(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2017-175099
(P2017-175099A)
(43)公開日　平成29年9月28日(2017.9.28)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
H01L 51/50	***(2006.01)***	H05B	33/22	B	3K107
C07D 401/14	***(2006.01)***	H05B	33/14	A	4C063
C07D 401/04	***(2006.01)***	C07D	401/14	CSP	
C07D 405/14	***(2006.01)***	C07D	401/04		
C07D 409/14	***(2006.01)***	C07D	405/14		

審査請求 有　請求項の数 14　ＯＬ　（全 70 頁）　最終頁に続く

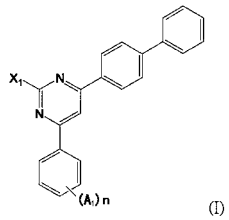
(21)出願番号　特願2016-146096 (P2016-146096)
(22)出願日　平成28年7月26日 (2016.7.26)
(31)優先権主張番号　105109396
(32)優先日　平成28年3月25日 (2016.3.25)
(33)優先権主張国　台湾 (TW)

(71)出願人　511105034
▲いく▼▲雷▼光電科技股▲分▼有限公司
台湾桃園市▲歴▼區民権路三段３３４巷５６號１樓
(74)代理人　100108453
弁理士　村山　靖彦
(74)代理人　100110364
弁理士　実広　信哉
(74)代理人　100133400
弁理士　阿部　達彦
(72)発明者　黄　賀隆
台湾桃園市▲歴▼區民権路三段３３４巷５６號１樓

最終頁に続く

(54)【発明の名称】有機エレクトロルミネセントデバイス用の化合物、およびこの化合物を用いた有機エレクトロルミネセントデバイス

(57)【要約】
【課題】有機エレクトロルミネセントデバイス用の化合物、およびこの化合物を用いた有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。
【解決手段】式（Ｉ）中、X_1、A_1およびｎは、明細書における定義と同じ意味を表す、新規な式（Ｉ）で表される化合物および前記化合物を用いた有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。



(I)

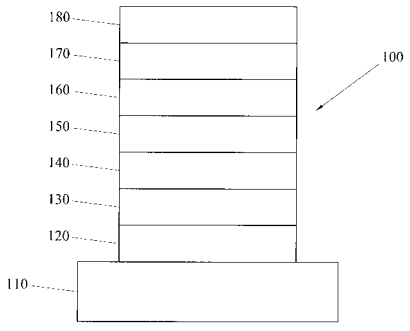
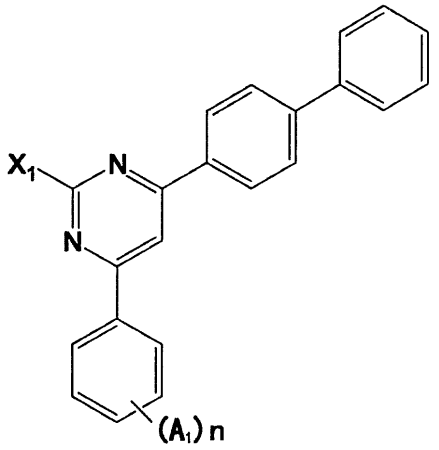


図１

【選択図】図１

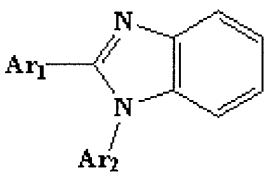
【特許請求の範囲】
【請求項１】
有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物であって、
【化１】



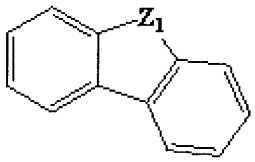
(I)

式中、
X_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～３０員）ヘテロアリール基を表し、
A_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～３０員）ヘテロアリール基を表し、
X_1およびA_1は、同一または異なり、
ｎは、１または２の整数を表し、ｎが２を表す場合、A_1がそれぞれ同一または異なり、X_1が置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基である場合、ｎが１である、有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物。
【請求項２】
X_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ２０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～２０員）ヘテロアリール基を表し、前記（５員～２０員）ヘテロアリール基は、Ｎ、ＯおよびＳからなる群から選ばれる少なくとも一つのヘテロ原子を含有し、
A_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ２０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～２０員）ヘテロアリール基を表し、前記（５員～２０員）ヘテロアリール基は、Ｎ、ＯおよびＳからなる群から選ばれる少なくとも一つのヘテロ原子を含有する、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物。
【請求項３】
上記（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基は、（Ｃ１－Ｃ１０）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基および（５員～３０員）ヘテロアリール基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基で置換され、
上記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ１－Ｃ１０）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基および（５員～３０員）ヘテロアリール基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基で置換される、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物。
【請求項４】
上記（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基は、（Ｃ１－Ｃ５）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ１０）ア

リール基およびベンゾイミダゾリル基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記ベンゾイミダゾリル基は、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基で置換され、
上記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ１－Ｃ５）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基およびベンゾイミダゾリル基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記ベンゾイミダゾリル基は、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基で置換される、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物。
【請求項５】
A_1は、式（ＩＩ）または式（ＩＩＩ）で表される化合物を表し、
【化２】

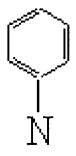


式（ＩＩ）



式（ＩＩＩ）

式中、
Ar_1およびAr_2はそれぞれ独立に、置換されていない（Ｃ６－Ｃ２０）アリール（またはアリーレン）基を表し、
式（ＩＩ）で表される化合物はAr_1またはAr_2により式（Ｉ）で表される化合物と結合するか、または式（ＩＩ）で表される化合物はAr_1およびAr_2により式（Ｉ）で表される化合物と縮合環を形成し、
Z_1はＮ、
【化３】



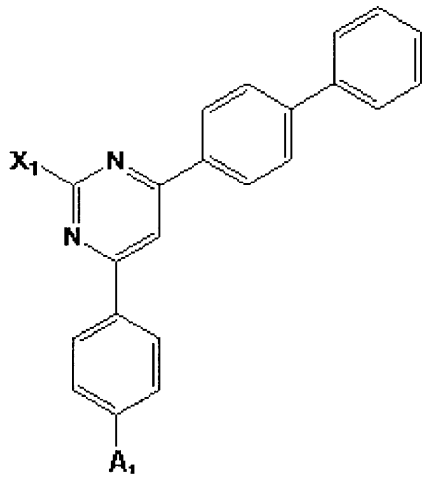
、

Ｏ、Ｓ、CMe_2またはCH_2を表し、
Z_1がＮである場合、式（ＩＩＩ）で表される化合物はZ_1により式（Ｉ）で表される化合物と結合し、
Z_1が
【化４】

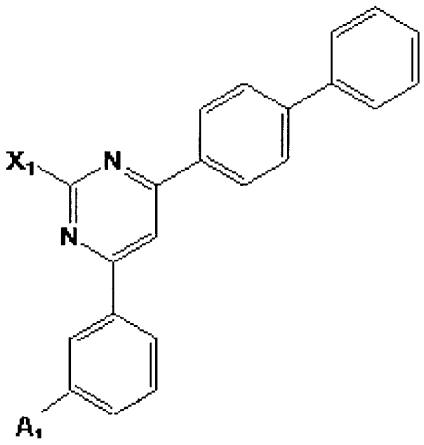
、

Ｏ、Ｓ、CMe_2またはCH_2である場合、式（ＩＩＩ）で表される化合物はそれの有するフェニル基により式（Ｉ）で表される化合物と結合する、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物。
【請求項６】
ｎが１である場合、上記式（Ｉ）で表される化合物は、式（Ｉ－１）または式（Ｉ－２）で表される化合物である、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物：

【化５】



（Ｉ－１）

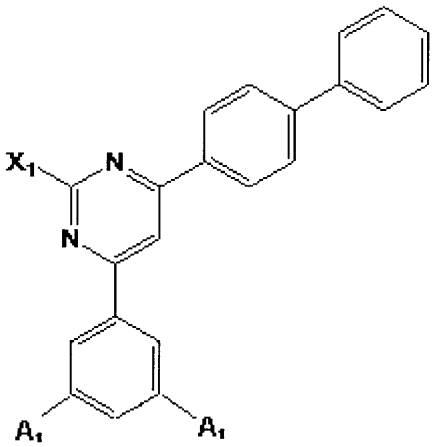


（Ｉ－２）。

【請求項７】

ｎが２である場合、上記式（Ｉ）で表される化合物は、式（Ｉ－３）で表される化合物である、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物：

【化６】

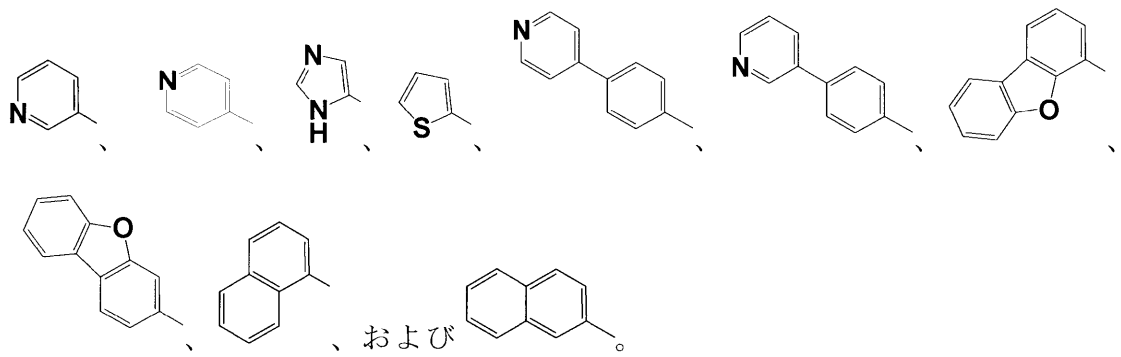


（Ｉ－３）。

【請求項８】

Ｘ$_1$は、下記基からなる群から選ばれる一つの基である、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物：

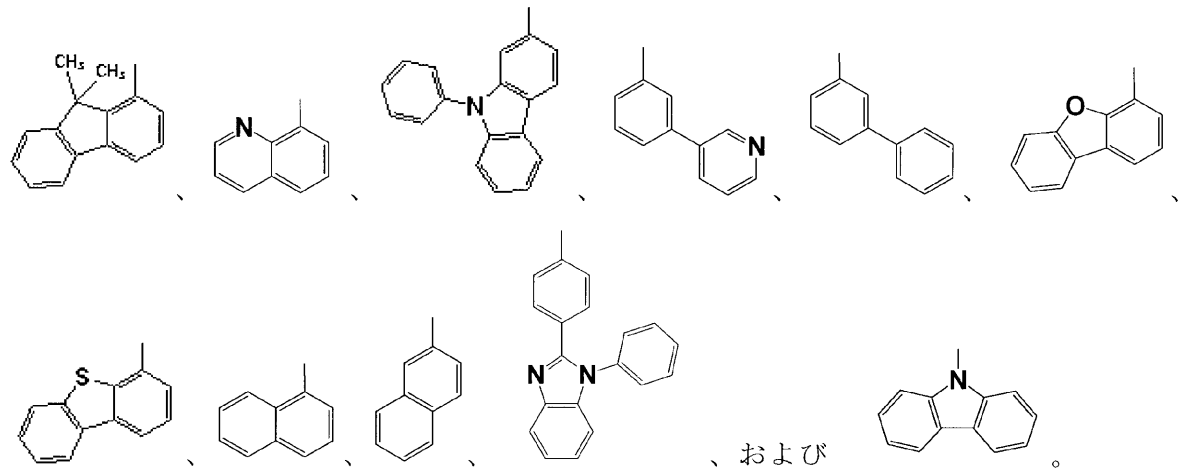
【化７】



、および

。

【請求項９】
A_1は、下記基からなる群から選ばれる一つの基である、請求項１に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス用の式（Ｉ）で表される化合物：
【化８】



、および 。

【請求項１０】
陰極、
陽極、および
前記陰極と前記陽極の間に設けられ、請求項１に記載の式（Ｉ）で表される化合物を含有する有機層
を含む有機エレクトロルミネセントデバイス。
【請求項１１】
上記有機層の重量で計算すると、式（Ｉ）で表される化合物の含有量は２５％～１００％であり、上記有機層の厚さは１ｎｍ～５００ｎｍである、請求項１０に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス。
【請求項１２】
上記有機層は電子輸送層であり、前記電子輸送層は式（Ｉ）で表される化合物を含む、請求項１０に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス。
【請求項１３】
上記電子輸送層は、ｎ型の電気伝導ドーパントをさらに含み、
前記ｎ型の電気伝導ドーパントの含有量は、０ｗｔ％を超え、かつ、７５ｗｔ％以下である、請求項１２に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス。
【請求項１４】
上記有機層は、電子輸送層、電子注入層、発光層、正孔ブロック層または電子ブロック層であり、
前記発光層は、蛍光または燐光発光体を含む、請求項１０に記載の有機エレクトロルミネセントデバイス。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、有機エレクトロルミネセントデバイス用の化合物およびこの化合物を用いた有機エレクトロルミネセントデバイスに関する。
【背景技術】
【０００２】
有機エレクトロルミネセントデバイス（Ｏｒｇａｎｉｃ Ｅｌｅｃｔｒｏｌｕｍｉｎｅｓｃｅｎｔ Ｄｅｖｉｃｅ。以下はＯＬＥＤともいう）の応用を満足させるために、新規

な有機材料の開発がさらに重視されている。このようなデバイスは、高発光率の高密度画素ディスプレーの製造においてはコスト優位性を提供し、さらに、長い寿命、高い効率、低い駆動電圧および広い色域を有するため、商業的な魅力を有する。

【０００３】

典型的なＯＬＥＤは、陽極と陰極との間に挟まれた有機発光（ｏｒｇａｎｉｃ　ｅｍｉｓｓｉｖｅ）層を少なくとも含む。電流を印加したとき、一層または複数層の有機発光層には、陽極から正孔を、陰極から電子を注入し、注入された正孔および電子は、それぞれ逆の電荷を帯びた電極に移動する（ｍｉｇｒａｔｅ）。電子および正孔が同じ分子に局在されたとき、“エキシトン（ｅｘｃｉｔｏｎ）”を形成し、前記エキシトンは、励起状態の局在化された電子－正孔ペアを有する。エキシトンは、発光メカニズムを通じて緩和し、光を発射する。これらのデバイスの電荷輸送能力および発光効率を向上させるために、発光層の傍らに、一層または複数層の追加層、例えば、電子輸送層および／または正孔輸送層、あるいは電子ブロック層および／または正孔ブロック層を積層する。米国特許第５７０７７４５号公報（特許文献１）および米国特許第９１５３７８７号公報（特許文献２）には、デバイス性能の向上および色度の調整のために、ホスト材料にもう一つの材料（ゲスト）をドープすることが開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００４】

【特許文献１】米国特許第５７０７７４５号公報

【特許文献２】米国特許第９１５３７８７号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００５】

多層フィルム構造を有するＯＬＥＤを製造する要因には、これらの電極および有機層の間の界面を安定させることが含まれる。また、有機材料において、電子および正孔の移動度（ｍｏｂｉｌｉｔｙ）は明らかに異なる。よって、対応する正孔輸送層および電子輸送層を使用すると、正孔および電子を発光層に効率的に輸送できる。また、前記発光層において正孔および電子の密度が平衡したとき、発光効率を増幅できる。上記有機層を適宜に積層すると、上記デバイスの効率および寿命を増進できる。しかしながら、実際にディスプレーの応用要求を全て満足させる有機材料を見つけ出すことは困難である。

【０００６】

そのため、デバイスの寿命を延長し、発光効率を向上させ、低い駆動電圧を維持できる電子輸送材料の開発が求められている。

【課題を解決するための手段】

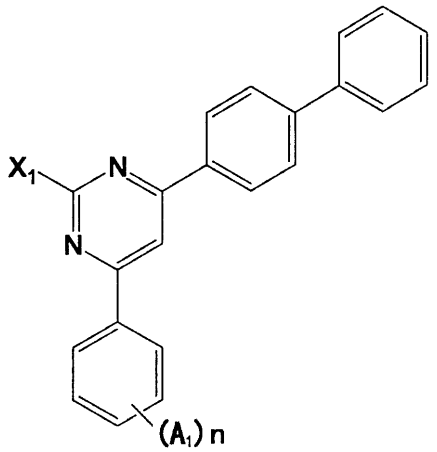
【０００７】

本発明は、高い発光効率、低い駆動電圧および長い寿命を有するＯＬＥＤ用の材料を提供することを一つの目的とする。

【０００８】

本発明は、

【化１】



(I)

式（Ｉ）中、

X_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～３０員）ヘテロアリール基を表し、

A_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～３０員）ヘテロアリール基を表し、

X_1およびA_1は、同一または異なり、

ｎは、１または２の整数を表し、ｎが２を表す場合、A_1がそれぞれ同一または異なり、X_1が置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基である場合、ｎが１である、ＯＬＥＤ用の式（Ｉ）で表される化合物（以下、式（Ｉ）化合物とも称す）を提供する。

【０００９】

さらに、本発明は、陰極、陽極、および前記陰極と前記陽極との間に設けられ、上記式（Ｉ）の化合物を含有する有機層を含む、有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。

【００１０】

本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスにおける有機層は、電子輸送層、電子注入層、発光層、正孔ブロック層または電子ブロック層であってもよく、前記有機エレクトロルミネセントデバイスは、前記有機層のほかに、前記有機層と異なる電子輸送層、電子注入層、発光層、正孔ブロック層および電子ブロック層からなる群から選ばれる少なくとも一つの層をさらに含んでもよい。

【発明の効果】

【００１１】

本発明によれば、本発明で提供された式（Ｉ）化合物により、デバイスの安定性を改善し、操作電圧を低下させることができる。

【図面の簡単な説明】

【００１２】

【図１】本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスの一つの実施態様の断面模式図である。

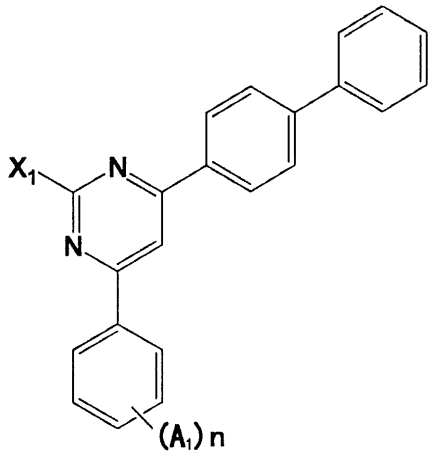
【図２】本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスのもう一つの実施態様の断面模式図である。

【図３】本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスのさらにもう一つの実施態様の断面模式図である。

【図４】本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスのエレクトロルミネセントスペクトルである。

【発明を実施するための形態】

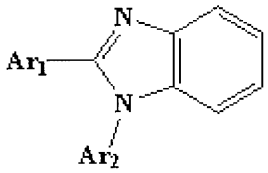
【００１３】
以下、好ましい実施態様によって本発明を詳細に説明し、当業者に、本発明の明細書に開示されている利点および効果を容易に理解させる。
【００１４】
本明細書に記載された範囲と開示された数値は、いずれも含有して併合することができる。例を挙げれば、任意の数値、例えば、一つの整数またはポイントが本明細書に記載された範囲に入ると、そのポイントまたは数値を下限値または上限値として副範囲を導出できる。また、本明細書に例示された基、例えば、X_1とA_1に属する基または置換基は、いずれも他の基と共に式（Ｉ）に併合できる。
【００１５】
本発明によれば、ＯＬＥＤに適用できる化合物は、例えば、式（Ｉ）化合物である。
【化２】



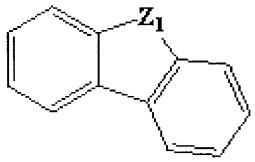
(I)

式（Ｉ）中、
X_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～３０員）ヘテロアリール基を表し、
A_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～３０員）ヘテロアリール基を表し、
X_1およびA_1は、同一または異なり、
ｎは、１または２の整数を表し、ｎが２を表す場合、A_1がそれぞれ同一または異なり、X_1が置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基である場合、ｎが１である。
【００１６】
一つの具体的な実施態様において、X_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ２０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～２０員）ヘテロアリール基を表し、前記（５員～２０員）ヘテロアリール基は、Ｎ、ＯおよびＳからなる群から選ばれる少なくとも一つのヘテロ原子を含有する。
【００１７】
一つの具体的な実施態様において、A_1は、置換されたもしくは置換されていない（Ｃ６－Ｃ２０）アリール基、または置換されたもしくは置換されていない（５員～２０員）ヘテロアリール基を表し、前記（５員～２０員）ヘテロアリール基は、Ｎ、ＯおよびＳからなる群から選ばれる少なくとも一つのヘテロ原子を含有する。
【００１８】
一つの具体的な実施態様において、上記式（Ｉ）におけるA_1は、式（ＩＩ）または式（ＩＩＩ）で表される化合物（以下、式（ＩＩ）化合物、式（ＩＩＩ）化合物とも称す）を表す。

【化３】

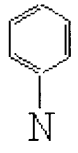


式（ＩＩ）



式（ＩＩＩ）

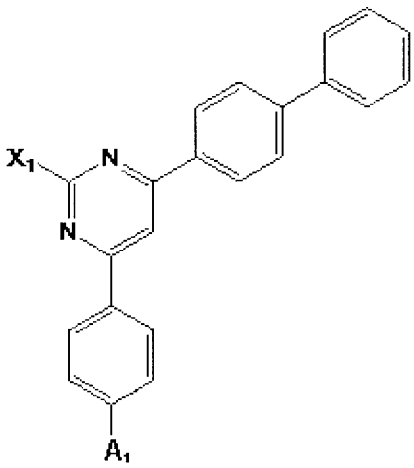
式（ＩＩ）中、Ar_1およびAr_2は、それぞれ独立に、置換されていない（Ｃ６－Ｃ２０）アリール基（またはアリーレン基）を表し、
式（ＩＩ）化合物はAr_1またはAr_2により式（Ｉ）化合物と結合するか、または式（ＩＩ）化合物はAr_1およびAr_2により式（Ｉ）化合物と縮合環を形成し、
式（ＩＩＩ）中、Z_1は、Ｎ、
【化４】



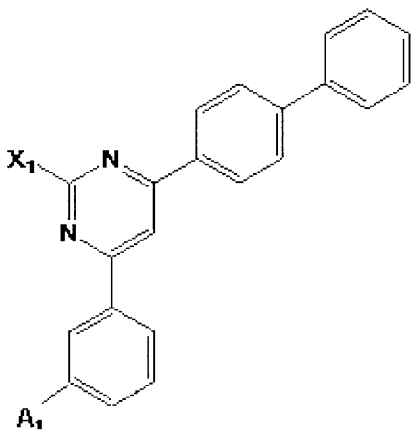
、

Ｏ、Ｓ、CMe_2またはCH_2を表し、
Z_1がＮである場合、式（ＩＩＩ）化合物はZ_1により式（Ｉ）化合物と結合し、Z_1が
【化５】

Ｏ、Ｓ、CMe_2またはCH_2である場合、式（ＩＩＩ）化合物はそれの有するフェニル基により式（Ｉ）化合物と結合する。
【００１９】
一つの具体的な実施態様において、ｎが１である場合、前記式（Ｉ）化合物が式（Ｉ－１）または式（Ｉ－２）で表される化合物である。
【化６】

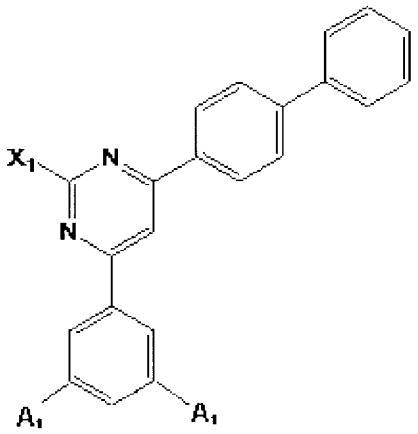


（Ｉ－１）



（Ｉ－２）

【００２０】
一つの具体的な実施態様において、ｎが２である場合、前記式（Ｉ）化合物が式（Ｉ－３）で表される化合物である。
【化７】



（Ｉ－３）

【００２１】
本明細書において、「置換されたもしくは置換されていない」における「置換された」とは、ある官能基における水素原子が別の一つの原子または基（すなわち、置換基）で置換されていることを示す。これらの置換基は、それぞれ独立に、下記基からなる群から選ばれる少なくとも一つである：重水素；ハロゲン；（Ｃ１－Ｃ３０）アルキル基；（Ｃ１－Ｃ３０）アルコキシ基；（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基；（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基で置換されてもよい（５員～３０員）ヘテロアリール基；（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基で置換された（５員～３０員）ヘテロアリール基；（Ｃ３－Ｃ３０）シクロアルキル基；（５員～７員）ヘテロシクロアルキル基；トリ（Ｃ１－Ｃ３０）アルキルシリル基；トリ（Ｃ１－Ｃ３０）アリールシリル基；ジ（Ｃ１－Ｃ３０）アルキル（Ｃ６－Ｃ３０）アリールシリル基；（Ｃ１－Ｃ３０）アルキルジ（Ｃ６－Ｃ３０）アリールシリル基；（Ｃ２－Ｃ３０）アルケニル基；（Ｃ２－Ｃ３０）アルキニル基；シアノ基；ジ（Ｃ１－Ｃ３０）アルキルアミノ基；ジ（Ｃ６－Ｃ３０）アリールアミノ基；（Ｃ１－Ｃ３０）アルキル（Ｃ６－Ｃ３０）アリールアミノ基；ジ（Ｃ６－Ｃ３０）アリールボリル基；ジ（Ｃ１－Ｃ３０）アルキルボリル基；（Ｃ１－Ｃ３０）アルキル（Ｃ６－Ｃ３０）アリールボリル基；（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基（Ｃ１－Ｃ３０）アルキル基；（Ｃ１－Ｃ３０）アルキル（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基；カルボキシル基；ニトロ基；およびヒドロキシ基。
【００２２】
一つの具体的な実施態様において、上記（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基は、（Ｃ１－Ｃ１０）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基および（５員～３０員）ヘテロアリール基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ６－Ｃ３０）アリールで置換される。
【００２３】
一つの具体的な実施態様において、上記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ１－Ｃ１０）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基および（５員～３０員）ヘテロアリール基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基で置換される。
【００２４】
もう一つの具体的な実施態様において、上記（Ｃ６－Ｃ３０）アリール基は、（Ｃ１－Ｃ５）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基およびベンゾイミダゾリル基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記ベンゾイミダゾリル基は、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基で置換される。
【００２５】

もう一つの具体的な実施態様において、上記（５員～３０員）ヘテロアリール基は、（Ｃ１－Ｃ５）アルキル基、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基およびベンゾイミダゾリル基からなる群から選ばれる少なくとも一つの置換基で置換され、前記ベンゾイミダゾリル基は、（Ｃ６－Ｃ１０）アリール基で置換される。

【００２６】

本明細書において、「アリール基（またはアリーレン基）」は、アリール基またはアリーレン基を表す。アリール基とは、芳香族炭化水素から誘導された単環系環または縮合環であり、フェニル基、ビフェニリル基、テルフェニル基（ｔｅｒｐｈｅｎｙｌ）、ナフチル基、ビナフチリル基、フェニルナフチル基、ナフチルフェニル基、フルオレニル基（ｆｌｕｏｒｅｎｙｌ）、フェニルフルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、ジベンゾフルオレニル基、フェナントリル基、フェニルフェナントリル基、アントリル基、インデニル基、トリフェニレニル基（ｔｒｉｐｈｅｎｙｌｅｎｙｌ）、ピレニル基、ナフタセニル基、ペリレニル基、クリセニル基（ｃｈｒｙｓｅｎｙｌ）、ナフトナフチル基、フルオランテニル基（ｆｌｕｏｒａｎｔｈｅｎｙｌ）等を含む。

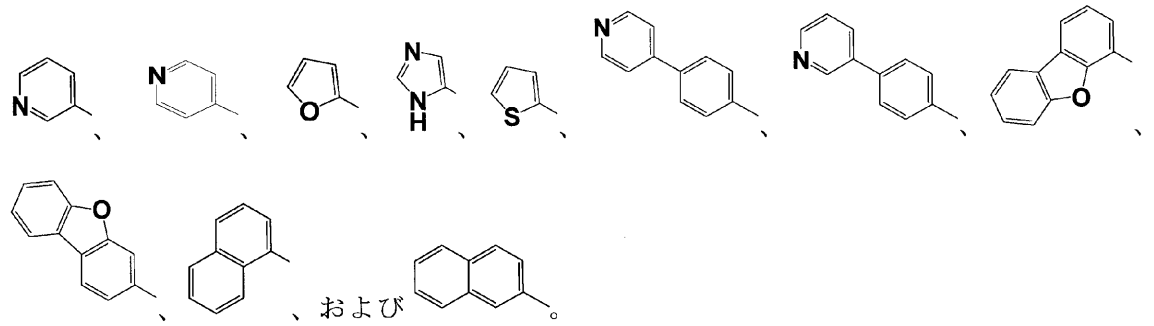
【００２７】

本明細書において、「ヘテロアリール基（またはヘテロアリーレン基）」は、ヘテロアリール基またはヘテロアリーレン基を表す。（５員～３０員）ヘテロアリール基とは、Ｂ、Ｎ、Ｏ、Ｓ、Ｐ（＝Ｏ）、Ｓｉ、およびＰからなる群から選ばれる少なくとも一つのヘテロ原子を含有する、３～３０個の環主鎖原子を有するアリール基であり、また、単環系環、または少なくとも一つのベンゼン環と縮合した縮合環であり、また、部分飽和であり、また、一個または複数個の単結合を介して少なくとも一つのヘテロアリール基またはアリール基をヘテロアリール基に結合させて形成したものであり、また、単環系環型のヘテロアリール基、例えば、フリル基、チエニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基、イソチアゾリル基、イソオキサゾリル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、トリアジニル基、テトラジニル基、トリアゾリル基、テトラゾリル基、フラザニル基（ｆｕｒａｚａｎｙｌ）、ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジル基、ピリダジニル基等、および縮合環型のヘテロアリール基、例えば、ベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、イソベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ジベンゾチエニル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾイソチアゾリル基、ベンゾイソオキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、イソインドリル基、インドリル基、インダゾリル基、ベンゾチアジアゾリル基、キノリル基、イソキノリル基、シンノリニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、カルバゾリル基、フェノキサジニル基、フェナントリジル基、ベンゾジオキソリル基（ｂｅｎｚｏｄｉｏｘｏｌｙｌ）、ジヒドロアクリジル基等を含む。

【００２８】

一つの具体的な実施態様において、X_1は、下記基からなる群から選ばれる一つの基である。

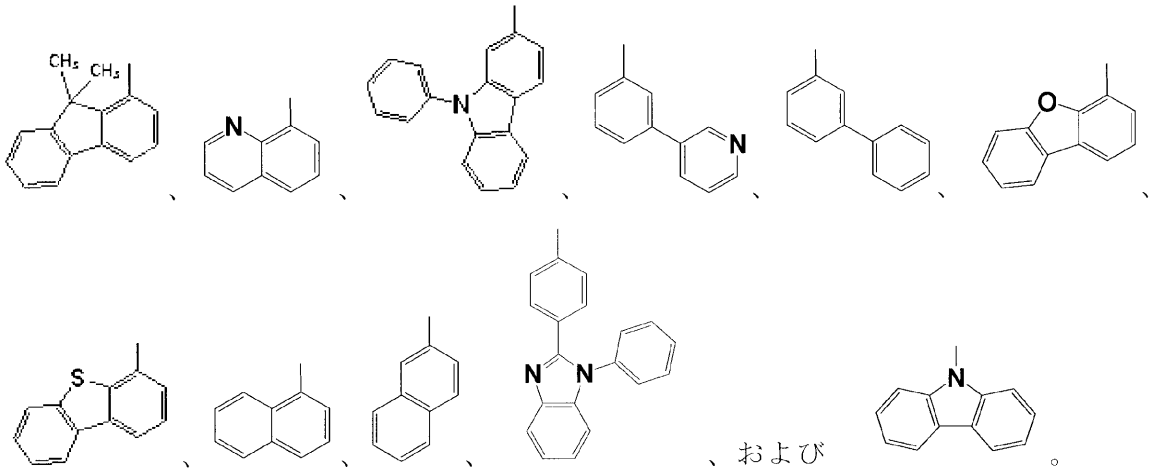
【化８】



【００２９】

一つの具体的な実施態様において、A_1は、下記基からなる群から選ばれる一つの基である。

【化９】



、および。

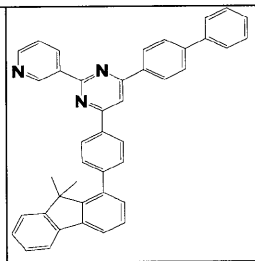
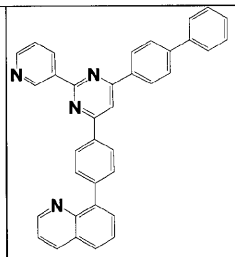
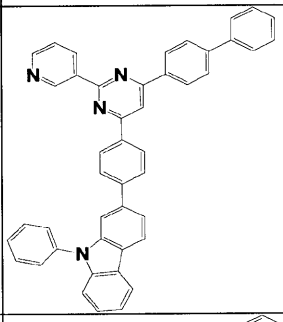
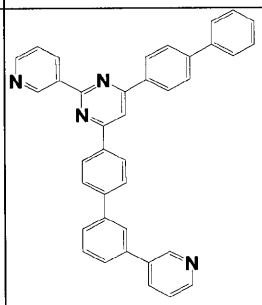
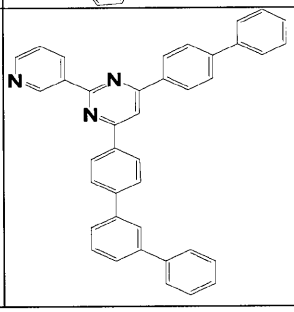
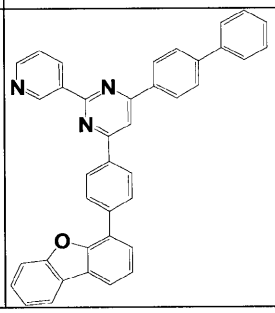
【００３０】

