

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5666907号  
(P5666907)

(45) 発行日 平成27年2月12日(2015.2.12)

(24) 登録日 平成26年12月19日(2014.12.19)

(51) Int.Cl.	F I
<b>C07D 487/04 (2006.01)</b>	C O 7 D 487/04 1 3 7
<b>C07D 491/048 (2006.01)</b>	C O 7 D 491/048 C S P
<b>C07D 493/04 (2006.01)</b>	C O 7 D 493/04 1 O 1 A
<b>C07D 519/00 (2006.01)</b>	C O 7 D 519/00
<b>C09K 11/06 (2006.01)</b>	C O 9 K 11/06 6 9 0
請求項の数 35 (全 123 頁) 最終頁に続く	

(21) 出願番号	特願2010-515859 (P2010-515859)	(73) 特許権者	000183646
(86) (22) 出願日	平成21年6月1日(2009.6.1)		出光興産株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2009/059981		東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(87) 国際公開番号	W02009/148016	(74) 代理人	100078732
(87) 国際公開日	平成21年12月10日(2009.12.10)		弁理士 大谷 保
審査請求日	平成23年5月27日(2011.5.27)	(74) 代理人	100081765
(31) 優先権主張番号	12/253,627		弁理士 東平 正道
(32) 優先日	平成20年10月17日(2008.10.17)	(72) 発明者	加藤 朋希
(33) 優先権主張国	米国(US)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(31) 優先権主張番号	特願2008-148515 (P2008-148515)	(72) 発明者	沼田 真樹
(32) 優先日	平成20年6月5日(2008.6.5)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(72) 発明者	吉田 圭
(31) 優先権主張番号	特願2009-100320 (P2009-100320)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
(32) 優先日	平成21年4月16日(2009.4.16)	(72) 発明者	西村 和樹
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		最終頁に続く	

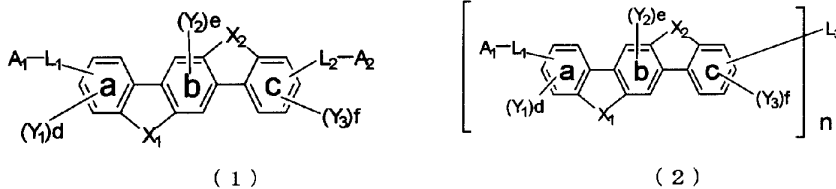
(54) 【発明の名称】 ハロゲン化合物、多環系化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記式(1)または(2)で表される多環系化合物。

【化1】



[式(1)および(2)において、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ独立に、酸素(O)、N-R<sub>1</sub>またはC R<sub>2</sub>R<sub>3</sub>を表し、式(1)および(2)中の $X_1$ と $X_2$ の少なくとも一つが酸素原子である。

前記R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>およびR<sub>3</sub>は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。

式(2)において、nは2、3または4を表し、それぞれL<sub>3</sub>を連結基とした2量体、

3量体、4量体である。

式(1)および(2)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(1)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

10

式(2)において、 $L_3$ は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

20

式(1)および(2)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

30

式(1)において、 $A_2$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。

式(1)および(2)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。

40

式(1)および(2)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【請求項2】

$A_1$ 及び/又は $A_2$ が、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基又はクォーターフェニル基から選ばれる少なくとも一つ以上の置換基を有するピリミジル基であることを特徴とする請求項1に記載の多環系化合物。

【請求項3】

$A_1$ 及び/又は $A_2$ が、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基又はクォーターフェニル基から選ばれる少なくとも一つ以上の置換基を有するカルバゾリル基であることを特徴とする請求項1に記載の多環系化合物。

50

## 【請求項 4】

$A_1$  及び / 又は  $A_2$  が、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基又はクォーターフェニル基から選ばれる少なくとも一つ以上の置換基を有するジベンゾフラニル基であることを特徴とする請求項 1 に記載の多環系化合物。

## 【請求項 5】

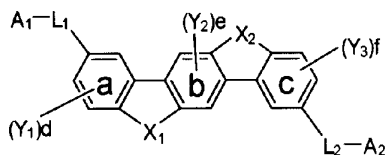
$A_1$  及び / 又は  $A_2$  が、2 以上のベンゼン環が互いにメタ位で結合する構造を有する芳香族炭化水素基であることを特徴とする請求項 1 に記載の多環系化合物。

## 【請求項 6】

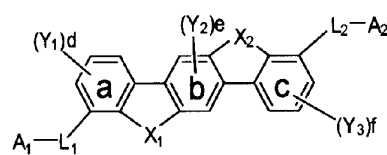
前記式 (1)、(2) が、それぞれ下記式 (1a)、(1b)、(2a)、(2b) のいずれかで表される請求項 1 に記載の多環系化合物。

10

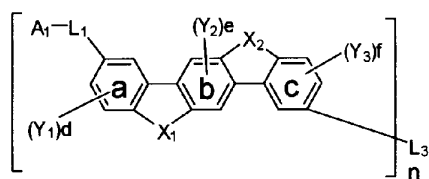
## 【化 2】



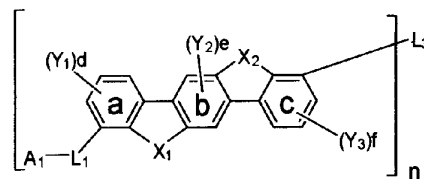
(1 a)



(1 b)



(2 a)



(2 b)

20

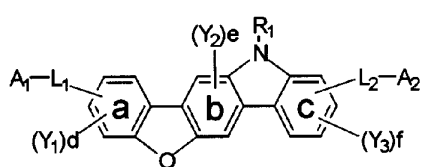
[ 式 (1a)、(1b)、(2a)、(2b) において、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ 、 $L_3$ 、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1$ 、 $Y_2$ 、 $Y_3$ 、 $n$ 、 $d$ 、 $f$ 、 $e$  は前記と同じである。 ]

## 【請求項 7】

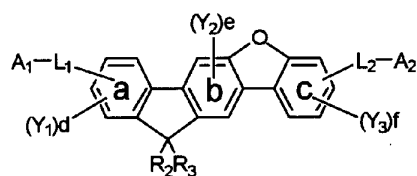
下記式 (5)、(6)、(9)、(10) のいずれかで表される請求項 1 に記載の多環系化合物。

30

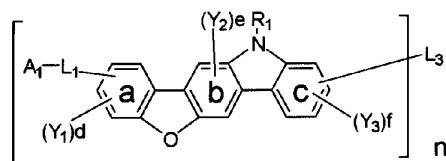
## 【化 3】



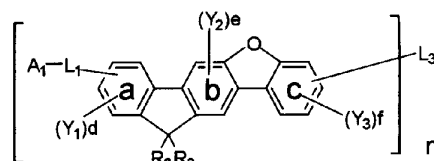
(5)



(6)



(9)



(10)

40

[ 式 (5)、(6)、(9)、(10) において、 $R_1$ 、 $R_2$  および  $R_3$  は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換も

50

しくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 の芳香族複素環基を表す。

式 (9)、(10) において、 $n$  は 2、3 または 4 を表し、それぞれ  $L_3$  を連結基とした 2 量体、3 量体、4 量体である。

式 (5)、(6)、(9)、(10) において、 $L_1$  は単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環  $a$  と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。

式 (5)、(6) において、 $L_2$  は単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環  $c$  と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。

式 (9)、(10) において、 $L_3$  は、 $n$  が 2 の場合、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環  $c$  と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表し、 $n$  が 3 の場合、炭素数 1 ~ 20 の 3 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 3 価の環状飽和炭化水素基、3 価のシリル基もしくは炭素数 1 ~ 20 の 3 価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数 6 ~ 24 の 3 価の芳香族炭化水素基、または原子数 3 ~ 24 でベンゼン環  $c$  と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基を表し、 $n$  が 4 の場合、炭素数 1 ~ 20 の 4 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環  $c$  と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基を表す。

式 (5)、(6)、(9)、(10) において、 $A_1$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_1$  は水素原子である場合はない。

式 (5)、(6) において、 $A_2$  は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_2$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。

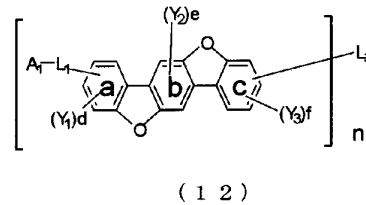
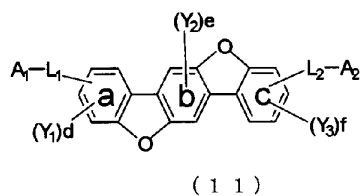
式 (5)、(6)、(9)、(10) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環  $a$ 、 $b$ 、 $c$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。 $d$ 、 $f$  は 0、1、2 または 3、 $e$  は 0、1 または 2 である。

式 (5)、(6)、(9)、(10) において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、カルボニル基を含まない。]

【請求項 8】

下記式 (11) または (12) で表される、多環系化合物。

## 【化4】



【式(12)において、nは2、3または4を表し、それぞれL<sub>3</sub>を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

10

式(11)および(12)において、L<sub>1</sub>は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価のシリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(11)において、L<sub>2</sub>は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価のシリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

20

式(12)において、L<sub>3</sub>は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

30

式(11)および(12)において、A<sub>1</sub>は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でL<sub>1</sub>と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、L<sub>1</sub>が炭素数1~20のアルキレン基である場合、A<sub>1</sub>は水素原子である場合はない。

式(11)において、A<sub>2</sub>は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でL<sub>2</sub>と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、L<sub>2</sub>が炭素数1~20のアルキレン基である場合、A<sub>2</sub>は水素原子である場合はない。

40

式(11)および(12)において、Y<sub>1</sub>、Y<sub>2</sub>およびY<sub>3</sub>は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である

50

。但し、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環 $b$ は $Y_2$ を一個または二個有し、 $Y_2$ がメチル基または無置換のフェニル基である場合は無い。

式(11)および(12)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【請求項9】

式(11)および(12)において、 $A_1$ が、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基である請求項8記載の多環系化合物。

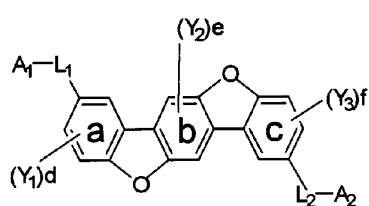
【請求項10】

式(11)および(12)において、 $A_1$ が、 $L_1$ と炭素-炭素結合で連結するピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1,3,5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンから選ばれる芳香族複素環基である請求項8記載の多環系化合物。

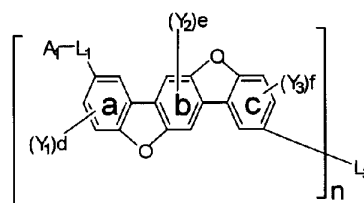
【請求項11】

下記式(13)または(14)で表される、多環系化合物。

【化5】



(13)



(14)

[式(14)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(13)および(14)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価のシリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環 $a$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(13)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、シリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環 $c$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(14)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環 $c$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環 $c$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環 $c$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を

10

20

30

40

50

表す。

式(13)および(14)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

式(13)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

10

式(13)および(14)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。但し、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環bは $Y_2$ を一個または二個有し、 $Y_2$ がメチル基または無置換のフェニル基である場合は無い。

20

式(13)および(14)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【請求項12】

式(13)および(14)において、 $A_1$ が、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基である請求項11記載の多環系化合物。

【請求項13】

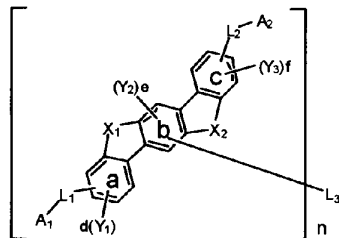
式(13)および(14)において、 $A_1$ が、 $L_1$ と炭素-炭素結合で連結するピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1,3,5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンから選ばれる芳香族複素環基である請求項11記載の多環系化合物。

30

【請求項14】

下記式(15)で表される多環系化合物。

【化6】



(15)

40

[式(15)において、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ独立に、酸素(O)、N- $R_1$ または $CR_2R_3$ を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共に $CR_2R_3$ である場合は無い。

前記 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共にN- $R_1$ の場合は、 $R_1$ の少なくとも1つは置換

50

もしくは無置換の環形成原子数 8 ~ 24 である 1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

式 (15) において、 $n$  は 2、3 または 4 を表し、それぞれ  $L_3$  を連結基とした 2 量体、3 量体、4 量体である。

式 (15) において、 $L_1$  は単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環 a と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。

式 (15) において、 $L_2$  は単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。

式 (15) において、 $L_3$  は、 $n$  が 2 の場合、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 b と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表し、 $n$  が 3 の場合、炭素数 1 ~ 20 の 3 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 3 価の環状飽和炭化水素基、3 価のシリル基もしくは炭素数 1 ~ 20 の 3 価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数 6 ~ 24 の 3 価の芳香族炭化水素基、または原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 b と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基を表し、 $n$  が 4 の場合、炭素数 1 ~ 20 の 4 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 b と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基を表す。

式 (15) において、 $A_1$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_1$  は水素原子である場合はない。

式 (15) において、 $A_2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_2$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_2$  は水素原子である場合はない。

式 (15) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0 または 1 である。

式 (15) において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、カルボニル基を含まない。]

【請求項 15】

式 (15) において、 $A_1$  が、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基である請求項 14 記載の多環系化合物。

【請求項 16】

式 (15) において、 $A_1$  が、 $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結するピリダジン、ピリミジン

10

20

30

40

50

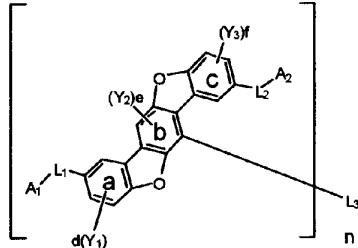


、ピラジン、1,3,5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンから選ばれる芳香族複素環基である請求項14記載の多環系化合物。

【請求項17】

下記式(16)で表される請求項14に記載の多環系化合物。

【化7】



(16)

[式(16)において、nは2、3または4を表し、それぞれL<sub>3</sub>を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(16)において、L<sub>1</sub>は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(16)において、L<sub>2</sub>は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(16)において、L<sub>3</sub>は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

式(16)において、A<sub>1</sub>は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でL<sub>1</sub>と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、L<sub>1</sub>が炭素数1~20のアルキレン基である場合、A<sub>1</sub>は水素原子である場合はない。

式(16)において、A<sub>2</sub>は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でL<sub>2</sub>と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、L<sub>2</sub>が炭素数1~20のアルキ

10

20

30

40

50

レン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

式(16)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0または1である。

式(16)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]  
【請求項18】

式(16)において、 $A_1$ が、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基である請求項17記載の多環系化合物。

10

【請求項19】

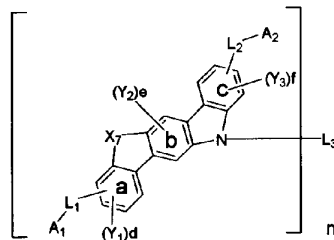
式(16)において、 $A_1$ が、 $L_1$ と炭素-炭素結合で連結するピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1,3,5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンから選ばれる芳香族複素環基である請求項17記載の多環系化合物。

【請求項20】

下記式(17)で表される多環系化合物。

【化8】

20



(17)

[式(17)において、 $X_7$ は、酸素(O)または $CR_2R_3$ を表す。

30

前記 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。

式(17)において、nは2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(17)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

40

式(17)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(17)において、 $L_3$ は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~2

50

4の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6～24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3～24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1～20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

10

式(17)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

式(17)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

20

式(17)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。

式(17)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【請求項21】

式(17)において、 $A_1$ が、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、または環形成原子数3～24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基である請求項20記載の多環系化合物。

30

【請求項22】

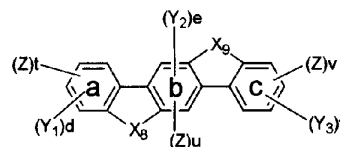
式(17)において、 $A_1$ が、 $L_1$ と炭素-炭素結合で連結するピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1,3,5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンから選ばれる芳香族複素環基である請求項20記載の多環系化合物。

【請求項23】

下記式(18)で表される八口ゲン化合物。

【化9】

40



(18)

[式(18)において、 $X_8$ 、 $X_9$ は、それぞれ独立に、酸素(O)またはN- $R_1$ を表す。

$R_1$ は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の

50

置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 の芳香族複素環基を表す。但し  $X_1$  と  $X_2$  が共に  $N - R_1$  の場合は、 $R_1$  の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8 ~ 24 である 1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

$Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。

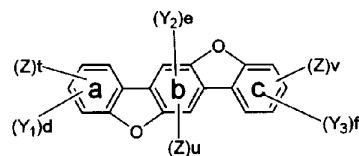
Z はハロゲン原子であり、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

t、u、v は 0 または 1 を表す。但し  $t + u + v = 1$  である。]

【請求項 24】

下記式 (19) で表される請求項 23 に記載のハロゲン化合物。

【化 10】



(19)

【式 (19) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。

Z はハロゲン原子であり、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

t、u、v は 0 または 1 を表す。但し  $t + u + v = 1$  である。]

【請求項 25】

陰極と陽極間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層の少なくとも一層が、請求項 1、14 又は 20 に記載の多環系化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 26】

前記発光層が、前記多環系化合物をホスト材料として含有する請求項 25 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 27】

前記発光層が、さらにりん光発光性材料を含有する請求項 25 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 28】

前記発光層がホスト材料とりん光性の発光材料を含有し、該りん光性の発光材料がイリジウム (Ir)、オスmium (Os) 又は白金 (Pt) 金属のオルトメタル化錯体である請求項 25 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 29】

前記発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を含有する請求項 25 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 30】

前記発光層と陰極との間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記多環系化合物を含有

10

20

30

40

50

する請求項 25 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

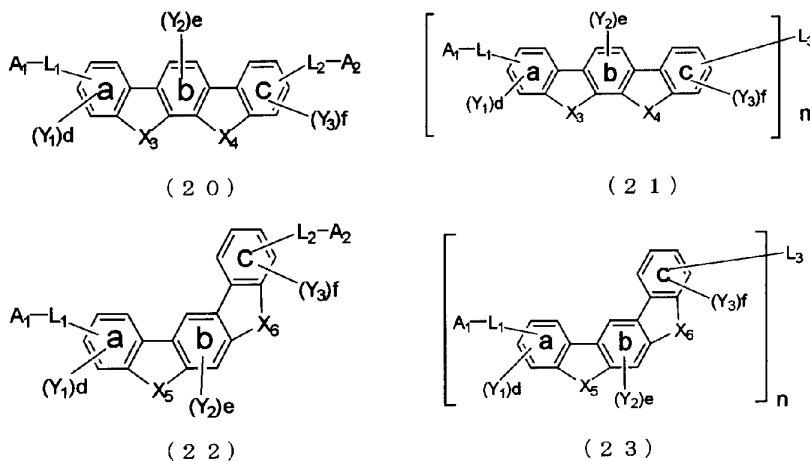
【請求項 31】

前記発光層が、炭素原子、窒素原子、酸素原子または硫黄原子で架橋した 共役ヘテロアセン骨格を有する化合物である有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含有する請求項 30 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 32】

前記発光層が、下記式 (20) ~ (23) のいずれかで表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含有する請求項 30 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 11】



10

20

[ 式 (20) ~ (23) において、X<sub>3</sub>、X<sub>4</sub>、X<sub>5</sub> および X<sub>6</sub> は、それぞれ独立に、酸素 (O)、硫黄 (S)、N-R<sub>1</sub> または CR<sub>2</sub>R<sub>3</sub> を表す。

前記 R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> および R<sub>3</sub> は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 の芳香族複素環基を表す。但し、X<sub>3</sub> と X<sub>4</sub>、または X<sub>5</sub> と X<sub>6</sub> が共に N-R<sub>1</sub> の場合は、R<sub>1</sub> の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8 ~ 24 である 1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

30

式 (21) および (23) において、n は 2、3 または 4 を表し、それぞれ L<sub>3</sub> を連結基とした 2 量体、3 量体、4 量体である。

式 (20) ~ (23) において、L<sub>1</sub> は単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環 a と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。

40

式 (20) および (22) において、L<sub>2</sub> は単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。但し、X<sub>3</sub> と X<sub>4</sub>、または X<sub>5</sub> と X<sub>6</sub> が共に CR<sub>2</sub>R<sub>3</sub> であり、かつ L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub> が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基である場合、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub> は同時にベンゼン環 b に対してパラ位置に連結する場合は無い。

式 (21) および (23) において、L<sub>3</sub> は、n が 2 の場合、単結合、炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキレン基、2 価のシリル基もしくは炭素数 2 ~ 20 の 2 価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 のベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表す。

50

成炭素数 6 ~ 24 の 2 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 2 価の芳香族複素環基を表し、n が 3 の場合、炭素数 1 ~ 20 の 3 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 3 価の環状飽和炭化水素基、3 価のシリル基もしくは炭素数 1 ~ 20 の 3 価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数 6 ~ 24 の 3 価の芳香族炭化水素基、または原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 3 価の芳香族複素環基を表し、n が 4 の場合、炭素数 1 ~ 20 の 4 価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_3$  と  $X_4$ 、または  $X_5$  と  $X_6$  が共に  $CR_2R_3$  であり、かつ  $L_1$ 、 $L_3$  が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数 6 ~ 24 の 2 価、3 価あるいは 4 価の芳香族炭化水素基である場合、 $L_1$ 、 $L_3$  は同時にベンゼン環 b に対してパラ位置に連結する場合は無い。

10

式 (20) ~ (23) において、 $A_1$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_1$  は水素原子である場合はない。

式 (20) および (22) において、 $A_2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_2$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_2$  は水素原子である場合はない。

20

式 (20) ~ (23) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。但し、 $X_3$  と  $X_4$ 、または  $X_5$  と  $X_6$  が、酸素 (O)、硫黄 (S)、もしくは  $CR_2R_3$  であり、 $L_1$ 、 $L_2$  が共に単結合であり、かつ  $A_1$  と  $A_2$  が共に水素原子である場合、ベンゼン環 b は  $Y_2$  を一個または二個有し、 $Y_2$  がメチル基または無置換のフェニル基である場合は無い。

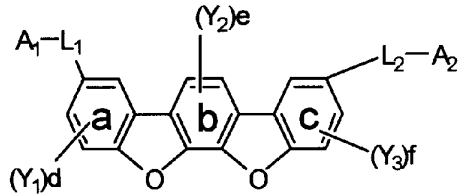
30

式 (20) ~ (23) において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、カルボニル基を含まない。]

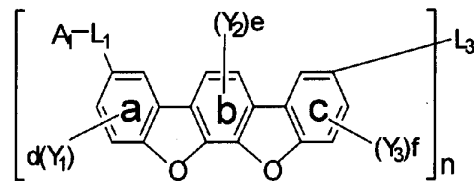
#### 【請求項 33】

前記発光層が、下記式 (24) ~ (27) のいずれかで表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料をホスト材料として含有する請求項 30 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

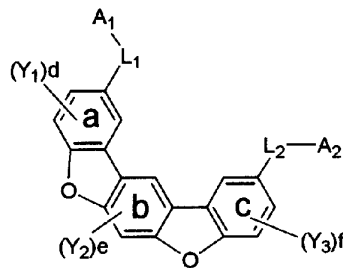
## 【化 1 2】



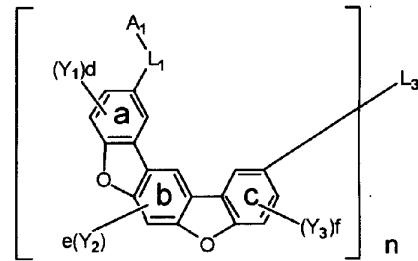
(24)



(25)



(26)



(27)

[式(25)および(27)において、nは2、3または4を表し、それぞれL<sub>3</sub>を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(24)~(27)において、L<sub>1</sub>は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(24)および(26)において、L<sub>2</sub>は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(25)および(27)において、L<sub>3</sub>は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

式(24)~(27)において、A<sub>1</sub>は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でL<sub>1</sub>と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、L<sub>1</sub>が炭素数1~20のアルキレン基である場合、A<sub>1</sub>は水素原子である場合はない。

10

20

30

40

50

式(24)および(26)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

式(24)～(27)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。但し、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環bは $Y_2$ を一個または二個有し、 $Y_2$ がメチル基または無置換のフェニル基である場合はない。

10

式(24)～(27)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

#### 【請求項34】

前記発光層と陽極との間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が前記多環系化合物を含有する請求項25記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【請求項35】

陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントを有する請求項25記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【技術分野】

#### 【0001】

本発明は、ハロゲン化合物、多環系化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、発光効率が高く、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する多環系化合物、その中間体であるハロゲン化合物に関するものである。

#### 【背景技術】

#### 【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある)は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。低電圧駆動の積層型有機EL素子が報告されて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。この積層型素子では、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送(注入)層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送(注入)層、発光層、電子輸送(注入)層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

30

40

#### 【0003】

有機EL素子の発光材料としてはトリス(8-キノリノラト)アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルプタジエン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている。

50



また、近年、有機EL素子の発光層に蛍光材料の他に、りん光発光材料を利用することも提案されている。このように有機EL素子の発光層において有機りん光発光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用し、高い発光効率が達成されている。有機EL素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが1:3の割合で生成すると考えられているので、りん光発光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子に比べて3~4倍の発光効率の達成が考えられる。

#### 【0004】

このような、有機EL素子用材料が記載された発明として特許文献1~7が挙げられる。

特許文献1には、ターフェニレン骨格を炭素原子、窒素原子、酸素原子等で架橋させた構造を母骨格とする化合物が記載されている。主に正孔輸送材料としてのデータが開示されているが、発光層におけるりん光発光性材料のホスト材料として用いる記載もある。しかしながらその記述は赤色りん光発光素子に限定されており、また発光効率も低く実用としては不十分である。

10

特許文献2には、窒素原子上あるいは芳香環上に置換基を有するインドロカルバゾール化合物が記載されている。正孔輸送材料としての使用が推奨されており、熱的、形態的に安定な薄膜正孔輸送層の調製可能な記載がある。しかしながらりん光発光性材料とともに用いるホスト材料または電子輸送材料としての有効性を示すデータは記載されていない。

特許文献3には、窒素原子上あるいは芳香環上に置換基を有するインドロカルバゾール化合物が記載されている。これらを発光層におけるりん光発光性材料のホスト材料に用いた緑色発光素子のデータが開示されているが、印加電圧が高く、また発光効率も低く、実用としては不十分である。

20

特許文献4には、置換基を有するインドロカルバゾール化合物が記載されており、発光層におけるりん光発光性材料のホスト材料として機能することが記載されている。しかしながらこれらの化合物は連結基を介して二量体や三量体構造を有することが特徴であり、分子量が大きい傾向がある。これらを用いた緑色りん光発光素子のデータが開示されているが、用いられているものは全て分子量が800以上と大きい。分子量の大きい材料は真空蒸着の効率が悪く、長時間の加熱による分解も懸念されるため、実用上の観点では不十分と考えられる。

特許文献5および6には、芳香環上に置換基を有するインデノフルオレン化合物が記載されており、発光層における蛍光発光性材料として機能することが記載されている。しかしながらりん光発光性材料とともに用いるホスト材料または電子輸送材料としての有効性を示すデータは記載されていない。

30

特許文献7には、ターフェニレン骨格を硫黄原子、ホウ素原子、リン原子で架橋させた構造を母骨格とする化合物が記載されている。これらの化合物は優れた耐酸化性を有し、塗布法による有機半導体活性層形成が可能であるとの記載がある。しかしながら、蛍光発光性材料もしくは燐光発光性材料とともに用いるホスト材料または電子輸送材料としての有効性を示すデータは記載されていない。

#### 【0005】

【特許文献1】WO2006/122630

【特許文献2】EP0908787

【特許文献3】WO2007/063796

【特許文献4】WO2007/063754

【特許文献5】US2002/0132134

【特許文献6】US2003/0044646

【特許文献7】特開2008-81494

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

#### 【0006】

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、発光効率が高く、長寿命であ

50

る有機EL素子及びそれを実現する多環系化合物、その中間体であるハロゲン化合物を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

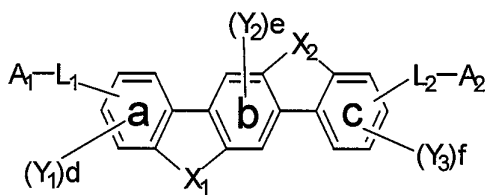
【0007】

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、下記式(1)または(2)で表される多環系化合物を有機EL素子用材料として用いることにより、前記の目的を達成することを見出し本発明を完成した。

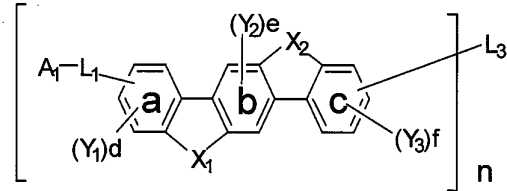
【0008】

すなわち、本発明は、下記式(1)または(2)で表される多環系化合物を提供するものである。

【化1】



(1)



(2)

【0009】

[式(1)および(2)において、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ独立に、酸素(O)、N- $R_1$ または $CR_2R_3$ を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共に $CR_2R_3$ である場合は無い。

前記 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共にN- $R_1$ の場合は、 $R_1$ の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8~24である1個の縮合芳香族複素環基を表す。

式(2)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(1)および(2)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2個のシリル基もしくは炭素数2~20の2個の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2個の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2個の芳香族複素環基を表す。

式(1)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2個のシリル基もしくは炭素数2~20の2個の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2個の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2個の芳香族複素環基を表す。

式(2)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2個のシリル基もしくは炭素数2~20の2個の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2個の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2個の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1~20の3個の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3個の環状飽和炭化水素基、3個のシリル基もしくは炭素数1~20の3個の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3個の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3個の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1~20の4個の飽和炭化水素基、置換もしくは無置

10

20

30

40

50

換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基を表す。

式 ( 1 ) および ( 2 ) において、 $A_1$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_1$  は水素原子である場合はない。

式 ( 1 ) において、 $A_2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_2$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$  が炭素数 1 ~ 20 のあるいはアルキレン基である場合、 $A_2$  は水素原子である場合はない。

式 ( 1 ) および ( 2 ) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。

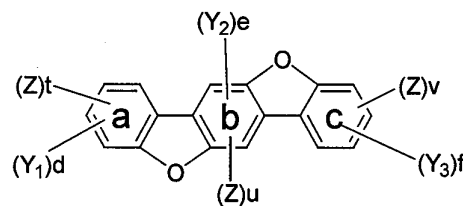
但し、 $X_1$  と  $X_2$  が、酸素 ( O ) もしくは  $CR_2R_3$  であり、 $L_1$ 、 $L_2$  が共に単結合であり、かつ  $A_1$  と  $A_2$  が共に水素原子である場合、ベンゼン環 b は  $Y_2$  を一個または二個有し、 $Y_2$  がメチル基または無置換のフェニル基である場合はない。

式 ( 1 ) および ( 2 ) において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、カルボニル基を含まない。]

【 0 0 1 0 】

また、本発明は、前記多環系化合物に用いることができる下記式 ( 1 8 ) で表されるハロゲン化合物を提供するものである。

【 化 2 】



( 1 9 )

【 0 0 1 1 】

[ 式 ( 1 9 ) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。

Z はハロゲン原子であり、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

t、u、v は 0 または 1 を表す。但し  $t + u + v = 1$  である。]

【 0 0 1 2 】

さらに、本発明は、陰極と陽極間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、前記有機薄膜層の少なくとも一層が、前記多環系化合物を含有する有機 EL 素子を提供するも

10

20

30

40

50

のである。

さらに、この有機EL素子用材料は、有機太陽電池、有機半導体レーザー、有機物を用いるセンサー、有機TFT用の有機電子素子用材料としても有効である。

【発明の効果】

【0013】

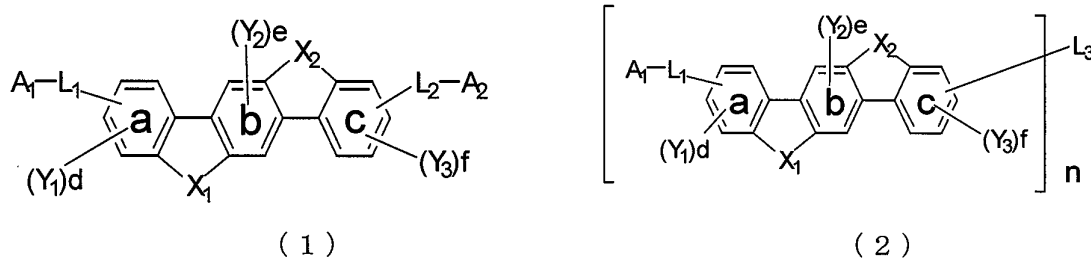
本発明によれば、発光効率が高く、長寿命である有機EL素子及びそれを実現する多環系化合物を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

本発明の有機EL素子用材料は、下記式(1)または(2)で表される。

【化3】



【0015】

[式(1)および(2)において、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ独立に、酸素(O)、N- $R_1$ または $CR_2R_3$ を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共に $CR_2R_3$ である場合は無い。

前記 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共にN- $R_1$ の場合は、 $R_1$ の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8~24である1個の縮合芳香族複素環基を表す。

式(2)において、nは2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(1)および(2)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2個のシリル基もしくは炭素数2~20の2個の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2個の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2個の芳香族複素環基を表す。

式(1)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2個のシリル基もしくは炭素数2~20の2個の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2個の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2個の芳香族複素環基を表す。

式(2)において、 $L_3$ は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2個のシリル基もしくは炭素数2~20の2個の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2個の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2個の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1~20の3個の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3個の環状飽和炭化水素基、3個のシリル基もしくは炭素数1~20の3個の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3個の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3個の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1~20の4個の飽和炭化水素基、置換もしくは無置

10

20

30

40

50

換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 c と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基を表す。

式 (1) および (2) において、 $A_1$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_1$  は水素原子である場合はない。

式 (1) において、 $A_2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_2$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$  が炭素数 1 ~ 20 のあるいはアルキレン基である場合、 $A_2$  は水素原子である場合はない。

式 (1) および (2) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。

但し、 $X_1$  と  $X_2$  が、酸素 (O) もしくは  $CR_2R_3$  であり、 $L_1$ 、 $L_2$  が共に単結合であり、かつ  $A_1$  と  $A_2$  が共に水素原子である場合、ベンゼン環 b は  $Y_2$  を一個または二個有し、 $Y_2$  がメチル基または無置換のフェニル基である場合はない。

#### 【0016】

式 (1) および (2) において、 $A_1$  及び / 又は  $A_2$  がピリミジル基又はジベンゾフラニル基である場合、電子輸送性が向上し、該多環系化合物を用いた素子の低電圧化が期待できる。

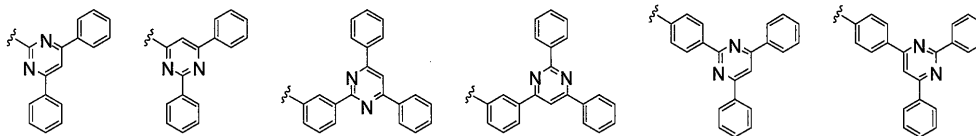
式 (1) および (2) において、 $A_1$  及び / 又は  $A_2$  がカルバゾリル基である場合、正孔輸送性が向上し、該多環系化合物を用いた素子の低電圧化が期待できる。

式 (1) および (2) において、 $A_1$  及び / 又は  $A_2$  がピリミジル基、ジベンゾフラニル基又はカルバゾリル基である場合、これらの置換基がさらに少なくとも一つ以上のアール基 (好ましくは、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基又はクォーターフェニル基、特に好ましくはフェニル基、メタビフェニル基、メタターフェニル基) を置換基として有することにより、分子の安定性が向上し、該多環系化合物を用いた素子の長寿命化が期待できる。前記ピリミジル基、ジベンゾフラニル基又はカルバゾリル基は、特に限定されるものではないが、具体例として、以下の例が挙げられる。

#### 【0017】

(ピリミジル基)

#### 【化 4】



#### 【0018】

(ジベンゾフラニル基)

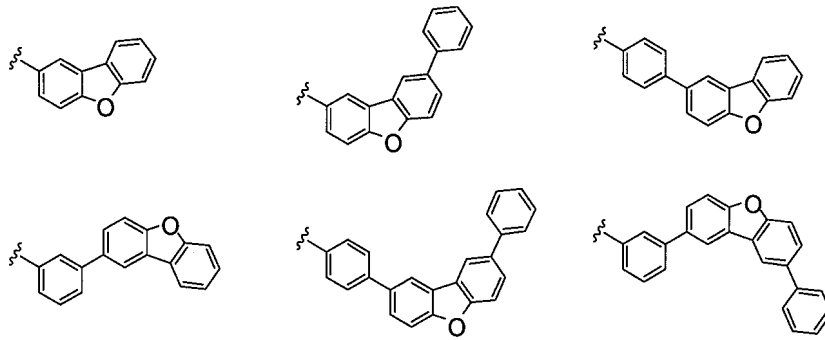
10

20

30

40

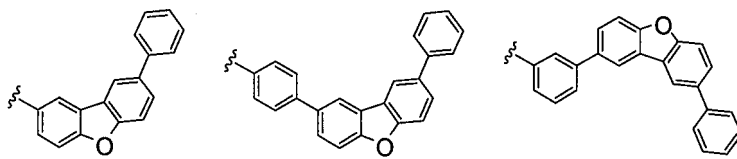
## 【化5】



10

この中でも特に好ましくは、以下の置換基である。

## 【化6】

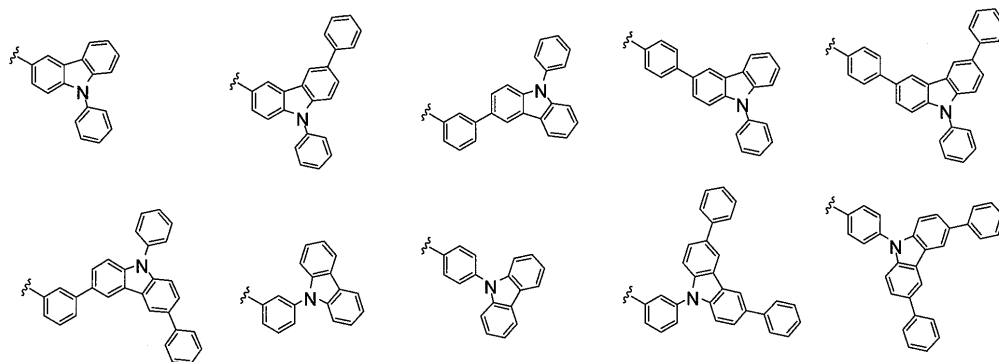


20

## 【0019】

(カルバゾリル基)

