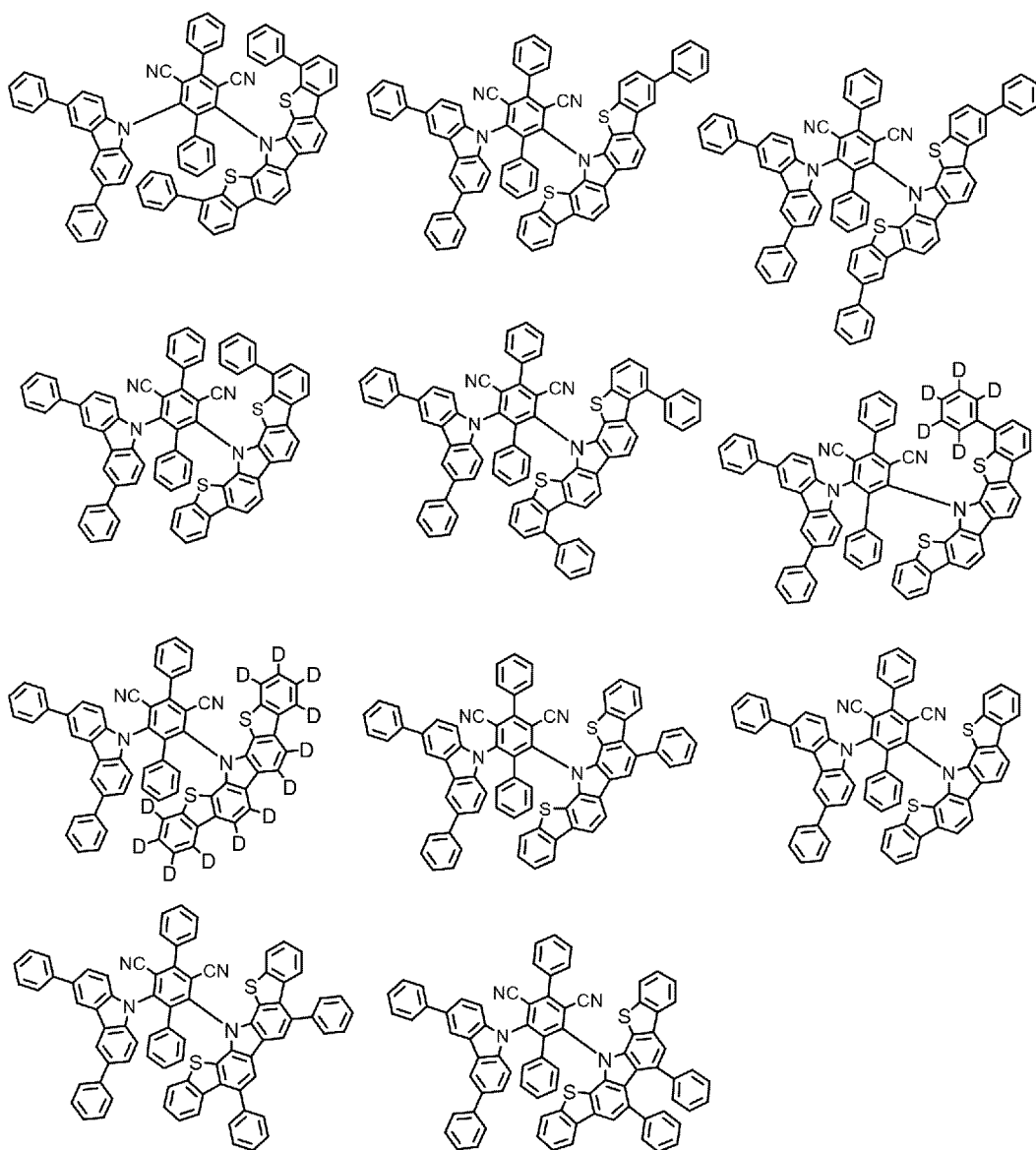


[0279] [化107]



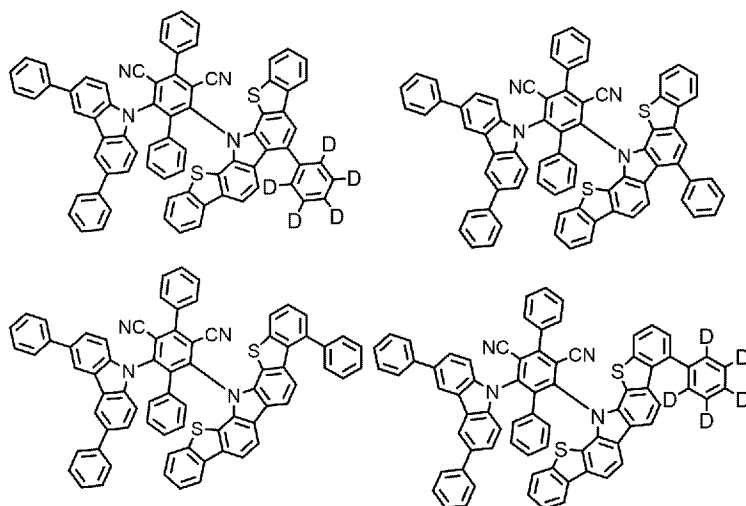
[0280]

[化108]



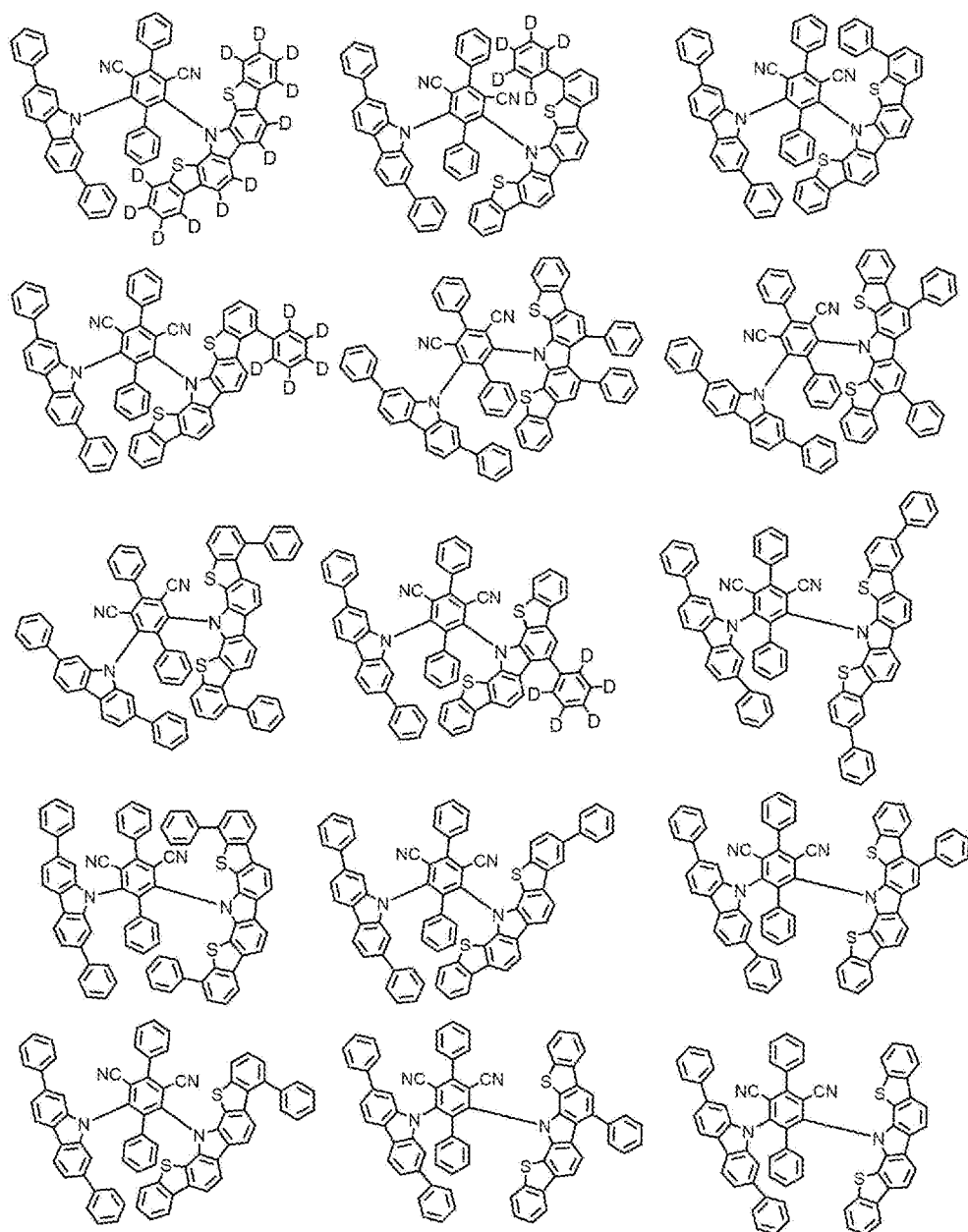
[0281]

[化109]



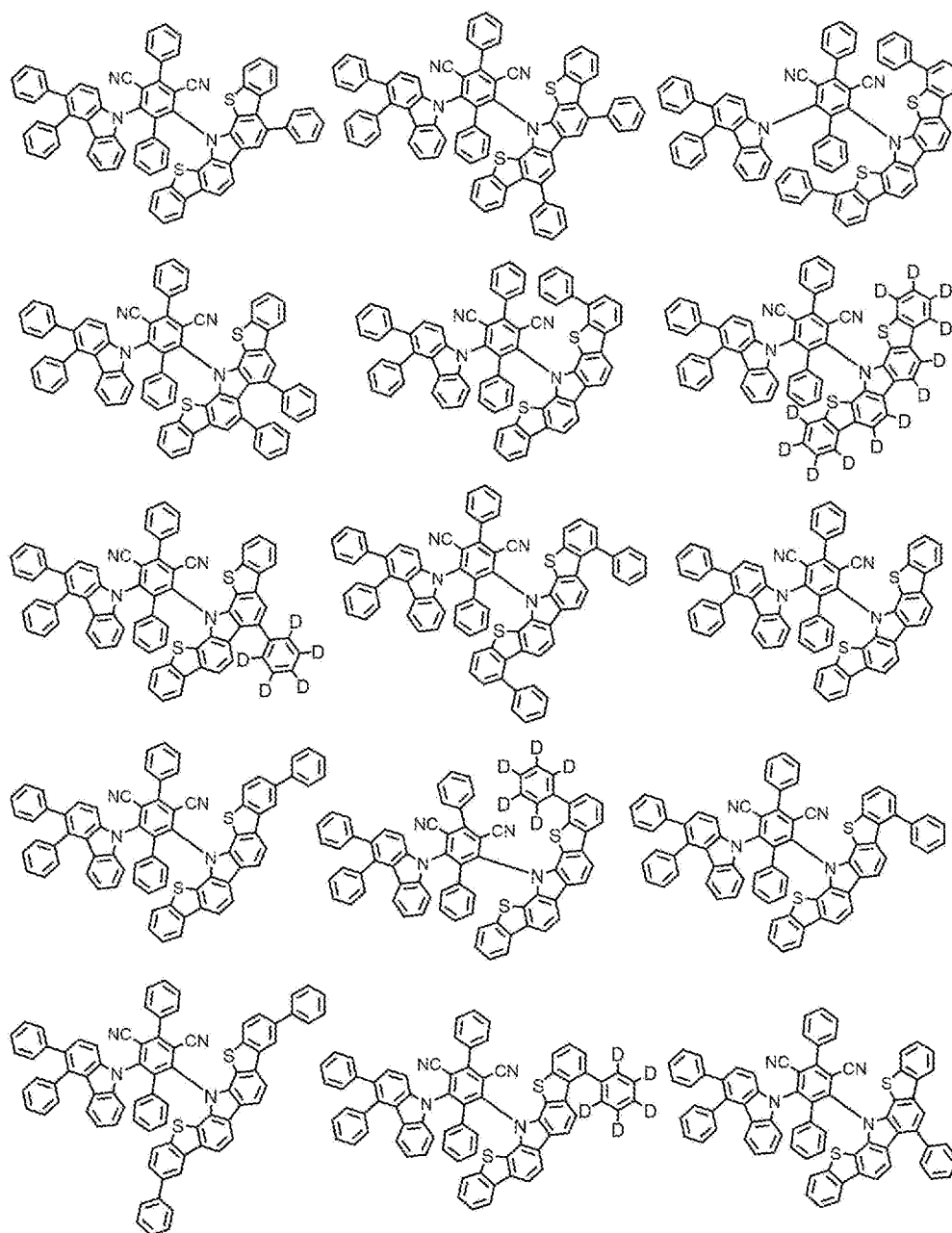
[0282]

[化110]



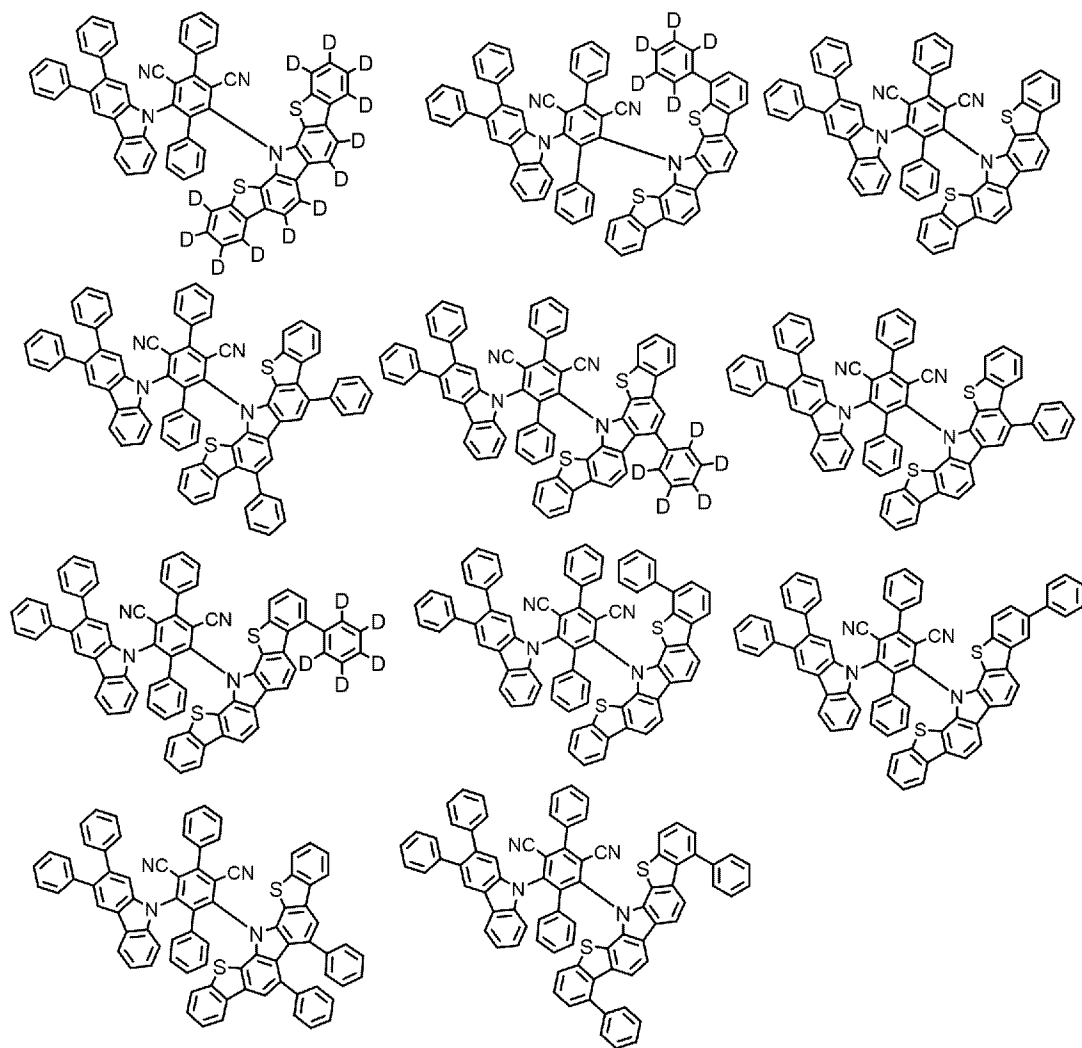
[0283]

[化111]

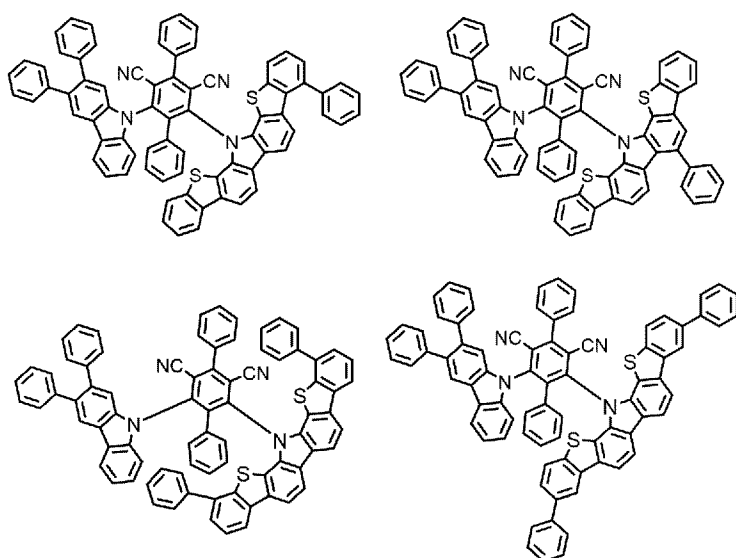


[0284]

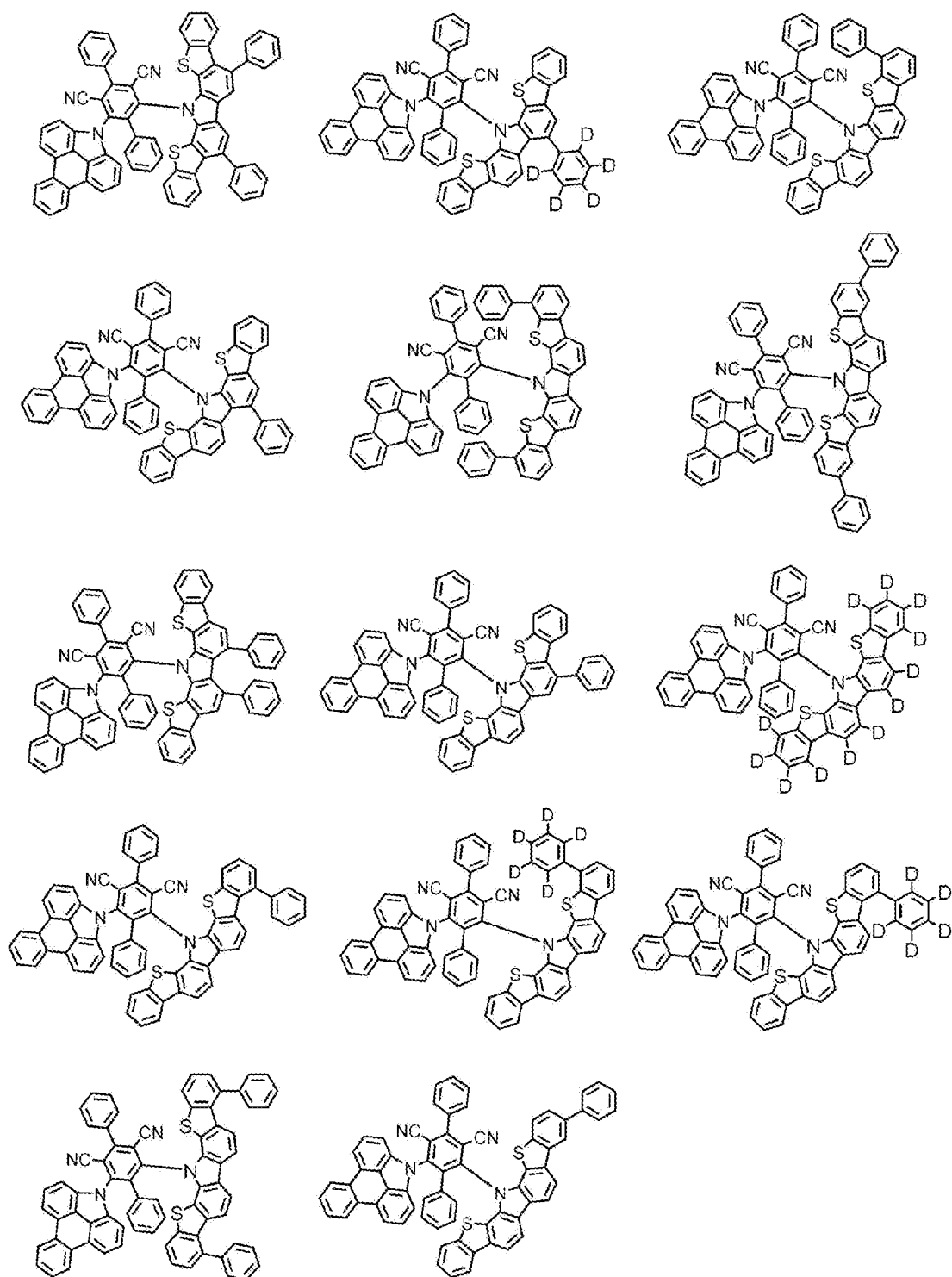
[化112]



[0285] [化113]

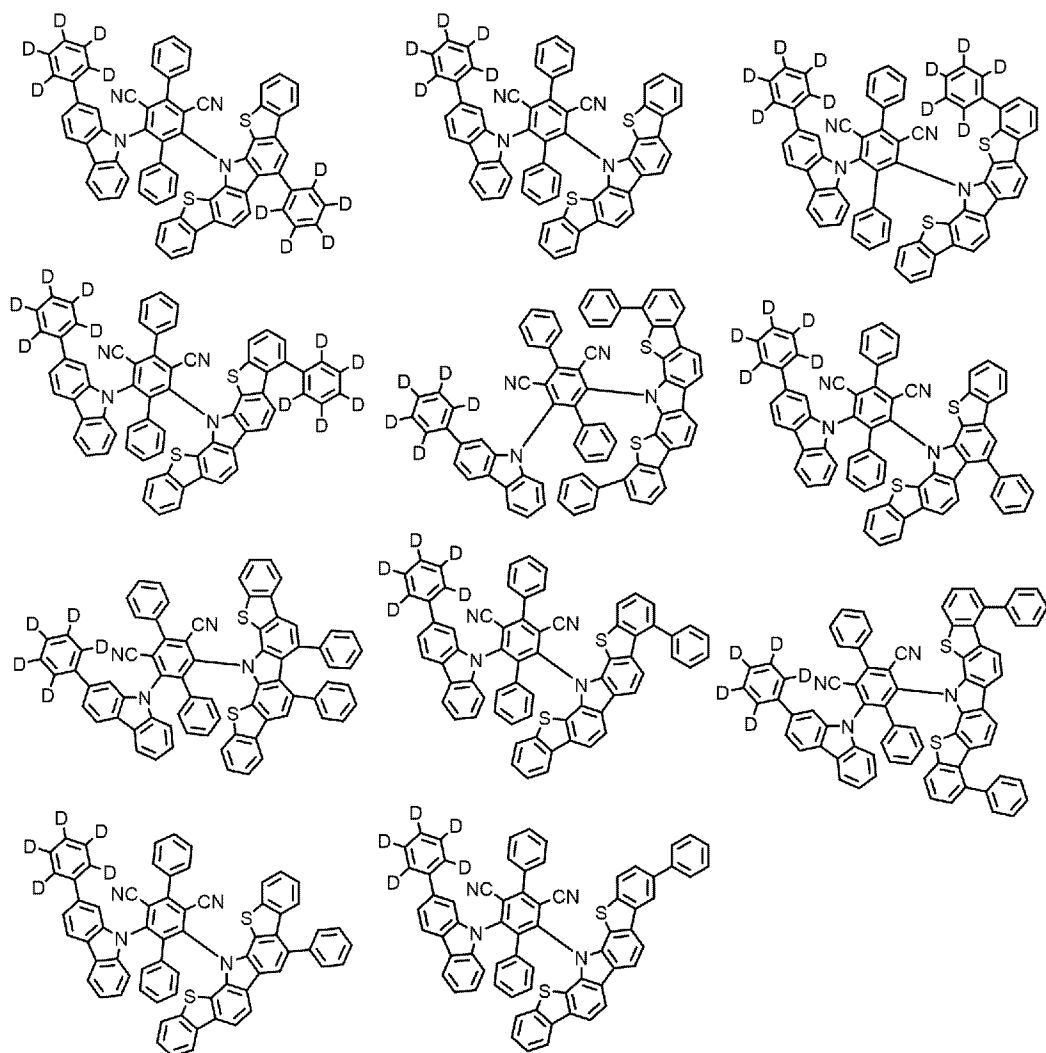


[0286] [化114]



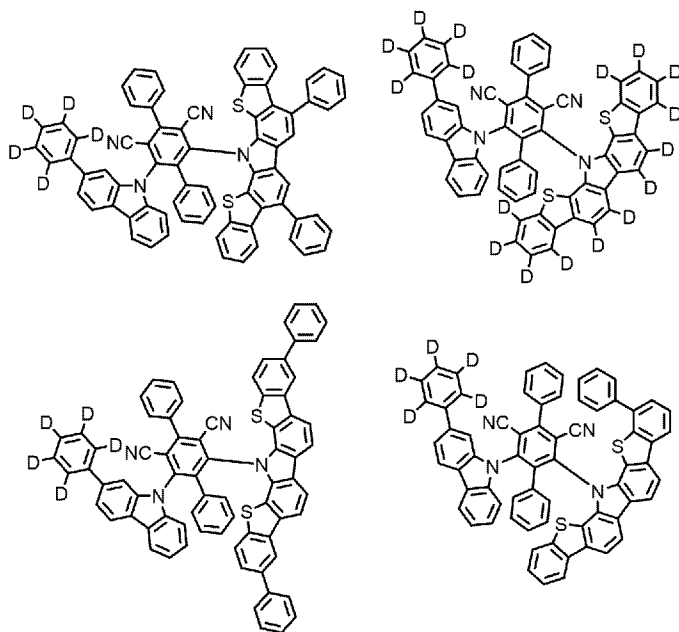
[0287]

[化115]

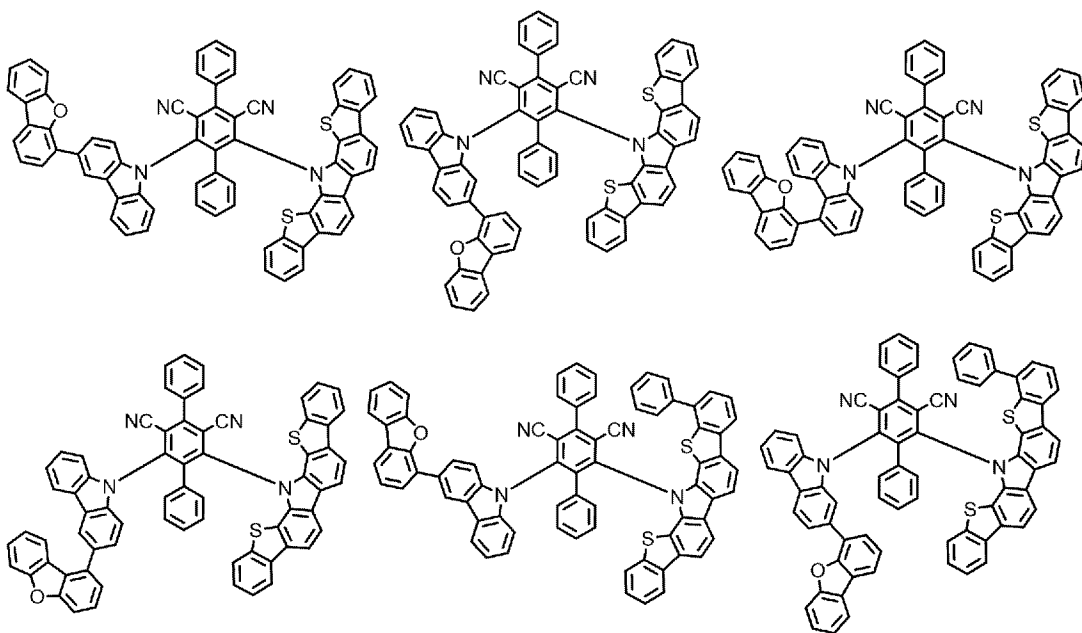


[0288]

[化116]

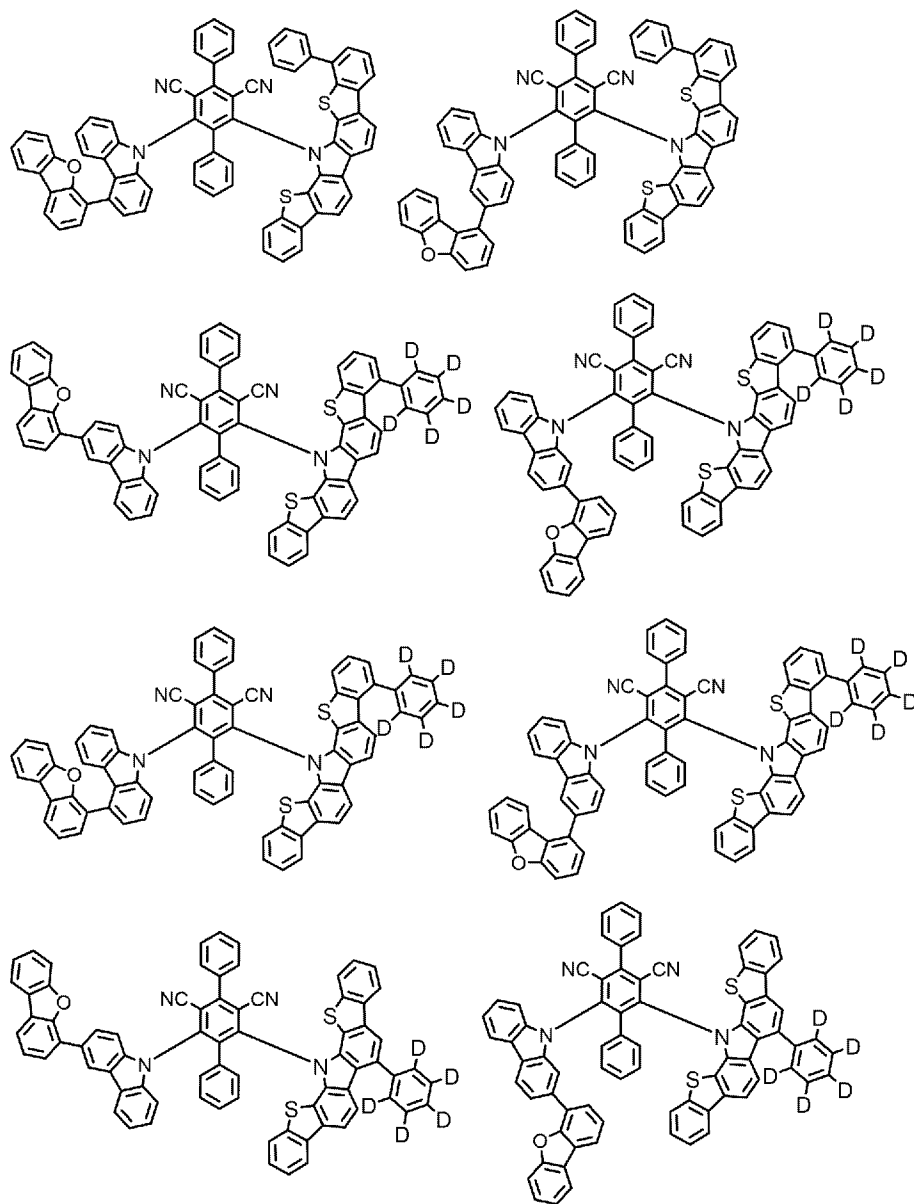


[0289] [化117]



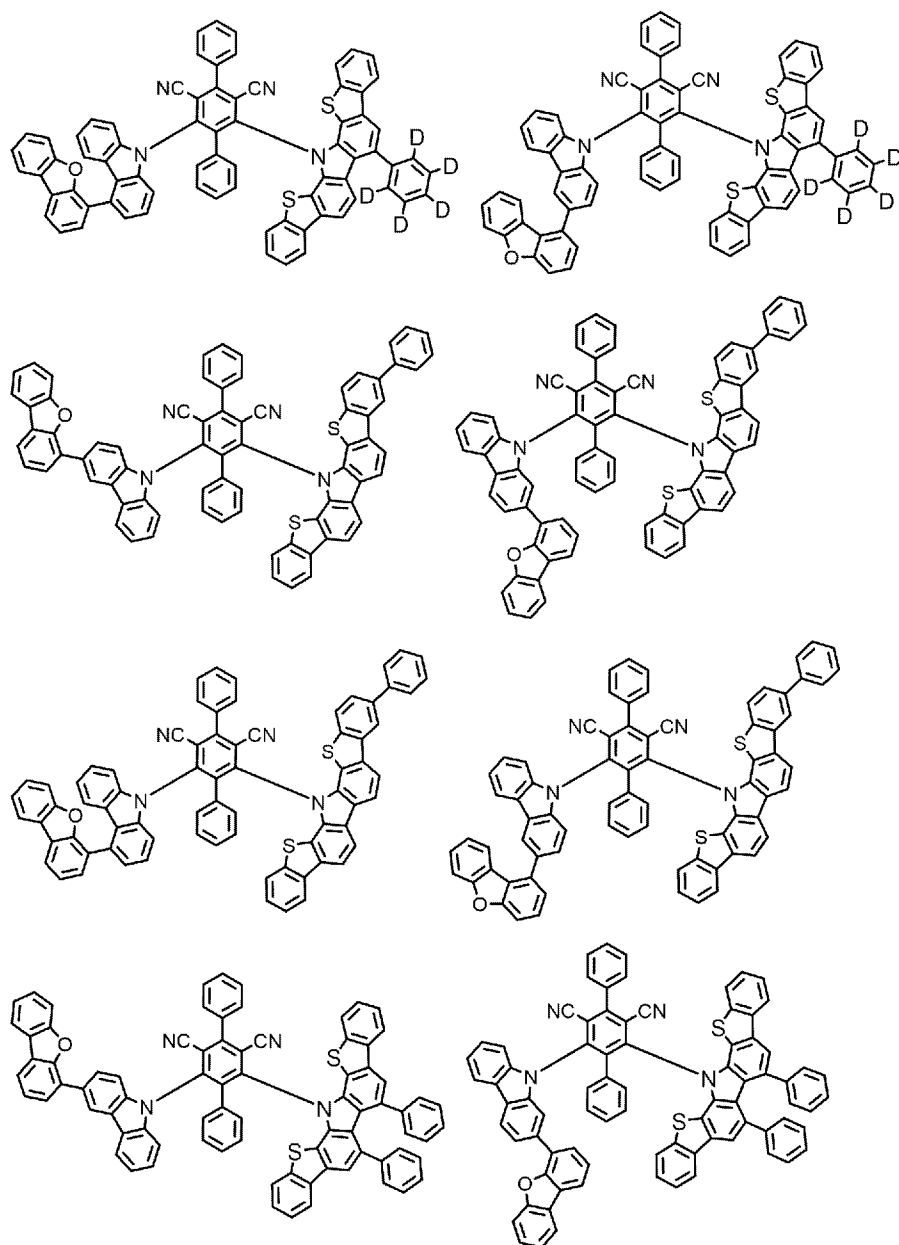
[0290]

[化118]



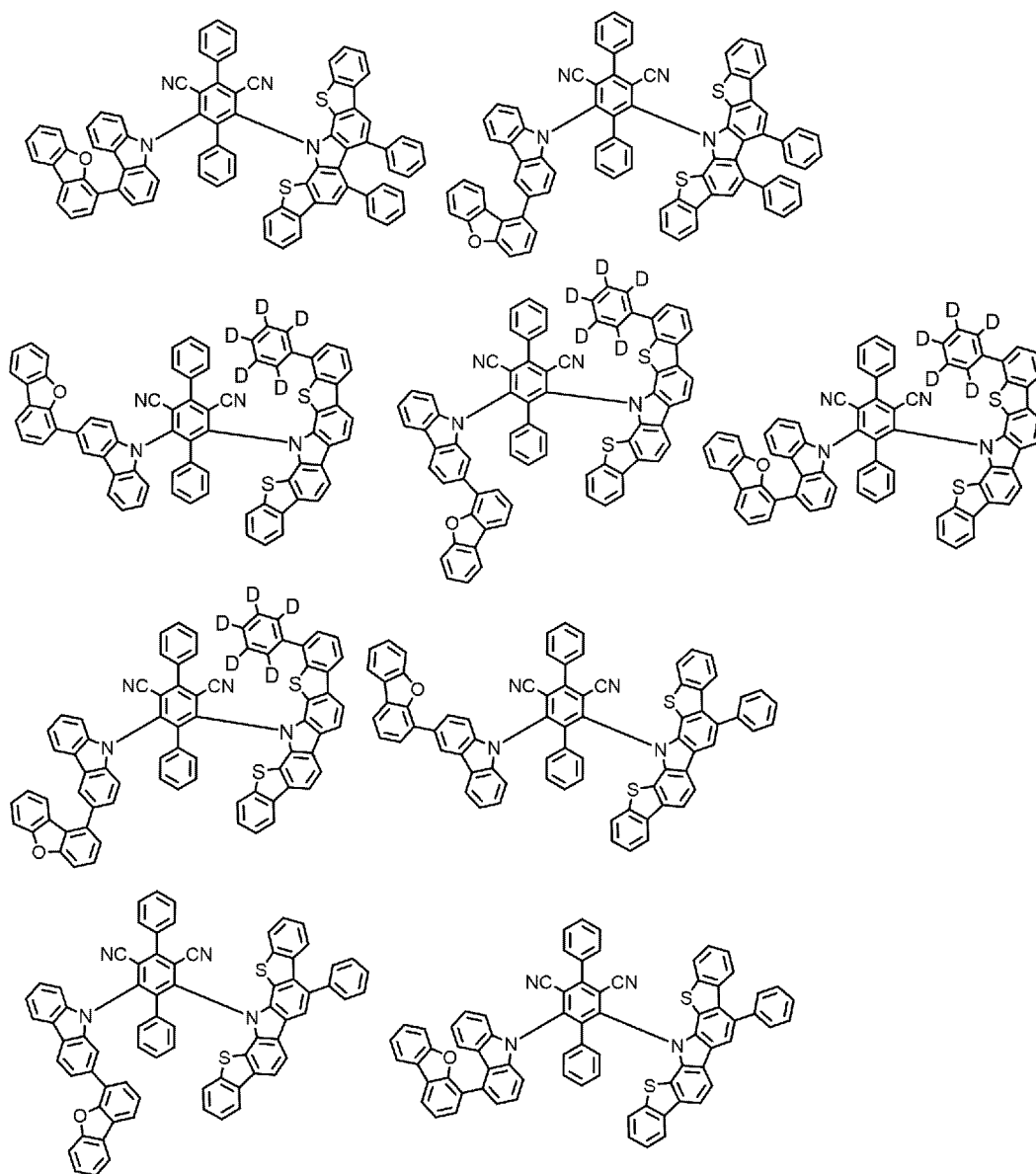
[0291]

[化119]



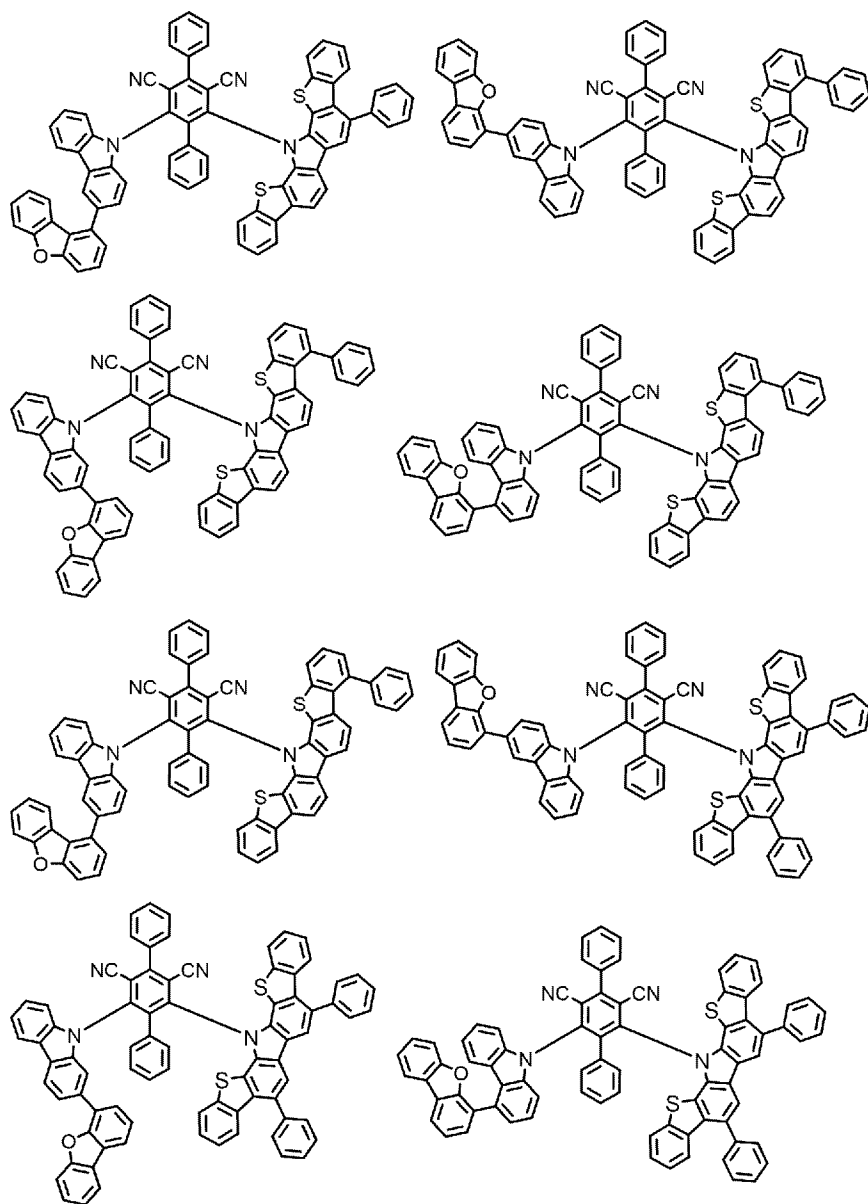
[0292]

[化120]



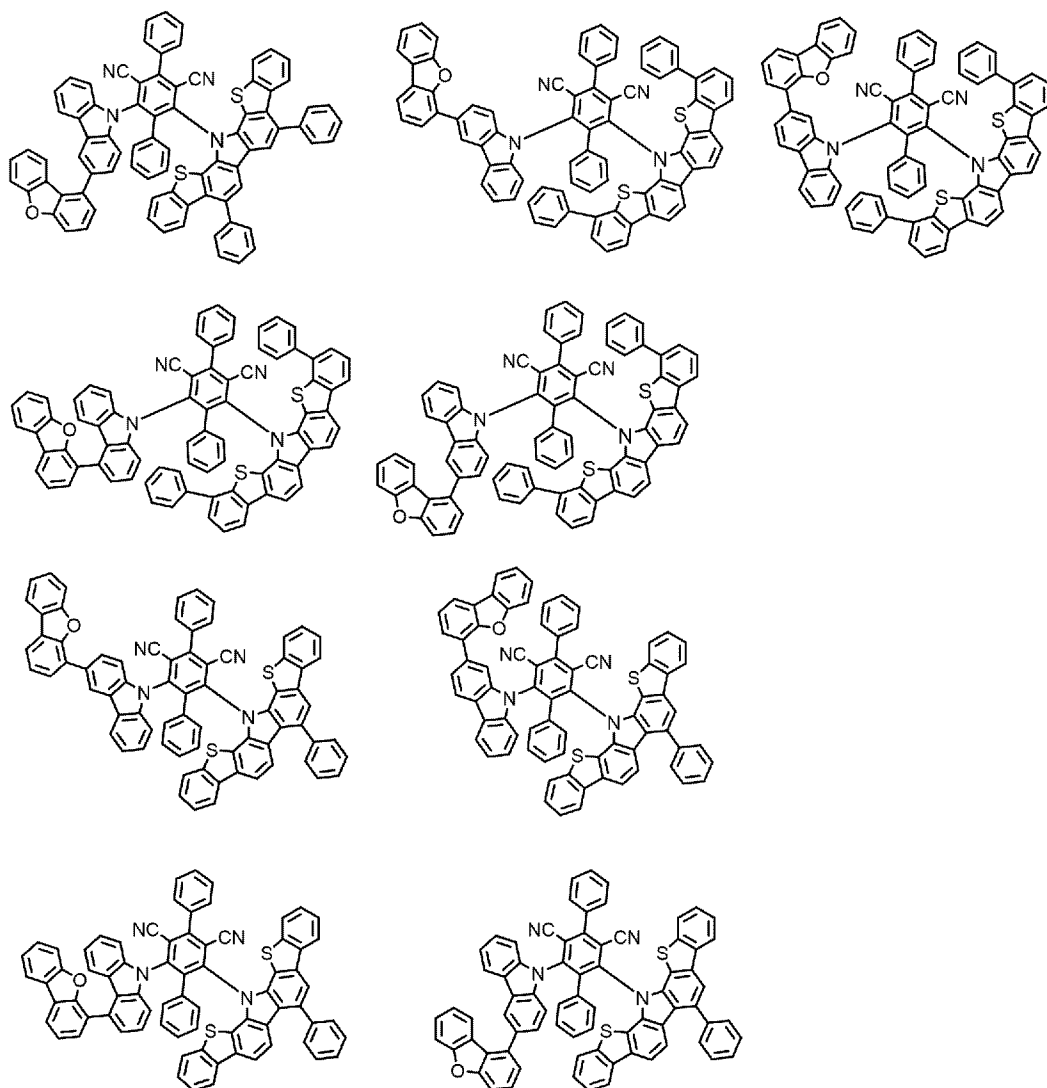
[0293]

[化121]



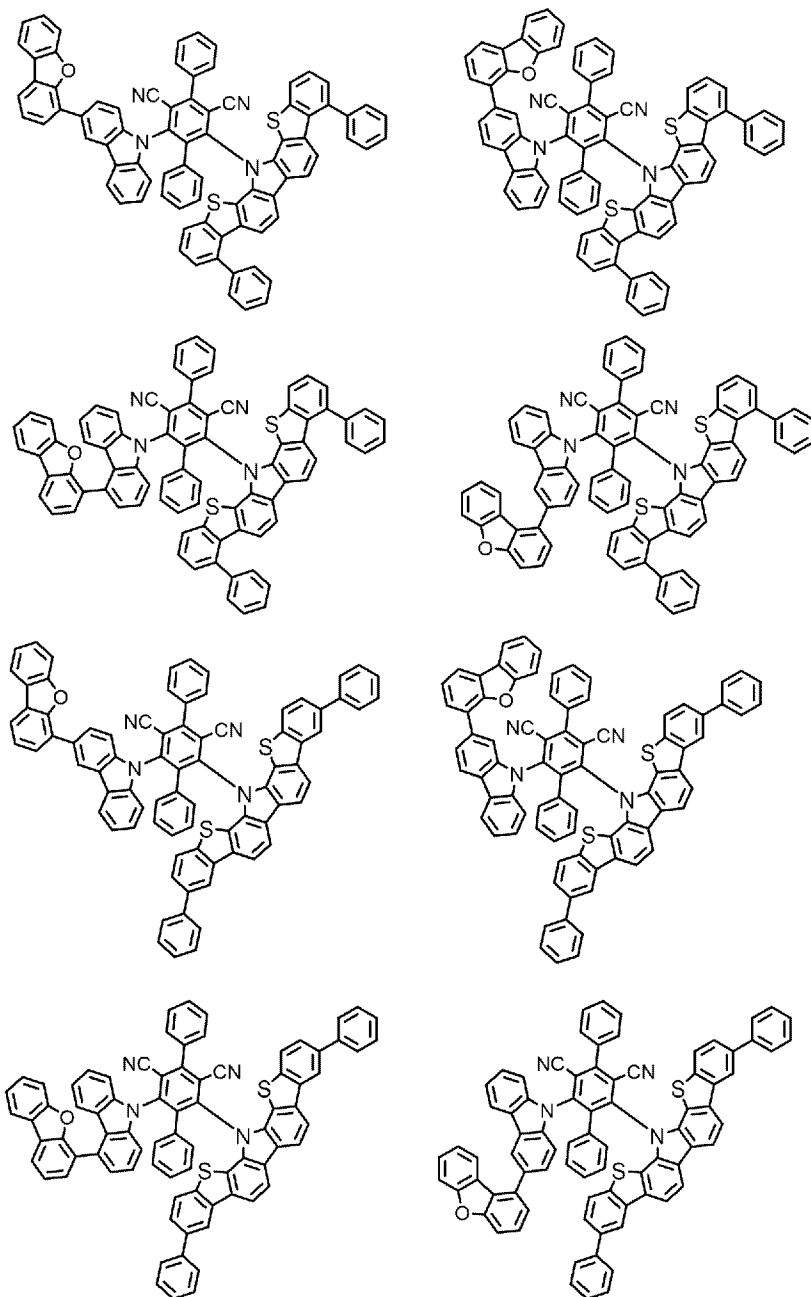
[0294]

[化122]



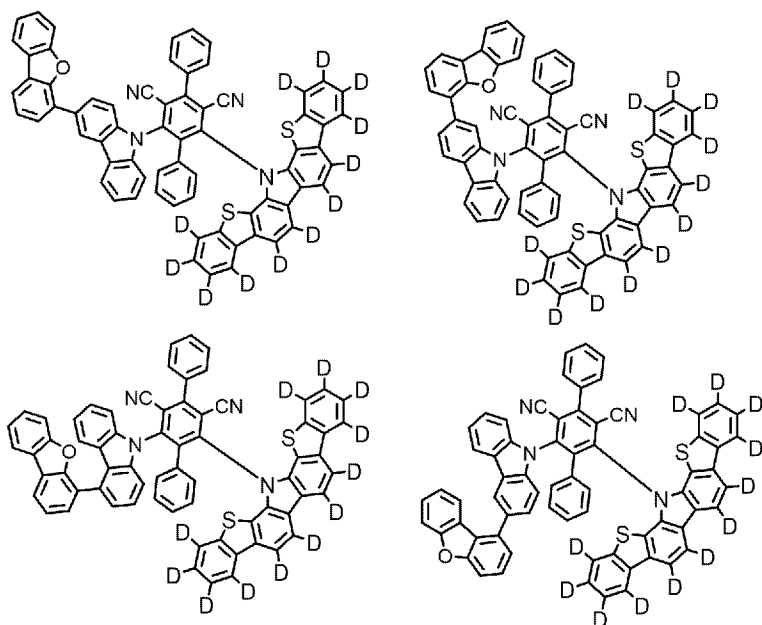
[0295]

[化123]

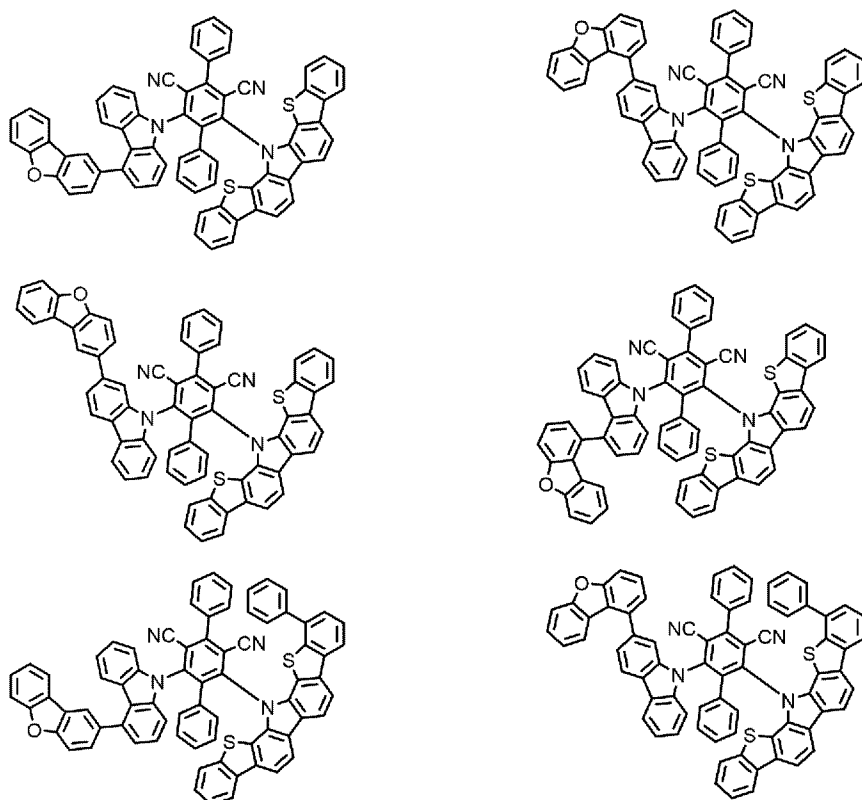


[0296]

[化124]

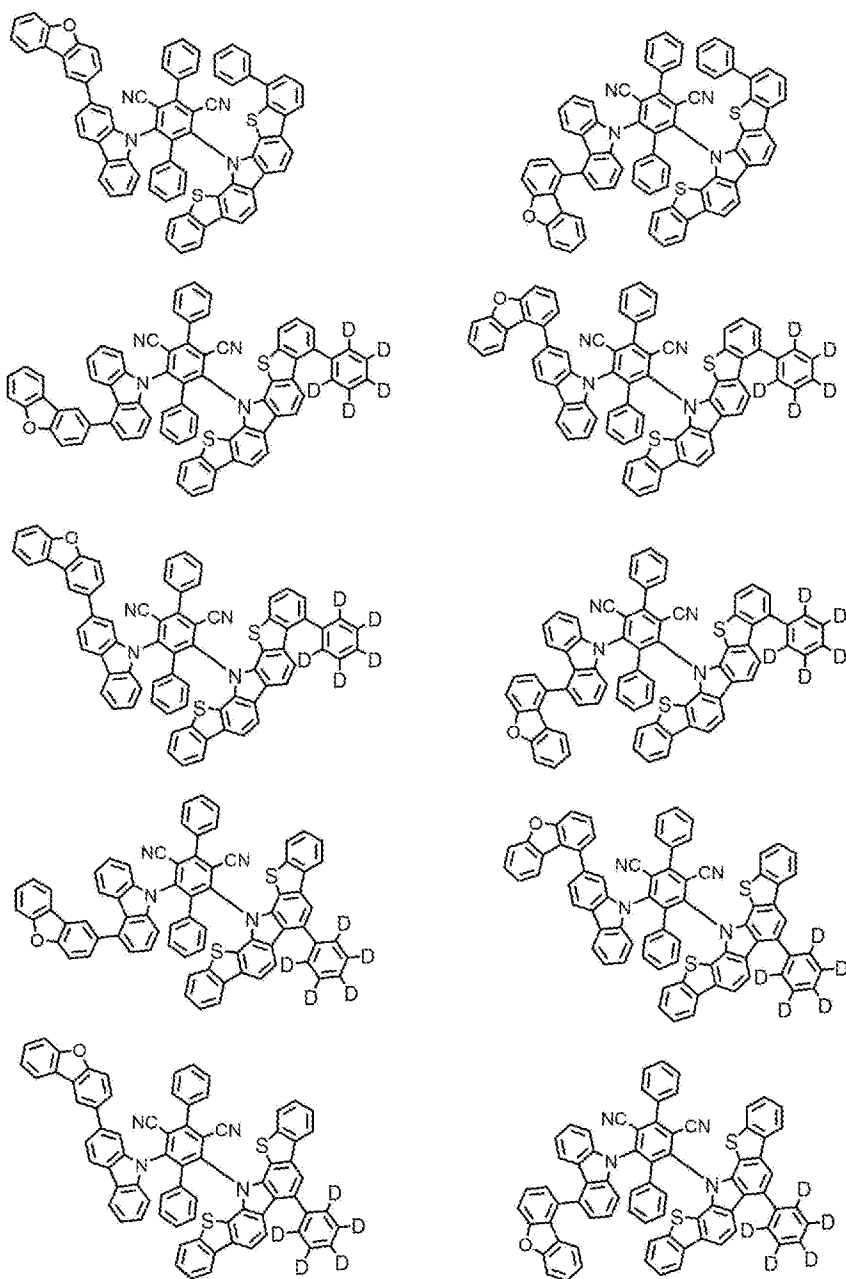


[0297] [化125]



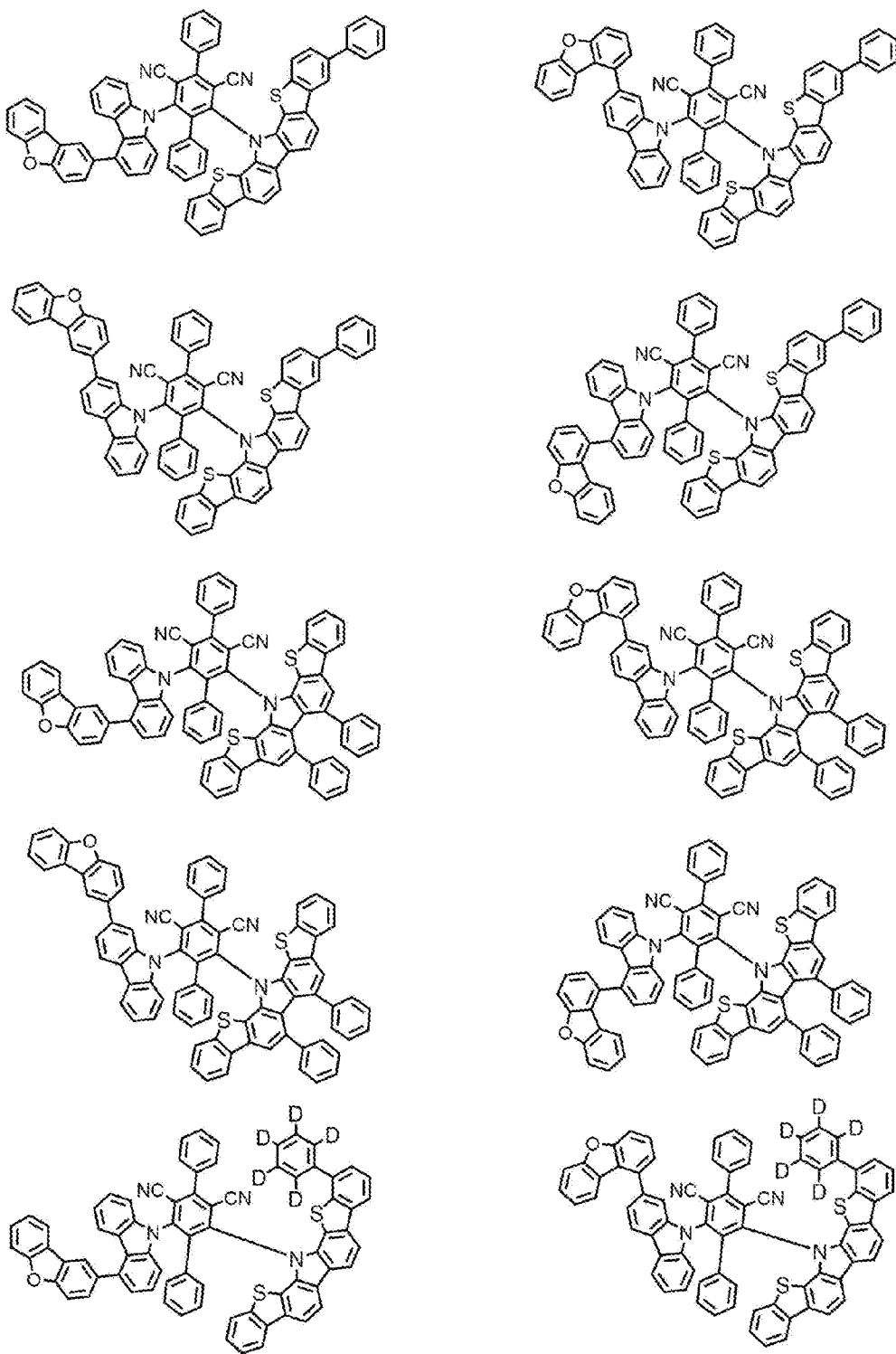
[0298]

[化126]



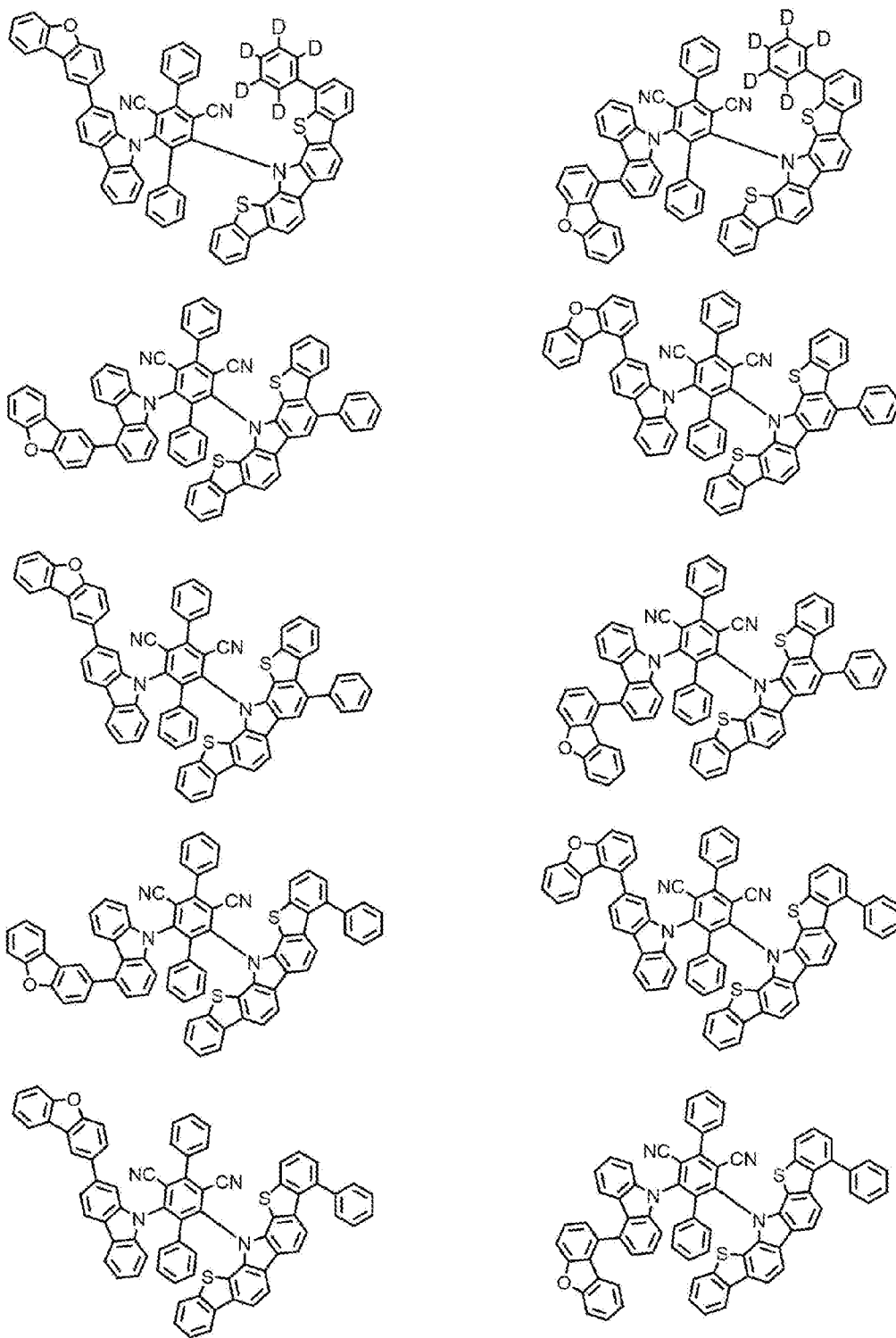
[0299]

[化127]



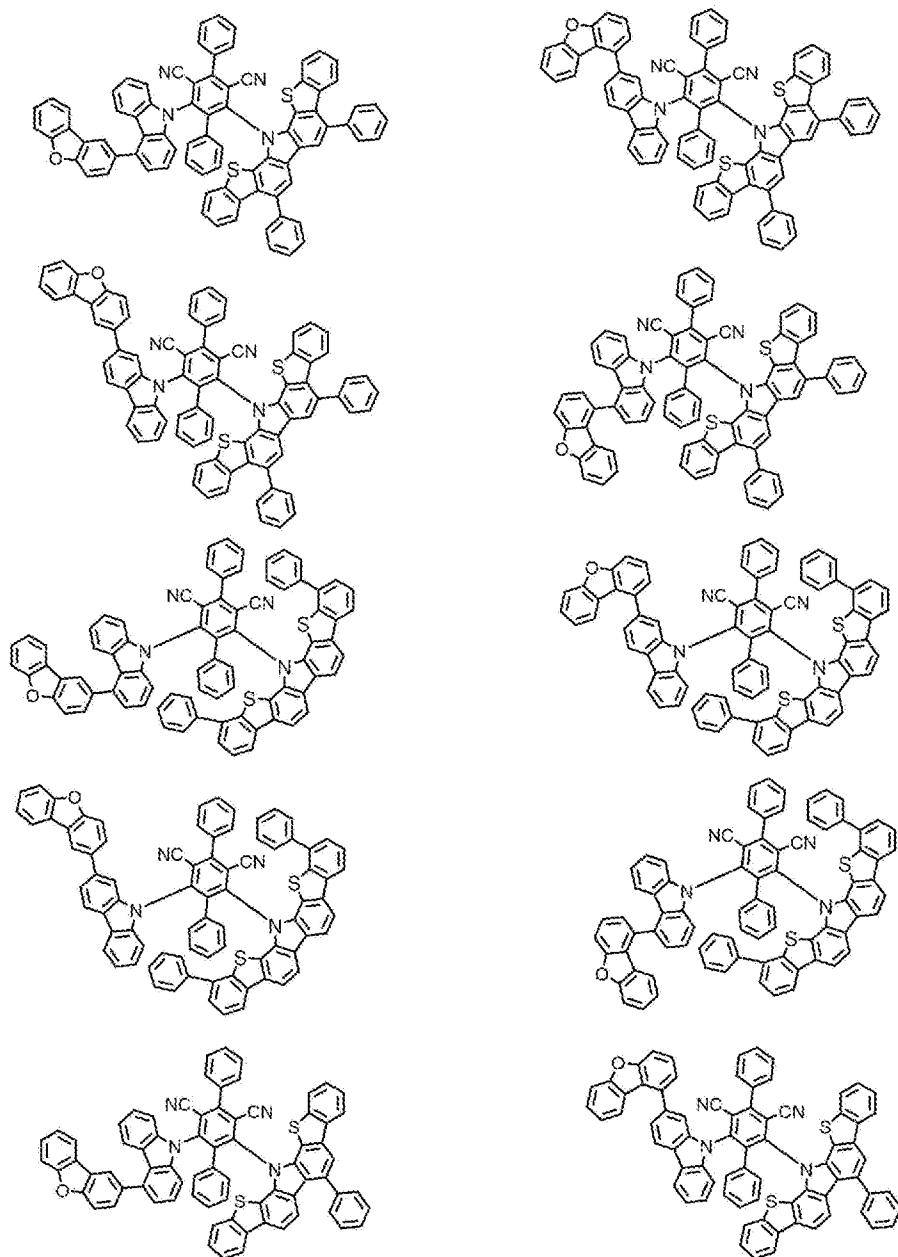
[0300]

[化128]



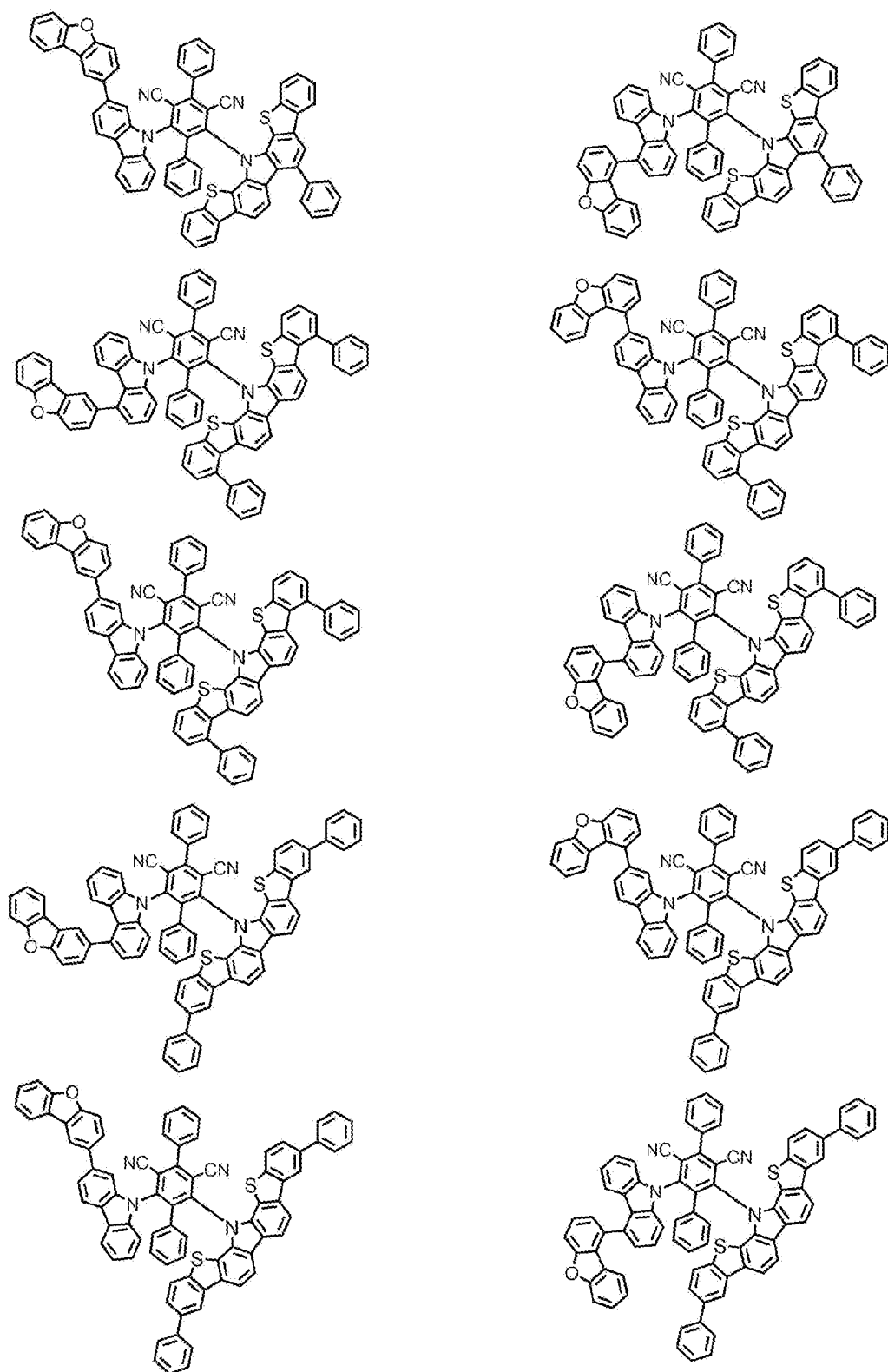
[0301]

[化129]



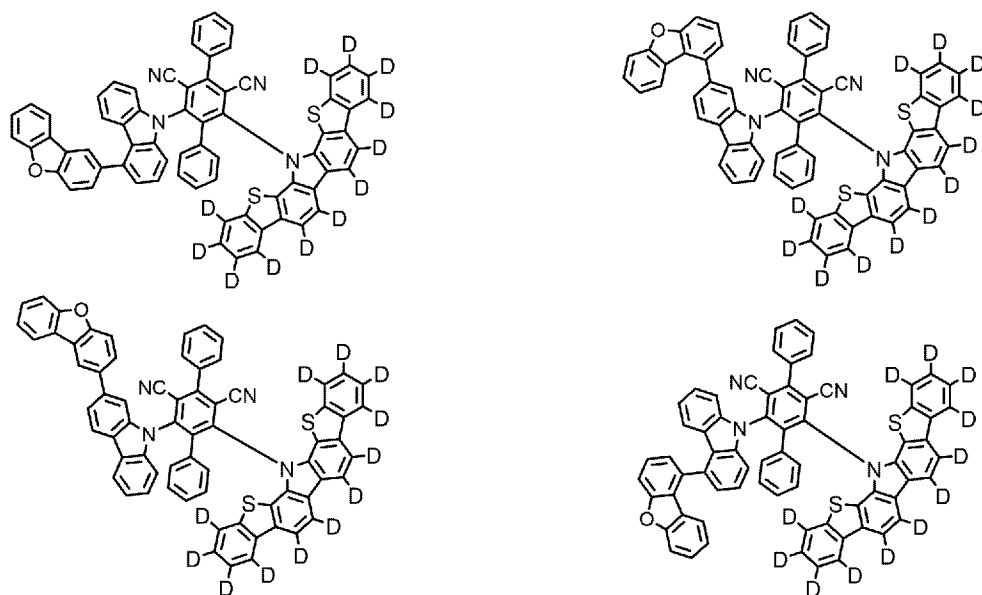
[0302]

[化130]

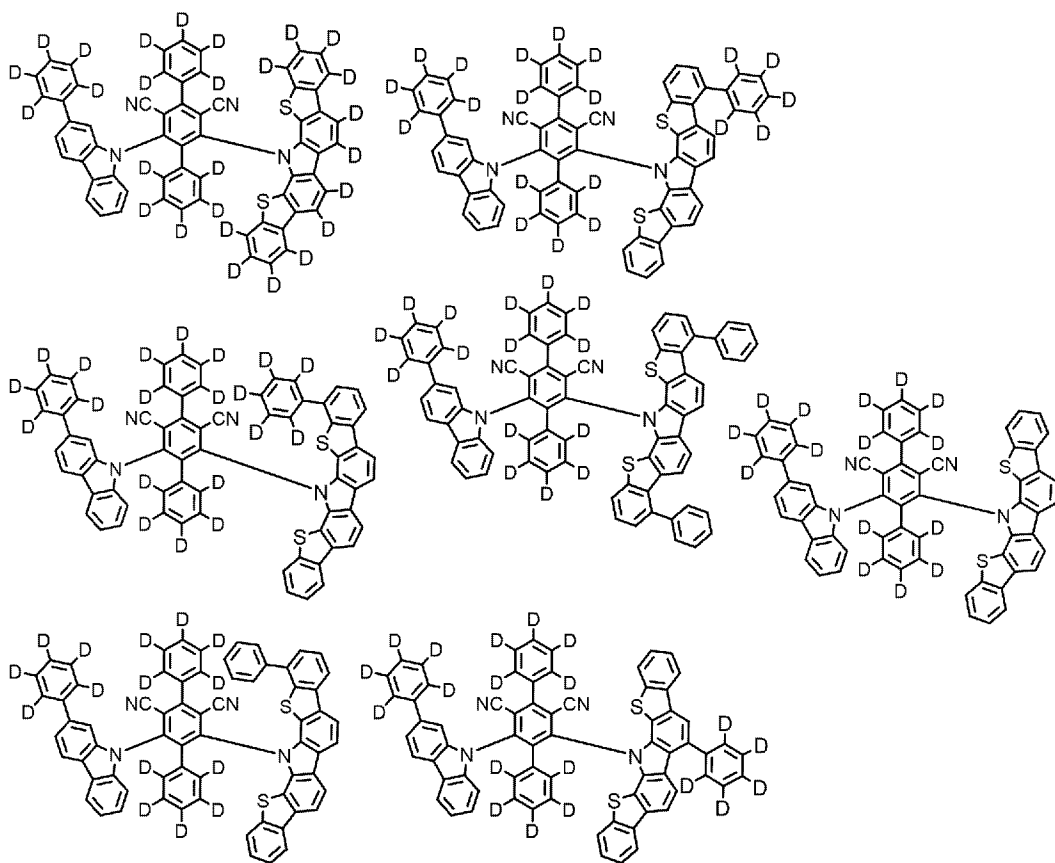


[0303]

[化131]