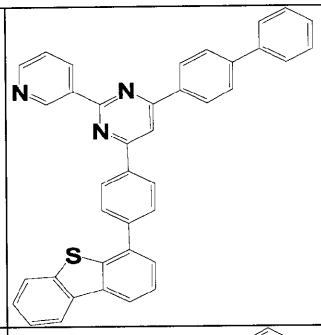
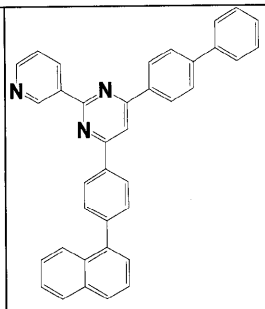
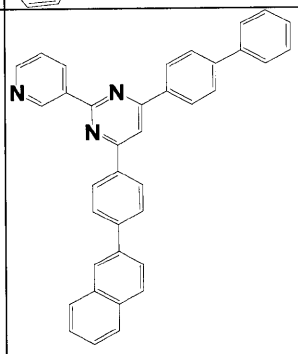
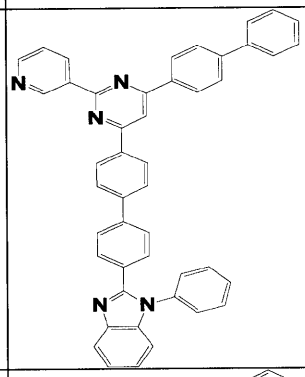
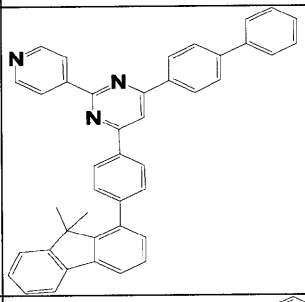
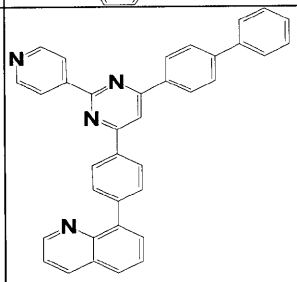
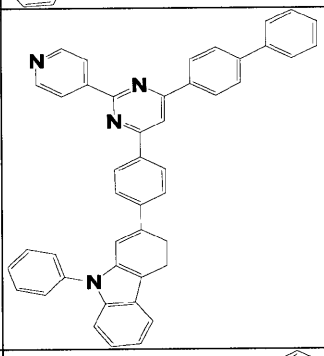
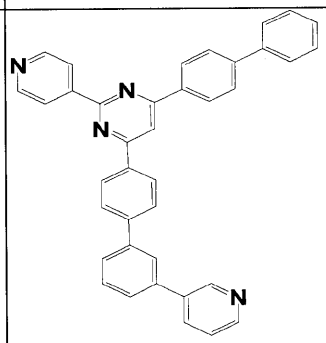
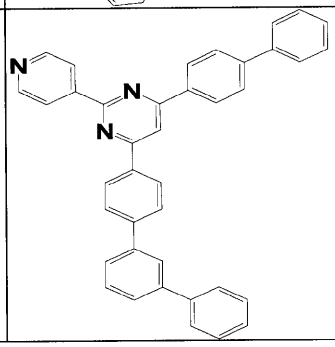
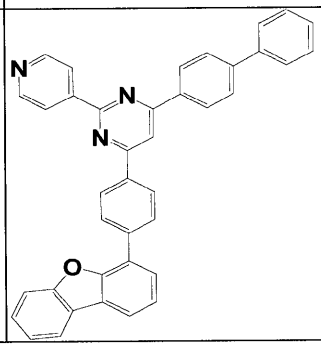
さらに、本発明は、陰極、陽極、および前記陰極と前記陽極との間に設けられ、上記式（Ｉ）化合物を含有する有機層を含む、有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。

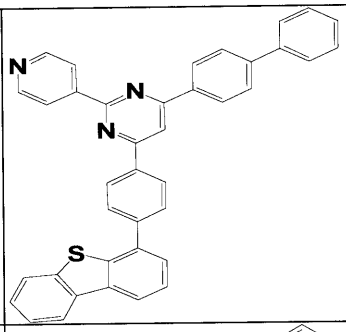
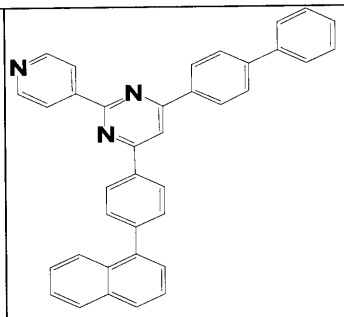
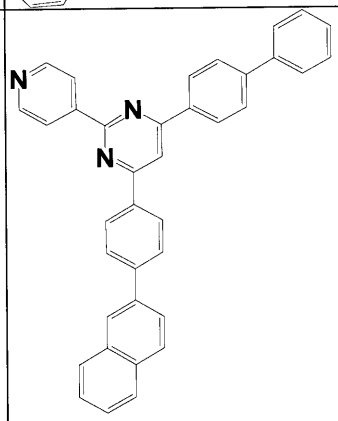
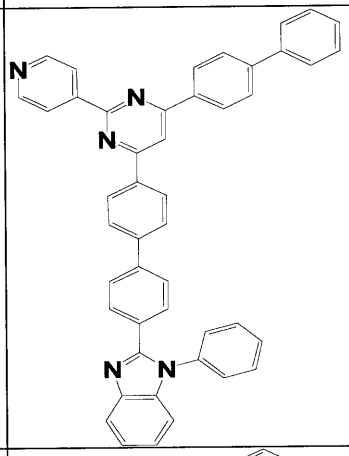
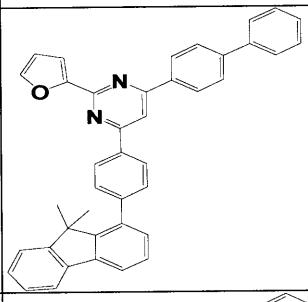
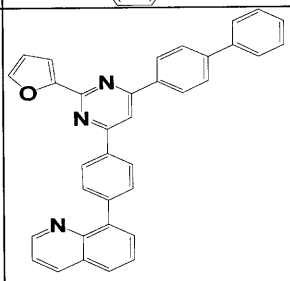
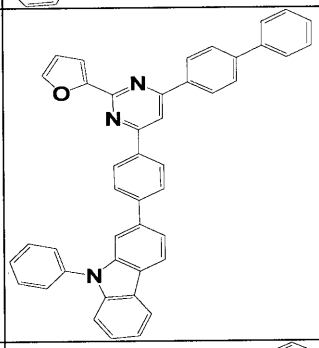
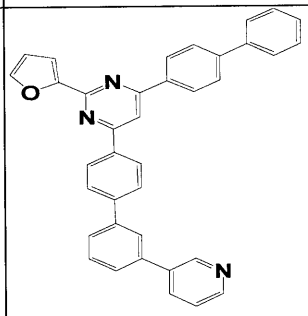
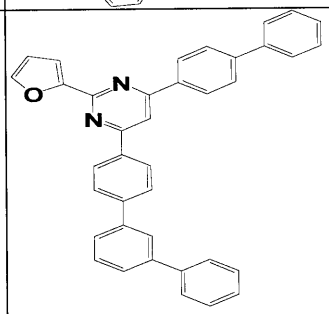
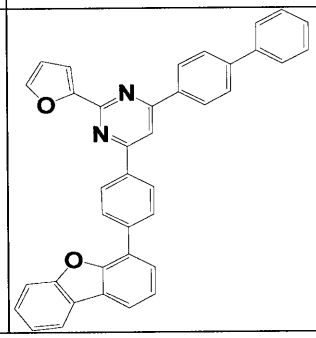
【００３１】

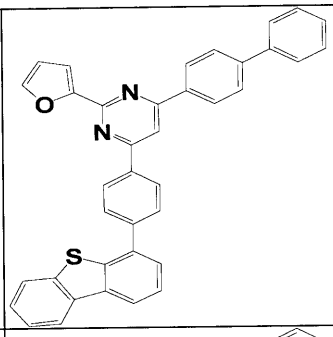
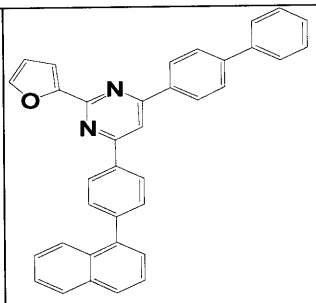
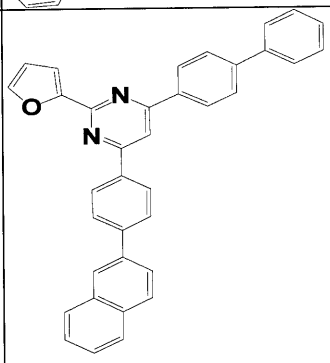
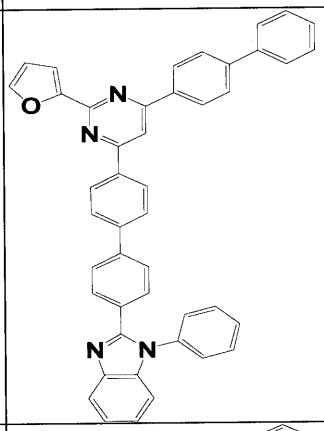
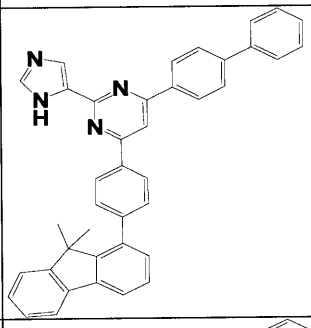
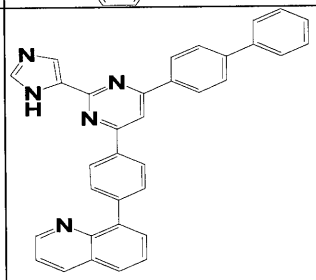
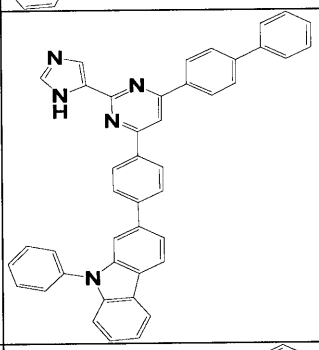
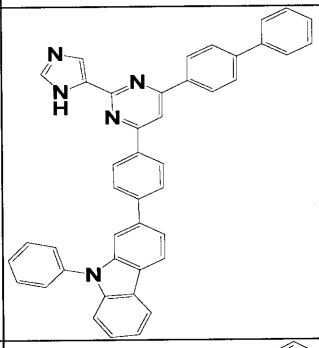
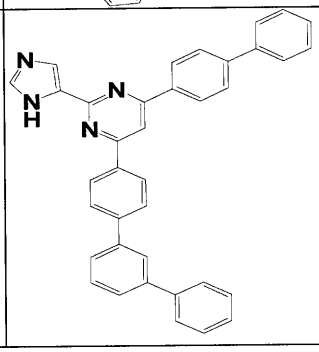
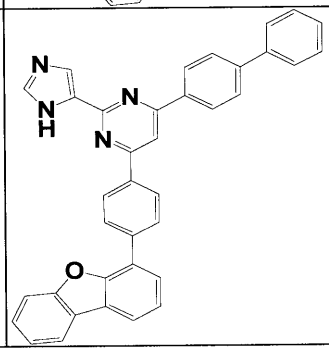
前記式（Ｉ）化合物の好ましい実例は、下記の化合物１－１～１－１０、２－１～２－１０、３－１～３－１０、４－１～４－１０、５－１～５－１０、６－１～６－１０、７－１～７－１０、８－１～８－１０、９－１～９－１０、１０－１～１０－１０、１１－１～１１－１０、１２－１～１２－１０、１３－１～１３－１０、１４－１～１４－１０、１５－１～１５－１０、１６－１～１６－１０、１７－１～１７－１０、１８－１～１８－１０、１９－１～１９－１０、２０－１～２０－１０、２１－１～２１－１０、２２－１～２２－１０、２３－１～２３－１０、２４－１～２４－１０、２５－１～２５－１０、２６－１～２６－１０、２７－１～２７－１０、２８－１～２８－１０、２９－１～２９－１０、３０－１～３０－１０、３１－１～３１－１０、３２－１～３２－１０、３３－１～３３－１０、３４－１～３４－１１、３５－１～３５－１１、３６－１～３６－１１から選ばれるが、これらに限定されない。

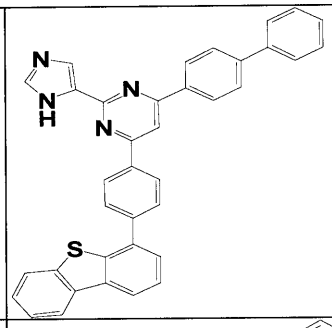
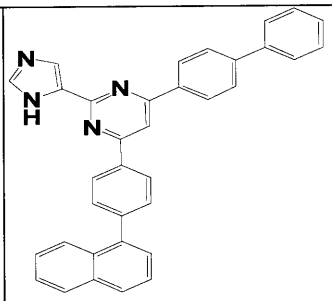
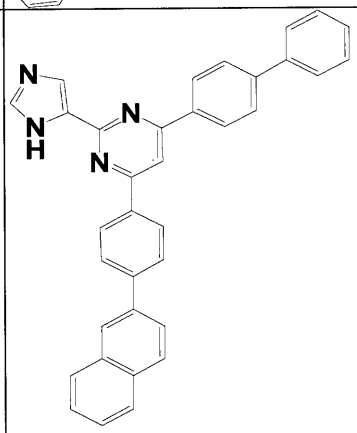
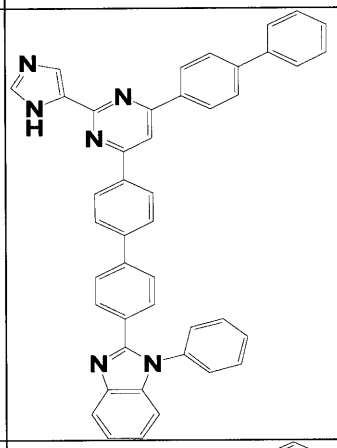
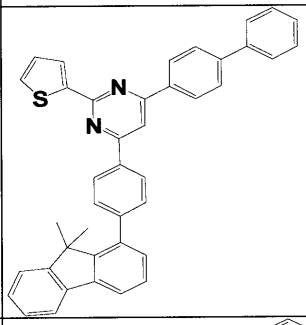
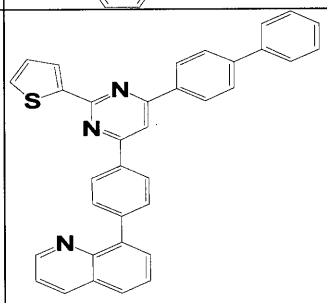
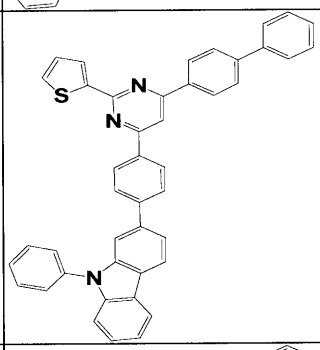
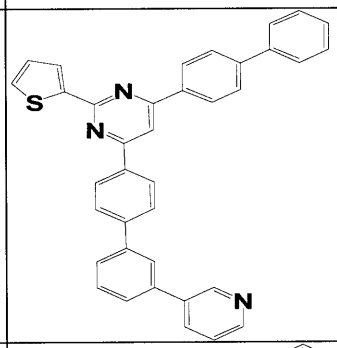
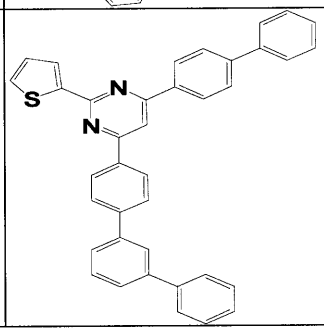
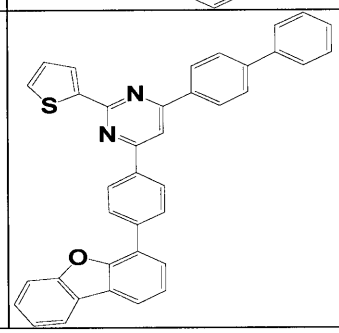
【表１】

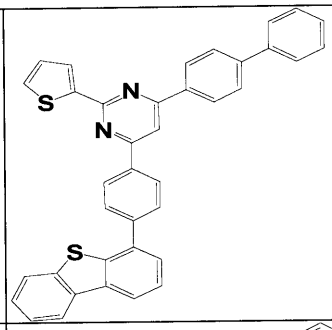
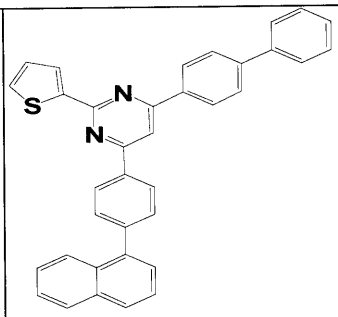
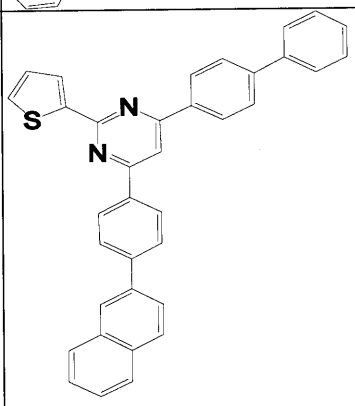
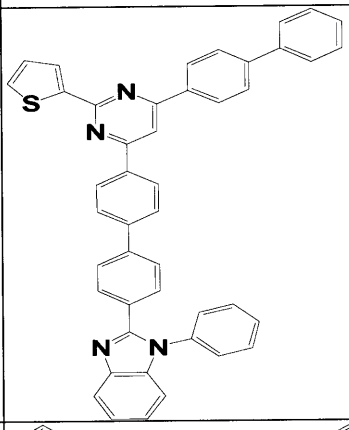
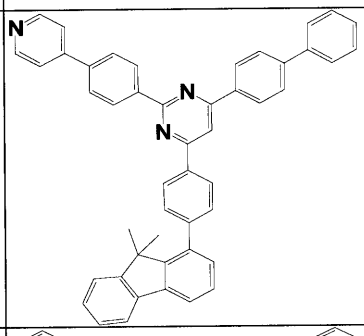
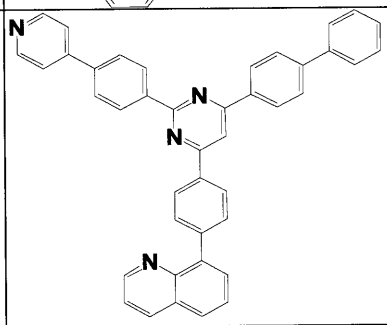
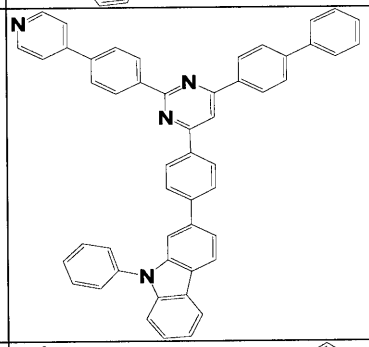
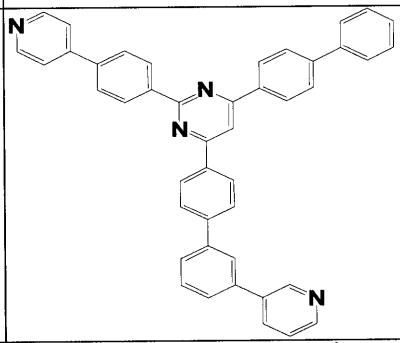
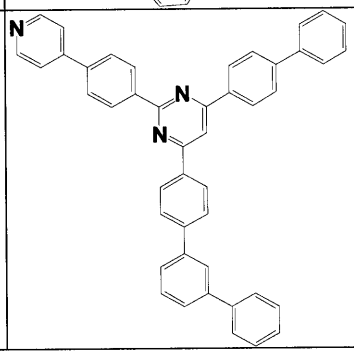
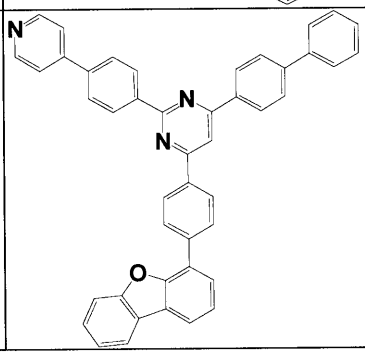
１－１		１－２	
１－３		１－４	
１－５		１－６	

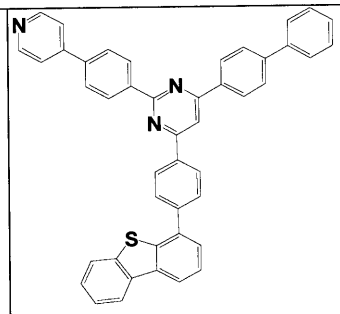
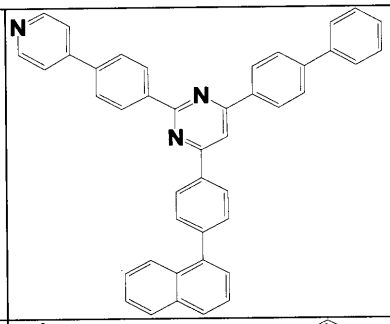
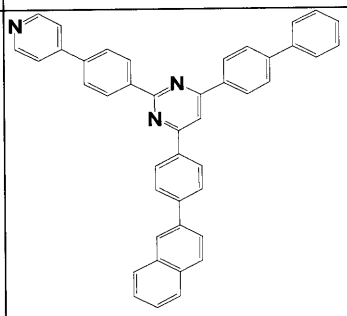
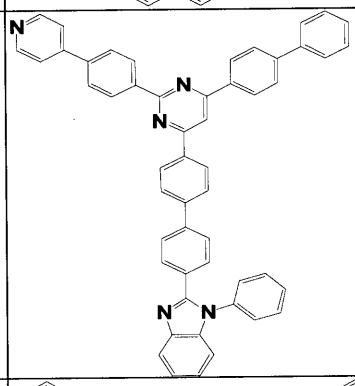
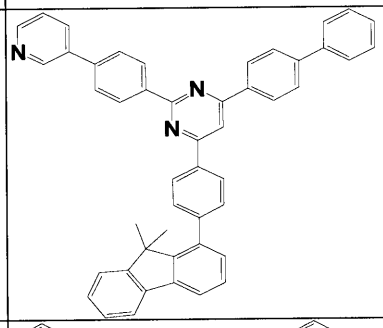
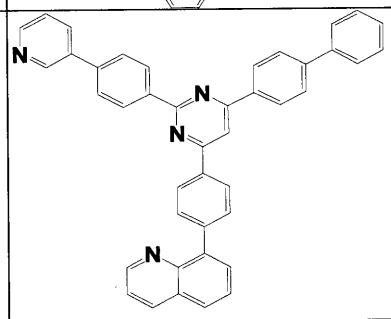
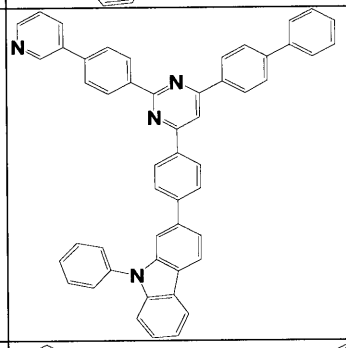
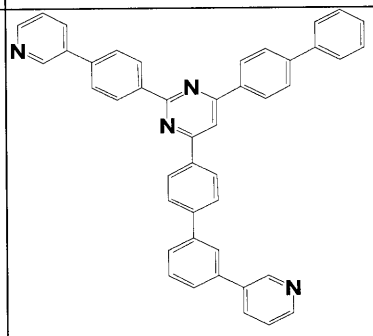
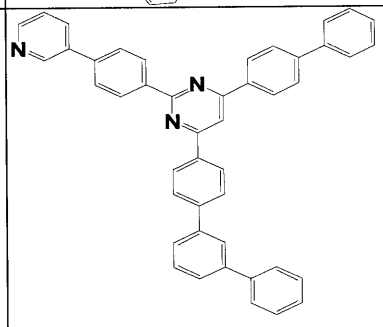
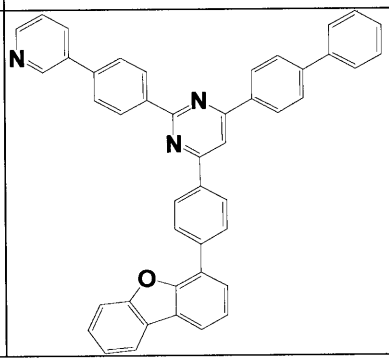
1－7		1－8	
1－9		1－10	
2－1		2－2	
2－3		2－4	
2－5		2－6	

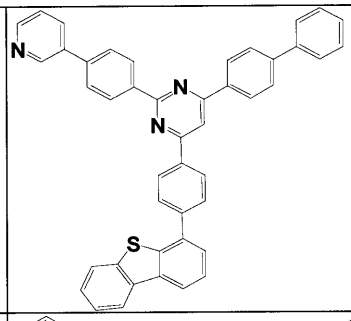
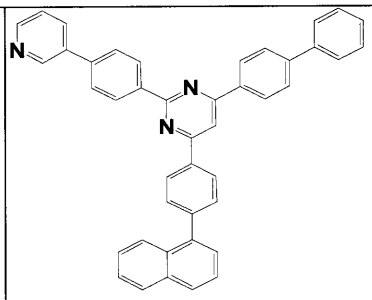
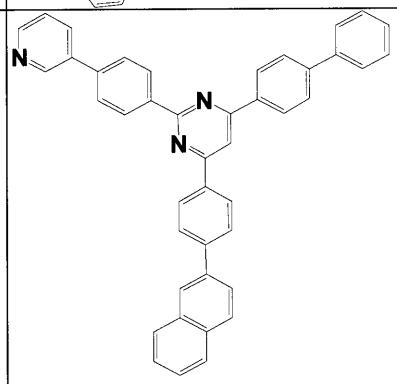
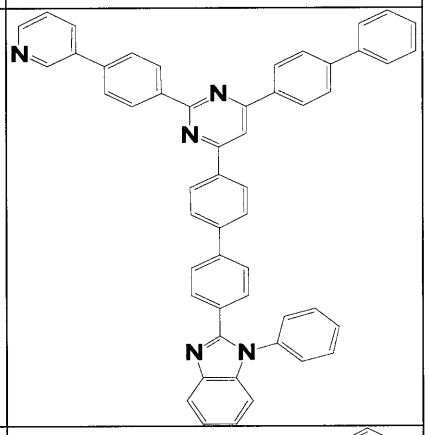
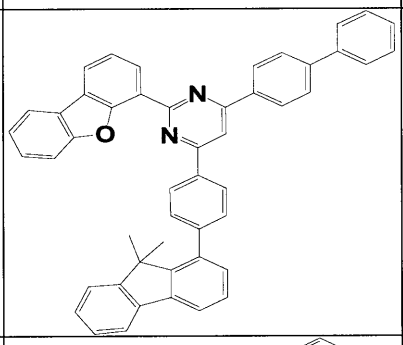
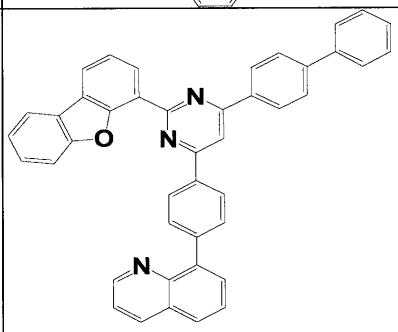
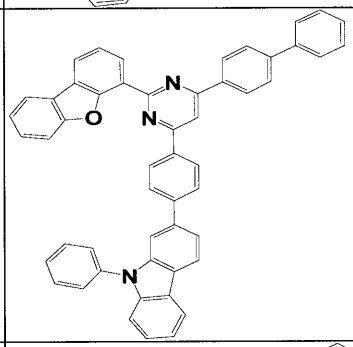
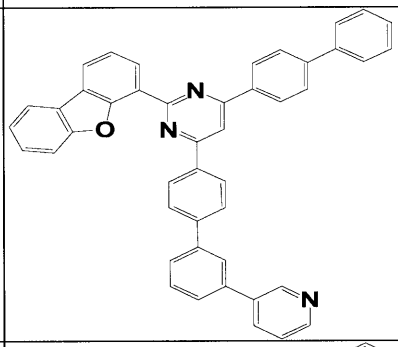
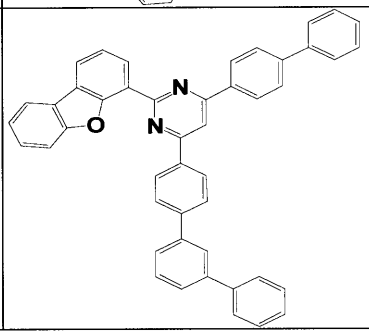
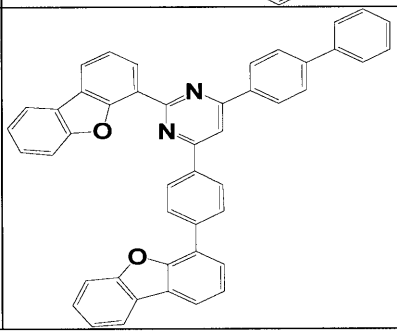
2－7		2－8	
2－9		2－10	
3－1		3－2	
3－3		3－4	
3－5		3－6	

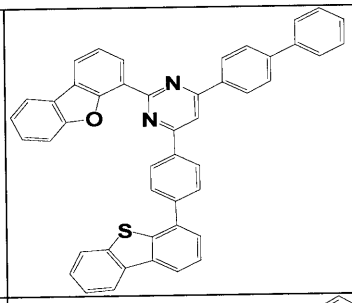
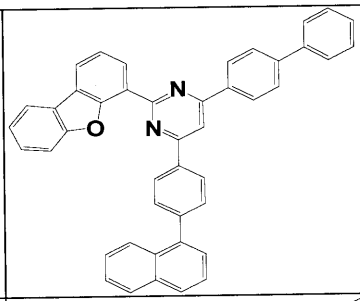
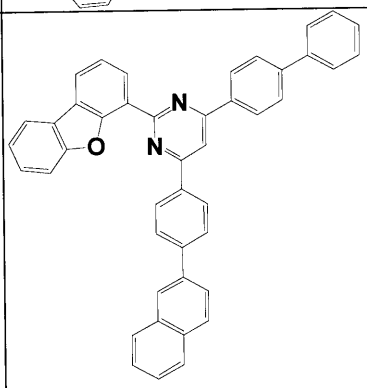
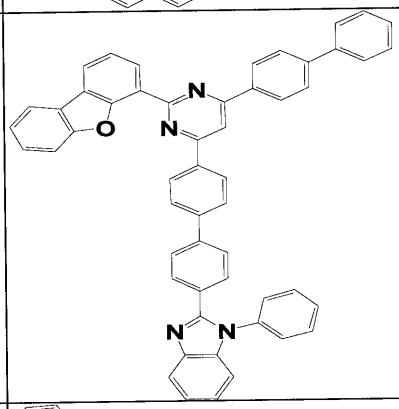
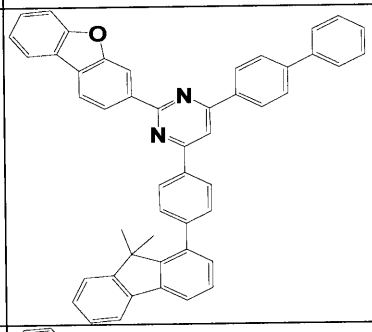
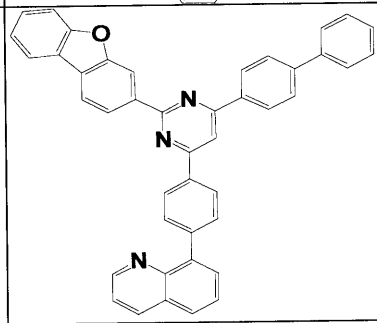
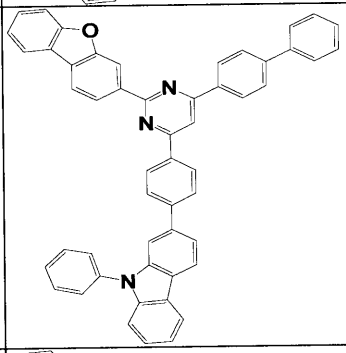
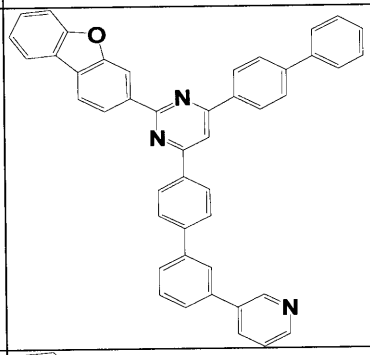
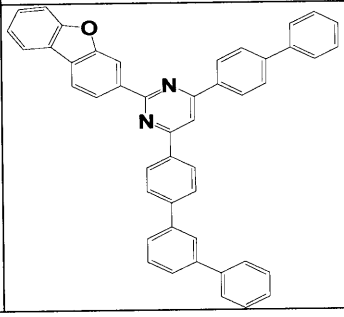
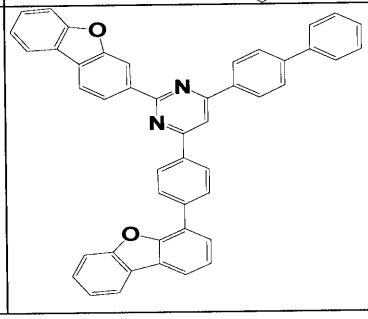
3 − 7		3 − 8	
3 − 9		3 − 1 0	
4 − 1		4 − 2	
4 − 3		4 − 4	
4 − 5		4 − 6	

