

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2019-161218

(P2019-161218A)

(43) 公開日 令和1年9月19日(2019.9.19)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>H01L 51/50 (2006.01)</b>	H05B 33/14 B	3K107
<b>H05B 33/12 (2006.01)</b>	H05B 33/12 C	
<b>H01L 27/32 (2006.01)</b>	H05B 33/22 B	
<b>C09K 11/06 (2006.01)</b>	H01L 27/32	
	C09K 11/06 690	
審査請求 未請求 請求項の数 15 O L (全 166 頁) 最終頁に続く		

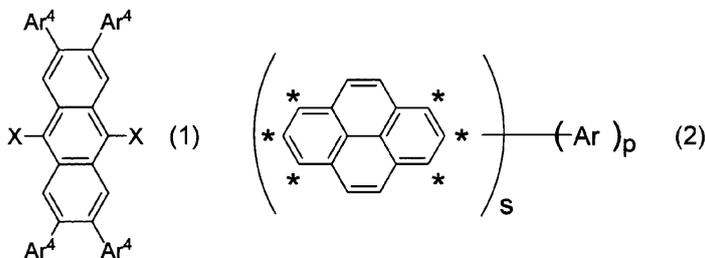
(21) 出願番号	特願2018-236977 (P2018-236977)	(71) 出願人	311002067 JNC株式会社 東京都千代田区大手町二丁目2番1号
(22) 出願日	平成30年12月19日(2018.12.19)	(74) 代理人	100092783 弁理士 小林 浩
(31) 優先権主張番号	特願2018-42049 (P2018-42049)	(74) 代理人	100128484 弁理士 井口 司
(32) 優先日	平成30年3月8日(2018.3.8)	(74) 代理人	100104282 弁理士 鈴木 康仁
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)	(72) 発明者	藤田 幸宏 千葉県市原市五井海岸5番地の1 JNC 石油化学株式会社 市原研究所内
		Fターム(参考)	3K107 AA01 BB01 BB02 CC04 CC21 DD51 DD53 DD68 DD69 DD74 DD75 DD76 DD78 DD84 DD86 FF14

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 キャリアバランスに優れた有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 発光層が、ホスト材料として、式(1)で表されるアントラセン系化合物および式(2)で表されるピレン系化合物を含み、さらにドーパント材料を含む有機電界発光素子。



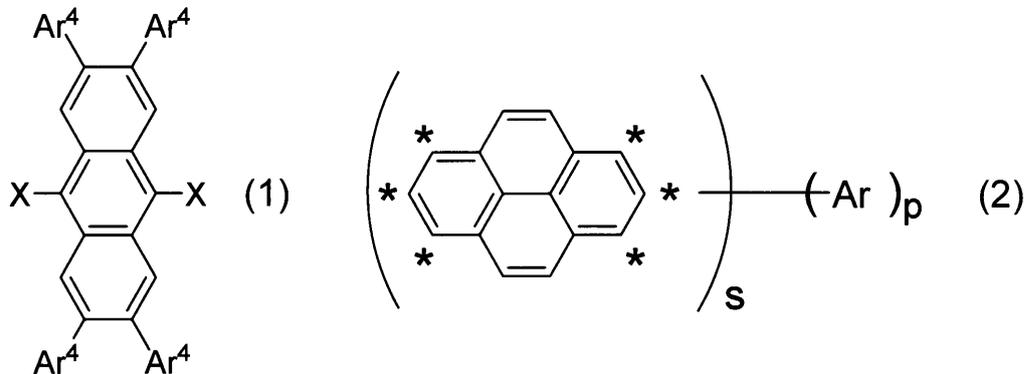
式(1)中、XおよびAr<sup>4</sup>は水素および置換されていてもよいアリール。式(2)中、p個のAr部分がs個のピレン部分の\*のいずれかの位置で結合し、ピレン部分の少なくとも1つの水素は、炭素数6~10のアリール等で置換されていてもよく、Arは置換されていてもよい炭素数14~40のアリールまたは炭素数12~40のヘテロアリールであり、sおよびpはそれぞれ独立して1または2の整数であり、sおよびpは同時に2になることはない。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

陽極層および陰極層からなる一対の電極層と、該一対の電極層間に配置される発光層とを有する有機電界発光素子であって、前記発光層は、ホスト材料として、下記一般式(1)で表されるアントラセン系化合物および下記一般式(2)で表されるピレン系化合物を含み、さらにドーパント材料を含む、有機電界発光素子。

## 【化 1】



10

(上記式(1)中、

XおよびAr<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいジアリールアミノ、置換されていてもよいジヘテロアリールアミノ、置換されていてもよいアリールヘテロアリールアミノ、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、置換されていてもよいアルケニル、置換されていてもよいアルコキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオまたは置換されていてもよいシリルであり、全てのXおよびAr<sup>4</sup>は同時に水素になることはなく、

20

式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素はハロゲン、シアノ、重水素または置換されていてもよいヘテロアリールで置換されていてもよい。)

(上記式(2)中、

s個のピレン部分とp個のAr部分とがピレン部分の\*のいずれかの位置とAr部分のいずれかの位置とで結合し、

30

ピレン部分の少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、

Arは、それぞれ独立して、炭素数14~40のアリールまたは炭素数12~40のヘテロアリールであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、

40

sおよびpはそれぞれ独立して1または2の整数であり、sおよびpは同時に2になることはなく、sが2である場合は2個のピレン部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、pが2である場合は2個のAr部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、そして、

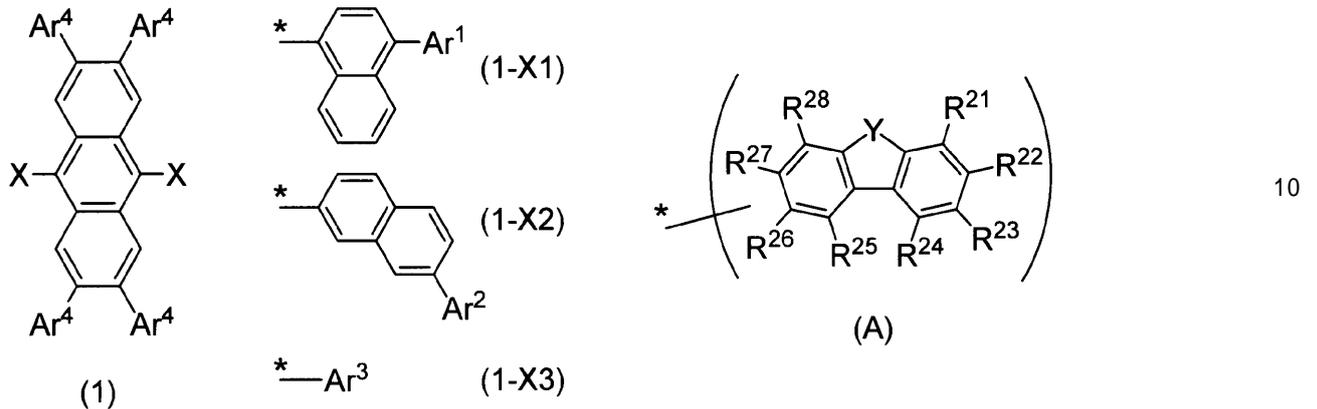
式(2)で表される化合物における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよい。)

50

## 【請求項 2】

前記発光層は、ホスト材料として、下記一般式(1)で表されるアントラセン系化合物を含む、請求項1に記載する有機電界発光素子。

## 【化 2】



(上記式(1)中、

Xはそれぞれ独立して上記式(1-X1)、式(1-X2)または式(1-X3)で表される基であり、式(1-X1)および式(1-X2)におけるナフチレン部位は1つのベンゼン環で縮合されていてもよく、式(1-X1)、式(1-X2)または式(1-X3)で表される基は\*において式(1)のアントラセン環と結合し、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>およびAr<sup>3</sup>は、それぞれ独立して、水素(Ar<sup>3</sup>を除く)、フェニル、ピフェニリル、テルフェニリル、クアテルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニル、または、上記式(A)で表される基であり、Ar<sup>3</sup>における少なくとも1つの水素は、さらにフェニル、ピフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニル、または、上記式(A)で表される基で置換されていてもよく、

Ar<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素、フェニル、ピフェニリル、ターフェニリル、ナフチル、または、炭素数1~4のアルキルもしくは炭素数5~10のシクロアルキルで置換されているシリルであり、そして、

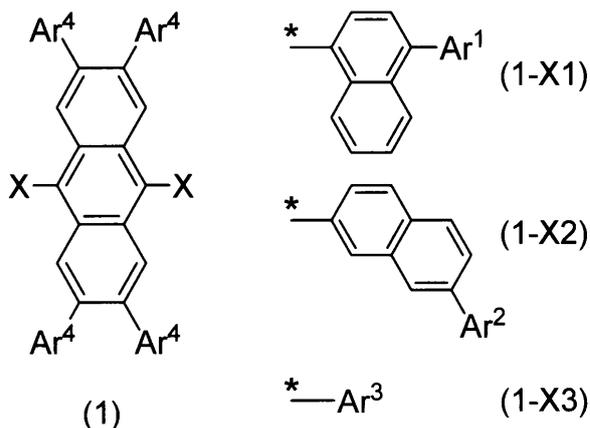
式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素はハロゲン、シアノ、重水素または上記式(A)で表される基で置換されていてもよく、

上記式(A)中、Yは-O-、-S-または>N-R<sup>29</sup>であり、R<sup>21</sup>~R<sup>28</sup>はそれぞれ独立して水素、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルコキシ、置換されていてもよいアリーロキシ、置換されていてもよいアリールチオ、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、置換されていてもよいアミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノであり、R<sup>21</sup>~R<sup>28</sup>のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、アリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、R<sup>29</sup>は水素または置換されていてもよいアリールであり、式(A)で表される基は\*において式(1-X1)または式(1-X2)のナフタレン環、式(1-X3)の単結合、式(1-X3)のAr<sup>3</sup>と結合し、また式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素と置換し、式(A)の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。)

## 【請求項 3】

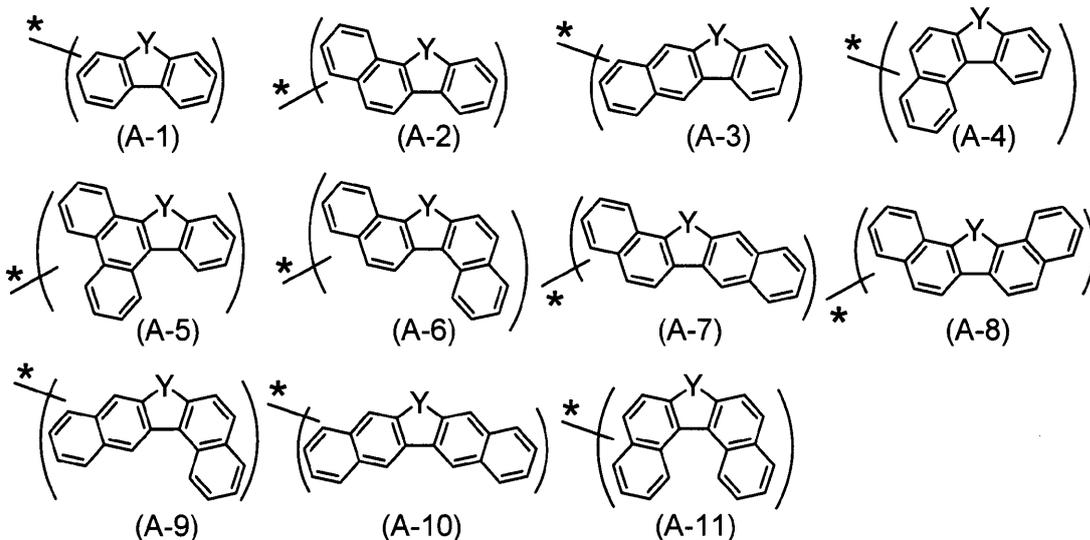
前記発光層は、ホスト材料として、下記一般式(1)で表されるアントラセン系化合物を含む、請求項1に記載する有機電界発光素子。

## 【化3】



10

## 【化4】



20

30

(上記式(1)中、

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

40

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

式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素はハロゲン、シアノ、重水素で置換されていてもよく、

上記式(A-1)~式(A-11)中、 $Y$ は $-O-$ 、 $-S-$ または $>N-R^{2,9}$ であり、 $R^{2,9}$ は水素またはアリールであり、式(A-1)~式(A-11)で表される基における少なくとも1つの水素はアルキル、シクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アルコキシ、アリールオキシ、アリールチオ、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、ジアリール置換アミノ、ジヘテロアリール置換アミノ、アリールヘテロアリール置換アミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノで置換されていてもよく、式(A-1)~

50

式 (A - 11) で表される基は \* において式 (1 - X1) または式 (1 - X2) のナフタレン環、式 (1 - X3) の単結合、式 (1 - X3) の Ar<sup>3</sup> と結合し、式 (A - 1) ~ 式 (A - 11) の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。)

【請求項 4】

上記式 (1) 中、

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

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

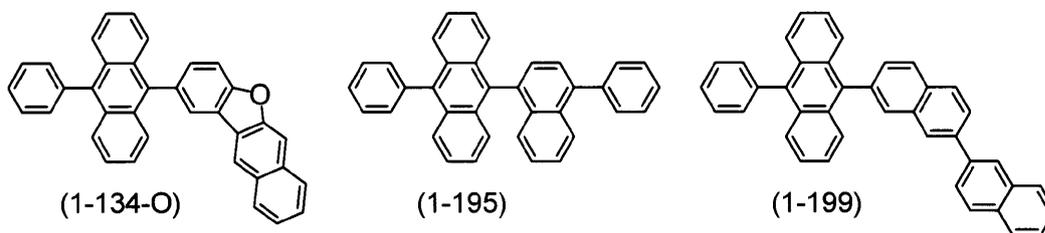
式 (1) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素はハロゲン、シアノ、重水素で置換されていてもよい、

請求項 3 に記載する有機電界発光素子。

【請求項 5】

上記式 (1) で表される化合物が下記構造式で表される化合物である、請求項 1 に記載する有機電界発光素子。

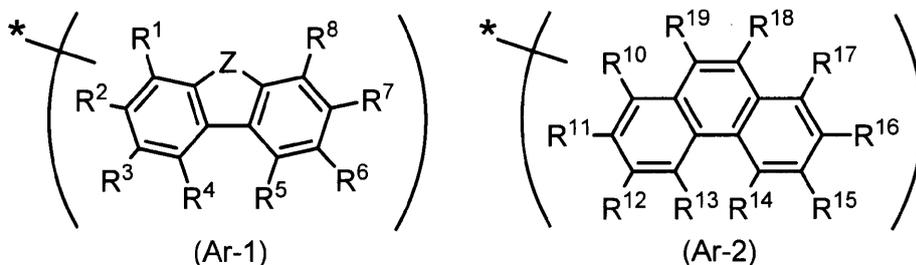
【化 5】



【請求項 6】

上記一般式 (2) 中の Ar が、それぞれ独立して、下記一般式 (Ar - 1) または一般式 (Ar - 2) で表される基である、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

【化 6】



上記各式中、

Z は、>CR<sub>2</sub>、>N-R、>O または >S であり、

>CR<sub>2</sub> における R は、それぞれ独立して、炭素数 1 ~ 6 のアルキル、炭素数 3 ~ 14 のシクロアルキル、炭素数 6 ~ 12 のアリールまたは炭素数 2 ~ 12 のヘテロアリールであり、前記アリールおよびヘテロアリールにおける少なくとも 1 つの水素は炭素数 1 ~ 4 のアルキルまたは炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキルで置換されていてもよく、R は互いに結合して環を形成していてもよく、

10

20

30

40

50

> N - RにおけるRは、炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールであり、前記アリールおよびヘテロアリールにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよく、

R<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>およびR<sup>10</sup>からR<sup>19</sup>は、それぞれ独立して、水素、炭素数6～10のアリール、炭素数2～11のヘテロアリール、炭素数1～30のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数2～30のアルケニル、炭素数1～30のアルコキシまたは炭素数6～30のアリールオキシであり、これらにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよく、R<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>のうち隣接する基同士またはR<sup>10</sup>からR<sup>19</sup>のうち隣接する基同士が互いに結合して縮合環を形成していてもよく、形成された環は、それぞれ独立して、炭素数6～10のアリール、炭素数2～11のヘテロアリール、炭素数1～30のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数2～30のアルケニル、炭素数1～30のアルコキシまたは炭素数6～30のアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよく、そして、

上記式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよく、

上記式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基は\*においてピレン部分のいずれかの位置で結合し、ピレン部分は上記式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基中のいずれかの位置で結合する。

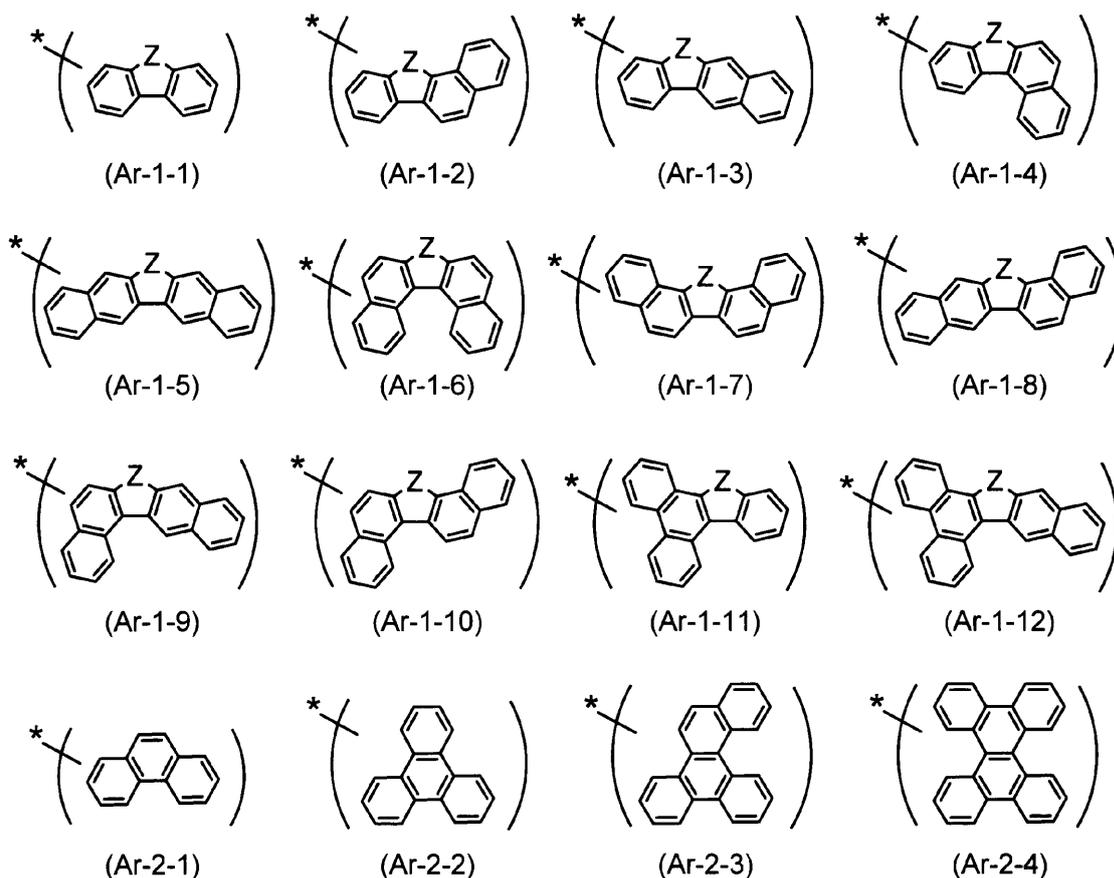
【請求項7】

上記一般式(2)中のArが、それぞれ独立して、下記一般式(Ar-1-1)～式(Ar-1-12)及び一般式(Ar-2-1)～式(Ar-2-4)のいずれかで表される基である、請求項1～5のいずれかに記載する有機電界発光素子。

10

20

## 【化 7】



10

20

上記各式中、

Zは、 $>CR_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ または $>S$ であり、

$>CR_2$ におけるRは、それぞれ独立して、炭素数1~6のアルキル、炭素数3~14のシクロアルキルまたは炭素数6~12のアリールであり、Rは互いに結合して環を形成していてもよく、

$>N-R$ におけるRは、炭素数1~4のアルキル、炭素数5~10のシクロアルキルまたは炭素数6~12のアリールであり、

上記各式で表される基における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキルまたは炭素数3~24のシクロアルキルで置換されていてもよく、そして、

上記各式で表される基における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよく、

上記式(Ar-1-1)~式(Ar-1-12)及び式(Ar-2-1)~式(Ar-2-4)のいずれかで表される基は\*においてピレン部分のいずれかの位置で結合し、ピレン部分は上記式(Ar-1-1)~式(Ar-1-12)及び式(Ar-2-1)~式(Ar-2-4)のいずれかで表される基中のいずれかの位置で結合する。

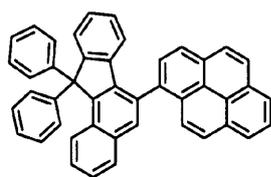
30

40

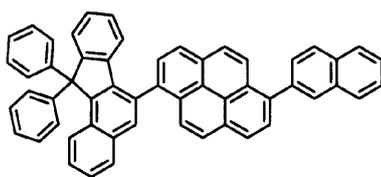
## 【請求項 8】

上記一般式(2)で表されるピレン系化合物が、下記いずれかの構造式で表される化合物である、請求項1~5のいずれかに記載する有機電界発光素子。

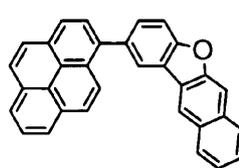
## 【化 8】



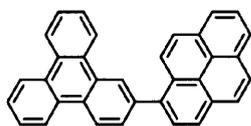
(2-1)



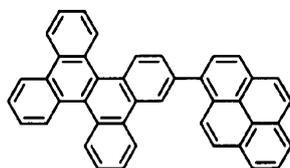
(2-46)



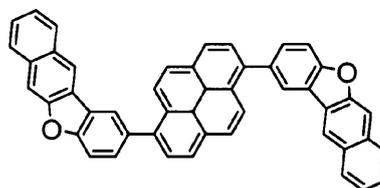
(2-174)



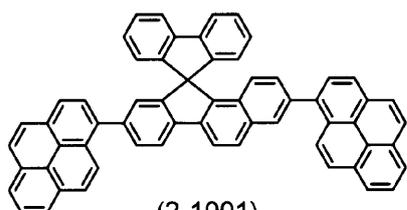
(2-350)



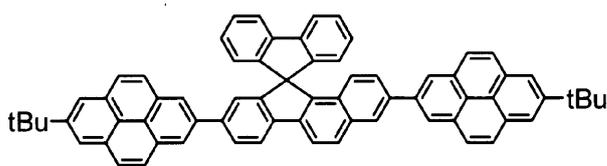
(2-356)



(2-359)



(2-1001)



(2-1080)



(2-1223)

## 【請求項 9】

前記発光層が少なくとも第 1 発光層と第 2 発光層を積層して構成され、前記第 1 発光層が前記アントラセン系化合物を含有し、前記第 2 発光層が前記ピレン系化合物を含有する、請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

30

## 【請求項 10】

前記第 1 発光層と前記第 2 発光層との間に前記アントラセン系化合物および前記ピレン系化合物を含む混合領域を有し、該混合領域においてアントラセン系化合物の濃度が第 1 発光層から第 2 発光層の方向に減少するか、ピレン系化合物の濃度が第 2 発光層から第 1 発光層の方向に減少するか、またはその両方である、請求項 9 に記載する有機電界発光素子。

## 【請求項 11】

前記発光層において、当該発光層を挟持する一方の層から他方の層の方向に前記アントラセン系化合物の濃度が減少するか、前記一方の層から前記他方の層の方向に前記ピレン系化合物の濃度が増加するか、またはその両方である、請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

40

## 【請求項 12】

前記ドーパント材料がホウ素含有化合物または上記一般式(2)で表されるピレン系化合物とは異なるピレン系化合物を含む、請求項 1 ~ 11 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

## 【請求項 13】

さらに、前記陰極層と該発光層との間に配置される電子輸送層および/または電子注入層を有し、該電子輸送層および電子注入層の少なくとも 1 つは、ボラン誘導体、ピリジン誘導体、フルオランテン誘導体、BO系誘導体、アントラセン誘導体、ベンゾフルオレン

50

誘導体、ホスフィンオキサイド誘導体、ピリミジン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアジン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、およびキノリノール系金属錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、請求項1～12のいずれかに記載する有機電界発光素子。

【請求項14】

前記電子輸送層および/または電子注入層が、さらに、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体および希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、請求項13に記載の有機電界発光素子。

10

【請求項15】

請求項1～14のいずれかに記載する有機電界発光素子を備えた表示装置または照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ホスト材料としてアントラセン系化合物およびピレン系化合物の両方を含む発光層を有する有機電界発光素子、これを用いた表示装置および照明装置に関する。

【背景技術】

20

【0002】

従来、電界発光する発光素子を用いた表示装置は、省電力化や薄型化が可能なことから、種々研究され、さらに、有機材料から成る有機電界発光素子（以下、有機EL素子）は、軽量化や大型化が容易なことから活発に検討されてきた。特に、光の三原色の一つである青色などの発光特性を有する有機材料の開発、および最適な発光特性となる複数材料の組み合わせについては、高分子化合物、低分子化合物を問わずこれまで活発に研究されてきた。

【0003】

有機EL素子は、陽極および陰極からなる一对の電極と、当該一对の電極間に配置され、有機化合物を含む一層または複数の層とからなる構造を有する。有機化合物を含む層には、発光層や、正孔、電子などの電荷を輸送または注入する電荷輸送/注入層などがあるが、これらの層に適当な種々の有機材料が開発されている。

30

【0004】

発光層は、電界を与えられた電極間において、陽極から注入された正孔と陰極から注入された電子とを再結合させることにより発光する層である。一般的な青色素子の発光層としては、一種類のピレン系ドーパントと一種類のアントラセン系ホストからなる単一発光層の構成が広く採用されている。一般的にアントラセン系化合物はホスト材料として知られ（国際公開第2014/141725号公報、国際公開第2016/152544号公報）、ホスト材料としては他にはジベンゾクリセン系化合物も知られている（特開2011-6397号公報）。

【先行技術文献】

40

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】国際公開第2014/141725号公報

【特許文献2】国際公開第2016/152544号公報

【特許文献3】特開2011-006397号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかしながら、このような単一発光層の構成においては、ドーパントとホストとでキャリアバランスを整え、発光層中心で発光させることは難しい場合も多く、通常は正孔輸送

50

層側または電子輸送層側に再結合領域が偏ることが多いといわれている。その結果、正孔輸送層や電子輸送層へキャリアの流れ込みが起こり、素子効率や素子寿命の低下につながると考えられている。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、発光層を二種類以上のホスト材料を用いて例えば二層構造とすることにより、再結合領域を発光層と隣接層との界面から遠ざけて、隣接層へのキャリアの流れ込みを抑制し、キャリアバランスを向上させることができると考えた。そして、本願の実施例において、このような素子構成が素子効率や素子寿命の向上につながることが実証され、これは、キャリアバランスが向上し、キャリア輸送層への負担を抑制できるようになったためと考えられる。

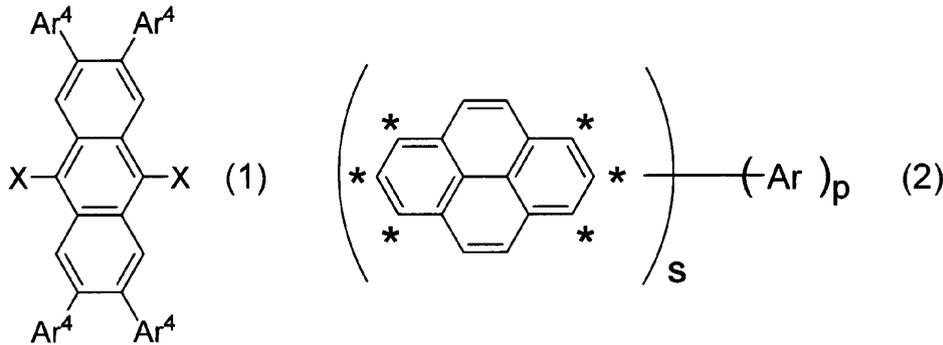
10

【0008】

項1.

陽極層および陰極層からなる一对の電極層と、該一对の電極層間に配置される発光層とを有する有機電界発光素子であって、前記発光層は、ホスト材料として、下記一般式(1)で表されるアントラセン系化合物および下記一般式(2)で表されるピレン系化合物を含み、さらにドーパント材料を含む、有機電界発光素子。

【化9】



20

(上記式(1)中、

XおよびAr<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいジアリールアミノ、置換されていてもよいジヘテロアリールアミノ、置換されていてもよいアリールヘテロアリールアミノ、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、置換されていてもよいアルケニル、置換されていてもよいアルコキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオまたは置換されていてもよいシリルであり、全てのXおよびAr<sup>4</sup>は同時に水素になることはなく、

30

式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素はハロゲン、シアノ、重水素または置換されていてもよいヘテロアリールで置換されていてもよい。) )

(上記式(2)中、

s個のピレン部分とp個のAr部分とがピレン部分の\*のいずれかの位置とAr部分のいずれかの位置とで結合し、

40

ピレン部分の少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、

Arは、それぞれ独立して、炭素数14~40のアリールまたは炭素数12~40のヘ

50

テロアリアルであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6～10のアリアル、炭素数2～11のヘテロアリアル、炭素数1～30のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数2～30のアルケニル、炭素数1～30のアルコキシまたは炭素数6～30のアリアルオキシで置換されていてもよく、

s および p はそれぞれ独立して1または2の整数であり、s および p は同時に2になることはなく、s が2である場合は2個のピレン部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、p が2である場合は2個のAr部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、そして、

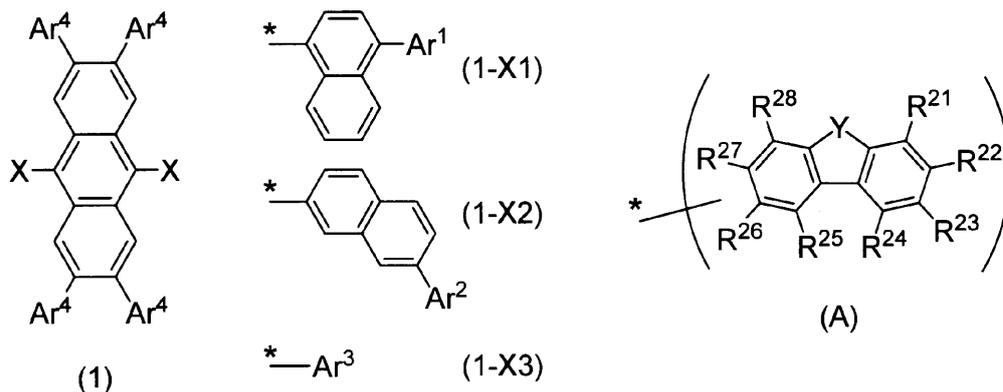
式(2)で表される化合物における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよい。

【0009】

項2.

前記発光層は、ホスト材料として、下記一般式(1)で表されるアントラセン系化合物を含む、項1に記載する有機電界発光素子。

【化10】



(上記式(1)中、

Xはそれぞれ独立して上記式(1-X1)、式(1-X2)または式(1-X3)で表される基であり、式(1-X1)および式(1-X2)におけるナフチレン部位は1つのベンゼン環で縮合されていてもよく、式(1-X1)、式(1-X2)または式(1-X3)で表される基は\*において式(1)のアントラセン環と結合し、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>およびAr<sup>3</sup>は、それぞれ独立して、水素(Ar<sup>3</sup>を除く)、フェニル、ピフェニリル、テルフェニリル、クアテルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニル、または、上記式(A)で表される基であり、Ar<sup>3</sup>における少なくとも1つの水素は、さらにフェニル、ピフェニリル、テルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニル、または、上記式(A)で表される基で置換されていてもよく、

Ar<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素、フェニル、ピフェニリル、ターフェニリル、ナフチル、または、炭素数1～4のアルキルもしくは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されているシリルであり、そして、

式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素はハロゲン、シアノ、重水素または上記式(A)で表される基で置換されていてもよく、

上記式(A)中、Yは-O-、-S-または>N-R<sup>29</sup>であり、R<sup>21</sup>～R<sup>28</sup>はそれぞれ独立して水素、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、置換されていてもよいアリアル、置換されていてもよいヘテロアリアル、置換されていてもよいアルコキシ、置換されていてもよいアリアルオキシ、置換されていてもよいアリアルチオ、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、置換されていてもよいアミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノであり、R<sup>21</sup>～R<sup>28</sup>のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、アリアル環またはヘテロアリアル環を形成していてもよく、

10

20

30

40

50

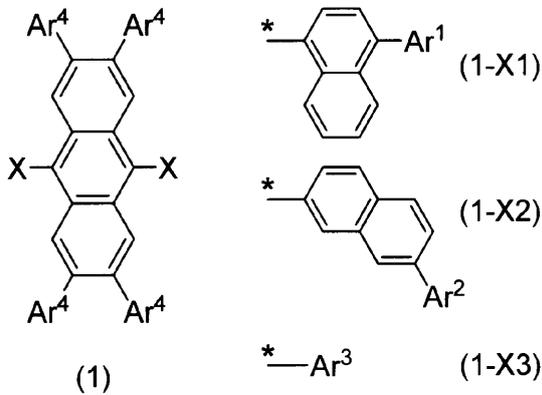
R<sup>29</sup> は水素または置換されていてもよいアリールであり、式 (A) で表される基は \* において式 (1-X1) または式 (1-X2) のナフタレン環、式 (1-X3) の単結合、式 (1-X3) の Ar<sup>3</sup> と結合し、また式 (1) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素と置換し、式 (A) の構造においてはいずれかの位置でこれらと結合する。

【0010】

項 3 .

前記発光層は、ホスト材料として、下記一般式 (1) で表されるアントラセン系化合物を含む、項 1 に記載する有機電界発光素子。

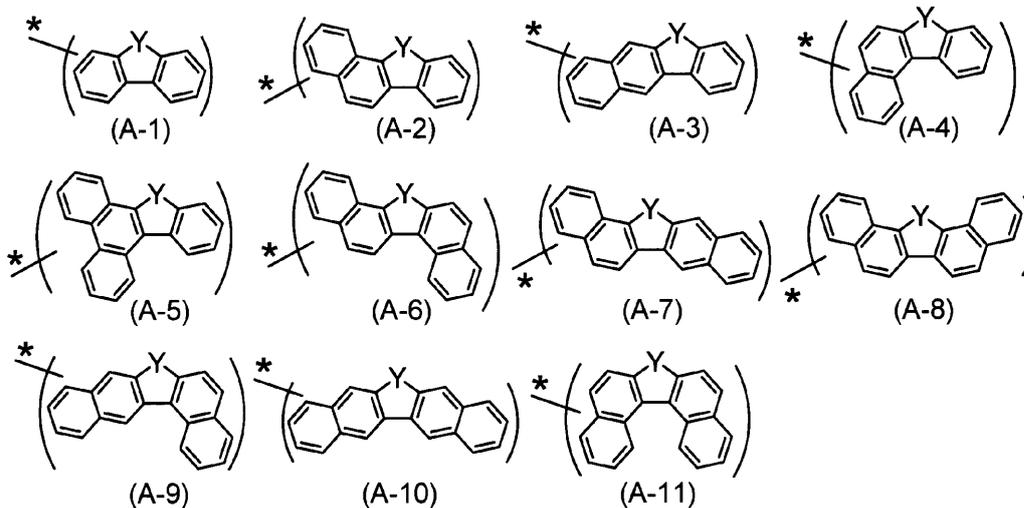
【化 1 1】



10

20

【化 1 2】



30

(上記式 (1) 中、

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

40

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

式 (1) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素はハロゲン、シアノ、重水素で置換されていてもよく、

50

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

【0011】

項4.

上記式(1)中、

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

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

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

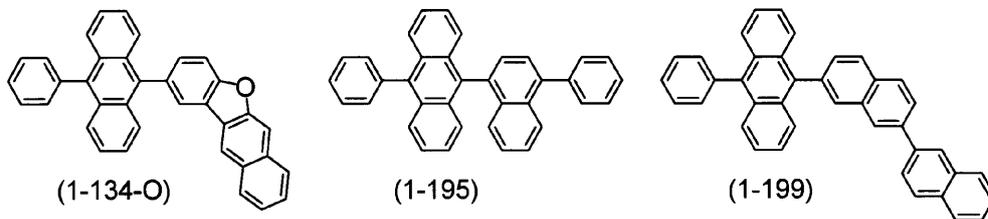
項3に記載する有機電界発光素子。

【0012】

項5.

上記式(1)で表される化合物が下記構造式で表される化合物である、項1に記載する有機電界発光素子。

【化13】

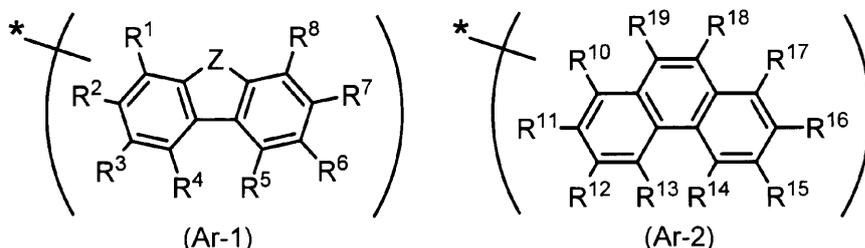


【0013】

項6.

上記一般式(2)中のArが、それぞれ独立して、下記一般式(Ar-1)または一般式(Ar-2)で表される基である、項1~5のいずれかに記載する有機電界発光素子。

【化14】



上記各式中、

10

20

30

40

50

Zは、 $>CR_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ または $>S$ であり、

$>CR_2$ におけるRは、それぞれ独立して、炭素数1～6のアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールであり、前記アリールおよびヘテロアリールにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよく、Rは互いに結合して環を形成していてもよく、

$>N-R$ におけるRは、炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数6～12のアリールまたは炭素数2～12のヘテロアリールであり、前記アリールおよびヘテロアリールにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～4のアルキルまたは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよく、

$R^1$ から $R^8$ および $R^{10}$ から $R^{19}$ は、それぞれ独立して、水素、炭素数6～10のアリール、炭素数2～11のヘテロアリール、炭素数1～30のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数2～30のアルケニル、炭素数1～30のアルコキシまたは炭素数6～30のアリールオキシであり、これらにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよく、 $R^1$ から $R^8$ のうち隣接する基同士または $R^{10}$ から $R^{19}$ のうち隣接する基同士が互いに結合して縮合環を形成していてもよく、形成された環は、それぞれ独立して、炭素数6～10のアリール、炭素数2～11のヘテロアリール、炭素数1～30のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数2～30のアルケニル、炭素数1～30のアルコキシまたは炭素数6～30のアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよく、そして、

上記式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよく、

上記式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基は\*においてピレン部分のいずれかの位置で結合し、ピレン部分は上記式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基中のいずれかの位置で結合する。

【0014】

項7.

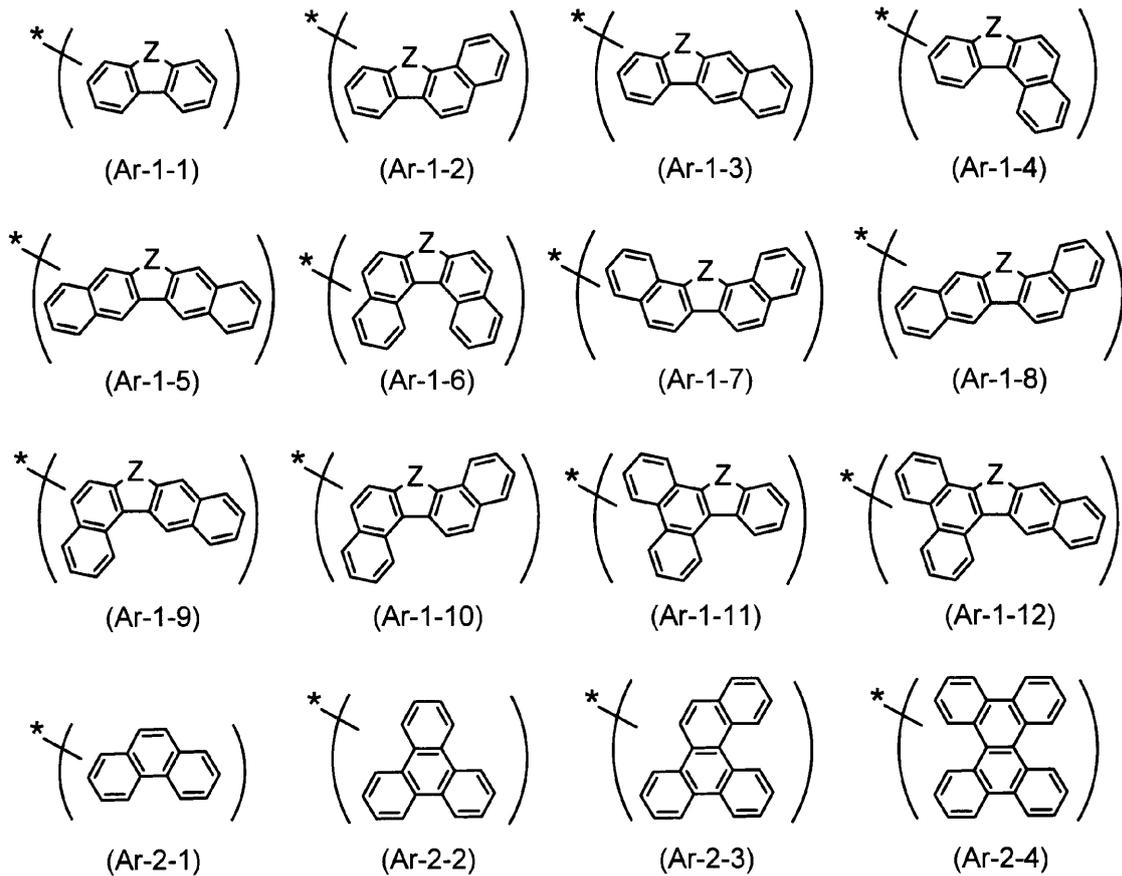
上記一般式(2)中のArが、それぞれ独立して、下記一般式(Ar-1-1)～式(Ar-1-12)及び一般式(Ar-2-1)～式(Ar-2-4)のいずれかで表される基である、項1～5のいずれかに記載する有機電界発光素子。

10

20

30

## 【化 1 5】



10

20

上記各式中、

Zは、 $>CR_2$ 、 $>N-R$ 、 $>O$ または $>S$ であり、

$>CR_2$ におけるRは、それぞれ独立して、炭素数1~6のアルキル、炭素数3~14のシクロアルキルまたは炭素数6~12のアリールであり、Rは互いに結合して環を形成していてもよく、

$>N-R$ におけるRは、炭素数1~4のアルキル、炭素数5~10のシクロアルキルまたは炭素数6~12のアリールであり、

上記各式で表される基における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキルまたは炭素数3~24のシクロアルキルで置換されていてもよく、そして、

上記各式で表される基における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよく、

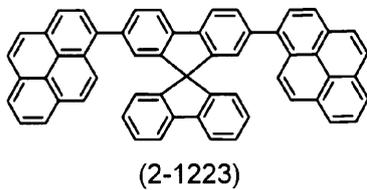
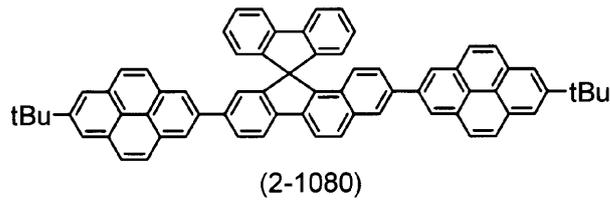
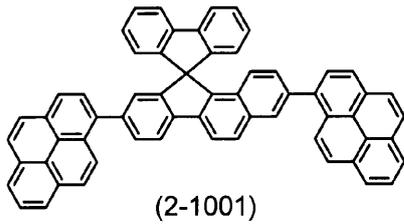
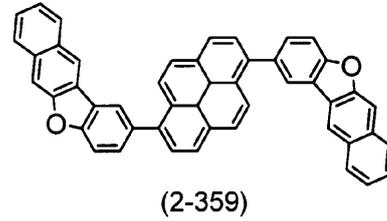
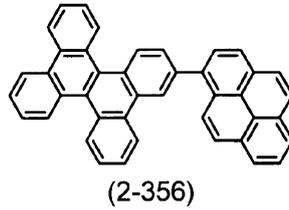
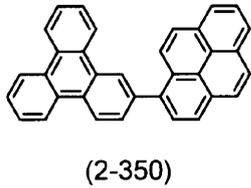
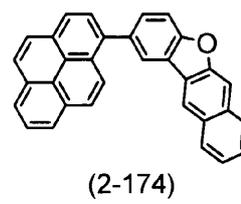
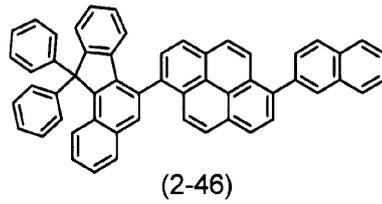
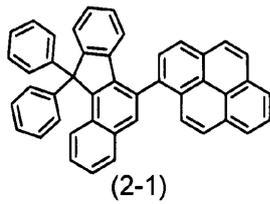
上記式(Ar-1-1)~式(Ar-1-12)及び式(Ar-2-1)~式(Ar-2-4)のいずれかで表される基は\*においてピレン部分のいずれかの位置で結合し、ピレン部分は上記式(Ar-1-1)~式(Ar-1-12)及び式(Ar-2-1)~式(Ar-2-4)のいずれかで表される基中のいずれかの位置で結合する。

## 【0015】

項 8 .

上記一般式(2)で表されるピレン系化合物が、下記いずれかの構造式で表される化合物である、項1~5のいずれかに記載する有機電界発光素子。

## 【化 1 6】



## 【 0 0 1 6】

項 9 .

前記発光層が少なくとも第 1 発光層と第 2 発光層を積層して構成され、前記第 1 発光層が前記アントラセン系化合物を含有し、前記第 2 発光層が前記ピレン系化合物を含有する、項 1 ~ 8 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

## 【 0 0 1 7】

項 1 0 .

前記第 1 発光層と前記第 2 発光層との間に前記アントラセン系化合物および前記ピレン系化合物を含む混合領域を有し、該混合領域においてアントラセン系化合物の濃度が第 1 発光層から第 2 発光層の方向に減少するか、ピレン系化合物の濃度が第 2 発光層から第 1 発光層の方向に減少するか、またはその両方である、項 9 に記載する有機電界発光素子。

## 【 0 0 1 8】

項 1 1 .

前記発光層において、当該発光層を挟持する一方の層から他方の層の方向に前記アントラセン系化合物の濃度が減少するか、前記一方の層から前記他方の層の方向に前記ピレン系化合物の濃度が増加するか、またはその両方である、項 1 ~ 8 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

## 【 0 0 1 9】

項 1 2 .

前記ドーパント材料がホウ素含有化合物または上記一般式(2)で表されるピレン系化合物とは異なるピレン系化合物を含む、項 1 ~ 1 1 のいずれかに記載する有機電界発光素子。

## 【 0 0 2 0】

10

20

30

40

50

項 1 3 .

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

【 0 0 2 1 】

項 1 4 .

前記電子輸送層および/または電子注入層が、さらに、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体および希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも1つを含有する、項 1 3 に記載の有機電界発光素子。

【 0 0 2 2 】

項 1 5 .

項 1 ~ 1 4 のいずれかに記載する有機電界発光素子を備えた表示装置または照明装置。

【 発明の効果 】

【 0 0 2 3 】

本発明の好ましい態様によれば、有機電界発光素子において、ホスト材料としてアントラセン系化合物およびピレン系化合物の両方を含有させた発光層とすることで、素子効率および素子寿命のいずれか、特に好ましくは素子効率および素子寿命を向上させることができる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 2 4 】

【 図 1 】本実施形態に係る有機 E L 素子を示す概略断面図である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 2 5 】

#### 1 . 有機 E L 素子における特徴的な発光層

本発明は、陽極層および陰極層からなる一対の電極層と、該一対の電極層間に配置される発光層とを有する有機 E L 素子であって、前記発光層は、ホスト材料として、上記一般式 ( 1 ) で表されるアントラセン系化合物および上記一般式 ( 2 ) で表されるピレン系化合物を含み、さらにドーパント材料を含む、有機 E L 素子である。

【 0 0 2 6 】

発光層においては、ホスト材料として前記アントラセン系化合物および前記ピレン系化合物の両方が含まれていればよく、発光層内における含有形態 ( 含有量や濃度勾配など ) としては、例えば、

- ( 1 ) 発光層中で両化合物が混在している形態、
- ( 2 ) 発光層中でアントラセン系化合物の濃度が、発光層を挟持する一方の層から他方の層の方向に向かって連続的に変化する形態、
- ( 3 ) 発光層中でピレン系化合物の濃度が、発光層を挟持する一方の層から他方の層の方向に向かって連続的に変化する形態、
- ( 4 ) 発光層中でアントラセン系化合物の濃度が、発光層を挟持する一方の層から他方の層の方向に向かって減少し、かつ、発光層中でピレン系化合物の濃度が、発光層を挟持する一方の層から他方の層の方向に向かって増加する形態、
- ( 5 ) 発光層が少なくとも第 1 発光層と第 2 発光層を積層して構成され、第 1 発光層がアントラセン系化合物を含有し、第 2 発光層がピレン系化合物を含有する形態、
- ( 6 ) 前記 ( 5 ) の第 1 発光層と第 2 発光層とを有し、かつこれらの発光層の間にアント

10

20

30

40

50

ラセン系化合物およびピレン系化合物を含む混合領域を有する形態、

(7) 前記(5)の第1発光層と第2発光層とを有し、かつこれらの発光層の間にアントラセン系化合物およびピレン系化合物を含む混合領域を有し、該混合領域においてアントラセン系化合物の濃度が第1発光層から第2発光層の方向に向かって連続的に変化する形態、

(8) 前記(5)の第1発光層と第2発光層とを有し、かつこれらの発光層の間にアントラセン系化合物およびピレン系化合物を含む混合領域を有し、該混合領域においてピレン系化合物の濃度が第1発光層から第2発光層の方向に向かって連続的に変化する形態、

(9) 前記(5)の第1発光層と第2発光層とを有し、かつこれらの発光層の間にアントラセン系化合物およびピレン系化合物を含む混合領域を有し、該混合領域においてアントラセン系化合物の濃度が第1発光層から第2発光層の方向に向かって減少し、かつ、ピレン系化合物の濃度が第1発光層から第2発光層の方向に向かって増加する形態、  
などが挙げられる。

連続的な濃度変化の濃度勾配は特に限定されず、連続的ではなく段階的に変化してもよい。

#### 【0027】

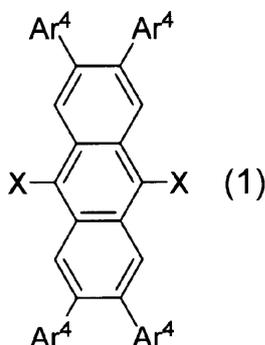
アントラセン系化合物は、発光層を挟持する2つの層、例えば正極や正孔層(正孔輸送層や正孔注入層)側の層と、陰極や電子層(電子輸送層や電子注入層)側の層との関係で、発光層中で正極や正孔層側に偏って存在してもよいし、発光層中で陰極や電子層側に偏って存在してもよい。また、ピレン系化合物は、発光層中で正極や正孔層側に偏って存在してもよいし、発光層中で陰極や電子層側に偏って存在してもよい。発光層内の電子量が正孔量に対して相対的に豊富に存在する場合は、アントラセン系化合物が陰極や電子層側に偏って存在し、ピレン系化合物が正極や正孔層側に偏って存在することが好ましい。発光層内の正孔量が電子量に対して相対的に豊富に存在する場合は、アントラセン系化合物が正極や正孔層側に偏って存在し、ピレン系化合物が陰極や電子層側に偏って存在することが好ましい。

#### 【0028】

##### 1-1. 式(1)で表されるアントラセン系化合物

本発明におけるホスト材料としての必須成分であるアントラセン系化合物は以下の構造を有する。

#### 【化17】



#### 【0029】

式(1)中、

XおよびAr<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいジアリールアミノ、置換されていてもよいジヘテロアリールアミノ、置換されていてもよいアリールヘテロアリールアミノ、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、置換されていてもよいアルケニル、置換されていてもよいアルコキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオまたは置換されていてもよいシリルであり、

全ての X および Ar<sup>4</sup> は同時に水素になることはなく、

式 (1) で表される化合物における少なくとも 1 つの水素はハロゲン、シアノ、重水素または置換されていてもよいヘテロアリアルで置換されていてもよい。

【0030】

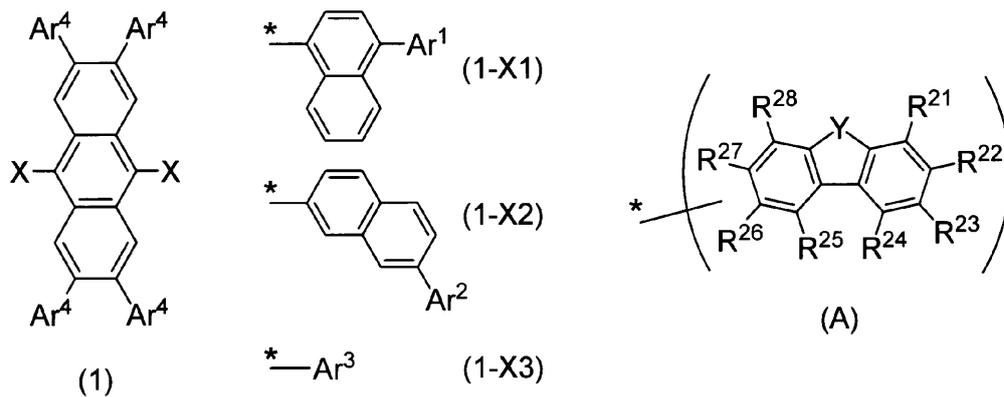
上記アリアル、ヘテロアリアル、ジアリアルアミノ、ジヘテロアリアルアミノ、アリアルヘテロアリアルアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルケニル、アルコキシ、アリアルオキシ、アリアルチオまたはシリルの詳細は、以下の好ましい態様の欄で説明する。また、これらへの置換基としては、アリアル、ヘテロアリアル、ジアリアルアミノ、ジヘテロアリアルアミノ、アリアルヘテロアリアルアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルケニル、アルコキシ、アリアルオキシ、アリアルチオまたはシリルなどが挙げられ、これらの詳細も以下の好ましい態様の欄で説明する。

10

【0031】

上記アントラセン系化合物の好ましい態様を以下に説明する。下記構造における符号の定義は上述する定義と同じである。

【化18】



20

【0032】

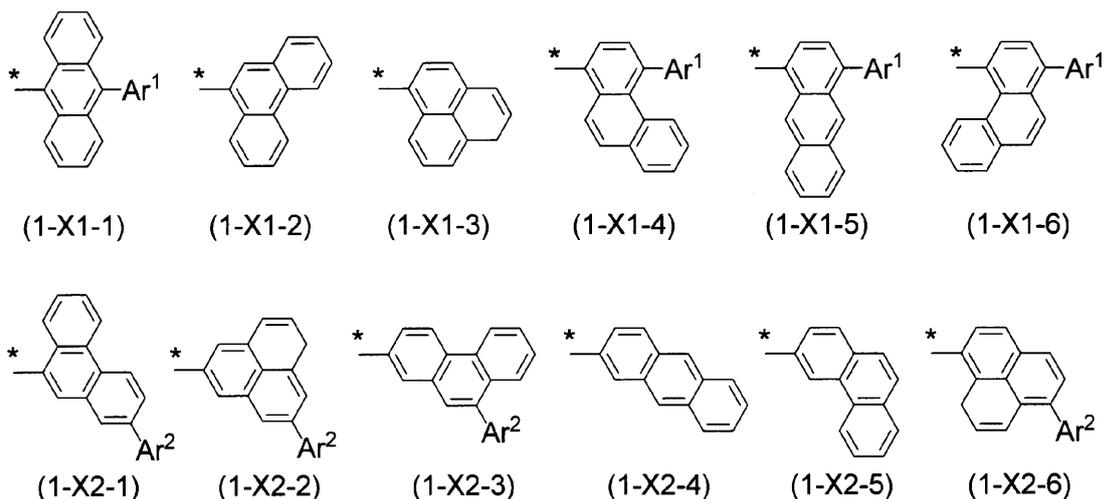
式 (1) では、X はそれぞれ独立して上記式 (1-X1)、式 (1-X2) または式 (1-X3) で表される基であり、式 (1-X1)、式 (1-X2) または式 (1-X3) で表される基は \* において式 (1) のアントラセン環と結合する。好ましくは、2 つの X が同時に式 (1-X3) で表される基になることはなく、さらに好ましくは 2 つの X が同時に式 (1-X2) で表される基になることもない。

30

【0033】

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

【化19】



40

50

## 【0034】

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

## 【0035】

$Ar^3$  は、フェニル、ピフェニリル、テルフェニリル、クアテルフェニリル、ナフチル、フェナントリル、フルオレニル、ベンゾフルオレニル、クリセニル、トリフェニレニル、ピレニル、または、上記式 (A) で表される基 (カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基およびフェニル置換カルバゾリル基も含む) である。なお、 $Ar^3$  が式 (A) で表される基である場合は、式 (A) で表される基はその \* において式 (1 - X3) 中の直線で表される単結合と結合する。すなわち、式 (1) のアントラセン環と式 (A) で表される基が直接結合する。

10

## 【0036】

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

20

## 【0037】

$Ar^4$  は、それぞれ独立して、水素、フェニル、ピフェニリル、ターフェニリル、ナフチル、または炭素数 1 ~ 4 のアルキルもしくは炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキルで置換されているシリルである。

## 【0038】

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

30

## 【0039】

具体的な「炭素数 1 ~ 4 のアルキルで置換されているシリル」としては、トリメチルシリル、トリエチルシリル、トリプロピルシリル、トリ*i*-プロピルシリル、トリブチルシリル、トリ*sec*-ブチルシリル、トリ*t*-ブチルシリル、エチルジメチルシリル、プロピルジメチルシリル、*i*-プロピルジメチルシリル、ブチルジメチルシリル、*sec*-ブチルジメチルシリル、*t*-ブチルジメチルシリル、メチルジエチルシリル、プロピルジエチルシリル、*i*-プロピルジエチルシリル、ブチルジエチルシリル、*sec*-ブチルジエチルシリル、*t*-ブチルジエチルシリル、メチルジプロピルシリル、エチルジプロピルシリル、ブチルジプロピルシリル、*sec*-ブチルジプロピルシリル、*t*-ブチルジプロピルシリル、メチルジ*i*-プロピルシリル、エチルジ*i*-プロピルシリル、ブチルジ*i*-プロピルシリル、*sec*-ブチルジ*i*-プロピルシリル、*t*-ブチルジ*i*-プロピルシリルなどがあげられる。

40

## 【0040】

シリルに置換する炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキルは、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘブチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、ビシクロ [1.1.1] ペンチル、ビシクロ [2.0.1] ペンチル、ビシクロ [1.2.1] ヘキシル、ビシクロ [3.0.1] ヘキシル、ビシクロ [2.1.2] ヘブチル、ビシクロ [2.2.2] オクチル、アダマンチル、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられ、シリルにおける3つの水素が、それぞれ独立して、これらのシクロアルキルで

50

置換されている。

【0041】

具体的な「炭素数5～10のシクロアルキルで置換されているシリル」としては、トリシクロペンチルシリル、トリシクロヘキシルシリルなどがあげられる。

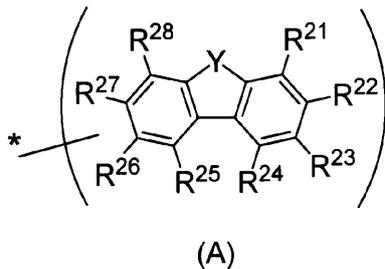
【0042】

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

【0043】

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

【化20】



【0044】

上記式(A)中、Yは-O-、-S-または>N-R<sup>29</sup>であり、R<sup>21</sup>～R<sup>28</sup>はそれぞれ独立して水素、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルコキシ、置換されていてもよいアリールオキシ、置換されていてもよいアリールチオ、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、置換されていてもよいアミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノであり、R<sup>21</sup>～R<sup>28</sup>のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、アリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、R<sup>29</sup>は水素または置換されていてもよいアリールである。