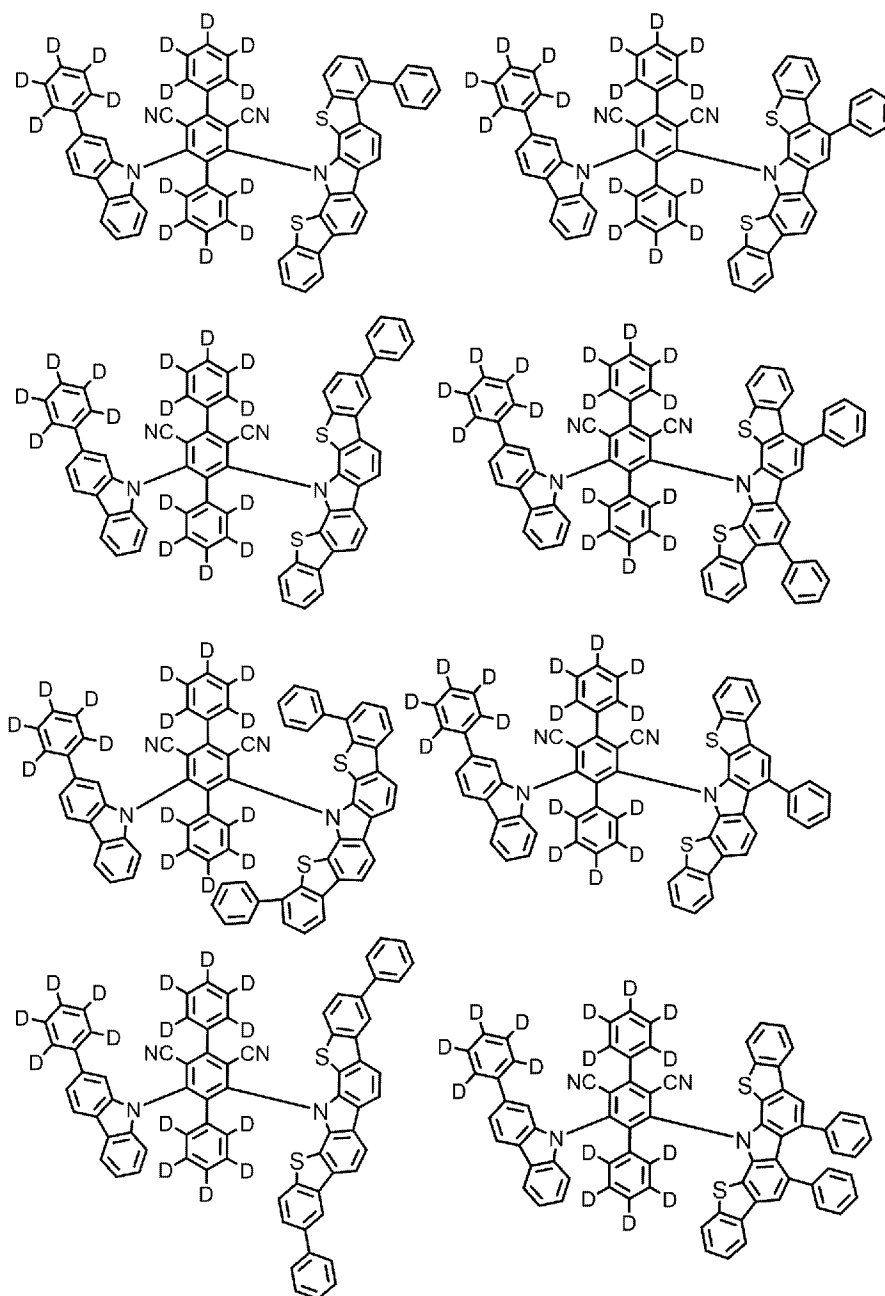


[0304] [化132]



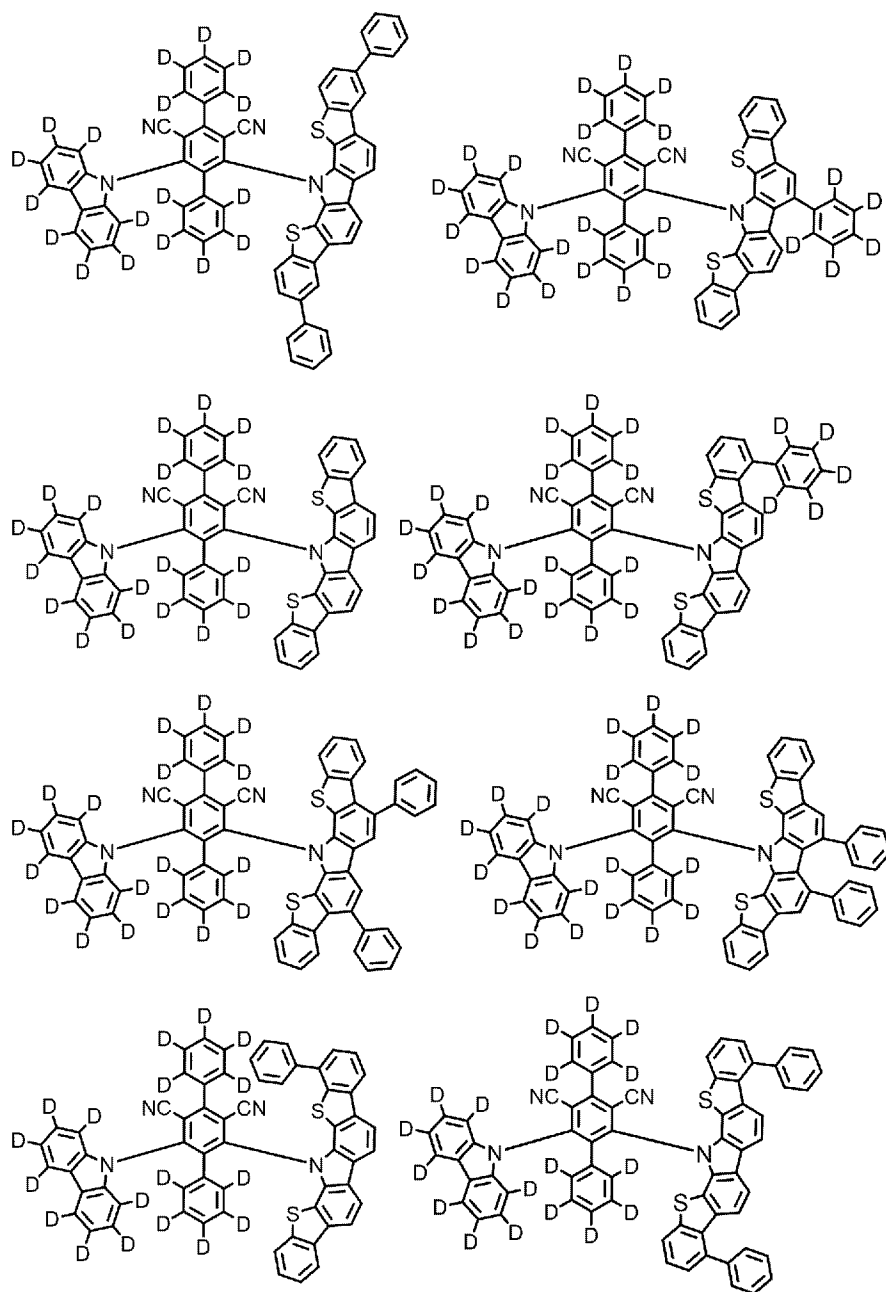
[0305]

[化133]



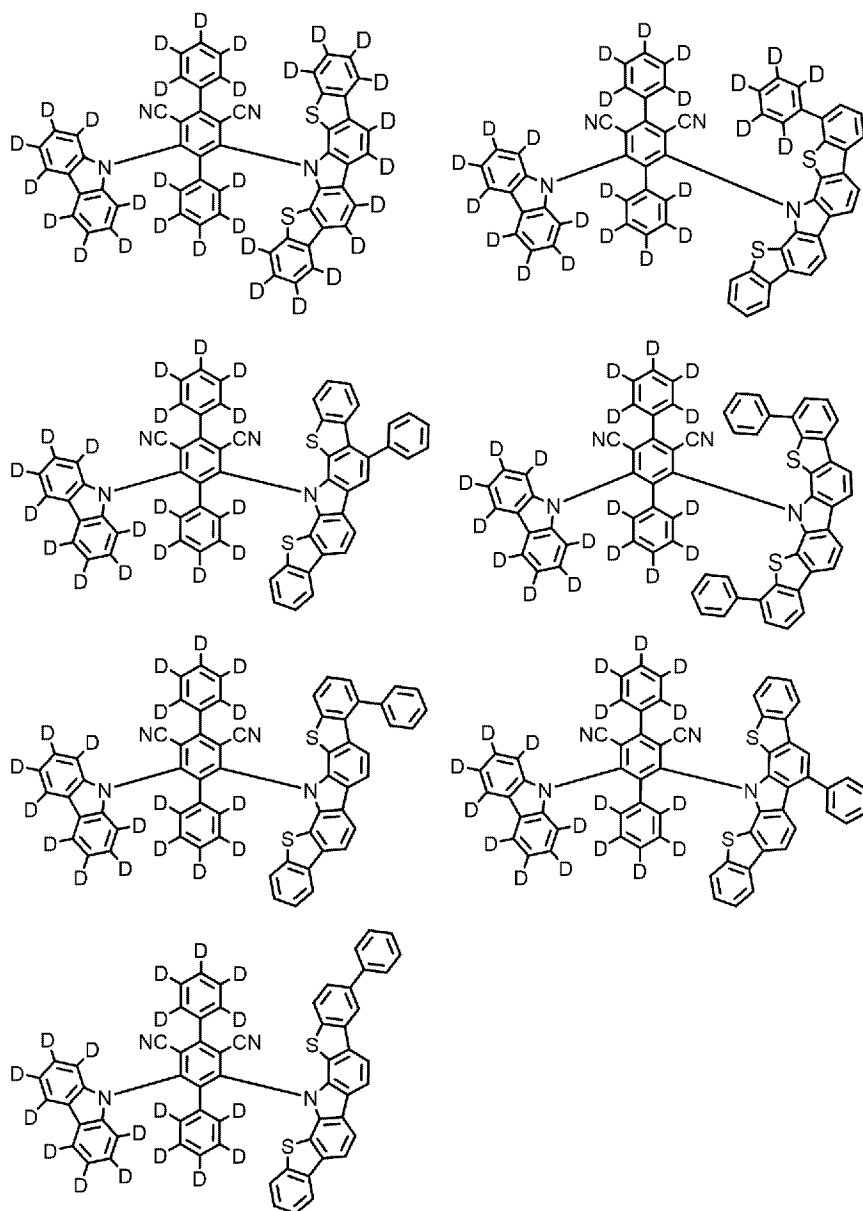
[0306]

[化134]



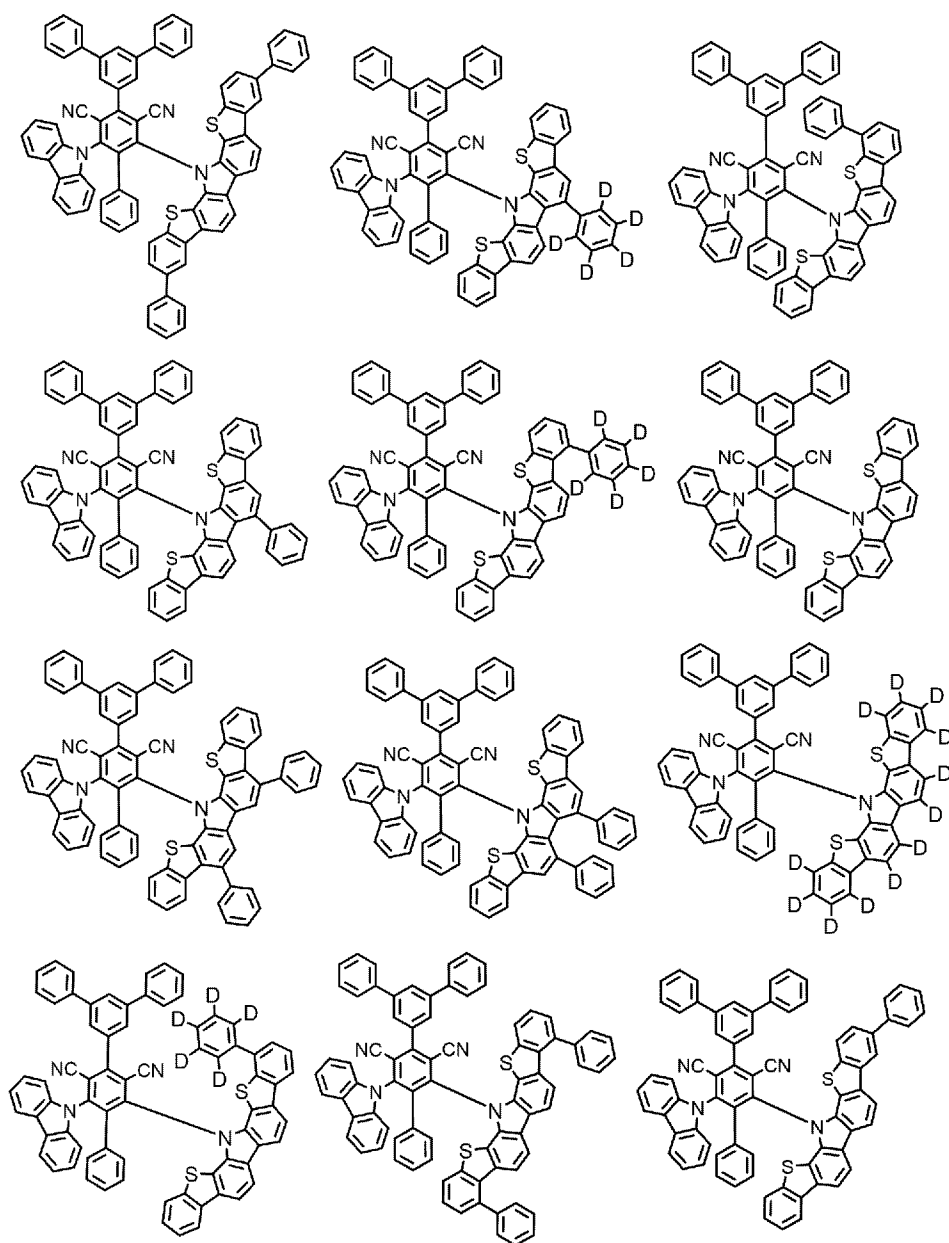
[0307]

[化135]

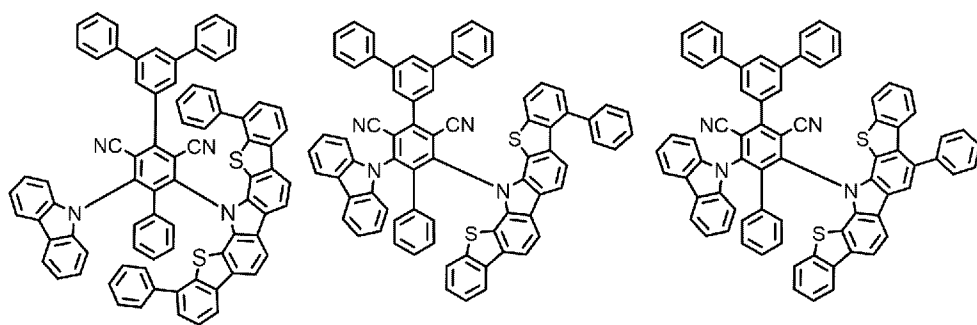


[0308]

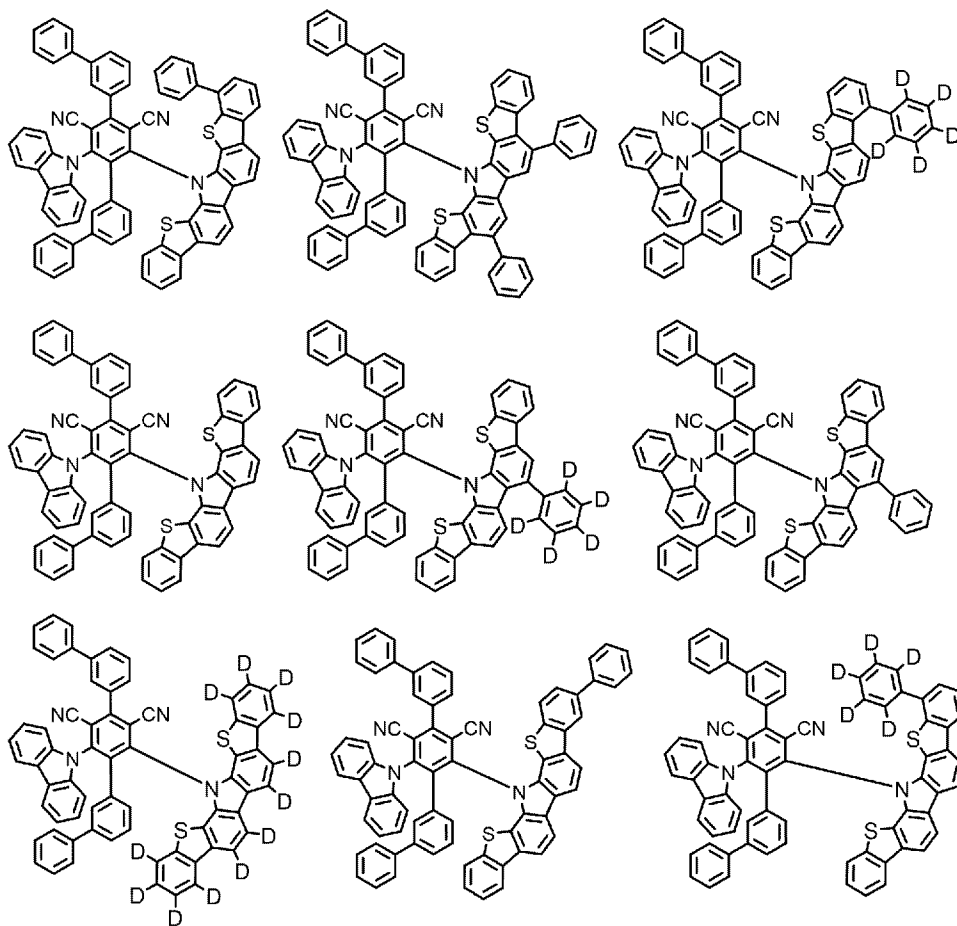
[化136]



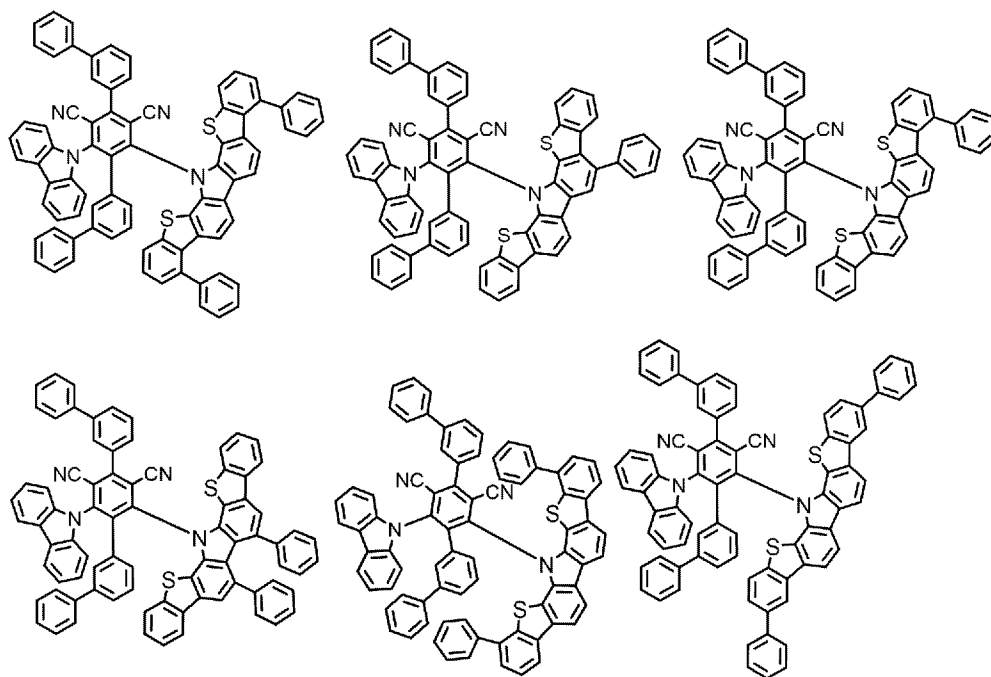
[0309] [化137]



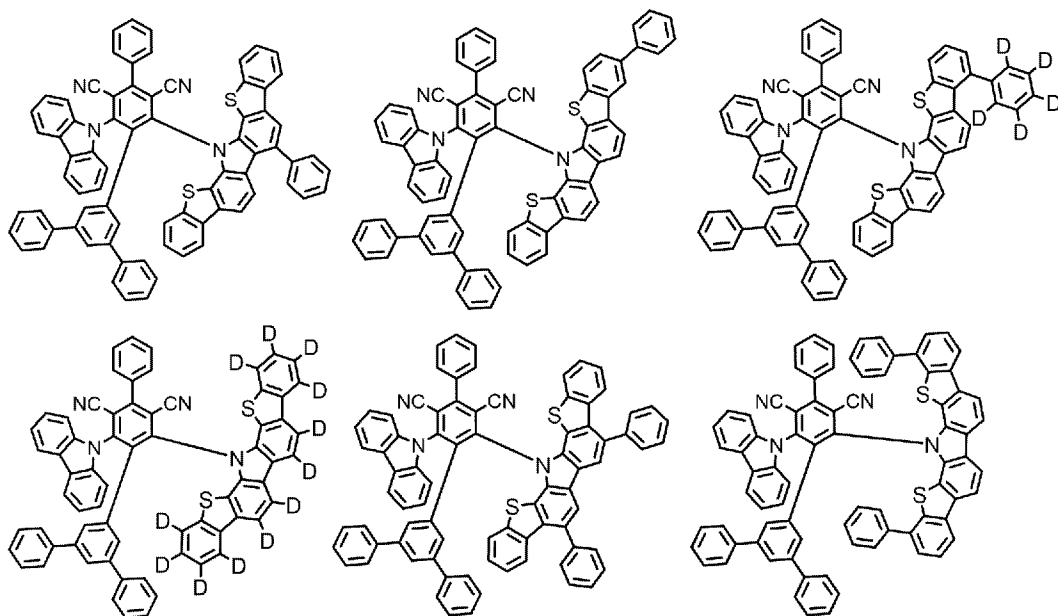
[0310] [化138]



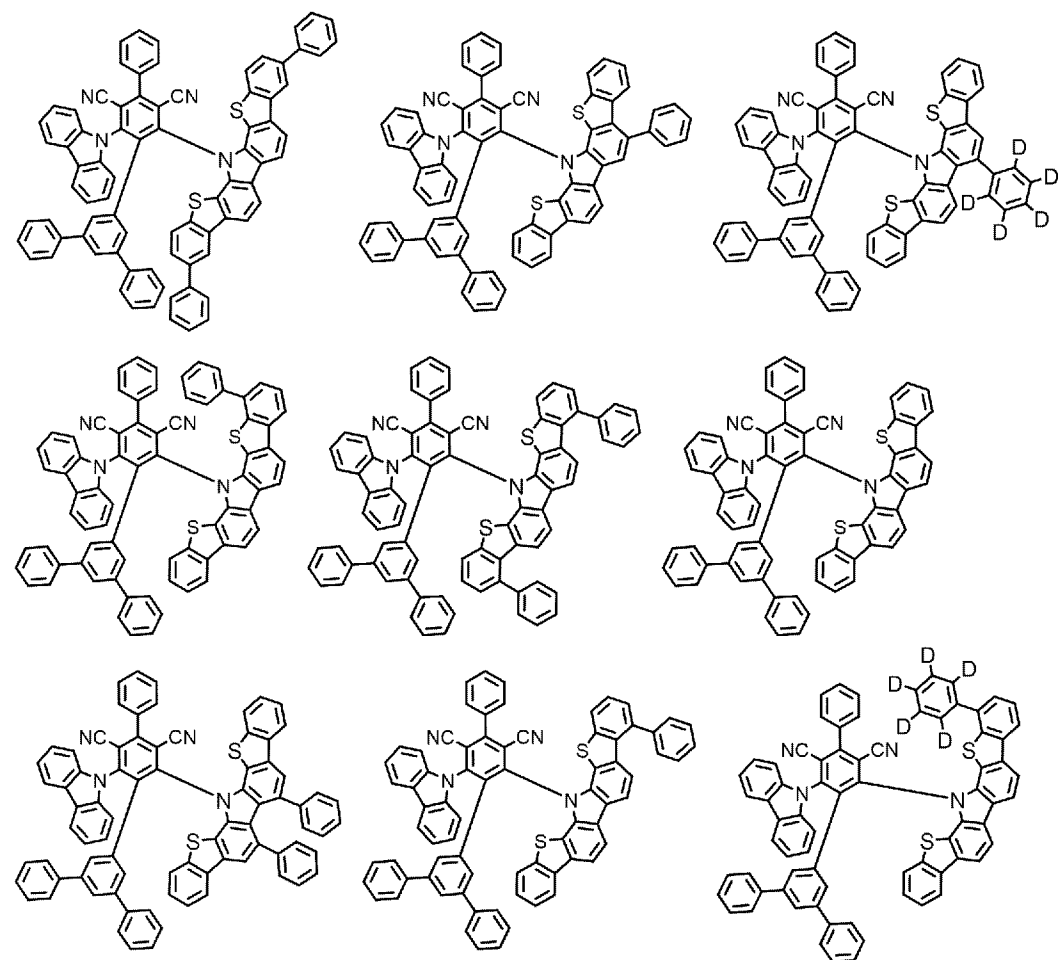
[0311] [化139]



[0312] [化140]



[0313] [化141]



[0314] 〔第二実施形態〕

＜有機エレクトロルミネッセンス素子用材料＞

本実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、第一実施形態に係る化合物を含有する。一態様としては、第一実施形態に係る化合物のみを含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が挙げられ、別の態様としては、第一実施形態に係る化合物と、第一実施形態における化合物とは異なる他の化合物とを含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料が挙げられる。

本実施形態の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、第一実施形態に係る化合物がホスト材料であることが好ましい。この場合、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、ホスト材料としての第一実施形態に係る化合物と、例えば、ドーパント材料等の他の化合物とを含んでいてもよい。

また、本実施形態の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料において、第一実施形態に係る化合物が遅延蛍光性材料であることが好ましい。

[0315] 〔第三実施形態〕

＜有機エレクトロルミネッセンス素子＞

本実施形態に係る有機EL素子について説明する。

本実施形態に係る有機EL素子は、陽極及び陰極の両電極間に有機層を備える。この有機層は、有機化合物で構成される層を少なくとも一つ含む。あるいは、この有機層は、有機化合物で構成される複数の層が積層されてなる。有機層は、無機化合物をさらに含んでいてもよい。

[0316] 本実施形態に係る有機EL素子において、有機層は、第一実施形態に係る化合物を含む。すなわち、本実施形態に係る有機EL素子は、陽極と、陰極と、有機層と、を有し、有機層は、第一実施形態に係る化合物を化合物M2として含む。

[0317] 本実施形態の有機EL素子において、有機層は、少なくとも1つの発光層を有し、発光層が、第一実施形態に係る化合物を化合物M2として含むこと

が好ましい。

[0318] 有機層は、例えば、一つの発光層で構成されていてもよいし、有機EL素子に採用され得る層を含んでいてもよい。有機EL素子に採用され得る層としては、特に限定されないが、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、電子障壁層、正孔障壁層、電子輸送層及び電子注入層からなる群から選択される少なくともいずれかの層が挙げられる。

[0319] 一実施形態において、発光層は、金属錯体を含んでもよい。

また、一実施形態において、発光層は、金属錯体を含まないことも好ましい。

また、一実施形態において、発光層は、燐光発光性材料（ドーパント材料）を含まないことが好ましい。

また、一実施形態において、発光層は、重金属錯体及び燐光発光性の希土類金属錯体を含まないことが好ましい。重金属錯体としては、例えば、イリジウム錯体、オスミウム錯体、及び白金錯体等が挙げられる。

[0320] 図3に、本実施形態に係る有機EL素子の一例の概略構成を示す。

有機EL素子1は、透光性の基板2と、陽極3と、陰極4と、陽極3と陰極4との間に配置された有機層10と、を含む。有機層10は、陽極3側から順に、正孔注入層6、正孔輸送層7、発光層5、電子輸送層8及び電子注入層9が、この順番で積層されて構成される。本発明は、図3に示す有機EL素子の構成に限定されない。

[0321] （発光層）

本実施形態の有機EL素子において、発光層は、化合物M1及び化合物M2を含む。発光層における化合物M2は、第一実施形態に係る化合物であることが好ましい。この態様の場合、化合物M2は、ホスト材料（マトリックス材料と称する場合もある。）であることが好ましく、化合物M1は、ドーパント材料（ゲスト材料、エミッター、又は発光材料と称する場合もある。）であることも好ましい。

本実施形態において、発光層が第一実施形態に係る化合物を含む場合、当

該発光層は、燐光発光性の金属錯体を含まないことが好ましく、燐光発光性の金属錯体以外の金属錯体も含まないことが好ましい。

[0322] (化合物M2)

化合物M2は、第一実施形態に係る化合物である。本実施形態の化合物M2は、熱活性化遅延蛍光性の化合物であることが好ましい。

[0323] (化合物M1)

化合物M1は、蛍光発光性の化合物であることが好ましい。化合物M1は、遅延蛍光性を示さない化合物であることが好ましい。

本実施形態の化合物M1は、燐光発光性の金属錯体ではない。化合物M1は、重金属錯体ではないことが好ましい。また、化合物M1は、金属錯体ではないことが好ましい。

[0324] 本実施形態の化合物M1としては、蛍光発光性材料を用いることができる。蛍光発光性材料としては、具体的には、例えば、ビスアリールアミノナフタレン誘導体、アリール置換ナフタレン誘導体、ビスアリールアミノアントラセン誘導体、アリール置換アントラセン誘導体、ビスアリールアミノピレン誘導体、アリール置換ピレン誘導体、ビスアリールアミノクリセン誘導体、アリール置換クリセン誘導体、ビスアリールアミノフルオランテン誘導体、アリール置換フルオランテン誘導体、インデノペリレン誘導体、アセナフトフルオランテン誘導体、ハウ素原子を含む化合物、ピロメテンハウ素錯体化合物、ピロメテン骨格を有する化合物、ピロメテン骨格を有する化合物の金属錯体、ジケトピロロピロール誘導体、ペリレン誘導体、及びナフタセン誘導体などが挙げられる。

[0325] 化合物M1は、最大ピーク波長が、400nm以上700nm以下の発光を示す化合物であることが好ましい。

本明細書において、最大ピーク波長とは、測定対象化合物が 10^{-6} モル／リットル以上 10^{-5} モル／リットル以下の濃度で溶解しているトルエン溶液について、測定した蛍光スペクトルにおける発光強度が最大となる蛍光スペクトルのピーク波長をいう。測定装置は、分光蛍光光度計（株式会社日立ハ

イテクサイエンス製、F-7000)を用いる。

[0326] 化合物M1は、赤色の発光又は緑色の発光を示すことが好ましい。

本明細書において、赤色の発光とは、蛍光スペクトルの最大ピーク波長が600nm以上660nm以下の範囲内である発光をいう。

化合物M1が赤色の蛍光発光性の化合物である場合、化合物M1の最大ピーク波長は、好ましくは600nm以上660nm以下、より好ましくは600nm以上640nm以下、さらに好ましくは610nm以上630nm以下である。

本明細書において、緑色の発光とは、蛍光スペクトルの最大ピーク波長が500nm以上560nm以下の範囲内である発光をいう。

化合物M1が緑色の蛍光発光性の化合物である場合、化合物M1の最大ピーク波長は、好ましくは500nm以上560nm以下、より好ましくは500nm以上540nm以下、さらに好ましくは510nm以上540nm以下である。

本明細書において、青色の発光とは、蛍光スペクトルの最大ピーク波長が430nm以上480nm以下の範囲内である発光をいう。

化合物M1が青色の蛍光発光性の化合物である場合、化合物M1の最大ピーク波長は、好ましくは430nm以上480nm以下、より好ましくは440nm以上480nm以下である。

[0327] 有機EL素子から発光する光の最大ピーク波長の測定は、以下のように行う。

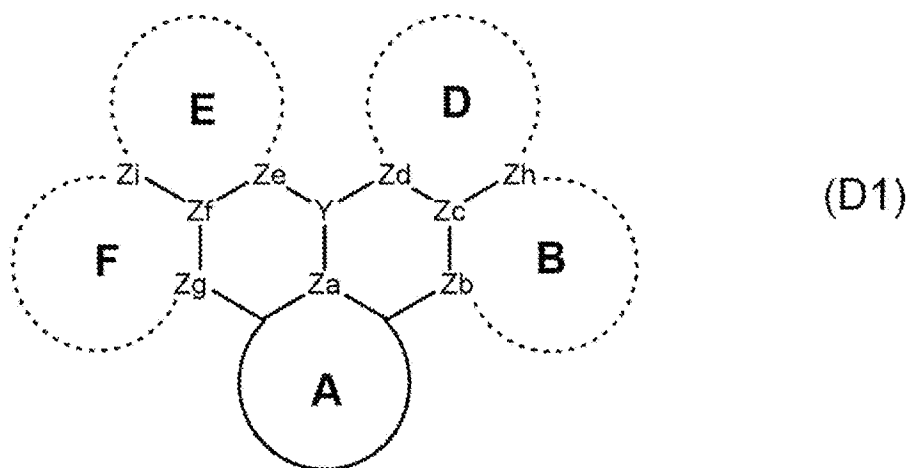
電流密度が10mA/cm²となるように有機EL素子に電圧を印加した時の分光放射輝度スペクトルを分光放射輝度計CS-2000(コニカミノルタ株式会社製)で計測する。得られた分光放射輝度スペクトルにおいて、発光強度が最大となる発光スペクトルのピーク波長を測定し、これを最大ピーク波長(単位: nm)とする。

[0328] (一般式(D1)で表される化合物)

本実施形態において、化合物M1は、下記一般式(D1)で表される化合

物であることも好ましい。

[0329] [化142]



[0330] (前記一般式 (D 1) において、

環 A、環 B、環 D、環 E 及び環 F は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール環、及び

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 30 の複素環からなる群から選択される環構造であり、

環 B 及び環 D の一方が存在するか、又は環 B 及び環 D の両方が存在し、

環 B 及び環 D の両方が存在する場合、環 B 及び環 D は、Z c と Z h とを繋ぐ結合を共有し、

環 E 及び環 F の一方が存在するか、又は環 E 及び環 F の両方が存在し、

環 E 及び環 F の両方が存在する場合、環 E 及び環 F は、Z f と Z i とを繋ぐ結合を共有し、

Z a は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z b は、

環 B が存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環 B が存在しない場合、酸素原子、硫黄原子、N R b、C (R b₁) (R b₂) 又は S i (R b₃) (R b₄) であり、

Z c は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z d は、

環 D が存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環 D が存在しない場合、酸素原子、硫黄原子又は N R d であり、

Z e は、

環 E が存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環 E が存在しない場合、酸素原子、硫黄原子又は N R e であり、

Z f は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z g は、

環 F が存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環 F が存在しない場合、酸素原子、硫黄原子、N R g、C (R g₁) (R g₂) 又は S i (R g₃) (R g₄) であり、

Z h は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z i は、窒素原子又は炭素原子であり、

Y は、ホウ素原子、リン原子、S i R h、P=O 又は P=S であり、

R b、R b₁、R b₂、R b₃、R b₄、R d、R e、R g、R g₁、R g₂、R g₃、R g₄ 及び R h は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基であり、

置換基としての R b、R b₁、R b₂、R b₃、R b₄、R d、R e、R g、R g₁、R g₂、R g₃、R g₄ 及び R h は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～30 のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5～30 の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数 1～30 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～30 のシクロアルキル基、

—S i (R g₁₁) (R g₁₂) (R g₁₃) で表される基、

—O— (R g₁₄) で表される基、

—S— (R g₁₅) で表される基、又は

—N (R g₁₆) (R g₁₇) で表される基であり、

ただし、Y と Z a との結合、Y と Z d との結合、並びに Y と Z e との結合は、いずれも単結合である。)

[0331] (前記化合物M 1において、 $R_{911} \sim R_{917}$ は、それぞれ独立に、
水素原子、
置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、
 R_{911} が複数存在する場合、複数の R_{911} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{912} が複数存在する場合、複数の R_{912} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{913} が複数存在する場合、複数の R_{913} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{914} が複数存在する場合、複数の R_{914} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{915} が複数存在する場合、複数の R_{915} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{916} が複数存在する場合、複数の R_{916} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{917} が複数存在する場合、複数の R_{917} は、互いに同一であるか又は異なる。)

[0332] YとZ aとの結合、YとZ dとの結合、並びにYとZ eとの結合は、いずれも単結合であり、この単結合は、共有結合であり、配位結合ではない。

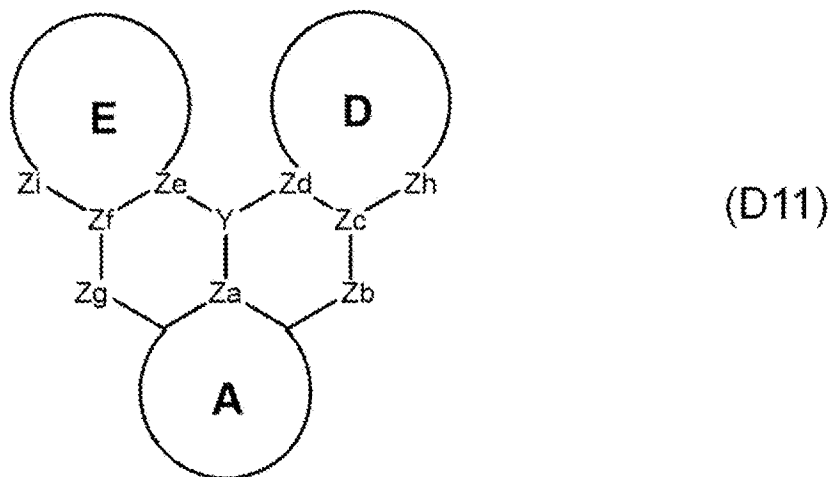
[0333] 本明細書において、複素環としては、例えば、前述の「本明細書に記載の置換基」で例示した「複素環基」から結合手を除いた環構造（複素環）が挙げられる。これらの複素環は置換基を有していてもよいし、無置換でもよい。

本明細書において、アリール環としては、例えば、前述の「本明細書に記載の置換基」で例示した「アリール基」から結合手を除いた環構造（アリー

ル環）が挙げられる。これらのアリール環は置換基を有していてもよいし、無置換でもよい。

[0334] 本実施形態において、化合物M1は、下記一般式（D11）で表される化合物であることも好ましい。

[0335] [化143]



[0336] （前記一般式（D11）において、

環A、環D及び環Eは、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール環、及び

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環からなる群から選択される環構造であり、

Zaは、窒素原子又は炭素原子であり、

Zbは、酸素原子、硫黄原子、NR_b、C(R_{b1})(R_{b2})又はSi(R_{b3})(R_{b4})であり、

Zcは、窒素原子又は炭素原子であり、

Zdは、窒素原子又は炭素原子であり、

Zeは、窒素原子又は炭素原子であり、

Zfは、窒素原子又は炭素原子であり、

Zgは、酸素原子、硫黄原子、NR_g、C(R_{g1})(R_{g2})又はSi(R_{g3})(R_{g4})であり、

Z h は、窒素原子又は炭素原子であり、

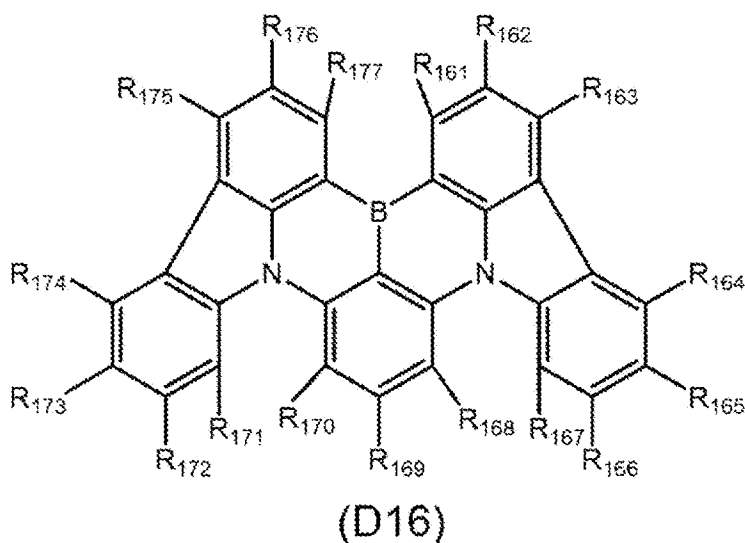
Z i は、窒素原子又は炭素原子であり、

Y は、ホウ素原子、リン原子、S i R h、P=O又はP=Sであり、

R b、R b₁、R b₂、R b₃、R b₄、R g、R g₁、R g₂、R g₃、R g₄及びR hは、それぞれ独立に、前記一般式（D 1）におけるR b、R b₁、R b₂、R b₃、R b₄、R g、R g₁、R g₂、R g₃、R g₄及びR hと同義である。）

[0337] 本実施形態において、化合物M 1は、下記一般式（D 1 6）で表される化合物であることも好ましい。

[0338] [化144]



[0339] （前記一般式（D 1 6）において、

R₁₆₁～R₁₇₇のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しないR₁₆₁～R₁₇₇は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—S i (R₉₆₁) (R₉₆₂) (R₉₆₃) で表される基、

—O— (R₉₆₄) で表される基、

—S— (R₉₆₅) で表される基、

—N (R₉₆₆) (R₉₆₇) で表される基、

—C (=O) R₉₆₈ で表される基、

—C O O R₉₆₉ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

R₉₆₁ ～ R₉₆₉ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

R₉₆₁ が複数存在する場合、複数の R₉₆₁ は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₆₂ が複数存在する場合、複数の R₉₆₂ は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₆₃ が複数存在する場合、複数の R₉₆₃ は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₆₄ が複数存在する場合、複数の R₉₆₄ は、互いに同一であるか又は異なり、

り、

R_{965} が複数存在する場合、複数の R_{965} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{966} が複数存在する場合、複数の R_{966} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{967} が複数存在する場合、複数の R_{967} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{968} が複数存在する場合、複数の R_{968} は、互いに同一であるか又は異な

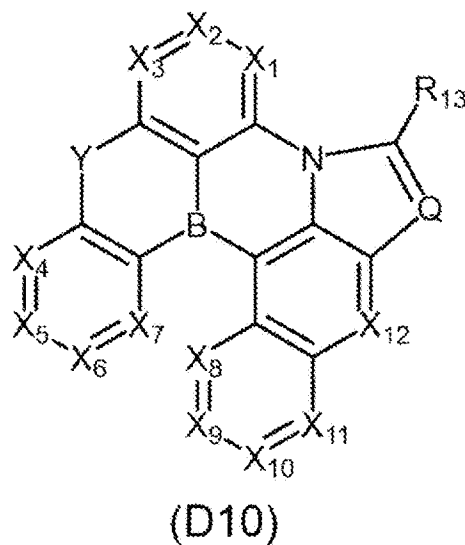
り、

R_{969} が複数存在する場合、複数の R_{969} は、互いに同一であるか又は異なる。))

[0340] (一般式 (D 1 0) で表される化合物)

本実施形態に係る有機EL素子において、化合物M 1 は、下記一般式 (D 1 0) で表される化合物であることも好ましい。前記一般式 (D 1) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 0) で表される化合物であることも好ましい。

[0341] [化145]



[0342] (前記一般式 (D 1 0) において、

X_1 は、 CR_1 または窒素原子であり、

X_2 は、 CR_2 または窒素原子であり、

X_3 は、 CR_3 または窒素原子であり、

X_4 は、 CR_4 または窒素原子であり、

X_5 は、 CR_5 または窒素原子であり、

X_6 は、 CR_6 または窒素原子であり、

X_7 は、 CR_7 であるか、窒素原子であるか、または X_8 と単結合で結合する炭素原子であり、

X_8 は、 CR_8 であるか、窒素原子であるか、または X_7 と単結合で結合する炭素原子であり、

X_9 は、 CR_9 または窒素原子であり、

X_{10} は、 CR_{10} または窒素原子であり、

X_{11} は、 CR_{11} または窒素原子であり、

X_{12} は、 CR_{12} または窒素原子であり、

Q は、 CR_Q または窒素原子であり、

Y は、 NR_{Y1} 、酸素原子、硫黄原子、 $C(R_{Y2})(R_{Y3})$ または $Si(R_{Y4})(R_{Y5})$ であり、

$R_1 \sim R_6$ 並びに $R_9 \sim R_{11}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

R_3 、 R_4 および R_{Y1} のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

R_3 、 R_4 および R_{Y1} のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が互いに結合して形成された単環又は縮合環における少なくとも一つの水素は、

炭素数1～50のアルキル基、

環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、
環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基、
—O— (R_{920}) で表される基、および
—N (R_{921}) (R_{922}) で表される基からなる群から選択される少なくともいずれかの置換基で置換されているか、もしくは置換されておらず、

当該置換基における少なくとも一つの水素は、環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基または炭素数 1 ～ 50 のアルキル基で置換されているか、もしくは置換されておらず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_1 \sim R_{11}$ 、並びに $R_{12} \sim R_{13}$ 、および R_Q は、それぞれ独立に、

水素原子、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、
—Si (R_{911}) (R_{912}) (R_{913}) で表される基、
—O— (R_{914}) で表される基、
—S— (R_{915}) で表される基、
—N (R_{916}) (R_{917}) で表される基、
置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、
—C (=O) R_{918} で表される基、
—COO R_{919} で表される基、
ハロゲン原子、
シアノ基、
ニトロ基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、
前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{Y1} は、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、
置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、または
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

R_{Y2} および R_{Y3} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、
互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は
互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{Y2} および R_{Y3} 、並びに R_{Y4} および R_{Y5} は、それぞれ独立に、

水素原子、
ハロゲン原子、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、または
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

$R_{911} \sim R_{922}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

R_{911} が複数存在する場合、複数の R_{911} は、互いに同一であるか又は異なる

り、

R_{912} が複数存在する場合、複数の R_{912} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{913} が複数存在する場合、複数の R_{913} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{914} が複数存在する場合、複数の R_{914} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{915} が複数存在する場合、複数の R_{915} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{916} が複数存在する場合、複数の R_{916} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{917} が複数存在する場合、複数の R_{917} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{918} が複数存在する場合、複数の R_{918} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{919} が複数存在する場合、複数の R_{919} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{920} が複数存在する場合、複数の R_{920} は、互いに同一であるか又は異な

り、

R_{921} が複数存在する場合、複数の R_{921} は、互いに同一であるか又は異な

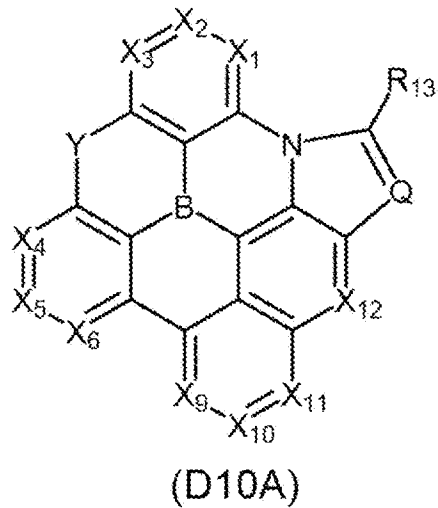
り、

R_{922} が複数存在する場合、複数の R_{922} は、互いに同一であるか又は異なる。))

[0343] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 X_7 が X_8 と単結合で結合する炭素原子であり、 X_8 が X_7 と単結合で結合する炭素原子である場合、例えば、前記一般式 (D 1 0) は、下記一般式 (D 1 0 A) で表される。

[0344]

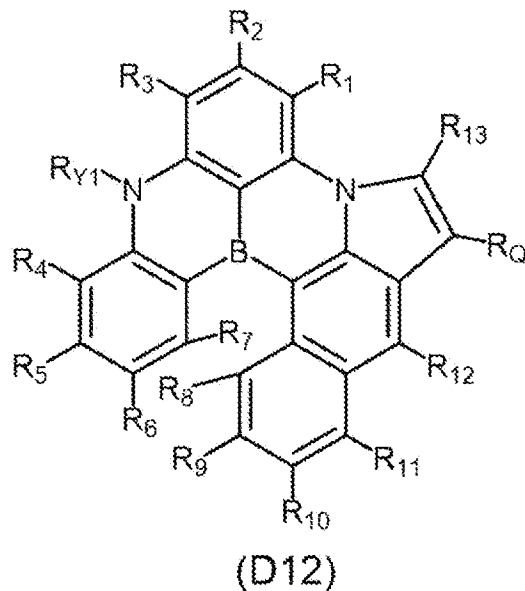
[化146]



[0345] (前記一般式 (D 1 0 A) において、X₁~X₆、X₉~X₁₂、Y、Q、及び R₁₃は、それぞれ独立に、前記一般式 (D 1 0) で定義した通りである。)

[0346] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 2) で表されることも好ましい。

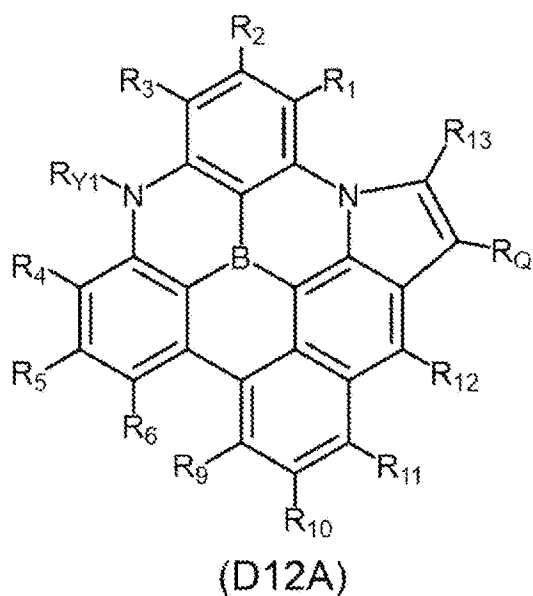
[0347] [化147]



[0348] (前記一般式 (D 1 2) において、R₁~R₁₃、R_{Y1}、R_Qは、それぞれ独立に、前記一般式 (D 1 0) で定義した通りである。)

[0349] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 2 A) で表されることも好ましい。

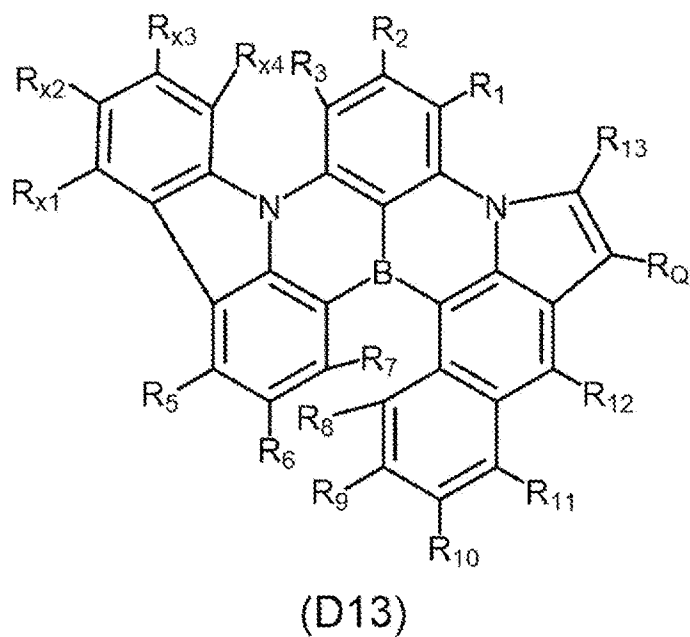
[0350] [化148]



[0351] (前記一般式 (D 1 2 A) において、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{13}$ 、 R_{Y1} 、 R_Q は、それぞれ独立に、前記一般式 (D 1 0) で定義した通りである。)

[0352] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 3) で表されることも好ましい。

[0353] [化149]



[0354] (前記一般式 (D 1 3) において、 $R_1 \sim R_3$ 、 $R_5 \sim R_{13}$ および R_Q は、それぞれ独立に、前記一般式 (D 1 0)

) で定義した通りであり、

$R_{x1} \sim R_{x4}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{x1} \sim R_{x4}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

$-Si(R_{931})(R_{932})(R_{933})$ で表される基、

$-O-(R_{934})$ で表される基、

$-S-(R_{935})$ で表される基、

$-N(R_{936})(R_{937})$ で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

$-C(=O)R_{938}$ で表される基、

$-COOR_{939}$ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

$R_{931} \sim R_{939}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

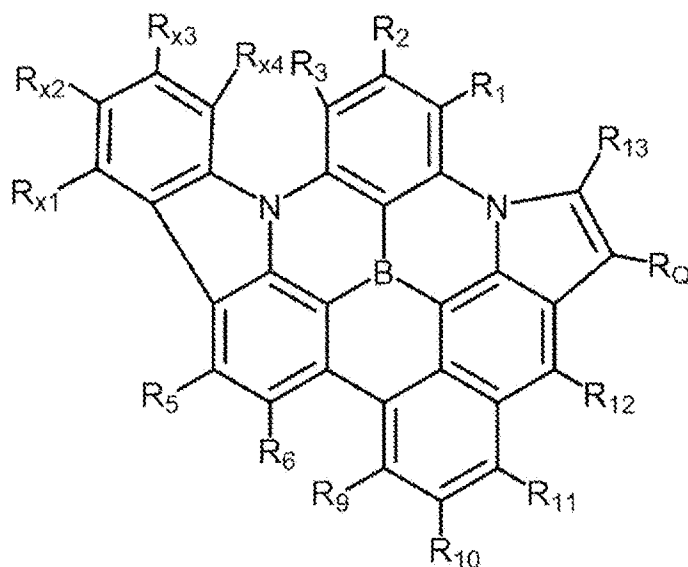
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、
 R_{931} が複数存在する場合、複数の R_{931} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{932} が複数存在する場合、複数の R_{932} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{933} が複数存在する場合、複数の R_{933} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{934} が複数存在する場合、複数の R_{934} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{935} が複数存在する場合、複数の R_{935} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{936} が複数存在する場合、複数の R_{936} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{937} が複数存在する場合、複数の R_{937} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{938} が複数存在する場合、複数の R_{938} は、互いに同一であるか又は異なり、
 R_{939} が複数存在する場合、複数の R_{939} は、互いに同一であるか又は異なる。))

[0355] なお、前記一般式 (D 1 3) において、例えば、 R_5 及び R_6 からなる組が、互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は互いに結合しない。

[0356] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 3 A) で表されることも好ましい。

[0357]

[化150]



(D13A)

[0358] (前記一般式 (D 1 3 A) において、 $R_1 \sim R_3$ 、 $R_5 \sim R_6$ 、 $R_9 \sim R_{13}$ および R_Q は、それぞれ独立に、前記一般式 (D 1 0) で定義した通りであり、 $R_{x1} \sim R_{x4}$ は、それぞれ独立に、前記一般式 (D 1 3) で定義した通りである。)

[0359] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 $R_1 \sim R_{13}$ 及び R_Q は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 5 0 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 5 0 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 5 0 のヘテロアリール基である

ことも好ましい。

[0360] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 $R_1 \sim R_{13}$ 及び R_Q は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 2 5 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 2 5 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 2 5 のヘテロアリール基である

ことも好ましい。

[0361] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 $R_1 \sim R_3$ 、 $R_5 \sim R_{13}$ 、

R_Q 及び $R_{x1} \sim R_{x4}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基である

ことも好ましい。

[0362] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 $R_1 \sim R_3$ 、 $R_5 \sim R_{13}$ 、

R_Q 及び $R_{x1} \sim R_{x4}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 25 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 25 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 25 のヘテロアリール基である

ことも好ましい。

[0363] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 $R_1 \sim R_{13}$ 、 R_Q 及び $R_{x1} \sim R_{x4}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 のヘテロアリール基である

ことが好ましい。

[0364] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 $R_1 \sim R_{13}$ 、 R_Q 及び $R_{x1} \sim R_{x4}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 25 のアルキル基、

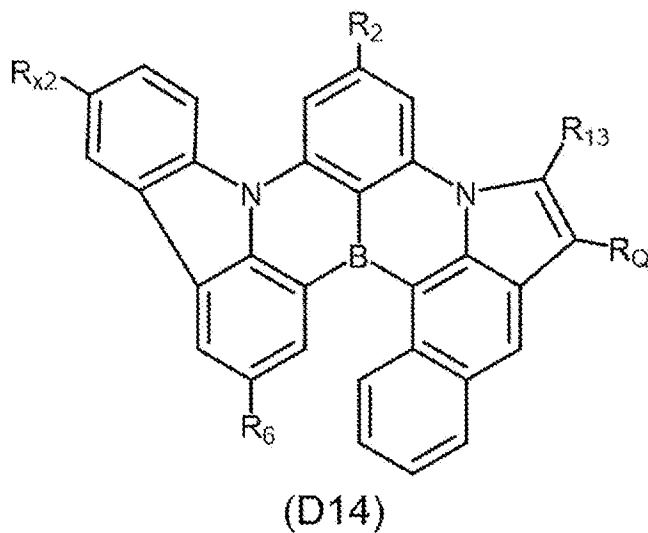
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 25 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 25 のヘテロアリール基である

ことが好ましい。

[0365] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 4) で表されることも好ましい。

[0366] [化151]



[0367] (前記一般式 (D 1 4) において、 R_2 、 R_6 、 R_{13} 、 R_Q および R_{x2} は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 1 0 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 1 2 のアリール基、または

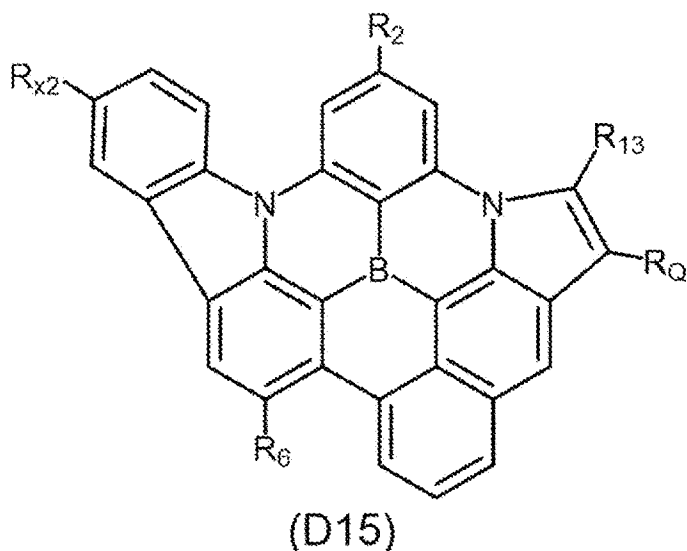
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 1 8 のヘテロアリール基である

。)

[0368] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物は、下記一般式 (D 1 5) で表されることも好ましい。

[0369]

[化152]



[0370] (前記一般式 (D 1 5) において、 R_2 、 R_6 、 R_{13} 、 R_Q および R_{x2} は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 1 0 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 1 2 のアリール基、または

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 1 8 のヘテロアリール基である

。)

[0371] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 R_{13} および R_Q は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 1 0 のアルキル基、

置換もしくは無置換のフェニル基、

置換もしくは無置換のナフチル基、または

置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基であることが好ましい。

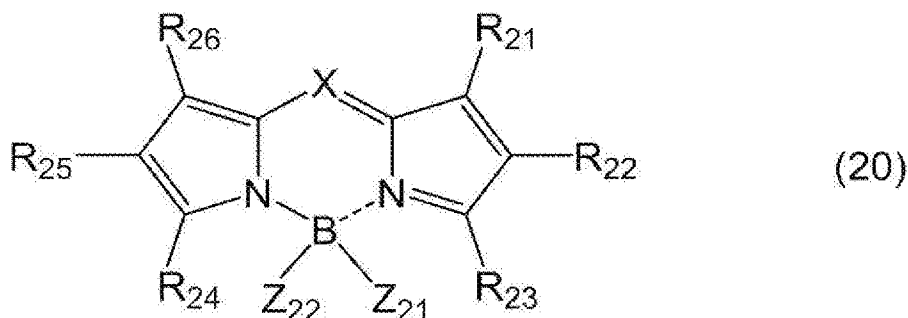
[0372] 前記一般式 (D 1 0) で表される化合物において、 R_6 および R_{x2} は、それぞれ独立に、水素原子、または置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 1 0 のアルキル基であることが好ましい。

[0373] (一般式 (2 0) で表される化合物)

本実施形態において、化合物 M 1 は、下記一般式 (2 0) で表される化合

物であることも好ましい。

[0374] [化153]



[0375] 前記一般式(20)において、

Xは、窒素原子、又はYと結合する炭素原子であり、

Yは、水素原子又は置換基であり、

R₂₁～R₂₆は、それぞれ独立に、水素原子もしくは置換基であるか、又はR₂₁及びR₂₂の組、R₂₂及びR₂₃の組、R₂₄及びR₂₅の組、並びにR₂₅及びR₂₆の組のいずれか1つ以上の組が互いに結合して環を形成し、

置換基としてのY、及びR₂₁～R₂₆は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロゲン化アルコキシ基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキルチオ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールチオ基、

置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数7～30のアラルキル基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30のヘテロアリール基、

ハロゲン原子、

カルボキシ基、

置換もしくは無置換のエステル基、
置換もしくは無置換のカルバモイル基、
置換もしくは無置換のアミノ基、
ニトロ基、
シアノ基、
置換もしくは無置換のシリル基、及び
置換もしくは無置換のシロキサニル基からなる群から選択され、
 Z_{21} 及び Z_{22} は、それぞれ独立に、置換基であるか、又は Z_{21} 及び Z_{22} が互いに結合して環を形成し、
置換基としての Z_{21} 及び Z_{22} は、それぞれ独立に、
ハロゲン原子、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルキル基、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のハロゲン化アルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルコキシ基、
置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のハロゲン化アルコキシ基、及び
置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリールオキシ基からなる群から選択される。

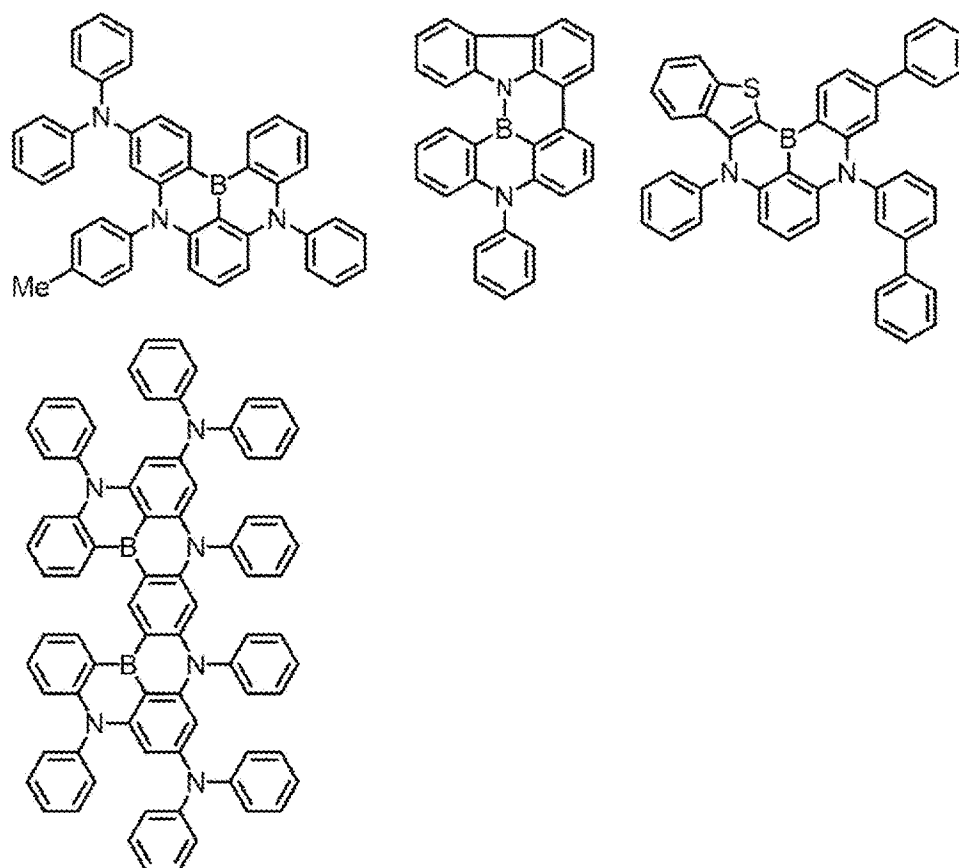
[0376] (化合物 M 1 の製造方法)

本実施形態に係る化合物 M 1 は、公知の合成方法に従って、又は当該合成方法に倣い、目的物に合わせた既知の代替反応及び原料を用いることで、製造できる。

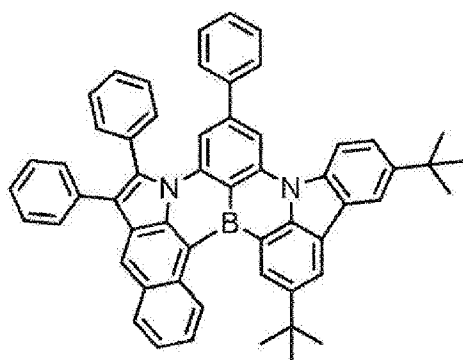
[0377] (化合物 M 1 の具体例)

本実施形態の化合物 M 1 の具体例としては、例えば、以下の化合物が挙げられる。ただし、本発明は、これら化合物の具体例に限定されない。なお、ピロメテン骨格中におけるホウ素原子と窒素原子との配位結合は、実線、破線、矢印、もしくは省略するなど、種々の表記方法がある。本明細書においては、実線で表すか、破線で表すか、又は記載を省略する。

[0378] [化154]

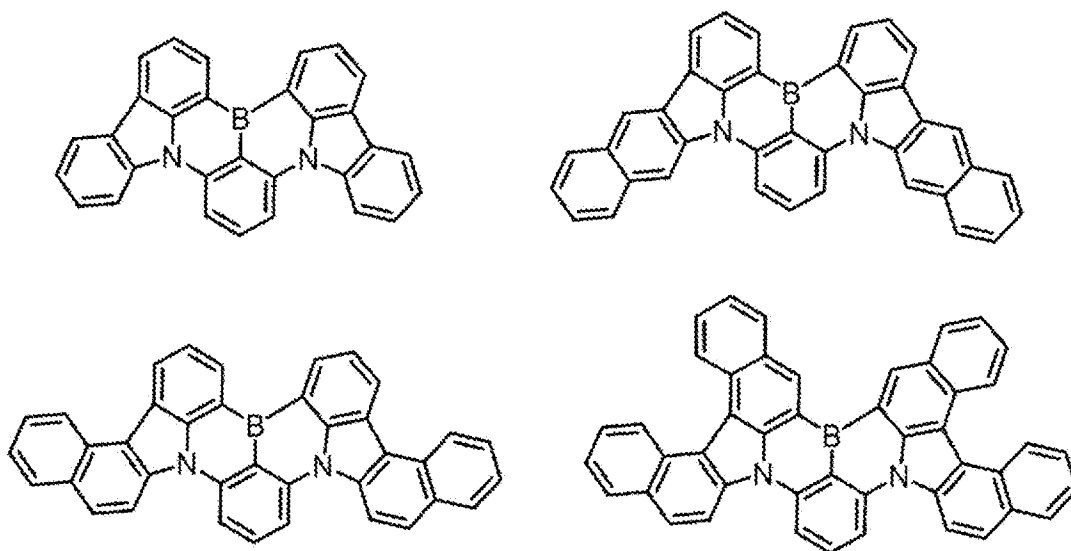


[0379] [化155]

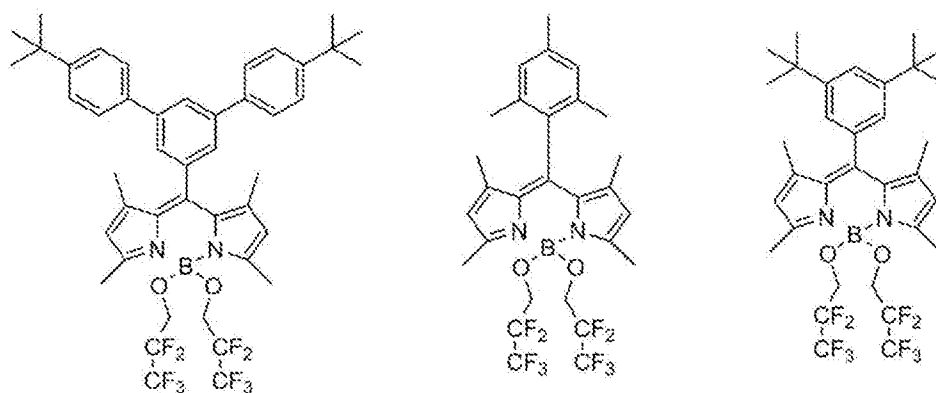


[0380]

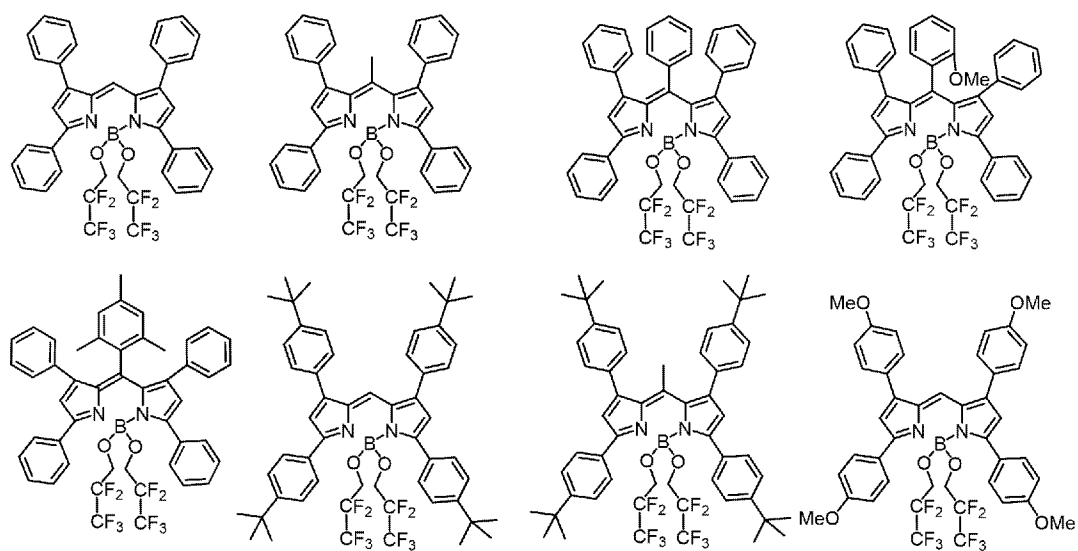
[化156]



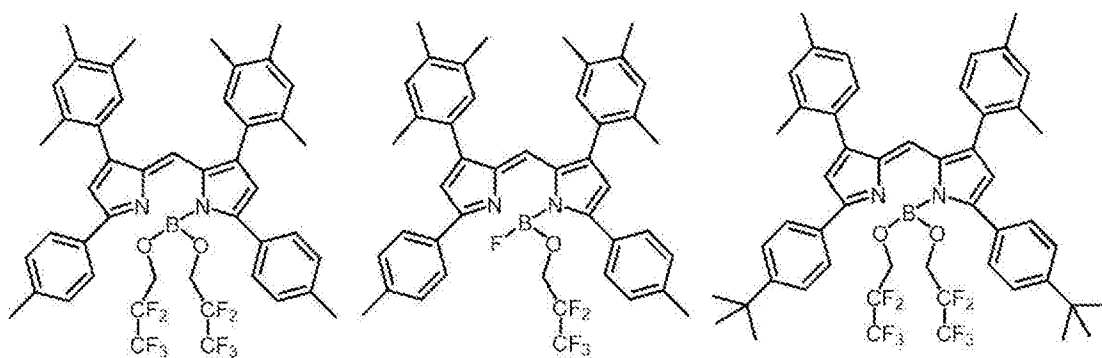
[0381] [化157]



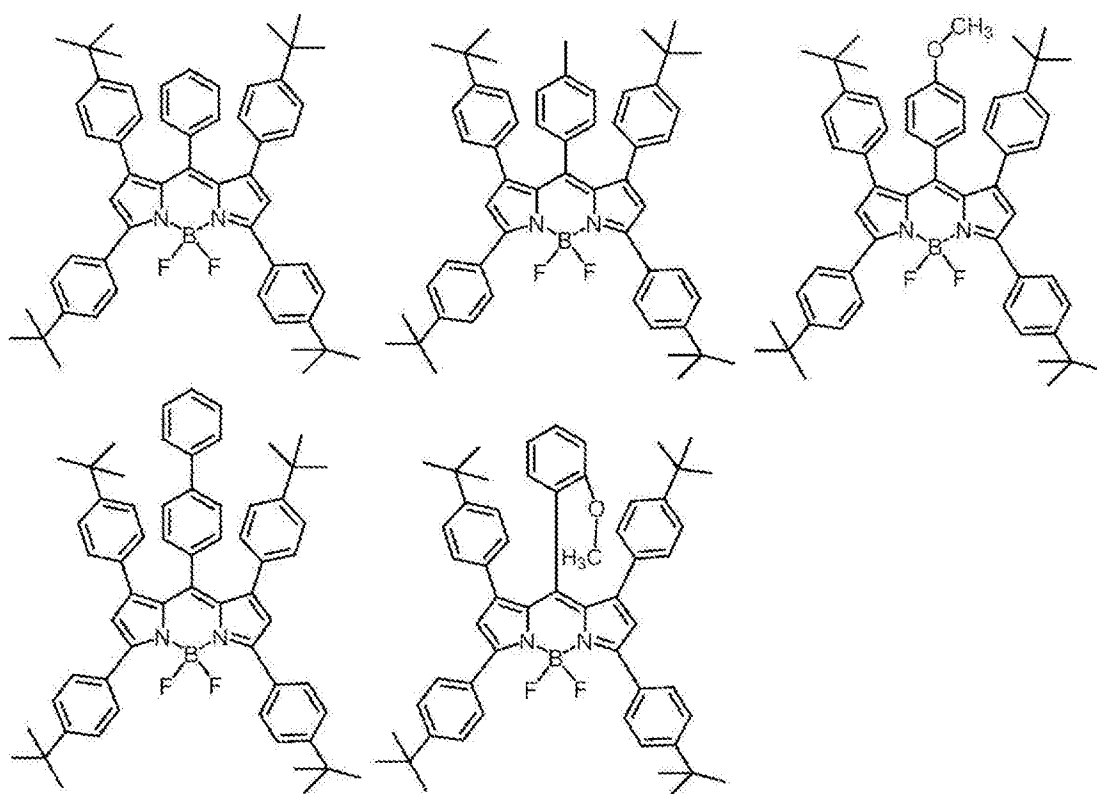
[0382] [化158]



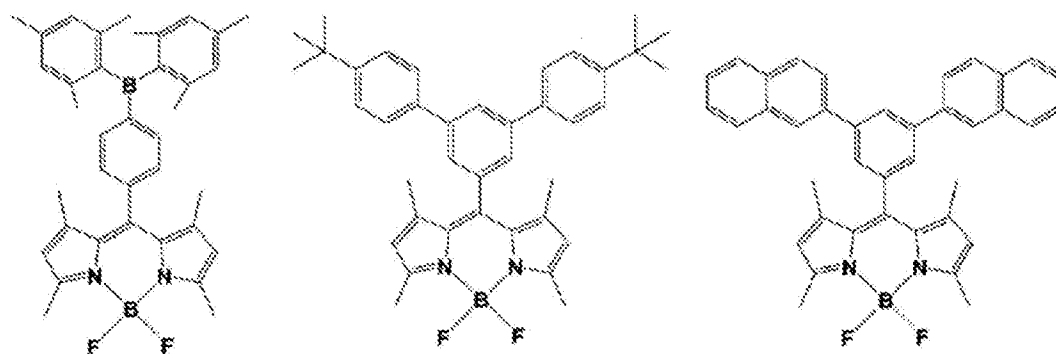
[0383] [化159]



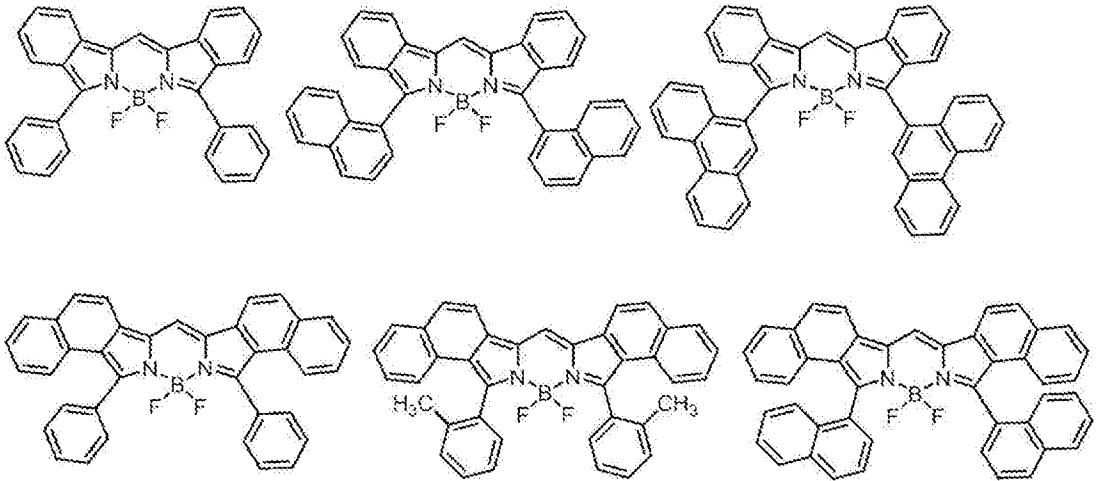
[0384] [化160]



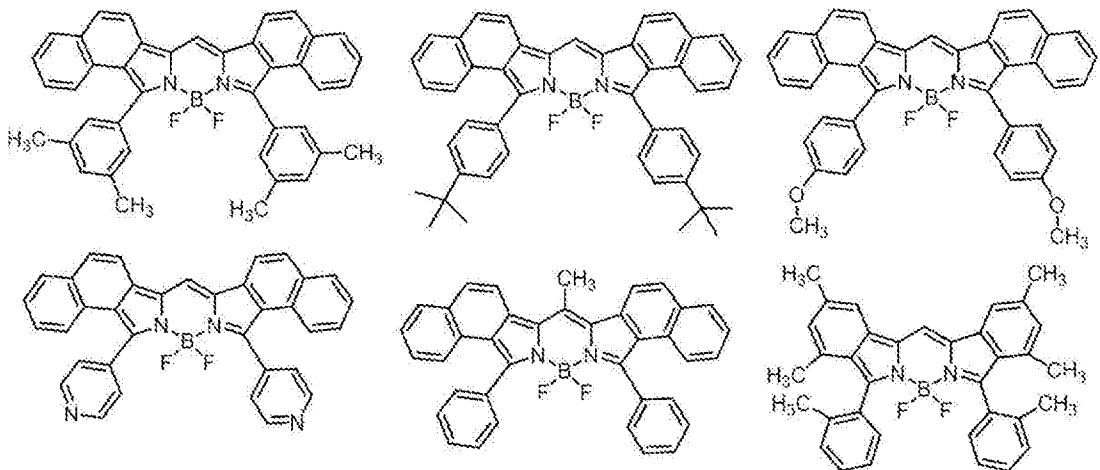
[0385] [化161]