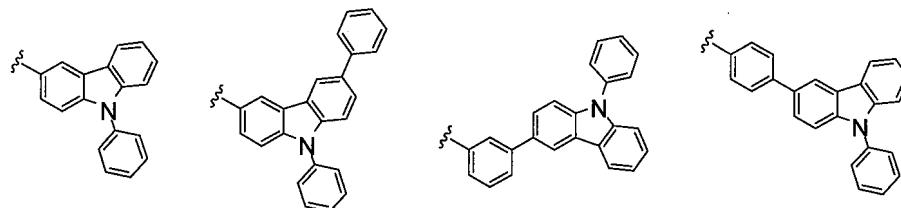
## 【化7】



30

この中でも特に好ましくは、以下の置換基である。

## 【化8】



40

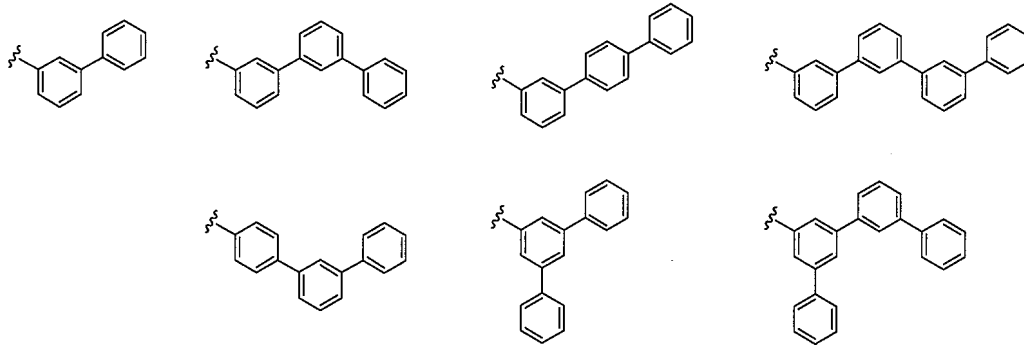
## 【0020】

式(1)および(2)において、 $A_1$ 及び/又は $A_2$ が置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基である場合、母骨格である共役ヘテロアセン骨格のキャリア輸送性の特徴を維持し、 $T_g$ が高まり、適切な蒸着特性が得られる。さらに、 $A_1$ 及び/又は $A_2$ が、2以上のベンゼン環が互いにメタ位で結合する構造を有する芳香族炭化水素基である場合、共役系の拡大を防ぎ、三重項エネルギーを上げることができる。なお

50

、本発明において、三重項エネルギーとは、最低励起三重状態と基底状態とのエネルギー差のことである。

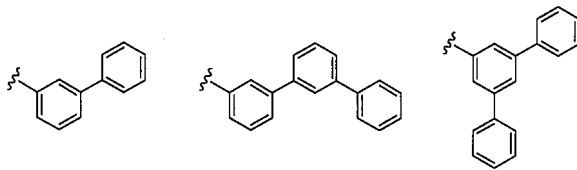
2以上のベンゼン環が互いにメタ位で結合する構造を有する例としては特に限定されるものではないが、具体例として、以下の例が挙げられ、  
【化9】



10

この中でも特に好ましくは、以下の構造である。

【化10】



20

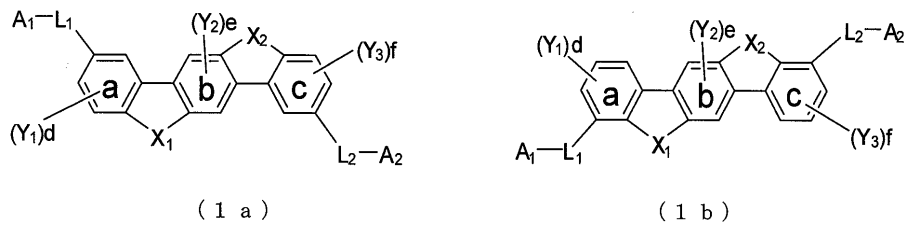
【0021】

前記式(1)及び(2)で表される化合物が、それぞれ下記式(1a)、(1b)、(2a)、(2b)のいずれかで表される多環系化合物であると好ましい。

このように、 $L_1-A_1-$ 、 $L_2-A_2-$ 等の置換基の結合位置がメタ位であると、共役系の拡大を防ぎ、三重項エネルギーを広げることができるため、好ましい。

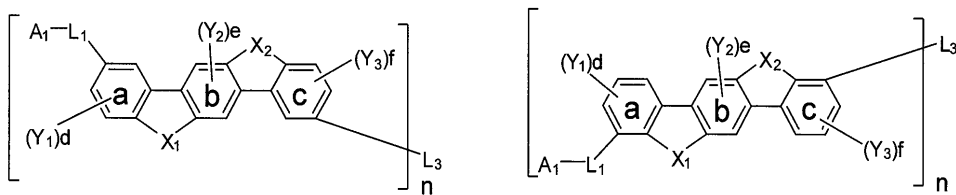
【0022】

【化11】



(1 a)

(1 b)



(2 a)

(2 b)

40

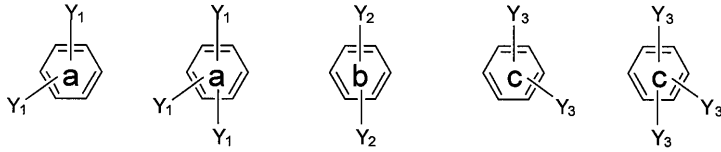
【式(1a)、(1b)、(2a)、(2b)において、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ 、 $L_3$ 、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $Y_1$ 、 $Y_2$ 、 $Y_3$ 、 $n$ 、 $d$ 、 $f$ 、 $e$ は前記と同じである。】

【0023】

50

式(1)および(2)において、Y<sub>1</sub>、Y<sub>2</sub>およびY<sub>3</sub>が複数個ベンゼン環a、b、cを置換する場合、それぞれ下記のように表される。

【化12】



式(1)および(2)において、A<sub>1</sub>、A<sub>2</sub>、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>およびL<sub>3</sub>は、カルボニル基を含まない。]

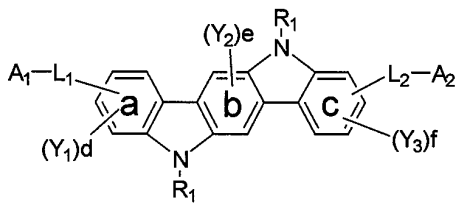
10

【0024】

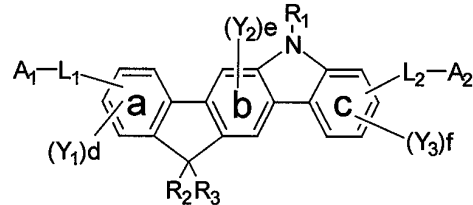
式(1)で表される多環系化合物は、下記式(3)~(6)、(11)および(13)のいずれかで表される多環系化合物であると好ましく、式(2)で表される多環系化合物は、下記式(7)~(10)、(12)および(14)のいずれかで表される多環系化合物であると好ましい。

【0025】

【化13】

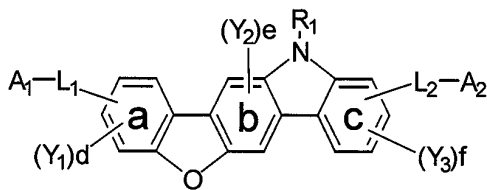


(3)

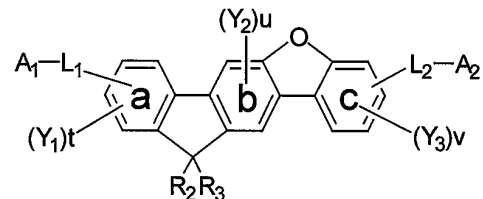


(4)

20

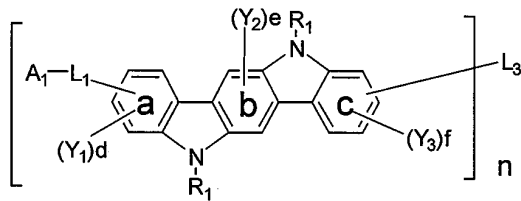


(5)

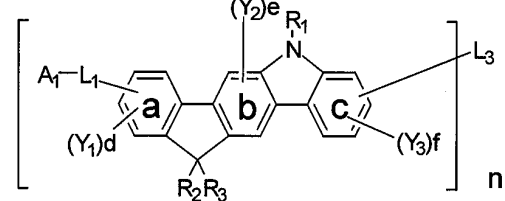


(6)

30

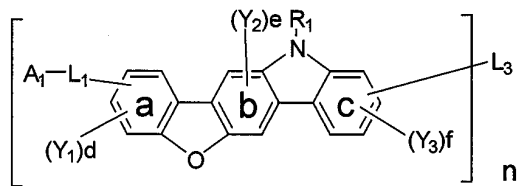


(7)

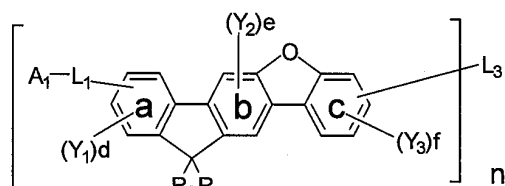


(8)

40



(9)



(10)

【0026】

50



[式(3)~(10)において、 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。但し、式(3)および(7)においては、 $R_1$ の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8~24である1価の縮合芳香族複素環基を表す。

式(7)~(10)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(3)~(10)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

10

式(3)~(6)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(7)~(10)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

20

30

式(3)~(10)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

式(3)~(6)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

40

式(3)~(10)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。但し、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環b

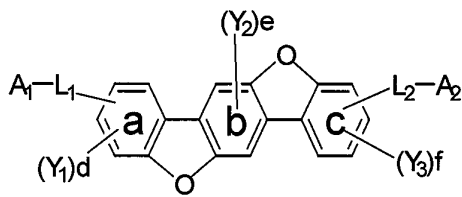
50

は  $Y_2$  を一個または二個有し、 $Y_2$  がメチル基または無置換のフェニル基である場合は無い。

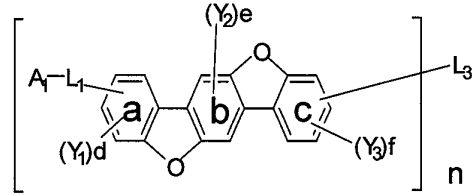
式(3)～(10)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【0027】

【化14】



(11)

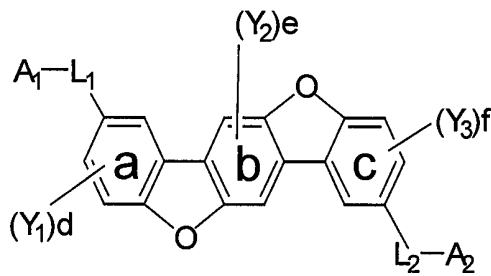


(12)

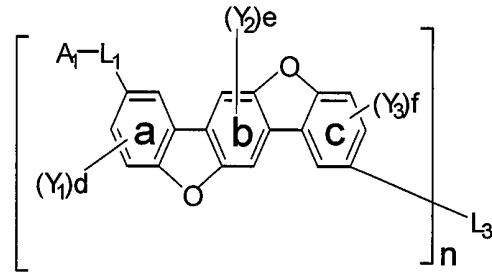
10

また、式(11)、(12)は、下記式(13)、(14)であると好ましい。

【化15】



(13)



(14)

20

【0028】

[式(12)、(14)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

30

式(11)～(14)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価のシリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(11)、(13)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価のシリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

40

式(12)、(14)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6～24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価

50

の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環 $c$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

式(11)~(14)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

10

式(11)、(13)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

式(11)~(14)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環 $a$ 、 $b$ 、 $c$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。 $d$ 、 $f$ は0、1、2または3、 $e$ は0、1または2である。但し、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環 $b$ は $Y_2$ を一個または二個有し、 $Y_2$ がメチル基または無置換のフェニル基である場合はない。

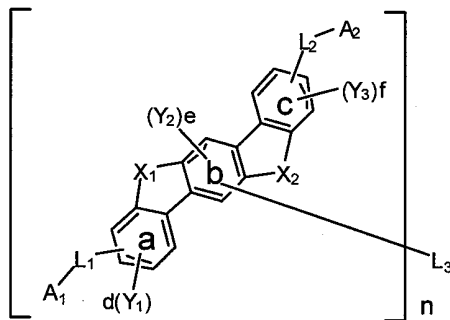
20

式(11)~(14)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【0029】

また、本発明は、下記式(15)で表される多環系化合物も提供するものである。

【化16】



(15)

30

【0030】

[式(15)において、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ独立に、酸素(O)、N- $R_1$ またはC $R_2$ R $_3$ を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共にC $R_2$ R $_3$ である場合はない。

前記 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_1$ と $X_2$ が共にN- $R_1$ の場合は、 $R_1$ の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8~24である1価の縮合芳香族複素環基を表す。

40

式(15)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(15)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環 $a$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(15)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環 $c$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

10

式(15)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環 $b$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環 $b$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環 $b$ と炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

20

式(15)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

30

式(15)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

式(15)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環 $a$ 、 $b$ 、 $c$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。 $d$ 、 $f$ は0、1、2または3、 $e$ は0または1である。

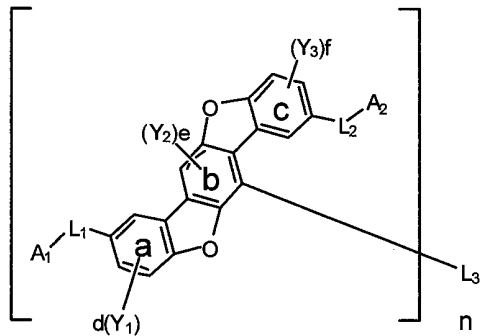
40

式(15)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【0031】

また、式(15)で表される多環系化合物は、下記式(16)で表される多環系化合物である好ましい。

## 【化 17】



(16)

10

## 【0032】

[式(16)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(16)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

20

式(16)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(16)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

30

40

式(16)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

式(16)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1~20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

50

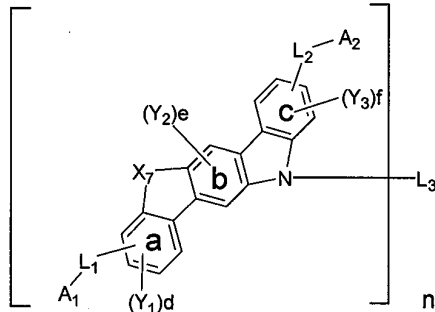
式(16)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0または1である。

式(16)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【0033】

また、本発明は、下記式(17)で表される多環系化合物も提供するものである。

【化18】



(17)

【0034】

[式(17)において、 $X_7$ は、酸素(O)または $CR_2R_3$ を表す。

前記 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1~20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキル基、炭素数7~24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3~20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基を表す。

式(17)において、nは2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(17)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(17)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(17)において、 $L_3$ は、nが2の場合、単結合、炭素数1~20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2~20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが3の場合、炭素数1~20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1~20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6~24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3~24でベンゼン環bと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1~20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無

10

20

30

40

50

置換の環形成炭素数 3 ~ 20 の 4 価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の 4 価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 b と炭素 - 炭素結合で連結する置換もしくは無置換の 4 価の芳香族複素環基を表す。

式 (17) において、 $A_1$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_1$  は水素原子である場合はない。

式 (17) において、 $A_2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_2$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$  が炭素数 1 ~ 20 のアルキレン基である場合、 $A_2$  は水素原子である場合はない。

式 (17) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 でベンゼン環 a、b、c と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、f は 0、1、2 または 3、e は 0、1 または 2 である。

式 (17) において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$  および  $L_3$  は、カルボニル基を含まない。]

【0035】

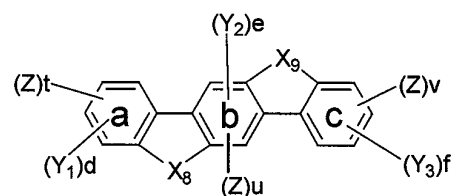
式 (11) ~ (17) において、 $A_1$  が、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、または環形成原子数 3 ~ 24 で  $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結する芳香族複素環基であると好ましい。

また、式 (11) ~ (17) において、 $A_1$  が、 $L_1$  と炭素 - 炭素結合で連結するピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1, 3, 5 - トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンから選ばれる芳香族複素環基であると好ましい。

【0036】

また、本発明は、本発明の多環系化合物の合成に用いるに適した中間体である下記式 (18) で表されるハロゲン化合物を提供するものである。

【化19】



(18)

【0037】

[式 (18) において、 $X_8$ 、 $X_9$  は、それぞれ独立に、酸素 (O) または N -  $R_1$  を表す。

$R_1$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 20 のシクロアルキル基、炭素数 7 ~ 24 のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数 3 ~ 20 の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 24 の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数 3 ~ 24 の芳香族複素環基を表す。但し  $X_1$  と  $X_2$  が共に N -  $R_1$  の場合は、 $R_1$  の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の環形成原子数 8 ~ 24 である 1 価の縮合芳香族複素環基を表す。

$Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。

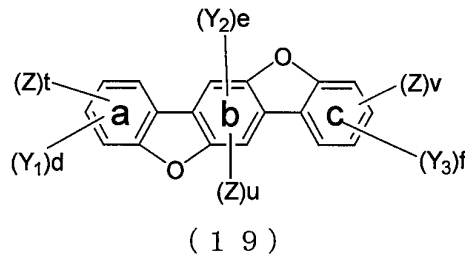
Zはハロゲン原子であり、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

t、u、vは0または1を表す。但し  $t + u + v = 1$  である。]

【0038】

式(18)で表されるハロゲン化合物は、下記式(19)で表されると好ましい。

【化20】



【0039】

[式(19)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。

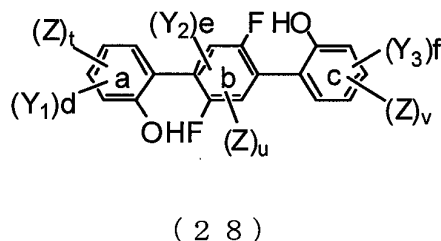
Zはハロゲン原子であり、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

t、u、vは0または1を表す。但し  $t + u + v = 1$  である。]

【0040】

式(19)で表されるハロゲン化合物は、下記式(28)で表される芳香族ハロゲン化合物を分子内環化反応させることにより得ることができる。

【化21】



【0041】

[式(28)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20のシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fの数は0、1、2または3、eの数は0、1または2である。

Zはハロゲン原子であり、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

10

20

30

40

50



t、u、vは0または1を表す。但し  $t + u + v = 1$  である。]

【0042】

上記式(28)で表される芳香族ハロゲン化合物の反応は、通常、塩基性触媒の存在下で行う。塩基性触媒としては、ナトリウムアミド、トリエチルアミン、トリブチルアミン、トリオクチルアミン、ピリジン、N,N-ジメチルアニリン、1,5-ジアザビシクロ[4,3,0]ノネン-5(DBN)、1,8-ジアザビシクロ[5,4,0]ウンデセン-7(DBU)、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水素化ナトリウム、燐酸ナトリウム、燐酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、ナトリウムメトキシド及びカリウムt-ブトキシドなどが挙げられる。

反応原料である式(28)で表される芳香族ハロゲン化合物に対する塩基性触媒の使用割合は、塩基性触媒/芳香族ハロゲン化合物(モル比)が、2~10程度となる量であり、好ましくは2~5となる量である。

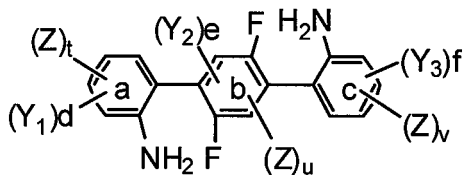
反応の際には、必要に応じて溶媒を用いることができる。溶媒として具体的には、トルエン、DMF(ジメチルホルムアミド)、DMAc(N,N-ジメチルアセトアミド)、DMSO(ジメチルスルホキシド)、NMP(N-メチルピロリドン)、テトラヒドロフランおよびジメトキシエタンなどが挙げられる。これらは一種を単独で又は二種以上を組み合わせて使用することができる。

上記式(28)で表される芳香族ハロゲン化合物の反応は、通常0~250程度、好ましくは150~200の温度において行う。反応温度が150以上であると、反応速度が低下せず適度のものとなるため、反応時間が短縮される。また、反応温度が200以下であると、生成物の着色が抑制される。反応時間は、通常1分~24時間程度、望ましくは1~10時間である。

また、上記式(18)において、 $X_8$ 、 $X_9$ が、共にN-R<sub>1</sub>であるハロゲン化合物は、下記式(29)で表される芳香族ハロゲン化合物を、前記と同様に分子内環化反応させることにより得ることができる。

【0043】

【化22】



(29)

但し、式(29)における $Y_1$ 、 $Y_2$ 、 $Y_3$ 、 $Z$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $t$ 、 $u$ および $v$ は、式(28)における $Y_1$ 、 $Y_2$ 、 $Y_3$ 、 $Z$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $t$ 、 $u$ および $v$ と同等である。

【0044】

式(1)~(19)、(28)および(29)において、各基の示す具体例を以下説明する。

$Y_1$ ~ $Y_3$ 、 $R_1$ ~ $R_3$ 、 $L_1$ ~ $L_3$ および $A_1$ ~ $A_2$ の示す置換もしくは無置換の環形成炭素数6~24の芳香族炭化水素基としては、例えば、置換もしくは無置換のベンゼン、ナフタレン、ピフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレン、トリフェニレン、ペリレン、クリセン、フルオランテン、ベンゾフルオレン、ベンゾトリフェニレン、ベンゾクリセン、アントラセン等の対応する価数の残基が挙げられ、ベンゼン、ナフタレン、ピフェニル、ターフェニル、フルオレン、フェナントレンが好ましい。

$Y_1$ ~ $Y_3$ 、 $R_1$ ~ $R_3$ 、 $L_1$ ~ $L_3$ および $A_1$ ~ $A_2$ の示す置換もしくは無置換の環形成原子数3~24の芳香族複素環基としては、例えば、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1,3,5-トリアジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、フェノチアジン、ジヒドロアクリジンの対応する価数の残基が挙げら

10

20

30

40

50

れ、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、フェノキサジン、ジヒドロアクリジンが好ましい。また、 $R_1$ の示す少なくとも1つの置換もしくは無置換の環形成原子数8～24である1価の縮合芳香族複素環基としては、芳香族複素環基の例の中から縮合構造を有する例が挙げられる。

$Y$ 、 $Y_1 \sim Y_3$ 、 $L_1 \sim L_3$ および $R_1 \sim R_3$ の示す炭素数1～20のアルキル基、アルキレン基、3価あるいは4価の飽和炭化水素基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、 $s$ -ブチル基、 $t$ -ブチル基、イソブチル基、 $n$ -ペンチル基、 $n$ -ヘキシル基、 $n$ -ヘプチル基、 $n$ -オクチル基、 $n$ -ノニル基、 $n$ -デシル基、 $n$ -ウンデシル基、 $n$ -ドデシル基、 $n$ -トリデシル基、 $n$ -テトラデシル基、 $n$ -ペンタデシル基、 $n$ -ヘキサデシル基、 $n$ -ヘプタデシル基、 $n$ -オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基等またはこれらを2～4価とした基が挙げられ、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、 $s$ -ブチル基、イソブチル基、 $t$ -ブチル基、 $n$ -ペンチル基、 $n$ -ヘキシル基、 $n$ -ヘプチル基、 $n$ -オクチル基、 $n$ -ノニル基、 $n$ -デシル基、 $n$ -ウンデシル基、 $n$ -ドデシル基、 $n$ -トリデシル基、 $n$ -テトラデシル基、 $n$ -ペンタデシル基、 $n$ -ヘキサデシル基、 $n$ -ヘプタデシル基、 $n$ -オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基が好ましい。

10

$Y_1 \sim Y_3$ 、 $L_1 \sim L_3$ 、 $R_1 \sim R_3$ および $A_1 \sim A_2$ の示す置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シクロアルキレン基、3価あるいは4価の環状飽和炭化水素基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等またはこれらを2～4価とした基が挙げられ、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が好ましい。

20

$Y_1 \sim Y_3$ の示す炭素数1～20のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、メトキシ基、 $i$ -プロポキシ基、 $n$ -プロポキシ基、 $n$ -ブトキシ基、 $s$ -ブトキシ基、 $t$ -ブトキシ基等が挙げられ、メトキシ基、エトキシ基、メトキシ基、 $i$ -プロポキシ基、 $n$ -プロポキシ基が好ましい。

$Y_1 \sim Y_3$ 、 $L_1 \sim L_3$ 、 $R_1 \sim R_3$ および $A_1 \sim A_2$ の示す炭素数1～20の置換シリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基、トリオクチルシリル基、トリエチルシリル基、ジメチルエチルシリル基、ジメチルイソプロピルシリル基、ジメチルプロピルシリル基、ジメチルブチルシリル基、ジメチルターシャリーブチルシリル基、ジエチルイソプロピルシリル基、フェニルジメチルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、ジフェニルターシャリーブチル基、トリフェニルシリル基等またはこれらを2～3価とした基が挙げられ、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリブチルシリル基が好ましい。

30

$Y_1 \sim Y_3$ および $R_1 \sim R_3$ の示す炭素数7～24のアラルキル基としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基等が挙げられる。

#### 【0045】

式(1)～(19)、(28)および(29)の前記各基に置換してもよい置換基としては、例えば、炭素数1～10のアルキル基(メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、 $s$ -ブチル基、イソブチル基、 $t$ -ブチル基、 $n$ -ペンチル基、 $n$ -ヘキシル基、 $n$ -ヘプチル基、 $n$ -オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ- $t$ -ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロロ- $t$ -ブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1,2-ジプロモエチル基、1,3-ジプロモイソプロピル基、2,3-ジブ

40

50

ロモ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1, 2 - ジヨードエチル基、1, 3 - ジヨードイソプロピル基、2, 3 - ジヨード - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1, 2 - ジアミノエチル基、1, 3 - ジアミノイソプロピル基、2, 3 - ジアミノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1, 2 - ジシアノエチル基、1, 3 - ジシアノイソプロピル基、2, 3 - ジシアノ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 - ニトロエチル基、2 - ニトロエチル基、2 - ニトロイソブチル基、1, 2 - ジニトロエチル基、1, 3 - ジニトロイソプロピル基、2, 3 - ジニトロ - t - ブチル基、1, 2, 3 - トリニトロプロピル基等)、環形成炭素数 3 ~ 40 のシクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4 - メチルシクロヘキシル基、1 - アダマンチル基、2 - アダマンチル基、1 - ノルボルニル基、2 - ノルボルニル基等)、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基(エトキシ基、メトキシ基、i - プロポキシ基、n - プロポキシ基、s - ブトキシ基、t - ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキシルオキシ基等)、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルコキシ基(シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、環形成炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基、環形成原子数 3 ~ 40 の芳香族複素環基、環形成炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基で置換されたアミノ基、環形成炭素数 6 ~ 40 の芳香族炭化水素基を有するエステル基、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を有するエステル基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

10

20

これらの中でも、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、フェニル基、ピリジル基、カルバゾリル基、ジベンゾフラニル基が好ましく、置換基の数は 1 ~ 2 が好ましい。

#### 【0046】

式(2)、(7) ~ (10)、(12)、(14)、(15) ~ (17) の多環系化合物において、n が 2 であると好ましい。

式(1)、(3) ~ (6)、(11) または (13) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_2$  で表される置換基の合計数が 3 以下、式(2)、(7) ~ (10)、(12)、(14)、(15) ~ (17) における  $[ ]_n$  内構造 1 つに対する  $Y_1$ 、 $Y_2$  および  $Y_3$  で表される置換基の合計数が 3 以下であると好ましい。

30

#### 【0047】

式(1)、(2) または (15) において、 $X_1$  と  $X_2$  が、それぞれ  $N - R_1$  で表され、 $X_1$  の  $N - R_1$  と  $X_2$  の  $N - R_1$  が異なっていると好ましい。このように、式(1)、(2) または (15) が非対称構造である場合、対象構造とした場合に比べて結晶化を抑制し、薄膜の安定性が増し素子の寿命が向上する。

式(3) または (7) のように式(1) または (2) において、さらには式(15) において、 $X_1$  と  $X_2$  が、共に  $N - R_1$  で表される化合物であると好ましい。N により架橋することで、化合物の正孔輸送性が向上し、素子の低電圧化を促すことができる。特に、ホスト材料、正孔輸送材料として好適に用いることができる。

また、式(3) または (7) において、 $R_1$  の少なくとも 1 つがジベンゾフラン残基またはカルバゾール残基であると好ましく、 $R_1$  の全てがジベンゾフラン残基またはカルバゾール残基であるとさらに好ましい。同様に、式(4)、(5)、(8)、(9)、(15) において、 $R_1$  がジベンゾフラン残基またはカルバゾール残基であると好ましい。

40

ジベンゾフランおよびカルバゾールのような電子輸送性の縮合芳香族複素環を結合させることで、ピリミジンのような縮環ではない含窒素複素環に比べて、正孔に対する安定性(耐酸化性)が増加し、長寿命化につながる。また、ジベンゾフランおよびカルバゾールのような、エネルギーギャップが大きく、電子輸送性の縮合芳香族複素環を N に結合させることで、燐光発光素子として用いた場合の効率低下を防ぎ、正孔に対する安定性(耐酸化性)が増加する。

#### 【0048】

50

また、式(1)~(17)のように、ベンゼン環 a, c がベンゼン環 b に対してパラ位に結合することで、電子輸送性を向上させることができ、素子の低電圧化を図ることができる。

式(5)、(6)、(9)または(10)のように、式(1)または(2)において、 $X_1$ と $X_2$ の少なくとも1つが酸素原子であると好ましく、(11)~(14)、(16)のように、共に酸素原子であるとさらに好ましい。酸素原子は、電気陰制度が高く、電子輸送性を向上させることができ、これにより素子の低電圧化を図ることができ、特に、ホスト材料又は電子輸送材料として好適に用いることができる。また、共に酸素原子である場合には、三重項エネルギーを広げることができるので、発光効率を向上させることができる。

10

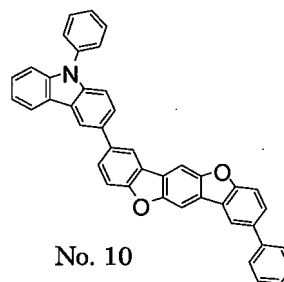
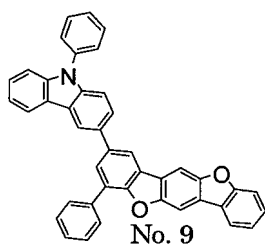
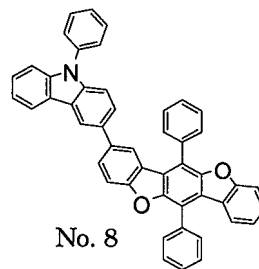
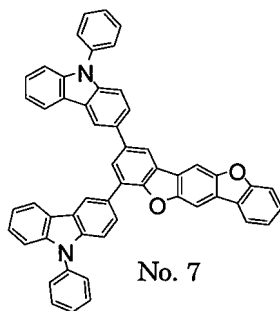
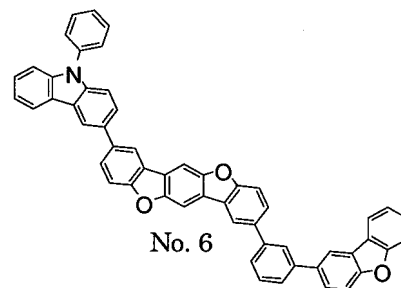
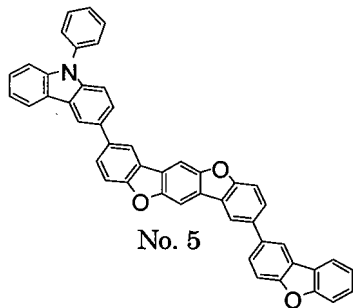
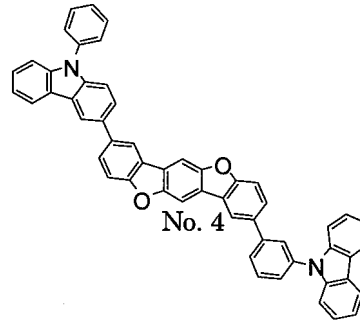
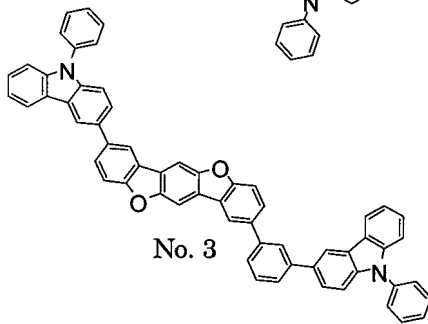
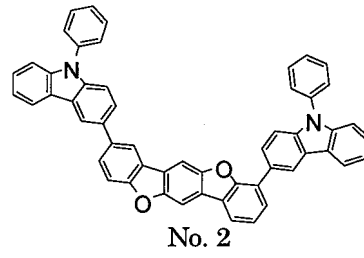
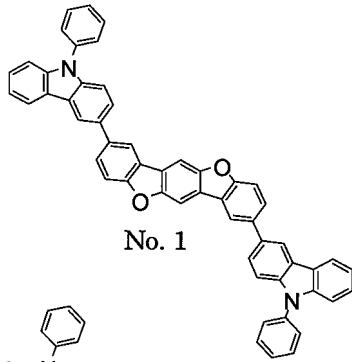
また、式(1)~(17)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ がカルボニル基を含まない、すなわち末端構造がカルボニル基を含まないことにより、寿命が短くなるのを抑制される。

【0049】

本発明の式(1)~(17)で表される有機EL素子用材料の具体例を以下に示すが、本発明は、これら例示化合物に限定されるものではない。

【0050】

【化 2 3】



【 0 0 5 1】

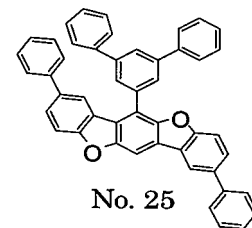
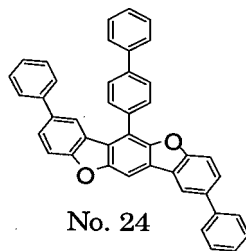
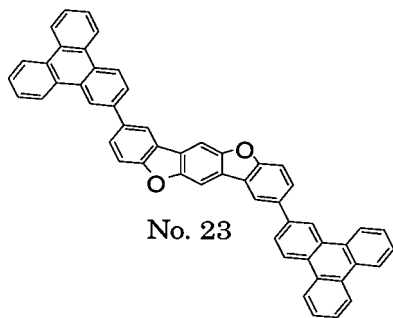
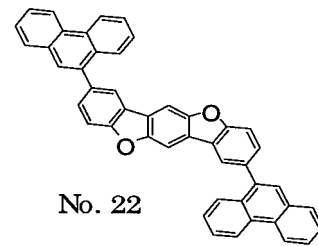
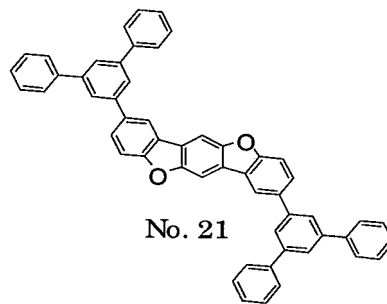
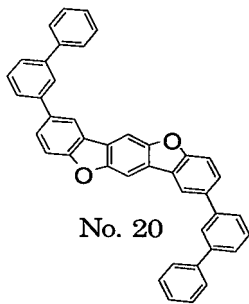
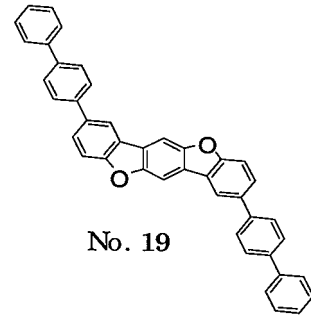
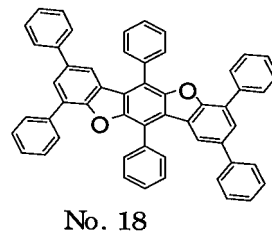
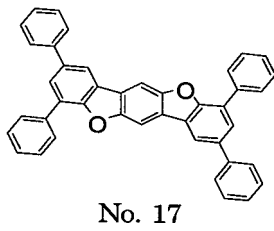
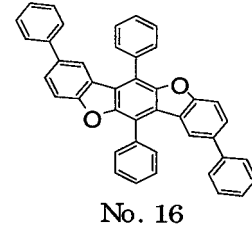
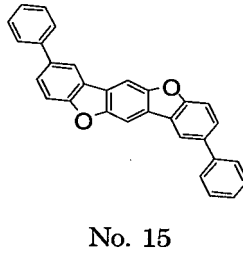
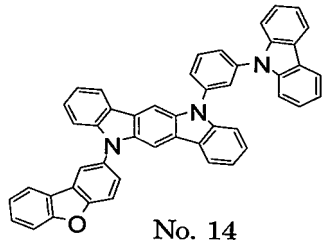
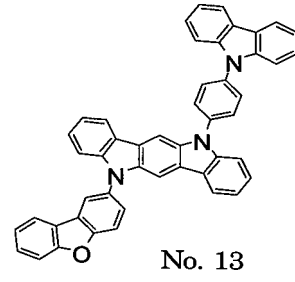
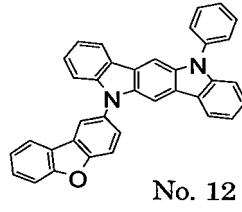
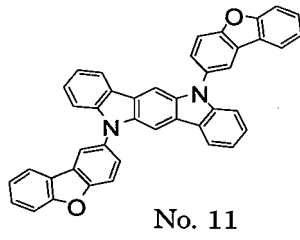
10

20

30

40

【化 2 4】



【 0 0 5 2】

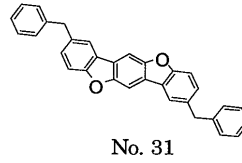
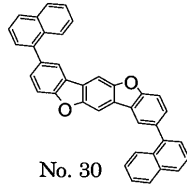
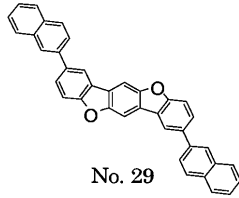
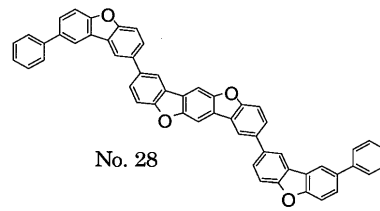
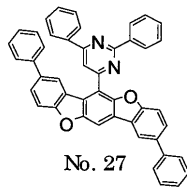
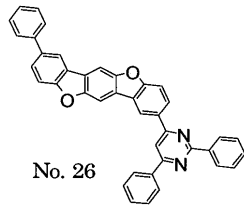
10

20

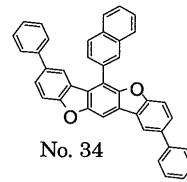
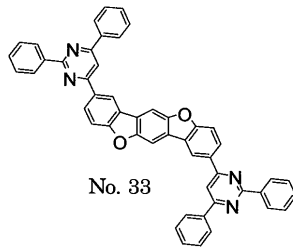
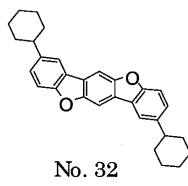
30

40

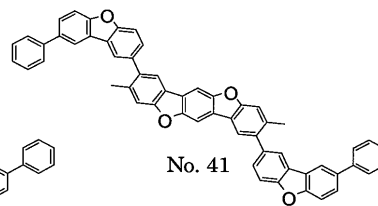
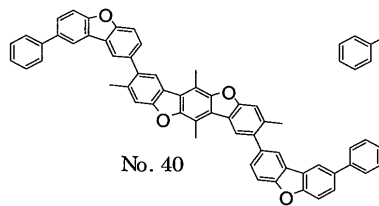
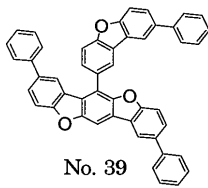
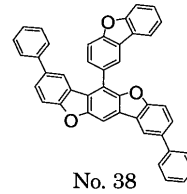
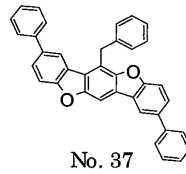
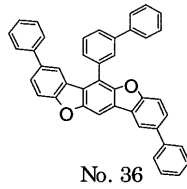
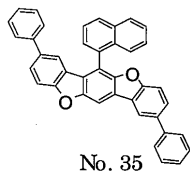
【化 2 5】