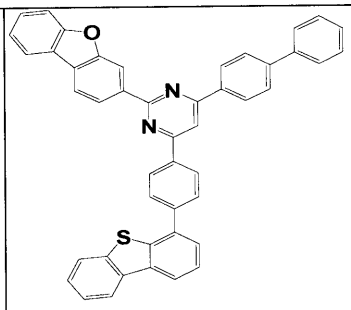
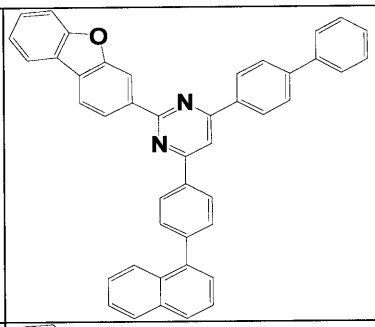
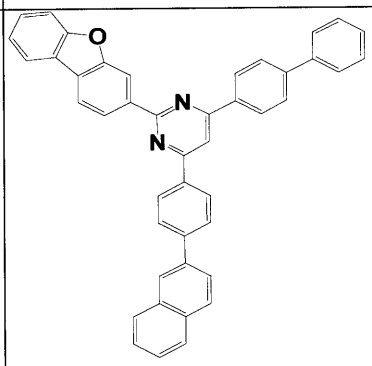
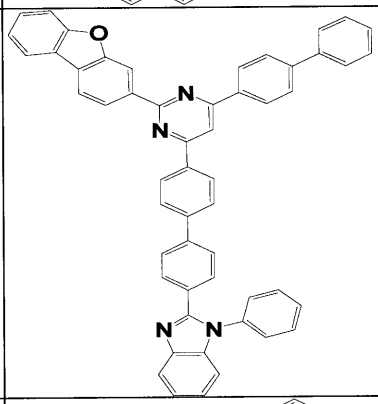
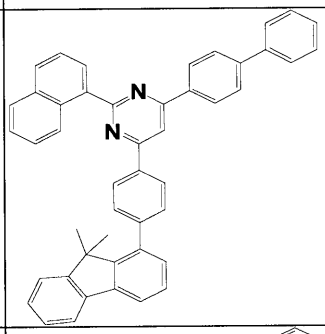
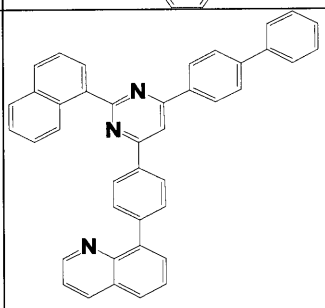
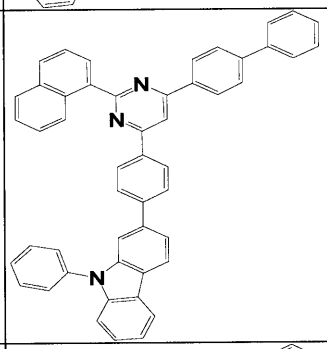
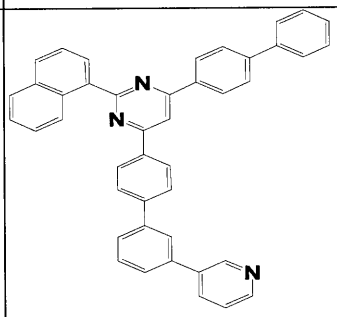
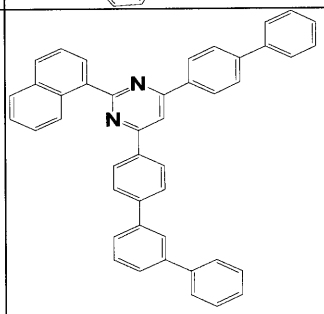
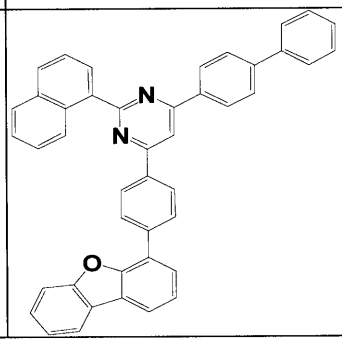
4 − 7		4 − 8	
4 − 9		4 − 1 0	
5 − 1		5 − 2	
5 − 3		5 − 4	
5 − 5		5 − 6	

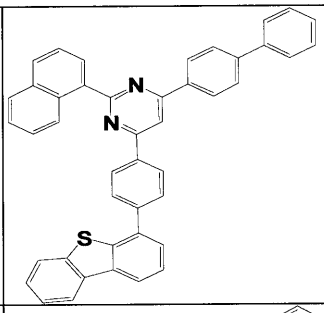
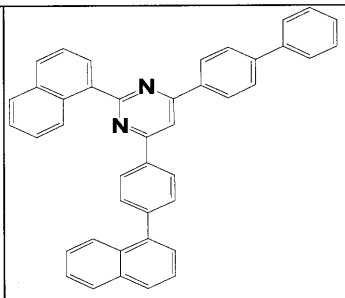
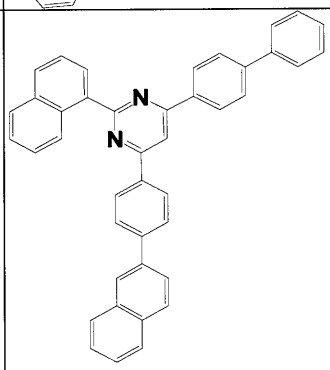
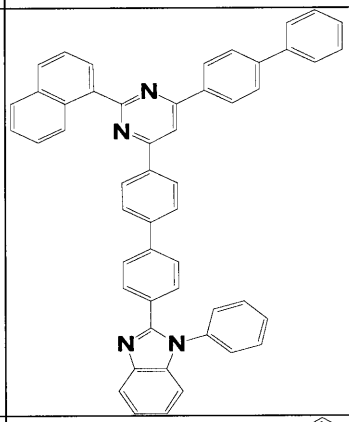
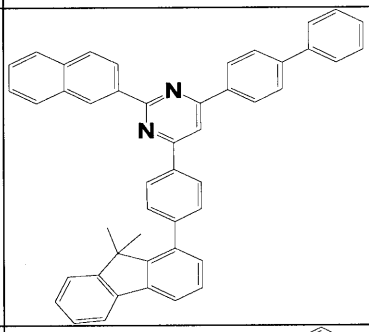
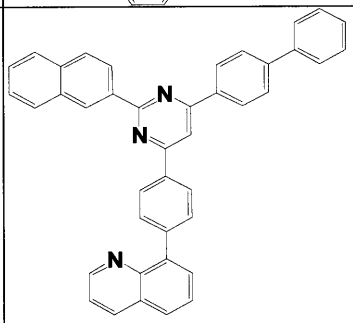
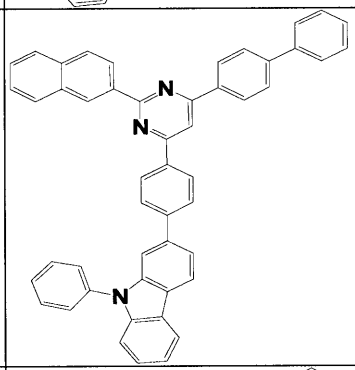
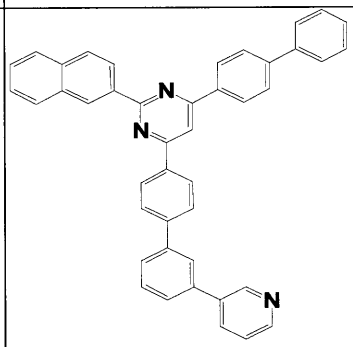
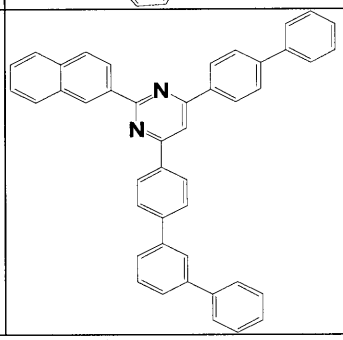
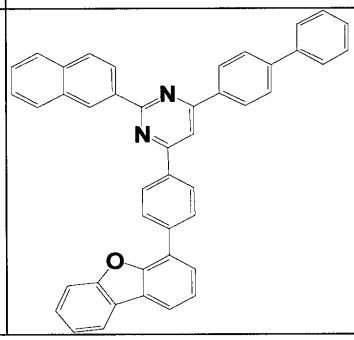
5 − 7		5 − 8	
5 − 9		5 − 1 0	
6 − 1		6 − 2	
6 − 3		6 − 4	
6 − 5		6 − 6	

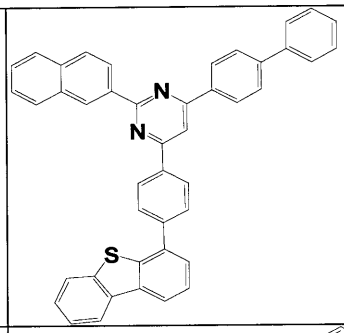
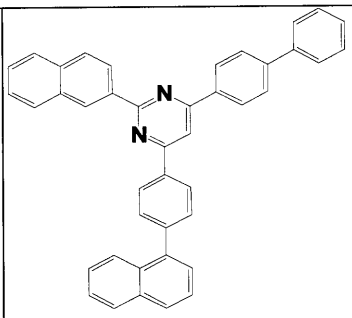
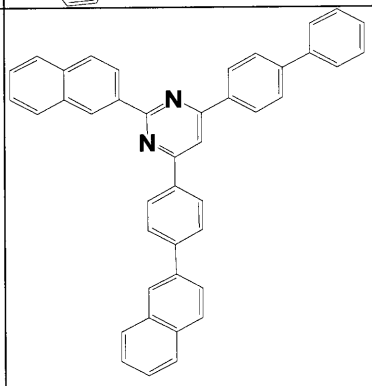
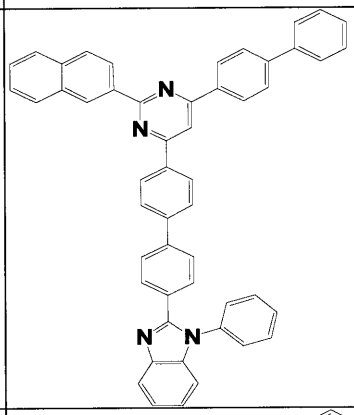
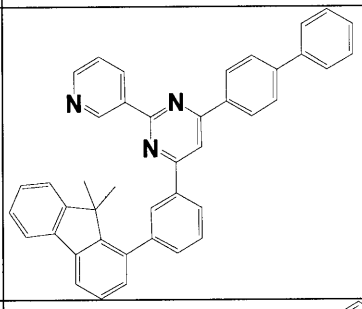
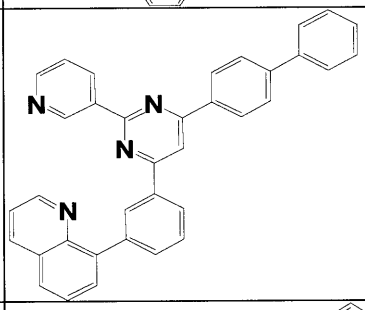
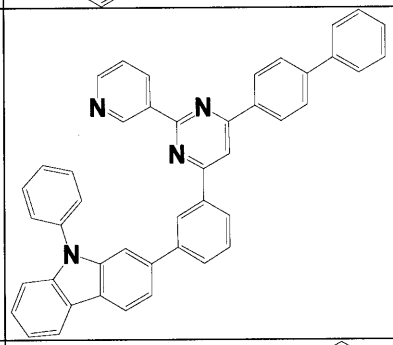
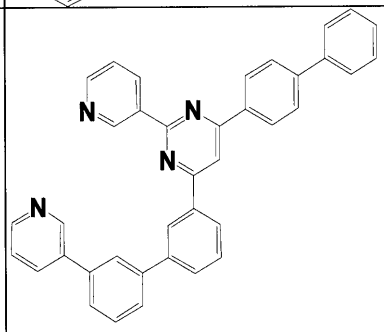
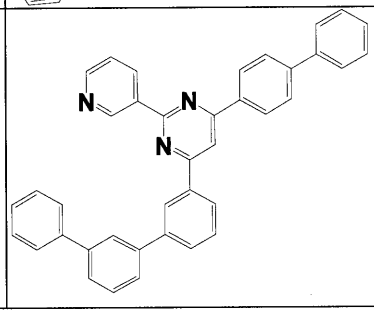
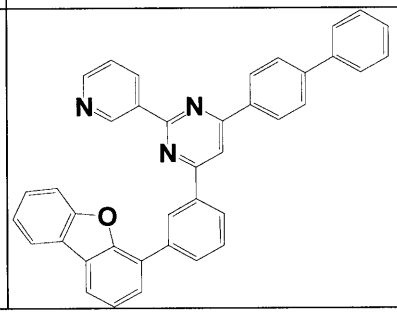
6 − 7		6 − 8	
6 − 9		6 − 1 0	
7 − 1		7 − 2	
7 − 3		7 − 4	
7 − 5		7 − 6	

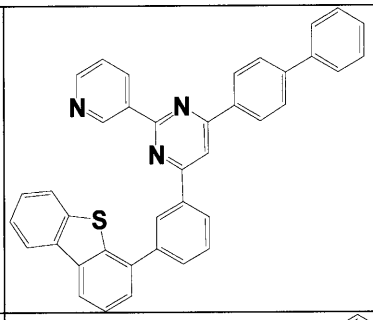
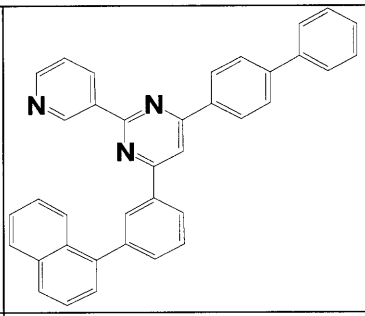
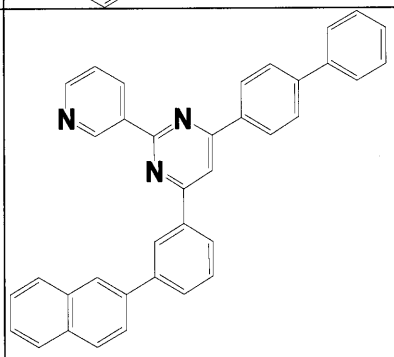
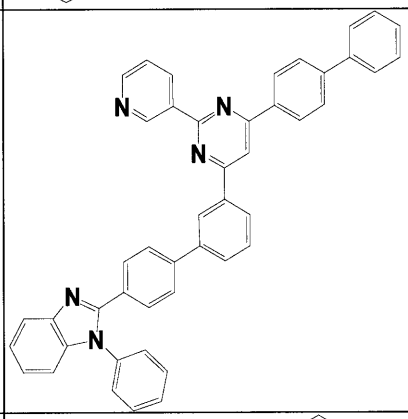
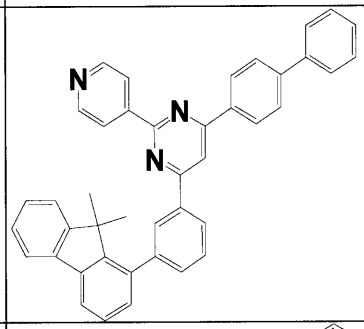
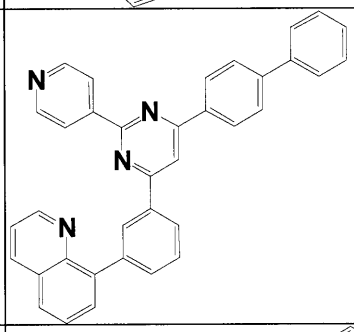
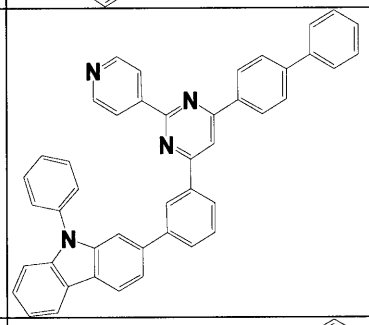
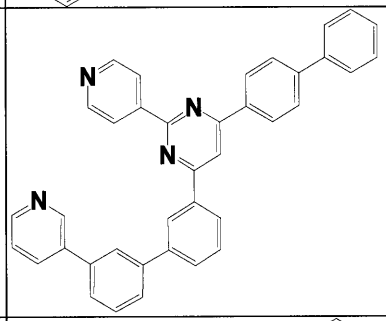
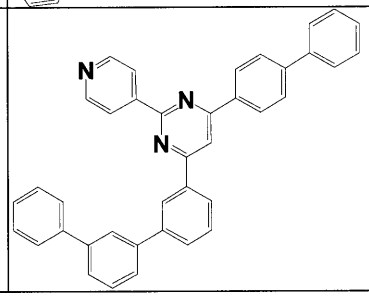
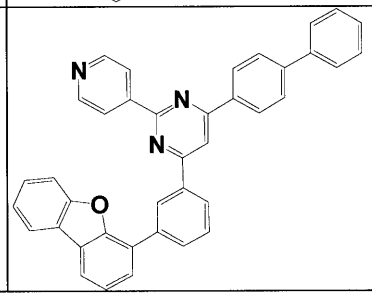
7－7		7－8	
7－9		7－10	
8－1		8－2	
8－3		8－4	
8－5		8－6	

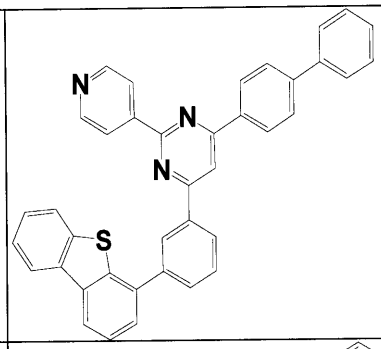
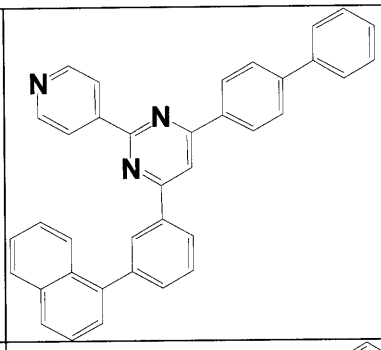
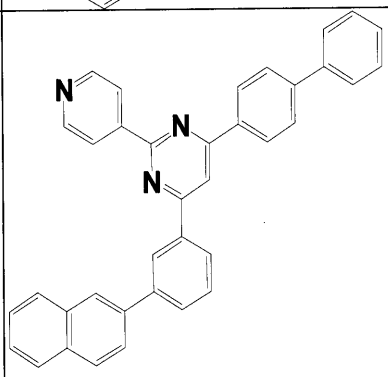
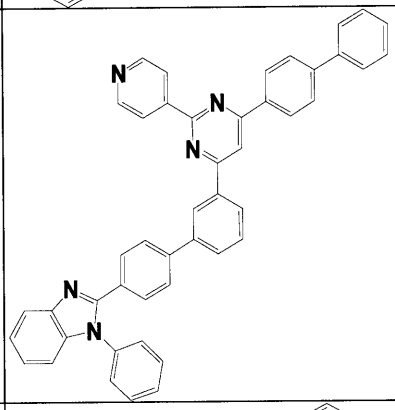
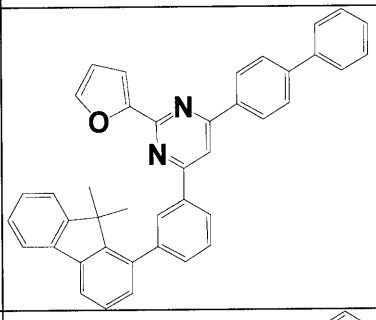
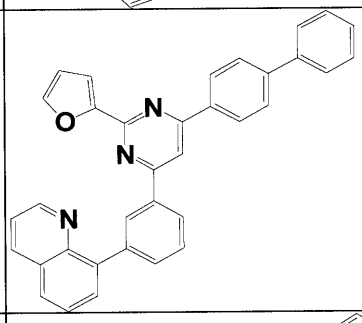
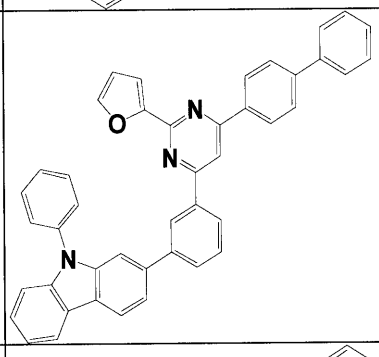
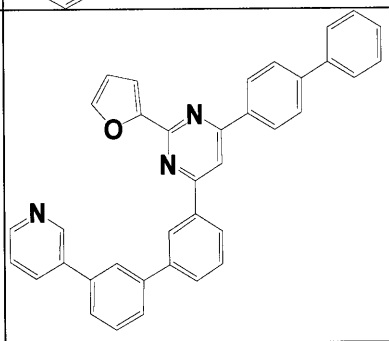
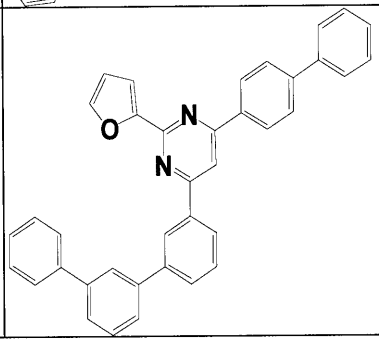
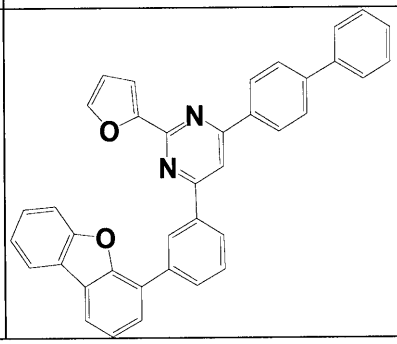
8－7		8－8	
8－9		8－10	
9－1		9－2	
9－3		9－4	
9－5		9－6	

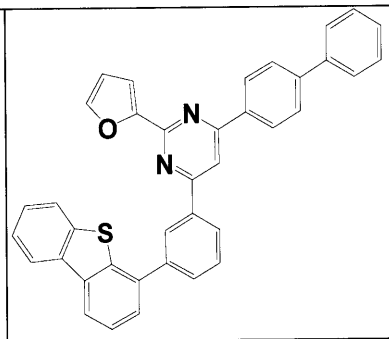
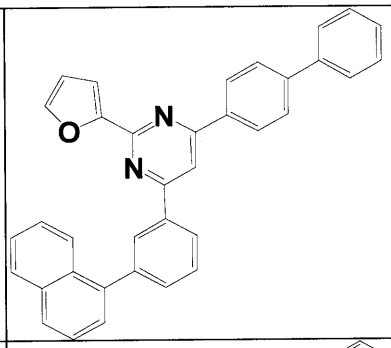
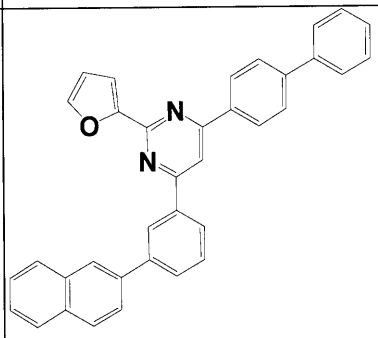
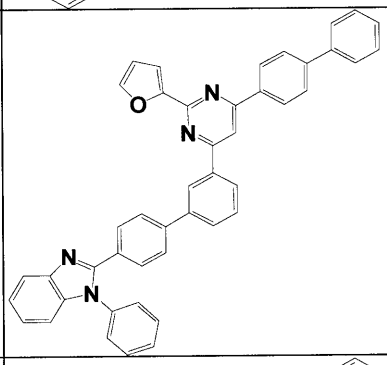
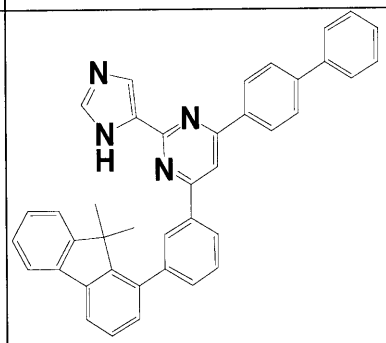
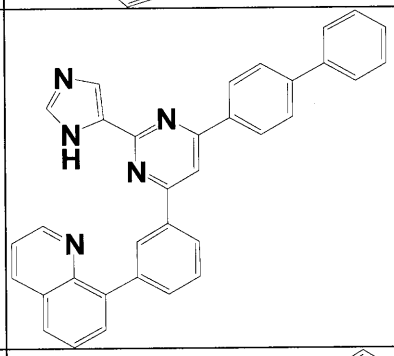
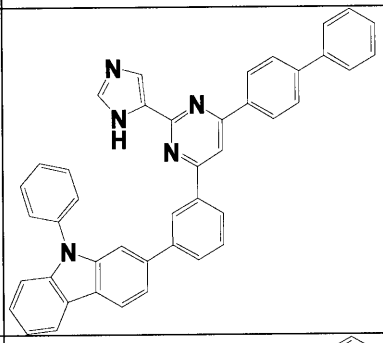
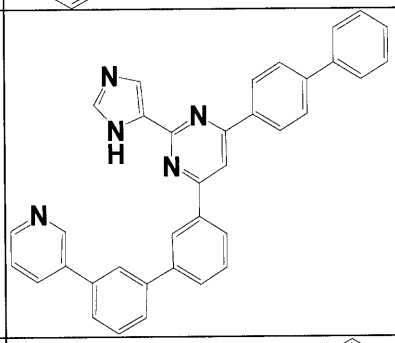
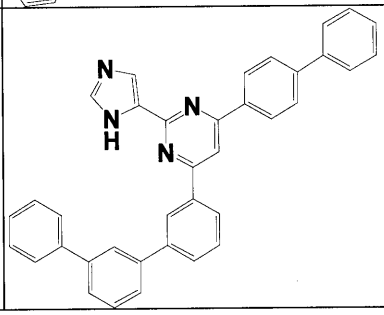
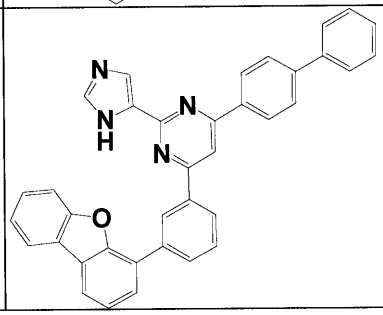
9－7		9－8	
9－9		9－10	
10－1		10－2	
10－3		10－4	
10－5		10－6	

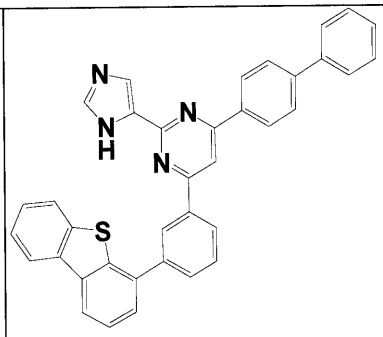
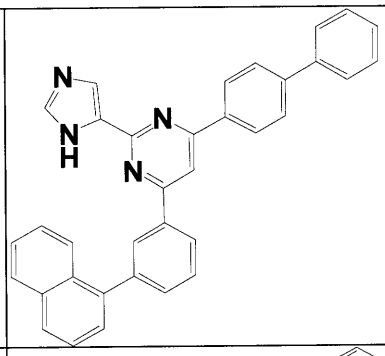
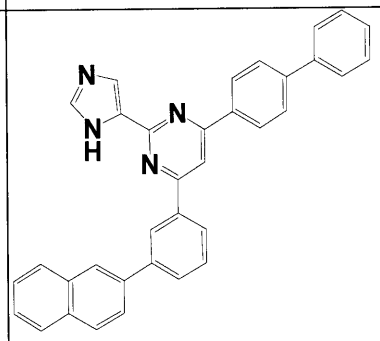
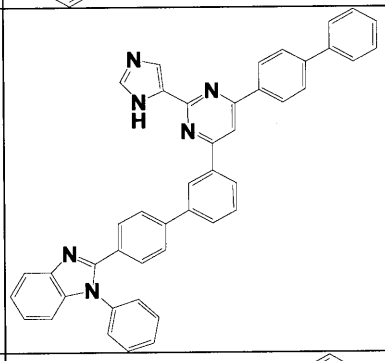
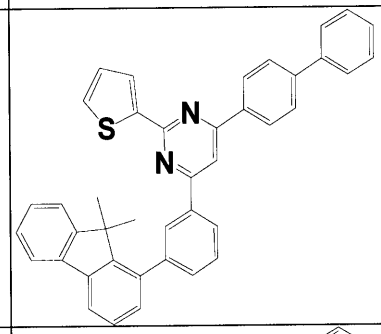
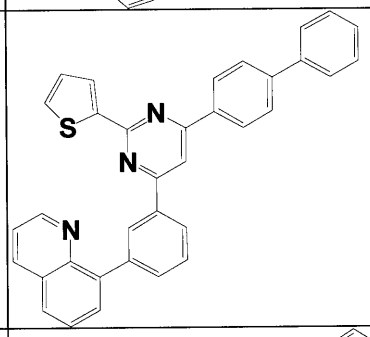
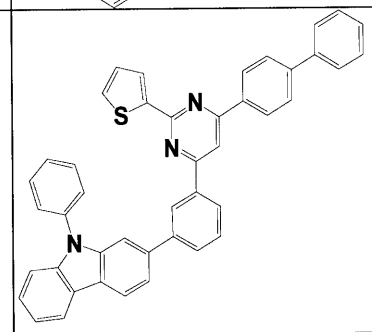
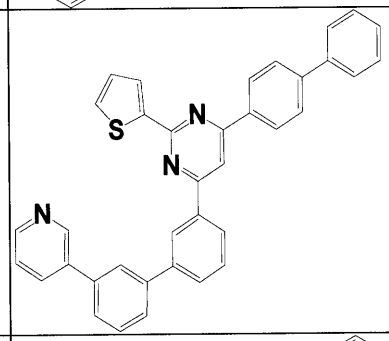
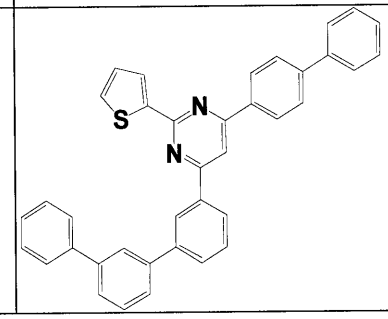
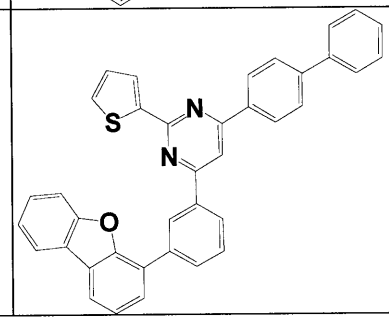
10－7		10－8	
10－9		10－10	
11－1		11－2	
11－3		11－4	
11－5		11－6	