[0386] [化162]



[0387] [化163]



[0388] <発光層における化合物M1及び化合物M2の関係>

本実施形態の有機EL素子において、化合物M2の最低励起一重項エネルギー S_1 (M2)と、化合物M1の最低励起一重項エネルギー S_1 (M1)とが、下記数式…(数1)の関係を満たすことが好ましい。

$$S_1(M2) > S_1(M1) \quad \cdots (数1)$$

[0389] 化合物M2の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M2)$ は、化合物M1の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M1)$ よりも大きいことが好ましい。すなわち、下記数式(数5)の関係を満たすことが好ましい。

$$T_{77K}(M2) > T_{77K}(M1) \quad \cdots (数5)$$

[0390] 本実施形態の有機EL素子を発光させたときに、発光層において、主に化合物M1が発光していることが好ましい。

[0391] ・TADF機構（メカニズム）

図4は、発光層における化合物M2及び化合物M1のエネルギー準位の関係の一例を示す図である。図4において、S0は、基底状態を表す。S1（M1）は、化合物M1の最低励起一重項状態を表す。T1（M1）は、化合物M1の最低励起三重項状態を表す。S1（M2）は、化合物M2の最低励起一重項状態を表す。T1（M2）は、化合物M2の最低励起三重項状態を表す。

図4中のS1（M2）からS1（M1）へ向かう破線の矢印は、化合物M2の最低励起一重項状態から化合物M1へのフェルスター型エネルギー移動を表す。

図4に示すように、化合物M2として ΔST （M2）の小さな化合物を用いると、最低励起三重項状態T1（M2）は、熱エネルギーにより、最低励起一重項状態S1（M2）に逆項間交差が可能である。そして、化合物M2の最低励起一重項状態S1（M2）から化合物M1へのフェルスター型エネルギー移動が生じ、最低励起一重項状態S1（M1）が生成する。この結果、化合物M1の最低励起一重項状態S1（M1）からの蛍光発光を観測することができる。このTADF機構による遅延蛍光を利用することによっても、理論的に内部量子効率を100%まで高めることができると考えられている。

[0392] 本実施形態の有機EL素子は、赤色発光または緑色発光することが好ましい。

本実施形態の有機EL素子が緑色発光する場合、有機EL素子から発光する光の主ピーク波長は、500nm以上560nm以下であることが好ましい。

本実施形態の有機EL素子が赤色発光する場合、有機EL素子から発光する光の主ピーク波長は、600nm以上660nm以下であることが好まし

い。

本実施形態の有機EL素子が青色発光する場合、有機EL素子から発光する光の主ピーク波長は、430nm以上480nm以下であることが好ましい。

[0393] 有機EL素子から発光する光の主ピーク波長の測定は、以下のように行う。

電流密度が10mA/cm²となるように有機EL素子に電圧を印加した時の分光放射輝度スペクトルを分光放射輝度計CS-2000（コニカミノルタ株式会社製）で計測する。

得られた分光放射輝度スペクトルにおいて、発光強度が最大となる発光スペクトルのピーク波長を測定し、これを主ピーク波長（単位：nm）とする。

[0394] ・発光層の膜厚

本実施形態の有機EL素子における発光層の膜厚は、好ましくは5nm以上50nm以下、より好ましくは7nm以上50nm以下、さらに好ましくは10nm以上50nm以下である。発光層の膜厚が5nm以上であると、発光層形成及び色度の調整が容易になりやすく、発光層の膜厚が50nm以下であると、駆動電圧の上昇が抑制されやすい。

[0395] ・発光層における化合物の含有率

発光層に含まれている化合物M2及び化合物M1の含有率は、例えば、以下の範囲であることが好ましい。

化合物M2の含有率は、90質量%以上99.9質量%以下でもよく、95質量%以上99.9質量%以下でもよく、99質量%以上99.9質量%以下でもよい。

化合物M1の含有率は、0.01質量%以上10質量%以下であることが好ましく、0.01質量%以上5質量%以下であることがより好ましく、0.01質量%以上1質量%以下であることがさらに好ましい。

なお、本実施形態は、発光層に、化合物M2及び化合物M1以外の材料が

含まれることを除外しない。

発光層は、化合物M2を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。発光層は、化合物M1を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

[0396] (基板)

基板は、有機EL素子の支持体として用いられる。基板としては、例えば、ガラス、石英、プラスチックなどを用いることができる。また、可撓性基板を用いてもよい。可撓性基板とは、折り曲げることができる（フレキシブル）基板のことであり、例えば、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエーテルスルホン、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリフッ化ビニル、ポリ塩化ビニルからなるプラスチック基板等が挙げられる。また、無機蒸着フィルムを用いることもできる。

[0397] (陽極)

基板上に形成される陽極には、仕事関数の大きい（具体的には4.0 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム－酸化スズ（ITO: Indium Tin Oxide）、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ、酸化インジウム－酸化亜鉛、酸化タングステン、および酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、グラフェン等が挙げられる。この他、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タングステン（W）、クロム（Cr）、モリブデン（Mo）、鉄（Fe）、コバルト（Co）、銅（Cu）、パラジウム（Pd）、チタン（Ti）、または金属材料の窒化物（例えば、窒化チタン）等が挙げられる。

これらの材料は、通常、スパッタリング法により成膜される。例えば、酸化インジウム－酸化亜鉛は、酸化インジウムに対し1質量%以上10質量%以下の酸化亜鉛を加えたターゲットを用いることにより、スパッタリング法で形成することができる。また、例えば、酸化タングステン、および酸化亜鉛を含有した酸化インジウムは、酸化インジウムに対し酸化タングステンを

0.5質量%以上5質量%以下、酸化亜鉛を0.1質量%以上1質量%以下含有したターゲットを用いることにより、スパッタリング法で形成することができる。その他、真空蒸着法、塗布法、インクジェット法、スピンコート法などにより作製してもよい。

陽極上に形成されるEL層のうち、陽極に接して形成される正孔注入層は、陽極の仕事関数に関係なく正孔（ホール）注入が容易である複合材料を用いて形成されるため、電極材料として可能な材料（例えば、金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物、その他、元素周期表の第1族または第2族に属する元素も含む）を用いることができる。

仕事関数の小さい材料である、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金（例えば、MgAg、AlLi）、ユーロピウム（Eu）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金等を用いることもできる。なお、アルカリ金属、アルカリ土類金属、およびこれらを含む合金を用いて陽極を形成する場合には、真空蒸着法やスパッタリング法を用いることができる。さらに、銀ペーストなどを用いる場合には、塗布法やインクジェット法などを用いることができる。

[0398]（陰極）

陰極には、仕事関数の小さい（具体的には3.8eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金（例えば、MgAg、AlLi）、ユーロピウム（Eu）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金等が挙げられる。

なお、アルカリ金属、アルカリ土類金属、これらを含む合金を用いて陰極を形成する場合には、真空蒸着法やスパッタリング法を用いることができる。また、銀ペーストなどを用いる場合には、塗布法やインクジェット法などを用いることができる。

なお、電子注入層を設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、ITO、グラフェン、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ等様々な導電性材料を用いて陰極を形成することができる。これらの導電性材料は、スパッタリング法やインクジェット法、スピコート法等を用いて成膜することができる。

[0399] (正孔注入層)

正孔注入層は、正孔注入性の高い物質を含む層である。正孔注入性の高い物質としては、モリブデン酸化物、チタン酸化物、バナジウム酸化物、レニウム酸化物、ルテニウム酸化物、クロム酸化物、ジルコニウム酸化物、ハフニウム酸化物、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。

また、正孔注入性の高い物質としては、低分子の有機化合物である4, 4', 4''-トリス(N, N-ジフェニルアミノ)トリフェニルアミン(略称: TDATA)、4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(略称: MTDATA)、4, 4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称: DPAB)、4, 4'-ビス(N-{4-[N'-(3-メチルフェニル)-N'-フェニルアミノ]フェニル}-N-フェニルアミノ)ビフェニル(略称: DNTPD)、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ベンゼン(略称: DPA3B)、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称: PCzPCA1)、3, 6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称: PCzPCA2)、3-[

N－（１－ナフチル）－N－（９－フェニルカルバゾール－３－イル）アミノ］－９－フェニルカルバゾール（略称：PCzPCN1）等の芳香族アミン化合物等も挙げられる。

また、正孔注入性の高い物質としては、高分子化合物（オリゴマー、デンドリマー、ポリマー等）を用いることもできる。例えば、ポリ（N－ビニルカルバゾール）（略称：PVK）、ポリ（４－ビニルトリフェニルアミン）（略称：PVTPA）、ポリ〔N－（４－{N’－〔４－（４－ジフェニルアミノ）フェニル〕フェニル－N’－フェニルアミノ}フェニル）メタクリルアミド〕（略称：PTPDMA）、ポリ〔N，N’－ビス（４－ブチルフェニル）－N，N’－ビス（フェニル）ベンジジン〕（略称：Poly-TPD）などの高分子化合物が挙げられる。また、ポリ（３，４－エチレンジオキシチオフェン）／ポリ（スチレンスルホン酸）（PEDOT／PSS）、ポリアニリン／ポリ（スチレンスルホン酸）（PAni／PSS）等の酸を添加した高分子化合物を用いることもできる。

[0400]（正孔輸送層）

正孔輸送層は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。正孔輸送層には、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、アントラセン誘導体等を使用することができる。具体的には、４，４’－ビス〔N－（１－ナフチル）－N－フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：NPB）やN，N’－ビス（３－メチルフェニル）－N，N’－ジフェニル－〔１，１’－ビフェニル〕－４，４’－ジアミン（略称：TPD）、４－フェニル－４’－（９－フェニルフルオレン－９－イル）トリフェニルアミン（略称：BAFLP）、４，４’－ビス〔N－（９，９－ジメチルフルオレン－２－イル）－N－フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：DFLDPBi）、４，４’，４’’－トリス（N，N－ジフェニルアミノ）トリフェニルアミン（略称：TDATA）、４，４’，４’’－トリス〔N－（３－メチルフェニル）－N－フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（略称：MTDATA）、４，４’－ビス〔N－（スピロ－９，９’－ビフルオレン－２－イル）－N－フェニルアミノ〕ビフェ

ニル（略称：BSPB）などの芳香族アミン化合物等を用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。

正孔輸送層には、CBP、CzPA、PCzPAのようなカルバゾール誘導体や、t-BuDNA、DNA、DPAnthのようなアントラセン誘導体を用いても良い。ポリ（N-ビニルカルバゾール）（略称：PVK）やポリ（4-ビニルトリフェニルアミン）（略称：PVTPA）等の高分子化合物を用いることもできる。

但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外の物質を用いてもよい。なお、正孔輸送性の高い物質を含む層は、単層であっても、上記物質からなる層が二層以上積層された層であってもよい。

[0401]（電子輸送層）

電子輸送層は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送層には、1）アルミニウム錯体、ベリリウム錯体、亜鉛錯体等の金属錯体、2）イミダゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、アジン誘導体、カルバゾール誘導体、フェナントロリン誘導体等の複素芳香族化合物、3）高分子化合物を使用することができる。具体的には低分子の有機化合物として、Alq、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（略称：Almq₃）、ビス（10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（略称：BeBq₂）、BAIq、Znq、ZnPBO、ZnBTZなどの金属錯体等を用いることができる。また、金属錯体以外にも、2-（4-ビフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール（略称：PBD）、1,3-ビス[5-（ptert-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン（略称：OXD-7）、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-フェニル-5-（4-ビフェニル）-1,2,4-トリアゾール（略称：TAZ）、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-（4-エチルフェニル）-5-（4-ビフェニル）-1,2,4-トリアゾール（略称：p-EtTAZ）、バソフェ

ナントロリン（略称：B P h e n）、バソキュプロイン（略称：B C P）、4, 4' -ビス（5 -メチルベンゾオキサゾール - 2 -イル）スチルベン（略称：B z O s）などの複素芳香族化合物も用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔輸送性よりも電子輸送性の高い物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層として用いてもよい。また、電子輸送層は、単層であっても、上記物質からなる層が二層以上積層された層であってもよい。

また、電子輸送層には、高分子化合物を用いることもできる。例えば、ポリ〔（9, 9 -ジヘキシルフルオレン - 2, 7 -ジイル） - c o - （ピリジン - 3, 5 -ジイル）〕（略称：P F - P y）、ポリ〔（9, 9 -ジオクチルフルオレン - 2, 7 -ジイル） - c o - （2, 2' -ビピリジン - 6, 6' -ジイル）〕（略称：P F - B P y）などを用いることができる。

[0402] （電子注入層）

電子注入層は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層には、リチウム（L i）、セシウム（C s）、カルシウム（C a）、フッ化リチウム（L i F）、フッ化セシウム（C s F）、フッ化カルシウム（C a F₂）、リチウム酸化物（L i O_x）等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を用いることができる。その他、電子輸送性を有する物質にアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を含有させたもの、具体的にはA l q中にマグネシウム（M g）を含有させたもの等を用いてもよい。なお、この場合には、陰極からの電子注入をより効率良く行うことができる。

あるいは、電子注入層に、有機化合物と電子供与体（ドナー）とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子供与体によって有機化合物に電子が発生するため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体的には、例えば上述した電子輸送層を構成する物質（金属錯体や複素芳香族化合物等）を用いることができる。電子供与体と

しては、有機化合物に対し電子供与性を示す物質であればよい。具体的には、アルカリ金属やアルカリ土類金属や希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラシアフルバレン（略称：TTF）等の有機化合物を用いることもできる。

[0403]（層形成方法）

本実施形態の有機EL素子の各層の形成方法としては、上記で特に言及した以外には制限されないが、真空蒸着法、スパッタリング法、プラズマ法、イオンプレーティング法などの乾式成膜法や、スピンドーティング法、ディッピング法、フローコーティング法、インクジェット法などの湿式成膜法などの公知の方法を採用することができる。

[0404]（膜厚）

本実施形態の有機EL素子の各有機層の膜厚は、上記で特に言及した以外には制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1 μ mの範囲が好ましい。

[0405] 第三実施形態に係る有機EL素子は、発光層に、化合物M2としての第一実施形態の化合物と、化合物M2よりも小さな最低励起一重項エネルギーを有する化合物M1と、を含有している。第三実施形態に係る有機EL素子は、PLQYの高い第一実施形態に係る化合物（化合物M2）を含むので、第三実施形態によれば、高効率化及び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる高性能な有機EL素子を提供できる。

[0406]〔第四実施形態〕

第四実施形態に係る有機EL素子の構成について説明する。第四実施形態の説明において第三実施形態と同一の構成要素は、同一符号や名称を付す等して説明を省略もしくは簡略化する。また、第四実施形態では、特に言及さ

れない材料や化合物については、第三実施形態で説明した材料や化合物と同様の材料や化合物を用いることができる。

[0407] 第四実施形態に係る有機EL素子は、発光層が、さらに化合物M3を含んでいる点で、第三実施形態に係る有機EL素子と異なる。その他の点については第三実施形態と同様である。

すなわち、第四実施形態において、発光層は、化合物M3と、化合物M2と、化合物M1とを含む。この態様の場合、化合物M2は、ホスト材料であることが好ましく、化合物M1は、ドーパント材料であることが好ましい。

[0408] (化合物M3)

本実施形態の化合物M3は、熱活性化遅延蛍光性の化合物でもよいし、熱活性化遅延蛍光性を示さない化合物でもよいが、熱活性化遅延蛍光性を示さない化合物であることが好ましい。

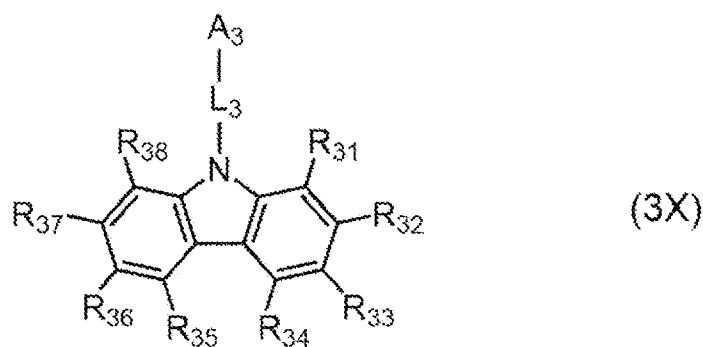
[0409] 化合物M3としては、特に限定されないが、アミン化合物以外の化合物であることが好ましい。また、例えば、化合物M3としては、カルbazool誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体を用いることができるが、これら誘導体に限定されない。

[0410] 本実施形態において、化合物M3は、下記一般式(3X)又は(3Y)で表される化合物であることが好ましい。

[0411] (一般式(3X)で表される化合物)

化合物M3は、下記一般式(3X)で表される化合物であることも好ましい。

[0412] [化164]



[0413] (前記一般式 (3 X) において、

A_3 は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の複素環基であり、

L_3 は、

単結合、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の 2 価の複素環基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基、及び置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 50 の 2 価の複素環基からなる群から選択される 2 つの基が結合して形成される 2 価の基、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 30 のアリーレン基及び置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ~ 30 の 2 価の複素環基からなる群から選択される 3 つの基が結合して形成される 2 価の基であり、

$R_{31} \sim R_{38}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ~ 50 のアルキニル基、

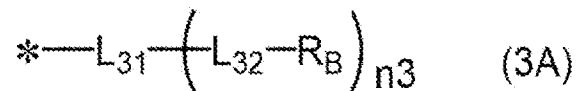
置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 50 のシクロアルキル基、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903})で表される基、

—O—(R_{904})で表される基、

—S— (R₉₀₅) で表される基、
 —N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基、
 置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、
 —C (=O) R₉₀₈ で表される基、
 —COOR₉₀₉ で表される基、
 ハロゲン原子、
 シアノ基、
 ニトロ基、
 —P (=O) (R₉₃₁) (R₉₃₂) で表される基、
 —Ge (R₉₃₃) (R₉₃₄) (R₉₃₅) で表される基、
 —B (R₉₃₆) (R₉₃₇) で表される基、
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基、又は
 下記一般式 (3A) で表される基である。)

[0414] [化165]



[0415] (前記一般式 (3A) において、

R_Bは、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、
 —Si (R₉₀₁) (R₉₀₂) (R₉₀₃) で表される基、
 —O— (R₉₀₄) で表される基、
 —S— (R₉₀₅) で表される基、
 —N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C(=O)R₉₀₈で表される基、

—COOR₉₀₉で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

—P(=O)(R₉₃₁)(R₉₃₂)で表される基、

—Ge(R₉₃₃)(R₉₃₄)(R₉₃₅)で表される基、

—B(R₉₃₆)(R₉₃₇)で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

R_Bが複数存在するとき、複数のR_Bは、互いに同一であるか又は異なり、

L₃₁は、

単結合、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基、当該アリーレン基から誘導される 3 価の基、4 価の基、5 価の基もしくは 6 価の基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の 2 価の複素環基、当該複素環基から誘導される、3 価の基、4 価の基、5 価の基もしくは 6 価の基、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基、及び置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の 2 価の複素環基からなる群から選択される 2 つの基が結合して形成される 2 価の基、当該 2 価の基から誘導される 3 価の基、4 価の基、5 価の基もしくは 6 価の基であり、

L₃₂は、

単結合、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリーレン基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の 2 価の複素環基であり、

n₃は、1、2、3、4 又は 5 であり、

L_{31} が単結合の場合、 n_3 は1であり、 L_{32} が前記一般式(3X)中における六員環の炭素原子と結合し、

L_{32} が複数存在するとき、複数の L_{32} は、互いに同一であるか又は異なり、

*は、前記一般式(3X)中における六員環の炭素原子との結合部位である。)

[0416] (化合物M3において、 R_{901} 、 R_{902} 、 R_{903} 、 R_{904} 、 R_{905} 、 R_{906} 、 R_{907} 、 R_{908} 、 R_{909} 、 R_{931} 、 R_{932} 、 R_{933} 、 R_{934} 、 R_{935} 、 R_{936} 及び R_{937} は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

R_{901} が複数存在する場合、複数の R_{901} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{902} が複数存在する場合、複数の R_{902} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{903} が複数存在する場合、複数の R_{903} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{904} が複数存在する場合、複数の R_{904} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{905} が複数存在する場合、複数の R_{905} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{906} が複数存在する場合、複数の R_{906} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{907} が複数存在する場合、複数の R_{907} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{908} が複数存在する場合、複数の R_{908} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{909} が複数存在する場合、複数の R_{909} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{931} が複数存在する場合、複数の R_{931} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{932} が複数存在する場合、複数の R_{932} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{933} が複数存在する場合、複数の R_{933} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{934} が複数存在する場合、複数の R_{934} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{935} が複数存在する場合、複数の R_{935} は、互いに同一であるか又は異なり、

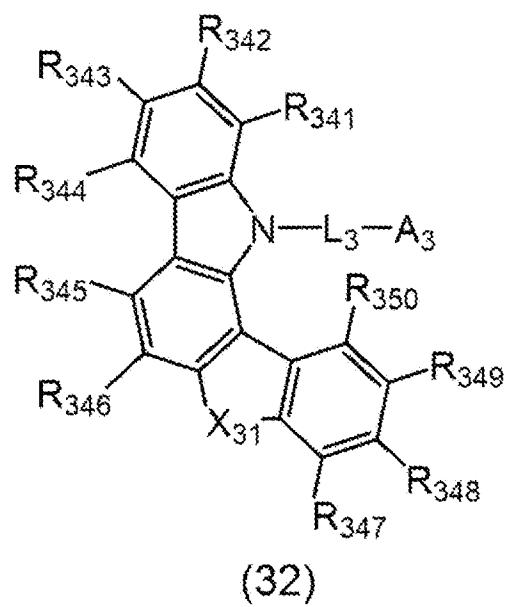
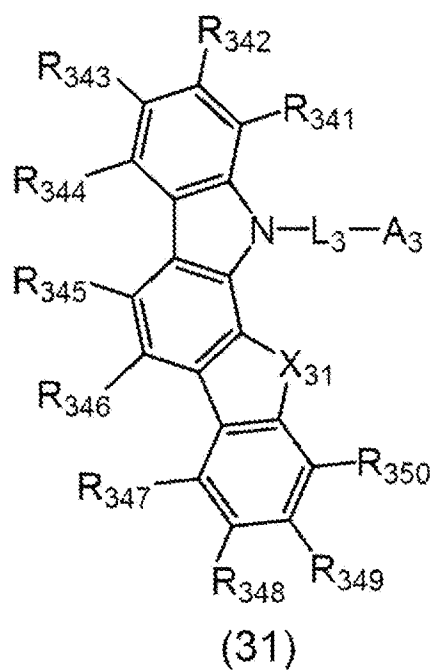
R_{936} が複数存在する場合、複数の R_{936} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{937} が複数存在する場合、複数の R_{937} は、互いに同一であるか又は異なる。))

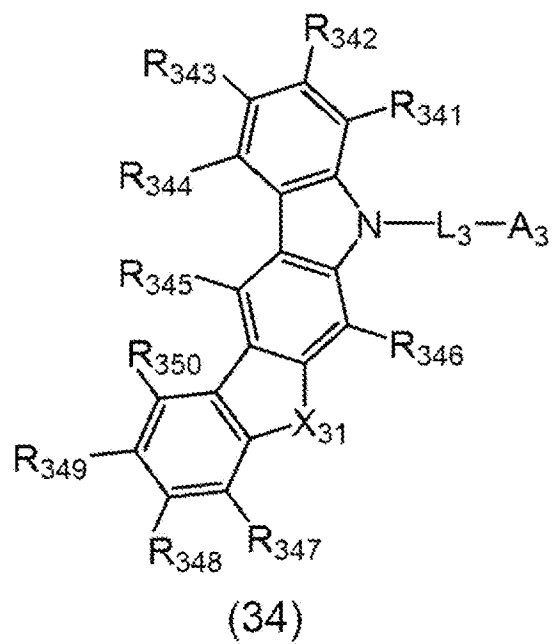
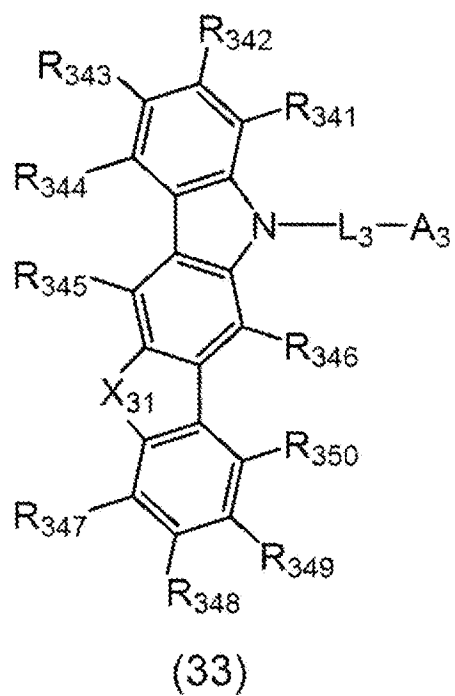
[0417] 化合物M3は、下記一般式(31)～(36)のいずれかで表される化合物であることも好ましい。

[0418]

[化166]

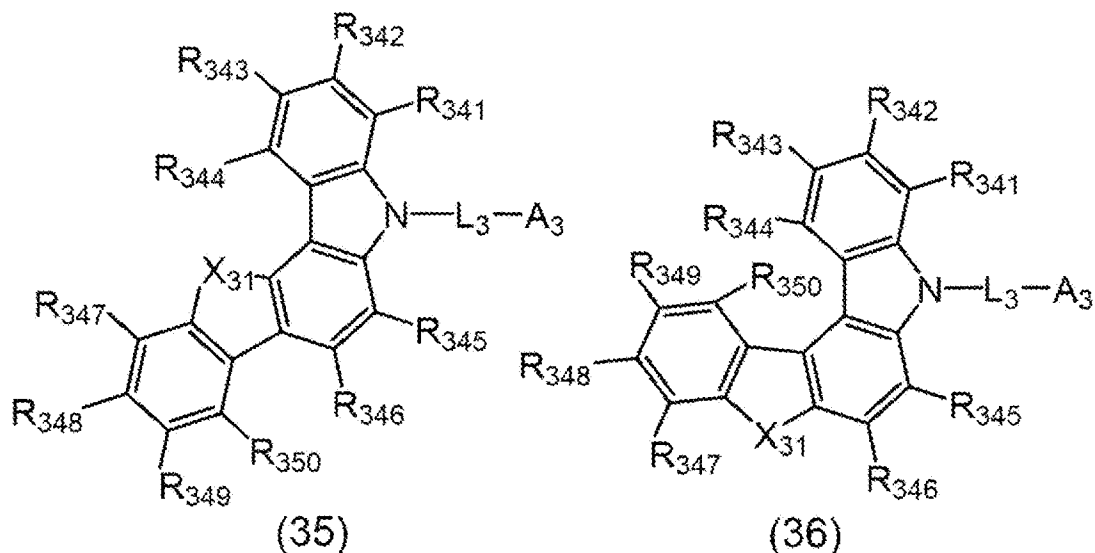


[0419] [化167]



[0420]

[化168]



[0421] (前記一般式(31)～(36)において、

A_3 及び L_3 は、それぞれ、前記一般式(3X)における A_3 及び L_3 と同義であり、

$R_{341} \sim R_{350}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

X_{31} は、硫黄原子、酸素原子、 NR_{352} 又は $CR_{353}R_{354}$ であり、

R_{353} 及び R_{354} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{341} \sim R_{350}$ と、 R_{352} と、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{353} 及び R_{354} とは、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義である。)

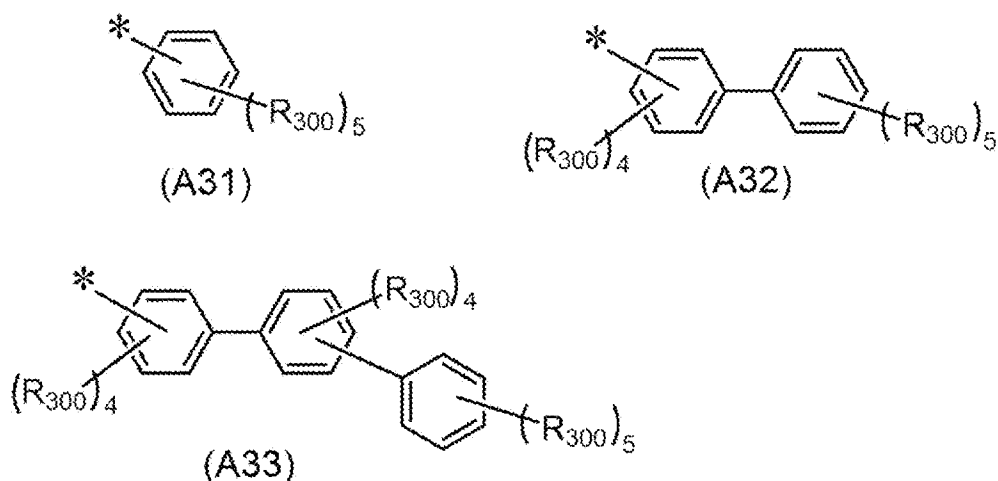
[0422] 化合物M3において、 R_{352} は、
置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であることが好ましい。

[0423] 化合物M3において、 R_{353} 及び R_{354} からなる組が、
互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、
互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は
互いに結合せず、
置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{353} 及び R_{354} は、それぞれ独立に、
置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であることが好ましい。

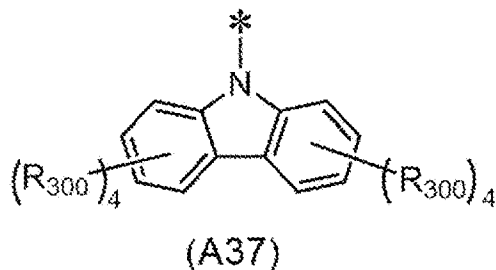
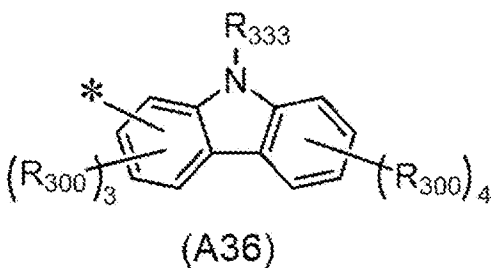
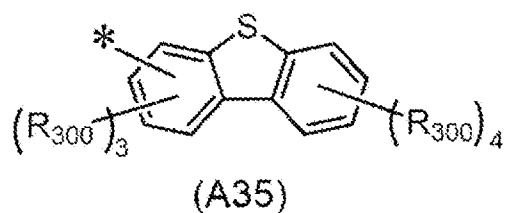
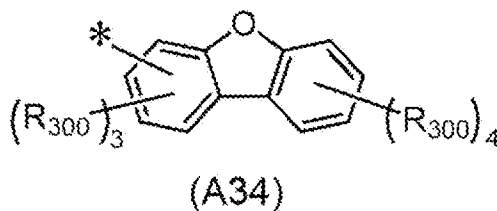
[0424] 化合物M3において、 X_{31} は、硫黄原子又は酸素原子であることが好ましい。

[0425] 化合物M3において、 A_3 は、下記一般式(A31)～(A37)のいずれかで表される基であることが好ましい。

[0426] [化169]



[0427] [化170]



[0428] (前記一般式 (A 3 1) ~ (A 3 7) において、

複数の R_{300} のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{300} 、並びに R_{333} は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義であり、

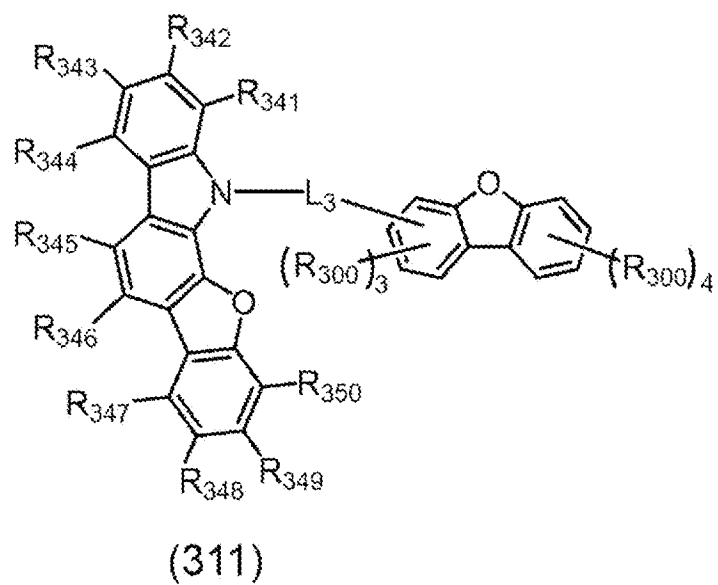
前記一般式 (A 3 1) ~ (A 3 7) 中の * は、それぞれ、前記化合物 M 3 の L_3 との結合位置を示す。))

[0429] 化合物 M 3 において、 A_3 は、前記一般式 (A 3 4)、(A 3 5) 又は (A 3 7) で表される基であることも好ましい。

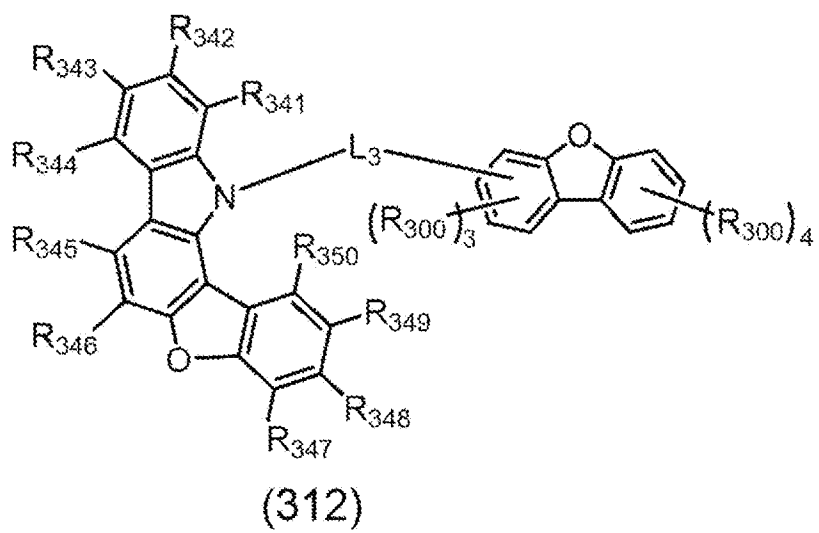
[0430] 化合物 M 3 は、下記一般式 (3 1 1) ~ (3 1 6) のいずれかで表される化合物であることも好ましい。

[0431]

[化171]

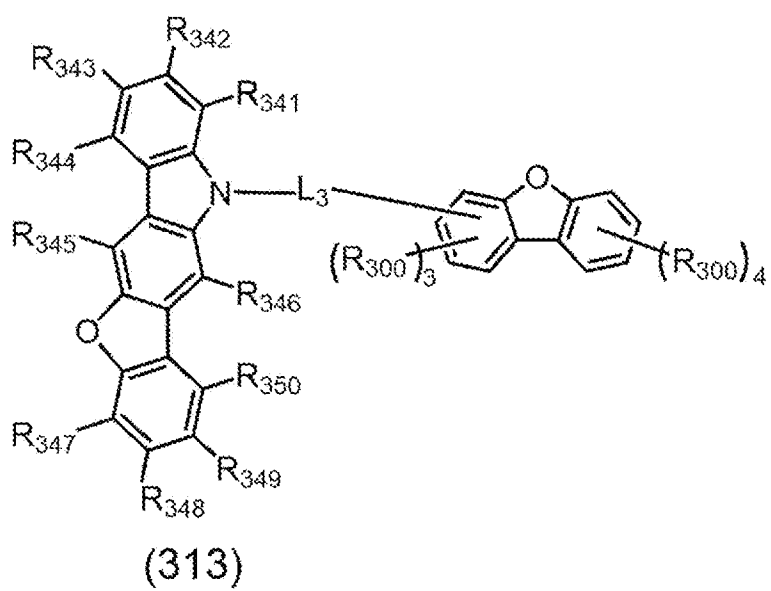


[0432] [化172]

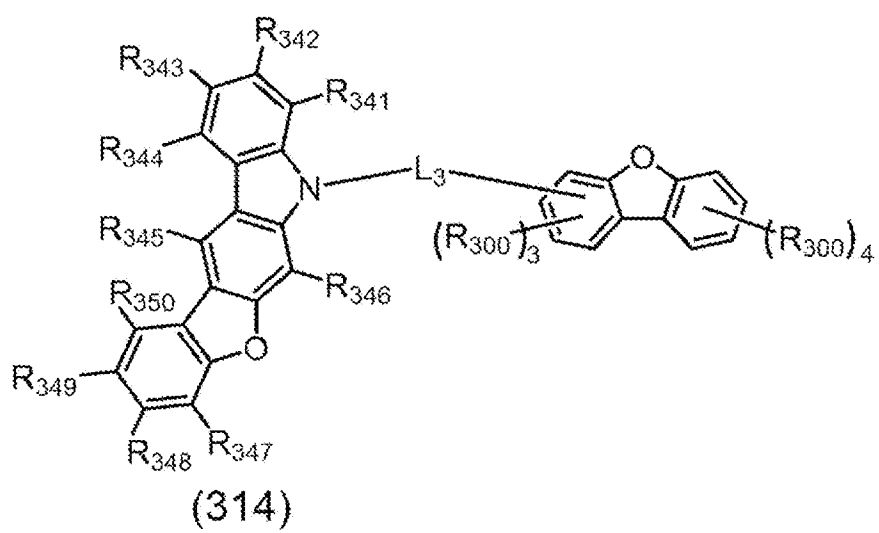


[0433]

[化173]

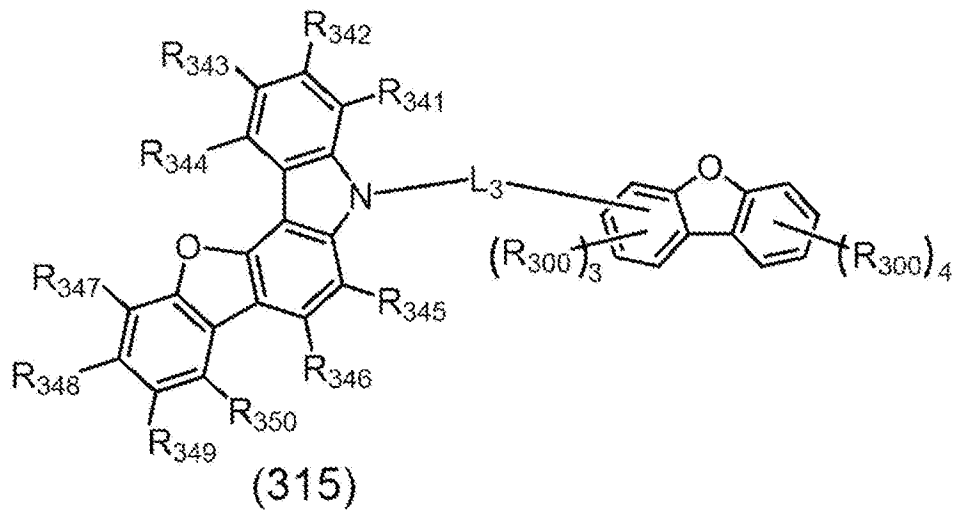


[0434] [化174]

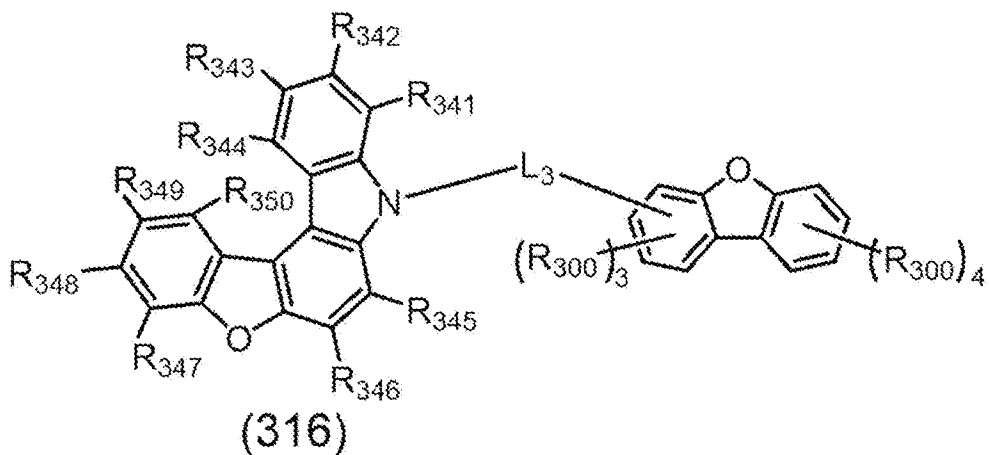


[0435]

[化175]



[0436] [化176]



[0437] (前記一般式(311)～(316)において、

L_3 は、前記一般式(3X)における L_3 と同義であり、

複数の R_{300} のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

$R_{341} \sim R_{350}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

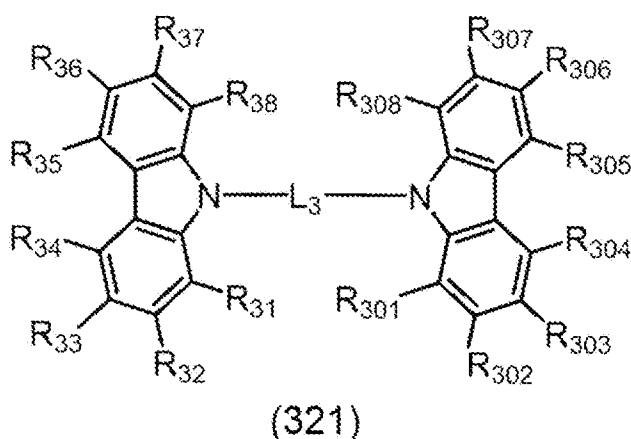
互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{300} 、並びに、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{341} \sim R_{350}$ は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義である。)

[0438] 化合物M3は、下記一般式(321)で表される化合物であることも好ましい。

[0439] [化177]



[0440] (前記一般式(321)において、

L_3 は、前記一般式(3X)における L_3 と同義であり、

$R_{31} \sim R_{38}$ 、並びに $R_{301} \sim R_{308}$ は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義である。)

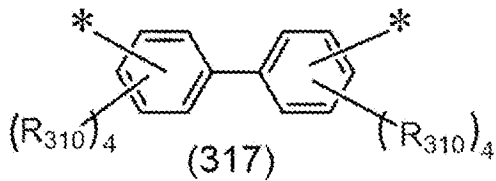
[0441] 化合物M3において、 L_3 は、単結合又は置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基であることが好ましい。

[0442] 化合物M3において、 L_3 は、単結合、置換もしくは無置換のフェニレン基、置換もしくは無置換のビフェニレン基、又は置換もしくは無置換のターフェニレン基であることが好ましい。

[0443] 化合物M3において、 L_3 は、下記一般式(317)で表される基であることが好ましい。

[0444]

[化178]



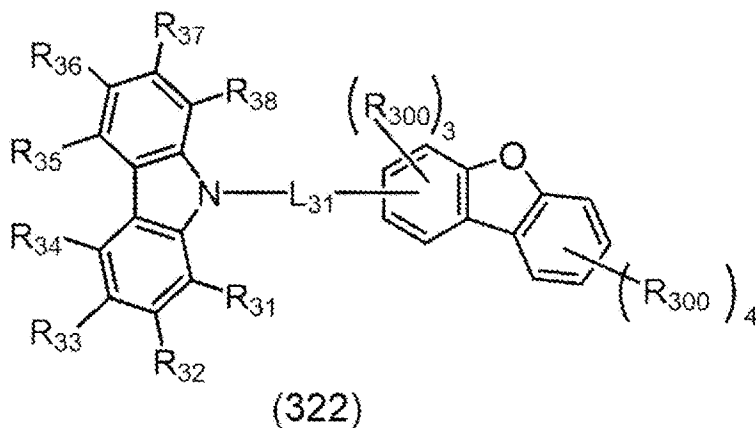
[0445] (前記一般式(317)において、 R_{310} は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義であり、*は、それぞれ独立に、結合位置を示す。)

[0446] 化合物M3において、 L_3 は、下記一般式(318)又は一般式(319)で表される2価の基を含むことも好ましい。

化合物M3において、 L_3 は、下記一般式(318)又は一般式(319)で表される2価の基であることも好ましい。

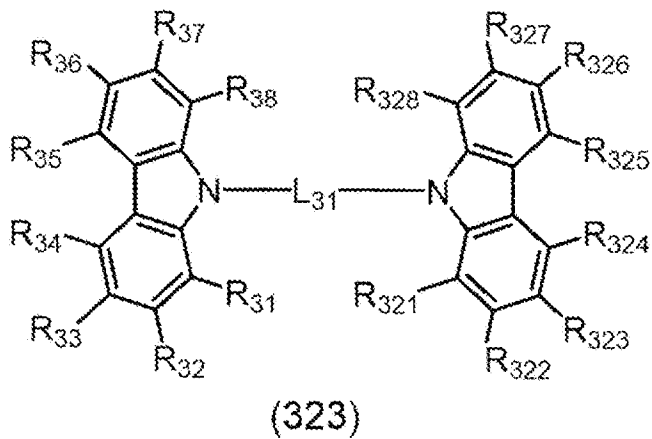
[0447] 化合物M3は、下記一般式(322)又は一般式(323)で表される化合物であることも好ましい。

[0448] [化179]



[0449]

[化180]



[0450] (前記一般式(322)及び一般式(323)において、

 L_{31} は、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の2価の複素環基、又は

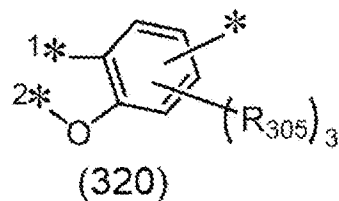
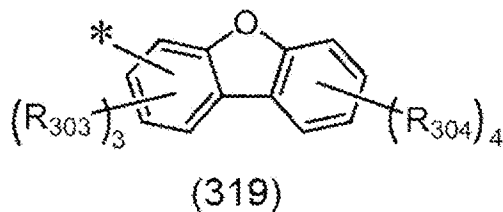
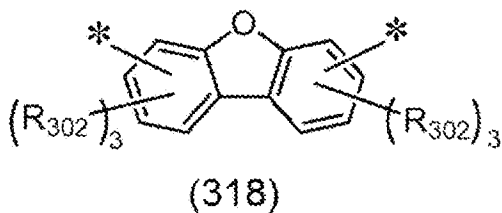
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基、及び置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の2価の複素環基からなる群から選択される2つの基が結合して形成される2価の基であり、

但し、 L_{31} は、下記一般式(318)又は一般式(319)で表される2価の基を含み、

$R_{31} \sim R_{38}$ 、 R_{300} 、並びに $R_{321} \sim R_{328}$ は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義である。)

[0451]

[化181]



[0452] (前記一般式(319)において、

複数の R_{304} のうちの隣接する2つからなる組が、互いに結合して、前記一般式(320)で表される環を形成し、

前記一般式(320)において、1*及び2*は、それぞれ独立に、 R_{304} が結合している環との結合位置を示し、

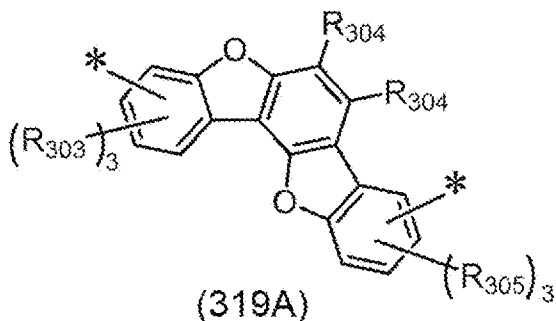
前記一般式(318)における R_{302} 、前記一般式(319)における R_{303} 、前記一般式(320)で表される環を形成しない R_{304} 、並びに前記一般式(320)における R_{305} は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義であり、

前記一般式(318)～(320)における*は、それぞれ、結合位置を示す。)

[0453] 化合物M3において、 L_3 又は L_{31} としての前記一般式(319)で表される基は、例えば、下記一般式(319A)で表される基である。

[0454]

[化182]

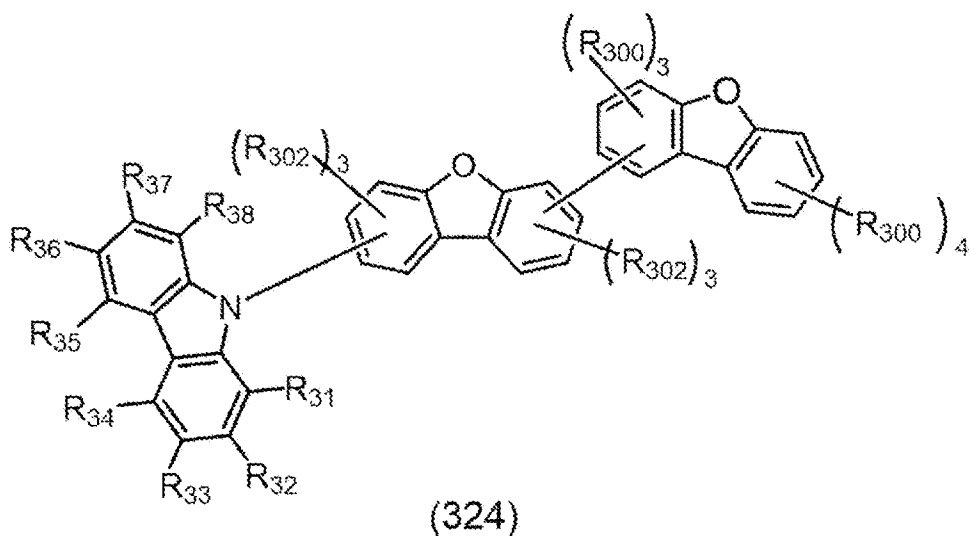


[0455] (前記一般式(319A)において、 R_{303} 、 R_{304} 及び R_{305} は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義であり、前記一般式(319A)における*は、それぞれ、結合位置を示す。)

[0456] 化合物M3は、前記一般式(322)で表される化合物であり、L₃₁は、前記一般式(318)で表される基であることも好ましい。

[0457] 化合物M3は、下記一般式(324)で表される化合物であることも好ましい。

[0458] [化183]



[0459] (前記一般式(324)において、 $R_{31} \sim R_{38}$ 、 R_{300} 、並びに R_{302} は、それぞれ独立に、前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ と同義である。)

[0460] 前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置

換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基、又は

前記一般式 (3 A) で表される基であり、

前記一般式 (3 A) における R_B は、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であることが好ましい。

[0461] 前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

前記一般式 (3 A) で表される基であり、

前記一般式 (3 A) における R_B は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基であることが好ましい。

[0462] 前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{31} \sim R_{38}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換のフェニル基、又は

前記一般式 (3 A) で表される基であり、

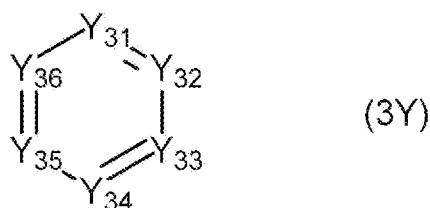
前記一般式 (3 A) における R_B は、置換もしくは無置換のフェニル基であることが好ましい。

[0463] 化合物 M3 は、ピリジン環、ピリミジン環、及びトリアジン環を有さない化合物であることも好ましい。

[0464] (一般式 (3 Y) で表される化合物)

化合物M3は、下記一般式(3Y)で表される化合物であることも好ましい。

[0465] [化184]



[0466] (前記一般式(3Y)において、

$Y_{31} \sim Y_{36}$ は、それぞれ独立に、 CR_3 又は窒素原子であり、

但し、 $Y_{31} \sim Y_{36}$ のうち2つ以上が窒素原子であり、

R_3 が複数存在する場合、複数の R_3 のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_3 は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数2～50のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903})で表される基、

—O—(R_{904})で表される基、

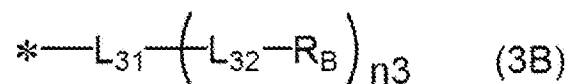
—S—(R_{905})で表される基、

—N(R_{906})(R_{907})で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数7～50のアラルキル基、

—C(=O)R_{908} で表される基、
 —COOR_{909} で表される基、
 ハロゲン原子、
 シアノ基、
 ニトロ基、
 $\text{—P(=O)(R}_{931}\text{)(R}_{932}\text{)}$ で表される基、
 $\text{—Ge(R}_{933}\text{)(R}_{934}\text{)(R}_{935}\text{)}$ で表される基、
 $\text{—B(R}_{936}\text{)(R}_{937}\text{)}$ で表される基、
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基、又は
 下記一般式 (3B) で表される基である。)

[0467] [化185]



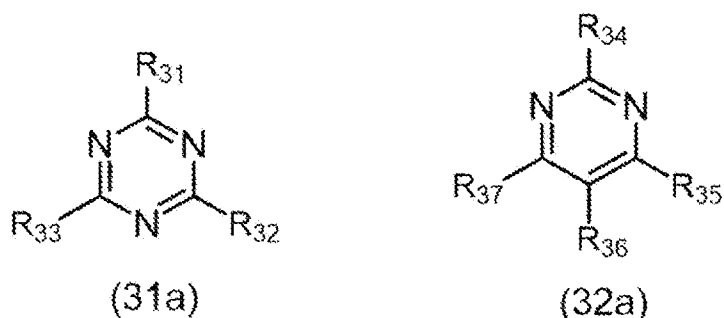
[0468] (前記一般式 (3B) において、 R_B 、 L_{31} 、 L_{32} 及び n_3 は、それぞれ独立に、前記一般式 (3A) における R_B 、 L_{31} 、 L_{32} 及び n_3 と同義であり、
 R_B が複数存在するとき、複数の R_B は、互いに同一であるか又は異なり、
 L_{31} が単結合の場合、 n_3 は 1 であり、 L_{32} が前記一般式 (3Y) 中における六員環の炭素原子と結合し、
 L_{32} が複数存在するとき、複数の L_{32} は、互いに同一であるか又は異なり、
 、
 * は、前記一般式 (3Y) 中における六員環の炭素原子との結合部位である。)

[0469] 化合物 M3 は、分子中にピリジン環を含まないことが好ましい。

[0470] 化合物 M3 は、下記一般式 (31a) 又は一般式 (32a) で表される化合物であることも好ましい。

[0471]

[化186]



[0472] (前記一般式(32a)において、

$R_{35} \sim R_{37}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、
互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、
互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は
互いに結合せず、

前記一般式(31a)における $R_{31} \sim R_{33}$ 、並びに前記一般式(32a)における R_{34} 及び前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{35} \sim R_{37}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(3Y)における R_3 と同義である。)

[0473] 化合物M3は、前記一般式(31a)で表される化合物であることも好ましい。

[0474] 前記一般式(3Y)における R_3 は、それぞれ独立に、

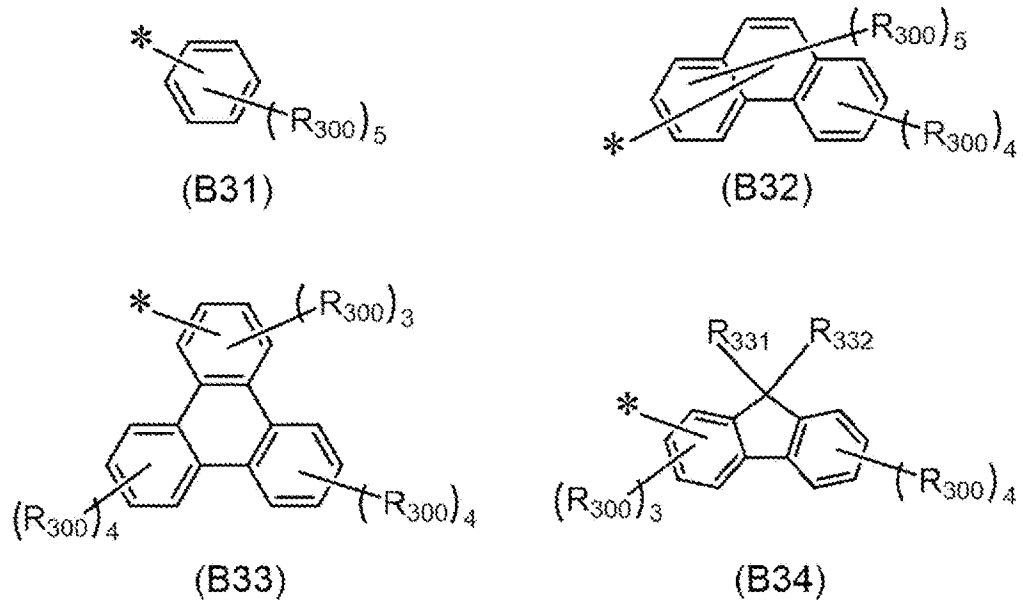
水素原子、
置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、
置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基、又は
前記一般式(3B)で表される基であることが好ましい。

[0475] 前記一般式(3Y)における R_3 は、それぞれ独立に、

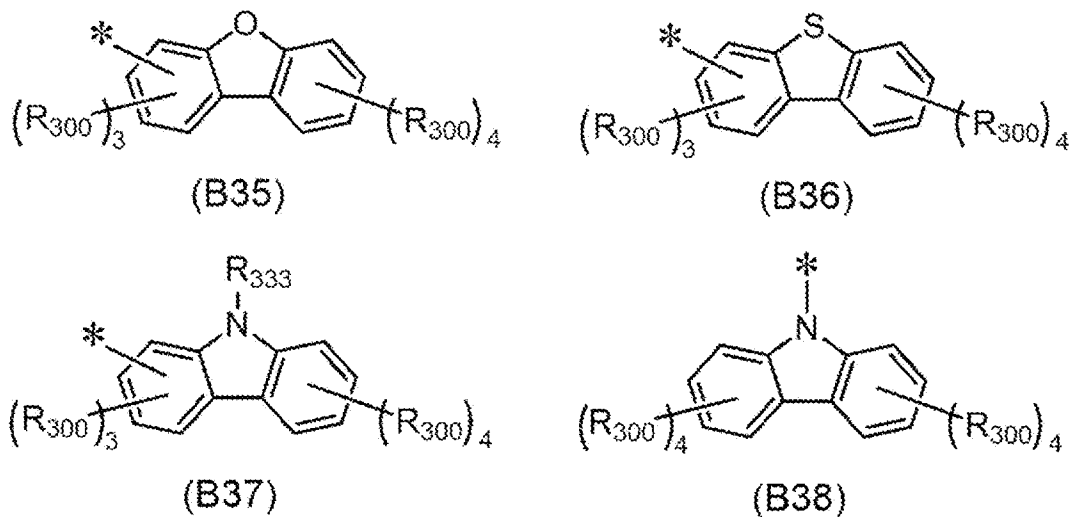
水素原子、
置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は
前記一般式(3B)で表される基であることが好ましい。

[0476] 前記一般式 (3 Y) で表される化合物 M 3 は、分子中に、下記一般式 (B 3 1) ~ (B 4 4) で表される基からなる群から選択される少なくとも 1 つの基を有することが好ましい。

[0477] [化187]



[0478] [化188]



[0479] (前記一般式 (B 3 1) ~ (B 3 8) において、
 複数の R_{300} のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、
 互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、
 互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は
 互いに結合せず、

R_{331} 及び R_{332} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{300} 、 R_{331} 及び R_{332} 、並びに R_{333} は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903}) で表される基、

—O—(R_{904}) で表される基、

—S—(R_{905}) で表される基、

—N(R_{906})(R_{907}) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C(=O) R_{908} で表される基、

—COOR $_{909}$ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

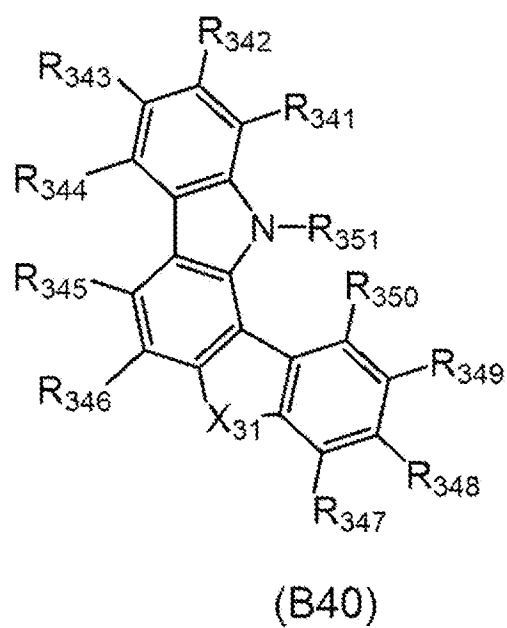
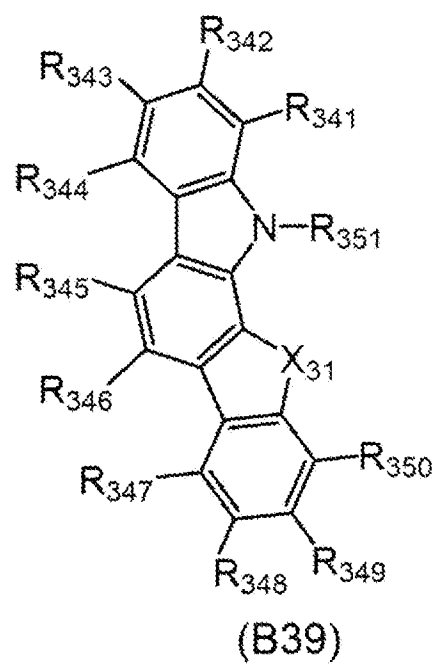
ニトロ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

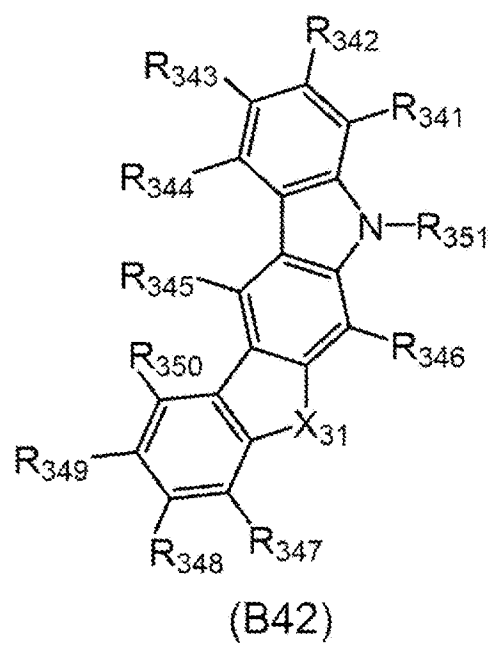
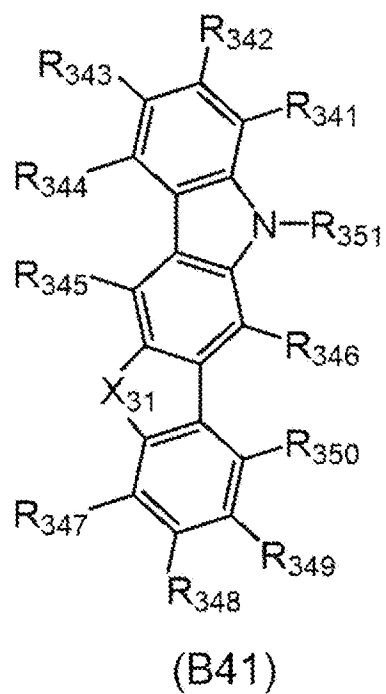
置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

前記一般式 (B31) ～ (B38) 中の*は、それぞれ、前記化合物 M3 の分子中における他の原子との結合位置を示す。)

[化189]

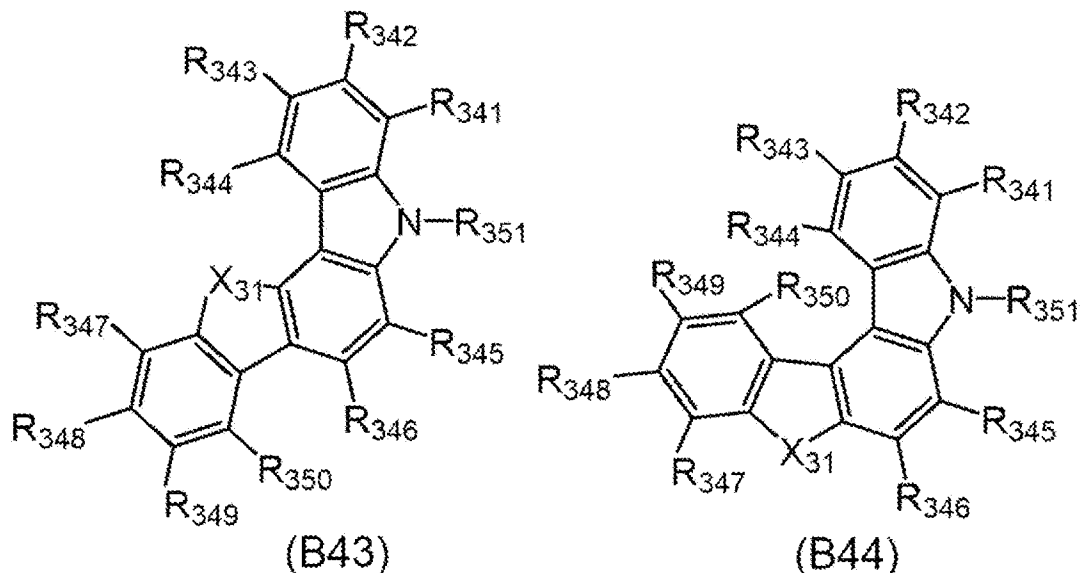


[0481] [化190]



[0482]

[化191]



[0483] (前記一般式 (B 3 9) ~ (B 4 4) において、

$R_{341} \sim R_{350}$ のうちの隣接する2つ以上からなる組の1組以上が、
互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、
互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は
互いに結合せず、

ただし、 $R_{341} \sim R_{351}$ のうちの少なくとも1つが、前記化合物M3の分子
中における他の原子との結合位置を示し、

X_{31} は、硫黄原子、酸素原子、 NR_{352} 又は $CR_{353}R_{354}$ であり、
 R_{353} 及び R_{354} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、
互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は
互いに結合せず、

前記化合物M3の分子中における他の原子との結合位置ではなく、前記置
換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合
環を形成しない $R_{341} \sim R_{351}$ と、 R_{352} と、前記置換もしくは無置換の単環
を形成せず、かつ、前記置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{353} 及び
 R_{354} とは、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基、

—S i (R₉₀₁) (R₉₀₂) (R₉₀₃) で表される基、

—O— (R₉₀₄) で表される基、

—S— (R₉₀₅) で表される基、

—N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

—C (=O) R₉₀₈ で表される基、

—C O O R₉₀₉ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基である。)

[0484] 前記一般式 (3 Y) で表される化合物 M₃ は、分子中に、前記一般式 (B 3 8) ～ (B 4 4) で表される基からなる群から選択される少なくとも 1 つの基を有することが好ましい。

[0485] 前記一般式 (3 Y) において、Y₃₁ ～ Y₃₆ のうち少なくとも 1 つが C R₃ であり、

少なくとも 1 つの R₃ が前記一般式 (3 B) で表される基であり、R_B が前記一般式 (B 3 1) ～ (B 4 4) で表される基のいずれかであることが好ましい。

[0486] 前記一般式 (3 Y) において、Y₃₁ ～ Y₃₆ のうち少なくとも 1 つが C R₃ であり、

少なくとも1つの R_3 が前記一般式(3B)で表される基であり、 R_B が前記一般式(B38)～(B44)で表される基のいずれかであることが好ましい。

[0487] 前記一般式(3A)及び(3B)において、 L_{31} は、

単結合、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基、当該アリーレン基から誘導される3価の基、4価の基、5価の基もしくは6価の基、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基からなる群から選択される2つの基が結合して形成される2価の基、当該2価の基から誘導される3価の基、4価の基、5価の基もしくは6価の基であり、

L_{32} は、それぞれ独立に、

単結合、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基であることが好ましい。

[0488] 前記一般式(3A)及び(3B)において、 L_{31} は、

単結合、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基であり、

n_3 は、1であり、

L_{32} は、

単結合、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基であることが好ましい。

[0489] 前記一般式(3A)及び(3B)において、 L_{31} は、

単結合、

置換もしくは無置換のフェニレン基、

置換もしくは無置換のビフェニレン基、又は

置換もしくは無置換のフェニレン基及び置換もしくは無置換のビフェニ

レン基からなる群から選択される2つの基が結合して形成される2価の基、当該2価の基から誘導される3価の基、4価の基、5価の基もしくは6価の基であり、

n_3 は、1であり、

L_{32} は、

単結合、

置換もしくは無置換のフェニレン基、又は

置換もしくは無置換のビフェニレン基であることが好ましい。

[0490] 前記一般式(3X)及び(3Y)で表される化合物において、 R_{352} は、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であることが好ましい。

[0491] 前記一般式(3X)及び(3Y)で表される化合物において、 R_{353} 及び R_{354} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{353} 及び R_{354} は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であることが好ましい。

[0492] 前記一般式(3X)及び(3Y)で表される化合物において、「置換もしくは無置換の」という場合における置換基が、

無置換の炭素数1～25のアルキル基、

無置換の炭素数2～25のアルケニル基、

無置換の炭素数 2 ～ 25 のアルキニル基、
 無置換の環形成炭素数 3 ～ 25 のシクロアルキル基、
 $-Si(R_{901})(R_{902})(R_{903})$ で表される基、
 $-O-(R_{904})$ で表される基、
 $-S-(R_{905})$ で表される基、
 $-N(R_{906})(R_{907})$ で表される基、
 無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、
 $-C(=O)R_{908}$ で表される基、
 $-COOR_{909}$ で表される基、
 $-P(=O)(R_{931})(R_{932})$ で表される基、
 $-Ge(R_{933})(R_{934})(R_{935})$ で表される基、
 $-B(R_{936})(R_{937})$ で表される基、
 $-S(=O)_2R_{938}$ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

無置換の環形成炭素数 6 ～ 25 のアリール基、又は

無置換の環形成原子数 5 ～ 25 の複素環基であり、

$R_{901} \sim R_{909}$ 、並びに $R_{931} \sim R_{938}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

無置換の炭素数 1 ～ 25 のアルキル基、

無置換の環形成炭素数 6 ～ 25 のアリール基、又は

無置換の環形成原子数 5 ～ 25 の複素環基であることが好ましい。

[0493] 前記一般式 (3 X) 及び (3 Y) で表される化合物において、「置換もしくは無置換の」という場合における置換基が、

ハロゲン原子、

無置換の炭素数 1 ～ 25 のアルキル基、

無置換の環形成炭素数 6 ～ 25 のアリール基、又は

無置換の環形成原子数 5 ～ 25 の複素環基であることが好ましい。

[0494] 前記一般式 (3 X) 及び (3 Y) で表される化合物において、「置換もしくは無置換の」という場合における置換基が、

無置換の炭素数 1 ～ 10 のアルキル基、

無置換の環形成炭素数 6 ～ 12 のアリール基、又は

無置換の環形成原子数 5 ～ 12 の複素環基であることが好ましい。

[0495] 前記一般式 (3 X) 及び (3 Y) で表される化合物において、「置換もしくは無置換」と記載された基は、いずれも「無置換」の基であることも好ましい。

[0496] (化合物 M 3 の製造方法)

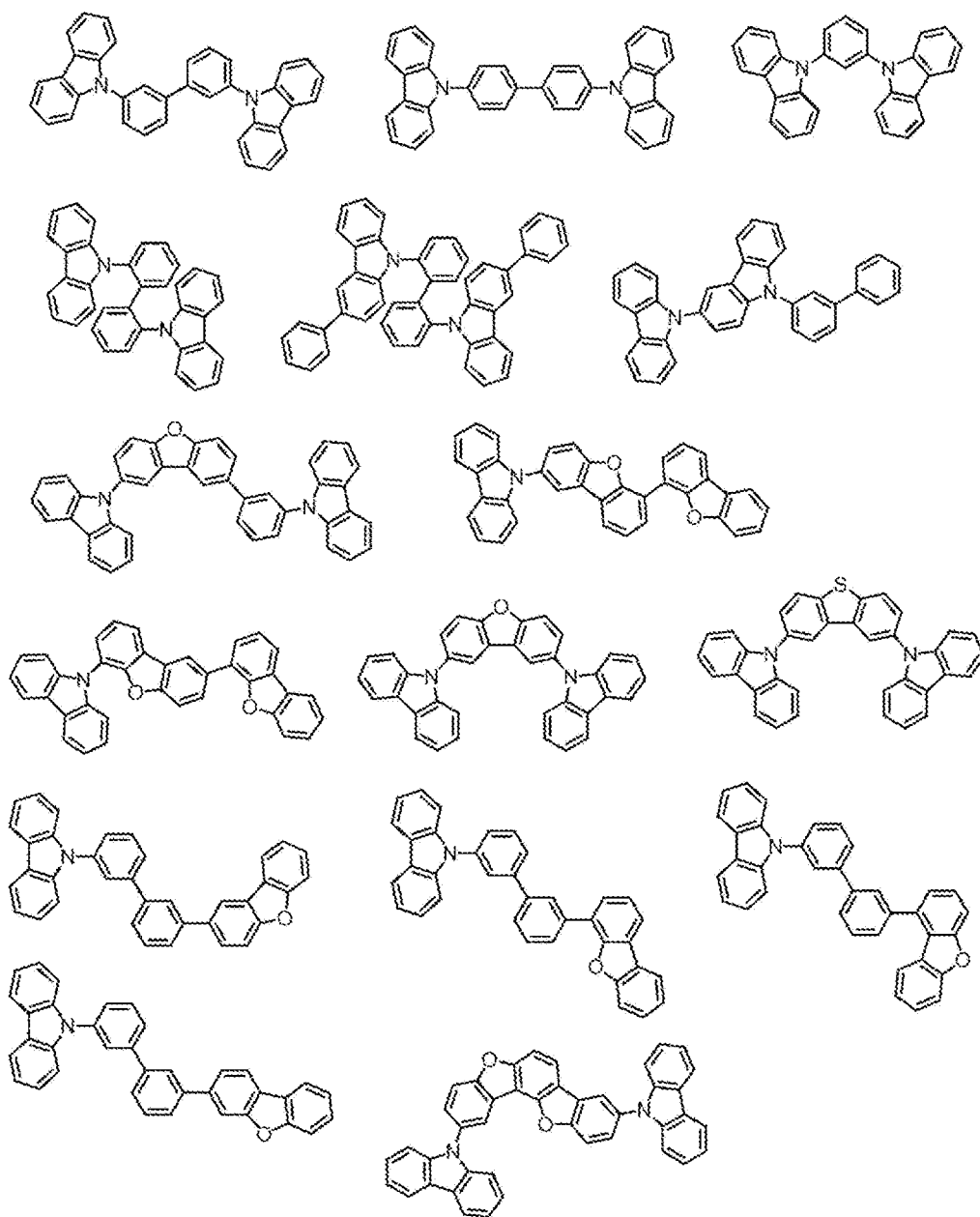
本実施形態に係る化合物 M 3 は、公知の方法により製造することができる。

[0497] (化合物 M 3 の具体例)

本実施形態の化合物 M 3 の具体例としては、例えば、以下の化合物が挙げられる。ただし、本発明は、これら化合物の具体例に限定されない。

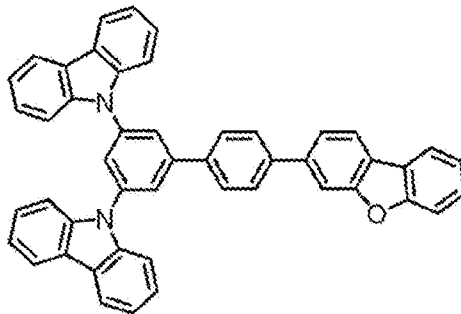
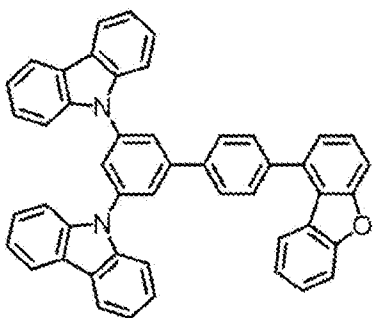
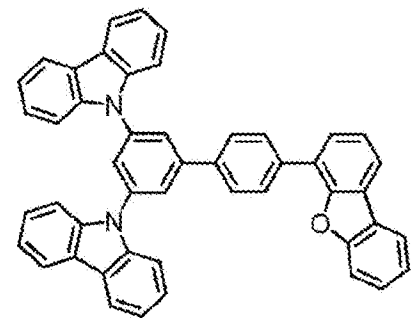
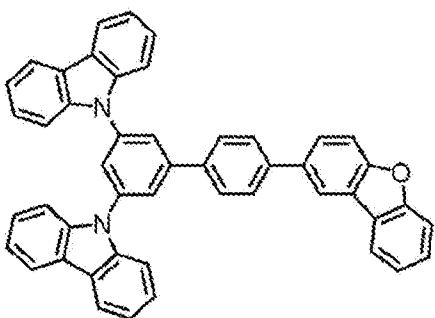
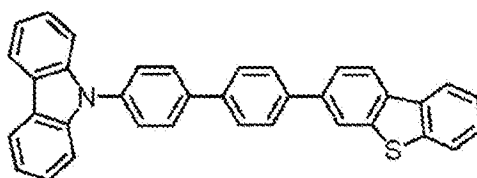
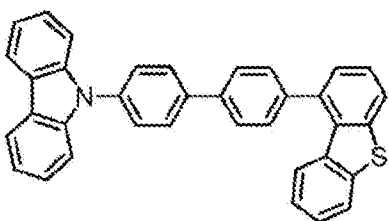
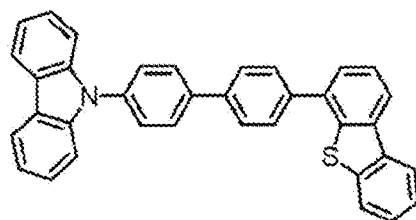
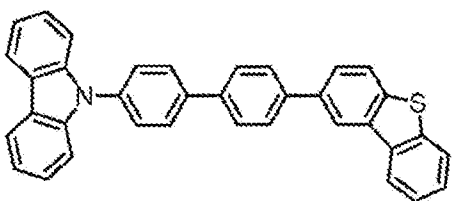
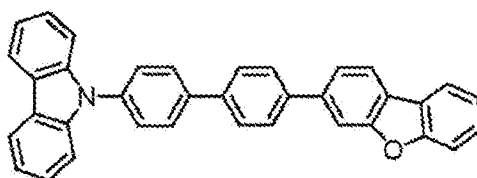
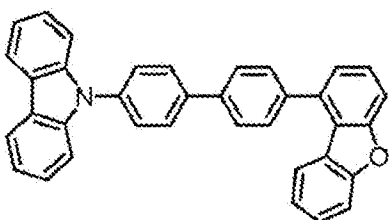
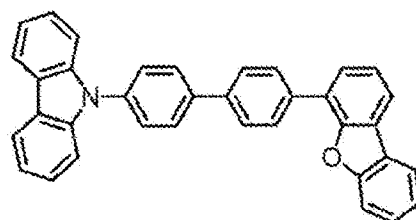
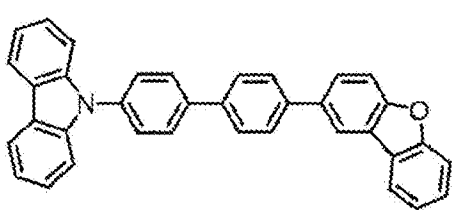
[0498]