10



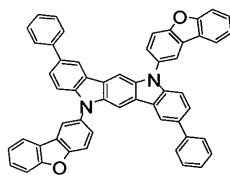
20



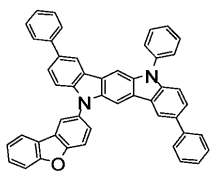
30

【 0 0 5 3】

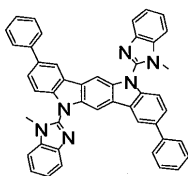
【化 2 6】



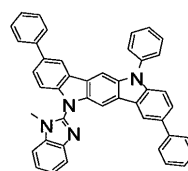
No. 42



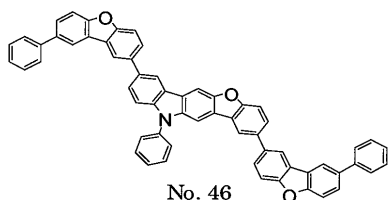
No. 43



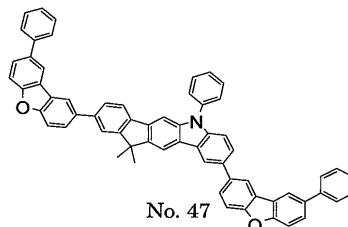
No. 44



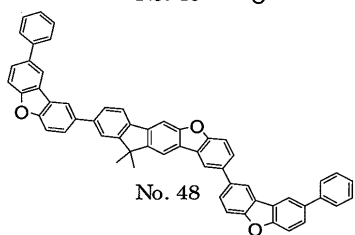
No. 45



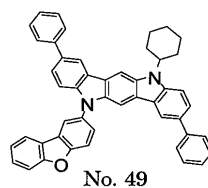
No. 46



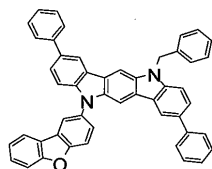
No. 47



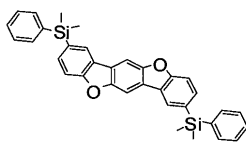
No. 48



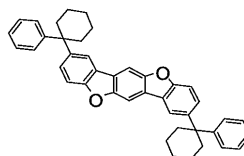
No. 49



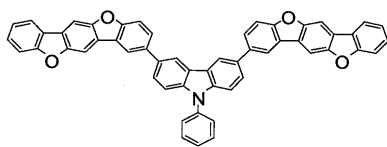
No. 50



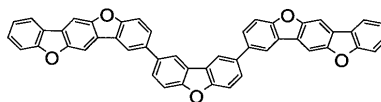
No. 51



No. 52



No. 53



No. 54

【 0 0 5 4 】

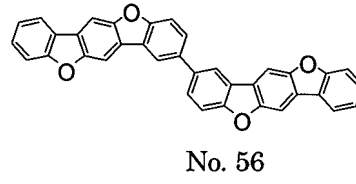
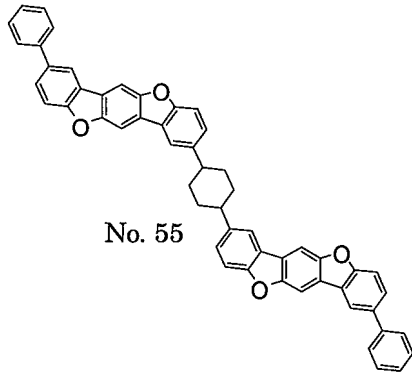
10

20

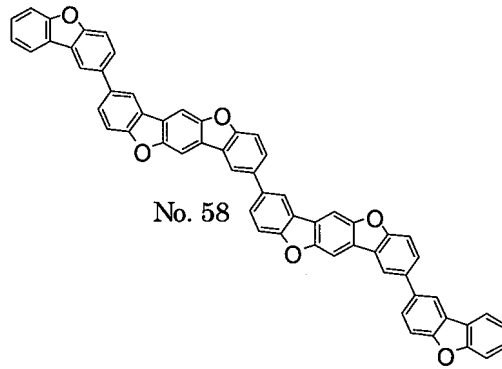
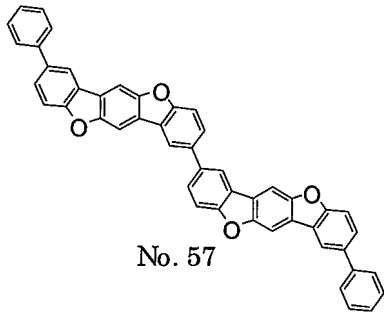
30



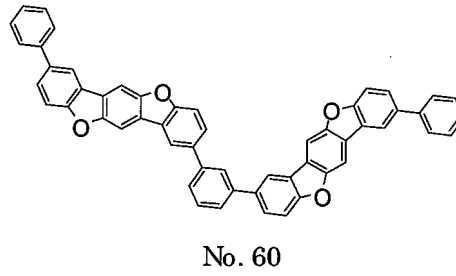
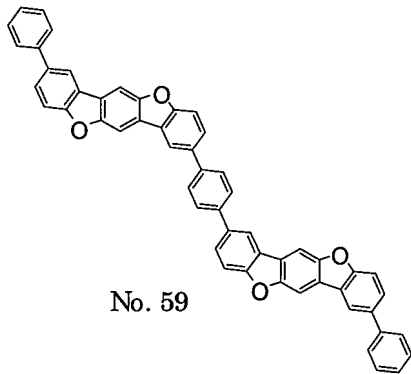
【化 2 7】



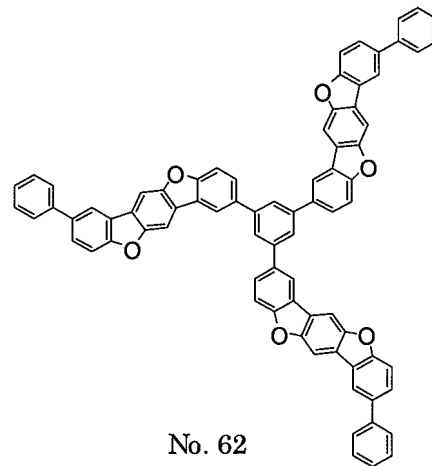
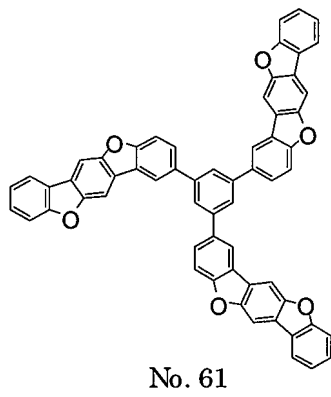
10



20



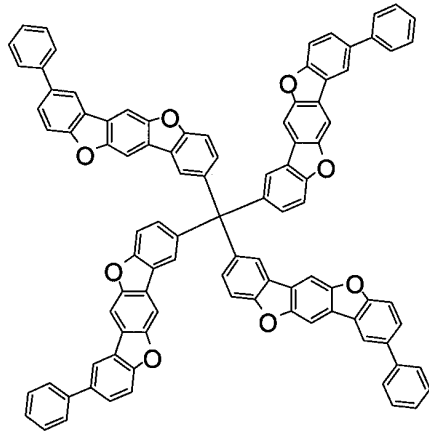
30



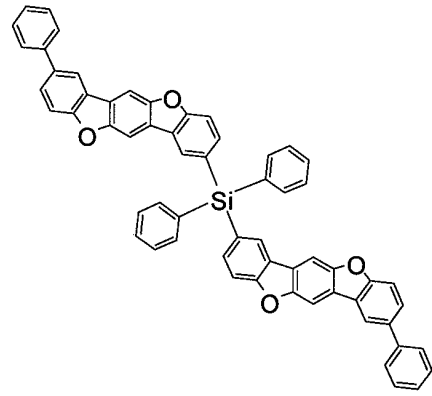
40

【 0 0 5 5 】

【化 2 8】

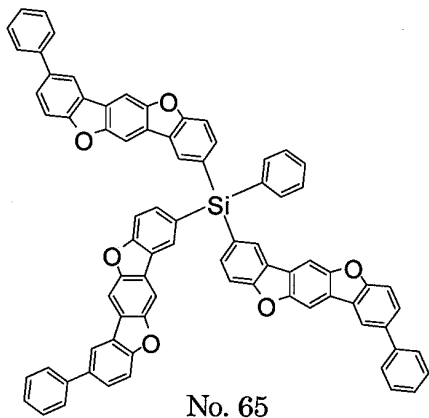


No. 63

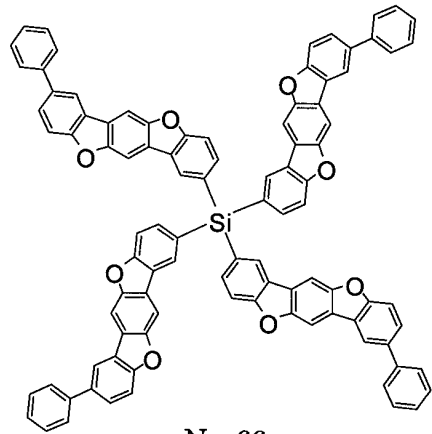


No. 64

10



No. 65



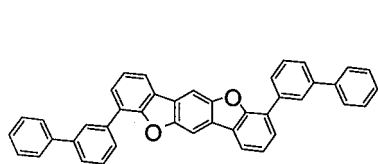
No. 66

20

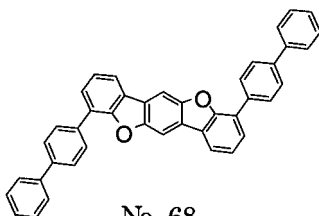
30

【 0 0 5 6】

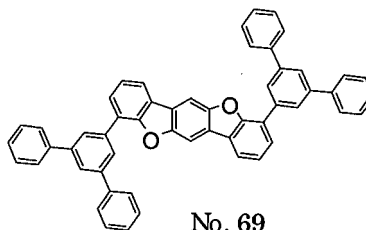
【化 2 9】



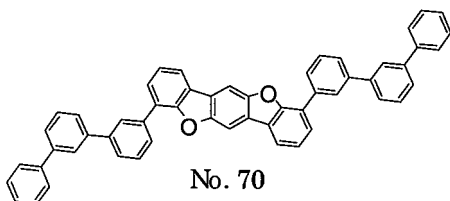
No. 67



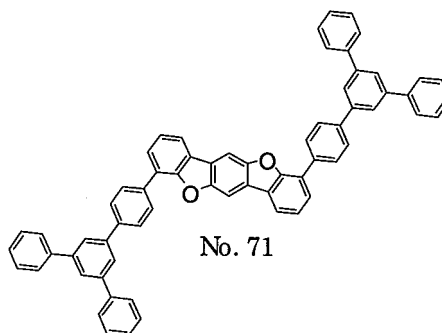
No. 68



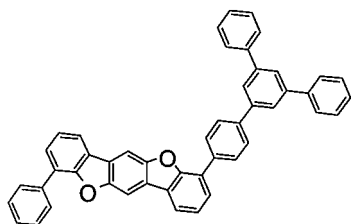
No. 69



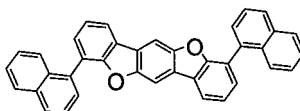
No. 70



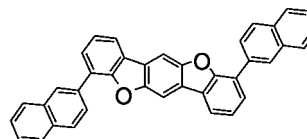
No. 71



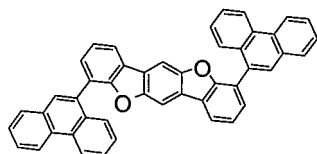
No. 72



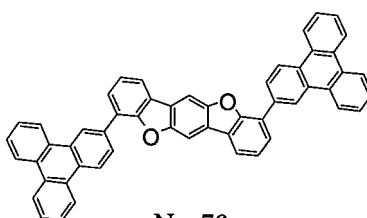
No. 73



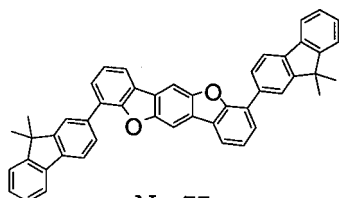
No. 74



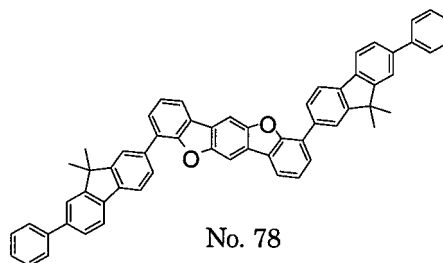
No. 75



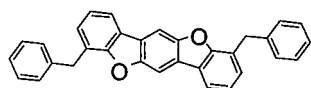
No. 76



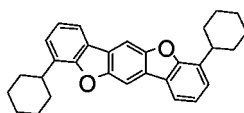
No. 77



No. 78



No. 79



No. 80

【 0 0 5 7 】

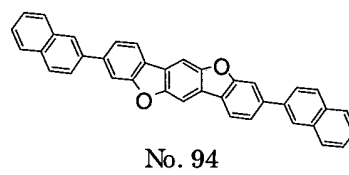
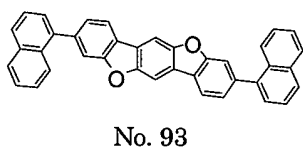
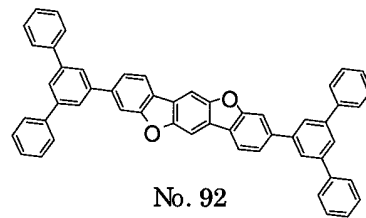
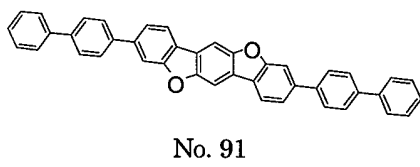
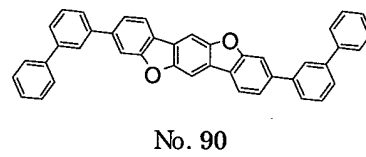
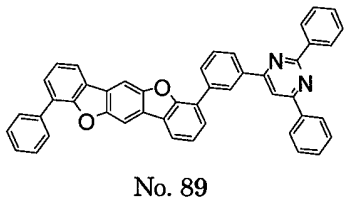
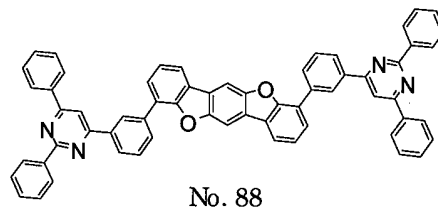
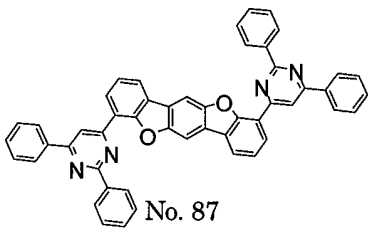
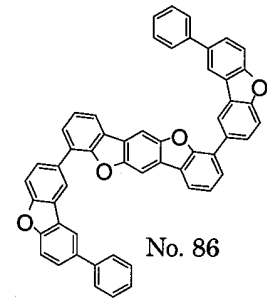
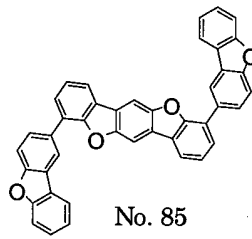
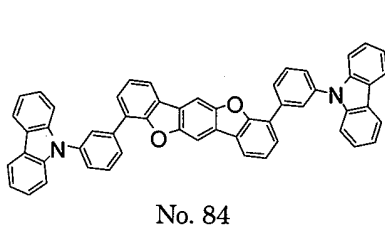
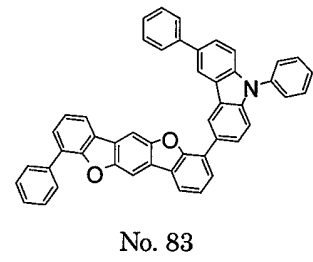
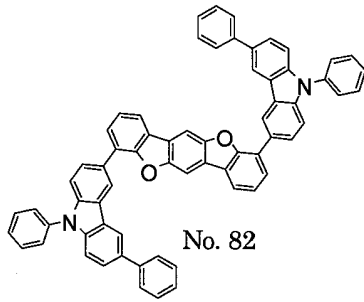
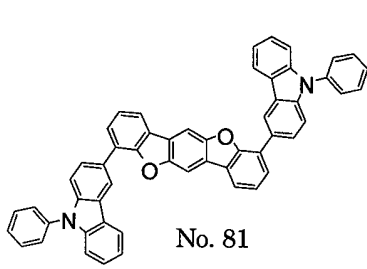
10

20

30

40

【化 3 0】



【 0 0 5 8 】

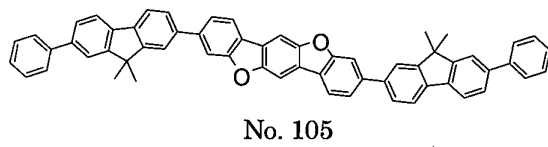
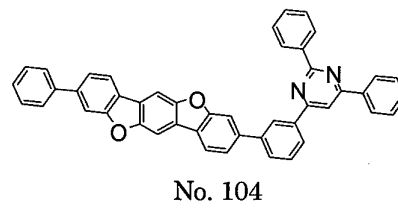
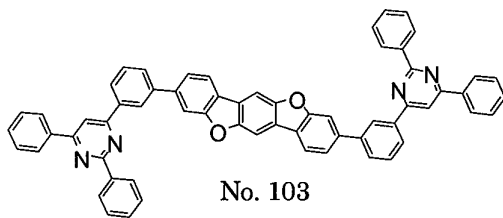
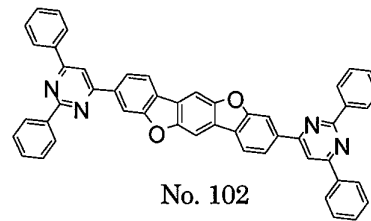
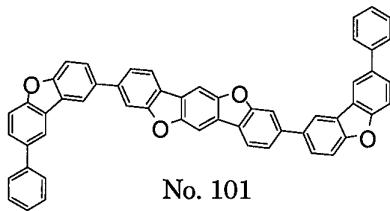
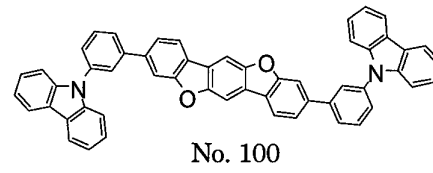
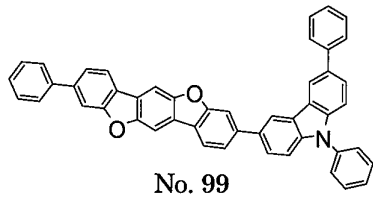
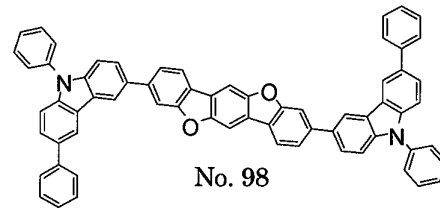
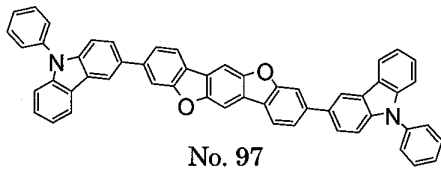
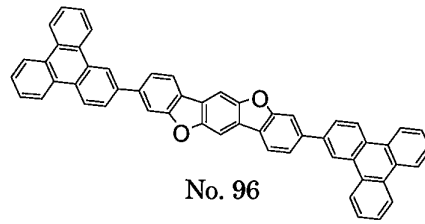
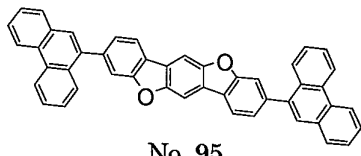
10

20

30

40

【化 3 1】



【 0 0 5 9 】

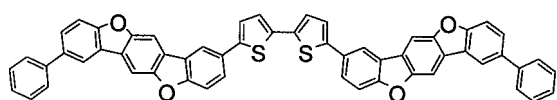
10

20

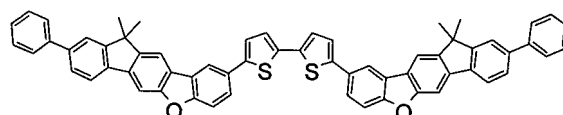
30

40

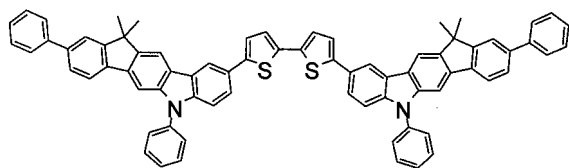
【化 3 2】



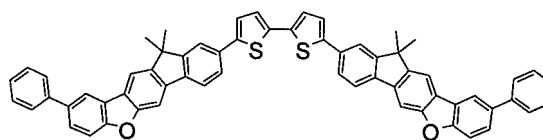
No. 106



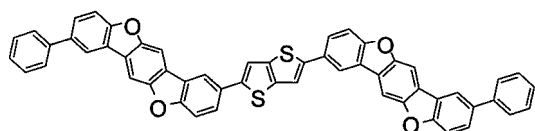
No. 107



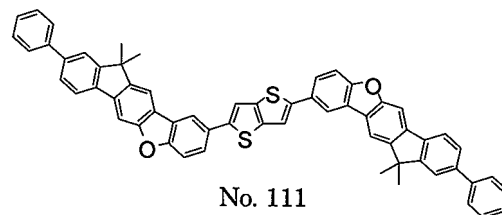
No. 108



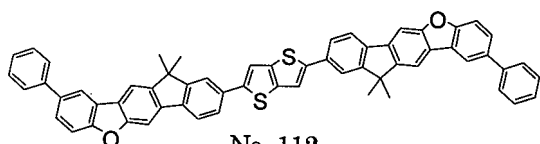
No. 109



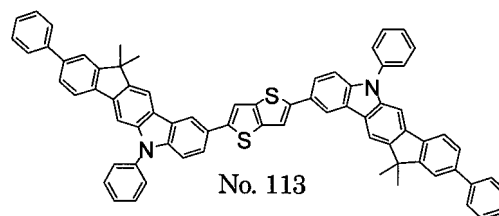
No. 110



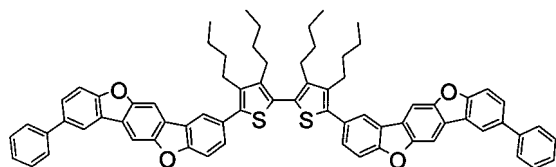
No. 111



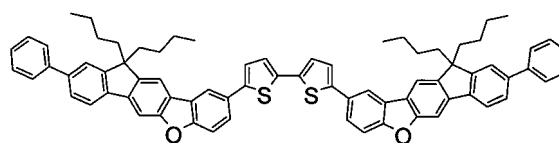
No. 112



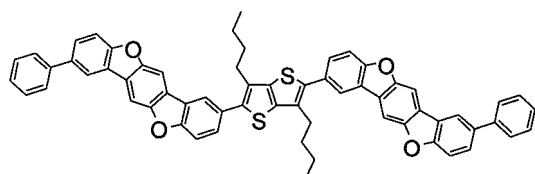
No. 113



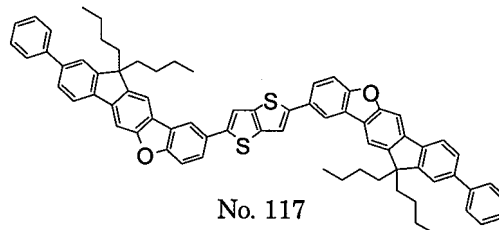
No. 114



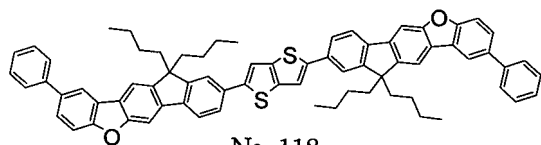
No. 115



No. 116



No. 117



No. 118

【 0 0 6 0 】

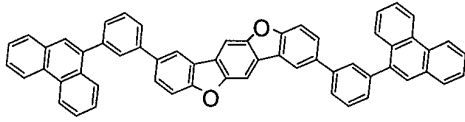
10

20

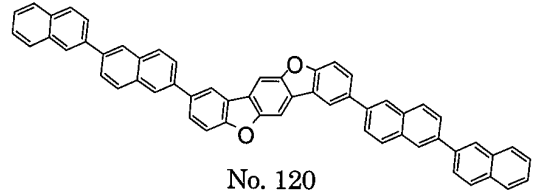
30

40

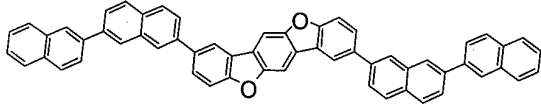
【化 3 3】



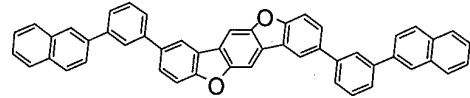
No. 119



No. 120

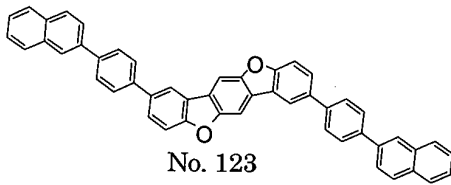


No. 121

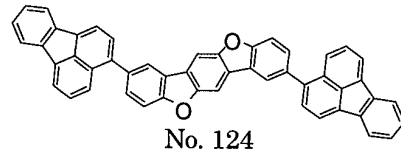


No. 122

10

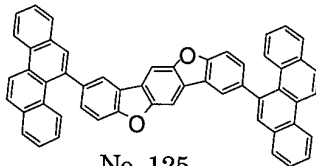


No. 123

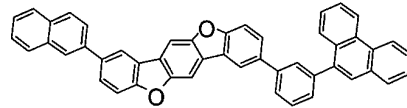


No. 124

20

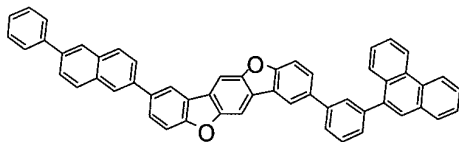


No. 125

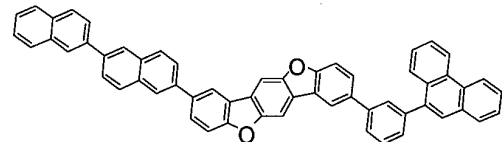


No. 126

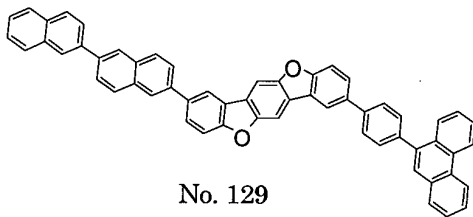
30



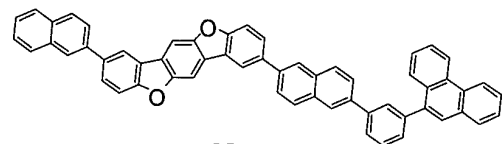
No. 127



No. 128



No. 129

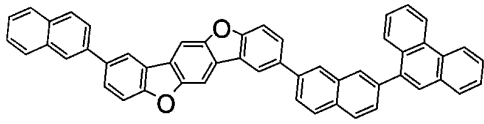


No. 130

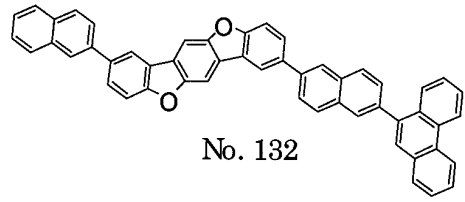
40

【 0 0 6 1】

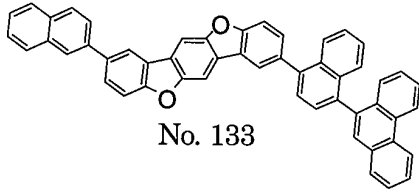
【化 3 4】



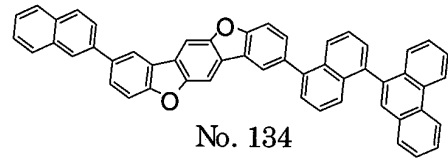
No. 131



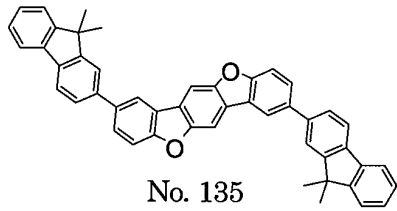
No. 132



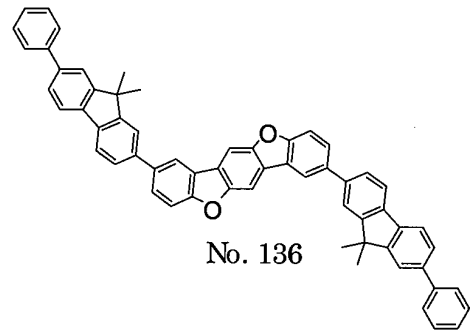
No. 133



No. 134



No. 135



No. 136

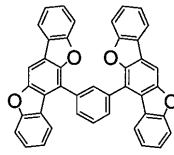
【 0 0 6 2 】

10

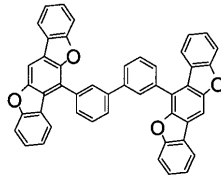
20



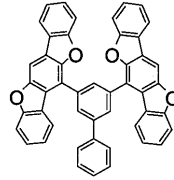
【化 3 5】



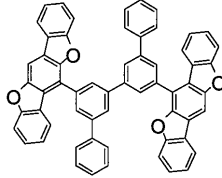
No. 500



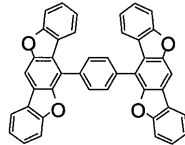
No. 501



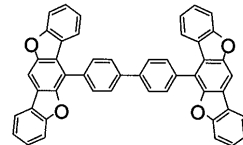
No. 502



No. 503

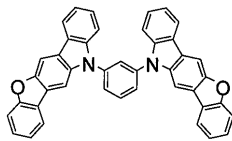


No. 504

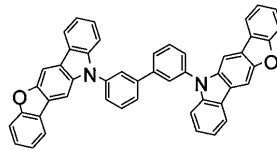


No. 505

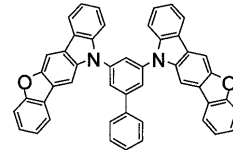
10



No. 506

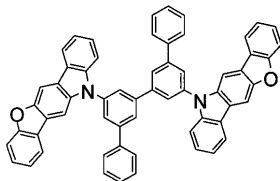


No. 507

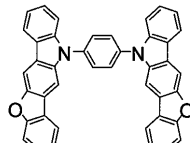


No. 508

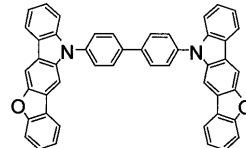
20



No. 509



No. 510

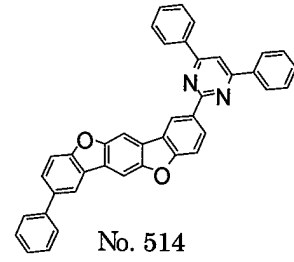
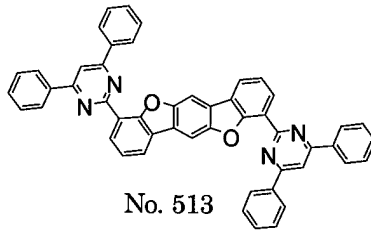
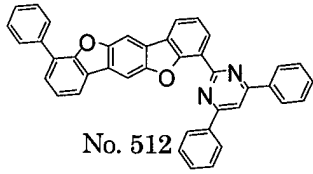


No. 511

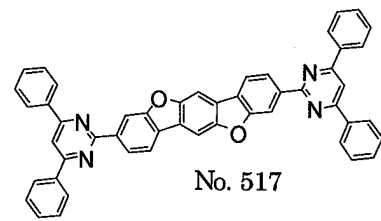
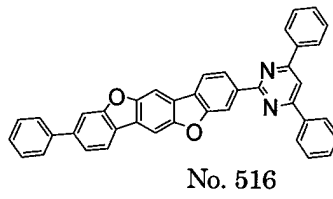
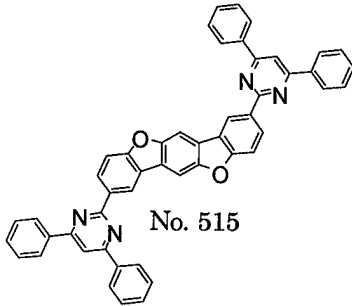
【 0 0 6 3 】

30

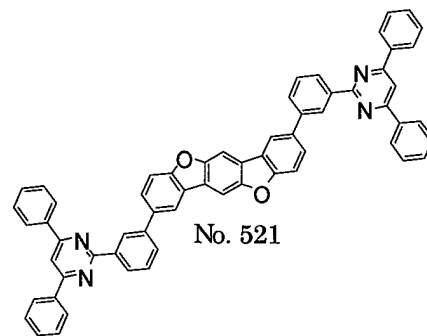
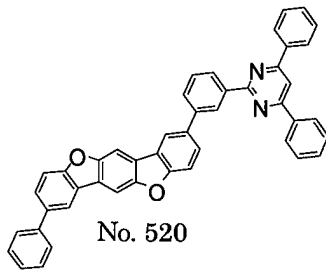
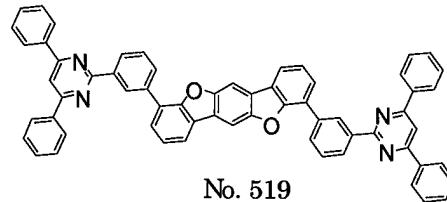
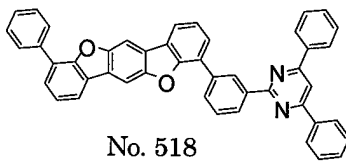
【化 3 6】



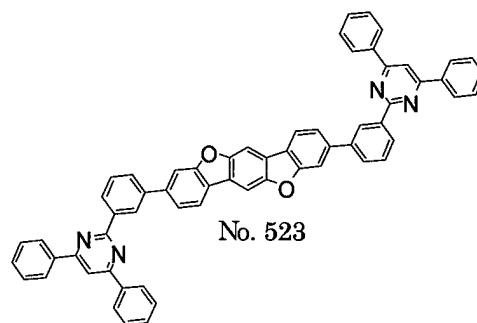
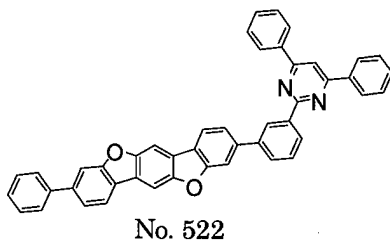
10



20



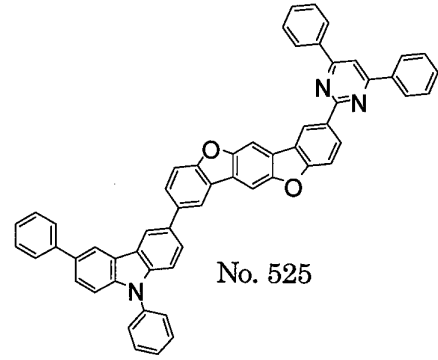
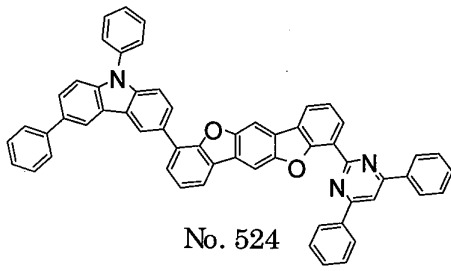
30



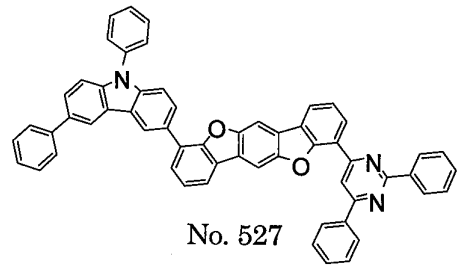
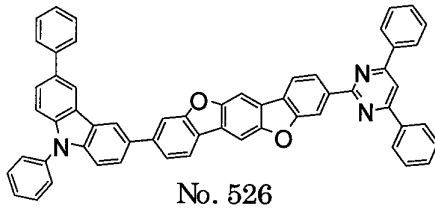
40

【 0 0 6 4 】

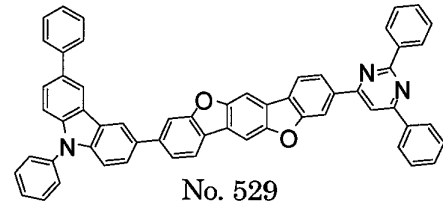
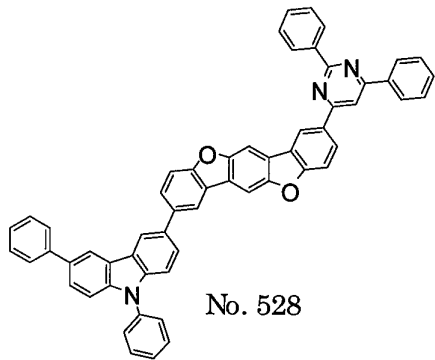
## 【化 3 7】



10



20



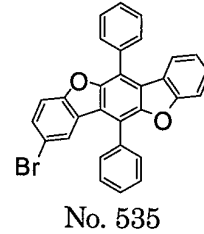
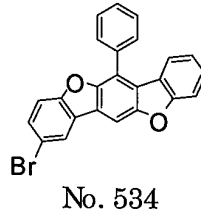
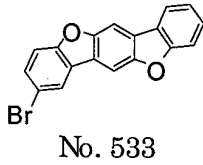
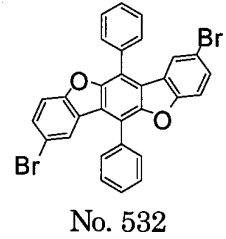
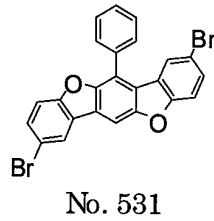
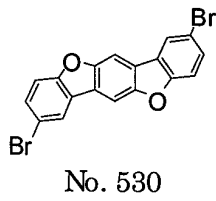
30

## 【 0 0 6 5 】

本発明の式(18)で表されるハロゲン化合物の具体例を以下に示すが、本発明は、これら例示化合物に限定されるものではない。

## 【 0 0 6 6 】

【化38】



10

【0067】

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

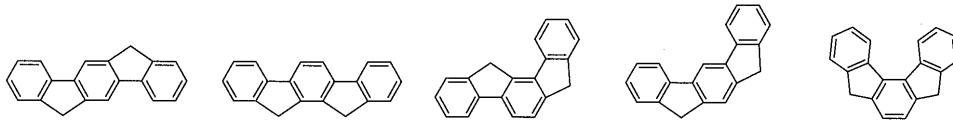
本発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に、発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層の少なくとも一層が、炭素原子、窒素原子、酸素原子または硫黄原子で架橋した共役ヘテロアセン骨格を有する多環系化合物を含有する。共役ヘテロアセン骨格の具体例を以下に示す。

