

(19)日本国特許庁(JP)

## (12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7159173号

(P7159173)

(45)発行日 令和4年10月24日(2022.10.24)

(24)登録日 令和4年10月14日(2022.10.14)

(51)国際特許分類

F I

C 0 7 D 401/04 (2006.01)

C 0 7 D 401/04

C S P

C 0 7 D 405/14 (2006.01)

C 0 7 D 405/14

C 0 7 D 401/14 (2006.01)

C 0 7 D 401/14

C 0 7 D 409/14 (2006.01)

C 0 7 D 409/14

H 0 1 L 51/50 (2006.01)

H 0 5 B 33/22

B

請求項の数 6 (全45頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2019-541014(P2019-541014)

(86)(22)出願日 平成30年9月7日(2018.9.7)

(86)国際出願番号 PCT/JP2018/033140

(87)国際公開番号 WO2019/049965

(87)国際公開日 平成31年3月14日(2019.3.14)

審査請求日 令和3年6月22日(2021.6.22)

(31)優先権主張番号 特願2017-174340(P2017-174340)

(32)優先日 平成29年9月11日(2017.9.11)

(33)優先権主張国・地域又は機関

日本国(JP)

(73)特許権者 000005315

保土谷化学工業株式会社

東京都港区東新橋一丁目9番2号

(74)代理人 110003339

特許業務法人南青山国際特許事務所

(74)代理人 100104215

弁理士 大森 純一

(74)代理人 100196575

弁理士 高橋 満

(74)代理人 100117330

弁理士 折居 章

(74)代理人 100168181

弁理士 中村 哲平

(74)代理人 100160989

弁理士 関根 正好

最終頁に続く

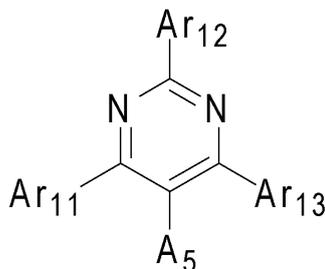
(54)【発明の名称】 ピリミジン環構造を有する化合物および有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(5)で表される、ピリミジン環構造を有する化合物。

【化1】



(5)

(式中、A<sub>5</sub>は置換または無置換の芳香族複素環基を表す。前記A<sub>5</sub>の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジア

ガスピロピフルオレニル基またはカルボリニル基である。 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。前記 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ の内、少なくとも1カ所が縮合多環芳香族基、芳香族複素環基、または置換基として、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、またはジベンゾチエニル基である。 $Ar_{13}$ は水素原子を表す。)

【請求項2】

一对の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、請求項1に記載のピリミジン環構造を有する化合物が、少なくとも1つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする

10

有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】

請求項2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が電子輸送層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】

請求項2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が正孔阻止層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項5】

請求項2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が発光層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】

請求項2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が電子注入層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

30

【技術分野】

【0001】

本発明は、各種の表示装置に好適な自発光素子である有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と略称する）に適した化合物と素子に関するものであり、詳しくはピリミジン環構造を有する化合物と、該化合物を用いた有機EL素子に関するものである。

【背景技術】

【0002】

有機EL素子は自己発光性素子であるため、液晶素子に比べて明るく視認性に優れ、鮮明な表示が可能であることから、活発な研究がなされてきた。

40

【0003】

1987年にイーストマン・コダック社のC. W. Tangらは各種の役割を各材料に分担した積層構造素子を開発することにより、有機材料を用いた有機EL素子を実用的なものにした。彼らは電子を輸送することのできる蛍光体と正孔を輸送することのできる有機物とを積層し、両方の電荷を蛍光体の層の中に注入して発光させることにより、10V以下の電圧で1000cd/m<sup>2</sup>以上の高輝度が得られるようになった（例えば、特許文献1および特許文献2参照）。

【0004】

現在まで、有機EL素子の実用化のために多くの改良がなされ、積層構造の各種の役割をさらに細分化して、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸

50

送層、電子注入層、陰極を設けた電界発光素子によって高効率と耐久性が達成されるようになってきた（例えば、非特許文献1参照）。

【0005】

また、発光効率の更なる向上を目的として三重項励起子の利用が試みられ、燐光発光性化合物の利用が検討されている（例えば、非特許文献2参照）。

そして、熱活性化遅延蛍光（TADF）による発光を利用する素子も開発されており、2011年に九州大学の安達らは、熱活性化遅延蛍光材料を用いた素子によって5.3%の外部量子効率を実現させた。（例えば、非特許文献3参照）

【0006】

発光層は、一般的にホスト材料と称される電荷輸送性の化合物に、蛍光性化合物や燐光発光性化合物または遅延蛍光を放射する材料をドーブして作製することもできる。前記非特許文献に記載されているように、有機EL素子における有機材料の選択は、その素子の効率や耐久性など諸特性に大きな影響を与える。（例えば、非特許文献2参照）

10

【0007】

有機EL素子においては、両電極から注入された電荷が発光層で再結合して発光が得られるが、正孔、電子の両電荷を如何に効率良く発光層に受け渡すかが重要である。その為には、電子注入性を高め、その移動度を大きくすることで、正孔と電子が発光層内で再結合する確率を向上させことであり、更には、陽極側から輸送された正孔を発光層に閉じ込めること、電子輸送層の劣化を防ぐこと、また、発光層内で生成した励起子を閉じ込めることによって、より再結合する環境を作り上げ、高効率発光を得ることができる。故に、電子輸送材料の果たす役割は重要であり、電子注入性が高く、電子移動度が大きく、正孔阻止性が高く、更には正孔に対する耐久性が高い電子輸送材料が求められている。

20

【0008】

また、素子の寿命に関しては材料の耐熱性やアモルファス性も重要である。耐熱性が低い材料では、素子駆動時に生じる熱により、低い温度でも熱分解が起こり、材料が劣化する。アモルファス性が低い材料では、短い時間でも薄膜の結晶化が起こり、素子が劣化してしまう。そのため使用する材料には耐熱性が高く、アモルファス性が良好な性質が求められる。

【0009】

代表的な発光材料であるトリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム（以後、Alq3と略称する）は電子輸送材料としても一般的に用いられるが、電子移動が遅く、また仕事関数が5.6 eVなので正孔阻止性能が十分とは言えない。

30

【0010】

電子注入性や移動度などの特性を改良した化合物として、ベンゾトリアゾール構造を有する化合物が提案されているが（例えば、特許文献3）、これらの化合物をまたは電子輸送層に用いた素子では、発光効率などの改良はされているものの、未だ十分とはいえず、さらなる低駆動電圧化や、さらなる高発光効率化が求められている。

【0011】

また、正孔阻止性に優れた電子輸送材料として、3-(4-ピフェニル)-4-フェニル-5-(4-t-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール（以後、TAZと略称する）が提案されている（例えば、特許文献4参照）。

40

【0012】

TAZは仕事関数が6.6 eVと大きく正孔阻止能力が高いために、真空蒸着や塗布などによって作製される蛍光発光層や燐光発光層の、陰極側に積層する電子輸送性の正孔阻止層として使用され、有機EL素子の高効率化に寄与している（例えば、非特許文献4参照）。

【0013】

しかし電子輸送性が低いことがTAZにおける大きな課題であり、より電子輸送性の高い電子輸送材料と組み合わせ、有機EL素子を作製することが必要であった（例えば、非特許文献5参照）。

50

## 【0014】

また、BCPにおいても仕事関数が6.7 eVと大きく正孔阻止能力が高いものの、ガラス転移点(T<sub>g</sub>)が83 と低いことから、薄膜の安定性に乏しく、正孔阻止層として十分に機能しているとは言えない。

## 【0015】

いずれの材料も膜安定性が不足しており、もしくは正孔を阻止する機能が不十分である。有機EL素子の素子特性を改善させるために、電子の注入・輸送性能と正孔阻止能力に優れ、薄膜状態での安定性が高い有機化合物が求められている。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

10

## 【0016】

【文献】特開平8-048656号公報

特許第3194657号公報

国際公開第2013/054764号

特許登録第2734341号

国際公開第2015/190400号

国際公開第2010/074422号

国際公開第2014/009310号

国際公開第2003/060956号

## 【非特許文献】

20

## 【0017】

【文献】応用物理学会第9回講習会予稿集55～61ページ(2001)

応用物理学会第9回講習会予稿集23～31ページ(2001)

Appl. Phys. Lett., 98, 083302(2011)

第50回応用物理学関係連合講演会28p-A-6講演予稿集1413ページ(2003)

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会誌11巻1号13～19ページ(2000)

J. Org. Chem., 2001, 66, 7125-7128

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

30

## 【0018】

本発明の目的は高効率、高耐久性の有機EL素子用材料として、電子注入・輸送性能に優れ、正孔阻止能力を有し、薄膜状態での安定性が高い優れた特性を有する有機化合物を提供し、更にこの化合物を用いて、高効率、高耐久性の有機EL素子を提供することにある。

## 【0019】

本発明が提供しようとする有機化合物が具備すべき物理的な特性としては、(1)電子の注入特性が良いこと、(2)電子の移動度が大きいこと、(3)正孔阻止能力に優れること、(4)薄膜状態が安定であること、(5)耐熱性に優れていることをあげることができる。また、本発明が提供しようとする有機EL素子が具備すべき物理的な特性としては、(1)発光効率および電力効率が高いこと、(2)発光開始電圧が低いこと、(3)実用駆動電圧が低いこと、(4)長寿命であること、をあげることができる。

40

## 【課題を解決するための手段】

## 【0020】

そこで本発明者らは上記の目的を達成するために、電子親和性であるピリミジン環の窒素原子が金属に配位する能力を有していることと、耐熱性に優れているということに着目して、ピリミジン環構造を有する化合物を設計して化学合成し、該化合物を用いて種々の有機EL素子を試作し、素子の特性評価を鋭意行なった結果、本発明を完成するに至った。

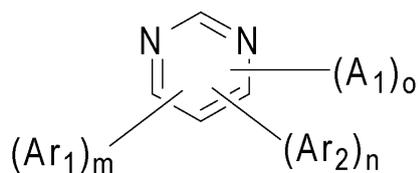
## 【0021】

[1] すなわち本発明は、下記一般式(1)で表される、ピリミジン環構造を有する化

50

合物である。

【化 1】



10

( 1 )

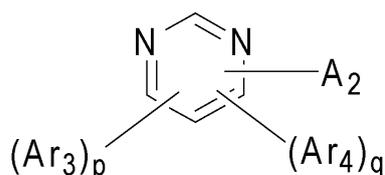
(式中、 $A_1$ は置換または無置換の芳香族複素環基を表す。 $Ar_1$ は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。 $Ar_2$ は重水素原子、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。 $m$ は1～3の整数を表し、 $n$ は0～2の整数を表し、 $o$ は1～2の整数を表す。 $m$ が2以上の整数である場合、同一のピリミジン環に複数個結合する $Ar_1$ は相互に同一でも異なってもよい。 $n$ が2の整数である場合、同一のピリミジン環に複数個結合する $Ar_2$ は相互に同一でも異なってもよい。 $o$ が2の整数である場合、同一のピリミジン環に複数個結合する $A_1$ は相互に同一でも異なってもよい。但し、 $m$ と $n$ と $o$ の整数の和を4以内とする。尚、 $n$ が0の場合、 $Ar_2$ は水素原子を表すものとする。)

20

【0022】

[2]また本発明は、上記[1]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、下記一般式(2)で表される、ピリミジン環構造を有する化合物。

【化 2】



30

( 2 )

(式中、 $A_2$ は置換または無置換の芳香族複素環基を表す。 $Ar_3$ は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。 $Ar_4$ は重水素原子、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。 $p$ は1～3の整数を表し、 $q$ は0～2の整数を表す。 $p$ が2以上の整数である場合、同一のピリミジン環に複数個結合する $Ar_3$ は相互に同一でも異なってもよい。 $q$ が2の整数である場合、同一のピリミジン環に複数個結合する $Ar_4$ は相互に同一でも異なってもよい。但し、 $p$ と $q$ の整数の和を3以内とする。)

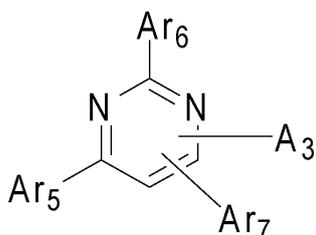
40

【0023】

[3]また本発明は、上記[1]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、下記一般式(3)で表される、ピリミジン環構造を有する化合物。