[化192]



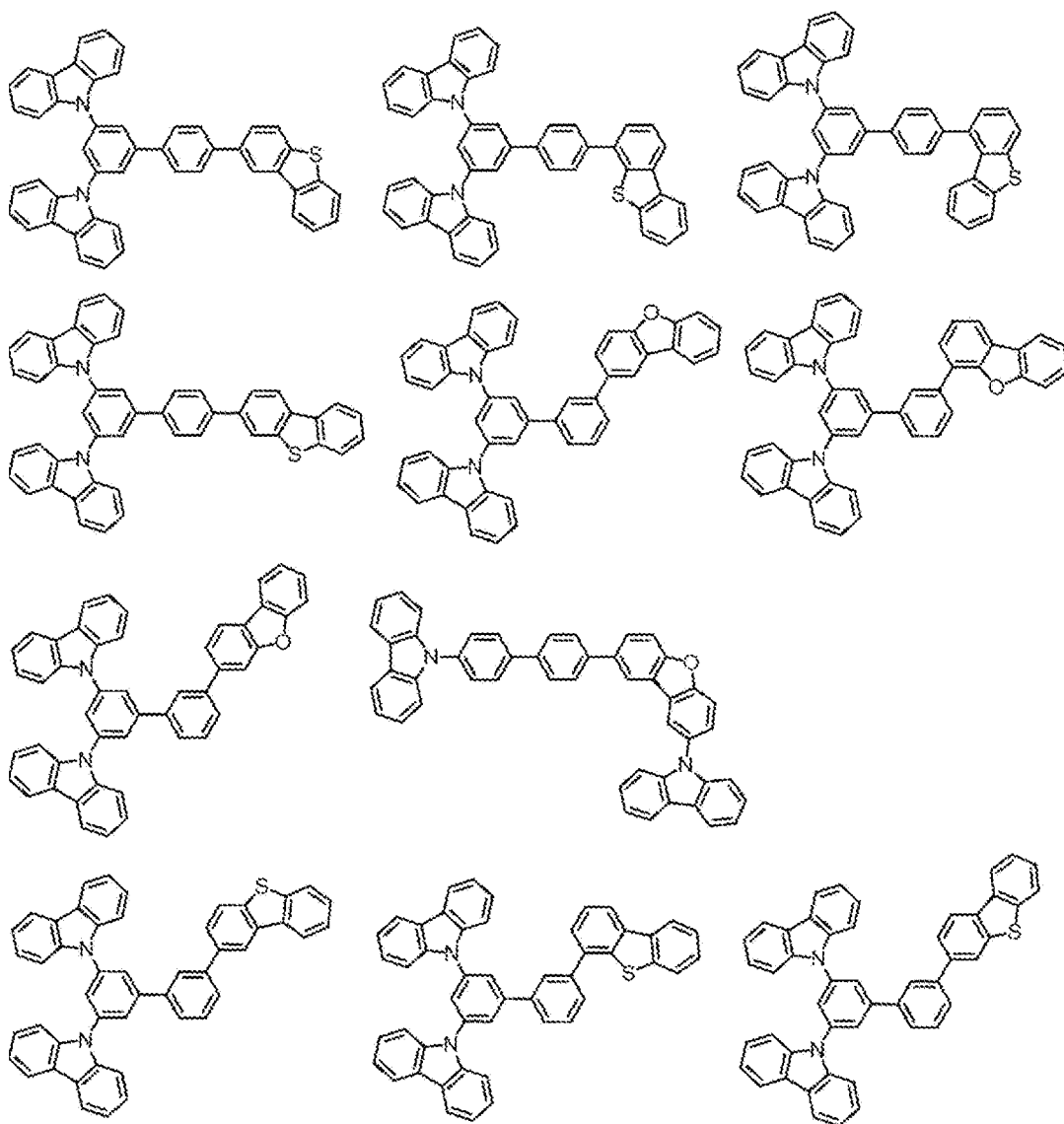
[0499]

[化193]



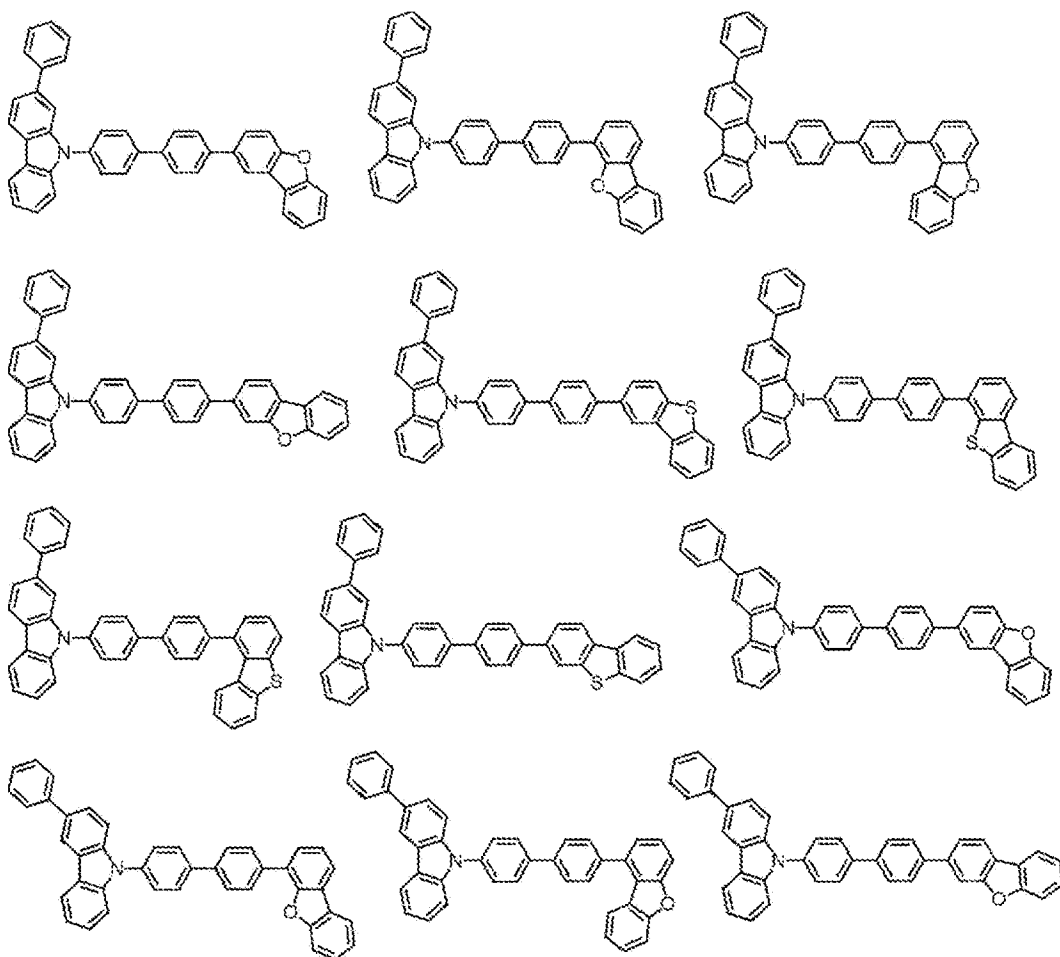
[0500]

[化194]



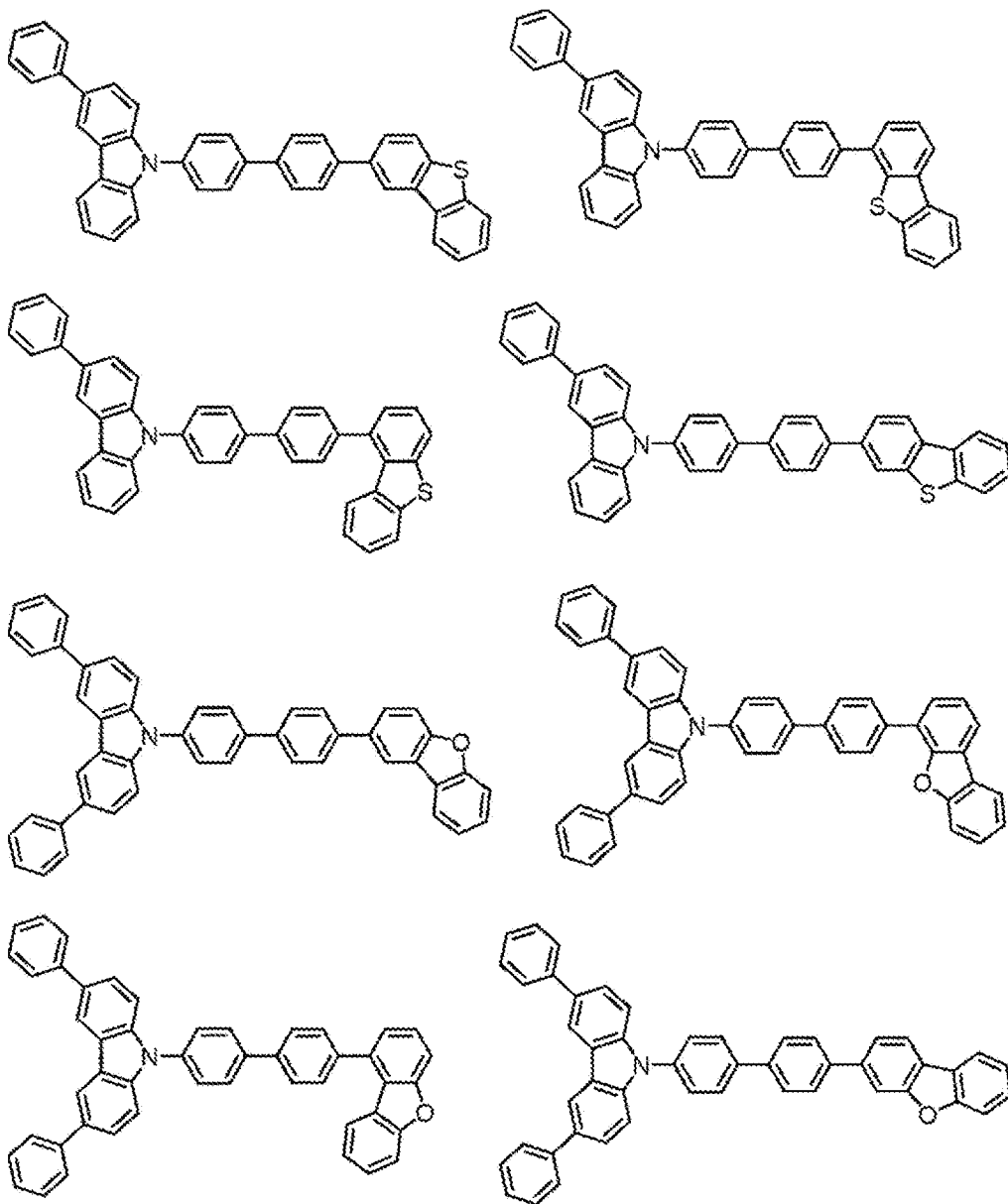
[0501]

[化195]



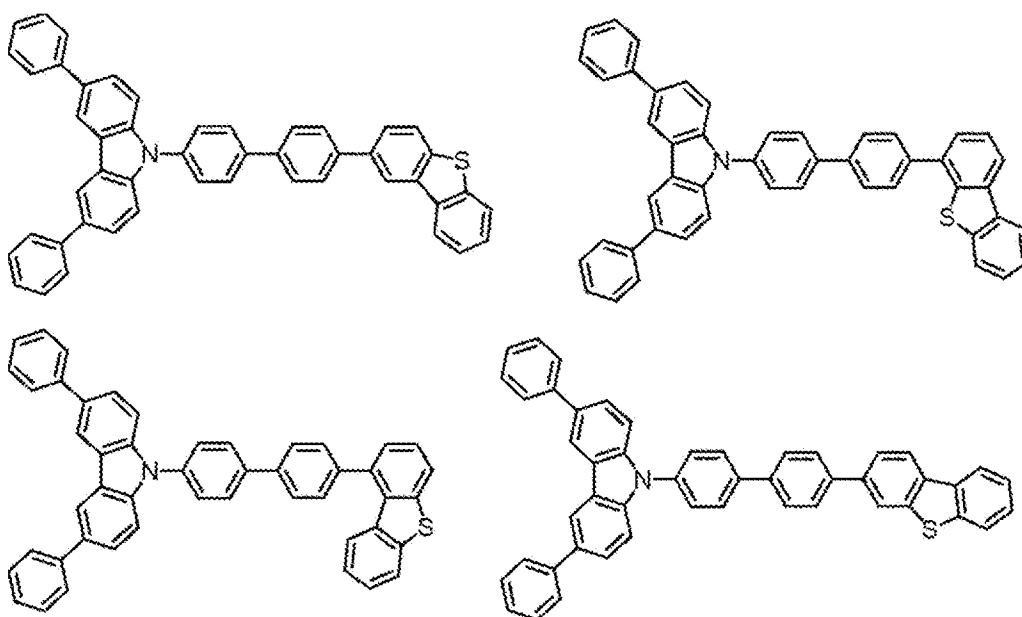
[0502]

[化196]

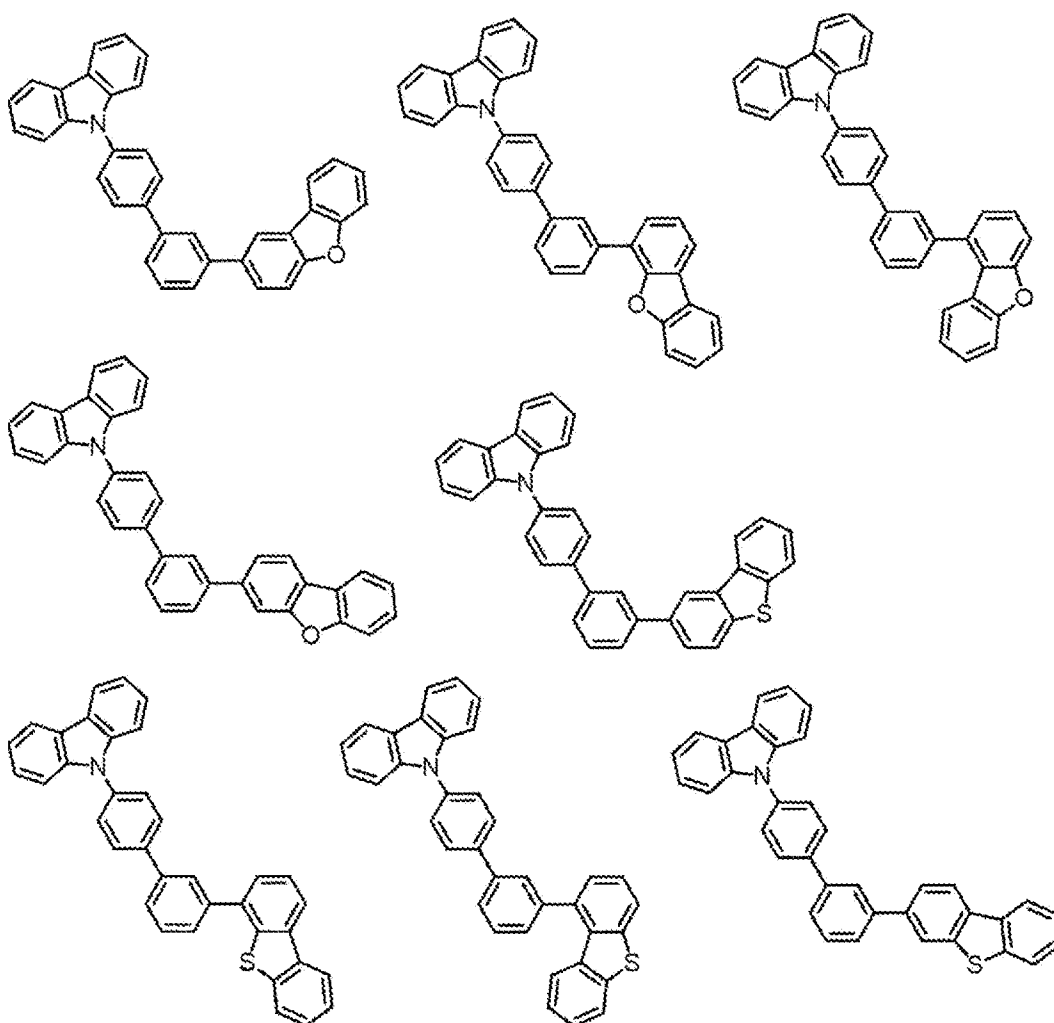


[0503]

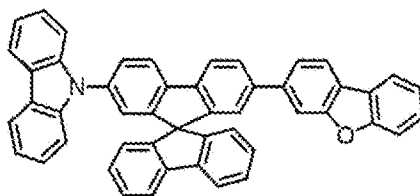
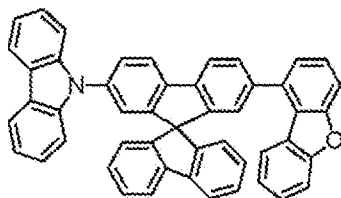
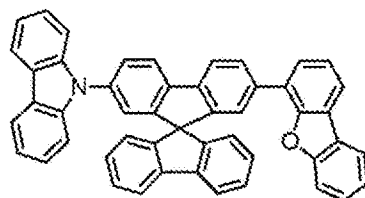
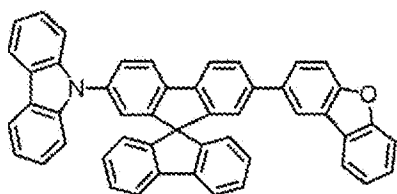
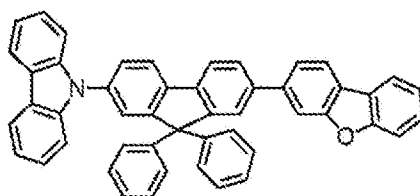
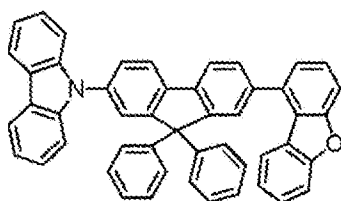
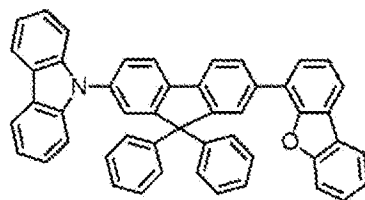
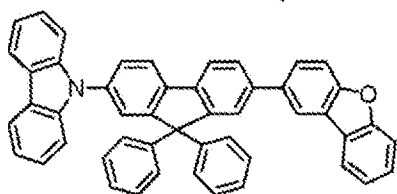
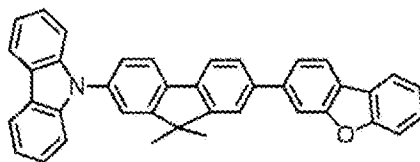
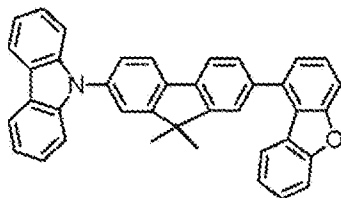
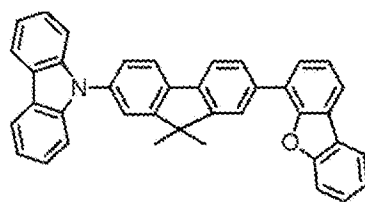
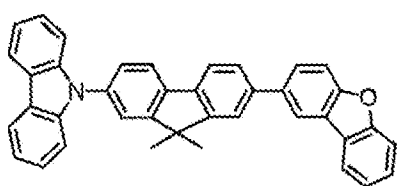
[化197]



[0504] [化198]

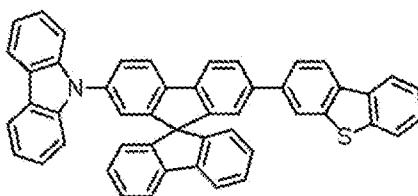
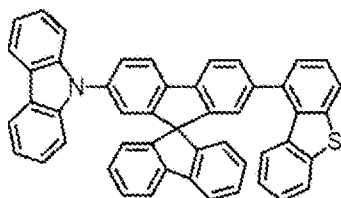
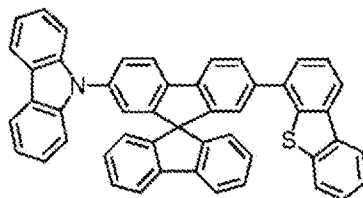
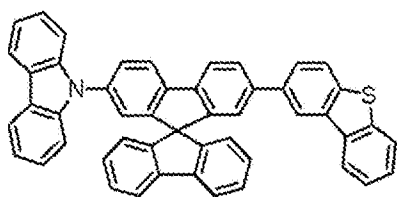
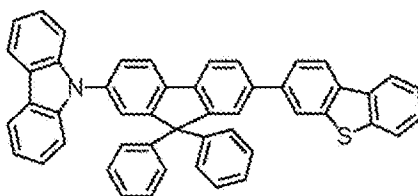
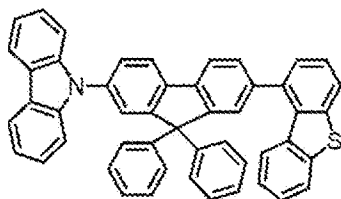
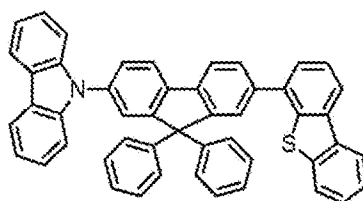
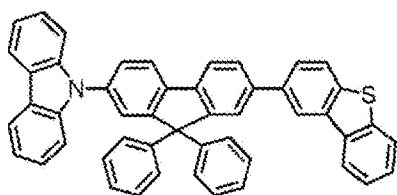
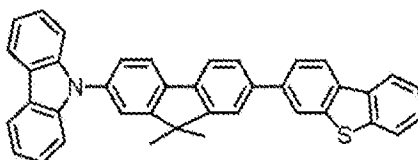
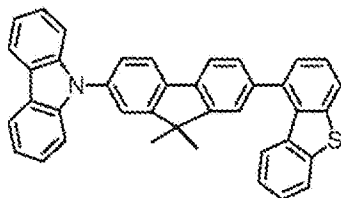
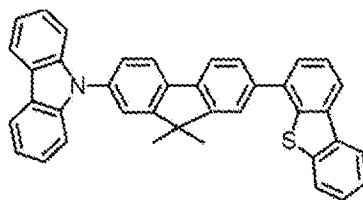
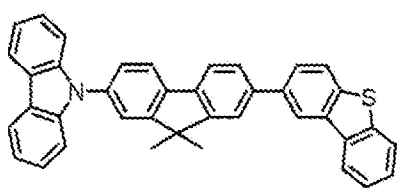


[0505] [化199]



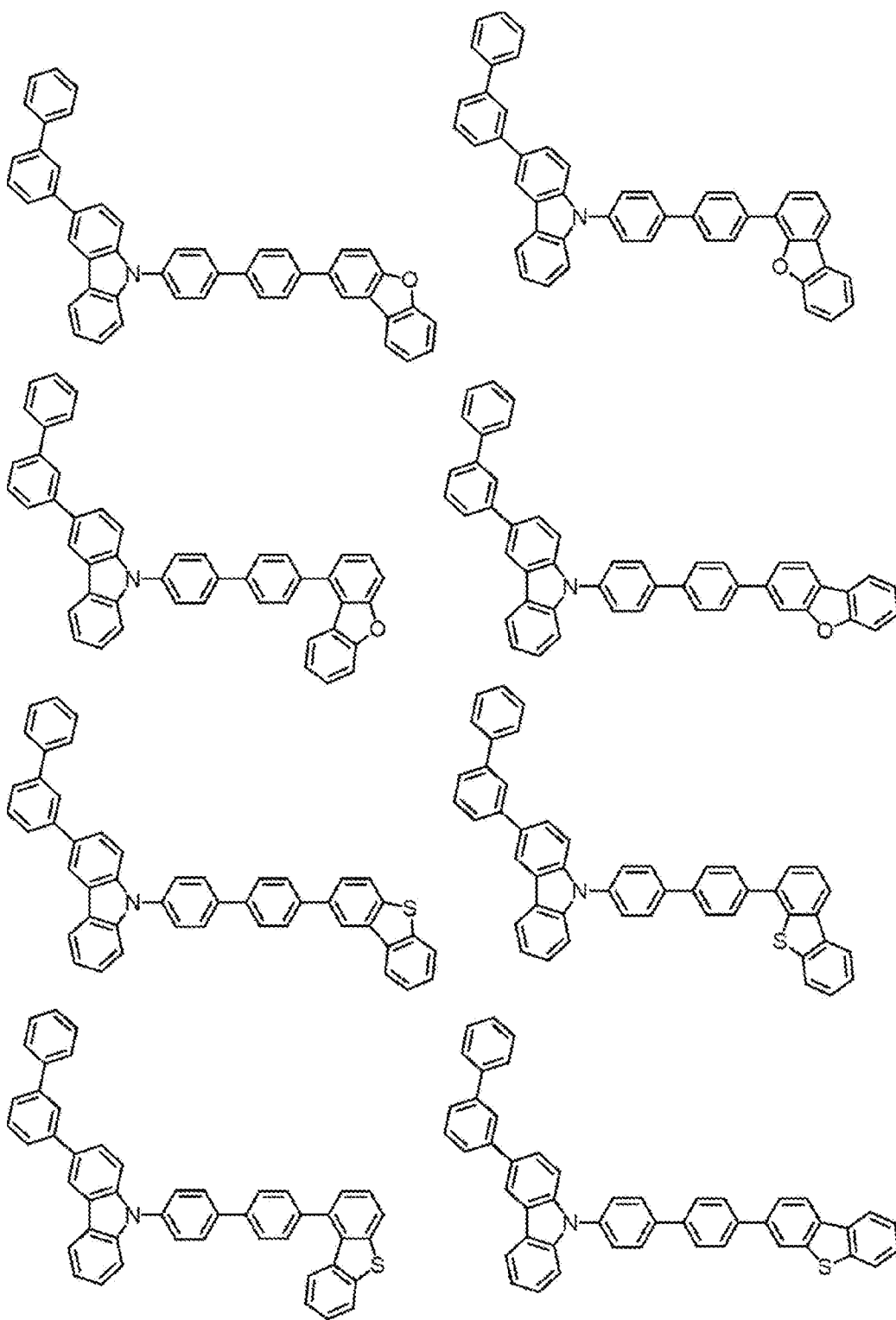
[0506]

[化200]



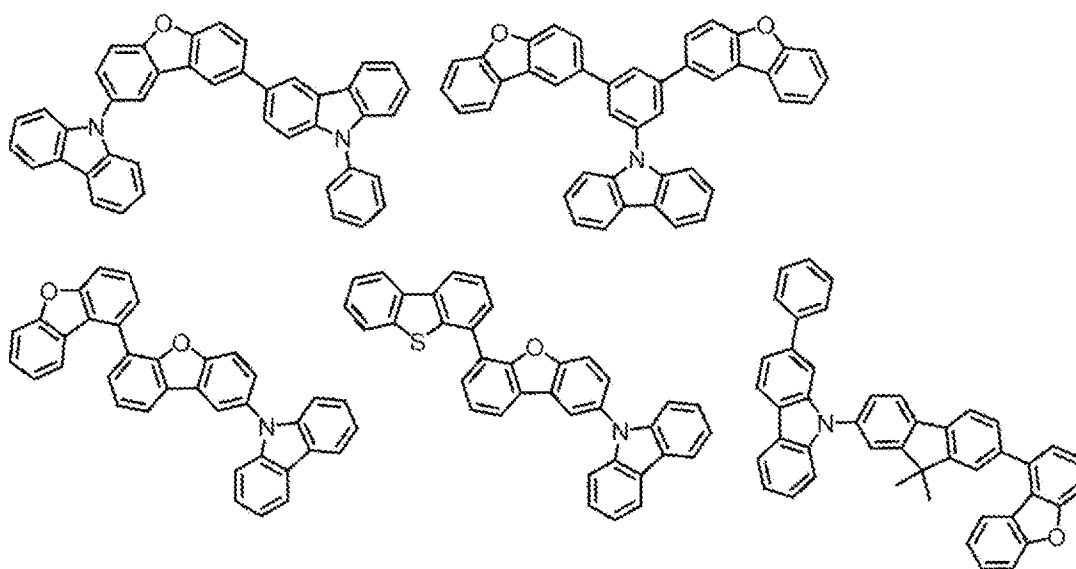
[0507]

[化201]

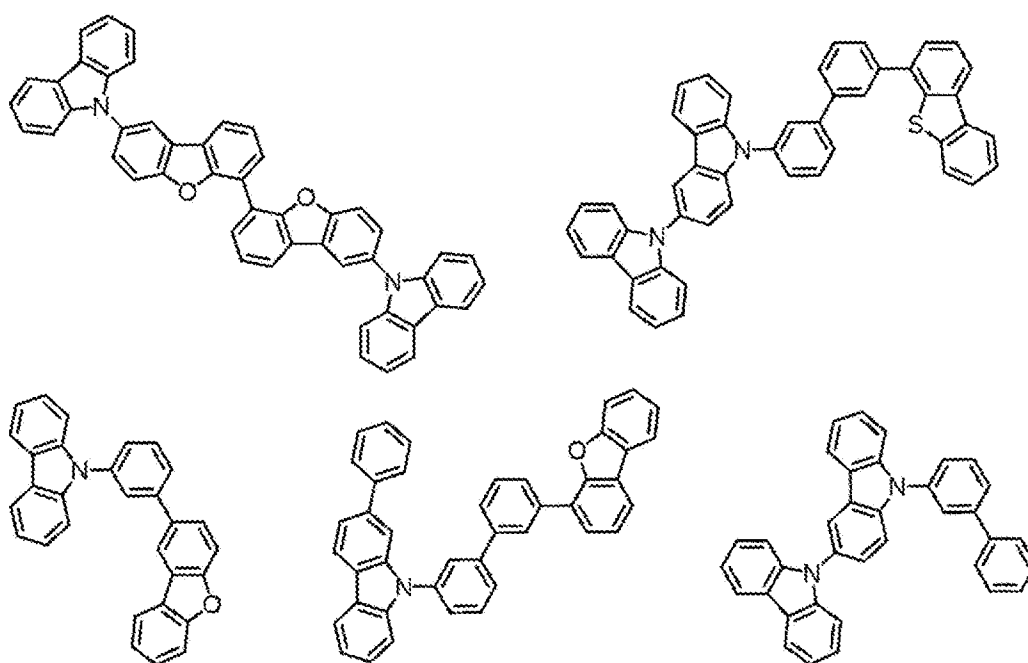


[0508]

[化202]

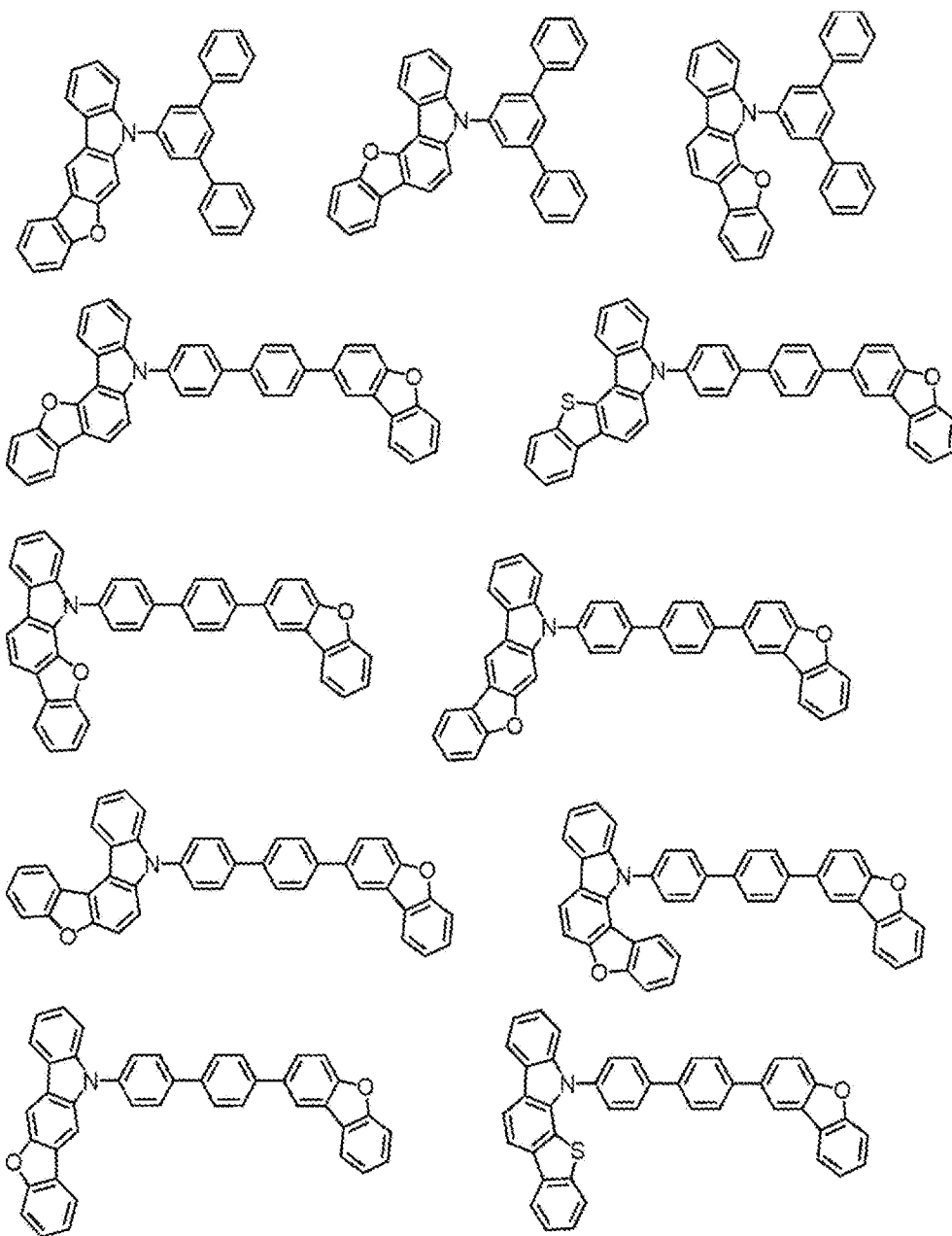


[0509] [化203]



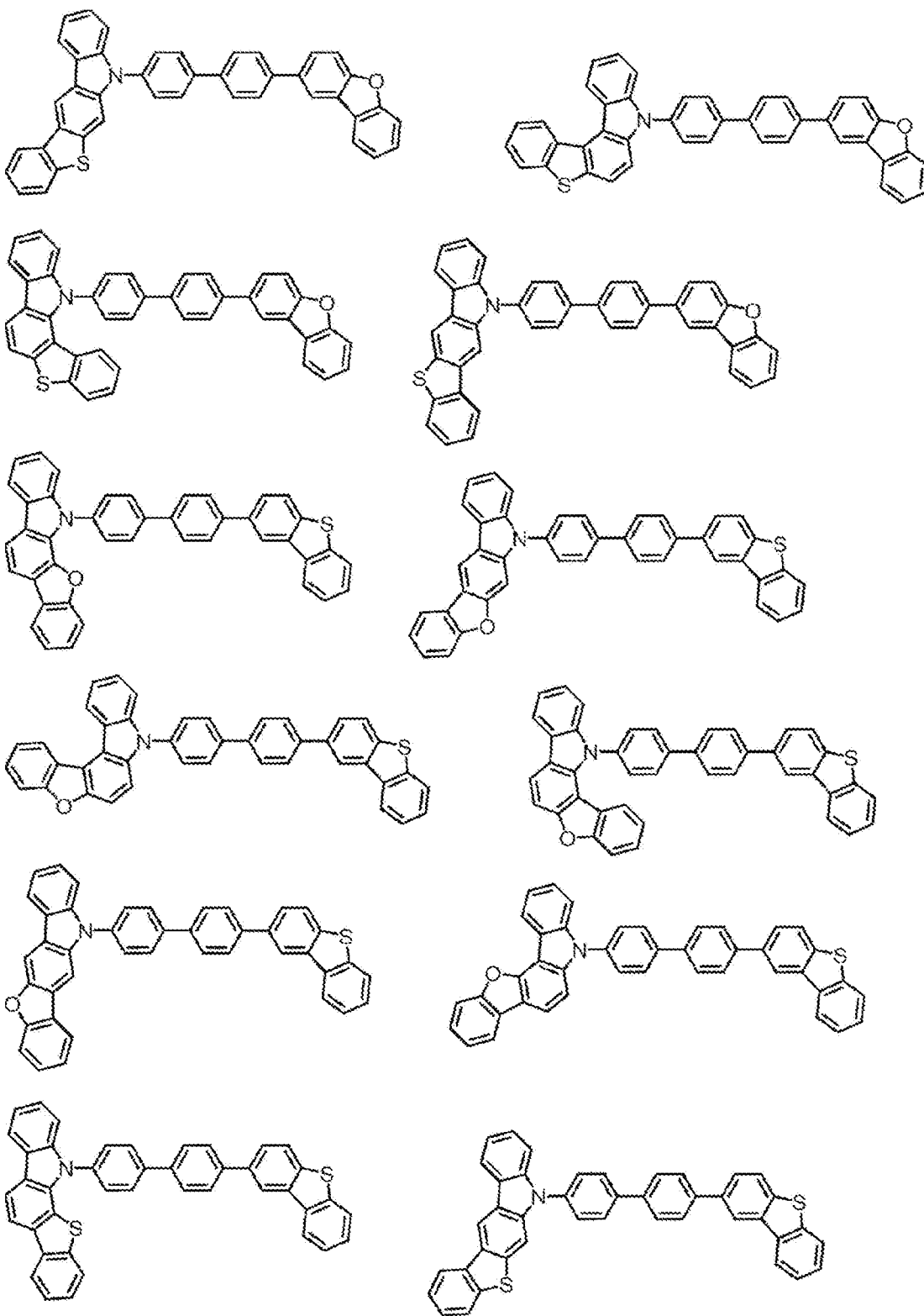
[0510]

[化204]



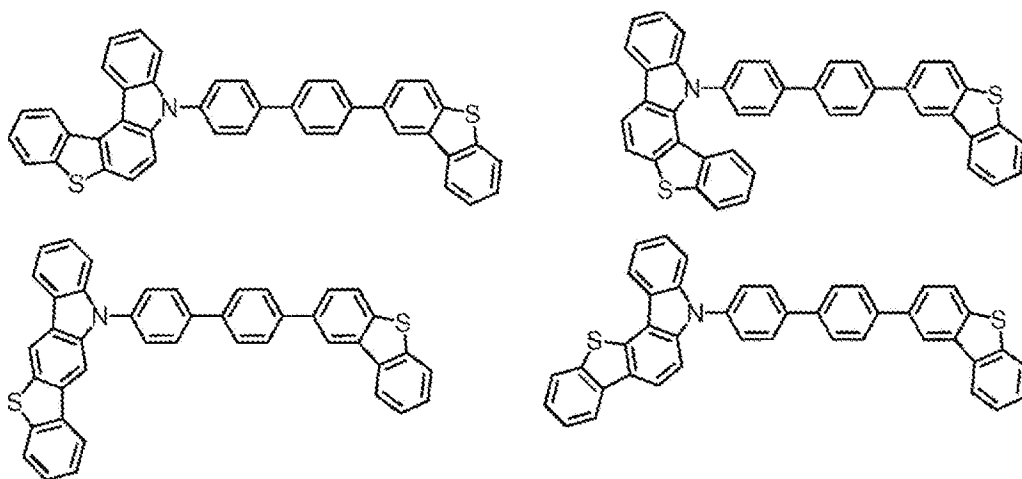
[0511]

[化205]

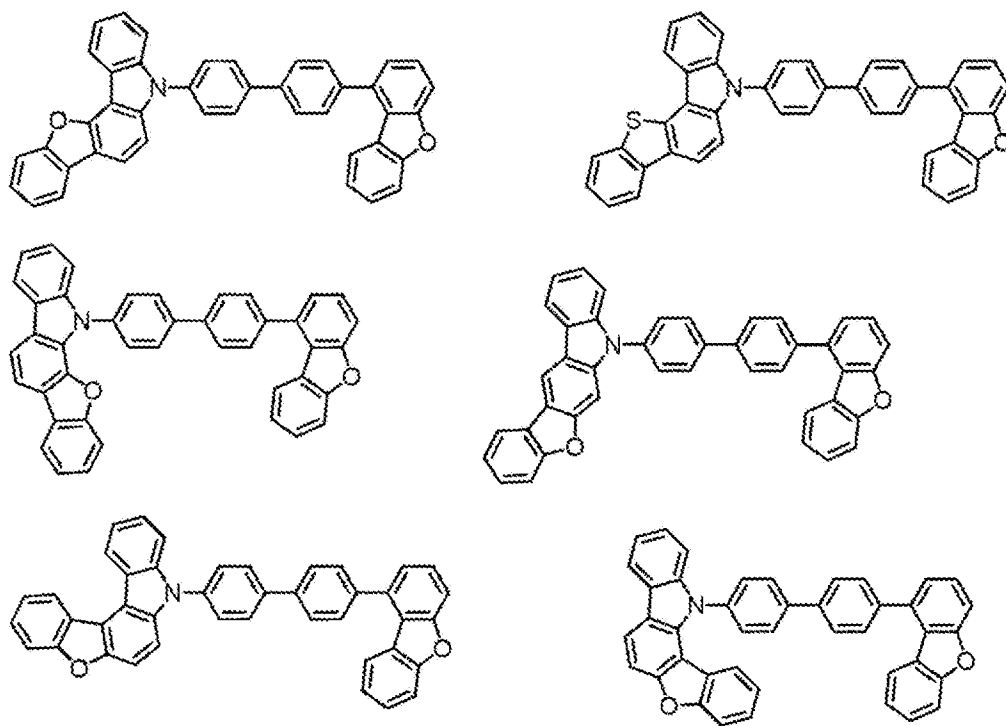


[0512]

[化206]

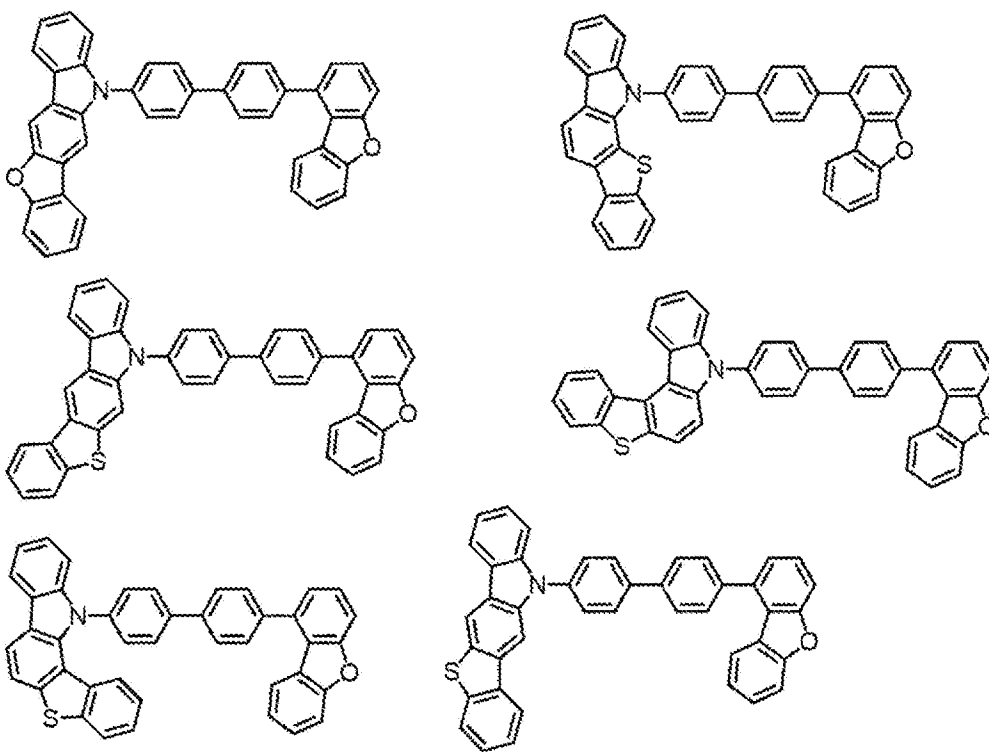


[0513] [化207]

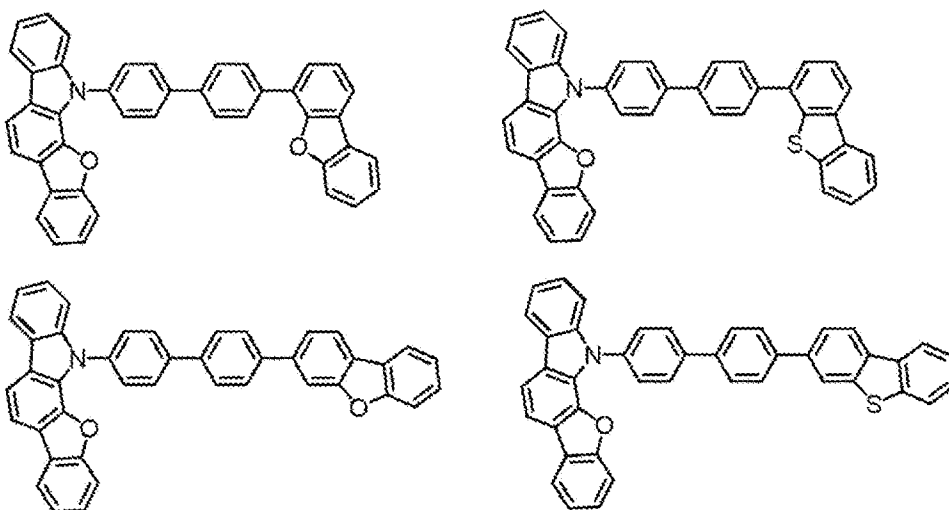


[0514]

[化208]

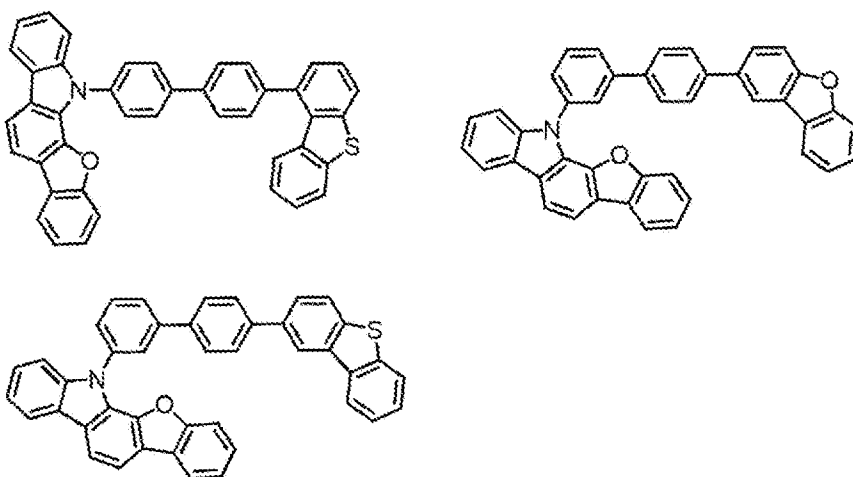


[0515] [化209]

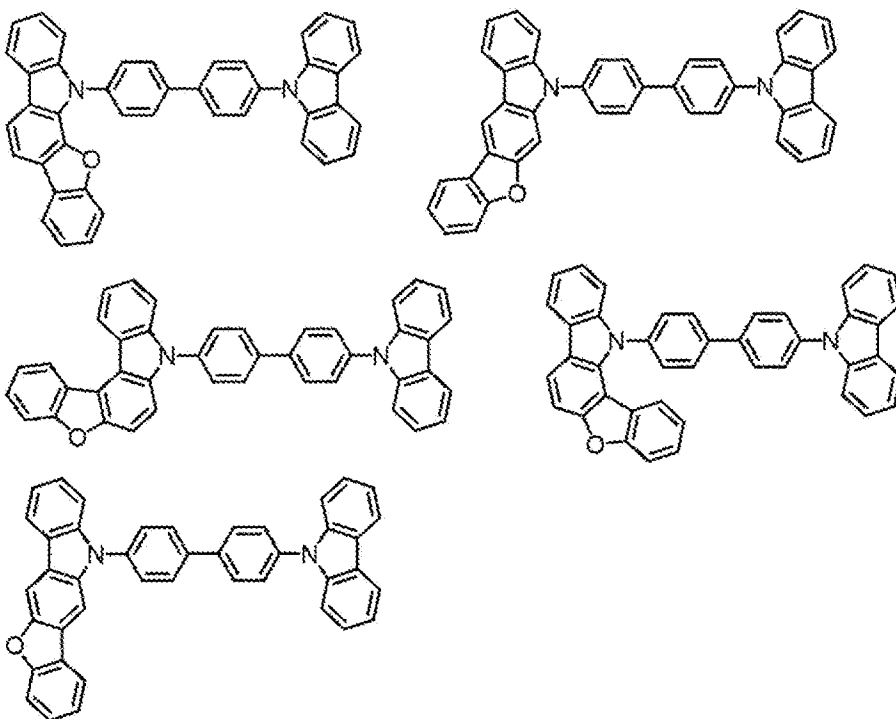


[0516]

[化210]

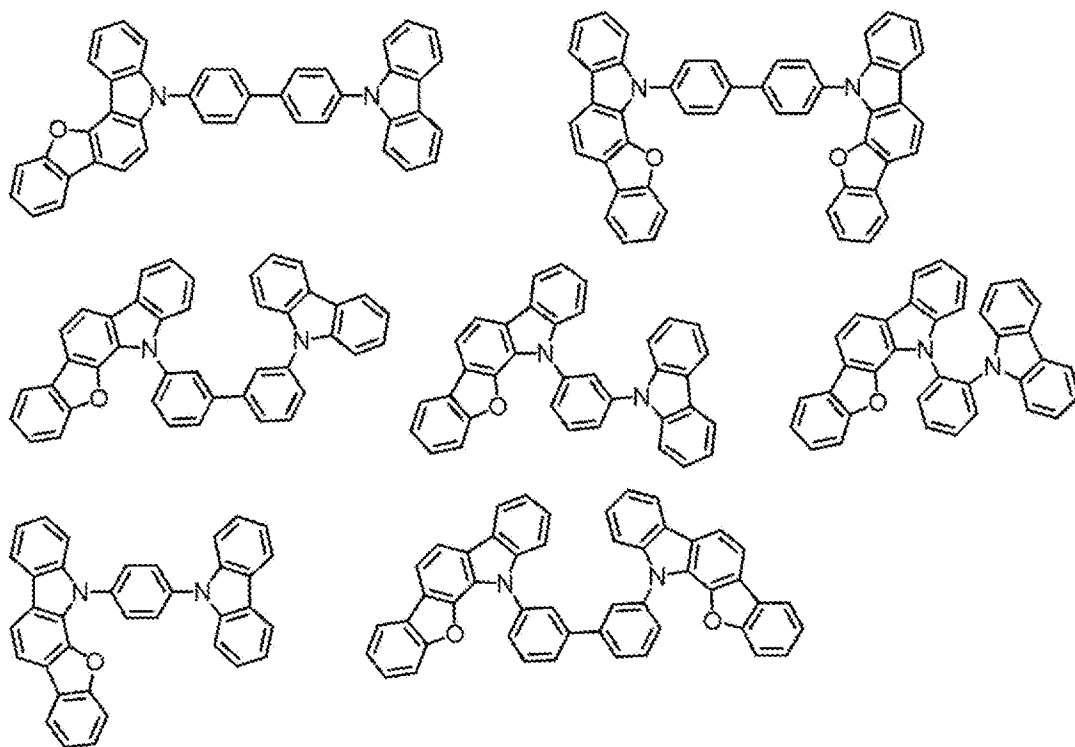


[0517] [化211]

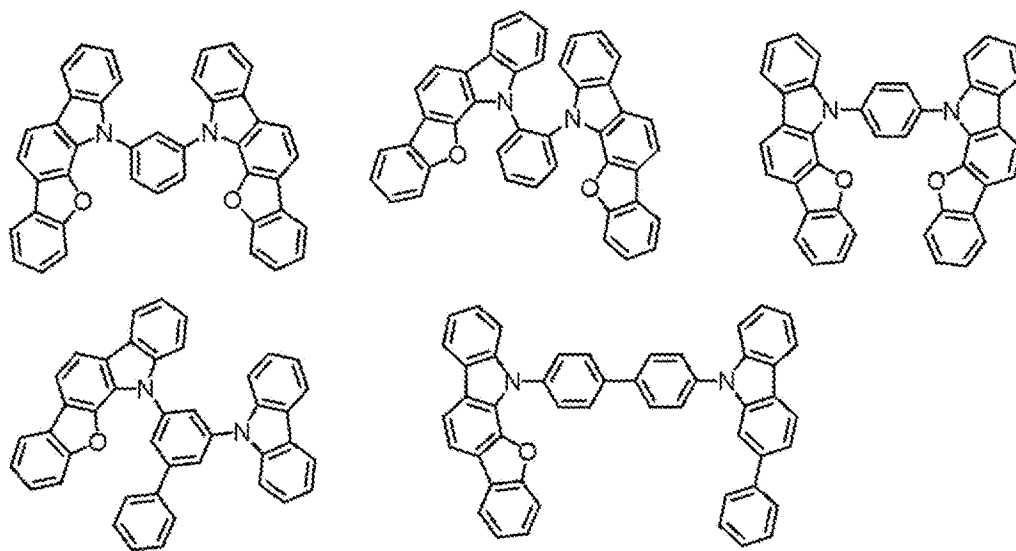


[0518]

[化212]

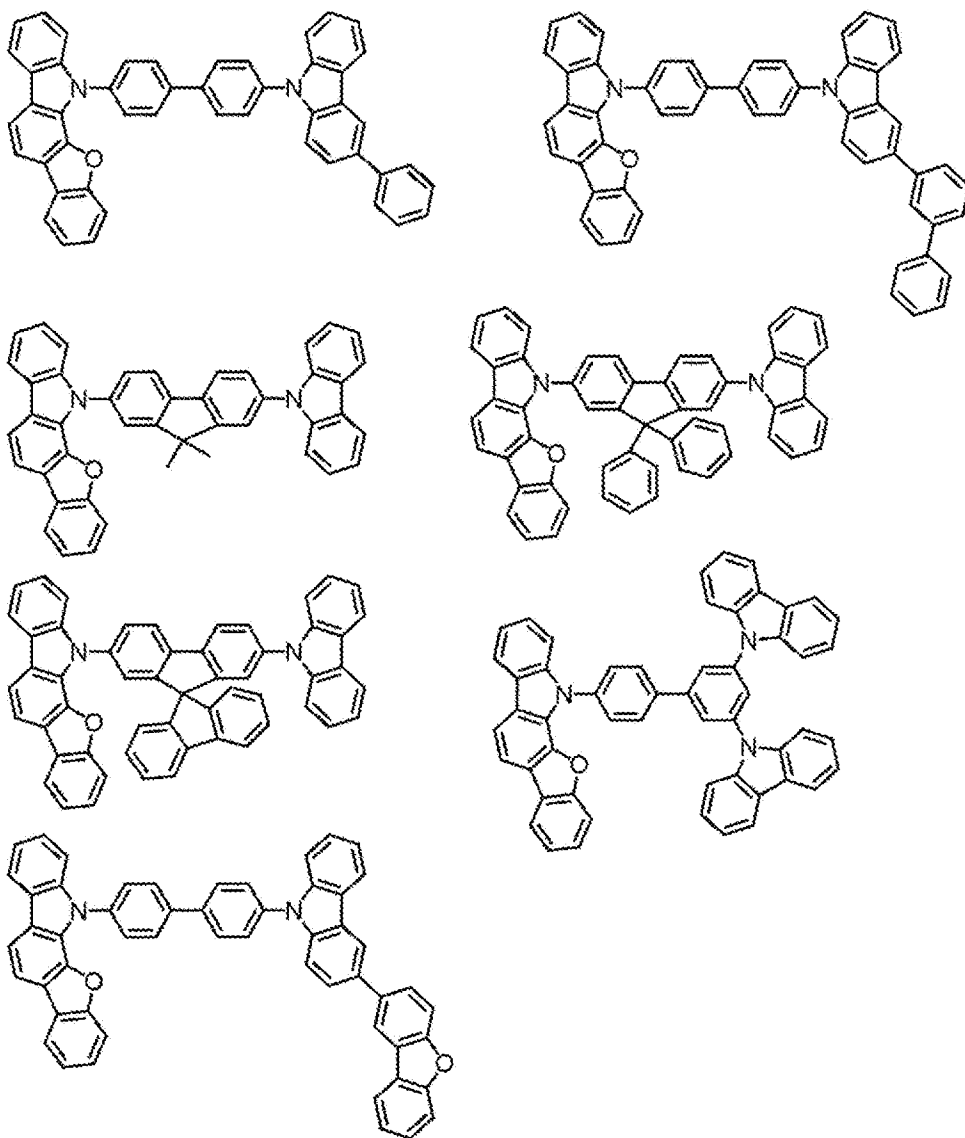


[0519] [化213]



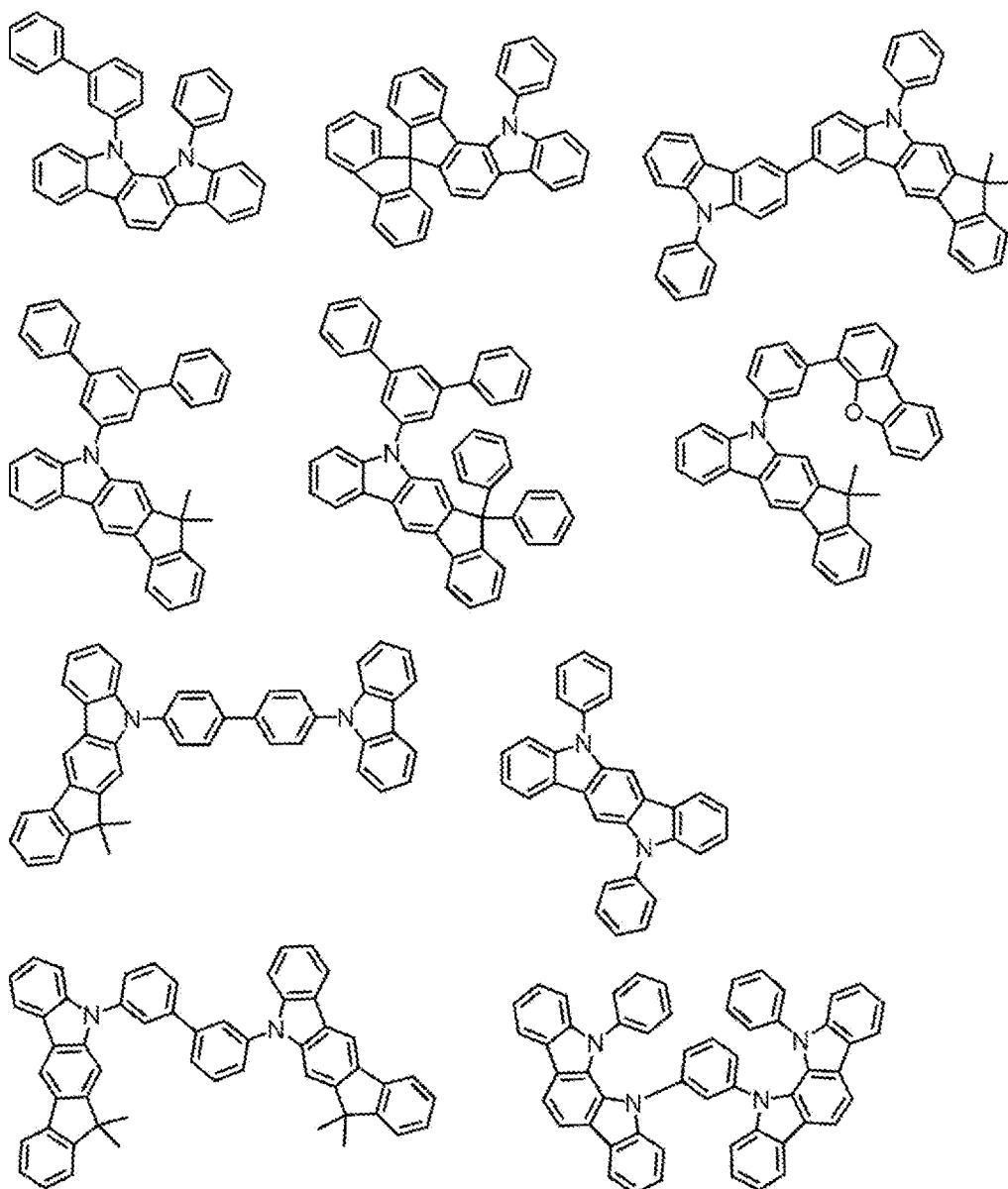
[0520]

[化214]



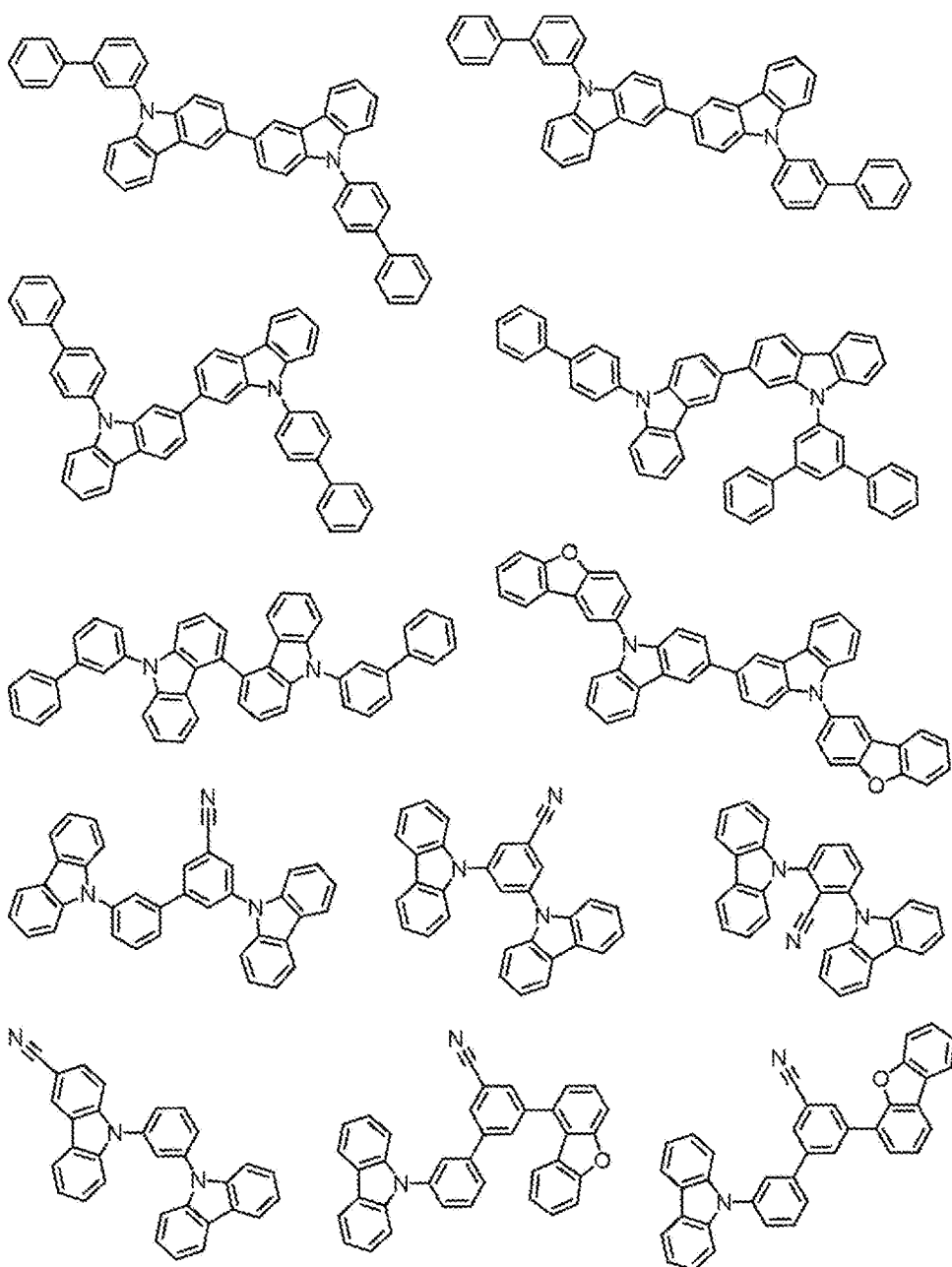
[0521]

[化215]

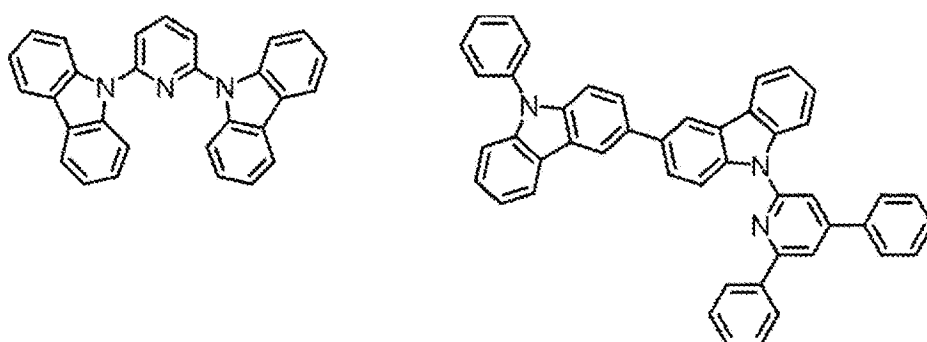


[0522]

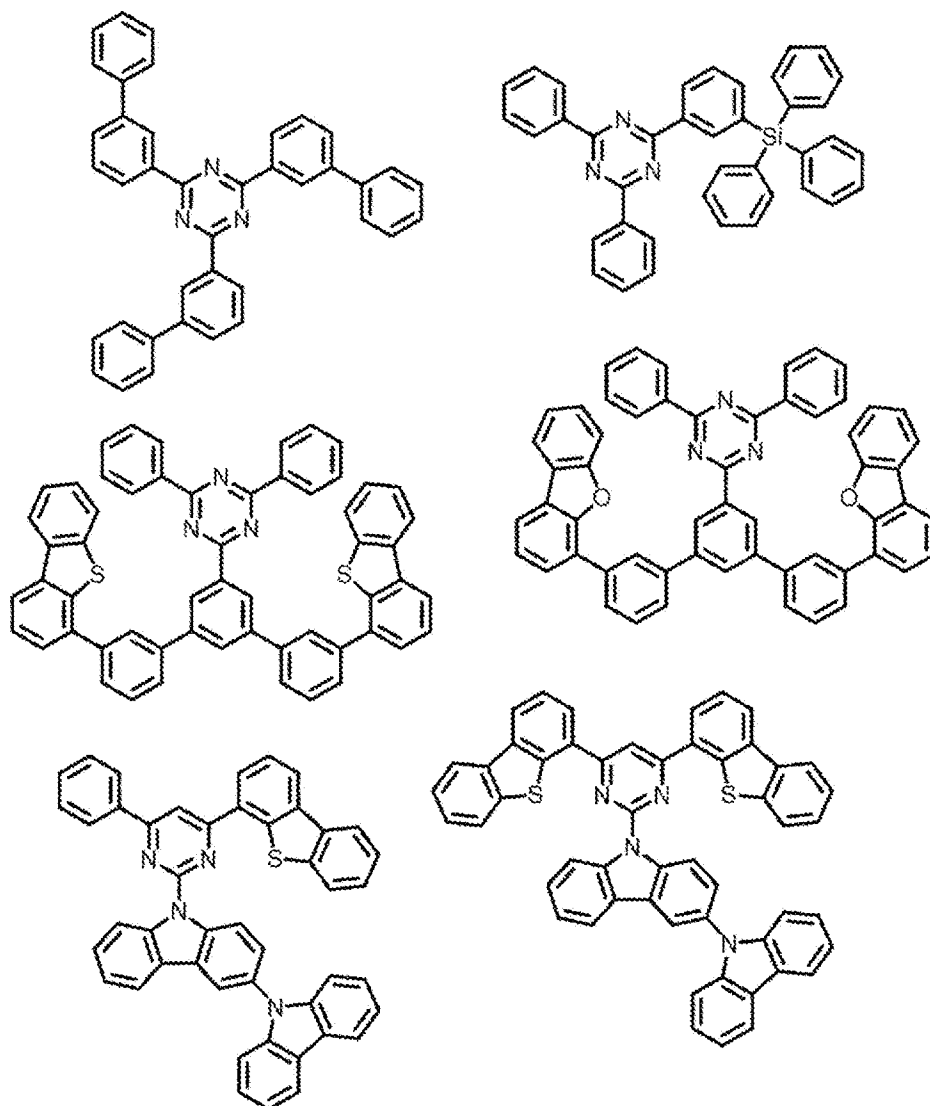
[化216]



[0523] [化217]

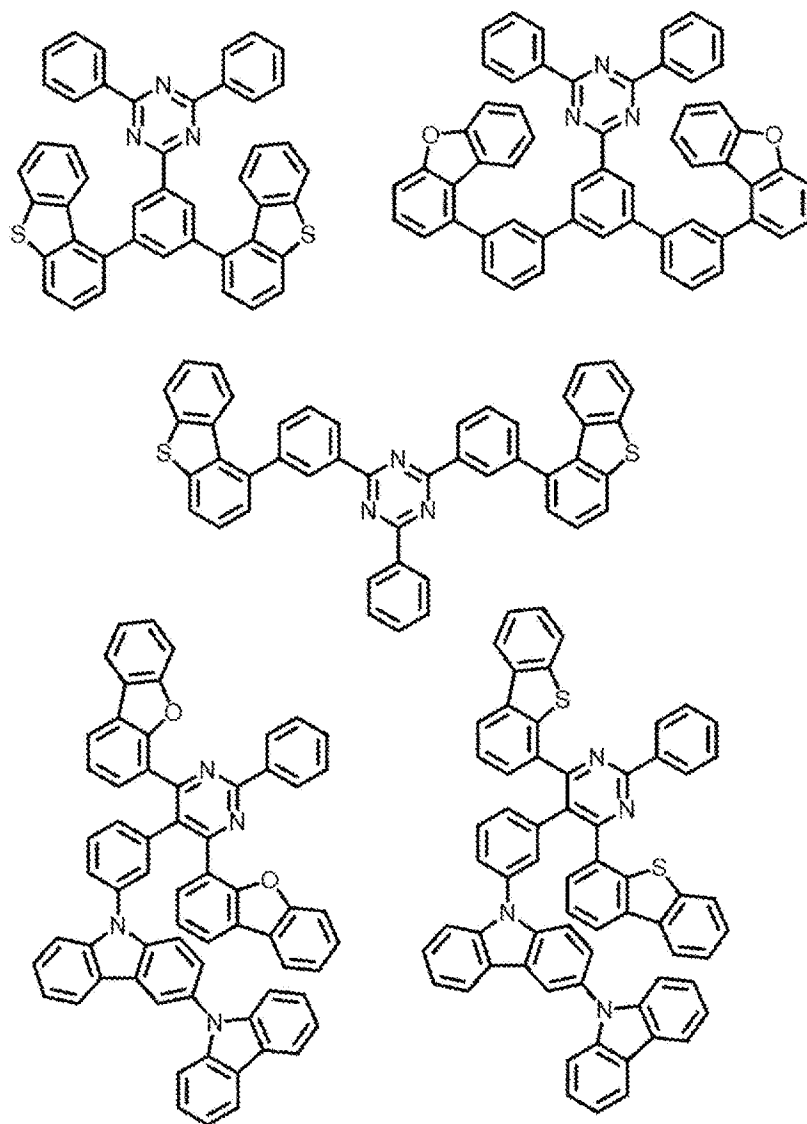


[0524] [化218]



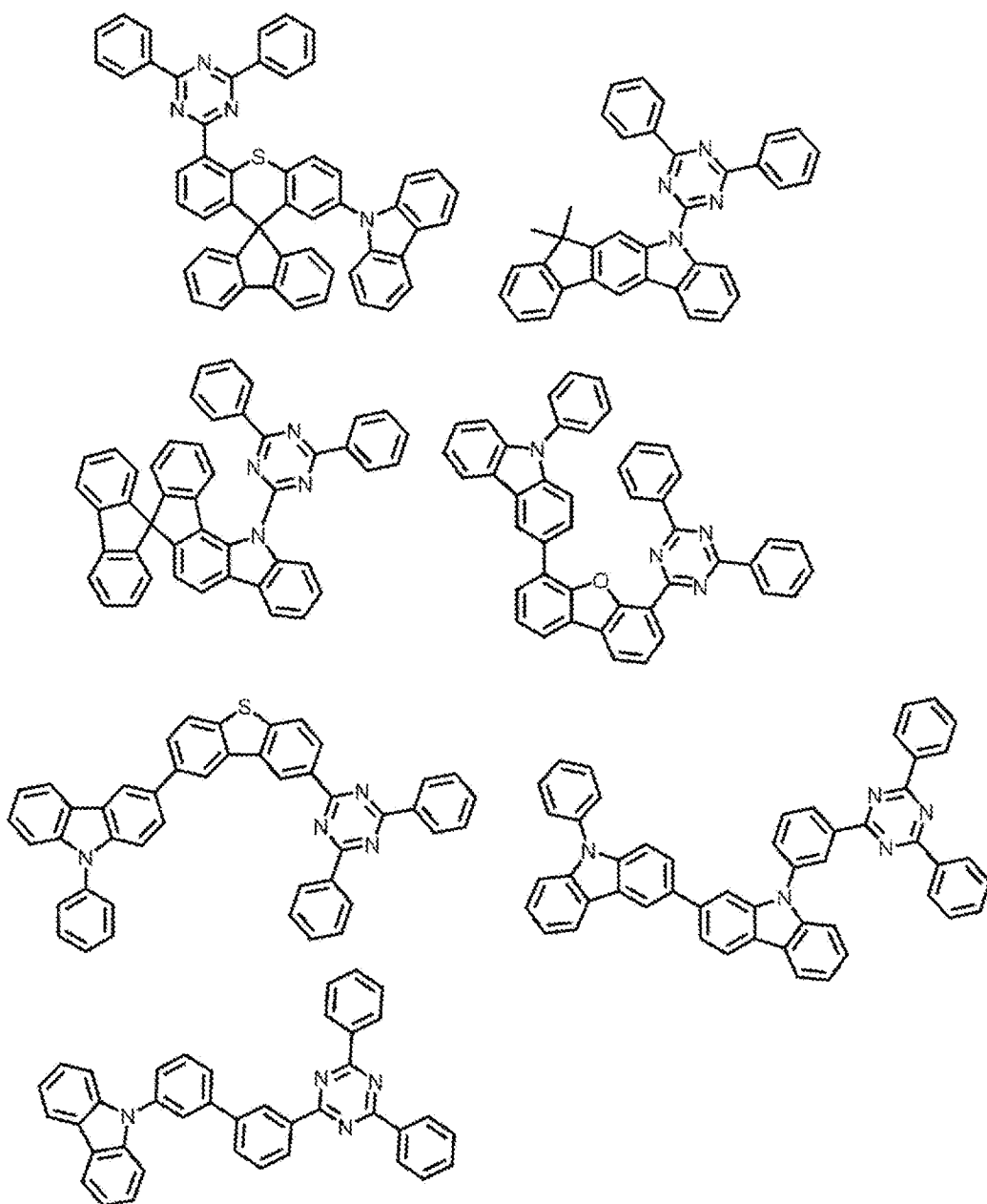
[0525]

[化219]