【0045】

R<sup>21</sup>～R<sup>28</sup>における「置換されていてもよいアルキル」の「アルキル」としては、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1～24の直鎖アルキルまたは炭素数3～24の分岐鎖アルキルがあげられる。炭素数1～18のアルキル(炭素数3～18の分岐鎖アルキル)が好ましく、炭素数1～12のアルキル(炭素数3～12の分岐鎖アルキル)がより好ましく、炭素数1～6のアルキル(炭素数3～6の分岐鎖アルキル)がさらに好ましく、炭素数1～4のアルキル(炭素数3～4の分岐鎖アルキル)が特に好ましい。

【0046】

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

10

20

30

40

50

## 【 0 0 4 7 】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「置換されていてもよいシクロアルキル」の「シクロアルキル」としては、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数3～20のシクロアルキル、炭素数3～16のシクロアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数5～8のシクロアルキル、炭素数5～6のシクロアルキル、炭素数5のシクロアルキルなどがあげられる。

## 【 0 0 4 8 】

具体的な「シクロアルキル」としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、およびこれらの炭素数1～4のアルキル（特にメチル）置換体や、ビスシクロ[1.0.1]ブチル、ビスシクロ[1.1.1]ペンチル、ビスシクロ[2.0.1]ペンチル、ビスシクロ[1.2.1]ヘキシル、ビスシクロ[3.0.1]ヘキシル、ビスシクロ[2.1.2]ヘプチル、ビスシクロ[2.2.2]オクチル、アダマンチル、ジアマンチル、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられる。

10

## 【 0 0 4 9 】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「置換されていてもよいアリアル」の「アリアル」としては、例えば、炭素数6～30のアリアルがあげられ、炭素数6～16のアリアルが好ましく、炭素数6～12のアリアルがより好ましく、炭素数6～10のアリアルが特に好ましい。

## 【 0 0 5 0 】

具体的な「アリアル」としては、単環系であるフェニル、二環系であるビフェニリル、縮合二環系であるナフチル、三環系であるテルフェニリル（*m*-テルフェニリル、*o*-テルフェニリル、*p*-テルフェニリル）、縮合三環系である、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントレニル、縮合四環系であるトリフェニレニル、プレニル、ナフタセニル、縮合五環系であるペリレニル、ペンタセニルなどがあげられる。

20

## 【 0 0 5 1 】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「置換されていてもよいヘテロアリアル」の「ヘテロアリアル」としては、例えば、炭素数2～30のヘテロアリアルがあげられ、炭素数2～25のヘテロアリアルが好ましく、炭素数2～20のヘテロアリアルがより好ましく、炭素数2～15のヘテロアリアルがさらに好ましく、炭素数2～10のヘテロアリアルが特に好ましい。また、ヘテロアリアルとしては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1～5個含有する複素環などがあげられる。

30

## 【 0 0 5 2 】

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

40

## 【 0 0 5 3 】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「置換されていてもよいアルコキシ」の「アルコキシ」としては、例えば、炭素数1～24の直鎖または炭素数3～24の分岐鎖のアルコキシがあげられる。炭素数1～18のアルコキシ（炭素数3～18の分岐鎖のアルコキシ）が好ましく、炭素数1～12のアルコキシ（炭素数3～12の分岐鎖のアルコキシ）がより好ましく、炭素数1～6のアルコキシ（炭素数3～6の分岐鎖のアルコキシ）がさらに好ましく、炭素数1～4のアルコキシ（炭素数3～4の分岐鎖のアルコキシ）が特に好ましい。

50

## 【0054】

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

## 【0055】

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

## 【0056】

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

10

## 【0057】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「トリアルキルシリル」としては、シリル基における3つの水素がそれぞれ独立してアルキルで置換された基があげられ、このアルキルは上述した $R^{21} \sim R^{28}$ における「アルキル」として説明した基を引用することができる。置換するのに好ましいアルキルは、炭素数1~4のアルキルであり、具体的にはメチル、エチル、プロピル、i-プロピル、ブチル、sec-ブチル、t-ブチル、シクロブチルなどがあげられる。

## 【0058】

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

20

30

## 【0059】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「トリシクロアルキルシリル」としては、シリル基における3つの水素がそれぞれ独立してシクロアルキルで置換された基があげられ、このシクロアルキルは上述した $R^{21} \sim R^{28}$ における「シクロアルキル」として説明した基を引用することができる。置換するのに好ましいシクロアルキルは、炭素数5~10のシクロアルキルであり、具体的にはシクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、ビシクロ[1.1.1]ペンチル、ビシクロ[2.0.1]ペンチル、ビシクロ[1.2.1]ヘキシル、ビシクロ[3.0.1]ヘキシル、ビシクロ[2.1.2]ヘプチル、ビシクロ[2.2.2]オクチル、アダマンチル、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられる。

40

## 【0060】

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

## 【0061】

$R^{21} \sim R^{28}$ における「置換されていてもよいアミノ」の「置換されたアミノ」としては、例えば2つの水素がアリールやヘテロアリールで置換されたアミノ基があげられる。2つの水素がアリールで置換されたアミノがジアリール置換アミノであり、2つの水素がヘテロアリールで置換されたアミノがジヘテロアリール置換アミノであり、2つの水素がアリールとヘテロアリールで置換されたアミノがアリールヘテロアリール置換アミノである。このアリールやヘテロアリールは上述した $R^{21} \sim R^{28}$ における「アリール」や

50

「ヘテロアリール」として説明した基を引用することができる。

【0062】

具体的な「置換されたアミノ」としては、ジフェニルアミノ、ジナフチルアミノ、フェニルナフチルアミノ、ジピリジルアミノ、フェニルピリジルアミノ、ナフチルピリジルアミノなどがあげられる。

【0063】

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

【0064】

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

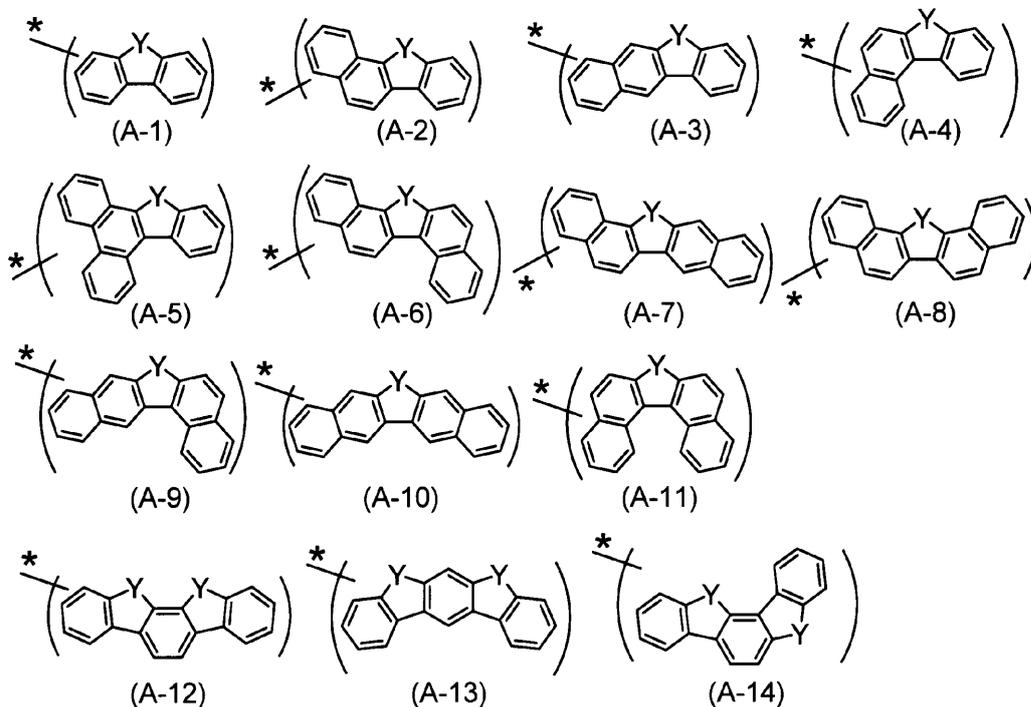
【0065】

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

【0066】

$R^{21} \sim R^{28}$ のうち隣接する基は互いに結合して炭化水素環、アリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよい。環を形成しない場合が下記式(A-1)で表される基であり、環を形成した場合としては例えば下記式(A-2)～式(A-14)で表される基があげられる。なお、式(A-1)～式(A-14)のいずれかで表される基における少なくとも1つの水素はアルキル、シクロアルキル、アリール、ヘテロアリール、アルコキシ、アリールオキシ、アリールチオ、トリアルキルシリル、トリシクロアルキルシリル、ジアリール置換アミノ、ジヘテロアリール置換アミノ、アリールヘテロアリール置換アミノ、ハロゲン、ヒドロキシまたはシアノで置換されていてもよく、これらは上述した $R^{21} \sim R^{28}$ における各基の説明を引用することができる。

【化21】



10

20

30

40

50

## 【0067】

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

## 【0068】

式(A)で表される基としては、例えば上記式(A-1)～式(A-14)のいずれかで表される基があげられ、上記式(A-1)～式(A-5)および式(A-12)～式(A-14)のいずれかで表される基が好ましく、上記式(A-1)～式(A-4)のいずれかで表される基がより好ましく、上記式(A-1)、式(A-3)および式(A-4)のいずれかで表される基がさらに好ましく、上記式(A-1)で表される基が特に好ましい。

10

## 【0069】

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

20

## 【0070】

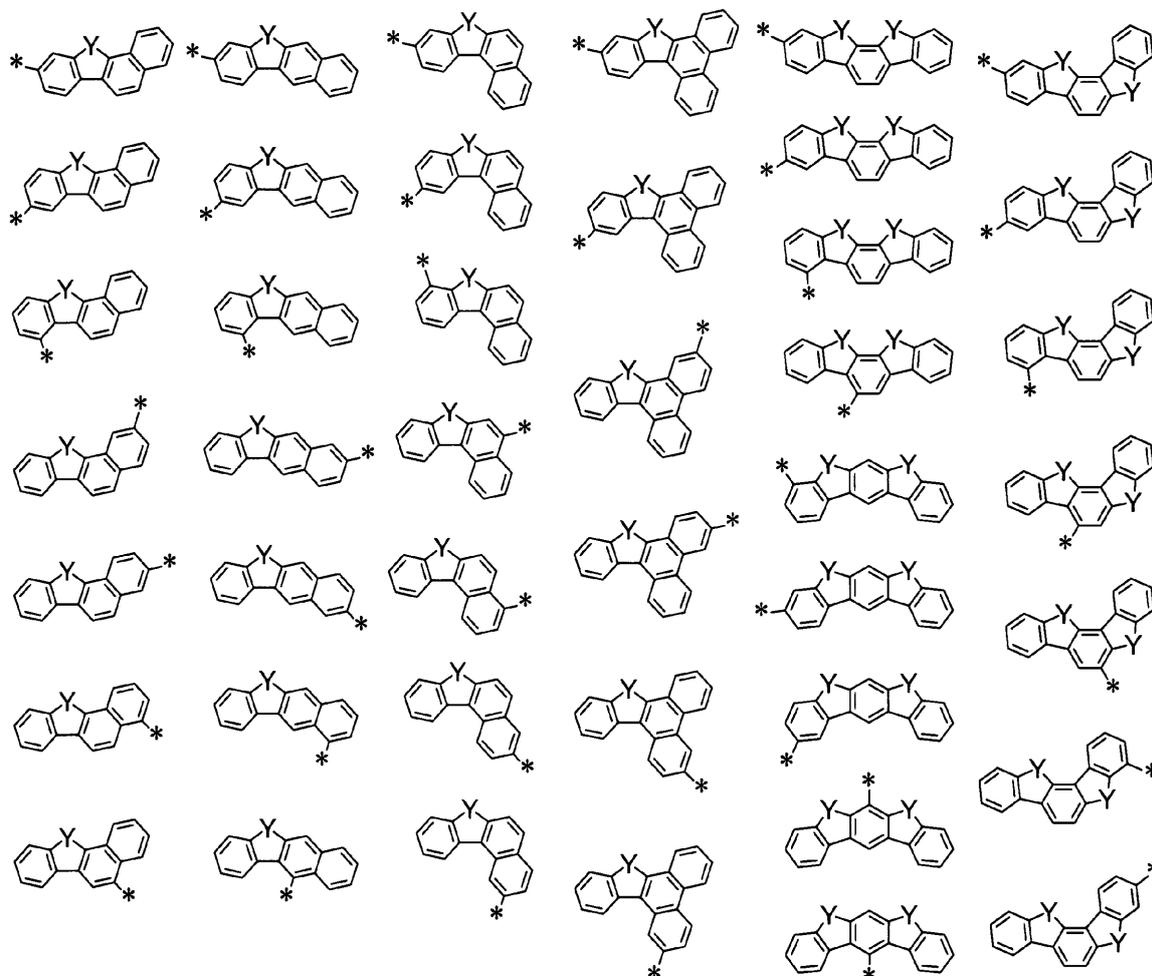
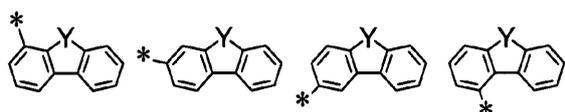
また、式(A)で表される基の構造中で、式(1-X1)または式(1-X2)中のナフタレン環、式(1-X3)中の単結合、式(1-X3)中の $Ar^3$ が結合する位置、また、式(A)で表される基の構造中で、式(1)で表される化合物における少なくとも1つの水素と置換する位置は、式(A)の構造中のいずれの位置であってもよく、例えば式(A)の構造中の2つのベンゼン環のいずれかや、式(A)の構造中の $R^{21} \sim R^{28}$ のうち隣接する基が互いに結合して形成されたいずれかの環や、式(A)の構造中のYとしての「>N-R<sup>29</sup>」における $R^{29}$ 中のいずれか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

## 【0071】

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

30

## 【化 2 2】



10

20

30

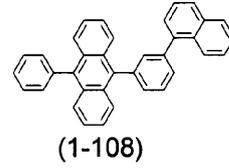
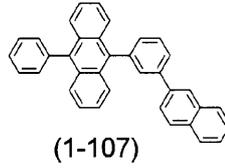
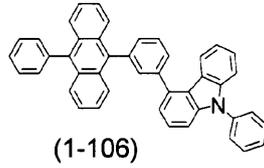
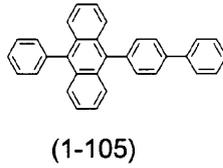
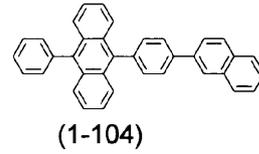
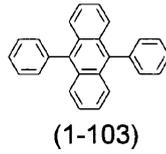
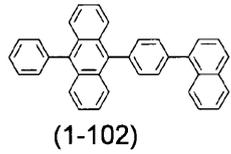
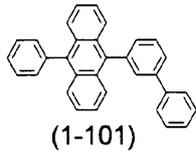
## 【0072】

また、一般式(1)で表されるアントラセン系化合物の化学構造中の水素は、その全てまたは一部がハロゲン、シアノまたは重水素であってもよい。

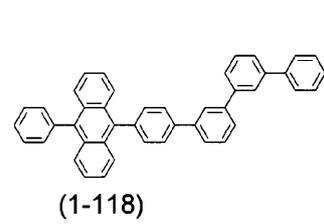
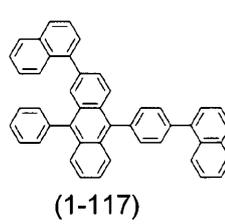
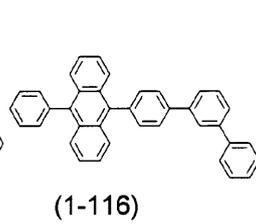
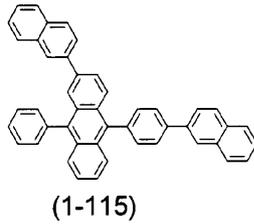
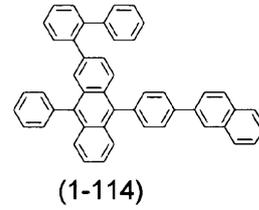
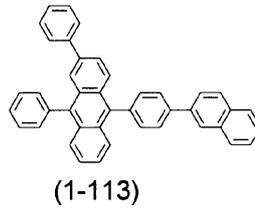
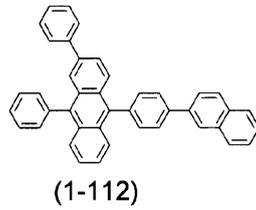
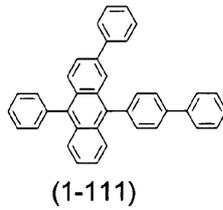
## 【0073】

アントラセン系化合物の具体的な例としては、例えば、下記式(1-101)～式(1-127)で表される化合物があげられる。

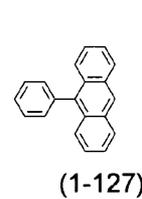
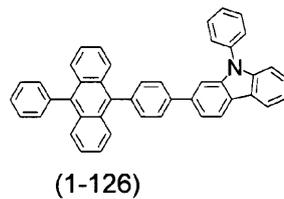
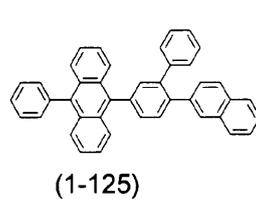
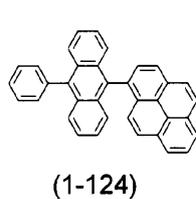
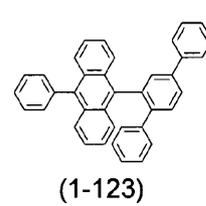
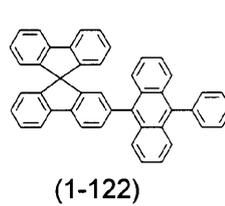
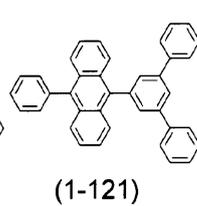
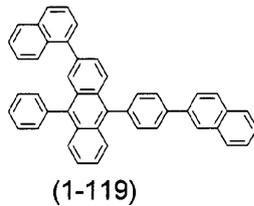
## 【化 2 3】



10



20



30

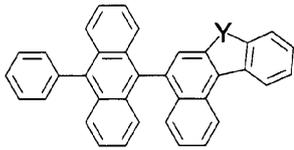
## 【0074】

また、アントラセン系化合物の他の具体的な例としては、例えば、下記式(1-131-Y)~式(1-179-Y)で表される化合物、下記式(1-180-Y)~式(1-182-Y)で表される化合物、および下記式(1-183-N)で表される化合物があげられる。各式中のYは-O-、-S-または $>N-R^{29}$ ( $R^{29}$ は上記と同じ定義)のいずれでもよく、 $R^{29}$ は例えばフェニル基である。式番号は、例えばYがOの場合は、式(1-131-Y)は式(1-131-O)とし、Yが-S-または $>N-R^{29}$ の場合はそれぞれ式(1-131-S)または式(1-131-N)とする。

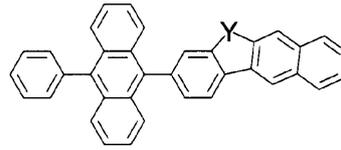
40

## 【0075】

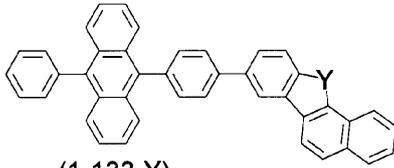
【化 2 4】



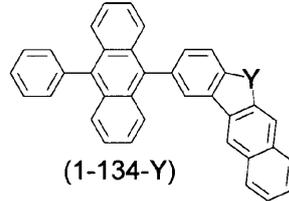
(1-131-Y)



(1-132-Y)

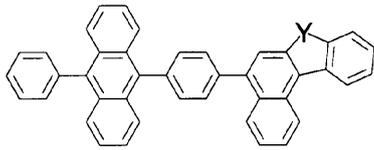


(1-133-Y)

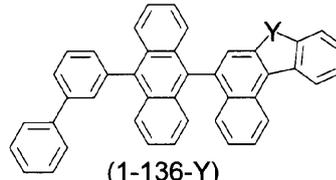


(1-134-Y)

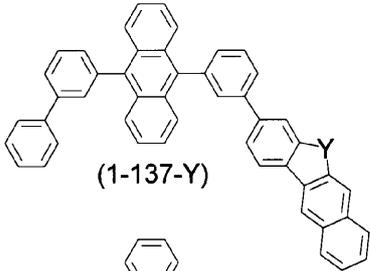
10



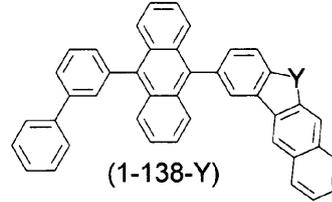
(1-135-Y)



(1-136-Y)

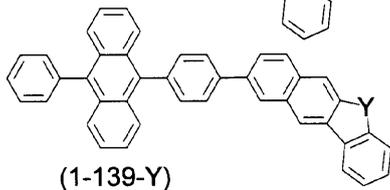


(1-137-Y)

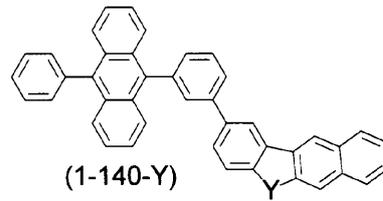


(1-138-Y)

20

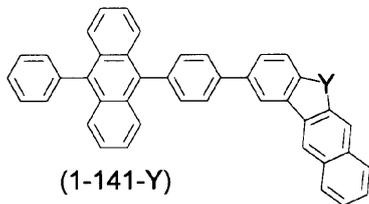


(1-139-Y)

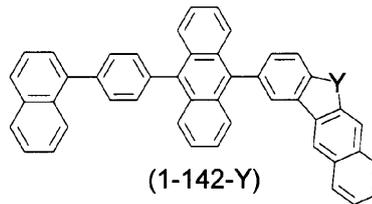


(1-140-Y)

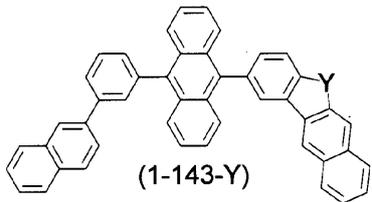
30



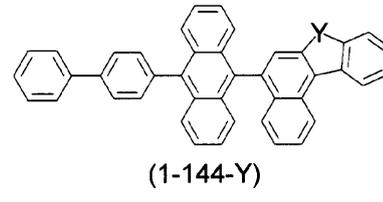
(1-141-Y)



(1-142-Y)



(1-143-Y)



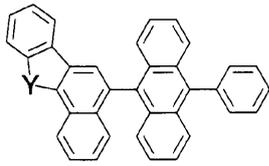
(1-144-Y)

40

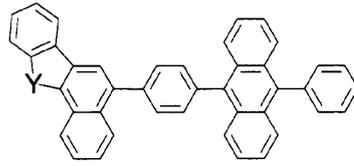
【 0 0 7 6 】



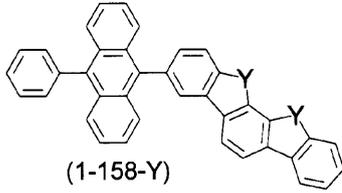
【化 2 6】



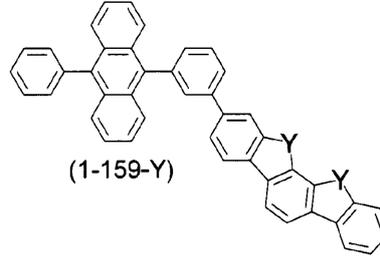
(1-156-Y)



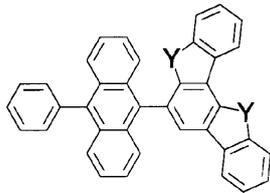
(1-157-Y)



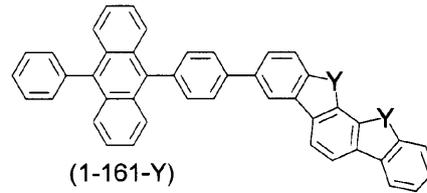
(1-158-Y)



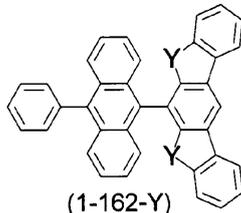
(1-159-Y)



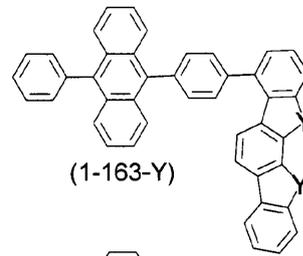
(1-160-Y)



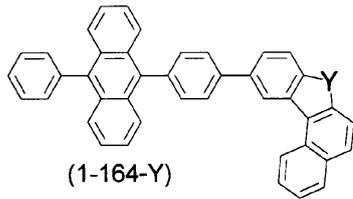
(1-161-Y)



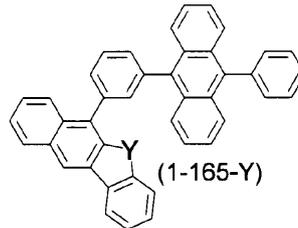
(1-162-Y)



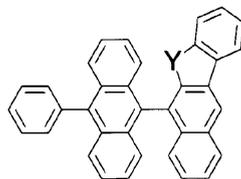
(1-163-Y)



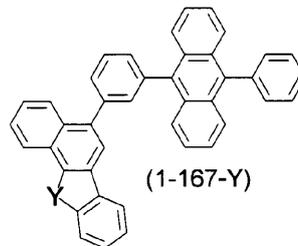
(1-164-Y)



(1-165-Y)



(1-166-Y)



(1-167-Y)

10

20

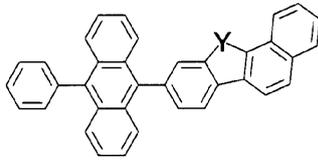
30

40

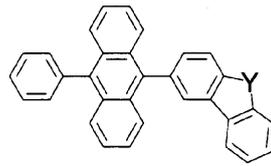
【 0 0 7 8 】



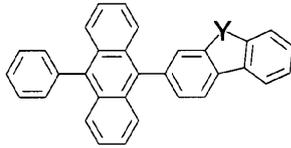
## 【化 2 8】



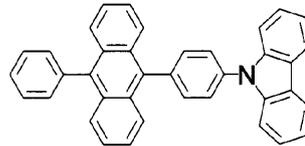
(1-180-Y)



(1-181-Y)



(1-182-Y)



(1-183-N)

10

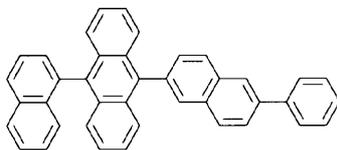
## 【 0 0 8 0】

また、アントラセン系化合物の具体的な例としては、下記式(1-191)~式(1-216)で表される化合物があげられる。

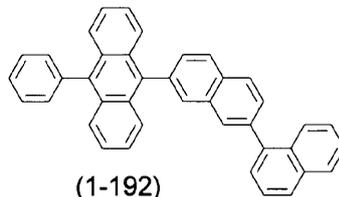
## 【 0 0 8 1】

## 【化 2 9】

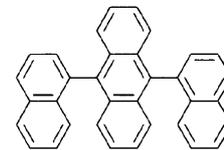
20



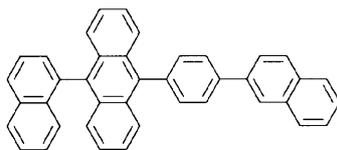
(1-191)



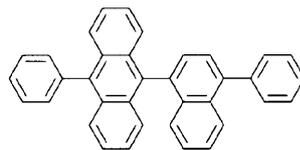
(1-192)



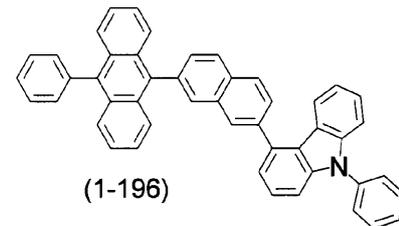
(1-193)



(1-194)

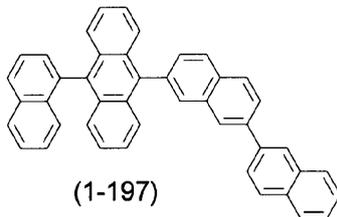


(1-195)

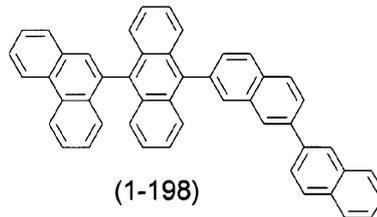


(1-196)

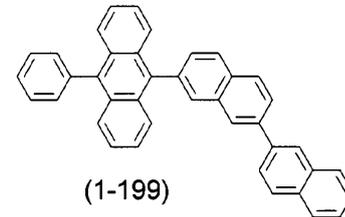
30



(1-197)



(1-198)

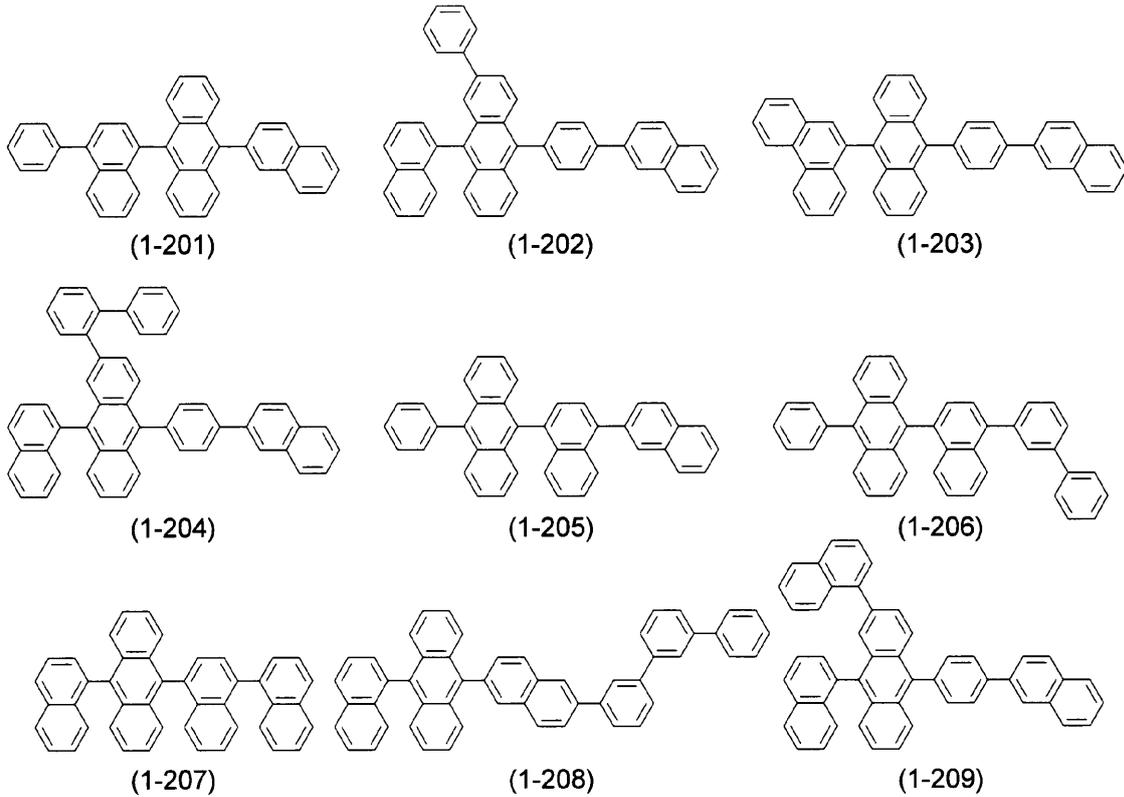


(1-199)

40

## 【 0 0 8 2】

## 【化30】

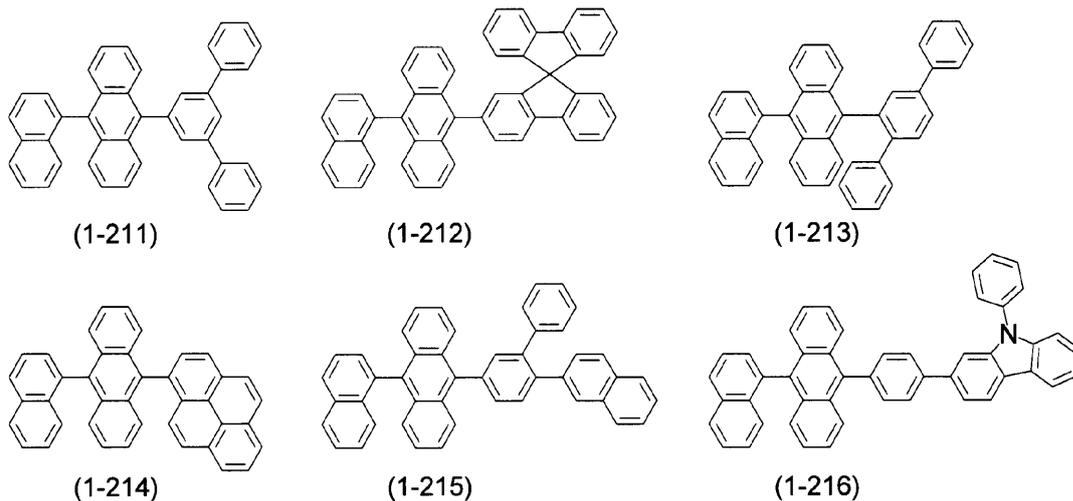


10

20

## 【0083】

## 【化31】



30

40

## 【0084】

## 1-2. 式(1)で表されるアントラセン系化合物の製造方法

式(1)で表されるアントラセン系化合物は、アントラセン骨格の所望の位置に反応性基を有する化合物と、X、Ar<sup>4</sup>および式(A)の構造などの部分構造に反応性基を有する化合物を出発原料として、鈴木カップリング、根岸カップリング、その他の公知のカップリング反応を応用して製造することができる。これらの反応性化合物の反応性基としては、ハロゲンやボロン酸などがあげられる。具体的な製造方法としては、例えば国際公開第2014/141725号公報の段落[0089]~[0175]における合成法を参考にすることができる。

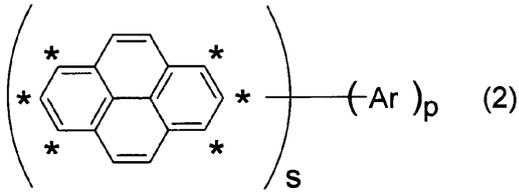
## 【0085】

## 1-3. 式(2)で表されるピレン系化合物

50

本発明におけるホスト材料として必須成分であるピレン系化合物は以下の構造を有する。

【化 3 2】



10

【0086】

上記式(2)中、

s個のピレン部分とp個のAr部分とがピレン部分の\*のいずれかの位置とAr部分のいずれかの位置とで結合し、

ピレン部分の少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、

20

Arは、それぞれ独立して、炭素数14~40のアリールまたは炭素数12~40のヘテロアリールであり、これらにおける少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリール、炭素数1~30のアルキル、炭素数3~24のシクロアルキル、炭素数2~30のアルケニル、炭素数1~30のアルコキシまたは炭素数6~30のアリールオキシで置換されていてもよく、

sおよびpはそれぞれ独立して1または2の整数であり、sおよびpは同時に2になることはなく、sが2である場合は2個のピレン部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、pが2である場合は2個のAr部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、そして、

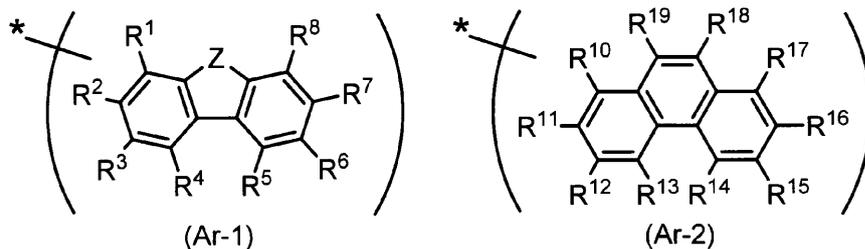
30

式(2)で表される化合物における少なくとも1つの水素は、それぞれ独立して、ハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよい。

【0087】

Arは、炭素数14~40のアリールまたは炭素数12~40のヘテロアリールであり、これらに種々の置換基が結合し得るが、Arの具体例としては下記一般式(Ar-1)または一般式(Ar-2)で表される基が挙げられる。R<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>およびR<sup>10</sup>からR<sup>19</sup>は置換基である。\*はピレン部分との結合を示す。

【化 3 3】



40

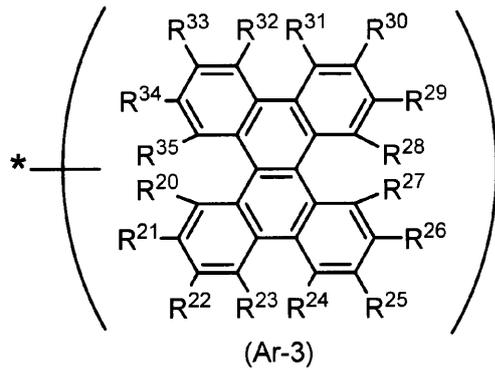
【0088】

また、式(Ar-2)で表される基において、隣接するR<sup>18</sup>とR<sup>19</sup>が互いに結合して縮合環を形成した一例として、下記一般式(Ar-3)で表される基が挙げられる。R

50

$2^0$  から  $R^{35}$  は置換基である。\* はピレン部分との結合を示す。

【化34】



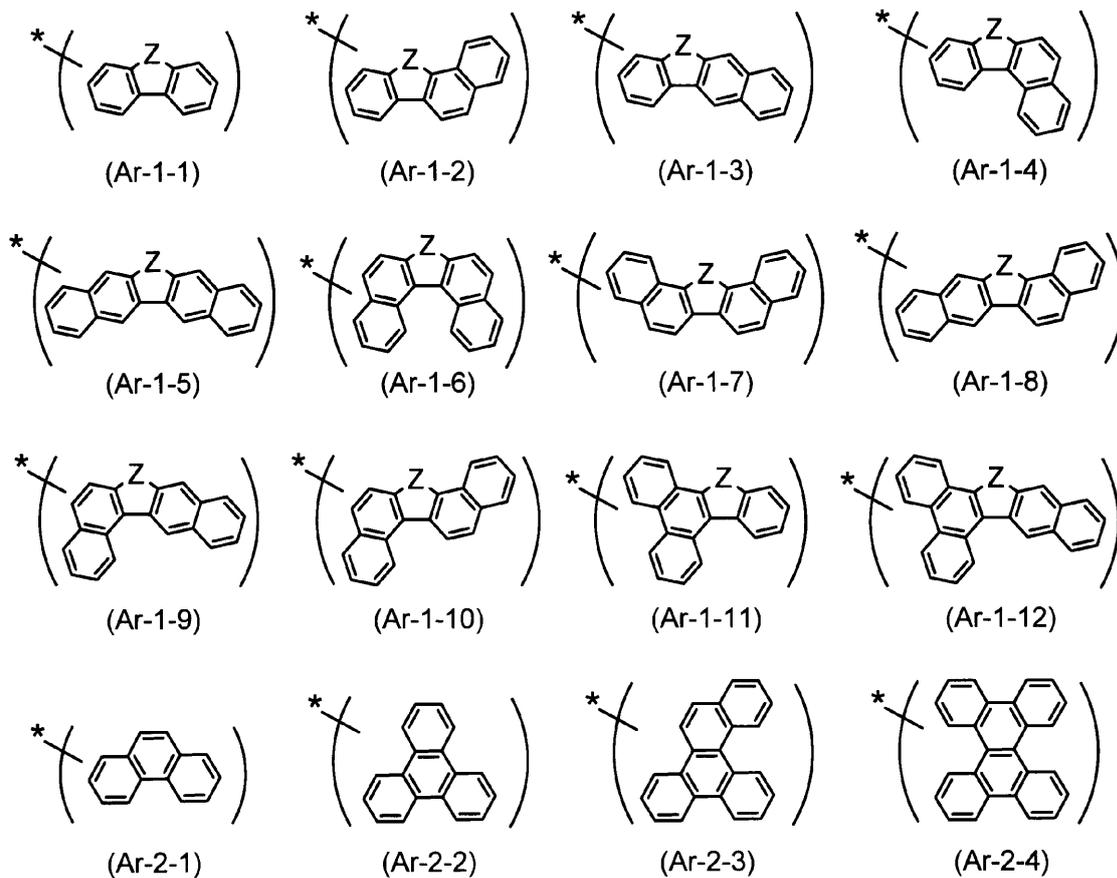
10

【0089】

式(Ar-1)または式(Ar-2)で表される基のより具体的な例としては、下記一般式のいずれかで表される基などが挙げられる。これらの中でも、式(Ar-1-1)、式(Ar-1-2)、式(Ar-1-3)、式(Ar-1-4)、式(Ar-2-2)または式(Ar-2-4)で表される基が好ましく、式(Ar-1-2)、式(Ar-1-3)、式(Ar-1-4)または式(Ar-2-4)で表される基がより好ましい。以下の各構造式においては置換基を明示していないが、各構造中の少なくとも1つの水素は置換されていてもよい。\* はピレン部分との結合を示す。なお、下記式(Ar-2-4)で表される基は上記式(Ar-3)で表される基に相当する。

20

【化35】



30

40

【0090】

Arとしての炭素数14~40のアリールまたは炭素数12~40のヘテロアリール、ピレン部分への第1の置換基(炭素数6~10のアリール、炭素数2~11のヘテロアリ

50

ール、炭素数 1 ~ 30 のアルキル、炭素数 3 ~ 24 のシクロアルキル、炭素数 2 ~ 30 のアルケニル、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシまたは炭素数 6 ~ 30 のアリーロキシ、好ましくは炭素数 6 ~ 10 のアリール) および第 1 の置換基への第 2 の置換基 (炭素数 6 ~ 10 のアリール、炭素数 2 ~ 11 のヘテロアリール、炭素数 1 ~ 30 のアルキル、炭素数 3 ~ 24 のシクロアルキル、炭素数 2 ~ 30 のアルケニル、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシまたは炭素数 6 ~ 30 のアリーロキシ、好ましくは炭素数 6 ~ 10 のアリール)、および、Ar への置換基 (式 (Ar - 1) の R<sup>1</sup> から R<sup>8</sup>、式 (Ar - 2) の R<sup>10</sup> から R<sup>19</sup>、式 (Ar - 3) の R<sup>20</sup> から R<sup>35</sup>、および、式 (Ar - 1 - 1) ~ 式 (Ar - 2 - 4) で明示していない置換基である、炭素数 6 ~ 10 のアリール、炭素数 2 ~ 11 のヘテロアリール、炭素数 1 ~ 30 のアルキル、炭素数 3 ~ 24 のシクロアルキル、炭素数 2 ~ 30 のアルケニル、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシまたは炭素数 6 ~ 30 のアリーロキシ、好ましくは炭素数 1 ~ 30 のアルキル) について、以下にまとめて説明する。

#### 【0091】

Ar としての炭素数 14 ~ 40 のアリールまたは炭素数 12 ~ 40 のヘテロアリールは、好ましくは炭素数 14 ~ 35 のアリールまたは炭素数 12 ~ 35 のヘテロアリールであり、より好ましくは炭素数 14 ~ 30 のアリールまたは炭素数 12 ~ 30 のヘテロアリールであり、さらに好ましくは炭素数 14 ~ 25 のアリールまたは炭素数 12 ~ 25 のヘテロアリールであり、特に好ましくは炭素数 14 ~ 20 のアリールまたは炭素数 12 ~ 20 のヘテロアリールであり、最も好ましくは炭素数 14 ~ 18 のアリールまたは炭素数 12 ~ 18 のヘテロアリールである。

#### 【0092】

具体的なアリールとしては、単環系であるフェニル、二環系であるビフェニル、縮合二環系であるナフチル、三環系であるテルフェニル (m-テルフェニル、o-テルフェニル、p-テルフェニル)、縮合三環系である、アントラセニル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントレニル、縮合四環系であるトリフェニレニル、ナフタセニル、縮合五環系であるペリレニルおよびペンタセニル等が挙げられる。

#### 【0093】

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

#### 【0094】

また、ピレン部分への第 1 の置換基および第 1 の置換基への第 2 の置換基、並びに、Ar への置換基については、炭素数 6 ~ 10 のアリールの具体例としてはフェニルまたはナフチルであり、炭素数 2 ~ 11 のヘテロアリールの具体例としては上述したヘテロアリール基の中から引用することができる。

#### 【0095】

炭素数 6 ~ 30 のアリーロキシは、ヒドロキシル基の水素が炭素数 6 ~ 30 のアリールで置換された基であり、このアリールは、好ましくは炭素数 6 ~ 25 のアリールであり、より好ましくは炭素数 6 ~ 20 のアリールであり、さらに好ましくは炭素数 6 ~ 15 のアリールであり、特に好ましくは炭素数 6 ~ 10 のアリールであり、当該アリールの具体例としては上述したアリール基の中から引用することができる。

#### 【0096】

10

20

30

40

50

炭素数 1 ~ 30 のアルキルは、直鎖および分岐鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数 1 ~ 24 の直鎖アルキルまたは炭素数 3 ~ 24 の分岐鎖アルキルが好ましく、炭素数 1 ~ 18 のアルキル（炭素数 3 ~ 18 の分岐鎖アルキル）がより好ましく、炭素数 1 ~ 12 のアルキル（炭素数 3 ~ 12 の分岐鎖アルキル）がさらに好ましく、炭素数 1 ~ 6 のアルキル（炭素数 3 ~ 6 の分岐鎖アルキル）が特に好ましく、炭素数 1 ~ 4 のアルキル（炭素数 3 ~ 4 の分岐鎖アルキル）がことさら好ましく、メチル、エチル、イソプロピルまたは t - ブチルがその中でより好ましく、そして、メチルまたは t - ブチルが最も好ましい。

【0097】

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

10

【0098】

炭素数 3 ~ 24 のシクロアルキルは、例えば、炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル、炭素数 3 ~ 16 のシクロアルキル、炭素数 3 ~ 14 のシクロアルキル、炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキル、炭素数 5 ~ 8 のシクロアルキル、炭素数 5 ~ 6 のシクロアルキル、炭素数 5 のシクロアルキルなどが挙げられる。

20

【0099】

具体的な「シクロアルキル」としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘブチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、およびこれらの炭素数 1 ~ 4 のアルキル（特にメチル）置換体や、ビスクロ [ 1 . 0 . 1 ] ブチル、ビスクロ [ 1 . 1 . 1 ] ペンチル、ビスクロ [ 2 . 0 . 1 ] ペンチル、ビスクロ [ 1 . 2 . 1 ] ヘキシル、ビスクロ [ 3 . 0 . 1 ] ヘキシル、ビスクロ [ 2 . 1 . 2 ] ヘブチル、ビスクロ [ 2 . 2 . 2 ] オクチル、アダマンチル、ジアマンチル、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられる。

30

【0100】

炭素数 2 ~ 30 のアルケニルは、例えば、好ましくは炭素数 2 ~ 20 のアルケニルであり、より好ましくは炭素数 2 ~ 10 のアルケニルであり、さらに好ましくは炭素数 2 ~ 6 のアルケニルであり、特に好ましくは炭素数 2 ~ 4 のアルケニルである。

【0101】

具体的なアルケニルとしては、ビニル、1 - プロペニル、2 - プロペニル、1 - ブテニル、2 - ブテニル、3 - ブテニル、1 - ペンテニル、2 - ペンテニル、3 - ペンテニル、4 - ペンテニル、1 - ヘキセニル、2 - ヘキセニル、3 - ヘキセニル、4 - ヘキセニルおよび 5 - ヘキセニル等が挙げられる。

40

【0102】

炭素数 1 ~ 30 のアルコキシは、例えば、好ましくは炭素数 1 ~ 24 のアルコキシ（炭素数 3 ~ 24 の分岐鎖のアルコキシ）であり、より好ましくは炭素数 1 ~ 18 のアルコキシ（炭素数 3 ~ 18 の分岐鎖のアルコキシ）であり、さらに好ましくは炭素数 1 ~ 12 のアルコキシ（炭素数 3 ~ 12 の分岐鎖のアルコキシ）であり、特に好ましくは炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ（炭素数 3 ~ 6 の分岐鎖のアルコキシ）であり、最も好ましくは炭素数 1 ~ 4 のアルコキシ（炭素数 3 ~ 4 の分岐鎖のアルコキシ）である。

【0103】

具体的なアルコキシとしては、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、イソブトキシ、s - ブトキシ、t - ブトキシ、ペンチルオキシ、ヘキシルオキシ

50

、ヘプチルオキシおよびオクチルオキシ等が挙げられる。

【0104】

式(Ar-1)および式(Ar-2)においては、R<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>のうち隣接する基同士やR<sup>10</sup>からR<sup>9</sup>のうち隣接する基同士は互いに結合して縮合環を形成していてもよい。隣接する基とは、R<sup>4</sup>とR<sup>5</sup>やR<sup>13</sup>とR<sup>14</sup>以外の組み合わせであり、例えばR<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>等である。このようにして縮合環が形成された構造が上記式(Ar-1-2)～式(Ar-1-12)や上記式(Ar-2-2)～式(Ar-2-4)(式(Ar-3))である。一方、上記式(Ar-1-1)や式(Ar-2-1)は縮合環を含まない構造である。形成された縮合環としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナントレン環、チオフェン環、ピロール環またはフラン環等が挙げられるが、好ましくはアリール環であるベンゼン環、ナフタレン環またはフェナントレン環であり、より好ましくはベンゼン環である。

10

【0105】

隣接基同士が互いに結合して形成された縮合環は、炭素数6～10のアリール、炭素数2～11のヘテロアリール、炭素数1～30のアルキル、炭素数3～24のシクロアルキル、炭素数2～30のアルケニル、炭素数1～30のアルコキシまたは炭素数6～30のアリールオキシで置換されていてもよく、さらにこれらは炭素数1～6のアルキルまたは炭素数3～14のシクロアルキルで置換されていてもよく、これらの基の詳細な説明は上述した説明を引用することができる。

【0106】

また、Zは、>CR<sub>2</sub>、>N-R、>Oまたは>Sであり、これらの中でも、好ましくは>CR<sub>2</sub>または>Oであり、より好ましくは>CR<sub>2</sub>であり、>CR<sub>2</sub>におけるR(炭素数1～6のアルキル、炭素数3～14のシクロアルキル、炭素数1～4のアルキルもしくは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数6～12のアリール、または、炭素数1～4のアルキルもしくは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数2～12のヘテロアリール)、および>N-RにおけるR(炭素数1～4のアルキル、炭素数5～10のシクロアルキル、炭素数1～4のアルキルもしくは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数6～12のアリール、または、炭素数1～4のアルキルもしくは炭素数5～10のシクロアルキルで置換されていてもよい炭素数2～12のヘテロアリール)についても、これらの基の詳細は上述したアルキル、シクロアルキル、アリールおよびヘテロアリールの説明を引用することができる。

20

30

【0107】

Zである>CR<sub>2</sub>については、当該Rは互いに結合して環を形成していてもよく、この場合はスピロ構造体が形成される。

【0108】

上記式(2)は、s個のピレン部分とp個のAr部分とがピレン部分の\*の位置(1位および/または2位)で結合することを意味しており、sおよびpはそれぞれ独立して1または2の整数であり、sおよびpは同時に2になることはない。ピレン部分是对称構造であるためs=1、p=1の場合やs=2、p=1の場合はピレン部分の1位および2位は2か所の\*で示せるが、s=1、p=2の場合は2つのAr部分がそれぞれピレン部分の6か所の位置に結合し得ることを6つの\*で示した。sが2である場合は2個のピレン部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよく、pが2である場合は2個のAr部分は置換基を含めて構造的に同一であっても異なってもよい。すなわち、ピレン部分は、上述するようにピレン構造に種々の置換基が結合する場合があります、置換基が結合した場合は、結合した置換基も含めてピレン部分を構成する。また、同様にAr部分も、結合した置換基も含めてAr部分を構成する。そして、式(2)で表されるピレン系化合物においてピレン部分やAr部分が複数含まれる場合は、置換基を含めたピレン部分や置換基を含めたAr部分がそれぞれ構造的に同一であっても異なってもよく、同一であることが好ましい。

40

【0109】

50

なお、ピレン部分とAr部分との結合については、ピレン部分においては\*の位置(1位および/または2位)でArが結合するが、逆にピレン部分はAr部分におけるどの位置で結合してもよい。例えば、Arの一例である式(Ar-1)または式(Ar-2)においては、R<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>およびR<sup>10</sup>からR<sup>19</sup>のいずれの位置でもピレン部分が結合してもよく、さらに、隣接基同士が互いに結合して縮合環が形成された場合には、当該縮合環に結合してもよい。また、R<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>およびR<sup>10</sup>からR<sup>19</sup>としてアリアル等の置換基が選択された場合のそのアリアルにおけるいずれかの位置や、Zとしての>CR<sub>2</sub>および>N-RのRとしてアリアル等の置換基が選択された場合のそのアリアルにおけるいずれかの位置で結合していてもよい。これらの結合位置の中でも、式(Ar-1)または式(Ar-2)におけるR<sup>1</sup>からR<sup>8</sup>またはR<sup>10</sup>からR<sup>19</sup>のいずれかの位置が好ましい。これらの説明は、式(Ar-1)および式(Ar-2)の下位の式でも同じである。

10

## 【0110】

また、式(2)で表されるピレン系化合物における水素は、その全てまたは一部がハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよい。例えば、式(2)においては、ピレン部分やAr部分における水素がハロゲン、シアノまたは重水素で置換され得る。ハロゲンは、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素であり、好ましくはフッ素、塩素または臭素、より好ましくはフッ素である。

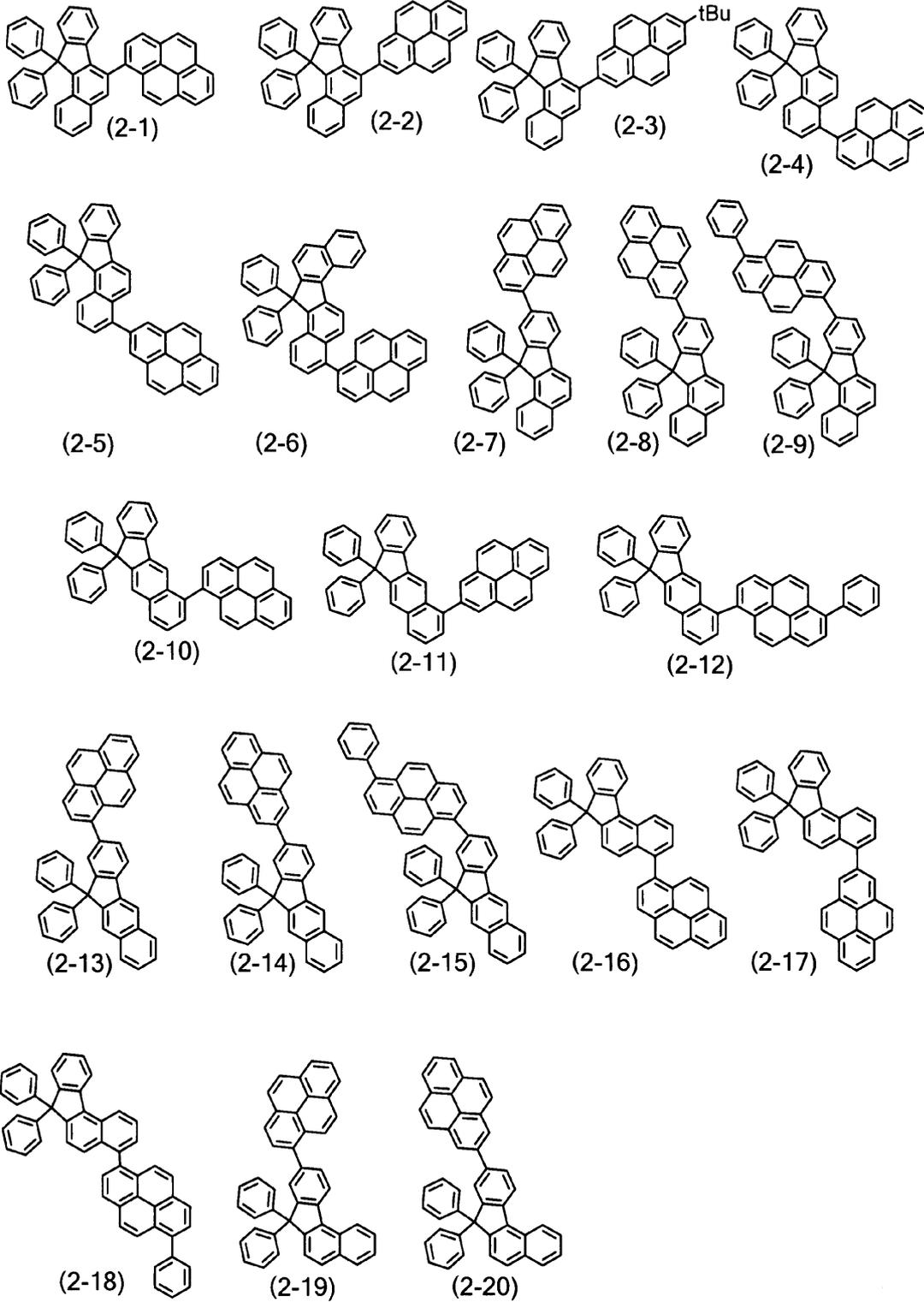
## 【0111】

本発明のピレン系化合物の具体的な例としては、以下の構造式で表される化合物が挙げられる。なお、下記構造式中の「Me」はメチル基、「Et」はエチル基、「tBu」はターシャリーブチル基、「iPr」はイソプロピル基、「D」は重水素を示す。

20

## 【0112】

【化 3 6】



10

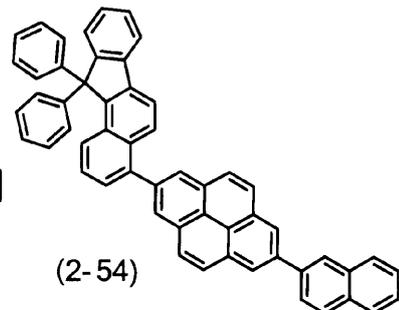
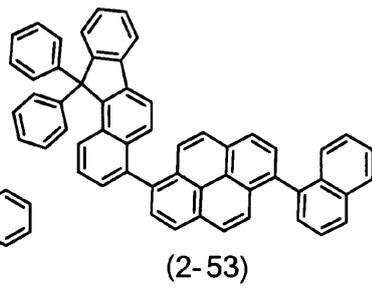
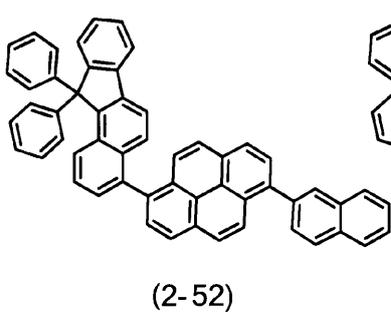
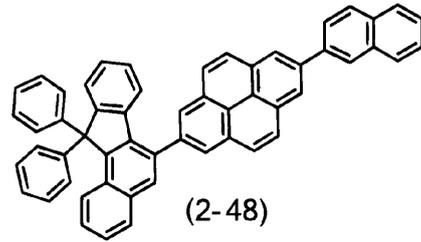
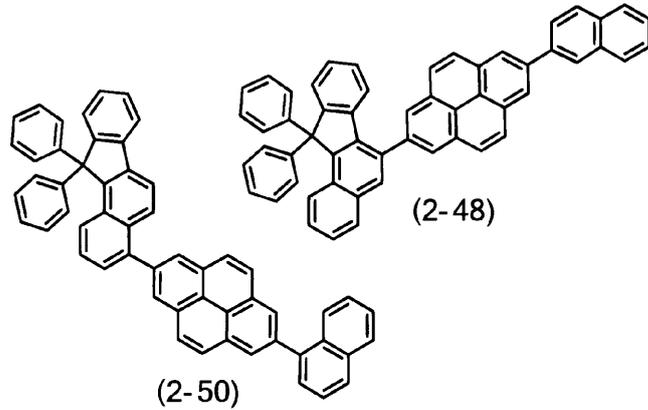
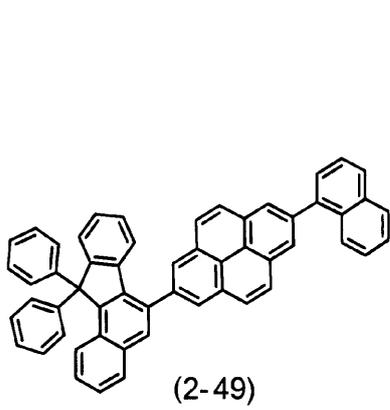
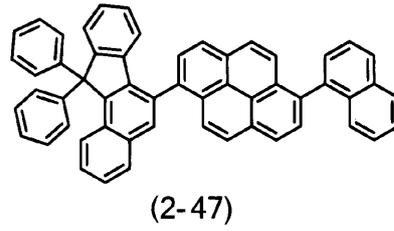
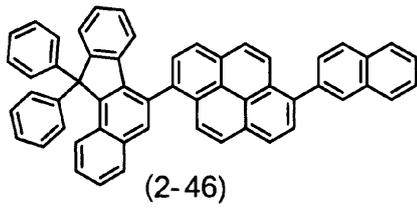
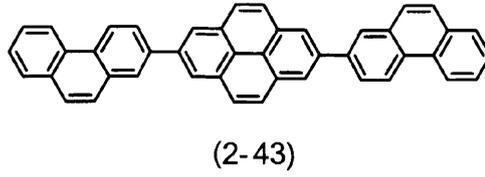
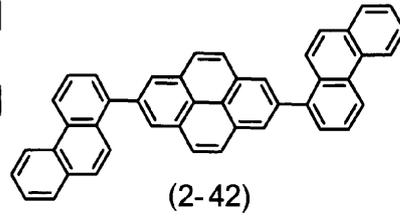
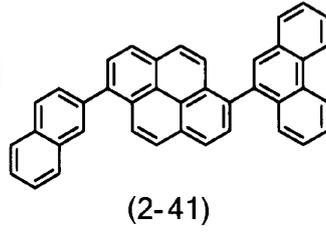
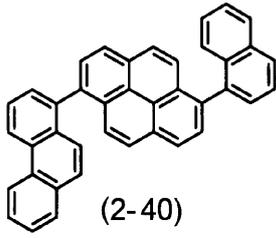
20