50

## 【化3】



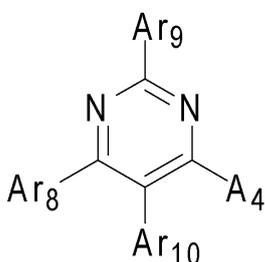
( 3 )

(式中、A<sub>3</sub>は置換または無置換の芳香族複素環基を表す。Ar<sub>5</sub>、Ar<sub>6</sub>は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。Ar<sub>7</sub>は水素原子、重水素原子、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。)

## 【0024】

[4]また本発明は、上記[1]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、下記一般式(4)で表される、ピリミジン環構造を有する化合物。

## 【化4】



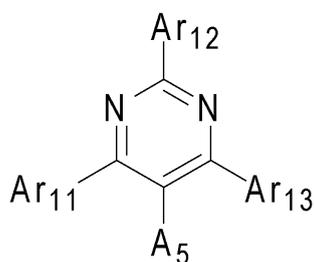
( 4 )

(式中、A<sub>4</sub>は置換または無置換の芳香族複素環基を表す。Ar<sub>8</sub>、Ar<sub>9</sub>は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。Ar<sub>10</sub>は水素原子、重水素原子、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。)

## 【0025】

[5]また本発明は、上記[1]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、下記一般式(5)で表される、ピリミジン環構造を有する化合物。

## 【化5】



( 5 )

10

20

30

40

50

(式中、 $A_5$ は置換または無置換の芳香族複素環基を表す。 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。 $Ar_{13}$ は水素原子、重水素原子、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基を表す。)

## 【0026】

[6]また本発明は、上記[4]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $A_4$ の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基、またはカルボニル基である、前記一般式(4)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

10

## 【0027】

[7]また本発明は、上記[5]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $A_5$ の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基またはカルボニル基である、前記一般式(5)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

## 【0028】

[8]また本発明は、上記[4]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $Ar_{10}$ が水素原子である前記一般式(4)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

20

## 【0029】

[9]また本発明は、上記[5]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $Ar_{13}$ が水素原子である前記一般式(5)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

## 【0030】

[10]また本発明は、上記[4]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $A_4$ の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基、またはカルボニル基であり、かつ、前記 $Ar_{10}$ が水素原子である、前記一般式(4)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

30

## 【0031】

[11]また本発明は、上記[5]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $A_5$ の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基、またはカルボニル基であり、かつ、前記 $Ar_{13}$ が水素原子である、前記一般式(5)で表される、ピリミジン環構造を有する化合物。

40

## 【0032】

[12]また本発明は、上記[4]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記 $Ar_8$ 、 $Ar_9$ の内、少なくとも1カ所が縮合多環芳香族基、芳香族複素環基または置換基として、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルパゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、またはジベンゾチエニル基であり、かつ、前記 $Ar_{10}$ が水素原子であ

50

る、前記一般式(4)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

【0033】

[13] また本発明は、上記[5]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記Ar<sub>11</sub>、Ar<sub>12</sub>の内、少なくとも1カ所が縮合多環芳香族基、芳香族複素環基、または置換基として、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、またはジベンゾチエニル基であり、かつ、前記Ar<sub>13</sub>が水素原子である、前記一般式(5)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

【0034】

[14] また本発明は、上記[4]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記A<sub>4</sub>の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基、またはカルボニル基であり、かつ、前記Ar<sub>10</sub>が水素原子であり、かつ、前記Ar<sub>8</sub>、Ar<sub>9</sub>の内、少なくとも1カ所が縮合多環芳香族基、芳香族複素環基または置換基として、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、またはジベンゾチエニル基である、前記一般式(4)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

【0035】

[15] また本発明は、上記[5]記載のピリミジン環構造を有する化合物であって、前記A<sub>5</sub>の芳香族複素環基が、ピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、イソキノリル基、インドリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基またはカルボリニル基であり、かつ、前記Ar<sub>13</sub>が水素原子であり、かつ、前記Ar<sub>11</sub>、Ar<sub>12</sub>の内、少なくとも1カ所が縮合多環芳香族基、芳香族複素環基または置換基として、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、またはジベンゾチエニル基である、前記一般式(5)で表されるピリミジン環構造を有する化合物。

【0036】

[16] また、本発明は、一对の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機EL素子において、上記[1]～[15]のいずれか一項に記載のピリミジン環構造を有する化合物が、少なくとも1つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする有機EL素子である。

【0037】

[17] また、本発明は、上記[16]記載の有機EL素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が電子輸送層である有機EL素子である。

【0038】

[18] また、本発明は、上記[16]記載の有機EL素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が正孔阻止層である有機EL素子である。

【0039】

[19] また、本発明は、上記[16]記載の有機EL素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が発光層である有機EL素子である。

【0040】

10

20

30

40

50

[ 2 0 ] また、本発明は、上記 [ 1 6 ] 記載の有機 E L 素子であって、前記ピリミジン環構造を有する化合物が用いられている前記有機層が電子注入層である有機 E L 素子である。

【発明の効果】

【 0 0 4 1 】

本発明のピリミジン環構造を有する化合物は、( 1 ) 電子の注入特性が良い、( 2 ) 電子の移動度が速い、( 3 ) 正孔阻止能力に優れている、( 4 ) 薄膜状態で安定に存在する、( 5 ) 耐熱性に優れている、などの特性があり、本発明の有機 E L 素子は、( 6 ) 発光効率が高い、( 7 ) 発光開始電圧が低い、( 8 ) 実用駆動電圧が低い、( 9 ) 長寿命、などの特性を有している。

10

【図面の簡単な説明】

【 0 0 4 2 】

【図 1】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 1 ~ 化合物 - 1 5 を示す図である。

【図 2】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 1 6 ~ 化合物 - 3 0 を示す図である。

【図 3】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 3 1 ~ 化合物 - 4 5 を示す図である。

【図 4】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 4 6 ~ 化合物 - 6 0 を示す図である。

【図 5】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 6 1 ~ 化合物 - 7 5 を示す図である。

【図 6】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 7 6 ~ 化合物 - 9 0 を示す図である。

【図 7】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 9 1 ~ 化合物 - 1 0 5 を示す図である。

20

【図 8】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 1 0 6 ~ 化合物 - 1 2 0 を示す図である。

【図 9】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 1 2 1 ~ 化合物 - 1 3 5 を示す図である。

【図 1 0】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 1 3 6 ~ 化合物 - 1 5 0 を示す図である。

【図 1 1】本発明のピリミジン環構造を有する化合物 - 1 5 1 ~ 化合物 - 1 6 0 を示す図である。

【図 1 2】実施例 2 0 ~ 3 6、比較例 1、2 の有機 E L 素子構成を示した図である。

【発明を実施するための形態】

30

【 0 0 4 3 】

一般式 ( 1 ) ~ ( 5 ) 中の  $A_1 \sim A_5$  で表される「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」における「芳香族複素環基」としては、具体的に、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、チエニル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、アザフルオレニル基、ジアザフルオレニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、およびカルボリニル基などの他に、炭素数 2 ~ 2 0 からなるヘテロアリール基から選択される。

40

【 0 0 4 4 】

一般式 ( 1 ) ~ ( 5 ) 中の  $A_{r1} \sim A_{r13}$  で表される「置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基」、「置換もしくは無置換の芳香族複素環基」または「置換もしくは無置換の縮合多環芳香族基」における「芳香族炭化水素基」、「芳香族複素環基」または「縮合多環芳香族基」としては、具体的に、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、インデニル基、プレニル基、ペリレニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、フリル基、ピロリル基、チエニル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、アザフルオレニル基、

50

ジアザフルオレニル基、アザスピロピフルオレニル基、ジアザスピロピフルオレニル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、ナフチリジニル基、フェナントロリニル基、アクリジニル基、およびカルボリニル基などの他に、炭素数 6 ~ 30 からなるアリール基、または炭素数 2 ~ 20 からなるヘテロアリール基から選択される。

#### 【0045】

一般式(1)~(5)中の $A_1 \sim A_5$ および $Ar_1 \sim Ar_{13}$ で表される「置換芳香族炭化水素基」、「置換芳香族複素環基」、「置換縮合多環芳香族基」における「置換基」としては、具体的に、重水素原子、シアノ基、ニトロ基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子；トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基などのシリル基；メチル基、エチル基、プロピル基などの炭素原子数1ないし6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基；メチルオキシ基、エチルオキシ基、プロピルオキシ基などの炭素原子数1ないし6の直鎖状もしくは分岐状のアルキルオキシ基；ビニル基、アリル基などのアルケニル基；フェニルオキシ基、トリルオキシ基などのアリールオキシ基；ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基などのアリールアルキルオキシ基；フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、スピロピフルオレニル基、インデニル基、ピレニル基、ペリレニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基などの芳香族炭化水素基もしくは縮合多環芳香族基；ピリジル基、チエニル基、フリル基、ピロリル基、キノリル基、イソキノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、キノキサリニル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルボリニル基などの芳香族複素環基のような基をあげることができ、これらの置換基はさらに、前記例示した置換基が置換していても良い。また、これらの置換基と置換したベンゼン環または同一のベンゼン環に複数置換された置換基同士が単結合で環を形成してもよく、置換もしくは無置換のメチレン基、酸素原子または硫黄原子を介して互いに結合して環を形成していてもよい。

#### 【0046】

本発明の有機EL素子に好適に用いられる、前記一般式(1)で表されるピリミジン環構造を有する化合物は、有機EL素子の電子注入層、電子輸送層または正孔阻止層の構成材料として使用することができる。電子の移動度が高く電子注入層または電子輸送層の材料として好ましい化合物である。

#### 【0047】

本発明の有機EL素子は電子の注入・輸送性能、薄膜の安定性や耐久性に優れた有機EL素子用の材料を使用しているため、従来の有機EL素子に比べて、電子輸送層から発光層への電子輸送効率が向上し、発光効率が向上すると共に、駆動電圧が低下して、有機EL素子の耐久性を向上させることができ、高効率、低駆動電圧、長寿命の有機EL素子を実現することが可能となった。

#### 【0048】

本発明のピリミジン環構造を有する化合物は、(1)電子の注入特性が良い、(2)電子の移動度が速い、(3)正孔阻止能力に優れている、(4)薄膜状態で安定に存在する、(5)耐熱性に優れている、などの特性があり、本発明の有機EL素子は、(6)発光効率高い、(7)発光開始電圧が低い、(8)実用駆動電圧が低い、(9)長寿命、などの特性を有している。

#### 【0049】

本発明のピリミジン環構造を有する化合物は、電子の注入・移動度が速いことで、同化合物を電子注入材料および/または電子輸送材料として用いて作製された電子注入層および/または電子輸送層を有する有機EL素子は、発光層への電子輸送効率が向上して、発光効率が向上すると共に、駆動電圧が低下することで、有機EL素子の耐久性が向上する。

#### 【0050】

本発明のピリミジン環構造を有する化合物は、正孔阻止能力と電子輸送性に優れ、かつ

薄膜状態においても安定であり、発光層内で生成した励起子を閉じ込める特徴があることから、同化合物を正孔阻止材料として用いて作製された正孔阻止層を有する有機EL素子は、正孔と電子が再結合する確率を向上させ、熱失活を防ぎ、高い発光効率を有し、駆動電圧が低下し、電流耐性が改善されることで最大発光輝度が向上している。

【0051】

本発明のピリミジン環構造を有する化合物は、電子輸送性に優れ、かつバンドギャップが広いことで、同化合物をホスト材料として用いて作製された発光層を有する有機EL素子は、ドーパントと呼ばれる蛍光発光体や燐光発光体、遅延蛍光発光体を担持させて発光層を形成することで駆動電圧が低下し、発光効率が改善される。

【0052】

よって、本発明のピリミジン環構造を有する化合物は、有機EL素子の電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層または発光層の材料として有用であり、従来の有機EL素子の発光効率および駆動電圧、そして耐久性を改良することができる。

【0053】

本発明のピリミジン環構造を有する化合物は新規な化合物であるが、これら化合物は、それ自体公知の方法に準じて合成することができる（例えば、特許文献5、非特許文献6参照）。

【0054】

本発明の有機EL素子に好適に用いられる、前記一般式(1)で表されるピリミジン化合物の中で、好ましい化合物-1~化合物-160の具体例として図1~11に示すが、これらの化合物に限定されるものではない。