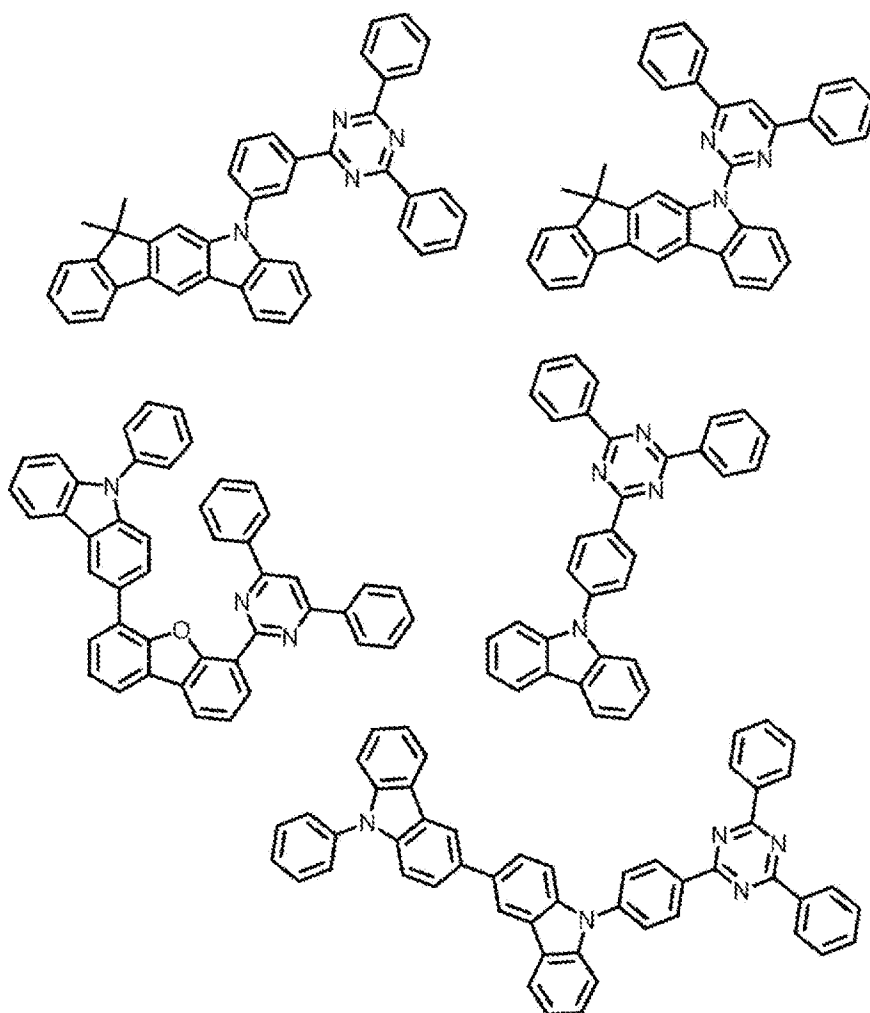
[0526]

[化220]



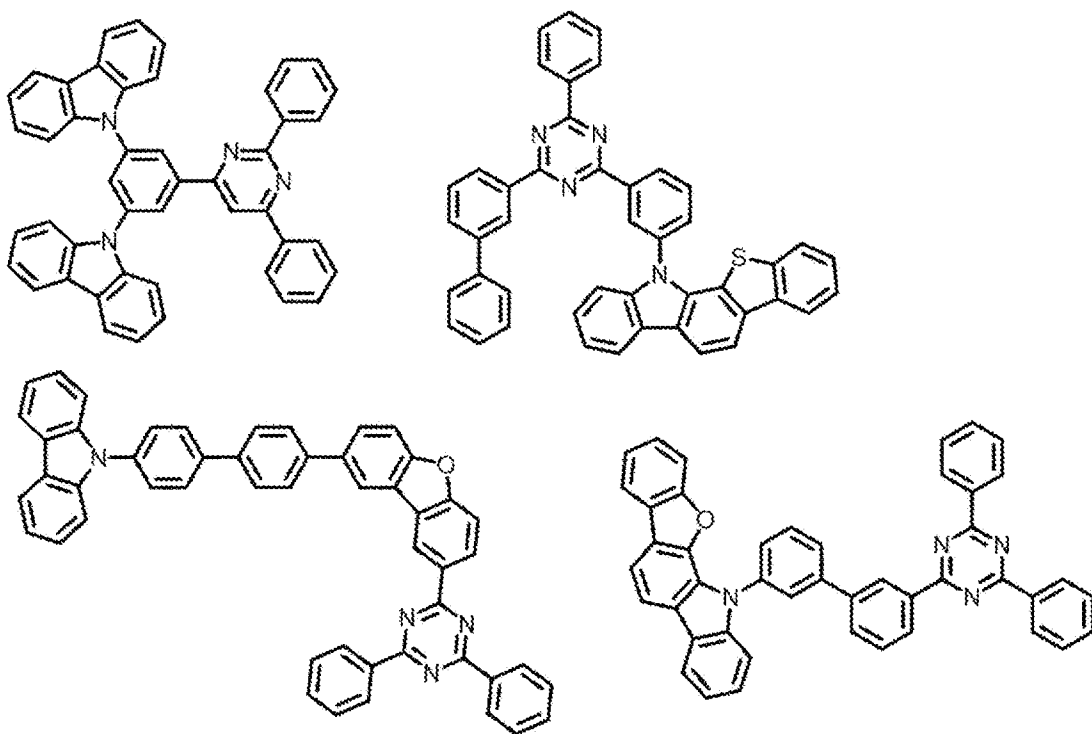
[0527]

[化221]

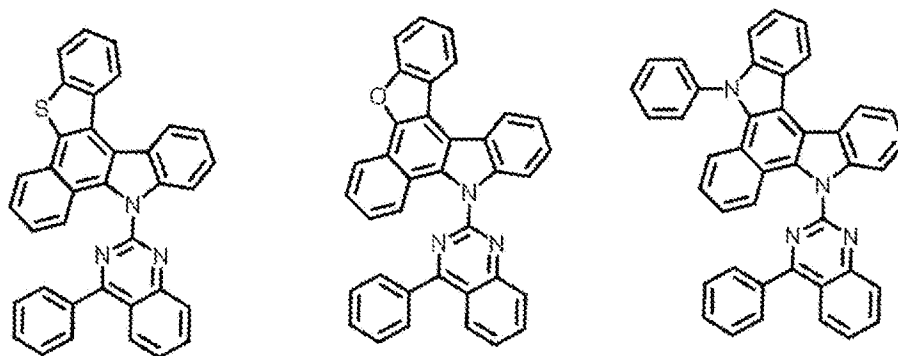


[0528]

[化222]

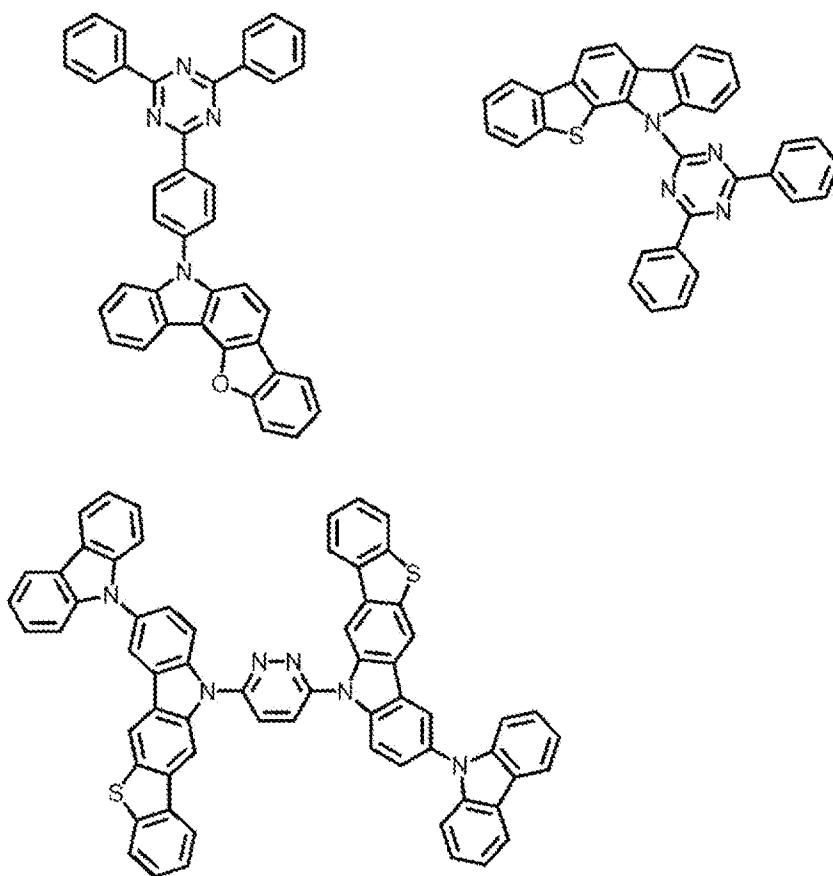


[0529] [化223]



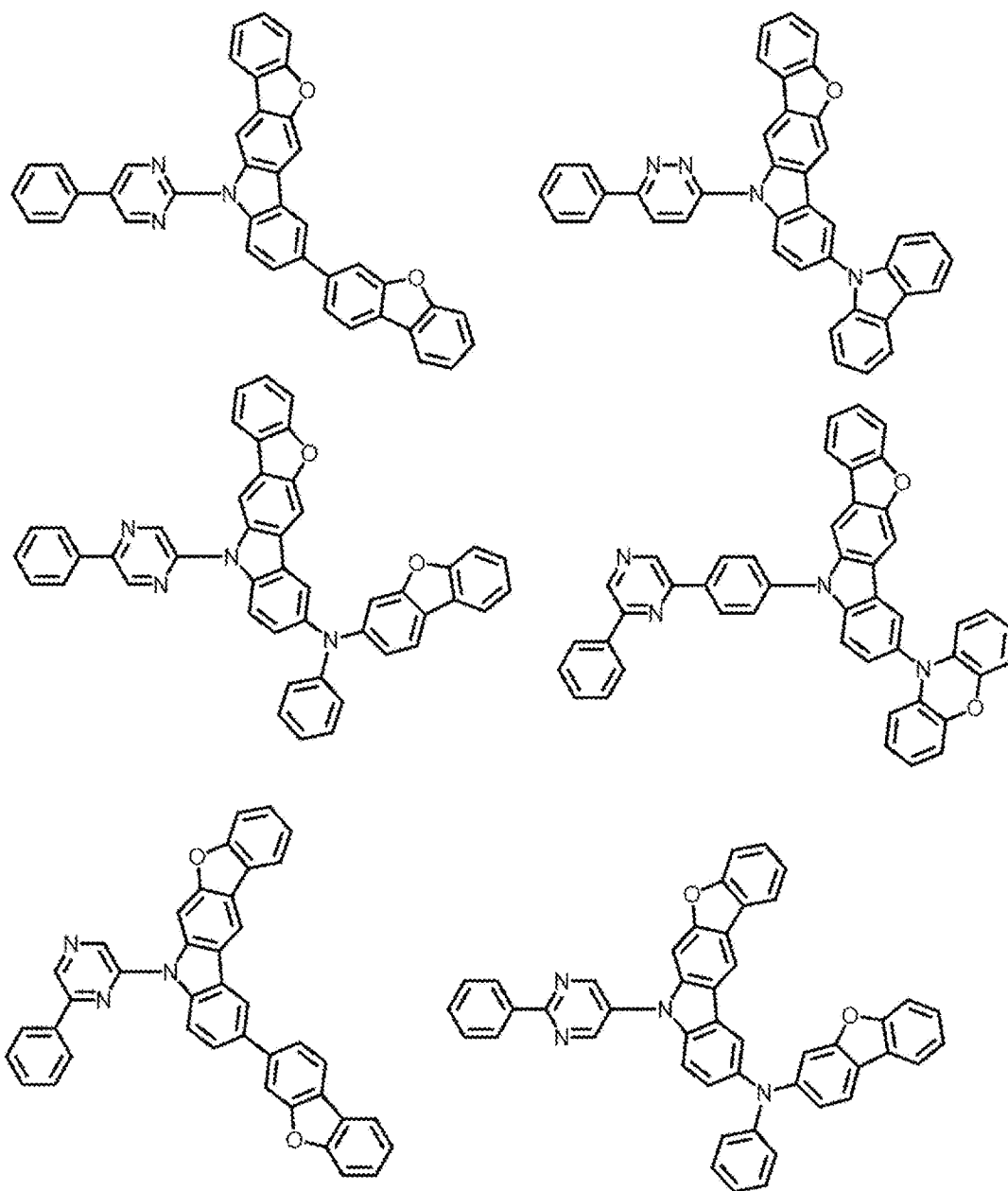
[0530]

[化224]



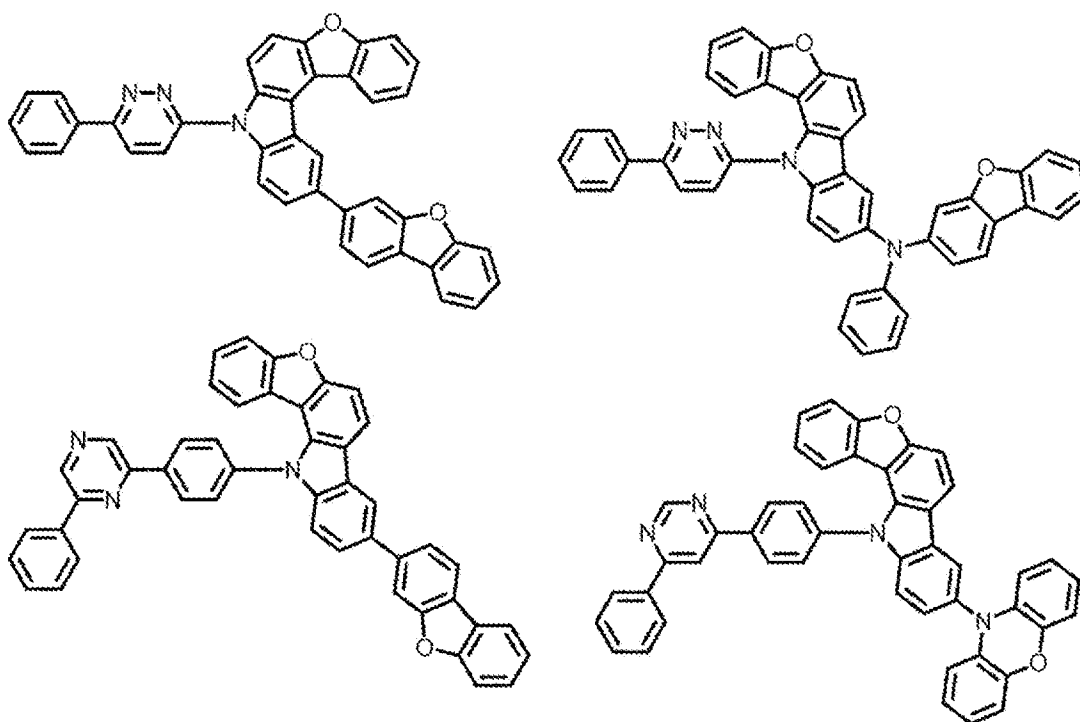
[0531]

[化225]

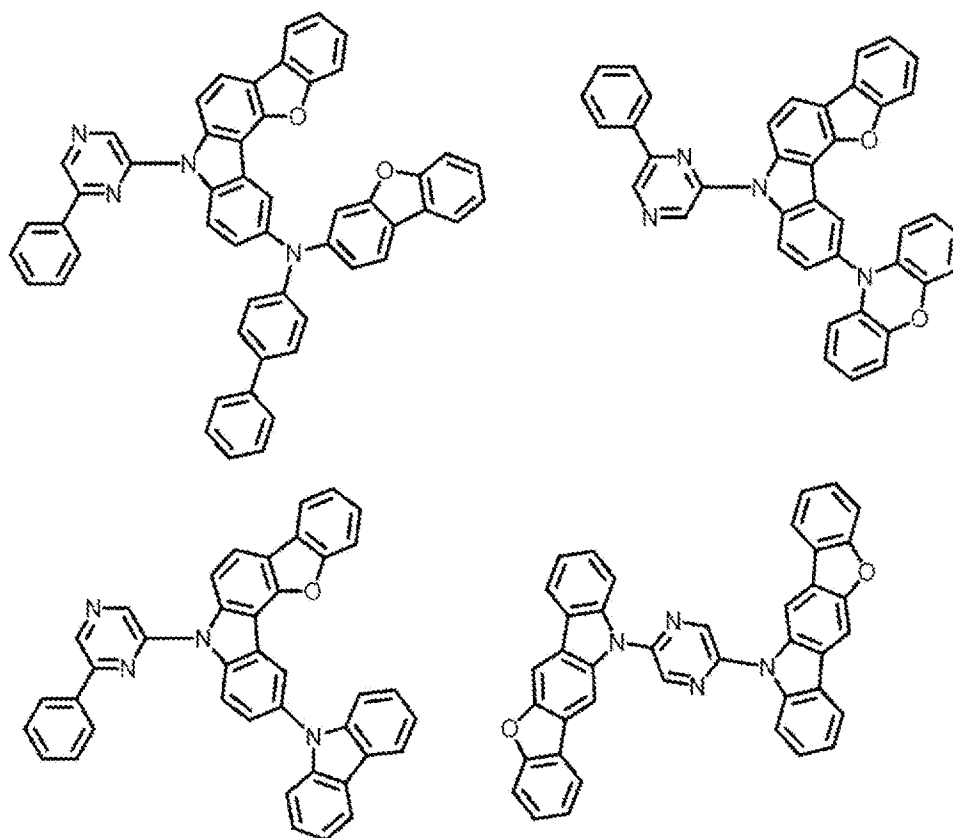


[0532]

[化226]

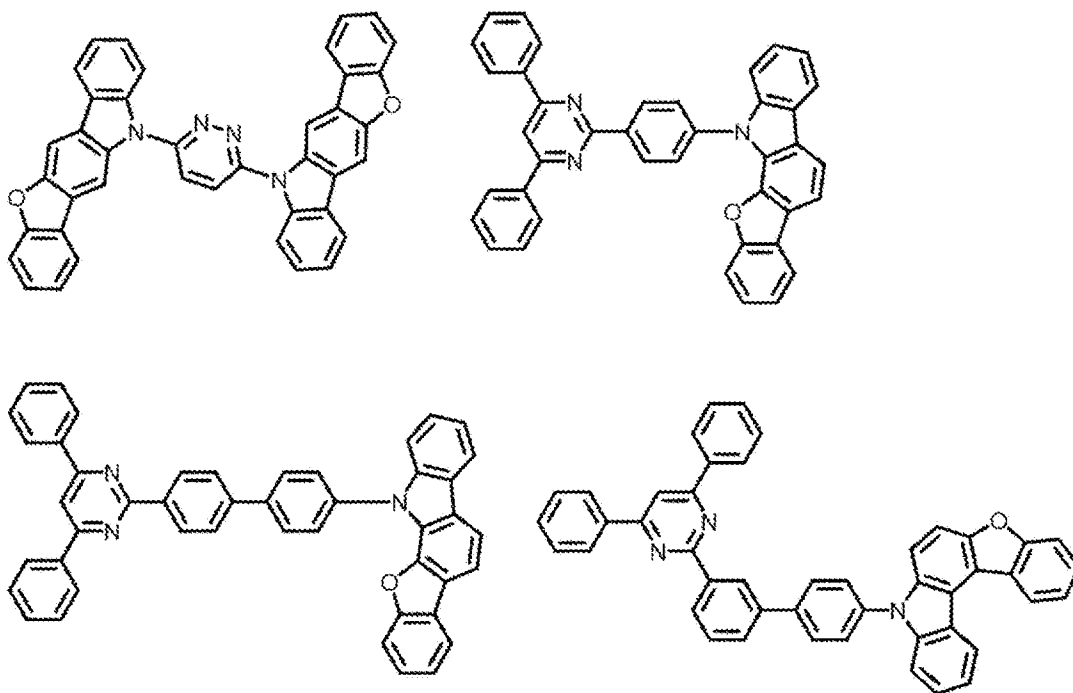


[0533] [化227]

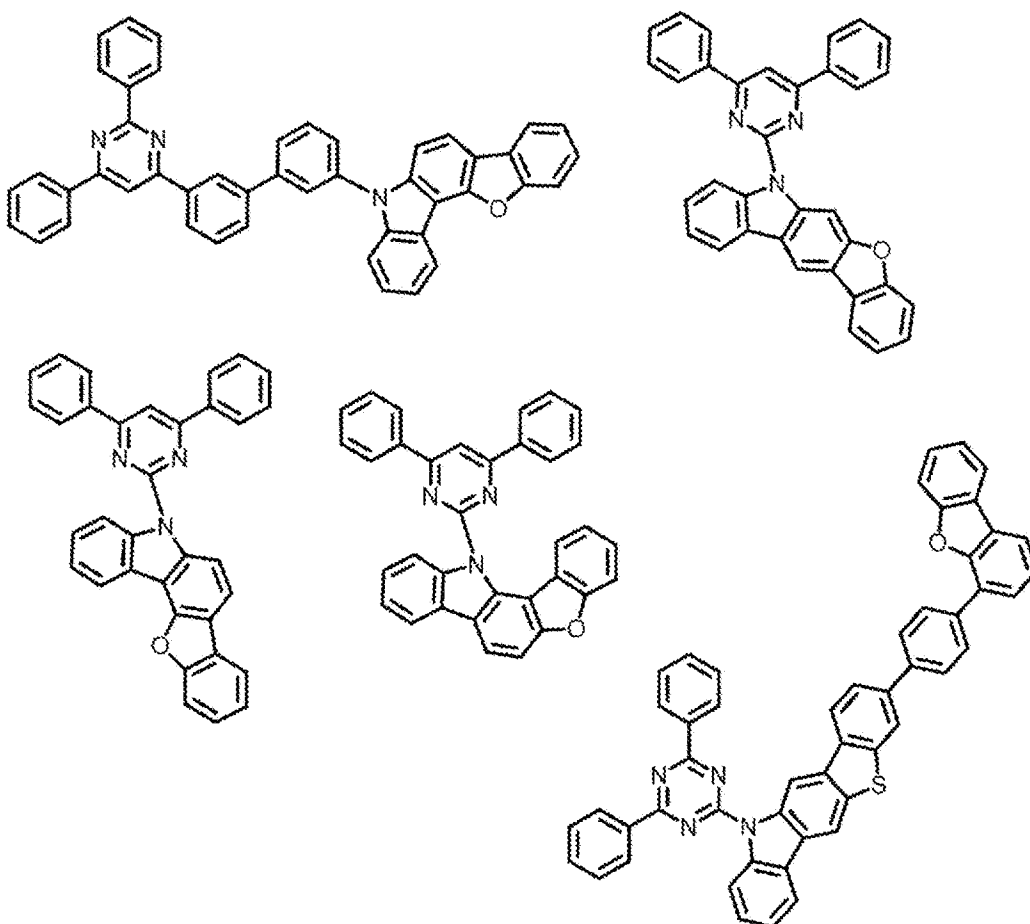


[0534]

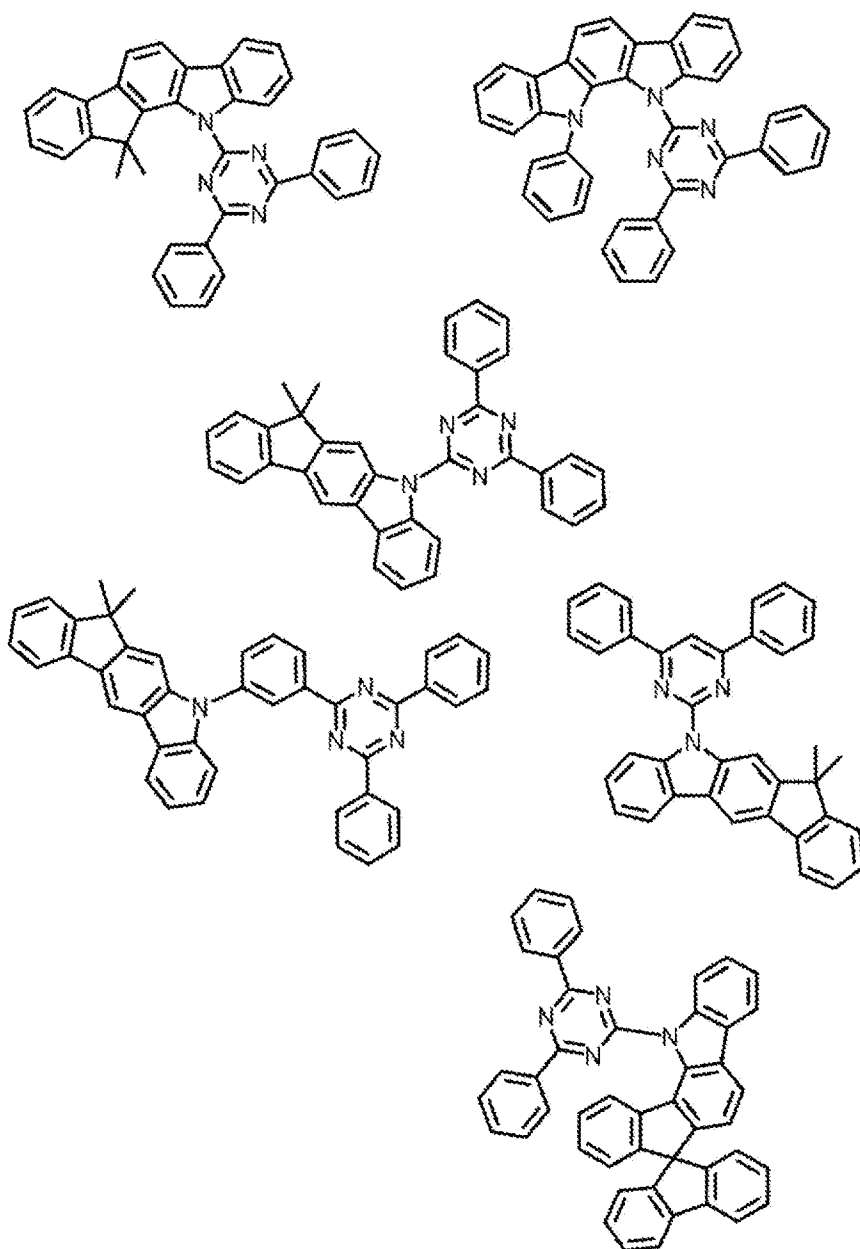
[化228]



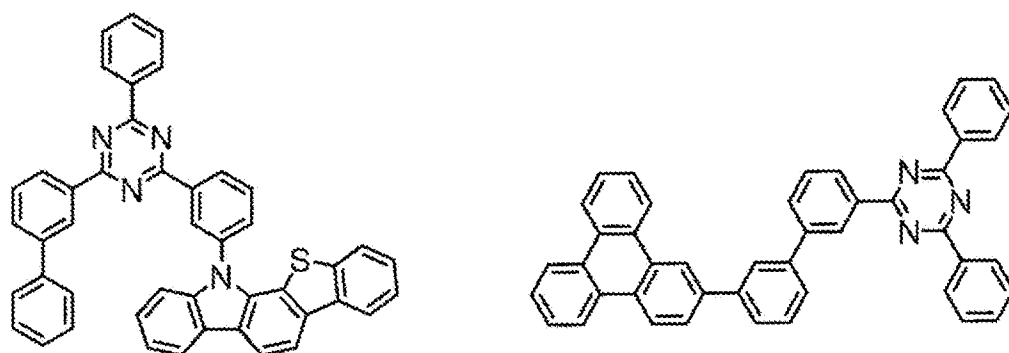
[0535] [化229]



[0536] [化230]



[0537] [化231]



[0538] <発光層における化合物M3、化合物M2、及び化合物M1の関係>

本実施形態の有機EL素子において、化合物M2の最低励起一重項エネルギー $S_1(M2)$ と、化合物M1の最低励起一重項エネルギー $S_1(M1)$ とが、下記数式(数1)の関係を満たすことが好ましい。

$$S_1(M2) > S_1(M1) \quad \cdots (\text{数1})$$

[0539] 本実施形態の有機EL素子において、化合物M2の最低励起一重項エネルギー $S_1(M2)$ と、化合物M3の最低励起一重項エネルギー $S_1(M3)$ とは、下記数式(数2)の関係を満たすことが好ましい。

$$S_1(M3) > S_1(M2) \quad \cdots (\text{数2})$$

[0540] また、化合物M3の最低励起一重項エネルギー $S_1(M3)$ は、化合物M1の最低励起一重項エネルギー $S_1(M1)$ よりも大きいことが好ましい。

$$S_1(M3) > S_1(M1) \quad \cdots (\text{数2A})$$

[0541] 化合物M3の最低励起一重項エネルギー $S_1(M3)$ と、化合物M2の最低励起一重項エネルギー $S_1(M2)$ と、化合物M1の最低励起一重項エネルギー $S_1(M1)$ とは、下記数式(数2B)の関係を満たすことが好ましい。

$$S_1(M3) > S_1(M2) > S_1(M1) \quad \cdots (\text{数2B})$$

[0542] 本実施形態の有機EL素子において、化合物M3の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M3)$ は、化合物M2の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M2)$ よりも大きいことが好ましい。

[0543] 本実施形態の有機EL素子において、化合物M2の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M2)$ は、化合物M1の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M1)$ よりも大きいことが好ましい。

[0544] 本実施形態の有機EL素子において、化合物M3、化合物M2及び化合物M1は、下記数式(数5A)の関係を満たすことが好ましい。

$$T_{77K}(M3) > T_{77K}(M2) > T_{77K}(M1) \quad \cdots (\text{数5A})$$

[0545] 本実施形態の有機EL素子を発光させたときに、発光層において、主に蛍光発光性の化合物M1が発光していることが好ましい。

本実施形態の有機EL素子は、赤色発光または緑色発光することが好まし

い。

[0546] ・発光層における化合物の含有率

発光層に含まれている化合物M3、化合物M2、及び化合物M1の含有率は、例えば、以下の範囲であることが好ましい。

化合物M3の含有率は、10質量%以上80質量%以下であることが好ましい。

化合物M2の含有率は、10質量%以上80質量%以下であることが好ましく、10質量%以上60質量%以下であることがより好ましく、20質量%以上60質量%以下であることがさらに好ましい。

化合物M1の含有率は、0.01質量%以上10質量%以下であることが好ましく、0.01質量%以上5質量%以下であることがより好ましく、0.01質量%以上1質量%以下であることがさらに好ましい。

発光層における化合物M3、化合物M2、及び化合物M1の合計含有率の上限は、100質量%である。なお、本実施形態は、発光層に、化合物M3、化合物M2、及び化合物M1以外の材料が含まれることを除外しない。

発光層は、化合物M3を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。発光層は、化合物M2を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。発光層は、化合物M1を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

[0547] 図5は、発光層における化合物M3、化合物M2、及び化合物M1のエネルギー準位の関係の一例を示す図である。図5において、S0は、基底状態を表す。S1(M1)は、化合物M1の最低励起一重項状態を表し、T1(M1)は、化合物M1の最低励起三重項状態を表す。S1(M2)は、化合物M2の最低励起一重項状態を表し、T1(M2)は、化合物M2の最低励起三重項状態を表す。S1(M3)は、化合物M3の最低励起一重項状態を表し、T1(M3)は、化合物M3の最低励起三重項状態を表す。図5中のS1(M2)からS1(M1)へ向かう破線の矢印は、化合物M2の最低励起一重項状態から化合物M1の最低励起一重項状態へのフェルスター型エネ

ルギー移動を表す。

図5に示すように、化合物M2として $\Delta ST(M2)$ の小さな化合物を用いると、最低励起三重項状態T1(M2)は、熱エネルギーにより、最低励起一重項状態S1(M2)に逆項間交差が可能である。そして、化合物M2の最低励起一重項状態S1(M2)から化合物M1へのフェルスター型エネルギー移動が生じ、最低励起一重項状態S1(M1)が生成する。この結果、化合物M1の最低励起一重項状態S1(M1)からの蛍光発光を観測することができる。このTADFメカニズムによる遅延蛍光を利用することによっても、理論的に内部量子効率を100%まで高めることができると考えられている。

[0548] 第四実施形態に係る有機EL素子は、発光層に、化合物M2としての第一実施形態の化合物と、化合物M2よりも小さな最低励起一重項エネルギーを有する化合物M1と、化合物M2よりも大きな最低励起一重項エネルギーを有する化合物M3と、を含有している。第四実施形態に係る有機EL素子は、PLQYの高い第一実施形態に係る化合物（化合物M2）を含むので、第四実施形態によれば、高効率化及び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる高性能な有機EL素子を提供できる。

[0549] [第五実施形態]

第五実施形態に係る有機EL素子の構成について説明する。第五実施形態の説明において第三実施形態又は第四実施形態と同一の構成要素は、同一符号や名称を付す等して説明を省略もしくは簡略化する。また、第五実施形態では、特に言及されない材料や化合物については、第三実施形態又は第四実施形態で説明した材料や化合物と同様の材料や化合物を用いることができる。

[0550] 第五実施形態に係る有機EL素子は、発光層が、化合物M2及び化合物M3を含み、化合物M1を含んでいない点で、第三実施形態又は第四実施形態に係る有機EL素子と異なる。その他の点については第三実施形態又は第四実施形態と同様である。

すなわち、第五実施形態において、発光層は、化合物M2と、化合物M3とを含む。

この態様の場合、化合物M3は、ホスト材料であることが好ましく、化合物M2は、ドーパント材料であることが好ましい。

本実施形態において、発光層が第一実施形態に係る化合物を含む場合、当該発光層は、燐光発光性の金属錯体を含まないことが好ましく、燐光発光性の金属錯体以外の金属錯体も含まないことが好ましい。

[0551] <化合物M2>

化合物M2は、第一実施形態に係る化合物である。

化合物M2は、遅延蛍光性の化合物であることが好ましい。

[0552] <化合物M3>

化合物M3は、第四実施形態において説明した化合物M3と同様である。

[0553] <発光層における化合物M2、及び化合物M3の関係>

本実施形態の有機EL素子において、化合物M2の最低励起一重項エネルギー $S_1(M2)$ と、化合物M3の最低励起一重項エネルギー $S_1(M3)$ とは、下記数式(数2)の関係を満たすことが好ましい。

$$S_1(M3) > S_1(M2) \quad \dots (数2)$$

[0554] 化合物M3の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M3)$ は、化合物M2の77[K]におけるエネルギーギャップ $T_{77K}(M2)$ よりも大きいことが好ましい。

[0555] 図6は、本発明の実施形態に係る発光の原理を説明するための図である。

図6において、 S_0 は、基底状態を表す。 $S_1(M2)$ は、化合物M2の最低励起一重項状態を表し、 $T_1(M2)$ は、化合物M2の最低励起三重項状態を表す。 $S_1(M3)$ は、化合物M3の最低励起一重項状態を表し、 $T_1(M3)$ は、化合物M3の最低励起三重項状態を表す。

図6に示すように、化合物M2として $\Delta ST(M2)$ の小さな化合物を用いると、化合物M2の最低励起三重項状態 $T_1(M2)$ は、熱エネルギーにより、最低励起一重項状態 $S_1(M2)$ に逆項間交差が可能である。

この化合物M2で生じる逆項間交差を利用することで、例えば、下記(i)又は下記(ii)に示すような発光を観測できる。

(i) 発光層が、化合物M2の最低励起一重項状態S1(M2)よりも小さい最低励起一重項状態S1の蛍光ドーパントを含まない場合は、化合物M2の最低励起一重項状態S1(M2)からの発光を観測することができる。

(ii) 発光層が、化合物M2の最低励起一重項状態S1(M2)よりも小さい最低励起一重項状態S1の蛍光ドーパント(第三実施形態又は第四実施形態では蛍光発光性の化合物M1)を含む場合は、蛍光ドーパントからの発光を観測できる。

なお、本実施形態の有機EL素子においては、前記(i)に示す発光を観測できる。前述の第三実施形態又は第四実施形態の有機EL素子においては、前記(ii)に示す発光を観測できる。

[0556] ・発光層における化合物の含有率

発光層に含まれている化合物M2及び化合物M3の含有率は、例えば、以下の範囲であることが好ましい。

化合物M2の含有率は、10質量%以上90質量%以下であることが好ましく、10質量%以上80質量%以下であることがより好ましく、10質量%以上60質量%以下であることがさらに好ましく、20質量%以上60質量%以下であることがさらに好ましい。

化合物M3の含有率は、10質量%以上90質量%以下であることが好ましい。

発光層における化合物M2及び化合物M3の合計含有率の上限は、100質量%である。

発光層は、化合物M2を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。発光層は、化合物M3を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

[0557] 第五実施形態に係る有機EL素子は、発光層に、化合物M2としての第一実施形態の化合物と、化合物M2よりも大きな最低励起一重項エネルギーを

有する化合物M3と、を含有している。第五実施形態に係る有機EL素子は、PLQYの高い第一実施形態に係る化合物（化合物M2）を含むので、第五実施形態によれば、高効率化及び長寿命化の少なくともいずれかを実現できる高性能な有機EL素子を提供できる。

[0558] 〔第六実施形態〕

〔電子機器〕

本実施形態に係る電子機器は、上述の実施形態のいずれかの有機EL素子を搭載している。電子機器としては、例えば、表示装置及び発光装置等が挙げられる。表示装置としては、例えば、表示部品（例えば、有機ELパネルモジュール等）、テレビ、携帯電話、タブレット、及びパーソナルコンピュータ等が挙げられる。発光装置としては、例えば、照明及び車両用灯具等が挙げられる。

[0559] 〔実施形態の変形〕

なお、本発明は、上述の実施形態に限定されず、本発明の目的を達成できる範囲での変更、改良等は、本発明に含まれる。

[0560] 例えば、発光層は、1層に限られず、複数の発光層が積層されていてもよい。有機EL素子が複数の発光層を有する場合、少なくとも1つの発光層が上記実施形態で説明した条件を満たしていればよい。例えば、その他の発光層が、蛍光発光型の発光層であっても、三重項励起状態から直接基底状態への電子遷移による発光を利用した燐光発光型の発光層であってもよい。

また、有機EL素子が複数の発光層を有する場合、これらの発光層が互いに隣接して設けられていてもよいし、中間層を介して複数の発光ユニットが積層された、いわゆるタンデム型の有機EL素子であってもよい。

[0561] また、例えば、発光層の陽極側、及び陰極側の少なくとも一方に障壁層を隣接させて設けてもよい。障壁層は、発光層に接して配置され、正孔、電子、及び励起子の少なくともいずれかを阻止することが好ましい。

例えば、発光層の陰極側で接して障壁層が配置された場合、当該障壁層は、電子を輸送し、かつ正孔が当該障壁層よりも陰極側の層（例えば、電子輸

送層)に到達することを阻止する。有機EL素子が、電子輸送層を含む場合は、発光層と電子輸送層との間に当該障壁層を含むことが好ましい。

また、発光層の陽極側で接して障壁層が配置された場合、当該障壁層は、正孔を輸送し、かつ電子が当該障壁層よりも陽極側の層(例えば、正孔輸送層)に到達することを阻止する。有機EL素子が、正孔輸送層を含む場合は、発光層と正孔輸送層との間に当該障壁層を含むことが好ましい。

また、励起エネルギーが発光層からその周辺層に漏れ出さないように、障壁層を発光層に隣接させて設けてもよい。発光層で生成した励起子が、当該障壁層よりも電極側の層(例えば、電子輸送層及び正孔輸送層等)に移動することを阻止する。

発光層と障壁層とは接合していることが好ましい。

[0562] その他、本発明の実施における具体的な構造、及び形状等は、本発明の目的を達成できる範囲で他の構造等としてもよい。

実施例

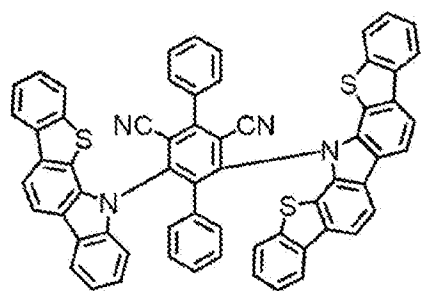
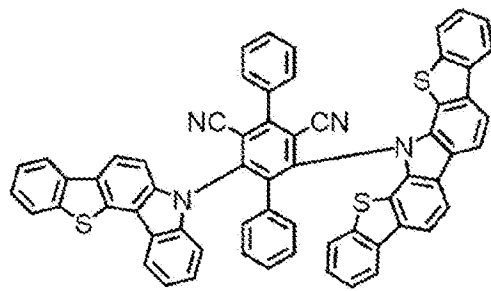
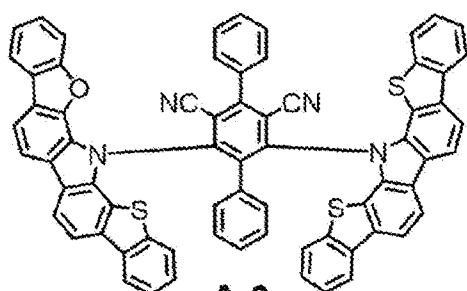
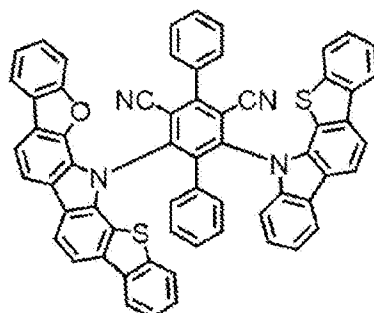
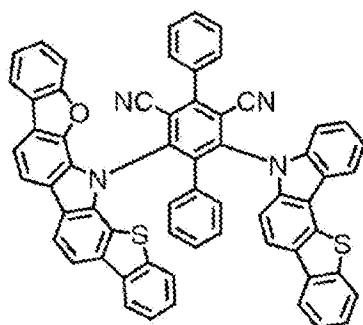
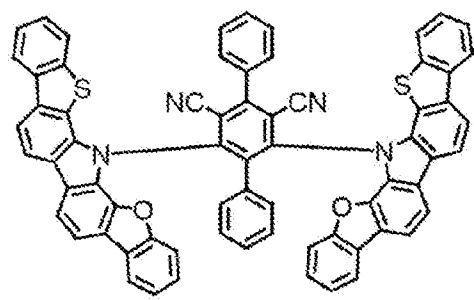
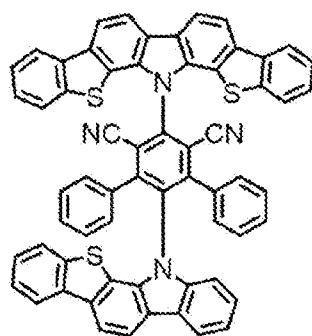
[0563] 以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。本発明はこれら実施例に何ら限定されない。

[0564] <化合物>

実施例1-1~1-5、実施例2-1~2-11、実施例3-1~3-24、並びに実施例4-1~4-25に係る有機EL素子の製造に用いた一般式(1)で表される化合物の構造を以下に示す。

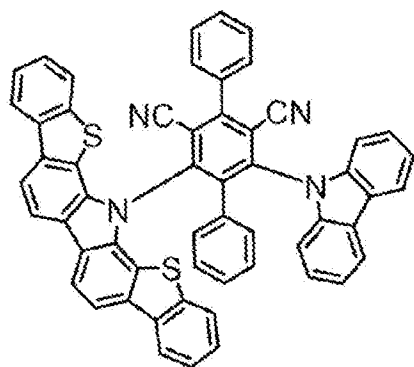
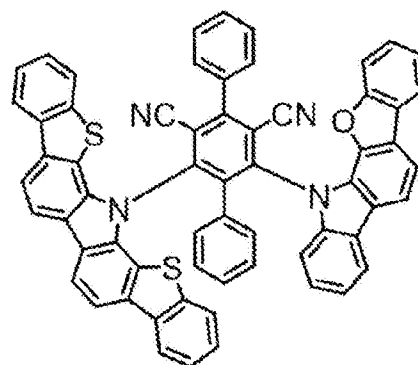
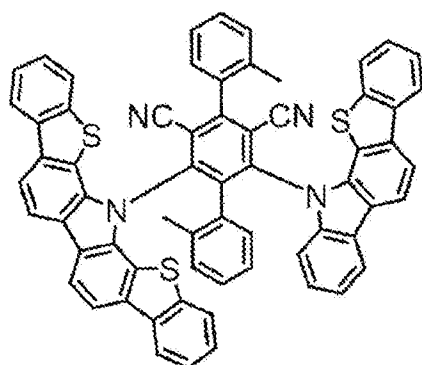
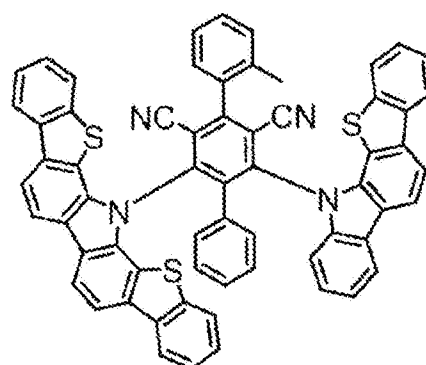
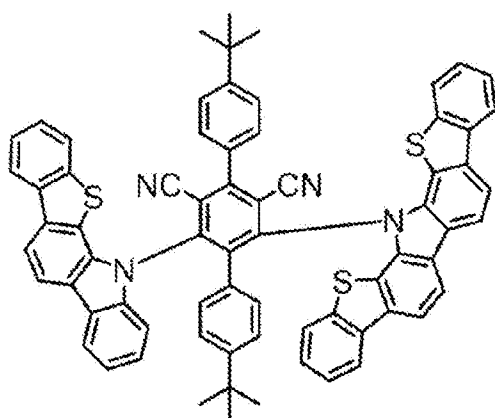
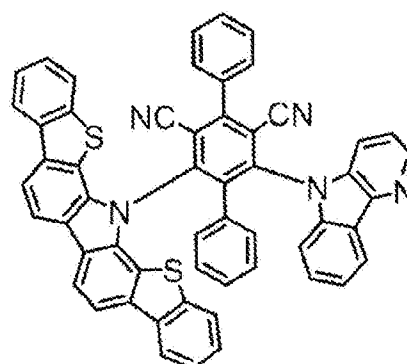
[0565]

[化232]

**A-1****A-2****A-3****A-4****A-5****A-6****A-7**

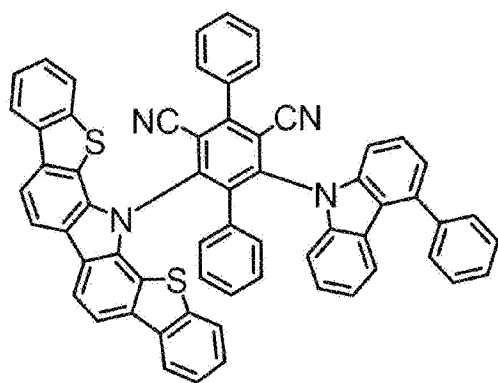
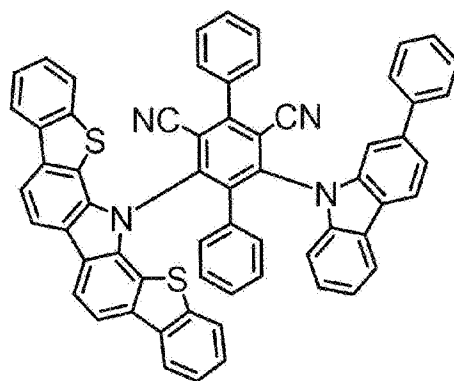
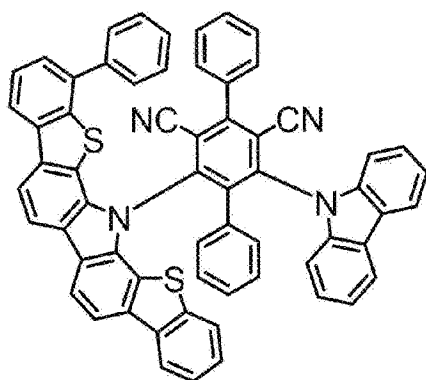
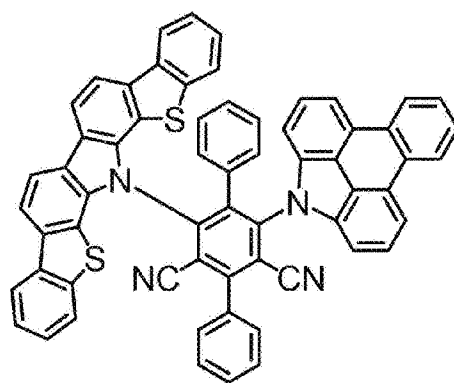
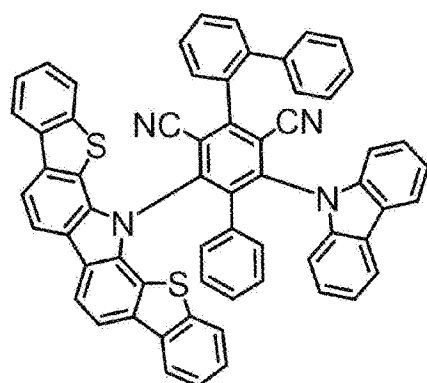
[0566]

[化233]

**A-9****A-10****A-11****A-12****A-13****A-14**

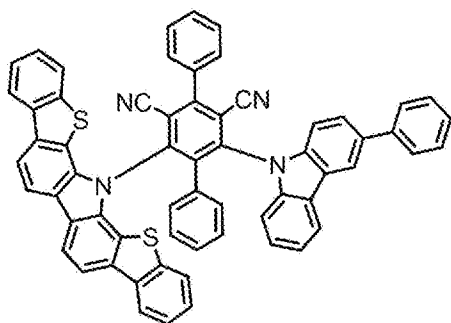
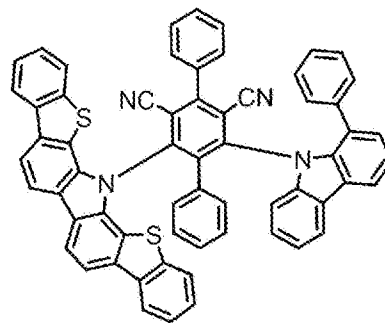
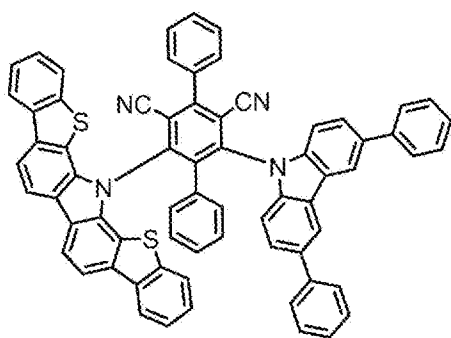
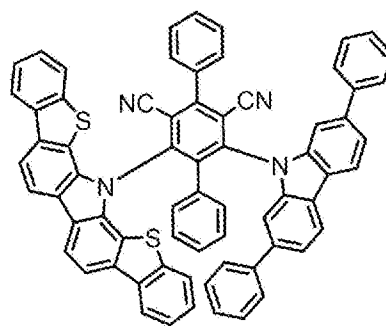
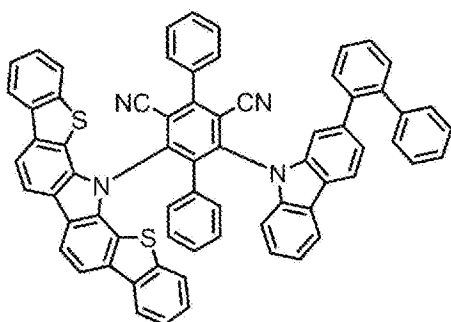
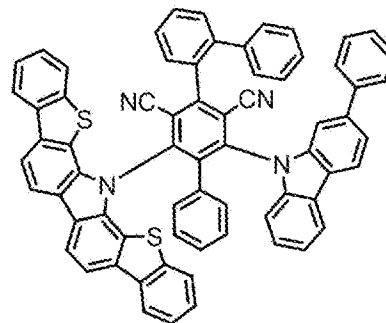
[0567]

[化234]

**A-15****A-16****A-17****A-19****A-20**

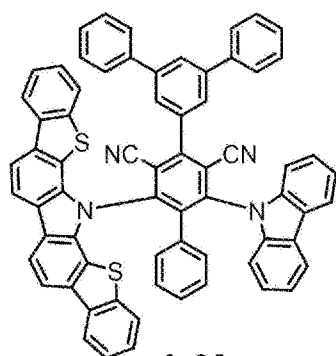
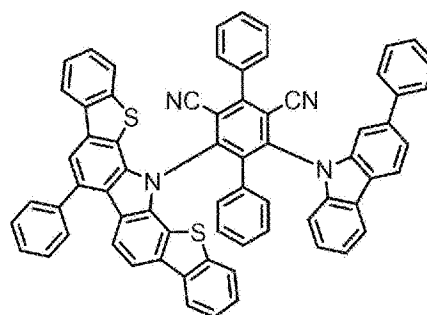
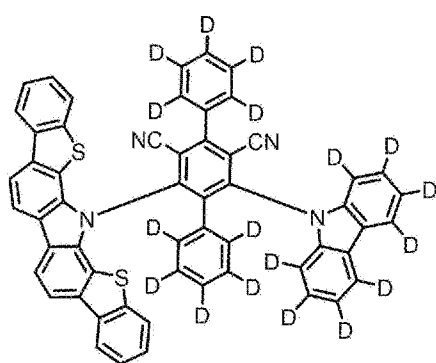
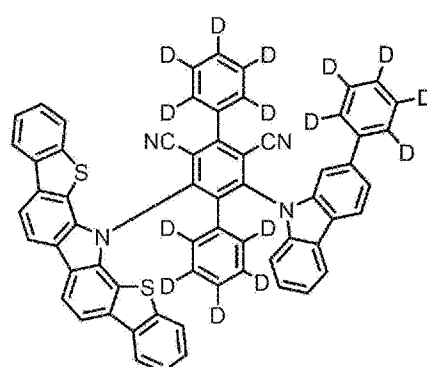
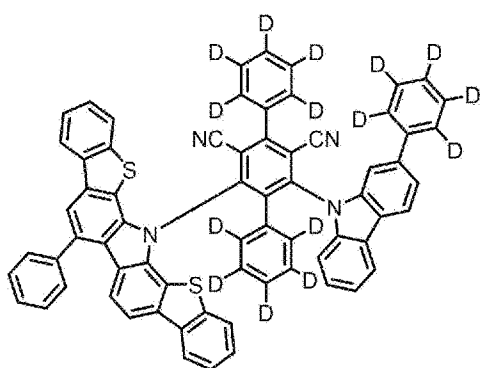
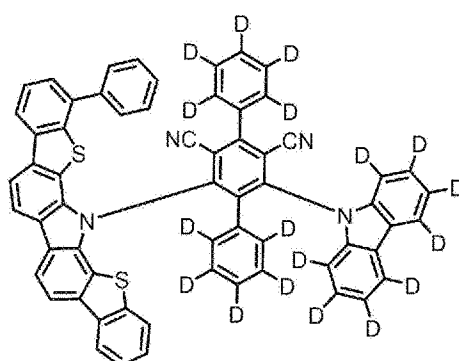
[0568]

[化235]

**A-21****A-22****A-23****A-24****A-25****A-26**

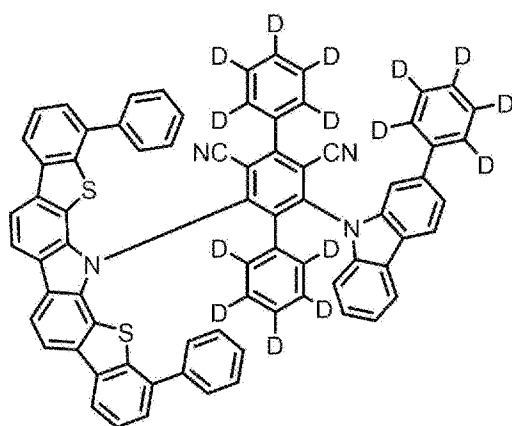
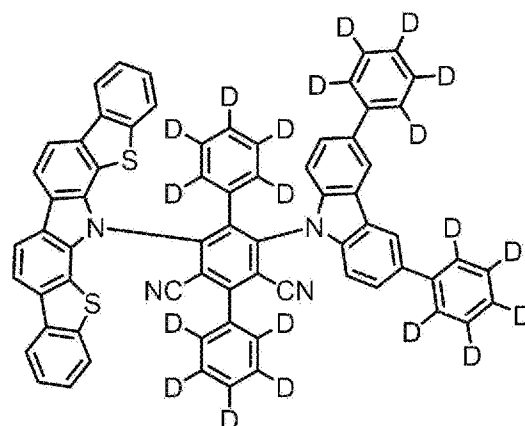
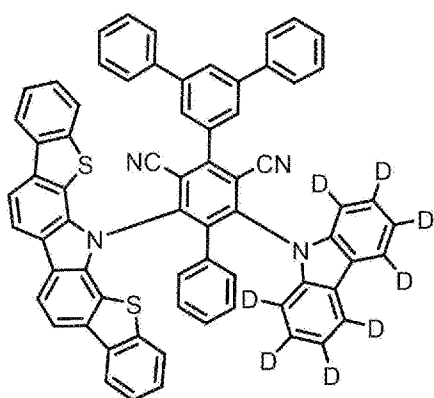
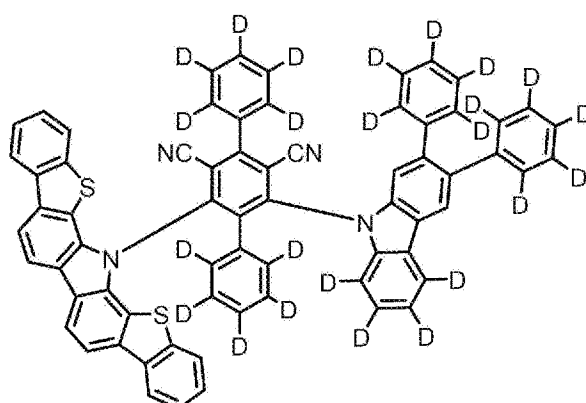
[0569]

[化236]

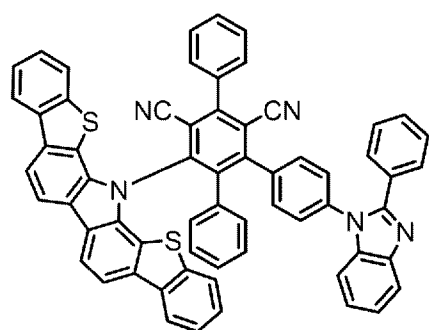
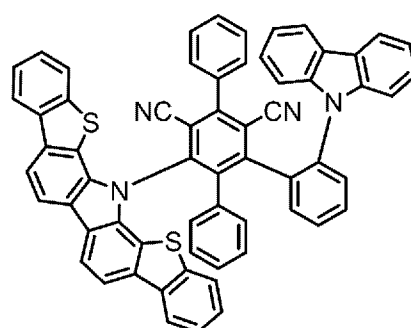
**A-30****A-31****A-32****A-33****A-34****A-35**

[0570]

[化237]

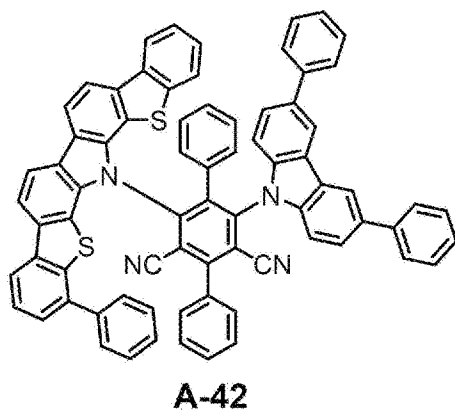
**A-36****A-37****A-38****A-39**

[0571] [化238]

**A-40****A-41**

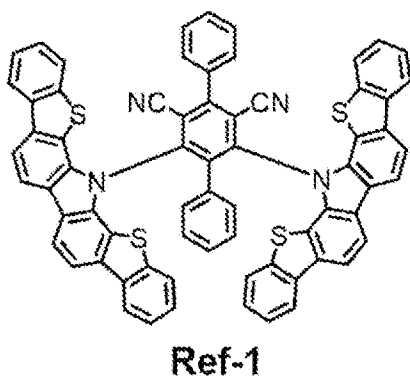
[0572]

[化239]



[0573] 比較例 1 - 1、比較例 2 - 1、比較例 3 - 1 及び比較例 4 - 1 に係る有機 EL 素子の製造に用いた化合物の構造を以下に示す。

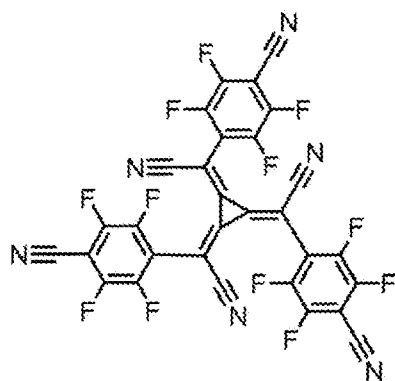
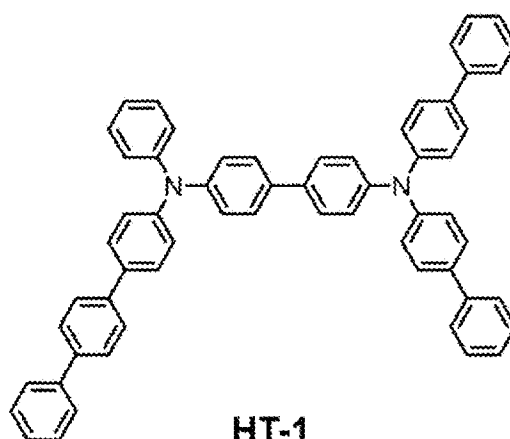
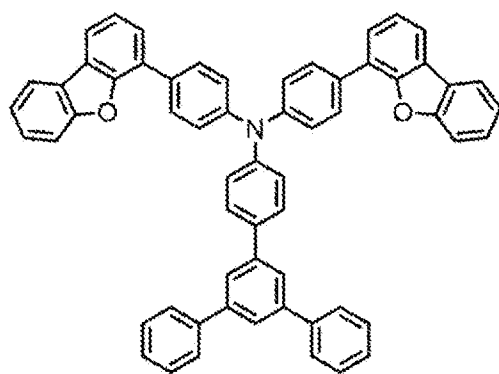
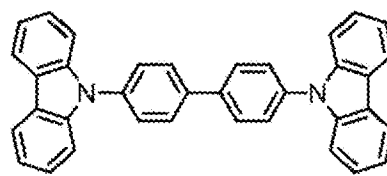
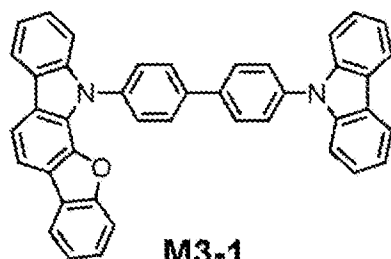
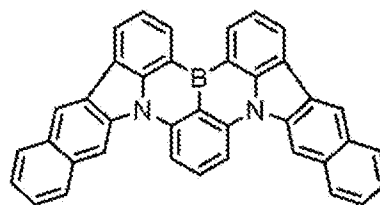
[0574] [化240]



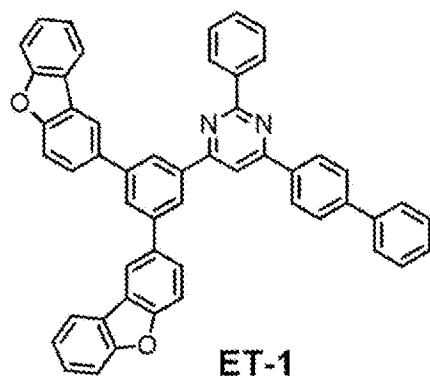
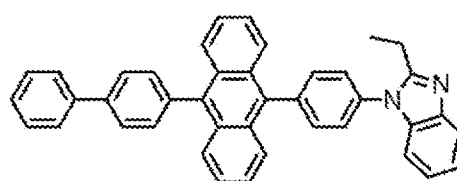
[0575] 実施例 1 - 1 ~ 1 - 5、実施例 2 - 1 ~ 2 - 1 1、実施例 3 - 1 ~ 3 - 2 4、実施例 4 - 1 ~ 4 - 2 5、比較例 1 - 1、比較例 2 - 1、比較例 3 - 1 並びに比較例 4 - 1 に係る有機 EL 素子の製造に用いたその他の化合物の構造を以下に示す。

[0576]

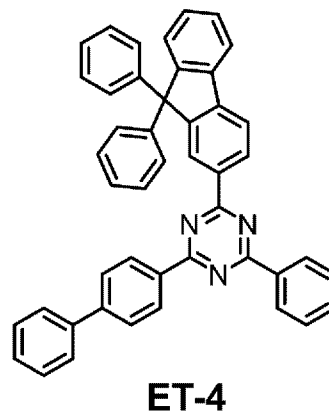
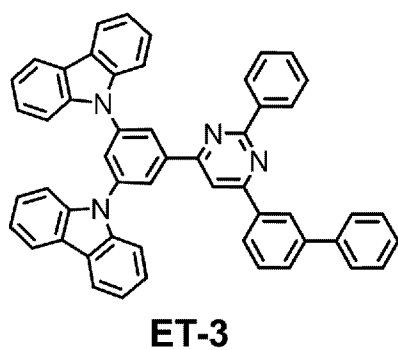
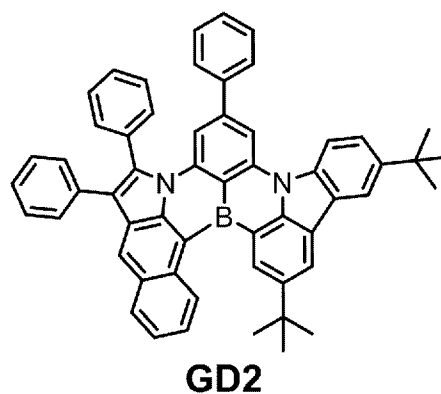
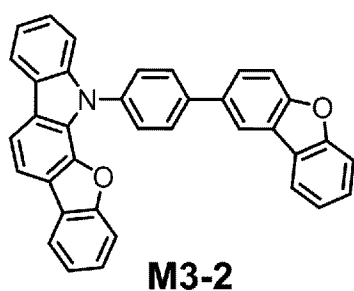
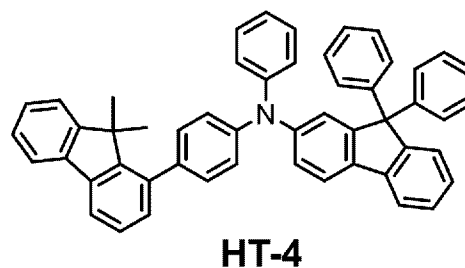
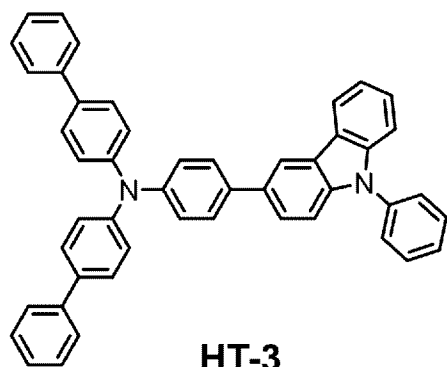
[化241]

**HA****HT-1****HT-2****CBP****M3-1****GD**

[0577] [化242]

**ET-1****ET-2**

[0578] [化243]



[0579] <有機EL素子の作製（１）>

有機EL素子を以下のように作製し、評価した。

[0580] （実施例１－１）

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極（陽極）付きガラス基板（ジオマテック株式会社製）を、イソプロピルアルコール中で5分間超音波洗浄を行った後、UVオゾン洗浄を1分間行った。ITOの膜厚は、130nmとした。

洗浄後の透明電極ライン付き前記ガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に透明電極を覆うようにして化合物HT-1と化合物HAとを共蒸着し、膜厚10nmの正孔注入層を形成した。正孔注入層における化合物HT-1の濃度を97質量%とし、化合物HAの濃度を3質量%とした。

次に、この正孔注入層上に、化合物HT-1を蒸着し、膜厚110nmの第1正孔輸送層を形成した。

次に、この第1正孔輸送層上に、化合物HT-2を蒸着し、膜厚5nmの第2正孔輸送層を形成した。

次に、この第2正孔輸送層上に、化合物CBPを蒸着し、膜厚5nmの電子障壁層を形成した。

次に、この電子障壁層上に、化合物M3としての化合物M3-1と、化合物M2としての化合物A-1と、を共蒸着し、膜厚25nmの発光層を形成した。発光層における化合物M3-1の濃度を75質量%とし、化合物A-1の濃度を25質量%とした。

次に、この発光層上に、化合物ET-1を蒸着し、膜厚5nmの正孔障壁層を形成した。

次に、この正孔障壁層上に、化合物ET-2を蒸着し、膜厚50nmの電子輸送層を形成した。

次に、この電子輸送層上に、LiFを蒸着し、膜厚1nmの電子注入層を形成した。

そして、この電子注入層上に、金属アルミニウム（Al）を蒸着し、膜厚80nmの金属Al陰極を形成した。

実施例1-1に係る有機EL素子の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

ITO(130)/HT-1:HA(10, 97%:3%)/HT-1(110)/HT-2(5)/CBP(5)/M3-1:A-1(25, 75%:25%)/ET-1(5)/ET-2(50)/LiF(1)/Al(80)

なお、括弧内の数字は、膜厚（単位：nm）を示す。

同じく括弧内において、パーセント表示された数字（97%：3%）は、正孔注入層における化合物HT-1及び化合物HAの割合（質量%）を示し、パーセント表示された数字（75%：25%）は、発光層における化合物M3-1及び化合物A-1の割合（質量%）を示す。以下、同様の表記とする。

[0581]（実施例1-2～実施例1-5）

実施例1-2～実施例1-5の有機EL素子は、それぞれ、実施例1-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-1を表1に記載の化合物M2に変更した以外、実施例1-1と同様にして作製した。

[0582]（比較例1-1）

比較例1-1の有機EL素子は、実施例1-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-1を表1に記載の化合物M2に変更した以外、実施例1-1と同様にして作製した。

[0583]（実施例2-1）

実施例2-1の有機EL素子は、実施例1-1の発光層に代えて、化合物M3としての化合物M3-1と、化合物M2としての化合物A-1と、化合物M1としての化合物GDとを、共蒸着し、膜厚25nmの発光層を形成し、当該発光層における化合物M3-1の濃度を74質量%とし、化合物A-1の濃度を25質量%とし、化合物GDの濃度を1質量%とした以外、実施例1-1と同様にして作製した。

実施例2-1に係る有機EL素子の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

ITO(130)/HT-1:HA(10, 97%:3%)/HT-1(110)/HT-2(5)/CBP(5)/M3-1:A-1:GD(25, 74%:25%:1%)/ET-1(5)/ET-2(50)/LiF(1)/Al(80)

[0584]（実施例2-2～実施例2-11）

実施例2-2～実施例2-11の有機EL素子は、それぞれ、実施例2-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-1を表2に記載の化合物M2に変更した以外、実施例2-1と同様にして作製した。

[0585] (比較例 2-1)

比較例 2-1 の有機 EL 素子は、実施例 2-1 の発光層に用いた化合物 M2 としての化合物 A-1 を表 2 に記載の化合物 M2 に変更した以外、実施例 2-1 と同様にして作製した。

[0586] <有機 EL 素子の評価 (1)>

作製した有機 EL 素子について、以下の評価を行った。評価結果を表 1 及び表 2 に示す。なお、比較例 1-1 及び 2-1 で使用した比較化合物 R e f-1 は、化合物 M2 に該当しないが、便宜的に化合物 M2 と同じ列に表記する。また、各実施例の発光層で使用した化合物の評価結果も表 1 及び表 2 に示す。

[0587] (寿命 L T 95)

作製した有機 EL 素子に、電流密度が 50 mA/cm^2 となるように電圧を印加し、初期輝度に対して輝度が 95% となるまでの時間 (L T 95 (単位: 時間)) を寿命として測定した。輝度は、分光放射輝度計 CS-2000 (コニカミノルタ株式会社製) を用いて測定した。表 1 に「L T 95 (相対値)」(単位: %) を示す。

表 1 に示す「L T 95 (相対値)」は、各例 (実施例 1-1 ~ 実施例 1-5 及び比較例 1-1) の L T 95 の測定値、並びに下記数式 (数 1 X) に基づいて算出した。

$$\text{L T 95 (相対値)} = (\text{各例の L T 95} / \text{比較例 1-1 の L T 95}) \times 100 \dots (\text{数 1 X})$$

[0588] (外部量子効率 E Q E)

作製した有機 EL 素子に、電流密度が 10.00 mA/cm^2 となるように電圧を印加した時の分光放射輝度スペクトルを分光放射輝度計 CS-2000 (コニカミノルタ株式会社製) で計測した。得られた分光放射輝度スペクトルから、ランバシアン放射を行ったと仮定し外部量子効率 E Q E (単位: %) を算出した。表 2 に「E Q E (相対値)」(単位: %) を示す。

表 2 に示す「E Q E (相対値)」は、各例 (実施例 2-1 ~ 実施例 2-1

1 及び比較例 2-1) の E Q E の測定値、並びに下記数式 (数 2 X) に基づいて算出した。

$$\text{EQE (相対値)} = (\text{各例の EQE} / \text{比較例 2-1 の EQE}) \times 100 \dots (\text{数 2 X})$$

[0589] (最大ピーク波長 λ_p 及び発光半値幅 FWHM)

有機 E L 素子の電流密度が $10.00 \text{ mA} / \text{cm}^2$ となるように素子に電圧を印加した時の分光放射輝度スペクトルを分光放射輝度計 CS-2000 (コニカミノルタ株式会社製) で計測した。得られた分光放射輝度スペクトルから、最大ピーク波長 λ_p (単位: nm) 及び発光半値幅 FWHM (単位: nm) を求めた。FWHM は、Full Width at Half Maximum の略称である。

[0590] (CIE 1931 色度)

有機 E L 素子の電流密度が $10.00 \text{ mA} / \text{cm}^2$ となるように素子に電圧を印加した時の CIE 1931 色度座標 (x、y) を分光放射輝度計 CS-2000 (コニカミノルタ株式会社製) で計測した。

[0591] [表 1]

	化合物 M2					化合物 M3			素子評価				
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]	CIE _x	CIE _y	LT95 (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
実施例 1-1	A-1	498	0.90	2.58	<0.01	M3-1	3.42	2.89	0.367	0.592	504	535	82
実施例 1-2	A-2	496	0.96	2.62	<0.01	M3-1	3.42	2.89	0.365	0.590	112	534	84
実施例 1-3	A-3	493	0.99	2.52	<0.01	M3-1	3.42	2.89	0.341	0.603	216	528	80
実施例 1-4	A-4	491	0.94	2.67	<0.01	M3-1	3.42	2.89	0.343	0.589	259	531	87
実施例 1-5	A-7	490	0.91	2.75	<0.01	M3-1	3.42	2.89	0.370	0.571	137	542	93
比較例 1-1	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-1	3.42	2.89	0.395	0.582	100	542	80

[0592]

[表2]

	化合物 M2					化合物 M3		化合物 M1		CIE _x	CIE _y	EQE (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]					
実施例2-1	A-1	498	0.90	2.58	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.295	0.639	107	516	40.0
実施例2-2	A-3	493	0.99	2.52	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.257	0.665	121	515	33.2
実施例2-3	A-4	491	0.94	2.67	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.238	0.672	110	514	31.0
実施例2-4	A-5	484	0.98	2.70	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.225	0.677	103	514	30.0
実施例2-5	A-6	475	0.95	2.69	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.212	0.686	115	515	30.0
実施例2-6	A-9	494	0.90	2.65	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.230	0.676	122	513	29.0
実施例2-7	A-10	489	0.90	2.69	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.244	0.668	138	514	30.0
実施例2-8	A-11	495	0.85	2.65	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.259	0.665	122	515	32.0
実施例2-9	A-12	499	0.87	2.58	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.291	0.645	114	515	38.0
実施例2-10	A-13	496	1.00	2.58	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.227	0.677	123	513	29.0
実施例2-11	A-14	505	0.99	2.64	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.290	0.643	112	514	36.0
比較例2-1	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-1	GD	2.45	2.18	0.368	0.597	100	522	82.5

[0593] <有機EL素子の作製(2)>

(実施例3-1)

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極(陽極)付きガラス基板(ジオマテック株式会社製)を、イソプロピルアルコール中で5分間超音波洗浄を行った後、UVオゾン洗浄を1分間行った。ITOの膜厚は、130nmとした。

洗浄後の透明電極ライン付き前記ガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に透明電極を覆うようにして化合物HT-3と化合物HAとを共蒸着し、膜厚10nmの正孔注入層を形成した。正孔注入層における化合物HT-3の濃度を97質量%とし、化合物HAの濃度を3質量%とした。

次に、この正孔注入層上に、化合物HT-3を蒸着し、膜厚90nmの第1正孔輸送層を形成した。

次に、この第1正孔輸送層上に、化合物HT-4を蒸着し、膜厚30nmの第2正孔輸送層を形成した。

次に、この第2正孔輸送層上に、化合物M3としての化合物M3-2と、

化合物M2としての化合物A-1と、を共蒸着し、膜厚25nmの発光層を形成した。発光層における化合物M3-2の濃度を75質量%とし、化合物A-1の濃度を25質量%とした。

次に、この発光層上に、化合物ET-3を蒸着し、膜厚5nmの正孔障壁層を形成した。

次に、この正孔障壁層上に、化合物ET-4と、化合物Liqと、を共蒸着し、膜厚50nmの電子輸送層を形成した。電子輸送層における化合物ET-4の濃度を50質量%とし、化合物Liqの濃度を50質量%とした。なお、Liqは、(8-キノリノラト)リチウム((8-Quinololinolato)lithium)の略称である。

次に、この電子輸送層上に、イッテルビウム(Yb)を蒸着し、膜厚1nmの電子注入層を形成した。

そして、この電子注入層上に、金属アルミニウム(Al)を蒸着し、膜厚80nmの金属Al陰極を形成した。

実施例3-1に係る有機EL素子の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

ITO(130)/HT-3:HA(10, 97%:3%)/HT-3(90)/HT-4(30)/M3-2:A-1(25, 75%:25%)/ET-3(5)/ET-4:Liq(50, 50%:50%)/Yb(1)/Al(80)

[0594] (実施例3-2～実施例3-20)

実施例3-2～実施例3-20の有機EL素子は、それぞれ、実施例3-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-1を表3に記載の化合物M2に変更した以外、実施例3-1と同様にして作製した。

[0595] (実施例3-21～実施例3-24)

実施例3-21～実施例3-24の有機EL素子は、それぞれ、実施例3-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-1を表4に記載の化合物M2に変更した以外、実施例3-1と同様にして作製した。