30

40

【 0 1 1 3 】

【化 3 7】



【 0 1 1 4 】

10

20

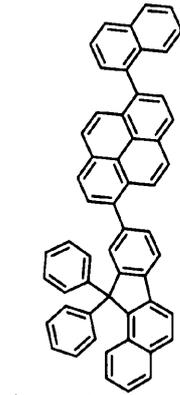
30

40

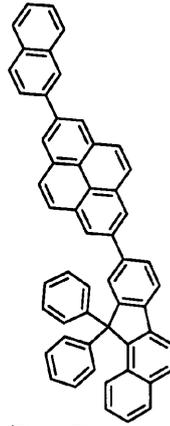
【化 3 8】



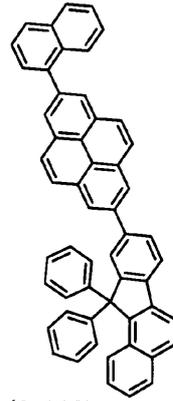
(2-110)



(2-111)

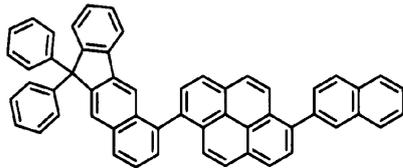


(2-112)

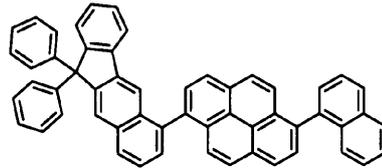


(2-113)

10

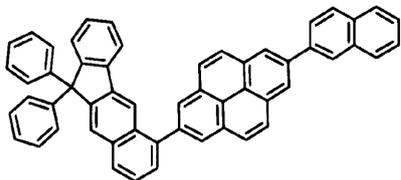


(2-116)

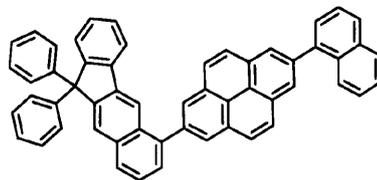


(2-117)

20

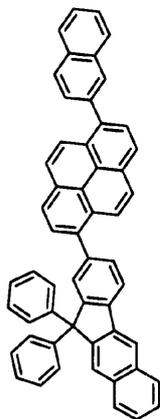


(2-118)

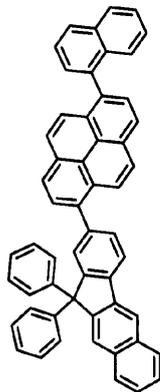


(2-119)

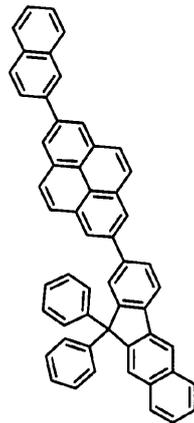
30



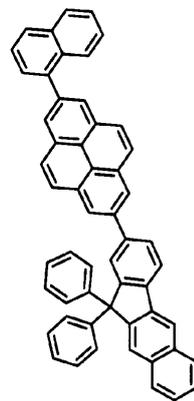
(2-122)



(2-123)



(2-124)

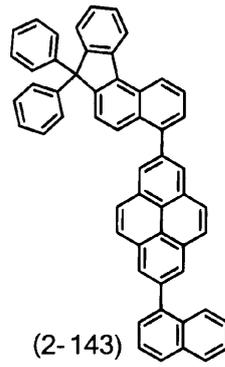
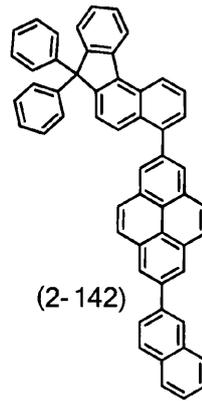
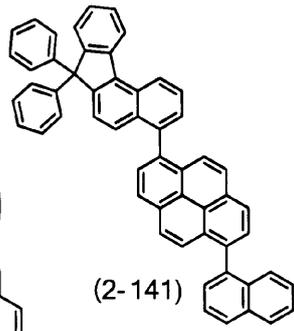
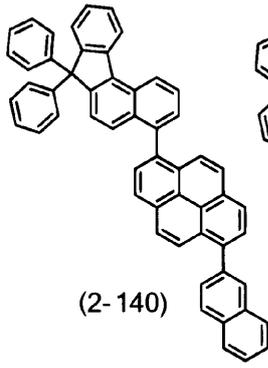


(2-125)

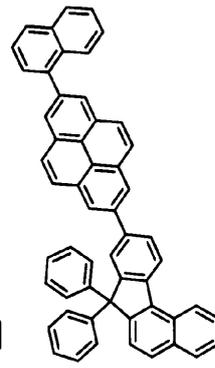
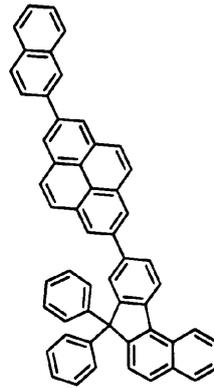
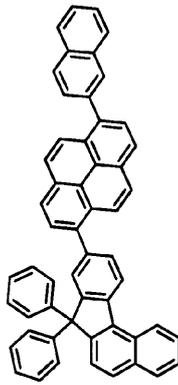
40

【 0 1 1 5 】

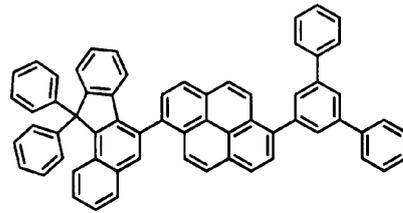
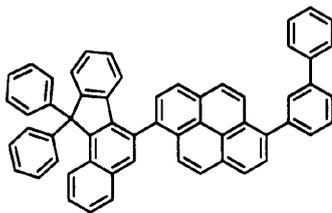
【化 3 9】



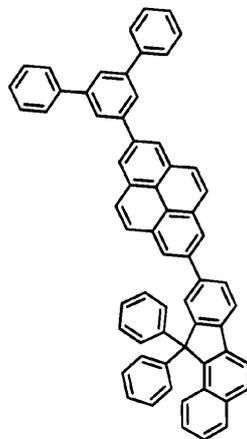
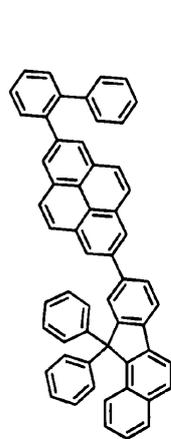
10



20



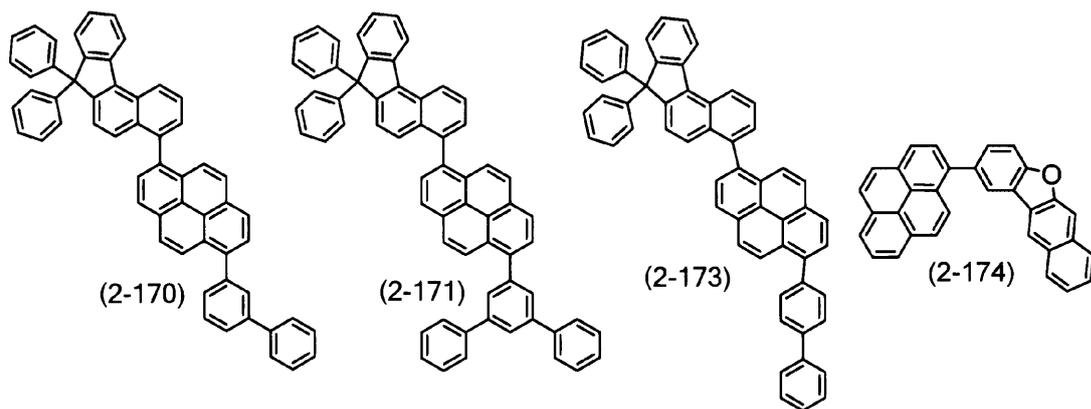
30



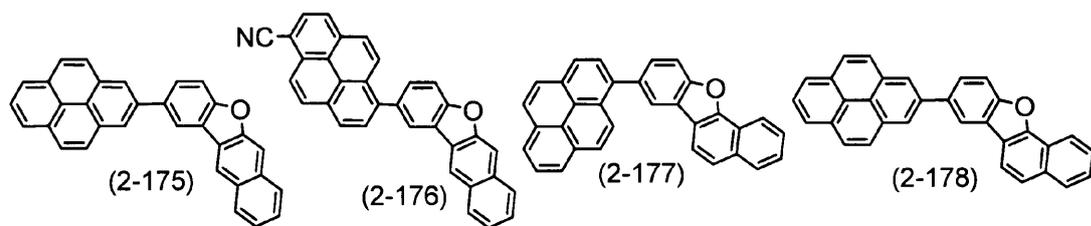
40

【 0 1 1 6 】

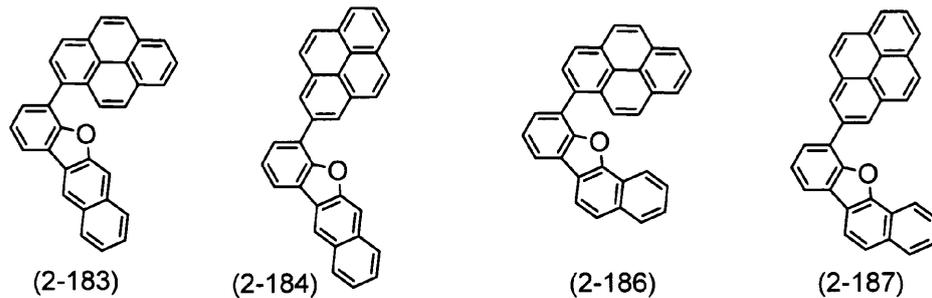
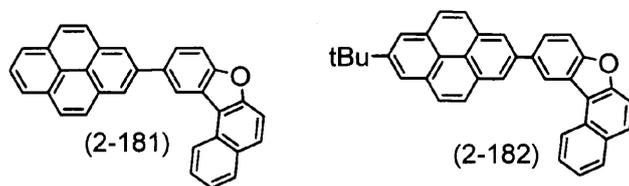
【化 4 0】



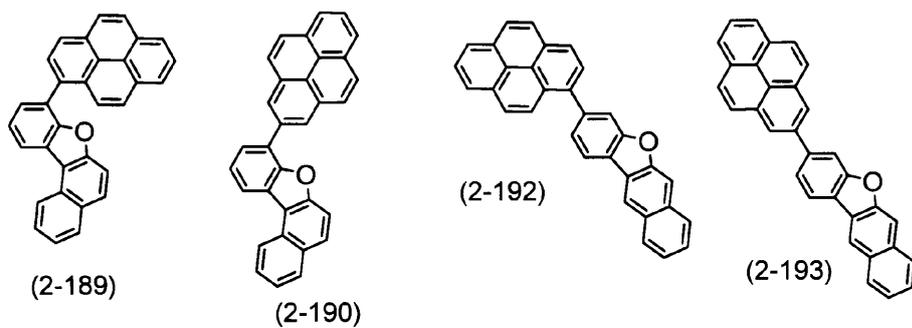
10



20



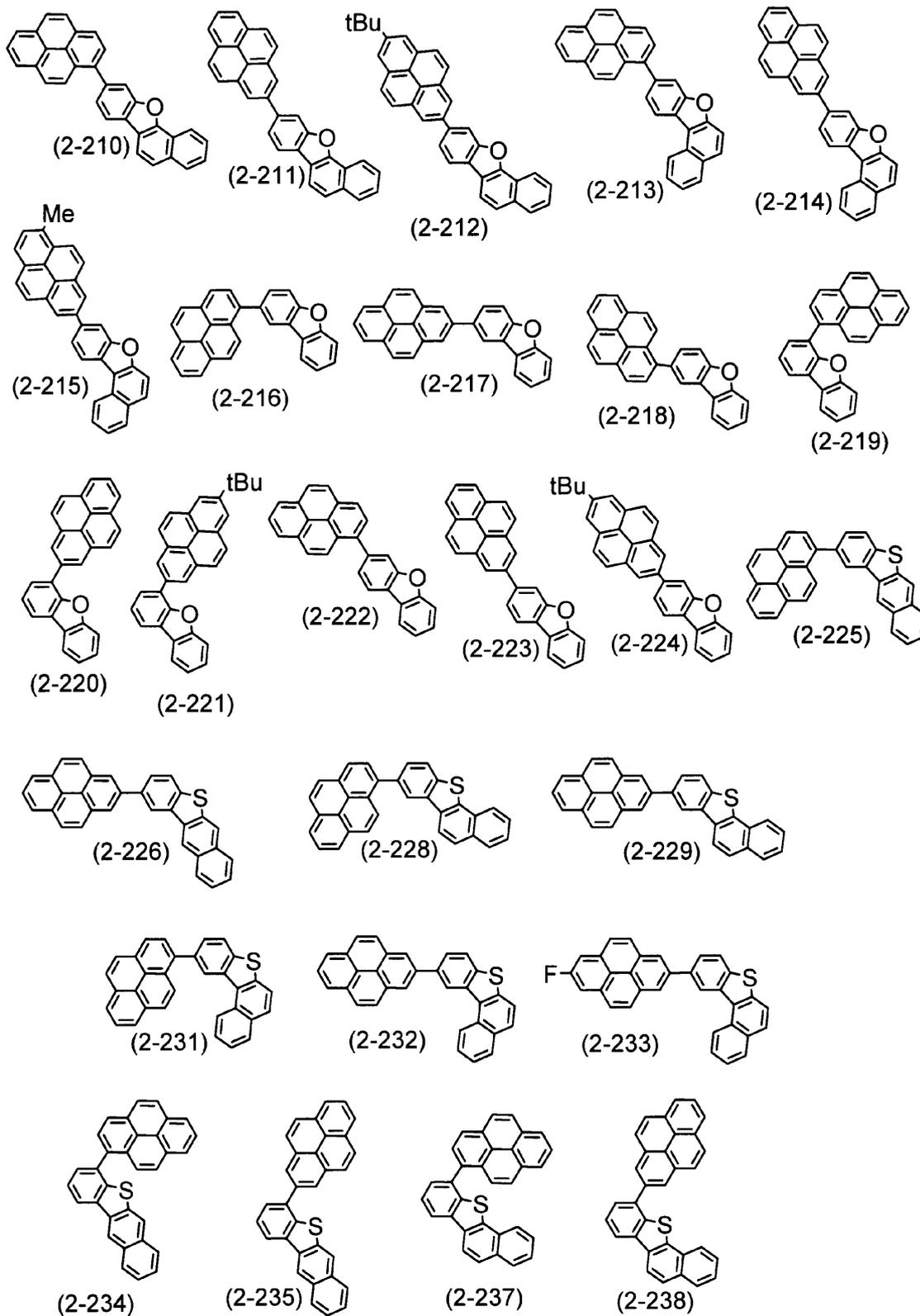
30



40

【 0 1 1 7 】

【化 4 1】



10

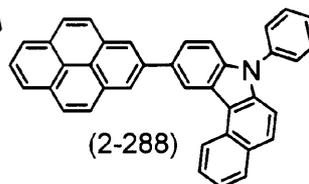
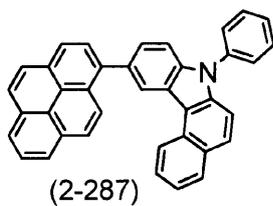
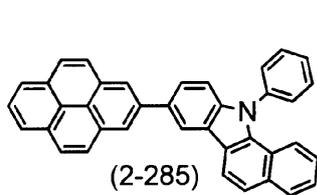
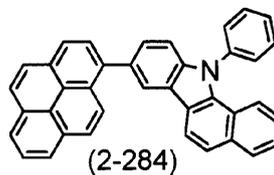
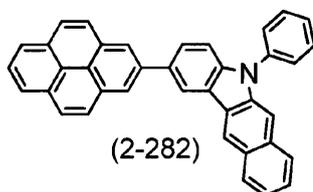
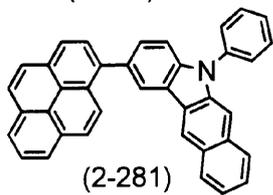
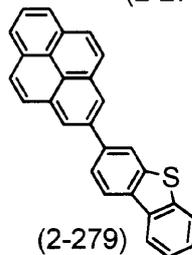
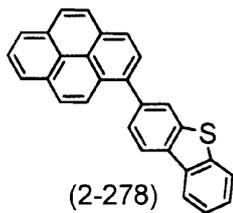
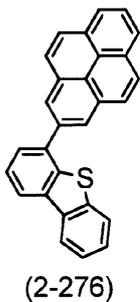
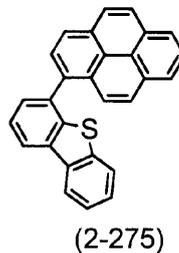
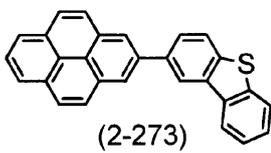
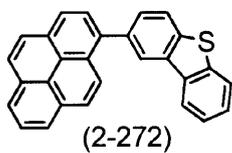
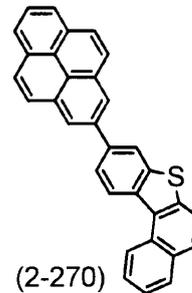
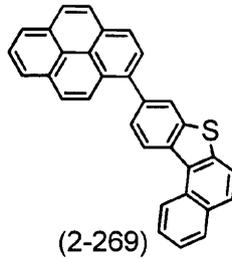
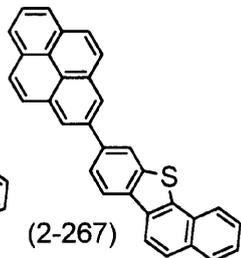
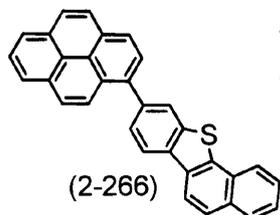
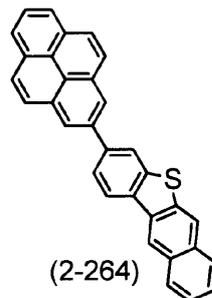
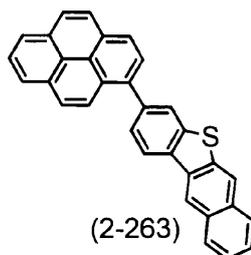
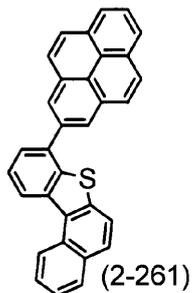
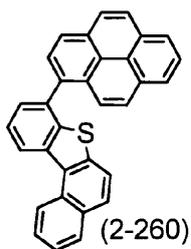
20

30

40

【 0 1 1 8 】

【化 4 2】



10

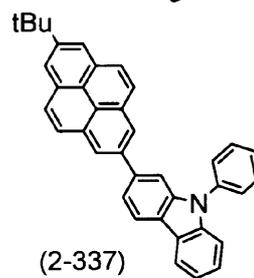
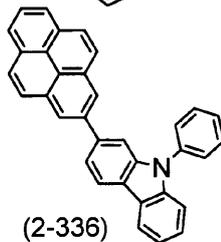
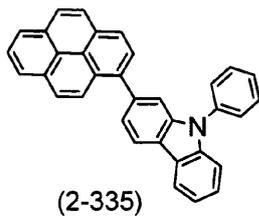
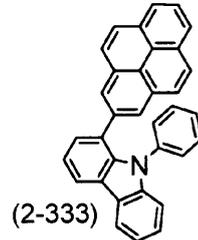
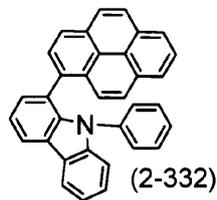
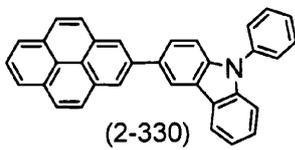
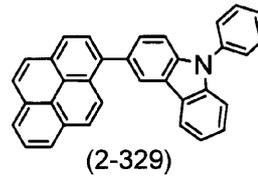
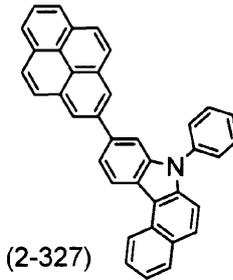
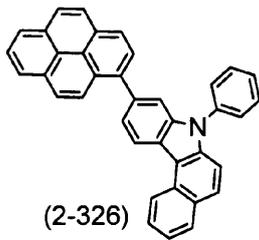
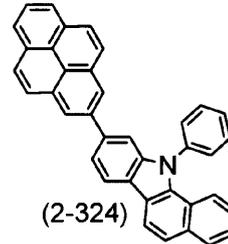
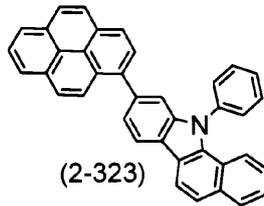
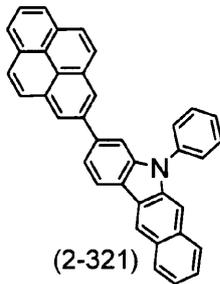
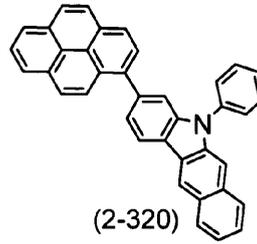
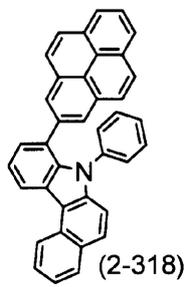
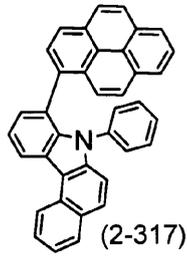
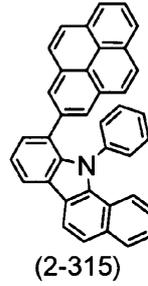
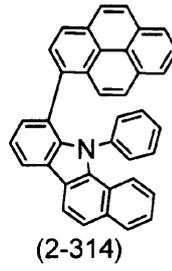
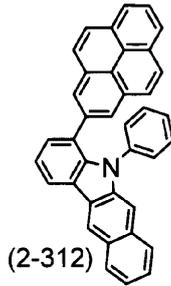
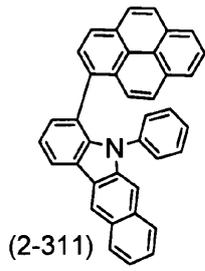
20

30

40

【 0 1 1 9 】

【化 4 3】



10

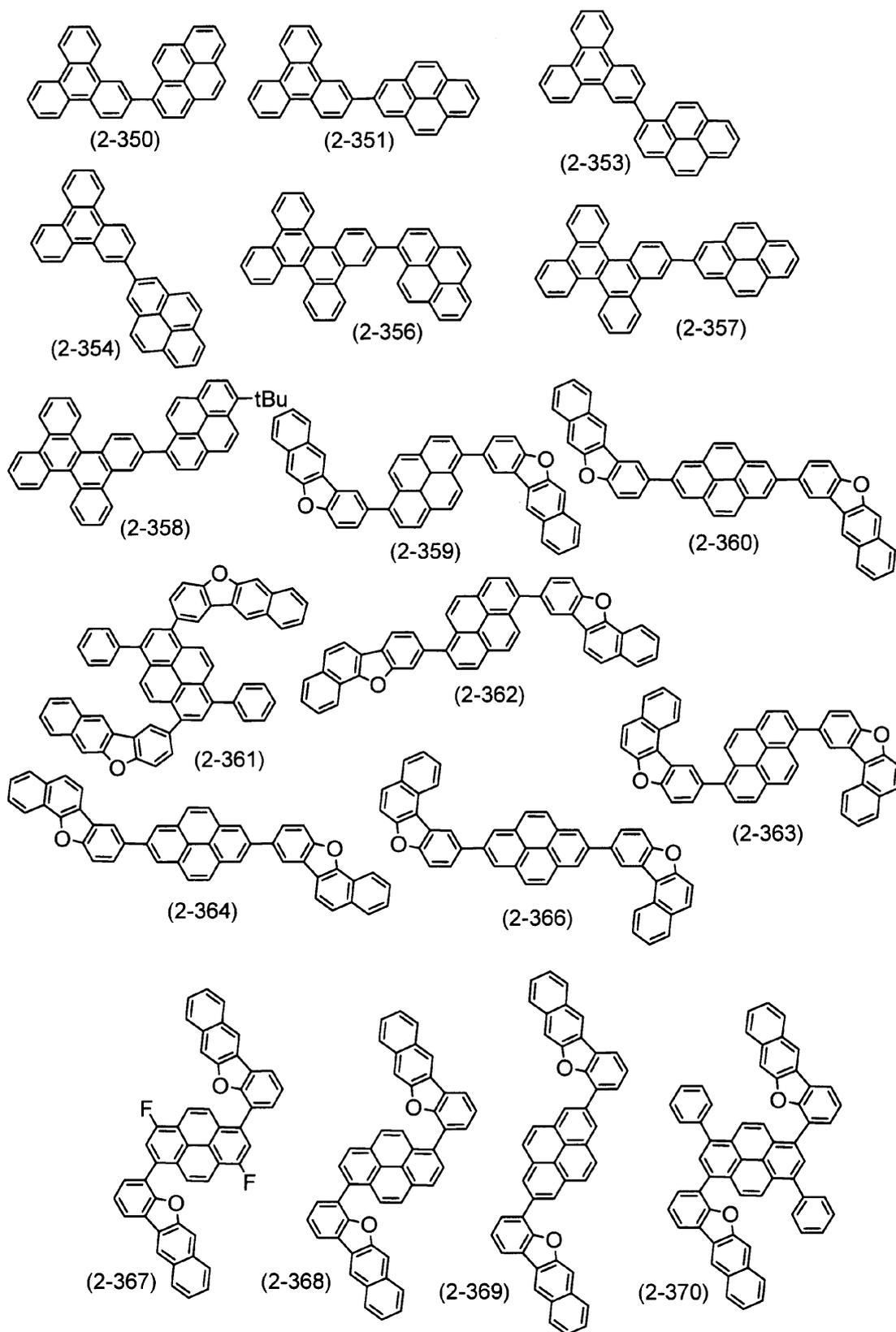
20

30

40

【 0 1 2 0 】

【化 4 4】



10

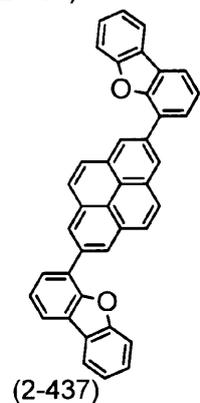
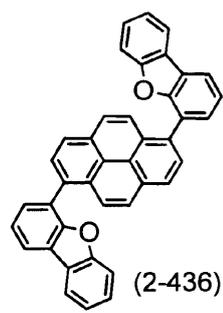
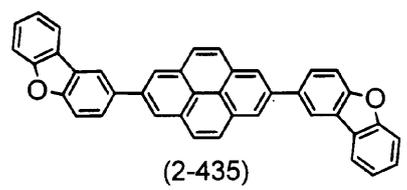
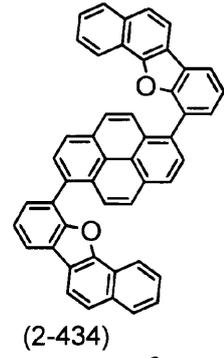
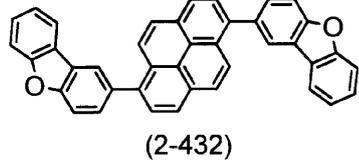
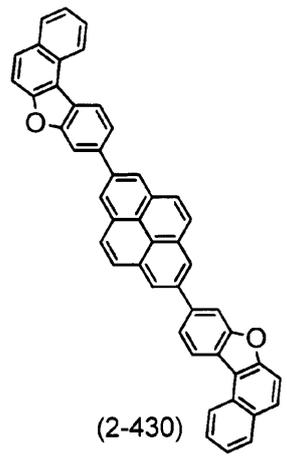
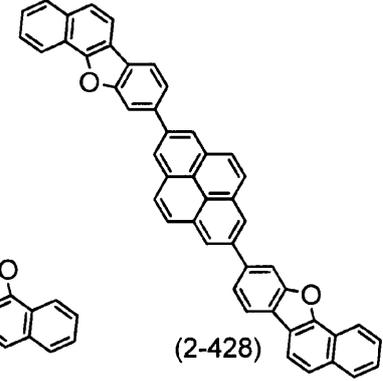
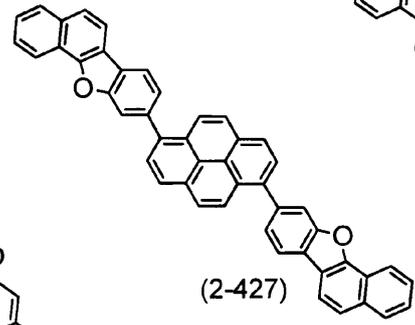
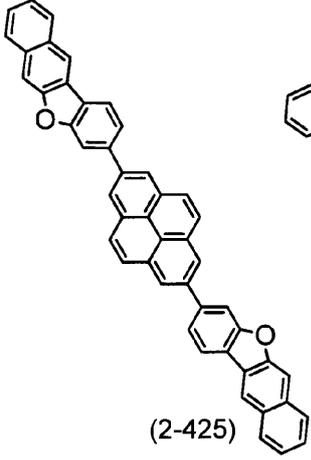
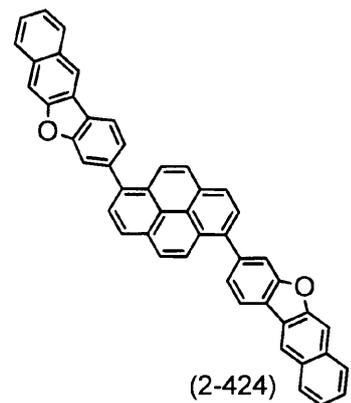
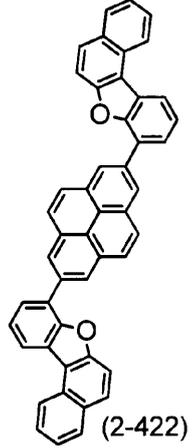
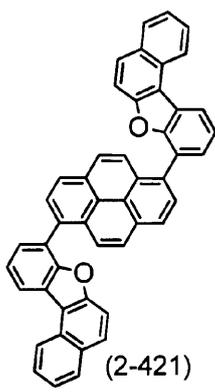
20

30

40

【 0 1 2 1 】

【化 4 5】



10

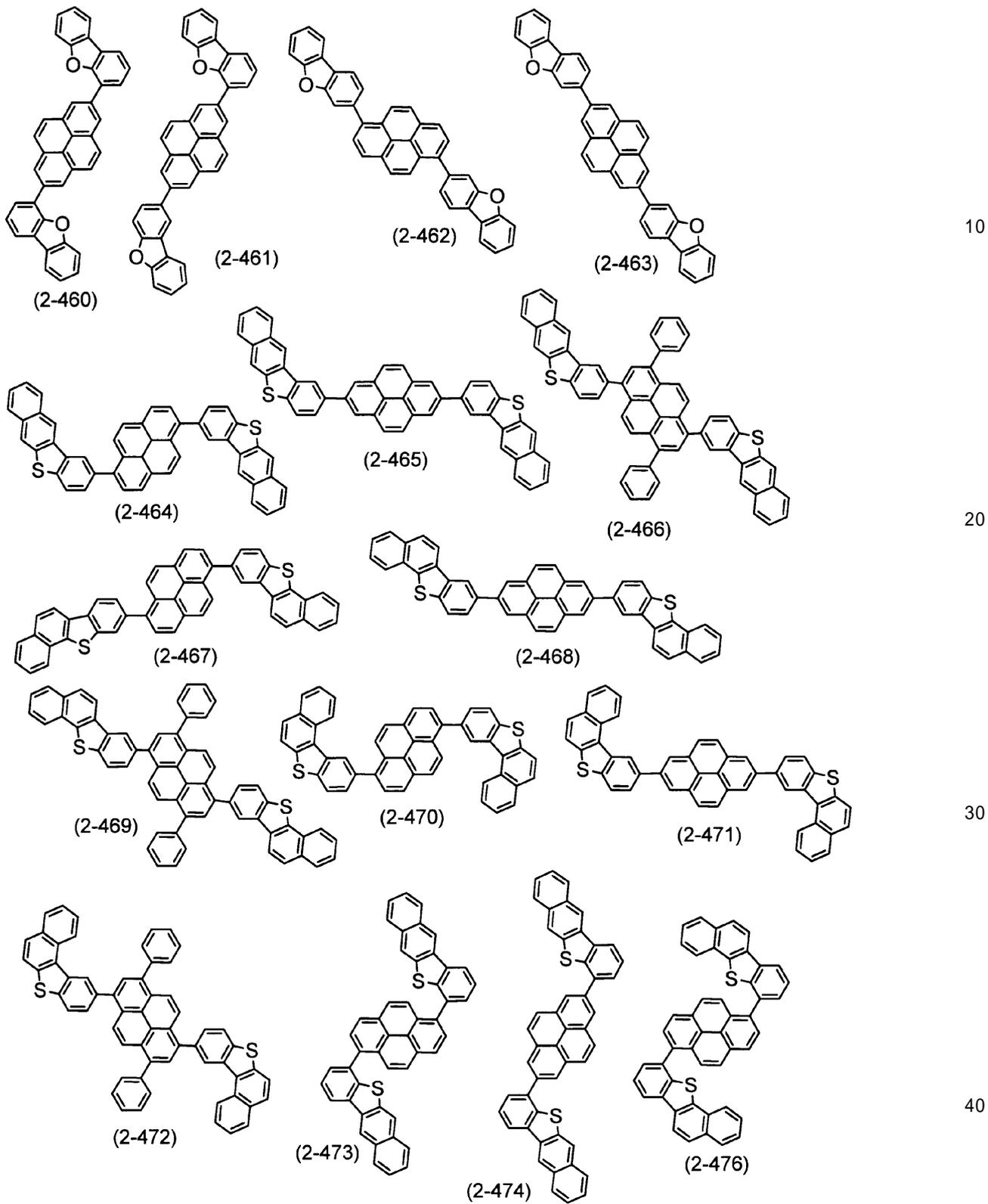
20

30

40

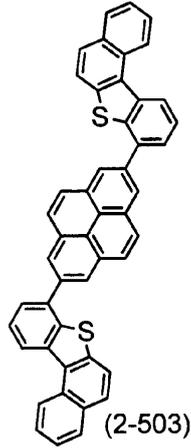
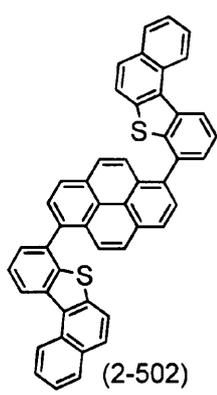
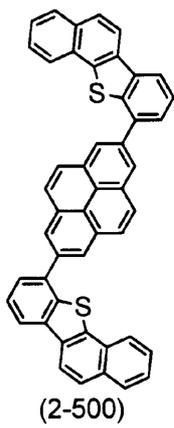
【 0 1 2 2 】

【化 4 6】

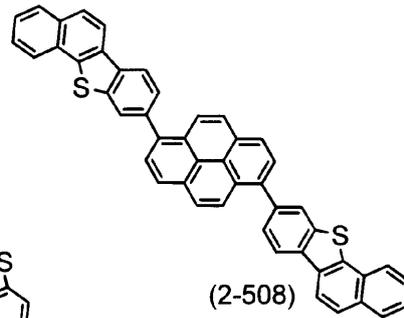
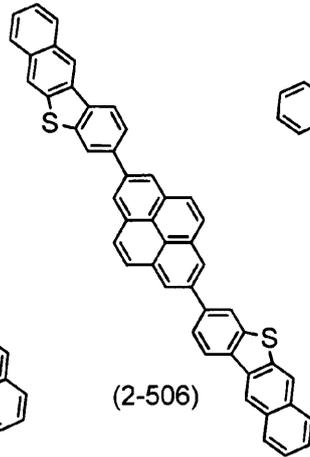
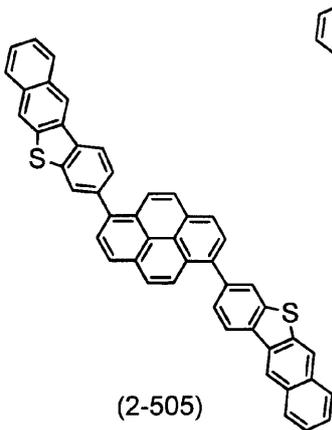


【 0 1 2 3】

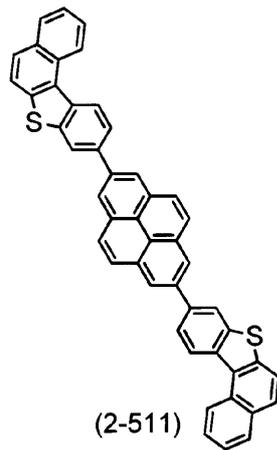
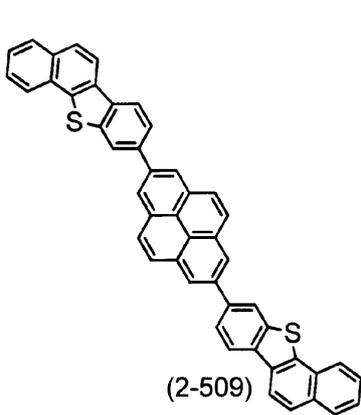
【化 4 7】



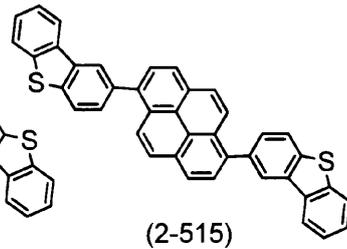
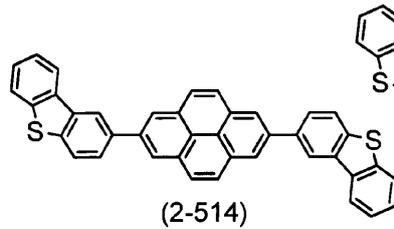
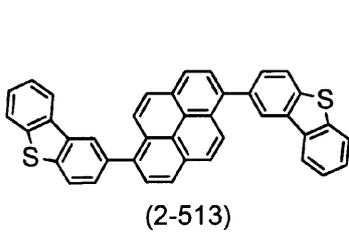
10



20



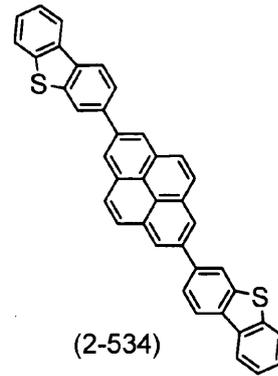
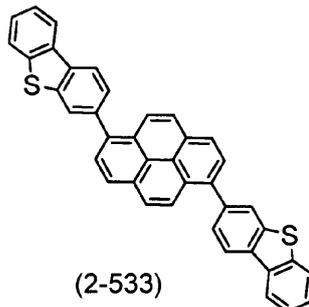
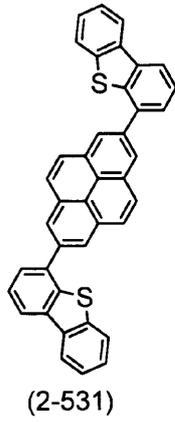
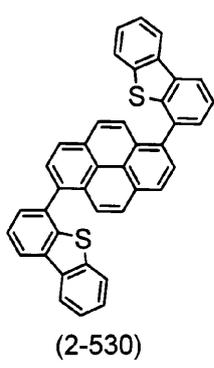
30



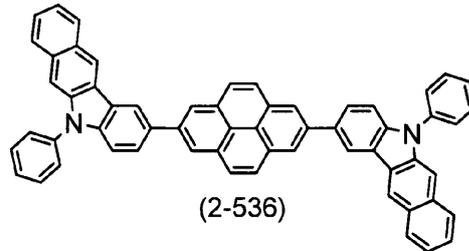
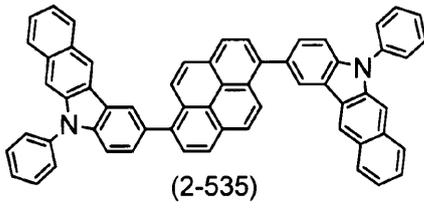
40

【 0 1 2 4 】

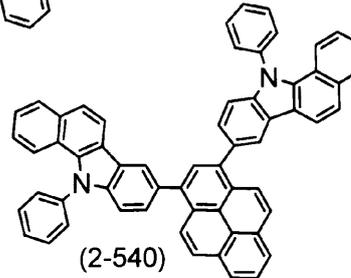
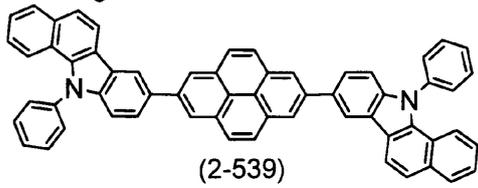
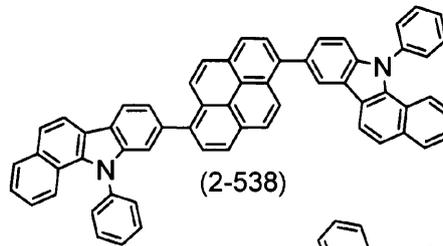
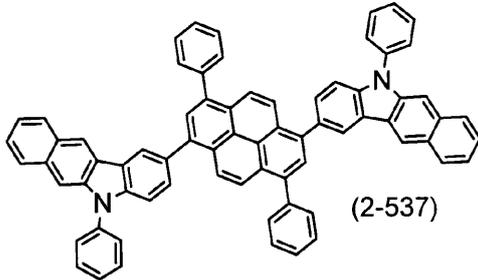
【化 4 8】



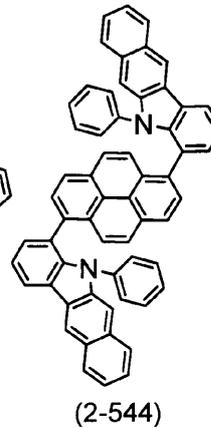
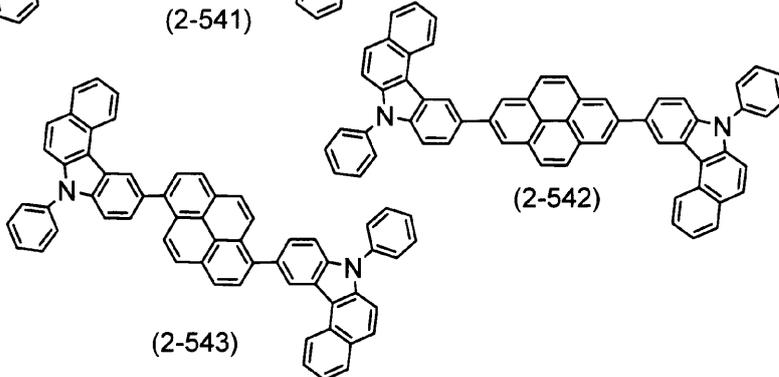
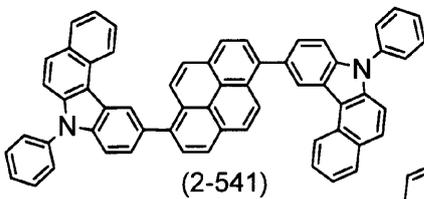
10



20



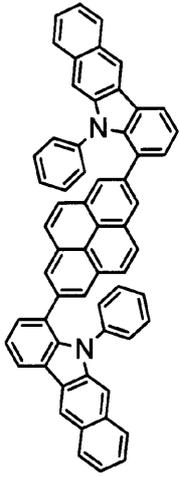
30



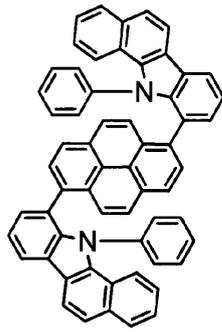
40

【 0 1 2 5】

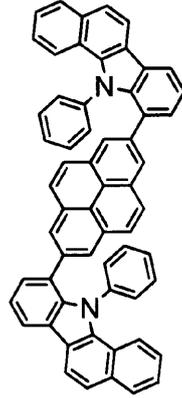
【化 4 9】



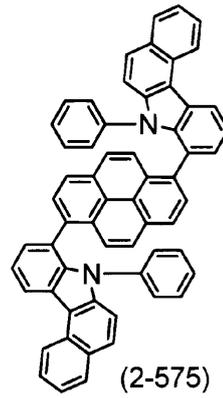
(2-570)



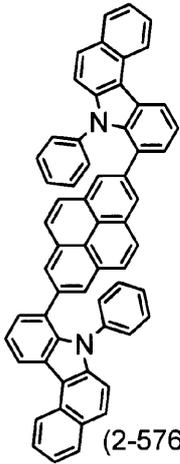
(2-572)



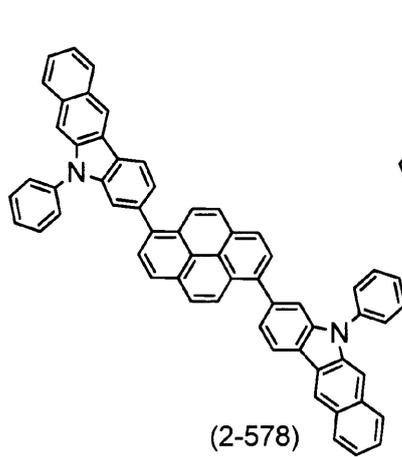
(2-573)



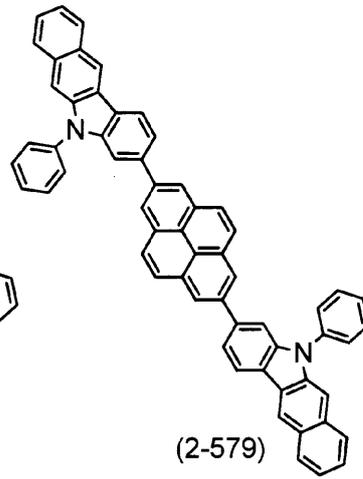
(2-575)



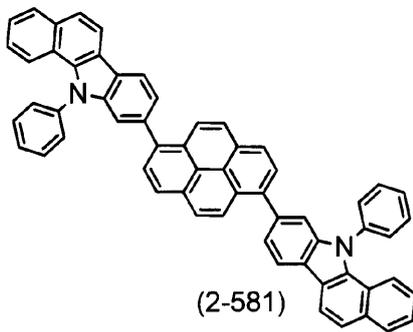
(2-576)



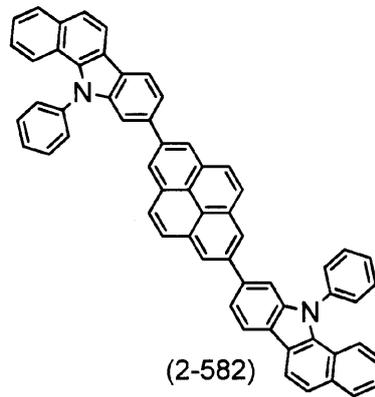
(2-578)



(2-579)



(2-581)



(2-582)

10

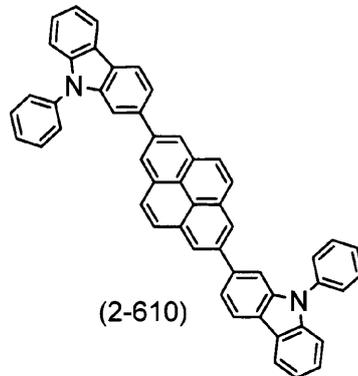
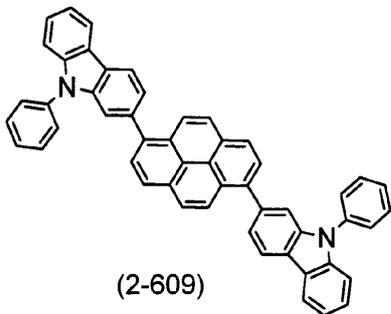
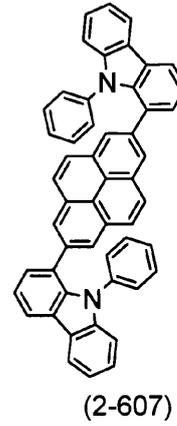
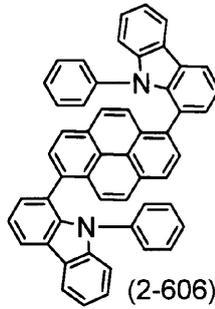
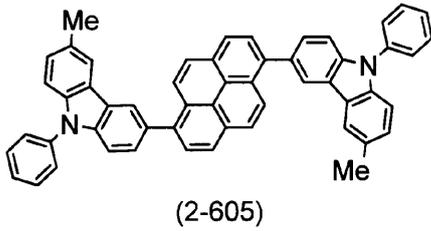
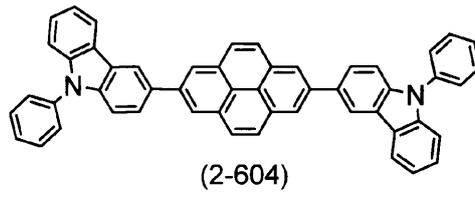
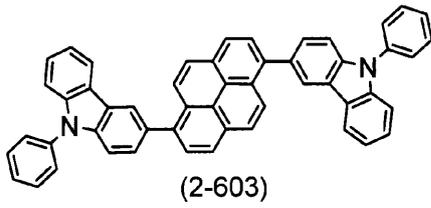
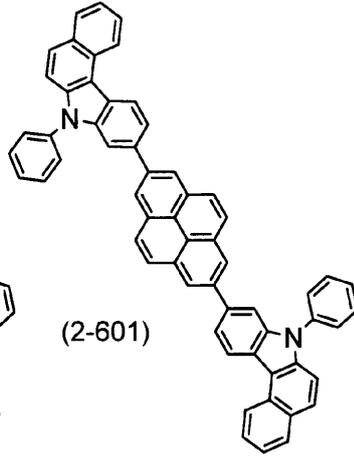
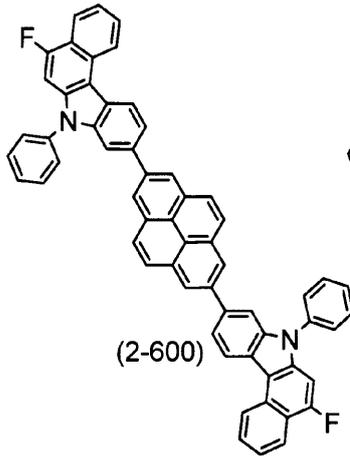
20

30

40

【 0 1 2 6】

【化 5 0】



【 0 1 2 7 】

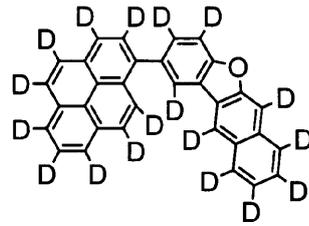
10

20

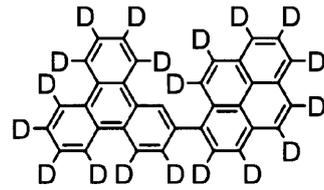
30

40

【化 5 1】

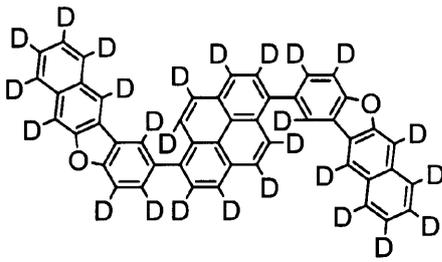


(2-624)

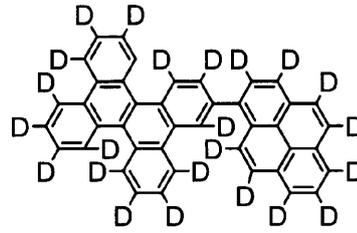


(2-625)

10



(2-626)

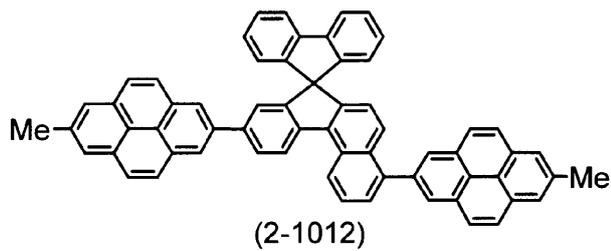
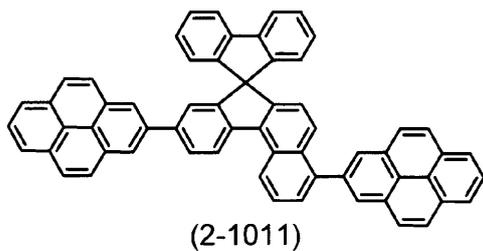
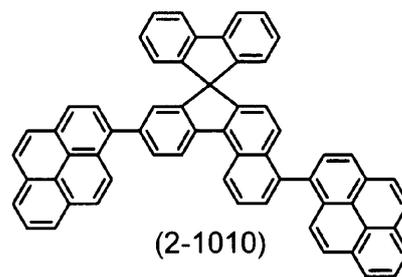
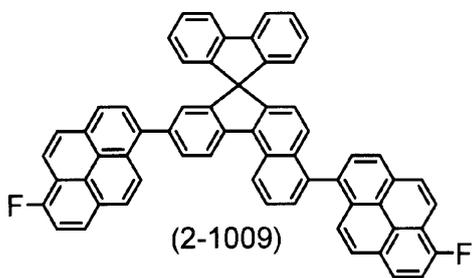
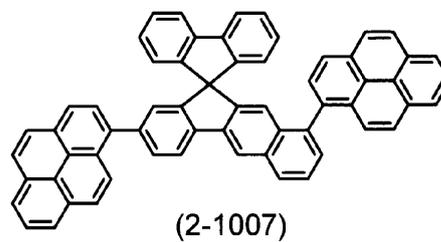
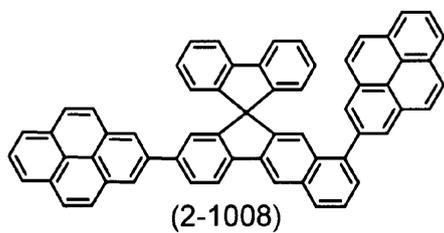
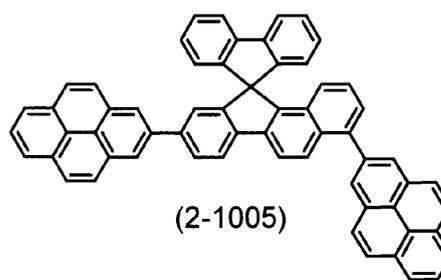
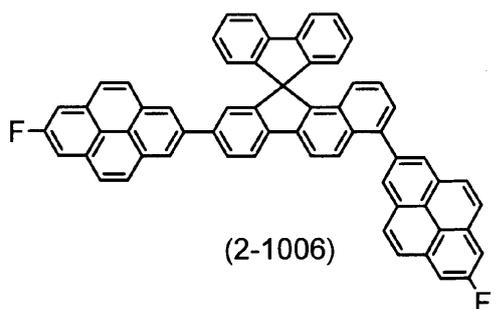
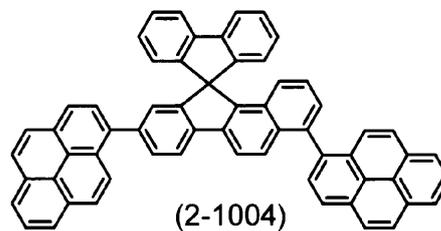
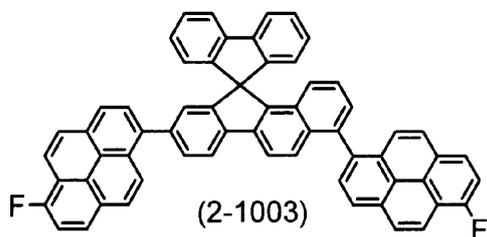
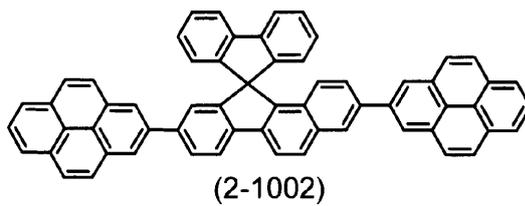
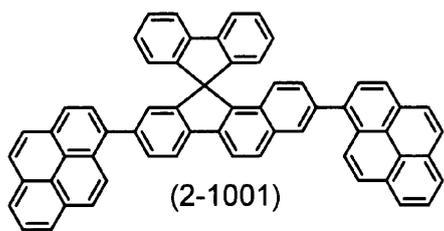


(2-627)

20

【 0 1 2 8 】

【化 5 2】



10

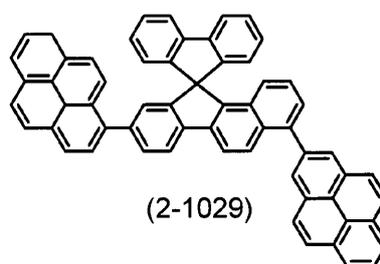
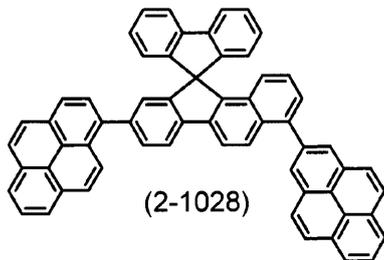
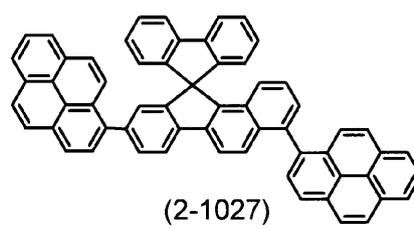
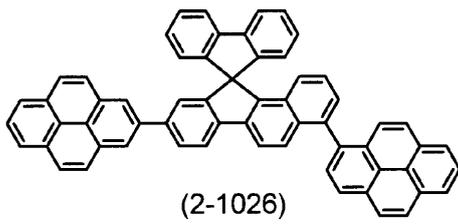
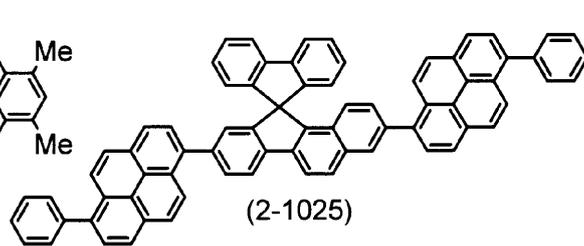
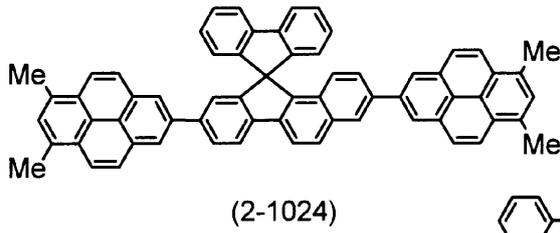
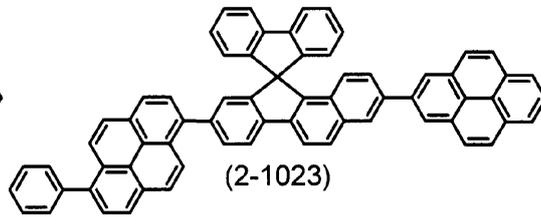
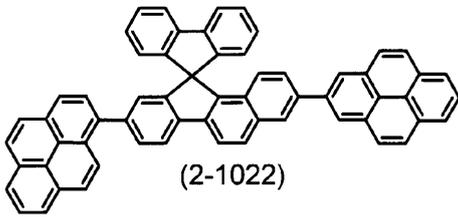
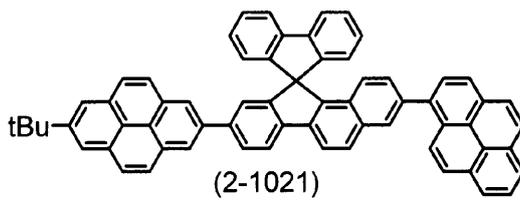
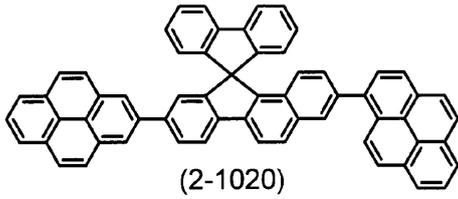
20