【0055】

一般式(1)~(5)で表されるピリミジン環構造を有する化合物の精製はカラムクロマトグラフによる精製、シリカゲル、活性炭、活性白土等による吸着精製、溶媒による再結晶や晶析法、昇華精製法などによって行った。化合物の同定は、NMR分析によって行なった。物性値として、融点、ガラス転移点(Tg)と仕事関数の測定を行った。融点は蒸着性の指標となるものであり、ガラス転移点(Tg)は薄膜状態の安定性の指標となり、仕事関数は正孔輸送性や正孔阻止性の指標となるものである。

【0056】

融点とガラス転移点(Tg)は、粉体を用いて高感度示差走査熱量計(ブルカー・エイエクセス製、DSC3100SA)によって測定した。

【0057】

仕事関数は、ITO基板の上に100nmの薄膜を作製して、イオン化ポテンシャル測定装置(住友重機械工業株式会社製、PYS-202)によって求めた。

【0058】

本発明の有機EL素子の構造としては、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層及び陰極からなるもの、また、正孔輸送層と発光層の間に電子阻止層を有するもの、発光層と電子輸送層の間に正孔阻止層を有するものがあげられる。これらの多層構造においては有機層を何層か省略あるいは兼ねることが可能であり、例えば正孔注入層と正孔輸送層を兼ねた構成とすること、電子注入層と電子輸送層を兼ねた構成とすること、などもできる。また、同一の機能を有する有機層を2層以上積層した構成とすることが可能であり、正孔輸送層を2層積層した構成、発光層を2層積層した構成、電子輸送層を2層積層した構成、などもできる。

【0059】

本発明の有機EL素子の陽極としては、ITOや金のような仕事関数の大きな電極材料が用いられる。本発明の有機EL素子の正孔注入層として、銅フタロシアニンに代表されるポルフィリン化合物のほか、スターバースト型のトリフェニルアミン誘導体、分子中にトリフェニルアミン構造またはカルバゾリル構造を2個以上有し、それぞれが単結合またはヘテロ原子を含まない2価基で連結した構造を有するアリーールアミン化合物などの他に、ヘキサシアノアザトリフェニレンのようなアクセプター性の複素環化合物や塗布型の高

10

20

30

40

50

分子材料を用いることができる。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

【0060】

本発明の有機EL素子の正孔輸送層として、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(以後、TPDと略称する)やN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(-ナフチル)-ベンジジン(以後、NPDと略称する)、N, N, N', N'-テトラピフェニルベンジジンなどのベンジジン誘導体、1, 1'-ビス[(ジ-4-トリルアミノ)フェニル]シクロヘキサン(以後、TAPCと略称する)、分子中にトリフェニルアミン構造またはカルバゾリル構造を2個以上有し、それぞれが単結合またはヘテロ原子を含まない2価基で連結した構造を有するアリールアミン化合物などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。また、正孔の注入・輸送層として、ポリ(3, 4-エチレンジオキシチオフェン)(以後、PEDOTと略称する)/ポリ(スチレンスルフォネート)(以後、PSSと略称する)などの塗布型の高分子材料を用いることができる。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

10

【0061】

また、正孔注入層あるいは正孔輸送層において、該層に通常使用される材料に対し、さらにトリスプロモフェニルアミンヘキサクロルアンチモン、ラジアレン誘導体(例えば、特許文献7参照)をPドーピングしたものや、TPDなどのベンジジン誘導体の構造をその部分構造に有する高分子化合物などを用いることができる。

20

【0062】

本発明の有機EL素子の電子阻止層として、4, 4', 4''-トリ(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(以後、CTTAと略称する)、9, 9'-ビス[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]フルオレン、1, 3'-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン(以後、mCPと略称する)、2, 2'-ビス(4-カルバゾール-9-イルフェニル)アダマンタン(以後、Ad-Czと略称する)などのカルバゾール誘導体、9-[4-(カルバゾール-9-イル)フェニル]-9-[4-(トリフェニルシリル)フェニル]-9H-フルオレンに代表されるトリフェニルシリル基とトリアリールアミン構造を有する化合物などの電子阻止作用を有する化合物を用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピンコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

30

【0063】

本発明の有機EL素子の発光層として、本発明のピリミジン環構造を有する化合物のほか、Alq<sub>3</sub>をはじめとするキノリノール誘導体の金属錯体その他、各種の金属錯体、アントラセン誘導体、ビスチリルベンゼン誘導体、ピレン誘導体、オキサゾール誘導体、ポリパラフェニレンピニレン誘導体などを用いることができる。また、発光層をホスト材料とドーパント材料とで構成してもよく、ホスト材料として、アントラセン誘導体が好ましく用いられるが、そのほか、本発明のピリミジン環構造を有する化合物を初めとする上記発光材料に加え、インドール環を縮合環の部分構造として有する複素環化合物、カルバゾール環を縮合環の部分構造として有する複素環化合物、カルバゾール誘導体、チアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ポリジアルキルフルオレン誘導体などを用いることができる。またドーパント材料としては、キナクリドン、クマリン、ルブレン、ペリレンおよびそれらの誘導体、ベンゾピラン誘導体、ローダミン誘導体、アミノスチリル誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜してもよいが、他の材料とともに混合

40

50

して成膜した単層として使用してもよく、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としてもよい。

【0064】

また、発光材料として燐光発光体を使用することも可能である。燐光発光体としては、イリジウムや白金などの金属錯体の燐光発光体を使用することができる。Ir(ppy)<sub>3</sub>などの緑色の燐光発光体、FIrpic、FIr6などの青色の燐光発光体、Btp<sub>2</sub>Ir(acac)などの赤色の燐光発光体などが用いられ、このときのホスト材料としては正孔注入・輸送性のホスト材料として4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ピフェニル(以後、CBPと略称する)やTCCTA、mCPなどのカルバゾール誘導体などに加え、本発明のピリミジン環構造を有する化合物を用いることができる。電子輸送性のホスト材料として、p-ビス(トリフェニルシリル)ベンゼン(以後、UGH2と略称する)や2,2',2''-(1,3,5-フェニレン)-トリス(1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール)(以後、TPBIと略称する)などを用いることができ、高性能の有機EL素子を作製することができる。

10

【0065】

燐光性の発光材料のホスト材料へのドーブは濃度消光を避けるため、発光層全体に対して1~30重量パーセントの範囲で、共蒸着によってドーブすることが好ましい。

【0066】

また、発光材料としてPIC-TRZ、CC2TA、PXZ-TRZ、4CzIPNなどのCDCB誘導体などの遅延蛍光を放射する材料を使用することも可能である。(例えば、非特許文献3参照)これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

20

【0067】

本発明の有機EL素子の正孔阻止層として、本発明のピリミジン環構造を有する化合物のほか、バソクプロイン(以後、BCPと略称する)などのフェナントロリン誘導体や、BA1qなどのキノリノール誘導体の金属錯体のほか、各種の希土類錯体、オキサゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体など、正孔阻止作用を有する化合物を用いることができる。これらの材料は電子輸送層の材料を兼ねてもよい。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

30

【0068】

本発明の有機EL素子の電子輸送層として、本発明のピリミジン環構造を有する化合物のほか、Alq<sub>3</sub>、BA1qをはじめとするキノリノール誘導体の金属錯体のほか、各種金属錯体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピリジン誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、アントラセン誘導体、カルボジイミド誘導体、キノキサリン誘導体、ピリドインドール誘導体、フェナントロリン誘導体、シロール誘導体などを用いることができる。これらは、単独で成膜しても良いが、他の材料とともに混合して成膜した単層として使用しても良く、上記複数の材料による単独で成膜した層同士、上記複数の材料による混合して成膜した層同士、または上記複数の材料による単独で成膜した層と混合して成膜した層の積層構造としても良い。これらの材料は蒸着法その他、スピコート法やインクジェット法などの公知の方法によって薄膜形成を行うことができる。

40

【0069】

本発明の有機EL素子の電子注入層として、本発明のピリミジン環構造を有する化合物のほか、フッ化リチウム、フッ化セシウムなどのアルカリ金属塩、フッ化マグネシウムなどのアルカリ土類金属塩、リチウムキノリノールなどのキノリノール誘導体の金属錯体、

50

酸化アルミニウムなどの金属酸化物、あるいはイッテルビウム ( Y b )、サマリウム ( S m )、カルシウム ( C a )、ストロンチウム ( S r )、セシウム ( C s ) などの金属などを用いることができるが、電子輸送層と陰極の好ましい選択においては、これを省略することができる。

【 0 0 7 0 】

さらに、電子注入層あるいは電子輸送層において、該層に通常使用される材料に対し、さらにセシウムなどの金属を N ドーピングしたものをを用いることができる。

【 0 0 7 1 】

本発明の有機 E L 素子の陰極として、アルミニウムのような仕事関数の低い電極材料や、マグネシウム銀合金、マグネシウムインジウム合金、アルミニウムマグネシウム合金の

10

【 0 0 7 2 】

以下、本発明の実施の形態について、実施例により具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

【実施例 1】

【 0 0 7 3 】

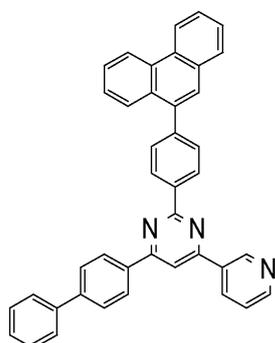
< 6 - ( ビフェニル - 4 - イル ) - 2 - { 4 - ( フェナンスレン - 9 - イル ) - フェニル } - 4 - ( ピリジン - 3 - イル ) - ピリミジン ( 化合物 - 1 7 ) の合成 >

反応容器に 6 - ( ビフェニル - 4 - イル ) - 2 - クロロ - 4 - ( ピリジン - 3 - イル ) - ピリミジン : 7 . 5 g、4 - ( フェナンスレン - 9 - イル ) - フェニルボロン酸 : 7 . 2 g、テトラキス ( トリフェニルホスフィン ) パラジウム ( 0 ) : 0 . 5 g、炭酸カリウム : 6 . 0 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、分液操作にて有機層を抽出した後、減圧下濃縮した。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ ( 担体 : シリカゲル、溶離液 : トルエン / 酢酸エチル ) によって精製を行うことで、6 - ( ビフェニル - 4 - イル ) - 2 - { 4 - ( フェナンスレン - 9 - イル ) - フェニル } - 4 - ( ピリジン - 3 - イル ) - ピリミジン ( 化合物 - 1 7 ) の白色粉体 : 1 . 5 g ( 収率 1 2 % ) を得た。

20

【 0 0 7 4 】

【化 6】



30

( 化合物 - 1 7 )

【 0 0 7 5 】

得られた白色粉体について N M R を使用して構造を同定した。

<sup>1</sup> H - N M R ( C D C l <sub>3</sub> ) で以下の 2 7 個の水素のシグナルを検出した。

( p p m ) = 9 . 5 5 ( 1 H )、8 . 9 0 ( 2 H )、8 . 8 5 ( 1 H )、8 . 8 2 ( 1 H )、8 . 7 8 ( 1 H )、8 . 7 0 ( 1 H )、8 . 4 6 ( 2 H )、8 . 1 5 ( 1 H )、8 . 0 4 ( 1 H )、7 . 9 7 ( 1 H )、7 . 8 6 ( 2 H )、7 . 8 0 ( 2 H )、7 . 7 8 - 7 . 4 9 ( 1 0 H )、7 . 4 4 ( 1 H )。

【実施例 2】

50

## 【0076】

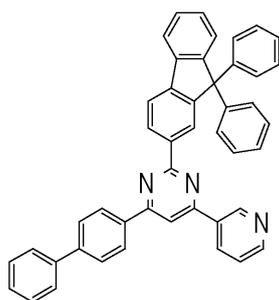
< 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - (9, 9 - ジフェニル [9H]フルオレン - 2 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン (化合物 - 26) の合成 >

反応容器に 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン : 5.0 g、2 - (9, 9 - ジフェニル [9H]フルオレン) ボロン酸 : 6.8 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.3 g、炭酸カリウム : 2.4 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、分液操作にて有機層を抽出した後、減圧下濃縮した。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体:シリカゲル、溶離液:トルエン/酢酸エチル)によって精製を行うことで、6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - (9, 9 - ジフェニル [9H]フルオレン - 2 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン (化合物 - 26) の淡灰褐色粉体 : 6.6 g (収率 73%) を得た。

10

## 【0077】

## 【化7】



20

(化合物 - 26)