[0596] (比較例3-1)

比較例3-1の有機EL素子は、実施例3-1の発光層に用いた化合物M

2としての化合物A-1を表3に記載の化合物M2に変更した以外、実施例3-1と同様にして作製した。

[0597] (実施例4-1)

実施例4-1の有機EL素子は、実施例3-1の発光層に代えて、化合物M3としての化合物M3-2と、化合物M2としての化合物A-40と、化合物M1としての化合物GD2とを、共蒸着し、膜厚25nmの発光層を形成し、当該発光層における化合物M3-2の濃度を74.4質量%とし、化合物A-40の濃度を25質量%とし、化合物GD2の濃度を0.6質量%とした以外、実施例3-1と同様にして作製した。

実施例4-1に係る有機EL素子の素子構成を略式的に示すと、次のとおりである。

ITO(130)/HT-3:HA(10, 97%:3%)/HT-3(90)/HT-4(30)/M3-2:A-40:GD2(25, 74.4%:25%:0.6%)/ET-3(5)/ET-4:Liq(50, 50%:50%)/Yb(1)/Al(80)

[0598] (実施例4-2)

実施例4-2の有機EL素子は、実施例4-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-40を表5に記載の化合物M2に変更した以外、実施例4-1と同様にして作製した。

[0599] (実施例4-3～実施例4-25)

実施例4-3～実施例4-25の有機EL素子は、それぞれ、実施例4-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-40を表6及び表7に記載の化合物M2に変更した以外、実施例4-1と同様にして作製した。

[0600] (比較例4-1)

比較例4-1の有機EL素子は、実施例4-1の発光層に用いた化合物M2としての化合物A-40を表5に記載の化合物M2に変更した以外、実施例4-1と同様にして作製した。

[0601] <有機EL素子の評価(2)>

実施例3-1～3-24、実施例4-1～4-25、比較例3-1並びに比較例4-1において作製した有機EL素子について、<有機EL素子の評

価（１）＞に記載の方法で、表３、表４、表５、表６及び表７に示す項目の評価を行った。評価結果を表３、表４、表５、表６及び表７に示す。

[0602] 表３及び表４に示す「EQE（相対値）」は、各例（実施例３－１～３－２４並びに比較例３－１）のEQEの測定値、並びに下記数式（数３X）に基づいて算出した。

$$\text{EQE（相対値）} = (\text{各例のEQE} / \text{比較例３－１のEQE}) \times 100 \dots (\text{数３X})$$

[0603] 表５、表６及び表７に示す「EQE（相対値）」は、各例（実施例４－１～４－２５並びに比較例４－１）のEQEの測定値、並びに下記数式（数４X）に基づいて算出した。

$$\text{EQE（相対値）} = (\text{各例のEQE} / \text{比較例４－１のEQE}) \times 100 \dots (\text{数４X})$$

[0604]

[表3]

	化合物M2					化合物M3			素子評価				
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]	CIE _x	CIE _y	EQE (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
実施例3-1	A-1	498	0.90	2.58	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.369	0.597	105	535	78
実施例3-2	A-9	494	0.90	2.65	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.333	0.605	113	527	78
実施例3-3	A-15	494	0.91	2.65	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.333	0.602	113	528	81
実施例3-4	A-16	495	0.83	2.66	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.332	0.606	110	527	77
実施例3-5	A-17	498	0.99	2.64	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.327	0.605	114	526	79
実施例3-6	A-20	488	0.85	2.68	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.292	0.604	123	519	75
実施例3-7	A-21	495	0.87	2.63	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.344	0.602	111	528	79
実施例3-8	A-22	492	0.87	2.67	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.301	0.601	114	521	78
実施例3-9	A-23	499	0.90	2.60	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.352	0.604	116	531	77
実施例3-10	A-24	497	0.84	2.63	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.338	0.607	108	527	76
実施例3-11	A-25	493	0.78	2.66	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.308	0.606	122	522	76
実施例3-12	A-26	491	0.86	2.66	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.311	0.606	108	522	77
実施例3-13	A-31	504	0.90	2.60	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.342	0.607	125	529	77
実施例3-14	A-32	493	0.92	2.67	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.324	0.606	114	524	77
実施例3-15	A-33	495	0.89	2.67	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.328	0.607	113	525	77
実施例3-16	A-34	502	0.89	2.59	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.335	0.609	129	526	76
実施例3-17	A-35	498	0.95	2.65	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.321	0.607	118	525	78
実施例3-18	A-36	495	0.99	2.69	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.305	0.610	117	521	75
実施例3-19	A-38	497	0.88	2.64	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.332	0.604	105	527	79
実施例3-20	A-39	495	0.90	2.64	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.327	0.607	114	526	77
比較例3-1	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.416	0.570	100	548	75

[0605] [表4]

	化合物M2					化合物M3			素子評価				
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]	CIE _x	CIE _y	EQE (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
実施例3-21	A-19	492	0.85	2.66	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.338	0.604	112	530	79
実施例3-22	A-30	497	0.92	2.64	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.330	0.605	107	527	79
実施例3-23	A-37	499	0.86	2.60	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.364	0.598	118	535	79
実施例3-24	A-42	500	0.84	2.60	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.359	0.601	112	533	77
比較例3-1 (再掲)	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-2	3.43	2.89	0.416	0.570	100	548	75

[0606] [表5]

	化合物 M2					化合物 M3	化合物 M1			素子評価				
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]	CIE _x	CIE _y	EQE (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
実施例 4-1	A-40	489	0.82	2.71	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.209	0.693	127	518	28.3
実施例 4-2	A-41	495	0.70	2.70	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.203	0.698	137	518	27.4
比較例 4-1	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.291	0.660	100	521	34.0

[0607]

[表6]

	化合物 M2					化合物 M3	化合物 M1			素子評価				
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]	CIE _x	CIE _y	EQE (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
実施例 4-3	A-9	494	0.90	2.65	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.230	0.693	122	519	29.0
実施例 4-4	A-15	494	0.91	2.65	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.240	0.692	123	519	30.0
実施例 4-5	A-16	495	0.83	2.66	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.250	0.690	119	519	29.0
実施例 4-6	A-17	498	0.99	2.64	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.230	0.690	132	519	29.0
実施例 4-7	A-19	492	0.85	2.66	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.250	0.690	124	520	28.0
実施例 4-8	A-20	488	0.85	2.68	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.220	0.690	137	518	28.0
実施例 4-9	A-21	495	0.87	2.63	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.250	0.680	121	519	32.0
実施例 4-10	A-22	492	0.87	2.67	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.220	0.700	136	518	28.0
実施例 4-11	A-23	499	0.90	2.60	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.290	0.660	121	520	35.0
実施例 4-12	A-24	497	0.84	2.63	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.250	0.680	122	519	30.0
実施例 4-13	A-25	493	0.78	2.66	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.230	0.690	141	518	29.0
実施例 4-14	A-26	491	0.86	2.66	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.230	0.690	125	518	29.0
比較例 4-1 (再掲)	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.291	0.660	100	521	34.0

[0608]

[表7]

	化合物 M2					化合物 M3	化合物 M1			素子評価				
	名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	名称	名称	S_1 [eV]	T_{77K} [eV]	CIE _x	CIE _y	EQE (相対値) [%]	λ_p [nm]	FWHM [nm]
実施例 4-15	A-30	497	0.92	2.64	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.240	0.690	126	519	29.0
実施例 4-16	A-31	504	0.90	2.60	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.260	0.680	130	519	31.0
実施例 4-17	A-32	493	0.92	2.67	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.240	0.690	126	518	29.0
実施例 4-18	A-33	495	0.89	2.67	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.240	0.680	124	519	29.0
実施例 4-19	A-34	502	0.89	2.59	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.250	0.690	132	519	29.0
実施例 4-20	A-35	498	0.95	2.65	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.220	0.700	135	519	28.0
実施例 4-21	A-36	495	0.99	2.69	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.220	0.700	143	518	28.0
実施例 4-22	A-37	499	0.86	2.60	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.290	0.660	120	520	28.0
実施例 4-23	A-38	497	0.88	2.64	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.240	0.690	126	519	29.0
実施例 4-24	A-39	495	0.90	2.64	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.230	0.690	129	519	28.0
実施例 4-25	A-42	500	0.84	2.60	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.300	0.650	122	520	34.0
比較例 4-1 (再掲)	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01	M3-2	GD2	2.39	1.99	0.291	0.660	100	521	34.0

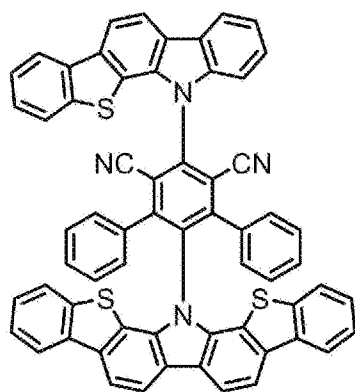
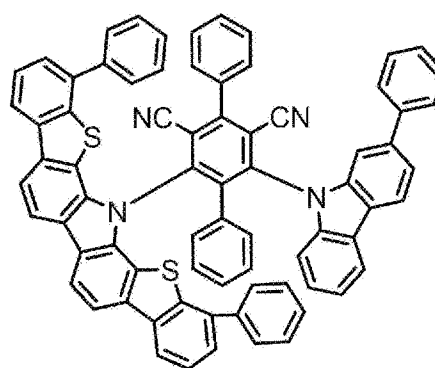
[0609] 一般式(1)で表される化合物を用いた実施例に係る有機EL素子によれば、比較例に係る有機EL素子に比べて、素子性能が向上した。

[0610] <化合物の評価>

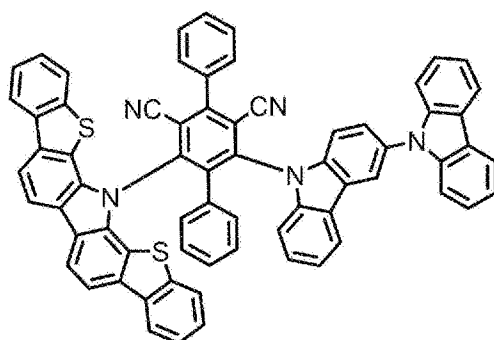
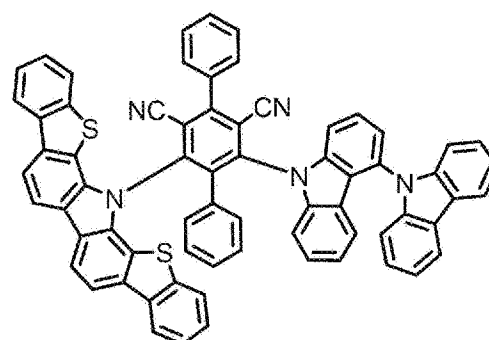
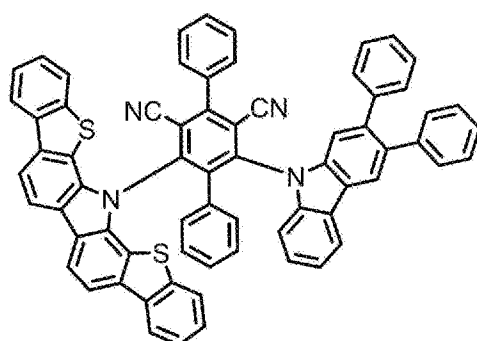
実施例の製造に用いた化合物及び下記化合物について評価を行った。

[0611]

[化244]

**A-8****A-18**

[0612] [化245]

**A-27****A-28****A-29**

[0613] (蛍光量子収率 (PLQY) の測定)

測定対象となる化合物を、濃度が $5\mu\text{mol/L}$ になるように、トルエンに溶解し、トルエン溶液を調製した。その後、調液後の溶液を5分間窒素バ

ブリングし、外気が混入しないように密閉した。

調製した測定対象化合物のトルエン溶液について、絶対PL（フォトルミネッセンス）量子収率測定装置 *Quantaaurus-QY*（浜松ホトニクス株式会社製）を用いて、PLQYを測定した。

[0614]（化合物の最大ピーク波長）

化合物の最大ピーク波長 λ は、以下の方法により測定した。

測定対象となる化合物の5 $\mu\text{mol/L}$ トルエン溶液を調製して石英セルに入れ、常温（300 K）でこの試料の発光スペクトル（縦軸：発光強度、横軸：波長とする。）を測定した。本実施例では、発光スペクトルを株式会社日立ハイテクサイエンス製の分光蛍光光度計（装置名：F-7000）で測定した。なお、発光スペクトル測定装置は、ここで用いた装置に限定されない。発光スペクトルにおいて、発光強度が最大となる発光スペクトルのピーク波長を最大ピーク波長 λ とした。

[0615]（化合物の遅延蛍光性）

遅延蛍光性は図1に示す装置を利用して過渡PLを測定することにより確認した。前記化合物A-1をトルエンに溶解し、自己吸収の寄与を取り除くため励起波長において吸光度が0.05以下の希薄溶液を調製した。また酸素による消光を防ぐため、試料溶液を凍結脱気した後にアルゴン雰囲気下で蓋付きのセルに封入することで、アルゴンで飽和された酸素フリーの試料溶液とした。

上記試料溶液の蛍光スペクトルを分光蛍光光度計FP-8600（日本分光社製）で測定し、また同条件で9,10-ジフェニルアントラセンのエタノール溶液の蛍光スペクトルを測定した。両スペクトルの蛍光面積強度を用いて、Morris et al., J. Phys. Chem., 80 (1976) 969中の(1)式により全蛍光量子収率を算出した。

前記化合物A-1が吸収する波長のパルス光（パルスレーザーから照射される光）で励起された後、当該励起状態から即座に観察されるPrompt発光（即時発光）と、当該励起後、即座には観察されず、その後観察される

D e l a y 発光（遅延発光）とが存在する。本実施例における遅延蛍光発光とは、D e l a y 発光（遅延発光）の量が P r o m p t 発光（即時発光）の量に対して 5 % 以上を意味する。具体的には、P r o m p t 発光（即時発光）の量を X_P とし、D e l a y 発光（遅延発光）の量を X_D としたときに、 X_D / X_P の値が 0.05 以上であることを意味する。

P r o m p t 発光と D e l a y 発光の量とその比は、“N a t u r e 492, 234-238, 2012”（参考文献 1）に記載された方法と同様の方法により求めることができる。なお、P r o m p t 発光と D e l a y 発光の量の算出に使用される装置は、前記参考文献 1 に記載の装置、または図 1 に記載の装置に限定されない。

化合物 A-2 ~ A-42 及び比較化合物 R e f-1 についても、化合物 A-1 と同様に測定した。

化合物 A-1 ~ A-42 及び比較化合物 R e f-1 について、D e l a y 発光（遅延発光）の量が P r o m p t 発光（即時発光）の量に対して 5 % 以上であることが確認された。具体的には、化合物 A-1 ~ A-42 及び比較化合物 R e f-1 について、 X_D / X_P の値が 0.05 以上であった。

[0616]（最低励起一重項エネルギー S_1 ）

測定対象化合物の最低励起一重項エネルギー S_1 は、前述の溶液法により測定した。

[0617]（エネルギーギャップ T_{77K} 及び $\Delta S T$ ）

測定対象化合物のエネルギーギャップ T_{77K} は、前述の「三重項エネルギーと 77 [K] におけるエネルギーギャップとの関係」で記載したエネルギーギャップ T_{77K} の測定方法により測定した。

化合物 A-1 ~ A-42 及び比較化合物 R e f-1 について、エネルギーギャップ T_{77K} の値と上記の最低励起一重項エネルギー S_1 の値から $\Delta S T$ を確認した。表中の「< 0.01」は、 $\Delta S T$ が 0.01 eV 未満であることを表す。

[0618]

[表8]

化合物 名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]	化合物 名称	λ [nm]	PLQY	S_1 [eV]	ΔST [eV]
A-1	498	0.90	2.58	<0.01	A-26	491	0.86	2.66	<0.01
A-2	496	0.96	2.62	<0.01	A-27	531	0.48	2.57	<0.01
A-3	493	0.99	2.52	<0.01	A-28	502	0.93	2.57	<0.01
A-4	491	0.94	2.67	<0.01	A-29	495	0.87	2.65	<0.01
A-5	484	0.98	2.70	<0.01	A-30	497	0.92	2.64	<0.01
A-6	475	0.95	2.69	<0.01	A-31	504	0.90	2.60	<0.01
A-7	490	0.91	2.75	<0.01	A-32	493	0.92	2.67	<0.01
A-8	489	0.86	2.80	<0.01	A-33	495	0.89	2.67	<0.01
A-9	494	0.90	2.65	<0.01	A-34	502	0.89	2.59	<0.01
A-10	489	0.90	2.69	<0.01	A-35	498	0.95	2.65	<0.01
A-11	495	0.85	2.65	<0.01	A-36	495	0.99	2.69	<0.01
A-12	499	0.87	2.58	<0.01	A-37	499	0.86	2.60	<0.01
A-13	496	1.00	2.58	<0.01	A-38	497	0.88	2.64	<0.01
A-14	505	0.99	2.64	<0.01	A-39	495	0.90	2.64	<0.01
A-15	494	0.91	2.65	<0.01	A-40	489	0.82	2.71	<0.01
A-16	495	0.83	2.66	<0.01	A-41	495	0.70	2.70	<0.01
A-17	498	0.99	2.64	<0.01	A-42	500	0.84	2.60	<0.01
A-18	495	0.99	2.70	<0.01	Ref-1	504	0.87	2.52	<0.01
A-19	492	0.85	2.66	<0.01	M3-1	—	—	3.42	0.53
A-20	488	0.85	2.68	<0.01	M3-2	—	—	3.43	0.54
A-21	495	0.87	2.63	<0.01	GD	508	0.75	2.45	0.27
A-22	492	0.87	2.67	<0.01	GD2	512	0.91	2.39	0.40
A-23	499	0.90	2.60	<0.01					
A-24	497	0.84	2.63	<0.01					
A-25	493	0.78	2.66	<0.01					

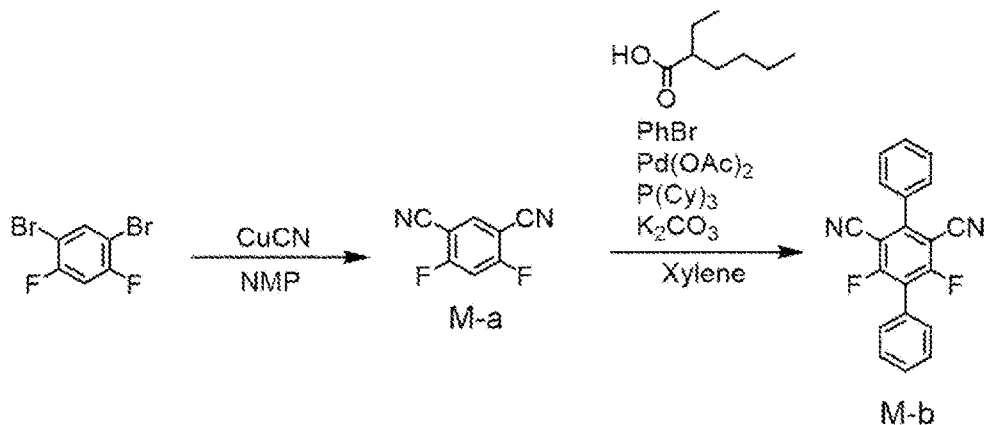
[0619] <合成例>

[0620] (化合物 A-1 の合成)

化合物 A-1 の合成方法を以下に説明する。

[0621]

[化246]

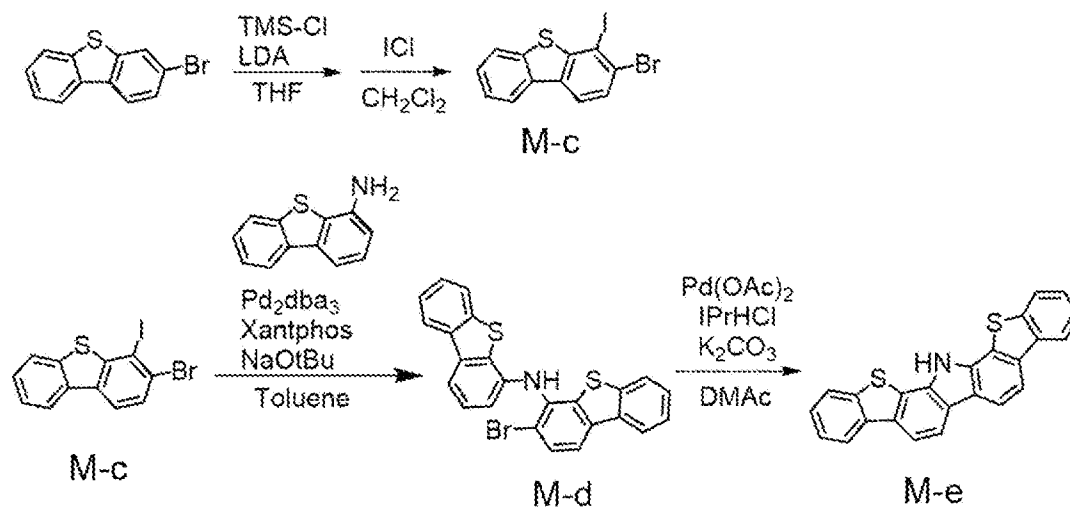


[0622] 窒素雰囲気下、2 Lの三口フラスコに、1, 5-dibromo-2, 4-difluorobenzene (165 g, 607 mmol)、cyanocopper (120 g, 1335 mmol) 及びNMP (800 ml) を入れ、150℃で5時間攪拌した。反応混合物に塩化メチレン1 Lを加え、セライトを用いてろ過し、ろ液をエバポレーターを用いて濃縮した。濃縮後に得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、58 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MS (Gas Chromatograph Mass Spectrometer) の分析により中間体M-aと同定した (収率58%)。NMPは、N-メチル-2-ピロリドンの略称である。

[0623] 窒素雰囲気下、500 mLの三口フラスコに、中間体M-a (20 g, 122 mmol)、炭酸カリウム (33.7 g, 244 mmol)、diacetoxypalladium (1.368 g, 6.09 mmol)、トリクロヘキシルホスフィン (5.13 g, 18.28 mmol)、bromobenzene (31.9 ml, 305 mmol)、2-ethylhexanoic acid (7.81 ml, 48.7 mmol) 及びXylene (250 ml) を入れ、100℃で5時間攪拌した。反応溶液に塩化メチレン200 mlを加え、セライトに通した。得られた溶液の塩化メチレンを除去し、沈殿した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロ

マトグラフィーで精製し、12 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-bと同定した（収率31%）。

[0624] [化247]



[0625] 窒素雰囲気下、500 mlの三口フラスコに、3-ブロモジベンゾチオフエン（26.3 g, 100 mmol）、クロロトリメチルシラン（33 g, 300 mmol）、及びTHF（150 mL）を入れた。ドライアイス／アセトンバスで、三口フラスコ内の材料を−78℃まで冷却してから、リチウムジイソプロピルアミドを125 ml（2 M, THF溶液）滴下した。−78℃で2時間攪拌し、その後、室温に戻し、更に2時間攪拌した。攪拌後、三口フラスコに水（100 mL）を加えてから、酢酸エチルで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。得られた液体にジクロロメタン200 ml加え、続いて一塩化ヨウ素（49 g, 300 mmol）を、0℃で滴下した後、40℃で6時間攪拌した。室温に戻し、飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液（100 mL）を加え、ジクロロメタンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体M-c（28 g, 72 mmol、収率72%）

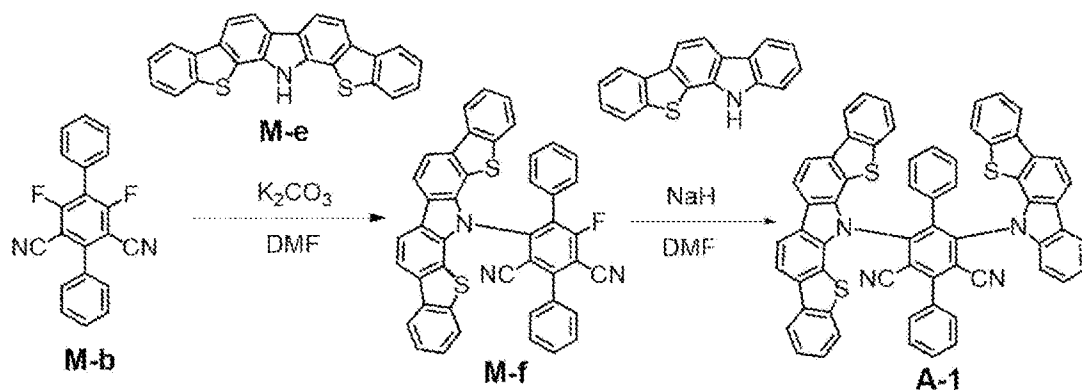
を得た。

[0626] 窒素雰囲気下、500 mlの三口フラスコに中間体M-c (24.5 g, 63.0 mmol)、Dibenzo[b, d]thiophen-4-amine (12.55 g, 63.0 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) (0.865 g, 0.945 mmol)、Xantphos (キサントホス) (1.385 g, 1.889 mmol)、ナトリウムtert-ブトキシド (9.08 g, 94 mmol) 及びトルエン 210 mLを加えて、60℃で8時間加熱攪拌後に室温(25℃)まで冷却した。析出した固体をろ取し、トルエン200 mlで洗浄し、25 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-dと同一とした(収率86%)。

[0627] 窒素雰囲気下、200 mlの三口フラスコに、中間体M-d (9.5 g, 20.7 mmol)、1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾリウムクロリド(IPrHCl) (0.36 g, 0.82 mmol)、酢酸パラジウム(II) (0.093 g, 0.41 mmol)、炭酸カリウム (5.8 g, 42 mmol) 及びN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc) 60 mLを加えて、160℃で10時間攪拌後に室温(25℃)まで冷却した。析出した固体をろ取し、アセトンで洗浄して、6.9 gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体M-eと同一とした(収率86%)。ASAP-MSは、Atmospheric Pressure Solid Analysis Probe Mass Spectrometryの略称である。

[0628]

[化248]



[0629] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体M-b (3.0 g、9.48 mmol)、中間体M-e (3.6 g、9.5 mmol)、炭酸カリウム (2.6 g、19 mmol) 及びDMF 50 mLを入れ、100℃で4時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、4.1 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により中間体M-fと同定した (収率64%)。DMFは、N,N-ジメチルホルムアミドの略称である。

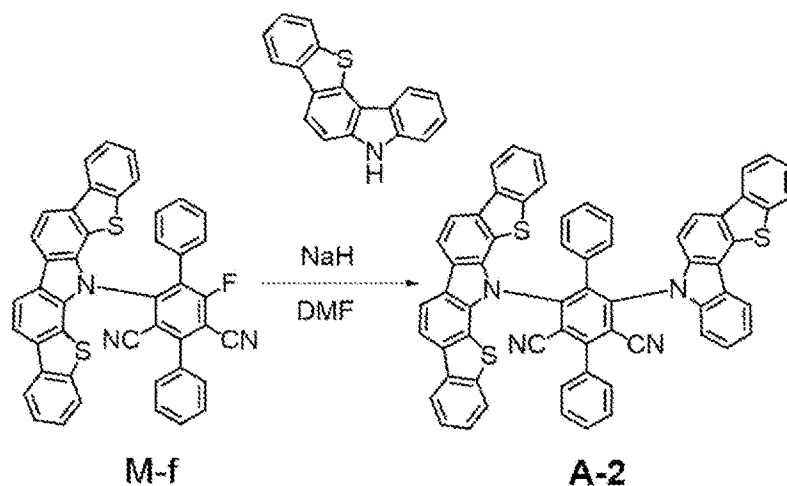
[0630] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、12H-[1] Benzo thieno [2,3-a] carbazole (0.809 g、2.96 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.14 g、3.55 mmol)、及びDMFを15 mLを入れ、0℃で30分撹拌した。次に反応混合物に中間体M-f (2 g、2.96 mmol) を入れ、室温で2時間撹拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.6 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-1と同定した (収率58%)。

[0631] (化合物A-2の合成)

化合物A-2の合成方法を以下に説明する。

[0632]

[化249]

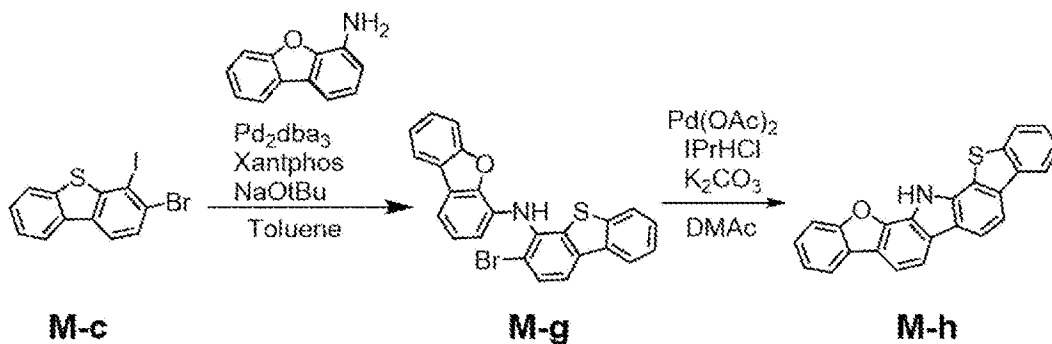


[0633] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、5H-benzo[4,5]thieno[3,2-c]carbazole (0.971 g, 3.55 mmol)、水素化ナトリウム(40質量%オイル含有) (0.14 g, 3.55 mmol)、及びDMFを15 mLを入れ、0℃で30分撹拌した。次に反応混合物に中間体M-f (2 g, 2.96 mmol)を入れ、室温で2時間撹拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2.2 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-2と同定した(収率80%)。

[0634] (化合物A-3の合成)

化合物A-3の合成方法を以下に説明する。

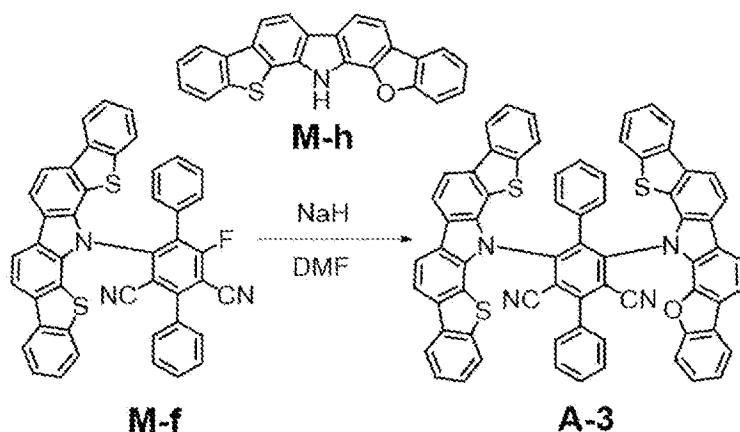
[0635] [化250]



[0636] 窒素雰囲気下、500 ml の三口フラスコに中間体M-c (20 g, 51.4 mmol)、dibenzo[b, d]furan-4-amine (9.42 g, 51.4 mmol)、Pd₂dba₃ (0.706 g, 0.771 mmol)、(9,9-dimethyl-9H-xanthene-4,5-diyl)bis(triphenyl-14-phosphane) (1.130 g, 1.542 mmol)、NaOt-Bu (7.41 g, 77 mmol) 及びToluene (171 ml) を加えて、60℃で8時間加熱攪拌後に室温(25℃)まで冷却した。析出した固体をろ取し、トルエン200 ml で洗浄して、19 g の白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-g と同定した(収率83%)。

[0637] 窒素雰囲気下、300 ml の三口フラスコに、中間体M-g (15 g, 33.8 mmol)、1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾリウムクロリド(IPrHCl) (0.430 g, 1.013 mmol)、酢酸パラジウム(II) (0.114 g, 0.506 mmol)、炭酸カリウム (9.80 g, 70.9 mmol) 及びDMAc (169 ml) を加えて、140℃で6時間攪拌後に室温(25℃)まで冷却した。析出した固体をろ取し、アセトンで洗浄して、8.4 g の白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体M-h と同定した(収率69%)。

[0638] [化251]

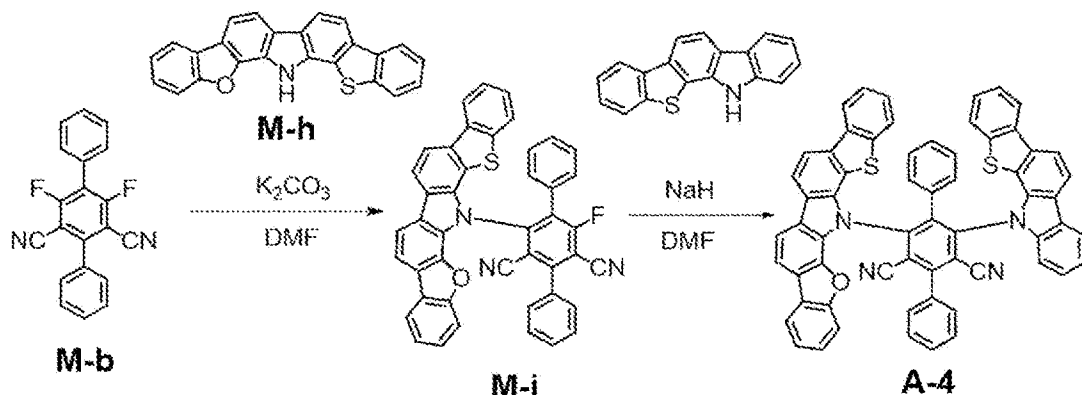


[0639] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、中間体M-h (0.532 g, 1.465 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.064 g, 1.598 mmol)、及びDMFを15 mLを入れ、0℃で30分撹拌した。次に反応混合物に中間体M-f (0.9 g, 1.332 mmol)を入れ、室温で2時間撹拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、0.7 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-3と同定した (収率52%)。

[0640] (化合物A-4の合成)

化合物A-4の合成方法を以下に説明する。

[0641] [化252]



[0642] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに中間体M-b (3 g, 9.48 mmol)、リン酸三カリウム (4.03 g, 18.97 mmol)、中間体M-h (3.45 g, 9.48 mmol) 及びDMF (47.4 mL)を入れ、60℃で4時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、4.9 gの黄色固体を得た。ASAP-MSの分析により、中間体M-iと同定した (収率78%)。

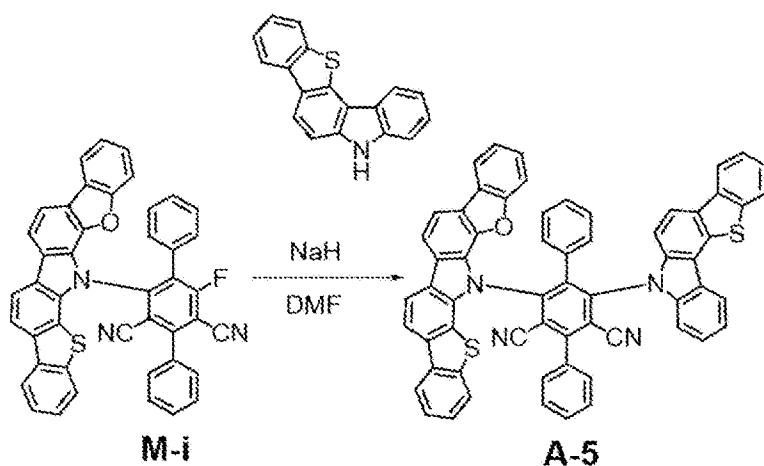
[0643] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、12H-[1] Benzo thieno [2, 3-a] carbazole (0.912 g, 3.33 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.133 g,

3.33 mmol)、及びDMF (15.16 mL)を入れ、0℃で30分撹拌した。次に反応混合物に中間体M-i (2 g, 3.03 mmol)を入れ、室温で2時間撹拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.1 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-4と同定した(収率40%)。

[0644] (化合物A-5の合成)

化合物A-5の合成方法を以下に説明する。

[0645] [化253]

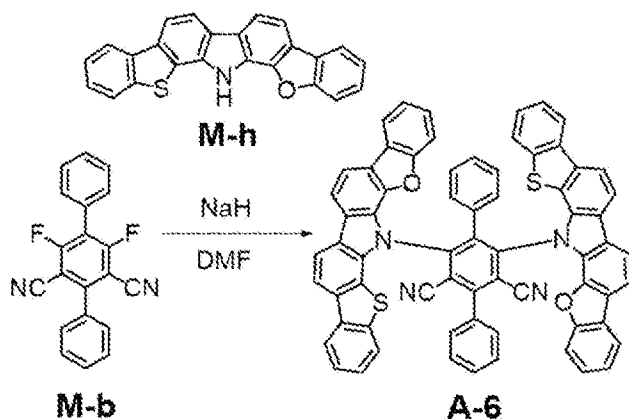


[0646] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、5H-benzo[4,5]thieno[3,2-c]carbazole (0.646 g, 2.365 mmol)、水素化ナトリウム(40質量%オイル含有) (0.095 g, 2.365 mmol)、及びDMF (19.70 mL)を入れ、0℃で30分撹拌した。次に反応混合物に中間体M-i (1.3 g, 1.970 mmol)を入れ、室温で2時間撹拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.4 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-5と同定した(収率78%)。

[0647] (化合物A-6の合成)

化合物A-6の合成方法を以下に説明する。

[0648] [化254]

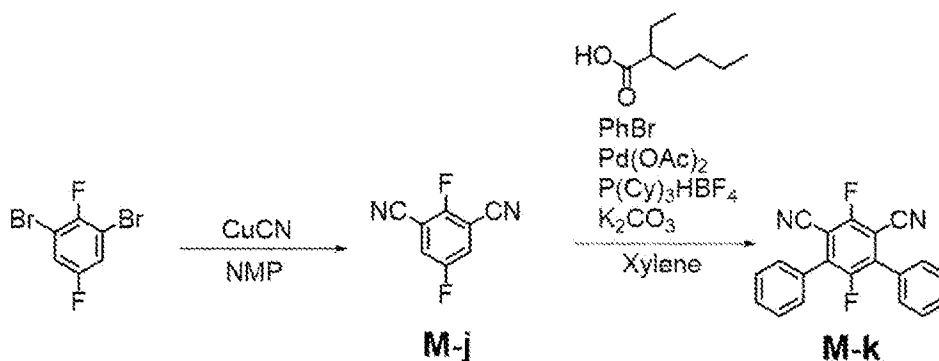


[0649] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、中間体M-h (1 g, 3.16 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.278 g, 6.96 mmol)、及びDMF (15.8 mL)を入れ、0℃で30分攪拌した。次に反応混合物に中間体M-b (2.53 g, 6.96 mmol)を入れ、100℃で2時間攪拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2.1 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-6と同定した (収率66%)。

[0650] (化合物A-7の合成)

化合物A-7の合成方法を以下に説明する。

[0651] [化255]

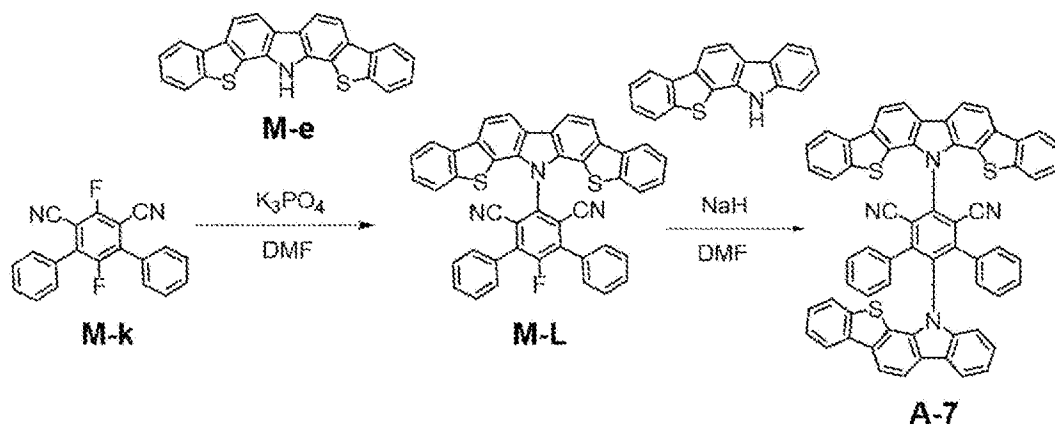


[0652] 窒素雰囲気下、1 Lの三口フラスコに、1,3-dibromo-2,5-difluorobenzene (35 g, 129 mmol)、cyan

ocopper (25.4 g, 283 mmol) 及び NMP (257 ml) を入れ、150℃で5時間攪拌した。反応混合物に塩化メチレン500 mL を加え、セライトを用いてろ過し、ろ液をエバポレーターを用いて濃縮した。濃縮後に得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、エタノールで再結晶を行い12 g の白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-j と同定した（収率57%）。

[0653] 窒素雰囲気下、300 mL の三口フラスコに、2,5-difluoroisophthalonitrile (6.3 g, 38.4 mmol)、炭酸カリウム (11.67 g, 84 mmol)、diacetoxypalladium (0.431 g, 1.919 mmol)、トリシクロヘキシルホスホニウムテトラフルオロボラート (2.120 g, 5.76 mmol)、bromobenzene (12.05 ml, 115 mmol)、2-ethylhexanoic acid (2.460 ml, 15.36 mmol) 及びXylene (80 ml) を入れ、100℃で5時間攪拌した。反応溶液に塩化メチレン100 ml を加え、セライトに通した。得られた溶液の塩化メチレンを濃縮し、沈殿した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、5.2 g の白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-k と同定した（収率43%）。

[0654] [化256]



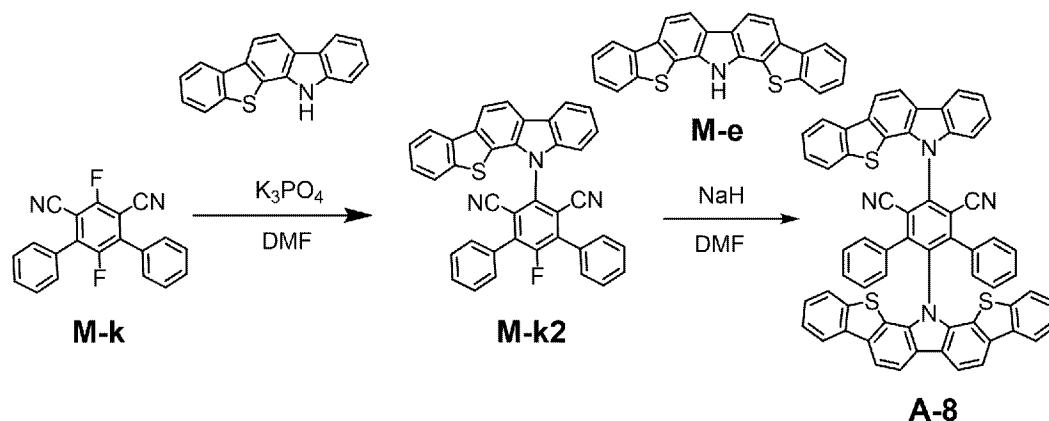
[0655] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体M-k (1.5 g, 4.74 mmol)、中間体M-e (1.8 g, 4.74 mmol)、リン酸三カリウム (3.02 g, 14.23 mmol) 及びDMF (23.71 mL) を入れ、60℃で4時間攪拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により中間体M-Lと同定した (収率62%)。

[0656] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、12H-[1] Benzo thieno [2, 3-a] carbazole (0.922 g, 3.37 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.124 g, 3.09 mmol)、及びDMF (14.06 mL) を入れ、0℃で30分攪拌した。次に反応混合物に中間体M-L (1.9 g, 2.81 mmol) を入れ、70℃で8時間攪拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.8 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-7と同定した (収率69%)。

[0657] (化合物A-8の合成)

化合物A-8の合成方法を以下に説明する。

[0658] [化257]



[0659] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体M-k (2.4 g, 7.59 mmol)、12H-[1] Benzo thieno [2, 3-a]

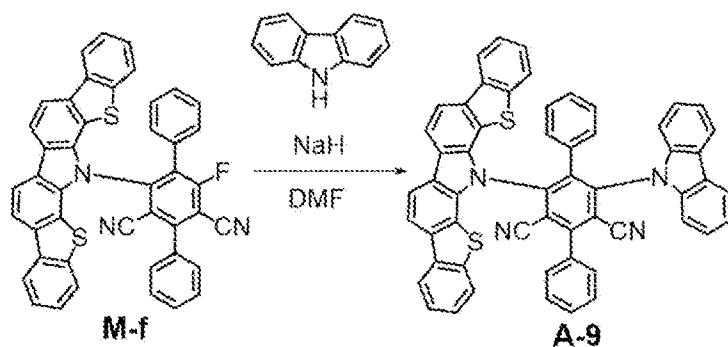
] carbazole (2.074 g, 7.59 mmol)、リン酸三カリウム (4.83 g, 22.76 mmol) 及び DMF (37.9 ml) を入れ、50℃で4時間攪拌した。反応溶液にイオン交換水100 ml を入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、4 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により中間体 M-k 2 と同定した (収率 93%)。

[0660] 窒素雰囲気下、100 mL の三口フラスコに、中間体 M-e (1.332 g, 3.51 mmol)、水素化ナトリウム (40 質量%オイル含有) (0.154 g, 3.86 mmol)、及び DMF (14.06 ml) を入れ、0℃で30分攪拌した。次に反応混合物に中間体 M-k 2 (2 g, 3.51 mmol) を入れ、170℃で14時間攪拌した。反応混合物に水50 mL を加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、0.98 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-8 と同定した (収率 30%)。

[0661] (化合物 A-9 の合成)

化合物 A-9 の合成方法を以下に説明する。

[0662] [化258]



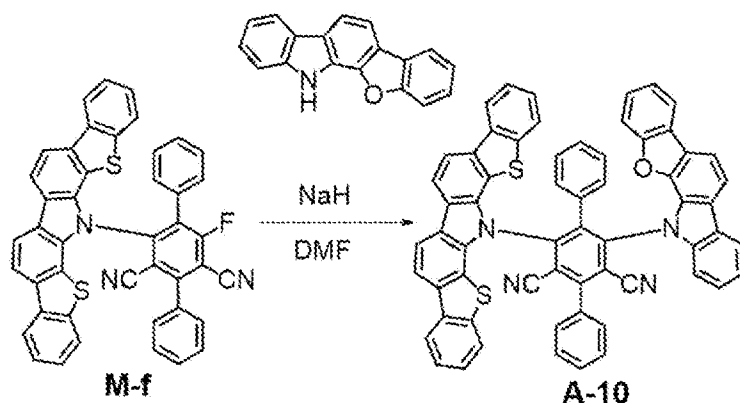
[0663] 窒素雰囲気下、100 mL の三口フラスコに、9H-carbazole (2.313 g, 13.84 mmol)、水素化ナトリウム (40 質量%オイル含有) (0.488 g, 12.21 mmol)、及び DMF (40.7 ml) を入れ、0℃で30分攪拌した。次に反応混合物に中間体 M-f (5.5 g, 8.14 mmol) を入れ、室温で2時間攪拌した。反応混合物にメタノ

ール 20 mL を加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、6.3 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-9 と同定した（収率 94 %）。

[0664] （化合物 A-10 の合成）

化合物 A-10 の合成方法を以下に説明する。

[0665] [化259]



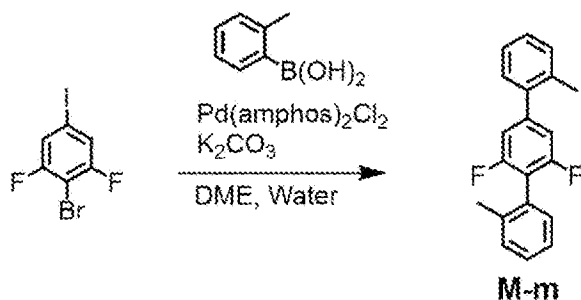
[0666] 窒素雰囲気下、100 mL の三口フラスコに 12H-benzofuro[2,3-a]carbazole (1.466 g, 5.70 mmol)、水素化ナトリウム（40 質量%オイル含有）（0.228 g, 5.70 mmol）、及び DMF（17.26 mL）を入れ、0℃で30分撹拌した。次に反応混合物に中間体 M-f（3.5 g, 5.18 mmol）を入れ、室温で2時間撹拌した。反応混合物にメタノール 20 mL を加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3.7 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-10 と同定した（収率 78 %）。

[0667] （化合物 A-11 の合成）

化合物 A-11 の合成方法を以下に説明する。

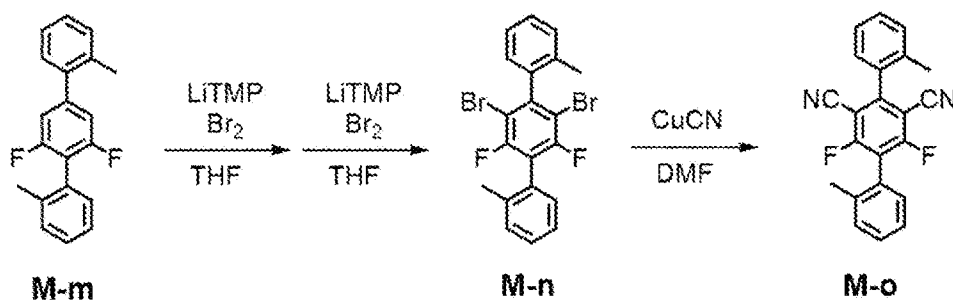
[0668]

[化260]



[0669] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、5-bromo-1,3-difluoro-2-iodobenzene (4.00 g, 12.54 mmol)、o-tolylboronic acid (3.75 g, 27.60 mmol)、炭酸カリウム (10.40 g, 75.00 mmol)、ビス[ジ tert-ブチル (4-ジメチルアミノフェニル) ホスフィン]ジクロロパラジウム (0.266 g, 0.376 mmol)、DME (66.9 mL) 及びイオン交換水 (16.7 mL) を入れ、90℃で5時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、酢酸エチルで有機層を抽出し、抽出した有機層を水および食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体M-m (3.50 g, 11.9 mmol、収率95%)を得た。

[0670] [化261]



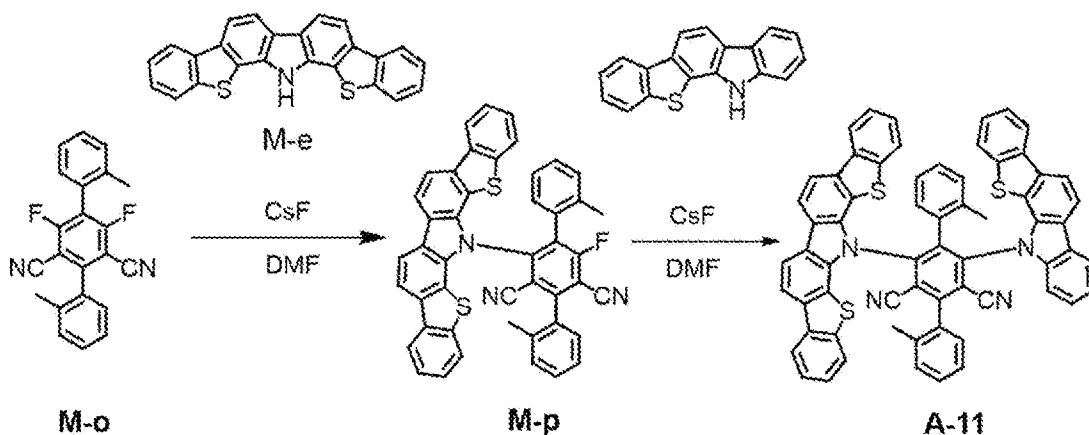
[0671] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、2,2,6,6-Tetramethylpiperidine (2.428 mL, 14.27 mmol)、及びTHF (20 mL) を加えた。ドライアイス/アセトンバスで

、三口フラスコ内の材料を -78°C まで冷却してから、*n*-ブチルリチウムを 14.3 mL (1.6 M , *hexane* 溶液) 滴下した。 0°C で 20 分攪拌し、 -78°C まで冷却した後、中間体M-m (3.5 g , 11.89 mmol) を $\text{THF } 20\text{ mL}$ に溶かした溶液を加え、 15 分攪拌した。攪拌後、溶液に臭素 (1.218 mL , 23.78 mmol) を加え、室温に戻してから 20 分攪拌した。攪拌後、溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液 (100 mL) を加え、ヘキサンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに通し、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。得られた液体を $\text{THF } 20\text{ mL}$ に溶かして調製した溶液を、再度調製したLiTMPの THF 溶液に -78°C で滴下して 15 分攪拌した。そこに臭素 (0.77 mL , 15.0 mmol) を加え、室温に戻してから 20 分攪拌した。攪拌後の溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液 (100 mL) を加え、ヘキサンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体M-n (2.75 g , 6.07 mmol 、収率 51%) を得た。LiTMPは、リチウム2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジドの略称である。

[0672] 窒素雰囲気下、 1 L の三口フラスコに、中間体M-n (2.75 g , 6.07 mmol)、*cyanocopper* (1.31 g , 14.6 mmol) 及びDMF (66 mL) を入れ、 150°C で 5 時間攪拌した。反応混合物に塩化メチレン 500 mL を加え、セライトを用いてろ過し、ろ液をエバポレーターにて濃縮した。濃縮後に得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、 1.0 g の白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-oと同定した (収率 44%)。

[0673]

[化262]



[0674] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに中間体M-o (1.0 g, 2.90 mmol)、フッ化セシウム (1.32 g, 8.71 mmol)、中間体M-e (1.1 g, 2.90 mmol) 及びDMF (10.0 mL) を入れ、室温で20時間攪拌した。反応溶液にイオン交換水50 mL 入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.5 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体M-p と同定した (収率75%)。

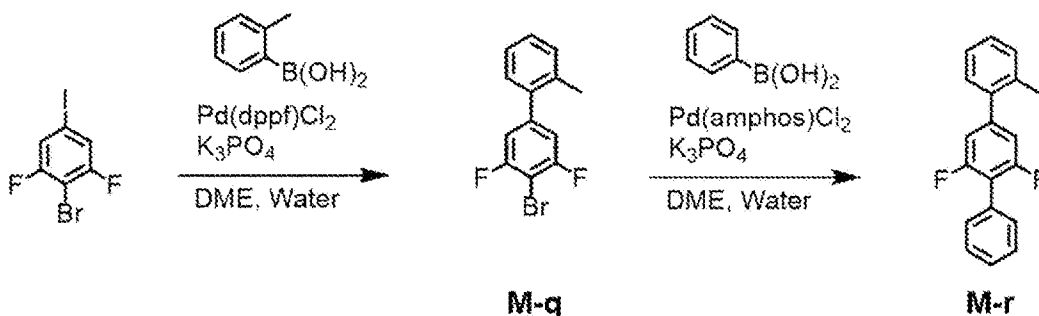
[0675] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、中間体M-p (1.54 g、2.20 mmol)、12H-[1] Benzo thieno [2,3-a] carbazole (0.718 g, 2.63 mmol)、フッ化セシウム (1.00 g, 6.56 mmol)、及びDMF (11.0 mL) を入れ、50℃で1時間攪拌した。反応混合物に水50 mL を加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.62 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-11 と同定した (収率77%)。

[0676] (化合物A-12の合成)

化合物A-12の合成方法を以下に説明する。

[0677]

[化263]

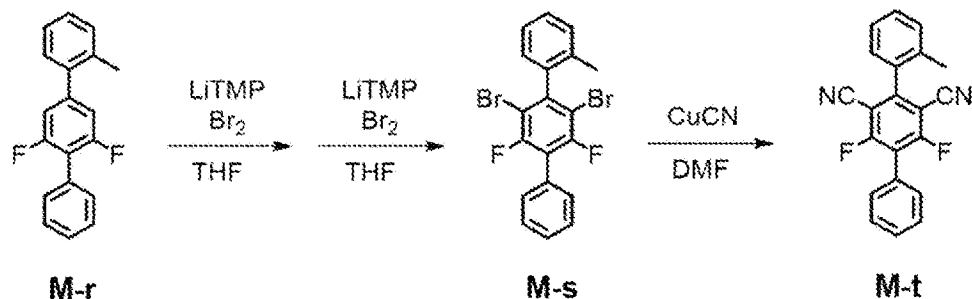


[0678] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、5-bromo-1,3-difluoro-2-iodobenzene (5.00 g, 15.68 mmol)、o-tolylboronic acid (2.13 g, 15.68 mmol)、リン酸カリウム (9.98 g, 47.00 mmol)、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム(II)ジクロロメタン付加物 (0.128 g, 0.157 mmol)、DME (84.1 mL) 及びイオン交換水 (20.9 mL) を入れ、室温で1時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、酢酸エチルで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体M-q (3.47 g, 12.3 mmol、収率78%)を得た。

[0679] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体M-q (3.47 g, 12.3 mmol)、phenylboronic acid (2.26 g, 18.54 mmol)、リン酸カリウム (7.87 g, 37.1 mmol)、ビス[ジ tert-ブチル(4-ジメチルアミノフェニル)ホスフィン]ジクロロパラジウム(II) (0.101 g, 0.124 mmol)、DME (65.9 mL) 及びイオン交換水 (16.5 mL) を入れ、60℃で2時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、酢酸エチルで有機層を抽出し、抽出した有機層を水および食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧

除去した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体M-r (3.15 g, 11.2 mmol、収率90%)を得た。

[0680] [化264]

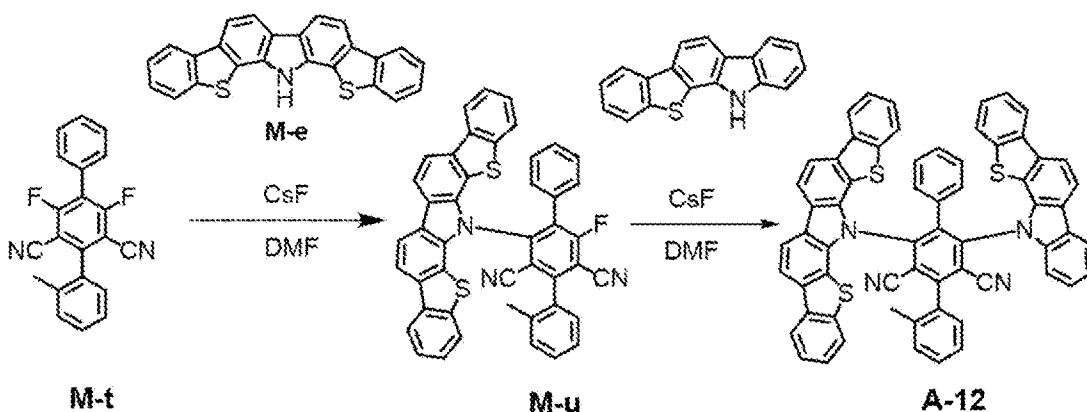


[0681] 窒素雰囲気下、200 mlの三口フラスコに、2, 2, 6, 6-Tetramethylpiperidine (3.19 ml, 18.73 mmol) 及びTHF (40 ml)を加えた。ドライアイス／アセトンバスで、三口フラスコ内の材料を−78℃まで冷却してから、n-ブチルリチウムを18.7 ml (1.6 M, hexane溶液)滴下した。0℃で20分攪拌し、−78℃まで冷却した後、中間体M-r (3.15 g, 11.2 mmol)をTHF 20 mlに溶かした溶液を加え、15分攪拌した。攪拌後、溶液に臭素 (1.28 ml, 25.0 mmol)を加え、室温に戻してから20分攪拌した。攪拌後、溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液 (100 mL)を加え、ヘキサンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに通し、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。得られた液体をTHF 20 mlに溶かして調製した溶液を、再度調製したLiTMPのTHF溶液に−78℃で滴下して15分攪拌した。そこに臭素 (1.28 ml, 25.0 mmol)を加え、室温に戻してから20分攪拌した。攪拌後、溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液 (100 mL)を加え、ヘキサンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及

び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体M-s (4.16 g, 9.51 mmol、収率85%)を得た。

[0682] 窒素雰囲気下、1 Lの三口フラスコに、中間体M-s (4.16 g, 9.51 mmol)、cyanocopper (2.20 g, 24.6 mmol) 及びDMF (112 mL) を入れ、160℃で10時間攪拌した。反応混合物に塩化メチレン500 mLを加え、セライトを用いてろ過し、ろ液をエバポレーターにて濃縮した。濃縮後に得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、1.57 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-tと同定した（収率42%）。

[0683] [化,265]



[0684] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに中間体M-t (1.0 g, 3.03 mmol)、フッ化セシウム (1.38 g, 9.08 mmol)、中間体M-e (1.15 g, 3.03 mmol) 及びDMF (15.0 mL) を入れ、室温で20時間攪拌した。反応溶液にイオン交換水50 mL を入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.55 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体M-uと同定した(収率74%)。

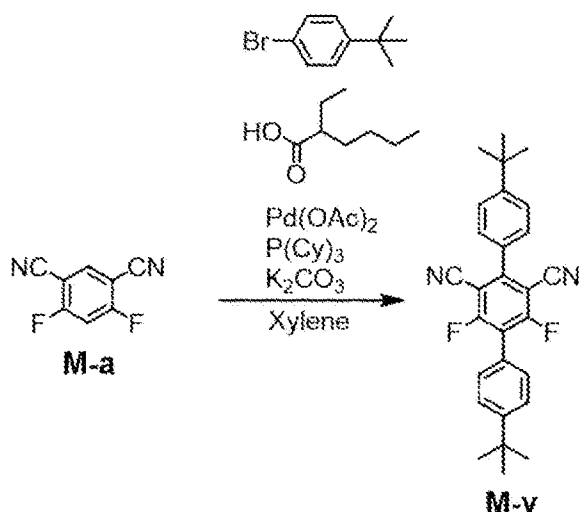
[0685] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、中間体M-u (1.55 g、2.25 mmol)、12H-[1] Benzo thieno [2,3-

a] carbazole (0.737 g, 2.70 mmol)、フッ化セシウム (1.02 g, 6.74 mmol)、及びDMF (11.0 ml) を入れ、50℃で1時間攪拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.6 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-12と同一とした(収率75%)。

[0686] (化合物A-13の合成)

化合物A-13の合成方法を以下に説明する。

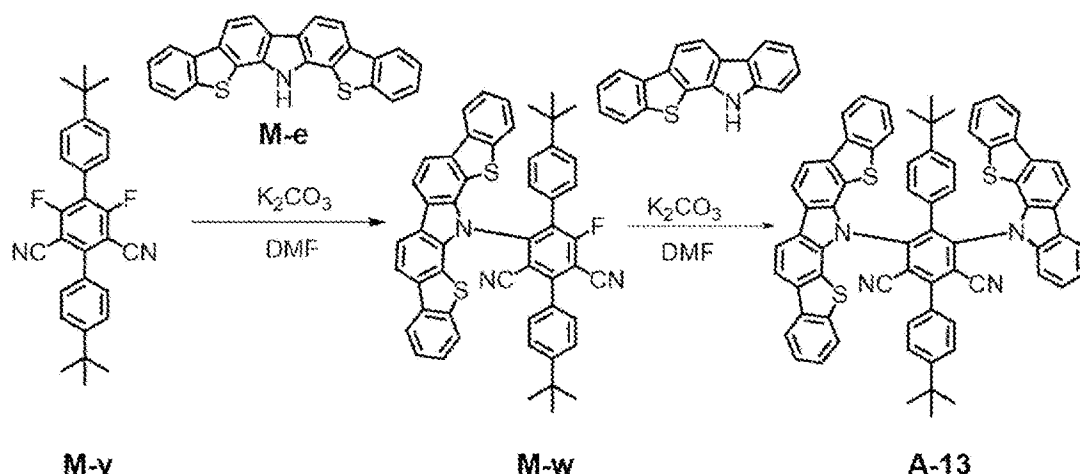
[0687] [化266]



[0688] 窒素雰囲気下、500 mLの三口フラスコに、中間体M-a (20 g, 122 mmol)、diacetoxypalladium (1.368 g, 6.09 mmol)、トリシクロヘキシルホスフィン (5.13 g, 18.28 mmol)、炭酸カリウム (42.1 g, 305 mmol) 及びXylene (244 ml) を加え、室温で30分攪拌した。その後、2-ethylhexanoic acid (7.81 ml, 48.7 mmol) 及び1-bromo-4-(tert-butyl)benzene (45.7 ml, 268 mmol) を入れ、100℃で5時間攪拌した。反応溶液を室温に戻し、塩化メチレン200 mlを加え、セライトに通した。得られた溶液の塩化メチレンを除去し、沈殿した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、36 gの白色固体を得た。得ら

れた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-vと同定した（収率69％）。

[0689] [化267]



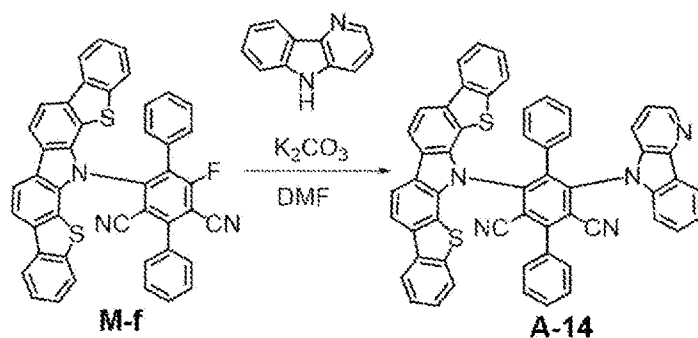
[0690] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体M-v（7.2 g, 16.80 mmol）、中間体M-e（6.38 g, 16.80 mmol）、炭酸カリウム（4.64 g, 33.6 mmol）及びDMF（56.0 mL）を入れ、100℃で4時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、12 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により中間体M-wと同定した（収率91％）。

[0691] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、中間体M-w（3 g, 3.81 mmol）、12H-benzo[4,5]thieno[2,3-a]carbazole（1.249 g, 4.57 mmol）、炭酸カリウム（0.789 g, 5.71 mmol）及びDMF（12.69 mL）を入れ、120℃で4時間撹拌した。反応混合物に水50 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3.5 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-13と同定した（収率88％）。

[0692] （化合物A-14の合成）

化合物A-14の合成方法を以下に説明する。

[0693] [化268]

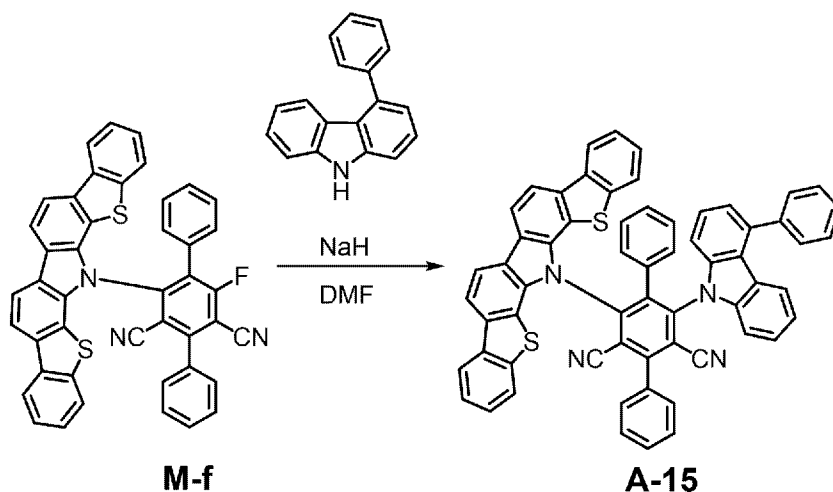


[0694] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、5H-pyrido[3,2-b]indole (0.684 g, 4.07 mmol)、炭酸カリウム (0.614 g, 4.44 mmol)、中間体M-f (2.5 g, 3.70 mmol) 及びDMF (12.33 mL) を入れ、140℃で4時間撹拌した。反応混合物にメタノール20 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3.1 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-14と同定した (収率88%)。

[0695] (化合物A-15の合成)

化合物A-15の合成方法を以下に説明する。

[0696] [化269]



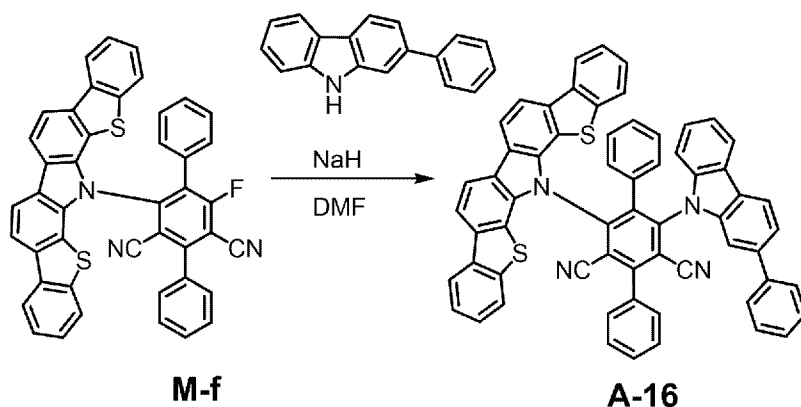
[0697] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、4-phenyl-9H-carbazole (1.1 g, 4.44 mmol)、水素化ナトリウム (

40質量%オイル含有) (0.18g, 4.44mmol)、及びDMF (37ml) を入れ、0℃で1時間攪拌した。次に0℃で中間体M-f (2.5g, 3.70mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で攪拌した。攪拌後、反応混合物にイオン交換水を30ml加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-15と同定した(収率72%)。

[0698] (化合物A-16の合成)

化合物A-16の合成方法を以下に説明する。

[0699] [化270]

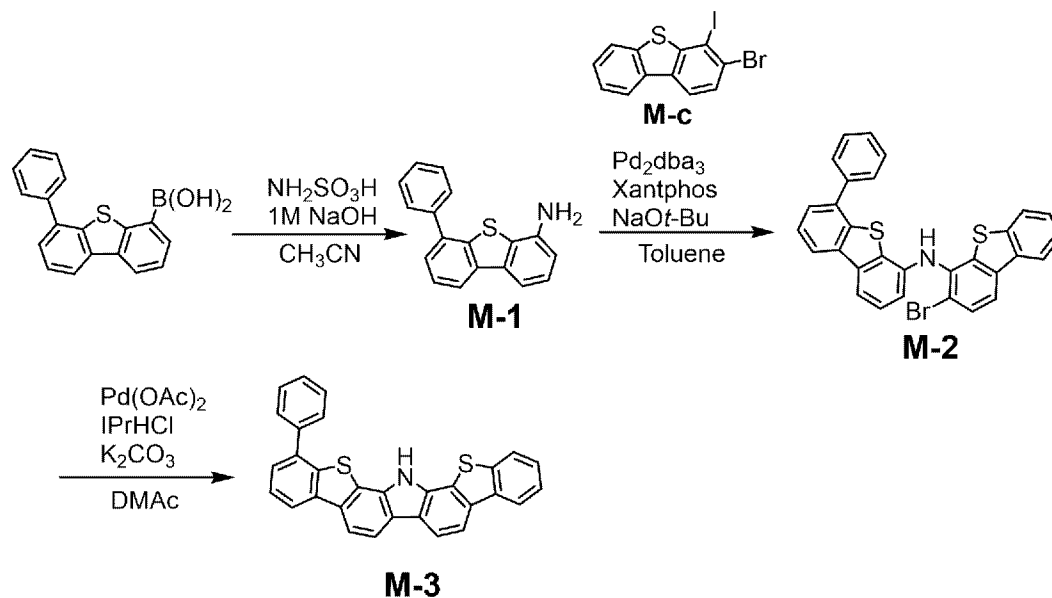


[0700] 窒素雰囲気下、100mLの三口フラスコに、2-phenyl-9H-carbazole (1.1g, 4.44mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.18g, 4.44mmol)、及びDMF (37ml) を入れ、0℃で1時間攪拌した。次に0℃で中間体M-f (2.5g, 3.70mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で攪拌した。反応混合物にイオン交換水を30ml加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-16と同定した(収率63%)。

[0701] (化合物A-17の合成)

化合物A-17の合成方法を以下に説明する。

[0702] [化271]



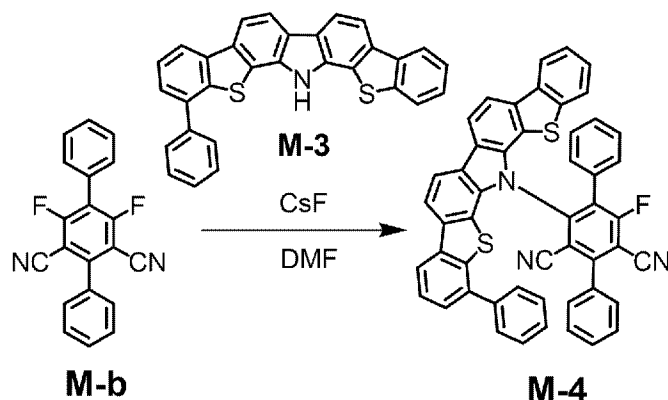
[0703] 窒素雰囲気下、1000mLの三口フラスコに、Boronic acid, B-(6-phenyl-4-dibenzothiophenyl)-(40g, 132mmol)、スルファミン酸(29.7g, 263mmol)、Acetonitrile(658ml)、及び水酸化ナトリウム(1M)(881ml, 881mmol)を入れて室温で24時間攪拌した。攪拌後、トルエンを用いて抽出し、有機層を回収した。次日に、回収した有機層をエバポレーターを用いて、溶媒を除去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し17gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-1と同定した(収率48%)。

[0704] 窒素雰囲気下、500mlの三口フラスコに中間体M-1(10.6g, 38.6mmol)、中間体M-c(15g, 38.6mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)(0.353g, 0.386mmol)、Xantphos(1.13g, 1.54mmol)、ナトリウムtert-ブトキシド(5.56g, 57.8mmol)及びToluene(129ml)を加えて、100℃で8時間加熱攪拌後に室温(25℃)まで冷却した。冷却後に得られた溶液をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、25gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MS

の分析により中間体M-2と同定した（収率77％）。

[0705] 窒素雰囲気下、200mlの三口フラスコに、中間体M-2（8.5g, 15.84mmol）、1,3-ビス（2,6-ジイソプロピルフェニル）イミダゾリウムクロリド（IPrHCl）（0.202g, 0.475mmol）、酢酸パラジウム（II）（0.053g, 0.238mmol）、炭酸カリウム（4.60g, 33.3mmol）及びN,N-ジメチルアセトアミド（DMAc）（52.8ml）を加えて、160℃で10時間攪拌後に室温（25℃）まで冷却した。析出した固体をろ取し、メタノールで洗浄し7.2gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体M-3と同定した（収率73％）。

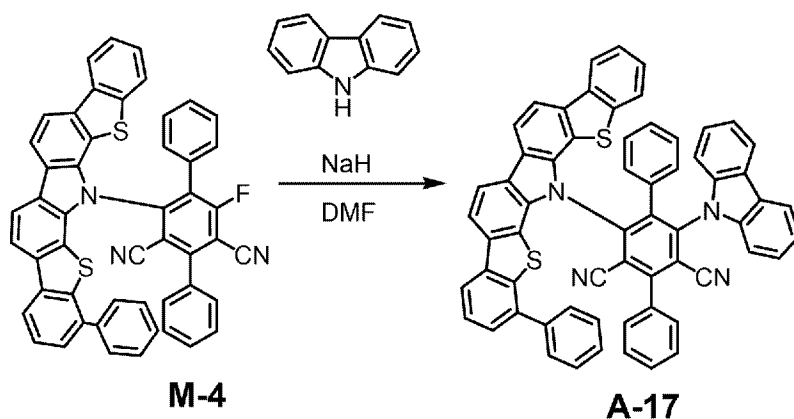
[0706] [化272]



[0707] 窒素雰囲気下、100mLのナスフラスコに中間体M-3（4.0g, 8.8mmol）、フッ化セシウム（2.7g, 17.6mmol）、中間体M-b（2.9g, 9.22mmol）及びDMF（30ml）を入れ、室温で12時間攪拌した。攪拌後、反応溶液にイオン交換水50mlを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、5.5gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体M-4と同定した（収率83％）。

[0708]

[化273]

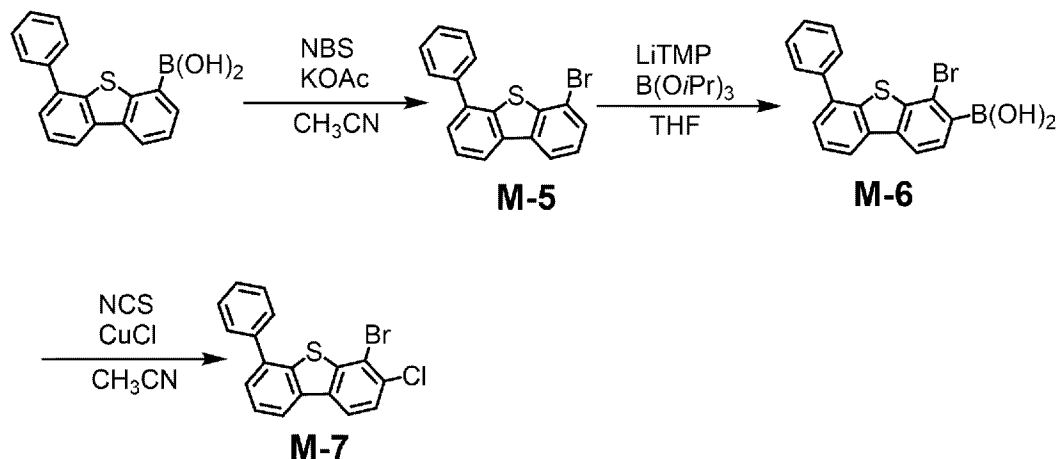


[0709] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、9H-carbazole (1.0 g, 45.98 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.24 g, 5.98 mmol)、及びDMF (40 mL)を入れ、0℃で1時間撹拌した。次に0℃で中間体M-4 (3.0 g, 3.99 mmol)を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で撹拌した。撹拌後、反応混合物にイオン交換水を30 mL加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体2.9 gを得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-17と同定した (収率81%)。

[0710] (化合物A-18の合成)