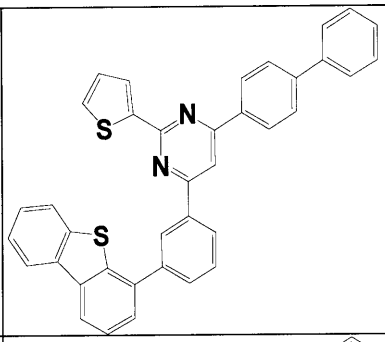
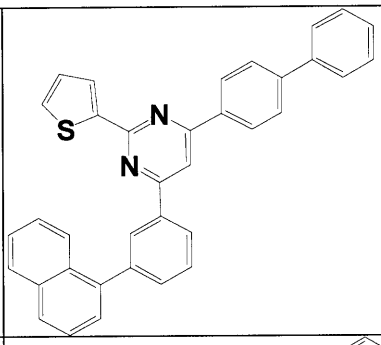
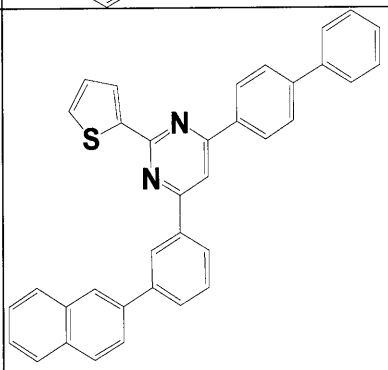
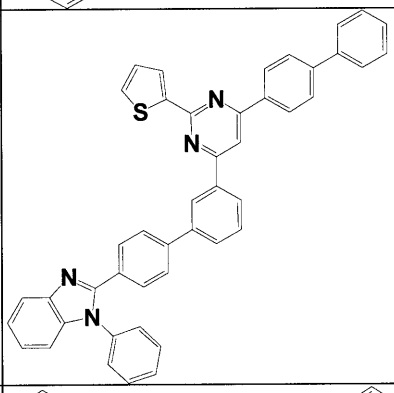
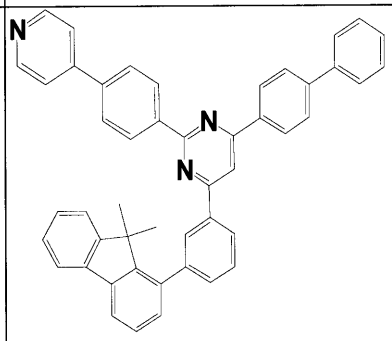
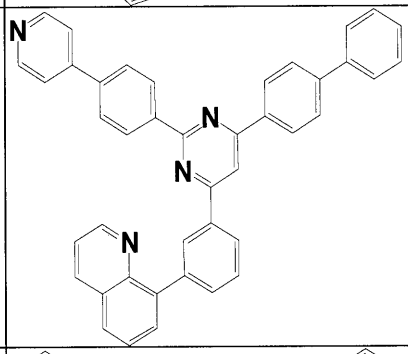
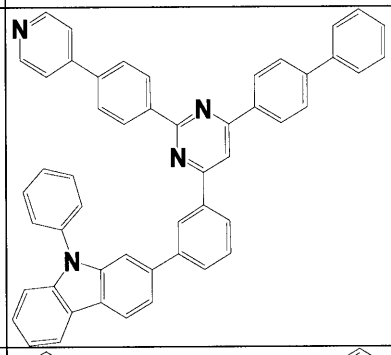
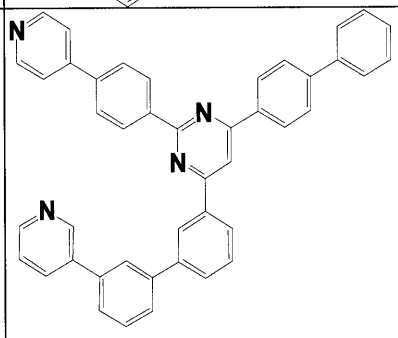
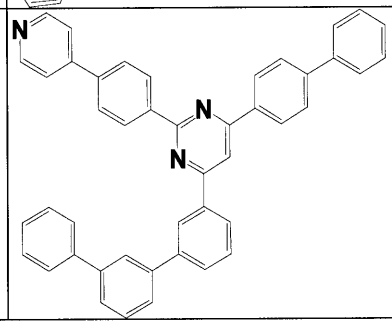
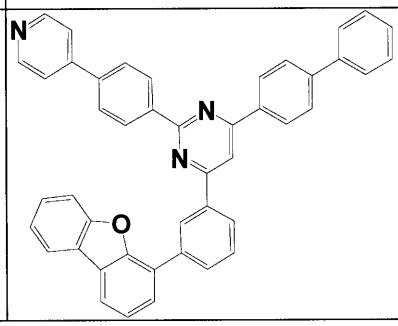
1 1 − 7		1 1 − 8	
1 1 − 9		1 1 − 1 0	
1 2 − 1		1 2 − 2	
1 2 − 3		1 2 − 4	
1 2 − 5		1 2 − 6	

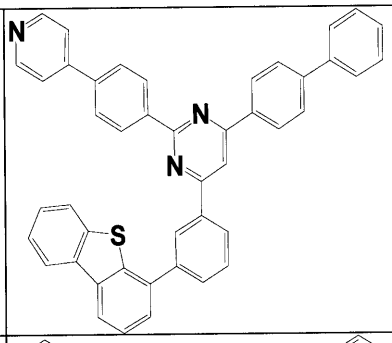
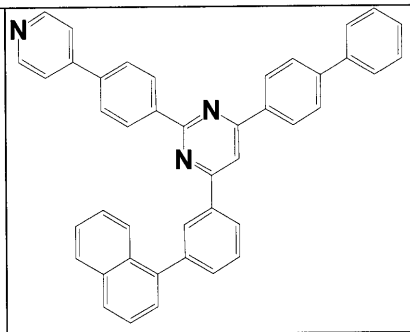
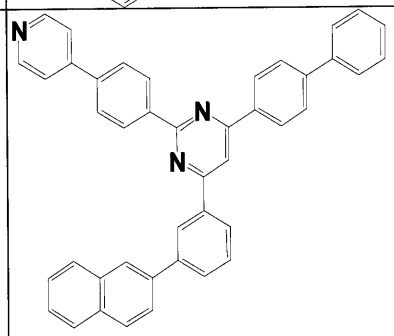
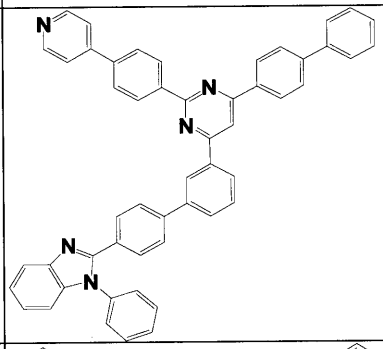
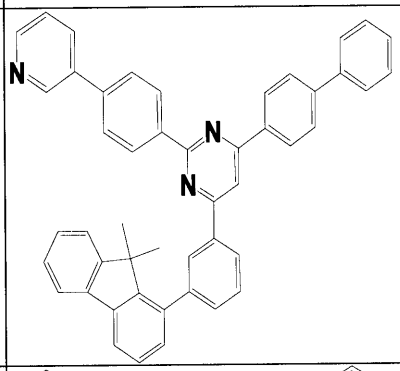
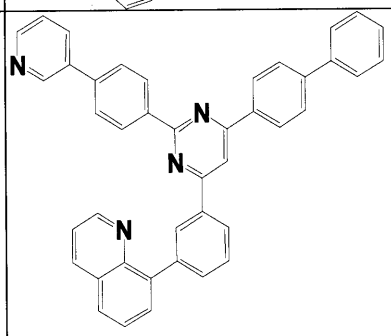
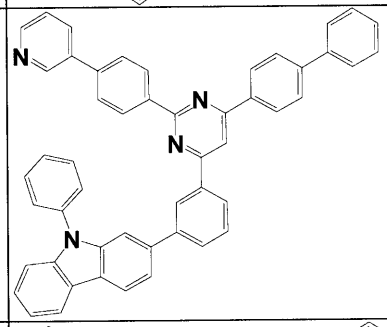
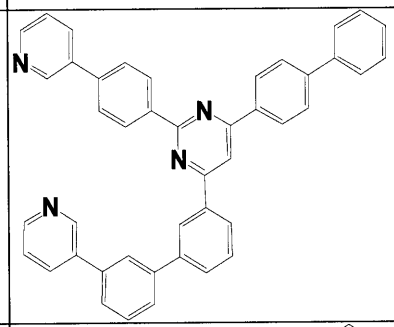
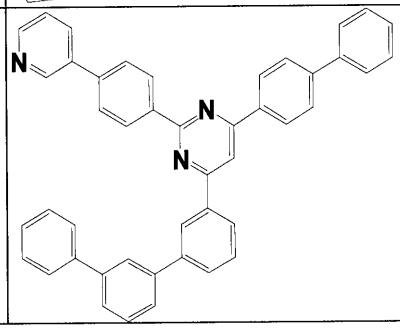
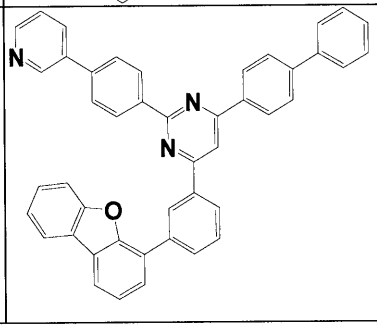
1 2 － 7		1 2 － 8	
1 2 － 9		1 2 － 1 0	
1 3 － 1		1 3 － 2	
1 3 － 3		1 3 － 4	
1 3 － 5		1 3 － 6	

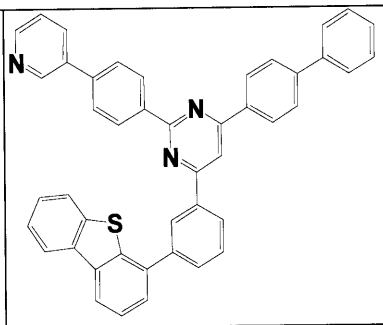
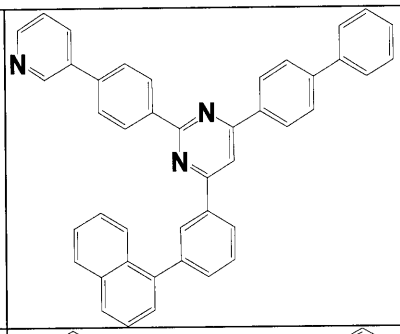
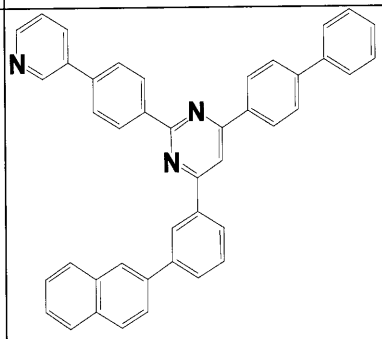
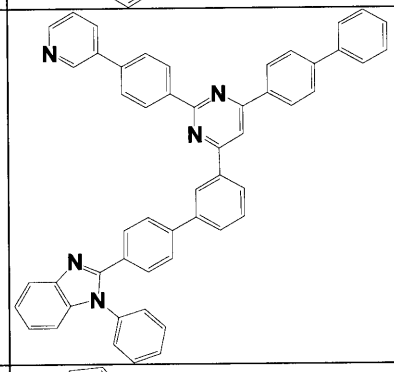
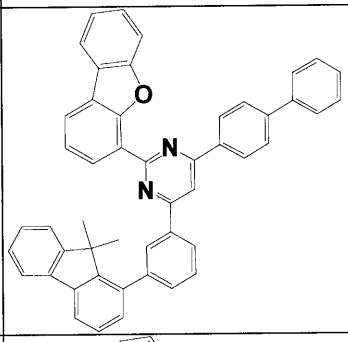
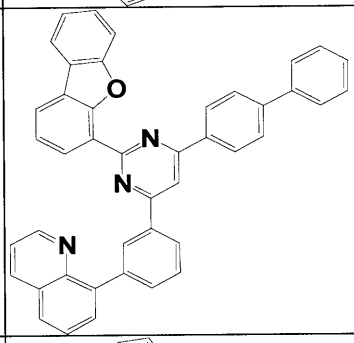
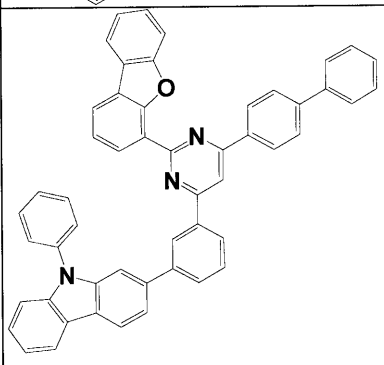
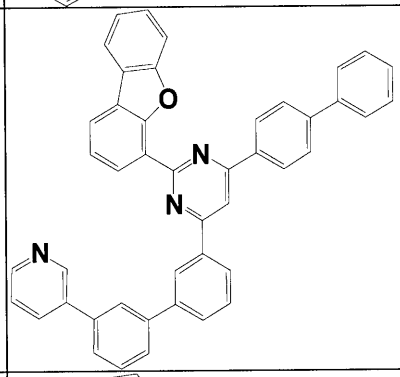
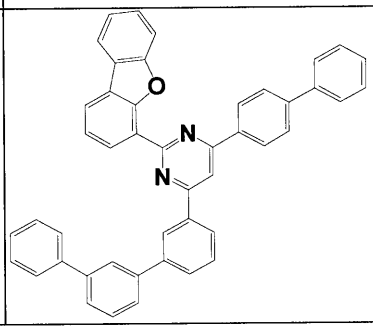
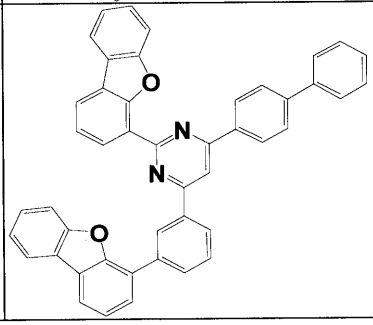
1 3 − 7		1 3 − 8	
1 3 − 9		1 3 − 1 0	
1 4 − 1		1 4 − 2	
1 4 − 3		1 4 − 4	
1 4 − 5		1 4 − 6	

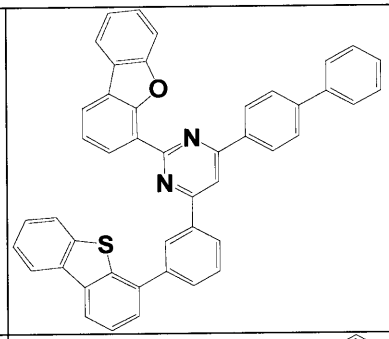
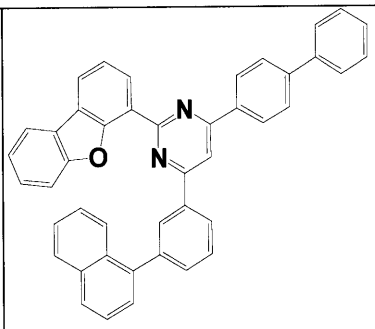
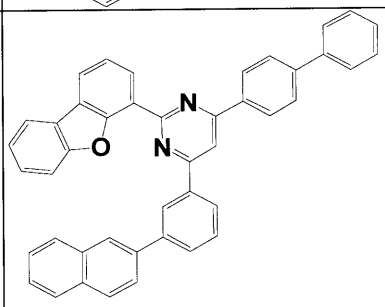
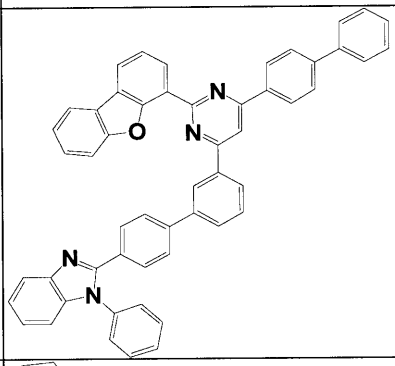
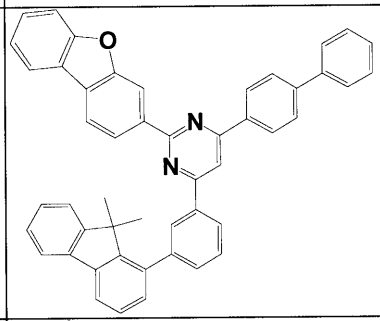
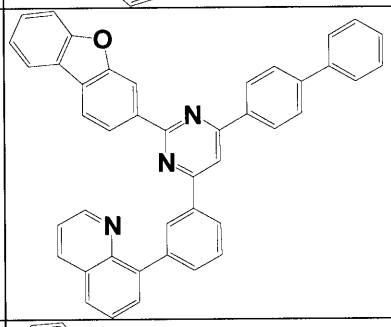
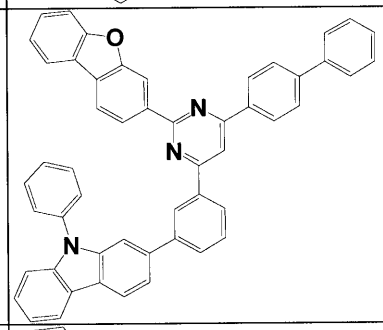
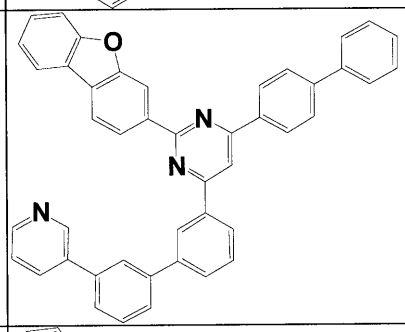
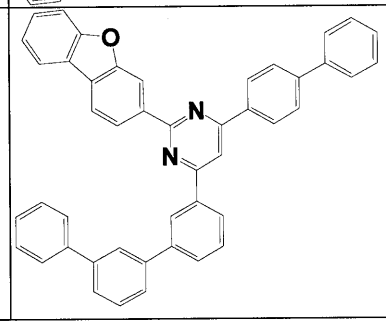
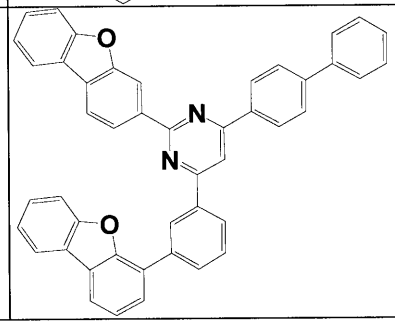
14－7		14－8	
14－9		14－10	
15－1		15－2	
15－3		15－4	
15－5		15－6	

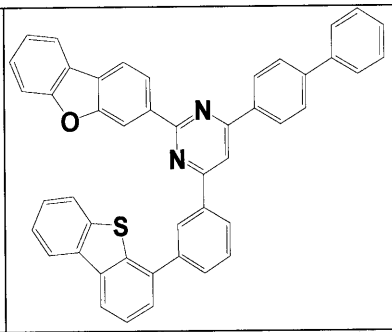
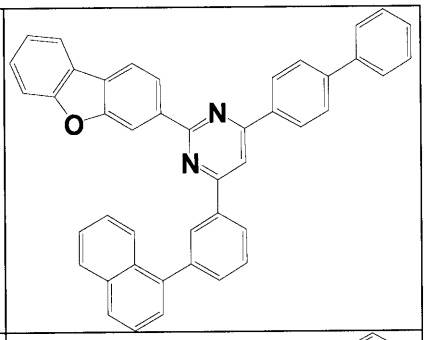
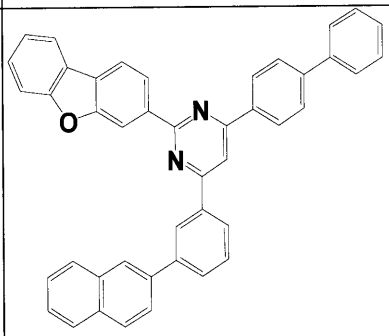
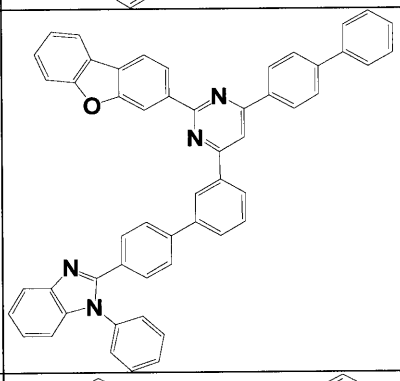
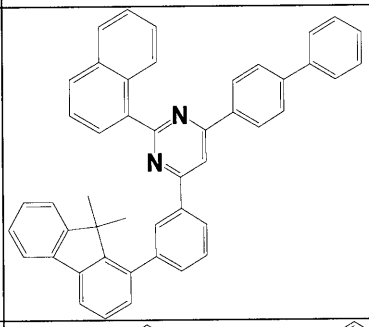
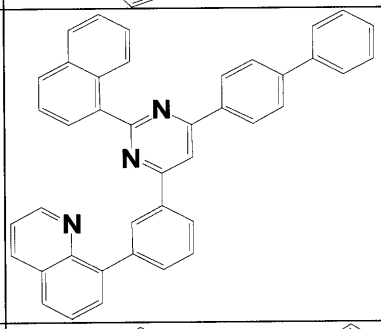
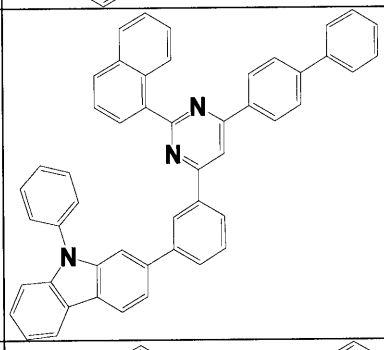
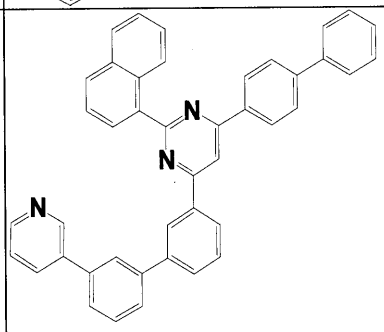
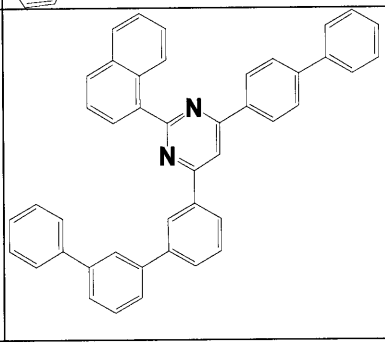
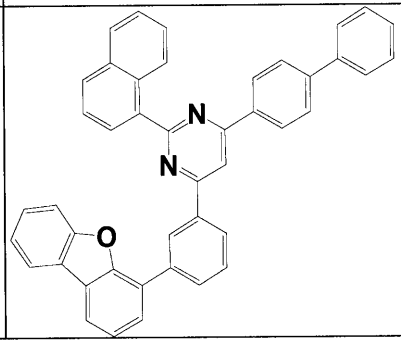
15－7		15－8	
15－9		15－10	
16－1		16－2	
16－3		16－4	
16－5		16－6	

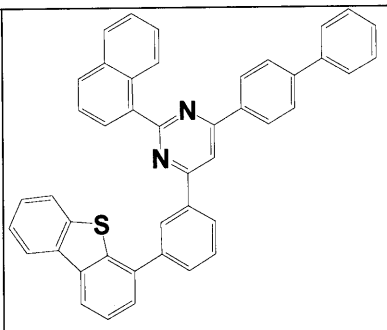
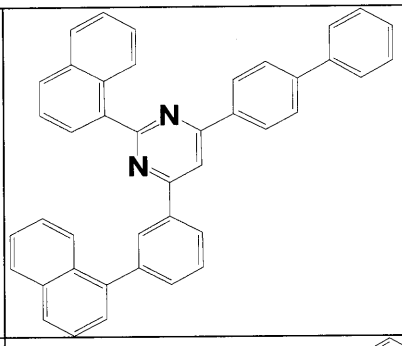
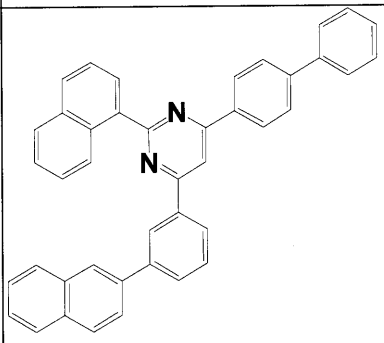
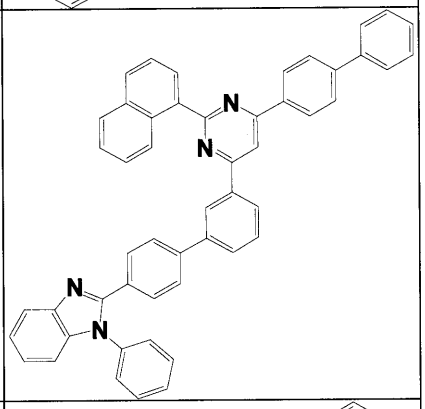
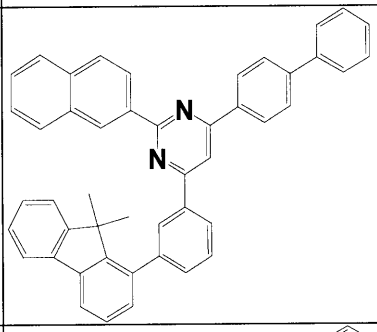
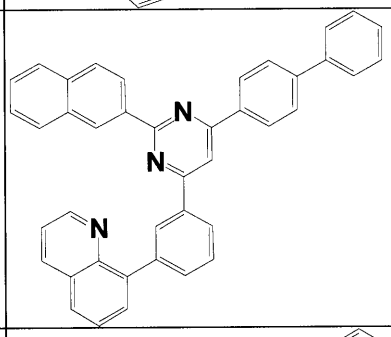
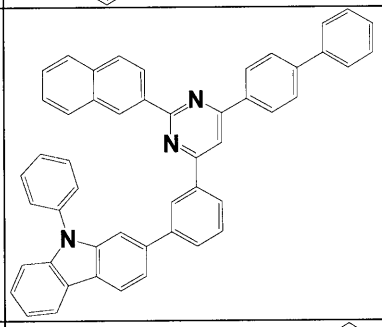
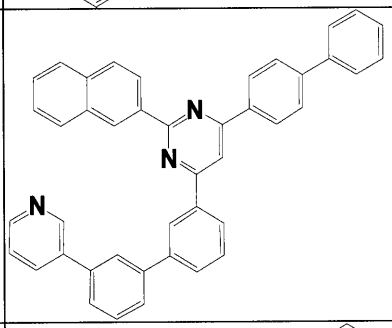
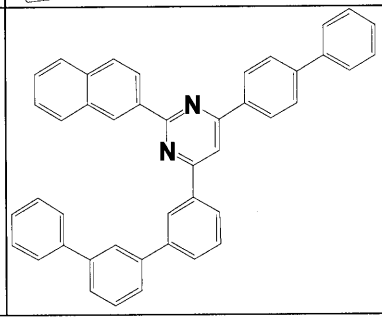
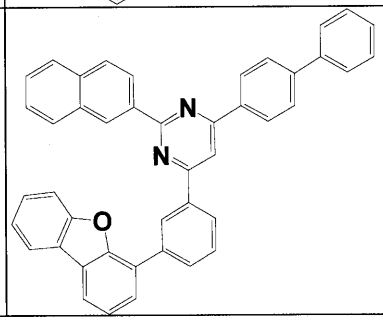
16－7		16－8	
16－9		16－10	
17－1		17－2	
17－3		17－4	
17－5		17－6	

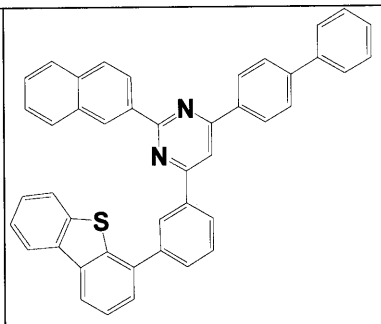
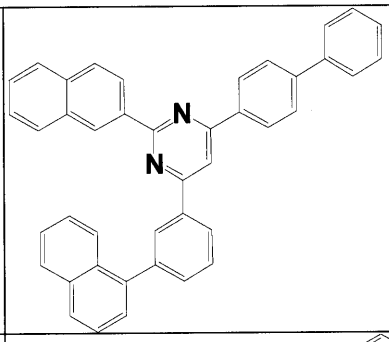
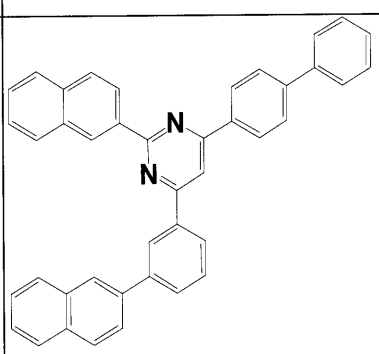
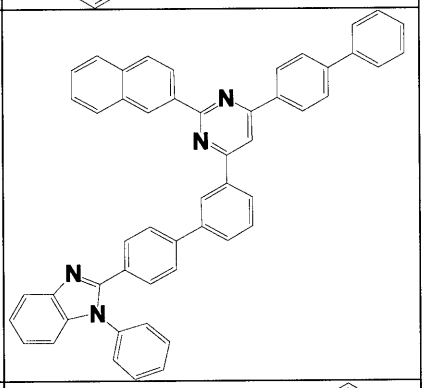
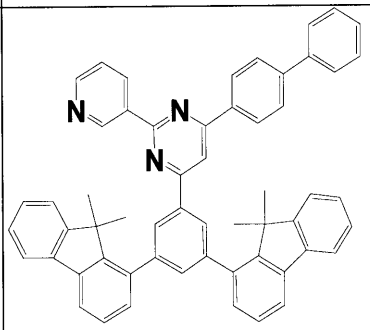
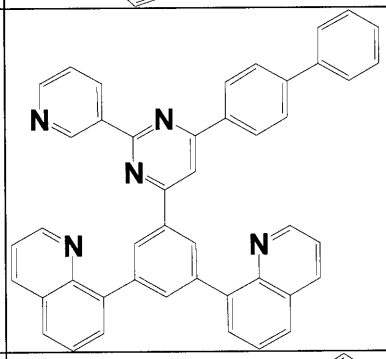
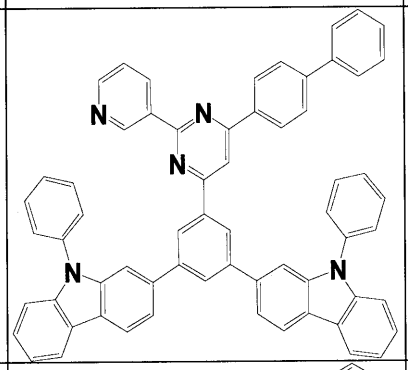
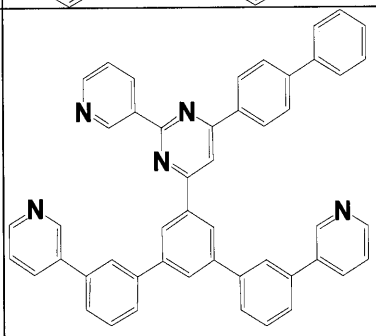
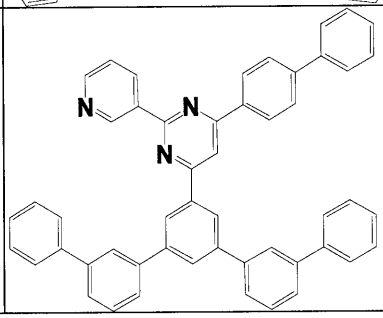
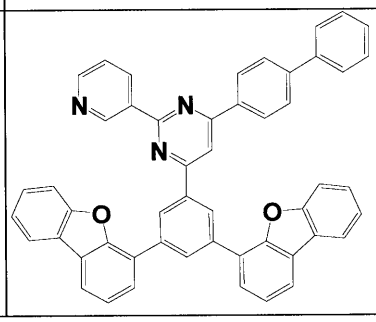
17－7		17－8	
17－9		17－10	
18－1		18－2	
18－3		18－4	
18－5		18－6	