## 【0078】

得られた淡灰褐色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

<sup>1</sup>H - NMR (DMSO - d<sub>6</sub>) で以下の 31 個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.63 (1H)、8.81 (2H)、8.77 (1H)、8.69 (2H)、8.58 (2H)、8.19 (1H)、8.08 (1H)、7.96 (2H)、7.84 (2H)、7.68 (1H)、7.54 (3H)、7.45 (3H)、7.39 - 7.21 (10H)。

30

## 【実施例3】

## 【0079】

< 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ [9H]フルオレン - 2 - イル) - ピリミジン (化合物 - 27) の合成 >

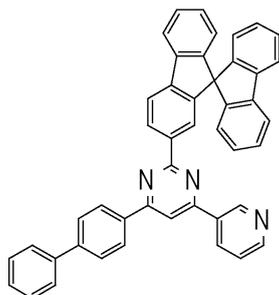
反応容器に 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン : 7.0 g、2 - (9, 9' - スピロビ [9H]フルオレン) ボロン酸 : 8.1 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.5 g、炭酸カリウム : 3.4 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、分液操作にて有機層を抽出した後、減圧下濃縮した。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体:シリカゲル、溶離液:ジクロロメタン/酢酸エチル)によって精製を行うことで、6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ [9H]フルオレン - 2 - イル) - ピリミジン (化合物 - 27) の白色粉体 : 5.5 g (収率 43%) を得た。

40

## 【0080】

50

## 【化 8】



10

## (化合物 - 27)

## 【0081】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) で以下の29個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.37 (1H)、8.85 (1H)、8.75 (1H)、8.46 (1H)、8.26 (2H)、8.06 (1H)、8.05 (1H)、7.94 (4H)、7.77 (2H)、7.69 (2H)、7.55 - 7.37 (7H)、7.16 (3H)、6.83 (2H)、6.75 (1H)。

20

## 【実施例 4】

## 【0082】

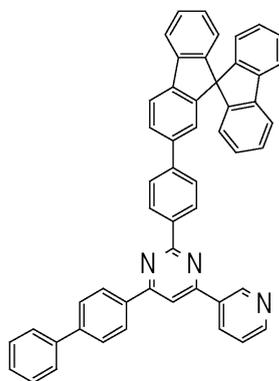
< 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - { 4 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン - 2 - イル) - フェニル } - ピリミジン (化合物 - 36) の合成 >

実施例 3 において、2 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン) ボロン酸に代えて、4 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン - 2 - イル) - フェニルボロン酸を用いて、同条件下で反応を行うことで、6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - { 4 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン - 2 - イル) - フェニル } - ピリミジン (化合物 - 36) の白色粉体：6.4 g (収率 45%) を得た。

30

## 【0083】

## 【化 9】



40

## (化合物 - 36)

## 【0084】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) で以下の33個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.48 (1H)、8.80 (1H)、8.69 (2H)、8.60 (

50

1 H)、8.38 (2 H)、8.06 (1 H)、7.98 (1 H)、7.91 (1 H)、7.90 (2 H)、7.82 (2 H)、7.76 (1 H)、7.71 (2 H)、7.64 (2 H)、7.52 (3 H)、7.46 - 7.37 (4 H)、7.16 (3 H)、7.09 (1 H)、6.84 (2 H)、6.78 (1 H)。

【実施例 5】

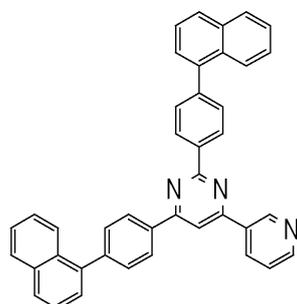
【0085】

< 2, 6 - ビス{4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニル} - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン (化合物 - 43) の合成 >

反応容器に 2 - クロロ - 6 - {4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニル} - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン : 8.0 g、4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニルボロン酸 : 5.5 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.5 g、炭酸カリウム : 3.4 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内にメタノールを加えて析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をモノクロロベンゼン溶媒により再結晶精製を行うことで、2, 6 - ビス{4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニル} - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン (化合物 - 43) の白色粉体 : 6.8 g (収率 60%) を得た。

【0086】

【化 10】



(化合物 - 43)

【0087】

得られた白色粉体について NMR を使用して構造を同定した。

<sup>1</sup>H - NMR (CDCl<sub>3</sub>) で以下の 27 個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.57 (1 H)、8.91 (2 H)、8.84 (1 H)、8.71 (1 H)、8.50 (2 H)、8.19 (1 H)、8.07 - 7.90 (6 H)、7.76 (4 H)、7.64 - 7.45 (9 H)。

【実施例 6】

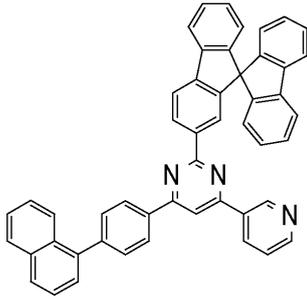
【0088】

< 6 - {4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニル} - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン - 2 - イル) - ピリミジン (化合物 - 46) の合成 >

反応容器に 2 - クロロ - 6 - {4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニル} - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン : 8.0 g、2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン) ボロン酸 : 8.1 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.5 g、炭酸カリウム : 3.4 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内にメタノールを加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をモノクロロベンゼン/アセトン混合溶媒により晶析精製を行うことで、6 - {4 - (ナフタレン - 1 - イル) - フェニル} - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン - 2 - イル) - ピリミジン (化合物 - 46) の白色粉体 : 6.2 g (収率 45%) を得た。

【 0 0 8 9 】

【 化 1 1 】



10

( 化 合 物 - 4 6 )

【 0 0 9 0 】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

<sup>1</sup>H - NMR (CDCl<sub>3</sub>) で以下の31個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.40 (1H)、8.88 (1H)、8.77 (1H)、8.48 (1H)、8.31 (2H)、8.12 - 7.87 (9H)、7.68 (2H)、7.57 (2H)、7.53 - 7.36 (6H)、7.16 (3H)、6.84 (2H)、6.76 (1H)。

20

【 実 施 例 7 】

【 0 0 9 1 】

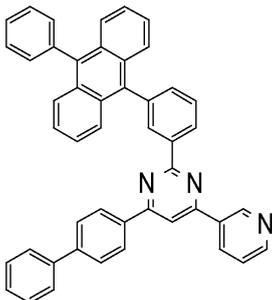
< 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - { 3 - (10 - フェニル - アントラセン - 9 - イル) - フェニル } - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン (化合物 - 149) の合成 >

反応容器に 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン : 6.0 g、3 - (10 - フェニル - アントラセン - 9 - イル) フェニルボロン酸 : 7.8 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.4 g、炭酸カリウム : 4.8 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内に H<sub>2</sub>O を加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をモノクロロベンゼン溶媒により再結晶精製を行うことで、6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - { 3 - (10 - フェニル - アントラセン - 9 - イル) - フェニル } - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン (化合物 - 149) の白色粉体 : 6.2 g (収率 56%) を得た。

30

【 0 0 9 2 】

【 化 1 2 】



40

( 化 合 物 - 1 4 9 )

【 0 0 9 3 】

50

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) で以下の31個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.47 (1H)、8.98 (1H)、8.88 (1H)、8.77 (1H)、8.62 (1H)、8.39 (2H)、8.13 (1H)、7.89 - 7.73 (8H)、7.71 - 7.34 (15H)。

【実施例8】

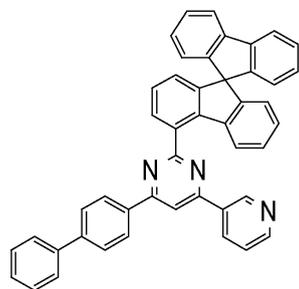
【0094】

< 6 - (ピフェニル - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 151) の合成 >

反応容器に 6 - (ピフェニル - 4 - イル) - 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - ピリミジン : 5.0 g、4 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン) ボロン酸 : 5.8 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン) パラジウム(0) : 0.3 g、炭酸カリウム : 2.4 g を仕込み、トルエン、エタノール、 $\text{H}_2\text{O}$  混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、分液操作にて有機層を抽出した後、減圧下濃縮した。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体: シリカゲル、溶離液: トルエン)によって精製を行うことで、6 - (ピフェニル - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 151) の淡灰褐色粉体 : 4.0 g (収率 44%) を得た。

【0095】

【化13】



(化合物 - 151)

【0096】

得られた淡灰褐色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{DMSO-d}_6$ ) で以下の29個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.75 (1H)、8.97 (1H)、8.87 (1H)、8.82 (1H)、8.65 (2H)、8.07 (2H)、7.92 (2H)、7.84 (3H)、7.68 (1H)、7.64 (1H)、7.54 (2H)、7.45 (3H)、7.33 (1H)、7.20 (2H)、7.13 (2H)、6.77 (1H)、6.76 (2H)、6.65 (1H)。

【実施例9】

【0097】

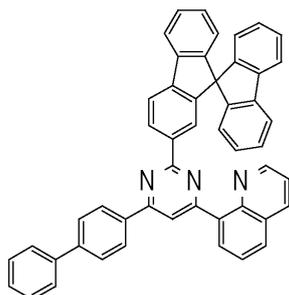
< 6 - (ピフェニル - 4 - イル) - 4 - (キノリン - 8 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン - 2 - イル) - ピリミジン (化合物 - 152) の合成 >

反応容器に 6 - (ピフェニル - 4 - イル) - 2 - クロロ - 4 - (キノリン - 8 - イル) - ピリミジン : 6.0 g、2 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオレン) ボロン酸 : 6.0 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン) パラジウム(0) : 0.4 g、炭酸カリウム : 2.5 g を仕込み、トルエン、エタノール、 $\text{H}_2\text{O}$  混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内にメタノールを加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をモノクロロベンゼン溶媒により再結晶精製を行うことで、6 - (ピフェニル - 4 - イル) - 4 - (キノリン - 8 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ[9H]フルオ

レン - 2 - イル) - ピリミジン (化合物 - 152) の白色粉体 : 6.5 g (収率 63%) を得た。

【0098】

【化14】



10

(化合物 - 152)

【0099】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  (DMSO- $d_6$ ) で以下の31個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 8.94 (1H)、8.80 (1H)、8.55 (1H)、8.52 (1H)、8.32 (2H)、8.27 (1H)、8.18 (2H)、8.14 (1H)、8.07 (2H)、7.88 (2H)、7.78 (4H)、7.63 (1H)、7.51 (3H)、7.43 (3H)、7.18 (3H)、6.72 (2H)、6.63 (1H)。

20

【実施例10】

【0100】

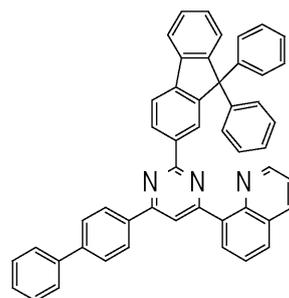
< 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - (9,9-ジフェニル[9H]フルオレン - 2 - イル) - 4 - (キノリン - 8 - イル) - ピリミジン (化合物 - 153) の合成 >

反応容器に 6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - クロロ - 4 - (キノリン - 8 - イル) - ピリミジン : 6.0 g、2 - (9,9-ジフェニル[9H]フルオレン) ボロン酸 : 7.2 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン) パラジウム(0) : 0.4 g、炭酸カリウム : 2.5 g を仕込み、トルエン、エタノール、 $\text{H}_2\text{O}$  混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、分液操作にて有機層を抽出した後、減圧下濃縮した。得られた粗生成物をアセトン溶媒により再結晶精製を行うことで、6 - (ビフェニル - 4 - イル) - 2 - (9,9-ジフェニル[9H]フルオレン - 2 - イル) - 4 - (キノリン - 8 - イル) - ピリミジン (化合物 - 153) の白色粉体 : 8.5 g (収率 83%) を得た。

30

【0101】

【化15】



40

(化合物 - 153)

【0102】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) で以下の33個の水素のシグナルを検出した。

50

(ppm) = 9.04 (1H)、8.76 (1H)、8.73 (1H)、8.66 (1H)、8.56 (1H)、8.42 (3H)、8.23 (1H)、8.17 (1H)、8.06 (1H)、7.94 (2H)、7.87 (1H)、7.81 (2H)、7.68 (1H)、7.54 (3H)、7.46 (2H)、7.41 (1H)、7.38 - 7.19 (10H)。