化合物A-18の合成方法を以下に説明する。

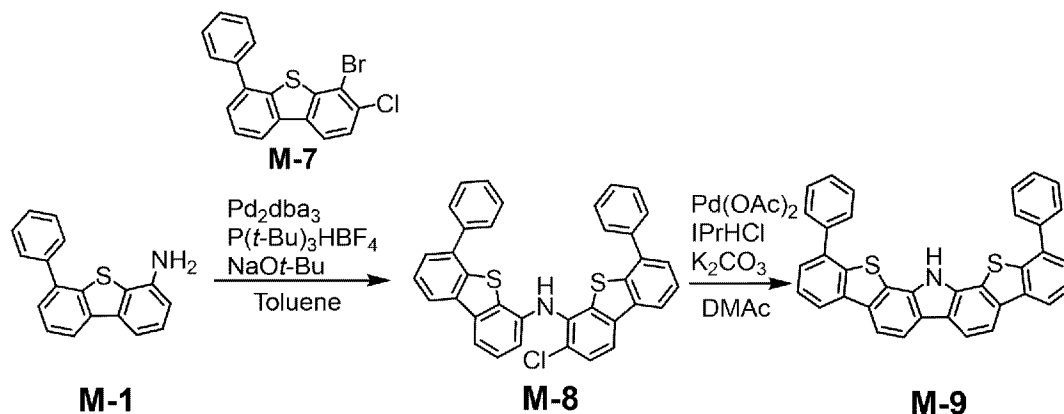
[0711] [化274]



- [0712] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに、Boronic acid, B-(6-phenyl-4-dibenzothienyl)- (50 g, 164 mmol)、N-ブロモスクシンイミド (NBS) (32.2 g, 181 mmol)、酢酸カリウム (KOAc) (3.23 g, 32.9 mmol) 及びアセトニトリル (470 mL) を入れ、50℃で6 攪拌時間した。攪拌後、反応混合物にイオン交換水を400 mL 加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し44 gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体M-5と同定した (収率79%)。
- [0713] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに2, 2, 6, 6-tetramethylpiperidine (26.1 mL, 153 mmol) 及びTHF (236 mL) を入れ、アイスバスを用いて0℃まで氷冷した。氷冷後の反応溶液にノルマルブチルリチウム (1.6 Mヘキサン溶液) (96 mL, 153 mmol) を滴下した。滴下後、0℃で30分間攪拌した。次にドライアイス/メタノールバスを用いて-78℃まで冷却した。冷却後、triisopropyl borate (33.3 g, 177 mmol)、中間体M-5 (40 g, 118 mmol) の順に入れ、-78℃から室温までゆっくりと昇温しながら攪拌した。反応終了後、塩酸10%を100 mL 滴下した。滴下後、有機層を回収し、得られた固体をトルエンで洗浄して、40 gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体M-6と同定した (収率89%)。
- [0714] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに、中間体M-6 (40 g, 104 mmol)、N-クロロスクシンイミド (NCS) (13.94 g, 104 mmol)、copper (I) chloride (10.34 g, 104 mmol) 及びAcetonitrile (348 mL) を入れ、60℃で6 攪拌時間した。反応混合物に塩化メチレンを300 mL 加え、セライトに通し、得られた溶液を濃縮した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し28 gの白色固体を得た。得られた白色固体をA

SAP-MSの分析により中間体M-7と同定した（収率72％）。

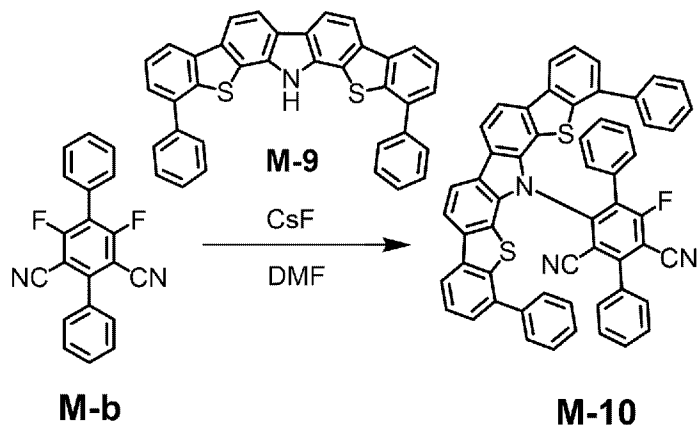
[0715] [化275]



[0716] 窒素雰囲気下、100mlの三口フラスコに中間体M-1（3.5g、12.6mmol）、中間体M-7（4.7g、12.6mmol）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（0）（0.353g、0.386mmol）、トリ-tert-ブチルホスホニウムテトラフルオロボレート（0.17g、0.19mmol）、ナトリウムtert-ブトキシド（1.8g、19.0mmol）及びToluene（42ml）を加えて、60℃で8時間加熱攪拌後に室温（25℃）まで冷却した。得られた溶液をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、5gの白色固体を得た。得られた白色固体をSAP-MSの分析により中間体M-8と同定した（収率70％）。

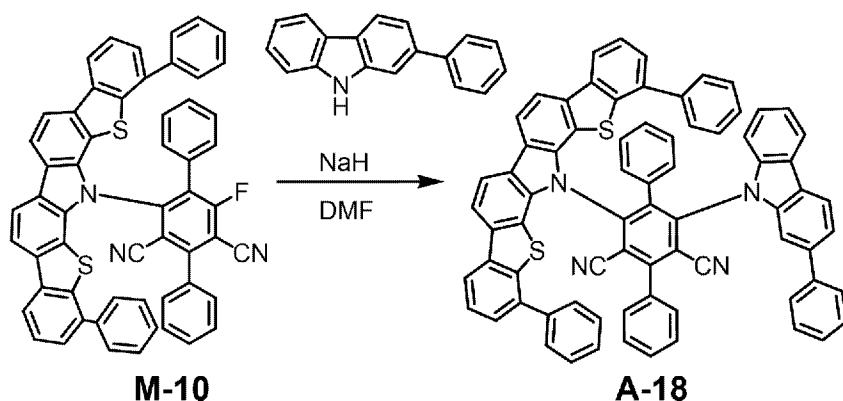
[0717] 窒素雰囲気下、500mlの三口フラスコに、中間体M-8（25g、44mmol）、1,3-ビス（2,6-ジイソプロピルフェニル）イミダゾリウムクロリド（IPrHCl）（0.202g、0.475mmol）、酢酸パラジウム（II）（0.15g、0.66mmol）、炭酸カリウム（13g、92mmol）及びN,N-ジメチルアセトアミド（DMAc）（220ml）を加えて、160℃で10時間攪拌後に室温（25℃）まで冷却した。析出した固体をろ取し、メタノールで洗浄し18gの白色固体を得た。得られた白色固体をSAP-MSの分析により中間体M-9と同定した（収率77％）。

[0718] [化276]



[0719] 窒素雰囲気下、500 mL のナスフラスコに中間体M-9 (18 g, 8.8 mmol)、フッ化セシウム (7.7 g, 51 mmol)、中間体M-b (11 g, 35.5 mmol) 及びDMF (230 mL) を入れ、室温で12時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水200 mL を入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、20 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体M-10と同定した (収率71%)。

[0720] [化277]



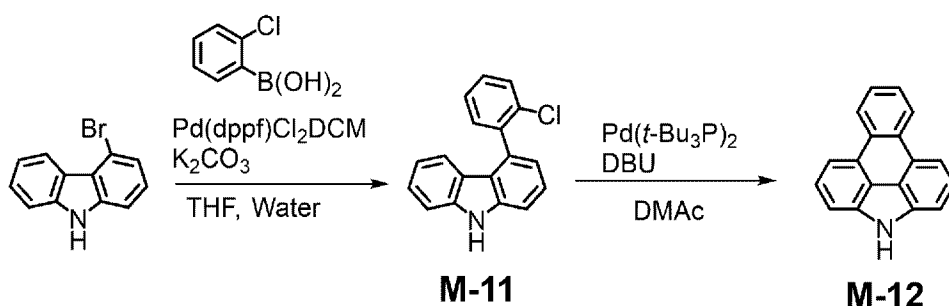
[0721] 窒素雰囲気下、100 mL の三口フラスコに、2-phenyl-9H-carbazole (1.4 g, 5.80 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.23 g, 5.80 mmol)、及びDMF (50 mL) を入れ、0℃で1時間撹拌した。次に0℃で中間体M-10 (4

． 0 g， 4． 8 3 m m o l） を入れ、 ゆっくりと室温まで昇温し、 更に 1 時間室温で撹拌した。 反応混合物にイオン交換水を 3 0 m l 加え、 析出した固体をろ取した。 得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、 黄色固体 2． 9 g を得た。 得られた黄色固体を A S A P－M S の分析により化合物 A－1 8 と同定した（収率 8 9 %）。

[0722] （化合物 A－1 9 の合成）

化合物 A－1 9 の合成方法を以下に説明する。

[0723] [化278]

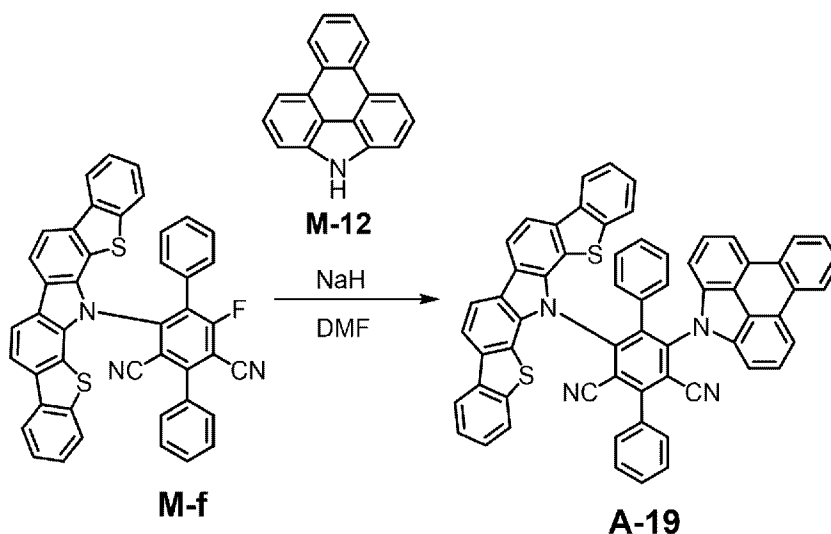


[0724] 窒素雰囲気下、5 0 0 m L の三口フラスコに、4－b r o m o－9 H－c a r b a z o l e（6 6． 6 g， 2 7 1 m m o l）、（2－c h l o r o p h e n y l） b o r o n i c a c i d（4 4． 4 g， 2 8 4 m m o l）、炭酸カリウム（5 6． 1 g， 4 0 6 m m o l）、[1， 1 ‘－ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン]ジクロロパラジウム（I I）ジクロロメタン付加物（1． 1 g， 1． 3 5 m m o l）、T H F（2 0 0 m l）及びイオン交換水（6 5 m l）を入れ、室温で8時間撹拌した。撹拌後、反応溶液を濃縮した。濃縮後の反応溶液にイオン交換水 1 0 0 m l を入れ、トルエンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し白色固体を得た。得られた白色固体を A S A P－M S を用いて中間体 M－1 1 と同定した（収率 9 6 %）。

[0725] 窒素雰囲気下、1 0 0 m l の三口フラスコに、中間体 M－1 1（6 g， 2 1． 6 m m o l）、ジアザビシクロウンデセン（D B U）（9． 6 7 m l，

64. 8 mmol)、ビス(トリート-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0) (0.552 g, 1.080 mmol) 及びN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc) (22 ml) を加えて、20時間加熱攪拌還流をおこなった。反応終了後にイオン交換水100 mlを入れ、トルエンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、白色固体2.8 gを得た。得られた白色固体をASAP-MSを用いて中間体M-12と同定した(収率54%)。

[0726] [化,279]

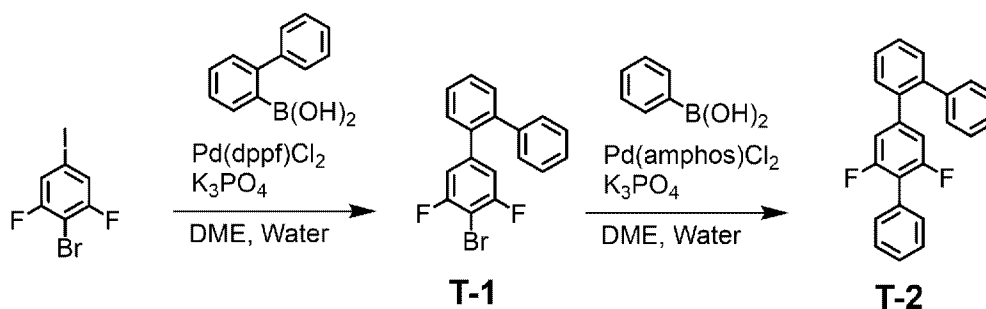


[0727] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体M-12 (1.29 g, 5.33 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.21 g, 5.33 mmol)、及びDMF (45 mL)を入れ、0℃で1時間攪拌した。次に0℃で中間体M-f (3.0 g, 4.44 mmol)を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを50 mL加え、固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体を3.4 g得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-19と同定した (収率85%)。

[0728] (化合物A-20の合成)

化合物A-20の合成方法を以下に説明する。

[0729] [化280]

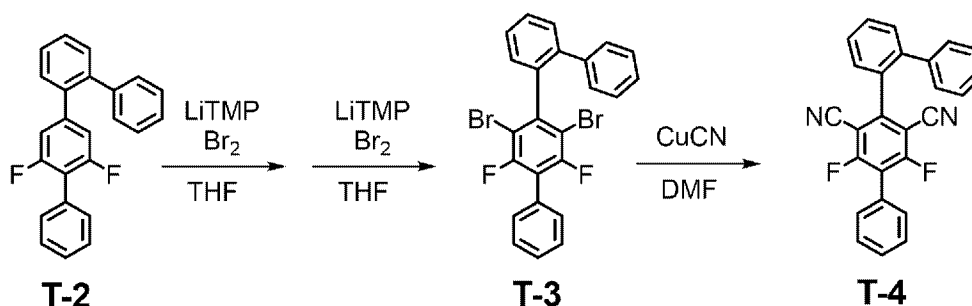


[0730] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、2-bromo-1,3-difluoro-5-iodobenzene (7.00 g, 21.95 mmol)、[1,1'-biphenyl]-2-ylboronic acid (4.78 g, 24.15 mmol)、リン酸カリウム (13.98 g, 65.90 mmol)、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム (I)ジクロロメタン付加物 (0.359 g, 0.439 mmol)、DME (117 mL) 及びイオン交換水 (29 mL) を入れ、室温で8時間撹拌した。反応溶液を濃縮後、イオン交換水 20 mL を入れ、ジクロロメタンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体T-1 (6.97 g, 20.05 mmol、収率91%) を得た。

[0731] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体T-1 (6.97 g, 20.05 mmol)、phenylboronic acid (2.95 g, 24.23 mmol)、炭酸カリウム (12.86 g, 60.6 mmol)、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム (I)ジクロロメタン付加物 (0.330 g, 0.404 mmol)、DME (108 mL) 及びイオン交換水 (26.9 mL) を入れ、60℃で4時間撹拌した。反応溶液を濃縮後、イオン交換水 20 mL を入れ、

ジクロロメタンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体 T-2 (6.23 g, 18.1 mmol、収率 90%) を得た。

[0732] [化281]

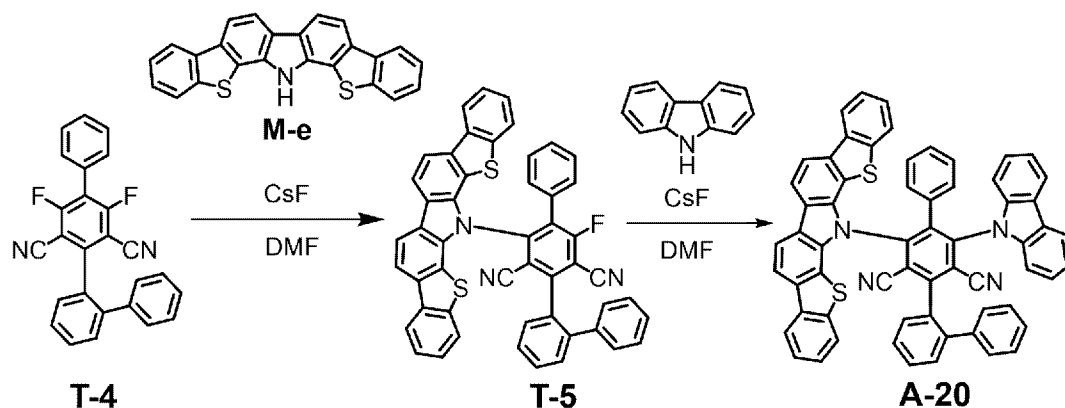


[0733] 窒素雰囲気下、200 ml の三口フラスコに、2,2,6,6-Tetramethylpiperidine (6.16 ml, 36.2 mmol) 及び THF (60 ml) を加えた。ドライアイス/アセトンバスで、三口フラスコ内の材料を -78°C まで冷却した後、n-ブチルリチウムを 22.6 ml (1.6 M, hexane 溶液) 滴下した。 0°C で 20 分攪拌し、 -78°C まで冷却した後、中間体 T-2 (6.2 g, 18.1 mmol) を THF 60 ml に溶かした溶液を三口フラスコに加え、20 分攪拌した。反応溶液に臭素 (2.32 ml, 45.0 mmol) を加え、室温に戻してから 20 分攪拌した。反応溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液 (100 mL) を加え、酢酸エチルにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに通し、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。得られた液体を THF 60 ml に溶かし、再度調製した LiTMP の THF 溶液に -78°C で滴下して 15 分攪拌した。反応溶液に臭素 (2.32 ml, 45.0 mmol) を加え、室温に戻してから 20 分攪拌

した。反応溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液（１００ｍＬ）を加え、ヘキサンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し、中間体Ｔ－３（８．１ｇ，１６．２ｍｍｏｌ、収率８９％）を得た。

[0734] 窒素雰囲気下、１Ｌの三口フラスコに、中間体Ｔ－３（８．１ｇ，１６．２ｍｍｏｌ）、cyanocopper（３．１９ｇ，３５．６ｍｍｏｌ）及びNMP（１６２ｍｌ）を入れ、１８０℃で１０時間攪拌した。反応混合物に塩化メチレン５００ｍＬを加え、セライトを用いてろ過し、ろ液をエバポレーターにて濃縮した。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、１．７４ｇの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体Ｔ－４と同定した（収率２７％）。

[0735] [化282]



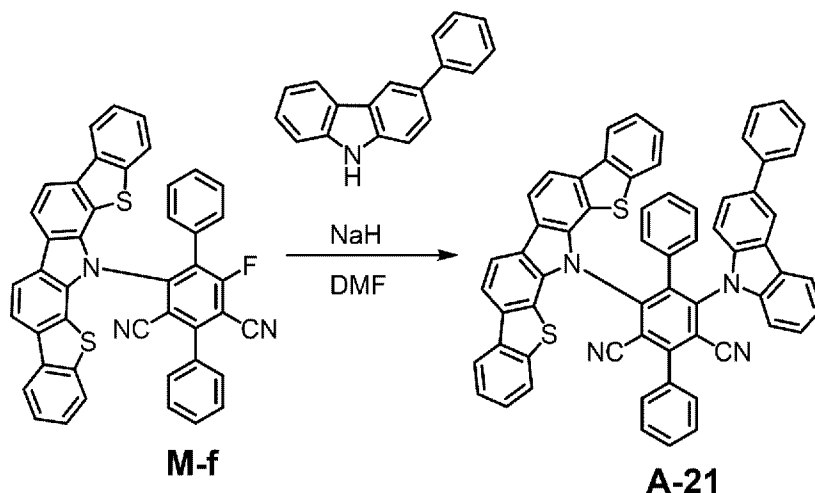
[0736] 窒素雰囲気下、１００ｍＬのナスフラスコに中間体Ｔ－４（１．９５ｇ，４．９７ｍｍｏｌ）、フッ化セシウム（２．２７ｇ，１４．９ｍｍｏｌ）、中間体Ｍ－ｅ（１．８９ｇ，４．９７ｍｍｏｌ）及びDMF（４９．７ｍｌ）を入れ、室温で２０時間攪拌した。反応溶液にイオン交換水５０ｍｌを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、２．９ｇの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体Ｔ－５と同定した（収率７８％）。

[0737] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、中間体 T-5 (1.5 g、2.00 mmol)、9H-carbazole (0.567 g、3.39 mmol)、フッ化セシウム (0.909 g、5.98 mmol)、及び DMF (20 mL) を入れ、80℃で4時間攪拌した。反応混合物にメタノール 200 mL を加え、析出した固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、0.9 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-20 と同定した (収率 50%)。

[0738] (化合物 A-21 の合成)

化合物 A-21 の合成方法を以下に説明する。

[0739] [化283]

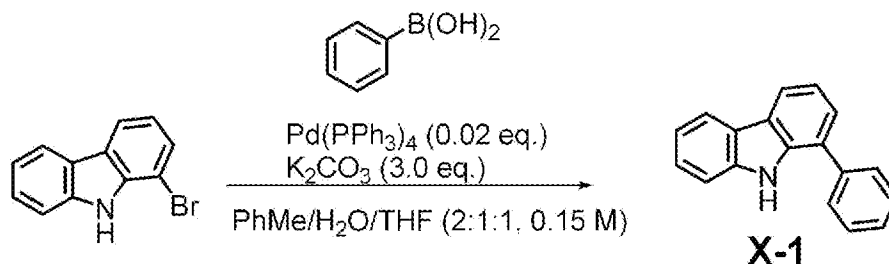


[0740] 窒素雰囲気下、100 mL の三口フラスコに、3-phenyl-9H-carbazole (1.1 g、4.44 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.18 g、4.44 mmol) 及び DMF (37 mL) を入れ、0℃で1時間攪拌した。次に反応溶液に0℃で中間体 M-f (2.5 g、3.70 mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で攪拌した。反応混合物にイオン交換水を30 mL 加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体 2.7 g を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-21 と同定した (収率 81%)。

[0741] (化合物 A-22 の合成)

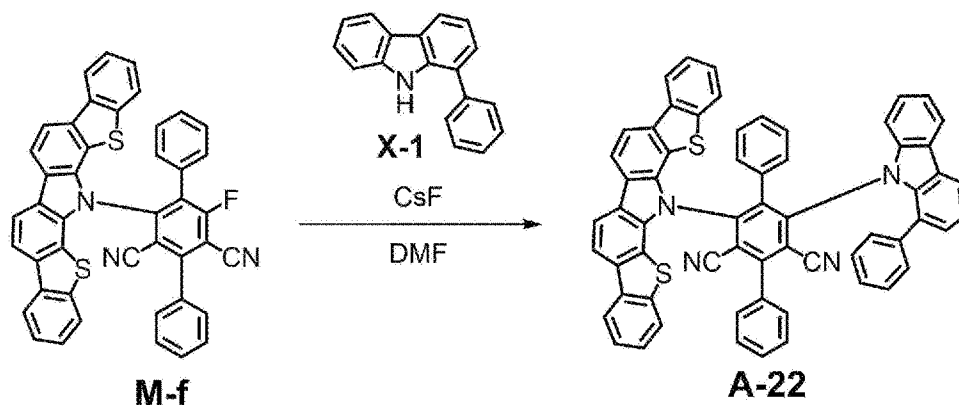
化合物 A-22 の合成方法を以下に説明する。

[0742] [化284]



[0743] 窒素雰囲気下、500 mL の三口フラスコに、1-ブロモ-9H-カルバゾール (10 g, 40.6 mmol)、phenylboronic acid (7.43 g, 60.9 mmol)、炭酸カリウム (16.85 g, 122 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0.939 g, 0.813 mmol)、トルエン (135 mL)、THF (67.7 mL) 及びイオン交換水 (67.7 mL) を入れ、100℃で5時間撹拌した。室温に放冷後、反応溶液にイオン交換水を加え、トルエンで有機層を抽出した。有機層を硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン/ジクロロメタン=80%:20%) によって精製し、中間体 X-1 (8.50 g, 34.9 mmol、収率86%) を得た。

[0744] [化285]

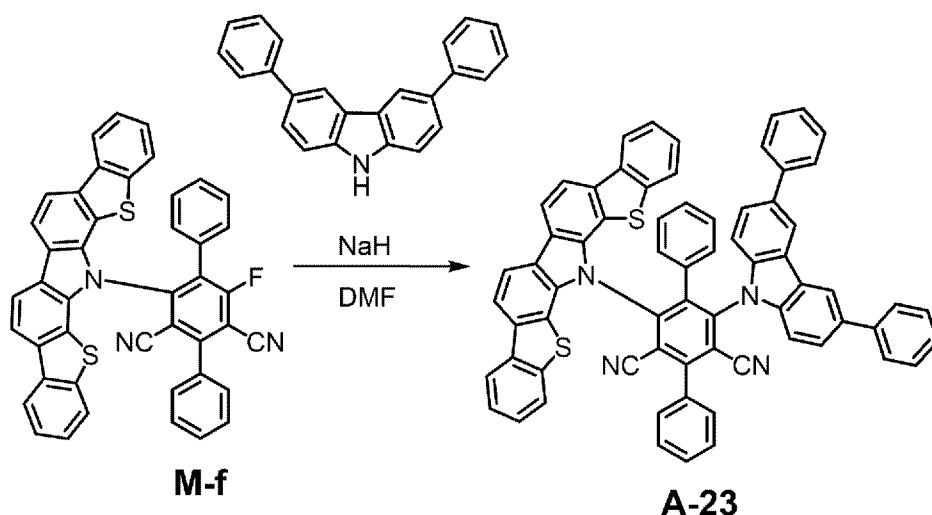


、フッ化セシウム（１．７７６ｇ，１１．６９ｍｍｏｌ）及びDMF（２３．４ｍｌ）を入れ、１３０℃で５時間、１５０℃で４時間撹拌した。室温に放冷後、反応混合物に水を加え、析出した固体をメタノールで洗浄した。固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、０．３３９ｇの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-22と同定した（収率１６％）。

[0746]（化合物A-23の合成）

化合物A-23の合成方法を以下に説明する。

[0747] [化286]

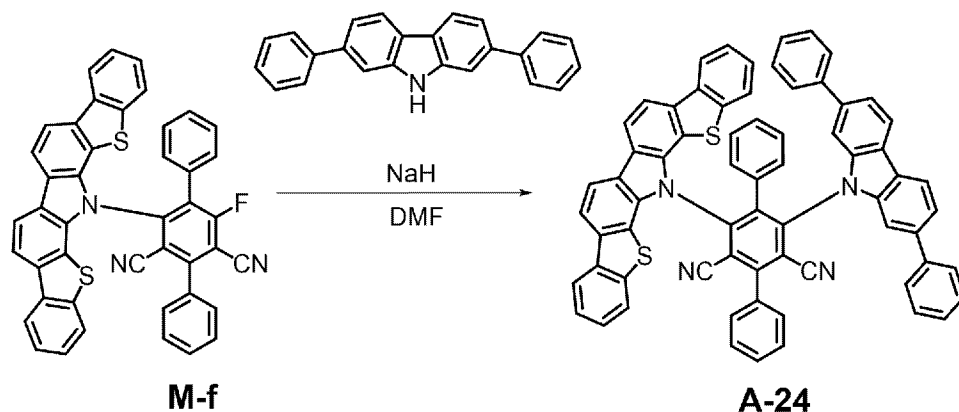


[0748] 窒素雰囲気下、１００ｍｌの三ツ口フラスコに、３，６－ジフェニルカルバゾール（１．４１８ｇ，４．４４ｍｍｏｌ）及びDMF（３７．０ｍｌ）を入れ、０℃で氷冷した。氷冷後の反応溶液に水素化ナトリウム（４０質量％オイル含有）（０．１７８ｇ，４．４４ｍｍｏｌ）を入れ、０℃で１時間撹拌した。反応溶液に０℃で中間体M-f（２．５ｇ，３．７０ｍｍｏｌ）を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に１時間室温で撹拌した。反応混合物にイオン交換水を３０ｍｌ加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体３．３ｇを得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-23と同定した（収率９１％）。

[0749]（化合物A-24の合成）

化合物 A-24 の合成方法を以下に説明する。

[0750] [化287]

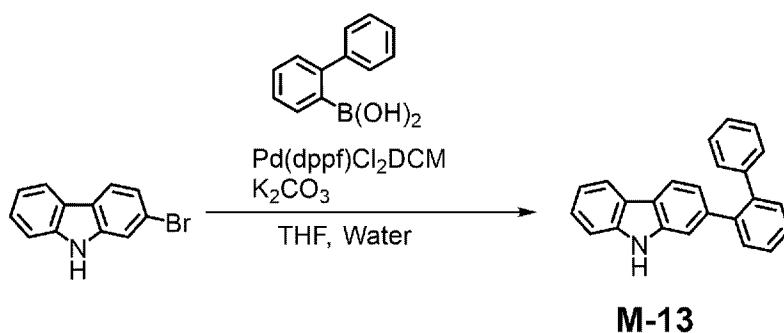


[0751] 窒素雰囲気下、100 ml の三口フラスコに、2,7-ジフェニルカルバゾール (1.418 g, 4.44 mmol) 及び DMF (37.0 ml) を入れ、0℃で氷冷した。氷冷後の反応溶液に水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.178 g, 4.44 mmol) を入れ、0℃で1時間撹拌した。反応溶液に0℃で中間体 M-f (2.5 g, 3.70 mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で撹拌した。反応混合物にイオン交換水を30 ml 加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体 2.8 g を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-24 と同定した (収率 78%)。

[0752] (化合物 A-25 の合成)

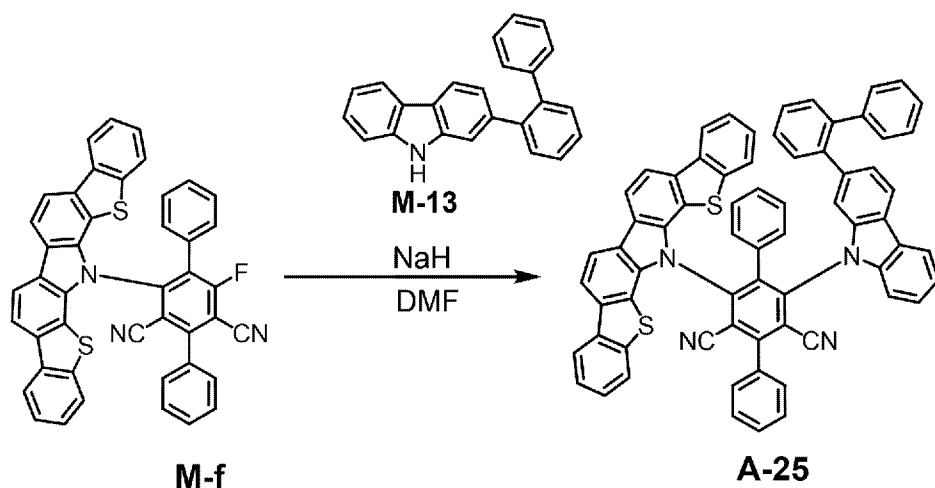
化合物 A-25 の合成方法を以下に説明する。

[0753] [化288]



[0754] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、2-ブロモカルbazール（10 g, 40.6 mmol）、2-ビフェニルボロン酸（8.45 g, 42.7 mmol）、炭酸カリウム（8.42 g, 60.9 mmol）、[1, 1'-ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン]ジクロロパラジウム（11）ジクロロメタン付加物（1.1 g, 1.35 mmol）、THF（30 mL）及びイオン交換水（10 mL）を入れ、室温で8時間撹拌した。反応溶液を濃縮後、イオン交換水30 mLを入れ、トルエンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色固体を1.1 g得た。得られた白色固体をASAP-MSを用いて中間体M-13と同一した（収率85%）。

[0755] [化289]



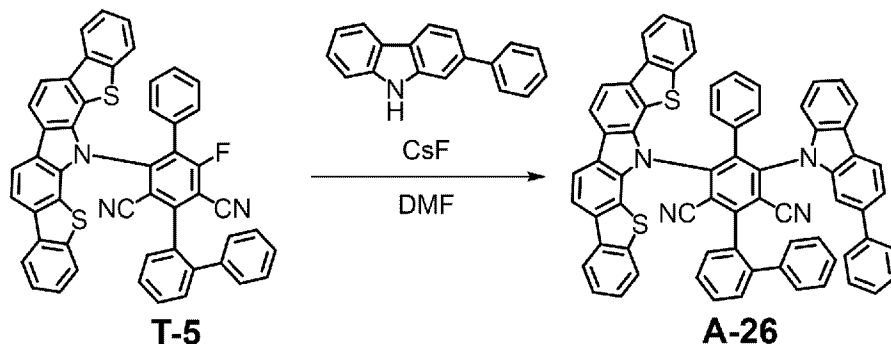
[0756] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、中間体M-13（1.42 g, 4.44 mmol）及びDMF（40 mL）を入れ、0℃で氷冷した。氷冷後の反応溶液に水素化ナトリウム（40質量%オイル含有）（0.18 g, 4.44 mmol）を入れ、0℃で1時間撹拌した。0℃で中間体M-f（2.5 g, 3.70 mmol）を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で撹拌した。反応混合物にイオン交換水を30 mL加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー

で精製し、黄色固体 1.9 g を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-25 と同定した（収率 78 %）。

[0757] （化合物 A-26 の合成）

化合物 A-26 の合成方法を以下に説明する。

[0758] [化290]



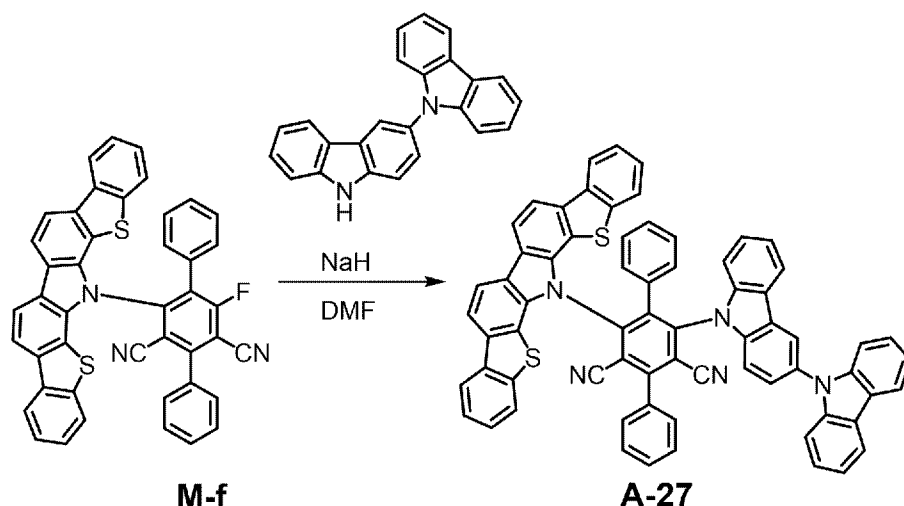
[0759] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、中間体 T-5（1.4 g、1.86 mmol）、2-phenyl-9H-carbazole（0.770 g、3.17 mmol）、フッ化セシウム（0.849 g、5.59 mmol）及び DMF（18.6 mL）を入れ、80℃で5時間攪拌した。反応混合物にメタノール 200 mL に加え、析出した固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、0.8 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-26 と同定した（収率 44 %）。

[0760] （化合物 A-27 の合成）

化合物 A-27 の合成方法を以下に説明する。

[0761]

[化291]



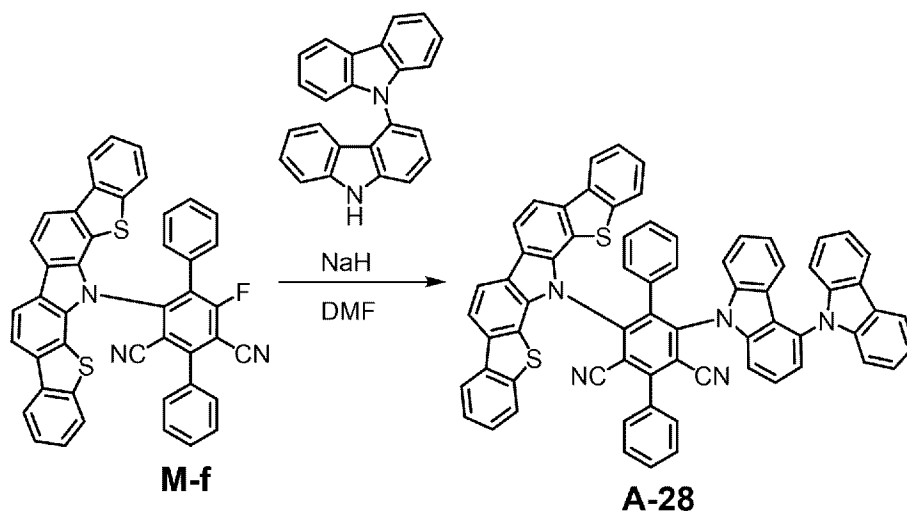
[0762] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、3, 9'-ビ[9H-カルバゾール] (1.77 g, 5.33 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.21 g, 5.33 mmol) 及びDMF (45 mL) を入れ、0℃で1時間撹拌した。次に反応溶液に0℃で中間体M-f (3.0 g, 4.44 mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で撹拌した。反応混合物にイオン交換水を30 mL加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体2.7 gを得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-27と同定した (収率62%)。

[0763] (化合物 A-28 の合成)

化合物 A-28 の合成方法を以下に説明する。

[0764]

[化292]



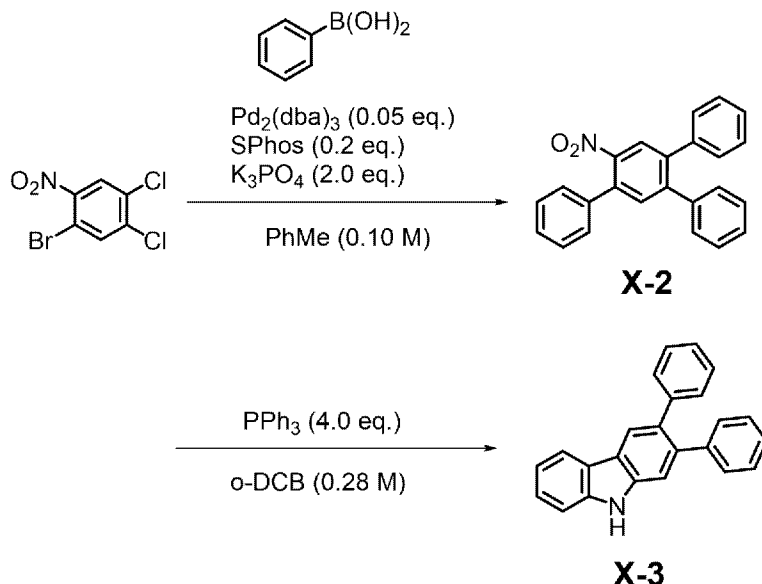
[0765] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、4, 9'-ビ[9H-カルバゾール] (0.83 g, 2.49 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.11 g, 2.84 mmol) 及びDMF (24 mL) を入れ、0℃で1時間攪拌した。次に反応溶液に0℃で中間体M-f (1.6 g, 2.37 mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で攪拌した。反応混合物にイオン交換水を20 mL加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体1.7 gを得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-28と同定した (収率73%)。

[0766] (化合物A-29の合成)

化合物A-29の合成方法を以下に説明する。

[0767]

[化293]

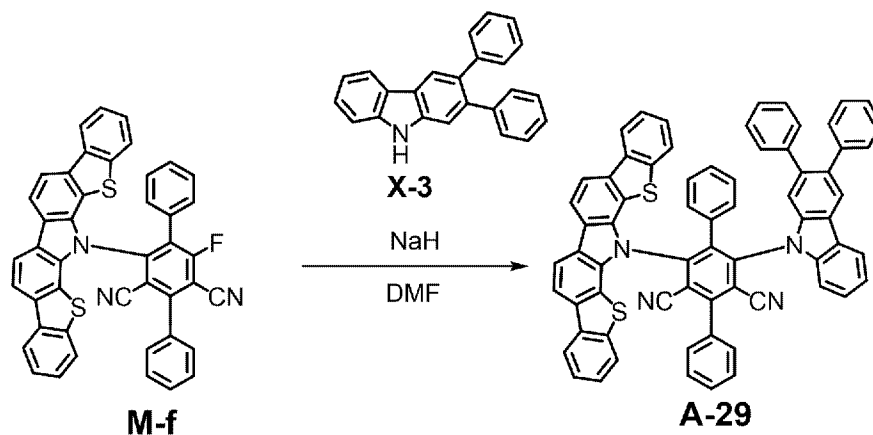


[0768] 窒素雰囲気下、1000 mL のナスフラスコに、1-ブromo-4,5-ジクロロ-2-ニトロベンゼン (8 g, 29.5 mmol)、phenylboronic acid (36 g, 295 mmol)、リン酸三カリウム (16.85 g, 122 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (0) (1.30 g, 1.420 mmol)、SPhos (2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル) (2.40 g, 5.85 mmol) 及びトルエン (135 mL) を加え、110℃で6時間攪拌した。室温に放冷後、反応溶液にイオン交換水 20 mL を入れ、酢酸エチルで有機層を抽出した。有機層を水で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン/酢酸エチル = 90% : 10% - 70% : 30%) によって精製し、中間体 X-2 (1.15 g, 3.23 mmol、収率 11%) を得た。

[0769] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、中間体 X-2 (1 g, 2.85 mmol)、トリフェニルホスフィン (3 g, 11.44 mmol) 及び o-ジクロロベンゼン (10 mL) を加え、180℃で6時間攪拌した。室温に放冷後、反応溶液に反応液を減圧蒸留により濃縮した。濃縮後に得ら

れた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン／酢酸エチル＝95％：5％－50％：50％）によって精製し、中間体X-3（0.66g, 2.08mmol、収率73％）を得た。

[0770] [化294]



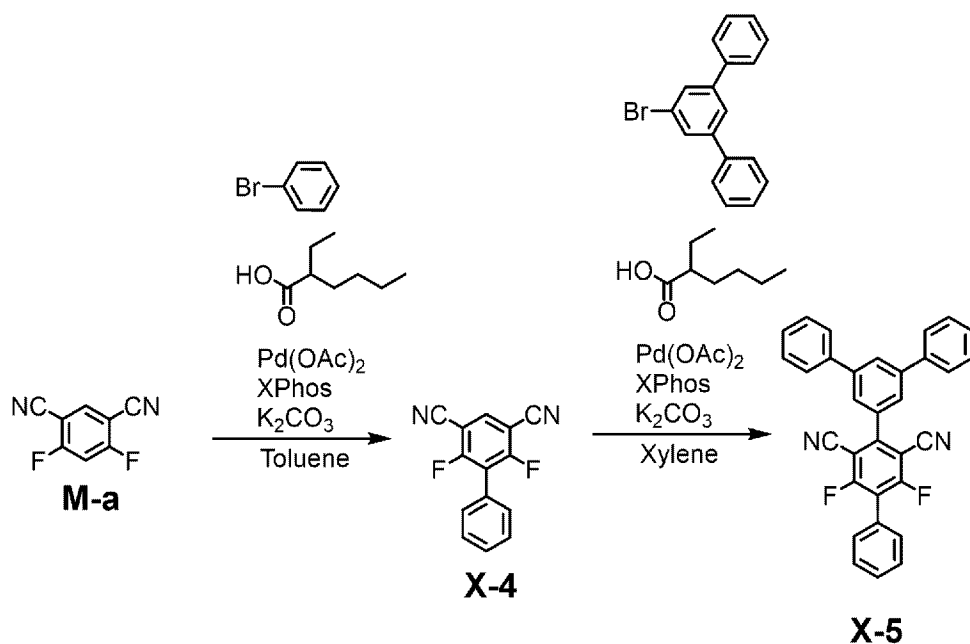
[0771] 窒素雰囲気下、50mLの三口フラスコに、氷冷下、中間体X-3（0.446g, 1.40mmol）のDMF（8.0mL）溶液に水素化ナトリウム（60質量％、0.056g, 1.40mmol）を加え、同温で30分間攪拌した。反応液に中間体M-f（0.94g, 1.40mmol）のDMF（5.4mL）溶液を滴下し、室温に昇温して6時間攪拌した。反応混合物に水を加え、析出した固体をメタノールで洗浄した。固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、0.339gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-29と同定した（収率16％）。

[0772] （化合物A-30の合成）

化合物A-30の合成方法を以下に説明する。

[0773]

[化295]

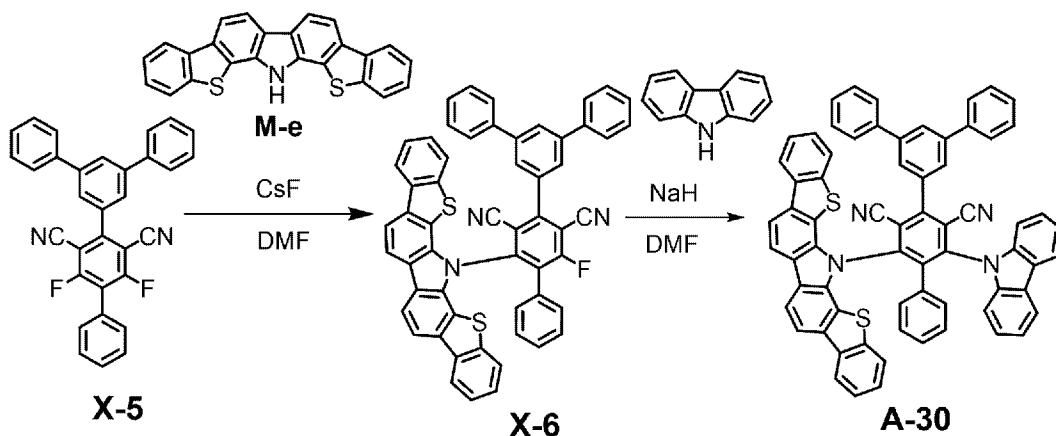


[0774] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに、中間体M-a (20 g, 122 mmol)、diacetoxypalladium (0.41 g, 1.83 mmol)、XPhos (2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 4', 6'-トリイソプロピルビフェニル) (1.74 g, 3.66 mmol)、炭酸カリウム (25.3 g, 183 mmol) 及びToluene (300 mL) を加え、室温で30分攪拌した。その後、反応溶液に2-ethylhexanoic acid (1.95 mL, 12.19 mmol) 及びブロモベンゼン (10.84 mL, 104 mmol) を入れ、40℃で終夜攪拌した。攪拌後、反応溶液を室温に戻し、水を加え、沈殿した固体をろ過した。得られた固体をシリカパッドに通し、トルエンで再結晶することにより、13.2 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体X-4と同一した (収率44%)。

[0775] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体X-4 (2 g, 8.33 mmol)、5'-bromo-1, 1':3', 1''-terphenyl (3 g, 9.70 mmol)、diacetoxypalladium (0.20 g, 0.82 mmol)、XPhos (2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 4', 6'-トリイソプロピルビフェニル) (1.74 g, 3.66 mmol)、炭酸カリウム (25.3 g, 183 mmol) 及びToluene (300 mL) を加え、室温で30分攪拌した。その後、反応溶液に2-ethylhexanoic acid (1.95 mL, 12.19 mmol) 及びブロモベンゼン (10.84 mL, 104 mmol) を入れ、40℃で終夜攪拌した。攪拌後、反応溶液を室温に戻し、水を加え、沈殿した固体をろ過した。得られた固体をシリカパッドに通し、トルエンで再結晶することにより、13.2 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体X-4と同一した (収率44%)。

ルホスフィノー2', 4', 6'-トリイソプロピルビフェニル) (0.80 g, 1.678 mmol)、炭酸カリウム (3 g, 21.71 mmol) 及びXylene (40 ml) を加え、室温で10分撹拌した。その後、反応溶液に2-ethylhexanoic acid (0.06 ml, 0.374 mmol) を加え、130℃で5時間撹拌した。撹拌後、反応溶液を室温に戻し、水を加え、酢酸エチルで有機層を2回抽出した。抽出した有機層を水で洗浄し、硫酸ナトリウムで洗浄した後、溶媒を減圧下留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2.20 gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体X-5と同一した (収率56%)。

[0776] [化296]



[0777] 窒素雰囲気下、300 mLのナスフラスコに中間体X-5 (2.70 g, 5.76 mmol)、フッ化セシウム (2.50 g, 16.46 mmol)、中間体M-e (2.20 g, 5.80 mmol) 及びDMF (50 ml) を加え、室温で20時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水50 mlを加え、析出した固体をろ取し、メタノールで洗浄した。洗浄後の固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3.14 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体X-6と同一した (収率65%)。

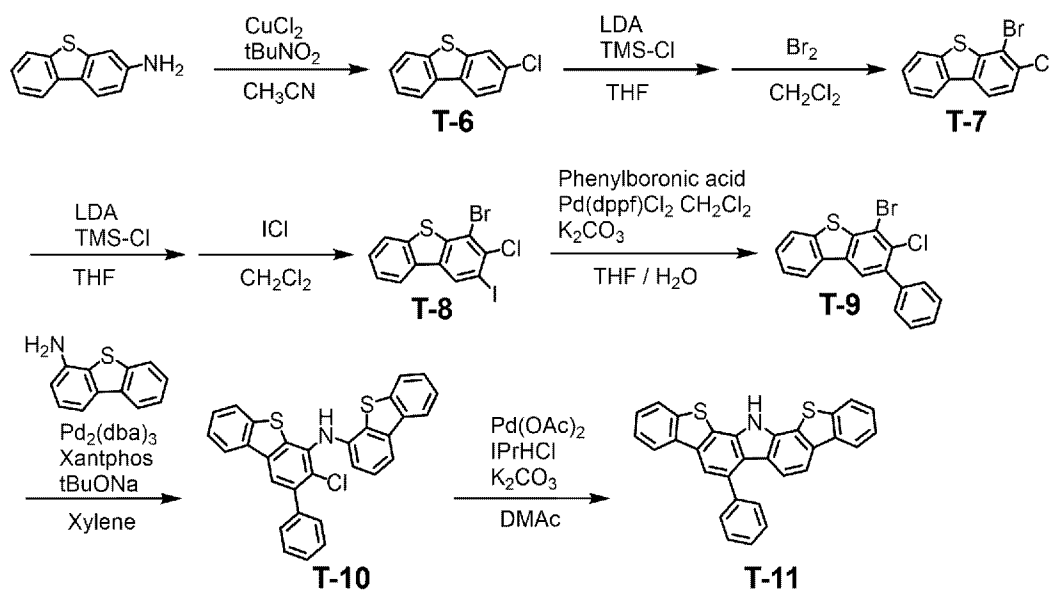
[0778] 窒素雰囲気下、100 mLのナスフラスコに、氷冷下、カルバゾール (0.36 g, 2.51 mmol) のDMF (7 mL) 溶液に水素化ナトリウム

(60質量%、0.080g、2.00mmol)を加え、同温で30分間攪拌した。反応液に中間体X-6(1.50g、1.812mmol)のDMF(7ml)溶液を滴下し、室温に昇温して18時間攪拌した。反応混合物に水を加え、析出した固体をメタノールで洗浄した。固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、0.925gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-30と同定した(収率52%)。

[0779] (化合物A-31の合成)

化合物A-31の合成方法を以下に説明する。

[0780] [化297]



[0781] 窒素雰囲気下、300mLの三口フラスコに塩化銅(II)(12.1g, 90mmol)、アセトニトリル(70ml)、及び亜硝酸tertブチル(13.18ml, 113mmol)を入れ、65℃に昇温した。dibenzob[b,d]thiophene-3-amine(15g, 75mmol)をアセトニトリル(90ml)に溶かして溶液を調製し、この溶液を15分かけて反応溶液に滴下した。滴下後の反応溶液を1時間攪拌した後、放冷し、6N塩酸(150ml)を加えて攪拌した。攪拌後の反応溶液をトルエンで抽出し、brineで洗浄後、濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、12gの白色固体を

得た。得られた白色固体をA S A P－MSの分析により、中間体T－6と
同定した（収率73％）。

[0782] 窒素雰囲気下、500mLの三口フラスコに、中間体T－6（12.0g
， 54.9mmol）、クロロトリメチルシラン（17.5g， 110mmol）及びTHF（180mL）を入れた。ドライアイス／アセトンバスで、三口フラスコ内の材料を－78℃まで冷却してから、リチウムジイソプロピルアミド（LDA）を30mL（2M， THF溶液）滴下した。－78℃で30分攪拌し、その後、室温に戻し更に3時間攪拌した。攪拌後、三口フラスコに水（100mL）を加えてから、酢酸エチルで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。得られた液体にジクロロメタン200mL加え、続いて臭素（13.2g， 83mmol）を、0℃で滴下した後、室温で4時間攪拌した。攪拌後の反応溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液（100mL）を加え、ジクロロメタンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し中間体T－7（14g， 47mmol、収率86％）を得た。

[0783] 窒素雰囲気下、500mLの三口フラスコに、中間体T－7（12.0g
， 54.9mmol）、クロロトリメチルシラン（15.0g， 94mmol）、及びTHF（160mL）を入れた。ドライアイス／アセトンバスで、三口フラスコ内の材料を－78℃まで冷却してから、リチウムジイソプロピルアミドを26mL（2M， THF溶液）滴下した。－78℃で20分攪拌し、その後、室温に戻し更に3時間攪拌した。攪拌後、三口フラスコに水（100mL）を加えてから、酢酸エチルで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。得られた液体にジクロロメタン200mL加え、続いて一塩化ヨウ素（11.6g， 71.4mmol）を、0℃

で滴下した後、室温で4時間攪拌した。攪拌後の反応溶液に飽和亜硫酸水素ナトリウム水溶液（100 mL）を加え、ジクロロメタンにより有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、洗浄後の有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥させた有機層をロータリーエバポレーターで濃縮した。濃縮後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し中間体T-8（19.5 g, 46 mmol、収率97%）を得た。

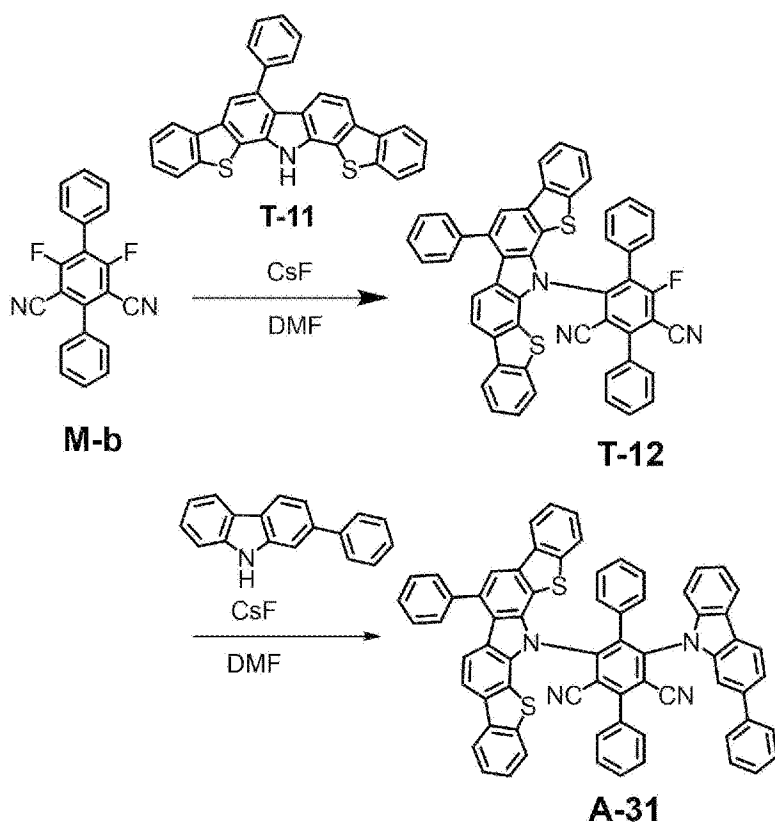
[0784] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体T-8（19.5 g, 46 mmol）、phenylboronic acid（5.61 g, 46 mmol）、炭酸カリウム（19.1 g, 138 mmol）、[1, 1'-ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン]ジクロロパラジウム（II）ジクロロメタン付加物（1.13 g, 1.38 mmol）、THF（123 mL）及びイオン交換水（31 mL）を入れ、40℃で7時間攪拌した。反応溶液を濃縮後、イオン交換水100 mLを入れ、ジクロロメタンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し中間体T-9（2.50 g, 5.89 mmol、収率13%）を得た。

[0785] 窒素雰囲気下、500 mLの三口フラスコに中間体T-9（2.5 g, 5.89 mmol）、Dibenzo[b, d]thiophen-4-amine（1.33 g, 6.69 mmol）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（0）（0.092 g, 0.10 mmol）、Xantphos（キサントホス）（0.116 g, 0.401 mmol）、ナトリウムtert-ブトキシド（0.964 g, 10.0 mmol）及びXylene 35 mLを加えて、60℃で17時間加熱攪拌後に室温（25℃）まで冷却した。反応溶液を濃縮後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し2.5 gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体T-10と同定した（収率68%）。

[0786] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、中間体T-10（2.5 g

、4.57 mmol)、1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾリウムクロリド(IPrHCl)(0.086 g、0.203 mmol)、酢酸パラジウム(II)(0.023 g、0.102 mmol)、炭酸カリウム(1.76 g、12.7 mmol)及びN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)17 mLを加えて、180℃で9時間攪拌後に室温(25℃)まで冷却した。反応溶液にイオン交換水30 mLを加え、酢酸エチルで有機層を抽出し、有機層を濃縮した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.7 gの白色固体を得た。得られた白色固体をASAP-MSの分析により中間体T-11と同定した(収率73%)。

[0787] [化298]



[0788] 窒素雰囲気下、100 mLのナスフラスコに中間体M-b(0.791 g、2.50 mmol)、フッ化セシウム(1.14 g、7.51 mmol)、中間体T-11(1.14 g、2.50 mmol)及びDMF(20.9

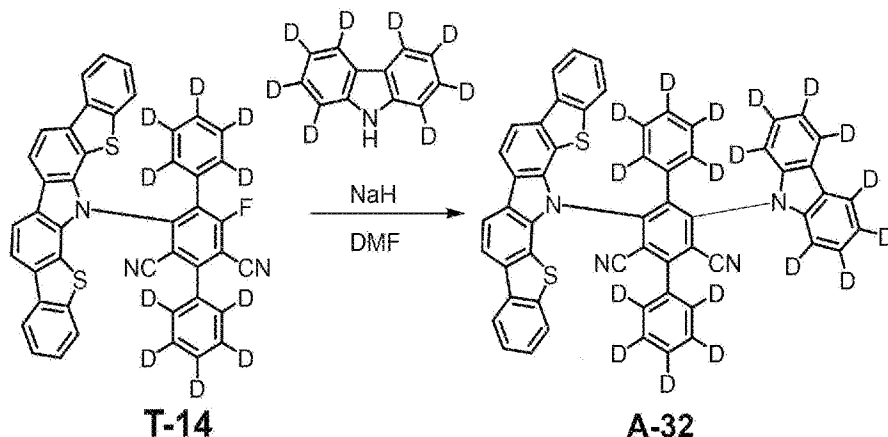
m l) を入れ、室温で 20 時間撹拌した。反応溶液にイオン交換水 50 m l 入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1.7 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を A S A P-M S の分析により、中間体 T-12 と同定した (収率 92%)。

[0789] 窒素雰囲気下、100 m L のナスフラスコに、中間体 T-12 (1.73 g、2.30 m m o l)、2-phenyl-9H-carbazole (0.840 g、3.45 m m o l)、フッ化セシウム (1.05 g、6.90 m m o l) 及び D M F (7.7 m l) を入れ、80℃で 1 時間撹拌した。撹拌後、析出した固体をろ取し、カラムクロマトグラフィーで精製し、0.9 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を A S A P-M S の分析により化合物 A-31 と同定した (収率 40%)。

[0790] (化合物 A-32 の合成)

化合物 A-32 の合成方法を以下に説明する。

[0791] [化299]



[0792] (化合物 A-32 の合成)

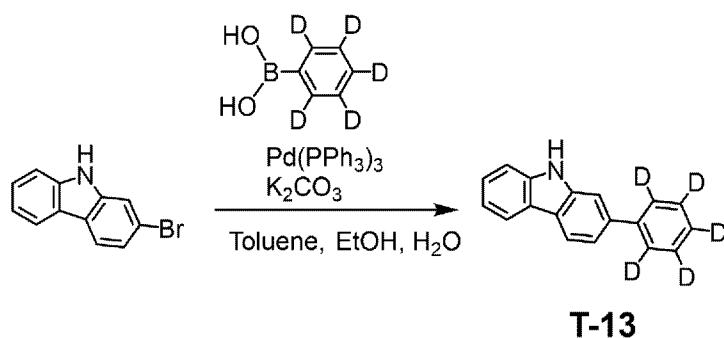
窒素雰囲気下、100 m L の三口フラスコに、カルバゾール-1,2,3,4,5,6,7,8-d8 (1.2 g、6.6 m m o l)、水素化ナトリウム (40 質量%オイル含有) (0.27 g、6.6 m m o l)、及び D M F (45 m l) を入れ、0℃で 30 分撹拌した。次に反応混合物に中間体 T-14 (3.0 g、4.4 m m o l) を入れ、室温で 2 時間撹拌した。反応混

合物にメタノール 20 mL を加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3.2 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を A S A P - M S の分析により化合物 A - 3 2 と同定した（収率 87 %）。

[0793] （化合物 A - 3 3 の合成）

化合物 A - 3 3 の合成方法を以下に説明する。

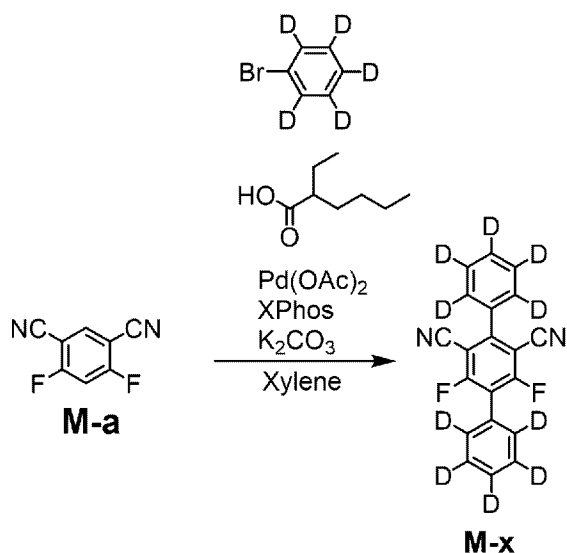
[0794] [化300]



[0795] 窒素雰囲気下、300 mL の三口フラスコに、2-bromo-9H-carbazole (16 g, 65 mmol)、phenyl-d5-boronic acid (9.90 g, 78 mmol)、炭酸カリウム (27.0 g, 195 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) (1.50 g, 1.30 mmol)、トルエン (108 mL)、THF (54 mL) 及びイオン交換水 (54 mL) を入れ、80℃で4時間撹拌した。反応溶液をトルエンで有機層を抽出し、抽出した有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し中間体 T - 1 3 (2.50 g, 5.89 mmol、収率 13 %) を得た。

[0796]

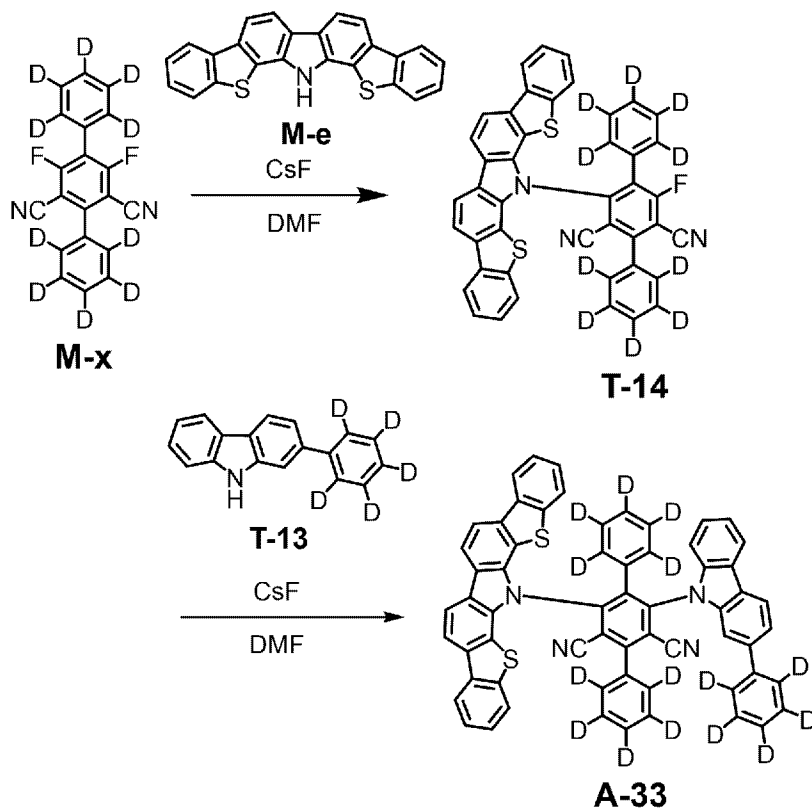
[化301]



[0797] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに、中間体M-a (34 g, 207 mmol)、diacetoxy palladium (1.40 g, 6.22 mmol)、XPhos (2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルビフェニル) (5.93 g, 12.4 mmol)、炭酸カリウム (86 g, 622 mmol) 及びXylene (414 mL) を加え、室温で30分撹拌した。撹拌後の反応溶液に2-ethylhexanoic acid (6.64 mL, 41.4 mmol) 及びブロモベンゼン-d5 (101 g, 622 mmol) を入れ、100℃で5時間撹拌した。撹拌後、反応溶液を室温に戻し、沈殿した固体をろ過した。得られた固体をキシレンで再結晶を行い48 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSの分析により中間体M-xと同定した (収率71%)。

[0798]

[化302]

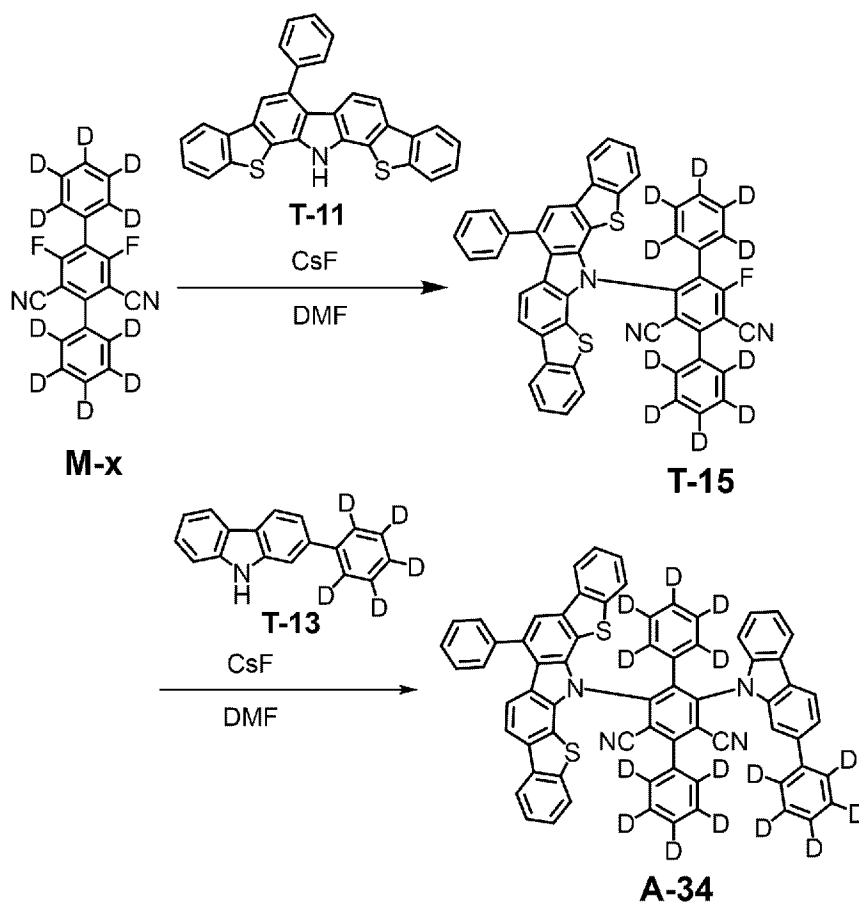


- [0799] 窒素雰囲気下、300 mLの三口フラスコに中間体M-x (19.6 g, 60.0 mmol)、フッ化セシウム (16.6 g, 109 mmol)、中間体M-e (20.7 g, 54.5 mmol) 及びDMF (182 mL) を入れ、室温で20時間攪拌した。攪拌後の反応溶液にイオン交換水200 mLを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2.4 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体T-14と同定した (収率91%)。
- [0800] 窒素雰囲気下、100 mLのナスフラスコに、中間体T-14 (2.5 g, 3.65 mmol)、中間体T-13 (1.36 g, 5.47 mmol)、フッ化セシウム (1.66 g, 10.9 mmol) 及びDMF (37 mL) を入れ、80℃で4時間攪拌した。攪拌及び放冷後、反応溶液にメタノール70 mLを加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、1.71 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-33と同定した (収率51%)。

[0801] (化合物A-34の合成)

化合物A-34の合成方法を以下に説明する。

[0802] [化303]



[0803] 窒素雰囲気下、100 mLのナスフラスコに中間体M-x (1.11 g, 34.0 mmol)、フッ化セシウム (1.15 g, 10.2 mmol)、中間体T-11 (1.55 g, 3.40 mmol) 及びDMF (11.3 mL) を入れ、室温で20時間攪拌した。攪拌後の反応溶液にイオン交換水20 mLを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2.4 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体T-15と同定した(収率91%)。

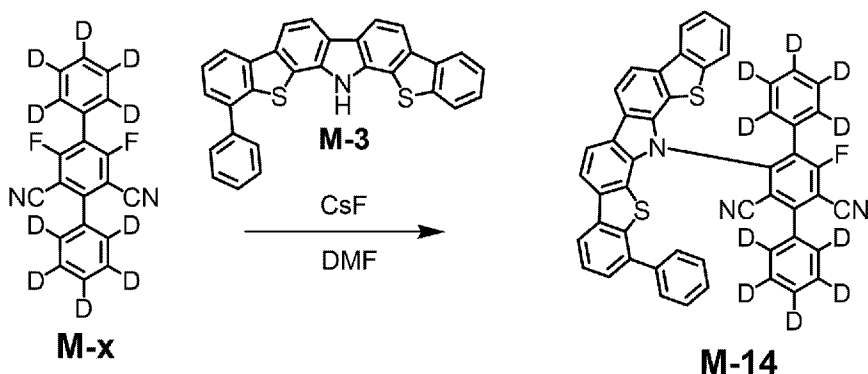
[0804] 窒素雰囲気下、100 mLのナスフラスコに、中間体T-15 (2.4 g, 3.19 mmol)、中間体T-13 (1.17 g, 4.72 mmol)

、フッ化セシウム（１．４４ｇ，９．４５ｍｍｏｌ）及びDMF（１１ｍｌ）を入れ、８０℃で２時間攪拌した。析出した固体をろ過し、カラムクロマトグラフィーで精製し、１．４６ｇの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-34と同定した（収率４７％）。

[0805]（化合物A-35の合成）

化合物A-35の合成方法を以下に説明する。

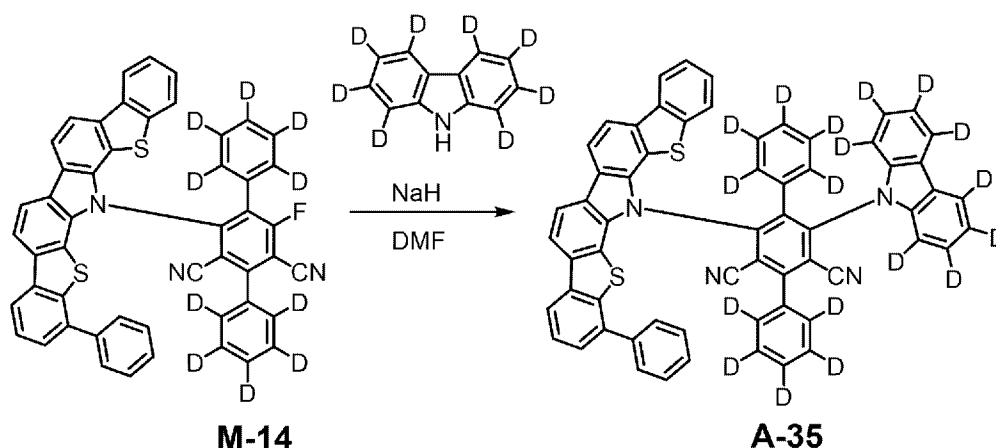
[0806] [化304]



[0807] 窒素雰囲気下、１００ｍＬのナスフラスコに中間体M-3（３．５ｇ，７．７ｍｍｏｌ）、フッ化セシウム（２．３ｇ，１５．４ｍｍｏｌ）、中間体M-x（２．３ｇ，８．０７ｍｍｏｌ）及びDMF（３０ｍｌ）を入れ、室温で１２時間攪拌した。攪拌後の反応溶液にイオン交換水５０ｍｌを入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、５．１ｇの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により、中間体M-14と同定した（収率８７％）。

[0808]

[化305]

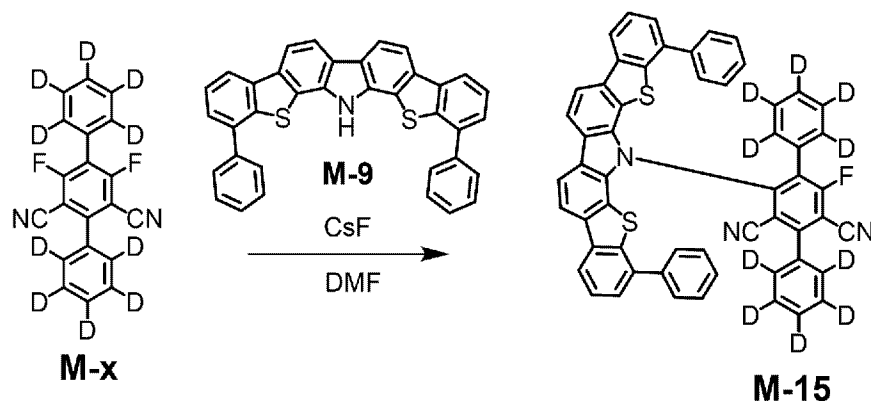


[0809] 窒素雰囲気下、50 mLの三口フラスコに、カルバゾール-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-d₈ (0.24 g, 1.34 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.058 g, 1.34 mmol) 及び DMF (10 mL) を入れ、0℃で1時間撹拌した。撹拌後の反応溶液に0℃で中間体M-14 (0.6 g, 0.79 mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で撹拌した。反応混合物にイオン交換水を10 mL 加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体0.47 gを得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-35と同定した (収率65%)。

[0810] (化合物A-36の合成)

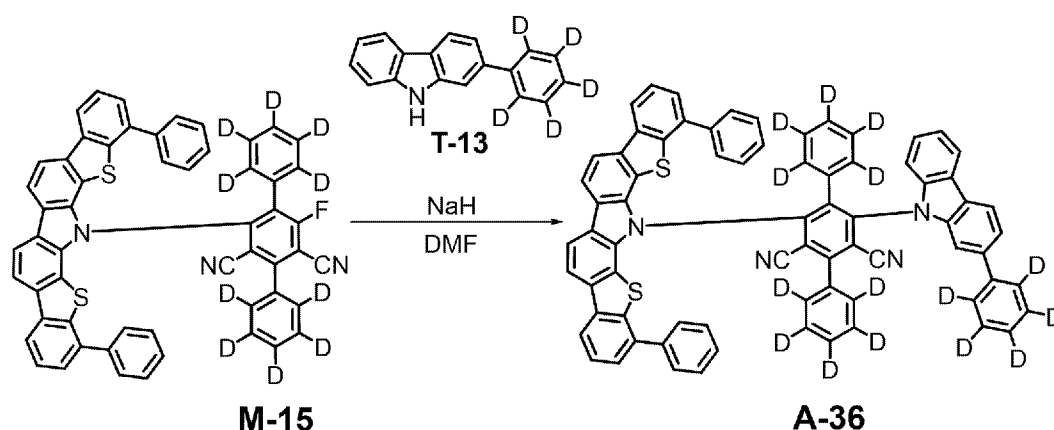
化合物A-36の合成方法を以下に説明する。

[0811] [化306]



[0812] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに中間体M-9 (3.0 g, 5.60 mmol)、フッ化セシウム (2.6 g, 16.9 mmol)、中間体M-x (1.9 g, 5.92 mmol) 及びDMF (20 mL) を入れ、室温で12時間撹拌した。撹拌後の反応溶液にイオン交換水20 mL を入れ、析出した固体をろ取した。ろ取した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、4.4 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により中間体M-15 と同定した (収率93%)。

[0813] [化307]



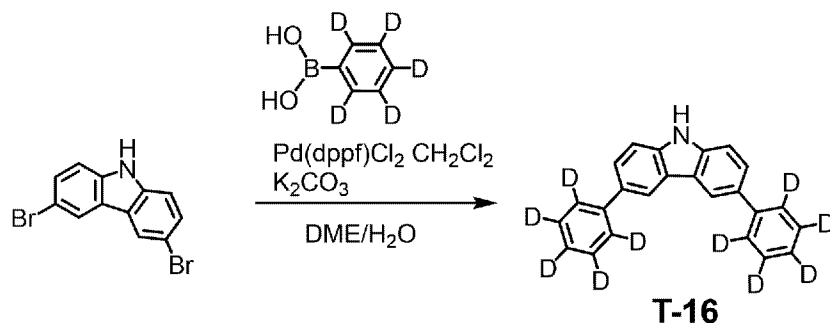
[0814] 窒素雰囲気下、100 mL の三口フラスコに、中間体T-13 (0.76 g, 3.04 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.12 g, 3.04 mmol) 及びDMF (20 mL) を入れ、0℃で1時間撹拌した。撹拌後の反応溶液に0℃で中間体M-15 (1.7 g, 2.03 mmol) を入れ、ゆっくりと室温まで昇温し、更に1時間室温で撹拌した。反応混合物にイオン交換水を20 mL 加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体1.84 g を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-36 と同定した (収率85%)。