20

【0068】

インデノフルオレン（炭素原子で架橋）

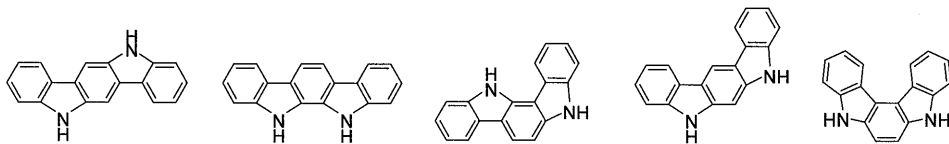
【化39】



30

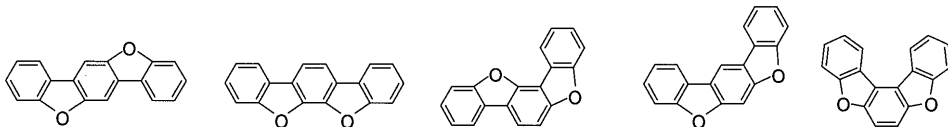
インドロカルバゾール（窒素原子で架橋）

【化40】



ベンゾフラノジベンゾフラン（酸素原子で架橋）

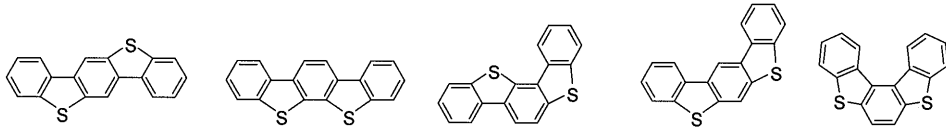
【化41】



40

ベンゾチオフェノジベンゾチオフェン（硫黄原子で架橋）

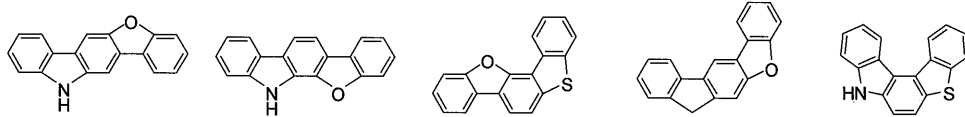
【化42】



この他、炭素原子、窒素原子、酸素原子または硫黄原子を組み合わせて架橋した 共役ヘテロアセン骨格でも良い。具体例を以下に示す。これらの例を組合せて電子及び正孔の輸送性を調整することができる。特に酸素原子と窒素原子を組合せることにより、電子及び正孔の輸送性を両立でき、素子の低電圧化が可能となる。

10

【化43】



【0069】

そして、この 共役ヘテロアセン骨格を有する多環系化合物として、本発明の有機EL素子においては、前述した本発明の多環系化合物を用いる。

前記発光層と陰極との間に電子輸送層を有し、該電子輸送層が前記多環系化合物を含有しても良い。さらに、前記発光層と前記電子輸送層が共に前記多環系化合物を含有すると好ましい。

20

また、前記発光層と陽極との間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が前記多環系化合物を含有しても良い。

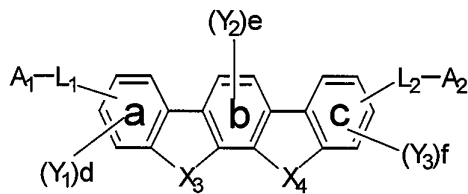
さらに、本発明の多環系化合物は、少なくとも発光層に含有されていると好ましく、発光層に用いた場合は長寿命化が可能で、電子輸送層または電子注入層に用いた場合は低電圧化が可能で、発光層と電子輸送層または電子注入層との2つ以上の層に同時に含有されると低電圧化及び長寿命化が可能であることから好ましい。

特に、電子輸送層または電子注入層に加え、前記発光層が、本発明の多環系化合物をホスト材料として含有すると好ましく、下記式(20)~(27)のいずれかで表される有機EL素子用材料をホスト材料として含有すると好ましい。

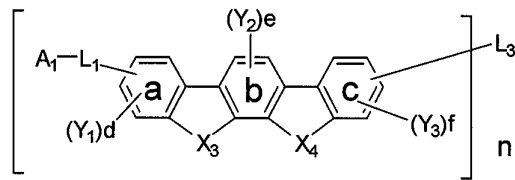
30

【0070】

【化44】

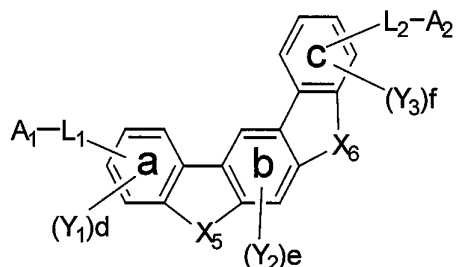


(20)

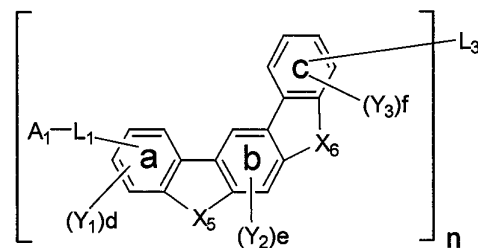


(21)

40



(22)



(23)

50

## 【 0 0 7 1 】

[式(20)～(23)において、 $X_3$ 、 $X_4$ 、 $X_5$ および $X_6$ は、それぞれ独立に、酸素(O)、硫黄(S)、N- $R_1$ または $CR_2R_3$ を表す。

前記 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は、それぞれ独立に、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_3$ と $X_4$ 、または $X_5$ と $X_6$ が共にN- $R_1$ の場合は、 $R_1$ の少なくとも1つは置換もしくは無置換の環形成原子数8～24である1価の縮合芳香族複素環基を表す。

10

式(21)および(23)において、 $n$ は2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(20)～(23)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(20)および(22)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_3$ と $X_4$ 、または $X_5$ と $X_6$ が共に $CR_2R_3$ であり、かつ $L_1$ 、 $L_2$ が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基である場合、 $L_1$ 、 $L_2$ は同時にベンゼン環bに対してパラ位置に連結する場合は無い。

20

式(21)および(23)において、 $L_3$ は、 $n$ が2の場合、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が3の場合、炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6～24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、 $n$ が4の場合、炭素数1～20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。但し、 $X_3$ と $X_4$ 、または $X_5$ と $X_6$ が共に $CR_2R_3$ であり、かつ $L_1$ 、 $L_3$ が共に置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価、3価あるいは4価の芳香族炭化水素基である場合、 $L_1$ 、 $L_3$ は同時にベンゼン環bに対してパラ位置に連結する場合は無い。

30

40

式(20)～(23)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

式(20)および(22)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3

50

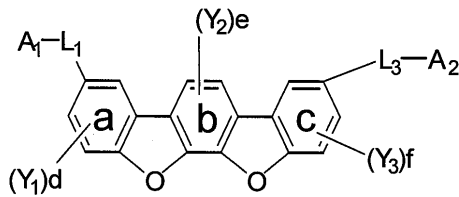
～24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

式(20)～(23)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。但し、 $X_3$ と $X_4$ 、または $X_5$ と $X_6$ が、酸素(O)、硫黄(S)、もしくは $CR_2R_3$ であり、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環bは $Y_2$ を一個または二個有し、 $Y_2$ がメチル基または無置換のフェニル基である場合はない。

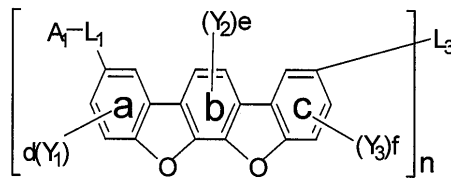
式(20)～(23)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

【0072】

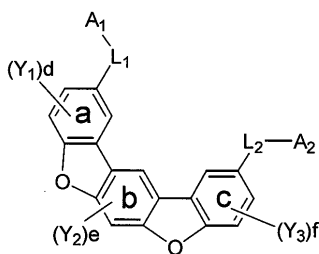
【化45】



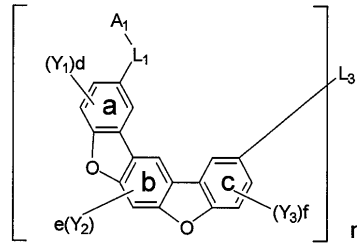
(24)



(25)



(26)



(27)

【0073】

[式(25)および(27)において、nは2、3または4を表し、それぞれ $L_3$ を連結基とした2量体、3量体、4量体である。

式(24)～(27)において、 $L_1$ は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環aと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(24)および(26)において、 $L_2$ は単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換である環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24のベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表す。

式(25)および(27)において、 $L_3$ は、nが2の場合、単結合、炭素数1～20のアルキレン基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキレン基、2価のシリル基もしくは炭素数2～20の2価の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の2価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の2価の芳香族複素環基を表し、nが

10

20

30

40

50

3の場合、炭素数1～20の3価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の3価の環状飽和炭化水素基、3価のシリル基もしくは炭素数1～20の3価の置換シリル基、置換もしくは無置換で環形成炭素数6～24の3価の芳香族炭化水素基、または原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の3価の芳香族複素環基を表し、nが4の場合、炭素数1～20の4価の飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20の4価の環状飽和炭化水素基、ケイ素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の4価の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24でベンゼン環cと炭素-炭素結合で連結する置換もしくは無置換の4価の芳香族複素環基を表す。

式(24)～(27)において、 $A_1$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24で $L_1$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_1$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_1$ は水素原子である場合はない。

10

式(24)および(26)において、 $A_2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または環形成原子数3～24で $L_2$ と炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。但し、 $L_2$ が炭素数1～20のアルキレン基である場合、 $A_2$ は水素原子である場合はない。

式(24)～(27)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ および $Y_3$ は、炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数7～24のアラルキル基、シリル基もしくは炭素数3～20の置換シリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～24の芳香族炭化水素基、または置換もしくは無置換の環形成原子数3～24でベンゼン環a、b、cと炭素-炭素結合で連結する芳香族複素環基を表す。d、fは0、1、2または3、eは0、1または2である。但し、 $L_1$ 、 $L_2$ が共に単結合であり、かつ $A_1$ と $A_2$ が共に水素原子である場合、ベンゼン環bは $Y_2$ を一個または二個有し、 $Y_2$ がメチル基または無置換のフェニル基である場合はない。

20

式(24)～(27)において、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、カルボニル基を含まない。]

30

【0074】

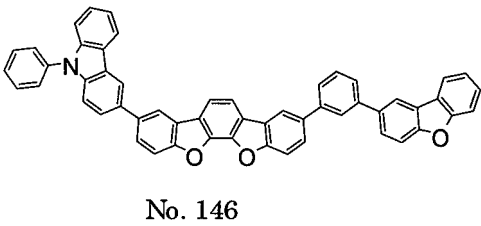
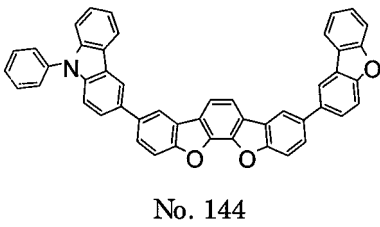
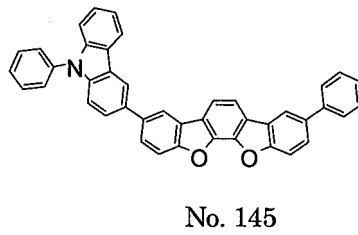
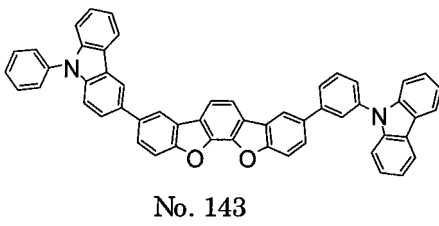
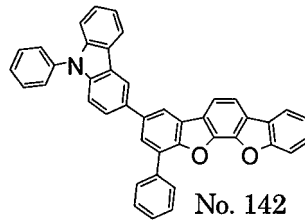
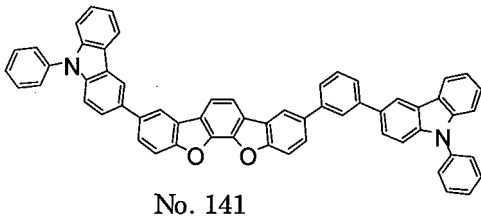
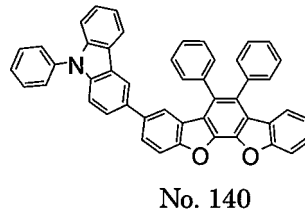
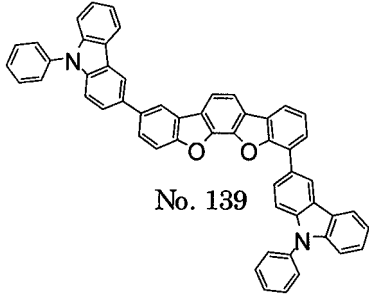
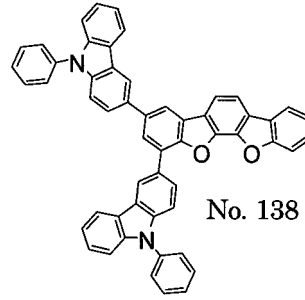
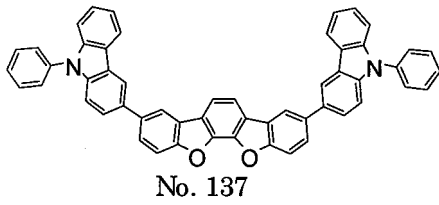
式(20)～(27)において、 $Y_1$ ～ $Y_3$ 、 $R_1$ ～ $R_3$ 、 $L_1$ ～ $L_3$ および $A_1$ ～ $A_2$ の示す各基の例及びその置換基の例としては、式(1)～(19)で挙げたものと同様の例が挙げられる。

本発明の式(20)～(27)で表される有機EL素子用材料の具体例を以下に示すが、本発明は、これら例示化合物に限定されるものではない。

【0075】



【化 4 6】



【 0 0 7 6】

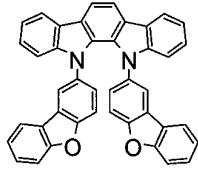
10

20

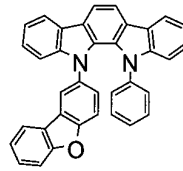
30

40

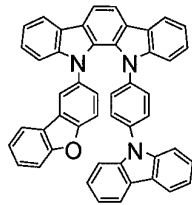
【化 4 7】



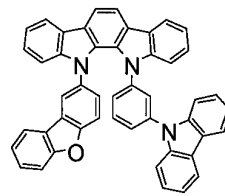
No. 147



No. 148

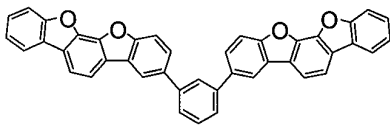


No. 149

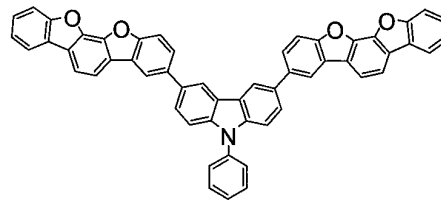


No. 150

10

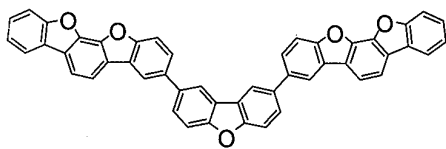


No. 151

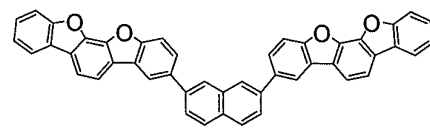


No. 152

20

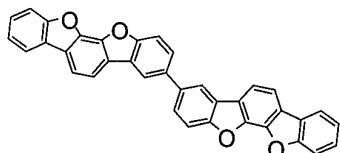


No. 153

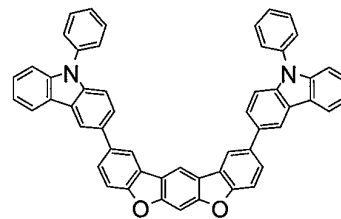


No. 154

30



No. 155

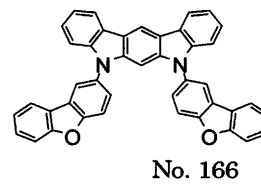
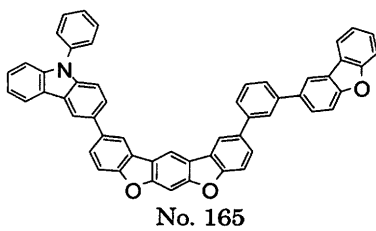
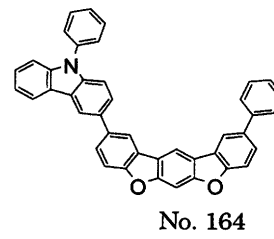
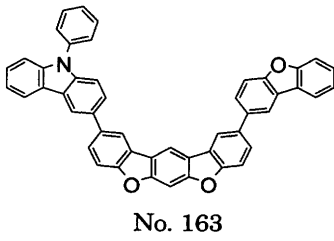
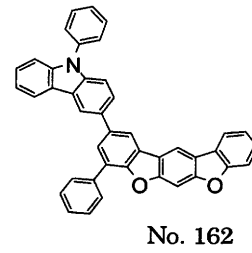
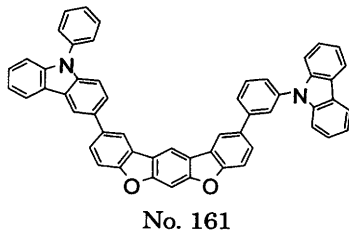
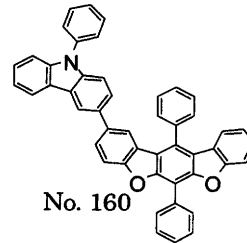
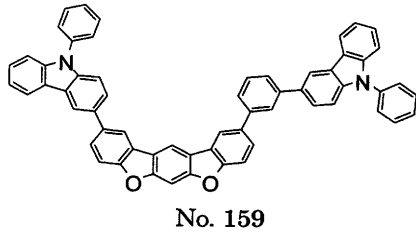
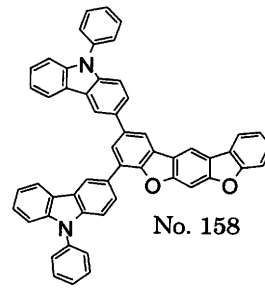
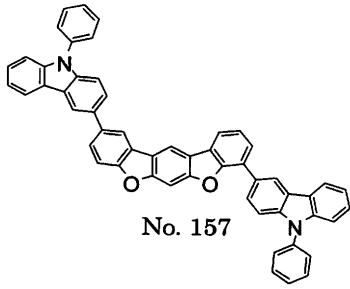


No. 156

40

【 0 0 7 7 】

【化 4 8】



【 0 0 7 8 】

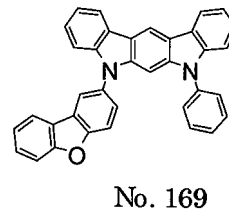
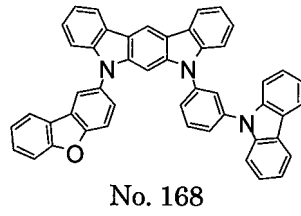
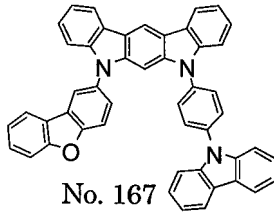
10

20

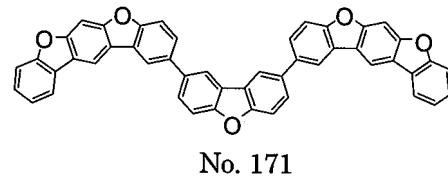
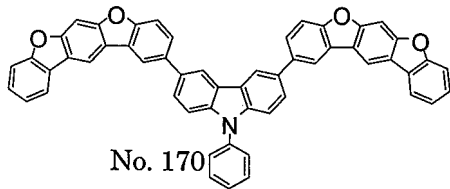
30

40

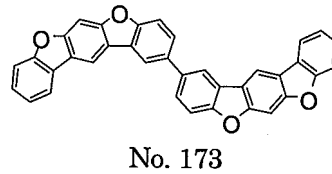
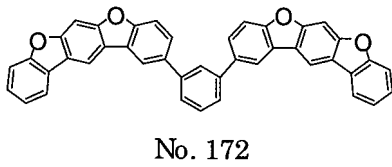
【化 4 9】



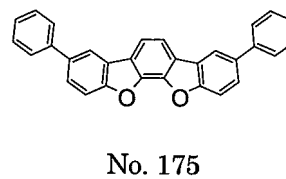
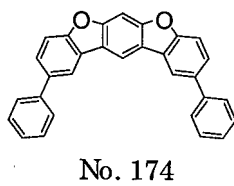
10



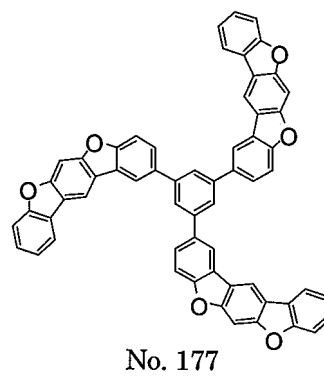
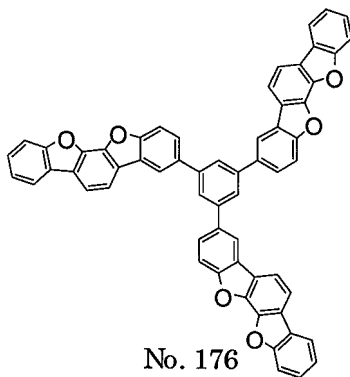
20



30

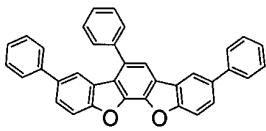


40

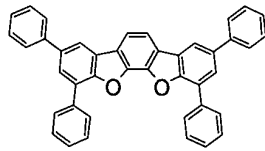


【 0 0 7 9 】

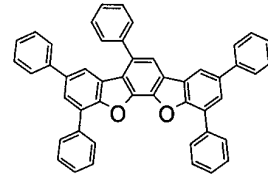
【化50】



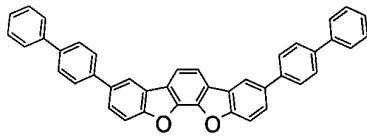
No. 178



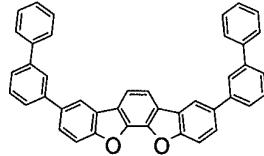
No. 179



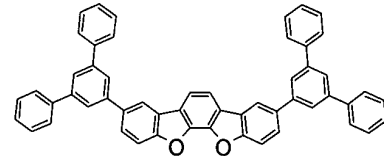
No. 180



No. 181

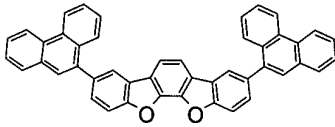


No. 182

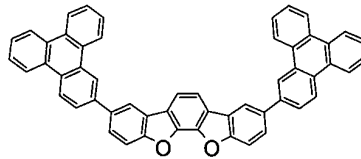


No. 183

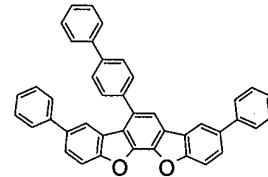
10



No. 184

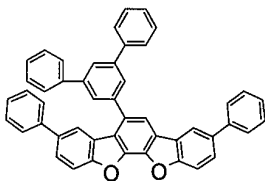


No. 185

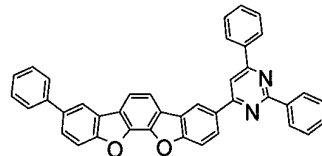


No. 186

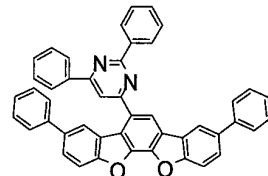
20



No. 187

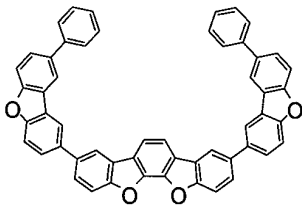


No. 188

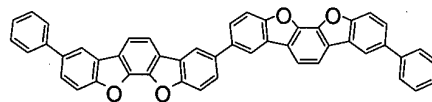


No. 189

30

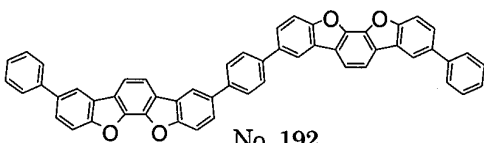


No. 190

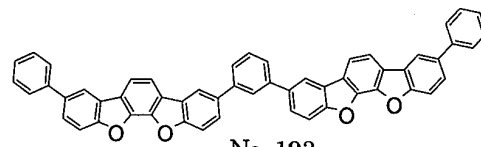


No. 191

40



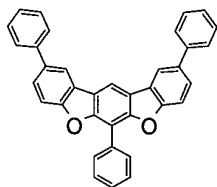
No. 192



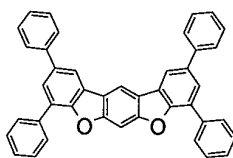
No. 193

【0080】

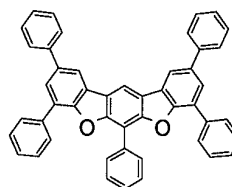
【化 5 1】



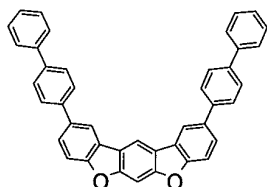
No. 194



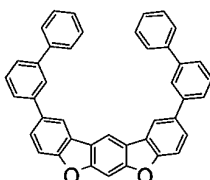
No. 195



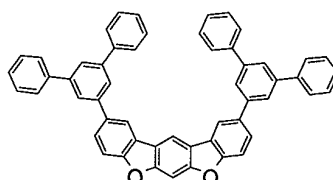
No. 196



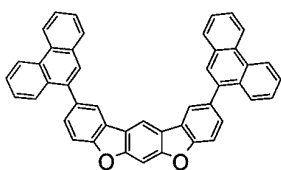
No. 197



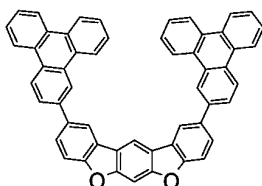
No. 198



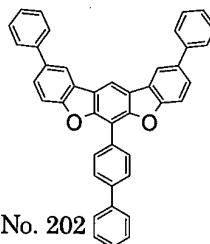
No. 199



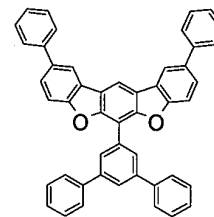
No. 200



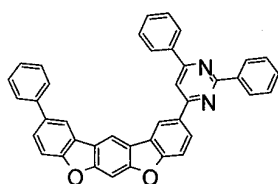
No. 201



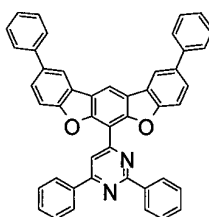
No. 202



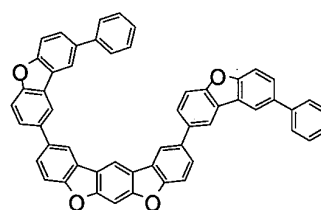
No. 203



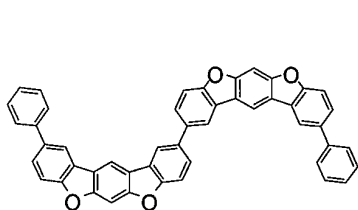
No. 204



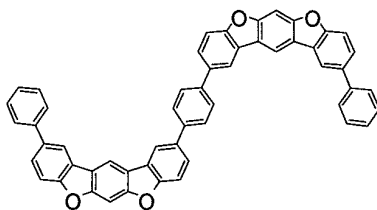
No. 205



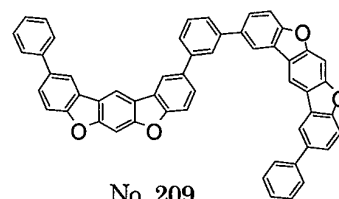
No. 206



No. 207



No. 208



No. 209

【 0 0 8 1 】

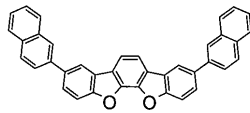
10

20

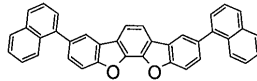
30

40

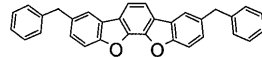
【化 5 2】



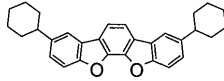
No. 210



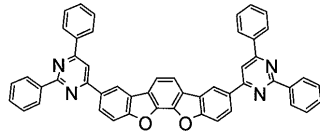
No. 211



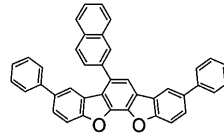
No. 212



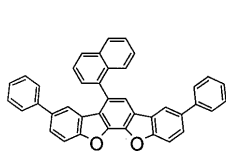
No. 213



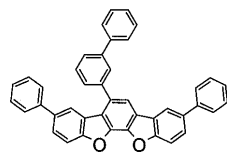
No. 214



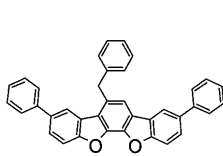
No. 215



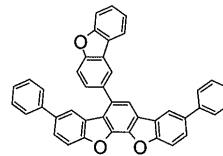
No. 216



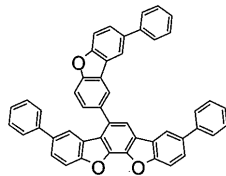
No. 217



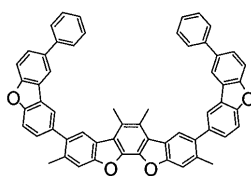
No. 218



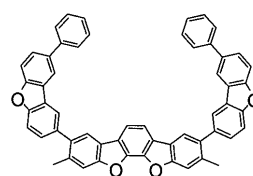
No. 219



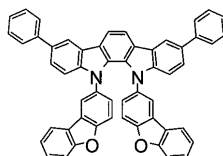
No. 220



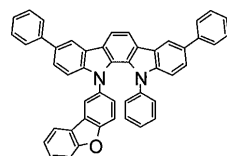
No. 221



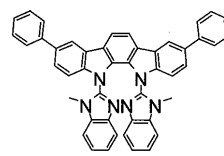
No. 222



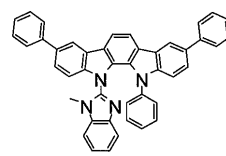
No. 223



No. 224



No. 225



No. 226

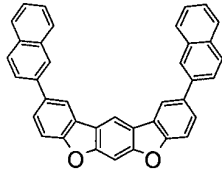
【 0 0 8 2 】

10

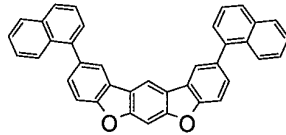
20

30

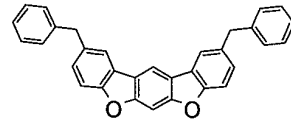
【化53】



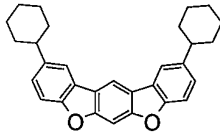
No. 227



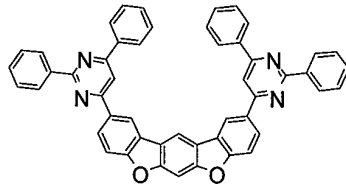
No. 228



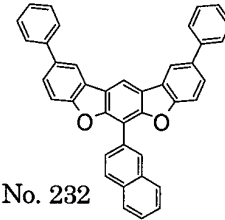
No. 229



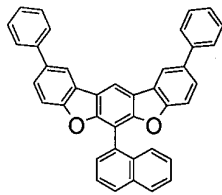
No. 230



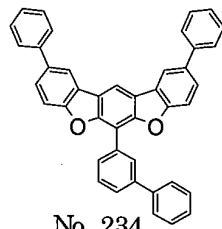
No. 231



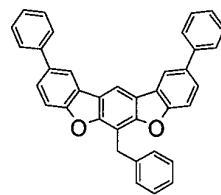
No. 232



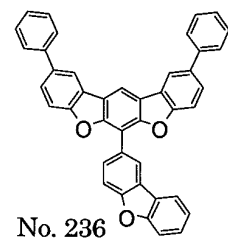
No. 233



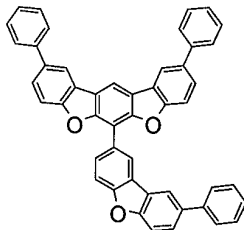
No. 234



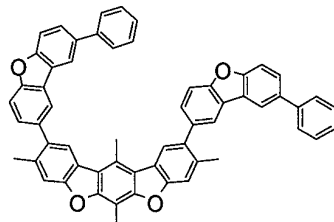
No. 235



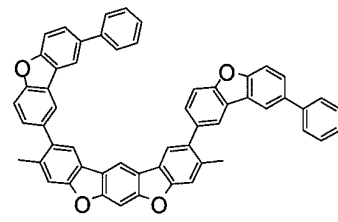
No. 236



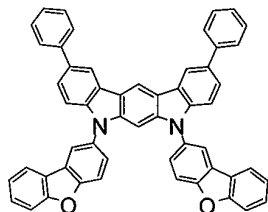
No. 237



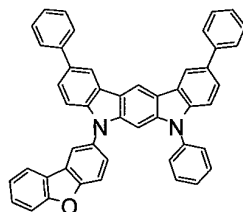
No. 238



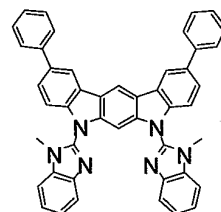
No. 239



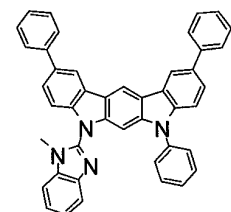
No. 240



No. 241



No. 242



No. 243

【0083】

10

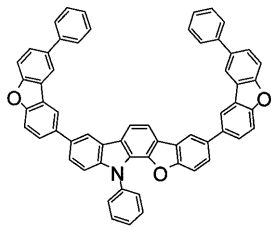
20

30

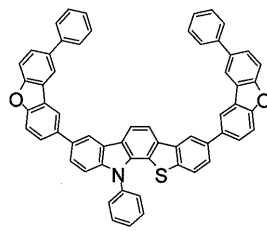
40



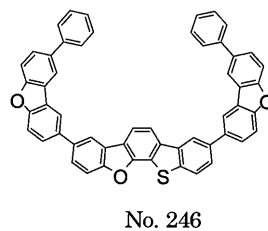
【化 5 4】



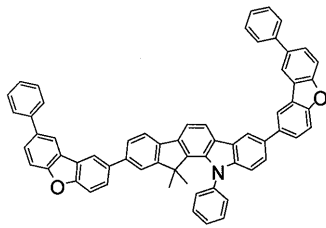
No. 244



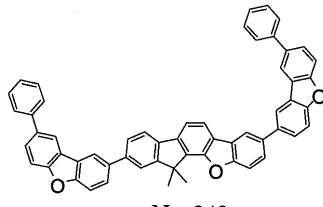
No. 245



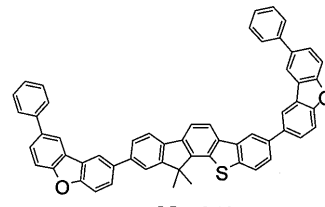
No. 246



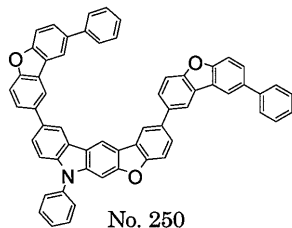
No. 247



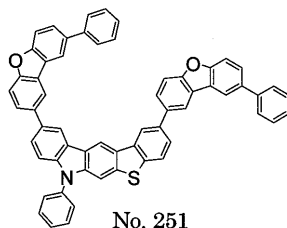
No. 248



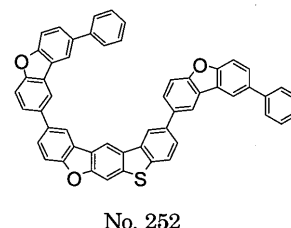
No. 249



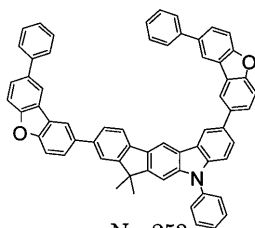
No. 250



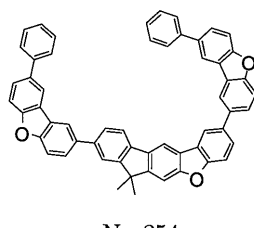
No. 251



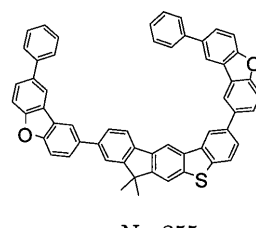
No. 252



No. 253



No. 254



No. 255

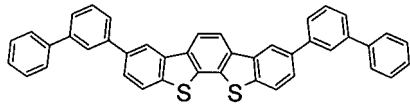
【 0 0 8 4 】

10

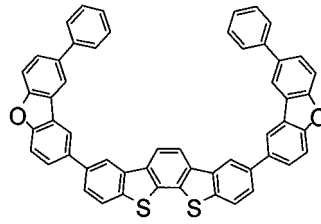
20

30

【化 5 5】

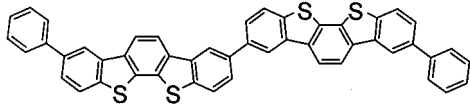


No. 256

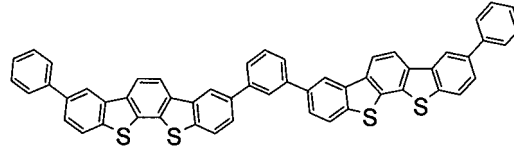


No. 257

10

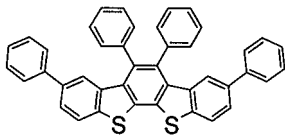


No. 258

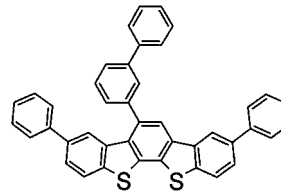


No. 259

20

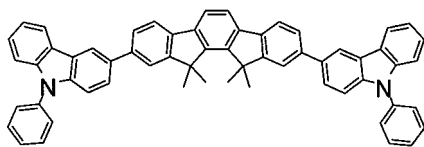


No. 260

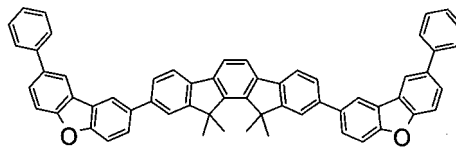


No. 261

30

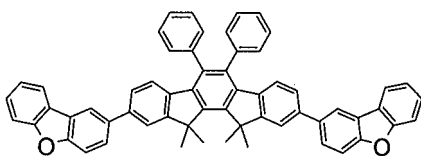


No. 262

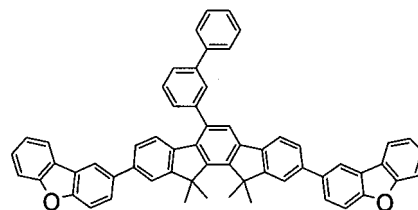


No. 263

40



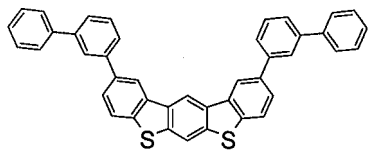
No. 264



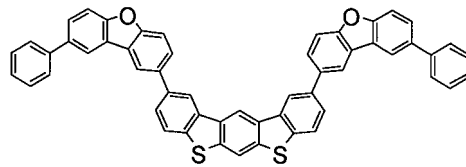
No. 265

【 0 0 8 5 】

【化 5 6】

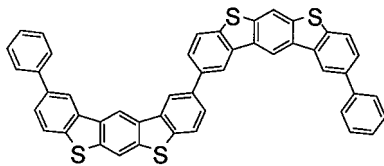


No. 266

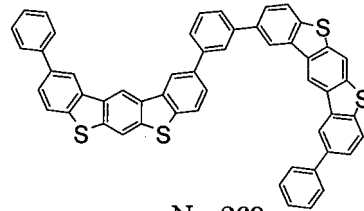


No. 267

10

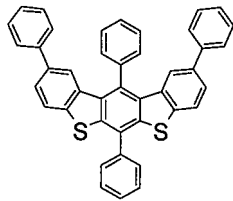


No. 268

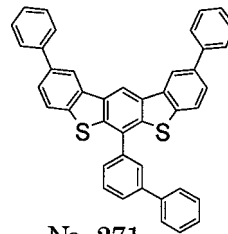


No. 269

20

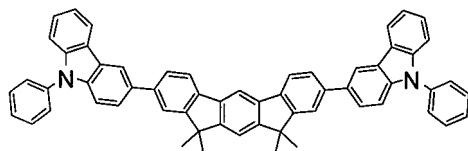


No. 270

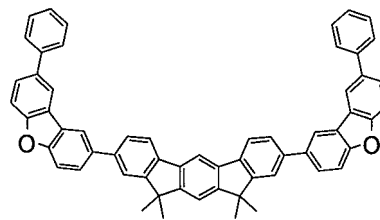


No. 271

30

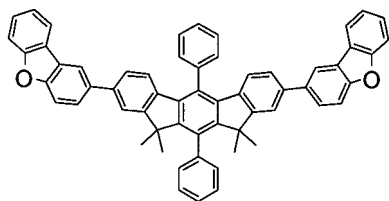


No. 272



No. 273

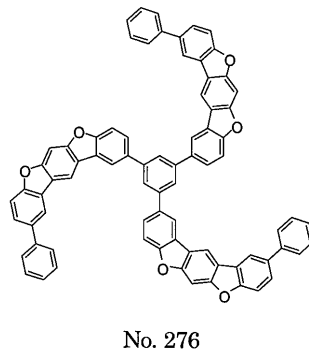
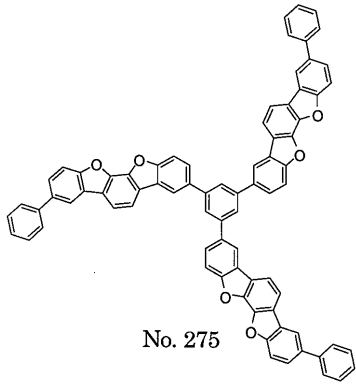
40