【実施例 11】

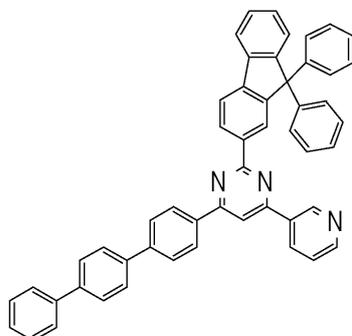
【0103】

< 2 - (9, 9 - ジフェニル [9H] フルオレン - 2 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 154) の合成 >

反応容器に 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン : 8.0 g、2 - (9, 9 - ジフェニル [9H] フルオレン) ボロン酸 : 7.6 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.4 g、炭酸カリウム : 5.4 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内にメタノールを加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体:シリカゲル、溶離液:ジクロロメタン/酢酸エチル)によって精製を行うことで、2 - (9, 9 - ジフェニル [9H] フルオレン - 2 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 154) の白色粉体 : 3.9 g (収率 29%) を得た。

【0104】

【化 16】



(化合物 - 154)

【0105】

得られた白色粉体について NMR を使用して構造を同定した。

<sup>1</sup>H - NMR (CDCl<sub>3</sub>) で以下の 35 個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.47 (1H)、8.81 (1H)、8.80 (2H)、8.57 (1H)、8.37 (2H)、8.05 (1H)、7.96 (1H)、7.88 (3H)、7.78 (4H)、7.68 (2H)、7.56 - 7.23 (17H)。

【実施例 12】

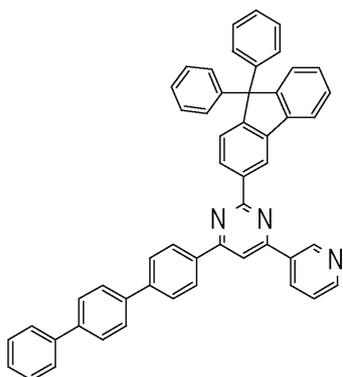
【0106】

< 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロビ [9H] フルオレン - 2 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 155) の合成 >

反応容器に 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン : 8.0 g、2 - (9, 9' - スピロビ [9H] フルオレン) ボロン酸 : 6.9 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.4 g、炭酸カリウム : 3.2 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内に H<sub>2</sub>O を加え、析出した固体を濾過して粗



## 【化 1 8】



(化合物 - 1 5 6)

## 【0 1 1 1】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H}$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>) で以下の35個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.54 (1H)、9.10 (1H) 8.83 (1H)、8.67 (2H)、8.45 (2H)、8.12 (1H)、8.03 (1H)、7.90 (2H)、7.79 (4H)、7.70 (2H)、7.62 (1H)、7.56 (2H)、7.54 - 7.23 (15H)。

## 【実施例 1 4】

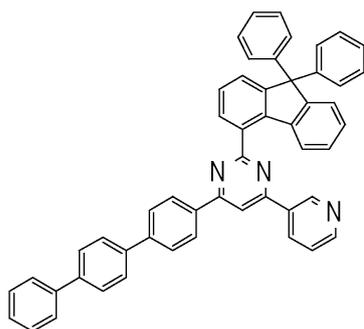
## 【0 1 1 2】

< 2 - (9, 9 - ジフェニル [9H] フルオレン - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 1 5 7) の合成 >

反応容器に 2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン : 5.5 g、4 - (9, 9 - ジフェニル [9H] フルオレン) ボロン酸 : 4.7 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) : 0.3 g、炭酸カリウム : 3.6 g を仕込み、トルエン、エタノール、H<sub>2</sub>O 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内に H<sub>2</sub>O を加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体: シリカゲル、溶離液: ジクロロメタン/酢酸エチル)によって精製を行うことで、2 - (9, 9 - ジフェニル [9H] フルオレン - 4 - イル) - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1''] ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 1 5 7) の白色粉体 : 3.2 g (収率 35%) を得た。

## 【0 1 1 3】

## 【化 1 9】



(化合物 - 1 5 7)

## 【0114】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) で以下の35個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.50 (1H)、8.81 (1H)、8.64 (1H)、8.43 (2H)、8.30 (1H)、7.86 (3H)、7.77 (4H)、7.68 (2H)、7.60 (1H)、7.58 (1H)、7.54 - 7.21 (17H)、7.10 (1H)。

## 【実施例15】

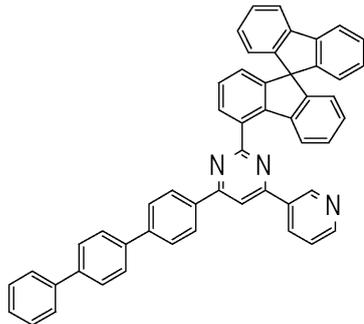
## 【0115】

< 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン - 4 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1'']ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 158) の合成 >

反応容器に2 - クロロ - 4 - (ピリジン - 3 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1'']ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン：8.0 g、4 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン) ボロン酸：6.9 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)：0.4 g、炭酸カリウム：5.3 gを仕込み、トルエン、エタノール、 $\text{H}_2\text{O}$ 混合溶媒下にて一晩還流撹拌した。放冷した後、系内に $\text{H}_2\text{O}$ を加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体：シリカゲル、溶離液：ジクロロメタン/酢酸エチル)によって精製を行うことで、4 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン - 4 - イル) - 6 - ([1, 1'; 4', 1'']ターフェニル - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 158) の白色粉体：3.7 g (収率28%)を得た。

## 【0116】

## 【化20】



(化合物 - 158)

## 【0117】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) で以下の33個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.55 (1H)、8.83 (1H)、8.70 (1H)、8.48 (2H)、8.33 (1H)、7.90 (5H)、7.79 (4H)、7.75 (1H)、7.69 (2H)、7.54 (1H)、7.51 (2H)、7.43 (3H)、7.28 (1H)、7.18 (2H)、7.11 (2H)、6.91 (2H)、6.88 (1H)、6.78 (1H)。

## 【実施例16】

## 【0118】

< 4 - (フェナンスレン - 9 - イル) - 5 - (ピリジン - 3 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン - 4 - イル) - ピリミジン (化合物 - 159) の合成 >

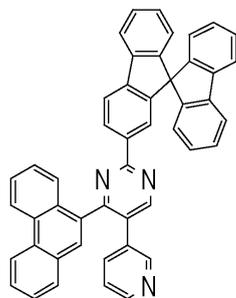
反応容器に5 - クロロ - 4 - (フェナンスレン - 9 - イル) - 2 - (9, 9' - スピロピ[9H]フルオレン - 4 - イル) - ピリミジン：5.0 g、3 - ピリジルボロン酸：1.

2 g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0):0.4 g、トリシクロヘキシルホスフィン:0.5 gリン酸三カリウム:5.3 gを仕込み、1,4-ジオキサン、H<sub>2</sub>O混合溶媒下にて一晚還流撹拌した。放冷した後、系内にH<sub>2</sub>Oを加え、分液操作にて有機層を抽出した後、減圧下濃縮した。得られた粗生成物をカラムクロマトグラフ(担体:シリカゲル、溶離液:ジクロロメタン/酢酸エチル)によって精製を行うことで、4-(フェナンスレン-9-イル)-5-(ピリジン-3-イル)-2-(9,9'-スピロピ[9H]フルオレン-4-イル)-ピリミジン(化合物-159)の白色粉体:1.7 g(収率32%)を得た。

【0119】

【化21】

10



(化合物-159)

20

【0120】

得られた白色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

<sup>1</sup>H-NMR(CDC1<sub>3</sub>)で以下の29個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = (ppm) = 8.84(1H)、8.70(2H)、8.67(1H)、8.47(1H)、8.33(1H)、7.98(1H)、7.96(1H)、7.91(1H)、7.87(2H)、7.78(1H)、7.70(1H)、7.61(4H)、7.46-7.26(5H)、7.14(3H)、6.94(1H)、6.80(2H)、6.75(1H)。

【実施例17】

30

【0121】

<4-(ピフェニル-4-イル)-2-(10-フェニル-アントラセン-9-イル)-5-(キノリン-8-イル)-ピリミジン(化合物-160)の合成>

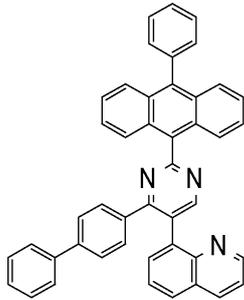
反応容器に4-(ピフェニル-4-イル)-5-クロロ-2-(10-フェニル-アントラセン-9-イル)-ピリミジン:5.0 g、8-キノリンボロン酸:2.0 g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0):0.4 g、トリシクロヘキシルホスフィン:0.5 gリン酸三カリウム:6.1 gを仕込み、1,4-ジオキサン、H<sub>2</sub>O混合溶媒下にて一晚還流撹拌した。放冷した後、系内にH<sub>2</sub>O、メタノールを加え、析出した固体を濾過して粗生成物を得た。得られた粗生成物をトルエン/アセトン混合溶媒による晶析精製を行うことで、4-(ピフェニル-4-イル)-2-(10-フェニル-アントラセン-9-イル)-5-(キノリン-8-イル)-ピリミジン(化合物-160)の淡黄色粉体:3.0 g(収率51%)を得た。

40

【0122】

50

## 【化 2 2】



(化合物 - 160)

10

## 【0123】

得られた淡黄色粉体についてNMRを使用して構造を同定した。

$^1\text{H}$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>) で以下の29個の水素のシグナルを検出した。

(ppm) = 9.42 (1H)、9.15 (1H)、8.70 (1H)、8.14 (1H)、7.90 (2H)、7.88 - 7.59 (10H)、7.55 - 7.30 (13H)。

## 【実施例18】

## 【0124】

一般式(1)で表されるピリミジン化合物について、高感度示差走査熱量計(ブルカー・エイエックスエス製、DSC3100SA)によって融点とガラス転移点を測定した。

20

	融点	ガラス転移点
実施例1の化合物	236	115
実施例2の化合物	267	135
実施例3の化合物	観測されず	146
実施例4の化合物	331	164
実施例5の化合物	257	103
実施例6の化合物	306	157
実施例7の化合物	303	144
実施例8の化合物	観測されず	148
実施例9の化合物	306	151
実施例10の化合物	観測されず	137
実施例11の化合物	282	147
実施例12の化合物	274	159
実施例13の化合物	326	149
実施例14の化合物	275	148
実施例15の化合物	観測されず	161
実施例16の化合物	観測されず	164
実施例17の化合物	観測されず	141

30

40

## 【0125】

一般式(1)で表されるピリミジン環構造を有する化合物は100以上のガラス転移点を有しており、薄膜状態が安定であることを示すものである。

## 【実施例19】

## 【0126】

一般式(1)で表されるピリミジン環構造を有する化合物を用いて、ITO基板の上に膜厚100nmの蒸着膜を作製して、イオン化ポテンシャル測定装置(住友重機械工業株式会社製、PYS-202)によって仕事関数を測定した。

仕事関数

実施例1の化合物 6.53 eV

50

実施例 2 の化合物	6 . 5 7 e V
実施例 3 の化合物	6 . 5 2 e V
実施例 4 の化合物	6 . 4 0 e V
実施例 5 の化合物	6 . 4 9 e V
実施例 6 の化合物	6 . 5 3 e V
実施例 7 の化合物	5 . 9 7 e V
実施例 8 の化合物	6 . 4 3 e V
実施例 9 の化合物	6 . 5 1 e V
実施例 10 の化合物	6 . 5 1 e V
実施例 11 の化合物	6 . 5 9 e V
実施例 12 の化合物	6 . 5 8 e V
実施例 13 の化合物	6 . 5 8 e V
実施例 14 の化合物	6 . 5 1 e V
実施例 15 の化合物	6 . 5 6 e V
実施例 16 の化合物	6 . 5 9 e V
実施例 17 の化合物	6 . 0 7 e V

10

## 【 0 1 2 7 】

一般式 ( 1 ) で表されるピリミジン環構造を有する化合物は N P D、T P D などの一般的な正孔輸送材料がもつ仕事関数 5 . 5 e V より大きい値を有しており、大きな正孔阻止能力を有している。

20

## 【 実施例 2 0 】

## 【 0 1 2 8 】

有機 E L 素子は、図 1 2 に示すように、ガラス基板 1 上に透明陽極 2 として I T O 電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔注入層 3、正孔輸送層 4、発光層 5、正孔阻止層 6、電子輸送層 7、電子注入層 8、陰極 ( アルミニウム電極 ) 9 の順に蒸着して作製した。