[0815] (化合物A-37の合成)

化合物A-37の合成方法を以下に説明する。

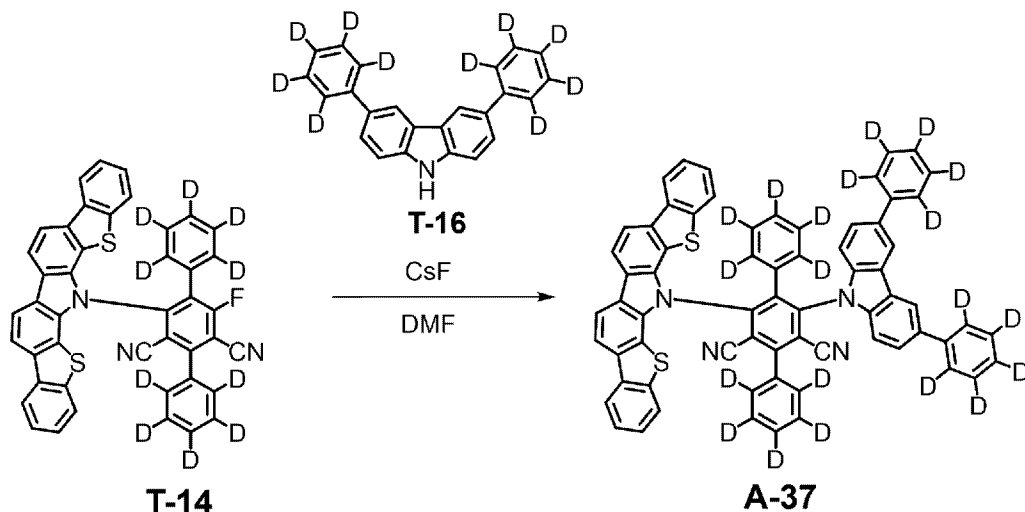
[0816]

[化308]



[0817] 窒素雰囲気下、200 mLの三口フラスコに、3, 6-dibromo-9H-carbazole (10 g, 30.8 mmol)、phenyl-d5-boronic acid (8.59 g, 67.7 mmol)、炭酸カリウム (12.80 g, 92 mmol)、[1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム(II)ジクロロメタン付加物 (0.754 g, 0.923 mmol)、DME (82 mL) 及びイオン交換水 (20.5 mL) を入れ、80℃で4時間撹拌した。反応溶液を濃縮後、ジクロロメタンで有機層を抽出し、有機層を水及び食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー及びトルエン再結晶によって精製し、中間体T-16 (7.64 g, 23.0 mmol、収率75%)を得た。

[0818] [化309]

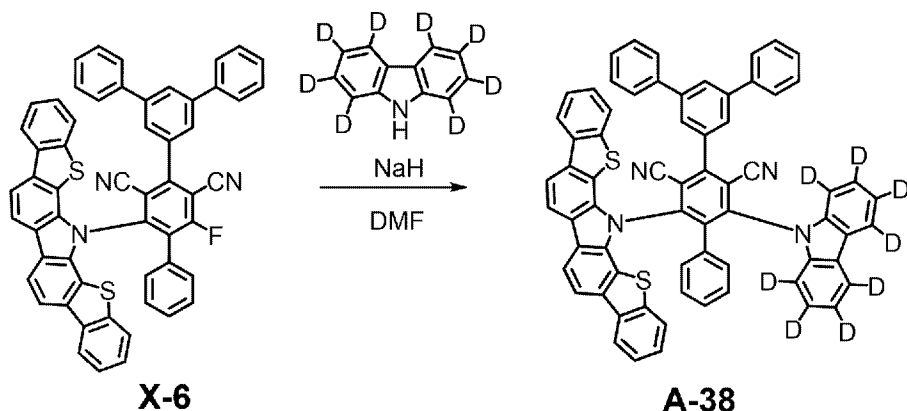


[0819] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、中間体 T-14 (2.5 g、3.65 mmol)、中間体 T-16 (1.80 g、5.47 mmol)、フッ化セシウム (1.66 g、10.9 mmol) 及び DMF (36.5 mL) を入れ、80℃ で 3 時間攪拌した。攪拌及び放冷後、反応溶液にメタノール 70 mL を加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、1.50 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-37 と同定した (収率 41%)。

[0820] (化合物 A-38 の合成)

化合物 A-38 の合成方法を以下に説明する。

[0821] [化310]

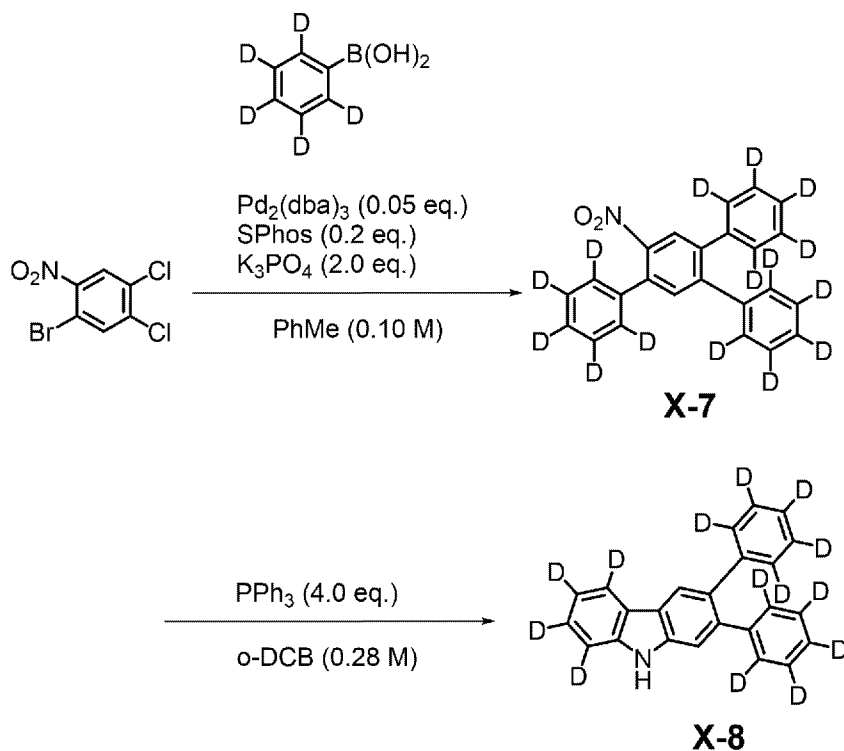


[0822] 窒素雰囲気下、100 mL のナスフラスコに、氷冷下、9H-carbazole-1,2,3,4,5,6,7,8-d₈ (0.41 g、2.36 mmol) の DMF (10 mL) 溶液に水素化ナトリウム (60 質量%、0.087 g、2.17 mmol) を加え、同温で 30 分間攪拌した。攪拌後の反応溶液に中間体 X-6 (1.63 g、1.969 mmol) の DMF (10 mL) 溶液を滴下し、室温に昇温して 18 時間攪拌した。反応混合物に水を加え、析出した固体をメタノールで洗浄した。洗浄後の固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、1.14 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-38 と同定した (収率 59%)。

[0823] (化合物A-39の合成)

化合物A-39の合成方法を以下に説明する。

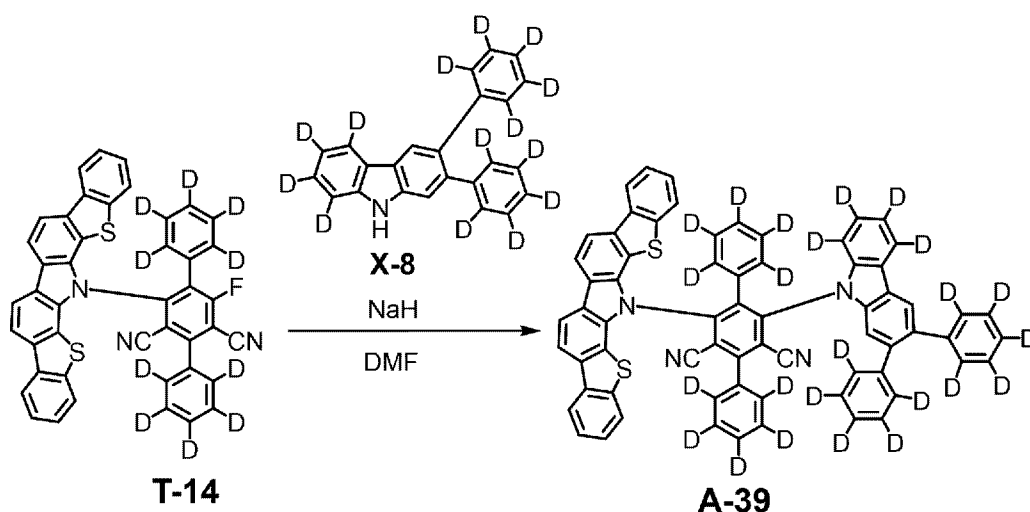
[0824] [化311]



[0825] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに、1-ブromo-4,5-ジクロロ-2-ニトロベンゼン (10 g, 36.9 mmol)、(phenyl-d5) boronic acid (42.1 g, 332 mmol)、リン酸三カリウム (15.67 g, 73.8 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (0) (1.69 g, 1.846 mmol)、SPhos (3.03 g, 7.38 mmol) 及びトルエン (PhMe) (369 mL) を加え、110℃で9時間攪拌した。攪拌後、反応溶液を室温に放冷し、放冷後、イオン交換水を加え、酢酸エチルで有機層を2回抽出した。有機層を硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒をロータリーエバポレーターで減圧除去した。溶媒の減圧除去後に得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン/ジクロロメタン=67%:33%) によって精製し、中間体X-7 (3.01 g, 8.21 mmol、収率22%) を得た。

[0826] 窒素雰囲気下、200 mL のナスフラスコに、中間体 X-7 (3 g, 8.19 mmol)、トリフェニルホスフィン (7 g, 26.69 mmol) 及び *o*-ジクロロベンゼン (30 mL) を加え、180℃で12時間撹拌した。撹拌後、反応溶液を室温に放冷し、放冷後、反応溶液を減圧蒸留により濃縮した。得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン／酢酸エチル＝95％：5％→50％：50％) によって精製し、中間体 X-8 (1.47 g, 4.41 mmol、収率58％) を得た。

[0827] [化312]

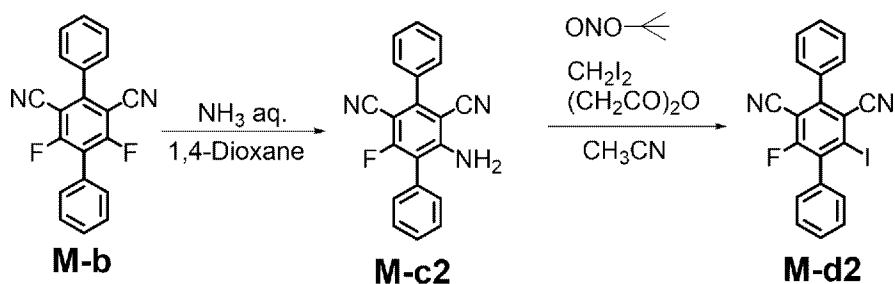


[0828] 窒素雰囲気下、50 mL の三口フラスコに、氷冷下、中間体 X-8 (0.77 g, 2.31 mmol) の DMF (7.0 mL) 溶液に水素化ナトリウム (60 質量％、0.09 g, 2.29 mmol) を加え、同温で30分間撹拌した。撹拌後の反応溶液に中間体 T-14 (1.50 g、2.19 mmol) の DMF (7.0 mL) 溶液を滴下し、室温に昇温して15時間撹拌した。反応混合物に水を加え、析出した固体をメタノールで洗浄した。洗浄後の固体をカラムクロマトグラフィーで精製し、1.03 g の黄色固体を得た。得られた黄色固体を ASAP-MS の分析により化合物 A-39 と同定した (収率47％)。

[0829] (化合物 A-40 の合成)

化合物 A-40 の合成方法を以下に説明する。

[0830] [化313]

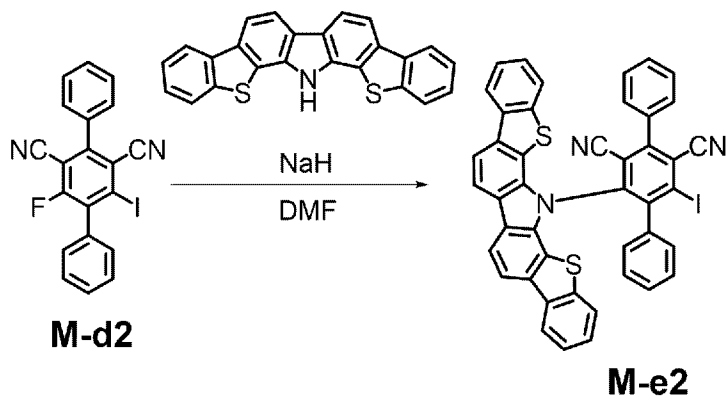


[0831] 窒素雰囲気下、500 mLの三口フラスコに、中間体M-b (25 g, 79 mmol) 及び1,4-ジオキサン160 mLを入れ、次に30質量%アンモニア水25 mLを入れ、80℃で10時間加熱撹拌した。撹拌後に反応溶液を室温(25℃)に戻し、エバポレータを用いて溶媒を留去し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、23 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSにより中間体M-c2と同定した(収率93%)。

[0832] 窒素雰囲気下、1000 mLの三口フラスコに、中間体M-c2 (23 g, 73 mmol) 及びアセトニトリル150 mLを入れ、次にDiiodomethane (8.86 mL, 110 mmol)、及びTert-butyl nitrite (44.0 mL, 367 mmol)を入れ、5分撹拌し、次に無水酢酸(139 mL, 1468 mmol)を入れ、25℃で4時間撹拌した。反応終了後、反応溶液にイオン交換水を500 mL入れ、析出した固体を回収した。回収した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、27 gの白色固体を得た。得られた白色固体をGC-MSにより中間体M-d2と同定した(収率87%)。

[0833]

[化314]

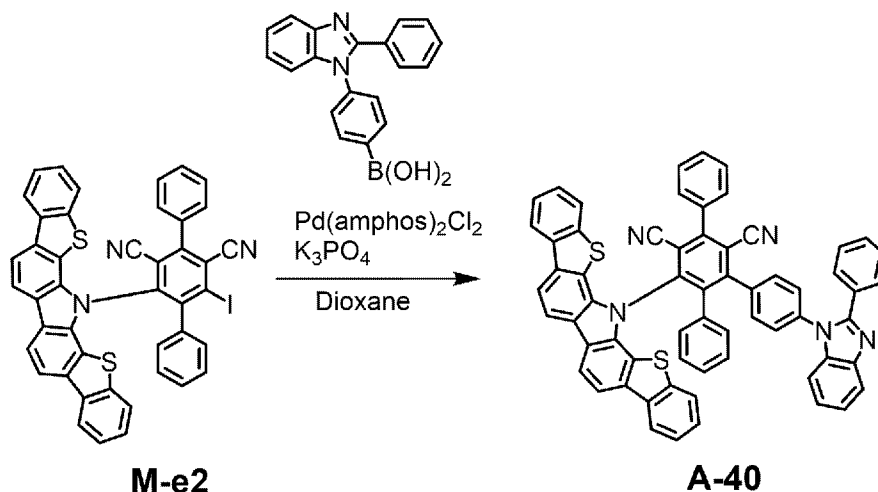


[0834] 窒素雰囲気下、300 mLの三口フラスコに1,4-bis[1]benzothieno[2,3-a:3',2'-i]carbazole (6.3 g, 16.5 mmol)、水素化ナトリウム (40質量%オイル含有) (0.73 g, 18.2 mmol)、及びDMF (83 mL)を入れ、0℃で1時間攪拌した。次に反応混合物に中間体M-d2 (7.0 g, 16.5 mmol)を入れ、室温で2時間攪拌した。反応混合物に水100 mLを加え、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、11 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により中間体M-e2と同定した (収率85%)。

[0835] 1,4-bis[1]benzothieno[2,3-a:3',2'-i]carbazoleはWO2021/066059A1記載と同様の方法で合成した。

[0836]

[化315]



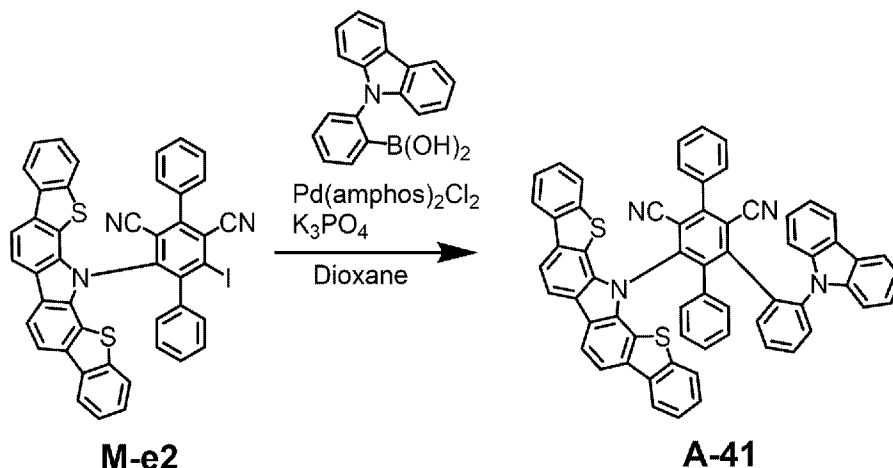
[0837] 窒素雰囲気下、300 mLの三口フラスコに、中間体M-e2 (2.5 g, 3.20 mmol)、4-(2-Phenyl-1H-benzimidazol-1-yl)phenylboronic Acid (1.5 g, 4.80 mmol)、ビス[ジ-tert-ブチル(4-ジメチルアミノフェニル)ホスフィン]ジクロロパラジウム(0.111 g, 0.16 mmol)、リン酸三カリウム(1.69 g, 8.0 mmol)及び1,4-Dioxane (16 mL)を入れ、100℃で5時間攪拌した。攪拌後の反応溶液にイオン交換水50 mLを入れ、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、2.6 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-40と同定した(収率88%)。

[0838] (化合物A-41の合成)

化合物A-41の合成方法を以下に説明する。

[0839]

[化316]



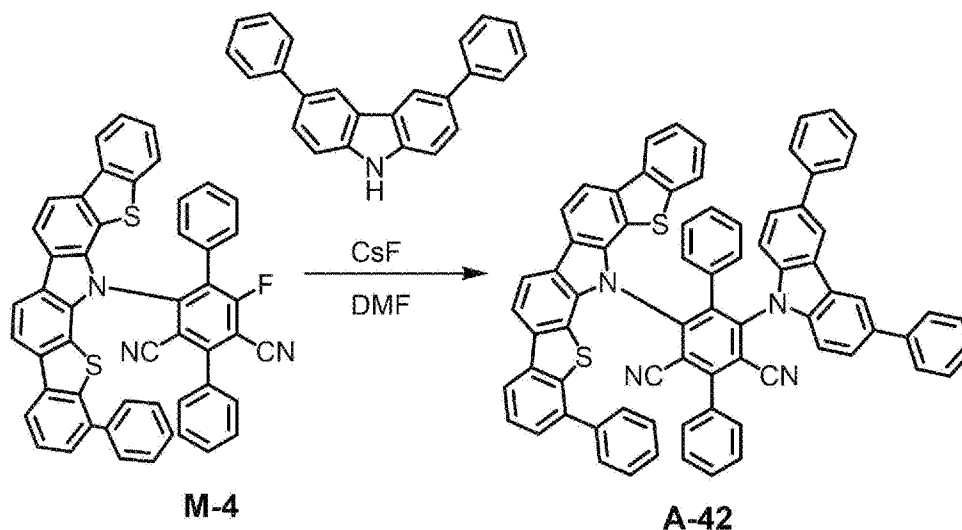
[0840] 窒素雰囲気下、300 mLの三口フラスコに、中間体M-e2 (4.0 g, 5.10 mmol)、(2-(9H-carbazol-9-yl)phenyl)boronic acid (2.2 g, 7.66 mmol)、ビス[ジ tert-ブチル (4-ジメチルアミノフェニル) ホスフィン] ジクロロパラジウム (0.181 g, 0.255 mmol)、リン酸三カリウム (2.71 g, 12.76 mmol) 及び1,4-Dioxane (25.5 mL) を入れ、100℃で5時間攪拌した。攪拌後の反応溶液にイオン交換水100 mLを入れ、析出した固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3.4 gの黄色固体を得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-41と同定した (収率74%)。

[0841] (化合物A-42の合成)

化合物A-42の合成方法を以下に説明する。

[0842]

[化317]



[0843] 窒素雰囲気下、100 mLの三口フラスコに、中間体M-4（1.5 g，2.0 mmol）、3,6-ジフェニルカルバゾール（1.0 g，3.0 mmol）、フッ化セシウム（0.91 g，5.98 mmol）、及びDMF（20 mL）を入れ、室温で4時間攪拌した。攪拌後、反応混合物にイオン交換水を30 mL加え、析出した固体をろ過した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、黄色固体2.0 gを得た。得られた黄色固体をASAP-MSの分析により化合物A-42と同定した（収率95%）。

[0844] （比較化合物Ref-1の合成）

比較化合物Ref-1は、WO2021/066059 A1の記載に従って合成した。

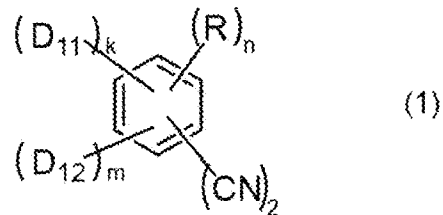
符号の説明

[0845] 1…有機EL素子、2…基板、3…陽極、4…陰極、5…発光層、6…正孔注入層、7…正孔輸送層、8…電子輸送層、9…電子注入層。

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（１）で表される化合物。

[化1]



（前記一般式（１）において、

CNは、シアノ基であり、

D₁₁及びD₁₂は、それぞれ独立に、下記一般式（１１）、一般式（１２）又は一般式（１３）で表される基であり、但し、少なくとも１つのD₁₁は、下記一般式（１２）又は一般式（１３）で表される基であり、

Rは、それぞれ独立して、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数１～５０のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数１～５０のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数２～５０のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数３～５０のシクロアルキル基

、

—Si(R₉₀₁)(R₉₀₂)(R₉₀₃)で表される基、

—O—(R₉₀₄)で表される基、

—S—(R₉₀₅)で表される基、

—N(R₉₀₆)(R₉₀₇)で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数７～５０のアラルキル基、

—C(=O)R₉₀₈で表される基、

—COOR₉₀₉で表される基、

シアノ基、

ニトロ基、

—P(=O)(R₉₃₁)(R₉₃₂)で表される基、

—Ge(R₉₃₃)(R₉₃₄)(R₉₃₅)で表される基、

—B(R₉₃₆)(R₉₃₇)で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

但し、少なくとも1つのRは、置換基であり、少なくとも1つの置換基としてのRは、前記一般式(1)中のベンゼン環との炭素—炭素結合により結合し、

kは、1又は2であり、

mは、0、1又は2であり、

nは、1、2又は3であり、

k+m+nは、4であり、

kが2のとき、複数のD₁₁は、互いに同一であるか、又は異なり

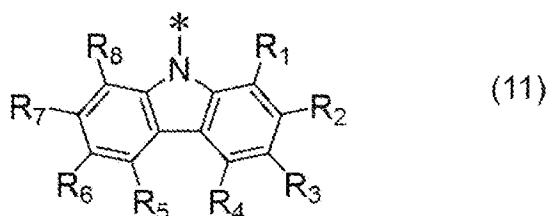
、

mが2のとき、複数のD₁₂は、互いに同一であるか、又は異なり

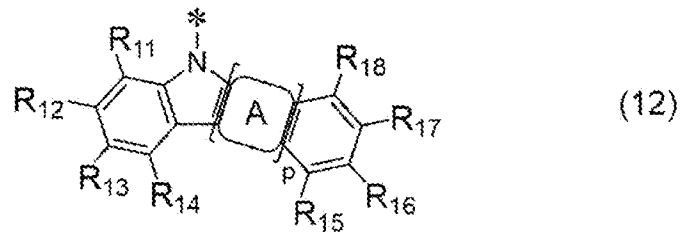
、

nが2又は3のとき、複数のRは、互いに同一であるか、又は異なる。))

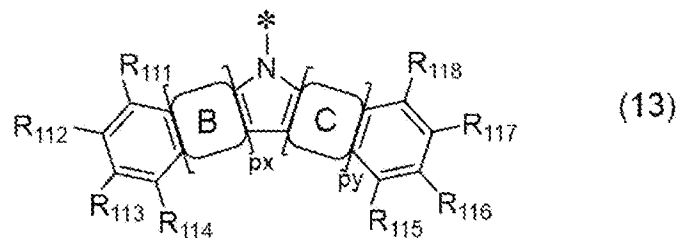
[化2]



[化3]



[化4]



(前記一般式 (12) における $R_{11} \sim R_{18}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (13) における $R_{111} \sim R_{118}$ のうちの隣接する 2 つ以上からなる組の 1 組以上が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (11) における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式 (12) における置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{11} \sim R_{18}$ 、並びに前記一般式 (13) における置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない $R_{111} \sim R_{118}$ は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のアルキル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 50 のハロアルキル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルケニル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 50 のアルキニル基、
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ～ 50 のシクロアルキル基

、

— Si (R₉₀₁) (R₉₀₂) (R₉₀₃) で表される基、

— O — (R₉₀₄) で表される基、

— S — (R₉₀₅) で表される基、

— N (R₉₀₆) (R₉₀₇) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 50 のアラルキル基、

— C (=O) R₉₀₈ で表される基、

— C O O R₉₀₉ で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

— P (=O) (R₉₃₁) (R₉₃₂) で表される基、

— Ge (R₉₃₃) (R₉₃₄) (R₉₃₅) で表される基、

— B (R₉₃₆) (R₉₃₇) で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 50 の複素環基であり、

前記一般式 (12) 及び前記一般式 (13) において、

環 A、環 B 及び環 C は、それぞれ独立に、下記一般式 (14) 及び一般式 (15) で表される環構造からなる群から選択されるいずれかの環構造であり、

環 A、環 B 及び環 C は、隣接する環と任意の位置で縮合し、

p、p_x 及び p_y は、それぞれ独立に、1、2、3 又は 4 であり、

p が 2、3 又は 4 の場合、複数の環 A は、互いに同一であるか、又

は異なり、

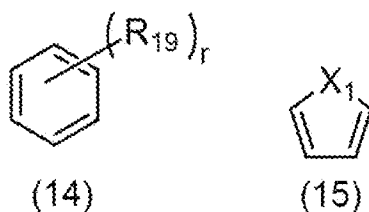
$p \times$ が 2、3 又は 4 の場合、複数の環 B は、互いに同一であるか、又は異なり、

$p y$ が 2、3 又は 4 の場合、複数の環 C は、互いに同一であるか、又は異なり、

但し、少なくとも 1 つの D_{11} は、前記一般式 (1 2) 又は一般式 (1 3) で表される基であって、この D_{11} としての前記一般式 (1 2) 中の p が 4 であり、4 つの環 A が 2 つの下記一般式 (1 4) で表される環構造及び 2 つの下記一般式 (1 5) で表される環構造を含み、この D_{11} としての前記一般式 (1 3) 中の $p \times$ 及び $p y$ が 2 であり、2 つの環 B が 1 つの下記一般式 (1 4) で表される環構造及び 1 つの下記一般式 (1 5) で表される環構造を含み、2 つの環 C が 1 つの下記一般式 (1 4) で表される環構造及び 1 つの下記一般式 (1 5) で表される環構造を含み、

前記一般式 (1 1) ~ (1 3) 中の * は、前記一般式 (1) 中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[化5]



(前記一般式 (1 4) において、

r は、0、2 又は 4 であり、

複数の R_{19} からなる組が、

互いに結合して、置換もしくは無置換の単環を形成するか、

互いに結合して、置換もしくは無置換の縮合環を形成するか、又は

互いに結合せず、

前記一般式 (15) において、 X_1 は、硫黄原子又は酸素原子であり、

置換もしくは無置換の単環を形成せず、かつ、置換もしくは無置換の縮合環を形成しない R_{19} は、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 1～50 のハロアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2～50 のアルケニル基、

置換もしくは無置換の炭素数 2～50 のアルキニル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 3～50 のシクロアルキル基

、

—Si(R_{901})(R_{902})(R_{903}) で表される基、

—O—(R_{904}) で表される基、

—S—(R_{905}) で表される基、

—N(R_{906})(R_{907}) で表される基、

置換もしくは無置換の炭素数 7～50 のアラルキル基、

—C(=O) R_{908} で表される基、

—COO R_{909} で表される基、

ハロゲン原子、

シアノ基、

ニトロ基、

—P(=O)(R_{931})(R_{932}) で表される基、

—Ge(R_{933})(R_{934})(R_{935}) で表される基、

—B(R_{936})(R_{937}) で表される基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6～50 のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数 5～50 の複素環基であり、

複数の R_{19} は、互いに同一であるか又は異なり、

複数の X_1 は、互いに同一であるか又は異なり、

ただし、前記一般式(13)で表される基である D_{11} は、下記条件(Pv1)、条件(Pv2)及び条件(Pv3)の少なくともいずれかを満たす。

条件(Pv1) : k が2のとき、環Bとしての前記一般式(15)で表される環構造中の X_1 及び環Cとしての前記一般式(15)で表される環構造中の X_1 の少なくともいずれかが、酸素原子である。

条件(Pv2) : k が2のとき、2つの D_{11} は、互いに異なる。

条件(Pv3) : n が3のとき、環Bとしての前記一般式(15)で表される環構造中の X_1 及び環Cとしての前記一般式(15)で表される環構造中の X_1 は、それぞれ独立に、硫黄原子又は酸素原子である。)

(一般式中、 R_{901} 、 R_{902} 、 R_{903} 、 R_{904} 、 R_{905} 、 R_{906} 、 R_{907} 、 R_{908} 、 R_{909} 、 R_{931} 、 R_{932} 、 R_{933} 、 R_{934} 、 R_{935} 、 R_{936} 及び R_{937} は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基

、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

R_{901} が複数存在する場合、複数の R_{901} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{902} が複数存在する場合、複数の R_{902} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{903} が複数存在する場合、複数の R_{903} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{904} が複数存在する場合、複数の R_{904} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{905} が複数存在する場合、複数の R_{905} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{906} が複数存在する場合、複数の R_{906} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{907} が複数存在する場合、複数の R_{907} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{908} が複数存在する場合、複数の R_{908} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{909} が複数存在する場合、複数の R_{909} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{931} が複数存在する場合、複数の R_{931} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{932} が複数存在する場合、複数の R_{932} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{933} が複数存在する場合、複数の R_{933} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{934} が複数存在する場合、複数の R_{934} は、互いに同一であるか又は異なり、

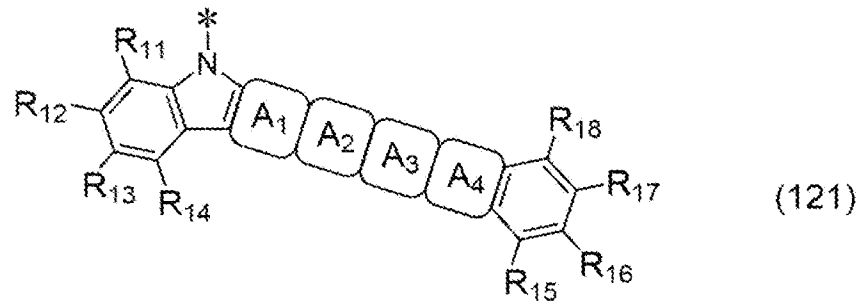
R_{935} が複数存在する場合、複数の R_{935} は、互いに同一であるか又は異なり、

R_{936} が複数存在する場合、複数の R_{936} は、互いに同一であるか又は異なり、

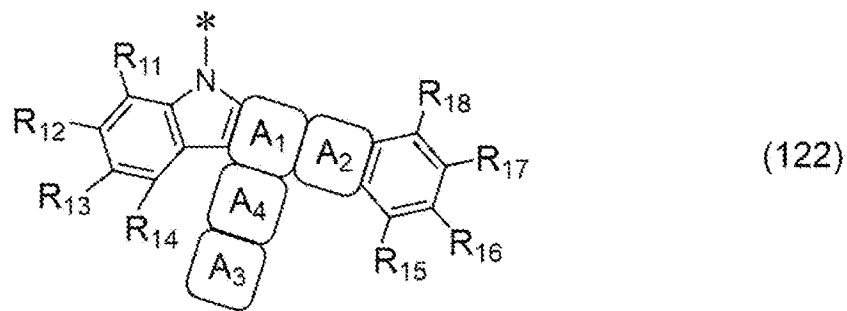
R_{937} が複数存在する場合、複数の R_{937} は、互いに同一であるか又は異なる。))

[請求項2] 少なくとも1つの D_{11} は、下記一般式(121)、一般式(122)又は一般式(131)で表される基である、
請求項1に記載の化合物。

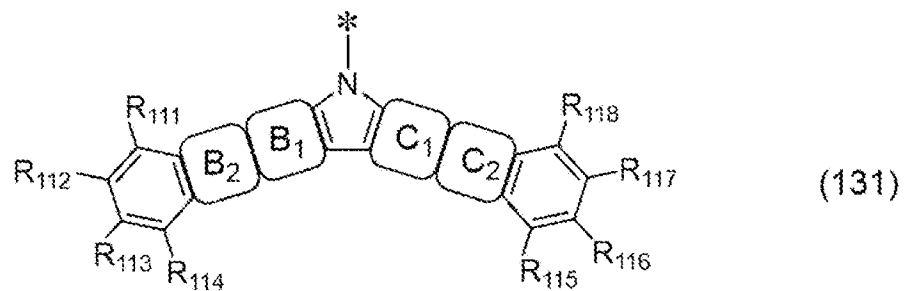
[化6]



[化7]



[化8]



(前記一般式(121)及び一般式(122)において、 $R_{11} \sim R_{18}$ は、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ と同義であり、

環 A_1 、環 A_2 、環 A_3 及び環 A_4 の内、2つが前記一般式(14)で表される環構造であり、残りの2つが前記一般式(15)で表される環構造であり、

前記一般式(131)において、 $R_{111} \sim R_{118}$ は、前記一般式(13)における $R_{111} \sim R_{118}$ と同義であり、

環 B_1 及び環 B_2 の一方が、前記一般式(14)で表される環構造であり、環 B_1 及び環 B_2 の他方が、前記一般式(15)で表される

環構造であり、

環 C_1 及び環 C_2 の一方が、前記一般式(14)で表される環構造であり、環 C_1 及び環 C_2 の他方が、前記一般式(15)で表される環構造であり、

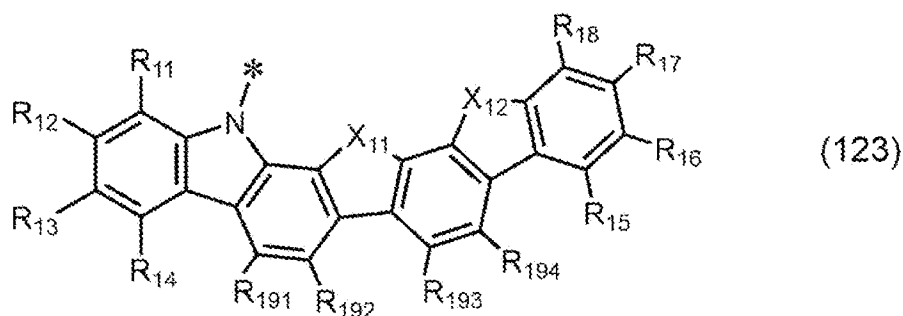
前記一般式(121)、一般式(122)及び一般式(131)中の*は、前記一般式(1)中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[請求項3] 環 A_1 及び環 A_3 が、前記一般式(14)で表される環構造であり、環 A_2 及び環 A_4 が前記一般式(15)で表される環構造であり、環 B_1 が、前記一般式(14)で表される環構造であり、環 B_2 が、前記一般式(15)で表される環構造であり、環 C_1 が、前記一般式(14)で表される環構造であり、環 C_2 が、前記一般式(15)で表される環構造である、請求項2に記載の化合物。

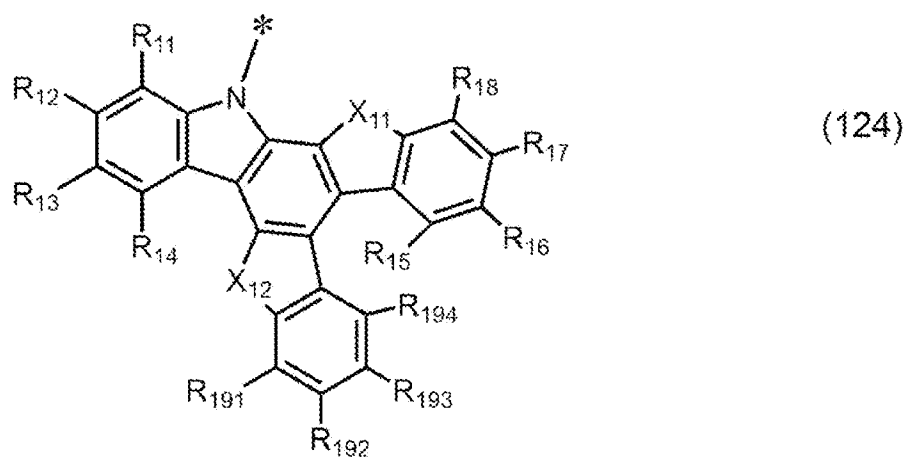
[請求項4] 少なくとも1つの D_{11} が、前記一般式(131)で表される基である、請求項2又は請求項3に記載の化合物。

[請求項5] 少なくとも1つの D_{11} が、下記一般式(123)、一般式(124)、一般式(125)又は一般式(132)で表される基である、請求項2又は請求項3に記載の化合物。

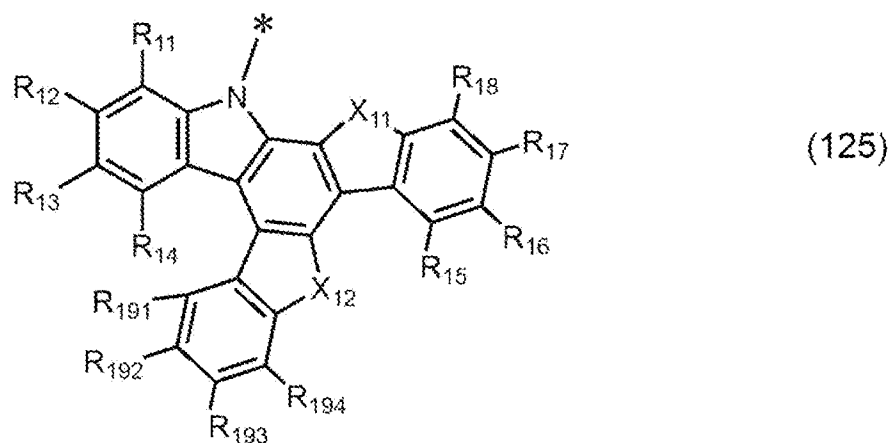
[化9]



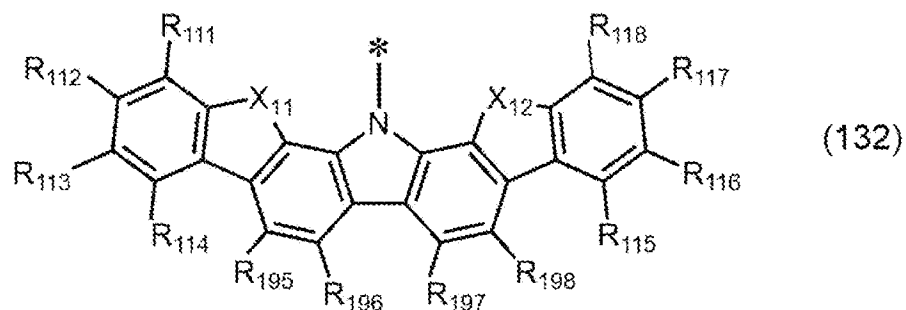
[化10]



[化11]



[化12]



(前記一般式(123)、一般式(124)及び一般式(125)において、 $R_{11} \sim R_{18}$ は、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ と同義であり、 $R_{191} \sim R_{194}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(14)における R_{19} と同義であり、

前記一般式（１３２）において、 $R_{111} \sim R_{118}$ は、前記一般式（１３）における $R_{111} \sim R_{118}$ と同義であり、 $R_{195} \sim R_{198}$ は、それぞれ独立に、前記一般式（１４）における R_{19} と同義であり、

前記一般式（１２３）、一般式（１２４）、一般式（１２５）及び一般式（１３２）において、 X_{11} 及び X_{12} は、それぞれ独立に、前記一般式（１５）における X_1 と同義であり、*は、前記一般式（１）中のベンゼン環との結合位置を示す。）

[請求項6] X_{11} が硫黄原子である、請求項５に記載の化合物。

[請求項7] 少なくとも１つの D_{11} が、前記一般式（１３２）で表される基である、

請求項５又は請求項６に記載の化合物。

[請求項8] D_{12} は、前記一般式（１１）又は前記一般式（１２）で表される基である、

請求項１から請求項７のいずれか一項に記載の化合物。

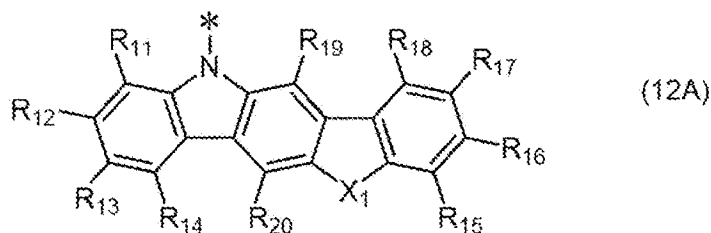
[請求項9] D_{12} は、前記一般式（１２）で表される基である、

請求項１から請求項８のいずれか一項に記載の化合物。

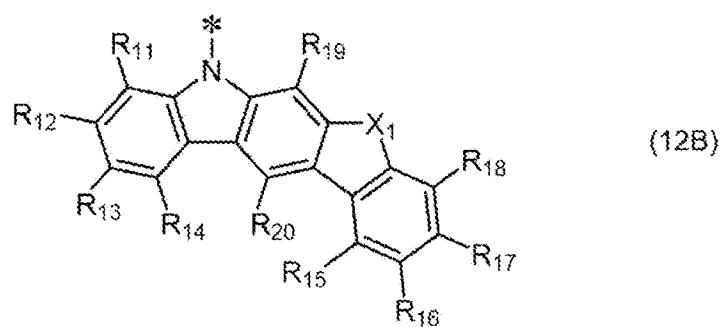
[請求項10] 前記一般式（１２）で表される基は、下記一般式（１２Ａ）、（１２Ｂ）、（１２Ｃ）、（１２Ｄ）、（１２Ｅ）及び（１２Ｆ）で表される基からなる群から選択されるいずれかの基である、

請求項１から請求項９のいずれか一項に記載の化合物。

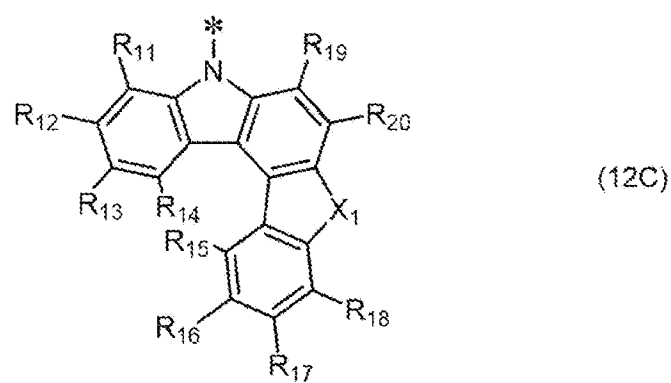
[化13]



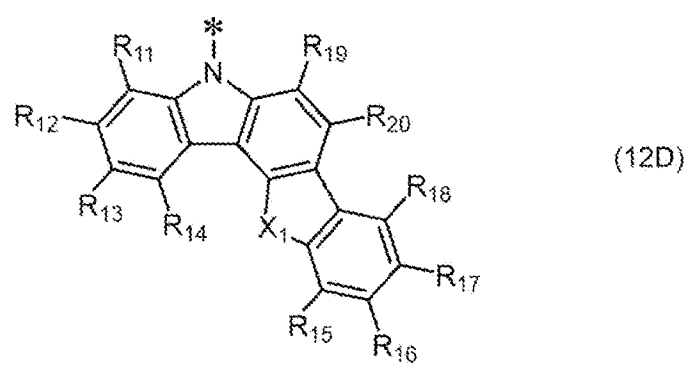
[化14]



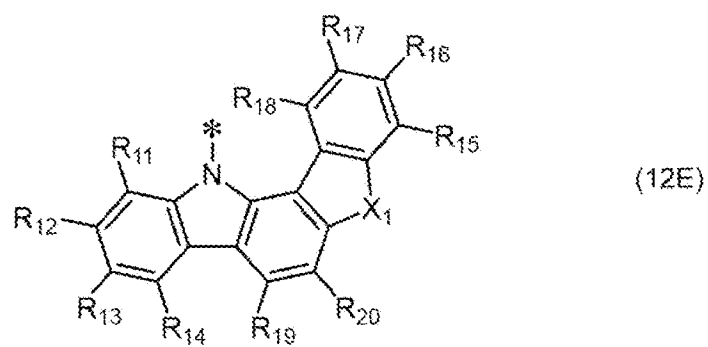
[化15]



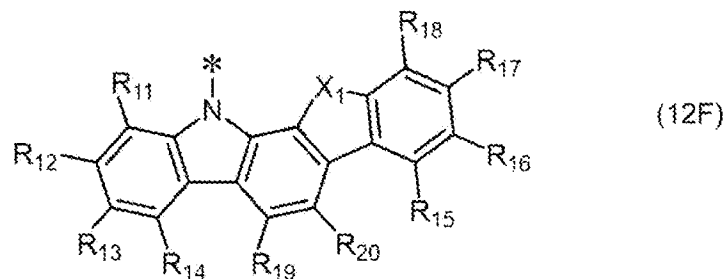
[化16]



[化17]



[化18]



(前記一般式 (1 2 A)、(1 2 B)、(1 2 C)、(1 2 D)、(1 2 E) 及び (1 2 F) において、

$R_{11} \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、前記一般式 (1 2) における $R_1 \sim R_8$ と同義であり、

R_{19} 及び R_{20} は、それぞれ独立に、前記一般式 (1 4) における R_{19} と同義であり、

X_1 は、前記一般式 (1 5) における X_1 と同義であり、

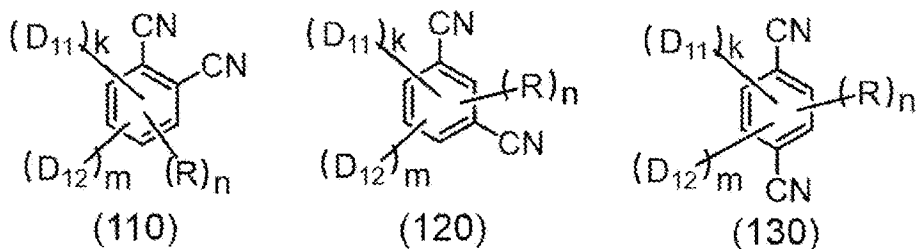
前記一般式 (1 2 A)、(1 2 B)、(1 2 C)、(1 2 D)、(1 2 E) 及び (1 2 F) 中の * は、前記一般式 (1) 中のベンゼン環との結合位置を示す。)

[請求項11]

前記一般式 (1) で表される化合物は、下記一般式 (1 1 0)、一般式 (1 2 0) 又は一般式 (1 3 0) で表される、

請求項 1 から請求項 1 0 のいずれか一項に記載の化合物。

[化19]

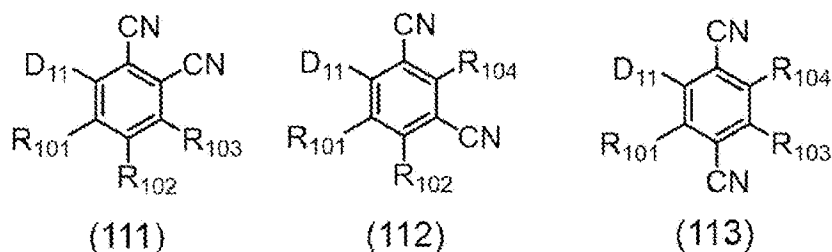


(前記一般式 (1 1 0)、一般式 (1 2 0) 及び一般式 (1 3 0) において、 D_{11} 、 D_{12} 、 R 、 k 、 m 及び n は、それぞれ、前記一般式 (1) における D_{11} 、 D_{12} 、 R 、 k 、 m 及び n と同義である。)

[請求項12] 前記一般式(1)中の n が2である、請求項1から請求項11のいずれか一項に記載の化合物。

[請求項13] 前記一般式(1)で表される化合物は、下記一般式(111)、一般式(112)又は一般式(113)で表される、
請求項1から請求項11のいずれか一項に記載の化合物。

[化20]



(前記一般式(111)、一般式(112)及び一般式(113)において、 D_{11} は、前記一般式(1)における D_{11} と同義であり、 $R_{101} \sim R_{104}$ は、それぞれ独立に、前記一般式(1)における R と同義である。)

[請求項14] 前記一般式(1)中の R は、それぞれ独立して、
置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数5～14の複素環基である、
請求項1から請求項13のいずれか一項に記載の化合物。

[請求項15] 前記一般式(1)中の R は、それぞれ独立して、
置換もしくは無置換のフェニル基、又は
置換もしくは無置換の環形成原子数6の複素環基である、
請求項1から請求項14のいずれか一項に記載の化合物。

[請求項16] 前記一般式(11)における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ 、前記一般式(13)における $R_{111} \sim R_{118}$ 並びに前記一般式(14)における R_{19} は、それぞれ独立に、
水素原子、
置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、
置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基

、又は

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基である

、

請求項1から請求項15のいずれか一項に記載の化合物。

[請求項17] 前記一般式(11)における $R_1 \sim R_8$ 、前記一般式(12)における $R_{11} \sim R_{18}$ 、前記一般式(13)における $R_{111} \sim R_{118}$ 並びに前記一般式(14)における R_{19} は、それぞれ独立に、

水素原子、

無置換の炭素数1～50のアルキル基、

無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基、又は

無置換の環形成炭素数6～50のアリール基である、

請求項1から請求項16のいずれか一項に記載の化合物。

[請求項18] 請求項1から請求項17のいずれか一項に記載の化合物を含有する

、

有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

[請求項19] 陽極と、陰極と、有機層と、を有し、

前記有機層は、請求項1から請求項17のいずれか一項に記載の化合物を化合物M2として含む、

有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項20] 前記有機層は、少なくとも1つの発光層を有し、

前記発光層が前記化合物M2を含む、

請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項21] 前記発光層は、前記化合物M2と、さらに化合物M1とを含み、

前記化合物M1は、蛍光発光性の化合物であり、

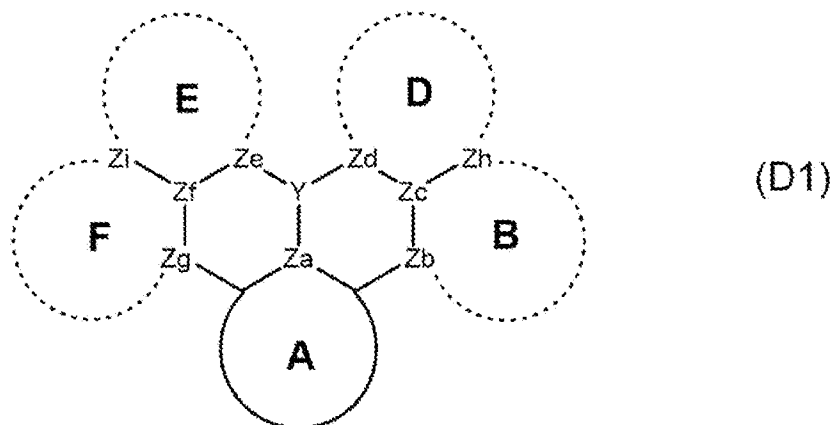
前記化合物M1の最低励起一重項エネルギー $S_1(M1)$ と、前記化合物M2の最低励起一重項エネルギー $S_1(M2)$ とが、下記数式(数1)の関係を満たす、

請求項20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$S_1(M2) > S_1(M1) \quad \dots (\text{数} 1)$$

[請求項22] 前記化合物M1は、下記一般式(D1)で表される化合物である、
請求項21に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化21]



(前記一般式(D1)において、

環A、環B、環D、環E及び環Fは、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール環、及び
置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環からなる群
から選択される環構造であり、

環B及び環Dの一方が存在するか、又は環B及び環Dの両方が存在
し、

環B及び環Dの両方が存在する場合、環B及び環Dは、ZcとZh
とを繋ぐ結合を共有し、

環E及び環Fの一方が存在するか、又は環E及び環Fの両方が存在
し、

環E及び環Fの両方が存在する場合、環E及び環Fは、ZfとZi
とを繋ぐ結合を共有し、

Zaは、窒素原子又は炭素原子であり、

Zbは、

環Bが存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環Bが存在しない場合、酸素原子、硫黄原子、 NR_b 、 $\text{C}(\text{R}_b)_1$ (R_b_2) 又は $\text{Si}(\text{R}_b)_3$ (R_b_4) であり、

Z_c は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z_d は、

環Dが存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環Dが存在しない場合、酸素原子、硫黄原子又は NR_d であり、

Z_e は、

環Eが存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環Eが存在しない場合、酸素原子、硫黄原子又は NR_e であり、

Z_f は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z_g は、

環Fが存在する場合、窒素原子又は炭素原子であり、

環Fが存在しない場合、酸素原子、硫黄原子、 NR_g 、 $\text{C}(\text{R}_g)_1$ (R_g_2) 又は $\text{Si}(\text{R}_g)_3$ (R_g_4) であり、

Z_h は、窒素原子又は炭素原子であり、

Z_i は、窒素原子又は炭素原子であり、

Y は、ホウ素原子、リン原子、 SiR_h 、 $\text{P}=\text{O}$ 又は $\text{P}=\text{S}$ であり、

R_b 、 R_{b_1} 、 R_{b_2} 、 R_{b_3} 、 R_{b_4} 、 R_d 、 R_e 、 R_g 、 R_{g_1} 、 R_{g_2} 、 R_{g_3} 、 R_{g_4} 及び R_h は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基であり、

置換基としての R_b 、 R_{b_1} 、 R_{b_2} 、 R_{b_3} 、 R_{b_4} 、 R_d 、 R_e 、 R_g 、 R_{g_1} 、 R_{g_2} 、 R_{g_3} 、 R_{g_4} 及び R_h は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の環形成原子数5～30の複素環基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基

、

— Si (R₉₁₁) (R₉₁₂) (R₉₁₃) で表される基、

— O — (R₉₁₄) で表される基、

— S — (R₉₁₅) で表される基、又は

— N (R₉₁₆) (R₉₁₇) で表される基であり、

ただし、YとZ_aとの結合、YとZ_dとの結合、並びにYとZ_eとの結合は、いずれも単結合である。)

(前記化合物M1において、R₉₁₁～R₉₁₇は、それぞれ独立に、

水素原子、

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～50のシクロアルキル基

、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリール基、又は

置換もしくは無置換の環形成原子数5～50の複素環基であり、

R₉₁₁が複数存在する場合、複数のR₉₁₁は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₁₂が複数存在する場合、複数のR₉₁₂は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₁₃が複数存在する場合、複数のR₉₁₃は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₁₄が複数存在する場合、複数のR₉₁₄は、互いに同一であるか又は異なり、

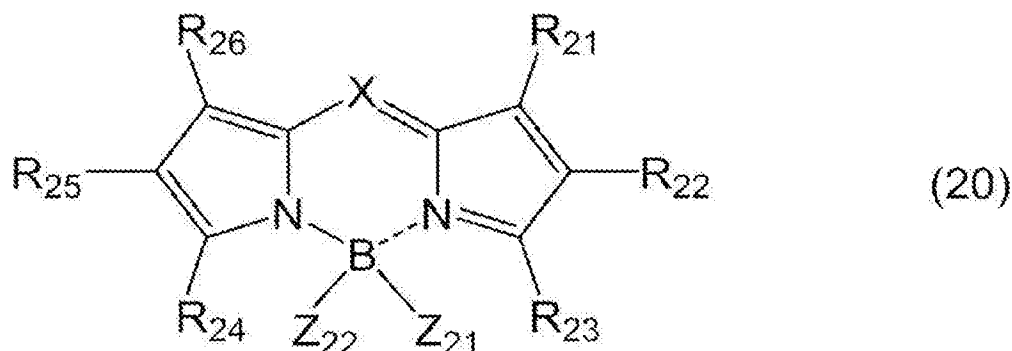
R₉₁₅が複数存在する場合、複数のR₉₁₅は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₁₆が複数存在する場合、複数のR₉₁₆は、互いに同一であるか又は異なり、

R₉₁₇が複数存在する場合、複数のR₉₁₇は、互いに同一であるか又は異なる。)

[請求項23] 前記化合物M1は、下記一般式(20)で表される化合物である、
請求項21に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化22]



(前記一般式(20)において、

Xは、窒素原子、又はYと結合する炭素原子であり、

Yは、水素原子又は置換基であり、

R₂₁～R₂₆は、それぞれ独立に、水素原子もしくは置換基である
か、又はR₂₁及びR₂₂の組、R₂₂及びR₂₃の組、R₂₄及びR₂₅の組
、並びにR₂₅及びR₂₆の組のいずれか1つ以上の組が互いに結合し
て環を形成し、

置換基としてのY、及びR₂₁～R₂₆は、それぞれ独立に、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数3～30のシクロアルキル基

、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリール基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のハロゲン化アルコキシ基

、

置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキルチオ基、

置換もしくは無置換の環形成炭素数6～30のアリールオキシ基

、

置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリールチオ基、
 置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 30 のアルケニル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 30 のアラルキル基、
 置換もしくは無置換の環形成原子数 5 ～ 30 のヘテロアリール基
 、
 ハロゲン原子、
 カルボキシ基、
 置換もしくは無置換のエステル基、
 置換もしくは無置換のカルバモイル基、
 置換もしくは無置換のアミノ基、
 ニトロ基、
 シアノ基、
 置換もしくは無置換のシリル基、及び
 置換もしくは無置換のシロキサニル基からなる群から選択され、
 Z_{21} 及び Z_{22} は、それぞれ独立に、置換基であるか、又は Z_{21} 及び Z_{22} が互いに結合して環を形成し、
 置換基としての Z_{21} 及び Z_{22} は、それぞれ独立に、
 ハロゲン原子、
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルキル基、
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のハロゲン化アルキル基、
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリール基、
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルコキシ基、
 置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のハロゲン化アルコキシ基
 、及び
 置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ～ 30 のアリールオキシ基
 からなる群から選択される。)

[請求項24]

前記発光層は、前記化合物 M2 と、さらに化合物 M3 とを含み、
 前記化合物 M2 の最低励起一重項エネルギー S_1 (M2) と、前記

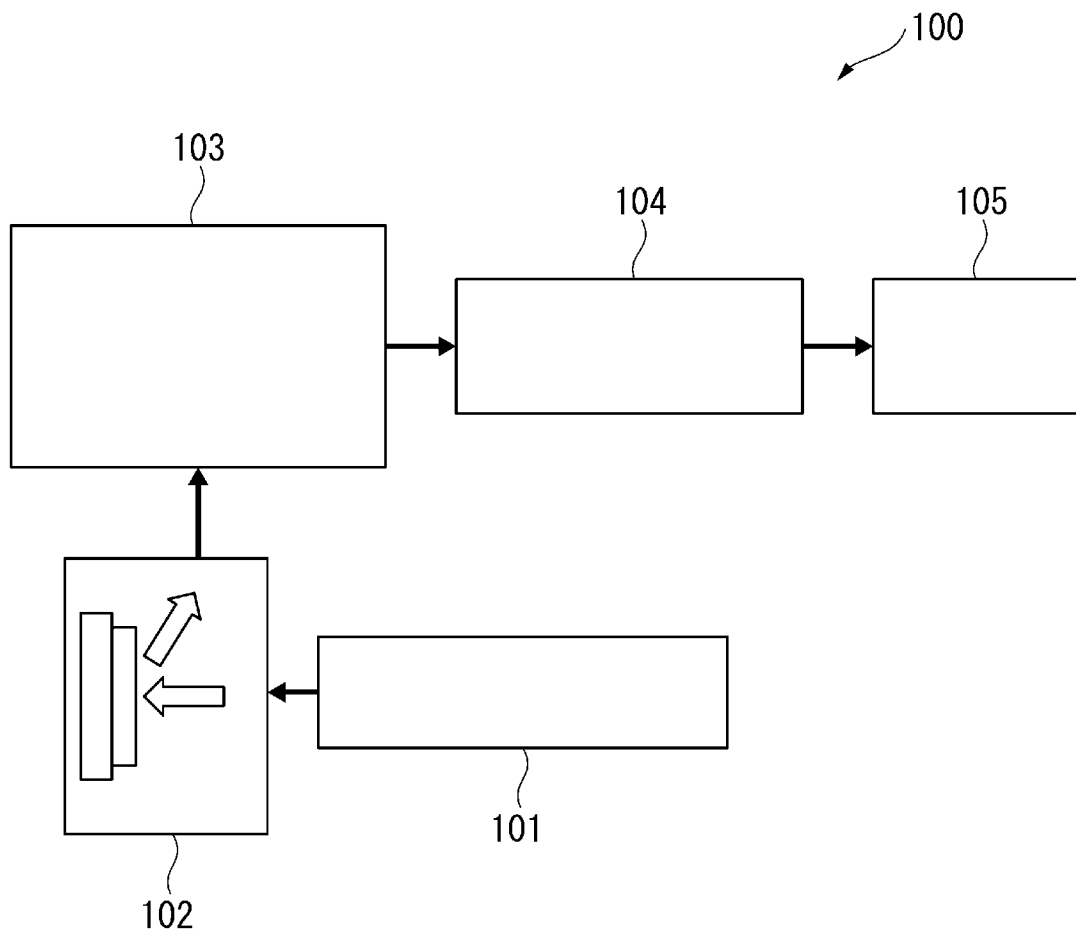
化合物M3の最低励起一重項エネルギー $S_1(M3)$ とが、下記数式(数2)の関係を満たす、

請求項20から請求項23のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

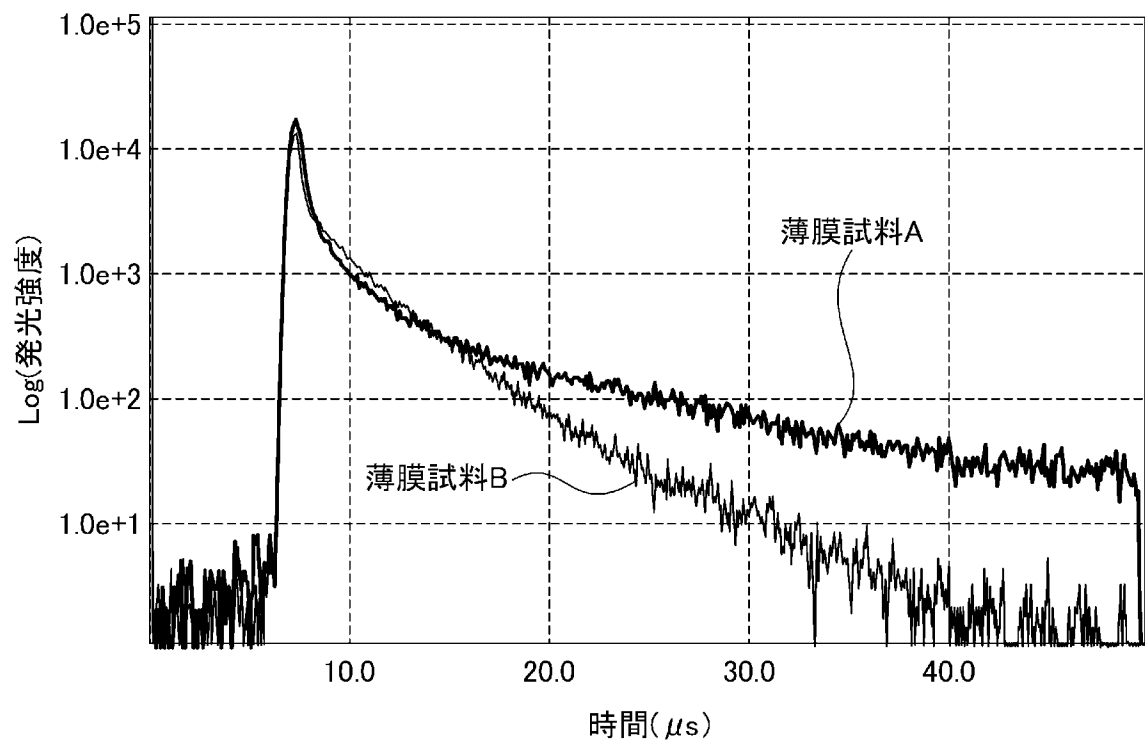
$$S_1(M3) > S_1(M2) \quad \dots (数2)$$

[請求項25] 請求項19から請求項24のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を搭載した、電子機器。

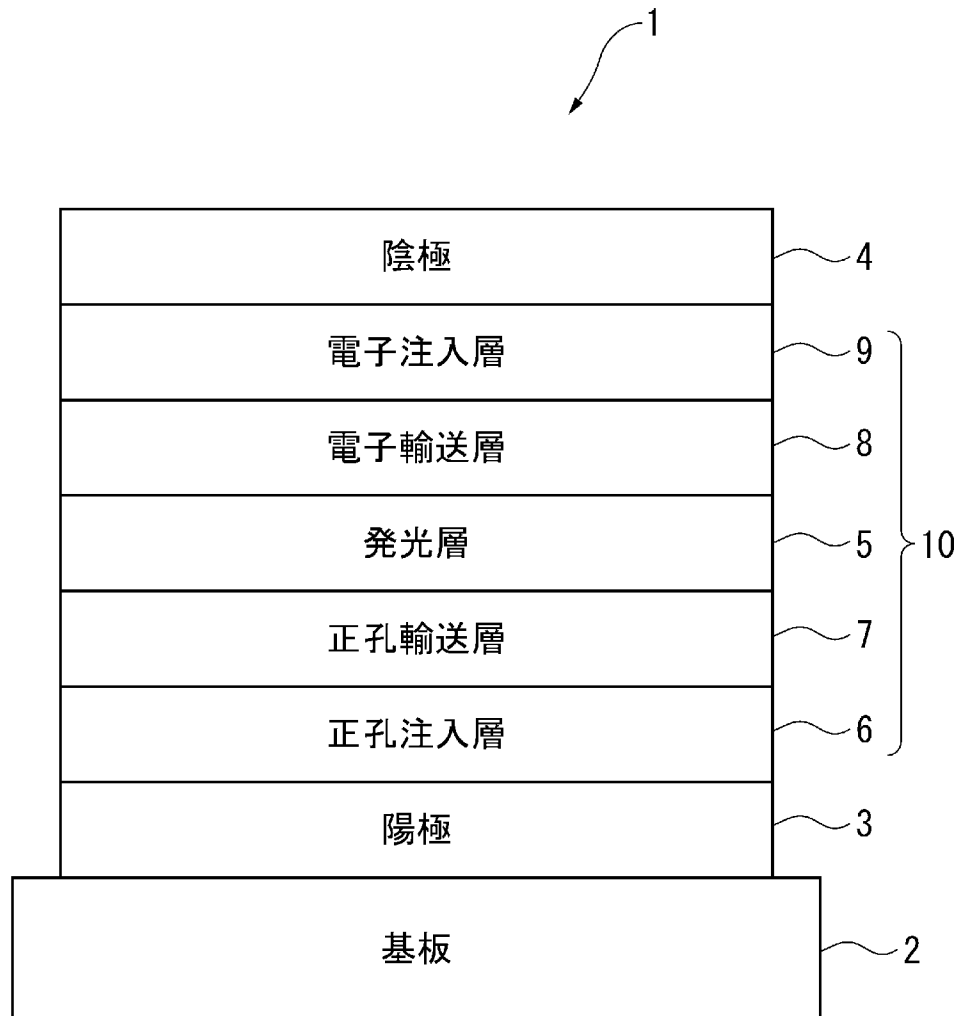
[図1]



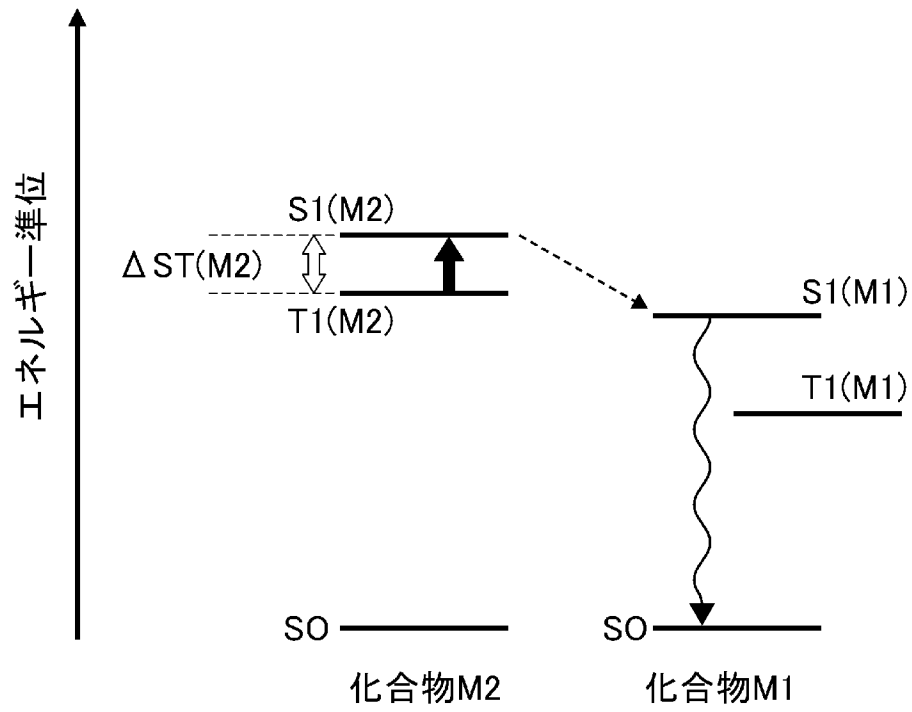
[図2]



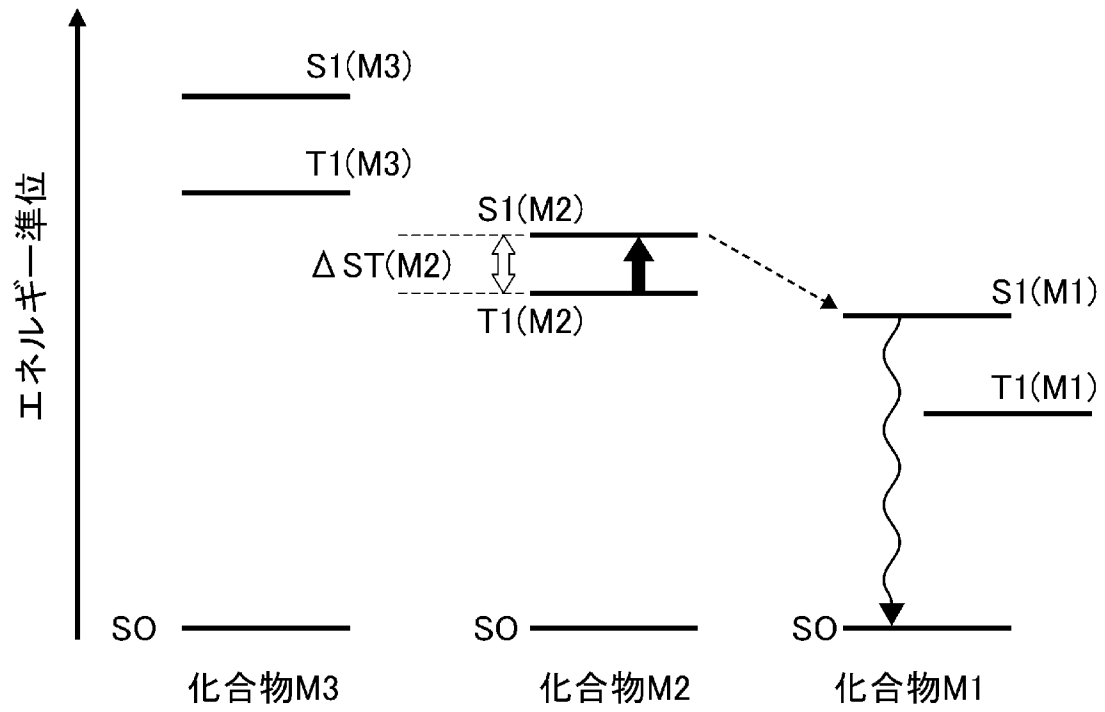
[図3]



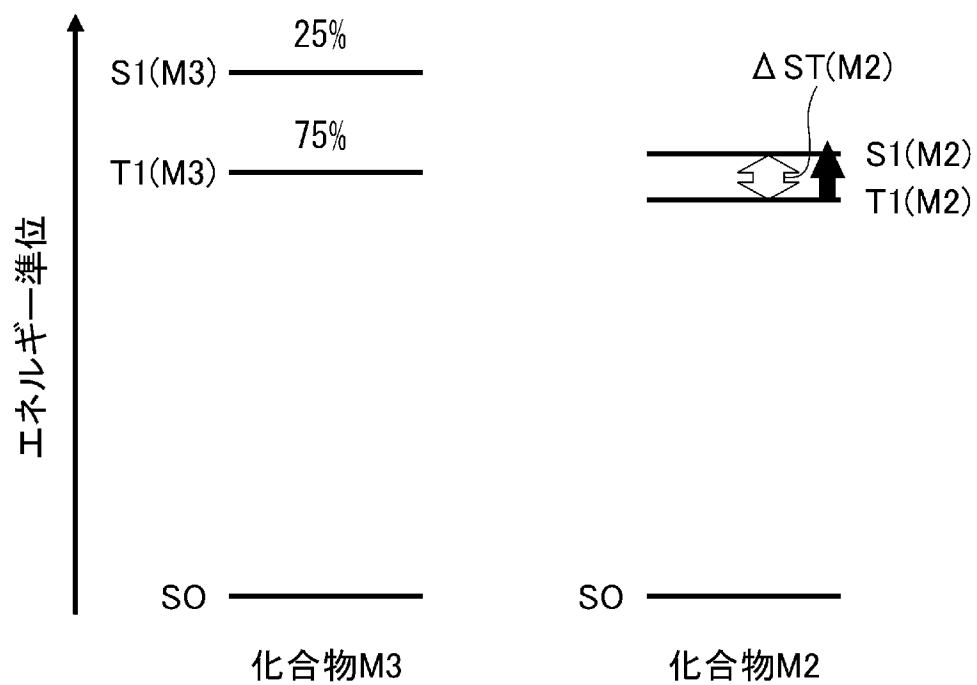
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/023247

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**C07D 495/14**(2006.01)i; **C07D 519/00**(2006.01)i; **C09K 11/06**(2006.01)i; **H01L 51/50**(2006.01)i

FI: C07D495/14 A CSP; C07D519/00 301; C09K11/06 660; C09K11/06 690; H05B33/14 B

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D495/14; C07D519/00; C09K11/06; H01L51/50

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022

Registered utility model specifications of Japan 1996-2022

Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2021/066059 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 08 April 2021 (2021-04-08) claims, paragraphs [0114]-[0170], [0184]-[0200], [0218]-[0258], examples	1-25
A	WO 2014/208698 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 31 December 2014 (2014-12-31) entire text	1-25
A	WO 2019/195104 A1 (KYULUX, INC.) 10 October 2019 (2019-10-10) entire text	1-25

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

09 August 2022

Date of mailing of the international search report

23 August 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/023247

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2021/066059	A1	08 April 2021	(Family: none)	
WO	2014/208698	A1	31 December 2014	US 2016/0130225	A1
				EP 3015457	A1
				CN 105209434	A
				KR 10-2016-0023655	A
WO	2019/195104	A1	10 October 2019	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C07D 495/14(2006.01)i; C07D 519/00(2006.01)i; C09K 11/06(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i FI: C07D495/14 A CSP; C07D519/00 301; C09K11/06 660; C09K11/06 690; H05B33/14 B										
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C07D495/14; C07D519/00; C09K11/06; H01L51/50 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2022年</td> </tr> </table> 国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2022年	日本国実用新案登録公報	1996-2022年	日本国登録実用新案公報	1994-2022年
日本国実用新案公報	1922-1996年									
日本国公開実用新案公報	1971-2022年									
日本国実用新案登録公報	1996-2022年									
日本国登録実用新案公報	1994-2022年									
C. 関連すると認められる文献										
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号								
X	WO 2021/066059 A1 (出光興産株式会社) 08.04.2021 (2021-04-08) 請求の範囲, 段落[0114]~[0170], [0184]~[0200], [0218]~[0258], 実施例	1-25								
A	WO 2014/208698 A1 (出光興産株式会社) 31.12.2014 (2014-12-31) 全文	1-25								
A	WO 2019/195104 A1 (KYULUX, INC.) 10.10.2019 (2019-10-10) 全文	1-25								
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。										
<table border="0"> <tr> <td> * 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般の技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 </td> <td> “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献 </td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般の技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献						
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般の技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献									
国際調査を完了した日 09.08.2022		国際調査報告の発送日 23.08.2022								
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 神谷 昌克 4H 8379 電話番号 03-3581-1101 内線 3492								

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/023247

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2021/066059	A1	08.04.2021	(ファミリーなし)	
WO	2014/208698	A1	31.12.2014	US 2016/0130225	A1
				EP 3015457	A1
				CN 105209434	A
				KR 10-2016-0023655	A
WO	2019/195104	A1	10.10.2019	(ファミリーなし)	