No. 274

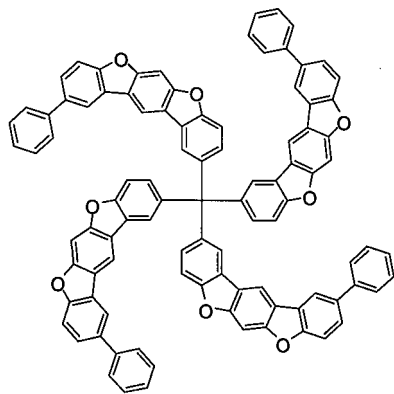
【 0 0 8 6 】

【化 5 7】

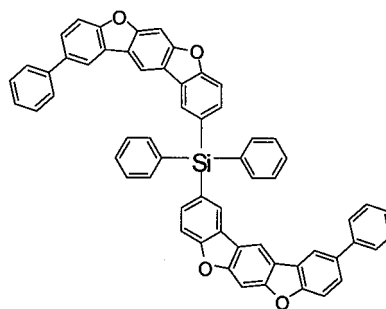


【 0 0 8 7 】

【化 5 8】

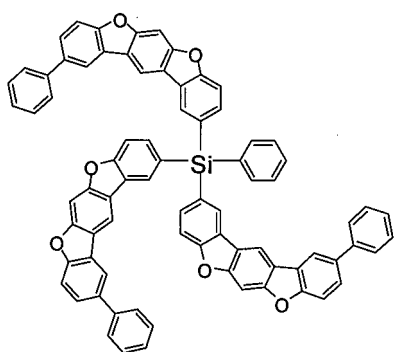


No. 277

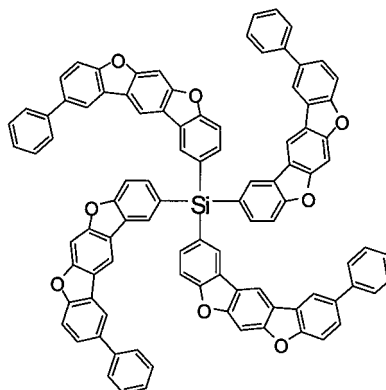


No. 278

10

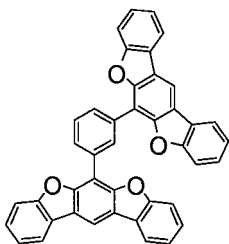


No. 279

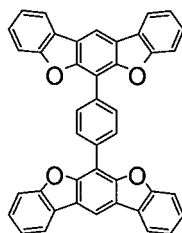


No. 280

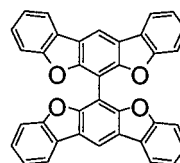
20



No. 281

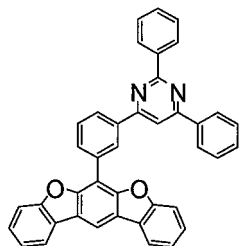


No. 282

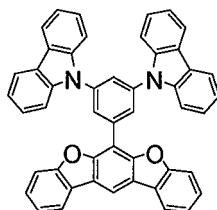


No. 283

30



No. 284

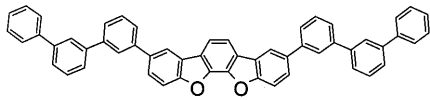


No. 285

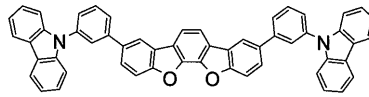
40

【 0 0 8 8 】

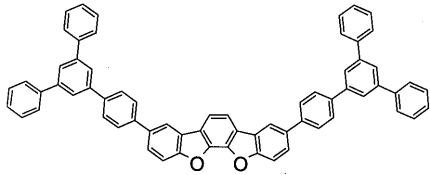
【化59】



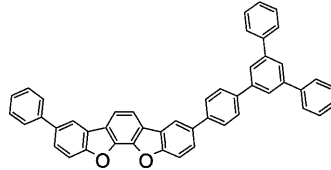
No. 286



No. 287

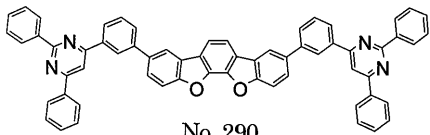


No. 288

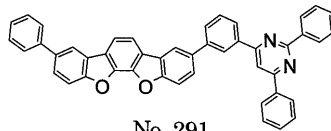


No. 289

10

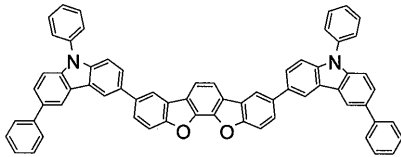


No. 290

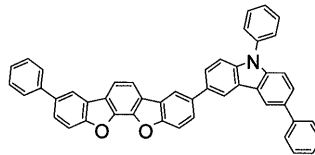


No. 291

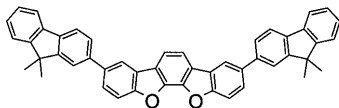
20



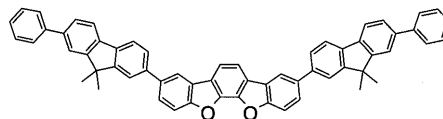
No. 292



No. 293



No. 294

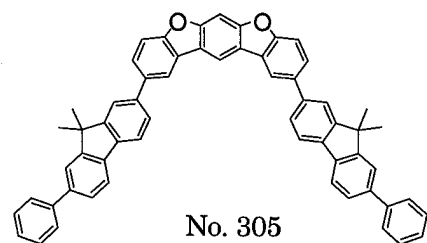
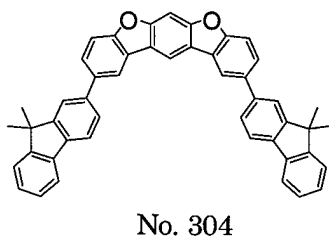
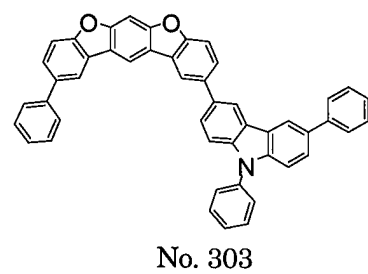
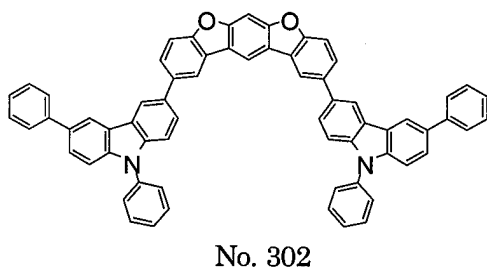
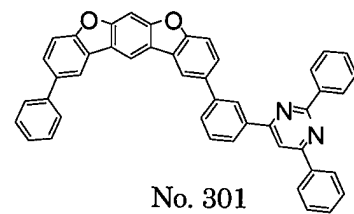
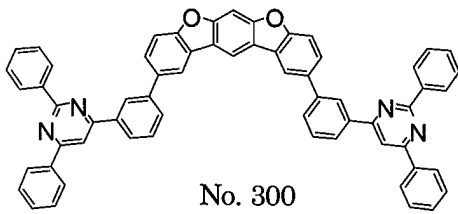
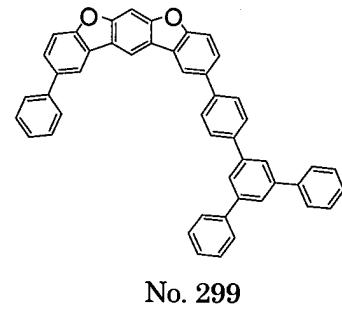
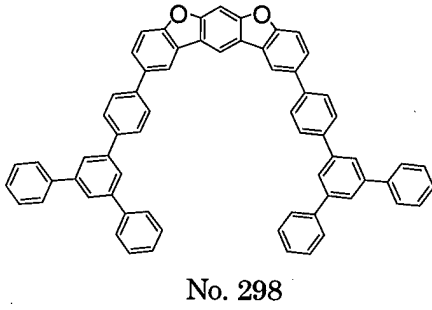
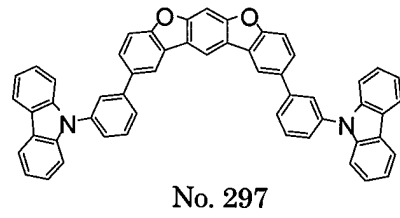
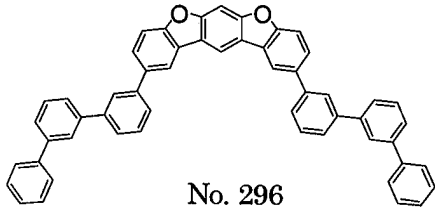


No. 295

30

【0089】

【化 6 0】



【 0 0 9 0】

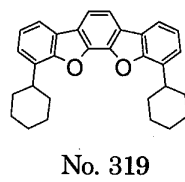
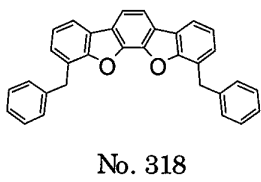
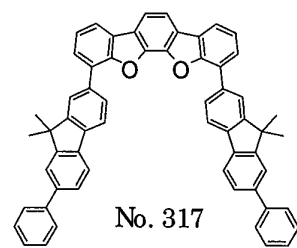
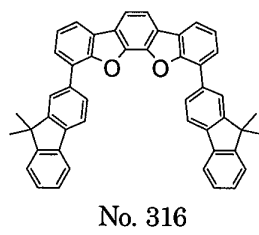
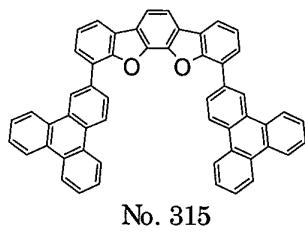
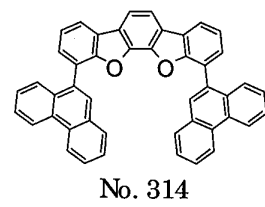
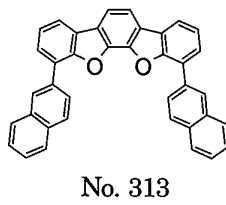
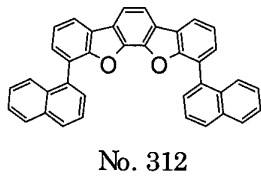
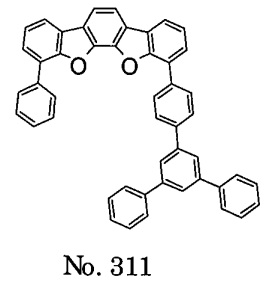
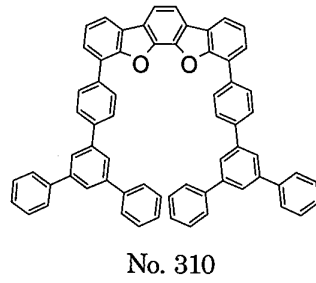
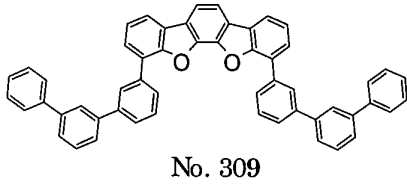
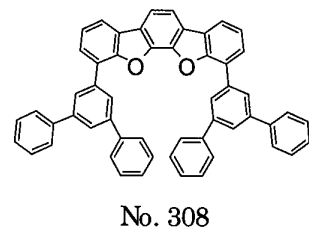
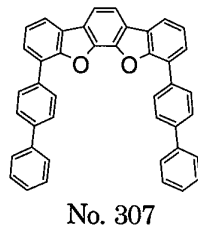
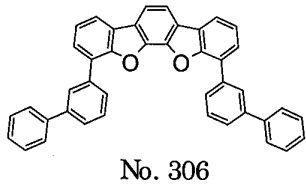
10

20

30

40

【化 6 1】



【 0 0 9 1】

10

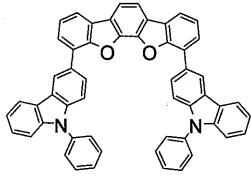
20

30

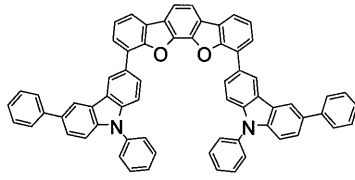
40



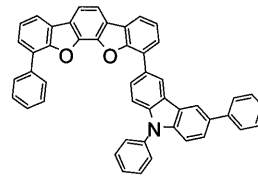
【化 6 2】



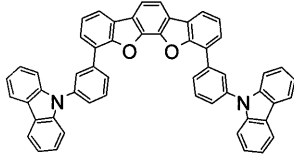
No. 320



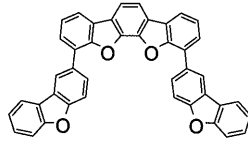
No. 321



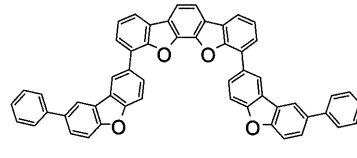
No. 322



No. 323

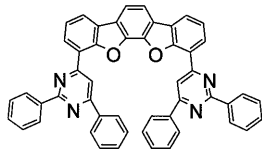


No. 324

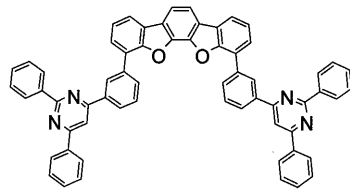


No. 325

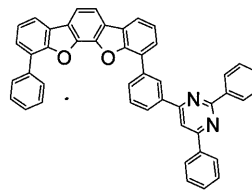
10



No. 326



No. 327

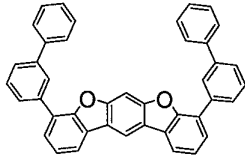


No. 328

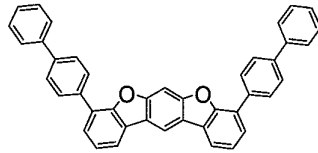
20

【 0 0 9 2 】

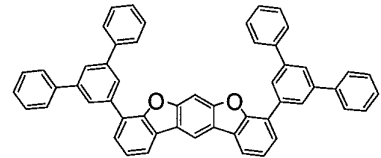
【化 6 3】



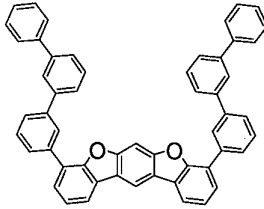
No. 329



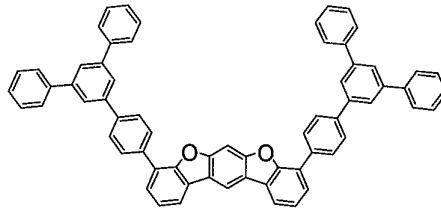
No. 330



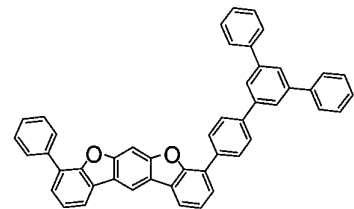
No. 331



No. 332

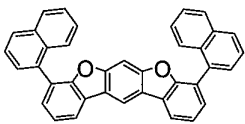


No. 333

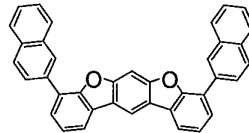


No. 334

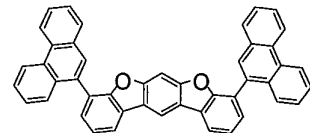
10



No. 335

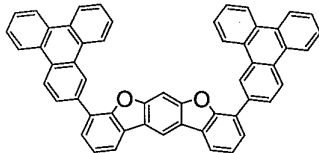


No. 336

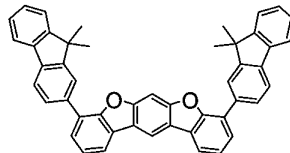


No. 337

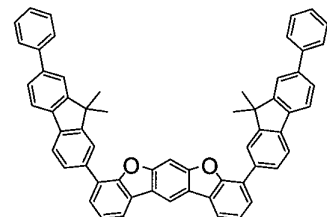
20



No. 338

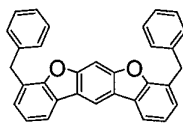


No. 339

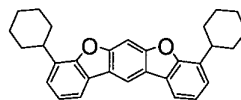


No. 340

30



No. 341

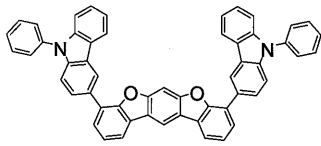


No. 342

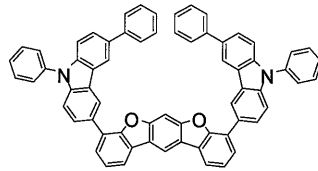
40

【 0 0 9 3 】

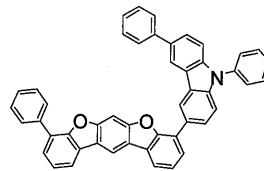
【化 6 4】



No. 343

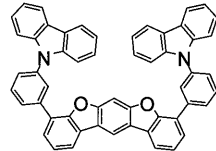


No. 344

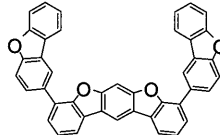


No. 345

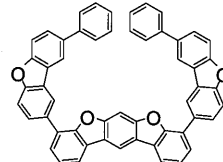
10



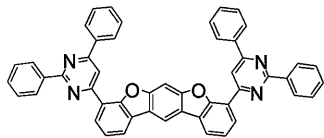
No. 346



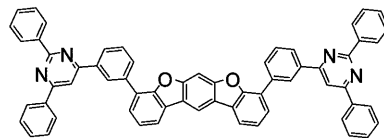
No. 347



No. 348

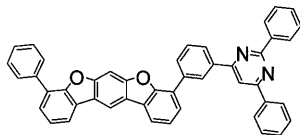


No. 349



No. 350

20

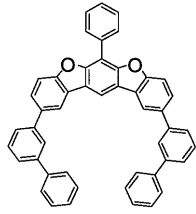


No. 351

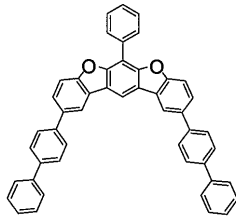
30

【 0 0 9 4 】

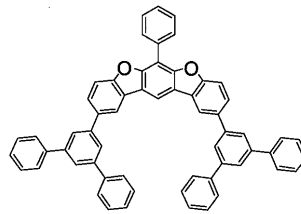
【化 6 5】



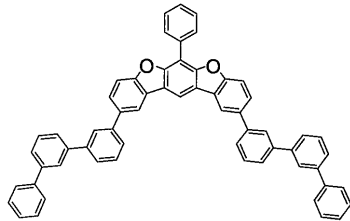
No. 352



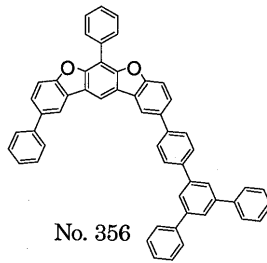
No. 353



No. 354

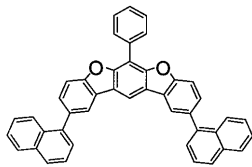


No. 355

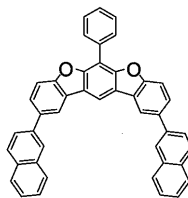


No. 356

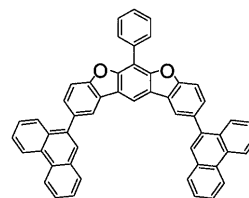
10



No. 357

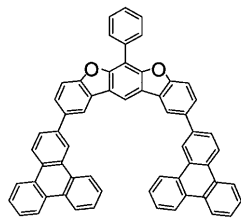


No. 358

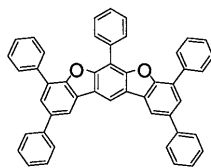


No. 359

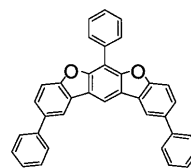
20



No. 360



No. 361

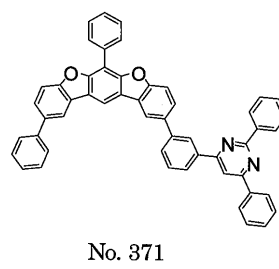
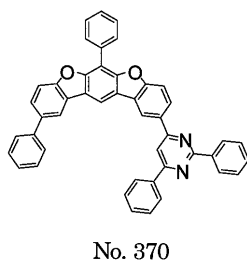
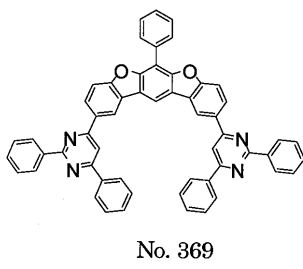
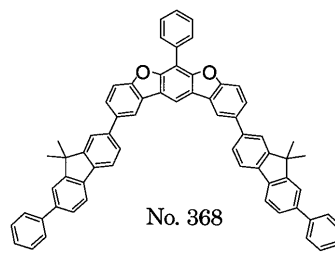
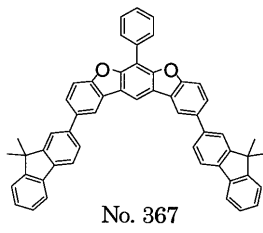
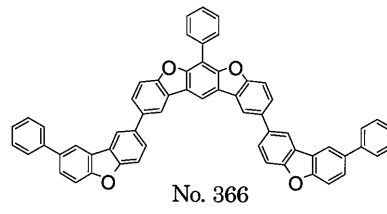
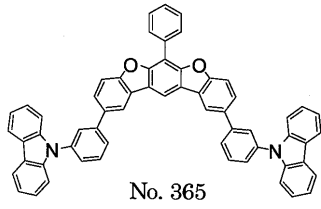
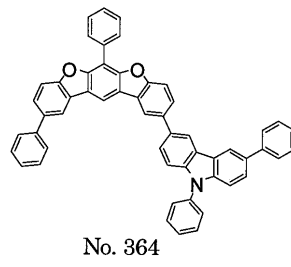
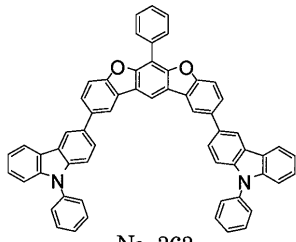


No. 362

30

【 0 0 9 5 】

【化 6 6】



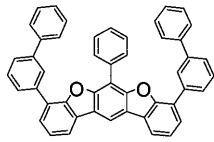
【 0 0 9 6】

10

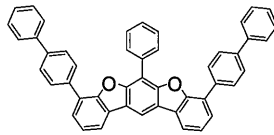
20

30

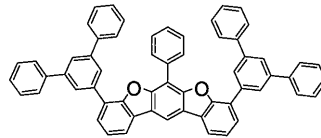
【化 6 7】



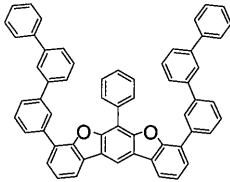
No. 372



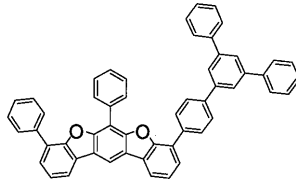
No. 373



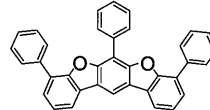
No. 374



No. 375

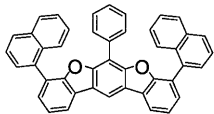


No. 376

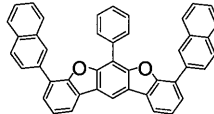


No. 377

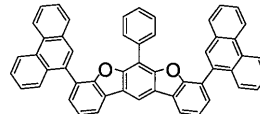
10



No. 378

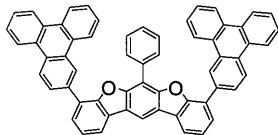


No. 379

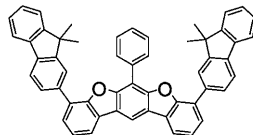


No. 380

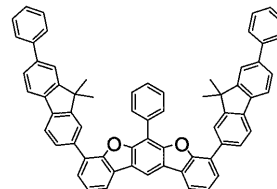
20



No. 381



No. 382

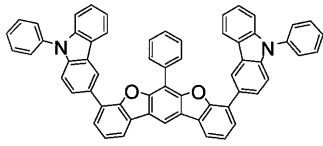


No. 383

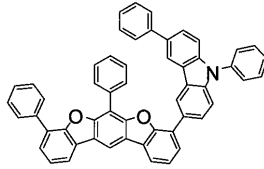
30

【 0 0 9 7 】

【化 6 8】

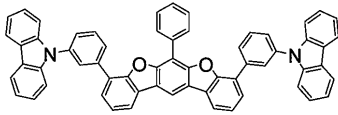


No. 384

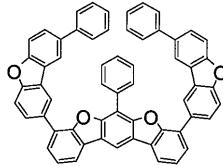


No. 385

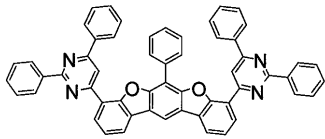
10



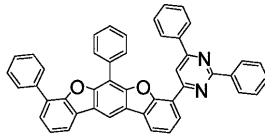
No. 386



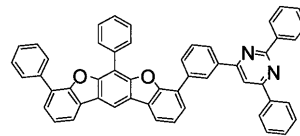
No. 387



No. 388



No. 389

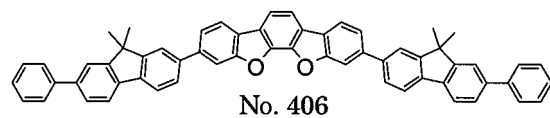
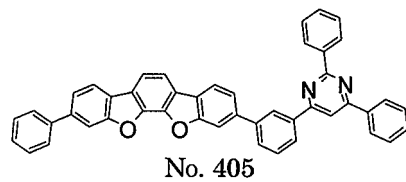
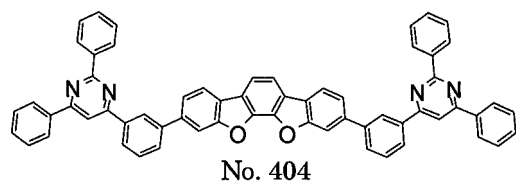
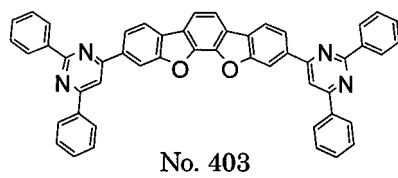
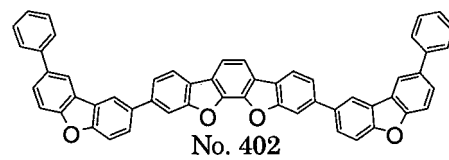
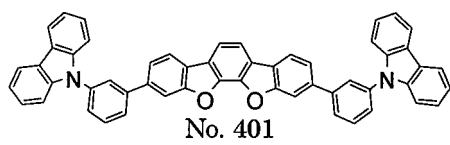
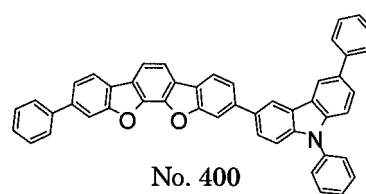
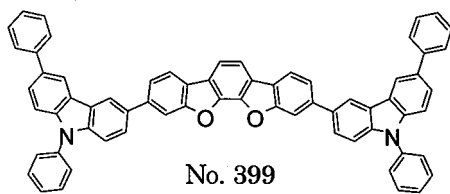
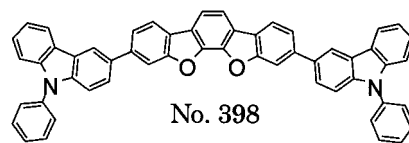
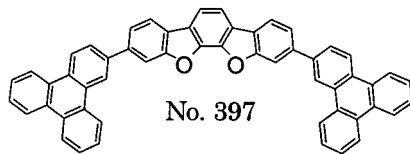
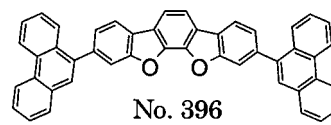
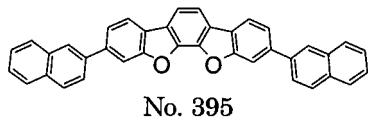
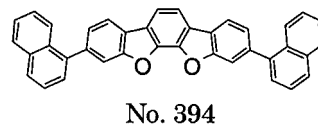
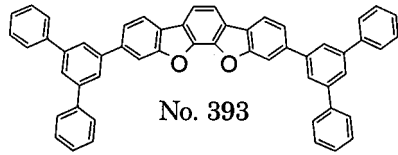
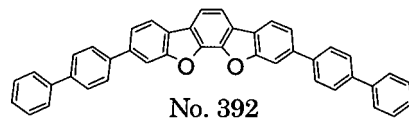
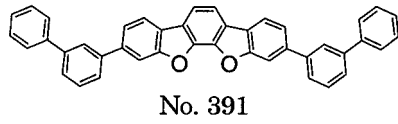


No. 390

20

【 0 0 9 8 】

【化 6 9】



【 0 0 9 9 】

10

20

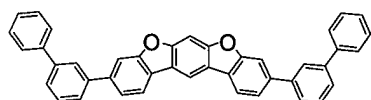
30

40

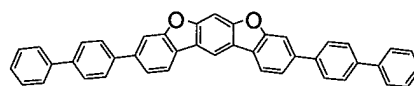
50



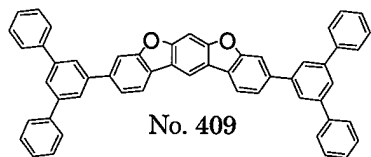
【化70】



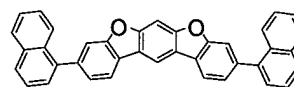
No. 407



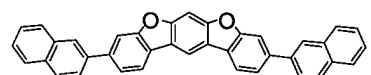
No. 408



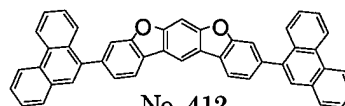
No. 409



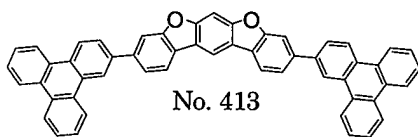
No. 410



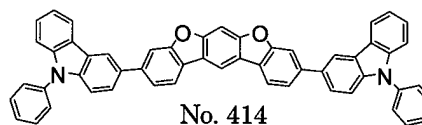
No. 411



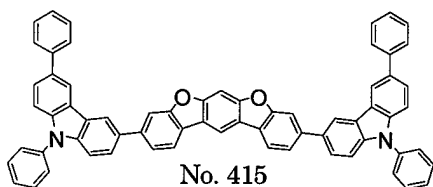
No. 412



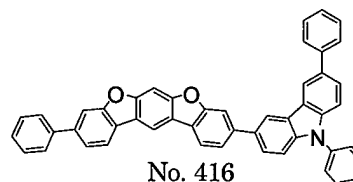
No. 413



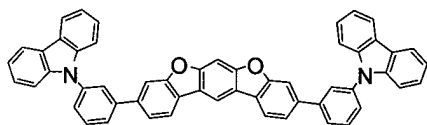
No. 414



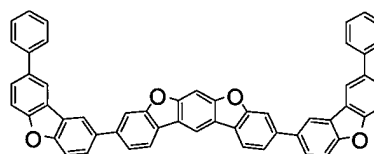
No. 415



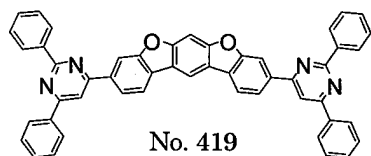
No. 416



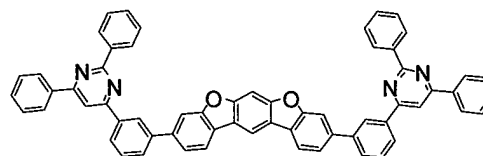
No. 417



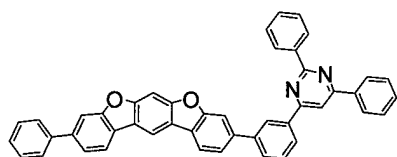
No. 418



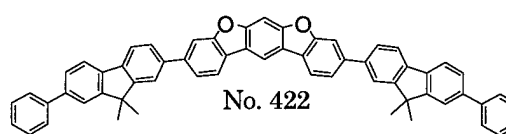
No. 419



No. 420



No. 421



No. 422

10

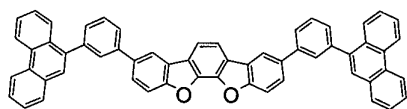
20

30

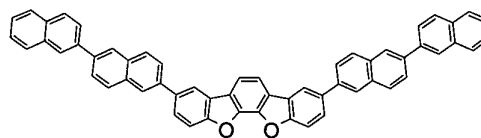
40

【0100】

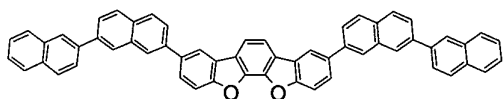
【化 7 1】



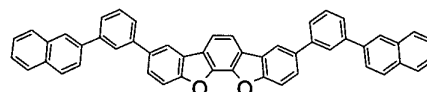
No. 423



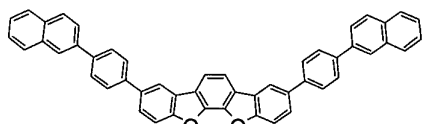
No. 424



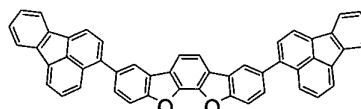
No. 425



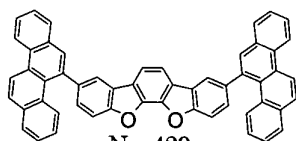
No. 426



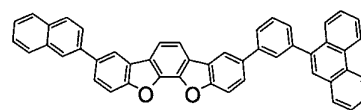
No. 427



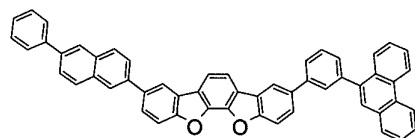
No. 428



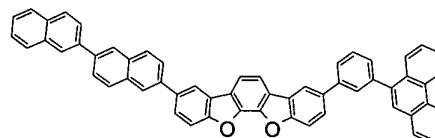
No. 429



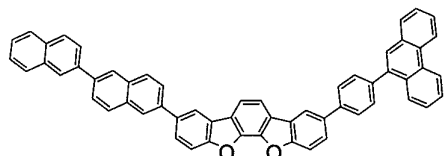
No. 430



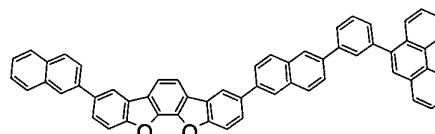
No. 431



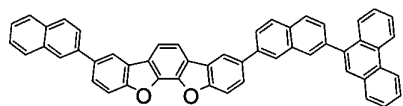
No. 432



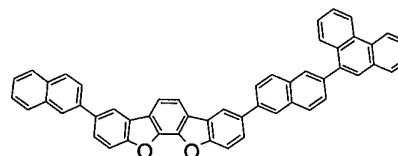
No. 433



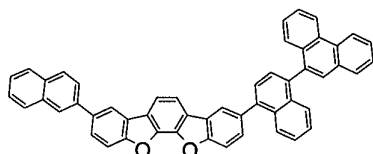
No. 434



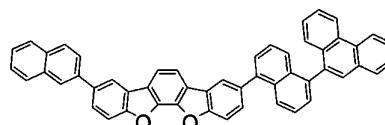
No. 435



No. 436



No. 437



No. 438

10

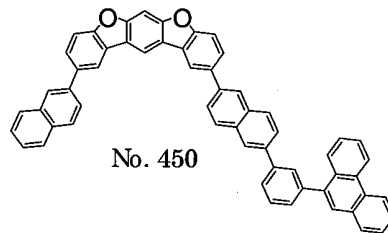
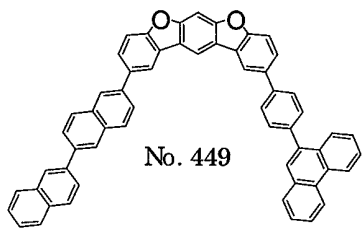
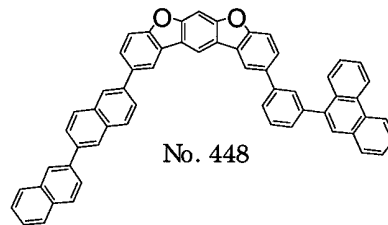
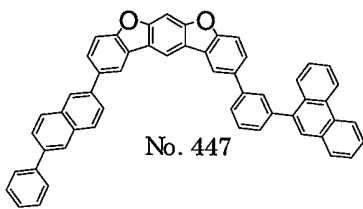
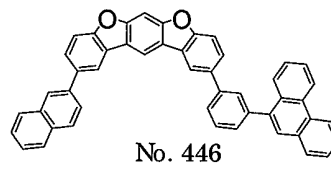
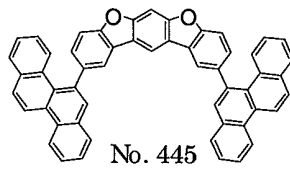
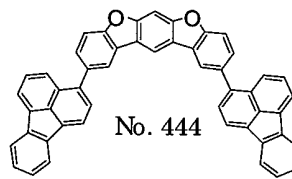
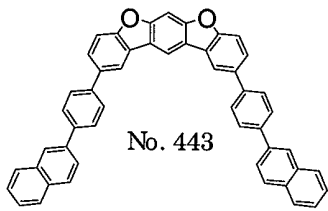
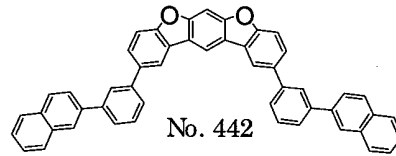
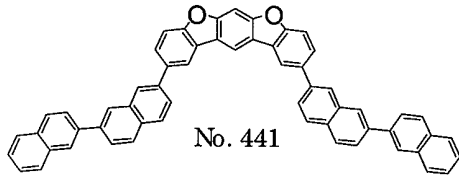
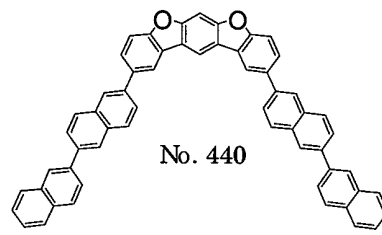
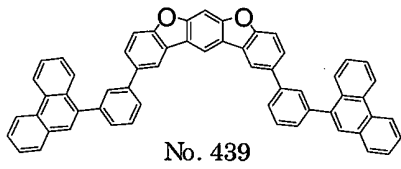
20

30

40

【 0 1 0 1 】

【化 7 2】



【 0 1 0 2】

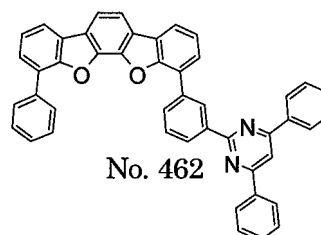
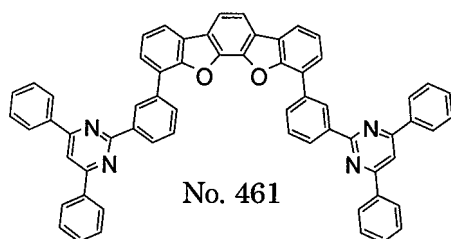
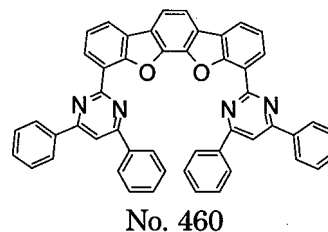
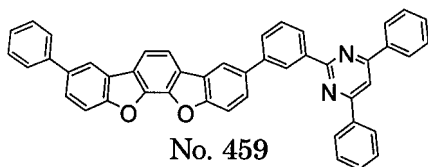
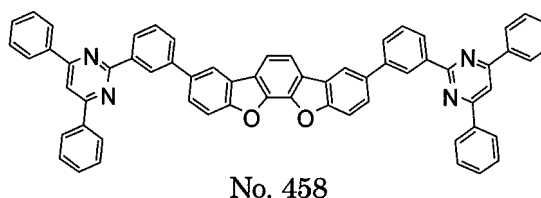
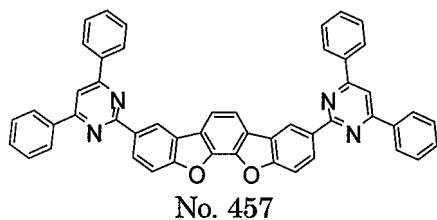
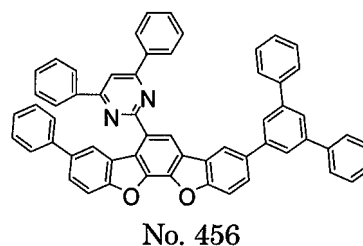
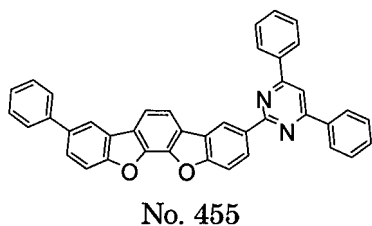
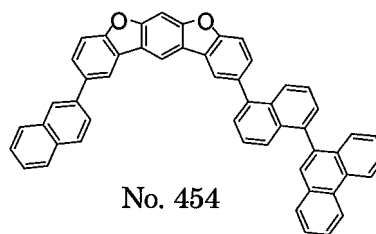
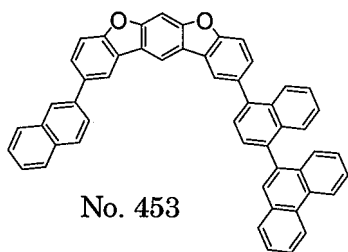
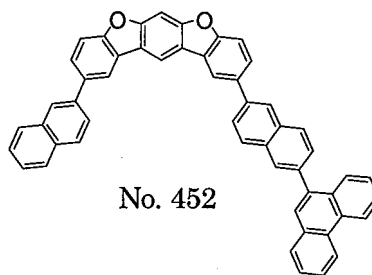
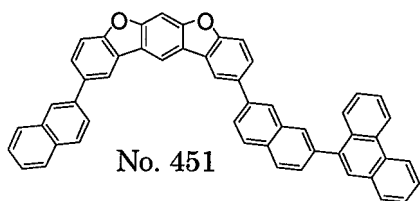
10

20

30

40

【化 7 3】



【 0 1 0 3】

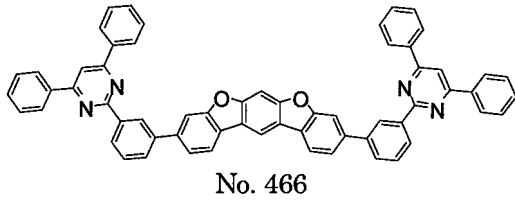
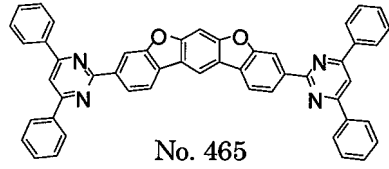
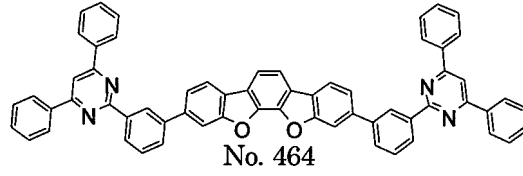
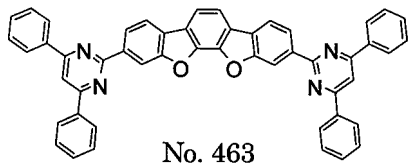
10

20

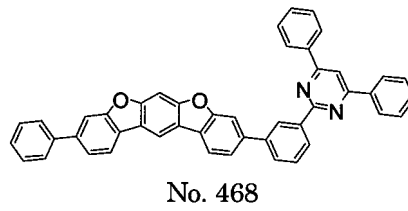
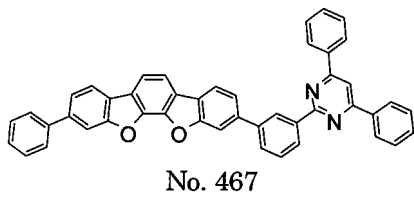
30

40

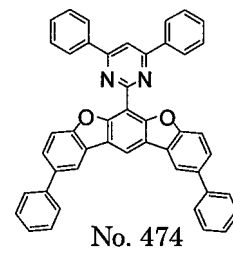
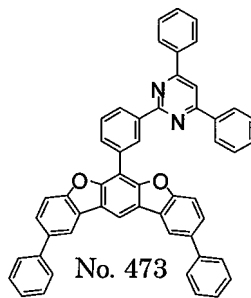
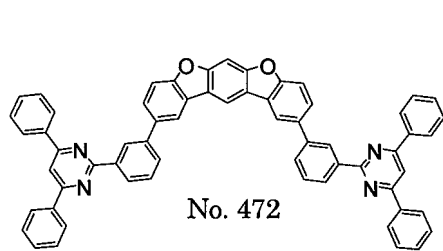
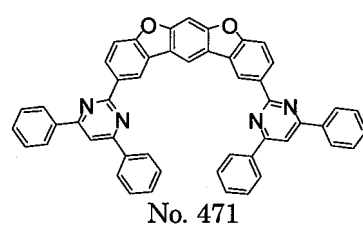
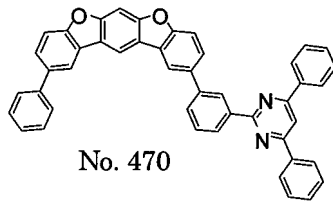
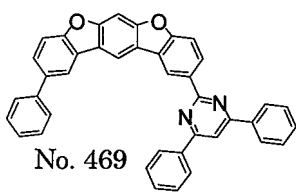
【化 7 4】



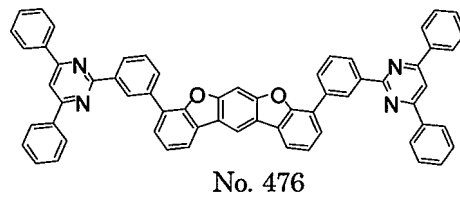
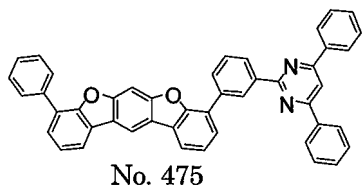
10



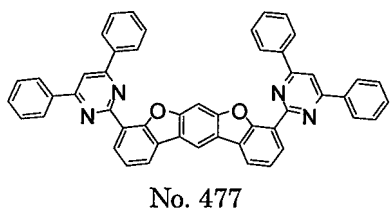
20



30

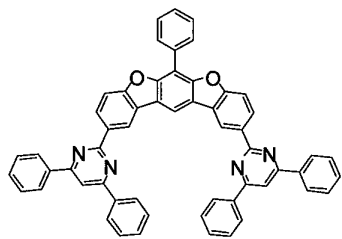


40

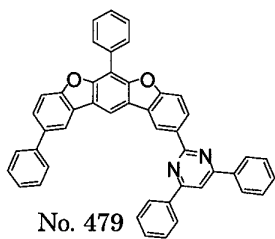


【 0 1 0 4 】

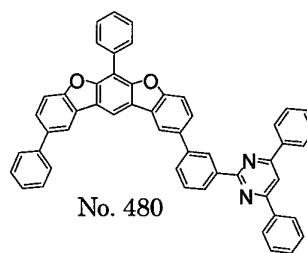
【化75】



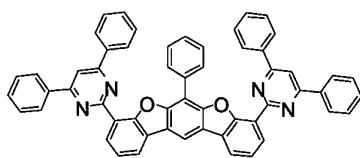
No. 478



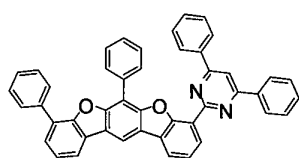
No. 479



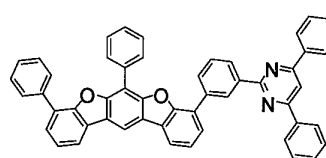
No. 480



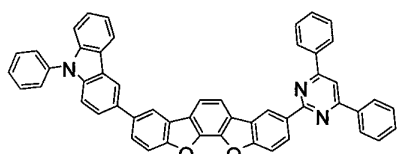
No. 481



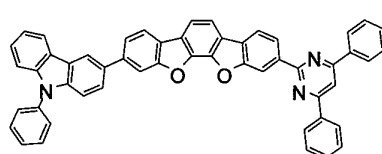
No. 482



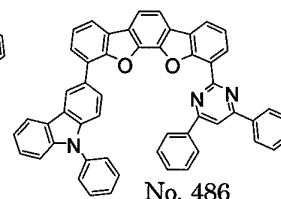
No. 483



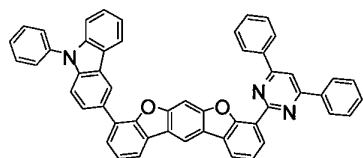
No. 484



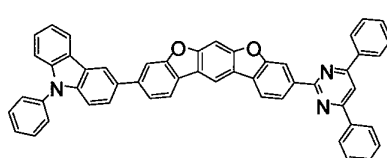
No. 485



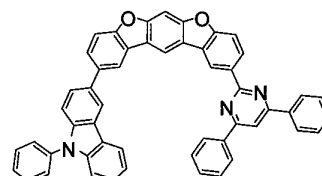
No. 486



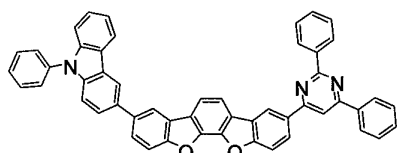
No. 487



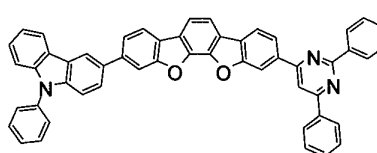
No. 488



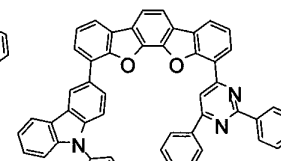
No. 489



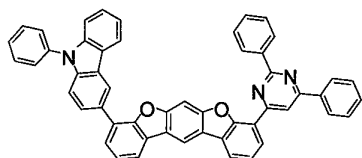
No. 490



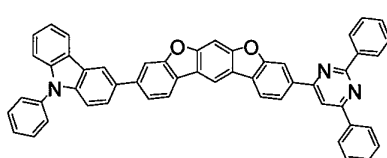
No. 491



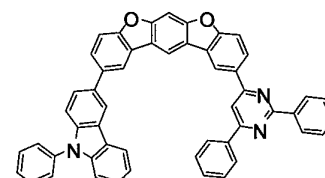
No. 492



No. 493



No. 494



No. 495

【0105】

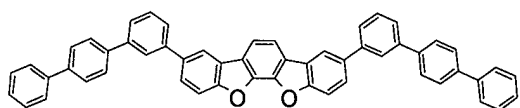
10

20

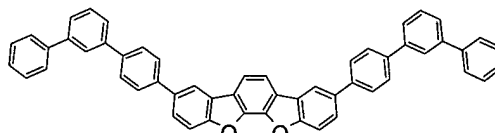
30

40

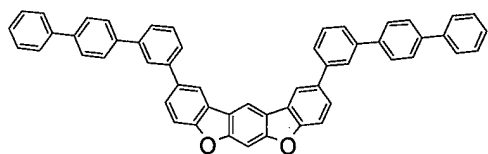
【化76】



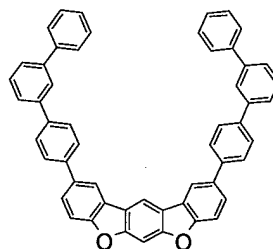
No. 536



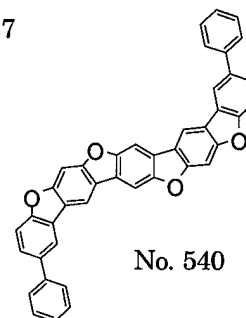
No. 537



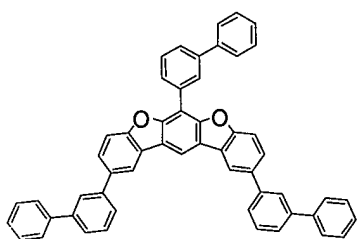
No. 538



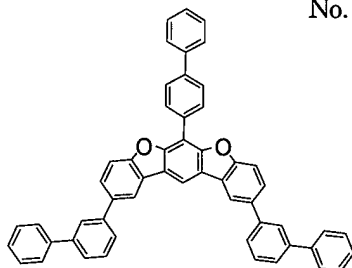
No. 539



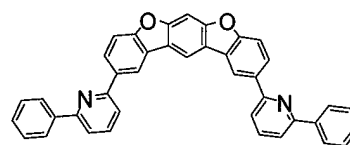
No. 540



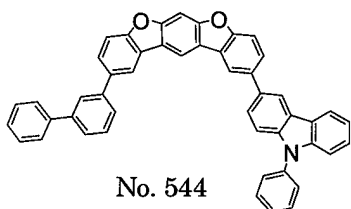
No. 541



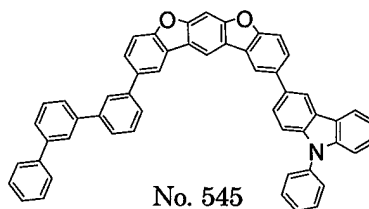
No. 542



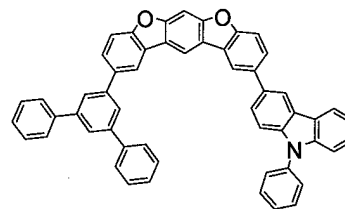
No. 543



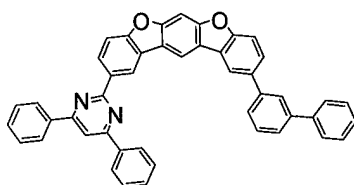
No. 544



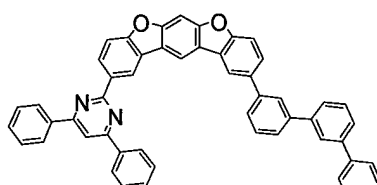
No. 545



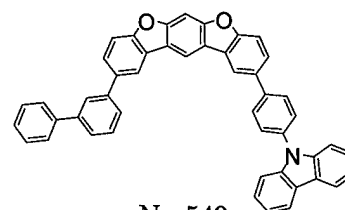
No. 546



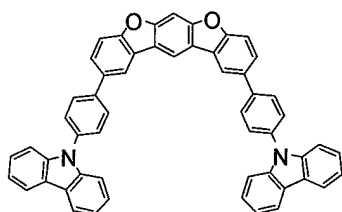
No. 547



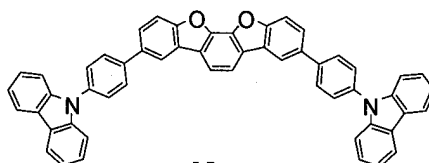
No. 548



No. 549



No. 550



No. 551

【0106】

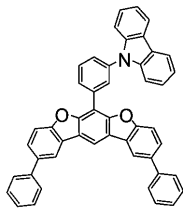
10

20

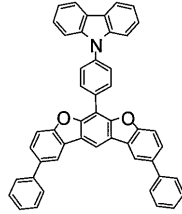
30

40

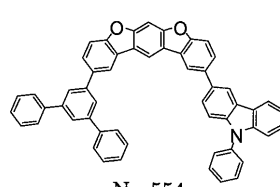
## 【化 7 7】



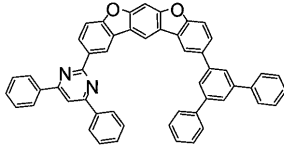
No. 552



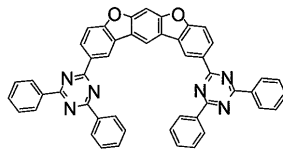
No. 553



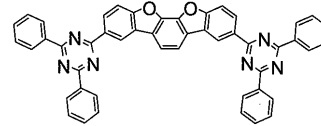
No. 554



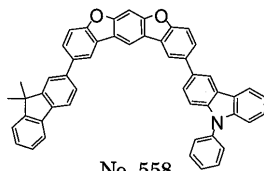
No. 555



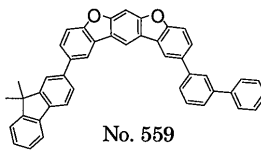
No. 556



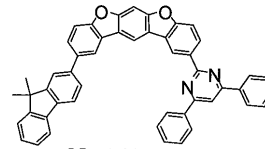
No. 557



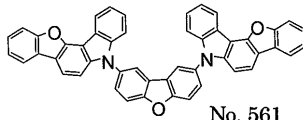
No. 558



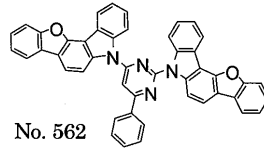
No. 559



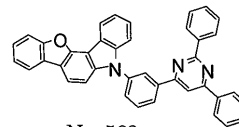
No. 560



No. 561



No. 562



No. 563

## 【 0 1 0 7 】

多層型の有機 E L 素子の構造としては、例えば、陽極 / 正孔輸送層 ( 正孔注入層 ) / 発光層 / 陰極、陽極 / 発光層 / 電子輸送層 ( 電子注入層 ) / 陰極、陽極 / 正孔輸送層 ( 正孔注入層 ) / 発光層 / 電子輸送層 ( 電子注入層 ) / 陰極、陽極 / 正孔輸送層 ( 正孔注入層 ) / 発光層 / 正孔障壁層 / 電子輸送層 ( 電子注入層 ) / 陰極、等の多層構成で積層したものが挙げられる。

## 【 0 1 0 8 】

本発明の有機 E L 素子において、前記発光層が、前記多環系化合物をホスト材料として含有すると好ましい。また、前記発光層が、ホスト材料とりん光発光性材料からなり、該ホスト材料が前記多環系化合物であると好ましい。また、前記多環系化合物は、りん光発光性材料と共に用いるホスト材料またはりん光発光性材料と共に用いる電子輸送材料であっても良く、三重項エネルギーが  $2.2 \sim 3.2 \text{ eV}$  であると好ましく、 $2.5 \sim 3.2 \text{ eV}$  であるとより好ましい。

りん光発光性材料としては、りん光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、イリジウム ( Ir )、オスミウム ( Os )、ルテニウム ( Ru ) 又は白金 ( Pt ) を含有する化合物であると好ましく、イリジウム錯体、オスミウム錯体、ルテニウム錯体、白金錯体等の金属錯体であるとさらに好ましく、中でもイリジウム錯体及び白金錯体がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。イリジウム錯体、オスミウム錯体、ルテニウム錯体、白金錯体等の金属錯体の具体例を以下に示す。

## 【 0 1 0 9 】

10

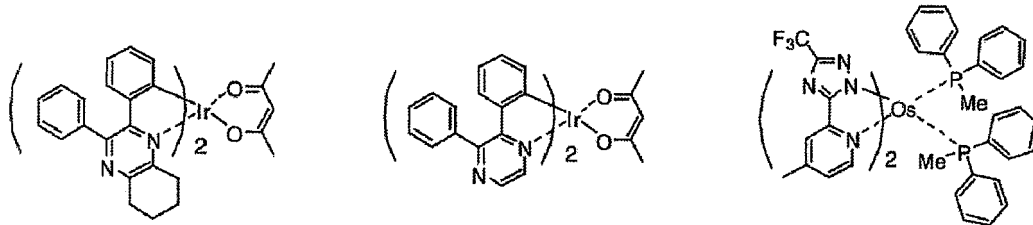
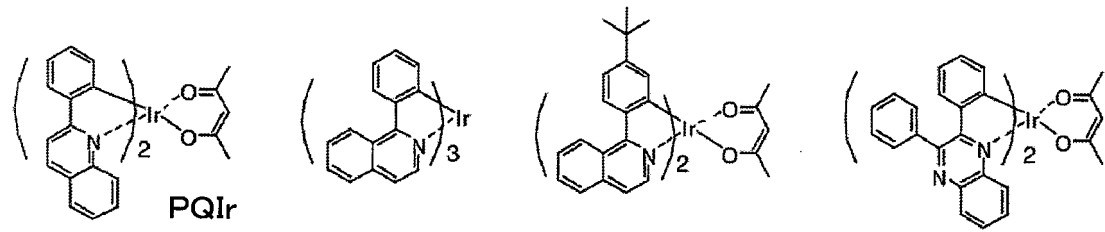
20

30

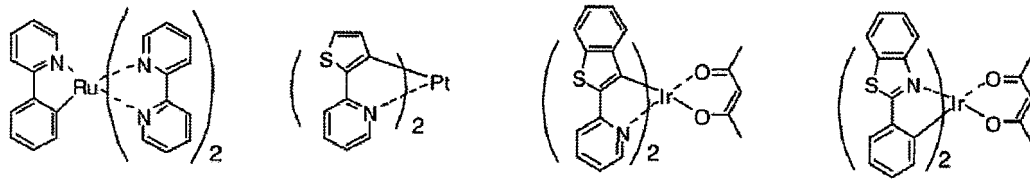
40



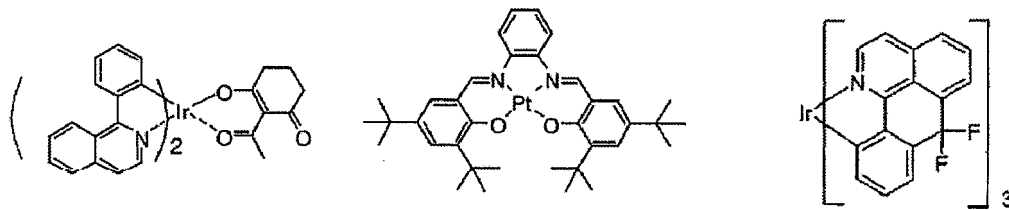
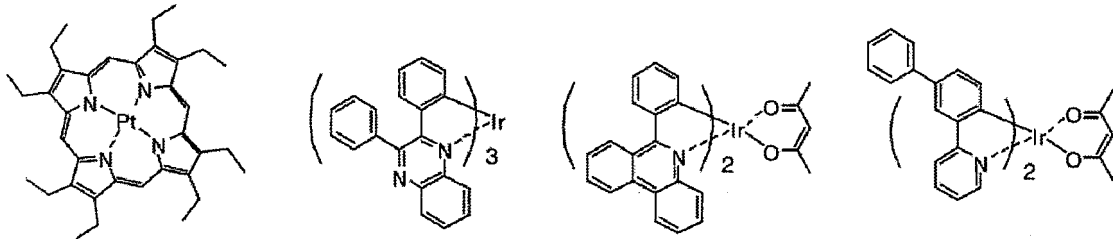
【化78】



10



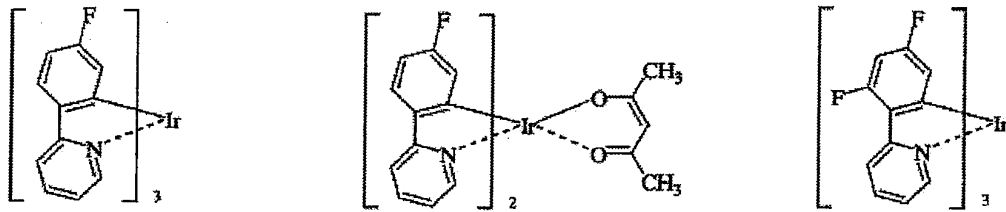
20



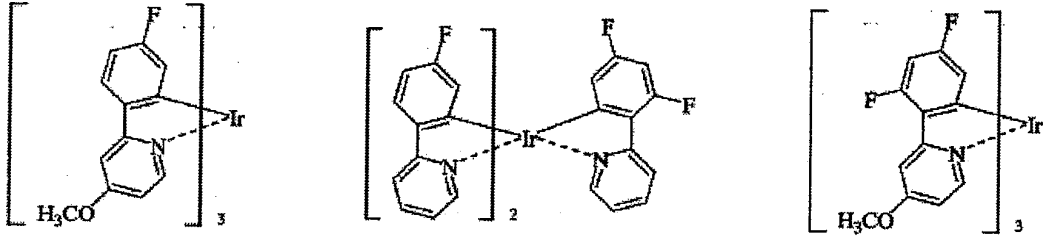
30

【0110】

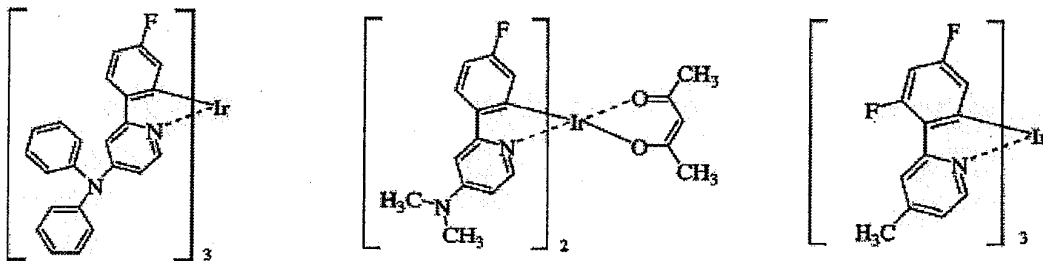
【化79】



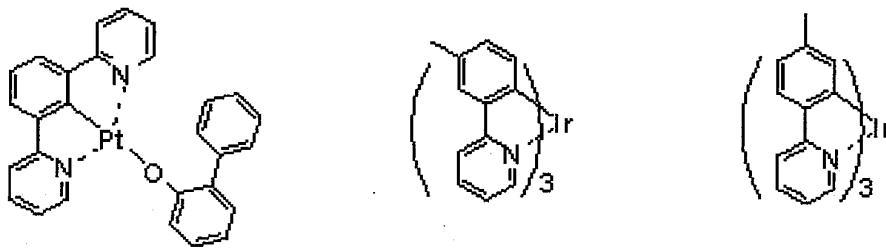
10



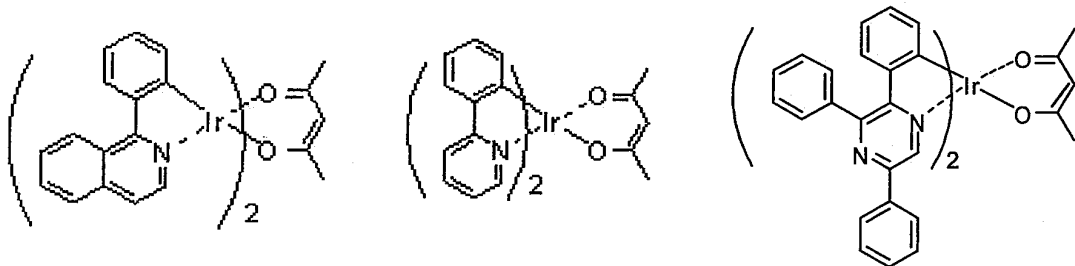
20



30

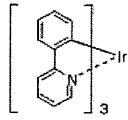
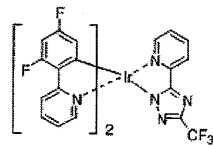
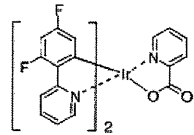
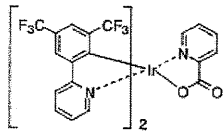


40

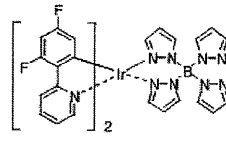
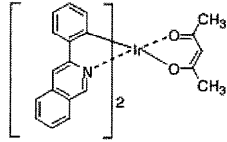


【0111】

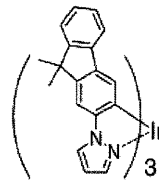
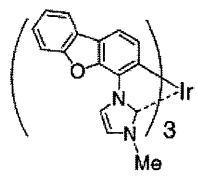
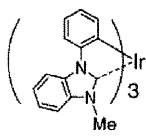
【化 8 0】



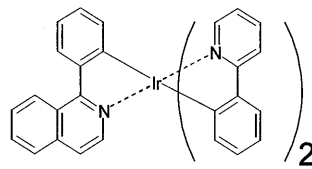
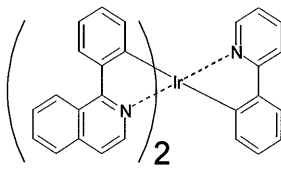
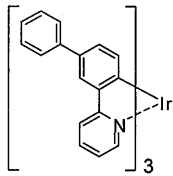
Ir(ppy)<sub>3</sub>



10

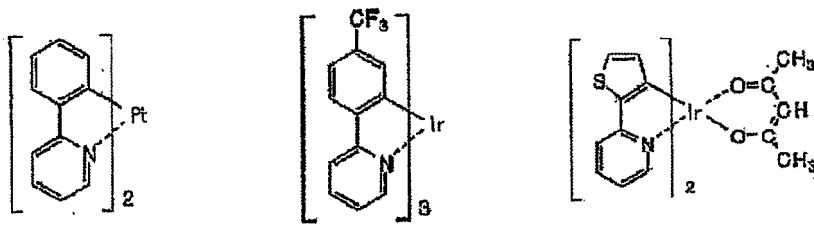


20

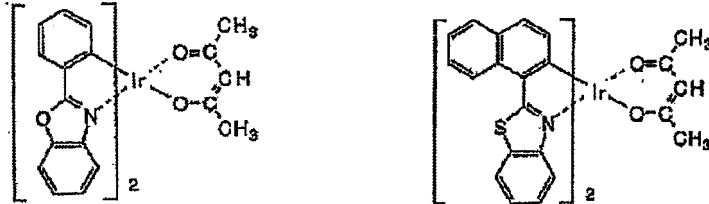


【 0 1 1 2】

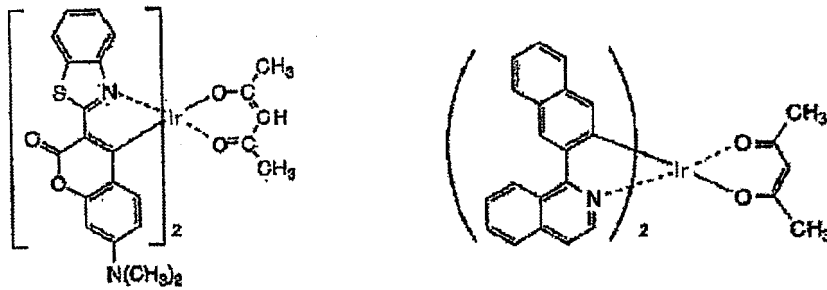
## 【化 8 1】



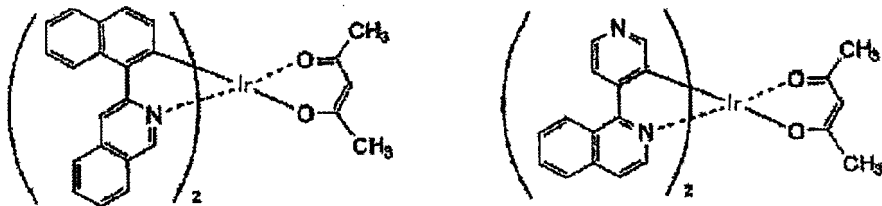
10



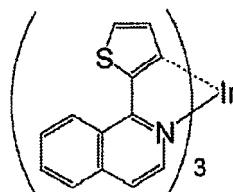
20



30



40



## 【 0 1 1 3】

また、本発明の有機 EL 素子は、前記発光層が、ホスト材料と燐光発光性材料を含有し、且つ、発光波長の極大値が 500 nm 以下である金属錯体を含有すると好ましい。さらに、本材料は蛍光発光性ドーパントと共に用いることもできる。青色、緑色、赤色蛍光発光性ドーパントと共に用いることができる。特に青色、緑色蛍光発光性ドーパントと共に、より好ましく用いることができる。さらに、蛍光有機 EL 素子の電子輸送材料としても

50

好ましく用いることができる。

【0114】

本発明の有機EL素子は、前記陰極と有機薄膜層（例えば電子注入層や発光層など。）との界面領域に還元性ドーパントを有することが好ましい。還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれる少なくとも一種が挙げられる。

【0115】

アルカリ金属としては、仕事関数が2.9 eV以下である、Na（仕事関数：2.36 eV）、K（仕事関数：2.28 eV）、Rb（仕事関数：2.16 eV）、Cs（仕事関数：1.95 eV）等が好ましく挙げられる。これらのうち、より好ましくはK、Rb、Csであり、さらに好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

アルカリ土類金属としては、仕事関数が2.9 eV以下である、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0～2.5 eV）、Ba（仕事関数：2.52 eV）等が好ましく挙げられる。

希土類金属としては、仕事関数が2.9 eV以下である、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が好ましく挙げられる。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域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可能である。

【0116】

アルカリ金属化合物としては、Li<sub>2</sub>O、Cs<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、これらの中でも、LiF、Li<sub>2</sub>O、NaFが好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合したBa<sub>m</sub>Sr<sub>1-m</sub>O（0 < m < 1）、Ba<sub>m</sub>Ca<sub>1-m</sub>O（0 < m < 1）等が挙げられ、これらの中でも、BaO、SrO、CaOが好ましい。

希土類金属化合物としては、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、ScO<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GdF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>等が挙げられ、これらの中でも、YbF<sub>3</sub>、ScF<sub>3</sub>、TbF<sub>3</sub>が好ましい。

【0117】

アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 $\beta$ -ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

【0118】

還元性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度は、モル比で、有機物：還元性ドーパント = 100：1～1：100が好ましく、5：1～1：5がより好ましい。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1～15 nmで形成する。

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好まし

10

20

30

40

50

くは島の厚み 0.05 ~ 1 nm で形成する。

【0119】

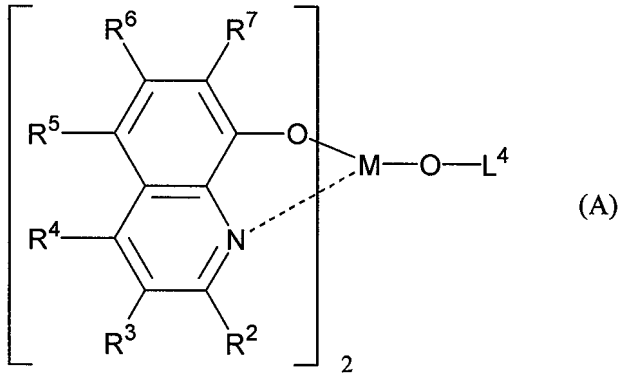
本発明の有機 EL 素子は、発光層と陰極との間に電子注入層を有する場合、該電子注入層に用いる電子輸送材料としては、分子内にヘテロ原子を 1 個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく、特に含窒素環誘導体が好ましい。

【0120】

この含窒素環誘導体としては、例えば、下記式 (A) で表される含窒素環金属キレート錯体が好ましい。

【0121】

【化 8 2】



10

20

【0122】

$R^2 \sim R^7$  は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、又は複素環基を表し、これらは置換されていてもよい。

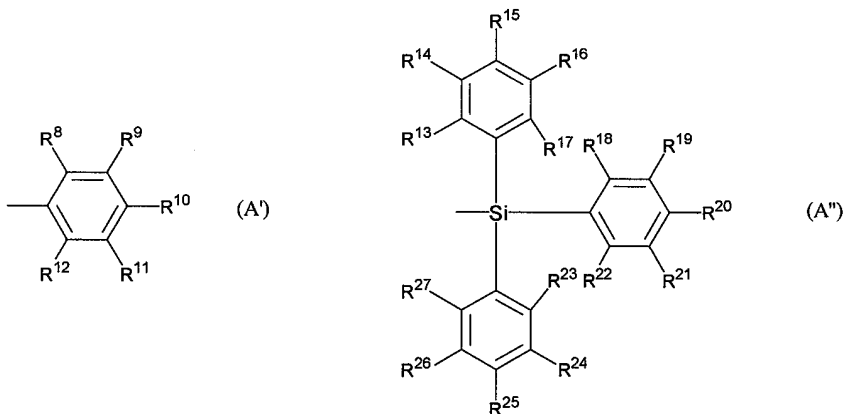
【0123】

M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、インジウムであることが好ましい。

式 (A) の  $L^4$  は、下記式 (A') 又は (A'') で表される基である。

【0124】

【化 8 3】



30

40

【0125】

(式中、 $R^8 \sim R^{12}$  は、それぞれ独立して、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基を示し、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、 $R^{13} \sim R^{27}$  は、それぞれ独立して、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基を示し、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。)