## 【 0 1 2 9 】

具体的には、膜厚 5 0 n m の I T O を成膜したガラス基板 1 をイソプロピルアルコール中にて超音波洗浄を 2 0 分間行った後、2 0 0 ° に加熱したホットプレート上にて 1 0 分間乾燥を行った。その後、U V オゾン処理を 1 5 分間行った後、この I T O 付きガラス基板を真空蒸着機内に取り付け、0 . 0 0 1 P a 以下まで減圧した。続いて、透明陽極 2 を覆うように正孔注入層 3 として、下記構造式の電子アクセプター ( Acceptor - 1 ) と下記構造式の化合物 ( H T M - 1 ) を、蒸着速度比が Acceptor - 1 : H T M - 1 = 3 : 9 7 となる蒸着速度で二元蒸着を行い、膜厚 1 0 n m となるように形成した。この正孔注入層 3 の上に、正孔輸送層 4 として下記構造式の化合物 ( H T M - 1 ) を膜厚 6 0 n m となるように形成した。この正孔輸送層 4 の上に、発光層 5 として下記構造式の化合物 ( E M D - 1 ) と下記構造式の化合物 ( E M H - 1 ) を、蒸着速度比が E M D - 1 : E M H - 1 = 5 : 9 5 となる蒸着速度で二元蒸着を行い、膜厚 2 0 n m となるように形成した。この発光層 5 の上に、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 として本発明実施例 1 の化合物 ( 化合物 - 1 7 ) と下記構造式の化合物 ( E T M - 1 ) を、蒸着速度比が化合物 - 1 7 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行い、膜厚 3 0 n m となるように形成した。この正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の上に、電子注入層 8 としてフッ化リチウムを膜厚 1 n m となるように形成した。最後に、アルミニウムを 1 0 0 n m 蒸着して陰極 9 を形成した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行った。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

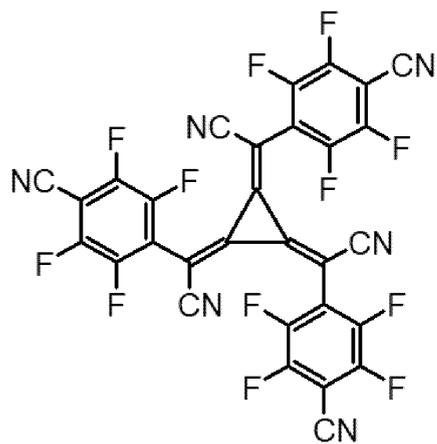
30

40

## 【 0 1 3 0 】

50

【化 2 3】

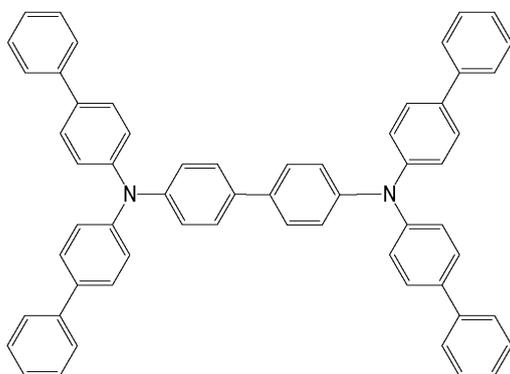


10

( Acceptor - 1 )

【 0 1 3 1 】

【化 2 4】



20

30

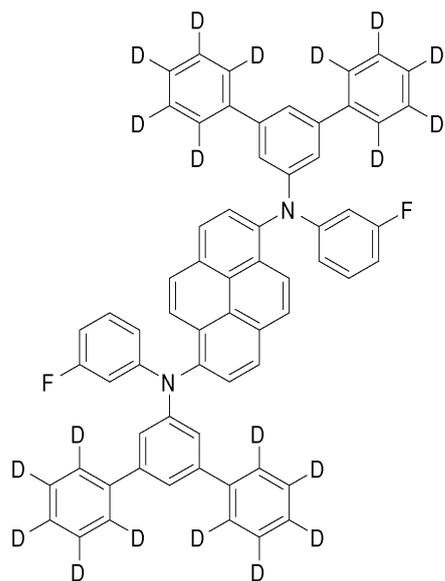
( H T M - 1 )

【 0 1 3 2 】

40

50

【化 2 5】



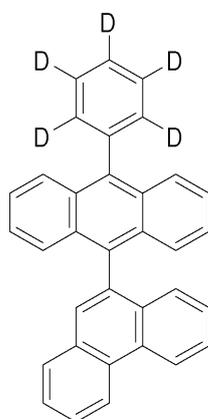
10

( E M D - 1 )

【 0 1 3 3 】

20

【化 2 6】

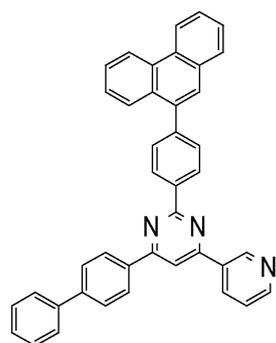


30

( E M H - 1 )

【 0 1 3 4 】

【化 2 7】



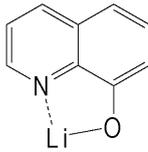
40

( 化合物 - 1 7 )

50

【 0 1 3 5 】

【 化 2 8 】



( E T M - 1 )

10

【 実施例 2 1 】

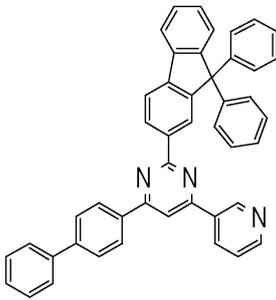
【 0 1 3 6 】

実施例 2 0 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 ( 化合物 - 1 7 ) に代えて、実施例 2 の化合物 ( 化合物 - 2 6 ) を用い、蒸着速度比が化合物 - 2 6 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

【 0 1 3 7 】

【 化 2 9 】

20



( 化合物 - 2 6 )

30

【 実施例 2 2 】

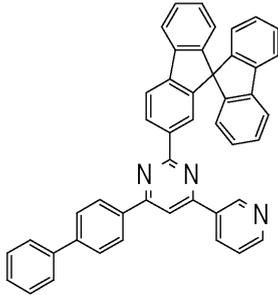
【 0 1 3 8 】

実施例 2 0 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 ( 化合物 - 1 7 ) に代えて、実施例 3 の化合物 ( 化合物 - 2 7 ) を用い、蒸着速度比が化合物 - 2 7 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

【 0 1 3 9 】

40

## 【化 3 0】



(化合物 - 27)

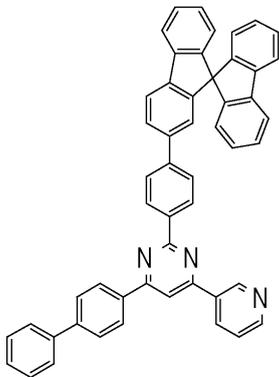
## 【実施例 23】

## 【0140】

実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 17) に代えて、実施例 4 の化合物 (化合物 - 36) を用い、蒸着速度比が化合物 - 36 : E T M - 1 = 50 : 50 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

## 【0141】

## 【化 31】



(化合物 - 36)

## 【実施例 24】

## 【0142】

実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 17) に代えて、実施例 5 の化合物 (化合物 - 43) を用い、蒸着速度比が化合物 - 43 : E T M - 1 = 50 : 50 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

## 【0143】

10

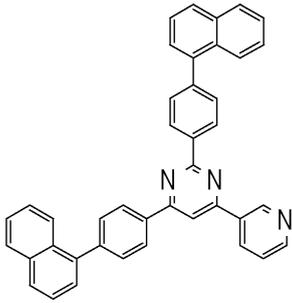
20

30

40

50

## 【化 3 2】



10

## (化合物 - 4 3)

## 【実施例 2 5】

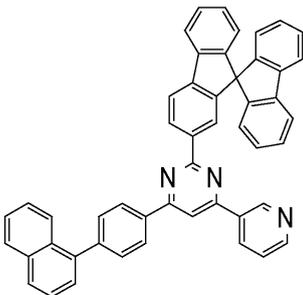
## 【0 1 4 4】

実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 6 の化合物 (化合物 - 4 6) を用い、蒸着速度比が化合物 - 4 6 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0 1 4 5】

## 【化 3 3】



30

## (化合物 - 4 6)

## 【実施例 2 6】

## 【0 1 4 6】

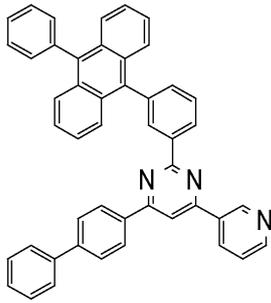
実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 7 の化合物 (化合物 - 1 4 9) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 4 9 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0 1 4 7】

50

## 【化 3 4】



10

(化合物 - 1 4 9)

## 【実施例 2 7】

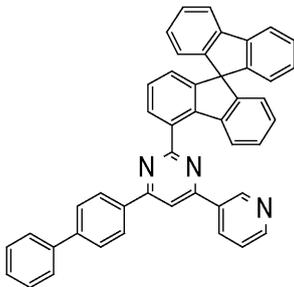
## 【0 1 4 8】

実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 8 の化合物 (化合物 - 1 5 1) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 1 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0 1 4 9】

## 【化 3 5】



30

(化合物 - 1 5 1)

## 【実施例 2 8】

## 【0 1 5 0】

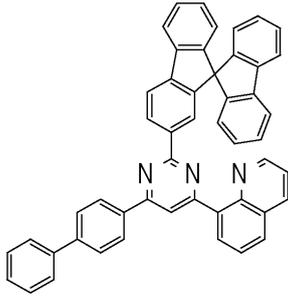
実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 9 の化合物 (化合物 - 1 5 2) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 2 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0 1 5 1】

50

## 【化 3 6】



10

(化合物 - 1 5 2)

## 【実施例 2 9】

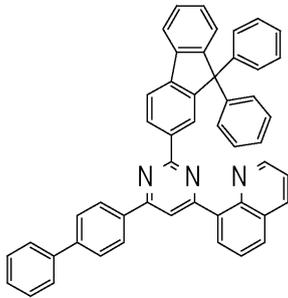
## 【0 1 5 2】

実施例 2 0 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 1 0 の化合物 (化合物 - 1 5 3) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 3 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0 1 5 3】

## 【化 3 7】



30

(化合物 - 1 5 3)

## 【実施例 3 0】

## 【0 1 5 4】

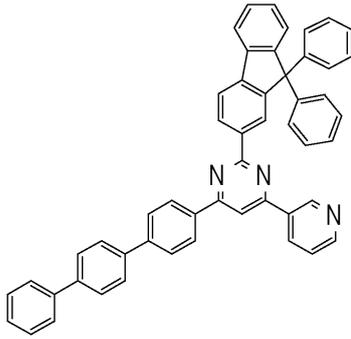
実施例 2 0 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 1 1 の化合物 (化合物 - 1 5 4) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 4 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0 1 5 5】

50

## 【化 3 8】



10

(化合物 - 1 5 4)

## 【実施例 3 1】

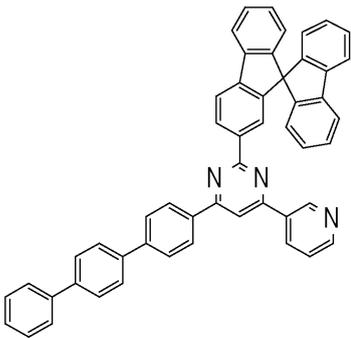
## 【0 1 5 6】

実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 1 2 の化合物 (化合物 - 1 5 5) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 5 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0 1 5 7】

## 【化 3 9】



30

(化合物 - 1 5 5)

## 【実施例 3 2】

## 【0 1 5 8】

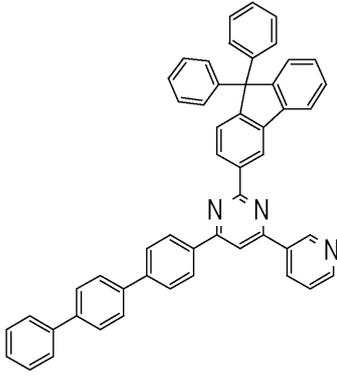
実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 1 3 の化合物 (化合物 - 1 5 6) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 6 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0 1 5 9】

50

## 【化 4 0】



10

(化合物 - 1 5 6)