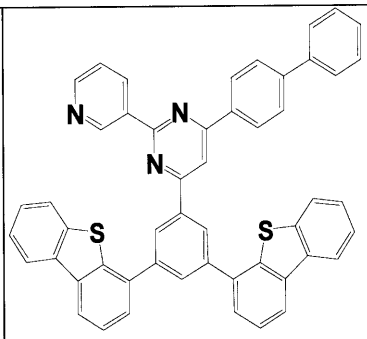
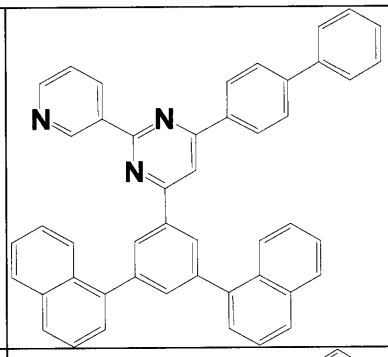
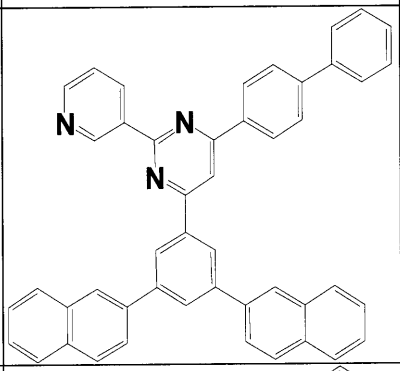
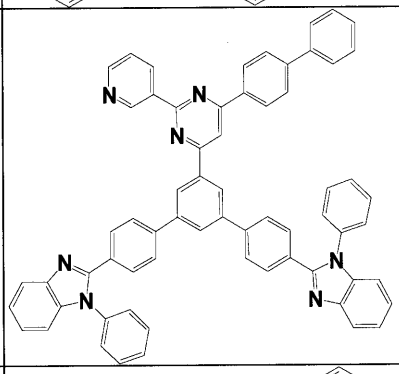
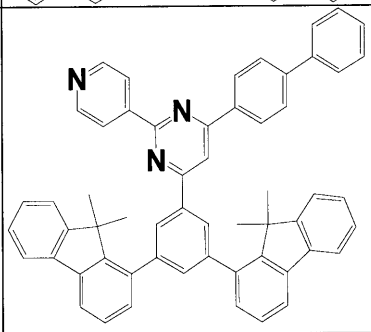
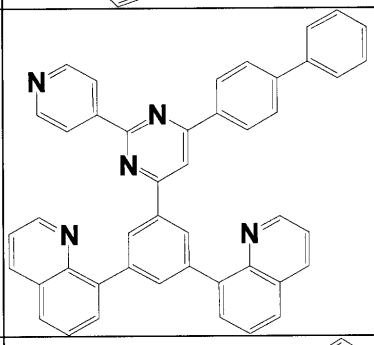
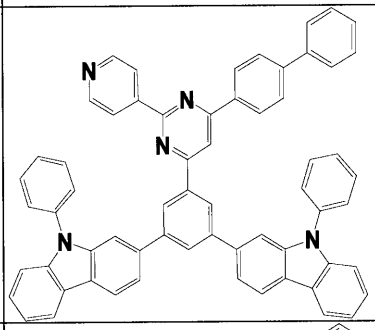
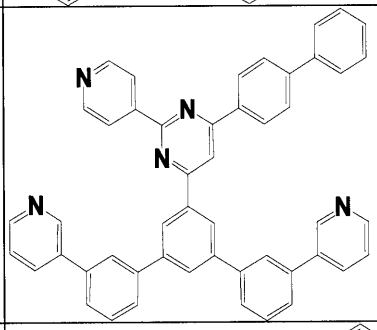
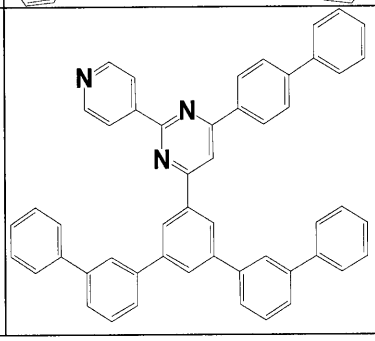
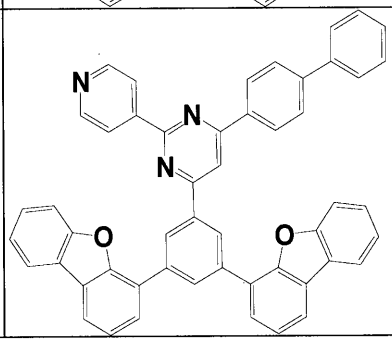
18－7		18－8	
18－9		18－10	
19－1		19－2	
19－3		19－4	
19－5		19－6	

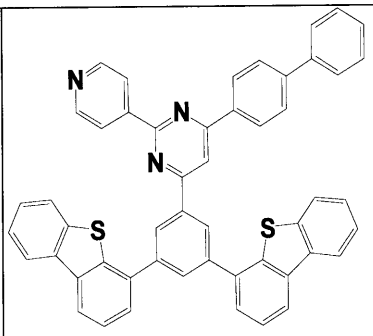
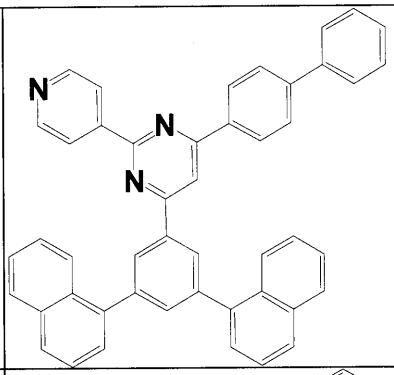
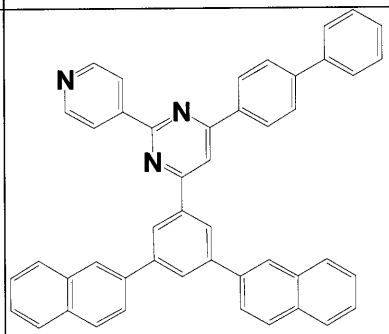
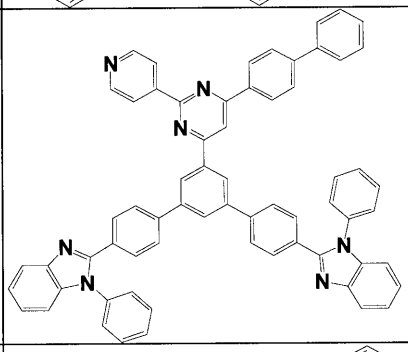
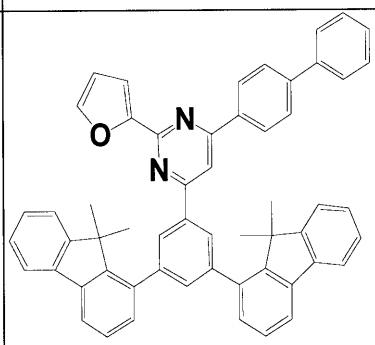
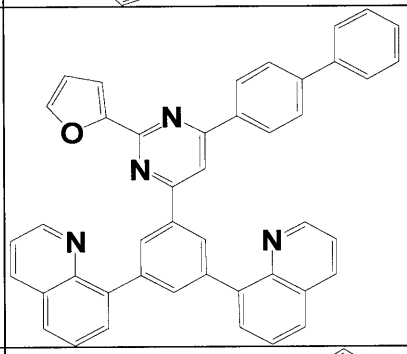
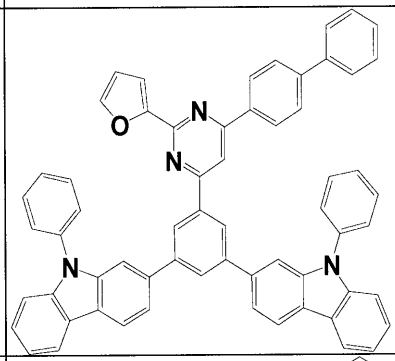
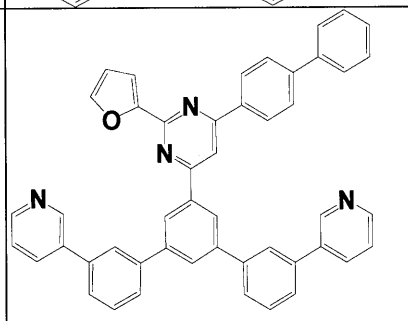
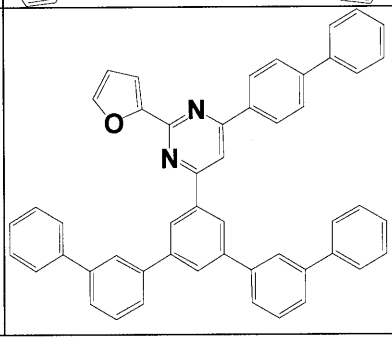
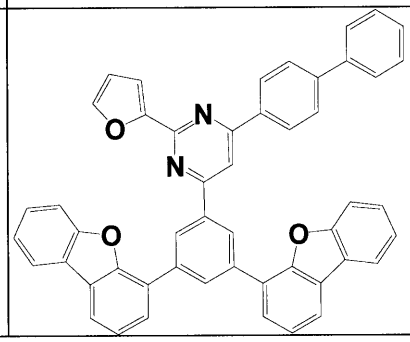
19－7		19－8	
19－9		19－10	
20－1		20－2	
20－3		20－4	
20－5		20－6	

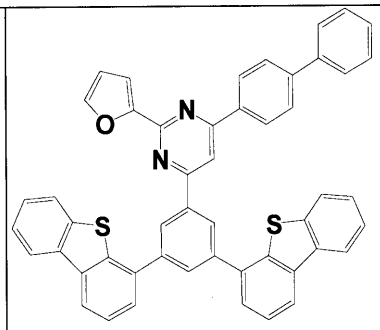
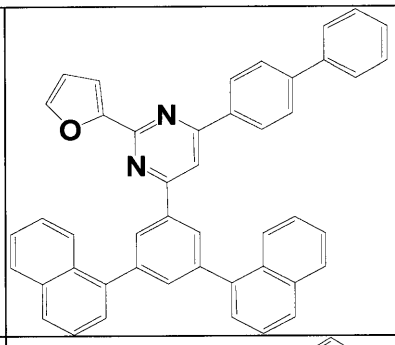
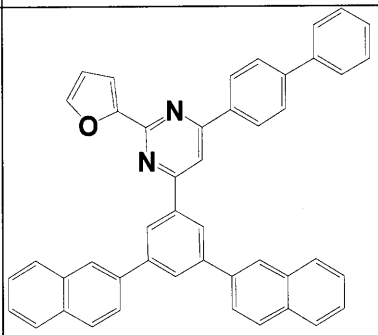
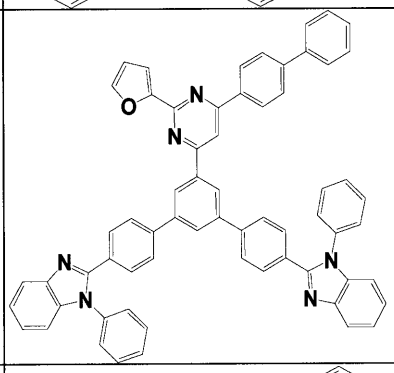
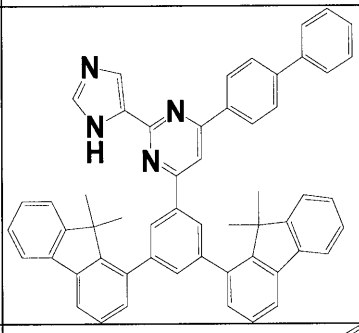
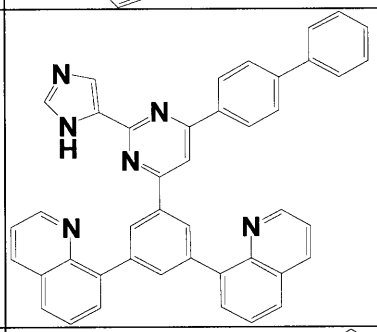
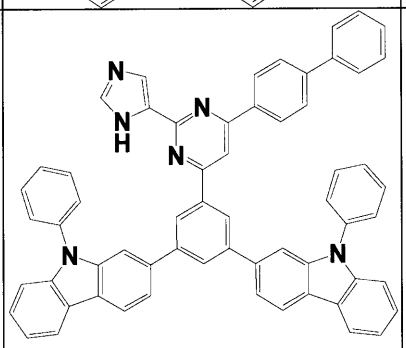
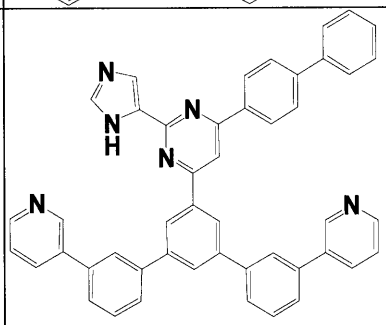
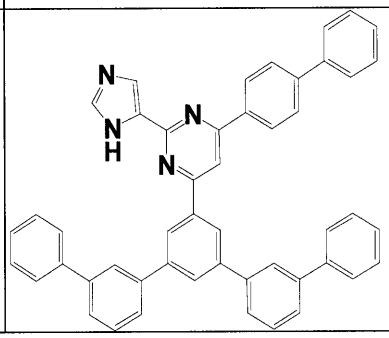
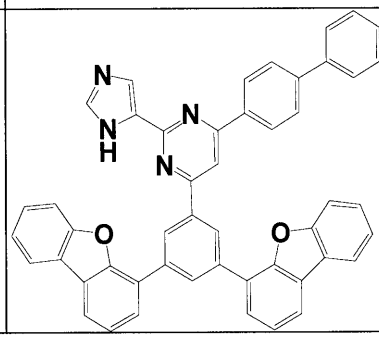
2 0 − 7		2 0 − 8	
2 0 − 9		2 0 − 1 0	
2 1 − 1		2 1 − 2	
2 1 − 3		2 1 − 4	
2 1 − 5		2 1 − 6	

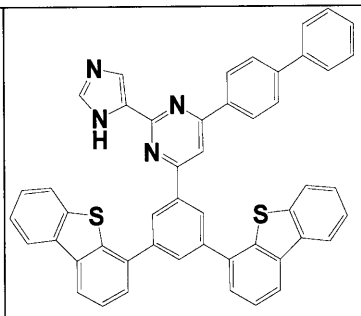
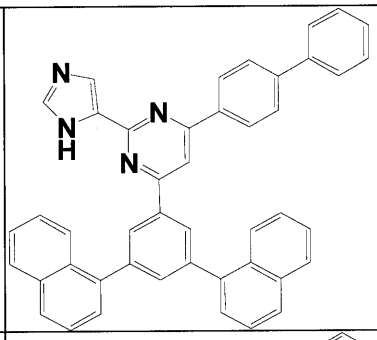
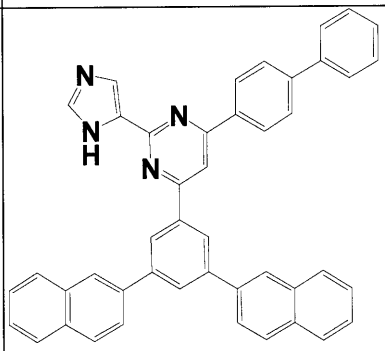
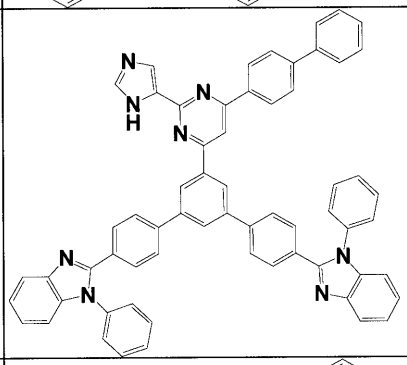
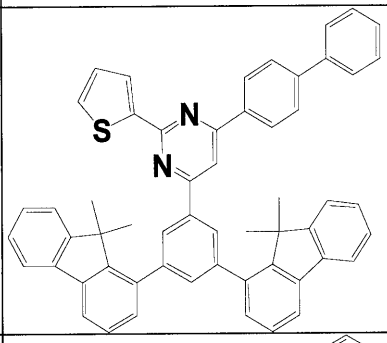
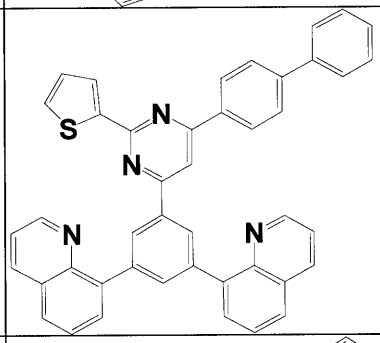
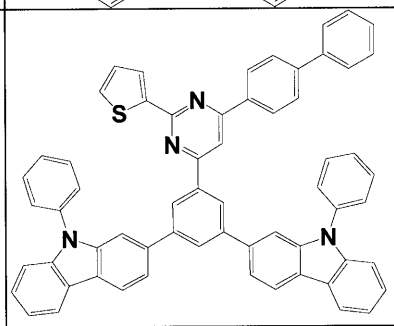
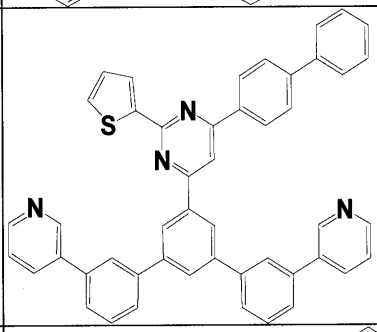
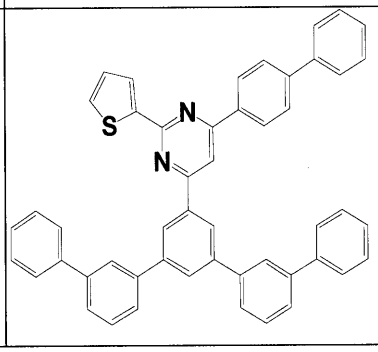
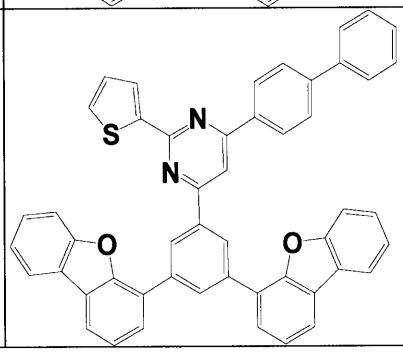
2 1 − 7		2 1 − 8	
2 1 − 9		2 1 − 1 0	
2 2 − 1		2 2 − 2	
2 2 − 3		2 2 − 4	
2 2 − 5		2 2 − 6	

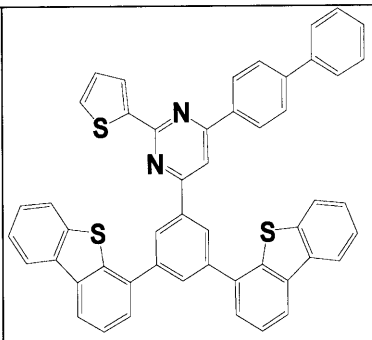
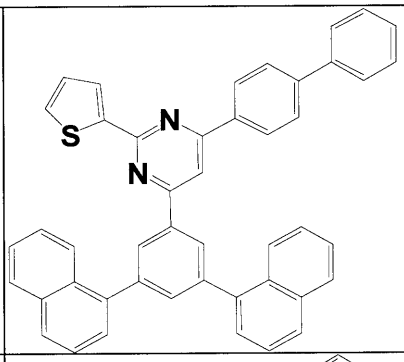
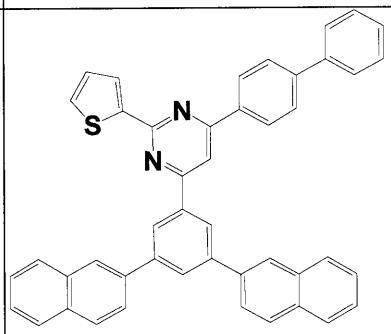
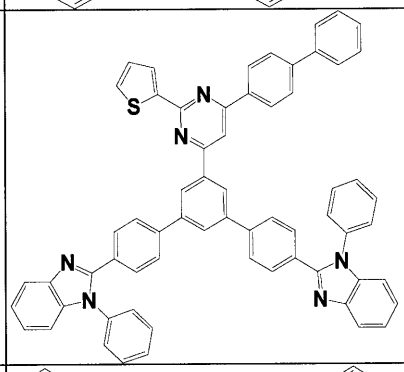
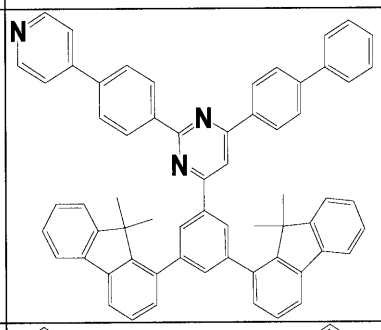
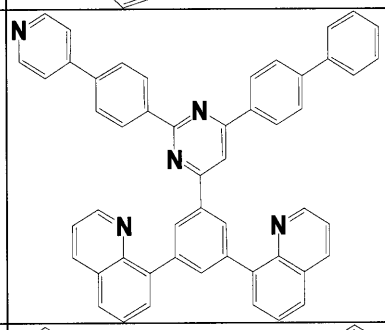
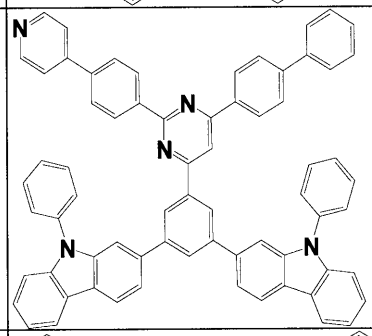
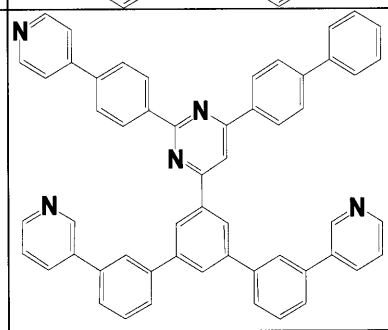
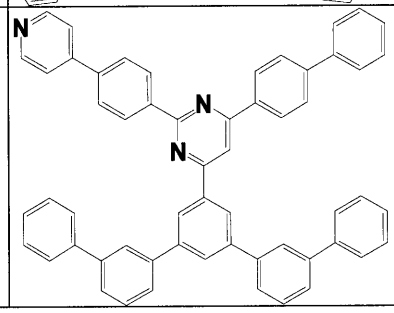
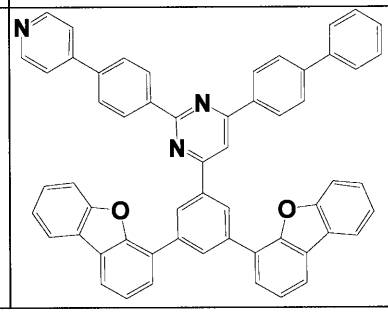
2 2 − 7		2 2 − 8	
2 2 − 9		2 2 − 1 0	
2 3 − 1		2 3 − 2	
2 3 − 3		2 3 − 4	
2 3 − 5		2 3 − 6	

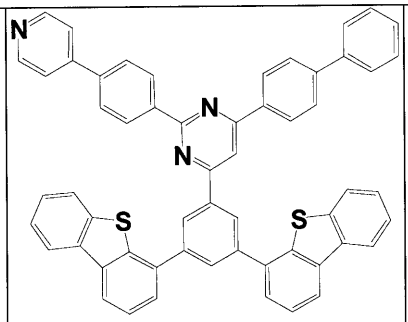
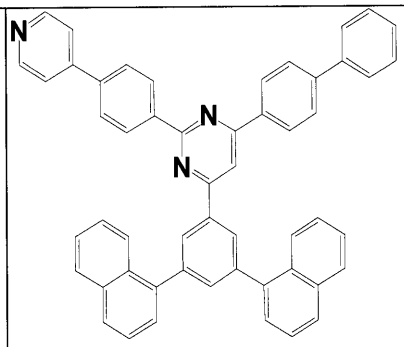
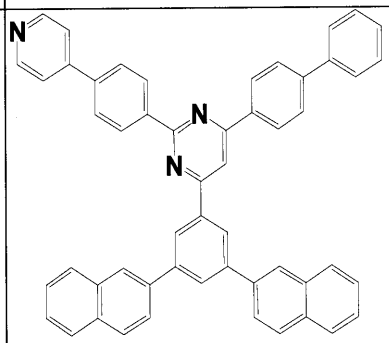
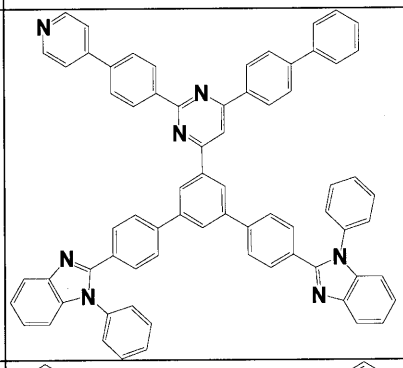
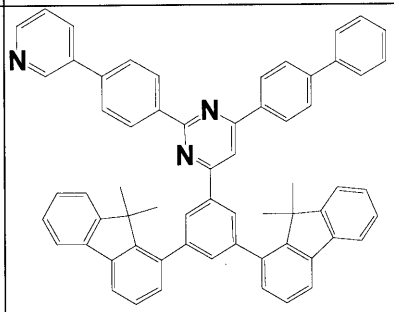
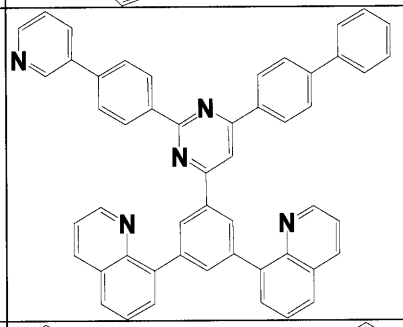
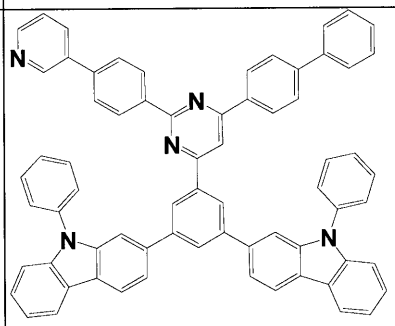
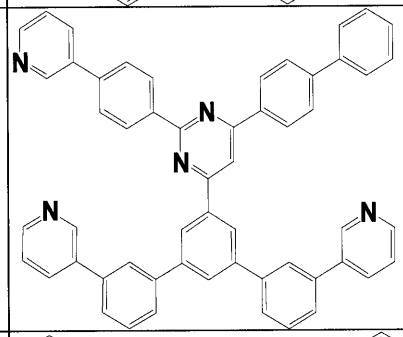
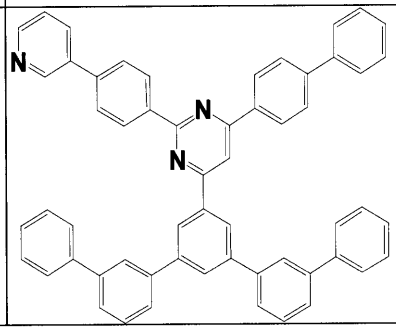
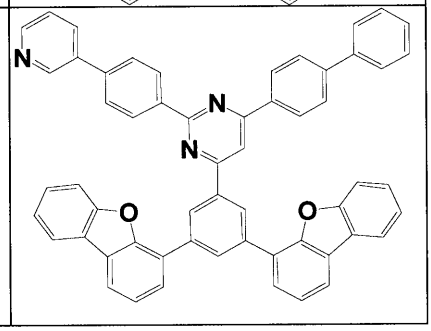
2 3 − 7		2 3 − 8	
2 3 − 9		2 3 − 1 0	
2 4 − 1		2 4 − 2	
2 4 − 3		2 4 − 4	
2 4 − 5		2 4 − 6	

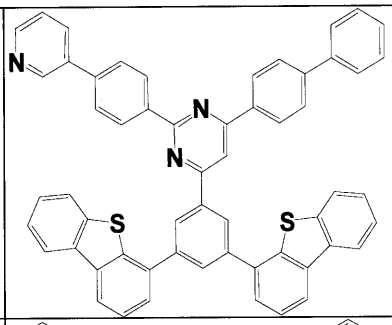
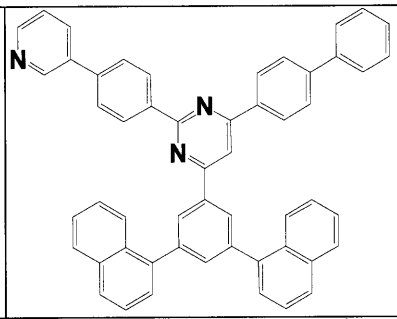
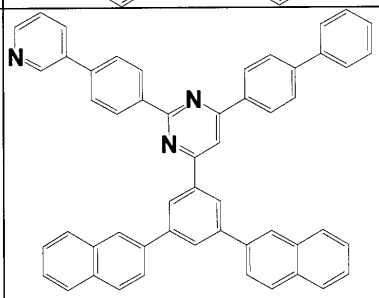
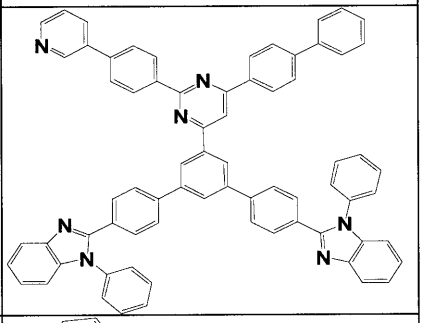
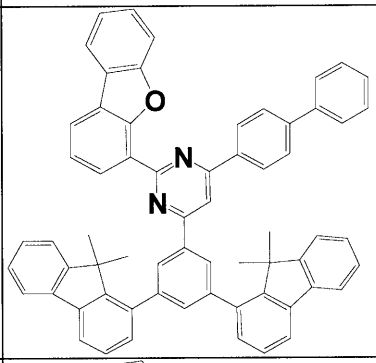
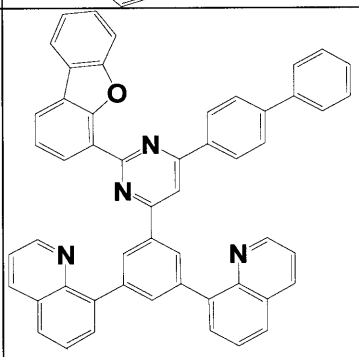
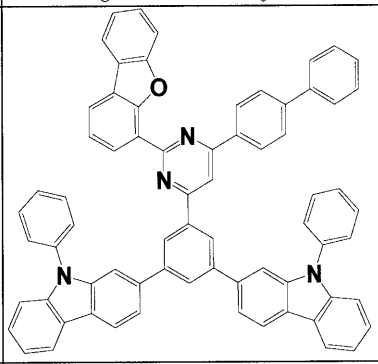
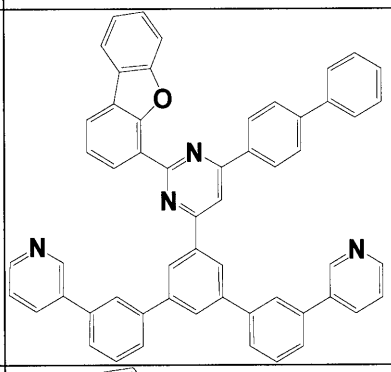
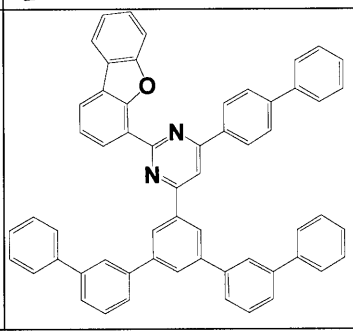
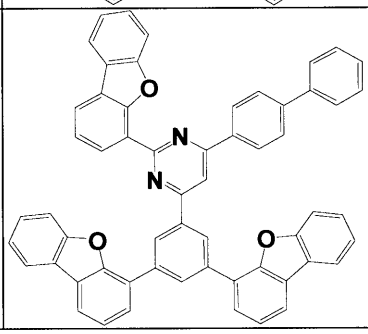
2 4 − 7		2 4 − 8	
2 4 − 9		2 4 − 1 0	
2 5 − 1		2 5 − 2	
2 5 − 3		2 5 − 4	
2 5 − 5		2 5 − 6	

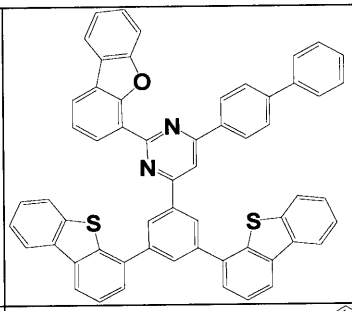
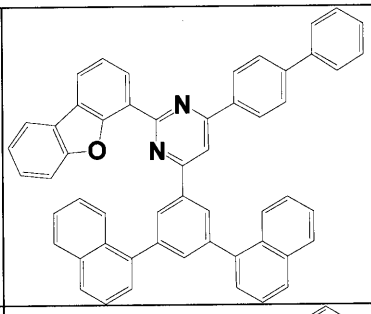
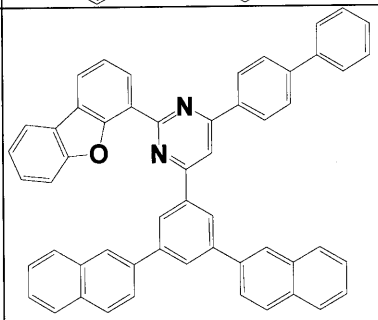
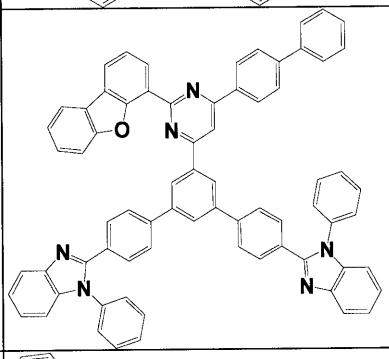
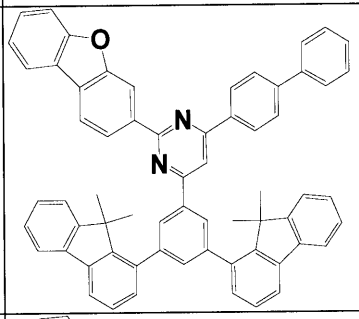
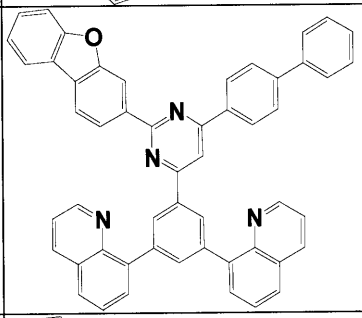
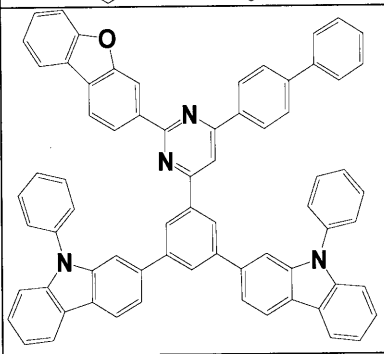
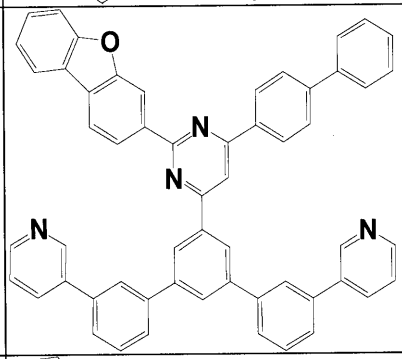
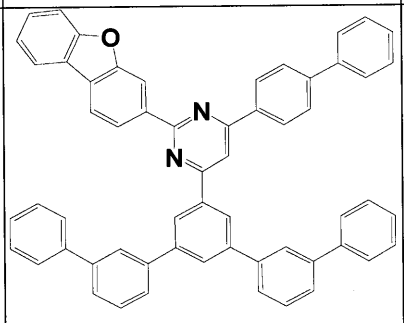
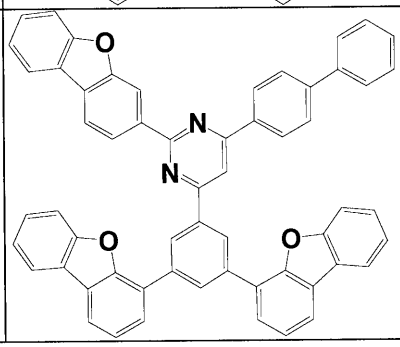
2 5 － 7		2 5 － 8	
2 5 － 9		2 5 － 1 0	
2 6 － 1		2 6 － 2	
2 6 － 3		2 6 － 4	
2 6 － 5		2 6 － 6	