30

40

【 0 1 2 9 】

【化 5 3】



【 0 1 3 0 】

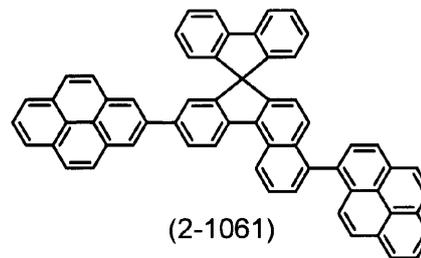
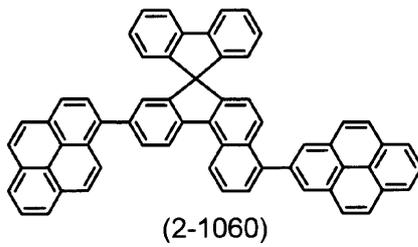
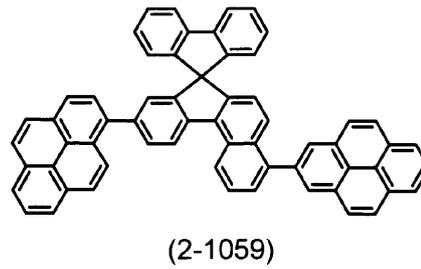
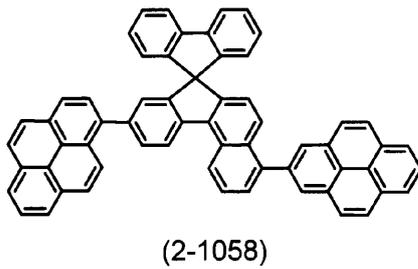
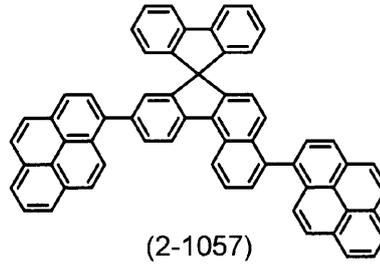
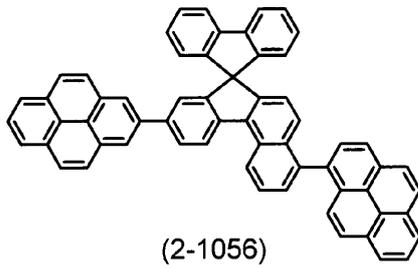
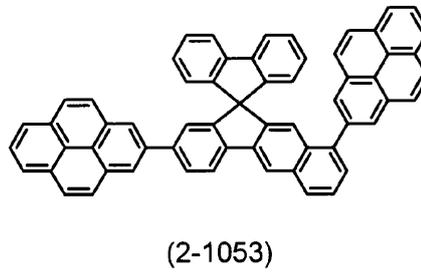
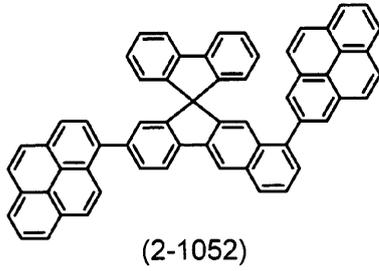
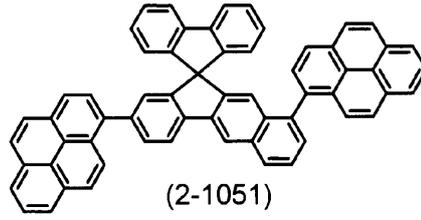
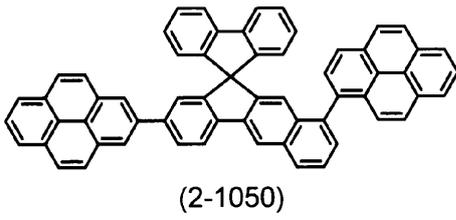
10

20

30

40

【化 5 4】



【 0 1 3 1 】

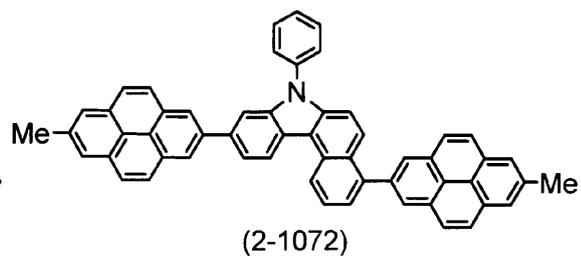
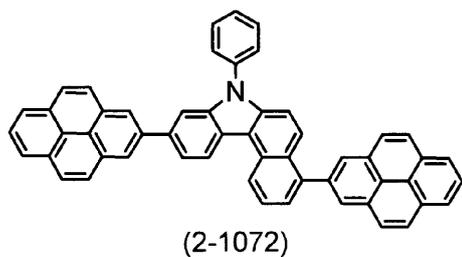
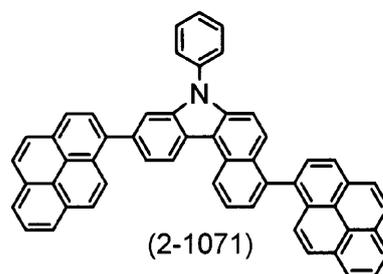
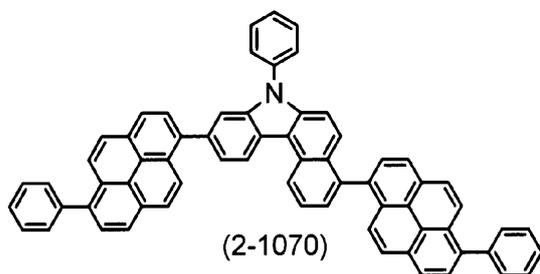
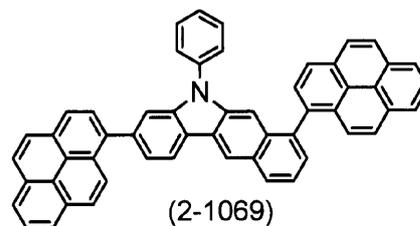
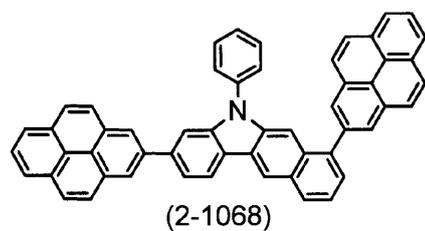
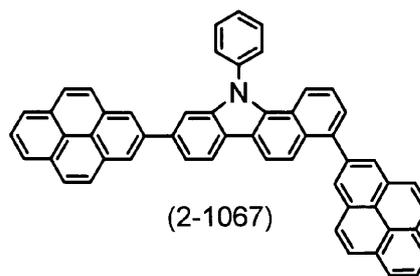
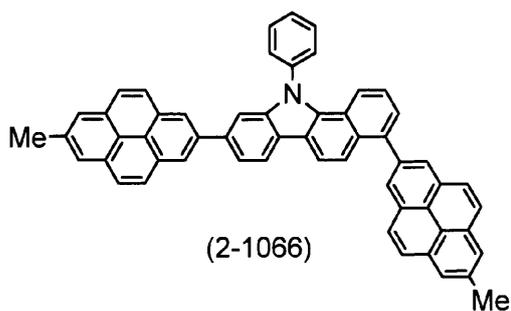
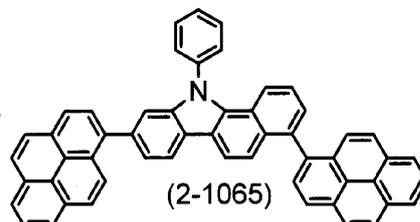
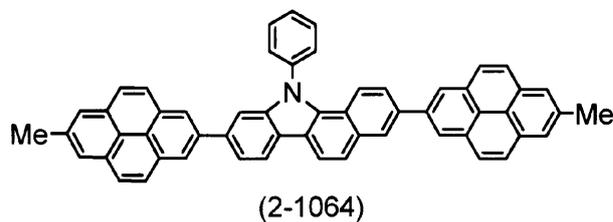
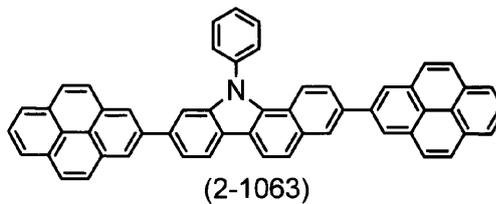
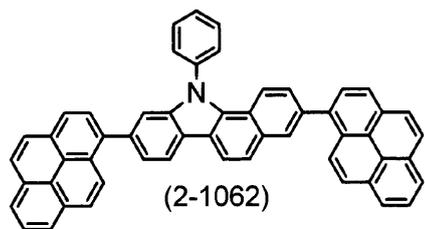
10

20

30

40

【化 5 5】



10

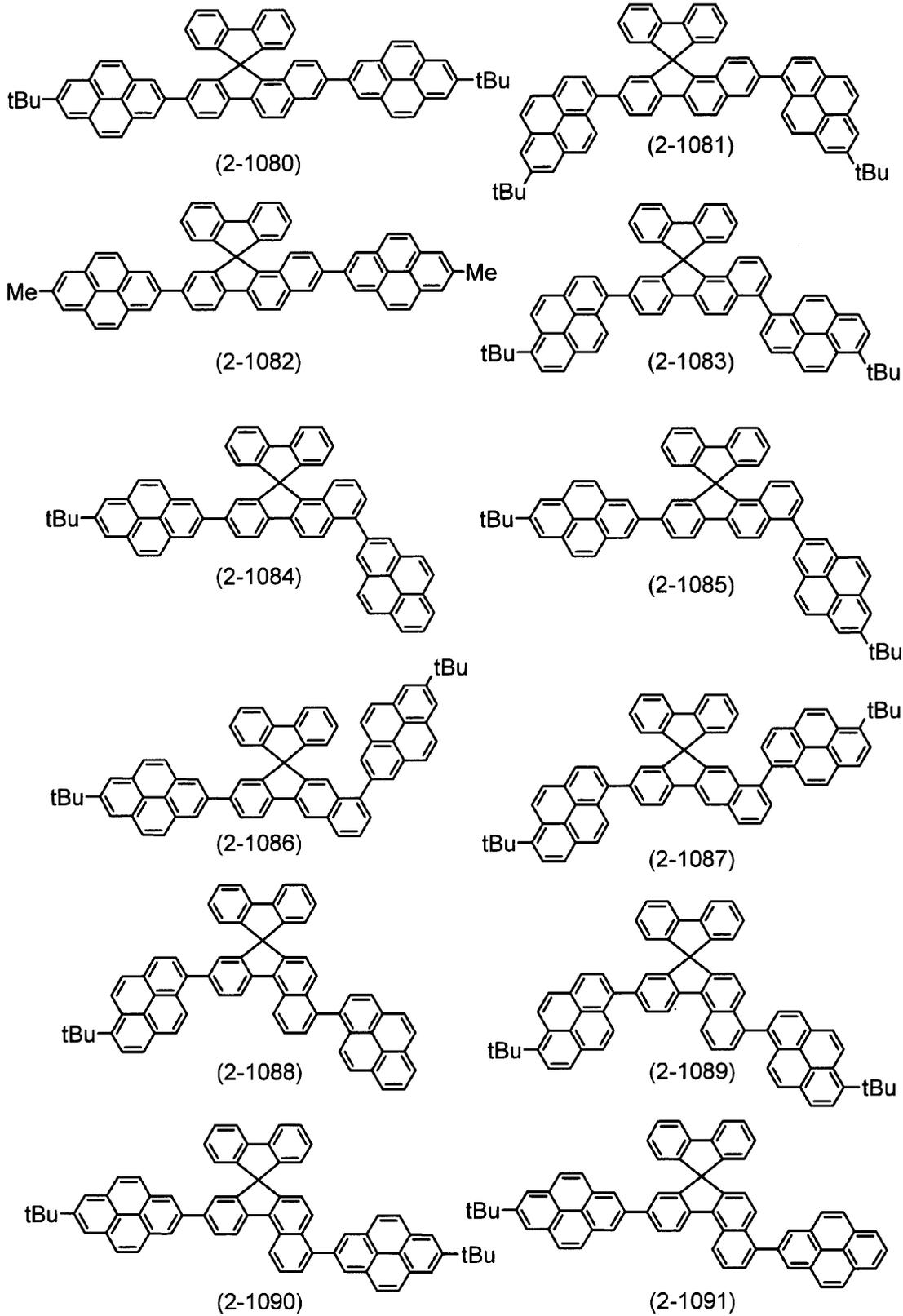
20

30

40

【 0 1 3 2 】

【化 5 6】



10

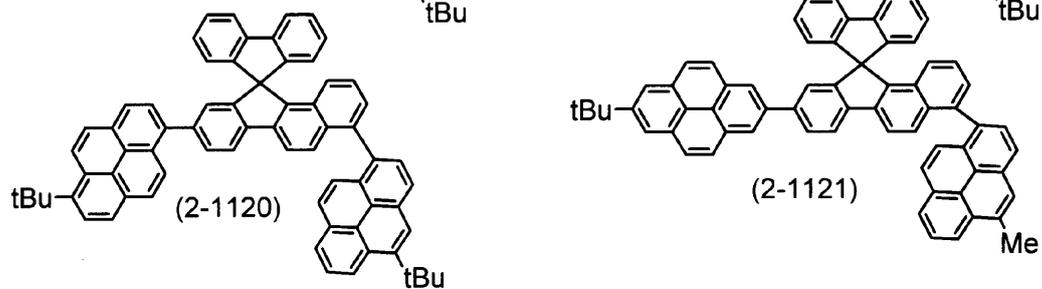
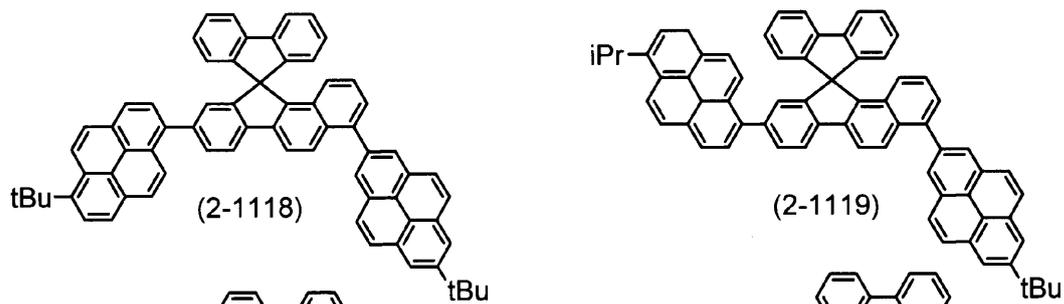
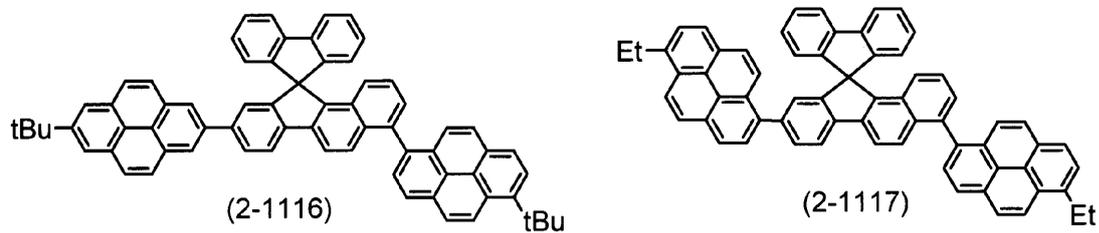
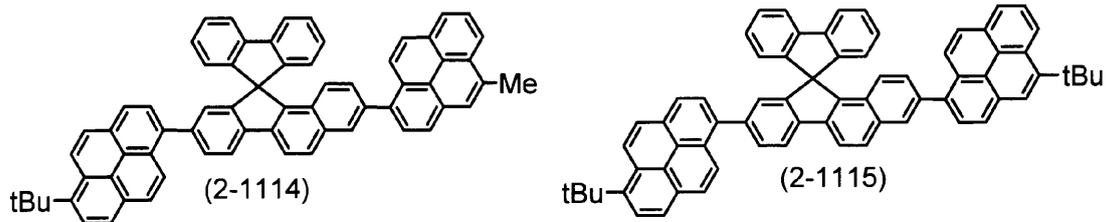
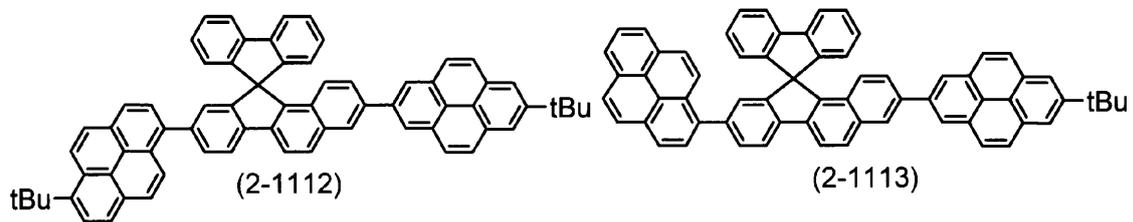
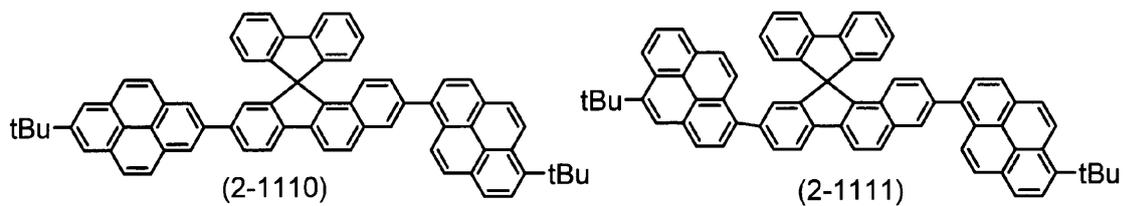
20

30

40

【 0 1 3 3 】

【化 5 7】



【 0 1 3 4 】

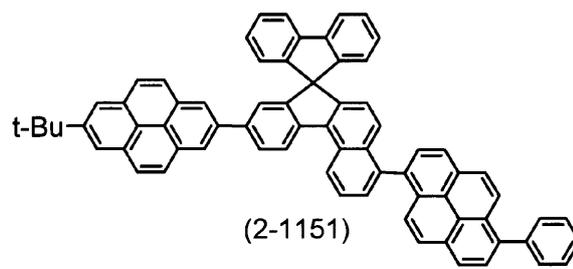
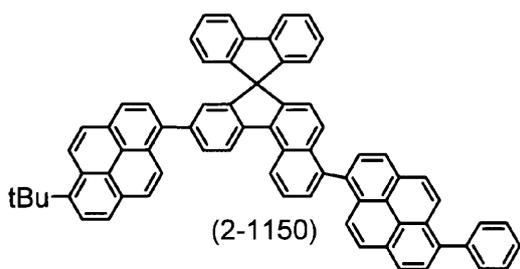
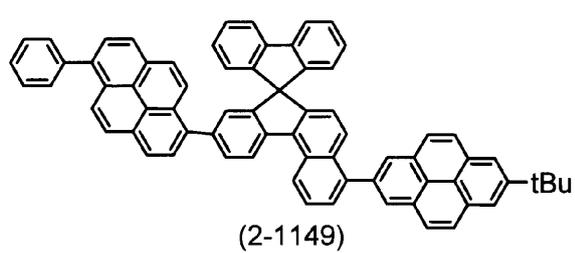
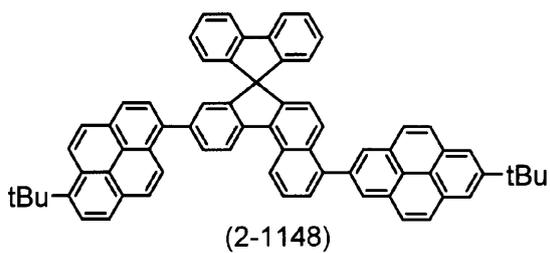
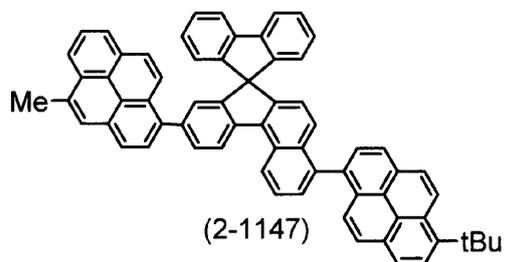
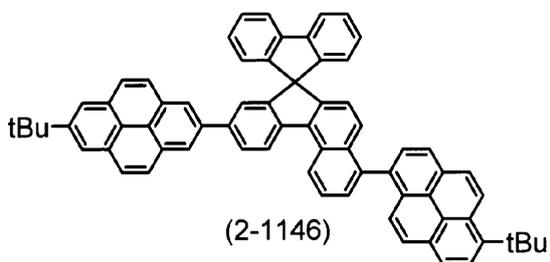
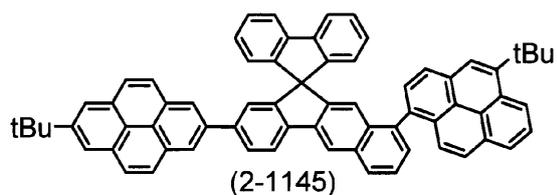
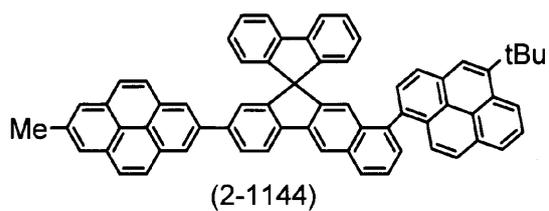
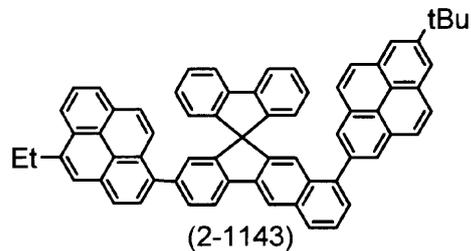
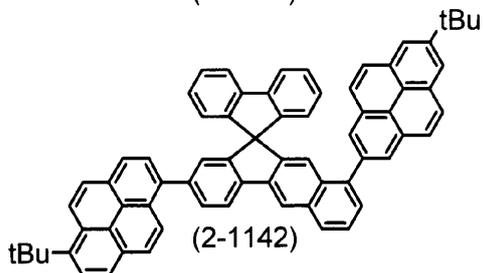
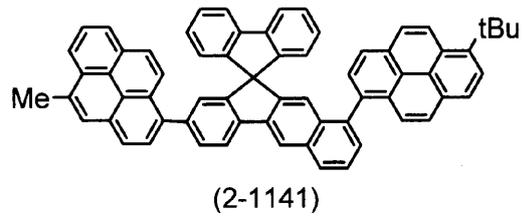
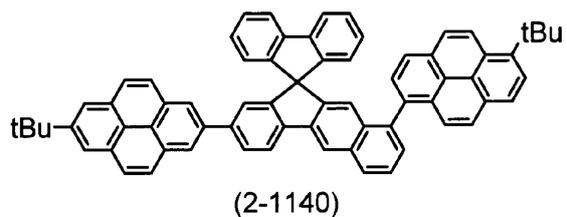
10

20

30

40

【化 5 8】



10

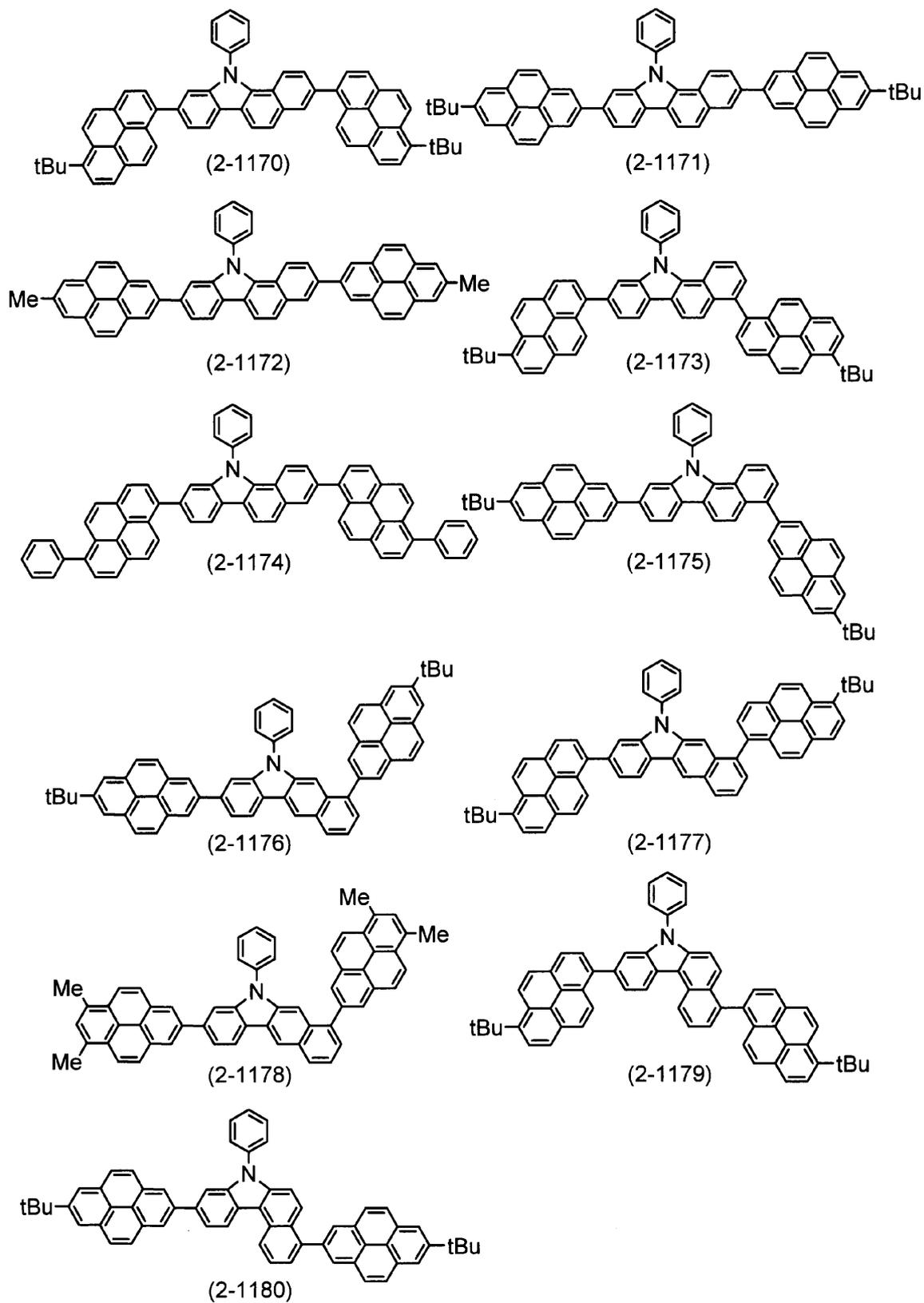
20

30

40

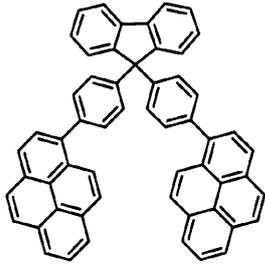
【 0 1 3 5】

【化 5 9】

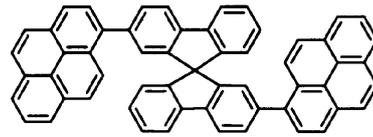


【 0 1 3 6 】

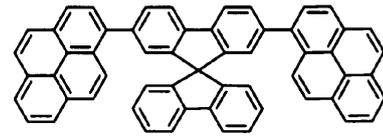
## 【化 6 0】



(2-1221)

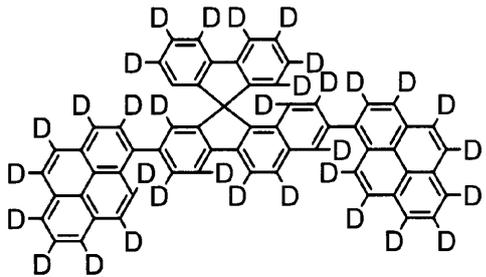


(2-1222)

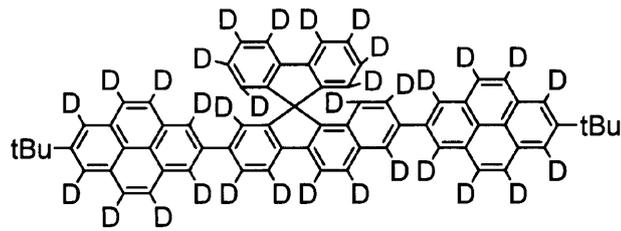


(2-1223)

10

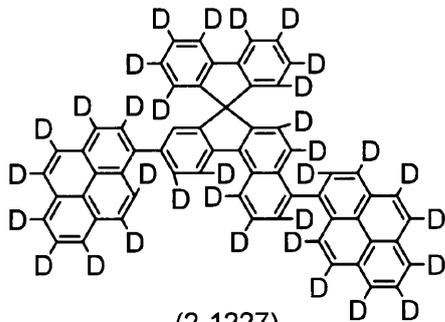


(2-1225)

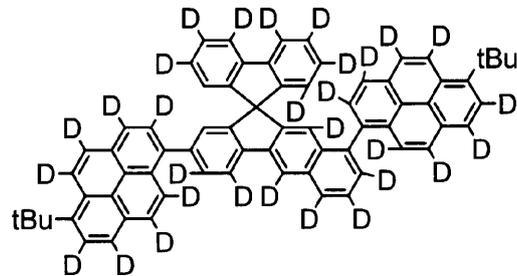


(2-1226)

20



(2-1227)



(2-1228)

30

## 【 0 1 3 7】

上記の化合物の中では、式(2-1)、式(2-2)~式(2-20)、式(2-41)~式(2-43)式(2-46)、式(2-47)~式(2-173)、式(2-174)、式(2-175)~式(2-215)、式(2-350)、式(2-351)~式(2-354)、式(2-356)、式(2-357)、式(2-358)、式(2-359)、式(2-360)~式(2-430)、式(2-1001)、式(2-1002)~式(2-1012)、式(2-1080)、式(2-1081)~式(2-1091)、式(2-1223)のいずれかで表される化合物が好ましい。

40

## 【 0 1 3 8】

また、式(2-1)、式(2-46)、式(2-174)、式(2-350)、式(2-356)、式(2-359)、式(2-1001)、式(2-1080)、式(2-1223)のいずれかで表される化合物がより好ましい。

## 【 0 1 3 9】

## 1-4. 式(2)で表されるピレン系化合物の製造方法

式(2)で表されるピレン系化合物は、ピレン骨格やArで表される化合物の骨格などに各種置換基を結合させた構造を有し、公知の方法を用いて製造することができる。通常使用されるハロゲン化反応、ボロン酸化反応またはボロン酸エステル化反応により中間体を製造し、製造した中間体を使用して鈴木カップリング反応、またその他のメタル化反応

50

、メタル種を經由するクロスカップリング反応（根岸カップリング反応、熊田 - 玉尾カップリング反応、小杉 - 右田 - スティレカップリング反応等）を行うことで、適宜、式（2）で表されるピレン系化合物を製造することができる。また、メトキシ基などのアルコキシ基などの置換基を有する中間体を製造して、ピリジン塩酸塩などを使用した脱メチル化反応で - OH 体とした後に、無水トリフルオロメタンスルホン酸などの試薬を使用してスルホン酸エステルとし、鈴木カップリング反応等のクロスカップリング反応を行うことでも、式（2）で表されるピレン系化合物を製造することができる。また、これらのハロゲン、ボロン酸、ボロン酸エステルあるいはスルホン酸エステルを有する中間体は市販の材料を使用することもできる。参考までに、後述する合成例において、当該ピレン系化合物の具体的な製造方法を説明している。

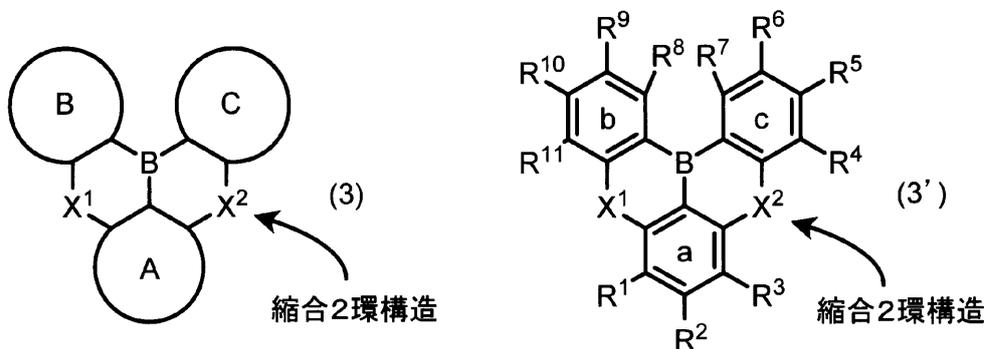
10

#### 【0140】

##### 1 - 5 . 本発明で好適なドーパント材料（ホウ素含有化合物）

ホウ素含有化合物としては、下記一般式（3）で表される化合物および一般式（3'）で表される構造を複数有する化合物の多量体があげられる。当該化合物およびその多量体は、好ましくは、下記一般式（3'）で表される化合物、または下記一般式（3'）で表される構造を複数有する化合物の多量体である。なお式（3）において中心原子の「B」はホウ素原子を意味し、「A」および「C」と共にリング内の「B」はそれぞれリングで示される環構造を示す符号である。

#### 【化61】



20

30

#### 【0141】

一般式（3）におけるA環、B環およびC環は、それぞれ独立して、アリール環またはヘテロアリール環であり、これらの環における少なくとも1つの水素は置換基で置換されていてもよい。この置換基は、置換または無置換のアリール、置換または無置換のヘテロアリール、置換または無置換のジアリールアミノ、置換または無置換のジヘテロアリールアミノ、置換または無置換のアリールヘテロアリールアミノ（アリールとヘテロアリールを有するアミノ基）、置換または無置換のアルキル、置換または無置換のシクロアルキル、置換または無置換のアルコキシまたは置換または無置換のアリールオキシが好ましい。これらの基が置換基を有する場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルがあげられる。また、上記アリール環またはヘテロアリール環は、「B」、「X<sup>1</sup>」および「X<sup>2</sup>」から構成される一般式（3）中央の縮合2環構造と結合を共有する5員環または6員環を有することが好ましい。

40

#### 【0142】

ここで、「縮合2環構造」とは、一般式（3）の中央に示した、「B」、「X<sup>1</sup>」および「X<sup>2</sup>」を含んで構成される2つの飽和炭化水素環が縮合した構造を意味する。また、「縮合2環構造と結合を共有する6員環」とは、例えば上記一般式（3'）で示すように前記縮合2環構造に縮合したa環（ベンゼン環（6員環））を意味する。また、「（A環である）アリール環またはヘテロアリール環がこの6員環を有する」とは、この6員環だけでA環が形成されるか、または、この6員環を含むようにこの6員環にさらに他の環などが縮合してA環が形成されることを意味する。言い換えれば、ここで言う「6員環を有

50

する（A環である）アリール環またはヘテロアリール環」とは、A環の全部または一部を構成する6員環が、前記縮合2環構造に縮合していることを意味する。「B環（b環）」、「C環（c環）」、また「5員環」についても同様の説明が当てはまる。

【0143】

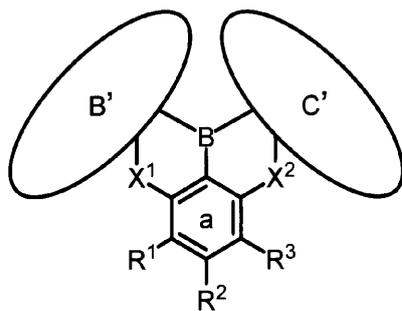
一般式(3)におけるA環（またはB環、C環）は、一般式(3')におけるa環とその置換基 $R^1 \sim R^3$ （またはb環とその置換基 $R^8 \sim R^{11}$ 、c環とその置換基 $R^4 \sim R^7$ ）に対応する。すなわち、一般式(3')は、一般式(3)のA～C環として「6員環を有するA～C環」が選択された構造に対応する。その意味で、一般式(3')の各環を小文字のa～cで表した。

【0144】

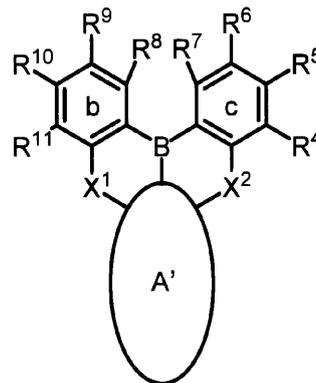
一般式(3')では、a環、b環およびc環の置換基 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素はアリール、ヘテロアリール、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノ、アリールヘテロアリールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリールオキシで置換されていてもよく、これらにおける少なくとも1つの水素はアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよい。したがって、一般式(3')で表される化合物は、a環、b環およびc環における置換基の相互の結合形態によって、下記式(3'-1)および式(3'-2)に示すように、化合物を構成する環構造が変化する。各式中のA'環、B'環およびC'環は、一般式(3)におけるそれぞれA環、B環およびC環に対応する。また、各式中の $R^1 \sim R^{11}$ 、a、b、c、 $X^1$ および $X^2$ の定義は一般式(3')における定義と同じである。

【0145】

【化62】



(3'-1)



(3'-2)

【0146】

上記式(3'-1)および式(3'-2)中のA'環、B'環およびC'環は、一般式(3')で説明すれば、置換基 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して、それぞれa環、b環およびc環と共に形成したアリール環またはヘテロアリール環を示す（a環、b環またはc環に他の環構造が縮合してできた縮合環ともいえる）。なお、式では示してはいないが、a環、b環およびc環の全てがA'環、B'環およびC'環に変化した化合物もある。また、上記式(3'-1)および式(3'-2)から分かるように、例えば、b環の $R^8$ とc環の $R^7$ 、b環の $R^{11}$ とa環の $R^1$ 、c環の $R^4$ とa環の $R^3$ などは「隣接する基同士」には該当せず、これらが結合することはない。すなわち、「隣接する基」とは同一環上で隣接する基を意味する。

【0147】

上記式(3'-1)や式(3'-2)で表される化合物は、例えば後述する具体的化合物として列挙した式(3-2)～式(3-9)や式(3-290)～式(3-375)で

10

20

30

40

50

表されるような化合物などに対応する。すなわち、例えば a 環（または b 環または c 環）であるベンゼン環に対してベンゼン環、インドール環、ピロール環、ベンゾフラン環またはベンゾチオフェン環などが縮合して形成される A' 環（または B' 環または C' 環）を有する化合物であり、形成されてきた縮合環 A'（または縮合環 B' または縮合環 C'）はそれぞれナフタレン環、カルバゾール環、インドール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環などである。

【0148】

一般式(3)における  $X^1$  および  $X^2$  は、それぞれ独立して、 $>O$  または  $>N-R$  であり、前記  $>N-R$  の R は置換されていてもよいアリール、置換されていてもよいヘテロアリール、置換されていてもよいアルキルまたは置換されていてもよいシクロアルキルであり、前記  $>N-R$  の R は連結基または単結合により前記 B 環および / または C 環と結合していてもよく、連結基としては、 $-O-$ 、 $-S-$  または  $-C(-R)_2-$  が好ましい。なお、前記「 $-C(-R)_2-$ 」の R は水素、アルキルまたはシクロアルキルである。この説明は一般式(3')における  $X^1$  および  $X^2$  でも同じである。

10

【0149】

ここで、一般式(3)における「 $>N-R$  の R は連結基または単結合により前記 A 環、B 環および / または C 環と結合している」との規定は、一般式(3')では「 $>N-R$  の R は  $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(-R)_2-$  または単結合により前記 a 環、b 環および / または c 環と結合している」との規定に対応する。

この規定は、下記式(3'-3-1)で表される、 $X^1$  や  $X^2$  が縮合環 B' および縮合環 C' に取り込まれた環構造を有する化合物で表現できる。すなわち、例えば一般式(3')における b 環（または c 環）であるベンゼン環に対して  $X^1$ （または  $X^2$ ）を取り込むようにして他の環が縮合して形成される B' 環（または C' 環）を有する化合物である。この化合物は、例えば後述する具体的化合物として列挙した、式(3-40) ~ (3-114) で表されるような化合物などに対応し、形成されてきた縮合環 B'（または縮合環 C'）は例えばフェノキサジン環、フェノチアジン環またはアクリジン環である。

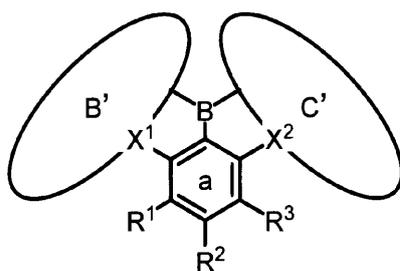
20

また、上記規定は、下記式(3'-3-2)や式(3'-3-3)で表される、 $X^1$  および / または  $X^2$  が縮合環 A' に取り込まれた環構造を有する化合物でも表現できる。すなわち、例えば一般式(3')における a 環であるベンゼン環に対して  $X^1$ （および / または  $X^2$ ）を取り込むようにして他の環が縮合して形成される A' 環を有する化合物である。この化合物は、例えば後述する具体的化合物として列挙した式(3-115) ~ (3-126) で表されるような化合物などに対応し、形成されてきた縮合環 A' は例えばフェノキサジン環、フェノチアジン環またはアクリジン環である。なお、下記式(3'-3-1)、式(3'-3-2)および式(3'-3-3)中の  $R^1 \sim R^{11}$ 、a、b、c、 $X^1$  および  $X^2$  の定義は一般式(3')における定義と同じである。

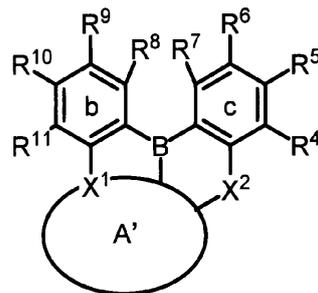
30

【0150】

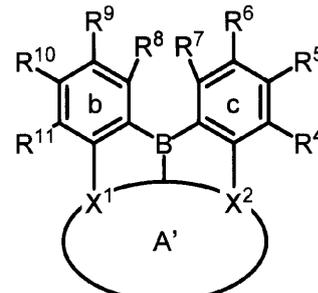
【化63】



(3'-3-1)



(3'-3-2)



(3'-3-3)

40

【0151】

一般式(3)の A 環、B 環および C 環である「アリール環」としては、例えば、炭素数

50

6 ~ 30のアリール環があげられ、炭素数6 ~ 16のアリール環が好ましく、炭素数6 ~ 12のアリール環がより好ましく、炭素数6 ~ 10のアリール環が特に好ましい。なお、この「アリール環」は、一般式(3')で規定された「 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共に形成されたアリール環」に対応し、また、a環(またはb環、c環)がすでに炭素数6のベンゼン環で構成されているため、これに5員環が縮合した縮合環の合計炭素数9が下限の炭素数となる。

【0152】

具体的な「アリール環」としては、単環系であるベンゼン環、二環系であるビフェニル環、縮合二環系であるナフタレン環、三環系であるテルフェニル環(m-テルフェニル、o-テルフェニル、p-テルフェニル)、縮合三環系である、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、縮合四環系であるトリフェニレン環、ピレン環、ナフタセン環、縮合五環系であるペリレン環、ペンタセン環などがあげられる。

10

【0153】

一般式(3)のA環、B環およびC環である「ヘテロアリール環」としては、例えば、炭素数2 ~ 30のヘテロアリール環があげられ、炭素数2 ~ 25のヘテロアリール環が好ましく、炭素数2 ~ 20のヘテロアリール環がより好ましく、炭素数2 ~ 15のヘテロアリール環がさらに好ましく、炭素数2 ~ 10のヘテロアリール環が特に好ましい。また、「ヘテロアリール環」としては、例えば環構成原子として炭素以外に酸素、硫黄および窒素から選ばれるヘテロ原子を1ないし5個含有する複素環などがあげられる。なお、この「ヘテロアリール環」は、一般式(3')で規定された「 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共に形成されたヘテロアリール環」に対応し、また、a環(またはb環、c環)がすでに炭素数6のベンゼン環で構成されているため、これに5員環が縮合した縮合環の合計炭素数6が下限の炭素数となる。

20

【0154】

具体的な「ヘテロアリール環」としては、例えば、ピロール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、ピラゾール環、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、インドール環、イソインドール環、1H-インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾオキサゾール環、ベンゾチアゾール環、1H-ベンゾトリアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シンノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、プリン環、プテリジン環、カルバゾール環、アクリジン環、フェノキサチン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、フェナジン環、インドリジン環、フラン環、ベンゾフラン環、イソベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、チオフエン環、ベンゾチオフエン環、ジベンゾチオフエン環、フラザン環、オキサジアゾール環、チアントレン環などがあげられる。

30

【0155】

上記「アリール環」または「ヘテロアリール環」における少なくとも1つの水素は、第1の置換基である、置換または無置換の「アリール」、置換または無置換の「ヘテロアリール」、置換または無置換の「ジアリールアミノ」、置換または無置換の「ジヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アリールヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アルキル」、置換または無置換の「シクロアルキル」、置換または無置換の「アルコキシ」、または、置換または無置換の「アリールオキシ」で置換されていてもよいが、この第1の置換基としての「アリール」や「ヘテルアリール」、「ジアリールアミノ」のアリール、「ジヘテロアリールアミノ」のヘテロアリール、「アリールヘテロアリールアミノ」のアリールとヘテロアリール、また「アリールオキシ」のアリールとしては上述した「アリール環」または「ヘテロアリール環」の一価の基があげられる。

40

【0156】

また第1の置換基としての「アルキル」としては、直鎖および分枝鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1 ~ 24の直鎖アルキルまたは炭素数3 ~ 24の分枝鎖アルキルがあげられる。炭素数1 ~ 18のアルキル(炭素数3 ~ 18の分枝鎖アルキル)が好ましく、炭

50

素数 1 ~ 12 のアルキル (炭素数 3 ~ 12 の分枝鎖アルキル) がより好ましく、炭素数 1 ~ 6 のアルキル (炭素数 3 ~ 6 の分枝鎖アルキル) がさらに好ましく、炭素数 1 ~ 4 のアルキル (炭素数 3 ~ 4 の分枝鎖アルキル) が特に好ましい。

【0157】

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

10

【0158】

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

20

【0159】

具体的なシクロアルキルとしては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、およびこれらの炭素数 1 ~ 4 のアルキル (特にメチル) 置換体や、ビスシクロ [1.0.1] ブチル、ビスシクロ [1.1.1] ペンチル、ビスシクロ [2.0.1] ペンチル、ビスシクロ [1.2.1] ヘキシル、ビスシクロ [3.0.1] ヘキシル、ビスシクロ [2.1.2] ヘプチル、ビスシクロ [2.2.2] オクチル、アダマンチル、ジアマンチル、デカヒドロナフタレニル、デカヒドロアズレニルなどがあげられる。

【0160】

また第1の置換基としての「アルコキシ」としては、例えば、炭素数 1 ~ 24 の直鎖または炭素数 3 ~ 24 の分枝鎖のアルコキシがあげられる。炭素数 1 ~ 18 のアルコキシ (炭素数 3 ~ 18 の分枝鎖のアルコキシ) が好ましく、炭素数 1 ~ 12 のアルコキシ (炭素数 3 ~ 12 の分枝鎖のアルコキシ) がより好ましく、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ (炭素数 3 ~ 6 の分枝鎖のアルコキシ) がさらに好ましく、炭素数 1 ~ 4 のアルコキシ (炭素数 3 ~ 4 の分枝鎖のアルコキシ) が特に好ましい。

30

【0161】

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

【0162】

第1の置換基である、置換または無置換の「アリール」、置換または無置換の「ヘテロアリール」、置換または無置換の「ジアリールアミノ」、置換または無置換の「ジヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アリールヘテロアリールアミノ」、置換または無置換の「アルキル」、置換または無置換の「シクロアルキル」、置換または無置換の「アルコキシ」、または、置換または無置換の「アリールオキシ」は、置換または無置換と説明されているとおり、それらにおける少なくとも1つの水素が第2の置換基で置換されていてもよい。この第2の置換基としては、例えば、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルがあげられ、それらの具体例は、上述した「アリール環」または「ヘテロアリール環」の一価の基、また第1の置換基としての「アルキル」または「シクロアルキル」の説明を参照することができる。また、第2の置換基としてのアリールやヘテロアリールには、それらにおける少なくとも1つの水素がフェニルなどのアリール (具

40

50

体例は上述した基)やメチルなどのアルキル(具体例は上述した基)やシクロヘキシルなどのシクロアルキル(具体例は上述した基)で置換された基も第2の置換基としてのアリーールやヘテロアリーールに含まれる。その一例としては、第2の置換基がカルバゾリル基の場合には、9位における少なくとも1つの水素がフェニルなどのアリーールやメチルなどのアルキルやシクロヘキシルなどのシクロアルキルで置換されたカルバゾリル基も第2の置換基としてのヘテロアリーールに含まれる。

#### 【0163】

一般式(3')の $R^1 \sim R^{1'}$ におけるアリーール、ヘテロアリーール、ジアリーールアミノのアリーール、ジヘテロアリーールアミノのヘテロアリーール、アリーールヘテロアリーールアミノのアリーールとヘテロアリーール、またはアリーールオキシのアリーールとしては、一般式(3)で説明した「アリーール環」または「ヘテロアリーール環」の一価の基があげられる。また、 $R^1 \sim R^{1'}$ におけるアルキル、シクロアルキルまたはアルコキシとしては、上述した一般式(3)の説明における第1の置換基としての「アルキル」や「シクロアルキル」や「アルコキシ」の説明を参照することができる。さらに、これらの基への置換基としてのアリーール、ヘテロアリーール、アルキルまたはシクロアルキルも同様である。また、また、 $R^1 \sim R^{1'}$ のうちの隣接する基同士が結合してa環、b環またはc環と共にアリーール環またはヘテロアリーール環を形成した場合の、これらの環への置換基であるヘテロアリーール、ジアリーールアミノ、ジヘテロアリーールアミノ、アリーールヘテロアリーールアミノ、アルキル、シクロアルキル、アルコキシまたはアリーールオキシ、および、さらなる置換基であるアリーール、ヘテロアリーール、アルキルまたはシクロアルキルについても同様である。

10

20

#### 【0164】

一般式(3)の $X^1$ および $X^2$ における $>N-R$ のRは上述した第2の置換基で置換されていてもよいアリーール、ヘテロアリーール、アルキルまたはシクロアルキルであり、アリーール、ヘテロアリーール、アルキルやシクロアルキルにおける少なくとも1つの水素は例えばアルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよい。このアリーール、ヘテロアリーール、アルキルやシクロアルキルとしては上述する基があげられる。特に炭素数6~10のアリーール(例えばフェニル、ナフチルなど)、炭素数2~15のヘテロアリーール(例えばカルバゾリルなど)、炭素数1~4のアルキル(例えばメチル、エチルなど)、炭素数3~16のシクロアルキル(例えばピシクロオクチルやアダマンチル等)が好ましい。この説明は一般式(3')における $X^1$ および $X^2$ でも同じである。

30

#### 【0165】

一般式(3)における連結基である「 $-C(-R)_2-$ 」のRは水素またはアルキルまたはシクロアルキルであるが、このアルキルまたはシクロアルキルとしては上述する基があげられる。特に炭素数1~4のアルキル(例えばメチル、エチルなど)が好ましい。この説明は一般式(3')における連結基である「 $-C(-R)_2-$ 」でも同じである。

#### 【0166】

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

40

#### 【0167】

このような多量体としては、例えば、下記式(3'-4)、式(3'-4-1)、式(3'-4-2)、式(3'-5-1)~式(3'-5-4)または式(3'-6)で表される多量体化合物があげられる。下記式(3'-4)で表される多量体化合物は、例えば後述する式(3-21)で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式(3')

50

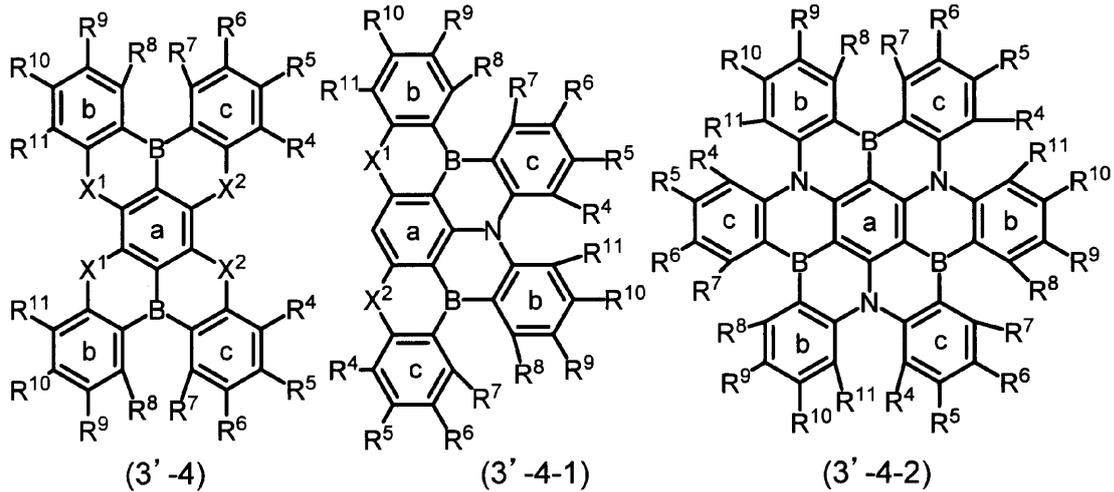
で説明すれば、a環であるベンゼン環を共有するようにして、複数の一般式(3')で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式(3'-4-1)で表される多量体化合物は、例えば後述する式(3-218)で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式(3')で説明すれば、a環であるベンゼン環を共有するようにして、二つの一般式(3')で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式(3'-4-2)で表される多量体化合物は、例えば後述する式(3-219)で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式(3')で説明すれば、a環であるベンゼン環を共有するようにして、三つの一般式(3')で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式(3'-5-1)~式(3'-5-4)で表される多量体化合物は、例えば後述する式(3-19)、式(3-20)、式(3-22)または式(3-23)で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式(3')で説明すれば、b環(またはc環)であるベンゼン環を共有するようにして、複数の一般式(3')で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。また、下記式(3'-6)で表される多量体化合物は、例えば後述する式(3-24)~(3-28)で表されるような化合物に対応する。すなわち、一般式(3')で説明すれば、例えばある単位構造のb環(またはa環、c環)であるベンゼン環とある単位構造のb環(またはa環、c環)であるベンゼン環とが縮合するようにして、複数の一般式(3')で表される単位構造を一つの化合物中に有する多量体化合物である。なお下記構造式中の各符号の定義は一般式(3')における定義と同じである。

【0168】

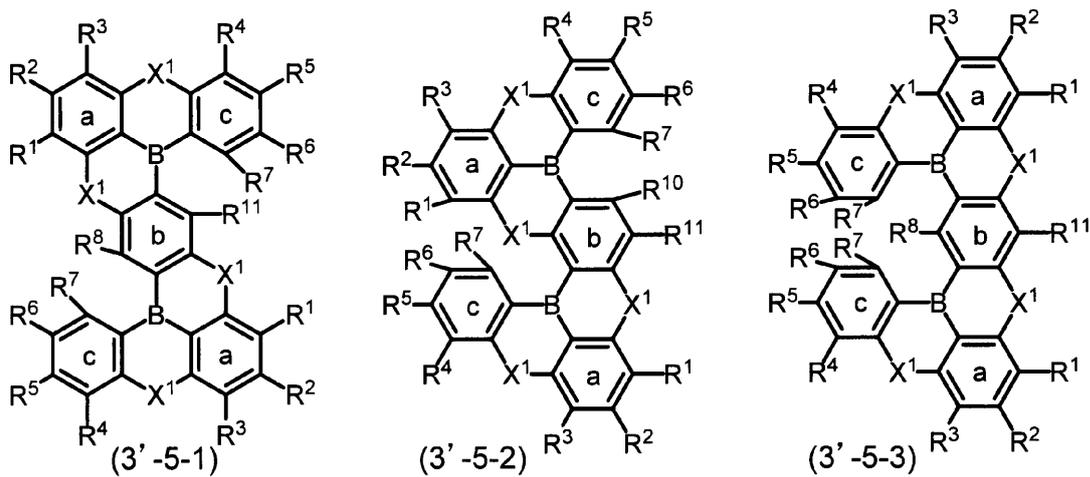
10

20

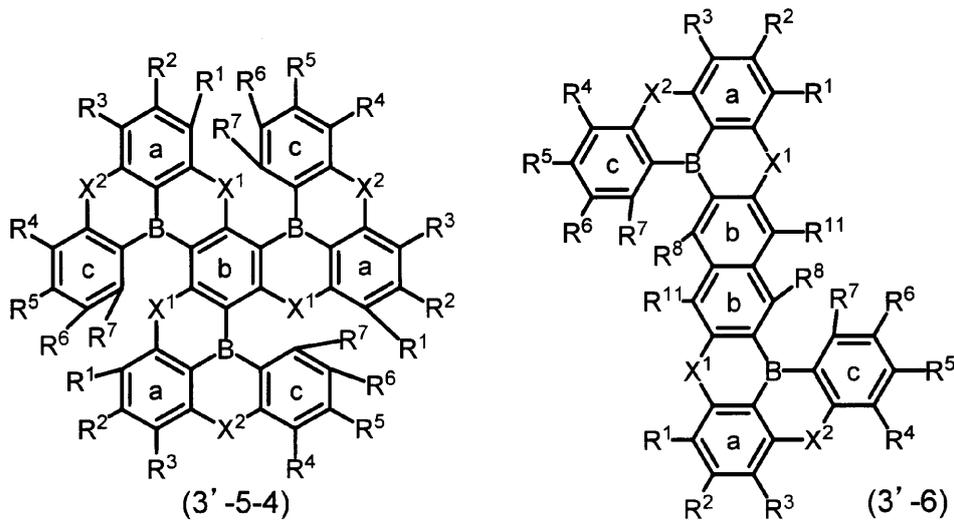
## 【化64】



10



20



30

40

## 【0169】

多量体化合物は、式(3'-4)、式(3'-4-1)または式(3'-4-2)で表現される多量化形態と、式(3'-5-1)~式(3'-5-4)のいずれかまたは式(3'-6)で表現される多量化形態とが組み合わさった多量体であってもよく、式(3'-5-1)~式(3'-5-4)のいずれかで表現される多量化形態と、式(3'-6)で表現される多量化形態とが組み合わさった多量体であってもよく、式(3'-4)、式(3'-4-1)または式(3'-4-2)で表現される多量化形態と式(3'-5-1)~式(3'-5-4)のいずれかで表現される多量化形態と式(3'-6)で表現され

50

る多量化形態とが組み合わさった多量体であってもよい。

【0170】

また、一般式(3)または(3')で表される化合物およびその多量体の化学構造中の水素は、その全てまたは一部がハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよい。例えば、式(3)においては、A環、B環、C環(A~C環はアリール環またはヘテロアリール環)、A~C環への置換基、ならびに、 $X^1$ および $X^2$ である>N-RにおけるR(=アルキル、シクロアルキル、アリール)における水素がハロゲン、シアノまたは重水素で置換されうるが、これらの中でもアリールやヘテロアリールにおける全てまたは一部の水素がハロゲン、シアノまたは重水素で置換された態様があげられる。ハロゲンは、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素であり、好ましくはフッ素、塩素または臭素、より好ましくは塩素である。

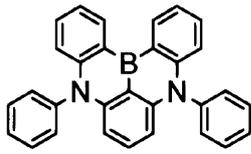
10

【0171】

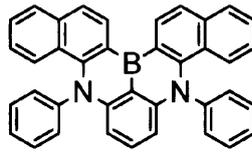
式(3)で表される化合物およびその多量体のさらに具体的な例としては、例えば、下記構造式で表される化合物があげられる。なお、下記構造式中の「Me」はメチル基、「tBu」はターシャリーブチル基、「iPr」はイソプロピル基、「Ph」はフェニル基を示す。

【0172】

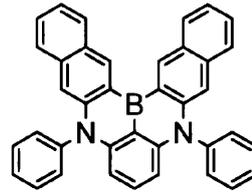
【化 6 5】



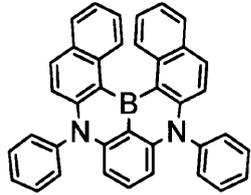
(3-1)