## 【実施例 3 3】

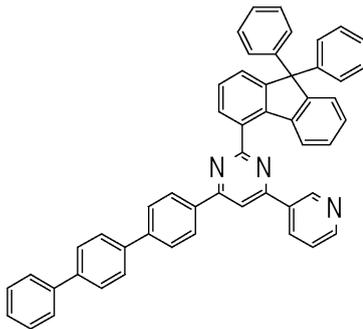
## 【0 1 6 0】

実施例 2 0 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7 ) に代えて、実施例 1 4 の化合物 (化合物 - 1 5 7 ) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 7 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0 1 6 1】

## 【化 4 1】



30

(化合物 - 1 5 7)

## 【実施例 3 4】

## 【0 1 6 2】

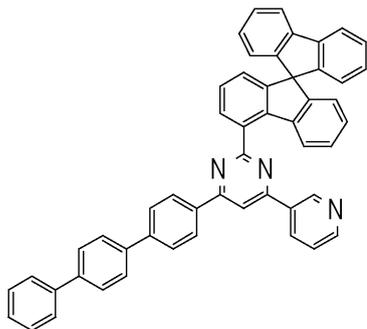
実施例 2 0 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7 ) に代えて、実施例 1 5 の化合物 (化合物 - 1 5 8 ) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 8 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0 1 6 3】

50

## 【化 4 2】



10

(化合物 - 1 5 8 )

## 【実施例 3 5】

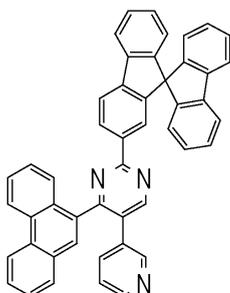
## 【0 1 6 4】

実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 16 の化合物 (化合物 - 1 5 9) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 5 9 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0 1 6 5】

## 【化 4 3】



30

(化合物 - 1 5 9 )

## 【実施例 3 6】

## 【0 1 6 6】

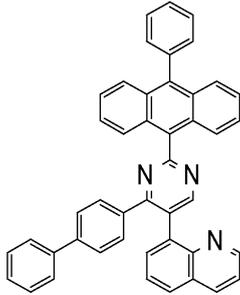
実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 1 7) に代えて、実施例 17 の化合物 (化合物 - 1 6 0) を用い、蒸着速度比が化合物 - 1 6 0 : E T M - 1 = 5 0 : 5 0 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 E L 素子を作製した。作製した有機 E L 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 E L 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0 1 6 7】

50

## 【化 4 4】



10

(化合物 - 160)

## 【0168】

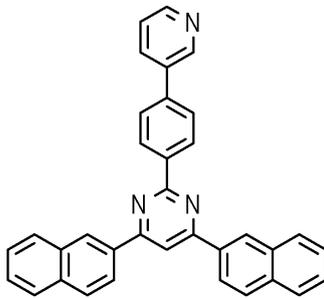
## [比較例 1]

比較のために、実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 17) に代えて、下記構造式の化合物 (ETM - 2) (例えば、特許文献 6 参照) を用い、蒸着速度比が ETM - 2 : ETM - 1 = 50 : 50 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 EL 素子を作製した。作製した有機 EL 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 EL 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

20

## 【0169】

## 【化 4 5】



30

(ETM - 2)

## 【0170】

## [比較例 2]

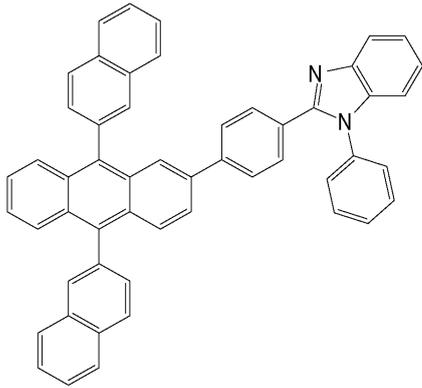
比較のために、実施例 20 において、正孔阻止層兼電子輸送層 6 および 7 の材料として本発明実施例 1 の化合物 (化合物 - 17) に代えて、下記構造式の化合物 (ETM - 3) (例えば、特許文献 8 参照) を用い、蒸着速度比が ETM - 3 : ETM - 1 = 50 : 50 となる蒸着速度で二元蒸着を行った以外は、同様の条件で有機 EL 素子を作製した。作製した有機 EL 素子について、大気中、常温で特性測定を行なった。作製した有機 EL 素子に直流電圧を印加したときの発光特性の測定結果を表 1 にまとめて示した。

40

## 【0171】

50

## 【化 4 6】



10

## ( E T M - 3 )

## 【 0 1 7 2 】

実施例 20 から実施例 36 および比較例 1、2 で作製した有機 E L 素子を用いて、素子寿命を測定した結果を表 1 にまとめて示した。素子寿命は、発光開始時の発光輝度（初期輝度）を  $2000 \text{ cd/m}^2$  として定電流駆動を行った時、発光輝度が  $1900 \text{ cd/m}^2$ （初期輝度を 100% とした時の 95% に相当：95% 減衰）に減衰するまでの時間として測定した。

20

## 【 0 1 7 3 】

30

40

50

【表 1】

	正孔阻止層兼 電子輸送層	電圧[V] (@10mA/cm <sup>2</sup> )	輝度[cd/m <sup>2</sup> ] (@10mA/cm <sup>2</sup> )	発光効率[cd/A] (@10mA/cm <sup>2</sup> )	電力効率[lm/W] (@10mA/cm <sup>2</sup> )	素子寿命 95%減衰
実施例20	化合物-17/ ETM-1	3.67	823	8.24	7.06	244時間
実施例21	化合物-26/ ETM-1	3.56	895	8.95	7.89	231時間
実施例22	化合物-27/ ETM-1	3.49	899	8.99	8.11	257時間
実施例23	化合物-36/ ETM-1	3.60	887	8.87	7.74	307時間
実施例24	化合物-43/ ETM-1	3.52	863	8.64	7.73	261時間
実施例25	化合物-46/ ETM-1	3.49	887	8.88	8.00	287時間
実施例26	化合物-149/ ETM-1	3.70	871	8.73	7.43	248時間
実施例27	化合物-151/ ETM-1	3.42	861	8.61	7.90	252時間
実施例28	化合物-152/ ETM-1	3.55	895	8.96	7.94	296時間
実施例29	化合物-153/ ETM-1	3.56	873	8.74	7.73	283時間
実施例30	化合物-154/ ETM-1	3.45	893	8.94	8.13	316時間
実施例31	化合物-155/ ETM-1	3.45	887	8.88	8.09	259時間
実施例32	化合物-156/ ETM-1	3.57	875	8.76	7.71	323時間
実施例33	化合物-157/ ETM-1	3.72	873	8.75	7.40	271時間
実施例34	化合物-158/ ETM-1	3.67	880	8.82	7.55	275時間
実施例35	化合物-159/ ETM-1	3.44	923	9.24	8.43	233時間
実施例36	化合物-160/ ETM-1	3.48	909	9.09	8.22	267時間
比較例1	ETM-2/ ETM-1	3.82	805	8.05	6.62	165時間
比較例2	ETM-3/ ETM-1	4.01	659	6.59	5.16	203時間

## 【0174】

表1に示す様に、電流密度10mA/cm<sup>2</sup>の電流を流したときの駆動電圧は、上記構造式の化合物ETM-2、3を用いた比較例1、2の有機EL素子の3.82~4.01Vに対し、実施例20から実施例36までの有機EL素子では3.42~3.72Vと低電圧化した。また、発光効率においては、比較例1、2の有機EL素子の6.59~8.05cd/Aに対し実施例20から実施例36までの有機EL素子では8.24~9.24cd/Aと向上し、電力効率においても、比較例1、2の有機EL素子の5.16~6.62lm/Wに対し、実施例20から実施例36までの有機EL素子では7.06~8.43lm/Wと大きく向上した。特に、素子寿命(95%減衰)においては、比較例1、2の有機EL素子における165~203時間に対し、実施例20から実施例36までの有機EL素子では231~323時間と、大きく長寿命化している。

## 【0175】

このように本発明の有機EL素子は、上記構造式の化合物ETM-2、3を用いた素子

と比較して、発光効率および電力効率に優れており、長寿命の有機EL素子を実現できることがわかった。

【産業上の利用可能性】

【0176】

本発明の、特定のピリミジン環構造を有する化合物は、電子の注入特性が良く、正孔阻止能力に優れており、薄膜状態が安定であるため、有機EL素子用の化合物として優れている。該化合物を用いて有機EL素子を作製することにより、高い効率を得ることができると共に、駆動電圧を低下させることができ、耐久性を改善させることができる。例えば、家庭電化製品や照明の用途への展開が可能となった。

【符号の説明】

【0177】

- 1 ガラス基板
- 2 透明陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 正孔阻止層
- 7 電子輸送層
- 8 電子注入層
- 9 陰極