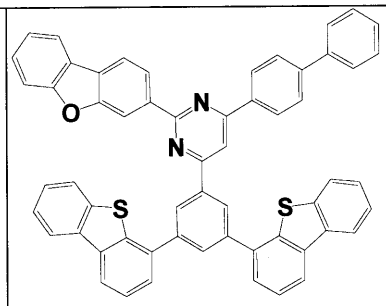
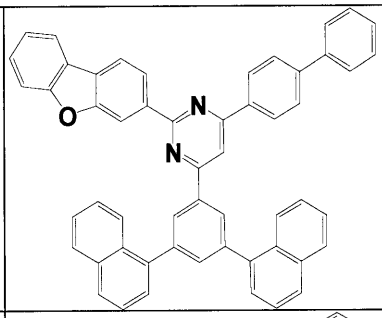
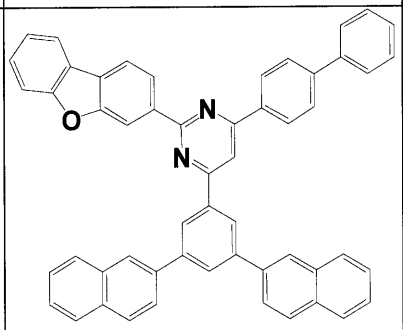
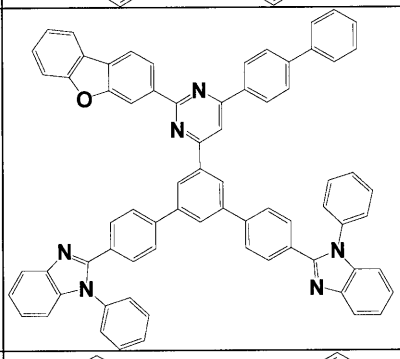
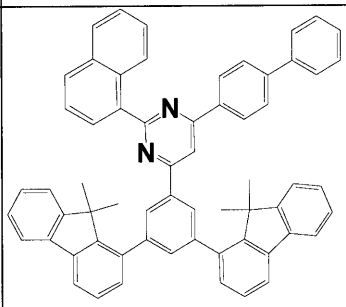
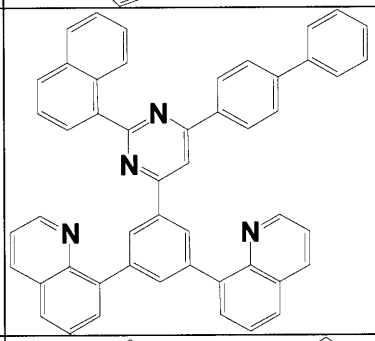
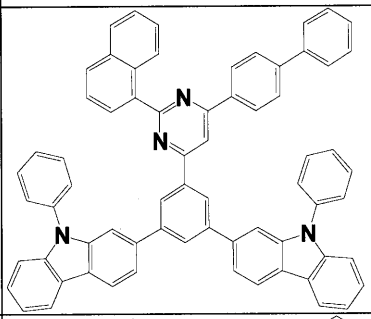
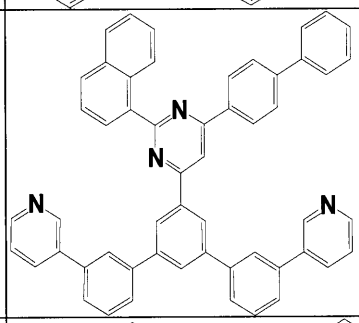
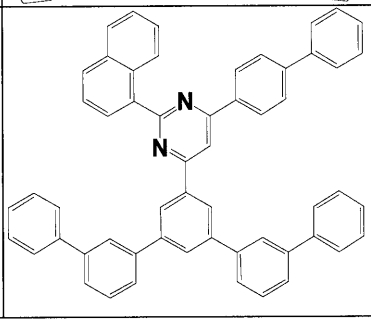
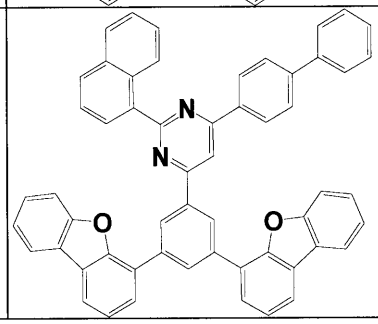
2 6 − 7		2 6 − 8	
2 6 − 9		2 6 − 1 0	
2 7 − 1		2 7 − 2	
2 7 − 3		2 7 − 4	
2 7 − 5		2 7 − 6	

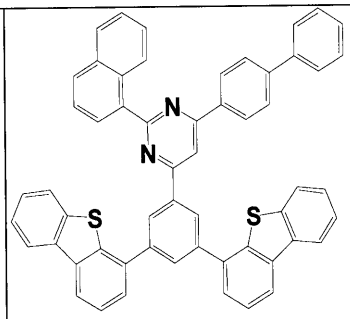
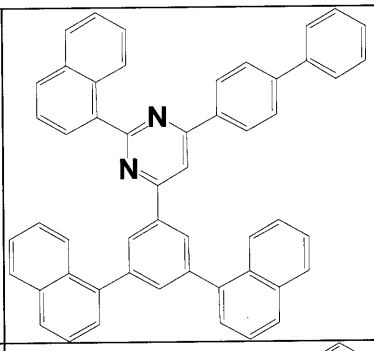
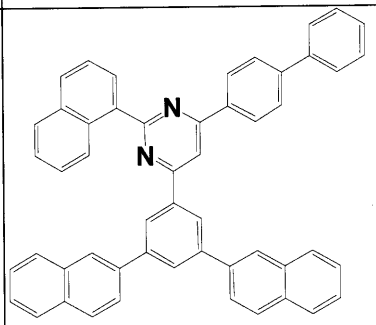
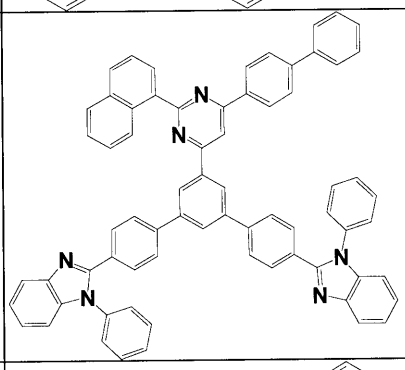
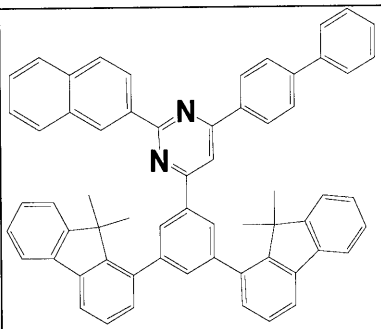
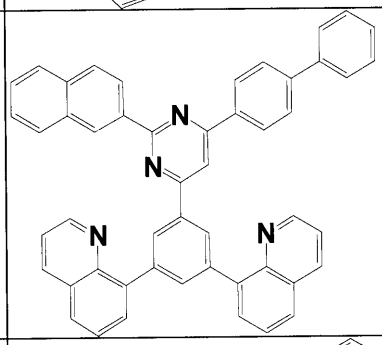
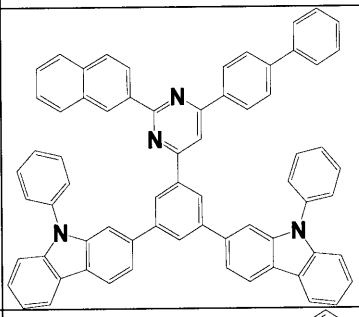
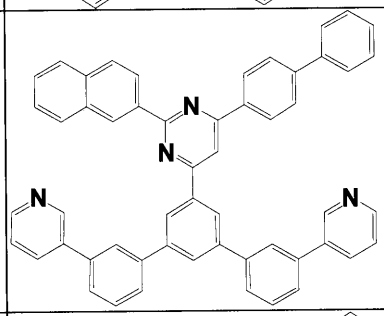
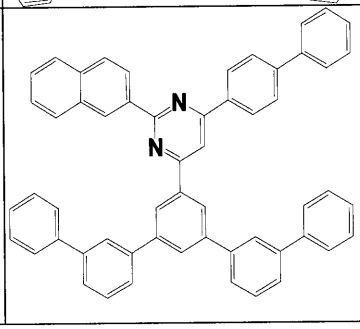
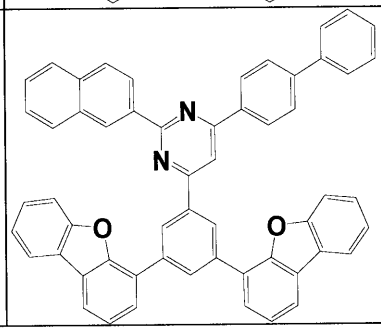
2 7 － 7		2 7 － 8	
2 7 － 9		2 7 － 1 0	
2 8 － 1		2 8 － 2	
2 8 － 3		2 8 － 4	
2 8 － 5		2 8 － 6	

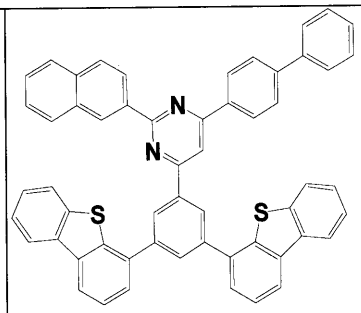
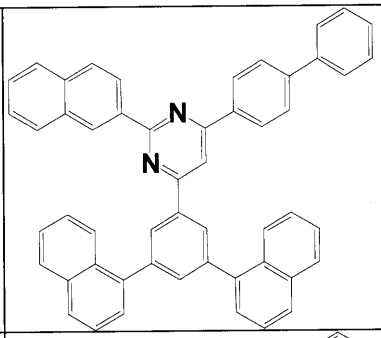
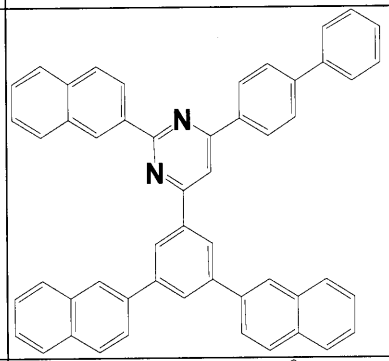
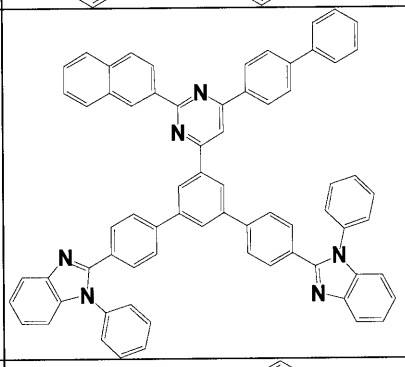
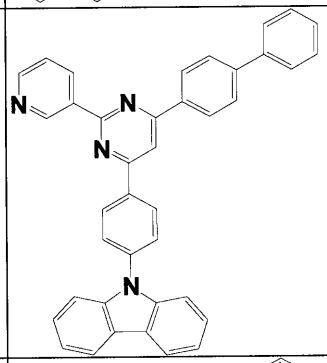
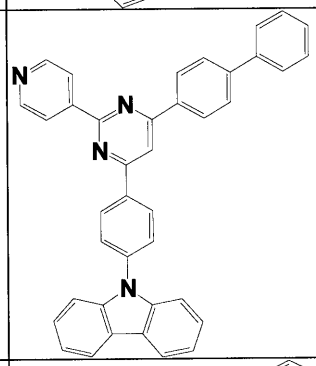
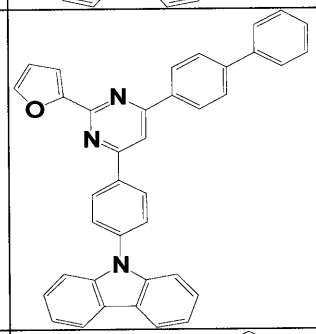
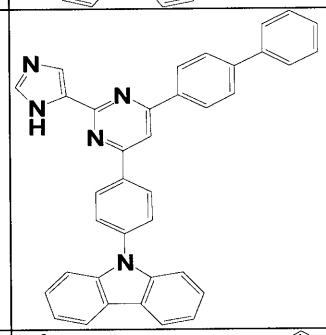
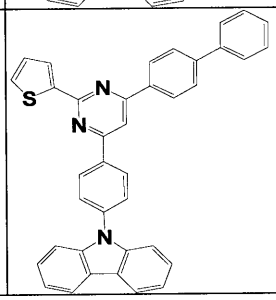
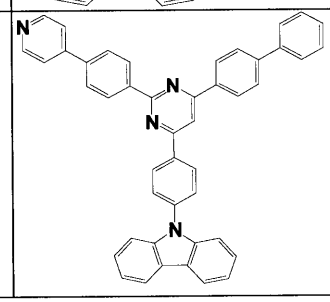
2 8 － 7		2 8 － 8	
2 8 － 9		2 8 － 1 0	
2 9 － 1		2 9 － 2	
2 9 － 3		2 9 － 4	
2 9 － 5		2 9 － 6	

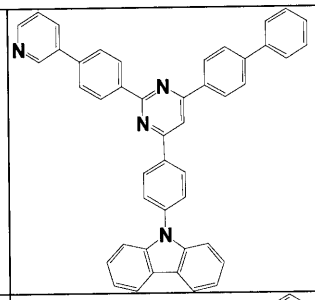
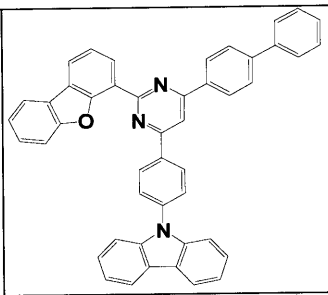
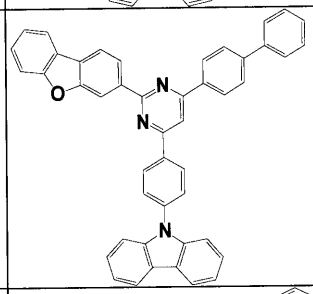
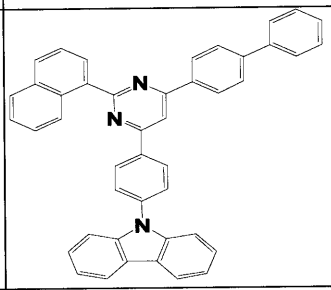
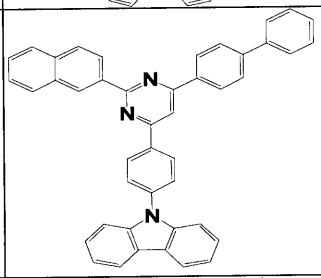
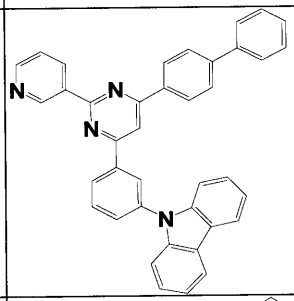
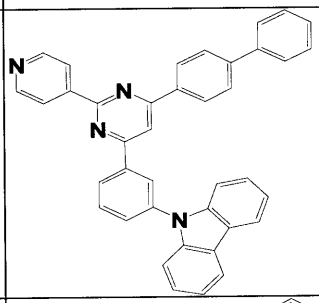
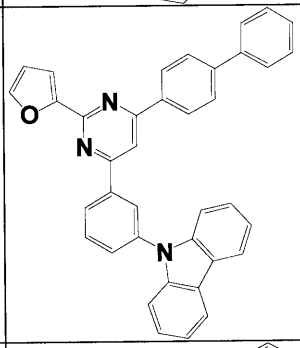
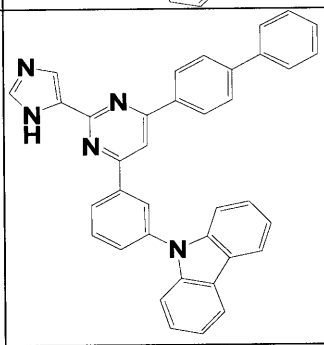
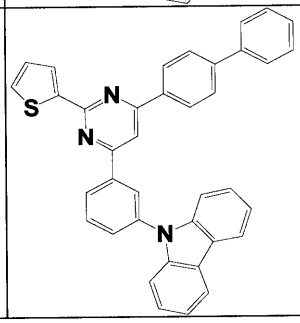
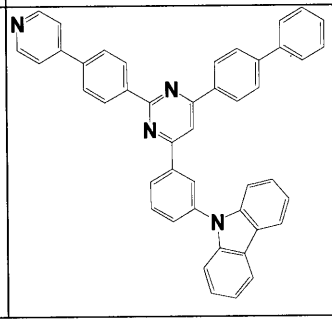
29－7		29－8	
29－9		29－10	
30－1		30－2	
30－3		30－4	
30－5		30－6	

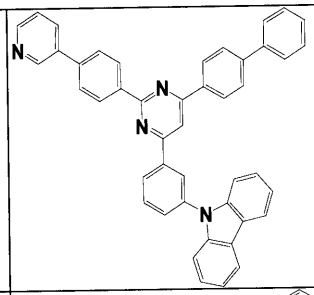
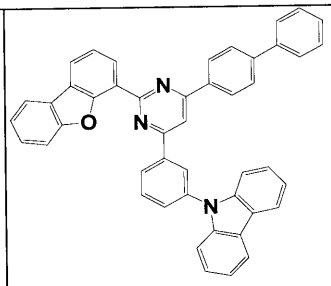
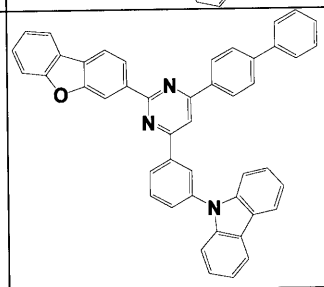
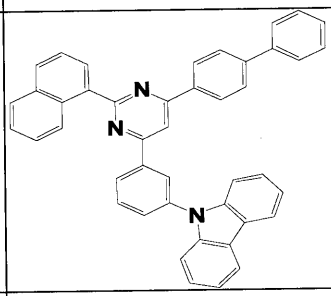
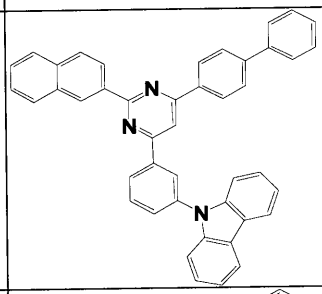
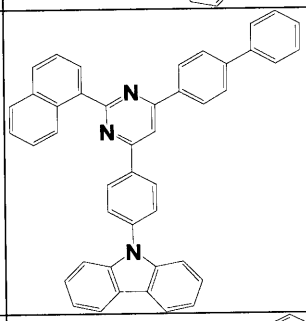
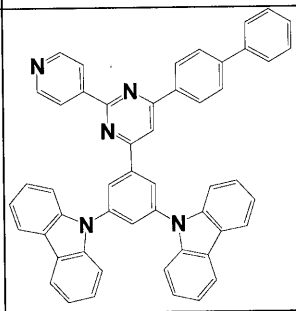
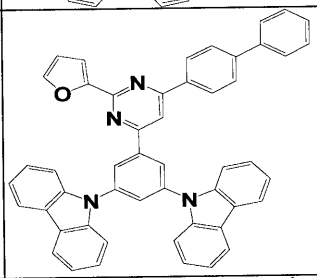
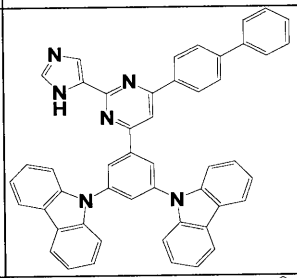
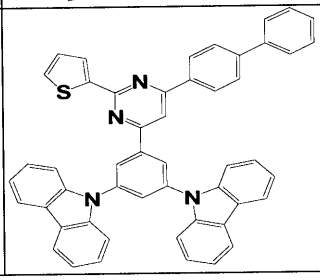
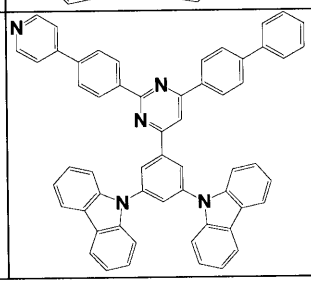
30－7		30－8	
30－9		30－10	
31－1		31－2	
31－3		31－4	
31－5		31－6	

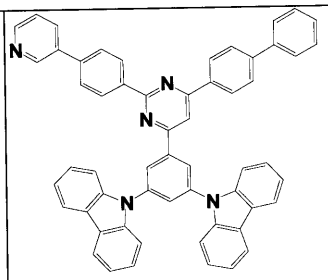
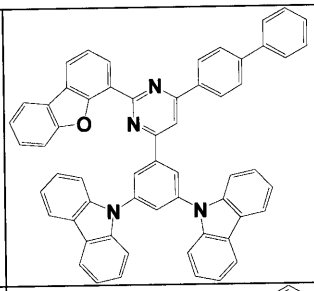
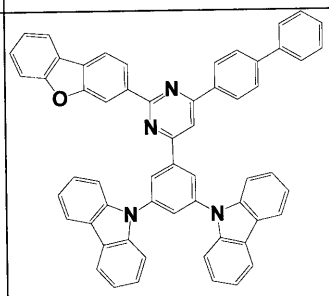
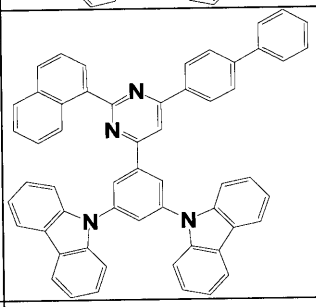
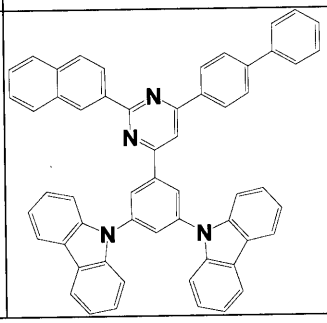
3 1 − 7		3 1 − 8	
3 1 − 9		3 1 − 1 0	
3 2 − 1		3 2 − 2	
3 2 − 3		3 2 − 4	
3 2 − 5		3 2 − 6	

3 2 − 7		3 2 − 8	
3 2 − 9		3 2 − 1 0	
3 3 − 1		3 3 − 2	
3 3 − 3		3 3 − 4	
3 3 − 5		3 3 − 6	

3 3 − 7		3 3 − 8	
3 3 − 9		3 3 − 1 0	
3 4 − 1		3 4 − 2	
3 4 − 3		3 4 − 4	
3 4 − 5		3 4 − 6	

3 4 − 7		3 4 − 8	
3 4 − 9		3 4 − 1 0	
3 4 − 1 1			
3 5 − 1		3 5 − 2	
3 5 − 3		3 5 − 4	
3 5 − 5		3 5 − 6	

3 5 − 7		3 5 − 8	
3 5 − 9		3 5 − 1 0	
3 5 − 1 1			
3 6 − 1		3 6 − 2	
3 6 − 3		3 6 − 4	
3 6 − 5		3 6 − 6	

３６－７		３６－８	
３６－９		３６－１０	
３６－１１			

【００３２】
下記のようなフローチャート１～６に示す一連の反応により、式（Ｉ）で表される化合物を合成できるが、これに限定されない。
【００３３】
４－ブロモベンズアルデヒド（４－ｂｒｏｍｏｂｅｎｚａｌｄｅｈｙｄｅ）（５０ｇ、２７０．２ｍｍｏｌ）、４－アセチルビフェニル（４－Ａｃｅｔｙｌｂｉｐｈｅｎｙｌ）（５５．６８ｇ、２８３．８ｍｍｏｌ）および１０００ｍｌのＥｔＯＨをそれぞれ反応フラスコに加えて撹拌し、さらにＮａＯ－ｔ－Ｂｕ（Ｓｏｄｉｕｍ　ｔｅｒｔ－Ｂｕｔｏｘｉｄｅ、ＳＴＢとも略す）（２９．８３ｇ、３１０．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに加えてともに撹拌した後、室温２５℃で一晩反応させ（窒素ガスを通す）、ろ過した後、１００ｍｌ水と１００ｍｌメタノールで洗浄し、固体をさらに４００ｍｌ純水と１００ｍｌメタノールで１５分間撹拌してろ過を２～３回繰り返し、固体をさらに４００ｍｌメタノールで１５分間撹拌してろ過し、固体をさらに４００ｍｌエタノールで１５分間撹拌して純化、ろ過し、６５℃で乾燥し、白色固体として８４．７ｇの中間体Ａを得て、収率が８６．２８％であった。
【００３４】
中間体Ａ（２０ｇ、５５．１ｍｍｏｌ）、異なるピリジニウムクロリド（ｐｙｒｉｄｉｎｉｕｍ　ｃｈｌｏｒｉｄｅ）誘導体（６０．６ｍｍｏｌ）、および２００ｍｌのトルエンを反応フラスコに加えて撹拌し、さらにＳＴＢ（７．９３ｇ、８２．６ｍｍｏｌ）を反応フラスコに加えてともに撹拌した後、温度１００±５℃で１６時間反応させた（窒素ガスを通す）。温度を低下させ、３００ｍｌ酢酸エチル（Ｅｔｈｙｌ　Ａｃｅｔａｔｅ、ＥＡとも略す）を加えた後、２００ｍｌ純水で４回抽出し、無水硫酸ナトリウムで脱水、ろ過し、濃縮した後、メタノールを加えて析出、ろ過し、メタノールで洗浄し、乾燥し、固体として中間体Ｂを得た。
【００３５】

３－ブロモベンズアルデヒド（３－ｂｒｏｍｏｂｅｎｚａｌｄｅｈｙｄｅ）（５０ｇ、２７０．２ｍｍｏｌ）、４－アセチルビフェニル（４－Ａｃｅｔｙｌｂｉｐｈｅｎｙｌ）（５５．６８ｇ、２８３．８ｍｍｏｌ）および１０００ｍｌのＥｔＯＨをそれぞれ反応フラスコに加えて撹拌し、さらにＳＴＢ（２９．８３ｇ、３１０．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに加えてともに撹拌した後、室温２５℃で一晩反応させ（窒素ガスを通す）、ろ過した後、１００ｍｌ水と１００ｍｌメタノールで洗浄し、固体をさらに４００ｍｌ純水と１００ｍｌメタノールで１５分間撹拌してろ過を２～３回繰り返し、固体をさらに４００ｍｌメタノールで１５分間撹拌、ろ過し、固体をさらに４００ｍｌエタノールで１５分間撹拌して純化、ろ過し、６５℃で乾燥し、白色固体として８９．６ｇの中間体Ｃを得て、収率が９１．２７％であった。

【００３６】

中間体Ｃ（２０ｇ、５５．１ｍｍｏｌ）、異なるピリジニウムクロリド誘導体（６０．６ｍｍｏｌ）および２００ｍｌトルエンを反応フラスコに加えて撹拌し、さらにＳＴＢ（７．９３ｇ、８２．６ｍｍｏｌ）を反応フラスコに加えてともに撹拌した後、温度１００±５℃で１６時間反応させた（窒素ガスを通す）。温度を低下させ、３００ｍｌのＥＡを加えた後、２００ｍｌ純水で４回抽出し、無水硫酸ナトリウムで脱水、ろ過し、濃縮した後、メタノールを加えて析出、ろ過し、メタノールで洗浄し、乾燥し、固体として中間体Ｄを得た。

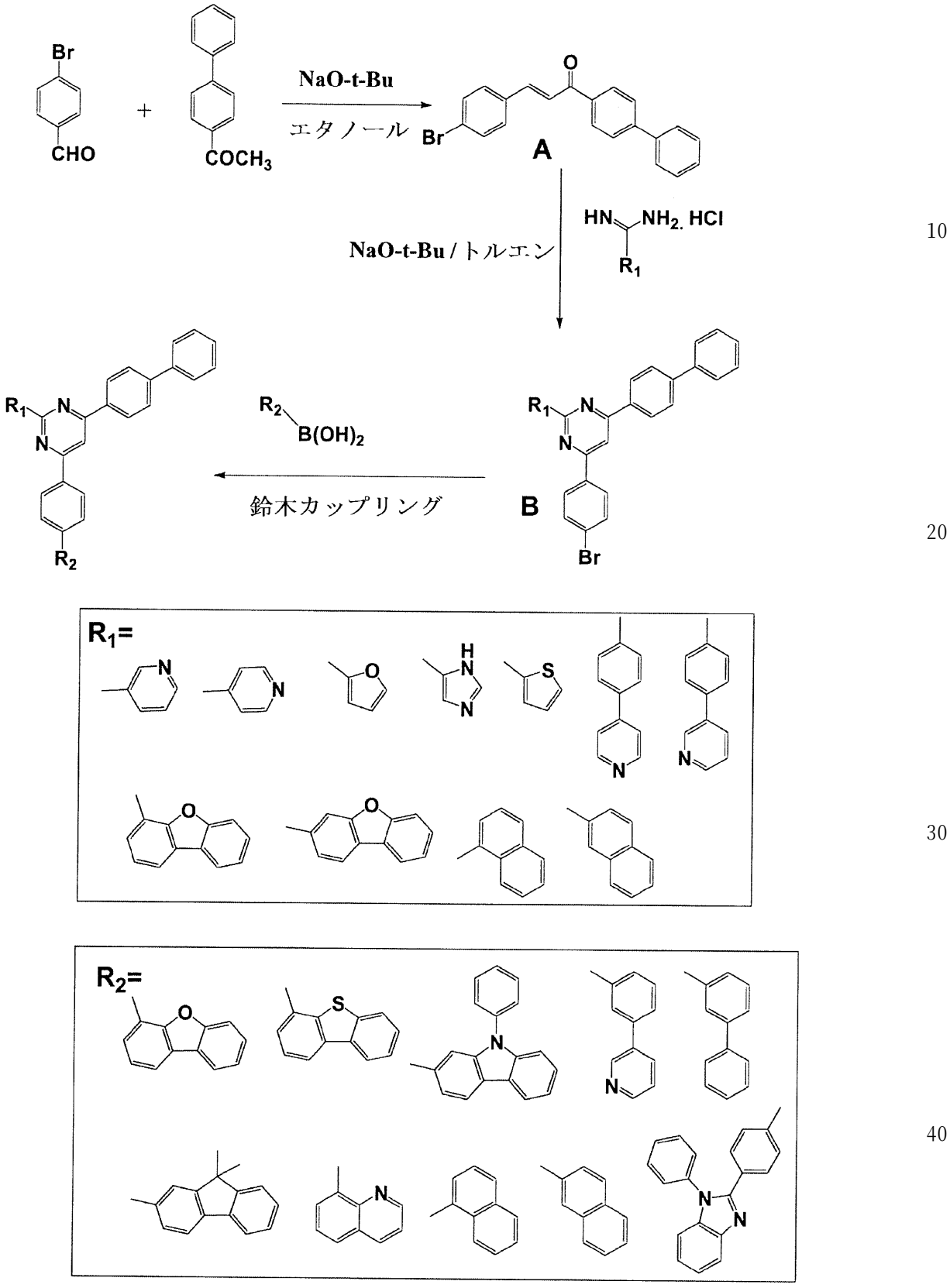
【００３７】

３，５－ジブロモベンズアルデヒド（３，５－Ｄｉｂｒｏｍｏｂｅｎｚａｌｄｅｈｙｄｅ）（３０ｇ、１１３．７ｍｍｏｌ）、４－アセチルビフェニル（４－Ａｃｅｔｙｌｂｉｐｈｅｎｙｌ）（２３．４２ｇ、１１９．４ｍｍｏｌ）および６００ｍｌのＥｔＯＨをそれぞれ反応フラスコに加えて撹拌し、さらにＳＴＢ（１６．３７ｇ、１７０．５ｍｍｏｌ）を反応フラスコに加えてともに撹拌した後、室温２５℃で一晩反応させ（窒素ガスを通す）、ろ過した後、１００ｍｌ水と１００ｍｌメタノールで洗浄し、固体をさらに２５０ｍｌ純水と５０ｍｌメタノールで１５分間撹拌してろ過を２～３回繰り返し、固体をさらに２００ｍｌメタノールで１５分間撹拌、ろ過し、固体をさらに２５０ｍｌエタノールで１５分間撹拌して純化、ろ過し、６５℃で乾燥し、淡黄色固体として４８．５ｇの中間体Ｅを得て、収率が９８．４９％であった。