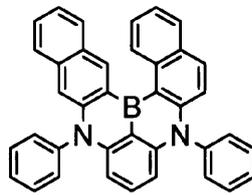
(3-2)



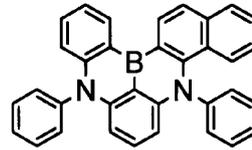
(3-3)



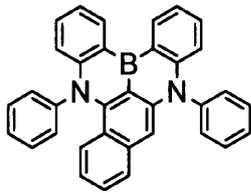
(3-4)



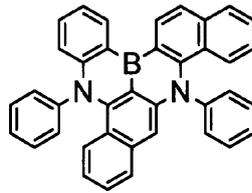
(3-5)



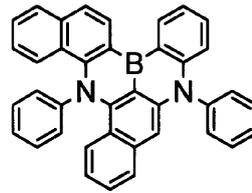
(3-6)



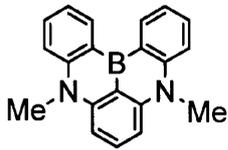
(3-7)



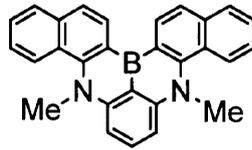
(3-8)



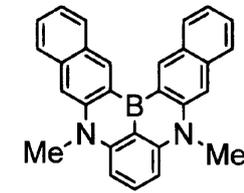
(3-9)



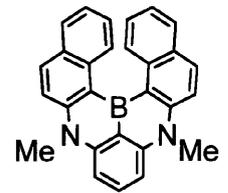
(3-10)



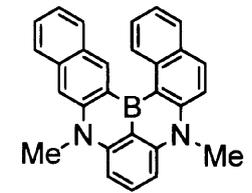
(3-11)



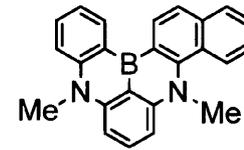
(3-12)



(3-13)



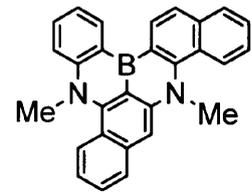
(3-14)



(3-15)



(3-16)



(3-17)



(3-18)

【 0 1 7 3 】

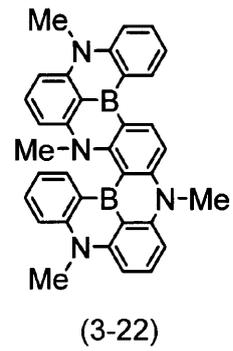
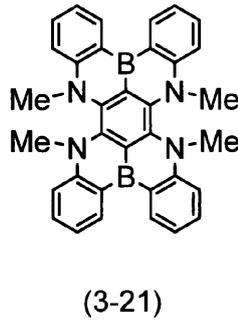
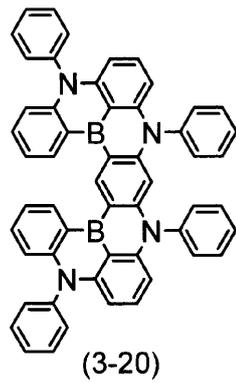
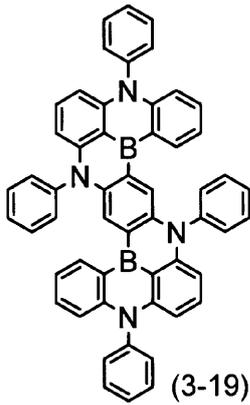
10

20

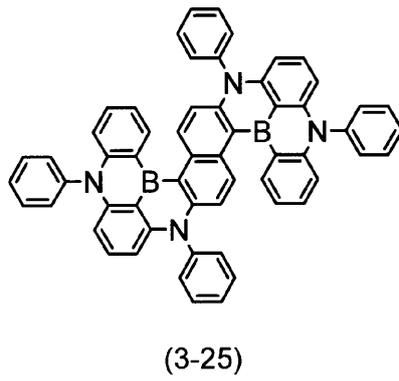
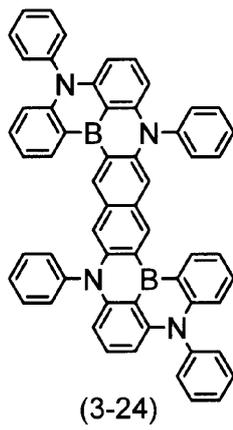
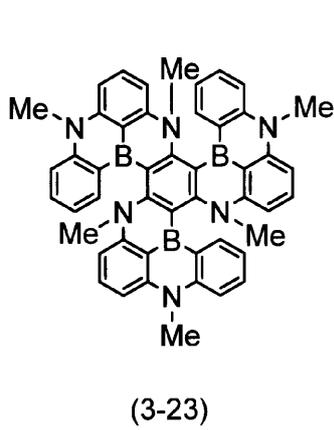
30

40

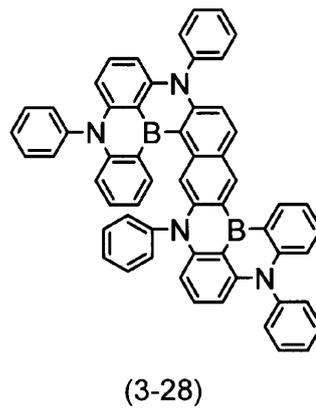
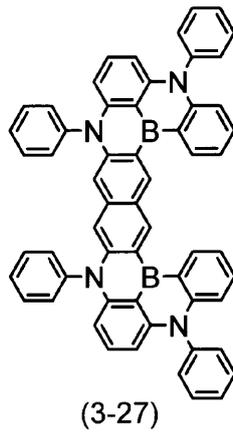
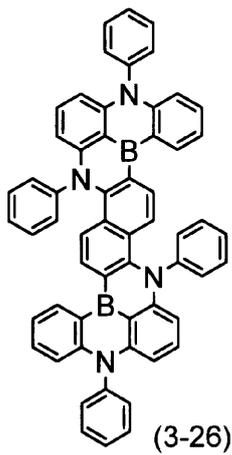
【化 6 6】



10



20

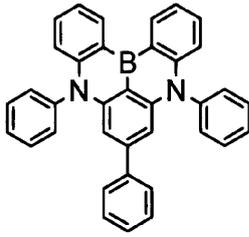


30

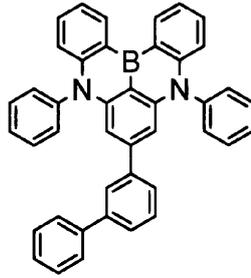
【 0 1 7 4】

40

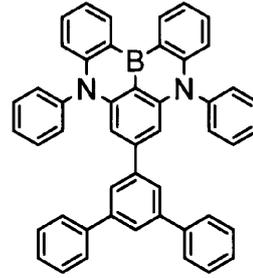
【化 6 7】



(3-30)

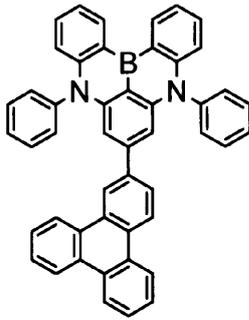


(3-31)

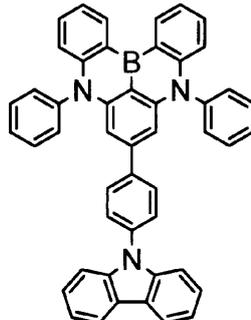


(3-32)

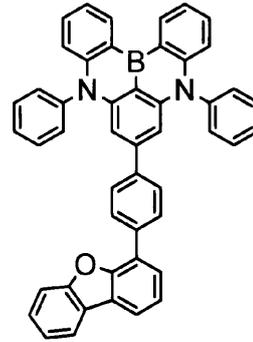
10



(3-33)

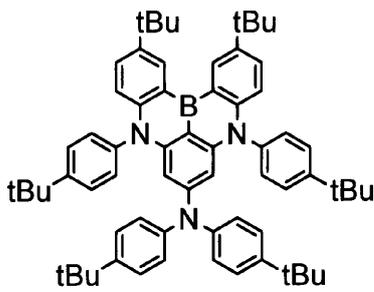


(3-34)

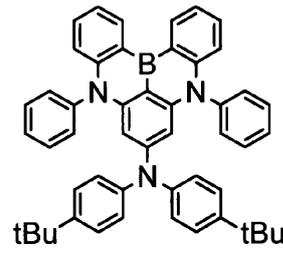


(3-35)

20

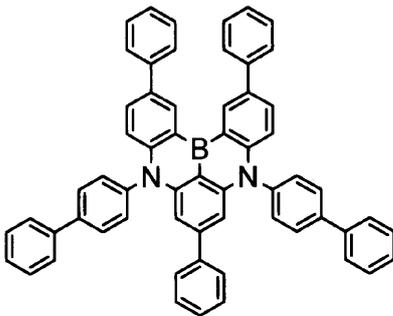


(3-36)

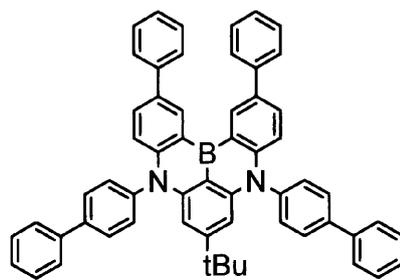


(3-37)

30



(3-38)

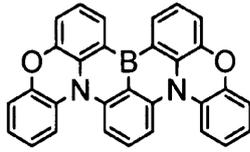


(3-39)

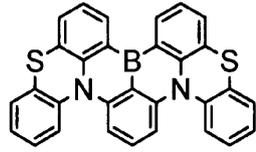
40

【 0 1 7 5 】

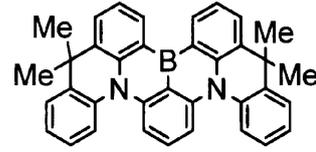
【化 6 8】



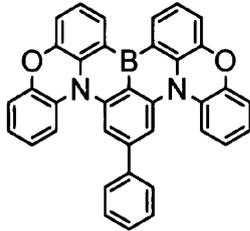
(3-40)



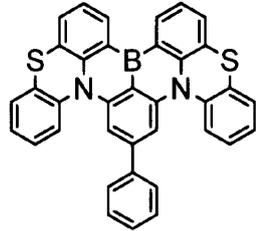
(3-41)



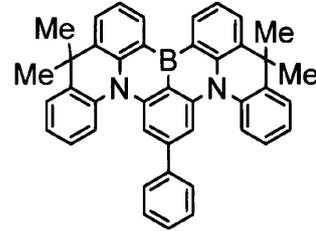
(3-42)



(3-43)

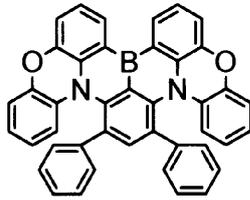


(3-44)

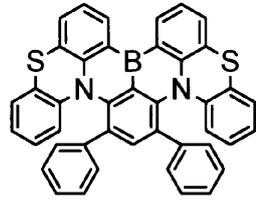


(3-45)

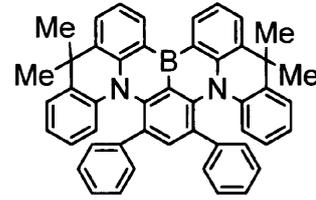
10



(3-46)

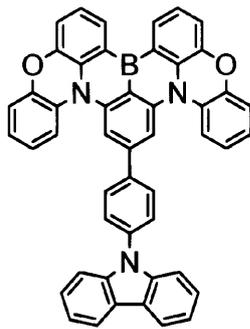


(3-47)

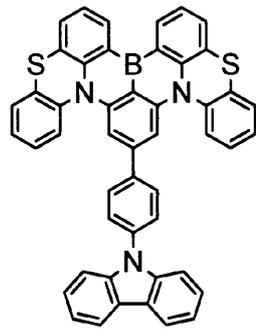


(3-48)

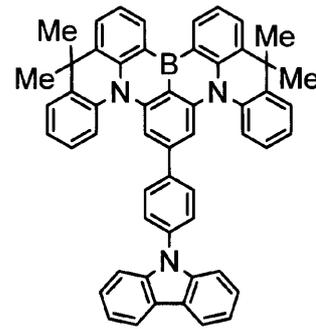
20



(3-49)



(3-50)

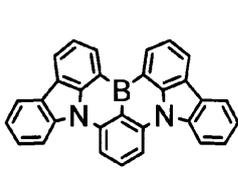


(3-51)

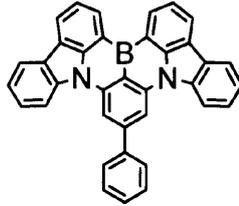
30

【 0 1 7 6 】

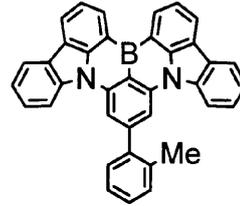
【化 6 9】



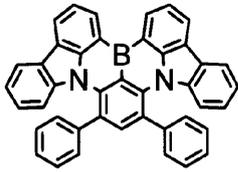
(3-60)



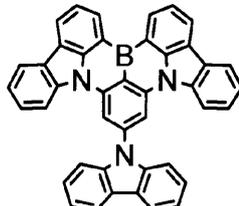
(3-61)



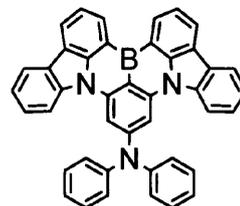
(3-62)



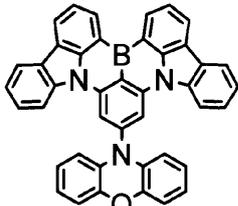
(3-63)



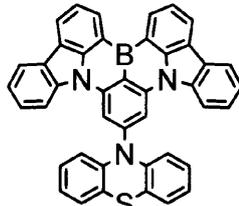
(3-64)



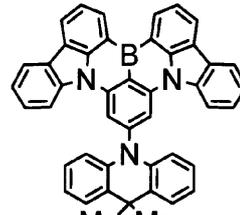
(3-65)



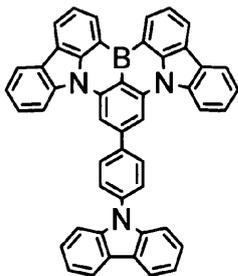
(3-66)



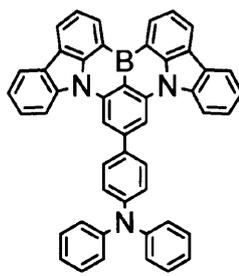
(3-67)



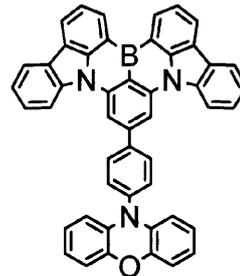
(3-68)



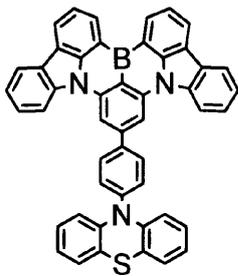
(3-69)



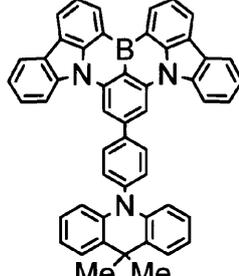
(3-70)



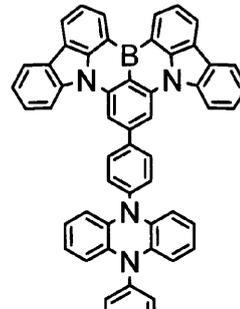
(3-71)



(3-72)



(3-73)



(3-74)

10

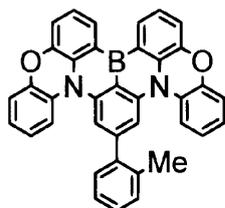
20

30

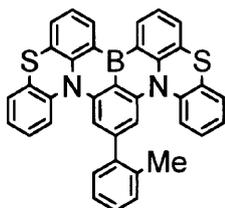
40

【 0 1 7 7 】

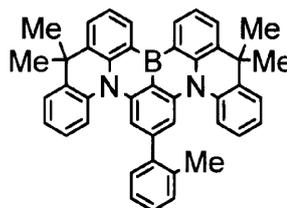
【化 7 0】



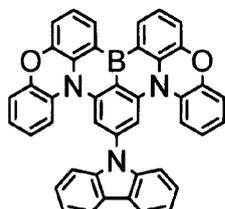
(3-80)



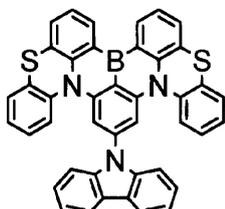
(3-81)



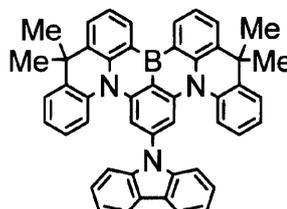
(3-82)



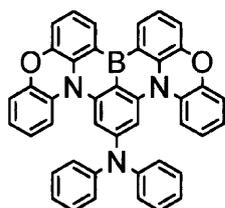
(3-83)



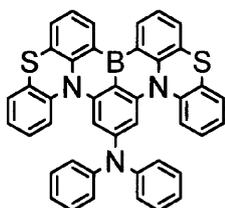
(3-84)



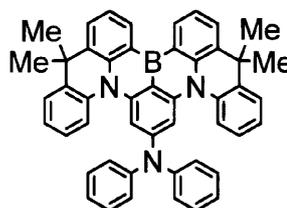
(3-85)



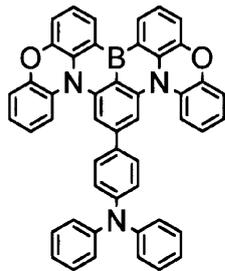
(3-86)



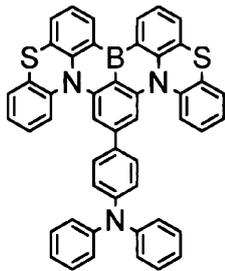
(3-87)



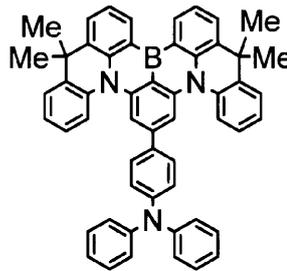
(3-88)



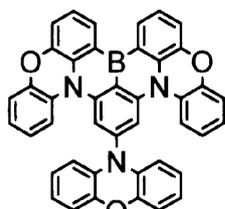
(3-89)



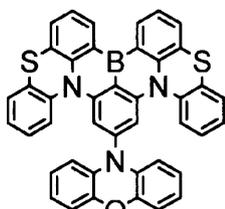
(3-90)



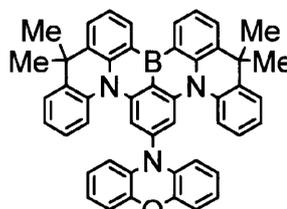
(3-91)



(3-92)



(3-93)



(3-94)

10

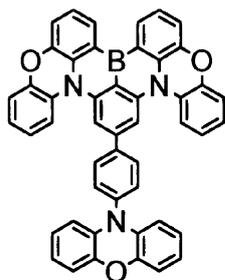
20

30

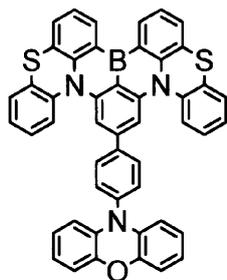
40

【 0 1 7 8】

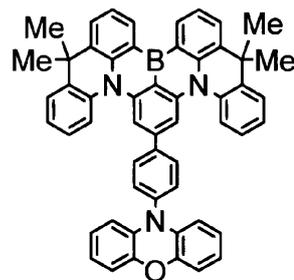
【化 7 1】



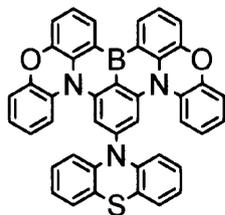
(3-100)



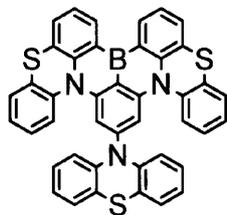
(3-101)



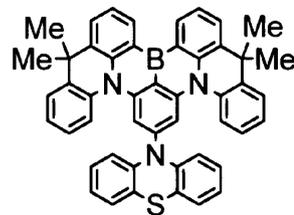
(3-102)



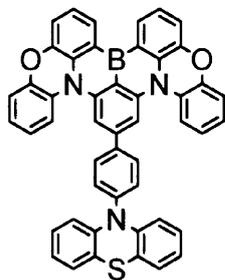
(3-103)



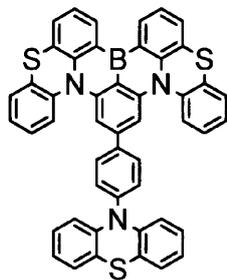
(3-104)



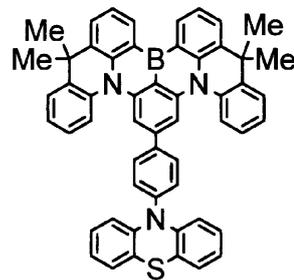
(3-105)



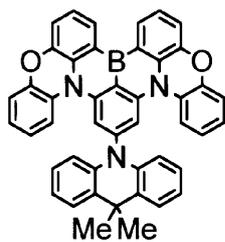
(3-106)



(3-107)



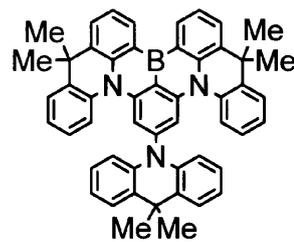
(3-108)



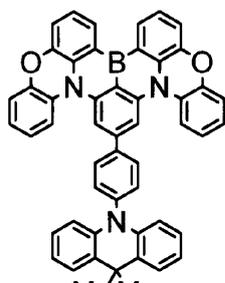
(3-109)



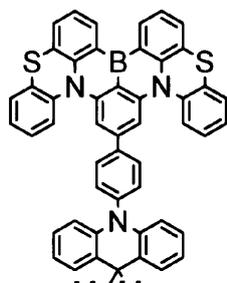
(3-110)



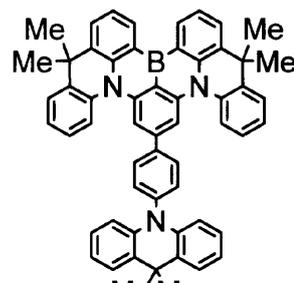
(3-111)



(3-112)



(3-113)



(3-114)

10

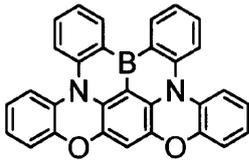
20

30

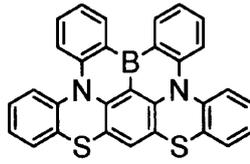
40

【 0 1 7 9 】

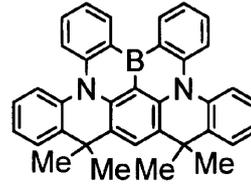
【化 7 2】



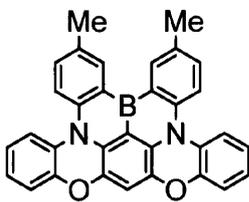
(3-115)



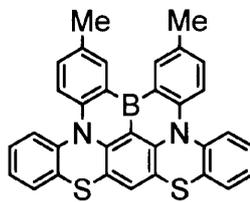
(3-116)



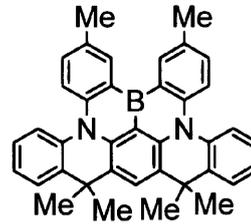
(3-117)



(3-118)

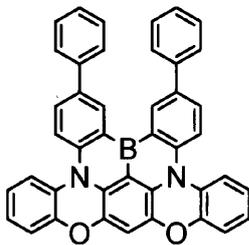


(3-119)

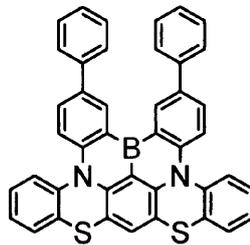


(3-120)

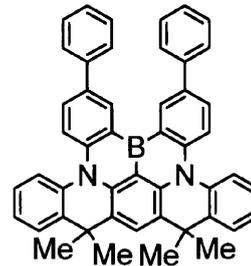
10



(3-121)

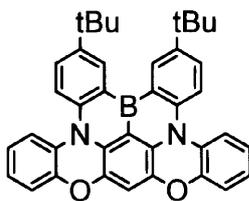


(3-122)

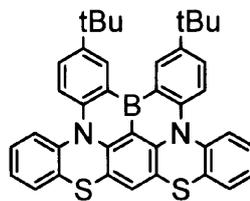


(3-123)

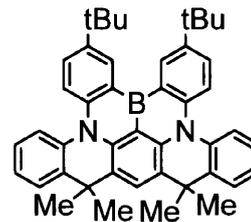
20



(3-124)



(3-125)

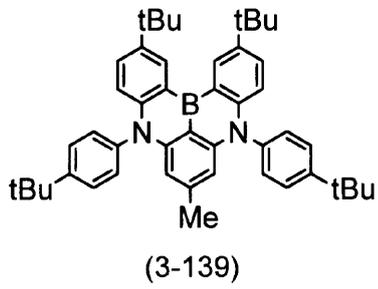
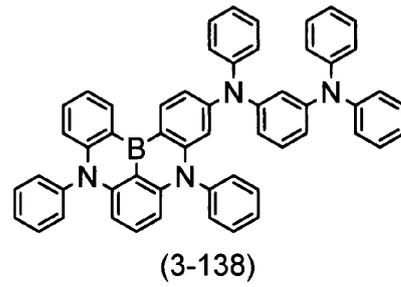
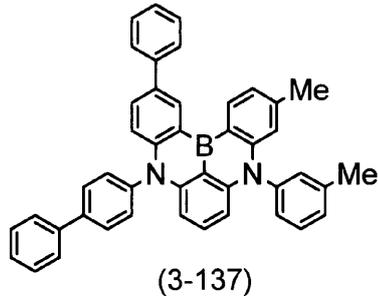
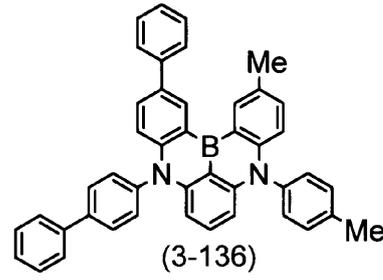
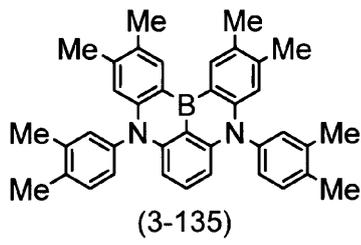
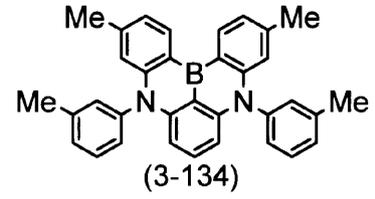
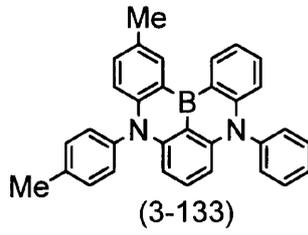
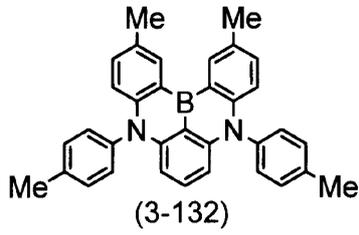
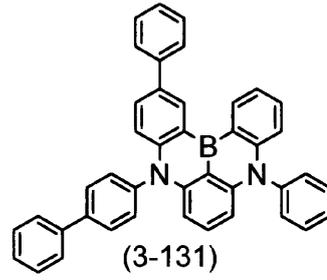
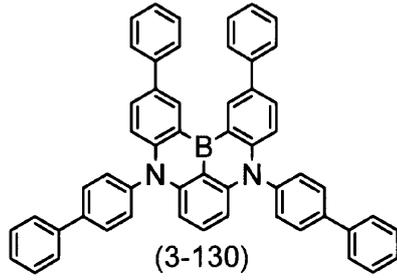


(3-126)

30

【 0 1 8 0 】

【化 7 3】



10

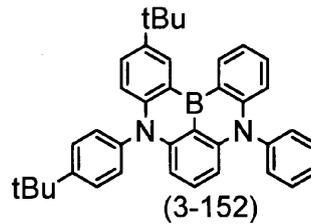
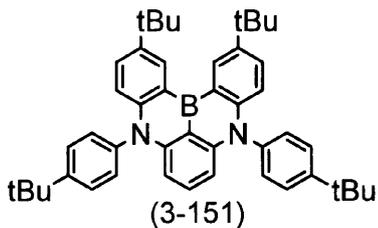
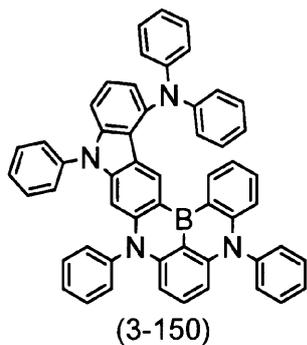
20

30

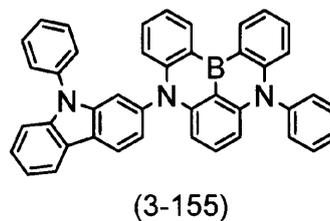
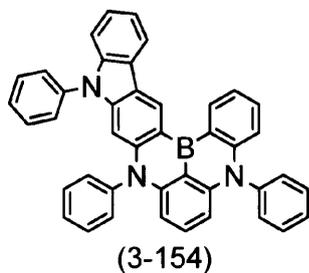
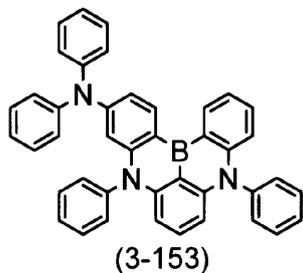
40

【 0 1 8 1 】

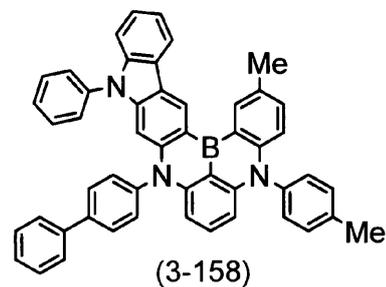
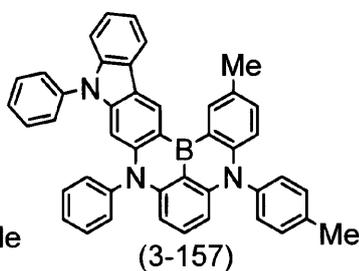
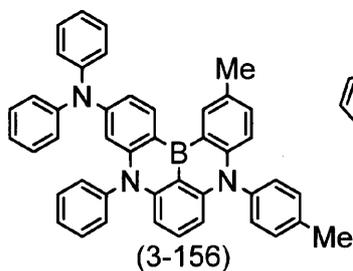
【化 7 4】



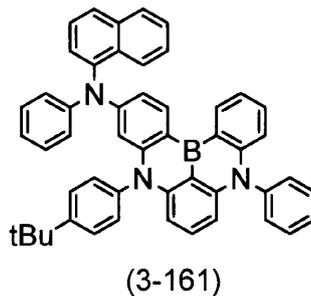
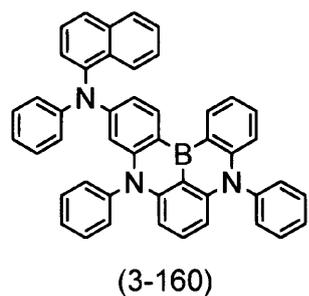
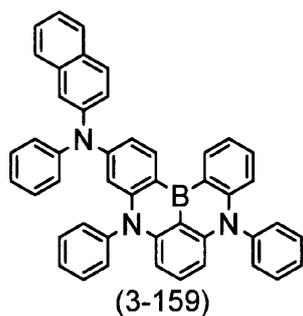
10



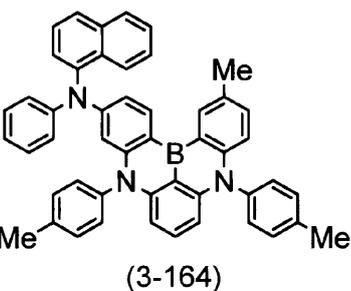
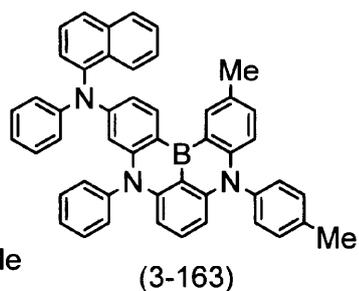
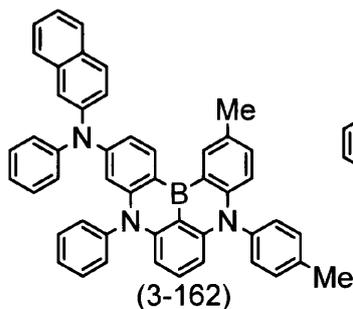
20



30

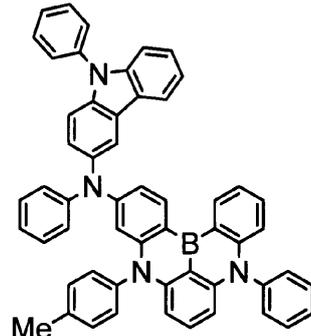
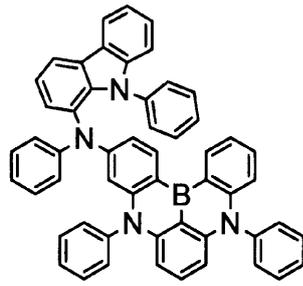
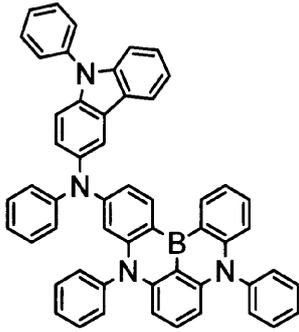


40

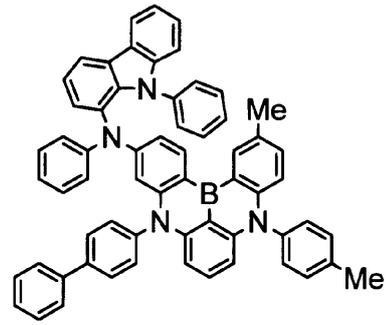
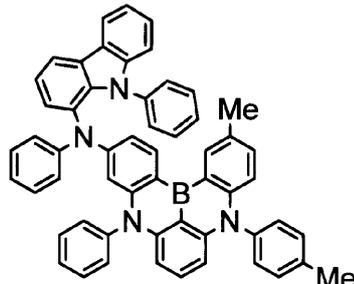
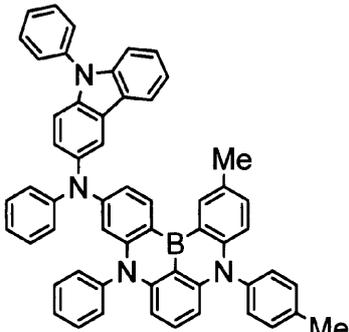


【 0 1 8 2 】

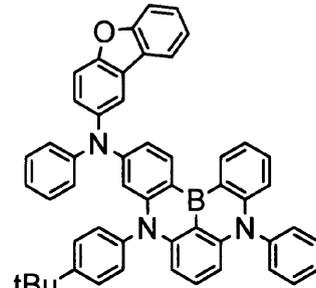
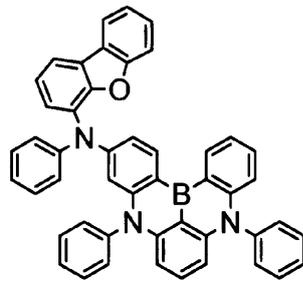
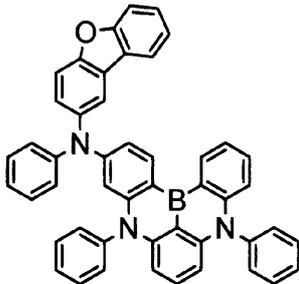
【化 7 5】



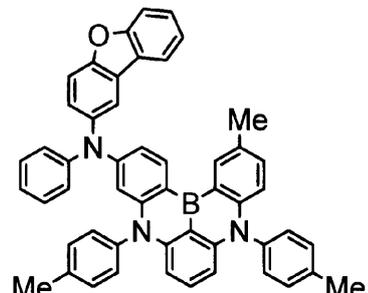
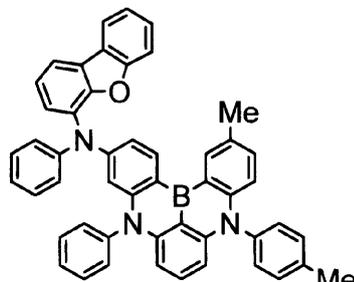
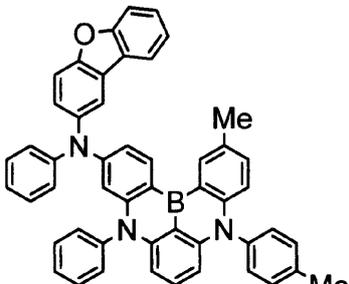
10



20



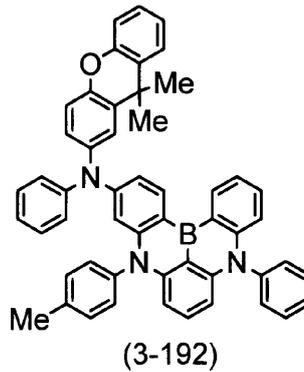
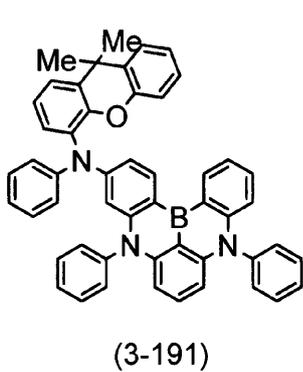
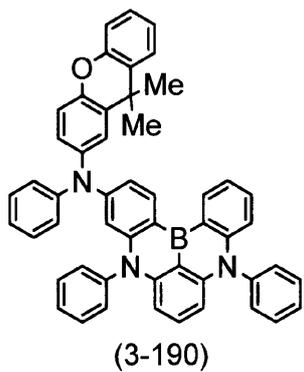
30



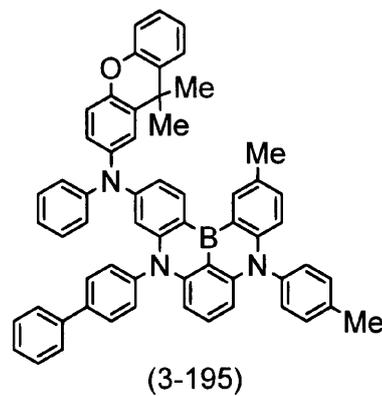
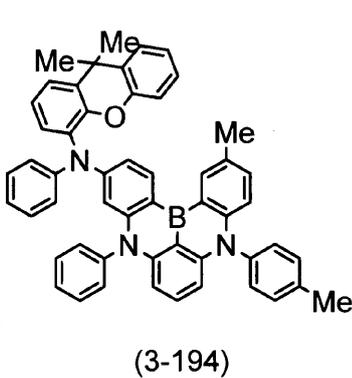
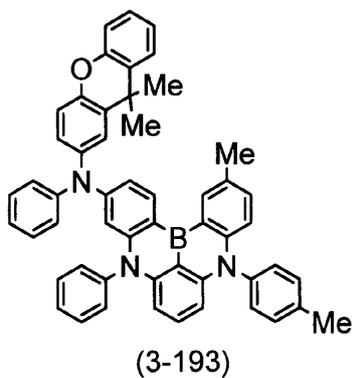
40

【 0 1 8 3 】

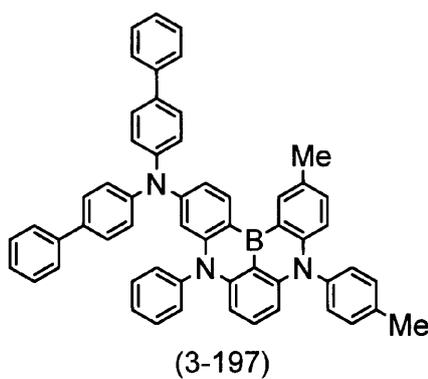
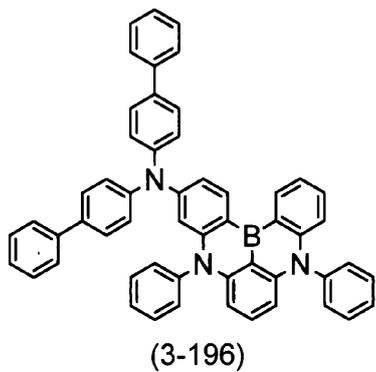
【化 7 6】



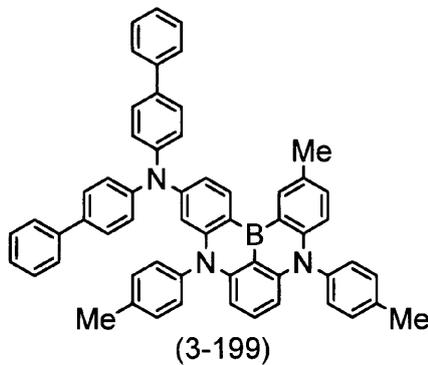
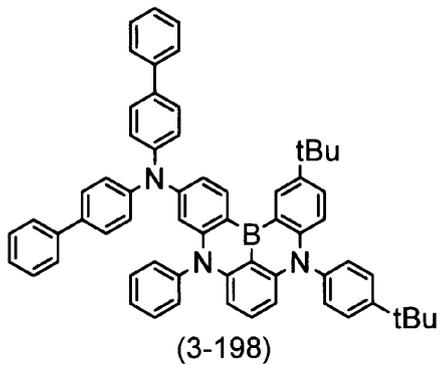
10



20



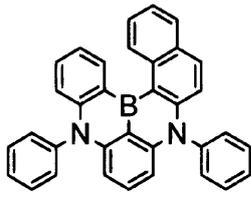
30



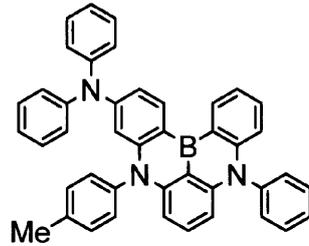
40

【 0 1 8 4】

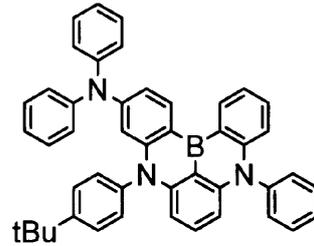
【化 7 7】



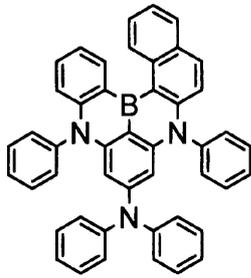
(3-210)



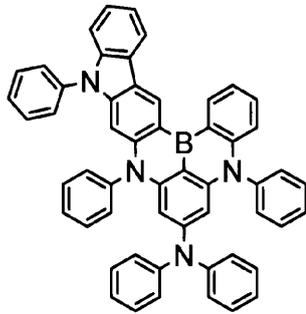
(3-211)



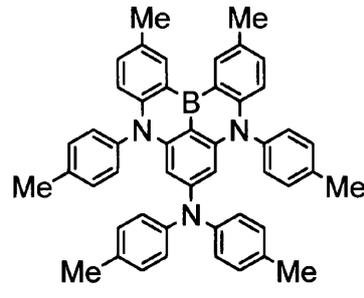
(3-212)



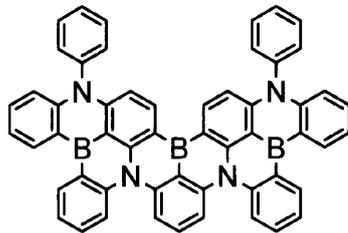
(3-213)



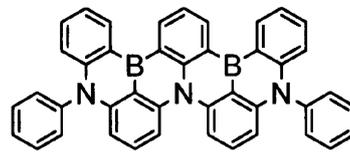
(3-214)



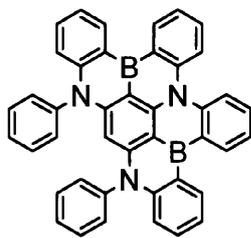
(3-215)



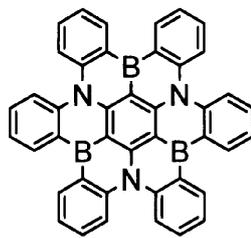
(3-216)



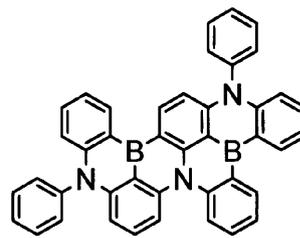
(3-217)



(3-218)



(3-219)



(3-220)

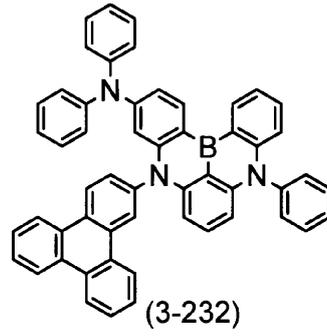
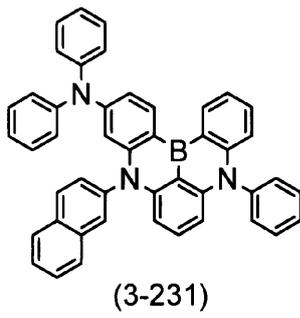
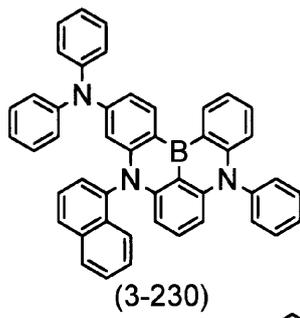
【 0 1 8 5 】

10

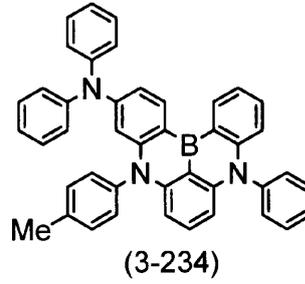
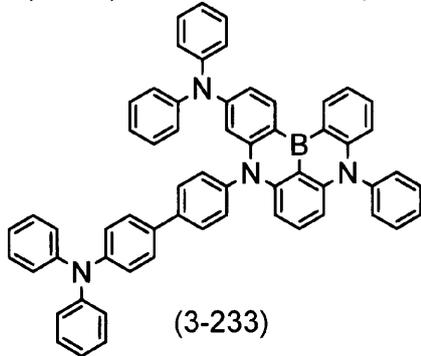
20

30

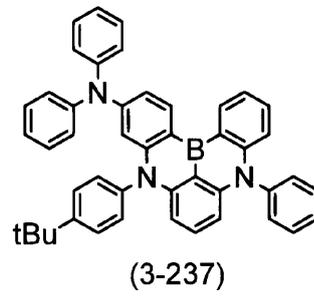
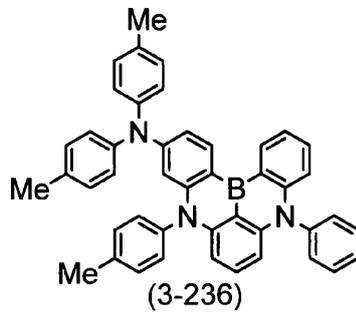
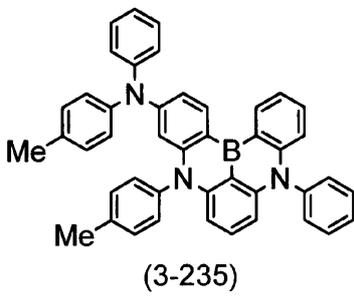
【化 7 8】



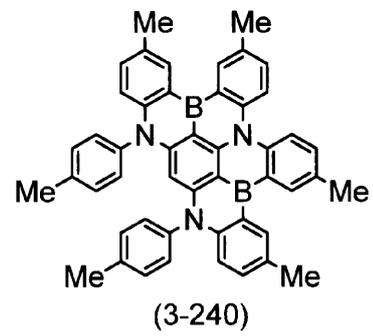
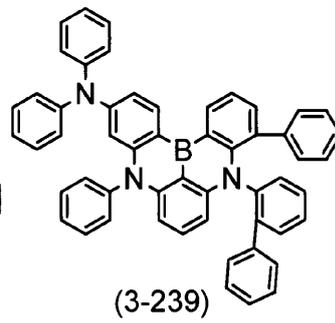
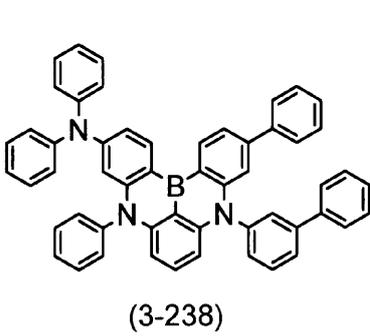
10



20



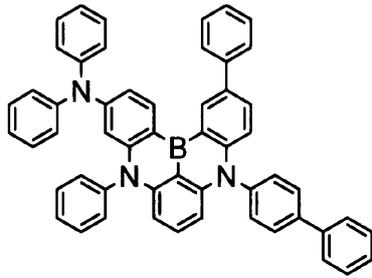
30



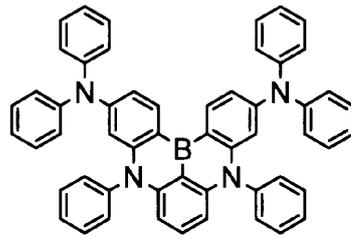
【 0 1 8 6】

40

【化 7 9】

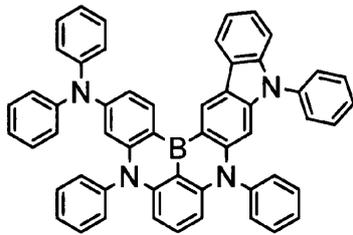


(3-250)

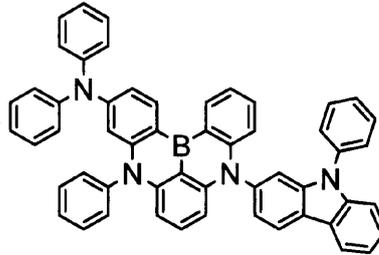


(3-251)

10

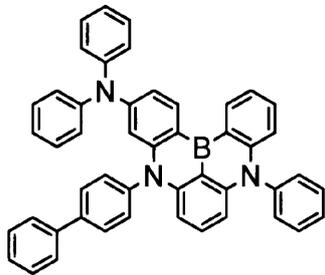


(3-252)

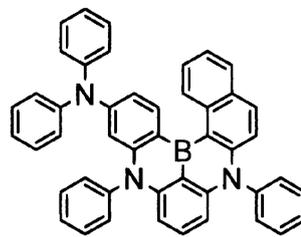


(3-253)

20

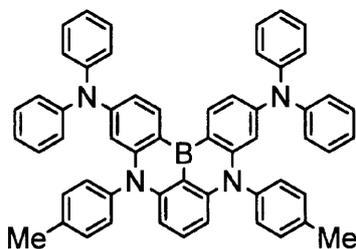


(3-254)

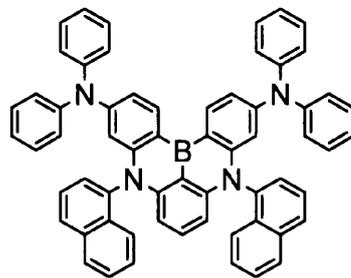


(3-255)

30



(3-256)

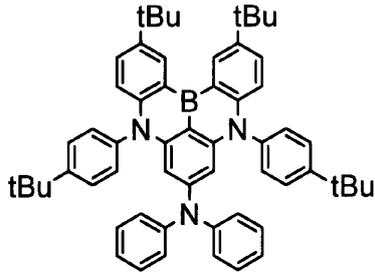


(3-257)

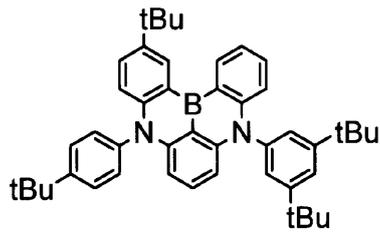
40

【 0 1 8 7 】

【化 8 0】

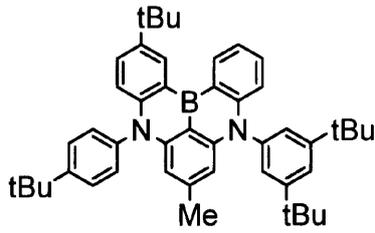


(3-260)

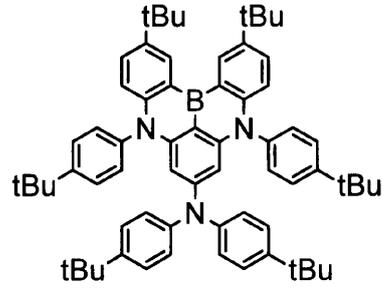


(3-261)

10

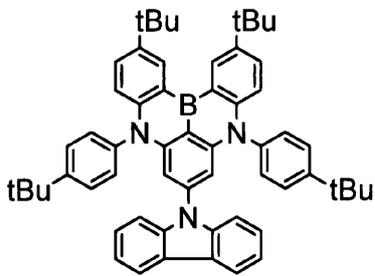


(3-262)

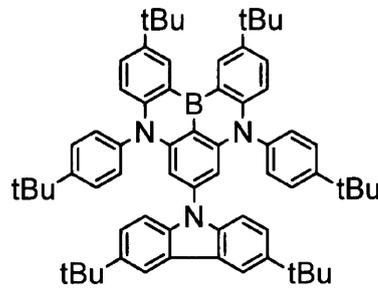


(3-263)

20

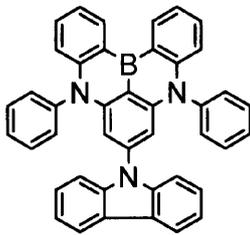


(3-264)

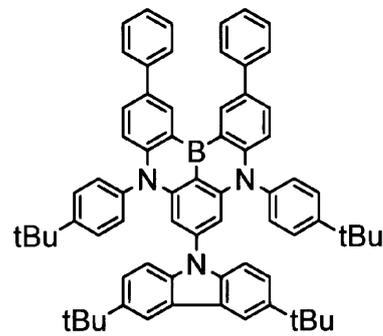


(3-265)

30



(3-266)

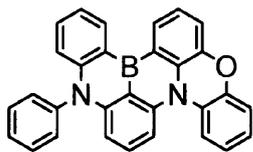


(3-267)

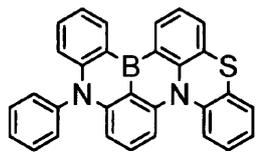
40

【 0 1 8 8 】

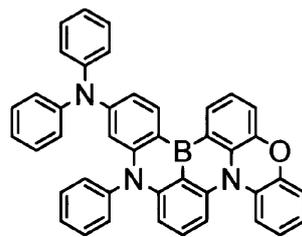
【化 8 1】



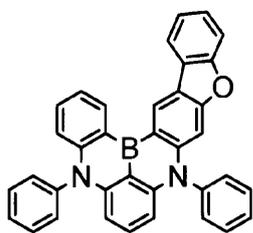
(3-270)



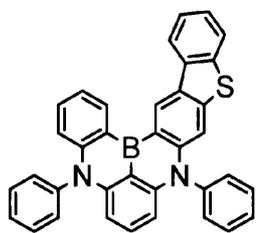
(3-271)



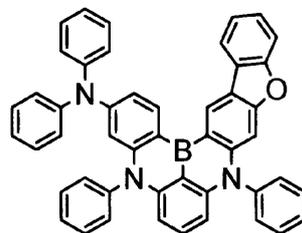
(3-272)



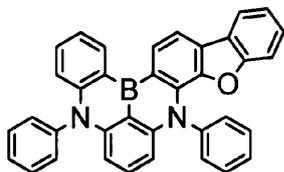
(3-273)



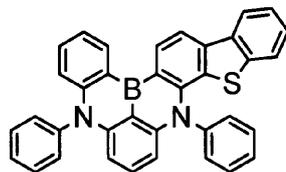
(3-274)



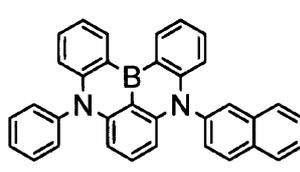
(3-275)



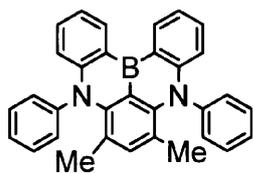
(3-276)



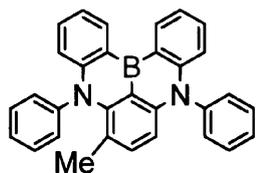
(3-277)



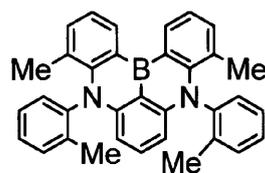
(3-278)



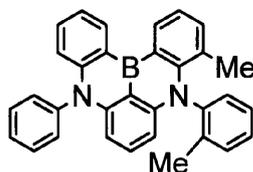
(3-279)



(3-280)



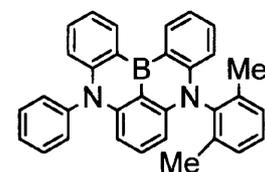
(3-281)



(3-282)



(3-283)



(3-284)

【 0 1 8 9 】

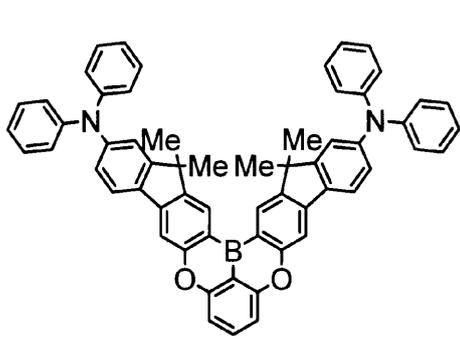
10

20

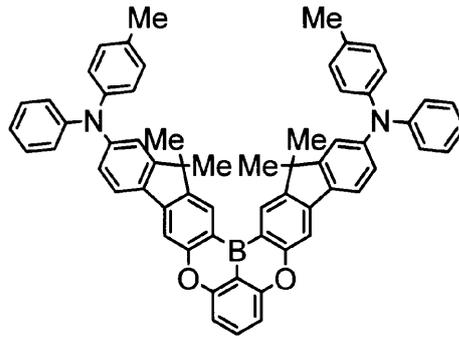
30

40

【化 8 2】

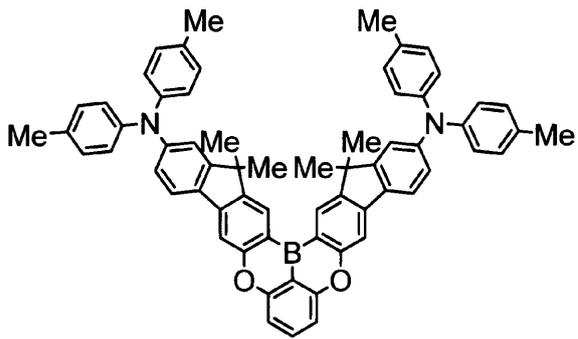


(3-290)

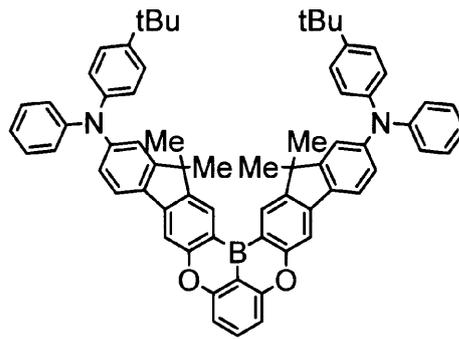


(3-291)

10

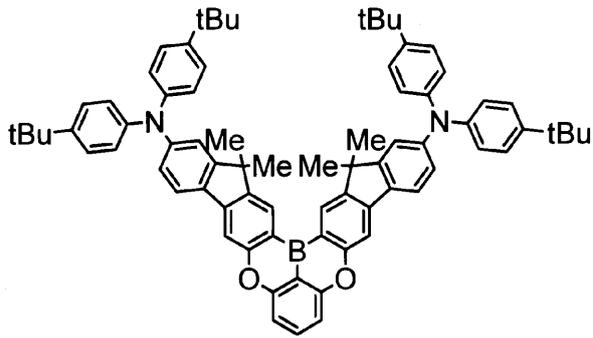


(3-292)

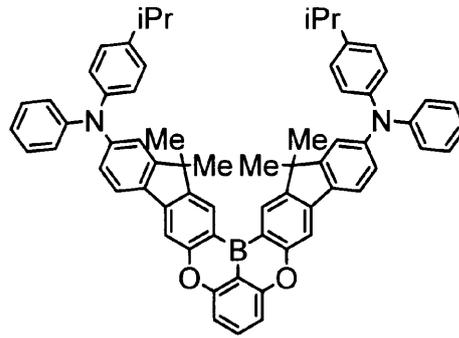


(3-293)

20



(3-294)



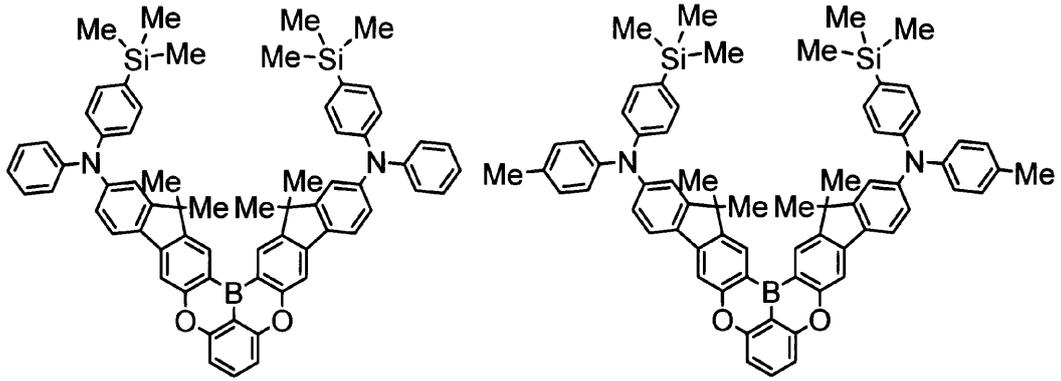
(3-295)

30

40

【 0 1 9 0 】

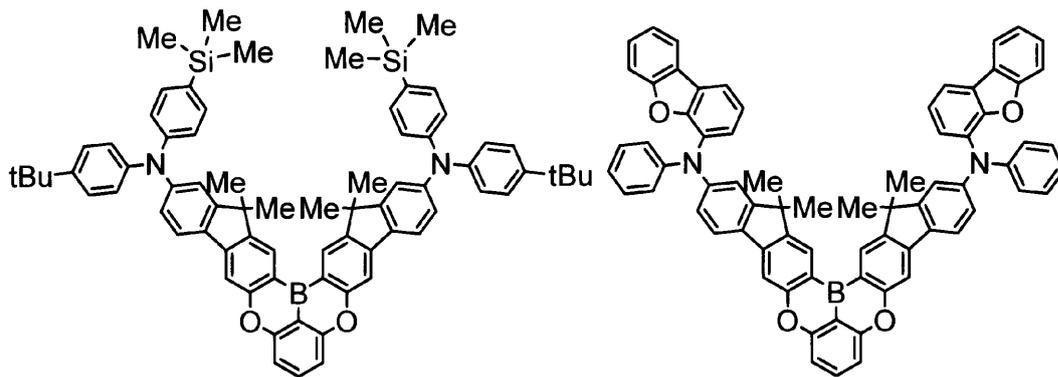
【化 8 3】



(3-300)

(3-301)

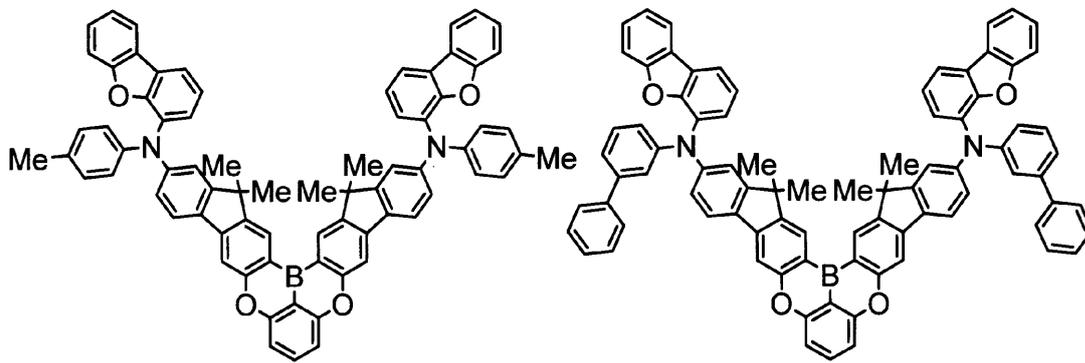
10



(3-302)

(3-303)

20



(3-304)

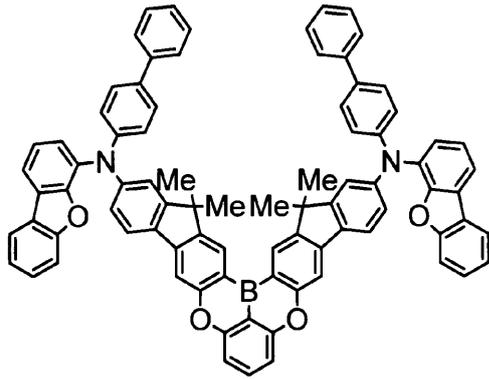
(3-305)

30

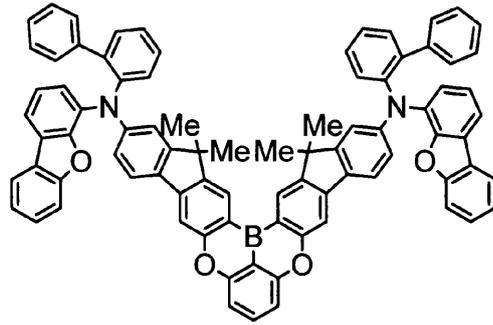
40

【 0 1 9 1 】

【化 8 4】

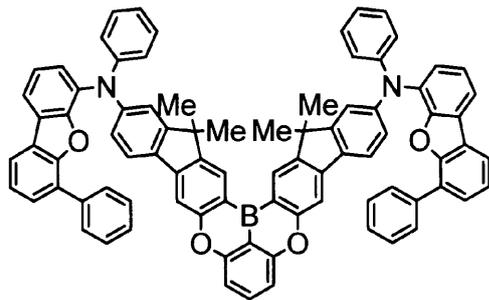


(3-310)

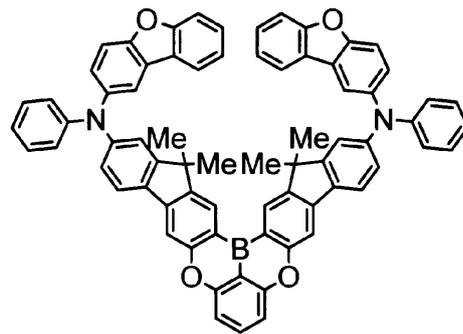


(3-311)

10

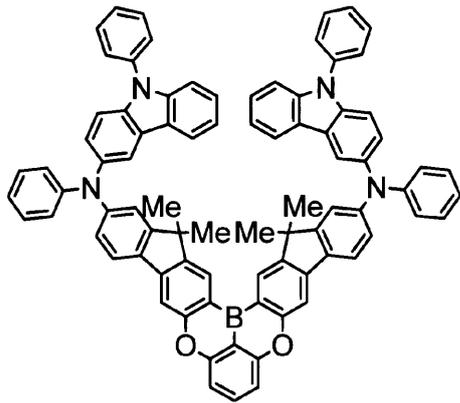


(3-312)

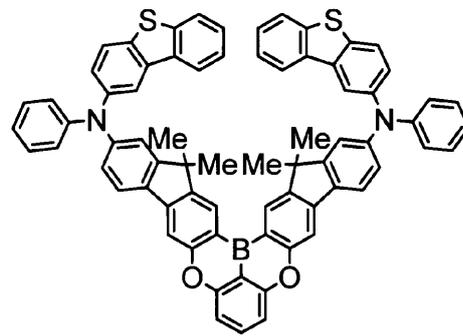


(3-313)

20



(3-314)



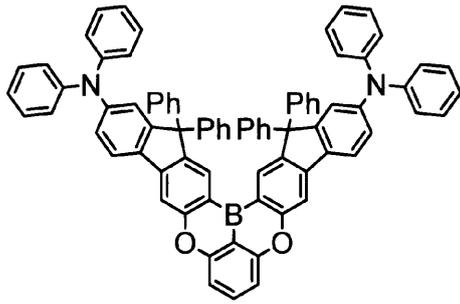
(3-315)

30

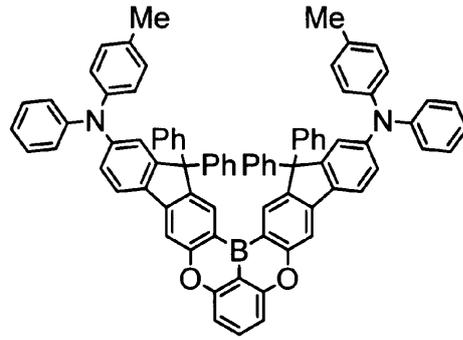
40

【 0 1 9 2 】

【化 8 5】

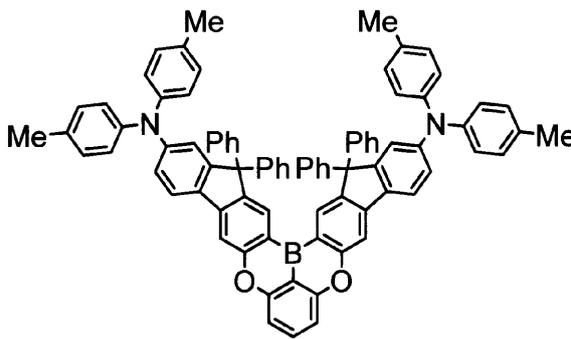


(3-320)

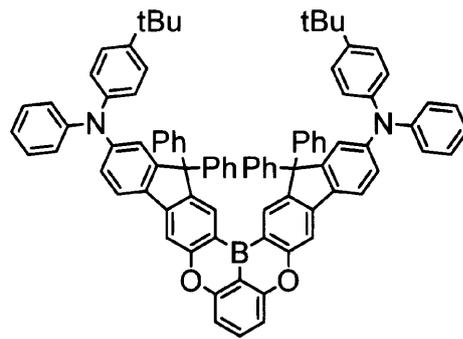


(3-321)

10

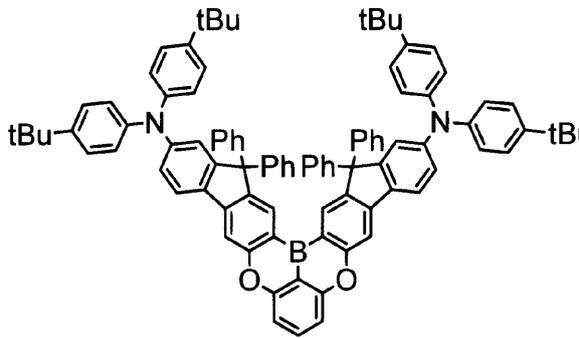


(3-322)

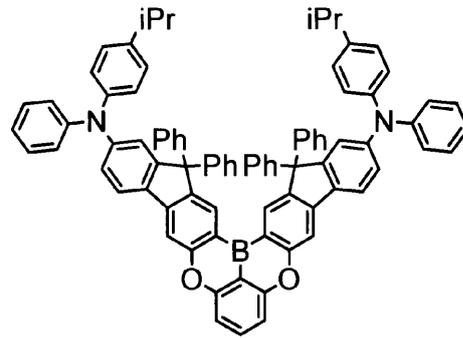


(3-323)

20



(3-324)



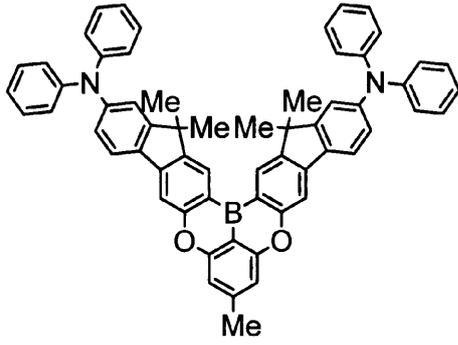
(3-325)

30

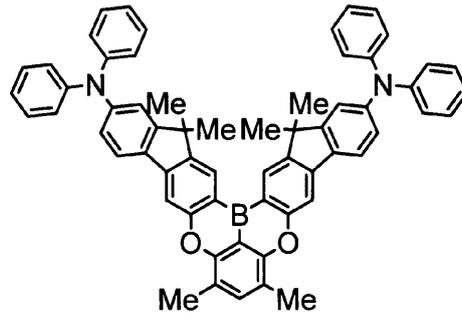
40

【 0 1 9 3 】

【化 8 6】

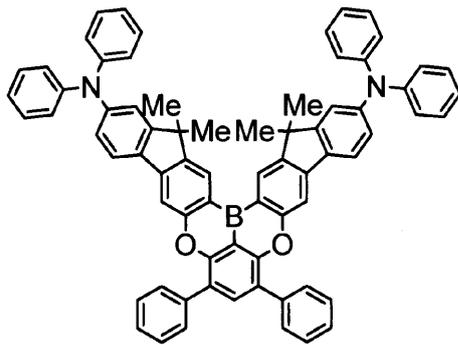


(3-330)

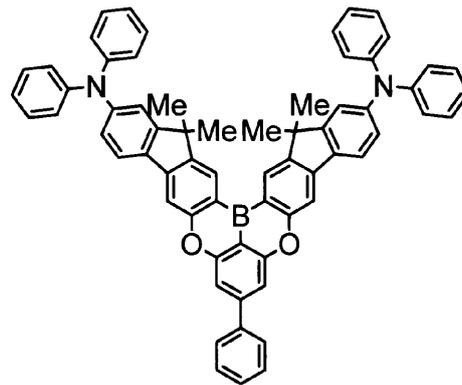


(3-331)

10

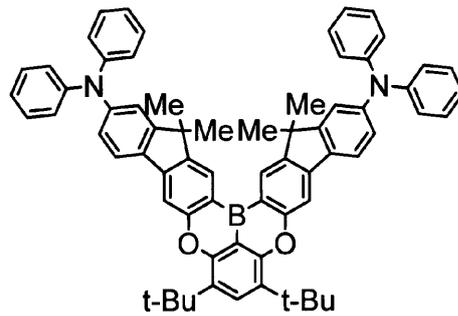


(3-332)

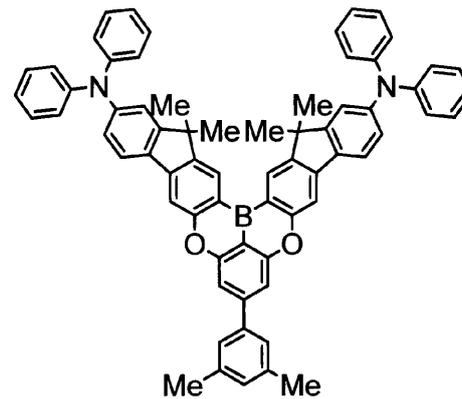


(3-333)

20



(3-334)



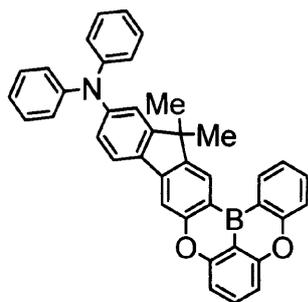
(3-335)

30

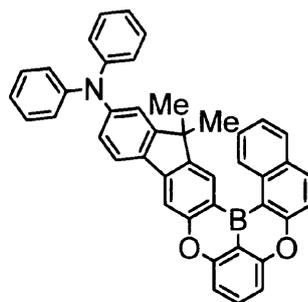
40

【 0 1 9 4 】

【化 8 7】

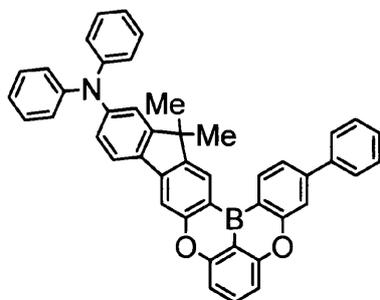


(3-340)

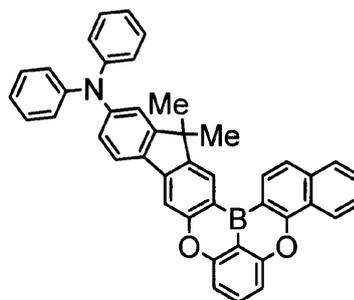


(3-341)

10

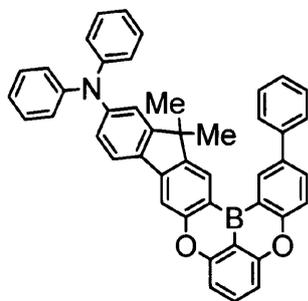


(3-342)

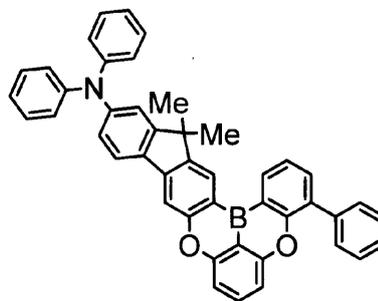


(3-343)

20

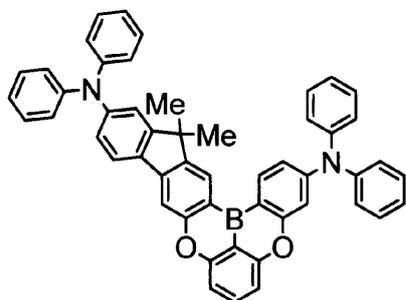


(3-344)

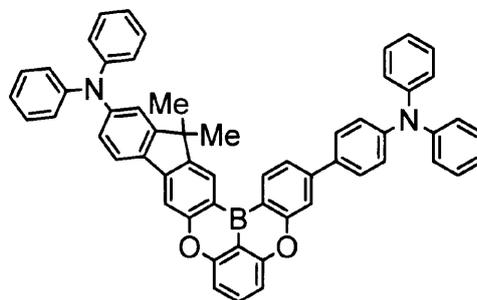


(3-345)

30



(3-346)

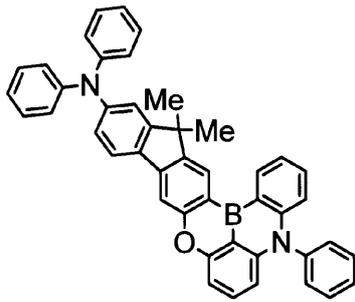


(3-347)

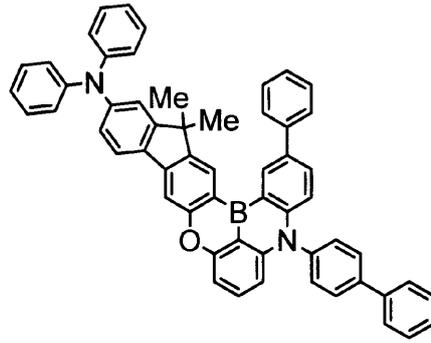
40

【 0 1 9 5 】

【化 8 8】

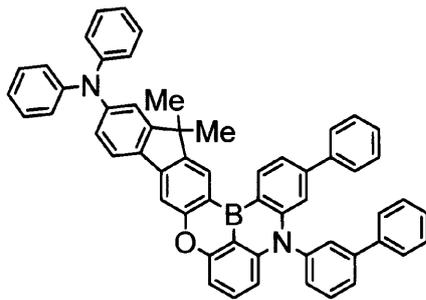


(3-350)

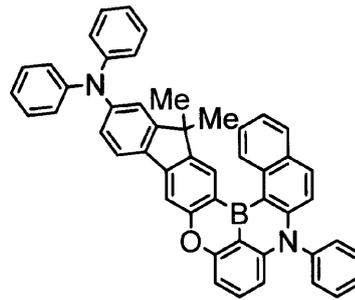


(3-351)

10

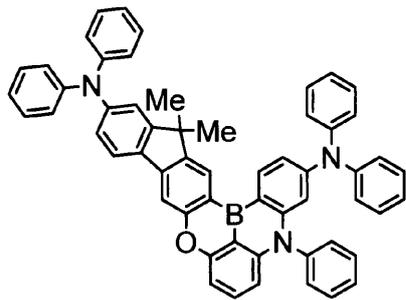


(3-352)

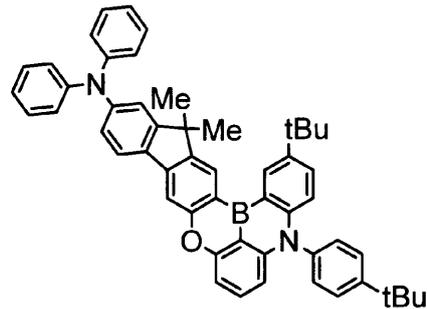


(3-353)

20



(3-354)



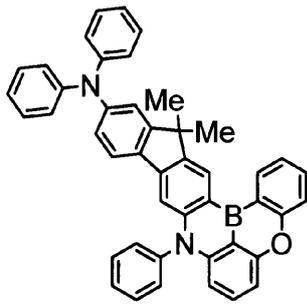
(3-355)

30

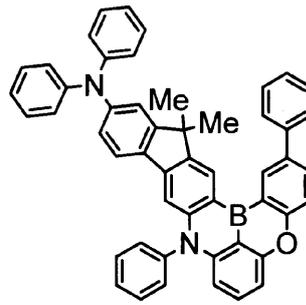
【 0 1 9 6 】

40

【化 8 9】

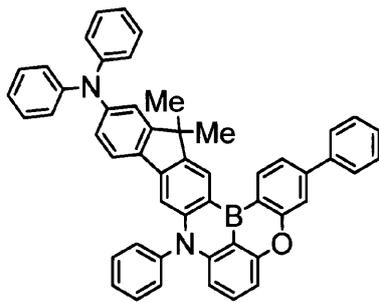


(3-360)

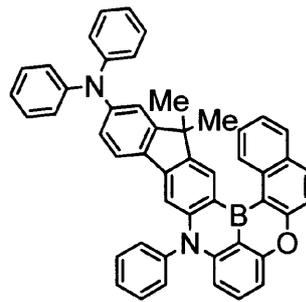


(3-361)

10

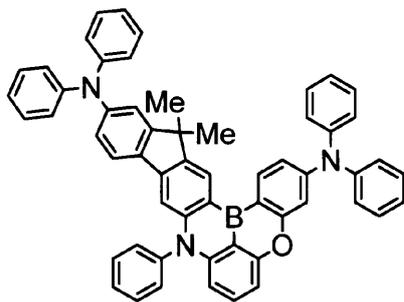


(3-362)

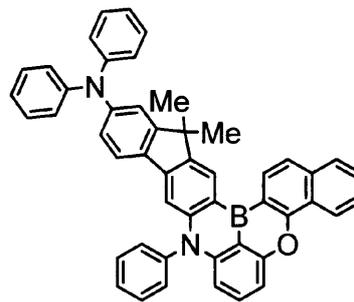


(3-363)

20



(3-364)



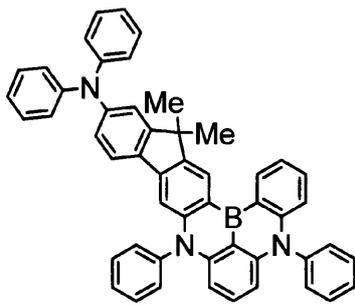
(3-365)

30

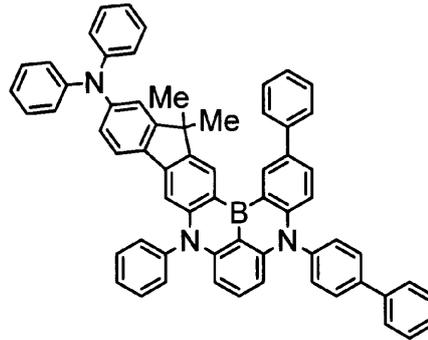
【 0 1 9 7 】

40

【化 9 0】

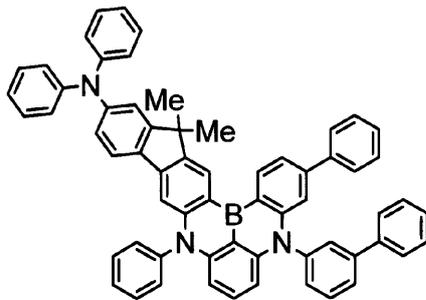


(3-370)

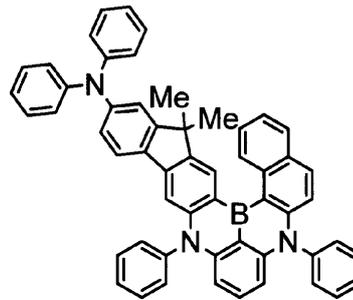


(3-371)

10

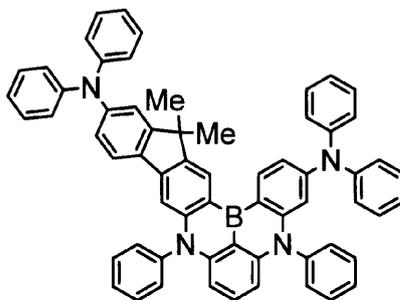


(3-372)

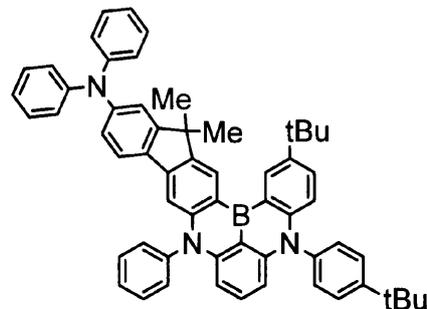


(3-373)

20

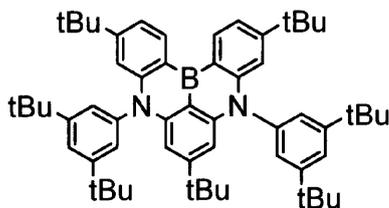


(3-374)

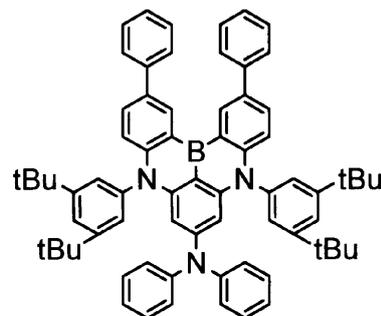


(3-375)

30



(3-376)



(3-377)

40

【 0 1 9 8】

1 - 6 . 式 ( 3 ) で表される化合物およびその多量体の製造方法

一般式 ( 3 ) や ( 3 ' ) で表される化合物およびその多量体は、基本的には、まず A 環 ( a 環 ) と B 環 ( b 環 ) および C 環 ( c 環 ) とを結合基 ( X<sup>1</sup> や X<sup>2</sup> を含む基 ) で結合さ

50

せることで中間体を製造し（第1反応）、その後、A環（a環）、B環（b環）およびC環（c環）を結合基（中心原子「B」（ホウ素）を含む基）で結合させることで最終生成物を製造することができる（第2反応）。第1反応では、アミノ化反応であればブッフバルト-ハートウィッグ反応といった一般的反応が利用できる。また、第2反応では、タンデムヘテロフリーデルクラフツ反応（連続的な芳香族求電子置換反応、以下同様）が利用できる。なお、後述するスキーム（1）～（13）では、 $X^1$ や $X^2$ として $>N-R$ の場合について説明しているが、Oの場合についても同様である。また、スキーム（1）～（13）における構造式中の各符号の定義は式（3）および式（3'）における定義と同じである。

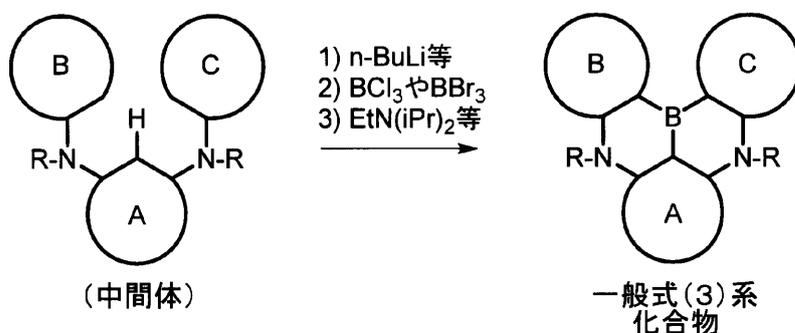
【0199】

第2反応は、下記スキーム（1）や（2）に示すように、A環（a環）、B環（b環）およびC環（c環）を結合する中心原子「B」（ホウ素）を導入する反応であり、まず、 $X^1$ と $X^2$ （ $>N-R$ ）間の水素原子をn-ブチルリチウム、sec-ブチルリチウムまたはt-ブチルリチウム等でオルトメタル化する。次いで、三塩化ホウ素や三臭化ホウ素等を加え、リチウム-ホウ素の金属交換を行った後、N,N-ジイソプロピルエチルアミン等のプレンステッド塩基を加えることで、タンデムボラフリーデルクラフツ反応させ、目的物を得ることができる。第2反応においては反応を促進させるために三塩化アルミニウム等のルイス酸を加えてもよい。

【0200】

【化91】

スキーム(1)



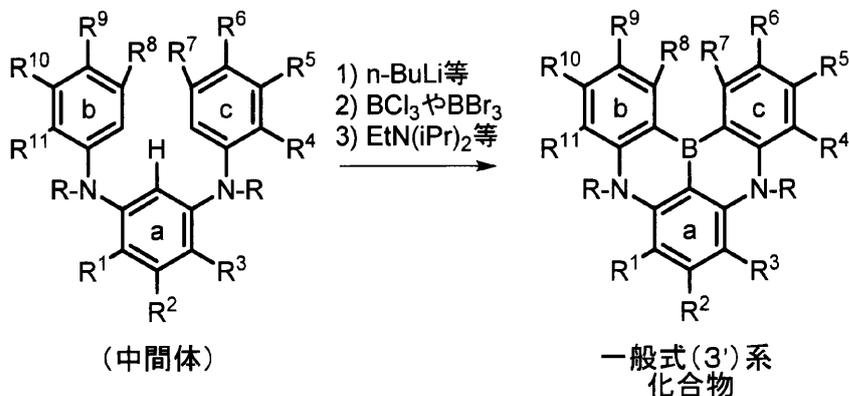
10

20

30

【化92】

スキーム(2)



40

【0201】

なお、上記スキーム（1）や（2）は、一般式（3）や（3'）で表される化合物の製造方法を主に示しているが、その多量体については、複数のA環（a環）、B環（b環）およびC環（c環）を有する中間体を用いることで製造することができる。詳細には下記

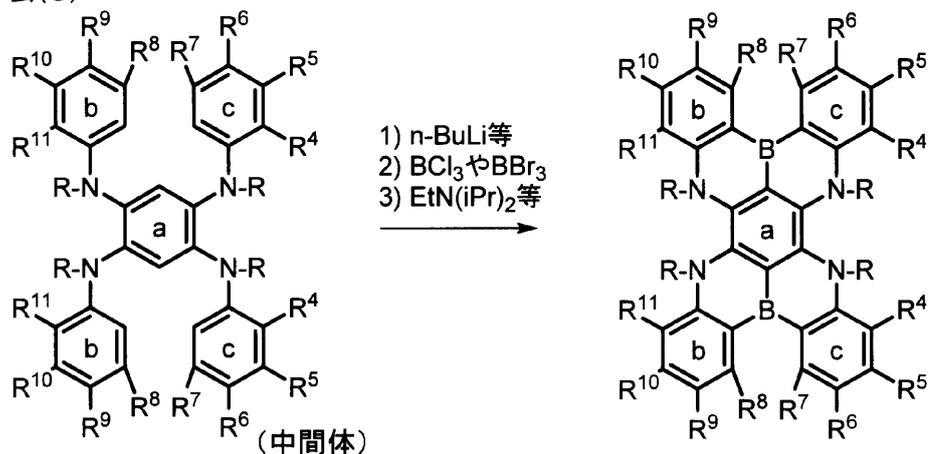
50

スキーム(3)~(5)で説明する。この場合、使用するブチルリチウム等の試薬の量を2倍量、3倍量とすることで目的物を得ることができる。

【0202】

【化93】

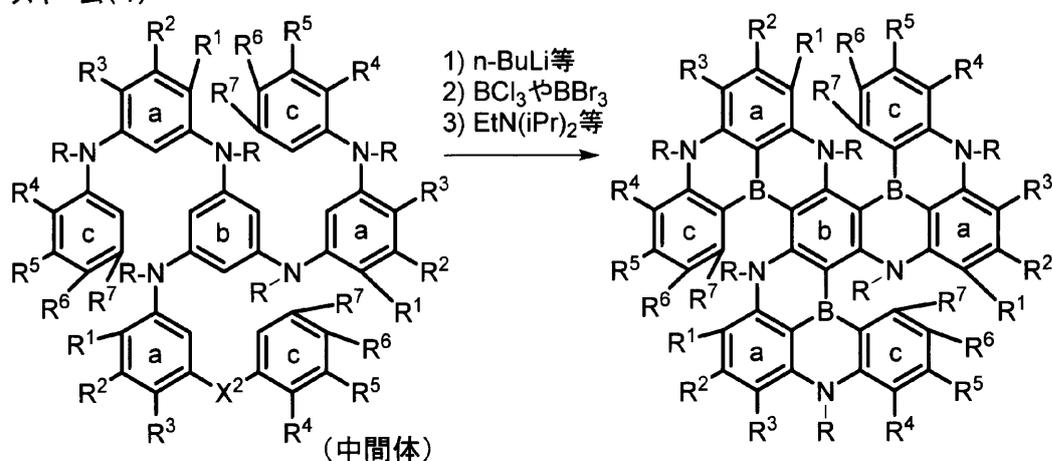
スキーム(3)



10

【化94】

スキーム(4)

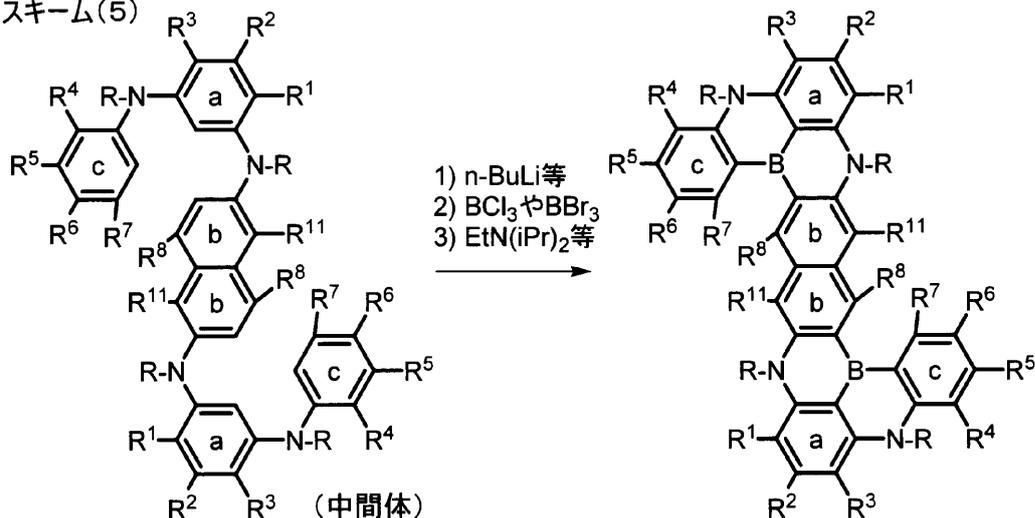


20

30

【化95】

スキーム(5)



40

【0203】

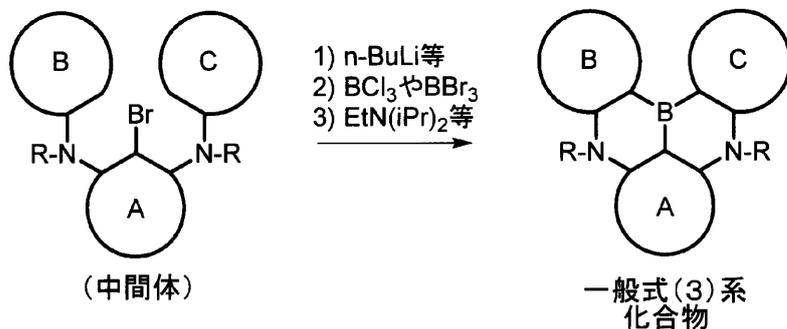
50

上記スキームにおいては、オルトメタル化により所望の位置へリチウムを導入したが、下記スキーム(6)および(7)のようにリチウムを導入したい位置に臭素原子等を導入し、ハロゲン-メタル交換によっても所望の位置へリチウムを導入することができる。

【0204】

【化96】

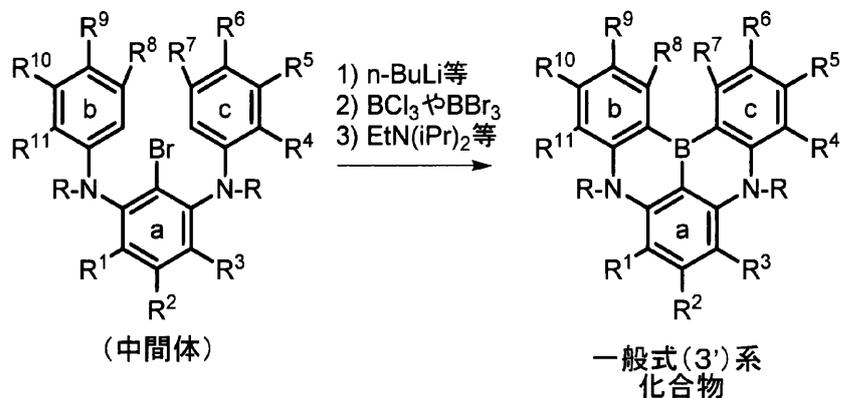
スキーム(6)



10

【化97】

スキーム(7)



20

30

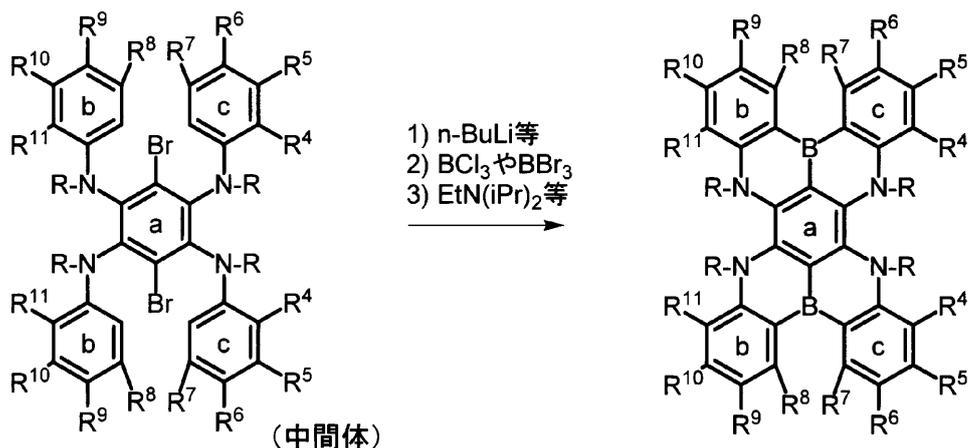
【0205】

また、スキーム(3)で説明した多量体の製造方法についても、上記スキーム(6)および(7)のようにリチウムを導入したい位置に臭素原子や塩素原子等のハロゲンを導入し、ハロゲン-メタル交換によっても所望の位置へリチウムを導入することができる(下記スキーム(8)、(9)および(10))。

【0206】

## 【化98】

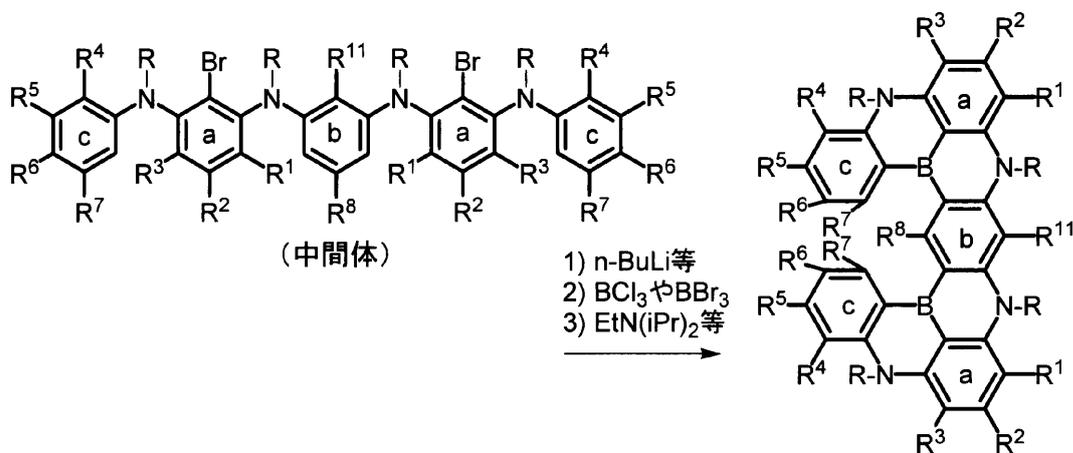
## スキーム(8)



10

## 【化99】

## スキーム(9)

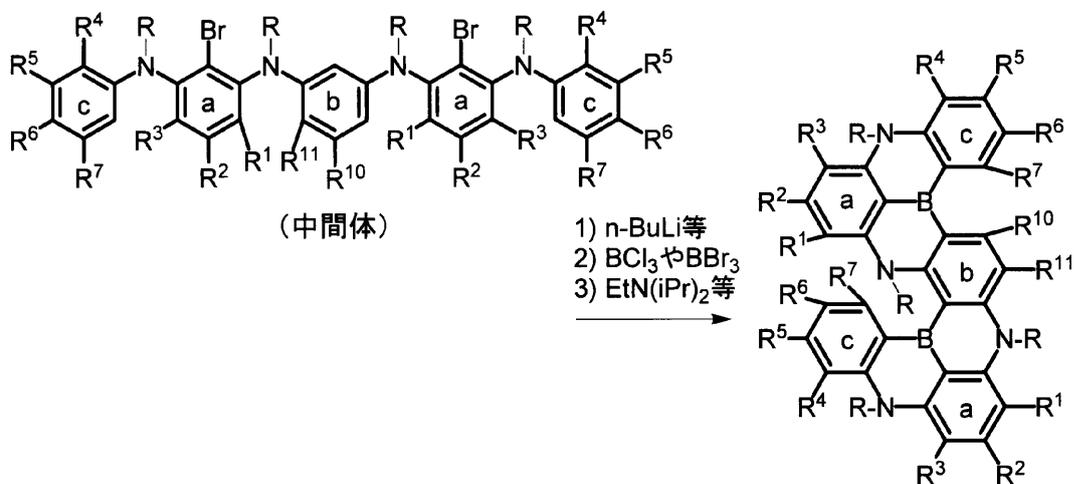


20

30

## 【化100】

## スキーム(10)



40

## 【0207】

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

50

## 【0208】

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

## 【0209】

上述の合成法を適宜選択し、使用する原料も適宜選択することで、所望の位置に置換基を有する化合物およびその多量体を合成することができる。

## 【0210】

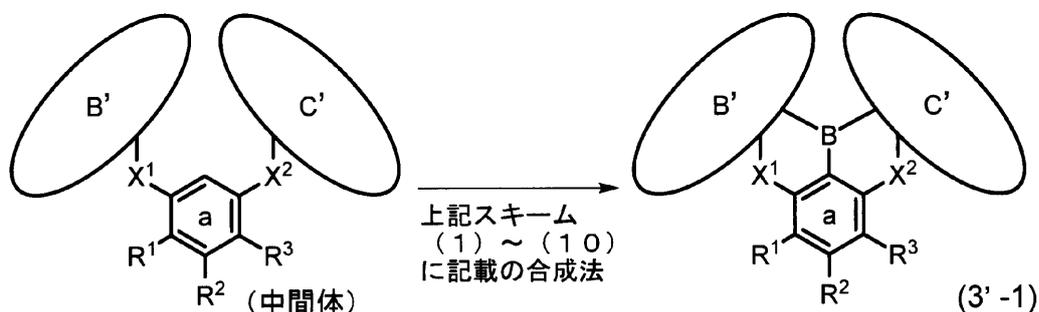
また、一般式(3')では、*a*環、*b*環および*c*環の置換基 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して*a*環、*b*環または*c*環と共にアリール環またはヘテロアリール環を形成していてもよく、形成された環における少なくとも1つの水素はアリールまたはヘテロアリールで置換されていてもよい。したがって、一般式(3')で表される化合物は、*a*環、*b*環および*c*環における置換基の相互の結合形態によって、下記スキーム(11)および(12)の式(3'-1)および式(3'-2)に示すように、化合物を構成する環構造が変化する。これらの化合物は下記スキーム(11)および(12)に示す中間体に上記スキーム(1)~(10)で示した合成法を適用することで合成することができる。

10

## 【0211】

## 【化101】

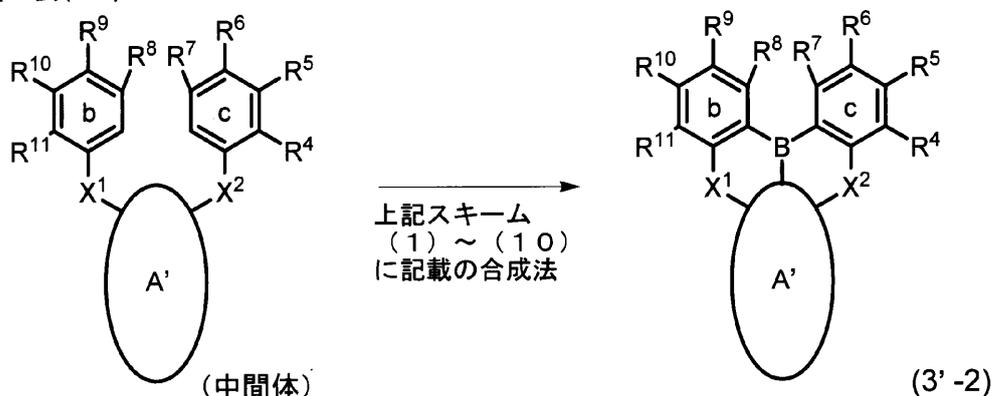
スキーム(11)



20

## 【化102】

スキーム(12)



30

40

## 【0212】

上記式(3'-1)および式(3'-2)中のA'環、B'環およびC'環は、置換基 $R^1 \sim R^{11}$ のうちの隣接する基同士が結合して、それぞれ*a*環、*b*環および*c*環と共に形成したアリール環またはヘテロアリール環を示す(*a*環、*b*環または*c*環に他の環構造が縮合してできた縮合環ともいえる)。なお、式では示してはいないが、*a*環、*b*環および*c*環の全てがA'環、B'環およびC'環に変化した化合物もある。

## 【0213】

また、一般式(3')における「>N-R」のRは-O-、-S-、-C(-R)<sub>2</sub>-ま

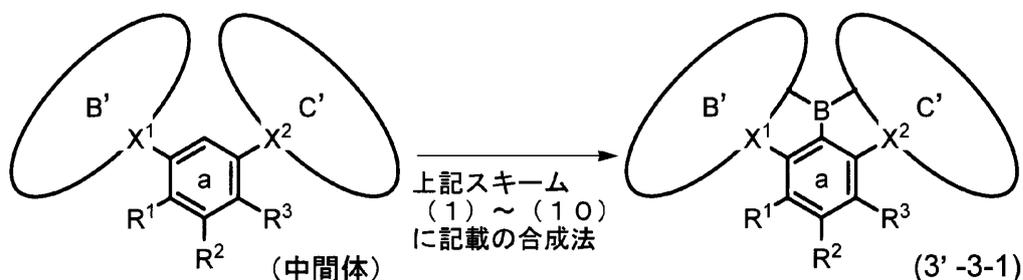
50

たは単結合により前記 a 環、 b 環および / または c 環と結合している」との規定は、下記スキーム (13) の式 (3' - 3 - 1) で表される、 $X^1$  や  $X^2$  が縮合環 B' および縮合環 C' に取り込まれた環構造を有する化合物や、式 (3' - 3 - 2) や式 (3' - 3 - 3) で表される、 $X^1$  や  $X^2$  が縮合環 A' に取り込まれた環構造を有する化合物で表現することができる。これらの化合物は下記スキーム (13) に示す中間体に上記スキーム (1) ~ (10) で示した合成法を適用することで合成することができる。

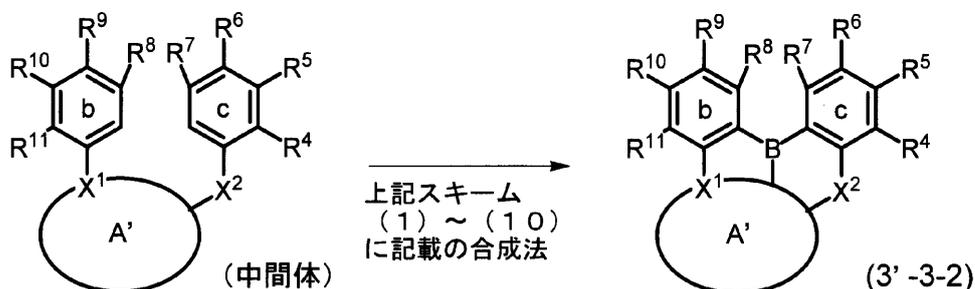
【0214】

【化103】

スキーム(13)



10



20



30

【0215】

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

40

【0216】

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

【0217】

なお、上記スキーム (1) ~ (13) で使用するメタル - 「B」 (ホウ素) の金属交換

50

試薬としては、ホウ素の三フッ化物、ホウ素の三塩化物、ホウ素の三臭化物、ホウ素の三ヨウ化物などのホウ素のハロゲン化物、CIPN(NEt<sub>2</sub>)<sub>2</sub>などのホウ素のアミノ化ハロゲン化物、ホウ素のアルコキシ化物、ホウ素のアリールオキシ化物などがあげられる。

【0218】

なお、上記スキーム(1)~(13)で使用するブレンステッド塩基としては、N,N-ジイソプロピルエチルアミン、トリエチルアミン、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジン、N,N-ジメチルアニリン、N,N-ジメチルトルイジン、2,6-ルチジン、テトラフェニルホウ酸ナトリウム、テトラフェニルホウ酸カリウム、トリフェニルボラン、テトラフェニルシラン、Ar<sub>4</sub>BNa、Ar<sub>4</sub>BK、Ar<sub>3</sub>B、Ar<sub>4</sub>Si(なお、Arはフェニルなどのアリール)などがあげられる。

10

【0219】

上記スキーム(1)~(13)で使用するルイス酸としては、AlCl<sub>3</sub>、AlBr<sub>3</sub>、AlF<sub>3</sub>、BF<sub>3</sub>・OEt<sub>2</sub>、BCl<sub>3</sub>、BBr<sub>3</sub>、GaCl<sub>3</sub>、GaBr<sub>3</sub>、InCl<sub>3</sub>、InBr<sub>3</sub>、In(OTf)<sub>3</sub>、SnCl<sub>4</sub>、SnBr<sub>4</sub>、AgOTf、ScCl<sub>3</sub>、Sc(OTf)<sub>3</sub>、ZnCl<sub>2</sub>、ZnBr<sub>2</sub>、Zn(OTf)<sub>2</sub>、MgCl<sub>2</sub>、MgBr<sub>2</sub>、Mg(OTf)<sub>2</sub>、LiOTf、NaOTf、KOTf、Me<sub>3</sub>SiOTf、Cu(OTf)<sub>2</sub>、CuCl<sub>2</sub>、YCl<sub>3</sub>、Y(OTf)<sub>3</sub>、TiCl<sub>4</sub>、TiBr<sub>4</sub>、ZrCl<sub>4</sub>、ZrBr<sub>4</sub>、FeCl<sub>3</sub>、FeBr<sub>3</sub>、CoCl<sub>3</sub>、CoBr<sub>3</sub>などがあげられる。

20

【0220】

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

30

【0221】

また、式(3)で表される化合物やその多量体には、少なくとも一部の水素原子が重水素で置換されている化合物などやフッ素や塩素などのハロゲンまたはシアノで置換されている化合物なども含まれるが、このような化合物などは所望の箇所が重水素化、フッ素化、塩素化またはシアノ化された原料を用いることで、上記と同様に合成することができる。

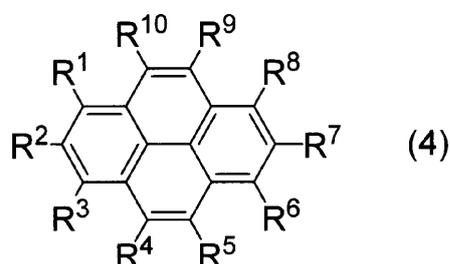
【0222】

1-7. 本発明で好適なドーパント材料(ピレン系化合物)

このピレン系化合物としては、上記一般式(2)で表されるピレン系化合物とは異なるピレン系化合物であり、下記一般式(4)で表される化合物があげられる。

40

【化104】



50

## 【0223】

上記式(4)中、

$R^1$ から $R^{10}$ は、それぞれ独立して、水素、ジアリールアミノ、ジヘテロアリールアミノまたはアリールヘテロアリールアミノであり、これらにおける少なくとも1つの水素はアリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルで置換されていてもよく、

式(4)で表される化合物における少なくとも1つの水素がハロゲン、シアノまたは重水素で置換されていてもよい。

## 【0224】

式(4)における置換基 $R^1$ から $R^{10}$ の定義は、上述したドーパント材料としてのホウ素含有化合物を表す一般式(3)または一般式(3')における説明を引用することができる。また、このように引用できる説明に加えて、上記「ジヘテロアリールアミノ」におけるヘテロアリール、上記「アリールヘテロアリールアミノ」におけるヘテロアリールおよびこれらへの置換基である上記「ヘテロアリール」は、アントラセン系化合物を表す上記一般式(1)における置換基の一つである上記式(A)で表される基であってもよく、この説明を引用することができる。また、上記「ジアリールアミノ」、「ジヘテロアリールアミノ」および「アリールヘテロアリールアミノ」の置換位置は、上記式(4)における $R^1 \sim R^3$ および $R^6 \sim R^8$ のうちの少なくとも1つであることが好ましく、 $R^1$ および $R^6$ の二箇所ならびに $R^2$ および $R^7$ の二箇所であることがより好ましく、 $R^1$ および $R^6$ の二箇所であることがさらに好ましい。

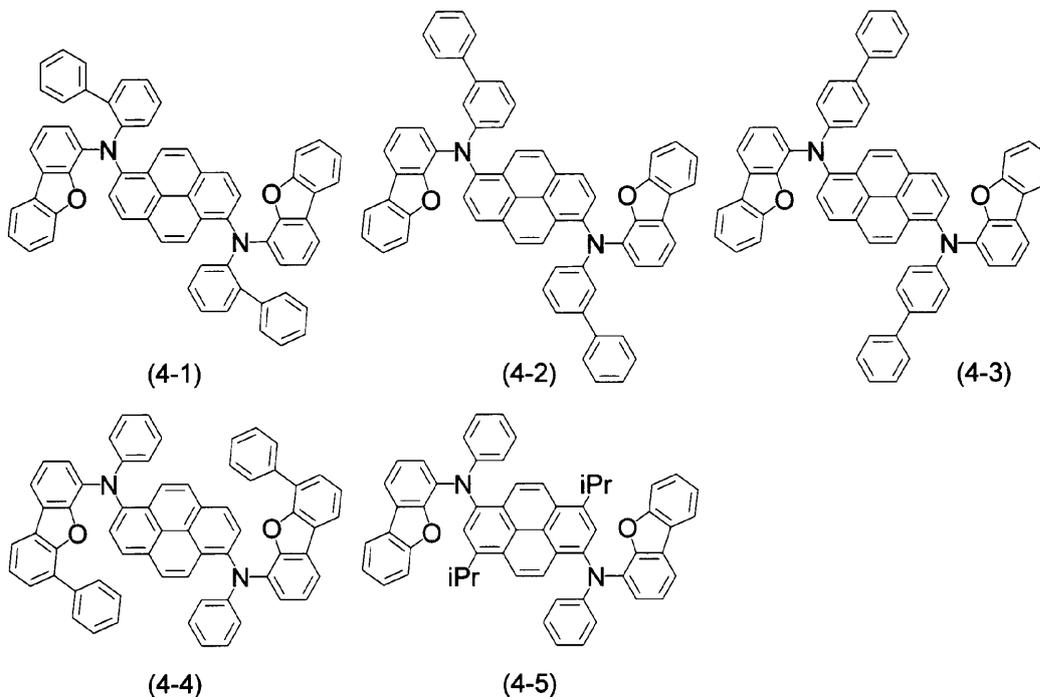
10

## 【0225】

式(4)で表される化合物の具体的な例としては、例えば、下記構造式で表される化合物があげられる。なお、下記構造式中の「iPr」はイソプロピル基を示す。

20

## 【化105】



30

40

## 【0226】

## 1-8. 式(4)で表される化合物の製造方法

式(4)で表される化合物は、ピレン骨格などに各種置換基を結合させた構造を有し、公知の方法を用いて製造することができる。例えば、特開2013-080961号公報に記載された製造方法や実施例での合成例を参考にして製造することができる。

## 【0227】

## 2. 有機電界発光素子

50

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

【0228】

<有機電界発光素子の構造>

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

【0229】

10

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

【0230】

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

20

【0231】

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

30

【0232】

<有機電界発光素子における基板>

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

40

【0233】

<有機電界発光素子における陽極>

50

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

#### 【0234】

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

10

#### 【0235】

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

20

#### 【0236】

< 有機電界発光素子における正孔注入層、正孔輸送層 >

正孔注入層 103 は、陽極 102 から移動してくる正孔を、効率よく発光層 105 内または正孔輸送層 104 内に注入する役割を果たす。正孔輸送層 104 は、陽極 102 から注入された正孔または陽極 102 から正孔注入層 103 を介して注入された正孔を、効率よく発光層 105 に輸送する役割を果たす。正孔注入層 103 および正孔輸送層 104 は、それぞれ、正孔注入・輸送材料の一種または二種以上を積層、混合するか、正孔注入・輸送材料と高分子結着剤の混合物により形成される。また、正孔注入・輸送材料に塩化鉄（III）のような無機塩を添加して層を形成してもよい。

#### 【0237】

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

30

#### 【0238】

正孔注入層 103 および正孔輸送層 104 を形成する材料としては、光導電材料において、正孔の電荷輸送材料として従来から慣用されている化合物、p 型半導体、有機 EL 素子の正孔注入層および正孔輸送層に使用されている公知の材料の中から任意の材料を選択して用いることができる。それらの具体例は、カルバゾール誘導体（N - フェニルカルバゾール、ポリビニルカルバゾールなど）、ビス（N - アリールカルバゾール）またはビス（N - アルキルカルバゾール）などのビスカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体（芳香族第 3 級アミノを主鎖あるいは側鎖に持つポリマー、1, 1 - ビス（4 - ジ - p - トリルアミノフェニル）シクロヘキサン、N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ（3 - メチルフェニル） - 4, 4' - ジアミノピフェニル、N, N' - ジフェニル - N, N' - ジナフチル - 4, 4' - ジアミノピフェニル、N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ（3 - メチルフェニル） - 4, 4' - ジフェニル - 1, 1' - ジアミン、N, N' - ジナフチル - N, N' - ジフェニル - 4, 4' - ジフェニル - 1, 1' - ジアミン、N<sup>4</sup>, N<sup>4'</sup> - ジフェニル - N<sup>4</sup>, N<sup>4'</sup> - ビス（9 - フェニル - 9H - カルバゾール - 3 - イル） - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン、N<sup>4</sup>, N<sup>4</sup>, N<sup>4'</sup>, N<sup>4'</sup> - テトラ [1, 1' - ビフェニル] - 4 - イル） - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミ

40

50

ン、4, 4', 4'' - トリス(3 - メチルフェニル(フェニル)アミノ)トリフェニルアミンなどのトリフェニルアミン誘導体、スターバーストアミン誘導体など)、スチルベン誘導体、フタロシアニン誘導体(無金属、銅フタロシアニンなど)、ピラゾリン誘導体、ヒドラゾン系化合物、ベンゾフラン誘導体やチオフエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、キノキサリン誘導体(例えば、1, 4, 5, 8, 9, 12 - ヘキサアザトリフェニレン - 2, 3, 6, 7, 10, 11 - ヘキサカルボニトリルなど)、ポルフィリン誘導体などの複素環化合物、ポリシランなどである。ポリマー系では前記単量体を側鎖に有するポリカーボネートやスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾールおよびポリシランなどが好ましいが、発光素子の作製に必要な薄膜を形成し、陽極から正孔が注入できて、さらに正孔を輸送できる化合物であれば特に限定されない。

10

## 【0239】

また、有機半導体の導電性は、そのドーピングにより、強い影響を受けることも知られている。このような有機半導体マトリックス物質は、電子供与性の良好な化合物、または、電子受容性の良好な化合物から構成されている。電子供与物質のドーピングのために、テトラシアノキノジメタン(TCNQ)または2, 3, 5, 6 - テトラフルオロテトラシアノ - 1, 4 - ベンゾキノジメタン(F4TCNQ)などの強い電子受容体が知られている(例えば、文献「M.Pfeiffer, A.Beyer, T.Fritz, K.Leo, Appl. Phys. Lett., 73(22), 3202-3204(1998)」および文献「J.Blochwitz, M.Pfeiffer, T.Fritz, K.Leo, Appl. Phys. Lett., 73(6), 729-731(1998)」を参照)。これらは、電子供与型ベース物質(正孔輸送物質)における電子移動プロセスによって、いわゆる正孔を生成する。正孔の数および移動度によって、ベース物質の伝導性が、かなり大きく変化する。正孔輸送特性を有するマトリックス物質としては、例えばベンジジン誘導体(TPDなど)またはスターバーストアミン誘導体(TDATAなど)、あるいは、特定の金属フタロシアニン(特に、亜鉛フタロシアニンZnPcなど)が知られている(特開2005-167175号公報)。

20

## 【0240】

<有機電界発光素子における発光層>

発光層105は、電界を与えられた電極間において、陽極102から注入された正孔と、陰極108から注入された電子とを再結合させることにより発光する層である。発光層105を形成する材料としては、正孔と電子との再結合によって励起されて発光する化合物(発光性化合物)であればよく、安定な薄膜形状を形成することができ、かつ、固体状態で強い発光(蛍光)効率を示す化合物であるのが好ましい。本発明における発光層では、ホスト材料として上記一般式(1)のアントラセン系化合物および上記一般式(2)のピレン系化合物を必須成分として含有し、ドーパント材料として好ましくは上述したハウ素含有化合物や上記一般式(2)のピレン系化合物とは異なるピレン系化合物を含有することができる。これらの詳細は上述したとおりであり、以下では発光層の一般的な説明をする。

30

## 【0241】

発光層は単一層でも複数層からなってもどちらでもよく、それぞれ発光層用材料(ホスト材料、ドーパント材料)により形成される。ドーパント材料はホスト材料の全体に含まれていても、部分的に含まれていても、いずれであってもよい。ドーピング方法としては、ホスト材料との共蒸着法によって形成することができるが、ホスト材料と予め混合してから同時に蒸着してもよい。

40

## 【0242】

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

## 【0243】

ドーパント材料の使用量はドーパント材料の種類によって異なり、そのドーパント材料の特性に合わせて決めればよい。ドーパントの使用量の目安は、好ましくは発光層用材料

50

全体の 0.001 ~ 50 重量%であり、より好ましくは 0.05 ~ 20 重量%であり、さらに好ましくは 0.1 ~ 10 重量%である。上記の範囲であれば、例えば、濃度消光現象を防止できるという点で好ましい。

#### 【0244】

<有機電界発光素子における電子注入層、電子輸送層>

電子注入層 107 は、陰極 108 から移動してくる電子を、効率よく発光層 105 内または電子輸送層 106 内に注入する役割を果たす。電子輸送層 106 は、陰極 108 から注入された電子または陰極 108 から電子注入層 107 を介して注入された電子を、効率よく発光層 105 に輸送する役割を果たす。電子輸送層 106 および電子注入層 107 は、それぞれ、電子輸送・注入材料の一種または二種以上を積層、混合するか、電子輸送・注入材料と高分子結着剤の混合物により形成される。

10

#### 【0245】

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

20

#### 【0246】

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

#### 【0247】

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

30

#### 【0248】

また、他の電子伝達化合物の具体例として、ピリジン誘導体、ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、フェナントロリン誘導体、ペリノン誘導体、クマリン誘導体、ナフタルイミド誘導体、アントラキノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体（1,3-ビス〔（4-t-ブチルフェニル）1,3,4-オキサジアゾリル〕フェニレンなど）、チオフエン誘導体、トリアゾール誘導体（N-ナフチル-2,5-ジフェニル-1,3,4-トリアゾールなど）、チアジアゾール誘導体、オキシニ誘導体の金属錯体、キノリノール系金属錯体、キノキサリン誘導体、キノキサリン誘導体のポリマー、ベンザゾール類化合物、ガリウム錯体、ピラゾール誘導体、パーフルオロ化フェニレン誘導体、トリアジン誘導体、ピラジン誘導体、ベンゾキノリン誘導体（2,2'-ビス（ベンゾ[h]キノリン-2-イル）-9,9'-ス

40

50

ピロピフルオレンなど)、イミダゾピリジン誘導体、ボラン誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体(トリス(N-フェニルベンゾイミダゾール-2-イル)ベンゼンなど)、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、キノリン誘導体、テルピリジンなどのオリゴピリジン誘導体、ピピリジン誘導体、テルピリジン誘導体(1,3-ビス(4'-(2,2':6'2"-テルピリジニル))ベンゼンなど)、ナフチリジン誘導体(ビス(1-ナフチル)-4-(1,8-ナフチリジン-2-イル)フェニルホスフィンオキサイドなど)、アルダジン誘導体、カルバゾール誘導体、インドール誘導体、リンオキサイド誘導体、ビスチリル誘導体などがあげられる。

【0249】

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

10

【0250】

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

【0251】

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

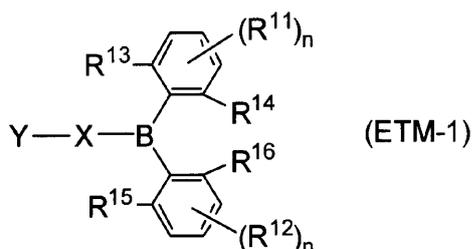
20

【0252】

<ボラン誘導体>

ボラン誘導体は、例えば下記一般式(ETM-1)で表される化合物であり、詳細には特開2007-27587号公報に開示されている。

【化106】



30

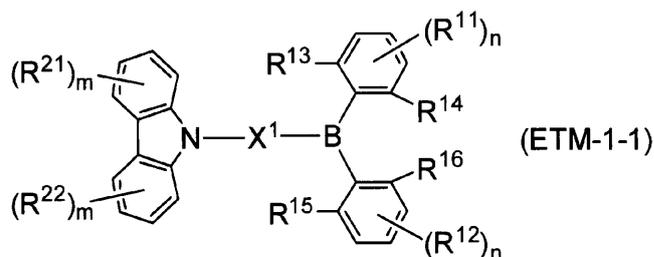
上記式(ETM-1)中、R<sup>11</sup>およびR<sup>12</sup>は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも一つであり、R<sup>13</sup>~R<sup>16</sup>は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキルまたは置換されていてもよいアリールであり、Xは、置換されていてもよいアリーレンであり、Yは、置換されていてもよい炭素数16以下のアリール、置換されているボリル、または置換されていてもよいカルバゾリルであり、そして、nはそれぞれ独立して0~3の整数である。また、「置換されていてもよい」または「置換されている」場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

40

【0253】

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

## 【化 1 0 7】

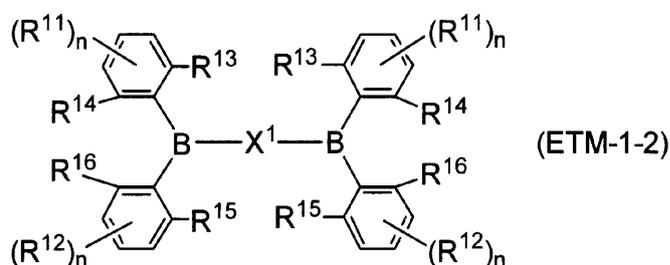


式 ( E T M - 1 - 1 ) 中、 $R^{11}$  および  $R^{12}$  は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも一つであり、 $R^{13} \sim R^{16}$  は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキルまたは置換されていてもよいアリールであり、 $R^{21}$  および  $R^{22}$  は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも一つであり、 $X^1$  は、置換されていてもよい炭素数 20 以下のアリーレンであり、 $n$  はそれぞれ独立して 0 ~ 3 の整数であり、そして、 $m$  はそれぞれ独立して 0 ~ 4 の整数である。また、「置換されていてもよい」または「置換されている」場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

10

20

## 【化 1 0 8】



30

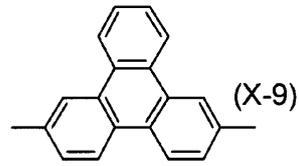
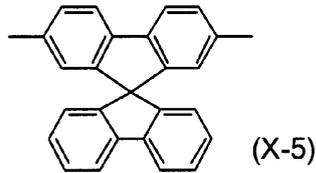
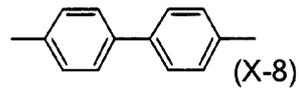
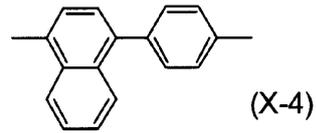
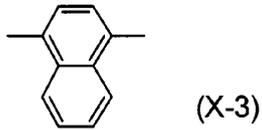
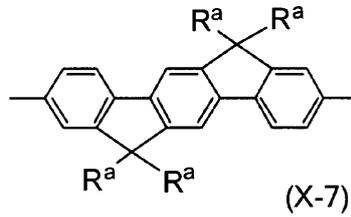
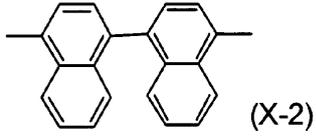
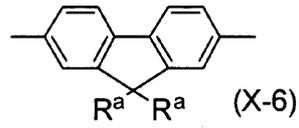
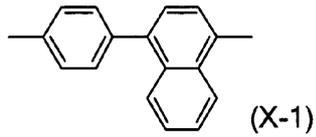
式 ( E T M - 1 - 2 ) 中、 $R^{11}$  および  $R^{12}$  は、それぞれ独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、置換されていてもよいアリール、置換されているシリル、置換されていてもよい窒素含有複素環、またはシアノの少なくとも一つであり、 $R^{13} \sim R^{16}$  は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアルキル、置換されていてもよいシクロアルキルまたは置換されていてもよいアリールであり、 $X^1$  は、置換されていてもよい炭素数 20 以下のアリーレンであり、そして、 $n$  はそれぞれ独立して 0 ~ 3 の整数である。また、「置換されていてもよい」または「置換されている」場合の置換基としては、アリール、ヘテロアリール、アルキルまたはシクロアルキルなどがあげられる。

## 【 0 2 5 4】

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

40

## 【化109】



10

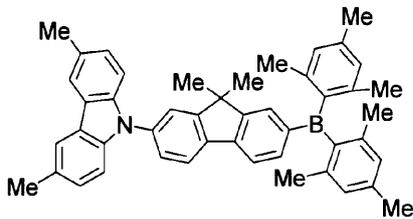
20

(各式中、 $R^a$  は、それぞれ独立してアルキル基、シクロアルキル基または置換されていてもよいフェニル基である。)

## 【0255】

このボラン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

## 【化110】



30

## 【0256】

このボラン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

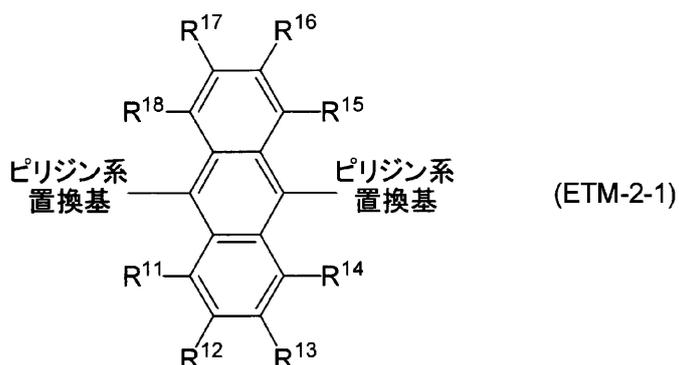
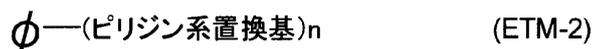
## 【0257】

<ピリジン誘導体>

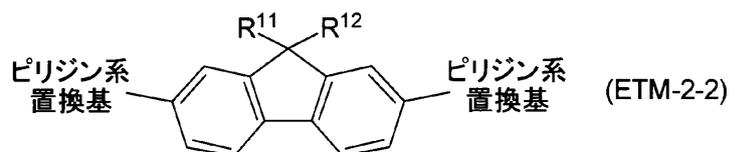
ピリジン誘導体は、例えば下記式 (ETM-2) で表される化合物であり、好ましくは式 (ETM-2-1) または式 (ETM-2-2) で表される化合物である。

40

【化 1 1 1】



10



20

【0258】

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

【0259】

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

30

【0260】

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

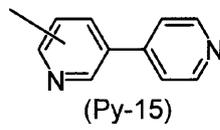
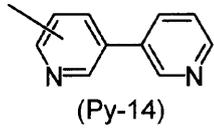
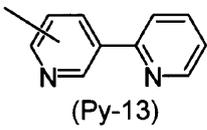
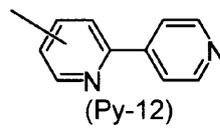
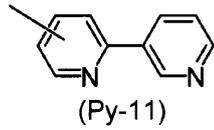
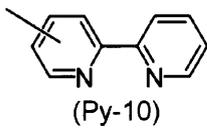
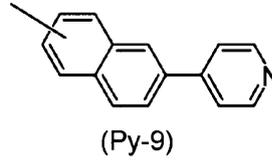
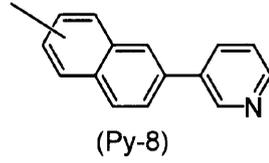
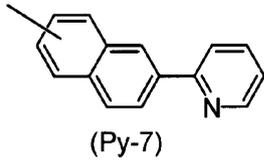
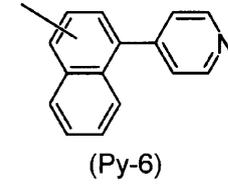
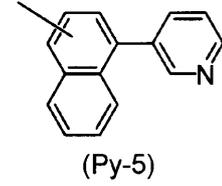
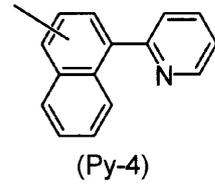
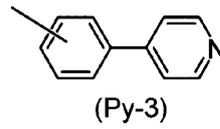
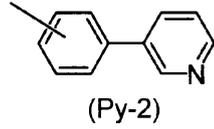
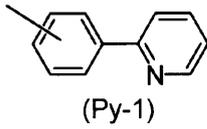
【0261】

各式において、「ピリジン系置換基」は、下記式 (Py-1) ~ 式 (Py-15) のいずれかであり、ピリジン系置換基はそれぞれ独立して炭素数 1 ~ 4 のアルキルまたは炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキルで置換されていてもよい。また、ピリジン系置換基はフェニレン基やナフチレン基を介して各式における、アントラセン環またはフルオレン環に結合していてもよい。

40

【0262】

## 【化 1 1 2】



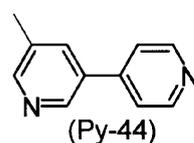
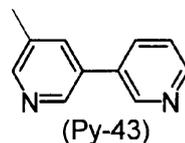
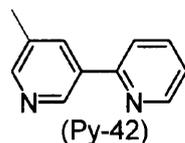
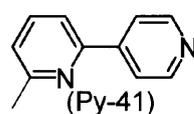
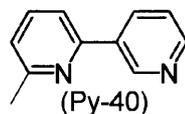
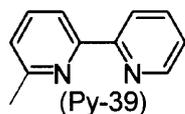
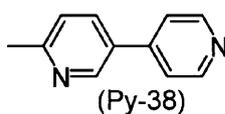
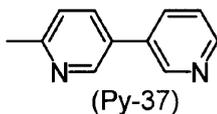
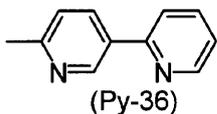
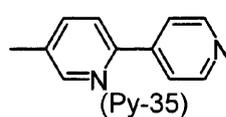
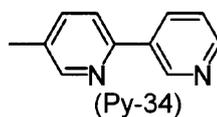
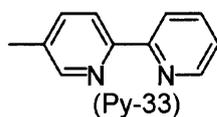
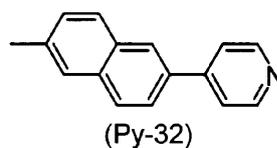
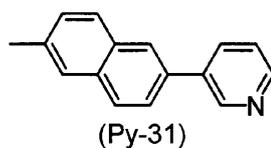
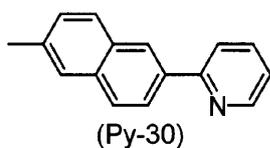
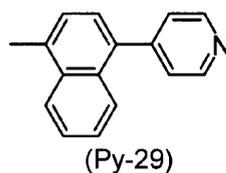
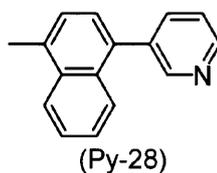
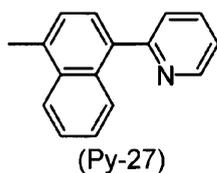
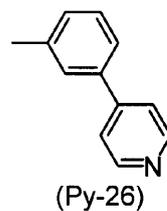
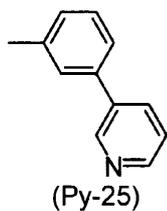
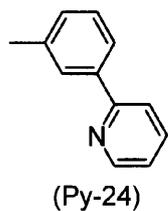
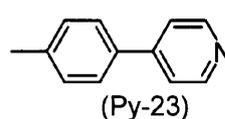
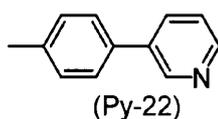
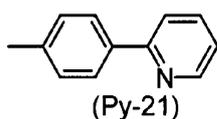
10

20

## 【 0 2 6 3 】

ピリジン系置換基は、上記式 (Py-1) ~ 式 (Py-15) のいずれかであるが、これらの中でも、下記式 (Py-21) ~ 式 (Py-44) のいずれかであることが好ましい。

## 【化 1 1 3】



## 【0264】

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

## 【0265】

R<sup>11</sup> ~ R<sup>18</sup>における「アルキル」としては、直鎖および分枝鎖のいずれでもよく、例えば、炭素数1 ~ 24の直鎖アルキルまたは炭素数3 ~ 24の分枝鎖アルキルがあげられる。好ましい「アルキル」は、炭素数1 ~ 18のアルキル(炭素数3 ~ 18の分枝鎖アルキル)である。より好ましい「アルキル」は、炭素数1 ~ 12のアルキル(炭素数3 ~ 12の分枝鎖アルキル)である。さらに好ましい「アルキル」は、炭素数1 ~ 6のアルキル(炭素数3 ~ 6の分枝鎖アルキル)である。特に好ましい「アルキル」は、炭素数1 ~ 4のアルキル(炭素数3 ~ 4の分枝鎖アルキル)である。

10

20

30

40

50

## 【0266】

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

10

## 【0267】

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

## 【0268】

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

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

20

## 【0269】

ピリジン系置換基に置換する炭素数5~10のシクロアルキルとしては、上記シクロアルキルの説明を引用することができる。

## 【0270】

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

30

## 【0271】

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

## 【0272】

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

40

## 【0273】

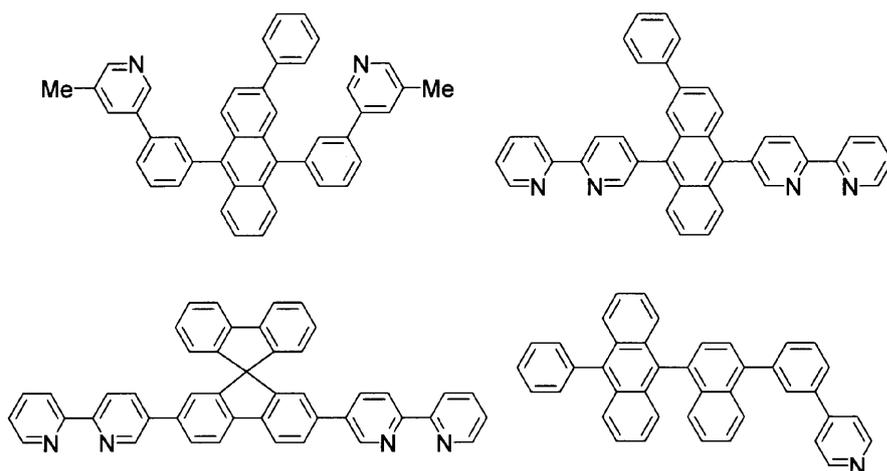
上記式(ETM-2-2)における $R^{11}$ および $R^{12}$ は結合して環を形成していてもよく、この結果、フルオレン骨格の5員環には、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキサン、フルオレンまたはインデンなどがスピロ結合していてもよい。

## 【0274】

50

このピリジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化 1 1 4】



10

【 0 2 7 5 】

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

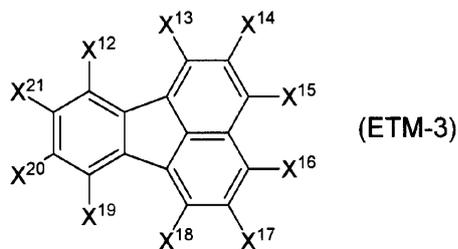
【 0 2 7 6 】

<フルオランテン誘導体 >

20

フルオランテン誘導体は、例えば下記一般式 (ETM-3) で表される化合物であり、詳細には国際公開第 2 0 1 0 / 1 3 4 3 5 2 号公報に開示されている。

【化 1 1 5】



30

【 0 2 7 7 】

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

【 0 2 7 8 】

このフルオランテン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

## 【化 1 1 6】



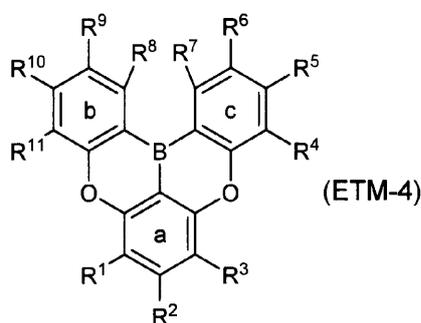
10

## 【 0 2 7 9 】

&lt; B O系誘導体 &gt;

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

## 【化 1 1 7】



20

## 【 0 2 8 0 】

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

30

## 【 0 2 8 1 】

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

40

## 【 0 2 8 2 】

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

## 【 0 2 8 3 】

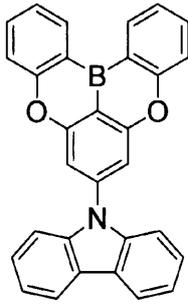
式 ( E T M - 4 ) における置換基や環形成の形態、また式 ( E T M - 4 ) の構造が複数合わさってできる多量体の説明については、上記一般式 ( 3 ) や式 ( 3 ' ) で表される化合物やその多量体の説明を引用することができる。

## 【 0 2 8 4 】

この B O系誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

50

## 【化 1 1 8】



10

## 【 0 2 8 5】

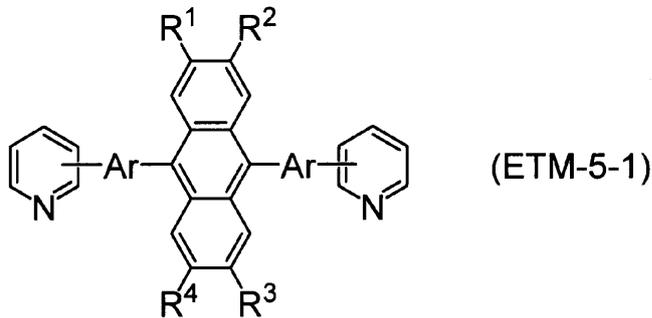
この B O 系誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

## 【 0 2 8 6】

< アントラセン誘導体 >

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

## 【化 1 1 9】



20

## 【 0 2 8 7】

A r は、それぞれ独立して、2 価のベンゼンまたはナフタレンであり、R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> は、それぞれ独立して、水素、炭素数 1 ~ 6 のアルキル、炭素数 3 から 6 のシクロアルキルまたは炭素数 6 ~ 2 0 のアリールである。

30

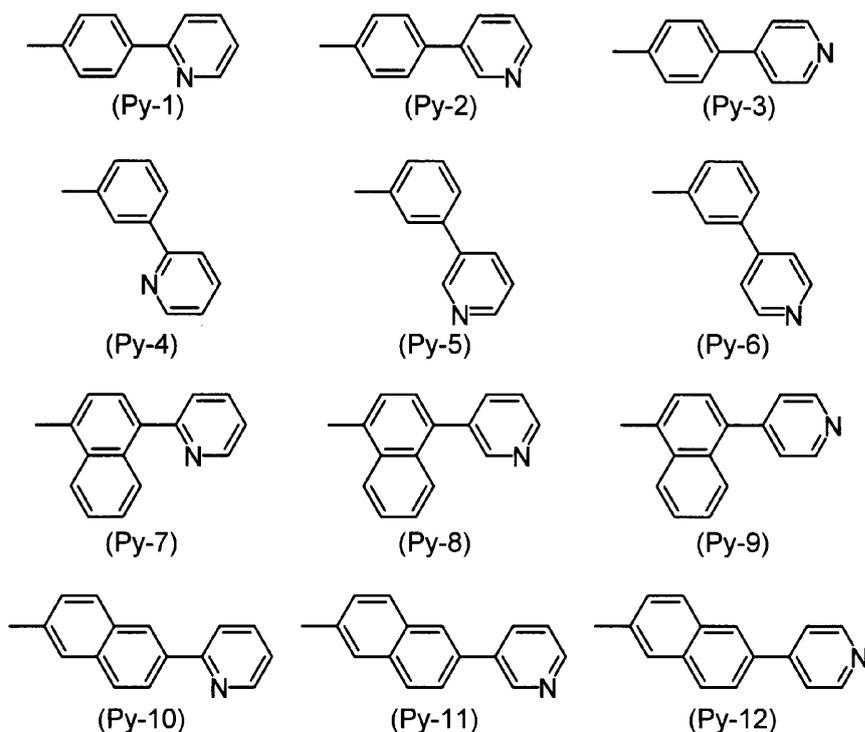
## 【 0 2 8 8】

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

## 【 0 2 8 9】

40

## 【化 1 2 0】



10

20

## 【0 2 9 0】

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

30

## 【0 2 9 1】

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

40

## 【0 2 9 2】

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

## 【0 2 9 3】

R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> における炭素数 6 ~ 20 のアリールについては、炭素数 6 ~ 16 のアリールが好ましく、炭素数 6 ~ 12 のアリールがより好ましく、炭素数 6 ~ 10 のアリールが特に好ましい。

## 【0 2 9 4】

「炭素数 6 ~ 20 のアリール」の具体例としては、単環系アリールであるフェニル、(

50

o - , m - , p - )トリル、( 2 , 3 - , 2 , 4 - , 2 , 5 - , 2 , 6 - , 3 , 4 - , 3 , 5 - )キシリル、メシチル( 2 , 4 , 6 - トリメチルフェニル)、( o - , m - , p - )クメニル、二環系アリールである( 2 - , 3 - , 4 - )ビフェニリル、縮合二環系アリールである( 1 - , 2 - )ナフチル、三環系アリールであるテルフェニリル( m - テルフェニル - 2 ' - イル、m - テルフェニル - 4 ' - イル、m - テルフェニル - 5 ' - イル、o - テルフェニル - 3 ' - イル、o - テルフェニル - 4 ' - イル、p - テルフェニル - 2 ' - イル、m - テルフェニル - 2 - イル、m - テルフェニル - 3 - イル、m - テルフェニル - 4 - イル、o - テルフェニル - 2 - イル、o - テルフェニル - 3 - イル、o - テルフェニル - 4 - イル、p - テルフェニル - 2 - イル、p - テルフェニル - 3 - イル、p - テルフェニル - 4 - イル)、縮合三環系アリールである、アントラセン - ( 1 - , 2 - , 9 - )イル、アセナフチレン - ( 1 - , 3 - , 4 - , 5 - )イル、フルオレン - ( 1 - , 2 - , 3 - , 4 - , 9 - )イル、フェナレン - ( 1 - , 2 - )イル、( 1 - , 2 - , 3 - , 4 - , 9 - )フェナントリル、縮合四環系アリールであるトリフェニレン - ( 1 - , 2 - )イル、ピレン - ( 1 - , 2 - , 4 - )イル、テトラセン - ( 1 - , 2 - , 5 - )イル、縮合五環系アリールであるペリレン - ( 1 - , 2 - , 3 - )イルなどがあげられる。

10

## 【 0 2 9 5 】

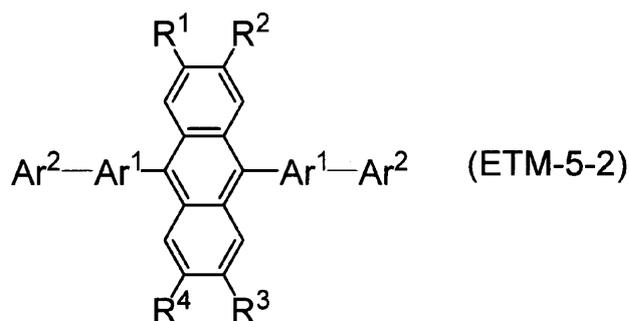
好ましい「炭素数 6 ~ 2 0 のアリール」は、フェニル、ビフェニリル、テルフェニリルまたはナフチルであり、より好ましくは、フェニル、ビフェニリル、1 - ナフチル、2 - ナフチルまたは m - テルフェニル - 5 ' - イルであり、さらに好ましくは、フェニル、ビフェニリル、1 - ナフチルまたは 2 - ナフチルであり、最も好ましくはフェニルである。

20

## 【 0 2 9 6 】

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

## 【 化 1 2 1 】



30

## 【 0 2 9 7 】

Ar<sup>1</sup> は、それぞれ独立して、単結合、2 価のベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フルオレン、またはフェナレンである。

## 【 0 2 9 8 】

Ar<sup>2</sup> は、それぞれ独立して、炭素数 6 ~ 2 0 のアリールであり、上記式( E T M - 5 - 1 )における「炭素数 6 ~ 2 0 のアリール」と同じ説明を引用することができる。炭素数 6 ~ 1 6 のアリールが好ましく、炭素数 6 ~ 1 2 のアリールがより好ましく、炭素数 6 ~ 1 0 のアリールが特に好ましい。具体例としては、フェニル、ビフェニリル、ナフチル、テルフェニリル、アントラセニル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、テトラセニル、ペリレニルなどがあげられる。

40

## 【 0 2 9 9 】

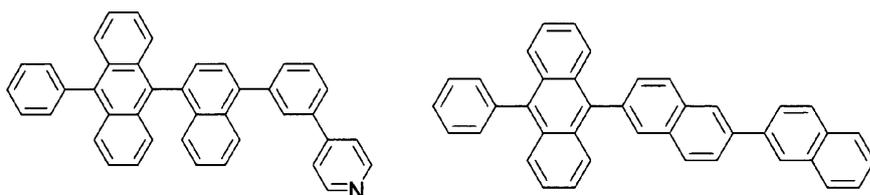
R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> は、それぞれ独立して、水素、炭素数 1 ~ 6 のアルキル、炭素数 3 から 6 のシクロアルキルまたは炭素数 6 ~ 2 0 のアリールであり、上記式( E T M - 5 - 1 )における説明を引用することができる。

## 【 0 3 0 0 】

50

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

【化 1 2 2】



【 0 3 0 1 】

10

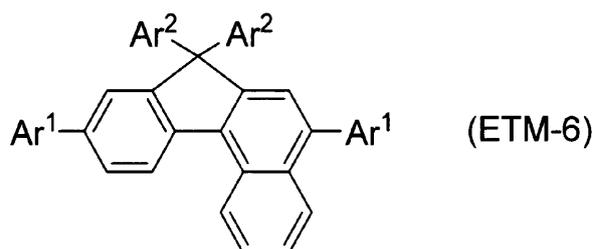
これらのアントラセン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【 0 3 0 2 】

<ベンゾフルオレン誘導体>

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

【化 1 2 3】



20

【 0 3 0 3 】

Ar<sup>1</sup> は、それぞれ独立して、炭素数 6 ~ 20 のアリールであり、上記式 ( E T M - 5 - 1 ) における「炭素数 6 ~ 20 のアリール」と同じ説明を引用することができる。炭素数 6 ~ 16 のアリールが好ましく、炭素数 6 ~ 12 のアリールがより好ましく、炭素数 6 ~ 10 のアリールが特に好ましい。具体例としては、フェニル、ピフェニリル、ナフチル、テルフェニリル、アントラセニル、アセナフチレニル、フルオレニル、フェナレニル、フェナントリル、トリフェニレニル、ピレニル、テトラセニル、ペリレニルなどがあげられる。

30

【 0 3 0 4 】

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

【 0 3 0 5 】

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

40

【 0 3 0 6 】

50

Ar<sup>2</sup>における「シクロアルキル」としては、例えば、炭素数3～12のシクロアルキルがあげられる。好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3～10のシクロアルキルである。より好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3～8のシクロアルキルである。さらに好ましい「シクロアルキル」は、炭素数3～6のシクロアルキルである。具体的な「シクロアルキル」としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、シクロヘブチル、メチルシクロヘキシル、シクロオクチルまたはジメチルシクロヘキシルなどがあげられる。

## 【0307】

Ar<sup>2</sup>における「アリール」としては、好ましいアリールは炭素数6～30のアリールであり、より好ましいアリールは炭素数6～18のアリールであり、さらに好ましくは炭素数6～14のアリールであり、特に好ましくは炭素数6～12のアリールである。

10

## 【0308】

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

## 【0309】

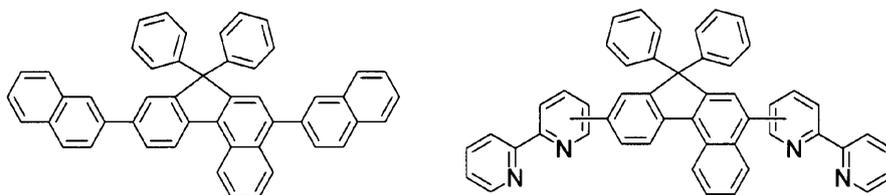
2つのAr<sup>2</sup>は結合して環を形成していてもよく、この結果、フルオレン骨格の5員環には、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキサン、フルオレンまたはインデンなどがスピロ結合していてもよい。

20

## 【0310】

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

## 【化124】



## 【0311】

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

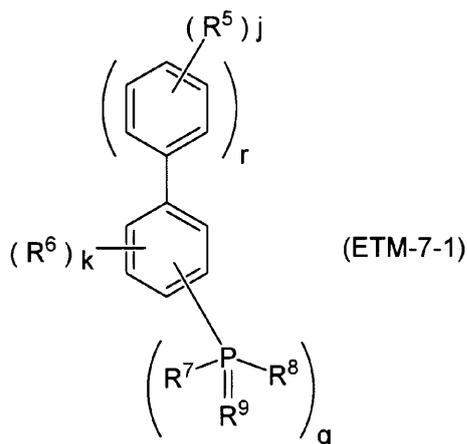
30

## 【0312】

<ホスフィンオキサイド誘導体>

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

## 【化125】



40

50

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

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

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

R<sup>9</sup> は酸素または硫黄であり、

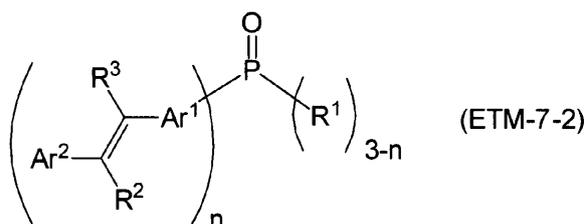
j は 0 または 1 であり、k は 0 または 1 であり、r は 0 ~ 4 の整数であり、q は 1 ~ 3 の整数である。

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

【0313】

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

【化126】



【0314】

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

【0315】

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

【0316】

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

【0317】

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

【0318】

50

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

【0319】

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

【0320】

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

10

【0321】

また、アルキニル基とは、例えば、アセチレニル基などの三重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。アルキニル基の炭素数は特に限定されないが、通常、2～20の範囲である。

【0322】

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

20

【0323】

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

【0324】

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

【0325】

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

30

【0326】

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

【0327】

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

【0328】

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

40

【0329】

ハロゲンとは、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素を示す。

【0330】

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

【0331】

また、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環は無置換でも置換さ

50

れていてもかまわない。

【0332】

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

【0333】

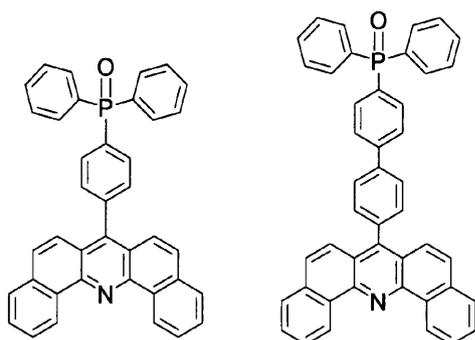
隣接置換基との間に形成される縮合環とは、例えば、 $Ar^1$ と $R^2$ 、 $Ar^1$ と $R^3$ 、 $Ar^2$ と $R^2$ 、 $Ar^2$ と $R^3$ 、 $R^2$ と $R^3$ 、 $Ar^1$ と $Ar^2$ 等の間で形成された共役または非共役の縮合環である。ここで、 $n$ が1の場合、2つの $R^1$ 同士で共役または非共役の縮合環を形成してもよい。これら縮合環は、環内構造に窒素、酸素、硫黄原子を含んでいてもよいし、さらに別の環と縮合してもよい。

10

【0334】

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

【化127】



20

【0335】

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

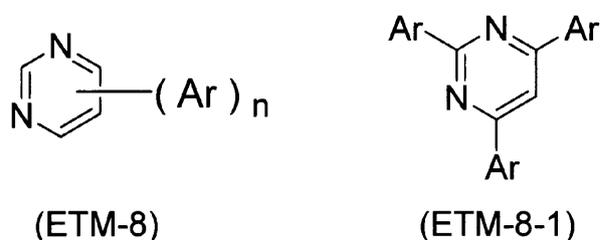
【0336】

<ピリミジン誘導体>

30

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

【化128】



40

【0337】

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

【0338】

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

50

## 【0339】

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

10

## 【0340】

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

20

## 【0341】

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

30

## 【0342】

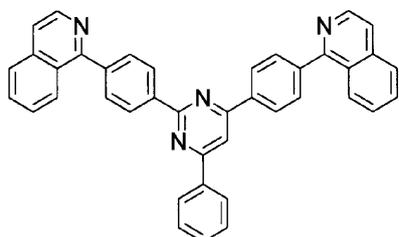
また、上記アリールおよびヘテロアリールは置換されていてもよく、それぞれ例えば上記アリールやヘテロアリールで置換されていてもよい。

## 【0343】

このピリミジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

40

## 【化129】



50

## 【0344】

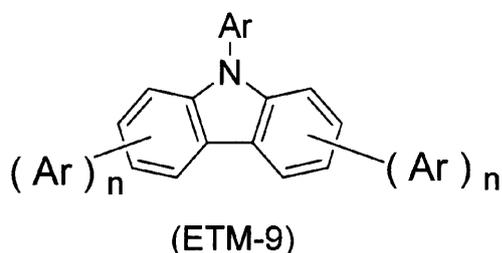
このピリミジン誘導体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

## 【0345】

<カルバゾール誘導体>

カルバゾール誘導体は、例えば下記式 (ETM-9) で表される化合物、またはそれが単結合などで複数結合した多量体である。詳細は米国公開公報 2014/0197386 号公報に記載されている。

## 【化130】



10

## 【0346】

Ar は、それぞれ独立して、置換されていてもよいアリール、または置換されていてもよいヘテロアリールである。n は独立して 0 ~ 4 の整数であり、好ましくは 0 ~ 3 の整数であり、より好ましくは 0 または 1 である。

20

## 【0347】

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

## 【0348】

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

30

40

## 【0349】

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

## 【0350】

50

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

10

## 【0351】

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

## 【0352】

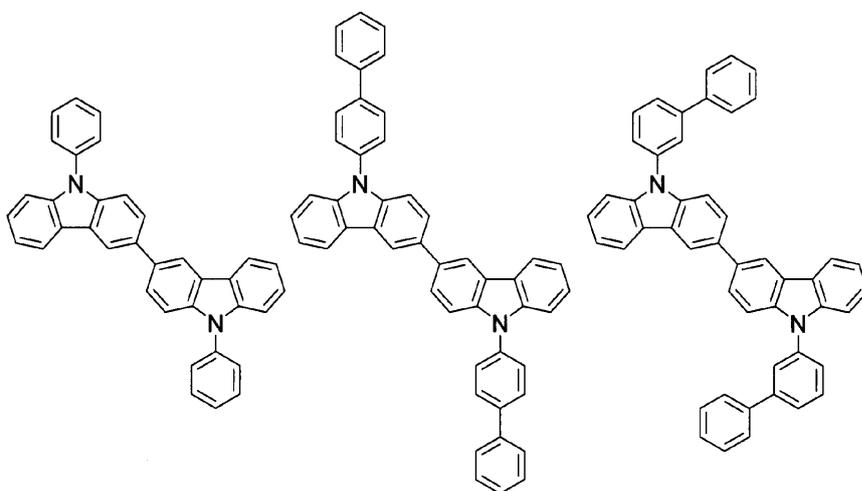
カルバゾール誘導体は、上記式(ETM-9)で表される化合物が単結合などで複数結合した多量体であってもよい。この場合、単結合以外に、アリアル環(好ましくは多価のベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環またはトリフェニレン環)で結合されていてもよい。

## 【0353】

このカルバゾール誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

20

## 【化131】



30

## 【0354】

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

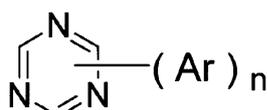
## 【0355】

## &lt;トリアジン誘導体&gt;

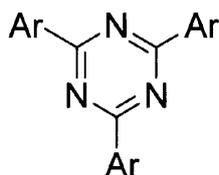
40

トリアジン誘導体は、例えば下記式(ETM-10)で表される化合物であり、好ましくは下記式(ETM-10-1)で表される化合物である。詳細は米国公開公報2011/0156013号公報に記載されている。

## 【化 1 3 2】



(ETM-10)



(ETM-10-1)

## 【 0 3 5 6】

10

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

## 【 0 3 5 7】

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

## 【 0 3 5 8】

20

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

30

## 【 0 3 5 9】

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

40

## 【 0 3 6 0】

具体的なヘテロアリールとしては、例えば、フリル、チエニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、オキサジアゾリル、フラザニル、チアジアゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、ピリミジニル、ピリダジニル、ピラジニル、トリアジニル、ベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾ [b] チエニル、インドリル、イソインドリル、1H - インダゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1H - ベンゾトリアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、キナゾリル、キノキサリニル、フタラジニル

50

、ナフチリジニル、プリニル、プテリジニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、フェノキサチニル、チアントレニル、インドリジニルなどがあげられる。

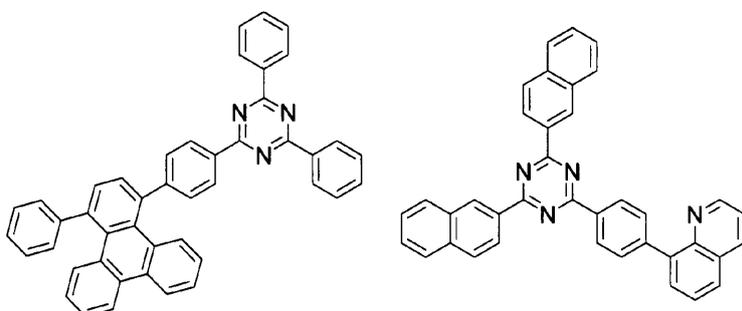
【0361】

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

【0362】

このトリアジン誘導体の具体例としては、例えば以下の化合物があげられる。

【化133】



10

【0363】

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

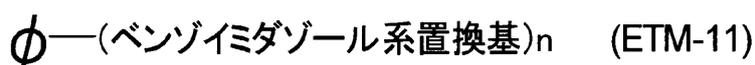
20

【0364】

<ベンゾイミダゾール誘導体>

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

【化134】

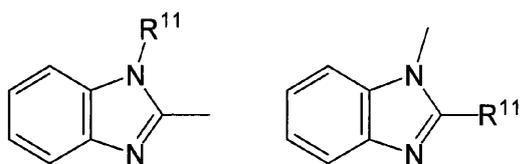


【0365】

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

30

【化135】



ベンゾイミダゾール基

40

【0366】

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

50

## 【0367】

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

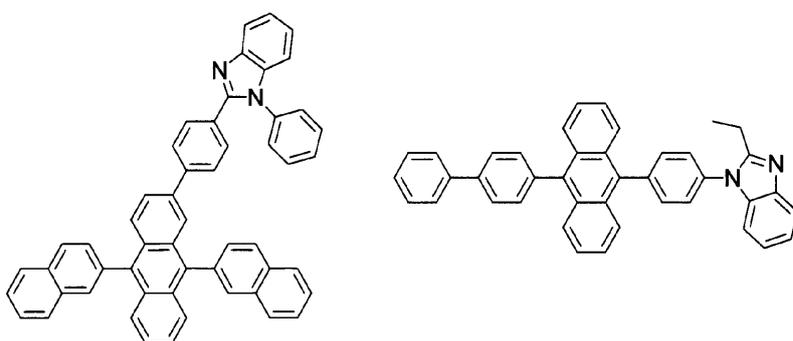
10

## 【0368】

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

20

## 【化136】



30

## 【0369】

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

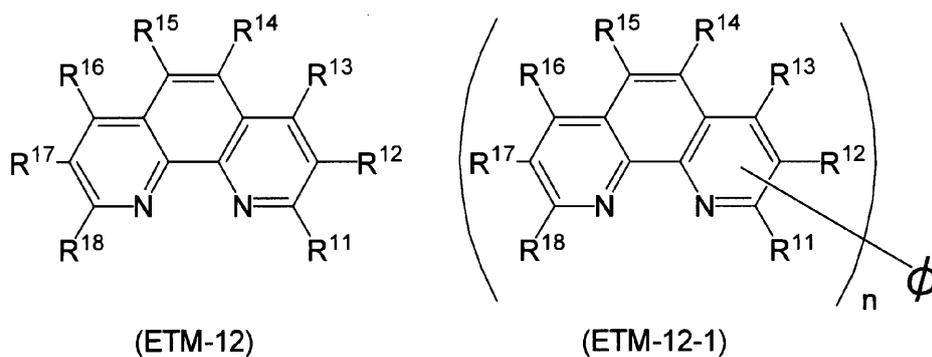
40

## 【0370】

<フェナントロリン誘導体>

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

## 【化 1 3 7】



10

## 【 0 3 7 1】

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

## 【 0 3 7 2】

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

20

## 【 0 3 7 3】

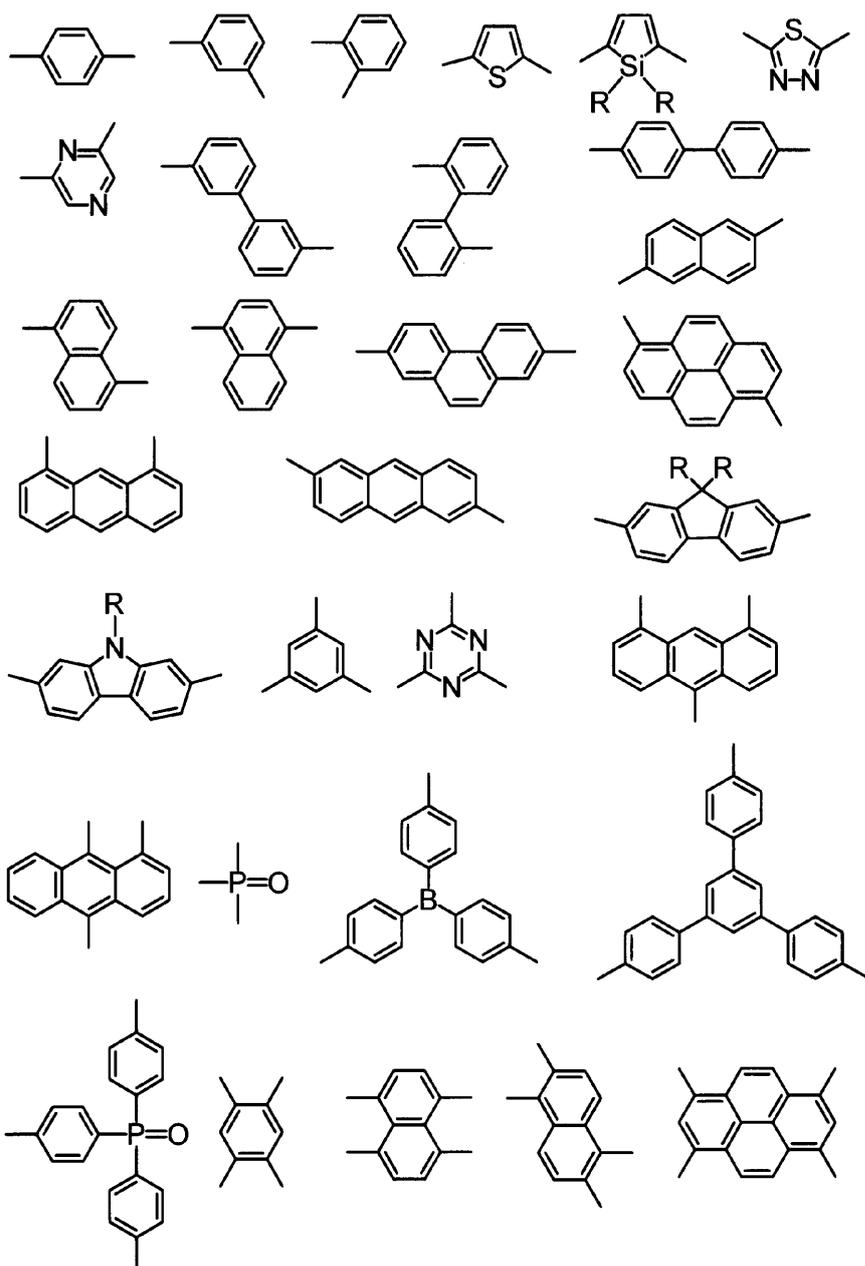
各フェナントロリン誘導体における少なくとも 1 つの水素が重水素で置換されていてもよい。

## 【 0 3 7 4】

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

30

## 【化 1 3 8】



10

20

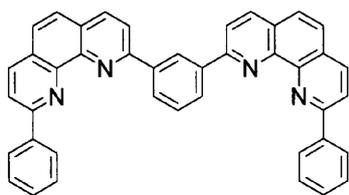
30

## 【0375】

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

40

## 【化 1 3 9】



## 【 0 3 7 6】

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

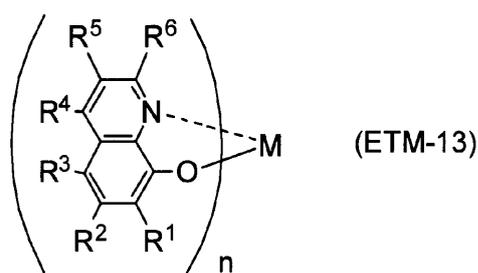
10

## 【 0 3 7 7】

<キノリノール系金属錯体>

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

## 【化 1 4 0】



20

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

## 【 0 3 7 8】

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

30

40

50

、5、6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-t-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリン)ベリリウムなどがあげられる。

10

20

【0379】

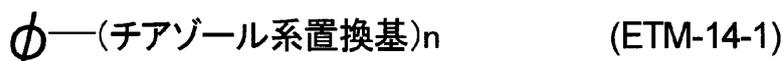
このキノリノール系金属錯体は公知の原料と公知の合成方法を用いて製造することができる。

【0380】

<チアゾール誘導体およびベンゾチアゾール誘導体>

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

【化141】



30

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

【化142】

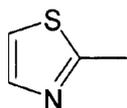


40

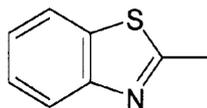
【0381】

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

## 【化 1 4 3】



チアゾール基



ベンゾチアゾール基

## 【 0 3 8 2】

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

10

20

## 【 0 3 8 3】

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

## 【 0 3 8 4】

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

30

## 【 0 3 8 5】

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

40

## 【 0 3 8 6】

< 有機電界発光素子における陰極 >

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

## 【 0 3 8 7】

50

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

10

#### 【0388】

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

20

#### 【0389】

< 各層で用いてもよい結着剤 >

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

30

#### 【0390】

< 有機電界発光素子の作製方法 >

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

40

#### 【0391】

次に、有機EL素子を作製する方法の一例として、陽極/正孔注入層/正孔輸送層/ホスト材料とドーパント材料からなる発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。適当な基板上に、陽極材料の薄膜を蒸着法などにより形成させて陽極を作製した後、この陽極上に正孔注入層および正孔輸送層の薄膜を形成させる。この上にホスト材料とドーパント材料を共蒸着し薄膜を形成させて発光層とし、この発光層の上に電子輸送層、電子注入層を形成させ、さらに陰極用物質からなる薄膜を

50

蒸着法などにより形成させて陰極とすることにより、目的の有機EL素子が得られる。なお、上述の有機EL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

#### 【0392】

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

#### 【0393】

<有機電界発光素子の応用例>

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

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

#### 【0394】

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

#### 【0395】

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

#### 【0396】

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

#### 【0397】

照明装置としては、例えば、室内照明などの照明装置、液晶表示装置のバックライトなどがあげられる(例えば、特開2003-257621号公報、特開2003-277741号公報、特開2004-19211号公報など参照)。バックライトは、主に自発光しない表示装置の視認性を向上させる目的に使用され、液晶表示装置、時計、オーディオ装置、自動車パネル、表示板および標識などに使用される。特に、液晶表示装置、中でも薄型化が課題となっているパソコン用途のバックライトとしては、従来方式が蛍光灯や導光板からなっているため薄型化が困難であることを考えると、本実施形態に係る発光素子を用いたバックライトは薄型で軽量が特徴になる。

#### 【実施例】

10

20

30

40

50

## 【0398】

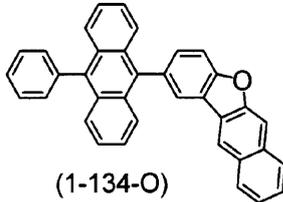
以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明していくが、本発明はこれらに限定されない。まず、実施例で使用する化合物の合成例について、以下に説明する。

## 【0399】

合成例(1)

化合物(1-134-O) : 2-(10-フェニルアントラセン-9-イル)ナフト[2,3-b]ベンゾフランの合成

## 【化144】



10

化合物(1-134-O)は、国際公開第2014/141725号公報の段落[0106]に記載された方法に準じて合成した。

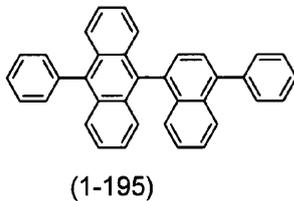
## 【0400】

合成例(2)

化合物(1-195)の合成

20

## 【化145】



化合物(1-195)は、特開2016-88927号公報の「合成例30:化合物(CH-AP41)の合成」に記載された方法に準じて合成した。

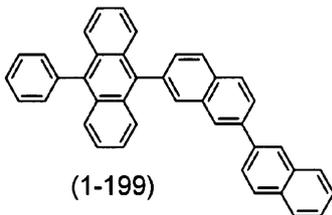
30

## 【0401】

合成例(3)

化合物(1-199)の合成

## 【化146】



40

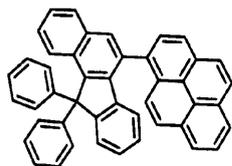
化合物(1-199)は、特開2012-104806号公報の「式(1-55)で表される化合物の合成例」に記載された方法に準じて合成した。

## 【0402】

合成例(4)

化合物(2-1) : 11,11-ジフェニル-6-(ピレン-1-イル)-11H-ベンゾ[a]フルオレンの合成

## 【化 1 4 7】



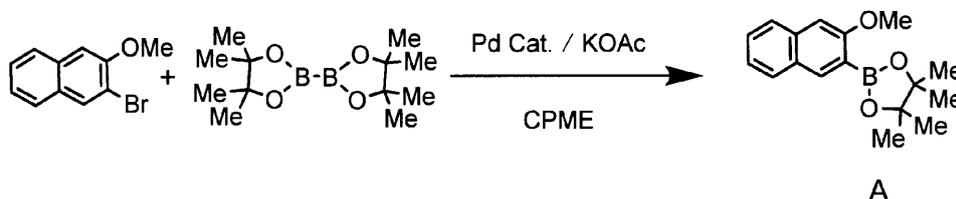
(2-1)

## 【0 4 0 3】

窒素雰囲気下、フラスコに 1 - ブロモ - 2 - メトキシナフタレン ( 9 . 5 g )、ビス ( ピナコラート ) ジボロン ( 1 2 . 2 g )、酢酸カリウム ( 1 1 . 8 g )、パラジウム触媒として ( 1 , 1 ' - ビス ( ジフェニルホスフィノ ) フェロセン ) パラジウム ( I I ) ジクロリド・ジクロロメタン錯体 ( 0 . 9 8 g ) およびシクロペンチルメチルエーテル ( C P M E、1 4 3 m L ) をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、還流温度で 4 時間撹拌した。反応液を室温まで冷却して水を加え、さらに酢酸エチルを加えて分液抽出した。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、活性炭ショートカラム ( 溶離液 : トルエン ) で精製して中間体 A を得た ( 1 1 . 3 g )。

10

## 【化 1 4 8】



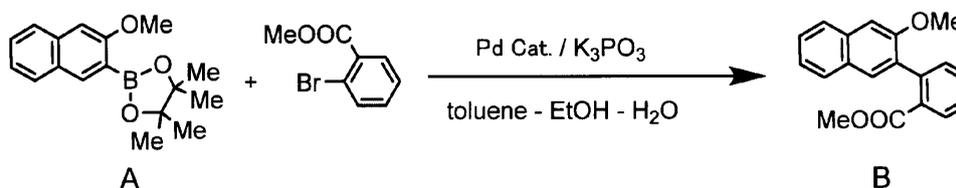
20

## 【0 4 0 4】

窒素雰囲気下、中間体 A ( 1 1 . 3 g )、2 - ブロモ安息香酸メチル ( 8 . 6 g )、リン酸カリウム ( 1 6 . 9 g )、パラジウム触媒としてテトラキス ( トリフェニルホスフィン ) パラジウム ( 1 . 4 g )、トルエン ( 8 5 m L )、エタノール ( 1 7 m L ) および水 ( 9 m L ) をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、還流温度で 7 時間撹拌した。反応液を室温まで冷却し水を加え、さらにトルエンを加えて分液抽出した。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、粗体をシリカゲルカラム ( 溶離液 : トルエン ) で精製して中間体 B を得た ( 9 . 1 g )。

30

## 【化 1 4 9】

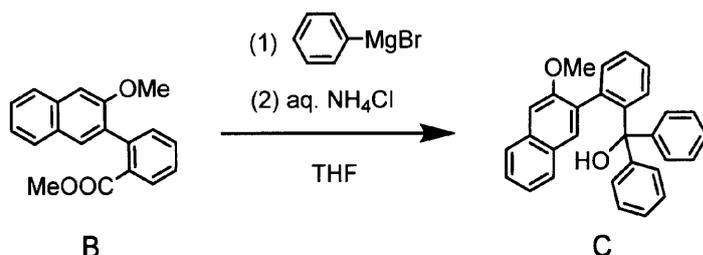


40

## 【0 4 0 5】

窒素雰囲気下、中間体 B ( 9 . 1 g ) およびテトラヒドロフラン ( T H F、2 1 m L ) をフラスコに入れて、氷浴で冷却した後、窒素雰囲気下、1 M の臭化フェニルマグネシウム / T H F 溶液 ( 9 4 m L ) を滴下して、3 時間還流温度で撹拌した。冷却後、飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて反応を停止させた後、酢酸エチルを加えて溶媒抽出した。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、粗体をシリカゲルカラム ( 溶離液 : トルエン ) で精製して中間体 C を得た ( 1 2 . 3 g )。

## 【化 1 5 0】

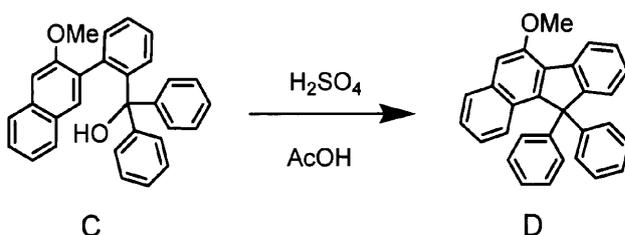


## 【 0 4 0 6】

10

窒素雰囲気下、フラスコに中間体 C ( 1 2 . 3 g ) および酢酸 ( 1 1 7 m L ) をフラスコに入れて、そこへ濃硫酸を一滴加えた後、窒素雰囲気下、90 で 3 時間攪拌した。冷却後に水を加えた後に沈殿物をろ過し、沈殿物を水洗して乾燥することで中間体 D を得た ( 1 0 . 6 g ) 。

## 【化 1 5 1】

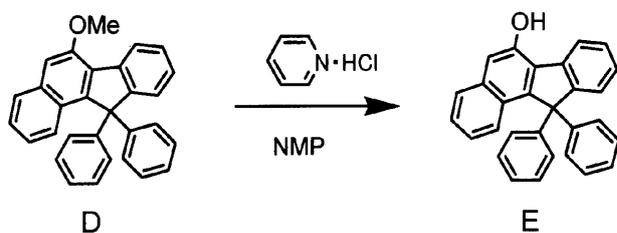


20

## 【 0 4 0 7】

窒素雰囲気下、中間体 D ( 1 0 . 6 g ) 、ピリジン塩酸塩 ( 1 5 . 4 g ) および N - メチルピロリドン ( NMP , 1 0 m L ) をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、185 で 4 時間攪拌した。冷却して、水を加えた後に沈殿物をろ過し、沈殿物を水洗して乾燥することで中間体 E を得た ( 1 0 . 1 g ) 。

## 【化 1 5 2】



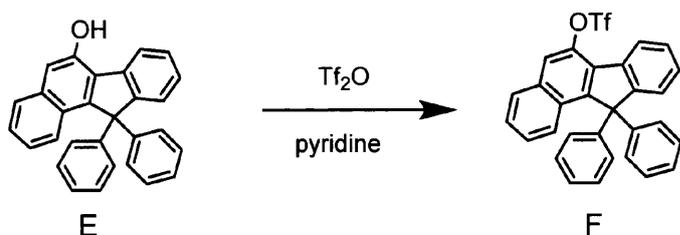
30

## 【 0 4 0 8】

窒素雰囲気下、中間体 E ( 1 0 g ) およびピリジン ( 1 0 0 m L ) をフラスコに入れ、氷浴で冷却した後、窒素雰囲気下、トリフルオロメタンスルホン酸無水物 ( 1 8 . 3 g ) を滴下した。そのまま 3 時間攪拌した後に、水を加えて反応を停止した。沈殿物をろ過してシリカゲルショートカラム ( 溶離液 : トルエン ) で精製することで、中間体 F を得た ( 1 3 . 4 g ) 。

40

## 【化 1 5 3】



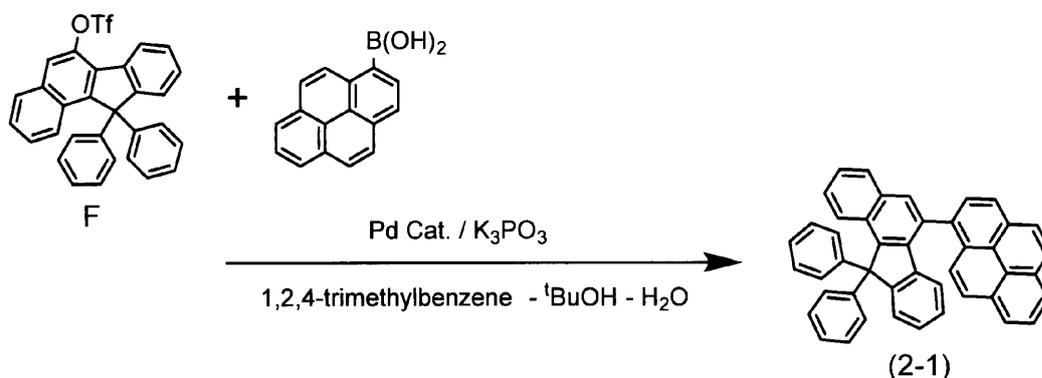
## 【 0 4 0 9】

10

窒素雰囲気下、中間体 F (3 g)、1 - ピレンボロン酸 (2.1 g)、リン酸カリウム (2.5 g)、パラジウム触媒としてテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0.2 g)、1, 2, 4 - トリメチルベンゼン (24 mL)、t - ブチルアルコール (3 mL) および水 (1.5 mL) をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、還流温度で 4 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却して水を加え、さらにトルエンを加えて分液抽出した。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、粗体をシリカゲルカラム (溶離液: トルエン / ヘプタン = 3 / 1 (容量比)) で精製した後に、昇華精製することで、化合物 (2 - 1) を得た (1.2 g)。

## 【化 1 5 4】

20



30

## 【 0 4 1 0】

NMR 測定により得られた化合物 (2 - 1) の構造を確認した。

<sup>1</sup>H - NMR (CDCl<sub>3</sub>): 6.0 (d, 1H)、6.6 (dt, 1H)、7.0 (dt, 1H)、7.2 ~ 7.5 (m, 13H)、7.9 ~ 8.0 (m, 5H)、8.0 (t, 1H)、8.2 ~ 8.3 (m, 5H)、8.4 (d, 1H)。

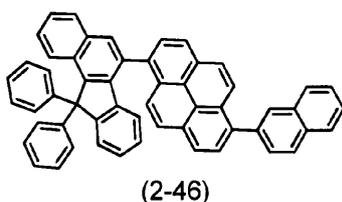
## 【 0 4 1 1】

合成例 (5)

化合物 (2 - 46): 6 - (6 - (ナフタレン - 2 - イル)ピレン - 1 - イル) - 11, 11 - ジフェニル - 11H - ベンゾ [a] フルオレンの合成

## 【化 1 5 5】

40



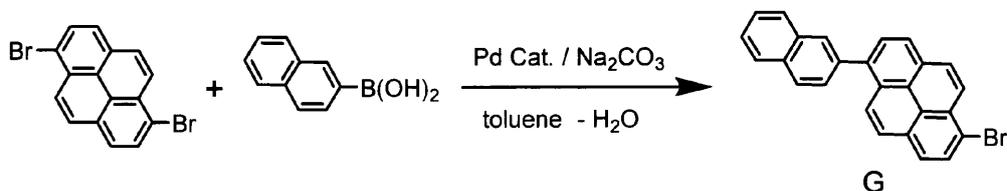
## 【 0 4 1 2】

窒素雰囲気下、1, 6 - ジプロモピレン (3.5 g)、2 - ナフチルボロン酸 (1.7 g)、炭酸カリウム (2.7 g)、パラジウム触媒としてテトラキス(トリフェニルホス

50

フィン)パラジウム(0.3g)、トルエン(35mL)、および水(9mL)をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、還流温度で3時間撹拌した。反応液を室温まで冷却し水を加え、さらにトルエンを加えて分液抽出した。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、粗体をシリカゲルカラム(溶離液:トルエン/ヘプタン=6/1(容量比))で精製して中間体Gを得た(2.1g)。

【化156】



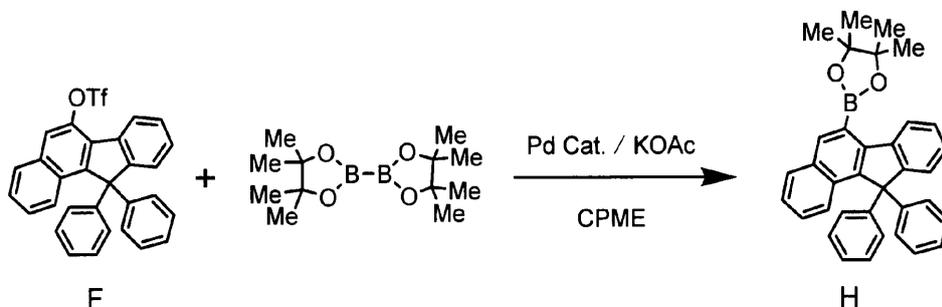
10

【0413】

窒素雰囲気下、中間体F(7g)、ビス(ピナコラート)ジボロン(4.1g)、酢酸カリウム(4.0g)、パラジウム触媒として(1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン)パラジウム(II)ジクロリド・ジクロロメタン錯体(0.3g)およびシクロペンチルメチルエーテル(CPME、67mL)をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、還流温度で4時間撹拌した。反応液を室温まで冷却し水を加え、さらに酢酸エチルを加えて分液抽出した。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、活性炭ショートカラム(溶離液:トルエン)で精製して中間体Hを得た(4.6g)。

20

【化157】



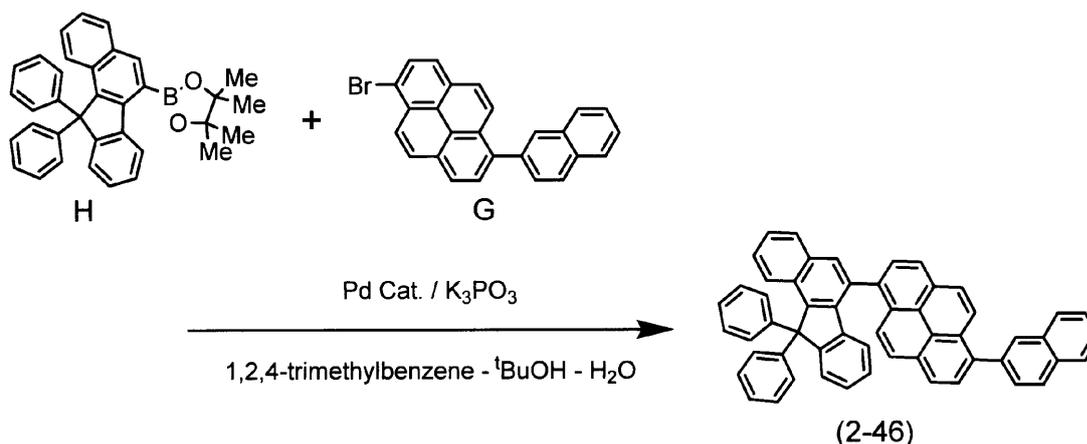
30

【0414】

窒素雰囲気下、中間体G(0.8g)、中間体H(0.9g)、リン酸カリウム(0.9g)、パラジウム触媒としてテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0.1g)、1,2,4-トリメチルベンゼン(12mL)、t-ブチルアルコール(2mL)および水(1mL)をフラスコに入れ、窒素雰囲気下、還流温度で14時間撹拌した。反応液を室温まで冷却して水を加え、さらにトルエンを加えて分液抽出を行った。有機層を分離後、乾燥、濃縮し、粗体をシリカゲルカラム(溶離液:トルエン/ヘプタン=1/3(容量比))で精製した後、昇華精製することで、化合物(2-46)を得た(1.0g)。

40

## 【化 1 5 8】



10

## 【 0 4 1 5】

NMR測定により得られた化合物(2-46)の構造を確認した。

$^1H$ -NMR( $CDCl_3$ ): 6.0 (d, 1H)、6.6 (dt, 1H)、7.0 (dt, 1H)、7.2~7.6 (m, 15H)、7.8~8.2 (m, 14H)、8.2~8.3 (m, 2H)。

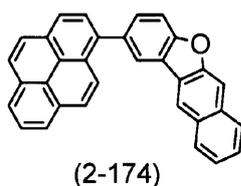
20

## 【 0 4 1 6】

合成例(6)

化合物(2-174): 2-(ピレン-1-イル)ナフト[2,3-b]ベンゾフランの合成

## 【化 1 5 9】



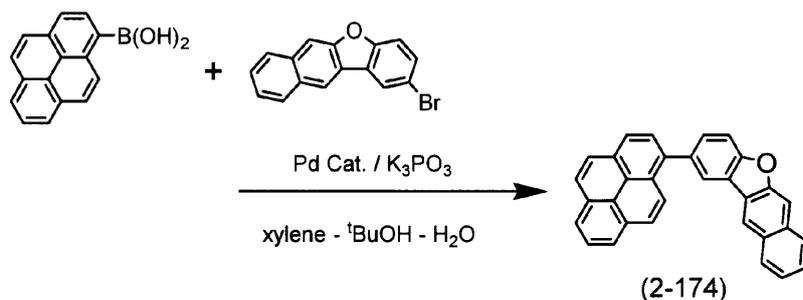
30

## 【 0 4 1 7】

窒素雰囲気下、1-ピレンボロン酸(1.0g)、国際公開第2014/141725号公報に記載の方法で合成した、2-ブロモベンゾ[b]ナフト[2,3-d]フラン(1.1g)、パラジウム触媒としてテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0.09g)、リン酸カリウム(1.7g)、キシレン(15mL)、*t*-ブチルアルコール(5mL)および水(3mL)をフラスコに入れ、還流温度で2時間加熱攪拌した。反応後、冷却して反応液に水と酢酸エチルを加えて攪拌した後に沈殿物をろ過し、水、メタノールで粗体を洗浄した。沈殿物を乾燥後、クロロベンゼンに加熱溶解させた後にシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)でろ過し、その溶出液を濃縮することで得られる固体を、さらにクロロベンゼン/再沈殿で精製した。得られた固体を乾燥後、昇華精製することで化合物(2-174)を得た(1.0g)。

40

## 【化160】



10

## 【0418】

NMR測定により得られた化合物(2-174)の構造を確認した。

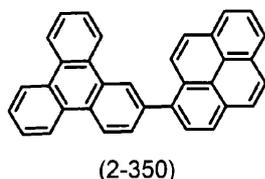
$^1\text{H-NMR}$  ( $CDCl_3$ ) : 7.5 (m, 1H)、7.5~7.6 (m, 1H)、7.7~7.8 (m, 2H)、8.0~8.3 (m, 13H)、8.5 (s, 1H)。

## 【0419】

合成例(7)

化合物(2-350) : 2-(ピレン-1-イル)トリフェニレンの合成

## 【化161】



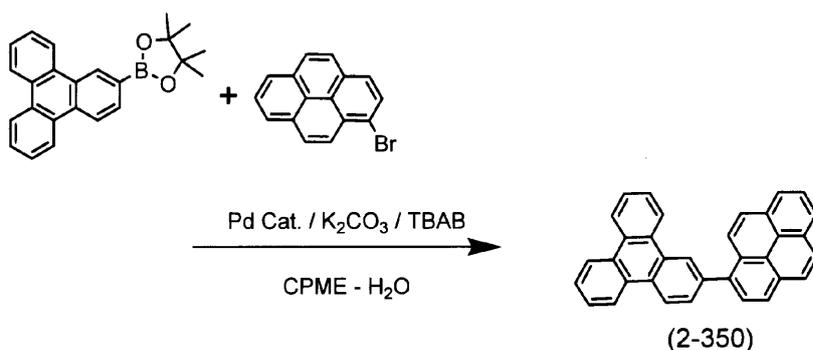
20

## 【0420】

窒素雰囲気下、フラスコに4,4,5,5-テトラメチル-2-(トリフェニレン-2-イル)-1,3,2-ジオキサボロラン(3.0g)、1-ブロモピレン(2.2g)、パラジウム触媒としてクロロフェニルアリル[1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾール-2-イリデン]パラジウム(II)(25mg)、炭酸カリウム(2.2g)、臭化テトラブチルアンモニウム(TBAB, 0.8g)、シクロペンチルメチルエーテル(CPME, 20mL)および水(2mL)をフラスコに入れ、還流温度で2時間加熱攪拌した。反応後、冷却して反応液に水を加えて攪拌した後に、沈殿物をろ過した。沈殿物を乾燥後、クロロベンゼンに加熱溶解させた後にシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)でろ過し、その溶出液を濃縮することで得られる固体をろ過して、乾燥後昇華精製することで化合物(2-350)を得た(3.3g)。

30

## 【化162】



40

## 【0421】

NMR測定により得られた化合物(2-350)の構造を確認した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $CDCl_3$ ) : 7.6~7.7 (m, 4H)、7.9 (dd, 1H)、8

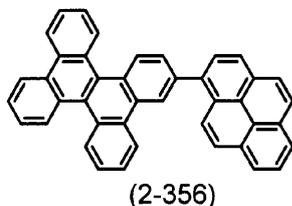
50

. 0 (m, 2H)、8.1~8.2 (m, 4H)、8.2 (m, 1H)、8.3 (m, 2H)、8.7~8.8 (m, 4H)、8.8 (d, 1H)、8.9 (d, 1H)。

【0422】

合成例(8)

化合物(2-356): 2-(ピレン-1-イル)ジベンゾ[g,p]クリセンの合成  
【化163】



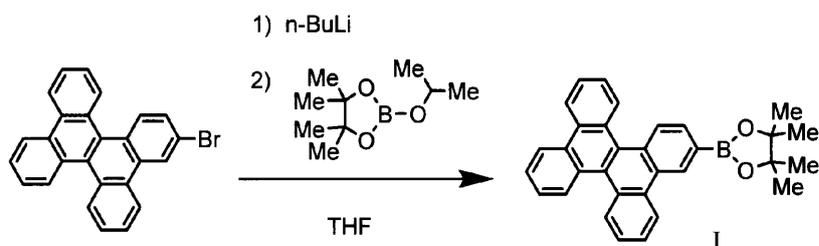
10

【0423】

窒素雰囲気下、特許公開2011-006397号公報に記載の方法で合成した3-プロモジベンゾ[g,p]クリセン(14g)およびテトラヒドロフラン(THF、200mL)をフラスコに入れ、均一溶液にした後、ドライアイス-アセトン浴で-78度に冷却して、1.6Mのn-ブチルリチウム/ヘキサン溶液(28mL)を滴下した。同温度で0.5時間攪拌した後に、2-イソプロポキシ-4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン(12.8g)を加えた。同温度で3時間攪拌した後に、昇温して希塩酸を加えて反応を停止した。トルエンを加え、抽出した後に有機層を濃縮し、得られた粗体をシリカゲルカラム(溶離液:トルエン/ヘプタン=7/3(容量比))で精製することで、中間体Iを得た(11.5g)。

20

【化164】



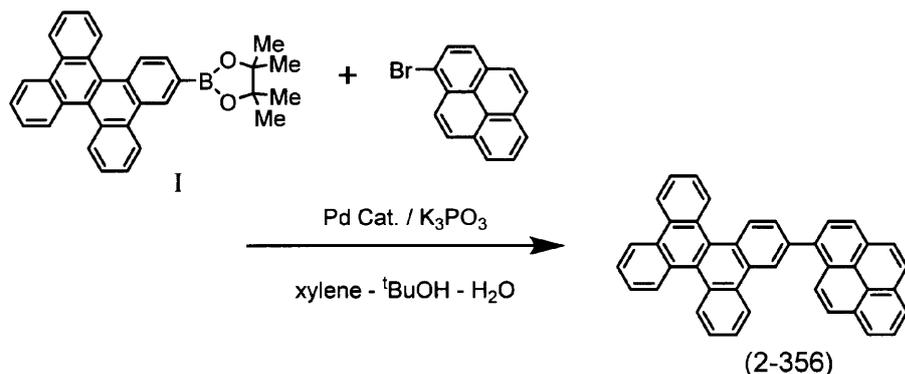
30

【0424】

窒素雰囲気下、中間体I(1.0g)、1-プロモピレン(0.59g)、パラジウム触媒としてビス(ジ-t-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(16mg)、リン酸カリウム(0.9g)、キシレン(10mL)、t-ブチルアルコール(3mL)および水(2mL)をフラスコに入れ、還流温度で2時間攪拌した。反応後、反応液を冷却して水、酢酸エチルを加えて攪拌した後に、析出した沈殿物をろ過した。得られた粗体をシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)で精製した後に、トルエン/ヘプタンで再沈殿を行い精製した。得られた固体を乾燥後、昇華精製することで化合物(2-356)を得た(0.7g)。

40

## 【化 1 6 5】



10

## 【 0 4 2 5】

NMR測定により得られた化合物(2-356)の構造を確認した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $CDCl_3$ ): 7.7 (m, 6H)、7.9 (dd, 1H) 8.0 ~ 8.1 (m, 2H)、8.1 ~ 8.3 (m, 5H)、8.3 (d, 1H)、8.4 (d, 1H)、8.7 ~ 8.8 (m, 5H)、8.9 (m, 1H)、8.9 (d, 1H)、9.0 (d, 1H)。

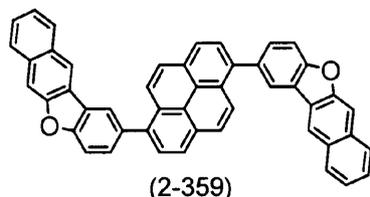
## 【 0 4 2 6】

合成例(9)

化合物(2-359): 1,6-ビス(ナフト[2,3-b]ベンゾフラン-2-イル)-3a<sup>1</sup>,5a<sup>1</sup>-ジヒドロピレンの合成

20

## 【化 1 6 6】



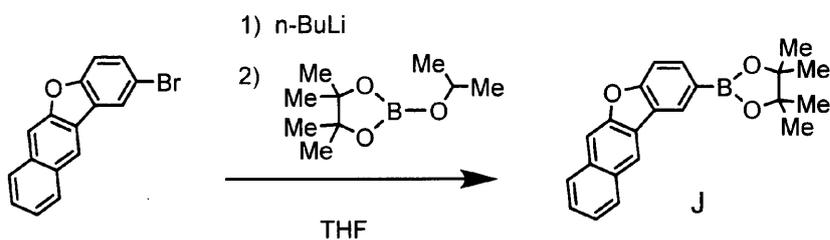
30

## 【 0 4 2 7】

窒素雰囲気下、国際公開第2014/141725号公報に記載の方法で合成した、2-プロモベンゾ[b]ナフト[2,3-d]フラン(10.8g)とテトラヒドロフラン(THF、200mL)をフラスコに入れ、ドライアイス-アセトン浴で-78に冷却した。そこへ1.6M、n-ブチルリチウム/ヘプタン溶液(25mL)を滴下した。同温度で1時間攪拌した後に、2-イソプロポキシ-4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン(10g)を加えた。同温度で2時間攪拌した後に、昇温して希塩酸を加えて反応を停止した。トルエンを加え、抽出した後に有機層を濃縮し、得られた粗体をシリカゲルカラム(溶離液:トルエン/ヘプタン=7/3(容量比))で精製することで、中間体Jを得た(9.2g)。

40

## 【化 1 6 7】

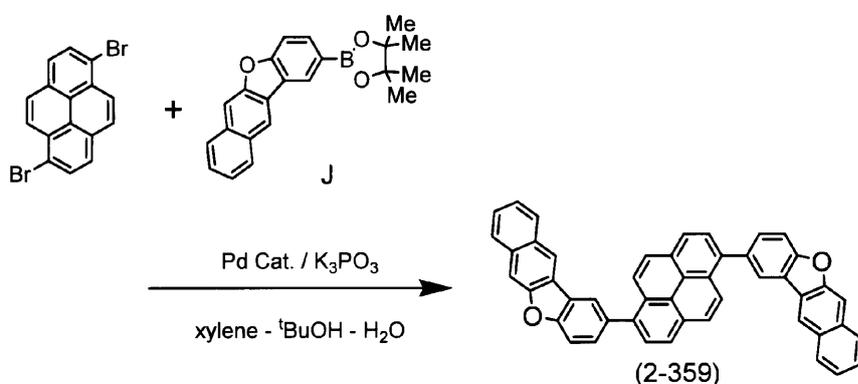


## 【 0 4 2 8】

50

窒素雰囲気下、1,6-ジブロモピレン(1.0g)、中間体J(2.0g)、パラジウム触媒としてビス(ジ-t-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(20mg)、リン酸カリウム(2.4g)、キシレン(15mL)、t-ブチルアルコール(3mL)および水(2mL)をフラスコに入れ、還流温度で2時間攪拌した。反応後、反応液を冷却して水、酢酸エチルを加えて攪拌した後、析出した沈殿物をろ過した。得られた粗体をシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)で精製した後に、熱クロロベンゼンで洗浄し精製した。得られた固体を乾燥後、昇華精製することで化合物(2-359)を得た(1.6g)。

【化168】



10

20

【0429】

LC-MS測定により得られた化合物(2-359)を確認した。

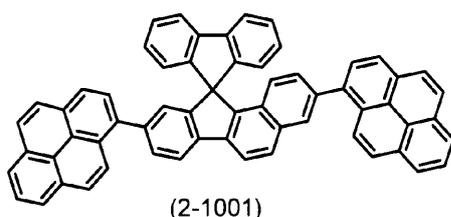
MS(ACPI)  $m/z = 635 (M+H)$

【0430】

合成例(10)

化合物(2-1001): 3,9-ジ(ピレン-1-イル)スピロ[ベンゾ[a]フルオレン-11,9'-フルオレン]の合成

【化169】



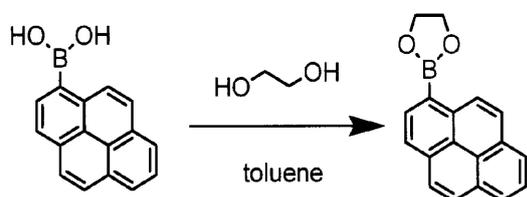
30

【0431】

窒素雰囲気下、ピレン-1-ボロン酸(5g)、エチレングリコール(3.8g)およびトルエン(30mL)の入ったフラスコを、還流温度で3時間攪拌した。反応後冷却して、水を加えて攪拌し、有機層を分離した後、有機層を減圧濃縮して粗体を得た。粗体をシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)に通した後に、溶出液を濃縮することで2-(ピレン-1-イル)-1,3,2-ジオキサボロランを得た(4.2g)。

40

【化170】



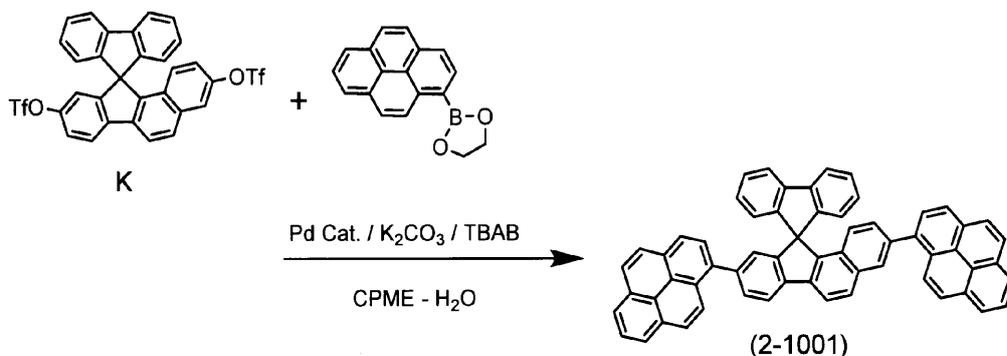
【0432】

50

窒素雰囲気下、特許公開2009-184993号公報記載の方法で合成した中間体K (3.8 g)、2-(ピレン-1-イル)-1,3,2-ジオキサボロラン(3.3 g)、パラジウム触媒としてクロロフェニルアリル[1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾール-2-イリデン]パラジウム(II)(19 mg)、炭酸カリウム(3.2 g)、臭化テトラブチルアンモニウム(TBAB、0.6 g)、シクロペンチルメチルエーテル(CPME、20 mL)および水(2 mL)をフラスコに入れ、還流温度で9時間加熱攪拌した。反応後、冷却して反応液に水を加えて攪拌した後に、沈殿物をろ過した。沈殿物を乾燥後、クロロベンゼンに加熱溶解させた後にシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)でろ過し、その溶出液を濃縮することによって得られる固体をろ過して、乾燥後、昇華精製することで化合物(2-1001)を得た(2.2 g)。

10

【化171】



20

【0433】

NMR測定により得られた化合物(2-1001)の構造を確認した。

$^1\text{H-NMR}$  (CDCl<sub>3</sub>): 6.9~7.0 (m, 4H)、7.2 (t, 2H)、7.4 (dd, 1H)、7.4 (dt, 2H)、7.7 (dd, 1H)、7.8~7.9 (m, 2H)、7.9~8.1 (m, 9H)、8.1~8.2 (m, 13H)。

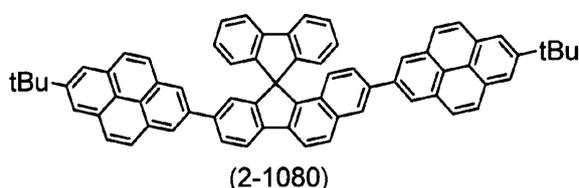
【0434】

合成例(11)

化合物(2-1080): 3,9-ビス(7-(*t*-ブチル)ピレン-2-イル)スピロ[ベンゾ[*a*]フルオレン-11,9'-フルオレン]の合成

30

【化172】

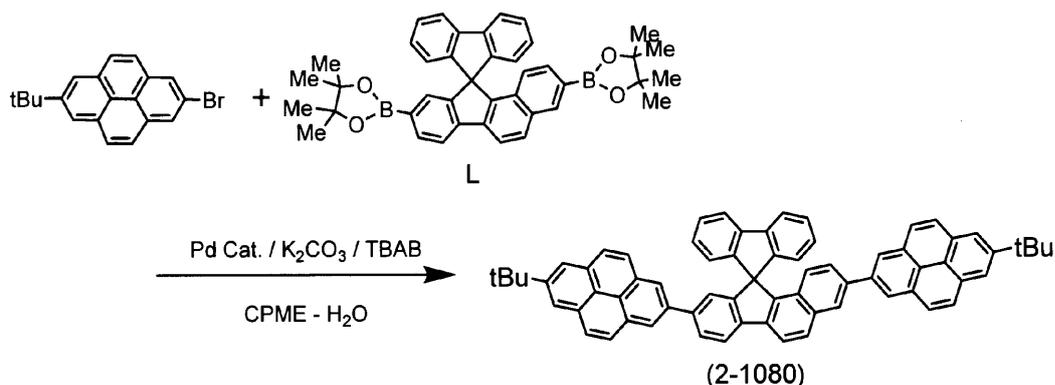


【0435】

窒素雰囲気下、国際公開第2015/141608号公報に記載の方法で合成した中間体L(1.7 g)、2-ブromo-7-(*t*-ブチル)ピレン(2 g)、パラジウム触媒としてクロロフェニルアリル[1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾール-2-イリデン]パラジウム(II)(9 mg)、炭酸カリウム(1.6 g)、臭化テトラブチルアンモニウム(TBAB、0.3 g)、シクロペンチルメチルエーテル(CPME、20 mL)および水(2 mL)をフラスコに入れ、還流温度で4時間加熱攪拌した。反応後、冷却して反応液に水を加えて攪拌した後に、沈殿物をろ過した。沈殿物を乾燥後、クロロベンゼンに加熱溶解させた後にシリカゲルショートカラム(溶離液:トルエン)でろ過し、その溶出液を濃縮することによって得られる固体をろ過して、乾燥後、昇華精製することで化合物(2-1080)を得た(1.6 g)。

40

## 【化 1 7 3】



10

## 【 0 4 3 6】

NMR測定により得られた化合物(2-1080)の構造を確認した。

$^1\text{H-NMR}$  (CDCl<sub>3</sub>) : 1.6 (s, 9H)、1.6 (s, 9H)、6.9 (d, 2H)、6.9 (d, 1H)、7.1 (dt, 2H)、7.2 (d, 1H)、7.5 (dt, 2H)、7.6 (dd, 1H)、7.9 (dd, 1H)、8.0~8.2 (m, 19H)、8.3 (s, 3H)。

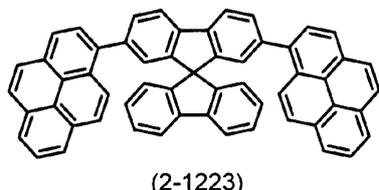
## 【 0 4 3 7】

合成例(12)

化合物(2-1223)の合成

20

## 【化 1 7 4】



化合物(2-1223)は、上記合成例(10)に記載された方法に準じて合成した。

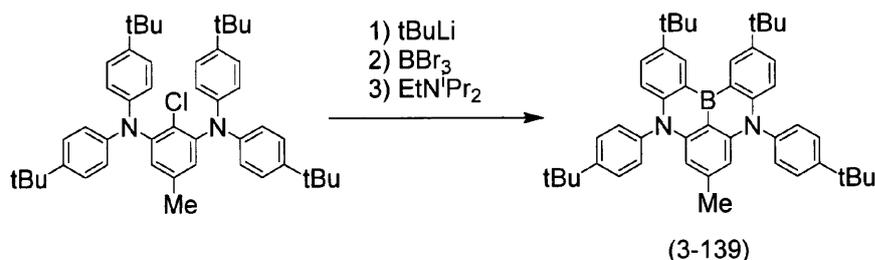
30

## 【 0 4 3 8】

合成例(13)

化合物(3-139) : 2, 12-ジ-tert-ブチル-5, 9-ビス(4-(tert-ブチル)フェニル)-7-メチル-5, 9-ジヒドロ-5, 9-ジアザ-13b-ボラナフト[3, 2, 1-de]アントラセンの合成

## 【化 1 7 5】



40

化合物(3-139)は、国際公開第2015/102118号公報の「合成例(32)」に記載された方法に準じて合成した。

## 【 0 4 3 9】

NMR測定により得られた化合物の構造を確認した。

$^1\text{H-NMR}$  (500MHz, CDCl<sub>3</sub>) : = 1.47 (s, 36H)、2.17 (s, 3H)、5.97 (s, 2H)、6.68 (d, 2H)、7.28 (d, 4H)、

50

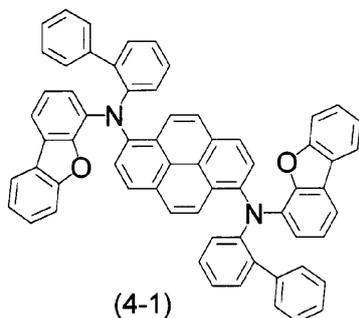
7.49 (dd, 2H)、7.67 (d, 4H)、8.97 (d, 2H) .

【0440】

合成例(14)

化合物(4-1)の合成

【化176】



10

化合物(4-1)は、特開2013-080961号公報の「製造例8」に記載された方法に準じて合成した。

【0441】

原料の化合物を適宜変更することにより、上述した合成例に準じた方法で、本発明の他の化合物を合成することができる。

20

【0442】

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

【0443】

実施例1~7および比較例1~11に係る有機EL素子を作製し、それぞれ特定の輝度発光時の電圧(V)、発光波長(nm)、CIE色度(x, y)、外部量子効率(%)を測定した。また特定の輝度を保持する時間(素子寿命)も測定した。

【0444】

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

30

【0445】

外部量子効率の測定方法は次の通りである。アドバンテスト社製電圧/電流発生器R6144を用いて、素子の輝度が1000cd/m<sup>2</sup>、100cd/m<sup>2</sup>および10cd/m<sup>2</sup>になる電圧を印加して素子を発光させた。TOPCON社製分光放射輝度計SR-3ARを用いて、発光面に対して垂直方向から可視光領域の分光放射輝度を測定した。発光面が完全拡散面であると仮定して、測定した各波長成分の分光放射輝度の値を波長エネルギーで割って を掛けた数値が各波長におけるフォトン数である。次いで、観測した全波長領域でフォトン数を積算し、素子から放出された全フォトン数とした。印加電流値を素電荷で割った数値を素子へ注入したキャリア数として、素子から放出された全フォトン数を素子へ注入したキャリア数で割った数値が外部量子効率である。

40

【0446】

作製した実施例1~7および比較例1~11に係る有機EL素子における各層の材料構成、およびEL特性データを下記表1~4に示す。

【0447】

【表 1】

実施例	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層1 (15nm)	正孔輸送層2 (10nm)	発光層1 (12.5nm)		発光層2 (12.5nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
					ホスト1 (濃度; 質量%)	ドーパント1 (濃度; 質量%)	ホスト2 (濃度; 質量%)	ドーパント2 (濃度; 質量%)			
1	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1001 (98)	3-139 (2)	1-134-O (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq/MgAg
2	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1001 (98)	3-139 (2)	1-195 (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq/MgAg
3	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1001 (98)	4-1 (2)	1-134-O (98)	4-1 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq/MgAg
4	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-174 (98)	3-139 (2)	1-134-O (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq/MgAg
5	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1223 (98)	3-139 (2)	1-134-O (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq/MgAg

実施例	1000 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		100 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		10 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		輝度が初期輝度の90%を保持する時間 (hr)
	波長 (nm)	色度 (x, y)	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	
1	464	(0.129, 0.106)	3.9	7.1	7.0	6.6	1016
2	463	(0.131, 0.099)	4.0	6.9	6.1	4.0	1460
3	460	(0.136, 0.132)	3.8	6.3	6.1	5.8	-
4	462	(0.131, 0.089)	3.9	6.6	6.5	6.0	1500 以上
5	463	(0.131, 0.098)	3.7	6.9	6.7	6.0	-

【 表 2 】

実施例	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層1 (15nm)	正孔輸送層2 (10nm)	発光層1 (5nm)		発光層2 (20nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
					ホスト1 (濃度; 質量%)	ドーパント1 (濃度; 質量%)	ホスト2 (濃度; 質量%)	ドーパント2 (濃度; 質量%)			
6	HI	HAT-QN	HT-1	HT-2	2-1080 (96)	3-139 (4)	1-134-O (96)	3-139 (4)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq/MgAg

実施例	1000 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		100 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		10 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性	
	波長 (nm)	色度 (x, y)	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)
6	463	(0.131, 0.091)	3.7	6.9	7.0	6.9

実施例	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層 (25nm)	正孔輸送層 (25nm)	発光層1 (12.5nm)		発光層2 (12.5nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
					ホスト1 (濃度; 質量%)	ドーパント1 (濃度; 質量%)	ホスト2 (濃度; 質量%)	ドーパント2 (濃度; 質量%)			
7	HI	HAT-QN	HT-1	HT-1	2-1001 (98)	3-139 (2)	1-199 (98)	3-139 (2)	ET-2	ET-4 + Liq	Liq/MgAg

実施例	1000 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		100 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		10 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性	
	波長 (nm)	色度 (x, y)	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)
7	464	(0.129, 0.109)	3.8	7.6	7.0	6.4

【表 3】

比較例	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層1 (15nm)	正孔輸送層2 (10nm)	発光層 (25nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
					ホスト (濃度; 質量%)	ドーパント (濃度; 質量%)			
1	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	1-134-O (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg
2	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1001 (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg
3	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	1-195 (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg
4	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	1-134-O (98)	4-1 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg
5	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1001 (98)	4-1 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg
6	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-174 (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg
7	HI	HAT-ON	HT-1	HT-2	2-1223 (98)	3-139 (2)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MgAg

【 0 4 5 0 】

比較例	1000 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性			100 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		10 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		輝度が初期輝度の90%を保持する時間 (hr)
	波長 (nm)	色度 (x, y)	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	
1	461	(0.131, 0.084)	3.9	6.7	6.7	6.0	6.0	501
2	466	(0.131, 0.125)	4.1	5.7	5.0	4.0	4.0	161
3	460	(0.134, 0.075)	4.3	6.7	5.9	3.3	3.3	1056
4	459	(0.134, 0.119)	3.6	6.0	5.4	5.1	5.1	-
5	461	(0.138, 0.145)	4.1	4.5	3.3	2.0	2.0	-
6	462	(0.132, 0.085)	4.1	5.7	5.1	3.4	3.4	193
7	465	(0.131, 0.112)	4.0	5.8	4.7	3.1	3.1	-

10

20

30

40

【表 4】

比較例	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層1 (15nm)	正孔輸送層2 (10nm)	発光層 (25nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
					ホスト (濃度; 質量%)	ドーパント (濃度; 質量%)			
8	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	1-134-O (96)	3-139 (4)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MeAg
9	HI	HAT-CN	HT-1	HT-2	2-1080 (96)	3-139 (4)	ET-1	ET-3 + Liq	Liq / MeAg

比較例	1000 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性			100 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		10 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性	
	波長 (nm)	色度 (x, y)	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)
8	462	(0.132, 0.085)	3.8	6.1	6.1	5.8	
9	465	(0.129, 0.103)	3.9	6.0	5.9	5.5	

比較例	正孔注入層1 (40nm)	正孔注入層2 (5nm)	正孔輸送層 (25nm)	発光層 (25nm)		電子輸送層1 (5nm)	電子輸送層2 (25nm)	陰極 (1nm/100nm)
				ホスト (濃度; 質量%)	ドーパント (濃度; 質量%)			
10	HI	HAT-CN	HT-1	1-199 (98)	3-139 (2)	ET-2	ET-4 + Liq	Liq / MeAg
11	HI	HAT-CN	HT-1	2-1001 (98)	3-139 (2)	ET-2	ET-4 + Liq	Liq / MeAg

比較例	1000 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性			100 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性		10 cd/m <sup>2</sup> 時の素子特性	
	波長 (nm)	色度 (x, y)	電圧 (V)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)	外部量子効率 (%)
10	462	(0.131, 0.085)	3.8	6.2	6.3	6.4	
11	466	(0.132, 0.120)	3.7	6.5	5.5	3.4	

【0451】

表1~4において、「HI」はN<sup>4</sup>, N<sup>4'</sup>-ジフェニル-N<sup>4</sup>, N<sup>4'</sup>-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミンであり、「HAT-CN」は1,4,5,8,9,12-ヘキサアザトリフェニレンヘキサカルボニトリルであり、「HT-1」はN-( [1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N-(4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル)-[1

10

20

30

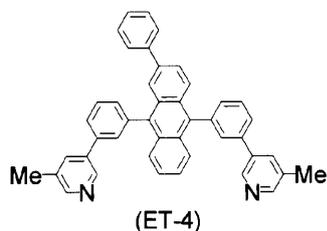
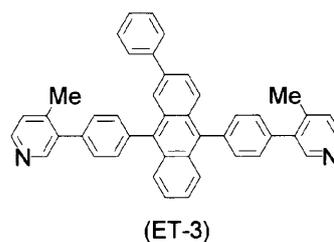
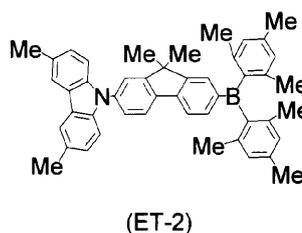
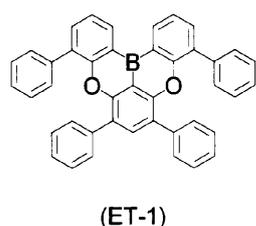
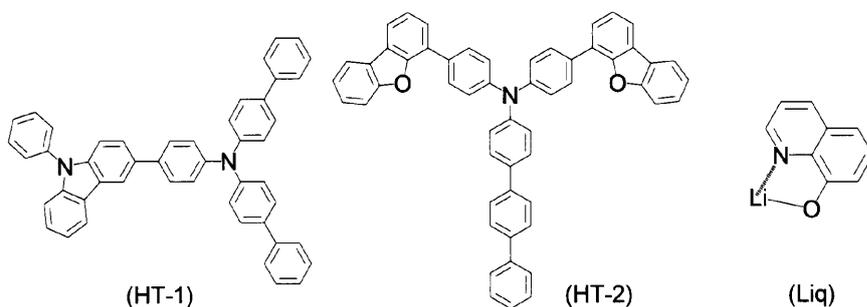
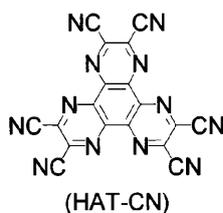
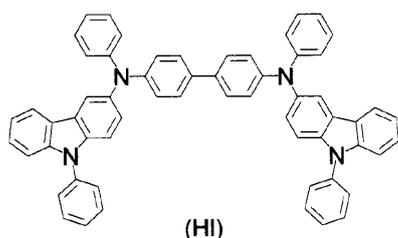
40

50

, 1'-ピフェニル]-4-アミンであり、「HT-2」はN,N-ビス(4-(ジベンゾ[b,d]フラン-4-イル)フェニル)-[1,1':4',1''-テルフェニル]-4-アミンであり、「ET-1」は4,6,8,10-テトラフェニル[1,4]ベンゾキサポリキノ[2,3,4-kl]フェノキサポリニンであり、「ET-2」は9-{7-[ビス(2,4,6-トリメチルフェニル)ボラニル]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル}-3,6-ジメチル-9H-カルバゾールであり、「ET-3」は3,3'-(2-フェニルアントラセン-9,10-ジイル)ビス(4,1-フェニレン)ビス(4-メチルピリジン)であり、「ET-4」は3,3'-(2-フェニルアントラセン-9,10-ジイル)ジベンゼン-3,1-ジイル]ビス(5-メチルピリジン)である。「Liq」と共に以下に化学構造を示す。

【0452】

【化177】



【0453】

<実施例1>

<ホスト材料：化合物(2-1001)および化合物(1-134-O)の素子>

スパッタリングにより180nmの厚さに製膜したITOを150nmまで研磨した、26mm×28mm×0.7mmのガラス基板((株)オプトサイエンス製)を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置(昭和真空(株)製)の基板ホルダーに固定し、HI、HAT-CN、HT-1、HT-2、化合物(2-1001)、化合物(1-134-O)、化合物(3-139)、ET-1およびET-3をそれぞれ入れたモ

10

20

30

40

50

リブデン製蒸着用ポート、Li q、マグネシウムおよび銀をそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

【0454】

透明支持基板のITO膜の上に順次、表1に示すように、下記各層を形成した。真空槽を $5 \times 10^{-4}$  Paまで減圧し、HI、HAT-CN、HT-1およびHT-2の順に蒸着して、正孔注入層1（膜厚40 nm）、正孔注入層2（膜厚5 nm）、正孔輸送層1（膜厚15 nm）および正孔輸送層2（膜厚10 nm）を形成した。次に、化合物（2-1001）と化合物（3-139）を同時に加熱して膜厚12.5 nmになるように蒸着して発光層1を形成した。化合物（2-1001）と化合物（3-139）の質量比がおよそ98対2になるように蒸着速度を調節した。次に、化合物（1-134-O）と化合物（3-139）を同時に加熱して膜厚12.5 nmになるように蒸着して発光層2を形成した。化合物（1-134-O）と化合物（3-139）の質量比がおよそ98対2になるように蒸着速度を調節した。次に、ET-1を加熱して膜厚5 nmになるように蒸着して電子輸送層1を形成した。次に、ET-3とLi qを同時に加熱して膜厚25 nmになるように蒸着して電子輸送層2を形成した。ET-3とLi qの質量比がおよそ50対50になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は0.01~1 nm/秒であった。その後、Li qを加熱して膜厚1 nmになるように0.01~0.1 nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムと銀を同時に加熱して膜厚100 nmになるように蒸着して陰極を形成し、有機EL素子を得た。このとき、マグネシウムと銀の原子数比が10対1となるように0.1~10 nm/秒の間で蒸着速度を調節した。

10

20

【0455】

ITO電極を陽極、マグネシウム/銀電極を陰極として直流電圧を印加し、 $1000 \text{ cd/m}^2$  発光時の特性を測定したところ、表1に示すように、駆動電圧は3.9 V、外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は7.1%であり、波長464 nm、CIE色度 $(x, y) = (0.129, 0.106)$ の青色発光が得られた。また、 $100 \text{ cd/m}^2$  発光時の外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は7.0%であり、 $10 \text{ cd/m}^2$  発光時の外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は6.6%であった。次に、作製した素子を低電流駆動試験（電流密度 $= 10 \text{ mA/cm}^2$ ）したところ、初期輝度の90%以上の輝度を保持する時間は1016時間であった。

【0456】

<実施例2~5>

実施例1に準じて、表1に記載した層構成で各有機EL素子を製造し、EL特性データを測定した（表1）。

30

【0457】

<実施例6>

<ホスト材料：化合物（2-1080）および化合物（1-134-O）の素子>

スパッタリングにより180 nmの厚さに製膜したITOを150 nmまで研磨した、 $26 \text{ mm} \times 28 \text{ mm} \times 0.7 \text{ mm}$ のガラス基板（株）オプトサイエンス製）を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置（昭和真空（株）製）の基板ホルダーに固定し、HI、HAT-CN、HT-1、HT-2、化合物（2-1080）、化合物（1-134-O）、化合物（3-139）、ET-1およびET-3をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ポート、Li q、マグネシウムおよび銀をそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

40

【0458】

透明支持基板のITO膜の上に順次、表2に示すように、下記各層を形成した。真空槽を $5 \times 10^{-4}$  Paまで減圧し、HI、HAT-CN、HT-1およびHT-2の順に蒸着して、正孔注入層1（膜厚40 nm）、正孔注入層2（膜厚5 nm）、正孔輸送層1（膜厚15 nm）および正孔輸送層2（膜厚10 nm）を形成した。次に、化合物（2-1080）と化合物（3-139）を同時に加熱して膜厚5 nmになるように蒸着して発光層1を形成した。化合物（2-1080）と化合物（3-139）の質量比がおよそ96対4になるように蒸着速度を調節した。次に、化合物（1-134-O）と化合物（3-

50

139)を同時に加熱して膜厚20nmになるように蒸着して発光層2を形成した。化合物(1-134-0)と化合物(3-139)の質量比がおよそ96対4になるように蒸着速度を調節した。次に、ET-1を加熱して膜厚5nmになるように蒸着して電子輸送層1を形成した。次に、ET-3とLi qを同時に加熱して膜厚25nmになるように蒸着して電子輸送層2を形成した。ET-3とLi qの質量比がおよそ50対50になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は0.01~1nm/秒であった。その後、Li qを加熱して膜厚1nmになるように0.01~0.1nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムと銀を同時に加熱して膜厚100nmになるように蒸着して陰極を形成し、有機EL素子を得た。このとき、マグネシウムと銀の原子数比が10対1となるように0.1~10nm/秒の間で蒸着速度を調節した。

10

## 【0459】

I T O電極を陽極、マグネシウム/銀電極を陰極として直流電圧を印加し、1000cd/m<sup>2</sup>発光時の特性を測定したところ、表2に示すように、駆動電圧は3.7V、外部量子効率(η<sub>ext</sub>)は6.9%であり、波長463nm、CIE色度(x, y) = (0.131, 0.091)の青色発光が得られた。また、100cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率は7.0%であり、10cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率は6.9%であった。

## 【0460】

<実施例7>

<ホスト材料：化合物(2-1001)および化合物(1-199)の素子>

スパッタリングにより180nmの厚さに製膜したI T Oを150nmまで研磨した、26mm×28mm×0.7mmのガラス基板((株)オプトサイエンス製)を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置(昭和真空(株)製)の基板ホルダーに固定し、HI、HAT-CN、HT-1、化合物(2-1001)、化合物(1-199)、化合物(3-139)、ET-2およびET-4をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ポート、Li q、マグネシウムおよび銀をそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

20

## 【0461】

透明支持基板のI T O膜の上に順次、表2に示すように、下記各層を形成した。真空槽を5×10<sup>-4</sup>Paまで減圧し、HI、HAT-CNおよびHT-1の順に蒸着して、正孔注入層1(膜厚40nm)、正孔注入層2(膜厚5nm)および正孔輸送層(膜厚25nm)を形成した。次に、化合物(2-1001)と化合物(3-139)を同時に加熱して膜厚12.5nmになるように蒸着して発光層1を形成した。化合物(2-1001)と化合物(3-139)の質量比がおよそ98対2になるように蒸着速度を調節した。次に、化合物(1-199)と化合物(3-139)を同時に加熱して膜厚12.5nmになるように蒸着して発光層2を形成した。化合物(1-199)と化合物(3-139)の質量比がおよそ98対2になるように蒸着速度を調節した。次に、ET-2を加熱して膜厚5nmになるように蒸着して電子輸送層1を形成した。次に、ET-4とLi qを同時に加熱して膜厚25nmになるように蒸着して電子輸送層2を形成した。ET-4とLi qの質量比がおよそ50対50になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は0.01~1nm/秒であった。その後、Li qを加熱して膜厚1nmになるように0.01~0.1nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムと銀を同時に加熱して膜厚100nmになるように蒸着して陰極を形成し、有機EL素子を得た。このとき、マグネシウムと銀の原子数比が10対1となるように0.1~10nm/秒の間で蒸着速度を調節した。

30

40

## 【0462】

I T O電極を陽極、マグネシウム/銀電極を陰極として直流電圧を印加し、1000cd/m<sup>2</sup>発光時の特性を測定したところ、表2に示すように、駆動電圧は3.8V、外部量子効率(η<sub>ext</sub>)は7.6%であり、波長464nm、CIE色度(x, y) = (0.129, 0.109)の青色発光が得られた。また、100cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率は7.0%であり、10cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率は6.4%であった。

50

## 【0463】

&lt;比較例1&gt;

&lt;ホスト材料：化合物(1-134-O)の素子&gt;

スパッタリングにより180nmの厚さに製膜したITOを150nmまで研磨した、26mm×28mm×0.7mmのガラス基板((株)オプトサイエンス製)を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置(昭和真空(株)製)の基板ホルダーに固定し、HI、HAT-CN、HT-1、HT-2、化合物(1-134-O)、化合物(3-139)、ET-1およびET-3をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ポート、Li q、マグネシウムおよび銀をそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

10

## 【0464】

透明支持基板のITO膜の上に順次、表3に示すように、下記各層を形成した。真空槽を $5 \times 10^{-4}$  Paまで減圧し、HI、HAT-CN、HT-1およびHT-2の順に蒸着して、正孔注入層1(膜厚40nm)、正孔注入層2(膜厚5nm)、正孔輸送層1(膜厚15nm)および正孔輸送層2(膜厚10nm)を形成した。次に、化合物(1-134-O)と化合物(3-139)を同時に加熱して膜厚25nmになるように蒸着して発光層を形成した。化合物(1-134-O)と化合物(3-139)の質量比がおよそ98対2になるように蒸着速度を調節した。次に、ET-1を加熱して膜厚5nmになるように蒸着して電子輸送層1を形成した。次に、ET-3とLi qを同時に加熱して膜厚25nmになるように蒸着して電子輸送層2を形成した。ET-3とLi qの質量比がおよそ50対50になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は0.01~1nm/秒であった。その後、Li qを加熱して膜厚1nmになるように0.01~0.1nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムと銀を同時に加熱して膜厚100nmになるように蒸着して陰極を形成し、有機EL素子を得た。このとき、マグネシウムと銀の原子数比が10対1となるように0.1~10nm/秒の間で蒸着速度を調節した。

20

## 【0465】

ITO電極を陽極、マグネシウム/銀電極を陰極として直流電圧を印加し、 $1000 \text{ cd/m}^2$  発光時の特性を測定したところ、表3に示すように、駆動電圧は3.9V、外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は6.7%であり、波長461nm、CIE色度(x, y) = (0.131, 0.084)の青色発光が得られた。また、 $100 \text{ cd/m}^2$  発光時の外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は6.7%であり、 $10 \text{ cd/m}^2$  発光時の外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は6.0%であった。次に、作製した素子を低電流駆動試験(電流密度 $= 10 \text{ mA/cm}^2$ )したところ、初期輝度の90%以上の輝度を保持する時間は501時間であった。

30

## 【0466】

&lt;比較例2~7&gt;

比較例1に準じて、表3に記載した層構成で各有機EL素子を製造し、EL特性データを測定した(表3)。

## 【0467】

&lt;比較例8&gt;

&lt;ホスト材料：化合物(1-134-O)の素子&gt;

スパッタリングにより180nmの厚さに製膜したITOを150nmまで研磨した、26mm×28mm×0.7mmのガラス基板((株)オプトサイエンス製)を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置(昭和真空(株)製)の基板ホルダーに固定し、HI、HAT-CN、HT-1、HT-2、化合物(1-134-O)、化合物(3-139)、ET-1およびET-3をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ポート、Li q、マグネシウムおよび銀をそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

40

## 【0468】

透明支持基板のITO膜の上に順次、表4に示すように、下記各層を形成した。真空槽を $5 \times 10^{-4}$  Paまで減圧し、HI、HAT-CN、HT-1およびHT-2の順に蒸

50

着して、正孔注入層 1 (膜厚 40 nm)、正孔注入層 2 (膜厚 5 nm)、正孔輸送層 1 (膜厚 15 nm) および正孔輸送層 2 (膜厚 10 nm) を形成した。次に、化合物 (1 - 134 - 0) と化合物 (3 - 139) を同時に加熱して膜厚 25 nm になるように蒸着して発光層を形成した。化合物 (1 - 134 - 0) と化合物 (3 - 139) の質量比がおよそ 96 対 4 になるように蒸着速度を調節した。次に、ET - 1 を加熱して膜厚 5 nm になるように蒸着して電子輸送層 1 を形成した。次に、ET - 3 と Liq を同時に加熱して膜厚 25 nm になるように蒸着して電子輸送層 2 を形成した。ET - 3 と Liq の質量比がおよそ 50 対 50 になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は 0.01 ~ 1 nm / 秒であった。その後、Liq を加熱して膜厚 1 nm になるように 0.01 ~ 0.1 nm / 秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムと銀を同時に加熱して膜厚 100 nm になるように蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子を得た。このとき、マグネシウムと銀の原子数比が 10 対 1 となるように 0.1 ~ 10 nm / 秒の間で蒸着速度を調節した。

10

## 【0469】

ITO 電極を陽極、マグネシウム / 銀電極を陰極として直流電圧を印加し、1000 cd / m<sup>2</sup> 発光時の特性を測定したところ、表 4 に示すように、駆動電圧は 3.8 V、外部量子効率 は 6.1% であり、波長 462 nm、CIE 色度 (x, y) = (0.132, 0.085) の青色発光が得られた。また、100 cd / m<sup>2</sup> 発光時の外部量子効率は 6.1% であり、10 cd / m<sup>2</sup> 発光時の外部量子効率は 5.8% であった。

## 【0470】

< 比較例 9 >

比較例 8 に準じて、表 4 に記載した層構成で有機 EL 素子を製造し、EL 特性データを測定した (表 4)。

20

## 【0471】

< 比較例 10 >

< ホスト材料：化合物 (1 - 199) の素子 >

スパッタリングにより 180 nm の厚さに製膜した ITO を 150 nm まで研磨した、26 mm × 28 mm × 0.7 mm のガラス基板 ((株) オプトサイエンス製) を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置 (昭和真空 (株) 製) の基板ホルダーに固定し、HI、HAT - CN、HT - 1、化合物 (1 - 199)、化合物 (3 - 139)、ET - 2 および ET - 4 をそれぞれ入れたモリブデン製蒸着用ポート、Liq、マグネシウムおよび銀をそれぞれ入れた窒化アルミニウム製蒸着用ポートを装着した。

30

## 【0472】

透明支持基板の ITO 膜の上に順次、表 4 に示すように、下記各層を形成した。真空槽を  $5 \times 10^{-4}$  Pa まで減圧し、HI、HAT - CN および HT - 1 の順に蒸着して、正孔注入層 1 (膜厚 40 nm)、正孔注入層 2 (膜厚 5 nm) および正孔輸送層 (膜厚 25 nm) を形成した。次に、化合物 (1 - 199) と化合物 (3 - 139) を同時に加熱して膜厚 25 nm になるように蒸着して発光層を形成した。化合物 (1 - 199) と化合物 (3 - 139) の質量比がおよそ 98 対 2 になるように蒸着速度を調節した。次に、ET - 2 を加熱して膜厚 5 nm になるように蒸着して電子輸送層 1 を形成した。次に、ET - 4 と Liq を同時に加熱して膜厚 25 nm になるように蒸着して電子輸送層 2 を形成した。ET - 4 と Liq の重量比がおよそ 50 対 50 になるように蒸着速度を調節した。各層の蒸着速度は 0.01 ~ 1 nm / 秒であった。その後、Liq を加熱して膜厚 1 nm になるように 0.01 ~ 0.1 nm / 秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、マグネシウムと銀を同時に加熱して膜厚 100 nm になるように蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子を得た。このとき、マグネシウムと銀の原子数比が 10 対 1 となるように 0.1 ~ 10 nm / 秒の間で蒸着速度を調節した。

40

## 【0473】

ITO 電極を陽極、マグネシウム / 銀電極を陰極として直流電圧を印加し、1000 cd / m<sup>2</sup> 発光時の特性を測定したところ、表 4 に示すように、駆動電圧は 3.8 V、外部量子効率は 6.2% であり、波長 462 nm、CIE 色度 (x, y) = (0.131, 0

50

． 0 8 5 ) の青色発光が得られた。また、 $100 \text{ cd/m}^2$  発光時の外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は 6 . 3 % であり、 $10 \text{ cd/m}^2$  発光時の外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}$ は 6 . 4 % であった。

【 0 4 7 4 】

< 比較例 1 1 >

比較例 1 0 に準じて、表 4 に記載した層構成で有機 E L 素子を製造し、E L 特性データを測定した(表 4)。

【 0 4 7 5 】

以上、本発明に係る化合物の一部について、有機 E L 素子の発光層用材料としての評価を行い、その有用性を示したが、評価を行っていない他の化合物も同じ基本骨格を有し、全体としても類似の構造を有する化合物であり、当業者においては同様に優れた特性を備える発光層用材料であることを理解できる。

10

【 産業上の利用可能性 】

【 0 4 7 6 】

本発明の好ましい態様によれば、有機電界発光素子において、ホスト材料としてアントラセン系化合物およびピレン系化合物の両方を含有させた発光層とすることで、素子効率および素子寿命のいずれか、特に好ましくは素子効率および素子寿命を向上させることができる。

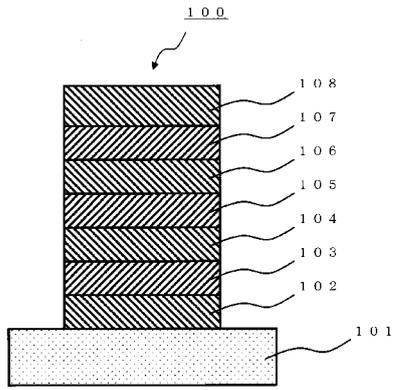
【 符号の説明 】

【 0 4 7 7 】

- 1 0 0 有機電界発光素子
- 1 0 1 基板
- 1 0 2 陽極
- 1 0 3 正孔注入層
- 1 0 4 正孔輸送層
- 1 0 5 発光層
- 1 0 6 電子輸送層
- 1 0 7 電子注入層
- 1 0 8 陰極

20

【 図 1 】



---

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I			テーマコード(参考)
	C 0 9 K	11/06	6 6 0	
	C 0 9 K	11/06	6 3 5	

【要約の続き】

【選択図】なし