10

20

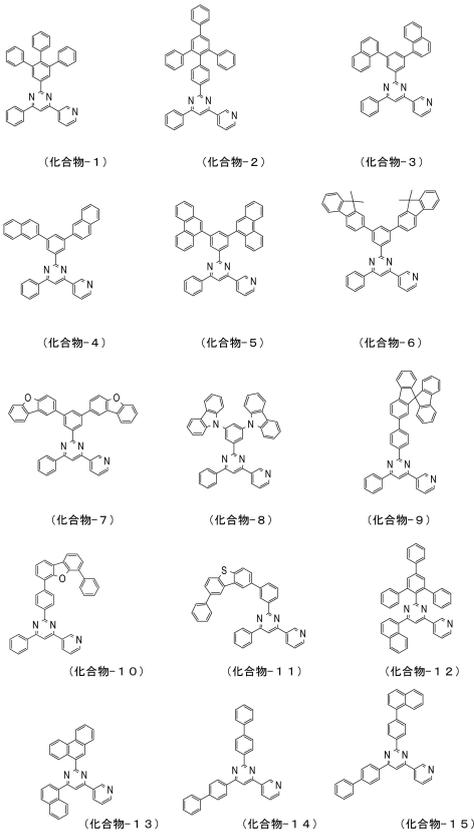
30

40

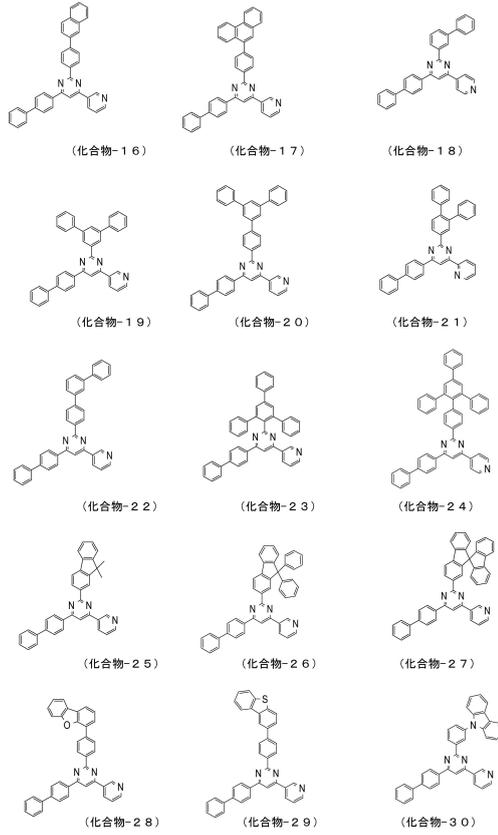
50

【 図面 】

【 図 1 】



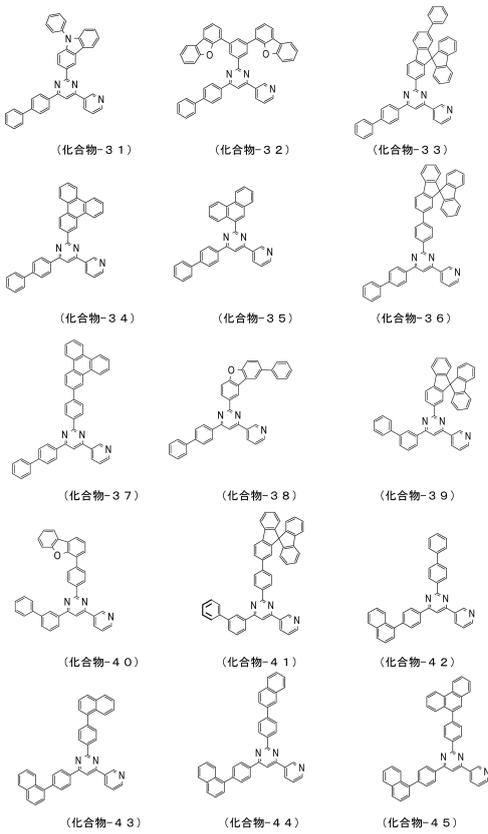
【 図 2 】



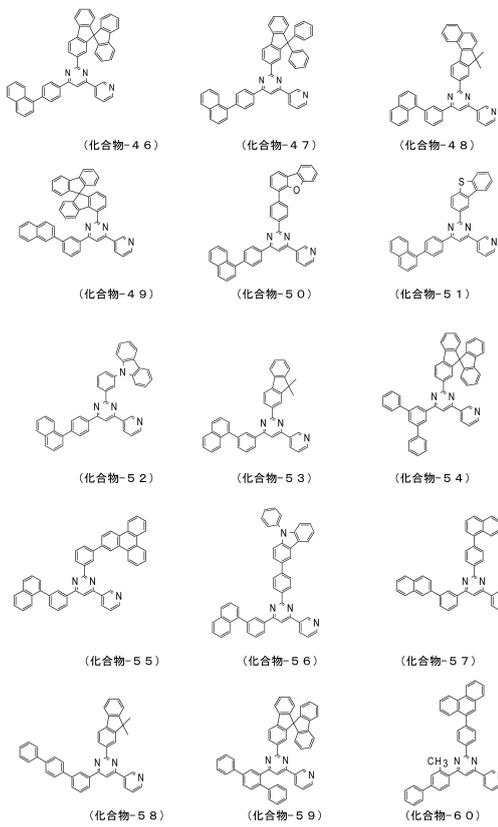
10

20

【 図 3 】



【 図 4 】

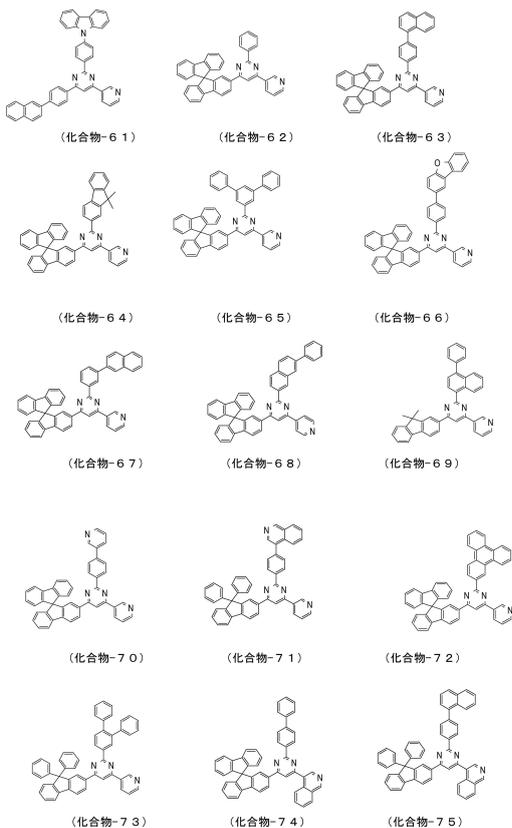


30

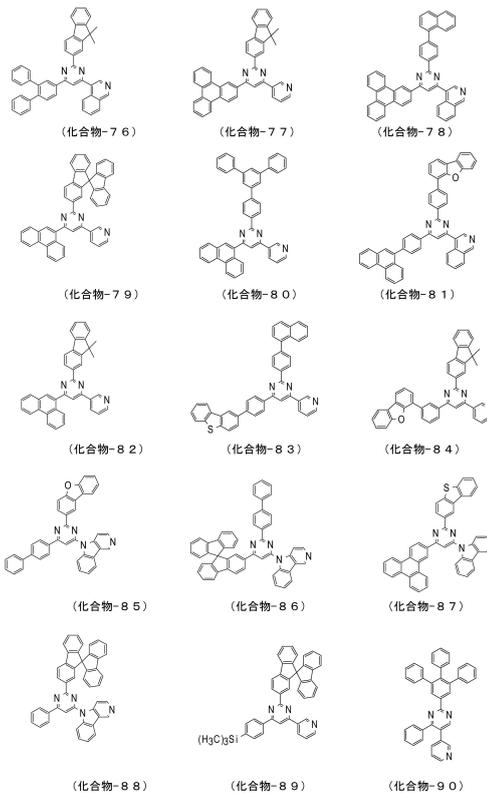
40

50

【 図 5 】



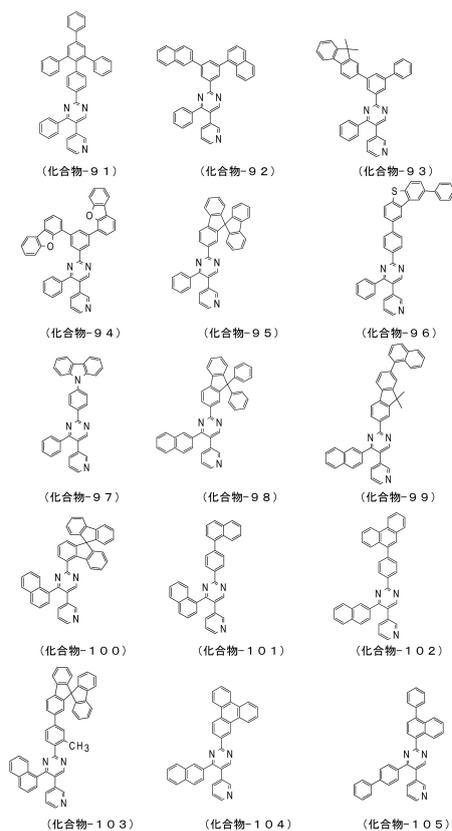
【 図 6 】



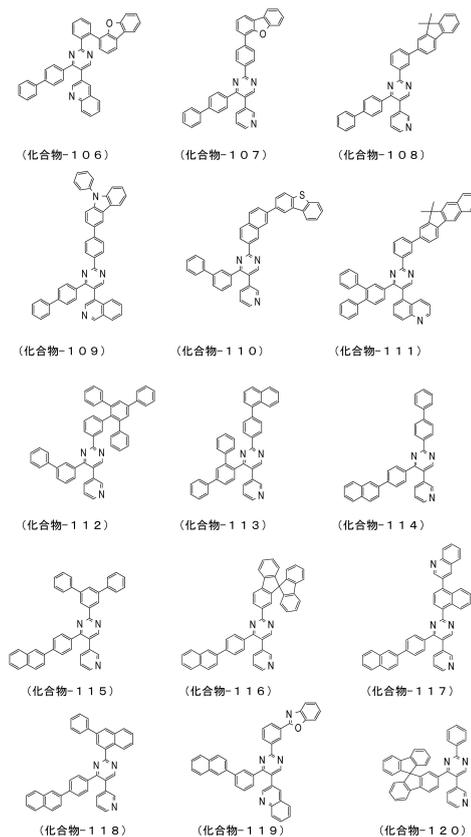
10

20

【 図 7 】



【 図 8 】

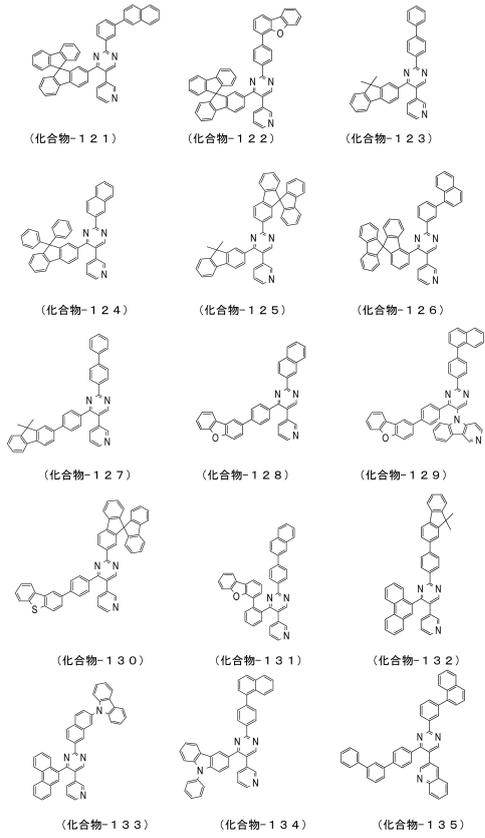


30

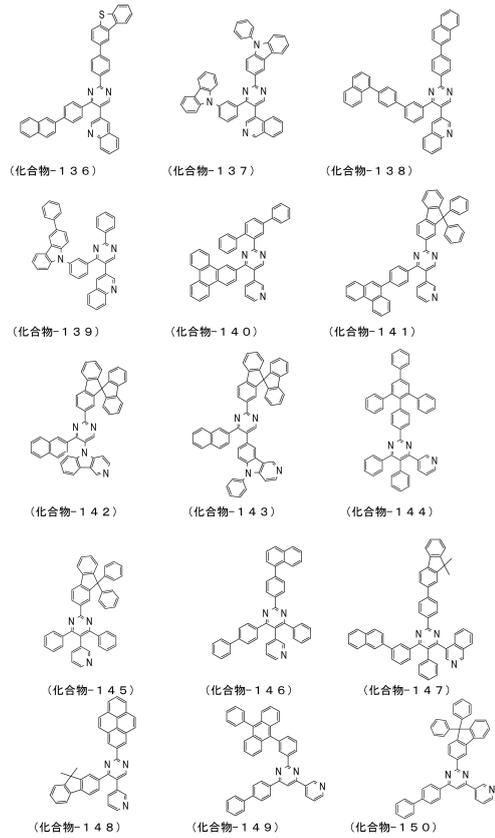
40

50

【図 9】



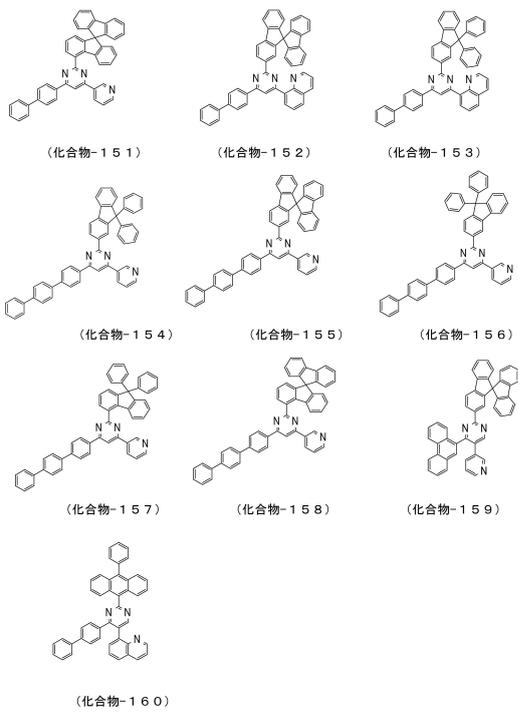
【図 1 0】



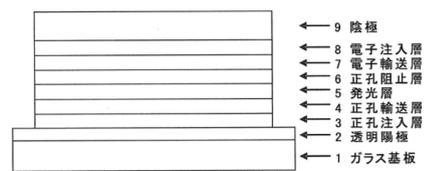
10

20

【図 1 1】



【図 1 2】



30

40

50

## フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I  
H 0 5 B 33/14 B

(74)代理人 100168745

弁理士 金子 彩子

(74)代理人 100176131

弁理士 金山 慎太郎

(74)代理人 100197398

弁理士 千葉 絢子

(74)代理人 100197619

弁理士 白鹿 智久

(72)発明者 加瀬 幸喜

東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内

(72)発明者 金 是仁

東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内

(72)発明者 平山 雄太

東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内

(72)発明者 駿河 和行

東京都中央区八重洲二丁目4番1号 保土谷化学工業株式会社内

審査官 三上 晶子

(56)参考文献

国際公開第2016/108596(WO, A2)

韓国公開特許第10-2015-0109111(KR, A)

米国特許出願公開第2012/0104941(US, A1)

国際公開第2012/023947(WO, A1)

国際公開第2016/089165(WO, A2)

韓国公開特許第10-2017-0086211(KR, A)

韓国公開特許第10-2015-0135626(KR, A)

韓国公開特許第10-2013-0093195(KR, A)

中国特許出願公開第106279103(CN, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C 0 7 D 2 0 1 / 0 0 - 5 2 1 / 0 0

H 0 1 L 5 1 / 5 0

C a p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )