

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002 - 326965

(P2002 - 326965A)

(43)公開日 平成14年11月15日(2002.11.15)

(51) Int. Cl ⁷	識別記号	F I	テ-マ-コ-ド [*] (参考)
C 0 7 C 13/72		C 0 7 C 13/72	3 K 0 0 7
1/32		1/32	4 C 0 5 6
25/18		25/18	4 H 0 0 6
49/792		49/792	
57/50		57/50	

審査請求 未請求 請求項の数 16 O L (全 45数) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001 - 135248(P2001 - 135248)

(22)出願日 平成13年5月2日(2001.5.2)

(71)出願人 000002185
ソニー株式会社
東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72)発明者 柴沼 徹朗
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

(72)発明者 高田 一範
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

(74)代理人 100076059
弁理士 逢坂 宏

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 スピロフルオレン化合物及びその製造方法、並びにその合成中間体、及びそのスピロフルオレン化合物を用いた有機電界発光素子

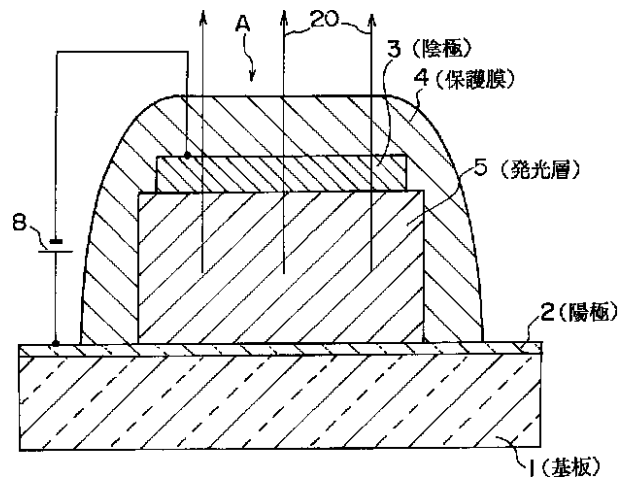
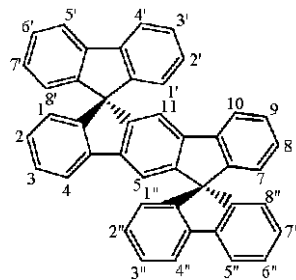
(57)【要約】

【課題】 強い発光を呈する青色の有機発光材料として好適な化合物及びそれを高効率に製造する方法、並びにその合成中間体、及びそのスピロフルオレン化合物を用いた有機電界発光素子を提供すること。

【解決手段】 下記一般式(1)で表されるスピロフルオレン化合物。

【化49】

一般式(1) :



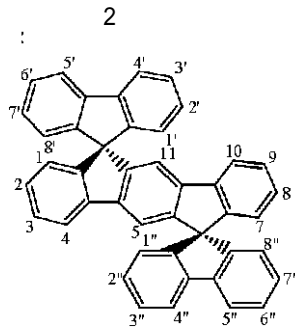
(但し、前記一般式(1)において、ベンゾ基は互いに独立に、置換及び/又は融合されていてもよい。)

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(1)で表されるスピロフルオレン化合物。

【化1】 一般式(1) :

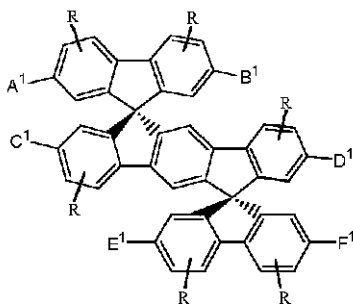


2

(但し、前記一般式(1)において、ベンゾ基は互いに独立に、置換及び/又は融合されていてもよい。)

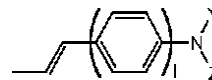
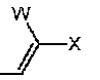
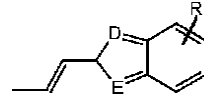
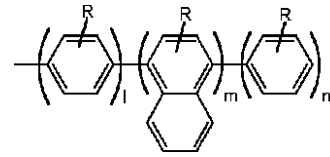
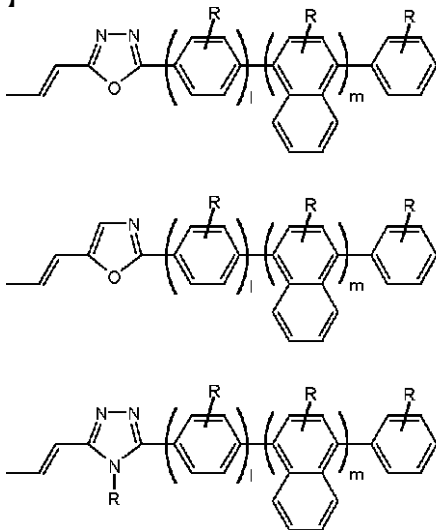
【請求項2】 下記一般式(2)で表されるスピロフルオレン化合物。

【化2】 一般式(2) :



[但し、前記一般式(2)において、A¹、B¹、C¹、D¹、E¹及びF¹は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基 :

【化3】



10

20

30

40

50

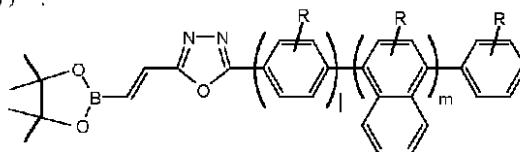
のいずれかである。また、前記一般式(2)及び前記基中、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のW、X、Y及びZは、各々独立に、水素原子、又は置換若しくは無置換の炭素数6~30のアリール基であり、WとX、及びYとZの置換基同士が結合して置換若しくは無置換の飽和若しくは不飽和の5員環又は6員環を形成していてもよく、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子であり、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。また、前記基中、Dは-CR¹-又は窒素であり、ここでR¹は、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中、Eは-O-、-S-、-NR²-、CR³R⁴-、-CH=CH-、-CH=N-であり、R²、R³、R⁴は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数

6～20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されているもよい。]

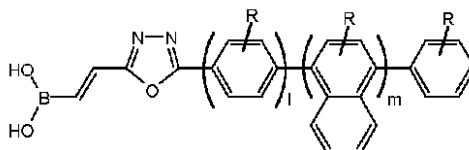
【請求項3】 下記一般式(3)～(9)で表されるピナコレートボロン化合物の少なくとも一種と、下記一般式(3)：

*式(10)で表されるプロモ化合物とを金属触媒の存在下でカップリング反応させることによって、下記一般式(2)で表されるスピロフルオレン化合物を得る、スピロフルオレン化合物の製造方法。

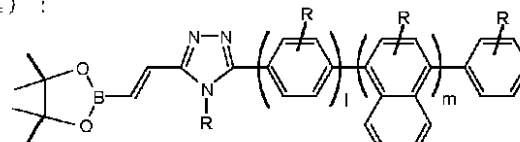
【化4】



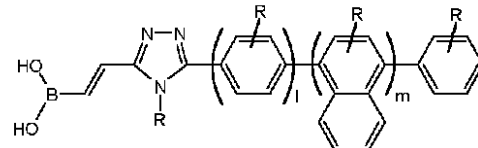
又は



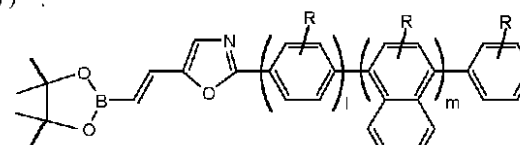
一般式(4)：



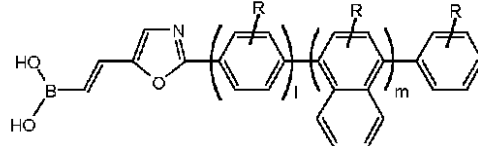
又は



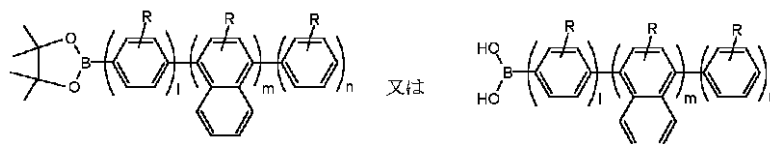
一般式(5)：



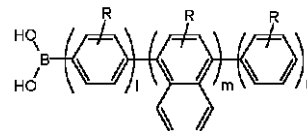
又は



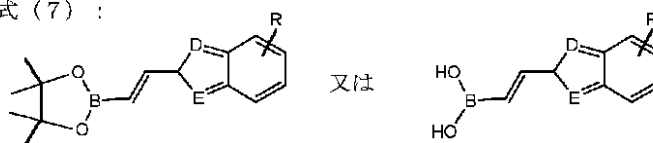
一般式(6)：



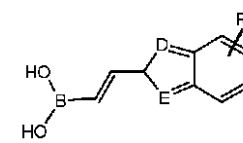
又は



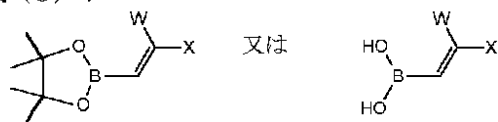
一般式(7)：



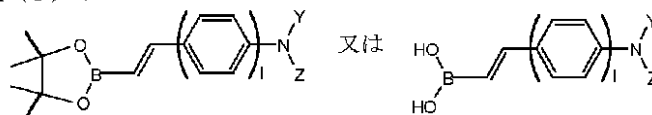
又は



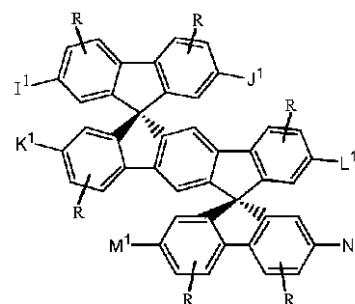
一般式(8) :



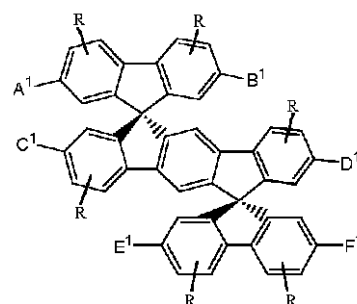
一般式(9) :



[但し、前記一般式(3)~(9)において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のW、X、Y及びZは、各々独立に、水素原子、又は置換若しくは無置換の炭素数6~30のアリール基であり、WとX、及びYとZの置換基同士が結合して置換若しくは無置換の飽和若しくは不飽和の5員環又は6員環を形成していてもよく、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子であり、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。また、前記基中、Dは-CR¹-又は窒素であり、ここでR¹は、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中、Eは-O-、-S-、-NR²-、CR³R⁴-、-CH=CH-、-CH=N-であり、R²、R³、R⁴は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。]

*【化5】
一般式(10) :

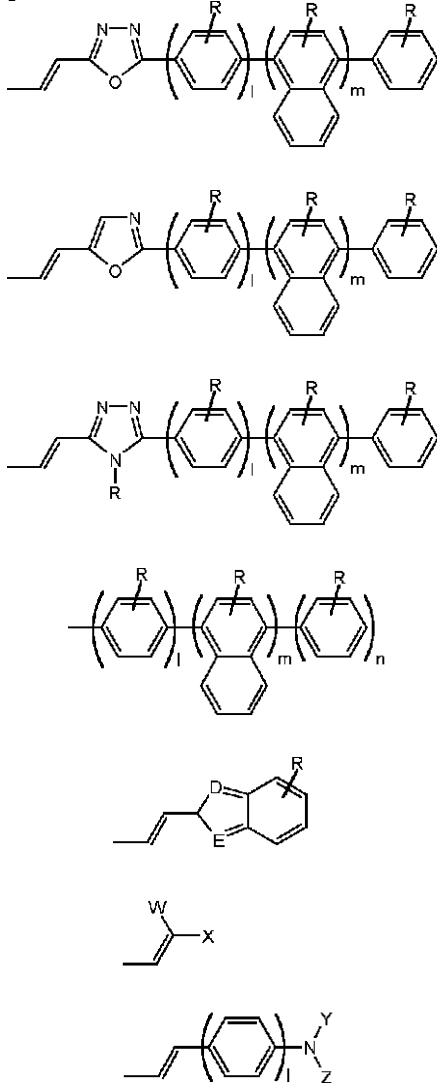
[但し、前記一般式(10)において、I¹、J¹、K¹、L¹、M¹及びN¹の少なくとも一つが、臭素原子(Br)又はヨウ素原子(I)のハロゲン原子であり、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基又はエステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。]

【化6】
一般式(2) :

7

[但し、前記一般式(2)において、A¹、B¹、C¹、D¹、E¹及びF¹は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基：

【化7】



のいずれかである。また、前記一般式(2)及び前記基中、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のW、X、Y及びZは、各々独

8

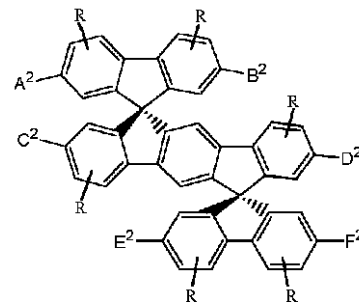
立に、水素原子、又は置換若しくは無置換の炭素数6~30のアリール基であり、WとX、及びYとZの置換基同士が結合して置換若しくは無置換の飽和若しくは不飽和の5員環又は6員環を形成していてもよく、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子であり、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。また、前記基中、Dは-CR¹-又は窒素であり、ここでR¹は、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中、Eは-O-、-S-、-NR²-、CR³R⁴-、-CH=CH-、-CH=N-であり、R²、R³、R⁴は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。]

【請求項4】 下記一般式(11)で表される、請求項2に記載したスピロフルオレン化合物。

【化8】

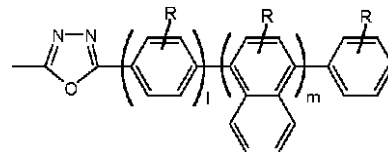
一般式(11)：

30



[但し、前記一般式(11)において、A²、B²、C²、D²、E²、F²は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基：

【化9】



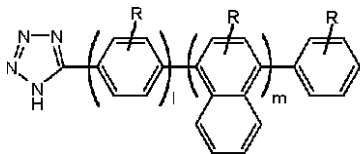
である。また、前記一般式(11)及び前記基において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル

9

基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【請求項5】 下記一般式(12)で表されるテトラゾール化合物と、下記一般式(13)で表されるカルボン酸クロライド化合物とを脱塩酸剤の存在下で縮合させることによって、下記一般式(11)で表されるスピロフルオレン化合物を得る、請求項3に記載したスピロフルオレン化合物の製造方法。

【化10】 一般式(12) :



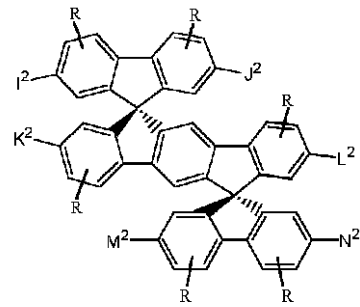
[但し、前記一般式(12)において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【化11】

*

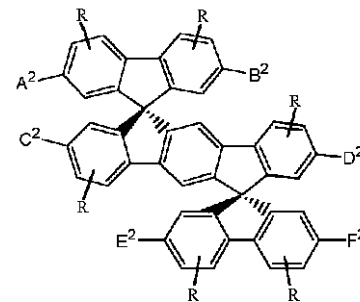
一般式(13) :

10



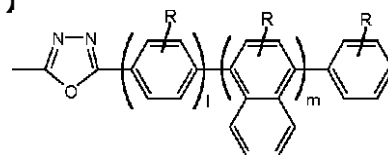
* [但し、前記一般式(13)において、I²、J²、K²、L²、M²及びN²のうちの少なくとも一つがカルボン酸クロライド(-COCl)基であり、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基又はエステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。]

【化12】 一般式(11) :



[但し、前記一般式(11)において、A²、B²、C²、D²、E²及びF²は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基 :

【化13】

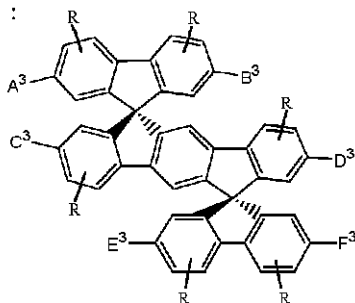


である。また、前記一般式(11)及び前記基において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐

若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

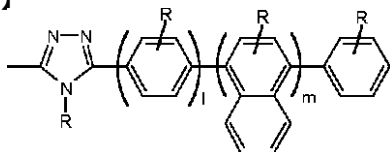
【請求項6】 下記一般式(14)で表される、請求項2に記載したスピロフルオレン化合物。

【化1.4】
一般式(14) :



[但し、前記一般式(14)において、A³、B³、C³、D³、E³及びF³は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基 :

【化1.5】



である。また、前記一般式(14)及び前記基において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子

10

30

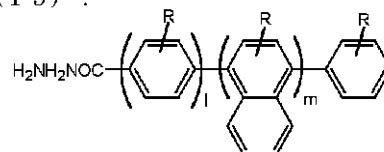
40

50

である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【請求項7】 下記一般式(15)で表されるヒドラジン化合物と、下記一般式(17)で表されるカルボン酸クロライド化合物とを脱塩酸剤の存在下で縮合させることによって生成する下記一般式(18)で表される中間体と、下記一般式(16)とを強酸又は脱水剤の存在下で脱水縮合させることによって、下記一般式(14)で表されるスピロフルオレン化合物を得る、請求項3に記載したスピロフルオレン化合物の製造方法。

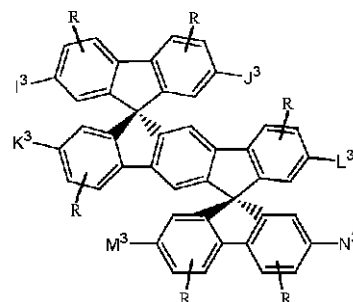
【化1.6】
一般式(15) :



一般式(16) : H₂N-R

【但し、前記一般式(15)及び前記一般式(16)において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記一般式(15)中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【化1.7】
一般式(17) :



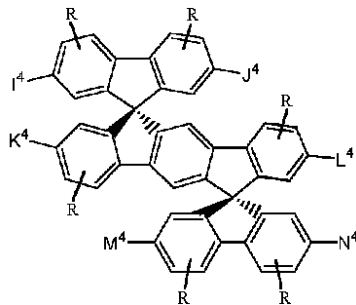
[但し、前記一般式(17)において、I³、J³、K³、L³、M³及びN³のうちの少なくとも一つがカルボン酸クロライド(-COCl)基であり、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1

13

~ 20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基又はエステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ビフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。]

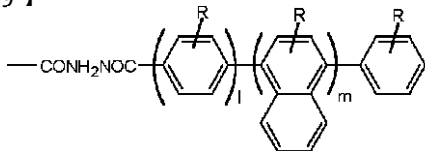
【化18】

一般式(18) :



[但し、前記一般式(18)において、I⁴、J⁴、K⁴、L⁴、M⁴及びN⁴のうちの少なくとも一つが、下記一般式で表される基 :

【化19】



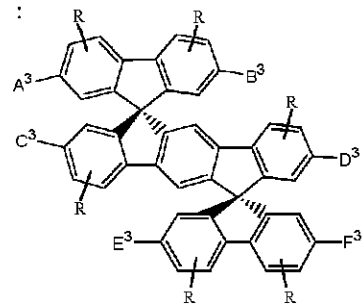
[但し、前記一般式(18)及び前記基中、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ビフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【化20】

50

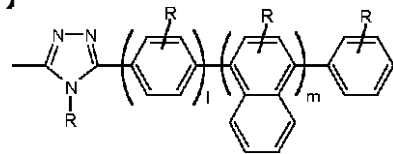
14

一般式(14) :



[但し、前記一般式(14)において、A³、B³、C³、D³、E³及びF³は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基 :

【化21】

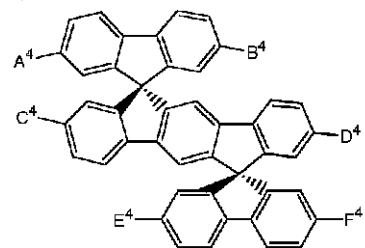


である。また、前記一般式(14)及び前記基において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ビフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【請求項8】 下記一般式(19)で表される、請求項2に記載したスピロフルオレン化合物。

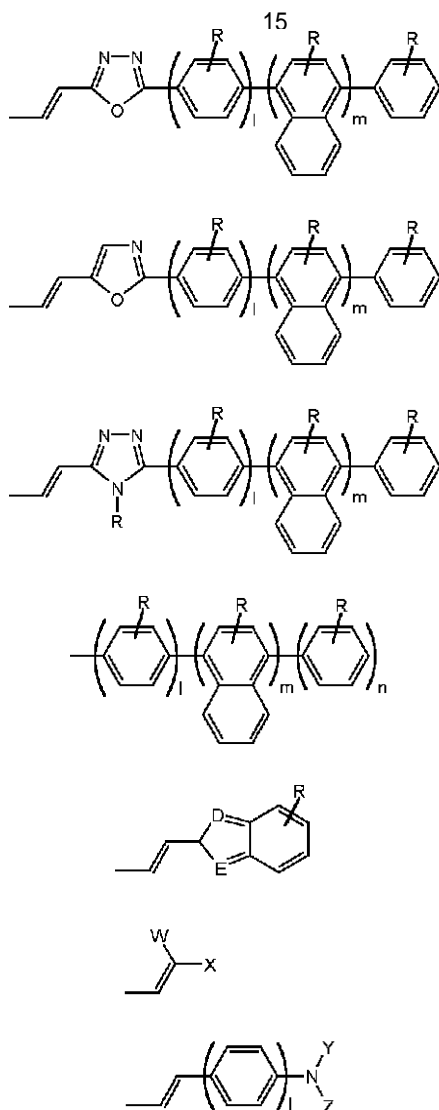
【化22】

一般式(19) :



[但し、前記一般式(19)において、A⁴、B⁴、C⁴、D⁴、E⁴及びF⁴は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基 :

【化23】



10

20

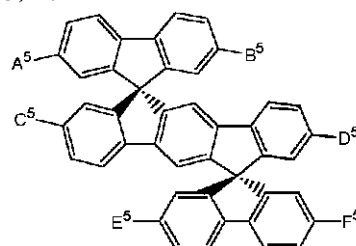
30

のいずれかである。また、前記基中、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ビフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のW、X、Y及びZは、各々独立に、水素原子、又は置換若しくは無置換の炭素数6~30のアリール基であり、WとX、及びYとZの置換基同士が結合して置換若しくは無置換の飽和若しくは不飽和の5員環又は6員環を形成していてもよく、ここで置換基とは、炭素数1~6の

アルキル基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子であり、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。また、前記基中、Dは $-CR^1-$ 又は窒素であり、ここで R^1 は、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中、Eは $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 CR^3R^4- 、 $-CH=CH-$ 、 $-CH=N-$ であり、 R^2 、 R^3 、 R^4 は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。]

【請求項9】 下記一般式(20)で表される、請求項2に記載したスピロフルオレン化合物。

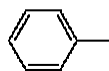
【化24】
一般式(20) :



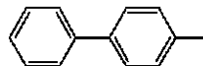
[但し、前記一般式(20)において、 A^5 、 B^5 、 C^5 、 D^5 、 E^5 及び F^5 は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、水素原子又は下記一般式(略号)L1~L23のいずれかである。]

【化25】

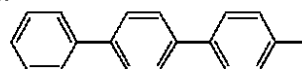
L1:



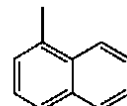
L2:

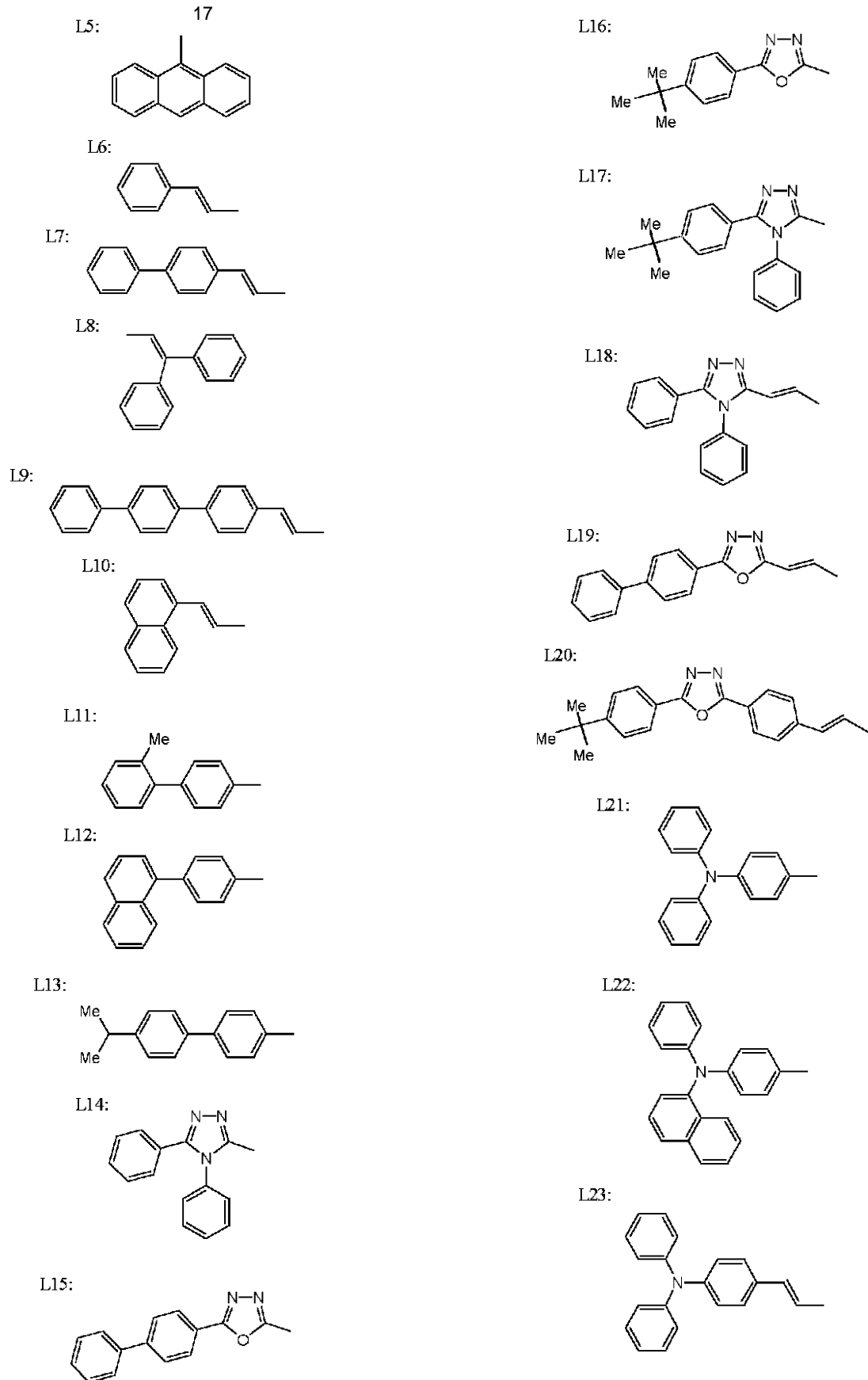


L3:



L4:





【請求項 10】 請求項 3 に記載した一般式 (10)、請求項 5 に記載した一般式 (13)、請求項 7 に記載した一般式 (17) 又は請求項 7 に記載した一般式 (18) で表される合成中間体。

【請求項 11】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極

との間に設けられている有機電界発光素子において、請求項 1 に記載した一般式 (1) で表されるスピロフルオレン化合物が、前記有機層に含まれていることを特徴とする、有機電界発光素子。

【請求項 1 2】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、請求項 2 に記載した一般式 (2) で表されるスピロフルオレン化合物が、前記有機層に含まれていることを特徴とする、有機電界発光素子。

【請求項 1 3】 請求項 4 に記載した一般式 (1 1)、請求項 6 に記載した一般式 (1 4)、請求項 8 に記載した一般式 (1 9) 又は請求項 9 に記載した一般式 (2 0) で表されるスピロフルオレン化合物が用いられている、請求項 1 0 に記載した有機電界発光素子。

【請求項 1 4】 前記有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記正孔輸送層の形成材料として前記スピロフルオレン化合物が用いられている、請求項 9 又は 1 0 に記載した有機電界発光素子。

【請求項 1 5】 前記有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが順次積層された有機積層構造を有しており、前記電子輸送層の形成材料として前記スピロフルオレン化合物が用いられている、請求項 9 又は 1 0 に記載した有機電界発光素子。

【請求項 1 6】 前記有機層が、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記発光層の形成材料として前記スピロフルオレン化合物が用いられている、請求項 9 又は 1 0 に記載した有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明が属する技術分野】本発明は、青色発光を呈する有機発光材料として好適なスピロフルオレン化合物及びその製造方法、並びにその合成中間体、及びそのスピロフルオレン化合物を用いた有機電界発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】近年、マルチメディア指向の商品をはじめとする、人間と機械とのインターフェースの重要性が高まってきている。人間が、より快適にかつ効率良く機械を操作するためには、操作される機械の情報を誤りなく、簡潔に、瞬時に、及び十分な情報量で取り出す必要があり、それを実現するために、ディスプレイ等の様々な表示素子についての研究が行われている。

【0003】また、機械の小型化に伴い、表示素子の小型化及び薄膜化に対する要求も日々高まってきているのが現状である。

【0004】例えば、ノート型パーソナルコンピュータやノート型ワードプロセッサなどの、表示素子一体型であるラップトップ型情報処理機器の小型化には目を見張

る進歩があり、それに伴って、その表示素子である液晶ディスプレイに関する技術革新も素晴らしいものがある。

【0005】今日、液晶ディスプレイは、様々な製品のインターフェースとして用いられている。ラップトップ型情報処理機器はもちろんのこと、小型テレビ、時計、電卓等の液晶ディスプレイをインターフェースとした製品は、我々の日常生活に多く用いられている。

【0006】これらの液晶ディスプレイは、液晶が低電圧駆動及び低消費電力であるという特徴を有しているので、小型の表示デバイスから大容量の表示デバイスに至るまで幅広く使用され、人間と機械のインターフェースを図る表示素子の中心として研究されてきた。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、液晶ディスプレイは自発光性を有しておらず、このため使用時にはバックライトを必要とする。このバックライトを駆動するに際し消費される電力は、液晶を駆動するときに消費される電力に比べ、より大きな電力を必要とするため、結果的に内蔵蓄電池等では使用時間が短くなり、使用上の制限が生じてしまう。

【0008】更に、液晶ディスプレイは、視野角が狭いため、大型ディスプレイ等の大型表示素子にはあまり適していないことも問題である。

【0009】また、液晶ディスプレイは、液晶分子の配向状態による表示方法であるので、視野角の中においても、角度によってコントラストが変化してしまうのも大きな問題であると考えられる。

【0010】また、駆動方式を考えれば、駆動方式の一つであるアクティブマトリックス方式は、動画を扱うのに十分な応答速度を示すが、しかしながら、TFT (薄膜トランジスタ) 駆動回路を用いるため、画素欠陥によって画面サイズの大型化が困難である。

【0011】他の駆動方式である単純マトリックス方式は、低コストである上に画面サイズの大型化が比較的容易であるが、しかしながら、動画を扱うには十分な応答速度を有していないという問題がある。

【0012】これに対し、自発光性の表示素子として、プラズマ表示素子、無機電界発光素子、有機電界発光素子等が研究されている。

【0013】プラズマ表示素子は、低圧ガス中でのプラズマ発光を表示に用いたもので、大型化、大容量化に適しているが、薄膜化、コストの面での問題を抱えている。また、駆動に高電圧の交流バイアスを必要とするため、携帯用デバイスにはあまり適していない。

【0014】無機電界発光素子は、緑色発光ディスプレイ等が商品化されたが、プラズマ表示素子と同様に、交流バイアス駆動であり、駆動には数百Vを必要とするため、実用性に欠けている。

【0015】また、無機材料を用いることによる、カラ

ーディスプレイに必要な赤（R）、緑（G）、青（B）の三原色の発光に成功しているが、発光材料として無機材料を用いるために、分子設計などによる発光波長等の制御は困難であり、フルカラー化は困難である。

【0016】一方、有機化合物による電界発光現象は、1960年代前半に、強く蛍光を発生するアントラセン単結晶へのキャリア注入による発光現象が発見されて以来、長い時間研究されてきたが、低輝度、単色であり、しかも単結晶であったため、有機材料へのキャリア注入という基礎的な研究として行われてきた。

【0017】しかし、1987年にEastman Kodak社のTangらが低電圧駆動、高輝度発光が可能なアモルファス発光層を有する積層構造の有機薄膜電界発光素子を発表して以来、各方面において、赤（R）、緑（G）、青（B）の三原色の発光、安定性、輝度上昇、積層構造、製作方法等の研究開発が盛んに行われてきている。

【0018】有機発光材料の第一の利点は、分子設計によって材料の光学的な性質をある程度コントロールできるところにあり、現在、分子設計等によって、様々な新規の有機発光性材料が研究開発されている。また、それらの有機発光性材料を構成材料として用いた有機電界発光素子は、直流低電圧駆動、薄型、自発光性等の優れた特徴を有しており、カラーディスプレイへの応用研究も盛んに行われ始めている。

【0019】しかしながら、有機電界発光素子の実用化を考えると、依然として、色度、発光寿命、発光効率等のデバイスとしての信頼性に問題があるのが現状であり、それらの問題をクリアすることが、有機電界発光素子によるフルカラーディスプレイの実用化を実現するための大きな要因となる。

【0020】本発明の目的は、上記のような現状に鑑み、強い発光を呈する青色の有機発光材料として好適なスピロフルオレン化合物及びそれを高効率に製造する方法、並びにその合成中間体、及びそのスピロフルオレン化合物を用いた有機電界発光素子を提供することにある。

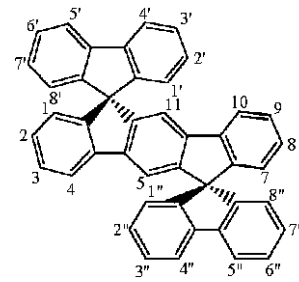
【0021】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、下記一般式（1）又は（2）で表されるスピロフルオレン化合物が強い発光を呈し、青色の発光材料となりうることを見出し、かつその一般的かつ高効率な製造方法を確立し、本発明に到達したものである。

【0022】即ち、本発明は、下記一般式（1）で表されるスピロフルオレン化合物に係るものである。

【化26】

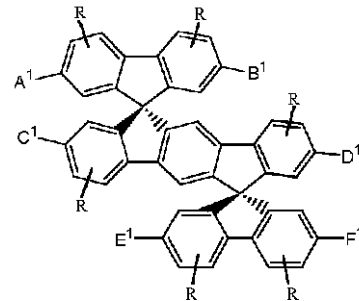
一般式（1）：



10 * (但し、前記一般式（1）において、ベンゾ基は互いに独立に、置換及び/又は融合されていてもよい。)

【0023】また、下記一般式（2）で表されるスピロフルオレン化合物に係るものである。

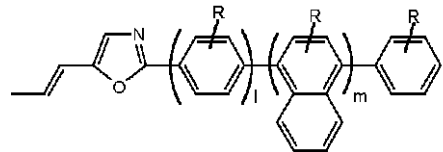
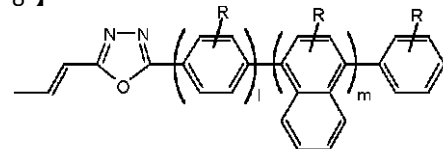
【化27】
一般式（2）：



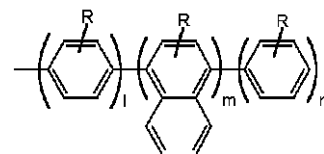
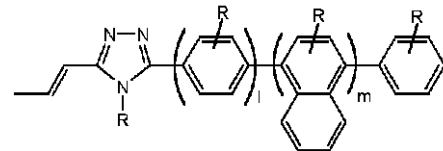
[但し、前記一般式（2）において、A¹、B¹、C¹、D¹、E¹及びF¹は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基：

【化28】

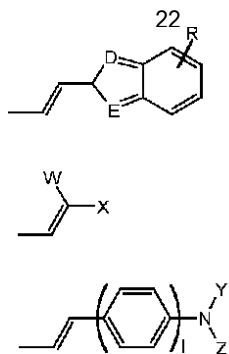
30



40



*



のいずれかである。また、前記一般式(2)及び前記基中、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ビフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のW、X、Y及びZは、各々独立に、水素原子、又は置換若しくは無置換の炭素数6~30のアリール基であり、WとX、及びYとZの置換基同士が結合して置換若しくは無置換の飽和若しくは不飽和の5員環又は6員環を形成していてもよく、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリール

10 アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子であり、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。また、前記基中、Dは- CR^1 -又は窒素であり、ここで R^1 は、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中、Eは-O-、-S-、- NR^2 -、 CR^3R^4 -、-CH=CH-、-CH=N-であり、 R^2 、 R^3 、 R^4 は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。]

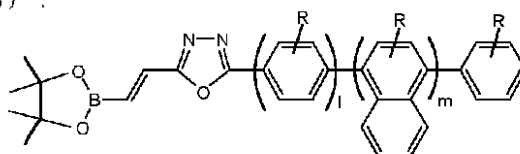
【0024】本発明のスピロフルオレン化合物は、熱的安定性に優れており、良好な発光効率を与え、極めて結晶化し難く、均一性のあるアモルファス性薄膜を形成することができる。また、有機電界発光素子の構成材料として、本発明のスピロフルオレン化合物を用いれば、カラーディスプレイ等のフルカラー化と共に、素子の長寿命化を実現することができる。

【0025】前記一般式(2)のスピロフルオレン化合物は、下記一般式(3)~(9)で表されるピナコレートボロン化合物の少なくとも一種と、下記一般式(10)で表されるプロモ化合物とを金属触媒の存在下でカップリング反応させることによって、高効率に製造することができる。

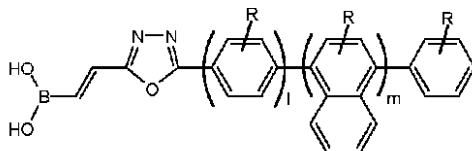
【化29】

一般式(3) :

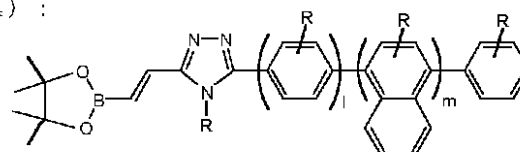
28



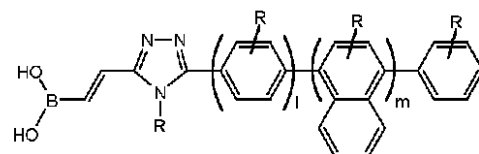
又は



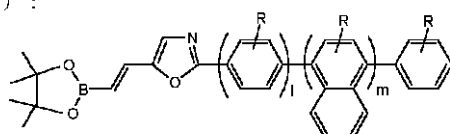
一般式(4) :



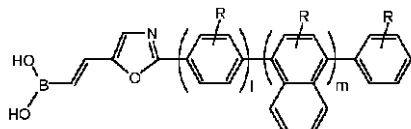
又は



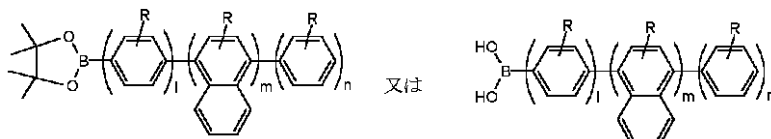
一般式(5) :



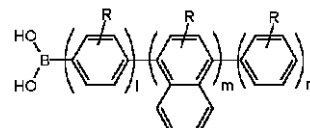
又は



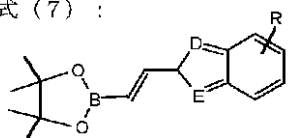
一般式(6) :



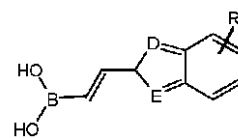
又は



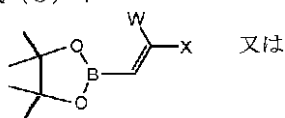
一般式(7) :



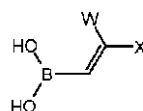
又は



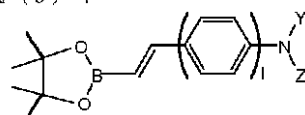
一般式(8) :



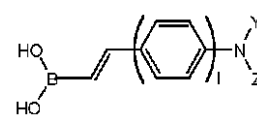
又は



一般式(9) :



又は

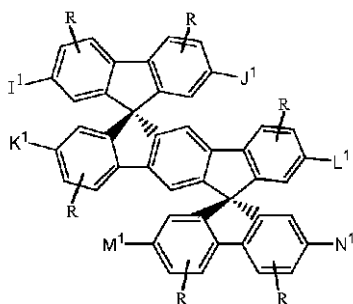


[但し、前記一般式(3)~(9)において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原

子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、

ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のW、X、Y及びZは、各々独立に、水素原子、又は置換若しくは無置換の炭素数6~30のアリール基であり、WとX、及びYとZの置換基同士が結合して置換若しくは無置換の飽和若しくは不飽和の5員環又は6員環を形成していてもよく、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子であり、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。また、前記基中、Dは-CR¹-又は窒素であり、ここでR¹は、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、前記基中、Eは-O-、-S-、-NR²-、CR³R⁴-、-CH=CH-、-CH=N-であり、R²、R³、R⁴は互いに同一であっても異なっていてもよく、水素原子、又は炭素数1~6の直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子を示し、これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。]

【化30】
一般式(10) :



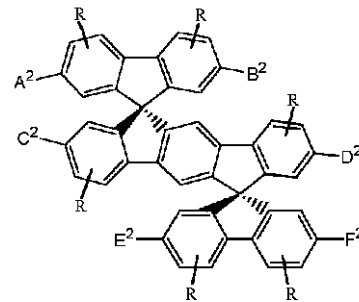
[但し、前記一般式(10)において、I¹、J¹、K¹、L¹、M¹及びN¹の少なくとも一つが、臭素原子(Br)又はヨウ素原子(I)のハロゲン原子であり、

50

各々のRは互いに同一であっても異なっていてもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基又はエステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。]

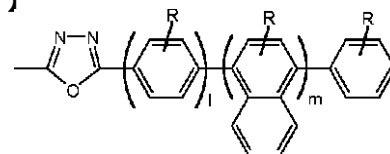
【0026】本発明のスピロフルオレン化合物は、下記一般式(11)で表されるものが好ましい。

【化31】
一般式(11) :



[但し、前記一般式(11)において、A²、B²、C²、D²、E²、F²は、互いに同一であっても異なっていてもよく、各々独立に、下記一般式で表される基 :

【化32】



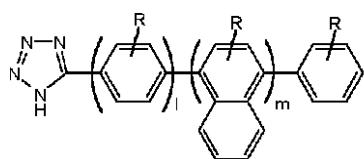
である。また、前記一般式(11)及び前記基において、各々のRは互いに同一であっても異なっていてもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30の

50

アリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中の1は1、2又は3であり、m及びnは0～6の整数である。]

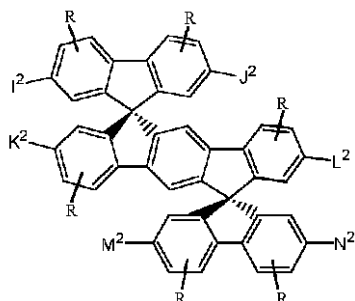
【0027】前記一般式(11)で表されるスピロフルオレン化合物は、下記一般式(12)で表されるテトラゾール化合物と、下記一般式(13)で表されるカルボン酸クロライド化合物とを脱塩酸剤の存在下で縮合させることによって、効率よく製造することができる。

【化33】一般式(12)：



[但し、前記一般式(12)において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1～20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中の1は1、2又は3であり、m及びnは0～6の整数である。]

【化34】一般式(13)：

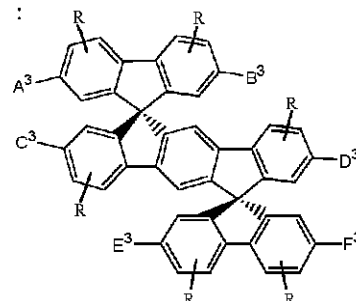


[但し、前記一般式(13)において、I²、J²、K²、L²、M²及びN²のうちの少なくとも一つがカルボン酸クロライド(-COCl)基であり、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1～20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基又はエステル基、水酸基、ハロ

ゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。]

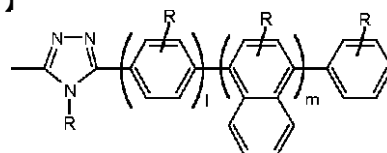
【0028】本発明のスピロフルオレン化合物は、より具体的には、下記一般式(14)で表されるものが多い。

【化35】一般式(14)：



[但し、前記一般式(14)において、A³、B³、C³、D³、E³及びF³は、互いに同一であっても異なってもよく、各々独立に、下記一般式で表される基：

【化36】

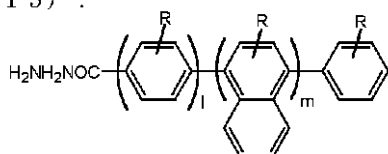


である。また、前記一般式(14)及び前記基において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1～20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中の1は1、2又は3であり、m及びnは0～6の整数である。]

30

【0029】上記一般式(14)で表されるスピロフルオレン化合物は、下記一般式(15)で表されるヒドラジン化合物と、下記一般式(17)で表されるカルボン酸クロライド化合物とを脱塩酸剤の存在下で縮合させることによって生成する下記一般式(18)で表される中間体と、下記一般式(16)とを強酸又は脱水剤の存在下で脱水縮合させることによって、効率よく製造することができる。

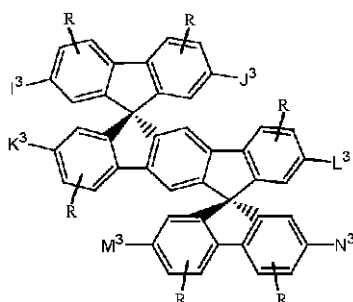
【化37】
一般式(15)：



一般式(16)： H_2N-R

[但し、前記一般式(15)及び前記一般式(16)において、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記一般式(15)中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

【化38】
一般式(17)：

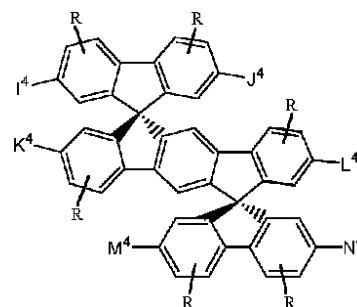


[但し、前記一般式(17)において、 I^3 、 J^3 、 K^3 、 L^3 、 M^3 及び N^3 のうちの少なくとも一つがカルボン酸クロライド(-COCl)基であり、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基又はエステル基、水酸基、ハロ

31

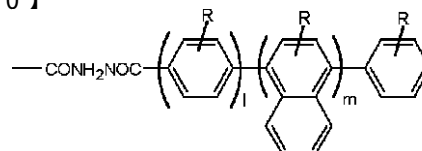
ゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。]

【化39】
一般式(18)：



[但し、前記一般式(18)において、 I^4 、 J^4 、 K^4 、 L^4 、 M^4 及び N^4 のうちの少なくとも一つが、下記一般式で表される基：

【化40】

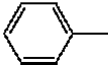


[但し、前記一般式(18)及び前記基中、各々のRは互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、1~20の炭素原子を有する直鎖、分岐若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、エステル基、水酸基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アルキルアミノ基、アリール基、アリールアミノ基又はアリールオキシ基であり、前記アリール基とは、置換若しくは無置換のフェニル基、ピフェニル基、トリフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フルオレニル基、2-フルオレニル基又は9-フルオレニル基等であり、ここで置換基とは、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~30のアリール基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基又はハロゲン原子である。また、前記基中のlは1、2又は3であり、m及びnは0~6の整数である。]

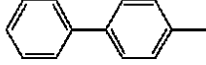
【0030】特に好ましくは、下記一般式(19)で表されるスピロフルオレン化合物である。

【化41】

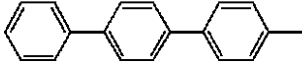
L1:



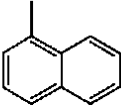
L2:



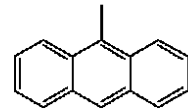
L3:



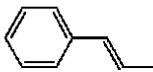
L4:



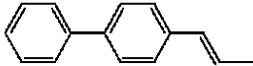
L5:



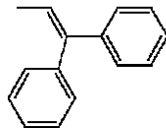
L6:



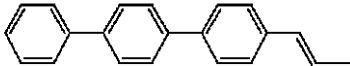
L7:



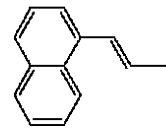
L8:



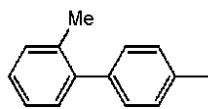
L9:



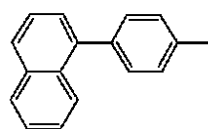
L10:



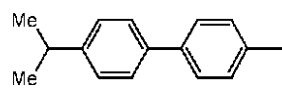
L11:



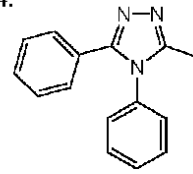
L12:



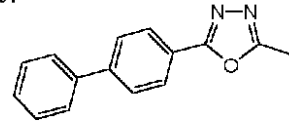
L13:



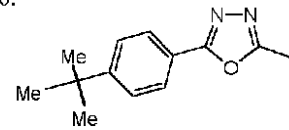
L14:



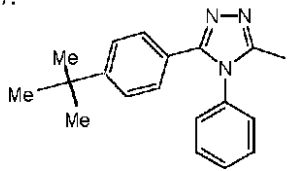
L15:



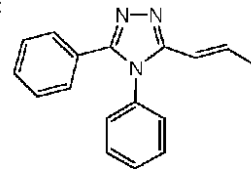
L16:



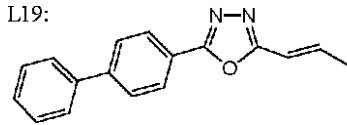
L17:



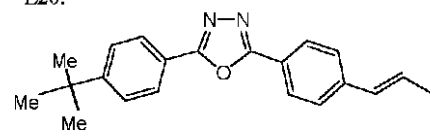
L18:



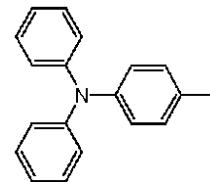
L19:



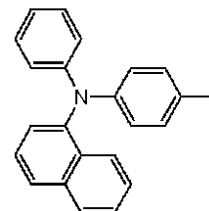
L20:

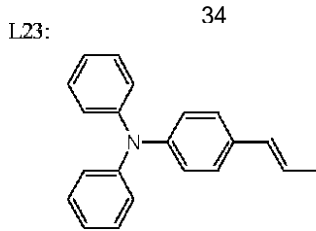


L21:



L22:





【0032】最も好ましい本発明のスピロフルオレン化合物は、上記一般式（略号）L1～L23で表されるものが、前記一般式（20）に対して意味を有する下記表1～3に示した化合物群である。

【0033】

【表1】

表1: 一般式(20)のスピロフルオレン化合物
O⁵=D⁵=H(水素)

化合物	A ⁵	B ⁵	E ⁵	F ⁵
スピロ-A1	L1	L1	L1	L1
スピロ-A2	L2	L2	L2	L2
スピロ-A3	L3	L3	L3	L3
スピロ-A4	L4	L4	L4	L4
スピロ-A5	L5	L5	L5	L5
スピロ-A6	L6	L6	L6	L6
スピロ-A7	L7	L7	L7	L7
スピロ-A8	L8	L8	L8	L8
スピロ-A9	L9	L9	L9	L9
スピロ-A10	L10	L10	L10	L10
スピロ-A11	L11	L11	L11	L11
スピロ-A12	L12	L12	L12	L12
スピロ-A13	L13	L13	L13	L13
スピロ-A14	L14	L14	L14	L14
スピロ-A15	L15	L15	L15	L15
スピロ-A16	L16	L16	L16	L16
スピロ-A17	L17	L17	L17	L17
スピロ-A18	L18	L18	L18	L18
スピロ-A19	L19	L19	L19	L19
スピロ-A20	L20	L20	L20	L20
スピロ-A21	L21	L21	L21	L21
スピロ-A22	L22	L22	L22	L22
スピロ-A23	L23	L23	L23	L23
スピロ-A24	L1	L1	L2	L2
スピロ-A25	L1	L1	L3	L3
スピロ-A26	L1	L1	L4	L4
スピロ-A27	L1	L1	L5	L5
スピロ-A28	L1	L1	L6	L6
スピロ-A29	L1	L1	L7	L7
スピロ-A30	L1	L1	L8	L8
スピロ-A31	L1	L1	L9	L9
スピロ-A32	L1	L1	L10	L10
スピロ-A33	L1	L1	L11	L11
スピロ-A34	L1	L1	L12	L12
スピロ-A35	L1	L1	L13	L13
スピロ-A36	L1	L1	L14	L14
スピロ-A37	L1	L1	L15	L15
スピロ-A38	L1	L1	L16	L16
スピロ-A39	L1	L1	L17	L17
スピロ-A40	L1	L1	L18	L18
スピロ-A41	L1	L1	L19	L19
スピロ-A42	L1	L1	L20	L20
スピロ-A43	L1	L1	L21	L21
スピロ-A44	L1	L1	L22	L22
スピロ-A45	L1	L1	L23	L23
スピロ-A46	L2	L2	L3	L3
スピロ-A47	L2	L2	L4	L4
スピロ-A48	L2	L2	L5	L5
スピロ-A49	L2	L2	L6	L6
スピロ-A50	L2	L2	L7	L7
スピロ-A51	L2	L2	L8	L8
スピロ-A52	L2	L2	L9	L9

スピロ-A53	L2	L2	L10	L10
スピロ-A54	L2	L2	L11	L11
スピロ-A55	L2	L2	L12	L12
スピロ-A56	L2	L2	L13	L13
スピロ-A57	L2	L2	L14	L14
スピロ-A58	L2	L2	L15	L15
スピロ-A59	L2	L2	L16	L16
スピロ-A60	L2	L2	L17	L17
スピロ-A61	L2	L2	L18	L18
スピロ-A62	L2	L2	L19	L19
スピロ-A63	L2	L2	L20	L20
スピロ-A64	L2	L2	L21	L21
スピロ-A65	L2	L2	L22	L22
スピロ-A66	L2	L2	L23	L23
スピロ-A67	L3	L3	L4	L4
スピロ-A68	L3	L3	L5	L5
スピロ-A69	L3	L3	L6	L6
スピロ-A70	L3	L3	L7	L7
スピロ-A71	L3	L3	L8	L8
スピロ-A72	L3	L3	L9	L9
スピロ-A73	L3	L3	L10	L10
スピロ-A74	L3	L3	L11	L11
スピロ-A75	L3	L3	L12	L12
スピロ-A76	L3	L3	L13	L13
スピロ-A77	L3	L3	L14	L14
スピロ-A78	L3	L3	L15	L15
スピロ-A79	L3	L3	L16	L16
スピロ-A80	L3	L3	L17	L17
スピロ-A81	L3	L3	L18	L18
スピロ-A82	L3	L3	L19	L19
スピロ-A83	L3	L3	L20	L20
スピロ-A84	L3	L3	L21	L21
スピロ-A85	L3	L3	L22	L22
スピロ-A86	L3	L3	L23	L23
スピロ-A87	L4	L4	L5	L5
スピロ-A88	L4	L4	L6	L6
スピロ-A89	L4	L4	L7	L7
スピロ-A90	L4	L4	L8	L8
スピロ-A91	L4	L4	L9	L9
スピロ-A92	L4	L4	L10	L10
スピロ-A93	L4	L4	L11	L11
スピロ-A94	L4	L4	L12	L12
スピロ-A95	L4	L4	L13	L13
スピロ-A96	L4	L4	L14	L14
スピロ-A97	L4	L4	L15	L15
スピロ-A98	L4	L4	L16	L16
スピロ-A99	L4	L4	L17	L17
スピロ-A100	L4	L4	L18	L18
スピロ-A101	L4	L4	L19	L19
スピロ-A102	L4	L4	L20	L20
スピロ-A103	L4	L4	L21	L21
スピロ-A104	L4	L4	L22	L22
スピロ-A105	L4	L4	L23	L23
スピロ-A106	L5	L5	L6	L6
スピロ-A107	L5	L5	L7	L7
スピロ-A108	L5	L5	L8	L8

スピロ-A109	L5	L5	L9	L9
スピロ-A110	L5	L5	L10	L10
スピロ-A111	L5	L5	L11	L11
スピロ-A112	L5	L5	L12	L12
スピロ-A113	L5	L5	L13	L13
スピロ-A114	L5	L5	L14	L14
スピロ-A115	L5	L5	L15	L15
スピロ-A116	L5	L5	L16	L16
スピロ-A117	L5	L5	L17	L17
スピロ-A118	L5	L5	L18	L18
スピロ-A119	L5	L5	L19	L19
スピロ-A120	L5	L5	L20	L20
スピロ-A121	L5	L5	L21	L21
スピロ-A122	L5	L5	L22	L22
スピロ-A123	L5	L5	L23	L23
スピロ-A124	L6	L6	L7	L7
スピロ-A125	L6	L6	L8	L8
スピロ-A126	L6	L6	L9	L9
スピロ-A127	L6	L6	L10	L10
スピロ-A128	L6	L6	L11	L11
スピロ-A129	L6	L6	L12	L12
スピロ-A130	L6	L6	L13	L13
スピロ-A131	L6	L6	L14	L14
スピロ-A132	L6	L6	L15	L15
スピロ-A133	L6	L6	L16	L16
スピロ-A134	L6	L6	L17	L17
スピロ-A135	L6	L6	L18	L18
スピロ-A136	L6	L6	L19	L19
スピロ-A137	L6	L6	L20	L20
スピロ-A138	L6	L6	L21	L21
スピロ-A139	L6	L6	L22	L22
スピロ-A140	L6	L6	L23	L23
スピロ-A141	L7	L7	L8	L8
スピロ-A142	L7	L7	L9	L9
スピロ-A143	L7	L7	L10	L10
スピロ-A144	L7	L7	L11	L11
スピロ-A145	L7	L7	L12	L12
スピロ-A146	L7	L7	L13	L13
スピロ-A147	L7	L7	L14	L14
スピロ-A148	L7	L7	L15	L15
スピロ-A149	L7	L7	L16	L16
スピロ-A150	L7	L7	L17	L17
スピロ-A151	L7	L7	L18	L18
スピロ-A152	L7	L7	L19	L19
スピロ-A153	L7	L7	L20	L20
スピロ-A154	L7	L7	L21	L21
スピロ-A155	L7	L7	L22	L22
スピロ-A156	L7	L7	L23	L23
スピロ-A157	L8	L8	L9	L9
スピロ-A158	L8	L8	L10	L10
スピロ-A159	L8	L8	L11	L11
スピロ-A160	L8	L8	L12	L12
スピロ-A161	L8	L8	L13	L13
スピロ-A162	L8	L8	L14	L14
スピロ-A163	L8	L8	L15	L15
スピロ-A164	L8	L8	L16	L16

スピロ-A165	L8	L8	L17	L17
スピロ-A166	L8	L8	L18	L18
スピロ-A167	L8	L8	L19	L19
スピロ-A168	L8	L8	L20	L20
スピロ-A169	L8	L8	L21	L21
スピロ-A170	L8	L8	L22	L22
スピロ-A171	L8	L8	L23	L23
スピロ-A172	L9	L9	L10	L10
スピロ-A173	L9	L9	L11	L11
スピロ-A174	L9	L9	L12	L12
スピロ-A175	L9	L9	L13	L13
スピロ-A176	L9	L9	L14	L14
スピロ-A177	L9	L9	L15	L15
スピロ-A178	L9	L9	L16	L16
スピロ-A179	L9	L9	L17	L17
スピロ-A180	L9	L9	L18	L18
スピロ-A181	L9	L9	L19	L19
スピロ-A182	L9	L9	L20	L20
スピロ-A183	L9	L9	L21	L21
スピロ-A184	L9	L9	L22	L22
スピロ-A185	L9	L9	L23	L23
スピロ-A186	L10	L10	L11	L11
スピロ-A187	L10	L10	L12	L12
スピロ-A188	L10	L10	L13	L13
スピロ-A189	L10	L10	L14	L14
スピロ-A190	L10	L10	L15	L15
スピロ-A200	L10	L10	L16	L16
スピロ-A201	L10	L10	L17	L17
スピロ-A202	L10	L10	L18	L18
スピロ-A203	L10	L10	L19	L19
スピロ-A204	L10	L10	L20	L20
スピロ-A205	L10	L10	L21	L21
スピロ-A206	L10	L10	L22	L22
スピロ-A207	L10	L10	L23	L23
スピロ-A208	L10	L10	L24	L24
スピロ-A209	L11	L11	L12	L12
スピロ-A210	L11	L11	L13	L13
スピロ-A211	L11	L11	L14	L14
スピロ-A212	L11	L11	L15	L15
スピロ-A213	L11	L11	L16	L16
スピロ-A214	L11	L11	L17	L17
スピロ-A215	L11	L11	L18	L18
スピロ-A216	L11	L11	L19	L19
スピロ-A217	L11	L11	L20	L20
スピロ-A218	L11	L11	L21	L21
スピロ-A219	L11	L11	L22	L22
スピロ-A220	L11	L11	L23	L23
スピロ-A221	L12	L12	L13	L13
スピロ-A222	L12	L12	L14	L14
スピロ-A223	L12	L12	L15	L15
スピロ-A224	L12	L12	L16	L16
スピロ-A225	L12	L12	L17	L17
スピロ-A226	L12	L12	L18	L18
スピロ-A227	L12	L12	L19	L19
スピロ-A228	L12	L12	L20	L20
スピロ-A229	L12	L12	L21	L21

スピロ-A230	L12	L12	L22	L22
スピロ-A231	L12	L12	L23	L23
スピロ-A232	L12	L12	L24	L24
スピロ-A233	L13	L13	L14	L14
スピロ-A234	L13	L13	L15	L15
スピロ-A235	L13	L13	L16	L16
スピロ-A236	L13	L13	L17	L17
スピロ-A237	L13	L13	L18	L18
スピロ-A238	L13	L13	L19	L19
スピロ-A239	L13	L13	L20	L20
スピロ-A240	L13	L13	L21	L21
スピロ-A241	L13	L13	L22	L22
スピロ-A242	L13	L13	L23	L23
スピロ-A243	L14	L14	L15	L15
スピロ-A244	L14	L14	L16	L16
スピロ-A245	L14	L14	L17	L17
スピロ-A246	L14	L14	L18	L18
スピロ-A247	L14	L14	L19	L19
スピロ-A248	L14	L14	L20	L20
スピロ-A249	L14	L14	L21	L21
スピロ-A250	L14	L14	L22	L22
スピロ-A251	L14	L14	L23	L23
スピロ-A252	L15	L15	L16	L16
スピロ-A253	L15	L15	L17	L17
スピロ-A254	L15	L15	L18	L18
スピロ-A255	L15	L15	L19	L19
スピロ-A256	L15	L15	L20	L20
スピロ-A257	L15	L15	L21	L21
スピロ-A258	L15	L15	L22	L22
スピロ-A259	L15	L15	L23	L23
スピロ-A260	L16	L16	L17	L17
スピロ-A261	L16	L16	L18	L18
スピロ-A262	L16	L16	L19	L19
スピロ-A263	L16	L16	L20	L20
スピロ-A264	L16	L16	L21	L21
スピロ-A265	L16	L16	L22	L22
スピロ-A266	L16	L16	L23	L23
スピロ-A267	L17	L17	L18	L18
スピロ-A268	L17	L17	L19	L19
スピロ-A269	L17	L17	L20	L20
スピロ-A270	L17	L17	L21	L21
スピロ-A271	L17	L17	L22	L22
スピロ-A272	L17	L17	L23	L23
スピロ-A273	L18	L18	L19	L19
スピロ-A274	L18	L18	L20	L20
スピロ-A275	L18	L18	L21	L21
スピロ-A276	L18	L18	L22	L22
スピロ-A277	L18	L18	L23	L23
スピロ-A278	L19	L19	L20	L20
スピロ-A279	L19	L19	L21	L21
スピロ-A280	L19	L19	L22	L22
スピロ-A281	L19	L19	L23	L23
スピロ-A282	L20	L20	L21	L21
スピロ-A283	L20	L20	L22	L22
スピロ-A284	L20	L20	L23	L23
スピロ-A285	L21	L21	L22	L22

スピロ-A286	L21	L21	L23	L23
スピロ-A287	L22	L22	L23	L23
スピロ-A288	H	H	L1	L1
スピロ-A289	H	H	L2	L2
スピロ-A290	H	H	L3	L3
スピロ-A291	H	H	L4	L4
スピロ-A292	H	H	L5	L5
スピロ-A293	H	H	L6	L6
スピロ-A294	H	H	L7	L7
スピロ-A295	H	H	L8	L8
スピロ-A296	H	H	L9	L9
スピロ-A297	H	H	L10	L10
スピロ-A298	H	H	L11	L11
スピロ-A299	H	H	L12	L12
スピロ-A300	H	H	L13	L13
スピロ-A301	H	H	L14	L14
スピロ-A302	H	H	L15	L15
スピロ-A303	H	H	L16	L16
スピロ-A304	H	H	L17	L17
スピロ-A305	H	H	L18	L18
スピロ-A306	H	H	L19	L19
スピロ-A307	H	H	L20	L20
スピロ-A308	H	H	L21	L21
スピロ-A309	H	H	L22	L22
スピロ-A310	H	H	L23	L23
スピロ-A311	H	L1	H	L1
スピロ-A312	H	L2	H	L2
スピロ-A313	H	L3	H	L3
スピロ-A314	H	L4	H	L4
スピロ-A315	H	L5	H	L5
スピロ-A316	H	L6	H	L6
スピロ-A317	H	L7	H	L7
スピロ-A318	H	L8	H	L8
スピロ-A319	H	L9	H	L9
スピロ-A320	H	L10	H	L10
スピロ-A321	H	L11	H	L11
スピロ-A322	H	L12	H	L12
スピロ-A323	H	L13	H	L13
スピロ-A324	H	L14	H	L14
スピロ-A325	H	L15	H	L15
スピロ-A326	H	L16	H	L16
スピロ-A327	H	L17	H	L17
スピロ-A328	H	L18	H	L18
スピロ-A329	H	L19	H	L19
スピロ-A330	H	L20	H	L20
スピロ-A331	H	L21	H	L21
スピロ-A332	H	L22	H	L22
スピロ-A333	H	L23	H	L23
スピロ-A334	H	L1	H	L2
スピロ-A335	H	L1	H	L3
スピロ-A336	H	L1	H	L4
スピロ-A337	H	L1	H	L5
スピロ-A338	H	L1	H	L6
スピロ-A339	H	L1	H	L7
スピロ-A340	H	L1	H	L8
スピロ-A341	H	L1	H	L9

スピロ-A342	H	L1	H	L10
スピロ-A343	H	L1	H	L11
スピロ-A344	H	L1	H	L12
スピロ-A345	H	L1	H	L13
スピロ-A346	H	L1	H	L14
スピロ-A347	H	L1	H	L15
スピロ-A348	H	L1	H	L16
スピロ-A349	H	L1	H	L17
スピロ-A350	H	L1	H	L18
スピロ-A351	H	L1	H	L19
スピロ-A352	H	L1	H	L20
スピロ-A353	H	L1	H	L21
スピロ-A354	H	L1	H	L22
スピロ-A355	H	L1	H	L23
スピロ-A356	H	L2	H	L3
スピロ-A357	H	L2	H	L4
スピロ-A358	H	L2	H	L5
スピロ-A359	H	L2	H	L6
スピロ-A360	H	L2	H	L7
スピロ-A361	H	L2	H	L8
スピロ-A362	H	L2	H	L9
スピロ-A363	H	L2	H	L10
スピロ-A364	H	L2	H	L11
スピロ-A365	H	L2	H	L12
スピロ-A366	H	L2	H	L13
スピロ-A367	H	L2	H	L14
スピロ-A368	H	L2	H	L15
スピロ-A369	H	L2	H	L16
スピロ-A370	H	L2	H	L17
スピロ-A371	H	L2	H	L18
スピロ-A372	H	L2	H	L19
スピロ-A373	H	L2	H	L20
スピロ-A374	H	L2	H	L21
スピロ-A375	H	L2	H	L22
スピロ-A376	H	L2	H	L23
スピロ-A377	H	L3	H	L4
スピロ-A378	H	L3	H	L5
スピロ-A379	H	L3	H	L6
スピロ-A380	H	L3	H	L7
スピロ-A381	H	L3	H	L8
スピロ-A382	H	L3	H	L9
スピロ-A383	H	L3	H	L10
スピロ-A384	H	L3	H	L11
スピロ-A385	H	L3	H	L12
スピロ-A386	H	L3	H	L13
スピロ-A387	H	L3	H	L14
スピロ-A388	H	L3	H	L15
スピロ-A389	H	L3	H	L16
スピロ-A390	H	L3	H	L17
スピロ-A391	H	L3	H	L18
スピロ-A392	H	L3	H	L19
スピロ-A393	H	L3	H	L20
スピロ-A394	H	L3	H	L21
スピロ-A395	H	L3	H	L22
スピロ-A396	H	L3	H	L23
スピロ-A397	H	L4	H	L5

スピロ-A398	H	L4	H	L6
スピロ-A399	H	L4	H	L7
スピロ-A400	H	L4	H	L8
スピロ-A401	H	L4	H	L9
スピロ-A402	H	L4	H	L10
スピロ-A403	H	L4	H	L11
スピロ-A404	H	L4	H	L12
スピロ-A405	H	L4	H	L13
スピロ-A406	H	L4	H	L14
スピロ-A407	H	L4	H	L15
スピロ-A408	H	L4	H	L16
スピロ-A409	H	L4	H	L17
スピロ-A410	H	L4	H	L18
スピロ-A411	H	L4	H	L19
スピロ-A412	H	L4	H	L20
スピロ-A413	H	L4	H	L21
スピロ-A414	H	L4	H	L22
スピロ-A415	H	L4	H	L23
スピロ-A416	H	L5	H	L6
スピロ-A417	H	L5	H	L7
スピロ-A418	H	L5	H	L8
スピロ-A419	H	L5	H	L9
スピロ-A420	H	L5	H	L10
スピロ-A421	H	L5	H	L11
スピロ-A422	H	L5	H	L12
スピロ-A423	H	L5	H	L13
スピロ-A424	H	L5	H	L14
スピロ-A425	H	L5	H	L15
スピロ-A426	H	L5	H	L16
スピロ-A427	H	L5	H	L17
スピロ-A428	H	L5	H	L18
スピロ-A429	H	L5	H	L19
スピロ-A430	H	L5	H	L20
スピロ-A431	H	L5	H	L21
スピロ-A432	H	L5	H	L22
スピロ-A433	H	L5	H	L23
スピロ-A434	H	L6	H	L7
スピロ-A435	H	L6	H	L8
スピロ-A436	H	L6	H	L9
スピロ-A437	H	L6	H	L10
スピロ-A438	H	L6	H	L11
スピロ-A439	H	L6	H	L12
スピロ-A440	H	L6	H	L13
スピロ-A441	H	L6	H	L14
スピロ-A442	H	L6	H	L15
スピロ-A443	H	L6	H	L16
スピロ-A444	H	L6	H	L17
スピロ-A445	H	L6	H	L18
スピロ-A446	H	L6	H	L19
スピロ-A447	H	L6	H	L20
スピロ-A448	H	L6	H	L21
スピロ-A449	H	L6	H	L22
スピロ-A450	H	L6	H	L23
スピロ-A451	H	L7	H	L8
スピロ-A452	H	L7	H	L9

スピロ-A453	H	L7	H	L11
スピロ-A454	H	L7	H	L12
スピロ-A455	H	L7	H	L13
スピロ-A456	H	L7	H	L14
スピロ-A457	H	L7	H	L15
スピロ-A458	H	L7	H	L16
スピロ-A459	H	L7	H	L17
スピロ-A460	H	L7	H	L18
スピロ-A461	H	L7	H	L19
スピロ-A462	H	L7	H	L20
スピロ-A463	H	L7	H	L21
スピロ-A464	H	L7	H	L22
スピロ-A465	H	L7	H	L23
スピロ-A466	H	L8	H	L9
スピロ-A467	H	L8	H	L10
スピロ-A468	H	L8	H	L11
スピロ-A469	H	L8	H	L12
スピロ-A470	H	L8	H	L13
スピロ-A471	H	L8	H	L14
スピロ-A472	H	L8	H	L15
スピロ-A473	H	L8	H	L16
スピロ-A474	H	L8	H	L17
スピロ-A475	H	L8	H	L18
スピロ-A476	H	L8	H	L19
スピロ-A477	H	L8	H	L20
スピロ-A478	H	L8	H	L21
スピロ-A479	H	L8	H	L22
スピロ-A480	H	L8	H	L23
スピロ-A481	H	L9	H	L10
スピロ-A482	H	L9	H	L11
スピロ-A483	H	L9	H	L12
スピロ-A484	H	L9	H	L13
スピロ-A485	H	L9	H	L14
スピロ-A486	H	L9	H	L15
スピロ-A487	H	L9	H	L16
スピロ-A488	H	L9	H	L17
スピロ-A489	H	L9	H	L18
スピロ-A490	H	L9	H	L19
スピロ-A491	H	L9	H	L20
スピロ-A492	H	L9	H	L21
スピロ-A493	H	L9	H	L22
スピロ-A494	H	L9	H	L23
スピロ-A495	H	L10	H	L11
スピロ-A496	H	L10	H	L12
スピロ-A497	H	L10	H	L13
スピロ-A498	H	L10	H	L14
スピロ-A500	H	L10	H	L15
スピロ-A501	H	L10	H	L16
スピロ-A502	H	L10	H	L17
スピロ-A503	H	L10	H	L18
スピロ-A504	H	L10	H	L19
スピロ-A505	H	L10	H	L20
スピロ-A506	H	L10	H	L21
スピロ-A507	H	L10	H	L22
スピロ-A508	H	L10	H	L23
スピロ-A509	H	L11	H	L12

スピロ-A510	H	L11	H	L13
スピロ-A511	H	L11	H	L14
スピロ-A512	H	L11	H	L15
スピロ-A513	H	L11	H	L16
スピロ-A514	H	L11	H	L17
スピロ-A515	H	L11	H	L18
スピロ-A516	H	L11	H	L19
スピロ-A517	H	L11	H	L20
スピロ-A518	H	L11	H	L21
スピロ-A519	H	L11	H	L22
スピロ-A520	H	L11	H	L23
スピロ-A521	H	L12	H	L13
スピロ-A522	H	L12	H	L14
スピロ-A523	H	L12	H	L15
スピロ-A524	H	L12	H	L16
スピロ-A525	H	L12	H	L17
スピロ-A526	H	L12	H	L18
スピロ-A527	H	L12	H	L19
スピロ-A528	H	L12	H	L20
スピロ-A529	H	L12	H	L21
スピロ-A530	H	L12	H	L22
スピロ-A531	H	L12	H	L23
スピロ-A532	H	L13	H	L14
スピロ-A533	H	L13	H	L15
スピロ-A534	H	L13	H	L16
スピロ-A535	H	L13	H	L17
スピロ-A536	H	L13	H	L18
スピロ-A537	H	L13	H	L19
スピロ-A538	H	L13	H	L20
スピロ-A539	H	L13	H	L21
スピロ-A540	H	L13	H	L22
スピロ-A541	H	L13	H	L23
スピロ-A542	H	L14	H	L15
スピロ-A543	H	L14	H	L16
スピロ-A544	H	L14	H	L17
スピロ-A545	H	L14	H	L18
スピロ-A546	H	L14	H	L19
スピロ-A547	H	L14	H	L20
スピロ-A548	H	L14	H	L21
スピロ-A549	H	L14	H	L22
スピロ-A550	H	L14	H	L23
スピロ-A551	H	L15	H	L16
スピロ-A552	H	L15	H	L17
スピロ-A553	H	L15	H	L18
スピロ-A554	H	L15	H	L19
スピロ-A555	H	L15	H	L20
スピロ-A556	H	L15	H	L21
スピロ-A557	H	L15	H	L22
スピロ-A558	H	L15	H	L23
スピロ-A559	H	L16	H	L17
スピロ-A560	H	L16	H	L18
スピロ-A561	H	L16	H	L19
スピロ-A562	H	L16	H	L20
スピロ-A563	H	L16	H	L21
スピロ-A564	H	L16	H	L22
スピロ-A565	H	L16	H	L23

スピロ-A566	H	L17	H	L18
スピロ-A567	H	L17	H	L19
スピロ-A568	H	L17	H	L20
スピロ-A569	H	L17	H	L21
スピロ-A570	H	L17	H	L22
スピロ-A571	H	L17	H	L23
スピロ-A572	H	L18	H	L19
スピロ-A573	H	L18	H	L20
スピロ-A574	H	L18	H	L21
スピロ-A575	H	L18	H	L22
スピロ-A576	H	L18	H	L23
スピロ-A577	H	L19	H	L20
スピロ-A578	H	L19	H	L21
スピロ-A579	H	L19	H	L22
スピロ-A580	H	L19	H	L23
スピロ-A581	H	L20	H	L21
スピロ-A582	H	L20	H	L22
スピロ-A583	H	L20	H	L23
スピロ-A584	H	L21	H	L22
スピロ-A585	H	L21	H	L23
スピロ-A586	H	L22	H	L23

【表2】

表2. 一般式(20)のスピロフルオレン C⁵=D⁵=L1

化合物	A ⁵	B ⁵	E ⁵	F ⁵
スピロ-B1	L1	L1	L1	L1
スピロ-B2	L2	L2	L2	L2
スピロ-B3	L3	L3	L3	L3
スピロ-B4	L4	L4	L4	L4
スピロ-B5	L5	L5	L5	L5
スピロ-B6	L6	L6	L6	L6
スピロ-B7	L7	L7	L7	L7
スピロ-B8	L8	L8	L8	L8
スピロ-B9	L9	L9	L9	L9
スピロ-B10	L10	L10	L10	L10
スピロ-B11	L11	L11	L11	L11
スピロ-B12	L12	L12	L12	L12
スピロ-B13	L13	L13	L13	L13
スピロ-B14	L14	L14	L14	L14
スピロ-B15	L15	L15	L15	L15
スピロ-B16	L16	L16	L16	L16
スピロ-B17	L17	L17	L17	L17
スピロ-B18	L18	L18	L18	L18
スピロ-B19	L19	L19	L19	L19
スピロ-B20	L20	L20	L20	L20
スピロ-B21	L21	L21	L21	L21
スピロ-B22	L22	L22	L22	L22
スピロ-B23	L23	L23	L23	L23
スピロ-B24	L1	L1	L2	L2
スピロ-B25	L1	L1	L3	L3
スピロ-B26	L1	L1	L4	L4
スピロ-B27	L1	L1	L5	L5

スピロ-B28	L1	L1	L6	L6
スピロ-B29	L1	L1	L7	L7
スピロ-B30	L1	L1	L8	L8
スピロ-B31	L1	L1	L9	L9
スピロ-B32	L1	L1	L10	L10
スピロ-B33	L1	L1	L11	L11
スピロ-B34	L1	L1	L12	L12
スピロ-B35	L1	L1	L13	L13
スピロ-B36	L1	L1	L14	L14
スピロ-B37	L1	L1	L15	L15
スピロ-B38	L1	L1	L16	L16
スピロ-B39	L1	L1	L17	L17
スピロ-B40	L1	L1	L18	L18
スピロ-B41	L1	L1	L19	L19
スピロ-B42	L1	L1	L20	L20
スピロ-B43	L1	L1	L21	L21
スピロ-B44	L1	L1	L22	L22
スピロ-B45	L1	L1	L23	L23
スピロ-B46	L2	L2	L3	L3
スピロ-B47	L2	L2	L4	L4
スピロ-B48	L2	L2	L5	L5
スピロ-B49	L2	L2	L6	L6
スピロ-B50	L2	L2	L7	L7
スピロ-B51	L2	L2	L8	L8
スピロ-B52	L2	L2	L9	L9
スピロ-B53	L2	L2	L10	L10
スピロ-B54	L2	L2	L11	L11
スピロ-B55	L2	L2	L12	L12
スピロ-B56	L2	L2	L13	L13
スピロ-B57	L2	L2	L14	L14
スピロ-B58	L2	L2	L15	L15
スピロ-B59	L2	L2	L16	L16
スピロ-B60	L2	L2	L17	L17
スピロ-B61	L2	L2	L18	L18
スピロ-B62	L2	L2	L19	L19
スピロ-B63	L2	L2	L20	L20
スピロ-B64	L2	L2	L21	L21
スピロ-B65	L2	L2	L22	L22
スピロ-B66	L2	L2	L23	L23
スピロ-B67	L3	L3	L4	L4
スピロ-B68	L3	L3	L5	L5
スピロ-B69	L3	L3	L6	L6
スピロ-B70	L3	L3	L7	L7
スピロ-B71	L3	L3	L8	L8
スピロ-B72	L3	L3	L9	L9
スピロ-B73	L3	L3	L10	L10
スピロ-B74	L3	L3	L11	L11
スピロ-B75	L3	L3	L12	L12
スピロ-B76	L3	L3	L13	L13
スピロ-B77	L3	L3	L14	L14
スピロ-B78	L3	L3	L15	L15
スピロ-B79	L3	L3	L16	L16
スピロ-B80	L3	L3	L17	L17
スピロ-B81	L3	L3	L18	L18
スピロ-B82	L3	L3	L19	L19
スピロ-B83	L3	L3	L20	L20

スピロ-B84	L3	L3	L21	L21
スピロ-B85	L3	L3	L22	L22
スピロ-B86	L3	L3	L23	L23
スピロ-B87	L4	L4	L5	L5
スピロ-B88	L4	L4	L6	L6
スピロ-B89	L4	L4	L7	L7
スピロ-B90	L4	L4	L8	L8
スピロ-B91	L4	L4	L9	L9
スピロ-B92	L4	L4	L10	L10
スピロ-B93	L4	L4	L11	L11
スピロ-B94	L4	L4	L12	L12
スピロ-B95	L4	L4	L13	L13
スピロ-B96	L4	L4	L14	L14
スピロ-B97	L4	L4	L15	L15
スピロ-B98	L4	L4	L16	L16
スピロ-B99	L4	L4	L17	L17
スピロ-B100	L4	L4	L18	L18
スピロ-B101	L4	L4	L19	L19
スピロ-B102	L4	L4	L20	L20
スピロ-B103	L4	L4	L21	L21
スピロ-B104	L4	L4	L22	L22
スピロ-B105	L4	L4	L23	L23
スピロ-B106	L5	L5	L6	L6
スピロ-B107	L5	L5	L7	L7
スピロ-B108	L5	L5	L8	L8
スピロ-B109	L5	L5	L9	L9
スピロ-B110	L5	L5	L10	L10
スピロ-B111	L5	L5	L11	L11
スピロ-B112	L5	L5	L12	L12
スピロ-B113	L5	L5	L13	L13
スピロ-B114	L5	L5	L14	L14
スピロ-B115	L5	L5	L15	L15
スピロ-B116	L5	L5	L16	L16
スピロ-B117	L5	L5	L17	L17
スピロ-B118	L5	L5	L18	L18
スピロ-B119	L5	L5	L19	L19
スピロ-B120	L5	L5	L20	L20
スピロ-B121	L5	L5	L21	L21
スピロ-B122	L5	L5	L22	L22
スピロ-B123	L5	L5	L23	L23
スピロ-B124	L6	L6	L7	L7
スピロ-B125	L6	L6	L8	L8
スピロ-B126	L6	L6	L9	L9
スピロ-B127	L6	L6	L10	L10
スピロ-B128	L6	L6	L11	L11
スピロ-B129	L6	L6	L12	L12
スピロ-B130	L6	L6	L13	L13
スピロ-B131	L6	L6	L14	L14
スピロ-B132	L6	L6	L15	L15
スピロ-B133	L6	L6	L16	L16
スピロ-B134	L6	L6	L17	L17
スピロ-B135	L6	L6	L18	L18
スピロ-B136	L6	L6	L19	L19
スピロ-B137	L6	L6	L20	L20
スピロ-B138	L6	L6	L21	L21
スピロ-B139	L6	L6	L22	L22

スピロ-B140	L6	L6	L23	L23
スピロ-B141	L7	L7	L8	L8
スピロ-B142	L7	L7	L9	L9
スピロ-B143	L7	L7	L10	L10
スピロ-B144	L7	L7	L11	L11
スピロ-B145	L7	L7	L12	L12
スピロ-B146	L7	L7	L13	L13
スピロ-B147	L7	L7	L14	L14
スピロ-B148	L7	L7	L15	L15
スピロ-B149	L7	L7	L16	L16
スピロ-B150	L7	L7	L17	L17
スピロ-B151	L7	L7	L18	L18
スピロ-B152	L7	L7	L19	L19
スピロ-B153	L7	L7	L20	L20
スピロ-B154	L7	L7	L21	L21
スピロ-B155	L7	L7	L22	L22
スピロ-B156	L7	L7	L23	L23
スピロ-B157	L8	L8	L9	L9
スピロ-B158	L8	L8	L10	L10
スピロ-B159	L8	L8	L11	L11
スピロ-B160	L8	L8	L12	L12
スピロ-B161	L8	L8	L13	L13
スピロ-B162	L8	L8	L14	L14
スピロ-B163	L8	L8	L15	L15
スピロ-B164	L8	L8	L16	L16
スピロ-B165	L8	L8	L17	L17
スピロ-B166	L8	L8	L18	L18
スピロ-B167	L8	L8	L19	L19
スピロ-B168	L8	L8	L20	L20
スピロ-B169	L8	L8	L21	L21
スピロ-B170	L8	L8	L22	L22
スピロ-B171	L8	L8	L23	L23
スピロ-B172	L9	L9	L10	L10
スピロ-B173	L9	L9	L11	L11
スピロ-B174	L9	L9	L12	L12
スピロ-B175	L9	L9	L13	L13
スピロ-B176	L9	L9	L14	L14
スピロ-B177	L9	L9	L15	L15
スピロ-B178	L9	L9	L16	L16
スピロ-B179	L9	L9	L17	L17
スピロ-B180	L9	L9	L18	L18
スピロ-B181	L9	L9	L19	L19
スピロ-B182	L9	L9	L20	L20
スピロ-B183	L9	L9	L21	L21
スピロ-B184	L9	L9	L22	L22
スピロ-B185	L9	L9	L23	L23
スピロ-B186	L10	L10	L11	L11
スピロ-B187	L10	L10	L12	L12
スピロ-B188	L10	L10	L13	L13
スピロ-B189	L10	L10	L14	L14
スピロ-B190	L10	L10	L15	L15
スピロ-B200	L10	L10	L16	L16
スピロ-B201	L10	L10	L17	L17
スピロ-B202	L10	L10	L18	L18
スピロ-B203	L10	L10	L19	L19
スピロ-B204	L10	L10	L20	L20

スピロ-B205	L10	L10	L21	L21
スピロ-B206	L10	L10	L22	L22
スピロ-B207	L10	L10	L23	L23
スピロ-B208	L10	L10	L24	L24
スピロ-B209	L11	L11	L12	L12
スピロ-B210	L11	L11	L13	L13
スピロ-B211	L11	L11	L14	L14
スピロ-B212	L11	L11	L15	L15
スピロ-B213	L11	L11	L16	L16
スピロ-B214	L11	L11	L17	L17
スピロ-B215	L11	L11	L18	L18
スピロ-B216	L11	L11	L19	L19
スピロ-B217	L11	L11	L20	L20
スピロ-B218	L11	L11	L21	L21
スピロ-B219	L11	L11	L22	L22
スピロ-B220	L11	L11	L23	L23
スピロ-B221	L12	L12	L13	L13
スピロ-B222	L12	L12	L14	L14
スピロ-B223	L12	L12	L15	L15
スピロ-B224	L12	L12	L16	L16
スピロ-B225	L12	L12	L17	L17
スピロ-B226	L12	L12	L18	L18
スピロ-B227	L12	L12	L19	L19
スピロ-B228	L12	L12	L20	L20
スピロ-B229	L12	L12	L21	L21
スピロ-B230	L12	L12	L22	L22
スピロ-B231	L12	L12	L23	L23
スピロ-B232	L12	L12	L24	L24
スピロ-B233	L13	L13	L14	L14
スピロ-B234	L13	L13	L15	L15
スピロ-B235	L13	L13	L16	L16
スピロ-B236	L13	L13	L17	L17
スピロ-B237	L13	L13	L18	L18
スピロ-B238	L13	L13	L19	L19
スピロ-B239	L13	L13	L20	L20
スピロ-B240	L13	L13	L21	L21
スピロ-B241	L13	L13	L22	L22
スピロ-B242	L13	L13	L23	L23
スピロ-B243	L14	L14	L15	L15
スピロ-B244	L14	L14	L16	L16
スピロ-B245	L14	L14	L17	L17
スピロ-B246	L14	L14	L18	L18
スピロ-B247	L14	L14	L19	L19
スピロ-B248	L14	L14	L20	L20
スピロ-B249	L14	L14	L21	L21
スピロ-B250	L14	L14	L22	L22
スピロ-B251	L14	L14	L23	L23
スピロ-B252	L15	L15	L16	L16
スピロ-B253	L15	L15	L17	L17
スピロ-B254	L15	L15	L18	L18
スピロ-B255	L15	L15	L19	L19
スピロ-B256	L15	L15	L20	L20
スピロ-B257	L15	L15	L21	L21
スピロ-B258	L15	L15	L22	L22
スピロ-B259	L15	L15	L23	L23
スピロ-B260	L16	L16	L17	L17

スピロ-B261	L16	L16	L18	L18
スピロ-B262	L16	L16	L19	L19
スピロ-B263	L16	L16	L20	L20
スピロ-B264	L16	L16	L21	L21
スピロ-B265	L16	L16	L22	L22
スピロ-B266	L16	L16	L23	L23
スピロ-B267	L17	L17	L18	L18
スピロ-B268	L17	L17	L19	L19
スピロ-B269	L17	L17	L20	L20
スピロ-B270	L17	L17	L21	L21
スピロ-B271	L17	L17	L22	L22
スピロ-B272	L17	L17	L23	L23
スピロ-B273	L18	L18	L19	L19
スピロ-B274	L18	L18	L20	L20
スピロ-B275	L18	L18	L21	L21
スピロ-B276	L18	L18	L22	L22
スピロ-B277	L18	L18	L23	L23
スピロ-B278	L19	L19	L20	L20
スピロ-B279	L19	L19	L21	L21
スピロ-B280	L19	L19	L22	L22
スピロ-B281	L19	L19	L23	L23
スピロ-B282	L20	L20	L21	L21
スピロ-B283	L20	L20	L22	L22
スピロ-B284	L20	L20	L23	L23
スピロ-B285	L21	L21	L22	L22
スピロ-B286	L21	L21	L23	L23
スピロ-B287	L22	L22	L23	L23
スピロ-B288	H	H	L1	L1
スピロ-B289	H	H	L2	L2
スピロ-B290	H	H	L3	L3
スピロ-B291	H	H	L4	L4
スピロ-B292	H	H	L5	L5
スピロ-B293	H	H	L6	L6
スピロ-B294	H	H	L7	L7
スピロ-B295	H	H	L8	L8
スピロ-B296	H	H	L9	L9
スピロ-B297	H	H	L10	L10
スピロ-B298	H	H	L11	L11
スピロ-B299	H	H	L12	L12
スピロ-B300	H	H	L13	L13
スピロ-B301	H	H	L14	L14
スピロ-B302	H	H	L15	L15
スピロ-B303	H	H	L16	L16
スピロ-B304	H	H	L17	L17
スピロ-B305	H	H	L18	L18
スピロ-B306	H	H	L19	L19
スピロ-B307	H	H	L20	L20
スピロ-B308	H	H	L21	L21
スピロ-B309	H	H	L22	L22
スピロ-B310	H	H	L23	L23
スピロ-B311	H	L1	H	L1
スピロ-B312	H	L2	H	L2
スピロ-B313	H	L3	H	L3
スピロ-B314	H	L4	H	L4
スピロ-B315	H	L5	H	L5
スピロ-B316	H	L6	H	L6

スピロ-B317	H	L7	H	L7
スピロ-B318	H	L8	H	L8
スピロ-B319	H	L9	H	L9
スピロ-B320	H	L10	H	L10
スピロ-B321	H	L11	H	L11
スピロ-B322	H	L12	H	L12
スピロ-B323	H	L13	H	L13
スピロ-B324	H	L14	H	L14
スピロ-B325	H	L15	H	L15
スピロ-B326	H	L16	H	L16
スピロ-B327	H	L17	H	L17
スピロ-B328	H	L18	H	L18
スピロ-B329	H	L19	H	L19
スピロ-B330	H	L20	H	L20
スピロ-B331	H	L21	H	L21
スピロ-B332	H	L22	H	L22
スピロ-B333	H	L23	H	L23
スピロ-B334	H	L1	H	L2
スピロ-B335	H	L1	H	L3
スピロ-B336	H	L1	H	L4
スピロ-B337	H	L1	H	L5
スピロ-B338	H	L1	H	L6
スピロ-B339	H	L1	H	L7
スピロ-B340	H	L1	H	L8
スピロ-B341	H	L1	H	L9
スピロ-B342	H	L1	H	L10
スピロ-B343	H	L1	H	L11
スピロ-B344	H	L1	H	L12
スピロ-B345	H	L1	H	L13
スピロ-B346	H	L1	H	L14
スピロ-B347	H	L1	H	L15
スピロ-B348	H	L1	H	L16
スピロ-B349	H	L1	H	L17
スピロ-B350	H	L1	H	L18
スピロ-B351	H	L1	H	L19
スピロ-B352	H	L1	H	L20
スピロ-B353	H	L1	H	L21
スピロ-B354	H	L1	H	L22
スピロ-B355	H	L1	H	L23
スピロ-B356	H	L2	H	L3
スピロ-B357	H	L2	H	L4
スピロ-B358	H	L2	H	L5
スピロ-B359	H	L2	H	L6
スピロ-B360	H	L2	H	L7
スピロ-B361	H	L2	H	L8
スピロ-B362	H	L2	H	L9
スピロ-B363	H	L2	H	L10
スピロ-B364	H	L2	H	L11
スピロ-B365	H	L2	H	L12
スピロ-B366	H	L2	H	L13
スピロ-B367	H	L2	H	L14
スピロ-B368	H	L2	H	L15
スピロ-B369	H	L2	H	L16
スピロ-B370	H	L2	H	L17
スピロ-B371	H	L2	H	L18
スピロ-B372	H	L2	H	L19

スピロ-B373	H	L2	H	L20
スピロ-B374	H	L2	H	L21
スピロ-B375	H	L2	H	L22
スピロ-B376	H	L2	H	L23
スピロ-B377	H	L3	H	L4
スピロ-B378	H	L3	H	L5
スピロ-B379	H	L3	H	L6
スピロ-B380	H	L3	H	L7
スピロ-B381	H	L3	H	L8
スピロ-B382	H	L3	H	L9
スピロ-B383	H	L3	H	L10
スピロ-B384	H	L3	H	L11
スピロ-B385	H	L3	H	L12
スピロ-B386	H	L3	H	L13
スピロ-B387	H	L3	H	L14
スピロ-B388	H	L3	H	L15
スピロ-B389	H	L3	H	L16
スピロ-B390	H	L3	H	L17
スピロ-B391	H	L3	H	L18
スピロ-B392	H	L3	H	L19
スピロ-B393	H	L3	H	L20
スピロ-B394	H	L3	H	L21
スピロ-B395	H	L3	H	L22
スピロ-B396	H	L3	H	L23
スピロ-B397	H	L4	H	L5
スピロ-B398	H	L4	H	L6
スピロ-B399	H	L4	H	L7
スピロ-B400	H	L4	H	L8
スピロ-B401	H	L4	H	L9
スピロ-B402	H	L4	H	L10
スピロ-B403	H	L4	H	L11
スピロ-B404	H	L4	H	L12
スピロ-B405	H	L4	H	L13
スピロ-B406	H	L4	H	L14
スピロ-B407	H	L4	H	L15
スピロ-B408	H	L4	H	L16
スピロ-B409	H	L4	H	L17
スピロ-B410	H	L4	H	L18
スピロ-B411	H	L4	H	L19
スピロ-B412	H	L4	H	L20
スピロ-B413	H	L4	H	L21
スピロ-B414	H	L4	H	L22
スピロ-B415	H	L4	H	L23
スピロ-B416	H	L5	H	L6
スピロ-B417	H	L5	H	L7
スピロ-B418	H	L5	H	L8
スピロ-B419	H	L5	H	L9
スピロ-B420	H	L5	H	L10
スピロ-B421	H	L5	H	L11
スピロ-B422	H	L5	H	L12
スピロ-B423	H	L5	H	L13
スピロ-B424	H	L5	H	L14
スピロ-B425	H	L5	H	L15
スピロ-B426	H	L5	H	L16
スピロ-B427	H	L5	H	L17
スピロ-B428	H	L5	H	L18

スピロ-B429	H	L5	H	L19
スピロ-B430	H	L5	H	L20
スピロ-B431	H	L5	H	L21
スピロ-B432	H	L5	H	L22
スピロ-B433	H	L5	H	L23
スピロ-B434	H	L6	H	L7
スピロ-B435	H	L6	H	L8
スピロ-B436	H	L6	H	L9
スピロ-B437	H	L6	H	L10
スピロ-B438	H	L6	H	L11
スピロ-B439	H	L6	H	L12
スピロ-B440	H	L6	H	L13
スピロ-B441	H	L6	H	L14
スピロ-B442	H	L6	H	L15
スピロ-B443	H	L6	H	L16
スピロ-B444	H	L6	H	L17
スピロ-B445	H	L6	H	L18
スピロ-B446	H	L6	H	L19
スピロ-B447	H	L6	H	L20
スピロ-B448	H	L6	H	L21
スピロ-B449	H	L6	H	L22
スピロ-B450	H	L6	H	L23
スピロ-B451	H	L7	H	L8
スピロ-B452	H	L7	H	L9
スピロ-B453	H	L7	H	L10
スピロ-B454	H	L7	H	L11
スピロ-B455	H	L7	H	L12
スピロ-B456	H	L7	H	L13
スピロ-B457	H	L7	H	L14
スピロ-B458	H	L7	H	L15
スピロ-B459	H	L7	H	L16
スピロ-B460	H	L7	H	L17
スピロ-B461	H	L7	H	L18
スピロ-B462	H	L7	H	L19
スピロ-B463	H	L7	H	L20
スピロ-B464	H	L7	H	L21
スピロ-B465	H	L7	H	L22
スピロ-B466	H	L8	H	L9
スピロ-B467	H	L8	H	L10
スピロ-B468	H	L8	H	L11
スピロ-B469	H	L8	H	L12
スピロ-B470	H	L8	H	L13
スピロ-B471	H	L8	H	L14
スピロ-B472	H	L8	H	L15
スピロ-B473	H	L8	H	L16
スピロ-B474	H	L8	H	L17
スピロ-B475	H	L8	H	L18
スピロ-B476	H	L8	H	L19
スピロ-B477	H	L8	H	L20
スピロ-B478	H	L8	H	L21
スピロ-B479	H	L8	H	L22
スピロ-B480	H	L8	H	L23
スピロ-B481	H	L9	H	L10
スピロ-B482	H	L9	H	L11
スピロ-B483	H	L9	H	L12

スピロ-B484	H	L9	H	L13
スピロ-B485	H	L9	H	L14
スピロ-B486	H	L9	H	L15
スピロ-B487	H	L9	H	L16
スピロ-B488	H	L9	H	L17
スピロ-B489	H	L9	H	L18
スピロ-B490	H	L9	H	L19
スピロ-B491	H	L9	H	L20
スピロ-B492	H	L9	H	L21
スピロ-B493	H	L9	H	L22
スピロ-B494	H	L9	H	L23
スピロ-B495	H	L10	H	L11
スピロ-B496	H	L10	H	L12
スピロ-B497	H	L10	H	L13
スピロ-B498	H	L10	H	L14
スピロ-B500	H	L10	H	L15
スピロ-B501	H	L10	H	L16
スピロ-B502	H	L10	H	L17
スピロ-B503	H	L10	H	L18
スピロ-B504	H	L10	H	L19
スピロ-B505	H	L10	H	L20
スピロ-B506	H	L10	H	L21
スピロ-B507	H	L10	H	L22
スピロ-B508	H	L10	H	L23
スピロ-B509	H	L11	H	L12
スピロ-B510	H	L11	H	L13
スピロ-B511	H	L11	H	L14
スピロ-B512	H	L11	H	L15
スピロ-B513	H	L11	H	L16
スピロ-B514	H	L11	H	L17
スピロ-B515	H	L11	H	L18
スピロ-B516	H	L11	H	L19
スピロ-B517	H	L11	H	L20
スピロ-B518	H	L11	H	L21
スピロ-B519	H	L11	H	L22
スピロ-B520	H	L11	H	L23
スピロ-B521	H	L12	H	L13
スピロ-B522	H	L12	H	L14
スピロ-B523	H	L12	H	L15
スピロ-B524	H	L12	H	L16
スピロ-B525	H	L12	H	L17
スピロ-B526	H	L12	H	L18
スピロ-B527	H	L12	H	L19
スピロ-B528	H	L12	H	L20
スピロ-B529	H	L12	H	L21
スピロ-B530	H	L12	H	L22
スピロ-B531	H	L12	H	L23
スピロ-B532	H	L13	H	L14
スピロ-B533	H	L13	H	L15
スピロ-B534	H	L13	H	L16
スピロ-B535	H	L13	H	L17
スピロ-B536	H	L13	H	L18
スピロ-B537	H	L13	H	L19
スピロ-B538	H	L13	H	L20
スピロ-B539	H	L13	H	L21
スピロ-B540	H	L13	H	L22

スピロ-B541	H	L13	H	L23
スピロ-B542	H	L14	H	L15
スピロ-B543	H	L14	H	L16
スピロ-B544	H	L14	H	L17
スピロ-B545	H	L14	H	L18
スピロ-B546	H	L14	H	L19
スピロ-B547	H	L14	H	L20
スピロ-B548	H	L14	H	L21
スピロ-B549	H	L14	H	L22
スピロ-B550	H	L14	H	L23
スピロ-B551	H	L15	H	L16
スピロ-B552	H	L15	H	L17
スピロ-B553	H	L15	H	L18
スピロ-B554	H	L15	H	L19
スピロ-B555	H	L15	H	L20
スピロ-B556	H	L15	H	L21
スピロ-B557	H	L15	H	L22
スピロ-B558	H	L15	H	L23
スピロ-B559	H	L16	H	L17
スピロ-B560	H	L16	H	L18
スピロ-B561	H	L16	H	L19
スピロ-B562	H	L16	H	L20
スピロ-B563	H	L16	H	L21
スピロ-B564	H	L16	H	L22
スピロ-B565	H	L16	H	L23
スピロ-B566	H	L17	H	L18
スピロ-B567	H	L17	H	L19
スピロ-B568	H	L17	H	L20
スピロ-B569	H	L17	H	L21
スピロ-B570	H	L17	H	L22
スピロ-B571	H	L17	H	L23
スピロ-B572	H	L18	H	L19
スピロ-B573	H	L18	H	L20
スピロ-B574	H	L18	H	L21
スピロ-B575	H	L18	H	L22
スピロ-B576	H	L18	H	L23
スピロ-B577	H	L19	H	L20
スピロ-B578	H	L19	H	L21
スピロ-B579	H	L19	H	L22
スピロ-B580	H	L19	H	L23
スピロ-B581	H	L20	H	L21
スピロ-B582	H	L20	H	L22
スピロ-B583	H	L20	H	L23
スピロ-B584	H	L21	H	L22
スピロ-B585	H	L21	H	L23
スピロ-B586	H	L22	H	L23

【表3】

表3: 一般式(20)のスビロフルオレン化合物
 $C^5=D^5=L2$

化合物	A ⁵	B ⁵	E ⁵	F ⁵
スビロ-C1	L1	L1	L1	L1
スビロ-C2	L2	L2	L2	L2
スビロ-C3	L3	L3	L3	L3
スビロ-C4	L4	L4	L4	L4
スビロ-C5	L5	L5	L5	L5
スビロ-C6	L6	L6	L6	L6
スビロ-C7	L7	L7	L7	L7
スビロ-C8	L8	L8	L8	L8
スビロ-C9	L9	L9	L9	L9
スビロ-C10	L10	L10	L10	L10
スビロ-C11	L11	L11	L11	L11
スビロ-C12	L12	L12	L12	L12
スビロ-C13	L13	L13	L13	L13
スビロ-C14	L14	L14	L14	L14
スビロ-C15	L15	L15	L15	L15
スビロ-C16	L16	L16	L16	L16
スビロ-C17	L17	L17	L17	L17
スビロ-C18	L18	L18	L18	L18
スビロ-C19	L19	L19	L19	L19
スビロ-C20	L20	L20	L20	L20
スビロ-C21	L21	L21	L21	L21
スビロ-C22	L22	L22	L22	L22
スビロ-C23	L23	L23	L23	L23
スビロ-C24	L1	L1	L2	L2
スビロ-C25	L1	L1	L3	L3
スビロ-C26	L1	L1	L4	L4
スビロ-C27	L1	L1	L5	L5
スビロ-C28	L1	L1	L6	L6
スビロ-C29	L1	L1	L7	L7
スビロ-C30	L1	L1	L8	L8
スビロ-C31	L1	L1	L9	L9
スビロ-C32	L1	L1	L10	L10
スビロ-C33	L1	L1	L11	L11
スビロ-C34	L1	L1	L12	L12
スビロ-C35	L1	L1	L13	L13
スビロ-C36	L1	L1	L14	L14
スビロ-C37	L1	L1	L15	L15
スビロ-C38	L1	L1	L16	L16
スビロ-C39	L1	L1	L17	L17
スビロ-C40	L1	L1	L18	L18
スビロ-C41	L1	L1	L19	L19
スビロ-C42	L1	L1	L20	L20
スビロ-C43	L1	L1	L21	L21
スビロ-C44	L1	L1	L22	L22
スビロ-C45	L1	L1	L23	L23
スビロ-C46	L2	L2	L3	L3
スビロ-C47	L2	L2	L4	L4
スビロ-C48	L2	L2	L5	L5
スビロ-C49	L2	L2	L6	L6
スビロ-C50	L2	L2	L7	L7

スビロ-C51	L2	L2	L8	L8
スビロ-C52	L2	L2	L9	L9
スビロ-C53	L2	L2	L10	L10
スビロ-C54	L2	L2	L11	L11
スビロ-C55	L2	L2	L12	L12
スビロ-C56	L2	L2	L13	L13
スビロ-C57	L2	L2	L14	L14
スビロ-C58	L2	L2	L15	L15
スビロ-C59	L2	L2	L16	L16
スビロ-C60	L2	L2	L17	L17
スビロ-C61	L2	L2	L18	L18
スビロ-C62	L2	L2	L19	L19
スビロ-C63	L2	L2	L20	L20
スビロ-C64	L2	L2	L21	L21
スビロ-C65	L2	L2	L22	L22
スビロ-C66	L2	L2	L23	L23
スビロ-C67	L3	L3	L4	L4
スビロ-C68	L3	L3	L5	L5
スビロ-C69	L3	L3	L6	L6
スビロ-C70	L3	L3	L7	L7
スビロ-C71	L3	L3	L8	L8
スビロ-C72	L3	L3	L9	L9
スビロ-C73	L3	L3	L10	L10
スビロ-C74	L3	L3	L11	L11
スビロ-C75	L3	L3	L12	L12
スビロ-C76	L3	L3	L13	L13
スビロ-C77	L3	L3	L14	L14
スビロ-C78	L3	L3	L15	L15
スビロ-C79	L3	L3	L16	L16
スビロ-C80	L3	L3	L17	L17
スビロ-C81	L3	L3	L18	L18
スビロ-C82	L3	L3	L19	L19
スビロ-C83	L3	L3	L20	L20
スビロ-C84	L3	L3	L21	L21
スビロ-C85	L3	L3	L22	L22
スビロ-C86	L3	L3	L23	L23
スビロ-C87	L4	L4	L5	L5
スビロ-C88	L4	L4	L6	L6
スビロ-C89	L4	L4	L7	L7
スビロ-C90	L4	L4	L8	L8
スビロ-C91	L4	L4	L9	L9
スビロ-C92	L4	L4	L10	L10
スビロ-C93	L4	L4	L11	L11
スビロ-C94	L4	L4	L12	L12
スビロ-C95	L4	L4	L13	L13
スビロ-C96	L4	L4	L14	L14
スビロ-C97	L4	L4	L15	L15
スビロ-C98	L4	L4	L16	L16
スビロ-C99	L4	L4	L17	L17
スビロ-C100	L4	L4	L18	L18

スピロ-C101	L4	L4	L19	L19
スピロ-C102	L4	L4	L20	L20
スピロ-C103	L4	L4	L21	L21
スピロ-C104	L4	L4	L22	L22
スピロ-C105	L4	L4	L23	L23
スピロ-C106	L5	L5	L6	L6
スピロ-C107	L5	L5	L7	L7
スピロ-C108	L5	L5	L8	L8
スピロ-C109	L5	L5	L9	L9
スピロ-C110	L5	L5	L10	L10
スピロ-C111	L5	L5	L11	L11
スピロ-C112	L5	L5	L12	L12
スピロ-C113	L5	L5	L13	L13
スピロ-C114	L5	L5	L14	L14
スピロ-C115	L5	L5	L15	L15
スピロ-C116	L5	L5	L16	L16
スピロ-C117	L5	L5	L17	L17
スピロ-C118	L5	L5	L18	L18
スピロ-C119	L5	L5	L19	L19
スピロ-C120	L5	L5	L20	L20
スピロ-C121	L5	L5	L21	L21
スピロ-C122	L5	L5	L22	L22
スピロ-C123	L5	L5	L23	L23
スピロ-C124	L6	L6	L7	L7
スピロ-C125	L6	L6	L8	L8
スピロ-C126	L6	L6	L9	L9
スピロ-C127	L6	L6	L10	L10
スピロ-C128	L6	L6	L11	L11
スピロ-C129	L6	L6	L12	L12
スピロ-C130	L6	L6	L13	L13
スピロ-C131	L6	L6	L14	L14
スピロ-C132	L6	L6	L15	L15
スピロ-C133	L6	L6	L16	L16
スピロ-C134	L6	L6	L17	L17
スピロ-C135	L6	L6	L18	L18
スピロ-C136	L6	L6	L19	L19
スピロ-C137	L6	L6	L20	L20
スピロ-C138	L6	L6	L21	L21
スピロ-C139	L6	L6	L22	L22
スピロ-C140	L6	L6	L23	L23
スピロ-C141	L7	L7	L8	L8
スピロ-C142	L7	L7	L9	L9
スピロ-C143	L7	L7	L10	L10
スピロ-C144	L7	L7	L11	L11
スピロ-C145	L7	L7	L12	L12
スピロ-C146	L7	L7	L13	L13
スピロ-C147	L7	L7	L14	L14
スピロ-C148	L7	L7	L15	L15
スピロ-C149	L7	L7	L16	L16
スピロ-C150	L7	L7	L17	L17

スピロ-C151	L7	L7	L18	L18
スピロ-C152	L7	L7	L19	L19
スピロ-C153	L7	L7	L20	L20
スピロ-C154	L7	L7	L21	L21
スピロ-C155	L7	L7	L22	L22
スピロ-C156	L7	L7	L23	L23
スピロ-C157	L8	L8	L9	L9
スピロ-C158	L8	L8	L10	L10
スピロ-C159	L8	L8	L11	L11
スピロ-C160	L8	L8	L12	L12
スピロ-C161	L8	L8	L13	L13
スピロ-C162	L8	L8	L14	L14
スピロ-C163	L8	L8	L15	L15
スピロ-C164	L8	L8	L16	L16
スピロ-C165	L8	L8	L17	L17
スピロ-C166	L8	L8	L18	L18
スピロ-C167	L8	L8	L19	L19
スピロ-C168	L8	L8	L20	L20
スピロ-C169	L8	L8	L21	L21
スピロ-C170	L8	L8	L22	L22
スピロ-C171	L8	L8	L23	L23
スピロ-C172	L9	L9	L10	L10
スピロ-C173	L9	L9	L11	L11
スピロ-C174	L9	L9	L12	L12
スピロ-C175	L9	L9	L13	L13
スピロ-C176	L9	L9	L14	L14
スピロ-C177	L9	L9	L15	L15
スピロ-C178	L9	L9	L16	L16
スピロ-C179	L9	L9	L17	L17
スピロ-C180	L9	L9	L18	L18
スピロ-C181	L9	L9	L19	L19
スピロ-C182	L9	L9	L20	L20
スピロ-C183	L9	L9	L21	L21
スピロ-C184	L9	L9	L22	L22
スピロ-C185	L9	L9	L23	L23
スピロ-C186	L10	L10	L11	L11
スピロ-C187	L10	L10	L12	L12
スピロ-C188	L10	L10	L13	L13
スピロ-C189	L10	L10	L14	L14
スピロ-C190	L10	L10	L15	L15
スピロ-C200	L10	L10	L16	L16
スピロ-C201	L10	L10	L17	L17
スピロ-C202	L10	L10	L18	L18
スピロ-C203	L10	L10	L19	L19
スピロ-C204	L10	L10	L20	L20
スピロ-C205	L10	L10	L21	L21
スピロ-C206	L10	L10	L22	L22
スピロ-C207	L10	L10	L23	L23
スピロ-C208	L10	L10	L24	L24
スピロ-C209	L11	L11	L12	L12
スピロ-C210	L11	L11	L13	L13
スピロ-C211	L11	L11	L14	L14
スピロ-C212	L11	L11	L15	L15
スピロ-C213	L11	L11	L16	L16
スピロ-C214	L11	L11	L17	L17
スピロ-C215	L11	L11	L18	L18
スピロ-C216	L11	L11	L19	L19
スピロ-C217	L11	L11	L20	L20
スピロ-C218	L11	L11	L21	L21
スピロ-C219	L11	L11	L22	L22
スピロ-C220	L11	L11	L23	L23

スピロ-C221	L12	L12	L13	L13
スピロ-C222	L12	L12	L14	L14
スピロ-C223	L12	L12	L15	L15
スピロ-C224	L12	L12	L16	L16
スピロ-C225	L12	L12	L17	L17
スピロ-C226	L12	L12	L18	L18
スピロ-C227	L12	L12	L19	L19
スピロ-C228	L12	L12	L20	L20
スピロ-C229	L12	L12	L21	L21
スピロ-C230	L12	L12	L22	L22
スピロ-C231	L12	L12	L23	L23
スピロ-C232	L12	L12	L24	L24
スピロ-C233	L13	L13	L14	L14
スピロ-C234	L13	L13	L15	L15
スピロ-C235	L13	L13	L16	L16
スピロ-C236	L13	L13	L17	L17
スピロ-C237	L13	L13	L18	L18
スピロ-C238	L13	L13	L19	L19
スピロ-C239	L13	L13	L20	L20
スピロ-C240	L13	L13	L21	L21
スピロ-C241	L13	L13	L22	L22
スピロ-C242	L13	L13	L23	L23
スピロ-C243	L14	L14	L15	L15
スピロ-C244	L14	L14	L16	L16
スピロ-C245	L14	L14	L17	L17
スピロ-C246	L14	L14	L18	L18
スピロ-C247	L14	L14	L19	L19
スピロ-C248	L14	L14	L20	L20
スピロ-C249	L14	L14	L21	L21
スピロ-C250	L14	L14	L22	L22
スピロ-C251	L14	L14	L23	L23
スピロ-C252	L15	L15	L16	L16
スピロ-C253	L15	L15	L17	L17
スピロ-C254	L15	L15	L18	L18
スピロ-C255	L15	L15	L19	L19
スピロ-C256	L15	L15	L20	L20
スピロ-C257	L15	L15	L21	L21
スピロ-C258	L15	L15	L22	L22
スピロ-C259	L15	L15	L23	L23
スピロ-C260	L16	L16	L17	L17
スピロ-C261	L16	L16	L18	L18
スピロ-C262	L16	L16	L19	L19
スピロ-C263	L16	L16	L20	L20
スピロ-C264	L16	L16	L21	L21
スピロ-C265	L16	L16	L22	L22
スピロ-C266	L16	L16	L23	L23
スピロ-C267	L17	L17	L18	L18
スピロ-C268	L17	L17	L19	L19
スピロ-C269	L17	L17	L20	L20
スピロ-C270	L17	L17	L21	L21
スピロ-C271	L17	L17	L22	L22
スピロ-C272	L17	L17	L23	L23
スピロ-C273	L18	L18	L19	L19
スピロ-C274	L18	L18	L20	L20
スピロ-C275	L18	L18	L21	L21
スピロ-C276	L18	L18	L22	L22
スピロ-C277	L18	L18	L23	L23
スピロ-C278	L19	L19	L20	L20
スピロ-C279	L19	L19	L21	L21
スピロ-C280	L19	L19	L22	L22
スピロ-C281	L19	L19	L23	L23

スピロ-C282	L20	L20	L21	L21
スピロ-C283	L20	L20	L22	L22
スピロ-C284	L20	L20	L23	L23
スピロ-C285	L21	L21	L22	L22
スピロ-C286	L21	L21	L23	L23
スピロ-C287	L22	L22	L23	L23
スピロ-C288	H	H	L1	L1
スピロ-C289	H	H	L2	L2
スピロ-C290	H	H	L3	L3
スピロ-C291	H	H	L4	L4
スピロ-C292	H	H	L5	L5
スピロ-C293	H	H	L6	L6
スピロ-C294	H	H	L7	L7
スピロ-C295	H	H	L8	L8
スピロ-C296	H	H	L9	L9
スピロ-C297	H	H	L10	L10
スピロ-C298	H	H	L11	L11
スピロ-C299	H	H	L12	L12
スピロ-C300	H	H	L13	L13
スピロ-C301	H	H	L14	L14
スピロ-C302	H	H	L15	L15
スピロ-C303	H	H	L16	L16
スピロ-C304	H	H	L17	L17
スピロ-C305	H	H	L18	L18
スピロ-C306	H	H	L19	L19
スピロ-C307	H	H	L20	L20
スピロ-C308	H	H	L21	L21
スピロ-C309	H	H	L22	L22
スピロ-C310	H	H	L23	L23
スピロ-C311	H	L1	H	L1
スピロ-C312	H	L2	H	L2
スピロ-C313	H	L3	H	L3
スピロ-C314	H	L4	H	L4
スピロ-C315	H	L5	H	L5
スピロ-C316	H	L6	H	L6
スピロ-C317	H	L7	H	L7
スピロ-C318	H	L8	H	L8
スピロ-C319	H	L9	H	L9
スピロ-C320	H	L10	H	L10
スピロ-C321	H	L11	H	L11
スピロ-C322	H	L12	H	L12
スピロ-C323	H	L13	H	L13
スピロ-C324	H	L14	H	L14
スピロ-C325	H	L15	H	L15
スピロ-C326	H	L16	H	L16
スピロ-C327	H	L17	H	L17
スピロ-C328	H	L18	H	L18
スピロ-C329	H	L19	H	L19
スピロ-C330	H	L20	H	L20
スピロ-C331	H	L21	H	L21
スピロ-C332	H	L22	H	L22
スピロ-C333	H	L23	H	L23
スピロ-C334	H	L1	H	L2
スピロ-C335	H	L1	H	L3
スピロ-C336	H	L1	H	L4
スピロ-C337	H	L1	H	L5
スピロ-C338	H	L1	H	L6
スピロ-C339	H	L1	H	L7
スピロ-C340	H	L1	H	L8

スピロ-C341	H	L1	H	L9
スピロ-C342	H	L1	H	L10
スピロ-C343	H	L1	H	L11
スピロ-C344	H	L1	H	L12
スピロ-C345	H	L1	H	L13
スピロ-C346	H	L1	H	L14
スピロ-C347	H	L1	H	L15
スピロ-C348	H	L1	H	L16
スピロ-C349	H	L1	H	L17
スピロ-C350	H	L1	H	L18
スピロ-C351	H	L1	H	L19
スピロ-C352	H	L1	H	L20
スピロ-C353	H	L1	H	L21
スピロ-C354	H	L1	H	L22
スピロ-C355	H	L1	H	L23
スピロ-C356	H	L2	H	L3
スピロ-C357	H	L2	H	L4
スピロ-C358	H	L2	H	L5
スピロ-C359	H	L2	H	L6
スピロ-C360	H	L2	H	L7
スピロ-C361	H	L2	H	L8
スピロ-C362	H	L2	H	L9
スピロ-C363	H	L2	H	L10
スピロ-C364	H	L2	H	L11
スピロ-C365	H	L2	H	L12
スピロ-C366	H	L2	H	L13
スピロ-C367	H	L2	H	L14
スピロ-C368	H	L2	H	L15
スピロ-C369	H	L2	H	L16
スピロ-C370	H	L2	H	L17
スピロ-C371	H	L2	H	L18
スピロ-C372	H	L2	H	L19
スピロ-C373	H	L2	H	L20
スピロ-C374	H	L2	H	L21
スピロ-C375	H	L2	H	L22
スピロ-C376	H	L2	H	L23
スピロ-C377	H	L3	H	L4
スピロ-C378	H	L3	H	L5
スピロ-C379	H	L3	H	L6
スピロ-C380	H	L3	H	L7
スピロ-C381	H	L3	H	L8
スピロ-C382	H	L3	H	L9
スピロ-C383	H	L3	H	L10
スピロ-C384	H	L3	H	L11
スピロ-C385	H	L3	H	L12
スピロ-C386	H	L3	H	L13
スピロ-C387	H	L3	H	L14
スピロ-C388	H	L3	H	L15
スピロ-C389	H	L3	H	L16
スピロ-C390	H	L3	H	L17

スピロ-C391	H	L3	H	L18
スピロ-C392	H	L3	H	L19
スピロ-C393	H	L3	H	L20
スピロ-C394	H	L3	H	L21
スピロ-C395	H	L3	H	L22
スピロ-C396	H	L3	H	L23
スピロ-C397	H	L4	H	L5
スピロ-C398	H	L4	H	L6
スピロ-C399	H	L4	H	L7
スピロ-C400	H	L4	H	L8
スピロ-C401	H	L4	H	L9
スピロ-C402	H	L4	H	L10
スピロ-C403	H	L4	H	L11
スピロ-C404	H	L4	H	L12
スピロ-C405	H	L4	H	L13
スピロ-C406	H	L4	H	L14
スピロ-C407	H	L4	H	L15
スピロ-C408	H	L4	H	L16
スピロ-C409	H	L4	H	L17
スピロ-C410	H	L4	H	L18
スピロ-C411	H	L4	H	L19
スピロ-C412	H	L4	H	L20
スピロ-C413	H	L4	H	L21
スピロ-C414	H	L4	H	L22
スピロ-C415	H	L4	H	L23
スピロ-C416	H	L5	H	L6
スピロ-C417	H	L5	H	L7
スピロ-C418	H	L5	H	L8
スピロ-C419	H	L5	H	L9
スピロ-C420	H	L5	H	L10
スピロ-C421	H	L5	H	L11
スピロ-C422	H	L5	H	L12
スピロ-C423	H	L5	H	L13
スピロ-C424	H	L5	H	L14
スピロ-C425	H	L5	H	L15
スピロ-C426	H	L5	H	L16
スピロ-C427	H	L5	H	L17
スピロ-C428	H	L5	H	L18
スピロ-C429	H	L5	H	L19
スピロ-C430	H	L5	H	L20
スピロ-C431	H	L5	H	L21
スピロ-C432	H	L5	H	L22
スピロ-C433	H	L5	H	L23
スピロ-C434	H	L6	H	L7
スピロ-C435	H	L6	H	L8
スピロ-C436	H	L6	H	L9
スピロ-C436	H	L6	H	L10
スピロ-C437	H	L6	H	L11
スピロ-C438	H	L6	H	L12
スピロ-C439	H	L6	H	L13
スピロ-C440	H	L6	H	L14
スピロ-C441	H	L6	H	L15

スピロ-C442	H	L6	H	L16
スピロ-C443	H	L6	H	L17
スピロ-C444	H	L6	H	L18
スピロ-C445	H	L6	H	L19
スピロ-C446	H	L6	H	L20
スピロ-C447	H	L6	H	L21
スピロ-C448	H	L6	H	L22
スピロ-C449	H	L6	H	L23
スピロ-C450	H	L7	H	L8
スピロ-C451	H	L7	H	L9
スピロ-C452	H	L7	H	L10
スピロ-C453	H	L7	H	L11
スピロ-C454	H	L7	H	L12
スピロ-C455	H	L7	H	L13
スピロ-C456	H	L7	H	L14
スピロ-C457	H	L7	H	L15
スピロ-C458	H	L7	H	L16
スピロ-C459	H	L7	H	L17
スピロ-C460	H	L7	H	L18
スピロ-C461	H	L7	H	L19
スピロ-C462	H	L7	H	L20
スピロ-C463	H	L7	H	L21
スピロ-C464	H	L7	H	L22
スピロ-C465	H	L7	H	L23
スピロ-C466	H	L8	H	L9
スピロ-C467	H	L8	H	L10
スピロ-C468	H	L8	H	L11
スピロ-C469	H	L8	H	L12
スピロ-C470	H	L8	H	L13
スピロ-C471	H	L8	H	L14
スピロ-C472	H	L8	H	L15
スピロ-C473	H	L8	H	L16
スピロ-C474	H	L8	H	L17
スピロ-C475	H	L8	H	L18
スピロ-C476	H	L8	H	L19
スピロ-C477	H	L8	H	L20
スピロ-C478	H	L8	H	L21
スピロ-C479	H	L8	H	L22
スピロ-C480	H	L8	H	L23
スピロ-C481	H	L9	H	L10
スピロ-C482	H	L9	H	L11
スピロ-C483	H	L9	H	L12
スピロ-C484	H	L9	H	L13
スピロ-C485	H	L9	H	L14
スピロ-C486	H	L9	H	L15
スピロ-C487	H	L9	H	L16
スピロ-C488	H	L9	H	L17
スピロ-C489	H	L9	H	L18
スピロ-C490	H	L9	H	L19

スピロ-C491	H	L9	H	L20
スピロ-C492	H	L9	H	L21
スピロ-C493	H	L9	H	L22
スピロ-C494	H	L9	H	L23
スピロ-C495	H	L10	H	L11
スピロ-C496	H	L10	H	L12
スピロ-C497	H	L10	H	L13
スピロ-C498	H	L10	H	L14
スピロ-C500	H	L10	H	L15
スピロ-C501	H	L10	H	L16
スピロ-C502	H	L10	H	L17
スピロ-C503	H	L10	H	L18
スピロ-C504	H	L10	H	L19
スピロ-C505	H	L10	H	L20
スピロ-C506	H	L10	H	L21
スピロ-C507	H	L10	H	L22
スピロ-C508	H	L10	H	L23
スピロ-C509	H	L11	H	L12
スピロ-C510	H	L11	H	L13
スピロ-C511	H	L11	H	L14
スピロ-C512	H	L11	H	L15
スピロ-C513	H	L11	H	L16
スピロ-C514	H	L11	H	L17
スピロ-C515	H	L11	H	L18
スピロ-C516	H	L11	H	L19
スピロ-C517	H	L11	H	L20
スピロ-C518	H	L11	H	L21
スピロ-C519	H	L11	H	L22
スピロ-C520	H	L11	H	L23
スピロ-C521	H	L12	H	L13
スピロ-C522	H	L12	H	L14
スピロ-C523	H	L12	H	L15
スピロ-C524	H	L12	H	L16
スピロ-C525	H	L12	H	L17
スピロ-C526	H	L12	H	L18
スピロ-C527	H	L12	H	L19
スピロ-C528	H	L12	H	L20
スピロ-C529	H	L12	H	L21
スピロ-C530	H	L12	H	L22
スピロ-C531	H	L12	H	L23
スピロ-C532	H	L13	H	L14
スピロ-C533	H	L13	H	L15
スピロ-C534	H	L13	H	L16
スピロ-C535	H	L13	H	L17
スピロ-C536	H	L13	H	L18
スピロ-C537	H	L13	H	L19
スピロ-C538	H	L13	H	L20
スピロ-C539	H	L13	H	L21
スピロ-C540	H	L13	H	L22
スピロ-C541	H	L13	H	L23
スピロ-C542	H	L14	H	L15

スピロ-C543	H	L14	H	L16
スピロ-C544	H	L14	H	L17
スピロ-C545	H	L14	H	L18
スピロ-C546	H	L14	H	L19
スピロ-C547	H	L14	H	L20
スピロ-C548	H	L14	H	L21
スピロ-C549	H	L14	H	L22
スピロ-C550	H	L14	H	L23
スピロ-C551	H	L15	H	L16
スピロ-C552	H	L15	H	L17
スピロ-C553	H	L15	H	L18
スピロ-C554	H	L15	H	L19
スピロ-C555	H	L15	H	L20
スピロ-C556	H	L15	H	L21
スピロ-C557	H	L15	H	L22
スピロ-C558	H	L15	H	L23
スピロ-C559	H	L16	H	L17
スピロ-C560	H	L16	H	L18
スピロ-C561	H	L16	H	L19
スピロ-C562	H	L16	H	L20
スピロ-C563	H	L16	H	L21
スピロ-C564	H	L16	H	L22
スピロ-C565	H	L16	H	L23
スピロ-C566	H	L17	H	L18
スピロ-C567	H	L17	H	L19
スピロ-C568	H	L17	H	L20
スピロ-C569	H	L17	H	L21
スピロ-C570	H	L17	H	L22
スピロ-C571	H	L17	H	L23
スピロ-C572	H	L18	H	L19
スピロ-C573	H	L18	H	L20
スピロ-C574	H	L18	H	L21
スピロ-C575	H	L18	H	L22
スピロ-C576	H	L18	H	L23
スピロ-C577	H	L19	H	L20
スピロ-C578	H	L19	H	L21
スピロ-C579	H	L19	H	L22
スピロ-C580	H	L19	H	L23
スピロ-C581	H	L20	H	L21
スピロ-C582	H	L20	H	L22
スピロ-C583	H	L20	H	L23
スピロ-C584	H	L21	H	L22
スピロ-C585	H	L21	H	L23
スピロ-C586	H	L22	H	L23

【0034】本発明はまた、本発明の化合物の合成中間体として好適な種々の化合物も提供するものである。

【0035】即ち、前記一般式(2)、(11)、(14)、(19)又は(20)で表されるスピロフルオレン化合物の合成中間体として用いられる前記一般式(10)、(13)、(17)又は(18)で表される化合物である。

【0036】図1～図4は、本発明に基づく化合物を有機発光材料として用いる有機電界発光素子(EL素子)の例をそれぞれ示すものである。

【0037】図1は陰極3を発光光20が透過する透過型有機電界発光素子Aであって、発光光20は保護層4の側からも観測できる。図2は陰極3での反射光も発光光20として得る反射型有機電界発光素子Bを示す。

【0038】図中、1は有機電界発光素子を形成するための基板であり、ガラス、プラスチック及び他の適宜の材料を用いることができる。また、有機電界発光素子を他の表示素子と組み合わせて用いる場合には、基板を共有することもでき、例えばアクティブマトリクス駆動する場合には、TFT(Thin Film Transistors: 薄膜トランジスタ)を基板として用いることも可能である。

2は透明電極(陽極)であり、例えば、上記透過型有機電界発光素子Aでは透明電極ITO(indium tin oxide)、IZO(Indium zinc oxide)、 SnO_2 等を使用でき、また反射型有機電界発光素子BではCr、Fe、Co、Ni、Cu、Ta、W、Pt、Mo、Au及びこれらの合金等を使用できる。

【0039】また、5は有機発光層であり、本発明に基づく化合物を発光材料として含有している。この発光層について、有機電界発光20を得る層構成としては、従来公知の種々の構成を用いることができる。後述するように、例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれかを構成する材料が発光性を有する場合、これらの薄膜を積層した構造を使用できる。更に本発明の目的を満たす範囲で電荷輸送性能を上げるために、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が、複数種の材料の薄膜を積層した構造、または、複数種の材料を混合した組成からなる薄膜を使用するのを妨げない。また、発光性能を上げるために、少なくとも1種異常の蛍光性の材料を用いて、この薄膜を正孔輸送層若しくは電子輸送層、またはこれらの両方に含ませた構造を使用してもよい。これらの場合には、発光効率を改善するために、正孔または電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含ませることも可能である。

【0040】本発明に基づく化合物は、電子輸送性能と正孔輸送性能の両方を持つため、素子構成中、電子輸送層を兼ねた発光層としても、或いは正孔輸送層を兼ねた発光層としても用いることが可能である。また、本発明に基づく化合物を発光層として、電子輸送層と正孔輸送層とで挟み込んだ構成とすることも可能である。

【0041】なお、図1及び図2中、3は陰極であり、電極材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金、LiF、 LiO_2 、或いはこれらを積層した構造を使用できる。透過型の有機電界発光素子においては、陰極の厚さを調節することにより、用途に合った光透過率を得ることができる。一方、反射型の有機電界発光素子においては、陰極の厚さを薄くして高い透過率を保持し、なおかつ陽極を反射率の高い材料で構成することによって、有機電界発光を陰極側に取り出すことができる。また、図中の4は封止・保護層であり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることにより、その効果が上がる。気密性が保たれれば、適宜の材料を使用することができる。また、8は電流注入用の駆動電源である。

【0042】本発明に基づく有機電界発光素子において、有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造(シングルヘテロ構造)を有しており、正孔輸送層又は電子輸送層の形成材料として本発明に基づく化合物が用いられてよい。或いは、有機層が、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とが順次積層された有機積層構造(ダブルヘテロ構造)を有しており、発光層の形成

材料として本発明に基づく化合物が用いられてよい。

【0043】このような有機積層構造を有する有機電界発光素子の例を示すと、図3は、透過性の基板1上に、透光性の陽極2と、正孔輸送層6と電子輸送層7とからなる有機層5aと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子Cである。

【0044】図3に示すように発光層を省略した走行性の場合には、正孔輸送層6と電子輸送層7の界面から所定波長の発光光20を発生する。これらの発光光は基板1側から観測される。

【0045】また、図4は、透光性の基板1上に、透光性の陽極2と、正孔輸送層10と発光層11と電子輸送層12とからなる有機層5bと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子Dである。

【0046】図4に示した有機電界発光素子においては、陽極2と陰極3の間に直流電圧を印加することにより、陽極2から注入された正孔が正孔輸送層10を経て、また陰極3から注入された電子が電子輸送層12を経て、それぞれ発光層11に到達する。この結果、発光層11においては電子/正孔の再結合が生じて一重項励起子が生成し、この一重項励起子から所定波長の発光を発生する。

【0047】上述した各有機電界発光素子C、Dにおいて、基板1は、例えば、ガラス、プラスチック等の光透過性の材料を適宜用いることができる。また、他の表示素子と組み合わせて用いる場合や、図3及び図4に示した積層構造をマトリックス状に配置する場合等は、この基板を共用としてよい。また、素子C、Dはいずれも、透過型、反射型のいずれの構造もとりうる。

【0048】また、陽極2は、透明電極であり、ITO(indium tin oxide)やSnO₂等が使用できる。この陽極2と正孔輸送層6(又は正孔輸送層10)の間には、電荷の注入効率を改善する目的で、有機物若しくは有機金属化合物からなる薄膜を設けてもよい。なお、保護膜4が金属等の導電性材料で形成されている場合は、陽極2の側面に絶縁膜が設けられていてもよい。

【0049】また、有機電界発光素子Cにおける有機層5aは、正孔輸送層6と電子輸送層7とが積層された有機層であり、これらのいずれか又は双方に本発明に基づく化合物が含有され、発光性の正孔輸送層6又は電子輸送層7としてよい。有機電界発光素子Dにおける有機層5bは、正孔輸送層10と本発明に基づく化合物を含有する発光層11と電子輸送層12とが積層された有機層であるが、その他、種々の積層構造を取ることができる。例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が発光性を有していてもよい。

【0050】また、特に、正孔輸送層6又は電子輸送層

7や発光層11が本発明に基づく化合物からなる層であることが望ましいが、これらの層を本発明の化合物のみで形成してもよく、或いは、本発明に基づく化合物と他の正孔又は電子輸送材料(例えば、芳香族アミン類やピラゾリン類等)との共蒸着によって形成してもよい。さらに、正孔輸送層において、正孔輸送性能を向上させるために、複数種の正孔輸送材料を積層した正孔輸送層を形成してもよい。

【0051】また、有機電界発光素子Cにおいて、発光層は電子輸送性発光層7であってよいが、電源8から印加される電圧によっては、正孔輸送層6やその界面で発光される場合がある。同様に、有機電界発光素子Dにおいて、発光層は層11以外に、電子輸送層12であってよく、正孔輸送層10であってよい。発光性能を向上させるために、少なくとも1種の蛍光性材料を用いた発光層1を正孔輸送層と電子輸送層との間に挟持させた構造であるのがよい。または、この蛍光性材料を正孔輸送層又は電子輸送層、或いはこれらの両層に含有させた構造を構成してよい。このような場合、発光効率を改善するために、正孔又は電子の輸送を制御するための薄膜(ホールプロッキング層やエキシトン生成層など)をその層構成に含ませることも可能である。

【0052】また、陰極3に用いる材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金を使用でき、これらの金属層が積層した構造であってもよい。なお、陰極の厚みや材質を適宜選択することによって、用途に見合った有機電界発光素子を作製できる。

【0053】また、保護膜4は、封止膜として作用するものであり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることで、電荷注入効率や発光効率を向上できる。なお、その気密性が保たれれば、アルミニウム、金、クロム等の単金属または合金など、適宜その材料を選択できる。

【0054】上記した各有機電界発光素子に印加する電流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いてもよい。電流値、電圧値は、素子を破壊しない範囲内であれば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率よく発光させることが望ましい。

【0055】次に、図5は、本は杖異の有機電界発光素子を用いた平面ディスプレイの構成例である。図示の如く、例えばフルカラーディスプレイの場合は、赤(R)、緑(G)及び青(B)の3原色を発光可能な有機層5(5a、5b)が、陰極3と陽極2との間に配されている。陰極3及び陽極2は、互いに交差するストライプ状に設けることができ、輝度信号回路14及びシフトレジスタ内蔵の制御回路15により選択されて、それぞれに信号電圧が印加され、これによって、選択された陰極3及び陽極2が交差する位置(画素)の有機層が発光するように構成される。この駆動方法としては、単純

マトリックス方式又はアクティブマトリックス方式を用いることができる。

【0056】即ち、図5は例えば8×3RGB単純マトリックスであって、正孔輸送層と、発光層および電子輸送層のいずれか少なくとも一方とからなる積層体5を陰極3と陽極2の間に配置したものである(図3又は図4参照)。陰極と陽極は、ともにストライプ状にパターンニングするとともに、互いにマトリクス状に直交させ、シフトレジスタ内蔵の制御回路15および14により時系列的に信号電圧を印加し、その交差位置で発光するよ

*ブ状パターンを赤(R)、緑(G)、青(B)の各色毎に配し、マルチカラーあるいはフルカラーの全固体型フラットパネルディスプレイを構成することが可能となる。

【0057】

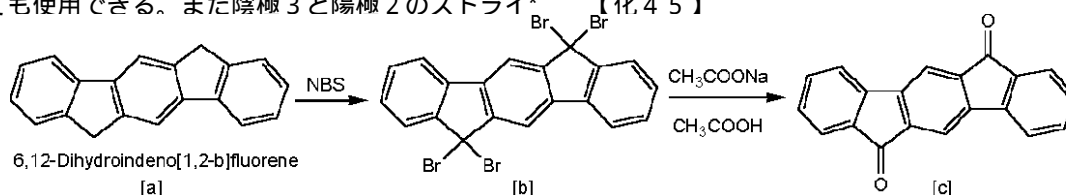
【実施例】以下、本発明を実施例について具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0058】次に示す反応式にしたがって、本発明に基づくスピロフルオレン化合物[A]を製造した。

(1)スピロフルオレン化合物[A]の合成例

(a)化合物[c]

【化45】

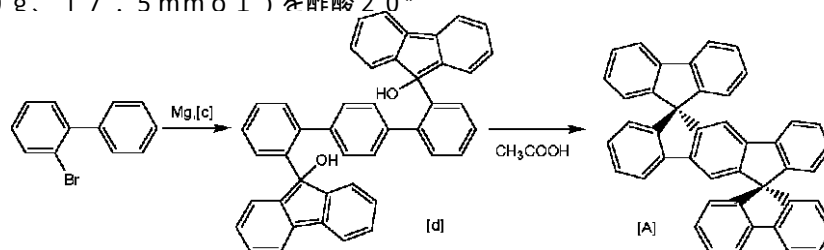


【0059】6,12-Dihydroindeno[1,2-b]fluorene (合成法はJ.Org.Chem., Vol.56,3,1991,1210-1217に記載) 15.4g (60.6mmol)をクロロベンゼン300mlに溶解させ、50で30分攪拌した後、NBS(N-ブロモスクシンイミド、27.0g、151.5mmol)と触媒量のAIBNを数回に分けて加え、120で4時間攪拌した。その後、溶媒を減圧留去した後、残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(クロロホルム/ヘキサン=4/1)で分離した。その後、再結晶(クロロホルム/ヘキサン)により化合物[c] 15.5g (収率45%)を得た。得られた化合物[c] (10.0g、17.5mmol)を酢酸2.0*

20*0ml中に溶解させた後、酢酸ナトリウム10gを加え、5時間加熱還流した。反応溶液を室温に戻し、Na₂C₂O₃を加え中和した後、有機層を抽出し、溶媒を留去後、残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(クロロホルム/ヘキサン=5/1)で分離した。その後、再結晶(クロロホルム/ヘキサン)により精製された化合物[c] 4.10g (収率83%)を得た。化合物[c]の同定はFAB-MSスペクトル測定によって行った[FAB-MS:m/z 281(M⁺)]。

【0060】(b)化合物[A]

【化46】



【0061】窒素雰囲気下、Mg削り屑1.2gを、最初に、20mlの乾燥ジエチルエーテル中に入れた。2-bromobiphenyl (4.66g、20.0mmol)を乾燥ジエチルエーテル10mlに溶解させ、この溶液の約5mlを先に調整したエーテル溶液に加えて、グリニヤール反応を開始させ、緩やかに沸騰するように残りの溶液を加えた。上述のようにして得られた化合物[c] (5.52g、20.0mmol)を乾燥ジエチルエーテル15mlに溶解し、グリニヤール溶液に滴下添加した後、混合物をさらに2時間沸騰させた。反応混合物を冷却した後、沈殿物を吸引濾過し、少量のエーテルで洗浄した。塩化アンモニウム溶液中で、マグネシウ

ム錯体を加水分解した。1時間攪拌後、生成物[d]を吸引濾過し、水で洗浄して、吸引乾燥した。次に酢酸100mlに生成物[d]を溶解した後、この溶液に濃硫酸0.1mlを加え、溶液を数分間沸騰させ、形成されたスピロフルオレン化合物[A]を、水を加えて沈殿させた。冷却後、生成物を吸引濾過し、水で洗浄した。エタノールからの再結晶によって、乾燥した生成物をさらに、精製した。これにより、無色の結晶の化合物[A] 5.98g (収率54%)が得られた。化合物[A]の同定はFAB-MS測定によって行った[FAB-MS:m/z 553(M⁺)]。

【0062】(2)2',2''-ジブロモスピロフルオ

レン化合物の合成例

上述のようにして得られたスピロフルオレン化合物

[A] (2.77 g, 5.00 mmol) を塩化メチレン 10 ml に溶解し、 FeCl_3 (無水) 2 mg と混合した後、塩化メチレン 3 ml 中の臭素 0.62 ml (12.0 mmol) を 30 分間かけて攪拌しながら滴下添加した。2 時間後、得られた溶液を飽和 NaHCO_3 水溶液と水とで洗浄し、過剰の臭素を除き、有機層は、 Na_2SO_4 で乾燥後、溶媒を留去させた。白色の残渣をメタノールから再結晶すると、無色の結晶の 2', 2'' - ジプロモスピロフルオレン化合物 2.03 g (収率 57%) が得られた。合成化合物の同定は FAB-MS スペクトル測定によって行った [FAB-MS: m/z 712 (M^+)]。

【0063】 2, 8, 2', 2'' - テトラプロモ化合物および 2, 8, 2', 7', 2'', 7'' - ヘキサプロモ化合物については、異なる化学量論比を用いて、上記の方法と同様にして製造することができた。

【0064】 (3) 2', 2'' - ジアセチル化合物の合成例

上述のようにして得られたスピロフルオレン化合物

[A] (4.54 g, 8.2 mmol) の無水二硫化炭素 25 ml 溶液に無水 AlCl_3 17.20 g を添加した後、攪拌しながら、アセチルクロライド (2.30 g, 16.4 g) の無水二硫化炭素 5 ml 溶液を徐々に滴下し、還流下において 2 時間沸騰させた。溶媒を減圧留去し、氷冷下で、氷 100 g および塩酸 30 ml と混合した後、有機層を抽出し、トルエン/酢酸エチル (5:1) を用いて、粗製生物をシリカゲルクロマトグラフィーで分離した。その後、再結晶 (ヘキサン/酢酸エチル) により、2', 2'' - ジアセチルスピロフルオレン化合物 4.34 g (収率 83%) が得られた。合成化合物の同定は FAB-MS スペクトル測定によって行った [FAB-MS: m/z 637 (M^+)]。

【0065】 2, 8, 2', 2'' - テトラアセチルスピロフルオレン化合物および 2, 8, 2', 7', 2'', 7'' - ヘキサアセチルスピロフルオレン化合物については、異なる化学量論比を用いることにより、上記の方法と同様にして主生成物として得ることができた。

【0066】 (4) 2', 2'' - ジカルボン酸スピロフルオレン化合物の合成例

2', 2'' - ジアセチル化合物 (4.24 g, 10.5 mmol) のジオキサン溶液 (10 ml) を、氷冷下で攪拌しながら、臭素 10.4 g のジオキサン溶液 (5 ml) を滴下混合した。その後、水酸化ナトリウム水溶液 (15 g / 40 ml) 溶液に滴下添加した後、室温でさらに 1 時間攪拌後、亜硫酸水素ナトリウム水溶液 (1.4 g / 30 ml) を混合した。濃塩酸を加えて酸性化した後、沈殿生成物を濾過し、少量の水で洗浄した。エタノールを用いて再結晶し、2', 2'' - ジカルボン酸ス

ピロフルオレン化合物 5.39 g (収率 80%) を得た。合成化合物の同定は FAB-MS スペクトル測定によって行った [FAB-MS: m/z 641 (M^+)]。

【0067】 2, 8, 2', 2'' - テトラカルボン酸スピロフルオレン化合物および 2, 8, 2', 7', 2'', 7'' - ヘキサカルボン酸スピロフルオレン化合物については、異なる化学量論比を用いることにより、上記の方法と同様にして主生成物として得ることができた。

【0068】 (5) 2', 2'' - ジカルボン酸ジクロリドスピロフルオレン化合物の合成例

2', 2'' - ジカルボン酸スピロフルオレン化合物 (4.60 g, 7.17 mmol) と DMF (ジメチルホルムアミド) 3 ml を混合した後、過剰量の塩化チオニル 4.6 ml を徐々に滴下した後、3 時間加熱還流した。その後、未反応の塩化チオニルを減圧留去した後、残渣をろ過し、ヘキサンで洗浄後、減圧下乾燥させ 2', 2'' - ジカルボン酸ジクロリドスピロフルオレン化合物 3.80 g (収率 82%) を得た。合成化合物の同定は FAB-MS スペクトル測定によって行った [FAB-MS: m/z 650 (M^+)]。

【0069】 2, 8, 2', 2'' - テトラカルボン酸ジクロリドスピロフルオレン化合物および 2, 8, 2', 7', 2'', 7'' - ヘキサカルボン酸ジクロリドスピロフルオレン化合物についても、上記の方法と同様にして得ることができた。

【0070】 (6) 2', 2'' - ジフェニルスピロフルオレン化合物の合成例

2', 2'' - ジプロモスピロフルオレン化合物 (3.00 g, 4.21 mmol)、フェニル硼酸 (1.03 g, 8.42 mmol)、 $\text{PdCl}_2(\text{dppf})$ 60 mg を THF 20 ml と飽和炭酸水素ナトリウム溶液 10 ml との混合物中でスラリー化した。激しく攪拌しながら、混合物を還流下で 2 時間沸騰させた後、室温まで冷却後、固体を吸引濾過し、水で洗浄し、減圧乾燥し、2', 2'' - ジフェニルスピロフルオレン化合物 2.32 g (収率 78%) が得られた。合成化合物の同定は FAB-MS スペクトル測定によって行った [FAB-MS: m/z 705 (M^+)]。

【0071】 (7) 2', 2'' - ジ(ピフェニル)スピロフルオレン化合物の合成例

2', 2'' - ジプロモスピロフルオレン化合物 (3.00 g, 4.21 mmol)、ピフェニル硼酸 (1.67 g, 8.42 mmol)、 $\text{PdCl}_2(\text{dppf})$ 60 mg を THF (テトラヒドロフラン) 20 ml と飽和炭酸水素ナトリウム水溶液 10 ml との混合物中でスラリー化した。激しく攪拌しながら、混合物を還流下で 2 時間沸騰させた後、室温まで冷却後、固体を吸引濾過し、水で洗浄し、減圧乾燥し、2', 2'' - ジ(ピフェ

ニル)スピロフルオレン化合物 2.74 g (収率76%)が得られた。合成化合物の同定はFAB-MSスペクトル測定によって行った[FAB-MS:m/z 857(M⁺)]。

【0072】(8)2, 8, 2', 2"-テトラフェニルスピロフルオレン化合物の合成例

2, 8, 2', 2"-テトラプロモスピロフルオレン化合物(3.66 g, 4.21 mmol)、フェニル硼酸(2.05 g, 16.4 mmol)、PdCl₂(dppf)140 mgをTHF40 mlと飽和炭酸水素ナトリウム水溶液20 mlとの混合物中でスラリー化した。激しく攪拌しながら、混合物を還流下で24時間沸騰させた後、室温まで冷却後、固体を吸引濾過し、水で洗浄し、減圧乾燥し、2, 8, 2', 2"-テトラフェニルスピロフルオレン化合物2.67 g (収率74%)が得られた。合成化合物の同定はFAB-MSスペクトル測定によって行った[FAB-MS:m/z 857(M⁺)]。

【0073】(9)2, 8, 2', 2"-テトラキス(ピフェニル)スピロフルオレン化合物の合成例

2, 8, 2', 2"-テトラプロモスピロフルオレン化合物(3.66 g, 4.21 mmol)、ピフェニル硼酸(2.05 g, 16.4 mmol)、PdCl₂(dppf)140 mgをTHF40 mlと飽和炭酸水素ナトリウム水溶液20 mlとの混合物中でスラリー化した。激しく攪拌しながら、混合物を還流下で24時間沸騰させた後、室温まで冷却後、固体を吸引濾過し、水で洗浄し、減圧乾燥し、2, 8, 2', 2"-テトラキス(ピフェニル)スピロフルオレン化合物2.67 g (収率74%)が得られた。合成化合物の同定はFAB-MSスペクトル測定によって行った[FAB-MS:m/z 1161(M⁺)]。

【0074】(10)2, 8, 2', 7', 2", 7"-ヘキサフェニルスピロフルオレン化合物の合成例

2, 8, 2', 7', 2", 7"-ヘキサプロモスピロフルオレン化合物(4.33 g, 4.21 mmol)、フェニル硼酸(3.09 g, 25.3 mmol)、PdCl₂(dppf)140 mgをTHF40 mlと飽和炭酸水素ナトリウム水溶液20 mlとの混合物中でスラリー化した。激しく攪拌しながら、混合物を還流下で24時間沸騰させた後、室温まで冷却後、固体を吸引濾過し、水で洗浄し、減圧乾燥し、2, 8, 2', 7', 2", 7"-ヘキサフェニルスピロフルオレン化合物3.25 g (収率76%)が得られた。合成化合物の同定はFAB-MSスペクトル測定によって行った[FAB-MS:m/z 1009(M⁺)]。

【0075】(11)2, 8, 2', 7', 2", 7"-ヘキサ(ピフェニル)スピロフルオレン化合物の合成例

2, 8, 2', 7', 2", 7"-ヘキサプロモスピロ

フルオレン化合物(4.33 g, 4.21 mmol)、ピフェニル硼酸(5.01 g, 25.3 mmol)、PdCl₂(dppf)140 mgをTHF40 mlと飽和炭酸水素ナトリウム水溶液20 mlとの混合物中でスラリー化した。激しく攪拌しながら、混合物を還流下で24時間沸騰させた後、室温まで冷却後、固体を吸引濾過し、水で洗浄し、減圧乾燥し、2, 8, 2', 7', 2", 7"-ヘキサ(ピフェニル)スピロフルオレン化合物4.20 g (収率68%)が得られた。合成化合物の同定はFAB-MSスペクトル測定によって行った[FAB-MS:m/z 1465(M⁺)]。

【0076】(12)2', 2"-ビス[5-(p-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル]-スピロフルオレン化合物の合成例

2', 2"-ジカルボン酸ジクロリドスピロフルオレン化合物(3.06 g, 4.5 mmol)の無水ピリジン10 ml溶液中に、5-(4-t-ブチルフェニル)テトラゾール(2.01 g, 11.0 mmol)の無水ピリジン20 mlを徐々に滴下した。その後、不活性ガス雰囲気下で3時間加熱還流を行った。反応溶液を冷却後、水150 mlを加え、2時間攪拌し、沈殿したオキサジアゾール化合物をろ過し、水で洗浄した後、クロロホルム/酢酸エチル(10:1)を用いて、粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィーで分離した。その後、再結晶(クロロホルム/ヘキサン)により、2', 2"-ビス[5-(p-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル]-スピロフルオレン化合物1.87 gを得た。合成物の同定はFAB-MS測定によって行った[FAB-MS:m/z 983(M⁺)]。

【0077】(13)2', 2"-ビス[1-フェニル-5-(p-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-トリアゾール-2-イル]-スピロフルオレン化合物の合成例

2', 2"-ジカルボン酸ジクロリドスピロフルオレン化合物(3.06 g, 4.5 mmol)のポリリン酸10 ml/NMP(N-メチルピロリドン)20 mlの混合溶液中に4-t-ブチルフェニル-安息香酸ヒドラジド(2.17 g, 10.5 mmol)のNMP20 mlを徐々に滴下し、不活性ガス雰囲気下で3時間加熱還流を行った。その後、アニリン(1.0 g, 10.5 mmol)を徐々に滴下し、175 で30時間加熱攪拌した。反応溶液を冷却後、水150 mlを加え、2時間攪拌し、沈殿物をろ過し、水で洗浄した後、クロロホルム/酢酸エチル(8:1)を用いて、粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィーで分離した。その後、再結晶(クロロホルム/ヘキサン)により、2', 2"-ビス[1-フェニル-5-(p-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-トリアゾール-2-イル]-スピロフルオレン化合物1.87 g (収率42.2%)を得た。合成物の

同定はFAB-MS測定によって行った[FAB-MS:m/z 1133(M⁺)]。

【0078】(14)2', 2"-ビス[(p-フェニル)スチリル]スピロフルオレン化合物の合成例

2', 2"-ジプロモスピロフルオレン化合物(3.00g、4.21mmol)、1-ピフェニル-2-ピナコレートボロンエテン(3.09g、10.1mmol)及びPdCl₂(dppf)140mgをTHF40mlと飽和炭酸水素ナトリウム水溶液20mlとの混合物中でスラリー化した。窒素雰囲気下で加熱還流しながら20時間攪拌した。冷却後、生成物をろ過し、沈殿物を水で洗浄し乾燥する。有機層を分離し、水層をクロロホルムで抽出した。合わせた有機層を硫酸マグネシウム上で乾燥し、溶媒を減圧し生成物を得る。先にろ別した生成物と合わせてクロロホルムに溶解させ、アルミナのカラムにより副生成物を分離した後、クロロホルム/ヘキサンから再結晶させて2', 2"-ビス[(p-フェニル)スチリル]スピロフルオレン化合物1.72g(収率45%)を得た。合成物の同定はFAB-MS測定によって行った[FAB-ms:m/z 909(M⁺)]。

【0079】(15)2', 2"-ビス(ジスチリル)スピロフルオレン化合物の合成例

2', 2"-ジプロモスピロフルオレン化合物(3.00g、4.21mmol)、1,1-ジフェニル-2-ピナコレートボロンエテン(3.09g、10.1mmol)及びPdCl₂(dppf)140mgをTHF40mlと飽和炭酸水素ナトリウム水溶液20mlとの混合物中でスラリー化した。窒素雰囲気下で加熱還流しながら20時間攪拌した。冷却後、生成物をろ過し、沈殿物を水で洗浄し乾燥する。有機層を分離し、水層をクロロホルムで抽出した。合わせた有機層を硫酸マグネシウム上で乾燥し、溶媒を減圧し生成物を得る。先にろ別した生成物と合わせてクロロホルムに溶解させ、アルミナのカラムにより副生成物を分離した後、クロロホルム/ヘキサンから再結晶させて2', 2"-ビス(1,1-ジフェニルピニル)スピロフルオレン化合物1.46g(収率38%)を得た。合成物の同定はFAB-MS測定によって行った[FAB-ms:m/z 909(M⁺)]。

【0080】実施例1

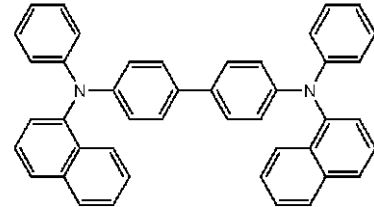
本実施例は上記表1に記載したスピロフルオレン化合物のうち、スピロ-A2の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0081】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法に*

より10⁻⁴Pa以下の真空下で、下記構造式(1)の-NPD(α-ナフチルフェニルジアミン)を例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0082】

【化4.7】
構造式(1): α-NPD

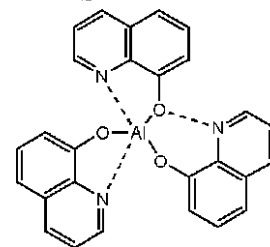


【0083】さらに、発光材料として上記表1に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-A2)を正孔輸送層に接して蒸着した。スピロ-A2からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0084】さらに、電子輸送材料として下記構造式(2)のAlq₃(トリス(8-キノリノール)アルミニウム)を正孔輸送層に接して蒸着した。Alq₃からなるこの電子輸送層の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0085】

【化4.8】
構造式(2): Alq₃



【0086】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着によって、蒸着レート1nm/秒として、例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0087】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、分光測定を行った結果、430nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1200cd/cm²の輝度が得られた。

【0088】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度が半減するまで700時間であった。

【0089】実施例2

本実施例は上記表1に記載したスピロフルオレン化合物のうち、スピロ-A7の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0090】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により 10^{-4} Pa以下の真空下で、上記構造式(1)の-NPDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0091】さらに、発光材料として上記表1に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-A7)を正孔輸送層に接して蒸着した。スピロ-A7からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0092】さらに、電子輸送材料として上記構造式(2)のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0093】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0094】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、440nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1500cd/cm²の輝度が得られた。

【0095】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度が半減するまで1100時間であった。

【0096】実施例3

本実施例は上記表1に記載したスピロフルオレン化合物のうち、スピロ-A8の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0097】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により 10^{-4} Pa以下の真空下で、上記構造式(1)の-NPDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0098】さらに、発光材料として上記表1に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-A8)を正孔輸送層に接して蒸着した。スピロ-A8からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0099】さらに、電子輸送材料として上記構造式(2)のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0100】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0101】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、440nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1600cd/cm²の輝度が得られた。

【0102】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度が半減するまで2400時間であった。

【0103】実施例4

本実施例は上記表1に記載したスピロフルオレン化合物のうち、スピロ-A10の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0104】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により 10^{-4} Pa以下の真空下で、上記構造式(1)の-NPDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0105】さらに、発光材料として上記表1に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-A10)を正孔輸送層に接して蒸着した。スピロ-A10からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0106】さらに、電子輸送材料として上記構造式(2)のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0107】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0108】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、435nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1500cd/cm²の輝度が得られた。

【0109】この有機電界発光素子を作成後、窒素雰囲気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度10
度が半減するまで1700時間であった。

【0110】実施例5

本実施例は上記表1に記載のスピロフルオレン化合物のうち、スピロ-A11の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0111】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10⁻⁴Pa以下の真空下で、上記構造式(1)の-NPDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0112】さらに、発光材料として上記表1に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-A11)を正孔輸送層に接して蒸着した。スピロ-A11からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0113】さらに、電子輸送材料として上記構造式30
(2)のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0114】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0115】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、実施例1と同様に分光40
測定を行った結果、430nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1000cd/cm²の輝度が得られた。

【0116】この有機電界発光素子を作成後、窒素雰囲気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度が半減するまで800時間であった。

【0117】実施例6

本実施例は上記表1に記載したスピロフルオレン化合物50

のうち、スピロ-A13の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0118】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10⁻⁴Pa以下の真空下で、上記構造式(1)の-NPDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0119】さらに、発光材料として上記表1に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-A13)を正孔輸送層に接して蒸着した。スピロ-A13からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0120】さらに、電子輸送材料として上記構造式(2)のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0121】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0122】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、430nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1400cd/cm²の輝度が得られた。

【0123】この有機電界発光素子を作成後、窒素雰囲気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度が半減するまで850時間であった。

【0124】実施例7

本実施例は上記表3に記載したスピロフルオレン化合物のうち、スピロ-C2の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0125】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30nm×30nmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mm単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10⁻⁴Pa以下の真空下で、上記構造式(1)の-NPDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0126】さらに、発光材料として上記表3に記載したスピロフルオレン化合物(スピロ-C2)を正孔輸送

層に接して蒸着した。スピロ-C2からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0127】さらに、電子輸送材料として上記構造式(2)のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0128】陰極材料はMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成することで、有機電界発光素子を作製した。

【0129】このように作製した有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は青色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、440nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1200cd/cm²の輝度が得られた。

【0130】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/cm²で電圧値を一定に通電して連続発光させることで強制劣化させた際、輝度が半減するまで1000時間であった。

【0131】

【発明の作用効果】本発明のスピロフルオレン化合物は、熱的安定性に優れており、良好な発光効率を与え、*

*極めて結晶化し難く、均一性のあるアモルファス性薄膜を形成することができる。また、本発明の化合物は、本発明の合成中間体を経て一般的かつ高効率な方法で製造することができる。さらに、有機電界発光素子の構成材料として、本発明のスピロフルオレン化合物を用いれば、カラーディスプレイ等のフルカラー化と共に、素子の長寿命化を実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に基づく有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図2】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図3】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

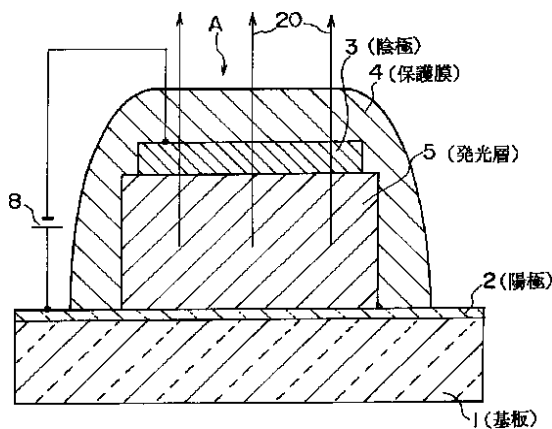
【図4】同、更に他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図5】同、有機電界発光素子を用いたフルカラーの平面ディスプレイの構成図である。

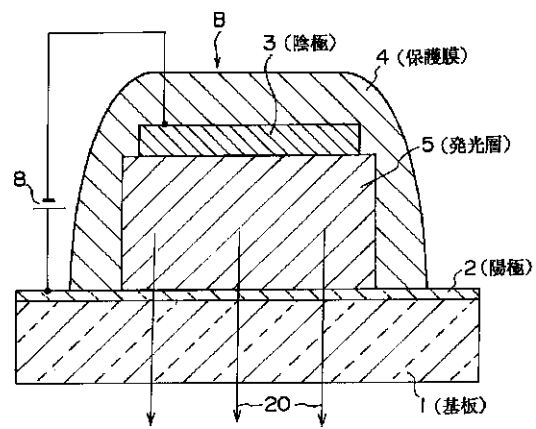
【符号の説明】

1...基板、2...透明電極(陽極)、3...陰極、4...保護膜、5、5a、5b...有機層、6...正孔輸送層、7...電子輸送層、8...電源、10...正孔輸送層、11...発光層、12...電子輸送層、14...輝度信号回路、15...制御回路、20...発光光、A、b、C、D...有機電界発光素子

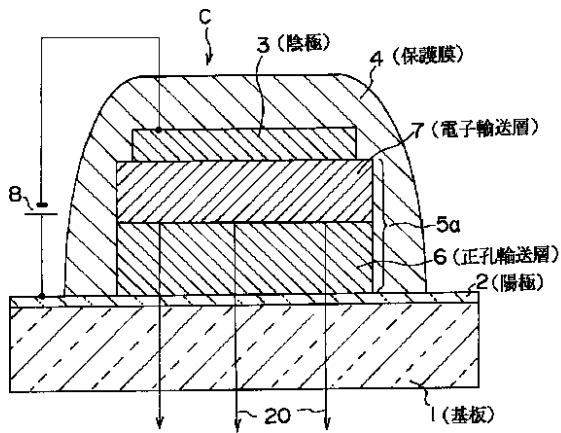
【図1】



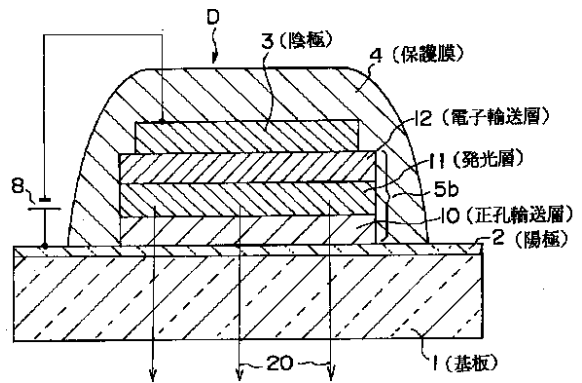
【図2】



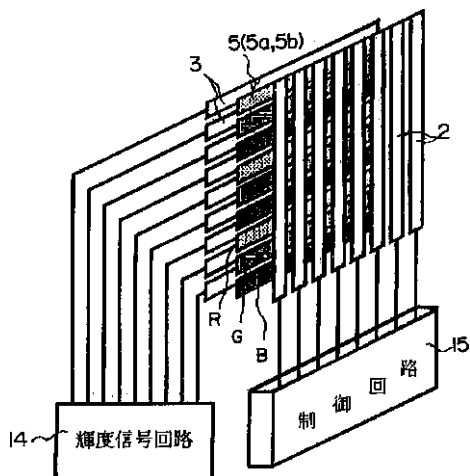
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マコード (参考)
C 0 9 K 11/06	6 1 0	C 0 9 K 11/06	6 1 0
	6 1 5		6 1 5
	6 2 0		6 2 0
	6 2 5		6 2 5
	6 4 0		6 4 0
	6 9 0		6 9 0
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
33/22		33/22	B
// C 0 7 D 215/30		C 0 7 D 215/30	D
249/02		249/02	
271/10		271/10	

(72)発明者 田村 眞一郎
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB04 AB11 CA01 CB01
DA01 DB03 EB00
4C056 AA01 AB02 AC07 AD01 AE03
AF01 FA04 FB01 FC01
4H006 AA01 AA02 AB92 AC24 AC30
AC44 AC46 BA92 BJ50

专利名称(译)	螺茛化合物，其制备方法，其合成中间体和使用该螺茛化合物的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2002326965A	公开(公告)日	2002-11-15
申请号	JP2001135248	申请日	2001-05-02
[标]申请(专利权)人(译)	索尼公司		
申请(专利权)人(译)	索尼公司		
[标]发明人	柴沼 徹朗 高田 一範 田村 眞一郎		
发明人	柴沼 徹朗 高田 一範 田村 眞一郎		
IPC分类号	H01L51/50 C07C13/32 C07C13/72 C07C25/18 C07C49/792 C07C57/50 C07D215/30 C07D249/02 C07D271/10 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	C07C13/72 C07C13/32 C07C25/18 C07C49/792 C07C57/50 C09K11/06.610 C09K11/06.615 C09K11/06.620 C09K11/06.625 C09K11/06.640 C09K11/06.690 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D C07D215/30 C07D249/02 C07D271/10 C07D271/107		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB04 3K007/AB11 3K007/CA01 3K007/CB01 3K007/DA01 3K007/DB03 3K007/EB00 4C056/AA01 4C056/AB02 4C056/AC07 4C056/AD01 4C056/AE03 4C056/AF01 4C056/FA04 4C056/FB01 4C056/FC01 4H006/AA01 4H006/AA02 4H006/AB92 4H006/AC24 4H006/AC30 4H006/AC44 4H006/AC46 4H006/BA92 4H006/BJ50 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC06 3K107/CC22 3K107/CC45 3K107/DD59 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78		
代理人(译)	逢坂浩司		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：为了提供适合于显示强发光的蓝色有机发光材料的化合物，高效地生产其的方法，其合成中间体以及使用螺茛化合物的有机电致发光器件。由以下通式(1)表示的螺茛化合物：[化学49]（然而，在通式(1)中，苯甲酰基可以彼此独立地被取代和/或稠合。）