【0126】

50

含窒素複素環誘導体としては、以下の式を有する有機化合物からなる含窒素複素環誘導体であって、金属錯体でない含窒素化合物も挙げられる。例えば、(a)に示す骨格を含有する5員環もしくは6員環や、式(b)に示す構造のものが挙げられる。

【0127】

【化84】



10

【0128】

(式(b)中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z<sup>1</sup>ならびにZ<sup>2</sup>は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。)

【0129】

【化85】



20

【0130】

好ましくは、5員環もしくは6員環からなる含窒素芳香多環族を有する有機化合物。さらには、このような複数窒素原子を有する含窒素芳香多環族の場合は、上記(a)と(b)もしくは(a)と(c)を組み合わせた骨格を有する含窒素芳香多環有機化合物。

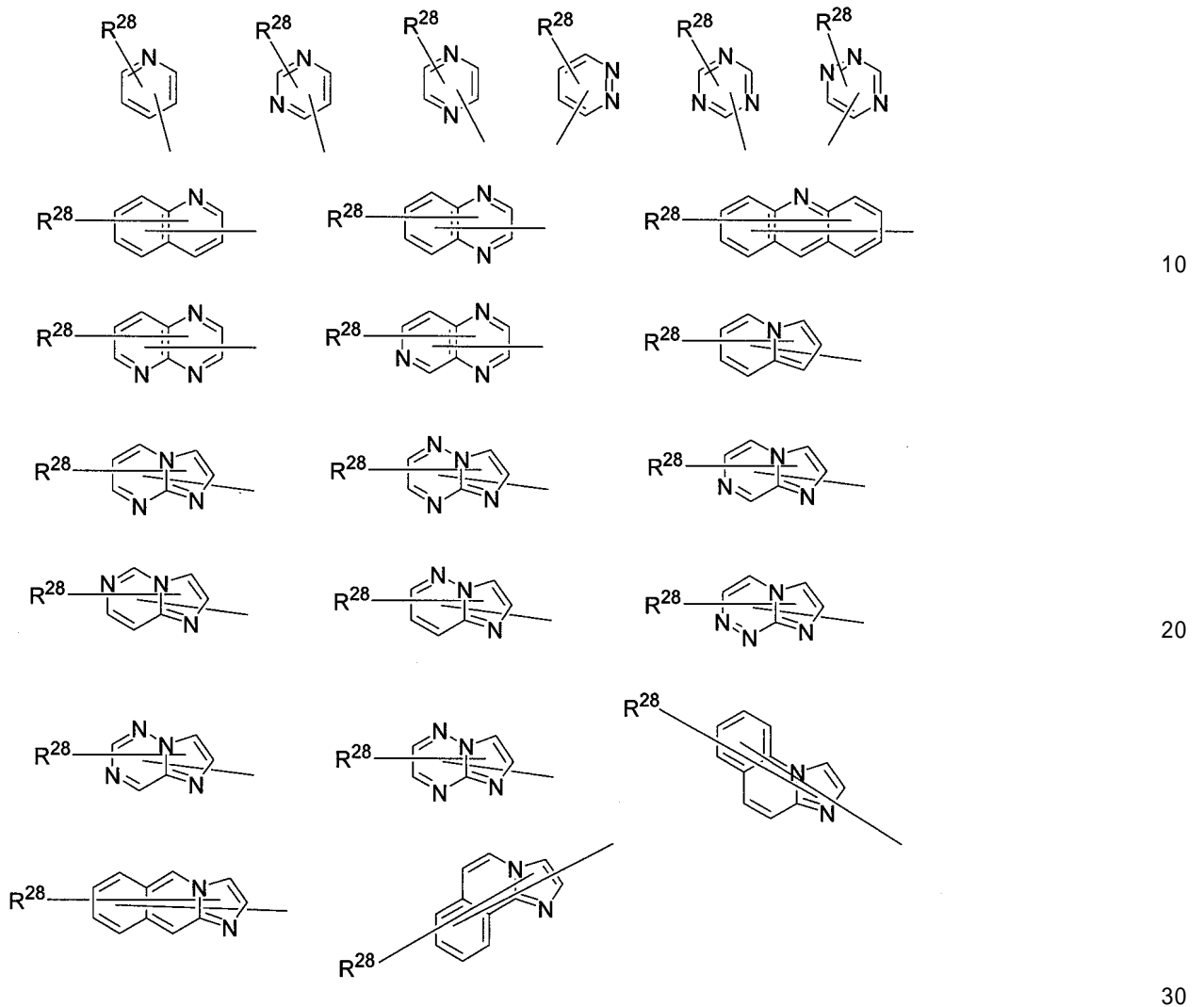
【0131】

含窒素有機化合物の含窒素基は、例えば、以下の式で表される含窒素複素環基から選択される。

30

【0132】

## 【化 8 6】



## 【0133】

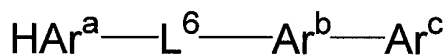
(各式中、 $R^{28}$ は、炭素数6～40のアリール基、炭素数3～40のヘテロアリール基、炭素数1～20のアルキル基又は炭素数1～20のアルコキシ基であり、 $R^{28}$ が複数のとき、複数の $R^{28}$ は互いに同一又は異なってもよい。)

## 【0134】

さらに、好ましい具体的な化合物として、下記式で表される含窒素複素環誘導体が挙げられる。

## 【0135】

## 【化 8 7】



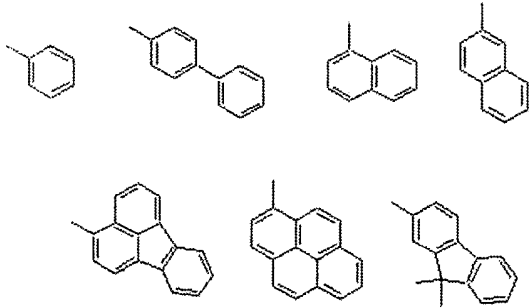
## 【0136】

(式中、 $HAr^a$ は、置換基を有していてもよい炭素数3～40の含窒素複素環であり、 $L^6$ は単結合、置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリーレン基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリーレン基であり、 $Ar^b$ は置換基を有していてもよい炭素数6～40の2価の芳香族炭化水素基であり、 $Ar^c$ は置換基を有していてもよい炭素数6～40のアリール基又は置換基を有していてもよい炭素数3～40のヘテロアリール基である。)





## 【化90】



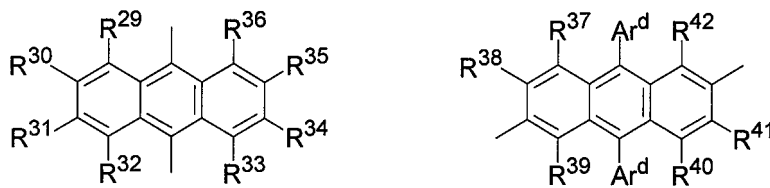
10

## 【0143】

Ar<sup>b</sup>は、例えば、下記のアリールアントラニル基から選択される。

## 【0144】

## 【化91】



20

## 【0145】

(式中、R<sup>29</sup> ~ R<sup>42</sup>は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1 ~ 20のアルキル基、炭素数1 ~ 20のアルコキシ基、炭素数6 ~ 40のアリールオキシ基、置換基を有していてもよい炭素数6 ~ 40のアリール基又は炭素数3 ~ 40のヘテロアリール基であり、Ar<sup>d</sup>は、置換基を有していてもよい炭素数6 ~ 40のアリール基又は炭素数3 ~ 40のヘテロアリール基である。)

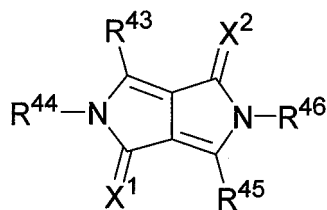
また、上記式で表されるAr<sup>b</sup>において、R<sup>29</sup> ~ R<sup>36</sup>は、いずれも水素原子である含窒素複素環誘導体が好ましい。

## 【0146】

この他、下記の化合物(特開平9-3448号公報参照)も好適に用いられる。

## 【0147】

## 【化92】



40

## 【0148】

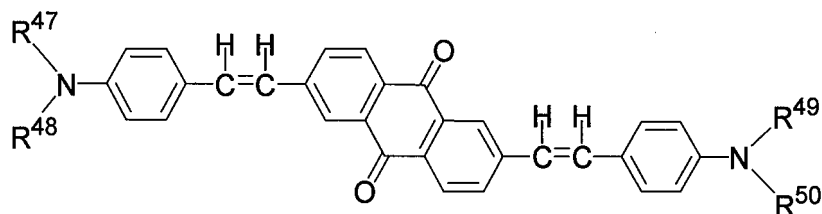
(式中、R<sup>43</sup> ~ R<sup>46</sup>は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは未置換の脂肪族基、置換もしくは未置換の脂肪族式環基、置換もしくは未置換の炭素環式芳香族環基、置換もしくは未置換の複素環基を表し、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子もしくはジシアノメチレン基を表す。)

## 【0149】

また、下記の化合物(特開2000-173774号公報参照)も好適に用いられる。

## 【0150】

【化93】

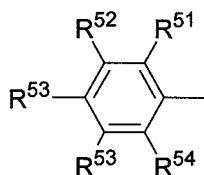


【0151】

式中、 $R^{47}$ 、 $R^{48}$ 、 $R^{49}$ 及び $R^{50}$ は互いに同一の又は異なる基であって、下記式で表わされるアリール基である。 10

【0152】

【化94】



【0153】

(式中、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、 $R^{53}$ 、 $R^{54}$ 及び $R^{55}$ は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、或いはそれらの少なくとも1つが飽和または不飽和アルコキシル基、アルキル基、アミノ基又はアルキルアミノ基である。) 20

【0154】

さらに、該含窒素複素環基もしくは含窒素複素環誘導体を含む高分子化合物であってもよい。

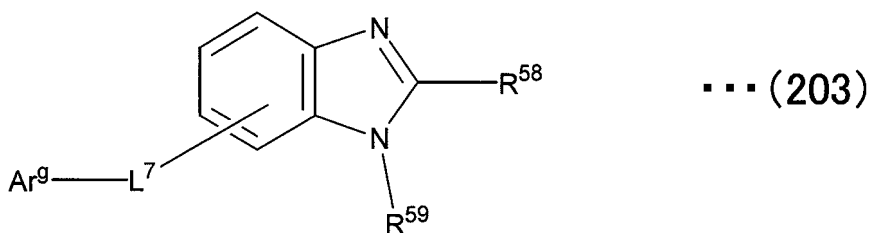
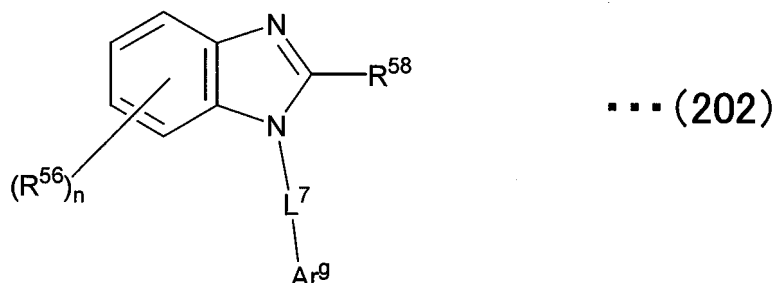
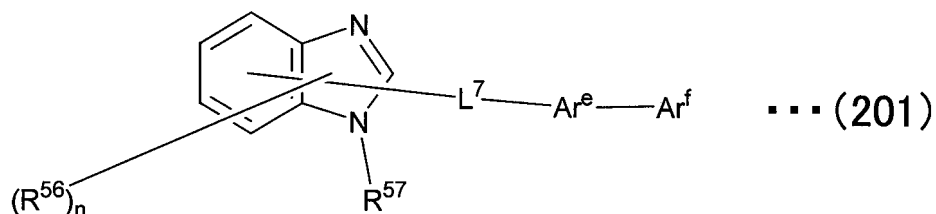
【0155】

また、電子輸送層は、下記式(201)~(203)で表される含窒素複素環誘導体の少なくともいずれか1つを含有することが好ましい。

【0156】

30

【化 9 5】



【 0 1 5 7】

式(201)~(203)中、 $R^{56}$ は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基で、 $n$ は0~4の整数であり、 $R^{57}$ は、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は炭素数1~20のアルコキシ基であり、 $R^{58}$ 及び $R^{59}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基であり、 $L^7$ は、単結合、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基、置換基を有していてもよいキノリニレン基又は置換基を有していてもよいフルオレニレン基であり、 $Ar^g$ は、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリーレン基、置換基を有していてもよいピリジニレン基又は置換基を有していてもよいキノリニレン基であり、 $Ar^e$ 及び $Ar^f$ は、水素原子、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基又は置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基である。

$Ar^g$ は、置換基を有していてもよい炭素数6~60のアリール基、置換基を有していてもよいピリジル基、置換基を有していてもよいキノリル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1~20のアルコキシ基、又は $-Ar^e-Ar^f$ で表される基( $Ar^e$ 及び $Ar^f$ は、それぞれ前記と同じ)である。

【 0 1 5 8】

また、含窒素環誘導体としては、含窒素5員環誘導体も好ましく挙げられる。該含窒素

10

20

30

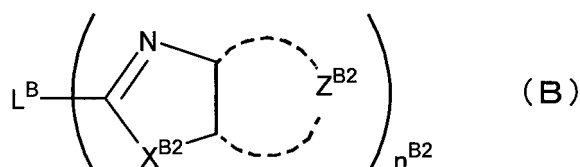
40

50

5員環としては、例えばイミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素5員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記式(B)で表されるものである。

【0159】

【化96】



10

【0160】

式(B)中、 $L^B$ は二価以上の連結基を表し、例えば、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、金属原子(例えば、バリウム原子、ベリリウム原子)、芳香族炭化水素環、芳香族複素環等が挙げられる。

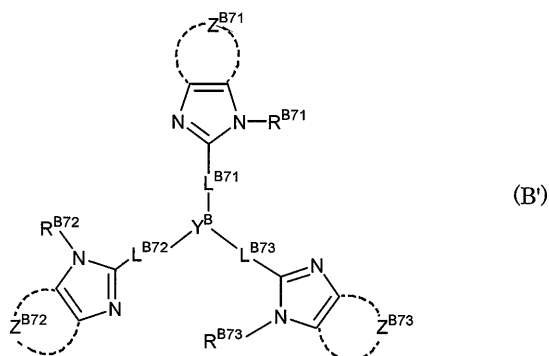
【0161】

前記式(B)で表される含窒素5員環誘導体のうち、さらに好ましくは下記式(B')で表されるものが好ましい。

20

【0162】

【化97】



30

【0163】

式(B')中、 $R^{B71}$ 、 $R^{B72}$ 及び $R^{B73}$ は、それぞれ式(B)における $R^{B2}$ と同様である。

$Z^{B71}$ 、 $Z^{B72}$ 及び $Z^{B73}$ は、それぞれ式(B)における $Z^{B2}$ と同様である。

$L^{B71}$ 、 $L^{B72}$ 及び $L^{B73}$ は、それぞれ連結基を表し、式(B)における $L^B$ の例を二価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。 $L^{B71}$ 、 $L^{B72}$ 及び $L^{B73}$ は置換基を有していてもよく、置換基としては前記式(B)における $L^B$ で表される基の置換基として挙げたものと同様である。

40

$Y^B$ は、窒素原子、1,3,5-ベンゼントリイル基又は2,4,6-トリアジントリイル基を表す。

【0164】

電子注入層及び電子輸送層を構成する化合物としては、本発明の多環系化合物の他、電子欠乏性含窒素5員環又は電子欠乏性含窒素6員環骨格と、置換又は無置換のインドール骨格、置換又は無置換のカルバゾール骨格、置換又は無置換のアザカルバゾール骨格を組み合わせた構造を有する化合物等も挙げられる。また、好適な電子欠乏性含窒素5員環又

50

は電子欠乏性含窒素6員環骨格としては、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、トリアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、キノキサリン、ピロール骨格及び、それらがお互いに縮合したベンズイミダゾール、イミダゾピリジン等の分子骨格が挙げられる。これらの組み合わせの中でも、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン骨格と、カルバゾール、インドール、アザカルバゾール、キノキサリン骨格が好ましく挙げられる。前述の骨格は置換されていてもよいし、無置換でもよい。

【0165】

電子注入層及び電子輸送層は、前記材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。これらの層の材料は、電子欠乏性含窒素ヘテロ環基を有していることが好ましい。

10

【0166】

また、電子注入層の構成成分として、含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えばLi<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、Na<sub>2</sub>S、Na<sub>2</sub>Se及びNa<sub>2</sub>Oが挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えばCaO、BaO、SrO、BeO、BaS及びCaSeが挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えばLiF、NaF、KF、LiCl、KCl及びNaCl等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えばCaF<sub>2</sub>、BaF<sub>2</sub>、SrF<sub>2</sub>、MgF<sub>2</sub>及びBeF<sub>2</sub>等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

20

また、半導体としては、例えばBa、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnからなる群から選択される少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等が挙げられ、これらは一種を単独で使用してもよいし、二種以上を組み合わせ使用してもよい。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、例えばアルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

30

また、本発明における電子注入層には、前述の還元性ドーパントを好ましく含有させることができる。

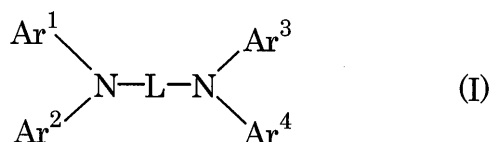
なお、電子注入層又は電子輸送層の膜厚は、特に限定されないが、好ましくは、1~100nmである。

【0167】

正孔注入層又は正孔輸送層（正孔注入輸送層も含む）には芳香族アミン化合物、例えば、式(I)で表わされる芳香族アミン誘導体が好適に用いられる。

40

【化98】



【0168】

式(I)において、Ar<sup>1</sup>~Ar<sup>4</sup>は置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリール基または置換もしくは無置換の環形成原子数5~50のヘテロアリール基を表す。

50

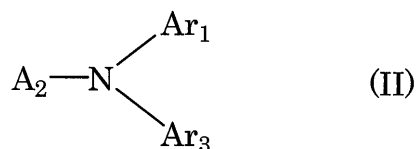
## 【0169】

Lは連結基である。具体的には置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数5～50のヘテロアリーレン基、または、2個以上のアリーレン基もしくはヘテロアリーレン基を単結合、エーテル結合、チオエーテル結合、炭素数1～20のアルキレン基、炭素数2～20のアルケニレン基、アミノ基で結合して得られる2価の基である。

## 【0170】

また、下記式(II)の芳香族アミンも正孔注入層または正孔輸送層の形成に好適に用いられる。

## 【化99】



10

## 【0171】

式(II)において、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_3$ の定義は前記式(I)の $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ の定義と同様である。

## 【0172】

本発明の化合物は、正孔および電子を輸送する化合物であるため、正孔注入層または輸送層、電子注入層または輸送層にも用いることができる。

20

## 【0173】

本発明において、有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。

30

## 【0174】

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記式(1)で表される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が好ましい。

40

## 【実施例】

## 【0175】

次に、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は下記実施例に限定されるものではない。なお、下記合成実施例において、DMFはジメチルホルムアミド、THFはテトラヒドロフラン、DMEはジメトキシエタン、NBSはN-ブロモスクシンイミド、Phはフェニル基、AcOEtは酢酸エチル、NMPはN-メチルピロリドンである。

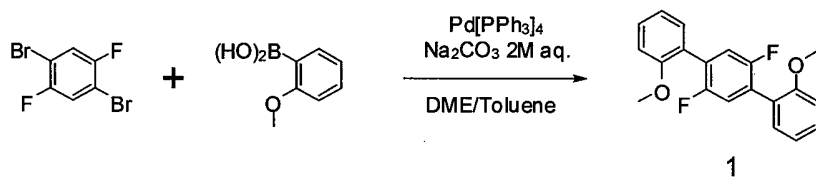
## 【0176】

合成実施例1(化合物No.1の合成)

(1)化合物1の合成

50

## 【化100】



## 【0177】

三口フラスコに1,4-ジブロモ-2,5-ジフルオロベンゼン(49.3g、181.5mmol)、2-メトキシフェニルボロン酸(66.2g、435.6mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(363mL、726mmol)、DME(360mL)、トルエン(360mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(20.8g、18.0mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

10

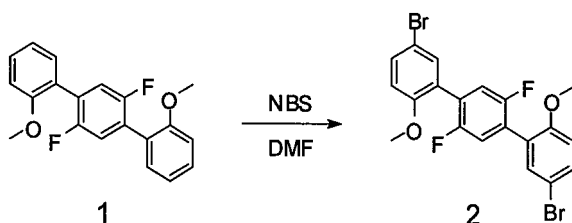
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(500mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量38.5g、収率65%

FD - MS分析 C<sub>20</sub>H<sub>16</sub>F<sub>2</sub>O<sub>2</sub> : 理論値326、観測値326

## 【0178】

(2) 化合物2の合成

## 【化101】



20

## 【0179】

三口フラスコに化合物1(36.6g、112.2mmol)、NBS(39.9g、224mmol)、DMF(1000mL)を入れ、Ar雰囲気下室温で8時間撹拌した。反応終了後、試料を分液ロートに移し、水(1000mL)を加え、AcOEtにて抽出した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量38g、収率70%

30

FD - MS分析 C<sub>20</sub>H<sub>14</sub>Br<sub>2</sub>F<sub>2</sub>O<sub>2</sub> : 理論値484、観測値484

## 【0180】

(3) 化合物3の合成

## 【0181】

三口フラスコに化合物2(37.2g、76.8mmol)、1M BBr<sub>3</sub> CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>溶液(180mL、180mmol)、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>(500mL)を入れ、Ar雰囲気下0℃で8時間撹拌した。その後、室温で一晩放置した。反応終了後、飽和NaHCO<sub>3</sub>水溶液で中和した。試料を分液ロートに移し、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量28g、収率80%

40

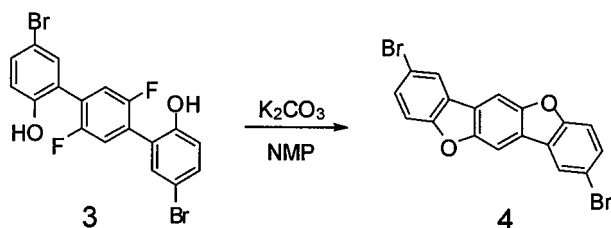
FD - MS分析 C<sub>18</sub>H<sub>10</sub>Br<sub>2</sub>F<sub>2</sub>O<sub>2</sub> : 理論値456、観測値456

## 【0182】

(4) 化合物4の合成



## 【化102】



## 【0183】

三口フラスコに化合物3(27.4g、60.1mmol)、 $\text{K}_2\text{CO}_3$ (18.2g、132mmol)、NMP(250mL)を入れ、 $\text{Ar}$ 雰囲気下150 で8時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(500mL)を加え、AcOEtにて抽出した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量20g、収率80%

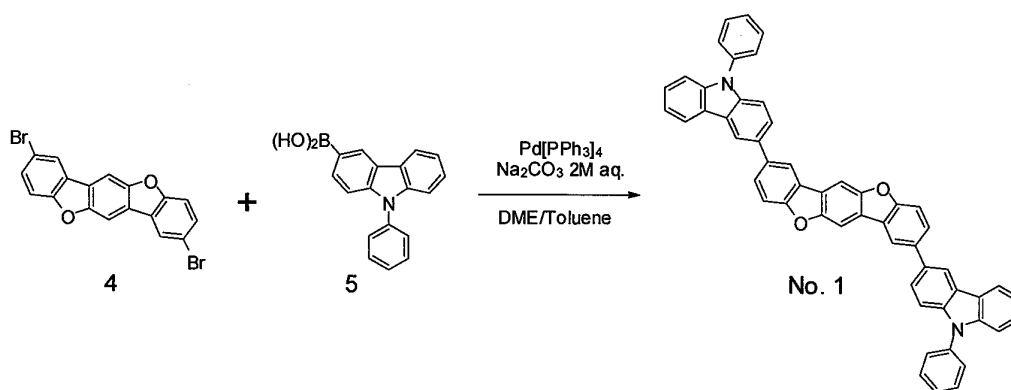
10

FD - MS分析  $\text{C}_{18}\text{H}_8\text{Br}_2\text{O}_2$  : 理論値416、観測値416

## 【0184】

(5) 化合物No. 1の合成

## 【化103】



20

## 【0185】

三口フラスコに化合物4(2.5g、6.0mmol)、化合物5(3.8g、13.2mmol)、2M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液(12mL、24mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、 $\text{Pd[PPh}_3\text{]}_4$ (0.35g、0.3mmol)を入れ、 $\text{Ar}$ 雰囲気下で8時間還流した。

30

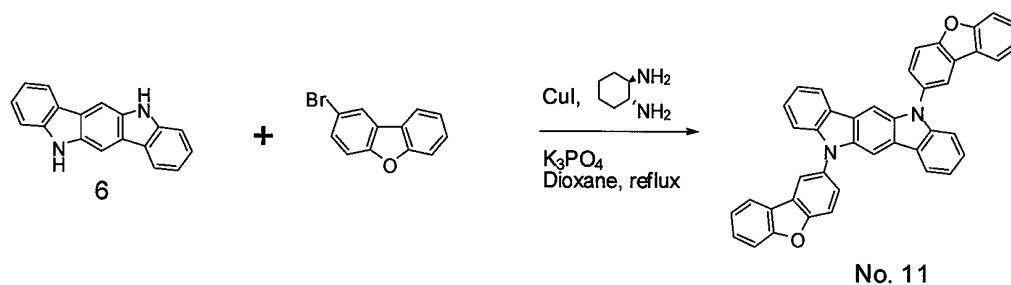
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ にて抽出した。 $\text{MgSO}_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 1)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量2.0g、収率45%

FD - MS分析  $\text{C}_{54}\text{H}_{32}\text{N}_2\text{O}_2$  : 理論値740、観測値740

## 【0186】

合成実施例2(化合物No. 11の合成)

## 【化104】



No. 11

40

## 【0187】

三口フラスコに化合物6(2.6g、10mmol)、2-プロモジベンゾフラン(5.0g、20mmol)、CuI

50

(1.9g、10mmol)、トランスシクロヘキサン1,2-ジアミン(3.4g、30mmol)、 $K_3PO_4$  (8.5g、40mmol)、1,4-dioxane(10mL)を入れ、アルゴン雰囲気下で10時間還流した。

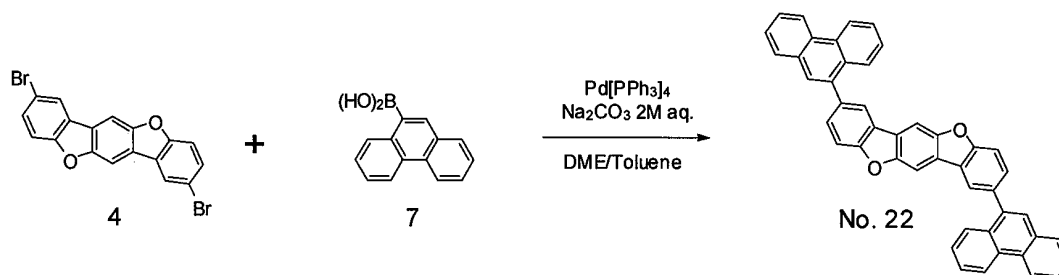
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、 $CH_2Cl_2$ にて抽出した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 11)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量2.1g、収率35%

FD - MS分析  $C_{42}H_{24}N_2O_2$  : 理論値588、観測値588

【0188】

合成実施例3(化合物No. 22の合成)

【化105】



【0189】

三口フラスコに化合物4(2.5g、6.0mmol)、化合物7(2.9g、13.2mmol)、2M  $Na_2CO_3$ 水溶液(12mL、24mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、 $Pd[PPh_3]_4$  (0.35g、0.3mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

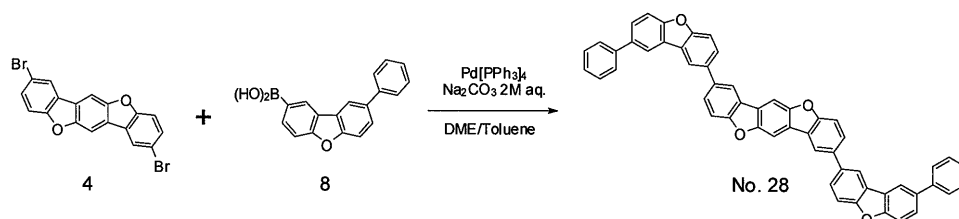
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、 $CH_2Cl_2$ にて抽出した。 $MgSO_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 22)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.3g、収率35%

FD - MS分析  $C_{46}H_{26}O_2$  : 理論値610、観測値610

【0190】

合成実施例4(化合物No. 28の合成)

【化106】



【0191】

三口フラスコに化合物4(2.5g、6.0mmol)、化合物8(3.8g、13.2mmol)、2M  $Na_2CO_3$ 水溶液(12mL、24mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、 $Pd[PPh_3]_4$  (0.35g、0.3mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、 $CH_2Cl_2$ にて抽出した。 $MgSO_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 28)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量2.1g、収率47%

FD - MS分析  $C_{54}H_{30}O_4$  : 理論値742、観測値742

【0192】

合成実施例5(化合物No. 39の合成)

(1) 化合物9の合成

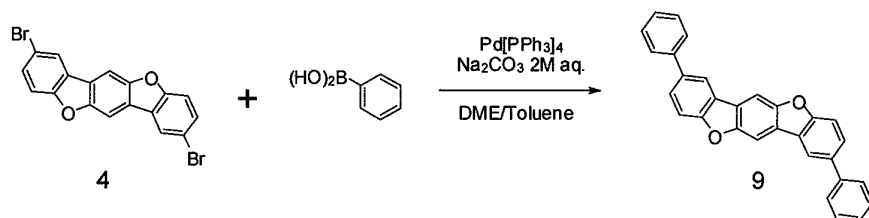
10

20

30

40

## 【化107】



## 【0193】

10

三口フラスコに化合物4 (10.0g、24.0mmol)、フェニルボロン酸(6.4g、52.8mmol)、2M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液(48mL、96mmol)、DME(48mL)、トルエン(48mL)、 $\text{Pd[PPh}_3\text{]}_4$  (1.4g、1.2mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(300mL)を加え、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ にて抽出した。 $\text{MgSO}_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量7.5g、収率76%

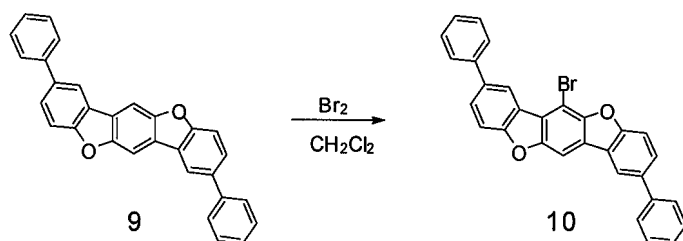
FD - MS分析  $\text{C}_{30}\text{H}_{18}\text{O}_2$  : 理論値410、観測値410

## 【0194】

(2) 化合物10の合成

## 【化108】

20



## 【0195】

30

三口フラスコに化合物9 (7.5g、18.3mmol)、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  (100mL)を入れ、Ar雰囲気下で臭素(2.9g、18.3mmol)を滴下した。その後、室温で8h攪拌した。反応終了後、試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ にて抽出した。有機層を飽和 $\text{NaNO}_2$ 水溶液(50mL)で洗浄、 $\text{MgSO}_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量5.4g、収率60%

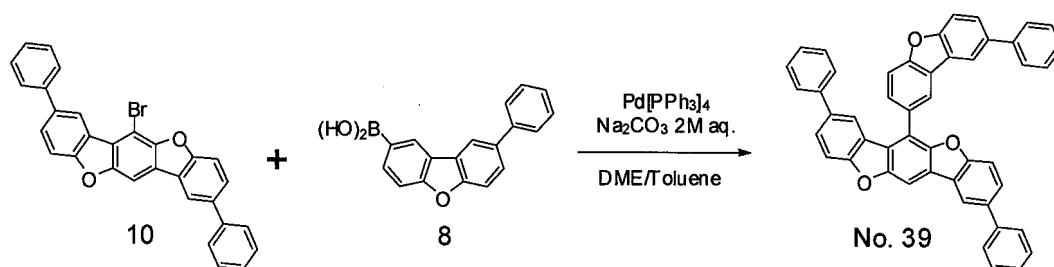
FD - MS分析  $\text{C}_{30}\text{H}_{17}\text{BrO}_2$  : 理論値489、観測値489

## 【0196】

(3) 化合物No. 39の合成

## 【化109】

40



## 【0197】

三口フラスコに化合物10 (4.9g、10.0mmol)、化合物8(3.2g、11.0mmol)、2M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液(10mL、20mmol)、DME(20mL)、トルエン(20mL)、 $\text{Pd[PPh}_3\text{]}_4$  (0.58g、0.5mmol)を入

50

れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(100mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 39)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.8g、収率28%

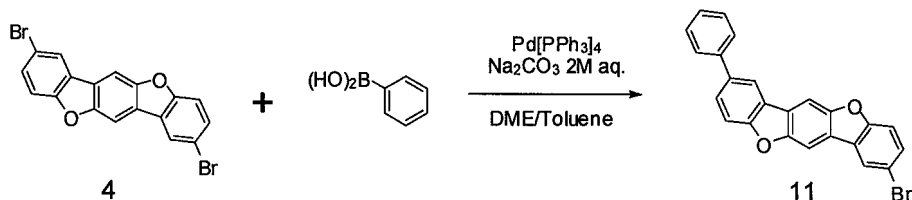
FD - MS分析 C<sub>48</sub>H<sub>28</sub>O<sub>3</sub> : 理論値652、観測値652

【0198】

合成実施例6(化合物No. 57の合成)

(1) 化合物11の合成

【化110】



【0199】

三口フラスコに化合物4(16.6g、40mmol)、フェニルボロン酸(4.9g、40mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(40mL、80mmol)、DME(80mL)、トルエン(80mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(2.3g、2.0mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

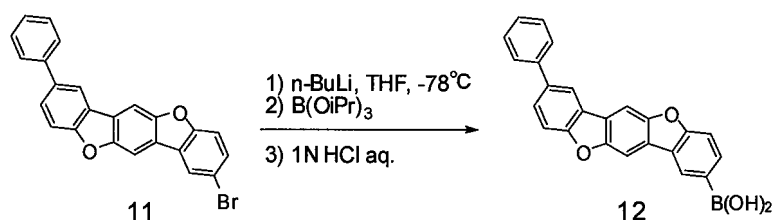
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(300mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量10.7g、収率65%

FD - MS分析 C<sub>24</sub>H<sub>13</sub>BrO<sub>2</sub> : 理論値413、観測値413

【0200】

(2) 化合物12の合成

【化111】



【0201】

三口フラスコに化合物11(10g、24.2mmol)、THF(240mL)を入れ、-78 に冷却した。n-BuLi(1.65M n-ヘキサン溶液、16.1mL、26.6mmol)を滴下して加え、-78 で20分撹拌した。ほう酸 トリイソプロピル(13.7g、72.6mmol)を加え、-78 で1時間撹拌後、一晚室温で放置した。1N HCl(100mL)を加え、室温で1時間撹拌した。試料を濃縮した後、分液ロートに移し、水(100mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料を再結晶(トルエン-ヘキサン)により精製し、白色の固体を得た。収量5.5g、収率60%

【0202】

(3) 化合物No. 57の合成

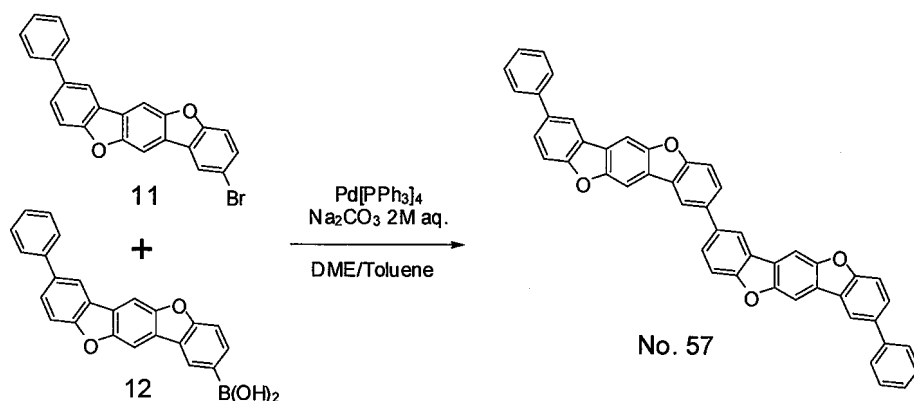
10

20

30

40

## 【化112】



10

## 【0203】

三口フラスコに化合物11 (2.5g、6.0mmol)、化合物12(2.5g、6.6mmol)、2M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液 (6mL、12mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、 $\text{Pd[PPh}_3\text{]}_4$  (0.35g、0.3mmol)を入れ、 $\text{Ar}$ 雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(100mL)を加え、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ にて抽出した。 $\text{MgSO}_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 57)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.6g、収率40%

20

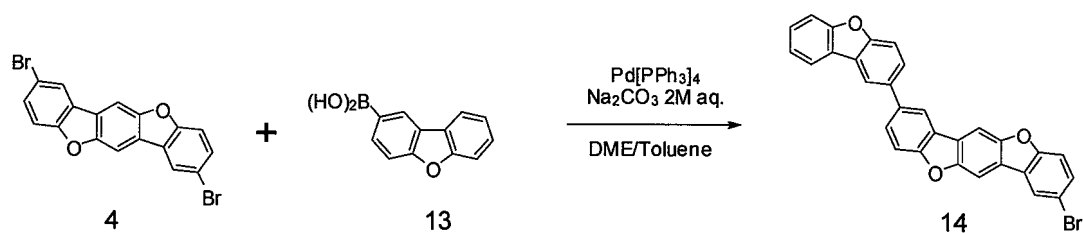
FD - MS分析  $\text{C}_{48}\text{H}_{26}\text{O}_4$  : 理論値666、観測値666

## 【0204】

合成実施例7 (化合物No. 58の合成)

(1) 化合物14の合成

## 【化113】



30

## 【0205】

三口フラスコに化合物4 (16.6g、40mmol)、化合物13 (8.5g、40mmol)、2M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液 (40mL、80mmol)、DME(80mL)、トルエン(80mL)、 $\text{Pd[PPh}_3\text{]}_4$  (2.3g、2.0mmol)を入れ、 $\text{Ar}$ 雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(300mL)を加え、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ にて抽出した。 $\text{MgSO}_4$ で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量11.1g、収率55%

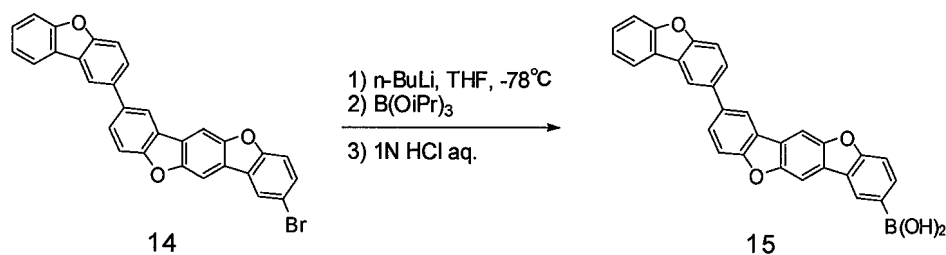
40

FD - MS分析  $\text{C}_{30}\text{H}_{15}\text{BrO}_3$  : 理論値503、観測値503

## 【0206】

(2) 化合物15の合成

## 【化 1 1 4】



## 【 0 2 0 7 】

10

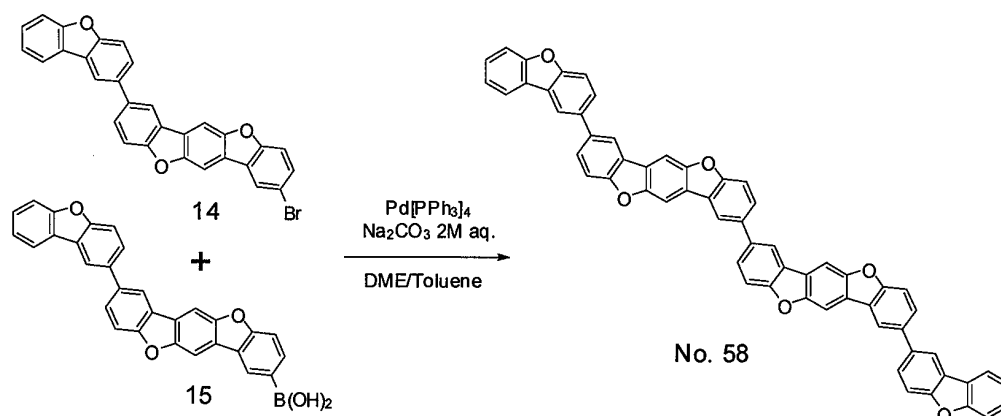
三口フラスコに化合物14 (11g、21.9mmol)、THF (220mL)を入れ、-78 に冷却した。*n*-BuLi(1.65M *n*-ヘキサン溶液、14.5mL、24.0mmol)を滴下して加え、-78 で20分撹拌した。ほう酸 トリイソプロピル(12.4g、65.6mmol)を加え、-78 で1時間撹拌後、一晚室温で放置した。1N HCl(100mL)を加え、室温で1時間撹拌した。試料を濃縮した後、分液ロートに移し、水(100mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料を再結晶(トルエン-ヘキサン)により精製し、白色の固体を得た。収量6.4g、収率62%

## 【 0 2 0 8 】

(3) 化合物 No. 58 の合成

## 【化 1 1 5】

20



30

## 【 0 2 0 9 】

三口フラスコに化合物14 (3.0g、6.0mmol)、化合物15(3.1g、6.6mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液 (6mL、12mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub> (0.35g、0.3mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(100mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物 No. 58)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.3g、収率26%

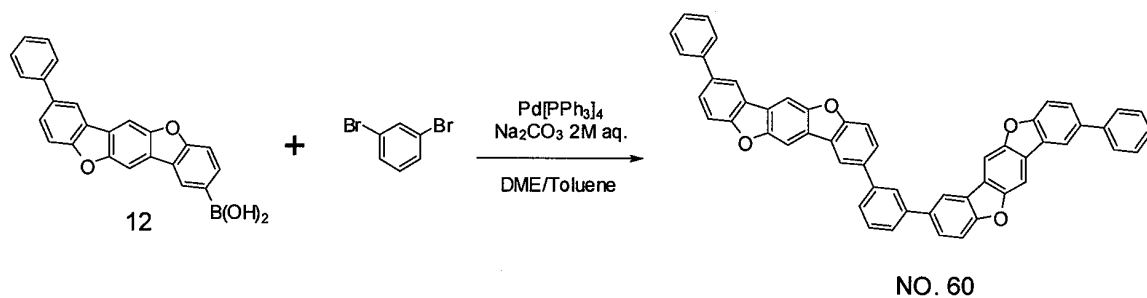
40

FD - MS分析 C<sub>60</sub>H<sub>30</sub>O<sub>6</sub>: 理論値846、観測値846

## 【 0 2 1 0 】

合成実施例 8 (化合物 No. 60 の合成)

## 【化 1 1 6】



10

## 【 0 2 1 1】

三口フラスコに化合物12 (5.5g、14.5mmol)、1,3-ジブロモベンゼン(1.7g、7.3mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液 (15mL、30mmol)、DME(15mL)、トルエン(15mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub> (0.42g、0.37mmol) を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

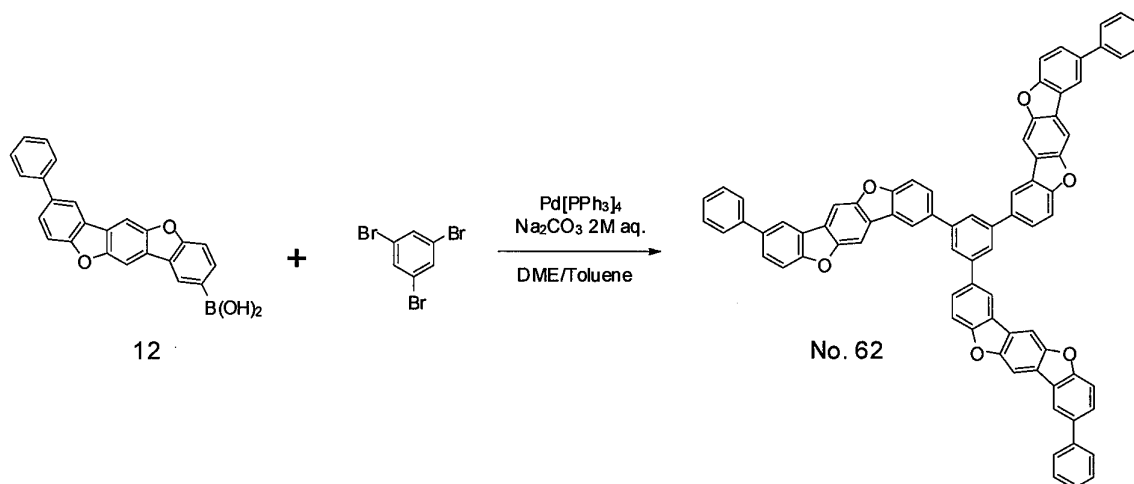
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 60)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.6g、収率29%

FD - MS分析 C<sub>54</sub>H<sub>30</sub>O<sub>4</sub> : 理論値742、観測値742

## 【 0 2 1 2】

合成実施例9 (化合物No. 62の合成)

## 【化 1 1 7】



30

## 【 0 2 1 3】

三口フラスコに化合物12 (8.3g、21.9mmol)、1,3,5-トリプロモベンゼン(2.3g、7.3mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液 (22.5mL、45mmol)、DME(15mL)、トルエン(15mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub> (0.63g、0.56mmol) を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(150mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(No. 62)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.1g、収率14%

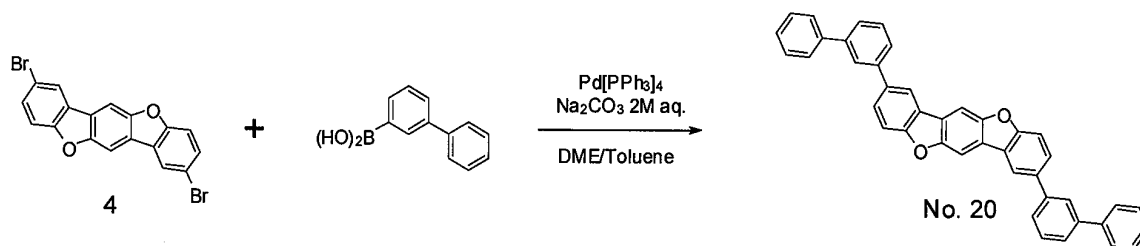
FD - MS分析 C<sub>78</sub>H<sub>42</sub>O<sub>6</sub> : 理論値1075、観測値1075

## 【 0 2 1 4】

合成実施例10 (化合物No. 20の合成)

40

## 【化118】



## 【0215】

10

三口フラスコに化合物4 (2.5g、6.0mmol)、3-ビフェニルボロン酸(2.6g、13.2mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(12mL、24mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(0.35g、0.3mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 20)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.3g、収率39%

FD-MS分析 C<sub>42</sub>H<sub>26</sub>O<sub>2</sub>: 理論値562、観測値562

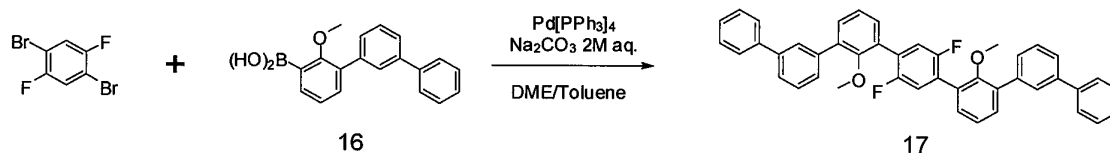
## 【0216】

合成実施例11(化合物No. 67の合成)

20

(1) 化合物17の合成

## 【化119】



## 【0217】

30

三口フラスコに1,4-ジブロモ-2,5-ジフルオロベンゼン(5.4g、20.0mmol)、化合物16(12.8g、42.0mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(40mL、80.0mmol)、DME(40mL)、トルエン(40mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(1.2g、1.0mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(100mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量8.8g、収率70%

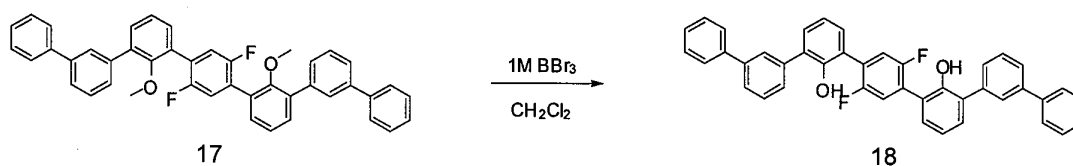
FD-MS分析 C<sub>44</sub>H<sub>32</sub>F<sub>2</sub>O<sub>2</sub>: 理論値630、観測値630

## 【0218】

(2) 化合物18の合成

## 【化120】

40



## 【0219】

三口フラスコに化合物17(8.8g、14.0mmol)、1M BBr<sub>3</sub> CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>溶液(34mL、34.0mmol)、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>(140mL)を入れ、Ar雰囲気下で8時間撹拌した。その後、室温で一晩放置した

50



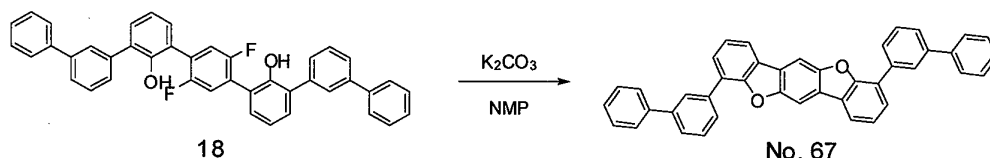
。 反応終了後、飽和NaHCO<sub>3</sub>水溶液で中和した。試料を分液ロートに移し、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量7.8g、収率93%

FD - MS分析 C<sub>42</sub>H<sub>28</sub>F<sub>2</sub>O<sub>2</sub> : 理論値602、観測値602

【0220】

(3) 化合物No. 67の合成

【化121】



10

【0221】

三口フラスコに化合物18(7.8g、12.9mmol)、K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>(7.2g、51.8mmol)、NMP(50mL)を入れ、Ar雰囲気下200℃で3時間撹拌した。反応終了後、室温まで冷却した。試料にトルエン(500mL)を加え、分液ロートに移し、水で洗浄した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥した後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 67)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量2.5g、収率35%

20

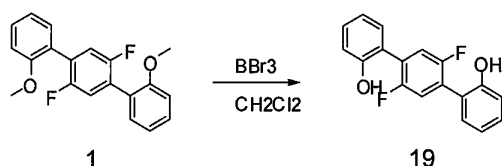
FD - MS分析 C<sub>42</sub>H<sub>26</sub>O<sub>2</sub> : 理論値562、観測値562

【0222】

合成実施例12(化合物No. 455の合成)

(1) 化合物19の合成

【化122】



30

【0223】

三口フラスコに化合物1(30.0g、91.9mmol)、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>(500mL)を入れ、0℃に冷却した。1M BBr<sub>3</sub>(220mL、220mmol)を加え、その後室温で24時間撹拌した。

反応終了後、溶液を-78℃に冷却し、メタノール(50mL)、水(100mL)で失活した。試料を分液ロートに移し、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固し、白色の固体を得た。収量24.7g、収率90%

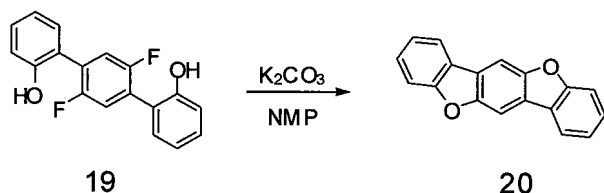
FD - MS分析 C<sub>18</sub>H<sub>12</sub>F<sub>2</sub>O<sub>2</sub> : 理論値298、観測値298

40

【0224】

(2) 化合物20の合成

【化123】



50

## 【0225】

三口フラスコに化合物19(20.0g、67.1mmol)、NMP(700mL)、を入れ、化合物40を完全に溶解させた。K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>(37.1g、268.2mmol)を加え、200℃で2時間撹拌した。

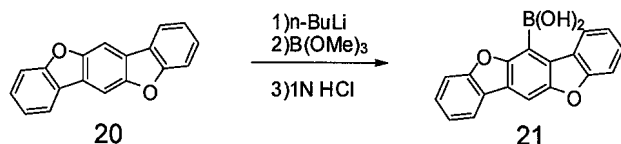
反応終了後、溶液を室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、トルエン(2L)を加え、水で洗浄した。濃縮・乾固の後、再結晶を行い、白色の固体を得た。収量12.7g、収率73%

FD - MS分析 C<sub>18</sub>H<sub>10</sub>O<sub>2</sub> : 理論値258、観測値258

## 【0226】

(3) 化合物21の合成

## 【化124】



## 【0227】

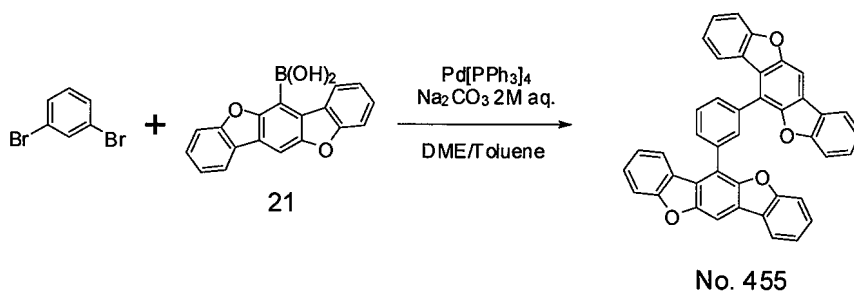
三口フラスコに化合物20(12.0g、46.5mmol)、THF(500mL)を加え、-78℃に冷却した。n-BuLi((2.63M in hexane)18.6ml、48.8mmol)を加え、室温、Ar雰囲気下で1時間撹拌した。次に再度-78℃に冷却し、ほう酸トリメチル(10.4g、100mmol)を加え、-78℃で10分間撹拌した後、室温で1時間撹拌した。

反応終了後、半分程度の容量に濃縮した。1N HCl(200mL)を加え、室温で1時間撹拌した。試料を分液ロートに移し、酢酸エチルにて抽出した。この溶液をMgSO<sub>4</sub>で乾燥した後、濃縮し、トルエン/ヘキサン混合溶媒で分散洗浄し、白色の固体を得た。収量12.6g、収率90%

## 【0228】

(4) 化合物No. 455の合成

## 【化125】



## 【0229】

三口フラスコに化合物21(3.8g、12.6mmol)、1,3-ジプロモベンゼン(1.4g、6.0mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(12mL、24mmol)、DME(12mL)、トルエン(12mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(0.35g、0.30mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、溶液を室温まで冷却し、試料を分液ロートに移し、水(50mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 455)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.8g、収率52%

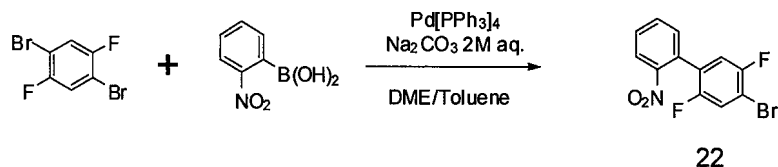
FD - MS分析 C<sub>42</sub>H<sub>22</sub>O<sub>4</sub> : 理論値590、観測値590

## 【0230】

合成実施例13(化合物No. 461の合成)

(1) 化合物22の合成

## 【化126】



## 【0231】

三口フラスコに1,4-ジブロモ-2,5-ジフルオロベンゼン(37.5g、138.0mmol)、2-ニトロフェニルボロン酸(23.0g、138.0mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(138mL、276mmol)、DME(275mL)、トルエン(275mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(8.0g、6.9mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

10

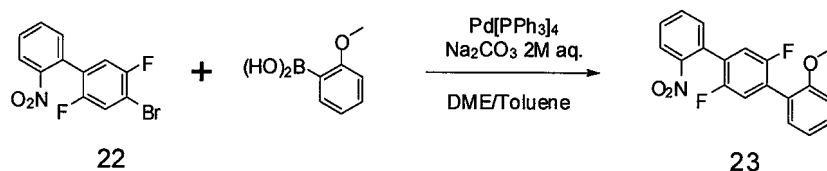
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(250mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量26.1g、収率60%

FD - MS分析 C<sub>12</sub>H<sub>6</sub>BrF<sub>2</sub>NO<sub>2</sub> : 理論値314、観測値314

## 【0232】

(2) 化合物23の合成

## 【化127】



20

## 【0233】

三口フラスコに化合物22(26.1g、83.0mmol)、2-メトキシフェニルボロン酸(15.2g、99.6mmol)、2M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液(83mL、166mmol)、DME(165mL)、トルエン(165mL)、Pd[PPh<sub>3</sub>]<sub>4</sub>(4.8g、4.2mmol)を入れ、Ar雰囲気下で8時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(200mL)を加え、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量22.1g、収率78%

30

FD - MS分析 C<sub>19</sub>H<sub>13</sub>F<sub>2</sub>NO<sub>3</sub> : 理論値341、観測値341

## 【0234】

(3) 化合物24の合成

## 【化128】



40

## 【0235】

三口フラスコに化合物23(22.1g、64.8mmol)、1M BBr<sub>3</sub> CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>溶液(163mL、163mmol)、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>(500mL)を入れ、Ar雰囲気下0℃で8時間撹拌した。その後、室温で一晩放置した。反応終了後、飽和NaHCO<sub>3</sub>水溶液で中和した。試料を分液ロートに移し、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>にて抽出した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の個体を得た。収量20.2g、収率95%

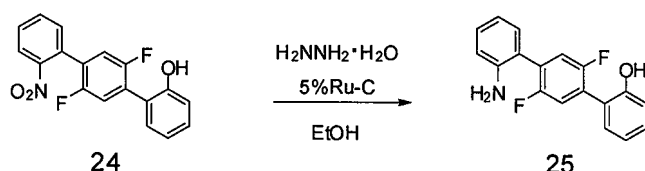
FD - MS分析 C<sub>18</sub>H<sub>11</sub>F<sub>2</sub>NO<sub>3</sub> : 理論値327、観測値327

## 【0236】

50

## (4) 化合物25の合成

## 【化129】



## 【0237】

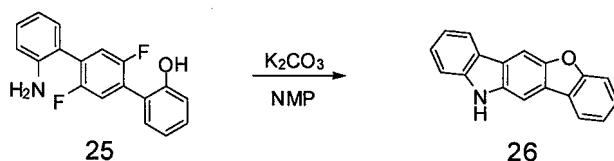
三口フラスコに化合物24 (20.2g、61.6mmol)、5% Ru-C(2.47g)、エタノール(230mL)を入れ、Ar雰囲気下70 で撹拌した。ヒドラジーン水和物(18.6g、371.9mmol)をエタノール(20mL)に溶解させ滴下した。その後、反応混合物を8時間還流した。反応終了後、室温まで冷却した。試料を減圧濾過し、濾液を濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量15.6g、収率85%

FD - MS分析  $C_{18}H_{13}F_2NO$ : 理論値297、観測値297

## 【0238】

## (5) 化合物26の合成

## 【化130】



## 【0239】

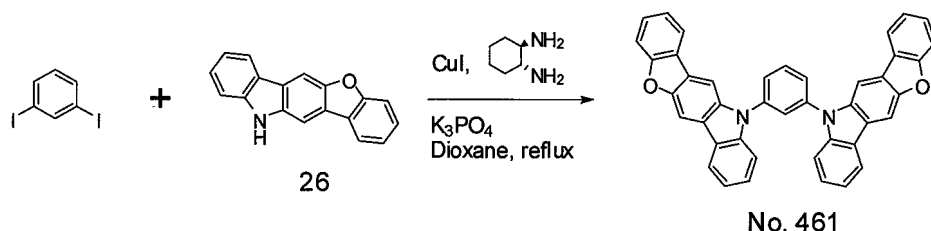
三口フラスコに化合物25(15.6g、52.3mmol)、 $K_2CO_3$  (28.9g、208.9mmol)、NMP(500mL)を入れ、Ar雰囲気下150 で8時間撹拌した。反応終了後、室温まで冷却した。試料に水(500mL)を加え、析出した固体を濾取した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製し、再結晶を2回行い、白色の固体を得た。収量10.8g、収率80%

FD - MS分析  $C_{18}H_{11}NO$ : 理論値257、観測値257

## 【0240】

## (6) 化合物No. 461の合成

## 【化131】



## 【0241】

三口フラスコに1,3-ジヨードベンゼン(2.1g、6.5mmol)、化合物26(4.0g、15.6mmol)、CuI(1.3g、6.5mmol)、トランスシクロヘキサン1,2-ジアミン(2.2g、19.5mmol)、 $K_3PO_4$  (5.5g、25.9mmol)、1,4-dioxane(7.5mL)を入れ、Ar雰囲気下で10時間還流した。

反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水(100mL)を加え、 $CH_2Cl_2$ にて抽出した。試料をカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 461)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量1.3g、収率35%

10

20

30

40

50

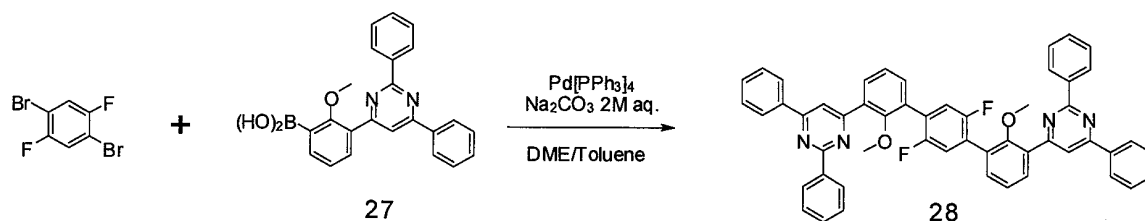
FD - MS 分析  $C_{42}H_{24}N_2O_2$  : 理論値588、観測値588

【0242】

合成実施例14 (化合物No. 87の合成)

(1) 化合物28の合成

【化132】



【0243】

三口フラスコに1,4-ジブromo-2,5-ジフルオロベンゼン (5.4g、20.0mmol)、化合物27 (16.1g、42.0mmol)、2M  $Na_2CO_3$  水溶液 (40mL、80.0mmol)、DME (40mL)、トルエン (40mL)、 $Pd[PPh_3]_4$  (1.2g、1.0mmol) を入れ、Ar 雰囲気下で8時間還流した。

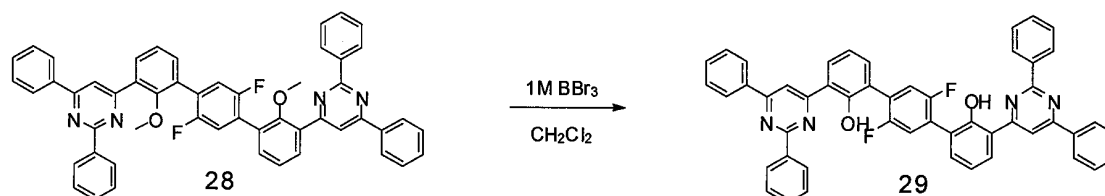
反応終了後、室温まで冷却した。試料を分液ロートに移し、水 (100mL) を加え、 $CH_2Cl_2$  にて抽出した。 $MgSO_4$  で乾燥後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量11.8g、収率75%

FD - MS 分析  $C_{52}H_{36}F_2N_4O_2$  : 理論値786、観測値786

【0244】

(2) 化合物29の合成

【化133】



【0245】

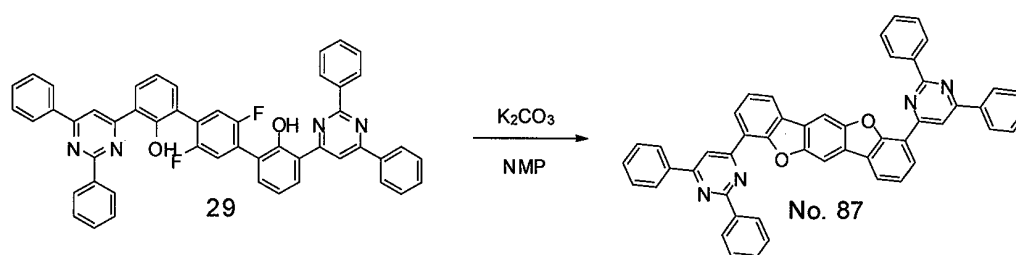
三口フラスコに化合物28 (11.8g、15.0mmol)、1M  $BBr_3$   $CH_2Cl_2$  溶液 (37mL、37.0mmol)、 $CH_2Cl_2$  (150mL) を入れ、Ar 雰囲気下0 で8時間撹拌した。その後、室温で一晩放置した。反応終了後、飽和  $NaHCO_3$  水溶液で中和した。試料を分液ロートに移し、 $CH_2Cl_2$  にて抽出した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色の固体を得た。収量10.2g、収率90%

FD - MS 分析  $C_{50}H_{32}F_2N_4O_2$  : 理論値758、観測値758

【0246】

(3) 化合物No. 87の合成

【化134】



【0247】

三口フラスコに化合物29 (10.2g、13.4mmol)、 $K_2CO_3$  (7.4g、53.8mmol)、NMP (60mL) を入

50

れ、Ar雰囲気下200 で3時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷却した。試料にトルエン(500mL)を加え、分液ロートに移し、水で洗浄した。MgSO<sub>4</sub>で乾燥した後、ろ過、濃縮した。試料をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。濃縮・乾固の後、再結晶を2回行い白色の粉末(化合物No. 87)を得た。これを昇華精製して白色の固体を得た。収量2.2g、収率 23%

FD - MS分析 C<sub>50</sub>H<sub>30</sub>N<sub>4</sub>O<sub>2</sub> : 理論値718、観測値718

【0248】

合成実施例1~14においてFD - MS(フィールドディソープションマス)分析の測定に用いた装置及び測定条件を以下に示す。

装置 : HX110(日本電子社製)

条件 : 加速電圧 8kV

スキャンレンジ m/z = 50 ~ 1500

エミッタ種 : カーボン

エミッタ電流 : 0mA 2mA/分 40mA(10分保持)

【0249】

実施例1

(有機EL素子の作製)

25mm x 75mm x 1.1mmのITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)に、イソプロピルアルコール中で5分間の超音波洗浄を施し、さらに、30分間のUV(Ultraviolet)オゾン洗浄を施した。

このようにして洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして、化合物Aを厚さ30nmで蒸着し、正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、りん光用ホストである化合物No. 1とりん光用ドーパントであるIr(Ph-ppy)<sub>3</sub>とを厚さ30nmで共蒸着し、りん光発光層を得た。Ir(Ph-ppy)<sub>3</sub>の濃度は、5質量%であった。

続いて、このりん光発光層上に、厚さ10nmの化合物B、更に厚さ20nmの化合物C、厚さ1nmのLiF、厚さ80nmの金属Alを順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極であるLiFについては、1/minの速度で形成した。

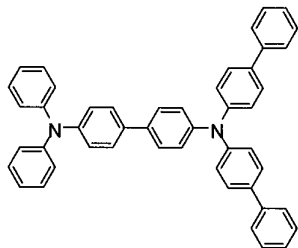
【0250】

10

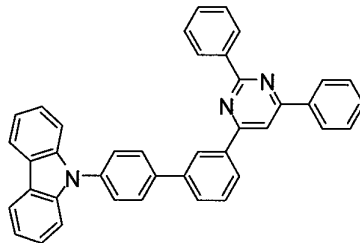
20

30

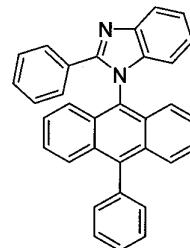
【化 1 3 5】



化合物 A

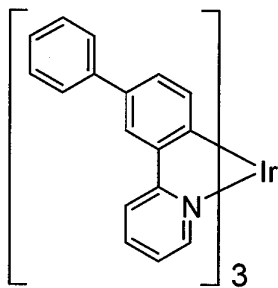


化合物 B



化合物 C

10



Ir(Ph-ppy)3(facial 体)

20

【 0 2 5 1】

(有機 EL 素子の発光性能評価)

以上のように作製した有機 EL 素子を直流電流駆動により発光させ、輝度 (L)、電流密度を測定し、輝度 1000 cd/m<sup>2</sup>における電流効率 (L/J) を求めた。さらに輝度 20000 cd/m<sup>2</sup>における素子寿命を求めた。結果を表 1 に示す。

【 0 2 5 2】

実施例 2 ~ 12

実施例 1 においてホスト化合物 No. 1 を用いる代わりに表 1 に記載のホスト材料を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 1 に示す。

30

比較例 1、2

実施例 1 においてホスト化合物 No. 1 を用いる代わりにホスト材料として国際公開特許 EP 0908787 号公報記載の下記化合物 (a)、(b) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 1 に示す。

比較例 3、4

実施例 1 においてホスト化合物 No. 1 を用いる代わりにホスト材料として国際公開特許 WO 2006-122630 号公報記載の下記化合物 (c)、(d) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 1 に示す。

比較例 5

40

実施例 1 においてホスト化合物 No. 1 を用いる代わりにホスト材料として国際公開特許 WO 2007-063754 号公報記載の下記化合物 (e) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 1 に示す。

比較例 6

実施例 1 においてホスト化合物 No. 1 を用いる代わりにホスト材料として公開特許公報 2008-81494 号公報記載の下記化合物 (f) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 1 に示す。

比較例 7

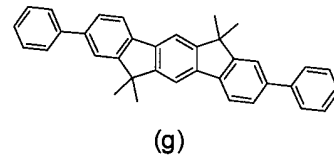
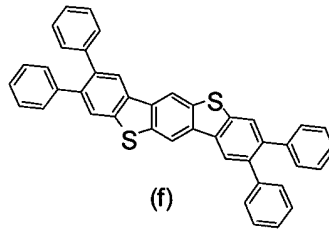
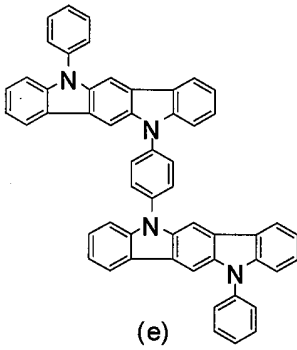
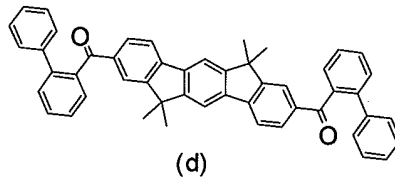
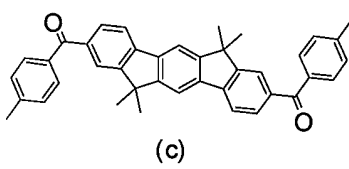
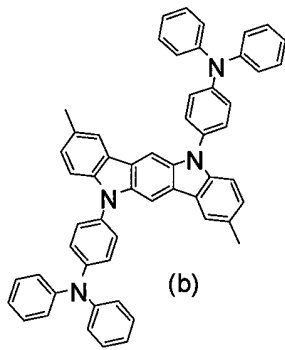
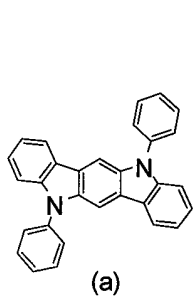
実施例 1 においてホスト化合物 No. 1 を用いる代わりにホスト材料として国際公開特許 US 2002-0132134 および US 2003-0044646 号公報記載の下記

50

化合物 (g) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 1 に示す。

【 0 2 5 3 】

【 化 1 3 6 】



【 0 2 5 4 】

10

20

30



【表 1】

表 1

	ホスト化合物	電圧(V) @20mA/cm <sup>2</sup>	効率(cd/A) @1,000cd/m <sup>2</sup>	寿命(hr) @20,000cd/m <sup>2</sup>
実施例 1	(1)	5.8	52.3	350
実施例 2	(11)	4.5	45.8	110
実施例 3	(22)	6.0	50.8	320
実施例 4	(28)	5.2	57.6	400
実施例 5	(39)	5.3	57.5	300
実施例 6	(57)	5.2	56.8	410
実施例 7	(58)	5.0	50.5	350
実施例 8	(60)	5.4	57.8	370
実施例 9	(62)	5.3	54.3	500
実施例 10	(455)	4.7	58.5	380
実施例 11	(461)	4.6	56.5	390
実施例 12	(87)	4.6	52.1	230
比較例 1	(a)	4.6	26.5	50
比較例 2	(b)	4.2	17.6	30
比較例 3	(c)	4.9	37.5	50
比較例 4	(d)	4.7	35.9	60
比較例 5	(e)	4.3	17.3	30
比較例 6	(f)	5.5	38.2	50
比較例 7	(g)	5.4	28.7	60

## 【0255】

## 実施例 13

(有機EL素子の作製)

前述と同様にして洗浄した透明電極付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、ガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、透明電極を覆うようにして、化合物Aを厚さ30nmで蒸着し、正孔輸送層を得た。

この正孔輸送層上に、りん光用ホストである化合物No. 198とりん光用ドーパントであるIr(Ph-ppy)<sub>3</sub>とを厚さ30nmで共蒸着し、りん光発光層を得た。Ir(Ph-ppy)<sub>3</sub>の濃度は、10質量%であった。

続いて、このりん光発光層上に、厚さ10nmの化合物No. 20、更に厚さ20nmの化合物C、厚さ1nmのLiF、厚さ80nmの金属Alを順次積層し、陰極を得た。なお、電子注入性電極であるLiFについては、1/minの速度で形成した。

## 【0256】

(有機EL素子の発光性能評価)

以上のように作製した有機EL素子を直流電流駆動により発光させ、輝度(L)、電流密度を測定し、輝度1000cd/m<sup>2</sup>における電流効率(L/J)を求めた。さらに輝度20000cd/m<sup>2</sup>における素子寿命を求めた。結果を表2に示す。

## 【0257】

## 実施例 14 ~ 22

実施例 13 においてホスト化合物No. 198および電子輸送性化合物No. 20を用いる代わりに表2に記載のホスト化合物および電子輸送性化合物を用いた以外は実施例 13と同様にして有機EL素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表2に示す。

## 【0258】

## 比較例 8

10

20

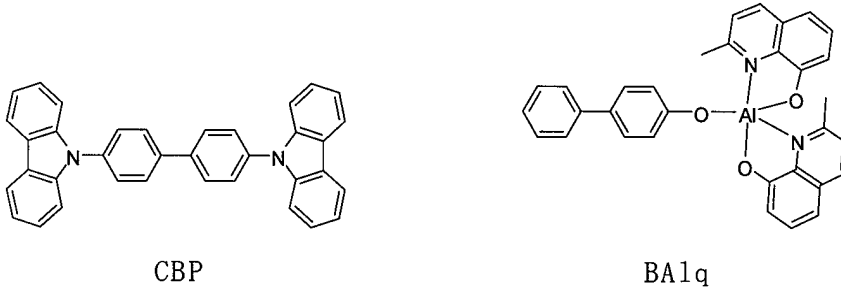
30

40

50

実施例 13 においてホスト化合物 No. 198 を用いる代わりに CBP を、電子輸送性化合物 No. 20 を用いる代わりに BAlq を用いた以外は実施例 13 と同様にして有機 EL 素子を作製、評価した。発光性能評価結果を表 2 に示す。

【化 137】



10

【0259】

【表 2】

表 2

	ホスト化合物	電子輸送性化合物	電圧(V) @20mA/cm <sup>2</sup>	効率(cd/A) @1,000cd/m <sup>2</sup>	寿命(hr) @20,000cd/m <sup>2</sup>
実施例 13	(198)	(20)	4.7	65.1	500
実施例 14	(198)	(67)	4.5	63.9	550
実施例 15	(137)	(67)	4.5	57.1	350
実施例 16	(193)	(67)	5.2	61.8	400
実施例 17	(209)	(67)	5.3	63.8	380
実施例 18	(198)	(87)	4.5	63.5	540
実施例 19	(137)	(87)	4.2	59.5	580
実施例 20	CBP	(20)	5.3	47.2	100
実施例 21	CBP	(67)	5.1	48.5	100
実施例 22	CBP	(87)	4.8	42.8	110
比較例 8	CBP	BAlq	6.5	45.1	30

20

【0260】

実施例の有機 EL 素子に対して、比較例の有機 EL 素子はいずれも電流効率が低い値を示しており、駆動電圧も高く、寿命も短かった。

30

【産業上の利用可能性】

【0261】

以上詳細に説明したように、本発明の多環系化合物を有機 EL 素子用材料として利用すると、発光効率が高く、かつ寿命の長い有機 EL 素子が得られる。このため、本発明の有機 EL 素子は、各種電子機器の光源等として極めて有用である。また、本発明のハロゲン化合物は、前記多環系化合物の中間体に適している。また、本発明の多環系化合物は有機電子素子用材料としても有効に活用でき、有機太陽電池、有機半導体レーザー、有機物を用いるセンサー、有機 TFT においても極めて有用である。

40

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		
<i>H 0 1 L 51/50</i>	<i>(2006.01)</i>	H 0 5 B	33/14	B
<i>C 0 7 F 15/00</i>	<i>(2006.01)</i>	H 0 5 B	33/22	B
		H 0 5 B	33/22	D
		C 0 7 F	15/00	E

(72)発明者 岩隈 俊裕  
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72)発明者 細川 地潮  
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

審査官 瀬下 浩一

(56)参考文献 国際公開第2006/122630(WO,A1)  
特開2004-204234(JP,A)  
特開平11-176578(JP,A)  
特開2007-019294(JP,A)  
国際公開第2008/056746(WO,A1)  
特開2006-083386(JP,A)  
国際公開第2009/136595(WO,A1)  
Keiko Kawaguchi et al., Organic Letters, 2008年 2月16日, Vol.10, No.6, p.1199-1202

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C 0 7 D 4 8 7 / 0 4  
C 0 7 D 4 9 1 / 0 4 8  
C 0 7 D 4 9 3 / 0 4  
C 0 7 D 5 1 9 / 0 0  
C 0 9 K 1 1 / 0 6  
H 0 1 L 5 1 / 5 0  
C 0 7 F 1 5 / 0 0  
CAplus/REGISTRY(STN)