【００３８】

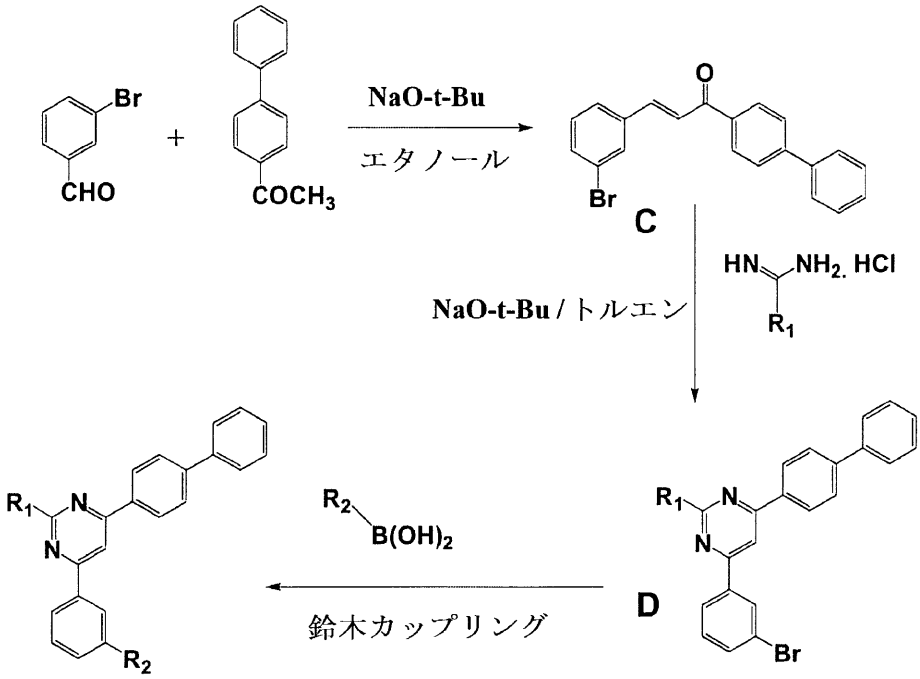
中間体Ｅ（２０ｇ、５５．１ｍｍｏｌ）、異なるピリジニウムクロリド誘導体（６０．６ｍｍｏｌ）および２００ｍｌトルエンを反応フラスコに加えて撹拌し、さらにＳＴＢ（７．９３ｇ、８２．６ｍｍｏｌ）を反応フラスコに加えてともに撹拌した後、温度１００±５℃で１６時間反応させた（窒素ガスを通す）。温度を低下させ、３００ｍｌのＥＡを加えた後、２００ｍｌ純水で４回抽出し、無水硫酸ナトリウムで脱水、ろ過し、濃縮した後、メタノールを加えて析出、ろ過し、メタノールで洗浄し、乾燥し、固体として中間体Ｆを得た。

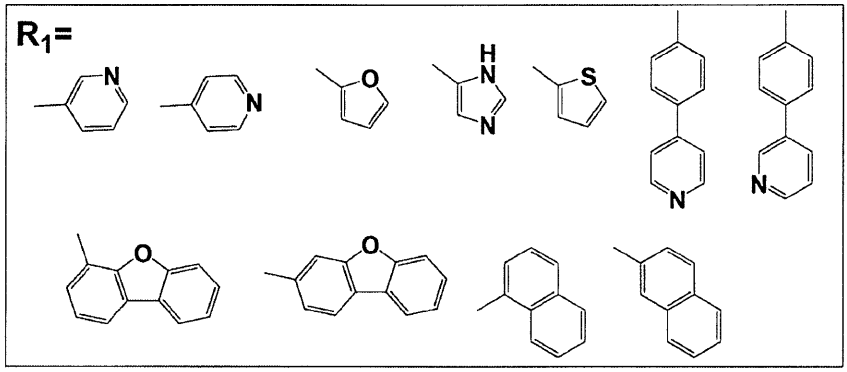
【化１０】

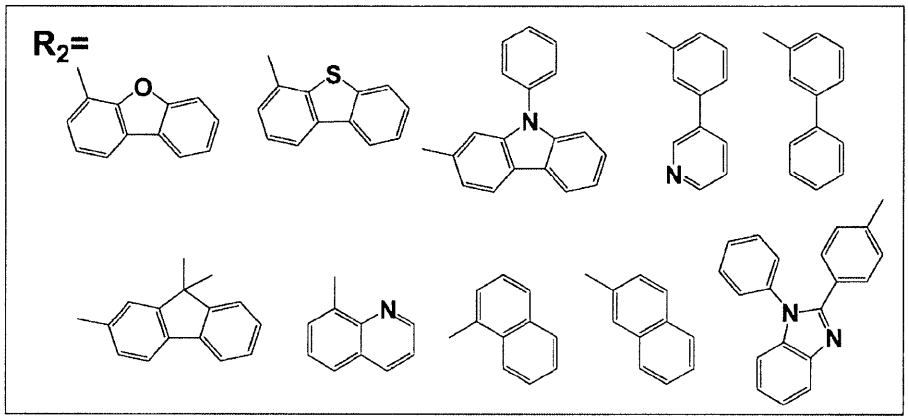


フローチャート１

【化１１】

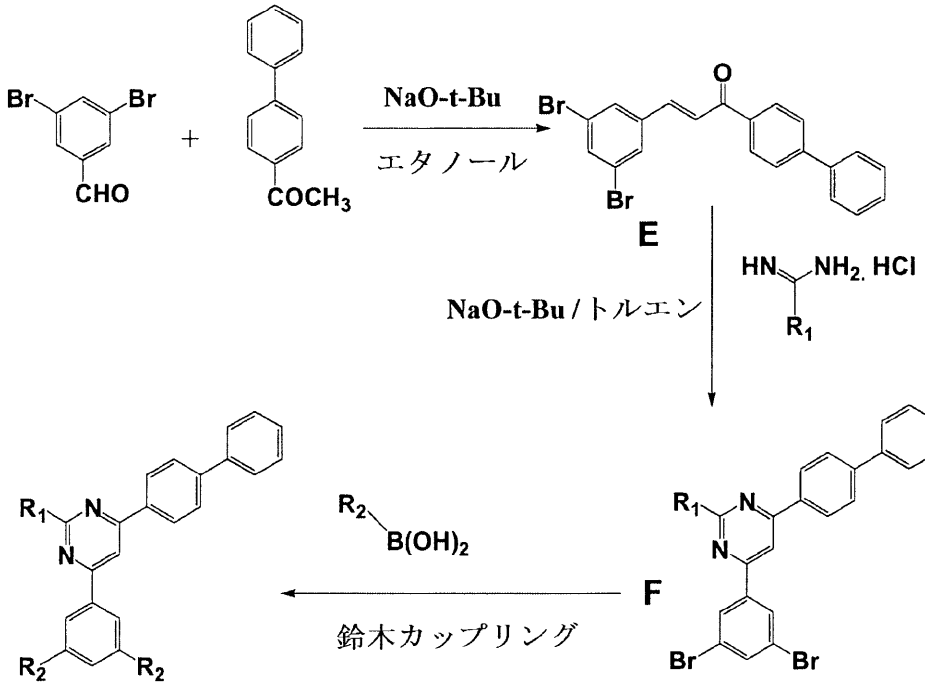


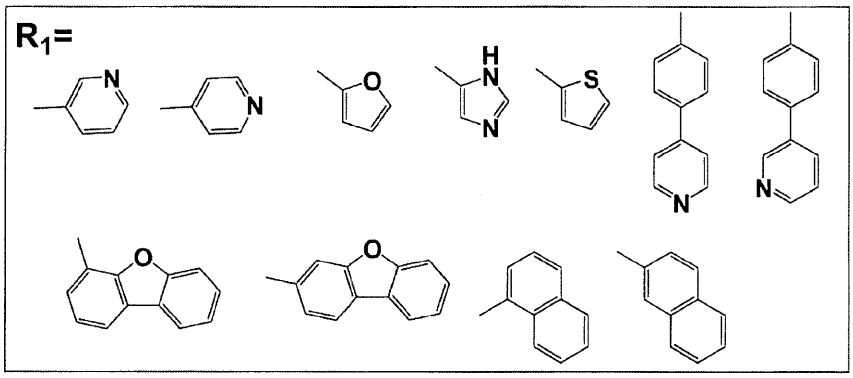


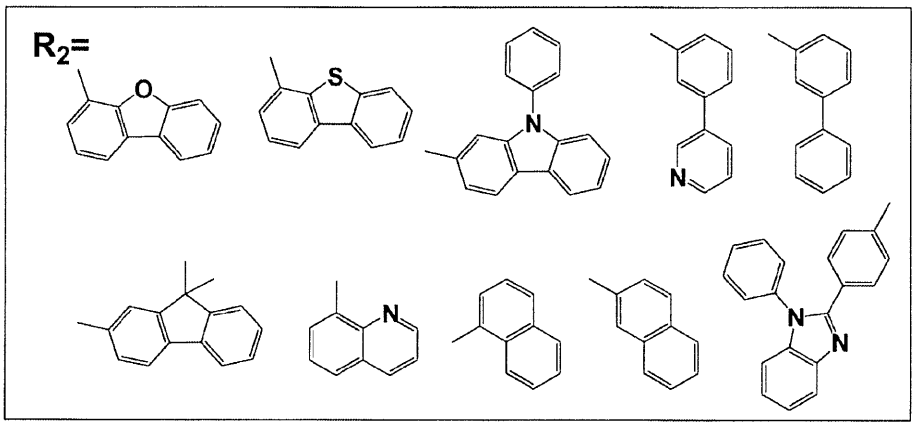


フローチャート２

【化１２】

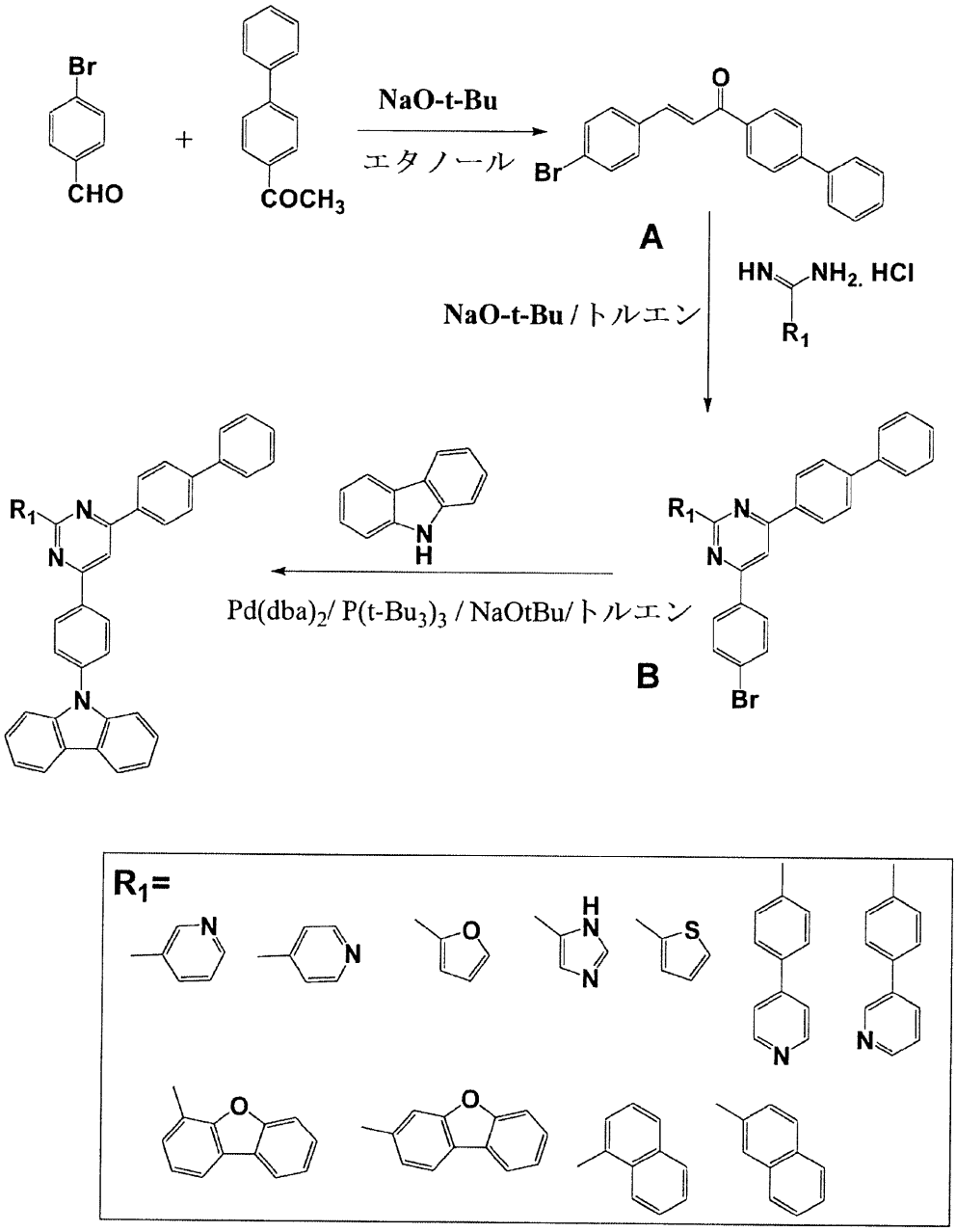






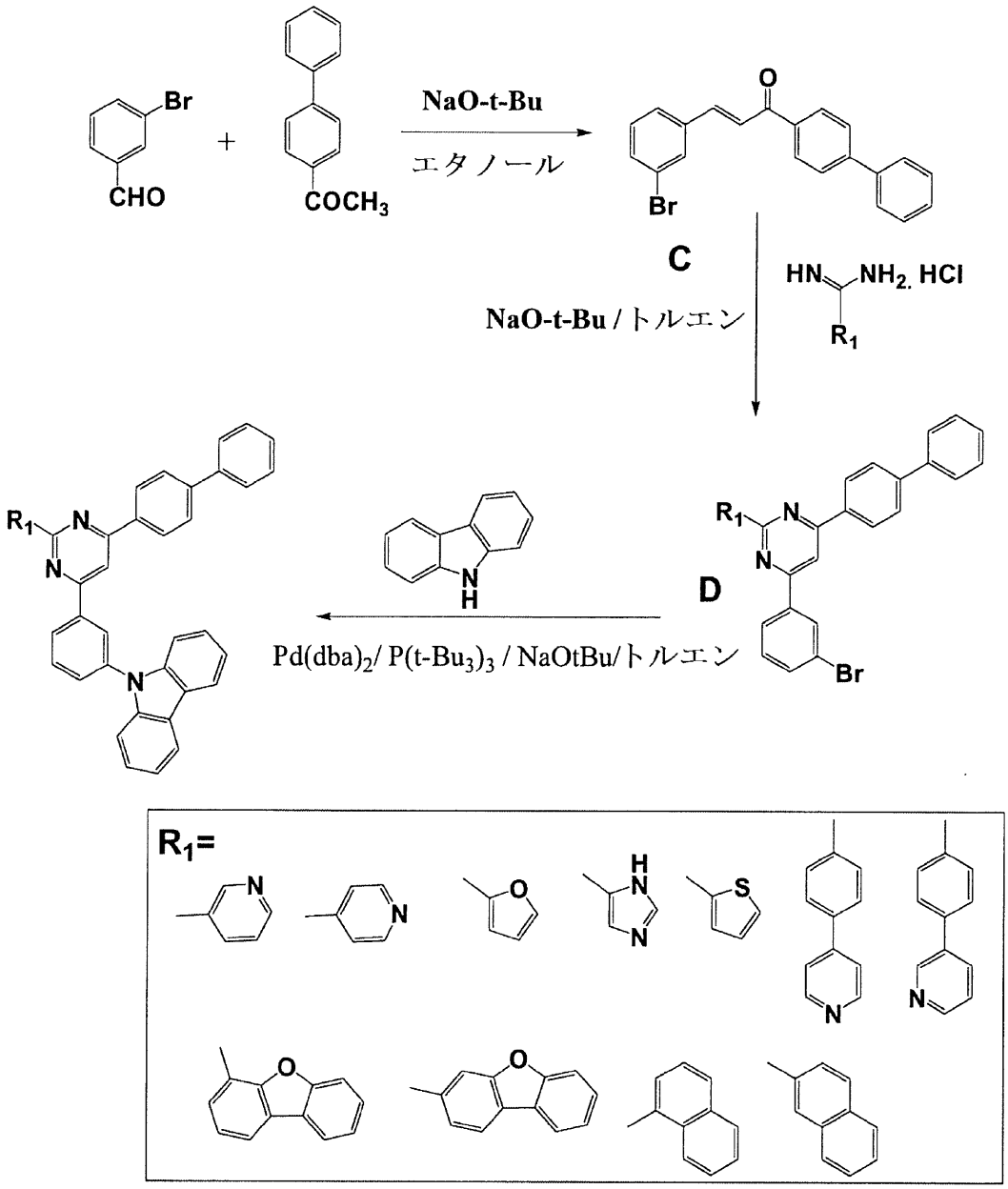
フローチャート３

【化１３】



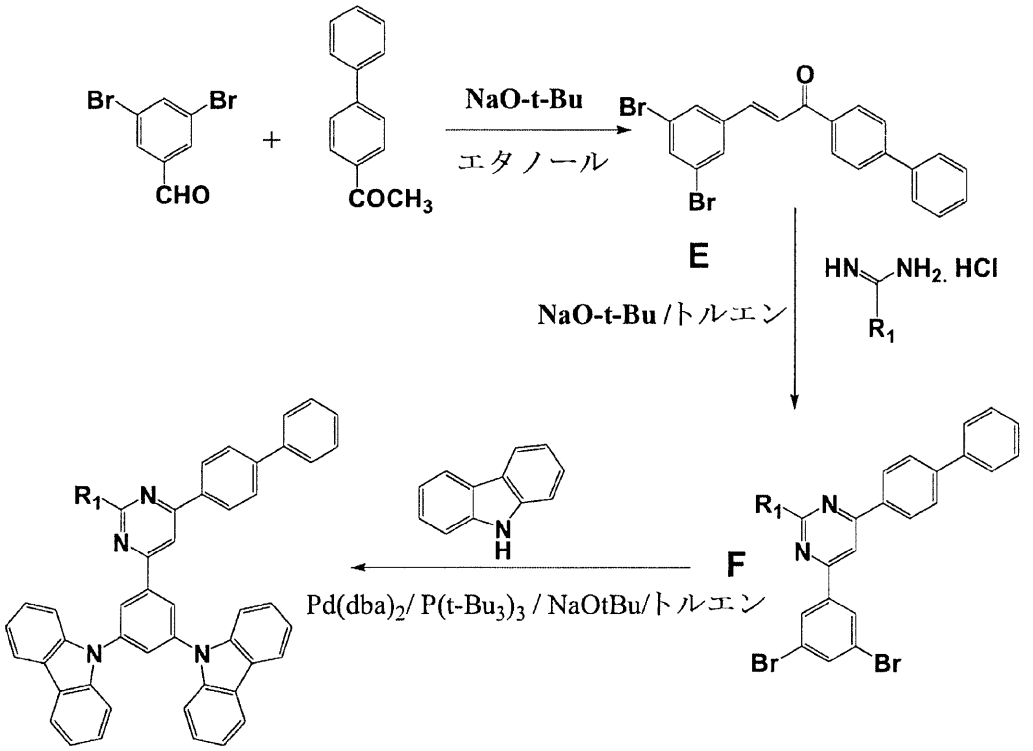
フローチャート４

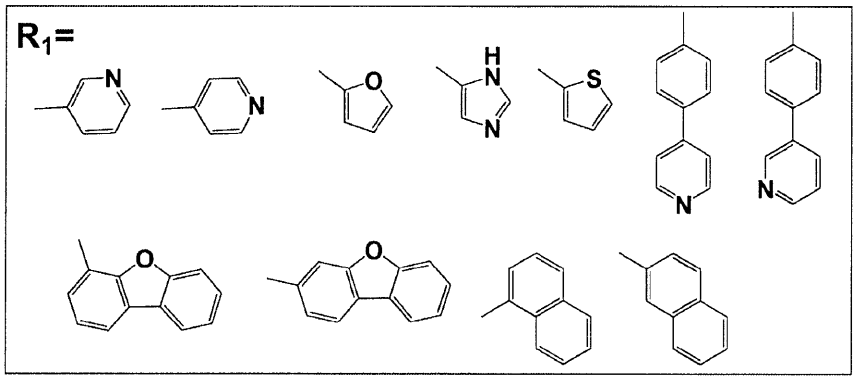
【化１４】



フローチャート５

【化１５】





フローチャート６

【００３９】

さらに、本発明は、陰極、陽極、および前記陰極と前記陽極との間に設けられ、本発明の式（Ｉ）化合物を含有する有機層を含む、有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。

【００４０】

式（Ｉ）で表される化合物は、ＯＬＥＤの有機層に適用できる。そのため、本発明のＯＬＥＤは、基板上の陰極と陽極との間に設けられた少なくとも一層の有機層を有し、この有機層は、上記の式（Ｉ）で表される化合物を含む。前記有機層は、発光層、正孔ブロック層、電子輸送層、電子注入層または正孔輸送層であり、また、有機エレクトロルミネセントデバイスは、前記有機層のほかに、前記有機層と異なる電子輸送層、電子注入層、発光層、正孔ブロック層および電子ブロック層からなる群から選ばれる少なくとも一つの層をさらに含んでもよい。式（Ｉ）で表される化合物を含有する上記有機層は、好ましくは電子輸送・注入層であり、式（Ｉ）で表される化合物を単一材料としてもよく、ｎ／ｐ型の電気伝導ドーパント（ｎ／ｐ　ｔｙｐｅ　ｄｏｐａｎｔｓ）と組み合わせてもよい。一

つの具体的な実施態様において、前記電子輸送層は式（Ｉ）化合物を含有する。
【００４１】
電子輸送層用の電気伝導ドーパントは、好ましくは有機アルカリ金属・アルカリ土類金属の錯体（ｏｒｇａｎｉｃ ａｌｋａｌｉ／ａｌｋａｌｉｎｅ ｍｅｔａｌ ｃｏｍｐｌｅｘｅｓ）、酸化物（ｏｘｉｄｅｓ）、ハロゲン化物（ｈａｌｉｄｅｓ）、炭酸塩（ｃａｒｂｏｎａｔｅｓ）、並びにリチウムおよびセシウムから選ばれる少なくとも１種類の金属を含むアルカリ金属・アルカリ土類金属リン酸塩（ｐｈｏｓｐｈａｔｅｓ ｏｆ ａｌｋａｌｉ／ａｌｋａｌｉｎｅ ｇｒｏｕｐ ｍｅｔａｌｓ ｃｏｎｔａｉｎｉｎｇ ａｔ ｌｅａｓｔ ｏｎｅ ｍｅｔａｌ ｓｅｌｅｃｔｅｄ ｆｒｏｍ ｌｉｔｈｉｕｍ ａｎｄ ｃｅｓｉｕｍ）である。この有機金属錯体は、上記特許文献または他の文献では公知であり、適宜の有機金属錯体を選んで本発明に使用できる。
【００４２】
上記有機層の重量で計算すると、上記電気伝導ドーパントの含有量は０ｗｔ％～９０ｗｔ％である。例えば、上記有機層が電子輸送層または電子注入層であり、電子輸送層／電子注入層における上記電気伝導ドーパントの含有量は、好ましくは２５ｗｔ％～７５ｗｔ％の重量比率の範囲にある。
【００４３】
一つの具体的な実施態様において、上記有機層は電子輸送層である。
【００４４】
一つの具体的な実施態様において、上記電子輸送層は、式（Ｉ）化合物とｎ型の電気伝導ドーパントとを含み、前記ｎ型の電気伝導ドーパントの含有量は０ｗｔ％を超え、かつ、７５ｗｔ％以下である。
【００４５】
一つの具体的な実施態様において、上記有機層の重量で計算すると、式（Ｉ）化合物の含有量は２５ｗｔ％～１００ｗｔ％である。また、上記有機層の厚さは１ｎｍ～５００ｎｍである。
【００４６】
また、もう一つの具体的な実施態様において、上記有機エレクトロルミネセントデバイスは、電子輸送層、電子注入層、発光層、正孔ブロック層および電子ブロック層からなる群から選ばれる少なくとも一つの層をさらに含む。前記発光層は、蛍光または燐光発光体をさらに含む。
【００４７】
一つの具体的な実施態様において、上記陽極から上記有機層までの間は、さらに正孔注入層、正孔輸送層、発光層を含み、上記有機層から上記陰極までの間は、さらに電子注入層を含み、上記有機層は電子輸送層である。
【００４８】
また、式（Ｉ）で表される化合物は、さらに、発光層と電子輸送層との間の層に使用できる。前記発光層は、蛍光および燐光ドーパント、並びにそれぞれ蛍光または燐光ドーパントに対応する蛍光および燐光発光ホストを含んでもよい。
【００４９】
さらに、下記式（Ｉ）で表される化合物は、電子注入・輸送層、または正孔ブロック層および／または電子ブロック層に使用できる。
【００５０】
本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスの構造を、図面に合せて説明する。
【００５１】
図１は、本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスの一つの具体的な実施態様の断面模式図である。有機エレクトロルミネセントデバイス１００は、基板１１０、陽極１２０、正孔注入層１３０、正孔輸送層１４０、発光層１５０、電子輸送層１６０、電子注入層１７０および陰極１８０を含む。有機エレクトロルミネセントデバイス１００は、上記各層を順次に沈積することにより作製できる。図２は、本発明の有機エレクトロルミネセ

ントデバイスのもう一つの具体的な実施態様の断面模式図である。図２に示す有機エレクトロルミネセントデバイスは、図１のものと似ていて、基板２１０、陽極２２０、正孔注入層２３０、正孔輸送層２４０、発光層２５０、電子輸送層２６０、電子注入層２７０および陰極２８０を含んでいるが、図１と違いは、エキシトンブロック層２４５が正孔輸送層２４０と発光層２５０との間に設けられていることである。図３は、本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスのまたもう一つの具体的な実施態様の断面模式図である。図３に示す有機エレクトロルミネセントデバイスは、図１のものと似ていて、基板３１０、陽極３２０、正孔注入層３３０、正孔輸送層３４０、発光層３５０、電子輸送層３６０、電子注入層３７０および陰極３８０を含んでいるが、図１との違いは、エキシトンブロック層３５５が発光層３５０と電子輸送層３６０との間に設けられていることである。

【００５２】

また、図１～図３に示すデバイスの逆構造（ｒｅｖｅｒｓｅ　ｓｔｒｕｃｔｕｒｅ）で有機エレクトロルミネセントデバイスを製造できる。これらの逆構造において、必要に応じて一層または複数層を増減してもよい。

【００５３】

正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層、正孔ブロック層、発光層および電子注入層に適用される材料は、公知の材料を選択してもよい。例えば、電子輸送層を形成する電子輸送材料は、発光層を形成する材料と異なり、正孔を輸送する性質を持つため、電子輸送層において正孔を移動させ、発光層と電子輸送層の解離エネルギーの差によるキャリア蓄積を防止する。

【００５４】

また、米国特許第５８４４３６３号公報には、陽極が結合されたフレキシブル透明基板が開示されており、その全ての内容は本発明に引用される。例えば、米国特許公開２００３０２３０９８０号公報に例示されたｐ型ドープの正孔輸送層は、モル比５０：１で、ｍ－ＭＴＤＡＴＡにＦ$_4$－ＴＣＮＱをドープし、その全ての内容は本発明に引用される。例えば、米国特許公開２００３０２３０９８０号公報に例示されたｎ型ドープの電子輸送層は、モル比１：１で、Ｂｐｈｅｎにリチウムをドープし、その全ての内容は本発明に引用される。例えば、米国特許第５７０３４３６号公報および米国特許第５７０７７４５号公報に例示された陰極の全ての内容は本発明に引用され、この陰極は、金属薄層（例えば、マグネシウム／銀（Ｍｇ：Ａｇ））、およびスパッタリングで沈積して金属薄層を覆う透明導電層（ＩＴＯ　Ｌａｙｅｒ）を有する。米国特許第６０９７１４７号公報および米国特許公開２００３０２３０９８０号公報に開示された各ブロック層の応用および原理は、その全ての内容が本発明に引用される。米国特許公開２００４０１７４１１６号公報に例示された注入層および同出願に説明された保護層は、その全ての内容が本発明に引用される。

【００５５】

特に説明されていない構造および材料も本発明に適用でき、例えば、米国特許第５２４７１９０号公報に開示されたポリマー材料（ＰＬＥＤｓ）を含む有機エレクトロルミネセントデバイスの全ての内容は本発明に引用される。また、単一有機層を有する有機エレクトロルミネセントデバイス、または例えば米国特許第５７０７７４５号公報に開示された堆積して形成された有機エレクトロルミネセントデバイスは、その全内容が本発明に引用される。

【００５６】

特に明記しない限り、異なる実施態様における任意の層は、任意の適宜の方法により沈積して形成できる。有機層に関して、好ましい方法としては、例えば、米国特許第６０１３９８２号公報および米国特許第６０８７１９６号公報に開示された熱蒸着法およびインクジェット印刷法（その全ての内容は本発明に引用される）、米国特許第６３３７１０２号公報に開示された有機気相沈積法（ｏｒｇａｎｉｃ　ｖａｐｏｒ　ｐｈａｓｅ　ｄｅｐｏｓｉｔｉｏｎ、すなわち、ＯＶＰＤ）（その全内容は本発明に引用される）、米国特許第１０／２３３４７０号公報に開示された有機気相インクジェット印刷沈積法（ｄｅｐｏ

ｓｉｔｉｏｎ ｂｙ ｏｒｇａｎｉｃ ｖａｐｏｒ ｊｅｔ ｐｒｉｎｔｉｎｇ、すなわち、ＯＶＪＰ）（その全内容は本発明に引用される）を含む。他の適宜の方法は、スピンコーティング、および溶液に基づいたプロセスを含む。溶液に基づいたプロセスは、好ましくは窒素ガスまたは不活性ガス雰囲気で行う。他の層に関して、好ましい方法としては、熱蒸着法を含む。好ましいパターニング方法は、例えば、米国特許第６２９４３９８号公報および米国特許第６４６８８１９号公報に開示されたマスクを介して沈積して冷間圧接するプロセス、およびインクジェット印刷または有機気相インクジェット印刷沈積とパターニングとを組み合わせたプロセスを含み、その全内容は本発明に引用される。当然ながら、他の方法も使用できる。沈積用の材料は、使用する沈積方法に対応するように調整することができる。

【００５７】

本発明の式（Ｉ）で表される化合物は、真空沈積またはスピンコーティング法により、有機エレクトロルミネセントデバイス用の非晶性フィルムを製作できる。上記化合物をいずれか一つの上記有機層に使用すると、高い発光効率および低い駆動電圧で、長い使用寿命および好ましい熱安定性を示す。

【００５８】

本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスは、単一のデバイスに適用でき、その構造は、アレイ配置またはアレイＸ－Ｙ座標に陰極と陽極の両極が設けられたデバイスである。公知のデバイスと比べて、本発明は、有機エレクトロルミネセントデバイスの発光効率および駆動安定性を有意に向上させることができる。また、発光層における燐光ドーパントと結合し、本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスをフルカラーまたはマルチカラー表示パネルに適用すると、好ましい性能を実現でき、白光を発射できる。

【実施例】

【００５９】

以下、実施例によって本発明の多くの性質および効果を詳細に説明する。これらの実施例は、本発明の性質を説明するためのものだけであって、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【００６０】

合成例１（化合物１－４の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、および３－（３－ピリジル）フェニルボロン酸（３－（３－Ｐｙｒｉｄｙｌ）ｐｈｅｎｙｌｂｏｒｏｎｉｃ ａｃｉｄ）（５．１４ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１－４（４．７ｇ、収率４０．５％）を得た。

^{1}Ｈ ＮＭＲ （４００ ＭＨｚ，$CDCl_3$，δ）：

９．９４３（ｓ，１Ｈ）；９．００１－８．９８１（ｄ，Ｈ）；８．９４４（ｓ，１Ｈ）；８．７７６－８．７６３（ｄ，１Ｈ）；８．６４７－８．６４０（ｄ，１Ｈ）；８．４３６－８．３９１（ｔ，４Ｈ）；８．１６７（ｓ，１Ｈ）；７．９８２－７．９６１（ｄ，１Ｈ）；７．８７８－７．８１３（ｍ，５Ｈ）；７．７４１－７．６３３（ｍ，５Ｈ）；７．５２６－７．４１９（ｍ，５Ｈ）。

【００６１】

合成例２（化合物１－５の合成）
４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、および３－ビフェニルボロン酸（３－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ　ｂｏｒｏｎｉｃ　ａｃｉｄ）（５．１２ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１－５（５．８ｇ、収率５０．０％）を得た。
^1H　ＮＭＲ　（４００　ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$，δ）：
９．９４６－９．９４３（ｄ，１Ｈ）；８．９９６－８．９７６（ｄ，１Ｈ）；８．７７７－８．７６０（ｄ，１Ｈ）；８．４２３－８．３８８（ｔ，４Ｈ）；８．１６１（ｓ，１Ｈ）；７．９１０－７．８１１（ｍ，５Ｈ）；７．７１８－７．６３２（ｍ，６Ｈ）；７．５９５－７．５５８（ｔ，１Ｈ）；７．５２６－７．４７６（ｍ，５Ｈ）；７．４３９－７．３８２（ｍ，２Ｈ）。
【００６２】
合成例３（化合物１－６の合成）
４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、およびジベンゾフラン－４－ボロン酸（ｄｉｂｅｎｚｏｆｕｒａｎ－４－ｂｏｒｏｎｉｃ　ａｃｉｄ）（５．４８ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１－６（７．２ｇ、収率６０．６％）を得た。
^1H　ＮＭＲ　（４００　ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$，δ）：
９．９６５－９．９６１（ｓ，１Ｈ）；９．０２８－８．９９８（ｄ，１Ｈ）；８．７８４－８．７６８（ｄ，１Ｈ）；８．５０７－８．４８６（ｄ，２Ｈ）；８．４２４－８．４０３（ｄ，２Ｈ）；８．２０８（ｓ，１Ｈ）；８．１７７－８．１５５（ｄ，２Ｈ）；８．０３７－７．９９７（ｔ，２Ｈ）；７．８４２－７．８２１（ｄ，２Ｈ）；７．７３３－７．７０５（ｄ，３Ｈ）；７．６５８－７．６３７（ｄ，１Ｈ）；７．５３０－７．４７５（ｍ，５Ｈ）；７．４３９－７．３７７（ｍ，２Ｈ）。
【００６３】
合成例４（化合物１－７の合成）
４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、およびジベンゾチオフェン－４－ボロン酸（Ｄｉｂｅｎｚｏｔｈｉｏｐｈｅｎｅ－４－

ｂｏｒｏｎｉｃ ａｃｉｄ）（５．８９ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１－７（７．１ｇ、収率５８．０％）を得た。

^1H ＮＭＲ （４００ ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$，δ）：

９．９６５－９．９５９（ｄ，１Ｈ）；９．０１５－８．９９６（ｍ，１Ｈ）；８．７８７－８．７７２（ｍ，１Ｈ）；８．４６９－８．４０７（ｍ，４Ｈ）；８．２３１－８．２０３（ｍ，３Ｈ）；７．９９５－７．９７４（ｄ，２Ｈ）；７．８８３－７．８２２（ｍ，３Ｈ）；７．７２６－７．７０３（ｄ，２Ｈ）；７．６４１－７．５７８（ｍ，２Ｈ）；７．５３１－７．４０３（ｍ，６Ｈ）。

【００６４】

合成例５（化合物１－１０の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、および４－（１－フェニル－１Ｈ－ベンゾ［ｄ］イミダゾール－２－イル）フェニルボロン酸（４－（１－ｐｈｅｎｙｌ－１Ｈ－ｂｅｎｚｏ［ｄ］ｉｍｉｄａｚｏｌ－２－ｙｌ）ｐｈｅｎｙｌｂｏｒｏｎｉｃ ａｃｉｄ（８．１２ｇ、２５．８ｍｍｏｌ））を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１－１０（３．１ｇ、収率４３．０％）を得た。

^1H ＮＭＲ （４００ ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$，δ）：

９．９３１（ｓ，１Ｈ）；８．９９２－８．９６９（ｄ，１Ｈ）；８．７５７（ｄ，１Ｈ）；８．３６９－８．３６２（ｄ，４Ｈ）；８．１４８（ｓ，１Ｈ）；７．９２９－７．９１０（ｄ，１Ｈ）；７．８２２－７．８０２（ｄ，４Ｈ）；７．７２９－７．６４４（ｍ，７Ｈ）；７．５６５－７．４８７（ｍ，７Ｈ）；７．４３３－７．３８６（ｍ，４Ｈ）。

【００６５】

合成例６（化合物２－６の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－４－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－４－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、およびジベンゾフラン－４－ボロン酸（ｄｉｂｅｎｚｏｆｕｒａｎ－４－ｂｏｒｏｎｉｃ ａｃｉｄ）（５．４８ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イ

オン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物２－６（９．６ｇ、収率８０．９％）を得た。

^{1}Ｈ ＮＭＲ （４００ ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$，δ）：

８．８６８－８．８５３（ｄ，２Ｈ）；８．６１７－８．６０２（ｄ，２Ｈ）；８．５１４－８．４８７（ｄ，２Ｈ）；８．４２４－８．４０３（ｄ，２Ｈ）；８．２４８（ｓ，１Ｈ）；８．１８７－８．１６０（ｄ，２Ｈ）；８．０３８－８．００５（ｔ，２Ｈ）；７．８５２－７．８２５（ｄ，２Ｈ）；７．７３４－７．７０３（ｍ，３Ｈ）；７．６５６－７．６３７（ｄ，１Ｈ）；７．５３４－７．４７８（ｍ，４Ｈ）；７．４４８－７．３８０（ｍ，２Ｈ）。

【００６６】

合成例７（化合物２－１０の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（４－ブロモフェニル）－２－ピリジン－４－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（４－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－４－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、および４－（１－フェニル－１Ｈ－ベンゾ［ｄ］イミダゾール－２－イル）フェニルボロン酸（４－（１－ｐｈｅｎｙｌ－１Ｈ－ｂｅｎｚｏ［ｄ］ｉｍｉｄａｚｏｌ－２－ｙｌ）ｐｈｅｎｙｌｂｏｒｏｎｉｃ ａｃｉｄ）（８．１２ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、Ｐｄ（ＰＰｈ$_{3}$）$_{4}$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物２－１０（１１ｇ、収率７８．０％）を得た。

^{1}Ｈ ＮＭＲ （４００ ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$，δ）：

δ ８．８４７－８．８３３（ｄ，２Ｈ）；８．５７４－８．５５９（ｄ，２Ｈ）；８．３９０－８．３５９（ｍ，４Ｈ）；８．１６８（ｓ，１Ｈ）；７．９３２－７．９１２（ｄ，１Ｈ）；７．８２３－７．７９１（ｍ，４Ｈ）；７．７３０－７．６８７（ｔ，４Ｈ）；７．６５６－７．６３５（ｄ，２Ｈ）；７．５８６－７．４８６（ｍ，５Ｈ）；７．４３６－７．３４６（ｍ，４Ｈ）；７．３１４－７．２５８（ｔ，２Ｈ）。

【００６７】

合成例８（化合物１２－４の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（３－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（３－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、および３－（３－ピリジル）フェニルボロン酸（３－（３－Ｐｙｒｉｄｙｌ）ｐｈｅｎｙｌｂｏｒｏｎｉｃ ａｃｉｄ）（５．１４ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、Ｐｄ（ＰＰｈ$_{3}$）$_{4}$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥

して、白色固体として化合物１２－４（８．７ｇ、収率７５．０％）を得た。
^{1}Ｈ　ＮＭＲ　（４００　ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$，δ）：
９．９３３－９．９３７（ｓ，１Ｈ）；８．９８７－８．９５０（ｔ，２Ｈ）；８．７６６－８．７５５（ｄ，１Ｈ）；８．６４４－８．６３２（ｄ，１Ｈ）；８．５３１（ｓ，１Ｈ）；８．４０３－８．３８２（ｄ，２Ｈ）；８．３１４－８．２９４（ｄ，１Ｈ）；８．１６７（ｓ，１Ｈ）；７．９８７－７．９６６（ｄ，１Ｈ）；７．８８８（ｓ，１Ｈ）；７．８４７－７．６３８（ｍ，９Ｈ）；７．５１８－７．４００（ｍ，５Ｈ）。

【００６８】

合成例９（化合物１２－６の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（３－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（３－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、およびジベンゾフラン－４－ボロン酸（ｄｉｂｅｎｚｏｆｕｒａｎ－４－ｂｏｒｏｎｉｃ　ａｃｉｄ）（５．４８ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１２－６（８．１ｇ、収率６８．０％）を得た。
^{1}Ｈ　ＮＭＲ　（４００　ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$，δ）：
９．９７０（ｄ，１Ｈ）；９．０２２－８．９９２（ｄ，１Ｈ）；８．８４８－８．８４０（ｔ，１Ｈ）；８．７７０－８．７６１（ｄ，１Ｈ）；８．４１５－８．３９４（ｄ，２Ｈ）；８．３６２－８．３４２（ｄ，１Ｈ）；８．２０９（ｓ，１Ｈ）；８．１３９－８．１２１（ｄ，１Ｈ）；８．０４６－８．００８（ｔ，２Ｈ）；７．８２４－７．６４１（ｍ，４Ｈ）；７．５３４－７．４６６（ｍ，５Ｈ）；７．４３１－７．３７８（ｍ，２Ｈ）。

【００６９】

合成例１０（化合物１２－１０の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（３－ブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（３－ｂｒｏｍｏｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、２１．５ｍｍｏｌ）、および４－（１－フェニル－１Ｈ－ベンゾ［ｄ］イミダゾール－２－イル）フェニルボロン酸（４－（１－ｐｈｅｎｙｌ－１Ｈ－ｂｅｎｚｏ［ｄ］ｉｍｉｄａｚｏｌ－２－ｙｌ）ｐｈｅｎｙｌｂｏｒｏｎｉｃ　ａｃｉｄ）（８．１２ｇ、２５．８ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物１２－１０（７．８ｇ、収率５５．４％）を得た。
^{1}Ｈ　ＮＭＲ　（４００　ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$，δ）：
９．９２５（ｓ，１Ｈ）；８．９７７－８．９５９（ｄ，１Ｈ）；８．７６７－８．７

５７（ｄ，１Ｈ）；８．４９０（ｓ，１Ｈ）；８．３９８－８．３７７（ｄ，１Ｈ）；８．２７２－８．２５１（ｄ，１Ｈ）；８．１４０（ｓ，１Ｈ）；７．９３１－７．９１１（ｄ，１Ｈ）；７．８２３－７．７７６（ｔ，３Ｈ）；７．７４８－７．６３１（ｍ，８Ｈ）；７．５８３－７．４７１（ｍ，７Ｈ）；７．４３３－７．３４６（ｍ，４Ｈ）。

【００７０】

合成例１１（化合物２３－６の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（３，５－ジブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（３，５－ｄｉｂｒｏｍｏ－ｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、１８．４ｍｍｏｌ）、およびジベンゾフラン－４－ボロン酸（ｄｉｂｅｎｚｏｆｕｒａｎ－４－ｂｏｒｏｎｉｃ　ａｃｉｄ）（８．６ｇ、４０．６ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物２３－６（７．２ｇ、収率５４．４％）を得た。

^1H ＮＭＲ（４００ ＭＨｚ，$CDCl_3$，δ）：

δ １０．００９－１０．００３（ｄ，１Ｈ）；９．０５３－９．０３３（ｄ，１Ｈ）；８．８８７－８．８８３（ｓ，２Ｈ）；８．７７８－８．７６６（ｄ，１Ｈ）；８．６２７（ｔ，１Ｈ）；８．４４０－８．４１８（ｄ，２Ｈ）；８．３０２（ｓ，１Ｈ）；８．０６４－８．０４５（ｄ，１Ｈ）；７．８５４－７．８０７（ｍ，４Ｈ）；７．７０７－７．６５１（ｍ，４Ｈ）；７．５７２－７．４６９（ｍ，７Ｈ）；７．４２３－７．３８７（ｍ，３Ｈ）。

【００７１】

合成例１２（化合物２３－８の合成）

４－ビフェニル－４－イル－６－（３，５－ジブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（３，５－ｄｉｂｒｏｍｏ－ｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、１８．４ｍｍｏｌ）、およびナフタレン－１－イルボロン酸（Ｎａｐｈｔｈａｌｅｎ－１－ｙｌｂｏｒｏｎｉｃ　ａｃｉｄ（７．９ｇ、４５．９ｍｍｏｌ））を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１００ｍｌを加え、K_2CO_3（４．４６ｇ、３２．３ｍｍｏｌ）を４０ｍｌの脱イオン水に溶解して反応フラスコに加え、$Pd(PPh_3)_4$（０．３７１ｇ、０．３ｍｍｏｌ）を加えた後、エタノール２０ｍｌを加え、撹拌しながら８０℃で１６時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、白色固体として化合物２３－８（１１ｇ、収率９４．０％）を得た。

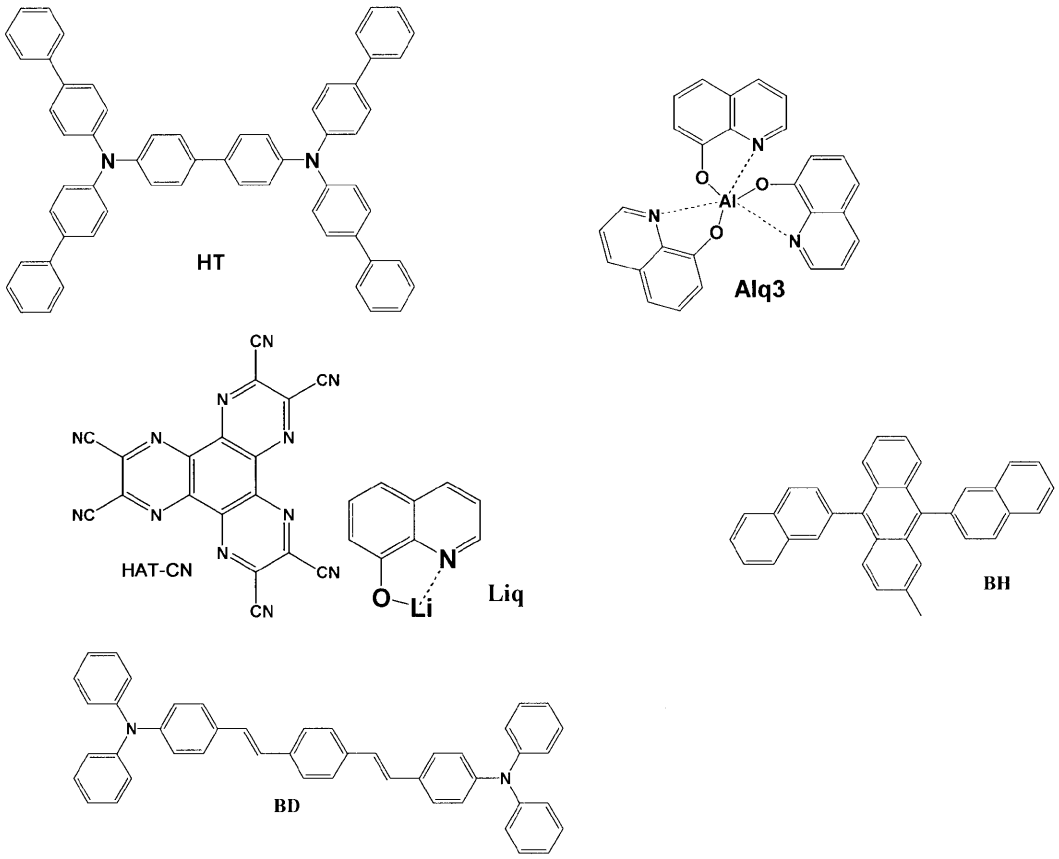
^1H ＮＭＲ（４００ ＭＨｚ，$CDCl_3$，δ）：

９．９０５（ｄ，１Ｈ）；８．９２８－８．９２３（ｄ，１Ｈ）；８．７２０（ｄ，１Ｈ）；８．５０３（ｓ，２Ｈ）；８．３８３－８．３５２（ｄ，２Ｈ）；８．１９２（ｓ，１Ｈ）；８．１２３－８．１０３（ｄ，２Ｈ）；７．９７７－７．９４１（ｔ，４Ｈ）；７．８６９（ｄ，１Ｈ）；７．７９０－７．７５９（ｄ，２Ｈ）；７．６８４－７．３８０（ｍ，１４Ｈ）。

【００７２】

合成例１３（化合物３６－１の合成）
４－ビフェニル－４－イル－６－（３，５－ジブロモフェニル）－２－ピリジン－３－イル－ピリミジン（４－Ｂｉｐｈｅｎｙｌ－４－ｙｌ－６－（３，５－ｄｉｂｒｏｍｏ－ｐｈｅｎｙｌ）－２－ｐｙｒｉｄｉｎ－３－ｙｌ－ｐｙｒｉｍｉｄｉｎｅ）（１０ｇ、１８．４ｍｍｏｌ）、カルバゾール（ｃａｒｂａｚｏｌｅ）（７．１ｇ、４２．４ｍｍｏｌ）、およびＳＴＢ（１３．１１６ｇ、１３．６ｍｍｏｌ）を反応フラスコに入れ、さらにトルエン１５０ｍｌを加えて撹拌し、Ｐｄ（ｄｂａ）$_2$（０．６７３ｇ、１．１７ｍｍｏｌ）とＰ（ｔ－ｂｕｔｙｌ）$_3$（０．６６２ｇ、０．３１２ｍｍｏｌ）を加え、撹拌しながら１１５℃で１８時間還流反応させた。反応終了後、１５０ｍｌ脱イオン水を加えて室温まで撹拌し、固体をろ過して脱イオン水とアセトンで洗浄し、固体に２００ｍｌ脱イオン水、５０ｍｌメタノールおよび５０ｍｌアセトンの混合溶液を加えて３０分間撹拌し、再びろ過し、２回繰り返した。固体を乾燥し、１０００ｍｌトルエンで加熱溶解した後、シリカゲルカラムに通して、蒸留濃縮した後、３００ｍｌメタノールを加えて３０分間撹拌、ろ過し、乾燥して、黄色固体として化合物３６－１（６．３ｇ、収率４８．０％）を得た。
^{1}Ｈ ＮＭＲ （４００ ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_3$，δ）：
９．８９８－９．８９４（ｄ，１Ｈ）；８．９４０－８．９１０（ｄ，１Ｈ）；８．７５２－８．７３６（ｄ，１Ｈ）；８．６４０－８．６３５（ｄ，２Ｈ）；８．３８０－８．３５４（ｄ，２Ｈ）；８．２１９－８．２００（ｄ，４Ｈ）；８．１６３（ｓ，１Ｈ）；８．０３８－８．０２８（ｔ，１Ｈ）；７．７９９－７．７６８（ｄ，２Ｈ）；７．６８２－７．６３１（ｍ，６Ｈ）；７．５１９－７．３４５（ｍ，１２Ｈ）。
【００７３】
実施例１（有機エレクトロルミネセントデバイスの製造）
基板を蒸着システムに供する前に、予め溶剤および紫外線オゾンで基板を洗浄し、脱脂を行った。その後、基板を真空沈積室に搬送し、基板の上部に全での層を沈積した。図２に示す各層は、加熱された蒸着ボート（ｂｏａｔ）により、約10^{-6}トルの真空度で、以下の順で沈積した。
ａ）正孔注入層、厚さ２０ｎｍ、ＨＡＴ－ＣＮ。
ｂ）正孔輸送層、厚さ６０ｎｍ、ＨＴ。
ｃ）発光層、厚さ３０ｎｍ、３％体積比でＢＤをドープしたＢＨを含む（ＢＨとＢＤは商品名、台湾いくらい光電科技株式会社製）。
ｄ）電子輸送層、厚さ２５ｎｍ、化合物１－４とドープしたキノリンリチウム（Ｌｉｑ）とを含む。
ｅ）電子注入層、厚さ１ｎｍ、フッ化リチウム（ＬｉＦ）。
ｆ）陰極、厚さは約１５０ｎｍ、Ａ１を含む。
デバイスの構造は、ＩＴＯ／ＨＡＴ－ＣＮ（２０ｎｍ）／ＨＴ（６０ｎｍ）／ＢＨ－３％ＢＤ（３０ｎｍ）／化合物１－４（２５ｎｍ）：Ｌｉｑ（１ｎｍ）／フッ化リチウム（１ｎｍ）／Ａ１（１５０ｎｍ）で示されてもよい。
【００７４】

【化１６】



【００７５】
上記各層を沈積して形成した後、上記デバイスを沈積室から乾燥箱に搬送し、直ちにＵＶ硬化性エポキシ樹脂と、吸湿剤を含むガラス蓋板とで封止した。上記有機エレクトロルミネセントデバイスは、３ｍｍ^{2}の発光区域を有した。外部電源に接続した後、上記有機エレクトロルミネセントデバイスは、直流電圧で動作し、その発光性質を下記表１のように確認した。
【００７６】
全ての製造された有機エレクトロルミネセントデバイスのエレクトロルミネセント性質は、いずれも定電流源（ＫＥＩＴＨＬＥＹ ２４００ Ｓｏｕｒｃｅ Ｍｅｔｅｒ, ｍａｄｅ ｂｙ Ｋｅｉｔｈｌｅｙ Ｉｎｓｔｒｕｍｅｎｔｓ, Ｉｎｃ., Ｃｌｅｖｅｌａｎｄ, Ｏｈｉｏ）および光度計（ＰＨＯＴＯ ＲＥＳＥＡＲＣＨ Ｓｐｅｃｔｒａ Ｓｃａｎ ＰＲ ６５０, ｍａｄｅ ｂｙ Ｐｈｏｔｏ Ｒｅｓｅａｒｃｈ, Ｉｎｃ., Ｃｈａｔｓｗｏｒｔｈ, Ｃａｌｉｆ.）を使用し、室温で測定した。
【００７７】
デバイスの使用寿命（安定性とも称す）は、定電流駆動で発光層の光色を室温および異なる初期光度によって試験を行った。光色は、国際照明委員会が定めたＣＩＥ坐標で示した。
【００７８】
実施例２～６（有機エレクトロルミネセントデバイスの製造）
実施例１において、電子輸送層の化合物１－４を、それぞれ化合物１－６、１－７、１２－６、２３－８および３６－１に替える以外、実施例２、実施例３、実施例４、実施例５および実施例６は、実施例１と同じ層構造を有した。
【００７９】
比較例１（有機エレクトロルミネセントデバイスの製造）

実施例１において、電子輸送層の化合物１－４をＥＴに替える以外、比較例１の製造は、実施例１と似ている層構造を有した。比較例１のデバイスの構造は、ＩＴＯ／ＨＡＴ－ＣＮ（２０ｎｍ）／ＨＴ（６０ｎｍ）／ＢＨ－３％ＢＤ（３０ｎｍ）／ＥＴ：Ｌｉｑ（２０ｎｍ）／ＬｉＦ（１ｎｍ）／Ａ１（１５０ｎｍ）で示されてもよい。

【００８０】

製造された有機エレクトロルミネセントデバイスの発光のピーク波長、最大発光効率、駆動電圧および安定性を表１に示した。図４は、製造された有機エレクトロルミネセントデバイスのエレクトロルミネセントスペクトルであった。

【００８１】

【表２】

表１

	化合物（濃度%）	発光ピーク（ｎｍ）	駆動電圧（Ｖ）	最大発光効率（cd／A）@10mA／cm^2	出力効率（ｌｍ／Ｗ）	使用安定性T^{97}（時間）@1000 輝度
実施例１	化合物１－４（４）	４６８	４．５７	９．５１	６．５４	６２．５
実施例２	化合物１－６（４）	４６８	４．７８	９．６８	６．３６	６２．０
実施例３	化合物１－７（４）	４６８	４．６２	９．８３	６．６９	７５．０
実施例４	化合物１２－６（４）	４６８	４．７４	１０．２６	６．８０	５０．０
実施例５	化合物２３－８（４）	４６８	５．０１	１０．８５	６．８０	４２．５
実施例６	化合物３６－１（４）	４６８	５．３９	８．３８	４．８９	７５．０
比較例１	ＥＴ（４）	４６８	４．７５	９．８５	６．５２	２４．６

【００８２】

本発明は、上記実施例、方法および実例に限定されず、本発明の請求する範囲および精神における全ての実施例および方法に基づくものである。

【産業上の利用可能性】

【００８３】

上記のように、有機エレクトロルミネセントデバイス用の材料を含む本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスは、長い使用寿命の特性を実現でき、高い発光効率を有し、低い駆動電圧を維持できる。そのため、本発明の有機エレクトロルミネセントデバイスは、極めて高い技術的価値を有し、フラットパネルディスプレー、携帯通信デバイスのディスプレー、面発光体の特性を利用した光源、記号板に適用できる。

【符号の説明】

【００８４】

１００、２００、３００　有機エレクトロルミネセントデバイス
１１０、２１０、３１０　基板
１２０、２２０、３２０　陽極
１３０、２３０、３３０　正孔注入層
１４０、２４０、３４０　正孔輸送層
１５０、２５０、３５０　発光層

１６０、２６０、３６０	電子輸送層
１７０、２７０、３７０	電子注入層
１８０、２８０、３８０	陰極
２４５、３５５	エキシトンブロック層

【図１】

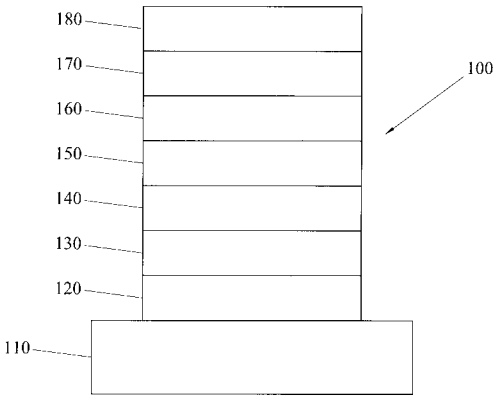


図１

【図２】

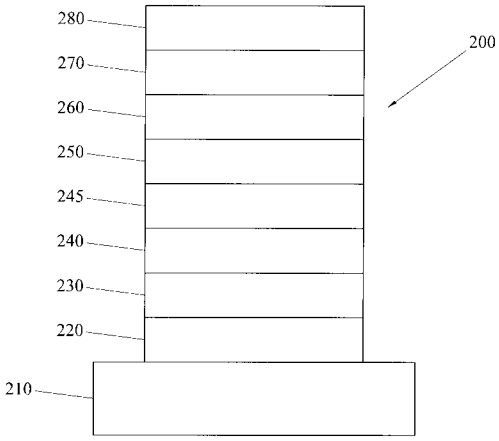


図２

【図３】

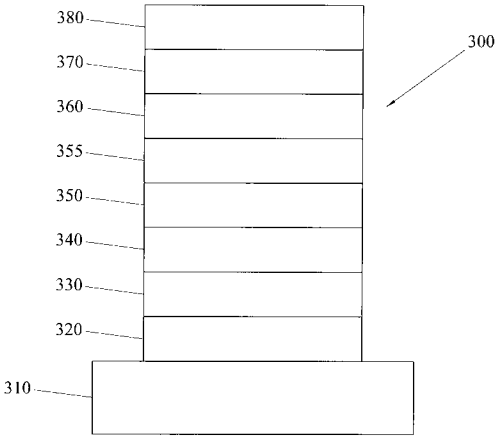

380
370
360
355
350
340
330
320
310
300

図３

【図４】

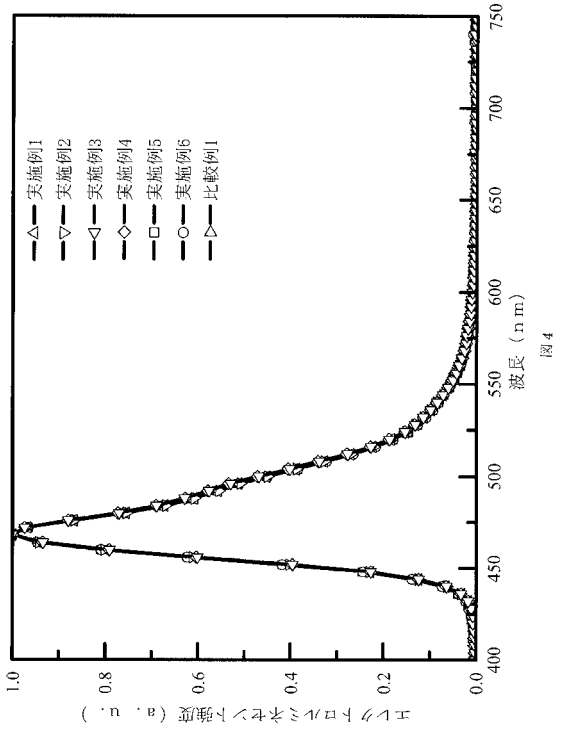

△ 実施例1
▽ 実施例2
◁ 実施例3
◇ 実施例4
□ 実施例5
○ 実施例6
▷ 比較例1
400
450
500
550
600
650
700
750
波長（ｎｍ）
0.0
0.2
0.4
0.6
0.8
1.0

図４

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
Ｃ０７Ｄ 405/10	*(2006.01)*	Ｃ０７Ｄ	409/14	
Ｃ０７Ｄ 403/10	*(2006.01)*	Ｃ０７Ｄ	405/10	
Ｃ０７Ｄ 239/26	*(2006.01)*	Ｃ０７Ｄ	403/10	
		Ｃ０７Ｄ	239/26	

(72)発明者　傅　益煥
台湾桃園市▲歷▼區民権路三段３３４巷５６號１樓
(72)発明者　林　皇穎
台湾桃園市▲歷▼區民権路三段３３４巷５６號１樓
(72)発明者　林　祺臻
台湾桃園市▲歷▼區民権路三段３３４巷５６號１樓

Ｆターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC04 CC12 CC21 DD66 DD67 DD71 DD74 DD76
DD78 FF14 FF15
4C063 AA01 AA03 BB01 BB06 CC29 CC76 CC94 DD08 DD12 DD29
EE10

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的化合物和使用该化合物的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2017175099A	公开(公告)日	2017-09-28
申请号	JP2016146096	申请日	2016-07-26
申请(专利权)人(译)	▲いく▼▲雷▼光电科技股▲分▼有限公司		
[标]发明人	黄賀隆 傅益煥 林皇穎 林祺臻		
发明人	黄 賀隆 傅 益煥 林 皇穎 林 祺臻		
IPC分类号	H01L51/50 C07D401/14 C07D401/04 C07D405/14 C07D409/14 C07D405/10 C07D403/10 C07D239/26		
CPC分类号	C07D239/26 C07D401/04 C07D401/10 C07D401/14 C07D403/04 C07D403/10 C07D403/14 C07D405/04 C07D405/10 C07D405/14 C07D409/04 C07D409/10 C07D409/14 C09K11/06 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1088 C09K2211/1092 H01L51/0065 H01L51/0067 H01L51/0068 H01L51/0072 H01L51/0073 H01L51/0074 H01L51/50 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1014 H01L51/0058 H01L51/5076 H01L51/5016 H01L51/0052 H01L51/0059 H01L51/5012 H01L51/5072 H01L2251/558		
FI分类号	H05B33/22.B H05B33/14.A C07D401/14.CSP C07D401/04 C07D405/14 C07D409/14 C07D405/10 C07D403/10 C07D239/26 H05B33/14.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC12 3K107/CC21 3K107/DD66 3K107/DD67 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD76 3K107/DD78 3K107/FF14 3K107/FF15 4C063/AA01 4C063/AA03 4C063/BB01 4C063/BB06 4C063/CC29 4C063/CC76 4C063/CC94 4C063/DD08 4C063/DD12 4C063/DD29 4C063/EE10		
代理人(译)	村山彦 安倍晋三龙彦		
优先权	105109396 2016-03-25 TW		
其他公开文献	JP6535638B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种用于有机电致发光器件的化合物以及使用该化合物的有机电致发光器件。 在式（I）中，X1，A1和n具有与说明书中定义相同的含义，并且使用由式（I）表示的新型化合物和上述化合物。 提供一种有机电致发光器件。 [选型图]图1

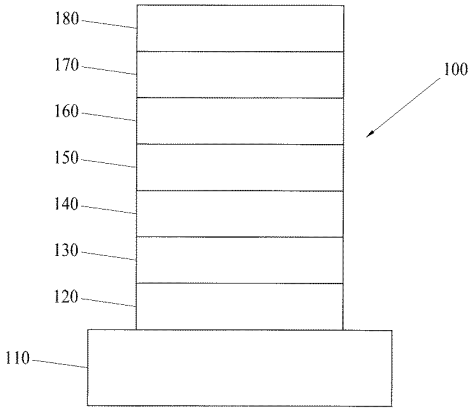


図1